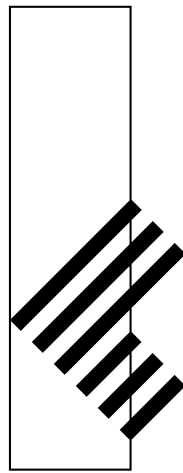


工学院大学
総合研究所年報
第22号 2014年度



平成27年7月発行

工学院大学総合研究所

RESEARCH INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY
KOGAKUIN UNIVERSITY

建学の精神とアクティブ・ラーニング

学長 佐藤 光史

工学院大学の建学の精神は、「社会・産業と最先端の学問をつなぐ工の精神」であり、前身の工手学校創立以来 128 年間にわたって、連綿と受け継がれている DNA です。14 万人に及ぶ卒業生を輩出し続けられたのは、この精神を大切にして教育・研究と社会貢献に寄与してきたからです。これからも科学技術が多くの問題を解決し、社会に必須なことは明らかで、本学がもつ役割の重要性は益々増大します。これからも建学の精神に則して、変化し続ける社会に開かれ、その期待に応える大学であることが、私たちに課せられた大きな使命であり、かつ取り組むべき大学改革の原点と考えています。

さて、急速に自立が求められている高等教育機関においては、研究活動のさらなる活性化や組織化が取り組むべき改革の一つです。本学における研究活動の量と質の充実ぶりは、いずれもこの報告書が明らかにしており、また社会における高い評価が実証しているとおりです。また、このような活発な研究活動の多くに、学生、特に大学院生が大きく関わり、研究を通じた実践的な教育の大きな成果であることも明らかです。これらの研究活動は、教員も含めて、まだ答えのない問題解決に取り組む学生・大学院生の思考を活性化する「アクティブ・ラーニング」そのものであり、大学の教育改革と軌を一にするものです。

30 年以上も前、大学院時代の指導教員は「大学院生は当然ながら、大学生には講義形式の座学は本来不要で、学生実験も理想から外れている」との持論を展開していました。学生は研究室を巡りながら多様な分野の研究活動に参加し、その中で必要な学力を身に付けつつ、多様な研究手法や思考方法を学び、自身に最適な分野を探索することが望ましいとの主張でした。ただし、「そんなことをすると大学の資源がパンクするからね」と、ニヤリとしながら難しい現実も見据えた持論でした。インターネットもなかった時代、思考を活性化する「アクティブ・ラーニング」の有効性を唱えた卓見だったと考えています。

今や、21 世紀型教育として PBL や PIL を中心とするアクティブ・ラーニングが花形です。扱うテーマは、社会・産業における顕在的問題解決を目指したり、将来に繋がる潜在的な需要を秘めるものまで多様です。社会・産業と最先端の学問をつなぐための現代的な連携のルール化も進み、安心して産学官や産学公連携を進められるようになったことは、イノベーションを目指す研究者にとってはむしろ有益です。本冊子のように研究成果を組織的にまとめることは、大学の可能性を発信できる大切な作業の一つです。学内外において、さらに活発な連携構築につながり、工の精神がさらに堅固になることを期待しています。

研究の活性化とこれからの研究

総合研究所 所長 鷹野 一朗

本年報は本学独自の学内競争的研究費であるプロジェクト研究と、2014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報告するものです。プロジェクト研究は新規応募課題13件のうち採択課題5件、継続課題9件で、学外研究者との連携や国際的な連携などが活発に行われました。また、今年で4年目となる科研費採択奨励研究費は確実に定着してきており、その成果として科研費申請件数も徐々に増加してきております。これらの資金による研究活動の活性化は研究者の意識向上だけでなく、学生に対しても研究を通じた教育面での成果につながります。近年、卒業生には社会人としての問題発見能力や問題解決能力を身に着けていることが求められており、これらの研究資金は本学の学生の教育においても十分に寄与しているものと言えます。

さて、2014年度は研究者にとって激動の時代であり、27年度版科学技術白書の前段には如実にその姿が現れています。その内容をご紹介すると、特集1として「ノーベル賞受賞の青色発光ダイオードの発明、LED照明の普及とこれからの展開」が述べられている一方で、特集2として「公正な研究活動の推進に向けた取組」が取り上げられています。研究者にとって日本人のノーベル賞受賞は大きな勇気を与えるものでありますが、特集2に関しては、研究者が改めて自らに問い直すべき重要な課題として受け止める必要があります。そこには、「研究活動における不正行為は、科学の本質に反し、科学や社会の発展を妨げ冒瀆するものであり、絶対に許すことのできないものである。」と述べられています。一つの事件をきっかけとして、そもそも研究とは何かが問われることになりました。また、既にご承知のように本学の行動規範には「無限の可能性が開花する学園」という本学の理念のもと、持続型社会をささえる科学技術をめざし、人類社会に貢献することが使命と考え、教育・研究活動を行う」とあります。私たち教員は、常に社会との関係を意識しながら、公正な研究を行い、自らの襟を正すとともに教育者として研究倫理の大切さを学生に伝える必要があります。

大学にとって教育及び研究は駆動輪です。本年報の研究成果に表れているように本学の研究環境は他大学と比べても整っており、より高度な研究を目指すことができます。一方で、研究に関わる学生への道徳的な教育を行えるような環境づくりも整えていきたいと思えます。総合研究所は、より良い研究環境を整えるとともに多くの優れた研究成果が生まれるよう支援をしております。

目 次

学 長 佐藤 光史
総合研究所所長 鷹野 一郎

1. 総合研究所プロジェクト研究報告（2014年度研究終了）

- ・ 遠隔操作する火山調査ロボットの通信に関する研究
責任者 羽田 靖史…………… 11
- ・ 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…………… 20
- ・ 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
—III族酸化物バッファ層の可能性探索と ICP エッチング特性評価—
責任者 山口 智広…………… 28
- ・ 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…………… 37

2. 総合研究所プロジェクト研究報告（2015年度継続研究）

- ・ 表面ナノ構造を基礎とした機能性薄膜の形成
責任者 阿相 英孝…………… 51
- ・ 大学間連携による広域共助システムの構築（2014年度末で中止）
責任者 久田 嘉章…………… 56
- ・ 分子プレカーサー法による次世代薄膜リチウムイオン電池の作製
責任者 佐藤 光史…………… 66
- ・ 八王子市犬目町地域の理科教育に果たした斎藤家の役割に関する基礎的研究
責任者 数馬 広二…………… 74
- ・ 天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形加工と機械的性質
責任者 西谷 要介…………… 81
- ・ キチン・哺乳類キチナーゼの医薬工領域への展開
責任者 小山 文隆…………… 92
- ・ シンセティックジェットを利用した推進器開発のための基礎的研究
—ジェットポンプとしての流体力評価—
責任者 佐藤光太郎…………… 104
- ・ タイ産業のグリーン化のための統合評価システムの開発
責任者 稲葉 敦…………… 109
- ・ タイマングローブ植林地域における環境改善に関する研究
責任者 酒井 裕司…………… 120

3. 総合研究所科学研究費採択奨励研究報告（2014年度）

- 気生微細藻類が産生する機能性脂質の特徴づけおよび効率的生産に関する研究
阿部 克也…………… 131
- 超音波浮遊液滴に生じる非線形ダイナミクスの制御
長谷川浩司…………… 132
- 深海から生放送を実現する可視光による映像の移動体海中伝送技術
前田 幹夫…………… 133
- パルス熱源に基づく非定常温度分布を考慮した磁性体の磁化制御と機能性の発現
武沢 英樹…………… 134
- 多剤耐性克服薬の開発を志向したセコスリキシドおよび立体異性体類の効率合成研究
南雲 紳史…………… 135
- 微小径長軸の転造による大径フランジ成形技術の開発
久保木 功…………… 136
- バリオジェネシスに動機づけられた統一理論の構築と探求
進藤 哲央…………… 137
- ハードディスクの大容量化の研究
赤城 文子…………… 138
- クラスタリングと周辺技術へのクリフォード代数の導入
橘 完太…………… 139
- 環境適応型ヘテロロジーニアスネットワーク
大塚 裕幸…………… 140

2015年度 総合研究所運営委員

総合研究所所長	鷹野 一郎 (電気システム工学科 教授)
所長代理	長嶋 祐二 (情報デザイン学科 教授)
大学院運営委員会委員長	今村 保忠 (生命化学科 教授)
先進工学部 (生命・応化・環境) 互選	中尾 真一 (環境化学科 教授)
先進工学部 (応物) 互選 工学部 (電気・情通) 互選	坂本 哲夫 (応用物理学科 教授)
先進工学部 (機理) 互選	雑賀 高 (機械理工学科 教授)
工学部 (機械・機シス) 互選	伊藤慎一郎 (機械工学科 教授)
建築学部 互選	小野里憲一 (建築学科 教授)
情報学部 互選	長嶋 祐二 (情報デザイン学科 教授)
基礎・教養教育部門 互選	数馬 広二 (基礎・教養教育部門 教授)
ECEC センター長	鷹野 一郎 (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)
BMSC センター長	今村 保忠 (生命化学科 教授)

2014 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 2014 年度
・ 2014 年度研究終了		
遠隔操作する火山調査ロボットの通信に関する研究	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—Ⅲ族酸化物バッファ層の可能性探索と ICP エッチング特性評価—	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
・ 2015 年度継続研究		
表面ナノ構造を基礎とした機能性薄膜の形成	阿相 英孝	応用化学科 准教授
大学間連携による広域共助システムの構築（2014 年度末で中止）	久田 嘉章	まちづくり学科 教授
分子プレカーサー法による次世代薄膜リチウムイオン電池の作製	佐藤 光史	基礎・教養教育部門 教授
八王子市犬目町地域の理科教育に果たした斎藤家の役割に関する基礎的研究	数馬 広二	基礎・教養教育部門 教授
天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形加工と機械的性質	西谷 要介	機械工学科 准教授
キチン・哺乳類キチナーゼの医薬工領域への展開	小山 文隆	応用化学科 教授
シンセティックジェットを利用した推進器開発のための基礎的研究—ジェットポンプとしての流体力評価—	佐藤光太郎	機械創造工学科 教授
タイ産業のグリーン化のための統合評価システムの開発	稲葉 敦	環境エネルギー化学科 教授
タイマングローブ植林地域における環境改善に関する研究	酒井 裕司	環境エネルギー化学科 准教授

(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 2014 年度
気生微細藻類が産生する機能性脂質の特徴づけおよび効率的生産に関する研究	阿部 克也	応用化学科 准教授
超音波浮遊液滴に生じる非線形ダイナミクスの制御	長谷川浩司	機械工学科 助教
深海から生放送を実現する可視光による映像の移動体海中伝送技術	前田 幹夫	電気システム工学科 教授
パルス熱源に基づく非定常温度分布を考慮した磁性体の磁化制御と機能性の発現	武沢 英樹	機械創造工学科 教授
多剤耐性克服薬の開発を志向したセコスリキンドおよび立体異性体類の効率合成研究	南雲 紳史	応用化学科 教授
微小径長軸の転造による大径フランジ成形技術の開発	久保木 功	機械工学科 教授
バリオジェネシスに動機づけられた統一理論の構築と探求	進藤 哲央	基礎・教養教育部門 准教授
ハードディスクの大容量化の研究	赤城 文子	情報通信工学科 教授
クラスタリングと周辺技術へのクリフォード代数の導入	橘 完太	情報デザイン学科 准教授
環境適応型ヘテロジーニアスネットワーク	大塚 裕幸	情報通信工学科 教授

1. 総合研究所プロジェクト研究報告
(2014年度研究終了)

遠隔操作する火山調査ロボットの通信に関する研究

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

Research on Communication with Tele-Operated Robot for Volcano Inspection

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. In this paper, we describe the trial simulation using ray-tracing method for volcano inspection robot. We also develop GPS based auto-aiming antenna system. Experimental results in Mt. Asama area show their effectiveness.

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。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。

本研究ではロボットの遭難を防止するために、未知環境におけるロボットと操作卓との通信に関する研究を行った。なお、研究開始当初は屋内環境を想定していたが、本プロジェクト研究では、途中からより一般的な屋外広範囲を対象として研究を進め、中でも火山調査ロボットに資する無線通信技術の

研究を行った。

2. ロボットによる火山調査

活動中の火山に対し、火口付近の立入禁止区域域内の調査は、土石流や融雪型火山泥流の予測に関する重要な情報となる。そこで、我々の研究グループでは、産官学をメンバーとする火山災害対応ロボティクス研究会を中心に、火山噴火時に立入禁止区域域内の調査を実施することが可能な無人調査ロボットシステムの実現を目指している。具体的には、飛行ロボットならびに地上移動ロボットの研究開発を行い、浅間山周辺において、このロボットシステムを用いた模擬無人調査を実施している。これにより、火山噴火が起こった際、火口付近の立入禁止区域域内に投入可能な無人調査ロボットシステムの実現を目指す。

3. 想定する無線通信

飛行ロボット及び地上移動ロボットは遠隔地に置いた操作卓(地上固定局)から、監視・操作のための通信を行なうと考える。通信は以下の3種類の通信が想定する(図1)。

- ① 地上固定局 \leftrightarrow 地上移動ロボット間
- ② 地上固定局 \leftrightarrow 飛行ロボット間
- ③ 飛行ロボット \leftrightarrow 地上移動ロボット間

まず①は地上固定局から直接地上移動ロボットを操作するための通信である。この通信可能範囲を知ることにより、移動

ロボットが不作為に通信範囲を逸脱し操作不可能になる状態(ロボットの遭難)を回避することが出来る。次に②は地上固定局と飛行ロボットとの直接通信である。地上移動ロボット同様に、飛行ロボットを操作する場合の遭難を防ぐことができる。また、この通信は次に述べる中継通信を実現するためにも必要である。最後の③の通信は、地上移動ロボットが遭難した場合、または①の直接通信可能範囲外を調査したい場合において、地上固定局から飛行ロボットを中継することによって地上移動ロボットを操作・監視するための通信である。

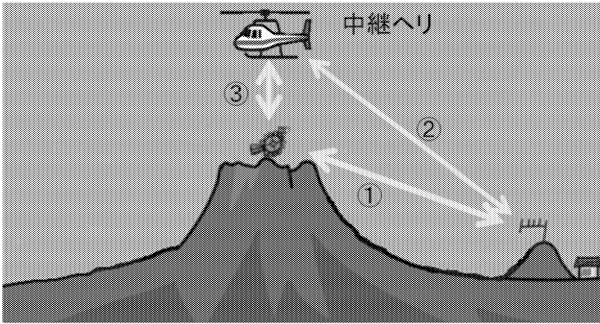


Fig.1 想定する3種類の無線通信

4. 電波マップを用いたロボットの行動計画支援

4. 1 目的と概要

本研究では飛行ロボット及び地上移動ロボットは安全圏に設置した地上固定局から無線電波にて監視及び操作される。用いる無線電波は地形や使用する電波の周波数、電力等の条件により伝搬経路が異なるため、これをシミュレーションにより明らかとすることによって、ロボットの行動可能範囲を明らかとする。

4. 2 電波伝搬シミュレーション手法

シミュレーションの計算方法にはいくつかの方法があり、利点・欠点がある。本研究では、浅間山火口から数km離れた位置から電波を発信した際の広範囲な電波伝搬を調べるため、時間領域差分法(FDTD法)[6]や、FEM解析は向かず、レイトレース法を用いた[7]。レイトレース法は、幾何光学理論に基づき送信点から受信点へ到達する電波を追跡することにより、伝搬損失、遅延時間、到来方向を推定できる手法で、電波伝搬解析で広く使われている。シミュレーション時間が短く一般に広い範囲の計算に使用される。

電界が位相情報なしで加算されている場合、時間で平均化された受信電力は以下で与えられる。

$$P_R = \sum_{i=1}^{N_p} P_i$$

N_p はパスの数であり、 P_i は i thパスの電力を時間で平均化し、以下によって与えられる。

$$P_i = \lambda^2 / S \pi \eta \left| E g(\theta\phi) + E g(\theta\phi) \right|^2$$

λ は波長、 η_0 は自由空間(377Ω)のインピーダンス、 $E_{\theta,i}$

と $E_{\phi,i}$ は i thパスの受信点での電界の θ と ϕ の成分であるとき、

θ_i と ϕ_i の到来方向は

$$g_{\theta}(\theta, \phi) = \left| G_{\theta}(\theta, \phi) \right|^{\frac{1}{2}} e^{j\phi\theta}$$

で与えられる。 G_{θ} は受信アンテナ利得の θ 成分であり、 ϕ_{θ} は遠い区域の電界と g_{ϕ} のための類似の定義の2成分の相

対位相、量 β は本質的量の尺度である。これにより、送信された波形 $S_T(f)$ の周波数スペクトルは受信機 $S_R(f)$ の周波数感度のスペクトルと重複する。

$$\beta = \frac{\int_{f_{\min}}^{f_{\max}} S_T(f) S_R(f) df}{\int_{f_{\min}}^{f_{\max}} S_T(f) df}$$

ここで f_{\min} と f_{\max} は最小周波数と最大周波数であり $S_T(f) > 0$ の範囲である。レシーバ波形 $S_R(f)$ は最大値が1となるように常に正規化を行う。正弦波形の場合はフラットな分布が想定

される。また、 $f_0 - \frac{\beta}{2} < f < f_0 + \frac{\beta}{2}$ および f_0 は搬送波周波数であり、 β は有効帯域でありそうでない場合は0となる。すべてのフィールドが(位相と)コヒーレントに結合されている場合総受信電力は以下で求まる。

$$P_R = \frac{\lambda^2 \beta}{8 \pi \eta_0} \left| \sum_{i=1}^{N_p} [E_{\theta,i} g_{\theta}(\theta_i, \phi_i) + E_{\theta,i} g_{\phi}(\theta_i, \phi_i)] \right|^2$$

経路を結合するための相関オプションを使用する場合時間による相関パスの各グループを電力で平均化し、以下を使用して求まる。

$$Q_j = \frac{\lambda^2 \beta}{8 \pi \eta_0} \left| \sum_{i=1}^{M_j} [E_{\theta,i} g_{\theta}(\theta_i, \phi_i) + E_{\theta,i} g_{\phi}(\theta_i, \phi_i)] \right|^2$$

Q_j は j thグループの経路に起因する電力であり、 M_j はグループ内の経路の数である。総電力は各グループのパワーを合計することによって見出せる。

$$P_R = \sum_{i=1}^{N_c} Q_i$$

N_c は相関するグループの数である。受信電力が検出されるとdBmの値を以下の式で決定される。

$$P_R(\text{dBm}) = 10 \log_{10} [P_R(\text{W})] + 30\text{dB} - L_S(\text{dB})$$

4. 3 シミュレーションコンピュータの環境

シミュレーションコンピュータの環境は表1の通りである。

Table 1 シミュレーションコンピュータの諸元

CPU	Core i7 4770S (3.1GHz)
Memory	16GB (PC3-12800)
OS	Windows7 Enterprise 64bit
シミュレーションソフトウェア	Wireless Insite (remcom)

4. 4 シミュレーション環境モデル

浅間山は長野県北佐久郡軽井沢町及び御代田町と、群馬県吾妻郡嬭恋村との境にあり、安山岩質の標高 2,568m の、世界でも有数の活火山として知られている。浅間山は近年噴火の兆候が見られているため、過去の噴火事例から監視の必要性が高い。今回は地形モデルとして、浅間山、小浅間山、六里が丘休憩所を含む図 2 で表す範囲について、2m メッシュの地形データ(図3)を入手し計算機のスペックに合わせて 14m メッシュに変換して利用した。これにより昨年までの 50m メッシュを用いたシミュレーション結果よりも、特に山頂周辺での精度が向上している。

地上固定局は浅間山六里が丘休憩所に設置し、パラボラアンテナ(利得 27.5dBi, 半値角約 7deg)を打ち上げ角 7.95deg で小浅間山頂に向けた。

飛行ロボットは半波長ダイポールアンテナ(2.14dBi)を持ち、対地高度一定で飛行するものとし、10m, 30m, 50m, 100m の4種類を試みた。地上移動ロボットは地表高 0.4m に同じく半波長ダイポールアンテナを設置した。固定局及び各ロボットからの送信電波は 2.4GHz, 200mW (23dBm)である。

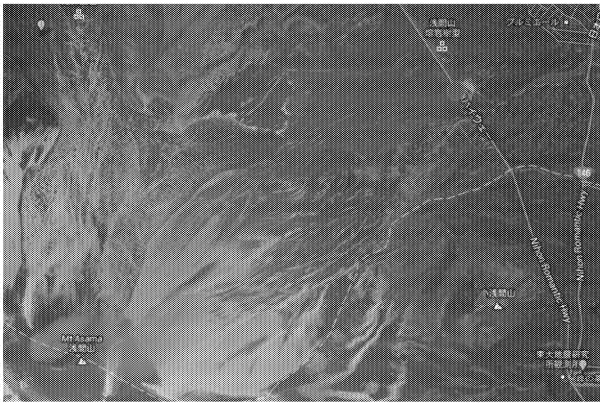


Fig.2 シミュレーション範囲(赤丸が固定局, 三角が小浅間山山頂)

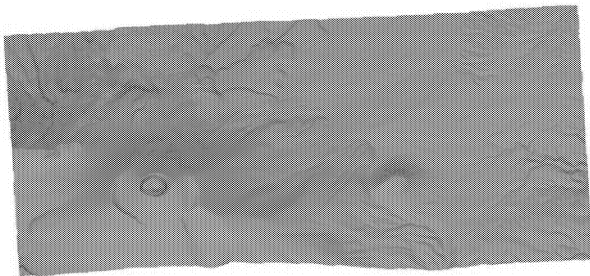


Fig.3 シミュレーションに用いた三次元地形図

4. 5 シミュレーション結果

4. 5. 1 固定局↔地上移動ロボット間の電波伝搬シミュレーション結果

固定局と地上移動ロボット間の通信可能範囲をシミュレーションした。固定局から送信した電波が地上移動ロボットにおいて-100dB 以上で受信可能な範囲を図 4 に示す。山の

複雑な地形のため、直接固定局から通信可能な範囲は大きく制限されていることがわかる。直接操作で地上移動ロボットを動かす場合はこの範囲を逸脱してはならない。

4. 5. 2 固定局↔飛行ロボット間の電波伝搬シミュレーション結果

固定局から送信した電波が空中ロボットにおいて-100dB 以上で受信可能な範囲を図 5~8 に示す。空中ロボットの地表高はそれぞれ図 5-8 がそれぞれ 10m, 30m, 50m, 100m である。地上移動ロボット同様、直接固定局から通信可能な範囲は制限されているが、空中ロボットの高度を上げることによって通信範囲が大きくなり、50m または 100m まで高度を上げればほぼ制限がなくなることがわかる。ただし固定局からみて小浅間山の裏側に関してはこの限りではなく、飛行ロボットの高度にかかわらず通信することはできない。

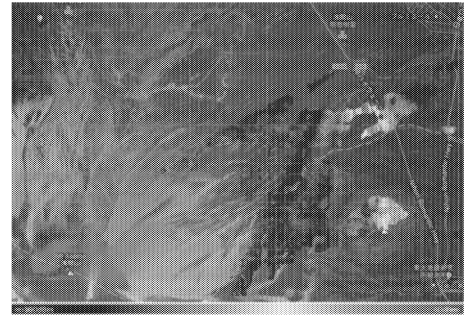


Fig.4 固定局から小浅間山山頂の探査ロボットに向けて電波を発信した際のシミュレーション結果(地表 0.4m)

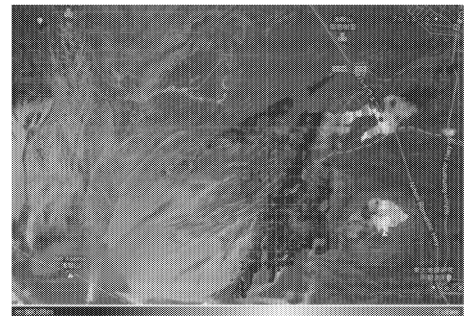


Fig.5 固定局から小浅間山頂の飛行ロボットに向けて発信した際の電波伝搬シミュレーション結果(地表 10m)

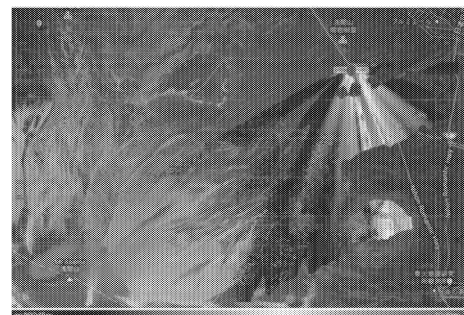


Fig.6 固定局から小浅間山頂の飛行ロボットに向けて発信した際の電波伝搬シミュレーション結果(地表 30m)



Fig.7 固定局から小浅間山頂の飛行ロボットに向けて発信した際の電波伝搬シミュレーション結果(地表 50m)



Fig.9 飛行ロボットから発信した際の電波伝搬シミュレーション結果(地表 0.4m)

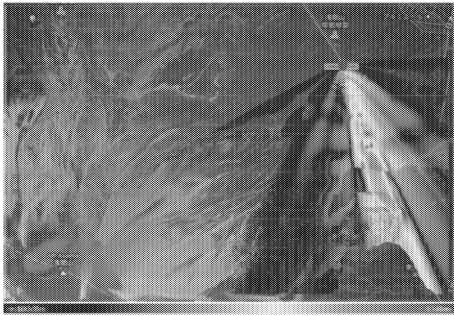


Fig.8 固定局から小浅間山頂の飛行ロボットに向けて発信した際の電波伝搬シミュレーション結果(地表 100m)



Fig.10 飛行ロボットから発信した際の電波伝搬シミュレーション結果(地表 10m)

4. 5. 3 飛行ロボット⇄地上移動ロボット間の電波伝搬シミュレーション結果

飛行ロボットを小浅間山山頂にホバリングさせた際の、飛行ロボットから地上移動ロボットへの通信可能範囲を図 9～13 に示す。前節と同様に、飛行ロボットの地標高は図 10-13 がそれぞれ 10m, 30m, 50m, 100m であり、また比較のために飛行ロボットが離陸していない際の結果も図 9 に表した。

結果をみると、飛行ロボットが飛び立っていない場合は通信可能範囲がせまいが、離陸すると通信可能エリアは大きく広がる。しかし、高度 10,30,50m の段階では特に山頂に近いエリアに関しては通信不可能となっており、殆どの範囲が通信可能とするためには地表高 100m までを高度を上げなければならないことがわかった。これは特に山頂の地形によって見通し範囲が狭くなることが原因であり、例えば地上移動ロボットが山頂から下りていく場合に通信を維持するためには、飛行ロボットは 100m の対地高度を保つ必要がある。また、図 4 に示した固定局からの直接通信では地上ロボットと通信不可能であった範囲について、本節の中継通信であれば、地固定局から飛行ロボットまでの通信範囲(図8)と飛行ロボットから地上ロボットまでの通信範囲(図 13)を用いて中継通信が可能となることから、シミュレーションから中継通信の有効性を示す事が出来た。



Fig.11 飛行ロボットから発信した際の電波伝搬シミュレーション結果(地表 30m)

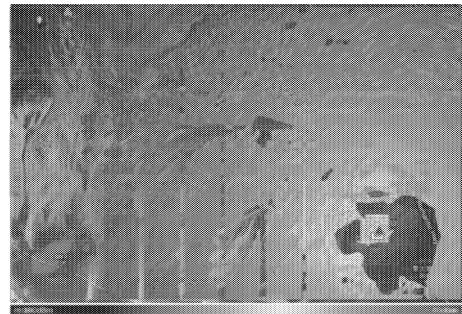


Fig.12 飛行ロボットから発信した際の電波伝搬シミュレーション結果(地表 50m)

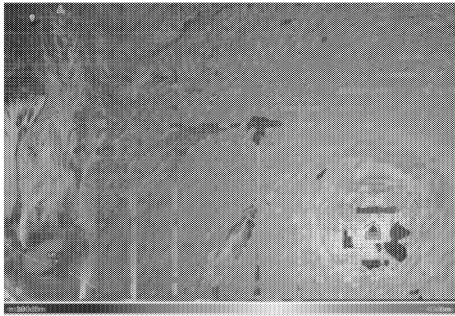


Fig.13 飛行ロボットから発信した際の電波伝搬シミュレーション結果(地表 100m)

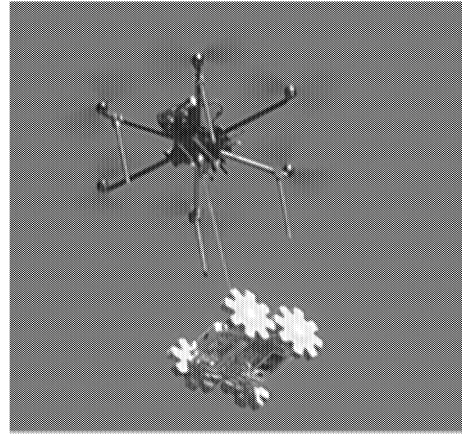


Fig.16 飛行ロボットが地上移動ロボットを運搬し降下させている様子

4. 6 ダイクストラ法による飛行ロボットの行動計画
シミュレーション結果を用いてロボットの行動計画を行った。例として図 6 に示す対地高度 30mの通信可能範囲(ここでは受信電力-100dBm 以上と仮定している)において、固定局から小浅間山山頂まで飛行する最短経路をダイクストラ法を用いて求めた結果を図20に示す。このように経路を事前に計画することにより通信切断を未然に防ぐ事が出来る。

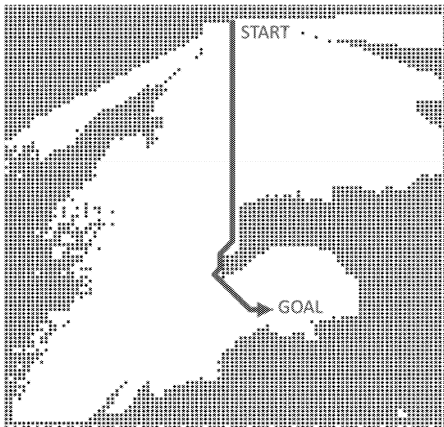


Fig.14 通信可能エリアを逸脱しない飛行ロボットの経路計画



Fig.16 地上移動ロボット. 遠くに見えるのは固定局のある六里が丘休憩所

4. 7 実証実験と評価

2012年から2014年の都合6回に分けて火山災害対応ロボティクス研究会による共同実験が行なわれ、本プロジェクト研究ではシミュレーション結果の検証実験を行った。地上固定局の写真を図 15 に、飛行ロボット、地上移動ロボットの写真を図 16,17 に表す。



Fig.15 固定局のパラボラアンテナ. 左遠方は小浅間山, 右側の斜面は浅間山のもの。

本稿では紙面の都合上、2014年に行った実験結果の一部を示す。固定局の送信アンテナとしてここでは八木アンテナ(利得 19.0dBi)を使用した。固定局の設置箇所は前節の六里が丘休憩所ではなく、小浅間山の麓(北緯 36.4078deg, 東経 138.5579deg)である。送信機は Contec 社製の FXA2020 を用いて 2.4GHz 帯の電波を 200mW (23dBm) で出力し、これを飛行ロボットにとりつけた受信機で 1 秒ごとに測定・記録した。今回、この飛行ロボットは GPS により完全自動制御を行ったので通信ができなくとも飛行には支障がない。計測したルートは小浅間山山頂付近で四角を描くルートで、3 フライト行った。実測値を図18 に、シミュレーション結果を図19 に示す。大まかな傾向が似ているが、シミュレーションでは計測が行えなかった場所でも実測が行える場所があり、最大で 50dBm の大きな差があった。この差は地形データの形状および材質に起因すると考えている。すなわち、実際の環境では植生のある場所であっても、シミュレーションではある一定の湿度(伝導率 20%)を持った大地と仮定しているため実際には葉などで吸収または乱反射を考慮していなかったためだと考える。この問題に関しては今後シミュレーション条件を変更し改善する予定である。

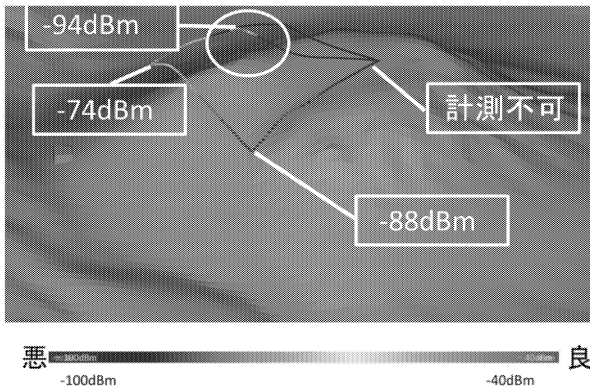


Fig.17 飛行ロボットで実測した電界強度値

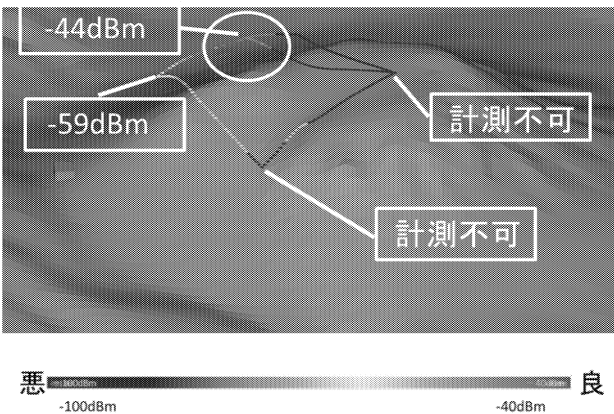


Fig.18 同条件でのシミュレーション結果値

5. ロボットを自動追尾するアンテナシステムの開発

5.1 目的と概要

先述のように、地上局から遠方のロボットと通信するためにはパラボラや八木などの指向性アンテナを用いる必要があるが、ロボットが位置を変えるとともにその向きを変更する必要がある。これまでの研究では手動でアンテナの向きを変えていたが、これを自動追尾するシステムを開発した。アンテナが自動的にロボットを追尾することで仮想的に等方位に利得の高い通信を行う事が出来るようになる。このシステムは、GPS を用いて飛行ロボットとアンテナ側の位置を測定し、お互いの位置関係から目的方向を決定する。この目標 pan 角および tilt 角をアンテナ基部のモータを制御することによりアンテナの指向方位を制御する。このシステムの構成図を図 21 に、ソフトウェア構成を図 22 に示す。

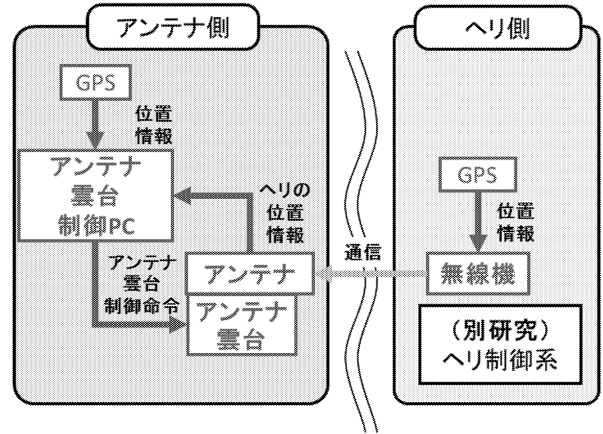


Fig.21 自動追尾アンテナシステムの構成

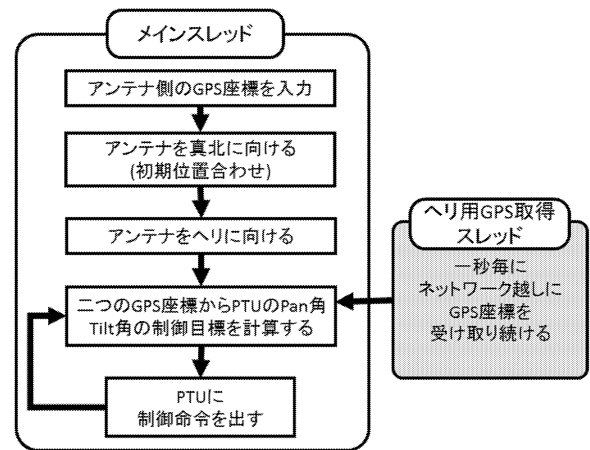


Fig.22 自動追尾アンテナシステムのソフトウェア構成

5.2 実装

5.2.1 アンテナ用追尾サブシステム

アンテナ部はクリエート・デザイン (株) CRB90-24 (利得 25dBi, 表 2) を用いた。またモータドライバはツジ電子 (株) TF-2MD3-R6 を使い、オリエンタルモータ社 ブラシレスモータ TF-M30-24-3500-G15 を 2 基を PID 制御している。構築した機構部の諸元を表 3 に示す。

Table 2 アンテナ部の諸元

アンテナ構成	グリッド・パラボラ型
周波数	2400~2500 MHz
偏波	垂直偏波
反射器径	公称 900 mm
利得	25 dBi
F/B 比	30 dB
放射パターン	水平面半値幅(H): 約 9° 垂直面半値幅(E): 約 9°
インピーダンス	50 Ω
耐電力	50 W
質量	約 7.1 kg

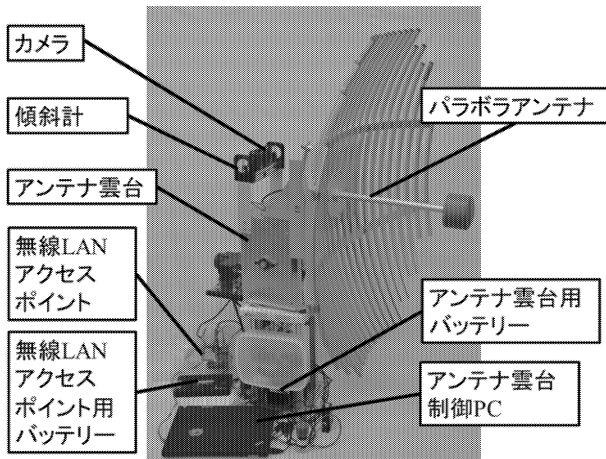


Fig.23 自動追尾アンテナシステムの外観

Table 3 追尾機構部の諸元

チルト軸のギヤ比	1500:1
パン軸のギヤ比	15:1
チルトレンジ	±90°
パンレンジ	±720°
重量	16.8kg
寸法	H620mm W235mm D371mm

5. 2. 3 ロボット側計測・蓄積・通信サブシステム
GPS で取得した飛行ロボットの緯度経度座標と、周辺の無線 LAN の電界強度を 1 秒おきに計測・蓄積・送信するサブシステムを構築した。装置の全体像を図 13 に示す。

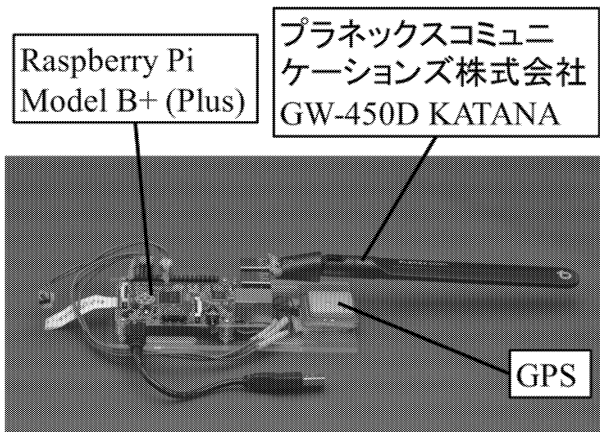


Fig.24 ロボットに搭載した計測・蓄積・通信サブシステム

5. 2. 2 制御角の算出法

地球を球体と近似した球面三角法[8]からアンテナの制御 Pan 角 θ , Tilt 角 ϕ を求める。アンテナ側の GPS 座標を取得した地点を点 P(B_1, L_1, h_1) (緯度, 経度, 標高) とし, 真北方向, 真東方向, 上方向をそれぞれ x, y, z とする。また, 飛行ロボットの GPS 座標を取得した地点を点 O(B_2, L_2, h_2) とする。点 Q の垂線と直交するように引いた点 P を通る直線を r とし, それらの交点を点 O とする。

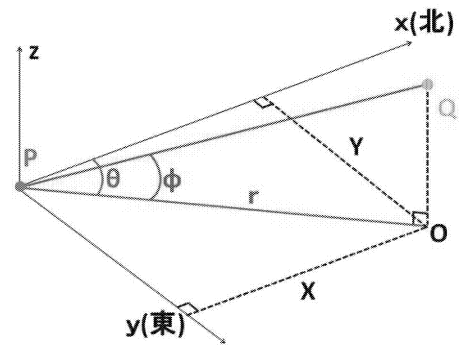


Fig.25 球面三角法

図 25 のように点 P を通る x 軸と平行な直線と点 O との最短距離を Y とすると $Y = \cos(B_2) \sin(L_2 - L_1)$ となる。同様に, y 軸との最短距離 X は

$$X = \cos(B_1) \sin(B_2) - \sin(B_1) \cos(B_2) \cos(L_2 - L_1)$$

となる。赤道半径は $l = 6378.137 \times 10^3 \text{ m}$ であるので, r の距離は,

$$r = l \cos^{-1}(\sin B_1 \sin B_2 + \cos B_1 \cos B_2 \cos(L_2 - L_1))$$

となり, $\theta = \tan^{-1} \frac{Y}{X}$, $\phi = \tan^{-1} \frac{h_2 - h_1}{r}$ と表すことが出来る。ただし, θ は真北が 0° で東回りを正である。 ϕ は水平の状態を 0° とし, 仰角方向に正である。

5. 3 実証実験と評価

2014 年 10 月 25 日に, 実験環境及び実験の様子を図 20 に示す。飛行ロボットが飛行した位置は, 浅間山の標高 1,700 m 付近で, その際の電界強度は, -89 dBm から -86 dBm 程度で通信が安定して確立しなかった[9]とある, よって -85dBm 以上を通信が安定して確立できるとして計測尾を個なった。



Fig.26 自動追尾アンテナシステムの実証実験の様子

実験の結果を図 27 に示す。アンテナの追尾制御により, 固定時に比べて平均 19 dB, 最大 33dB の利得上昇を達成し, 実際に常時通信が出来ることが確認できた。

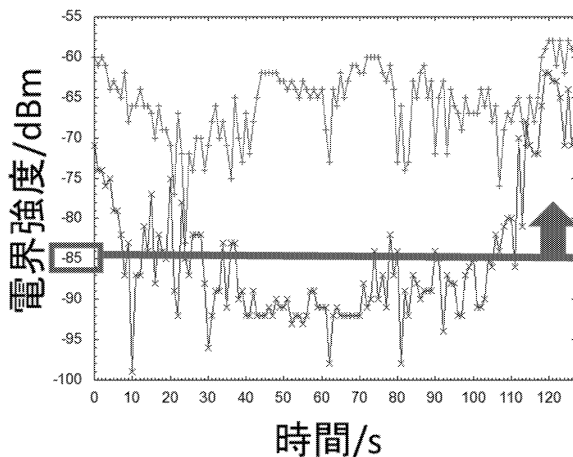


Fig.27 ロボットから見た固定局の電波強度について、アンテナ追尾を行ったもの(上)と固定設置のもの(下)の比較

6. まとめ

本研究では飛行ロボットと地上移動ロボットが火山調査を行なうために、まず無線通信可能範囲を電波伝搬シミュレーションにより求め、ロボットの行動に資する情報提供を行なうことを目的とした。固定局とロボットを含めた三者間の通信を電波伝搬レベルでシミュレーションすることによりロボットの行動範囲の可視化を行ない、飛行ロボットを中継した行動可能範囲の拡大について議論を進め、シミュレーション結果によりその有効性を明らかとした。またダイクストラ法を用いて無線通信範囲を逸脱しない経路計画を行った。実際に浅間山で実証実験を行った結果、屋外でのシミュレーションはモデルの情報不足のためまだ精度が低く今後検討項目が必要であることが明らかとなった。また GPS 座標ベースでロボットを追尾するアンテナシステムを構築し実験でその有効性を確認した。

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 SSRR, 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.robonable.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.robonable.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) 穂刈四三二, "平面球面三角法", 基礎数学講座 3 巻, 共立出版株式会社, pp157-198, 1963..
- (9) 永谷他, "小型クローラ移動ロボットの遠隔操作による火山活動区域の観察 高出力の無線通信を用いた浅間山でのフィールド実験", 第 12 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論文集, pp.54-57. 2011.

① 発表論文

なし

② 学会発表

Keiji Nagatani, Ken Akiyama, Genki Yamauchi, Kazuya Yoshida, Yasushi Hada, Shinichi Yuta, Tomoyuki Izu, Mackay Randy, Development and Field Test of Teleoperated Mobile Robots for Active Volcano Observation, 2014 IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems, Chicago, Illinois Sept. 14-18, 2014

Keiji Nagatani, Ken Akiyama, Genki Yamauchi, Hikaru Otsuka, Takuma Nakamura, Seiga Kiribayashi, Kazuya Yoshida, Yasushi Hada, Shin'ichi Yuta, Kenichi Fujino, Tomoyuki Izu, Randy Mackay, Volcanic Ash Observation in Active Volcano Areas using Teleoperated Mobile Robots -- Introduction to Our Robotic-Volcano-Observation Project and Field Experiments, Proceedings of the 11th IEEE International Symposium on Safety Security and Rescue Robotics (SSRR2013), Oct. 2013.

永谷圭司, 西村健志, 吉田智章, 小柳栄次, 羽田靖史, 油田信一, 多田隈建二郎. 小型移動ロボットの遠隔操作による火山活動区域の観察 --浅間山における 2012 年フィールド試験--, 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, 2012 年 12 月.

山内元貴, 秋山健, 高橋悠輔, 永谷圭司, 吉田和哉, 羽田靖史, 車輪型軽量火山探査ロボットの開発と遠隔操作試験, 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, 2012 年 12 月.

松田崇志, 羽田靖史, 行田弘一, 無線遠隔操作型移動ロボットの遭難を防ぐための時間領域差分法を用いた電界強度推定, 第 31 回 日本ロボット学会 学術講演会(RSJ2013), 2013 年 9 月.

松田崇志, 渡邊浩也, 羽田靖史, 無線遠隔操作型移動ロボットの遭難を防ぐための電界強度シミュレーション, 日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会 2013(ROBOMECH2013), 2013 年 5 月.

渡邊浩也, 松田崇志, 羽田靖史, 移動ロボットによる動的な電波状況推定のための環境形状データの自動生成, 日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会 2013(ROBOMECH2013), 2013 年 5 月.

北澤弘之, 松田崇志, 山内元貴, 秋山健, 羽田靖史, 永谷圭司, 油田信一, 活火山探査ロボットのための長距離遠隔通信実験, 第 14 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(SI2013), 2013 年 12 月.

永谷圭司, 油田信一, 吉田智章, 伊豆智幸, Randy Mackay, 多田隈建二郎, 山崎公俊, 羽田靖史, 森山裕二, 島田徹, 藤原伸也, 飯野勝博, 飛行ロボットと小型移動ロボットの複合システムによる火山活動区域の無人調査, 第 14 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(SI2013), 2013 年 12 月.
 松田崇志, 羽田靖史, 行田弘一, 遠隔操作ロボットのための電波伝搬推定における障害物の影響, 日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会 2014(ROBOMECH2014), 2014 年 5 月.

長田大輝, 江川典良, 松田崇志, 羽田靖史, ロボットを自動追尾するアンテナシステムの開発, 電子情報通信学会東京支部学生会研究発表会, 2015 年 2 月.

江川典良, 松田崇志, 羽田靖史, 行田弘一, 無線長距離遠隔操作型移動ロボットにおける電界強度マップの生成, 第 15 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(SI2014), 2014 年 12 月.

松田崇志, 羽田靖史, 金聖熙, 石井貴裕, 行田弘一, 移動ロボットが作成した部分的な地図を用いた電波伝搬シミュレーションに関する考察と評価, 第 15 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(SI2014), 2014 年 12 月.

金聖熙, 松田崇志, 石井貴裕, 羽田靖史, 動的な電波状況推定のための二次元環境形状データの生成, 第 15 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(SI2014), 2014 年 12 月.

石井貴裕, 松田崇志, 金聖熙, 羽田靖史, 電波伝搬シミュレーション用三次元地図の動的生成, 第 15 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(SI2014), 2014 年 12 月.

③ 特許出願

なし

④ 講演

羽田靖史, 工学院大学機械系同窓会「秋の集い」, 2013 年 10 月.
 羽田靖史, 災害対応ロボットの社会実装プロジェクトにおける無線通信政策への提言の検討状況, 電子情報通信学会 2015 年総合大会, 2015 年 3 月.

⑤ 解説等

羽田靖史, 東日本大震災とレスキューロボットの現状と今後, 工学院大学機械系同窓会会誌「KUMEA36 号」, 2014 年 3 月.
 羽田靖史, 災害対応ロボットの無線通信に関する話題, 工学院大学機械系同窓会会誌「KUMEA37 号」, 2015 年 3 月.

⑥ 著書

羽田 靖史ら 38 名, IoT/CPS/M2M 応用技術とデバイス・材料技術, 237-245, 2014 年 4 月.

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 UniversityNaoya Yoshida, Department of Environmental and Energy Chemistry,
Faculty of Engineering, Kogakuin UniversityToshiya 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, cesium, and strontium for safekeeping. In this study, adsorption of these ions on magnesium compounds was evaluated, and fixation into glass was tried. The resultant adsorbed magnesium compounds could be vitrified into phosphate glasses. Stability of these obtained glasses against immersion into water, *dil.* HCl *aq.*, and *dil.* NaOH *aq.* was also evaluated, and it was found that the stability was drastically improved by addition of Nb₂O₅.

1. はじめに

2011年3月の東日本大震災により発生した原発事故により、これまで核燃料サイクルの中では比較的半減期が短い重要視されてこなかったヨウ素、セシウム、ストロンチウムなどの核種の放射性同位体が大気、海、土壤に飛散した。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。この問題のうち保管（固化処理）に関しては、当研究グループでこれまで行われてきた放射性廃棄物のガラス固化技術を応用して核種の安定的な長期保管が可能であると考えられる。そのガラス固化技術につながる形で効率的な回収方法を確立することが必要とされている。

本研究では、ヨウ素、セシウム、ストロンチウムの3種の放射性物質をターゲットとし、ヨウ素吸着性能

を有することが知られている酸化マグネシウムに注目した¹⁾。さらに、マグネシウムはリン酸塩ガラスに添加元素として一定の割合で加えると「リン酸異常現象」と呼ばれる密度低下を伴う構造の変化が起き、構造内に様々な元素を取り込めることを、本研究グループでは明らかにしている²⁻⁵⁾。この現象を利用し、ヨウ素やセシウム、ストロンチウムをマグネシウム化合物で吸着、回収しリン酸塩ガラスを用いた長期安定的なガラス固化体の作製ができるのではないかと考えた。よって、本研究では、ヨウ素、セシウム、ストロンチウムのマグネシウム化合物による効率的な回収について安定同位体を用い検討し、その後安定な固化ガラスとして最終処理を行う一連のプロセスの開発を目的とした。

最終年度である今年度は、前年度までに作製法を確立したセシウムないしストロンチウム固化ガラスの化学的耐久性に焦点をあてた研究を行った。特に、耐水性の向上（水に対する溶解の抑制）について、水への浸出が起きやすく、定量しやすいMoO₃を添加・固化したガラスを用いて検討を行った。

2. 実験

2.1 ヨウ素をターゲットとしたマグネシウム化合物による回収及びガラス固化処理⁶⁾

本研究では、マグネシウム化合物によるヨウ素の吸着性能評価として、JIS 活性炭試験法の吸着性能(液相)を利用し、マグネシウム化合物のヨウ素吸着性能評価を行った。ヨウ化カリウム水溶液にヨウ素を溶かして 0.05 mol/L ヨウ素溶液とし、そこへ一定量のマグネシウム化合物を投入・攪拌し、吸着させた。予備実験から求めた吸着平衡時間に達した後、溶液を遠沈管に移し、遠心分離により液相と沈殿物(ヨウ素 - マグネシウム化合物)に分離した。分離した液相を 0.10 mol/L チオ硫酸ナトリウム溶液を用い滴定した。滴定量からヨウ素残留濃度、試料単位質量当たりのヨウ素吸着量を求め、吸着等温線を作成した。また、遠心分離後のヨウ素 - マグネシウム化合物の X 線回折(XRD)測定を行い、結晶相の同定を行った。

ガラス固化に用いる母ガラスの作製、およびガラス固化処理を行った。リン酸、酸化マグネシウムを出発原料とし、 $MgO:P_2O_5=40:60$ (モル比) となるようにビーカー内で各出発原料を混合、縮合させ、マントルヒーターを用いて加熱しながら混合・脱水を行った。十分に混合・脱水させた後アルミナるつぼに移し、電気炉(マッフル炉)中で 1 時間仮焼、1250°C で 1 時間熔融させ、ステンレス板を用いて急冷し、母ガラスを作製した。母ガラスに含有率 5~20mass%の間でヨウ素-マグネシウム化合物を加え、乳鉢で混合、1250°C、45 分の条件で熔融させ、ステンレス板を用いてプレス急冷し、固化ガラス(以下、ヨウ素固化ガラスと表記)を作製した。また、吸光度測定を行ったサンプルに関しては、プレス急冷法により板ガラスの作製を行った。ヨウ素固化ガラスについて、XRD 測定、エネルギー分散型 X 線分析 (EDX)、および拡散反射スペクトル測定を行った。

2.2 セシウム、ストロンチウムをターゲットとしたマグネシウム化合物による回収およびガラス固化処理

セシウム、ストロンチウムの回収および最終処理として、酸化マグネシウムを用いた液相におけるセシウム、ストロンチウムの回収実験、ガラス固化処理を行った。セシウム、ストロンチウムの 10 mM 溶液 100 ml を作製し、リン酸により pH 2.0 に調整後、酸化マグネシウム(比表面積: 20.5 m²/g)を 1.0 g 投入、シェイカーにより常温で攪拌した。任意の経時ごとに 1 ml 採取し、ろ過、10 倍希釈の後イオン交換クロマトグラフィ

ー(IC)測定により各残留濃度を測定した。また、アルカリ条件下での検討、pH 調整の有無、吸着をカルシウム化合物に変えた場合についても検討を行った。

セシウム、ストロンチウムのガラス固化範囲および耐水性を確認するため、 $MgO-Cs_2O-P_2O_5$ 系および $MgO-SrO-P_2O_5$ 系ガラスを $MgO+Cs_2O$ or $SrO : P_2O_5$ のモル組成比 40:60~60:40 で作製した。ガラス作製には熔融急冷法を用い、原料を混合、300°C で仮焼の後、1250°C で 1 時間の条件で熔融、グラファイトボードに流し出しガラス試料を得た。次いで XRD および EDX 分析を行った。

2.3 ストロンチウム及びセシウム固化ガラスの化学的耐久性評価

ガラス試料の化学的耐久性を調査するために、耐酸性および耐塩基性試験、またその比較のため耐水性試験を行った。化学的耐久性評価は MCC 法に基づき行った。MCC 試験法は DOE (米国エネルギー省) の指導の下に設立された MCC (Materials Characterization Center) によって提案された一連の試験法であり、ガラス溶解/浸出速度の測定手法として広く用いられている方法である。MCC-1 試験法はガラスからの規格化浸出量 (Normalized elemental mass loss: ML_1) を評価するのに用いられる。

作製したガラス試料 ($MgO : SrO : P_2O_5$ 、 $MgO : Cs_2O : P_2O_5$ 比が (20:20:60) と (25:25:50) のもので、それぞれ msp20、msp25、mcp20、mcp25 と略記する。)をアルミナ乳鉢で粉碎し、ふるいを用いて 10~20 メッシュパスになるように粒径を揃えた。1.0 g の試料と浸漬液 50 mL を PFA 容器に入れ、90°C で 1、3、7、12 日間保持した (MCC 法 - 静的浸出試験)。その後、5A のろ紙を用いてろ過し、得られたろ液に対してイオンクロマトグラフィ (IC) によって溶出イオンの調査を行った。浸漬液にイオン交換水を用いたものは、得られたろ液をイオン交換水にて 100 倍希釈を行ったものを試料として使用した。浸漬液に水酸化ナトリウム水溶液を用いたものは、0.1 mol/L に調整した酢酸を用いて pH を酸性にし、イオン交換水を用いて 100 倍希釈をしたものを試料とした。また、標準液として硝酸マグネシウム六水和物、硝酸ストロンチウムおよび硝酸セシウム水溶液が、10 mmol/L となるように採取し、50 mL メスフラスコを用いてメスアップし水溶液を作製した。IC 測定条件として、島津高速液体クロマトグラフシステム (Prominence) を用いて、カラムは Hitachi Chemical Gelpack (IC-65)、溶離液として 5 mmol/L の希硫酸を用いた。試料の表面積および規格化浸出率は以下の式 (1-1)、(1-2) を用いて算出した。

$$SA = \frac{W_0 \times 3}{0.0613 \times d} \quad (1-1)$$

SA: 試料の表面積
 W₀: 試料の初期量 (g)
 d: 密度 (g・cm⁻³)

0.0613 : 10~20 メッシュのオープン平均半径 (cm)

浸漬液はイオン交換水、塩酸および水酸化ナトリウム (各 0.1 mol・L⁻¹) を使用した。浸出試験後の浸出液 (ろ液) については、IC により各元素の濃度を測定し、以下に示す式によって規格化浸出率 (g・cm⁻²) を求めた。

$$NL_i = (C_i / f_i) / (SA / V) \dots \dots \dots (1-2)$$

NL_i: 規格化浸出率 (g・cm⁻²)
 C_i: 浸出液中の i 元素濃度 (g・cm⁻³)
 f_i: 反応前ガラス試料中の i 元素重量分率 (-)
 SA: ガラス試料表面積 (cm²)
 V: 浸出液体積 (m³)

規格化浸出率は各元素の浸出量 (浸出液中の濃度) を実験条件やガラス組成を考慮することで均一化するものであり、各元素の浸出量をガラス表面積あたりのガラス溶解量に換算した値となる。

2. 4 MgO-P₂O₅ 系ガラスの耐水性向上

2. 2 に述べた方法を用い、母ガラスとして MgO-P₂O₅ 系ガラス、MgO-Nb₂O₅-P₂O₅ 系ガラス、MgO-B₂O₃-P₂O₅ 系ガラス、MgO-Al₂O₃-P₂O₅ 系ガラスを用いて、10 mol% の MoO₃ を固化したガラスを作製し耐水実験を行った。試料をバルクでイオン交換水 100 mL に 9 日間浸し、浸漬開始から 1、2、4、24、72、144、216 時間後にそれぞれ浸漬液を採取し、紫外可視 (UV-vis) 吸収スペクトル測定を行うことで Mo イオンの浸出量を比較した。

3. 結果および考察

3. 1 マグネシウム化合物のヨウ素吸着性能とガラス固化の結果

ヨウ素吸着性能評価において使用したサンプルの型番、比表面積および JIS 活性炭試験法に準じ求めた各試料の吸着性能を Table 1 に示す。

酸化マグネシウムの小粒径試料で最大 2.23 g/g のヨウ素吸着性能を示すことがわかった。また比表面積が大きいものほど吸着性能が高い傾向にあることがわかった。表中ブランクとなっているマグネシウムクリン

Table 1 マグネシウム化合物のヨウ素吸着性能

サンプル	比表面積(m ² / g)	ヨウ素吸着性能 (mg / g)
酸化マグネシウム	UC 95M	8.5
	UC 95HK	6
	UC 95ST	20.5
	UCM 150	180
マグネシウムクリンカー	UBE 98粉	-
	UBE 99S粉	-
高純度超微粉マグネシア	2000A	7.6
	500A	33.3
水酸化マグネシウム	UD 650	29.30
	UD 653	21.90

カー試料は粒が粗いため、平衡時間に達する前に攪拌が止まってしまう、ヨウ素吸着性能を評価することができなかった。また、水酸化マグネシウム試料については吸着量が少ないため、JIS 規格に準ずる範囲の吸着等温線を得ることができなかった。これは、吸着性能が表面積に依存することや、酸化マグネシウムが水に対して溶解度が高いのに対し、水酸化マグネシウムは難溶性なため、化学吸着と物理吸着の割合が異なるためだと考えられる。

Fig. 1 にヨウ素を吸着した酸化マグネシウムと酸化マグネシウム試料、水酸化マグネシウム試料の XRD パターンを示す。

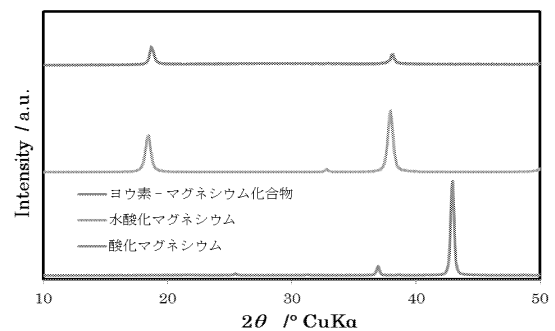


Fig. 1 ヨウ素-マグネシウム化合物及び酸化マグネシウム、水酸化マグネシウムの XRD パターン

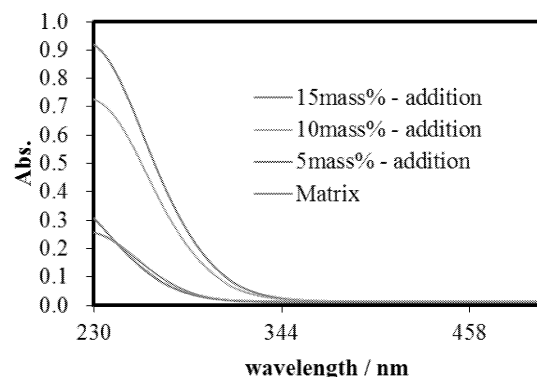


Fig. 2 母ガラスおよびヨウ素固化ガラスの拡散反射スペクトル (吸光度換算)

酸化マグネシウム試料を用いてヨウ素溶液中のヨウ素を吸着しても、吸着後のヨウ素-マグネシウム化合物は水酸化マグネシウムの形に変わっていることがわかった。これは溶液中で、溶解度の高い酸化マグネシウム試料が水酸化マグネシウムへと変化し、その過程でヨウ素を吸着しているためだと考えられる。また、水酸化マグネシウム試料と比べ、吸着量が明らかに多いのは、溶液中で電離して、ヨウ素と反応する割合が多く、化学吸着の割合が高いためだと考えられる。

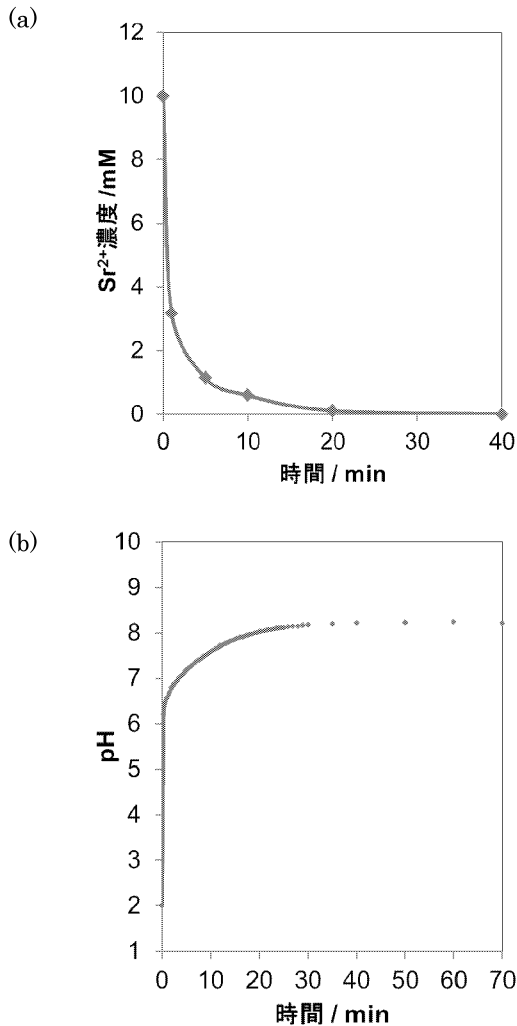


Fig. 3 ストロンチウム浸漬液の振とう時間と残留濃度および pH の関係

(a) 振とう時間と Sr 濃度変化

(b) 振とう時間と pH 変化

作製した固化ガラスは、いずれもヨウ素-マグネシウム化合物の添加量が 15 mass%まで透明であり、X 線の非晶質となった。添加量 20 mass%では部分的に失透し不均質となった。また、EDX パターンからはヨウ素元素に相当するピークは見られなかったため、大部分

は溶融の過程で蒸発していると考えられる。Fig. 2 に母ガラス ($MgO : P_2O_5 = 40 : 60$) およびヨウ素固化ガラスの拡散反射スペクトル測定 (吸光換算済) の結果を示す。ヨウ素-マグネシウム化合物の添加量の増加とともに紫外域での吸収強度が高くなった。ガラス中でのヨウ化物イオン、および臭化物イオンは通常二つに分離した吸収帯を持つが、相当するピークの分離は見られなかった。そのため、単体の形ではなく、化合物としてガラス中に保持されている可能性が示唆された。

3. 2 マグネシウム化合物によるセシウム、ストロンチウムの回収とガラス固化結果

Fig. 3 にイオン交換クロマトグラフィーを用いて測定した、振とう時間とセシウムまたはストロンチウムの残留濃度の関係 (a) およびその時の pH 変化 (b) を示す。振とう開始後 20 分程度で、セシウム、ストロンチウムの残留濃度は共に大幅に減少した。また、各ターゲットの濃度減少に応じて pH 変化にも相関性が見られたため、マグネシウムと共に、セシウムまたは、ストロンチウムおよびリン酸が共沈することにより、溶液中の各ターゲットの残留濃度が著しく減少したと考えられる。また、pH 調整無、アルカリ条件下、塩酸を用い pH 調整を行った系、酸化カルシウムを用いた場合では、いずれもこのような急激な濃度減少は見られなかった。沈殿物の XRD パターンから、セシウム溶液を用いた系では $CsMgPO_4 \cdot 6H_2O$ 、酸化マグネシウム、水酸化マグネシウムが混在した形で沈殿していることがわかった。

作製した固化ガラスは、いずれの組成でも無色透明なガラスとなった。いずれの組成でもハローパターンとなり、結晶化することなくガラス化したと考えられる。また、セシウム、固化ガラスにおいて、金属元素の添加とともに密度が増加し、リン酸異常現象と思われる密度低下は見られなかった。しかし、ストロンチウム固化ガラスでは、モル組成比 $MgO + SrO : P_2O_5 = 47 : 53$ の試料で密度の低下が見られた。これは、イオンの価数およびイオン半径に依存し、同族の Mg および Sr を含む 3 成分系のみ密度の低下が見られたと考えられる。各固化ガラスについて、組成比 25:25:50 の試料を用いて EDX 測定を行った結果、添加量と同等の割合で各元素が検出された。よって、ヨウ素のガラス固化処理とは異なり、仕込み量通りの含有率となることが示唆された。

3. 3 ストロンチウムおよびセシウム固化ガラスの化学的耐久性評価

MCC 試験法により、イオン交換水、0.1 mol/L の塩酸および水酸化ナトリウム水溶液を用いた浸漬試験を行った。ストロンチウム固化ガラス、セシウム固化ガラスについて、MgO-(Cs₂O or SrO)-P₂O₅ 比(20 : 20 : 60、それぞれ mcp20、msp20 と略記する)、(25 : 25 : 50、それぞれ mcp25、msp25 と略記する)の組成で作製した試料を用いた。Fig. 4 に浸出液のイオンクロマトグラムを示す。

Fig. 5~7 に mcp20、mcp25、msp20、msp25 の規格化浸出率を示す。イオン交換水に浸漬させた場合、セシウム固化ガラスでは、セシウムイオンが速やかに溶出し、その後緩やかな溶出 (mcp20) あるいは再沈殿・再溶出を示唆するような結果が得られた。マグネシウムイオンはセシウムイオンに比べて溶出量が少なく、初期に溶解したのちはほとんど濃度変化が見られなかった。つまり、ガラス成分のうち、セシウムイオンが優先的に溶解していた。一方で、ストロンチウム固化ガラスでは、イオン交換水への浸漬日数に比例し、ストロンチウムイオンとセシウムイオンの両方についてリニアかつ同等の浸出率変化であった。また、ストロンチウム含有量が増えると溶出量が減少した。塩酸に浸漬させた場合も概ね同等の結果であったが、ストロンチウムの溶出がやや増える結果となった。水酸化ナトリウム水溶液に浸漬させた場合は、mcp、msp ともに溶出量が少なく、特に mcp ではマグネシウムイオンの溶出が少なく、msp ではストロンチウムイオンとマグネシウムイオンの両方の溶出が少なかった。

msp サンプルは、イオンの溶出が穏やかであり、特に浸出液に水酸化ナトリウムを用いたものに関しては、ほとんどイオンの溶出が見られなかったため mcp サンプルよりも化学的耐久性は高いことがわかった。

ガラスの溶解反応は、金属元素架橋構造の水和反応による溶解が支配的であることと、金属元素の含有量が増えることにより金属元素架橋構造が増えることから、マグネシウム、セシウム、ストロンチウム等の金属元素含有量が増えることによってガラスの溶解が促進されると考えられる。しかし結果としてストロンチウム固化ガラスの耐水性が金属元素の含有量と共に増したのは、ストロンチウム添加量の増加により、P-O-P 結合よりも水に強い P-O-Sr 結合が増加したため、水和反応が進行しなかったと考えられる。これらの結果から、固化ガラスの耐水性を向上させるためには、P-O-M 結合(M: 金属元素)を生成するカチオン種を添加する必要があると考えられる。また、マグネシウム、セシウムのみを含むセシウム固化ガラスにストロンチウムを添加することにより、耐水性の向上が見込める。

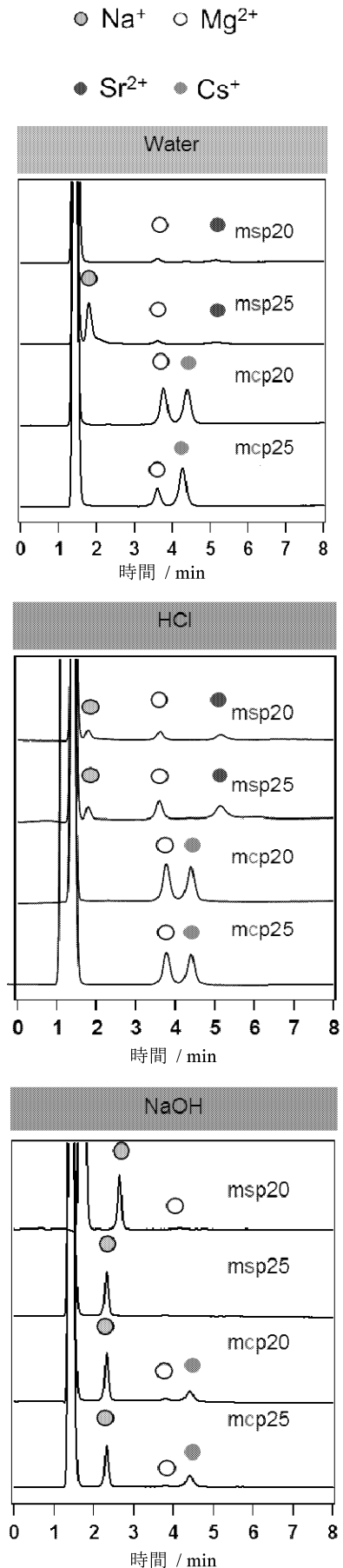


Fig. 4 浸漬日数1日目のイオンクロマトグラム

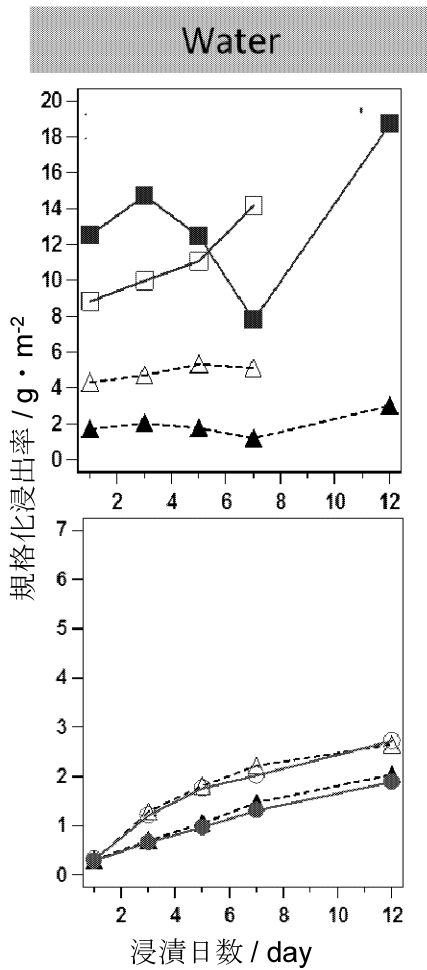
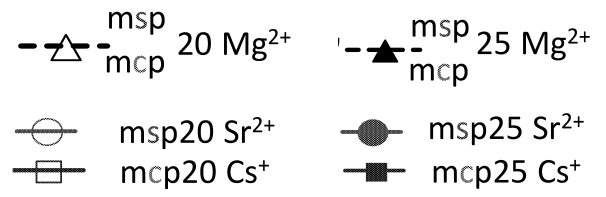
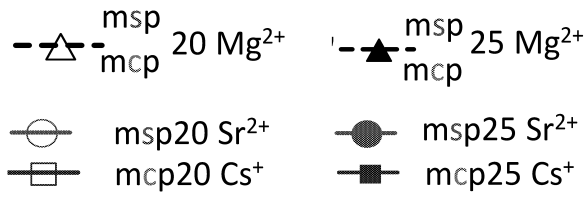


Fig. 5 イオン交換水浸漬における規格化浸出率
 上) mcp20 および mcp25 の結果
 下) msp20 および msp25 の結果

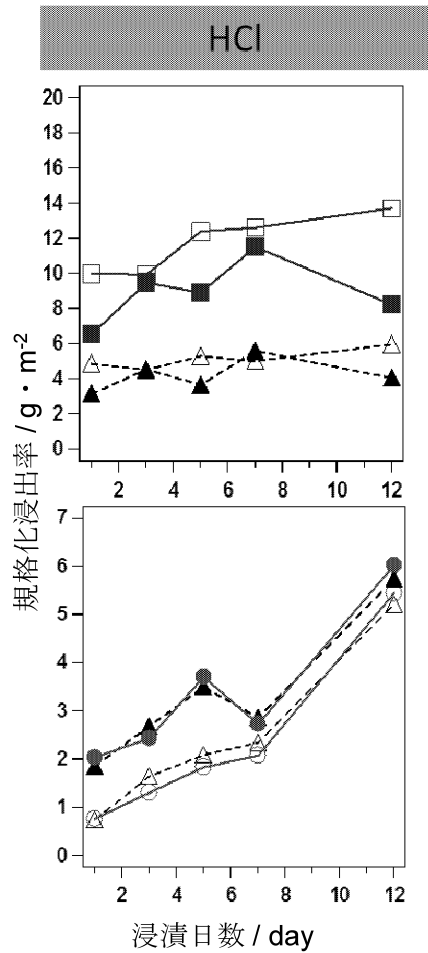


Fig. 6 塩酸浸漬における規格化浸出率
 上) mcp20 および mcp25 の結果
 下) msp20 および msp25 の結果

3. 4 MgO-P₂O₅系ガラスの耐水性向上

MgO:Nb₂O₅:P₂O₅=40:10:50、MgO:P₂O₅:B₂O₃=40:50:10、MgO:Al₂O₃:P₂O₅=45:5:50 (モル比) である母ガラスをそれぞれ作製できた。それらに対して 10 mol%の MoO₃ を加えてガラス固化させることにも成功し、青色透明かつ均質なサンプルを得た。XRD を用いて結晶性を確認したところ、有意な回折ピークは観察されずハローのみとなったことから、固化ガラスが得られたことが示唆された。なお、青色は Mo に由来する。

イオン交換水への浸漬実験を行ったところ、3 成分目を添加していない MgO-P₂O₅ ガラスを用いた場合には、肉眼で確認できるほどの着色 (青色) があった。作製した固化ガラスを浸漬させたイオン交換水 (室温で 3 週間浸漬させたもの) の UV-vis 吸収スペクトル測定結果を Fig. 8 に示した。紫外光領域に溶出したモリブデン酸に由来する吸収が見られたが、Al₂O₃、B₂O₃、Nb₂O₅ のような 3 成分目の酸化物を添加することでこの吸収が顕著に減少した。特に Nb₂O₅ を加えた場合にはほとんど UV-vis 吸収に変化は無く、溶出がほとんど無い

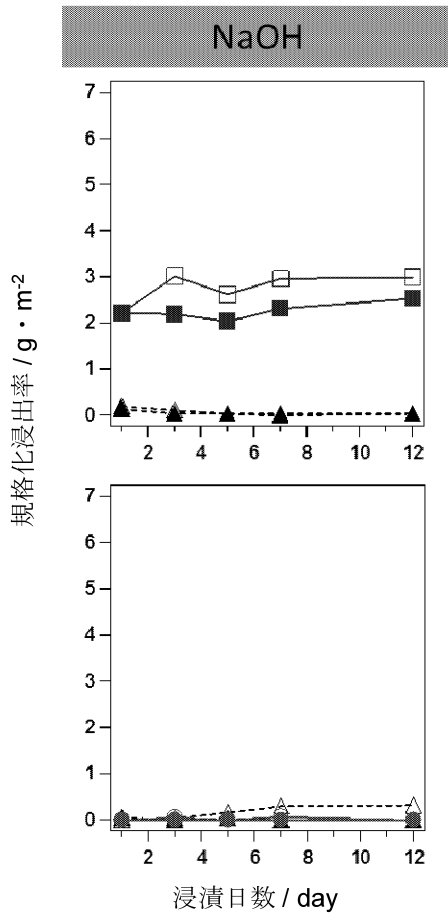


Fig. 7 水酸化ナトリウム水溶液浸漬における規格化浸出率

- 上) mcp20 および mcp25 の結果
- 下) msp20 および msp25 の結果

ことが示唆された。以上のことから、 Al_2O_3 、 B_2O_3 、 Nb_2O_5 のような 3 成分目の酸化物を添加することで耐水性の向上が可能であることが確認できた。

4. 結言

ヨウ素、セシウム、ストロンチウムの 3 種の元素について、マグネシウム化合物を用いた回収法、およびその後のガラス固化処理の検討を行った。ヨウ素の回収については、酸化マグネシウムの小粒径試料で最大 2.23 g/g のヨウ素吸着性能を示すことがわかった。また、水酸化マグネシウムを用いた場合と比較し、化学吸着の割合が高いことから吸着性能が高いと考えられる。その後のガラス固化に関しては、紫外可視拡散反

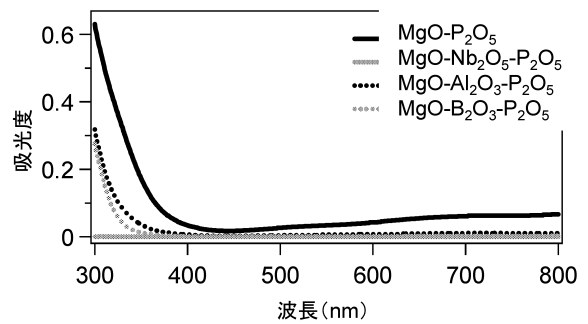


Fig. 8 室温で 3 週間浸漬させた浸漬液の UV-vis 吸収スペクトル

射スペクトルからは、ヨウ化物イオンに相当するピークは見られなかったため、化合物の形でガラス中に保持されていると考えられる。

セシウム、ストロンチウムの回収について、酸化マグネシウムを用い、リン酸により各浸漬液の pH を 2.0 に調整した条件で、セシウム、ストロンチウムともに溶液中の残留濃度の著しい低下が見られた。この濃度減少は、リン酸とマグネシウムおよびターゲットであるセシウム、ストロンチウムの共沈反応によるものであると考えられる。その後のガラス固化処理の検討に関しては、セシウム、ストロンチウムの硝酸塩、酸化マグネシウム、リン酸を原料とし、組成範囲を変化させ、固化ガラスを作製した。その結果、作製したすべての組成で無色透明な非晶質のガラス試料が得られた。これらのガラスについて密度測定を行った結果、セシウム固化ガラスでは、リン酸異常現象とみられる密度低下は見られず金属元素の添加量に応じて密度が上昇した。ストロンチウム固化ガラスについては組成比 $MgO+SrO : P_2O_5 = 47 : 53$ (モル比) のサンプルで、密度の低下が見られた。また EDX スペクトルから、仕込み量と同等の割合の組成が維持されていることがわかった。これらの固化ガラスについて耐水性試験を行った結果、セシウム固化ガラスでは、セシウムおよびマグネシウムの添加量によらず、一定の浸出量、浸出率となり、ストロンチウム固化ガラスでは、ストロンチウムの添加に伴い耐水性が上昇した。

耐水性向上を試みた結果、 $MgO-P_2O_5$ 系固化ガラスよりも、 $MgO-Al_2O_3-P_2O_5$ 系、 $MgO-B_2O_3-P_2O_5$ 系固化ガラスの溶出が少なくなり、 $MgO-Nb_2O_5-P_2O_5$ 系固化ガラスではほとんど溶出が見られなかった。3 成分系にすることで耐水性を上げることができるとわかった。

以上の結果から、ヨウ素に関しては酸化マグネシウムにより、セシウム、ストロンチウムに関しては酸化マグネシウムと合わせて、リン酸による pH 調整を行うことで、十分な回収性能を示すことが示唆された。ま

た、回収後の固化ガラスに関し、セシウム、ストロンチウム固化ガラスでは、仕込み量に応じた割合で、ガラス中に保持されていることから長期安定に効率良く最終処理が行えることが示唆された。耐水性に関しては、P-O-P 結合よりも水に強い P-O-M 結合を生成するカチオン種を添加することで向上が見込まれると考えられ、 Al_2O_3 、 B_2O_3 、 Nb_2O_5 のような 3 成分目の酸化物の添加によってこれを確かめることができた。

参 考 文 献

1) N. N. Treushchenko, B. A. Dmitrievskii, A. A. Kazakov, S. K. Tsvetkov, A. Yu. Popov, B. Ya. Galkin, and V. A. Treushchenko, "Recovery and Long-Term Storage of Radioactive Iodine Using Magnesium Containing Composites", *Theoretical Foundations of Chemical Engineering*, Vol. 44, No. 4, pp. 587-591 (2010).

2) T. Okura, K. Yamashita, T. Kanazawa, "A Structural Explanation for the Phosphate Glass Anomaly", *Phys. Chem. Glasses*, 29, 13 (1988).

3) T. Okura, T. Miyachi, H. Monma, "Properties and Vibrational Spectra of Magnesium Phosphate Glasses for Nuclear Waste Immobilization", *J. Eur. Ceram. Soc.*, 26[4-5], 831 (2006).

4) 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. Mater. Japan*, 13, pp. 448-445 (2006).

5) 大倉利典：放射性廃棄物の固化処理用ガラス，特許 04129237 (2008).

6) N. Yoshida, R. Kadokura, K. Watanabe, K. Awata, A. Ishida, T. Okura, "Evaluation of Iodine-adsorption on Magnesium Compounds toward Fixing of Radioactive Iodine", *Key Engineering Materials*, Vol. 617, pp. 201-204 (2014).

①発表論文

1) N. Yoshida, R. Kadokura, K. Watanabe, K. Awata, A. Ishida, T. Okura, "Evaluation of Iodine-adsorption on Magnesium Compounds toward Fixing of Radioactive Iodine", *Key Engineering Materials*, Vol. 617, pp. 201-204 (2014).

2) T. Okura, N. Yoshida, "New Iron Phosphate Glasses for High Level Nuclear Waste Immobilization", *J. Soc. Inorg. Mater. Japan*, in press.

②学会発表

1) 門倉遼、吉田直哉、大倉利典、「放射性ヨウ素の固定を目指したマグネシウム化合物によるヨウ素吸着性の評価」，無機マテリアル学会第 124 回学術講演会，2012 年 6 月 7 日

2) T. Okura, N. Yoshida, "Immobilization of Simulated High Level Nuclear Wastes with Li_2O - CeO_2 - Fe_2O_3 - P_2O_5 Glasses", *International Conference on Environmental, Biological, and Ecological Science, and Engineering*, Aug. (2012).

3) 門倉遼、吉田直哉、大倉利典、「放射性ヨウ素をターゲットとしたマグネシウム化合物によるヨウ素吸着能評価及びリン酸塩ガラスによる固化処理」，第 22 回無機リン化学討論会，2012 年 9 月 25 日

4) Ryo Kadokura, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, "Evaluation of Iodine-adsorption on Magnesium Compounds toward Fixing of Radioactive Iodine", *The 11th International Symposium on Advanced Technology*, Oct. (2012).

5) 門倉遼、吉田直哉、大倉利典、「マグネシウム化合物を用いたヨウ素の吸着及びリン酸塩ガラスを用いた固化処理」，日本セラミックス協会 2013 年年会，2013 年 3 月 17 日

6) Ryo Kadokura, Naoya Yoshida, Kunio Watanabe, Keiji Awata, Akio Ishida, and Toshinori Okura, "Adsorption and Vitrification of Iodine, Cesium, and Strontium with Magnesium Compounds", *International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2013*, Oct. 28 (2013).

7) Toshinori Okura, Ryo Kadokura, Kunio Watanabe, Keiji Awata, Akio Ishida, and Naoya Yoshida, "Immobilization of Simulated High Level Radioactive Waste using Phosphate Glass Anomaly", *International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2013*, Oct. 31 (2013).

8) 門倉遼、吉田直哉、大倉利典、「マグネシアを用いた模擬放射性物質の回収及びリン酸塩ガラスを用いたガラス固化処理」，日本セラミックス協会 2014 年年会，2014 年 3 月 17 日

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 —Ⅲ族酸化物バッファ層の可能性探索と ICP エッチング特性評価—

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

— Investigations on possibility of group-III oxide buffer layers and characteristics of ICP etching —

Tomohiro Yamaguchi, Department of Information & Communications Engineering, Kogakuin University

Tohru Honda, Department of Information & Communications Engineering, Kogakuin University

Masataka Higashiwaki, National Institute of Information and Communications Technology

Tsutomu Araki, Department of Electrical & Electronic Engineering, Ritsumeikan University

ABSTRACT : The possibility on the use of group-III oxide buffer layer was investigated toward the growth of high-quality In-based nitride semiconductors. The thermal stability of α -Ga₂O₃ was up to approximately 600°C in vacuum and the phase transition from α - to β -phase occurred around this temperature. Therefore, it was found that the use of α -(AlGa)₂O₃ is required for the growths of GaN and GaInN with a low InN molar fraction, while α -Ga₂O₃ can be used for the growths of InN and GaInN with a high InN molar fraction.

The inductively coupled plasma (ICP) etching characteristics of GaN and InN were also investigated toward the development of device fabrication process. The etching rate of GaN and InN was constant as a function of etching time. The etching rate of GaN was faster than that of InN. The tendency of the etching speed between GaN and InN as a function of temperature was different. This suggests that the etching behavior is changed depending on the InN molar fraction of GaInN.

Finally, the results in this project for three years and future prospects are described.

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、青紫色レーザーダイオード (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 GaInN 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。初年度は、高品質 In 系厚膜成長技術の開拓に焦点を当て、2年目は、製作した GaInN 膜の構造解析を行うとともに、GaInN 膜を用いたデバイスの試作までを行った。最終年度である今年度は、高品質 In 系窒化物半導体結晶成長のための新しい下地基板（テンプレート）の開拓と本学におけるデバイス製作プロセスの構築を行ったので報告する。

2. 高品質 In 系窒化物半導体結晶成長のための新しい下地基板（テンプレート）の開拓

GaN や In 系窒化物半導体薄膜は、格子整合・熱膨張係数の観点から、バルク基板上に成長することが好まれるが、GaN のバルク基板は非常に高価であり、また In 系窒化物半導体のバルク基板ははまだ実現されていない。そのため、一般的に、GaN や In 系窒化物半導体の結晶成長には、結晶の対称性が窒化物半導体に似通っている sapphire ($\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$) 基板を用い、同基板上にヘテロエピタキシャル成長することが主流となっている。⁵⁾ しながら、sapphire 基板と GaN の格子不整合差は約 13% と大きく、GaN に In が含まれる In 系窒化物半導体では、sapphire との格子不整合差はさらに大きくなる。

解決法の 1 つとして、我々は $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ に着目した。sapphire 基板上へのミスト気相化学成長（mist CVD: mist Chemical Vapor Deposition）法による高品質 $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 結晶成長がこれまで報告されている。⁶⁾ Mist CVD 法とは霧化法の一つであり、有機金属粉末の水溶液を原料に用い、超音波振動子によりミスト化された原料がキャリアガスを用いて加熱された反応領域まで運ばれ、基板上に酸化物薄膜を製作することができるという方法である。この方法の特徴は、成長雰囲気は真空である必要はなく大気圧下での成長が可能であることから装置構成がシンプルであり、また、水素等の危険なキャリアガスを使用しなくとも薄膜の製作が可能であることから安全であり大変魅力的な薄膜製法である。

Mist CVD 法により sapphire 基板上に $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 薄膜を成長することにより、両者の間におよそ 5% の格子不整合があるにもかかわらずミスフィット転位が $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 表面にほとんど貫通しない高品質な薄膜を実現できる。⁷⁾ GaN と $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の格子不整合差はおよそ 9% と GaN と sapphire 基板に比べると小さい。

本研究では、 $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ と III 族窒化物半導体の相性を調査すべく、III 族窒化物半導体の中でも最も結晶成長技術が確立されている GaN に焦点を絞り、 $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 上への GaN 薄膜の結晶成長からスタートさせた。

$\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の mist CVD 結晶成長を行うにあたり、原料と

して超純水にガリウムアセチルアセトナート ($\text{Ga}(\text{acac})_3$) の粉末を溶解させたものを用いた。ただし、この $\text{Ga}(\text{acac})_3$ は水に難溶であるため、少量の塩酸を加えた水溶媒の原料を使用した。基板として用いた sapphire は、有機洗浄を行った後に、室温から反応炉内にセットをした。図 1 に mist CVD 成長装置の概略図を示している。

図 2 に成長温度 450°C, 460°C, 470°C にて成長させたサンプルの X 線回折 (XRD: X-ray diffraction) 2θ - ω 測定結果を示す。成長温度 450°C では単結晶 $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 薄膜が得られたが、それ以上の成長温度である 460°C、470°C では、(0006) $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ からの回折ピークの他に 39° 付近に (-402) $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ からの回折ピークが観測された。(0006) $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ のロックンガープ測定における半値全幅 (FWHM: Full Width at Half Maximum) は 70 arcsec. と成長方向の揺らぎが小さい高品質結晶が成長していることが分かった。この結果を踏まえ、単結晶 $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$ が得られた 450°C にて成長したサンプルを GaN 成長用基板として使用した。

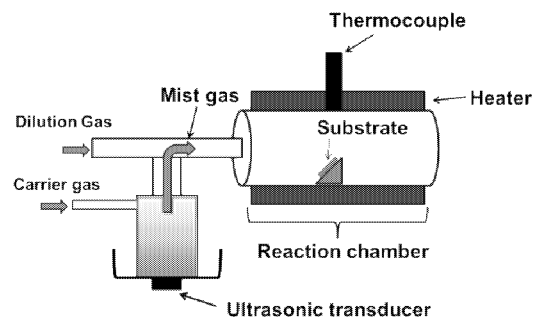


Fig. 1 Schematic drawing of mist CVD setup we used in this study.

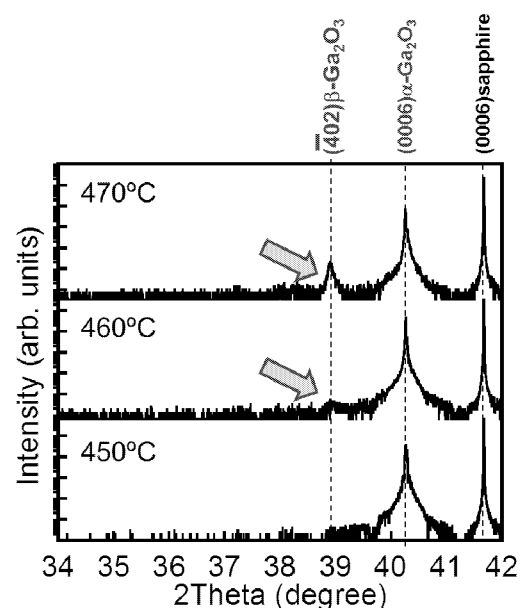


Fig. 2 XRD 2θ - ω profiles of Ga_2O_3 films grown on sapphire at 450, 460 and 470°C.

α -Ga₂O₃ を GaN 用下地層として利用するにあたり、昇温実験を行った。 α -Ga₂O₃/sapphire テンプレートの昇温時の反射高速電子回折 (RHEED: Reflection High Energy Electron Diffraction) 回折パターンを図 3 に示す。室温から 590°C まで RHEED のパターンに大きな変化は見られなかったが、600°C 付近で RHEED のパターンが急激に弱くなり、肉眼では確認することができなくなった。昇温前後の 2 θ - ω 測定結果を図 4 に示す。600°C までの昇温により、 α -Ga₂O₃ からの回折ピークが小さくなり、昇温前には見られなかった新たな(-402) β -Ga₂O₃ の回折ピークが確認された。昇温時の RHEED による α -Ga₂O₃ の回折パターンは 590°C 付近まで明瞭なパターンであり、600°C で消失したことから 600°C 付近を境にして α -Ga₂O₃ の結晶構造が β -Ga₂O₃ へと相転移が始まるものだと考えられる。

GaN の MBE 成長を行うにあたり、 α -Ga₂O₃ の基板窒化処理を β -Ga₂O₃ へと相転移温度以下の 570°C にて行った。図 5 に基板窒化時の RHEED パターンを示す。また、図 6 に RHEED パターンのパターン間隔変遷を示す。窒化開始 5 分後に α -Ga₂O₃ の RHEED パターンの<10>および<01>の内側に新たなパターンが現れた。このパターンは時間経過とともに徐々に強くなっていることが見て取れる。また、窒化時間とともに α -Ga₂O₃ のパターンの間隔は狭くなり、最終的には GaN の RHEED パターンと非常に近くなった。これは、基板表面に窒素プラズマを照射する窒化により、 α -Ga₂O₃ 表面の酸素と窒素が置換され、表面の原子配列が GaN に近づいていることを示している。

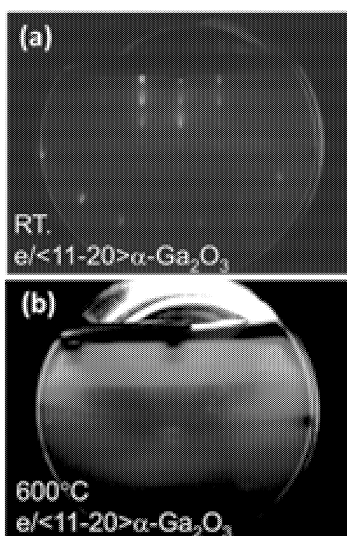


Fig. 3 RHEED diffraction patterns of Ga₂O₃ taken at substrate temperature of (a) room temperature and (b) 600°C.

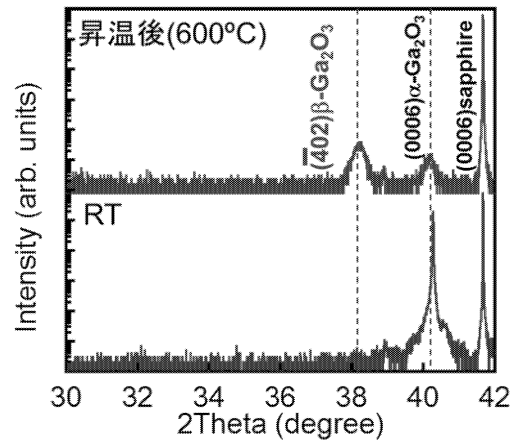


Fig. 4 XRD 2 θ - ω profiles of Ga₂O₃ films with and without annealing at 600°C.

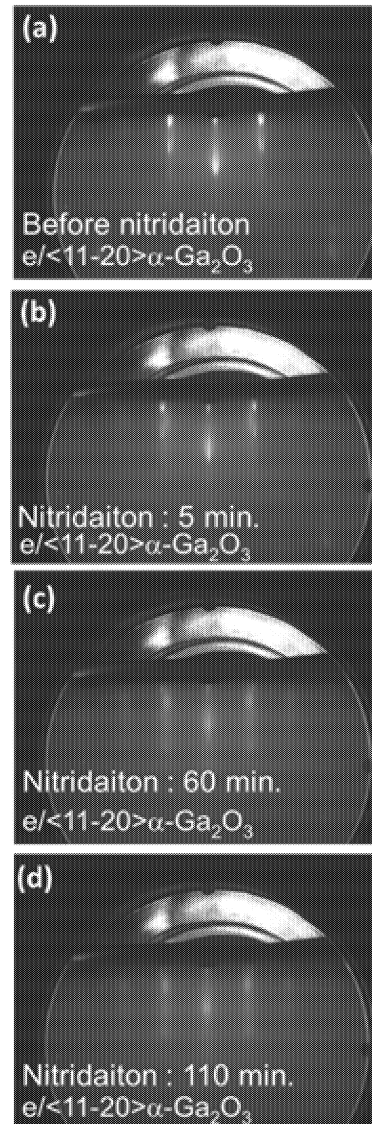


Fig. 5 RHEED diffraction patterns of Ga₂O₃ nitridated at (a) 0 min, (b) 5 min, (c) 60 min and (d) 110 min.

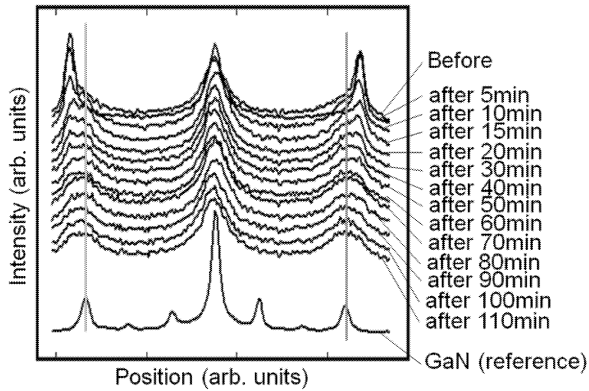


Fig. 6 Distance transition of RHEED diffraction patterns during nitridation.

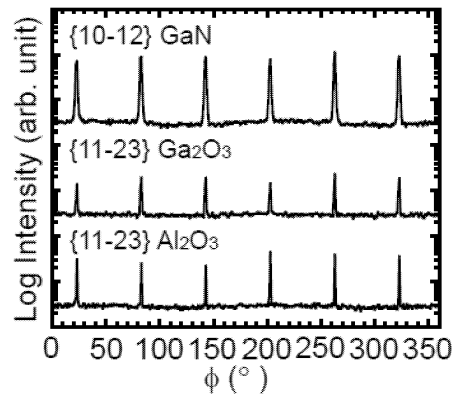


Fig. 8 XRD ϕ profiles of GaN film grown at 570°C on α -Ga₂O₃/sapphire.

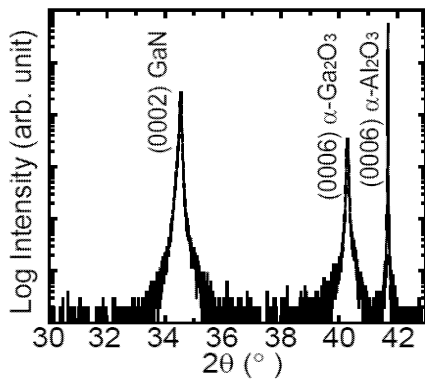


Fig. 7 XRD 2 θ - ω profile of GaN film grown at 570°C on α -Ga₂O₃/sapphire.

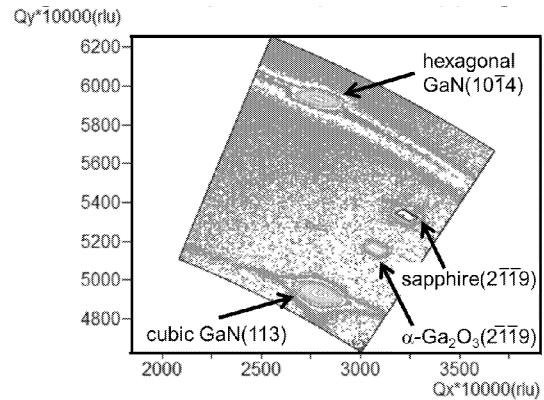


Fig. 9 XRD RSM of GaN film grown at 570°C on α -Ga₂O₃/sapphire.

窒化に引き続き、570°CにてGaN成長を行った。図7に α -Ga₂O₃/sapphire上にGaNを成長させたサンプルのXRD 2 θ - ω 測定結果を、図8に同サンプルのXRD ϕ スキャン測定結果を、図9に同サンプルのXRD逆格子マッピング測定結果を示す。図7および図8より、GaNが

$$\langle 0001 \rangle_{\text{GaN}} // \langle 0001 \rangle_{\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3} // \langle 0001 \rangle_{\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3}$$

$$\langle 10\cdot10 \rangle_{\text{GaN}} // \langle 11\cdot20 \rangle_{\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3} // \langle 11\cdot20 \rangle_{\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3}$$

の方位関係を持って結晶成長ができていることが分かった。一方で、図9より、立方晶GaNからの回折ピークが確認された。GaNの低温成長時には、立方晶GaNが比較的容易に混入されることが報告⁸⁾されており、この結果はそれを裏づける結果である。

この結果を踏まえ、我々は次に α -(AlGa)₂O₃に着目した。 α -Al₂O₃、つまりsapphireは熱力学的に非常に安定な物質であるため、 α -(AlGa)₂O₃を形成することによって熱力学的安定性が増すことが期待される。

図10および図11に α -(AlGa)₂O₃の昇温実験結果を示す。 α -(Al_{0.04}Ga_{0.96})₂O₃とAlをわずか4%程度加えただけで、 α 層構造は600°C後半まで保たれ、700°Cのアニールにより β 相への構造変化が確認された。また、

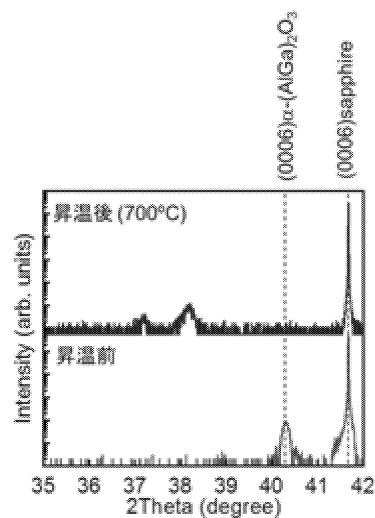


Fig. 10 XRD 2 θ - ω profiles of (Al_{0.04}Ga_{0.96})₂O₃ films with and without annealing at 700°C.

α -(Al_{0.20}Ga_{0.80})₂O₃とAlを20%程度まで加えると、所望の700°C以上の730°Cまで昇温しても、若干の構造変

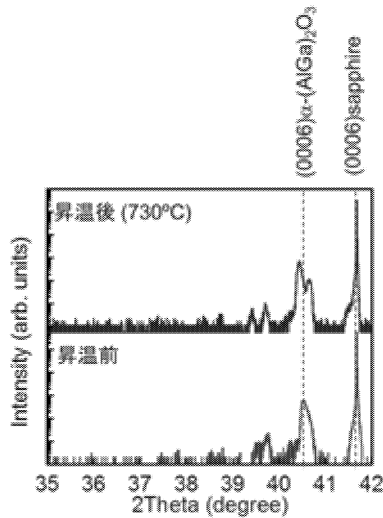


Fig. 11 XRD 2θ - ω profiles of $(\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.80})_2\text{O}_3$ films with and without annealing at 730°C .

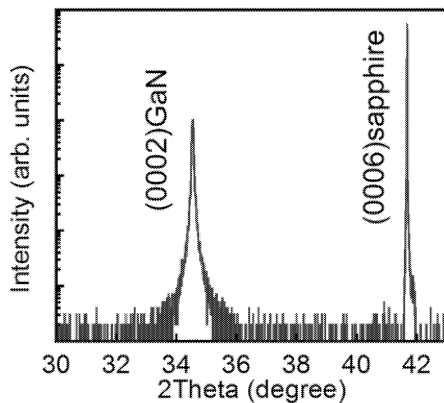


Fig. 12 XRD 2θ - ω profile of GaN film grown at 700°C on $(\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.80})_2\text{O}_3/\text{sapphire}$.

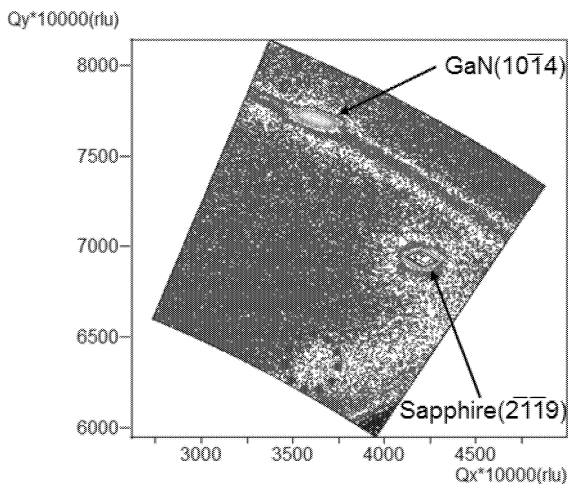


Fig. 13 XRD RSM of GaN film grown at 700°C on $(\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.80})_2\text{O}_3/\text{sapphire}$.

化（もしくは相分離）はみられるものの α 相を保持し続けることが分かった。

図 12 に α - $(\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.80})_2\text{O}_3/\text{sapphire}$ 上に 700°C にて GaN を成長させたサンプルの XRD 2θ - ω 測定結果を、図 13 に同サンプルの XRD 逆格子マッピング測定結果を示す。なお、同サンプルにおいても GaN 成長前に窒化処理を行っている。これらの結果より立方晶 GaN の混在が非常に少ない六方晶 GaN が成長していることが見て取れる。なお、同サンプルにおいて、 α - $(\text{Al}_{0.20}\text{Ga}_{0.80})_2\text{O}_3$ からの回折ピークが確認されなかった。この理由については現在調査を進めている。

以上のことから、以下のことが言える。

① GaN を成長する場合には 700°C 以上まで構造変化を起こさず安定して存在できる α - $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$ が求められる。また、窒化や成長中においても α - $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$ が構造変化を起こしている可能性が考えられるため、引き続き調査が必要である。

② In 系窒化物半導体において GaN の対極となる InN の最適温度は 400 - 500°C である。そのため、 α - Ga_2O_3 は sapphire に代わる有望な下地層になりえる。

③ In 系窒化物半導体は組成により最適成長温度が異なる。In 組成の高い GaInN においては α - Ga_2O_3 を使うことができるが、In 組成が低いところにおいては α - $(\text{Al}_x\text{Ga}_{1-x})_2\text{O}_3$ が必要になる。

いずれの点においても、sapphire に比べ格子不整合差の小さな系での III 族窒化物半導体結晶成長が実現できる。 α - Ga_2O_3 をはじめとする III 族酸化物半導体上への In 系窒化物半導体の優位性の立証をめざし、III 族酸化物半導体の結晶品質向上にむけた研究を引き続き行っていく予定である。

3. デバイス製作プロセスの構築

図 14 に、昨年度試作した pn-GaInN ダイオードの製作プロセスを示す。購入した GaN/Sapphire テンプレート上に、まず n-GaInN 層を成長させる。その上に p-GaInN 層を連続して成長させる。p-GaInN 層は、GaInN 成長時に適切な Mg 量を供給することにより実現することができる。このように結晶成長により製作した pn 接合 GaInN 膜に対して、誘導結合方式 (ICP: Inductively Coupled Plasma) ドライエッチング装置を用いて p 型 InGaIn 層を部分的に除去した後、n 型電極、p 型電極として、スパッタ装置を用いて Ti/Al/Ti/Au を、電子銃型 (EB: electron beam) 蒸着装置を用いて Au/Ni をそれぞれ堆積させる。

昨年度は、JST ナノテクノロジープラットフォーム「研究設備の試行的利用」に採択頂いたこともあり、物質・材料研究機構にて、エッチングおよび電極形成を行った。

本年度は、私学助成により昨年度末に購入した ICP エッチング装置 (Samco 社製 ICP-RIE 101iPHK) (図 15 参照) を用い、エッチング特性の検討を行った。

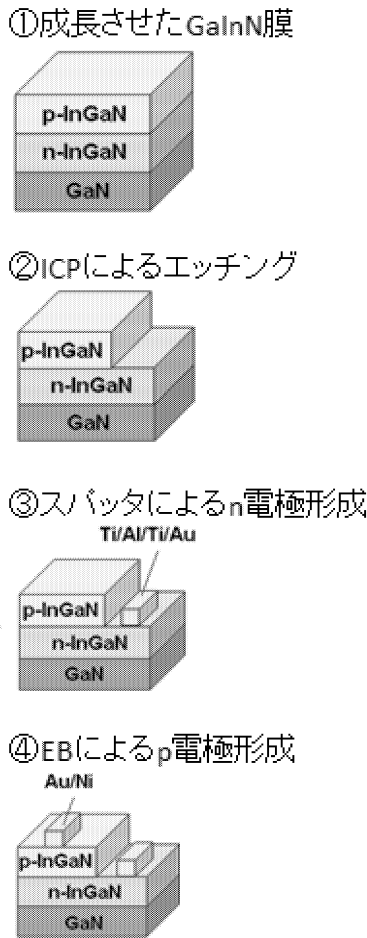


Fig. 14 Fabrication process of pn-GaInN diode.



Fig. 15 ICP etching system installed last year at Kogakuin University.

これまで、誘導結合型プラズマ(ICP: inductively coupled plasma)および電子サイクロトロン共鳴プラズマ(ECR: electron cyclotron resonance)による GaN エッチングは報告されているものの⁹⁾、未だ InN のエッチングについての報告は少なく、エッチングの挙動については未解明などが多い。ここでは、In を含む混晶系材料のデバイス製作を目的としながらも、本学に導入した ICP エッチング装置の特性評価、および研究報告例の少ない InN のエッチング挙動を調べるため、ICP-RIE による GaN と InN のエッチングを行い、比較検討を行った。

試料は(0001)Sapphire 上に有機金属気相成長 (MOVPE: Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy)法により成長した GaN テンプレートと同テンプレート上に RF-MBE 法により成長した InN 薄膜を用いた。まず、両試料上にスピナーによりレジスト AZ5214E を堆積させ、紫外線露光によりパターニングを行った。次に、製作したパターンに対して、ICP エッチング装置を用い、GaN および InN のエッチングを施した。装置内に供給するガスは Cl₂ ガス 20 sccm, Ar ガス 10 sccm とした。また、ICP 電力は 200 W、バイアス電力 80 W とした。

図 16 に、エッチング時の基板ステージ温度 40°C における GaN および InN のエッチング時間依存性を示す。図中の点は SEM 観察により得られたエッチング深さを示しており、図中の直線はそれらの値を用いて最小二乗法により導いたものである。GaN、InN 共に、エッチング深さはほぼ比例的に変化しており、エッチング速度が時間に対し一定であることが見て取れる。また、GaN に比べ InN のエッチングが遅いことがわかる。これは In の塩化物の蒸気圧が Ga の塩化物に比べて小さいことに起因する可能性が考えられる。なお、外挿した直線により両者のエッチング開始に差異が確認できる。これは、GaN と InN の結晶表面に存在する表面酸化物による影響によるものと考えられる。

図 17 に、エッチング時間 1 分における GaN および InN のエッチング時の基板ステージ温度依存性を示す。GaN の場合には、基板ステージ温度を 200°C まで変化させても 1 分間のエッチング深さは変化しなかったが、InN の場合には、基板ステージ温度を上げるに従い、1 分間のエッチング深さは深くなっている。これらの結果は、GaInN 混晶の組成に対してエッチング条件が大きく異なる可能性があることも示唆している。なお、このエッチングの基板ステージ温度が生成物の影響に律速されるとすれば、この結果より蒸気圧曲線を把握しエッチング時に生成される物質を同定することができるかもしれない。結果、In 系窒化物半導体のエッチングメカニズムが分かることが期待できる。今後、In 系窒化物半導体による高精度なエッチングを行うにあたり、さらなる検討を継続していく予定である。

なお、n 電極形成や p 電極形成に必要な蒸着装置はすでに本学にあるため、一貫したプロセスが行える状態が整ったことを追記しておく。

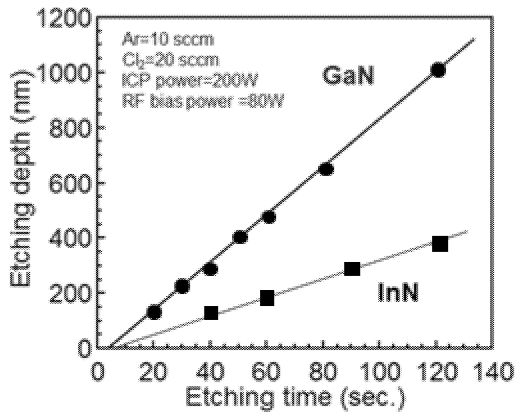


Fig. 16 Etching time dependences of GaN and InN at substrate temperature of 40°C.

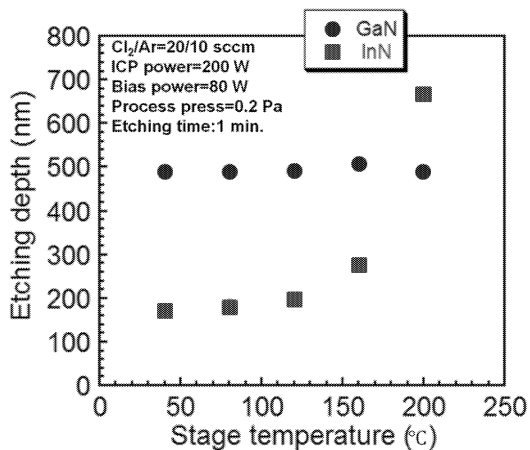


Fig. 9 Substrate stage temperature dependences of GaN and InN at etching time of 1 min.

4. 最後に

3年間の総合研究所プロジェクト研究において、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を行ってきた。

結晶成長においては、GaInN をはじめとする In 系窒化物半導体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を示した。また、さらなる結晶高品質化をめざし、In 系窒化物半導体結晶成長のための新しい下地基板（テンプレート）の開拓としてⅢ族酸化物半導体に着目し、Ⅲ族酸化物半導体自体の持つ問題点を明らかにするとともに、同半導体上への GaN 成長までを行った。

デバイス製作プロセスの構築においては、結晶成長により製作した pn-GaInN 膜を用い、デバイスプロセスを行った。JST ナノテクノロジープラットフォーム「研究設備の試行的利用」に採択頂いたこともあり、エッチン

グおよび電極形成の全てのデバイス製作プロセス（pn-GaInN ダイオードの試作）を物質・材料研究機構にて行うことができた。また、工学院大学において一貫プロセスが行えるように着々と準備を進め続けている。特に今年度は、私学助成により昨年度末に購入いただいた ICP エッチング装置を用いた GaN と InN のエッチング特性を評価できた。In 系窒化物半導体のエッチング特性への展開が期待できる。

今後、pn-GaInN ダイオード構造を基盤として、同構造の結晶成長技術の高度化を図るとともに、同構造のデバイス製作プロセスを構築していく予定である。また、デバイス製作により得られる結果を結晶成長にフィードバックできる研究スタイルを構築していく。この研究スタイルが pn-GaInN ダイオードから発展した構造をもつ新しい光デバイスや電子デバイスの実現に結びつくものと信じている。

謝辞

「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」に関する研究は、H24-H26 までの3年間、工学院大学プロジェクト研究の援助を受けて行われた。また、「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」において得られた研究成果の一部は、科研費 若手研究 (A) # 25706020 (H25-H26)、東電記念財団 研究助成 (基礎研究) (H24-H25)、および、文部科学省 ナノテクノロジープラットフォーム「研究設備の試行的利用」(H25)の援助も受けている

なお、立命館大学の名西徳之教授には、本研究成果として得られた一部のサンプル製作にあたり、結晶成長装置を使用させていただくとともに多大なるご助言をいただいた。

東京工業高等専門学校の尾沼猛儀准教授には、本研究成果のすべてについてご議論いただいた。

ナノテクノロジープラットフォーム「研究設備の試行的利用」の援助においては、選択エッチング、電極形成に必要な各種装置の使用にあたり、物質・材料研究機構の池田直樹氏、大里啓考氏のご助言、ご協力をいただいた。

物質・材料研究機構の角谷正友博士、Liwen Sang 博士には、pn-GaInN 太陽電池特性のシミュレーションを行うために、シミュレータを使用させていただいた。また、デバイス構造製作プロセスに関して、ご議論いただいた。

pn-GaInN の結晶成長およびデバイス製作プロセスについては当研究室大学院生の鳴谷建人君に、窒化物半導体結晶成長用の新しい下地基板（テンプレート）の開拓については当研究室大学院生の畠山匠君に協力してもらった。

ここに、あわせて感謝申し上げます。

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) 赤崎 勇編著 III族窒化物半導体 (培風館, 1999, 東京).
- 6) D. Shinohara and S. Fujita, *Jpn. J. Appl. Phys.* **47**, 73 (2008).
- 7) H. Ito, K. Kaneko and S. Fujita, *Jpn. J. Appl. Phys.* **51**, 100207 (2012).
- 8) A. Botchkarev, A. Salvador, B. Sverdlov, J. Myoung and H. Morkoç, *J. Appl. Phys.* **77**, 4455 (1995).
- 9) C. C. Kao, H. W. Huang, J. Y. Tsai, C. C. Yu, C. F. Lin, H. C. Kuo and S. C. Wang, *Mat. Sci. Eng. B* **107**, 283 (2004).
6. T. Hatakeyama, K. Tanuma, S. Osawa, Y. Sugiura, T. Onuma, T. Yamaguchi and T. Honda, "Growth of oxide thin films by mist chemical vapor deposition – Application of corundum-structured oxides for growth of GaN –", The 13th International Symposium on Advanced Technology (Nov. 2014, Vietnam).
7. T. Yamaguchi, T. Araki, T. Onuma, T. Honda and Y. Nanishi, "RF-MBE growth of InGaN alloys and fabrication of optical device structures", The Corroborative Conference on Crystal Growth (Nov. 2014, Thailand) (*Invited talk*).
8. D. Isono, Y. Sugiura, T. Yamaguchi and T. Honda, "X-ray photoelectron spectroscopy of C+, C- and M-GaN surfaces", 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (Nov. 2014, Japan).
9. S. Osawa, T. Onuma, T. Yamaguchi and T. Honda, "Interface reaction between Al and N atoms in GaN growth on Al by RF-MBE", 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (Nov. 2014, Japan).
10. Y. Watanabe, S. Osawa, D. Tajimi, T. Hatakeyama, T. Yamaguchi and T. Honda, "Characterization of GaN thin film grown on pseudo Al templates by radio-frequency plasma-assisted molecular beam epitaxy", 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (Nov. 2014, Japan).
11. T. Hatakeyama, K. Tanuma, S. Osawa, Y. Sugiura, T. Onuma, T. Hirasaki, H. Murakami, T. Yamaguchi and T. Honda, "Mist chemical vapor deposition growth of α -(AlGa)₂O₃", 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (Nov. 2014, Japan).
12. T. Yamaguchi, T. Hatakeyama, K. Tanuma, M. Sugimoto, H. Nagai, T. Onuma, M. Sato and T. Honda, "Mist chemical vapor deposition growth of group-III oxides and its growth mechanism", The 21st International SPACC (The Society of Pure and Applied Coordination Chemistry) Symposium (Nov. 2014, Japan) (*Invited talk*).
13. T. Yamaguchi, T. Araki, T. Onuma, T. Honda and Y. Nanishi, "Growth of InGaN alloys using DERI method and fabrication of LED structures", Energy Materials Nanotechnology open access week (Sep. 2014, China) (*Invited talk*).
14. K. Narutani, T. Yamaguchi, K. Wang, T. Araki, Y. Nanishi, L. Sang, M. Sumiya, S. Fujioka, T. Onuma and T. Honda, "Growth of pn-GaInN structures by RF-MBE and fabrication of homojunction-type light emitting diodes", 18th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (Sep. 2014, USA).
15. T. Yamaguchi, T. Hatakeyama, Y. Sugiura, T. Onuma and T. Honda, "Growth of α -Ga₂O₃ on α -Al₂O₃ substrate by mist CVD and growth of GaN on α -Ga₂O₃ buffer layer by RF-MBE", 18th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (Sep. 2014, USA).
16. T. Honda, T. Yamaguchi, Y. Sugiura, D. Isono, Y. Watanabe, S. Osawa, D. Tajimi, T. Iwabuchi, S. Kuboya, T. Tanikawa, R. Katayama and T. Matsuoka, "Kelvin

研究成果

① 発表論文

1. R. Oliva, A. Segura, J. Ibanez, T. Yamaguchi, Y. Nanishi and L. Artus, "Pressure dependence of the refractive index in wurtzite and rocksalt indium nitride", *Appl. Phys. Lett.* **105**, 232111/1-3 (2014).

② 国際学会発表

1. T. Yamaguchi, T. Araki, T. Onuma, T. Honda and Y. Nanishi, "Growth and doping of In-based nitride semiconductors using DERI method", The 2015 Materials Challenges in Alternative and Renewable Energy Conference (Feb. 2015, Korea) (*Invited talk*).
2. T. Yamaguchi, T. Araki, T. Onuma, T. Honda and Y. Nanishi, "Progress in InGaN growth by RF-MBE and development to optical device fabrication", SPIE Photonic West 2015 (Feb. 2015, USA) (*Invited talk*).
3. T. Hatakeyama, K. Tanuma, S. Osawa, Y. Sugiura, T. Onuma, T. Hirasaki, H. Murakami, T. Yamaguchi and T. Honda, "Fabrication of α -(AlGa)₂O₃ on sapphire substrate by mist CVD", 10th International Symposium on Semiconductor Light Emitting Devices (Dec. 2014, Taiwan).
4. L. Artus, N. Domenech-Amador, R. Cusco, T. Hatakeyama, T. Yamaguchi and T. Honda, "Raman scattering study of α -Ga₂O₃ single-crystal films grown by mist CVD", Materials Research Society 2014 Fall Meeting (Dec. 2014, USA).
5. D. Isono, S. Fujioka, Y. Sugiura, T. Onuma, T. Yamaguchi and T. Honda, "AR-XPS spectra and band-bending properties of +c, -c and m-GaN surfaces", Materials Research Society 2014 Fall Meeting (Dec. 2014, USA).
6. T. Hatakeyama, K. Tanuma, S. Osawa, Y. Sugiura, T. Onuma, T. Yamaguchi and T. Honda, "Growth of oxide thin films by mist chemical vapor deposition – Application of corundum-structured oxides for growth of GaN –", The 13th International Symposium on Advanced Technology (Nov. 2014, Vietnam).
7. T. Yamaguchi, T. Araki, T. Onuma, T. Honda and Y. Nanishi, "RF-MBE growth of InGaN alloys and fabrication of optical device structures", The Corroborative Conference on Crystal Growth (Nov. 2014, Thailand) (*Invited talk*).
8. D. Isono, Y. Sugiura, T. Yamaguchi and T. Honda, "X-ray photoelectron spectroscopy of C+, C- and M-GaN surfaces", 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (Nov. 2014, Japan).
9. S. Osawa, T. Onuma, T. Yamaguchi and T. Honda, "Interface reaction between Al and N atoms in GaN growth on Al by RF-MBE", 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (Nov. 2014, Japan).
10. Y. Watanabe, S. Osawa, D. Tajimi, T. Hatakeyama, T. Yamaguchi and T. Honda, "Characterization of GaN thin film grown on pseudo Al templates by radio-frequency plasma-assisted molecular beam epitaxy", 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (Nov. 2014, Japan).
11. T. Hatakeyama, K. Tanuma, S. Osawa, Y. Sugiura, T. Onuma, T. Hirasaki, H. Murakami, T. Yamaguchi and T. Honda, "Mist chemical vapor deposition growth of α -(AlGa)₂O₃", 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (Nov. 2014, Japan).
12. T. Yamaguchi, T. Hatakeyama, K. Tanuma, M. Sugimoto, H. Nagai, T. Onuma, M. Sato and T. Honda, "Mist chemical vapor deposition growth of group-III oxides and its growth mechanism", The 21st International SPACC (The Society of Pure and Applied Coordination Chemistry) Symposium (Nov. 2014, Japan) (*Invited talk*).
13. T. Yamaguchi, T. Araki, T. Onuma, T. Honda and Y. Nanishi, "Growth of InGaN alloys using DERI method and fabrication of LED structures", Energy Materials Nanotechnology open access week (Sep. 2014, China) (*Invited talk*).
14. K. Narutani, T. Yamaguchi, K. Wang, T. Araki, Y. Nanishi, L. Sang, M. Sumiya, S. Fujioka, T. Onuma and T. Honda, "Growth of pn-GaInN structures by RF-MBE and fabrication of homojunction-type light emitting diodes", 18th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (Sep. 2014, USA).
15. T. Yamaguchi, T. Hatakeyama, Y. Sugiura, T. Onuma and T. Honda, "Growth of α -Ga₂O₃ on α -Al₂O₃ substrate by mist CVD and growth of GaN on α -Ga₂O₃ buffer layer by RF-MBE", 18th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (Sep. 2014, USA).
16. T. Honda, T. Yamaguchi, Y. Sugiura, D. Isono, Y. Watanabe, S. Osawa, D. Tajimi, T. Iwabuchi, S. Kuboya, T. Tanikawa, R. Katayama and T. Matsuoka, "Kelvin

- force microscopic study on GaN layers grown on (111)Al templates by RF-MBE”, 18th International Conference on Molecular Beam Epitaxy (Sep. 2014, USA).
17. R. Oliva, J. Ibañez, A. Segura, T. Yamaguchi, Y. Nanishi, L. Artus, “Pressure Dependence of the Refractive Index in Wurtzite and Rocksalt InN”, 52th European High Pressure Research Group International Meeting (Sep. 2014, France).
 18. T. Araki, T. Yamaguchi and Y. Nanishi, “RF-MBE Growth of InN and InGaN Ternary Alloys Using DERI”, 19th International Conference on Ternary and Multinary Compounds (Sep. 2014, Japan) (*Invited talk*).
 19. S. Osawa, T. Onuma, T. Yamaguchi and T. Honda, “Thickness dependence of pseudo aluminum templates in growth of GaN by RF-MBE”, The International Workshop on Nitride Semiconductors (Aug. 2014, Poland).
 20. T. Yamaguchi, K. Narutani, T. Onuma, T. Araki, T. Honda and Y. Nanishi, “RF-MBE growth of GaInN films using DERI method and fabrication of p-n homojunction blue-green light-emitting diodes”, The 6th International Symposium on Functional Materials (Aug. 2014, Singapore) (*Invited talk*).
 21. T. Onuma, K. Narutani, S. Fujioka, T. Yamaguchi, K. Wang, T. Araki, Y. Nanishi, L. Sang, M. Sumiya, T. Honda, “Optical properties of GaInN p-n homojunction blue-green light-emitting-diodes”, International Union of Materials Research Societies, International Conference in Asia 2014 (Aug. 2014, Japan) (*Invited talk*).
 22. T. Yamaguchi, T. Onuma, H. Nagai, C. Mochizuki, M. Sato, T. Honda, T. Araki and Y. Nanishi, “RF-MBE growth of group-III nitrides and mist CVD growth of group-III oxides”, Third International Conference on Materials Energy and Environments (Jul. 2014, USA) (*Invited talk*).
 23. T. Yamaguchi, K. Tanuma, T. Hatakeyama, T. Onuma and T. Honda, “Mist Chemical Vapor Deposition Growth of Ga₂O₃, In₂O₃ and Their Alloys”, The 41st International Symposium on Compound Semiconductor (May 2014, France).
 24. T. Yamaguchi, K. Narutani, T. Onuma, T. Honda, T. Araki and Y. Nanishi, “RF-MBE growth of GaInN ternary alloys using DERI method and fabrication of pn-GaInN LEDs”, 2014 International Workshop on Future Energy Materials and Devices (May 2014, Korea) (*Invited talk*).
 25. Y. Watanabe, S. Osawa, D. Tajimi, T. Hatakeyama, T. Yamaguchi and T. Honda, “Fabrication of Pseudo Aluminum Templates on 4H-SiC and Growth of GaN on Pseudo Aluminum Templates by RF-MBE”, 5th International Symposium on Growth of III-Nitrides (May 2014, USA).
 26. K. Narutani, T. Yamaguchi, K. Wang, T. Araki, Y. Nanishi, L. Sang, M. Sumiya, S. Fujioka, T. Onuma, and T. Honda, “RF-MBE Growth of pn-GaInN Structure and Fabrication of Blue-Green Homo Junction-Type Light Emitting Diode”, Conference on LED and Its Industrial Application '14 (Apr. 2014, Japan).
- ③ 国内学会発表
1. 本田徹、山口智広、”窒化ガリウム系発光ダイオードにおける「グリーンギャップ」問題”、JAEA 放射光科学シンポジウム 2015 「環境・エネルギー研究開発における放射光科学」(2015年3月 兵庫) (*招待講演*)。
 2. 高橋幹夫、畠山匠、尾沼猛儀、山口智広、本田徹、”ミスト CVD による α -(AlGa)2O3 混晶成長の基礎検討- α -Ga2O3 と比較した α -Al2O3 の成長速度の検討-”、2015年(平成27年)春季第62回応用物理学関係連合講演会(2015年3月 神奈川)。
 3. 星川侑也、大澤真弥、松本雄大、山口智広、尾沼猛儀、本田徹、”RF-MBE による窒化サファイア基板上アルミニウム薄膜成長”、2015年(平成27年)春季第62回応用物理学関係連合講演会(2015年3月 神奈川)。
 4. 磯野大樹、網谷良介、杉浦洋平、山口智広、本田徹、”n-GaN 結晶の XPS スペクトルにおける内殻準位ピーク非対称性の検討”、2014年(平成26年)秋季第75回応用物理学学会学術講演会(2014年9月 北海道)。
 5. 渡邊悠斗、大澤真弥、尾沼猛儀、山口智広、本田徹、”疑似 Al 基板上 GaN 薄膜のフォトルミネッセンス評価”、2014年(平成26年)秋季第75回応用物理学学会学術講演会(2014年9月 北海道)。
 6. 大澤真弥、渡邊悠斗、尾沼猛儀、山口智広、本田徹、”RF-MBE 法を用いた GaN 成長が疑似 Al 基板に与える影響”、2014年(平成26年)秋季第75回応用物理学学会学術講演会(2014年9月 北海道)。
 7. 山口智広、”光デバイス応用に向けた In 系窒化物半導体 MBE 成長~DERI 法の紹介と様々な応用展開~”、第1回放射光利用研究セミナー(2014年9月 大阪) (*招待講演*)。
 8. 大澤真弥、渡邊悠斗、尾沼猛儀、山口智広、本田徹、”RF-MBE 法を用いた膜厚の異なる Al テンプレート上 GaN 成長”、第6回窒化物半導体結晶成長講演会(2014年7月 愛知)。
 9. 鳴谷建人、山口智広、Ke Wang、荒木努、名西徳之、Liwon Sang、角谷正友、藤岡秀平、尾沼猛儀、本田徹、”RF-MBE 法による GaInN 厚膜成長と pn ホモ接合型 LED の製作”、第6回窒化物半導体結晶成長講演会(2014年7月 愛知)。
 10. K. Narutani, T. Yamaguchi, K. Wang, T. Araki, Y. Nanishi, L. Sang, M. Sumiya, S. Fujioka, T. Onuma and T. Honda, “Blue-green light emitting diodes using pn-GaInN homojunction type-structure”, 33rd Electronic Materials Symposium (2014年7月 静岡)。
 11. D. Isono, R. Amiya, T. Yamaguchi and T. Honda, “AR-XPS spectra of c-, c+ and m-plane n-GaN crystals”, 33rd Electronic Materials Symposium (2014年7月 静岡)。

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: New network so called sensor network has been proposed recently. It connects many sensors via small-scale private wireless network such as ZigBee. 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. Developed measurement systems and fundamental experimental results will be presented.

In sensor network, sensed signals from many sensor nodes distributed in home, office and public places are collected to a center node by small local radio network. It will have a big impact on our lives and grow to be a giant industry in the future. We have proposed a new accurate ultrasonic positioning method which can be installed in sensor network. Ultrasonic continuous waves (CWs) at discrete frequencies which correspond to those of the Inverse Fast Fourier Transform (IFFT) procedure are transmitted. Based on the relative amplitudes and phases between the received and transmitted CWs, the impulse response can be calculated in the center node, which can provide accurate distance information between nodes via many reflecting objects. If we subtract the impulse response at present time from that at the preceding time, we can obtain the change of distances to objects at two different times. By this procedure, we can exclude effects of inactive objects and detect only moving objects. Sensor network such as ZigBee and Z-Wave including these devices will be applied not only to care environment but also home/office monitoring, prevention of crime and watch in hospitals. In this report, both developed measurement systems and basic experimental results will be illustrated.

1. はじめに

20 世紀の末に従来の固定交換方式に代わって、移動交換方式と言われる新しい交換方式を採用した自動車電話のサービスが開始された。21 世紀に入り、基地局と端末を構成要素とする自動車電話のネットワークで使用可能な携帯電話が開始された。メッセージの送受信、カメラ機能、更にインターネットへの接続が可能になり、その後携帯電

話は産業的な側面からも飛躍的な進歩を遂げた。しかし、その後提案された多くの無線システムに関しては、無線 LAN と Bluetooth は普及しているが、その他のシステムには関連産業を牽引するような進展は見られない。移动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动通信

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ー、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、Z-Wave 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、現状筆者等の知るところでは、過去の研究例も含めてこれらの詳細に関する発表例はあまりない。従って、本研究では多くの部分は実際に装置等を組んでの実

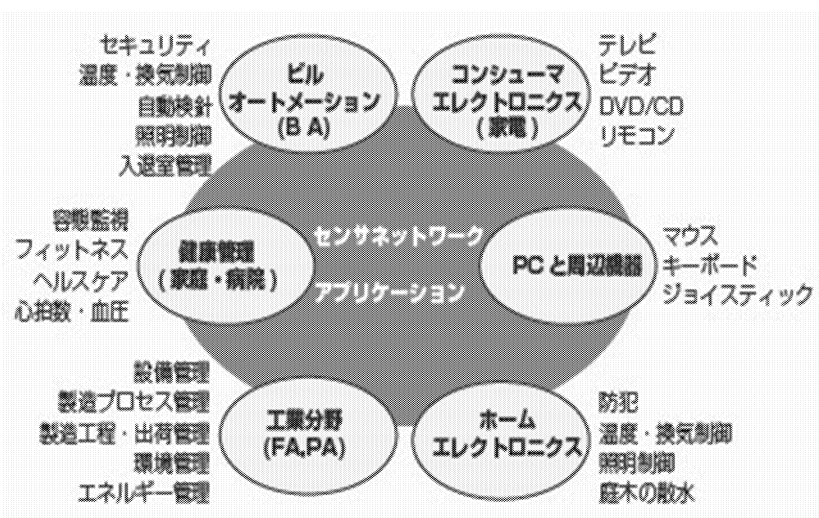
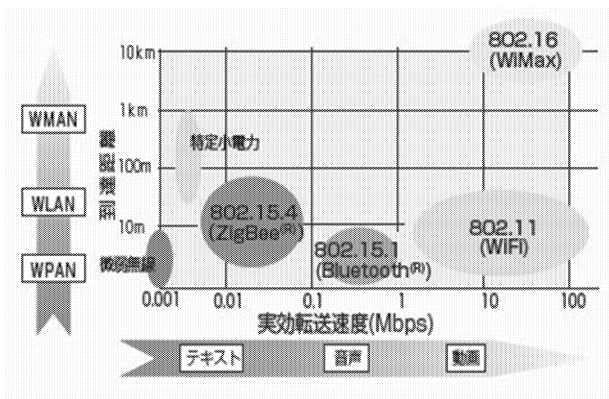


図1 センサネットワークの必要性と将来展望

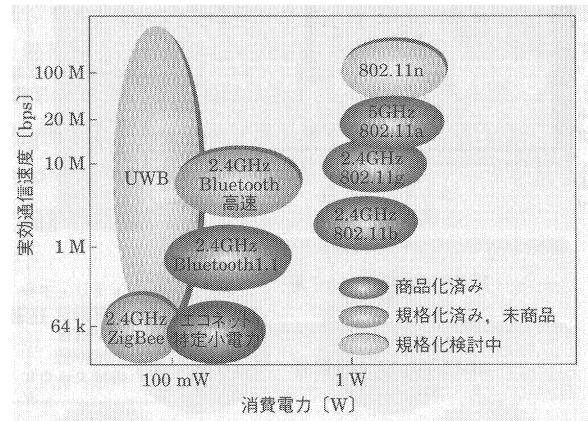
験に頼らざるを得ない。本論文では、ZigBee をベースにして、超音波送受信機能を搭載したセンサノードの構成を提案した。提案に基づき疑似的なセンサノードと同じく疑似的なセンサノードを開発し、その機能確認を行った。また、一部基礎的なレベルも残っているが、開発した装置を部屋を用いた実験系と組み合わせ、データの取得を行った。実験では、本提案の実現性を確認した。本報告では、これ等の結果をまとめた。

表 1 各種無線規格(PHY)と応用分野

System	Features	Application
WLAN (Wireless LAN)	IEEE802.11a/b/g/i, 2.4GHz/5.2-5.6GHz	LAN (Wi-Fi)等、データ伝送等
Bluetooth / Bluetooth Low Energy	IEEE802.15.1, 2.4GHz	マウス-PC通信等、時計-携帯通信等
ZigBee	IEEE802.15.4, 2.4GHz, 65535ノード	センサネットワーク等
Z-Wave	800-900MHz(米、欧州等), 232ユニット	センサデータ伝送、ホームオートメーション
UWB (Ultra-Wide Band)	IEEE802.15.3a, 3~10GHz	未定
BAN (Body Area Network), HBC (Human Body Com.)	IEEE802.15.6, 5~50MHz	ボディ通信、非接触スイッチング等
Transfer Jet	4.5GHz, 560Mbps (誘導電界結合型)	高速インターフェース (USB等)
WiGig (Wireless Gigabit)	60GHz, 7Gbps (~10m程度)	PC-HDTV、プロジェクトアダーデータベース等



(a) 各種無線の通信速度と伝送距離の関係



(b) 各種無線の消費電力と実行通信速度の関係

図 2 各種無線の特徴比較(ZigBeeはセンサネットワークのような低消費電力で通信速度の遅いシステムへの応用を想定している)

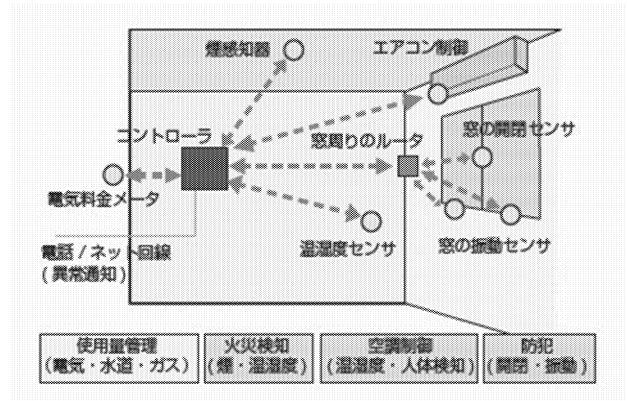


図 3 家庭やオフィスへの応用として従来検討されて来た形態例

2. 携帯以外の無線システムとセンサネットワーク

総務省は、センサネットワークの将来展望を非常に大きな社会的インパクトのあるシステムと考え、図1に示すような概念を提案し、ロードマップ等も示している。我々は将来これ等の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。

表 1 に、提案されているあるいは既に規格化された携帯

電話以外の無線システムの特徴と応用分野を示す。携帯電話は非常に大きな産業に成長したが、携帯電話以外では WLAN、Bluetooth は使用されているが、関連産業を牽引するようなインパクトは小さい。

ZigBee、Z-Wave は上記のセンサネットワーク用として期待は大きいですが、センサネットワーク自体のサービス内容が現状では決して魅力あるものではない。むしろセンサネットワークおよびそれを支える無線システムの発展は、サービス内容の充実に依存する点が大きいと考えられる。その点本研究は、センサネットワークに付加価値を与えるものであり、今後このような提案が多くなされることがセンサネットワークの大きな飛躍には必須の条件である。

ZigBee の周波数帯域は国により種々アサインされているが、日本では 2.4GHz 帯が候補の一つである⁽¹³⁾。Z-Wave は、800-900MHz 帯を用いた ZigBee より簡易なシステムであるがより長距離通信が可能である⁽¹⁴⁾。米、欧州で規格化されているが、日本では対応する周波数帯域には空きがない。図 2(a)に示すように ZigBee は、低レート伝送のため最大 250kbps と低いが、最大の特徴は 1 本のノードは 65,535 本のノードと接続が可能である。また、センサノードは図 2(b)に示すように極めて低消費電力動作が可能であり、単一バッテリーで 1~数年の動作を保証している。これによりセンサノード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。本研究では、ZigBee を基本無線ネットワークとしたセンサネットワークを想定した。新提案の超音波距離計測技術を基に、センサノードで得られたデータを ZigBee でセンターノードへ送り、そこでデータ処理することで、介護環境等における要介護者の動きを検知するものである。

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する場合は、各ノードが内蔵する数~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、逡倍することで数

10kHz の超音波の送信信号を生成する。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⁽¹⁵⁾の一括処理を行う。

図 3 に、特に家庭やオフィスを対象とする場合の、従来検討されて来たセンサネットワークの応用に関する模式図を示す。最近注目されている HEMS (Home Energy Management System)と結び付け、かつスマートメーターなどの技術も導入した新しい構図が検討されているが、必須と言う観点から見ると必ずしも大きなインパクトは期待出来ないと考えられる。本研究はこれらの期待にも応え、センサネットワークの応用と普及に大きく貢献出来る可能性も秘めている。

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

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図 4 に示す (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 5 に示すようにトランスデューサは周波数特性を有すると仮定する。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ット伝達関数 $G(\omega_i)$ 、 $i=1\sim n+1$ 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。従って、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。

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 ($331.45+0.607 \times T_0(^{\circ}\text{C})$ 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⁾。

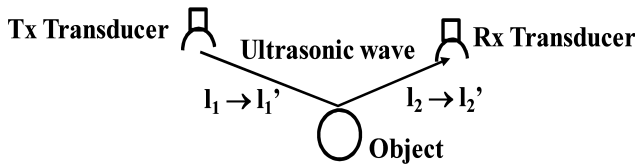


図 4 反射物体を介した超音波の送受信

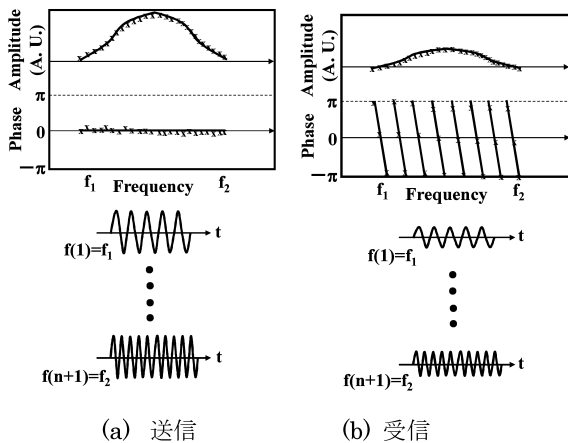


図 5 IFFT 周波数に対応した CW 超音波の送受信

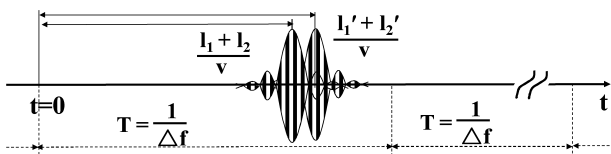


図 6 図 4 の系のインパルス応答(IFFT 処理結果)

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 4 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 6 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、両者の差を取ると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ものである⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽⁹⁾。

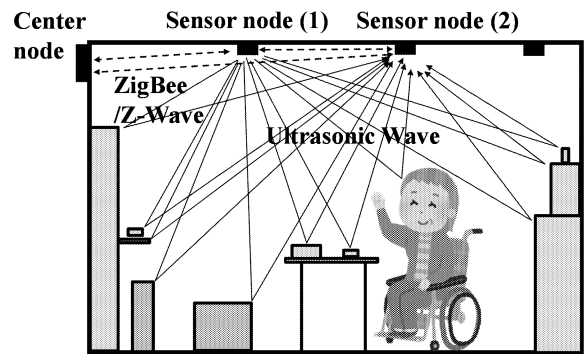


図 7 介護環境への応用例

4. ZigBee をベースとする本技術の介護環境等への応用

図 7 に、ZigBee をベースとするセンサネットワークに本提案技術を導入する場合を模式的に示す。センサノード (1) から超音波を送信、(2) で受信する。受信ノードでは、送信波に対する受信波の相対振幅/位相を測定し、ZigBee を介してセンターノードへ送る。センターノードで 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。異なる時間に対応するインパルス応答の差を求めることにより、時間間での動物体のみを検知するものである。静止物体は、インパルス応答では同じ応答として現れるため差を取ることによって消去される。図では、車いすに乗った老人のみが時間内で移動したとすると、インパルス応答の差には、老人の最初の位置と行き着いた位置の 2 ケの位置に対応するインパルスが現れる。これにより老人の移

動のみをモニターすることが可能となる。

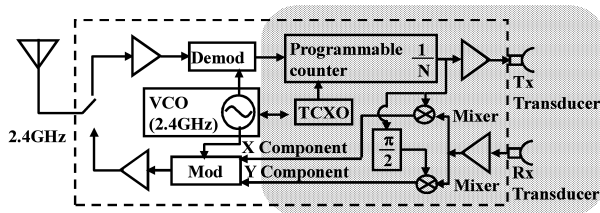


図 8 提案する超音波送受信機能を搭載した ZigBee ベースのセンサノードの構成

5. ZigBee を想定した測定、評価系の構築

5.1. 超音波送受信を搭載したセンサノード構成の提案

図 8 に、ZigBee を想定したセンサノードへ超音波の送受信機能を付加する構成に関して、我々の提案を示した。日本では ZigBee は 2.4GHz 帯の周波数を用いるが、各ノードは基準信号を生成するために TCXO (Temperature Compensated X tal Oscillator) を内蔵している。一般に TCXO は 10 数 MHz 程度の水晶振動子よりなる。例えば、40kHz の超音波を用いる場合は、10MHz 程度の TCXO 出力を分周および通倍することで得ることが出来る。また、受信した超音波から送信波に対する相対振幅と相対位相を求める必要がある。これには、送信信号と受信信号を DBM (Double Balanced Mixer) に入力することで、いわゆる同相成分(I 成分)と直交相成分(Q 成分)を求めることにより特定することが出来る。これらの成分は、データとして 2.4GHz の信号に変調を掛けることでセンターノードへ伝達することが出来る。ただし、情報量的には、相対振幅と相対位相の 2 ケのデータのため極めて容量の少ない伝送路で十分である。この点、ZigBee は伝送速度を低く抑えることで、消費電力も少なく理想的である。

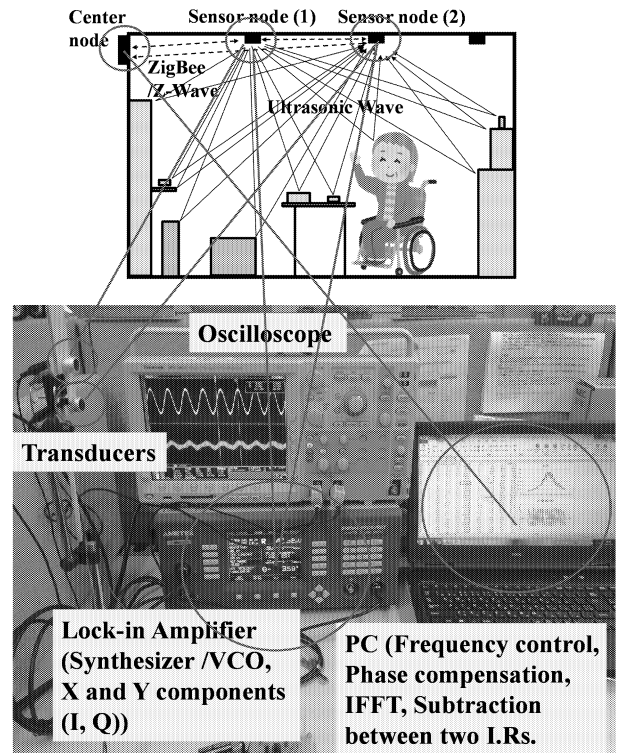


図 9 開発した ZigBee ベースの超音波送受信機能を有する疑似センサノードと IFFT 機能等を有する疑似センターノード

5.2. 実験用の疑似的なセンサノードとセンターノードの開発

図 8 の ZigBee 用センサノードとセンターノードを実際に作成し、本提案の超音波による計測実験を行うのは時間と労力の関係から難しい。今回は、図 8 とほぼ同等の機能を有する疑似的なセンサノードを開発した。更に、図 7 のセンターノードに対応する疑似センターノードも開発し、両者を合わせて実際のセンサネットワークでの計測に極めて近い動作を実現した。ただし、図 7 の ZigBee を用いた Air 部の伝送路は、付帯する装置がかなり必要のため、実験ではケーブルによりセンサノードとセンターノード間を接続することで、等価的に実現した。

図 9 に開発した ZigBee ベースの超音波送受信機能を有する疑似センサノードと IFFT 機能等を有する疑似セン

ターノードを示す。センサノード(1)、(2)には超音波の送受信機能が必要であり、実験では 40kHz の送信と受信トランスデューサを空間に設置することで実現した。また、各ノードは 40kHz を中心に IFFT 周波数に対応する送信用信号を生成する必要がある。これは、ロックインアンプ内のシンセサイザを用いて対応する周波数信号を時系列的に生成することで実現している。

受振トランスデューサからの信号は、送信信号と比較し相対振幅と相対位相を抽出する必要があるが、これはロックインアンプに受信トランスデューサからの信号を再び戻すことにより、ロックインアンプ内の DBM を活用して、送信信号を基本にした受信信号の同相すなわち X 成分(I)と直交相すなわち Y 成分(Q)を求めている。

これらの成分は ZigBee を介してセンターノードへ送られるが、実験ではケーブルを用いて直接センターノードに対応する PC へ伝送している。PC では、ロックインアンプからの受信信号の同相成分(I)と直交相成分(Q)を持ちいて、それらを相対振幅と相対位相に変換し、更に IFFT 処理を加えることでインパルス応答を求めている。また、PC には指定された時間間隔で再び上記の一連の操作を実施するように、ロックインアンプを制御するソフトが組まれている。従って、異なる時間のインパルス応答が自動的に蓄積されることになる。

5.3. 動作確認実験

開発した図 9 の疑似的なセンサノードと疑似的なセンターノードの機能確認を図 10 に示す簡単な実験系を用いて行った。送信トランスデューサと受信トランスデューサを間隔 L だけ離し、送受信トランスデューサ間のインパルス応答を求める。 L を変化させ同様に送受信トランスデューサ間のインパルス応答を求める。更に 2 個のインパルス応答間の差を求めることで、送受信トランスデューサ間の距離の変化を確認した。

図 11(a)に、 $L=160\text{cm}$ の場合のインパルス応答を示す。送受信トランスデューサ間が 160cm であることが明確に

分かる。図 11(b)に、 L を $L=320\text{cm}$ に広げた場合のインパルス応答を示す。超音波の伝搬に伴い振幅は減少するが、送受信トランスデューサ間が 320cm であることが明確に示されている。図 11(c)に、 $L=160\text{cm}$ の場合と $L=320\text{cm}$ の場合のインパルス応答の差を示す。時間を置いて、送受信トランスデューサ間が 160cm から 320cm へ広がった様子が鮮明に表示出来ることが分かった。

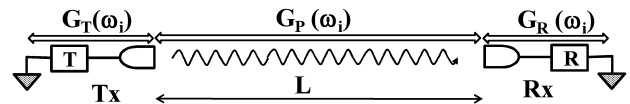
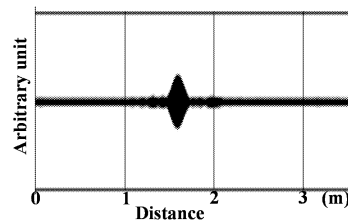
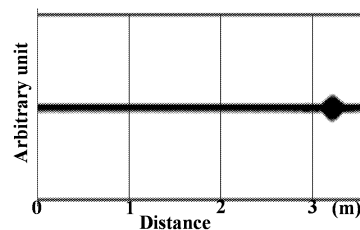


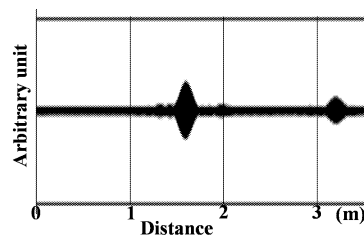
図 10 疑似センサノード、疑似センターノードを用いた確認実験



(a) $L=160\text{cm}$ の場合のインパルス応答



(b) $L=320\text{cm}$ の場合のインパルス応答



(c) $L=160\text{cm}$ と 320cm のインパルス応答の差

図 11 疑似センサノード、疑似センターノードを用いた確認実験の結果(各 L に対応するインパルス応答と 2 つのインパルス応答の差から動きが検知出来る)



図 12 部屋を用いた実験系(疑似センサノードから信号を送信し、受信信号を再び送り返す)

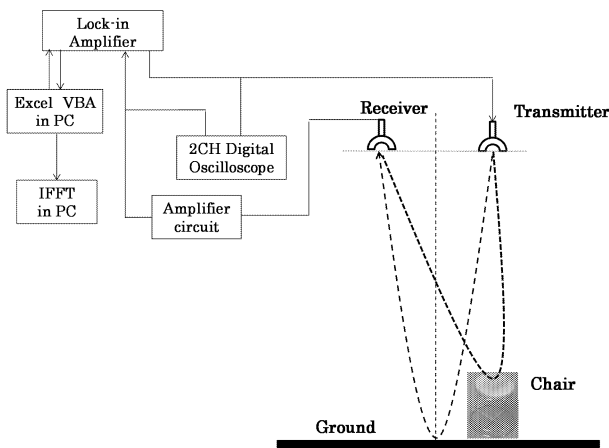


図 13 実験系および送受信トランスデューサ(約 15cm 分離)を含む全測定、評価装置のブロック図

6. 部屋を用いた実験とその結果

6.1. 実験系の構築

図 9 に示した ZigBee ベースの超音波送受信機能を有する疑似センサノードと IFFT 機能等を有する疑似センターノードを用いて室内実験を行った。実験系は新宿校舎 21 階の A2114 室に組んだ。送受信トランスデューサと検

知物である丸椅子の写真を図 12 に示す。図 9 の疑似センサノードと疑似センターノードはかなりの容積を占めるため、別途実験機の上に構築し、送受信トランスデューサとの間はケーブルで接続した。図 13 に全測定系のブロック図を示す。左側半分は図 9 の各ノードに対応し、右側半分は図 12 のトランスデューサと検知物に対応している。

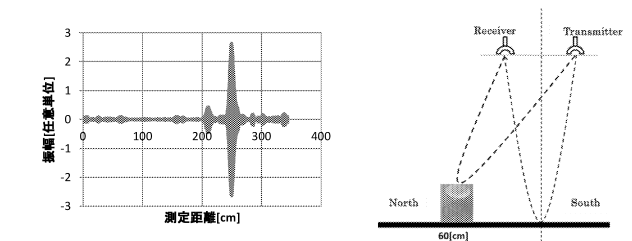
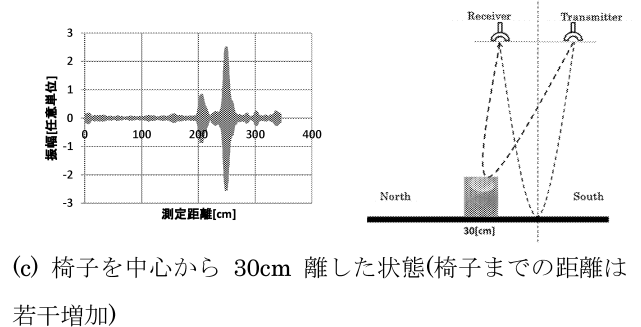
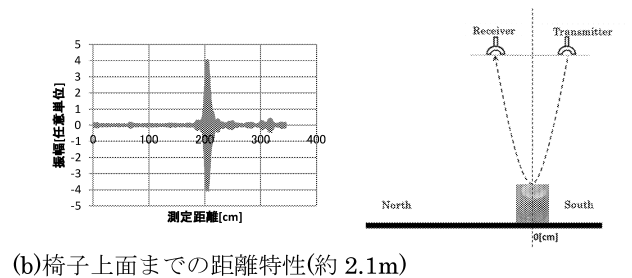
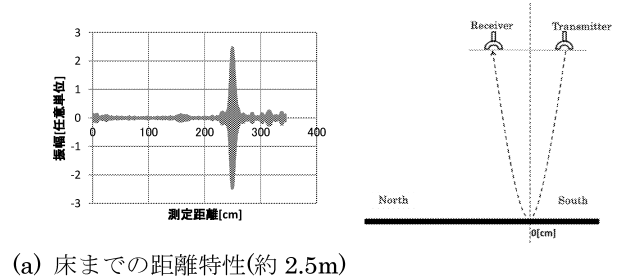


図 14 部屋を用いた実測データ

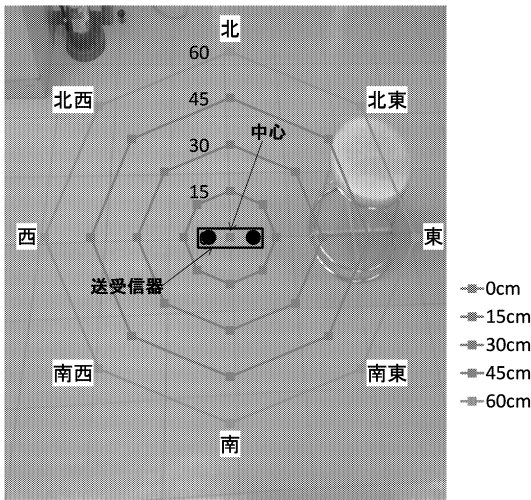
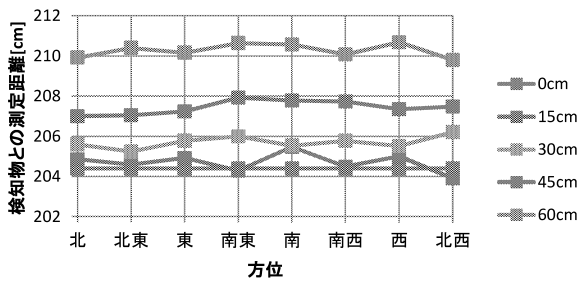
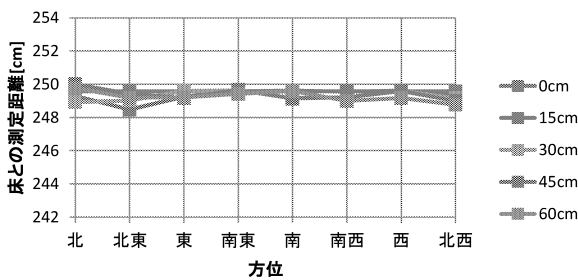


図 15 センサノードを中心に 360°反射物体を周回した実験系



(a) 360°周回に対する反射物体の距離(送受信トランスデューサ間は東西方向に 15cm 離れているため、方位による誤差はわずかであるが生ずる)



(b) 反射物体の 360°周回に対する床までの距離のパラッキ(測定誤差内で一定値が得られている)

図 16 センサノードを中心に 360°反射物体を周回した実験の結果

6.2. 測定、評価結果

図 14(a)に、検知物の無い状態での図 9 の測定/評価系の出力、すなわちインパルス応答を示す。床までの距離約 2.5m に対応してインパルス波形が明確に観測されている。図 14(b)に、検知物である丸椅子を送受信トランスデューサ間の間に置いた場合のインパルス応答を示す。トランスデューサから椅子までの距離約 2.1m に対応して、同様にインパルス波形が明確に観測される。図 14(c)に、椅子を中心から約 30cm 離れた場合のインパルス応答を示す。インパルス波形から、椅子までの距離は若干増加することが分かる。更に、送信トランスデューサからの 40kHz の超音波は椅子に斜めに入射するため、受信トランスデューサへ反射して来る超音波は椅子の座面のふちから主に反射して来るものと考えられる。図 14(b)の座面全体から反射する場合と異なり、距離による変化と反射強度の変化が反映されインパルス波形の振幅は小さくなって現れている。一方、床からの反射は図 14(a)の場合と同じ距離に同じ振幅で現れる。図 14(d)に、更に椅子を中心から約 60cm 離れた場合のインパルス応答を示す。インパルス波形から、椅子までの距離は更に増加することが分かる。また、送信トランスデューサから 40kHz の超音波は椅子へ一層斜めに入射する。送信トランスデューサの指向性と椅子の反射部が更に小さくなるため、インパルス波形の振幅は図 14(c)より小さくなって現れている。

以上の結果から、図 12、13 のように部屋を想定した実験系においても、図 9 の測定/評価系を用いることによって検知物体までの距離特性が極めて正確に把握出来ることが分かった。

図 12 の実験系は、図 15 に示すように送受信のトランスデューサは東西方向に 15cm 離れて設置されている。従って、検知物体である椅子を送受信トランスデューサの周りに 360°周回させ方向による影響を評価した。椅子は中心から、0、15、30、45、60cm 離れて行き、各距離に対して北、北東、東、南東、南、南西、西、北西と 360°周回させてデータを取得した。図 16(a)に、方向に対する距

離特性の実測値を示す。若干のバラツキはあるが、極めて正確に距離把握が可能であることが分かる。図 16(b)に、各条件に対する床の測定値のバラツキを示す。測定誤差内で一定値が得られることを示している。

7. むすび

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。更に、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。センサノードとセンタノードを疑似的に表す測定/評価系を構築し、部屋を用いた実験により本提案の実現の可能性を示した。今後、老人住宅や病室などの現実的な介護環境等を想定した実験系を構築し、更に理想的な条件の下で具体的な評価を行う予定である。

謝辞

本研究の一部は、文部科学省研究費補助(基盤研究(C))および工学院大学プロジェクト研究費の下に行われている。ここに記して、謝意を表する。

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,” 特許番号 5442215 (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.
- [16] 疋田, 佐藤, 金田, “高精度超音波距離計測をセンサネットワークへ導入する研究 —介護環境モニター等への応用を目指して—,” 第 43 回 EM シンポジウム予稿集, pp.5-10, 2014.
- [17] T.Sato, Y.Kaneda and M.Hikita, “Ultrasonic precise distance measurement and movement detection installed in sensor network,” in IEEE Ultrason. Symp. Proc., pp.2466-2469, 2014.
- [18] M.Hikita, T.Sato and Y.Kaneda, “Millimeter-wave-based simulation and basic experiment for ultrasonic radar sensor — Installed in sensor network for care environment —,” Proc. Asia-Pacific Microwave Conf. pp.1348-1350.
- [19] Y.Kaneda, T.Sato and M.Hikita, “Study on movement detection for care environment using precise ultrasonic distance measurement —Comparison between ultrasonic wave and sound wave at upper vocal register—,” Proc. USE, Vol.35, pp.43-44, 2014.

研究成果

① 発表論文

1. Y.Kaneda, T. Sato, M. Hikita, “Study on movement detection for care environment –Comparison between ultrasonic wave at upper vocal register-,” Proc. Symp. Ultrasonic Electronics, Vol.35, pp.43-44, 2014.
2. M. Hikita, T. Sato, Y. Kaneda, “Millimeter-wave-based simulation and experiment for ultrasonic radar sensor –Installed in sensor network for care environment-,” Proc. Asias-Pacific Microwave Conf. pp.1348-1350, 2014.
3. T. Sato, Y. Kaneda, M. Hikita, “Ultrasonic precise distance measurement and movement detection installed in sensor network,” 2014 IEEE Inter. Ultrason. Symp. Proc. pp.2466-2469.
4. 疋田、佐藤、金田、”高精度超音波距離計測をセンサネットワークへ導入する研究－介護環境モニター等をめざして－”EM シンポジウム論文集、pp.5-10, 2014
5. 疋田、飛田、佐藤、”高精度超音波距離計測をセンサネットワークに導入する介護環境モニターの研究(第 1 報)”工学院大学研究報告第 116 号、pp.105-112, 2014.
6. M. Hikita, T. Sato, “Ultraosnic Radar sensor installed in sensor network for care environment,” Proc. Inter. Workshop Ant. and Theory. pp.1-4, 2014.
7. T. Sato, N. Tobita, M. Hiita, “Study on movement detection using precise ultrasonic distance measurement –Application to care environments-,” Proc. Symp. Ultrasonic Electronics, Vol.34, pp.117-118, 2013.
8. 疋田、飛田、”高精度超音波距離計測をセンサネットワークに導入する介護環境モニターの研究” Antenna Propagation 信学技報告、Vol.A-P2012-61, pp.179-184, 2012
9. 疋田、飛田、”センサ・ネットワーク用超音波位置センシング方式の基礎研究(第 2 報)”工学院大学研究報告第 113 号、pp.1-4, 2012.

② 学会発表

1. Y.Kaneda, T. Sato, M. Hikita, “Study on movement detection for care environment –Comparison between ultrasonic wave at upper vocal register-,” Symp. Ultrasonic Electronics, Dec. 2014. (Tokyo, Japan)
2. M. Hikita, T. Sato, Y. Kaneda, “Millimeter-wave-based simulation and experiment for ultrasonic radar sensor –Installed in sensor network for care environment-,” Asias-Pacific Microwave Conf. Nov. 2014. (Sendai, Japan)
3. T. Sato, Y. Kaneda, M. Hikita, “Ultrasonic precise distance measurement and movement detection installed in sensor network,” 2014 IEEE Inter. Ultrason. Symp. Sep. 2014. (Chicago, USA)
4. 疋田、佐藤、金田、”高精度超音波距離計測をセンサネットワークへ導入する研究－介護環境モニター等をめざして－”EM シンポジウム、2014 年 6 月 (東京)
5. M. Hikita, T. Sato, “Ultraosnic Radar sensor installed in

sensor network for care environment,” Inter. Workshop Ant. and Theory. April, 2014. (Sydney, Australia)

6. T. Sato, N. Tobita, M. Hiita, “Study on movement detection using precise ultrasonic distance measurement –Application to care environments-,” Symp. Ultrasonic Electronics, Vol.34, Nov, 2013. (Kyoto, Japan)
7. 疋田、飛田、”高精度超音波距離計測をセンサネットワークに導入する介護環境モニターの研究” 信学会 Antenna Propagation 研究会, 2012 年 8 月 (札幌)

2. 総合研究所プロジェクト研究報告 (2015年度継続研究)

表面ナノ構造を基礎とした機能性薄膜の形成

工学院大学 応用化学科 阿相英孝

工学院大学 環境エネルギー化学科 吉田直哉

工学院大学 環境エネルギー化学科 大倉利典

工学院大学 電気システム工学科 鷹野一郎

芝浦工業大学 材料工学科 湯本敦史

地方独立行政法人 東京都立産業技術研究センター 中村 勲

Fabrication of functional thin films based on nanostructured surface

Hidetaka Asoh, Department of Applied Chemistry, Kogakuin Univ.

Naoya Yoshida, Department of Environmental and Energy Chemistry, Kogakuin Univ.

Toshinori Okura, Department of Environmental and Energy Chemistry, Kogakuin Univ.

Ichiro Takano, Department of Electrical Engineering, Kogakuin Univ.

Atsushi Yumoto, Department of Materials Science and Engineering, Shibaura Institute of Technology

Isao Nakamura, Tokyo Metropolitan Industrial Technology Research Institute

ABSTRACT : Functional thin films with nanostructured surface are expected to be used in various fields such as electrochemical, optoelectrical, magnetical and biological sciences as functional devices. In this study, the fabrication of functional thin films was investigated by two types of approach, that is, wet process (metal-assisted chemical etching, anodic etching, anodizing) and dry process (supersonic free-jet PVD, ion beam assisted deposition). The proposed thin films have potential technological applications in fields that need textured surfaces of controlled morphology on the submicron to nanometer order.

1. はじめに

表面処理の従来の役割は、主に装飾（着色）や防食（防錆）であったが、現在では様々な処理法が開発され、あらゆる産業分野で表面処理技術の重要性が増している。表面処理の目的は、①耐摩耗性や耐食性の付加など従来の基材の保護や機能性向上を図ること、②電気的特性や光学的特性の付加など従来の基材にはない新たな機能を付加すること、の大きく二つに分類される。但し、現状の製品や部品に対して要求される事項は必ずしも1つではなく、複数の要求を満足するためには、数種類以上の表面処理を複合的に組み合わせて対応するのが現状であ

る。そのため、各種材料の表面をナノスケールで制御し、所望の表面特性を発現させるためには、基礎的な知見、実験技術を体系的に整理・活用することが重要な課題である。

そこで本プロジェクト研究では、ナノスケールで表面構造を制御した機能性薄膜の形成を主目的とし、濡れ性、接着性、耐摩耗性、磁性などの表面特性、各種機能をウェットプロセスならびにドライプロセス、それぞれ異なる二つのアプローチによって制御し、分子系、材料系、機械系の連携をベースとして、学内外の研究者間の協力体制のもとに社会ニーズにマッチした研究を展開することを目的として平成25年度より共同研究を開始した。本研究で実施する機能性薄膜の作製法は以下の二つに大別

されるが、機能性薄膜というキーワードのもとに、基礎データ・技術を蓄積し、最終的には研究分野を越え、独自の表面処理技術の確立、新規物性の発現を目標として研究を進めている。

【ウエットプロセス】

アノード酸化、めっき、電解重合、電解析出、ゾル-ゲル法、化学エッチングなど

【ドライプロセス】

真空蒸着、イオンプレーティング、スパッタリング、CVD、溶射、イオン注入、エッチングなど

2. 本研究の目的

本研究では、ナノスケールで表面構造を制御した機能性薄膜の形成を主目的とし、濡れ性、接着性、耐摩耗性、磁性などの表面特性、各種機能をウエットプロセスならびにドライプロセス、それぞれ異なる二つのアプローチで展開し、適宜グループ間の情報提供、技術提供を通じて機能性薄膜作製技術の確立、得られた薄膜を活用した応用研究を模索する。

2-1: ウエットプロセスにより形成したナノポーラス構造表面の濡れ性評価

本研究課題の一つは、ウエットプロセスを用いてナノメートルスケールで幾何学構造、表面粗さ、表面状態などを制御した各種基板を準備し、撥水/撥油性、親水/親油性などの濡れ性に及ぼす基板表面の微細構造の影響を明らかにすることを目的とする。特に、バルク基板ではなく微細な孔を持つ固体基板表面の濡れ性を液滴の「静的」な状態ではなく、「動的」な挙動で評価することを目的とする。一般に固体表面は静的接触角で評価されることが多いが、自己浄化、防汚、刺激応答性表面の創製など実用を考える上では、動的濡れ性の理解が必要である。

2-2: ドライプロセスにより形成した光磁気特性を持つ薄膜の評価

近年、光で制御できる磁性材料のように、光と磁気の関係が注目を集めている。この特性は磁性ナノ粒子による影響を強く受け、このナノ構造が光磁気特性を決定している。本研究では、ドライプロセスを代表するスパッタリング法や真空蒸着法などの基本成膜技術の他に、特徴ある成膜が行える超音速フリージェットPVD法やイオンビームミキシング法を用い磁性薄膜のナノ構造を制御することを目的とする。

2-3: ウエットとドライプロセスの融合によるナノ構造を制御した多機能薄膜の形成

本研究では最終的に、ウエットプロセスとドライプロセスとの融合を図り、光磁気特性、濡れ性、機械的特性などに優れた多機能薄膜の形成を実現させることを目的とする。すなわち、ウエットプロセスで微細加工された構造にドライプロセスで薄膜を形成し、濡れ性や磁気特性の制御、特性改善を図る。また、ドライプロセスで成膜した薄膜にアルミナやチタニアを形成し、ナノポーラ

ス構造をつくることで、濡れ性に対する光磁気応答性を調査する。

3. プロジェクト研究の進捗状況

共同研究者は、学内だけでなく学外の機関にも所属しているため、全メンバーへの情報提供は、基本的に電子メールで行っている。また、学内関係者との打ち合わせは、適宜当事者間で調整して実施している。

<平成26年度に実施した主な打ち合わせ>

- 5月 研究経過に関する打ち合わせ
- 8月 学会発表内容に関する打ち合わせ、ほか
- 9月 学会発表内容に関する打ち合わせ、ほか
- 10月 共同研究内容の論文化に関する打ち合わせ、学会発表内容に関する打ち合わせ、ほか
- 12月 本研究課題の継続申請に関して、ほか
- 1月 予算執行に関して
- 2月 学会発表内容に関する打ち合わせ、ほか
- 3月 学会発表内容に関する打ち合わせ、ほか

研究期間の2年目までは、当初の計画通りに研究が進んでおり、今後も、ウエットとドライプロセスの融合によるナノ構造を制御した多機能薄膜の形成の実現に向けて、定期的に打ち合わせを行い、研究を展開する計画である。本報告では、2014年度の研究成果の一部をそれぞれのグループごとに報告する。

4. ウエットプロセスを中心としたナノ構造制御、表面改質、表面機能化

担当：阿相（本学応用化学科）、吉田、大倉（本学環境エネルギー化学科）

前年度に引き続き、シリコン（Si）表面にマイクロ、ナノメートルスケールでサイズの異なる凹凸構造を作製し、濡れ性に対する微細構造と表面修飾の影響を調べた。

評価対象となる基板には、結晶面（100）のp型シリコン基板（Bドーパ、比抵抗値：1-20 Ω・cm）を用いた。前処理として、アセトン脱脂後、HFまたはピラニア溶液（H₂SO₄：H₂O₂=3:1）に基板を5分浸漬し、表面の自然酸化皮膜を除去した。マイクロサイズの凹凸構造は、試料をNaOH中で5分アルカリエッチングすることで作製した。また、撥水性に対するSi表面の化学的状態の影響を評価するために、アルカリエッチング後、HFに5分浸漬しシリコン表面を水素終端化した試料も作製した。ナノサイズの凹凸構造としては、Ag微粒子を無電解析出後、金属触媒エッチングを施し、ナノサイズの孔径を持つポーラスシリコンを作製した。エッチング時の触媒として用いたAg微粒子は、処理後に試料を硝酸に浸漬することで除去した。金属触媒エッチングを施した試料に対しては、さらにオクタデシルトリメトキシシラン（ODS）を用いて疎水化処理を施した。作製した試料の表面形態は走査型電子顕微鏡（FE-SEM: JSM-6701F）を用いて観察し、接触角・転落角は全自動接触角計（DM-700）を用いて評価した。

図1に種々の処理を施したシリコン表面の濡れ性を水滴の接触角で評価した結果を示す。ピラニア溶液で処理後、OH終端化した平滑なシリコン基板の接触角は45°であった。平滑なシリコン表面に対しアルカリ（NaOH）

エッチングを施すことで結晶異方性エッチングが進行し、高さと幅が 0.5-1 μm のピラミッド型構造を基板全面にランダムに作製した。ピラミッド型構造の接触角は 15° を示し、平滑な Si と比べると表面の粗さが増したために接触角が低くなり、より濡れやすい表面に変化した。

一方、HF で処理し水素終端化した平滑なシリコン表面あるいはピラミッド型構造を形成した後に HF 処理した表面の接触角は、それぞれ 75° 、 83° となった。この結果は、表面の形態だけでなくシリコン表面の化学状態にも濡れ性が大きく影響を受けることを示している。

図 2 に金属触媒エッチングを施したシリコンの SEM 像を示す。基板全面に析出した直径 50-150 nm の Ag 微粒子を用いた金属触媒エッチングにより、孔径が 50-150 nm のポーラス構造をシリコン表面に作製した(図 2 左)。金属触媒エッチングを施すことで基板に対して Ag 微粒子が垂直に沈降し、エッチング時間 1 min の処理で、孔の深さ 3.5 μm のポーラスシリコンが形成された(図 2 右)。さらに、エッチング時間を 10 min に延長することで、ポーラスシリコンの孔の深さは 30 μm に増加した。また、エッチング時間が長くなることで基板最表面における化学溶解も進行し、表面粗さが増加している様子も観察された。

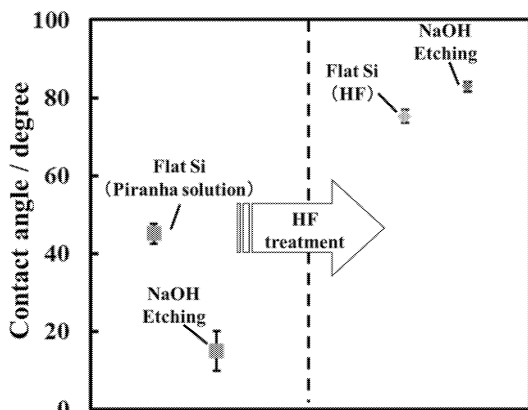


Fig. 1 Changes in water contact angle (WCA) of silicon substrates after various treatment.

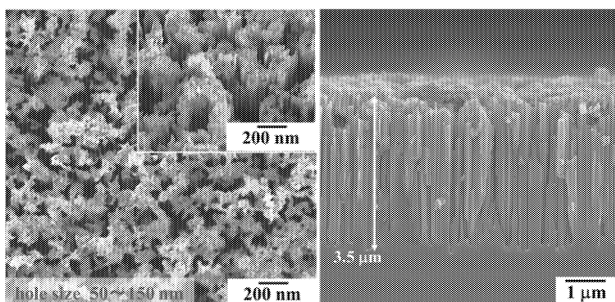


Fig. 2 (left) Plan view and (right) cross sectional SEM images of nanoporous structures formed on Si (100) by metal-assisted chemical etching for 1 min using Ag catalyst.

図 3 (上) にポーラスシリコンに対する静的接触角の測定結果を示す。平滑なシリコンと比べてポーラスシリコンはいずれも接触角が高く (130°), 疎水性を示した。エッチング時間の延長によって孔は深くなり表面は粗雑化した。静的接触角にはほとんど変化がなかった。また、金属触媒エッチング後、ポーラスシリコンを硝酸に浸漬し Ag 微粒子を除去した場合、微細なポーラス構造を維持したまま、接触角は 10° に低下し超親水性を示した。これは硝酸に浸漬したことでシリコン表面が酸化され、 SiO_2 層を形成したためと考えられる。

図 3 (下) にポーラスシリコン上の動的撥水性 (転落角) を評価した結果を示す。静的撥水性に関しては接触角の変化に対する孔の深さと表面粗さの影響は少なかったが、転落角は、孔が深く表面が粗い基板ほど高い値を示した。これは長時間のエッチングで表面粗さが増加したことでピン止め効果が発現し、その効果が転落角に大きく影響したと考えられる。しかし、ODS 処理を施した試料では、ピン止め効果が消失し転落角は 10° 未満となり、高い動的撥水性を示した。なお、これらの結果は複数の国内学会で発表を行った¹⁻⁴⁾。2014 年 12 月に開催された第 6 回大学コンソーシアム八王子学生発表会においては、口頭発表準優秀賞 (産業提案部門) を授与された³⁾。最終年度も引き続き、静的接触角、動的接触角、転落角、転落加速度などから表面の微細構造と濡れ性の関係を総合的に評価・検証する予定である。

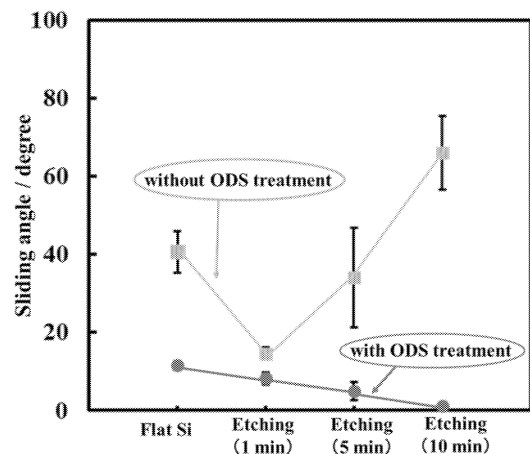
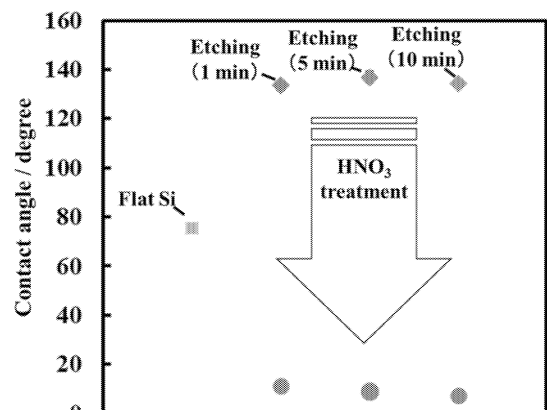


Fig. 3 Changes in WCA (upper) and water sliding angle (lower) of silicon substrates with different nanoporous structures.

5. ドライブプロセスを中心としたナノ構造制御、表面改質、表面機能化

担当: 鷹野(本学電気システム工学科), 湯本(芝浦工大), 中村(都立産業技術研究センター)

HDD などの磁気記録媒体の記録密度を向上させるため、記録層を構成する硬磁性材料のナノ組織化が試みられている。しかし、現在の HDD の記録層として主に用いられている CoPtCr 系合金では粒径 6 nm 以下に微細化させると、磁化状態が周囲からの熱擾乱(熱エネルギー)によって揺らぎ始め、室温で記録したデータが消える熱揺らぎの問題が指摘されている。微細化による磁気エネルギーの低下を抑制するには、材料の磁気異方性を高めることが効果的であり、近年、CoPtCr 系合金よりも結晶磁気異方性エネルギーの大きな材料として L1₀ 型 FePt 規則合金が着目され、次世代 HDD の記録層への応用が盛んに検討されている⁵⁾。

平成 26 年度は、超音速フリージェット PVD によりナノ結晶 FePt 膜の形成を試み、成膜条件が及ぼす FePt 膜の硬磁気特性への影響を評価検討した。

本法により、φ5 mm 板厚 1 mm の A1050 基板に、純度 99.99 wt% FePt (Pt77.74 wt%, Fe22.26 wt%) 合金を波長 532 nm の Q スイッチ Nd:YAG パルスレーザ(周波数 10 Hz)によって加熱蒸発させることで生成した FePt ナノ粒子を、マッハ 4.2 の超音速ガス流により加速、基板にナノ粒子を堆積させることで成膜させた。図 4 に、成膜させた FePt 膜の断面 SEM 写真を示す。図 4 より A1050 基板に膜厚 39 μm の均一な膜が形成されていることが観察された。また、XRD の回折ピークから Scherrer の式により結晶子サイズを算出した結果、結晶子サイズは 5.5 nm であり、本法により緻密なナノ結晶 FePt 膜が成膜できることを明らかとした。

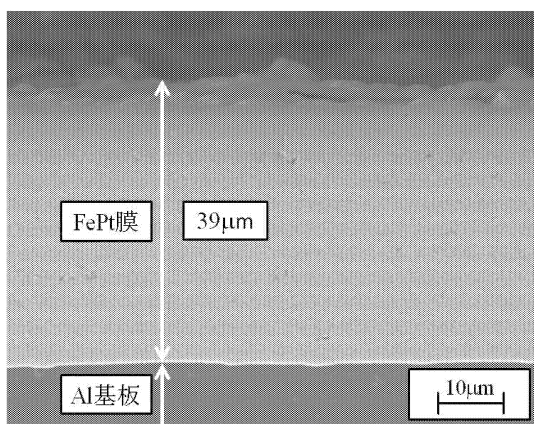


Fig. 4 Cross sectional SEM images of nano structure FePt fim on A1050 substrate.

成膜した試料の一部は、真空ランプ加熱炉による熱処理(昇温 10°C/min, 温度 300~500°C, 保持時間 1 h)を

行い、XRD による構造解析及び SQUID (印加磁場-5T~5T) による磁気特性の評価を行った。熱処理(500°C)前後の FePt 膜の XRD 測定結果を図 5 に示す。図 5 より、熱処理によりブロードな回折ピークから結晶性の高いシャープな回折ピークとなること、ピークが高角側へシフトし、Fe 原子と Pt 原子がランダムに配置された不規則 fcc 構造(JCPDS03-065-9122)から規則化 L1₀ 構造(fct 構造)(JCPDS 03-065-9121)へと変化していることが確認された。

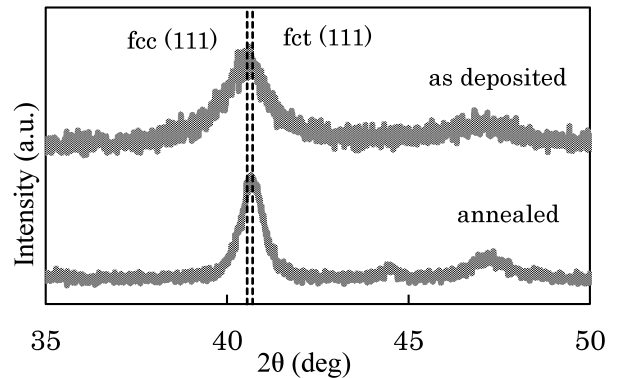


Fig. 5 X-ray diffraction patterns.

また、図 6 に熱処理前後の FePt 膜の磁気特性測定結果を示す。熱処理による fcc 構造から fct 構造への構造変化に伴い、硬磁気特性が飛躍的に向上(保磁力が 0.12 kOe から 8.42 kOe に、残留磁化は 0.85 emu/g から 26.42 emu/g に変化)したことが確認された。

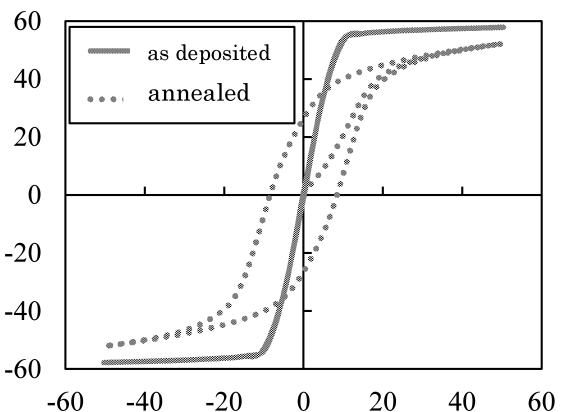


Fig. 6 M-H loops of FePt fim measured by SQUID.

これらの結果は表面技術協会にて発表を行った⁶⁾。最終年度も引き続き、ナノ組織・ナノ構造と膜特性の関係を総合的に評価・検証する予定である。

参 考 文 献

- (1) 町田健太, 阿相英孝, 吉田直哉, 大倉利典, 小野幸子, 表面技術大会第 130 回講演大会 (2014 年 9 月 22 日 京都大学)
- (2) 町田健太, 阿相英孝, 吉田直哉, 大倉利典, 小野幸子, 金属のアノード酸化皮膜の機能化部会 第 31 回 ARS 足柄コンファレンス (2014 年 11 月 20 日 いこいの村あしがら)
- (3) 町田健太, 阿相英孝, 吉田直哉, 大倉利典, 小野幸子, 第 6 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (2014 年 12 月 6 日 八王子市学園都市センター)
- (4) 町田健太, 阿相英孝, 吉田直哉, 大倉利典, 小野幸子, 電気化学会第 82 回大会 (2015 年 3 月 15 日 横浜国立大学)
- (5) 杉山香里, 次世代記録メディア材料として注目される鉄白金合金, ふえらむ Vol.19, No.3, pp162-165 (2014)
- (6) 木下裕輔, 湯本敦史, 表面技術大会第 131 回講演大会 (2015 年 3 月 4 日 関東学院大学)

大学間連携による広域共助システムの構築

工学院大学 まちづくり学科 久田嘉章、村上正浩、平本達也

独立行政法人 防災科学技術研究所 (2013 年度末まで工学院大学) 久保智弘

東北福祉大学 福富哲也、尾形正志、鶉橋徹、渡辺信也、樋口智美、佐藤玲於、結城卓

神戸学院大学 浅野壽夫、前林清和、若菜稔、濱田真由美、信田めぐみ

Study on Effective Cooperative Partnership among Distant Universities

Yoshiaki Hisada, Masahiro Murakami, Tatsuya Hiramoto, Department of Urban Planning, Kogakuin University

Tomohiro Kubo, National Research Institute for Earth Science and Disaster Prevention

Tetsuya Fukutomi, Masashi Ogata, Toru Uzurahashi,

Shinya Watanabe, Tomomi Higuchi, Reo Satoh, Yuuki Suguru, Tohoku Fukusi University

Toshio Asano, Kiyokazu Maebayashi, Minoru Wakana,

Mayumi Hamada, Megumi Nobuta, Kobe Gakuin University

ABSTRACT: We developed and tested an effective cooperative partnership using ITC, which shared the information on the damage and safety during large earthquakes among the three distant universities (Kogakuin, Tohoku Fukusi, and Kobe Gakuin Universities). First, we held workshops for discussing own experiences and effective cooperation methodology, and then developed the information system. Finally, we tested the system during the earthquake drill of Kogakuin University, and discussed how to developed a more effective partnership.

1. はじめに

1995 年阪神淡路大震災や 2011 年東北地方太平洋沖地震の経験を踏まえ、現在では首都直下地震や南海トラフ巨大地震に対する懸念が高まっている。大規模震災が発生した場合、被災地の事業者や大学はライフラインの停止などにより機能不全に陥り、被害状況の把握や関係者の安否確認は非常に困難な状況になる。そこで迅速かつ効果的な対応を行うためには、被災地外の機関との広域連携体制を構築することが必要となると考えられる。

東北福祉大学・工学院大学・神戸学院大学 (以下、TKK3 大学) は、遠隔授業システムによる遠隔授業や夏季集中講義・演習などのための協定を締結しており、教育を中

心とする共助体制を構築している⁽¹⁾。2011 年東日本大震災の際は、仙台市内にある東北福祉大学では、停電やライフライン被害により、周辺の被害情報の把握、原発被害の情報など災害対応に必要な情報が十分に収集できず、速やかな対応を行うことが困難な状況になった。さらに春休みであったため、多くの教職員・学生は国内外に旅行や部活動、就職活動などに出ており、被災した大学での安否確認は困難を極めた。同様に都心にある工学院大学でも長周期地震動等により室内やエレベータが損傷し、また都内の混乱等により速やかな対応は困難になった⁽²⁾。一方、神戸市内の神戸学院大学は平常であり、TKK3 大学

連携により関西旅行に來ている東北福祉大学の学生の安否確認と一時受け入れ実施することができた。さらに震災直後に神戸学院大学・工学院大学の教職員が東北福祉大学を訪問し、備蓄品などの提供や関東・関西方面での学生就職活動、被災地でのボランティアの支援の申し出を行った。特に学生ボランティア活動では、TKK3 大学連携により多くの活動を実施した。また、工学院大学で毎年実施している防災訓練では、東北福祉大学・神戸学院大学の教職員・学生による講演会・実習、訓練の見学、さらに遠隔授業システムを用いた学長等による情報交換なども実施している。安否確認や被災地での状況は、被災地外の大学を拠点とすれば速やかな対応の可能性がある、その後の業務継続やボランティア活動でも被災地外から支援を得る体制とシステムを整え、被災時には速やかに活用することの重要性を認識した。

本研究の目的は、これまで被災の経験を持つ神戸学院大学と東北福祉大学と連携し、災害時の対応や業務継続、社会貢献活動のための経験・ノウハウ^{(3),(4)}と、工学院大学の都市減災研究センター（以下、UDM⁽⁵⁾）等で蓄積した減災のための研究成果^{(6),(7)}を融合し、大学間連携による広域共助システムを構築することにある。昨年度、3大学の減災のための経験・ノウハウの共有を目的として、大学連携による学生・教職員の安否確認、大学業務継続、学生ボランティア活動等を効果的に実施するための広域共助システムの構築に向けたワークショップの実施、および本学の防災訓練において広域共助システムの検証を行った。広域共助システムを用いた災害時の情報共有には、各大学の防災体制や安否確認の方法について共有し、災害時対応のガイドラインを作成し、広域共助システムを情報共有のツールとして活用していく必要がある。本報告では、各大学の防災訓練の見学後に実施した3大学の防災体制に関する意見交換会、昨年度構築した広域情報共助システムを活用した防災訓練、および緊急時の3大学間での連絡体制に関するワークショップについて報告する。

2. 大学間連携による広域共助システムの構築

2. 1 研究概要

本研究では、文部科学省による平成21年度「大学教育充実のための戦略的大学連携支援プログラム」に採択された東北福祉大学、工学院大学、神戸学院大学による大学間連携⁽¹⁾をもとに、より効果的な広域共助体制の構築について検討する。

上記プログラムは、平成21年度から24年度まで文部科学省から助成を受けて、防災・減災、ボランティアを中心とした社会貢献教育の展開を目的に各大学にコーディネートを行うためのセンターを設置し、共同イベントや共通カリキュラムの構築、ボランティアネットワークの構築などを行った。このうち、共通カリキュラムについては、文部科学省からの助成が終了した後も継続的に実施している。

本研究では、このフレームワークを利用した広域共助体制の構築を検討している。初めに各大学のセンター関係者だけでなく、各大学の職員も含めた顔の見える関係を作るためにWSや意見交換会を実施した⁽⁸⁾。次に災害時の連携について実践的な防災訓練を通じて検証を行い、訓練での課題の改善策や次回の連携について、検討会を行った。こういった活動をPDCAサイクルで継続して実施していく計画である。

Fig.1に示すように、本研究はTKK3大学で実施している大学間連携授業やボランティア活動等で蓄積した連携体制を基礎とし、震災の被災経験を持つ神戸学院大学と東北福祉大学における災害時の対応や業務継続のための経験・ノウハウと、工学院大学のUDM等で蓄積した減災のための研究成果を融合し、大学間連携による広域共助システムを構築することを目的とする。平成25年度は、第1回大学連携による教職員ワークショップと、広域共助システムの構築、および3大学協働により広域共助システムを取り入れた防災訓練を実施し、広域共助システムの有効性について検証を行った。

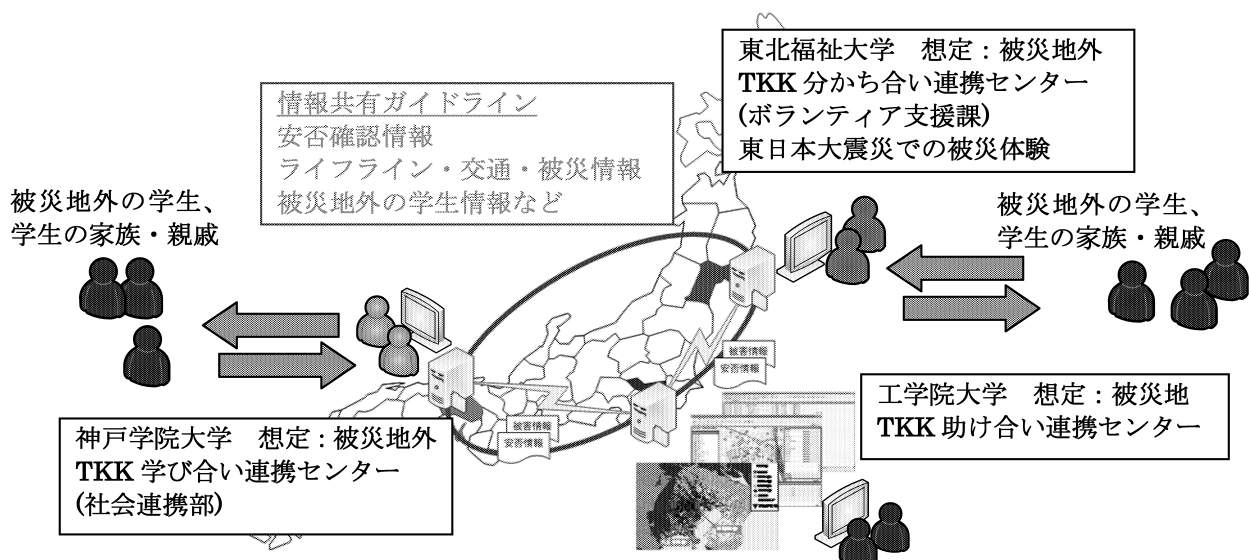


Fig.1 Schematic explanation for effective cooperative partnership among the three distant universities

2. 2 広域情報共助システムについて

災害時に情報共有を行うために、3 大学で共通で利用できる広域共助システムを構築した⁽⁹⁾。災害時に利用するシステムを構築するにあたり、災害時のみの利用ではなく平時から利用することを考え、3 大学連携で通常業務として行っている共同カリキュラム⁽¹⁾での使用をしている (Fig. 2)。安否確認についても、このシステムを利用することで情報を共有することができる (Fig. 3)。PC の専門的な知識がなくとも情報共有ができることを想定し、簡易に情報が共有できるシステムを構築した。また、WordPress を使った情報共有を行うため、平時の利用なども考慮した簡易なマニュアルも作成した。その結果、3 大学連携授業の資料共有や授業映像の共有など平時に利用可能である。

3. 3 大学連携会議と防災訓練について

3. 1 第 1 回 3 大学連携会議

広域共助体制による体制やガイドラインを構築するにあたり、前年度防災訓練の報告や課題等を整理し、安否確認方法や緊急時の連絡体制について議論を積み重ねることが必要である。そこで、2014 年度は、2014 年 6 月 24 日に 3 大学関係者による第 1 回 3 大学連携会議を遠隔会議システムを用いて実施した (Fig. 4)。

2014 年 6 月 24 日に実施した意見交換会では、2013 年度のプロジェクト研究に関する振り返りと防災訓練に関する報告を行った。2014 年度は安否確認の体制を中心に検討することを目的に、各大学の関係者同士がそれぞれの災害時の対応体制を共有するため、安否確認の方法や、東日本大震災時の実施状況に関して報告を行った。

1. 開会のあいさつ
 - 1-1. 本日のワークショップについて
2. 自己紹介(各自 1 分程度)

3. 報告事項

- 3-1. 昨年度 (2013 年度) プロジェクト研究について
- 3-2. 昨年度の訓練報告と今年度の防災訓練の予定

4. ワークショップ

- 4-1. 学生・教職員の安否確認の現状と課題
 - ・学生教職員(学内外)の安否確認の方法
 - ・東日本大震災時の安否確認の実施状況と課題

ブラウザから安否情報を入力。

大学: 東北福祉大 工学院大 神戸学院大

学籍番号:

名前:

安否: 無事です 怪我有、無事です。 助けが必要です

その他(詳細)情報:

大学	学籍番号	名前	所属情報	連絡事項	入力時刻
神戸学院大	0151152	藤田真由	無事	ポータルシステムが正常に動作します。	2013/07/26 PM4:22
工学院大	0012200	久保智弘	無事	怪我有り(爪、怪我)です。	2013/07/26 PM4:57
神戸学院大		高井	無事		2013/11/26 PM4:57
工学院大	0002260	久保智弘	無事	怪我有り(爪、怪我)です。	2013/11/27 PM1:20
神戸学院大	5411270	高井 洋	無事		2013/11/26 PM4:18
工学院大	0a11017	河川内志	無事		2013/11/26 PM4:19
工学院大	0a11189	松山勇気	無事	怪我有り(腕からの出血があり止血剤が塗布されました)	2013/11/26 PM4:21
工学院大	0a11209	藤原聖仁	無事		2013/11/26 PM4:23
工学院大	0012200	久保智弘	無事	怪我有り(爪、怪我)です。	2013/11/26 PM4:23
東北福祉大	0092989	榎野大也	無事		2013/11/26 PM4:22
工学院大	0110062	大野 弘貴	無事		2013/11/26 PM4:23
工学院大	0119962	大野 弘貴	無事		2013/11/26 PM4:23
東北福祉大	0261450	渡邊裕子	無事		2013/11/26 PM4:23
東北福祉大	0243200	澤 道智	無事		2013/11/26 PM4:23
東北福祉大	0253200	藤生 尚子	無事		2013/11/26 PM4:24
工学院大	0a11189	藤原聖仁	無事		2013/11/26 PM4:23
工学院大	0110062	大野 弘貴	無事		2013/11/26 PM4:23
東北福祉大		榎野大也	無事		2013/11/26 PM4:23
工学院大	0110064	本橋直之	無事	3分前メールが送信された。送信メールが届いていないようです。	2013/11/26 PM4:40
東北福祉大	0253200	藤生 尚子	無事		2013/11/26 PM4:42
工学院大	0a11189	藤原聖仁	無事		2013/11/26 PM4:43
工学院大	0a11189	藤原聖仁	無事		2013/11/26 PM4:43
工学院大	0a11189	藤原聖仁	無事		2013/11/26 PM4:43
工学院大	0a11189	藤原聖仁	無事		2013/11/26 PM4:43
工学院大	0a11189	藤原聖仁	無事		2013/11/26 PM4:43
神戸学院大	0111240	高井 洋	無事		2013/11/26 PM4:54
神戸学院大	0111240	高井 洋	無事		2013/11/26 PM4:54
神戸学院大	0111240	高井 洋	無事		2013/11/26 PM4:54
東北福祉大		榎野大也	無事		2013/11/26 PM4:53
東北福祉大		榎野大也	無事		2013/11/26 PM4:46
東北福祉大		榎野大也	無事	先ほど一度送信しましたが、送信できていないので、再送信します。	2013/11/26 PM4:48

Fig.3 ITC system for effective sharing information among distant universities (Top: Input window for safety information, Bottom: Sum table window)

1. 開会のあいさつ
 - 1-1. 本日のワークショップについて
2. 自己紹介(各自 1 分程度)

The image shows two side-by-side screenshots of the Takuakai Server website. The left screenshot displays the general user interface, which includes a header with the site name 'Takuakai Server', a navigation menu, and a main content area with various links and information. The right screenshot shows the administrator dashboard, which includes a sidebar with navigation options, a main content area with a 'ダッシュボード' (Dashboard) section, and a '最近の投稿' (Recent Posts) section.

Fig.2 ITC system for effective sharing information among distant universities (Left: General window, Right: Administer window)

4-2.3 大学広域連携による緊急時連絡網や安否確認の方法について

4-3. まとめ

5. 連絡事項・閉会のあいさつ

第1回3大学連携会議では、各大学の災害時の安否確認方法と東日本大震災時の安否確認方法について共有を行った。

1) 東北福祉大学

東北福祉大学では、東日本大震災時は、被災地の大学として大学内での災害対応活動に合わせて、当時使用していた安否確認システムを利用し確認を行ったがサーバーの遅延などの影響で対象者全員にメールが届くのにかかるの時間を要した。

東日本大震災を機に新たに導入した安否確認システムにおいて学生・教職員が各自システムに登録を行い、災害時には安否確認に関するメールをサーバーから送付し、集計を行う体制となっている。取りまとめは、総務部災害対策課が担当しており、学生は1年生の入学ガイダンス時、および授業や防災訓練等を通じて、安否確認システムの使用方法について周知を行っている。教職員に対しても、都度学内情報サービス等を通じて周知活動を行っており、システム登録の普及率を向上させようと取り組んでいる。

2) 工学院大学

工学院大学では、新宿と八王子でキャンパスが分散しており、それぞれのキャンパスで安否確認の方法が異なっている。新宿校舎では、各フロア単位で学生教職員の安否確認を実施し、その後学科ごとに決められた教室フロアにて再度 IC カードや紙媒体で安否確認を行う。八王子校舎では、各建物単位で安否確認を実施し、その後体育館または総合教育棟で安否確認を行う。防火・防災体制の中心は、防災センター・総務課・施設課が中心となり、新宿・八王子で連携して実施する。

東日本大震災時は、学生を対象に地震発生4日後に学内情報サービス (KUPORT) を通じて安否確認のメールを送信した。教職員に関しては、部署・学科ごとに取りまとめを行い確認した。対象者全員の安否を確認できたのが3/29となり、かなりの時間を要した。教職員に対しての安否確認は、確立されておらず、部署ごとにまとめる以外に緊急連絡網の作成等を検討する必要がある。

3) 神戸学院大学

学内情報サービス (ユニバーサルパスポート) の安否確認システムを使用し、学生・教職員によって安否確認の担当部署が異なる。安否確認メールの送信は総務事務室が実施し、教員の安否確認は総務事務室・各学部長室、職員の安否確認は総務事務室、学生の安否確認については学生支援事務室および各学部長室が行う。

安否確認メールの送信基準は以下の通りである。

【地震の場合】

①近畿2府4県で震度6以上の地震が発生した場合、または近畿2府4県に大津波警報 (津波の高さ3m以上) が発令された場合

②①以外で安否確認メールの送信が必要と学長が判断した場合

【風水害の場合】

①台風 (高波を含む)、大雨、竜巻等により、近畿2府4県で風、水、土砂等による大規模な災害が発生し、重大かつ甚大な被害があった場合

②①以外で安否確認メールの送信が必要と学長が判断した場合

東日本大震災での課題は、回答された安否確認データの集計は、エクセル等で一度データを集計する必要があった。2012年に学内情報サービスが変更され、変更に伴い安否確認システムの変更を行ったことで、集計が学生の場合、学籍番号・学部・学年・指導教官等まで把握できるようになった。



Fig.4 Cooperation meeting by the 2014 project at Kogakuin University (2014/6/24)

3. 2 防災訓練の見学と意見交換会

昨年度挙げられた課題の一つとして、3大学連携を進める上で、本学の防災訓練に、東北福祉大学と神戸学院大学の学生と職員に参加していただき、本学の防災訓練のノウハウを共有していたが、2大学で実施している防災訓練について、直接確認をする機会がなかった、そこで、今年度は各大学の防災訓練に、研究関係者や防災担当職員が見学に向い、交流を図るだけでなく各大学のノウハウや防災訓練に係る体制などについて意見交換会を開催し、情報の共有をした。

1) 東北福祉大防災訓練について

訓練日時：平成26年10月1日 (水) 8:50~14:00

意見交換会参加者：

工学院大学 平本達也 (まちづくり学科)
 神戸学院大学 濱田真由美 (社会連携部)
 東北福祉大学 鶴橋徹 樋口智美 (ボランティア支援課)
 安藤孝宏 結城卓 (総務部災害対策課)

・意見交換会内容

1. 訓練の実施主体について

1-1. 参加部署など防災訓練の規模

- ・運営主体は、総務部災害対策課、防災士研修室、障がい学生支援室、保健室、各部署有志職員、ボランティア支援か、管財部管財課、学生防災士が運営をしている
- ・対象は「リエゾンゼミⅠ」履修学生および担当教職員
- ・「リエゾンゼミⅠ」は1年生対象の必修科目で、学生約10名程度を1グループとして、教職員2名が担当し、学生生活に必要な知識等を学ぶ講義としており、講義の中で、防災の時間を2コマとっているが、その中の1コマを防災訓練に充てている。
- ・学生は全体で1332名、教員114名、職員10名が訓練に参加している
- ・2年生以上の学生も自由に参加することができる
- ・1年生時に必ず体験していることから、懐かしく思い参加してくれる学生もいる

1-2. 防災訓練の周知方法

- ・リエゾンゼミⅠ担当教員に、訓練で使用する名簿などをメールや学内情報サービスを通じて周知している。
- ・その他学生や教職員についても、学内情報サービスを通じて実施することを周知している。
- ・キャンパスの中心部で、ほかの講義が実施されている中で実施することから、学内全体に周知することで先生方の理解を得られるようにしている。

2. 訓練の成果

2-1. 主な防災訓練の方法や検証内容

- ・訓練内容は、緊急避難時の障がい学生への避難行動支援に関する座学や、発災後を想定した体験型の訓練を実施した
- ・東日本大震災までは、避難場所までの避難訓練を実施していたが、実践的な経験や知識を得ることを目的に、避難場所へ集合して安否確認をした後に座学や体験型の訓練をする形式にした
- ・本学で導入されている安否確認システムのテストも訓練時に確認している。システムの利用方法は4月の入学時にもガイダンスしているが、全員が情報登録をしているわけではないので、この機会に改めて利用してもらうようにアナウンスする場となっている。

2-2. 今までの訓練の問題点や成果

- ・リエゾンゼミ担当の教職員や受講している学生以外にも多くの学生や教職員に参加してもらいたいが、なかなか参加率が増えない。ほとんど総務部災害対策課の職員が

中心に運営している。

- ・安否確認システムは、4月だけでなくこの時期にもアナウンスすることで、登録状況が増加し、使い方を知ってもらう良い機会となっている。

2) 神戸学院大学防災訓練について

訓練日時：平成26年10月21日(水)12:00~14:00
 意見交換会参加者：

工学院大学 平本達也 (まちづくり学科)
 遠藤智香 (総務部総務課)
 神戸学院大学 濱田真由美 (社会連携部)
 千原伸郎 飯田正樹 國光渉 武田益尚
 (総務事務グループ)
 東北福祉大学 渡辺信也 (ボランティア支援課)
 結城卓 (総務部災害対策課)

・意見交換会内容

1. 訓練の実施主体について

1-1. 参加部署など防災訓練の規模

- ・ポートアイランドと有瀬で実施主体や規模が異なる
- ・有瀬、総務主体+自衛消防組織
- ・2月に学生と職員合わせて約350名で訓練を実施した
- ・ポートアイランドキャンパスは6つのプログラムで訓練を実施した
- ・自衛消防組織の訓練は、自衛消防組織に所属する47名の職員から、当日24名+警備員を選抜し訓練を行った
- ・ポーアイキャンパスでは、従来職員だけで行っていたが、ポーアイ4大学連携事業の「神戸市夏季防災大学」に合わせて、今年度からポーアイ4大学総合防災訓練と自衛消防組織の訓練を同時に開催した。

1-2. 防災訓練の周知方法・周知内容

- ・有瀬は地震と火災を分けて訓練を実施し、地震に関する訓練の際は安否確認システムも運用しており、実施の周知は学内掲示で対応をしている
- ・ポーアイキャンパスはポスターやチラシなどを配布し周知している
- ・組織自体も職員数の違いに伴いキャンパス毎に異なり、有瀬キャンパスは自衛消防組織が4隊あるが、ポートアイランドキャンパスは1隊となっている
- ・無線機を16台設置し、広大なキャンパスを限られた人数で対応できるように準備している

2. 訓練の成果

2-1. 主な防災訓練の想定内容や検証項目

- ・今年度のポーアイキャンパスは、多数の訓練が同時に進行しているため、特に震度設定や被害想定は設けていない(マスコミ用の資料には南海トラフ地震により震度6強が発生したことを想定したとお伝えしている)
- ・有瀬キャンパスについては、阪神・淡路大震災時のような直下地震を想定し訓練を行った

2-2. 今までの訓練の問題点や成果

(阪神淡路大震災や東日本大震災を経て訓練内容に変化があったか)

- ・南海トラフ地震などの津波により、学生・教職員が帰宅困難となった場合をこれから検討していく
- ・ポーアイキャンパスができてからまだ8年ほどのため、防災対策についてはまだまだこれから
- ・ポーアイキャンパスは、神戸市指定収容避難所にも指定されていることから、地域の方々との関わりも進めていきたい
- ・事務系の女性職員が多いキャンパスのため、先生方にも災害時にはリーダーシップをとっていただきたいと考えている
- ・そのために、先生方のスキルアップや危機管理意識向上のための取り組みを行いたい

2-3. その他

- ・学生消防団が、港島地区の消防団として所属している
- ・災害時は彼らにも活躍してもらうことになるが、学内だけでなく、地域の取り組みにも参加をして、普段から顔の見える関係づくりを構築していきたいと考えている。

3. 3 工学院大学地震防災訓練での検証

昨年度で構築した広域情報共有システムについて、今年度も2014年11月27日(木)に行った工学院大学地震防災訓練の検証を行った。下記に、今回の訓練の想定、訓練内容について記載する。

・訓練の想定について

工学院大学の防災訓練では、首都圏で震度6弱の地震が発生したことを想定して実施される。この地震発生に伴い、工学院大学新宿キャンパスと八王子キャンパスで、自衛消防組織による初動対応や災害対策本部の設置、運営の訓練を実施する。今年度は、東北福祉大学と神戸学院大学の職員及び学生が本学に来校した際に震災にあつたことを想定した。当日の防災訓練の流れを以下に示す。

- 14:10：首都圏で震度6弱の地震が発生
- 14:15：自衛消防隊による自衛消防活動を開始
- 14:25～15：30まで 災害対策本部訓練
- 14:30～16:10：体験型訓練(防災イベント)

・情報共有訓練について

これまで、TKK3 大学連携として、工学院大学の地震防災訓練の機会を利用して、遠隔会議システムによる情報共有を実施してきた。遠隔会議を使った情報共有訓練では、被災地にある工学院大学で、収集した被害状況や協力の支援を被災地外にある東北福祉大学と神戸学院大学に報告・依頼を行い、情報共有を行うものである。年度は、広域共助システムによる情報共有に加え、MCA 無線装置を利用した3大学間での情報共有訓練を実施した。



Fig.5 Earthquake drill of Tohoku Fukusi University



Fig.6 Earthquake drill of Kobe Gakuin University

・想定シナリオについて

発災直後、被災地内の大学では被害状況の把握と災害対応が中心となり、周辺の情報把握が難しい状況である。またライフラインにも被害や通信の輻輳が想定されることから、十分に周辺情報を収集することが難しいと考えられる。そこで、周辺情報について、被災地外から情報共有サーバーにより、被災地内の大学へ共有するシナリオを想定した。シナリオの内容は、発災直後に、震度情報や交通情報を被災地外の2大学でWEBやTVから入手する。次に交通情報や周辺の被害情報について、MCA 無線装置を用いて、被災地内の大学から被災地外の大学へ情報入力の依頼を行い、WEBを通じて入力する。最後に、安否確認について、被災地内いる職員や学生の情報を被災地内の大学で確認しMCA 無線を用いて各大学に伝達するシナリオにした。Table 2 に訓練で使用したシナリオを示す。

・訓練での情報共有について

上述の想定に基づいて、訓練で実際に情報共有を行った。防災訓練では、被災地外の2大学で収集した情報を入力し、被災地内の工学院大学で災害対応に活用した。平常時からファイル共有や記事作成を、3大学連携でホームページとして使用していたシステムのため、防災訓練時に昨年度と別の担当者がシステムを利用しても、通常から活用して操作を行っていたため、防災訓練でも、スムーズに情報の入力を行うことができた。また、MCA 無線装置も情報収集を行うために活用し、訓練中に他大学へ指示をリアルタイムですることができた。

連絡体制の検討を目的としてワークショップを2015年3月9日に遠隔会議システムを用いて実施した。

第2回のワークショップでは、防災訓練見学及び意見交換会の結果報告と、3大学間で利用することを目的に導入したMCA 無線装置を交えた緊急連絡体制の窓口に関する検討を行った。

1. 開会のあいさつ

(工学院大学・久田教授(プロジェクト代表))

1-1. 本日の会議の趣旨について

2. 今年度実施した防災訓練の報告

2-1.3 大学での防災訓練見学の報告

2-2. 防災訓練での課題や気づいた点、改善点等の議論

ホーム 2015年前期TKK連携授業 TKK3大学連携授業 プロジェクト研究のページ 問い合わせ 災害情報共有ページ

災害情報共有ページ

災害時に情報を共有するためのページです。

災害情報共有ページへの5件のコメント



分ち合いセンター東北福祉大学 より:

2014年11月27日 14:34

14:33 東北福祉大学

◆交通情報：地震の影響により、関東地方の公共交通機関は、次の通り運転見合わせとなっております。

【電車】JR東日本、JR東海、私鉄各社、地下鉄(関東地方全線)

【新幹線】東海道新幹線(東京～静岡間)、東北新幹線(東京～宇都宮間)、上越・北陸新幹線(東京～高崎間)

【空線】羽田、成田

◆停電：東京23区の一部

◆通信障害：固定電話、各携帯電話各社(関東の広い範囲)

記入者：東北福祉大学が

ランティア支援課 平田

温原

Fig.5 The emergency operating enter of Kogakuin university during the earthquake drill

3. 4 第2回3大学連携会議について

最後に、各大学の防災訓練の振り返りと3大学緊急時

Table.2 The time schedule for earthquake drill in Kogakuin university (November 28, 2013)

時間	神戸学院大学さん	東北福祉大学さん	工学院大学
	地震発生⇒本学停電で遠隔システムが起動できず、MCA無線とネット環境が整っている想定		
14:30	②からの無線対応 各地の震度状況を記入の依頼が来て情報収集	②からの無線対応 各地のインフラ情報を記入の依頼が来て情報収集	②から個別MCA無線に連絡 神戸学院大学は各地の震度状況を記入してもらおう 東北福祉大学はインフラ等の影響を記入してもらおう
	本震の概要と各地の震度 別紙①防災訓練放送概要を参考に本震の概要と各地の震度を記載	インフラ等の影響 別紙①防災訓練放送概要を参考にインフラ等の影響を記載	
	入力後②の無線へ連絡 入力した旨を伝え、その他必要な情報があればご連絡ください	入力後②の無線へ連絡 入力した旨を伝え、その他必要な情報があればご連絡ください	
			②から個別MCA無線に連絡 こちらにきている2大学の学生さんの状況や今後欲しい状況について伝える
14:50			②から個別MCA無線に連絡 少し大きな余震があったため、引き続き追加情報があればご連絡をお願いしますと指示する
	余震の概要と各地の震度 別紙①の余震(10:21～)の概要と震度を記載	その他情報	別紙①「安倍総理大臣が～」の箇所を記入する
			安否確認の依頼 工学院から2大学へお願いを掲示
	安否情報の協力 工学院大学さんの安否情報について、協力します。西日本にいる工学院の方や工学院大学に連絡のつかない方は下記の連絡先まで安否の連絡をしてください。 078-xxx-xxx 大学間での共有は引き続きMCA無線番号4番〇〇までご連絡ください。	安否情報の協力	工学院大学さんの安否情報について、協力します。北日本にいる工学院の方や工学院大学に連絡のつかない方は下記の連絡先まで安否の連絡をしてください。 022-xxx-xxx 大学間での共有は引き続きMCA無線番号3番〇〇までご連絡ください。
15:00頃	TKK共有訓練終了		
	その後、15:30頃まで工学院大学災害対策本部員が使用テストする可能性があるため、その後も平本から終了の連絡があるまで電源は入れておいてください。		

1) 3 大学での防災訓練見学の報告

東北福祉大学の防災訓練について、1 年生必修科目である「リyezんゼミ I」の講義の中で、「防災・減災教育」の回を利用し、講義を受講している学生と、講義担当の教員及び職員らが協働で防災訓練を実施した。主な訓練内容は、緊急避難時の障がい学生への避難行動支援方法(座学)と発災後を想定した各種体験型訓練及び安否確認システム送受信訓練であった。

3. 3 大学緊急連絡体制について

3-1. 各大学の現状の緊急時連絡先について

3-2. 3 大学緊急時連絡体制の窓口について

4. MCA 無線装置の活用について

4-1. 平時・災害時での活用方法について

4-2. 通信費について

5. まとめ

神戸学院大学の防災訓練については、大学の自衛消防組織の防災訓練とポートアイランドキャンパスの 4 大学による総合防災訓練を同時に実施した。主な訓練内容は、自衛消防組織に所属する職員による、地震・火災を想定した防災訓練を実施し、その他に体験型のイベントを実施した。

工学院大学の防災訓練について、東京湾北部地震により震度 6 弱の地震が発生したことを想定し、新宿校舎・八王子校舎で同時に自衛消防組織による発災対応型訓練や災害対策本部構成員が集合し本部運営の訓練を実施した。

2) 地震防災訓練での課題や気づいた点、改善点などの議論

<東北福祉大学>

- ・1 年次の必修科目として取り入れている
- ・座学が学生の専攻と近く、大学を卒業してからも必要な知識として知ることができる
- ・学生が主体のイベント(救護関連)
- ・教職員や 2 年生以上の学生の参加率
- ・国見キャンパス以外との連携

<神戸学院大学>

- ・津波を想定した訓練や水上消防によるデモンストレーション
- ・IC カードを利用した避難所の運営管理訓練
- ・東北福祉大学のお米を利用した炊き出し訓練により TKK3 大学連携を少し内容に含められた
- ・地域の避難所ともなっていることから地域も巻き込んだ訓練の実施
- ・同時に様々な訓練を実施していることから、被害を想定した訓練がまだできていない

<工学院大学>

- ・フロアサイネージを利用した情報収集訓練

- ・3 大学連携によるイベントや MCA 無線を用いた訓練を実施できた

- ・大学内で災害時の対応が正確に伝わっていない

- ・訓練内容がマンネリ化している

- ・情報収集をする機器が多く、職員が対応しきれない

3) 3 大学緊急連絡体制について

東日本大震災では、東北福祉大学の学生が関西地方に旅行で来ており、その際神戸学院大学で避難や連絡をしていただいた。その経験もあり、TKK 3 大学の学生が集中授業などで外部活動をしている際に被災した大学との連絡を取る体制構築のため、3 大学で緊急時の連絡先を共有するために検討を行う。

○各大学の現状の緊急時連絡先について

工学院大学は、新宿校舎と八王子校舎でわかれて連絡先があり、新宿校舎は平日については TKK 助け合い連携センター、休日・夜間は警備室が担当を予定。八王子校舎については、平日・夜間休日ともに、警備室(5 号館)が担当することを想定している。

神戸学院大学は、TKK 学びあい連携センターがあるポートアイランドキャンパスでの連絡を想定し、平日は TKK 学びあい連携センター、休日・夜間については、中央監視室が窓口となる。TKK 学びあい連携センターは社会連携部に所属しており、TKK スタッフがいない場合も社会連携部職員を通じて伝達をする。

東北福祉大学は、平日・及び休日・夜間は総務部災害対策課が担当をしている。

○3 大学緊急時連絡体制の窓口について

大学として取決めをしないと、警備室から関係部署へ伝わらない可能性もあるため、これを機に各大学で警備室や担当部署へつないでもらえるよう決めていく。

神戸学院大学では、休日・夜間に中央監視室に連絡があった際に、TKK 担当スタッフや総務部に連絡する体制を検討していくが、これから人事異動などがあるため、それが分かり次第の体制構築になる。

東北福祉大学は、平日は災害対策課に連絡することで、TKK 分かち合い連携センターにも情報を伝えることができる。休日・夜間についても、緊急連絡用携帯電話を利用することを考えている。

学生や教職員に今後安否確認時の連絡先として資料を作成し配布して共有していくことを踏まえ、しっかりと連絡先を決めたうえで、次年度以降に各大学の防災訓練での活用も検討する。

TKK3 大学連携プロジェクトは少なくともあと 4 年間は続くが、以降のことについても考えていく必要がある。神戸学院大学では、TKK 関連のスタッフの中に、防災担当の職員が関わっていないため、防災訓練や議論をしても、防災担当部署である総務部に伝わらない部分がある。そのために、担当者レベルでの体制づくりを検討していきたいと思う。東北福祉大学としても、今後 4 年後どうなるかはわからないが、経費の関係で規模は変わっても

定期的な議論を続けていくことはやっていきたい。

4) MCA 無線装置の活用方法について

工学院大学防災訓練で MCA 無線装置のテストを行った。そこで 3 大学間で平時や災害時での活用方法を検討し、今後の 3 大学間連携による情報共有ツールの一つとして体制の検討を実施した。

○平時・災害時での活用方法について

平時では遠隔会議システムを利用した講義を始める際に、システム障害などで接続ができなかった際のシステム担当者間での連絡手段として利用する。また、各大学防災訓練の際に、MCA 無線装置を用いた情報共有訓練を訓練の項目の一つとして取り上げ、緊急連絡先となる窓口間で通信テストを行い、日頃からの使用と災害時での使用テストとして実施する。災害時には広域な被害状況の確認のためや、大学間の情報提供に利用し、遠隔会議システムやその他の通信手段が被災地内の大学で利用できないことを考え、代替手段として活用をする。

MCA 無線の通信をするためのエリアが異なるため、3 拠点による同時の接続はできないが、代替手段としては有効であると考えられる。MCA 無線は、携帯電話と異なり基地局の範囲が広く、全面的に被害があった場合は分からないが、携帯電話や衛星携帯よりは強く、コスト面もある程度抑えられる。

東北福祉大学では連携講義の際に、遠隔会議システムを移動させるときに一緒に持ち歩くことですぐに利用することができる。しかし、訓練では事前に発生することが予知できたため、無線装置をすぐに利用することができたが、何度か利用しないと使い勝手が分からない部分があった。

○通信費について

工学院大学は、TKK 連携事業予算から支出を検討している。TKK プロジェクトは 2018 年度までのため、以降は未定となっている。

神戸学院大学としては、予算として認められれば支出は可能ではあるが、TKK の一つの事業として申請をする必要があると考えられる。TKK の事業として実施するか、今後の体制を見据えて総務部を巻き込んだの予算組みにするかは今後の課題として挙げられる。キャンパス間での無線機は導入しているが、今年度ようやく導入されたものでもあるため、広域で利用できる無線機を担当部署が持つかはまだ検討をする必要がある。企画書などを提出し大学として稟議にあげて検討をする必要がある。

東北福祉大学としては、TKK 連携事業予算として必要があるのであれば、申請書を作成したうえで決裁をしていく。以前、MCA 無線機の導入を検討している、ボランティア活動のため外部(遠方)へいくバスと、大学に設置する本部との連絡手段として検討をしていた。

2015 年度に関しては予算は工学院大学が負担し、2016 年度については今後授業での利用や訓練で活用したうえで、各大学で有用性を認めてもらう必要がある。

4. おわりに

今回、本研究で構築した広域共助体制とそれに伴うシステムについて、工学院大学での地震防災訓練で検証を行い、意見交換会やワークショップで挙げられた課題から緊急時の連絡体制に関して検討を行った。その結果、本研究で構築したシステムを利用することで、災害時の情報共有に利用できることを確認した。2014 年度は、東北福祉大学と神戸学院大学の防災訓練に各大学の研究関係者と防災担当の職員が直接訓練の様子を見学し、意見交換をしたことで、各大学の訓練の特徴を共有することができ、そこで生まれた疑問点も訓練後に実施した意見交換会で共有することができた。3 大学連携を実施してきた中で、顔の見える関係づくりだけでなく広域共助体制の構築や各大学の防災訓練内容について客観的な意見交換をすることもできた。

今後は引き続き各大学での防災訓練について、見学に行くなどの交流を図るとともに、本プロジェクトで導入した MCA 無線や、3 大学連携による学生・教職員用の緊急時連絡網を活用して訓練内容に取り入れ、災害時を想定して利用できるように、構築したシステムとともに継続的に実施していくことが必要である。システムの運用について、災害時の停電などの影響を受けにくくする必要があり、緊急時の連絡体制については 3 大学の担当者だけでなく、大学の総務部や災害時の対応部署を把握し、学生や教職員にも周知をしていく必要がある。

謝辞

本研究で開催したワークショップや防災訓練の実施において、TKK3 大学(東北福祉大学・神戸学院大学・工学院大学)の多くの教職員・学生に協力を頂きました。記して感謝いたします。

参考文献

- (1) TKK3 大学連携プロジェクト
<http://www.kobegakuin.ac.jp/~tkk/>
- (2) 久保智弘、久田嘉章、相澤幸治、大宮憲司、小泉秀斗、東日本大震災における首都圏超高層建築における被害調査と震度アンケート調査、日本地震工学会、日本地震工学会論文集、第 12 巻、第 5 号、pp1-20、2012
- (3) 高橋英彦、東日本大震災 被災地からの報告「災害文化の伝承に必要なこと」、社会貢献学会大会、2012
- (4) 小抜 隆、高橋英彦、東北福祉大学「減災・予防福祉演習」における実践を中心として、社会貢献学会大会、2012
- (5) 都市減災研究センター (UDM)
<http://www.ns.kogakuin.ac.jp/~wwgt024/>
- (6) 久田嘉章、村上正浩、座間信作、遠藤 真、柴山明寛、市居嗣之、関澤 愛、末松孝司、山田武志、野田五十樹、松井宏樹、久保智弘、大貝 彰、地域住民と自治体の協働による発災対応力の向上と効率的な

- 被害情報収集・共有のための防災訓練、日本地震工学会論文集 第9巻2号、pp.130-147, 2009
- (7) 村上 正浩、柴山 明寛、久田 嘉章、市居 嗣之、座間 信作、遠藤 真、大貝 彰、関澤 愛、末松 孝司、野田 五十樹、住民・自治体協働による防災活動を支援する情報収集・共有システムの開発、日本地震工学会論文集 第9巻2号、pp.200-220, 2009
- (8) 渡辺信也、久田 嘉章、大学間連携による災害時支援体制の構築について 3 大学連携によるワークショップの実施、社会貢献学会・第4回大会、2013
- (9) 広域情報共有システム、
<http://tasukeaimap.cc.kogakuin.ac.jp/wordpress/>
- (10) 久保智弘、久田嘉章、村上正浩、大学間連携による広域共助システムの構築について：その1 広域共助システムの構築と情報共有訓練の実施について、日本建築学会、日本建築学会梗概集、学術講演梗概集 2014(構造 II)、135-136, 2014-09-12
- (11) 渡辺信也、久田嘉章、大学間連携による災害時支援体制について、社会貢献学会・第5回大会、2014

【研究成果】

口頭発表

- 平本達也、久田嘉章、村上正浩、大学間連携による広域共助システムの構築について 情報共有訓練と緊急時連絡体制について、社会貢献学会第6回大会（東北福祉大学）、2015年8月
- 渡辺信也、平本達也、久田嘉章、大学間連携による災害時支援体制について、社会貢献学会・第5回大会（神戸学院大学）、2014年11月
- 久保智弘、久田嘉章、村上正浩、大学間連携による広域共助システムの構築について：その1 広域共助システムの構築と情報共有訓練の実施について、日本建築学会、日本建築学会梗概集、学術講演梗概集 2014(構造 II)、135-136, 2014年9月
- 久田嘉章、地域連携による工学院大学における震災対策の取り組み、香川大学事業継続管理シンポジウム 第4回「全学BCP構築に向けて」、2014年3月
- 渡辺信也、久田嘉章、大学間連携による災害時支援体制の構築について 3大学連携によるワークショップの実施、社会貢献学会・第4回大会（工学院大学）、2013年11月
- 村上正浩、久田嘉章、大学が地域社会に対してできること、社会貢献学会・第4回大会（工学院大学）、2013年11月
- 村上正浩、久田嘉章、安心して働き・学び・遊び・集うことのできる新都心・新宿を目指して、社会貢献学会・第3回大会（東北福祉大学）、2012年11月

The new generation thin film Li-ion battery fabricated by molecular precursor method (II)

Mitsunobu Sato, Kogakuin University

Tohru Honda, Kogakuin University

Ichiro Takano, Kogakuin University

Li Lu, National University of Singapore

分子プレカーサー法による次世代薄膜リチウムイオン電池の作製 (II)

工学院大学 基礎・教養教育部門 佐藤 光史

工学院大学 情報通信工学科 本田 徹

工学院大学 電気システム工学科 鷹野 一郎

国立シンガポール大学 機械工学科 呂 力

ABSTRACT : Lithium ion batteries (LIB) were increasing attention, because they are the dominant power sources for most of portable electronics. We reported the transparent thin film LIB with using the ceramic electrodes, $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ (LTO) and $\text{Li}_3\text{Fe}_2(\text{PO}_4)_3$ (LFP) thin films fabricated on fluorinated tin oxide glass electrode, by the molecular precursor method (MPM). In order to develop the micro and transparent LIB, it is necessary to improve the electrochemical performance of the materials for each electrode. This work mainly focuses on the fabrication of and the copper-doped LTO on a SUS substrate by using the MPM. The electrochemical measurements in terms of rate capability and charge-discharge profile are employed to evaluate the battery performance of LTO, copper doped LTO (Cu-LTO) thin films. In the case of Cu-LTO thin films, the plateau was observed at around 1.55 V with 300 mAh/g of capacity. The electric conductivity of the LTO electrode was clearly improved by the Cu dopant.

1. Introduction

Lithium rechargeable batteries using intercalation compounds as the cathode and lithium metal as the anode have been intensively studied during the past decade. However, it has been recognized that this type of battery will unlikely reach commercialization because of safety problems¹⁾. To overcome this problem, a safer approach to rechargeable lithium batteries is to replace lithium metal with a lithium intercalation compound, usually a carbon, leading to the so-called

“lithium ion” batteries, first commercialized in 1990 by Sony Energetic Inc²⁾⁻⁴⁾. The energy density of lithium ion battery with high discharge voltage (3.6 V) is nearly twice as high as the Ni-Cd battery. Excellent cycle life and a higher level of intrinsic safety have been demonstrated¹⁾. Compared to lithium metal batteries, the cathode materials suitable for lithium ion batteries are very highly oxidizing compounds, in order to compensate the loss in cell potential at the anode.

Candidate cathode materials include layered compounds such as LiCoO_2 , LiNiO_2 , and three

dimensional LiMn_2O_4 spinel phase. For practical application, LiMn_2O_4 spinel is a more desirable cathode candidate for Li ion batteries⁵⁾⁻¹⁵⁾, owing to the high cost of cobalt or nickel. Manganese-based materials offer the following advantages: Low cost due to the natural abundance of manganese, lower toxicity and well-known recycling problems. Recent developments of lithium secondary batteries have shown that some 3-D compounds are the most promising cathode materials for secondary lithium ion batteries. Generally, compounds with a 3-D framework are more stable than the two-dimensional compounds. Lithium ion diffusion is clearly easier in 3-D frameworks than in two dimensional structures, because in the former structure the number of contact points of the diffusion paths for lithium ions is unambiguously larger than that in the latter. For instance, the 3-D V_2O_5 and LiM_2O_4 ($M = \text{Ti}, \text{V}, \text{Mn}$, spinel structure) exhibit very interesting lithium intercalation properties¹⁶⁾⁻²⁷⁾. Among them, spinel phase compounds are of extreme interest as the cathode active materials for high energy density rechargeable lithium batteries. Recently, the layered $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_2$ (LNMO) has been extensively studied as a promising cathode material with low cost, nontoxicity, large theoretical capacity (180 mAh/g) in the voltage range of 2.5–4.5 V (vs Li), and good structural stability.

Spinel $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ (LTO) is a promising anode material for lithium-ion batteries. This material exhibits characteristic properties, including very flat discharge and charge curves and a small structural change during charge–discharge processes. The material has a theoretical specific capacity of 175 mAh g^{-1} and exhibits a practical specific capacity as high as 150–160 mAh g^{-1} after 100 deep discharge cycles. During the process of Li^+ intercalation and de-intercalation, the cubic symmetry of the parent spinel is unaffected by lithiation; the lattice parameter (0.836 nm) and unit-cell volume are virtually unaltered by the phase transition. The lack of significant change to the crystallographic parameter is remarkable and provides a structure that is extremely tolerant to electrochemical cycling. At the same time, the improved safety and reliability of the spinel compared with that of carbon electrodes make the lithium-ion batteries using LTO material as anode suitable to electric vehicle and power storage batteries²⁸⁾⁻³²⁾.

We reported the transparent thin film LIB with using the $\text{Li}_3\text{Fe}_2(\text{PO}_4)_3$ for cathode and LTO for anode electrodes fabricated by the molecular precursor method³³⁾. The rechargeable properties of this Li ion battery assembled with the newly fabricated thin films were examined by a repeated charge and discharge test. It is remarkable that synchronously electrochromic reactions can be clearly observed during the charge and discharge operations of the transparent thin-film battery. The MPM is a wet process for the formation of thin films of various metal oxides or phosphates, including titania and calcium phosphate compounds³⁴⁾⁻⁴⁵⁾. This method is based on the design of metal complexes in coating solutions, which have many practical advantages such as excellent stability, homogeneity, miscibility, coatibility, and so on. This is because metal complex anions with high stability can be dissolved in suitable solvents such as ethanol by combining them with the appropriate alkylamines.

Furthermore, the resultant solutions can form excellent precursor films through various coating procedures, including the spin-coating method. A uniform thin film can be easily obtained owing to the stoichiometric quantity of the metal complexes in the precursor solution. Even though multiple metal species are present in the coating solution, uniformity of the resultant oxides or phosphates can be obtained. This is the primary feature of the MPM in thin-film fabrication as compared with a conventional sol-gel method, in which metaloxane polymers with different metal species having specific hydrolytic behaviors need to be prepared in coating solutions. Because the MPM is a solution-based method, it can also be used to fabricate thin films on large-area substrates. In this study, the multi-layering of Cu-LTO and LNMO thin films were examined by the MPM, and the electrical properties of the resulting batteries were measured.

2. Experimental

2.1 Materials

Li_2O , TiO_2 , and CuO precursor solutions (Li^+ , Ti^{4+} , $\text{Cu}^{2+} = 0.5 \text{ mmol g}^{-1}$) were purchased from TFTECH Co., Inc. Other materials were used without further purification. The SUS304 substrate ($\Phi 11 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$) was purchased from Rare metallic Co., Ltd. Celgard 2400 was used as the separator. The electrolyte solution was 1 M LiPF_6 in ethylene carbonate (EC)/dimethyl carbonate (DMC)/diethylene carbonate (DEC) (1:1:1 by weight, DAN VEC).

2.2 Preparation of Cu-LTO precursor solution

The LTO precursor solution was prepared by mixing 2.0 g of the Li_2O precursor solution and 2.5 g of the TiO_2 precursor solution. The Cu-LTO precursor solutions ($\text{Li}_{4-x}\text{Cu}_x\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ ($x = 0.1, 0.2, 0.5$)) were prepared by adding the stoichiometric amount of each precursor solution. The molecular sieves were then added into the precursor solutions.

2.3 Coating and heat-treating procedures

Precursor films were formed by means of spin-coating at ambient temperature using a two-step process: the first step was carried out at 500 rpm for 5 s and the second at 2000 rpm for 30 s for all samples. Each precursor solution (50 μL) was dropped by a micropipette and spin-coated on a $\Phi 11 \text{ mm}$ of SUS304 substrate. The spin-coated precursor films were heat-treated at 550°C for 30 min in air. Respective coating solution was applied to form each layer and the procedures for coating and heat-treatment in air were repeated and finally seven-layered films for Cu-LTO.

2.4 Measurements

The crystal phase of the heat-treated thin films adhered to the SUS substrate was examined using an MXP-18AHF22 (Bruker AXS) X-ray diffractometer, with Cu $K\alpha$ radiation generated at 45 kV and 100 mA. The use of parallel beam optics with an incident angle of 0.3° in the 2θ range of 10–45° was employed in each measurement. The thickness of each film was measured by a stylus profilometer, DEKTAK-3 (Sloan). Half-battery cells were assembled in an argon-filled

glove box using the thin films as the working electrode, metal Li foil as the counter electrode and reference electrode, two pieces of separators (Celgard 2500) and 7–10 drops of electrolyte. Swage-locks were used for half-battery assembling. The charge-discharge tests were carried out using Maccor (SERIES 4000). All the tests were conducted at a constant current density of $5 \mu\text{A cm}^{-2}$ between 1.0 V and 3.0 V, at room temperature. The cyclic voltammogram (CV) and EIS were tested by Solartron (1400 CellTest System).

3. Results

3. 1 XRD patterns of the resulting thin films

Stable precursor solutions for the spin-coating process were facily prepared. The XRD pattern of the resultant thin films that was fabricated on SUS substrate by heat treating the LTO precursor film and copper doped LTO thin films in air is shown in Fig. 1. The peaks at $2\theta = 18.4, 35.6, 43.3, 57.2, 62.8, 66.1, 75.4,$ and 79.4 are assignable to the (111), (311), (400), (511), (440), (531), (622) and (444) phases of LTO, respectively. The peaks at $2\theta = 25.3, 38.6, 48.1,$ and 55.0 are assignable to the (101), (112), (200) and (211) phases of anatase structure, and the peaks at $2\theta = 27.5$ is assignable to the (110) phases of rutile structure, respectively. Cu, Cu_2O and CuO were not appeared in the XRD patterns of the copper doped LTO thin film. Also in this pattern, the peaks assignable to SUS and compound were observed.

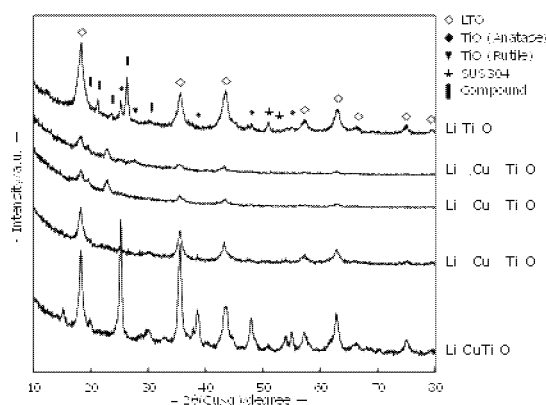


Fig. 1 The XRD pattern of the LTO and copper doped LTO thin film adhered to an SUS substrate. The peaks are denoted as follows:
 ◇: LTO ◆: Anatase ▼: Rutile |: Compound
 ★: SUS

3.2 Impedance results of these thin films

The Li ion conductivity of the resultant thin films was measured by the AC impedance analyzer. Impedance measurements at frequencies from 100 kHz to 10 mHz were performed using a Solartron under ambient temperature. The ionic conductivities at room temperature of the $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{3.9}\text{Cu}_{0.1}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{3.8}\text{Cu}_{0.2}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$, and $\text{Li}_{3.5}\text{Cu}_{0.5}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ are 4.87×10^{-6} , 2.09×10^{-5} , 2.56×10^{-5} and $7.91 \times 10^{-5} \text{S/cm}$, respectively.

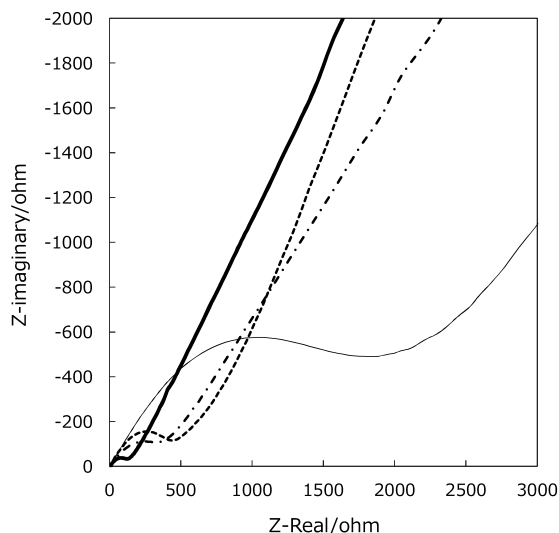


Fig. 2 The Nyquist plot of the LTO and copper doped LTO thin film adhered to an SUS substrate. The lines indicate each film as follows: LTO; — $\text{Li}_{3.9}\text{Cu}_{0.1}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$; ···· $\text{Li}_{3.8}\text{Cu}_{0.2}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$; - - - $\text{Li}_{3.5}\text{Cu}_{0.5}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$; ———, ,

3. 3 Charge and discharge test of the half battery

The electrochemical behaviors of the $\text{Li}_{4-x}\text{Cu}_x\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ ($x = 0, 0.1, 0.2, 0.5$) are characterized by CVs. As shown in Fig. 3 (a–d), respectively, the voltage is scanned from 1 to 3 V, and then back to 1 V. The CVs of all samples show the cathodic/anodic peak (located at 1.63 V/1.51 V for $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$, 1.67 V/1.49 V, 1.25 V for $\text{Li}_{3.9}\text{Cu}_{0.1}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$, 1.65 V/1.52V, 1.27V for $\text{Li}_{3.8}\text{Cu}_{0.2}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$, and 1.63 V/1.54V, 1.26V for $\text{Li}_{3.5}\text{Cu}_{0.5}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ for Li-ion intercalation/de-intercalation reaction in $\text{Li}_{4-x}\text{Cu}_x\text{Ti}_5\text{O}_{12}$.

Fig. 4 shows the first charge-discharge curves at $5 \mu\text{A cm}^{-2}$ obtained with the LTO and Cu-LTO. The main charge-discharge plateau at ca. 1.5 V was observed in all samples, which was in agreement with the CV curve. The capacity performance of LTO was extended by doping the copper, and the capacity of $\text{Li}_{3.5}\text{Cu}_{0.5}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ was twice larger than LTO.

The cycling behavior of the samples between 1.0 and 3.0 V were showed in Fig. 5. It was apparent that the capacity performance and cycling stability were improved by doping the copper. After 45 cycles, the capacity of the pristine LTO is only 71 mAh g⁻¹, while

the capacity of (Li_{4-x}Cu_xTi₅O₁₂ (x = 0.1, 0.2, 0.5, 1) were 80, 153, 186 mAh g⁻¹, respectively. The Li_{3.5}Cu_{0.5}Ti₅O₁₂ showed the best performance having 186 mAh g⁻¹ even after 45 cycles with capacity retention of 65 %.

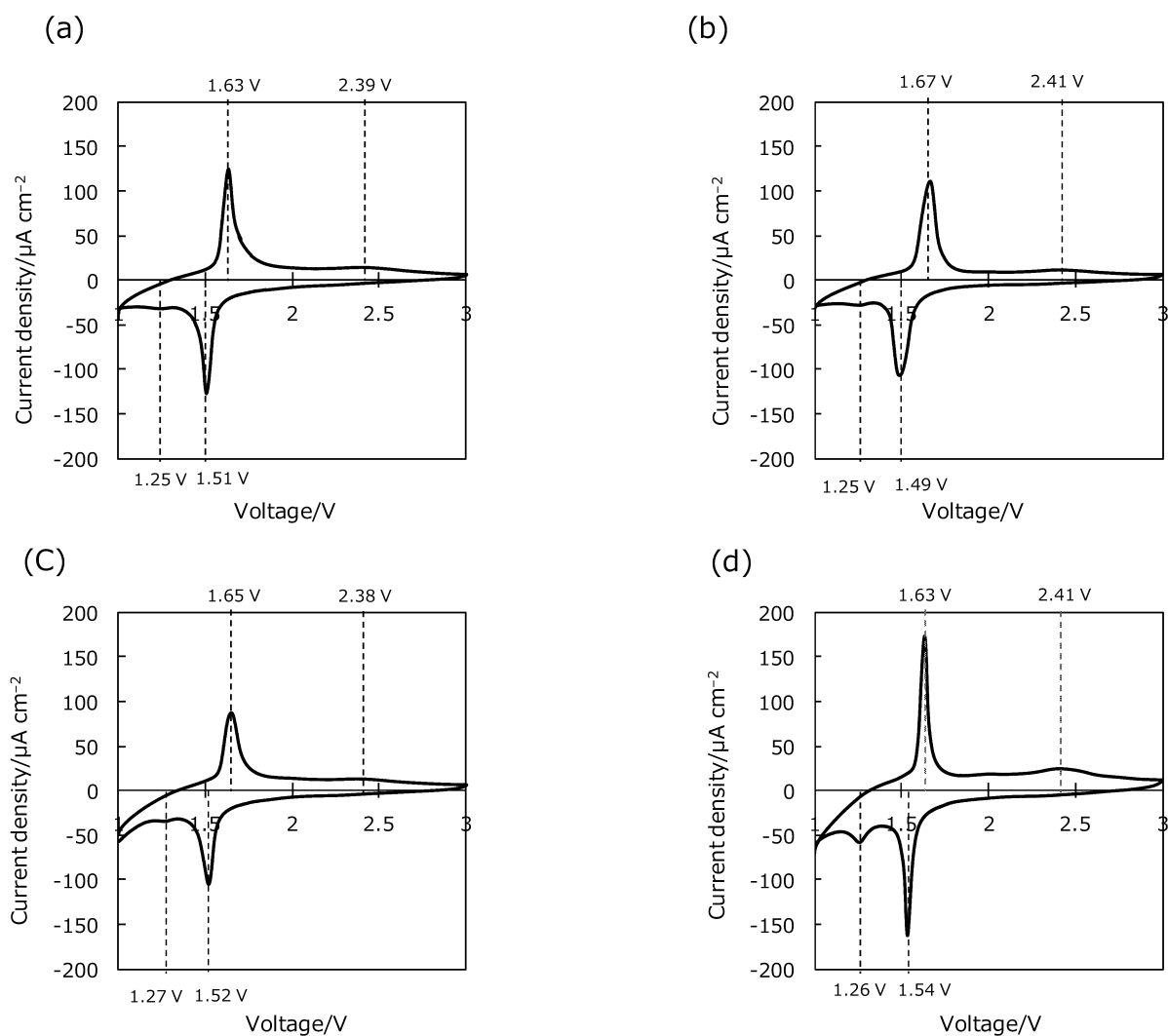


Fig. 3 The electrochemical behaviors of the Li_{4-x}Cu_xTi₅O₁₂ (x = 0, 0.1, 0.2, 0.5) are characterized by cyclic voltammograms. The voltage was scanned from 1 to 3 V, and then back to 1 V. (a) Li₄Ti₅O₁₂, (b) Li_{3.9}Cu_{0.1}Ti₅O₁₂, (c) Li_{3.8}Cu_{0.2}Ti₅O₁₂ (d) Li_{3.5}Cu_{0.5}Ti₅O₁₂ are shown.

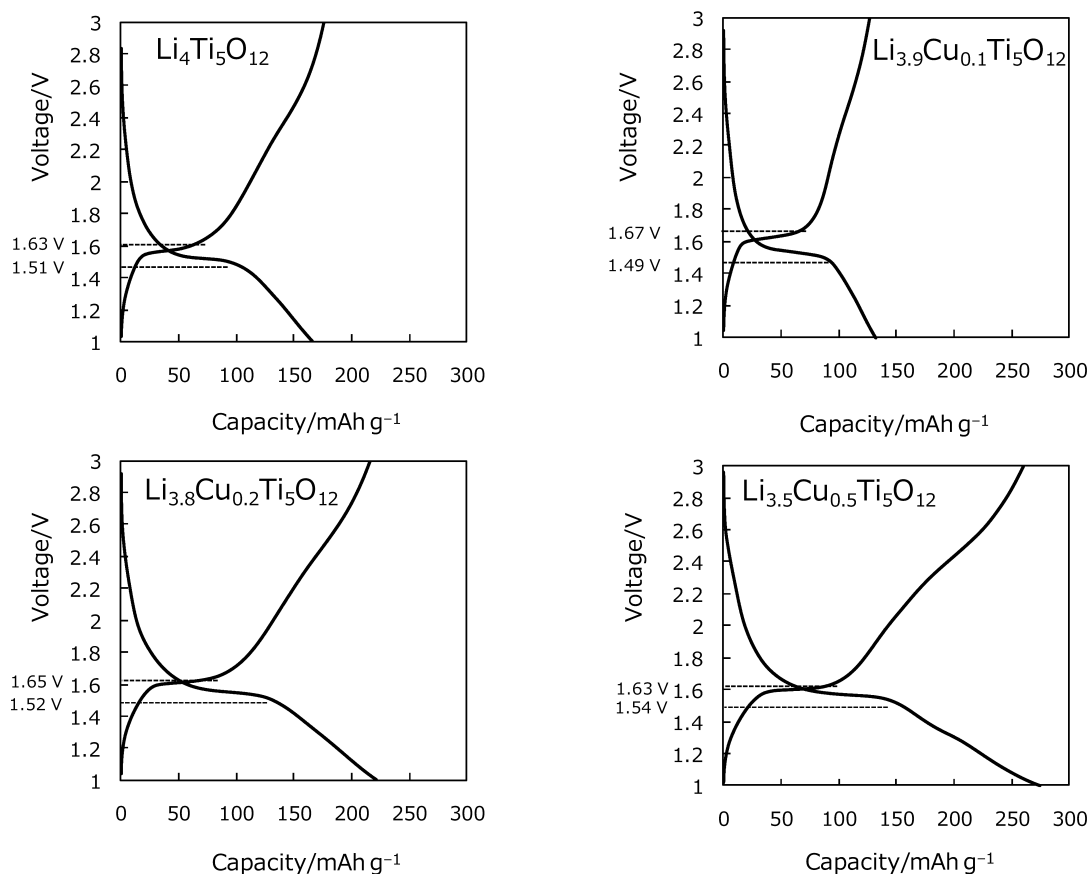


Fig. 4 The first charge-discharge curves at $5 \mu\text{A cm}^{-2}$ obtained with the LTO and Cu doped LTO.

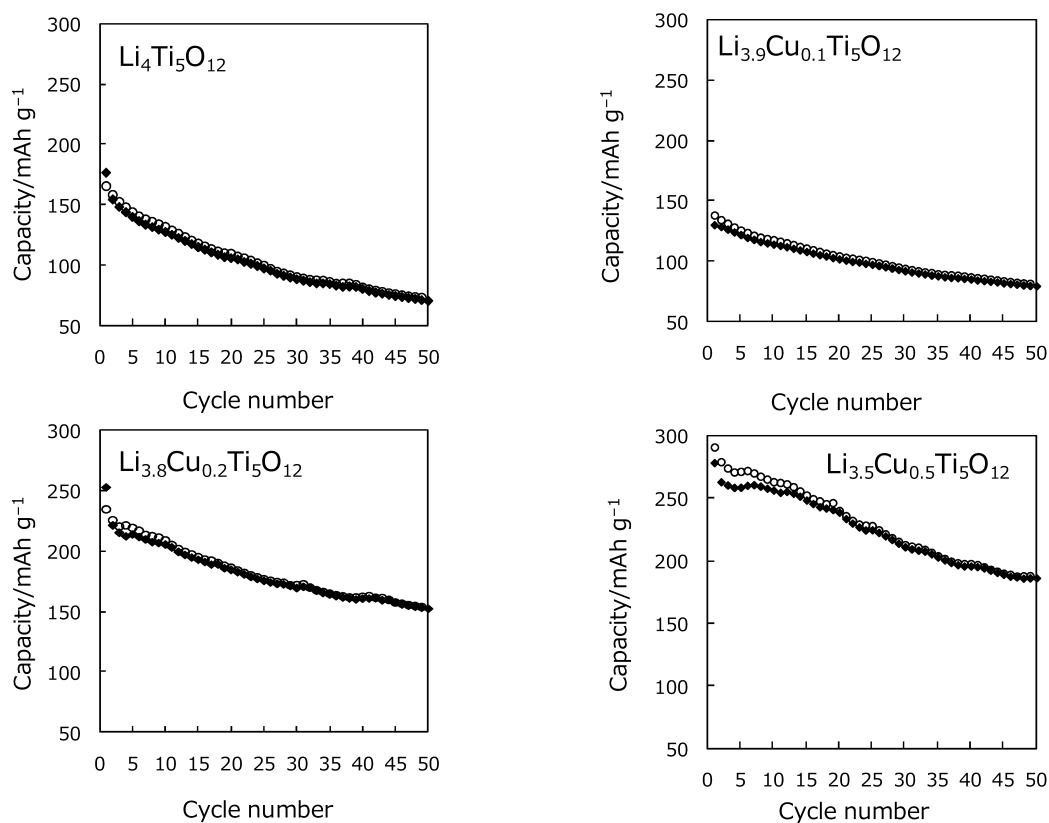


Fig. 5 The capacity performance and cycling stability of $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{3.9}\text{Cu}_{0.1}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$, $\text{Li}_{3.8}\text{Cu}_{0.2}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ and $\text{Li}_{3.5}\text{Cu}_{0.5}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$.

4. Discussion

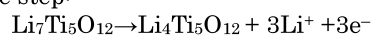
4-1. Fabrication process

The spin-coated precursor films on the SUS substrates were suitable for obtaining the oxide thin films with strong adhesion. The $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ powders are usually synthesized by a solid-state reaction of lithium and titanium salts⁴⁶. However, the solid-state reactions have some disadvantages, such as inhomogeneous distribution, lack of stoichiometric control, and so on. Many procedures for fabricating the LTO usually require the heating temperature higher than 800°C, owing to the thermal decomposition of residual carbonate phases and the completion of the crystallization to $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ phase. However, in the case of MPM, no reaction occurs to produce carbonate species³³. Moreover, many procedures for fabricating the LTO powders require the addition of excess amount of Li. Ge *et al.* reported that the electronic and Li-ion conductivity of $\text{Li}_{4+x}\text{Ti}_{5-x}\text{O}_{12}$ increase with the increasing of doped Li amount, and its cycling stability was influenced when the Li doping was of $x = 0.247$. Thus, it is important to discuss about the effect of doping metals on stoichiometric control.

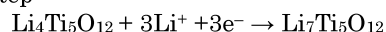
4.2 LTO thin films

The charge-discharge cycling behavior is a typically kinetic-controlled reaction of LTO with a flat charge-discharge plateau at an average potential of 1.55 V (vs. Li/Li^+), which is attributed to a two-phase phenomenon pertaining to $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ phase and $\text{Li}_7\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ one. This intercalation and de-intercalation process can be expressed as follows⁴⁸.

Discharge step:



Charge step:



In the spinel-type lithium titanate, the oxygen framework provides a 3-D network of channels for facile Li^+ diffusion (10^{-8} to 10^{-6} $\text{cm}^2 \text{ s}^{-1}$) and exhibits little or no volume expansion during lithiation. Accordingly, it is acceptable that the good reversibility and the capability prevent from the structural change during lithium insertion/extraction. These properties make it an attractive anode for applications that require a long cycle life. There are no or few side reactions of the used electrolytes directly related to the irreversible capacity and power loss. This allows for the use of nanostructures to improve the rate capability, and the solid electrolyte interphase (SEI) was not formed. The good chemical compatibility, along with the relatively high potential versus Li^+/Li , makes the LTO anode much safer than the carbon-based anodes^{30, 31}.

In these present results, the plateau of the LTO thin films also shows 1.55 V with ca. 30 mAh g^{-1} of capacity. However, the voltage gradually decreased from the 1.55 V. It might be owing to the poor electrical conductivity of the LTO thin films on SUS substrate.

4.3 The effect of Cu-doping

The LTO thin film exhibits poor electrical and lithium ionic conductivities, and then limits its high rate-capability. The electrochemical performance of LTO materials can be improved by doping several kinds of metallic ions, but the interpretation of doping effects is complicated by the interrelations between doping and microstructural changes, since the microstructure formed can be affected by the dopant additions. It has been reported that doping with cations (Mg^{2+} , Ni^{3+} , Al^{3+} , Cr^{3+} , Co^{3+} , Fe^{3+} , Mn^{3+} , Ga^{3+} , Zr^{4+} , Mo^{4+} , V^{5+} , Ta^{5+}) in Li, Ti or O site and incorporation of second phase with high electrical conductivity are effective ways to improve the conductivities, and these can be attributed to the effects of the dopant on the LTO microstructure^{49, 50}.

By the present Cu-doping to LTO thin films, their charge-discharge curves and electrical conductivity were clearly improved. Additionally, the plateau at 1.4 V with ca. 300 mA h g^{-1} of capacity appeared with the doping of 0.5 mol%.

Reference

- (1) M. Wakihara, O. Yamamoto: Lithium Ion Batteries Fundamentals and Performance, WILEY-VCH, (1998).
- (2) D.W. Murphy and J.N. Carides: Low Voltage Behavior of Lithium/Metal Dichalcogenide Topochemical Cells, J. Electrochem. Soc., 126, (1979) pp. 349-351.
- (3) M. Lazzari and B. Scrosati: A Cyclable Lithium Organic Electrolyte Cell Based on Two Intercalation Electrodes, J. Electrochem. Soc., 127, (1980) pp.773-774.
- (4) T. Nagaura and K. Tazawa: Lithium ion rechargeable battery, Prog. Batt. Solar Cells, 9 (1990) 20-29.
- (5) K. Ozawa: Lithium-ion rechargeable batteries with LiCoO_2 and carbon electrodes: the LiCoO_2/C system, Solid State Ionics, 69 (1994) 212-223.
- (6) J.R. Dahn, U. Sacken, M. R. Jukow and H. Al-Janaby: Rechargeable LiNiO_2 / · Carbon Cells, J. Electrochem. Soc., 138 (1991) 2207-2211.
- (7) W. Ebner, D. Fouchard, L. Xie: The LiNiO_2 /carbon lithium-ion battery, Solid State Ionics, 69 (1994) 238-256.
- (8) C. Delmas, I. Saadoune, and A. Rougier: The cycling properties of the $\text{Li}_x\text{Ni}_{1-y}\text{CO}_y\text{O}_2$ electrode, J. Power. Sources, 43-44 (1993) 595-602.
- (9) R. J. Gummow and M. M. Thackeray: Characterization of $\text{Li}_x\text{Co}_{1-y}\text{Ni}_y\text{O}_2$ Electrodes for Rechargeable Lithium Cells, J. Electrochem. Soc., 140 (1993) 3365-3368.
- (10) J. M. Tarascon, E. Wang, F. K. Shokoohi, W. R. McKinnon, and S. Colson: The Spinel Phase of LiMn_2O_4 as a Cathode in Secondary Lithium Cells, J. Electrochem. Soc, 138 (1991) 2859-2864.
- (11) T. Ohzuku, M. Kitagawa and T. Hirai: Electrochemistry of Manganese Dioxide in Lithium Nonaqueous Cell III. X-Ray Diffractational Study on the Reduction of Spinel-Related Manganese Dioxide J. Electrochem. Soc., 137 (1990) 769-775.
- (12) J.M. Tarascon, D. Guyomard: The $\text{Li}_{1+x}\text{Mn}_2\text{O}_4/\text{C}$ rocking-chair system: a review, Electrochim. Acta 38 (1993) 1221-1231.

- (13) J.M. Tarascon, W.R. McKinnon, F. Coowar, T.N. Boowmer, G. Amatucci and D. Guyomard: Synthesis Conditions and Oxygen Stoichiometry Effects on Li Insertion into the Spinel LiMn_2O_4 *J. Electrochem. Soc.*, 141, (1994) 1421-1431.
- (14) D. Guyomard and J. M. Tarascon: The carbon/ $\text{Li}_{1+x}\text{Mn}_2\text{O}_4$ system, *Solid State Ionics*, 69 (1994) 222-237.
- (15) R.J. Gummow, A. de Kock, M.M. Thackeray: Improved capacity retention in rechargeable 4 V lithium/lithium manganese oxide (spinel) cells, *Solid State Ionics* 69 (1994) 59-67.
- (16) D. W. Murphy, P. A. Christian, F. J. Disalvo, and J. V. Waszczak: Lithium incorporation by vanadium pentoxide, *Inorg. Chem.*, 18 (1979) 2800-2803.
- (17) P. G. Dickens, S. J. French, A. T. Hight, M. F. Pye: Phase-relationships in the ambient-temperature $\text{Li}_x\text{V}_2\text{O}_5$ system ($0.1 < x < 1.0$), *Mater. Res. Bull.* 14 (1979) 1295-1299.
- (18) C. Delmas, S. Brethes and M. Ménétrier: $\omega\text{-Li}_x\text{V}_2\text{O}_5$ - a new electrode material for rechargeable lithium batteries, *J. Power Sources*, 34, (1991) 113-118.
- (19) K.M. Abraham: Status of Rechargeable Positive Electrodes for Ambient Temperature Li Batteries, *J. Power Sources*, 7, (1981/82) 1-43.
- (20) Li Guohua, H. Ikuta, T. Uchida and M. Wakihara: The Spinel Phases $\text{Li}_M\text{Mn}_{2-y}\text{O}_4$ ($M = \text{Co}, \text{Cr}, \text{Ni}$) as the Cathode for Rechargeable Lithium Batteries, *J. Power Sources*, 54 (1996) 178-182.
- (21) M. Wakihara, H. Ikuta and T. Uchida: Nickel Chevrel-phase sulfides $\text{Ni}_y\text{Mo}_6\text{S}_{8-z}$ and $\text{Ni}_y\text{Mo}_6\text{S}_{8-z}\text{O}_n$ as the cathode of lithium secondary batteries, *J. Power Sources*, 43-44 (1993) 651-655.
- (22) S. Yamaguchi, T. Uchida and M. Wakihara: A Rechargeable Lithium Battery Employing Cobalt ChevrelPhase Compound as the Cathode, *J. Electrochem. Soc.*, 138 (1991) 687-689.
- (23) W. Wakihara, T. Uchida, K. Suzuki and M. Taniguchi: A rechargeable lithium battery employing iron Chevrel phase compound ($\text{Fe}_{1.25}\text{Mo}_6\text{S}_{7.8}$) as the cathode, *Electrochim. Acta*, 34 (1989) 867-869.
- (24) H. Xia, L. Lu and Y. S. Meng: Growth of layered $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_2$ thin films by pulsed laser deposition for application in microbatteries, *Appl. Phys. Lett.*, 92, (2008) 011912.
- (25) B. Wang, J.B. Bates, F.X. Hart, B.C. Sales, R.A. Zuhr, J.D. Robertson: Characterization of Thin - Film Rechargeable Lithium Batteries with Lithium Cobalt Oxide Cathodes, *J. Electrochem. Soc.*, 143 (1996) 3203-3213
- (26) Y. Zhou, H. Li: Sol-gel template synthesis and structural properties of a highly ordered $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_2$ nanowire array, *J. Mater. Chem.*, 12 (2002) 681-68
- (27) S. Lai, C. Hu, Y. Li, D. Luo, M. Cao, Z. Yu, H. Liu: Preparation and properties of $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_2$ thin films by spin-coating for lithium micro-batteries, *Solid State Ionics*, 179 (2008) 1754-1757.
- (28) K.M. Colbow, J.R. Dahn, R.R. Haering: Structure and Electrochemistry of the Spinel Oxides LiTi_2O_4 and $\text{Li}_{4/3}\text{Ti}_{5/3}\text{O}_4$, *J. Power Sources*, 26 (1989) 397-402.
- (29) M. Nishizawa: Measurements of Chemical Diffusion Coefficient of Lithium Ion in Graphitized Mesocarbon Microbeads Using a Microelectrode, *Electrochemi. Solid State Lett.*, 1 (1998) 10-12.
- (30) T. Ohzuku, Y. Iwakoshi, K. Sawai: Formation of Lithium-Graphite Intercalation Compounds in Nonaqueous Electrolytes and Their Application as a Negative Electrode for a Lithium Ion (Shuttlecock) Cell, *J. Electrochem. Soc.*, 140 (1993) 2490-2497.
- (31) K. Zaghbi, M. Armand, M. Gauthier: Electrochemistry of Anodes in Solid-State Li-Ion Polymer Batteries, *J. Electrochem. Soc.*, 145 (1998) 3135-3140.
- (32) E. Ferg: Spinel Anodes for Lithium-Ion Batteries, *J. Electrochem. Soc.*, 141 (1994) 147-150.
- (33) H. Nagai, H. Hara, M. Enomoto, C. Mochizuki, T. Honda, I. Takano, and M. Sato: Synchronous Electrochromism of Lithium Ion Battery with Chemically Fabricated Transparent Thin Films, *Funct. Mater. Lett.* 6 (2013) 1341001-1341008.
- (34) M. Sato, H. Hara, T. Nishide, Y. Sawada: A Water-resistant Precursor in a Wet Process for TiO_2 Thin Film Formation. *J. Mater. Chem.*, 6 (1996) 1767-1770.
- (35) T. Nishide, M. Sato, H. Hara, Crystal Structure and Optical Property of TiO_2 Gels and Films Prepared from Ti-edta Complexes as Titania Precursors, *J. Mater. Sci.*, 35 (2000) 465-469.
- (36) M. Sato, H. Hara, M. Kuritani, T. Nishide: Novel Route to Co_3O_4 Thin Films on Glass Substrates via N-alkyl Substituted Amine Salt of Co(III)-EDTA Complex. *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 45 (1997) 43-49.
- (37) M. Sato, T. Tanji, H. Hara, T. Nishide, Y. Sakashita: Sr TiO_3 Film Fabrication and Powder Synthesis from a Non-polymerized Precursor System of a Stable Ti(IV) Complex and Sr(II) Salt of edta, *J. Mater. Chem.*, 9 (1999) 1539-1542.
- (38) H. Nagai, C. Mochizuki, H. Hara, I. Takano, M. Sato: Enhanced UV-sensitivity of Vis-responsive Anatase Thin Films Fabricated by Using Precursor Solutions Involving Ti Complexes. *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 92 (2008) 1136-1144.
- (39) H. Nagai, M. Hasegawa, H. Hara, C. Mochizuki, I. Takano, M. Sato: An Important Factor Controlling the Photoreactivity of Titania: O-deficiency of Anatase Thin Film, *J. Mater. Sci.*, 43 (2008) 6902-6911.
- (40) H. Nagai, S. Aoyama, H. Hara, C. Mochizuki, I. Takano, N. Baba, M. Sato: Rutile Thin Film Responsive to Visible Light and with High UV Light Sensitivity, *J. Mater. Sci.*, 44 (2009) 861-868.
- (41) H. Nagai, S. Aoyama, H. Hara, C. Mochizuki, I. Takano, T. Honda, M. Sato: Photoluminescence and Photoreactivity Affected by Oxygen Defects in Crystal-oriented Rutile Thin Film Fabricated by Molecular Precursor Method, *J. Mater. Sci.*, 45 (2010) 5704-5710.
- (42) D. S. Likius, H. Nagai, S. Aoyama, C. Mochizuki, H. Hara, N. Baba, M. Sato: Percolation Threshold for Electrical Resistivity of Ag-nanoparticle/Titania Composite Thin Films Fabricated Using Molecular Precursor Method, *J. Mater. Sci.*, 47 (2012) 3890-3899.
- (43) C. Mochizuki, Y. Sasaki, H. Hara, M. Sato, T.

- Hayakawa, F. Yang, X. Hu, H. Shen, S. Wang: Crystallinity Control of Apatite through Ca-EDTA Complexes and Porous Composites with PLGA., *J. Biomed. Mater. Res. Part B* 90 (2009) 290-301.
- (44) T. Honda, T. Oda, Y. Mashiyama, H. Hara, M. Sato: Fabrication of *c*-axis Oriented Ga-doped MgZnO-based UV Transparent Electrodes by Molecular Precursor Method, *Phys. Status. Solidi.*, 7 (2010) 2471-2473.
- (45) H. Nagai and M. Sato: Heat Treatment in Molecular Precursor Method for Fabricating Metal Oxide Thin Films"Heat Treatment - Conventional and Novel Applications, *InTech*, Chapter 13 (2012) 103-128.
- (46) J. Wang, H. Zhao, Q. Yang, T. Zhang, J. Wang, *Electrochemical, Ionics*, 19 (2013) 415-419
- (47) Study on the effect of Li doping in spinel $\text{Li}_{4+x}\text{Ti}_{5-x}\text{O}_{12}$ ($0 \leq x \leq 0.2$) materials for lithium-ion batteries
- (48) X. Sun, M. Hegde, Y. Zhang, M. He, L. Gu, Y. Wang, J. Shu, P. V. Radovanovic B. Cui: Structure and Electrochemical Properties of Spinel $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ Nanocomposites as Anode for Lithium-Ion Battery, *Int. J. Electrochem. Sci.*, 9 (2014) 1583-1596.
- (49) T. F. Yi, L. J. Jiang, J. Shu, C. B. Yue, R. S. Zhu, H. B. Qiao: Recent development and application of $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ as anode material of lithium ion battery, *J. Phys. Chem. Solid.*, 71 (2010) 1236-1242.
- (50) J. Wang, H. Zhao, Q. Yang, T. Zhang, J. Wang: Electrochemical characteristics of $\text{Li}_{4-x}\text{Cu}_x\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ used as anode material for lithium-ion batteries, *Ionics*, 19 (2013) 415-419.

八王子市犬目町地域の理科教育に果たした齋藤家の 役割に関する基礎的研究

工学院大学 基礎・教養教育部門 数馬広二
工学院大学 基礎・教養教育部門 吉田司雄
工学院大学 基礎・教養教育部門 榎本淳一
工学院大学 工学部 環境エネルギー化学科 釜谷美則
工学院大学 総務・人事部付 酒井智晴
工学院大学 科学教育センター 若松昭秀
八王子市郷土資料館 紺野英二
八王子市郷土資料館 加藤典子
国立国会図書館 河村真澄
飯能市郷土館 宮島花陽乃
小島資料館 小島政孝

Basic Research on roles of the Saito Family to contribute to the spread of science education for Inume-machi and its neighboring area of Hachioji city, Tokyo from the end of Edo era to Showa era.

Koji Kazuma, Division of Liberal Arts, Kogakuin University
Morio Yoshida, Division of Liberal Arts, Kogakuin University
Junichi Enomoto, Division of Liberal Arts, Kogakuin University
Minori Kamaya, Department of Environmental and Energy Chemistry,
Kogakuin University
Tomoharu Sakai, Department of General Affairs, Kogakuin University
Akihide Wakamatsu, Science Education Center, Kogakuin University
Eiji Konno, Hachioji City Historical Musium
Noriko Kato, Hachioji City Historical Musium
Masumi Kawamura, National Diet Library
Kayano Miyajima, Hanno Municipal Musium
Masataka Kojima, Kojima Musium

ABSTRACT :

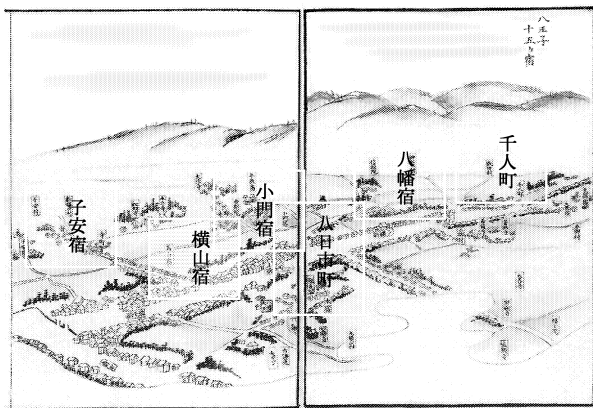
1. This study aims to investigate roles of the Saito Family to contribute to the spread of science education for Inume-machi of Hachioji city from the end of Edo era to Showa era.
2. At the end of Edo era, the Saito Family in Inume-machi was one of the *Hachioji Sennin-Doshin* and the village head of Inume. *Hachioji Sennin-Doshin* were employed by Tokugawa for the defense of the Edo Castle.
3. The collection of the Saito family contains old documents about their agricultural administration in Edo era, letters written in the same period, books since Meiji era, swords, instruments for chemical experiments, samples of stone relics as well as clothes, and so forth. Until 2014, we have made lists of 5,053 items of the collection.
4. The contents of the documents includes *Hatamoto*, *Sennin-doshin*, their land governance and situations of the Shimo-inume village of the time, *Kenjutsu (Japanese fencing)* school and Memorandum which was written by Saito family after exploration for the remains of neighboring villages.
5. The research group assumes there are several reasons why the Saito family could take advantages of getting the leading edge scientific (technological) information from Edo, supposedly the most advanced information

center at that time. The first reason is that the Saito Family was one of *Sennin-Doshin* throughout the Edo era. Secondly, they had learned *Ohira-Shinkyō-Ryu Kenjyutsu* (one of the Japanese fencing schools) and they occasionally visited a training center of the school in the Edo area. Then finally, being the village head of Inume might have allowed them to have easy access to the information from Edo.

6. With these backgrounds, the Saito family could contribute to the spread of science education for *Inume-machi*, which led Satoshi Saito, an offspring of the Saito family, to be assigned as a teacher of *Kawaguchi Seinen Gakko* (a school for youth after elementary education) during Showa era.

1. はじめに

工学院大学犬目キャンパスが所在する東京都八王子市犬目町に、江戸時代より住居する斎藤家を対象とする本研究プロジェクトの2014年度分の成果を報告する。江戸時代、武蔵国多摩郡犬目村は戸数94戸余り、前田家支配を上犬目、川村家支配を下犬目といった。斎藤家は下犬目村名主を務め、また江戸幕府の防衛拠点として甲州街道八王子宿に配備された軍事組織「八王子千人同心(組頭)」の家格を元禄12年(1699)以来、江戸時代の終わりまで、約170年間保った。



八王子十五宿 (武蔵名勝図会 国立公文書館蔵) より

その家格により、江戸幕末の社会情勢に敏感で、それがゆえに近代においても地域でのすぐれた指導者となり得たと考えられる。斎藤家には、一万点に及ぶ文書のほか、理科実験道具や古代遺跡から出土した石などの標本、織物生地サンプルなどがある。明治40年～大正2年に記された『石器時代代遺跡探検記』も確認される。2014年度は、斎藤家文書の目録化、斎藤家文書における武術流派—大平真鏡流—との関わり、理科教育に関する資料の確認を行った。

2. 斎藤家文書の目録化

文書目録作りの方法については①文書の埃や

砂塵の除去、②重なった文書の剥離、③文書内容の解読、④文書表題の決定、⑤通し番号の作成、⑥B4サイズのケント紙封筒に文書一枚ずつ封入、⑦データ入力」という作業工程で行われた。なお、これらの作業は、古文書を破損せずに扱いつつ、古文書を読解するという、特殊技能を要する。

本プロジェクト以前に、2011年度より整理を開始し、2012年度末時点で近代書4,578冊と、近世文書1,900点の文書目録(仮)をまとめた。本プロジェクト1年目(2013年度)で近世文書3,153点を目録化し、目録合計5,053点。2年目(2014年度)で目録化を継続し、目録合計5,662点となった。未着手は、単位H、L～R、T～X 合計2,363点である。

斎藤家文書の各箱の概要と整理済み点数は以下のとおり。

1) 単位A (4,142点)

- ・一紙物が多く、内容は多岐に渡る…旗本用人／千人同心／知行村／上犬目村、に関わる物が比較的多い。
- ・剣術関係は数点(A-11-2「御長柄剣炮棒御見分諸控」、A-11-5「(剣術組合せ書上げ)」他)ある。

2) 単位B : 501点

- ・村明細帳、宗旨人別帳など下犬目村(及び上犬目村・近隣村)の基礎的なデータとなる史料、単位Aとも共通する村方文書

3) 単位C : 83点

- ・手本、御用留、日記、千人同心公務・剣術・宗旨人別帳

4) 単位D : 41点

- ・借用証文・質地証文・村政・千人同心組織

5) 単位E : 279点

- ・借用証文・質地証文・小作・村政・千人同心

6) 単位F : 330点

- ・旗本下知状・一紙物

※板が添えられている史料。斎藤家が特に重要視した資料か。

7) 単位H : 整理中

- ・質地証文・金子借用証文→齊藤家を中心に下犬目村、上犬目村、近隣村よりの文書。
- ・千人同心…扶持米・切米など俸禄を引当にした証文。文政年間の文書。

8) **単位 I : 43 点**

- ・反別帳

9) **単位 J : 61 点** 近世書籍

10) **単位 K : 53 点** 近代書籍

11) **単位 S : 38 点** 近代書籍

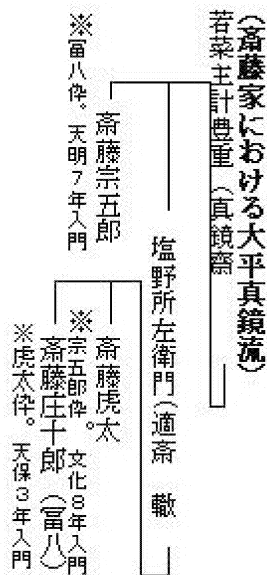
未着手：単位 H、L～R、T～X 合計 2,363 点

3. 齋藤家資料¹⁾の中の武術関係資料

齋藤家が江戸の情報を敏感に入手できた立場として①下犬目村名主 ②八王子千人同心・組頭の二つの立場があった。②の立場においては武術修行がある。

「大平真鏡流」は、若菜主計豊重（真鏡齋）

（1727-1819）が創始した剣術、薙刀、柔術、居合術などの武術流派。八王子千人同心原半左衛門組頭の塩野所左衛門（号を適齋、1775-1847）は「八王子総指役」として43年間八王子で大平真鏡流を指揮した。齋藤宗五郎一齋藤虎太一齋藤庄十郎（富八）の三名が学んだ流派は大平真鏡流であった。



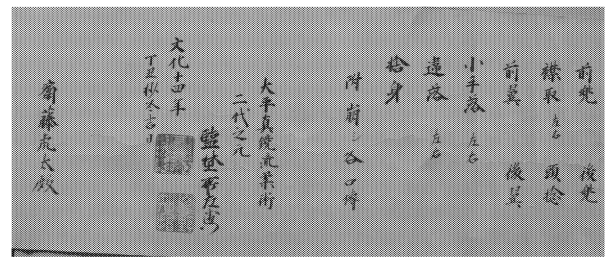
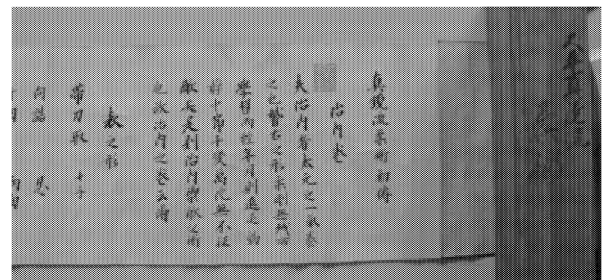
1) 齋藤宗五郎（1758～??）ⁱⁱ⁾は、天明七年（1787）の八月に創始者の若菜主計（真鏡齋）に入門。翌年3月に目録を得、寛政2年（1792）に父富八から千人同心組頭を継承し（由緒番代）

た。文化2年（1805）8月に中傳、同年10月に免許を授与された。

2) 齋藤虎太ⁱⁱⁱ⁾（1796～1868）は、文化10年、宗五郎から由緒番代（ゆいしょばんがわり）^{iv)}をし、千人同心として「高三十俵老人扶持」の扶持米を得ていた。文化12年（1815）塩野所左衛門から初伝、文化14年（1817）に柔術目録『治内卷』を授与された。

3) 齋藤庄十郎（富八・1817～1864^{v)}）は、16才の天保3年8月に塩野所左衛門に剣術・柔術に入門^{vi)}。天保4年11月に剣術目録（初伝か?）。天保10年（1839）に23才で剣術中傳（三才巻）を得ている。柔術については天保6年2月に目録（初伝『治内卷』）を授かっている。齋藤庄十郎は宗五郎の父富八からの名を継いだ齋藤富八であると考えられ、齋藤家では三代にわたり大平真鏡流を学んだこととなる。

今回、大平真鏡流柔術初伝（文化14年（1817）治内之巻）の発見により、齋藤虎太の場合、剣術、柔術が並習されていたことがわかった。（文化14年）



「真鏡流柔術初傳」

治内卷

夫治内者、太元之一氣養_レ之也。稽古之形、柔剛無_レ残所_一、學習而經_レ年月_一、即、進退、動靜、中節、千變万化無_レ不_レ征_レ敵矣。是即、治内防_レ禦_レ敵之術也。故治内卷云爾、

表之形

- 帯刀取 十手
- 向詰 忍
- 片胸 両胸
- 前兜 後兜
- 襟取 左右 頭捻

前翼 後翼
 小手落 左右
 違落 左右
 捨身

付崩 各々口伝

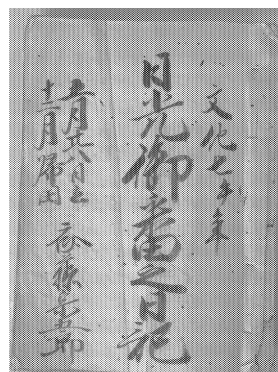
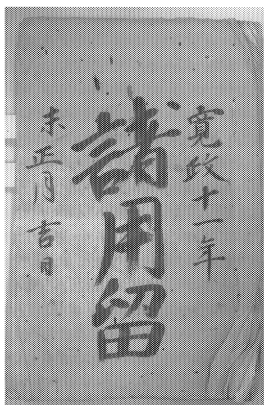
太平真鏡流柔術 二代之元 塩野所左衛門
 文化十四年丁丑 極冬吉日
 齋藤虎太殿

また、下犬目村齋藤家は、隣村の戸吹村で千人同心の松崎正作（天然理心流免許）とは、『番組合之縮図』によれば戸吹村から犬目村へ廻状の順番が記されていることから、地域的にも情報流通でも近い千人同心であり、冠婚葬祭では交流していたのではないかと考えられる。

4. 齋藤宗五郎と『御用留』および『日光御番之日記』の記録

『御用留』（『諸用留』）は、江戸時代・明治時代（初年）の村に旗本領主（旗本知行地）や代官（幕領）から出された通達や触書、村の訴訟・陳情などを記録した帳面で、名主や庄屋が書き写し、その後の村政に活用するために手元に残したものである。

齋藤家所蔵の『御用留』は、齋藤富八から確認される。寛政十一年の記録では、富士山信仰と御師^{*vii}や、廻状の記録などが記され、剣術関係の記事がある。また日光東照宮の火の番の期間の記録『日光御番之日記』に武術修行に関する記述がある。



（寛政 11 年『諸用留』）（文化 7 年『日光御番之日記』）

（1）剣術見分の廻状の記録

千人頭原半左衛門邸（八王子千人町）で行われる剣術の見分の案内が月番より発信された。廻状として回ってきたのは翌日で、犬目村からも齋藤は組頭として、刻限に遅れずに村々参集したと考えられる。^{*viii}

「以_レ廻状_一、致_レ啓上_一候。然ば、来ル六日五

ツ時、原半左衛門殿 於_レ御宅_一、剣術御見分御座候間、刻限無_レ遅滞_一御出ならるべく候。右御案内として、如_レ此_一御座候、以上。

四月三日

月番 小野沢宗蔵 右廻状四日昼頃参り候・・・

（2）剣術免許伝授における御礼（文化2年）

①中傳取得

齋藤宗五郎は中傳（三才巻）を授与されたときには左のように若菜主計（真鏡齋）へ金三百疋と鯉節一連（一連は十節を縄でくくったもの）を、また八王子指南役の塩野所左衛門へは上酒一升と鯉節一連を御礼として差し上げた。御礼代として金三分と一匁（貫）六百文（千六百文）の経費を記している。

「太平真鏡流

一 剣術 諸士 若菜主計門人

右は八月六日、中傳巻物請之候。立会人塩野所左衛門

一金三百疋

かつうふし 壹連 若菜先生へ礼

一上酒壹升 代三百文

塩野所左衛門方へ礼二 遣ワス

ふし 壹連

〆 金三分ト壹〆六百文かかり

右伝達相濟候而頭又四郎殿方へ 月番

空代佐太郎を以、御届申上候以上。」

②免許取得

免許においては、麻上下を着用し、千人町にあった塩野所左衛門屋敷で免許の授与をされた。その同日に、千人同心野沢次郎右衛門（窪田助之丞殿組と頭見習）、岡本門蔵（原組）が免許。千人頭家の石坂彦三郎、石坂悌五が目録を授与された。齋藤宗五郎は、御礼として金一両と鯉節一連を若菜主計へ、上酒一升と鯉節一連を塩野所左衛門へ差し出している。合計金壹両壹分と四百三十文の経費があった。

「太平真鏡流 一 剣術免許

諸士 若菜門人

右は十月十九日麻上下着用、塩野所左衛門方にて所左衛門立合、免許請_レ之候。

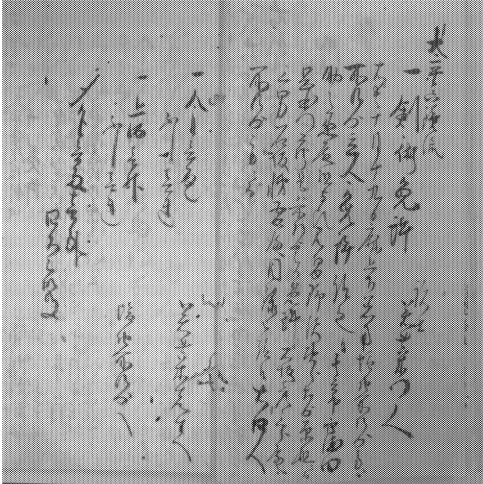
其節窪田助之丞殿組と頭見習 野沢次郎右衛門、原組にて岡本門蔵、是八所左衛門より免許。石坂彦三郎殿 三男石坂悌吾殿目録被_レ請候。右四人、所左衛門方にて。

一 金壹両也

若菜先生へ

ふし壹連

一 上酒壺升 塩野所左衛門へ
 心し壺連
 金壺両壺分ト
 四百三拾文
 (『諸用留(文化二年 巳正月吉日)』*)



(3) 日光勤番中の武術指導

齋藤宗五郎は、日光東照宮の火の番の期間に、本陣で、日光同心の村上富助へ大平真鏡流中傳(三才巻)を授けた。このとき宗五郎は橋本類八とともに免許の立場であったので、中傳を授ける権利をもっていたのであろうか？(『文化七年(1810) 日光御番之日記』)

六月十日 天気吉 櫓當番

日光同心之内、村上富助^江 真鏡流中傳巻伝達。於本陣、橋本類八相渡候。差添齋 藤宗五郎 *

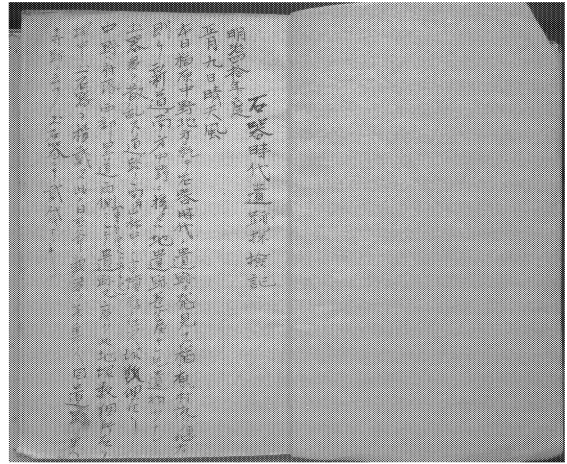
5 明治期における理科教育に関する資料

齋藤家文書の中に、明治40年~大正2年に遺跡を調査した記録「石器時代遺跡探検日記」が所蔵される。ここには以下のように記される。

明治四十年度

正月九日晴天 風

本日榑原、中野地方ニ於テ石器時代ノ遺跡ヲ発見ス。榑原八村落ノ東北方、則チ新道ノ南方、中野ニ接スル地、遺跡甚ダ廣ケレドモ遺物少ナシ土器多ク散乱ス。道路ノ南方山林中ニ古墳存在ス。塚数個在リ。中野八村落ノ西部里道両側ニシテ遺跡又廣ク此地塚数個所在リ。塚中土石器ヲ積載ス。此ノ日、石斧数多ク採集ス。同遺跡ヲ里人、寺跡ト云フ。土石器ニテ貳袋アリキ。(後略)



『石器時代遺跡探検日記』

に明治40年(1907)正月より始まる日記には犬目町の隣村である榑原村、中野村の遺跡調査と土石器収集を行う研究者であったと考えられる。

この資料に関して、八王子郷土資料館学芸員・紺野英二氏より以下の考察がある。

「石器の採集地と年代の記された興味深い資料といえる。照合作業が必要だが、齋藤家のどなたかが明治時代の終わり頃に石器の収集をしていた記録である。場所も八王子だけでなく、あきる野などまで足を伸ばしており、精力的な活動がみえる。明治時代の考古学は、現在のようないくつかの明確な文系科目ではなく、人類学の一部として理系の分野とされていた。とくに、石器の研究は、先史学とされ、人類の骨格研究などと同様の扱いであった。今回の日記も、理系である人類学研究の一端として、石器時代人の生活域の解明を考えていたのかもしれない。」

2015年度研究において、現存する齋藤家の石の資料との対応について継続検討する。

6, 八王子科学教室における本プロジェクトの紹介

八王子キャンパス科学教室(2014年8月23日、24日)で2日間にわたり「八王子学サロン」のブースでミニ講演会および展示を行った。

1) ミニ講演会

日時 平成26年8月23日

1回目 11:00~11:20

2回目 14:00~14:20

演題:「八王子を作った二人の人物~北条氏照と大久保長安」

講演:八王子市郷土資料館学芸員 紺野英二氏

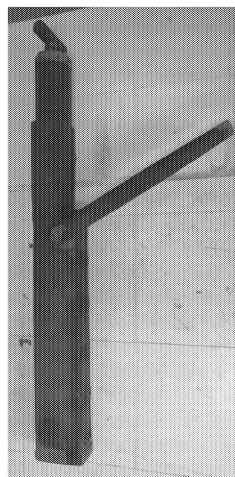
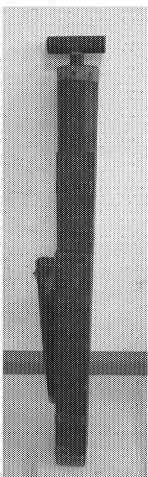


内容：江戸時代はじめに現在の八王子市街に町ができた。その起こりと、それ以前（戦国時代）の八王子の町について八王子城主北条氏照（1540-1590）と、八王子城落城後の大久保長安（1545-1613）の二人の事績という点からの講演。

2) 展示と解説

日時 平成26年8月23日、24日
 内容 水鉄砲、手鏡、村地図、隕石
 解説 八王子郷土資料館学芸員 加藤典子氏

①むかしの火消し道具-水鉄砲



水鉄砲（「八幡町 鹿山庄太郎」製と銘がある）

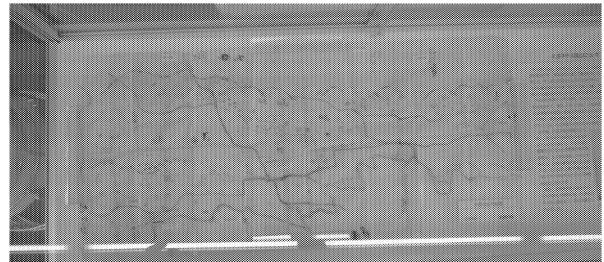
②手鏡

斎藤家所蔵の手鏡（和鏡）を展示し、小学生が実際に手にとり顔を映す機会を提供した。現代の鏡と製作技術の違い（鉛とガラス）を解説。



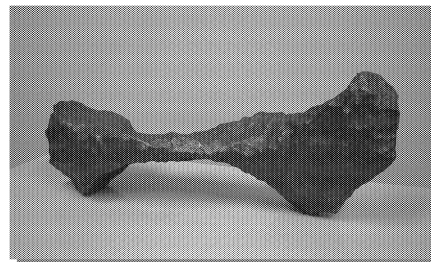
（斎藤家所蔵の手鏡）

③江戸時代犬目村付近の地図



④古文書にみる八王子隕石の紹介

塩野適斎『桑都日記』の文化14年（1817）12月22日の記事に、八王子小門宿、原宿、大和田村、柚木村、日野本郷に5つの隕石が落ちたとある。また、「御勘定奉行御届」（国立公文書館蔵）には「当月二二日昼八頃（13時～15時ごろ）晴天にて雷鳴地響きいたし、怪しきもの落ち候。」とある。会場では、記録とともに、鷹野一郎教授所蔵の隕石を展示させていただいた。



ギベオン隕石（鷹野一郎教授研究室蔵）

7. 成果発表

平成26年9月10日に日本武道学会第47回大会（於：福山市立大学）において、数馬広二「武蔵国多摩郡犬目村の大平真鏡流について－八王子千人同心・斎藤家文書の整理を通して－」と題し、本研究の成果の一部を発表した。

参考文献

1. 塩野適斎『桑都日記』正・続、山本正夫、栗山亀蔵訳、鈴木龍二編、1973、鈴木龍二記念刊行会
2. 「御勘定奉行御届」（国立公文書館蔵）

*i 齋藤家文書は、2011 年度より整理を開始し、2013 年度で近世文書目録合計 5,053 点となった。齋藤家文書を分類すると、○旗本用人○千人同心

○知行村／上犬目村に関わる物○剣術関係○村明細帳、宗旨人別帳など下犬目村(及び上犬目村・近隣村)○手本、御用留、日記、千人同心公務・借用証文・質地証文・村政・小作・村政、旗本下知状・一紙物、反別帳などがある。

*ii

(次丁)

(御届書之写 但日向半切)

覚

太平真鏡流劔術

一 免許 諸士 若菜主計門人
中村万吉組与頭
齋藤宗五郎

丑四十八才

右は天明七末年八月門人仕。同八申年三月目録。文化二丑年八月中傳、同年十月免許請申候。

此段御届申上候、以上。(『諸用留(文化二年巳正月吉日)』)

*iii 『八王子千人同心関係史料集 第一集 千人頭月番日記(一)』八王子市教育委員会 1988 p267

齋藤虎太は、『文化十二亥年七月 月番帳 中村万吉』によると

中村万吉組同心組頭 齋藤宗五郎
同人伴 組頭役見習
齋藤虎太

右宗五郎儀願之通退役並びに番代被申渡、虎太儀引付組頭本役御足高被下候段も被申渡候。

七月一三日には御鑓奉行・天野大和守へ千人頭中村万吉から「右(宗五郎)病気につき」という理由で由緒番代(千人同心株の相続)の報告がなされた。

*iv 齋藤虎太の由緒書 A-10-15-7

「・由緒書

高三十俵壹人扶持

元千人隊 組頭

本国生国共 武蔵

齋藤虎太

神奈川県支配所

武州多摩軍犬目村住居

文恭院様御代 文化十年 父齋藤富八跡御番代 被_レ申付、申渡候、父跡 組頭役相勤、弘化度、御下金頂戴仕り、文政度 両度御下金頂戴仕り。」

*v 八王子市安養寺にある齋藤家墓碑の調査による。

*vi 齋藤家文書

*vii ○『諸用留(寛政十一年 未正月吉日)』
三月七日 富士山御師田邊権太夫来、申六月中、太々神楽御進二付、五拾文寄附致候積り御座候

*viii 「以_レ廻状、致_レ啓上_レ候。然ば、来ル六日五ツ時、原半左衛門殿 於_レ御宅_レ劔術御見分御座候間、刻限無_レ遅滞_レ御出ならるべく候。右御案内として、如_レ此、御座候、以上。

四月三日

月番 小野沢宗蔵

右廻状四日昼頃参り候・・・

*ix 『諸用留(文化二年 巳正月吉日)』

*x (『文化七午年(1810) 日光御番之日記 齋藤宗五郎 十一月二十八日迄 十二月帰国』)

天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形加工と機械的性質

工学院大学 工学部 機械工学科 西谷要介

(地独) 東京都立産業技術研究センター 城南支所 梶山哲人

(地独) 東京都立産業技術研究センター 山中寿行

Processing of Natural Fiber Reinforced Plants-Derived Engineering Plastic Composites
and Their Mechanical Properties

Yosuke Nishitani, Department of Mechanical Engineering, Faculty of Engineering,
Kogakuin University
Tetsuto Kajiyama, Jonan branch, Tokyo Metropolitan Industrial Technology Research Institute
Toshiyuki Yamanaka, Tokyo Metropolitan Industrial Technology Research Institute

ABSTRACT : In order to develop the new engineering materials such as structural materials and tribomaterials based on all plants-derived materials, the processing of natural fiber reinforced plants-derived engineering plastic composites and their mechanical properties were investigated experimentally in this project study. The materials used in this project study were hemp fiber filled plants-derived polyamide (PA) biomass composites and the polymer blends of these composites and plants-derived thermoplastic elastomer (bio-TPE). In this year, we investigated the following four contents: (1) polymer processing method of natural fiber reinforced plants-derived engineering plastic biomass composites using melt-mixing method by co-rotating batch mixer, (2) processing of these biomass composites using continuous melt-mixing by twin screw extruder and their mechanical properties, (3) control technology of interface between natural fiber and plants-derived engineering plastic, and (4) rheological and thermal properties of these biomass composites. The following results were obtained: (1) we were selected the suitable mixing conditions such as temperature and rotational speed of melt-mixing method by co-rotating batch mixer. (2) Hemp fiber reinforced plants-derived polyamide composites and the blend of these composites and bio-TPE were prepared by the continuous melt-mixing method and their mechanical properties were investigated. It was found that the effect of the addition of bio-TPE on the mechanical properties of these biomass composites differed for each property. In particular, Izod impact strength and specific wear rate improved with the addition of bio-TPE. And the influence of the processing sequence on the mechanical properties of these composites differed with property. Although the tensile properties improved by changing the processing sequence, the Izod impact strength and tribological properties were not influenced so much by processing sequence. (3) The mechanical properties of these biomass composites improved with changing surface treatment method. Specially, the wet process using planetary centrifugal mixer was the best surface treatment method in this study. (4) Finally, the addition of hemp fiber and the blends of bio-TPE with plants-derived had strong influence on the rheological and thermal properties.

1. はじめに

近年、地球温暖化や資源枯渇などが叫ばれており、省エネルギーやCO₂削減のため、機械・装置などの小型化・軽量化が進んでおり、それらに用いられる材料に対する要求性能も益々厳しくなっている。そのため、エンブラをはじめとした高性能な高分子材料が多用されているが、高分子材料のほとんどが石油由来材料であり、バイオマスのような再生可能資源由来の原材料にシフトしていかなければ、将来の資源問題に直面することが予想される。これまでも、バイオマスを用いた高分子系複合材料の開発が多く検討されてきた¹⁾。代表例としては、天然繊維強化系ポリ乳酸複合材料などがある。この複合材料は植物由来であるため、環境負荷低減を実現できるものの、得られた複合材料の物性、特に機械的性質や耐熱性などが、一般的な複合材料に比べて著しく低く、実際の機械や部品などへの適用は困難である。したがって、機械的性質や耐熱性がより高性能な植物由来材料系複合材料の開発が望まれていることは明らかである。また、将来のエネルギー問題や食糧問題を考慮すると、可食植物ではなく、非可食植物を原料とすることも望まれているため、それらを同時に解決する必要がある²⁾。

これらの問題点を解決するためには、非可食植物であるトウゴマ由来のポリアミドを用い、天然繊維で強化した天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料を創製することが必要である。これまでに筆者らは、この複合材料の創製に関する先行研究として、トウゴマ由来のポリアミド 1010 (PA1010) を用い、麻繊維で強化した麻繊維強化 PA1010 複合材料の創製について検討し、A) アルカリ処理による前処理が有効であること、B) 表面処理を施すことにより機械的性質等を著しく向上させること、C) 第 3 成分にトウゴマ由来 PA11 エラストマー (植物由来 TPE, bio-TPE) を添加させることで、植物由来度を下げることなく高度な物性バランスを有する材料となり得ること、などの成果を挙げている^{2),3)}。しかしながら、更に高性能な天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料を創製するためには、繊維分散状態や材料内部構造を制御する新しい成形加工方法の開発、ならびにそれにより得られた複合材料の機械的性質などを明らかにする必要がある。

本研究は、機械や機械部品に多用されているエンジニアリングプラスチック (エンブラ) に匹敵する性能を有する総植物由来材料を用いた天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の創製を目的とし、マトリックス樹脂として非可食植物であるトウゴマを原料とした植物由来ポリアミドを、強化繊維としては麻繊維などの天然繊維を用いた総植物由来の天然繊維強化エンブラ系複合材料の成形加工および機械的性質について実験的に検討した結果を報告する。今年度は次の 4 項目を中心に検討した。

(1) バッチ式溶融混練法を用いた天然繊維強化植物由

来エンブラ系複合材料の成形加工法の検討

(2) 二軸押出機を用いた連続式溶融混練法による天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形と機械的性質の評価

(3) 天然繊維/樹脂間の界面制御技術に関する検討

(4) 天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料のレオロジー的および熱的性質の評価

2. バッチ式溶融混練法を用いた天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形加工法の検討

2.1 バッチ式溶融混練法について

植物由来樹脂をはじめとした高分子材料の各種物性を改質する方法として、フィラーや繊維などの複合化や、異種ポリマー同士を混合するポリマーブレンド化、さらにはそれらを組み合わせた多成分系複合化技術などがある。これら複合材料の性能はマトリックス樹脂中に複合化した改質材 (フィラー、繊維、および異種ポリマーなど) が有する性質や形状 (径、長さおよびアスペクト比など) だけでなく、それらの分散・分配状態によって大きく左右されることが知られている⁴⁾。そのため、各種混練装置を用いた溶融混練法による分散・分配プロセスが重要となる。

一般的に樹脂系複合材料のコンパウンドには二軸押出機を用いた溶融混練法が用いられている。特に連続式二軸押出機を用いた溶融混練法は、工業的に簡便かつ大量生産も可能なため、多く利用されている。しかしながら、同法はスクリュ長 (L/D 比) に限りがあり、分散・分配制御に必要なせん断力やそれらを付加する時間が限定されるため、それらを確保するためには、スクリュ長 (L/D 比) を長くするなどの装置自体の改良が必要となる。一方、バッチ式溶融混練法は、連続式二軸押出機を用いた溶融混練法と異なり、分散・分配制御が必要となる混練条件を任意で選択することが可能である特徴を有する。したがって、時間・温度・速度などの混練条件を適切に選定することで、マトリックス樹脂中に天然繊維や第 3 成分 (ポリマーブレンド成分) の適切な分散・分配状態を得られることが可能になることが期待される。

本章では、バッチ式溶融混練法を用いた天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形加工技術を確立することを目的に、同複合材料のマトリックス樹脂である植物由来ポリアミド 11 のバッチ式溶融混練法における混練条件を選定するための基礎検討結果を報告する。ちなみに、連続式二軸押出機を用いた混練手順変更によるバッチ式溶融混練法に関する検討結果は、3.3 章で別途報告する。

2.2 実験

本実験に用いた樹脂材料は植物由来ポリアミド 11 (PA11, Rilsan BMN O, アルケマ (株)) である。この PA11 は植物由来エンブラ系材料の 1 種であり、トウ

ゴマ由来のひまし油を原料とした植物由来樹脂である。バッチ式溶融混練法に用いた混練装置はラボプラストミル (KF15V 型, (株) 東洋精機製作所) である。混練機への材料投入量を 70% (容量比) に固定して、回転数および温度などの混練条件を変更して混練時のトルクを測定することで、混練条件の選定を検討した。

2. 3 実験結果と考察

Fig.2.1 に植物由来 PA11 のラボプラストミルを用いたバッチ式溶融混練法による混練時のトルクおよび温度と混練時間の関係を示す。ただし、溶融混練温度は 200°C である。回転数 60rpm では混練開始時の抵抗によって発生するトルクのピークが確認されず、分散・分配に必要な練りがほとんど行われないことが予想される。一方、回転数 120rpm 以上では、回転数 60rpm とは異なり、混練開始時にトルクの大きな立ち上がりを確認されており、十分混練が行われることがわかる。しかしながら、回転数 300rpm では混練時に発生するせん断発熱による温度上昇が 10°C 以上発生しており、樹脂や複合化する天然繊維の熱劣化を引き起こす可能性が考えられる。したがって、これらの結果から、混練温度を 200°C、回転数を 120~240rpm に選定することで、PA11 を適切に混練できることがわかる。今後は、これらの結果をもとに、天然繊維強化系複合材料をバッチ式溶融混練法により成形していく予定である。

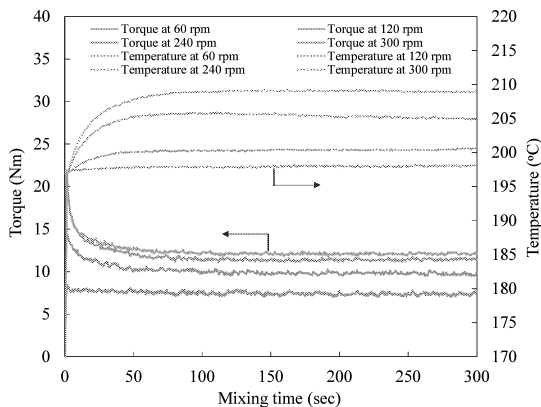


Fig. 2.1 Torque and temperature of melt-mixing by co-rotating batch mixer.

2. 4 まとめ

バッチ式溶融混練法を用いた天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形加工技術を確認することを目的に、同複合材料のマトリックス樹脂である植物由来 PA11 のバッチ式溶融混練法における混練条件を選定するための基礎検討を行った結果、植物由来 PA11 の適切なバッチ式溶融混練法における混練条件は温度 200°C および回転数 120~240rpm であることがわかった。

3. 二軸押出機を用いた連続式溶融混練法による天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形と機械的性質

3. 1 はじめに

高性能な天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料を創製するためには、繊維分散状態や材料内部構造を制御する新しい成形加工方法の開発はもちろんのこと、最適な材料配合設計 (材料の種類, 組成比, 繊維表面処理など) 技術を構築する必要がある。これまでに筆者らは、同複合材料の創製に関する先行研究として、トウゴマ由来のポリアミド 1010 (PA1010) を用い、麻繊維で強化した麻繊維 (HF) 強化 PA1010 複合材料の創製について検討し、A) アルカリ処理による前処理が有効であること、B) 表面処理を施すことにより機械的性質等を著しく向上させること、C) 第 3 成分にトウゴマ由来 PA11 エラストマー (PA11E) を添加させることで、植物由来度を下げることなく高度な物性バランスを有する材料となり得ることなどの成果を挙げている²⁾³⁾。しかしながら、添加する第 3 成分の bio-TPE の種類が機械的性質に及ぼす影響は明らかになっていないのが現状である。また、前述したバッチ式溶融混練法と比較検討するため、二軸押出機を用いた混練手順を変更することによるバッチ式溶融混練法を検討する必要がある。なぜならば、複合化技術とポリマーブレンド化技術を組み合わせた多成分複合化技術において、溶融混練時における混練手順 (材料投入手順) の違いにより内部構造が変化するため、機械的性質をはじめとした各種物性が大きく影響を受けることが知られているためである⁵⁾。

本章では、二軸押出機を用いた連続式溶融混練法による天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形と機械的性質を明らかにすることを目的に、麻繊維強化植物由来 PA1010 に植物由来 TPE の 1 種である PA11E を添加した 3 成分系植物由来複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の成形と物性について、(1) PA11E の種類、および (2) 混練手順の違いが同複合材料の機械的性質に及ぼす影響を実験的に検討した結果を報告する。

3. 2. 植物由来 PA11 エラストマーの種類が機械的性質に及ぼす影響

3. 2. 1 実験

本節で使用した材料は植物由来 3 成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) である。マトリックス樹脂として植物由来 PA1010 (VESTAMID Terra DS16, ダイセル・エポニック (株)) を用いた。ブレンド材としては、ハードセグメント (HS) に PA11 を、ソフトセグメント (SS) にポリエーテルを有する PA11 系熱可塑性エラストマー (PA11E, PEBAX Rnew, アルケマ (株)) を用いた。ただし硬度の異なる 3 種類の PA11E-L (PEBAX Rnew 35R53, D35), PA11E-M (PEBAX Rnew 55R53, D55), PA11E-H (PEBAX Rnew 72R53, D72) を使用した。なお、硬度は HS と SS の成分比により決定されるものである。

また充填材として、麻繊維 (HF, $\phi 50 \sim 100 \mu\text{m}$) を用いた。ただし、HF は予め 5mm に切断し、アルカリ脱脂およびウレイド基を有するシランカップリング剤 (A-1160) による表面処理を施したものである (HF-S)。材料配合としては、PA1010/PA11E=80/20 (重量比) で固定し、このポリマーブレンドに対し HF の充填量は 20vol.% で固定した。これら複合材料の成形は、密閉した樹脂容器内でドライブレンドした後、真空乾燥機にて $80^\circ\text{C} \times 12\text{h}$ で乾燥し連続式 2 軸押出機 (TEX30H96, (株) 日本製鋼所) により熔融混練 (220°C , 85rpm) した。機械的性質測定用試料として射出成形機 (NS20-2A, 日精樹脂工業 (株)) により、各種試験片を射出成形した。成形条件はシリンダ温度 220°C 、金型温度 30°C 、射出率 $13\text{cm}^3/\text{s}$ である。機械的性質としては引張り、曲げ、アイゾット衝撃、およびデュロメータ硬さ、トライボロジー的性質としてはリングオンプレート型すべり摩耗試験を用い、一定荷重および一定速度におけるすべり摩耗試験とステップロード法による限界 pv 値試験の 2 種類で評価した。引張り特性は 2 号試験片を用い、引張り速度は $50\text{mm}/\text{min}$ で万能型材料試験機 (V10-C, (株) 東洋精機製作所) により評価した。曲げ特性は JIS K 7171 に準拠し、試験片は矩形型試料を用いた。試験速度は $2\text{mm}/\text{min}$ として前述の万能型材料試験機により三点曲げを行い評価した。アイゾット衝撃特性は、JIS K 7110 に準拠し、機械加工により切り欠きを付けたノッチ付き試料を用い、アイゾット衝撃試験機 (DG-IB 型, (株) 東洋精機製作所) により評価した。硬さ試験はデュロメータ硬さ試験機 (DISITAL HARDNESS TESTER ASTM D, (株) 東洋精機製作所) を用いて、JIS に準拠して評価した。トライボロジー特性は両試験ともリングオンプレート型すべり摩耗試験機 (EFM-III-E, ORIENTEC (株)) を用いた。すべり摩耗試験は、JIS K 7218A 法に準拠し、すべり速度を $0.2\text{m}/\text{s}$ 、垂直荷重を 50N 、すべり距離を 600m とした。なお、比摩耗率は試験前後の重量より算出した。一方、ステップロード法による限界 pv 値試験は、すべり摩耗試験と同じ試験機を用い、すべり速度 v を一定 ($v=0.3 \sim 0.5\text{m}/\text{sec}$) とし、スタート時の荷重を 50N とし、3 分毎に 25N ずつ上昇させた。またすべり摩耗試験後の摺動面、摩耗粉および相手材観察を行うため、走査型電子顕微鏡 (SEM, JSM-6360LA, 日本電子 (株)) およびリアルサーフェスビュー (VE-8800S, KEYENCE (株)) を用いた。さらに、麻繊維および PA11E の分散状態の観察を行うため、冷凍破断後、走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて試験片内部構造の観察も行った。

3. 2. 2 実験結果と考察

3 成分系植物由来複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の機械的性質に及ぼす PA11E の種類の影響について論じる。Fig.3.2.1 に引張り強さ σ_t および引張り弾性率 E_t に及ぼす PA11E の硬さ HDD の影響を示す。 σ_t は HDD の増加によりほとんど変化しないものの、 E_t は HDD の増加に伴い

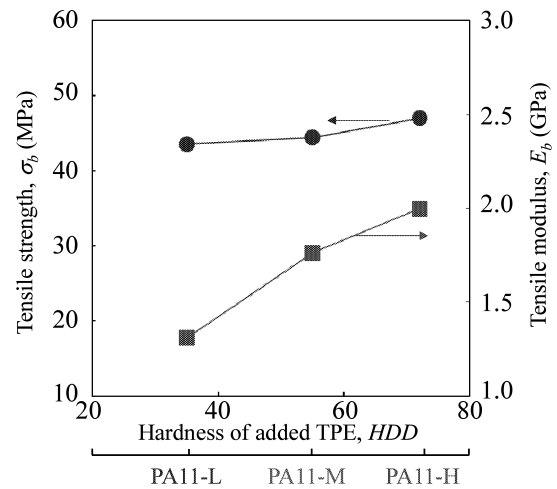


Fig.3.2.1 Influence of hardness of PA11E on the tensile strength and tensile modulus of ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E).

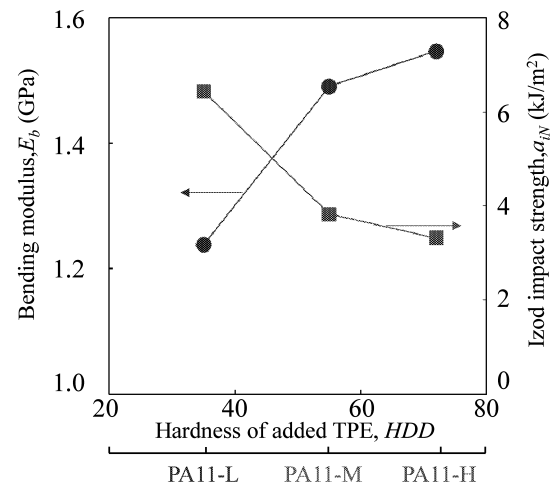


Fig.3.2.2 Influence of hardness of PA11E on the bending modulus and Izod impact strength of ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E).

単調に上昇する。次に、Fig.3.2.2 に曲げ弾性率 E_b およびアイゾット衝撃強さ a_{iN} に及ぼす PA11E の硬さ HDD の影響を示す。 HDD の増加に伴い E_b は上昇するものの、 a_{iN} は低下する。これは各 PA11E 中の硬さが PA11 から成るハードセグメント (HS) とエラストマー成分であるソフトセグメント (SS) の成分比、特に SS 量は PA11E-L > PA11E-M > PA11E-H の順に少なくなり、その影響を受けるため、SS 量の増加 (HDD の減少) に伴い剛性は低下するものの衝撃特性は向上したものと考えられる。

次にこれら機械的性質に及ぼす材料内部構造の影響を検討するために、各 3 成分系複合材料の内部構造を観察した SEM 画像を Fig.3.2.3 に示す。観察試料はエタノール洗浄により、試料表面の PA11E 分散相中の SS 成分であるポリエーテル部を除去したもので、SEM 画像中で孔の空いている箇所となる。 PA11E 分散相中のポリエーテル部の大きさは PA11E-H > PA11E-M > PA11E-L の順で、

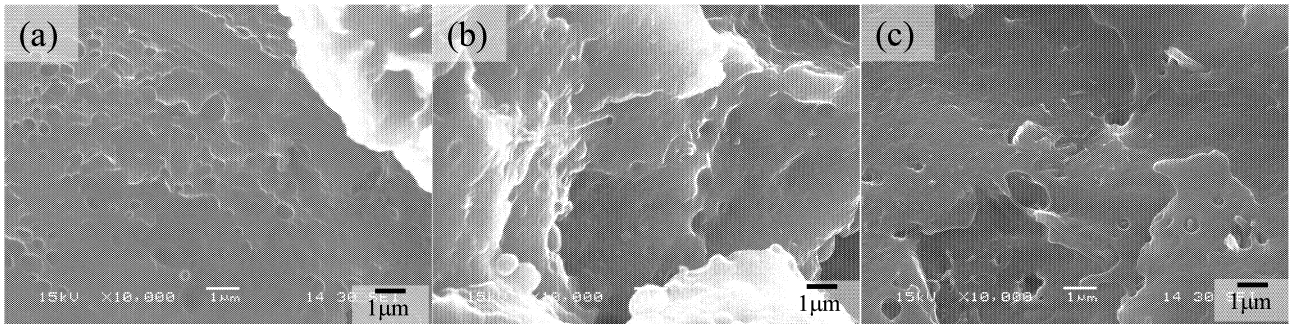


Fig.3.2.3 Image of SEM photographs of fracture surface for various ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E): (a) HF/PA1010/PA11E-L, (b) HF/PA1010/PA11E-M and (c) HF/PA1010/PA11E-H.

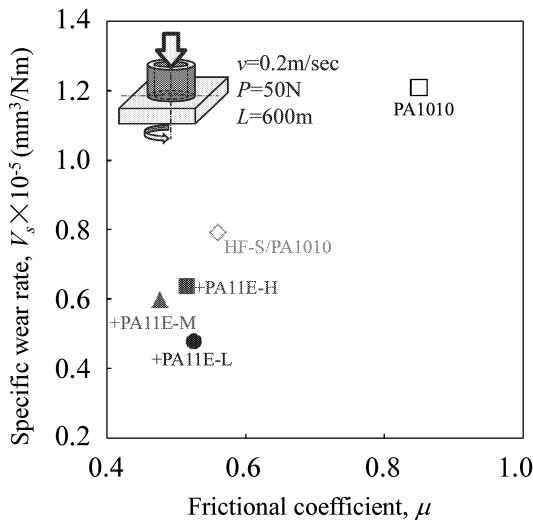


Fig. 3.2.4 Relationship between specific wear rate and frictional coefficient of ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E).

量はその逆となる。つまり、PA11E-L が最も微分散化していることがわかる。一方、PA11E 中の HS である PA11 部は PA1010 と相溶していることが予想される。したがって、これらのことから SS であるポリエーテル部の成分量により、複合材料中の分散構造が変化し、各種機械的性質が改質されるものと考えられる。

Fig.3.2.4 に比摩耗率 V_s と摩擦係数 μ の関係を示す。この図においては、左下部になるほど、低摩擦化および耐摩耗性向上が図れるため、トライボロジックの性質は改善されることになる。HF 充填により、PA1010 単体 (100%) と比較し、 V_s および μ ともに大きく低下する。さらに PA11E 添加により 3 成分系複合材料化することで、 μ は HF のみ充填系とほとんど変わらないものの、 V_s に関しては PA11E-L > PA11E-M > PA11E-H の順に大きな改質効果が認められる。これらは HF および PA11E 添加効果により摩擦摩耗のモードが変化するためと考えられる。これらの摩擦摩耗のメカニズムを明確にするためには、相手材表面の移着膜や摩耗粉を詳細に検討する必要がある^{6,7)}。なぜならば、高分子系複合材料のトライボロジックの性質は相手材表面への移着膜の形成や摩耗粉の形状に大きく影響を受けるためである。Fig.3.2.5 に各種 PA11E を添加した 3 成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) に対するすべり摩耗試験後の金属相手材表面の SEM 写真を示す。ただし、Fig.(a)は HF/PA1010, Fig.(b)は HF/PA1010/PA11E-H, Fig.(c)は HF/PA1010/PA11E-M, および Fig.(d)は HF/PA1010/PA11E-L である。HF/PA1010 (Fig.(a)) は表面全体に一樣に厚い移着膜が形成されているのに対し、PA11E-H (Fig.(b)) を添加した系では、すべり方向と直行した浅い溝が薄い移着膜の上に形成されている。一方、PA11E-M (Fig.(c)) および PA11E-L (Fig.(d)) を添加した系ではより薄い滑らかな移着膜が形成され、その表面に細かな摩耗粉が点在している。したがって、移着膜の厚みを整理すると、HF/PA1010 > HF/PA1010/PA11E-H > HF/PA1010/PA11E-M > HF/PA1010/PA11E-L の順に薄くなり、PA11E の硬度順と同じ傾向を示すことがわかる。これは PA11E 中の SS 成分量 (ポリエーテル量) の増加に伴い、よりゴムライクになるためと考えられる。PA11E を含む 3 成分系複合材料において、PA11E は PA1010 よりも融点が低いので、しゅう動中の摩擦熱により PA1010 よりも PA11E 成分が先に溶けることが考えられ、そのた

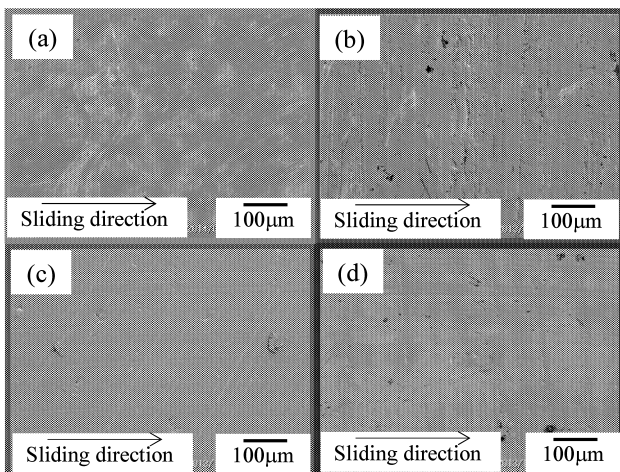


Fig.3.2.5 Image of SEM photographs of counterface against various ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E): (a) HF/PA1010, (b) HF/PA1010/PA11E-H, (c) HF/PA1010/PA11E-M, and (d) HF/PA1010/PA11E-L.

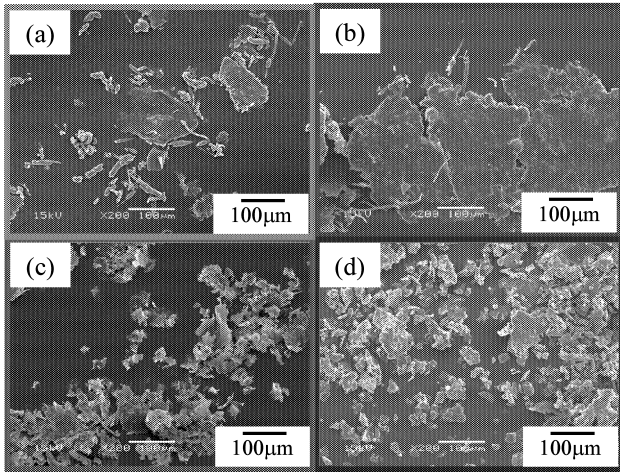


Fig.3.2.6 Image of SEM photographs of wear debris for various ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E): (a) HF/PA1010, (b) HF/PA1010/PA11E-H, (c) HF/PA1010/PA11E-M, and (d) HF/PA1010/PA11E-L.

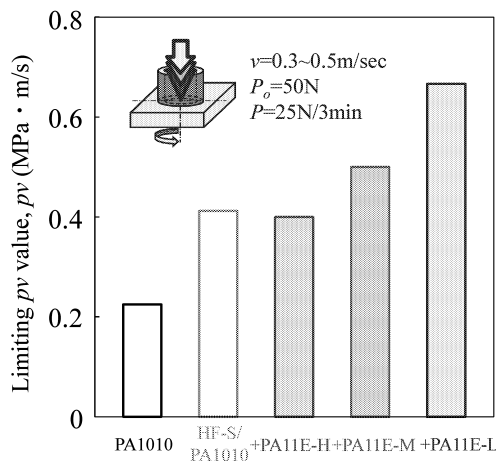


Fig.3.2.7 The limiting pv values of ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E)

め、選択的に PA11E がより移着膜として形成されるためである。次に Fig.3.2.6 に各種 3 成分系複合材料のすべり摩耗試験時に発生した摩耗粉を SEM 観察した結果を示す。ただし、Fig.(a)は HF/PA1010, Fig.(b)は HF/PA1010/PA11E-H, Fig.(c)は HF/PA1010/PA11E-M, および Fig.(d)は HF/PA1010/PA11E-L である。PA11E 未添加系の 2 成分複合材料 (HF/PA1010, Fig.(a)) では大きな薄い鱗片状および細長いロール状の摩耗粉があるのに対し、PA11E-H を添加した系 (Fig.(b)) ではより大きく薄い鱗片状と若干のロール状摩耗粉が観察される。一方、摩耗特性の良い PA11E-M (Fig.(c)) および PA11E-L 添加系 (Fig.(d)) では若干の鱗片状の摩耗粉もあるが、その大きさは小さく、より細かな粒状の摩耗粉が多く観察される。このような摩耗粉の形状の違いや、前述した移着膜形成の違いがトライボロジー的性質を変化させた理由と考えられる。

3. 3. 混練手順の違いが機械的性質に及ぼす影響

3. 3. 1 実験

本節で使用した材料は植物由来 3 成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) である。複合材料の母材として植物由来樹脂 PA1010 (VESTAMID Terra DS16, ダイセル・エポニック (株)) を用い、充填材として予め 5mm に切断した麻繊維 (HF, $\phi 50 \sim 100 \mu\text{m}$), およびブレンド材として前節で最も性能バランスの良かった PA11E-L (アルケマ (株)), PEBA X Rnew 35R53) を使用した。ただし、HF の前処理としてアルカリ脱脂およびウレイド基を有するシランカップリング剤 (A-1160) による表面処理を施した。材料配合は前節とは異なり、PA11E 中に HF を分散させるため、PA11E を増加させ、PA1010/PA11E=60/40 (重量比) で固定し、繊維充填は樹脂に対し 20vol.% とした。成形手順の影響を検討するために 4 種類の混練手順を用いて検討した。A 法は HF, PA1010 および PA11E を 1 段階で同時に混練する方法であるのに対し、B~D 法は 2 段階調整法である。B 法は HF と PA11E を混練して HF/PA11E を調整した後に PA1010 を投入する方法、C 法は HF/PA1010 を調整した後に PA11E を添加する方法、D 法は PA1010/PA11E を調整した後に HF を充填する方法である。これらの成形法の概略図を Fig.3.3.1 に示す。これら複合材料の成形は、密閉した樹脂容器内でドライブレンドした後、真空乾燥炉にて $80^\circ\text{C} \times 12\text{h}$ で乾燥した試料について、前述した材料の投入手順により、二軸押出機 (TEX30, (株) 日本製鋼所) を用いた熔融混練 (220°C , 85rpm) により調整し、その後射出成形機 (NS20-2A, 日精樹脂工業 (株)) により、各種試験片を射出成形した。成形条件はシリンダ温度 220°C , 金型温度 30°C , 射出率 $13\text{cm}^3/\text{s}$ である。実験は機械的性質として引張り、アイゾットおよびトライボロジー特性を評価した。試験方法は前節と同様であるため省略する。

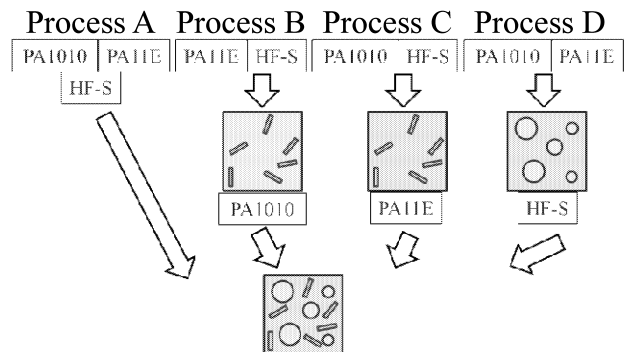


Fig. 3.3.1 Schematic diagram of four kinds of processing method for ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E).

3. 3. 2 実験結果と考察

3 成分系植物由来複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の機械的性質に及ぼす混練手順 (材料投入手順) の影響について論じる。各種成形手順で成形した 3 成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の引張り強さ σ_t と引張り弾性率 E_t の関係について Fig.3.3.2 に示す。PA1010 単体 (100%)

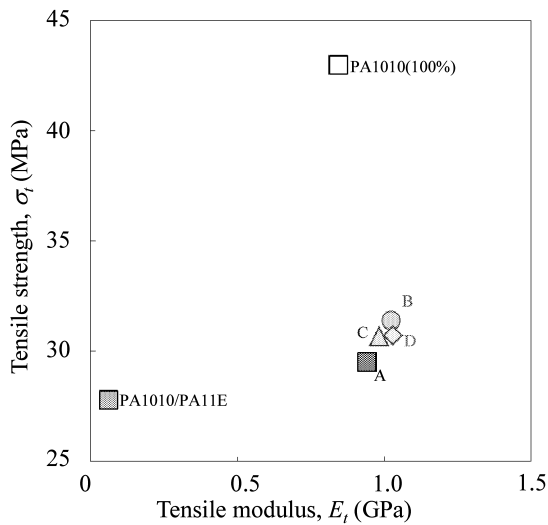


Fig.3.3.2 Influence of processing sequence on the tensile properties of ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E).

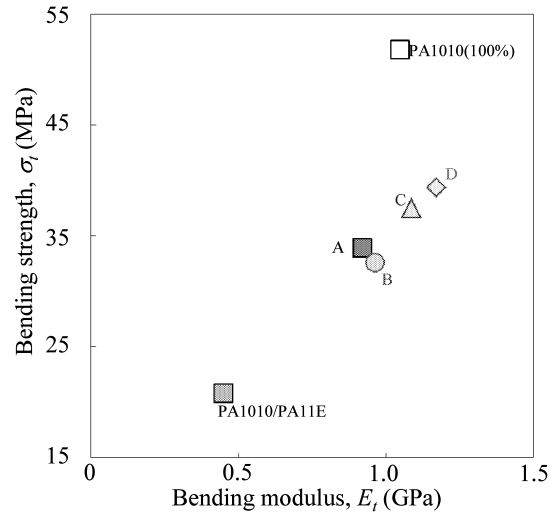


Fig.3.3.4 Influence of processing sequence on the bending properties of ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E).

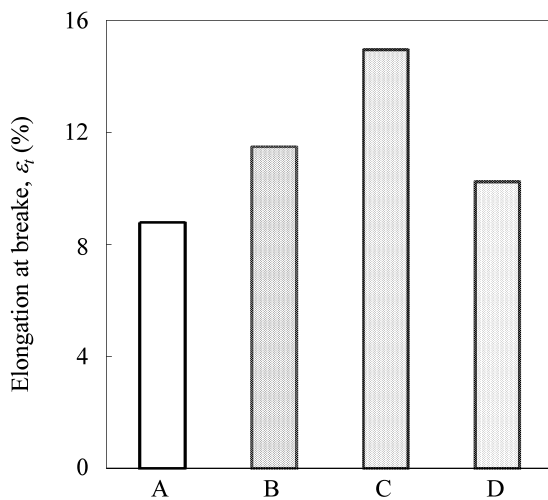


Fig.3.3.3 Influence of processing sequence on the elongation at break of ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E).

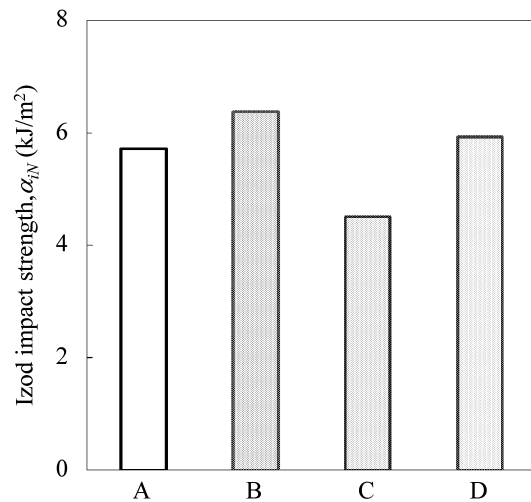


Fig.3.3.5 Influence of processing sequence on the Izod impact strength of ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E).

に比べて、PA11E40wt.%添加した2成分系ポリマーブレンド (PA1010/PA11E) は σ_t および E_t とも低下するのに対し、3成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の σ_t はPA1010/PA11Eブレンドより若干高い程度だが、 E_t はPA1010単体 (100%) よりも高い値を示すものの、混練手順の違いによる差異は少ない。Fig.3.3.3に各種成形手順で成形した3成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の引張り破断強さ ϵ_t を示す。 ϵ_t は成形手順の違いにより異なり、A法に比べてC法では最大70%上昇する。次に、Fig.3.3.4に各種成形手順で成形した3成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の曲げ強さ σ_b と曲げ弾性率 E_b の関係を示す。 σ_b および E_b ともPA1010単体 (100%) とPA1010/PA11Eブレンドの中間程度の値を示し、混練手順の違いにより明確な差異が現れる。これら曲げ特性の混

練手順の影響としては、A法=B法<C法<D法の順で上昇する傾向を示す。一方、Fig.3.3.4に各種成形手順で成形した3成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) のアイゾット衝撃強さ a_{iN} を示す。 a_{iN} は混練手順による差異がほとんど認められない。これらのように成形手順の違いにより3成分系複合材料の機械的性質が変化する理由は、PA11E分散相の形状やHFの分散状態などの材料内部構造が変化するためと考えられる。

次に、リングオンプレート型すべり摩耗試験における摩擦係数 μ と比摩耗率 V_s の関係をFig.3.3.6に示す。PA1010 (100%) と比較してA法では μ および V_s ともに若干改善されるものの、B法からD法ではそれらと比較して μ および V_s は上昇する。特に最後にHFを添加したD法は μ および V_s ともに大きく上昇する。これは他の成形

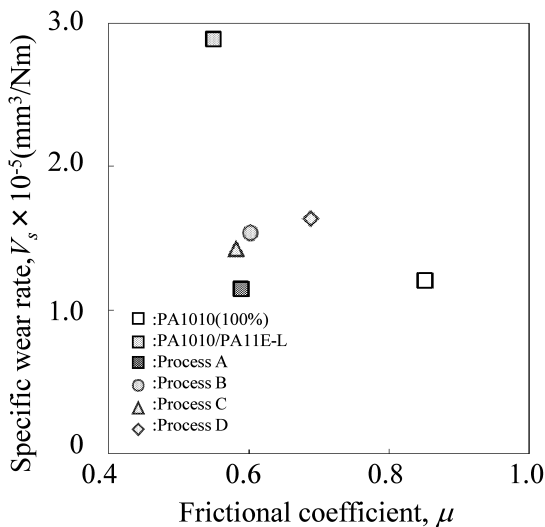


Fig.3.3.6 Influence of processing sequence on the tribological properties of ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E).

法に比べて HF 分散状況が不良であるためと考えられる。今後はより詳細な機械的およびトライボロジーの性質のメカニズム検討を行うため、材料内部構造、摩耗粉、試験片および相手材表面について走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いた観察を検討していく予定である。

3. 4 まとめ

二軸押出機を用いた連続式熔融混練法による天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形と機械的性質を明らかにすることを目的に、麻繊維強化植物由来 PA1010 に植物由来 TPE の 1 種である PA11E を添加した 3 成分系植物由来複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の成形と物性について、(1) PA11E の種類、および (2) 混練手順の違いが同複合材料の機械的性質に及ぼす影響を実験的に検討した結果を次のことがわかった。

(1) PA11E の種類が 3 成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の機械的性質に及ぼす影響を実験的に検討した結果、PA11E の硬度が低い (SS 成分が多い) ほど、改質効果が高いことがわかった。

(2) 植物由来 3 成分系複合材料 (麻繊維/PA1010/PA11E) の機械的性質に及ぼす成形手順の影響を実験的に検討した結果、成形手順の変更により引張り特性は改善されるものの衝撃特性やトライボロジー的性質に対する効果は低いことがわかった。

4. 天然繊維/樹脂間の界面制御技術

4. 1 はじめに

天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の高性能化のためには、天然繊維/樹脂間の界面接着性の向上が必要である。これまでの検討から麻繊維強化植物由来ポリアミド 1010 複合材料 (HF/PA1010) において、麻繊維と

PA1010 間の界面接着性および繊維の分散性を向上させるために、(1) アルカリ処理を用いた前処理、および (2) シランカップリング剤を用いた表面処理などを検討し、水酸化ナトリウム (NaOH) 水溶液およびウレイドシランカップリング剤を用いた表面処理を施すことにより、各種機械的性質をバランス良く向上させることを明らかにしてきた。さらに、効率よく界面接着性を向上させる手段として天然繊維に直接表面処理剤 (シランカップリング剤など) を施すためには、繊維表面に均一に最適量をコーティングする技術、すなわち、適切な表面処理方法を開発する必要がある。本章では、そのための処理方法、処理液および配合などを実験的に検討した結果を報告する。また、あわせて繊維表面の化学構造を明らかにするための化学分析手法もあわせて検討する。

4. 2. 表面処理方法が機械的性質に及ぼす影響

4. 2. 1 実験

本節で使用した材料は麻繊維強化植物由来ポリアミド系複合材料 (HF/PA1010) である。材料の詳細は前章までと同一のため、詳細は省略する。用いた HF は、前処理としてアルカリ処理を施した後、ウレイド基を有するシランカップリング剤 (A-1160, モメンティブパフォーマンスマテリアルズ) による表面処理を (a) スリーワンモータ, L (攪拌機, Blh600, 新東科学 (株)) による乾式処理 (L-dry), (b) スリーワンモータ (同上) による湿式処理 (L-wet), (c) 自転公転ミキサー, P (ARE-310, (株) シンキー) による乾式処理 (P-dry), (d) 自転公転ミキサー (同上) による湿式処理 (P-wet), (e) ディップコータ, D (マイクロスピードディップコータ, MD-0408, (株) SDI) による湿式処理 (D-wet) の 5 種類の表面処理方法でシランカップリング剤の表面処理を施して、比較評価を行った。繊維充填量は樹脂に対して 20vol.% に固定した。複合材料の成形は二軸押出機 (TEX30, (株) 日本製鋼所) を用いた熔融混練 (220°C, 85rpm) により調整し、その後射出成形機 (NS20-2A, 日精樹脂工業 (株)) により、各種試験片を射出成形した。実験は引張り強さ、曲げ特性などの機械的性質およびリングオンプレート型すべり摩耗試験機によるトライボロジー特性を評価した。試験方法は前章と同様であるため省略する。

4. 2. 2 実験結果と考察

麻繊維強化植物由来 PA 系複合材料 (HF/PA1010) の機械的性質に及ぼす表面処理方法の影響について論じる。各種表面処理法を用いて表面処理を施した HF/PA1010 複合材料の引張り強さ σ_t と引張り弾性率 E_t の関係について Fig.4.2.1 に示す。 σ_t および E_t も HF 充填効果および繊維表面処理により改質されるが、表面処理方法の違いによっても大きく異なることがわかる。引張り特性に及ぼす表面処理法の効果としては L-wet=L-dry=P-dry<P-wet<D-wet の順となる。次に各種表面処理法

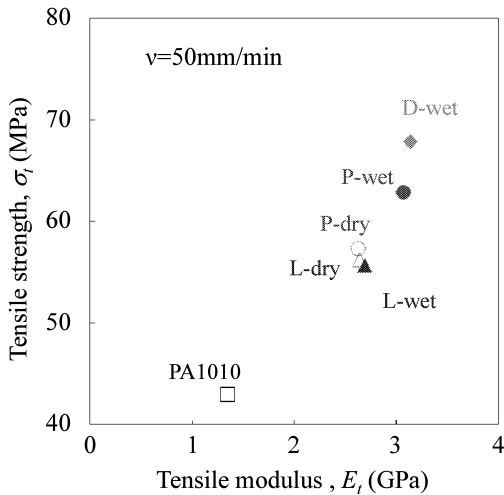


Fig.4.2.1 Influence of surface treatment method on the tensile properties of HF/PA1010 biomass composites.

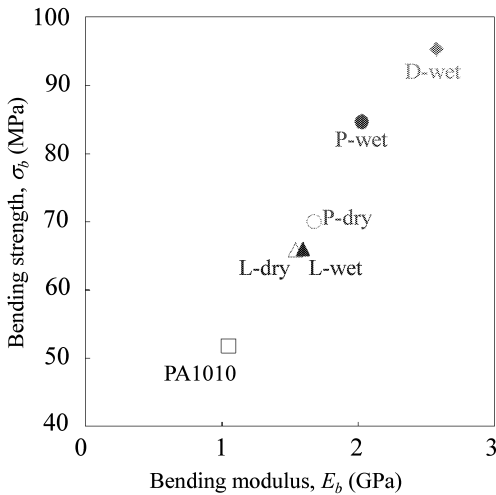


Fig.4.2.2 Influence of surface treatment method on the bending properties of HF/PA1010 biomass composites.

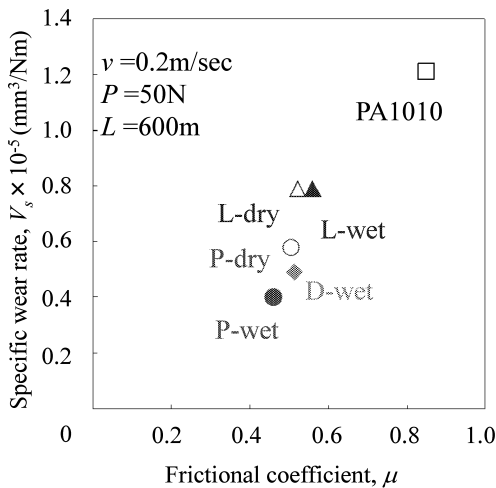


Fig.4.2.3 Influence of surface treatment method on the tribological properties of HF/PA1010 biomass composites.

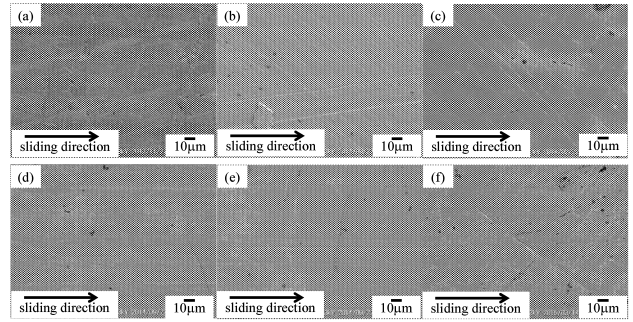


Fig.4.2.4 Image of SEM photographs of counterface against various surface treatment method HF/PA1010 biomass composites. (a) neat PA1010, (b) L-dry (c) L-wet, (d) P-dry, (e) P-wet and (f) D-wet.

を用いて表面処理を施した HF/PA1010 複合材料の曲げ強さ σ_b と曲げ弾性率 E_b の関係について Fig.4.2.2 に示す。引張り特性と同様に、曲げ特性においても表面処理方法の違いは顕著に現れ、その効果は $L\text{-dry}=L\text{-wet} < P\text{-dry} < P\text{-wet} < D\text{-wet}$ の順となる。これら機械的性質が変化した理由としては、表面処理方法の違いにより、繊維表面へのシランカップリング剤の濡れ方が変化したためであり、その結果、麻繊維/樹脂間の界面接着性が変化したためと考えられる。

Fig.4.2.3 に各種表面処理法を用いて表面処理を施した HF/PA1010 複合材料の比摩耗率 V_s と μ の関係を示す。PA1010 単体 (100%) と比較し、繊維充填系は表面処理の種類にかかわらず μ および V_s ともに低下する。麻繊維の表面処理方法の違いが μ に及ぼす影響として、 μ は $P\text{-wet} < P\text{-dry} = D\text{-wet} = L\text{-dry} < L\text{-wet}$ の順に大きくなるものの、繊維充填有無ほどの大きな差異は認められない。一方、 V_s に関しては $L\text{-dry}=L\text{-wet} > P\text{-dry} > D\text{-wet} > P\text{-wet}$ の順に小さくなり、最も V_s の高い L-dry と低い P-wet を比較すると V_s は 50%低下しており、表面処理方法の違いにより大きな改善効果が得られることがわかる。これらトライボロジー的性質の変化の原因を解明するため試験後の金属相手材 (S45C) 表面を SEM によって観察した結果を Fig.4.2.4 に示す。ただし(a)に PA1010 単体、(b)に L-dry、(c)に L-wet、(d)に P-dry、(e)に P-wet、(f)に D-wet の試験後の金属相手材表面の SEM 観察結果を示す。(a)に示す PA1010 単体では厚い移着膜と荒れた表面が認められるのに対し、(b)から(f)の繊維充填系では相手材表面の薄く滑らかな移着膜が形成されていることが確認できる。また L-dry および L-wet と比較して、P-dry、D-wet および P-wet の方がより薄く滑らかな移着膜を形成していることが確認でき、これらの移着膜の厚さは V_s の傾向とも一致している。これらトライボロジー的性質の変化は表面処理方法の変更により HF への塗布量や塗布状態が変化したこと、またそれに伴う樹脂/繊維間の界面接着性の変化によるものと考えられるが、その詳細は現時点では不明である。今後 FTIR などの化学分析によりその違いを明らかにしていく予定である。

また P-wet や D-wet などの表面処理方法においては、その処理速度などの条件を変更することにより、形成される膜厚を制御することが期待できることから、今後は処理条件による影響についても検討をしていく予定である。

4. 3. 表面分析法に関する検討

シランカップリング剤などの表面処理効果について、定性的かつ定量的に把握するためには、天然繊維表面へのシランカップリング剤付着量や構造などを、化学分析を用いて把握する必要がある。そのため、フーリエ変換型赤外分光光度計 (FT-IR) を用いた構造解析を行った。ただし、測定装置はフーリエ変換赤外分光光度計 (FT/IR-6000, 日本光学(株)) に粉体反射測定装置 (DR PRO410-M 型) を取り付け、拡散反射法⁸⁾で測定したもので、測定条件は積算回数 32 回、分解 4cm^{-1} 、測定波数 $4000\sim 400\text{cm}^{-1}$ である。なお、測定試料は細断した少量の繊維に粉末化した KBr を混ぜたものである。Fig.4.3 に拡散反射法による FT-IR で各種表面処理を施した麻繊維 (HF) を測定した結果を示す。表面未処理 HF に比べ、アルカリ処理およびウレイドシラン処理を施した HF は異なる波形を示しており、同測定法により HF 表面の構造などを把握できることがわかる。今後は、定性的かつ定量的な同定法を構築していくとともに、各種表面処理による構造解析などを実施していく予定である。

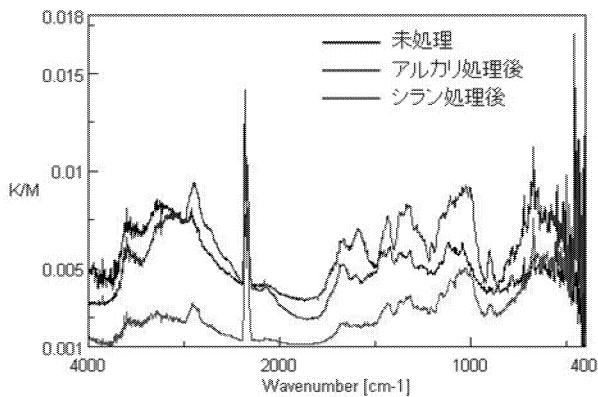


Fig.4.3 The FT-IR curves of various surface treated hemp fibers.

4. 4 まとめ

本章では、植物由来 HF/PA1010 複合材料の麻繊維の表面処理方法の違いがトライボロジー的性質に及ぼす影響を実験的に検討した結果、また、あわせて繊維表面の化学構造を明らかにするための化学分析手法も検討した結果、次のことがわかった。

(1) 植物由来 HF/PA1010 複合材料の麻繊維の表面処理の方法の違いがトライボロジー的性質に及ぼす影響を実験的に検討した結果、摩擦係数および比摩耗率などのトライボロジー的性質は、自転公転ミキサーによる湿式処理 (P-wet) およびディップコートによる湿式処理 (D-wet) を用いた表面処理方法で大きな改善効果が得

られることがわかった。

(2) 拡散反射法によるフーリエ変換赤外分光光度計を用いた構造解析により、麻繊維の表面処理効果を確認できることがわかった。

5. 天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料のレオロジー的性質

5. 1 はじめに

天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料において、天然繊維をマトリックス樹脂中に良好に分散・分配制御を行うためには、レオロジー制御技術 (例えば、マトリックス樹脂の熱可塑性樹脂と粘度差のある第 3 成分を利用することにより天然繊維などのフィラーが移行する現象や、また第 3 成分として添加した系の分散相の形状・大きさなどを制御することが可能となること) を活用することが必要不可欠である。そのための基礎データとして、複合材料のレオロジー的性質について、熔融状態の動的粘弾性および固体粘弾性などを評価する必要がある。同時に融点や熱分解温度などの熱的性質も成形時の基礎データとして必要なため、各種熱的性質も把握する必要がある。本章では、これらの成形時の基礎データを取得すること、また材料内部構造などを把握することを目的に、各種天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料のレオロジー的性質および熱的性質について実験的に検討した結果を報告する。

5. 2 実験

本章で用いた材料は 3 章と同様なため、詳細は省略する。測定用試料として圧縮成形により $220^{\circ}\text{C}\times 5\text{min}$ 、 5MPa の条件で平板を成形した。熔融状態における動的粘弾性は平行円板型レオメータ (Reometrix Ink., ARES) を用い、振動流試験により評価した。振動流試験は、角周波数 $10^{-1}\sim 10^2\text{rad/s}$ 、ひずみ振幅は 1%、測定温度は 200, 210, 220, 230 および 240°C で行った。ただし、円板径 D は 25mm であり、熔融した試料をわずかに圧縮した状態で、平行円板間隔 H を 1mm として測定した。

5. 3 実験結果と考察

平行円板型レオメータを用いた一定ひずみ ($\gamma=1\%$ 、線形粘弾性領域) 下における振動流試験による熔融状態の動的粘弾性を評価した結果を報告する。熔融粘弾性の基本的な性質である角周波数 ω 依存性として、各種複合材料の貯蔵弾性率 G' と角周波数 ω の関係を Fig.5.3.1 に示す。PA1010 単体 (100%) の G' は ω の増加に伴い単調に上昇し、 $G'\omega$ 曲線の傾きは 2 に近い値 (線形粘弾性モデルに相当) を示す⁹⁾。一方、HF-S/PA1010 および HF-S/PA1010/PA11E 複合材料においては、同様に ω の増加に伴い G' は単調に上昇するものの、HF 充填および PA11E 添加により $G'\omega$ 曲線の傾きが小さくなる、いわゆるゴム状第二平坦領域を示す。つまり、HF 充填およ

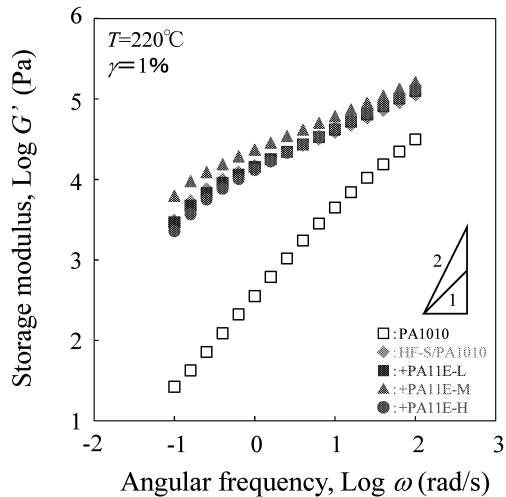


Fig.5.3.1 Relationship between storage modulus and angular frequency of various ternary biomass composites (HF/PA1010/PA11E)

び PA11E 添加により粘性的挙動から弾性的挙動に変化することがわかる。これは HF の繊維および PA11E の分散相などがつくり出す内部構造が形成されたためと考えられる。今後は、 G' 以外の測定値についても詳細に検討していくとともに、材料内部構造との関係も検討していく予定である。

5. 4 まとめ

植物由来 3 成分系複合材料 (HF/PA1010/PA11E) の溶融粘弾性を実験的に検討した結果、HF 充填および PA11E 添加によって貯蔵弾性率などの粘弾性的性質が変化することがわかった。

6. 結論

本研究は、機械や機械部品に多用されているエンブラに匹敵する性能を有する総植物由来材料を用いた天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の創製を目的とし、マトリックス樹脂として非可食植物であるトウモロコシを原料とした植物由来ポリアミドを、強化繊維としては麻繊維などの天然繊維を用いた総植物由来の天然繊維強化エンブラ系複合材料の成形加工および機械的性質について実験的に検討したものである。今年度は以下の 4 項目を中心に検討し、次のことがわかった。

(1) バッチ式溶融混練法を用いた天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の成形加工法の検討し、天然繊維強化エンブラ系複合材料をラボプラストミルによるバッチ式溶融混練法で調整するための混練条件 (温度・回転数など) を選定したこと

(2) 二軸押出機を用いた連続式溶融混練法により天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料を成形し、その機械的性質を評価した結果、各種特性の改質のために最適な PA11E の種類がわかったこと。またバッチ式溶融混練

法と比較評価のため、混練手順の違いが各種物性に及ぼす影響を明らかにしたこと。

(3) 天然繊維/樹脂間の界面制御技術に関する検討を行い、ディップコートや高速攪拌機などを用いたシラン処理技術を検討し、処理方法により表面処理効果が異なることを明らかにするとともに、FT-IR を用いたシラン付着量などの化学分析手法も確立したこと。

(4) 天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料のレオロジー的性質として溶融粘弾性を評価し、溶融状態のレオロジー的性質を把握したこと。

参考文献

- (1) 例えば、由井浩：ポリマー系複合材料—基礎・実践・未来—プラスチックエージ (2004)
- (2) Hasumi, M., Nishitani, Y., Kitano, T.: Effect of Surface Treatment on the Mechanical Properties of Hemp Fiber Reinforced Polyamide 1010 Composites, Proc. PPS-28, P-07-324 (2012)
- (3) 向田準, 荷見愛, 西谷要介, 北野武：麻繊維充填 PA1010 複合材料の機械的性質に及ぼす植物由来 PA11E 添加の影響, 2013 年度材料技術研究協会討論会, (2013), pp.181-182
- (4) 例えば、西敏夫編：高分子ナノテクノロジーハンドブック, NTS (2014)
- (5) 西谷要介, 川原崇, 関口勇, 北野武：PA 系ナノコンポジットを 1 成分とするポリマーブレンドの物性に及ぼす成形手順の影響, 成形加工'09, (2009) 189-190.
- (6) Bahadur, S.: The development of transfer layers and their role in polymer tribology, Wear, Vol.245, (2000) pp.92-99
- (7) Nishitani, Y. et.al. : Effects of Addition of Functionalized SEBS on Rheological, Mechanical, and Tribological Properties of Polyamide 6 Nanocomposites, Polym. Eng. Sci., Vol.50, (2010) 100-112
- (8) 中村吉伸, 永田員也：シランカップリング剤の効果と使用法, S&T 出版, (2012), pp.363-369
- (9) Ferry, J.D.: Viscoelastic Properties of Polymers, 3rd ed., Wiley Press, New York (1980).

研究成果

1. 学会発表 (国際会議)

- (1) Nishitani, Y., Hasumi, M., Kitano, T.: Influence of Silane Coupling Agents on the Rheological Behavior of Hemp Fiber Filled Polyamide 1010 Biomass Composites in Molten State, Proc. of 30th International Conference of the Polymer Processing Society (PPS-30), June 10, 2014, Renaissance Hotel, Cleveland, Ohio, USA 他 3 件

2. 学会発表 (国内)

- (1) 西谷要介, 向田準, 梶山哲人, 山中寿行, 北野武, バイオマスポリアミド 1010 のレオロジー的性質に及ぼす植物由来 TPE 添加の影響, プラスチック成形加工学会第 22 回秋季大会 (成形加工シンポジア'14 新潟), 朱鷺メッセ, 他 7 件

キチン・哺乳類キチナーゼの医薬工領域への展開

工学院大学 工学部 応用化学科 小山文隆

東京薬科大学 薬学部 病原微生物学教室 野口 雅久

東京薬科大学 薬学部 免疫学教室 大野 尚仁

Development of research discipline on chitin and mammalian chitinases in medicine, pharmacy and engineering

Fumitaka Oyama: Department of Applied Chemistry, Faculty of Engineering, Kogakuin University

Norihisa Noguchi: Department of Microbiology, School of Pharmacy, Tokyo University of Pharmacy and Life Sciences,

Naohito Ohno: Laboratory for Immunopharmacology of Microbial Products, Tokyo University of Pharmacy and Life Sciences

ABSTRACT : Mice and humans express two active chitinases, chitotriosidase and acidic mammalian chitinases. They also produce chitinase-like proteins (CLPs), which lack any detectable functions. The CLPs belong to glycosyl hydrolases family 18. Mice express Ym1, Ym2 and breast regression protein-39 (BRP-39), whereas humans produce YKL-40, the human homologue of BRP-39, but do not synthesize homologues of Ym1 and Ym2. Recently, CLPs have attracted considerable attention due to their increased expression in a number of many pathological conditions, including asthma, allergies, rheumatoid arthritis and malignant tumors. Little is known, however, about the significance of CLPs increased expression levels during pathophysiological states. Because CLPs lack chitinolytic activity and detectable functions, their biochemical properties have only been partially defined. The quantification of Ym1, Ym2 and BRP-39 individually is important steps in gaining insight into the *in vivo* regulation of the CLPs. In this study, we established quantitative real-time PCR system to quantify the expression of Ym1, Ym2 and BRP-39 individually and compare their expression levels with those of mammalian chitinases and reference genes in mouse tissues. We found that Ym1 and BRP-39 mRNAs were expressed at a high level in the mouse lung, whereas Ym2 mRNA was the most abundant CLP in the stomach, followed by lung. Furthermore, the expression levels of Ym1 and BRP-39 in the mouse lung were higher than those of two active chitinases. Our results indicate that catalytically inactive BRP-39 and Ym1 are constitutive genes in normal mouse lung.

1. はじめに

キチナーゼ様タンパク質 (CLPs) は、構造的にキチナーゼと相同であるが、キチンを分解する能力が欠損している [1, 2]。いくつかの CLPs は、マウスとヒトで同定されている [3-14]。マウスは、主に breast regression protein-39 (BRP-39) [chitinase 3-like-1 (Chi311), 38-kDa glycoprotein (gp38k)], Ym1 (Chi313), Ym2 (Chi314) を発現している。一方、ヒトは、BRP-39 のヒト相同体である YKL-40 (CHI3L1, human cartilage glycoprotein-39) を発現しているが、Ym1 と Ym2 を合成していない [3-10]。

BRP-39 と YKL-40 は、マクロファージ、軟骨細胞、腫瘍細胞を含む様々な細胞で分泌されている糖タンパク質である [3, 10, 15, 16]。BRP-39 のアミノ酸配列は、YKL-40 のアミノ酸配列と 73% が同一である [15, 16]。最近の研究で、BRP-39 と YKL-40 は機能的に同じである、と報告された [17]。Ym1 は、Ym2 とアミノ酸配列同一性 91% と高い配列相同性を示すが、これらのタンパク質は異なる発現パターンを示す [5, 6, 9]。

配列類似性に基づくと、CLPs は糖質分解酵素ファミリー 18 に属する [1, 2, 18, 19]。糖質分解酵素ファミリー 18 には、二つの触媒的に活性のある哺乳類キチナーゼ、キトトリオンダーゼ (Chit1) と酸性哺乳類キチナーゼ (AMCase) が含まれる [20-23]。キチナーゼのファミリー 18 の触媒作用に関わる保存配列は、DXXDXDXE である。E は触媒残基であると想定されている [1, 2, 24]。CLPs のキチナーゼ活性の欠損は、進化の過程で、保存された触媒残基の変異のためであると一般的に想定されている [1, 2, 24]。

CLPs mRNAs またはタンパク質のレベルの増加は多くの炎症の病気で注目されている [2, 17, 25]。BRP-39/YKL-40 のレベルは、喘息、慢性閉塞性肺疾患 (COPD)、嚢胞線維症、関節リウマチ、炎症性腸疾患、アルコール性肝硬変、様々なタイプの悪性腫瘍で上昇する [26-36]。Ym1 は、寄生虫感染症による炎症で合成される [37]。Ym1 と Ym2 は、アレルギー肺炎で発現する [37]。従って、CLPs は様々な病気で重要な役割を果たしていると考えられる [38, 39]。しかし、これらのタンパク質の病気への寄与はわかっていない。

最近、我々は、キチナーゼと参照遺伝子の発現レベルを定量するために、一つの標準 DNA を使った定量 real-time PCR (qPCR) を確立した [40, 41]。この方法は、同じスケールで、複数遺伝子の発現レベルを定量し、比較することを可能にした。CLPs は、

キチン分解活性と検出できる機能が欠損しているため、それらの生物学的特徴はほとんど明らかにされていない [38]。BRP-39, Ym1, Ym2 のそれぞれの定量は、CLPs の生体内での制御を考える重要な手掛かりを得る重要なステップである。

本研究では、同じスケールで、BRP-39, Ym1, Ym2 それぞれの発現を定量するための qPCR システムを確立した。さらに、それらの発現レベルを参照遺伝子の発現レベルと比較した。

2. 実験材料と方法

RNA と cDNA の調製

qPCR 分析は、Minimum Information for Publication of Quantitative Real-Time PCR Experiments (MIQE) ガイドに従って設計した [45, 46]。

我々は、この研究において、二種類の RNA サンプルを使った。一つは、200~1,200 匹のマウスから得られた total RNA サンプルである (The Mouse Total RNA Master Panel, Clontech Laboratories 社)。さらに、我々は、3ヶ月齢の雄のマウス (n=5) の肺と胃から単離した total RNA を使用した。Total RNA は、TRIzol Reagent (Invitrogen 社) を使って、組織から調製した。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 (Takara Bio 社), 10 mM dithiothreitol, 0.5 mM deoxynucleotide triphosphates (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、組換えマウス白血病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。

qPCR 用 primer pairs の選択

qPCR 用 primers は、Primer Express Software (Applied Biosystems 社) で設計し、その合成は Sigma-Genosys (Sigma-Aldrich 社) に依頼した。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、三種類の CLPs primers (2.5 pmol), を含む最

終液量 13 μ l で行った。PCR 反応は、Mx3005P QPCR System (Agilent 社) を用いて行った。PCR プログラムは以下である。反応は、95 $^{\circ}$ C 10 分で DNA の変性とポリメラーゼ活性化を行った後、95 $^{\circ}$ C 30 秒、55 $^{\circ}$ C 1 分、72 $^{\circ}$ 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。

マウス Refs/CLPs 標準 DNA の作成

BRP-39, Ym1, Ym2 の隣接する領域の 11-137 塩基を付加した PCR ターゲット領域をカバーする cDNA 断片は、PCR によってマウス組織 cDNA 混合液から増幅した。これらの primers は、EcoRI, BglIII, XhoI の制限酵素部位と 25 塩基の CLP cDNA の配列と一致した配列を含む。さらに、増幅した cDNA の分解を制限酵素での分解を効率よく確実にするために、4 塩基の余分な塩基を含む。これらの PCR 産物は、Wizard SV Gel and PCR Clean-Up System (Promega 社) を使って精製した。その後、該当する制限酵素で分解し、2% アガロースゲル電気泳動で分離し、Clean-Up System で再び精製した。次に、各断片は、T4 DNA ligase (Promega 社) を使って連結した。連結した断片は、forward primer 5'-CATGGAATTCATCTCCTTCGTC AATATAACTTTGAT-3' と reverse primer 5'-CATGGAGCTCTCTCCAGTGTAGCCATTCTTAGGAT-3' を使って PCR で増幅した。得られた DNA 断片は、CLPs 標準 DNA として使った。

マウス遺伝子の五つの参照遺伝子 (Refs) と三つの CLPs (Refs/CLPs) 標準 DNA の合成は、以前報告した通りに行った [40]。AMCase/pepsinogen C/Chit1/GAPDH/ β -actin から成る DNA 断片の 3' 末端に EcoRI 制限部位を含むマウス Refs 標準 DNA を PCR でマウスキチナーゼの標準 DNA から増幅した [41]。CLPs とマウス Refs 標準 DNAs は EcoRI で分解し、T4 DNA ligase を使って連結した。連結した断片は、forward primer 5'-GTGGATTCTGTGCCGACAAAGCAGATGGCC-3' と reverse primer 5'-CATGGAGCTCTCTCCAGTGTAGCCATTCTTAGGAT-3' を使って増幅した。増幅した DNA の 3'-末端に Takara Taq HS (Takara Bio 社) を用いて dA を付加し、上で述べた手順で精製した。得られた断片は、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、ABI PRISM Big-Dye Terminator v3.1 Cycle Sequencing Kit and the 3130 Genetic Analyzer

instrument (Applied Biosystems 社) を使って確認した。マウス Refs/CLPs 標準 DNA (1,597 塩基; 図 1A) は、同じ primers を使って、plasmid DNA から PCR で再び増幅させて調製した。PCR 産物は上記に述べたように精製し、その後、標準 DNA として使った。

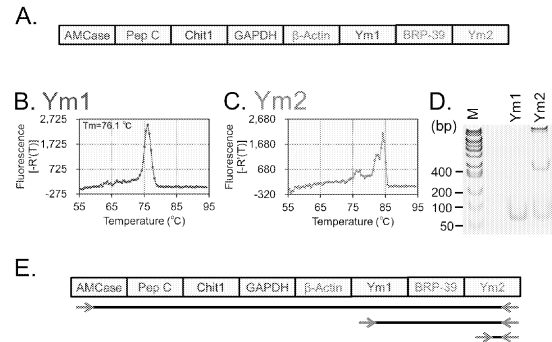


図 1. マウス Refs/CLPs 標準 DNA の作成と検証 (A) qPCR 解析で使う Refs/CLPs 標準 DNA の略図。マウス Refs/CLPs 標準 DNA を鋳型として Ym1 primer (B) と Ym2 primer (C) を使って増幅した PCR 産物の解離曲線。(D) Ym1 と Ym2 の PCR 産物の 10% ポリアクリルアミドゲル電気泳動で解析した結果。(E) Ym2 primer でマウス Refs/CLPs 標準 DNA から増幅した推定上の DNA 産物。

pGEM-T Easy vector 付 Refs/CLPs 標準 DNA (4,629 塩基; 図 2B) は、forward primer 5'-CATGAGATCTACAAAGGAGGTCCAGCCAGGCAGAG-3' と reverse primer 5'-TGACAGATCTCTGAATATAGTCAAGAGACTGAGA-3' を使って、plasmid DNA から PCR で調製した。増幅した DNA は精製し、pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA として用いた。

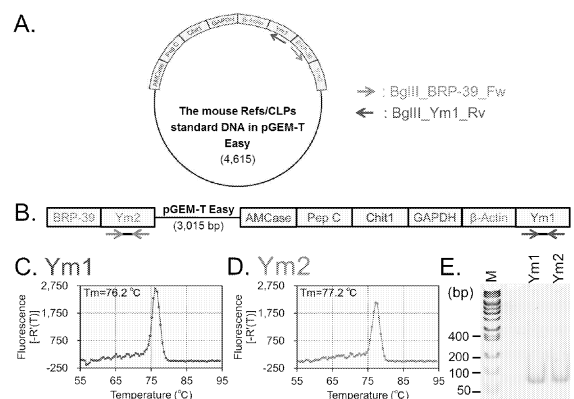


図 2. pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA の調製と検証 (A) pGEM-T Easy vector にクローン化したマウス Refs/CLPs 標準 DNA の略図。(B) pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA を鋳型として Ym1 primer (B) と Ym2 primer (C) を使って増幅した PCR 産物の解離曲線。(D) Ym1 と Ym2 の PCR 産物

の、10% ポリアクリルアミドゲル電気泳動で解析した結果。

全コード領域を含む BRP-39, Ym1, Ym2 cDNA の調製

BRP-39, Ym1, Ym2 の全コード領域を含む cDNA は、primer でマウスの肺 (BRP-39 と Ym1) または、胃 (Ym2) 組織 cDNA から増幅し、pcDNA3.1/V5-His C vector (Invitrogen 社) に挿入した。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 primer を使って plasmid DNA から再び増幅し、全コード領域 cDNA として使用した。

標準曲線の作製と mRNA 定量

標準 DNA モル濃度は、濃度と分子量に基づいて計算した。核酸の濃度は、260 nm で吸光度測定し、決定した。複数遺伝子を含む標準 DNA のモル濃度は、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 DNA の濃度を始めとして調製した。標準 DNA は、100 から 1,000 万分子の範囲で 10 倍段階希釈を行い、使用するまで -20°C で凍結保存した。

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 30 秒、 55°C 30 秒、 72°C 10 秒で、この PCR 反応を 40 サイクル行った。標準曲線を作成し、mRNA 定量を行った。それぞれのサンプルは三回増幅し、それぞれの実験は最低二回繰り返した。

統計解析

データは、平均±標準偏差 (SD) として示している。mRNA レベルの解析には Student's t 検定を使った。統計的有意性は、 $p < 0.05$ と設定した。

3. 結果

マウス組織における CLPs 検出のための qPCR システムの確立

正常なマウス組織における CLPs 遺伝子の発現レベルを定量することと、CLPs と哺乳類キチナーゼ、参照遺伝子の mRNA を比較することを目的とした (図 3)。

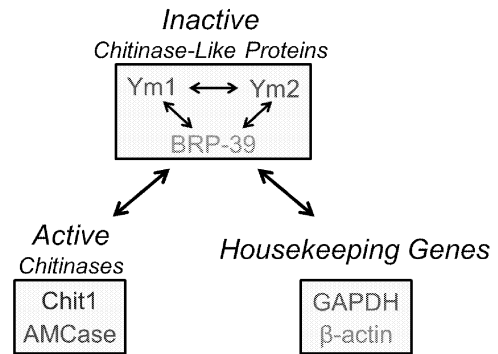


図 3. マウス CLPs とキチナーゼの遺伝子発現レベルを比較するための戦略

まず、同じスケールで複数の mRNA レベルを定量することができる qPCR システムを確立した。方法で述べたように、CLP の発現を解析するために primer を設計した。Ym1 は、分子全体で Ym2 と塩基配列同一性 94 % を示す [9]。Primer の mispriming を防ぐために、3' 末端領域が特有の reverse primer を設計した。しかし、Ym1 と Ym2 は非常に高い配列相同性を有するので、Ym1 と Ym2 で高い相同性のある forward primer を選ばざるを得なかった。また、BRP-39 特異的 primer も設計した。

一つの融解温度 (T_m) と 10% ポリアクリルアミドゲル電気泳動で一つのバンドで示される、一つの産物であるかを基準に primer の適合性を評価した。PCR 産物は、マウス組織 cDNA 混合物から増幅した。図 4A-C に示すように、Ym1 ($T_m = 76.3^{\circ}\text{C}$)、Ym2 ($T_m = 77.3^{\circ}\text{C}$)、BRP-39 ($T_m = 80.8^{\circ}\text{C}$) の融解曲線で一つのピークを示した。図 4D は、Ym1 (65 bp)、Ym2 (65 bp)、BRP-39 (57 bp) PCR 断片の予想サイズで明確な一つのバンドを示す。これらの結果は、PCR 産物は、マウス組織 cDNA 混合物から特異的産物である一つの増幅産物であることを示す。

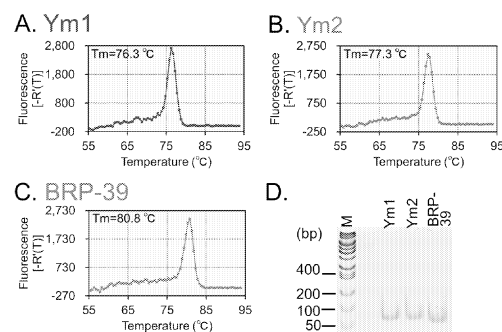


図 4. qPCR 用の CLPs primer の適合性の評価 (A-C) PCR 産物の融解曲線, (D) PCR 産物の 10% ポリアクリルアミドゲル電気泳動の結果。

マウス Refs/CLPs 標準 DNA の作成

標準 DNA は正確な三つの CLPs の定量に必要な

qPCR システムを設計した。二つのキチナーゼと参照遺伝子として pepsinogen C と二つの housekeeping 遺伝子, GAPDH と β -actin を使った。CLPs のレベルを評価するため, ほとんどの組織で恒常的に高いレベルで発現している GAPDH と β -actin を使用した [42-44, 47]。さらに, pepsinogen C (progastricsin としても知られている) を胃における参照遺伝子として選択した。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, 胃で生産されている。この酵素は, 胃粘膜の主な構成成分である [48]。これらの参照遺伝子を使って, 三つの CLPs とキチナーゼの遺伝子発現をマウスの組織で評価した。

CLPs 標準 DNA を五つの参照遺伝子 cDNA と一對一の割合で結合し, この DNA 断片を pGEM-T Easy vector にクローン化した。1,597 塩基長の DNA は五つの参照遺伝子 (Refs) と三つの CLPs cDNA 断片を含む。PCR のターゲット領域に及び, 隣接領域に 9-146 塩基, いくつかの制限酵素部位を含む (図 1A)。この報告において Refs/CLPs 標準 DNA としてこの分子を名付けた。

pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA の評価

ターゲット cDNA が八種類の cDNA の primer を使ってマウス Refs/CLPs 標準 DNA から増幅されるかを検討した。Ym1 primer では, 一つの融解温度と 10% ポリアクリルアミドゲル電気泳動で一つのバンドで示すように (図 1B と D), 一つの産物が得られた。しかし, Ym2 primer は三つのピークが得られ, 複数のバンドが得られた (図 1C と D)。これらの結果は, Ym2 primer で複数の産物が, マウス Refs/CLPs 標準 DNA から増幅されたことを示す。

この問題を克服するために, NCBI Blast Search (2 blast search) tool を使って, 標準 DNA の塩基配列と Ym2 forward primer を比較した。そして, Ym2 forward primer は Ym1 にアニーリングできることが分かった。また, AMCase cDNA にクロス反応することが分かった。Ym1 と Ym2 は, BRP-39 と Chit1 との塩基配列類似性はなかった。従って, Ym2 cDNA の増幅に加えて, 二つの cDNA (Ym1/BRP-39/Ym2 と AMCase/Pep C/Chit1/GAPDH/ β -actin/Ym1/BRP-39/Ym2) が Ym2 primer を使って標準 DNA から増幅したと考えられた (図 1C, D, E)。この問題は, アニーリング温度の変更では解決できなかった。

多くの研究は, RT-PCR 解析で primer を intron をまたがるか intron/exon の境界で設計している [49]。マウス Refs/CLPs 標準 DNA を pGEM-T Easy vector にクローン化した (図 2A)。AMCase/Ym1 と Ym2 断片の間の距離を広げるため, 直線化した

pGEM-T Easy 配列を含む標準 DNA を調製した。これは, BRP-39 forward primer 5'-CATGAGATCTACAAAGGAGGTCCAGCCAGGCAGAG-3' と Ym1 reverse primer 5'-TGACAGATCTCCTGAATATAGTCAAGAGACTGAGA-3' を使った PCR で, BRP-39/Ym2/pGEM-T Easy/AMCase/Pep C/Chit1/GAPDH/ β -actin/Ym1 を含む (図 2A)。この標準 DNA は, pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA と呼ぶ (図 2B)。

次に, Ym2 primer がこの標準 DNA から一つの Ym2 cDNA を増幅するか検討した。Mispriming による増幅を避けるために, qPCR プログラムのアニーリングと伸長時間を短くした (55 °C, 30 秒, 72 °C, 10 秒)。PCR を行った後, Ym1 産物であった通り (図 2C と E), 一つの融解温度 (図 2D) と 10% ポリアクリルアミドゲル電気泳動で予想サイズの一つのバンド (図 2E) で示す通り, Ym2 primer が一つの産物を生産した。これらの結果は, 一つの産物が, pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA (図 2B) から Ym2 primer をつかって増幅されたことを示す。pGEM-T Easy 配列 (約~3 kbp) は, PCR 反応において intron 配列として機能した。従って, 本研究では, 特に指定しない限り, pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA を標準 DNA として用いた。

標準曲線と qPCR システムの検証

CLPs, キチナーゼ, 参照遺伝子 mRNA の定量は, 標準曲線に依存している。三つの CLPs と五つの参照遺伝子 mRNA を正確に定量できるか, このシステムを使って検証した。pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA (図 2B) の段階希釈液は, 八種類の mRNA を解析するために使った qPCR 定量を比較, 評価するため, それぞれの標準曲線を作製するために使用した。各標準曲線は, 標準 DNA の 10 倍の段階希釈液で作られた。また, 八組の異なる primers は, 7 桁の広範囲にわたって測定が可能だった (図 5A-H, 赤●)。

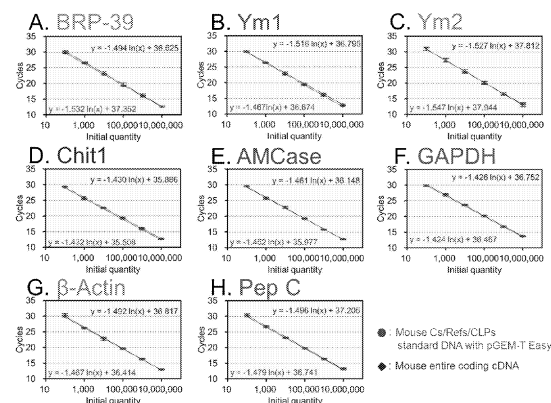


図 5. マウス組織解析のための qPCR システムの検証

次に、八種類の遺伝子の cDNA を分析することによって qPCR 定量化を評価した。標準曲線が八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。図 5A-H の青◇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。従って、同じスケールで CLPs と参照遺伝子を定量できる。

正常マウス組織における CLPs の発現

生体内での BRP-39, Ym1, Ym2 の遺伝子発現制御を明らかにするため、四種類の胎生期と八種類の成熟組織から抽出した total RNA から逆転写した cDNA を pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA を使って qPCR で解析した (図 2B)。BRP-39, Ym1, Ym2 mRNA は、マウス組織において広く発現していた (図 6A-C)。

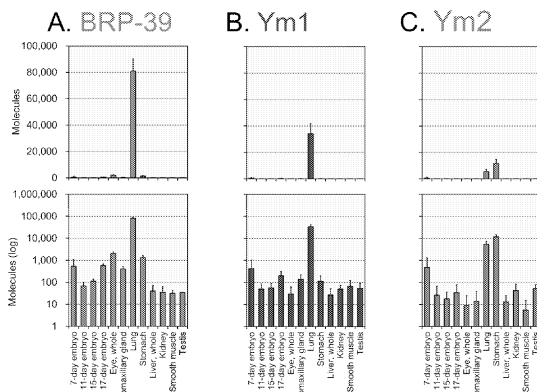


図 6. マウス組織における BRP-39, Ym1, Ym2 mRNA 発現。図の縦軸は、上は実数値で、下は対数値で示している。

これら CLPs mRNA の発現において、明らかな組織特性があることが分かった。BRP-39 mRNA も正常なマウス組織で広く発現していた (図 6A)。BRP-39 mRNA の最も高い発現は肺で、次いで7日目の胎児、目、胃、17日目の胎生期だった (図 6A, 上と下の図)。

同様に、Ym1 mRNA の最も高い発現は、マウスの肺で、次いで7日目の胎生期で検出した (図 6B, 上の図)。一方、Ym2 mRNA の最も高い発現は、マウスの胃で、次いで肺で検出した (図 6C, 上の図)。Ym1 と Ym2 mRNA は、他の組織で低レベルながらも容易に検出できた (図 6B, 6C, 下の図)。Ym2 mRNA と BRP-39, Ym1 のレベルを比較したとき、BRP-39 と Ym1 は肺で高いレベルで合成されていた (図 6)。

マウスの肺と胃組織における CLP, キチナーゼ, 参照遺伝子 mRNA の発現レベル

CLPs と哺乳類キチナーゼの多くの病態生理学の

研究は肺組織を使って行われている

[7, 17, 27, 50-52]。本研究では、マウスの胃組織において、Ym2 mRNA は高い発現であることを示した (図 6)。さらに、AMCase mRNA がマウスの胃で過剰に発現していた [23, 40, 41, 53]。

CLPs と参照遺伝子の発現レベルを肺と胃組織 cDNA を使って、比較した。図 7A は、マウスの肺組織から得た結果を示した。Chit1 は、肺組織で特徴がはっきりとした哺乳類キチナーゼである。マウスの肺組織において、Chit1 のレベルを 1.0 としたとき、cDNA の相対発現レベルは、BRP-39 は 78, Ym1 は 50, Ym2 は 0.3, AMCase は 7.0, GAPDH は 81, β -actin は 292 であった (図 7A)。肺組織は、活性のあるキチナーゼである Chit1 と AMCase よりも BRP-39 と Ym1 の高い発現レベルを示した ($p < 0.01$)。さらに、マウスの肺組織における BRP-39 と Ym1 の発現レベルは、housekeeping 遺伝子としてよく知られている GAPDH のレベルに匹敵した [42-44]。この結果は、BRP-39 と Ym1 はマウスの肺で大量に転写されていることを示している。

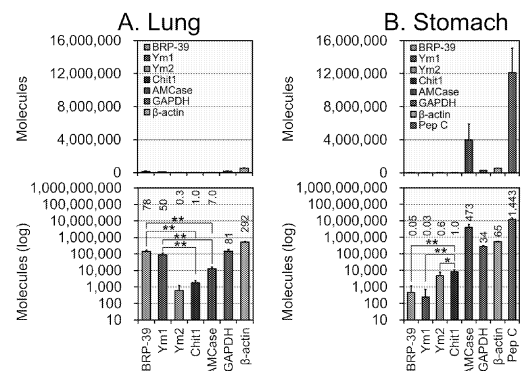


図 7. 肺と胃組織における BRP-39, Ym1, Ym2, 参照遺伝子 mRNA の分析。図の縦軸は、上は実数値で、下は対数値で示している。

図 7B は、マウスの胃組織において得た結果を示す。マウスの胃組織において、Chit1 のレベルを 1.0 にしたとき、cDNA の相対発現レベルは、BRP-39 は 0.05, Ym1 は 0.03, Ym2 は 0.6, AMCase は 473, GAPDH は 34, β -actin は 65, pepsinogen C は 1,443 であった (図 7B)。胃組織は、BRP-39 と Ym1 の発現は Chit1 より低いことが分かった ($p < 0.01$)。Ym2 mRNA は胃で高い発現だったが、発現が Chit1 より低かった。また、Ym2 の発現レベルは AMCase, GAPDH, β -actin, pepsinogen C のレベルよりも低かった。

4. 考察

CLPs は構造的にキチナーゼに関連しているが、キチン分解活性を欠損している [1, 2, 38]。CLPs レ

ベルはいくつかの重篤な病気で増加する。従って、CLPs の生物学的重要性がかなり注目されている。本研究において、キチナーゼ様タンパク質を区別し、それらの mRNA レベルを五つの参照遺伝子レベルと比較する定量法を確立した。マウスの肺において触媒的に不活性な BRP-39 と Ym1 が恒常遺伝子であることを示した。

以前の研究で、マウスとヒト組織において Chit1 と AMCcase 発現レベルを定量し、比較した [40, 41]。ここで、CLPs のレベル解析に我々の方法を応用した。Ym1 と Ym2 の塩基配列がとても似ているので、Ym1 と Ym2 primer が互いにクロス反応する心配があった。しかし、設計した Ym1 と Ym2 primer は、マウス組織 cDNA 混合液から対応する cDNA を増幅できた (図 4)。Ym1 と Ym2 の reverse primer は、PCR 効率に強く影響を与える 3' 末端領域にユニークな配列を含んでいる。一方、Ym1 と Ym2 cDNA の forward primer は似ている。この結果は、これらの cDNA が非常に類似しているにもかかわらず、forward または reverse primer のどちらか一方は、ターゲット cDNA の特異的増幅のためのユニークな配列を含む、ことを示す。この概念は、Ym1 と Ym2 のように、互いによく似ている分子の定量に適用できる。

マウス Refs/CLPs 標準 DNA を検証したとき、複数の産物を Ym2 primer を使ってマウス Refs/CLPs 標準 DNA から増幅した。この結果は、Ym1/AMCase と Ym2 間のクロス反応であると考えられた (図 1C と E)。通常は、RT-PCR の primer を設計するとき、混入したゲノム DNA からの非標的産物の増幅を避けるため、目的の領域に intron 配列を含む [49]。哺乳類の intron は、約 3 kbp 以上の長さであるため、一般的に、目的の cDNA と比較して、ゲノム配列を PCR で増幅するのは困難である。マウス Refs/CLPs 標準 DNA は、pGEM-T Easy vector (約 3 kbp, 図 2A) にクローン化していたので、Ym1 と Ym2 の間に pGEM-T Easy 配列を含む直鎖のマウス Refs/CLPs 標準 DNA を PCR により調製した (図 2A と B)。さらに、qPCR のプロトコルを変更した (アニーリング 55 °C, 30 秒; 伸長反応 72 °C, 10 秒)。結果として、クロス反応の問題を克服することが出来た。また、pGEM-T Easy 付マウス Refs/CLPs 標準 DNA の検証から、Ym1 と Ym2 をそれぞれ定量できる (図 5)。

BRP-39, Ym1, Ym2 の遺伝子発現パターンの結果は、以前の報告と一致した [3, 9, 37]。また、この解析は CLPs を検出するためと、マウス組織において同じスケールで CLPs と参照遺伝子の遺伝子発現パターンの網羅的研究をするのに十分な感受性であった。マウスの肺における mRNA レベルの順序は、GAPDH \approx BRP-39 \approx Ym1 > AMCcase > Chit1 > Ym2

であった。

BRP-39 と Ym1 mRNA は、同じ発現パターンを示す (図 6A と B)。Ym1 mRNA は、マウスの肺で高いレベルで発現した。一方、Ym2 mRNA は胃、次いで、肺で検出した。Ym1 と Ym2 は高い配列相同性を示すが、発現パターンは異なった。詳細な CLPs 遺伝子のプロモーター領域の詳細な特徴づけ、*cis-* と *trans-* 的に作用する転写因子の同定は、これらの CLPs の選択的発現を理解するには必要だろう。

マウス肺組織において、BRP-39 と Ym1 mRNA レベルが活性のあるキチナーゼである Chit1 と AMCcase より高いことを見出した。BRP-39 と Ym1 mRNA のレベルは、典型的な恒常発現している遺伝子である GAPDH のレベルに匹敵した。肺において、Chit1 と AMCcase は、キチン含有病原体から保護するための宿主防御システムの一部として働いているだろう [50, 54]。活性のあるキチナーゼ、BRP-39, Ym1 の比較は、マウスの肺で高く発現している。さらに、BRP-39 と Ym1 はマウスの肺で共発現しているようだ (図 6A と B)。Qureshi らは、BRP-39, Ym1, Ym2 が炎症を促進した初発の腫瘍モデルで過剰に発現していたと報告した [55]。彼らは、これらの CLPs が組織リモデリングと免疫応答を増殖することを示唆した [55]。BRP-39 と Ym1 はキチン分解活性を欠いていると報告されているが、マウスにおけるこれらの発現の高いレベルは、これらの分子が生物学的防御として生理学的重要性を示唆している。

AMCase は主にマウスの胃で過剰発現しており [40, 41]、強い活性のピークは pH 2.0 で見られた。このことは、AMCase がキチン含有食物を分解する消化酵素として機能していることを示唆している [23, 56]。Chit1 は、肺組織と比べ、胃で高く発現していた (約 10 倍) (図 7)。Chit1 は、胃の pH 2 でキチン分解活性を持たないため [21, 57]、Chit1 は胃でキチン分解活性に貢献していないと思われる。Chit1 は、胃と小腸の非腺性部分のような中性付近の pH の部分で生産されていることを示す [53]。従って、おそらく Chit1 も小腸のような中性組織の条件下でキチンを分解する消化酵素として機能している。

Ym2 発現は、Chit1 と AMCcase より低かったが、BRP-39 と Ym1 と比較して高かった。Ym1 の機能はまだ知られていないが、表面プラズモン共鳴を用いた解析結果は、Ym1 がキトビオース、キトトリオース、キトテトラオースに結合できることを証明している。さらに、ヘパリン硫酸は候補リガンドとしても示唆されている [8]。Ym2 も Ym1 に密接に関連している機能未知のタンパク質である [5]。AMCase とともに Ym2 の高い発現は、おそらく、食物消化やマウスの胃の防御メカニズムに関与している。

キチナーゼと CLPs mRNA やタンパク質のレベルの増加は、多くの炎症性の状態で知られている [2, 17, 25]。Chit1 のレベルは、ゴーシェ病、喫煙者、慢性閉塞性肺疾患 (COPD) 患者、アルツハイマー病で上昇する [20, 52, 58, 59]。AMCase の発現と活性も、喘息モデルマウスやキチン投与によるアレルギー性気道応答で増加する [50, 51]。従って、キチナーゼと CLPs は、おそらく、多くの病態生理学的状態で重要な役割をしている [2, 38, 39]。しかし、これら病気の病態生理学的にキチナーゼと CLPs の寄与はわかっていない。

CLPs 発現の多くの研究において、qPCR または Western blotting を使った相対定量は、CLPs レベルの上昇の評価に利用されている [17, 51, 55, 60]。両方の方法は、関連する遺伝子の発現レベルの GAPDH と β -actin のような housekeeping のレベルでの標準化を含む。相対定量法は、関連する遺伝子の mRNA レベルを housekeeping 遺伝子と比較する絶対定量法より簡単である。しかし、相対定量法は異なる遺伝子転写物のレベルを同じスケールで比較することができない。我々の方法は、標準 DNA の作製に関連する複数のステップが必要であるが、異なる遺伝子を直接比較することができる。

最近の研究において、病気のマウスやヒトの肺で BRP-39/YKL-40 の増加した発現レベルは発現調節の脱制御の結果だろう、と報告された [2, 38]。さらに、BRP-39 欠損と YKL-40 遺伝子導入マウスを使って、これらタンパク質が機能的に同じであり、組織リモデリング、細胞死経路の制御と気道閉塞に関与していることを証明した [17]。さらに、BRP-39 は、インターロイキン (IL)-13 受容体 $\alpha 2$ を介した細胞死、炎症、リモデリングの制御による細菌排除を促進するとき、細菌感染の間誘導される [60, 61]。ここに書いた定量システムを使って、CLPs mRNA レベルを qPCR を使ってマウス組織間で哺乳類キチナーゼと比較することができる。この解析のタイプは、特に、マウスモデルを使った生体病理学的研究において CLPs の生物学的機能の理解を助けることができる。

参考文献

1. Bussink AP, Speijer D, Aerts JM, Boot RG: Evolution of mammalian chitinase(-like) members of family 18 glycosyl hydrolases. *Genetics* 2007, 177(2):959-970.
2. Kawada M, Hachiya Y, Arihiro A, Mizoguchi E: Role of mammalian chitinases in inflammatory conditions. *Keio J Med* 2007, 56(1):21-27.
3. Hakala BE, White C, Recklies AD: Human cartilage gp-39, a major secretory product of articular chondrocytes and synovial cells, is a mammalian member of a chitinase protein family. *J Biol Chem* 1993, 268(34):25803-25810.
4. Rehli M, Krause SW, Andreesen R: Molecular characterization of the gene for human cartilage gp-39 (CHI3L1), a member of the chitinase protein family and marker for late stages of macrophage differentiation. *Genomics* 1997, 43(2):221-225.
5. Webb DC, McKenzie AN, Foster PS: Expression of the Ym2 lectin-binding protein is dependent on interleukin (IL)-4 and IL-13 signal transduction: identification of a novel allergy-associated protein. *J Biol Chem* 2001, 276(45):41969-41976.
6. Ward JM, Yoon M, Anver MR, Haines DC, Kudo G, Gonzalez FJ, Kimura S: Hyalinosis and Ym1/Ym2 gene expression in the stomach and respiratory tract of 129S4/SvJae and wild-type and CYP1A2-null B6, 129 mice. *Am J Pathol* 2001, 158(1):323-332.
7. Sun YJ, Chang NC, Hung SI, Chang AC, Chou CC, Hsiao CD: The crystal structure of a novel mammalian lectin, Ym1, suggests a saccharide binding site. *J Biol Chem* 2001, 276(20):17507-17514.
8. Chang NC, Hung SI, Hwa KY, Kato I, Chen JE, Liu CH, Chang AC: A macrophage protein, Ym1, transiently expressed during inflammation is a novel mammalian lectin. *J Biol Chem* 2001, 276(20):17497-17506.
9. Jin HM, Copeland NG, Gilbert DJ, Jenkins NA, Kirkpatrick RB, Rosenberg M: Genetic characterization of the murine Ym1 gene and identification of a cluster of highly homologous genes. *Genomics* 1998, 54(2):316-322.
10. Shackelton LM, Mann DM, Millis AJ: Identification of a 38-kDa heparin-binding glycoprotein (gp38k) in differentiating vascular smooth muscle cells as a member of a group of proteins associated with tissue remodeling. *J Biol Chem* 1995, 270(22):13076-13083.
11. Hu B, Trinh K, Figueira WF, Price PA: Isolation and sequence of a novel human chondrocyte protein related to mammalian members of the chitinase protein family. *J Biol Chem* 1996, 271(32):19415-19420.
12. Arias EB, Verhage HG, Jaffe RC:

- Complementary deoxyribonucleic acid cloning and molecular characterization of an estrogen-dependent human oviductal glycoprotein. *Biol Reprod* 1994, 51(4):685–694.
13. Sendai Y, Komiya H, Suzuki K, Onuma T, Kikuchi M, Hoshi H, Araki Y: Molecular cloning and characterization of a mouse oviduct-specific glycoprotein. *Biol Reprod* 1995, 53(2):285–294.
 14. Kzhyshkowska J, Mamidi S, Gratchev A, Kremmer E, Schmuttermaier C, Krusell L, Haus G, Utikal J, Schledzewski K, Scholtze J, Goerdts S: Novel stabilin-1 interacting chitinase-like protein (SI-CLP) is up-regulated in alternatively activated macrophages and secreted via lysosomal pathway. *Blood* 2006, 107(8):3221–3228.
 15. Morrison BW, Leder P: neu and ras initiate murine mammary tumors that share genetic markers generally absent in c-myc and int-2-initiated tumors. *Oncogene* 1994, 9(12):3417–3426.
 16. Johansen JS: Studies on serum YKL-40 as a biomarker in diseases with inflammation, tissue remodelling, fibroses and cancer. *Dan Med Bull* 2006, 53(2):172–209.
 17. Lee CG, Hartl D, Lee GR, Koller B, Matsuura H, Da Silva CA, Sohn MH, Cohn L, Homer RJ, Kozhich AA, Humbles A, Kearley J, Coyle A, Chupp G, Reed J, Flavell RA, Elias JA: Role of breast regression protein 39 (BRP-39)/chitinase 3-like-1 in Th2 and IL-13-induced tissue responses and apoptosis. *J Exp Med* 2009, 206(5):1149–1166.
 18. Henrissat B: A classification of glycosyl hydrolases based on amino acid sequence similarities. *Biochem J* 1991, 280(Pt 2):309–316.
 19. Cantarel BL, Coutinho PM, Rancurel C, Bernard T, Lombard V, Henrissat B: The Carbohydrate-Active EnZymes database (CAZy): an expert resource for Glycogenomics. *Nucleic Acids Res* 2009, 37(Database issue):D233–D238.
 20. Hollak CE, van Weely S, van Oers MH, Aerts JM: Marked elevation of plasma chitotriosidase activity. A novel hallmark of Gaucher disease. *J Clin Invest* 1994, 93(3):1288–1292.
 21. Renkema GH, Boot RG, Muijsers AO, Donker-Koopman WE, Aerts JM: Purification and characterization of human chitotriosidase, a novel member of the chitinase family of proteins. *J Biol Chem* 1995, 270(5):2198–2202.
 22. Boot RG, Renkema GH, Strijland A, van Zonneveld AJ, Aerts JM: Cloning of a cDNA encoding chitotriosidase, a human chitinase produced by macrophages. *J Biol Chem* 1995, 270(44):26252–26256.
 23. Boot RG, Blommaert EF, Swart E, Ghauharali-van der Vlugt K, Bijl N, Moe C, Place A, Aerts JM: Identification of a novel acidic mammalian chitinase distinct from chitotriosidase. *J Biol Chem* 2001, 276(9):6770–6778.
 24. Watanabe T, Kobori K, Miyashita K, Fujii T, Sakai H, Uchida M, Tanaka H: Identification of glutamic acid 204 and aspartic acid 200 in chitinase A1 of *Bacillus circulans* WL-12 as essential residues for chitinase activity. *J Biol Chem* 1993, 268(25):18567–18572.
 25. Sohn MH, Kang MJ, Matsuura H, Bhandari V, Chen NY, Lee CG, Elias JA: The chitinase-like proteins breast regression protein-39 and YKL-40 regulate hyperoxia-induced acute lung injury. *Am J Respir Crit Care Med* 2010, 182(7):918–928.
 26. Letuve S, Kozhich A, Arouche N, Grandsaigne M, Reed J, Dombret MC, Kiener PA, Aubier M, Coyle AJ, Pretolani M: YKL-40 is elevated in patients with chronic obstructive pulmonary disease and activates alveolar macrophages. *J Immunol* 2008, 181(7):5167–5173.
 27. Hector A, Kormann MS, Mack I, Latzin P, Casaulta C, Kieninger E, Zhou Z, Yildirim AO, Bohla A, Rieber N, Kappler M, Koller B, Eber E, Eickmeier O, Zielen S, Eickelberg O, Griese M, Mall MA, Hartl D: The chitinase-like protein YKL-40 modulates cystic fibrosis lung disease. *PLoS One* 2011, 6(9):e24399.
 28. Johansen JS, Stoltenberg M, Hansen M, Florescu A, Horslev-Petersen K, Lorenzen I, Price PA: Serum YKL-40 concentrations in patients with rheumatoid arthritis: relation to disease activity. *Rheumatology (Oxford)* 1999, 38(7):618–626.
 29. Bernardi D, Podswiadek M, Zaninotto M, Punzi L, Plebani M: YKL-40 as a marker of joint involvement in inflammatory bowel disease.

- Clin Chem 2003, 49(10):1685–1688.
30. Koutroubakis IE, Petinaki E, Dimoulios P, Vardas E, Roussomoustakaki M, Maniatis AN, Kouroumalis EA: Increased serum levels of YKL-40 in patients with inflammatory bowel disease. *Int J Colorectal Dis* 2003, 18(3):254–259.
 31. Vind I, Johansen JS, Price PA, Munkholm P: Serum YKL-40, a potential new marker of disease activity in patients with inflammatory bowel disease. *Scand J Gastroenterol* 2003, 38(6):599–605.
 32. Chupp GL, Lee CG, Jarjour N, Shim YM, Holm CT, He S, Dziura JD, Reed J, Coyle AJ, Kiener P, Cullen M, Grandsaigne M, Dombret MC, Aubier M, Pretolani M, Elias JA: A chitinase-like protein in the lung and circulation of patients with severe asthma. *N Engl J Med* 2007, 357(20):2016–2027.
 33. Vos K, Steenbakkers P, Miltenburg AM, Bos E, van Den Heuvel MW, van Hogezaand RA, de Vries RR, Breedveld FC, Boots AM: Raised human cartilage glycoprotein-39 plasma levels in patients with rheumatoid arthritis and other inflammatory conditions. *Ann Rheum Dis* 2000, 59(7):544–548.
 34. Johansen JS, Moller S, Price PA, Bendtsen F, Junge J, Garbarsch C, Henriksen JH: Plasma YKL-40: a new potential marker of fibrosis in patients with alcoholic cirrhosis? *Scand J Gastroenterol* 1997, 32(6):582–590.
 35. Johansen JS, Cintin C, Jorgensen M, Kamby C, Price PA: Serum YKL-40: a new potential marker of prognosis and location of metastases of patients with recurrent breast cancer. *Eur J Cancer* 1995, 31A(9):1437–1442.
 36. Cintin C, Johansen JS, Christensen IJ, Price PA, Sorensen S, Nielsen HJ: Serum YKL-40 and colorectal cancer. *Br J Cancer* 1999, 79(9–10):1494–1499.
 37. Hung SI, Chang AC, Kato I, Chang NC: Transient expression of Yml, a heparin-binding lectin, during developmental hematopoiesis and inflammation. *J Leukoc Biol* 2002, 72(1):72–82.
 38. Lee CG, Da Silva CA, Dela Cruz CS, Ahangari F, Ma B, Kang MJ, He CH, Takyar S, Elias JA: Role of chitin and chitinase/chitinase-like proteins in inflammation, tissue remodeling, and injury. *Annu Rev Physiol* 2011, 73:479–501.
 39. Bueter CL, Specht CA, Levitz SM: Innate sensing of chitin and chitosan. *PLoS Pathog* 2013, 9(1):e1003080.
 40. Ohno M, Tsuda K, Sakaguchi M, Sugahara Y, Oyama F: Chitinase mRNA levels by quantitative PCR using the single standard DNA: acidic mammalian chitinase is a major transcript in the mouse stomach. *PLoS One* 2012, 7(11):e50381.
 41. Ohno M, Togashi Y, Tsuda K, Okawa K, Kamaya M, Sakaguchi M, Sugahara Y, Oyama F: 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* 2013, 8(6):e67399.
 42. Kouadjo KE, Nishida Y, Cadrin-Girard JF, Yoshioka M, St-Amand J: Housekeeping and tissue-specific genes in mouse tissues. *BMC Genomics* 2007, 8:127.
 43. Dabek J, Wilczok J, Kulach A, Gasior Z: Altered transcriptional activity of gene encoding GAPDH in peripheral blood mononuclear cells from patients with cardiac syndrome X – an important part in pathology of microvascular angina? *Arch Med Sci* 2010, 6(5):709–712.
 44. Zainuddin A, Chua KH, Abdul Rahim N, Makpol S: Effect of experimental treatment on GAPDH mRNA expression as a housekeeping gene in human diploid fibroblasts. *BMC Mol Biol* 2010, 11:59.
 45. Bustin SA, Benes V, Garson JA, Hellemans J, Huggett J, Kubista M, Mueller R, Nolan T, Pfaffl MW, Shipley GL, Vandesompele J, Wittwer CT: The MIQE guidelines: minimum information for publication of quantitative real-time PCR experiments. *Clin Chem* 2009, 55(4):611–622.
 46. Bustin SA, Beaulieu JF, Huggett J, Jaggi R, Kibenge FS, Olsvik PA, Penning LC, Toegel S: MIQE precis: Practical implementation of minimum standard guidelines for fluorescence-based quantitative real-time PCR experiments. *BMC Mol Biol* 2010, 11:74.
 47. Nygard AB, Jorgensen CB, Cirera S, Fredholm M: Selection of reference genes for gene expression studies in pig tissues using SYBR green qPCR. *BMC Mol Biol* 2007, 8:67.
 48. Kageyama T: Pepsinogens, progastricsins,

- and prochymosins: structure, function, evolution, and development. *Cell Mol Life Sci* 2002, 59(2):288–306.
49. O'Connell J: The basics of RT-PCR. Some practical considerations. *Methods Mol Biol* 2002, 193:19–25.
 50. Zhu Z, Zheng T, Homer RJ, Kim YK, Chen NY, Cohn L, Hamid Q, Elias JA: Acidic mammalian chitinase in asthmatic Th2 inflammation and IL-13 pathway activation. *Science* 2004, 304(5677):1678–1682.
 51. Reese TA, Liang HE, Tager AM, Luster AD, Van Rooijen N, Voehringer D, Locksley RM: Chitin induces accumulation in tissue of innate immune cells associated with allergy. *Nature* 2007, 447(7140):92–96.
 52. Seibold MA, Donnelly S, Solon M, Innes A, Woodruff PG, Boot RG, Burchard EG, Fahy JV: Chitotriosidase is the primary active chitinase in the human lung and is modulated by genotype and smoking habit. *J Allergy Clin Immunol* 2008, 122(5):944–950. e943.
 53. Boot RG, Bussink AP, Verhoek M, de Boer PA, Moorman AF, Aerts JM: Marked differences in tissue-specific expression of chitinases in mouse and man. *J Histochem Cytochem* 2005, 53(10):1283–1292.
 54. van Eijk M, van Roomen CP, Renkema GH, Bussink AP, Andrews L, Blommaert EF, Sugar A, Verhoeven AJ, Boot RG, Aerts JM: Characterization of human phagocyte-derived chitotriosidase, a component of innate immunity. *Int Immunol* 2005, 17(11):1505–1512.
 55. Qureshi AM, Hannigan A, Campbell D, Nixon C, Wilson JB: Chitinase-like proteins are autoantigens in a model of inflammation-promoted incipient neoplasia. *Genes Cancer* 2011, 2(1):74–87.
 56. Kashimura A, Okawa K, Ishikawa K, Kida Y, Iwabuchi K, Matsushima Y, Sakaguchi M, Sugahara Y, Oyama F: Protein A-mouse acidic mammalian chitinase-V5-His expressed in periplasmic space of *Escherichia coli* possesses chitinase functions comparable to CHO-expressed protein. *PLoS One* 2013, 8(11):e78669.
 57. Zheng T, Rabach M, Chen NY, Rabach L, Hu X, Elias JA, Zhu Z: Molecular cloning and functional characterization of mouse chitotriosidase. *Gene* 2005, 357(1):37–46.
 58. Letuve S, Kozhich A, Humbles A, Brewah Y, Dombret MC, Grandsaigne M, Adle H, Kolbeck R, Aubier M, Coyle AJ, Pretolani M: Lung chitinolytic activity and chitotriosidase are elevated in chronic obstructive pulmonary disease and contribute to lung inflammation. *Am J Pathol* 2010, 176(2):638–649.
 59. Watabe-Rudolph M, Song Z, Lausser L, Schnack C, Begus-Nahrman Y, Scheithauer MO, Rettinger G, Otto M, Tumani H, Thal DR, Attems J, Jellinger KA, Kestler HA, von Arnim CA, Rudolph KL: Chitinase enzyme activity in CSF is a powerful biomarker of Alzheimer disease. *Neurology* 2012, 78(8):569–577.
 60. He CH, Lee CG, Dela Cruz CS, Lee CM, Zhou Y, Ahangari F, Ma B, Herzog EL, Rosenberg SA, Li Y, Nour AM, Parikh CR, Schmidt I, Modis Y, Cantley L, Elias JA: Chitinase 3-like 1 regulates cellular and tissue responses via IL-13 receptor alpha2. *Cell Rep* 2013, 4(4):830–841.
 61. Dela Cruz CS, Liu W, He CH, Jacoby A, Gornitzky A, Ma B, Flavell R, Lee CG, Elias JA: Chitinase 3-like-1 promotes *Streptococcus pneumoniae* killing and augments host tolerance to lung antibacterial responses. *Cell Host Microbe* 2012, 12(1):34–46.

発表論文

1. Ohno, M., Kida, Y., Sakaguchi, M., Sugahara, Y. and Oyama, F. (2014) Establishment of a quantitative PCR system for discriminating chitinase-like proteins: catalytically inactive breast regression protein-39 and Yml are constitutive genes in mouse lung. *BMC Molecular Biology* 15, 23.
2. Kashimura, A., Kimura, M., Okawa, K., Suzuki, H., Ukita, A., Wakita, S., Okazaki, K., Ohno, M., Bauer, P.O., Sakaguchi, M., Sugahara, Y. and Oyama, F. (2015) Functional properties of the catalytic domain of mouse acidic mammalian chitinase expressed in *Escherichia coli*. *Int. J. Mol. Sci.* 16, 4028–4042.
3. Ohno, M., Bauer, P.O., Kida, Y., Sakaguchi, M., Sugahara, Y. and Oyama, F. (2015) Quantitative Real-Time PCR Analysis of YKL-40 and Its Comparison with Mammalian Chitinase mRNAs in Normal Human Tissues Using a Single Standard DNA. *Int. J. Mol. Sci. in press*

学会発表

1. M. Ohno, K. Tsuda, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, and F. Oyama., Comparison of mRNA levels among Chit1, AMCcase and reference genes in mouse tissues., The 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (IFAEE), 2014年11月 (ポスター発表)
2. M. Ohno, Y. Kida, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama., Analysis of the expression levels of chitinase-like proteins, Ym1, Ym2 and breast regression protein-39, in mouse tissues., The 64th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics, 2014年10月 (ポスター発表)
3. M. Ohno, K. Tsuda, K. Okawa, M. Sakaguchi, Y. Sugahara and F. Oyama., Species-specific expression of acidic mammalian chitinase in stomach tissues., The 63rd Annual Meeting of the American Society of Human Genetics, 2013年10月 (ポスター発表)
4. M. Ohno, Y. Togashi, K. Tsuda, K. Okawa, M. Kamaya, M. Sakaguchi, Y. Sugahara and F. Oyama., Quantitative PCR comparison of mRNA levels in human and mouse., 10th International Conference of the Asian Pacific Chitin Chitosan Symposium, 2013年10月 (ポスター発表)
5. 大野美紗, 貴田雄太, 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様タンパク質の遺伝子発現解析, 日本農芸化学会2015年度大会, 2015年3月 (口頭発表)
6. 大野美紗, 貴田雄太, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, マウス組織でのキチナーゼとキチナーゼ様タンパク質の発現レベルの解析, 第28回キチン・キトサンシンポジウム, 2014年8月 (ポスター発表)
7. 大野美紗, 富樫勇斗, 津田京子, 大川一明, 釜谷美則, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, マウスとヒト組織における哺乳類キチナーゼ mRNAレベルの解析, 日本農芸化学会2014年度大会, 2014年3月 (口頭発表)
8. 大野美紗, 富樫勇斗, 津田京子, 大川一明, 釜谷美則, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, マウスとヒトにおける哺乳類キチナーゼの発現レベルの解析, 第3回 医薬工3大学包括連携推進シンポジウム, 2013年12月 (ポスター発表)

シンセティックジェットを利用した推進器開発のための基礎的研究 —ジェットポンプとしての流体力評価—

工学院大学 機械創造工学科 佐藤 光太郎

東京都市大学 機械工学科 西部 光一

Fundamental Study on Thruster using Synthetic Jets

— Evaluation of Fluid Force as Jet Pump —

Kotaro Sato, Department of Innovative Mechanical Engineering, Kogakuin University
Koichi Nishibe, Department of Mechanical Engineering, Tokyo City University

ABSTRACT : Although there have recently been various studies on synthetic jets, many issues remain to be clarified, including details of the jet structure and the fluid force. In this paper, a jet pump (fan) which utilizes the synthetic jet is proposed as a fundamental investigation for development of the thruster using synthetic jets. The numerical results of the velocity change with time downstream of the slot are compared with the experimental results. The typical flow patterns inside the pump and the performance curves are demonstrated. Furthermore, the mechanism of pressure restoration for various non-dimensional stroke length L_0 is discussed.

1. はじめに

連続噴流の代替としてシンセティックジェットが注目され、盛んに研究が行われている⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾。シンセティックジェットはアクチュエータの種類が豊富であることが大きな特徴であり、ダイアフラム、スピーカ、ピエゾ素子、プラズマアクチュエータ、放電気泡など、その多くは回転部をもたない方式である。シンセティックジェットの非回転アクチュエータは小型化・軽量化に適していることからシンセティックジェットの応用研究として、様々な流動制御が試みられ、これまでも一定の成果が得られている。しかしながら、シンセティックジェットを利用した推進器に関する研究例は少なく、シンセティックジェットと流体力の関係についての研究はほとんど見られない^{(3),(4)}。したがって、流体機械としての性能特性と流れ場との関係には未だに不明な点が多く残され、そのため最適振動条件や最適形状に関する議論もほとんどなされていない。

本研究はシンセティックジェットを利用した推進器開発のための基礎的研究であり、ここでは実験を容易にするため推進器の代わりにジェットポンプ（ファン）として流動特性と流体力との関係について議論する。主として、スロット出口近傍での噴流速度時間変化並びにポンプ内部の典型的フローパターンを示すとともに、無次元

ストロークをパラメータとしてポンプの昇圧機構並びに性能特性に言及する。さらに連続噴流を利用した標準型ジェットポンプ（ファン）との比較を試みる。また、流路内に吹出しスロットを有するジェットポンプの性能特性についても議論する。

2. 実験装置および方法

本実験で用いた実験装置の概略を Fig. 1 に示す。作動流体には空気、シンセティックジェット・アクチュエータにはスピーカを使用した。スピーカには二次元ノズル（スロット幅 $b_0 = 5 \text{ mm}$ 、高さ $H = 100 \text{ mm}$ ）が取り付けられており、流路上下端にはアクリル板が配されているため、ノズル近傍では概ね二次元流れとみなすことができる。本実験装置の流路高さは $H = 100 \text{ mm}$ 、入口流路幅は $W_{in} = 25 \text{ mm}$ であり、ダクト流路幅 $W_s = 25 \text{ mm}$ である。したがって、ここではスロット幅とダクト幅の比 $W_s / b_0 = 5$ の結果について報告する。また、ポンプ出口幅 W_{out} を 0 mm 、 6 mm 、 12.5 mm 、 18 mm 、 25 mm と変更することで流量 Q を調整した。

シンセティックジェットはシグナルジェネレータ(MCP LG1100D)とアンプ(classic Pro V3000)によりスピーカを駆動することで生成されている。本研究では $y/b_0 = \pm 17.5$ を便宜上のポンプ入口、下流 $x/b_0 = 30$ を出口と定義

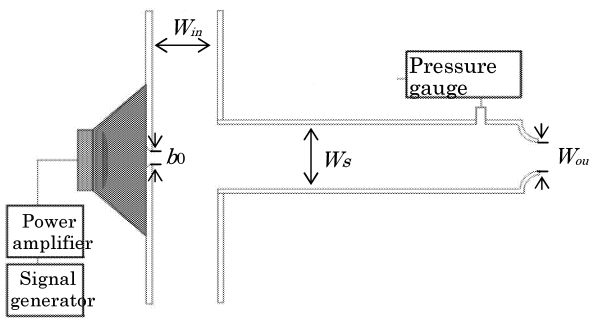


Fig. 1 Experimental apparatus

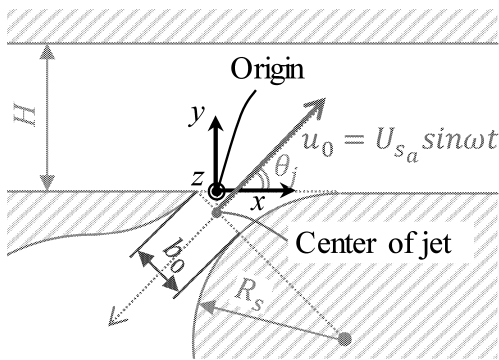


Fig. 2 Coordinate system and geometry of the slot.

して 2 点の差圧を微差圧計 (岡野製作所 DMP3000) で計測することにより吐出圧 Δp を求めた. 流量 Q は $x/b_0 = 37$ での速度 U_{out} に出口断面積 A_{out} を掛けて求めた. 本研究では, スロット出口代表速度 $U_0 = 7.5 \text{ m/s}$, レイノルズ数 $Re = U_0 b_0 / \nu = 2400$ の結果を示す. なお, シンセティックジェット速度の定義については Holman らの論文 (1) を参照されたい. また, 結果については無次元ストローク $L_0 = l/b_0$, 流量係数 $\Phi = \frac{U_{out} A_{out}}{b_0 H U_0}$, 圧力係数 $\Psi = \frac{\Delta p}{0.5 \rho U_0^2}$

を用いて整理した.

一方, 流路内にスロット有するコアンダジェットポンプ (ファン) のスロット形状を Fig. 2 に, 試作機の実験装置概略を Fig. 3 に示す. シンセティックジェットはシグナルジェネレータ (MCP LG1100D) とアンプ (classic Pro V3000) によりスピーカを駆動することで生成されている. 吹き出しスロットは $b_0 = 10 \text{ mm}$, また, 流路幅, 流路高さともに 30 mm である. スロットからの噴出角度は $\theta = 45^\circ$ である. ポンプの吐出圧 Δp はスロットの上流 210 mm を便宜上のポンプ入口, 下流 340 mm を出口と定義して 2 点の差圧を微差圧計 (岡野製作所 DMP3000) で計測することにより求めた. 流量 Q は装置出口速度に流路断面積を掛けて求めた.

3. 数値シミュレーション

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 (株) ソフトウェアクレイドル) を用いた. 乱流モデルには $k-\epsilon$ モデルを採用し, 2 次元非圧縮非粘性流れを仮定して流れ場の解析を行った.

Fig. 4 にシンセティックジェットを利用したポンプ (ファ

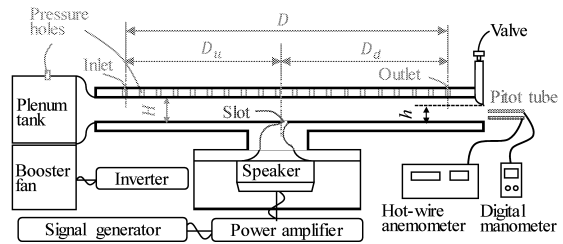


Fig. 3 Schematic diagram of experimental apparatus

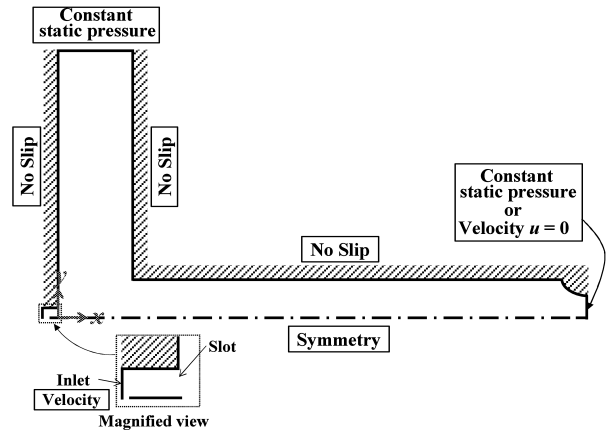


Fig. 4 Boundary conditions for numerical

モデルの計算領域及び境界条件を示す. 境界条件としてスロット (駆動体出口) とゼロ流量時における装置出口では流速規定を与え, 被駆動体入口部とゼロ流量時以外での装置出口では圧力規定 (大気圧一定), スロット中心線上では対称境界, その他の固体表面は滑り無し条件とした. なお, 本研究では実験条件に合わせてレイノルズ数 $Re = 2400$ で計算を行った. 全体のメッシュ数は約 80,000 である.

4. 結果および考察

Fig. 5 に無次元ストローク $L_0 = 30$, 無次元ポンプ出口幅 $W_{out}/b_0 = 2.5$ の条件下で実験並びに数値解析により得られた噴流中心位置 ($y/b_0 = 0$) における x 方向速度の絶対値 $|u|$ の時間波形を示す. (a), (b) はそれぞれスロット出口近傍 ($x/b_0 = 0.6$), 装置出口 ($x/b_0 = 37$) の位置で計測された結果である. 本図でのシンセティックジェットの振動数は 50 Hz であり, 周期は 0.02 s となる. スロット出口近傍の (a) では噴出過程における正の流速と吸引過程における負の流速が交互に与えられるが, 絶対値 $|u|$ を示した本図では噴出過程の大きな山と吸引過程の小さな山の繰り返しとして観察される. したがって, 大きな山のピークとピークの間隔が 0.02 s を示している. (a) $x/b_0 = 0.6$ の位置では実験, 数値解析ともに吸引時の最大流速絶対値 (小さい山の最大値) は噴出時 (大きい山の最大値) の約 $1/2$ になっており, 実験結果と数値解析結果が良好に一致していることがわかる. (b) 装置出口 $x/b_0 = 37$ に対する結果では, 速度絶対値時間波形の周期が 0.02 s として読み取れる. すなわちこの位置ではシンセティックジェット吸引過程においても流れの向きが変化することは

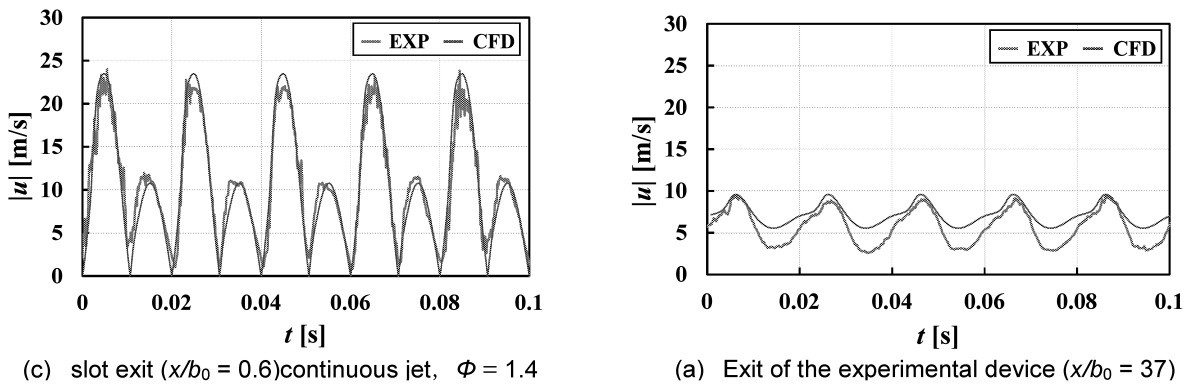


Fig. 5 Velocity waveform along the centerline ($L_0 = 30, W_{out}/b_0 = 2.5, \phi \approx 2$) Fig.

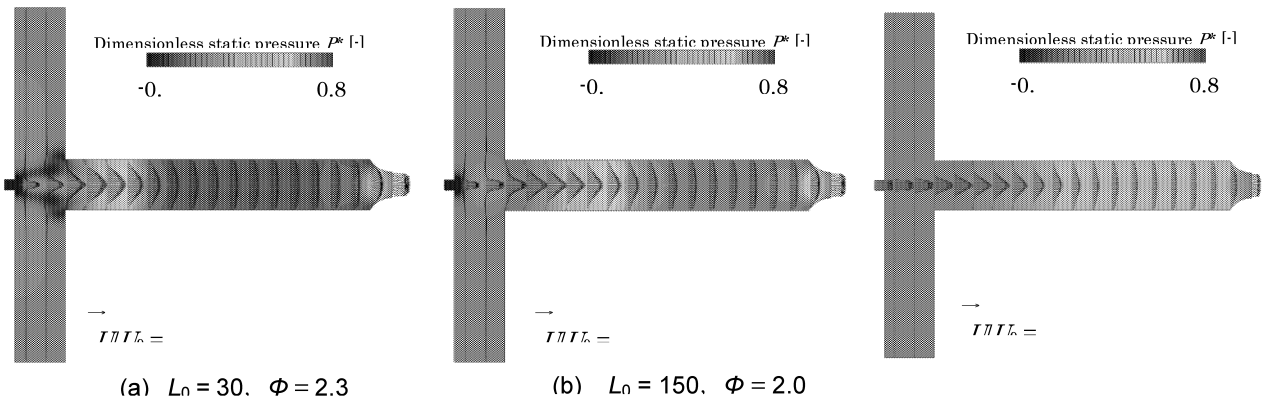
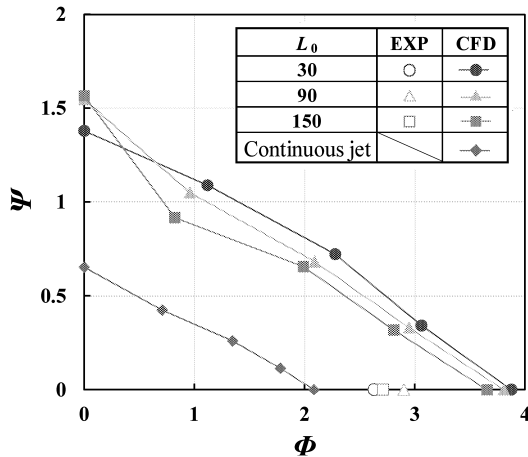


Fig. 6 Time-mean velocity vectors and static pressure distribution ($W_{out}/b_0 = 2.5$)



7 Static pressure – flowrate performance

なく、速度 u は常に正を示すことがわかる。実験結果と数値解析結果とは定性的に一致しているものの、定量的には差異が見られる。実験では下流に行くにしたがって二次元構造が崩れるのに対して、数値解析では計算領域全体で二次元流れを仮定していることが主な原因のひとつとして考えられる。ポンプ性能としては、この速度波形の差異はエントレインメントの違いと捉えることができ、本図の出口条件における実験の流量係数が $\phi = 1.85$ であったのに対して、数値解析では $\phi = 2.28$ となっている。

Fig. 6 に数値解析で得られた時間平均ベクトルおよび

時間平均圧力分布を示す。この時のレイノルズ数は $Re = U_0 b_0 / \nu = 2400$ (シンセティックジェット, 連続噴流ともにスロット出口速度は $U_0 = 7.5 \text{ m/s}$) で無次元ポンプ出口幅は $W_{out}/b_0 = 2.5$ である。(a)は $L_0 = 30$, (b)は $L_0 = 150$, (c)は連続噴流に対する流れ場であり、このとき結果として得られた流量係数はそれぞれ $\phi = 2.3, 2.0, 1.4$ (連続噴流の場合、総流量は噴流流量の 1.4 倍)であった。時間平均をした本ベクトル図では、いずれの場合においても噴流構造がダクト内でも確認でき、下流になるにしたがって噴流幅が増加する様子が伺える。また、ダクト入口付近には渦領域が観察される。ベクトル図と圧力分布を対比すると、スロットから下流になるほど、噴流幅が増加し、それとともに静圧回復する過程が確認でき、(a), (b), (c)とも噴流幅がダクト幅と概ね等しくなる位置で最大圧力を示している。ただし、最大圧力となる位置は(a), (b), (c)の順に下流側へ移っていることがわかる。なお、(a), (b), (c)の吐出圧力係数はそれぞれ、 $\Psi = 0.72, 0.68, 0.26$ となっており、シンセティックジェットの Ψ は同程度、連続噴流の Ψ はシンセティックジェットの値の 4 割程度であった。

連続噴流(c)のダクト内での挙動と広く知られている自由噴流の挙動⁽²⁾を比較すると、噴流幅の拡大角(拡大率)に明白な違いは認められない。一方、シンセティックジェットの無次元ストロークが異なる(a) $L_0 = 30$ と(b) $L_0 = 150$ の流れ場を比べると、(a)の噴流幅拡大角は(b)よりも大きく、それに伴い(a)はより上流側で静圧回復して

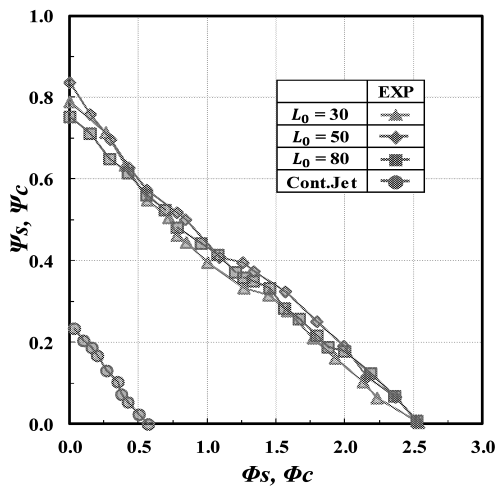


Fig.8 Typical static pressure-flow-rate performance curves. ($H/b_0 = 3, HW = 1, Re = b_0 U_0 / \nu = 5300$)

いる様子が観察できる。このことは自由噴流状態のシンセティックジェットにおいて、 L_0 が小さくなるにしたがって噴流幅拡大角が大きくなるという研究報告⁽²⁾と対応している。

ところで、シンセティックジェット(a), (b)と連続噴流(c)の流れ場を比較すると、スロット近傍の様子が異なっている。本図において、連続噴流ではスロット近傍の逆流領域が極めて限定的であるのに対して、シンセティックジェットでは正味の流量がゼロであることから、スロット近傍に大きな逆流領域が形成され、時間平均で見るとこの逆流（上流側に向かう流れ）により噴流構造の平均流が生成されていることがわかる。なお、本研究では正味の流量がゼロであるシンセティックジェットと流量を伴う連続噴流を同一代表速度の下で比較している。そのため、両者では吸引流量が大きく異なり、必要エネルギーにも差異があるものと考えられる。ポンプ性能を比較する上で揃える条件等については、今後検討が必要である。

Fig. 7 は $Re = U_0 b_0 / \nu = 2400$ ($U_0 = 7.5$ m/s) の条件において数値計算で得られたシンセティックジェットを利用したジェットポンプの性能曲線である。なお、図中には最大流量における実験結果も示す。本図からシンセティックジェット $L_0 = 30, 90, 150$ 、並びに連続噴流のいずれの場合も単純な右下がり特性を示していることがわかる。同一流速条件下でのシンセティックジェットと連続噴流の結果を比較すると、シンセティックジェットの値が連続噴流の値を大きく上回っており、ゼロ流量でのシンセティックジェットの Ψ は連続噴流の Ψ の2倍程度に達している。また、シンセティックジェットの性能曲線は L_0 にわずかに依存するものの、本条件範囲では明白な違いは確認できない。最大流量時における実験結果でも同様の傾向を示しているが、性能曲線に及ぼす L_0 の影響の詳細については今後の検討課題である。

Fig. 8 は流路内にスロット有するコアンダジェットポンプ（ファン）の実験によって得られた無次元性能曲線である。横軸は無次元吸引流量、縦軸は圧力係数である。

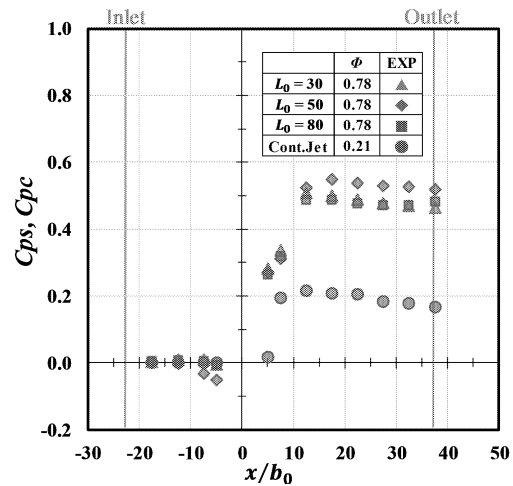


Fig. 9 Static pressure distribution on the upper surface of the duct. ($H/b_0 = 3, HW = 1, Re = b_0 U_0 / \nu = 5300, \Phi = \Phi_{max}/3$)

プロット点 $\Delta, \diamond, \square, \circ$ はそれぞれ無次元ストローク $L_0 = 30, 50, 150$ 、連続噴流の結果である。いずれの場合も単純な右下がり特性を示しているが、本実験条件では性能曲線はほとんど L_0 に依存していない。ところでシンセティックジェットの場合は吸引流量と吐出流量は等しいが、連続噴流では吸引流量に噴流の流量を加えた値が吐出流量となる。

Fig. 9 に流路上壁で計測された表面圧力分布を示す。この時の流量は最大流量の $1/3$ である。スロット付近で不連続的に静圧が上昇する様子が伺える。いずれの条件においても静圧は最大値を示し、その後、静圧は摩擦損失によりわずかに減少している。

5. 結言

本研究ではシンセティック利用推進器開発のための基礎的研究として、シンセティックジェットを利用したジェットポンプ（ファン）の性能特性について、数値計算並びに実験により検討した。また、ポンプ内部の流れ場に関して、連続噴流を利用した標準型ジェットポンプとの同異について議論した。さらに流路内にスロット有するコアンダジェットポンプ（ファン）の性能および圧力上昇過程が示された。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、東京都市大学 大上 浩 教授、富士原 民雄 准教授から有益なご助言を賜りました。また、実験および計算には工学院大学大学院生 石澤 知明 君、東京都市大学大学院生 牛窪 一樹 君の助力を頂きました。ここに記して謝意を表します。

参考文献

(1) Holman, R., Utturkar, Y., Mittal, R., Smith, B. and Cattafesta, L., Formation criterion for synthetic jets, AIAA Journal, Vol. 43, No.10 (2005), pp.2110-2116.

- (2) Nishibe, K., Fujita, Y., Sato, K., Yokota and K., Koso, T., Experimental and numerical study on the flow characteristics of synthetic jets, Journal of Fluid Science and Technology, Vol. 6, No. 4 (2011), pp. 425-436.
- (3) Ohuchi, H., Wadasako, T., Hosaka, T. and Osada, T., Fundamental study on a PZT Jet pump, Proceedings of the 6th JFPS International Symposium on Fluid Power, pp. 57-62.
- (4) 高曾徹, 中嶋亮太, シンセティック・ジェット原理による圧電ファンの特性, 日本機械学会九州支部第61期講演論文集(2008), pp. 3-4.

①査読付き論文

1. Koichi NISHIBE, Tamio FUJIWARA, Hiroshi OHUE, Hideaki TAKEZAWA, Kotaro SATO and Kazuhiko YOKOTA, Synthetic jet actuator using bubbles produced by electric discharge, Bulletin of the JSME, Journal of fluid science and technology, Vol.9, No.3, [DOI:10.1299/jfst_2014jfst003_3], 2014
2. Koichi NISHIBE, Yuki FUJITA, Kotaro SATO and Kazuhiko YOKOTA, Study on the fundamental flow characteristics of synthetic jets (Behavior of free synthetic jets), Bulletin of the JSME, Journal of fluid science and technology, Vol.9, No.1, [DOI: 10.1299/jfst.2014jfst0007], 2014
3. 工藤正規, 中沢孝則, 高橋政行, 佐藤光太郎, 西部光一, 旋回流発生器に生じる不安定流れの制御, 日本混相流学会誌「混相流」27巻5号, 623-630頁, 2014

他1編

②学会発表

1. N. TAKAHASHI, K. NISHIBE, T. FUJIWARA, H. OHUE, K. SATO, Influence of the Characteristics of Velocity Oscillation at the Exit on the Flow Structure of Synthetic Jets, 16th International Symposium on Flow Visualization, June 24-28, 2014, Okinawa, Japan
2. Shinsaku Nakamura, Masayuki Takahashi, Kotaro Sato, Kazuhiko Yokota, Influence of an Upstream Obstacle on the Flow Characteristics of Axial-flow Fans, Proceedings of the ASME 2014 4th Joint US-European Fluids Engineering Division Summer Meeting and 11th International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels, FEDSM2014, August 3-7, 2014, Chicago, Illinois, USA
3. Takanori Nakazawa, Masanori Kudo, Koichi Nishibe, Kotaro Sato, FLOW CHARACTERISTICS DOWNSTREAM OF SWIRL FLOW GENERATORS, Proceedings of the ASME 2014 4th Joint US-European Fluids Engineering Division Summer Meeting and 11th International Conference on Nanochannels,

Microchannels, and Minichannels, FEDSM2014, August 3-7, 2014, Chicago, Illinois, USA

4. Takahiro Iwasaki, Koichi Nishibe, Kotaro Sato, Kazuhiko Yokota, Donghyuk Kang, A Study on the Coanda Effect and the Thrust Characteristics of Synthetic Jets, Proceedings of the ASME 2014 4th Joint US-European Fluids Engineering Division Summer Meeting and 11th International Conference on Nanochannels, Microchannels, and Minichannels, FEDSM2014, August 3-7, 2014, Chicago, Illinois, USA
他15件

③特許出願

なし

タイ産業のグリーン化のための統合評価システムの開発

工学院大学 環境エネルギー化学科 稲葉 敦

共同研究者

国立研究開発法人 産業技術総合研究所 安全科学研究部門 社会と LCA 研究グループ

研究グループ長 田原聖隆

早稲田大学政治経済学術院 教授 近藤康之

CPMO, NSTDA, Assoc. professor / Director Thumrongrut Mungcharoen

Life Cycle Assessment Laboratory, MTEC, NSTDA, 専門家 Chantana Yuvaniyama

Life Cycle Assessment Laboratory, MTEC, NSTDA, 研究員 SaowalakOrarnrithinun

Life Cycle Assessment Laboratory, MTEC, NSTDA, 研究員 Ruethai Trungkavashirakun

Life Cycle Assessment Laboratory, MTEC, NSTDA, 研究員 ATHIWATR JIRAJARIYAVECH

Thailand Textile Institute, グループリーダー PeerapornPaLapleevalya

Faculty of Engineering, Chiang Mai University, 講師 Natanee Vorayos

FTI(The Federation of Thai Industries), 研究員 Pranat Phetpakdee

Development of integrated evaluation system for Thai green industry

Atsushi Inaba, School of Advanced Engineering

ABSTRACT : Eco-Efficiency has been paid attention recently as the indicator to show the environmental performance of product and/or company, which is calculated by dividing the value of the product/company by their environmental load. When the added value and the CO₂ emission of the industrial sector were selected as the numerator and the denominator respectively, the CO₂ efficiency of its sector was defined. And then, if a company calculated the CO₂ efficiency in the same way as the industrial sector that it belong to, they could be compared each other, which could be used as the bench mark to evaluate the performance of the company. The aim of this study is to calculate the CO₂ efficiencies for 407 industrial sectors in Japan, and to compare them with those of the industrial sectors in Thailand, which will be useful for both countries to reduce the CO₂ emissions. In 2015, the first year of this study, we analyzed the input/output table and the industrial statistics in Thailand, and just started the preparation to calculate the CO₂ efficiencies for the industrial sectors. According to the energy consumption statistics in Thailand, the total energy consumption consists of only 10 industrial sectors. The preliminary calculation results showed the CO₂ efficiencies of Thailand industries were not so much lower than those of Japanese industry. But, they have to be checked again more precisely in the next year.

1. はじめに

これまで環境に関する国際的な取り組みは地球温暖化問題を中心に実施されてきた。たとえば、サプライチェーン(バリューチェーン)全体で温室効果ガス(GHG)の排出削減対策に取り組むことを目的とし、従来からのライフサイクルアセスメント(LCA)を基礎としたカーボンフットプリント(CFP)が実施されている。また、WBCSDとWRIが協働で製品と組織のGHG排出量の計算方法を2011年に提示した。特に組織の算定方法は、従来から行われている企業の直接排出量(SCOPE1)と電力起因の排出量(SCOPE2)に加え、購入した素材や部品並びに生産した製品の使用や廃棄、従業員の通勤などに係わる間接排出量(SCOPE3)の算定方法を示したことで着目された。Carbon Disclosure Projectが世界の大企業にSCOPE3の方法で算定したGHG排出量の情報開示を求めていることもあって、世界中の企業でのGHG排出量の情報開示が加速されている。

また最近では、GHGだけではなく人間の健康への影響や生態系の保全などのさらに多様な環境問題に対応することが必要になっている。たとえば、EC環境総局は製品と組織の環境フットプリント(EFP)のガイダンスドラフトを2012年に改訂し、2013年にパイロットプロジェクトを開始した。製品では、30のプロジェクトが進行中であり、日本からは日本電機工業会を主体としたIT機器のプロジェクトが採択されている。

EC環境総局のEFPは、LCAの国際標準規格であるISO-14040(2006)で厳しく制限されている製品の相互比較を念頭において推進されている。環境負荷が少ない製品の優位性が増すことから、貿易障壁となりアジア諸国にとって大きな驚異となる可能性がある。欧州企業がEFPの実施を始めると、製品を納入している企業にその製品のEFPのデータ開示を求めることになる。これを感じ取っているタイの産業界では、製品のEFPの実施に対応できる体制を構築する強い要望がある。

一方、組織の環境影響評価については、ISO-TS-14072(組織のLCA)が2014年に発行された。この組織のLCAの方法は、ECの組織のEFPと調和して進むことが望まれるが、両者とも概念が先行し具体的な実施方法が明確になっていない。組織のEFPは、購入している製品等の環境負荷を含む情報開示である。しかし、組織(企業)の活動量(生産量)が増加すると環境負荷が増大することは自明であり、産業界には絶対値を開示することへの根強い抵抗感がある。

「環境効率」は、組織の環境負荷を生産量や産出した付加価値と比較する考え方であり、少ない環境負荷で大きな活動を生み出すことを支援する評価方法として着目されている。ISO-14045(2012)で環境効率の概

要は示されているが、環境負荷の算出方法、並びに生産量や産出した付加価値の計算方法が多様であり具体的な実施方法が明確ではない。環境効率指標を開発し、タイの産業界に広めることで、タイの産業界の環境負荷の削減と、高付加価値化を推進することができる。

そこで、本研究では、タイ産業界のグリーン化のための統合評価手法の構築に向けて、タイの環境効率(CO₂効率)を算出し、最終的な目的の統合評価システムの足がかりにすることを目的とする。

2. 環境効率について

2.1 環境効率の有用性

持続可能な社会を導くためには、社会を構成する各対象が、Fig.1に示すようなトリプルボトムラインを考える必要であり、経済・社会・環境の3側面に配慮した活動を行うことが求められている。ボトムラインとは、企業決算の最終行、つまり収益・損失の最終結果のことをいい、トリプルボトムラインとは、持続的発展の視点から、経済に加え、環境や社会をも配慮し総合的な評価を高めていこうという考え方である⁽¹⁾。

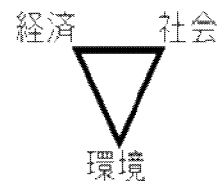


Fig.1 トリプルボトムラインの概念図

持続可能な社会へ導くために具体策は、Fig.2に示すように、経済的側面を示す経済成長と、社会的側面を示す生活の豊かさを向上させつつ環境的側面を示す環境負荷量を削減するというデカップリング(Decoupling:分離)を実施することである。

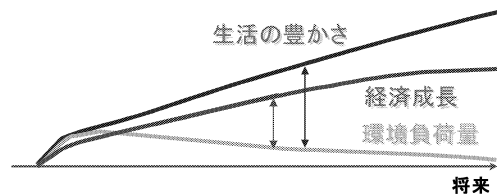


Fig.2 経済成長及び生活の豊かさと環境負荷量のデカップリング

このデカップリングを評価するための指標として、製品・サービスの価値を環境負荷量で除す環境効率指

標があげられ注目されている。環境効率指標の概念は、持続可能な発展のための世界経済人会議(The World Business Council for Sustainable Development :WBCSD) が 1992 年に開催され、定義式が提案された⁽²⁾。提案されている式(1)を下記に示す。

$$\text{環境効率} = \frac{\text{製品・サービスの価値}}{\text{環境負荷量}} \quad \dots(1)$$

環境効率指標は、上記のように製品・サービスの価値と環境負荷量を対比させた指標が一般的に使われている。環境効率指標は、環境負荷削減だけを対象とした従来のライフサイクルアセスメント(Life Cycle Assessment: LCA)や製品アセスメント等の手法と異なり、製品・サービスの価値向上と環境負荷削減の両側面の指標として有効性が期待されている。近年、生産者の間で新たな尺度として注目を浴びている。環境効率指標は、企業の経営者、環境担当者、技術開発者らの共通した評価基準、すなわちコミュニケーションツールとして注目する企業が増加している。また、各企業にとって環境パフォーマンスの効率性を消費者に提示する手法の重要性が認識され始めており、製品・企業のアピール、または既存製品との比較等、優位性を示す情報提供として導入・活用されつつある⁽³⁾。日本においては、日経 BP 社による 2014 年第 15 回環境ブランド調査(総合ランキング)で上位に選ばれた企業 20 社(サントリー、トヨタ自動車、イオン、パナソニック、日産自動車、麒麟ビール、日本コカ・コーラ、シャープ、サッポロビール、東芝、ホンダ、アサヒビール、セブン・イレブン、麒麟ビバレッジ、日立製作所、キヤノン、ヤマト運輸、ブリヂストン、三菱電機、アサヒ飲料)のほとんどが環境効率を環境報告書や HP において公開している。公開状況を Fig.3 に示した。

日経BP社 調査ランキング	企業名	環境効率		データ 基準年
		企業レベル	製品レベル	
1	サントリー	○	×	2013
2	トヨタ自動車	◎	×	2013
3	イオン	×	×	2013
4	パナソニック	○	◎	2013
5	日産自動車	○	×	2013
6	麒麟ビール	○	×	2013
7	日本コカ・コーラ	○	×	2013
8	シャープ	○	×	2013
9	サッポロビール	○	×	2013
10	東芝	○	◎	2013
11	ホンダ	○	×	2013
12	アサヒビール	○	×	2013
13	セブン・イレブン	×	×	2013
14	麒麟ビバレッジ	○	×	2013
15	日立製作所	○	◎	2013
16	キヤノン	○	×	2013
17	ヤマト運輸	○	×	2013
18	ブリヂストン	○	×	2013
19	三菱電機	○	◎	2013
20	アサヒ飲料	○	×	2013

Fig.3 企業における環境効率指標の使用状況 (2013年度)

2. 2 環境効率指標の定義について

環境効率指標については、WBCSD の定義式に沿った環境効率指標が主流になっているが、環境効率指標を導入する分母の「製品・サービスの環境負荷量」としてどのような環境負荷物質を選択するか、また分子の「製品・サービスの価値」としてどのような価値を考えるかは多種多様であり、また環境効率の算定に組み入れるデータの収集範囲も様々な実施されている。このため、環境効率を算定する企業は、その方法を自ら調査し決定する手間が必要となり、消費者や投資家等の公表された環境効率を見る側にとっても、多種多様な環境効率を理解することが困難になっている。

JST 戦略的創造研究推進事業「循環型社会」研究開発領域(H16～H18)「付加価値を基礎とした環境効率指標の提案とその活用」⁽⁴⁾において開発された環境効率指標の提案とその活用⁽⁴⁾において開発された環境効率は、国・産業・企業・製品の各レベルの算定方法が相互に関連性を有し、環境効率算定式の分子(付加価値)と分母(環境負荷)の評価範囲が同一に設定されているので、同一の産業部門のなかでの企業の位置づけを知るのに適している。また、産業連関表を活用して産業分類ごとの環境効率指標を算定するので、客観性に富む。Fig.4 にこの環境効率指標の定義を示す。

さらに具体的には、「付加価値を基礎とした環境効率指標の提案とその活用」で開発された環境効率指標は、次の点において特に有用に活用されると考えられる。付加価値は、国・産業・企業・製品の各レベルにおいて、経済的な価値を設定しているため、経済発展と環境負荷低減との両立を考慮した上で、国、産業、企業、製品を評価することができる。また、国・産業・企業・製品の各レベルが相互に関連性を有しているため、異なるレベルの環境効率を結びつけた上での評価が可能である。評価例としては、国全体の環境効率と比較して各産業部門の環境効率の差異を示したり、ある産業部門の環境効率を基準として、当該産業部門に属する企業の環境効率を算定することでその部門の中での企業の位置づけを明確にしたりすることができる。また、対象企業の環境効率を基準にしてその企業が製造している製品の環境効率を比較することで、製品の優位性を明確にしたりすることができる。

この環境効率指標は、国の付加価値の合計である国内総生産(Gross Domestic Product : GDP)を基点としているため、他国での環境効率も同様に算出可能である。また、結果として、対象となる当該国の産業構造を反映した環境効率が算定されるため、それぞれの国ごとの環境効率の比較、並びに産業構造の分析も可能になる。Fig.4 に示したように、各レベルで有機的に関連性を確保していることから、多種の評価が可能であり汎用性が高く、タイの評価に用いる環境効率指標の定義として適当であると考えた。

表の見方

LCA:
 エコノミーまたはCFPPの指標あり
 LCAの記載有り
 *記載なし

環境効率:
 算出している
 算出を算出している
 *算出していない

アライナー:
 環境効率の年々変化を算出している
 環境効率の年々変化を算出している
 *算出していない

参照範囲: 環境報告書、HP

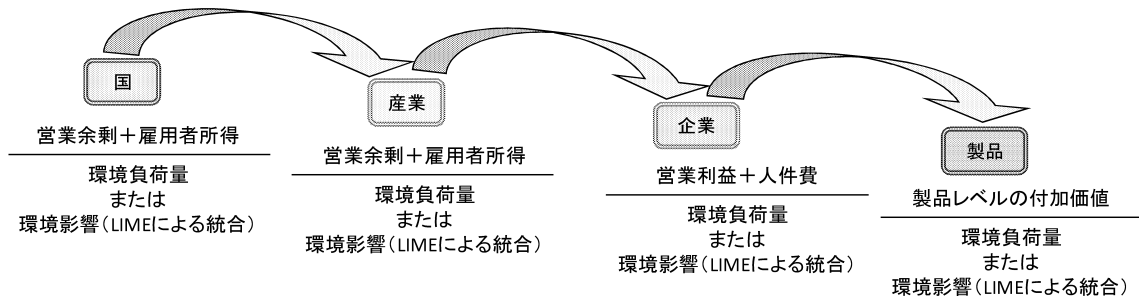


Fig. 4 国・産業・企業・製品の各レベルにおける環境効率指標の定義

2. 3 産業連関表について

上述の環境効率を求める際に用いる産業連関表 (Input Output Table)は、国内の経済の1年間に行われた財・サービスの産業間の取引を示した統計値を表形式で示したものである。財・サービスについての産業部門ごとの生産構造(各産業部門の各財への支払い)、販売構造(各製品の各産業部門への販売)をみる事ができる。日本では、5年に一度作成されている。国内の財・サービスの産業間の取引が1つの行列で示されていることから、付加価値の算出や環境負荷量の算出を用いるのに適している。Fig.5に産業連関表の構造を示す。a産業を例に挙げ列(タテ)を見ると、a産業は300百億円の生産額を生むのに、必要な原材料やサービスとしてa産業から10百億円、b産業から40百億円、他の産業からの仕入れも含めて合計100百億円を仕入れたことがわかる。また、a産業は雇用者所得を60百億円、営業利益を30百億円等、合計200百億円を生み出したこともわかる。a産業を例に挙げ行(ヨコ)を見ると、a産業が製造した製品・サービスは、a産業自体に10百億円、b産業に60百億円等、合計120百億円が産業に売れたことがわかる。また、a産業が生産した商品を消費者へ販売、輸出したり等で合計180百億円が、需要されたことがわかる。

2. 4 産業レベルの環境効率の算出方法

以上より、産業レベルの環境効率の分子にあたる付加価値は、産業連関表を使用して導出することができる。通常、付加価値の定義は、人件費+営業余剰+帰属利子であるが、本研究ではタイの産業連関表と比較を容易にするために、帰属利子は付加価値として含めない式(2)を適用した。

$$V_{1i} = Pay_i + Pro_i \quad \dots(2)$$

ここで、

- V_{1i} : 対象産業における付加価値
- Pay_i : 対象産業における人件費
- Pro_i : 対象産業における営業余剰
- i : 産業分類

(百億円)

	a産業	b産業	...	内生部門計	最終需要計	国内生産額
a産業	10	60	...	120	180	300
b産業	40					
...	...					
内生部門計	100					
雇用者所得	60					
営業余剰	30					
その他	110					
粗付加価値部門計	200					
国内生産額	300					

Fig. 5 産業連関表の構造

産業レベルの環境効率の分母にあたる環境負荷は、日本においては産業連関表を活用して求めた環境負荷原単位データブック(3EID)⁽⁶⁾を用いることが可能である。本研究では、もっともデータが整備されているCO₂排出量を対象とした。3EIDにおいては、CO₂発生要因物として化石燃料(20種)、廃棄物(2種)、石灰石(使用時にCO₂として分離する投入量のみを対象)およびその他燃料種(4種)を考慮し、各部門への年間投入量を推計している。製品原料になる量や別燃料に転換される量を控除するために、CO₂排出に寄与する係数を決め、各産業の各発生要因物の投入量にそのCO₂排出係数を乗じてCO₂排出量を推算している。計算式を式(3)に示した。

$$L_j = \sum_{k'} D_{k'j} t_{k'j} h_{k'j} c_{k'j} + D_{k''j} t_{k''j} c_{k''j} \quad \dots (3)$$

- j : 産業分類
- L : CO₂排出量 (t-CO₂)
- k : 発生要因物 (k'' =石灰石、 k' それ以外)
- D : 年間発生要因物投入量

- t :CO₂ 排出量への寄与率
(製品原料への投入量等を控除するため)
- h :発熱量
- c :CO₂ 排出係数

参照した環境効率の分母である環境影響、すなわちここでは CO₂ 排出量の評価範囲は、対象の産業部門における直接部分と定義し、さらに企業の努力をより適切に反映するために、その産業部門における電力使用に伴う CO₂ 排出量を加えている。すなわち、当該産業部門へ投入されている事業用電力および自家発電部門への投入額に応じた CO₂ 排出量を加算する。また、日本の環境指標の定義では、自家輸送由来の CO₂ 排出量も考慮したが、タイにおける環境負荷は、自家輸送は対象外とした。算出式を式(4)に示した。

$$L1i = \text{Dir}i + \text{Lle}i \quad \dots(4)$$

$$\text{Lle}i = \text{INie} \times (\text{L1e}) / \text{G'e}$$

- L1i : 対象産業における CO₂ 排出量
- Diri : 対象産業における直接 CO₂ 排出量
- L1ei : 対象産業における電力由来の CO₂ 排出量
- i : 産業分類
- INie : 対象産業の事業用電力への投入額
- L1e : 事業用電力の直接 CO₂ 排出量
- G'e : 事業用電力の生産額－事業用電力が投入した事業電力

3. 日本の 2005 年度の環境効率

日本の産業連関表は、5 年ごとに作成され公開されているので、研究開始時に最新(現在は 2011 年版が公開された)であった 2005 年度⁽⁶⁾のデータを用いて我が国の環境効率を算出した。日本の産業連関表では、産業は大分類(34 部門)、中分類(108 部門)、小分類(190 部門)、基本分類(行 520×列 407 部門)に分類され、最も詳細な分類が基本分類である。環境負荷情報を引用する 3EID では、環境負荷量を算出するために基本分類は 403 部門に統合され、基本分類のレベルで環境負荷量が計算されている。そこで本研究では、基本分類における環境効率を算出した。

基本分類ごとの環境効率を大分類ごとに表示し Fig.6 に示す。横軸に大分類、縦軸には CO₂ 排出量を分母とした環境効率が計算されている、Fig 6 には大分類に含まれる基本分類すべての環境効率が示されている。たとえば、大分類「農林水産業」には、基本分類 31 部門(米、麦類、いも類、豆類、野菜(露地)、野菜(施設)、果実、砂糖原料作物、飲料用作物、その他の食用耕種作物、飼料作物、種苗、花き・花木類、その他の非食用耕種作物、酪農、鶏卵、肉鶏、豚、肉用牛、その他の畜産、獣医学、農業サービス(除獣医学)、育林、素材、特用林産物(含狩猟業)、沿岸漁業、沖合漁業、遠洋漁業、海面養殖業、内水面漁業、内水面養殖業)が縦に並んでプロットされている。農林水産業でもっとも環境効率が高い部門は、育林で 9,471 円/kg-CO₂ となり、環境効率が低い部門は、花き・花木類の 71 円/kg-CO₂ となっている。大分類の中でも基本分類の環境効率に相違があり、ばらつきがある結果と

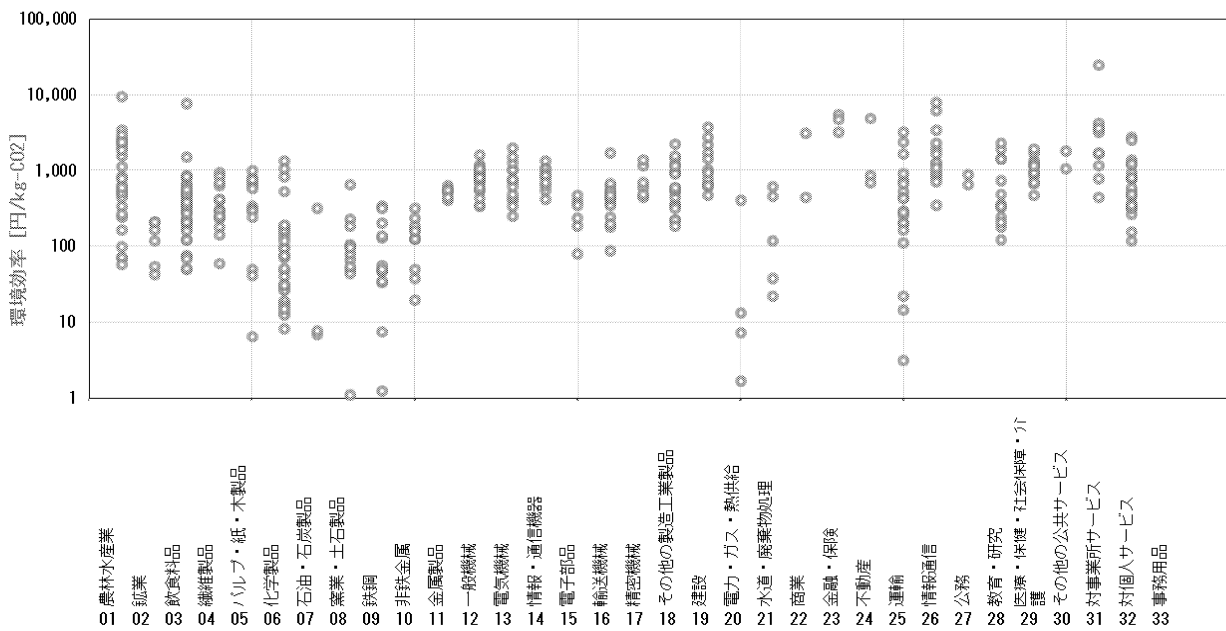


Fig.6 日本の産業連関表基本分類における環境効率 (大分類ごと表示)

なっている。基本分類の中で最も環境効率が高い部門は、大部門の対事業所サービスに属する労働者派遣サービスで 24,798 円/kg-CO₂となる。労働者派遣サービスは、サービス業の中でもエネルギーをあまり必要とせず、かつ付加価値が高いため環境効率が高い部門である。最も低い部門は、大分類が窯業・土石製品であるセメントの 1 円/kg-CO₂であった。セメントは石灰石起源の CO₂排出量が多いため、環境効率が低い結果となった。日本全体の環境効率としては、256 円/kg-CO₂となった。Table1 に日本の産業連関表大分類ごとの環境効率一覧を示した。第 1 次産業および CO₂排出量が多い第 2 次産業の環境効率が低く、第 3 次産業のサービス業の環境効率が高い。

なお、この結果は産業の特徴を分析しているものであり、各産業の優劣を表現するために算出しているものではないことに留意していただきたい。

Table1 日本における環境効率（大分類）

大分類	環境効率 [円/kg-CO ₂]
01 農林水産業	268
02 鉱業	131
03 飲食品	362
04 繊維製品	232
05 パルプ・紙・木製品	154
06 化学製品	79
07 石油・石炭製品	9
08 窯業・土石製品	31
09 鉄鋼	20
10 非鉄金属	121
11 金属製品	501
12 一般機械	792
13 電気機械	657
14 情報・通信機器	783
15 電子部品	275
16 輸送機械	378
17 精密機械	744
18 その他の製造工業製品	540
19 建設	1,204
20 電力・ガス・熱供給	8
21 水道・廃棄物処理	88
22 商業	1,076
23 金融・保険	5,064
24 不動産	4,623
25 運輸	128
26 情報通信	1,631
27 公務	712
28 教育・研究	694
29 医療・保健・社会保障・介護	1,025
30 その他の公共サービス	1,575
31 対事業所サービス	2,212
32 対個人サービス	489

4. タイにおける 2005 年度の環境効率

タイの産業連関表を基に、タイの環境効率の算出を行った。タイの産業連関表は、タイ政府より公開されており、最新版は 2005 年版⁽⁷⁾である。タイの産業連関表の分類で最も細かい分類が 180 分類(Table2)であり、日本の小分類に相当する。環境負荷量を算出するにあたっては、日本の 3EID に相当する資料は存在せずまた、タイの産業連関表においては物量表がないので、各産業分類への環境負荷を算出する際に必要となるエネルギー等の投入量は、エネルギーバランス表⁽⁸⁾および、農業に関しては OIL AND THAILAND 2005⁽⁹⁾を用いた。エネルギー投入量が把握できる分類は、10 分類であり、「Agricultural/ Manufacturing/ Mining, Construction/ Commercial/ Road transport/ Rail transport/ Air transport/ Waterway transport/ Energy Industries」となり、燃料種は「無煙炭、瀝青炭、褐炭、コークス、ブリケット他、原油、コンデンセート、天然ガス（生産）、天然ガス（販売）、NGL、LPG、レギュラーガソリン、プレミアムガソリン、ジェット燃料、灯油、高速ディーゼル、低速ディーゼル、重油、電力、燃料木材、木炭、籾殻、バガス」となる。

このエネルギー投入が把握できる分類は、日本の産業連関表の大分類 34 分類よりもさらに大まかな分類となる。なお、現時点では電力の負荷が各産業に割り振れておらず、暫定的な結果になっている。

参考までにタイの環境効率を Table3 と Fig.7 に示した。環境効率を示す際には、付加価値の単位が円とパーツで異なることから、2005 年の平均為替レートとして 1 パーツ 2.819 円として、円に換算した。タイの産業分類ごとの環境効率は、電力負荷を加味していないことを差し引いても Mining と Commercial の環境効率が高くなっている。これには付加価値と環境負荷の算出に問題がある可能性がある。今後さらなる考察が必要である。また、電力負荷を加味していなくても、Road Transport、Rail transport、Air transport、Energy Industries の環境効率が低い結果となった。タイ全体の環境効率は、現状の条件では 65 円/kg-CO₂となっている。

Table2.タイの産業連関表における産業分類

分類	産業分類
Agriculture	Paddy/ Maize/ Other cereals/ Cassava/ Other root crops/ Beans and nuts/ Vegetable/ Fruits/ Sugar cane/ Coconut/ Oil palm/ Kenaf and jute/ Other crops for textile and matting/ Tobacco/ Coffee and tea/ Rubber/ Other agricultural product/ Cattle and buffalo/ Swine/ Other livestock/ Poultry/ Poultry products/ Silk worm/ Agricultural services/ Logging/ Charcoal and fire-wood/ Other forest products/ Ocean and coastal fishing/ Inland fishing
Mining and Quarrying	Coal and lignite/ Petroleum and natural gas/ Iron ore/ Tin ore/ Tungsten ore/ Other non-ferrous metals/ Fluorite/ Chemical fertilizers/ Salt/ Limestone/ Stone quarrying/ Other mining and quarrying
Food Manufacturing	Slaughtering/ Canning and preserving of meat/ Dairy products/ Canning and preservation of fruit and vegetables/ Canning and preservation of fish and other sea foods/ Coconut and palm oil/ Animal oil, animal fat, vegetable oil and by-products/ Rice milling/ Tapioca milling/ Grinding of maize/ Flour and other grain milling/ Bakery products/ Noodles and similar products/ Sugar/ Confectionery/ Ice/ Monosodium glutamate/ Coffee and tea/ Other food products/ Animal feed/ Distilling and spirits blending/ Breweries/ Soft drinks and carbonated water/ Tobacco processing/ Tobacco products
Textile Industry	Spinning/ Weaving/ Textile bleaching, printing and finishing/ Made-up textile goods/ Knitting/ Wearing apparel/ Carpets and rugs/ Jute mill products
Other industries	Tanneries and leather finishing/ Leather products/ Footwear, except of rubber
Saw Mills and Wood Products	Saw mills/ wood and cork products/ Wooden furniture and fixtures
Paper Industries and Printing	Pulp, paper and paperboard/ Paper and paperboard products/ Printing and publishing
Rubber, Chemical and Petroleum Industries	Basic industrial chemicals/ Fertilizer and pesticides/ Petrochemical products/ Paints/ Drugs and medicines/ Soap and cleaning preparations/ Cosmetic/ Matches/ Other chemical products
Energy Industries	Petroleum refineries/ Other petroleum products/ Rubber sheet and block rubber/ Types and tubes/ Other rubber products/ Plastic ware
Non-metallic Products	Ceramic and earthen ware/ Glass and glass products/ Structural clay products/ Cement/ Concrete and cement products/ Other non-metallic products
Metal, Metal Products and Machinery	Iron and steel/ Secondary steel products/ Non-ferrous metal/ Cutlery and hand tools/ Metal furniture and fixtures/ Structure metal products/ Other fabricated metal products/ Engines and turbines/ Agricultural machinery and equipment/ Wood and metal working machines/ Special industrial machinery/ Office and household machinery and appliances/ Electrical industrial machinery and appliances/ Radio, television and communication equipment and apparatus/ Household electrical appliances/ Insulated wire and cable/ Electric accumulators and batteries/ Other electrical apparatus and supplies/ Ship building and repairing/ Railroad equipment/ Motor vehicles/ Motor vehicles/ Repair of motor vehicles/ Aircraft
Fabricated Metal Products	Cutlery and hand tools/ Metal furniture and fixtures/ Structure metal products/ Other fabricated metal products/ Engines and turbines/ Agricultural machinery and equipment/ Wood and metal working machines/ Special industrial machinery/ Office and household machinery and appliances/ Electrical industrial machinery and appliances/ Radio, television and communication equipment and apparatus/ Household electrical appliances/ Insulated wire and cable/ Electric accumulators and batteries/ Other electrical apparatus and supplies/ Ship building and repairing/ Railroad equipment/ Motor vehicles/ Motor vehicles/ Repair of motor vehicles/ Aircraft
Commercial	Water work and supply/ Wholesale trade/ Retail trade/ Restaurants and drinking places/ Hotels and places of lodging/ Storage and warehousing/ Post and telecommunication/ Banking services/ Life insurance services/ Other insurance services/ Real estate/ Business services/ Public administration/ Sanitary and similar services/ Education/ Research/ Hospital/ Business and labor associations/ Other community service/ Motion Picture Production/ Movie theatres / Radio, television and related services/ Libraries and museums/ Amusement and recreation/ Repair not classified elsewhere/ Personal service
Construction	Residential building construction/ Non-residential building construction/ Public works for agriculture and forestry/ Non-agriculture public works/ Construction of electric plants/ Construction of communication facilities/ Other construction/
Railway	Residential building construction
Waterway	Ocean transport/ Coastal and inland water transport/ Water transport services/
Air Transport	Air transport/ Other services

Table3. タイの環境効率 (タイの分類)

	value added [10 ⁶ BATH]	CO ₂ emissions [tCO ₂]	eco-efficiency [JPY/kg-CO ₂]
Agriculture	633,547	22,638,926	79
Manufacturing	1,755,067	83,368,985	59
Mining and Quarrying	143,876	86,937	4,665
Construction	114,223	483,285	666
Commercial	3,092,460	1,528,730	5,703
Road Transport	105,498	55,561,446	5
Rail transport	4,333	322,439	38
Air transport	196,665	10,601,946	52
Waterway transport	60,031	209,755	807
Energy Industries	247,981	98,951,701	7

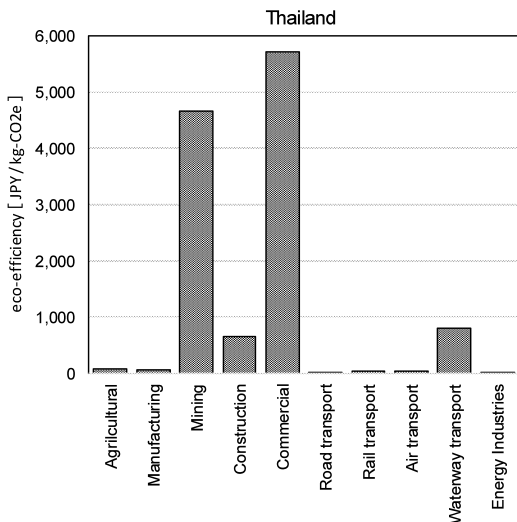


Fig.7 タイの環境効率 (タイの大分類)

5. 日本とタイの環境効率の比較(中間報告)

日本の産業連関表とタイの産業連関表の分類は異なることから、分類の大まかなタイの分類に合わせて日本の環境効率を算出し、タイの環境効率との比較を行った。日本の分類とタイの分類との対応表を作成し算出したタイの分類における日本の環境効率を Table4、Fig.8 に示した。しかし、前述したようにタイの分析においては電力の負荷が加味されていないので、暫定的な考察である。

両国の環境効率を比較した結果、タイの Mining と Commercial の環境効率が日本に比べて高い結果となった。タイの Commercial の付加価値が大きいことお

よび環境負荷量が小さいことが考えられるが、計算方法に問題がある可能性も残されている。タイの統計データには何らかの特異値が含まれることがしばしばあり、この結果もそれらの特異値が影響を与えている可能性がある。今後、他の統計データとの相互関係の分析を進め、計算方法を再確認したい。また、Mining の環境効率がタイの方が高い理由としては、タイでは原油・天然ガスといった日本に比べて高付加価値の製品が対象であることがあげられる。しかし、Commercial と同様に統計データの特異値の影響なども考えられる。

参考までに、Mining と Commercial における日本の基本分類における環境効率とタイの環境効率の比較を Table5 に示した。Mining に関しては、細分化して見ても、日本の Mining に含まれる産業の値すべてタイより低い結果になっている。Mining においては、電力の影響はそれほど大きくないと考えられるので、何らかの特異値や、付加価値の計算、環境負荷の計算に問題がある可能性が高い。また、Commercial については、日本の Commercial に含まれる産業の中にはタイの値より高いものあり、一概に特異値や計算方法の問題だけではなく、産業分類やその構造の違いも考慮して確認する必要がある。

また反対に、タイにおける Road Transport、Rail transport、Air transport の環境効率が日本の環境効率より低いという結果になっている。これについても上記の問題があるか確認する必要がある。

また、さらに詳細な比較を行うためには、上記で述べたこと以外に、タイの産業連関表の分類である 180 分類に、統計上は 10 分類でしか示されていない環境負荷量を配分する方法を検討する必要がある。ここでの計算結果は、研究の遂行上の暫定的な結果であることに再度留意されたい。

Table4. 日本環境効率 (タイの分類に統合)

	付加価値 [百万円]	CO ₂ 排出量 [t-CO ₂]	環境効率 [円 /kg-CO ₂]
Agricultural	5,123,895	19,138,827	268
Manufacturing	62,695,714	456,744,978	137
Mining	234,790	1,787,657	131
Construction	22,933,839	19,054,594	1,204
Commercial	251,080,200	253,967,360	989
Road transport	9,626,580	43,593,112	221
Rail transport	1,897,205	9,437,934	201
Air transport	384,202	26,515,091	14
Waterway transport	1,049,656	49,753,671	21
Energy Industries	3,376,017	517,519,093	7
合計	358,402,098	1,397,512,317	256

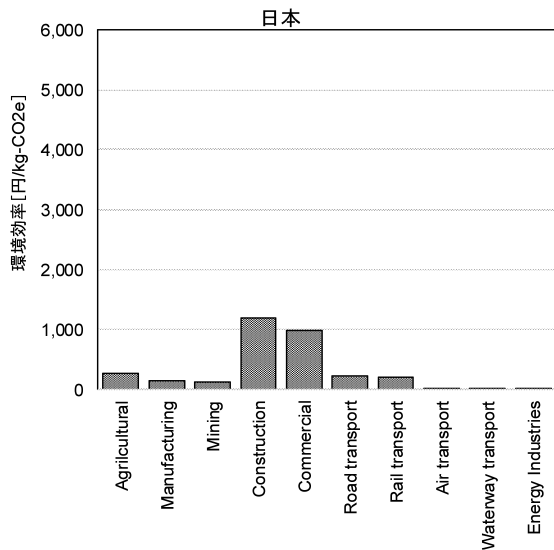


Fig.8 日本の環境効率 (タイの大分類)

6. 今後の予定

現状のところ、タイの産業連関表、並びに各種の統計表を入手し、それらを分析することで産業構造を把握し、環境効率の計算方法などを確認した状況である。本報告での結果は、中間報告としての暫定的な結果であることに留意が必要である。

今後、タイの産業連関表分析結果の精査の実施、電力負荷の加味、CO₂排出原単位などの確認等を実施して、タイの産業のCO₂効率の数値を確定させたい。また、タイ独自の産業構造を考慮して、日本のCO₂効率との比較において注意すべき点を整理する。最終的にはタイの企業がCO₂効率の試算を実施することができるデータを整備する計画である。

参考文献

- (1) ElkingtonJohn.: Cannibals with Forks. Capstone Publishing Ltd. (1997)
- (2) SchmidheinyStephan: Changing Course: A global business perspective on development and the environment. The MIT Press. (1992)
- (3) 社団法人産業環境管理協会: 平成 17 年度エネルギー使用合理化環境経営管理システムの構築事業 (環境効率調査) 報告書. 社団法人産業環境管理協会. (2006)
- (4) 社会技術研究センター: JST 戦略的創造研究推進事業「循環型社会」研究開発領域 (H16~H18)「付加価値を基礎とした環境効率指標の提案とその活用」
<<http://www.ristex.jp/result/circulation/value.html>>, (参照 2015-6-18)

- (5) (国研) 国立環境研究所;産業連関表による環境負荷原単位データブック (3EID), 国立環境研究所ホームページ,
<<http://www.cger.nies.go.jp/publications/report/d031/index-j.html>>, (参照 2015-6-18)
- (6) 総務省:平成 17 年 (2005 年) 産業連関表, 総務省ホームページ
<<http://www.e-stat.go.jp/SG1/estat/List.do?bid=000001019588&cycode=0>>(参照 2014-6-18)
- (7) Office of National Economic and Social Development Board, Office of Prime Minister; Input - Output Table of Thailand 2005
- (8) Ministry of Energy, Thailand ;Thailand Energy Situation in 2005, Physical Unit (Department of Alternative Energy Development and Efficiency (DEDE))
- (9) Department of Alternative Energy Development and Efficiency: OIL AND THAILAND 2005

Table5 日本とタイにおける環境効率の比較 (Mining と Commercial)

10列コード	10の列名	日本				タイ			
		通常用付加価値 [百万円]	付加価値 [百万円]	直接CO2 [t-CO2]	環境効率 [円/kg-CO2]	分類	付加価値 [百万円]	直接CO2 [t-CO2]	環境効率 [円/kg-CO2]
061101	金属鉱物	7,654	7,571	63,213	120	Mining	405,586	86,938	4,665
062101	鉱業原料鉱物	39,983	37,664	679,769	55				
062201	砂利・採石	74,190	59,687	285,979	209				
062202	砕石	111,248	87,981	523,672	168				
062909	その他の非金属鉱物	2,112	1,958	46,167	42				
071101	石炭・原油・天然ガス	45,851	39,929	188,857	211				
521201	廃棄物処理 (公営) ★★	543,753	543,753	14,115,409	39				
521202	廃棄物処理 (産業)	1,568,466	1,538,254	12,855,251	120				
611101	卸売	44,279,166	41,412,895	13,303,913	3,113				
611201	小売	20,867,007	19,332,283	43,174,179	448				
621101	金融	17,668,366	14,342,715	2,573,808	5,573				
621201	生命保険	4,400,333	4,067,029	868,865	4,681				
621202	損害保険	1,753,676	1,726,271	533,825	3,234				
641101	不動産仲介・管理業	1,782,286	1,656,779	1,944,484	852				
641102	不動産賃貸業	2,650,519	2,566,176	3,730,308	688				
642101	住宅賃貸料	5,660,553	5,154,073	1,061,027	4,858				
716101	貨物利用運送	296,749	292,220	391,784	746				
717101	倉庫	823,850	804,307	2,836,052	284				
718101	コンビニ	499,592	484,488	290,049	1,670				
718901	道路輸送施設提供	2,027,594	1,967,773	2,938,917	670				
718902	水運施設管理 ★★	37,105	37,105	84,268	440				
718903	その他の水運付帯サービス	52,966	52,018	16,435	3,165				
718904	航空施設管理 (国営) ★★	70,603	70,603	162,811	434				
718905	航空施設管理 (産業)	25,149	23,376	141,881	165				
718906	その他の航空付帯サービス	268,294	259,317	285,123	909				
718909	旅行・その他の運輸付帯サービス	549,688	526,397	218,447	2,410				
731101	郵便・信書便	1,401,027	1,395,317	730,989	1,909				
731201	固定電気通信	1,554,908	1,535,313	1,910,293	804				
731202	移動電気通信	2,092,397	1,962,122	1,578,623	1,243				
731203	その他の電気通信	193,325	186,548	530,972	351				
731909	その他の通信サービス	34,569	34,322	38,921	882				
732101	公共放送	249,393	242,176	334,325	724				
732102	民間放送	822,122	805,205	487,465	1,652				
732103	有線放送	172,847	166,019	132,636	1,252				
733101	情報サービス	8,144,090	8,001,199	3,491,675	2,292				
734101	インターネット付帯サービス	393,620	388,403	406,551	955				
735101	映像情報制作・配給業	491,008	482,666	446,373	1,081				
735102	新聞	895,485	867,255	251,967	3,442				
735103	出版	833,284	809,107	130,189	6,215				
735104	ニュース供給・興信所	272,165	260,298	32,624	7,979				
811101	公務 (中央) ★★	5,032,512	5,032,512	5,663,493	889				
811201	公務 (地方) ★★	11,148,839	11,148,839	17,051,298	654				
821101	学校教育 (国公立) ★★	11,368,015	11,368,015	5,948,526	1,911				
821102	学校教育 (私立) ★	3,716,617	3,716,617	2,582,500	1,439				
821301	社会教育 (国公立) ★★	395,036	395,036	1,097,031	360				
821302	社会教育 (非営利) ★	93,210	93,210	384,265	243				
821303	その他の教育訓練機関 (国公立) ★★	285,947	285,947	1,567,024	182				
821304	その他の教育訓練機関 (産業)	527,099	525,364	1,588,735	331				
822101	自然科学研究機関 (国公立) ★★	564,083	564,083	2,652,395	213				
822102	人文科学研究機関 (国公立) ★★	31,226	31,226	63,517	492				
822103	自然科学研究機関 (非営利) ★	113,982	113,982	155,479	733				
822104	人文科学研究機関 (非営利) ★	16,974	16,974	7,352	2,309				
822105	自然科学研究機関 (産業)	231,286	229,629	1,852,456	124				
822106	人文科学研究機関 (産業)	2,180	2,094	1,465	1,430				
822201	企業内研究開発	5,070,325	4,850,069	14,063,539	345				
831101	医療 (国公立)	3,351,704	3,330,213	3,905,339	853				
831102	医療 (公益法人等)	3,889,443	3,805,815	3,980,115	956				
831103	医療 (医療法人等)	10,494,700	10,190,714	10,870,580	937				
831201	保健衛生 (国公立) ★★	469,160	469,160	405,250	1,158				
831202	保健衛生 (産業)	166,013	164,800	242,278	680				
831301	社会保険事業 (国公立) ★★	511,242	511,242	729,495	701				
831302	社会保険事業 (非営利) ★	228,130	228,130	481,255	474				
831303	社会福祉 (国公立) ★★	1,142,838	1,142,838	849,326	1,346				
831304	社会福祉 (非営利) ★	2,168,774	2,168,774	1,248,088	1,738				
831305	社会福祉 (産業)	202,962	202,962	163,075	1,245				
831401	介護 (居宅)	2,165,678	2,160,419	1,130,629	1,911				
831402	介護 (施設)	2,040,720	2,008,734	1,728,970	1,162				
841101	対企業民間非営利団体	618,455	608,838	569,925	1,068				
841102	対家計民間非営利団体 (除別掲) ★	2,117,086	2,117,086	1,160,700	1,824				
851101	広告	2,183,754	2,051,950	1,779,113	1,153				
851201	物品賃貸業 (除貸自動車)	2,971,920	2,309,906	636,521	3,629				
851301	貸自動車業	491,209	464,757	585,374	794				
851410	自動車修理	2,515,452	2,446,736	1,460,060	1,676				
851510	機械修理	1,308,394	1,252,543	2,776,453	451				
851901	建物サービス	2,437,812	2,379,236	565,197	4,210				
851902	法務・財務・会計サービス	1,445,867	1,421,512	439,555	3,234				
851903	土木建築サービス	2,319,339	2,224,190	1,302,769	1,707				
851904	労働者派遣サービス	3,398,581	3,351,926	135,167	24,708				
851909	その他の対事業所サービス	9,963,548	9,124,804	2,536,351	3,598				
861101	映画館	47,471	44,982	291,483	154				
861102	興行場 (除別掲) ・興行団	407,298	403,117	144,505	2,790				
861103	遊藝場	2,604,356	2,499,324	7,794,469	321				
861104	競輪・競馬等の競走場・競技団	229,743	219,713	818,526	268				
861105	スポーツ施設提供業・公園・遊園地	1,101,672	1,078,905	1,391,896	775				
861109	その他の娯楽	215,931	209,105	390,561	535				
861201	一般飲食店 (除喫茶店)	4,873,346	4,772,578	10,474,076	456				
861202	喫茶店	407,896	396,221	1,054,679	376				
861203	遊藝飲食店	2,313,166	2,262,022	3,737,299	605				
861301	宿泊業	2,364,475	2,181,287	6,846,666	319				
861401	洗濯業	1,293,067	1,275,311	2,627,713	485				
861402	理容業	530,881	525,473	566,926	927				
861403	美容業	1,333,971	1,324,742	947,392	1,398				
861404	浴場業	257,961	254,668	2,130,776	120				
861409	その他の洗濯・理容・美容・浴場業	297,047	294,519	376,065	783				
861901	写真業	212,283	208,734	82,399	2,533				
861902	冠婚葬祭業	899,040	880,919	2,528,678	348				
861903	各種修理業 (除別掲)	169,183	167,895	207,342	810				
861904	個人教授業	2,290,942	2,254,303	1,902,848	1,185				
861909	その他の対個人サービス	708,523	696,056	558,131	1,247				
900000	分類不明	1,192,723	-1,134,263	2,703,741	-420				

Appendix

2014年度は、タイの研究者2名を日本に招聘し、CO₂排出量のデータの作成方法を指導した。この招聘は2014年10月につくば市で行われたエコバランス国際会議に際して実施され、世界のLCA研究者と意見交換をすることができた。また、2015年2月には共同研究者(産業技術総合研究所田原氏と早稲田大学近藤氏)と共にタイに赴き、タイの企業の環境担当者や研究者に向けて、LCAの最近の動向、産業連関表の概要、環境効率の概要について解説する講演会を実施した。約100名の参加が得られ盛会であった。この講演会の実施により、タイの産業育成のためには環境効率の研究が重要であることを伝えることができたと思う。また、タイの統計値の収集を効率的に行うための人的ネットワークができたことが大きな収穫であった。



Photo 1 タイ講演会の様子

タイマングローブ植林地域における環境改善に関する研究

工学院大学 環境エネルギー化学科 酒井裕司

工学院大学 機械工学科 小林潤

成蹊大学 物質生命理工学科 加藤茂

産業技術総合研究所 環境管理技術研究部門 小寺洋一

ワライラック大学 Kan Chantrapomma

ワライラック大学 Charun Bunyakan

ワライラック大学 Attaso Khamwichit

ワライラック大学 Suthira Thongkao

ワライラック大学 Wipawee Khamwichit

Research on Environmental Improvement in Rehabilitated Mangrove Forests of Thailand

Yuji Sakai, Department of Environmental and Energy Chemistry

Jun Kobayashi, Department of Mechanical Engineering

Shigeru Kato, Seikei University

Yoichi Kodera, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology

Kan Chantrapomma, Walailak University

Charun Bunyakan, Walailak University

Attaso Khamwichit, Walailak University

Suthira Thongkao, Walailak University

Wipawee Khamwichit, Walailak University

ABSTRACT : Mangroves are increasingly seen as carbon-rich ecosystems and their reforestation and rehabilitation are very important as global warming measurement. The mangrove rehabilitation sites at the abandoned shrimp ponds and new mud flat areas in southern part of Thailand have been planted since 1998. The present research aims to study soil chemical properties (electrical conductivity, salinity, pH, and oxidation-reduction potential) and carbon accumulation and food cycle system in this rehabilitated mangrove site. Soil was sampled from surface to 2.0 m depth and biomass investigation (tree height and weight of each part of tree) was performed at sites that were planted in 1998, 2004, 2009, and 2013. Consequently, the change in soil chemical properties in soil profile and each site was confirmed. Carbon content in soil was gradually increased with planting age. In addition, stable isotopes such as $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{13}\text{C}$ in fish in this area are monitored. It has been found that nitrogen metabolism mechanism in fish differs due to the difference of amino acid in protein. Therefore, the rehabilitated mangrove forest would be as a sink source for atmospheric carbon and rich biodiversity of the estuaries ecosystem.

1. はじめに

マングローブは、熱帯・亜熱帯の感潮域や海に流れ込む河川の河口域など海水と淡水が混じり合う汽水域で育つ塩性樹木群が形成する群落の総称である。Fig. 1 は、世界のマングローブ分布を示し、熱帯から亜熱帯地域の感潮河川域や沿岸に分布している。また、東南アジア地域に広がるマングローブは、世界のマングローブ植生面積の40%以上が集中していると報告されている¹⁾。マングローブ生態系は林産物、漁業生産物、魚類(生物)育成の涵養機能、自然環境保全・保護機能、多様な生物の生息環境の提供など、様々な機能を有する。さらに近年沿岸のマングローブ(Mangroves)、藻場(Seagrass beds)、塩性湿地(Tidal saltmarshes)は、沿岸地域の保全のみならず、炭素貯蔵の役割も果たしていることが注目されている²⁾。高濃度の有機物(炭素)を堆積している沿岸植物生態系では、泥土堆積で貧酸素環境化であることから、堆積している有機物の分解は殆どされず炭素隔離されることになるため、陸上森林の数倍以上の炭素蓄積能を有する³⁻⁶⁾。しかし、そのような環境が、他の土地利用のために破壊または転換されると、隔離されていた炭素から膨大な地球温暖化効果ガスの放出が進行することとなる^{4,6,7-10)}。

UNEP(国連環境計画)、FAO(国連食糧農業機構)およびIUCN(国際自然保護連合)は、沿岸植物生態系に蓄積された炭素を検討し“Blue carbon”と命名し、新たな視点から重要な生態系と位置づけている¹¹⁾。そして、それらの沿岸植物生態系は、地球上に約4,900万ha分布している¹¹⁾。マングローブは沿岸域の僅か0.5%のみの植生であるが、沿岸堆積物における炭素貯蔵の10~15% (24 TgCyr⁻¹)を占めている¹²⁾。

地球上におけるマングローブ生育面積は約1,500万haで、タイのマングローブ森林は1960年初頭からの約40年間で半減し約17万haまで減少した。その原因は、燃料確保のため過剰伐採、エビ養殖池造成による転換、農用地や工業用地への転換、スズ採掘による破壊などである¹³⁾。そして、放棄されたエビ養殖場では、マングローブ樹木による光合成での炭素固定・蓄積機能が消滅して

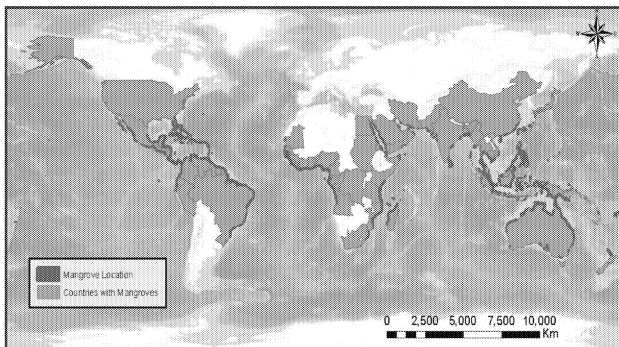


Fig.1 Global distribution of mangrove

(Source: Brian C. Murray et al., Nicholas Institute for Environmental Policy Solutions Report NI R 11-04, March 2011)

いるだけでなく、熱帯の高温環境下で土壌が硫酸酸性化することにより、数千年にわたってマングローブが大気から湿地土壌中に粒状有機物質として固定・蓄積した泥炭状の有機炭素が酸化・分解作用を受け、急速に大気中へCO₂やCH₄として放出される⁷⁾。また、マングローブ伐採において、0.07~0.42 Gtの二酸化炭素は排出されているとの報告例もある³⁾。

タイ全域に広がる放置・放棄エビ養殖池面積は、約24,000~32,000haである¹⁴⁾。また、河川上流から運搬される土壌及び沿岸域の浸食で運搬される土壌の堆積で新たな干潟が数万ha以上と増え続けており、この地域へのマングローブ植林は新たな“Blue carbon”蓄積場として重要視している。加藤らは、これらのエビ養殖放棄池と新規干潟の約1200haに約700万本の植林を行ってきた¹⁵⁾。本研究では、このマングローブ植林地を調査対象地とする。

また、マングローブ林は、魚つき林とも称され、Gajasenilらはマングローブ森林の破壊と修復による沿岸域魚類資源の推移について報告している¹⁶⁾。マングローブ樹木からの大量の落枝葉有機物は、沿岸域や海洋に生息している多様な生物の餌源として供給され、特有の海生動物相の構成に寄与、さらに多様な微生物群の増繁殖にも関係し、マングローブ生態系食物連鎖(Food chain)の中心である^{14,17)}。そして、安定同位体の存在量は、生物の体のみならず吸収・排出される化学成分としても測定することができるため、物質の起源・生成機構や食物網内での各種動物の位置付けなどに関する情報を求めることができる。炭素は一般に植物の光合成によって無機物である二酸化炭素を有機物(有機炭素)に変換するところから生物圏に入り、動物や菌類はこの有機物を利用して体を作り、エネルギーを獲得する。一方、窒素は硝酸態やアンモニア態として大気を経由して植物が吸収・利用し、微生物が植物と共生して窒素を固定する。さらに現在では肥料として大量に使用されている。これらの過程を経て無機態の窒素が有機態の窒素に変換され生物圏に入り、これらの窒素源を利用して動物は体を作る。このように、地球上の全ての生物は物質循環のなかに生きている。水域生態系の主要な生産者は、沖合を浮遊する植物プランクトンと沿岸で付着生活を送る底生藻類である。これらはいずれも水中に溶けている二酸化炭素(無機態炭素)から光のエネルギーを利用して炭素を固定(光合成)する。このとき同位体効果が起き、植物体の炭素同位体比は、反応の元の二酸化炭素の炭素同位体比より低くなる。そのため、沖合で生息する植物プランクトンの炭素同位体比は通常-25~-20‰程度になると報告されている。

本報告では、放棄されたエビ養殖池跡地へのマングローブ植林による土壌化学性、炭素貯蔵量の経年変化を検討し、さらに生物多様性増進の効果を評価する手法として、マングローブ植林地域に回帰してきている魚介類の調査時に採集したそれぞれの魚類試料中の安定同位体窒

素($\delta^{15}\text{N}$)および炭素($\delta^{13}\text{C}$)の存在比から、食物連鎖(Food web)の推定を行い、マングローブ植林の魚類回帰についての検討を行った。

2. 試験区及び実験方法

2.1 試験区

研究対象となるエビ養殖放棄地へのマングローブ植林試験区は、首都バンコクから約 800 km 南に位置するナコンシタマラート(NST)県(北緯 $8^{\circ}00' \sim 9^{\circ}19'$ 、東経 $99^{\circ}15' \sim 100^{\circ}15'$)は、南部タイ半島部のシャム湾側に面して、総面積は $9,942.5 \text{ km}^2$ 、海岸線長は 225 km である。ナコンシタマラ市東部海岸は、ナコン湾またはパクファナン湾で、湾は浅く嘴状海岸線の半島部の長さは約 14 km 、湾幅はパクファナン河口部の最も狭いところで約 3 km から湾口地区では約 10 km である。ナコンシタマラ県の気象は熱帯モンスーン型で、年間総雨量は $1,900 \sim 2,400 \text{ mm}$ であり、モンスーン季の降雨量はその約 60% である。

本年度の対象試験区として、タイ南部ナコンシタマラート(NST)近郊で 1998、2004、2009、2013 年にマングローブ植林した試験区を調査した(Fig.2)。

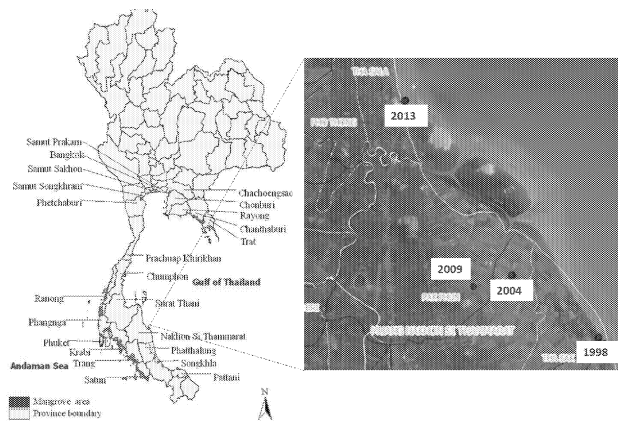


Fig.2 Sampling site in mangrove afforestation of Nakhon Si Thammarat (NST) in Thailand.

2.2 土壌サンプリング方法

1998、2004、2009、2013 年にマングローブを植林した各試験区で 3 地点、検土杖を用いて地表部から 200 cm まで 10 cm 毎に土壌数十グラムをサンプリングした(100 cm 以下は 50 cm 毎に採取)。また土壌サンプリング地点付近にて、地表部から 100 cm まで 10 cm 毎に温度、pH、酸化還元電位(ORP)を測定した。土壌サンプリング及び測定点の位置情報は、Table 1 に示す。

Table 1 Latitude and longitude of soil sampling and measurement in four mangrove planting sites (NST).

Site	Sampling/pH, ORP	Latitude	Longitude
1998site	Soil Sampling	N $08^{\circ}31'03.0''$	E $100^{\circ}02'40.5''$
		N $08^{\circ}31'03.5''$	E $100^{\circ}02'40.9''$
	Soil pH, ORP	N $08^{\circ}31'04.2''$	E $100^{\circ}02'41.5''$
		N $08^{\circ}31'03.3''$	E $100^{\circ}02'40.8''$
2004site	Soil Sampling	N $08^{\circ}31'03.5''$	E $100^{\circ}02'41.7''$
		N $08^{\circ}31'03.3''$	E $100^{\circ}02'40.9''$
	Soil pH, ORP	N $08^{\circ}32'42.1''$	E $100^{\circ}00'20.9''$
		N $08^{\circ}32'42.5''$	E $100^{\circ}00'21.5''$
2009site	Soil Sampling	N $08^{\circ}32'41.9''$	E $100^{\circ}00'19.1''$
		N $08^{\circ}32'42.4''$	E $100^{\circ}00'20.9''$
	Soil pH, ORP	N $08^{\circ}32'42.6''$	E $100^{\circ}00'21.6''$
		N $08^{\circ}32'41.3''$	E $100^{\circ}00'19.6''$
2013site	Soil Sampling	N $08^{\circ}37'16.1''$	E $099^{\circ}57'24.6''$
		N $08^{\circ}37'16.4''$	E $099^{\circ}57'24.9''$
	Soil pH, ORP	N $08^{\circ}37'16.4''$	E $099^{\circ}57'24.9''$
		N $08^{\circ}37'16.1''$	E $099^{\circ}57'25.0''$
2013site	Soil Sampling	N $08^{\circ}37'16.6''$	E $099^{\circ}57'24.8''$
		N $08^{\circ}37'16.6''$	E $099^{\circ}57'24.9''$
	Soil pH, ORP	N $08^{\circ}37'17.0''$	E $099^{\circ}57'26.9''$
		N $08^{\circ}37'17.0''$	E $099^{\circ}57'26.7''$
2013site	Soil Sampling	N $08^{\circ}37'16.7''$	E $099^{\circ}57'26.9''$
		N $08^{\circ}37'17.0''$	E $099^{\circ}57'26.7''$
	Soil pH, ORP	N $08^{\circ}37'16.9''$	E $099^{\circ}57'27.1''$
		N $08^{\circ}37'17.0''$	E $099^{\circ}57'26.8''$
2013site	Soil Sampling	N $08^{\circ}37'17.1''$	E $099^{\circ}57'26.8''$
		N $08^{\circ}37'17.1''$	E $099^{\circ}57'26.8''$

2.3 バイオマス量測定

各植林試験区(1998、2004、2009、2013)にて、マングローブが地上部に蓄積している炭素固定量を調査するため、各試験区にてマングローブ地上部バイオマス量の測定を行った。バイオマス量調査は、マングローブ各部位(葉、枝、幹、根)にて重量測定を行い、樹高及び胸高直径(DBH)測定も行った。

2.4 土壌化学性分析

各サンプリング土壌試料に対して、土壌溶液(土壌:水(1M KCl)) = 1:5(重量比)を作製し、1 時間振とう後(200rpm)、上澄み液を pH、EC メーター(F-50, HORIBA)及びビオン電極(1512A-10C, HORIBA)を用いて pH、EC、Na イオン濃度を測定した。さらに土壌試料を乾燥炉にて 110°C で 24 時間乾燥させ、CN コーダー(SUMIGRAPH NC-22A)にて炭素・窒素含有量の測定を行った。

2.5 魚類試料の採集と試料分析

廃棄されたエビ養殖池へのマングローブ植林を行った地区の水路に回帰してきている魚介類の採集を行い、種別の同定と採集試料中の安定同位体窒素($\delta^{15}\text{N}$)および炭素($\delta^{13}\text{C}$)の分析を行った。各試料は恒温乾燥機内で 85°C 、1 週間乾燥し、その後、乳鉢で微粉化した。また、安定同位体比精密質量分析に際しては、各試料中の油脂分の脱脂処理を行った。魚類試料中の安定同位体窒素($\delta^{15}\text{N}$)および炭素($\delta^{13}\text{C}$)の分析には、安定同位体比精密質量分析計(DELTA V, Thermo Fisher Scientific Japan)で行った。

3. 結果及び考察

3.1 マングローブ植林試験区における樹高、バイオマス量

各植林試験区(1998、2004、2009、2013)にて、マングローブ地上部バイオマス量の測定を行った(Fig.3)。各試験区におけるバイオマス量、マングローブ各部位(葉、枝、幹、根)の重量測定結果、及び樹高、胸高直径(DBH)の測定結果をTable 2 に示した。バイオマス総量において、1998 年では2004 年に植林した試験区より減少したが、同地域にて、植林後 25 年経過したデータとして 1772 kg¹⁸⁾という報告もあるので、今後も地上部バイオマス量は増加する傾向にあると考えられる。また、Satyanarayana らの報告¹⁹⁾から、植生状況を 1,000 trees/ha と仮定すると、25 年後には、1772 t/ha、10 年後で 718 t/ha という結果が得られ、熱帯常緑林における平均的なバイオマス量(247 t/ha)²⁰⁻²²⁾と比較して高い数値が得られた。今後、経過年数変化に伴うバイオマス総量の精度の高いアロメトリー式の導出のため、調査を継続する。



Fig.3 Biomass measurement in mangrove planting site.

Table 2 Measurement data of biomass in fresh weight in four mangrove plantation sites.

Planted year [yr]	Total [kg]	Leaves [kg]	Branch [kg]	Trunk [kg]	Root [kg]	Length [m]	Girth [cm]
1998	670	50	153	232	236	9.5	36
2004	744	63	100	145	436	6.3	30
2004	692	65	128	218	281	8.4	26
2009	32	7	9	7	9	5.2	15
2013	6.8	1	0.8	2	3	1.9	14
2013	5.8	1	0.6	1.2	3	1.5	10

3.2 マングローブ植林試験区における土壌化学性

各植林試験区(1998、2004、2009、2013)にて、土壌深さ 100 cm までの 10 cm 毎の鉛直深さ方向における温度、酸化還元電位(ORP)と土壌深さ 100 cm までの 10 cm 毎と 100 cm 以降 50 cm 毎の鉛直深さ方向における pH、EC、Na 濃度を測定した(Fig.4)。本報告書では、ORP、pH(KCl)、EC の測定結果を示す。酸化還元電位における測定結果を、Table 3 に示す。深くなるにつれて数値が負に大きくなっていく傾向が確認出来、還元状態が進行していることがわかった(Table 3)。調査結果では、2004 年(10 年後)の試験区での還元状態が進行していることがわかった。参考として、新たに堆積している 3 年後の泥地におけるデータ²³⁾では、地表部より還元状態になっていることが確認できたため、今後の調査において、マングローブ植林地帯として、新規堆積地帯にも着目して調査を進める必要があることが示唆された。各試験区における深さ方向での pH 測定結果では、表層付近から深さ方向に従って、徐々に高い値をとり、1998 年での値が他と比較して、小さいことがわかった(Fig.5)。また、KCl でなく H₂O の場合には、すべての値において約 0.3 から 0.5 程度大きい数値をとったことから、土壌の潜在的な酸性を有していることも確認できた。次に、各試験区における深さ方向での EC 測定結果では、すべての試験区で表層付近での値が大きいことがわかり、1998 年での値が他と比較して大きいことも確認できた(Fig.6)。また、すべての EC 値が Na 濃度と相関性が高いこともわかり、土壌中の塩類の主成分は Na であることも示唆された。

Table 3 Redox potential of each depth in four mangrove plantation sites.

Depth [cm]	REDOX [mV] (in each elapsed year)				
	1	5	10	16	3*
0-10	171	57	-51	113	-155
10-20	186	-37	-62	-12	-102
20-30	92	-103	-81	-17	-102
30-40	-28	-41	-91	74	-118
40-50	-87	-96	-150	91	-124
50-60	-139	-80	-181	-32	-200
60-70	-150	-120	-156	27	-225
70-80	-141	-115	-234	-146	-260
80-90	-114	-118	-311	-193	-
90-100	-140	-167	-320	-	-



Fig.4 Measurement of soil pH, EC, and ORP in mangrove planting site.

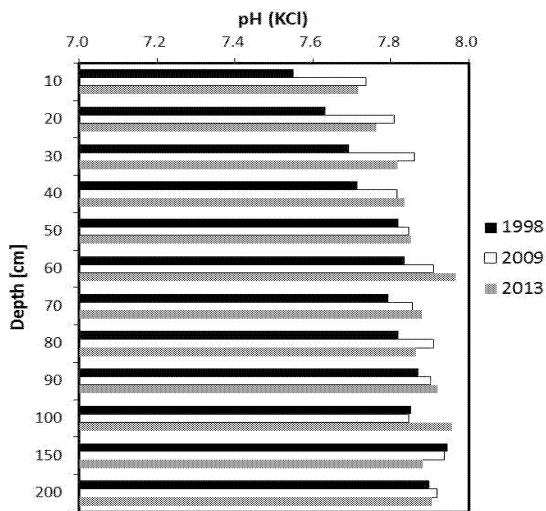


Fig.5 Soil pH in each depth of mangrove planting sites.

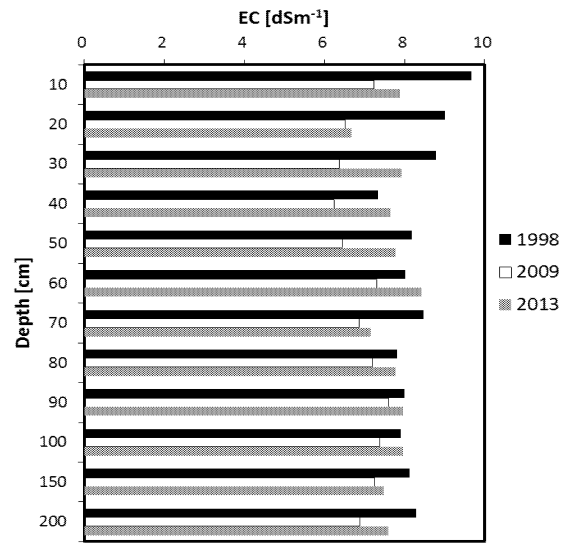


Fig.6 Soil EC in each depth of mangrove planting sites.

3.3 マングローブ植林試験区における土壤中炭素・窒素含有量

各試験区における土壌深さ方向における炭素含有量及び窒素含有量の測定結果を、Fig.7、Fig.8にそれぞれ示した。炭素含有量においては、1998年の表層(0~10cm)に多く蓄積している傾向が得られた。これはマングローブがもたらしたリター(落葉落枝)の影響であると考えられる。植林したマングローブの成長とともに生じたリターが地表面にて、土壌微生物に分解され生成した有機物が徐々に土壌に蓄積されていると考えられる。窒素含有量においては、試験区ごとの各深さにおける濃度の挙動は、炭素と似た傾向を示したが、1998年で高い値を示しておらず、炭素と同様に考えることは出来ないと思われる。

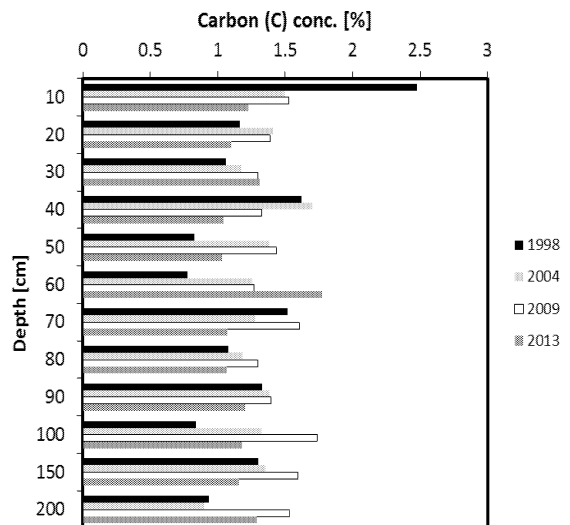


Fig.7 Soil carbon content in each depth of mangrove planting sites.

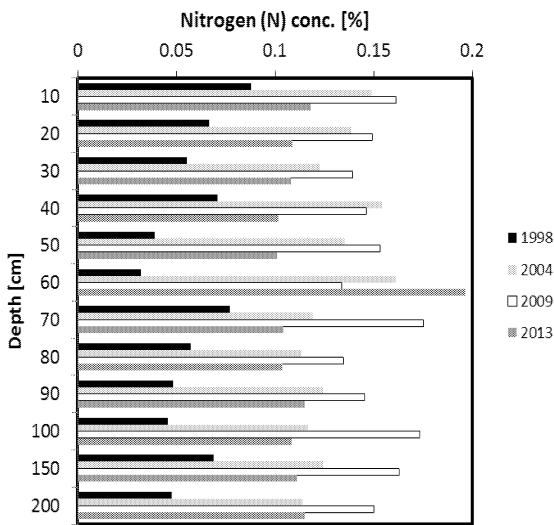


Fig.8 Soil nitrogen content in each depth of mangrove planting sites.

3. 4 マングローブ植林試験区における炭素固定量評価

各試験における土壤中炭素固定量を計算した結果、Table 4 のようになった。年々、炭素固定量は増加していく傾向にあることが示唆され、16 年後には、510 MgC/ha の炭素量が土壤中に固定されていることがわかった。エビ養殖放棄池へのマングローブ植林地域における土壌有機炭素量は、1,390–1,870 tCO₂eq/ha と推算され、既往の報告例での通常の海域でのマングローブ生育地域での値 (1,690–2,020 tCO₂eq/ha) と比較すると若干少ない数値であることもわかった。

Table 4 Average global carbon stocks of mangrove planting soil in Nakhon Si Thammarat (NST).

	1998	2004	2009	2013
Soil carbon content [MgCha ⁻¹]	510	422	443	379

3. 5 魚類試料中の窒素・炭素同位体比

生物や生物が作り出した有機物に含まれる安定同位体の天然存在比($\delta^{13}\text{C}/\delta^{12}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}/\delta^{14}\text{N}$)は、生態系の構造やその変遷を解析する上で極めて優れた指標になる。生態系を構成する全ての生物の全窒素同位体比は、その生態系の生産者の同位体比に支配される。海水中の硝酸イオンを窒素源として生育した植物プランクトンの全窒素同位体比は、 $\delta^{15}\text{N}$ 値 = +3~+10‰ である。そのため、それを餌とする動物プランクトンや魚の全窒素同位体比は、この生態系の生産者に比べ高い値になる。動物は捕食によって餌から窒素を得る一方、不要な窒素を尿やアンモニアとして体外に排出し、その際に体組織に残る窒素は

^{15}N に富み、排出される窒素は ^{14}N に富むという同位体分別がおこる。この動物による同位体分別は、①餌に対して捕食者の全窒素同位体比は約 3.3‰/TL(Trophic level) 高くなる。②この ^{15}N 濃縮は、植食動物(一次消費者)から高次消費者までのほとんどの生物に共通することが経験的に求められている。廃棄されたエビ養殖池へのマングローブ植林を実施した地区の水路から採集した魚類とマングローブ 2 種(フタバナヒルギ: *Rhizophora apiculata*、オオバヒルギ: *Rhizophora mucronata*) の $\delta^{15}\text{N}$ 値を Table 5 に示す。*Rhizophora apiculata* の $\delta^{15}\text{N}$ は 3.00‰、*Rhizophora mucronata* の $\delta^{15}\text{N}$ は 5.12‰ であった。 $\delta^{15}\text{N}$ の高い値を示した魚種は、*Atherinomorus duodecimalis* (13.30‰)、*Ambassis gymnocephalus* (11.60‰)、*Trichiurus lepturus* (11.40‰)、*Arius manillensis* (11.20‰)、*Arius maculatus* (11.10‰)、であった。一方、 $\delta^{15}\text{N}$ の低い値を示した魚種は、*Odontamblyopus rubicundus* (5.18‰)、次いで *Scatophagus arugus* (5.43‰)、*Tenulosa toli* (5.43‰) であった。全窒素同位体比の $\delta^{15}\text{N}$ 値は、魚種により生体内でのアミノ酸代謝と大きく関係していることが考えられる。低い $\delta^{15}\text{N}$ 値を示した魚類の構成アミノ酸は、L-alanine、L-valine、L-leucine、L-glutamic acid などからなることが考えられ、魚体内に存在するトランスアミラーゼによりアミノ基の脱離反応が優先的に進み、脱離するアミノ基は ^{15}N に富むことから魚体内の $\delta^{15}\text{N}$ 値は低い値を示したことが推察できる。しかし、 $\delta^{15}\text{N}$ の高い値を示した魚類の構成アミノ酸として Methionine、Phenylalanine が考えられ、これらのアミノ酸は代謝反応の初期反応にアミノ基が関わらないため、代謝されるアミノ酸と代謝されずに残るアミノ酸の間で同位体分別が起こらないため、 $\delta^{15}\text{N}$ の高い値を示したことが推察される。Fig.9 にアミノ酸の脱アミノ反応及び脱カルボニル反応を示す。本結果からは、動物(魚類を含む)による同位体分別は、①餌に対して捕食者の全窒素同位体比は約 3.3‰ ずつ高くなるとされている平均的な窒素同位体濃縮は明らかにすることはできなかったが、魚種によりタンパク質の構成アミノ酸の相違により、窒素代謝の異なることが明らかになった。

廃棄されたエビ養殖池へのマングローブ植林を実施した地区の水路から採集した魚類とマングローブ 2 種(フタバナヒルギ: *Rhizophora apiculata*、オオバヒルギ: *Rhizophora mucronata*) の $\delta^{13}\text{C}$ 値を Table 5 に示す。*Rhizophora apiculata* および *Rhizophora mucronata* の $\delta^{13}\text{C}$ 値は、-26.80‰ であった。この $\delta^{13}\text{C}$ 値は、陸上植物(樹木)の値とほぼ同じ値を示した。マングローブ植林樹木は旺盛に生育、枝葉をリターとして母樹周辺に落とし、これらのリターは微生物等の分解を受け、水溶性の物質となり水中への拡散と土壌中への蓄積が進む。水圏生態系では、水中へ溶解拡散したこれら水溶性有機物等はまず植物プランクトンの成長の餌として吸収利用され、更に動物プランクトンが植物プランクトンを捕食する食物連鎖が始まる。更にこれに続く、底生動物、草食性魚類、

び推算を行う。

またマングローブ植林地域における炭素貯蔵量の把握の他に、バイオマス利用の検討も行う予定である。まず現地にて採取したマングローブ樹種、ゴムの木、その他、熱帯樹種など各種バイオマスを急速熱分解(Fig.10)を利用して特性を評価する。さらにパーム油産業から大量に廃棄されるバイオマスや木質バイオマスのエネルギー利用方法における研究も進展させる予定である。

最後に、持続可能性を有するマングローブ植林の森林減少と森林劣化からの排出を削減するための活動(REDD+)は、環境保全としての効果のみならず、費用対効果が高い気候変動の緩和政策の選択枝となり、経済的、社会的、及びその他の環境・適応に関する共同便益を持つ可能性があると考えられるため調査及び検討を行う予定である。

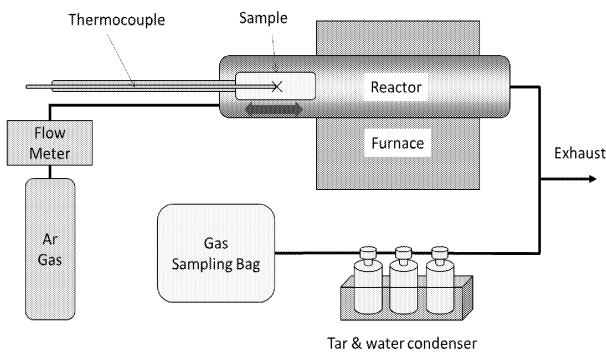


Fig.10 Experimental apparatus of rapid pyrolysis of biomass.

参考文献

- 1) Spalding, M., Mami Kainuma and Lorna Collins, World Atlas of Mangroves, Earthscan 2010.
- 2) Reisinger, A., Kitching, R.L., Chiew, F., Hughes, L., Newton, P.C.D., Schuster, S.S., Tait, A., and Whetton, P.: Australasia. In: Climate Change 2014: Impacts, Adaptation, and Vulnerability. Part B: Regional Aspects. Contribution of Working Group II to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Barros, V.R., Field, C.B., Dokken, D.J., Mastrandrea, M.D., Mach, K.J., Bilir, T.E., Chatterjee, M., Ebi, K.L., Estrada, Y.O., R.C., Genova, Girma, B., Kissel, E.S., Levy, A.N., S., MacCracken, Mastrandrea, P.R., and White, L.L. (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, (2014) pp.1371-1438.
- 3) Donato, D.C., Kauffman, J.B., Murdiyarso, D., Kurnianto and S., Stidham M.: Mangroves among the most carbon-rich forests in the tropics, Nature Geoscience, 4 (2011) pp.293-297.

- 4) Eong, O.J.: Mangroves - a carbon source and sink, Chemosphere, 27 (1993) pp.1097-1107.
- 5) Murdiyarso, D., Hergoualch, K. and Verchot, L.V.: Opportunities for reducing greenhouse gas emissions in tropical peatlands, Proceeding of the National Academy of Science USA, 107 (2010) pp.19655-19660.
- 6) Kristensen, E., Bouillon, S. T. Dittmar and C. Marchand: Organic carbon dynamics in mangrove ecosystems, Aquatic Botany, 89 (2008) pp.201-219.
- 7) Granek, E., Ruttenberg, B.I.: Changes in biotic and abiotic processes following mangrove clearing, Estuarine and Coastal Shelf Science, 80 (2008) pp.555-562.
- 8) Sjöling, S., Mohammed, S.M., Lyimo, T.J., and Kyaruzi, J.J.: Benthic bacterial diversity and nutrient processes in mangroves: impact of deforestation, Estuarine and Coastal Shelf Science, 63 (2005) pp.397-406.
- 9) Strangmann, A., Bashan, Y. and Giani L.: Methane in pristine and impaired mangrove sediments and its possible effects on establishment of mangrove seedlings, Biology and Fertility of Soils, 44 (2008) pp.511-519.
- 10) Sweetman, A.K., Middleburg, J.J., Berl, A.M., Bernardino, A.F. and Schander, C.: Impacts of exotic mangrove forests and mangrove deforestation on carbon remineralization and ecosystem functioning in marine sediments, Biogeosciences, 7 (2010) pp.2129-2145.
- 11) Nellemann, C.E., Corcoran C.M., Durate, L., C.V. and Fonseca, G.: Blue carbon -The role of the healthy oceans in binding carbon-, UNEP, FAO, UNESCO, IUCN, (2009) pp.1-80.
- 12) Alongi D.M.: Carbon Cycling and Storage in Mangrove Forests, Annual Review of Marine Science, 6 (2014) pp.195-219.
- 13) Asia Shrimp Culture Council, Asian Shrimp News, Collected volume, 1985-1995, Compiled by C. Kwei and L. N Bangkok, Thailand (1996).
- 14) Sanit A., Ruangrai, T.: Overview of shrimp farming and mangrove loss in Thailand, Edited by Barbier and Suthawan Sathirathai; in Shrimp Farming and Mangrove Loss in Thailand, (2004) pp.37-51.
- 15) 加藤茂, 酒井裕司, 小島紀徳: マングローブ植林による生物多様な生態系回復と炭素隔離, 日本海水学会誌, 67(6) (2013) pp.305-317.
- 16) Gajaseeni, J., Ajchariyavanich, N., Pratadsunthornsam, A., and Teerakupt, K.: Nutrient budget in the disturbed and natural mangrove forests, The Sixth National Seminar on Mangrove Ecology, Bangkok, Thailand (1988) pp.29-31.
- 17) Suzuki, T., Shikano, S., Nakasone, Y., Paphavasit, N., Piumsomboon, A. and Nishihira, M.: Effect of deforestation on the benthic communities in Samut Songkhram mangrove swamp, Thailand, Nishihira M. eds., Benthic Communities and Biodiversity in Thai Mangrove Swamps, Biological Institute, Tohoku University (1997) pp.79-96.
- 18) Kato, S.: The Green and Blue Earth Project, KEIDANREBN Nature Conservation Fund (KNCF) Report (2011).
- 19) Satyanarayana B., Idris, I. F., Mohamad K.A., Husain

- M.L., Shazili, A.M., Dahdouh-Guebas, F.: Mangrove species distribution and abundance in relation to local environmental settings: a case-study at Tumpat, Kelantan Delta, east coast of peninsular Malaysia, *Botanica Marina*, 53(1) (2010) pp.79–88.
- 20) Alongi D.M.: *The Energetics of Mangrove Forests*. (2009) Dordrecht: Springer.
- 21) Camacho, L.D., Gevana, D.T., Carandang, A.P., Camacho, S.C., Combalicer, E.A. et al.: Tree biomass and carbon stock of a community-based mangrove forest in Bohol, Philippines, *Forest Science and Technology*, 7 (2011) pp.161–67.
- 22) Donato, D.C., Kauffman, J.B., Mackenzie, R.A., Ainsworth, A., Pflieger, A.Z.: Whole-island carbon stocks in the tropical Pacific: implications for mangrove conservation and management, *Journal of Environmental Management*, 97 (2012.) pp.89–96.
- 23) Kato, S.: *The Green and Blue Earth Project*, KEIDANREBN Nature Conservation Fund (KNCF) Report (2013).
- 24) DeNitro, M. J., Epstein, S.: Influence of diet on the distribution of carbon isotopes in animals, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 45 (1978) pp.341-351.

【研究成果】

＜学会発表＞

- 1) Yuji Sakai, *Environmental Restoration in Desertification Area and Mangrove Forest of Asia*, International Conference on Biological, Civil and Environmental Engineering (BCEE-2015), Feb. 3, 2015 (Indonesia) (Keynote Lecture)
- 2) Yuji Sakai, Suthira Thongkao, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, Toshinori Kojima, Shigeru Kato, *Evaluation of soil chemical properties and carbon sequestration potential in rehabilitated mangrove forests of southern Thailand*, International Conference on Biological, Civil and Environmental Engineering (BCEE-2015), Feb.3, 2015 (Indonesia)
- 3) 坂口湧一, Yuichi Sakaguchi, Suthira Thongkao, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, 小島紀徳, 加藤茂, 酒井裕司, *タイにおけるマングローブ修復地域の土壌化学性及び炭素固定評価*, 化学工学会第80年会, 芝浦工業大学, 2015年3月21日 (ポスター発表学生賞・特別賞)

3. 総合研究所科学研究費採択奨励研究報告 (2014年度)

気生微細藻類が産生する機能性脂質の特徴づけおよび 効率的生産に関する研究

応用化学科 准教授

阿部 克也

活性酸素やフリーラジカルを捕捉し、無害化する反応に寄与することができる抗酸化物質が大変注目されている。抗酸化物質の中でもカロテノイドは、疎水性条件下で非常に高い抗酸化能を有している。それとともにプロビタミン A 作用や視物質における発色団として用いられ、精巣萎縮や不妊などの生殖に関わる疾病の予防やがん細胞の増殖抑制など多様な特性がある。カロテノイド生産を目的とした合成法には有機化学、遺伝子工学と天然の生物由来の生合成があり、生物由来のカロテノイドは主に光合成生物により産生される。高等植物は種々の器官に分化しているのに比べ、微細藻類は環境ストレスに応じて細胞全体で多種多様のカロテノイドを蓄積する。また、単位面積当たりの生育速度は微細藻類の方が速いため、微細藻類によるカロテノイドの生産が注目されている。

本研究では、乾燥した岩場の表面で生活している光合成微生物（気生微細藻類）に着目し、アスタキサンチンやアドニキサンチンなどのキサントフィルとそのエステル型カロテノイドを多く蓄積する気生微細藻類 *Scenedesmus* sp. KGU-Y002 を用い、遊離型・エステル型カロテノイドの生産を目的とした液体培養条件の検討を行った。その結果、気生微細藻類 *Scenedesmus* sp. KGU-Y002 が光強度 $80 \mu\text{mol photons m}^{-2} \text{s}^{-1}$ 、硝酸イオン濃度 720 mg L^{-1} で最も高い細胞増殖を示し、比増殖速度 $\mu_{\text{max}} = 0.59 \text{ day}^{-1}$ 、21 日間の培養で 2.0 g L^{-1} の藻細胞を回収できることを明らかにした。その比増殖速度は水界圏で生活する微細藻類よりも高かったことから、乾燥した岩場から単離した気生微細藻類は液体培地において高い増殖能力を示すことが分かった。また、光強度および培地添加剤（カチオン種）によって光安定性の高い脂肪酸エステル型カロテノイドを選択的に蓄積することが可能であった。現在、各培養条件下における細胞内の脂肪酸エステル型カロテノイドとシグナル伝達物質の量的関係について検討している。シグナル伝達物質の制御解析は選択的なカロテノイド合成を行う上で重要である。

超音波浮遊液滴に生じる非線形ダイナミクスの制御

機械工学科 助教
長谷川 浩司

従来の液滴浮遊技術を用いた材料創生や物性測定は、線形的な液滴挙動を前提としたものであったが、申請者のこれまでの研究により、浮遊液滴の非線形かつダイナミックな挙動に対する実験的知見を蓄積する必要があることが明らかとなってきた。本研究では、このような浮遊液滴の強い非線形性を示す挙動を熱流体力学の視点から解明し、現状では整備が不十分である浮遊液滴の輸送現象に関する基礎的、かつ定量的実験情報を拡充することを目的としている。本研究では、申請者がこれまで蓄積してきた実験技術・ノウハウを基に、従来の超音波浮遊装置に対して、テスト部内の反射板の幾何学形状に改良を加えた際の液滴の浮遊範囲、浮遊液滴の並進運動、およびテスト部内の音圧分布を実験的に評価した。

同一音圧下での液滴形状は、改良 R36 では R_{∞} と比較し、球形状に近くなることに加え、テスト部内の音圧を増加させ、液滴界面が大きく変形した場合においても浮遊可能である傾向を示すことが確認された。従来型では、浮遊液滴は、定常的な並進運動をすることが確認できた一方で、改良型では定常的な並進運動の発生が確認できなかった。さらに、改良型では、従来型と比較して、並進運動の振幅が約 1/8 まで抑制されることが示された。その原因として、R36 では R_{∞} と比較して液滴に生じる音圧が変化したことにより、並進運動を抑制できた可能性が考えられる。一方、本撮影条件は空間分解能を $80 \pm 2 \mu\text{m}/\text{pixel}$ としているため、計測精度に起因して、R36 での並進運動が検出できていない可能性が考えられる。

以上の結果は、音場浮遊法ではテスト部内の音圧分布と液滴との相互作用により液滴が浮遊しているため、液滴の動的挙動はその音圧分布に依存していると考えられる。そのため、テスト部内の音圧分布計測を行った。テスト部内の音圧は、先端直径 1 mm のプローブマイクロフォンを用いて測定した。浮遊液滴周囲の音圧分布を調べたところ、計測誤差の影響を考慮すべきではあるものの、本計測結果から、 R_{∞} では R36 と比較して並進運動を誘発する攪乱力が大きく、R36 ではその力が小さいために並進運動の発生が抑制されていることが示唆された。しかしながら、現状では液滴と音圧計測に用いるプローブマイクロフォンの干渉による音場の乱れが生じることを理由に、液滴浮遊下での音圧分布の計測は実験技術上困難である。今後、浮遊液滴の動的挙動を明らかにするために液滴浮遊下での音圧分布の計測方法を確立する必要がある。

深海から生放送を実現する可視光による映像の移動体海中伝送技術

電気システム工学科 教授

前田 幹夫

深海の潜水艇からTV生中継を実現するための映像の光伝送システムを提案する。潜水艇の近くに中継装置を置き、潜水艇で撮影した映像を青色LEDの光で中継装置に送り、洋上の船まで光ファイバでさらに伝送する。このシステムでは出射ビームが常に中継装置を捉えることができるように光ビームのずれを検出する手法が重要となる。そこで任意の方向からの光を受信できるように中継装置を球形とし、表面に貼った再帰性反射材で反射した光を潜水艇側の複数の受光器で受光し、その強度を比較することでずれの方向を検出する工夫をしている。光送信機の前方10mの位置で中継装置を左右に動かし、再帰性反射材によって光送信機に戻った反射光の測定値を理論値と併せて図1に示す。この図から、直径60cmおよび90cmの中継装置について、測定値は±2m以内では範囲のずれを正確に検出できていることがわかる。

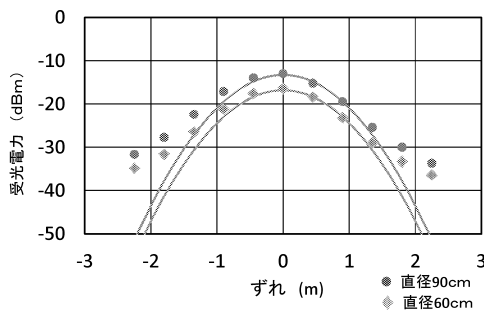


図1 送信器における反射光の電力

中継装置では多数の受光モジュールで受信した映像信号を合成することで受信品質を高めているが、光が斜めから入射する球の周辺部にある受光モジュールは十分な受信品質を確保することができない。そこで、図2に示すように、光の到来方向を検知して、受光面をメカニカルに向ける制御回路を試作した。実験を行ない、周辺部にある受光モジュールも正対位置にある受光モジュールと同程度の受信性能に改善できることを明らかにした。本奨励費で購入した3Dプリンタを用いて全部で20個の受光モジュールを製作した。

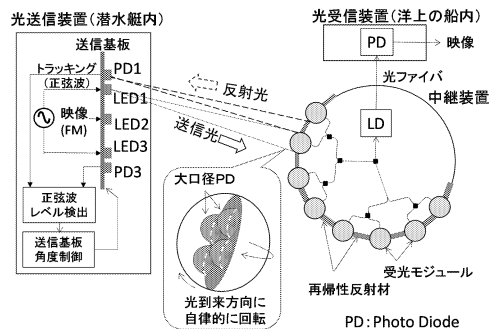


図2 映像信号光伝送の構成図

さらに、2000灯の青色LEDから成る光送信器を試作し、半値半幅3.58度の細くて均整度の高い光ビームを放射できることを確認した。

パルス熱源に基づく非定常温度分布を考慮した磁性体の磁化制御と機能性の発現

機械創造工学科 教授
武沢 英樹

本研究では、着磁後の永久磁石に放電加工やレーザー照射により、磁化の制御と形状の制御とを「同時に」、あるいは「個々に」行うことを最終目的としている。ここでは、放電やレーザー光による磁石表面への局所的な熱入力の一連の繰り返しによる、非定常な磁石温度分布を考慮して、磁石形状と磁化状態の制御法の確立を目指した。そのために、ネオジム磁石の放電加工における加工条件の違いでの、磁石内部温度の把握と加工後の磁束密度変化の関係について実験的に調べた。

表1に示す仕上げ加工条件と荒加工条件の2種類の条件で、直径10mm、高さ10mmのネオジム磁石を高さ1mm除去する加工中の磁石内部温度の測定を行った。これまでの研究により、荒加工条件で加工を行うと、加工後の磁石高さは同一であるにも関わらず、半分に以下に低下することがわかっている。磁石内部温度の測定には、先端径約0.5mmのK熱電対を用いた。いずれの放電条件においても、深さ方向の温度変化を調べるために、加工前の磁石の上端から2, 3, 4, 5mm下の側面から直径1mm、横穴深さ5mmの穴を細穴放電加工機で加工し、熱電対を埋め込んだ。ただし、実験は4回の実験に分けて深さ方向の温度変化を取得した。ここで、磁石は1mmの除去加工が行われるため、加工終了直前では、加工面から設置した熱電対までの距離はそれぞれ1mmづつ接近している。

図1に、No.1およびNo.2の条件で高さ1mmの除去加工を行った際の磁石内部温度の履歴を示す。(a)～(d)までは、それぞれ別々の加工実験になる。高さ1mmを除去するのにNo.1の低速加工条件では約50分、No.2の高速加工条件では、約5分の加工時間であった。同図(a)より、No.1の条件では上端より2mmの位置(加工終了直前加工面との距離:1mm)における磁石内部温度は80°C程度を示していた。一方、同一測定部位で放電条件をNo.2とすると、加工初期の130°C程度から加工終了直前では180°C程度まで上昇した。このように温度上昇する理由の1つは、加工面と熱電対の距離が2mmから1mmへと縮まるためである。磁石上面からの深さが1mmづつ深くなると、それぞれの条件による内部温度は、No.1の条件で約65°C(上面から3mm)、約55°C(上面から4mm)、約50°C(上面から5mm)と低下する。一方、No.2の条件では、約130°C(上面から3mm)、約110°C(上面から4mm)、約70°C(上面から5mm)とする。これより、表面磁束密度の変化は、磁石形状の変化に加え磁石内部温度による磁力の低下が複合された結果であることがわかった。

表1 放電加工条件

	Discharge current (A)	Pulse duration (μs)	Pulse interval (μs)	D.F (%)
No.1	5	32	32	50
No.2	20	128	128	50

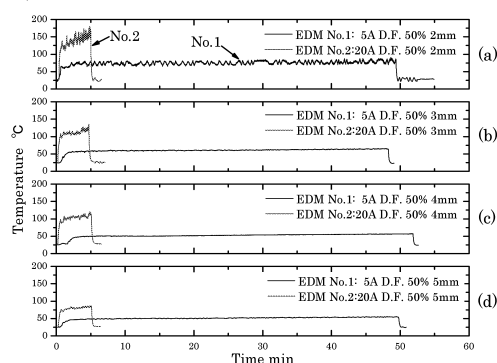


図1 放電加工中の磁石内部温度の変化

多剤耐性克服薬の開発を志向したセコスリキシド および立体異性体類の効率合成研究

応用化学科 教授
南雲 紳史

近年、癌の化学療法は著しく進歩しているが、その効果を妨げる多剤耐性が大きな問題となっている。ある抗癌剤が当初臨床効果を示していながら、長期間の連続投与により効果を失うことがある。その際、別の抗癌剤に切りかえても臨床効果が表れない場合もある。このように、あらゆる抗癌剤に対する耐性を獲得した状態を多剤耐性という。近年、多剤耐性の分子機構解明が進むに伴い、耐性を獲得した癌細胞の細胞膜上にはP-糖タンパク質が過剰に発現していることがわかった。このタンパク質は正常細胞の膜上にも存在し、異物排泄の役割を果たしていることが知られている。したがって、癌細胞内に入り込んだ抗癌剤が細胞外に排泄されることが耐性の原因の一つとして考えられる。

痛風治療に用いられ、抗腫瘍活性も有することが知られているコルヒチンはこの輸送タンパクの代表的なターゲットである。埼玉県のとちぎから採取された *Saccharothrix* sp. CF24 の大規模発酵液から単離されるセコスリキシドは、コルヒチン耐性 KB 細胞に対して、コルヒチンの共存下で殺細胞活性 (IC₅₀ 1.0 g/mL) を示すことから、多剤耐性克服薬開発上の新たなリード化合物として興味深い。しかし、天然からは極微量しか得られないうえ、これまでに化学合成も確立されていなかった。

報告者は最近、2級水酸基に隣接したエポキシドの有機銅試薬による位置選択的メチル化反応、シリレンの位置選択的開環反応、エポキシスルフィドのメチル化反応、トランス選択的大環状閉環メタセシス反応などを利用してセコスリキシドの全合成に成功した。また、セコスリキシドの発見者によって提唱されていた立体構造が誤っていたことも突き止め、正しい絶対配置及び相対配置を明らかにした。しかしながら、全工程数として 39 工程要し、得られた量もわずか 3mg であった。これでは各種生物活性評価に付すには不十分である。

そこで今回、第二世代合成を検討したところ、工程数を 10 工程短縮することに成功し、結果としてセコスリキシドを 30mg 得ることができた。この成功の一番の要因は、報告者らの研究室で開発した 2級水酸基に隣接したエポキシドの有機銅試薬による位置選択的メチル化反応を 2度利用し、6か所の不斉炭素をいっきに構築したことにある。また、合成しようと考えている 7種の立体異性体のうち、一種類を合成できた。未だ先行実験のため得られた量はわずかであり、これから大量合成をするところである。

微小径長軸の転造による大径フランジ成形技術の開発

機械工学科 教授
久保木 功

本研究では微小径長軸材に転造による溝の成形と同時に増肉を行う据込み加工でフランジの成形を試みた。フランジ外周端面をフラットに加工するため、加工時にフランジ外周端面の拘束を行う工具の製作を行い、フランジ外周端面の改善（フラット化）のための検討を行った。

供試材には約 $\phi 1\text{mm}$ の微小径の線材、オーステナイト系ステンレス鋼 SUSXM7、冷間圧造用低炭素鋼 SWCH12A および 7/3 黄銅 C2600 の 3 種類を用いた。転造加工は一对の平行な板状工具間に試験片を挿入し、片方の工具を固定（固定側工具）、もう一方の工具を移動（移動側工具）させることで行った。中実材の転造によって成形される転造品のフランジ端面を鼓形状や丸みを帯びた形状から平坦化（フラット化）するため、フランジ端面に成形工具間に挟んだ $0.2\sim 0.5\text{mm}$ の金属薄板を接触させ、拘束させた。この端面拘束用の成形工具間薄板を用いて転造加工を行った。

SUSXM7 において端面拘束なしの場合、フランジ外周端面はフランジ両端のフランジ径が大きく、中央の径が小さい鼓状に成形されている。端面拘束を行った場合、フランジ端面にリング状の空洞は残るが、鼓状は改善されフラットにすることができた。SWCH12A では端面拘束なしの場合、フランジ外周端面が閉じたコーナーが丸みを帯びた形状で成形された。そこで端面拘束を行うとフランジ中心の線は消え、端面はフラットに成形される。ところが断面を見てみるとフランジ部の合わせ目の部分に空洞が見られた。また転造によって縮径部（溝部）の直径を基準としたフランジ径の増加の割合（増径率 M_b ）は、端面拘束なしの場合、SUSXM7 および SWCH12A では約 100%であったが、端面拘束すると増径率 M_b は約 90%となり、フランジ端面をフラットにすることで寸法精度の向上を図ることができた。

SUSXM7 のフランジ端面はフラットに成形されるが、中央部に欠肉が生じる。これより突起高さを大きくすると、この欠肉はなくなりフラットに成形することができる。しかし、内部にマンネスマン割れが見られた。SWCH12A では端面拘束を行うことでフランジ中央からフラットとなり始め、最初はフランジ端面のコーナーは丸みを帯びているが、突起高さを大きくするとコーナーはシャープに転造できる。しかし、断面を確認すると内部にマンネスマン割れが発生しており、フランジ先端部分で空洞が発生していた。

さらに、端面拘束を行っても、端面なしと同様に断面減少率を約 67%まで縮径させると、フランジ径は縮径部（溝部）の直径に対し 3 倍以上に増径できる（増径率 $M_b=267\%$ ）ことが明らかとなった。

バリオジェネシスに動機づけられた統一理論の構築と探求

基礎・教養教育部門 准教授

進藤 哲央

本研究では、電弱バリオン数生成を可能にするような素粒子標準模型を超える新物理学模型の探求と構築を行った。標準模型では、電弱バリオン数生成に必要な強い1次相転移が得られないことが知られており、この実現には大きなノンデカップリング効果を要する。これを生じるため、ヒッグス場と新たに導入されるボゾンとの結合定数が大きい模型を構築した。しかしながら、ここで必要とされるような大きな結合定数は、低いスケールでランダウポールが現れることを示唆する。本研究では、そのようなランダウポールより上のスケールにおけるより基本的な物理理論の候補としてSU(2)の超対称ゲージ理論に基づく模型を構築し、このSU(2)模型に、基本場としての右巻きニュートリノを導入することで、低エネルギーの有効理論ではニュートリノ質量が輻射的に生成され、またダークマターの候補をふくむような模型を構築することに成功した。この模型のニュートリノ質量は、1ループおよび3ループのダイアグラムを通して生成される。この研究成果を論文としてまとめ、S. Kanemura, N. Machida, T. Shindou, Physics Letters B738, 178として出版した。この研究と並行し、超対称標準模型における、レプトンフレイバーの破れに関する現象論的研究も行い、将来の実験において、タウセクターのレプトンフレイバーの破れが発見される可能性について調べ、T. Goto, Y. Okada, T. Shindou, M. Tanaka, R. Watanabe, Physical Review D91, 033007として出版した。

ハードディスクの大容量化の研究

情報通信工学科 教授
赤城 文子

1. 背景及び目的

現代のビッグデータを支える磁気ディスク装置(Hard Disk Drive:HDD)は面密度1テラビットを超える大容量化が望まれている。しかし、次世代の磁気記録技術は暗中模索状態であり決定打がない。その中で、光を用いた熱アシスト磁気記録方式とマイクロ波を使ったマイクロ波アシスト磁気記録方式はスローペースながら近年、少しずつ実用化が見え始めている。しかし、実用化における課題や問題は山積であるため、シミュレーションや基礎実験がこれまで以上に必要となっている。そこで、上記2方式について、研究目標を次のように定めた。(1)熱アシスト磁気記録方式は、高密度化が期待されているビットパターン媒体を用いた場合の最適ヘッド媒体条件(ビットエラーレート0の条件)を明らかにする。(2)マイクロ波アシスト磁気記録方式は、磁界強度が高く安定な発振磁界を得る為のマイクロ波発生素子とヘッド条件、及び本方式に最適な多層媒体条件を明らかにする。

2. 研究成

本研究では、マイクロマグネティクスシミュレーションを用いた[1]。熱アシスト磁気記録方式では、熱分布の広がりエラーの原因となるが、ビットパターン媒体を用いることで最大許容分布を広げられると予想した。記録密度は2.5Tb/in²をターゲットとした。図1に示すように、熱分布はビット長の約3倍の広がりまで許容できることが明らかになった。マイクロ波アシスト磁気記録方式では、磁界強度増大のために、磁界発生層の厚さの検討を行った。その結果、磁界発生層の厚さを10 nmから20 nmに増大させるだけでは磁界発振はしないが、異方性定数を2桁下げることで、安定した発振磁界が得られ、磁界強度は2.3倍高くなることが明らかになった。図2に得られた発振磁界を示す。

[1] F. Akagi, J. Ushiyama, A. Ayano, and H. Miyamoto, IEEE Trans. on Magn., 49 7 3667-3670, 2013.

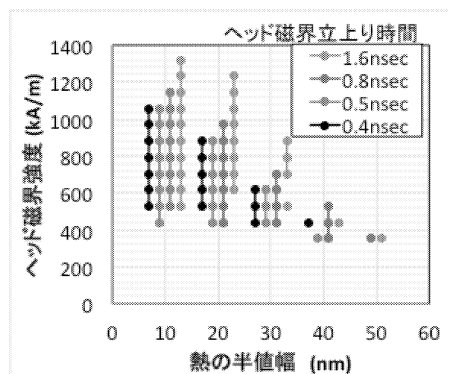


図1 エラーレートが0になるヘッド磁界強度と熱の半値幅の関係

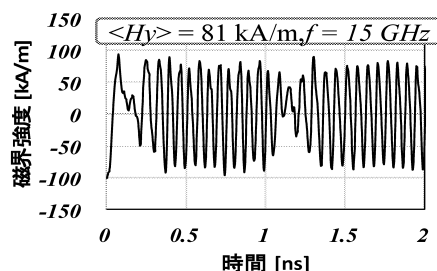


図2 磁界発生層の膜厚を20 nmにした場合の発振磁界

クラスタリングと周辺技術へのクリフォード代数の導入

情報デザイン学科 准教授
橋 完太

各時刻に実数の値を持つ時系列データを、フーリエ変換のように複素数で表現することで、周波数成分のような本質的な情報が浮かび上がることがある。複素数への拡張は複素化と呼ばれ、複素数を複素化すると四元数となる。回転軸と角度を表す四元数は、三次元の方向を簡潔に高精度で表現できる。本研究の目的は、クラスタリングとその周辺技術に複素数や四元数を一般化したクリフォード代数を用い、データからより重要な情報を引き出し、学習性能を向上させることである。具体的な実応用 (a) 三次元身体運動のパターン認識; (b) 「洋上のチェス」とも呼ばれる帆走の強化学習; に向けて、クラスタリングを中心とする計算知能の技術にクリフォード代数を導入する効果を明らかにする。

平成26年度には、これまでに進めてきたクリフォード代数を用いるクラスタリングを実応用に向けた周辺技術へ展開するため、各応用先において以下のように研究を進めた。(a) 三次元身体運動のクラスタリング・認識を行うためモーションデータはWeb 公開されているデータを用いた。また、解像度に劣るものの安価に導入でき大掛かりな準備を必要としないKinect やスマートフォンの加速度センサーなども一部で用いた。(b) 平面ベクトル場の強化学習モデルを、帆走シミュレータを用いて計算機上で検討した。また、これらの研究は、ダナン理工大学のMinh Tuan Pham 博士とも協力して進めた。

平成26年度の主な研究発表

- [1] Tachibana K. Possible usages of geometric algebra in robotic sailing, Asian Workshop on Clifford's Geometric Algebra and Information Technology.
- [2] Manabe H. and Tachibana K. Unmanned Sailing as Computational Affective Science - Consideration on Representations of State Vector Space, Proc. of Int'l Symposium on Affective Science and Engineering 2015
- [3] Nguyen N. H. V., Pham M. T. and Tachibana K. CGA clustering based vector quantization approach for human activity recognition using discrete hidden Markov model, Proc. of Int'l Symposium on Advanced Technology
- [4] 佐藤亘, 橋完太. Acquisition of cooperative behavior among heterogeneous agents, 計測自動制御学会システム・情報部門学術講演会

環境適応型ヘテロジーニアスネットワーク

情報通信工学科 教授
大塚 裕幸

移動通信の分野においてヘテロジーニアスネットワークの研究開発は加速しているが、通信トラフィックの変動に対する最適なシステム設計の検討は十分に行われていない。また、送信電力に対する性能評価も十分では無い。本研究では、通信トラフィックが変動した場合においてもシステム全体の通信性能を維持・向上できる環境適応型ヘテロジーニアスネットワーク (Heterogeneous network; HetNet) を実現することを目的とする。具体的には通信トラフィックおよび端末の受信特性に応じて、マクロセル内にオーバーレイしたピコ基地局・リレー基地局の送信電力および端末の受信電力オフセット値を適応的に制御するアルゴリズムを確立する。この手法により移動通信システム全体の通信性能の維持・向上と低消費電力化の両立を目指す。

端末のピコ基地局からの受信電力にオフセット CS0 を与え仮想的にピコセルを拡大する方法と、ピコ基地局の送信電力を変化させることによってピコセルを調整する方法の二つを複合した CRE 協調制御技術を提案した。さらに、セルあたりのユーザ数を標準的な値 30 から、高トラフィックを想定して最大 90 まで増やした場合の通信性能の評価を行った。

マクロ基地局の送信電力は一定 (46dBm) とし、ピコ基地局の送信電力は 24~42dBm、端末の受信電力オフセット CS0 は 0~9dB の範囲において、システムレベルシミュレーションにより平均ユーザスループットおよび下位 5%ユーザスループット特性を評価した。例えば、下位 5%ユーザスループットに着目すると、ピコ基地局の送信電力を 39dBm、CS0 を 3dB としたとき、最も良いスループット特性が得られることを明らかにした。また、トラフィックの増加によるユーザスループット特性の劣化を基地局送信電力と CS0 による協調制御で抑えることが出来る可能性を示した。今後はトラフィックの変化に対して適応的に送信電力および CS0 の制御を行う制御アルゴリズムについての検討を進める。

通信品質を改善するリレー通信において、時分割リレー通信の最適構成法を明らかにした。アクセスリンクのブランクサブフレーム比 (Blank Subframe Ratio; BSR) とリレーノード RN の送信電力をパラメータとしてシステム全体のユーザスループット特性を明らかにした。得られた成果については、関連する標準化機関に技術提案し、世界市場における日本の地位向上を目指す。

研究成果として、特許「無線通信ネットワークおよび大電力無線基地局」を出願した。また、論文「Adaptive Control CRE and its Throughput Performance in HetNet」が採録された。さらに IEEE の国際会議、国内の IEICE 総合大会、研究会等で研究成果の発表を行った。