

工学院大学  
総合研究所年報  
第24号 2016年度



平成 29 年 7 月 発行

工学院大学総合研究所

RESEARCH INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY  
KOGAKUIN UNIVERSITY

## 知識基盤社会における大学の研究活動

学長 佐藤光史

今年度も、多くの教員が中心になって実施した研究の成果をまとめた本冊子が発行されることを大変嬉しく思うと共に、その努力に敬意を表するものです。これらの研究成果が教育活動に反映されて優れた人材が育つことは、高等教育機関である大学としての誇りです。これら活発な研究活動によって、2年連続でイノベーションジャパンにおける採択数が私立大学トップになる実績などに結びついていると確信しています。共に活動している学生たちにとっても、大きな自信につながる好影響を与えています。引き続き、活躍を期待しております。

さて、周知のとおり知識基盤社会を支えるコンピュータの世界では、髪の毛ほどの太さのデバイスに演算機能を搭載することも実験的には可能とされており、また量子コンピュータも数年後の実用化を目指していると言われております。かつては想像の産物だった人工知能の能力向上にも目を見張るものがあります。人工知能が制御するロボットが人間に置き換わって効率化を図れる仕事が急増し、現在ある職業の半分以上が無くなって大きな社会的変革が起こるとの予測が発表されたのはまだ5、6年前のことです。その後もこの分野の科学技術は加速度的に発展しており、ある大きな業界では先を見込んで窓口担当者の募集人数を絞り込むなど、すでに身近な影響が現れ始めています。

このように縮小傾向になる職業がある一方、新たに生まれる職業も芽生えてきます。むしろ、積極的に新たな職業を生み出すことに挑戦する創造的人材が社会から求められています。このような観点からは、文部科学省が進めている「工学教育のあり方」に関する検討は、現在進んでいる社会的変革に対応できる工学の可能性に対して、大きな期待を寄せているとみなすことができます。工学を中心とする分野で有意な人材を130年にわたって輩出して科学技術立国・日本そして世界の発展を支えている本学は、これからも創造的人材の育成に相応しい機関です。

このように、知識基盤社会は常に変化し続ける社会です。学生が自己実現を達成し、かつ社会で活躍する人材に育つためには、さまざまな環境変化の中を一人ひとりが生き抜く力を備える必要があります。その力は、確実な基礎力であり、自立的・継続的な学びであることはかねてより指摘されており、変化する社会における普遍性と言えます。大学における研究活動は、背後に広がる基礎を常に意識させることや、自立性や創造性などを育てる目的を兼ねており、純粋な研究機関における活動との違いです。成果はもちろん大切ですが、研究プロセスにおける気づきが学生たちを大きく育てると信じるものです。

## 産学官共創に向けて

総合研究所 所長 鷹野一朗

10～20年後の日本では、労働人口の約49%の職が人工知能やロボットで代替されるとい  
う推計結果が2015年に発表されました。（梶野村総合研究所と英オックスフォード大学の  
マイケル A. オズボーン准教授、カール・ベネディクト・フレイ博士との共同研究）その後  
の人工知能やロボットの急速な発展は周知のごとくであり、様々な分野での応用展開が進  
んでいます。私たち研究者は、自らの未来を消し去るような行為を行っているのではない  
かとの疑念に駆られます。その一方で、ヘンリー・チェスブロウによって定義された「オ  
ープンイノベーション」が新たなマーケットを開拓する術として期待されています。平成  
29年度版科学技術白書では、オープンイノベーションを「技術を求める組織と技術を持つ  
組織が出会い、新しい価値を創造するための手段」と記しています。すなわち、オープン  
イノベーションによるマーケット開拓はあくまでも企業主体ですが、大学や研究開発法人  
が価値創造のプラットフォームとなることが期待されているということです。私たち研究者  
は、知財化を意識しながらシーズを広く公開していくことが求められ、さらにはシーズと  
シーズを融合させるような試みも新たな研究展開として期待されることでしょう。

本学は上述したような社会的背景を考慮しながら、学内競争的研究であるプロジェクト  
研究費と科学研究費申請を基礎とした科研費採択奨励研究費を設けております。プロジェ  
クト研究では、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、2017年度向け  
ては新規応募課題12件のうち採択課題5件、継続課題10件となりました。また、科研費  
採択奨励研究に関わる新規の科研費申請件数は127件にのぼり申請率は79.5%となり過去  
最高を更新しました。今後は採択率をアップするための施策を強化したいと考えています。

産学官連携では、今年度2回目となるJST技術説明会をはじめとし、りそな技術懇親会、  
多摩信用金庫との発表会の定例化、外部では諏訪圏工業メッセ、再生可能エネルギー産業  
フェア、テクノトランスファーinかわさきなどにも継続的に出展しております。また、2017  
年度も研究力の重要なアピールの場である「イノベーション・ジャパン 2017 ー大学見本  
市&ビジネスマッチングー」に応募し、過去最高の14件の研究が採択されました。このよ  
うに本学は、新しい価値の創出を行い、企業、大学、公的研究機関の連携によって正の循  
環を生み出すべく連携システムの構築を進めていきます。これまでの成果は、本学の個々  
の研究者の高い研究力を示すものであり、その努力無くしては成り立たないことを申し上  
げたいと思います。

最後に、本年報をまとめるにあたり、ご協力いただいた教職員の方々に御礼申し上げる  
とともに、研究者の皆様のさらなる発展を祈念いたします。

# 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（2016年度研究終了）

- ・ 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…………… 1 1
- ・ 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…………… 2 2
- ・ 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  
責任者 佐藤光太郎…………… 3 1
- ・ 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…………… 4 0

## 2. 総合研究所プロジェクト研究報告（2017年度継続研究）

- ・ 抗腫瘍活性を有するアレニコライドAの化学合成および医薬化学研究  
責任者 南雲 紳史…………… 5 7
- ・ 網羅的生体分子情報の高速解析システムの開発と次世代型がん個別最適化治療法への応用  
責任者 福岡 豊…………… 6 0
- ・ 非常時における音声通話確保を目的とした新しい通信受付制御方式  
責任者 馬場 健一…………… 6 8
- ・ 高速高精度な多関節ロボットの位置、姿勢、力とモーメントのハイブリッド制御  
— 基礎研究：単純適応制御を用いた AC サーボモータの位置決め制御—  
責任者 黄 慶九…………… 7 5
- ・ GaN 系集積化面発光素子用近紫外透明導電膜製作技術の開発研究  
責任者 本田 徹…………… 8 5
- ・ 大地震時の強震動予測手法の開発と超高層建築の耐震対策への適用  
責任者 久田 嘉章…………… 9 2
- ・ 神経難病者のニーズ調査に基づく自立住環境支援スイッチの研究  
—ALS 患者の脳波電極数の削減—  
責任者 田中 久弥…………… 1 0 0
- ・ ヒトの下肢関節動態を再現した脚運動機構による人工関節評価システムの開発  
責任者 桐山 善守…………… 1 0 8
- ・ 希土類フリー新規超イオン伝導性固体電解質の開発  
責任者 大倉 利典…………… 1 1 8
- ・ 光充電型リチウムイオン電池の高容量化と全固体化  
責任者 永井 裕己…………… 1 2 4

### 3. 総合研究所科学研究費採択奨励研究報告（2016年度）

- 自然と歴史的伝統材料に学んだ酸化鉄系高彩度赤色顔料の開発  
橋本 英樹…………… 1 3 7
- 基板表面修飾によるアモルファス酸化物 TFT の高移動度化  
相川 慎也…………… 1 3 8
- 転造によるフランジ成形に及ぼすフランジ端面拘束の影響  
久保木 功…………… 1 3 9
- アクアポリンを模擬した新規透水メカニズムに基づく高透水性分離膜の理論設計  
高羽 洋充…………… 1 4 0
- 自律分散制御によるユーザ指向の新たな全光ネットワーク構成手法に関する研究  
馬場 健一…………… 1 4 1
- 建築工事における作業者負荷と生産性の計測・分析に関する研究  
石田 航星…………… 1 4 2
- 温室効果ガス削減貢献量の算定方法の開発  
稲葉 敦…………… 1 4 3
- エネルギーアシスト磁気記録方式を用いたハードディスク装置の大容量化  
赤城 文子…………… 1 4 4
- 昆虫の表面機能に基づく小型移動ロボットの開発  
鈴木 健司…………… 1 4 5
- ゲスト分子の電荷がクラスレート水和物の安定性に及ぼす響の分子論的研究  
平塚 将起…………… 1 4 6

## 2017年度 総合研究所運営委員

学長	佐藤 光史 (応用物理学科 教授)
総合研究所所長	鷹野 一郎 (電気電子工学科 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	伊藤 雄三 (応用化学科 教授)
先進工学部 (応物) 互選 工学部 (電気電子) 互選	坂本 哲夫 (応用物理学科 教授)
先進工学部 (機理) 互選	堀内 邦雄 (機械理工学科 准教授)
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	阿部 道彦 (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)
教育推進機構 互選	数馬 広二 (保健体育科 教授)
F M S 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)
ブランディングUDMセンター長	久田 嘉章 (まちづくり学科 教授)
ブランディングSVセンター長	中島 幸雄 (機械理工学科 教授)

## 2016 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 2016 年度
<b>・ 2016 年度研究終了</b>		
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	生命化学科 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	佐藤光太郎	機械理工学科 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	環境化学科 准教授
<b>・ 2017 年度継続研究</b>		
抗腫瘍活性を有するアレニコライドAの化学合成および医薬化学研究	南雲 紳史	生命化学科 教授
網羅的生体分子情報の高速解析システムの開発と次世代型がん個別最適化治療法への応用	福岡 豊	電気システム工学科 教授
非常時における音声通話確保を目的とした新しい通信受付制御方式	馬場 健一	情報通信工学科 教授
高速高精度な多関節ロボットの位置、姿勢、力とモーメントのハイブリッド制御 — 基礎研究：単純適応制御を用いた AC サーボモータの位置決め制御—	黄 慶九	電気システム工学科 准教授
GaN 系集積化面発光素子用近紫外透明導電膜製作技術の開発研究	本田 徹	応用物理学科 教授
大地震時の強震動予測手法の開発と超高層建築の耐震対策への適用	久田 嘉章	まちづくり学科 教授
神経難病者のニーズ調査に基づく自立住環境支援スイッチの研究 —ALS 患者の脳波電極数の削減—	田中 久弥	コンピュータ科学科 教授
ヒトの下肢関節動態を再現した脚運動機構による人工関節評価システムの開発	桐山 善守	機械システム工学科 准教授
希土類フリー新規超イオン伝導性固体電解質の開発	大倉 利典	応用化学科 教授
光充電型リチウムイオン電池の高容量化と全固体化	永井 裕己	応用物理学科 助教

(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 2016 年度
自然と歴史的伝統材料に学んだ酸化鉄系高彩度赤色顔料の開発	橋本 英樹	応用化学科 助教
基板表面修飾によるアモルファス酸化物 TFT の高移動度化	相川 慎也	総合研究所 准教授
転造によるフランジ成形に及ぼすフランジ端面拘束の影響	久保木 功	機械工学科 教授
アクアポリンを模擬した新規透水メカニズムに基づく高透水性分離膜の理論設計	高羽 洋充	環境化学科 教授
自律分散制御によるユーザ指向の新たな全光ネットワーク構成手法に関する研究	馬場 健一	情報通信工学科 教授
建築工事における作業者負荷と生産性の計測・分析に関する研究	石田 航星	建築学科 助教
温室効果ガス削減貢献量の算定方法の開発	稲葉 敦	環境化学科 教授
エネルギーアシスト磁気記録方式を用いたハードディスク装置の大容量化	赤城 文子	応用物理学科 教授
昆虫の表面機能に基づく小型移動ロボットの開発	鈴木 健司	機械システム工学科 教授
ゲスト分子の電荷がクラスレート水和物の安定性に及ぼす響の分子論的研究	平塚 将起	機械工学科 助教



# 1. 総合研究所プロジェクト研究報告 (2016年度研究終了)



## 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**: To develop the new ecofriendly engineering materials such as structural materials and tribomaterials based on all plant-derived materials, processing of natural fiber reinforced plant-derived engineering plastic biomass composites and their mechanical properties were investigated experimentally in this project study. The materials used in this study were various natural fiber reinforced plant-derived polyamide (PA) biomass composites. In this year, we investigated the following three contents: (1) the influence of maleic acid treatment on the mechanical properties of these biomass composites, (2) the effect of type of natural fibers on the mechanical properties of these biomass composites, and (3) the gear properties of these biomass composites. The following results were obtained: (1) the mechanical and tribological properties of hemp fiber reinforced plant-derived polyamide biomass composites (HF/PA1010) are improved with maleic acid treatment. The combination NaClO<sub>2</sub> and maleic acid treatment was the most effect improvement for the mechanical and tribological properties of HF/PA1010 biomass composites. (2) The effect of type of natural fibers on the mechanical and tribological properties of natural fiber reinforced plant-derived polyamide 1010 biomass composites differed for each property. In particular, ramie fiber (RF) was the most effective of the various natural fiber systems for enhancement of mechanical and tribological properties of these polyamide 1010 biomass composites. (3) The wear volume of the spur gear of PA1010 improved with the filling HF although those of HF/PA1010 biomass composites decreased with increasing the volume fraction of fiber. On the other hand, the gear fatigue strength had a maximum peak at 20vol.%. It follows from these results that the new engineering materials based on all plant-derived materials may be able to developed with high performance of mechanical and tribological properties.

### 1. はじめに

近年、環境負荷、資源枯渇および地球温暖化などの問

題点から、持続型社会の構築を目指した研究開発が盛んに行われている<sup>1)2)</sup>。機械分野においても、省エネルギー化やCO<sub>2</sub>削減のため、各種機械装置の小型化・軽量化

が益々進んでおり、使用される材料もより軽量かつ高性能はもちろんのこと、より環境性能に優れた材料が必要とされている<sup>3)</sup>。そのため、構造部材や機械部材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）においても、石油をはじめとした化石燃料由来の材料ではなく、バイオマスをはじめとした再生可能資源由来の原材料にシフトしていく必要がある<sup>4)</sup>。しかしながら、エンブラ並みの性能を有するバイオマス由来の高分子材料は、未だに開発されていない問題点がある。また、将来のエネルギー問題や食糧問題を考慮すると、バイオマス由来であっても、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おり、それらを同時に解決する必要がある。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（PA）を用いることがあげられる。ただし、これら植物由来 PA を構造材料や機械部材として使用するためには更なる高性能化が必要であり、使用する強化材（強化繊維）も植物由来原料を用いれば、総て植物由来原料をベースとした高性能な高分子系複合材料となるため、高い魅力を有している。そこで、植物由来 PA を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ために、これらの成形加工や、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。

筆者らは、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てきた。昨年度までに①バッチ式熔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混練条件、②二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評価し、植物由来熱可塑性エラストマー（PA11E）の添加により、各種物性をバランスよく向上させること、③天然繊維/樹脂間の界面制御技術としてアルカリ処理として亜塩素酸ナトリウム（ $\text{NaClO}_2$ ）とウレイドシランカップリング剤を併用することで界面接着性を向上させ各種機械的性質を向上させることなどを明らかにしてきた<sup>4)~8)</sup>。

今年度は、昨年度の内容を継続するとともに、更なる高性能な天然繊維強化エンブラ系複合材料を開発するために、同複合材料の成形加工と機械的性質について、以下の3点を中心に、実験的に検討した結果を報告する。

- (1) 新規の天然繊維/樹脂間の界面制御技術として、マレイン酸処理が機械的性質に及ぼす影響
- (2) 天然繊維の種類が各種物性に及ぼす影響
- (3) 実際の機械部品への応用として、小型歯車の製作とその性能評価

## 2. マレイン酸処理の影響

### 2.1 マレイン酸処理について

これまでに麻繊維強化植物由来ポリアミド 1010 バイオマス複合材料の高性能化のため、天然繊維/樹脂間の界面接着性を向上させることを目的に、アルカリ処理およびシランカップリング剤処理などの表面処理やその処理方法を実験的に検討してきた。その中でも、アルカリ処理として亜塩素酸ナトリウム（ $\text{NaClO}_2$ ）水溶液と、反応性官能基としてウレイド基を有するシランカップリング剤（A-1160）を併用することで、各種機械的性質を向上させることを明らかにしてきた。今年度は、天然繊維/樹脂間の界面接着性や、複合材料中の天然繊維の分散性を向上させることを目的に、新規の表面処理としてマレイン酸処理を検討した結果を報告する。

### 2.2 実験

本章で使用した材料は麻繊維強化植物由来ポリアミド 1010 バイオマス複合材料（HF/PA1010）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。この PA1010 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。また充填材として、予め 5mm に切断した麻繊維（HF,  $\phi 50\sim 100\mu\text{m}$ ）を用い、複合材料中の麻繊維の充填量は 20vol.%一定とした。麻繊維の表面処理としては、2 種類のアルカリ水溶液：水酸化ナトリウム（ $\text{NaOH}$ ）および亜塩素酸ナトリウム（ $\text{NaClO}_2$ ）による前処理と、2 種類の表面処理：ウレイド基を有するシランカップリング剤（S3, 3-ウレイドプロピルトリメトキシシラン, SILQUEST A-1160, モメンティブパフォーマンスマテリアルズ（株））および無水マレイン酸によるマレイン酸（MA）処理を組み合わせた 4 種類の表面処理：(a) $\text{NaOH}+\text{S3}$ , (b) $\text{NaClO}_2+\text{S3}$ , (c) $\text{NaOH}+\text{MA}$  および(d) $\text{NaClO}_2+\text{MA}$  を施した（Fig. 2.1）。アルカリ処理は  $\text{NaOH}$  および  $\text{NaClO}_2$  5%水溶液を用いて室温で 4h 攪拌して行った。その後純水にて洗浄し、余分なアルカリ水溶液を除去し、大気中で 12h 自然乾燥した後、真空乾燥機により  $80^\circ\text{C}\times 5\text{h}$  にて真空乾燥した。またウレイドシランカップリング剤（A-1160）による表面処理は 1%水溶液を pH3.5 に調整するため酢酸を加え 15min 攪拌した後、麻繊維を加えて 1h 攪拌した。アルカリ脱脂後と同条件にて乾燥させた。一方、マレイン酸処理は、

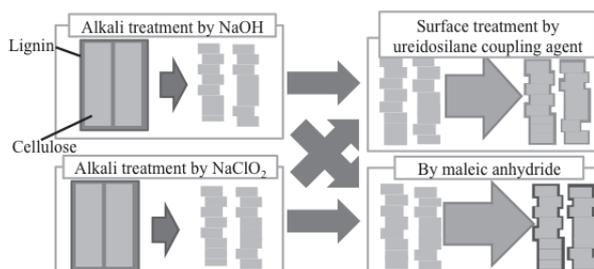


Fig. 2.1 Schematic diagram of four types of surface treatment in this study.

5%のマレイン酸水溶液に麻繊維を加えて 1h 攪拌することで施した。マレイン酸処理後も、ウレイドシラン処理と同条件にて乾燥させた。

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  $80^{\circ}\text{C} \times 12\text{h}$  で乾燥し連続式二軸押出機 (TEX30H96, (株) 日本製鋼所) により熔融混練 ( $220^{\circ}\text{C}$ , 85rpm) した。熔融混練後、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  $220^{\circ}\text{C}$ 、金型温度  $30^{\circ}\text{C}$ 、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  $p_v$  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。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  $50\text{N}$ 、すべり距離を  $600\text{m}$  とした。なお、比摩耗量は試験前後の重量より算出した。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。

### 2.3 機械的性質に及ぼすアルカリ処理の種類の影響

本章では、麻繊維強化植物由来ポリアミド 1010 バイオマス複合材料 (HF/PA1010) の機械的性質に及ぼすマレイン酸処理の影響について議論する。Fig. 2.2 に機械的性質の代表的な結果として引張り特性について示す。縦軸は引張り強さ  $\sigma$  および横軸は引張り弾性率  $E_t$  であり、右上にシフトするほど高性能化を示している。 $\sigma$  および  $E_t$  ともに各種表面処理により向上していることがわかる。表面処理の種類の影響としては  $\text{NaOH} + \text{S3} < \text{NaOH} + \text{MA} = \text{NaClO}_2 + \text{S3} < \text{NaClO}_2 + \text{MA}$  の順で向上する。すなわち、アルカリ処理としては  $\text{NaOH}$  よりも  $\text{NaClO}_2$  の方が良好なこと、またウレイドシラン処理 (S3) よりもマレイン酸処理 (MA) の方が優れていることがわかる。これは表面処理の違いにより繊維/樹脂間の界面接着性や、複合材料中の繊維分散性が異なるためと考えられる。

次に、機械材料への応用を考えた場合に、重要な特性となるトライボロジー的性質について、リングオンプレート型すべり摩耗試験による評価結果を中心に論じる。一定荷重および一定速度条件下におけるリングオンプレート型すべり摩耗試験による試験結果として、マレイン酸処理系 HF/PA1010 バイオマス複合材料の比摩耗量  $V_s$  と摩擦係数  $\mu$  の関係を Fig. 2.3 に示す。この図においては左下にいくほど、低摩擦かつ低摩耗を示すものである。

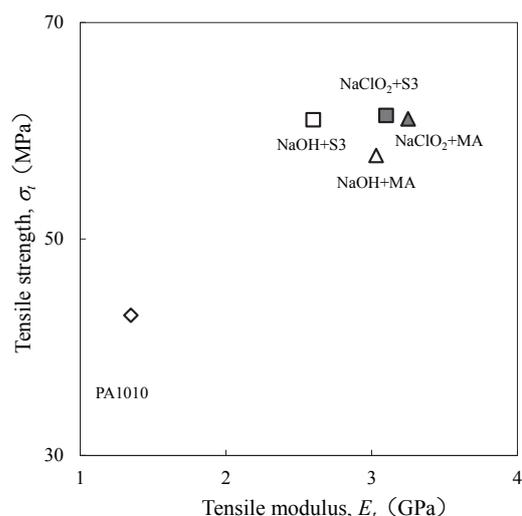


Fig. 2.2 Tensile properties of maleic acid treated HF/PA1010 biomass composites.

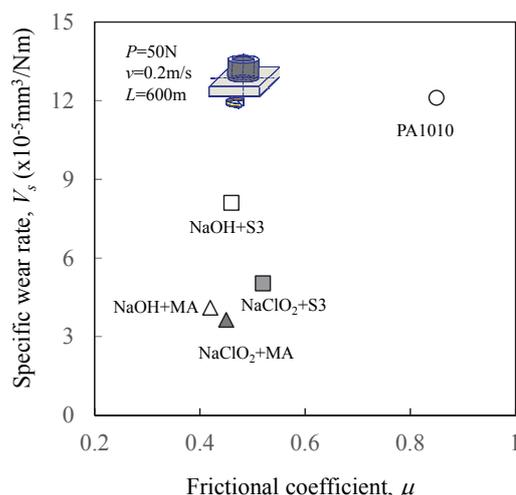


Fig. 2.3 Tribological properties of maleic acid treated HF/PA1010 biomass composites.

PA1010 の摩擦係数  $\mu$  および比摩耗量  $V_s$  は HF 充填および各種表面処理により改質され、 $\text{PA1010} > \text{NaOH} + \text{S3} > \text{NaClO}_2 + \text{S3} > \text{NaOH} + \text{MA} > \text{NaClO}_2 + \text{MA}$  の順に低下する。 $\text{NaOH}$  よりも  $\text{NaClO}_2$  のアルカリ処理が、またウレイドシランカップリング剤 (S3) 処理よりもマレイン酸 (MA) 処理の方が、より改質効果が高いことがわかる。これは表面処理の違いにより界面接着性が変化し、バルクの機械的性質が変化することもちろんのこと、摩耗メカニズムが変化するためと考えられる。高分子複合材料のトライボロジー的性質におけるメカニズムを解明するためには、試験片や相手材表面などを観察することが必要不可欠である<sup>9),10)</sup>。なぜならば、試験片の削れ方や、相手材表面への移着膜形成の仕方がトライボロジー的性質に強く影響を与えるためである。Fig. 2.4 にすべり摩耗試験後の試験片表面を SEM 観察した結果を示す。ただし、試験終了後試験片をオスミウムで蒸着したものであ

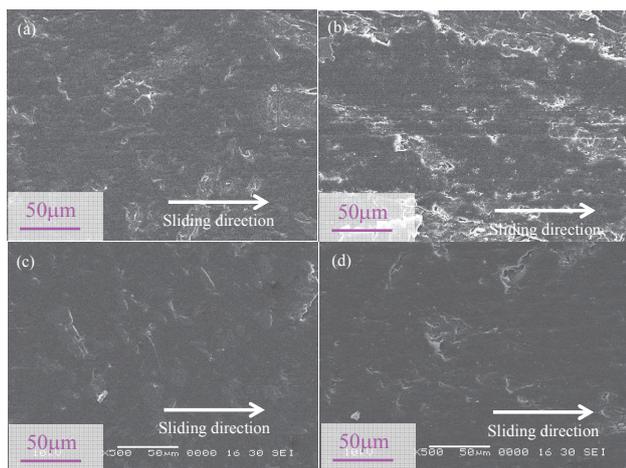


Fig. 2.4 Worn surface of maleic acid treated HF/PA1010 biomass composites: (a) NaOH+S3, (b) NaClO<sub>2</sub>+S3, (c) NaOH+MA, and (d) NaClO<sub>2</sub>+MA

る。ウレイドシラン (S3) 処理系の Fig. 2.4 (a)および(b)は表面の凹凸が荒れており、かつ繊維の周辺部が明確に現れているのに対し、マレイン酸 (MA) 処理系の Fig. 2.4 (c)および(d)では比較的滑らか、かつ繊維の露出が少ない摩擦面を形成していることがわかる。これは、マレイン酸処理では繊維/樹脂界面間の接着性が高く、摩擦摩耗による繊維への攻撃性が少ないため、異なる摩耗面を形成したためであり、その結果、より高い耐摩耗性を示したものと考えられる。なお、図表は省略するが、金属相手材への移着膜形成の仕方や摩耗粉形状も、表面処理の違いにより異なっていることも確認された。

## 2. 4 まとめ

高性能な植物由来エンブラ系複合材料の開発を目的に、新規のマレイン酸処理が機械的およびトライボロジー性質に及ぼす影響について、実験的に検討した結果、次の知見を得た。

- (1) マレイン酸処理により引張り特性などの機械的性質が向上すること。
- (2) マレイン酸処理により摩擦係数および比摩耗量が大きく改善されること。
- (3) 特に NaClO<sub>2</sub> とマレイン酸処理の両者を併用することで、より高性能化できること。

## 3. 麻繊維強化植物由来ポリアミド複合材料の各種物性に及ぼす繊維種の影響

### 3. 1 はじめに

これまでに、天然繊維強化植物由来エンブラ系複合材料の高性能化を目指し、繊維表面処理や第三成分 (植物由来 PA11 エラストマー) の添加の影響などを検討してきた。ただし、用いた天然繊維としては、ヘンプ麻 (HF) のみである。したがって、更なる高性能化や同複合材料を系統的に開発していくためには、強化繊維である天然

繊維の種類を変更して材料配合設計に必要な基礎データを取得していく必要がある。本章では、その一環として麻繊維強化植物由来 PA1010 バイオマス複合材料の各種物性に及ぼす天然繊維の種類の影響を実験的に検討した結果を報告する。

### 3. 2. 実験方法

本章で用いた材料は各種麻繊維を PA1010 に複合化した麻繊維強化植物由来 PA1010 複合材料である。複合材料の母材としては植物由来 PA1010 (VESTAMID Terra DS16, ダイセル・エボニック (株)) を用いた。強化繊維としては、ヘンプ麻 (HF)、ジュート麻 (黄麻, JF)、サイザル麻 (SF) およびラミー麻 (芋麻, RF) の 4 種類を用いた。各種麻繊維 ( $\phi 50\sim 100\mu\text{m}$ ) は、予め 5mm に裁断したものをを用いた。各種麻繊維は水酸化ナトリウム 5wt.%水溶液によるアルカリ脱脂を行った後、ウレイド基を有するシランカップリング剤 (S3, 3-ウレイドプロピルトリメトキシシラン, SILQUEST A-1160, モメンティブパフォーマンスマテリアル (株)) による表面処理 (1wt.%) を施して使用した。繊維充填量は樹脂に対し 20vol.%で固定した。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°C × 12h で乾燥し、二軸押出機 (TEX30H96, (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 13cm<sup>3</sup>/s である。実験は機械的性質として引張り、曲げおよびアイゾット衝撃特性を、トライボロジー的性質としてリングオンプレート型すべり摩耗試験を用いたすべり摩耗により評価した。試験方法は前章と同様であるため省略する。

### 3. 3. 実験結果と考察

Fig. 3.1 に各種麻繊維強化植物由来 PA1010 バイオマス

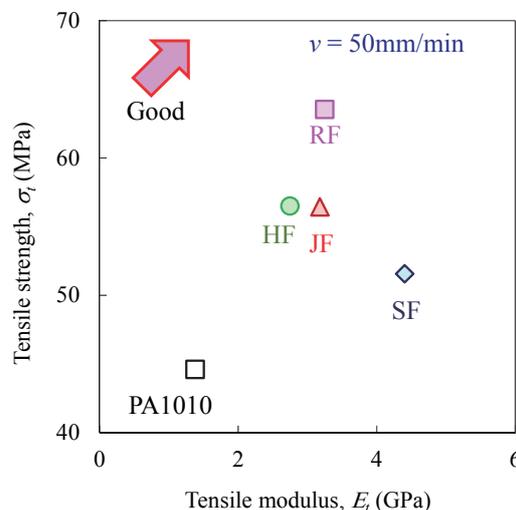


Fig. 3.1 Tensile properties of various natural fiber reinforced plant-derived PA1010 biomass composites.

複合材料の引張り特性として、引張り強さ $\sigma_t$ と引張り弾性率 $E_t$ の関係を示す。各種麻繊維との複合化により、 $\sigma_t$ および $E_t$ ともにPA1010単体と比べて大きく改質するものの、繊維種によって改質効果が異なることがわかる。特に、 $\sigma_t$ はラミー麻繊維 (RF) 系が最も改質されるのに対し、 $E_t$ はサイザル麻繊維(SF)系が最も高い値を示す。次に、Fig.3.2 に示す各種麻繊維強化植物由来 PA1010 バイオマス複合材料のノッチ付きアイゾット衝撃強さ $a_{iN}$ では各種麻繊維との複合化により低下するものの、RF 系のみ低下が少ないことがわかる。これら各種機械的性質の改質メカニズムを明らかにするために、各種麻繊維強化植物由来 PA1010 バイオマス複合材料の材料内部構造をSEM 観察した結果を Fig. 3.3 に示す。ただし、冷凍切断後の破断面を、研磨機により鏡面研磨仕上げした断面をオスミウム (Os) によりコーティングしたものを SEM 観察した結果である。繊維種の違いにより、複合材料中の繊維分散状態が異なり、強度の改質効果の高い RF 系では繊維が複合材料中に良好に分散しているの

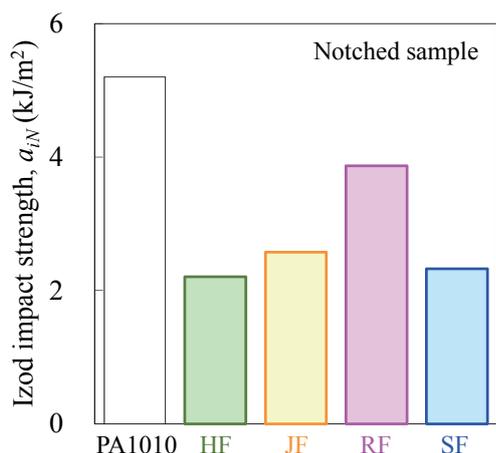


Fig. 3.2 Izod impact strength of various natural fiber reinforced plant-derived PA1010 biomass composites.

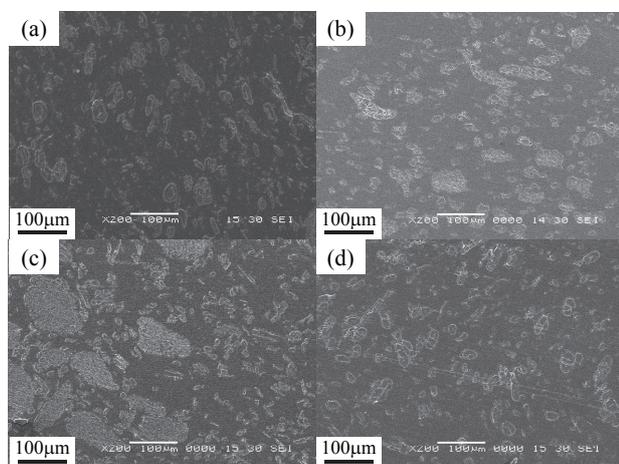


Fig. 3.3 SEM photographs of cross section of various natural fiber reinforced plant-derived PA1010 biomass composites: (a) HF/PA1010, (b) JF/PA1010, (c) SF/PA1010 and (d) RF/PA1010

に対し、剛性の改質効果の高い SF 系では複合材料中の繊維の分散性が他の繊維種に比べて劣っており、細かな繊維だけでなく、大きな繊維束が数多く確認できる。つまり、繊維種により複合材料中での繊維分散性が異なり、その結果、機械的性質の改質効果も変化するためと考えられる。

次に各種麻繊維強化植物由来ポリアミド 1010 バイオマス複合材料のトライボロジーの性質として、一定荷重および一定速度条件下におけるリングオンプレート型すべり摩耗試験により求めた比摩耗量 $V_s$ と摩擦係数 $\mu$ の関係を Fig. 3.4 に示す。摩擦係数 $\mu$ と比摩耗量 $V_s$ では繊維種の影響は異なっており、 $\mu$ は PA1010>JF 系>RF 系>HF 系>SF 系の順で小さくなるのに対し、 $V_s$ は PA1010 >HF 系>SF 系>JF 系>RF 系の順で改善される。これらの摩耗メカニズムを解明するために、金属相手材 (S45C) 表面を SEM 観察した結果を Fig. 3.5 に示す。

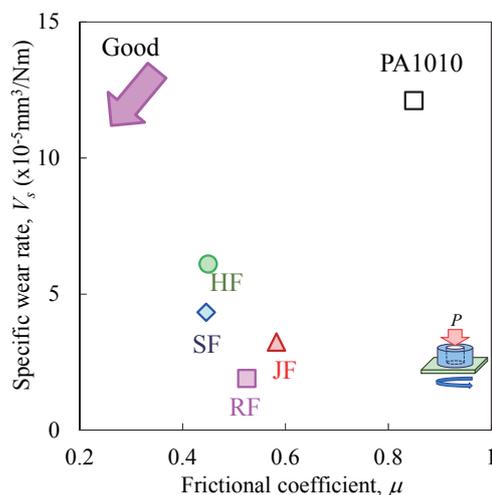


Fig. 3.4 Tribological properties of various natural fiber reinforced plant-derived PA1010 biomass composites.

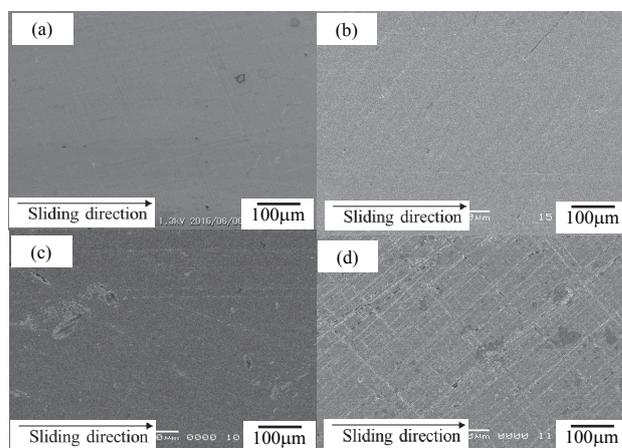


Fig. 3.5 SEM photographs of metallic counterface after sliding wear test against various natural fiber reinforced plant-derived PA1010 biomass composites: (a) HF/PA1010, (b) JF/PA1010, (c) SF/PA1010 and (d) RF/PA1010

比較的摩擦係数 $\mu$ の低い HF 系 (Fig. 3.5(a)) および SF 系 (Fig. 3.5(c)) は相手材表面に移着膜が厚く均一に付着しており、滑らかな面を形成している。それに対して比摩耗量  $V_s$  の低い JF 系 (Fig. 3.5(b)) および RF 系 (Fig. 3.5(d)) では、移着膜の付着は確認できるものの、金属相手材表面の凹凸が確認できるように、他の系よりも薄いことがわかる。したがって、JF 系および RF 系では相手材表面へ樹脂が移着するものの、その量が少ないため、より高い耐摩耗性を示すものと考えられる。

### 3. 4 まとめ

麻繊維強化植物由来ポリアミド 1010 バイオマス複合材料の各種物性に及ぼす天然繊維の種類の影響を実験的に検討した結果、以下のことがわかった。

(1) 各種麻繊維強化植物由来 PA1010 複合材料の各種物性に及ぼす天然繊維の種類の影響は、測定項目により異なること。

(2) ラミー繊維 (RF) による複合化が、引張り強さ、アイゾット衝撃強さおよび比摩耗量などに、最も有効であること。

(3) 天然繊維の種類が各種物性に及ぼす影響は、複合材料中の繊維分散状態の違いが大きく寄与すること。

## 4. 麻繊維強化植物由来ポリアミド複合材料の小型歯車への応用

### 4. 1 はじめに

総植物由来原料を用いた高性能な新規の高分子系複合材料を開発するために、これまでトウゴマ由来の植物由来ポリアミドをベースに、麻繊維をはじめとした各種天然繊維による複合化、またより高性能化のために、繊維表面処理の種類や方法、さらには第 3 成分として植物由来熱可塑性エラストマーの添加の影響などを実験的に検討し、従来の石油由来のエンジニアリングプラスチックに匹敵する性能を有することを明らかにしてきた。ここでは、実際の機械部品への応用を目的とし、開発した麻繊維強化植物由来ポリアミド系バイオマス複合材料を用いて小型歯車を実際に製作し、歯車強度や摩耗性などの評価を試みた結果を報告する。

### 4. 2. 実験方法

本章で用いた材料はヘンプ麻繊維 (HF) を PA1010 に複合化した HF/PA1010 複合材料である。複合材料の母材としては植物由来 PA1010 (VESTAMID Terra DS16, ダイセル・エボニック (株)) を用いた。強化繊維としては、ヘンプ麻 (HF,  $\phi 50 \sim 100 \mu\text{m}$ ) を予め 5mm に裁断したものをを用いた。HF は水酸化ナトリウム 5wt.% 水溶液によるアルカリ脱脂を行った後、ウレイド基を有するシランカップリング剤 (S3, 3-ウレイドプロピルトリメトキシシラン, SILQUEST A-1160, モメンティブパフォーマンスマテリアル (株)) による表面処

理 (1wt.%) を施して使用した。繊維充填量は樹脂に対し 10, 20 および 30vol.% と変化させた。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、二軸押出機 (TEX30H96, (株) 日本製鋼所) を用いた熔融混練 ( $220^\circ\text{C}$ , 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、平板 ( $30 \times 30 \times 3\text{mm}$ ) を射出成形した。成形条件はシリンダ温度  $220^\circ\text{C}$ , 金型温度  $30^\circ\text{C}$ , 射出率  $13\text{cm}^3/\text{s}$  である。成形した平板から 1.5mm 厚の円盤を機械加工により削りだし、ホブ盤により仕上げ加工を行い、小型平歯車を製作した。なお、歯車の仕様は、モジュール 0.5mm, 歯数 22, 歯幅 1.5mm, ピッチ円直径 11mm である。製作した小型平歯車を Fig. 4.1 に、歯車の諸元表を Table 4.1 に示す。

歯車特性評価は、歯元曲げ強度試験、歯車耐久試験および歯車摩耗量の 3 種類を実施した。歯元曲げ強度試験は専用治具を用いて材料万能試験機 (V-10, 東洋精機製作所, オートグラフタイプ) を用いて評価した。SUS304 製の負荷歯車とピッチ円上でかみ合わせ、負荷歯車に取り付けたレバーを回転中心から半径方向に腕を伸ばし、その腕の直角方向に荷重を負荷し歯車の歯が折損した時の負荷荷重より回転トルクを求めた。この回転トルクを式 (1) に示す Lewis の式<sup>1)</sup>より歯元曲げ強さ $\sigma_b$ を求めた。

$$\sigma_b = \frac{2000TZ}{by'd_0^2} \quad (1)$$

ただし、ここで $\sigma_b$ は歯元曲げ応力 (MPa)、2000 は係数、 $T$ は負荷トルク (Nm)、 $Z$ は歯数、 $b$ は歯幅 (mm)、 $y'$ は歯数と圧力各などの歯車形状から決定される歯車係数 (ここでは 0.559)、および  $d_0$ はピッチ円直径 (mm) である。なお、実際の測定にあたっては、歯型の干渉を防ぐため前後の歯を切除し一つの歯をかみ合わせて試験を行った。

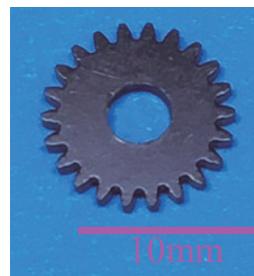


Fig. 4.1 Small spur gear of HF/PA1010 composites.

Table 4.1 Specification of test gear and drive gear.

	Test gear	Drive gear
Materials	HF/PA1010 composites	SUS304
Module, $m$ (mm)	0.5	0.5
Number of teeth, $Z$	22	44
Pitch diameter, $d_0$ (mm)	11	22
Tip diameter, $d_a$ (mm)	12	23
Face width, $b$ (mm)	1.5	2

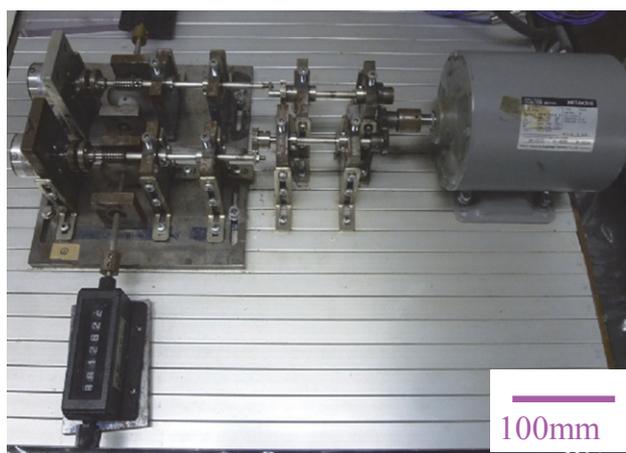


Fig. 4.2 The absorbing typed gear tester.

次に、歯車耐久試験は Fig. 4.2 に示す動力吸収式歯車試験機を用い、試験条件として負荷トルク  $T=10\sim 150\text{Nmm}$ 、歯車の回転数  $n=1740\text{rpm}$  (試験歯車の周速  $v=1\text{m/s}$ ) で一定とし、無潤滑で運転を行い、伝達が停止した時の積算回転数  $N$  を破壊寿命とした。繰り返し曲げ応力は負荷トルクから前掲した式 (1) に示す Lewis の式<sup>11)</sup>を用いて求めた曲げ応力を応力振幅  $S$  とし、 $S-N$  線図から求められる近似曲線より  $N=10^7$  の時の応力振幅を歯車疲労強度  $\sigma_u$  と定義した。

一方、歯車摩耗試験は歯車耐久試験と同じ歯車 (Fig.4.1) および動力吸収式歯車試験機 (Fig. 4.2) を用い、次に示す条件：応力振幅  $S=20\text{MPa}$ 、歯車回転速度  $n=1740\text{rpm}$  ( $v=1\text{m/s}$ )、積算回転数  $1\times 10^4, 2\times 10^4, 5\times 10^4, 10\times 10^4$  および  $20\times 10^4$ 、室温無潤滑下で行った。歯車摩耗量  $V$  は試験前後の歯車の質量差から算出した。

### 4. 3. 実験結果と考察

麻繊維強化植物由来ポリアミド 1010 バイオマス複合材料 (HF/PA1010) の歯元曲げ強さ  $\sigma_b$  について論じる。Fig. 4.3 に歯元曲げ強さ  $\sigma_b$  と繊維充填量  $V_f$  の関係を示す。歯元曲げ強さ  $\sigma_b$  は麻繊維 (HF) との複合化により改善するものの、繊維充填量  $V_f$  の増加に伴い低下する。これらの傾向は、HF/PA1010 バイオマス複合材料の基本的な機械的およびトライボロジック的性質<sup>14)</sup>に影響を受けたものと考えられる。一般に高分子系複合材料の強度や弾性率などの機械的性質は繊維充填量  $V_f$  の増加に伴い上昇するが、強化繊維との複合化により延性的挙動から脆性的挙動に変化するため、破断伸びや衝撃特性などが低下することが知られている<sup>15)</sup>。 $\sigma_b$  は強度や弾性率だけでなく、伸びや靱性なども大きな影響を及ぼすため、このような傾向を示すものと考えられる。

次に、歯車耐久試験結果として、Fig. 4.4 に麻繊維強化 HF/PA1010 の応力振幅  $S$  と積算回転数  $N$  の関係、いわゆる  $S-N$  曲線を示す。本図では右上にシフトするほど高性能である。各種充填量の HF/PA1010 複合材料の  $S-N$

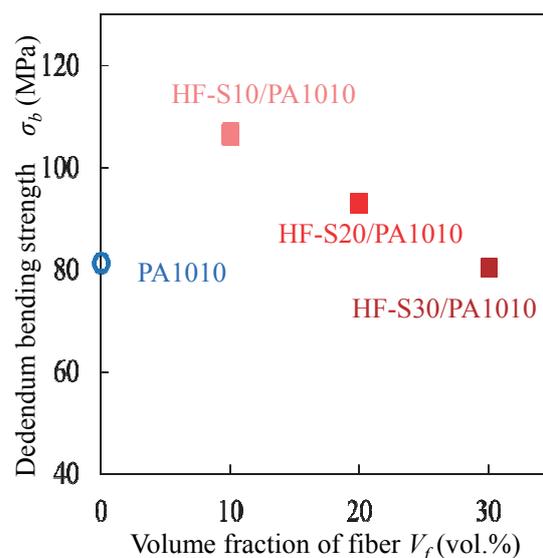


Fig. 4.3 Influence of volume fraction of fiber on the dedendum bending strength of HF/PA1010 biomass composites.

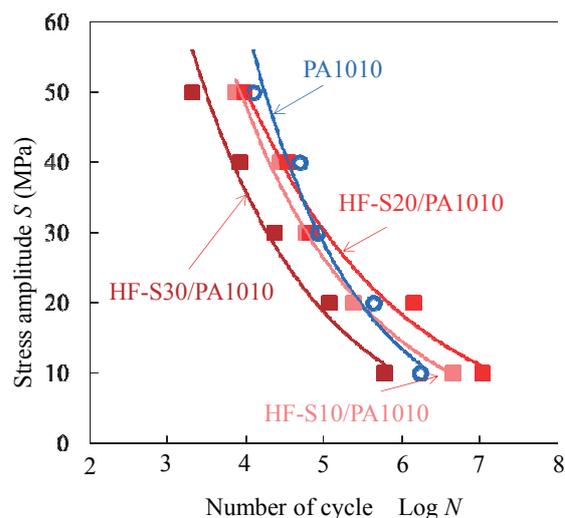


Fig. 4.4  $S-N$  curves of HF/PA1010 biomass composites using an absorbing typed gear testing apparatus.

曲線は繊維充填量  $V_f$  によって異なる。高い  $S$  領域においては、回転数  $N$  は  $\text{HF-S30 /PA1010} < \text{HF-S10/PA1010} < \text{HF-S20/PA1010} < \text{PA1010}$  の順に大きくなるのに対し、一方低い  $S$  領域においては、 $\text{HF-S30/PA1010} < \text{PA1010} < \text{HF-S10 /PA1010} < \text{HF-S20/PA1010}$  の順に回転数  $N$  は大きくなる。ただし、HF-S の後の数字は、繊維充填量  $V_f$  (vol.%) を示す。これらの結果から、低い  $S$  領域においては、 $V_f=20\text{vol.}\%$  に最大値を有することがわかる。

一方、動力吸収式歯車試験機を用いた HF/PA1010 バイオマス複合材料の小型歯車の摩耗量  $V$  について論じる。Fig. 4.5 に歯車の摩耗量  $V$  と回転数  $N$  の関係を示す。HF との複合化により摩耗量  $V$  は顕著に改善されるものの、摩耗量  $V$  は繊維充填量  $V_f$  の増加に伴い低下するこ

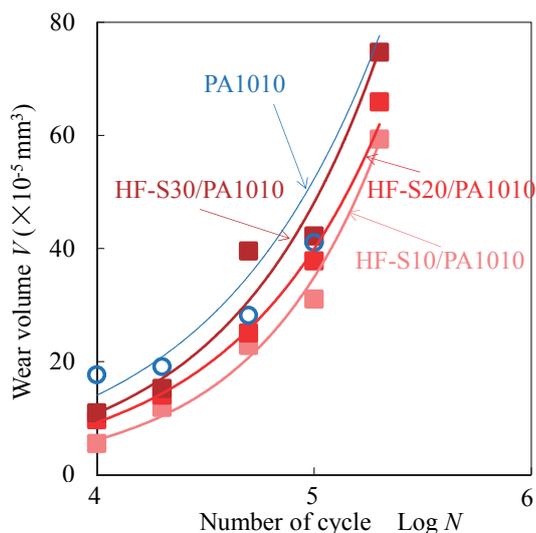


Fig. 4.5 Relationship between wear volume of cycle for HF/PA1010 biomass composites using an absorbing typed gear testing apparatus.

とがわかる。これは Fig. 4.3 に示した歯元曲げ強さ  $sb$  と同じ傾向である。つまり、摩耗量も HF/PA1010 バイオマス複合材料の基本的な機械的およびトライボロジー的性質と密接に関係していることがわかる。

#### 4. 4 まとめ

実際の機械部品への応用を目的とし、これまでに開発した麻繊維強化植物由来ポリアミド系バイオマス複合材料 (HF/PA1010) を用いて小型歯車を実際に製作し、それらの歯車強度や耐摩耗性などの評価を試みた結果、以下のことがわかった。

(1) HF/PA1010 バイオマス複合材料の歯元曲げ強さおよび歯車耐久試験による摩耗量は、麻繊維との複合化により向上すること。ただし、繊維充填量の増加に伴い両者とも低下する傾向を示すこと。

(2) HF/PA1010 バイオマス複合材料の歯車疲労強さは、繊維充填量 20Vol.% で最大値を示すこと。

## 5. 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、昨年度までの内容を継続するとともに、更なる高性能な天然繊維強化エンブラ系複合材料を開発するために、同複合材料の成形加工と機械的性質について、以下の3点を中心に、実験的に検討した結果、次のことがわかった。

(1) 天然繊維/樹脂間の界面制御技術として、新規の表面処理としてマレイン酸処理が各種物性に及ぼす影響を検討した結果、機械的およびトライボロジー的性質ともに改善されることを明らかにした。特に、亜塩素酸ナトリウム ( $\text{NaClO}_2$ ) とマレイン酸処理の両者を併用した表面処理は、麻繊維強化植物由来ポリアミド複合材料の物性の改善効果が高いこと。

(2) 麻繊維強化植物由来ポリアミド複合材料の各種物性に及ぼす天然繊維の種類の影響を検討した結果、測定項目によって繊維の種類の影響が異なること。特に、強度などの機械的性質と耐摩耗性などのトライボロジー的性質をバランス良く最も改善できるのはラミー麻繊維であること。

(3) 開発した麻繊維強化植物由来ポリアミド 1010 複合材料の実際の機械部品への応用として、小型歯車を製作し、歯車特性を評価した結果、歯元曲げ強さや歯車の摩耗量は麻繊維との複合化により大きく改善するものの、繊維充填量の増加に伴い低下すること。また歯車疲労強さは繊維充填量 20vol.% において最大値を示すこと。

## 参考文献

- (1) Faruk, O., Bledzki, A.K., Fink, H., Sain, M.: Biocomposites reinforced with natural fibers: 2000–2010, Prog. Polym. Sci., Vol. 37, (2012) pp. 1552–1596
- (2) Nirmal, U., Hashim, J., Ahmad, M.M.H.M.: A review on tribological performance of natural fibre polymeric composites, Tribol. Inter., Vol. 83 (2015) pp. 77–104.
- (3) 例えば、西谷要介監修：高分子トライボロジーの制御と応用、シーエムシー出版 (2015)
- (4) Nishitani, Y., Yamanaka, T., Kajiya, T., Kitano, T.: Thermal Properties of Hemp Fiber Reinforced Plant-Derived Polyamide Biomass Composites and their Dynamic Viscoelastic Properties in Molten State, in: El-Amin, M. (Ed.), Viscoelastic and Viscoplastic Materials, InTech, Rijeka, Croatia, 2016, pp. 53–79.
- (5) 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)
- (6) 向田準, 西谷要介, 山中寿行, 梶山哲人, 北野武: 3成分系植物由来複合材料 (麻繊維/ポリアミド 1010/TPE) の機械的およびトライボロジー的性質に及ぼす植物由来 TPE の種類の影響, 材料試験技術, Vol. 61(1), (2016) pp. 3–11
- (7) Nishitani, Y., Mukaida J., Yamanaka T., Kajiya T., Kitano, T.: Effect of processing sequence on the dynamic viscoelastic properties of ternary biomass composites (Hemp fiber/PA1010/PA11E) in the molten state, AIP Conference Proceedings, 1779 (2016) 060004
- (8) Mukaida J., Nishitani Y., Yamanaka T., Kajiya T., Kitano, T.: Influence of types of alkali

- treatment on the mechanical properties of hemp fiber reinforced polyamide 1010 composites, AIP Conference Proceedings, 1779 (2016) 060005
- (9) Bahadur, S. : The development of transfer layers and their role in polymer tribology, *Wear*, Vol.245, (2000) pp.92-99
- (10) 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
- (11) 精密工学会成形プラスチック歯車研究専門委員会編：成形プラスチック歯車ハンドブック，シグマ出版，(1995) pp.343
- (12) 佐藤貞雄，齋木直樹，堀口真裕，片岡誉，西谷要介：光硬化性樹脂複合材の疲労強度とトライボロジー特性に及ぼす充填材の影響，工学院大学研究報告，Vol.111 (2011) pp.7-13.
- (13) Nishitani, Y., Sekiguchi, I., Kitano, T. : Tribological Properties and Gear Strength of Various Carbon Fibers Filled PBT composites, *Proc. PPS-27*, P-3-521 (2011)
- (14) Mukaida J., Nishitani Y., Yamanaka T., Kajiyama T., Kitano, T. : Effect of Fiber Content on the Tribological Properties of Ternary Biomass Composites (HF/PA1010/PA11E), *The Proc. of International Tribology Conference, TOKYO 2015*, (2011) pp.904-905.
- (15) Nielsen, L. E. 著，小野木重治訳：高分子と複合材料の力学的性質，化学同人，(1983).

## 研究成果

(2014年4月から2017年3月まで)

### 1. 投稿論文 (査読付き)

- (1) 西谷要介，荷見愛，向田準，梶山哲人，山中寿行，北野武：麻繊維強化植物由来ポリアミド1010バイオマス複合材料のトライボロジー的性質，*材料技術*，Vol.35, (2017) pp.9-17
- (2) 向田準，西谷要介，山中寿行，梶山哲人，北野武：3成分系植物由来複合材料（麻繊維/ポリアミド1010/TPE）の機械的およびトライボロジー的性質に及ぼす植物由来TPEの種類の影響，*材料試験技術*，Vol.61(1), (2016) pp.3-11

### 2. 著書

- (1) Nishitani, Y., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T. : Thermal Properties of Hemp Fiber Reinforced Plant-Derived Polyamide Biomass Composites and their Dynamic Viscoelastic Properties in Molten State, in: El-Amin, M. (Ed.), *Viscoelastic and Viscoplastic Materials*, InTech, Rijeka, Croatia, 2016, pp. 53-79. <http://dx.doi.org/10.5772/64215>.
- (2) 西谷要介：ポリマーアロイ・ブレンドのレオロジー的および機械的性質，今井昭夫編，第三・第四世代ポリマーアロイの設計・制御・相容化技術，S&T出版，(2016) pp. 24-50

- (3) 西谷要介：アロイ・ブレンド・複合材料による制御，西谷要介監，高分子トライボロジーの制御と応用，シーエムシー出版，(2015) pp. 84-99

### 3. その他の論文

- (1) Nishitani, Y., Mukaida J., Yamanaka T., Kajiyama T., Kitano, T. : Effect of processing sequence on the dynamic viscoelastic properties of ternary biomass composites (Hemp fiber/PA1010/PA11E) in the molten state, AIP Conference Proceedings, 1779 (2016) 060004; doi: 10.1063/1.4965525.
- (2) Mukaida J., Nishitani Y., Yamanaka T., Kajiyama T., Kitano, T. : Influence of types of alkali treatment on the mechanical properties of hemp fiber reinforced polyamide 1010 composites, AIP Conference Proceedings, 1779 (2016) 060005; doi: 10.1063/1.4965526.
- (3) Nishitani, Y., Mukaida J., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T. : Thermal properties of hemp fiber filled polyamide 1010 biomass composites and the blend of these composites and polyamide 11 elastomer, AIP Conference Proceedings, 1713 (2016) 120007; doi: 10.1063/1.4942322.
- (4) 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, AIP Conference Proceedings, 1664 (2015) 060007; doi: 10.1063/1.4918425.
- (5) Mukaida, J., Nishitani, Y., Kitano, T. : Effect of addition of plants-derived polyamide 11 elastomer on the mechanical and tribological properties of hemp fiber reinforced polyamide 1010 composites, AIP Conference Proceedings, 1664 (2015) 060008; doi: 10.1063/1.4918426.

### 4. 学会発表 (国際会議)

- (1) Nishitani, Y., Mukaida, J., Yamada Y., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T. : Gear Strength of Hemp Fiber Reinforced Plants-Derived Polyamide1010 Biomass Composites, *Proc. of Polymer Processing Society Asia/Australia Conference (PPS-2016)*, Oct. 13, 2016, The Century City Hall, Chendgu, China, S06-196-P.
- (2) Nishitani, Y., Mukaida, J., Yamada Y., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T. : Influence of Initial Fiber Length on the Mechanical and Tribological Properties of Hemp Fiber Reinforced Plants-Derived Polyamide 1010 Biomass Composites, *Proc. of 32nd International Conference of the Polymer Processing Society (PPS-32)*, July 26, 2016, The Lyon Conference Center, Lyon, France, S06-102.
- (3) Mukaida, J., Nishitani, Y., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T. : Fabrication of Hemp Fiber Reinforced Plants-Derived Polyamide 1010 Biomass Composites and Their Mechanical Properties, *Proc. of 14th Japan International*

- SAMPE Symposium and Exhibition (JISSE14), Dec. 8, 2015, Shiinoki Cultural Complex, Ishikawa Prefecture, Ishikawa, Japan, 59, 1-6.
- (4) Nishitani, Y., Mukaida, J., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T.: Effect of Processing Sequence on the Dynamic Viscoelastic Properties of Ternary Biomass Composites (Hemp Fiber/ PA1010/ PA11E) in the Molten State, Proc. of Regional Conference of Polymer Processing Society, Graz 2015 (PPS-2015), Sep. 22, 2015, Messecongress Graz, Graz, Austria, Nat-81.
- (5) Mukaida, J., Nishitani, Y., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T.: Influence of Types of Alkali Treatment on the Mechanical Properties of Hemp Fiber Reinforced Polyamide 1010 Composites, Proc. of Regional Conference of Polymer Processing Society, Graz 2015 (PPS-2015), Sep. 22, 2015, Messecongress Graz, Graz, Austria, Nat-104.
- (6) Sugawara, N., Mukaida, J., Nishitani, Y., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T.: Effects of Blend Ratio of Plants-Derived TPE on the Tribological Properties of Hemp Fiber Reinforced Polyamide 11 Composites, Proc. of International Tribology Conference, TOKYO 2015, Sep. 16, 2015, Katsushika Campus, Tokyo University of Science, Tokyo, Japan, 910-911.
- (7) Mukaida, J., Nishitani, Y., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T.: Effect of Fiber Content on the Tribological Properties of Ternary Biomass Composites (HF/PA1010/PA11E), Proc. of International Tribology Conference, TOKYO 2015, Sep. 16, 2015, Katsushika Campus, Tokyo University of Science, Tokyo, Japan, 904-905.
- (8) Nishitani, Y., Mukaida, J., Yamanaka, T., Kajiyama, T., Kitano, T.: Thermal Properties of Hemp Fiber Filled Polyamide 1010 Biomass Composites and the Blend of These Composites and Polyamide 11 Elastomer, Proc. of 31th International Conference of the Polymer Processing Society (PPS-31), June 9, 2015, ICC Jeju, Jeju, Korea, 1116-1120.
- (9) Mukaida, J., Nishitani, Y., Kitano, T.: Influence of surface treatment method on the mechanical properties of hemp fiber reinforced polyamide 1010 biomass composites, Proc. of International Symposium on Fiber Science and Technology (ISF2014), Sep. 29, 2014, Big Sight Tokyo Fashion Town Hall, Tokyo, Japan, PS5-25.
- (10) 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, The Renaissance Hotel, Cleveland, Ohio, USA, 527-531.
- (11) Mukaida, J., Nishitani, Y., Kitano, T.: Effect of Addition of Plants-Derived Polyamide 11 Elastomer on the Mechanical and Tribological Properties of Hemp Fiber Reinforced Polyamide 1010 Composites, Proc. of 30th International Conference of the Polymer Processing Society (PPS-30), June 10, 2014, The Renaissance Hotel, Cleveland, Ohio, USA, 532-536.
5. 学会発表 (国内)
- (1) 西谷要介, 麻繊維強化植物由来ポリアミド複合材料のトライボロジー, 日本レオロジー学会高分子加工技術研究会第 86 回例会, 2017 年 3 月 10 日, 京都工芸繊維大学
- (2) 菅原夏希, 向田準, 金子周平, 西谷要介, 梶山哲人, 北野武, 麻繊維強化植物由来ポリアミドの熱的性質に及ぼす表面処理効果, 2016 年度材料技術研究協会討論会, 2016 年 12 月 3 日, 東京理科大学野田キャンパス, pp. 97-98
- (3) 西谷要介, 多成分系複合材料の成形と物性, 日本接着学会関東支部月例講演会第 258 回, 2016 年 10 月 28 日, 工学院大学新宿キャンパス
- (4) 菅原夏希, 向田準, 小田嵩人, 西谷要介, 梶山哲人, 山中寿行, 北野武, リサイクル麻繊維強化植物由来ポリアミド 1010 バイオマス複合材料の機械的性質, プラスチック成形加工学会第 24 回秋季大会 (成形加工シンポジウム' 16 仙台), 2016 年 10 月 27 日, 仙台国際センター, pp. 22-23
- (5) 菅原夏希, 向田準, 小田嵩人, 西谷要介, 梶山哲人, 山中寿行, 北野武, 麻繊維およびガラス繊維ハイブリッド型植物由来ポリアミド 11 バイオマス複合材料の摩耗挙動, トライボロジー会議 2016 秋新潟, 2016 年 10 月 12 日, 朱鷺メッセ, F6
- (6) 山中寿行, 梶山哲人, 向田準, 小田嵩人, 西谷要介, 北野武, 3 成分系バイオマス複合材料 (麻繊維/PA1010/PA11E) の機械的性質に及ぼす初期繊維長の影響, 第 27 回プラスチック成形加工学会年次大会 (成形加工' 16), 2016 年 6 月 14 日, タワーホール船堀, pp. 87-88.
- (7) 向田準, 西谷要介, 梶山哲人, 山中寿行, 北野武, 3 成分系植物由来複合材料 (麻繊維/ポリアミド 1010/TPE) の機械的およびトライボロジーの性質に及ぼす植物由来 TPE の種類の影響, 第 266 回材料試験技術シンポジウム, 2016 年 1 月 28 日, 産業総合技術研究所 臨界副都心センター
- (8) 西谷要介, 向田準, 山中寿行, 梶山哲人, 北野武, 麻繊維強化植物由来エンブラ系複合材料を用いたトライボマテリアルの開発, 2015 年度材料技術研究協会討論会, 2015 年 11 月 29 日, 近畿大学東大阪キャンパス, pp. 43-44.
- (9) 西谷要介, 向田準, 山中寿行, 梶山哲人, 北野武, 麻繊維強化植物由来 PA1010 バイオマス複合材料のレオロジーの性質に及ぼすアルカリ処理の影響, プラスチック成形加工学会第 23 回秋季大会 (成形加工シンポジウム' 15 福岡), 2015 年 11 月 3 日, 福岡大学, pp. 259-260.
- (10) 向田準, 菅原夏希, 小田嵩人, 西谷要介, 山中寿行, 梶山哲人, 北野武, 麻繊維強化植物由来 PA1010 バイオマス複合材料の機械的性質に及ぼす繊維長の影響, プラスチック成形加工学会第 23 回秋季大会 (成形加工シンポジウム' 15 福岡), 2015 年 11 月 3 日, 福岡大学, pp. 261-262.

- (1 1) 菅原夏希, 向田準, 西谷要介, 梶山哲人, 山中寿行, 北野武, 麻繊維およびガラス繊維ハイブリッド型植物由来ポリアミド 11 複合材料の機械的およびトライボロジー的性質, プラスチック成形加工学会第 23 回秋季大会 (成形加工シンポジア' 15 福岡), 2015 年 11 月 3 日, 福岡大学, pp. 263-264.
- (1 2) 山中寿行, 梶山哲人, 西谷要介, 向田準, 菅原夏希, 表面処理麻繊維/ポリアミド 11 複合体の熔融混練に関する検討, プラスチック成形加工学会第 23 回秋季大会 (成形加工シンポジア' 15 福岡), 2015 年 11 月 2 日, 福岡大学, pp. 415-416.
- (1 3) 向田準, 菅原夏希, 西谷要介, 山中寿行, 梶山哲人, 北野武, 麻繊維強化 PA1010 バイオマス複合材料を用いた機械材料の開発- 繊維表面処理の最適化検討-, 第 27 回高分子加工技術討論会講演要旨集, 2015 年 10 月 26 日, 名古屋市工業研究所, pp. 7-10.
- (1 4) 向田準, 西谷要介, 梶山哲人, 山中寿行, 北野武, 麻繊維強化ポリアミド 1010 複合材料のトライボロジー的性質に及ぼす表面処理方法の影響, プラスチック成形加工学会第 26 回年次大会 (成形加工' 15), 2015 年 6 月 4 日, タワーホール船堀, pp. 355-356.
- (1 5) 菅原夏希, 向田準, 西谷要介, 梶山哲人, 山中寿行, 北野武, 3 成分系バイオマス複合材料 (麻繊維/PA11/TPE) の機械的性質に及ぼす植物由来 TPE 添加量の影響, プラスチック成形加工学会第 26 回年次大会 (成形加工' 15), 2015 年 6 月 4 日, タワーホール船堀, pp. 363-364.
- (1 6) 向田準, 西谷要介, 北野武, 植物由来 PA1010/PA11 エラストマーブレンドの機械的性質, 2014 年度材料技術研究協会討論会, 2014 年 12 月 6 日, 東京理科大学野田キャンパス, P47
- (1 7) 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), 2014 年 11 月 14 日, 朱鷺メッセ, pp. 75-76.
- (1 8) 向田準, 西谷要介, 梶山哲人, 山中寿行, 北野武, バイオマス原料を用いた 3 成分系複合材料 (麻繊維/PA1010/TPU) の機械的性質, 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), 2014 年 11 月 14 日, 朱鷺メッセ, pp. 289-290.
- (1 9) 向田準, 西谷要介, 北野武, 3 成分系植物由来複合材料 (麻繊維/PA1010/PA11E) の機械的性質と熔融粘弾性, 第 26 回高分子加工技術討論会講演要旨集, 2014 年 10 月 27 日, 名古屋市工業研究所, pp. 20-23.
- (2 0) 西谷要介, 植物由来原料を用いた高分子系複合材料の成形と物性, 材料技術研究協会討論会第 1 回出前講演会, 2014 年 10 月 15 日, 日本大学駿河台キャンパス.
- (2 1) 向田準, 西谷要介, 麻繊維充填植物由来ポリアミド複合材料の機械的およびトライボロジー的性質, 日本トライボロジー学会第 61 回高分子材料のトライボロジー研究会, 2014 年 9 月 30 日, 工学院大学新宿キャンパス.
- (2 2) 向田準, 西谷要介, 北野武, 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, プラスチック成形加工学会第 25 回年次大会 (成形加工' 14), 2014 年 6 月 3 日, タワーホール船堀, pp. 159-160.
- (2 3) 西谷要介, 荷見愛, 向田準, 北野武, 総植物由来原料を用いた天然繊維強化エンブラ系複合材料の成形と物性, 2014 年度日本ゴム協会研究発表講演会講演要旨, 2014 年 5 月 21 日, 埼玉会館, pp. 111.

## 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 先進工学部 生命化学科 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 Chemistry and Life Science, School of Advanced 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** : Acidic mammalian chitinase (AMCase) has been implicated in various pathophysiological conditions including asthma, allergic inflammation and food processing. AMCase is most active at pH 2.0, and its activity gradually decreases to up to pH 8. Here we analyzed chitin degradation by AMCase in weak acidic to neutral conditions by fluorophore-assisted carbohydrate electrophoresis established originally for oligosaccharides analysis. We found that specific fragments with slower-than-expected mobility as defined by chitin oligosaccharide markers were generated at pH 5.0~8.0 as by-products of the reaction. We established an improved method for chitin oligosaccharides suppressing this side reaction by pre-acidification of the fluorophore-labeling reaction mixture. Using this strategy, we found that AMCase produced dimer of *N*-acetyl-D-glucosamine (GlcNAc) at strong acidic to neutral condition. Moreover, we found that AMCase generates (GlcNAc)<sub>2</sub> as well as (GlcNAc)<sub>3</sub> under physiological conditions.

#### 1. はじめに

キチンは *N*-acetyl-D-glucosamine (GlcNAc) が  $\beta$ -1,4 結合した重合体で、ほとんどの溶媒に不溶である。キチンは、甲殻類および昆虫の外骨格、寄生虫の外殻および真菌類の細胞壁の主要成分である [1, 2]。

キチナーゼは、キチンのグリコシド結合を加水分解する。それらは、細菌、真菌、線虫および節

足動物など様々な生物でキチン代謝を担っている [1-5]。

ほ乳類はキチンを合成しない。しかし、マウスとヒトは、キトトリオシダーゼ (chitotriosidase, Chit1) と酸性哺乳動物キチナーゼ (acidic mammalian chitinase, AMCase) とよばれる二種の活性キチナーゼを発現する [4, 6]。Chit1 は最初にクローニング、精製された哺乳類キチナーゼである [7, 8]。AMCase は、Chit1 に次いで発見されたの哺乳類キチナーゼで、その酸性領域での等電点に

より命名された[9]。

AMCase は、喘息およびアレルギー性喘息モデルマウスにおいて発現が顕著に増加することから注目を集めている[10, 11]。AMCase 遺伝子のいくつかのハプロタイプは、ヒトの気管支喘息と関連している[12-14]。さらに、AMCase は眼[15-17]および胃の疾患に関与することが示されている[18, 19]。

我々は、AMCase mRNA がマウスの胃において高いレベルで発現されていることを報告した[20, 21]。AMCase の発現レベルは、胃液の主要な消化酵素であるペプシンの前駆体であるペプシノーゲンに匹敵することから、この酵素の消化における役割が示唆された。このことは、最近、AMCase が、マウス消化系で、プロテアーゼ耐性糖質分解酵素であることを報告した[22]。さらに、組換え AMCase およびその触媒ドメイン (Catalytic domain) は、pH 2.0 で至適を示し、その条件で、主に (GlcNAc)<sub>2</sub> を生成し、弱酸性から中性 (pH 5.0~7.0) においても低めのキチナーゼ活性を示した[9, 23, 24]。しかし、これまでの AMCase をめぐる研究では、中性条件下でのキチナーゼ活性は十分調べられていない。

本研究では、マウス AMCase を pH 2.0~8.0 の条件下で、キチン基質とインキュベートし、Jackson が報告した方法でキチンオリゴマーの還元末端を蛍光標識し、電気泳動で分離し[fluorophore-assisted carbohydrate electrophoresis (FACE)], 産物を分析した。FACE 法は、高速液体クロマトグラフィー (HPLC) および核磁気共鳴(NMR) 解析と比較しても、非常に高感度であり、微量のキチンオリゴマーも検出できる[9, 25]。

我々は、キチン基質を AMCase で分解した際に、主要な分解産物[(GlcNAc)<sub>2</sub>]に加え、遅い移動度を持つ副生成物が、pH 依存的に生成されることを見いだした。今回、キチンオリゴマーの特異的検出のための改良 FACE 法を確立した。この方法を用いて、AMCase が pH 2.0~8.0 の範囲で (GlcNAc)<sub>2</sub> を生成することを見出した。

## 2. 実験材料と方法

### 大腸菌での AMCase の発現と酵素活性の測定

我々は、既に報告した方法で、大腸菌で Protein A-AMCase-V5-His を発現し、ペリプラズム画分から精製した[23, 24]。

キチン分解活性は、合成発色基質 4-nitrophenyl *N, N'*-diacetyl-β-D-chitobioside (Sigma-Aldrich 社) を用いて測定した。AMCase ユニットの定義も以前の報告に従った[23, 24]。

### 組換えマウス AMCase によるコロイダルキチン、(GlcNAc)<sub>6</sub> の分解

コロイダルキチンは以前報告された方法を用い、エビ外殻キチン(Sigma-Aldrich) より調製し、AMCase のキチナーゼ活性決定の基質として使用

した[23, 24]。すべての酵素反応は基質にコロイダルキチン (終濃度 1 mg/mL)、または (GlcNAc)<sub>6</sub> (0.2 μmol/mL) (生化学工業) を用い、酵素として組換えマウス AMCase (0.8 mU または 0.1 mU) を用い、McIlvaine's 緩衝液 (0.1 M citric acid と 0.2 M Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub> の混合液; pH 2.0~pH 8.0) 条件下において全量 50 μL で行った。37°C, 1 時間反応させた。

### Jackson 法によるキチンオリゴマーの蛍光標識法

分子量マーカーのキチンオリゴマー [(GlcNAc)<sub>1-6</sub>] または酵素反応で生成したキチンオリゴマーは Jackson により報告された方法 (Jackson 法) に従い[25]、還元末端に fluorophore 8-aminonaphthalene-1,3,6-trisulphonic acid (ANTS, Invitrogen 社) を結合させることで標識し、40 % polyacrylamide gel electrophoresis (PAGE) を用いて分離し、Luminescent Image Analyzer(ImageQuant LAS 4000, GE Healthcare) を用いて定量した。

### Jackson 法の改良

酵素反応した試料を凍結乾燥し、その後 0.2 M ANTS-acetic acid/water(3:17, v/v), 1.0 M NaCNBH<sub>3</sub>-dimethyl sulfoxide (DMSO) に溶解した。そして、17.5 M acetic acid を 5 μL 加え、37°C で 16 時間反応した。その反応液に 1 M NaOH を 15 μL 添加することで中和し、loading buffer を 15 μL 加えた後に、PAGE により分離し、Luminescent Image Analyzer で解析した。

## 3. 結果

### pH 5.0~8.0 における pH 依存的な蛍光標識産物の解析

これまで、マウス AMCase は人工発色基質の 4-nitrophenyl *N, N'*-diacetyl-chitobioside [4NP-(GlcNAc)<sub>2</sub>] に対するキチン分解活性が pH 2.0 で最も高く、酸性条件 (pH 3.0~7.0) で pH 上昇とともに徐々に減少することを報告している[23, 24]。AMCase が pH 条件に依存し、異なるキチン分解産物を生成するかどうかを検討するため、McIlvaine buffer を用い、pH 2.0~8.0 の条件でコロイダルキチンまたは (GlcNAc)<sub>6</sub> を基質として酵素反応を行った。そして、Jackson により報告されている FACE 法[25]を用いて産物解析を行った。

AMCase は、酸性条件下でコロイダルキチンを分解し、主として (GlcNAc)<sub>2</sub> を生成した(図 1A, 短い矢印)。加水分解活性は pH を上昇させると低下したが、pH 6.0 まで認められた(図 1A)。このことは、組換え AMCase は、広い pH 範囲で、高分子量キチン基質を分解することができることを示

す。pH 5.0~8.0 で生成された産物には、(GlcNAc)<sub>2</sub>の他に、GlcNAc オリゴマーと移動度が異なるバンドも認められた(図 1A, 長い矢印)。

AMCase は低分子量基質である (GlcNAc)<sub>6</sub> を分解し、主として (GlcNAc)<sub>2</sub> を生成した(図 1B, 小さい矢印)。さらに、pH 4.0 以上で、移動度の遅いバンドを検出した(図 1B, 大きい矢印)。これらの結果は、AMCase による分解産物の pH 依存的変化、または FACE 反応での副生成物の pH 依存的生成の可能性を示唆した。

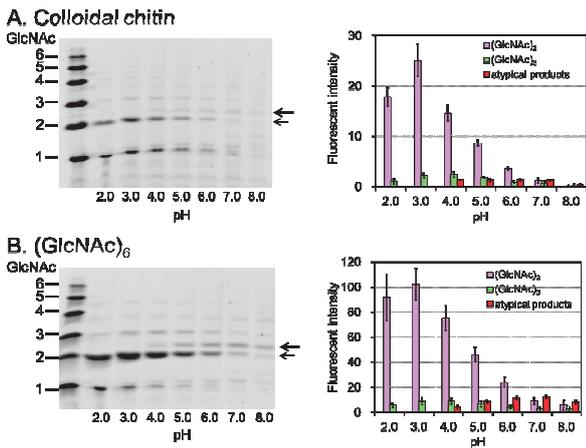


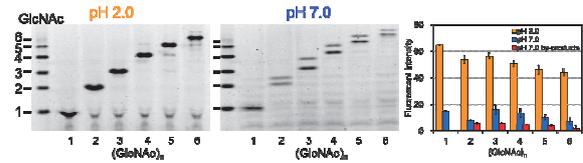
図 1. pH 5.0~8.0 での pH 依存的蛍光標識バンドの検出。コロイダルキチンの分解(A), (GlcNAc)<sub>6</sub> の分解(B)。グラフは定量結果を示した。

**GlcNAc オリゴマーの検出のための改良 FACE 法**

次に、AMCase の非存在下、McIlvaine 緩衝液を用い、pH 2.0 または 7.0 で、GlcNAc オリゴマーの蛍光標識反応で遅い移動度を示す生成物が得られるかどうかを検討した。pH 2.0 処理の場合、GlcNAc オリゴマーから予想される移動度にバンドが認められ、移動度の遅いバンドは認められなかった(図 2A, 左右)。これに対し、pH 7.0 でインキュベーションすると、各 GlcNAc オリゴマーについて、2 種類のバンドが得られた(図 2A, 中央および右)。蛍光標識反応を pH 7.0 処理の場合、GlcNAc オリゴマーの移動度の遅いバンドが認められた(図 2A)。さらに、pH 2.0 (図 2A) と比較して、pH 7.0 での蛍光効率の低下が認められた。以上の結果は、McIlvaine の緩衝液を用い、pH 5.0~8.0 の酵素反応から直接得られた GlcNAc オリゴマーを Jackson 法で蛍光標識する際には注意が必要であることを示す。

次に、中性 pH での副生成物の生成を抑制することを試みた。蛍光試薬で標識する前に濃酢酸で反応溶液を酸性化すると、両方の条件ですべてのオリゴマーについて単一バンドとなった (図 2B)。このように、蛍光標識前に、反応液を濃酢酸で酸性化することで、副生成物の形成が抑制された。

**A. Jackson's method**



**B. Pre-acidification method**

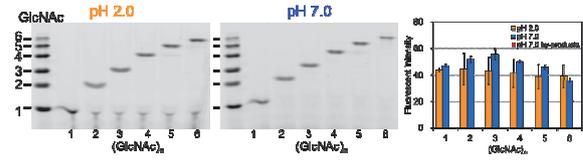


図 2. キチンオリゴマーの蛍光標識比較

Jackson 法での結果(A)  
前酸性化蛍光標識法での結果(B)  
グラフは定量結果を示した。

**蛍光標識に対する緩衝液の効果**

次に、(GlcNAc)<sub>1~6</sub> の蛍光標識に対するキチン分解活性の生化学的評価に一般的に使用されるいくつかの緩衝液の影響を調べた。我々は、MES, PIPES, HEPES および MOPS について検討した (150 mM, pH 7.0)。蛍光標識する前に濃酢酸で処理することで、いずれの緩衝液でも均一なバンドを与えた(図 3C)。以上のことから、我々の改良 FACE 法は、使用した緩衝液に関係なく、中性領域での産物の解析に有用であることが分かった。

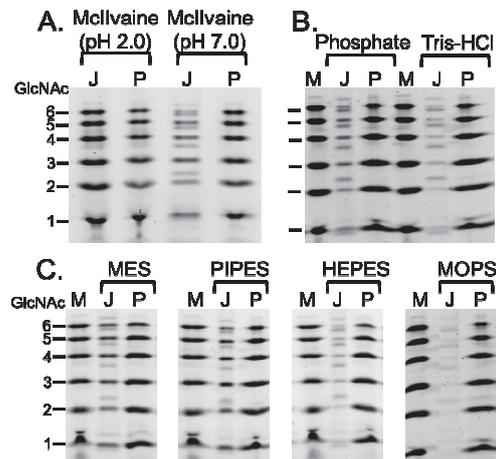


図 3. 蛍光標識法における緩衝液の検討

McIlvaine Buffer の結果(A)  
Phosphate, Tris-HCl Buffer の結果(B)  
Good Buffer の結果(C)  
(M; GlcNAc の分子量マーカー, J; Jackson's method, P; Pre-acidification method)

**改良 FACE 法での GlcNAc オリゴマーの定量性**

(GlcNAc)<sub>2</sub> の定量性を評価するため、pH 7.0 で (GlcNAc)<sub>2</sub> と蛍光強度との間の直線性を検討した。直線性は、50 nmol まで認められた(図 4)。

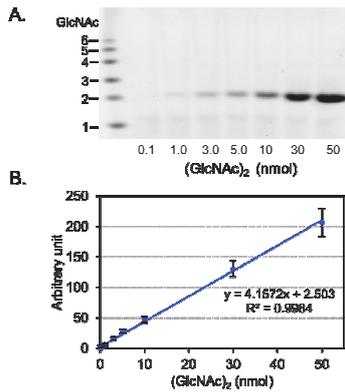


図 4. GlcNAc オリゴマー標識物標準曲線の作成  
0.1~50 nmol (GlcNAc)<sub>2</sub> 標準物質の泳動結果(A) とその標準曲線(B)

#### 改良 FACE 法を用いた AMCCase のキチナーゼ活性の再評価

改良 FACE 法を用いて、AMCCase のキチナーゼ活性を再評価した。pH 2.0~8.0 の McIlvaine 緩衝液中で、コロイド状キチン (コロイダルキチン) を基質に、AMCCase (0.8 mU) で 1 時間インキュベートした結果、主として (GlcNAc)<sub>2</sub> が生成した(図 5A)。次に、pH 2.0~8.0 の McIlvaine 緩衝液中で、AMCCase を (GlcNAc)<sub>6</sub> と 1 時間インキュベートすると、主に (GlcNAc)<sub>2</sub> (図 5B) が生成した。

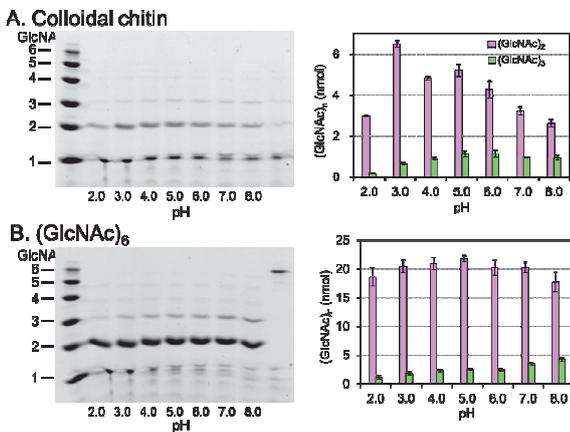


図 5. Mouse AMCCase の各種キチンの分解  
コロイダルキチンの分解 (A), (GlcNAc)<sub>6</sub> の分解 (B)。グラフはその定量結果を示した。

#### 4. 考察

AMCCase はマウスの胃で大量に合成され[20, 21, 26], 活性の至適が pH 2.0 である[9, 23]。これまでの研究では、天然のキチン基質を用い、AMCCase が pH 2.0 で主に (GlcNAc)<sub>2</sub> を生成すると報告されている[9, 23, 24]。また AMCCase は、マウスの胃と腸の条件下で、消化酵素として機能することが示されている[20-22]。

これまでの遺伝子発現解析により、AMCCase mRNA は唾液腺および肺組織においても高レベルで発現されることが報告されている[20]。キチンオリゴマー (N-アセチル-キチオリゴマー) は、哺乳動物細胞において、様々な生物学的活性を有することが知られている[1, 27]。キチンとキトサンの両方のオリゴマーには抗癌および抗炎症特性が報告されている[28, 29]。マウス AMCCase は pH 8.0 まで活性があることが示されているが、pH が高くなるとその活性は実質的に低下する[9, 23]。我々は、病理学的条件下で、AMCCase が過剰発現され、胃の状態とは異なる特異的な分解産物を生成する可能性を考えた。

オリゴマー検出のために広く使用されている Jackson 法[25]は、目的分子の還元末端を標識し、続いて PAGE で分離し、イメージャーで解析する。キチナーゼに関する研究では、通常、広範囲に pH を設定できる McIlvaine 緩衝液 (クエン酸/リン酸緩衝系) が用いられる。この高濃度の不揮発性緩衝液中で、直接蛍光標識すると問題が二つあった。

「副生成物」が、AMCCase による消化に由来するものではなく、キチンオリゴマーの蛍光標識中(図 1)に、pH 5.0~8.0 で生成されることを明らかにした。もう一点重要な問題は、pH 2.0 と比較して、より高い pH での標識効率が低下することである(図 2A)。

これらの問題を克服するため、pH 2.0~8.0 の酵素反応で生成される GlcNAc オリゴマーの還元末端を効率的に標識できる蛍光標識法の開発に着手した。そして我々は、蛍光標識の直前に濃酢酸により試料を酸性化することで副生成物の生成を抑制することが出来た。この場合、ポイントとして重要なのは、標識中溶液の pH を pH < 4.0 に調整することである。

我々は副生成物の化学構造は解析できなかったが、この改良蛍光標識法は、副生成物の生成を抑制し、GlcNAc オリゴマーを単一のバンドとして検出することができた(図 2B)。この方法は簡単であり、生化学分析に一般的に使用される様々な緩衝液に適用することができる(図 3)。さらに、中性領域の反応液を用いても GlcNAc オリゴマーの蛍光効率が低下しないことも確認した。なお、この改良標識法は、蛍光標識前に濃酢酸を加える以外、Jackson 法と本質的に同一である。

最後に、我々は、GlcNAc オリゴマーの改良蛍光標識法を用いて、キチン基質の pH 依存的分解を再検討した(図 5)。我々は、pH 5.0~8.0 において、キチン基質から生成された生成物が、合成発色基質である 4NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> から推定されるレベルよりも、高いことを明らかにした。これらの結果

は、コロイドダルキチンに対する AMCCase の分解能力が、pH 5.0~8.0 において、合成基質よりも高く、AMCCase が体細胞組織の pH 条件下で機能することを示している。AMCCase は強酸性から中性の条件下で作用し、キチン基質を分解し、主に (GlcNAc)<sub>2</sub> を生成することができる[30]。

#### 参考文献

1. Khoushab F, Yamabhai M. Chitin research revisited. *Mar Drugs*. 2010;8:1988-2012.
2. Koch BE, Stougaard J, Spaink HP. Keeping track of the growing number of biological functions of chitin and its interaction partners in biomedical research. *Glycobiology*. 2015;25:469-82.
3. Bueter CL, Specht CA, Levitz SM. Innate sensing of chitin and chitosan. *PLoS Pathog*. 2013;9:e1003080.
4. Lee CG, Da Silva CA, Dela Cruz CS, Ahangari F, Ma B, Kang MJ, et al. Role of chitin and chitinase/chitinase-like proteins in inflammation, tissue remodeling, and injury. *Annu Rev Physiol*. 2011;73:479-501.
5. Hamid R, Khan MA, Ahmad M, Ahmad MM, Abdin MZ, Musarrat J, et al. Chitinases: An update. *J Pharm Bioallied Sci*. 2013;5:21-9.
6. Bussink AP, van Eijk M, Renkema GH, Aerts JM, Boot RG. The biology of the Gaucher cell: the cradle of human chitinases. *Int Rev Cytol*. 2006;252:71-128.
7. 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;270:2198-202.
8. 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;270:26252-6.
9. Boot RG, Blommaert EF, Swart E, Ghauharali-van der Vlugt K, Bijl N, Moe C, et al. Identification of a novel acidic mammalian chitinase distinct from chitotriosidase. *J Biol Chem*. 2001;276:6770-8.
10. Zhu Z, Zheng T, Homer RJ, Kim YK, Chen NY, Cohn L, et al. Acidic mammalian chitinase in asthmatic Th2 inflammation and IL-13 pathway activation. *Science*. 2004;304:1678-82.
11. Reese TA, Liang HE, Tager AM, Luster AD, Van Rooijen N, Voehringer D, et al. Chitin induces accumulation in tissue of innate immune cells associated with allergy. *Nature*. 2007;447:92-6.
12. Bierbaum S, Nickel R, Koch A, Lau S, Deichmann KA, Wahn U, et al. Polymorphisms and haplotypes of acid mammalian chitinase are associated with bronchial asthma. *Am J Respir Crit Care Med*. 2005;172:1505-9.
13. Seibold MA, Reese TA, Choudhry S, Salam MT, Beckman K, Eng C, et al. Differential enzymatic activity of common haplotypic versions of the human acidic Mammalian chitinase protein. *J Biol Chem*. 2009;284:19650-8.
14. Okawa K, Ohno M, Kashimura A, Kimura M, Kobayashi Y, Sakaguchi M, et al. Loss and gain of human acidic mammalian chitinase activity by nonsynonymous SNPs. *Mol Biol Evol*. 2016;33:3183-93.
15. Bucolo C, Musumeci M, Maltese A, Drago F, Musumeci S. Effect of chitinase inhibitors on endotoxin-induced uveitis (EIU) in rabbits. *Pharmacol Res*. 2008;57:247-52.
16. Musumeci M, Aragona P, Bellin M, Maugeri F, Rania L, Bucolo C, et al. Acidic mammalian chitinase in dry eye conditions. *Cornea*. 2009;28:667-72.
17. Bucolo C, Musumeci M, Musumeci S, Drago F. Acidic Mammalian chitinase and the eye: implications for ocular inflammatory diseases. *Front Pharmacol*. 2011;2:43.
18. Cozzarini E, Bellin M, Norberto L, Polese L, Musumeci S, Lanfranchi G, et al. CHIT1 and AMCCase expression in human gastric mucosa: correlation with inflammation and *Helicobacter pylori* infection. *Eur J Gastroenterol Hepatol*. 2009;21:1119-26.
19. Nookaew I, Thorell K, Worah K, Wang S, Hibberd ML, Sjoval H, et al. Transcriptome signatures in *Helicobacter pylori*-infected mucosa identifies acidic mammalian chitinase loss as a corpus atrophy marker. *BMC Med Genomics*. 2013;6:41.
20. 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:e50381.
21. Ohno M, Togashi Y, Tsuda K, Okawa K, Kamaya M, Sakaguchi M, et al. 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:e67399.
22. Ohno M, Kimura M, Miyazaki H, Okawa K, Onuki R, Nemoto C, et al. Acidic mammalian chitinase is a proteases-resistant glycosidase in mouse digestive system. *Sci Rep*. 2016; 6 37756.
23. Kashimura A, Okawa K, Ishikawa K, Kida Y, Iwabuchi K, Matsushima Y, et al. 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:e78669.
24. Kashimura A, Kimura M, Okawa K, Suzuki H, Ukita A,

- Wakita S, et al. Functional properties of the catalytic domain of mouse acidic mammalian chitinase expressed in *Escherichia coli*. *Int J Mol Sci*. 2015;16:4028-42.
25. Jackson P. The use of polyacrylamide-gel electrophoresis for the high-resolution separation of reducing saccharides labelled with the fluorophore 8-aminonaphthalene-1,3,6-trisulphonic acid. Detection of picomolar quantities by an imaging system based on a cooled charge-coupled device. *Biochem J*. 1990;270:705-13.
  26. 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;53:1283-92.
  27. Aam BB, Heggset EB, Norberg AL, Sorlie M, Varum KM, Eijsink VG. Production of chito oligosaccharides and their potential applications in medicine. *Mar Drugs*. 2010;8:1482-517.
  28. Masuda S, Azuma K, Kurozumi S, Kiyose M, Osaki T, Tsuka T, et al. Anti-tumor properties of orally administered glucosamine and N-acetyl-D-glucosamine oligomers in a mouse model. *Carbohydr Polym*. 2014;111:783-7.
  29. Azuma K, Osaki T, Minami S, Okamoto Y. Anticancer and anti-inflammatory properties of chitin and chitosan oligosaccharides. *J Funct Biomater*. 2015;6:33-49.
  30. Wakita S, Kimura M, Kato N, Kashimura A, Kobayashi S, Kanayama N, et al. Improved fluorescent labeling of chitin oligomers: chitinolytic properties of acidic mammalian chitinase under somatic tissue pH conditions. *Carbohydr Polym*. 2017;164 145-53.
- Nonsynonymous SNPs, *Mol Biol Evol*. **33**, 3183-3193.
4. Ohno, M., Kimura, M., Miyazaki, H., Okawa, K., Onuki, R., Nemoto, C., Tabata, E., Wakita, S., Kashimura, A., Sakaguchi, M., Sugahara, Y., Nukina, N., Bauer, P. O. & Oyama, F. (2016) Acidic mammalian chitinase is a proteases-resistant glycosidase in mouse digestive system, *Sci Rep*. **6**, 37756.
  5. Kimura, M., Wakita, S., Ishikawa, K., Sekine, K., Yoshikawa, S., Sato, A., Okawa, K., Kashimura, A., Sakaguchi, M., Sugahara, Y., Yamanaka, D., Ohno, N., Bauer, P. O. & Oyama, F. (2016) Functional Properties of Mouse Chitotriosidase Expressed in the Periplasmic Space of *Escherichia coli*, *PLoS One*. **11**, e0164367.
  6. Honda, S., Wakita, S., Sugahara, Y., Kawakita, M., Oyama, F. & Sakaguchi, M. (2016) Characterization of two *Listeria innocua* chitinases of different sizes that were expressed in *Escherichia coli*, *Appl Microbiol Biotechnol*.
  7. Ohno, M., Bauer, P. O., Kida, Y., Sakaguchi, M., Sugahara, Y. & 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*. **16**, 9922-35.
  8. Kazami, N., Sakaguchi, M., Mizutani, D., Masuda, T., Wakita, S., Oyama, F., Kawakita, M. & Sugahara, Y. (2015) A simple procedure for preparing chitin oligomers through acetone precipitation after hydrolysis in concentrated hydrochloric acid, *Carbohydr Polym*. **132**, 304-10.
  9. Kashimura, A., Kimura, M., Okawa, K., Suzuki, H., Ukita, A., Wakita, S., Okazaki, K., Ohno, M., Bauer, P. O., Sakaguchi, M., Sugahara, Y. & Oyama, F. (2015) Functional properties of the catalytic domain of mouse acidic mammalian chitinase expressed in *Escherichia coli*, *Int J Mol Sci*. **16**, 4028-42.
  10. Ohno, M., Kida, Y., Sakaguchi, M., Sugahara, Y. & Oyama, F. (2014) Establishment of a quantitative PCR system for discriminating chitinase-like proteins: catalytically inactive breast regression protein-39 and Ym1 are constitutive genes in mouse lung, *BMC Mol Biol*. **15**, 23.

### 3年間の研究成果

#### ① 発表論文

1. Wakita, S., Kimura, M., Kato, N., Kashimura, A., Kobayashi, S., Kanayama, N., Ohno, M., Honda, S., Sakaguchi, M., Sugahara, Y., Bauer, P. O. & Oyama, F. (2017) Improved fluorescent labeling of chitin oligomers: chitinolytic properties of acidic mammalian chitinase under somatic tissue pH conditions., *Carbohydr Polym*. **164** 145-153.
2. Honda, S., Kunii, T., Nohara, K., Wakita, S., Sugahara, Y., Kawakita, M., Oyama, F. & Sakaguchi, M. (2017) Characterization of a *Bacillus thuringiensis* chitinase that binds to cellulose and chitin, *AMB Express*. **7**, 51.
3. Okawa, K., Ohno, M., Kashimura, A., Kimura, M., Kobayashi, Y., Sakaguchi, M., Sugahara, Y., Kamaya, M., Kino, Y., Bauer, P. O. & Oyama, F. (2016) Loss and Gain of Human Acidic Mammalian Chitinase Activity by

#### ② 学会発表

##### 国際学会

- 1 Okawa, K., Ohno, M., Kashimura, A., Kobayashi, Y., Sakaguchi, M., Sugahara, Y., Oyama, F., Loss and recovery of chitinolytic activity by amino acid substitutions in human acidic mammalian chitinase., The 66th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics (ASHG) (Vancouver), 2016年10月21日

- 2 Wakita, S., Kimura, M., Kashimura, A., Sakaguchi, M., Sugahara, Y., Oyama, F., Functional analysis of acidic mammalian chitinase under physiological conditions., The 66th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics (ASHG) (Vancouver), 2016年10月21日
- 3 Kimura, M., Wakita, S., Ishikawa, K. Sekine, K. Yoshikawa, S., Sato, A. Okawa, K., Kashimura, A., Yamanaka, D., Ohno, N., Sakaguchi, M., Sugahara, Y., Oyama, F., Protein A-mouse Chit1-V5-His expressed in Escherichia coli possesses chitinase functions comparable to CHO-expressed protein., The 66th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics (ASHG) (Vancouver), 2016年10月20日
- 4 Tabata, E., Ohno, M., Sakaguchi, M., Oyama, F., Gene expression analysis of mammalian chitinase transcripts in pig tissues., The 66th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics (ASHG) (Vancouver), 2016年10月20日
- 5 Oyama, F., Okawa, K., Ohno, M., Kashimura, A. Kobayashi, Y. Sakaguchi, M., Sugahara, Y., Inactivation of mouse AMCcase by introducing amino acid substitutions encoded by single-nucleotide polymorphisms in human AMCcase gene., The 66th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics (ASHG) (Vancouver), 2016年10月19日
- 6 Honda, S., Wakita, S., Sugahara, Y., Oyama, F., Sakaguchi, M., Analysis of chitinases from nonpathogenic bacterium *Listeria innocua*., The 66th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics (ASHG) (Vancouver), 2016年10月19日
- 7 S. Honda, Y. Sugahara, M. Kawakita, F. Oyama, M. Sakaguchi, Comparison of degradation products from various substrates by *Listeria* chitinases, The 14th International Symposium on Advanced Technology(ISAT-14), 2015年11月2日
- 8 M. Kimura, K. Ishikawa, K. Sekine, S. Yoshikawa, S. Wakita, A. Sato, A. Kashimura, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama, Characterization of *Escherichia coli*-produced mouse chitotriosidase, The 14th International Symposium on Advanced Technology(ISAT-14), 2015年11月2日
- 9 M. Ohno, Y. Kida, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama, Gene expression analysis of chitinase-like protein, YKL-40, with mammalian chitinases using qPCR in normal human tissues., The 65th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics, 2015年10月9日
- 10 F. Oyama, A. Kashimura, M. Kimura, K. Okawa, H. Suzuki, A. Ukita, S. Wakita, K. Okazaki, M. Ohno, M. Sakaguchi, Y. Sugahara., Expression and characterization of catalytic domain of mouse AMCcase in *Escherichia coli*., The 65th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics, 2015年10月9日
- 11 K. Okawa, M. Ohno, A. Kashimura, Y. Kobayashi, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama, Biochemical analysis of chimeric human and mouse AMCcase proteins expressed in *Escherichia coli*., The 65th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics, 2015年10月8日
- 12 M. Kimura, K. Ishikawa, K. Sekine, S. Yoshikawa, S. Wakita, A. Sato, A. Kashimura, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama, Enzymatic properties of mouse chitotriosidase expressed in *Escherichia coli*., The 65th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics, 2015年10月8日
- 13 A. Kashimura, K. Okawa, K. Ishikawa, Y. Kida, K. Iwabuchi, Y. Matsushima, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, and F. Oyama, Expression of mouse acidic mammalian chitinase in periplasmic space of *Escherichia coli*, The 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (IFAEE), 2014年11月2日
- 14 K. Okawa, A. Kashimura, Y. Kobayashi, M. Ohno, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, and F. Oyama, Characterization of *Escherichia coli*-produced human acidic mammalian chitinase, The 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (IFAEE), 2014年11月2日
- 15 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2日
- 16 M. Kimura, K. Ishikawa, K. Sekine, S. Yoshikawa, A. Sato, K. Okawa, A. Kashimura, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, and F. Oyama, Expression of mouse chitotriosidase in *Escherichia coli*, The 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (IFAEE), 2014年11月2日
- 17 S. Honda, Y. Sugahara, F. Oyama, and M. Sakaguchi, Expression of *Listeria innocua* chitinases in *Escherichia coli* and comparison of their properties, The 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (IFAEE), 2014年11月2日
- 18 F. Oyama, M. Ohno, A. Kashimura, K. Okawa, K. Ishikawa, M. Sakaguchi, and Y. Sugahara, Biochemical Analysis of Mammalian Chitinases, The 1st Innovation Forum of Advanced Engineering and Education (IFAEE), 2014年11月1日
- 19 A. Kashimura, K. Okawa, M. Kimura, K. Okazaki, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama., Enzymatic properties of the catalytic domain of mouse acidic mammalian chitinase expressed in *Escherichia coli*., The 64th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics,

- 2014年10月20日
- 20 K. Okawa, A. Kashimura, Y. Kobayashi, M. Ohno, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama., Expression of human acidic mammalian chitinase in *Escherichia coli* and analysis of its properties., The 64th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics, 2014年10月20日
- 21 F. Oyama, M. Ohno, Y. Kida, M. Sakaguchi, Y. Sugahara., Cross-species gene expression analysis of chitinase-like proteins with mammalian chitinases using qPCR in mouse and human tissues., The 64th Annual Meeting of the American Society of Human Genetics, 2014年10月20日
- 22 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19日

## 国内学会

- 1 田畑絵理, 檜村昭徳, 大野美紗, 坂口政吉, 小山文隆, ニワトリ組織におけるキチナーゼ遺伝子発現レベルとその酵素学的機能の解析, 日本農芸化学会 2017年度大会(京都), 2017年3月18日
- 2 大川一明, 大野美紗, 檜村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, ヒトとマウスの酸性哺乳類キチナーゼの機能解析と比較, 第30回 日本キチン・キトサン学会大会[川崎市], 2016年8月19日
- 3 小山文隆, 大野美紗, 木村将大, 大川一明, 田畑絵理, 脇田悟誌, 檜村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, マウス胃における酸性ほ乳類キチナーゼの発現と生産細胞の同定, 第30回 日本キチン・キトサン学会大会[川崎市], 2016年8月19日
- 4 脇田悟誌, 木村将大, 檜村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, AMCase による酸性～中性条件キチン分解産物の解析, 第30回 日本キチン・キトサン学会大会[川崎市], 2016年8月18日
- 5 田畑絵理, 大野美紗, 坂口政吉, 小山文隆, ブタ組織におけるキチナーゼ遺伝子発現レベルの解析, 第30回 日本キチン・キトサン学会大会[川崎市], 2016年8月18日
- 6 本田翔太郎, 菅原康里, 小山文隆, 坂口政吉, C末端欠損 *Listeria innocua* キチナーゼの性質, 第30回 日本キチン・キトサン学会大会[川崎市], 2016年8月18日
- 7 木村将大, 脇田悟誌, 石川晃太郎, 関根一孝, 吉川聡, 佐藤章, 檜村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, マウスキトトリオンダナーゼは生理的条件下でキチン基質を分解する, 第30回 日本キチン・キトサン学会大会[川崎市], 2016年8月18日
- 8 大川一明, 檜村昭徳, 大野美紗, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, キメラ体を利用したヒトとマウスAMCaseの機能比較, 日本農芸化学会 2016年度(平成28年度)大会[札幌], 2016年3月29日
- 9 大野美紗, 大貫理徳, 根本千雪, 大川一明, 檜村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, マウスの胃における酸性ほ乳類キチナーゼの発現と活性, 日本農芸化学会 2016年度(平成28年度)大会[札幌], 2016年3月29日
- 10 木村将大, 脇田悟誌, 石川晃太郎, 関根一孝, 吉川聡, 佐藤章, 檜村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, マウスキトトリオンダナーゼの大腸菌のペリプラズムでの発現, 日本農芸化学会 2016年度(平成28年度)大会[札幌], 2016年3月28日
- 11 大野美紗, 貴田雄太, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, 哺乳類キチナーゼとキチナーゼ様タンパク質の遺伝子発現解析, 第29回 キチン・キトサン学会大会, 2015年8月20日
- 12 小山文隆, 檜村昭徳, 木村将大, 大川一明, 鈴木博隆, 浮田淳史, 脇田悟誌, 岡崎香奈, 大野美紗, 坂口政吉, 菅原康里, 大腸菌で発現したマウス酸性哺乳類キチナーゼの触媒ドメインの性質, 第29回 キチン・キトサン学会大会, 2015年8月20日
- 13 水谷大介, 坂口政吉, 小山文隆, 菅原康里, 二成分モノマーを用いたキトサングラフト体 (CS-g-PAM-PAA) の凝集特性, 第29回 キチン・キトサン学会大会, 2015年8月20日
- 14 脇田悟誌, 木村将大, 檜村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, Fluorophore を用いたキチンオリゴ糖蛍光標識法の改良, 第29回 キチン・キトサン学会大会, 2015年8月20日
- 15 大川一明, 檜村昭徳, 大野美紗, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, ヒトとマウス酸性哺乳類キチナーゼのキメラ体の作製とその解析, 第29回 キチン・キトサン学会大会, 2015年8月20日
- 16 木村将大, 石川晃太郎, 関根一孝, 吉川聡, 脇田悟誌, 佐藤章, 檜村昭徳, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, マウスキトトリオンダナーゼの大腸菌での発現とその性質, 第29回 キチン・キトサン学会大会, 2015年8月20日
- 17 本田翔太郎, 菅原康里, 小山文隆, 坂口政吉, *Listeria* 属キチナーゼの分解産物比較, 第29回 キチン・キトサン学会大会, 2015年8月20日
- 18 大野美紗, 貴田雄太, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, ヒトとマウス組織における哺乳類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4回医薬工3大学包括連携推進シンポジウム (工学院大学新宿校舎), 2015年6月20日
- 19 本田翔太郎, 菅原康里, 小山文隆, 坂口政吉, *Listeria* 由来キチナーゼの機能解析, 日本農芸化学会

2015 年度（平成 27 年度）大会（岡山）, 2015 年 3 月 29 日

- 20 小山 文隆, 樫村 明徳, 木村 将大, 大川 一明, 鈴木博隆, 浮田 敦史, 脇田 悟誌, 岡崎 香奈, 大野 美紗, 坂口 政吉, 菅原 康里, マウス酸性哺乳類キチナーゼの触媒ドメインの大腸菌での発現とその性質, 日本農芸化学会 2015 年度（平成 27 年度）大会（岡山）, 2015 年 3 月 28 日
- 21 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（平成 27 年度）大会（岡山）, 2015 年 3 月 28 日
- 22 坂口政吉, 松嶋裕大, 本田翔太郎, 菅原康里, 小山文隆, 川喜田正夫, 細菌グルコアミラーゼのドメインの役割, 日本応用糖質科学会 26 年度大会(第 63 回), 2014 年 9 月 24 日
- 23 菅原康里, 鈴木将平, 坂口政吉, 小山文隆, キトサン誘導体の薬物徐放担体への応用, 第 28 回キチン・キトサンシンポジウム, 2014 年 8 月 8 日
- 24 樫村昭徳, 大川一明, 岡崎香奈, 木村将大, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, Acidic Mammalian Chitinase の触媒ドメインの大腸菌での発現, 第 28 回キチン・キトサンシンポジウム, 2014 年 8 月 7 日
- 25 水谷大介, 坂口政吉, 小山文隆, 菅原康里, キトサンへの二成分モノマーのグラフト重合, 第 28 回キチン・キトサンシンポジウム, 2014 年 8 月 7 日
- 26 脇田悟誌, 金山直人, 樫村昭徳, 大川一明, 坂口政吉, 菅原康里, 小山文隆, 酸性哺乳類キチナーゼの pH 依存的キチン分解産物の検討, 第 28 回キチン・キトサンシンポジウム, 2014 年 8 月 7 日
- 27 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 7 日
- 28 小山文隆, 大野美紗, 樫村昭徳, 大川一明, 石川晃太郎, 坂口政吉, 菅原康里, 哺乳類キチナーゼの遺伝子発現解析と大腸菌での発現, 第 28 回キチン・キトサンシンポジウム, 2014 年 8 月 7 日

# 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

工学院大学 機械理工学科 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

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

**ABSTRACT** : This is a fundamental study on the jet vectoring control by means of adjusting the synthetic jet Strouhal number (frequency) without slot shape change with time in actuators. This work involved introduction of asymmetric slots with various beak lengths in free synthetic jets for various frequencies, experimentally and numerically. Furthermore, the behavior of synthetic jets was compared with that of the continuous jets. In our experiment, velocity measurements for both types of jets were performed using a hot-wire anemometer with an I-type probe and a traverser, and flow visualization for observing the behavior of the jets was performed using the smoke wire method. Through the experiment, typical flow patterns and time-averaged velocity distributions of synthetic jets for various beak lengths and Strouhal number were demonstrated. The time-averaged velocity was measured at a reference point on the slot centerline to evaluate the degree of the bend of the jets and the obtained data was used in the Strouhal number-beak length map.

**Keywords**: Vector control, Synthetic jet, Continuous jet, Two-dimensional flow, Numerical simulation

### 1. はじめに

シンセティックジェットは機器の小型化および軽量化に適していることから、連続噴流の代替として期待されている。シンセティックジェットの基本流動特性についてはおよそ 20 年前から研究がなされており、既に一定の成果が得られている [1-4]。一方、流体機械でのシンセティックジェットによる流動制御に関しても研究され始めているが [5-9]、実用レベルでシンセティックジェットを連続噴流の代替として使用するには、さらなる課題の解決が必要である。例えば高レイノルズ数流れの生成、騒音低下、噴射方向制御などが挙げられ、なかでも噴射方向制御についてはメインジェット方向制御を目的としてシンセティックジェットをサブジェットに用いる試みがなされている [10-12]。例えば、Smith and Glezer [10] は単純な矩形連続噴流と高アスペクト比シンセティックジェット（サブジェット）との間の相互干渉を調べ、メインジェットの進行方向に及ぼすシンセティックジェットの効果について議論した。ここでは、シンセティックジェットを用いることでメインジェット方向制御が可能であることが明らかにされた。Luo ら [11] はメインジェットの方向制御のため、2つのノズルからサブジェットを生成し、それらに 180°の相対位相遅れを持たせた新たなシンセティックジェットアクチュエー

タを開発し、この方法は従来の制御方法に比べ方向制御に効果的であることを示している。一方、Smith and Glezer [13] は隣接する二つのスロットにより形成される位相差を伴うシンセティックジェットでは噴流進行方向が位相により決定されることを示した。すなわちここでは噴流は位相が進んでいるジェット側に偏向することが明らかにされている。

ところで噴流の挙動はコアンダ効果に代表されるように流れ場の幾何形状に大きく依存することが知られていることから上記の噴流方向制御に関する技術の確立には、シンセティックジェットの基本流動特性に及ぼす流れ場の非対称性の影響を調べなければならない。シンセティックジェットの運動に及ぼす大規模非対称境界の影響についてはいくつか報告されているが [4]、現在まで我々の研究グループによる報告を除いて、サブジェットを使用しないシンセティックジェットの方向制御方法に関する論文は見当たらない [14,15]。特にスロット部の局所的非対称性が噴流進行方向および再循環領域サイズに与える影響について系統的調査はなされていない。

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、特に推進器の姿勢制御に関して独自の制御方法を提案するものである。ここでは、く

ちばし形状非対称スロットにより生成された2次元シンセティックジェットの基本流動特性について実験並びに数値解析を用いて検討する。主として実験的に得られた速度分布計測および流れの可視化と数値解析で得られた速度ベクトルを示し、シンセティックジェットの挙動に及ぼすくちばし長さ（非対称性）および無次元周波数（振動特性）の影響に着目して議論を展開する。また、これらの結果を連続噴流の流動特性と比較・検討することで両者の同異について言及するとともに、シンセティックジェット独特の性質を利用することで幾何形状を変化させることなく噴流方向制御が可能であることを示す。

## 2. 主な記号

$b_0$	: Slot width [m]
$c$	: Beak length [m]
$C$	: Dimensionless beak length ( $=c/b_0$ ) [-]
$l_0$	: Stroke length [m]
$L_0$	: Dimensionless stroke length ( $=l_0/b_0$ ) [-]
$Re$	: Reynolds number ( $=U_{s0}b_0/\nu$ ) [-]
$t$	: Time [s]
$t^*$	: Dimensionless time ( $=U_{s0}T/b_0$ ) [-]
$T$	: Cycle [s]
$u$	: $x$ -axis directional velocity [m/s]
$ u $	: Absolute value of the velocity $=\sqrt{u^2+v^2}$
$ u_{\max} $	: Maximum value of velocity
$U_{c0}$	: Characteristic velocity of continuous jet [m/s]
$U_{sa}$	: Velocity oscillation amplitude at the slot exit [m/s]
$U_{s0}$	: Characteristic velocity of synthetic jets [m/s]
$v$	: $y$ -axis directional velocity [m]
$v_w$	: $y$ -axis directional supplement velocity for jet entrainment [m]
$w$	: Slot height [m]
$x_{vp}$	: Position of vortex pair along with the $x$ -axis [m]
$y_{jc}$	: Position of jet center along with the $y$ -axis [m]
Greeks	
$\nu$	: Kinematic viscosity [m <sup>2</sup> /s]
$\omega$	: Vorticity [1/s]
$\omega^*$	: Dimensionless vorticity ( $=U_{s0}b_0/\omega$ ) [-]
Subscripts	
$c$	: Continuous jet
$s$	: Synthetic jets
$0$	: Outlet of slot

## 3. 実験装置および方法

### 3.1 定義式

#### 3.1.1 代表速度 $U_{s0}$

シンセティックジェットの代表速度には、Holman らに

よって提唱されている以下の式 (1) を用いた。

$$U_{s0} = \frac{1}{T} \int_0^T U_{sa} \sin \omega t dt \quad (1)$$

シンセティックジェットの代表速度は、噴出時の流速のみを1周期の時間で平均した値である。ここで  $T$  は周期、 $U_{sa}$  はスロットでの速度振動振幅である。連続噴流の代表速度  $U_{c0}$  はスロット出口での平均流速とした。

#### 3.1.2 レイノルズ数 $Re$

レイノルズ数の定義には以下の式 (2) を用いた。

$$Re = \frac{U_{s0}b_0}{\nu} \quad (2)$$

ここでは代表長さをスロット幅とした。動粘度  $\nu$  の計算には、作動流体である空気の値を用いて計算した。また、連続噴流のレイノルズ数の計算にも同じ式を用いた。本研究では実験と数値解析の両方でレイノルズ数  $Re = 990$  で一定とした。

#### 3.1.3 無次元ストローク $L_0$

以下に無次元ストロークの定義式 (3) を示す。

$$L_0 = \frac{l_0}{b_0} \quad (3)$$

ここで  $l_0$  は1周期で噴出される流体塊の長さであり、無次元ストロークは流体塊の長さをスロット幅で除した値である。本研究では無次元ストロークをパラメータとして、無次元ストロークが流れ場に及ぼす影響を調べた。

#### 3.1.4 無次元くちばし長さ $C$

無次元くちばし長さは以下の式 (4) のように定義した。

$$C = \frac{c}{b_0} \quad (4)$$

ここで  $c$  はくちばし長さであり、無次元くちばし長さはくちばし長さをスロット幅で除した値である。本研究では無次元くちばし長さもパラメータとし、無次元くちばし長さがシンセティックジェットに及ぼす影響を調べた。

### 3.2 実験装置

図1に実験装置概略図、図2にスロット幾何形状拡大図を示す。本研究ではスロット幅  $b_0 = 5 \text{ mm}$  で一定とし、スロットのスペン方向長さ  $w = 100 \text{ mm}$  より、スロットのアスペクト比は  $w/b_0 = 20$  である。このシリンダは天板と底板で固定されており、おおむね二次元流れが再現されている。シンセティックジェットはパソコン上のサウンドエディタ・レコーディングソフトウェア (Audacity) で出力したサイン波形をアンプ (Classic Pro V3000) で増幅し、スピーカ (DIECOOK DD-15L) を駆動させて生成した。一方、連続噴流は、ブロワ (昭和電機 U75-2-R313) をインバータで回転数を制御し、プレナムタンク内に送風することにより生成した。Fig. 1(b) に対称形状と非対称形状スロットの模式図を示す。スロット出口の中心線を原点として座標の設定を行なった。スロット出口の片側にくちばしと呼ぶ三角柱を密着させることで非対称スロットを作成した。無次元ストロークの影響を調査するために、スピーカに印加する電圧およびサイン波形の周波数を調整し、5種のくちばし ( $C = 1, 2, 3, 4, 5$ ) を付け替えることで無次元くちばし長さの影響を調べた。

### 3.3 計測方法

流速の計測には熱線流速計 (KANOMAX IHW-100)

を用い、 $50 \times 1024$  点を  $100 \mu\text{s}$  のインターバルでデータを測定した。速度分布のデータ取得にはトラバーサ（中央精機 ALS-230-C2P）、コントローラ（QT-AK）および同社製のプログラミングソフトウェア QT-EDIT を用い任意の間隔で計測（自動運転制御）できるようにした。速度波形の平均にはマルチパーパス FFT アナライザ（小野測器 CF-5220）を用い、スロット直後 ( $x/b_0 = 0.4$ ) に配置した熱線プローブをプレトリガとして使用した。熱線流速計から入力された電圧は FFT アナライザの DC モードで計測し、512 回の平均化処理を行なった。エクセルで 6 次の多項式近似曲線を用いて近似を行い、測定された電圧を流速に変換した。熱線流速計はその測定原理より、気温によって電圧が影響を受けるためにキングの式を用いて校正を行なう。本研究では気温の影響を最小限にできるよう室温の管理を徹底しているものの、FFT アナライザの校正に上述の多項式を用いたために若干の誤差を含んでいることを付記しておく。また、時間平均よどみ点の特定を目的とした速度計測には流れの向きを知る必要があることからレーザードップラー流速計（日本カノマックス Smart LDV II）を使用した。流れの可視化にはスモークワイヤ法を適用した。ニクロムワイヤに塗布した流動パラフィン（関東化学 Cat. No. 32033-00）に、ボルトスライダ（三菱電機 S-130-10）を用いて電圧を印加し白煙を生成した。画像および動画の撮影にはデジタルカメラ（ニコン D5200, カシオ EX-F1）を用いた。画像を撮影する際の露出時間は  $1/10 \text{ s}$ 、動画は  $300 \text{ fps}$  で撮影を行なった。撮影に必要な光量を確保するため、ハロゲンライト（PHOTRON HVC-SL）を実験装置下方から照射した。

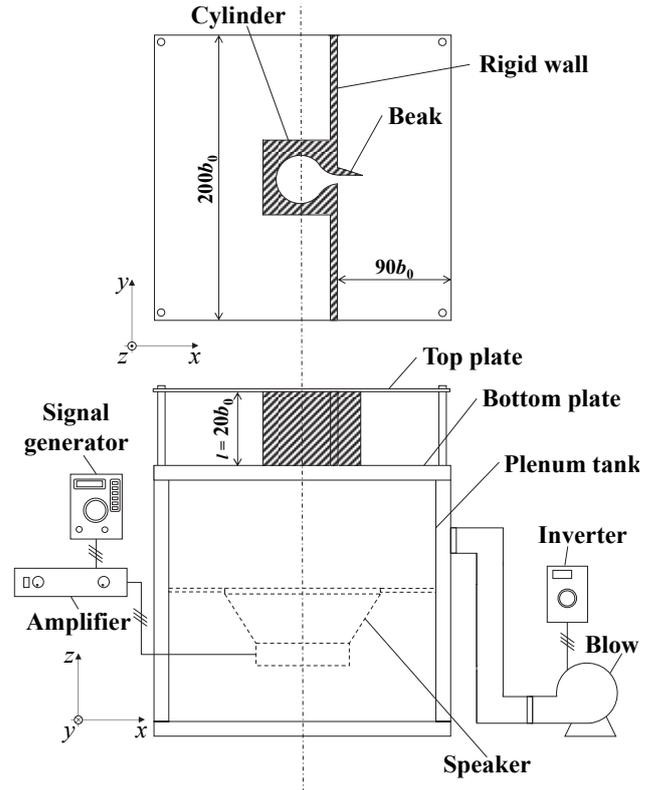


図 1 実験機の模式図

### 3.4 数値解析

数値解析には非構造格子系熱流体解析システム SGRYU/Tetra for windows [(株)ソフトウェアクレイドル] を用いた。乱流モデルには  $k-\epsilon$  を適用し、二次元非圧縮粘性流れを仮定して流れ場の解析を行った。数値解析ではレイノルズ数を  $Re_{in} = 2480$  として計算を行った。

図 3 に本研究で用いた計算モデルと計算条件を示す。境界条件としてスロット出口には流速規定条件 ( $u_{s0} = U_{sa} \sin \omega t_{us0}$ ) を、計算領域出口境界 ( $x = 400b_0$ ) には圧力一定条件を与えた。また、スロットのくちばし部および剛体壁には non-slip 条件、上側境界 ( $H_1 = 336b_0$ ) および下側境界 ( $H_2 = 336b_0$ ) にはそれぞれ一定流速  $v_w = -0.05U_{s0}$ ,  $0.05U_{s0}$  を境界条件として与えた。なお、本計算に用いたグリッド数は約 300,000 である。

### 4. 結果及び考察

本研究では連続噴流、シンセティックジェットともに  $Re = 990$  で得られた結果について議論する。

図 4 に対称スロットおよび非対称スロットにおける連続噴流のフローパターンを示す。(a) はスモークワイヤ法により可視化された瞬時の流れ場の様子であり、(b) は数値解析によって得られた 10 周期分の時間平均速度ベクトル図である。図 4 のパネル (i) ~ (iii) は、それぞれ  $C = 0, 3, 5$  の場合を示す。(ii), (iii) において非対称スロットくちばし部は赤色で示されている。実験結果 (a) と数値解析 (b) は定性的に一致しており、本図から連続噴流の場合には無次元くちばし長さ  $C$  に依ら

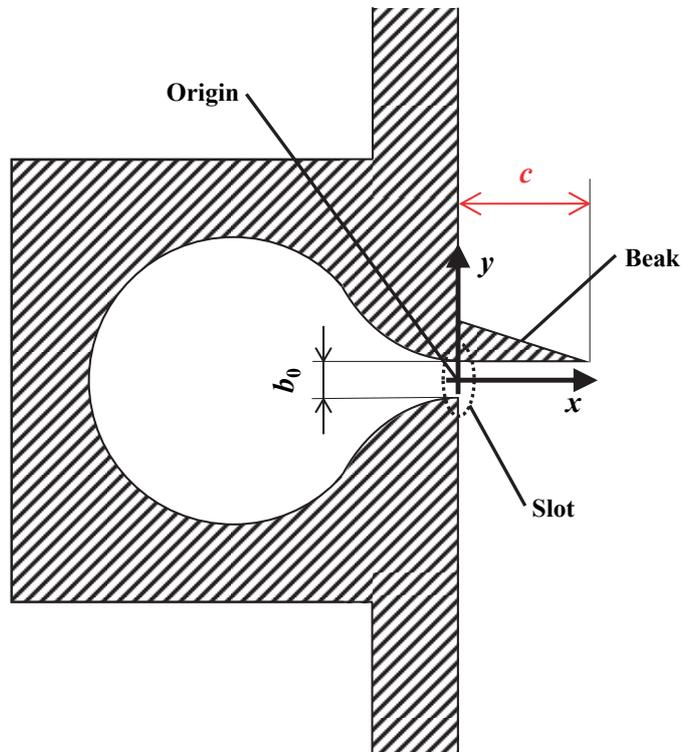


図 2 非対称スロットの幾何形状

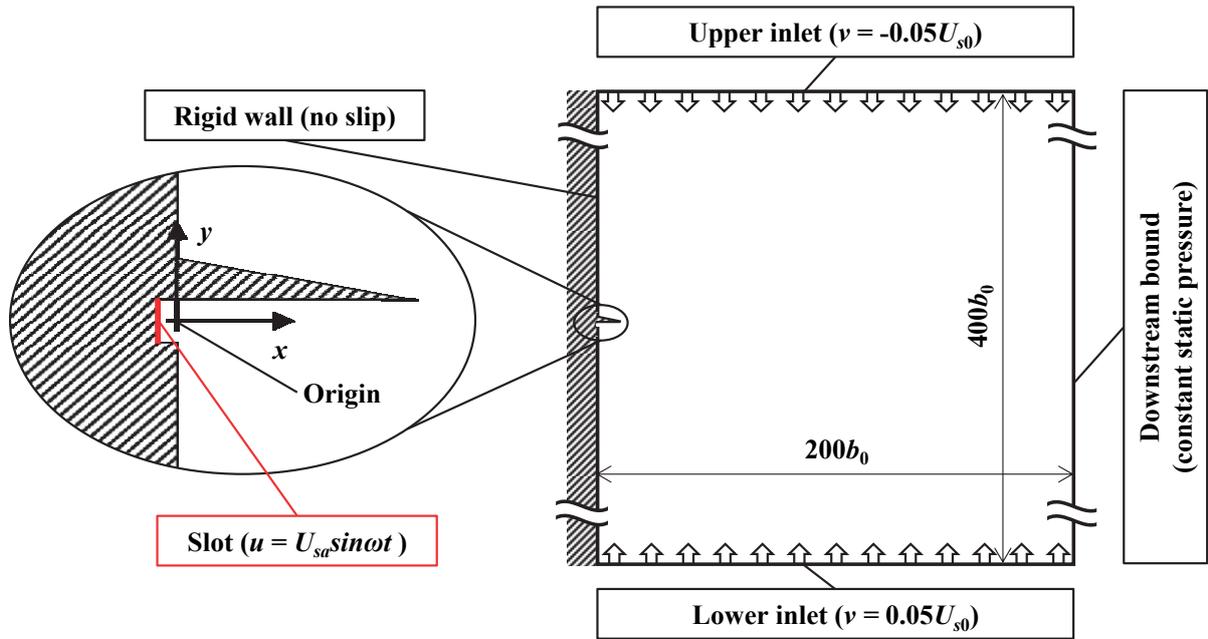


図3 数値計算におけるシンセティックジェットの境界条件.

ず噴流は  $x$  軸上を直進することがわかる. また, 噴流幅も  $C$  とは無関係に  $x$  が増加するにしたがって広がっている様子が伺える. このことから本条件の局所的範囲で連続噴流の挙動はスロット部非対称性の程度にはあまり依存しないと結論づけられる.

図5に実験および数値解析より得られた  $Sr = 5.00 \times 10^{-2}$  ( $f = 30\text{Hz}$ ) のシンセティックジェットのフローパターンを示す. 前図同様, (a) スモークワイヤ法による可視化観察例, (b) 時間平均速度ベクトル図で, (i) ~ (iii) は, それぞれ  $C = 0, 3, 5$  の場合の結果である. (a) 実験結果と (b) 数値解析結果を比較すると, 噴流の進行方向に関して両者は良好な一致を示している. 本図において対称スロットを表す (a) (i) と (b) (i) では, 噴流は  $x$  方向に直進し, 噴流幅は  $x$  の増加とともに広がることから, ここで形成されるシンセティックジェットは連続噴流と概ね同様の傾向を示すことがわかる. ただし, シンセティックジェットの噴流幅の拡大率は連続噴流の場合よりも大きくなっており, この傾向は前報告[4]の結果に対応している. これとは対照的に非対称スロットの (ii)  $C = 3$  および (iii)  $C = 5$  の場合, 生成されたシンセティックジェットは反くちばし側方向へ湾曲して進行し, スロット近傍には時計回り方向の再循環領域が形成される. 実験結果と数値解析結果では渦スケールに差異があるものの, 両者は定性的に一致している. このシンセティックジェットの偏向メカニズムは以下のように考えられる. 本条件ではスロットが非対称形状であるために速度せん断層の  $x$  方向の巻き上がり位置に違いが現れ, 対称な渦対は生成されない. すなわち, 時計回りの渦はスロット下側角部付近で形成されるのに対して, 反時計回りの渦はくちばしの存在により巻き上がりが抑制され, くちばし先端付近で形成される. 上側の反時計回りの渦が下側の時計回りの渦よりも前方に形成されることで, 互いの渦による誘起速度は  $y$  方向下向き成分を持つようになる. その結果, 渦対は下方へ進行する. その後, 吸引プロセスに転ずるとスロット近くに位置する下側の時計回りの渦がより吸い込み流れの影響を受けスロット側へ引き寄せられ, さらにくちばし先端付近では別の時計回り渦が生成されることから一層, 他渦の  $x$  方向へ

の進行を妨げることになる. このサイクルが繰り返されると, くちばし形状非対称スロットを通して生成されるシンセティックジェットは, スロット下方に時計回りの再循環領域を形成するようになる. その後, くちばし付近で新たに生成された時計回りの渦は大きな再循環領域に引き込まれると推測される. 非対称スロットによって引き起こされる流れの偏向は連続噴流では見られず, 渦対の繰り返し生成によって噴流構造を実現するシンセティックジェット特有の現象であると考えられる. ちなみに後述のように同一無次元周波数条件において噴流の曲率は無次元くちばし長さ  $C$  が増加するにしたがって増加しており, この理由としてくちばし長さ  $C$  が長くなるほど形成される渦対の  $x$  方向位置の差が大きくなるためと考えられる.

図6は図5よりも低い周波数条件  $Sr = 1.67 \times 10^{-2}$  ( $f = 10\text{Hz}$ ) で発生するシンセティックジェットのフローパターン観察例である. (a) スモークワイヤ法による可視化観察, (b) 計算による時間平均速度ベクトルで, (i), (ii), (iii) にそれぞれ  $C = 0, 3, 5$  に対する結果を示す. 本図も他の結果同様, 実験結果と数値解析結果は噴流進行方向に関して良好な一致を示している. (i) 対称スロット  $C = 0$  の  $Sr = 1.67 \times 10^{-2}$  (図6) と  $Sr = 5.00 \times 10^{-2}$  (図5) の結果を比較すると, 噴流進行方向に顕著な差異は認められない. ところが, 非対称スロット (ii)  $C = 3$  および (iii)  $C = 5$  の結果について本図と図5を比較すると,  $Sr = 5.00 \times 10^{-2}$  (図5) では噴流はスロット形状の非対称性の影響を受け下向きに転向しているのに対し,  $Sr = 1.67 \times 10^{-2}$  (図6) では噴流進行方向に及ぼすくちばし長さの影響はほとんど見られない. すなわち, 噴流の向きは無次元くちばし長さ  $C$  だけでなく, 無次元周波数  $Sr$  にも依存していることがわかる. したがって, 同一非対称スロットを用いたシンセティックジェットの場合, 周波数を調整することで進行方向制御可能であることが明らかである.

図7に実験で得られた  $x/b_0 = 5, 10, 15, 20, 25$  における  $x$  方向時間平均速度分布を示す. (a), (b), (c) は

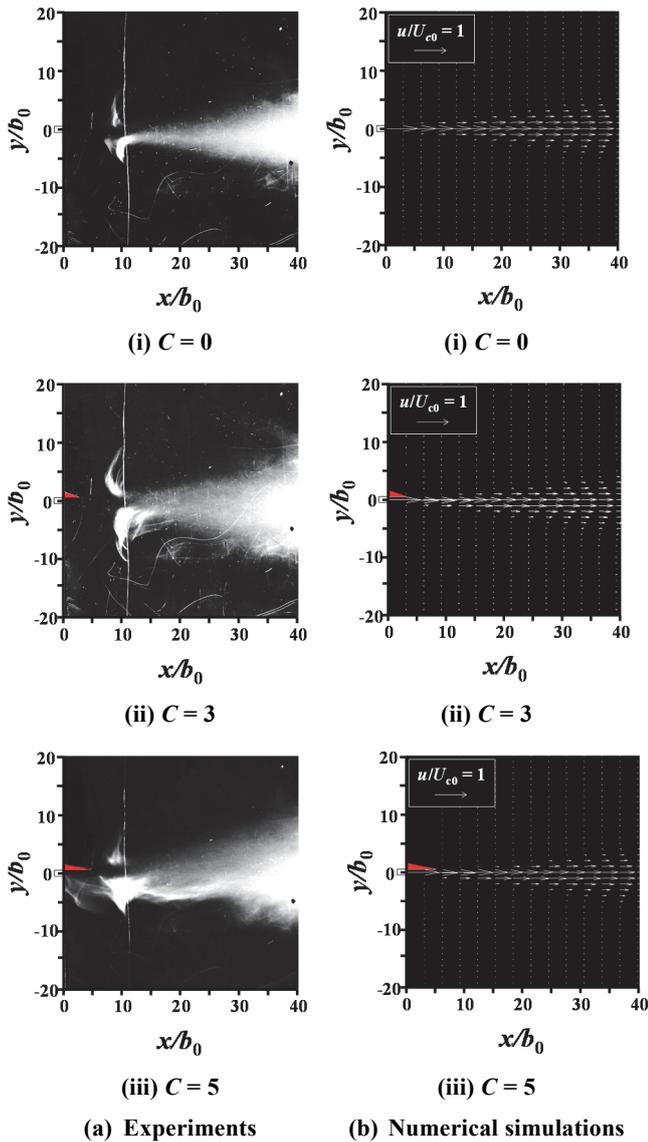


図4 連続噴流のフローパターン ( $U_{c0} = 3.0 \text{ m/s}, Re = 990$ )

それぞれ連続噴流，シンセティックジェット  $Sr = 5.00 \times 10^{-2}$  ( $f = 30 \text{ Hz}$ ) の合成ジェット，シンセティックジェット  $Sr = 1.67 \times 10^{-2}$  ( $f = 10 \text{ Hz}$ ) の場合である．図中，パラメータの無次元くちばし長さ  $C = 0, 3, 5$  は，それぞれ丸，四角，三角でプロットされている．連続噴流および  $Sr = 1.67 \times 10^{-2}$  のシンセティックジェットの噴流中心（最大速度）は，いずれの  $x/b_0$  においても無次元くちばし長さ  $C$  と無関係に，ほぼスロット中心線上 ( $y/b_0 = 0$ ) に位置している様子が見られる．一方，シンセティックジェット  $Sr = 5.00 \times 10^{-2}$  では非対称スロット  $C = 3, 5$  の時に噴流中心は反くちばし方向に明らかに偏向する．さらに，無次元くちばし長さ  $C$  が長くなるほど，スロット中心線からの噴流中心までの距離が増加することが見て取れる．なお，これらの結果は図2の速度ベクトル図の結果と一致している．

図8はスロット中心線上にある計測点 ( $x/b_0 = 10, y/b_0 = 0$ ) における  $x$  方向速度  $u$  の値を無次元周波数  $Sr$  と無次元くちばし長さ  $C$  のマップ上に示した実験結果である．噴流が偏向せずに直進する場合には  $u$  は大きな値と

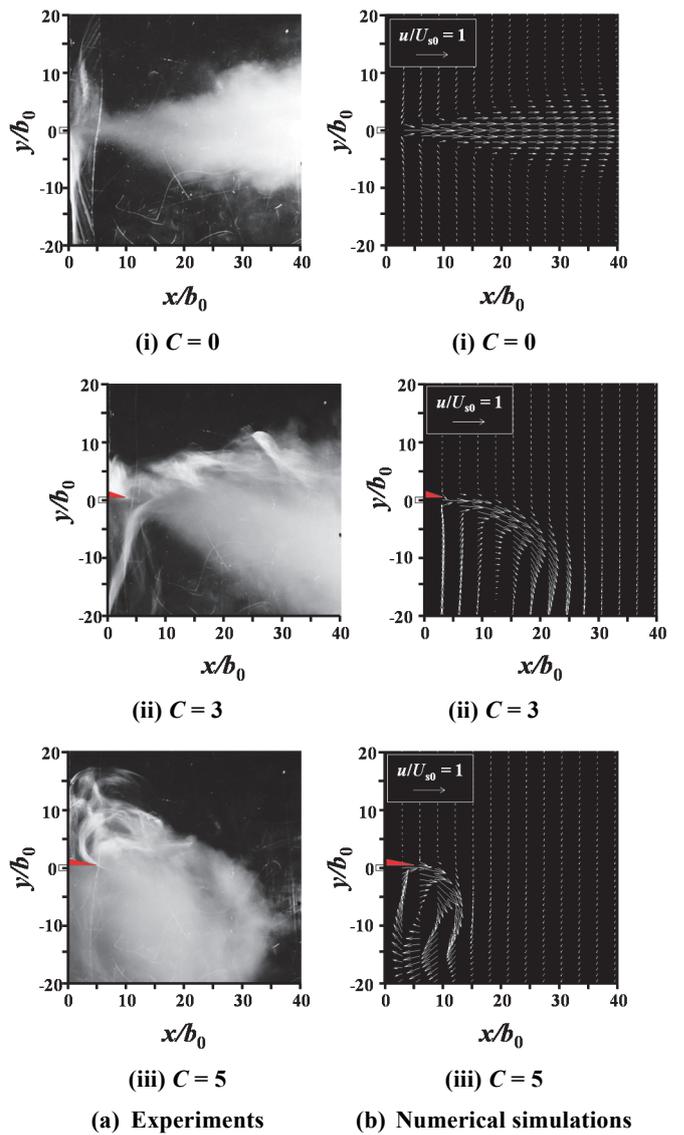


図5 シンセティックジェットのフローパターン ( $Sr = 5.00 \times 10^{-2}, f = 30 \text{ Hz}, U_{s0} = 3.0 \text{ m/s}, Re = 990$ )

なり，偏向して噴流中心が計測点から離れるほど小さな値を示すはずである．すなわち本図は本実験範囲での噴流偏向度を  $Sr-C$  マップ上に示したものである．本図からシンセティックジェットの進行方向は無次元周波数  $Sr$  と無次元くちばし長さ  $C$  の両方に依存していることが明らかである． $C = 0$  を除く同一無次元くちばし長さ  $C$  について見ると，無次元周波数  $Sr$  の増加とともに噴流偏向度が増加していることがわかる．ところで， $Sr = 0.1$  線上の値を見ると， $0 < C < 3$  の範囲では  $C$  の増加とともに偏向度が増し， $3 < C < 5$  の範囲では  $C$  の増加とともに偏向度が減少する．これは  $Sr = 0.1$  および  $C = 5$  の条件下では，放出された渦が千鳥状に配列して再循環領域を形成しないことから，噴流は蛇行するものの時間平均噴流中心速度で考えた場合，概ね直線的に進行すると評価されるためと考えられる．しかしながら，渦の千鳥配列メカニズムの詳細については，不明な点が多く，今後さらなる研究が必要である．

再循環領域の大きさに及ぼす無次元周波数  $Sr$  の影響を調べるため，図9に  $y$  軸（図2参照）に相当する壁表

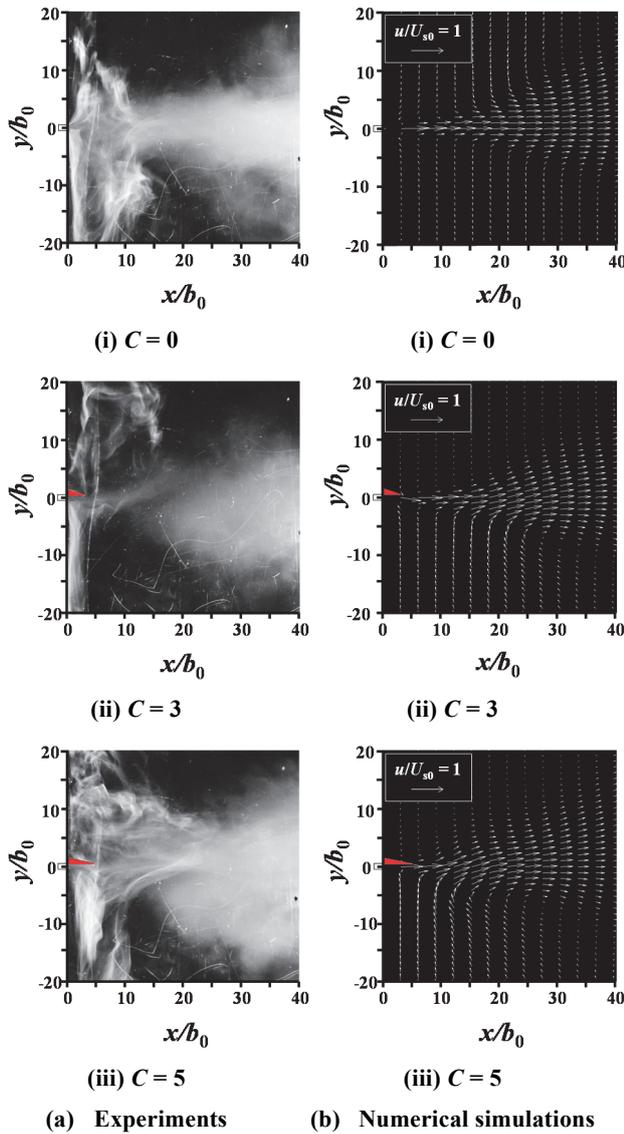


図6 シンセティックジェットの流れパターン ( $Sr = 1.67 \times 10^{-2}, f = 10 \text{ Hz}, U_{s0} = 3.0 \text{ m/s}, Re = 990$ )

面でのよどみ点  $y_{st} / b_0$  と無次元周波数  $Sr$  の関係を示す。本図における無次元くちばし長さは  $C = 3$  である。なお、ここでは  $x / b_0 = 1$  の線上で時間平均  $y$  方向速度  $v = 0$  となる点を便宜上、よどみ点と定義する。また、 $Sr < 5.83 \times 10^{-2}$  ( $f < 35 \text{ Hz}$ ) では計測領域 (長さ  $74b_0$  の壁上) によどみ点が存在しないことを確認している。無次元周波数が低い場合には噴流中心の曲率が小さくなるため再循環領域が形成されず、壁面上によどみ点は現れない。本条件ではよどみ点からスロット中心までの距離 (概ね再循環領域の  $y$  方向長さに相当) は  $0.066 < Sr < 0.092$  の範囲で  $Sr$  の増加とともにほぼ直線的に増加し、 $Sr > 0.092$  においても勾配はかわるものの増加傾向にあることがわかる。このことは図8でスロット中心線上での速度が小さくなるために正確に特性を示すことができなかった高周波数領域でも噴流中心の曲率は  $Sr$  に依存することを意味している。これらの結果は、シンセティックジェットを利用した推進体は非対称スロットを適用することで幾何形状を変化させることなく周波数調整のみで姿勢制御可能であることを示唆している。

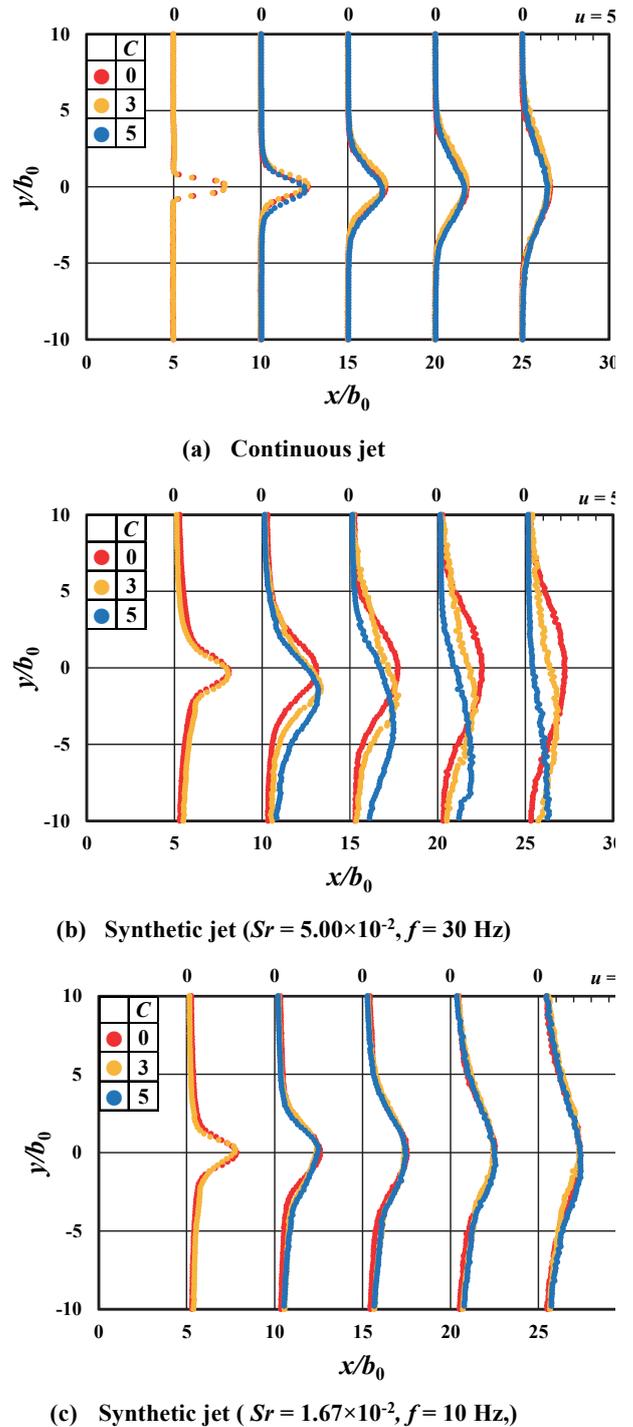


図7 連続噴流およびシンセティックジェットの時間平均速度分布 ( $U_{e0} = U_{s0} = 3.0 \text{ m/s}, Re = 990$ )

### 5. 結言

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、くちばし形状非対称スロットにより生成された2次元シンセティックジェットの基本的流動特性について実験並びに数値解析を用いて解明を試みた。主として実験的に得られた速度分布計測および流れの可視化と数値解析で得られた速度ベクトルを示し、シンセティックジェットの挙動に及ぼすくちばし長さ (非対称性) および無次元周波数 (振動特性) の影響に着目して議論を展開し、シンセティックジェットと連続噴流の流動特性の同異についても検討した。主な結

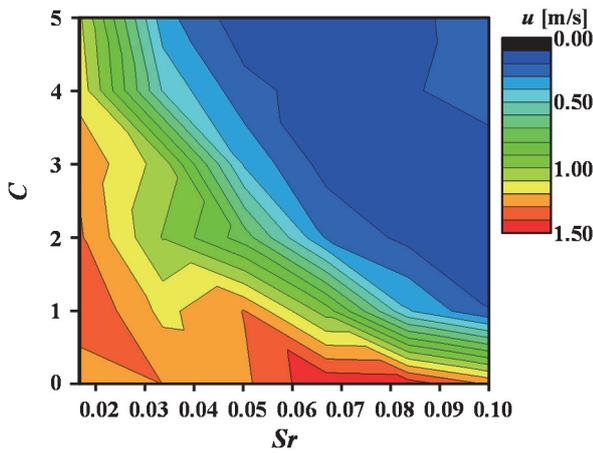


図8 下流 ( $x/b_0 = 60$ ) におけるスロット中心線上流速のx方向成分によるコンターマップ ( $U_{s0} = 3.0$  m/s,  $x/b_0 = 60$ ,  $Re = 990$ ).

論として、連続噴流はスロットの非対称スロット形状と無関係にほぼ直線的に進行するのに対して、シンセティックジェットは非対称スロットのくちばし長さおよび無次元周波数に依存し、偏向する場合があること、くちばし長さおよび無次元周波数がともに大きい場合には反くちばし側に再循環領域が形成されること、同一くちばし長さ ( $C=3$ ) に対して無次元周波数が大きくなるにしたがって再循環領域は小さくなる (噴流の曲率が大きくなる) こと、噴流が偏向することはシンセティックジェット特有の現象であることなどがわかった。

これらの結果からシンセティックジェットを利用した推進体では非対称スロットを適用することで幾何形状を変化させることなく周波数調整のみで姿勢制御可能であることが示唆された。

### 謝辞

本研究の実験および計算には元工学院大学大学院 渡部裕介 君、工学院大学大学院 小林 亮太 君に協力を頂きました。また、報告書作成には工学院大学大学院 寺門宏明 君の助力を得ました。ここに記して謝意を表します。

### ①査読付き論文

- Tomita, Y. and Sato, K., Pulsed jets driven by two interacting cavitation bubbles produced at different times, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol. 819, pp. 465-493, 2017.5 [DOI: 10.1017/jfm.2017.185]
- 西部光一, 野田和希, 片平渉, 高橋政行, 大上浩, 佐藤光太郎, 小型多段遠心ファンの空力特性に関する実験的研究(羽根車・戻り羽形状の影響), 日本混相流学会「混相流」30 巻 5 号, 483-490 頁, 2017.3 [DOI: 10.3811/jjmf.30.483]
- 姜東赫, 西部光一, 佐藤光太郎, 横田和彦, 渦法によるシンセティックジェットの流動特性に関する研究, 日本機械学会論文集, 第 82 巻, 第 839 号, pp.1-12, 2016.7 [DOI: 10.1299/transjsme.16-00163]
- Watabe Y., Sato K., Nishibe K., Yokota K., The Influence of an Asymmetric Slot on the Flow

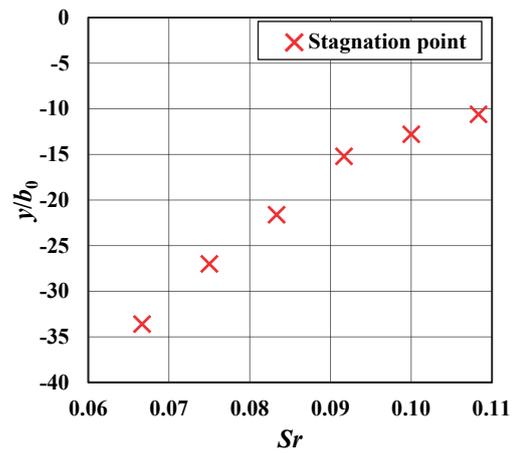


図9 レーザードップラー流速計により計測された壁面近傍のよどみ点 ( $C = 3$ ,  $U_{s0} = 3.0$  m/s,  $x/b_0 = 1$ ,  $Re = 990$ ).

Characteristics of Synthetic Jets. Springer Proceedings in Physics, vol 185. Springer, Cham, pp 101-107, 2016 [DOI: 10.1007/978-3-319-30602-5\_13]

- Ishizawa T., Sato K., Nishibe K., Yokota K., Performance Characteristics of a Fan Using Synthetic Jets. Springer Proceedings in Physics, vol 185. Springer, Cham, pp.109-115, 2016 [DOI:10.1007/978-3-319-30602-5\_14]
- 姜 東赫, 横田 和彦, 佐藤 光太郎, 鰭ポンプの性能特性に関する実験的研究, 日本機械学会論文集, 第 82 巻, 第 835 号, pp.1-11, [DOI:10.1299/transjsme.15-00546] 2016.3
- 姜 東赫, 横田 和彦, 佐藤 光太郎, エルボ流路に配置された回転円柱を用いた粘性マイクロポンプの特性, 日本機械学会論文集, Vol. 81 (2015) No. 830 p. 15-00326 [DOI:10.1299/transjsme.15-00326] 2015.9
- 高橋政行, 中村慎策, 佐藤光太郎, 横田和彦, 軸流ファンの流動特性に及ぼす障害物の影響, 日本ターボ機械協会, 学会誌「ターボ機械」, Vol.43, No.6, pp.336-347, 2015.6
- Donghyuk Kang, Kazuhiko Yokota, and Kotaro Sato, Flagmill -A New Power Generator Utilizing Flexible Sheet -, *Bulletin of the JSME, Journal of fluid science and technology*, Vol.10, No.1, Paper No.14-00327, pp1-15, [DOI: 10.1299/jfst.2015jfst0005], 2015.3
- 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, pp1-12, [DOI: 10.1299/jfst.2014jfst003 3], 2014.9
- 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, pp1-12 [DOI: 10.1299/jfst.2014jfst0007], 2014.5

### ②学会発表

- Y. Arai, Y. Kasai, S. Nakamura, K. Sato, H. Otake, K. Nishibe, Influence of Inlet Guide Vanes on Performance Characteristics of Axial-flow Fan with an obstacle, The 27th International Symposium on Transport Phenomena,

- September, 2016, Hawaii, USA
2. W. KATAHIRA, K. NODA, K. NISHIBE, M. TAKAHASHI, H. OHUE, and K. SATO, Unsteady Flow Characteristics in Return Channel of Compact Multi-stage Centrifugal Blower, The 27th International Symposium on Transport Phenomena, September, 2016, Hawaii, USA
  3. Y. ISHIKAWA, Y. NOMURA, T.SAYAMA, K.NISHIBE, H. OHUE and K.SATO, Investigation of Flow characteristic of Synthetic Jet on Circular Cylinder, The 27th International Symposium on Transport Phenomena, September, 2016, Hawaii, USA
  4. Ryota Kobayashi, Koichi Nishibe, Yusuke Watabe, Kotaro Sato, Kazuhiko Yokota, VECTOR CONTROL OF SYNTHETIC JETS USING AN ASYMMETRIC SLOT, Proceedings of the ASME 2016 Fluids Engineering Division Summer Meeting, FEDSM2016, July 10-14, 2016, Washington D.C., USA [DOI:10.1115/FEDSM2016-7648]
  5. Nobuhiro Kobayashi, Koichi Nishibe, Yusuke Watabe, Kotaro Sato, Kazuhiko Yokota, FLOW AROUND A RECTANGULAR CYLINDER WITH AN ASYMMETRIC SLOT FOR SYNTHETIC JETS, Proceedings of the ASME 2016 Fluids Engineering Division Summer Meeting, FEDSM2016, July 10-14, 2016, Washington D.C., USA [DOI:10.1115/FEDSM2016-7647]
  6. Kosuke Takahashi, Fujio Hiroki, Kotaro Sato, Koichi Nishibe, SELF-EXCITED VIBRATION OF A FLAT PLATE WITH A HOLE FOR WATER FLOW, Proceedings of the ASME 2016 Fluids Engineering Division Summer Meeting, FEDSM2016, July 10-14, 2016, Washington D.C., USA [DOI:10.1115/FEDSM2016-7645]
  7. Y. Osawa, K. Ochiai, T. Ishizawa, K. Sato, H. Yoshida, Flow Characteristics inside a Cylindrical Tank with a Rotating Cylinder, The 14th International Symposium on Advanced Technology (ISAT), 2015.10, TOKYO, JAPAN
  8. Shohei Shimizu, Shinsaku Nakamura, Kotaro Sato, Kazuhiko Yokota, Influence of a blockage disk on the Performance of an Axial Flow Fan, The 13th Asian International Conference on Fluid Machinery, 7th - 10th September 2015, Tokyo, Japan
  9. Konosuke SASAKI, Koichi NISHIBE, Tamio FUJIWARA, Hiroshi OHUE & Kotaro SATO, INFLUENCE OF OSCILLATION CHARACTERISTICS ON SYNTHETIC JET STRUCTURE, INT. CONF. ON JETS, WAKES AND SEPARATED FLOWS, JUNE 16-18, 2015, KTH MECHANICS, STOCKHOLM, SWEDEN
  10. Yusuke WATABE, Kotaro SATO, Koichi NISHIBE & Kazuhiko YOKOTA, Influence of an Asymmetric Slot on the Flow Characteristics of Synthetic Jets, INT. CONF. ON JETS, WAKES AND SEPARATED FLOWS, JUNE 16-18, 2015, KTH MECHANICS, STOCKHOLM, SWEDEN
  11. Tomoaki ISHIZAWA, Kotaro SATO, Koichi NISHIBE & Kazuhiko YOKOTA, Performance Characteristics of a Fan using Synthetic Jets, INT. CONF. ON JETS, WAKES AND SEPARATED FLOWS, JUNE 16-18, 2015, KTH MECHANICS, STOCKHOLM, SWEDEN
  12. 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
  13. 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
  14. 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
  15. 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
  16. 日下部裕真, 姜東赫, 佐藤光太郎, 横田和彦, クロスフローファン流れに生じる後ろ回り流体振動に関する片壁面半径の影響, ターボ機械協会 第77回 総会講演会, 2017年5月19日 (東京・東大生産技術研究所)
  17. 鈴木健仁, 横田和彦, 姜東赫, 佐藤光太郎, 低流量領域に生じる軸流送風機の後ろ回り変動に関する研究, ターボ機械協会 第77回 総会講演会, 2017年5月19日 (東京・東大生産技術研究所)
  18. 山口裕理, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 軸流ファンの非定常流れに関する実験および数値シミュレーション, 日本機械学会, 関東支部第23期総会・講演会, 2017年3月16, 17日 (東京・東京理科大)
  19. 司馬聖大, 工藤正規, 佐藤光太郎, 西部光一, 横田和彦, 出口円管付環状翼列下流に生じる流体振動特性, 日本機械学会 第94期 流体工学部門 講演会, 2016年11月12日 (土) ~13日 (日) (山口・宇部・山口大)
  20. 大島直也, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 円管内高速旋回流の流れ特性, 日本機械学会 2016年度年次大会, 2016年9月11日(日)~14日(水) (福岡・九大)
  21. 落合慶一, 清水翔平, 高橋政行, 佐藤光太郎, 横田和彦, 軸流ファンの流動特性に及ぼす吐出側円板型障害物の影響, 日本機械学会 2016年度年次大会, 2016年9月11日(日)~14日(水) (福岡・九大)
  22. 藤原章博, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 旋回噴流に生じる非定常特性, 日本機械学会 2016年度年次大会, 2016年9月11日(日)~14日(水) (福岡・九大)
  23. 小永井拓也, 西部光一, 横田和彦, 佐藤光太郎, 回転子を伴う円筒型容器内部の流動特性, 日本混相流学会 混相流シンポジウム2016, 講演論文集2016.8 (京都・同志社大)
  24. 野村陽平, 西部光一, 富士原民雄, 大上浩, 佐藤光太郎, シンセティックジェットファンの性能特性に休止時間が及ぼす影響, 日本混相流学会 混相流シンポジウム2016, 講演論文集2016.8 (京都・同志社)

京大学 生産技術研究所)

大)

25. 野田和希, 片平渉, 西部光一, 高橋政行, 佐藤光太郎, 大上浩, 小型多段式遠心ファンの開発にむけた基礎的研究日本混相流学会 混相流シンポジウム 2016, 講演論文集2016.8 (京都・同志社大)
26. 山口裕介, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 多翼ファンに発生する後ろ向きに伝播する流体振動, 日本機械学会関東支部第 22 期総会・講演会, 2016 年 3 月 10 日～11 日 (東京)
27. 谷口祐太, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 二円板間に設置された回転円柱周りに生じる流体振動, 日本機械学会関東支部第 22 期総会・講演会, 2016 年 3 月 10 日～11 日 (東京)
28. 鈴木健仁, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 遷音速圧縮機に生じる流体変動に関する数値シミュレーション, 日本機械学会関東支部第 22 期総会・講演会, 2016 年 3 月 10 日～11 日 (東京)
29. 井上翔太, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 上流を支持された柔軟シート配置がフラッタ発電に与える影響, 日本機械学会関東支部第 22 期総会・講演会, 2016 年 3 月 10 日～11 日 (東京)
30. 笠井泰明, 清水翔平, 佐藤光太郎, 横田和彦, 軸流ファンの入口障害物により発生する不安定流れの制御, 日本機械学会北陸信越支部 第 53 期総会・講演会, 2016.3.5 (長野)
31. 大橋悠貴, 工藤正規, 佐藤光太郎, 横田和彦, 西部光二, 出口円管を伴う環状入口案内翼列下流の流動特性, 日本機械学会北陸信越支部 第 53 期総会・講演会, 2016.3.5 (長野)
32. 藤原章博, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 旋回噴流の渦の振れ回りによって発生する非定常流れの調査, 日本機械学会第 93 期流体工学部門講演会講演論文集, 2015.11.8 (東京)
33. 杉山颯, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 一様流中に置かれた翼からの循環発生に関する研究, 日本機械学会第 93 期流体工学部門講演会講演論文集, 2015.11.8 (東京)
34. 牛窪一樹, 西部光一, 富士原民雄, 大上浩, 佐藤光太郎, ピストン型アクチュエータを用いたシンセティックジェットポンプの開発, 日本機械学会第 93 期流体工学部門講演会講演論文集, 2015.11.8 (東京)
35. 江口逸実, 石澤知明, 佐藤光太郎, 西部光一, 横田和彦, シンセティックジェットファンの性能特性, 日本機械学会第 93 期流体工学部門講演会講演論文集, 2015.11.8 (東京)
36. 小林延広, 渡部裕介, 小林亮太, 佐藤光太郎, 西部光二, 横田和彦, 非対称スロットによって生成される二次元シンセティックジェットの流動特性, 日本機械学会第 93 期流体工学部門講演会講演論文集, 2015.11.8 (東京)
37. 落合慶一, 大澤康敏, 石澤知明, 佐藤光太郎, 吉田裕文, 回転円筒を伴う容器内部の流動特性, 日本混相流学会混相流シンポジウム2015 講演論文集2015.7(高知・高知)
38. 和田伸浩, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 多翼前向き羽を持つ羽根車流れに発生する流体振動, 日本機械学会 2015 年度年次大会, 2015.9 (北海道・札幌)
39. 藤原章博, 姜東赫, 横田和彦, 佐藤光太郎, 円管から放出した旋回流の非定常性に関する実験と数値計算, ターボ機械協会 第 73 回 総会講演会, 2015.5.8 (東

③特許出願  
なし

## 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

ハジャイ大学 Kan Chantrapomma

ワライラック大学 Charun Bunyakan

ワライラック大学 Suthira Thongkao

ワライラック大学 Nirattisai Rakmak

### Research on Environmental Improvement in Rehabilitated Mangrove Forests of Thailand

Yuji Sakai, Department of Environmental Chemistry and Chemical Engineering  
Jun Kobayashi, Department of Mechanical Engineering  
Shigeru Kato, Seikei University  
Yoichi Kodera, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology  
Kan Chantrapomma, Hatyai University  
Charun Bunyakan, Walailak University  
Suthira Thongkao, Walailak University  
Nirattisai Rakmak, 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 have been planted in southern part of Thailand. The present research aims to study soil chemical properties, carbon storage in soil and biomass, biomass utilization and food cycle system in these rehabilitated mangrove sites. Soil was sampled from surface to 2.0 m depth and biomass investigation (tree height, DBH and weight) was performed at all sites. Consequently, total carbon stock in mangrove planting sites was gradually increased with the increase of elapsed year. In addition, stable isotopes ( $\delta^{15}\text{N}$  and  $\delta^{13}\text{C}$ ) in marine organism such as shrimp, shellfish, crab and fish in this rehabilitated area are monitored. The concentration factor of  $\delta^{13}\text{C}$  by the measurement results in all samples indicated the diversified recurrence in rehabilitated mangrove ecosystem, but it was difficult to elucidate the detailed mechanism. Lastly, the pyrolysis gasification properties in mangroves as biomass resource was investigated.

### 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<sup>1)</sup>。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。更に近年沿岸

の mangroove (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<sup>2)</sup>。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<sup>3-6)</sup>。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<sup>4,6,7-10)</sup>。

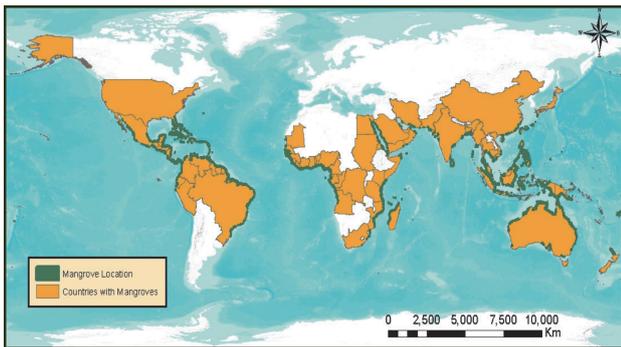


Fig. 1 Global distribution of mangrove

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

UNEP(国連環境計画)、FAO(国連食糧農業機構)及び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<sup>11)</sup>。それらの沿岸植物生態系は、地球上に約4,900万ha分布し<sup>11)</sup>、mangroove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 TgCy<sup>-1</sup>)を占めている<sup>12)</sup>。

地球上における mangroove 生育面積は約1,500万haで、タイの mangroove 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<sup>13)</sup>。そして放棄されたエビ養殖場では、mangroove 樹木による光合成での炭素固定・蓄積機能が消滅しているだけでなく、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 mangroove 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CO<sub>2</sub>やCH<sub>4</sub>として放出される<sup>7)</sup>。また、mangroove 伐採において、0.07~0.42 Gtの二酸化炭素は排出されるとの報告例もある<sup>3)</sup>。

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<sup>14)</sup>。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、このような新規堆積地域への mangroove 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<sup>15,16)</sup>。本研究プロジェクトでは、この mangroove 植林地を調査対象地としている。

また、mangroove 林は魚つき林とも称され、Gajaseniraは mangroove 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<sup>17)</sup>。mangroove 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、更に多様な微生物群の増繁殖にも関係し、mangroove 生態系における食物連鎖(Food chain)の中心である<sup>14,18)</sup>。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。更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。一方、沿岸の石の表面などで付着する底生藻類は密集して生息することが多く、そこで光合成が活発に行われると、近傍の二酸化炭素が不足して、反応で残っている「重い」二酸化炭素(<sup>13</sup>CO<sub>2</sub>)も利用する。活発に光合成する緑藻類では-10‰程度にまで上昇するが、実際の同位体濃縮機構は複雑である。

本報告では、放棄されたエビ養殖池跡地への mangroove 植林地域、新規堆積土壌での mangroove 植林地域、上記植林地域から北部に位置する mangroove 原生林調査地における土壌化学性、土壌中炭素・窒素含有量及びバイオマス量(地上部、地下部)における結果を議論する。更に、放棄されたエビ養殖池跡地への mangroove 植林による生物多様性における増進効果を評価するため、mangroove 植林後に回帰してきている魚介類分布・生息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( $\delta^{15}\text{N}$ )及び炭素( $\delta^{13}\text{C}$ )の存在比から食物網の推定を行い、mangroove 植林の魚類の回帰について検討を行う。本年度は、回遊性魚類と mangroove 樹木を対象とする。最後に、mangroove を再生可能エネルギーの一つとして着目し、その資源的な価値について検討を行うため、

数種のマングローブを用いて熱分解ガス化実験を行い、発生ガス組成や残渣量などについて明らかにし、バイオマスエネルギーとしての可能性について検討を行う。

## 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、首都バンコクから陸路で約 800 km 南に位置するナコンシタマラート(Nakhon Si Thammarat (NST))県(北緯 8°00'~9°19'、東経 99°15'~100°15')にあり、南部タイ半島部のシャム湾側に面して、総面積は 9,942.5 km<sup>2</sup>、海岸線長は 225 km である。ナコンシタマラート市東部海岸は、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。ナコンシタマラート県の気象は熱帯モンスーン型で、年間総雨量は 1,900-2,400 mm であり、モンスーン季の降雨量はその約 60%である。

対象試験区として、タイ南部ナコンシタマラート(NST)近郊での放棄エビ養殖池での植林地域(1998、1999、2000、2004 年植林試験区)(Fig. 2 c)、新規堆積土壌での試験区(2005、2007、2009、2012、2013 年植林試験区)(Fig. 2 b)及び上記試験区より北部(Kahnom)にある原生林にて川から 3 区分(Zone I、II、III)設定した調査区(50m×50m) (Fig. 2 a)において土壌 pH、ORP 測定、温度測定及び土壌採取、更に植生密度、樹高、バイオマス量の測定を行った。なお、原生林ではバイオマス量調査は行っていない。

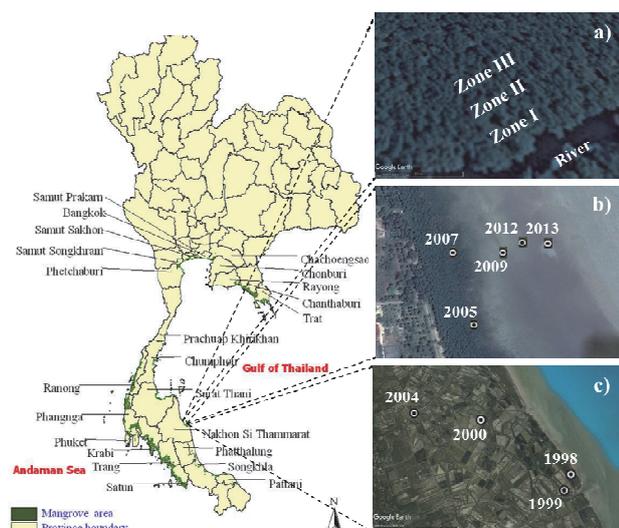


Fig. 2 Sampling sites in mangrove afforestation and virgin forest of Nakhon Si Thammarat (NST) in Thailand (2016) (a) virgin forest, b) new mud flat, c) abandoned shrimp pond).

### 2.2 土壌サンプリング方法

放棄エビ養殖池植林地域(1998、1999、2000、2004 年植林試験区)、新規堆積土壌試験区(2005、2007、2009、2012、2013 年植林試験区)及び原生林調査区 3 区分(Zone I、II、III)(川から陸にかけて 3 区分、Zone 内 4 区画×3=12 区画)において、3 地点ずつ、検土杖を用いて地表部から 200 cm まで 10 cm 毎に土壌数グラムをサンプリングした(100 cm 以下は 50 cm 毎)。また土壌採取地点付近にて、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地点の植林年、経過年数、位置情報は、Table 1(放棄エビ養殖池における植林地)、Table 2(新規堆積土壌における植林地)及び Table 3(原生林調査区)に示す。

Table 1 Latitude and longitude of soil sampling and measurement in five mangrove planting sites at the abandoned shrimp ponds (NST).

Planting year [year]	Investigation year [year]	Elapsed year [year]	Latitude	Longitude
1998	2016	18	N08°31'02.18"	E100°02'37.97"
1998	2014	16	N08°30'54.90"	E100°02'50.40"
1999	2016	17	N08°30'59.67"	E100°02'38.16"
2000	2015	15	N08°31'15.87"	E100°01'44.37"
2004	2014	10	N08°32'23.50"	E099°59'17.30"

Table 2 Latitude and longitude of soil sampling and measurement in five mangrove planting sites at the new mad flat soil (NST).

Planting year [year]	Investigation year [year]	Elapsed year [year]	Latitude	Longitude
2005	2016	11	N08°37'11.88"	E99°57'25.37"
2007	2016	9	N08°37'17.87"	E99°57'22.57"
2007	2015	8	N08°37'20.36"	E99°57'25.44"
2009	2015	6	N08°37'19.86"	E99°57'24.83"
2012	2016	4	N08°37'11.88"	E99°57'25.37"

Table 3 Latitude and longitude of soil sampling and measurement in twelve mangrove plots at virgin forest (NST).

Area	Plot	Latitude	Longitude
Zone □	1	N 09°15'21. 92"	E 99°49'00. 66"
	2	N 09°15'21. 78"	E 99°49'00. 36"
	3	N 09°15'21. 48"	E 99°48'59. 98"
	4	N 09°15'21. 32"	E 99°48'59. 71"
Zone □	1	N 09°15'21. 91"	E 99°48'59. 63"
	2	N 09°15'21. 76"	E 99°49'00. 22"
	3	N 09°15'21. 84"	E 99°49'00. 52"
	4	N 09°15'22. 01"	E 99°49'00. 58"
Zone □	1	N 09°15'22. 29"	E 99°49'00. 58"
	2	N 09°15'22. 28"	E 99°49'00. 28"
	3	N 09°15'21. 99"	E 99°49'00. 15"
	4	N 09°15'22. 42"	E 99°48'59. 68"

### 2.3 バイオマス量測定

各植林試験区(1998、1999 年植林試験区(Table 1)、2005、2007、2012 年植林試験区(Table 2))にて、地上部に蓄積している炭素固定量を調査するため、マングローブにおける地上部バイオマス量の測定を行った。調査方法として、マングローブにおける各部位(葉、枝、幹、根)の重量測定、樹高及び胸高直径(DBH)の測定を行った。なお植林

されている測定対象樹種は、フタバナヒルギ(*Rhizophora apiculata*)とオオバヒルギ(*Rhizophora mucronata*)である。更に、Pak Poon にある試験区にて 1990 年に植林したマングローブ樹種についても、上記同様、樹高、胸高直径(DBH)及びバイオマス量測定を行った。原生林(Table 3)については、バイオマス重量測定は行わず、樹高及び胸高直径(DBH)の測定のみ行った。また原生林内では、生育面積(50m×50m)内の生育本数(フタバナヒルギ(*Rhizophora apiculata*)、ホウガンヒルギ(*Xylocarpus alatus*))を計測した。

## 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(200 rpm)、上澄み液を pH、EC メーター(F-50, HORIBA)及びイオン電極(1512A-10C, HORIBA)を用いて pH、EC、Na イオン濃度を測定した。更に土壌試料を乾燥炉にて 110°C で 24 時間乾燥させ、NC アナライザー(SUMIGRAPH NC-22A、NC-95A)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

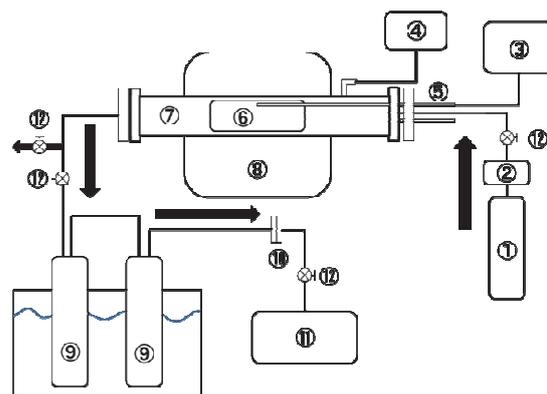
生物や生物が作り出した有機物に含まれる安定同位体の天然存在比( $\delta^{13}\text{C}/\delta^{12}\text{C}$ )及び( $\delta^{15}\text{N}/\delta^{14}\text{N}$ )は、生態系の構造やその変遷を解析する上で極めて優れた指標になる。Fig. 3 は、魚試料及びマングローブ試料採取地域を示す。本年度は回遊している魚類の採集を行い、種別の同定と採集試料中の安定同位体窒素( $\delta^{15}\text{N}$ )及び炭素( $\delta^{13}\text{C}$ )の分析を行った。各試料は 85°C の恒温乾燥機(ISUZU DRYING OVEN 2-2050, Isuzu Seisakusho Co. Tokyo)で 1 週間乾燥後、乳鉢で微粉化した。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(クロロホルム抽出)を行った。なお植物試料は Fig.3 中に示すパックプーン地区のマングローブ林のバイオマス調査に並行して採取を行った。試料中の安定同位体窒素( $\delta^{15}\text{N}$ )及び炭素( $\delta^{13}\text{C}$ )の分析には、安定同位体比精密質量分析計(Flash EA1112-DeltaV Advantage ConFloV System (Thermo Fisher Scientific Japan))で行った。



Fig. 3 Fish and mangrove sampling sites at Pak Poon mangrove estuary (NST).

## 2.6 熱分解ガス化特性評価

実験装置は横置き電気炉にステンレス製反応管を設置した構造で、密閉状態で反応管内部を移動可能なスライド機構を有しており、これにより試料を加熱部に挿入することが可能である(Fig. 4)。図中⑥では磁性ポートに試料を適量入れ、これをスライドさせることにより予熱部から加熱部へ移動させ試料を加熱した。加熱時の試料の温度変化を⑤の熱電対により計測し、③のデータロガーより記録を行った。生成したガスはアルゴンガスによって反応管外にページされ、これを冷却し凝縮成分を分離した後、ガスサンプリングバックに回収した(Fig. 4)。実験条件は、ガス化温度 600 および 700°C 一定で不活性雰囲気下(アルゴンガスのみ)及びアルゴン+水蒸気雰囲気下にて実施した。また 1 回の実験に使用する試料量は約 1 g、加熱時間は 10 分、アルゴンガス流量は 1 L/min、水供給量は 0.2 mL-liquid/min とした。ガス生成物の評価は TCD ガスクロマトグラフによる分析に基づき水素、一酸化炭素、メタン及び二酸化炭素について行い、固形残渣量の評価は実験後の試料重量より求めた。



①Arポンプ ②流量計 ③データロガー ④マイクロシリンジポンプ  
⑤熱電対 ⑥試料 ⑦ステンレス反応管 ⑧電気炉  
⑨冷却器(インピンジャー×2)⑩フィルター ⑪ガスサンプリングバック  
⑫上流弁 ⑬冷却弁 ⑭排気弁 ⑮サンプリングバックバブル

Fig. 4 Experimental apparatus of rapid pyrolysis of biomass.

## 3. 結果及び考察

### 3.1 マングローブ植林試験区でのバイオマス量調査

各植林試験区(1998、1999年植林試験区(Table 1)、2005、2007、2012年植林試験区(Table 2))にて、地上部に蓄積している炭素固定量を調査するため、マングローブにおける地上部バイオマス量の測定を行った(Fig. 5)。

Table 4 には、放棄エビ養殖池及び新規堆積土壌でのマングローブ植林地域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)の測定結果を示した。Table 4 中、経過年数 11 年より下が新規堆積土壌植林試験区でのデータである。両試験区にて植林年数の増加に伴う総バイオマス量の増加を確認出来た(Table 4)。昨年度調査した植林後 25 年経過したマングローブの総バイオマス量は非常に大きい数値を示し、特に根の部分における大量の炭素固定能を確認することが出来た。また同地域にて、植林後 25 年経過したデータである 1772 kg

<sup>18)</sup>という報告例と比較すると約2倍の値となり、当植林試験区における成長が良好であることを確認するとともに、根部分の精確な測定結果の総量への貢献が大きいことも分かった。また、Satyanarayana らの報告 <sup>19)</sup>から、植生状況を 1,000 trees/ha と仮定すると、25 年後には、3,609 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) <sup>20-22)</sup>と比較して非常に高い数値が得られた。



Fig. 5 Measurement of tree height and weight in mangrove planting site.

Table 4 Measurement data of biomass in fresh weight in mangrove planting sites at the abandoned shrimp ponds and new mud flat.

Elapsed year [year]	Total [kg]	Leaves [kg]	Branch [kg]	Trunk [kg]	Root [kg]	Height [m]	Girth [cm]	DBH [cm]
26	2644.1	125.2	455.6	1568.4	494.9	20.2	62.5	10.0
25	3609.2	157.6	314.3	2379.1	758.2	23.3	61.8	9.8
18	841.8	63.0	173.0	292.8	313.0	10.5	35.0	5.6
17	633.4	33.0	77.0	81.4	442.0	7.6	32.0	5.1
16	670.3	50.2	152.6	231.5	236.0	9.5	36.0	5.7
15	509.0	37.0	89.6	217.1	165.3	13.3	44.5	7.1
10	717.9	63.8	114.0	181.5	358.7	7.3	28.0	4.5
11	86.2	12.2	24.7	22.4	26.8	8.2	19.0	3.0
9	35.7	5.6	8.7	8.2	13.2	7.5	14.7	2.3
8	38.4	7.5	12.0	12.5	6.4	8.2	15.5	2.5
6	9.1	1.7	2.7	3.5	1.2	5.0	7.5	1.2
5	32.0	7.0	9.0	7.0	9.0	5.2	15.0	2.4
4	27.3	3.9	4.6	4.4	14.4	4.1	8.7	1.4
3	24.0	3.7	4.4	8.5	7.4	3.0	8.0	1.3
2	10.8	1.1	1.0	2.2	6.5	2.0	5.5	0.9
1	6.3	1.0	0.7	1.6	3.0	1.7	12.0	1.9

### 3. 2 マングローブ植林試験区での土壌化学性評価

各植林試験区にて、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. 6)。

今年度調査したエビ養殖放棄池での 1999 年植林試験区での ORP 測定結果では、土壌深度が深くなるにつれて負の値をとる傾向がみられ、還元状態が進行していることがわかった。新規堆積土壌試験区では、今年度調査結果から植林後 4 年目にて表層下部にて還元状態を確認できた。また既往の報告にて新規堆積 3 年後の泥地におけるデータ <sup>23)</sup>にて地表部より還元状態になっていることが確認出来ている。

エビ養殖放棄池植林試験区において、植林後 10 年から 18 年における植林区の土壌 pH(KCl) (Fig. 7)、EC(Fig. 8)、Na イオン濃度(Fig. 9)は、表層付近にて植林経過年が長いほど減少している傾向を確認した。pH(KCl)低下は表層付近の腐植化に起因すると考え、EC 及び Na イオン濃度減少には樹木の蒸散や代謝などが原因と考えられる。また植林経過 17、18 年の試験区土壌では EC と Na イオン濃度に高い相関を確認した(Figs. 8, 9)。原生林調査区では、土壌 pH(KCl)が 1.9-3.6 となり土壌深さ 50[cm]以降では非常に低い値を示した。EC は植林試験区と近い値を示したが、Na イオン濃度は低い値を示した。これはマングローブ林の陸化に伴う海水流入の減少と長年に渡る樹木の蒸散・代謝によるものと考えられた。更に、新規堆積地域のマングローブ植林地では、植林年数が長い試験区ほど pH、EC、Na イオン濃度が低い傾向を示した。2005 年試験区(植林年数 11 年)の表層部で特異的に pH が低い値を示し、植林経過で堆積された有機物が分解されず有機酸を生成していることが原因と示唆された。また、EC、Na イオン濃度は植林年数が短い試験区は海に位置しているため高い傾向であった。更に、すべての試験区にて EC と Na イオン濃度において高い相関性が確認された。



Fig. 6 Measurement of soil pH, EC, and ORP and soil sampling in mangrove planting site.

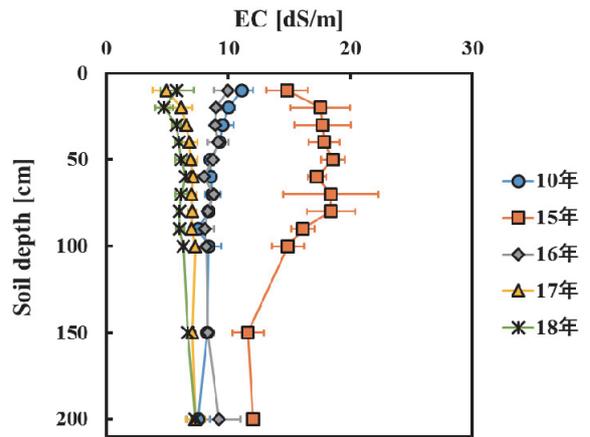


Fig. 8 Changes in soil EC in each depth after mangrove planting at abandoned shrimp ponds.

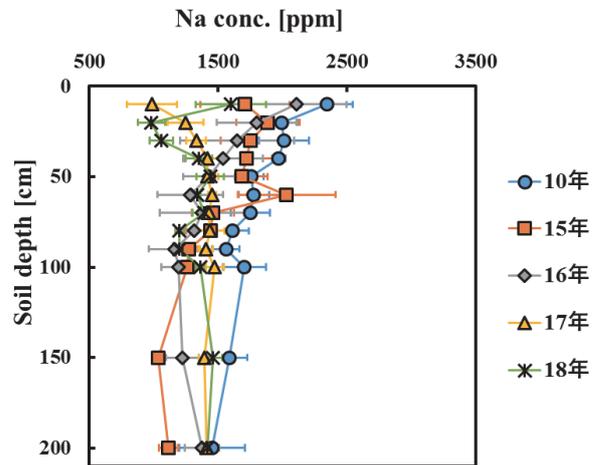


Fig. 9 Changes in soil Na concentration in each depth after mangrove planting at abandoned shrimp ponds.

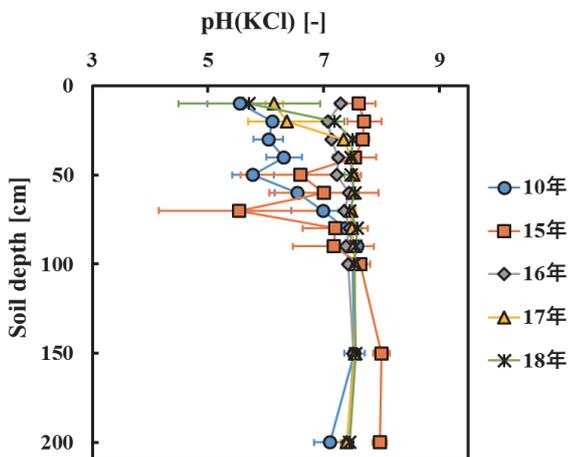


Fig. 7 Changes in soil pH(KCl) in each depth after mangrove planting at abandoned shrimp ponds.

### 3.3 マングローブ植林試験区の土壤中炭素含有量評価

エビ養殖放棄池マングローブ植林試験区及び原生林調査区での土壌深さ方向における炭素含有量の測定結果を、それぞれ Fig. 10、Fig. 11 に示す。Fig.10 では表層部(0-10 cm)にて他の深さよりも高濃度であり、17 年後までは増加する傾向を確認できた。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、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く傾向を示していると考えられる。窒素含有率については17年以降の表層部では窒素含有率が高く、樹木由来の窒素含有の植物成分が分解され、土壌中に分布していると考えられる。原生林植生地域では、各地点で深さ 40-80 [cm]で最大値をとり、川側(Zone I)から陸側(Zone III)にかけて炭素蓄積量が増加する傾向も確認出来た(Fig. 11)。土壌深部ではパイライトが多く存在し、微生物の鉄酸化細菌や硫酸化細菌が多いため炭素含有率が増加したと考えられる。

更に、原生林土壌中での炭素含有量(Fig. 11)はエビ養殖放棄池での植林試験区(Fig. 10)と比較して非常に高い値であることが分かった。

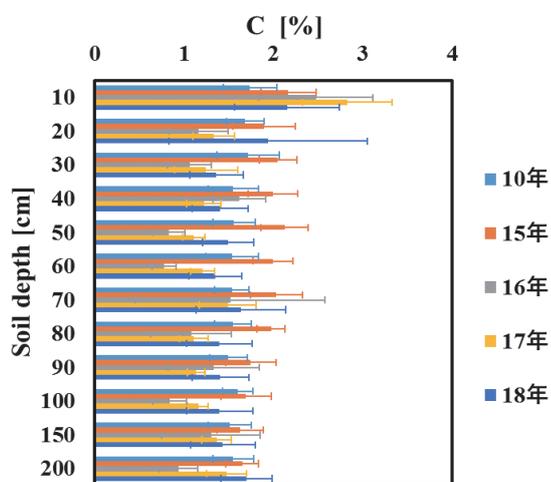


Fig. 10 Soil carbon content in each depth of mangrove planting sites at abandoned shrimp ponds.

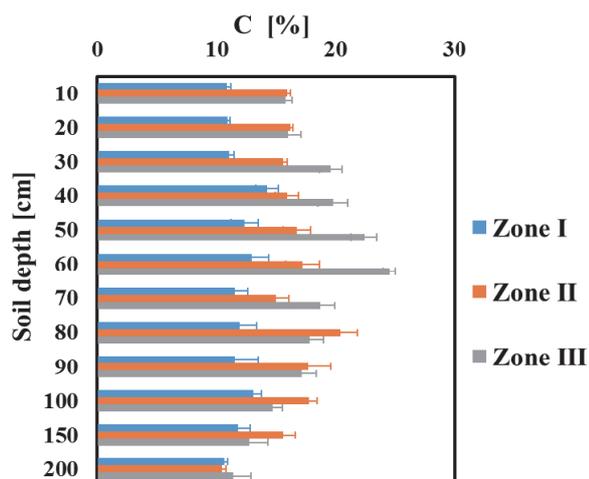


Fig. 11 Soil carbon content in each depth of mangrove virgin forest.

### 3.4 マングローブ植林試験区における炭素固定量評価

各植林試験区(エビ養殖放棄池、新規堆積土壌)及び原生林における土壌中、地上部及び地下部バイオマス中の炭素固定量を積算した結果、それぞれ Fig. 12、13、14 のようになった。また、バイオマス部位別の新鮮重量に含まれる炭素含有率は地上部・地下部バイオマスにおいて、それぞれ 0.45、0.39 と設定した。またエビ養殖放棄池での植林試験区の植生密度は 1764 本/ha、原生林植生地域の植生密度は 840 本/ha であり、新規堆積土壌の植生密度は 1500 本/ha とした。なお原生林植生地域でのバイオ

マスにおける伐倒調査を行うことが禁止されているため、調査にて計測した樹木の胸高直径(DBH)の値から Allometry 式を用いて地上部・地下部のバイオマス量を算出した。また今回使用した Allometry 式は原生林植生地域の主要構成種である *Rhizophora apiculata* の Allometry 式( $AGB(\text{地上部バイオマス量})=0.235DBH^{2.42}$ 、 $BGB(\text{地下部バイオマス量})=0.00698DBH^{2.61}$  ( $r^2=0.98$ ,  $n=57$ ))<sup>24)</sup>を用いて算出した。エビ養殖放棄池の樹木はすべて 10 年以上経過し、樹木の成熟に伴い、生育環境などにより植林試験区での差が出てきているが、同試験区である 16 年と 18 年の樹木中の炭素固定量は地上部・地下部バイオマスともに増加していることがわかった。植林試験区に比べ原生林植生地域では長年に渡り自然淘汰などにより植生密度が低く、そのため植林試験区の樹木中の最大炭素固定量より少ない値となったとされる。

エビ養殖放棄池植林試験区の総炭素固定量は 10 年以降、年々増加していく傾向を確認出来、植林経過 18 年での土壌中炭素蓄積量が最大値となり 268.8 [Mg-C/ha]となった。また原生林調査区での土壌炭素含有量が他の植林試験区と比較して高かったが(Figs. 10, 11)、特に調査地域 (Zone III)での土壌中炭素蓄積量が最大となり 1896 [Mg-C/ha]であった。また炭素蓄積量についても川側 (Zone I)から陸側 (Zone III)にかけて炭素蓄積量増加を確認した(Fig. 14)。そして原生林調査地域ではエビ養殖放棄池植林試験区の最大炭素固定量(450.6[MgC/ha](18年経過))の約 4 倍以上の炭素固定量となった(Figs. 12, 14)。本研究にて調査した原生林地域は、既報の原生林の土壌中炭素量(約 400 [MgC/ha])<sup>25)</sup>と比較すると非常に多く、放棄エビ養殖池(樹齢 10 年)<sup>26)</sup>と比較すると、当試験区(268.8 [MgC/ha])は参考値(154 [MgC/ha])<sup>26)</sup>も高い値であった。

そして新規堆積地域では植林年数が長い試験区ほど炭素固定量は増加する傾向を示し、2005 年試験区(11 年経過)では 398.6 [Mg/ha]と大幅に増加した(Fig. 13)。他の新規堆積地域での報告例では、植林年数 5 年で 160 [Mg/ha]<sup>27)</sup>、植林年数 10 年では 232 [Mg/ha]<sup>28)</sup>と本植林試験区の植林年数 2 年(312 [Mg/ha])の時点で値を超えていることから、本試験区の炭素固定能の高さを確認できた。また炭素堆積速度から植林年数約 10 年以降から炭素固定効果が確認できた。土壌の粒度測定では地表部で植林年数が 2 年から 11 年で粘土、シルトの増加が確認されたことが起因している可能性が示唆された。

以上の結果から、エビ養殖放棄池と新規堆積土壌でのマングローブ植林における地上部、地下部バイオマス及び土壌中の炭素固定量の経年における増加を確認することが出来、原生林試験区における炭素固定量の値から植生年数の増加に伴う更なる炭素固定能の増加が見込まれることも示された。

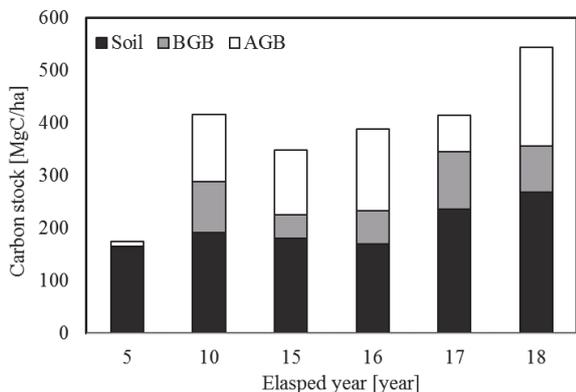


Fig. 12 Changes in carbon stock in mangrove planting sites at abandoned shrimp ponds.

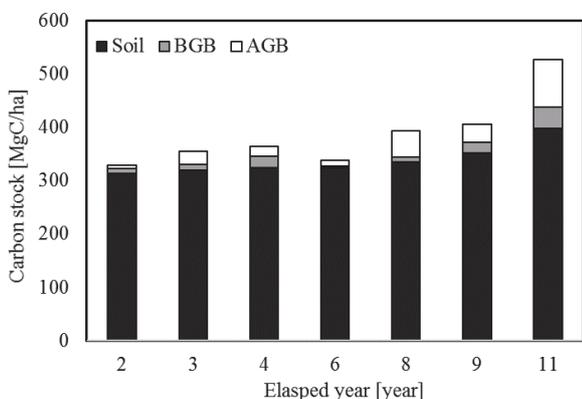


Fig. 13 Changes in carbon stock in mangrove planting sites at new mud flat.

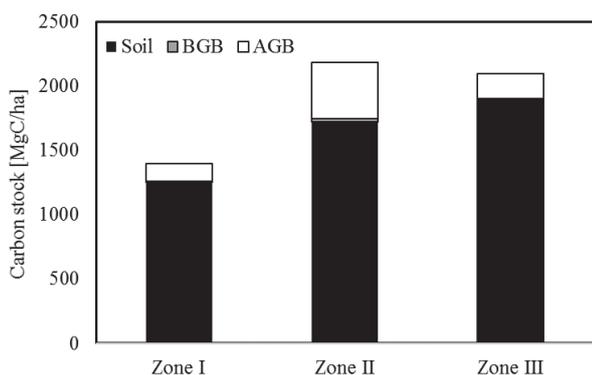


Fig. 14 Changes in carbon stock in mangrove planting sites at virgin forest.

### 3. 5 魚類試料中の窒素同位体比分析

マングローブ植林後の魚介類の回帰について安定同位体比の分析による検討は、生物多様性に関する評価の上で極めて重要である。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介類の全窒素同位体比は、この生態系の生産者(本研究ではマングローブ樹木)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、体内で種々の生化学的反応により不要となった窒素は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  $^{15}\text{N}$  に富み、排出される窒素は  $^{14}\text{N}$  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  $^{15}\text{N}$  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。試料魚 7 種類はパクファナン湾(Fig. 3)で採取した回遊魚で、地域の重要なタンパク源であるとともに収入源としても重要である。Table 5 に魚試料中の安定同位体炭素および窒素の濃度を示す。試料魚の  $\delta^{15}\text{N}$  値は、10.3 ~ 12.4‰ の範囲であった。*Plotosus lineatus* (Striped eel catfish) は幼魚および成魚ともに 10.3‰ であった。*Ablennes hians* (Flat needlefish) の  $\delta^{15}\text{N}$  値は 12.1‰、*Lates calcarifer* (Barramundi) の  $\delta^{15}\text{N}$  値は 12.2‰、*Eleutheronema tetradactylum* (Fourfinger threadfin) の  $\delta^{15}\text{N}$  値は 12.4‰ を示し、上記①の全窒素同位体比の約 3.3‰ TOL から推定するとおよそ 4 段階の食物連鎖の回復となるが、魚類試料中の全窒素同位体比の  $\delta^{15}\text{N}$  値からの食物連鎖評価は困難である。その要因は、魚体を構成するアミノ酸組成と生体内でのアミノ酸代謝(分解)とされる。主構成アミノ酸として、L-alanine, L-valine, L-leucine, L-glutamic acid などからなる直鎖アミノ酸を多く含む魚種では、魚体内に存在するトランスアミラーゼ(Transaminase)によりアミノ基の脱離反応が容易にそして優先的に進むことから、 $^{15}\text{N}$  を含むアミノ酸代謝産物のアンモニアや尿素として魚体外へ排出され、魚体内の  $^{15}\text{N}$  濃度は低下することから、魚試料中の  $\delta^{15}\text{N}$  値は低い値を示したことが推察できる。2015 年度研究で分析した試料には  $\delta^{15}\text{N}$  の高い値を示したカニやエビ類の構成アミノ酸としては Methionine, Phenylalanine が考えられた。これらのアミノ酸は代謝反応の初期過程においてはアミノ基が関わらないため、代謝されるアミノ酸と代謝を受けないで残留するアミノ酸の間で同位体分別が起こらず、 $\delta^{15}\text{N}$  の高い値を示したことが考えられる。Fig. 15 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食物連鎖一段階で約 3.3‰ 高くなるとされているが、本分析による窒素同位体濃縮からは生産者から消費者までの食物連鎖の段階について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を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。

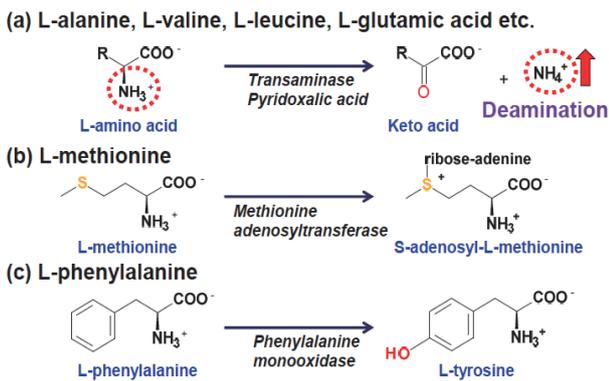


Fig. 15 Mechanism of deamination of amino acids through biological process.

### 3. 6 魚類試料中の炭素同位体比分析

パクファナン湾から採取した試料魚 7 種の  $\delta^{13}\text{C}$  値は、Table 5 に示す。パクファナン湾沿岸部に生育しているオオバヒルギ(*Rhizophora mucronata*)の地上 1.5m 葉の  $\delta^{13}\text{C}$  値は、 $-32.1\text{‰}$ であった。同樹木の樹高 24–25m の最上部葉の  $\delta^{13}\text{C}$  値は、 $-29.3\text{‰}$ であった。マングローブ樹木は旺盛に生育、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(Carbon sink)。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、雑食性魚類、肉食性魚類と捕食の連鎖が進み、生物多様な生態系が構築され、マングローブ生態系の食物網(Food web)となる。捕食者–被食者間の同位体比値の差を濃縮係数と称し、 $^{13}\text{C}$  の濃縮係数については約  $0.8\text{‰}/\text{TOL}$  (Trophic of level)( $0.8 \pm 1.1\text{‰}$ )<sup>29)</sup>の値が使用される。Table 5 は、試料魚 7 種の安定同位体炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  値を示す。最も高い濃度を示した魚種は *Rachycentron canadum* (Cobia)の  $\delta^{13}\text{C}$  値は $-14.2\text{‰}$ で、次いで、*Plotosus lineatus* (Striped eel catfish)及び *Ablennes hians* (Flat needlefish)の  $\delta^{13}\text{C}$  値は $-15.9\text{‰}$ であった。*Rhizophora mucronata* の地上 1.5m の葉における  $\delta^{13}\text{C}$  値 $-32.1\text{‰}$ を基礎炭素安定同位体比として 1TL の  $0.80\text{‰}$  で計算すると、*Rachycentron canadum* (Cobia)の TL は 22.38 段階、*Plotosus lineatus* (Striped eel catfish)及び *Ablennes hians* (Flat needlefish)の TL は 20.25 段階以上と推定される。

2015 年度報告し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で採集したカニ試料では、*Uca sp.* の  $^{13}\text{C}$  値は $-11.90\text{‰}$ 、*Grapsidao sesarmit crab* の  $^{13}\text{C}$  値は $-14.30\text{‰}$ 、*Leucosiida sp.* の  $^{13}\text{C}$  値は $-16.10\text{‰}$ 、またエビ試料では、*Odontodactylus scyllarus* の  $^{13}\text{C}$  値は $-16.40 \sim -7.90\text{‰}$ を示した。カニの *Uca sp.* の濃縮度について、マングローブ試料との差は  $14.90\text{‰}$ であったことから、1TL の  $0.80\text{‰}$  で計算すると TL の値は 25.25 となる。次いで、*Grapsidao sesarmit crab* の TL は 22.25 となり、これ

らのカニは肉食であることが推察でき、更にこの調査域では食物連鎖の高位にあることが考えられた。

Table 5 Concentration of carbon and nitrogen stable isotope in fish samples.

Sample No.	Scientific name / common name	$\delta^{13}\text{C}$ -VPDB [‰]	$\delta^{15}\text{N}$ -Air [‰]
1	<i>Plotosus lineatus</i> (Thunberg, 1787) /Striped eel catfish (young fish)	-16.5	10.3
2	<i>Plotosus lineatus</i> (Thunberg, 1787) /Striped eel catfish (adult)	-15.9	10.3
3	<i>Rachycentron canadum</i> (Linnaeus, 1766) /Cobia	-14.2	10.6
4	<i>Ablennes hians</i> (Valenciennes, 1846) /Flat needlefish	-15.9	12.1
5	<i>Lates calcarifer</i> (Bloch, 1790) /Barramundi	-16.8	12.2
6	<i>Eleutheronema tetradactylum</i> (Shaw,1804) /Fourfinger threadfin	-16.0	12.4
7	<i>Scomberomorus commerson</i> (Lacepède, 1800) /Narrow-barred Spanish mackerel	-17.1	11.2
8	<i>Parastromateus niger</i> (Bloch, 1795) /Black pomfret	-17.5	11.5

### 3. 7 安定同位体比によるマングローブ植物の水利用効率の評価

植物の水利用効率は、生態学では蒸散速度で成長速度あるいは光合成速度を除いたものと定義されている。植物の水利用効率は、気孔コンダクタンスに関係している。他の条件を均一とすると、 $\text{CO}_2$  濃度が高くなるほど光合成速度は高くなるため、気孔コンダクタンスが高くなるほど光合成速度も高くなる。しかし気孔コンダクタンスが無限大になっても外気より  $\text{CO}_2$  濃度が高くなることはなく、気孔コンダクタンスの増加に対する光合成速度の増加は頭打ちとなる。一方、植物の蒸散速度は気孔コンダクタンスに比例しており、気孔開度が増すほど出ていく水は多くなる。一定の条件では、気孔コンダクタンスが低いほど、常に光合成速度は低いが水利用効率は高い関係にある。水利用効率は光合成測定装置を用いたガス交換法で実測が可能であるが、植物体の炭素安定同位体  $\delta^{13}\text{C}$  濃度から潜在水利用効率を推定する方法がガス交換法より高頻度で利用されている。なお、潜在水利用効率は、光合成速度を気孔コンダクタンスで割った値である。炭素安定同位体  $\delta^{13}\text{C}$  を用いる方法の特徴として、次のように説明される。植物の光合成経路のカルビン-ベンソン回路において炭酸固定反応に関与する唯一の酵

素 RubisCO(ribulose 1,5-bisphosphate carboxylase/oxygenase)は、 $^{13}\text{CO}_2$ よりも $^{12}\text{CO}_2$ を優先的に同化する傾向があり、葉内の $\text{CO}_2$ 濃度が低下すると、 $^{13}\text{CO}_2$ も比較的多く同化できるようになる。植物体の $^{13}\text{C}$ 含量を測定することで、葉の光合成時における葉内 $\text{CO}_2$ 濃度の高低を推定できるとともに長期間の積算値であるとみなせる。乾燥地植物の $^{13}\text{C}$ 濃度は高く、気孔を開度を低くして水利用効率を高めていることが明らかになっている。炭素安定同位体比によって示されるのは、水利用効率そのものではなく潜在水利用効率である。

同樹木のオオバヒルギ(*Rhizophora mucronata*)葉の地上から1.5mと24-25mにおける $\delta^{13}\text{C}$ 値は、それぞれ $-32.1\%$ 、 $-29.3\%$ であった。地上1.5mの値からは、樹木の低い位置での光合成による蒸散速度は低く、潜在水利用率の低いことが考えられる。Table 6はマングローブ植物試料中の安定同位体炭素および窒素濃度を示す。一方、オオバヒルギの最も高い位置の葉の光合成は極めて旺盛であり、潜在水利用効率も高いことが考えられる。光合成で炭酸固定反応に関与する唯一の酵素RubisCOは、 $^{13}\text{CO}_2$ よりも $^{12}\text{CO}_2$ を優先的に同化する傾向がある。活発な光合成によりオオバヒルギ葉内の $\text{CO}_2$ 濃度低下が進み、 $^{13}\text{CO}_2$ も積極的に取り込み同化が進んだ結果、更に活発な光合成により大量の $\text{CO}_2$ が気孔から取り込まれ炭酸同化に使用されることから、 $^{13}\text{CO}_2$ も積極的に取り込み、地上1.5mの $\delta^{13}\text{C}$ 値に比べ $2.8\%$ 上昇したことが考えられる。

Table 6 Concentration of carbon and nitrogen stable isotope in mangrove samples.

Sample No.	Scientific name	$\delta^{13}\text{C}$ -VPDB [‰]	$\delta^{15}\text{N}$ -Air [‰]
1	<i>Rhizophora mucronata</i> (1.5 m height from ground)	-32.1	3.35
2	<i>Rhizophora mucronata</i> (24-25 m height from ground)	-29.3	3.25
3	<i>Rhizophora Apiculata</i> (1.5 height from ground)	-29.3	3.97
4	<i>Rhizophora mucronata</i> x <i>Rhizophora apiculata</i> (hybrid)	-30.8	4.85
5	<i>Rhizophora mucronata</i>	-30.1	6.16
6	<i>Rhizophora stylosa</i>	-29.7	7.88
7	<i>Bruguiera gymnorrhiza</i>	-29.1	-0.323
8	<i>Rhizophora mucronata</i> (trunk 1, wood)	-26.5	1.08
9	<i>Rhizophora mucronata</i> (trunk 2, wood)	-26.6	0.800
10	<i>Rhizophora apiculata</i> (trunk 1, wood)	-26.9	1.47
11	<i>Rhizophora apiculata</i> (trunk 2, wood)	-26.9	1.59

Sample 5, 6 and 7 were collected in Iriomote Island, Okinawa.

Other samples were collected in Nakhon Si Thammarat, Thailand.

試料番号3から7(Table 6)は、地上から約1.5mから採取した試料葉の $\delta^{13}\text{C}$ 値を示す。いずれも採取した地域に関わらず約29~30‰の範囲であった。ただし、 $\delta^{15}\text{N}$ 値は一定ではなく、樹種により光合成生産物の種類が異なり、樹体内での二次代謝に関係していることが考えられる。試料番号8から11は、オオバヒルギ(*Rhizophora mucronata*)及びフタバナヒルギ(*Rhizophora apiculata*)の $\delta^{13}\text{C}$ 値と $\delta^{15}\text{N}$ 値を示す。2樹種ともに $\delta^{13}\text{C}$ 値はほぼ同じであったが、 $\delta^{15}\text{N}$ 値については大きな差はなかった。

マングローブ試料葉の本分析結果は、マングローブ植林地の生物多様性に関して解析を進めるためには極めて重要な知見である。昨年までのマングローブ植林地の生物多様性の評価の検討には、炭素安定同位体分析の $\delta^{13}\text{C}$ として $-26\%$ を基準値として使用していた。樹木で地面に近い位置のオオバヒルギ葉は $\delta^{13}\text{C}$ として $-32.1\%$ と低く、同一(同じ)樹木で最も高い位置のオオバヒルギ葉は $\delta^{13}\text{C}$ として $-29.3\%$ であったことから、既評価に用いていた $\delta^{13}\text{C}$ とは $-6.1\%$ から $-3.3\%$ の相違が明らかになった。今後、 $\delta^{13}\text{C}$ として $-30\%$ 値を用いることで、 $^{13}\text{C}$ の生物体内への濃縮は少なくとも4段階(TL: trophic level)増えることになり、生物回帰についてより詳しく解明することができる。

### 3.8 廃棄されたエビ養殖池マングローブ植林地地区の食物連鎖

試料中の安定同位体窒素( $\delta^{15}\text{N}$ )及び炭素( $\delta^{13}\text{C}$ )の濃縮係数から捕食者の栄養段階(TOL)について推察すると、 $^{15}\text{N}$ の魚中への濃縮については、既報にある1TLで3%の濃縮が進むとされているが、本実験に用いた採集魚類試料では明確に栄養段階を明らかにすることはできなかった。この原因は、各試料魚のタンパク質構成する構成アミノ酸の違いにより、魚体内に存在するアミノ酸代謝分解酵素による脱アミノ基反応を受けやすいアミノ酸とそうでないアミノ酸に富む魚種で $^{15}\text{N}$ 濃縮が一定ではなく、 $\delta^{15}\text{N}$ 値からは栄養段階の推定は困難であった。

一方、炭素( $^{13}\text{C}$ )の濃縮係数からは、マングローブ植林地後、既に十数段階の食物連鎖がこの河川域には構築されていることがカニ試料の分析結果から推察でき、エビ類と貝類はカニに捕食されていることも推察できる。

以上より、ナコンシタマラのパクプーン地区でのマングローブ植林地効果として、多様な生物の回帰が確実に進んでいることは明らかであるが、本結果からは詳細な生産者から始まる最終消費者までの食物連鎖網の推定は出来ず、さらに精細な調査と分析・検討が必要であることが分かった。

### 3.9 マングローブの熱分解ガス化特性の検討

種の異なる5種のマングローブ(オオバヒルギ(*Rhizophora mucronata*)、シロバナヒルギ(*Bruguiera cylindrica*)、ヒルギダマシ(*Avicennia Marina*)、マヤブシキ(*Sonneratia alba*)、マヤブシキ(*Sonneratia alba*)パーク(樹

皮部分))を用いて熱分解ガス化実験を行い、発生ガス組成や残渣量などについて明らかにし、バイオマスエネルギーとしての可能性について検討を行った。

Fig. 16 に熱分解により生成されるガス化成分、液化成分及び固形残渣量を各条件にてまとめた結果を示す。600℃での熱分解挙動についてはパーク(樹皮部分)試料を除くと、気化量と固形残渣量はほぼ同様の結果を示したが、僅かながらオオバヒルギの気化量が多いことが明らかとなった。一方、700℃での熱分解挙動についてはパークも十分にガス化が進行していることが結果から明らかとなり、全体的には 600℃と比較して液化成分が減少しガス化成分が増加していることが示された。更に、水蒸気投入により固形残渣及び液化成分が減少し、ガス化成分が大きく増加することが明らかとなった。水蒸気は固形残渣中に含まれる炭素や液体成分と反応することで水素及び一酸化炭素を生成することが明らかとなり、本実験においても同様の傾向を示すことが明らかとなった。

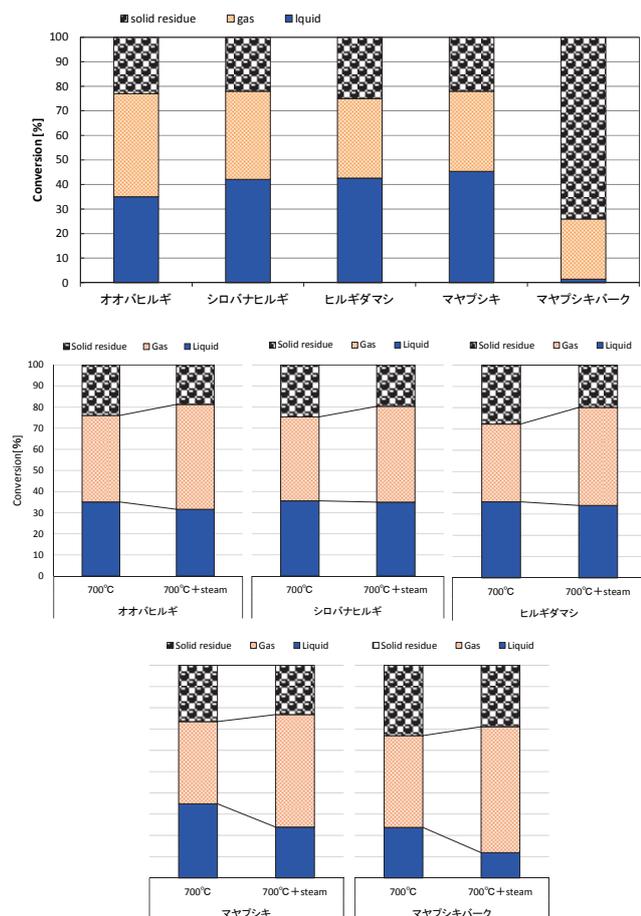


Fig. 16 The quantity of gas, liquid and solid residue of various mangroves (600℃, 700℃, 700℃+steam).

次に、生成した熱分解ガス中の成分組成を検討した(Fig. 17)。TCD による分析の結果、可燃性気体成分として主に含まれていたものは、水素、一酸化炭素及びメタンであり、それ以外の炭化水素類は検出されなかった。

600℃の加熱条件ではガス化反応も十分に進行せず、比較的二氧化碳が多く生成していることが分かるが、700℃にすることで可燃性気体成分が大幅に増加すると共に二氧化碳が減少することが明らかとなった。更に 700℃の加熱条件下において水蒸気を供給した場合、水素生成量が大幅に向上していることが分かり、特にマヤブシキ(Sommeratia alba)及びマヤブシキパークでその傾向が顕著であることが示された。樹皮は酸素含有量が低く炭素および水素含有量が比較的高いことから、水蒸気改質の促進により水素生成量が増加したのと考えられる。さらに、樹皮に含まれる灰分が触媒的な作用をもたらした可能性もあり、この点についても十分検討する必要がある。

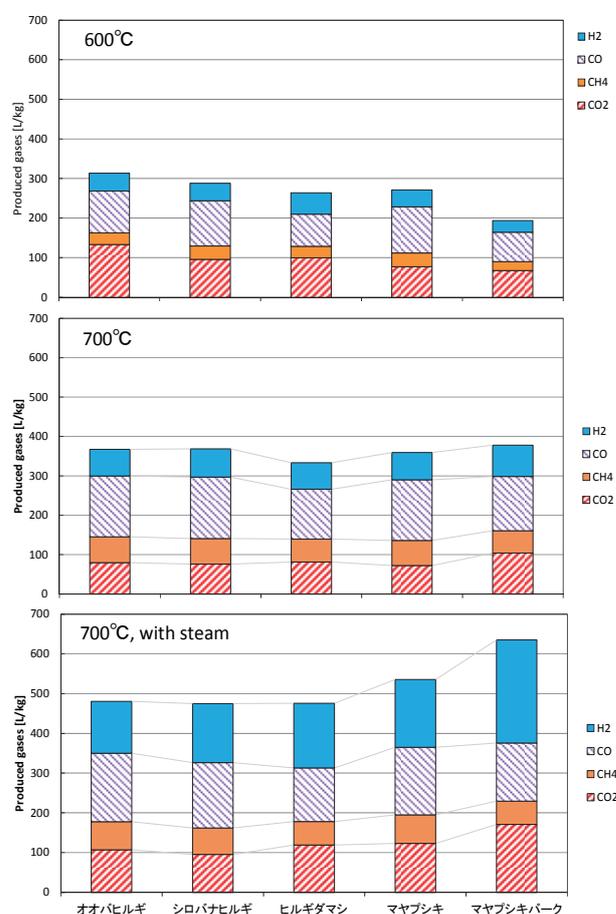


Fig. 17 Composition of produced gas in various mangroves under different conditions (600℃, 700℃, 700℃+steam).

次に、生成ガス組成より算出される生成ガスの全発熱量をまとめた結果を Fig. 18 に示す。なお、当該計算においては可燃成分である水素、一酸化炭素及びメタンのみを考慮し、その組成比に基づき単位試料重量当たりの発熱量として求めている。600℃と 700℃を比較すると、全体的に熱分解温度が高いほど発熱量も高くなる傾向を示し、水蒸気を導入することでさらに発熱量が増加することが明らかとなった(Fig.18)。樹種による影響については各条件下で異なり、特にマヤブシキ(Sommeratia alba)パークについては、比較的低温では発熱量が小さいが比

較的高温では他の樹種と比較しても大きく発熱量が異なることはなく、水蒸気を用いることで最も発熱量が高くなる傾向を示した。なお、これらマングローブの元の発熱量は明らかとなっていないが、杉の発熱量が概ね 18 MJ/kg であることを考慮すると、現状では元の熱量の半分も気体燃料に転換しておらず、変換効率の更なる向上を目指す必要がある。

以上、種類の異なるマングローブを用いて熱分解ガス化実験を行った結果、可燃性ガス成分を生成することが明らかとなった。また、加熱条件のみならず樹種によっても生成ガス成分が若干異なり、結果として生成ガス発熱量に差が生じることも明らかとなり、マングローブの再生可能エネルギーとしての適用性が示されると共に、その利用には樹種の特性を十分に把握しておく必要があることが示唆された。

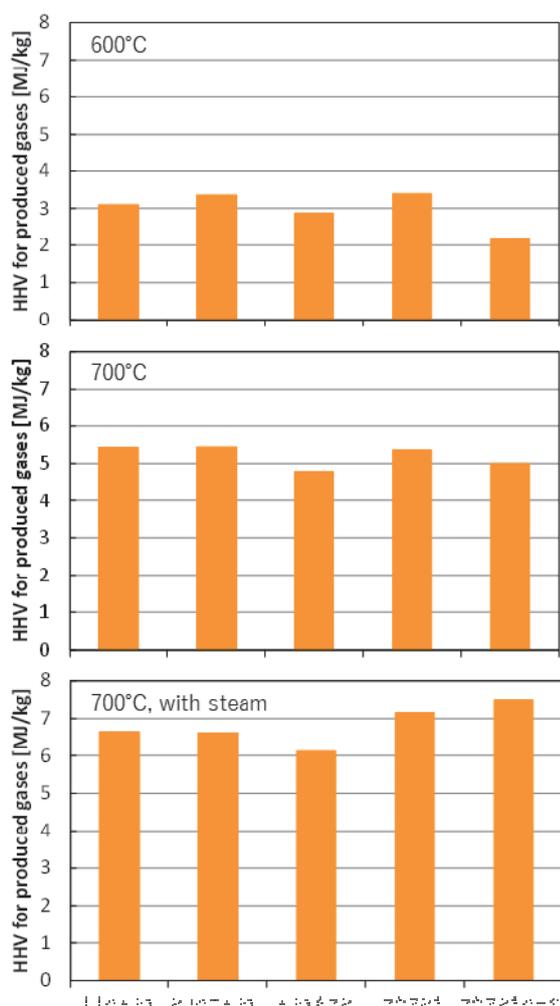


Fig. 18 HHV for produced gases from various mangroves (600□, 700□, 700□+steam).

#### 4. まとめ

タイ南部ナコンシタマラート県でのエビ養殖放棄池と新規堆積土壌でのマングローブ植林地域及びマングローブ原生林調査地にて、マングローブ植生地域における土

壤化学性、土壌中炭素・窒素含有量、更に地上部と地下部のバイオマス調査を行った。その結果、植林経過に伴う土壌中還元状態の進行、pH 低下、EC 減少といった土壌環境における変化を確認出来、また土壌中炭素及び窒素含有量の経年変化では表層部への炭素蓄積量の増加を確認することが出来た。また地上部、地下部バイオマス調査により、エビ養殖放棄池と新規堆積土壌における植林地域での経年による生長かつ炭素量増加と現在の炭素蓄積量を把握することが出来た。更に原生林での調査結果から、生育土壌中の非常に高い炭素固定能を確認出来、今後の炭素固定ポテンシャルの推算においても非常に貴重なデータを得ることが出来た。本研究のように長期間、現地での植林試験区における正確な実測データによる報告例は少ないため、本研究での実測データは極めて貴重である。更に、マングローブ植生地域、植生面積や生育データなども含め、今後も現地にて継続して評価を行い、Blue Carbon としてのマングローブ植生地域における炭素蓄積量を精確に検討していく予定である。

次に、一次生産者から終消費者までの食物網を推定することで破壊された生態系の修復段階を推定することが可能であるため、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生物多様性増進の効果を評価してきた。植林後の各種生物試料中の安定同位体窒素( $\delta^{15}\text{N}$ )及び炭素( $\delta^{13}\text{C}$ )の存在比から食物網の推定を行ってきた。その結果、生物試料中の窒素・炭素同位体比にて炭素の濃縮係数からはマングローブ植林後、既に十数段階の食物連鎖がこの河川域には構築されていることがカニ試料の分析結果から推察出来た。今年度調査した魚類の回帰については詳細なメカニズムまで解明を行うことは出来なかったが、ナコンシタマラのパクブーン地区でのマングローブ植林効果として、多様な生物の回帰が確実に進んでいることは明らかであり、今後も更に精細な調査と分析・検討を続けていく予定である。

上記のようなマングローブによる環境改善及び生態系回復効果の検討とは別に、マングローブを再生可能エネルギーの一つとし、資源的な価値を検討するため、数種のマングローブを用いてバイオマスエネルギーとしての可能性を検討した。種類の異なるマングローブを用いて熱分解ガス化実験を行った結果、可燃性ガス成分を生成することが明らかとなり、マングローブの再生可能エネルギーとしての適用性が示されるとともに、その利用には樹種の特性を十分に把握しておく必要があることが示唆された。

以上より、マングローブ植生地域における環境改善効果、高い炭素蓄積量とそれに伴う地球温暖化対策技術としての可能性、植林による沿岸生態系修復に伴う生態系回復効果及びマングローブのバイオマス資源としての今後の適用可能性を提言することで、持続的な生物資源生産及びエネルギー生産基盤構築の可能性を示す成果を得ることが出来た。

## 参考文献

- 1)Spalding, M., Kainuma, M., and Collins, L.: 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., Kurniantoand 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., Dittmar, T., and Marchand, C.: 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., Fonseca, C.V., and Grimsditch, 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, KEIDANREN 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., Pfleeger, 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, KEIDANREN Nature Conservation Fund (KNCF) Report (2013).
- 24)Komiya, A., Pongpam, S., and Kato S.: Common allometric equations for estimating the tree weight of mangroves, *Tropical Ecology*, 21, (2005) pp.471-477.
- 25)DelVecchia, A.G., Bruno, J.F., Benninger, L., Alperin, M., Banerjee, O., Morales, J.D.: Organic carbon inventories in natural and restored Ecuadorian mangrove, *PeerJ*:e388; DOI 10.7717/peerj.388 (2014)
- 26)Matsui, N., Morimune, K., Meepol, W., Chukwamdee, J.: Ten Year Evaluation of Carbon Stock in Mangrove Plantation Reforested from an Abandoned Shrimp Pond, *Forests*, 3 (2012) pp.431-444.
- 27)Siteo, A.A., Mandlate, L.J.C., and Guedes, B.S.: Biomass and Carbon Stocks of Sofala Bay Mangrove Forests, *Forests*, 5 (2014) pp.1967-1981.
- 28)MacKenzie, R.A., Foulk, P.B., Klump, J.V., Weckerly, K., Purbospito, J., Murdiyarso, D., Daniel, C., Donato, D.C., and Nam, V.N.: Sedimentation and belowground carbon accumulation rates in mangrove forests that differ in diversity and land use: a tale of two mangroves, *Wetlands Ecology and Management*, 24, (2016) pp.245-261.
- 29)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】

## ①発表論文

1) Shigeru Kato, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, Suthira Thongkao, Charun Bunyakan, Sangob Panichart, Sanit Aksornkoe, Prasert Tongnunui, Woraporn Tarangkoon, Yuji Sakai, Takuya Ito, Toshinori Kojima, Rehabilitation of abandoned shrimp ponds through mangrove plantation in Nakhon Si Thammarat, Thailand, *Environment and Natural Resources Journal* (投稿済み)

## ②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), Indonesia, Feb.3, 2015 (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), Indonesia, Feb.3, 2015

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)

4) 加藤茂, Suthira tongkao, Sanit Aksornkoe, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, Prasert Tongnunui, Woraporn Tarangkoon, Kan Chantrapromma, 酒井裕司, 鈴木誠一, 小島紀徳, 南部タイの破壊されたマングローブ生態の修復行動, 日本海水学会第 66 年会, 神奈川大学, 2015 年 6 月 4 日

5) Shigeru Kato, Savettachat Boonming, Suthira Thongkao, Kan Chantrapromma, Prasert Tongnunui, Waraporn Taraporn, Sanit Aksornkoe, Yuji Sakai, Toshinori Kojima, Rehabilitation of Abandoned Shrimp Ponds through Mangrove Planting in southern Thailand, Interdisciplinary International Conference Energy and Environmental Impact on Biodiversity and Sustainable Development, Bihar, India, Dec. 15-17, 2015 (Keynote Lecture)

6) Yuji Sakai, Suthira Thongkao, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, Toshinori Kojima, Shigeru Kato, Evaluation of carbon sequestration potential in rehabilitated mangrove forests of southern Thailand, 12th International Conference on Environment and Natural Science (ICENS), Singapore, Jan. 23, 2016

7) 柿沼賢太, 坂口湧一, Suthira Thongkao, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, 小島紀徳, 加藤茂, 酒井裕司, タイ南部マングローブ植林地域の土壌特性及び炭素固定評価, 化学工学会第 81 年会, 関西大学,

2016 年 3 月 13 日

8) 小林潤, 高橋慧輔, 加藤茂, 酒井裕司, マングローブの熱分解ガス化特性評価, 廃棄物資源循環学会研究討論会, 川崎市産業振興会館, 2016 年 5 月 27 日

9) 加藤茂, Savettachat Boonming, Suthira Thongkao, Kan Chantrapromma, Sanit Aksornkoe, 酒井裕司, 小島紀徳, Mahasaksakon Somsopap, Somsak Piriayota, 鈴木誠一, タイ国マングローブ生態系の復活への挑戦, 日本海水学会第 67 年会, 北海道登別市, 2016 年 6 月 9 日

10) Yuji Sakai, Suthira Thongkao, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, Toshinori Kojima, Shigeru Kato, Carbon storage potential in rehabilitated mangrove forests in abandoned shrimp ponds of southern Thailand, The 5th International EcoSummit Congress, EcoSummit 2016 - Ecological Sustainability: Engineering Change, Montpellier, France, Aug. 29, 2016

11) 加藤茂, 「亜熱帯・熱帯沿岸生態系と地球環境」ー塩の好きな植物マングローブが持つ力ー, ソルト・サイエンス・シンポジウム 2016, 東京, 2016 年 10 月 12 日

12) Shigeru Kato, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, Suthira Thongkao, Charun Bunyakan, Sangob Panichart, Sanit Aksornkoe, Prasert Tongnunui, Woraporn Tarangkoon, Yuji Sakai, Takuya Ito, Toshinori Kojima, Rehabilitation of abandoned shrimp ponds through mangrove plantation in Nakhon Si Thammarat, Thailand, The 2nd Environment and Natural Resources International Conference(ENRIC2016), Nov.16, 2016(優秀発表論文賞)

13) Suthira Thongkao, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, Charun Bunyakan, Sangob Panichart, Sanit Aksornkoe, Yuji Sakai, Shigeru Kato, Mangrove Forest Rehabilitation (Reforestation) in Thailand, The 11th Asia Pacific Conference on Sustainable Energy & Environmental Technologies (APCSEET 2017), Bihar, India, March 7, 2017

14) 神山昂大, 柿沼賢太, 坂口湧一, Suthira Thongkao, Savettachat Boonming, Kan Chantrapromma, 小島紀徳, 加藤茂, 酒井裕司, タイ南部エビ養殖放棄池でのマングローブ植林地域における炭素固定評価, 化学工学会第 82 年会, 芝浦工業大学, 2017 年 3 月 7 日

15) Yuji Sakai, Restoration and Rehabilitation of Degraded Ecosystems in Arid and Wet Lands, 3rd International Conference on Chemical Processes, Horticulture & Environmental Engineering (CPHEE-2017), London, March 23, 2017 (Keynote Lecture)

16) 加藤茂, Savettachat Boonming, Suthira Thongkao, Kan Chantrapromma, Sanit Aksornkoe, 酒井裕司, 伊藤拓哉, 小島紀徳, マングローブ植林による地球温暖化抑制と生物資源育成, 日本海水学会第 68 年会, 京都国際会館, 2017 年 6 月 1, 2 日

③特許出願  
特に無し



## 2. 総合研究所プロジェクト研究報告 (2017年度継続研究)



# 抗腫瘍活性を有するアレニコライドAの化学合成および医薬化学研究

工学院大学先進工学部生命化学科 南雲紳史、安井英子

芝浦工業大学工学部応用化学科 北川理

理化学研究所 園園孝介

Synthetic and Medicinal Chemical Studies of Arenicolide A with  
Antitumor Activity

Shinji Nagumo, Eiko Yasui, Department of Chemistry and Life Science, Kogakuin University

Osamu Kitagawa, Department of Applied Chemistry, Shibaura Institute of Technology

Kosuke Dodo, Riken

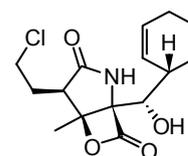
**ABSTRACT** : Arenicolide A and C are secondary metabolites of *Salinospora arenicola* possessing a 26-membered lactone ring involving 14 asymmetric centers and three characteristic conjugated (*E,E*)-diene units. Among them, arenicolide A shows moderate cytotoxicity against the human colon adenocarcinoma cell line HCT-116. Our study has achieved the construction of 26 membered lactone by using ring closing metathesis twice.

## 1. はじめに

近年、スキューバダイビングの普及によって、化学の世界でも海綿、サンゴ、ホヤ、ヒトデといった海洋無脊椎生物の存在が身近となり、それらが産生する天然物の探索にも関心が集まるようになった。海洋生物は陸上にはない環境的制限を乗り越えるため、あるいは天敵よる捕食を免れるために、陸上生物とは構造的に異なるタイプの二次代謝物を産生する。これらの中には、がんや感染症治療など様々な疾病に対するリード化合物として注目されているものも多い。ところで古くよりフグ毒として知られているテトロドキシンの真の生産者が海洋微生物であったということもあり、海洋微生物が産生する二次代謝物にも関心が高まっている。

この分野の第一人者であるカリフォルニア大学スクリプス海洋研究所の Fenical 教授は、種々の海洋放線菌より様々な二次代謝物を見出している。例えば、*Salinospora tropicana* からユニークなβラクトン構造

をとるサリノスポラミドA (Fig. 1) が単離されている。このものは細胞内において不要となったタンパク質の分解を担う20Sプロテアソームの強力な阻害活性を示すことが報告されている。また、ユビキチン-プロテアソーム系に関連するバイオツールとして広く利用されており、また多発性骨髄腫の治療薬として臨床試験が進められている。

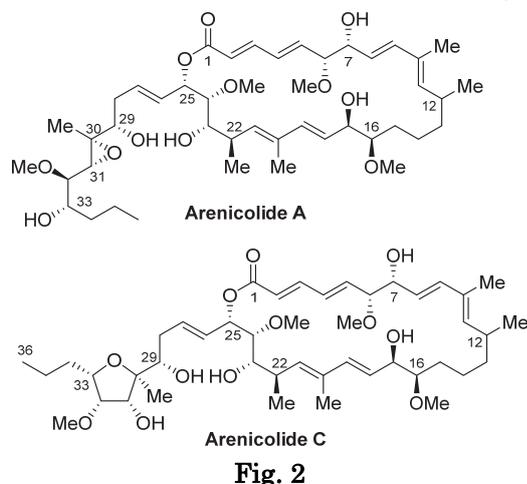


Salinosporamide A

Fig. 1

Fenical 教授は、同種族の放線菌 *Salinospora Arenicola* の発酵培地から 26 員環ラクトンと高度に酸素官能基化された側鎖を有するアレニコライドA、および

アレニコライドCを見出している (Fig 2)。このうち、アレニコライドAには結腸ガン細胞に対する中程度の抗腫瘍活性があり新規リード化合物としての期待がかかっている。アレニコライドAが示す抗腫瘍活性発現に関しては、理論計算化学により上皮成長因子 (EGF) との親和性があることは報告されているが、真の標的分子を含め作用機序の詳細については未だ明らかになっていない。その一つの原因として、アレニコライドAの海洋放線菌の発酵培地からの供給量が十分でないことが挙げられる。したがって、その作用機序の解明や構造修飾による活性増強を試みる上で、化学合成による供給が強く望まれ、我々はアレニコライド類の合成研究を行っている。

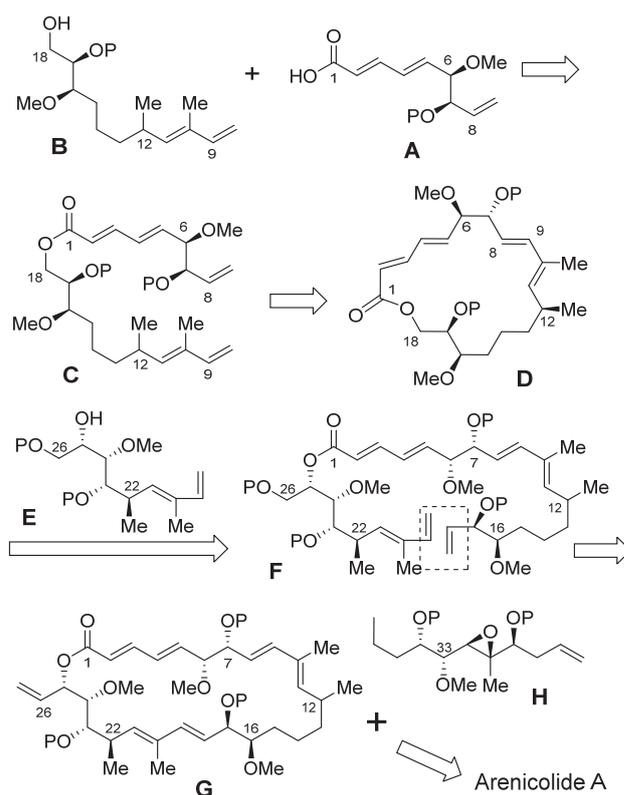


## 2. 合成計画

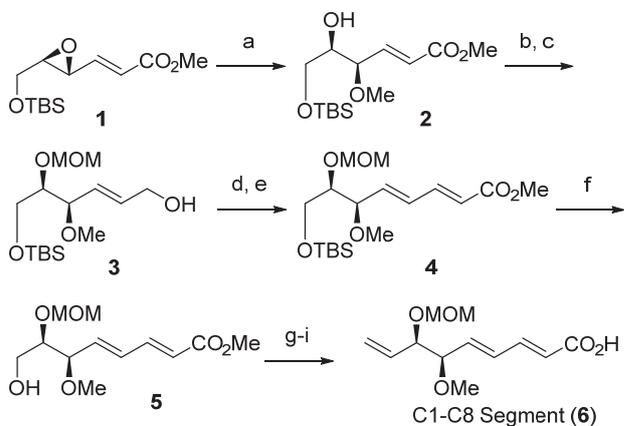
2015年度の報告書にも書いたが、我々は閉環メタセシスを繰り返す戦略で、各セグメントを連結する計画を立てている (Fig 3)。個々のセグメントとしては、C1-C8セグメント **A**、C9-C18セグメント **B**、C19-C26セグメント **E**、C27-C36セグメント **H** の4つを考えている。最初に、**A**と**B**からできるエステル**C**の閉環メタセシス反応を行う。次に、大員環ラクトン**D**とアルコール**E**から**F**を合成し、再度閉環メタセシス反応を行うことで、26員環ラクトン**G**を得る。最後に、側鎖部に相当する**H**とクロスメタセシスを行うことでアレニコライドAの全合成を達成する予定である。2015年度には、これらのうち、セグメント**E**を合成した。そこで2016年度は、セグメント**A**、**B**の合成とそれらの連結を検討した。

## 3. C1-C8セグメントの合成

既に合成している**1**をアルコキシ置換反応に付した後、MOM保護、還元により**3**へ導いた (Fig 4)。酸化後、Wittig反応により増炭することで**4**を得た。シリル基の除去後、酸化、Wittig反応、さらにエステル加水分解によりC1-C8セグメント(**6**)を合成した。



**Fig. 3**

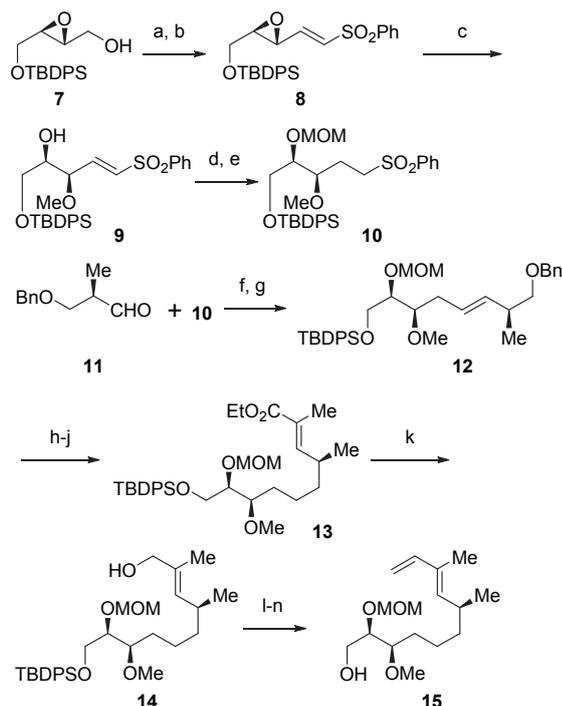


**Fig 4:** (a) Pd(OAc)<sub>2</sub>, P(2-furyl)<sub>3</sub>, B(OMe)<sub>3</sub>, THF, 81% (b) MOMCl, DIPEA, DMAP, CH<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> (c) DIBALH, THF, -20 °C 80% (2 steps) (d) Dess-Martin oxid. (e) Ph<sub>3</sub>P=CHCO<sub>2</sub>Me, 75% (2 steps) (f) AcOH, H<sub>2</sub>O, 84% (g) Swern oxid. (h) Tebbe reagent, THF, -40 °C, 42% (2 steps) (i) NaOH, H<sub>2</sub>O, MeOH

## 3. C9-C18セグメントの合成

既知の方法に従って合成したアルコール**7**を酸化した後、Horner-Emmons反応を行うことでエポキシビニルスルホン**8**を得た。パラジウム触媒存在下、B(OMe)<sub>3</sub>と反応させたところ、エポキシ不飽和エステルと同様、立体特異的にメトキシ基の置換反応が進行し、高収率で所望の**9**を得ることができた。これまで本反応は、エポキシ不飽和エステルのみで検討してきた。今回、このようにエポキシビニルスルホンにも適用できることがわかり、

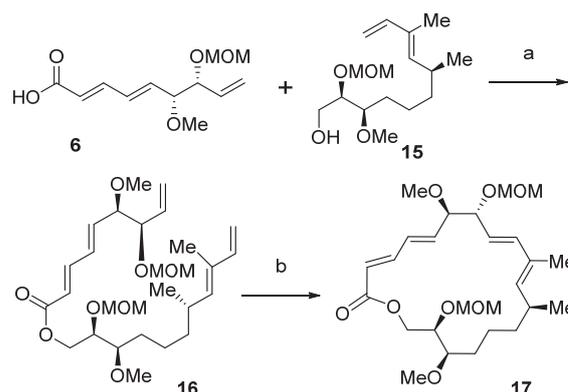
その応用範囲はさらに拡大できるものと期待している。ビニルスルホン **9** の水酸基を MOM 基で保護した後、接触水素化に付すことでスルホン **10** 導いた。化合物 **10** とアルデヒド **11** との Julia カップリングで **12** を得、脱ベンジル化後、酸化、Wittig 反応を行うことでエステル **13** へ導いた。さらに DIBAH 還元を行い、得られたアリルアルコール **14** に対して酸化、Wittig 反応を行うことで **15** を合成することができた (Fig 5)。



**Fig 5:** (a) IBX, DMSO (b)  $(\text{EtO})_2\text{P}(\text{O})\text{CH}_2\text{SO}_2\text{Ph}$ , NaH, toluene, 79% (2 steps) (c)  $\text{Pd}(\text{OAc})_2$ ,  $\text{P}(\text{2-furyl})_3$ ,  $\text{B}(\text{OMe})_3$ , THF, 80% (d) MOMCl, DIPEA, DMAP,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  (e) Pd/C,  $\text{H}_2$ , AcOEt, 64% (2 steps) (f) BuLi, AcCl, DMAP, THF,  $-78^\circ\text{C}$  to rt (g) 5% Na(Hg), MeOH, 57% (2 steps) (h)  $\text{PtO}_2$ ,  $\text{H}_2$ , MeOH (i)  $(\text{COCl})_2$ , DMSO,  $\text{Et}_3\text{N}$ ,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ ,  $-78^\circ\text{C}$  (j)  $\text{Ph}_3\text{P}=\text{C}(\text{Me})\text{CO}_2\text{Et}$ , THF, 50% (3 steps) (k) DIBAH, toluene,  $-78^\circ\text{C}$ , 93% (l)  $\text{MnO}_2$ ,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$  (m)  $\text{Ph}_3\text{P}^+\text{CH}_3 \text{Br}^-$ , KHMDs, THF,  $0^\circ\text{C}$ , 83% (2 steps) (n) TBAF, THF, 82%

#### 4. 19員環ラクトンの合成

C1-C8 セグメント **6** と C9-C18 セグメント **15** を合成できたので、椎名法によりこれらのエステル化を行った。定量的に反応は進行し、得られた **16** を第二世代 Grubbs 触媒による閉環メタセシス反応に付した。その結果、62% の収率で目的とする 19 員環ラクトンを得ることができた。化合物 **16** は、末端だけでなく内部にも複数のアルケンを有している。それにも関わらず、メタセシスは末端のアルケン同士の間で進行した。また、新たに形成されたアルケンも、望むトランスだけであった。このことは  $^1\text{H}$  NMR スペクトルで確認した。



**Fig 6:** (a) MNBA,  $\text{Et}_3\text{N}$ , DMAP,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ , quant. (b) Grubbs  $2^{\text{nd}}$ ,  $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ , reflux, 62%

#### 4. まとめ

2016年度の本課題研究で、C1-C8 セグメントと C9-C18 セグメントを合成することができた。また、閉環メタセシス反応を利用することにより、それら二つのセグメントの連結に成功した。

## 網羅的生体分子情報の高速解析システムの開発と 次世代型がん個別最適化治療法への応用

工学院大学 工学部 電気システム工学科 福岡 豊  
東京医科大学 医学総合研究所 分子腫瘍研究部門 梅津知宏 大屋敷純子

Development of Efficient and Integrative Methods for Multi-omics Data and their Application to Individually Optimized Cancer Therapy  
Yutaka Fukuoka, Department of Electrical Engineering, Kogakuin University  
Tomohiro Umezumi and Junko Ohyashiki, Department of Molecular Oncology, Tokyo Medical University

**ABSTRACT:** In this project, we are developing a fast processing system as well as an integrative analysis method for high throughput measurements, such as next generation sequencer (NGS). We are aiming at applying the developed system and method to individually optimized cancer therapy. To achieve the goal, the following three issues are addressed: 1) Effective processing of data from NGS, 2) an integrative method for various high throughput data to extract more useful information, and 3) new biomarkers for accurate diagnosis. In this report, we described our work in each of the issues.

### 1. はじめに

人口の高齢化にともない、がん患者数も増加している (Fig. 1)。2012 年の死亡者数は約 36 万人、2010 年の新規患者数は 80 万人以上と推計されている。手術、薬物、放射線などの治療法も急速に進歩しているが、死亡者数を十分に抑制できていないのが現状である。

また、多くの患者が抗がん剤の副作用に苦しんでいる。抗がん剤の治療効果に影響を与える最大の要因は、患者の遺伝的背景およびがん細胞における塩基配列の変異である。したがって、患者個々に適した抗がん剤を選択し、至適な量を投与するためには、患者個々についてゲノム情報を解読する必要がある。このように患者個人のゲノム情報を利用した治療を次世代型がん個別最適化治療とよび、その実現が切望されている。

本研究は次世代型がん個別最適化治療の実現を目指

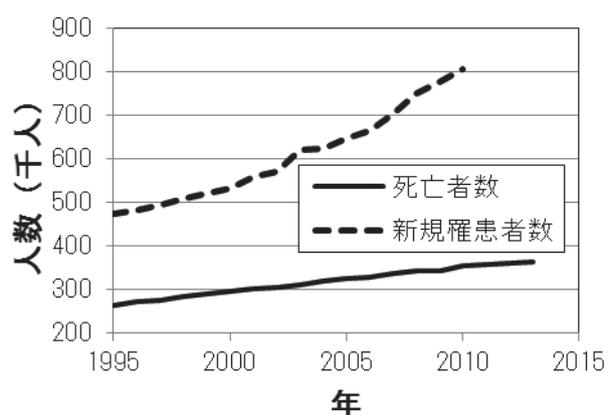


Fig. 1 Trend in the number of cancer patients (created from the statistics by the National Cancer Center).

し、以下の 3 項目を達成することを目的としている。

- (1) 次世代シーケンサー (NGS)・データを効率的に処理する方法を開発する。

- (2) 医学、生物学の先験的知識を活用し、異種データを統合的に解析する方法を開発する。
- (3) 開発した解析法をがん細胞由来のデータに適用し、抗がん剤（イマチニブ等）の治療効果判定等、次世代型がん個別最適化治療に役立つ新規バイオマーカーを開発する。

本研究では以下の実施計画に基づいて研究目的の達成を目指している。まず、NGSデータの効率的処理法と統合解析法の提案を中心に検討を進める。次に患者データ等の蓄積と解析を行い、治療効果判定等のための新規バイオマーカー候補の抽出を行う。最終的には、既存の知見等を参考にして候補を絞り込み、新規バイオマーカーとして実用化を図ることを目指す。

以下では、これまでの研究成果を中心に、(1) NGSデータの効率的処理法、(2) 異種データの統合解析法、(3) イマチニブ治療効果に関するバイオマーカーの探索について述べる。

## 2. NGSデータの効率的処理法の開発

### 2.1. はじめに

NGSはDNAの塩基（アデニン、チミン、シトシン、グアニン）の並びを分割して並列に読み取る装置である<sup>1)</sup>。NGSの登場によって個人の塩基配列を数日以内に決定することが可能になった。塩基配列の決定によって、患者個人の遺伝的背景やがんによる変異を知ることができる。しかし、30億塩基対を持つヒトの塩基配列データは、しばしばテラバイト・オーダーのビッグデータとなり、データ解析がボトルネックとなっている。

分割して読み取った配列情報（リード）を元のDNA（参照配列）にマッピングすることで、リードがどこから由来した配列であるか調べることができる。すなわち、マッピングとは参照配列に文字列を当てはめていく操作である。NGSでは、DNAを300塩基程度に分割して読み取るので、マッピングをCPU1基のみで行うと、30億の塩基から300塩基を見つける作業を何十万回も繰り返すため、かなりの時間が必要となる。この作業はリードごとに行われるので、並列化することが可能であると考えられる。

GPUはGraphic Processing Unitの略称であり、その名の通り、画像処理用に開発されたプロセッサである。近年、GPUを画像処理以外の目的に用いるGPGPUという技術が注目されており、ゲノム情報処理をはじめとする様々な分野に応用されている。GPGPUを用いて並列にマッピングを行うことで処理時間を短縮することができると考えられる。本研究では、GPGPUによる高速化の第一段階として、マッピングを行うソフトウェアの一部をGPGPU化した。

一方、塩基配列の変異のうち、特徴的なものを効率的に探索する方法も確立されていない。多くの研究では一塩基多型（SNP）を検出しているが、膨大な数の変異が存在するので、その中から意味のある情報を抽出するのが困難である。本研究では、2条件間で異なる変異のみを検出する方法によって、効率的に有用な情報を抽出できないか検討している。

以下で、2つの方法について説明する。

### 2.2. マッピングのGPGPU化

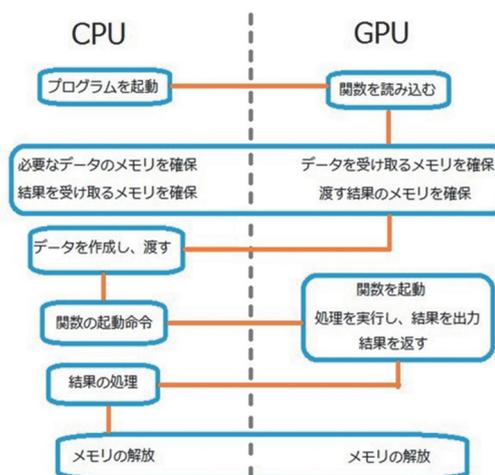


Fig. 2 Flowchart of GPGPU processing.

GPGPUプログラミングには、NVIDIA社が提供しているC/C++の統合開発環境であるCUDAを用いた。GPGPUでプログラムを実行する時の処理の流れをFig. 2に示す<sup>2)</sup>。GPUのIOに関する命令はCPUが行う。GPUとCPUはメモリを共有していないため、それぞれ必要なメモリを確保する必要がある。また、処理時間には、メモリの確保、データの受け渡しの時間も含めるものとする。

マッピングのためのソフトウェアである Burrows-

Wheeler Aligner (BWA)<sup>3)</sup>のソースファイルを入手して、一部を GPU 用書き換えた。BWA は C 言語で書かれており、プログラミング言語を変えずに CUDA での開発が可能である。今回は、BWA の処理のうち、インデックスを付ける関数の一部を GPU で処理するように書き換えた<sup>4)</sup>。

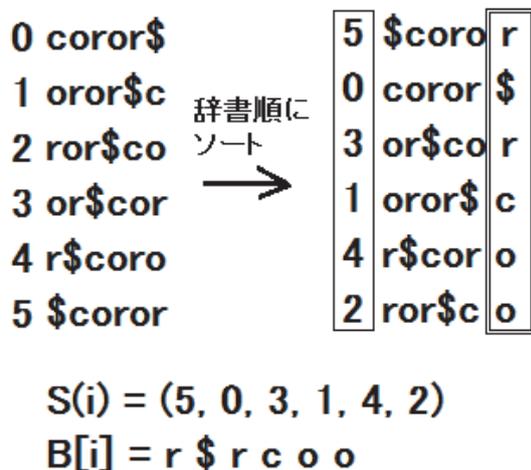


Fig. 3 Example of BWT and SA.

BWA は Li らによって開発された NGS のリード・データをマッピングするソフトウェアである<sup>3)</sup>。Suffix Array (SA) と Burrows-Wheeler Transform (BWT)<sup>5)</sup>を利用してマッピングを行う。

SA の作成は以下の手順で行う。まず、与えられた文字列の末尾に\$を挿入する。Fig. 3 の例では一番上にあるように coror の末尾に\$を挿入し、coror\$とする。次に、\$が先頭に来るまで文字列を一文字ずつシフトし、それぞれにインデックスを付ける (Fig. 3 左)。これら 6 つの文字列を辞書順にソートする (Fig. 3 右)。その際、\$はどのアルファベットよりも前に来るものとする。ソート後のインデックスの配列が SA である (Fig. 3 の S(i)が SA である)。BWT は、ソート後の配列の末尾の文字列を得る操作のことである。

Fig. 3 に示すように、文字列 coror から SA を作成すると、S(i) = (5, 0, 3, 1, 4, 2)となり、BWT 後の文字列は、B[i]= r\$rcoo となる。ただし、i = 0, 1, ..., 5 である。

これらに基づき、BWA は式 (1) を用いて、後ろの文字から数学的にマッピングを行う。式 (1) は、W という文字列の位置がわかっている (マッピングが完了

している) 場合に、aW という文字列をマッピングする計算を示している。

$$\left. \begin{aligned} \underline{R}(aW) &= C(a) + O(a, \underline{R}(W) - 1) + 1 \\ \overline{R}(aW) &= C(a) + O(a, \overline{R}(W)) \end{aligned} \right\} (1)$$

ここで、 $\underline{R}(W)$  と  $\overline{R}(W)$  は W で始まるインデックスの最小値と最大値を表している。ただし、W が空文字の場合、 $\underline{R}(W) = 1$  および  $\overline{R}(W) = n - 1$  とする (n は \$を含めた文字列全体の長さである)。C(a) は文字列全体中での a より小さい文字の個数であり、定数となる。O(a, i) は BWT 後の配列で i 番目までに文字 a が出現する回数である。

例として、coror の or をマッピングすることを考える。Fig. 3 右での r の位置から、 $\underline{R}(r) = 4$ 、 $\overline{R}(r) = 5$  であることがわかる。一方、o より小さい文字は c が 1 つだけなので、C(o) = 1である。これを式 (1) に代入すると  $\underline{R}(or) = 2$ 、 $\overline{R}(or) = 3$  となる。S(i)で i=2 のとき 3、i = 3 のとき 1 であるので、もとの文字列の 1、3 番目に or があることがわかる。このように式 (1) を用いて数学的にマッピングを行うことができる。

BWA のソースプログラムで、SA から BWT の文字列を繰り返し求める部分を GPGPU で並列化した。酵母のデータを使用して、CPU のみで計算を行う場合と GPGPU 化した場合の速度を比較した。

結果を Table 1 に示す。Fig. 2 に示すように、全体の実行時間には、メモリ確保やデータ受渡の時間も含まれている。したがって、全実行時間を比較すると大きな差はない。計算部分のみを比較すると、CPU の 70%程度の時間でマッピング処理が完了していることがわかる。

酵母のゲノム 1200 万塩基であり、30 億塩基を持つヒトと比べるとサイズが小さいので、CPU と GPGPU の差が出にくいものと考えられる。ヒトゲノムの処理を行う場合は、処理時間の差が大きくなり、GPGPU に

Table 1 Comparison of BWA executing time by CPU and GPGPU.

	全実行時間 (秒)	計算部分のみ(秒)
CPU	4.82	0.17
GPGPU	4.77	0.12

よる高速化の効果が顕著になると期待される。

### 2.3. NGS データからの特徴的変異検出法

NGS データはマイクロアレイ・データよりも膨大なため、有用な情報を抽出することはより難しくなる。そこで、遺伝子ごとに 2 条件で得られたリード・データを比較し、条件間で変異の数が大きく異なる遺伝子を抽出する方法を提案した<sup>6)</sup>。なお、マッピングには BWA<sup>3)</sup>、リシーケンシングには pindel<sup>7)</sup>を用いた。この方法を以下のデータに適用した。

測定の対象は多発性骨髄腫由来細胞株を低酸素下で長期間培養したものと通常の条件で培養したものの 2 種類である。Illumina 社 MiSeq および TruSight Cancer Panel を用いて計測したリード・データを上記の方法で処理した。抽出された遺伝子の機能を DAVID<sup>8)</sup>で解析したところ、特定の機能を持つ遺伝子が有意に多く検出された。この結果は、提案した方法によって意味のある結果が抽出できる可能性を示している。今後、その有効性についてさらに検討する。

## 3. 統合解析法の開発

### 3.1. はじめに

マイクロアレイや NGS などのハイスループットな技術を用いて網羅的に生命情報が収集されている。測定条件（患者数等）に比べて、パラメータ（遺伝子等）の数が非常に大きくなり、これまでの生体信号のように数理的な方法だけでは有用な情報を効率的に抽出できない。医学・生物学的知見を含めて総合的にデータを解釈し、正常な細胞活動の乱れとして疾患を捉える視点が求められている<sup>9)</sup>。

細胞内において遺伝子やタンパク質等の分子は相互作用しながら機能を果たしている。そこで、細胞内における遺伝子やタンパク質の量を網羅的に計測する技術が発展してきた。しかし、ハイスループットな計測では、自由度の大きいデータが得られるうえに、計測時のノイズも無視できないという問題がある<sup>10)</sup>。そこで、既知の生物学的知見や異種データと組合せることによって、有益な情報を抽出する方法が研究されている。

我々も生命分子システムの異常としてがんを理解す

ることを目標に、ハイスループットなデータを統合的に解析する方法を研究している。研究成果を次世代型がん個別最適化治療法の開発に応用することを目指している。

### 3.2. がんと microRNA

microRNA (miRNA) はタンパク質をコードしない 22 塩基程度の短い RNA であり、多くの遺伝子の発現を調整していることがわかっている<sup>11-12)</sup>。近年、がんにおける miRNA の役割が注目を集め、研究がさかんに行われるようになってきている<sup>13)</sup>。そのような中で、HeLa 細胞で 90 の miRNA をノックダウンすると細胞増殖とアポトーシスに影響が生じる<sup>14)</sup>、がんで異常な発現を示す miRNA が多い<sup>12)</sup>、50%以上の miRNA ががんに関連する部位近傍にある<sup>16-17)</sup>、乳がん・甲状腺がん・メラノーマにおいて 41 の miRNA がコピー数異常を示す<sup>18)</sup>ことが報告されている。

miRNA と遺伝子の両方の発現を比較することにより、がんにおける miRNA の役割を考察した研究はほとんど存在しない。そこで、我々の研究グループでは、肝細胞臓癌について、癌部と非癌部の双方で miRNA と遺伝子 (mRNA) の発現をマイクロアレイによって測定し<sup>19-20)</sup>、両者を統合解析することで miRNA が遺伝子に与える影響を解析した<sup>20-23)</sup>。

### 3.3. がんにおける miRNA-遺伝子の相互作用のシステム論的解析

我々は miRNA の役割を解明するために、miRNA と mRNA の相互作用を大規模に解析してきた<sup>20)</sup>。その中で、遺伝子の intron に存在する miRNA (intronic miRNA とよぶ) とその遺伝子 (ホスト遺伝子) の関係が、癌部と非癌部で異なることを見いだした。

具体的には、肝臓癌では intronic miRNA とホスト遺伝子の発現の相関が有意に高くなることがあった。intronic miRNA によって制御される遺伝子 (ターゲット遺伝子) とホスト遺伝子の間に相互作用がある場合、intronic miRNA-ホスト遺伝子-ターゲット遺伝子の間にループ構造ができる。周囲の非癌部では、intronic miRNA とホスト遺伝子の発現の相関が低いので、ループ構造ができない。この構造の相違が、がんのメカニズムに関係していると考えた。また、がん

細胞の高い増殖力は、細胞内の制御がうまく働かないことを意味しており、不安定な状態にあるとみなすことができる。

我々は上記のループ構造がポジティブフィードバックであるとの仮説をたてた<sup>21-23)</sup>。肝臓癌患者 40 人の miRNA と遺伝子の発現データ<sup>19)</sup>を用いて、仮説の検証を試みている。しかし、測定数が少ないので、データから直接ポジティブフィードバックであるかを検討できない。そこで、シミュレーションによって発現データを模擬して、ポジティブフィードバックの有無が発現データにどのような影響を与えるかを検討した。シミュレーション結果と実際のデータに類似性が見られた<sup>21-23)</sup>。しかし、異なる点も残されているので、さらなる検討が必要である。

### 3.4. マイクロアレイ・データの統合解析

がんの病態をシステムとして捉えることを目指して、文献 20 の方法を発展させて、miRNA と mRNA の発現を同時に解析する統合解析法を提案した<sup>24-27)</sup>。

まず、多くの先行研究と同様に、2 つの条件で発現が変化した miRNA と mRNA を検出し、両者間の制御関係を考慮することによって、変化が顕著に生じた機能を抽出する方法を提案した<sup>24-26)</sup>。以下では、この大きく変化する miRNA/mRNA を抽出して組み合わせる方法を個別検出による統合解析法とよぶ。しかし、この方法は、データサイズが小さいときには、抽出された miRNA のターゲットである mRNA が抽出される可能性が低く、有効な結果が得られないことがわかった。

そこで、大きく変化する miRNA を抽出した後に、その miRNA が制御する全ての遺伝子 (mRNA) を対象として遺伝子機能を調べ、発現変化があった遺伝子機能をグループとして抽出する方法を提案した<sup>27)</sup>。以下では、この方法を統計的統合解析法とよぶ。

#### 3.4.1. 個別検出による統合解析法

miRNA は Applied Biosystems 社 TaqMan Low-density Human microRNA array A card (ver. 3) を用いて測定した。測定ごとのばらつきが小さかったので、測定は 1 回のみとした。そこで、一定の割合  $R_{th}$  以上で発現が変化する miRNA を抽出することとした。割

合の閾値  $R_{th}$  としては 1.5、2.0、3.0 の 3 種類を用いた。

mRNA の発現は Affymetrix 社 GeneChip Human Gene 1.0 ST Array を用いて測定した。測定ごとのばらつきが無視できないので、各条件について 2 回の測定を行った。2 条件×2 回の測定データについて平均値に関する  $t$  検定を行い、発現に有意な差がある mRNA を抽出した。有意水準  $p_{th}$  としては 0.001、0.005、0.01 の 3 通りを用いた。したがって、 $R_{th}$  と  $p_{th}$  の組み合わせは合計で 9 通りである。その中で最適なものを探索した<sup>26)</sup>。

Table 2 The total numbers of the significantly enriched functions of the differentially expressed target genes for all differentially expressed miRNAs.

閾値		$R_{th}$		
		3.0	2.0	1.5
$p_{th}$	0.01	74 0.49±0.86	103 0.47±0.99	134 0.51±0.95
	0.005	62 0.20±0.48	90 0.20±0.55	119 0.19±0.49
	0.001	24 0.29±0.62	39 0.13±0.34	52 0.21±0.54

各セルの上段は発現変化した miRNA の数を表し、下段は有意に多く含まれる遺伝子機能の数の平均値と標準偏差を表している。

Table 3 Examples of the significantly enriched functions of the differentially expressed target genes of miR-130b.

ターゲット遺伝子機能		$p$ 値
1	regulation of apoptosis	$9.5 \times 10^{-4}$
	regulation of programmed cell death	0.001
	regulation of cell death	0.001
2	intracellular protein transport	0.001
	cellular protein localization	0.002
	cellular macromolecule localization	0.002

次に、miRNA のターゲット遺伝子予測 web ツールである MAGIA<sup>28)</sup>と本研究室で開発したターゲット遺伝子データベース<sup>29)</sup>を用いて、検出された miRNA それぞれについてターゲット遺伝子を決定する。最後に、各 miRNA について有意な発現変動を示すターゲット遺伝子の機能を遺伝子機能解析 web サービスである DAVID<sup>8)</sup>を用いて調べる。これによって、miRNA ごとに分けずに解析するよりもターゲット遺伝子について有用な情報を抽出することができる。

Table 2 は 9 通りの閾値の組合せについて、検出された miRNA の数 (上段) とターゲット遺伝子機能の数の平均値と標準偏差 (下段) を示している。何れの組合せでも平均値が 1 以下であり、1 つの miRNA について抽出されるターゲット遺伝子の機能は非常に少ないことがわかる。したがって、閾値の設定を厳しくしすぎると、意味のある結果を抽出できない可能性がある。一方で、条件を緩和すると変化の有意性に疑問が生じるので、これ以上の緩和は望ましくない。これらの結果から、 $R_{th}=1.5$ 、 $p_{th}=0.01$  の組合せが最適であると判断した<sup>26)</sup>。

この条件で検出された遺伝子機能を Table 3 に示す。アポトーシスなど、がんに関連がある機能が検出されているが、有意に変化する mRNA の数は少ない。これは、本研究で用いたマイクロアレイによる測定数が少ないためである。

その後、同種の細胞株について測定を行い、この方法を適用したところ、検出された miRNA のターゲットである mRNA が抽出される可能性が低いことがわかった。すなわち、マイクロアレイ数が少ない小規模なデータに対しては、有効な結果が得られない可能性が高いことが示唆された<sup>27)</sup>。

### 3.4.2. 統計的統合解析法

上記の結果を踏まえて、本研究では miRNA と遺伝子の少数の発現データからも解析可能な方法を提案した<sup>27)</sup>。この方法は、miRNA によって制御される特定の機能を持った遺伝子群をグループとして比較するものである。

まず、大きく発現変化する miRNA を検出する。また、mRNA については  $t$  統計量を計算する。次に、検

出された miRNA が制御する遺伝子群を MAGIA<sup>25)</sup>と本研究室で開発したターゲット遺伝子データベース<sup>29)</sup>を用いて決定する。それらのターゲット遺伝子群が特異的に持つ機能を DAVID<sup>8)</sup>を用いて調べる。有意に多くのターゲット遺伝子を含む機能に着目し、以下の解析対象とする。遺伝子発現データに対象の機能を持つ遺伝子 (mRNA) が含まれる場合、その mRNA の  $t$  統計量を抜き出す。抜き出された mRNA と同じ数だけ、発現データからランダムに mRNA を選び、 $t$  統計量を抜き出し、対照群とする。Wilcoxon 順位和検定を用いて、両群に違いがあるかを検定する。有意な違いがある場合、その機能に 2 条件の間で発現変化があったとみなす。

提案した統計的統合解析法の有効性を検証するために、シミュレーションと実際のデータを用いた検討を行った。

シミュレーションには以下の手順を用いた。なお、発現データは対数正規分布に従うと仮定した。

- 1) 各 mRNA について  $t$  統計量を計算する。
- 2) 遺伝子発現データの全体の平均を計算する。
- 3) 2) で計算した平均値の  $x\%$  の値を計算する。
- 4) 遺伝子発現データを対数変換し、平均と分散を計算する。
- 5) 3) の値を対数変換した値を平均として、分散が 4) と等しい正規分布から乱数を発生させる。
- 6) miRNA のターゲット遺伝子群を決定し、対数変換後の発現量を 5) の値と置き換える。
- 7) 6) と同数の遺伝子をランダムに選び対照群とする。

このように作成したシミュレーションデータに統計的統合解析法を適用した。すなわち、ターゲット遺伝子群と対照群に対し、Wilcoxon 順位和検定を行い、 $t$  統計量の分布に有意差があるかを調べた。 $x=100$ 、50、30 の 3 通りについて、100 回のシミュレーションを行い、 $x=50$ 、30 の場合に、両群間に有意差があるかを調べた。

その結果、 $x=100$  の場合は、有意差がある試行はほとんどなく、 $x=50$  場合には有意確率は  $10^{-12} \sim 10^{-4}$  の範囲、 $x=30$  場合には有意確率は  $10^{-65} \sim 10^{-46}$  の範囲と

なった。統計的統合解析法の有効性を示唆する結果が得られた。

次に、3.3.1. と同じデータに適用し、実データに対する有効性を検討した。 $t$  検定で有意差が検出された miR-93 のターゲット遺伝子群に、統計的統合解析法を適用したところ、transcription (DNA-templated), DNA binding, ATP binding などの遺伝子機能が有意に多く含まれるものとして検出された。これらの機能について、ターゲット遺伝子群と対照群の差を検定したところ、ATP binding, protein kinase activity, intracellular receptor signaling pathway, cadherin binding involved in cell-cell adhesion などの機能が検出された。何れもがんと関係ある機能であり、3.3.1. の結果よりも多くの機能を含んでいた<sup>27)</sup>。この結果は、小規模データについては、統計的統合解析法のほうが有効である可能性を示唆している。

#### 4. イマチニブの治療効果マーカーの探索

##### 4.1. はじめに

慢性骨髄性白血病に使われる抗癌剤であるイマチニブの投与を中止しても寛解が維持される患者が存在することが知られている。投与中止によって再発する患者も存在するため、中止を判断するためのバイオマーカーの開発が望まれている。

##### 4.2. 血漿 miRNA の網羅的発現解析による探索

我々は、投与中止後も完全寛解を維持している慢性骨髄性白血病患者 10 人と健常者 10 人 (対照群) から血漿 miRNA を抽出し、TaqMan PCR array を用いて miRNA の発現量を測定した。

得られたデータについて Wilcoxon 順位和検定を行い、2 群で発現が有意に異なる miRNA を検出したところ、miR-215 を含む 3 つが検出された。3 つの miRNA について、ターゲット遺伝子を MirTarBase<sup>30)</sup> から抽出した。その結果、miR-215 のみでターゲット遺伝子がみつかった。その機能を調べたところ、cell cycle, mitosis, DNA metabolic process に関係する遺伝子が多く含まれていた。また、この中には慢性骨髄性白血病に関する Pathway<sup>31)</sup>に含まれるものいくつか存在した。

そこで、この miRNA に注目して、さらに多くの患者および健常者について血漿とエクソソーム中の miRNA を RT-PCR によって測定した<sup>32)</sup>。被験者の正確な人数は、以下の通りである。投与中止後も完全寛解維持をしている患者 20 人、投与により病状を抑えることができている患者 32 人、健常者 28 人である。解析の結果、中止後に完全寛解を維持している患者の血漿中において miR-215 のレベルが顕著に低下していることが見いだされた。これは miR-215 がイマチニブ中止後の完全寛解維持において何らかの役割を果たしており、新たなバイオマーカーとなり得ることを示唆している。

#### 5. まとめ

本研究では、次世代型がん個別最適化治療の実現を目指し、NGS データ解析の高速化法の開発、統合解析法の提案、新規バイオマーカーの探索を行っている。本報告では、上記の 3 項目について 2016 年度までの研究成果を中心に述べた。

#### 参考文献

- [1] 鈴木穰、菅野純夫: 次世代シーケンサー目的別アドバンスメソッド、秀潤社、2012.
- [2] 青木尊之: はじめての CUDA プログラミング、工学社、2009.
- [3] H. Li and R. Durbin: Fast and accurate short read alignment with Burrows - Wheeler transform, *Bioinformatics*, vol. 25, 1754-1760, 2009.
- [4] 太田祥貴、福岡 豊: 次世代シーケンサ用のマッピングソフトウェアの GPGPU プログラミング、電気学会 光・量子研究会 OQD-15-036, 2015.
- [5] M. Burrows and D. J. Wheeler: A block-sorting lossless data compression algorithm, *Technical Report 124*, Digital Equipment Corporation, Palo Alto, CA, 1994.
- [6] 松井一馬、福岡 豊、大屋敷純子、梅津知宏: 次世代シーケンサデータの 2 条件比較による要因遺伝子の抽出, 第 55 回日本生体医工学会大会抄録集 P3-N12, 2016.
- [7] K. Ye, *et al.*: Pindel: a pattern growth approach to detect break points of large deletions and medium sized insertions from paired-end short reads, *Bioinformatics*, 25, 2865-2871, 2009.
- [8] D. W. Huang, B. T. Sherman, R. A. Lempicki:

- Systematic and integrative analysis of large gene lists using DAVID Bioinformatics Resources, *Nature Protocols*, 4, 44-57, 2008.
- [9] H. Kitano: *Systems biology: a brief overview*, *Science*, 295, 1662-1664, 2002.
- [10] I. S. Kohane, A. T. Kho, A. J. Butte: *Microarrays for an integrative genomics*, MIT press, 2003.
- [11] V. Ambros: The functions of animal microRNAs, *Nature*, 431, 350-355, 2004.
- [12] D. P. Bartel: MicroRNAs: genomics, biogenesis, mechanisms, and function, *Cell*, 116, 281-297, 2004.
- [13] E. A. C. Wiemer: The role of microRNAs in cancer: no small matter, *European Journal of Cancer*, 43, 1529-1544, 2007.
- [14] A. M. Cheng *et al.*: Antisense inhibition of human miRNAs and indications for an involvement of miRNA in cell growth and apoptosis, *Nucleic Acids Research*, 33, 1290-1297, 2005.
- [15] Y. Murakami *et al.*: Comprehensive analysis of microRNA expression patterns in hepatocellular carcinoma and non-tumorous tissues, *Oncogenes*, 25, 2537-2545, 2006.
- [16] G. A. Calin, *et al.*: Human microRNA genes are frequently located at fragile sites and genomic regions involved in cancers, *Proceedings of National Academy of Sciences USA*, 101, 2999-3004, 2004.
- [17] P. Lamy, *et al.*: Are microRNAs located in genomic regions associated with cancer?, *British Journal of Cancer*, 95, 1415-1418, 2006.
- [18] L. Zhang *et al.*: microRNAs exhibit high frequency genomic alterations in human cancer, *Proceedings of National Academy of Sciences USA*, 103, 9136-9141, 2006.
- [19] Y. Katayama, *et al.*: Identification of pathogenesis-related microRNAs in hepatocellular carcinoma by expression profiling, *Oncology Letters*, 4, 817-823, 2012.
- [20] Y. Fukuoka, M. Tashiro, T. Uchiyama: Systems analysis of interactions between microRNAs and genes in hepatocellular carcinoma, *Proceedings of IEEE EMBC 2013*, 600-603, 2013.
- [21] 都倉悠亮、福岡 豊：がんにおける遺伝子と microRNA のループ構造の影響の検討、第 55 回日本生体医工学会大会抄録集 P3-N18、2016.
- [22] 都倉悠亮、福岡 豊：がんにおける遺伝子と microRNA のフィードバックループに関する考察、電子情報通信学会技術報告 MBE2016-17、2016.
- [23] Y. Tokura and Y. Fukuoka: A study on feedback between microRNA and gene in cancer, *Proceedings of IEEE EMBC 2016 IEEE, FrCT9.4 2016*.
- [24] 大木拓也、梅津知宏、大屋敷純子、福岡 豊：miRNA と mRNA の統合解析によるがん細胞の低酸素適応のメカニズム解析、第 54 回日本生体医工学会大会抄録集 P2-5-26-A、2015.
- [25] T. Ohki, T. Umezumi, J. Ohyashiki, Y. Fukuoka: Integrative analysis of expression levels of miRNA and mRNA: Investigation of hypoxic tolerance in leukemia, *Proceedings of 37th IEEE EMBC, SaBPoT8.10*, 2015.
- [26] 大木拓也、福岡 豊、大屋敷純子、梅津知宏：miRNA と mRNA の統合解析における発現変化の閾値の最適化、第 55 回日本生体医工学会大会抄録集 P2-N13、2016.
- [27] 大木拓也、福岡 豊、大屋敷純子、梅津知宏：microRNA と遺伝子の統計的統合解析、電子情報通信学会技術報告 MBE2016-101, 2017.
- [28] G. Sales, *et al.*: MAGIA, a web-based tool for miRNA and Genes Integrated Analysis, *Nucleic Acids Research*, 38, W352-W359, 2010.
- [29] Y. Fukuoka and M. Fujita: A method for predicting targets of microRNA based on multiple databases and its application to cancer related microRNAs, *Proceedings of 37th IEEE EMBC, SaBPoT8.8*, 2015.
- [30] S. D. Hsu, *et al.*: miRTarBase update 2014: an information resource for experimentally validated miRNA-target interactions, *Nucleic Acids Research*, 42, D78-D85, 2014.
- [31] M. Kanehisa and S. Goto: KEGG: Kyoto encyclopedia of genes and genomes, *Nucleic Acids Research*, 28, 27-30, 2000.
- [32] K. Ohyashiki, *et al.*: Downregulation of plasma miR-215 in chronic myeloid leukemia patients with successful discontinuation of imatinib, *International Journal of Molecular Sciences*, 17, Article #570, 2016.

## 非常時における音声通話確保を目的とした新しい通信受付制御方式

工学院大学 情報学部 情報通信工学科 馬場 健一

芝浦工業大学 工学部 通信工学科 宮田 純子

東京工業大学 工学院 情報通信系 山岡 克式

A Call Admission Control Method for Accepting More Voice Calls in Emergency Situation

Ken-ichi Baba, Department of Information and Communications Engineering, Kogakuin University

Sumiko Miyata, Department of Communication, Shibaura Institute of Technology

Katsunori Yamaoka, Department of Information and Communications Engineering, Tokyo Institute of Technology

**ABSTRACT** : In emergency situations, telecommunication networks become congested due to large numbers of call requests. Several lines in telephone exchanges are generally reserved for emergency calls whose users communicate crucial information. Moreover, we consider that the holding time for general calls should be positively limited. In previous work, we proposed a novel call admission control method which can accept both required emergency calls and more general calls by utilizing trunk reservation control and holding time limitation control. In this paper, we implement the method on a trial system in VoIP networks and we evaluate the performance and the effectiveness of the method.

### 1. はじめに

地震や台風、事件などの非常時において、被災地・現場周辺への安否確認の通話や、被災地からの安否報告の通話等の大量の呼が発生することにより、ネットワーク内で輻輳が発生し、発信規制などによって通話したくても通話できないことが頻発する。まず、通話を優先電話と一般電話の2種類に分類する。優先電話とは、警察や消防が利用する電話など、通信制限を受けず、発信が優先される電話である(3)。一方、一般電話とは、非常時において主な通話要求は安否確認など、優先電話以外の電話である。優先電話は、優先的にネットワーク資源を割り当てるが、一般電話は優先電話に比べて優先度は低くなる。しかし、非常時の安否確認は個々のユーザにとって重要であり、優先度は低いながらも可能な限り通話を確保すべきと考えられる。このような緊急時の輻輳への対策と

して用いられる制御の一つとして回線留保制御がある。これは、優先電話と一般電話の発呼を区別し、回線交換機の最大収容数(これを回線数とする)のうち、一定数を優先電話専用として確保する制御である。すなわち、回線留保制御では、新規呼到着時に、使用中の回線数が予め設定された閾値以下である場合は、優先、一般両電話の通話要求を収容するが、使用中の回線数が閾値以上となる場合、優先電話の通話要求のみを収容し、一般電話からの通話要求を呼損とする。

また、非常時の輻輳制御における問題の一つに、一部の一般電話ユーザが長時間の通話によって回線を占有し、一般電話の収容数が減少する問題がある。非常時には多くのユーザから通話要求が発生するため、このような状況での一般電話は、安否確認など必要最小限に通話時間を留めるべきである。この問題への対策として、更なる一般電話収容数増大のために、一般電話に対して通話時

間制限を設けることが考えられる。

非常時の輻輳問題を解決する手法として、文献(1)(2)では回線留保制御と通話時間制限の二つの制御を用いた呼受付制御手法が提案されている。この呼受付制御手法では、優先・一般両電話を独立に取り扱い、待ち行列理論における M1M2/MD/s/s; th 待ち行列システムとして被災地の回線交換機をモデル化し、回線留保のための閾値緩和、及び一般電話の通話制限時間設定により、より多くの一般電話収容を実現する方式を提案している。そして、様々なトラフィック条件における優先・一般両電話の呼損率を計算機シミュレーションにより導出し、非常時において優先電話も収容しつつ、より多くの一般電話の収容も実現できることを明らかにしている。

しかし近年では、通話手段としてスマートフォンを用いた電話アプリケーションや IP 電話が普及し、回線交換網だけではなく IP 電話網も使われるようになった。IP 電話網とは、回線交換網のように交換機を用いて電話機、交換機同士を回線をつなぐネットワークではなく、インターネットを利用したネットワークである。IP 電話網では、音声データを IP パケットに変換して、相手先の IP アドレスを宛先にして IP 網に流し、相手先に IP パケットが届いたとき音声データに変換する。ただし、IP 電話網では、通話ごとに回線を占有させる回線交換網とは違い、音声データの IP パケットが流れる経路を占有できない(3)。文献(4)で、固定電話において、回線交換網から IP 電話網へ移行することを示しており、音声通話に IP 電話網を用いることが今後主流となることが予想される。そのため、回線交換網と同じように、IP 電話網にも非常時の輻輳対策を検討しなければならない。

文献(2)で行われた検証は回線交換機が対象であるため、IP 電話網においても適応可能かの検証は行われていない。そのため、非常時において IP 電話網でも有効であるか、IP 電話網での実装が可能であるか検証が必要である。そこで本研究では、文献(2)の提案方式が IP 電話網でも有効か実装して検証し、非常時において優先電話の確保および一般電話の収容増大を図ることが可能かを明らかにする。具体的には、SIP サーバにオープンソースの IP 電話サーバソフトである Asterisk、2 台の SIP 端末に多量の呼の生成、受付ツールである SIPp を用いた実験環境を構築し、Asterisk に回線留保制御のための閾値を設定する。100Mbps の回線上で 2 台の SIP 端末から多数の呼を発生させ、制御手法の効果を検証する。

## 2. 緊急時回線留保制御における到着呼量に基づく閾値設定法

発信規制など以外の、別の輻輳対策として、回線留保制御と通話時間制限がある。回線留保制御とは、優先・一般電話からの発呼を区別し、Fig. 1(a)のように、回線交換機の最大収容数から優先電話専用として回線を留保する制御である。このとき、留保した回線を留保回線、留保していない回線を非留保回線とする。回線留保制御は、

新規の呼が到着したときに、使用中の回線数があらかじめ設定していた閾値以下の場合、つまり非留保回線に空きがある場合は、優先・一般電話のどちらも通話要求も収容する。しかし、使用中の回線数があらかじめ設定していた閾値以上の場合、つまり非留保回線に空きがなく、留保回線に空きがある場合は、優先電話からの通話要求のみ収容し、一般電話からの通話要求は呼損とする。この制御の問題点として、留保回線数が適切でない場合、優先電話、一般電話のどちらも大きな呼損につながることである。Fig. 1(b)では、閾値を一般電話に対して厳しく設定し、優先電話専用の回線数を過剰に留保すると、優先電話はほぼ確実に収容されるが、優先電話に比べ一般電話からの通話要求が大量に到着する場合には、優先電話専用の回線に空きがあったとしても、多くの一般電話が収容されず呼損する。Fig. 1(c)では逆に、優先電話専用の回線数を少なめに留保すると、優先、一般電話ともに通話要求が多ければ、回線に空きが無くなり非常時に必要な通話要求が収容できず呼損する。このような問題を回避するためには、優先電話の呼量を予測して、留保する回線数を決める閾値は適切に設定しなければならない。

一方、通話時間制限とは、一般電話ユーザの通話に時間制限を設ける制御である。非常時において、多くのユーザから通話要求が発生し、その中で一部の一般電話ユーザが長時間通話をして回線を占有した場合、一般電話の収容数が減少する問題がある。一般電話ユーザの通話時間を、安否確認などに必要な最低限の時間に留めるように通話時間制限を設定することで、更なる一般電話の収容数増大につながる。Fig. 2 の上図では、通話時間制限を設けていないため、一般電話 A のユーザが長時間回線を占有し、通話要求してきた一般電話ユーザ B、C は収容されずに呼損してしまっている。しかし Fig. 2 の下図では、通話時間制限を設けたことで、一般電話 A のユーザが長時間回線を占有することもなく、制限時間になったとき退出している。その後、一般電話ユーザ B の通話要求も収容されてから制限時間になるまで通話でき、さらに通話要求してきた一般電話ユーザ C も収容されている。

この回線留保制御と通話時間制限を用いた輻輳対策の提案方式として文献(2)がある。文献(2)では、非常時の優先、一般両電話混在環境での回線交換機を想定し、Fig. 3 のような M1M2/MD/s/s; th 即時式完全線群としてモデル化を行っている。

回線交換機の最大電話収容数(回線数)は  $s$  本とし、回線留保のための閾値を  $th$  本としている。また、優先・一般両電話の到着率はそれぞれ平均  $\lambda_e$ 、 $\lambda_g$  のポアソン分布に従い、優先電話通話時間は平均値が  $1/\mu_e$  の指数分布に、一般電話通話時間は一定値  $h_g$  の一定分布に、それぞれ従っている。

文献(2)の閾値設定方式としては、到着する優先・一般両電話の呼量を予測し、閾値の設定に用いている。

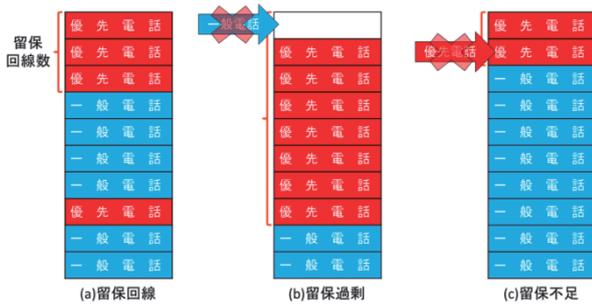


Fig. 1 Trunk reservation control.

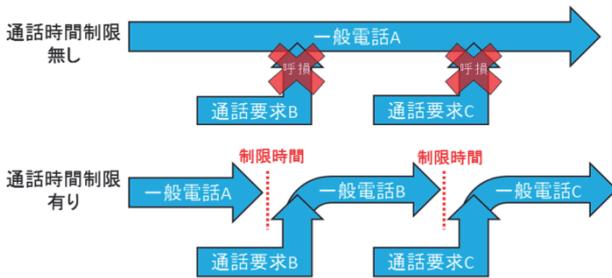


Fig. 2 Holding time control.

このとき、優先電話が留保回線のみならず非留保回線も利用可能であることを考慮して、予測される優先電話の呼量をすべて収容できるように回線を留保せずに、優先電話の予測呼量に対して留保回線数を減少させている。また、到着が予想される優先電話呼量 $a_e$ を、優先電話の到着率 $\lambda_e$ と平均通話時間 $1/\mu_e$ から式(1)により予測、一般電話呼量 $a_g$ は、一般電話の目標呼損率 $Br_g^*$ を設定し、全到着呼のうち $Br_g^*$ の確率で収容される仮定のもと、一般電話の到着率 $\lambda_g$ と通話制限時間 $h_g$ から式(2)により予測している。

$$a_e = \lambda_e \times 1/\mu_e = \frac{\lambda_e}{\mu_e} \quad (1)$$

$$a_g = (1 - Br_g^*)\lambda_g h_g \quad (2)$$

そして、閾値  $th$  は次式により設定している。

$$th = \min \left( \left\lceil \frac{(s-a_e)(a_e+a_g)}{a_g} \right\rceil, s \right) \quad (3)$$

閾値の設定に式(3)を用いる理由としては、使用中の回線数が閾値  $th$  以上である間、新規に収容されるのは優先呼のみであり、使用中の回線数が再び閾値未満となるまで一般呼は新規に収容されない。一方、使用中の回線数が閾値未満である場合、新規に収容される優先電話と一般電話の呼数の比は、それぞれの到着率比 $\lambda_e:\lambda_g$ に等しい。さらに、一般電話の通話時間は制限されているため、一般呼は優先呼と比較して短時間に退去する。これらの点を考慮し、文献(2)では、輻輳発生から長時間経過後における非留保回線を占める優先呼および一般呼の比率は、それぞれの呼量の比 $a_e:a_g$ に従うと仮定し、閾値  $th$  を次式より導出している。

$$s - \left( a_e - th \times \frac{a_e}{a_e+a_g} \right) = th \quad (4)$$

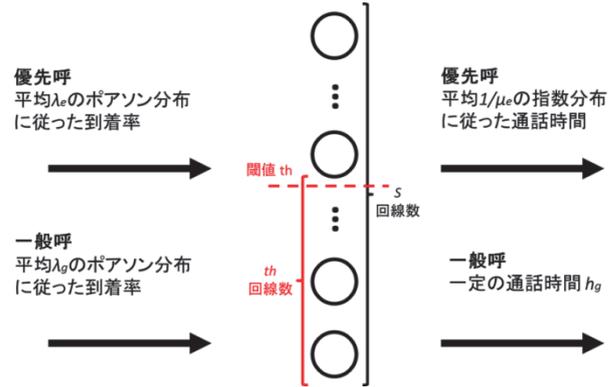


Fig. 3 Queuing model.

### 3. 回線留保制御手法と通話時間制御手法の実装

#### 3.1. 手法実装の概要

IP 電話網において通常のセッションはすべて SIP サーバで管理されているので、回線留保制御手法と通話時間制御手法を SIP サーバに実装することで優先呼と一般呼を制御することが可能になる。SIP サーバにおいては、サーバが管理する全リソースの中から到着する優先電話と一般電話を分配可能とする閾値により呼の受付判断を行い、また、優先電話と一般電話に対する通話時間制御手法を実装する。一般電話と優先電話の発呼を再現している送信側の SIP クライアントにより、一般電話と優先電話の到着率の制御と呼継続時間を指数分布に従うよう制御した。

#### 3.2. 実装環境

Fig. 4 に実験ネットワーク構成図を示す。SIP サーバにはオープンソースの IP 電話サーバソフトである Asterisk を使用する (5) (6) (7)。SIP クライアントとして、PC を 2 台用意し、それぞれ呼送信側と呼受信側に分け SIP のパフォーマンステストツールである SIPp を用いて多量の発呼及び受け付けを行う (9)。そして、SIP サーバと SIP クライアント PC 2 台を、使用可能帯域が 100Mbps のスイッチに接続する。SIP サーバの PC の OS は CentOS 7、SIP クライアント PC の OS は CentOS 6 である。

SIP サーバとして使用する Asterisk とは、アメリカの Digium 社によって開発が進められた IP-PBX (IP 電話の回線交換機) のオープンソース・ソフトウェアである。主に Linux プラットフォーム上で動作される。主な機能として、音声メールや音声会議、音声自動応答などが挙げられる。本研究で使用した Asterisk のバージョンは Asterisk13 である。

また、SIP クライアントとして使用した SIPp とは、SIP のためのオープンソーステストツールである。XML (Extensible Markup Language) でセッションシナリオを作成でき、PCAP (Packet Capture) を使用して RTP のストリーミングデータの再生が可能である。また、コマンドをオプションで用いることにより様々な条件を付与し多

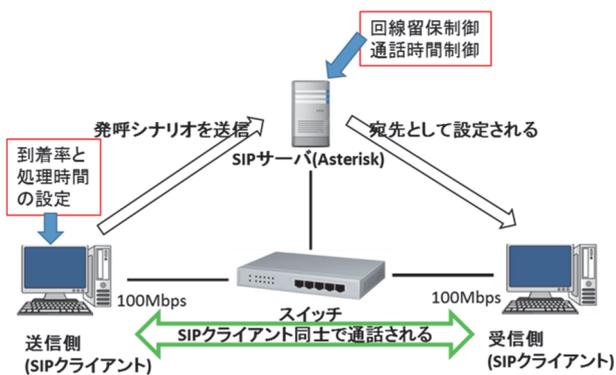


Fig. 4 Environment for implementation.

量の発呼を再現することができる。本研究において使用した SIPp のバージョンは 3.4 であり、PCAP データは、実機間の G.711 コーデックを使用した通信をキャプチャしたデータ (8) (10) の RTP のみを抽出して使用した。

Fig. 4 に示したネットワークにおける通信手順、ならびにそれぞれの機器の動作は以下のようになる。

1. 送信側の SIP クライアントが SIP サーバに非常時を想定した優先電話と一般電話の発呼シナリオを送る
2. SIP サーバが発呼シナリオを受け取り、そのシナリオにある受信側 SIP クライアントを宛先として設定する
3. 送信側と受信側の SIP クライアントによる通話を開始し、送信側の SIP クライアントにより優先呼と一般呼の到着率を設定し発呼する。
4. 優先呼と一般呼の收容数が最大收容回線数に達した場合、SIP サーバにより優先呼または一般呼の新規到着呼を收容しないようにする
5. 優先呼と一般呼の收容数が最大收容回線数未満で一般呼の收容数が設定した閾値と等しい場合は SIP サーバにより一般呼の新規到着呼を收容しないようにする
6. 送信側の SIP クライアントの発呼シナリオに従い、收容された優先呼と一般呼は呼継続時間が指数分布に従うように通話をする
7. 優先電話と一般電話のそれぞれの呼継続時間が設定した制限時間を経過した場合、SIP サーバによりその通話を切断する
8. 送信側 SIP クライアントで優先呼と一般呼の通話の状態を測定する

次節で最大收容回線数設定方法、回線留保制御と通話時間制御による呼受付制御手法、SIP クライアントにおける発呼シナリオの詳しい説明をする。

### 3.3. 回線留保制御手法

SIP サーバである Asterisk による最大收容回線数  $s$  の制限方法について述べる。Asterisk による最大收容回線数  $s$

は Asterisk のダイヤルプランに関する設定ファイルである `extensions.conf` で制限している。現在收容している呼数をカウントし、カウント数が 1000 になったら、すなわち同時收容呼数が 1000 呼になった場合、收容中の呼が退出しない限り新たに到着する呼は收容されず呼損となる。

Asterisk による回線留保制御の方法について述べる。Asterisk の UA の設定ファイルである `sip.conf` により閾値を設定することで一般呼の最大收容呼数を制御する。優先電話の留保帯域は SIP サーバの最大收容呼数と閾値との差になるため、閾値を設定することで優先呼を留保帯域分だけ確実に收容することができる。閾値の導出式に関しては文献 (2) の提案方式に記述されている式(2.3)を使用する。式(2.3)より閾値を導出するためには、SIP サーバの最大收容回線数  $s$ 、優先電話の到着率  $e$  及び呼量  $a_e$  と一般電話の到着率  $g$  及び呼量  $a_g$  を導出する必要がある。また、優先電話の呼量  $a_e$  と一般電話の呼量  $a_g$  を導出するために、優先電話と一般電話それぞれの到着率と呼継続時間を非常時の状況を想定した値に決定する。

### 3.4. 通話時間制御手法

Asterisk による通話時間制御の方法について述べる。Asterisk の設定ファイルである `extensions.conf` に優先電話と一般電話に対する最大で継続可能な呼継続時間を設定することで優先電話と一般電話の通話を制御する。設定する制限時間は非常時において必要最低限な時間に設定する必要があるが、詳しい設定時間は次章で述べる。例えば、制限時間を 30 秒と設定した場合、優先電話と一般電話のそれぞれの通話時間が 30 秒を超えた時点で通話を切断する。

### 3.5. 発呼シナリオの実装

SIP クライアントである SIPp で優先電話と一般電話の到着率と呼継続時間を設定方法について述べる。優先電話と一般電話の到着率は、それぞれ発呼する際に用いるシナリオコマンドにより、到着率を優先呼と一般呼それぞれで設定することで非常時における優先呼と一般呼の混在する大量の発呼を再現する。また、優先呼と一般呼の呼継続時間は、SIPp で優先呼と一般呼を発呼する際にそれぞれで用いる発呼シナリオファイルにおいて設定する。発呼シナリオファイルに使用する分布とその平均時間を設定することにより優先呼と一般呼がその設定した分布に従い呼を継続する。本研究においては発呼シナリオファイルに優先電話と一般電話の呼継続時間が指数分布に従うよう設定しており、このことにより実際の非常時におけるユーザの通話状況を再現した。

次に、通話時間制御手法の実装と呼継続時間を指数分布に従うように設定したときの優先呼と一般呼における文献 (8) との相違点について説明する。Fig. 5 に文献 (8) における優先呼と一般呼の発呼の様子、Fig. 6 に本研究で用いる優先呼と一般呼の発呼の様子を示す。文献 (8) では、優先呼、一般呼とも呼の継続時間を固定

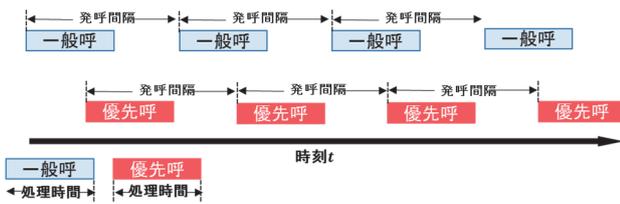


Fig. 5 Call arrival model on Ref. (8).

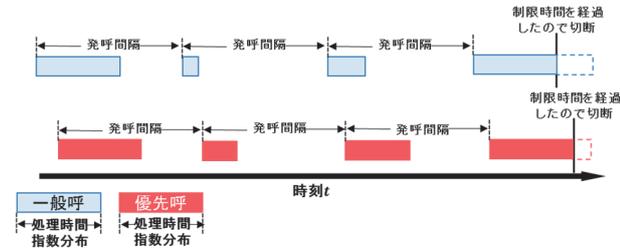


Fig. 6 Call arrival model on this study.

時間としていたが、本研究では優先呼、一般呼とも指数分布に従う時間とした。また、通話時間制御を用いる場合、設定した制限時間を経過したときに通話を切断する。

## 4. 検証した結果と評価

### 4.1. 実験条件

本研究では、非常時における IP 電話網に回線留保制御手法と通話時間制御手法を実装することにより収容呼数の増大が可能であるか検証する。Table 1 にすべての実験における共通のトラヒック条件を示す。なおトラヒック条件は、文献(2)と比較するため文献(8)を参考に決定した。また、通話時間制御を実装して実験する際の一般呼に対する制限時間は、総務省が規定している災害伝言用ダイヤル(171)を参考に 30 秒に設定した(11)。s は最大収容回線数、 $Br_g^*$  は優先電話の目標呼損率を表している。最大収容回線数は、使用可能帯域を 100 Mbps としているため、最大で収容できる 1000 回線に設定した。

次節以降に示すグラフの凡例において、“Without time limit”は本研究における通話時間制御を実装していない状態を示し、“With time limit”は本研究における通話時間制御を実装した状態を示している。また、“Target value”は目標値の 10%を示している。

### 4.2. 従来研究との比較

話時間制御手法の実装と優先電話と一般電話の呼継続時間を指数分布にすることで、測定値がどのように変化するのか検証し、また、従来研究である文献(2)と文献(8)の結果と本研究における目標値との比較も行う。Fig. 7 に文献(2)と文献(8)、目標値、そして、本研究による測定値の結果をまとめたものを示す。“Theoretical value”は文献(2)で得られた理論値を示し、“Previous value”は文献(8)での測定値を示している。本研究における優先呼と一般呼の到着率は文献(2)を参考に決定し、式(2.1)と式(2.2)により導出した呼量を

Table 1 Measurement time

s	1000 [lines]
$1/\mu_e$	30 [sec]
$h_g$	30 [sec]
$Br_g^*$	0.1
Measurement time	60 [min]

Table 2 Traffic environment.

優先呼 到着率	一般呼 到着率	閾値	優先呼 留保帯域
100	9900	971	39
300	9700	879	121
500	9500	794	206
1000	9000	562	438
1500	8500	299	701
2000	8000	0	1000
2500	7500	0	1000

基に式(2.4)により閾値を導出した。Table 2 に本節におけるトラヒック条件を示す。このとき、式(2.2)における一般呼制限時間 $h_g$ は 30 秒とする。

まずはじめに、Fig. 7 より従来研究である文献(8)の環境と本研究における通話時間制御手法を実装していない環境を比較する。双方の共通点は、通話時間制御をかけていない点と優先呼と一般呼の到着率がともに一定である点である。相違点としては、文献(8)の環境の優先呼と一般呼の継続時間が 30 秒で固定時間であるのに対し、本研究における通話時間制御手法を実装していない環境の優先呼と一般呼の継続時間は平均 30 秒の指数分布に従うという点である。Fig. 7 より従来研究である文献(8)の環境と本研究における通話時間制御手法を実装していない環境を比較すると、性能にほとんど差がなく、また、どちらも目標値や文献(2)の理論値と大きな差が生じた。これは文献(8)と本研究における通話時間制御を実装していない状態のどちらも一般呼のほうが優先呼よりも到着率が高く、かつ、優先呼と一般呼の到着率がそれぞれ一定であることにより、一般電話が常に非留保帯域を占有し優先呼が非留保帯域に収容されず留保帯域のみに収容されることにより、優先呼の呼損率が増加したことが原因であると考えられる。

次に、本研究における通話時間制御手法を実装した環境と通話時間制御手法を実装していない環境を比較すると、Fig. 7 から通話時間制御手法を実装した環境の呼損率がほぼ 0%であることがわかる。これは、優先呼と一般呼ともに制限時間である 30 秒を経過した呼が切断されることにより使用可能回線数が相対的に増加し、その分多くの優先呼が収容されやすくなったためと考えられる。通話時間制御手法を実装した環境の呼損率は、目標値である 10%から大きく離れているが、通話時間制御手法を実装することにより非常時における IP 電話網の収容呼数増大が可能であることがわかる。

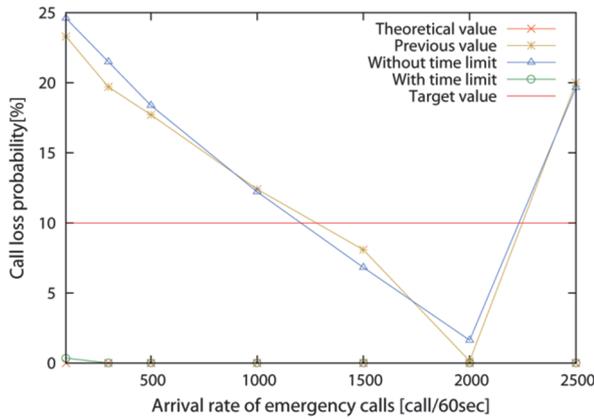


Fig. 7 Comparison of call loss probability.

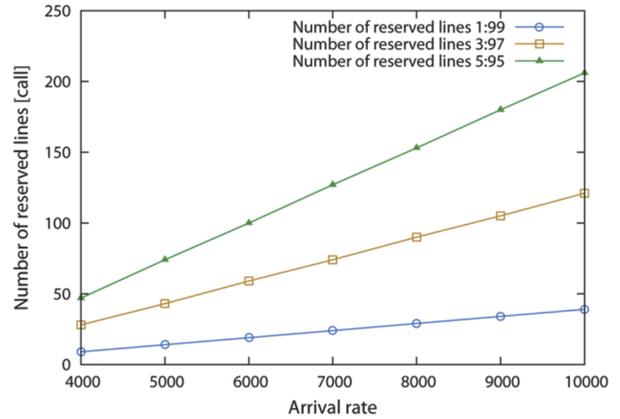


Fig. 8 Number of reserved lines.

### 4.3. 到着率が変化した際の通話時間制御手法の有無による性能評価

通話時間制御手法により優先呼の呼損率がどのように軽減されるか優先呼と一般呼の到着率の比率をそれぞれ 1:99、3:97、5:95 の割合とし測定を行った。Fig. 8 に、優先呼と一般呼の到着比率と到着率により変動する優先呼の留保回線数を示す。Fig. 9 に各到着比率における優先呼の呼損率を示す。Fig. 8、Fig. 9 における横軸は 60 秒あたりの優先呼、一般呼を合わせた呼の到着率を表す

Fig. 9 より、各到着比率においても通話時間制御手法を実装している環境と通話時間制御手法を実装していない環境における優先電話の呼損率を比較すると、通話時間制御手法を実装している環境の方が呼損率を低減している。また、到着率が低い場合には優先呼の呼損率が增大することがわかる。この原因として、優先呼と一般呼の到着率がともにポアソン分布でなく固定値であるため、一般呼と比較し到着率が著しく低い優先呼が非留保帯域に収容されにくく、非留保帯域にはほぼ一般呼が収容され続ける。つまり、優先呼は留保帯域のみにしか収容されない上、Fig. 8 より到着率が低い場合の留保回線数が減少するため、優先呼の呼損率が増加したと考えられる。文献 (2) と同様に優先呼と一般呼の到着率をポアソン分布に従うようにすることができれば、非留保帯域に優先呼が収容される確率が增大し、呼損率は改善されると思われる。

また、通話時間制御手法を優先電話と一般電話の両方に実装しているため、優先呼の継続時間が減少し、優先呼の収容数が増加したことにより呼損率が減少したことで目標値である 10% よりも呼損率が低くなったと考えられる。実際の非常時における IP 電話網の環境や本研究における優先呼の呼損率の目標値である 10% に近づけるためには、一般電話のみに通話時間制御手法を実装することが必要である。

### 4.4. 適切な留保帯域の調査

本研究環境においてはトラフィック条件が異なることなどにより、文献 (2) における理論的な閾値を用いても

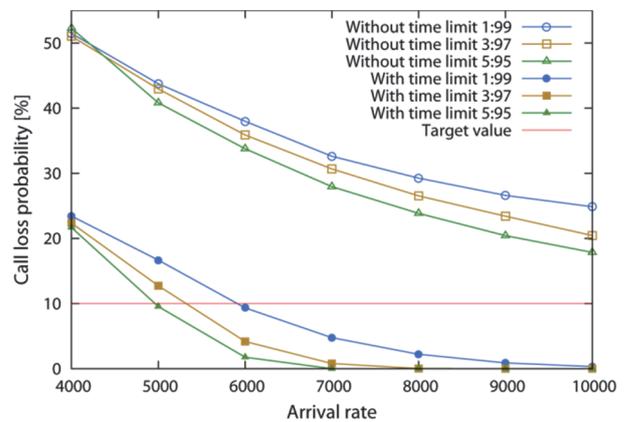


Fig. 9 Call loss probability.

同様の結果が得られないことがわかった。本研究環境における適切な閾値を調査するため、優先呼と一般呼の到着比率を 3:97 とし、優先電話と一般電話に通話時間制御手法を実装し、優先呼の留保帯域を 1.1 で割った環境、1.25 で割った環境、1.3 で割った環境の 3 パターンのデータをとった。Fig. 10 に留保帯域を減少させた環境の測定値と図の通話時間制御を実装した環境の測定値を示す。

Fig. 10 より留保帯域を減少させることにより、優先呼の目標呼損率に近づくことがわかる。また、前節と同様、到着率が低い場合は留保回線数が少ないため呼損率が大きくなる傾向にある。

## 5. まとめ

近年、スマートフォンの普及等により通話手段として回線交換網を利用した電話の利用者数が減少し電話網の一部、あるいは全てに VoIP 技術を利用する電話サービスである IP 電話の利用者数が年々増加の一途を辿っており、今後主流となることが予想される。また、地震や事件などの非常時における輻輳対策として従来研究である文献 (2) により回線交換網を対象とした回線留保制御と通話時間制御を用いた呼受付制御方式を提案されており、理論的に検証され、回線留保制御と通話時間制御を用いた呼受付制御手法により非常時における回線交換

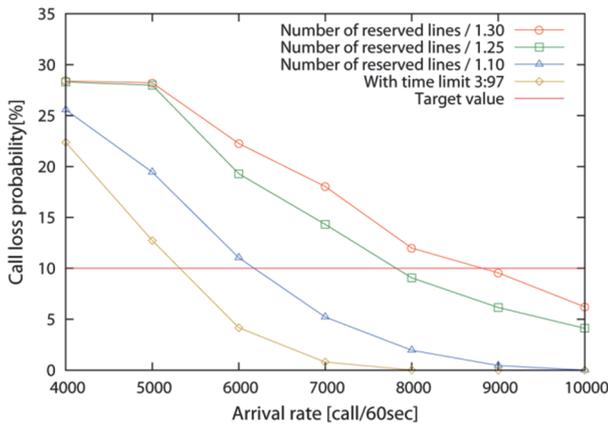


Fig. 10 Call loss probability ( $\lambda_e:\lambda_g=3:97$ ).

網の収容呼数の増大が可能であると示されている。しかし、IP 電話網や実装上においては有効性が確かめられていない。

そこで、本研究では非常時における IP 電話網の優先電話と一般電話の収容呼数の増大を目的とし、回線交換網を対象とした文献(2)で提案されている回線留保制御と通話時間制御を用いた呼受付制御手法を IP 電話網に実装し検証を行い性能を評価した。結果として、回線留保制御と通話時間制御を用いた呼受付制御手法を用いて、優先呼と一般呼を合わせた到着率が 6000 以上の場合においては、優先呼の呼損率を目標値である 10%以下に抑えることができたが、優先呼の呼損率が目標値よりも低くなってしまった。これは、通話時間制御手法を優先電話と一般電話の両方に実装しているため、優先呼の継続時間が減少し、優先呼の収容数が増加したことが原因と考えられる。また、優先呼と一般呼を合わせた到着率が 6000 未満の場合においては、優先電話の呼損率が 10%よりも高くなった。これは、優先呼と一般呼の到着率がポアソン分布に従わず固定値であるため、一般呼と比較し到着率が著しく低い優先呼が非留保帯域に収容されにくく、非留保帯域にはほぼ一般呼が収容され続け、到着率が低い場合の留保回線数は減少することが原因として考えられる。

今後の課題として、優先電話と一般電話の到着率をポアソン分布に従うように設定し、通話時間制御手法を一般電話のみに実装する必要がある。また、検証を行い、文献(2)における理論値と比較し目標値である 10%とどのような差が生じるか性能評価する必要がある。

## 参考文献

- (1) K. Tanabe, S. Miyata, K. Baba and K. Yamaoka, "Threshold configuration of emergency trunk reservation considering traffic intensity for accepting more general telephone calls", in *Proceedings of 6th International Workshop on Reliable Network Design and Modeling (RNDM 2014)*, pp. 165–170, November 2014.
- (2) K. Tanabe, S. Miyata, K. Baba and K. Yamaoka,

"Threshold relaxation and holding time limitation method for accepting more general calls under emergency trunk reservation", *IEICE Transaction on Fundamentals of Electronics, Communications and Computer Sciences*, vol. E99-A, no. 8, pp. 1518–1528, August 2016.

- (3) "回線交換から電話アプリまで", [http://coin.nikkeibp.co.jp/coin/itpro/hansoku/pdf/nnw201210\\_1.pdf](http://coin.nikkeibp.co.jp/coin/itpro/hansoku/pdf/nnw201210_1.pdf).
- (4) "「固定電話」の今後について", [http://www.ntt.co.jp/news2015/1511jwbw/pdf/xddh151106d\\_all.pdf](http://www.ntt.co.jp/news2015/1511jwbw/pdf/xddh151106d_all.pdf).
- (5) "Asterisk", <http://www.asterisk.org/>.
- (6) "Asterisk (PBX) | 用語集 | KDDI 株式会社", [http://www.kddi.com/yogo/通信サービス/Asterisk\(PBX\).html](http://www.kddi.com/yogo/通信サービス/Asterisk(PBX).html).
- (7) アイウィーヴ、マッキーソフト, "Asterisk 運用・開発ガイド", オーム社, June 2007.
- (8) 町田良平, "IP 電話網における非常時の収容呼数増大を目指した呼受付制御方式", 2015 年度工学院大学卒業論文, February 2016.
- (9) "Welcome to SIPp", <http://sipp.sourceforge.net/>.
- (10) 村杉直紀, "パケット通信網混雑時における音声コーデック選択のための特性評価", 2015 年度工学院大学卒業論文, February 2016
- (11) "総務省、災害用伝言サービス", [http://www.soumu.go.jp/menu\\_seisaku/ictseisaku/net\\_anzen/hijyo/dengon.html](http://www.soumu.go.jp/menu_seisaku/ictseisaku/net_anzen/hijyo/dengon.html)

## 2016 年度研究成果

### 論文誌

1. Kazuki Tanabe, Sumiko Miyata, Ken-ichi Baba and Katsunori Yamaoka, "Threshold relaxation and holding time limitation method for accepting more general calls under emergency trunk reservation", *IEICE Transaction on Fundamentals of Electronics, Communications and Computer Sciences*, vol. E99-A, no. 8, pp. 1518–1528, August 2016.

### 国際会議

2. Takuya Okamoto and Katsunori Yamaoka, "An efficient communications protocol for reticent sender cooperated with aggressively speaking receiver", in *Proceedings of 17th International Network Strategy and Planning Symposium (Networks 2016)*, September 2016.

### 研究会

3. 加田匠, 岡本卓也, 田辺和輝, 山岡克式, "許容発信試行回数の導入による非常時通信網の通信収容効率向上効果", 電子情報通信学会 技術研究報告 (IN2016-147), vol. 116, no. 485, pp. 299–304, March 2017.
4. 田辺和輝, 遠藤雅也, 南弘征, 山岡克式, "一定の QoS を満足する VoIP セッション収容数の検討," 電子情報通信学会 ソサイエティ大会, B-7-19, September 2016.

# 高速高精度な多関節ロボットの 位置、姿勢、力とモーメントのハイブリッド制御

## — 基礎研究：単純適応制御を用いた AC サーボモータの位置決め制御 —

工学院大学 電気システム工学科 黄慶九

华中科技大学 機械科学与工程学院 陳学東

High-speed and High-precision Hybrid Position/Posture/Force/Moment Control  
for Multi-joint Robot

— Basic Study: Position control of AC servo motor with simple adaptive control —

Qingjiu Huang, Department of Electrical Engineering, Kogakuin University  
Xuedong Chen, Huazhong University of Science and Technology

**ABSTRACT** : There are more and more needs for surface contact works, such as polish, grinding, paint, inspection, etc. with robot manipulators in recent years. In this paper, to achieve high-speed and high-precision surface contact work by robot manipulator, we propose a separation method of posture components to solve the problem of the rotation order, and a method of introducing the impedance characteristics to hybrid position, posture, force and moment control to eliminate the interference between free space and constrained space.

### 1. はじめに

工業用ロボットの関節部やフォークリフトなどの運搬用機械などさまざまな用途でサーボモータは用いられている。サーボモータと一口で言ってもその種類は複数ある。そもそも、サーボモータと呼ばれるものは直流モータや誘導モータ、超音波モータのような特定の形式のモータのことを指すものではなく、これらのモータに対してサーボ機構を導入し、位置や速度などに追従する用途で用いるモータのことである。駆動させる際にはサーボモータの他にサーボアンプと呼ばれるドライバとセットで使い、モータへの入力電流の制御や速度や角度制御の信号を出して回転させる。サーボモータとして主に用いられるのは、AC サーボモータとしては同期電動機型ブラシレス DC モータ、誘導電動機などがあり、DC サーボモータとしてはブラシ付 DC モータ、ステッピングモータである。このうちブラシレス DC モータは AC, DC どちらでも駆動させることが出来るため、幅広く使用されている。本研究ではこの AC サーボモータに着目している。AC サーボモータではじめて使用されたのは同期形 AC サーボモータである。同期モータは高速回転が可能で定速性があるため、可変電圧可変周波数のモータへの入力信号

(PWM 制御信号) を使用するのが適切である。インバータ回路はコンバータで三相商用電源を交流から直流電圧に変換し、インバータで直流から交流に変換することによって、モータの入力を可変電圧可変周波数にすることができる。これは PWM 制御とも言う。

かご形回転子を使った誘導モータは、慣性モーメントが小さいためサーボモータに適切である。これは誘導形 AC サーボモータと呼ばれる。同期形に比べベクトル制御をすることができるため、DC サーボモータ並みの制御能力があり、高効率、省エネルギー化を実現することができる。周波数  $f$  は、一定で電動機の極数も一定である。負荷の大きさによって、すべりの大きさは、変化するが、すべりの大きさの変化は、通常、数%程度のためほぼ定速度性と考えるとよい。速度が一定のもの、可変速のものと同様な用途で使われる。モータに電流を流すと働く力はベクトルとなり、トルク成分と界磁成分に分け、モータの効率が最も良くなるように制御を行うことである。

AC サーボモータには下記のような特徴がある (1) (2)。

- ブラシが使われていないためブラシの摩耗や、摩擦による効率の低下がない。
- 閉ループフィードバックにより精密な位置決め制御を行うことが出来る。
- インバータによる交流駆動のため、低振動、低騒音である。

- 負荷に合わせたサーボ調整として多くのパラメータ調整が必要である。
- 大電力では起動トルクの大きさや、調速の容易さ、効率の高さなど DC サーボモータに劣る点がある。

本研究ではこれらの特徴のなかの、負荷変動に対するサーボ調整の不便さに着目し、調整における手間を少なくする適応制御系を研究対象とする。

適応制御にはいくつかの方式があり、モデル規範型制御系、セルフチューニングレギュレータ、単純適応制御系などがある。本研究では負荷変動によるサーボ調整の安定化とともに利便性も念頭においているため、比較的实现が容易である単純適応制御系をもとにサーボモータの制御を行っていく。

## 2. 可変調整則ゲインの提案による単純適応制御系の構成

本章では基本的な単純適応制御の構成について述べる。その中で、概強正実性の有無に分けて構成法を述べるとともに、単純適応制御を行うにあたって重要となる調整則について述べる。また、この調整則は単純適応制御において数少ない使用者が調整する必要のあるパラメータとなる調整則ゲインを含むものであり、この調整則ゲインの値が制御の良し悪しを決めるので重要な値となる。この調整則ゲインの調整を簡単化するために可変調整則ゲインを提案する。

### 2. 1 単純適応制御系の基本構成

#### 2. 1. 1 適応制御構成 (概強正実である場合)

単純適応制御系の基本的な構成の説明をするにあたって理解がしやすいように、制御対象を式(2.1)に示すような  $n$  次 1 入出力、可制御、可観測、線形時不変系とし、概強正実条件を満足しているものと仮定する。

$$\begin{aligned} \dot{x}(t) &= Ax(t) + bu(t) \\ y(t) &= c^T x(t) \end{aligned} \quad (2.1)$$

また、制御対象が追従すべき安定な理想規範モデルを式(2.2)に示すような  $n_m$  次 1 入出力、可制御、可観測、線形時不変系とする。このとき  $n_m \leq n$  である。

$$\begin{aligned} \dot{x}_m(t) &= A_m x_m(t) + b_m u_m(t) \\ y_m(t) &= c_m^T x_m(t) \end{aligned} \quad (2.2)$$

単純適応制御は式(2.1)のパラメータが未知であったとしても、理想規範モデルの出力  $y_m$  に制御対象の出力  $y(t)$  が追従するような制御入力  $u(t)$  を構成するものである。そこで重要となるのが理想規範モデルの出力に追従するための制御入力をどのように実現するかということとなる。この問題を解決するために、まずは制御対象のパラメータが既知の場合を考える。このとき理想規範モデル出力  $y_m$  への出力マッチングは、コマンドジェネレータトラッカ入力解を構成し、それをフィードフォワード形式で決定することで実現できる。制御系の安定性については、制御対象の概強正実性を利用して出力フィードバック形式をとることにより確保する。この手法はあくまで

制御対象のパラメータが既知であることを前提とすることにより、あらかじめ計算によって算出することが出来ると仮定したものである。実際には制御対象のパラメータは未知であるため、このようなフィードフォワード、フィードバック制御入力を計算して実現することはできない。そこで、制御対象のパラメータが未知であっても、既知のときと同じような制御入力を得るために以下のように適応的に実現する。

制御対象が下記の条件を満たしているとする、制御入力は式(2.3)のように表すことが出来る。

1. 制御対象は概強正実条件を満たしている。
2. 制御対象はコマンドジェネレータトラッカ問題での仮定条件を満たす。

$$(ア) \quad \text{rank} \begin{bmatrix} A & b \\ c^T & 0 \end{bmatrix} = n + 1$$

(イ)  $\Omega_{ij}$  を次式の解とする。

$$\begin{bmatrix} A & b \\ c^T & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Omega_{11} & \Omega_{12} \\ \Omega_{21} & \Omega_{22} \end{bmatrix} = I_{n+1}$$

$$u(t) = k(t)^T z(t) \quad (2.3)$$

式(3.3)における  $z(t)$ ,  $k(t)$  は

$$z(t) = [e(t) \quad x_m(t)^T \quad u_m(t)^T]^T \quad (2.4)$$

$$k(t) = [k_e(t) \quad k_{x_m}(t)^T \quad k_{u_m}(t)^T]^T \quad (2.5)$$

$$e(t) = y(t) - y_m(t) \quad (2.6)$$

である。単純適応制御における適応制御入力は追従誤差のフィードバック、理想モデルの状態変数および設定入力フィードフォワードによる構成と、これらの制御ゲインパラメータに関する適応調整則からなる。ここで式(2.3)において  $z(t)$  を回帰ベクトル(regression vector),  $k(t)$  を適応ゲインベクトル(adaptive gain vector)という。また、 $e$  が追従誤差を表す。適応ゲインベクトルの構成法は積分型適応調整則などいくつかの調整則があり、この説明は後述の適応調整則にて行う。ここでは制御入力構成の理解のために基本的な調整則となる積分型適応調整則を例にとって制御入力について記述していく。下記の式(3.7)が積分型適応調整則の構成である。

$$\begin{aligned} k(t) &= k_I(t) \\ \dot{k}_I(t) &= -\Gamma_I z(t) e(t) \\ (\Gamma_I &= \Gamma_I^T > 0) \end{aligned} \quad (2.7)$$

$$\dot{k}_I(t) = \begin{bmatrix} \dot{k}_e(t) \\ \dot{k}_{x_m}(t) \\ \dot{k}_{u_m}(t) \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} \gamma_{I1} & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_{I2} & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_{I3} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e(t) \\ x_m(t) \\ u_m(t) \end{bmatrix} e(t)$$

式(3.7)での $\Gamma_I$ は調整則ゲイン行列と呼ばれ、適応調整則の構成で重要なものである。

また、 $u_m(t)$ 及び $\dot{u}_m(t)$ は有界とすると、式(2.3)～式(2.7)のように制御入力を構成するとき、 $e(t)$ は有界となる。

特に $u_m(t) \equiv \dot{u}_m(t) \equiv 0$ の場合には $\lim_{t \rightarrow \infty} e(t) = 0$ となる。

今までの式よりまとめた単純適応制御系の構成ブロック線図を図2.1に示す。

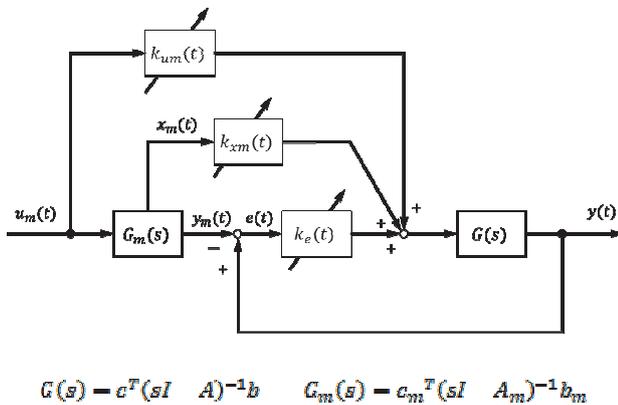


図 2.1 単純適応制御系の基本構成

### 2. 1. 2 適応制御構成 (概強正実でない場合)

前項では制御対象が概強正実条件を満たしていると仮定して構成を行っていたが、並列フィードフォワード補償器(PFC)の章で記述した通り、一般的な制御対象は概強正実条件を満たしていることは少ない。そのような制御対象には PFC を並列に付加した拡大系が概強正実条件を満たすようにして単純適応制御を行う。まず、制御対象  $G(s)$  を式(2.8)に示すような  $n$  次 1 入出力、可制御、可観測とし、 $G(s)$  は概強正実条件を満たしていないものとする。

## 2. 2 単純適応制御における適応調整則

2.1.1 節では式(2.7)に示した積分型適応調整則を用いて、単純適応制御の基本的な制御入力構成を示した。この他にも単純適応制御に用いられる適応調整則はいくつかあるので、この節ではそれらについて記述していく。

### 2. 2. 1 積分+比例型適応調整則

積分型適応調整則に比例項を加えたものが積分+比例型調整則である。積分+比例型調整則を式(2.8)に示す。

$$k(t) = \int \dot{k}_I(t) + k_p(t) = k_I(t) + k_p(t) \quad (2.8)$$

$$\dot{k}_I(t) = -\Gamma_I z(t) e(t) \quad \Gamma_I = \Gamma_I^T > 0$$

$$k_p(t) = -\Gamma_p z(t) e(t) \quad \Gamma_p = \Gamma_p^T > 0$$

$$\dot{k}_I(t) = \begin{bmatrix} \dot{k}_e(t) \\ \dot{k}_{x_m}(t) \\ \dot{k}_{u_m}(t) \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} \gamma_{I1} & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_{I2} & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_{I3} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e(t) \\ x_m(t) \\ u_m(t) \end{bmatrix} e(t)$$

$$k_p(t) = \begin{bmatrix} k_e(t) \\ k_{x_m}(t) \\ k_{u_m}(t) \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} \gamma_{I1} & 0 & 0 \\ 0 & \gamma_{I2} & 0 \\ 0 & 0 & \gamma_{I3} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} e(t) \\ x_m(t) \\ u_m(t) \end{bmatrix} e(t)$$

積分型適応調整則は安定性の確保を行うことはできるが、推定パラメータに対して振動的となり収束に時間がかかる。この問題に対して用いられるものが積分+比例型適応調整則である。比例項を加えることで非振動的になるように調整することを目的とし、収束時間を早めることができる。積分+比例型調整則も積分型適応調整則と同様に、 $u_m(t)$ 及び $\dot{u}_m(t)$ は有界とすると、式(3.3)～式(3.6)

及び式(3.13)のように制御入力を構成するとき、 $e(t)$ は有界となる。特に $u_m(t) \equiv \dot{u}_m(t) \equiv 0$ の場合には $\lim_{t \rightarrow \infty} e(t) = 0$ となる。

### 2. 2. 2 ロバスト適応調整則 ( $\sigma$ -修正法)

積分型の適応調整則ではどの調整則においてもその右辺には必ず $e(t)^2$ の項が含まれる。数学的証明においては

$\lim_{t \rightarrow \infty} e(t) = 0$ となるので収束性に問題は生じないが、この

調整則を実在系に実装するとき、近似数値積分を用いるので、この項が厳密にはゼロとならないことがある。そのため、長時間にわたり制御を行うと調整則が発散することがある。この現象をバースト現象という。このようなバースト現象を避けるために、積分型の調整則に負のフィードバックを付加する方法がある。このように、負のフィードバックを用いて調整則の安定化を図る手法を $\sigma$ -修正法といい、この手法を用いた調整則をロバスト適

応調整則という。ロバスト適応調整則の構成を式(2.9)に示す。

$$\dot{k}_I(t) = -\Gamma_I z(t) e(t) - \sigma k_I(t), \quad \sigma > 0 \quad (2.9)$$

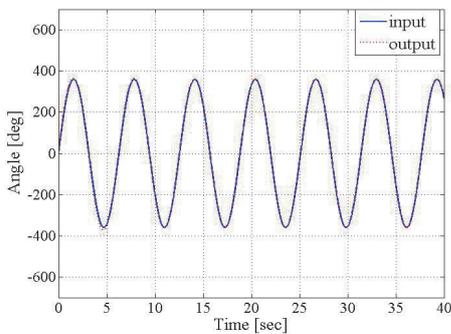
### 2. 3 可変調整則ゲインによる調節簡素化の提案

上記に示した適応調整則は制御入力の構成として重要となり、制御入力の構成においてサーボ調整の困難さの簡素化について他の制御より扱いやすいものである。しかし、実際の制御において適応調整則による制御入力の構成は行われるが、その適応調整則の働きを左右するの

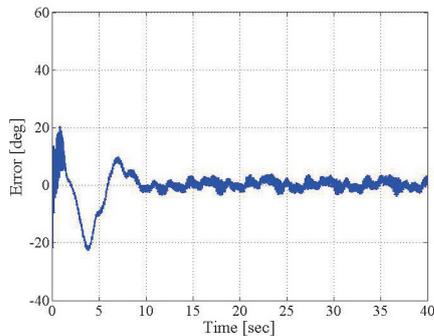
は内部的な調整則ゲインのパラメータによるものが大きい。この調整則ゲインパラメータは使用者の感覚と応答の結果から試行錯誤していく形が多い。そのため、単純適応制御を用いるだけでは負荷変動に対してのサーボ調整の簡単化は図れても、最終的な調整は使用者に左右されてしまい、誰でも扱うことが出来るが手間がかかってしまうことになる。そこで、本研究では調整則ゲイン自体をある一定条件化での可変にすることで、適応ゲイン調整の手間を省きつつ制御を行う方法を提案する。

まず調整則ゲインの可変にあたり、ゲイン変化によって応答にどのような差がうまれるかを、実機駆動を通して確認するために複数パターンでのゲイン変化での駆動を行った。下記に調整則ゲインを変更したときの各ゲインでの応答を示す。各調整則ゲインの表記は以下である。

$$\gamma = [\gamma_{11} \quad \gamma_{12} \quad \gamma_{13}] \quad (2.10)$$

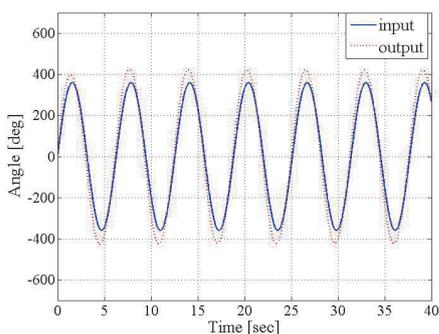


(a) 入出力波形

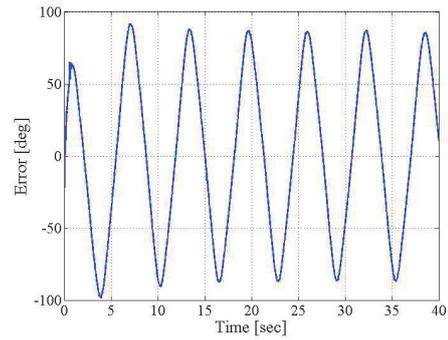


(b) 誤差波形

図 2.2 調整則ゲイン  $\gamma = [10^5 \quad 10 \quad 10]$

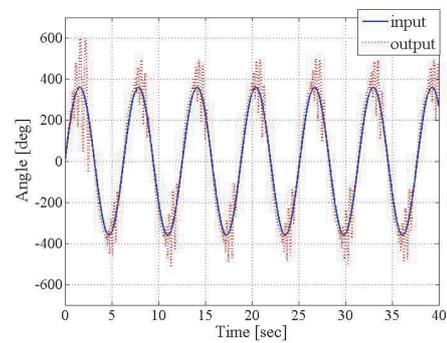


(a) 入出力波形

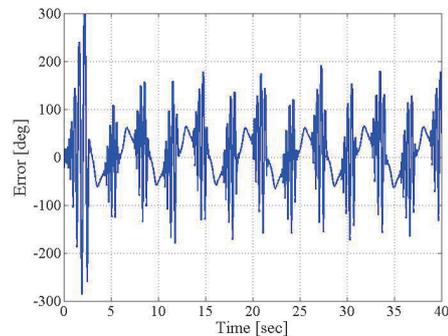


(b) 誤差波形

図 2.3 調整則ゲイン  $\gamma = [10^7 \quad 10 \quad 10]$

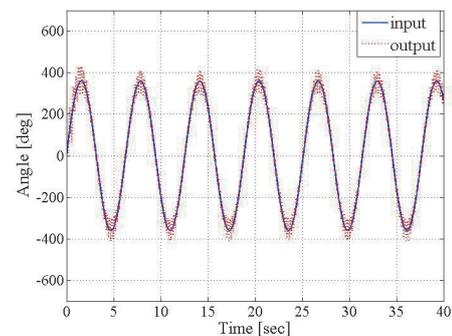


(a) 入出力波形

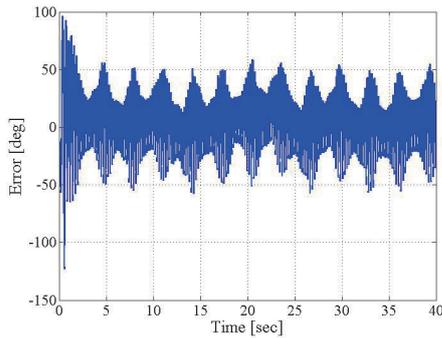


(b) 誤差波形

図 2.4 調整則ゲイン  $\gamma = [10^5 \quad 10^3 \quad 10]$



(a) 入出力波形



(b) 誤差波形

図 2.5 調整則ゲイン  $\gamma = [10^2 \ 10 \ 10]$ 

図 2.2 の調整則ゲインは制御対象に合わせて調整したゲインを用いたために追従性、安定性ともに一定以上の良好な結果が得られている。それに対し、図 2.3 では  $\gamma_{11}$  のゲインを  $10^7$  に増加させて駆動させたところ駆動中の振動は減少したが、目標値との誤差が大きく出ている。図 2.4 では、 $\gamma_{12}$  のゲインを  $10^3$  に増加させて駆動させた。応答では一方向への回転における追従性や速応性は維持できているが、その分逆回転になる際に振動的となっている。図 2.5 では図 2.3 とは逆に  $\gamma_{11}$  のゲインを  $10^2$  として小さくして駆動させた。上記の結果より、同一の制御対象においても調整則ゲインの設定によって良好な目標値追従制御が行えないことが確認でき、調整則ゲインの設定によっては不安定になることも確認した。今回の駆動において構造の簡単化のために、制御系への入力  $u_m$  と追従すべき目標値となる規範モデルの出力  $y_m$  は、 $u_m \approx y_m$  となるように設定しているため、 $\gamma_{12}$  と  $\gamma_{13}$  の適応的な働きは同じであると考えて今回の提案においては  $\gamma_{13} = 10$  で固定とした。図 2.2～図 2.5 の結果をもとに調整則ゲイン  $\gamma$  の内部パラメータの増減と相関による関係性を推定すると下記ようになる。

- $\gamma_{11}$  の増加により応答の振動性が小さくなるが、追従性が悪くなる。
- $\gamma_{11}$  が減少すると追従性や速応性が向上するが振動性が増す
- $\gamma_{12}$  の増加により応答の追従性の向上や維持が見られるが、振動的になる。

- $\gamma_{12}$  が減少した場合、振動は減少する。また場合より追従性が悪くなる。
- $\gamma_{11}$  と  $\gamma_{12}$  の値が近くなると振動的になる。

これらの推定をもとに調整則ゲインに条件を付けて状況的に可変するような調整則ゲインを作成した。下記に実装した可変調整則ゲインにおける条件を示す。

- 目標値誤差が指定範囲以内であるならば、 $\gamma_{11}$  を増加させる。
- 目標値誤差が指定範囲外であるならば、 $\gamma_{11}$  を減少させる。ただし、 $\gamma_{12}$  と値が近くなりすぎないように制限を設ける。
- 目標値誤差が指定範囲以内であるならば  $\gamma_{12}$  を減少させる。
- 目標値誤差が指定範囲外であるならば  $\gamma_{12}$  を増加させる。ただし、 $\gamma_{11}$  と値が近くなりすぎないように制限を設ける。
- 応答が振動的であるならば、増幅を抑えるために  $\gamma_{11}$ 、 $\gamma_{12}$  ともに減少させる。

この条件のもとに調整則ゲインを可変させ応答の安定化と追従性を図ることとする。この可変調整則ゲインの設定により、制御対象に対する調整則ゲインの手間を省くとともに、ゲイン推定の手段の一つとして用いることが出来る。ただし、初期に設定する調整則ゲインの値として制御系が暴走しない範囲で設定しなければならないため、多少の手間が生じてしまうが、制御系に最適な調整は上記の条件のもと可変調整則ゲインが行ってくれる。

### 3. 制御対象

本章では、制御に用いる AC サーボモータのモデル化について記述していく。

#### 3. 1 制御対象として用いる AC サーボモータ

制御対象として用いるサーボモータを図 3.1 に示す。

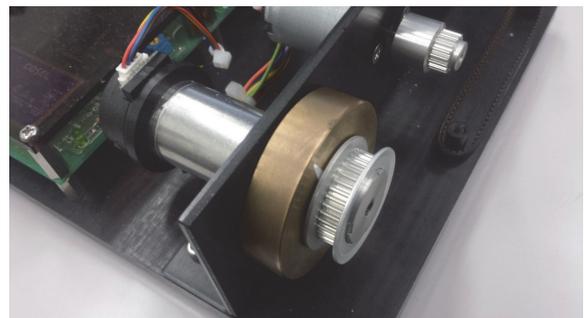


図 3.1 使用するサーボモータ

本研究では「マクソンジャパン株式会社」製の EC-max モータシリーズの「EC-max 22 283840」を用いた。

本研究では図 3.1 に示すサーボモータの角度制御を目的としているので、電圧入力、角度出力でモデリングを行う。電圧を入力、出力を角度としたときのモータモデルは電圧と角度の関係式とニュートンの運動方程式を用いることにより算出する。ここに、電圧入力（制御電圧入力）を  $V_i$ 、角度出力（制御出力）を  $\theta_o$  とする。また、以降のモデリングに用いる記号を表 3.1 にまとめる。

表 3.1 モデリングに用いる記号

各記号	記号要素
$\theta$	モータ角度（出力）
$\omega$	モータ角速度
$V_i$	入力電圧
$I$	モータ電流
$L$	インダクタンス
$R$	モータ内部抵抗
$V_g$	逆起電力
$K_t$	トルク定数
$T$	モータトルク
$J_m$	モータイナーシャ
$J_t$	負荷イナーシャ
$J(=J_m + J_t)$	合成イナーシャ

入力を電圧  $V_i$ 、出力を角度  $\theta$  とした伝達関数形にする。

$$G(s) = \frac{\theta}{V_i} = \frac{1}{\frac{R}{K_t}s^2 + K_t s} \quad (3.1)$$

今回想定しているサーボモータの各パラメータは表 3.2 に示すものを用いる。

表 3.2 モータパラメータ

各パラメータ	パラメータ値
$R$	0.018Nm/A
$K_t$	12.4Ω
$J_m$	$0.0225 \times 10^{-5} \text{kgm}^2$
$J_t$	$3.0 \times 10^{-5} \text{kgm}^2$
$J(=J_m + J_t)$	$3.02 \times 10^{-5} \text{kgm}^2$

表 4.2 の各パラメータを式(3.1)に代入することで算出したモータモデルを式(3.2)に示す。

$$G(s) = \frac{\theta}{V_i} = \frac{1}{\frac{12.4 \times 9.02 \times 10^{-8}}{0.018} s^2 + 0.018 s} = \frac{1}{0.021s^2 + 0.018s} \quad (3.2)$$

この式(3.2)が制御対象の伝達関数モデルとなる。このモデルを概強正実条件に当てはめると、条件は

1.  $G(s)$  のゼロ点はすべて左半面（負の値）をとる。すなわち最小位相系である。
  2. 相対次数  $\gamma$  は 0 または 1 である。
  3. 最高位係数は正。（ $N(s)$  の最高次数の係数  $b_m$  が正）
- であり、この条件に対し制御対象は

- $G(s)$  は分子が多項式ではなく正定数である為、ゼロ点は存在しない。
- 相対次数  $\gamma = n - m = 2$
- 最高位係数  $b_m = 0$

となる。

上記より制御対象は三つの条件のどれも満たしていないことが明白である。そのため、本研究で用いるサーボモータモデルは概強誠実性をもたないため、PFC を付加しなければ単純適応制御を行うことが出来ない。この PFC 設計については後述するシミュレーション解析の章で記述する。

#### 4. シミュレーション解析

前章までに単純適応制御系の構成について述べた。本章ではこれらを用いて構成した単純適応制御系によって制御対象であるサーボモータの制御を、シミュレーション解析によって行う。各解析には Matlab/Simulink を用いた。

##### 4. 1 PFC の設計

前章で説明した制御対象であるサーボモータの概強誠実条件を満たしていないことがわかる。そのため単純適応制御を行うために PFC（並列フィードフォワード補償機）を付加することを考える。

今回の条件では、制御対象の伝達関数モデルがある程度分かっており、相対次数  $\gamma$  も認識できているので、PFC の設計は比較的簡単に行うことが出来る。PFC 設計を行った結果、式(4.1)とした。

$$G_f(s) = \frac{0.5}{s+0.8} \quad (4.1)$$

ここで、拡大系  $G_a(s) = G(s) + G_f(s)$  において概強誠実条件に当てはめると、

$$G_a(s) = \frac{1.414s^2 + 1791s + 1432}{2.928s^2 + 3.262s^2 + 0.8s} \quad (4.2)$$

- $G(s)$  のゼロ点は  $(-1265.5, -0.8000)$  であり、どちらも左半面にあるため最小位相系となる。
- 相対次数  $\gamma = n - m = 3 - 2 = 1$
- 最高位係数  $b_m = 1.414 > 0$

よって、拡大系  $G_a(s)$  は概強誠実条件を満たす。

4. 2 単純適応制御系での基本制御

再構成前の伝達関数と再構成後の伝達関数にそれぞれ、PID 制御，単純適応制御（積分型調整則，積分+比例型調整則）を用いてシミュレーション解析を行った。本研究ではサーボモータの位置制御を目的としているので、角度制御として目標値入力に  $A \sin \omega t = 360 \sin t$  を加え、**360°**回転指令に対して制御出力がどの程度目標値に追

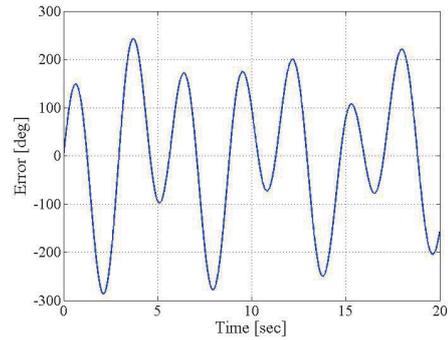
従しているかを見た。このときの単純適応制御系の各調整則と PID 制御系の応答を比較し、それぞれがモデル化誤差に対してどれだけのロバスト性があるかを確認する。単純適応制御系における PFC は、PFC 付加によって発生する定常誤差を少なくするために、フィードフォワードループからはずすように付加した。制御に用いたパラメータは表 4.1, 4.2 にそれぞれ示す。シミュレーション解析結果は図 4.1, 図 4.2 に PID 制御系での応答、図 4.3, 図 4.4 に積分+比例型適応調整則を用いた単純適応制御系での応答を示す。

表 4.1 PID パラメータ

各パラメータ	パラメータ値
$K_p$	<b>0.1</b>
$K_i$	<b>0.1</b>
$K_d$	<b>0.004</b>

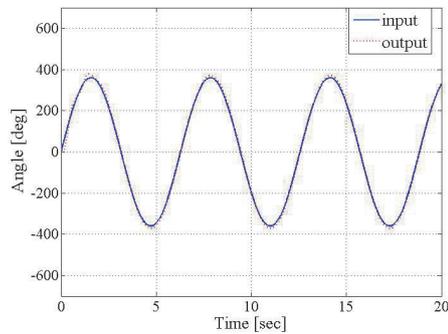
表 4.2 単純適応制御パラメータ（積分+比例型適応調整則）

各パラメータ	パラメータ値
$\Gamma_i$	<b>[10<sup>5</sup> 10 10]</b>
$\Gamma_p$	<b>[10<sup>3</sup> 10 10]</b>
PFC	$\frac{0.5}{s + 0.8}$
$\sigma$	<b>0.1</b>

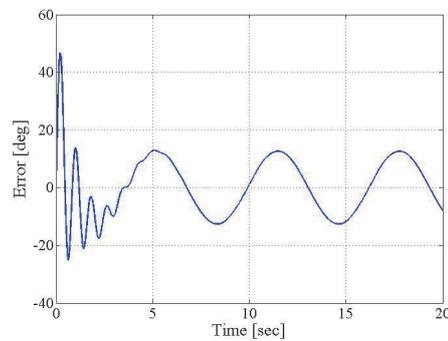


(b) 誤差波形

図 4.1 再構成前モデルでの PID 制御系

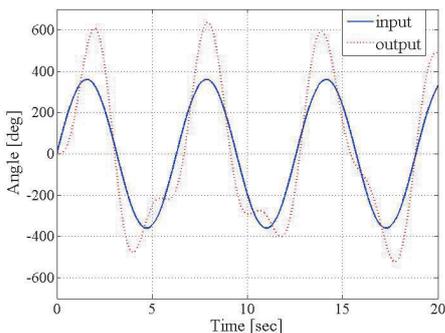


(a) 入出力波形

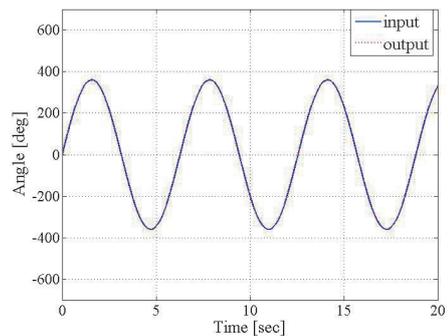


(b) 誤差波形

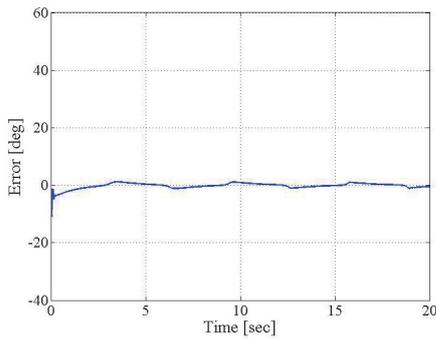
図 4.2 再構成後モデルでの PID 制御系



(a) 入出力波形

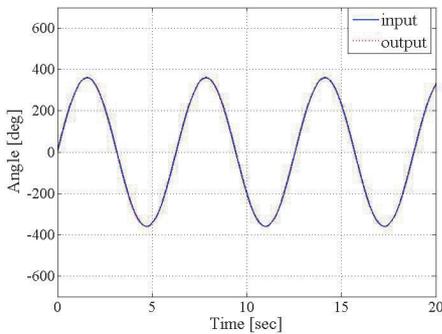


(a) 入出力波形

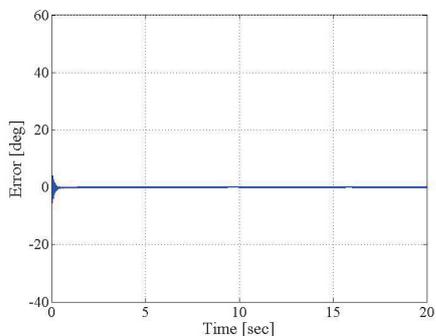


(b) 誤差波形

図 4.3 再構成前モデルでの単純適応制御系（積分+比例型適応調整則）



(a) 入出力波形



(b) 誤差波形

図 4.4 再構成後モデルでの単純適応制御系（積分+比例型適応調整則）

図 4.1, 図 4.2 から見て明らかなように、PID 制御系では再構成後のモデルでは立ち上がりこそ乱れているが目標値に追従していることがわかる。しかし、再構成前のモデルに対する応答では目標値に追従することが出来ておらず波形も大きく乱れている。

図 4.3、積分+比例型適応調整則では振動的な箇所は存在せず、立ち上がりの時間も短くなっている。積分+比例型適応調整則では調整則ゲインの数が増えるため、若干の調整の手間が増えるがその分良好な制御が行うことが見て取れた。誤差波形に一部振動的に立ち上がる場所が存在するものが見られるが、これは調整則ゲインの調整が適切なものでない可能性によって生まれるもので、

調整則ゲインを再調整することによって無くすることが可能である。

### 4. 3 可変調整則ゲインでの応答

3 章で提案した可変調整則ゲインを用いてシミュレーション解析を行う。このときの制御系構成図を図 5.19 に示す。提案方式では調整則の可変条件に制御出力の振動性と目標値誤差を必要とするため、基本的な単純適応制御系に振動検知部を追加して制御を行った。解析には比較のために可変調整則ゲインにおける初期ゲインとある程度調整したゲインでの単純適応制御でも解析を行う。このときの各パラメータを表 4.3 に示す。可変調整則ゲインでの初期ゲインは表 4.2 に示す  $\Gamma_{i_1}$  を用いる。

表 4.3 単純適応制御のパラメータ

各パラメータ	パラメータ値
$\Gamma_{i_1}$	$[10^3 \ 10^2 \ 10]$
$\Gamma_{i_2}$	$[10^5 \ 10 \ 10]$
PFC	$\frac{0.5}{s + 0.8}$
$\sigma$	0.1

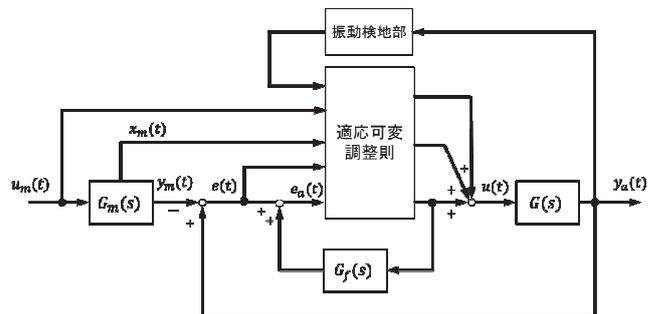
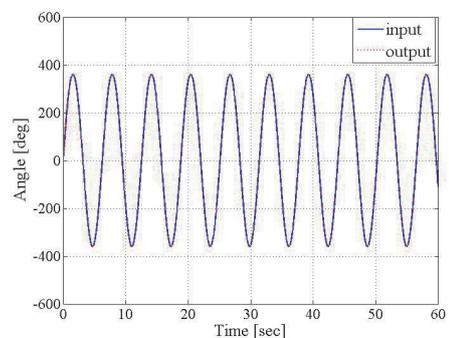
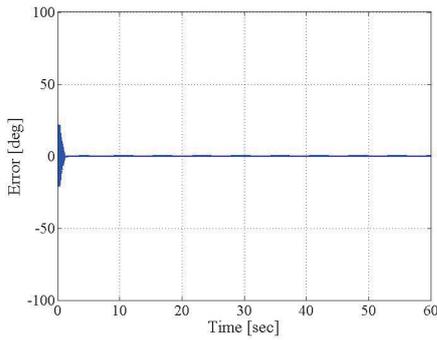


図 4.5 可変調整則ゲインでの制御系



(a) 入出力波形



(b) 誤差波形

図 4.6 可変調整則での応答

図 4.1～図 4.4 での誤差を見ると振動的に大きな誤差がいくつか見られる。一方、ある程度調整した調整則ゲインである図 4.6 を見ると誤差が大分小さくなりそれなりに良好な結果が得られていることが見て取れる。このシミュレーション解析より、提案した可変調整則ゲインを用いることで、安定性、追従性を確保した状態で、調整則ゲインの調整の手間を省くことができた。

## 5. 実機解析

本章では実際に単純適応制御系を用いて実機となるサーボモータの駆動を行い、どのような応答が得られるかの実機解析を行う。

### 5. 1 実験装置

実機解析に用いた実験装置を図 5.1 に示す。

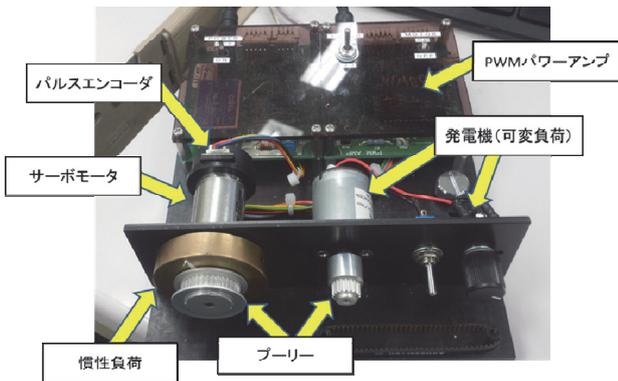


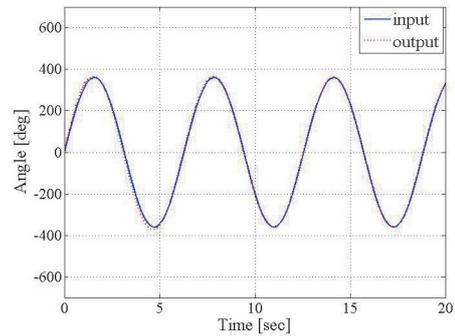
図 5.1 使用した実験装置

実験機材は「有限会社リアルテック」社製の「ブラシレスモータ制御実験装置 BTC03m」を用いて実機解析を行った。サーボモータを PWM パワーアンプによって PWM 制御駆動させ、パルスエンコーダにより回転角度をフィードバックすることで慣性負荷に対する制御系の設計が出来る。

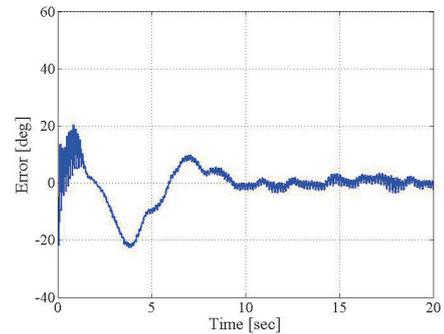
### 5. 2 単純適応制御系での基本制御

図 5.1 に示す実機を対象として、PID 制御、単純適応制御（積分＋比例型調整則）を用いて駆動させた。条件

はシミュレーションと同様に、角度制御として目標値入力に  $A \sin \omega t = 360 \sin t$  を加え、 $360^\circ$  回転指令に対して制御出力がどの程度目標値に追従しているかを見ることとする。PFC においても同様に、PFC 付加によって発生する定常誤差を少なくするために、フィードフォワードループからはずすように付加した。制御に用いたパラメータはシミュレーションと同様であり、表 4.1, 4.2 にそれぞれ示す。それぞれの応答及び比較を図 5.2, 図 5.3, 図 5.4 に示す。

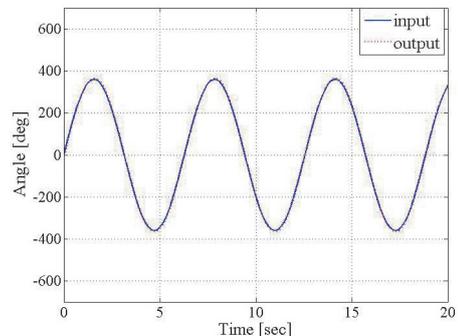


(a) 入出力波形

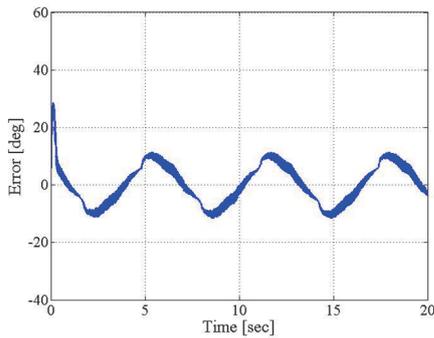


(b) 誤差波形

図 5.2 単純適応制御での実機結果

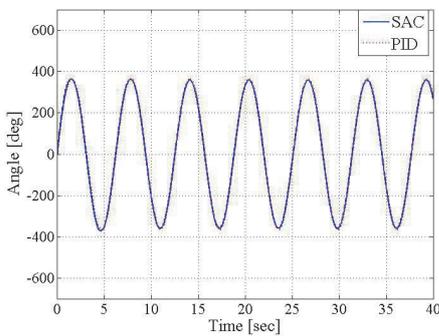


(a) 入出力波形

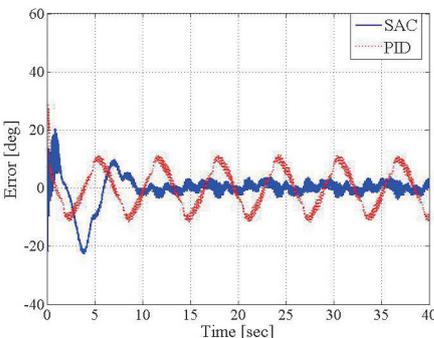


(b) 誤差波形

図 5.3 PID 制御での実機結果



(a) 出力比較



(b) 誤差比較

図 5.4 単純適応制御と PID 制御との実験結果の比較

図 5.2, 図 5.3 の入出力波形から PID 制御でも単純適応制御でも大きな乱れはなく目標に追従していることがわかる。一方誤差波形を見ると、PID 制御では最終的に約 10deg の誤差が出ているが単純適応制御では駆動開始時に大きな誤差がでていたものの、最終値では最大でも 5deg 以内に収まっていることがわかる。どちらも目標値追従はできているので、単純適応制御では PID 制御に比べ追従遅れが少ないため誤差が小さくなったと考えられる。そのため単純適応制御での追従性の良好な結果を得ることができた。誤差波形に見られる振動的な誤差は PID 制御, 単純適応制御ともに見られるため実機駆動における特性であると考えられる。

## 6. おわりに

本研究では AC サーボ調整の不便を減少させる目的のもと、単純適応制御を用いた制御系を構成し、サーボモータの角度追従制御のシミュレーション解析及び実機駆動解析を行った。

解析結果を通して、単純適応制御を用いることで調整パラメータの減少及び簡単化を行いつつも、制御応答の追従性や安定性の確保を満足した。単純適応制御系では、調整パラメータ自体が調整則ゲインしかないためそれほど多くなく、PID 制御のように制御対象からパラメータを算出するための計算もそれほど必要とせず、使用者が応答を確認しながら行えるため、本研究の目的である誰でも行うことの出来るサーボ調整として有効であることを示した。調整則としても基本となる積分型調整則でも良好な制御結果を示すことが出来たうえで、積分+比例型調整則を用いることで調整則ゲインパラメータの数が増えてしまうものの、安定性の向上や速応性の確保が行えることも示した。また、本論文で提案した可変調整則ゲインを用いた単純適応制御系を用いることで、使用者はおおよその初期値パラメータを入力するだけで、制御系が自ら調整則ゲインの調整を行ってくれるため、よりサーボ調整の簡素化を図ることが出来る。この提案において行った解析結果では追従性、安定性ともに良好な結果を得ることが出来、その有用性を示した。これらの結果より、サーボモータを制御対象としたときのサーボ調整の不便の減少において本研究の手法が有用であることを確認した。

## 参考文献

- (1) 環境適応型電気モータのサーボ制御, 小笠原彰吾, 黄慶九, 工学院大学 2013 年度卒業論文.
- (2) 自動制御基礎講座 サーボ機構, 大島康次郎, 荒木献次, オーム社, 1965 年.
- (3) アダプティブコントロール, 鈴木隆, コロナ社, 2001 年.
- (4) 単純適応制御 SAC, 岩井善太, 水本郁朗, 大塚弘文, 森北出版株式会社, 2008 年.
- (5) 適応制御, 市川邦彦, 金井喜美雄, 鈴木隆, 田村捷利, 昭晃堂, 1984 年.
- (6) 単純適応制御 (SAC) の最近の動向, 水本郁朗, 岩井善太, 計測と制御, 2001 年 10 月号.
- (7) 基礎と実践制御工学入門, 横山修一, コロナ社, 2009 年.
- (8) 純適応制御 (SAC) による磁気浮上装置の位置制御, 水谷明博, 高見勲, URL: <http://www.seto.nanzan-u.ac.jp/ise/gr-thesis/ms/2009/06mi106.pdf#search='SAC+%E9%81%A9%E5%BF%9C%E8%AA%BF%E6%95%B4%E5%89%87'>.
- (9) モータの基礎と永久磁石シリーズ(7) ブラシレス DC モータ, ネオマグ株式会社, NeoMag 通信バックナンバー, URL: <http://www.neomag.jp/mailmagazines/topics/letter201009.php>.
- (10) 単純適応制御を用いたサーボモータの位置決め制御, 宮前圭輔, 黄慶九, 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, 2015 年 12 月.
- (11) 実装に向けたサーボモータの単純適応制御, 宮前圭輔, 黄慶九, 電気学会全国大会, 2016 年 3 月.

## GaN系集積化面発光素子用近紫外透明導電膜製作技術の開発研究

工学院大学 先進工学部 応用物理学科 本田徹

School of Electronic Engineering, LED-IT Fusion Technology Research Center,

Yeungnam University Ja-Soon Jang

工学院大学 先進工学部 応用物理学科 佐藤光史

工学院大学 先進工学部 応用物理学科 永井裕己

工学院大学 先進工学部 応用物理学科 尾沼猛儀

工学院大学 先進工学部 応用物理学科 山口智広

Fabrication of Near UV Transparent Conductive Film for GaN-based Integrated Surface Emitting Devices

Tohru Honda, Department of Applied Physics, Kogakuin University

Ja-Soon Jang, School of Electronic Engineering, LED-IT Fusion Technology Research Center,  
Yeungnam University,

Mitsunobu Sato, Department of Applied Physics, Kogakuin University

Hiroki Nagai, Department of Applied Physics, Kogakuin University

Takeyoshi Onuma, Department of Applied Physics, Kogakuin University

Tomohiro Yamaguchi, Department of Applied Physics, Kogakuin University

**ABSTRACT** : The target of this project is for fabricating near UV transparent conductive films (TCF) for GaN-based integrated surface emitting devices. The detailed research topics are the followings; (1) the fabrication of high-quality II-O and III-O compound semiconductor thin films and the control of their electrical properties, (2) the improvement of light extraction efficiency using transparent conductive films with dispersed metal nanocrystals and (3) the realization of GaN-based integrated surface emitting devices with transparent conductive films. In this year, we focused on the researches of (I) the fabrication of CNT-doped  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  films by molecular precursor method (MPM) as a TCF, (II) the fabrication of Sn-doped  $\alpha\text{-Ga}_2\text{O}_3$  films by mist chemical vapor deposition (mist CVD) as a TCF, (III) the feasibility study of the fabrication of integrated surface emitting device structure by selective etching using inductively-coupled plasma reactive ion etching (ICP-RIE) and (IV) the feasibility study of the fabrication of embedded-type integrated surface emitting device structure, concerning mainly on the topics of (1) and (3).

### 1. はじめに

窒化ガリウム(GaN)を代表とする III-V 窒化物半導体は、青色・緑色・白色発光ダイオード(LED)、400nm 帯半導体レーザ(LD)に応用されるとともに、電子デバイスへの応用研究も活発に行われている。これら III-V 族窒

化物半導体は、近未来の主力半導体となる可能性を秘めている。

面発光レーザは、集積化が容易な半導体レーザの一形式であり、その製作プロセスは発光ダイオード等の集積化技術と重なるところが大きい。一方、フラットパネル・ディスプレイ(FPD)の研究・実用化は、近年著しい進展

があり、液晶ディスプレイのみならず、プラズマディスプレイ、有機 EL など非常に多様にわたる方式が市場に出ている。屋外大型ディスプレイの分野では、窒化物半導体を利用した発光ダイオードによる方法が、大きな市場を獲得している。これは、III-V 族窒化物半導体がディスプレイ应用到に適用していることを意味する。

このような背景の下、我々は、III-V 族窒化物材料の応用の裾野を広げるため、また、日々、モバイル機器を活用する学生等にとって興味をそそる研究テーマとして、他の方法では難しいと考える屋外利用を想定した 2 インチ程度の家庭・ビジネス用 III-V 族窒化物半導体発光素子を集積利用した FPD 应用到に展開可能な高密度 GaN 系 LED の集積化を実現できる「面発光素子」の製作[1]を一貫して行っている。

平成 18-20 年度に科学研究費補助金 基盤研究(C)「集積化 GaN 系面発光素子の基礎検討」にて、GaN 系発光素子集積化の構造について検討を行い、無機紫外 EL 素子の製作に成功した。平成 21-23 年度には、同基盤研究種目「プレーナー型集積化 GaN 系面発光素子の製作検討」にて、ショットキー型集積化発光素子の製作に取り組み、紫外発光ダイオードの製作および蛍光体を利用した RGB 画素の製作に成功した。平成 25-27 年には、同基盤研究種目「化学リフトオフ技術を用いた GaN 系集積化面発光素子製作検討」にて、化学リフトオフ技術を用いた面発光素子の製作を行ってきた。

また並行して、平成 21-23 年度には、本学総合研究所プロジェクト研究「集積化紫外発光素子のための透明導電膜の検討」にて、溶液法の 1 種である分子プレカーサー法 (MPM) による MgZnO 透明導電膜の製作を行い、抵抗率が  $10^{-2} \Omega\text{cm}$  程度の透明導電膜の形成に成功した。さらに、私立大学戦略的研究基盤形成支援事業 工学院大学総合研究所エネルギー変換エコマテリアルセンター「エネルギー形態相互変換エコマテリアルの創製と応用」にて、Ga-In-O 薄膜を MPM により製作することに成功し、350 nm 帯での高透過率を実現している。

III-V 族窒化物半導体発光素子を集積利用した FPD 应用到に展開可能な高密度 GaN 系 LED の集積化を行うことの問題点として、現在の市販されている LED 構造は、裏面 2 電極構造を有していることがあげられる。科学研究費補助金 基盤研究「化学リフトオフ技術を用いた GaN 系集積化面発光素子製作検討」にて検討を行ってきた、我々が開発した「金属中間層上 GaN 系半導体結晶成長」を用いることにより、製作した GaN 結晶下にある金属中間層を溶かし基板から LED 構造を化学的にリフトオフすることができるため、縦型電流注入素子の製作を可能とする。また、「LED から発光した光を隣の素子に伝搬するクロストーク防止のための弱導波路発光層構造の形成」を通して、光の取り出し効率を高めることができる。このような LED 構造から、集積化を加味して効率的に光を取り出すためには、縦型注入素子の光取り出し側への、光吸収・反射やキャリア損失の少ない高

品質な透明導電膜の使用が求められる。

本研究では特に、集積化面発光素子を実現するための 1 つの重要課題である「透明導電膜」について、様々な手法による製作およびその特性評価を行うことを通して、GaN 系集積化面発光素子用の透明導電膜製作技術を確立することを研究目的としている。

具体的には、

- (1) 高品質 II-O 族化合物半導体および III-O 族化合物半導体の製作および電気伝導制御
- (2) 金属ナノ粒子を分散させた透明導電膜による光取り出し効率の向上
- (3) 透明導電膜使用 GaN 系集積化発光素子の実現に関する検討を行っている。

今年度は、この 3 つの検討項目について (1) と (3) の検討項目を中心に

- (I) MPM を用いたカーボンナノチューブ (CNT) 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜の製作
- (II) ミスト CVD 法を用いた Sn 添加  $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 単結晶膜の製作
- (III) 反応性イオンエッチング (ICP-RIE) を用いた選択エッチングによる集積 LED デバイス製作の可能性探索
- (IV) LED 埋め込み型集積 LED デバイス製作の可能性探索

に関する研究を行った。

以下に、上記各項目についての成果を述べる。

## 2. MPM を用いたカーボンナノチューブ (CNT) 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜の製作

MPM を用いたカーボンナノチューブ (CNT) 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜の製作のために、エタノールに Ga-edta 錯体、ジブチルアミンを加え、Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> プレカーサー溶液 (0.3 mmol/g) を調製した。この Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> プレカーサー溶液に適量の CNT 溶液 (0.0583 mmol/g) を 10, 20, 30, 40, 50 mol% で混合し、CNT 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> プレカーサー溶液を調製した。図 1 に調製した溶液写真を示す。

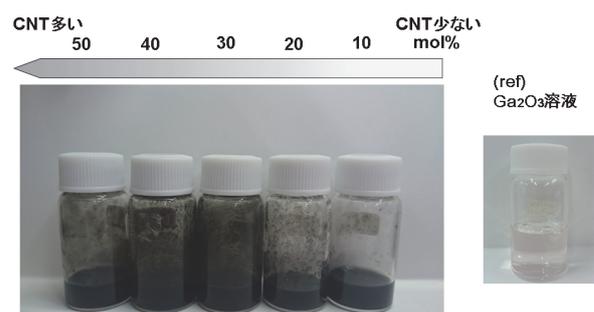
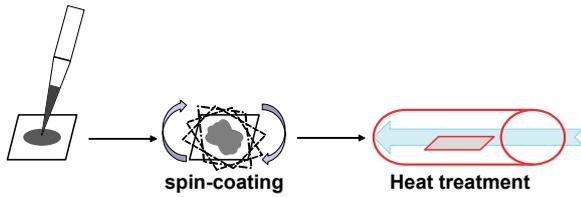
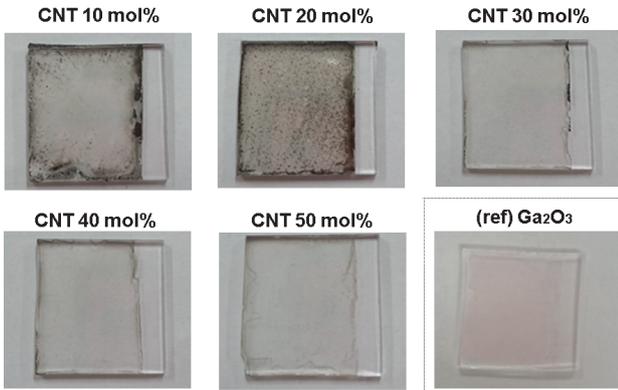


Fig. 1 Photographs of CNT-added Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> precursor solution.

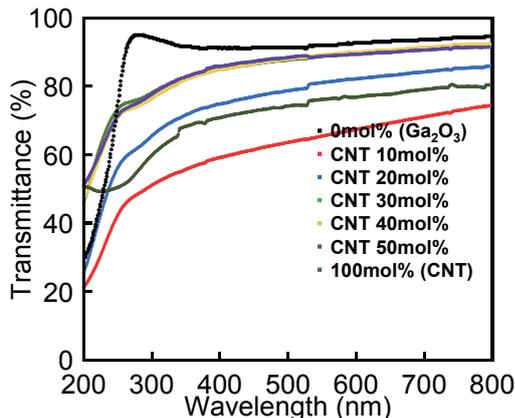


**Fig. 2** Procedure of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> film fabrication by Molecular precursor method (MPM).

これらの調製した CNT 添加プレカーサー溶液を 2×2 cm<sup>2</sup> の石英ガラス基板の上に 100 μL 滴下し、スピナー (1st step : 500 rpm 5 sec, 2nd step : 2000 rpm 30 sec) で塗付した。その後、大気中で 10 分間乾燥 (70°C) した。次に乾燥したプレカーサー膜を管状炉内で熱処理した。管状炉内中央に基板を設置し、Ar 雰囲気下、昇温速度 30°C/min. で昇温、600°C に到達後、温度を維持したまま 30 分間アニールして CNT 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜を製作した (図 2 参照)。

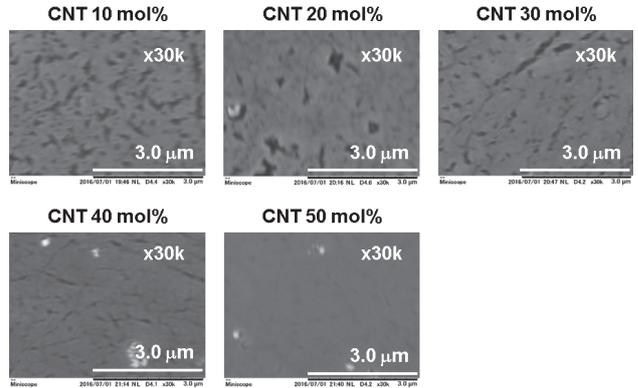


**Fig. 3** Photographs of CNT-doped Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films fabricated by MPM.



**Fig. 4** Transmittance spectra of CNT-doped Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

films fabricated by MPM.



**Fig. 5** Surface morphologies of CNT-doped Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films measured by SEM.

**Table I.** Resistivities of CNT-doped Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films.

CNT 濃度 (mol %)	抵抗率 (Ω cm)
10	6.0 × 10 <sup>-2</sup>
50	2.0 × 10 <sup>-2</sup>
100 (ref.)	1.0 × 10 <sup>-2</sup>

図 3 と図 4 に製作した CNT 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜写真と同サンプルの透過率測定結果を示す。CNT 添加無し Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜に比べ CNT 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜の透過率は低い、驚くことに、CNT 添加量が増えるにつれ透明性が改善していることが確認でき、50 mol% の CNT 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜では GaN の発光波長 365 nm で 80% 以上の高い透過率を示した。また、SEM による微小領域における表面モフォロジーについても CNT 添加量が増えるにつれ平坦性が改善されていることが確認された (図 5 参照)。

表 1 に CNT 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜の導電性を示す。また、参考値として CNT の導電性も併せて示している。この結果より、CNT 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜では安定して 10<sup>-2</sup> Ω cm の抵抗率が得られていることが分かる。

これらの結果より、抵抗率の低減化には依然改善の必要性があるものの、CNT 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜の透明導電膜応用への可能性が示された。

### 3. ミスト CVD 法を用いた Sn 添加α-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 単結晶膜の製作

ミスト CVD 法を用いた Sn 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜成長のための原料には、ガリウムアセチルアセトナート (Ga(C<sub>2</sub>H<sub>3</sub>O<sub>2</sub>)<sub>3</sub>) 粉末および塩化スズ (II) 二水和物 (SnCl<sub>2</sub>·2H<sub>2</sub>O) 粉末を用いた。それぞれの粉末に少量の塩酸を加えた超純水で溶かし Sn モル濃度 2.0×10<sup>-4</sup> mol/L の溶液を製作した。この溶液を用いて、成長温度 400°C、

450°C, 500°C にて(0001)  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(Sapphire) 基板上に Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜を製作した。

図 6 に XRD  $\theta$ -2 $\theta$ 測定結果を示す。成長温度 500°C のサンプルでは、測定範囲 30~42°において 41.5°付近の(0006) $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板からの回折ピークのほか、40.2°付近の(0006) $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> および 38.8°付近の(-402) $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> からの回折ピークが観測された。成長温度を下げるにつれて(-402) $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> からの回折ピークは減少し、 $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜が得られやすいことが分かった。

図 7 に同サンプルの表面および断面 SEM 像を示す。表面 SEM 像より、すべてのサンプルで一様に平坦膜が得られているものの、成長温度上昇に伴い結晶粒が大きくなる傾向が確認された。また、断面 SEM 像より成長温度上昇に伴い、膜厚の増加が確認された。

表 2 に同サンプルのホール効果測定による電気的特性結果を示す。成長温度 450°C および 500°C のサンプルでは導電性が確認され、特に成長温度 500°C のサンプルでは  $10^{-2} \Omega \text{ cm}$  の抵抗率が得られた。一方で、結晶構造の制御が実現された成長温度 400°C のサンプルは高抵抗であった。成長温度上昇に伴い、Sn の取り込み比が変化していると考えられる。

図 8 に同サンプルの透過率測定結果を示す。製作したすべての試料で近紫外可視光領域に対して平均で 80% 以上の透過性が確認された。吸収端は 250nm 付近であった。

図 9 に同サンプルの  $(\alpha h\nu)^2$ - $h\nu$ プロット図を示す。成長温度 400°C および 450°C の試料ではバンドギャップが約 5.2 eV と推定される。これは報告されている  $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> バンドギャップと一致する。しかしながら、成長温度 500°C のサンプルでは報告されているバンドギャップ値を上回る約 5.6 eV と推定された。この点については更なる調査が必要である。

これらの結果より、透明導電膜として CNT 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜とともに Sn 添加 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜の可能性が示された。ミスト CVD 法では高品質結晶を得やすい。ただし、結晶構造制御を含めた結晶高品質化とそれに伴う電気的特性の制御は、さらに研究を進める予定である。

#### 4. ICP-RIE を用いた選択エッチングによる集積化 LED デバイス製作の可能性探索

トップダウン方式による LED の集積化を検討するため、ICP-RIE を用いて LED ウェハの選択エッチングを試みた。LED ウェハは、Yeungnam Univ. の Jang 先生のグループにおいて有機金属化学気相エピタキシ法で製作されたものである。図 10 にサンプル構造を示す。サファイア上に低温 GaN 緩衝層を介し、GaN 薄膜を成長した後、Si ドープ n 形 GaN, GaInN/GaN 多重量子井戸, Mg ドープ p 形 GaN, Mg ドープ GaInN/GaN 超格子を成長している。Mg ドープ GaInN/GaN 超格子はコンタクト抵抗の低

減のために挿入されたものである。

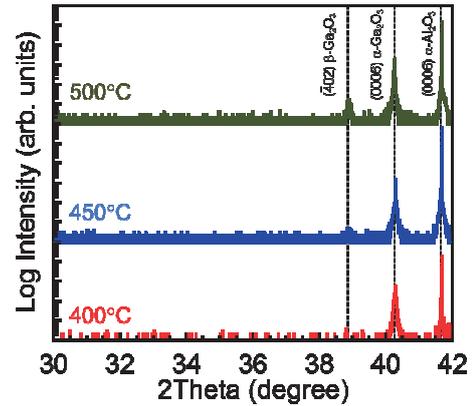


Fig. 6 XRD 2 $\theta$  scan profiles of Sn-doped Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films grown by mist CVD.

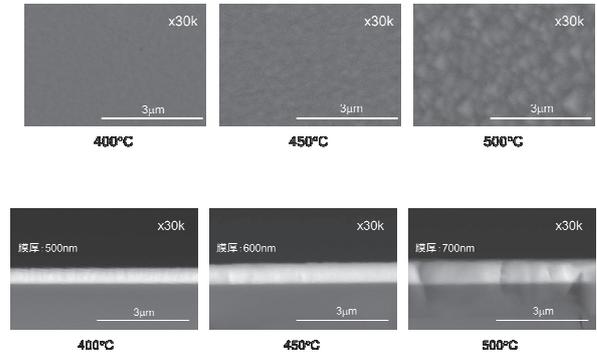


Fig. 7 Surface and cross-sectional SEM images of Sn-doped Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films grown by mist CVD.

Table II. Electrical properties of Sn-doped Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films grown by mist CVD.

成長温度 (°C)	抵抗率 ( $\Omega \text{ cm}$ )	移動度 ( $\text{cm}^2/\text{Vs}$ )	キャリア濃度 ( $/\text{cm}^3$ )
400	—	—	—
450	$1.1 \times 10^{-1}$	2.8	$2.1 \times 10^{19}$
500	$1.5 \times 10^{-2}$	8.9	$4.4 \times 10^{19}$

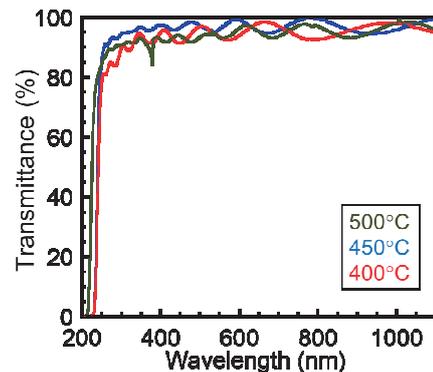


Fig. 8 Transmittance spectra of Sn-doped Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> films grown by mist CVD.

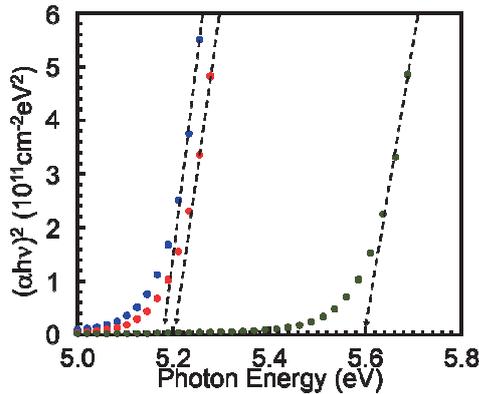


Fig. 9  $(\alpha h\nu)^2$ - $h\nu$  profiles of Sn-doped  $\text{Ga}_2\text{O}_3$  films grown by mist CVD.

エッチング前の基板洗浄には有機洗浄と、表面酸化膜除去のため BHF(バッファード弗酸)処理を行った。その後、フォトリソグラフィによりパターン形成を行った。まず、レジストの濡れ性向上のため HMDS(Hexa Methyl Di Silazane : 6-メチル 2-シラザン)をスピコートにより塗布した。スピコートの条件は Slope : 5 秒→回転数 : 4000 rpm を 20 秒→回転数 : 7000 rpm を 0.7 秒とした。その後、ポジレジストである AZ5214-E を塗布し、スピコート、プリバークを行った。スピコートの条件は HMDS と同じで、プリバークは 100°C で 2 分間行った。次に表面にマスクを被せて紫外線で 30 秒露光を行った。次に現像液である TMAH(Tetra Methyl Ammonium Hydroxide)に 1 分間浸し現像を行った。最後にポストバークを 120°C で 2 分間行った。このようにパターンを形成した基板を ICP-RIE 装置で ICP 電力 200 W, RF バイアス電力 160 W,  $\text{Cl}_2$  ガス流量 20 sccm の下で 1 分間エッチングを行った (図 11 参照)。

エッチング後、エッチング深さを段差計で測定した。また、エッチングによるダメージの影響を確認するために、GaN の発光強度分布を CL 測定装置で測定した。

今回用いたエッチングの条件は、通常 GaN が 560 nm 程度削れる条件であるが、LED ウェハのエッチング深さは 70 nm ほどであった。これは 2 つの要因が考えられる。1 つ目は表面酸化膜除去が不十分である可能性である。BHF に浸す時間や濃度などの条件が確定していない上に、エッチャントも最適なものかどうか現時点では十分な考察ができていない。2 つ目は構造起因の可能性である。LED ウェハの表面層には Mg ドープ GaInN/GaN 超格子構造が形成されており、In-N 結合を含む GaInN が含まれている。プロセス温度が 20°C から 200°C の範囲において、GaN はエッチングレートに温度依存性はないが InN は温度依存性があり低温ではエッチングレートが非



Fig. 10 Sample structure for selective etching using ICP-RIE.

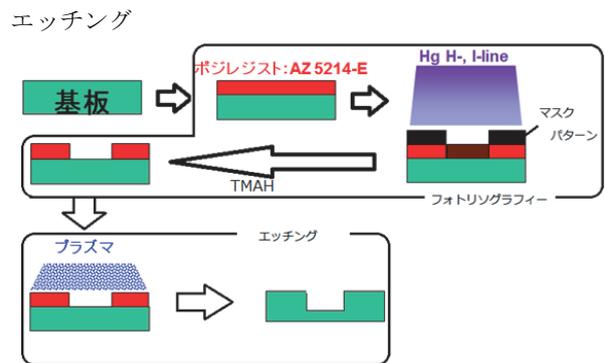


Fig. 11 Procedure of selective etching using ICP-RIE..

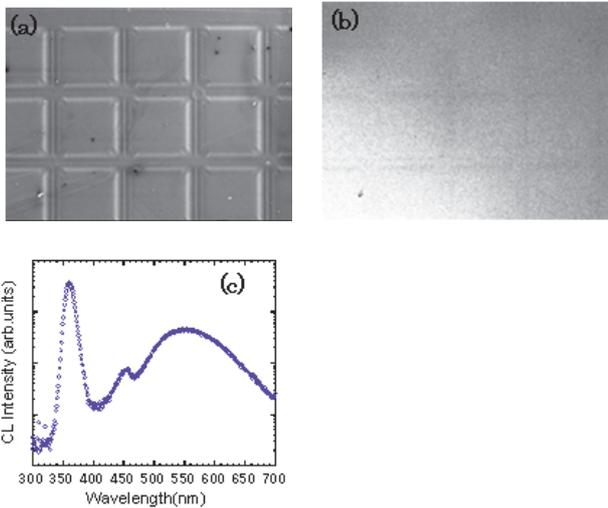
常に遅い。今回の実験では、LED ウェハではエッチング時の温度に 20°C を設定した。そのため、エッチングレートが表面層の超格子構造で大きく落ち込んだため、エッチングが十分に進まなかったのではないかと考えている。

今回のエッチングでは p 形 GaN 層までエッチングが到達したと考えられる。しかし、エッチングが浅いと溝部の光取り出し効率が増し発光強度が強くなるため、最終的な目標としてはサファイア基板までエッチングが到達することが目標となる。

今回のサンプルでは量子井戸層までエッチングが到達しなかったため、LED ウェハの代わりに GaN におけるエッチングの影響を確認した。図 12 に GaN を選択エッチングした領域の SEM 像、モノクロマティック CL 像 ( $\lambda \sim 361.5\text{nm}$ )、および CL スペクトルを示す。CL 像よりエッチングが行われた溝部分の発光強度が低くなっているのがわかる。これはエッチングによって溝部分がダメージを受けたため発光強度が弱まったものと考えられる。CL スペクトルを見ると、361.5 nm 付近の GaN のバンド端発光、500 nm から 700 nm にかけてのイエローミネッセンスが観測された。これらの発光はエッチング前にも観測されており、エッチング後に欠陥等による特異な発光は観測されなかった。

以上の結果より、エッチングによりバンド端発光の強度は減少したものの、特異な発光ピークは観測されず、

クラックやピットなどのマクロな欠陥も観測されなかったことから、ICP-RIE を用いた選択エッチングにより、デバイスへの影響を低減したまま LED の集積化が行える可能性が示された。



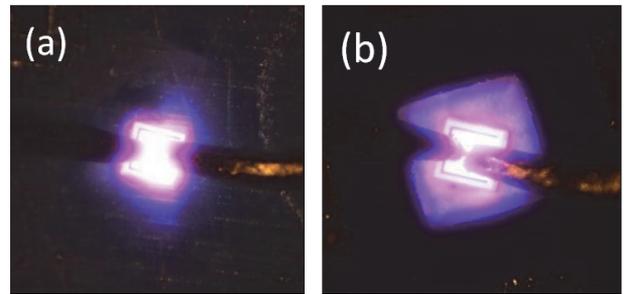
**Fig. 12** (a)SEM image, (b) monochromatic CL image ( $\lambda=361.5\text{nm}$ ) and (c) CL spectrum of selectively-etched GaN by ICP-RIE.

#### 4. LED 埋め込み型集積 LED デバイス製作の可能性探索

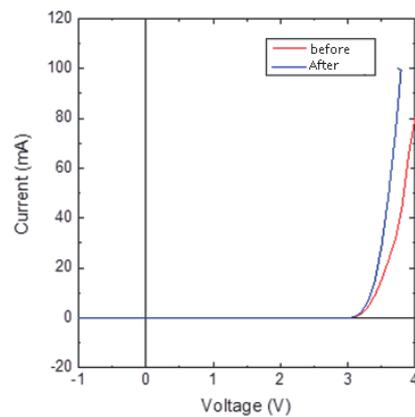
本節では、前節で示したトップダウン方式による LED の集積化と平行し、LED チップをマトリックスに埋め込み、集積化を試みた結果をまとめる。なお、本研究は、企業との共同研究の下で実施されたテーマであるため、本報告書では簡単な紹介にとどめる。

図 13, 14, 15 にマトリックスの 1 つを構成するマイクロカップ内に実装した前後の LED の発光写真、I-V 特性および発光スペクトルの比較を示す。図 13 より、マイクロカップ実装前は光が拡散しているが、マイクロカップ実装後は横方向への光の伝搬が抑制されていることが確認できる。図 14 に示す I-V 特性の比較から、定格 20 mA での動作電圧も 3.48-3.58 V でほぼ変化しないことが分かった。僅かな差は LED チップの個体差によるものと考えられる。また、図 15 に示す発光スペクトルの比較でもピーク波長は  $380\pm 2\text{ nm}$  と変化せず、実装工程による劣化は観られなかった。

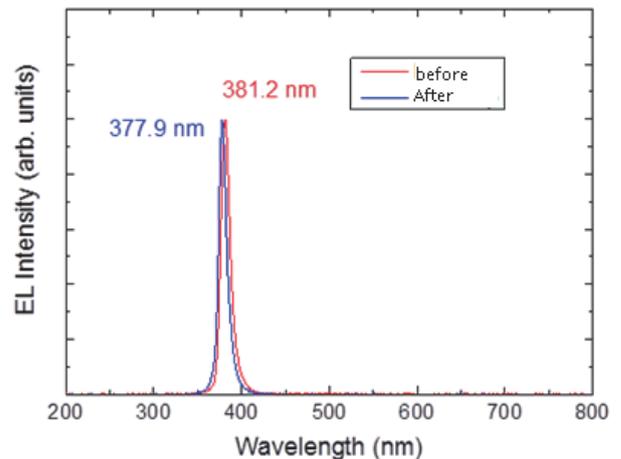
以上のように、実装前後の特性の比較から、マトリックスの有意性が示された。



**Fig. 13** Emission images (a) before and (b) after installation of LED tip into micro-cup structure.



**Fig. 14** I-V characteristics before and after installation of LED tip into micro-cup structure.



**Fig. 15** Emission spectra before and after installation of LED tip into micro-cup structure

## 5. まとめ

本研究では、集積化面発光素子を実現するための1つの重要課題である「透明導電膜」について、様々な手法による製作およびその特性評価を行うことを通じて、GaN系集積化面発光素子用の透明導電膜製作技術を確立することをめざしている。

今年度は、3つの検討項目について、以下のような結果を得た。

(1) 高品質 II-O 族化合物半導体および III-O 族化合物半導体の製作および電気伝導制御

本研究項目では、分子プレカーサー法およびミスト化学気相成長法を用いた II-O 族化合物半導体および III-O 族化合物半導体の製作を行っている。

今年度は特に Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 材料を中心材料として導電性サンプルの製作を行った。分子プレカーサー法では、溶液内にカーボンナノチューブ (CNT) を混ぜ調製し、薄膜堆積・アニール処理を通して、GaN の発光波長である 365nm 付近で 80% 以上の透過率を実現し、 $2.0 \times 10^{-2} \Omega\text{cm}$  の抵抗率を持つ薄膜製作に成功した。また、ミスト CVD 法を用いた結晶成長では、最適な成長温度を用いることで Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Sn 膜の構造制御に成功した。また、成長温度 500°C の Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>:Sn 膜において、 $1.5 \times 10^{-2} \Omega\text{cm}$  の抵抗率を実現した。

(2) 金属ナノ粒子を分散させた透明導電膜による光取り出し効率の向上

前年度の成果を国際会議 (CSW2016) で発表し、論文にまとめた。論文は高く評価され、当該学生は大学院生優秀論文表彰を受けた。

(3) 透明導電膜使用 GaN 系集積化発光素子の実現

Ja-Soon Jang 准教授 (Yeungnam University, Korea) より、有機金属気相成長 (MOVPE) 法で成長した GaInN 系青色 LED 構造のサンプルを提供して頂いた。LED は、n 型 GaN 層、GaInN/GaN 超格子 (SL) 下層、GaInN/GaN 多重量子井戸 (MQW) 活性層、p 型 GaN 層から構成されている。このサンプルを用いて、マイクロ LED 集積デバイスを製作するための反応性イオンエッチング (ICP-RIE) 処理による選択エッチングの条件探索とその時の発光層へのダメージの影響を調べた。

また、集積化デバイス製作の別のアプローチとして、LED チップをマトリックスに配列し集積化を試みた。マトリックス状にマイクロカップを製作し、そのカップ内に市販の LED を埋め込んだ。カップに LED を入れた時と入れなかった時で、カップから横方向に光が漏れていないことを確認し、LED 埋め込み型の集積化デバイスの可能性を見出した。

## 謝辞

本研究の遂行に協力頂いたフォトニクス研究室の高橋勇貴君、デバイスマテリアル研究室の力武健一郎君、名和遼祐君、光成将矢君に感謝の意を表す。

## 参考文献

- 1) T. Honda, A. Katsube, T. Sakaguchi, F. Koyama and K. Iga, Jpn. J. Appl. Phys. **34**, 3527 (1995).

# 大地震時の強震動予測手法の開発と超高層建築の耐震対策への適用

工学院大学・建築学部まちづくり学科 久田嘉章

工学院大学・建築学部建築学科 山下哲郎

工学院大学・大学院建築学専攻 中西真子

Study on Strong Ground Motion Prediction Method for Large Earthquakes  
and Its Application to High-Rise Building

Yoshiaki Hisada, Department of Urban Design and Planning, School of Architecture  
Tetsuo Yamashita, Department of Architecture, School of Architecture  
Mako Nakanisi, Architecture Program, Graduate School

**ABSTRACT** : We investigated building damage near the surface faults of the 2016 Kumamoto earthquake to know the characteristics of the strong ground motion near fault, and the effective countermeasures for seismic building design. In addition, we carried out the seismic response analyses to develop effective retrofitting methods for high-rise building using the Shinjuku campus building of Kogakuin University.

## 1. はじめに

本研究は、活断層に代表される数千～数万年に一度程度という極めて発生確率大地震の強震動と建物被害の特性を調査し、その予測手法の開発と、過酷な入力地震動に対する超高層建築の高い耐震性能を有する新しい既存建物の効果的な補強法の開発を行うことを目的とする。2016年度は、まず2016年熊本地震の震源近傍強震動の特性と、本震で出現した地表地震断層の直上の建物の被害調査を実施した。次に地表地震断層が出現する活断層帯地震など従来の耐震設計レベルを凌駕する可能性ある大地震に対する実用的な強震動予測手法を構築し、工学院大学新宿校舎を事例とする超高層建物への効果的な補強法を検証した。

## 2. 地表地震断層近傍の建物被害調査

### 2.1 2016年熊本地震の建物被害調査<sup>1)</sup>

2016年4月16日の熊本地震の本震(Mw7.0/MJMA7.3)では、布田川・日奈久断層帯に沿って長さ約30km、最大で約2mの地表地震断層が出現し、その近傍で多くの建物に被害が生じた。活断層など震源が浅い大規模地震の近傍では、指向性パルスやフリリングステップなど破壊力ある特徴的な強震動が観測されるだけでなく、地表地震

断層の出現に伴う断層すべりと地盤変状により、そのごく近傍の建物に様々な被害をもたらす。著者らは1999年台湾・集集地震や2011年福島県浜通り地震などによる地表地震断層の近傍でも建物被害を実施しており、被害の特徴やその対策を考察している。熊本地震では、日本建築学会・国土交通省では益城町を中心に詳細な調査が行われ、町の復旧対策に対する報告書が刊行されている。

著者らは熊本地震の本震で出現した地表地震断層のごく近傍の建物被害調査を実施した。この調査は外観目視により、築年・用途・構造・階数・基礎形式・屋根形式・地盤変状の有無、破壊パターン(D0～D6:岡田・高井(1999)に準拠)等を対象に、計240棟(倉庫を除くと193棟)で行った<sup>1)</sup>。

調査の代表例としてFig.1とTable 1に御船町高木地区の建物の被害分布と統計結果、Picture 1(a)～(c)に地表地震断層の直上の建物の被害例を示す。この地区の調査建物数は39棟で、9割は低層木造住宅(2階以下)であった。築年と全壊率(D4以上)の関係では、新しい建物で0%、古い建物で17%、非常に古い建物で29%であった。Fig.1には都市圏活断層図(国土地理院)による活断層と、出現した地表地震断層の位置を示すが、両者は比較的近いが、建物スケールでは一致しない。一方、Table 1には地表地震断層の直上とそれ以外の被害統計を示すが、前

者の全壊率は43%に対して、後者では13%であり、断層直上で被害が集中している。Picture 1 (a)~(c)は断層直上の典型的な被害例である。(a)は古い在来木造住宅で、基礎の無筋コンクリートブロックが断層すべりで破壊され、建物が大きく変形・大破している。次に(b)は断層直上の新しい住宅(恐らく軽量鉄骨造)であり、敷地の盛土で断層すべりが緩和されていた。さらにRC造のべた基礎が非常に有効であり、基礎に若干の亀裂があったが、断層すべり変位の影響を遮断し、建物は無被害であった。最後に(c)は非常に古い伝統木造建築であり、独立(束)基礎であるため、断層すべりが建物を変形・大破させているが、建物は変形に柔軟に追随し、倒壊は免れていた。

他の調査地域でも同様な結果で、50cm程度までの断層変位であれば、新しい建物のRC補強のべた基礎などの効果でほぼ無被害であり、古い木造建物でも変形に追随できる場合、倒壊は免れていた。

一方、強震動については、地盤の良否などでその強さと被害には大きな地域差がみられた。例えば、益城町下陣地区(調査建物数61)では、強震動により大破した建物は皆無であり、震度は5強程度と推定された。大破は地表地震断層直上の1棟のみで、50cm程度の縦ずれ変位に起因していた。一方、南阿蘇の黒川・河陽地区(調査建物数54)では、断層直上とそれ以外の全壊率は64%(倒壊率は18%)と53%(倒壊率は42%)であった。その殆どは耐震性に劣る古い木造建物に集中したが、震度7に相当する非常に強い揺れが生じたと推定された。

Table 1 Results for investigating building damage in the Takagi area for the 2016 Kumamoto.

1) 全棟			2) 地表断層直上			3) 断層直上以外		
被害度	棟数	割合	被害度	棟数	割合	被害度	棟数	割合
D0	4	10%	D0	1	14%	D0	3	9%
D1	16	41%	D1	1	14%	D1	15	47%
D2	9	23%	D2	1	14%	D2	8	25%
D3	3	8%	D3	0	0%	D3	3	9%
D4	6	15%	D4	4	57%	D4	2	6%
D5	1	3%	D5	0	0%	D5	1	3%
D6	0	0%	D6	0	0%	D6	0	0%
合計	39	100%	合計	7	100%	合計	32	100%
全壊	7	18%	全壊	4	57%	全壊	3	9%
倒壊	1	3%	倒壊	0	0%	倒壊	1	3%
4) 新しい			5) 古い			6) 非常に古い		
被害度	棟数	割合	被害度	棟数	割合	被害度	棟数	割合
D0	4	44%	D0	0	0%	D0	0	0%
D1	5	56%	D1	6	46%	D1	5	29%
D2	0	0%	D2	4	31%	D2	5	29%
D3	0	0%	D3	1	8%	D3	2	12%
D4	0	0%	D4	2	15%	D4	4	24%
D5	0	0%	D5	0	0%	D5	1	6%
D6	0	0%	D6	0	0%	D6	0	0%
合計	9	100%	合計	13	100%	合計	17	100%
全壊	0	0%	全壊	2	15%	全壊	5	29%
倒壊	0	0%	倒壊	0	0%	倒壊	1	6%



(a) Damage of a very old timber house (D4)



(a) Damage of an old wooden house (D4)



(c) Damage of a new house (D1)

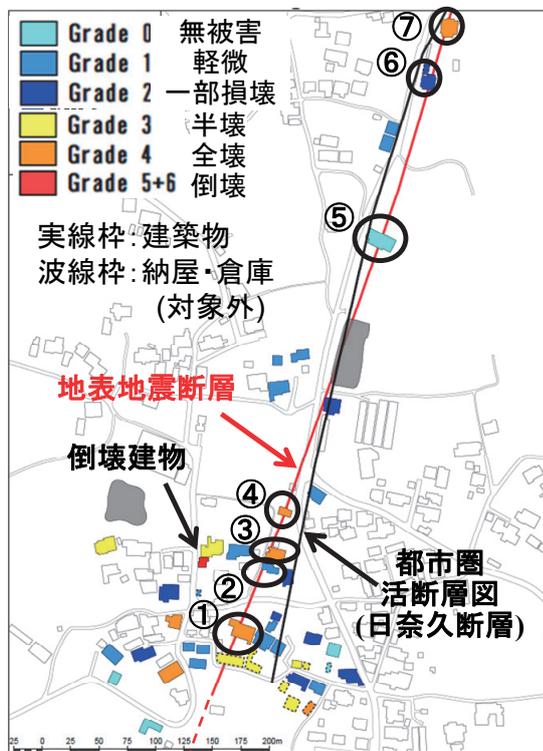


Fig.1 Results for investigating building damage in the Takagi area for the 2016 Kumamoto earthquake.

Picture 1 Damage of houses on the surface faulting of the 2016 Kumamoto earthquake

最後に、活断層に対する建物対策を考察する。災害時に機能継続を要する重要建物は活断層帯を避けることが望ましいが、一般の建築では以下のような対策を行うことで倒壊するような大被害の可能性を大きく低減できる。

- ・盛土などによる断層すべり変位を分散する対策
  - ・新築の小規模建築では、地域係数を1、耐震等級を2以上とし、RCベタ基礎、高い剛性の躯体、軽い屋根等による強震動と地盤変状への対策
  - ・新築の大規模建築では、地盤調査で断層位置とすべり量を特定し、断層を避ける、エクспанションジョイントなどでの構造的な分離などの地盤変状への対策
  - ・既存建物では、耐震診断・補強による倒壊防止対策
  - ・免震建物では、震源近傍強震動を考慮したレベル3地震動による余裕度検証や、断層すべりや地盤傾斜への対応策（フェールセーフなどの機能の追加など）の実施
- 上記の被害低減対策に加え、負傷者を出さない・避難しない対策、災害時対応力を併せたレジリエントな対策が有効である。

その他、室内や設備機器等の安全対策や、自助と共助による災害発生時の対応力向上策も重要である。

### 3. 極大地震動を考慮した既存超高層建築の耐震性能とダンパー補強効果の検討<sup>2),3)</sup>

首都圏では大震災時の帰宅困難者等の対策が急務となっており、特に超高層建築などの重要施設には従来よりも高い耐震性能が求められている。すなわち、耐用年数内に発生する可能性のある地震動には継続使用を可能とする一方、数千年一度程度の従来の想定を超える最大級の地震動に対しても出来るだけ倒壊させない高い耐震性能が求められている。最近、東京都は東京臨海部に建設される超高層建築に対して、首都直下地震や海溝型巨大地震を考慮した構造設計指標を提示している<sup>4),5)</sup>。ここでは、数十年に1度程度の稀な地震(L1)と数百年に1度程度の極稀な地震(L2)には高い耐震性能が求められており、更にはL2の1.5倍で数千年に1度程度の地震(L3)も新たに追加されており、L3規模の入力で余裕度の検証を行う必要性が求められている。

ここでは工学院大学新宿校舎（以下、大学棟）を対象とし、東京都の最新の基準を参考にクライテリアを設定し、様々な特徴を持つ地震動に対して耐震性能とダンパー補強効果の検証を行った<sup>2),3)</sup>。

#### 3.1 大学棟の立体モデル

構造計算書を元に SNAP Ver. 7（構造システム社）を用いて3次元立体フレームモデルを作成する（Fig.2に構造平面と制振ダンパーの設置候補位置を示す）。大学棟の地下部分は非常に剛性の高い構造となっているため本モデルでは柱脚は固定端として、地上階をモデル化する。建物重量は構造図および構造計算書より床（積載荷重、固定荷重）、壁及び小梁の重量を入力し、構造部材は解析

ソフトの自動計算により算出したが、2011年東日本大震災（以下、311地震）の観測記録と適合させるために重量を1割増した。梁は合成梁とし、床スラブを考慮した断面二次モーメント及び正負で異なる全塑性モーメントを合成構造設計指針（日本建築学会）の数式より算出した。柱は曲げと軸力による塑性化を考慮している。ブレースは座屈を考慮した柴田・若林の履歴特性を、パネルゾーンの設定は剛域ではなく弾性範囲内でのせん断変形をそれぞれ考慮した。減衰定数は観測記録から同定したレーリー型減衰とした。立体構造モデルの妥当性は、過去最大の応答値を観測した311地震の観測記録と地震応答解析結果の比較により行った。

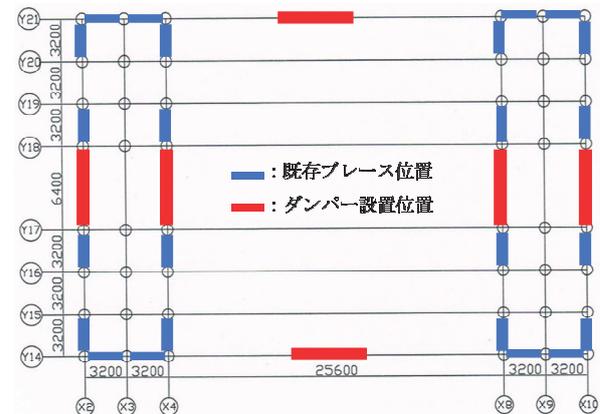


Fig.2 Structural plan and the locations of the columns, braces, and the oil dampers, for the Shinjuku campus building,

#### 2.2 プッシュオーバー解析

3次元立体フレームモデルを用いてプッシュオーバー解析を行う。Fig.3に使用した荷重分布を示す。通常用いられるAi分布に加えて、ここでは長周期・長時間地震動の検討用として1次モードに比例した荷重分布を用いた。ちなみにE-ディフェンスによる1/3スケールの超高層建築の倒壊実験から、長周期・長時間地震動では主に1次モード共振により、躯体に大変位が生じ、その長時間の繰り返しにより低層階の柱・梁接合部が順次破断し、柱の長柱化により崩壊に至っている。

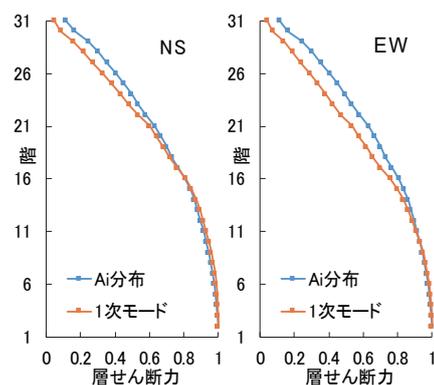


Fig.3 The normalized shear forces using the AI and 1st mode distribution for the pushover analyses.

Fig.4 にステップごとの最大層間変形角を示す。NS 構面の 16 階と 21 階は他の階に比べて最大層間変形角が増大しているが、これは他の階よりも階高が高いためである。変形が小さな段階では、上層、下層に大きな変化はないが、変形が大きくなるにつれて中層階を中心に变形が進むことが分かる。一方、EW 構面では、スーパートラスが配置されている 16,21 階は剛性が高いため変形が小さい。NS 構面と同様に、変形が小さな段階では下層と上層で大きな変化は見られないが、変形が増大するとともに、下層階での変形が特に目立つ。

Ai 分布と 1 次モード比例型外力分布と比べると、低層階で後者の方が層間変形の増大がやや大きい。但し、両者間に大きな差異は見られず、本解析では長周期地震動だけでなく、短周期地震動が卓越する標準型の地震動も同時に検討するために、以下の解析では Ai 分布で検証を行う。

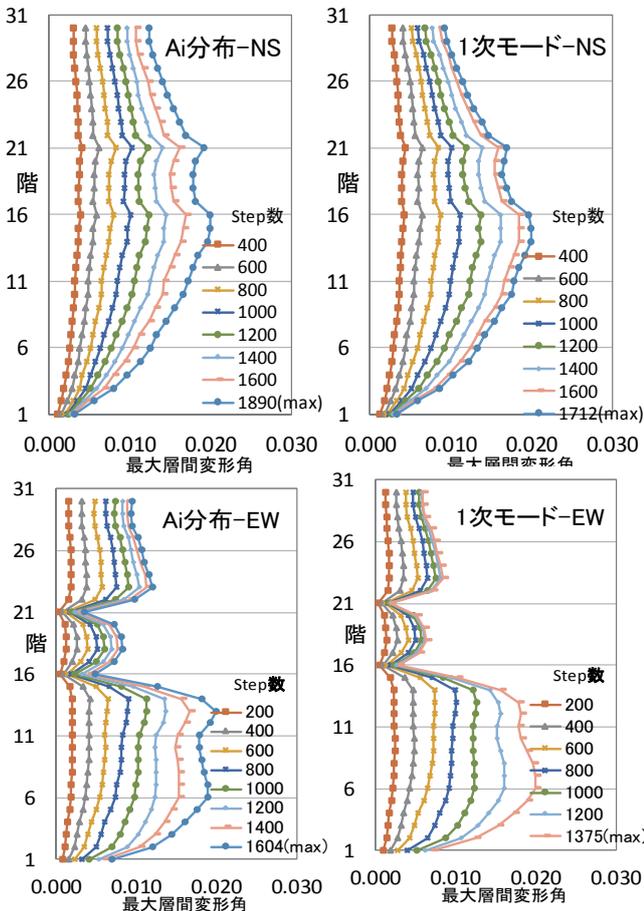
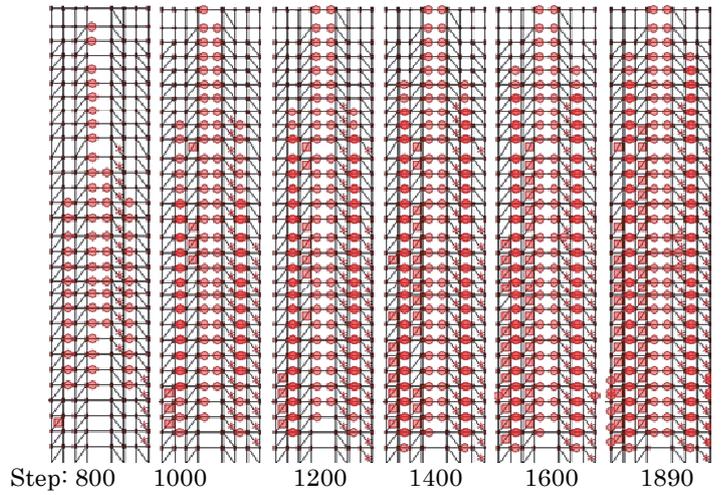


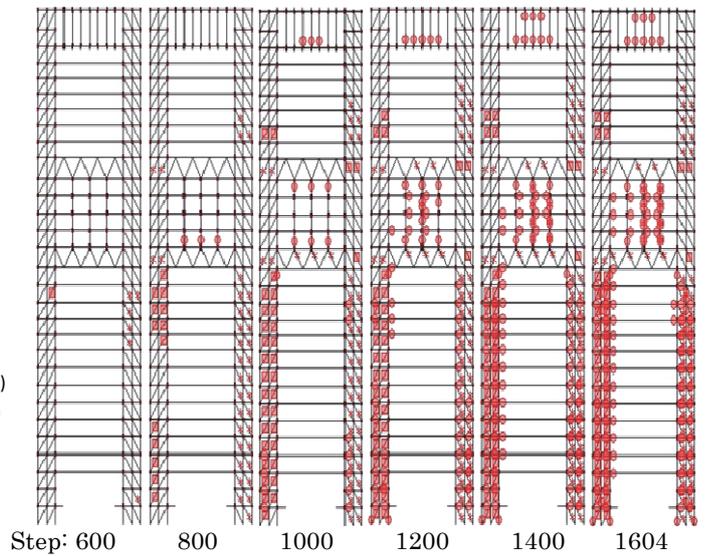
Fig.4 Results of the pushover analyses using the distributions of Ai (left) and the 1<sup>st</sup> mode (right).

Fig.5 に Ai 分布を用いたプッシュオーバー解析の塑性ヒンジ図を示す。NS 構面は中層階からヒンジが発生し、全体に万遍なく広がっているが、EW 構面では変形が進むにつれて下層階での塑性ヒンジ発生が目立つ。Fig.4 の最大層間変形角と比較をすると、層間変形角が大きくなる箇所に塑性ヒンジが集中しており、変形が大きい階は注

意が必要である。特に NS 構面で柱梁接合部でのヒンジが目立つ。



(a) Results on the X4 plane (NS)



(b) Results on the Y14 plane (EW)

Fig.5 Distributions of the plastic hinges of beams and the buckling of braces using the pushover analyses.

### 3. 3 制振補強案の検討

Table 2 に本研究で採用する東京都構造設計指針による東京都臨海部に建設される超高層建築物等の設計目標を示す<sup>4),5)</sup>。L1 地震と L2 地震の最大層間変形角をそれぞれ、1/200、1/100 以内とすることを補強目標とし、ダンパー設置階の検討を行い、さらに L3 地震で倒壊の危険性の確認等の余裕度の検証も行う。

Table 3 に使用する制振補強用のダンパーの性能を示す。ダンパーはカヤバシステムマシナリー株式会社による BDH2000160B3 であり、最大荷重でリリース機能を持つオイルダンパーを使用した。

ダンパーを効果的に配置するために、3次元立体フレームモデルに対する Ai 分布荷重のプッシュオーバー解

析の結果を用いる。すなわち、ダンパー抵抗ゼロの状態（状態 N）を仮定し、その弾性解析の結果から、層間変形とダンパーの変形が大きな階がダンパーの設置効率が良いと考え、その階を設置階とする。Fig.6 に、状態 N の解析結果から得られた各 i 層の層間変形と、その時のダンパーの水平成分を示す。

Fig.7 にダンパー配置モデルを示す。ダンパー総数 44 本のモデル (D44) を基準とし、余裕度の検証として D44 の 1.5 倍の本数であるダンパー総数 64 本のモデル (D64)、2 倍の本数であるダンパー総数 88 本のモデル (D88) の 3 種類作成した。

Table 2 The seismic design criteria for high-rise buildings in the Tokyo bay area (Structural Design Code by the City of Tokyo)<sup>(4),(5)</sup>

耐震レベル	入力地震動	構造物の特徴	想定する地震発生	上部構造			基礎
				部材の状態	最大層間変形角	層の最大塑性率	
中地震 (L1)	既往波 (29cm/s) 告示波 (種)	無被害 【機能維持】	数十年に一度発生	短期許容応力度内	1/200以内	—	短期許容応力度内
大地震 (L2)	既往波 (50cm/s) 告示波 (極種) サイト波 (個別・包絡) (長周期地震動を考慮)	軽微な補修により 事業継続可能 【指定機能維持】	数百年に一度発生	部材の塑性率が 4.0以下	1/100以内	2.0以下	脆性的破壊を生じない
極大地震 (L3)	告示波 (極種) の 1.5 倍程度 (長周期地震動を考慮)	倒塌・崩壊させない 【余裕度の検証】	数千年に一度発生	建物の用途・特徴に応じて個々に設定 (極大地震動が建物に入力した場合の性状を把握した上で判断)			

Table 3 Seismic Performance lists for the oil damper for seismic retrofitting

型式	2000160B3
1次減衰係数：C1 (kN・s/cm)	375.0
2次減衰係数：C2 (kN・s/cm)	15.5
リリース速度：Vr (cm/s)	4.3
最大速度：Vmax (cm/s)	30
リリース荷重：Fr (kN)	1600
最大減衰荷重：Fmax (kN)	2000
ダンパー剛性：Kd (kN)	5400

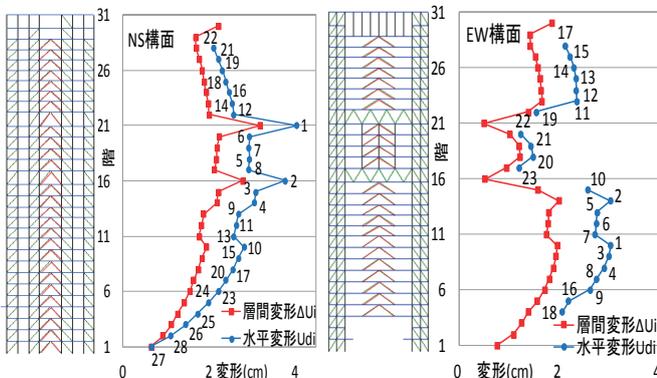


Fig.6 The horizontal displacements of the floors and the dampers using the push over analyses without dampers.

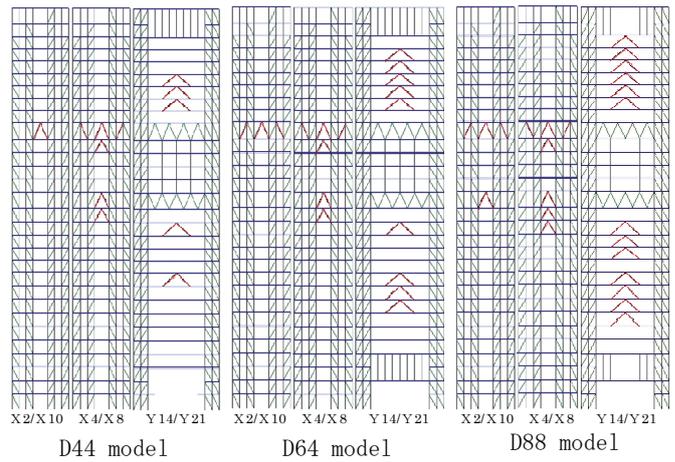


Fig.7 The three retrofitting models using the oil damper (D44 stands for the use of 44 dampers).

### 3. 4 入力地震動

Table 2 の基準に相当する L1~L3 地震動として、首都直下地震や海溝型巨大地震、活断層帯の地震など様々な特性の地震動を念頭に置いて策定する。まず標準型地震動として Fig.8(a) に示すように Elcentro 波とランダム位相の告示波を用いる (図は L1 と L2)。次に Fig.8(b) に示すように長周期・長時間型地震動として 311 地震と 2004 年紀伊半島沖地震 (Mw7.3) の新宿校舎 1 階で観測した地震波形の位相スペクトルを使用した告示波 (以下、311 告示波、紀伊告示波) を使用する。最後に Fig.8(c) に示すように、活断層帯の地震による震源近傍の L3 強震動として、1995 年兵庫県南部地震時に JR 鷹取駅で観測された波形 (以下、鷹取波) と熊本地震時に西原村で観測された地表地盤断層近傍のフリングステップ型波形 (以下、西原波) を使用する。

### 3. 5 応答解析

ダンパーの有無による各種の L1~L3 地震入力による地震応答解析を実施した。主な結果を以下に記す。

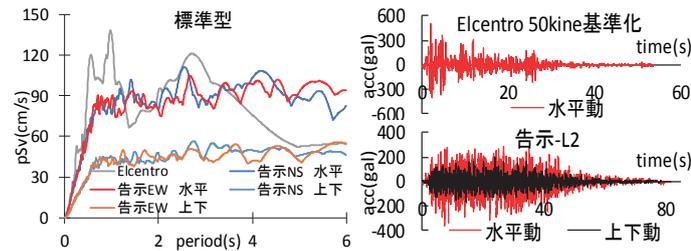
#### ・ L1 地震動による結果

Fig.9 に示すように、最大層間変形角は、ダンパーの有無に拘らず全ての地震動で 1/200 (=0.005) 以下に抑えられている。一方、Fig.10 に示すように最大加速度は、ダンパーなし (D00) では最上階の最大加速度が 150gal を超えているが、ダンパーを用いた全てのモデルではそれ以下に低減している。

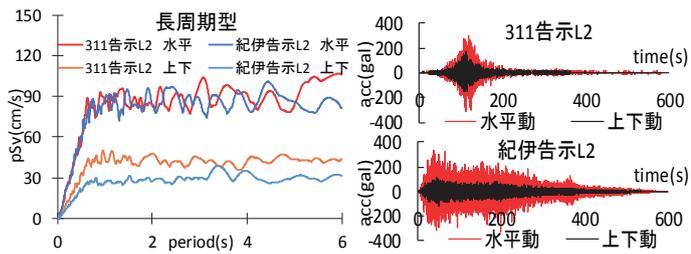
#### ・ L2 地震動による結果

Fig.11 に示すように、最大層間変形角はダンパー無し (D00) の場合は標準型地震動で 1/100(=0.01) を越える階が現れる。一方、ダンパーを用いた場合は全てのモデルで設計目標を満足する。D44、D64、D88 とダンパー数を増大させるほど、特に長周期・長時間地震動でその

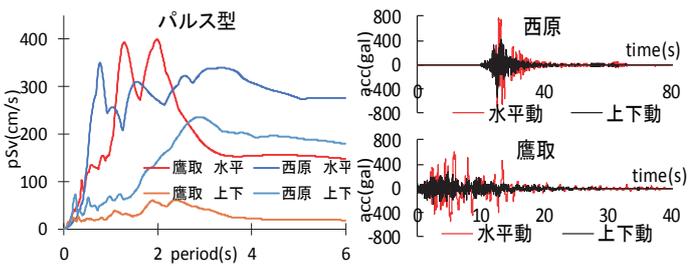
効果が顕著に現れている。



(a) Input ground motion for the normal-type



(b) Input ground motion for the long-period and long-duration type



(c) Input ground motion for the near fault type

Fig.8 Velocity response and accelerations of L1-L3 input ground motions

長周期・長時間地震動（311位相のL1-L3告示波）では建物全体の消費エネルギー（ $E_i$ ）のほぼ全てをダンパー（ $E_m$ ）と建物の減衰（ $E_d$ ）とで、それぞれ約半分ずつ吸収している。一方、標準波としてEl Centoro入力の場合でも約半分はダンパー（ $E_m$ ）によりエネルギーを消費しており、44本という少ないダンパー数にもかかわらず手法の有効性を示している。一方、地表地震断層近傍の短時間の速度パルスである西原波では、ダンパー（ $E_d$ ）は1割程度しかエネルギーを負担せず、その殆どはひずみエネルギー（ $E_d$ ）として建物にダメージを与えていることわかる。

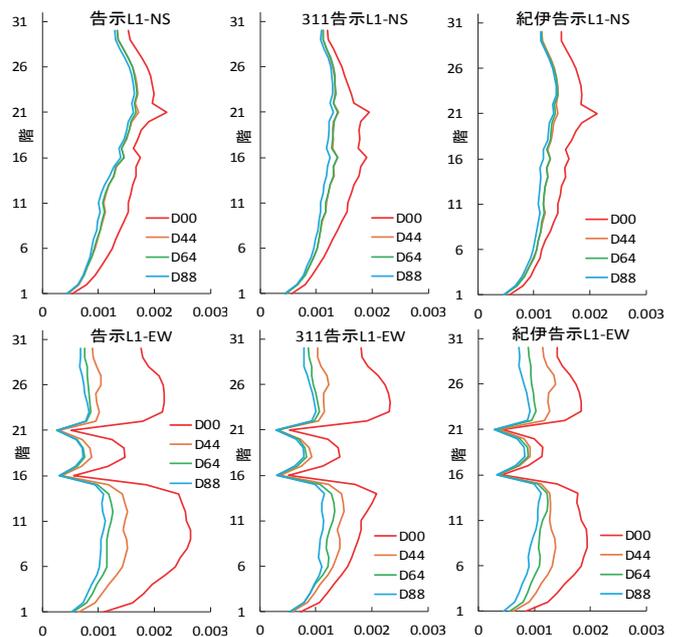


Fig.9 Maximum story drift angles for the L1 ground motions

・L3地震動による結果

Fig.12に示すように、西原波を除く全ての地震動でダンパーにより最大層間変形角が1/100程度まで低減されている。特に長周期・長時間地震動ではダンパーの顕著な効果が確認できる。一方、西原波のダンパー無しでは層間変形角が1/30以上と深刻な被害が予想され、ダンパーを入れてもあまり大きな低減効果は見られない。西原波は新宿校舎の1次固有周期（約3秒）の非常に大きな振幅のフリングステップ（長周期速度パルス）であるため、最大応答値を低減させるにはダンパーではあまり効果が期待できない。大規模な地表地震断層のごく近傍での超高層建築の耐震対策には大きな課題が残されている。

・エネルギー吸収

Fig.13にD44モデルによる建物全体のエネルギー消費の時刻歴を示す。ここで、 $E_i$ =入力エネルギー、 $E_k$ =運動エネルギー、 $E_s$ =ひずみエネルギー、 $E_d$ =減衰エネルギー、 $E_m$ =ダンパーエネルギーである。

4. おわりに

本研究は、はじめに2016年熊本地震の本震で出現した地表地震断層の直上の建物の被害調査を実施した。その結果、地表地震断層の直上であっても、数10cm程度の断層ズレであれば、べた基礎や耐震壁など耐震構造で建物被害を大きく低減できることを確認した。次に工学院大学新宿校舎を事例として、告示波などの標準波から長周期・長時間地震動、活断層など震源近傍の強震動を考慮したL1~L3地震動による超高層建物における効率的な補強法を検証した。その結果、継続時間の短い長周期パルス波（西原波）を除くと、ダンパーの付加により効率的に応答変位・加速度を低減できることを確認した。西原波は熊本地震の際、地表地震断層のごく近傍のフリングステップの特性を示しており、大規模な活断層の直上で超高層建築や免震建築などの長周期構造物を建設する際は要注意である。

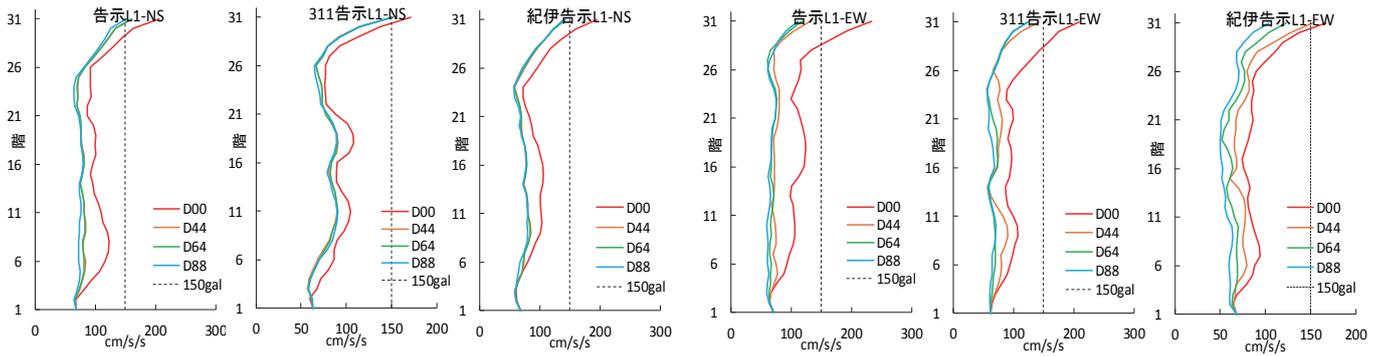


Fig.10 Maximum floor accelerations for the L1 ground motions

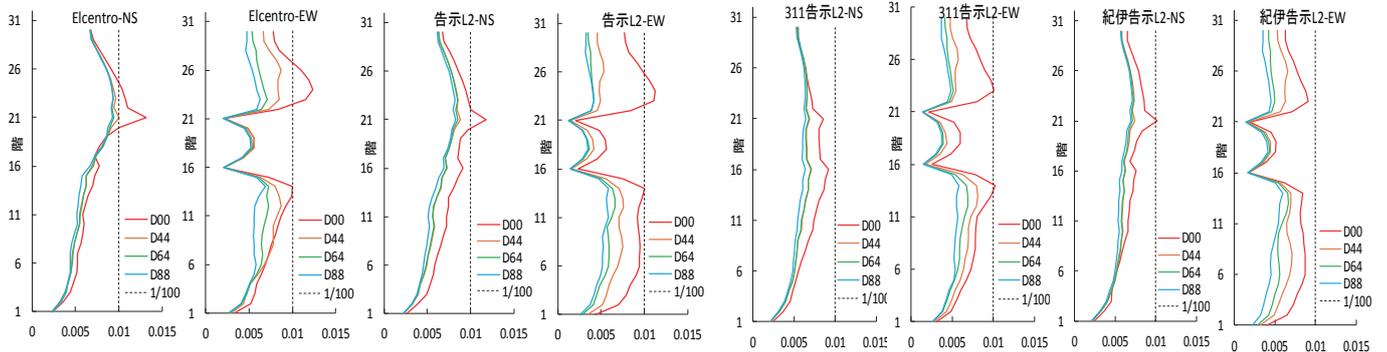


Fig.11 Maximum story drift angles for the L2 ground motions

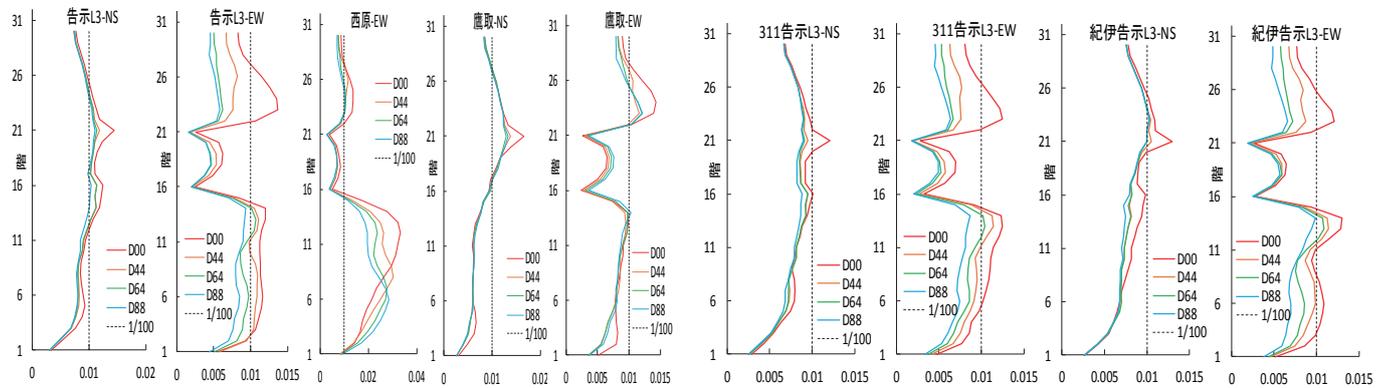


Fig.12 Maximum story drift angles for the L3 ground motions

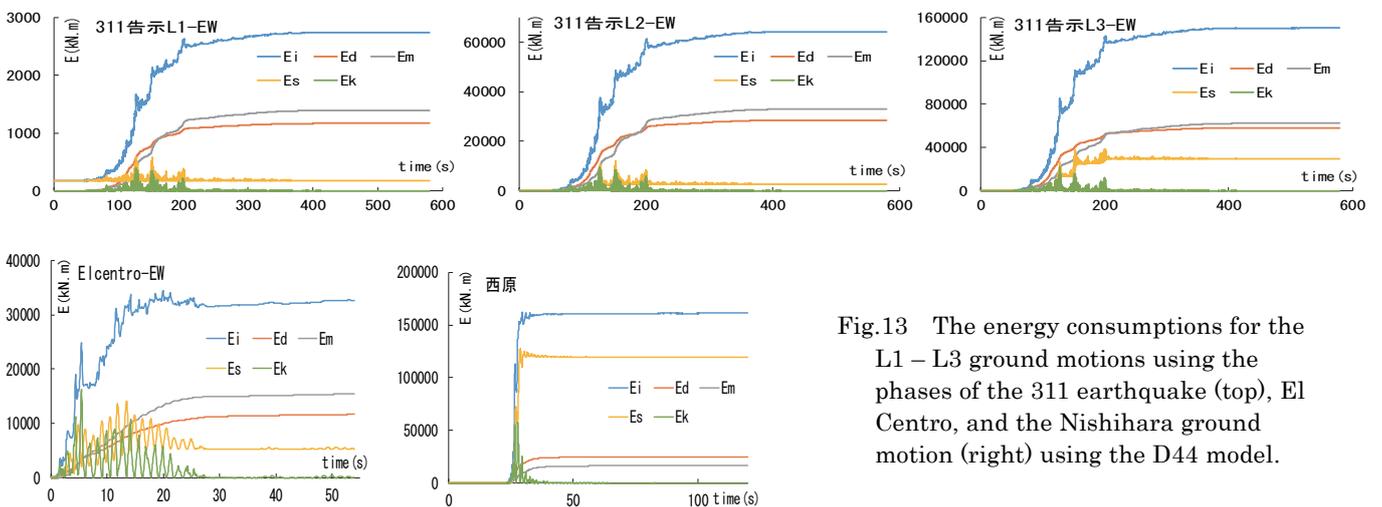


Fig.13 The energy consumptions for the L1 – L3 ground motions using the phases of the 311 earthquake (top), El Centro, and the Nishihara ground motion (right) using the D44 model.

## 謝辞

本調査において、熊本地震の建物被害調査では村上正浩・金田惇平・寺本彩乃・柳田悠太郎・進藤俊弥 氏（工学院大）、鱒沢曜 氏（鱒沢工学研究所）、境茂樹・森清隆・仲野健一・東條有希子 氏（安藤ハザマ）、木本幸一郎 氏（SAI 構造設計）、小林亘 氏（東京電機大）、鈴木 光 氏（減災アトリエ）が参加し、田中信也氏（東電設計）に情報提供を頂きました。また新宿校舎の地震応答解析では笠井和彦 氏（東京工業大）、DU Dong Sheng 氏（南京工大）から様々なご助言を頂きました。なお本研究の一部は文部科学省科研費（JP16K06586）の助成を受けています。

## 参考文献

- (1) Hisada, Y., J. Kaneda, A. Teramoto, M. Murakami, Y. Masuzawa, Y. Yanagida, T. Shindo, H. Suzuki, S. Sakai, K. Mori, K. Nakano, T. Tojo, K. Kimoto, S. Tanaka, W. Kobayashi: Strong Ground Motions and Damage Investigation of Buildings near the Surface Faulting of the 2016 Kumamoto Earthquake in Japan, Proc. 16th World Conference on Earthquake Engineering, Santiago Chile, (2017).
- (2) Hisada, Y., K. Kasai, T. Yamashita, D. S. Du, E. Pu, K. Shirasaki, H. Aoki, M. Nakanishi: Damage Prediction and Retrofit Plan Using Dampers for a High-Rise Steel Building in Tokyo Based on Its Response Records, Proc. 16th World Conference on Earthquake Engineering, Santiago Chile, (2017).
- (3) 笠井和彦他：長周期地震動等を考慮した既存超高層建築の耐震性能とダンパー補強効果の評価（その1～その5），日本建築学会大会，2016年9月
- (4) 東京都財務局：表 5.4 東京臨海部に建設される超高層建築物等の設計目標の目安，構造設計指針，(2016) .  
<http://www.zaimu.metro.tokyo.jp/kentikuhozen/kouzousekkeisisin.pdf>
- (5) 加藤研一，久田嘉章，石田 寛，渡辺哲史，鈴木文乃，小鹿紀英：東京臨海部を対象とした想定地震に基づく設計用地震動評価例、日本建築学会技術報告集、Vol. 23, No. 53 (2017) p. 53-58.

# 神経難病者のニーズ調査に基づく自立住環境支援スイッチの研究 —ALS患者の脳波電極数の削減—

工学院大学 情報学部 コンピュータ科学科 田中久弥

青山学院大学 経営学部 藤森裕美

Study on self-sustaining living environment support switch based on needs survey of neurological disorder

— Reduce the number of electroencephalogram electrodes of ALS patients —

Hisaya Tanaka, Department of computer science  
Hiromi Fujimori, Faculty of Business Administration, Aoyama Gakuin University

**ABSTRACT:** In many cases, we use a physical interface such as a keyboard or a mouse when using the computer. However, the physically handicapped such as ALS (Amyotrophic Lateral Sclerosis) difficult to use current computer interfaces. So we have studied the BCI (Brain-Computer Interface) as a new computer interface. BCI can operate a computer by analyzing the EEG. ALS patients can easily operate the computer because BCI does not require the movement of the limbs. But there are some problems in the current BCI. For example, it takes time and effort to attach electrodes. It took more than 5 minutes to attach the 8 electrodes. Furthermore, it is also a problem that the hair is dirty by electrolytic gel. Therefore, it is possible to improve the usability of BCI by reducing the number of electrodes. In this study, we examine the number and placement of the electrodes to be used for character input BCI. We determined the combination of the best electrode by classification rate of P300 and backward elimination method. As a result, we confirmed that the evaluation by the classification rate of P300 was improved when we reduced the number of electrodes from 8 to 7. In addition, if the number of electrodes is three or more, classification rate of P300 was identified to be an 80% or more. High classification rate of P300 was confirmed at vertex and the back of the head. Therefore, placement of the electrode was found to be near vertex and back of the head is preferred. From these results, we examined the number and placement of the best electrode by comparing classification rate of P300 and the percentage of correct answers of character input.

## 1. はじめに

一般的に人のコミュニケーションは発声や筆記、ボディランゲージなどによって行われる。しかし、筋萎縮性側索硬化症(Amyotrophic lateral sclerosis: ALS)をはじめとする神経難病は患者のコミュニケーション手段を狭めるため、患者と介護者間での意思疎通を困難にさせる。その結果として患者の生活の質(Quality of life: QOL)が低下する要因となっている。ALS患者のQOLを向上させるための手段として、文字盤や対話用装置といった意思

伝達補助装置(Communication aid: CA)が研究開発されており、微小な筋肉運動をセンシングするタッチセンサや視線入力センサなどが既に製品として実用化されている。CAの多くは残存している運動機能を利用して機器を操作するが、進行性の神経難病であるALSの場合、病勢が進行すると眼球運動も含めた全随意筋が麻痺した「完全な閉じ込め状態(Total locked-in state: TLS)」となり、運動機能を利用するCAは殆ど利用できなくなる。しかし、ALSは末梢神経系と中枢神経系に異常をきたさないとされているため、視覚、聴覚、高次脳機能を利用するBrain-

computer interface (BCI)がALS患者の最終的なコミュニケーション手段として期待されている。

ALS患者へのBCI適用を目的とした研究は国内外で行われているが、医療現場や在宅現場での実用化までには至っていない。実用化に至らない大きな原因として、工学研究者ベースでBCIの研究・開発が行われていることが挙げられる。先行研究の多くはBCIを開発し、健常者で評価実験を行い、その後ALS患者による評価実験を行うというプロセスを取っている。ALS患者によるBCIの日常利用を想定する場合、単純にBCIの性能を向上させるだけではなくALS患者が安全で無理なく利用できることが重要である。しかしながら、工学系の研究室レベルでは医療現場におけるニーズや問題が正確に把握できないため実用的なBCIの開発が難しい。そこで我々の研究室ではALS患者と介護者である作業療法士を対象に、BCI適用における課題・ニーズ調査を行った。調査の結果、インタフェースや入力時間など様々な問題が判明したが、そのなかでも計測電極の着脱に時間や手間がかかることに着目した。装着に電解ジェルを必要とする電極はBCI使用後に電解ジェルが頭皮に残るため、拭き取りまたは洗髪を行う必要があり、BCI使用者の負担となる。使用する電極が多ほど取得できるデータ数も増えるため、工学研究者は多くの電極を配置してきたが、BCI使用者の負担も増加するため実用的とは言えない。しかし、無暗に電極数を減らせばBCIの入力精度が下がり、CAとしての役割を果たせない。そこで本研究ではALS患者の日常利用を想定したBCI開発を目的として、入力精度を維持しつつ電極数を削減する電極配置法を検討した。

## 2. BCI システム

### 2.1 事象関連電位 P300

人間の脳は常に電気活動を行っており、脳内のあらゆる領域で極微弱な電流が流れている。そこで発生する電位を電極により計測、記録したものが脳波である。事象関連電位(Event Related Potential: ERP)とは、外因性または内因性の刺激情報に対する高次の処理過程、つまり認知活動で生じる数 $\mu$ V程の脳波の総称である。BCIはERPの特徴的な脳波をスイッチとして扱う場合が多い。P300とは注意に関するERPの成分のひとつであり、識別可能な2種類以上の感覚刺激をランダムに呈示し、低頻度の刺激を選択的に注意させることで、刺激後300ms付近の潜時で出現する陽性電位である<sup>[1]</sup>。P300を誘発する課題としては、容易に識別可能な2種類の刺激をランダムに呈示し、呈示回数の少ない刺激を数えさせることで注意を促すオドボール課題が代表的である。P300をはじめとするERPは極微弱な電位であるため、脳内の他領域で発生する脳電位や環境雑音(ノイズ)に紛れてしまう。そこで一般的にP300を計測する際は複数回刺激を呈示し、計測した複数の脳波を加算平均することでノイズなどを除

去しP300波形を抽出する。

### 2.2 P300 Speller

BCIによる文字入力ではP300をスイッチとして扱うものが多く、その中でも代表的といえるBCIにDonchinとFarewellが開発したP300 Spellerが挙げられる<sup>[2]</sup>。P300 Spellerの動作原理をFig.1に示す。文字盤を行または列単位でランダムに点滅させることで視覚刺激を与え、この時の脳波を各行・列で記録する。P300は被験者が注意を向けていた文字が光った時に出現する。一方で、注意を向けていない文字が光った時P300は出現しない。設定回数点滅を繰り返すと、電極ごとに各行・列で計測した脳波を加算平均する。この加算平均した脳波をFLDの判別器に代入してP300の判別を行う。これにより、まず被験者が注意を向けていた文字が含まれる行と列が推定できる。推定した行と列の交差する位置にある文字が、被験者の注意を向けていた文字と推定できる。

1回の刺激における文字盤の点滅範囲(刺激単位)は、行・列(Row/Column speller: RC)または1文字(Single Character speller: SC)に変更できる。また、試行回数も変更でき、一刺激単位につき一度だけ点滅させる単一試行型、複数回点滅させ計測した脳波を加算平均する複数試行型がある。一般的に単一試行型は入力にかかる時間は短いが入力精度は低い傾向があり、対して複数試行型は入力にかかる時間は長くなるが入力精度は高い傾向がある。本研究では複数試行型RCの設定で実験を行った。以後、本稿ではP300 SpellerをBCIと表記する。

### 2.3 P300の判別方法

BCIの文字入力では最もP300が強く現れた行または列を検出するためにP300の判別を統計学的に行う。しかしP300は潜時や電位の振幅などに個人差が生じる。計測した脳波からP300を適切に判別するために、個人の脳波特徴に則した判別器を作成する必要がある。本研究ではFisherの線形判別(Fisher's Linear Discriminant: FLD)で作成した判別器によってP300を判別する。

FLDは一般に(1)式で表される。 $w$ は重みベクトル、 $S_w$ クラス内共分散行列、 $m_1$ および $m_2$ はそれぞれのクラスにおける平均ベクトルである。FLDを用いた判別器の実装は(2)式である。 $class$ は判別器が出力する決定領域、 $x$ は入力ベクトル、 $w$ は重みベクトル、 $b$ は決定面の位置を決める偏りである。実装においてFLDの関係を用いて重みベクトル $w$ を(3)式で求めた<sup>[3]</sup>。本研究において、 $C_1$ はP300を含む脳波(ターゲット文字)、 $C_2$ はP300を含まない脳波(非ターゲット文字)のクラスをそれぞれ意味する。

$$w \propto S_w^{-1}(m_1 - m_2) \quad (1)$$

$$class(x) = \begin{cases} C_1 & w^T x + b > 0 \\ C_2 & (otherwise) \end{cases} \quad (2)$$

$$w = S_w^{-1}(m_1 - m_2) \quad (3)$$

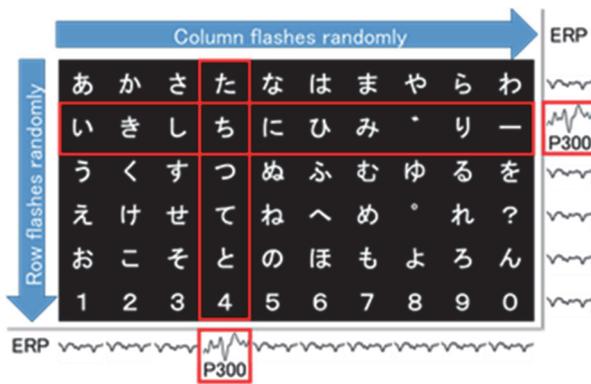


Fig.1 Principle of operation of BCI

### 3. 電極配置法と評価指標

電極配置法を提案するうえで、配置に対する評価指標を決定した。脳波には個人差が生じるため、P300型BCIは実験の始めに個人特徴量の解析を行い、判別器を作らなければならない。本研究では個人特徴量を抽出するBCI学習課題をオフライン実験(解析)と定義し、オフライン実験の計測データからFLDで判別器を作成した。オフラインで作成した判別器をBCIに適応させて行った実験をオンライン実験(解析)と定義した。オフライン実験とオンライン実験では評価指標が異なる。

#### 3.1 文字入力正答率

正答率はオンライン実験で被験者が入力を意図した文字と、BCIが出力した文字の一致数を百分率で表したものである。例えば、「さむい」の3文字入力を意図した時、結果が「かむい」であった場合、正答率は $2/3 = 67\%$ となる。

#### 3.2 P300判別率

P300判別率(Discriminant rate: DR)とは、オフライン実験の計測データからFLDで作成されたP300判別器の評価指標である。BCIの文字入力は判別器に基づいて行われる。判別器は個人毎に学習させる。従って、学習させた判別器の精度が低ければ正答率もその分低下する。P300判別器の性能評価を行うために、学習に用いた脳波データを判別器にかけることでP300判別率 $DR(x)$ を求める。算出式は式(3.1)である。 $DR(x)$ は全標本の内、正しく標本を判別できた数の割合である。 $x$ は学習に用いた特徴量行列、ここでは文字入力を行った時の脳波データから抽出した脳波特徴量である。 $C_\sigma$ は総クラス数で、ターゲット刺激クラスとノンターゲット刺激クラスの2クラスである。 $|x|_N$ は特徴量行列における標本数(刺激回数)、 $y(\cdot)$ は判別器であり、判別器は $x$ で学習済みとする。

$$DR(x) = \frac{\sum_{k=1}^{\sigma} y(x \in C_k) \in C_k}{|x|_N} \quad (4)$$

### 3.2 電極配置法のアルゴリズム

BCIの入力精度を向上または維持させるには、P300判別精度の高い電極のみを使用する必要がある。従って、P300判別率DRが高い電極を判別器に残しつつ、P300判別に有効でない電極を減らしていく必要がある。そこで本研究では総当たり法による電極配置の選択を行った。総当たり法とは、全ての説明変数の組み合わせを計算し、最も評価の良い組み合わせを選択する変数選択法のひとつである。

最初にオフラインデータを用いて、1から最大 $n$ 個の電極数ごとに考えられる全ての配置のDRを式(3.1)から算出する。全配置の数は式(3.4)で求まる。本研究では電極の最大数は8個である。電極数が8個では、8個の中から8個を選択するため1通りの配置が考えられる。同様に電極数が7個または1個では、8個の中から7個(1個)を選択するため8通り、電極数が6個または2個では28通り、電極数が5個または3個では56通り、電極数が4個では70通りの配置が考えられる。よって全255通りの電極配置のDRを算出することとなる。

$$\text{All Arrangement} = \sum_{k=1}^n n C_k \quad (3.4)$$

次に、各電極数で考えられる配置の中から、それぞれDRが最大値となる配置を求める。このときの電極配置を「各電極数での優良配置」と定義する。同電極数内でDRの最大値が重複した場合は、他の電極数で確定した優良配置のうち、使用された回数の多い電極をより多く含む配置を採用する。

最後に、各電極数での優良配置(本研究では8通り)の判別器をそれぞれ作成し、判別器に対応した電極数でオンライン実験を行う。実験の結果、優良配置の中で最も正答率が高くなった配置を、BCI使用者の最高入力精度となる配置とみなし、「個人の最適な電極配置」と定義した。

### 4. 電極配置法の評価実験

電極配置法の理論を評価するため、P300を計測しやすい後頭部配置で評価実験を行った。本実験では、オフライン実験で取得した計測データから各電極数での適切な配置を決定し、オンライン実験でその配置に則しながら電極数を減らしていき、正答率の向上または維持が可能か確認を行った。

#### 4.1 評価実験の設定

被験者は健康な20代の成人4名(男性3名、女性1名)を対象に行った。被験者のBCI使用経験は、10回以上が2人、5回目が1人、1回目が1人であった。被験者には実験の説明を十分に行い、本人から承諾を得た上で行った。この実験は工学院大学ヒトを対象とする研究倫理審査委員会の認可を受けている(承認番号H25-

6). 実験は工学院大学新宿キャンパスの実験室で行われた。被験者は背もたれを約 30° 後方に傾けた椅子に着座し、正面に配置したディスプレイを注視した。電極配置は後頭部配置とした。

被験者は事前に決められた 5 文字を入力する課題 (copy spelling 方式)を行った。SOA は 350ms, ISI は 150ms に設定し、1 文字の入力にかかる行・列の刺激回数をオフライン実験では 10 回、オンライン実験では 5 回とした。

#### 4. 2 BCI の設定

Fig.2 に BCI システムの構成図を示す。脳波は電極ジェル注入型アクティブウェット電極(g.tec 社製 LADY bird)を用い、耳朶を基準とする単極誘導法で誘導された。各電極で計測された脳波はチャンネルボックス(g.tec 社製 g.SAHARAbbox)でまとめ、生体アンプ(g.tec 社製 g.USBamp)によって増幅され、A/D 変換後にノート PC に取り込まれる。ローカットフィルタは 0.5Hz、ハイカットフィルタは 30Hz、ノッチフィルタは 50Hz に設定した。視覚刺激はノート PC から操作し HDMI 出力によりモニター(三菱電機 Diamond crista RDT231WM)に出力される。BCI のソフトウェア部は MathWorks 社の数値解析ソフトウェア MATLAB 及び Simulink で開発した。BCI システムは g.tec 社のデータ収集処理システム(g.BCIsys)をベースにし、脳波の計測制御、フィルタリング、統計処理、視覚刺激の機能をプログラミングした。

#### 4. 3 電極数についての結果と考察

被験者 4 人の正答率と DR の平均値を Fig.3 に示す。Fig.3 の被験者平均より、電極 6 個のときに正答率が 85%となり最も高い評価となった。続いて電極 8 個と 2 個のときに正答率 70%であった。しかし、被験者ごとに各電極数での正答率に差があることが確認された。被験者 A は電極 8 個で最大正答率 100%となった。しかし電極 2 個においても 80%と高い正答率が得られた。被験者 B は電極 6 個で最大正答率 100%となり、電極 8 個での 20%から大幅に向上した。被験者 C は電極 6 個で最大正答率 80%となり、被験者 B と同じく電極 8 個より正答率が向上した。被験者 D は電極 8 個から 3 個まで正答率 100%を維持した。よって、被験者 D は電極 3 個において最も良い結果となったと言える。以上より、被験者 4 名中 3 名において、従来の電極数 8 個より少ない数で正答率が最大となった。従って、提案した電極配置法で入力精度を低下させずに電極数を減らすことが可能であることが示された。

被験者によって正答率の変動幅が異なった要因のひとつとして、文字入力型 BCI の使用期間が関係していると考えられる。被験者 A と D は 1 年以上の BCI 使用経験があった。対して被験者 C は本実験で BCI を初めて使用した。よって被験者 C は BCI に対する知識や慣れが足りず、十分に課題に集中できなかったのではないかと考えられる。

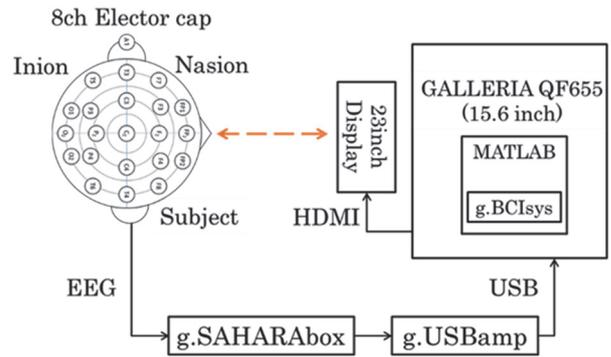


Fig.2 System configuration diagram of BCI

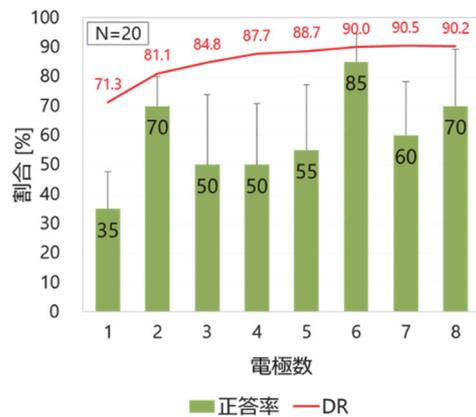


Fig.3 The correct percentage of all subjects and DR mean and standard error

DRに着目すると、電極 8 個から 2 個の間では大きな変動はなく緩やかに減少し、電極 1 個で大きく値が下がる傾向が全ての被験者で見られた。この結果は、P300 判別器を作成するための脳波情報量が減ったことで、判別分析の精度が低下したためだと推測できる。また、正答率も同様に電極数 1 個では値が下がる傾向があった。この結果から、電極数の削減は 2 個までが入力精度上の限界である可能性が考えられる。

#### 4. 4 電極配置についての結果と考察

各被験者の最大正答率となった電極配置(最適な電極配置)を Fig.4 に示す。使用された電極数は、被験者 A は電極 8 個、被験者 B は電極 6 個、被験者 C は電極 6 個、被験者 D は電極 3 個であった。よって、最適な電極配置は被験者ごとに異なった。被験者 B と C の最適な電極配置に使われた電極数は同じであったが、被験者 B は Cz と P3 の電極が削減されたのに対して、被験者 C は Fz と P4 が削減され、異なる配置となった。以上より、被験者間で共通する電極の削減順番はないことが示唆された。従って、正答率を向上させるためには、電極配置法で被験者ごとに最適な電極配置を決める必要がある。しかし、Pz, P8, Oz の電極は全被験者の最適な電極配置に使用された。よって、被験者間で共通して使用されやすい電極があることが示唆された。

以上の結果から、被験者間で共通する P300 判別に有効な電極位置があるかを採択回数によって検討した。採択

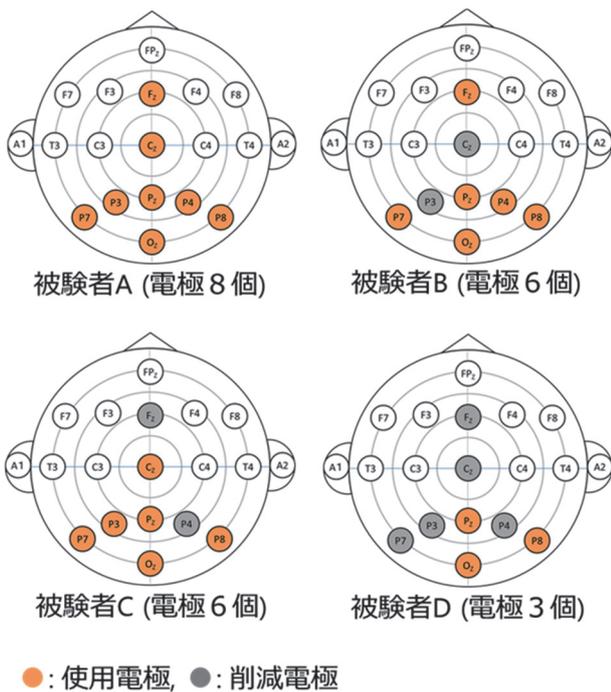


Fig.4 Optimum electrode position of each subject

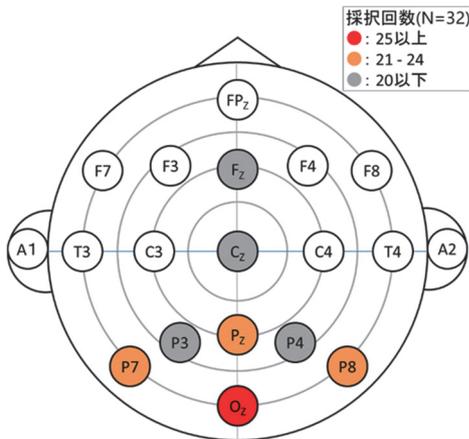


Fig.5 Number of times of adoption at each electrode position (subject average)

回数は各被験者の優良配置に使用された各電極の回数を示す。全被験者の採択合計回数の結果を Fig.5 に示す。採択合計回数の最大値は 32，最小値は 4 である。結果として、Oz の電極が 27 回と最も多く、続いて Pz と P7 が 23 回、P8 が 22 回、Fz が 16 回、P4 が 14 回、Cz が 13 回、P3 が 6 回となった。以上のことから、採択回数の多い電極は後頭部に集中していることが確認された。この結果は P300 が正中線及び後頭部付近で優位に誘発されることを反映していると考えられる。また、全被験者の最適な電極配置に使用された Pz, P8, Oz の採択回数が多いことより、採択回数が多いほど P300 判別に有効な電極と考えられる。従って、最適な電極配置は個人ごとに異なるが、採択回数の多い電極を使用すれば BCI 未経験者でも高い正答率が得られるのではないかと推定できる。

## 5. ALS 患者の利用姿勢を考慮した健常者実験

電極配置法の評価実験では、健常者を対象に頭部正中線と後頭部に電極を配置する後頭部配置における適切な電極配置を導き出した。結果、電極数が 6 個のときに最も正答率が高くなり、後頭部 Oz の電極が正答率に対して有用性の高い電極であることが判明した。従って、後頭部に電極を配置することで入力精度の向上が期待できるが、ALS 患者の安静姿勢は多様であり、枕などと干渉して後頭部に電極を配置できない場合もある。本実験では後頭部に電極を配置できない ALS 患者の姿勢を考慮した電極配置においても、電極配置法は有効であるかを実験により検討した。

### 5. 1 健常者実験の設定

被験者は健常な 20 代の成人 5 名(男性 4 名，女性 1 名)を対象に行った。被験者には実験の説明を十分にいき、本人から承諾を得た上で行った。この実験は工学院大学ヒトを対象とする研究倫理審査委員会の認可を受けている(承認番号 H25-6)。被験者の BCI 使用経験は、10 回以上が 1 人，4 回目が 1 人，2 回目が 2 人，1 回目が 1 人であった。実験は工学院大学新宿キャンパスの実験室で行われた。

本実験は後頭部に電極を配置できない ALS 患者の姿勢(車椅子座位姿勢)を計測姿勢とした。被験者は背もたれを 45° 後方に傾けた椅子に着座し、正面に配置したディスプレイを注視した。電極配置は頭頂部配置とした。BCI の設定及び構成は 4. 2 節に記述されたものと同じである。

被験者は事前に決められた 10 文字を入力する課題(copy spelling 方式)を 6 回行った(オフライン実験 1 回，オンライン実験 5 回)。SOA は 170ms，ISI は 70ms に設定し、1 文字の入力にかかる行・列の刺激回数をオフライン・オンライン実験ともに 5 回とした。つまり 1 文字の入力は 80 刺激から構成された。

### 5. 2 分析手法

実験で得られた電極 8 個の計測データをもとに、計測した実験データから BCI の出力結果や正答率を解析するための正答率シミュレーターで電極数の変化による正答率の変動を算出した。正答率はオンライン実験の計測データで被験者が入力を用意した文字と、シミュレーターが出力した文字の一致数を百分率で表したものである。被験者はオンライン実験で 10 文字の入力を 5 回行ったため 50 文字分の正答率を算出した。シミュレーションでは、まずオフライン実験の計測データから作られた判別器を DR によって電極数ごとに評価し、各電極数での適切な配置を決定した。電極の最大数は 8 個，最小数は 1 個である。次に、各電極数での適切な配置に則してオンライン実験の計測データの電極数や配置を変更し、正答率をシミュレーターで求めることで個人の最適な配置を決定した。

### 5. 3 健常者実験の結果

全被験者の電極 8 個での DR は 78%以上であった。つまり 800 刺激の約 80%で適切な P300 の判別が行われたと言える。被験者 A の DR と正答率を Fig.6 に示す。図

の縦軸は割合、横軸は電極数を示す。DR は電極 8 個の 85.4%から電極 2 個 (DR=70.4%) まではゆるやかに減少していき、電極 1 個 (DR=57.8%) で急激に下がった。他の被験者も同様の傾向が確認された。

各被験者の従来の電極 8 個の正答率と、正答率が最大となったときの電極数を Fig.7 に示す。被験者 C を除く 4 人の被験者が従来の電極 8 個よりも少ない数で正答率が最大となった。各被験者の最大正答率は、被験者 A は電極 4 個で 62%、被験者 B は電極 5 個で 62%、被験者 C は電極 8 個で 30%、被験者 D は電極 4 個で 42%、被験者 E は電極 7 個で 34%であった。

正答率が最大となった電極配置を被験者の最適な配置とみなした。被験者 A は Fz, Cz, C3, CP4, 被験者 B は F3, Cz, C4, CP3, CP4, 被験者 C は従来の電極 8 個の配置、被験者 D は Fz, Cz, C4, CP4, 被験者 E は Fz, F3, Cz, C4, CPz, CP3, CP4 であった(Fig.8)。

### 5. 4 健常者実験の考察

Fig.7 より、被験者 5 名中 4 名で電極数が減少しても正答率は向上または維持することが確認された。これは判別器の評価によって P300 を判別しにくい電極や環境ノイズが多く含まれた電極を排除できたため、BCI の入力精度が上がったと考えられる。このことより DR は電極の有用性を示す指標として成り立つと言える。以上より P300 判別に対して有用性の高い電極のみを使用することで、BCI の入力精度が向上できるという仮説が立証できたと言える。また、評価実験と同様に電極 2 個までは正答率を維持できることが確認された。従って、ALS 患者の利用姿勢(頭頂部配置)を考慮した配置でも、電極配置法によって入力精度を低下させずに電極数を減らすことが可能であることが示された。

最適な電極配置は被験者によって異なることが Fig.8 より確認された。これは P300 が誘発される位置に個人差が生じるためだと考えられる。被験者 A と D は正答率が最大となった電極数が同じ 4 個であったが、最適な電極配置は異なった。従って、被験者間で共通する電極の減らし方はなく、個人ごとに最適な電極配置を求める必要がある。しかし、Cz と CP4 は全被験者の最適な電極配置で使用されていた。これは、P300 は頭頂部正中線上と後頭部で誘発されやすいためだと言える。このことより、個人の最適な電極配置を決定する前の被験者や、安静姿勢の異なる ALS 患者のために新たな電極配置へ変更しても、Cz と CP4 に電極を配置すれば一定の入力精度は得られると考えられる。

本実験では ALS 患者の安静姿勢を考慮した頭頂部配置で実験を行った。結果、被験者 2 人は正答率が 62%となったが他の被験者は 50%以下となった。BCI の入力精度は 80%以上が望ましいとされている。今後より BCI の入力精度を上げるために、引き続き電極配置の検討を行うとともに、文字盤の改良や 1 文字あたりの刺激回数の見直しなどを別視点での問題解決を行う必要がある

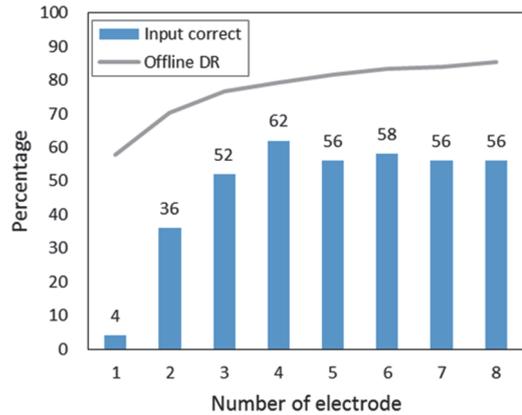


Fig.6 Subject A's DR and correct answer rate

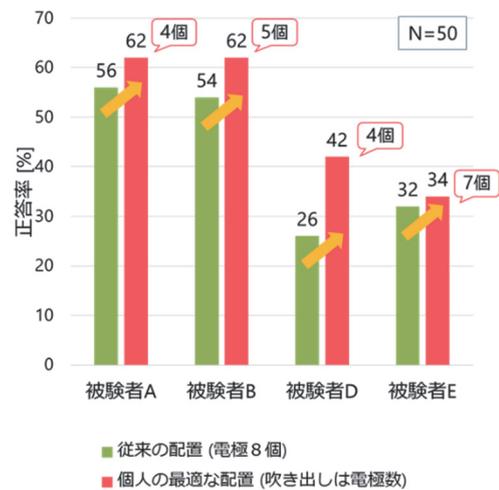


Fig.7 The correct placement rate of each subject's conventional placement and optimal placement

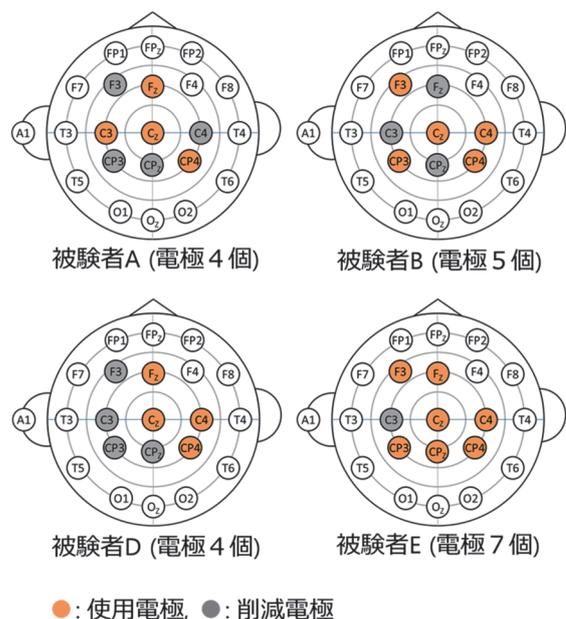


Fig.8 Optimum electrode placement of each subject

### 6. ALS 患者の最適な電極配置の検証

これまでの電極配置法の評価実験及び実証実験では、健常者を被験者として行ってきた。その結果、両実験で電極数の減少による BCI 入力精度の向上または維持が確認された。よって、本論文で提案した電極配置法の理論が実証されたと言える。そこで次に、過去に行った ALS 患者を被験者とした BCI 実験の計測データを使用して、ALS 患者の最適な電極配置を決定する検証を行った。

#### 6. 1 実験の設定

被験者は ALS 患者 1 名とし、2015 年 3 月に行った BCI 実験の計測データを使用した。実験は神奈川県立さがみ緑風園の ALS 患者の居室にて行われた。本実験は北里大学東病院の研究倫理委員会の承認を得て実施された(承認番号: 治療 12-749)。また、ALS 患者と OT には研究内容を十分に説明し承諾を得た後に実験が行われた。

本実験は後頭部に電極を配置できない ALS 患者の姿勢を計測姿勢とした。計測姿勢は仰臥位姿勢、電極配置は頭頂部配置であった。また、BCI の設定及び構成は 4. 2 節に記述されたものと同じである。

被験者は事前に決められた 3 文字を入力する課題(copy spelling 方式)を 2 回行った。1 回目の計測をオフライン実験、2 回目の計測をオンライン実験として扱った。SOA は被験者の希望により 510ms, ISI は 210ms に設定し、1 文字の入力にかかる行・列の刺激回数をオフライン実験では 15 回、オンライン実験では 10 回とした。

#### 6. 2 結果と考察

各電極数での正答率と DR の推移を Table 1 と Fig.9 に示す。結果より、電極数 8 から 1 個まで正答率を維持することが確認された。よって被験者の最適な電極配置は Cz のみを使用する配置となる(Fig.10)。

これまでの健常者を対象とした実験では、電極数 2 個まで正答率と DR はともに向上または維持し、電極数 1 個では急激に評価が低くなる傾向が確認されていた。しかし今回の結果では、電極数 1 個まで正答率 100%を維持することができた。これは、被験者の集中度合の高さに起因するものではないかと考えられる。被験者は日常的に意思伝達補助装置を使用しているため集中力が高く、また入力に対する意欲も高いため BCI の文字入力に適していると考えられる。よって、電極数が減り判別器に使用するデータ数が減少しても、被験者が集中していた良い計測データならば、データ数の少なさを補うことが出来る。しかし、今回の実験ではもともとの計測データ量が少ない。被験者の最適な電極配置を確定するためには、さらに実験を行い、計測データを増やしていく必要がある。

Table 1 DR and correct answer rate of ALS patients

電極数[個]	DR[%]	正答数[文字] (入力数 N=3)	正答率 [%]
8	91.0	3	100
7	91.7	3	100
6	90.4	3	100
5	90.3	3	100
4	90.0	3	100
3	86.5	3	100
2	83.3	3	100
1	76.1	3	100

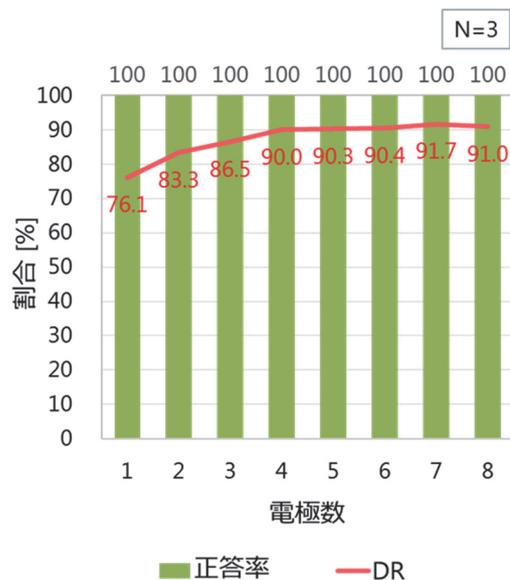


Fig.9 DR and correct answer rate of ALS patients

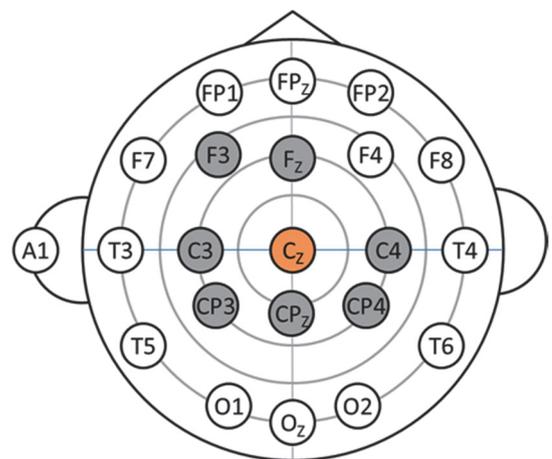


Fig.10 Optimal electrode placement of ALS patients  
(Orange: Used electrode, gray: Reducing electrode)

## 7. 結論

本研究は ALS 患者の医療・在宅現場における日常利用を想定した BCI の開発を目指した。BCI の実用化にあたって解決すべき課題や個々に抱えているニーズを把握するために、ALS 患者と介護者である作業療法士を対象としたニーズ調査を行った。調査結果から、BCI の利便性と入力精度の向上が必要であることが判明し、それら課題を解決する手段として電極配置に着目した。電極に関する問題を解決することにより BCI の利便性と入力精度の向上が可能であると推測し、電極配置法を検討した。

電極配置法を提案するにあたり、従来から使われている正答率と新たに提案した P300 判別率 DR を電極配置の評価指標として決定した。DR により各電極数での適切な電極配置を決め、正答率により BCI 使用者個人ごとの最適な電極配置を決定する電極配置法を提案した。

提案した電極配置法を評価するため、まず P300 を計測しやすい後頭部配置での評価実験を行った。結果、被験者 4 名中 3 名で従来の電極 8 個より少ない電極数で正答率が最大となった。加えて、後頭部 Oz に位置する電極が最も BCI 入力精度に影響を与えることが判明した。以上より、電極数を減少させることで BCI の入力精度を向上または維持することが可能であることが示され、提案した電極配置法は有効であることが確認された。

次に、ALS 患者の BCI 利用姿勢を考慮した配置による電極配置法の実証実験を行った。本実験ではニーズ調査で判明した後頭部に電極を配置できない姿勢を想定して行った。結果、被験者 5 名中 4 名で従来の電極 8 個よりも少ない電極で正答率が最大となった。また、被験者によって最適な電極配置は異なったが、Cz, CP4 は全被験者共通で使用されていたことより、P300 判別において有用な電極位置であることが示唆された。

最後に、過去に行った ALS 患者 1 名を被験者とした BCI 実験の計測データを使用して、ALS 患者の最適な電極配置を決定する検証を行った。結果、電極数 8 から 1 個まで正答率 100%を維持することが確認された。つまり、

被験者の最適な電極配置は Cz のみを使用する電極 1 個の配置となった。これは、被験者の集中度合の高さに起因するものではないかと考えられた。今後より入力精度に有効な個人の最適な電極配置を検討するために、ALS 患者を被験者とした実験を行い、検証を続けていく必要がある。

以上の全実験結果より、電極数の減少による正答率 (BCI 入力精度) の向上が確認された。従って、本論文で提案した電極配置法によって BCI の利便性と入力精度の向上が可能であると示され、BCI 実用化に対する課題や ALS 患者のニーズの解決に繋がったと言える。

今後の課題として、被験者の性別や年齢層を広げ、さらに多くの実験データから電極配置を分析していくことが挙げられる。また、各 ALS 患者の最適な電極配置による評価実験を行い、電極配置法によって BCI の入力精度と利便性が向上しているか、BCI 実用化のための実証を行う必要がある。

## 参考文献

- (1) 入戸, 堀: 心理学研究における事象関連電位(ERP)の利用; 広島大学総合科学部紀要IV理系編, Vol.26 (2000), pp.15-32.
- (2) L. A. Farwell and E. Donchin: Talking off the top of your head: Toward a mental prosthesis utilizing event-related brain potentials; *Electroencephalography and Clinical Neurophysiology*, vol.70 (1988), pp.510-523.
- (3) C.M.Bishop: *Pattern Recognition and Machine Learning*; Springer, Heidelberg, (2006).
- (4) Yjiki Ijichi and Hisaya Tanaka, *Electrodes Arrangement on Brain-Computer Interface for the ALS's Posture*, proc. of SMC 2016 IEEE INTERNATIONAL CONFERENCE ON SYSTEMS, MAN, AND CYBERNETICS, CDROM (2016)

## ヒトの下肢関節動態を再現した脚運動機構による 人工関節評価システムの開発

工学院大学 機械システム工学科 桐山善守

工学院大学 大学院 機械工学専攻 藤原史大

工学院大学 機械工学科 橋本成広

東京医科大学 整形外科学分野 高橋康仁

東京医科大学 整形外科学分野 山本謙吾

### Development of Evaluation System for Artificial Joints by Mechanism of Lower extremities Representing the Joint Kinematics

Yoshimori Kiriyama , Mechanical Systems Department , Kogakuin University  
Hiroshige Hashimoto , Mechanical Engineering Department , Kogakuin University  
Yasuhito Takahashi , Orthopedic Surgery , Tokyo Medical University  
Kengo Yamamoto , Orthopedic Surgery , Tokyo Medical University

**ABSTRACT** : To evaluate artificial joints, it is required for the lower extremity simulator to reproduce the loading condition or joint kinematics *in vivo* during daily motions. In this study, a new simulator for prosthesis has been developed that has the hip and knee joints and muscle tension during motion are applied via wires as the muscles. The simulator has eight muscle tension generators, and they are controlled along the time. As the result of validation of the specification, all muscles reproduced the anatomical function to move the joints. Also, the simulator showed the physiological range of motion of the hip and knee joints. Moreover, the simulator can make the posture during gait. Hence, the simulator is expected to elucidate the mechanism where the artificial joints are broken mechanically.

#### 1. はじめに

変形性関節症(Osteoarthritis: OA)は、関節軟骨の変性・摩耗とその後の軟骨・骨の新生増殖、および二次性滑膜炎などに基づく進行性の変性関節疾患<sup>1)</sup>と定義される。事故、加齢、疾患などが原因で関節の軟骨が傷みすり減ると、その損傷が起点となって別の損傷が生じるようになり、周囲の負担の少ない部位に異常軟骨や骨棘が発生し、関節の変形が進む。この変化に伴い、関節内の滑膜が炎症を起こす。このような関節の変形は、全身の関節に発生する可能性があり、加齢とともに発生頻度は増加する。特に、体

重を支える膝や股関節では傷みや変形が生じやすく、スポーツ選手や重労働者、中年以降の肥満女性などに発症が多く見られる。日本では、畳や布団という下肢の関節に負担が生じやすい生活様式も関与していると考えられている<sup>2)</sup>。2013年度の厚生労働省の調査<sup>3)</sup>により、日本におけるOAの患者数は約350万人であることが明らかとなった。さらに、ROADプロジェクトの調査<sup>4)</sup>では、X線で診断される膝OAの有病者数は約2350万人と推定している。さらに、介護が必要となった主な原因として、要介護者の10%<sup>4)</sup>、要支援者の20.7%<sup>5)</sup>がOAによるものと考えられ、要支援者に至っては最も多い結果となってい

る。本邦においては高齢化がさらに加速すると考えられており、OA 患者の増加も避けられず、その対応は急務の課題である。

重度の OA に対する治療方法の一つに、人工関節置換術がある。これは変形した関節を人工関節に置き換える外科治療法である。主な人工関節として、人工膝関節と人工股関節がある。どちらの人工関節も、ステンレス系金属、チタン系金属、コバルトクロム合金系金属、高分子材料、セラミックスなどが利用される。2011年の段階で、人工膝関節置換術の年間症例数は約8万5千件、人工股関節では約6万件であり、10年前と比べてそれぞれ約2倍に増加している<sup>6)</sup>。

人工関節は、常に新規デザインが開発されている。さらに近年では、高齢化による需要の増加や原材料の改善、個人差に対応するためのカスタムメイド人工関節など、様々な種類の人工関節が開発されている。人工関節の審査ガイドライン<sup>7,8)</sup>では、構造・原理、原材料、品目仕様、使用方法、製造方法のいずれかに新規性がある場合には、その新規性について適切な評価を行い、品質や有効性及び安全性の評価に関し必要な資料を提出する必要があるとしている。特に、機械的安全性については、人工関節の機能だけでなく耐用年数についても評価することになる。このため、国際標準化機構 (International Organization for Standardization: ISO) または米国試験材料協会 (American Society for Testing and Materials: ASTM) で定められたシミュレータを用いて、摺動面の可動・拘束範囲、全摺動面の磨耗特性、各コンポーネントの疲労強さ・組み合わせ強さなどが評価される。約100万回の磨耗試験が生体内での1年間相当負荷と考えられ、市販されている人工関節の耐用年数は20年以上と言われている。しかしながら、実際には20年未満で破損や折損などが生じ、再置換術を余儀なくされるケースも少なくない。

Takahashi らによると<sup>9)</sup>、ISO で規定された700万回の磨耗評価後の人工股関節では、100 $\mu$ m レベルでの観察でポリエチレンライナーに生じる磨耗をほとんど確認できなかったが、生体内に2年半設置されたものでは、明らかな磨耗の発生が確認できたと報告している。また、米国FDAの調査によると2002年から2013年の間に、人工関節のリコールが行われている<sup>10)</sup>。現状のISOやASTMにより規定された磨耗評価試験は、ヒトの定常歩行時の関節動態と生体内負荷を再現しているが、日常生活では歩行のみを行うわけではない。このため、軽度のジョギング<sup>11)</sup>や、人工関節の設置位置・角度<sup>12)</sup>、血清のタンパク質の熱変性<sup>13)</sup>が磨耗率を変化させるとの報告もある。すなわち、現在の評価試験は必ずしも生体内の力学環境を再現できていないことを意味している。

実際の生体内環境を想定して人工関節を評価するには、動作時の運動を再現しながら、筋による複雑な荷重状態を再現し、さらに人工関節に生じる力学的負担や関節コンポーネント間の微細な運動を詳細に計測できる必要がある。そこで本研究では、ヒトの解剖学的構造を再現した

脚運動機構に人工関節を取り付け、これに日常的な運動を行わせることができる人工関節評価シミュレータの開発を行うことを目的とする。特に本稿では、下肢の筋骨格構造、シミュレータの要求仕様・設計仕様および本シミュレータを用いた下肢の生理的運動の実現とワイヤで模した筋の制御手法について説明する。

## 2. 方法

### 2.1 開発目標

以下に、人工関節評価シミュレータの開発目標を示す。**筋骨格構造の再現**

筋骨格構造の骨格と筋を解剖学的に再現し、ヒトの股関節及び膝関節における荷重特性を再現する。

### 日常動作の再現

人工関節の荷重特性を評価するために、日常起こりうる荷重を再現する。

### 動作計測可能なシミュレータ

シミュレータの動作計測には、外部からモーションキャプチャシステムを用いることを前提とする。このため、シミュレータが行った運動を計測するために、下肢部を露出させることとする。

#### 2.1.1 全体構成

図1にシミュレータのCAD3次元モデルを、図2に制作したシミュレータを示す。モータ及びワイヤで筋を再現し、下肢骨格模型の関節を動作させることが可能となっている。30 [mm]角アルミフレームと30×60 [mm]アルミフレーム(株式会社ミスミ)に、モータ、張力調整機構、下肢骨格模型を取り付け構成した。専用のアルミフレーム用ナットを使用することで、アルミフレーム同士を固定でき、設計変更に対応可能とした。また、専用のアジャスタパッドとキャスタを支持部に取り付け、移動できるようにした。これにより、シミュレータの計測環境を容易に変更することができる。アルミフレームのたわみ算出簡易表(株式会社ミスミ)と想定される荷重を比較し、十分な強度を確認した。

また、モーションキャプチャシステムによる計測を前

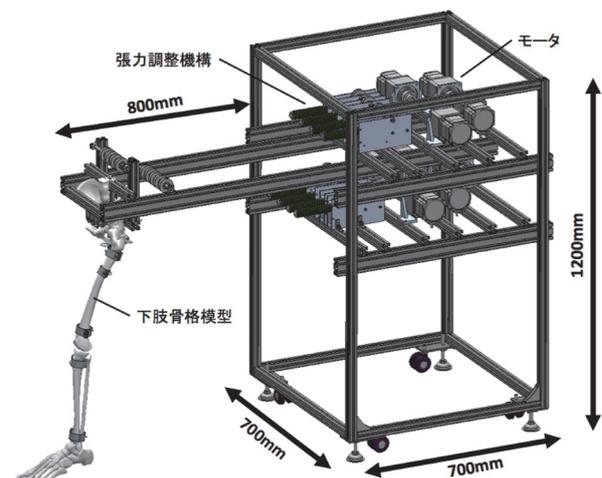


Fig.1 Simulator design.



Fig. 2 Outline of the simulator.

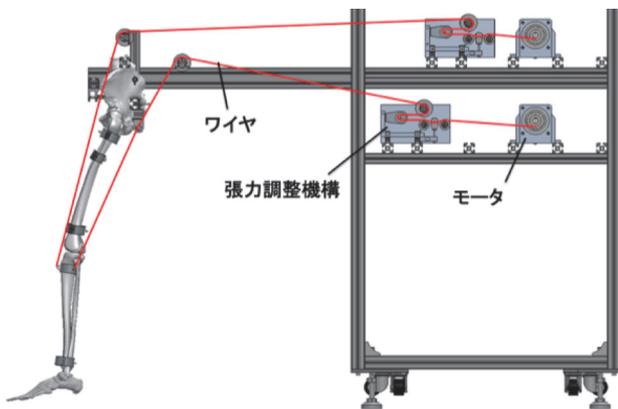


Fig. 3 Wire route.



Fig. 4 Pelvis model.



Fig. 6 Patella model.



Fig. 5 Lower extremities.

提とし、下肢骨格模型の運動計測を行うため、骨模型を土台部から露出させた。

ワイヤ経路を図3に示す。モータで巻き取ったワイヤ

Table 1 Muscle groups

筋群	筋肉	作用	最大筋力 [N]
広筋群	外側広筋	K-e	2255
	内側広筋	K-e	1443
	中間広筋	K-e	1024
大腿直筋	大腿直筋	K-e, H-f	849
腸腰筋	大腰筋	H-f	480
	腸骨筋	H-f	622
内転筋群	大内転筋	H-e, H-ad	1296
	長内転筋	H-f, H-ad	400
	短内転筋	H-ad	304
腓腹筋	腓腹筋内側頭	K-f, A-p	1308
	腓腹筋外側頭	K-f, A-p	606
中殿筋	中殿筋	H-ad, H-ir	2199
大腿二頭筋	大腿二頭筋	K-f, H-e, H-er	1021
半腱筋	半腱筋	K-f, K-ir, H-e, H-ir	302
	半膜筋	K-f, K-ir, H-e, H-ir	1162

(K-f: 膝屈曲, K-e: 膝伸展, K-ir: 膝内旋, K-er: 膝外旋, H-f: 股屈曲, H-e: 股伸展, H-ab: 股外転, H-ad: 股内転, H-ir: 股内旋, H-er: 股外旋, A-p: 足底屈, A-d: 足背屈)

の張力を張力調整機構で調整し、50 [mm]ガイドローラ(株式会社ミスミ)を用いワイヤを下肢骨格模型まで伝達した。このガイドローラとモータ、張力調整機構の位置は上下に分けて配置した。これにより下肢前側の筋群を上部に、下肢後側の筋群を下部に配置し、ワイヤの混線を防いだ。

### 2. 1. 2 骨模型

本研究は、全体の動きが分かりやすくなるよう骨模型を使用した。具体的には Sawbones 社の骨模型を利用し人工関節を設置した。図4に人工関節を設置した骨盤骨模型を、図5に人工関節を置換した下肢骨模型を示す。人工股関節には ZIMMER-BIOMET 社の Mallory-Head と Bimetric を使用した。カップサイズは 52 [mm]、ヘッドサイズは 28 [mm]、ステムは RPP10 となっている。人工膝関節には STRYKER 社製 Scorpio を使用した。大腿骨側はサイズ7、脛骨側はサイズ7、ポリエチレンインサートの厚みは 10 [mm]となっている。なお、人工関節の設置は、膝および股関節を専門とする整形外科医が行った。膝蓋骨は 3D プリンターを用いて制作した(図6)。

骨盤模型は、構成フレーム上に固定した。尾骨と腸骨の間の隙間に 30 mm アルミフレームを通した。この他に、腸骨稜、寛骨臼の裏側、上前腸骨棘にアルミフレームを接地させ固定した。このとき、上前腸骨棘と恥骨結節からなる面を基準とし、上前腸骨棘が恥骨結節より前に位置する姿勢で固定した。

### 2. 1. 3 再現する筋群

本研究では、アクチュエータを用いて筋を再現した。股関節と膝関節には約 30 もの筋がある。この全ての筋をアクチュエータを用いて再現することは、スペースと出力の関係上困難である。このため先行研究<sup>14, 15)</sup>と同様に、複数の筋をまとめて 1 つの筋群として再現した。この時の筋の選定方法を以下に示す。

- Edith らの研究<sup>16)</sup>で用いられた下肢筋肉の最大等尺

性筋力を参考に、この値が小さく、関節への影響が少ないと考えられる筋は使用しないこととした。

- 解剖学書<sup>17)</sup>を参考に、関節への役割・走行が似ている筋を1つにまとめた。
- 単関節筋と二関節筋を分別した。

以上を踏まえ、股関節と膝関節合わせて8つの筋群にまとめた。表1に使用する筋群、筋群を構成する筋肉、関節への作用(主動筋)、最大等尺性筋力を示す。これらの筋は股関節屈伸、内外転、内外旋運動、膝関節屈伸運動での主動筋の役割を満たしている。

### 2. 1. 4 筋張力の再現

決定した8つの筋群は、アクチュエータを用いて筋張力を発揮させた。シミュレータに用いるアクチュエータに必要な条件として、歩行などの日常動作を再現するために、それぞれの筋群の筋張力と筋収縮速度を満たす必要がある。筋肉をアクチュエータで再現した事例として、廣川らが開発した人工膝関節シミュレータ<sup>15)</sup>では、ワイヤをモータで巻き取ることで大腿直筋、大腿広筋、大臀筋、ハムストリングの4筋を再現した。桐山らの模擬筋駆動型屍体実験装置<sup>18)</sup>では、腰椎の動作に関わる7筋をモータによるワイヤ巻き取り機構で再現している。これらの研究を参考に、8つの筋群の筋張力と筋収縮速度を満たすことが可能であると考えた。そこで本研究では油圧式、空圧式アクチュエータと比較し、高精度の制御が可能かつコストが安価である電気式モータを使用することにした。

本シミュレータは、歩行、ジョギング、階段昇降運動などの日常動作を想定した。このため日常動作において、比較的負荷の高いジョギング時の筋張力と筋速度からモータに必要な出力を算出した。算出方法を以下に示す。

Edithらの文献<sup>16,19)</sup>より、ジョギング時(2.0[m/s])の筋電図、筋収縮速度からモータに必要な筋張力、筋速度を求めた。筋電図データは筋の最大等尺性収縮を1としており、外側広筋のジョギング時の最大の活動度0.5を全ての筋で用い、式(1)で計算した。

$$(\text{筋張力}) = (\text{最大等尺性筋力}) \times 0.5 \quad (1)$$

筋速度は、様々な運動を想定し、最大値である広筋群の筋速度446[mm/s]を全ての筋に用いた。

モータの回転軸半径 $r$ を15[mm]とし、モータの回転速度とトルクを式(2)、(3)を用い計算した。

$$\text{回転速度 [rpm]} = 60 \times \text{筋速度} / 2\pi r \quad (2)$$

$$(\text{トルク [Nm]}) = (\text{筋張力 [N]}) \times r [\text{m}] \quad (3)$$

### 2. 1. 5 張力調整機構

モータで巻き取ったワイヤの張力を調整するために、張力調整機構を作成した。図7に全体図を、図8にCAD断面図によるワイヤ経路を示す。ワイヤはガイドローラ

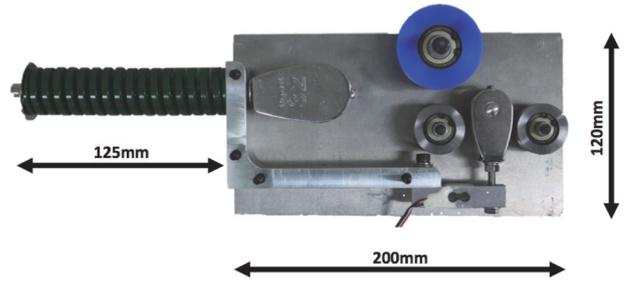


Fig. 7 Tension generator.

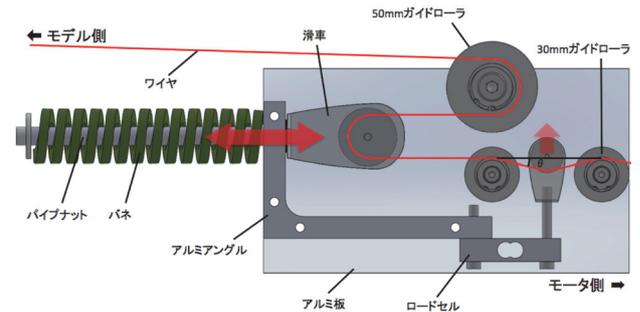


Fig. 8 Wire route in the tension generator.

を介して滑車に伝達され、ワイヤの張力は滑車を介してバネとロードセルに伝達される。50[mm]ガイドローラには、ワイヤ張力の2倍の荷重が作用し最大で約2600[N]の荷重を想定した。また、30[mm]ガイドローラには最大で500[N]の荷重が想定されるため、それぞれ耐荷重が十分なワイヤ用ガイドローラを使用した。

本張力調整機構においてバネはワイヤに張力を与え、外乱による姿勢変化を抑制する役割を持つ。容易な制御を可能にするため、バネには常にワイヤ張力の2倍の荷重が作用するようにした。バネには小スペースで高荷重が得られる強力バネ(株式会社東京発条製作所)を使用し、大腿二頭筋、半腱様筋には最大荷重が1226[N](バネ定数38.13[N/mm])、腸腰筋、内転筋、腓腹筋には2150[N](バネ定数71.56[N/mm])、広筋群、大腿直筋、中臀筋には2648[N](バネ定数88.15[N/mm])のバネを選択した。

バネへ荷重を伝達する滑車は、強力バネ、パイプナット、フランジブッシュを用いスライドするように構成した。このスライド部は軸方向のみに変位するため、フランジブッシュ上を滑ることで、軸方向の摩擦力を低減した。

本研究では、ロードセルによりワイヤ張力を計測した。機構への取り付けやすさから、安価で小型のPhidget社製マイクロロードセルを使用した。想定している最大荷重が約550[N]から1300[N]であるのに対し、ロードセルの最大荷重は500[N]である。このため、ワイヤ張力による荷重のうちロードセルの荷重検出成分が500[N]以下となるようにワイヤ経路を設定した。具体的には、図8の $\theta$ を約 $20^\circ$ で筋群に合わせて最大荷重が500[N]以下になるように取り付けた。

### 2. 1. 6 システム構成

図9にシステム構成図を示す。ワイヤの張力は、ロードセルにてひずみの電圧値として計測される。この値は非

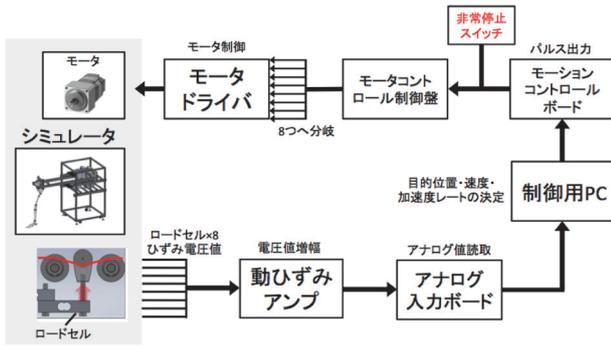


Fig. 9 System diagram.

常に小さいため、動ひずみアンプを用いて増幅させた。動ひずみアンプは、ワイヤの張力が 1000N のとき 2V となるように校正を行った。増幅された電圧のアナログ値は、アナログ入力ボードを用いて制御用 PC に入力した。制御用 PC には、時系列の目標荷重値を読み込ませ、現在の張力値、モータ軸半径、バネ定数からモータの目的位置・速度・加速度レートを決定した。これらの値をモーションコントロールボードにて、パルス列出力した。モータコントロール制御盤で 8 つのモータドライバに伝達した。また、すべてのモータの回転を同時に止めることができるように非常停止スイッチを設けた。

### 2. 1. 7 筋の付着位置

本研究では、筋の起始・停止を解剖学的に妥当な位置となるように決定した。

本シミュレータでは、筋の代わりであるモータと張力調節機構が大型で重量があり、骨格模型上に取り付けることができない。このため、骨盤とモータを固定し、骨盤にワイヤを経由させる必要があった。しかし、使用する筋群の 6 筋は骨盤に起始があるが、広筋群と腓腹筋は大腿骨に起始がある。この 2 筋の起始を骨盤とした場合、股関節の運動特性が変化してしまう。このため、広筋群と腓腹筋の起始を骨盤に設ける際、できる限り寛骨臼に近づけることで、股関節でのモーメントアームを小さくし、力学的影響を最小限に抑えることとした。

骨盤模型上に位置する起始はワイヤの通過点であるため、プーリなどを用いガイドする必要がある。しかしプーリを用いると 1 軸周りのみの作用方向の再現にとどまり、屈伸の回転軸にプーリを設置した場合、内外転・内外旋運動を行うことは困難となる。このため、ワイヤを全方向にガイドすることが可能となるようにアイボルトとデンデンボルトを取り付けることとした。アイボルトの内径は 16 [mm]、デンデンボルトの内径は 8 [mm]あり、筋の付着面積の大きい中臀筋などはアイボルトを、筋の付着面積の小さい大腿直筋などはデンデンボルトを使用することとした。

停止は骨模型上にステンレス製のバンドを取り付け、そのステンレスバンド上にワイヤを取り付けることとした。広筋群及び大腿直筋の停止は膝蓋骨に位置する。キャリアベルトを膝蓋腱として用い、ステンレスバンドと膝蓋骨を固定した。設定で決定した筋配置を図 10 に示す。

## 2. 2 評価方法

### 2. 2. 1 運動の計測

骨格模型の動作、姿勢を計測するためにモーションキャプチャシステムを用いた。本研究では、Qualisys 社 OQUS400 を使い、カメラ台数 6 台、サンプリング周波数 120 [Hz]において計測を行った。マーカは反射型のマーカを 10 個使用しシミュレータに貼付した。

反射マーカの貼付位置を図 11 に示す。骨盤のマーカはアルミフレーム上に 4 点(①~④)同じ高さとなるように設置した。大腿骨のマーカは解剖学的特徴点である大転子(⑤)、大腿骨外顆(⑥)、大腿骨内顆(⑦)に貼付した。脛骨のマーカも解剖学的特徴点である脛骨外側顆(⑧)、脛骨内側顆(⑨)、脛骨外顆(⑩)に貼付した。

### 2. 2. 2 各筋群の作用

設定した筋を評価するために、シミュレータの 1 つの筋群に対し、角度が滑らかに変化できるように筋張力を与えた。この時他の筋の筋張力を一定値(0 [N])にし、計測開始から 1 秒後に荷重を 3 秒間にわたって与えた。この時のシミュレータの運動をモーションキャプチャシステム

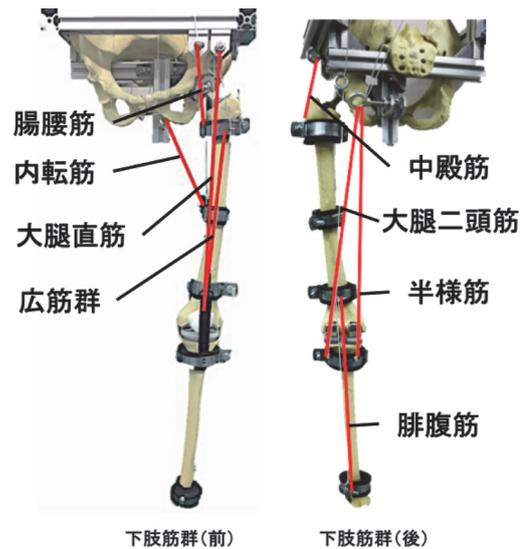


Fig. 10 Muscle lines.

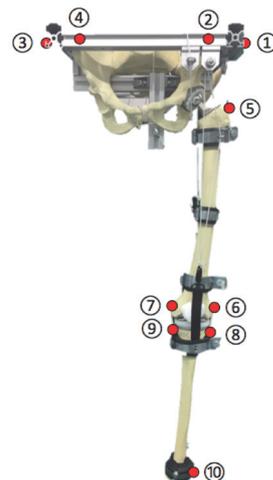


Fig. 11 Marker placements.

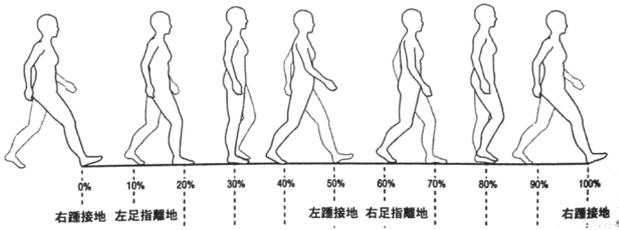


Fig. 12 Gait posture<sup>20)</sup>.

ムで計測した。また、この計測を8つの筋群で行った関節の可動域を考慮し、大腿直筋・広筋群は膝関節屈曲状態から計測を開始した。大腿二頭筋・半様筋は股関節屈曲及び膝関節屈曲状態、腸骨筋・内転筋・中臀筋・腓腹筋は立位時から計測を開始した。与えた筋張力と実際の筋張力を比較することで、追従性能を考察した。またこの時の股関節屈伸、内外転、内外旋運動、膝関節屈伸運動を元の筋肉と比較し評価を行った。

2. 2. 3 関節可動域

モーションキャプチャシステムを用い、シミュレータの股関節屈伸・内外転・内外旋、膝関節屈伸の角度を計測した。解剖学的肢位での立位を0度とし、矢状面での運動を屈曲・伸展、前額面での運動を内転・外転、水平面での運動を内旋・外旋とした。各筋の張力を試行錯誤的に微調整した。

2. 2. 4 歩行運動姿勢の再現

図12に歩行周期を細分した図を示す。0%の踵接地時、

20%の脚底接地時、60%の踵離地時、80%の遊脚時における姿勢をモーションキャプチャシステムを用い計測した。それぞれの姿勢時の筋張力は、試行錯誤的に調整した。

3. 結果

3. 1 各筋群の作用

8つの筋群にそれぞれ筋張力を与え、他の筋群の筋張力を一定にした時の下肢骨格運動を計測した。この時の結果を図13、14に示す。

3. 2 関節可動域

膝関節および股関節の可動域を図15に、その時の筋張力を表2に示す。

3. 2 歩行時関節角度

歩行時の下肢姿勢とそれに伴う筋張力の変化を図16および表3に示す。

4. 考察

4. 1 各筋群の作用

4. 1. 1 広筋群

図13(a)に示すように、広筋群は膝関節伸展の役割を満たしている。しかし同時に、図14に示す股関節伸展及び内転、内旋運動も行っている。広筋群は膝関節を跨ぐ単関節筋であるが、本シミュレータはワイヤを用いて筋張力を伝達しているため、股関節も跨ぐ二関節筋として股関

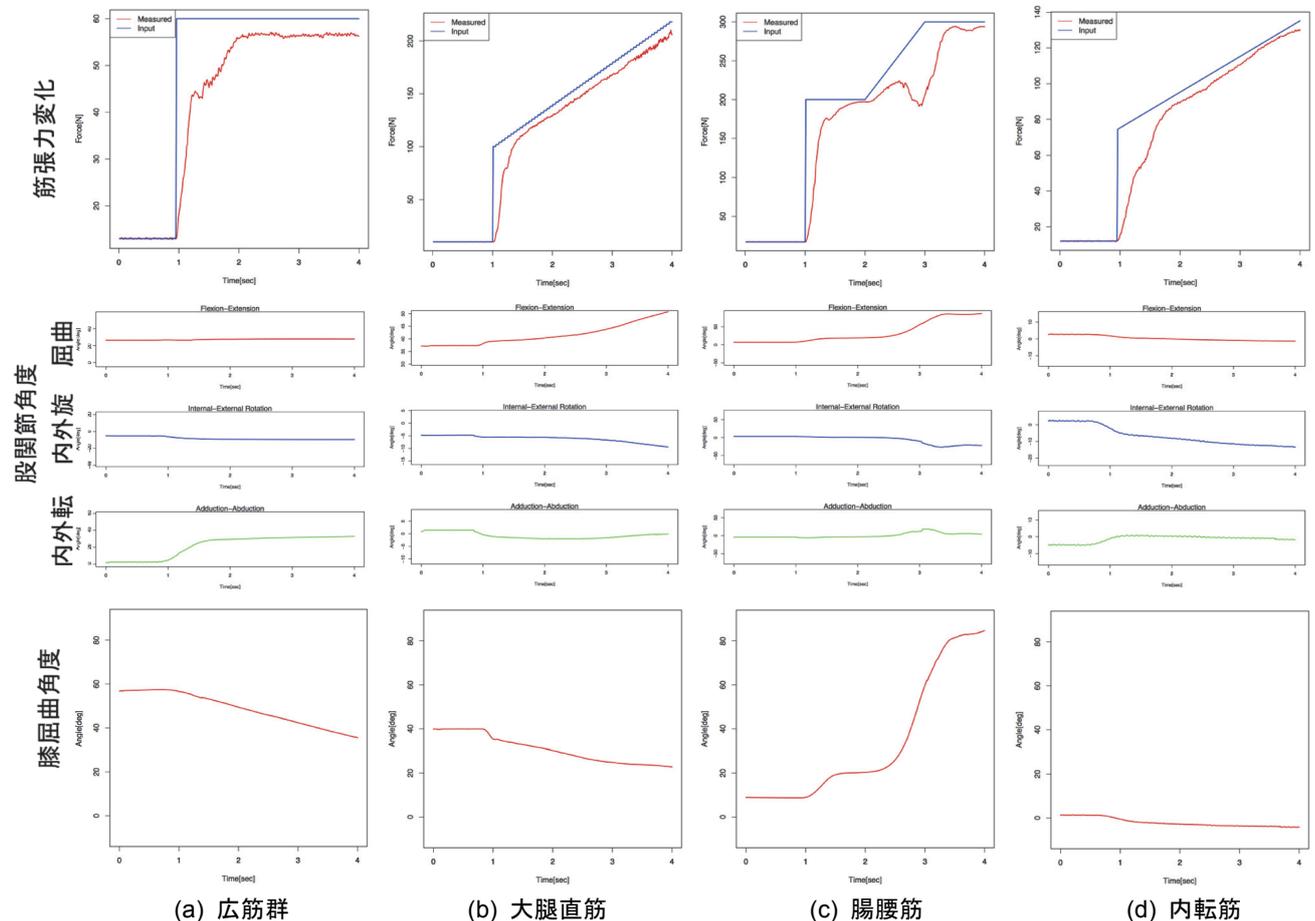


Fig. 13 Joint motions depending the muscle tensions (1).

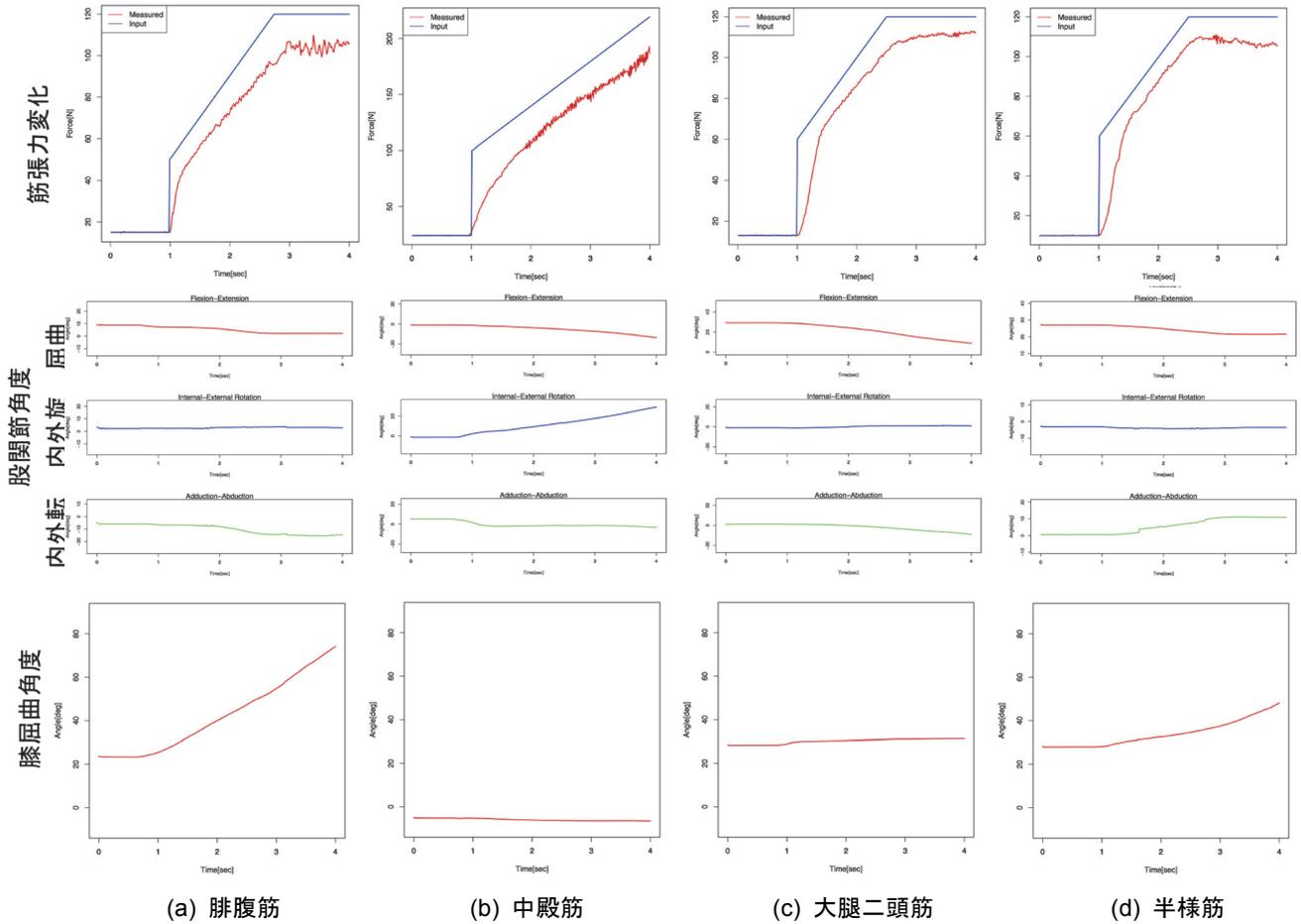


Fig. 14 Joint motions depending the muscle tensions (2).

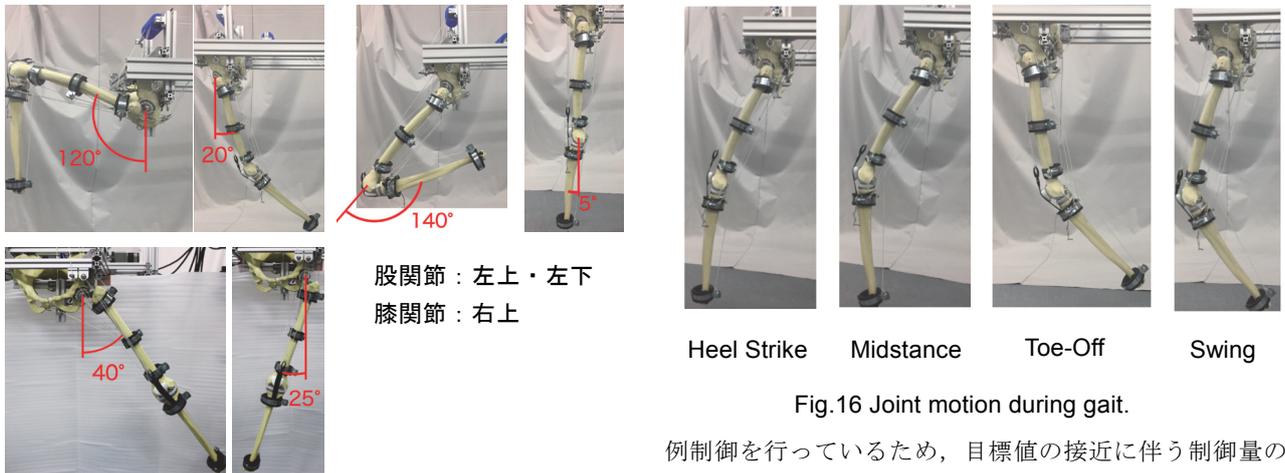


Fig.15 Range of motion of the joints.

節に影響を与えてしまっている。

図 13(a)に示す入力張力と計測張力のグラフにおいて、入力張力を追従する際、1.2 秒付近で計測張力の増加が緩やかになっている。広筋群の筋張力を増加し膝関節を伸展させると、膝関節屈曲の主動筋であり広筋群の拮抗筋となる腓腹筋、大腿二頭筋、半様筋の筋張力も増加する。この計測では広筋群以外の筋張力を一定(0 [N])に制御しているため、張力の増加に伴い腓腹筋、大腿二頭筋、半様筋は張力を減らす制御を行う。これが、広筋群の張力増加を緩やかにしたと考えられる。また、本シミュレータは比

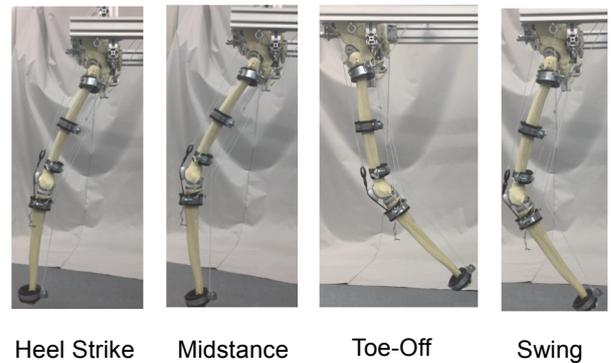


Fig.16 Joint motion during gait.

例制御を行っているため、目標値の接近に伴う制御量の減少が原因とも考えられる。

#### 4. 1. 2 大腿直筋

図 13(b)に示すように、大腿直筋は膝関節伸展及び股関節屈曲の役割を満たしている。二関節筋の機能として、2つの関節に同時に働きかけていることから、大腿直筋の機能を再現できたと言える。図 13(b)に示す入力と計測張力のグラフにおいて、最終的に一定のオフセットが生じたが運動の実現には問題が生じなかった。

#### 4. 1. 3 腸腰筋

図 13(c)に示すように、腸腰筋は股関節屈曲の役割を満たしている。しかし、膝関節屈曲運動が行なわれている。腸腰筋は膝関節を跨ぐ筋ではないため、股関節の屈曲に

Table 2 Muscle tensions at the maximum range of motions [N]

筋群	股関節 屈曲 120 度	股関節 伸展 20 度	股関節 外転 40 度	股関節 内転 25 度	膝関節 屈曲 140 度	膝関節 伸展 5 度
広筋群	16.8	12.6	18.9	11.2	6.3	13.9
大腿直筋	29.2	20.0	53.8	28.6	11.4	82.9
腸腰筋	201.1	28.6	64.7	16.7	98.6	10.6
内転筋群	18.0	12.0	7.2	58.3	5.4	5.7
腓腹筋	13.8	5.2	16.4	18.2	112.5	7.6
中殿筋	186	45.9	53.0	35.3	34.5	22.2
大腿二頭筋	8.1	94.8	6.2	8.8	21.4	9.6
半様筋	14.9	64.5	16.5	10.7	43.8	14.5

Table 3 Muscle tensions at the gait posture [N]

筋群	踵接地時	立脚中期	つま先離地	遊脚期
広筋群	11.7	12.9	22.9	12.8.3
大腿直筋	46.9	14.5	15.3	36.4
腸腰筋	93.4	45.6	37.0	63.0
内転筋群	16.3	11.6	70.5	70.9
腓腹筋	7.9	8.1	13.4	26
中殿筋	30.7	29.8	75.1	74.0
大腿二頭筋	6.3	5.6	37.6	15.2
半様筋	8.8	9.6	38.3	9.9

伴う下腿の自重による変化だと考えられる。

腸腰筋に与えた張力は他筋と比較しても大きく、200 [N]以下の張力を与えた場合には股関節は屈曲しなかった。これは、立位状態での腸腰筋のモーメントアームが他の股関節屈筋と比べて小さいためと考えられる。したがって、本研究において最大等尺性筋力が小さいために使用しなかった大腿筋膜張筋や縫工筋を考慮した筋配置にする必要があると言える。これらの筋肉は立位時のモーメントアームが腸腰筋と比べて大きくなっている。

また図 13(c)では約 2.5 秒から計測張力が急に減少している。これは、股関節の屈曲に伴い腸腰筋のモーメントアームがし、股関節屈曲に必要な筋張力が減少したためと考えられる。

#### 4. 1. 4 内転筋

図 13(d)に示すように、内転筋の役割である股関節内転及び内旋運動を確認した。しかし、内転筋群に含めた張内転筋は股関節屈筋の主動筋であり、大内転筋は股関節伸筋の主動筋であるが、これらの動作を行うことはできなかった。内転筋の付着面積と断面積は大きい本研究ではワイヤ 1 本で再現しているため、これらの運動を全て再現することは困難であると考えられる。内転筋の再現には、アクチュエータを増やしたり、筋の停止を複数の点に分けることが必要だと考えられる。

入力張力と計測張力の関係において、入力張力を追従

する際、1.4 秒付近で計測張力の増加が緩やかになっている。内転筋の筋張力を増加し股関節を内転させると、股関節外転の主動筋であり内転筋の拮抗筋である中臀筋の筋張力は増加する。これに伴い中臀筋は張力を減らす制御を行い、内転筋の計測張力の増加が緩やかになったと考えられる。

#### 4. 1. 5 腓腹筋

図 14(a)に示すように、腓腹筋は膝関節屈曲の役割を満たしている。しかし、股関節伸展及び外旋運動を行っている。腓腹筋は膝関節及び足関節を跨ぐ二関節筋であるが、本研究ではワイヤが骨盤を經由しているため股関節と膝関節を跨ぐ 2 関節筋として股関節に影響を与えてしまっている。

入力張力と計測張力のグラフにおいて、3~4 秒の間で張力の振動を認めた。これは、制御ゲインが適切でなかったために目標値への安定的収束とならなかったと考えられる。このため、巻き取り量に応じて、ワイヤの巻き取り変化を含めたモータ軸半径を考慮する必要がある。

#### 4. 1. 6 中殿筋

図 14(b)に示すように、中臀筋は股関節外転及び内旋の役割を満たしている。また、股関節伸展の補助筋の役割を満たしている。中臀筋の起始は腸骨に面が付着し、停止は大転子に位置しており付着面積と断面積が大きい。中臀筋の前方繊維は内旋、後方繊維は外旋の作用がある。本研

究では1本のワイヤで再現しているため、中殿筋の役割である内旋と外旋を行うことはできなかった。このため内転筋と同様に、アクチュエータを増やしたり筋の停止を複数の点に分けることが必要だと考えられる。

入力張力と計測張力の関係において、計測張力の追従が遅れており2~4秒の間で振動が大きくなった。これも腓腹筋と同じ原因と考えられる。

#### 4. 1. 7 大腿二頭筋・半様筋

図14(c)に示すように、大腿二頭筋は股関節伸展及び膝関節屈曲の役割を満たしている。同様に図14(d)に示すように、半様筋は股関節伸展及び膝関節屈曲の役割を満たしている。2つの関節に同時に働きかけていることから、大腿二頭筋の機能を再現できたと言える。

入力張力と計測張力のグラフにおいて、モータの応答速度やセンサの読取速度による遅延が見られるが、動作そのものには問題はなかったと考えられる。

#### 4. 2 可動域

本シミュレータは、図15に示すようにヒトの股関節及び膝関節の可動域を筋の張力で満たすことができた。表12から表17に示すように、股関節屈曲120度では腸腰筋、股関節伸展20度では大腿二頭筋及び半様筋、股関節外転40度では中臀筋、股関節内転25度では内転筋、膝関節屈曲140度では腓腹筋、膝関節伸展5度では大腿直筋が大きな筋張力を発揮している。これらは、それぞれの関節動作における主動筋であり、姿勢を維持する際にも主動筋として機能していることが確認できた。

また、図15の姿勢を維持する際、表2に示すように、すべての筋が筋張力を発揮することで関節の固定を行っている。これはヒトの関節と同様に、筋による能動的な姿勢を再現できたと言える。

本シミュレータは、この可動域を超える十分な可動範囲を持っていることを確認した。しかし問題点として可動域制限がないため、可動域を超えた運動及び可動域付近での運動特性が変化してしまう。股関節の可動域は靭帯が制限しており、また膝関節は内側副靭帯、外側副靭帯などが可動域を制限している。シミュレータにおいても靭帯に代わるものが必要であると考えられる。

#### 4. 3 歩行姿勢の再現

図16に示すように目標姿勢として、歩行時の4姿勢をシミュレータに与えた。この歩行時の関節角度を満たしていることから、8筋が連動した制御を行えば、連続的歩行運動時の姿勢の実現が可能だと考える。これらの姿勢は表3に示す筋張力にて行われ、それぞれ主動筋である筋が大きな張力を発揮している。しかし、図14に示すように、歩行中の腸腰筋における筋活動のタイミングは踵離地時付近で起こり、股関節が屈曲している遊脚期や踵接地時では筋活動を行っていない<sup>20)</sup>。これは、歩行時の腸腰筋は股関節において、股関節伸展運動の角速度を減少させ、屈曲運動の角速度を増加させる役割を持っていることを示している。このように歩行運動では、拮抗筋として関節運動を減速させる、主動筋として関節運動を

開始する、体重を支えるタイミングで筋活動が生じる。これを踏まえ、本シミュレータで歩行運動を再現するには、関節角度をフィードバックさせ、大腿・下腿の慣性力を考慮した制御が必要であると考えられる。

### 4. 4 本研究の限界と今後の課題

#### 4. 4. 1 筋骨格構造の再現

本シミュレータでは、筋張力で下肢骨格の姿勢を変え、2関節筋の機能を再現することができた。しかし、膝関節の単関節筋(広筋群・腓腹筋)では、股関節に影響を与えないような機構の開発を行い、付着面積・断面積が大きい単関節筋(内転筋・中臀筋)では、関節角度に応じた機能の変化を再現する必要がある。

また、今回再現できなかった筋骨格構造として靭帯と足部が挙げられる。靭帯は、可動域のみではなく運動特性に影響する。関節の過度の軸回転を制動する目的で本シミュレータにおいても靭帯を代用する機能が必要である。本研究では、足部の関節は計測対象とはしていないが、底屈・背屈を行える簡易的なものを取り付け、膝関節・股関節に荷重を伝達する必要がある。

本研究は関節の動作の再現を行ったが、日常動作では体重に応じた荷重が関節に加わる。しかし、現在の骨模型では荷重に耐えることができない。このため、金属フレーム等で骨格を再現することが考えられる。また同時に、今回困難であった起始・停止の位置を正確に再現し、大腿・下腿の慣性モーメントの再現も行う。

#### 4. 4. 2 日常動作の再現

本研究で再現した歩行姿勢は、連続運動ではなく静止姿勢を再現したものに過ぎない。実際の運動を連続的に行わせるには関節角度をフィードバックさせる必要がある。目標の関節角度を入力とし、現在の関節角度から各筋の関節機能に応じた筋張力を与える制御を行う必要がある。関節角度に応じた制御を行うことにより、本研究で行えなかった運動の再現が可能であると考えられる。

#### 4. 4. 3 人工関節の評価

本シミュレータは、様々な日常動作を再現し、この時の人工関節の荷重特性を計測・評価することを目的とした。人工膝関節では大腿骨コンポーネントと脛骨インサートの摺動面、人工股関節は寛骨臼コンポーネントとステムヘッドの摺動面における接触力・接触分布の変化を計測できる必要がある。このため、人工関節に荷重センサを取り付け、様々な日常動作における人工関節の接触力・接触分布の計測を行っていく。

## 5. 結論

本研究では、人工関節を評価する前段階として下肢の筋骨格構造を再現したシミュレータを開発し、日常運動で想定される下肢の姿勢を再現することができた。モーションキャプチャシステムで、シミュレータの下肢骨格模型の動作を計測可能な設計を行い、関節角度を計測することで2関節筋の機能を再現することができた。

## 参考文献

- (1) 標準医療情報センター, <http://www.ebm.jp>
- (2) 厚生労働省, 平成 25 年国民生活基礎調査(健康票), (2013).
- (3) 22 世紀医療センター, 平成 27 年度活動報告書, (2015).
- (4) 厚生労働省, 平成 25 年国民生活基礎調査(介護票), (2013).
- (5) 厚生労働省, 平成 25 年国民生活基礎調査の概況, (2013).
- (6) 人工関節ライフ, <http://kansetsu-life.com>
- (7) 厚生労働省, 人工膝関節の審査ガイドラインについて, 薬食機発第 0306004 号, (2009).
- (8) 厚生労働省, 人工股関節の審査ガイドラインについて, 薬食機発第 0306001 号, (2009).
- (9) Takahashi, Y. et al.: Raman tensor analysis of ultra-high molecular weight polyethylene and its application to study retrieved hip joint components, *Acta. Biomater.*, Vol.6(9), (2010) pp.3583-3594.
- (10) Consumers Union,: A summary of hip implant recalls safe patient project, (2013).
- (11) Bowsher JG, et al.: Metal-On-Metal hip simulator study of increased wear particle surface area due to 'severe' patient activity, *Proc. Inst. Mech. Eng. H*, Vol.220(2), (2006) pp.279-287.
- (12) Williams S, et al.: Tribology and wear of metal-on-metal hip prostheses: influence of cup angle and head position, *J. Bone Jt Surg. Am*, 90(3), (2008), pp.111-117.
- (13) Wan CAA, et al.: Poly(phosphoester) ionomers as tissue-engineering scaffolds, *J. Biomed. Mater. Res.*, 70B(1), (2004), pp.91-102.
- (14) Halloran JP, et al.: Verification of predicted knee replacement kinematics during simulated gait in the kansas knee simulator, *J. Biomech. Eng.*, 132,(2010), (2010), pp. 0810010-0801016.
- (15) 廣川俊二他, 生理的・能動的膝運動が可能な新型シミュレータの開発, 日本機械学会論文集, Vol.81, No.824, (2015) pp.14-27.
- (16) Edith M. Arnold, A Model of the Lower Limb for Analysis of Human Movement, *Annals of Biomed. Eng.*, Vol.38, No.2, (2010) pp.269-279.
- (17) 金子丑之助, 南山堂, 日本人体解剖学 上巻, (1956).
- (18) 桐山善守他, 模擬筋駆動型屍体実験装置を用いた全腰椎の筋負荷挙動, *バイオメカニズム*, 18, (2006) pp.241-250.
- (19) Edith A et al.: How muscle fiber lengths and velocities affect muscle force generation as humans walk and run at different speeds, *J. Exp. Biol.*, Vol.216, (2013) pp.2150-2160.
- (20) Donald N, 筋骨格系のキネシオロジー, 医歯薬出版株式会社, (2005).
- (21) Knutson S, EMG: Use and interpretation in gait. In Craik RL, Oatis CA(eds): *Gait Analysis: Theory and Application*. St. Louis, Mosby-Year Book Inc, (1995).

## 希土類フリー新規超イオン伝導性固体電解質の開発

工学院大学 先進工学部 応用化学科 大倉利典

工学院大学 先進工学部 応用化学科 吉田直哉

東京医科歯科大学 生体材料工学研究所 山下仁大

Ryu Bong-Ki, School of Materials Science and Engineering,  
Pusan National University (Korea)

### Development of Rare Earth-free Novel Superionic Solid Electrolyte

Toshinori Okura, Department of Applied Chemistry,  
School of Advanced Engineering, Kogakuin University

Naoya Yoshida, Department of Applied Chemistry,  
School of Advanced Engineering, Kogakuin University

Kimihiro Yamashita, Institute of Biomaterials and Bioengineering,  
Tokyo Medical and Dental University

Ryu Bong-Ki, School of Materials Science and Engineering,  
Pusan National University (Korea)

**ABSTRACT** : Our group has synthesized NASICON-type glass-ceramic solid electrolytes as a sodium superionic conductor. These glass-ceramics are thought to require rare earth element, such as yttrium, in their compositions, although the rare earth element can be exchanged with other rare earth elements. In this study, we tried to synthesize them without rare earth elements, but with Fe of high abundance and low costs, by melt quenching and glass-crystallization method.  $\text{Na}_{3+3x-y}\text{Fe}_{1-x}\text{P}_y\text{Si}_{3-y}\text{O}_9$  ( $x = 0\sim 0.5$ ,  $y = 0\sim 0.2$ ) glasses were prepared by melting stoichiometric mixtures of  $\text{Na}_2\text{O}\text{-SiO}_2$  glass and reagent-grade powders of anhydrous  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  and  $\text{Na}_2\text{HPO}_4$  at  $1400^\circ\text{C}$  for 1 h. The glasses were grinded, and the resulting glass powders were crystallized by heating. Those samples were characterized by scanning electron microscope and X-ray diffraction, and their ionic conductivities were measured by the AC two-probe method. Obtained samples had  $\text{Na}_5\text{FeSi}_4\text{O}_{12}$ -type crystal structure. We successfully synthesized them without rare earth elements by substitution with Fe. These crystal lattices were shrunk due to the difference of ionic radii ( $\text{Y}^{3+} = 0.104$  nm,  $\text{Fe}^{3+} = 0.069$  nm). This fact suggests that  $\text{Fe}^{3+}$  was replaced at the  $\text{Y}^{3+}$  sites.

#### 1. はじめに

$\text{Na}_2\text{O-R}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  (R = Rare Earth) 系結晶化ガラスは、組成および結晶化の際の熱処理条件によって  $\text{Na}_3\text{RSi}_3\text{O}_9$  (N3 型)、 $\text{Na}_5\text{RSi}_4\text{O}_{12}$  (N5 型)、 $\text{Na}_9\text{RSi}_6\text{O}_{18}$

(N9 型) の 3 つの結晶相を持つ。中でも N5 型は、結晶構造中に  $\text{SiO}_4$  四面体の 12 員環構造があり、その環状構造同士は希土類元素 R で結合されている。これらの構造間の隙間は 3 次元のトンネル構造となっていて、この中を  $\text{Na}^+$  が電荷キャリアーとして通るため、安定で高いイ

オン伝導性を持つことが知られている。さらに、Siの一部をPで置換した  $\text{Na}_2\text{O}-\text{R}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5-\text{SiO}_2$  系  $\text{Na}^+$ 伝導性固体電解質 (Narpsio) は、N5 型を合成可能な組成範囲が広い。このような Narpsio や  $\beta$ ,  $\beta''$ -アルミナなどのナトリウム超イオン伝導体は、一次電池、二次電池、化学センサ、エレクトロクロミック表示素子、電気分解装置など幅広い応用が可能である。しかしこの Narpsio の組成中の希土類元素は希少で高価であるため、これを地殻存在度が豊富でかつ希土類元素と同様に八面体構造をとる Fe で全置換することで、希土類フリーの安価な Narpsio の合成が期待できる。さらに、融液を様々な形状の型に流し出し急冷し、ガラス化した試料を結晶化する熔融急冷ガラス結晶化法による結晶化ガラスの合成法を用いることで、様々な形状に成型が可能である。

本研究グループでは、これまでの希土類元素を使用して合成する方法を用いて、希土類フリーNarpsio の合成を試みた。しかし、ガラスの作製における仮焼プロセス中に原料が吹きこぼれる現象が起こった。この原因として、脱  $\text{CO}_2$  が急激に起こるためであると考え、これを改善するため仮焼プロセス (温度、昇温・保持時間) の検討を行い、吹きこぼれが生じないガラス合成方法を報告した。さらに、その方法で合成したガラスを加熱処理して結晶化ガラスを得た。ところが、得られたバルク状結晶化ガラス試料は、Fig. 1 のように中心部に空隙が生じた。そこで、結晶化プロセスの検討を行ったが、理想的な結晶化ガラスを得ることはできなかった。この空隙が生じる原因としては、原料をすべて一緒に粉碎・混合し溶解させてガラスを得る方法では、ガラス中に依然として、原料から由来する  $\text{NH}_3$  や  $\text{CO}_2$  のような成分が残留していて、結晶化熱処理によって、それらが気体として膨張するためであると考えられる。そのため、本研究では原料を見直し、 $\text{NH}_3$  を発生させる原因であると考えられる  $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$  を  $\text{Na}_2\text{HPO}_4$  に変更することで、 $\text{NH}_3$  を排除した。次に、ガラスの合成方法として、はじめに  $\text{Na}_2\text{O}-\text{SiO}_2$  ガラスを作製し、それを母ガラスとして Fe と P を添加してガラスを作製する方法に変更した。これにより、 $\text{CO}_2$  が抜けやすくなると考えられる。



Fig. 1 空隙の生じた結晶化ガラス

さらに、結晶化の際の熱処理条件について検討を行うため、以下の条件で実験を行った。

- ① ステンレス板によるプレス急冷で作製した板状のガラス試料をアルミナ乳鉢で粉碎し、粉末状態で結晶化を行った。
- ② グラファイト円筒内で急冷し円柱状に作製したガラス試料を同様に粉碎し、粉末状態で結晶化またはダイヤモンドカッターで切り出したディスク状のままの結晶化を行った。
- ③ 一度作製した  $\text{Na}_2\text{O}-\text{SiO}_2$  ガラスを、さらに脱  $\text{CO}_2$  を目的として再熔融してからガラス化したものを母ガラスとして用い、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  および  $\text{Na}_2\text{HPO}_4$  を添加して溶解させ、グラファイト円筒内で急冷し円柱状に作製したガラス試料を、同様に粉末状態またはディスク状のままの結晶化を行った。

このようにして、本研究ではガラスの合成プロセスから見直しを行い、さらに結晶化熱処理条件についての検討を行い、希土類フリーの安価な Narpsio の合成と評価を目的とした。

## 2. 実験

はじめに、出発原料として  $\text{Na}_2\text{CO}_3$ 、 $\text{SiO}_2$  をそれぞれ秤量、粉碎・混合し、 $900^\circ\text{C}$  で 30 分仮焼後、 $1400^\circ\text{C}$  で 1 時間熔融し、室温にてプレス急冷することで  $\text{Na}_2\text{O}-\text{SiO}_2$  系ガラスを得た。その後、仕込み組成式  $\text{Na}_{3+3x}\text{Fe}_{1-x}\text{P}_y\text{Si}_{3-y}\text{O}_9$  ( $x = 0.2 \sim 0.5$ ,  $y = 0 \sim 0.2$ ) にしたがって、このガラスと  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  および  $\text{Na}_2\text{HPO}_4$  を秤量、粉碎・混合し、 $1350^\circ\text{C}$  で 1 時間熔融した後、室温にてプレス急冷またはグラファイト円筒に流し出して急冷する

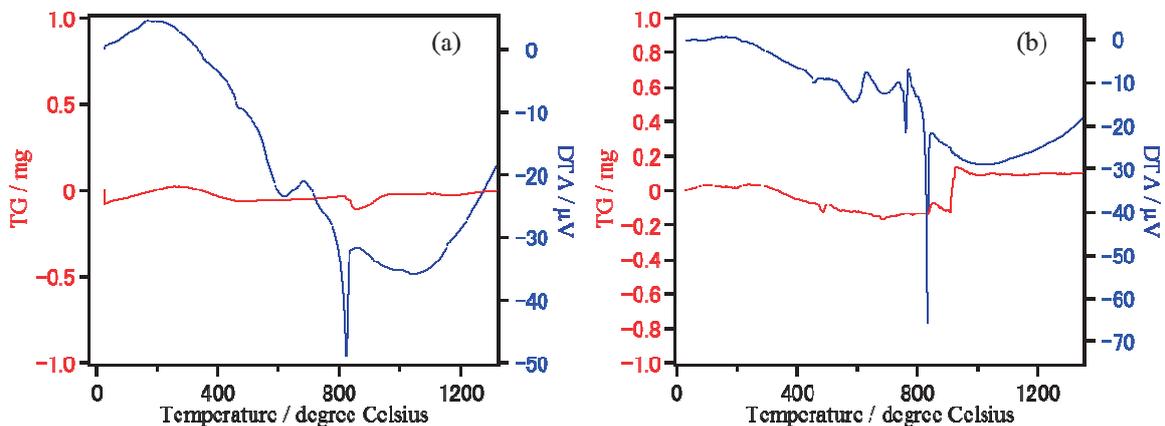


Fig. 2 合成したガラスの TG-DTA 曲線

(a)仕込み組成  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  (b)仕込み組成  $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$

Table 1 TG-DTA から得られた熱変化温度

仕込み組成	ガラス転移点/°C	結晶化点/°C	融点/°C
$\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$	463.7	681.6	818.2
$\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$	453.5	631.4, 765.2	828.6

ことでガラス試料を得た。これらの試料に対し、結晶化熱処理条件の検討のため、熱重量-示差熱分析 (TG-DTA) を行い、さらに熱重量-質量分析 (TG-MS) によりガラス中に残留するガス成分の確認を行った。さらに、これらのプレス急冷法で作製したガラス試料または円柱状にしたガラス試料を加熱処理することで結晶化を行った。

### 3. 結果および考察

Fig. 2 に③の条件で作製したガラスの TG-DTA 曲線を示した。また、そこから得られたガラス転移点、結晶化点、融点を Table 1 にまとめた。この条件で作製したガラスでは、仕込み組成が  $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでは、結晶化点が 2 つ現れ、一方は N5 型をもたらす結晶化点であるが、もう一方は別の結晶相をもたらすと思われる。これらをもとに結晶化条件の検討を行った。

#### 3. 1 プレス急冷ガラスを用いた結晶化ガラス

TG-DTA から得られたガラス転移点、結晶化点および融点に基づき、核生成温度と時間、核成長温度と時間を変化させて結晶化熱処理を行った。ガラス粉末を核生成温度  $550^\circ\text{C}$  で 6 時間、核成長温度  $750^\circ\text{C}$  で 5 時間結晶化させた結晶化ガラスの結晶相は、Fig.3 に示したように、仕込み組成式が  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものではわずかに  $\text{SiO}_2$  を含む混合相ではあるが、ほぼ N5 型を得ることに成功した。 $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものではそれらの結晶相に加え、 $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  も含む混合相となった。典型的な Y 系の XRD パターンと比較すると、ピークが高角側にシフトしていることから格子の収縮が認められる。これは、Fe が Y に比べイオン半径が小さいためであると考えられる。

#### 3. 2 円柱状ガラスから作製した結晶化ガラス

##### 3. 2. 1 粉末状での結晶化

粉末状態で 3. 1 項と同様の条件で結晶化を行ったところ、Fig. 4(a) に示したように仕込み組成式が  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでは N5 型とわずかに  $\text{SiO}_2$  相を含み、さらにプレス急冷ガラスを結晶化したものとは異なり  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  も含む混合相となった。仕込み組成式が  $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでも同様に N5 型とわずかに  $\text{SiO}_2$  および  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  を含む混合相となった。これはガラスの作製条件の違いにより、結晶化後の結晶相に違いが生じたことが示唆される。

##### 3. 2. 2 バルク状での結晶化

次に、バルク状 (ディスク状) ガラスについてもいくつかの条件を試したが、核生成温度  $550^\circ\text{C}$  で 6 時間、核成長温度  $750^\circ\text{C}$  で 5 時間熱処理した結晶化ガラスは、仕込み組成式が  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでは試料の中心部付近に空隙ができていて、それ以外の部分は均質な試料が得られた。使用する原料を変更し  $\text{NH}_3$  ガスの発生要因を排除し、さらにガラス合成方法を変更しさらなる脱  $\text{CO}_2$  に取り組んだが空隙が発生してしまっ。依然として、 $\text{CO}_2$  の発生要因が残されているためであると考えられる。仕込み組成式が  $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでは空隙は見られないものの、表面と内部の色調が異なり不均一なものとなった。両試料ともそのまま電導度測定用の試料として使用するには不適当なものとなった。これらの試料の結晶相は、Fig. 4(b) に示したように N5 型と不明な結晶相の混合相となった。これらのガラス試料に対して、TG-MS 測定を行ったところ Fig. 5 のような TG-MS 曲線が得られた。その結果、 $340^\circ\text{C}$  付近で質量数 44 のピークが検出され、依然として、ガラス試料中に  $\text{CO}_2$  成分の存在が確認できた。さらに温度が上昇するに伴って、重量減少が観測された。

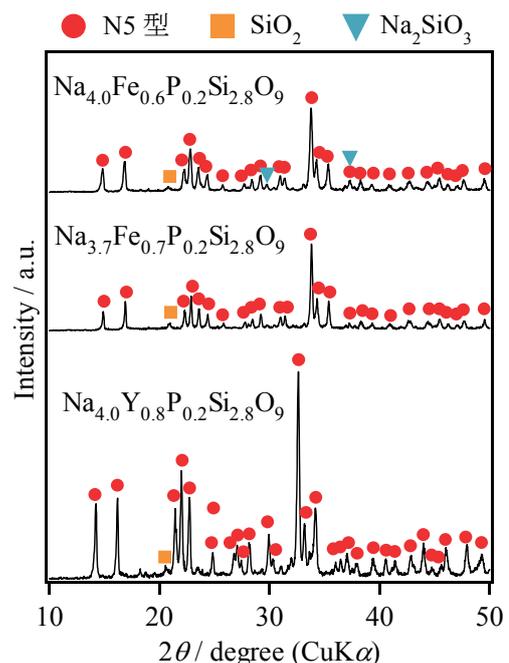


Fig. 3 プレス急冷ガラスを用いた粉末結晶化ガラス Y を用いた Narpsio の XRD パターン

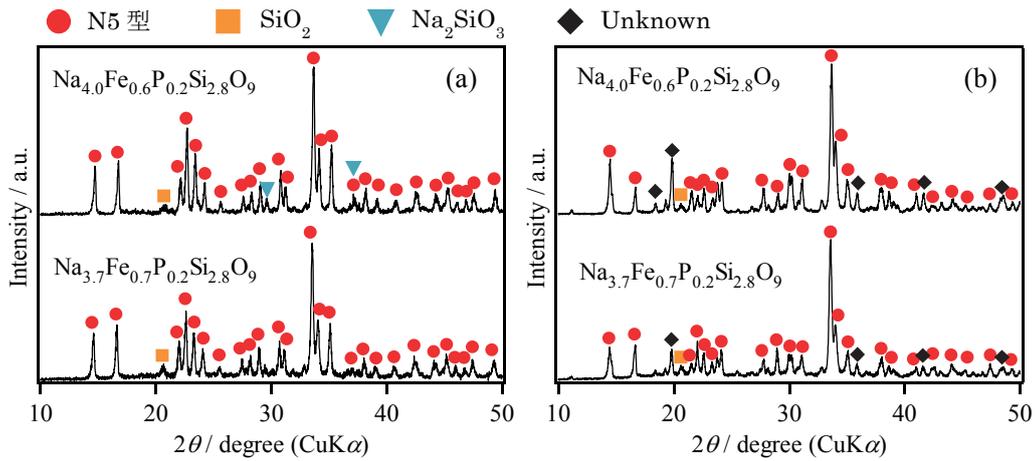


Fig. 4 円筒状ガラスを用いた結晶化ガラスの XRD パターン  
(a) 粉末結晶化 (b) ディスク状結晶化

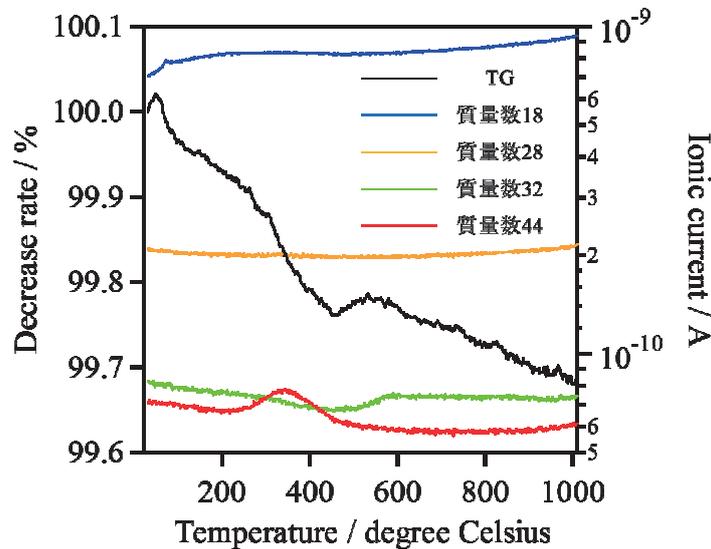


Fig. 5 合成したガラスの TG-MS 曲線 (仕込み組成  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$ )

### 3.3 再熔融母ガラスを使用した円柱状ガラスから作製した結晶化ガラス

前項の結果から、脱  $\text{CO}_2$  のために母ガラスの再熔融プロセスを追加しガラスを作製した。そのガラスについても TG-MS 測定を行い、Fig. 6 に示したように発生する  $\text{CO}_2$  の量を減らすことができた。さらに、Fig. 5 でみられた温度上昇ともなう重量減少はみられなかったことから、このガラス合成プロセスによってガラス中のその他の不純物を飛ばすことができたと考えられる。逆に重量が増加しているように見えるが、重量変化率が小さいことから誤差範囲であると考えられる。そして、これらのガラスの結晶化条件の検討を行った。

#### 3.3.1 粉末状での結晶化

3.2.1 項と同様の条件で結晶化させた結晶化ガラスの結晶相は、Fig. 7(a) に示したように 3.2.1 項と同様に仕込み組成式が  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものと  $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものではともに、N5 型とわずかに  $\text{SiO}_2$  および  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  の混合相となった。

#### 3.3.2 バルク状での結晶化

3.2.2 項と同様に核生成温度  $550^\circ\text{C}$  で 6 時間、核成長温度  $750^\circ\text{C}$  で 5 時間熱処理を施して得られた結晶化ガラスは、仕込み組成式が  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでは試料の表面と内側の色調が異なり、もろく崩壊しやすく空隙も発生していた(Fig. 8(a))。  $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでは空隙は見られないものの、これも表面と内側の色調が異なっていた(Fig. 8(b))。これらの試料の結晶相は Fig. 7(b) に示したよう 3.2.2 項と同じく N5 型と不明な結晶相の混合相となった。

そこで核成長時間を延ばし、核生成温度  $550^\circ\text{C}$  で 6 時間、核成長温度  $750^\circ\text{C}$  で 50 時間の長時間の熱処理条件で合成した。仕込み組成式が  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでは試料の中心部附近に空隙が出来きているが、それ以外の部分では均質な試料が得られた(Fig. 8(c))。仕込み組成式が  $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでは空隙は見られず表面と内部の色調は同じであるが、もろく崩壊しやすかった(Fig. 8(d))。

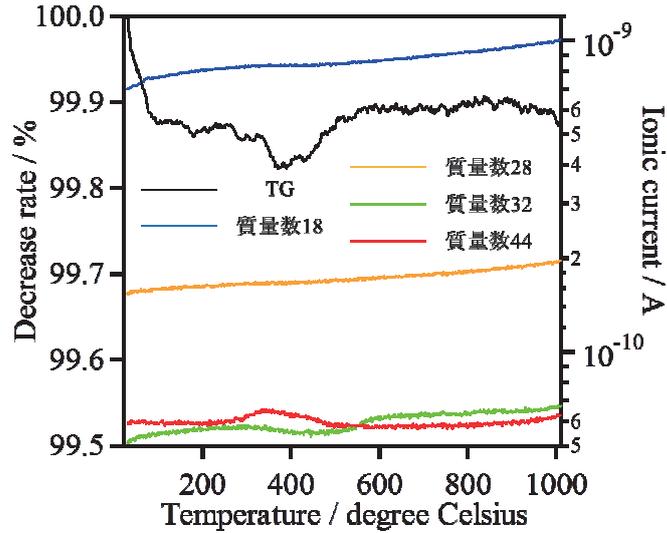


Fig. 6 合成したガラス（母ガラス再溶融）のTG-MS 曲線（仕込み組成  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$ ）

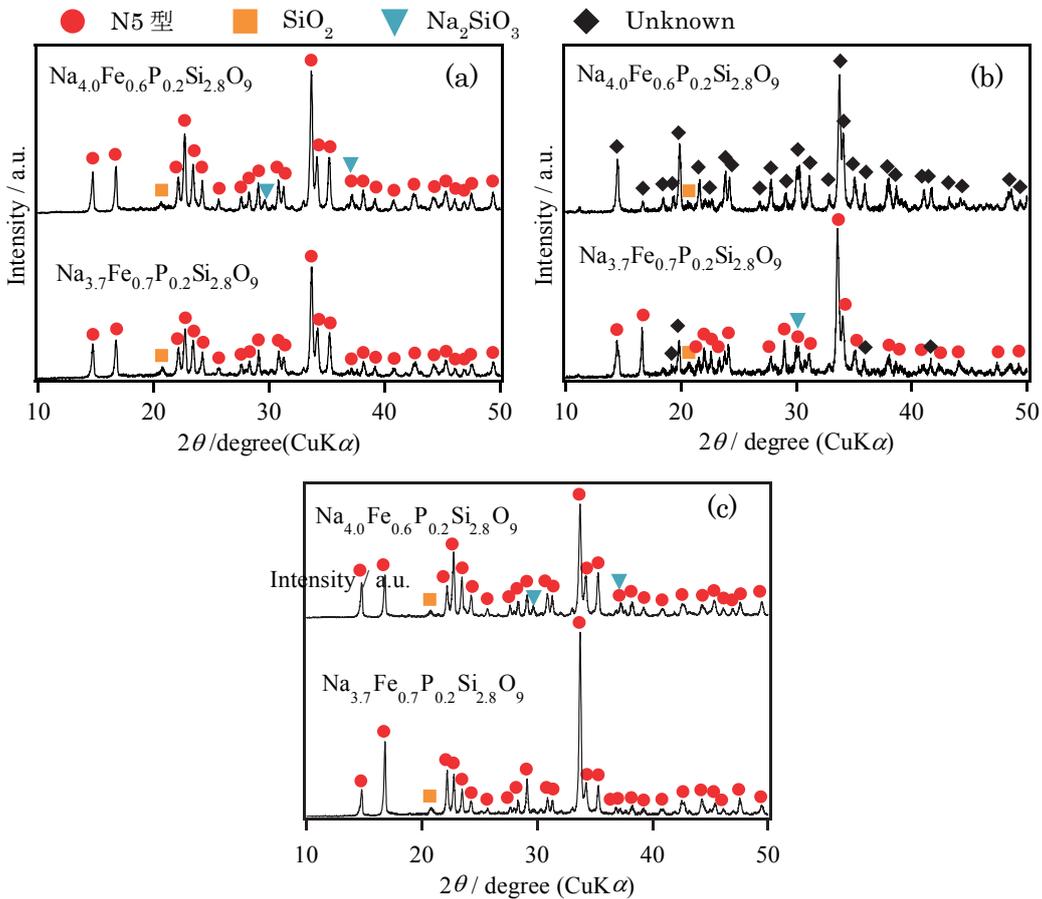


Fig. 7 再溶融母ガラスを使用した円筒状ガラスを用いた結晶化ガラスのXRDパターン  
(a) 粉末結晶化 (b) ディスク状結晶化 (c) ディスク状結晶化(核成長時間 50h)

これらの試料の結晶相は、Fig. 7(c) に示したように仕込み組成が  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものではわずかに  $\text{SiO}_2$  を含む混合相であるものの、ほぼ N5 型の結晶化ガラスを得ることができた。 $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  のものでもそれらの結晶相に加え、わずかに  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  を含む混合相であるもののほぼ N5 型の試料を得ることができた。

### 3. 4 電導度およびイオン輸率測定

電導度測定用に作製した結晶化ガラスのペレットに対し、交流二端子法による複素アドミタンス測定を行った。得られたアドミタンスプロットは、典型的な N5 型結晶化ガラスが示すような 2 つの円弧からなるプロットではなく、Fig. 9 に示したように抵抗とコンデンサーを直列につないだ場合に示すようなプロットとなった。

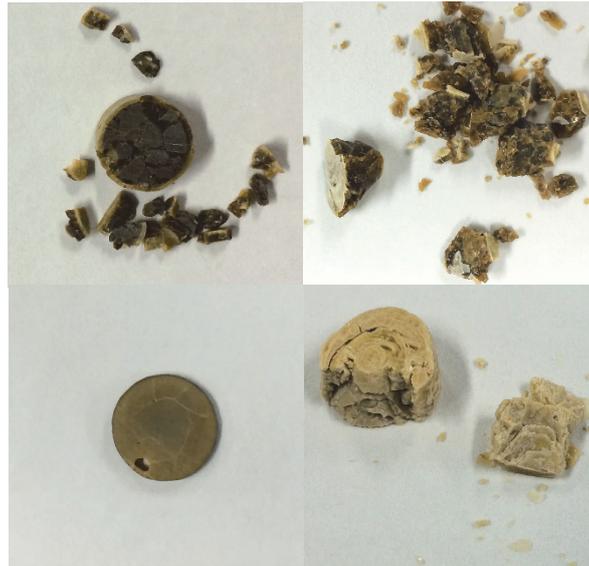


Fig. 8 再溶融母ガラスを使用した円筒状ガラスを用いた結晶化ガラス  
 (a)  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  (b)  $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$   
 (c)  $\text{Na}_{3.7}\text{Fe}_{0.7}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  (核成長時間 50h) (d)  $\text{Na}_{4.0}\text{Fe}_{0.6}\text{P}_{0.2}\text{Si}_{2.8}\text{O}_9$  核成長時間 50h)

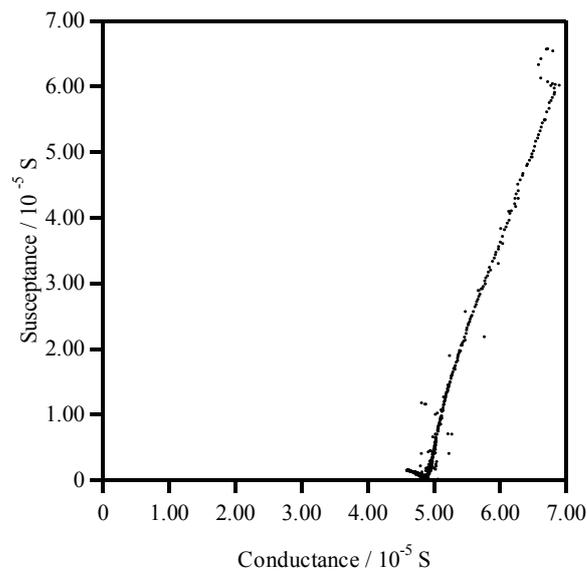


Fig. 9 300°Cにおけるアドミッタンスプロット

このプロットから求めた電導度は、300°Cにおいて  $1.24 \times 10^{-5} \text{ S/cm}$  となった。試料中に抵抗性成分と容量成分が存在していると考えられる。さらに、直流測定により得られた I/V 線図から試料の 300°C での全電導度を求めたところ、 $1.70 \times 10^{-6} \text{ S/cm}$  となった。

#### 4 おわりに

本研究では、Narpsio 結晶化ガラス中に含まれる希土類元素を Fe で全置換することで、希土類フリーの安価な Narpsio の合成を目指した。以前の検討では理想的な結晶化ガラス試料が得られなかったことを受けて、その改善に向けプロセス検討を行った。

まず、ガラスの合成方法を変更することにより、ガラス中に残留するガス発生因子を排除することを試みた。

粉末ガラス状態での熱処理による結晶化では、わずかに  $\text{SiO}_2$  および  $\text{Na}_2\text{SiO}_3$  を含むもののほぼ N5 型の結晶相を持つ試料を得ることに成功した。さらに、使用する母ガラスを再溶融させてからガラスを合成し、熱処理時間を長くすることにより、依然として空隙や脆弱性を完全に排除するには至らなかったが、粉末ガラス状態での熱処理により合成した結晶化ガラス同様に、ほぼ N5 型の結晶相を有する試料を得ることに成功した。

本研究から得られた知見は、これからのガラスセラミックスや希土類フリー化などの研究・開発の足掛かりとなると考えられる。

## 光充電型リチウムイオン電池の高容量化と全固体化

工学院大学 応用物理学科 永井裕己

工学院大学 応用物理学科 山口智広

工学院大学 情報通信工学科 工藤幸寛

工学院大学 基礎・教養科 望月千尋

シンガポール国立大学 機械工学科 Lu Li

工学院大学 応用物理学科 佐藤光史

Fabrication of photovoltaic lithium-ion-battery of all solid materials and large capacity

Hiroki Nagai, Tomohiro Yamaguchi, Mitsunobu Sato, Department of Applied Physics  
Yukihiro Kudoh, Department of Information and Communications Engineering  
Chihiro Mochizuki, Division of Liberal Arts  
Li Lu, Department of Mechanical Engineering, National University of Singapore

**ABSTRACT** : Lithium ion battery (LIB) has many advantages such as long cycle-life, low self-discharge, and high operating voltage. Recently, we successfully fabricated a novel thin-film LIB that could be charged by light irradiation. This novel, translucent, and solar-chargeable LIB was attained using titania (anode) and  $\text{LiCoO}_2$  (LCO, cathode) thin films prepared on a conductive glass substrate by the molecular precursor method, which is one of the wet processes used for thin film fabrication of various metal oxides etc, and an electrolytic solution involving  $\text{LiPF}_6$ . The charging voltage of the LIB was 1.38 V with 30 s-irradiation of 1 sun ( $100 \text{ mW cm}^{-2}$ ); the self-discharge voltage for 30 s was 1.37 V. In this present work, we examined the fabrication of an all-solid-state photovoltaic lithium ion battery using a polymer-gel electrolyte. The pastes of each active material were prepared by mixing carbon, polyvinylidene difluoride, and N-methylpyrrolidone and stirring for 48 h at ambient temperature. The 2.0 g of titania paste was dropped on the FTO pre-coated glass substrate ( $40 \times 66 \text{ mm}^2$  area) with titania thin film and coated on a  $36 \times 53 \text{ mm}^2$  area of the film by doctor-blade with  $600 \mu\text{m}$  space. The 1.5 g of LCO paste was dropped on the identical-size substrate and coated on a  $36 \times 53 \text{ mm}^2$  area of the film by doctor-blade with  $400 \mu\text{m}$  space. The gel-type electrolyte was prepared by mixing the poly(pyridinium-1,4-diyliminocarbonyl-1,4-phenylene-methylene hexafluorophosphate) with  $\text{LiPF}_6$ . The electrodes with the active materials, titania and LCO, were assembled into a sealed sandwich-type battery. A charge/discharge test using a current of 10 mA was performed with a DC voltage source/monitor. Averaged potentials of 2.57 and 1.54 V were observed by charging for 10 min and discharging for ca. 10 min, respectively. The 1-sun irradiation was achieved using a solar simulator and the voltage change was measured with a DC voltage monitor. The averaged voltages were 1.28 V during 1-sun irradiation for 10 min, and discharged with a discharge time of ca. 7 min by a discharge current of  $60 \mu\text{A}$ . The capacity of this all-solid-state LIB is 26 mA h. These results indicate that this device can simultaneously generate and store electricity by irradiation with solar light and may be applicable for various electronic devices.

## 1. はじめに

21世紀は、資源の枯渇や環境問題など世界規模の問題を鑑みながら社会が更に進出し続け、次世代につながるための持続可能な社会の構築が大きなテーマである。現在、エネルギー問題は深刻であり、クリーンエネルギーの利用は、環境問題の解決を含めて急務である。一方で、社会の進化技術としてユビキタスネットワーク社会の構築が進められている。ユビキタスネットワーク社会では、安心・安全かつ便利で豊かな社会を多様な地域で実現し、我が国の産業が活性化するとともに国際競争力が向上すると期待されている。しかしながら、これらユビキタスネットワーク社会の実現に向けた機器やセンサーの増加に伴い、電力消費も増大する。新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)とNMEMS技術研究機構は、電源や通信を有線で配線すると設置工事で大きな負担が必要なことや、電池を内蔵して無線にする場合に現状のセンサーや送信技術では電力消費が多く電池交換などのメンテナンスが必要であることなど、ユビキタスネットワーク社会実現への課題を指摘している。

これらの課題に対して、高電圧で高エネルギー密度のリチウムイオン電池(LIB)は、実用的な電源になり得る。しかし、一般的なリチウムイオン電池等の二次電池は、外部電源からの充電が必要である。したがって、リチウムイオン電池を設置したまま室内等の光で充電し、センサーに電力を供給できれば、省エネルギーな方法でユビキタスネットワーク社会の実現に向けて大きく貢献できる。以上のことから、外部電源が不要で、光充電できるリチウムイオン電池は、実用性、社会的必要性が非常に高く、その開発の価値は高い。

我々は、導電性ガラス(FTO)を電極基板として、正極として $\text{Li}_3\text{Fe}_2(\text{PO}_4)_3$ 、負極として $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ の各活物質薄膜を分子プレカーサー法で形成し、これらの電極間に $\text{LiPF}_6$ 電解液を注入した世界初の無色透明なLIBを報告した<sup>(1)</sup>。さらに、この透明LIBを発展させて、光で充電可能なリチウムイオン電池(PV-LIB)を報告した<sup>(2)</sup>。この電池は、負極活物質に $\text{TiO}_2$ 、正極活物質に $\text{LiCoO}_2$ (LCO)を用い、疑似太陽光の照射で約1.4Vの充放電電圧を示し、サイクル特性に優れている。このPV-LIBの薄膜活物質を形成した分子プレカーサー法は、低コストで薄膜作成が可能な化学的湿式法である<sup>(3)-(4)</sup>。目的とする金属を含む錯体がアルコール溶液中に均一に溶解しているプレカーサー溶液を基板に塗布、熱処理して、金属酸化物やリン酸化合物の薄膜を形成する。本研究では、この分子プレカーサー法を応用して水または有機溶媒に溶解したプレカーサー溶液を調製し、その溶液を用いて活物質の厚膜化に適しているミストCVD法、ESD法、水溶液スプレー法で高容量な活物質を形成する。かつ、実用化に向けて電解液の代わりに市販の電解ゲルを用い

て、安全性が高く、かつ高容量な全固体・光充電型リチウムイオン電池の形成を最終的な到達目標とする。

本年度は、高容量な活物質膜の形成の基礎研究と位置付け、分子プレカーサー溶液を用いてミストCVD法、ESD法、水溶液スプレー法で試みた。また、高容量で全固相の光充電型リチウムイオン電池形を形成可能か実証する目的で、市販の活物質を用いてペーストを調製し膜形成を試みた。また、市販のゲル化剤を用いたゲル化電解質の調製も試み、これらを組み合わせたデバイス作製を試みた。本報告書においては、このデバイスに関して報告する。

## 2. 実験

### 2.1 使用試薬

ポリフッ化ビニリデン(PVDF)はポリサイエンス社、 $\text{LiCoO}_2$ 粉末(LCO)はシグマアルドリッチ社、 $\text{TiO}_2$ 粉末( $\text{TiO}_2$ )は日本アエロジル株式会社、チタニア分子プレカーサー液(TFLEAD-Ti)と1-メチル-2-ピロリドン(NMP)は和光純薬工業株式会社、カーボンスーパーPはTIMCAL社製を用いてそれぞれの活物質ペーストを調製した。ヘキサフルオロリン酸リチウム( $\text{LiPF}_6$ )はキシダ化学株式会社、ポリ(六フッ化リン酸ピリジニウム-1,4-ジイルイミノカルボニル-1,4-フェニレンメチレン)(PICPM-PF<sub>6</sub>)は関東化学株式会社製を用いてゲル化電解質を調製した。基板は旭硝子株式会社のフッ素ドープ酸化スズプレコートガラス基板(FTO基板)を用い、日東電工のアクリル両面テープ、スリーボンド株式会社の紫外線硬化性樹脂TB3035Bを用いてデバイスを作製した。FTOガラス基板は、 $5 \times 10 \text{ mm}^2$ または $40 \times 66 \text{ mm}^2$ に切断し、I.P.A中で30分間超音波洗浄を2回した。70°Cの乾燥機中で10分間乾燥後、室温まで放冷し、成膜用基板として使用した。充放電繰り返し試験、サイクリックボルタンメトリー測定用サンプルは、株式会社レアメタリックのSUS304基板( $11 \text{ mm}\Phi \times 1 \text{ mm}$ )を使用した。SUS304基板は、I.P.A中で30分間超音波洗浄を2回した。70°Cの乾燥機中で10分間乾燥後、室温まで放冷し、成膜用基板として使用した。

### 2.2 活物質ペーストの調製

チタニア粉末 1.80 g, PVDF 0.10 g, カーボンスーパーP 0.10 g (質量比 18:1:1) に NMP 6.5 g を加え、室温で 48 時間攪拌し、チタニア複合ペーストを調製した。また、LCO 粉末 3.60 g, PVDF 0.20 g, カーボンスーパーP 0.20 g (質量比 18:1:1) に NMP 5.00 g を加え、室温で 48 時間攪拌し、LCO 複合ペーストを調製した。

### 2.3 チタニア複合膜(負極活物質)の形成

FTO 基板 ( $40 \times 66 \text{ mm}^2$ ) を、成膜面積が  $40 \times 53 \text{ mm}^2$  になるようにマスキングした。マスキングした FTO 基板

上に TFLEAD-Ti を 300  $\mu\text{L}$  滴下し、スピンのコーター (KYOWARIKEN: K-359S1) を使い、2 段階スピンのコーター法 (1<sup>st</sup> 500 rpm-5 s, 2<sup>nd</sup> 2000 rpm-30 s) で塗布してチタニアプレカーサー膜を得た。チタニアプレカーサー膜は、70°C に設定した乾燥器 (ADVAN) 中で 10 分間予備乾燥し、500°C に設定したマッフル炉 (アサヒ理化製作所) で、空气中 30 分間熱処理した。形成した薄膜上に、2 g のチタニア複合ペーストを垂らし、600  $\mu\text{m}$  の隙間厚のドクターブレード (BEVS Industrial Co., Ltd.) で塗布した。塗布した膜を 70°C で 70 分間乾燥させ、チタニア複合膜 (負極活物質) を形成した。

#### 2. 4 LCO 複合膜 (正極活物質) の形成

FTO 基板 (40 × 66 mm<sup>2</sup>) を、成膜面積が 40 × 53 mm<sup>2</sup> になるようにマスキングした。マスキングした FTO 基板の上に LCO 複合ペースト 1.5 g 垂らし、400  $\mu\text{m}$  の隙間厚のドクターブレードで塗布した。塗布した膜を空气中 70°C の乾燥器内で 60 分間乾燥し、LCO 複合膜 (正極活物質) を形成した。

#### 2. 5 LiPF<sub>6</sub> ゲル電解質の調製

0.01 g の PICPM-PF<sub>6</sub> に LiPF<sub>6</sub> 溶液を 1 mL 加え、55°C の恒温水槽中で 1 時間加温攪拌して調製した。

#### 2. 6 デバイスの作製

デバイスは、図 1 のような構造で作製した。活物質膜は 36 × 53 mm<sup>2</sup> の面積になるように周辺をふき取り、アクリル製両面テープで接着後、調製した LiPF<sub>6</sub> 電解液を極間に注入して、適量の紫外線硬化性樹脂を塗布後、365 nm の波長で 10 mW/cm<sup>2</sup> の強度の紫外線を照射して樹脂を硬化させた。その後、5°C の冷蔵庫中で 2 時間静置し、(-)FTO · TiO<sub>2</sub>|LiPF<sub>6</sub> ゲル|LCO · FTO(+) と表せるデバイスを作製した。

ガラス基板上に形成した膜を、ダイヤモンドカッターで裏側に線を入れて切断した。また、デバイスのクロスセクション用サンプルは、5 × 15 mm<sup>2</sup> の FTO ガラス基板の約 5 × 10 mm<sup>2</sup> にプレカーサー溶液でチタニア薄膜を形成後、チタニア複合ペースト 0.07 g を垂らし、600  $\mu\text{m}$  の隙間厚のドクターブレードで全面塗布した。また、LCO 複合ペースト 0.06 g を垂らし、膜を形成した。形成した膜を綿棒で約 5 × 10 mm<sup>2</sup> になるように周辺を拭き取り、電極が取れるようにアクリル製両面テープを 2 枚使用して、アッセンブルした。その後、紫外線硬化性樹脂を使用し片面を封じた。いずれのサンプルも、SEM 観察用台座にカーボンテープで固定し、カーボンペーストで膜と SEM 観察用台座を繋げた。その後、デシケーター内で一晩乾燥させた。

電流印加実験は、外部電源としてソースメーター (ADCMT 製 6241A) を用い、10 mA の定電流印加で充電後、10 mA の電流で放電した。光照射実験は、ソーラーシミュレーター (Asahi spectra 製 Lax-Cute) を用いて強度が 1 sun の疑似太陽光を 10 分間照射後、ソースメーターで 60  $\mu\text{A}$  の電流で放電させ、これを 5 回繰り返した。(-)FTO · TiO<sub>2</sub>|LiPF<sub>6</sub>, LiPF<sub>6</sub> ゲル|LCO · FTO(+) デバイスの分光感度は、分光計器社の SM-250GD ハイパーモノライトシステムを使って測定した。ステップ幅を 1 nm として、300-1100 nm の波長範囲での電流値を測定した。

電気的特性を調べる目的で、SUS304 基板 (Φ11 mm) 上にチタニア複合ペーストまたは LCO 複合ペースト 0.1 g を厚さ 60  $\mu\text{m}$  のドクターブレードで塗布した。塗布した膜を空气中 70°C の乾燥器内で 30 分間乾燥し、それぞれチタニア複合膜、LCO 複合膜を得た。シンガポール国立大学で充放電繰り返し試験、サイクリックボルタンメトリーでこれらの複合膜の電位を測定した。

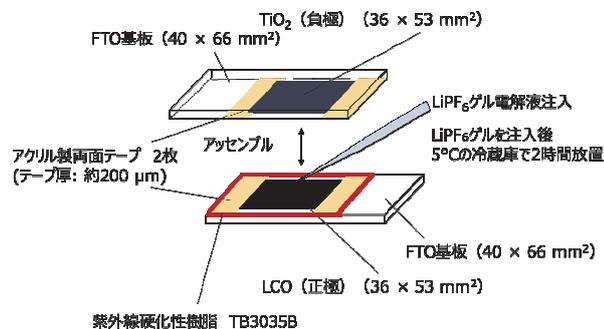


図 1 デバイスの概略図

#### 2. 7 測定

各膜の表面と断面形態を FE-SEM (JSM-6701F, JEOL) で観察した。表面形状観察用サンプルは、SEM 観察用台座にカーボンテープで固定し、カーボンペーストで膜と SEM 観察用台座を繋げた。断面観察用サンプルは、FTO

### 3. 結果と考察

#### 3. 1 活物質ペースト

図2に調製した活物質ペーストの写真を示す。調製したペーストは、目視レベルで均一だった。



図2 調製した活物質ペーストの写真（上：チタニア複合ペースト，下：LCO複合ペースト）

#### 3. 2 活物質膜写真

図3に形成した活物質膜の写真を示す。FTO基板上にチタニアペーストを塗布したところ、チタニア複合膜は容易に剥離した。そこで、分子プレカーサー法でチタニ

ア薄膜を形成し、その膜上にペーストを塗布してチタニア複合膜を形成したところ密着し、剥離しなかった。LCOペーストは、FTO基板上に直接塗布した。形成した膜は、基板に密着し、かつ均一だった。形成した活物質の理論容量を質量から求めたところ、チタニア複合膜は 26.0 mA h, LCO複合膜は 33.6 mA h だった。

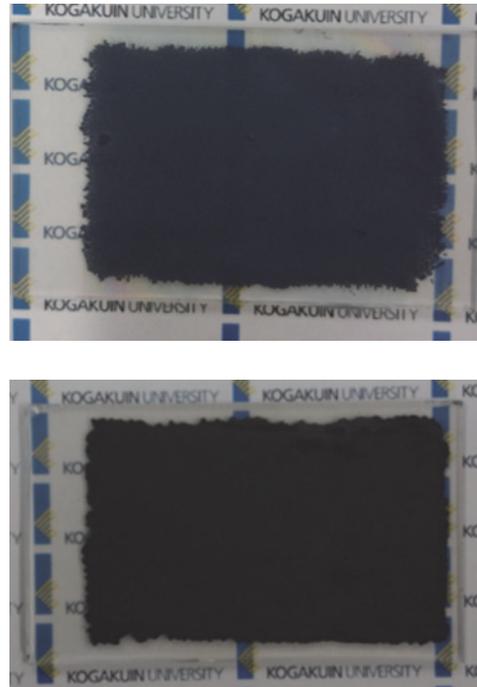


図3 FTO ガラス基板上に形成した活物質膜の写真（上：チタニア複合膜，下：LiCoO<sub>2</sub>複合膜）

#### 3. 3 XRDパターン

図4に形成した各活物質膜の XRD パターンを示す。チタニア複合膜の XRD パターンを Fig. 2(a)に示す。XRD

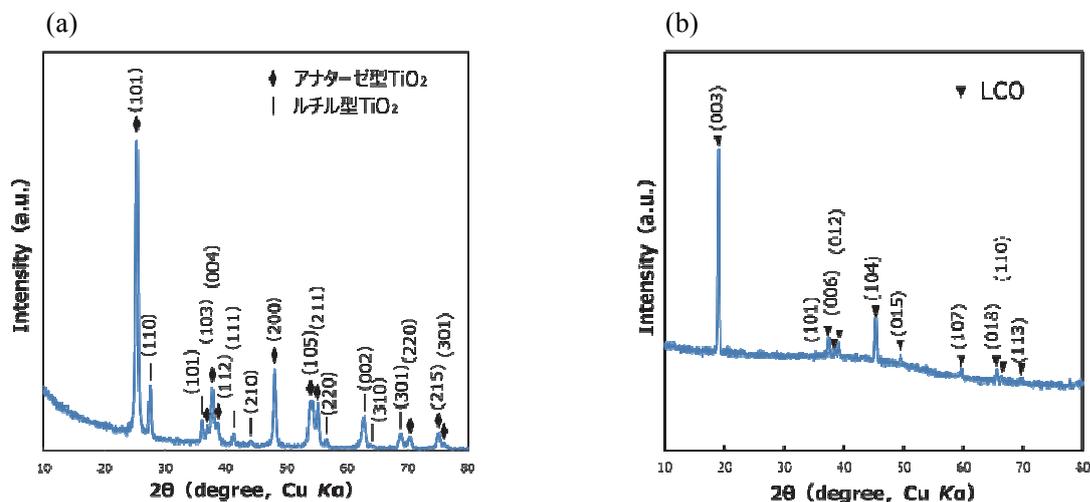


図4 FTO ガラス基板上に形成した活物質膜の XRD パターン (a) チタニア複合膜, (b) LiCoO<sub>2</sub>複合膜

パターンは、アナターゼ型  $\text{TiO}_2$  (ICDD No.00-021-1272), ルチル型  $\text{TiO}_2$  (ICDD No.00-021-1276) に帰属できた。また, LCO 複合膜の XRD パターンを Fig. 2(b)に示す。XRD パターンは, 菱面体構造の LCO (ICDD No.00-050-0653) に帰属できた。

### 3. 4 SEM イメージ

これら活物質膜の表面 SEM 像を図5に示す。チタニア複合膜には, クラックが観察された。しかし, 剥離しない膜であることから, 表面積の増大も期待して, その膜を電極として使用した。また, LCO 複合膜にも若干のクラックが見られた。しかし, いずれの膜も粒子の凝集は無く, 分散した膜だった。

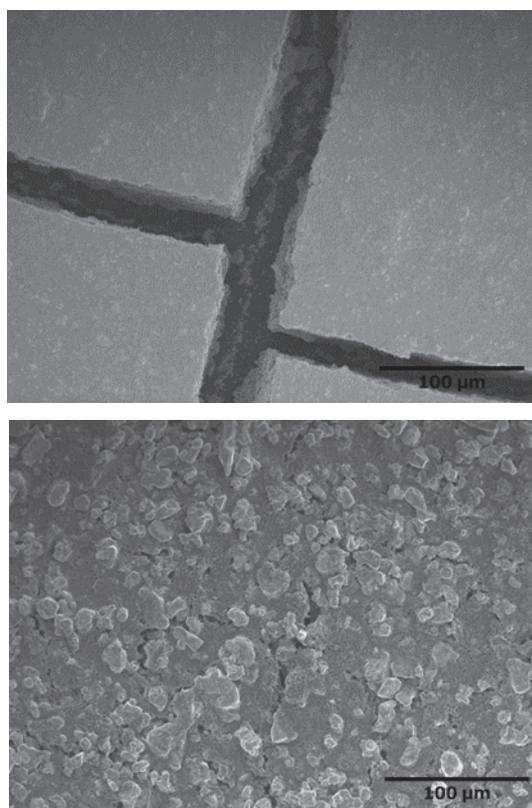


図5 FTO ガラス基板上に形成した活物質膜の SEM 像(上: チタニア複合膜, 下: LCO 複合膜)

これらの膜の断面 SEM 写真を図6に示す。断面 SEM 像から, チタニア複合膜のクラックは, 基板に対して垂直方向だけに生じているのではなく, 膜内部でも生じていることが分かった。また, LCO 複合膜は,  $10\ \mu\text{m}$  程度の粒子が含まれていることが分かった。これらの膜厚は, チタニア複合膜が  $\text{ca. } 100\ \mu\text{m}$  で, LCO 複合膜が  $\text{ca. } 50\ \mu\text{m}$  だった。

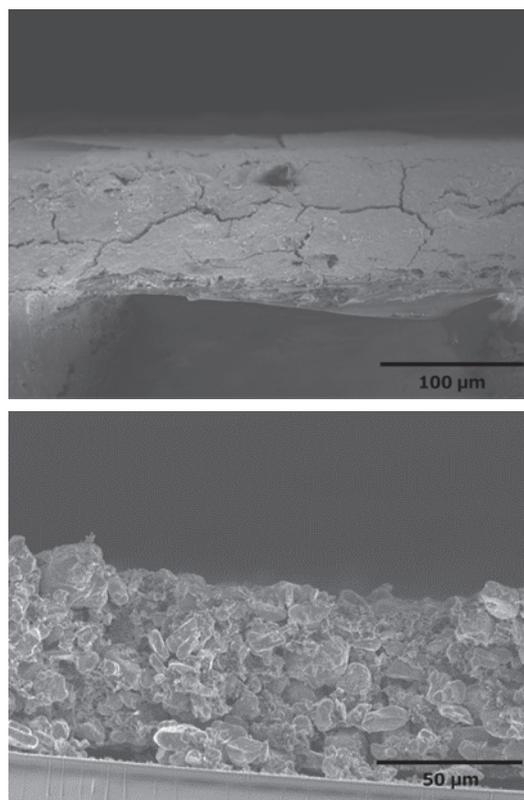


図6 FTO ガラス基板上に形成した活物質膜の断面 SEM 像(上: チタニア複合膜, 下: LCO 複合膜)

### 3. 5 サイクリックボルタンメトリー

これらの膜の電気的特性は, Ar で満たされたグローブボックス内で, リチウムを対極としてアッセンブルした。セパレーター (Celgard 2500) を電極間に挟み, 電解液で満たしたスウェッジロック型のハーフバッテリーを作製し, サイクリックボルタンメトリーをシンガポール国立大学 (NUS) の Lu 研究室で測定した。

チタニア複合膜のサイクリックボルタンメトリー (CV) 曲線は, Solartron (1400 CellTest System) を用いて, 室温で掃引速度  $0.1\ \text{mV s}^{-1}$ , 掃引範囲  $1.0\text{--}3.0\ \text{V}$  (vs.  $\text{Li/Li}^+$ ) で測定した。また, LCO 複合膜の掃引範囲は,  $2.5\text{--}4.2\ \text{V}$  で測定した。CV 曲線を図7に示す。

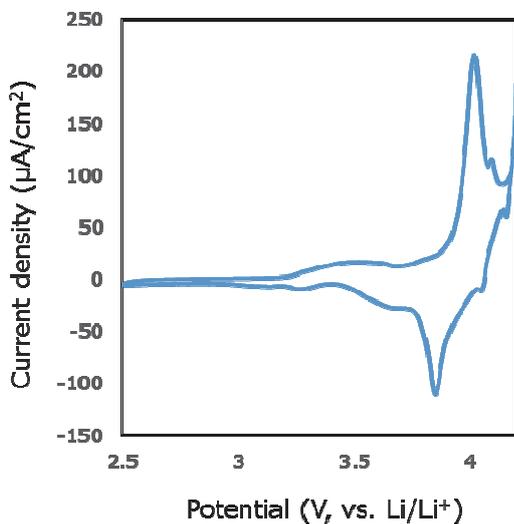
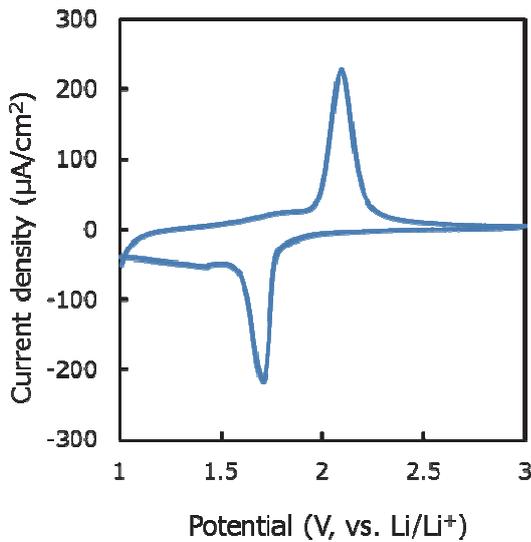


図7 SUS基板上に形成した活物質膜のサイクリックボルタモグラム(上:チタニア複合膜,下:LCO複合膜)

その結果、チタニア複合膜の酸化反応は2.11 Vに、還元反応は1.69 Vに電位を示した。また、LCO複合膜の酸化反応は4.02, 4.09, 4.19 Vに、還元反応は3.85, 4.05, 4.15 Vに電位を示した。文献では、3.97, 4.08, 4.19 Vで酸化反応が、3.87, 4.06, 4.16 Vで還元反応が起きていることから、調製したLCOペーストは、報告と同様にリチウムイオン電池の正極活物質として働くと考えられる<sup>16-18)</sup>。

### 3.6 充放電試験

チタニア複合膜の充放電試験は、CV測定と同様にセルを組み立てて、Maccor (SERIES 4000)を用い、室温で50 μAの定電流で1.0V-3.0 Vまで充電、50 μA定電流で1.0 Vまで放電を50サイクル測定した。また、LCO膜の充放電試験は、室温で50 μAの定電流で2.5-4.0 Vの間で充電・放電試験をおこなった。それぞれの1サイクル目の結果を図8に示す。チタニア複合膜の容量はca. 175 mAh/gで、LCO複合膜の容量はca. 100 mAh/gを示した。

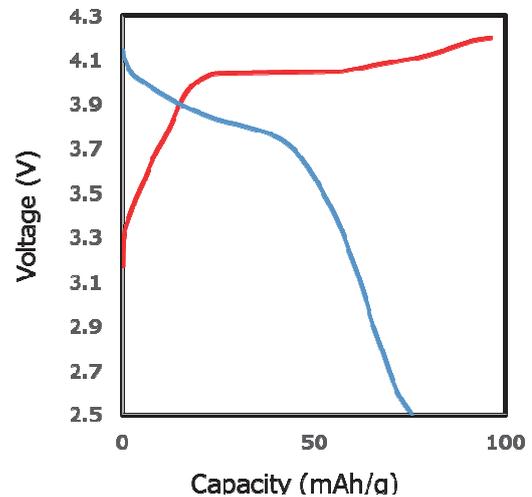
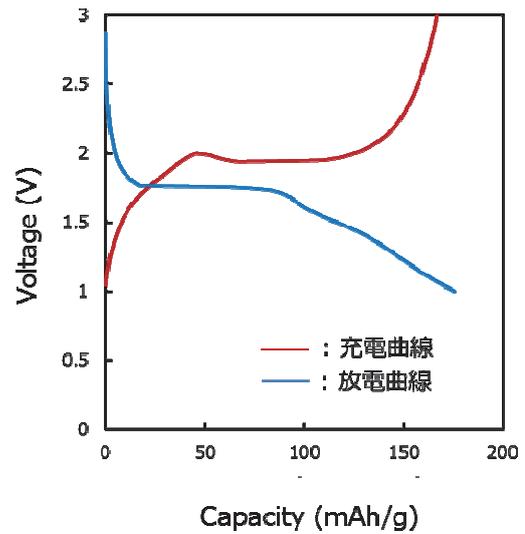


図8 SUS基板上に形成した活物質膜の充放電試験(上:チタニア複合膜,下:LCO複合膜)

### 3.7 LiPF<sub>6</sub>ゲル電解質

0.01 gのPICPM-PF<sub>6</sub>にLiPF<sub>6</sub>溶液を1 mL加え、55°Cの恒温水槽中で1時間加熱攪拌後、室温で静置した。得られたゲルは、無色半透明で図9のように流動性を示さなかった。



図9 ゲル化電解質

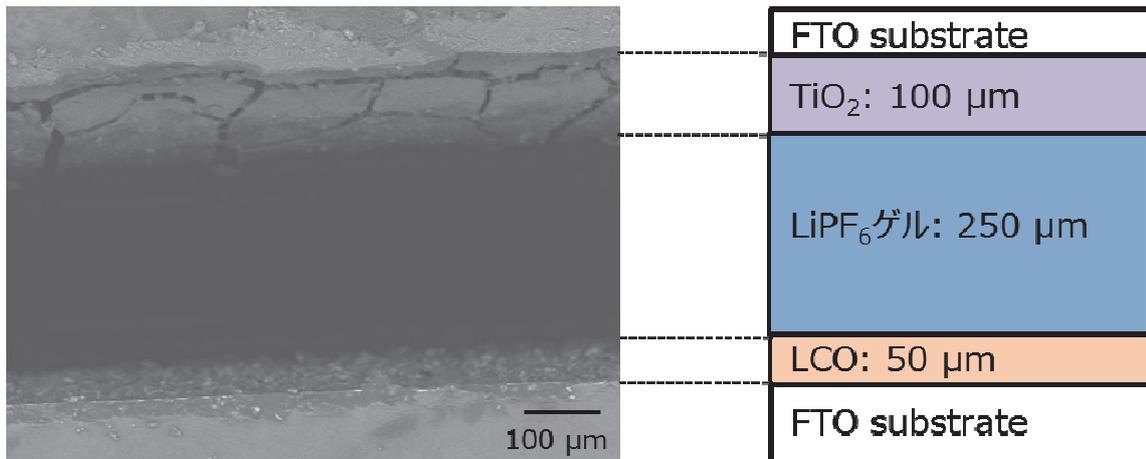


図 10 形成したデバイスのクロスセクションと各々の厚さ

### 3. 8 デバイスのクロスセクション観察

これらの電極とゲル化電解質を注入し、デバイスを作製した。作製したデバイスのクロスセクション画像を図 10 に示す。ゲルを注入しても、活物質は FTO 電極に密着していた。

### 3. 9 デバイスの充放電試験

負極にチタニア複合膜，正極に LCO 複合膜を使用し，LiPF<sub>6</sub>ゲルを使用したデバイスに 0.2 mA の定電流で充電，自然放電のサイクルを 60 秒間ずつ 30 回，1 sun の強度の疑似太陽光源照射（35 × 35 mm<sup>2</sup>），暗所保存のサイクルを 60 秒ずつ 30 回繰り返した。充放電試験の結果を図 11 に示す。定電流で充電した場合は，1.21 V を示し，自然放電時には，1.12 V を示した。また，光照射した場合は，1.03 V の電圧を示し，暗所時でも 1.00 V を示した。昨年度までに達成した薄膜を用いた光充電型リチウムイオン電池に比べて，充電時の電圧は，約半分の値を示した。

10 mA の定電流で 10 分間充電後，電圧が 0 V になるまで 10 mA の定電流で放電または自然放電した結果を図 12, 13 に示す。充電時には，2.57 V の平均電圧を示し，10 mA の定電流での放電時には，1.54 V の電圧を 9 分間示した。

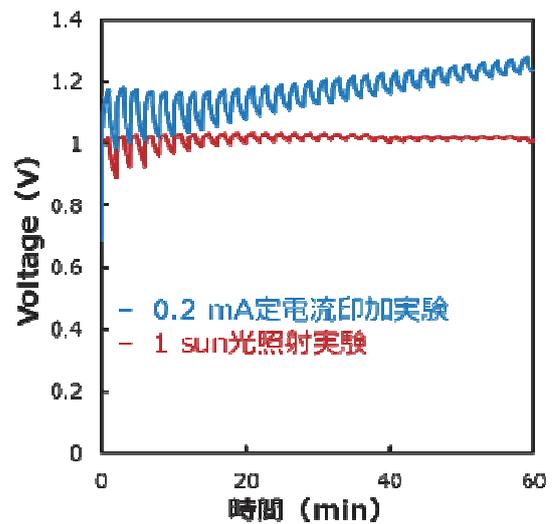


図 11 電流印加と自然放電，光照射・未照射の繰り返し実験

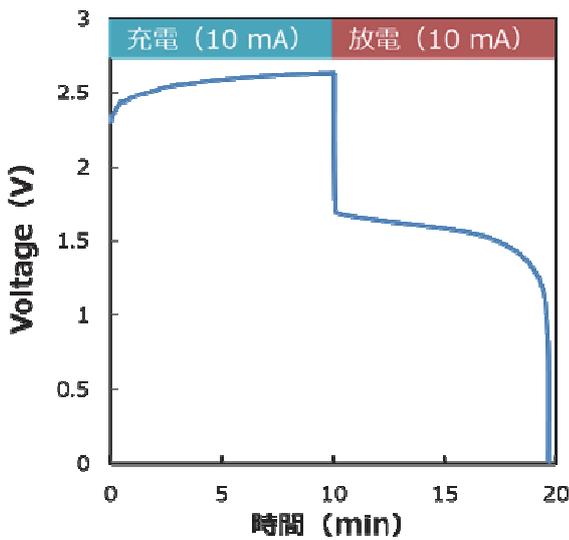
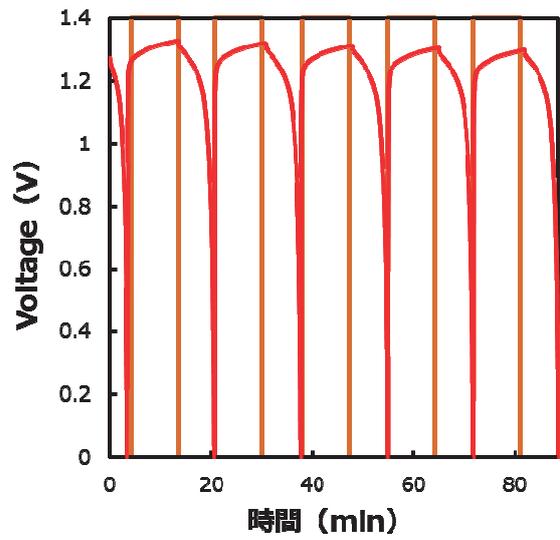


図 12 電流印加充放電試験



1 sun強度の光照射

図 14 光照射/放電試験

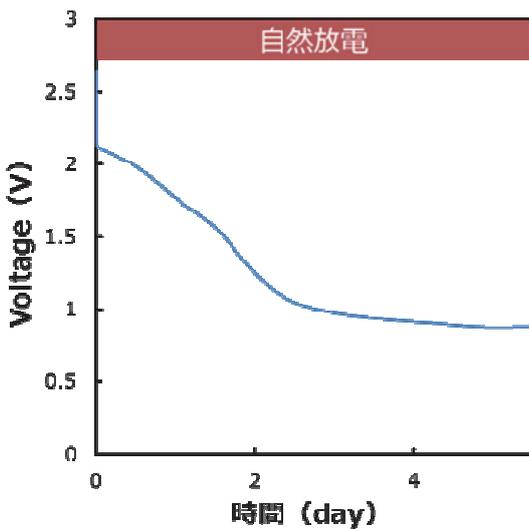


図 13 電流印加後自然充放試験験

10 分間の光照射による発生電圧は 1.28 V で、 $60 \mu\text{A}$  の定電流で放電したところ 7 分間で完全に放電した。さらに、この試験により、繰り返し充放電可能なことが分かった。光照射前に外部電源で充放電したセルの電圧は、約 1.3 倍高くなった。デバイスに 1 sun の強度の光を照射し、30 分間隔で電圧を測定した結果を図 15 に示す。光照射に対して安定して 1 V 以上の充電電圧を保持した。

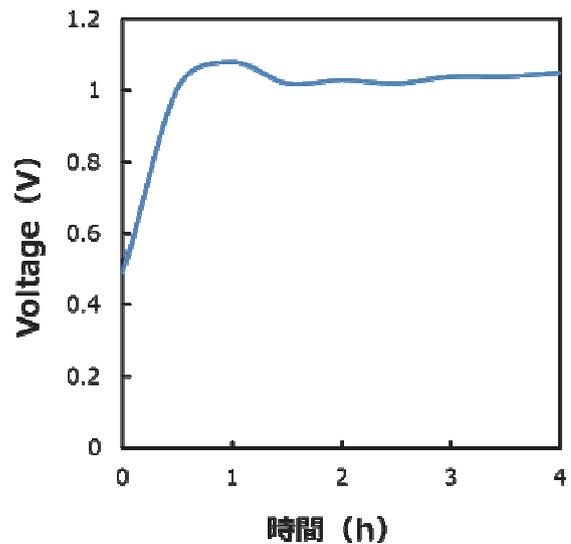


図 15 光照射による電圧変化

薄膜 LIB では過充電になる 10 mA の電流を印加しても、良好な充放電挙動を示した。また、自然放電はかなり緩やかに起こり、充電後 5 日後でも電圧は 0.87 V を維持していた。

次に 10 mA の定電流で 10 分間充電後、10 mA の定電流で 0 V になるまで一旦放電させた後、1 sun の強度の光を 10 分間照射、 $60 \mu\text{A}$  の定電流で放電するサイクルを 5 回繰り返した結果を図 14 に示す。

60 秒間隔で 60, 100, 200, 400  $\mu\text{A}$  の電流印加と自然放電するサイクルを 30 回繰り返し、充電平均電圧をプロットしたグラフを Fig. 16 に示す。1 sun 太陽光照射による充電平均電圧 1.03 V は 105  $\mu\text{A}$  の定電流印加に相当していると考えられる。

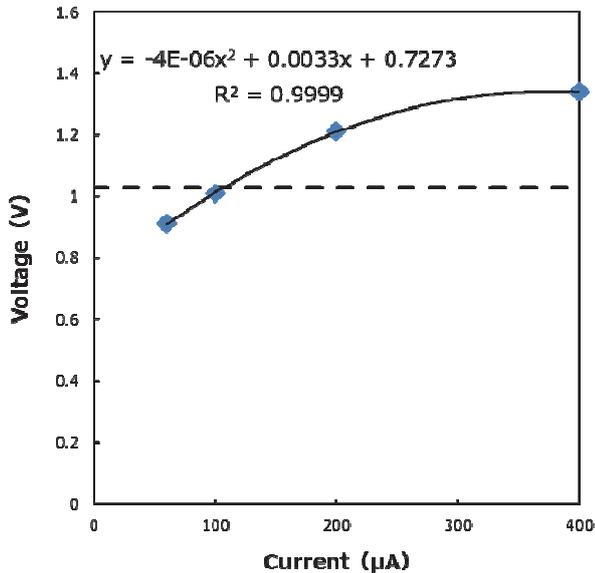


図 16 印加電流値による電圧変化

(一)FTO・TiO<sub>2</sub>|LiPF<sub>6</sub>, LiPF<sub>6</sub> ゲル|LCO・FTO(+)の分光感度は、分光計器社の SM-250GD ハイパーモノライトシステムを使って測定した。ステップ幅を 1 nm として、300–1100 nm の波長範囲での光電流を測定した (図 17)。

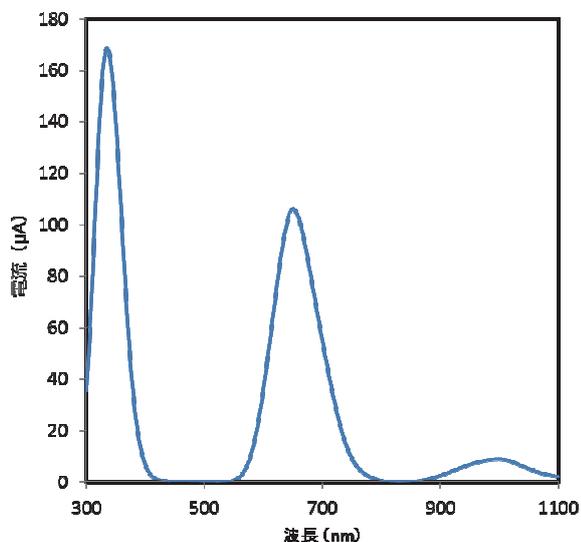


図 17 分光感度試験結果

形成したデバイスは、334 nm (3.71 eV), 650 nm (1.91 eV), 998 nm (1.24 eV) にそれぞれ極大値の電流を示した。334 nm における電流は、バンドギャップからチタニアによる光起電と考えられるが、650, 998 nm で示された光起電の理由は、現在のところ帰属不明である。

#### 4. まとめ

高容量で全固相の光充電型リチウムイオン電池形成が可能か実証する目的で以上のように検討し、以下の結果を得た。PICPM-PF<sub>6</sub>を適量添加した電解質ゲルを用いたデバイスが最高電圧を示し、かつ自然放電が緩やかだった。分子プレカーサー法で形成した TiO<sub>2</sub> 薄膜上に、低温でチタニア複合膜を固定化できた。FTO 基板の上に、低温で LCO 複合膜を固定化できた。FTO 基板の上に形成したチタニア複合膜、LCO 複合膜の理論容量は、それぞれ 26.0 mA h, 33.6 mA h だった。0.2 mA 定電流印加実験の発生電圧は、定電流印加時 1.21 V で、自然放電時は 1.12 V を示し、LIB として動作した。また、1 sun 強度の光を照射した時 1.03 V で、暗所時は 1.00 V を示し、PV-LIB として動作した。

以上のように、ドクターブレードを用いて FTO プレコートガラス基板の上に、チタニア複合膜、LCO 複合膜を活性物質とする電極を形成した。また、全固相化のために適切なゲル電解質を調製した。これらを組合せて、26.0 mA h という実用的なレベルに達する理論容量をもつ高容量な全固相 PV-LIB を作製した。

#### 参考文献

- (1) Nagai, H., Hara, H., Enomoto, M., Mochizuki, C., Honda, T., Takano, I., Sato, M.: "Synchronous Electrochromism of Lithium Ion Battery with Chemically Fabricated Transparent Thin Films, *Funct. Mater. Lett.*, Vol. 6, (2013) 1341001.
- (2) Nagai, H., Suzuki, T., Takahashi, Y., Sato, M.: Photovoltaic lithium ion battery fabricated by molecular precursor method, *Funct. Mater. Lett.*, Vol. 09, (2016) 1650046.
- (3) Nagai, H., Sato, M.: Highly Functionalized Lithium-Ion Battery, *Intech*, (2016) Ch.6.
- (4) Nagai, H., Mita, S., Takano, I., Honda, T., Sato, M.: Conductive and semi-transparent Cu thin film fabricated using molecular precursor solutions, *Mater. Lett.*, Vol. 141, (2015) 235-237.
- (5) Nagai, H., Suzuki T., Mochizuki, C., Takano, I., Honda, T., and Sato, M.: Formation mechanism of p-type Cu<sub>2</sub>O thin films via intermediate Cu<sup>0</sup> species derived from Cu(II) complex of ethylenediamine-N,N,N',N'-tetraacetic acid, *Science of Advanced Materials*, Vol. 6, (2014) 603-611.
- (6) Onuma, T., Nagai, H., Yamaguchi, T., Sato, M., Honda, T.: Cathodoluminescence spectra of Ga-In-O polycrystalline films fabricated by molecular precursor method, *Japanese Journal of Applied Physics*, 53, (2014) 05FF02.
- (7) Daniel, L. S., Nagai, H., Sato, M.: Absorption spectra and photocurrent densities of Ag nanoparticle/TiO<sub>2</sub> composite thin films with various amounts of Ag, *J.*

- Mater. Sci., 48, (2013) 7162–7170.
- (8) Sato, M., Hara, H., Nishide, T., Sawada, Y.: A Water-resistant Precursor in a Wet Process for TiO<sub>2</sub> Thin Film Formation, *J. Mater. Chem.*, 6 (1996) 1767-1770.
  - (9) Nishide, T., Sato, M., Hara, H.: Crystal Structure and Optical Property of TiO<sub>2</sub> Gels and Films Prepared from Ti-edta Complexes as Titania Precursors, *J. Mater. Sci.*, 35 (2000) 465-469.
  - (10) Sato, M., Hara, H., Kuritani, M., Nishide, T.: Novel Route to Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 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.
  - (11) Sato, M., Tanji, T., Hara, H., Nishide, T., Sakashita, Y.: SrTiO<sub>3</sub> 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.
  - (12) Nagai, H., Mochizuki, C., Hara, H., Takano, I., Sato, M.: 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.
  - (13) Nagai, H., Hasegawa, M., Hara, H., Mochizuki, C., Takano, I., Sato, M.: An Important Factor Controlling the Photoreactivity of Titania: O-deficiency of Anatase Thin Film, *J. Mater. Sci.*, 43 (2008) 6902-6911.
  - (14) Nagai, H., Aoyama, S., Hara, H., Mochizuki, C., Takano, I., Baba, N., Sato, M.: Rutile Thin Film Responsive to Visible Light and with High UV Light Sensitivity, *J. Mater. Sci.*, 44 (2009) 861-868.
  - (15) Nagai, H., Aoyama, S., Hara, H., Mochizuki, C., Takano, I., Honda, T., Sato, M.: 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.
  - (16) Abhilash, K. P., Christopher Selvin P., Nalini, Rajan Jose, B., Vijayaraghavan, R., Chowdari, B. V. R., Adams, S., Reddy, M. V.: Investigations on the influence of Sm<sup>3+</sup> ion on the nano TiO<sub>2</sub> matrix as the anode material for lithium ion batteries, *J. Alloy Comp.*, 710 (2017), 205-215.
  - (17) Subramanian, V., Chen, C. L., Chou, H. S., Fey, G. T. K.: Microwave-assisted solid-state synthesis of LiCoO<sub>2</sub> and its electrochemical properties as a cathode material for lithium batteries, *J. Mater. Chem.*, 11 (2001), 3348-3353.
  - (18) Cao, J., Hu, G., Peng, Z., Du, K., Cao, Y.: Polypyrrole-coated LiCoO<sub>2</sub> nanocomposite with enhanced electrochemical properties at high voltage for lithium-ion batteries, *J. Power Sour.*, 281 (2015), 49-55.



### 3. 総合研究所科学研究費採択奨励研究報告 (2016年度)



## 自然と歴史的伝統材料に学んだ酸化鉄系高彩度赤色顔料の開発

応用化学科 助教

橋本 英樹

鉄酸化物は組成や構造のちょっとした差異によって、色、電極特性、磁性、触媒特性などの性質が目まぐるしく変化する。本研究では、自然と歴史的伝統材料に着想を得て、新しい機能性鉄酸化物ナノ材料を開発することを目的としている。申請者はこれまでに、天然の細菌由来鉄酸化物と日本の伝統材料の研究から、 $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の発する赤色が「粒子周りを取り囲むガラス相」と「構造に置換される異種元素」に強く影響を受けることを発見した (Hashimoto et al. *Dyes Pigm.* 2012, 95, 639. Hashimoto et al. *ACS Appl. Mater. Interfaces* 2014, 6, 20282.)。そこで本申請では、 $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の構造中に異種元素として Al を導入することで、高彩度赤色顔料を開発した。具体的には、Al を固溶させた低結晶性水酸化鉄 (2-line ferrihydrite) を合成し、これを前駆体としてその後の加熱処理によって、Al 置換型  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を合成した。その結果、極めてユニークな粒子形態を有する  $\alpha$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を作製することに成功した。また作製した粉末の色彩は、市販品や水熱合成試料を遥かに凌駕し、L\*, a\*, b\*値 (明るさ, 赤味, 黄色味を示す指標) がそれぞれ市販品の約 1.3 倍, 1.5 倍, 2 倍であり、オレンジ色に近い発色を示した。攪拌時間, 攪拌速度, 攪拌方法, Al 添加量, 前駆体の焼成温度, 前駆体の乾燥方法, 炭酸源, 溶液濃度など様々なパラメーターを変化させて試料を合成したところ, Al 添加量 30% の試料において最も高い L\*, a\*, b\*値が得られることが明らかになった。更に, 作製した粉末の熱的耐性を調べたところ, 市販のヘマタイトを遥かに凌駕する驚くべき耐熱性を示す事が明らかになった。

## 基板表面修飾によるアモルファス酸化物 TFT の高移動度化

総合研究所 准教授

相川 慎也

近年のエレクトロニクス機器に対する設計要求の高まりから、薄膜トランジスタ (TFT) 素子の電界効果移動度向上が希求されている。従来の研究としては、高温熱処理で結晶化させることで性能向上を狙う試みがあるが、この方法は酸化物半導体材料の室温成膜可能な利点を損なう問題がある。これまでの研究では、酸素結合解離エネルギーが高く、かつ 6 価のイオンになるタングステンに着目し、酸化インジウムに酸化タングステンをドーピングした独自開発 In-W-O を用いて、低温プロセスで (150 °C)、優れた TFT 特性が得られることを見出してきた。一方で、タングステンのドーピング量が多くなると、イオン結合に起因するイオン散乱効果が顕著になり移動度が低下するため、材料組成の設計だけでは低温プロセスでの性能向上に限界があることを明らかにしてきた。

そのような状況の中、他の実験のために準備してあった Si 基板を、誤って酸化物 TFT に使用したところ、優れた特性が得られることを偶然見出した。この基板は、表面が自己組織化単分子膜 (SAM) で修飾されており、移動度は  $1.5 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (SAM なし) から  $17.2 \text{ cm}^2/\text{Vs}$  (SAM あり) へと 10 倍以上も向上した (Fig. 1)。特性向上の要因としては SAM によるドーピング効果が考えられるが、メカニズムの詳細は分かっていない。

SAM の形成が簡便な湿式プロセスであるため、従来の大電力が必要なイオン注入などによるドーピングと比較して、大幅なプロセスエネルギーの削減に貢献できる。そのうえ、現行の素子作製技術との適合性も高い。また、熱処理が不要な低温プロセスであるため、加熱・冷却にともなう熱エネルギーの消費抑制が可能である。これらは、次世代のデバイスプロセスにおける素子作製コストの低減、および機能性付加のための汎用プラスチック基板の使用に有用であり、これまで困難であった室温プロセスでの TFT 素子特性向上に大きなインパクトをもたらす。

今後の予定として、基板の表面修飾が与える影響を電気特性の観点から解明し、酸化物半導体と SAM の室温プロセス可能な特長を活用して、さらなる高度化に向けた特性チューナブルな酸化物 TFT を確立していく。

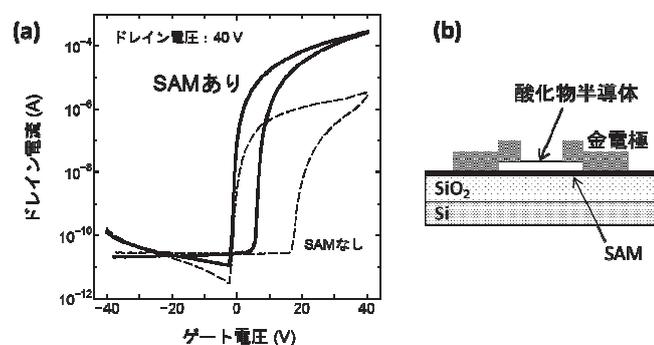


Fig. 1 (a) Typical  $I_D$ - $V_{GS}$  characteristics of oxide TFTs with and without SAM modification. (b) Schematic cross-sectional diagram of a bottom-gate TFT structure.

## 転造によるフランジ成形に及ぼすフランジ端面拘束の影響

機械工学科 教授

久保木 功

我々は微小径長軸材料を転造により縮径し、溝を成形させ、その部分の材料を移動させることで増径に用いる転造加工の検討を行っている。この転造による据込み加工を用いてフランジ成形を行った。フランジ径の増大のために、フランジ上下両側から縮径する溝幅を大きくして材料移動量を大きくする。このときフランジ外周端面はステンレス鋼 SUSXM7 において鼓状になっていた。本研究では、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。

供試材には直径約 1mm の微小径の線材、オーステナイト系ステンレス鋼 SUSXM7 を用いた。この線材を直線矯正し、約 30mm に切断して転造加工用の試験片とした。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。成形工具がグリップ工具よりも突出している部分を突起高さ  $h$  (mm)とし、この  $h$  を変えることで縮径される溝部の径を変えることができる。突起高さは喰付側および仕上側ともに同一とし、固定側・移動側工具は平行として加工を行った。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フラットにするため、フランジ外周端面に成形工具間に挟んだ 0.5mm の金属薄板を接触させ、フランジの増径を拘束し転造加工を実施した。グリップ工具のグリップ面から金属薄板端面までの長さを端面拘束長さ  $F_r$  とし、 $F_r = 0.28\text{mm}, 0.37\text{mm}, 0.46\text{mm}, 0.49\text{mm}$  および  $0.53\text{mm}$  の計 5 種類の拘束工具で加工を行った。

最初に、拘束工具を用いずに種々の成形工具幅を有するフランジ転造加工を行った場合の結果を示す。成形工具幅(溝幅)を大きくしても、断面減少率が小さくなるため、フランジ径を増大させるためには、材料移動量を大きくできる好適な溝幅が存在する。転造加工中に試験片内部に空洞(マンネスマン割れ)は認められるが、破断やすべりが生じずに、加工が最後まで可能な転造品の溝部断面減少率は成形工具幅が大きくなるほど小さくなる。成形工具幅を大きくすることで、溝幅が増大し、試験片長手方向の材料の移動量が大きくなる。これにより断面減少率が小さくなるので転造荷重は小さくできるものと考えられる。

次に、フランジ外周端面を拘束するような転造加工を行った。これによって端面をフラットに成形することができ、寸法精度を向上することが可能となった。端面拘束長さ  $F_r$  を小さくした試験片は、 $F_r$  の大きい試験片より、フランジ外周端面の拘束が大きくなり、欠肉が生じにくく、よりフラットな端面に加工できることがわかった。

## アクアポリンを模擬した新規透水メカニズムに基づく 高透水性分離膜の理論設計

環境化学科 教授  
高羽 洋充

水選択透過膜は海水淡水化や脱水処理など様々な工業プロセスで利用されているが、プロセスの効率化のために透水性を向上させることが重要である。海水淡水化や水処理に用いられる逆浸透膜には、主にポリアミドなどのポリマー膜が用いられていた。しかしながら近年、分子配向性を制御する特異的な透過機構が明らかとなり、高い透過性を得られる可能性が明らかとなってきた。多くの新しい膜材料の候補から実験で有用な膜を開発するには困難も多く、シミュレーションによる理論的な材料スクリーニングが望まれる。本研究では、超分子である 2-フェニル-1,3,4-オキサジアゾールの環状四量体の柱状構造に着目し、これを膜化したときの透水性と透過機構について非平衡分子動力学法(NEMD)を用いて検討した。またより細孔径の大きい環状六量体、八量体と透過速度を比較することで透水性の理論評価を行った。

2-フェニル-1,3,4-オキサジアゾール環状四量体、六量体、八量体を積層して水が透過できるように膜化し水透過モデルを作成し NEMD による透過シミュレーションを行った。透過シミュレーション結果より環状四量体膜の膜細孔内を通して、水分子が連続的に透過することが確認された。細孔中では、水分子がワイヤ状に水素結合を形成しながら透過していることが確認された。また、透過速度の圧力依存性を求めたところ、圧力に比例して透水量が増加する一般的な膜透過現象の傾向が観察された。圧力依存性から求めた純水透過係数は、一般的な逆浸透 (RO)膜と比較して数倍高い値となった。これは、環状四量体膜が新しい水処理膜として利用できる可能性を示している。また、環状四量体超分子膜が高い水透過性を持った理由としては、環状四量体分子の細孔径が水一分子程度のサイズであり、膜細孔内が水分子で満たされると水素結合形成により順序よく透過し、結果として細孔内の最短経路を移動することが高い拡散性をもたらしたと考えられる。

平成 27 年度の主な成果発表：

- [1] Hayato Higuchi , Hiromitsu Takaba, "Evaluation of water permeability of novel supramolecule membrane by non-equilibrium molecular dynamics", 2017 International Congress on Membranes and Membrane Processes, 1 August 2017, San Francisco, USA
- [2] Hiromitsu Takaba, Invited Speech, "Theoretical Verification of Novel Nano Porous Membranes with High Water Permeability", IUMRS-ICAM 2017, 27 August 2017, Kyoto
- [3] 分離技術会学生賞 (樋口 隼人)、分離技術会年会 2017 (2017 年 5 月 26 日)

# 自律分散制御によるユーザ指向の新たな全光ネットワーク 構成手法に関する研究

情報通信工学科 教授  
馬場 健一

近年、クラウドサービス、計算資源の仮想化などの技術の進展により、ユーザが柔軟に計算機サービスを設定、利用することが可能になりつつある。ストレージや計算資源における柔軟性は高まりつつあるが、柔軟な計算資源を活用するためには、高速なネットワークとユーザが所望するネットワーク資源を柔軟に提供できる機構が必要である。そのため、高度なマルチメディアネットワークの提供を可能とし、かつ低消費エネルギーのネットワークを実現できる全光ネットワークを構築することが期待されている。さらに、ユーザの要求に応える全光ネットワークの柔軟な制御手法として、従来のネットワークの全体管理型制御ではなく、自律分散型制御を実現することが考えられる。

そこで、高速かつ低消費エネルギーであり、細粒度の設定が可能な我が国で開発されたエラスティック光ネットワーク技術を用い、かつ柔軟な制御が可能な自律分散制御機構を用いて、ユーザの要求に応じた高速なネットワーク資源を提供できる全光ネットワークを実現する。エラスティック光ネットワークにおける光パスの割り当ては **RMSA (Routing, Modulation Level and Spectrum Allocation)** と呼ばれ、光パスの経路とその経路における伝送距離に合わせた変調方式、経路上で割り当てる光周波数スペクトルを決定する。この **RMSA** を適切に行うことにより、伝送距離に応じた最適な変調方式の割り当てを実現し、スロットの有効利用を図ることができる。分散制御で **RMSA** を行う場合、その時点におけるトラフィック状況に応じた経路の選択とネットワーク内の新たなノード数の増減への柔軟な対応が可能であるが、他の光パスの設定要求がシグナリングの時間差により先行することによって、選択したスロットが予約できずパス要求が棄却される場合がある。

そこで、先行研究では、パス要求に対してスロットの予約と仮予約の 2 つの経路の予約を行い、予約に失敗した際に仮予約を行ったスロットを用いることにより、衝突による要求の棄却を低減させるパス設定手法を提案している。しかし、先行研究においてスロットの仮予約を行う際にすでに予約を行った経路等の情報を十分考慮しないため、パス要求に対するスロットの仮予約も失敗する場合がある。さらに、通信要求を転送する際に、制御プレーンへの負荷増大を防ぐための転送処理において改善を検討すべき点がある。そこで本研究では、パス要求に対して仮予約を行うスロットを選択する際に、予約経路と仮予約経路の状況を考慮した周波数割当手法を提案した。また、パス要求のシグナリングにおける通信要求処理手法を改善した経路探索手法を提案した。2 つの提案手法を用いることにより、JPN25 トポロジにおいて要求棄却率が先行手法に対して約 63.4%低減することができた。

- [1] Yuya Hiraiwa and Ken-ichi Baba, "A spectrum allocation method based on distributed control plane in elastic optical networks," in *Proceedings of IEEE 17th International Conference on High Performance Switching and Routing (HPSR2016)*, June 2016.
- [2] Ryosuke Shinozawa and Ken-ichi Baba, "Spectrum allocation methods with multiple sub-optical-paths in elastic optical networks," in *Proceedings of IEEE 17th International Conference on High Performance Switching and Routing Workshop (HPSR2016 Workshop)*, June 2016.

## 建築工事における作業員負荷と生産性の計測・分析に関する研究

建築学科 助教

石田 航星

建築工事の労働生産性は他産業より低く、熟練技能者の高齢化と減少が深刻である。建築工事の労働生産性を向上させ、少ない人数で工事を行える体制と、建築工事の現場作業員の負担を軽減し、女性が安心して働ける職場環境を整える必要がある。しかしながら、内装工事のような屋内の工事では、既存の作業能率測定手法の実施に手間がかかるため作業手順の分析が全く行われていない。そこで本研究では小型加速度センサを作業員に装着し、作業員の動きの加速度を記録し、この加速度の変化により作業の状態や負担の大きさを分析する手法を考案する。これにより、作業状態の測定と分析を円滑化し、屋内における工事の分析を広く行える環境を整えることにより、建築工事の労働生産性の向上と現場作業の労働環境の改善に貢献することを目的として研究を実施した。2016年度における研究項目として「加速度センサを用いた作業状態の把握手法」について重点的に研究を実施した。移動経路の把握においては、作業員の位置情報を取得できる各種センサの計測精度を確認するとともに、Kinectなどのモーションセンサを用いて作業員の状態を把握する方法についても検討を行い、データ収集を行った。その結果、加速度センサにより、作業員が移動した床に荷物などがあることにより、無理な姿勢を取っていた箇所の推定方法などの考案を行った。また、実際の工事現場においては視認性の悪さやGPSや磁気センサの利用が行えないために正確な計測が行えないことが多いため、現実空間における計測では作業内容全てを記録することに限界があると考え、VR空間上で工事現場と建築作業員の動作を再現し、シミュレーションするソフトウェアの開発を開始した。VR空間上の工事現場の再現においては、3Dモデルの作成はArchiCADを利用し、ソフトウェア自体の開発はUnityを用いた。現場内の運搬作業の再現を行うとともに、作業員がクレーン車のブーム半径内に侵入したり、作業用自動車の近傍に近寄った場合に警告を出す安全教育に関する仕組みの実装を行った。

これら一連の研究により、建築工事の作業研究に対してICT技術を導入する手法全般について検討を行い、現実の作業においては加速度センサの利用方法を明らかにし、現実空間上での計測が困難な場合には仮想空間上で計測することが可能であることを確認した。

## 温室効果ガス削減貢献量の算定方法の開発

環境化学科 教授  
稲葉 敦

科研費の目的は、「日本発の環境側面の評価方法である温室効果ガス削減貢献量の具体的な算定方法を提案し世界標準にすることである。そのために、評価する製品を①最終製品、②最終製品に使われる部品や素材、③システムの3つに分類し、それぞれの分類ごとの温室効果ガス削減貢献量の算定方法のガイダンスを作成する。また、このガイダンスを使用した算定事例を作成する。さらに、WRI や ISO/TC207 関連の国内委員会に働きかける。」ことである。

上記の研究を進捗させるために、本研究費では、a) インターネットを用いて、既存の温室効果ガス排出削減貢献量の算定例を、企業の環境報告書や CSR レポート、工業会の報告書等から削減貢献収集した。また、b) 収集した削減貢献量の事例を最終製品、部品・素材、IT システム、組織全体（最終製品、部品・素材、IT システムの合算）に分類した。さらに詳細に分類するために、c) 最終製品の事例は削減貢献量の算定の有無で分類し、算定されている事例に関しては、算定年度が過去、未来、不明に分類した。部品・素材の事例は寄与率が設定されている事例、部品・素材の事例ではあるが寄与率を 1.00 として計算している事例、算定されていない事例に分類した。IT システム事例は算定の有無によって分類した。組織全体の事例は製品が特定できないため詳細分類は行わなかった。

事例調査の結果、合計で 60 件の削減貢献量の事例を収集することができ、内 2 件が重複していた為、その 2 件を除く 58 件を分析対象とした。収集した事例は、最終製品が 28 件、部品・素材が 16 件、IT システムが 11 件、組織全体が 3 件となった。

各事例の削減効果の発揮方法に着目し、事例分析を行うと、ベースラインが評価対象製品に置き換えることで消費電力量や紙の使用量などが削減される事例（直接効果）、評価対象製品を使用すると評価対象製品以外の製品やシステムの消費電力量や燃料消費量が間接的に緩和される事例（間接効果）、評価対象製品が導入されることで、従来使用されていた製品の使用頻度や消費エネルギー量などが将来的に削減することを想定して削減効果を算出する事例（みなし効果）の 3 種類の削減効果があることが分かった。特に、素材・部品では寄与率の算定が難しく、寄与率を 1.0 として計算している例が多いことがわかった。この場合は、素材・部品が使用される最終製品の削減貢献量とダブルカウントになる。また、IT システムでは、みなし効果の算定範囲の設定が課題であることがわかった。

## エネルギーアシスト磁気記録方式を用いた ハードディスク装置の大容量化

応用物理学科 教授  
赤城 文子

本研究では、次世代の磁気ディスク装置の候補である2種類のエネルギーアシスト磁気記録方式（熱アシスト磁気記録方式、マイクロ波アシスト磁気記録方式）について、計算機シミュレーションを用い、以下の検討を行った。

(a) 光(熱)を用いた熱アシスト磁気記録方式とビットパターン媒体を組み合わせた方式では、低磁界で記録可能な多層膜媒体の条件を明らかにする。

(b) 高周波磁界による磁気共鳴を用いたマイクロ波アシスト磁気記録方式では、 $10^{12}$  A/m<sup>2</sup>以下の低注入電流密度で20 GHz以上の発振磁界を得るために、スピントルク発振素子の新しい構造と磁気特性を明らかにする。

上記検討より、以下の結論が得られた。

- (a) ビットパターン媒体のドットをECC(exchange coupled composite)ドットにし、上部磁性層の飽和磁化を1.09 Tとした場合、上部磁性層の異方性定数を93 kJ/m<sup>3</sup>にすることで、単層膜ドットの1/2の印加磁界強度でビットエラーレートを0にできる。また、異方性定数が302 kJ/m<sup>3</sup>の時、上部磁性層の飽和磁化を0.81 T以上、異方性定数が604 kJ/m<sup>3</sup>の時、上部磁性層の飽和磁化を1.24 T以上にすることで低ヘッド磁界(640 kA/m)においてもビットエラーレートを0にできる。
- (b) スピン注入層を1層から2層に構造変更した3層スピントルク発振素子を用いることによって、発振周波数が30 GHzと目標を大きく上回り、また、注入電流密度を目標以下の $0.912 \times 10^{12}$  A/m<sup>2</sup>に下げることができた。追加したスピン注入層の最適条件は飽和磁化0.5 T、異方性定数10.0 kJ/m<sup>3</sup>、膜厚は1.25 nmである。

本研究に関係した発表及び論文

- (1) ECCドットビットパターン媒体を用いた熱アシスト磁気記録方式におけるヘッド磁界強度低減の検討, 電子情報通信学会総合大会 C-7-5, 2017年3月22日,  
デュアルSIL構造をもつSTOにおいて注入電流密度低減のためのSILの飽和磁化及び膜厚, 電子情報通信学会総合大会 C-7-6, 2017年3月22日,

## 昆虫の表面機能に基づく小型移動ロボットの開発

機械システム工学科 教授  
鈴木 健司

本研究は、昆虫などの微小生物の表面を模倣し、微細加工技術を用いて種々の構造と機能を持つ表面を創成し、これをロボットの表面に応用することにより昆虫の機能を再現した小型移動ロボットを開発することを目的としている。小型の自律移動ロボットが実現できれば、人の入れない狭小地、被災地、危険な場所等での情報収集への応用が期待できる。また、生物規範型の機能性表面は、ロボットのみならず種々の工業製品への応用が可能である。本研究では、昆虫を模倣した表面機能として、アメンボ規範とした撥水性表面による水面移動、昆虫を規範とした付着性表面による壁面歩行、トンボを規範とした微細構造を有する翅による羽ばたき飛翔に着目した。

水面移動においては、ロボットの脚に用いる金属ワイヤの表面に、撥水性を付与するための加工方法を開発した。ワイヤ素材をステップモータで回転させながら、フェムト秒レーザーを用いて螺旋状の溝加工を行い、撥水剤をディップ法により塗布することにより超撥水性ワイヤ表面の創成が可能となった。また、表面の接触角、水面での支持力、引き離し力、抗力などを評価し、これらの力の発生機構および表面の微細形状との関係を明らかにした。その結果をもとに水面移動ロボットを製作し、脚の構造や形状の最適化を行った。動作実験を行った結果、表面張力により水面に浮き、自立的に水面を高速で移動させることができた。以上の結果をまとめて **Micro Nano Letters** 誌に論文を投稿し、掲載された。

壁面歩行に関しては、ロボットの脚に装着するパッドに付着性を付与するために、表面に微量の液体を供給する機構の開発を行った。MEMS 技術を利用して付着パッドおよび多孔質体を含む機構を製作し、液体を多孔質体に含浸させ、歩行時に徐々に液体が供給されるようにした。液体の種類や量、パッドの材料などを変化させて垂直方向、接線方向の付着力の測定を行い、付着力の向上、および付着機構の最適化を行った。現在は、開発した付着パッドを壁面歩行に応用するためのロボット機構の開発を進めている。

羽ばたき飛翔ロボットに関しては、トンボの翅に見られる翅脈などの構造や棘状の微小突起を、MEMS 技術を用いて人工の翅に加工し、羽ばたき動作をさせて揚力、抗力の測定を行った。その結果、翅の表面に突起を設けることにより揚力が増加することや、翅脈の構造により翅の変形状態が変化し、揚力が変化することが確認された。製作した翅を羽ばたきロボットに取り付けて動作実験を行い、自立飛翔が行えることを確認した。今後はホバリングや旋回などの高度な飛翔を実現していく予定である。

# ゲスト分子の電荷がクラスレート水和物の 安定性に及ぼす響の分子論的研究

機械工学科 助教  
平塚 将起

クラスレート水和物とは、水分子が作るかご状の構造の中にメタンなどのゲスト分子が閉じ込められることで形成される結晶であり、天然ガスの輸送や分子貯蔵方法、畜冷熱媒体など熱工学分野での応用が期待されている。特にゲスト分子が電荷の分布をもつセミクラスレートハイドレートの場合、相平衡条件や安定性が大きく変化することが近年報告されている。この特性を理解することがセミクラスレートハイドレートの応用において重要であることから、本研究では分子シミュレーションや実験を用い、電荷を持ったゲスト分子が相平衡条件に及ぼす影響を分子論的に解明することを目的とし研究を実施した。

はじめに、分子シミュレーションを実施する際に必要となるセミクラスレートハイドレートの計算の初期構造の作成を行った。初期構造には系全体の双極子モーメントやポテンシャルエネルギーが最も小さくなる構造を用いることが必要であり、過去に通常のハイドレートに対して実施した方法を応用しセミクラスレートハイドレートの初期構造を計算機を用いて探索した。結果として、セミクラスレートや様々な結晶構造のハイドレートについて適切な初期構造を探索するプログラムを作成し、適切な初期構造を作成することができた。また作成した初期構造を用いてセミクラスレートハイドレートについて第一原理分子動力学計算を実施し、ハイドレート内のイオン分子の安定性や振動スペクトルの計算を行い、実験による測定結果と定性的に一致する結果を得ることができた。

また、ハイドレートの熱物性値を測定するために実験的にハイドレートを生成するための装置の作成も実施した。作成した装置の性能を確認するために、構造 I の二酸化炭素ハイドレートの相平衡条件を測定し、既存の実験値とよく一致する結果を得ることができ、装置が相平衡条件の測定に使用できることを確認した。また海水中でハイドレートの生成や採取を行うことを想定し、NaCl 水溶液中における二酸化炭素ハイドレートの相平衡条件の測定も実施した。

今後は本研究において進めることができた分子シミュレーションの結果や作成した実験装置を用いてセミクラスレートハイドレートの熱力学的安定性の解明に向けた研究を推進する予定である。