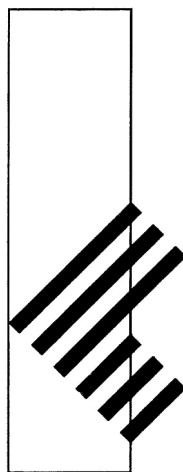


工学院大学  
総合研究所年報  
第26号 2018年度



令和元年 7 月発行

工学院大学総合研究所

RESEARCH INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY  
KOGAKUIN UNIVERSITY

## イノベーション・ジャパン 2019

学長 佐藤 光史

2018 年度版研究活動報告書の発刊に当たり、研究に取り組んだ教員と支援頂いたすべての教職員と協力者に感謝いたします。高等教育機関の特徴は、学生教育や社会貢献に際して、基礎となる研究や調査などが重要なことは論を待ちません。また研究者にとって、教育自体に関わる研究も含め、興味をもつ課題について研究し、問題を解決することは、最も人間的な輝きを放つ喜びの一つです。もちろん、論文として研究成果を公開することまでが義務のプロフェッショナルは、その成果が未来永劫に渡って引用の対象であることに責任をもつ必要があります。成果物が建築物などの場合には、常に広く公開されています。このように、分野によって公開の方法や内容は異なっても、公器としての教育機関が「公開の原則」を大切にするのは当然です。

そのような研究公開の一つの場である表題イベントの正式名称は、「イノベーション・ジャパン 2019～大学見本市&ビジネスマッチング～」です。16 回目となる本年は、8 月 29 日、30 日の両日、東京ビッグサイト青海展示棟で開催されます。主催者は国立研究開発法人の科学技術振興機構（JST）と新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）で、文部科学省と経済産業省の共催事業です。JST は、『イノベーション・ジャパンは、大学等から創出された研究成果の社会還元を促進するため、技術移転並びに産学連携への端緒となるものとして産業界に対して大学等の研究成果の内容を成果物やパネル等で紹介する JST の「大学見市」、及び NEDO 事業に関わる支援先企業、大学等の研究開発成果の実用化及び事業化を支援するため「ビジネスマッチング」の 2 つからなる、国内最大規模のイベント』として概要を説明しています。

昨年までの当該イベントで実績を積んできた本学は、今年の採択件数 27 件で**全国大学中トップ**になりました。この採択件数は前年比 2.2 倍で、驚異的に高い採択率 48% も前年から 1.2 倍に伸張しました。2 位大学の採択数は 22 で 5 件離れており、昨年 1 件違いの採択数でトップを逃したことを考えると、多くの教員による応募と質の向上の双方が功を奏したことが分かります。結果として、全採択数 403 件に占める本学の割合は 6.7% と上昇し、対前年比 2.2 倍です。採択された分野は 9 分野で、全 11 分野中 6 分野のみが採択された前年からこれも広がりを見せました。

イノベーション・ジャパンは、建学の精神である「社会・産業と最先端の学問を幅広くつなぐ『工』の精神」を具現化するために絶好の一機会です。また、多くの企業人に研究成果を直接説明する学生たちにとっても、教育実践の場として有用です。本報告書やこれらイベントが本学の存在感を示すと共に、社会・産業と実質的な連携へと発展する礎となることを大いに期待しています。

## 令和の時代に向けて

総合研究所 所長 鷹野 一朗

平成 28 年度に開始された「第 5 期科学技術基本計画」は、令和元年から計画の後半期に入りました。特に平成 30 年度からは「Society 5.0 実現化研究拠点支援事業」を開始し、Society 5.0 の実証や課題解決の先端中核拠点として、大学等における情報科学技術を核にイノベーションを先導する取組が始まっています。さらに、次期科学技術基本計画に関する検討も開始されているようです。

本学総合研究所でも、従来の研究費配分に関して議論を行い、改善に向けた検討を始めしております。それらを含めた平成 31 年度の状況について紹介いたします。

総合研究所は平成 31 年度プロジェクト研究費配分（新規応募課題 12 件、採択課題 5 件、継続課題 9 件）を決定しました。新規採択課題の種類としては、一般プロジェクト研究 2 件、協定・覚書締結機関の共同研究者との大学間連携プロジェクト研究 2 件、海外の機関に所属の共同研究者との国際プロジェクト研究 B が 1 件となり、継続分も含めるとそれぞれ 7 件、3 件、4 件となっており比較的バランスのとれた配分となっております。しかしながら、今後の課題として、協定・覚書を締結している海外機関に所属の共同研究者との国際プロジェクト研究 A での応募がこれまで 0 件であることや、新しい課題を掲げた研究グループの応募が少ないことが挙げられます。今後は総合研究所として特定テーマを提示するなどし、若手研究者や学内の異分野融合による新規研究グループの立ち上げを誘導する施策を考えたいと思います。次に、外部資金導入の根幹を成す平成 31 年度の科研費申請件数は、平成 30 年度から微減し 113 件で、新規と継続を合わせた科研費申請件数は 155 件、申請率 73.9% でこれも微減となりました。科学研究費採択奨励研究費については、平成 30 年度より評価方法を変更しました。申請分野ごとの差をなくすため、一律の評価点採用方式から、申請分野内での評価方式に変更し、平成 30 年度は 72 名に研究費を配分しました。さらに、総合研究所が重視するイノベーション・ジャパンなどの展示会への出展者 15 名に対して奨励金交付を開始しました。本学からの情報発信では、「JST 技術説明会」「りそな技術懇親会」「たましん技術説明会」「諏訪圏工業メッセ」「テクノトランスファー in かわさき」「第 8 回おた研究・開発フェア」「日中大学フェア（広州）」などの継続出展に加え、「イノベーション・ジャパン 2019」では、27 件の研究テーマが採択されました。

本学はブランドランキングなどで社会から高い評価を頂いており、令和となっても引き続き研究力を高めていきます。そのためには研究支援を怠ることなく、様々な要求に応えられるよう体制を整えたいと考えております。

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ますとともに、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（2018年度研究終了）		
・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	3
・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 —閉眼眼電位による意図伝達インターフェース—	責任者 田中 久弥	16
・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	26
・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	36
・光充電型リチウムイオン電池の高容量化と全固相化（Ⅲ）	責任者 永井 裕己	49
・耳小骨検査の正診率を向上させる検査方法及びデータ解析方法の確立	責任者 向井 正和	59
2. 総合研究所プロジェクト研究報告（2019年度継続研究）		
・革新的金属基圧電複合材料の創製と特性設計手法構築	責任者 柳迫 徹郎	69
・均質化とトポロジー最適化を援用した多孔質吸音材微視構造設計法の構築	責任者 山本 崇史	75
・体性感覚と視聴覚刺激を組み合わせた行動誘発メカニズムに関する基礎検討	責任者 近藤 公久	87
・Ⅲ族酸化物半導体を用いた深紫外線センサーの開発	責任者 尾沼 猛儀	97
・大型蓄電池の新しい設置形態を実現する複相電解質を用いた全固体電池開発	責任者 関 志朗	104
・ガラスナノピペットのガスフローコンダクタンスの研究	責任者 高見 知秀	108
・キチン・キトサン・哺乳類キチナーゼの医薬工領域への新展開	責任者 小山 文隆	116
・固有ひずみ理論とX線回折を用いた摩擦攪拌接合継手に対する3次元残留応力の非破壊評価	責任者 小川 雅	123
・拡張ヒッグスセクターを伴う新物理学模型とその現象論的性質の探究	責任者 進藤 哲央	131



### 3. 総合研究所科学研究費採択奨励研究報告（2018年度）

・光化学反応による Cu/CNT 微細配線の形成	永井 裕己	137
・高齢者に対する自重での伸張性筋活動を主とした筋力トレーニングの効果	桂 良寛	138
・背面処理に基づいたカードベース暗号	真鍋 義文	139
・拡張複合ヒッグスセクターをともなう新物理学モデルの現象論的性質	進藤 哲央	140
・対話システムにおける対話破綻のメディア依存効果に基づくマルチモーダル行動デザイン	大和 淳司	141
・増大するノード内並列性を活かすタスク並列型代数的多重格子法	藤井 昭宏	142
・原始惑星系円盤における詳細構造の研究	武藤 恭之	143
・テキスタイル電極による発汗状態のモニタ技術の開発	福岡 豊	144
・カロテノイド蓄積を指標とする二次代謝産物生合成の制御機構の解明	油井 信弘	145
・表面微細構造の異方性を利用した液滴輸送の研究	鈴木 健司	146
・Brain-Computer Interface を活用した新しい認知機能評価	田中 久弥	147
・非線形音場中に浮遊する多成分液滴の物質輸送現象	長谷川浩司	148
・ナノファイバ繊維層を担持した新たな空気清浄用フィルタ材の開発	中山 良一	149
・プラズマアクチュエータの形状配置・駆動方法の多元的工夫に基づく高性能剥離制御技術	佐藤 允	150
・革新的低比誘電率水系電解液の実現と次世代リチウムイオン電池の創製	関 志朗	151
・近代東アジアにおける探偵小説の翻訳ディスクールをめぐる文化研究	吉田 司雄	152
・マイクロ流体デバイス研究のための基盤構築	金田 祥平	153

## 2019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	坂本 哲夫 (応用物理学科 教授)
先進工学部 (機理) 互選	中島 幸雄 (機械理工学科 教授)
工学部 (機械・機シス) 互選	伊藤慎一郎 (機械工学科 教授)
工学部 (電気電子) 互選	於保 英作 (電気電子工学科 教授)
建築学部 互選	山下 哲郎 (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	高見 知秀 (基礎・教養科 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)
共生工学研究センター長	長澤 泰 (総合研究所 特任教授)

## 2018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2018年度
<b>・ 2018年度研究終了</b>		
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 —閉眼眼電位による意図伝達インターフェース—	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相化（Ⅲ）	永井 裕己	応用物理学科 准教授
耳小骨検査の正診率を向上させる検査方法及びデータ解析方法の確立	向井 正和	電気電子工学科 准教授
<b>・ 2019年度継続研究</b>		
革新的金属基圧電複合材料の創製と特性設計手法構築	柳迫 徹郎	機械工学科 助教
均質化とトポロジー最適化を援用した多孔質吸音材微視構造設計法の構築	山本 崇史	機械工学科 准教授
体性感覚と視聴覚刺激を組み合わせた行動誘発メカニズムに関する基礎検討	近藤 公久	情報デザイン学科 教授
Ⅲ族酸化物半導体を用いた深紫外線センサーの開発	尾沼 猛儀	応用物理学科 准教授
大型蓄電池の新しい設置形態を実現する複相電解質を用いた全固体電池開発	関 志朗	環境化学科 准教授
ガラスナノピペットのガスフローコンダクタンスの研究	高見 知秀	基礎・教養科 教授
キチン・キトサン・哺乳類キチナーゼの医薬工領域への新展開	小山 文隆	生命化学科 教授
固有ひずみ理論とX線回折を用いた摩擦攪拌接合継手に対する3次元残留応力の非破壊評価	小川 雅	機械システム工学科 助教
拡張ヒッグスセクターを伴う新物理学模型とその現象論的性質の探究	進藤 哲央	基礎・教養科 教授

(科学研究費採択奨励研究)

研 究 課 題	研究者	所属学科・職名は 2018 年度
光化学反応による Cu/CNT 微細配線の形成	永井 裕己	応用物理学科 准教授
高齢者に対する自重での伸張性筋活動を主とした筋力トレーニングの効果	桂 良寛	保健体育科 准教授
背面処理に基づいたカードベース暗号	真鍋 義文	システム数理学科 教授
拡張複合ヒッグスセクターをともなう新物理学模型の現象論的性質	進藤 哲央	基礎・教養科 教授
対話システムにおける対話破綻のメディア依存効果に基づくマルチモーダル行動デザイン	大和 淳司	システム数理学科 教授
増大するノード内並列性を活かすタスク並列型代数的多重格子法	藤井 昭宏	コンピュータ科学科 准教授
原始惑星系円盤における詳細構造の研究	武藤 恭之	基礎・教養科 准教授
テキスタイル電極による発汗状態のモニタ技術の開発	福岡 豊	電気電子工学科 教授
カロテノイド蓄積を指標とする二次代謝産物生合成の制御機構の解明	油井 信弘	生命化学科 准教授
表面微細構造の異方性を利用した液滴輸送の研究	鈴木 健司	機械システム工学科 教授
Brain-Computer Interface を活用した新しい認知機能評価	田中 久弥	コンピュータ科学科 教授
非線形音場中に浮遊する多成分液滴の物質輸送現象	長谷川浩司	機械工学科 准教授
ナノファイバ繊維層を担持した新たな空気清浄用フィルタ材の開発	中山 良一	環境化学科 助教
プラズマアクチュエータの形状配置・駆動方法の多元的工夫に基づく高性能剥離制御技術	佐藤 允	機械理工学科 准教授
革新的低比誘電率水系電解液の実現と次世代リチウムイオン電池の創製	関 志朗	環境化学科 准教授
近代東アジアにおける探偵小説の翻訳ディスクールをめぐる文化研究	吉田 司雄	国際キャリア科 教授
マイクロ流体デバイス研究のための基盤構築	金田 祥平	機械システム工学科 助教



# 1. 総合研究所プロジェクト研究報告

(2018年度研究終了)



# 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

東電設計（工学院大学・大学院建築学専攻・博士課程） 田中信也

JR 東日本（工学院大学・大学院建築学専攻・修了） 中西真子

## Study on Strong Ground Motion Prediction Method 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  
Shinya Tanaka, Tokyo Electric Power Services Co., Ltd.  
Mako Nakanisi, East Japan Railway Company

**ABSTRACT** : We carried out two studies during this project: 1) Proposal for a new procedure for evaluating the parameters of characterized fault model for predicting long-period ground motions containing permanent displacement in the near-fault region, and 2) Study on cost effectiveness by damping reinforcement using risk assessment method of existing high-rise building.

### 1. はじめに

本研究では、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時の強震動の特性の調査結果をもとに、はじめに地表地震断層近傍における永久変位を含む長周期成分の地震動評価が可能な震源断層モデルの設定方法を提案した<sup>1)</sup>。次に既存の超高層建築を対象として、過酷な入力地震動を考慮した最新の強震動地震学の成果と地震リスク評価手法を用いた制振補強効果の費用対効果を評価した<sup>2)</sup>。

### 2. 地表地震断層近傍における永久変位を含む長周期成分の地震動評価のための震源モデルの設定手法の開発<sup>1)</sup>

#### 2. 1 地震発生層以浅におけるすべり速度時間関数とすべり分布

強震動予測手法として「強震動予測レシピ」<sup>3)</sup>が現在では標準的な手法として使用されているが、Fig. 1 に示すように、その震源モデルは深さ数 km より深い地震発生層を対象としている。2016 年熊本地震などでは地表地震断層が出現し、その極近傍ではフリリングステップ/パル

ス（長周期パルス）が観測された。長周期パルスは地震発生層よりも浅い部分の震源をモデル化する必要がある。そこで本研究では、まず地震発生層以浅におけるすべり速度時間関数とすべり分布に関するモデルを構築し、次にその手法を 2016 年熊本地震の地表地震断層ごく近傍の強震記録に適用し、その手法の妥当性を検証する。

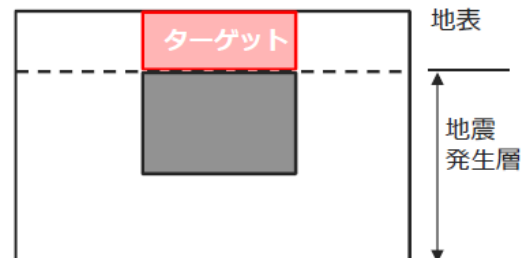


Fig.1 The seismicogenic layer and its shallower region generating “long-period pulse”

既往のインバージョン結果を収集結果より、Fig. 2 に示すように地震発生層以浅におけるすべり速度時間関数の経験式を求めた<sup>4)</sup>。すなわち、地表地震断層近傍の強震記録を逆解析の対象としている 1992 年ランダース地



震 (MW7.3)、1999 年集集地震 (MW7.7)、2014 年長野県北部の地震、及び 2016 年熊本地震を対象に、田中・他 (2017) と同様の方法で、震源インバージョン解析から得られた地震発生層以浅におけるすべり速度時間関数を、規格化 Yoffe 関数でモデル化した。規格化 Yoffe 関数<sup>5)</sup>は、すべり量  $D$ 、最大すべり速度の時刻に関連する時間  $\tau_s$ 、及びライズタイムに関連する時間  $\tau_R$  を設定する必要がある。本研究では、すべり量は対象とした小断層の平均的なすべり量とし、 $\tau_s$  と  $\tau_R$  は震源インバージョン結果との対応、及び観測記録の再現性を考慮して設定した。ただし、震源インバージョン解析から得られた地震発生層以浅のすべり速度時間関数は、多くの場合小断層によってその形状は異なる。特に近傍に観測点がない小断層は、計算波形に対する寄与が小さいことから、震源インバージョン解析における感度が低く、得られたすべり速度時間関数の精度が低い可能性が考えられる。そこで、本研究では地表地震断層近傍に位置する観測点周辺の地震発生層以浅の小断層を対象にすべり速度時間関数のモデル化を行った。なお、一般的に、震源インバージョン解析では数 km の長さ及び幅を持つ小断層を点震源で近似しているために、得られるすべり速度時間関数が純粋なすべり速度を表現することにはならない。ただし、永久変位や周期 1~2 秒程度以上の長周期成分の評価を目的とする場合、近似的にすべり速度時間関数と見なして大きな問題がないことを確認している。

の方法に基づきアスペリティを抽出している。本研究では、Kagawa et al. (2004)<sup>6)</sup>と同様に、収集した過去の震源インバージョン結果から、地震発生層以浅と地震発生層内でそれぞれアスペリティを抽出し、その形状とすべり量について分析を行った。その結果、連続しているアスペリティの長さとしべり量は、地震発生層内と地震発生層以浅とで比較するとほぼ 1 となり、同程度となることが分かった。この結果を踏まえ、地震発生層以浅と地震発生層内のアスペリティの長さとしべり量に大きな違いはないと仮定して地震発生層以浅の震源モデルを構築する。

## 2. 2 2016 年熊本地震での断層ごく近傍の強震動への適用

2016 年熊本地震を対象として、前節で整理した地震発生層内と地震発生層以浅のパラメータの関係を用いて、Table 1 と Fig. 3 に示すように、強震動レシピに基づく震源断層モデルを地震発生層以浅に拡張する。さらに、地表地震断層近傍において波数積分法<sup>8)</sup>による地震動評価を行い、設定した震源断層モデルの妥当性を確認する。

まず、地震発生層内の震源モデルは、強震動レシピに基づき震源断層モデルを設定する。地震発生層上端深さは余震分布を参考に 3km と仮定する。地震発生層下端深さは引間 (2016)<sup>9)</sup>を参考に 19km とし、巨視的断層面の形状とアスペリティ位置についても引間 (2016)<sup>9)</sup>をより設定する。すべり速度時間関数は、強震動レシピに基づき中村・宮武 (2000)<sup>10)</sup>による関数を用いる。

次に、前節の結果を用いて、地震発生層内に設定した上記の震源断層モデルを地震発生層以浅に拡張する。地震発生層以浅のすべり分布について、地表断層地震 (断層破壊が地表に及ぶ地震) を想定する場合、地震発生層内のアスペリティと同じ長さ及びすべり量を持つアスペリティを地震発生層以浅に設定し、その他の領域は背景領域と同じすべり量を設定する。地中断層地震 (断層破壊が地表に及ばない地震、あるいは地表の変位が小さい場合) を想定する場合、背景領域と同じすべり量を地震発生層以浅の全面に設定する。ここでは、北側の布田川断層については地表断層地震を、南側の日奈久断層については地中地震断層を仮定する。地震発生層以浅のすべり速度時間関数は、規格化 Yoffe 関数<sup>5)</sup>を用いし、 $\tau_s$  と  $\tau_R$  は Fig. 2 の回帰式を用いる。具体的なモデルとして次の 3 つのモデルを設定する。

Model-01: すべり速度時間関数の立ち上がり時間に関して、引間 (2016)<sup>9)</sup>による震源インバージョン結果では、破壊開始点付近の立ち上がり時間は約 2 秒遅れている。この結果を踏まえ、地震発生層内のすべりの立ち上がり時間は 1.8 秒遅らせるように設定した。これは、すべり速度時間関数の最大すべり速度に達する時間が地震発生層内と地震発生層以浅でほぼ同時刻となる保守的な設定である。設定した震源断層モデルをここでは基本震源モデルと位置付け、Model-01 とする。

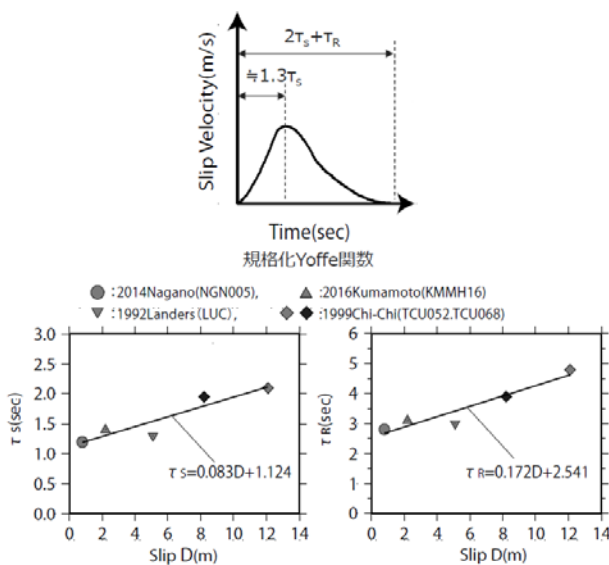


Fig.2 The Yoffe-type slip velocity functions modified (top), and the relations between the slip and the parameters of the functions (bottom)

次に、地震発生層内と地震発生層以浅のすべり量の関係を導く。すなわち前節で示したすべり速度時間関数に関する回帰式を用いるためには、地震発生層以浅のすべり量を設定する必要がある。Kagawa et al. (2004)<sup>6)</sup>では、既往の震源インバージョン結果から、深さ 5km を境界として、浅部と深部でそれぞれ Somerville et al. (1999)<sup>7)</sup>

Table 1 Source parameters of constructed characterized source model for the 2016 Kumamoto earthquake

	Parameters	Model-01 (Basic model)	Model-02	Model-03
the Seismogenic Layer	Size (Length×Width)	32km×20km(Futagawa) 12km×20km(Hinagu)		Same as the left column and 13km×10km(Idenoguchi)
	Strike	233° (Futagawa), 193° (Hinagu)		Same as the left column and 231° (Idenoguchi)
	Dip	75° (Futagawa), 78° (Hinagu)		Same as the left column and 65° (Idenoguchi)
	Rake	-160°		Same as the left column and 110° (Idenoguchi)
	Moment	3.1×10 <sup>19</sup> Nm		4.0×10 <sup>19</sup> Nm
Shallower Region than the Seismogenic Layer	Slip	Recipe×1.0	Recipe×1.4(asperity)	Recipe×1.0
	Rake	-160°	135°	-160°
	Slip velocity function	the regularized Yoffe $\tau_S=1.4s, \tau_R=3.1s$	the regularized Yoffe $\tau_S=0.7s, \tau_R=1.6s$	the regularized Yoffe $\tau_S=1.4s, \tau_R=3.1s$

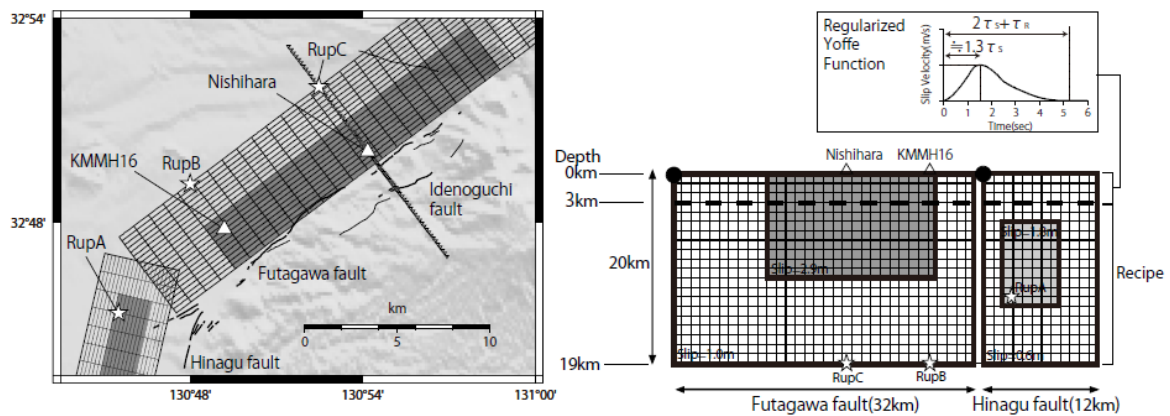


Fig.3 Characterized source model (Model-01) with elevation, rupture starting point(☆), active faults (bold line: active fault trace, thin line: active faults estimated), strong motion stations(△), and points orthogonal to the Futagawa fault through Nishihara Village(▽)

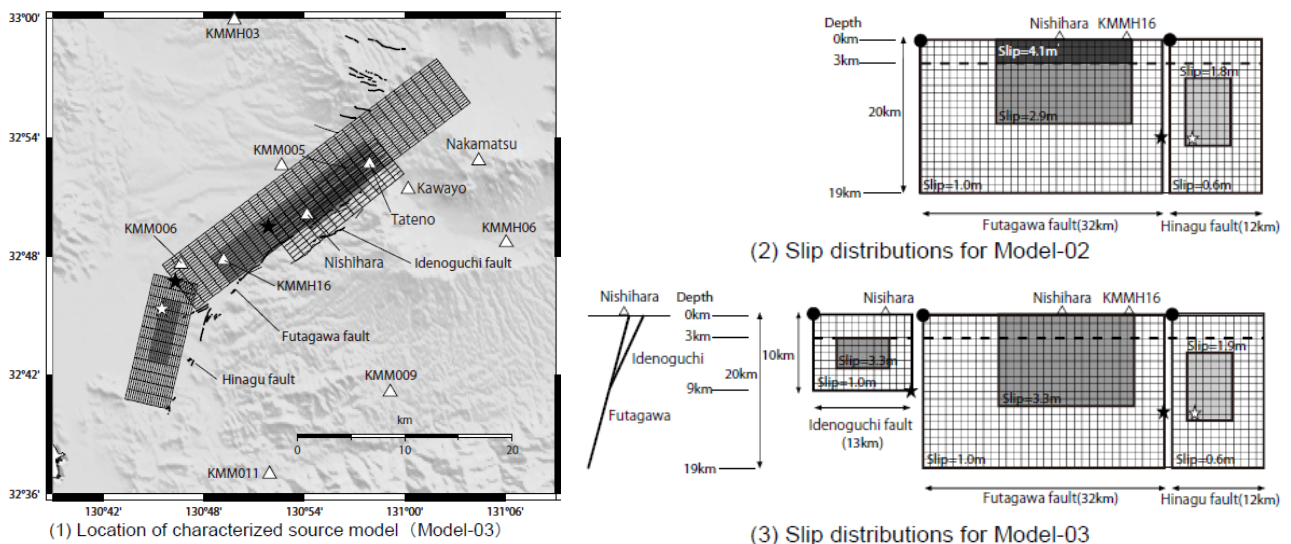


Fig.4 Characterized source model (Model-02 and Model-03) with elevation, active faults(27) (bold lines: active fault traces, thin lines: estimated active faults), triangles: strong motion stations

Model-02: Fig. 5 示すように Model-01 を用いて断層近傍の強震記録(西原波)との比較を行った結果、長周期パルスを過小評価することが明らかになった。そこで Table1、および、Fig. 4(2)に示すように、Model-02 とし

て、地震発生層以浅のアスペリティーのすべり量を 1.4 倍に増大させ、4.1m とし、すべり角は正断層成分を考慮した $-135^\circ$ 、すべり速度時間関数は  $\tau_S$ 、 $\tau_R$  とともに Model-01 の半分とした。

Model-03：次の改良モデルはFig. 4に示すように、熊本地震で出現した出ノ口断層を追加するモデルである。出ノ口断層の巨視的断層面は、Himematsu and Furuya (2006)<sup>11)</sup>を参考に設定した。断層面積が大きくなるため、結果的にすべり量とアスペリティ面積はModel-01よりもやや大きくなる。なお、出ノ口断層の破壊伝播速度は試行錯誤的に3.0km/sと強震動レシピよりも大きい値を設定した。引間 (2016)<sup>9)</sup>によれば、設定した出ノ口断層付近で局所的に3.2km/s程度の破壊伝播速度であった可能性を指摘しており、本研究でもこれと近い値が得られている。設定した修正モデルの諸元をTable 1に、断層面とすべり分布をFig. 4(3)に示す。

Fig. 5に、断層ごく近傍であるKiK-net 益城と西原の強震観測記録を対象として、Model-01を用いた波数積分法による周期1秒以上の速度・変位波形と強震観測記録との結果を示す。図中、FPは断層走行に並行、FNは同直交、UDは上下の各成分である。ちなみに破壊開始点に関しては、各観測点の下の断層下端部から破壊させている。図より地表地震断層から約2km程度離れたKiK-net 益城では計算波形は観測記録を非常によく再現しているが、地表断層から約0.7kmと非常に近い西原ではFP成分の速度パルスや、FN成分や特にUD成分のフリグステップ(永久変位)を過小評価している。

次にFig. 6に、西原波を対象として、Model-02とModel-03を用いた計算結果と観測記録との比較を示す。どちらのモデルでもModel-01での結果を改善し、観測記録を非常に良く再現している。ちなみに波形改善の理由は両者では異なり、Model-02では布田川断層の浅部からのフリグステップ/パルスにより、一方、Model-03では出ノ口断層の地震発生層中のアスペリティからの指向性パルスが、それぞれ寄与している。

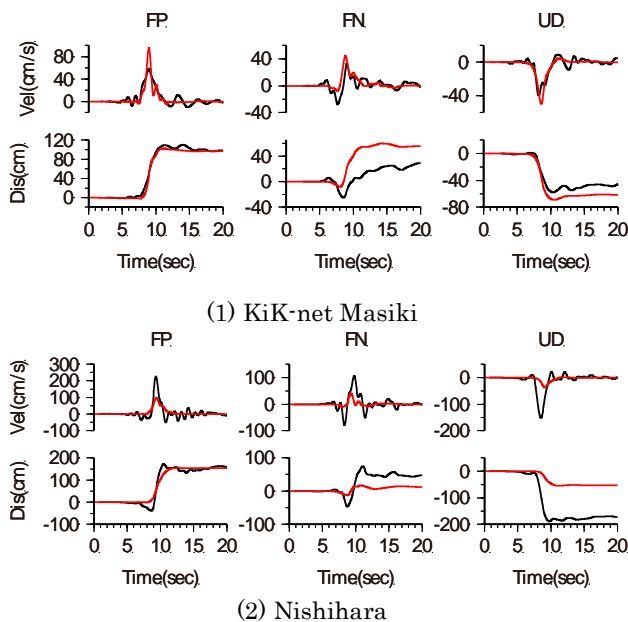


Fig.5 Comparisons of velocities and displacements between the strong motion records (black) and the simulations using Model-01 (red).

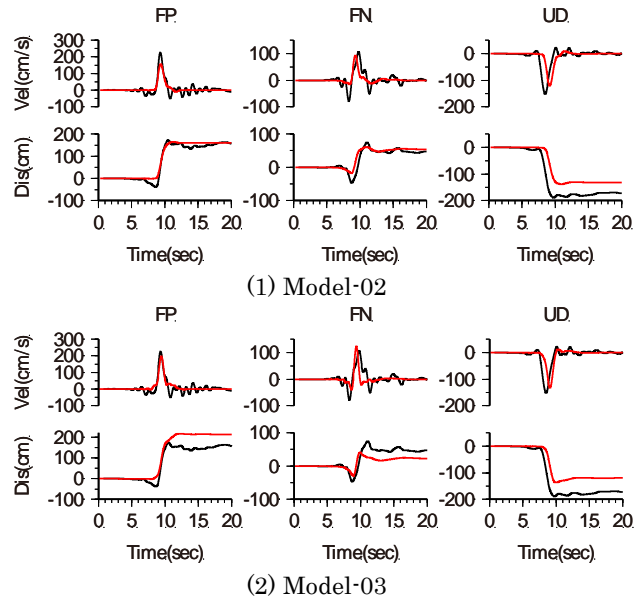


Fig.6 Comparisons of velocities and displacements between the strong motion records (black) and the simulations using Model-02 and 03 (red) at Nishihara.

Fig. 7と8は、その他の強震観測点におけるModel-02とModel-03を用いた計算結果と観測記録との比較であるが、両者とも観測記録をよく再現しており、大きな違いは見られない。

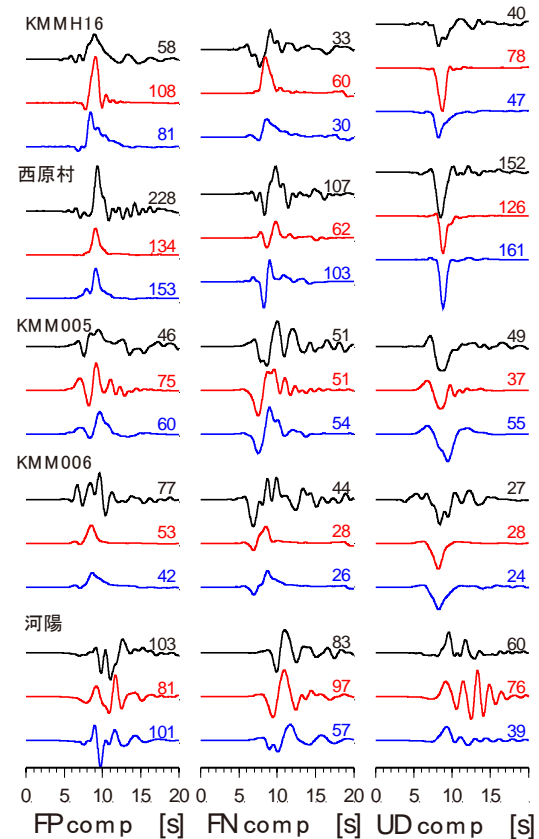


Fig.7 Comparisons of velocities among the strong motion records (black) and the simulations using Model-01 (red) and Model-02 (blue).



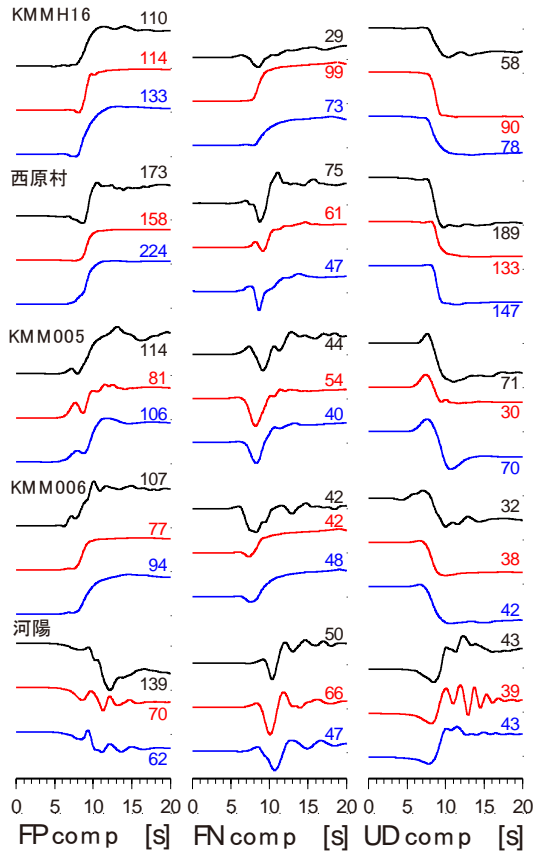
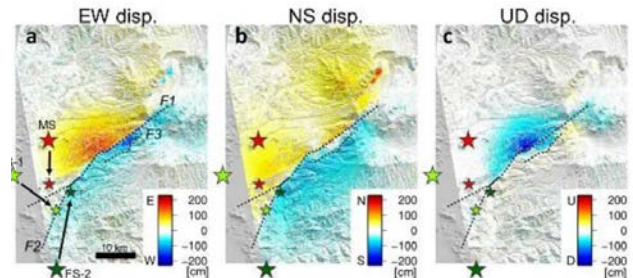


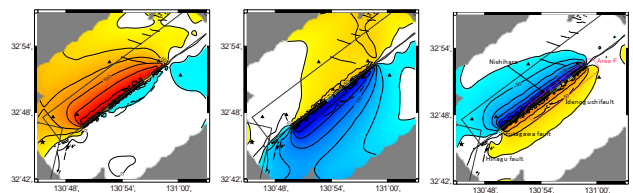
Fig.8 Comparisons of displacements among the strong motion records (black) and the simulations using Model-01 (red) and Model-02 (blue).

最後に2つの震源断層モデルのいずれか妥当か考察を行う。まず、Model-02で設定した地震発生層以浅における4.1mというすべり量は、活断層調査結果から確認できる水平方向の最大値2.2mよりも有意に大きい。次に、すべり速度時間関数に関して、 $\tau_s$ の0.7秒は前節で示した過去の地震からモデル化される値よりも明らかに短い。さらに、波数積分法により求めた最終的な変位の面的分布をFig.9に示す。この評価では定性的な傾向を比較することを目的として半無限一様地盤を仮定する。ここでは、布田川断層と出ノ口断層の地表断層に挟まれた領域(Fig.9のArea-F)に着目する。合成開口レーダーによる2016年熊本地震前後の地表変動<sup>11)</sup>によればUD成分は沈降となるが、Model-02は隆起している。一方、Model-03では沈降する傾向が再現できる。また、NS成分に関しても、Model-02ではこの領域が最大の変位になるのに対して、Model-03では周辺よりやや小さくなっており、観測の傾向を定性的に再現できている。以上の比較から、Model-03がより現実に近いモデルと考えられる。Model-03は、出ノ口断層の破壊伝播速度を修正しているものの、強震動レシペを基本に、本研究の成果を用いて地震発生層以浅に拡張したモデルであり、出ノ口断層を考慮した正確な巨視的断層面が設定できれば、地表地震断層近傍の永久変位を含む広域の観測記録をある程度予測することが可能であることを示している。また、出ノ

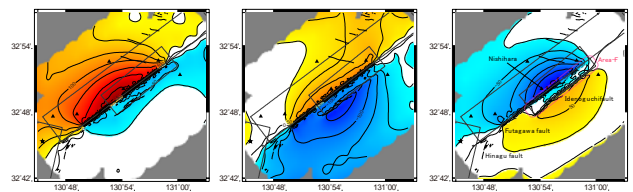
口断層を考慮していないModel-01が西原村において過小評価となることは、地表地震断層近傍における地震動評価では、巨視的断層面の設定が非常に重要であり、評価地点に最も近い断層を考慮したとしても放射特性の影響により振幅がほとんど出ない場合もあり得ることを示している。



(1) Observation (ALOS-2/PALSAR-2)



(2) Model-02



(3) Model-03

Fig.9 Comparisons of permanent distributions caused among (1) the observation from InSAR (black), and the simulations using (2) Model-02 and Model-03 (left: NS, center: EW, right: UD)

### 3. 既存超高層建築のリスク評価手法を用いた制振補強による費用対効果の評価<sup>2)</sup>

#### 3.1 損傷費用期待値の算出

近年、超高層建築には従来のL1、L2地震動に加え、最大級地震動を想定し、余裕度を見込んだL3地震動を考慮した耐震性能の評価が求められている<sup>12)</sup>。また、米国では超高層建築などの重要施設に関して、リスク評価手法とレジリエンスベースドデザインの考えを取り入れ、安全性能だけでなく経済・復旧性能の面から優良な建物の耐震性能を総合的に評価する制度が始まっている<sup>13), 14)</sup>。本研究では、東京都心部に実在する既存超高層建築(工学院大学新宿校舎<sup>15)</sup>)を対象にL1~L3地震による設計クライテリアを設定し、現有の非制振の建物と、ダンパーを付加した補強案による建物の地震応答解析を実施し、比較検討を行った。

28階鉄骨造の工学院大学新宿校舎を対象として、次式より損傷費用期待値 $E[C_D]$ を算出する<sup>16), 17)</sup>。

$E[C_D] = P[Safe]E[C_D|Safe] + P[Fail]E[C_D|Fail]$  (1)

ここで式中の  $P[Safe]$ ,  $E[C_D|Safe]$  はそれぞれ、建物が修理可能な場合の確率と損傷費用期待値、一方、 $P[Fail]$ ,  $E[C_D|Fail]$  は建物が修理不可能な場合の確率と損傷費用期待値である。 $P[Safe]$ ,  $P[Fail]$  は Fig. 10 のように fragility 曲線により定め、いずれかの層の構造部材の損傷状態が大破に達したら建物全体が修理不可能とする。なお、結果のバラツキを考慮するために、複数サンプルの  $E[C_D]$  を算出し、それらを平均化して損傷費用期待値を評価する。

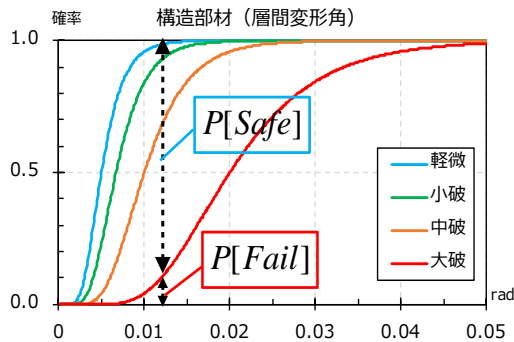


Fig.10 Fragility curve for the relationship between the interstory drift ratio and the degree of damage, and the evaluation method of repairable / impossible probability

修理可能な損傷費用は次式に示すように建物・収容物の直接被害と、収益損失による間接被害より評価する<sup>16), 17)</sup>。

$$C_D = C_{\text{建物}} + C_{\text{収容物}} + C_{\text{収益損失}} \quad \dots(2)$$

ここで、 $C_{\text{建物}}$ ,  $C_{\text{収容物}}$ ,  $C_{\text{収益損失}}$  はそれぞれ、建物と収容物の損傷費用、建物復旧期間中の収益損失額である。

修理可能な場合の建物の損傷費用は、確率的リスク評価手法により算出する<sup>16), 17)</sup>。この手法では、入力地震動（複数サンプル）を設定して地震応答解析を行い、各層の応答結果と fragility 曲線から建物の修理・再調達費用を確率的に評価する。すなわち、各層の「損傷状態確率」と対象建物の「修理・再調達費用」、「損傷状態と修理・再調達費用率」の3つを乗じることで各層の損傷費用を算出し、全層の損傷費用を合計し、建物全体の損傷費用を算出する。損傷状態と修理・再調達費用率との関係は文献<sup>16)-19)</sup>を参考に設定した。

修理・再調達費用は文献<sup>16)-19)</sup>を参照し、対象建物の新築工事の請負代金内訳書より設定した（地盤は良好であるため、地下部分は除外し、地上部のみを対象）。「非構造部材（加速度）」は fragility 曲線が最大加速度に依存する部材であり、ここでは天井の代金を各階面積に比例配分させる。一方、「非構造部材（変形）」は層間変形角に依存し、外壁・内壁の代金を各階面積に、「各種設備」は加速度依存として電気設備工事・空調設備工事・給排水衛生設備工事の代金を各階面積に、「構造部材」は地上躯体・鉄骨の代金を各階面積と部材数に応じそれぞれ比例して分布するものとした。なお、各種設備の電気・空

調・給排水衛生設備における設備配管類の被害は、加速度だけでなく変形にも依存する部材であるが、過去の地震では層間変形などに起因すると考えられる被害事例は報告されていない。例えば、文献<sup>18)</sup>に東日本大震災時の設備被害が報告されているが、これらの設備被害は全て建物の最大応答加速度との関係で求められている。よって本研究では各種設備の判定指標を配管類含め、全て加速度に依存するものとした。Fig. 11 に本研究で用いる各費用の金額を階数別の修理・再調達費用を示す。

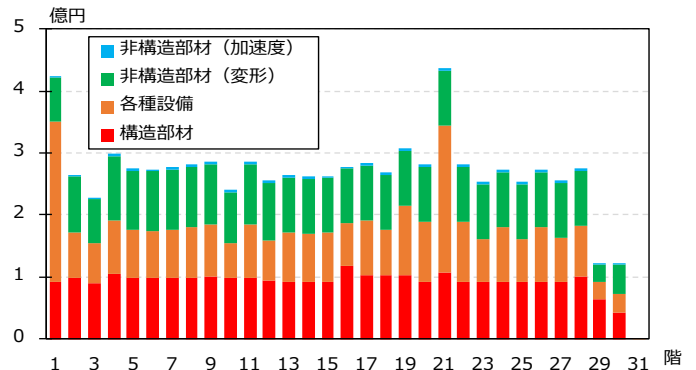


Fig.11 Repair and replacement costs for each floor

本研究ではさらに、高層建築に特有な修理・再調達費用の割増しを考慮する。すなわち、既存の地震時の修理・再調達費用に関する資料で対象としている建物は、住宅や中低層建物で階高は高くても10階程度である。一方、タワーマンションに代表される超高層建築の大規模修繕工事では、一般に15~20階程度を超えると施工方法が大きく異なり、枠組足場ではなく屋上から吊り下げ昇降させるゴンドラや移動昇降式足場が必要となるなど、より高額になる。例えば国土交通省が示す修繕積立の見込み金額は15階建未満のマンションと、20階以上のタワーマンションとを比較したとき、後者が平均で16%ほど高額となる<sup>20)</sup>。以上を踏まえ、得られた修理・再調達費用を2割増した金額を直接費として使用する。

本研究で用いる損傷度別の fragility 曲線を Fig. 12 に示す。文献<sup>13), 16)</sup>を参考として、fragility 曲線を対数正規分布とし、対数中央値は対象建物を用いたプッシュオーバー解析の結果<sup>15)</sup>と、文献<sup>18), 19), 21)</sup>を参考に設定した。さらに各曲線には対数正規分布のバラツキを考慮し、その標準偏差  $\sigma = 0.47$  とした。

修理可能な場合の収容物の損傷費用 ( $C_{\text{収容物}}$ ) を建物の損傷費用 ( $C_{\text{建物}}$ ) と同様の方法で算出する。ここでは文献<sup>16), 17)</sup>と同様に修理・再調達費用は建物と収容物とで同額と仮定し、fragility 曲線は Fig. 12(c) で示す各種設備（加速度）を用いる。また、損傷状態と修理・再調達費用率は文献<sup>16)</sup>に倣う。

修理可能な場合の収益損失額 ( $C_{\text{収益損失}}$ ) は対象建物がオフィスビルであると仮定し、地震被害で生じる修復期間中の使用不可による賃料の収益損失額を用い、式(3)より算出する<sup>16), 17)</sup>。

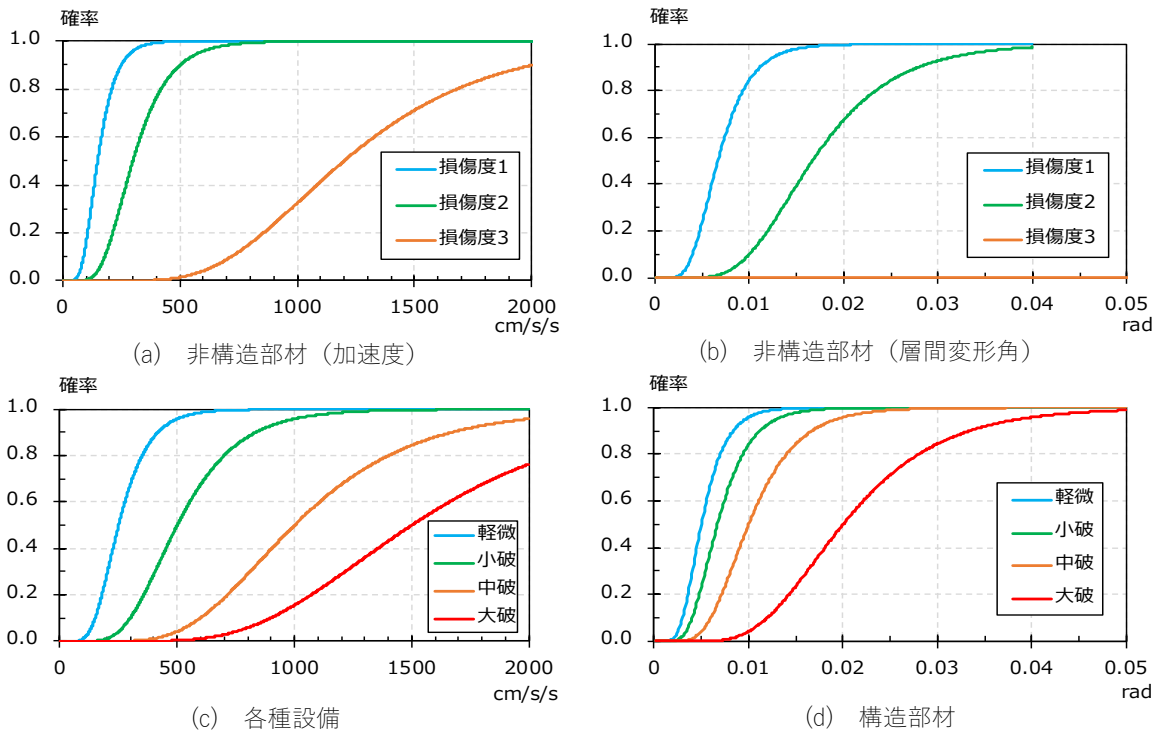


Fig.12 Fragility curves for non-structural and structural members

$$C_{\text{収益損失}} = E_0 \times D_{\text{lost}} \quad \dots(3)$$

ここで、式中の  $E_0$  は平常時一日あたりの収益、 $D_{\text{lost}}$  は建物の損傷による累積損失日数である。収益  $E_0$  は、2019年1月現在の東京・新宿のオフィスビル家賃相場が約3万円/坪平均であり、対象建物の収益面積は約200坪/階で28階建であることから、平常時の一日あたりの売上高  $E_0 = 0.056$  億円/日とする。一方、累積損失日数  $D_{\text{lost}}$  は、損傷比率 DF (Damage Factor = 建物の損傷費用/建物の再調達費用) から文献<sup>17)</sup>を参考値として算出する。ただし、参考値は低層建物を対象としているが、本研究では超高層建物であり、新築施工日数が約2年であることと、震災後の混乱等を考慮し、被災から解体までの期間も約2年と仮定して、DF=100%となる点が1500日(約4年間)となるように設定した。 $D_{\text{lost}} = 6 \times DF$  ( $0 \leq DF \leq 100$ ) であると仮定する。

$$\begin{aligned} D_{\text{lost}} &= 6 \times DF \quad (0 \leq DF < 100) \\ &= 1500 \quad (DF = 100) \end{aligned} \quad \dots(4)$$

修理不可能な場合、建物と収容物を全て再調達すると仮定した。さらに建物修復期間中の収益も損失されるので、損傷費用 ( $E[C_D/Fail]$ ) は、建物の再調達費用+収容物の再調達費用+修復期間(1500日)×売上高  $E_0$  (0.056 億円/日) より算出する。

### 3. 2 応答解析による損傷費用期待値算出

以上の方法により、制振ダンパーによる補強無しの現状モデルと、文献<sup>15)</sup>で作成した制振補強を行ったモデルを用いて損傷費用期待値の比較を行う。

ダンパー補強無しの現状モデル(以下、D00)と、文献<sup>15)</sup>で設定した44本・64本・88本のダンパーで制振補強を行ったモデル(以下、D44、D64、D88)を用いる。D44はL2地震動で層間変形角を1/100以内に抑える基本モデル、また、D64・D88は余裕度を見込んで、それぞれD44の1.5倍・2倍のダンパー本数を有するモデルである。使用するオイルダンパーはBDH型制振オイルダンパーとする。

入力地震動の設定は以下の通りである。既往研究<sup>15)</sup>では、本対象建物では告示波と想定した長周期・長時間地震動とでは最大応答値に大きな差は見受けられなかった。従って本研究では入力地震動として、確率的リスク評価を行うために振幅を告示スペクトルの中央値から変化させ、Jennings型の包絡関数に適合する模擬地震動を、ランダム位相を用いて複数波作成した。地震動レベルは、告示スペクトルによる従来のL1(稀に発生する地震)とL2(L1の5倍、極めて稀に発生する地震)に加え、東京都による構造設計指針<sup>12)</sup>を参考としたL2の1.5倍のL3とした。また、ランダム位相と振幅のパラツキを考慮するため、12種類の乱数を用い、対数正規分布(標準偏差  $\sigma = 0.4$ )で振幅にパラツキを与えた50波を用いて検証を行った。Fig.13にL2地震動を対象とした加速度応答スペクトル( $h=0.05$ )の分布図と、中央値と最小・最大値を示した加速度波形を示す。

以上のモデルと入力地震動を用いて応答解析を行った。事例として、Fig.14にL2地震時の層間変形角の結果を平均値と標準偏差を合わせて示す。ダンパー本数の増加に伴い、最大応答値の低減が確認できる。ダンパーによる応答値の低減効果はD00とD44との間で最も顕著に表



れている。

Fig. 15 に L2 地震の場合の最大層間変形角が最大となる 21 階の全波形 (50 波) の最大応答値と平均、標準偏差と fragility 曲線 (構造部材) との対応を示す。L1 地震動では、全地震波で大破には至らず、修理不可能にはならないが、L2・L3 地震動においては、どの地震動レベルにおいてもダンパー本数の増大に伴い、大破の確率が小さくなり、損傷度レベルが減少する。

損傷費用期待値の算出結果を Fig. 16 に示す。どの地震動レベルにおいても制振補強を行うことで損傷費用期待値が低減している。低減率では L1 地震動が最も顕著に表れており、価格は小さいがどのモデルにおいても D00 から 7~8 割減少している。一方、L2 地震動では 4~6 割、L3 地震動は 2~4 割減少しており、地震動レベルが大きくなるにつれて D00 の結果と比較した低減率は小さくなっている。これは、地震動レベルが大きくなると修復不

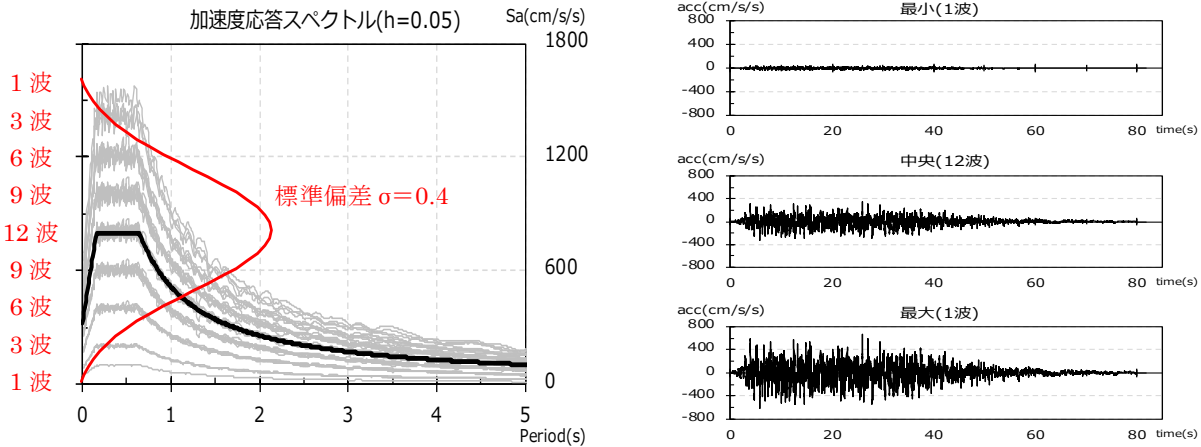


Fig.13 Input ground motion for the L2 earthquake (top: seismic design spectrum and its probabilistic distribution model; bottom: an example of acceleration waveform)

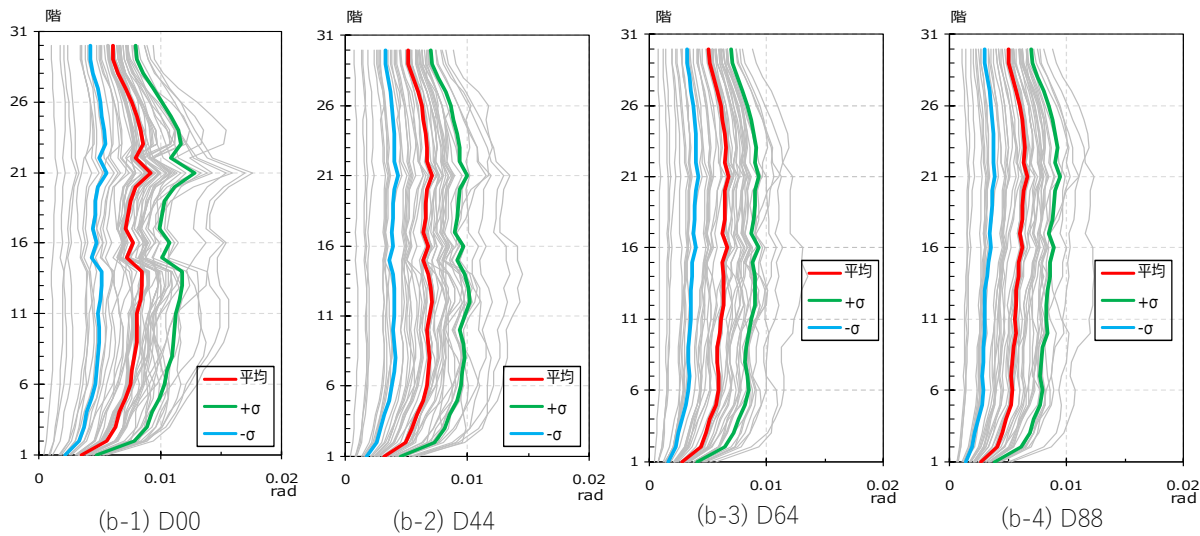


Fig.14 Example of the seismic response of the L2 earthquakes (the interstory drift ratios)

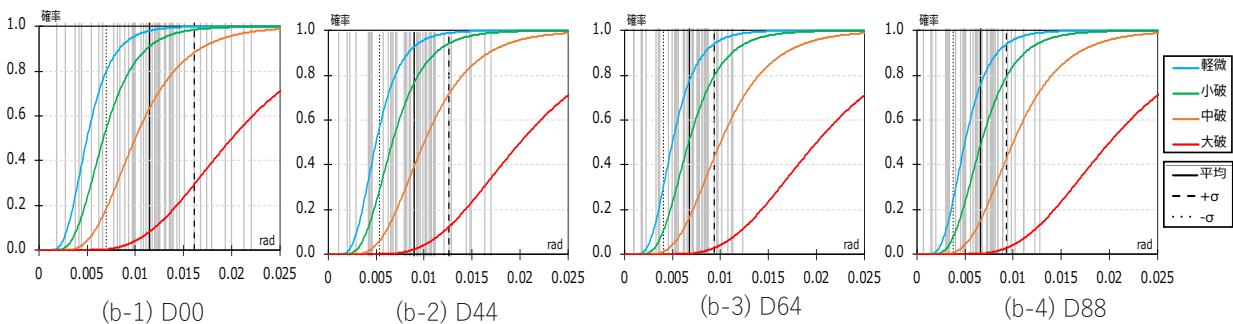


Fig.15 Example of fragility curves for the L2 earthquakes at 21<sup>st</sup> floor

可能な確率が高くなり、ダンパーを付加しても修理不可能な場合が現れて損傷費用が増大するためである。但し、制振化費用をダンパー1基当たり1,000万円と仮定すると、制振化費用を見込んでコスト面で補強のメリットがあることが分かった。D00 から D44 は費用が大きく低減したが、D64・D88 は D44 と比較して大きな低減差は見受けられないことより、今後ダンパー本数を設定する際には、安全性の余裕度とコストのバランスを考える必要がある。

Fig. 17 に修理可能な場合の各損傷費用の内訳を示す。L1 地震動では各種設備や収容物の占める割合が大きい。L2・L3 地震動では構造部材の占める割合が大きい。これはL1 地震動では構造部材(変形)が大破にまで至らないが、L2・L3 地震動になると層間変形角が大きくなり、構造部材(変形)の損傷度レベルが大きくなるためである。また、どのモデルにおいても構造部材のみならず、各種設備や収容物の損傷費用も大きな割合を占めていることから、建物の耐震性能を向上させる手段として、制振補強のみならず設備機器の固定化や非構造部材の耐震対策も合わせて実施することが効果的であると考えられる。

次に建物の供用期間を通じた損傷費用の累積値を考慮し、ライフサイクルコスト(以下、LCC)の視点から制振補強の費用対効果を検討する<sup>17)</sup>。使用する地震発生確率のモデルは、Table 2 に東京都の設計指針<sup>12)</sup>による工学的判断に基づくモデル(以下、工学モデル)を示す。さらに地震学の知見を踏まえた地震動予測地図(地震調査研究推進本部)<sup>22)</sup>による東京都心部(新宿駅西口地域)の地震ハザードを考慮したモデル(以下、地震学モデル)の二つのモデルを用いる。LCC は(5)式に示すように既に得られた損傷費用期待値と地震発生確率から、建物の供用期間と期待 LCC ( $E[C_L]$ ) の関係を算出する<sup>17)</sup>。

$$E[C_L] = C_1 + t_{life} \times \sum_{all\ sources} \sum_{j=1}^K v(L_j) \cdot E[C_D(L_j)] \quad (5)$$

ここで、式(5)の  $E[a]$  は確率変数  $a$  の期待値、 $C_1$  は制振化による初期費用、 $t_{life}$  は建物の供用期間、 $all\ sources$  は文献では用いた全ての震源を指すが、ここでは用いる地震/地震動の種別を意味する。 $C_D(L_j)$  は地震動レベル  $L_j$  の地震に対する損傷費用、 $v(L_j)$  は地震動レベル  $L_j$  の地震の年発生確率である。詳細は文献を参照されたい<sup>2)</sup>。

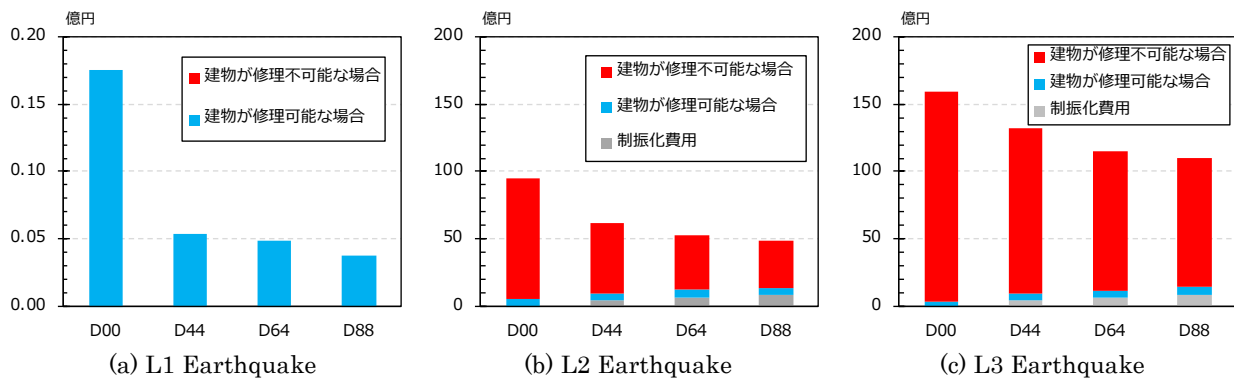


Fig.16 The estimated damage cost for L1-L3 earthquakes (Billion yen)

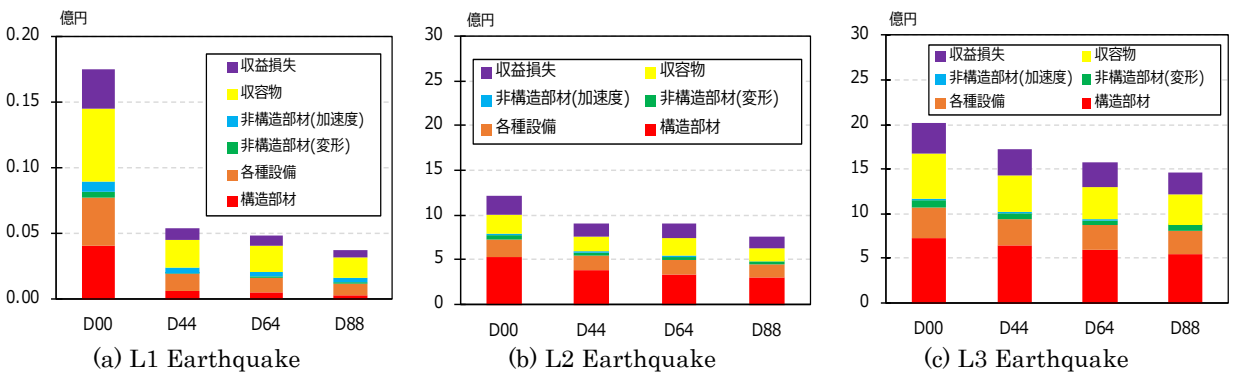


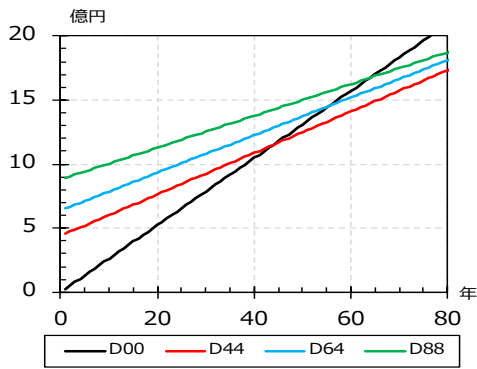
Fig.17 The repairable damage cost for L1-L3 earthquakes (Billion yen)

Table 2 Annual excess probability of L1-L3 earthquake for structural design guideline (City of Tokyo)

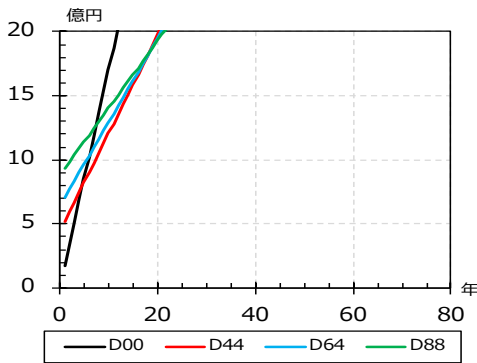
地震動レベル	超過確率	年発生確率	再現期間	入力波最大速度振幅の平均値 ( $\bar{V}_{max}$ )
L1	50年で50%	0.0138	72.6年	8.9cm/s ( $\mu = 2.19$ )
L2	50年で10%	0.0021	475年	44.3cm/s ( $\mu = 3.79$ )
L3	50年で2%	0.000404	2475年	66.5cm/s ( $\mu = 4.20$ )



損傷費用期待値 ( $E[C_D(L_j)]$ ) を評価して、年発生確率 ( $v(L_j)$ ) から供用期間一期待LCCの関係を求める。年発生確率 ( $v(L_j)$ ) のモデルとして、Fig.18に工学モデルと地震学モデルの期待LCCの比較を行った結果を示す。年発生確率 ( $v(L_j)$ ) として地震学モデルではカテゴリー I ~ III を併せた「全地震」を、工学モデルでは「L1+L2+L3」を使用した。工学モデルではL2が、地震学モデルではカテゴリー II の年発生確率の影響が大きい。工学モデルと地震学モデルとで結果が大きく異なっており、工学モデルでは約45年、地震学モデルではわずか5~10年で制振補強モデルがD00の期待LCCを下回った。また約20年以降でD88モデルが最も低い期待LCCとなった。東京都心部での地震発生確率が非常に高く評価されているためである。



(a) Engineering earthquake model (L1+L2+L3)



(b) Seismological earthquake model

Fig.18 Comparison of the life-cycle costs using dampers between Engineering and Seismology earthquake Models

#### 4. おわりに

本研究では、地表地震断層近傍における永久変位を含む長周期成分の地震動評価が可能な震源断層モデルの設定方法を提案し、次に既存の超高層建築を対象として、過酷な入力地震動を考慮した最新の強震動地震学の成果と地震リスク評価手法を用いた制振補強効果の費用対効果の評価した。前者では2016年熊本地震の断層近傍の強震観測記録に適用し、手法の妥当性を確認した。一方、後者では工学院大学新宿校舎での制振補強を事例として、設計用L1-L3地震動による構造・非構造被害、および、

復旧費用を考慮した費用対効果の観点から効率的な制振補強案を検討した。さらに工学的な地震動 (L1-L3) と地震学的ハザードモデルを用いてライフサイクルコストの観点から検討した結果、前者では制振補強による費用対効果が40-60年後に現れるのに対し、後者では東京都心部の非常に高い地震ハザードによるわずか5-10年になるという結果を得た。

謝辞：本研究の一部は総合研究所プロジェクト研究費に加えて、文部科学省科研費 (JP16K06586)、および、文部科学省・私学ブランディング事業「巨大都市・複合災害に対する建築・情報学融合によるエリア防災活動支援技術の開発と社会実装(平成28年~32年度)」の助成を頂いております。また、本研究の作成にあたり、国立研究開発法人 防災科学研究所の J-SHIS のデータを使用させていただきました。

#### 参考文献

- (1) 田中信也, 金田惇平, 引間和人, 久田嘉章: 地表地震断層近傍における永久変位を含む長周期成分の地震動評価のための震源モデルの設定方法、日本建築学会構造系論文集, 第752号, pp. 1525-1535, 2018.
- (2) 中西真子, 久田嘉章, 山下哲郎: 既存超高層建築のリスク評価手法を用いた制振補強による費用対効果に関する研究、日本地震工学会論文集、2019 (投稿中) .
- (3) 地震調査研究推進本部 地震調査委員会: 震源断層を特定した地震の強震、動予測手法 (「レンピ」), 2016-12-09.
- (4) 田中信也ほか2名: 震源インバージョン結果に基づく地震発生層以浅におけるすべり速度時間関数の評価、日本地震工学論文集, 第17巻, 第5号, pp. 1-20, 2017.
- (5) Tinti, E. et al.: A Kinematic Source-Time Function Compatible with Earthquake Dynamics, Bulletin of the Seismological Society of America, Vol. 95, No. 4, pp. 1211-1223, 2005.
- (6) Kagawa, T. et al.: Differences in ground motion and fault rupture process between the surface and buried rupture earthquakes, Earth Planets Space, 56, pp. 3-14, 2004.
- (7) Somerville, P. G. et al.: Characterizing crustal earthquake slip models for the prediction of strong ground motion, Seismological Research Letters, 70, pp. 59-80, 1999.
- (8) Hisada, Y, and J. Bielak, A Theoretical Method for Computing Near-Fault Strong Motions in Layered Half-Space Considering Static Offset due to Surface Faulting, with a Physical Interpretation of Fling Step and Rupture Directivity, Bull. of the Seism. Soc. of America, Vol. 93, No. 3, pp. 1154-1168, June., 2003.
- (9) 引間和人: 強震波形を用いた 2016 年熊本地震の

本震・前震の震源過程解析, 日本地震工学会第12回年次大会梗概集, P 4-17, 2016.

- (10) 中村洋光, 宮武 隆: 断層近傍強震動シミュレーションのための滑り速度時間関数の近似式, 地震第2輯, 第53巻, 第1号, pp. 1-9, 2000.
- (11) Himematsu, Y. and M. Furuya: Fault source model for the 2016 Kumamoto earthquake sequence based on ALOS-2/PALSAR-2 pixel-offset data: evidence for dynamic slip partitioning, Earth, Planets and Space, Vol. 68:196, 2016.
- (12) 東京都財政局: 東京都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, 2018.
- (13) FEMA: Seismic Performance Assessment of Building, FEMA P-58, 2012.
- (14) ARUP: REDiTM Rationg System - Resilience-based Earthquake Design Initiative for the Next Generation of Buildings, 2013.
- (15) 中西真子, 久田嘉章, 山下哲郎, 笠井和彦: 長周期・長時間地震動や活断層近傍の強震動など極大地震動を考慮した都心に建つ既存超高層建築の制振補強に関する研究, 日本地震工学論文集, 第18巻第2号, 2018.
- (16) 高橋雄司, 正木信男, 穴原一範, 五十田博: 地震危険度の高い地域の建物を対象とした地震リスクマネジメント, 日本建築学会構造系論文集 第591号, pp. 25-33, 2005.
- (17) 高橋雄司: 簡易シミュレーションによる建築物の地震リスク分析, 日本建築学会構造工学論文集, Vol150B, 2004.
- (18) 日本建築学会: 長周期地震動と超高層建築の対応策一専門家として知っておきたいこと一, 2003.
- (19) 北村春幸ほか: 性能設計における性能判断基準値に関する研究 時刻歴応答解析に基づく JSCA 耐震性能メニューの検証, 日本建築学会構造系論文集 第576号, pp. 47-57, 2004.
- (20) 国土交通省: マンションの修繕積立金に関するガイドライン, 2011.
- (21) 小泉秀斗, 久田嘉章, 山下哲郎, 坂本有奈利: 振動台を用いたシングルライン天井の天井版落下実験～その2: 天井落下と加速度の関係, 日本建築学会大会学術講演梗概集(北海道)構造I, pp. 1001-1002, 2013
- (22) 地震調査研究推進本部地震調査委員会: 全国地震動予測地図 2018年度版, 2018.

## 【研究成果 (2016～2018 年度)】

### ① 発表論文

- 1) T. Kashima, Y. Hisada, S2HM practice and lessons learned from the 2011 Tohoku Earthquake in Japan, Seismic Structural Health Monitoring, Springer, 2019.3 (著書: 掲載決定)
- 2) 田中信也, 金田惇平, 引間和人, 久田嘉章: 地表地震断層近傍における永久変位を含む長周期成分の地震動評価のための震源モデルの設定方法, 日本建築学会構造系論文集, 752号, pp 1525-1535, 2018.10 (査読あり)
- 3) 中西真子, 久田嘉章, 山下哲郎, 笠井和彦: 長周期・長時間地震動や活断層近傍の強震動など極大地震動を考慮した都心に建つ既存高層建築の制振補強に関する研究, 日本地震工学会論文集, 18巻, pp62-81, 2018.5 (査読あり)
- 4) 田中信也, 引間和人, 久田嘉章: 震源インバージョン結果に基づく地震発生層以浅におけるすべり速度時間関数の評価, 日本地震工学会論文集, 17巻, pp1-20, 2017.11 (査読あり)
- 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, pp. 53-58, 2017.2 (査読あり)
- 6) 久田嘉章: 大地震の際の「逃げる必要のない」安心で丈夫な家, Lifestyle MEMBERS, 渡辺パイプ, pp15-20, 2019 (査読なし)
- 7) 久田嘉章, 首都直下地震と建物対策～逃げる必要のない建物・まちを目指す～, 地域防災, 2019-2/ No. 24, pp. 4-7, 2019.2 (査読なし)
- 8) 久田嘉章, 首都直下地震による住まい・高層建物の想定被害, 日本地震工学会誌, 35号, pp. 16-19, 2018.10 (査読なし)
- 9) 久田嘉章, 地震被害を踏まえた新知識の規基準へのフィードバック, 2018年度日本建築学会大会[東北]構造部門 研究協議会資料「建築構造基準体系の現状と国際動向」, pp. 28-37, 2018.9 (査読なし)
- 10) 久田嘉章, ～震源近傍の強震動～指向性パルスとフリリングステップ～, シリーズ「新・強震動地震学基礎講座(第15回)」, 日本地震学会ニュースレター, 70/ 6, pp. 18-21, 2018.3 (査読なし)
- 11) 久田嘉章, 田中信也, 2016年熊本地震の断層近傍の強震動特性と地表地震断層近傍の建物被害調査, 第45回地盤震動シンポジウム「2016年熊本地震に学び, 将来の強震動予測を考える」, 日本建築学会, 2017.11 (査読なし)
- 12) 久田嘉章, 第7回「数千年に一度の最大級地震に対する建物の対策(その3: 逃げる必要のない建物とまちを目指す)」、NHK そなえる防災, 2017.9 (査読なし)
- 13) 久田嘉章, 震源近傍の強震動、長周期、長時間地震動の特性と建物の耐震対策, 日本振動技術協会 振動技術免震特集, NO. 35, pp. 21-25, 2017.5 (査読なし)
- 14) 久田嘉章, 第6回「第6回 数千年に一度の最大級地震に対する建物の対策(その2: 活断層近傍の建物対策)」、NHK そなえる防災, 2017.5 (査読なし)
- 15) 久田嘉章, 活断層帯の地震に対するレジリエントな建物対策 ～数千年に一度の地震にどう立ち向かうべきか～, Structure, 一般社団法人日本建築構造技術協会, 140号, 2017.4 (査読なし)
- 16) 久田嘉章, 2016年熊本地震で観測された震源近傍強震動, および地表地震断層による建物被害, 特集「熊本地震から見えてきたのも」地震動②, 建築雑誌4月号, 日本建築学会, 2017.4 (査読なし)
- 17) Y. Hisada, K. Kasai, T. Yamashita, D. Du, W. 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, 16th World Conference on Earthquake Engineering, 2017.1 (abstract 査読)
- 18) Y. Masuzawa, T. Kanai, Y. Hisada, T. Yamashita and S. Koizumi, Study on Aseismic Performance of Integrated Ceiling System and Anti-fall Measures of Ceiling, 16th World Conference on Earthquake Engineering, Santiago Chile, USB Memory, 2017.1 (abstract 査読)
- 19) Y. Hisada, J. Kaneda, A. Teramoto, M. Murakami, Y. Masuzawa et. al., Strong Ground Motions And Damage Investigation Of Buildings In The Vicinity Of The Surface Faulting Of The 2016 Kumamoto Earthquake In Japan, 16th World Conference on Earthquake Engineering, 2017.1 (abstract 査読)
- 20) 久田嘉章, 震源近傍の強震動, 長周期・長時間地震動の特性と建物の耐震対策, NHK そなえる防災, 振動技術, No. 35, 200-204, 2017.3 (査読なし)
- 21) 久田嘉章, 「第5回 数千年に一度の最大級地震に対する建物の対策(その1: 多様な地震と建物の安全対策)」, NHK そなえる防災, 2016.11 (査読なし)
- る超高層ビルの対策、第23回 R&R 建築再生展特別セミナー、東京国際展示場、2018.5.30 (招待講演)
- 12) 中西真子・久田嘉章, 既存超高層建築の費用対効果を考慮した耐震性能評価に関する研究, 第15回日本地震工学シンポジウム, 2018年12月8日
- 13) 中村 航・久田嘉章, 2016年熊本地震の地表地震断層の近傍における建物被害調査, 第15回日本地震工学シンポジウム, 2018年12月7日
- 14) 久田嘉章, 地表地震断層ごく近傍の強振動特性、および、断層ズレによる建物被害, 第15回日本地震工学シンポジウム, 2018年12月7日
- 15) 小坂宏之・田中良一・仲野健一・前川利雄・畑義雄・山崎康雄・石川理人・久田嘉章, 南海トラフを対象とした改良経験式による入力サイト波策定における検証と課題(その2)断層最短距離やサイト特性の影響に関するパラメトリックスタディ, 第15回日本地震工学シンポジウム, 2018年12月6日
- 16) 田中良一・小坂宏之・仲野健一・前川利雄・畑義雄・山崎康雄・石川理人・久田嘉章, 南海トラフを対象とした改良経験式による入力サイト波策定における検証と課題(その1)改良経験式に基づく計算コード作成と妥当性の確認, 第15回日本地震工学シンポジウム, 2018年12月6日
- 17) 久田嘉章・田中信也, 地表地震断層近傍における長周期成分の評価を目的とした震源モデルの長大断層への適用性(その2)2008年四川地震, 日本地震学会2018年度秋季大会, 2018年10月9日
- 18) 田中信也・久田嘉章, 地表地震断層近傍における長周期成分の評価を目的とした震源モデルの長大断層への適用性(その1)1999年コウジャエリ地震, 日本地震学会2018年度秋季大会, 2018年10月9日
- 19) 金田惇平・田中信也・中村航・久田嘉章, 2016年熊本地震におけるKiK-net 益城と益城町下陳の地震動と建物被害の違いの原因について その3 地震動と建物被害の違いの原因に関する考察, 2018年度日本建築学会大会(東北), 2018年9月6日
- 20) 田中信也・金田惇平・久田嘉章, 2016年熊本地震におけるKiK-net 益城と益城町下陳の地震動と建物被害の違いの原因について その2 KiK-net 益城と益城町下陳における地震動の推定, 2018年度日本建築学会大会(東北), 2018年9月6日
- 21) 中村 航・田中信也・金田惇平・久田嘉章, 2016年熊本地震におけるKiK-net 益城と益城町下陳の地震動と建物被害の違いの原因について その1 対象とした地点の建物被害の特徴, 2018年日本建築学会大会(東北), 2018年9月6日
- 22) 久田嘉章, 震源断層近傍の強振動特性 フリングステップ/パルスについて, 2018年度日本建築学会大会(東北), 2018年9月5日
- 23) 中西真子・久田嘉章, 制振補強を行った既存超高層建築の費用対効果を考慮した耐震性能評価の検討, 2018年度日本建築学会大会(東北), 2018年9月4日
- 24) 田中信也・久田嘉章, 2016年熊本地震を対象とした地表地震断層近傍における永久変位を含む長周期成分の評価, 日本地球惑星連合大会, 2018年5月21日
- 25) 久田嘉章, 地表地震断層近傍の強震動特性~Fling Stepとは何か?~, 日本地球惑星連合大会, 2018年5月21日
- 26) 久田嘉章, 長周期地震動に対する自助・共助による超高層建築の備え、緊急地震速報防災講演会 in 大阪「緊急地震速報10周年~緊急地震速報のこれから~」、気象庁、阿倍野区民センター2階大ホール、2018.2.14 (招待講演)
- 27) 久田嘉章, 震災から学ぶ建物・まちの地震防災・減災~1923年関東大震災から2016年熊本地震まで~, 第22回

## ② 学会発表

- 1) 久田嘉章, 熊本地震での活断層近傍の強震動と建物被害、および、地域連携によるエリア防災、三井住友建設、2019.2.19 (招待講演)
- 2) 久田嘉章, 活断層近傍の強震動特性と、地震・水害等による複合災害と建物・まちの対策、第147回工学地震学・地震工学談話会、東工大・大岡山キャンパス、2019.1.12 (招待講演)
- 3) 久田嘉章, 地震調査研究推進本部の調査研究成果の活用事例、および、今後10年間に期待すること(建築分野より)、地震調査研究推進本部 政策委員会、第3期総合的かつ基本的な施策に関する専門委員会、文部科学省、2018.10.24 (招待講演)
- 4) 久田嘉章, 最近の活断層や海溝型巨大地震の強震動特性と設計用地震動に適用する上での注意点、平成29年度「高圧ガス設備等耐震設計講座第4回」、CIVI研修センター日本橋、2018.10.17 (招待講演)
- 5) 久田嘉章, 「想定外地震動」を構造設計者はどう考えるべきか、技術交流セミナー(ユニオンシステム株式会社主催)、新宿ファーストウェスト、2018.9.27 (招待講演)
- 6) 久田嘉章, これまでの評価と観測から理解できる地震動の基礎と長周期長時間地震動や長周期パルスなど「想定外地震動」を構造設計者はどう考えるべきか、技術交流セミナー(ユニオンシステム株式会社主催)、新宿ファーストウェスト、2018.9.27 (招待講演)
- 7) 久田嘉章, 地震被害を踏まえた新知識の規基準へのフィードバック、日本建築学会大会(東北)構造部門-研究協議会「建築構造規体系の現状と国際動向」、2018.9.4 (招待講演)
- 8) 久田嘉章, 断層近傍の強震動特性と地表地震断層近傍の建物被害と対策、及び、想定外時の危機管理、原子力規制庁 勉強会、六本木ファーストビル、2018.7.31 (招待講演)
- 9) 久田嘉章, 地震動シミュレーション・ハザード・リスク評価とその活用、ワークショップ:工学的利活用から見た強震動評価の現状と課題—今後10年を見据えて—、防災科学技術研究所東京会議室、2018.7.20 (招待講演)
- 10) 久田嘉章, 地表地震断層近傍の建物被害、日本原子力学会2018特別国際シンポジウム、東京大学弥生講堂、2018.5.31 (招待講演)
- 11) 久田嘉章, 長周期・長時間地震動と長周期パルスに対する

- 「震災対策技術展」横浜、パシフィコ横浜、2018.2.8 (招待講演)
- 28) 久田嘉章、災害時、逃げる必要のない建物とまちづくり、麹町アカデミア・遊学堂 (ビジネスエアポート東京)、日本生命丸の内ガーデンタワー (ビジネスエアポート東京)、2018.2.6 (招待講演)
- 29) 久田嘉章、長周期地震動に対する自助・共助による高層集合住宅の備え、体験型防災イベント「大地震へのソナエ」、気象庁、東京臨海広域防災公園「そなエリア東京」、2018.2.2 (招待講演)
- 30) 久田嘉章、長周期地震動に対する自助・共助による高層オフィスビルの備え、体験型防災イベント「大地震へのソナエ」、気象庁、東京臨海広域防災公園「そなエリア東京」、2018.2.2 (招待講演)
- 31) 久田嘉章、数千年に一度の地震と想定すべき設計用・検証用地震動、第17回免震フォーラム「免震建築のこれからを考える」、日本免震構造協会、青年館ホール、2017.12.18 (招待講演)
- 32) 久田嘉章、過去の震災から学ぶ建物防災～関東大震災から熊本地震までの教訓～、読売新聞土地活用セミナー、品川イーストワンタワー 21階、2017.12.9 (招待講演)
- 33) 久田嘉章、長周期地震動による高層ビル被害と対策、防災ウィーク「新宿ならでは防災」、新宿駅周辺防災対策協議会、工学院大学新宿校舎、2017.11.6 (招待講演)
- 34) 久田嘉章、最近の活断層や海溝型巨大地震の強震動特性と設計用地震動に適用する上での注意点、高圧ガス設備等耐震設計講座、高圧ガス保安協会、TKP市ヶ谷コンファレンスセンター、2017.10.24 (招待講演)
- 35) 久田嘉章、首都直下地震の地震被害想定とレジリエントな災害対策～過去の震災事例や新宿での取り組み～、横浜駅西口共同防管・防災講演会、横浜市民防災センター研修室、2017.10.12 (招待講演)
- 36) 久田嘉章、2016年熊本地震に学ぶ活断層近傍の建築・まちの震災対策、社会貢献学会、第8回大会、2017年12月2日
- 37) 中西真子、久田嘉章、山下哲郎、笠井和彦、超高層建築の効果的な補強方法と評価、社会貢献学会 第8回大会、2017年12月2日
- 38) 金田惇平、久田嘉章、田中信也、2016年熊本地震における地表地震断層近傍の強震動特性と建物被害(その2)益城町と下陣の強震動特性の違いに関する考察、2017年秋大会 日本地震学会、2017.11.25
- 39) 久田嘉章、金田惇平、中村航、田中信也、2016年熊本地震における地表地震断層近傍の強震動特性と建物被害(その3)建物被害調査と推定される強震動特性、2017年秋大会 日本地震学会、2017.10.25
- 40) 田中信也、引間和人、金田惇平、久田嘉章、2016年熊本地震における地表地震断層近傍の強震動特性と建物被害(その1)益城町と西原村の観測記録の再現性に関する一考察、2017年秋大会 日本地震学会、2017年10月25日
- 41) 久田嘉章、中村航、2016年熊本地震の地表地震断層近傍の建物被害調査 その2 下陣・高木地区での調査結果と活断層近傍の建物対策、2017年度日本建築学会大会(中国)、2017年9月3日
- 42) 中村航、久田嘉章、2016年熊本地震の地表地震断層近傍の建物被害調査 その1 悉皆調査の概要と南阿蘇村での調査結果、2017年度日本建築学会大会(中国)、2017年9月3日
- 43) 田中信也、金田惇平、引間和人、久田嘉章、地震発生以浅に適用可能なすべり速度時間関数の評価 その2 規格化Yoffe 関数に基づく近似式、2017年度日本建築学会大会(中国)、2017年9月1日
- 44) 金田惇平、田中信也、引間和人、久田嘉章、地震発生以浅に適用可能なすべり速度時間関数の評価 その1 1999年集集地震を対象とした検討、2017年度日本建築学会大会(中国)、2017年9月1日
- 45) 寺本彩乃、鱒沢曜、久田嘉章、極大地震動による耐震建物の応答特性に関する研究、2017年度日本建築学会大会(中国)、2017年8月31日
- 46) 石川理人、久田嘉章、2014年長野県北部地震における建物被害調査と強震動シミュレーション、2017年度日本建築学会大会(中国)、2017年8月31日
- 47) 金田惇平、久田嘉章、Parameter Study on Near Fault Strong Ground Motion Considering Randomness of Faulting Process、日本地球惑星連合大会、2017年5月24日
- 48) 田中信也、引間和人、久田嘉章、地震発生層以浅に適用可能なすべり速度時間関数の評価、日本地球惑星科学連合大会、2017年5月21日
- 49) 久田嘉章、2016年熊本地震における地表地震断層の直上の建物被害と対策、日本地球惑星科学連合大会、2017年5月20日
- 50) 久田嘉章、首都圏で想定される地震被害とレジリエントな対策、防災・減災セミナー2017、防災ログ、2017.3 (招待講演)
- 51) 久田嘉章、新宿駅周辺における地域連携による超高層建築の地震防災の取り組み、第21回震災対策技術展、2017.2 (招待講演)
- 52) 久田嘉章、被害地震から学ぶ長周期・長時間地震動と震源近傍の地震動、第92回耐震構造研究会、2016.12 (招待講演)
- 53) 久田嘉章、断層近傍の強震動計算実習、「強震動予測-その基礎と応用」第16回講習会、日本地震学会、2016.12 (招待講演)

### ③ 特許出願

特に無し

# 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 —閉眼眼電位による意図伝達インターフェース—

工学院大学 情報学部 田中久弥

青山学院大学 経営学部大学間連携 GP 藤森裕美

Study of the independent living environment support switch  
based on the needs survey of intractable people with neurological diseases

— Intention transmission interface by closed electro-oculogram —

Hisaya Tanaka, Faculty of Informatics, Kogakuin University  
Hiromi Fujimori, School of Business, Aoyama Gakuin University

**ABSTRACT**: We have studied the Electrooculography (EOG) interface for Amyotrophic lateral sclerosis (ALS) patients that can use without preparation. We proposed eye move detection method using the Dynamic threshold by Root Mean Square (RMS) method (DTR method) and k-nn method. DTR method is the threshold method that dynamically calculate by RMS. We conducted experiments about detection accuracy for 19 healthy subjects in their twenties. As the result, proposed method's hit rate was 93.68%, and the FA rate was 12.89%. Next, we calculated Information transfer rate (ITR). ITR is popular evaluation index in Brain computer interface. The minimum ITR of proposed method was 19.02[bit/min]. The P300 speller is one of the representative BCIs. The ITR of P300 speller is 16.4[bit/min]. About ITR, proposed method is higher than P300 speller. Therefore, it can be said that the proposed method has usefulness as an interface.

## 1. はじめに

生体信号スイッチと呼ばれる筋電位 (Electromyography:EMG), 眼電位 (Electrooculography: EOG), 脳波 (Electroencephalogram: EEG) など生体信号を用いた機器制御装置がある。生体信号スイッチを用いることで四肢麻痺となった神経難病患者が残存機能を用いて家電の操作が可能となることが報告されている(1)。神経難病患者は個人ごとに症状や進行度合いに差がある。そのため、患者ごとに使えることのできる生体信号が異なる。中でも重度神経難病の一つである筋萎縮性側索硬化症 (Amyotrophic lateral sclerosis: ALS) は運動ニューロンの障害により身体を動かすことが困難になる。ALS は進行するスピードがはやく、次第に残存機能も変化するため、同じ生体信号を使用し続けることが出来ない。ALS の末期症状でも眼球運動には障害が起りにくいと言われている(2)。眼電位は角膜側と網膜側に帯電し

ている電位の眼球運動による変化を記録したものである。眼電位はALS患者でも使用できる生体信号である。眼球運動は比較的動作を行いやすく、S/Nが高いため検出を行いやすいという特徴もある。そのため眼電位は必要な準備が少なく、使用し続けられる可能性がある。

しかし眼電位は個人差が大きく、信号の分散が大きいことに加えて瞬きなどのアーティファクトが多い。ほかにも個人内でも信号のばらつきがある。そのため、眼電位をスイッチに用いる場合には随意眼球運動による眼電位とそれ以外を分類する必要がある。眼電位の分類に関する研究はまだ数が少なく、未踏領域が多く存在すると言える。これまで随意運動による電位を分類するために様々な検出方法が考案されてきた。斎藤らは電動車いすの制御を目的に随意性瞬目をサポートベクターマシン (SVM) によって98%の精度で分類した(3)。Dhanushらはキーボード操作を目的に上下左右方向の分類を80%の精度で行った(4)。これらの研究は個人ごとに特化した検出

器を作成している．そのため高い検出精度を持っているが，事前の計測や専門家による調整が必要となっている．例えば，斎藤らの研究では4日間かけて随意性瞬目と不随意瞬目をそれぞれ1600個ずつ収集し，ランダムに100個ずつ抽出して教師データとしている．Dhanushらの研究でも事前にキャリブレーションを行い，閾値を作成している．ほかにも生体信号は加齢などによって強度が変わる．眼電位による生体信号スイッチを日常的に利用することを考えるに，継続的に使用していった際に定期的な再調整が必要になると考える．現状，調整には専門的な知識や技能が必要であり，個人で容易に行うことが出来ない．そのため，人的コストのほかにもユーザビリティの低さが際立つ．そのため，生体信号スイッチには定期的な調整が不要となるシステムが望ましい．

そこで我々はこの問題に対して，信号処理を用いて動的に検出用の閾値を作り出すことで解決できると考えた．オンラインで閾値を導出することができれば，個人間の信号のばらつきや，加齢などによる個人内のばらつきに対して調整を行うことなく検出が可能になると考えられる．我々はこれを実現すべく，オンライン環境にて閾値を導出する方法(DTR法)と，それをサポートするためにパターン認識法の1つであるk近傍法による分類について提案した．本報告はこの2つの手法の検証および，組み合わせによる眼電位を用いた意図伝達インターフェースに関する研究である．

## 2. 計測概要および評価方法

### 2.1 計測概要

本研究にて行った実験，評価方法は本章にて記す記録事項にのっとっている．各章ではこの事項に対するデータに対してのオンライン検出，シミュレーション，ログデータを用いた疑似オンライン検出を行っている．眼電位スイッチの入力動作として先行研究(5)から，「閉眼して上を向く」という動作を入力動作として設定した(Fig.1)．信号計測用の電極は基準電極(Reference)を右耳垂に，眼電位計測用の電極を右眼球の約1cm下に，フィルタ用のGNDを左耳垂に装着した(Fig.2)．実験の流れをFig.3に示す．Fig.3中の動作区間は5秒間としその後安静区間5秒をとる計10秒間を1セットとして10セット行った．計測にはOpen BCIを用いた．Open BCIはオープンソースの生体信号センサーであり，検出アルゴリズムを追加することで検出を行った．

### 2.2 検出精度に関する評価方法

検出精度の指標としてTable.1の通りに検出回数を分類し，Hit率とFA率を算出した(1式)(2式)．Hit率は高いほど良い成績であり，FA率は低いほど良い成績である．

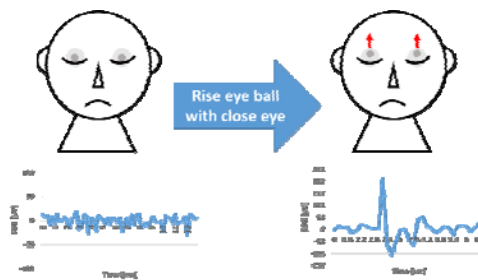


Fig.1. Eye movement up and down with closed eyes and its EOG

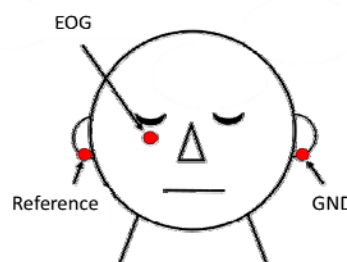


Fig2. Electrode arrangement in EOG measurement

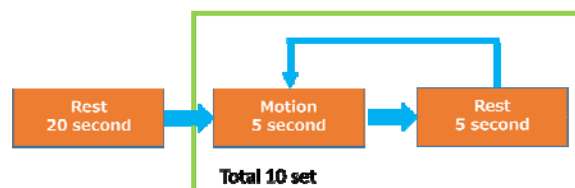


Fig.3 Flow of experiment

Table1 Signal detection classification

	検出あり	検出なし
動作意図あり	Hit	Miss
動作意図なし	FA	CR

$$\text{Hit率(\%)} = \frac{hit}{hit + miss} \times 100 \quad (1)$$

$$\text{FA率(\%)} = \begin{cases} \frac{FA}{FA + CR} \times 100 \dots (FA > 0) \\ 0.5 \times 100 \dots (FA = 0) \end{cases} \quad (2)$$

## 3. 動的閾値法

### 3.1 概要

本研究で提案する手法を構成する動的閾値法(以下DTR法)は，眼電位より信号処理を用いて動的に検出用の閾値を計算することが出来る．DTR法の処理の流れをFig.4に示す．DTR法ではまず取得した眼電位に対して，信号の実効値である二乗平均平方根(Root mean square: RMS)を計算する．実効値であるRMSは交流信号の時間あたりの強度を示しており，(3)式で計算される．RMSは現在時刻 $t$ における $N$ 個の眼電位データから $w$



個前までのデータの二乗値の平均の平方根を取ったものである。RMSは各個人ごとの眼電位から計算することが出来る。RMSを用いて閾値を計算することで事前の準備を行うことなく、個人ごとの閾値を自動で求めることが出来る。

DTR法はRMSに任意の定数 $\alpha$ を乗算することで閾値Thresholdを導出する。時刻 $t$ の眼電位に対しての閾値Thresholdは(4)式によって求められる。DTR法はこの閾値Thresholdを眼電位の絶対値が超えた場合に動作ありと判断し動作を検出する((5)式)。

$$RMS(t) = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{k=t-w}^N EOG(k)^2} \quad (3)$$

$$Threshold = \alpha \times RMS(t) \quad (4)$$

$$if \quad |EOG(t)| > Threshold \quad \dots output \quad (5)$$

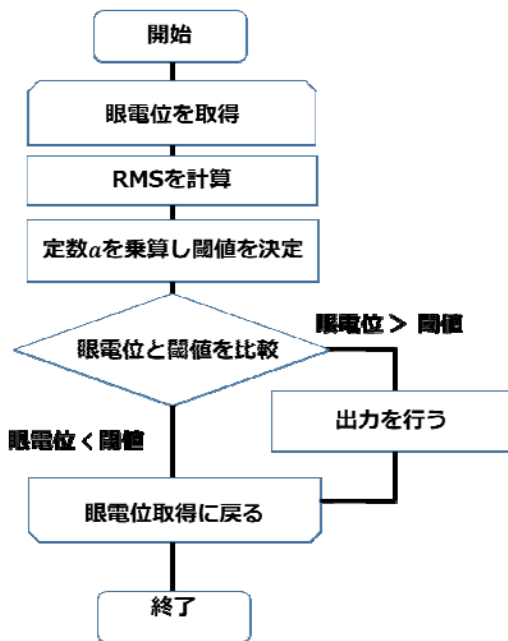


Fig4. Eye Movement Detection Algorithm by DTR Method

### 3. 2 精度検証実験

20代男性5名の被験者に対して2章に記載した実験を行った。実験時のパラメーターはRMSの計算区間を2秒間に(1式)、DTR法の乗算定数 $\alpha=2.5$ に設定した(2式)。各被験者の検出回数をTable.2に示す。また平均Hit率は92%、平均FA率は44%であった。DTR法では被験者5名中3名に対して動作指示時に行った動作をすべて検出することができた。しかし、FAについてSub.1では2回程度であったがSub.3やSub.4は安静区間の半分以上の区間で誤検出があった。DTR法では閾値をRMSの定数倍にしている。通常時の電位は約 $10\mu V$ 程度と低いため、閾値と眼電位の差が開かず誤検出が増えたと考える。Sub.2の誤検出の例をFig.5に示す。Fig.5はSub.2から計測された眼電位と、計算された閾値を示しており、横軸

は時間[秒]、縦軸は電位[ $\mu V$ ]である。Fig.5中の86.4秒から87秒の間に眼電位の揺らぎが確認できる。この例は他の被験者からも確認された。そのためDTR法は、突発的な眼電位の揺らぎを誤検出してしまうと考えられる。また、Fig.5からは全体的に誤検出が起こった地点以外にも閾値と眼電位にあまり差がなく、余裕がないことがわかる。このことから閾値を決定するための $\alpha$ について検討する必要があると言える。

### 3. 3 等価エラー率によるシミュレーション

シミュレーションではDTR法のパラメーターである乗算定数 $\alpha$ を変化させ、等価エラー率(Equal Error Rate: EER)を求めた。両検出法における適切なパラメーターを求めた。シミュレーションにはこれまでの5名のデータに加えて、追加で5名を計測し、計10名分の計測データを用いた。

Table2 Number of detections of DTR method (10 trials)

	Hit(回)	Miss(回)	FA(回)	CR(回)
Sub.1	10	0	2	8
Sub.2	10	0	4	6
Sub.3	10	0	5	5
Sub.4	8	2	6	4
Sub.5	8	2	7	3

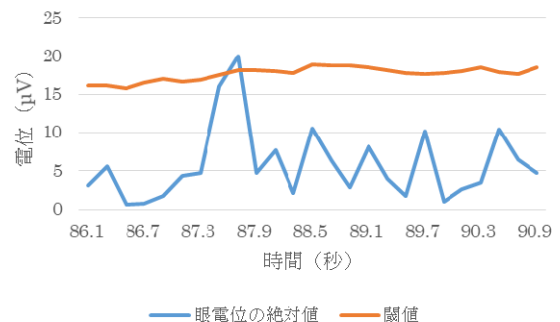


Fig.5 Dynamic threshold of DTR method and eye movement detection example (Sub.2)

精度の指標として前節までと同じように表1の項目について記録し、Hit率とFA率を計算した。EERは認証技術の精度性能の目安として用いられており、EERが小さいほど精度が高い。EERはMiss率とFA率の交点であり、その時のパラメーターが適正值である。Miss率は1からHit率を減算することで求めることが出来る。

### 3. 4 シミュレーション結果

実験にて追加で取得した5名うち1名はトリガーが正常に記録されなかったため除外し、計9名のデータにてシミュレーションを行った。パラメーターは(2)式の定数 $\alpha$ を1.5から4まで0.5刻みずつ変化させた。結果から得られた平均Miss率、FA率のグラフをFig.6に示す。閾値計算用の定数はMiss率とFA率の交点時の値となる。

Fig.6 から、交点は定数  $\alpha$  の値が 3.5 付近のとき最も検出精度が高いことが分かった。そこで、定数  $\alpha=3.5$  時の Hit 率と FA 率を求めた。結果を Fig.7 に示す。この時、平均 Hit 率は 83%、平均 FA 率は 14%であった。実験時の定数  $\alpha=2.5$  であったが、シミュレーション結果では閾値が上がったため平均 Hit 率 92%から 82%と 10%落ちている。しかし平均 FA 率に関しては 44%から 14%と大きく減少した。このことからシミュレーション結果による定数の変化の効果はあったと言える。岡村らのまばたきによる機器操作方法に関する報告(6)では初めて生体信号による操作を行った被験者の成功率は 80%前後であった。本実験においても被験者 9 名のうち 8 名は初めての使用であったがそれぞれ 70~100%の精度で検出できたため、DTR 法の有効性が示唆された。

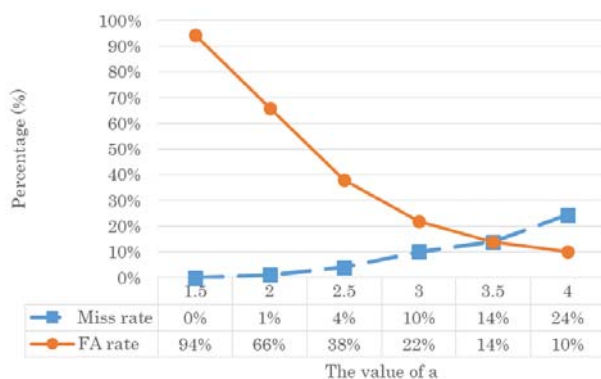


Fig.6 Average Miss rate and FA rate by  $\alpha$  value by DTR method(N=10)

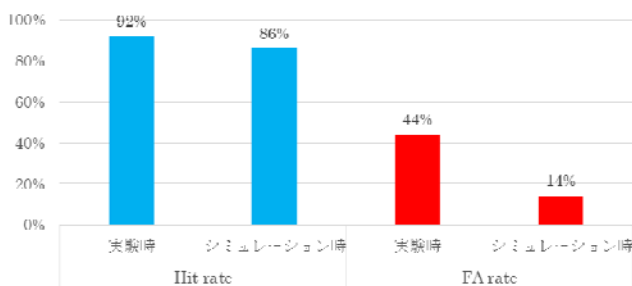


Fig.7 Comparison of average miss rate and FA rate in on-line vs simulation by DTR method(N=10)

検出時の波形についても観察を行った。Fig.8 に Sub.10 の第 5 試行目の波形を示す。縦軸は電位[ $\mu\text{V}$ ]で横軸はエポック開始からの経過時間[秒]である。本実験でのアルゴリズムでは眼電位の絶対値に対して閾値を適用し、動作の判断を行っている。しかし検出された波形を見ると、初めに増幅した箇所検出されており、絶対値を取る意味がない可能性が示唆された。そこで同区間の通常的眼電位に対して閾値を適用させた。Fig.9 示す。こちらの縦軸、横軸は同様である。絶対値を取らない場合でも初めに増幅した時点で検出がされている。このことは他の被験者でも確認することが出来た。そのため絶対値を取ることは不要であると言える。次に、通常的眼電位で再度、同様のシミュレーションを行った(6式)。被験者による平均結果を図 7 に示す。以前の結果と比較しても Hit 率に

変化はなく、FA 率に関しては減少しており、(6式の方が良い結果となった。そのため(3)式は以下の(6)式の通りに変更することとした。

$$\text{if } \text{EOG}(t) > \text{Threshold} \text{ ---output} \quad (6)$$

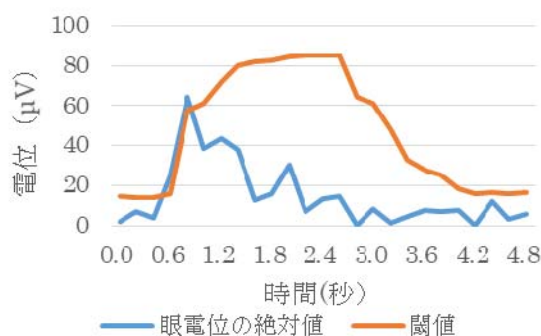


Fig.8 Eye Movement Detection Example by DTR Method and EOG Absolute Value (Sub.10)

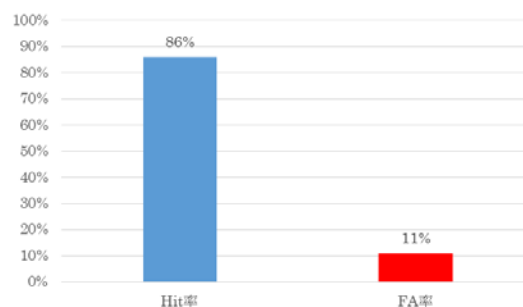


Fig.9 Eye Movement Detection Rate by DTR Method and EOG Absolute Value(N=10)

### 3. 5 シミュレーション結果

検出されなかった例のなかでいくつか共通するものがあつた。それは目視では十分な電位の変化が起きているのに検出されなかった例である。信号の揺らぎによる電位の変化のために閾値計算に用いた RMS の上昇が確認された。DTR 法は RMS の定数倍を閾値に用いる。そのため RMS の上昇に伴って閾値が変化してしまい、電位を得られても検出できない問題があることがわかつた。図 2-16 に一例を示す。図 2-16 の 0 秒の地点から動作区間に入っており、眼電位の増幅が確認されている。

しかし、直前に波形の揺らぎによって閾値が増加しており、Fig.10 に示す区間では検出が行われなかつた。このことから DTR 法では個人差に対応することが出来たものの、安定性に欠けることがわかつた。そのため、DTR 法を運用するためには安定性をサポートできる方法が必要であると考ええる。



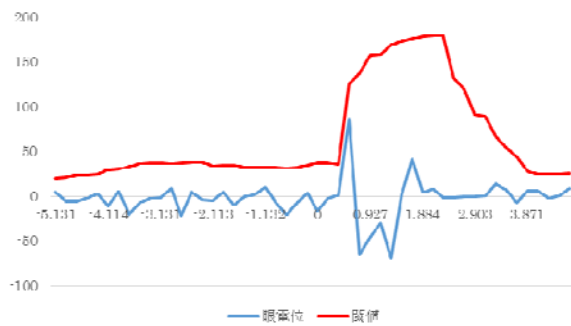


Fig.10 Example of eye movement that can not be detected by DTR method(An error detection)

#### 4. K近傍法による分類

##### 4.1 k近傍法概要

k近傍法とはベクトル空間上の距離を用いてクラス分類を行うパターン認識法の一つである。C個のクラスラベルが付与されたN個の訓練データ集合  $D = \{(x_n, t_n)\}_{n=1}^N, t \in \{Class_1, \dots, Class_C\}$  があるとす。入力データVとすると最近傍法の分類則は以下の(3-x)式で表される。 $d(V, x_i)$ はVと $x_i$ のベクトル間距離を計算する関数である。 $C(x_i)$ は $x_i$ の属するクラスである。k近傍法では上記の通り、最近傍を用いるのではなく入力データに近いk個の学習データのクラスで多数決を取る。

$$x_i = \operatorname{argmin}_V d(V, x_i) \rightarrow V \in C(x_i) \quad (7)$$

本研究では距離の算出に二点間の通常距離であるユークリッド距離を用いて分類を行った。k近傍法は少ない学習データでも安定して動作する上に比較的高い分類性能を得ることが出来る。

##### 4.2 k近傍法による分類特性

分類はpythonの機械学習ライブラリであるsklearnのk近傍法関数をk=5で用いて行った。k近傍法およびDTR法における13名の被験者による平均Hit率と平均FA率をFig.11に示す。検出回数と同様に、k近傍法はDTR法と比較するとHit率では6%高く、FA率では7%優れていた。

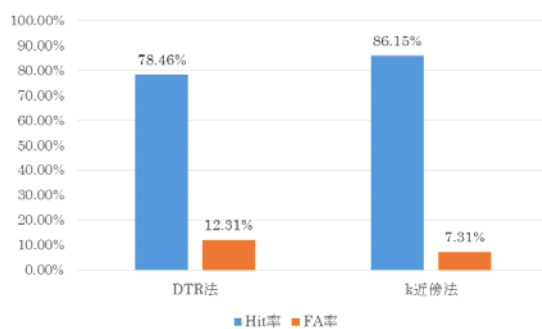


Fig.11 Comparison of DTR method and Knn method in eye movement detection(N=13)

##### 4.3 k近傍法によるオンライン眼球運動検出

生体信号スイッチにk近傍法を適用するためにはオンライン環境にて分類精度が維持される必要がある。

オンライン化を行うためにOpenBCIにてk近傍法解析用のプログラムを追加した。OpenBCIより取得できる眼電位データを次元長に合うようにバッファを行う。バッファされたデータに対してk近傍法による分類を行うことでオンライン化を図った。またオンライン化による検出精度評価のための実験を行った。被験者は20代男性2名に対して3試行ずつ計6試行を行った。Sub.1, Sub.2の各試行の分類率をFig.12, Fig.13に示す。それぞれの図は各試行のHit率とFA率を示している。Sub.1は1, 3試行目では100%, 2試行目で70%であったが、平均すると90%と高い精度であった。Sub.2はすべての試行において100%の検出かつ誤検出もない成績であった。両被験者において平均をとって95%と高い精度を出すことが出来た。このことからオンラインでのk近傍法による検出は可能であると言える。

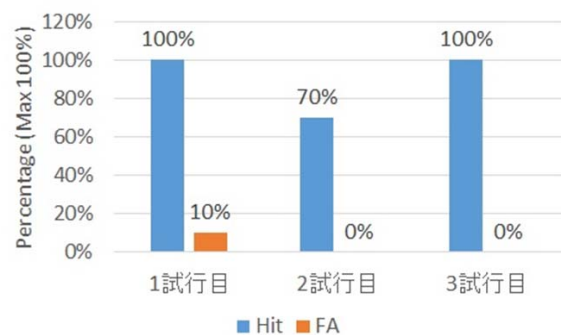


Fig.12 Online eye movement detection rate using Knn method(Sub.1)

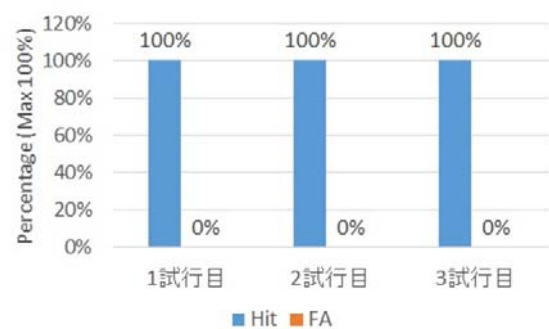


Fig.13 Online eye movement detection rate using Knn method(Sub.2)

次に延べ13名分のログデータを使用し、疑似的なオンライン検出を行った。この結果とオフライン検出時の精度と比較することでオンライン化による検出能力の変化を調べた。各被験者から算出したHit率とFA率の平均をFig.14に示す。オンライン検出のHit率はオフライン検出の86.15%とほぼ同等の86.92%であった。またFA率に関しては1%低い6.15%となった。条件の違いによる検出精度の変化は少なく、オンライン化による検出精度の劣

化は見られないことがわかった。

DTR法が検出できずk近傍法のみが検出できた区間に共通して見られた特徴として、動作前の波形の揺らぎが確認された。DTR法の閾値はRMSの定数倍であるため波形の変化に対応する。揺らぎによって閾値が増大し、意図動作によってさらに電位が上昇したため検出することが出来なかったと考える。これは前節でも述べていた問題点であり、k近傍法ではこの問題をクリア出来ていた。しかしk近傍法では変化が起きていても電位が小さい場合には検出が出来ないことがわかった。ある被験者の別区間では100 $\mu$ V程度の反応が起きている。しかしこの区間では50 $\mu$ V程度の反応であった。この区間はk近傍法では検出できなかったがDTR法では検出できた。このことからDTR法は電位が小さくとも変化があれば検出できると考えられる。

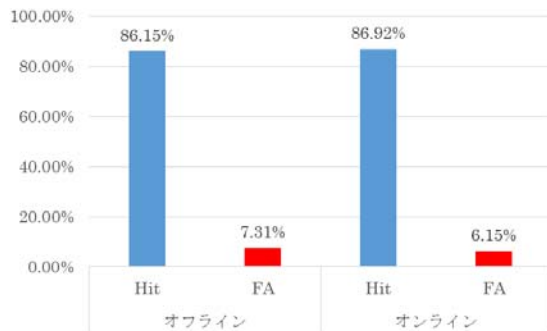


Fig.14 Eye movement detection rate by Knn method, comparison between on-line detection and off-line detection(N=13)

## 5. DTR法とk近傍法を併用した眼球運動検出法

### 5.1 併用法概要

併用する2つの手法はそれぞれ検出に要する時間が違っている。そのため、同じ波形の変化について比較をすることが出来ない。併用するためには両手法が同じ波形について分類を行う必要がある。そのため、DTR法の分類を行う波形をk近傍法のテストデータとすることにした。ほかにもDTR法の方がk近傍法と比べて検出時間が早い。そのため先に同じ波形の変化に対してもDTR法の方が早く検出されると予想できる。両手法による多数決を行うためには、DTR法が分類を行った後の待ち時間を設ける必要があると言える。併用法のアルゴリズムをFig.15に示す。

併用法ではOpen BCIによって判断部分の関数が呼び出されるごとに比較を行う。初めに関数が呼び出されると直近2秒間のRMSを計算し、そこから閾値を計算する。眼電位が閾値を超えるか否かで検出を行う。判断終了後にk近傍法による分類を行う。併用法に用いる2つの手法はDTR法の方がk近傍法よりも検出が早い。その

ため、併用法ではDTR法検出のフラグをたてk近傍法による検出を待つこととした。待ち時間はk近傍法のテストデータ長である3秒とした。また、過剰の検出を防ぐため、待ち状態ではDTR法による検出を行わないこととした。待ち状態中にk近傍法による検出があれば正常に出力を行う。DTR法の検出後、待ち時間以内にk近傍法による検出がない場合にはDTR法の出力を優先した。DTR法が待ち状態でない場合にk近傍法による検出が起こった場合、再度DTR法による分類を行う。それでもDTR法による検出がない場合はk近傍法を優先する。両手法のどちらも検出を行わなかった場合には出力しないこととした。表3に出力方法の一覧を示す。この併用法について、これまでの実験と同様に19試行の被験者に対してHit率とFA率を求めた。またDTR法のRMSは直近2秒間、 $\alpha$ は3.5、k近傍法のパラメーターkは5とこれまでの実験と同じように設定した。

Table3 Switch operation of DTR method and Knn method

	k近傍法 ON	k近傍法 OFF
DTR法 ON	出力あり	出力あり
DTR法 OFF	出力あり	出力なし

### 5.2 検出精度

計測された延べ20名分のデータの内、有効であった19名のログデータを用いて疑似オンライン検出を行った。19名の被験者から算出された平均Hit率とFA率はそれぞれ93.68%、12.89%であった(Fig.16)。平均Hit率はDTR法、k近傍法の両手法と比較しても最も高い値となった。このことから両手法の検出能力を統合できたとと言える。反面、平均FA率に関しては両手法と比較しても最も悪い結果となった。誤検出箇所を観察すると両手法がそろって誤検出するパターンではなく、どちらか一方のみが誤検出していた。現段階のシステムでは検出を優先しているため、誤検出をそのまま出力している状態であると言える。

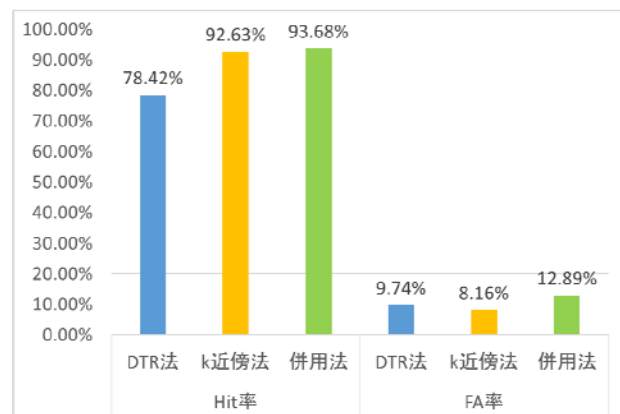


Fig16. Eye movement detection rate, comparison of each method (N=10 in DTR, N=13 in knn, N=19 in the combination)

### 5. 3 眼球運動検出の待ち時間

本研究で提案する併用法ではアルゴリズムに対して待ち時間を設定している。この待ち時間は検出にかかる最大の時間である。また、検出時間は Information Transfer Rate: ITR) の数値に関しても要因の1つであるため検討する必要があると考える。そこで併用法の待ち時間を変更し検出率に関しての比較を行うことにした。待ち時間は前節の実験ではk近傍法のテストデータ長である3秒間になっていた。本節の実験ではこの待ち時間を2秒から5秒の範囲で変更した。

結果としては待ち時間の変更による検出精度の変化はなく、全てにおいて平均Hit率94.00%、平均FA率12.75%であった。そこで両手法によって検出された回数を比較することにした。待ち時間を変化させることで、この回数は増加あるいは変化が起こらないはずである。各秒数の両手法とも検出した回数をTable4に示す。被験者内のNは、被験者内での検出回数である。全体の傾向として回数自体に大きな変化はなかった。仮説では数値は変わらない、もしくは増加するとしたが増加した被験者はSub.10とSub.15のみであった。また、回数が減少する被験者も見られた。Sub.2, Sub.3, Sub.11, Sub.12, Sub.17では秒数が増加と共に回数が減少した。減少の原因について観察を行った。減少の理由として最も挙げられたの

は波形の揺らぎによる誤検出を長時間保持したことであった。例として…の波形を示す。このことによって、誤検出後に正常に検出がなされていた場合に、DTR法では検出できなかったとカウントされてしまっていたため、回数の減少につながっていたと考えられる。加えて全体の検出回数を見ても実験時の待ち時間より短い2秒でも回数の大きな減少は見られない。このことから併用法による検出の大部分は2秒以下で行われていると考えられる。ITRの面で考えても検出時間は短い方が望ましい。したがって、併用法の待ち時間は2秒の方が3秒よりも適切であると言える。

### 5. 4 眼球運動検出の閾値

併用法に用いているDTR法は対象者の眼電位信号のRMSから閾値を導出し検出をしている(2式)。閾値算出に用いている $\alpha$ の値は2.4節のシミュレーションにて $\alpha=3.5$ に決定した。しかし全体の誤検出の内DTR法による誤検出がほとんどを占めていた(Fig.17)。被験者数に関してもシミュレーション時より増えている。そのため、閾値算出用のパラメーターに関して再度シミュレーションを行うこととした。

シミュレーション方法は式中の $\alpha$ の値を1.5から4までの範囲でパラメーターを変化させ、Miss率とFA率を

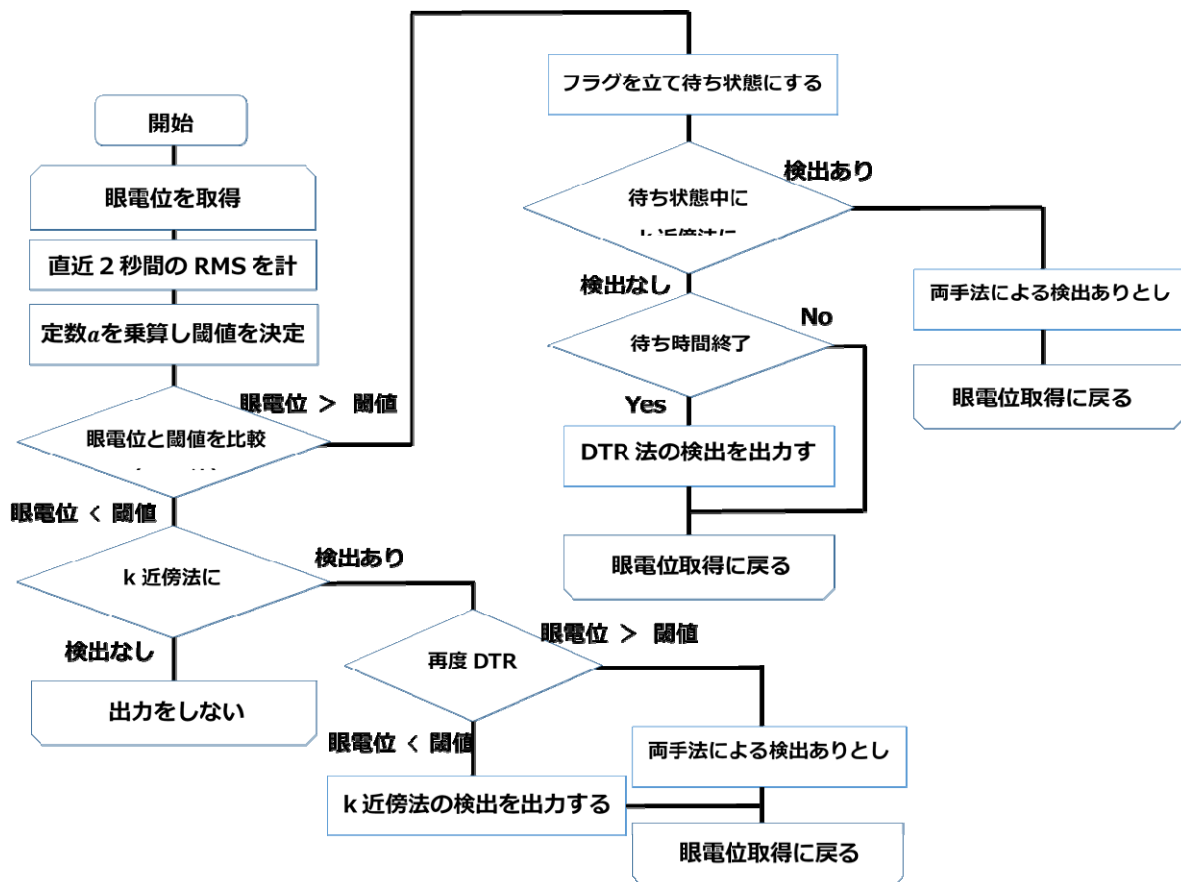


Fig.15 Eye Movement Detection Algorithm by Combination of DTR Method and Knn Method

算出する。そして Miss 率と FA 率の交点から最適なパラメーターとなる等価エラー率 (EER) を求めた。

変化させたパラメーターごとの Miss 率と FA 率を Fig.17 に示す。交点は  $\alpha = 3$  の時となった。これまでの実験では  $\alpha = 3.5$  でおこなっていたため、EER による適正値は下がったということになる。閾値が下がるということは検出率が上がる同時に誤検出も増加するトレードオフの関係にある。現状では DTR 法による誤検出が多いため、このまま閾値が下ると必然的に併用法でも誤検出が増加すると考えられる。そこで本節のシミュレーションで適当であるとされた  $\alpha = 3$  とともに、現状の  $\alpha = 3.5$  よりも大きい  $\alpha = 4$  でも検出率を調査した。延べ 19 名分の試行による平均結果を Fig.18 に示す。先述の予想通り  $\alpha = 3$  では  $\alpha = 3.5$  の時と比べて検出率の向上とともに誤検出も増加している。もう一方で閾値を増加させた  $\alpha = 4$  ではわずかに検出率が減少しているが、誤検出率が大きく減少している。このことから Fig.16 のように併用法では k 近傍法による検出能力の方が強いと考えられる。また、現状の併用法にて DTR 法を用いる場合には誤検出を少なくするように高めの閾値に設定することが望ましいと言える。

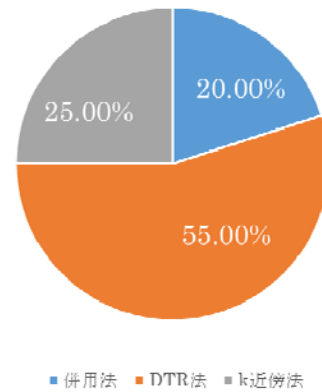
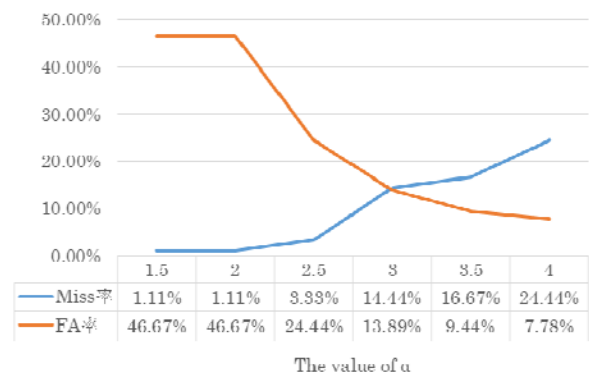


Fig17. Error detection rate of each method



The value of  $\alpha$

図 15

Fig18. Average Miss rate and FA rate by  $\alpha$  value by DTR method(N=19)

Table4 Eye movement detection waiting time and the number of detections (in 10 trials)

被験者	待ち時間 (秒)			
	2	3	4	5
1	7	7	7	7
2	8	8	8	7
3	7	7	7	6
4	8	8	8	8
6	7	7	7	7
7	9	9	9	9
8	3	3	3	3
9	0	0	0	0
10	7	8	8	8
11	6	6	5	4
12	10	10	10	9
13	9	9	9	9
14	10	10	10	10
15	6	6	5	7
16	7	7	7	7
17	7	6	6	6
18	9	9	9	9
19	8	8	8	8
20	10	10	10	10

## 6. 考察

### 6. 1 眼球運動の検出精度

結果より DCR 法と k 近傍法を組み合わせた併用法は正検出、誤検出の両面において両手法の能力を持っていることがわかった。結果でも記述した通り、現状では両手法の誤検出を拾ってしまっている。そのため両手法を組み合わせて誤検出を防ぐ方法が必要であると考え。しかし正検出に関しては最も高い値となっており、2 種類の検出法を併用した効果が出ていると言える。

### 6. 2 情報伝達効率

生体信号を用いたインターフェースの 1 つに Brain Computer Interface (BCI) がある。この BCI に対してよく用いられる評価指標の 1 つとして情報伝達効率 (Information Transfer Rate: ITR) というものがあり、インターフェースの情報伝達能力を示している。1 分間の ITR [bit/min]は次式によって定義されている (7 式)。N は選択肢の数、p は正検出率、T は入力に要するのに必要な時間である。

$$\begin{aligned}
 ITR = & \left\{ \log_2(N) + p \log_2(p) \right. \\
 & \left. + (1-p) \log_2 \frac{1-p}{N-1} \right\} \\
 & \times \frac{60}{T} \quad [\text{bit/min}] \quad \text{④}
 \end{aligned}
 \tag{7}$$

ここまで行ってきた待ち時間、DTR法の閾値などを反映し、待ち時間は2秒、DTR法の閾値はRMSの4倍とした。そのためITRは以下の式により算出した(8式)。

$$\begin{aligned}
 ITR = & \left\{ \log_2(2) + 0.82 \log_2(0.93) \right. \\
 & \left. + (1-0.93) \log_2 \frac{1-0.93}{2-1} \right\} \\
 & \times \frac{60}{2} = 19.02 [\text{bit/min}] \quad \text{④}
 \end{aligned}
 \tag{8}$$

ITRとしては内包する2つの手法と比べると最も低い値となった。稲田ら(6)や北村ら(7)のBCIと比較しても高い値となっている。また、このITRの値は併用法を用いた場合、最も検出に時間がかかった場合の値である。そのため検出時間がこれより早い場合はITRが向上することとなる。例えば検出時間がk近傍法と同等の約1.7秒であった場合、ITRは約22.37[bit/min]となる。この場合だとITRは検出精度の分だけk近傍法よりも高くなる。また検出率に関してはFig.16にあるように併用法が最も高い値になっている。これは前節でのシミュレーション結果で考察した、DTR法のサポートという観点からみると成功していると言える。これらのことから本研究における併用法のインターフェースとしての有効性を示唆することが出来る。

また本研究の目的は検出器作成のための事前準備を減らすことが可能なインターフェースの提案である。k近傍法は機械学習法であるため学習データを必要としてしまう。本研究では学習データを2クラスあわせて約200個用意し実験を行っている。現状ではこの学習データを用意しておく必要があるということになる。しかし用いている学習データはDTR法によって検出された区間の波形をもとにしている。そのため、初めは学習データがない状態でもDTR法のみを動かし、検出された波形を動作クラス、検出されなかった波形を安静クラスとして記録、更新することで学習データの作成と更新が出来るようになると言える。この仕組みを実現することで事前準備なしの検出器が作成できると考える。

## 7. 結論

本研究では生体信号を用いた意図伝達インターフェースの開発を目的に、閉眼眼電位を用いた手法について研究を行った。本報告では我々がこれまでに提案したDTR法とk近傍法を併用した方法について精度およびITRを求めた。結果として、精度に関しては正検出率が93.68%、誤検出率が12.89%であった。正検出率に関しては併用したそれぞれの手法を超える値となり、併用した効果があったと言える。しかし、誤検出に関しても増加してしまう結果となった。この点に関しては両手法を用いて誤検出を棄却する方法について検討を行う必要がある。次に、評価指標の1つであるITRを計算したところ、19.02[bit/min]と他の生体信号インターフェースよりも高い値となったため、有用性があると言える。一方で本研究の狙いであった事前準備に関して、現状ではk近傍法の学習データを事前に用意する必要がある。しかし、DTR法によって検出された波形を学習データとして更新する方法を構築することで解決できると考える。今後は2つの方法を組み合わせて誤検出について対策と更新方法について検討を行う必要がある。

## 参考文献

- (1) Fumihiko Masuda, Chikamune Wada: "Communication assistive method using sympathetic skin response", 12th International Conference on Computers Helping People with Special Needs, 189-192, 2010.
- (2) 大矢, 山下, 小山, 川澄: "眼電図を用いた随意性瞬目によるスイッチ操作の研究", 生体医工学, Vol. 46, No. 2, pp. 254-260, 2008.
- (3) 斎藤弘嗣: "眼電位を用いた電動車いすの制御方法の改善 -SVMによる不随意瞬目と随意瞬目の識別-", 法政大学大学院紀要 理工学・工学研究科編, 58, 2017.
- (4) Dhanush Roopa Lingegowda, Karan Amrutesh, Prof. Srikanth Ramanujam: "Electrooculography based Assistive Technology for ALS Patients", ICCE-Asia 2017, pp. 36-40.
- (5) 大矢, 川澄, "眼電図による ALS コミュニケーションツールの入力動作の研究", 生体医工学, 日本エム・イー学会誌 43(1), pp. 172-178, 2005.
- (6) 岡村, 加藤, 五百蔵, 田中: "まばたきによる筋電位変化を用いた機器操作方法の提案と実証", 第10回情報科学技術フォーラム, 第4分冊, pp303-306, 2011.
- (7) 稲田宏之, 田中久弥: "ピクトグラム走査方式 BCIのためのニード調査とその開発", ヒューマンインタフェースシンポジウム 2011, 12438, 2011/9.
- (8) 北村翔太, 田中久弥: "ALS 患者における意思伝達支援装置の入力時間改善", 電気学会論文誌, 論文誌 C, Vol. 138, No. 6, 2017.
- (9) 日本リハビリテーション工学協会: "利用者ニーズからみた『意思伝達装置利用実態調査』の分析-日常的な装置利用に求められる支援体制-", 厚生労

働省平成 21 年度障害者保険福祉推進事業『重度障害者用意思伝達装置の継続利用を確保するための利用者ニーズと提供機能の合致に関する調査研究事業』事業報告書, 2009.

- (10) 難病情報センター：“特定医療費（指定難病）受給者証所持者数”，  
<http://www.nanbyou.or.jp/entry/5354>,（参照 2018-08-27）.
- (11) 阿部康二：“神経難病のすべて～症状・診断から最先端医療，福祉の実態まで～”，新興医学出版社，2007.
- (12) 独立行政法人国立病院機構 宇多野病院完成脳神経筋センター：“病気について知りたい 筋萎縮性側索硬化症”，  
[http://utanohosp.jp/html/patient/know/neurology\\_03.html](http://utanohosp.jp/html/patient/know/neurology_03.html),（参照 2018-08-06）.
- (13) OpenBCI, ”OpenBCI”, <http://openbci.com/>,（参照 2018-01-29）.
- (14) Qiita：“k 近傍法（多クラス分類）”，  
<https://qiita.com/yshil2/items/26771139672d40a0be32>, 参照日 2019-1-08.

#### 学会発表

- [1] Daisuke Tamaki, Hisaya Tanaka: “Research on bio-signal switches using multi sensors”, Proceedings of the 8th International Conference on Applied Human Factors and Ergonomics (AHFE 2017), pp.104, B45, 2017/7/19.
- [2] 環大介, 田中久弥: “生体スイッチのための眼電位解析アルゴリズム”, ヒューマンインタフェースシンポジウム 2017, 6D2-2, ヒューマンインタフェース学会, 2017/9/6.
- [3] Daisuke Tamaki, Hiromi Fujimori, Hisaya Tanaka, “Eye Movement Detection Using k Nearest Neighbor Method”, The 4th International Symposium on Affective Science and Engineering (ISASE 2018), A2-4, 1st June, Eastern Washington University, WA, USA.
- [4] Daisuke Tamaki, Hiromi Fujimori, Hisaya Tanaka: “An Intention Transmission Interface by EOG with Close Eyes”, The 4th International Symposium on Affective Science and Engineering (ISASE 2019), 1-A-4, B45, 2019/3/17.



## 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

東京医科大学 医学部医学科臨床医学系整形外科分野 山本謙吾

### Development of Evaluation System for Artificial Joint by the Musculoskeletal Mechanism of Human

Yoshimori Kiriyama , Department of Mechanical Systems Engineering , Kogakuin University  
Kengo Yamamoto , Department of Orthopaedic Surgery ,Tokyo Medical University Hospital

**ABSTRACT** : To develop an artificial joint of the next generation, the practical evaluation is required. However, actual mechanical condition *in-vivo* has not necessarily been elucidated due to the ethical reasons against an invasive measurement. It is efficient to use the human-mimic mechanism and observe and measure the joint movement and loads. For this, we built the lower extremity simulator in this study. The simulator reproduces the human musculoskeletal systems, and the hip, knee and ankle joints are moved by the wires that transmit the muscle tensions. Also the simulator has the pelvis that moves forward-backward, upward-downward and the flexion-extension. Thus, the simulator showed similar stance phase on a level gait, and standing movements from sitting position to human. The joint movements showed a good agreement with human, while the joint loads, especially joint moments were larger than *in-vivo* data. Therefore, the control method or the calculation of the muscle tension should be considered to reproduce the human kinematics and kinetics, but the simulator could be useful to evaluate artificial joints.

#### 1. はじめに

人工関節の耐用年数を評価するうえで、磨耗特性やクリープ特性の評価が行われ、試験上は長期の使用が保証されている。しかし、臨床においては摺動面の摩耗や破損が多く報告されており<sup>1)2)</sup>、必ずしも想定される耐用年数を全うできるわけではない。この原因の一つとして、評価に用いられる力学条件が、日常生じうる生体内負荷を再現できていない可能性が考えられる。評価の入力として用いられる荷重や運動は、平地歩行を基本とした画一的な入力となっている。このため、日常的に経験しうる衝撃的な瞬間荷重や外乱変位などを想定した評価が必要だと考えられる。

生体内での人工関節の関節動態や力学的負担を明らか

にするために、様々な計測・評価実験が行われている。Damm らは、センサ内蔵型の人工膝関節・股関節<sup>3)4)</sup>を患者に装着し、歩行時の関節負荷を計測した<sup>5)</sup>。得られたデータは、生体内負荷を直接計測したものであり極めて有用となるが、倫理的・侵襲的な問題は避けられず、限られた計測しか行えないという制限がある。この一方、ヒト屍体に人工関節を取り付け他動的に動作させた際の関節負荷の計測が行われている。しかし、実験条件の相違による膝回旋角度のばらつきが報告<sup>6)</sup>されており、再現性が課題となっている。また、筋による能動的運動ではないため、生体の関節動態を反映できていないという問題も存在する。

そこで廣川らは、生体外でありながらも生体内と同様の力学環境を再現することを目的に、筋力による能動的

な関節駆動を再現した膝関節シミュレータの開発を行った<sup>7)</sup>。このシミュレータに人工膝関節を取り付け屈曲・伸展運動を行わせたところ、大腿・脛骨面での接触力が従来の報告と一致するように膝関節動態を再現できることを示した。しかし、このシミュレータは、遠位部である足部が固定されており、膝関節のみを対象としている。このため、足部接地時などにおける影響を評価できるわけではない。例えば歩行において、立脚期全体における運動学・動力学的な状況の変化が膝人工関節に与える影響を詳細に解析するには、下肢全体の運動を再現した状況下における人工関節の動態を直接計測できることが望ましい。また、膝関節と同様に手術件数の多い股関節についても同様の手法で評価できる可能性がある。膝関節と股関節は、互いの姿勢が生体内負荷に影響を与える可能性があり、様々な運動における下肢姿勢を再現するには両関節を再現できた方が直接的であり、そのためには骨盤を含む下肢全体をシミュレータとして構築することが望まれる。

そこで本研究では、下肢全体の骨格・筋の再現を行い、さらに筋張力を再現することで能動的な関節動態の再現が可能な下肢人工関節シミュレータの開発を行った。本シミュレータは、遠位部である足部を自由端とすることで、接地時における衝撃力や外乱変位などの状況を再現でき、さらに人工膝関節と股関節を取り付けることを可能とした。またこれにより、ヒトが日常的に行う動作を再現でき、この時の人工関節の動態や力学状態を直接計測できる。本稿では、開発したシミュレータに歩行動作を行わせ、関節動態と床反力さらに筋張力を計測することで、ヒト下肢運動の再現可能性について評価を行なった。

## 2. 方法

開発したシミュレータは、筋張力の時系列変化を入力とし、この筋張力に伴って生じた関節動態および下肢運動が出力となる。ヒト動作時の筋張力を参考に入力する筋張力を変更することで、様々な運動の実現できるシミュレータの開発を目的とした。

開発したシミュレータを図1に示す。本シミュレータは、左脚の下肢骨格構造を制御対象とし、入力となる筋張力を発揮するための張力調整機構とモータにより構成されている。生成した筋張力は、筋に模したワイヤにより骨格構造に伝達される。筋ワイヤの取り付け位置と走行は、解剖学的構造に基づいており、二関節筋を含めた筋の拮抗関係を実現している。また、骨盤は矢状面内の前後、上下、屈曲伸展運動を可能とし、遠位部である足部は自由端とした。これにより、歩行や昇降動作などを行うことができ、床反力の衝撃を負荷することができる。特に本稿では、基本運動としての歩行を対象とし、本シミュレータの運動・制御特性を評価した。

### 2. 1 下肢骨格の再現

図1に示すように、骨盤は筋の起始、人工股関節の白蓋コンポーネント、力覚センサを取り付けることを想定し、アルミフレームで構成した。白蓋コンポーネントは文献<sup>8)</sup>を参考に、外方開角45度、前方開角20度として設置した。なお、それぞれ $\pm 20$ 度の調整が可能となっている。また膝関節コンポーネントについては、大腿と頸骨それぞれのコンポーネントで $\pm 5$ 度の調整が可能である。

本シミュレータでは、7筋が骨盤を起始としており、後述のリンクケーブルを取り付けることで筋の起始をアルミフレーム上に再現した。また、2軸周りに角度変更が可能でガイドを設けることで、リンクケーブルから誘導されるワイヤを筋走行方向に向けた。

大腿はアルミパイプ上の治具に、ステムと大腿コンポーネントを取り付け構成した。このとき、ステムの前捻角と大腿コンポーネントの後傾角をそれぞれ調整可能とした。また、4筋の停止と広筋、腓腹筋の起始を取り付けた。本研究では、シミュレータに力覚センサを取り付けることを想定し、大腿コンポーネント上にスペースを確保した。

下腿も同様に、脛骨コンポーネントはアルミパイプ上の治具に取り付け構成した。膝蓋腱にはベルトを用い、これに3Dプリンタ製の膝蓋骨と大腿直筋、広筋、ハムストリングの停止を取り付けた。

足部は義足用の足部模型を用い、ヒンジを取り付けることで足関節を1軸関節とした。本研究では、この足部模型の踵骨部に腓腹筋の停止を取り付けた。また前脛骨筋としてばねを用い、足部の背屈運動は受動的運動として再現した。

本シミュレータは、体格寸法の違いなども評価できるように、8筋の起始・停止位置を任意の方向に調整でき、また大腿・下腿の寸法も変更可能となっている。

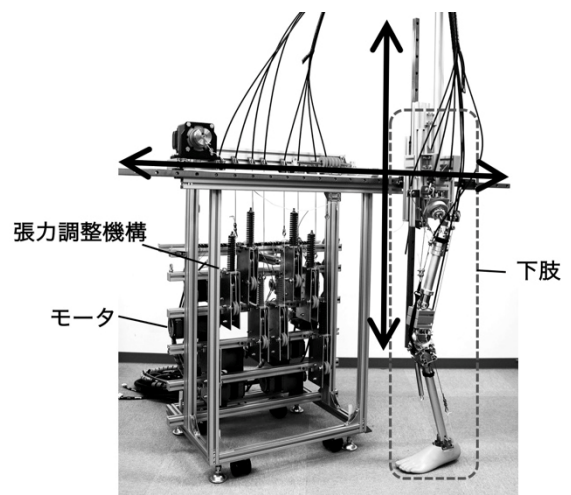


Fig.1 Lower extremity simulator



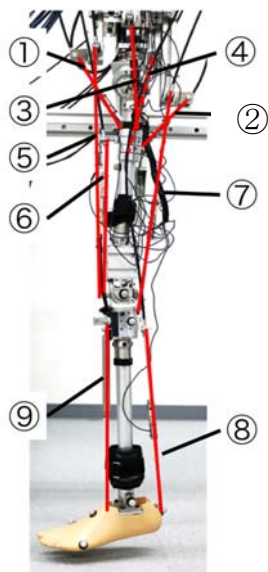


Fig.2 Reproduced muscles and the anatomical structure

Table 1 Muscles in the simulator

筋番号	筋名	筋番号	筋名
①	腸腰筋	⑥	広筋
②	大臀筋	⑦	ハムストリングス
③	中殿筋	⑧	ヒラメ筋
④	内転筋	⑨	前脛骨筋
⑤	大腿直筋		

## 2. 2 筋の再現

シミュレータの筋配置を図2に、同図における筋を表1に示す。下肢の全筋の再現はスペース上の制約のため困難である。このため、関節への役割・走行が近い複数の筋をまとめ、大臀筋、中臀筋、腸腰筋、大腿直筋、ハムストリングス、内転筋、広筋、前脛骨筋、ヒラメ筋の9つにまとめた。

これら9つの筋群は、骨格に付着したワイヤとして再現され、ワイヤをモータで巻き取ることで筋の収縮が再現された<sup>9)</sup>。本研究では、拮抗筋の機能を再現するために、停止時や弛緩時にトルクを保持可能なステッピングモータを用いた。モータの選定は、歩行や軽いジョギング運動時の筋張力を再現できることとし、Arnoldらの研究<sup>10)11)</sup>に基づき決定された。

ワイヤ張力の調整には、先行研究を参考に図3に示す張力調整機構を用いた<sup>12)</sup>。ばねには、ワイヤの牽引力を調整することに加えて、外乱変位に対する抑制効果を持たせた。生成されたワイヤの張力は、ロードセル(Micro load cell (0-50 kg)・CZL-635, Phidgets社)に取り付けられたプーリを介することで検出される。本研究では、大殿筋とハムストリングスにはばね定数 38.1 [N/mm]、腸腰筋、内転筋、腓腹筋には 71.6 [N/mm]、広筋群、大腿

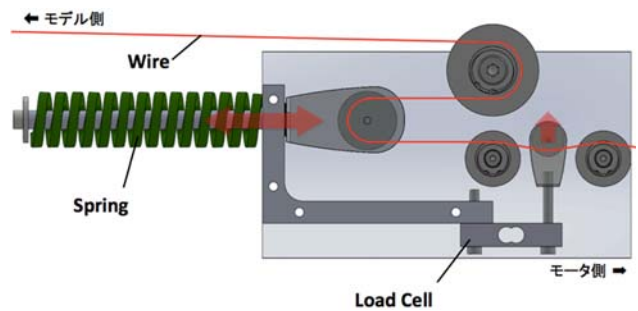


Fig.3 Muscle tension generator

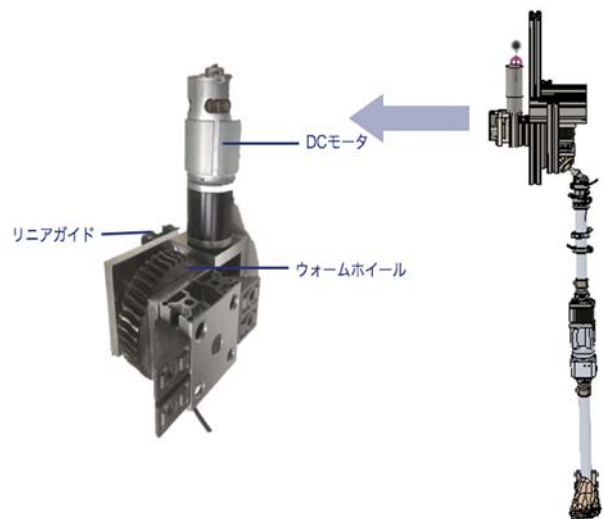


Fig.4 Mechanism of the pelvic movements

直筋、中殿筋には 88.2 [N/mm]のばねを利用した。

モータ及び張力調整機構で発生したワイヤ張力の伝達には、リンクケーブルを用いた。これにより、機構の単純化及び他の関節に影響を与えないようにした。

## 2. 3 骨盤運動機構

本シミュレータの下肢は、骨盤のみがモータと張力調整機構を載せるフレームと接続している。このため、骨盤部分の運動機構を構築した。この骨盤機構を図4に示す。この骨盤機構は、骨盤の前後傾運動を実現できるが、歩行接地時などの衝撃により骨盤姿勢が大きく変化しないようにウォームホイールとウォームギアにより回転を実現した。これにより、指定の前後傾運動はDCモータによって位置制御を行うが、脚部からの反力では姿勢が変化しない設定とした。

## 2. 4 下肢全体の可動域

本シミュレータの下肢は、骨盤のみがモータと張力調整機構を載せるフレームと接続している。この接続部に2軸のリニアガイドを用いることで、矢状面内の並進運動を可能とした。本研究では歩行動作や階段の昇降動作を想定し、骨盤が前後方向 2m、上下方向 1.2m 移動できるように設計した。なお、本シミュレータでは、骨盤の前後傾姿勢は目標値の実現のみを行うオープンループで

の制御であり、必ずしも目標の姿勢となるわけではない。

## 2. 5 歩行動作の再現

本研究では、ヒトの下肢動作の再現性評価の一つとして、日常動作である歩行運動を行わせた。ヒトの歩行時の関節角度・床反力から筋収縮の変位を推定し、モータの入力として与えた。また、反対側脚による蹴り出しを想定し、モータとワイヤを用いて骨盤を一定の速度で牽引した。なお、一周期の歩行を再現することとし、歩行周期を1.75秒とした。再現した動作を、光学式モーションキャプチャシステム (Kestrel 2200, Motion Analysis 社)、床反力計 (FP4060-07, Bertec 社)、前述のロードセルを用いて計測し、矢状面における関節角度、床反力、筋張力を文献値<sup>13)</sup>と比較した。この実験において、シミュレータの下肢は一般的な成人日本人男性とし、下肢身体節の寸法と重量および重心位置を文献<sup>14)</sup>に基づき決定した。骨格部材のみでは不足する重量を、重りを用いて補った。この際、決定した身体節の重心位置と実際の重心位置が一致するように、重りの取り付け位置を調整した。なお、体格寸法を変更した際には、重量と重心位置が変わるが、本シミュレータではそれらに対応した調整が可能である。

## 2. 6 着座姿勢から立ち上がりの再現

歩行以外の日常動作として、イス着座姿勢からの立ち上がり動作の再現を行った。イスに着座させてしまうと、シミュレータとイスとの接触力を検出する必要がある。この計測をさけるため、空中で着座姿勢を取らせ、その時の骨盤高さを治具で支えることとした。この姿勢から起立位になるため、下肢の運動だけでなく骨盤の姿勢制御を行った。この時の骨盤姿勢は、後述の動作計測データに基づき決定した。

## 2. 7 動作時の筋張力の推定

本研究では、動作時の筋張力の推定に OpenSim<sup>15)</sup>を用いた。OpenSim は物理シミュレータの一種であり、ヒトの運動データと周囲環境との接触力を組み合わせることで、動作時の筋張力を推定することができる。OpenSim では、すでにヒトの筋骨格構造が精密に再現されているが、これはシミュレータの簡易化された筋骨格構造とは異なる。このため、OpenSim 上のモデル設定を本シミュレータに対応させ、この状態で動作時の筋張力を推定した。これにより、シミュレータ用の筋張力を推定できることになる。

## 2. 8 動作の計測

本研究では、OpenSim に用いるヒトの運動データとして、歩行は OpenSim に付属の標準データを利用した。この一方、着座姿勢からの立ち上がりについては、シミュレータの身体特徴に近い健康成人1名の運動を計測し

利用した。

被験者の解剖学的特徴点に反射マーカを貼付し、片足を床反力計に乗せた状態で着座させた。この時、両腕を組ませたまま運動を行わせた。立ち上がり運動は、慣性の影響をできるだけ少なくするように、2秒かけてゆっくりと行わせた。

## 3. 結果

### 3. 1 歩行動作の再現

各関節の矢状面方向の角度変化を図5に示す。なお、歩行周期の0~60%を立脚相、60~100%を遊脚相としている。シミュレータとヒトを比較すると、股関節では、伸展のピークが歩行周期の50%時となりまた伸展角度も概ね一致した。膝関節では、伸展のピークがヒトの平均的な歩行では42%時であったが本シミュレータでは36%時であった。また屈曲のピークはヒトでは70%時、シミュレータでは76%時であった。ピーク値は、伸展と屈曲でどちらも大きな3度程度の違いしかなく可動域に対して十分小さいことから、定性的に一致していた。また足関節では、歩行周期20%頃まで底屈し、残りの立脚相は背屈となった。一般的なヒトの歩行では、底屈のピークは立脚期の5%程度で生じ背屈のピークは13%程度で生じたが、本シミュレータでは底屈のピークは10%程度で生じ背屈のピークは53%時で生じ大きく異なり、ヒトとは一致しなかった。

床反力変化を図6に示す。垂直・前後反力共に最大値は概ね一致した。しかし、垂直反力は二峰性の特徴が見られず、前後反力はピーク値が立脚中期に集中していた。

筋張力変化を図7に示す。得られた筋張力の半数は定性的な特徴を捉えていた。しかし、内転筋、腓腹筋、大腿直筋では張力発揮時間のずれを示した。

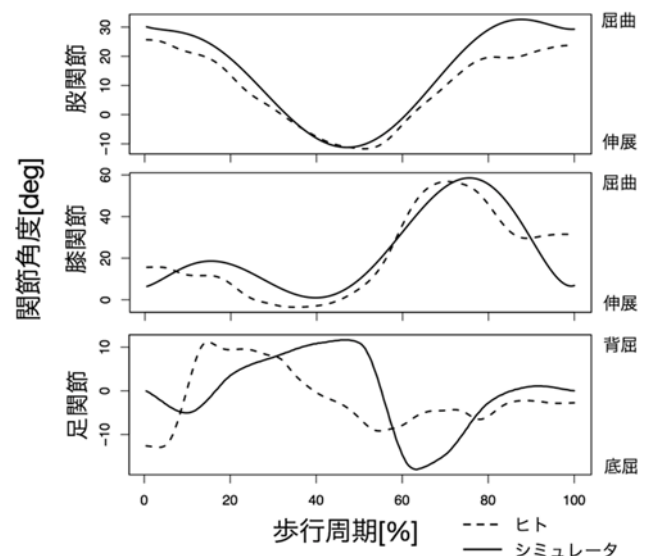


Fig.5 Comparison of the hip, knee and ankle joint angles between human and the simulator

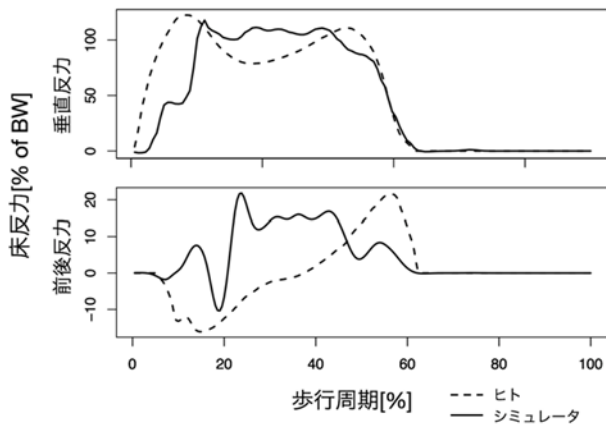


Fig.6 Ground reaction forces of human and the simulator (BW: Body Weight)

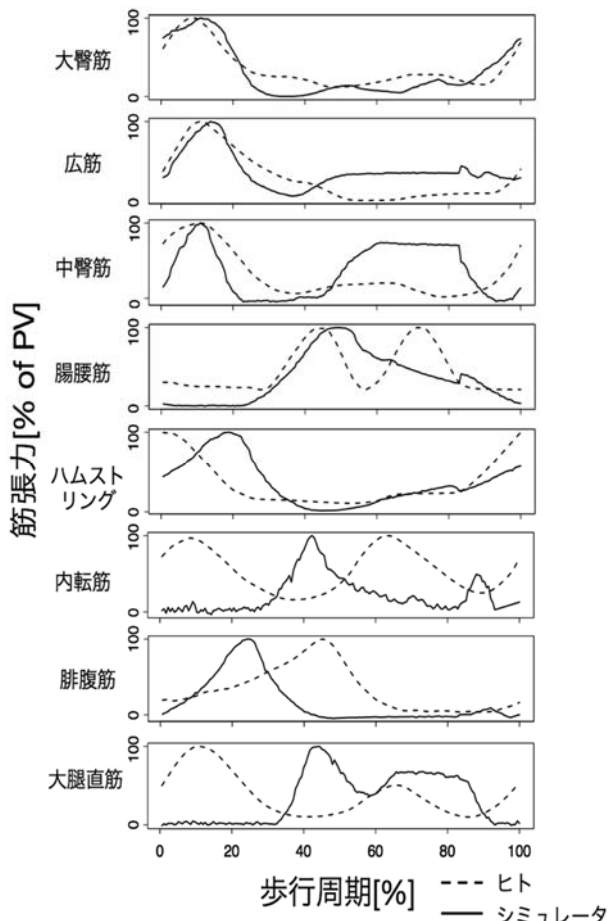


Fig.7 Muscle activation along time of human and the simulator (PV: Peak Value)

この時の股関節の力学的負担を図8に示す。前後(Fx)と内外側(Fy)に比べて、頭尾側方向(Fz)は大きな筋張力を示し、また波打つような筋張力の変化を示した。これに対して関節モーメントでは、内外反(Mx)と内外旋(Mz)に比べて、屈曲/伸展(My)モーメントが大きな値を示し、筋張力と同様に波打つような関節モーメントの変化を示

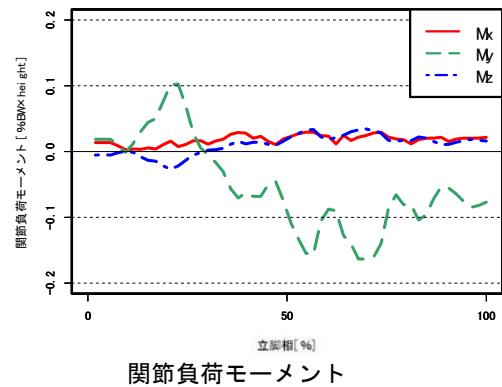
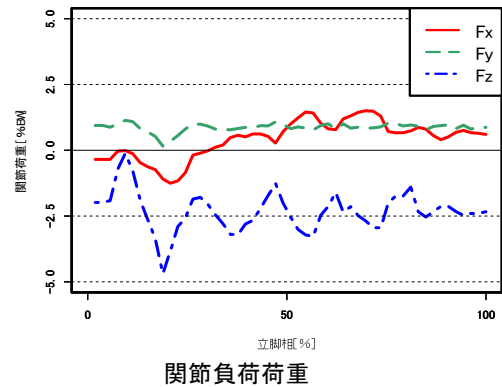


Fig.8 Muscle activation along time of human and the simulator (PV: Peak Value)

した。

### 3. 2 立ち上がり動作の再現

立ち上がり動作時の股関節、膝関節、骨盤の角度変化を図9に示す。この結果、ほぼヒトに類似した変化を示すことがわかった。

## 4. 考察

### 4. 1 歩行動作

股関節伸展の主動筋である大臀筋とハムストリングは立脚開始期(0%)から立脚中期(30%)にかけて体重を支えつつ股関節を進展させるために筋張力を発揮する。また、股関節屈筋の主動筋である腸腰筋は、立脚終期(50%)から遊脚初期(75%)にかけて股関節を屈曲させ、この勢いを保ち、遊脚終期まで屈曲を続ける。シミュレータの大臀筋及びハムストリング、腸腰筋はこれらの特徴を捉えており、図4に示す股関節屈伸運動の再現性に繋がったと考えられる。

股関節外転及び内転は、それぞれ中臀筋と内転筋が主動筋として機能しており、歩行においては前額面で骨盤姿勢を安定させる役割を持つ。シミュレータでは、中臀筋と内転筋ともにヒトと比べると活動時間の相違がみられる。これは、共に生理的断面積が大きい複数の筋を1本のワイヤで再現したため、生体とは異なる筋活動を行

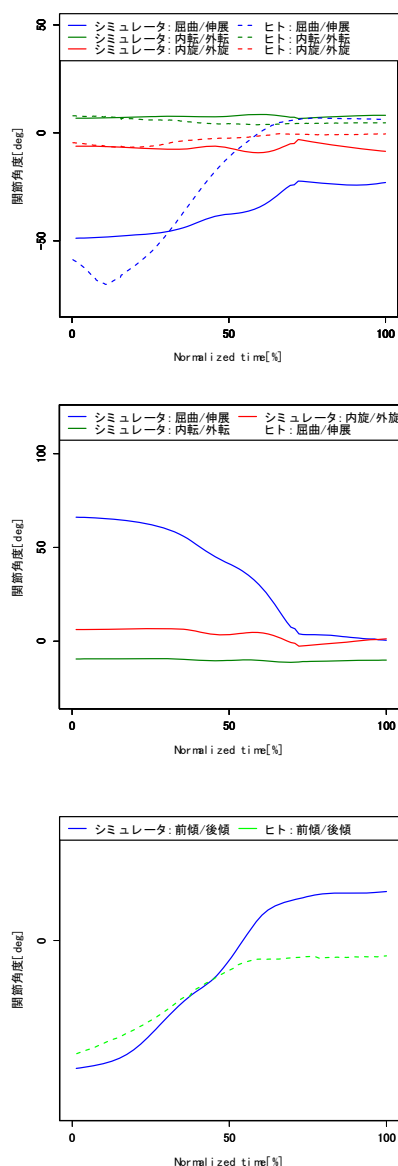


Fig.9 Muscle activation along time of human and the simulator (PV: Peak Value)

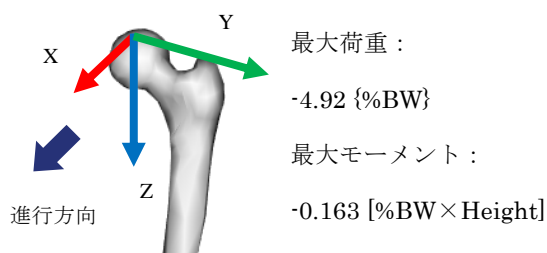


Fig.10 Muscle activation along time of human and the simulator (PV: Peak Value)

なった結果と考えられる。

膝関節伸筋の主動筋は大腿四頭筋(広筋, 大腿直筋)であり, 立脚初期(10%)に体重を支えるために活動し, 遊脚期(60~80%)に膝を伸展させるように再度発揮する. シミュレータでは広筋が立脚初期に筋張力を発揮し, 大腿直筋が遊脚期に発揮している. これは, 両筋張力のバランスが欠如したことより, 片方の筋活動が大きくなることで, もう片方の筋張力を補ったためと考えられる. 膝関節屈曲は, 下腿部の慣性や床反力による筋張力以外の力によって生じ, ハムストリングと腓腹筋の補助的な筋活動により立脚終期から遊脚初期 (50~60%) において屈曲を行う. 図 4 に示すシミュレータの膝関節屈伸運動は, このようなヒトの特徴を捉えており, 大腿四頭筋(広筋, 大腿直筋)が比較的大きな役割を担っているものの, ヒトと同様の筋活動を再現できていると考えられる. しかし, 屈伸運動や階段昇降運動など膝関節伸筋の活動度が増加する場合には, 張力が不足することが予想される. よって, 現状の筋変位の制御では限界があるため, 筋張力をフィードバックした制御が必要だと考えられる.

足関節の背屈筋である前脛骨筋は, 立脚期に他動的な足関節底屈を減速させる役割を持つ. 底屈筋である腓腹筋は一般的に, 立脚期 (10~40%) に活動する. シミュレータによる腓腹筋の筋活動はヒトの活動とは一致せず, 足関節角度と床反力においても再現性に欠けている. 本シミュレータは, 機構の簡略化として前脛骨筋をばねによる受動的な筋として再現した. このため, 腓腹筋の拮抗筋として足関節を制御できなかったことが原因と考えられる. このため, 前脛骨筋でも能動的な筋制御を行う必要があるといえる.

本シミュレータは, 股関節と膝関節では関節角度変位と筋発揮タイミングが概ね一致していた. 床反力の波形は必ずしも一致しなかったものの, 最大反力値が概ね一致していた. 今後, 筋張力をフィードバックした制御を行うことで, 筋張力の再現性向上が考えられる. また, 前脛骨筋を能動的な筋として再現することで, 腓腹筋の制御性の向上が望まれ, 床反力の垂直成分の二峰性を再現できると考えられる.

関節負荷のピーク値とその作用方向はを図 10 のように表される. 頭尾側方向の力( $F_z$ )は, 歩行時において踵接地から立脚中期を経てつま先離地に行こうするにあたり, 体重と慣性力さらに筋張力による圧縮力も加わり, 他の軸に比べて大きな値となることが予想される. 本実験でも, 予想通りの結果となった. また, 関節モーメントについては, 股関節の最大可動域は屈曲/伸展方向であり屈曲や伸展運動を行うと床反力と股関節中心までの距離が大きくなり, 関節モーメントの増加が予想される. 本研究でも予想通りの結果となった. これらの関節負荷と関節モーメントの大きさを, 既報の結果を比較したものを図 11 に示す. Bergmann ら<sup>16)</sup>による生体計測の結果と比較したものである. より大きな値を示しが  $F_z$  と  $M_y$  の変化のみ比較する. 頭尾側方向の力を比較すると, 本実験では, 波打つような変化を示しているものの, 値



の変遷については既報と大きな違いはない。このため、関節負荷は適切に再現できているといえる。これに対して関節モーメントでは、値の変化以上に関節モーメントの取る値そのものが大きく異なっている。本シミュレータでは、関節負荷を推定するセンサが骨盤側に取り付けてあるのに対して、参考にした文献では大腿骨頸部に取り付けてある。厳密な比較はできないが、本シミュレータのセンサの方が関節位置までのモーメントが長くなっており、このために関節モーメントが大きく算出されたものと考えられる。

#### 4. 2 立ち上がり動作

本シミュレータの起立運動時の関節及び骨盤の角度の平均値と、ヒトの起立運動時の各関節及び骨盤の角度比較を図9に示されている。ヒトの膝関節はOpenSim上でピンジョイントで再現したため屈曲伸展のみとした。本シミュレータの膝屈曲角度は、前述に示したように初期姿勢を70度としたため、ヒトの初期姿勢は90度程度であり違いがある。しかし、動作を行った時の角度推移は類似しており、動作終了時には0度となり立位姿勢時の膝屈曲伸展角度を再現していると言える。また、本シミュレータは立位姿勢に近づくと外旋をしていることがわかる。これは終末強制回旋運動といい大腿骨内側顆の関節面が外側顆よりも約1.2cm長いことや、伸展に伴い前十字靭帯と後十字靭帯がその絡み合いから解放される方向へ前十字靭帯が誘導することにより生じる。しかし、外旋角度を維持できていない。これは、靭帯が膝関節伸展筋の出力によりゆるんだため姿勢を維持できなかったと考えられる。

また、膝関節の内外転角度は角度の変化が小さい。膝関節は屈曲/伸展動作を主体としているため、角度推移が小さいと考えられる。

股関節角度は内外旋角度は、ヒト起立動作時と比較し外旋していた。これは、股関節外旋筋である大臀筋の出力値が入力値より大きく出力しているためであると考えられる。また、股関節内旋筋は本シミュレータには再現されておらず拮抗筋としての機能がないこのため内外旋の姿勢の維持が難しいと考えられる。また、股関節内外転角度はヒト起立動作と比較し外転していた。これは股関節外転筋である中臀筋は本シミュレータに再現されているが、股関節内転筋は再現されていないため股関節内外転の姿勢維持ができなかったためと考えられる。さらに、股関節屈曲伸展角度は角度が大きく異なった。これは、本シミュレータの骨盤角度の再現度の低さが影響していると考えられる。股関節角度は骨盤と大腿骨との相対角度であるため、骨盤の前傾後傾動作の影響を受けるためであると考えられる。

骨盤角度は初期姿勢は本シミュレータが22度後傾をしており、それに対してヒトは30度の後傾をしている。立位姿勢時には本シミュレータは8度程度前傾をしており、ヒトでは3度程度後傾していた。このことから骨盤

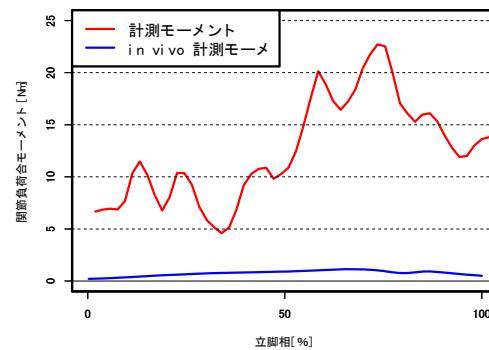
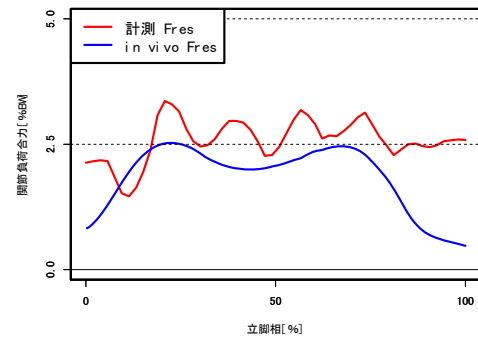


Fig.11 Muscle activation along time of human and the simulator (PV: Peak Value)

前後傾の角度推移は似ており、骨盤の制御に問題はなかったと考えられる。しかし、本シミュレータでは初期姿勢の再現度が低い。本シミュレータの初期姿勢は、まず骨盤角度から行った。DCモータを手動で制御しエルゴメータで角度を計測した。その後、下肢骨格の初期姿勢の維持を筋張力を用いて行った。この際、股関節の屈曲伸展に関わる筋によって骨盤姿勢に影響が生じたと考えられる。

本シミュレータの膝関節の屈曲伸展角度は、再現性が必ずしも高くない。これは、骨盤運動のタイミングのズレに伴い、ハムストリングスが引っ張られ膝関節伸展を妨げているためであると考えられる。内外旋は動作の40%付近で再現性が低くなっている。これは終末強制回旋運動の生じるタイミングの違いであると考えられる。またこの運動は伸展のタイミングに依存するため屈曲伸展角度の再現性の低さが影響しているとも考えられる。内外転角度は、動作開始から40%付近まで再現性が低くなっていた。これは、動作時に脛骨に大腿骨及び骨盤の重心が乗るまで安定しないためだと考えられる。内外旋及び内外転運動は、動作時間の50%以降は高い再現性を示した。これは、膝関節が立位姿勢と同様に伸展してからはほとんど内外旋及び内外転には動作をしないためと考えられる。

股関節角度は内外転は再現性が高かった。これは、骨盤の動作に影響をほとんど受けなかったためであると考えられる。屈曲伸展運動では、動作開始時から35%程度までは再現性が低かった。これは、骨盤の初期姿勢の違いによるものだと考えられる。また、動作全体の50%以降は標準偏差の変化が一定になっていた。骨盤動作の標準偏差の変化が一定となるタイミングと似ていた。このため、屈曲伸展動作は骨盤の動作に大きく影響を受けることがわかった。内外旋動作は動作35%付近まで再現性が低かった。これも同様に、内外旋角度の初期姿勢のズレが影響したためと考えられる。また、動作50%以降は再現性が高い。これは、骨盤動作の標準偏差の変化が一定になるタイミングと近いため、骨盤の姿勢の影響を受けていると考えられる。

骨盤の前傾後傾動作は、動作50%付近以降で標準偏差の変化が一定になっていた。本研究ではDCモータによる制御によって角度変化を行っているため、筋の影響が小さいためであると考えられる。

本シミュレータの膝関節の屈曲伸展角度は、再現性が低かった。これは、骨盤の動作タイミングのズレに伴い、ハムストリングスが引っ張られ膝関節伸展が妨げられたためであると考えられる。内外旋運動は、動作の40%付近で再現性が低くなっていた。これは終末強制回旋運動の生じるタイミングの違いであると考えられる。またこの運動は伸展のタイミングに依存するため、屈曲伸展角度の再現性の低さが影響していると考えられる。内外転角度は、動作開始から40%付近まで再現性が低くなった。これは、動作時に脛骨に大腿骨及び骨盤の重心が乗るまで安定しないためだと考えられる。内外旋及び内外転は、動作時間の50%以降で高い再現性を示した。これは、膝関節が立位姿勢と同様に伸展してからはほとんど内外転及び内外転には動作をしないためと考えられる。

股関節角度は内外転は再現性が高かった。これは、骨盤の動作に影響をほとんど受けなかったためであると考えられる。屈曲伸展では、動作開始時から35%程度までは再現性が低かった。これは骨盤の初期姿勢の違いによるものだと考えられる。また、動作50%以降は標準偏差の変化が一定になっていた。これは骨盤動作の標準偏差の変化が一定となるタイミングと近かった。このため、屈曲伸展動作は骨盤の動作に大きく影響を受けることがわかった。内外旋動作は動作35%付近まで再現性が低かった。これも同様に、内外旋角度の初期姿勢のズレが影響していると考えられる。また、動作50%以降は再現性が高かった。これは、骨盤動作の標準偏差の変化が一定になるタイミングと近いため、骨盤の姿勢の影響を受けたものと考えられた。

骨盤の前傾後傾動作は、動作50%付近以降で標準偏差の変化が一定になった。本研究では、DCモータによる制御によって角度変化を行っているため、筋の影響が小さくなったためであると考えられる。

本シミュレータの起立運動時に生じた床反力の平均と

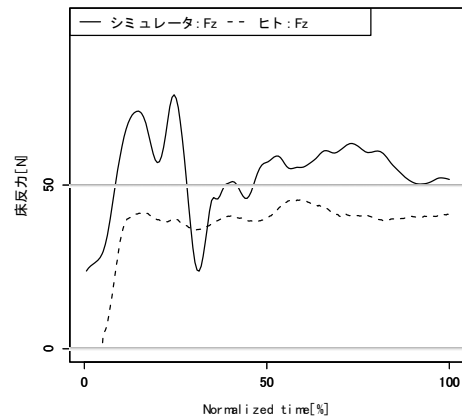


Fig.12 Ground reaction forces of human and the simulator

ヒトの起立運動時に生じた床反力との比較を図12に示す。ヒト動作時の床反力は本シミュレータの重量に合わせるため計測値を1/5に調整した。

ヒトの起立運動時は椅子から立ち上がるため重心が椅子の上に重心があり、椅子に生じる床反力は計測をできていないため初期値は小さい。動作が開始し椅子から臀部が離床しきつてからは床反力は安定していた。

本シミュレータの起立運動時は、初期姿勢を保つためにヒラメ筋が出力し床反力が生じた。このため、初期値がヒト計測時のものと異なった。動作時間の15%付近から臀部が離床している。この時のグラフ推移及び変化量は似ていた。動作の40%付近で急激に床反力が下がっている。これは、広筋群の筋張力の最大値の発火タイミングと近い。このため、広筋群により大腿骨が持ち上げられたためと考えられる。

#### 4.3 筋張力の妥当性

本報告資料には示していないが、外側広筋及び中間広筋の出力は入力値より早い段階で大きく筋張力を発生し、動作の途中で急激に小さくなっていった。これは、動作開始時にシミュレータの骨盤部及び大腿骨部の重心を脛骨に乗せるまで筋張力が大きく発生し、脛骨にそれらの重心が乗った直後に支えていた筋が緩むためであると考えられる。

この一方、本シミュレータのハムストリングスは大きな筋張力を出力していた。これは、拮抗筋である広筋群が大きく出力したため、ハムストリングスのワイヤが引っ張られ筋張力が発生したと考えられる。また、動作開始時は骨盤が後傾をしていた。ハムストリングスは股関節伸展筋であるため、骨盤を後傾させる。本研究では骨盤動作にモータを用いたが、前傾になるにつれハムストリングスは引っ張られてしまう。このため、動作が進むとハムストリングスは他動的に牽引され、その分が張力として検出されたと考えられる。

本シミュレータの大腿直筋の再現度が低かった。これは、大腿直筋と同じ膝伸展筋である広筋群の出力が大き

いため、広筋群がその機能を果たしてしまっただめだと考えられる。大腿直筋は2関節筋であり、股関節屈曲及び骨盤前傾時に作用する。しかし、本研究で用いた骨盤は筋張力で制御していないため、動作が進むにつれ大腿直筋が緩んでしまったと考えられる。腸腰筋も筋発火パターンが入力値と出力値で大きく異なった。腸腰筋は股関節屈曲及び骨盤前傾時に作用する。しかし、本研究では骨盤はモータ制御をしており、腸腰筋の働きを骨盤のモータが果たしてしまっただめのため、ほとんど出力をしなかったと考えられる。

中臀筋は筋発火パターンの再現度が高かった。これは、本シミュレータの股関節内外転がほとんど変化しなかったためと考えられる。このため、股関節外転筋である中臀筋は大きく出力をしなかったと考えられる。

大臀筋は動作時間の中間より再現度が高くなった。これは、大臀筋は股関節伸展筋であり骨盤を後傾させる。しかし、骨盤がモータにより前傾した時に引っ張られ再現度が高くなったと考えられる。

本シミュレータのヒラメ筋は、ヒト動作時より大きく出力していた。動作開始時に足関節が背屈し、立位姿勢になる時は底屈する。この時にヒラメ筋が引っ張られ、張力が作用してしまっただめと考えられる。

#### 4. 4 総合考察

本研究の限界として、靭帯などの関節動態を制動する軟部組織を構造的に再現できていない点が挙げられる。本シミュレータでは、関節面が接触する程度の靭帯様組織しか取り付けておらず、屈曲以外の制動は筋張力のバランスによって実現されている。しかしながら、実際の人工膝関節であれば軟部組織バランスが人工関節の早期の緩みや摩耗に影響を与えることになるため、筋張力バランス以外の方法で制動できるように軟部材料による制動機構の取り付けが重要となる。

また、本シミュレータの骨盤は前後傾運動を行えるものの内外旋や内外転はできない。このため、人工股関節の臼蓋コンポーネントが骨頭部分に被ることで生じる力学影響を評価することができない。現状では上半身の全重量を再現しておらずこれも本研究の限界であるが、上半身重量を再現した際には、骨盤の姿勢変化に伴う上体の力学的影響についても検討していく必要がある。

本シミュレータは、ヒトの下肢構造の再現を試みているが、足関節は底背屈の1自由度のみとなっており、足部は義足部品を利用している。実際のヒトの足関節は、底背屈、内外反、内外旋の組み合わせられた複雑な関節動態を示す。また、足部自体もアーチが変形し衝撃を吸収するため、義足の利用では必ずしも十分に足関節と足部変形を再現できるわけではない。このため、足関節と足部の構造的な再現も今後の課題といえる。

本研究では、日常動作によって人工関節に生じる運動学・動力学状態を明らかにすることを目的に下肢シミュレータの開発に取り組んだ。ヒトと同様に筋張力制御

を行うことで、生体と同様の運動および生体内力学環境の再現が期待できる。さらに、様々な動作を行わせることで、日常動作が人工関節に与える力学的影響を明らかにすることが可能となる。この結果、摺動面の摩耗評価を行う際の実験条件などを明らかにすることができ、画一的な入力条件となっていた従来手法に比べて、より実践的な評価が期待できる。上述のように、本シミュレータには克服すべき課題が複数ある。しかし、本シミュレータの開発意義は小さくなく、また現状のシミュレータであっても定性的にはヒトと同様の歩行を実現できている。このことから、本シミュレータは人工膝・人工股関節の基礎的な運動学・動力学状態を明らかにするうえで有用と考えられる。

#### 4. おわりに

本研究では、人工関節評価のための下肢シミュレータの開発を行った。これに歩行やイスからの起立動作を行わせたところ、ヒトと類似の運動を再現することができた。筋張力や関節負荷、関節モーメントは異なる場合があるものの、動作時の関節動態の関節や生体内力学的不可を推定する上で有用と考えられた。

#### 謝辞

本研究は、工学院大学総合研究所プロジェクト研究費の支援を得た。ここに記して謝意を表す。

#### 参考文献

- (1) 日本人工関節学会: THA レジストリー統計, (2016)
- (2) 日本人工関節学会: TKA レジストリー統計, (2016)
- (3) Damm, P., et al.: Total hip joint prosthesis for in vivo measurement of forces and moments, *Medical Engineering & Physics*, Vol.32, (2010) pp.95-100.
- (4) Heinlein, B., et al.: Design, calibration and pre-clinical testing of an instrumented tibial tray. *J. Biomechanics*, Vol.40 (2007) pp. S4-S10.
- (5) Damm, P., et al.: Comparison of in vivo measured loads in knee, hip and spinal implants during level walking. *J Biomechanics*, Vol. 51 (2017) pp.128-132.
- (6) Hacker, □S., et al.: The influence of the test setup on knee joint kinematics - A meta-analysis of tibial rotation. *J Biomechanics*, Vol.49 (2016) pp.2982-2988.
- (7) 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* Vol.81, No.824 (2015) pp.1-14.
- (8) 山本謙吾: 人工股関節のバイオマテリアル, 東京, メジカルビュー社, (2017).
- (9) Jantsch, M., et al.: Anthrob—A printed anthropomorphic robot, in *Proc. IEEE/RSJ Int. Conf. Humanoid Robots (Humanoids)*

- (2013) pp.342-347.
- (10) Arnold, E.M., et al. : A Model of the Lower Limb for Analysis of Human Movement, *Annals of Biomedical Engineering* 38: 269-279, 2010.
- (11) 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.
- (12) Donald, A.N., 嶋田智明他 (訳) : 筋骨格系のキネシオロジー, 医歯薬出版株式会社, (2010) pp.547-591.
- (13) 阿江通良, 湯海鵬他 : 日本人アスリートの身体部分慣性特性の推定: *バイオメカニズム* 11 (1992) pp.23-33.
- (14) Delp, S. et al: OpenSim: Open-Source Software to Create and Analyze Dynamic Simulations of Movement, *IEEE Trans Biomed Eng*, Vol.54 No.11 (2007) pp.1940-50.
- (15) Bergman et al: Standardized Loads Acting in Hip Implants, *PLoS One*. Vol.11 No.5 (2016) e0155612. doi: 10.1371/journal.

## 【研究 成果】

### 発表論文

- (1) 藤原史大, 萩原拓己, 高橋康仁, 山本謙吾, 桐山善守: 筋骨格構造を有する下肢人工関節シミュレータの開発, *臨床バイオメカニクス*, Vol.39 (2018) pp.71-77.

### 学会発表

- (2) 藤原史大, 萩原拓己, 高橋康仁, 山本謙吾, 桐山善守: 下肢人工関節シミュレータを用いた歩行動作における人工関節への負荷解析, *日本臨床バイオメカニクス学会*, 愛媛(11月), 2017年.
- (3) 萩原拓己, 高橋康仁, 山本謙吾, 桐山善守: 下肢人工関節シミュレータを用いた歩行動作における人工関節への負荷解析, *日本臨床バイオメカニクス学会*, 秋田(11月), 2018年.

### 特許出願

特に無し



## 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 (Part I)** : Our group has developed Na<sup>+</sup>-superionic conductive Narpsio (typically represented as a general formula of Na<sub>3+3x-y</sub>R<sub>1-x</sub>P<sub>y</sub>Si<sub>3-y</sub>O<sub>9</sub>, R = rare earth) glass-ceramics, as analogues of Na<sub>5</sub>RSi<sub>4</sub>O<sub>12</sub> (N5)-type Na<sup>+</sup>-superionic conductors, and it was revealed that these showed excellent ionic conductivity up to ~10<sup>-1</sup> S/cm, which is comparable to those of the conventional ceramic Na<sup>+</sup>-conductor such as β- and β''-aluminas and NASICONs. The R elements may have significant effects on the conduction properties, as well as the crystallization of glasses. However, the rare earth element has a problem in the amount of resources and cost. Therefore, by replacing the R of the N5-type structure with Fe, the synthesis of inexpensive N5-type glass-ceramics of the rare earth-free is expected. In this study, the N5-type Narpsio conductors were prepared from the glasses with the composition Na<sub>5-x</sub>FeP<sub>x</sub>Si<sub>4-x</sub>O<sub>12</sub> (x = 0~0.2) with investigating their thermal crystallization conditions, and their ionic conductivity were evaluated. The conductivity in the grain of the glass-ceramics crystallized for 2 h was increased slightly by the addition of P, and the conductivity was decreased by the longer thermal crystallization probably due to the formation of the impurity phases. However, it was found that the obtained N5-type glass-ceramics of the rare earth-free exhibited excellent conductivity of the order of 10<sup>-3</sup> S cm<sup>-1</sup>.

#### I - 1. はじめに

Na<sub>2</sub>O-R<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> (R=希土類元素)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

Na<sub>3</sub>RSi<sub>3</sub>O<sub>9</sub> (N3型)、Na<sub>5</sub>RSi<sub>4</sub>O<sub>12</sub> (N5型)、Na<sub>9</sub>RSi<sub>6</sub>O<sub>18</sub> (N9型)の3つの結晶相を持つ。中でもN5型は、結晶構造中にSiO<sub>4</sub>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Na<sup>+</sup>が電荷キャリアとして通るため、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Na<sub>2</sub>O-R<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-SiO<sub>2</sub>系Na<sup>+</sup>伝導性固体電解質(Narpsio)<sup>(1),(2)</sup>は、N5型を合成可能な組成範囲が広い。このようなNarpsioやβ, β'-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。

本研究(Part I)では、① SiのP一部置換および②結晶化熱処理条件の2つの観点から、RをFeで代替した希土類フリーN5型結晶化ガラスの合成を検討し、伝導度の向上を図った。

## I-2. 実験

結晶化ガラス試料の作製は、一般組成式Na<sub>5+3x-y</sub>Fe<sub>1-x</sub>P<sub>y</sub>Si<sub>4-y</sub>O<sub>12</sub> (x=0, y=0, 0.1, 0.2)にしたがい、熔融急冷・ガラス結晶化法を用いて行った。はじめに、Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>およびSiO<sub>2</sub>を秤量・粉砕・混合し、電気炉内で脱CO<sub>2</sub>のため900°Cで0.5 h 仮焼した後、1400°Cで1 h 熔融した。融液を大気中室温にてステンレス板を用いてプレス急冷し、母ガラスを得た。次に、作製した母ガラス、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>およびNa<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>を秤量・粉砕・混合した。これらを電気炉内にて1400°Cで1 h 熔融後、得られた融液を大気中室温にてステンレス板を用いてプレ

ス急冷し、ガラス試料を作製した。得られたガラス試料について、熱重量-示差熱分析(TG-DTA)を行い、結晶化条件を検討した。ガラス試料を粉砕した後、一軸加圧成型および冷間等方加圧(CIP)による成型(150 MPa)後、核生成を500°Cで1 h、核成長を750°Cで1~50 hと変化させて結晶化を行い、結晶化ガラス試料を作製した。得られた結晶化ガラスについて、結晶相の同定のため粉末X線回折(XRD)測定、微細構造の検討のため走査型電子顕微鏡(SEM)観察を行い、複素アドミタンス測定による伝導度の解析、直流分極法による電子伝導性の寄与について評価した

## I-3. 結果および考察

### I-3-1 Na<sub>5</sub>FeSi<sub>4</sub>O<sub>12</sub>型結晶化ガラスの合成の検討

これまで希土類元素としてYを使用して合成してきたN5型結晶化ガラスについて、YをFeに置き換えることによって希土類フリーN5型結晶化ガラスの合成を試みた。しかし、希土類元素を使用した系と同様の操作では試料を合成することが困難であり、大きく2つの問題があげられた。まず、ガラス試料は熔融の際に発泡しやすく、るつぽから吹きこぼれる影響で安定的に合成することが困難であった。この問題に対して、Na<sub>2</sub>O-SiO<sub>2</sub>系の母ガラスを作製し、そこにFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>およびNa<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>を添加する形で段階的に行うことにより、安定的にガラス試料が得られるようになった。次に、バルク状でのガラス試料の結晶化が困難であったことがあげられる。バルク状のガラス試料では、結晶化の際に空隙・亀裂の発生や不均一核生成により表面のみが結晶化し、均一に結晶化

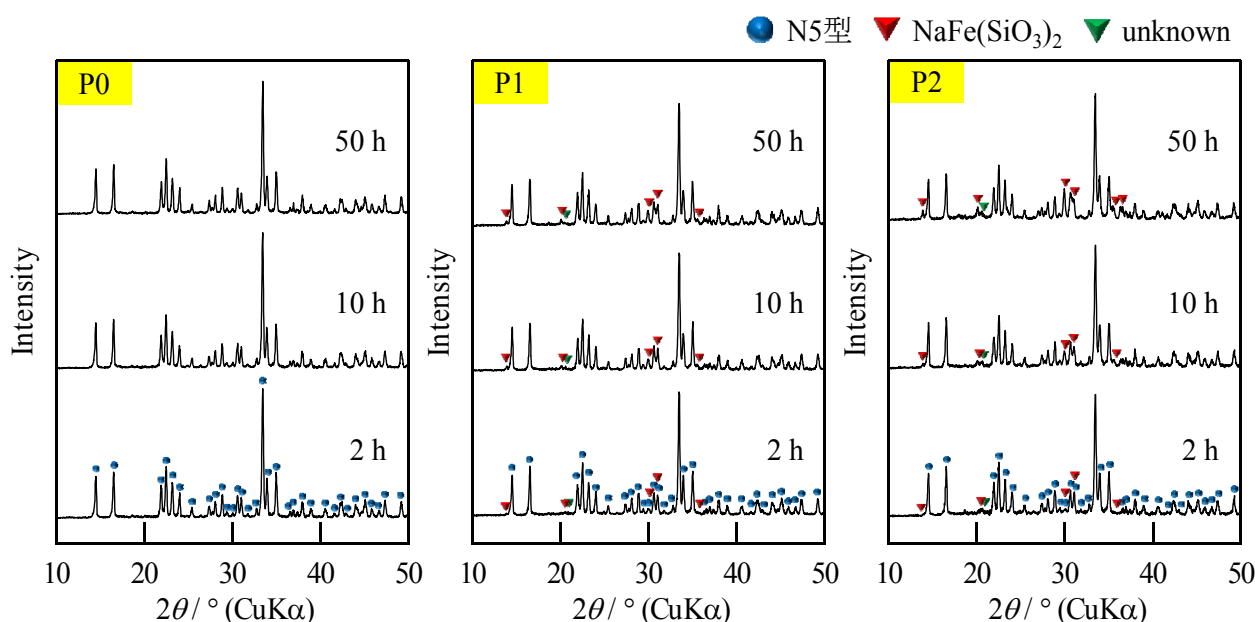


Fig. I-1 核成長時間を変化させて作製した結晶化ガラスのXRDパターン

が進行しなかった．そこで、ガラス試料を粉末状にした後にそれをペレット状に成型することで、より均質かつ緻密なガラス試料が得られると考えた．本研究では、ペレット状に成型したガラス試料を結晶化することにより結晶化ガラスの合成を検討した．

### I - 3 - 2 XRD 測定による結晶相の検討

組成式  $\text{Na}_{5+3x-y}\text{Fe}_{1-x}\text{P}_y\text{Si}_{4-y}\text{O}_{12}$  ( $x=0, y=0, 0.1, 0.2$  : それぞれ P0, P1, P2 と略記する) にしたがって、ガラス試料を作製し、核成長時間を 1~50 h と変化させて結晶化ガラスを合成した．Fig. I-1 に核成長時間を変化させて作製した結晶化ガラスの XRD パターンを示す．すべての組成で N5 型を主とした結晶相が得られた．P0 では N5 型の結晶相が得られたが、P1 および P2 では  $\text{NaFe}(\text{SiO}_3)_2$  が析出し、核成長時間が長くなるにつれてピークが強くなる傾向となった．

### I - 3 - 3 P による一部置換および核成長時間が伝導度に及ぼす影響

核成長時間 2 h で作製した P2 結晶化ガラス (P2-2 h) のコール・コールプロットを Fig. I-2 に示す．結晶化ガラスの伝導度を測定する際に考えられる抵抗成分として粒内、粒界、電極の 3 つが考えられる．今回の測定では円弧は温度上昇にともなって大きくなったが、1 つの円弧のみが観察された．そのため、本研究では成分ごとの解析が困難であることから、粒内の伝導度について評価した．Fig. I-3 に核成長 2 h で作製した各組成の結晶化ガラス (P0~2-2 h) のアレニウスプロットを示す．P の添加量の増加にともない伝導度は増加し、活性化エネルギーはわずかながら低下した．最高の伝導度は P2 で観察され、 $350^\circ\text{C}$  で  $8.78 \times 10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$  となり、活性化エネルギーは  $45.8 \text{ kJ mol}^{-1}$  となった．Fig. I-4 に各組成の  $350^\circ\text{C}$  での伝導度と核成長時間の関係を示した．P0 では、核成長時間の延長にともない伝導度は増加した．しかし、P1 および P2 では、核成長時間の延長による伝導度の増加はみられず、逆に低下する傾向となった．これは結晶相の変化と相関がみられ、核成長時間の延長により不純物相の析出量が増加し、それが抵抗成分となり伝

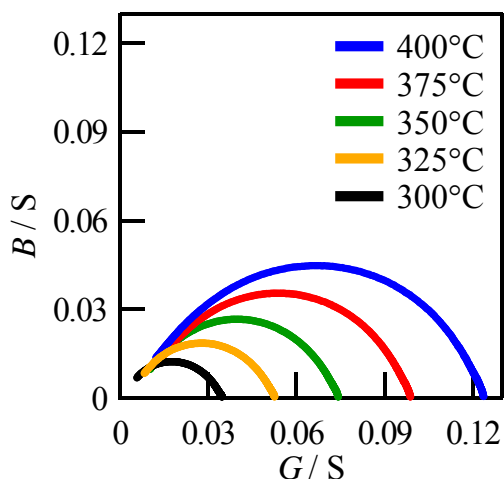


Fig. I-2 P2-2 h 結晶化ガラスのコール・コールプロット

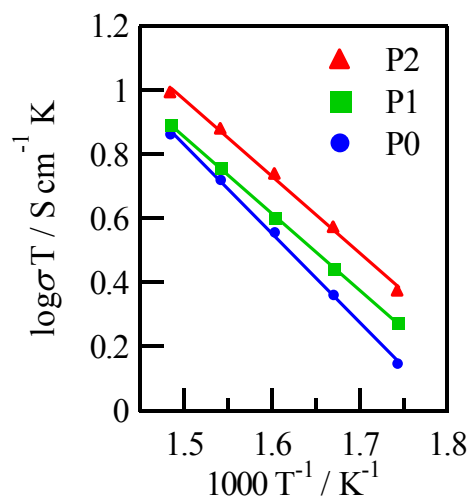


Fig. I-3 P0~2-2 h 結晶化ガラスのアレニウスプロット

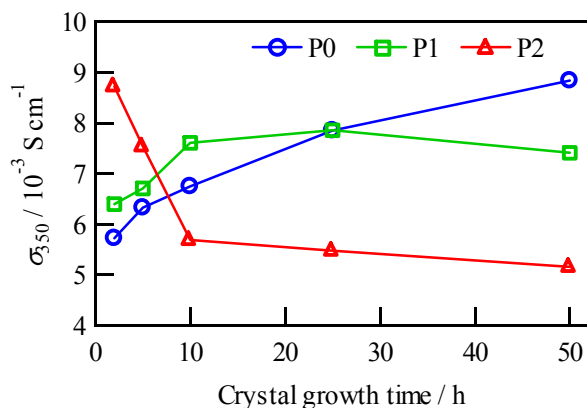


Fig. I-4  $350^\circ\text{C}$  での伝導度と核成長時間の関係

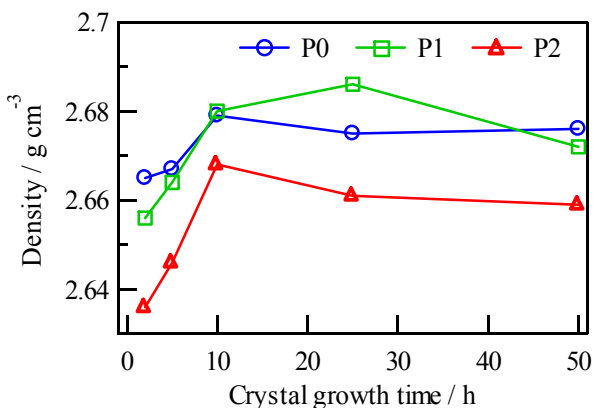


Fig. I-5 各組成の核成長時間による密度変化

導度が低下したと考えられる。

#### I-3-4 密度測定

伝導度測定を行った試料に対して、それぞれ密度測定を行った。Fig. I-5 に各組成の核成長時間による密度変化を示す。核成長時間が長くなるにつれて密度は増加傾向となった。P2 では 10 h 以降は低下傾向にあった。核成長時間の増加により結晶粒が成長し、密度が増加したと考えられる。また、P2 では不純物相の析出により密度が低下したと考えられる。P2 を除いて、密度が高い試料ほど伝導度が高い傾向となった。

#### I-3-5 SEM 観察

核成長 2 h および 50 h で作製した P0 結晶化ガラス (それぞれ P2 h, P0-50 h)、伝導度の高かった核成長 2 h で作製した P2 結晶化ガラス (P2-2 h) について、SEM 観察を行った。Fig. I-6 に各試料の SEM 像を示す。すべての試料において N5 型に特徴的な六角板状の結晶粒が観察された。P2 h と P0-50 h を比較すると、結晶粒が成長していることが確認できた。また、P2-2 h では比較的

小さい 2  $\mu\text{m}$  程度の結晶粒も観察され、結晶粒サイズにばらつきがあったが、P2-50 h でも結晶粒の成長が確認できた。伝導度測定の結果を踏まえると、P2 の伝導度の減少は粒界成分からの不純物相の析出に起因していると思われ、それが増加したために伝導度が低下したと考えられる。

#### I-3-6 電子伝導性の寄与の検討

核成長 2 h で作製した各組成の結晶化ガラス試料について、直流分極法により電子伝導性の寄与について検討した。Fig. I-7 に P2 結晶化ガラスの 350°C での I-V プロットを示す。I-V プロットより得られた直線の傾きと試料の面積、厚さを考慮し、電子伝導度を算出した。各組成の電子伝導度および伝導度測定により得られた粒内の伝導度を Table I-1 に示す。電子伝導度は、粒内の伝導度と比較すると、いずれの組成でも 1/1000 程度の値を示した。このことから、作製した試料はいずれも電子伝導性の寄与は極めて小さく、ほぼイオン伝導性であると考えられる。

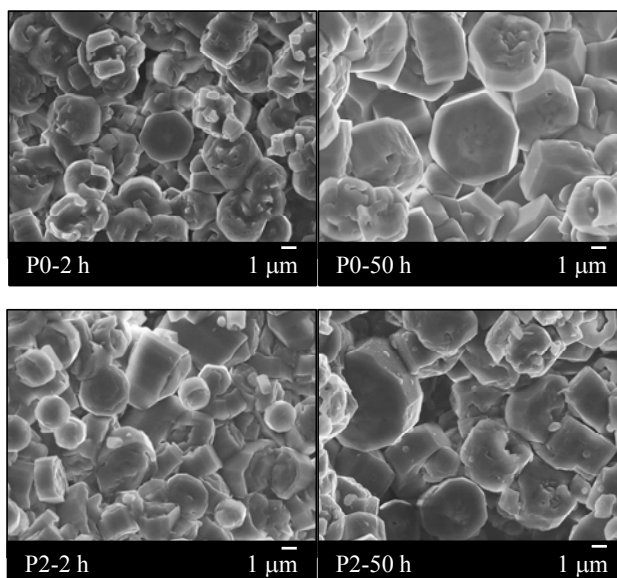


Fig. I-6 作製した結晶化ガラスの SEM 像

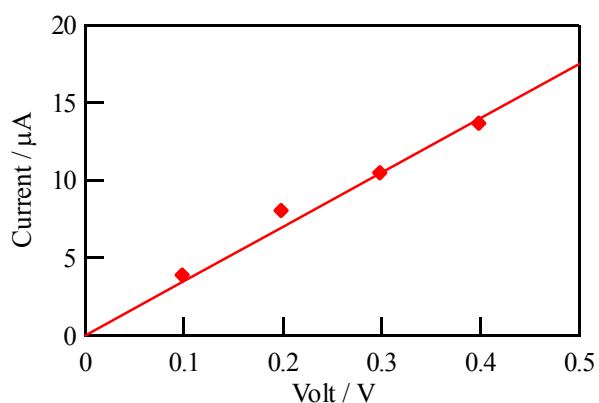


Fig. I-7 P2-2 h 結晶化ガラスの I-V プロット

Table I-1 各組成の電子伝導度と粒内の伝導度

sample	Electron conductivity / $10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$	Grain conductivity / $10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$
P0	0.00292	5.72
P1	0.00300	6.53
P2	0.00409	8.72

#### I - 4. おわりに

本研究 (Part I) では、① Si の P 一部置換および ② 結晶化熱処理条件の 2 つの観点から希土類フリーの安価な N5 型結晶化ガラスの合成を検討し、伝導度の向上を図った。

- ◆ すべての組成において N5 型を主とした結晶相が得られた。しかし、P を添加した試料では不純物相が析出し、核成長時間の延長によりそれが増加する傾向となった。
- ◆ 伝導度測定の結果、短時間の結晶化では P の添加により伝導度は増加した。P0 では核成長時間が長くなるにつれて伝導度は増加した。しかし、P を添加

した試料では、核成長時間の延長による伝導度の増加はみられず、逆に低下した。

- ◆ N5 型の特徴的な六角板状の結晶粒が観察され、核成長時間の延長により結晶粒の成長がみられた。
- ◆ 直流分極法により電子伝導性の寄与について検討した結果、いずれの組成でも粒内の伝導度と比較して電子伝導度は 1/1000 程度の値となり、電子伝導性は極めて小さいことがわかった。
- ◆  $\text{Na}_5\text{RSi}_4\text{O}_{12}$  結晶化ガラスに匹敵する  $10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$  の  $\text{Na}^+$  伝導性を有する希土類フリー結晶化ガラスを合成することができた。

**ABSTRACT (Part II) :** We have prepared glass-ceramics of the phosphorus-containing  $\text{Na}_5\text{RSi}_4\text{O}_{12}$  (N5)-type (R = rare earth)  $\text{Na}^+$ -superionic conductors (Narpsio), and confirmed wide composition range and various frame substitutions. Recently we achieved two important replacements, that is, R with Fe, and carrier  $\text{Na}^+$  with  $\text{H}^+$ . The replacement of R with cheap and rich Fe is important in terms of cost and amounts of resources. The carrier ion exchange of  $\text{Na}^+$  with  $\text{H}^+$  will spread its applications, such as a fuel cell. In this study,  $\text{Na}_{4.9}\text{FeP}_{0.1}\text{Si}_{3.9}\text{O}_{12}$  glass-ceramics of N5 phase was prepared at first, and then, exchange of carrier  $\text{Na}^+$  ion with  $\text{H}^+$  was tried in several conditions.  $\text{Na}_{4.9}\text{FeP}_{0.1}\text{Si}_{3.9}\text{O}_{12}$  glass-ceramics of N5 phase was prepared by melt-quenching and glass-crystallization method. Ion exchange experiment was carried out as follows; while monitoring with pH meter, prepared glass-ceramics was immersed into HCl aq. with/without NaCl at room temperature. The obtained samples were characterized by X-ray diffraction (XRD), thermogravimetry-differential thermal analysis (TG-DTA), and differential scanning calorimetry (DSC). XRD measurement indicated that glass-ceramic  $\text{Na}_{4.9}\text{FeP}_{0.1}\text{Si}_{3.9}\text{O}_{12}$  of N5 phase was successfully prepared. After ion exchange without addition of NaCl, unknown phase was appeared in XRD pattern, and this change could not be suppressed by changing concentration of HCl aq. A possible explanation against this change is due to dissolution of bonding  $\text{Na}^+$  in addition to carrier  $\text{Na}^+$ . After ion exchange with addition of NaCl, unknown phase was disappeared, although slight decrease in crystallinity was observed. Glass-ceramic  $\text{Na}_{4.9}\text{FeP}_{0.1}\text{Si}_{3.9}\text{O}_{12}$  of N5 phase was successfully prepared and replaced carrier  $\text{Na}^+$  ion with  $\text{H}^+$  without significant changes in crystallinity under the conditions of ion exchange with addition of NaCl.

#### II - 1. はじめに

$\text{Na}_2\text{O-R}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$  (R=希土類元素) 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。単位格子中には 90 個の Na が存在し、これらは 2 種類に分類され、骨格を形成する結合性の Na (76 個) と電荷キャリアとなる移動性の Na (14 個) がある。また、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)<sup>(1), (2)</sup> 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、N5 型結晶化ガラスの電荷キャリアである移動性  $\text{Na}^+$  を  $\text{H}^+$  へとイオン交換することにより、燃料電池にも応用可能な新たな固体電解質の作製が期待できる。現在、イオン交換を行う方法として、浸漬法が広く知られている。浸漬法は試料を塩酸、硫酸などの浸漬液に浸漬させることにより、浸漬液に含まれるイオンと試料に含まれるイオンのイオン交換を行う。そのため、浸漬法に使用する試料には浸漬液に対する耐久性が求められる。

本研究 (Part II) では、①  $\text{Na}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5-\text{SiO}_2$  系結晶化ガラスの合成条件の検討、②  $\text{Na}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5-\text{SiO}_2$  系結晶化ガラスに対するイオン交換条件の検討、③ イオン交換が  $\text{Na}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5-\text{SiO}_2$  系結晶化ガラスのイオン伝導に及ぼす影響の検討、の 3 項目について実施した。

## II - 2. 実験

結晶化ガラス試料の作製は、一般組成式  $\text{Na}_{5+3x-y}\text{Fe}_{1-x}\text{P}_y\text{Si}_{4-y}\text{O}_{12}$  にしたがいが、 $x=0, y=0.1$  (組成式  $\text{Na}_{4.9}\text{FeP}_{0.1}\text{Si}_{3.9}\text{O}_{12}$ ) として熔融急冷・ガラス結晶化法を用いて行った。はじめに、 $\text{Na}_2\text{CO}_3$  および  $\text{SiO}_2$  を秤量・粉砕・混合し、電気炉内で脱  $\text{CO}_2$  のために  $900^\circ\text{C}$  で 1 時間仮焼した後、 $1400^\circ\text{C}$  で 1 時間熔融した。この融液を大気中室温にてステンレス板を用いてプレス急冷し、母ガラスを得た。次に、作製した母ガラス粉末、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  および  $\text{Na}_2\text{HPO}_4$  を秤量・粉砕・混合した。これらを電気炉内にて  $1350^\circ\text{C}$  で 1 時間熔融後、得られた融液を大気中室温にてステンレス板を用いてプレス急冷し、ガラス試料を作製した。さらに、冷却過程でひずみが生じることによるクラックの発生を防ぐため、 $450^\circ\text{C}$  で 3 時間のアニーリングを行った。

得られたガラス試料について、熱重量-示差熱分析 (TG-DTA) を行い、結晶化条件 (核生成温度および核成

長温度) を検討した。試料を粉砕した後、一軸加圧および冷間等方加圧 (CIP) による成型 ( $150\text{ MPa}$ ) 後、核生成を  $550^\circ\text{C}$  で 6 時間、核成長を  $750^\circ\text{C}$  で 5 時間として結晶化を行い、結晶化ガラス試料を作製した。また、合成条件の検討のため、組成式を  $\text{Na}_{4.9}\text{Fe}_x\text{P}_{0.1}\text{Si}_{3.9}\text{O}_{12}$  ( $x=1.0\sim 0.5$ ) とし、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  もしくは  $\text{FeO}$  を用いて同条件で熔融し、グラファイト円筒に流し出し、急冷することでガラス化した。核生成を  $550\sim 650^\circ\text{C}$  で 6, 12 時間、核成長を  $700\sim 750^\circ\text{C}$  で 5, 10 時間とした。

作製した結晶化ガラスに対して、浸漬法を用いて  $\text{Na}^+$  から  $\text{H}^+$  へのイオン交換を行った。0.01 mol/L-HCl aq. を入れた HDPE 容器に作製した結晶化ガラスを入れ、メカニカルスターラーを用いて攪拌し、pH の経時変化を測定するとともに、 $\text{H}^+$  交換率の算出を行った。イオン交換条件の検討として、塩酸のみでは骨格構造中の結合性 Na も溶出してしまう可能性があったため、まず、浸漬液に NaCl を加えた。作製した結晶化ガラス (粒径を  $46\sim 105\ \mu\text{m}$  に分級した粉末状試料) に対して、NaCl を  $0\sim 0.04\ \text{mol/L}$  となるように加えた 0.01 mol/L-HCl aq. を用いてイオン交換を行った。次に、イオン交換時の試料の粒径と浸漬液の温度について検討した。試料の粒径を  $\sim 45, 46\sim 105\ \mu\text{m}$  に分級した粉末状試料を用い、浸漬液の温度を  $20\sim 40^\circ\text{C}$  としてイオン交換を行った。浸漬試料は吸引濾過を行った後、 $90^\circ\text{C}$  で 2 時間乾燥し、これをイオン交換後の試料とした。イオン交換前後の試料に対して粉末 X 線回折 (XRD) 測定、熱重量-示差熱分析 (TG-DTA)、熱重量-質量分析 (TG-MS)、示差走査熱量測定 (DSC)、複素アドミッタンス測定により伝導度測定を行った。

## II - 3. 結果および考察

### II - 3 - 1 $\text{Na}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5-\text{SiO}_2$ 系結晶化ガラスの合成条件の検討

熔融急冷試料はすべてガラスとなった。Fig. II-1 に原料に FeO を用いて Fe の添加量  $x$  を 1.0 として合成したガラスの TG-DTA 曲線を示す。Fe の添加量が多くなるにつれて核成長温度がやや高くなった。Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いた場合は Fe の添加量を少なくすると融点と思われるピーク数が増えた。結晶化条件は、核生成温度を  $550^\circ\text{C}$ 、核成長温度を  $750^\circ\text{C}$  とした。熱処理後は茶色となり、Fe の添加量が少なくなるにつれて色が薄くなった。表面付近が結晶化し、試料内に空隙ができ、ガラス相と思われる相が観察された。FeO を用いた場合も空隙やガラス相が観察されたが、結晶化している相が表面付近だけでなく内部も結晶化していた。Fig. II-2 に結晶化後の試料の XRD パターンを示す。すべての試料で N5 型結晶相を確認することができた。Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> を用いた場合では Fe の添加量  $x$  が 1.0, 0.9 のとき単一相であった。これは Fe の添加量が少なくなっても、構造中に欠陥を作ることで N5 型を維持したのではないかと考えられる。さらに添



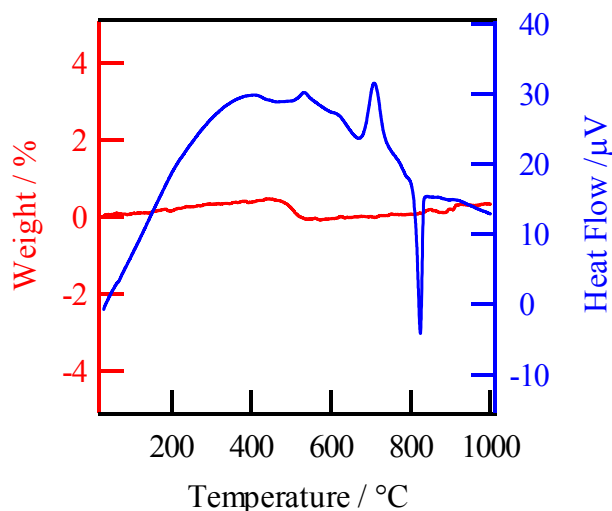


Fig. II-1 FeO を用い Fe の添加量  $x$  を 1.0 として合成したガラスの TG-DTA 曲線

加量が少なくなると N5 型の構造が崩壊し、 $\text{Na}_2\text{SiO}_3$ ,  $\text{SiO}_2$  もしくは  $\text{Na}_2\text{Si}_2\text{O}_5$  との混合相となった。この相は Fe の添加量を 0.8 から 0.5 まで減少させると多く現れた。

### II - 3 - 2 $\text{Na}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5-\text{SiO}_2$ 系結晶化ガラスに対するイオン交換条件の検討

Fig. II-3 にイオン交換の際の浸漬液 ( $\text{NaCl}$  を 0~0.04 mol/L となるように加えた 0.01 mol/L-HCl aq.) の時間に伴う pH 変化およびを示す。 $\text{NaCl}$  を浸漬液に添加することで、イオン交換が終了するまでの時間が長くなるのがわかった。これは、浸漬液中の  $\text{Na}^+$  濃度が高くなったことにより、結晶化ガラス中の  $\text{Na}^+$  の溶出が抑えら

れたためだと考えられる。Fig. II-4 にイオン交換した後の各試料の XRD パターンを示す。イオン交換後は  $\text{NaCl}$  濃度に関係なく、N5 型のピークに加えて未知相が現れたが、無添加の状態と比較するとわずかであった。 $\text{NaCl}$  濃度を 0.02 mol/L とした時に未知相が最も現れにくくなった。 $\text{NaCl}$  濃度は 0.02 mol/L 付近が適していると考えられる。

Fig. II-5 に試料の粒径と浸漬液の温度を変えた際の浸漬液の pH 変化を示す。試料の粒径を小さくすることでイオン交換にかかる時間が短くなった。粒径が小さくなったことで比表面積が大きくなり、浸漬液中の  $\text{H}^+$  とトンネル構造内に存在する移動性  $\text{Na}^+$  の交換が促進されたと考えられる。また、温度を高くすることでイオン交換にかかる時間が短くなった。温度を高くすることでイオンの移動度が大きくなり、イオン交換が促進されたと考えられるが、粒径を変えた時に比べて大きな変化はなかった。 $\text{Fe}$  のイオン半径が希土類元素と比べ非常に小さいため、トンネルサイズが狭くなっていると考えられる。そのため、イオン交換を阻害する構造となり、温度を高くしてイオンの移動度を大きくするよりも、比表面積を大きくすることで浸漬液に触れる面を多くする方が、より交換速度に大きく影響したと考えられる。Fig. II-6 に試料の粒径と浸漬液の温度を変えてイオン交換した試料の XRD パターンを示す。粒径の小さい方が未知相の発現が抑えられていたが、浸漬液の温度を変えても XRD パターンに大きな変化はなかった。

イオン交換前の結晶化ガラスと条件を変えてイオン交換を行った結晶化ガラスの TG-MS 曲線と DSC 曲線を Fig. II-7 に示す。TG-MS 測定では、イオン交換前は重量に大きな変化はなかったが、イオン交換後はほぼすべ

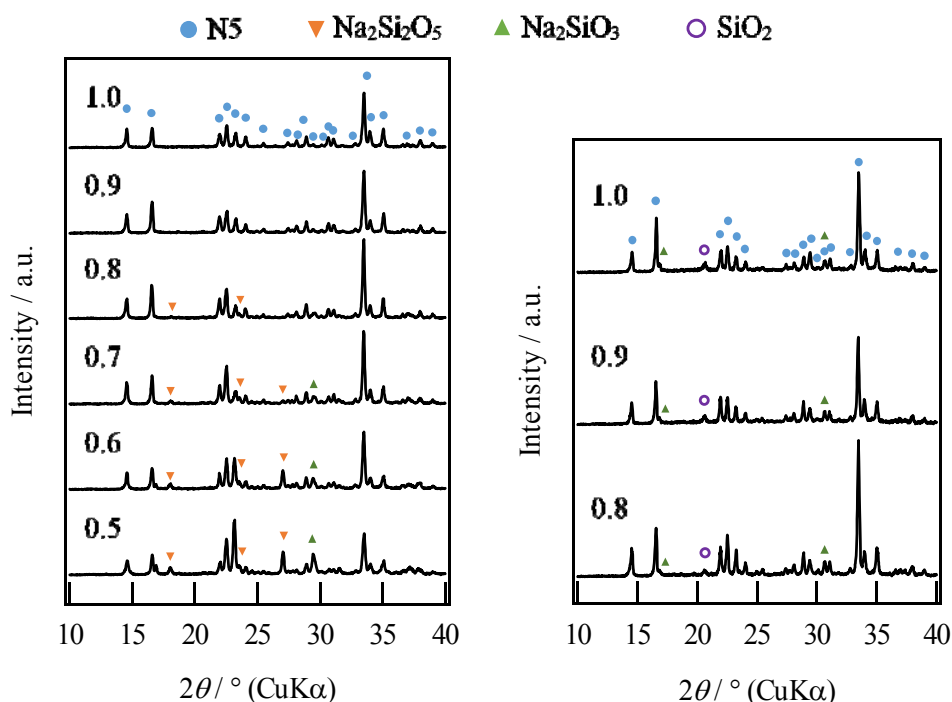


Fig. II-2 結晶化後の試料の XRD パターン (左 :  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , 右 :  $\text{FeO}$  を用いたもの)

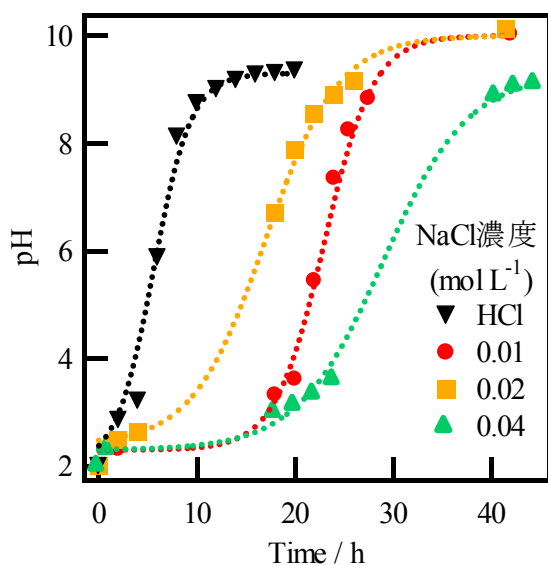


Fig. II-3 イオン交換の際の浸漬液の時間に伴う pH 変化

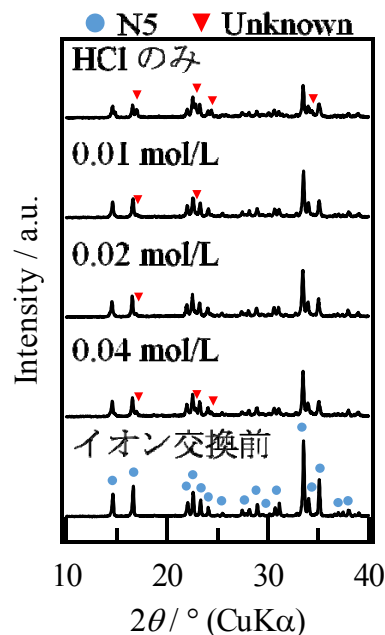


Fig. II-4 イオン交換した後の各試料の XRD パターン

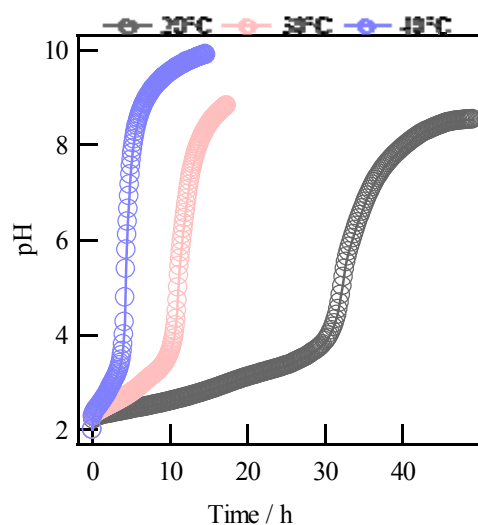
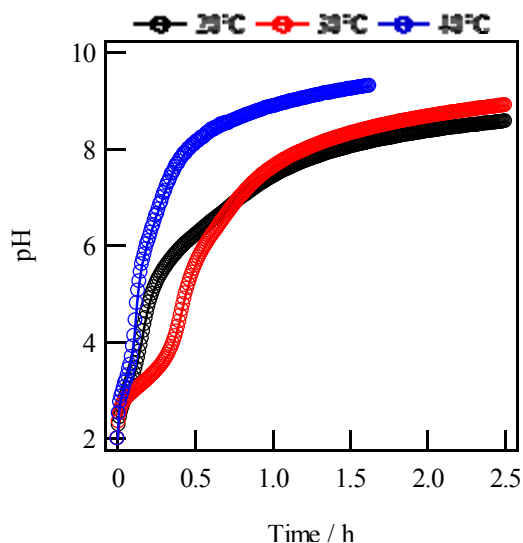


Fig. II-5 イオン交換時の pH 変化 (左: ~45 μm, 右: 46~105 μm)

での試料で2段階の重量減少が認められた。この2段階の重量減少は 18 m/z のピークの発生と対応することから、 $H_2O$  の脱離によるものと考えられる。80°C もしくは 120°C のピークは、表面吸着水あるいは表面近傍のトンネル内からの脱離によるもので、320°C 付近は高温のため表面吸着水とは考えにくく、トンネル内部からの脱離によるものだと考えられる。DSC 測定では、イオン交換後の試料では低温側のピーク位置にばらつきがあったが、すべての条件で 160°C 以下と 320°C 付近にピークが現れた。これは TG-MS と同様、低温では表面吸着水や表面近傍のトンネル内から、および高温ではトンネル内部からの脱離によるものと考えられる。2 回目の測定ではピークが検出されなかったため、一度脱離した  $H^+$  は戻りにくいものであると考えられる。以上より、イオ

ン交換は行われたと考えられる。

### II - 3 - 3 イオン交換が $Na_2O \cdot Fe_2O_3 \cdot P_2O_5 \cdot SiO_2$ 系結晶化ガラスのイオン伝導に及ぼす影響の検討

イオン交換後の結晶化ガラス試料は N5 型と未知相の混合相となったが、200°C で熱処理することにより、未知相が消失し N5 型単一相となった。Fig. II-8 に作製したイオン交換後の結晶化ガラスの伝導度を示す。イオン交換後の伝導度が温度上昇に伴い増加したことから、イオン伝導であると考えられる。同一試料で伝導度測定を 2 回行ったところ、イオン交換時の条件に関係なく 2 回目に測定した伝導度は 1 回目と比較すると小さくなる傾向となった。これは、トンネル内に存在していた  $H^+$  が部分的に脱離したためと考えられる。以上より、イオン交

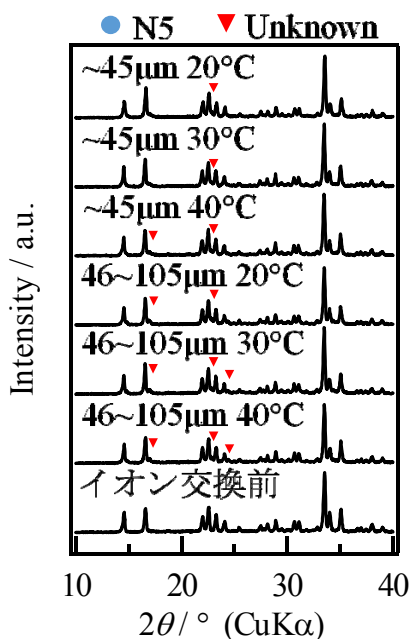


Fig. II-6 粒径および浸漬温度を変えてイオン交換した試料のXRDパターン

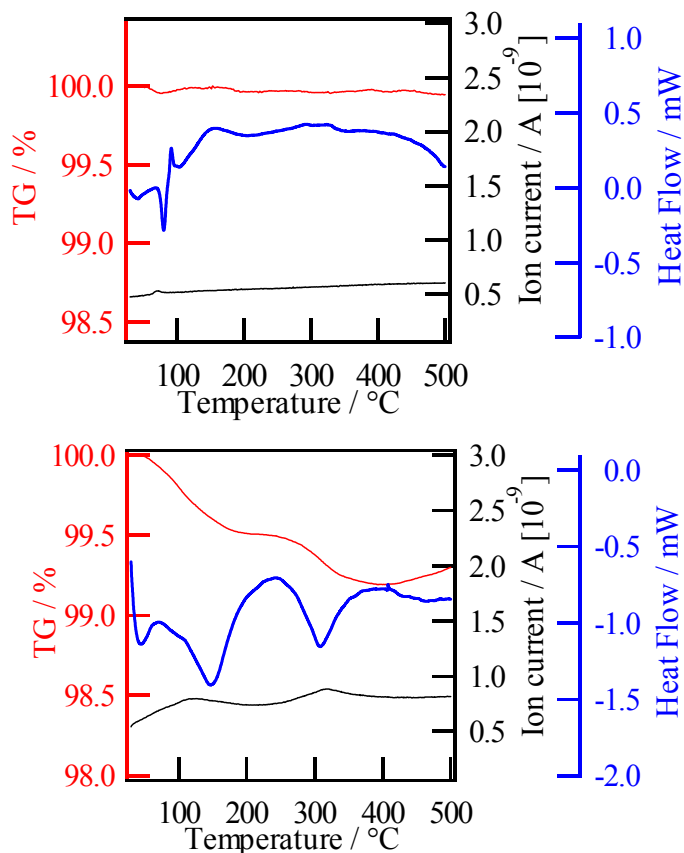


Fig. II-7 イオン交換前後のTG-MSおよびDSC曲線 (上:イオン交換前, 下:46~105  $\mu\text{m}$ , 30°Cにてイオン交換)

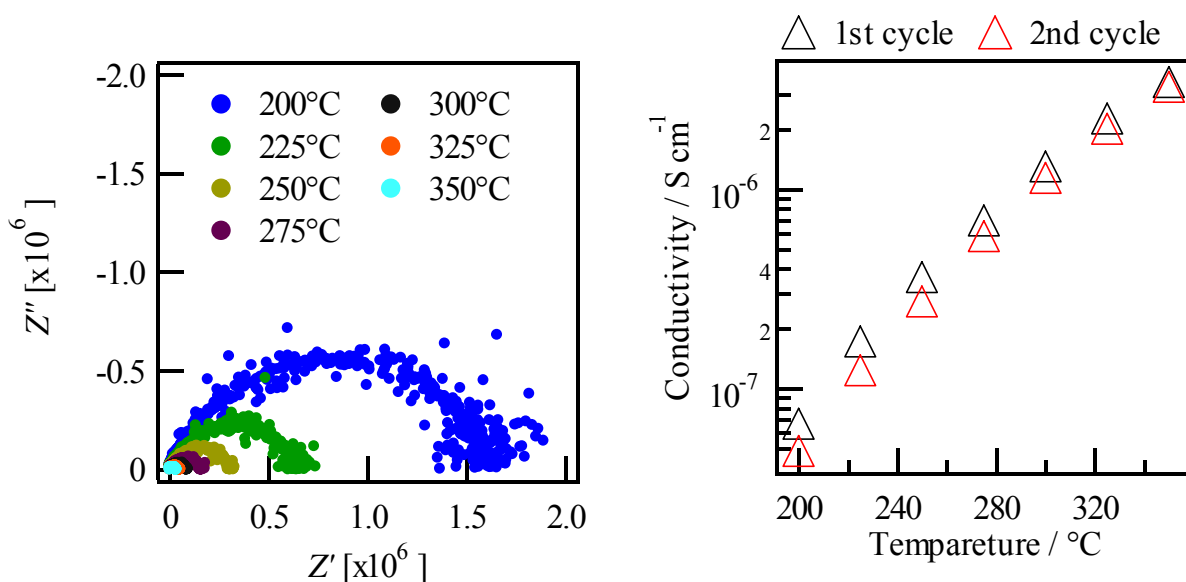


Fig. II-8 46~106  $\mu\text{m}$ , 30°Cでイオン交換した試料のコール・コールプロット (左) および伝導度 (右)

換後の結晶化ガラスは H<sup>+</sup>伝導性を示していると考えられる。また H<sup>+</sup>がトンネル内から脱離している 350°C では、1 回目と 2 回目ともに近い伝導度を示した。イオ

ン交換時にトンネル内の交換されずに残留した Na<sup>+</sup>が伝導性を示したためと考えられる。これより、イオン交換後の試料の伝導度は H<sup>+</sup>伝導だけでなく交換前の Na<sup>+</sup>伝導性を併せ持つものと考えられる。

## II - 4. おわりに

本研究 (Part II) では、希土類フリー-N5 型結晶化ガラスのバルク状での結晶化の検討を行った。また、イオン交換条件の検討およびイオン交換がイオン伝導に及ぼす影響について検討を行った。

- 原料および組成の検討を行った結果、希土類元素を Fe で全置換した希土類フリー-N5 型 Narpsio 結晶化ガラスの合成に成功した。試料内には空隙やガラス相と思われる相が観察されたため、合成法をさらに検討する必要がある。
- イオン交換条件の検討では、浸漬液に NaCl を添加することで未知相の生成を抑えることができた。しかし、すべて抑えることはできなかった。浸漬液の温度を高くする、もしくは試料の粒径を小さくすることでイオン交換の進行速度が速まった。温度を変えることで XRD パターンに大きな変化はなかったが、粒径を小さくすることで未知相の生成を大きく抑えることができた。
- イオン交換後の試料は H<sup>+</sup>伝導性を示すことがわかった。また、トンネル内の H<sup>+</sup>が脱離する温度に加熱した場合、2 回目の伝導度は低下した。イオン交換を行った際に、トンネル内に交換されずに残留した Na<sup>+</sup>により、高温での伝導度は Na<sup>+</sup>と H<sup>+</sup>の両方の伝導度を示していると考えられる。

## 参 考 文 献

1. Toshinori Okura, Hideki Monma and Kimihiro Yamashita, *J. Electroceram. (Review)*, **24**, 84-90 (2010).
2. Toshinori Okura, Naoya Yoshida and Kimihiro Yamashita, *Solid State Ionics (Invited Review)*, **285**, 143-154 (2016).

## 3 年間の研究成果

## ① 著書

1. Toshinori Okura, Kimihiro Yamashita, New Na<sup>+</sup> superionic conductor Narpsio glass-ceramics, in *Theoretical Chemistry for Advanced Nanomaterials-Functional Analysis by Computation and Experiment* (Ed. by Taku Onishi, Springer Nature, 2019). (in press)

## ② 発表論文

1. Toshinori Okura, "Development of Na<sup>+</sup> superionic conducting Na<sub>5</sub>YSi<sub>4</sub>O<sub>12</sub>-type glass-ceramics", *Adv. Mater. Lett.*, 10/ 2, 85-90 (2019).
2. Toshinori Okura, "Synthesis and Na<sup>+</sup> Conduction Properties of Na<sub>5</sub>YSi<sub>4</sub>O<sub>12</sub>-type Glass-ceramics", *AIP Conf. Proc.*, 2040, 020005 (2018).
3. 大倉利典, "ガラスの結晶化による超イオン伝導性

固体電解質の開発 (Review)", *J. Soc. Inorg. Mater. Japan*, 24, 382-386 (2017).

4. Norio Wada, Naohiro Horiuchi, Katsuyuki Mukogawa, Kosuke Nozaki, Miho Nakamura, Akiko Nagai, Toshinori Okura, Kimihiro Yamashita, "Electrostatic induction power generator using hydroxyapatite ceramic electrets", *Mater. Res. Bull.*, 74, 50-56 (2016).
5. Toshinori Okura, Naoya Yoshida, Kimihiro Yamashita, "Na<sup>+</sup> superionic conducting silicophosphate glass-ceramics - Review (Invited Review)", *Solid State Ionics*, 285, 143-154 (2016).

## ③ 解説

1. 阿相英孝, 大倉利典, "エコマテリアルとエネルギー変換技術が創る未来社会—4 化学のチカラ", *電気学会誌*, Vol. 138/ No. 4, 209-211 (2018).

## ④ 学会発表

1. Toshinori Okura, (Invited Lecture) Na<sup>+</sup> Superionic Conductor Narpsio Glass-Ceramics: Ionic Conductivity and SBF reactivity, 15th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (ICCMSE 2019), (Rhodes, Greece), 2019 年 5 月 3 日
2. Toshinori Okura, Koji Kawada, Naoya Yoshida, Kimihiro Yamashita, Development of Na<sup>+</sup>-Superionic Conductor Narpsio Glass-Ceramics, The 1st Symposium for Collaborative Research on Energy Science and Technology (SCREST-1st) (Singapore), 2019 年 1 月 10 日
3. Toshinori Okura, Koji Kawada, Naoya Yoshida and Kimihiro Yamashita, Synthesis and Na<sup>+</sup>-conduction properties of rare earth-free Narpsio glass-ceramics, International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2018 (ISIEM 2018) (Belgium), 2018 年 6 月 19 日
4. Naoya Yoshida, Yuki Okutomi, Ibuki Shibagaki and Toshinori Okura, Effect of polar interaction between liquid and solid on dynamic hydrophobicity of self-assembled monolayer surface, International Symposium on Inorganic and Environmental Materials 2018 (ISIEM 2018) (Belgium), 2018 年 6 月 18 日
5. Toshinori Okura, (Invited Lecture) Development of Na<sup>+</sup>-Fast Ionic Conducting Narpsio Glass-Ceramics, 14th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (ICCMSE2018) (Thessaloniki), 2018 年 3 月 15 日
6. Yoshikazu Kaji, Naoya Yoshida, Kimihiro Yamashita, Toshinori Okura, Carrier ion exchange of Na<sub>2</sub>O-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-SiO<sub>2</sub> glass-ceramics, AVS 64th International Symposium & Exhibition (Tampa), 2017 年 11 月 2 日
7. Yuki Iwai, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, Preparation and Characterization of

- Metal-doped calcium phosphate, AVS 64th International Symposium & Exhibition (Tampa), 2017年11月2日
8. Yuki Iwai, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, Preparation and Characterization of Metal-doped Calcium Phosphate, The 16th International Symposium on Advanced Technology (Tokyo), 2017年11月2日
  9. Yoshikazu Kaji, Naoya Yoshida, Kimihiro Yamashita, Toshinori Okura, Ionic Conductivity of H<sup>+</sup> Conductive Na<sub>2</sub>O-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-SiO<sub>2</sub> Glass-ceramics, The 16th International Symposium on Advanced Technology (Tokyo), 2017年11月2日
  10. Naoyuki Inoue, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, Preparation and Characterization of Bi doped Tricalcium Phosphate, The 16th International Symposium on Advanced Technology (Tokyo), 2017年11月2日
  11. Naoki Matsuoka, Naoya Yoshida, Kimihiro Yamashita, Toshinori Okura, Synthesis of H<sup>+</sup> Conductive Na<sub>4</sub>Y<sub>0.6</sub>Po<sub>0.2</sub>Si<sub>2.8</sub>O<sub>9</sub> Glass-ceramic Solid Electrolyte, The 16th International Symposium on Advanced Technology (Tokyo), 2017年11月2日
  12. Naoya Yoshida, Taiki Genma, Toshiyuki Kuriya, Kazuto Fukasawa, Toshinori Okura, Effects of 2D Inverse Opal Structure on Static and Dynamic Wettability, The 16th International Symposium on Advanced Technology (Tokyo), 2017年11月2日
  13. Naoya Yoshida, Taiki Genma, Kazuto Fukasawa, Toshinori Okura, Evaluation of static and dynamic wettability, AVS 64th International Symposium & Exhibition (Tampa), 2017年10月31日
  14. Toshinori Okura, (Keynote Lecture) Development of New Superionic Conductor Narpsio Glass-Ceramics, The 2017 Sustainable Industrial Processing Summit and Exhibition (2017 SIPS) (Cancun), 2017年10月23日
  15. Toshinori Okura, (Invited IAAM Medal Lecture) Synthesis and Na<sup>+</sup> conduction properties of Narpsio glass-ceramics, Asian Advanced Materials Congress (ASAMC) 2017 (Singapore), 2017年3月13日
  16. Toshinori Okura, (Invited Keynote Lecture) Na<sup>+</sup>-fast ionic conducting silicophosphate glassceramics, The 16th Australasian BioCeramic Symposium (Brisbane), 2016年12月5日
  17. Toshinori Okura, (Invited Lecture) Na<sup>+</sup> superionic conducting glass-ceramics of silicophosphates, The 9th International Symposium on Inorganic Phosphate Materials (Tokyo), 2016年9月28日
  18. Naoya Yoshida, Yuji Nakamura, Toshinori Okura, Surface properties of transparent thin films of photocatalytic Zn-doped calcium phosphates, The 9th International Symposium on Inorganic Phosphate Materials (Tokyo), 2016年9月26日
  19. Tomoyuki Kobayashi, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, Synthesis of Na<sub>5</sub>FeSi<sub>4</sub>O<sub>12</sub>-type glass-ceramics solid electrolyte, The 9th International Symposium on Inorganic Phosphate Materials (Tokyo), 2016年9月26日
  20. Yuta Toeda, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, Synthesis of Na<sub>9</sub>RSi<sub>6</sub>O<sub>18</sub>-type solid electrolyte, The 9th International Symposium on Inorganic Phosphate Materials (Tokyo), 2016年9月26日
  21. Yoshikazu Kaji, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, Na<sup>+</sup> / H<sup>+</sup> exchange of Na<sub>2</sub>O-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-SiO<sub>2</sub> glass-ceramics, The 9th International Symposium on Inorganic Phosphate Materials (Tokyo), 2016年9月26日
  22. Yuki Iwai, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, Preparation and Characterization of Mo-doped calcium phosphate, The 9th International Symposium on Inorganic Phosphate Materials (Tokyo), 2016年9月26日
  23. Hazuki Kasuya, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, Leaching behavior of magnesium phosphate glasses containing Cs<sup>+</sup> and Sr<sup>2+</sup>, The 9th International Symposium on Inorganic Phosphate Materials (Tokyo), 2016年9月26日
  24. Yuki Orito, Naoya Yoshida, Toshinori Okura, Adsorptive removal of boron and fluorine from liquid phase and vitrification into phosphate glass, The 9th International Symposium on Inorganic Phosphate Materials (Tokyo), 2016年9月26日
  25. Toshinori Okura, (Plenary Lecture) New Superionic Conductor Narpsio Glass-Ceramics, Advanced Ceramics and Applications V (Belgrade), 2016年9月21日
  26. Toshinori Okura, Koji Kawada, Naoya Yoshida, Kimihiro Yamashita, Synthesis and Na<sup>+</sup> conduction properties of rare earth-free Na<sub>5</sub>FeSi<sub>4</sub>O<sub>12</sub>-type glass-ceramics, European Advanced Materials Congress (EAMC) 2016 (Stockholm), 2016年8月24日
  27. 南部颯太, 吉田直哉, 大倉利典, ゼルーゲル法による Na<sub>5</sub>YSi<sub>4</sub>O<sub>12</sub> 薄膜の合成, 日本セラミックス協会 2019 年年会 (東京), 2019 年 3 月 24 日
  28. 柴垣息吹, 吉田直哉, 大倉利典, 自己組織化単分子膜のナトリウム塩水溶液に対する濡れ性, 日本セラミックス協会 2019 年年会 (東京), 2019 年 3 月 24 日
  29. 川田耕司, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典, Na<sub>2</sub>O-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-X<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>(X=B, Al, Ga)系 Na<sup>+</sup>伝導性結晶化ガラスの合成と Si 置換効果, 日本セラミックス協会 2019 年年会 (東京), 2019 年 3 月 24 日
  30. 南部颯太, 吉田直哉, 大倉利典, ゼルーゲル法による Na<sub>5</sub>YSi<sub>4</sub>O<sub>12</sub> 薄膜の合成, 第 10 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (八王子), 2018 年 12 月 8 日
  31. 塙 将也, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典, Fe 系 Narpsio の分極評価, 第 10 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (八王子), 2018 年 12 月 8 日
  32. 森 彩乃, 吉田直哉, 大倉利典, リン酸塩ガラスを

- 用いたセシウム吸着粘土鉱物のガラス固化と分相リサイクル技術の確立, 第 10 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (八王子), 2018 年 12 月 8 日
33. 柴垣息吹, 吉田直哉, 大倉利典, 滑水処理を施した材料表面の無機塩水溶液に対する濡れ性, 無機マテリアル学会第 137 回学術講演会 (豊橋), 2018 年 11 月 16 日
  34. 松岡尚輝, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典,  $\text{Na}^+/\text{H}^+$  交換 Narpsio 結晶化ガラスの  $\text{H}^+$  伝導性, 日本化学会第 8 回 CSJ 化学フェスタ 2018 (東京), 2018 年 10 月 25 日
  35. 川田耕司, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典,  $\text{Na}_5\text{YSi}_4\text{O}_{12}$  型結晶化ガラスのナトリウムイオン伝導に及ぼす置換元素の影響と結晶化熱処理の制御, 日本化学会第 8 回 CSJ 化学フェスタ 2018 (東京), 2018 年 10 月 25 日
  36. 井上直幸, 吉田直哉, 大倉利典, Bi 置換リン酸三カルシウムの合成と評価, 日本化学会第 8 回 CSJ 化学フェスタ 2018 (東京), 2018 年 10 月 25 日
  37. 井上直幸, 吉田直哉, 大倉利典, Bi 置換リン酸三カルシウムの合成と光触媒活性評価, 日本セラミックス協会第 31 回秋季シンポジウム (名古屋), 2018 年 9 月 5 日
  38. 松岡尚輝, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典,  $\text{H}^+$  伝導性 Narpsio 結晶化ガラスへの希土類置換がイオン伝導性に及ぼす影響, 無機マテリアル学会第 136 回学術講演会 (八王子), 2018 年 6 月 7 日
  39. 井上直幸, 吉田直哉, 大倉利典, Bi 置換リン酸三カルシウムの合成と評価, 無機マテリアル学会第 136 回学術講演会 (八王子), 2018 年 6 月 7 日
  40. 大倉利典, リン酸塩ガラス系材料の物質設計と新機能創製, 平成 30 年度早稲田大学リンアトラス研究所セミナー (東京), 2018 年 5 月 22 日
  41. 中村美穂, 米山祥平, 吉田直哉, 大倉利典, 山下仁大, 分極ゼオライトの電気特性評価, 日本セラミックス協会 2018 年年会 (仙台), 2018 年 3 月 17 日
  42. 岩井勇樹, 吉田直哉, 大倉利典, Sn 添加 FAp の合成と光触媒活性評価, 日本セラミックス協会 2018 年年会 (仙台), 2018 年 3 月 16 日
  43. 梶 義和, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典,  $\text{H}^+$  伝導性  $\text{Na}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5-\text{SiO}_2$  系結晶化ガラスのイオン伝導性, 日本セラミックス協会 2018 年年会 (仙台), 2018 年 3 月 16 日
  44. 秦 義彦, 吉田直哉, 大倉利典, セッコウの透明薄膜の作製, 第 9 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (八王子), 2017 年 12 月 9 日
  45. 井上直幸, 吉田直哉, 大倉利典,  $\text{Bi}^{3+}$  置換リン酸三カルシウムの合成と評価, 第 9 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (八王子), 2017 年 12 月 9 日
  46. 松岡尚輝, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典,  $\text{H}^+$  伝導性 Narpsio 結晶化ガラスのイオン伝導性, 無機マテリアル学会第 135 回学術講演会 (熊本), 2017 年 11 月 16 日
  47. 梶 義和, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典,  $\text{H}^+$  伝導性  $\text{Na}_2\text{O}-\text{Fe}_2\text{O}_3-\text{P}_2\text{O}_5-\text{SiO}_2$  系結晶化ガラスの合成とイオン伝導性, 日本セラミックス協会第 30 回秋季シンポジウム (神戸), 2017 年 9 月 20 日
  48. 大倉利典, オープンイノベーションを加速するエネルギーエレクトロニクス材料研究拠点の構築, VACUUM2017 真空展 (横浜), 2017 年 9 月 8 日
  49. 大倉利典, オープンイノベーションを加速するエネルギーエレクトロニクス材料研究拠点の構築, VACUUM2017 真空展 (横浜), 2017 年 9 月 7 日
  50. 大倉利典, オープンイノベーションを加速するエネルギーエレクトロニクス材料研究拠点の構築, VACUUM2017 真空展 (横浜), 2017 年 9 月 6 日
  51. 大倉利典, 吉田直哉, キャリアイオンが変更可能な結晶化ガラス新規固体電解質, イノベーション・ジャパン 2017 (東京), 2017 年 9 月 1 日
  52. 大倉利典, 吉田直哉, キャリアイオンが変更可能な結晶化ガラス新規固体電解質, イノベーション・ジャパン 2017 (東京), 2017 年 9 月 1 日
  53. 大倉利典, 吉田直哉, キャリアイオンが変更可能な結晶化ガラス新規固体電解質, イノベーション・ジャパン 2017 (東京), 2017 年 8 月 31 日
  54. 大倉利典, (特別講演) 高イオン伝導性結晶化ガラスの物質設計と高機能化, 上智大学データ報告会 (四谷), 2017 年 8 月 5 日
  55. 吉田直哉, 渡辺好亮, 大倉利典, セッコウの構造と物性に  $\text{Ag}^+$ ,  $\text{Fe}^{3+}$  添加が与える影響, 無機マテリアル学会第 134 回学術講演会 (船橋), 2017 年 6 月 8 日
  56. 吉田直哉, 山田隼平, 渡辺好亮, 堀内尚紘, 中村美穂, 山下仁大, 大倉利典, ガラス-金属添加セッコウ複合体の作製とアパタイト形成能の評価, 生体医歯工学共同研究拠点研究成果報告会 (東京), 2017 年 3 月 24 日
  57. 粕谷葉月, 吉田直哉, 大倉利典, 化学的耐久性の向上を目指した Sr, Cs 固化リン酸塩ガラスの溶解挙動の研究, 日本セラミックス協会 2017 年年会 (東京), 2017 年 3 月 17 日
  58. 折戸由貴, 吉田直哉, 大倉利典, 液相からのホウ素およびフッ素の回収, 日本セラミックス協会 2017 年年会 (東京), 2017 年 3 月 17 日
  59. 小林智行, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典,  $\text{Na}_5\text{FeSi}_4\text{O}_{12}$  型結晶化ガラスの合成とイオン伝導性, 日本セラミックス協会 2017 年年会 (東京), 2017 年 3 月 17 日
  60. 戸枝佑太, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典, 組成および熱処理条件検討による  $\text{Na}_9\text{YSi}_6\text{O}_{18}$  型結晶化ガラスの合成, 日本セラミックス協会 2017 年年会 (東京), 2017 年 3 月 17 日
  61. 粕谷葉月, 吉田直哉, 大倉利典, リン酸塩ガラスを用いたストロンチウムおよびセシウム固化ガラスの作製と化学的耐久性評価, 第 8 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (八王子), 2016 年 12 月 3 日
  62. 戸枝佑太, 吉田直哉, 大倉利典,  $\text{Na}_9\text{YSi}_6\text{O}_{18}$  型結晶化ガラスの合成とイオン伝導性, 第 8 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (八王子), 2016 年 12 月 3 日
  63. 松岡尚輝, 吉田直哉, 大倉利典, NASICON 型結晶化ガラスの希土類元素一部置換とキャリアイオン交換, 第 8 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (八王子), 2016 年 12 月 3 日
  64. 井上直幸, 吉田直哉, 大倉利典, 陰イオン置換型リン酸三カルシウムの合成と評価, 第 8 回大学コンソーシアム八王子学生発表会 (八王子), 2016 年 12 月 3 日
  65. 岩井勇樹, 吉田直哉, 大倉利典, 陰イオン置換型リ



ン酸カルシウムの合成と光触媒活性評価, 第8回大学コンソーシアム八王子学生発表会(八王子), 2016年12月3日

66. 折戸由貴, 吉田直哉, 大倉利典, 液相中からのホウ素およびフッ素の回収とリン酸塩ガラス固化体の作製, 第8回大学コンソーシアム八王子学生発表会(八王子), 2016年12月3日
67. 梶 義和, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典,  $\text{Na}^+$ 伝導性  $\text{Na}_2\text{O}\text{-Fe}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5\text{-SiO}_2$  系結晶化ガラスの  $\text{Na}^+/\text{H}^+$ 交換, 無機マテリアル学会第133回学術講演会(仙台), 2016年11月10日
68. 渡辺好亮, 吉田直哉, 大倉利典,  $\text{Ag}^+$ ,  $\text{Fe}^{3+}$  添加セッコウの構造と物性, 日本セラミックス協会第29回秋季シンポジウム(広島), 2016年9月8日
69. 小林智行, 吉田直哉, 山下仁大, 大倉利典,  $\text{Na}_2\text{O}\text{-Fe}_2\text{O}_3\text{-P}_2\text{O}_5\text{-SiO}_2$  系結晶化ガラスの合成とイオン伝導性, 無機マテリアル学会第132回学術講演会(船橋), 2016年6月2日

## 光充電型リチウムイオン電池の高容量化と全固相化(Ⅲ)

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 all solid phase photovoltaic lithium-ion-battery with high capacity

Hiroki Nagai, Tomohiro Yamaguchi, Mitsunobu Sato, Department of Applied Physics  
Yukihiro Kudoh, Department of Information and Communications Engineering  
Chihiro Mochizuki, Center for Promotion of Higher Education Division of Liberal Arts  
Li Lu, Department of Mechanical Engineering, National University of Singapore

**ABSTRACT:** A  $\text{LiCoO}_2$  thin film on a quartz glass substrate was fabricated by a wet process involving heat treatment of a precursor film spray-coated with an aqueous ammonia solution containing  $\text{LiCH}_3\text{COO}$  and  $\text{Co}(\text{CH}_3\text{COO})_2$ . The precursor film formed onto the substrate at  $180^\circ\text{C}$  in air, and was heat treated at  $500^\circ\text{C}$  in air for 0.5 h. The obtained film was spin-coated further with an ethanol-based precursor solution containing identical metal acetates, and heat treated at  $500^\circ\text{C}$  in air for 0.5 h. The X-ray diffraction pattern of the resultant film showed only peaks assignable to the layered-rock-salt  $\text{LiCoO}_2$ . Raman spectroscopy measurements revealed vibrational modes assignable to layered rock salt  $\text{LiCoO}_2$ , with minor content of less than 5 mol% of spinel-type  $\text{Co}_3\text{O}_4$ . The field emission scanning electron microscopy images indicated that the resultant film was  $0.21\ \mu\text{m}$  thick, had no voids, and was a combination of small rounded grains measuring  $18\ \text{nm}$  in diameter and hexagonal grains larger than  $0.2\ \mu\text{m}$  in length. The Hall effect measurements indicated that the resultant thin film was a p-type semiconductor with electrical resistivity of  $35(2)\ \Omega\cdot\text{cm}$  and a carrier concentration and carrier mobility of  $8(2) \times 10^{16}\ \text{cm}^{-3}$  and  $2(1)\ \text{cm}^2\cdot\text{V}^{-1}\cdot\text{s}^{-1}$ , respectively. The electrodes with the active materials, titania on FTO pre-coated glass substrate and the resulting films on the quartz glass substrate, were assembled into a sealed sandwich-type battery. A charge/discharge test using a current of  $0.5\ \mu\text{A}$  was performed with a DC voltage source/monitor. Averaged potentials of 1.6 and 0.7 V were observed by charging for 1 min and discharging for an identical duration, respectively. The 1-sun irradiation was achieved using a solar simulator and the voltage change was measured with a DC voltage monitor. The charging voltage of the assembled battery was 1.14 V by irradiating of 1 sun ( $100\ \text{mW}\ \text{cm}^{-2}$ ); the self-discharge voltage was 1.10 V. The averaged voltages were 1.1 V during 1-sun irradiation for 1 min. These results indicate that spray method is useful for fabricating the all-solid-phase thin film PV-LIB.

## 1. はじめに

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、分散型の電力消費が増大している。これに関して、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なること、また電池交換などのメンテナンスが必要であることなど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、多様な機器の電源として実用的である。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少なからず貢献できる。以上のことから、外部電源が不要な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、その開発は急務である。

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>。この透明LIBを研究背景として、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)を用いており、1-sun強度の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>。この方法は、酸化物やリン酸化合物などを形成したい金属イオンを含む比較的安定な金属錯体が、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し、熱処理して薄膜を形成する。

本プロジェクトでは、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、Electro-Spray Deposition(静電スプレー析出, ESD)法、水溶液スプレー法で容量を増大させた活物質膜を形成する。かつ、実用化に向けて電解液の代わりに市販の電解質ゲルを用いることによって、安全性が高く、かつ大容量な光充電型全固体化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、分子プレカーサー水溶液を用いてスプレーコート法による薄膜形成結果を中心に報告する。スプレーコート法は、溶液を噴霧し基板上に膜を形成させる方法である。膜を形成する際、基板の大きさに制限されること無く塗布が可能であるため、大規模な塗布にも用い

られるほか、高効率なロールツーロール製法にも適している。また、スプレーコート法はグラフィックアートや工業的な塗布、多様な有機または高分子化合物薄膜の形成にも用いられている。本報告では、このようなスプレーコート法によって、正極材料である $\text{LiCoO}_2$ (LCO)の成膜と膜厚の増加を目的として、基礎的な成膜条件について得られた成果を記載した。

LCOは積層構造とスピネル構造の二つの構造を持ち、積層構造のLCOは $\text{Li}^+$ イオンと $\text{CoO}_6$ 八面体層がc軸方向に交互に積み重なった構造である。構造内の $\text{Li}^+$ イオンは、層間の二次元平面内を移動し、電極、電解質界面で離脱挿入が進行するため、酸化物イオンとコバルトイオンで構成された結晶は構造を保ちやすく、充放電反応に伴うホスト材料の劣化が起こりにくい。このことから、積層構造のLCOは、複雑なスピネル構造のLCOよりも高い導電性と優れたサイクル特性を持ち、リチウムイオン電池の正極材料として優れている。

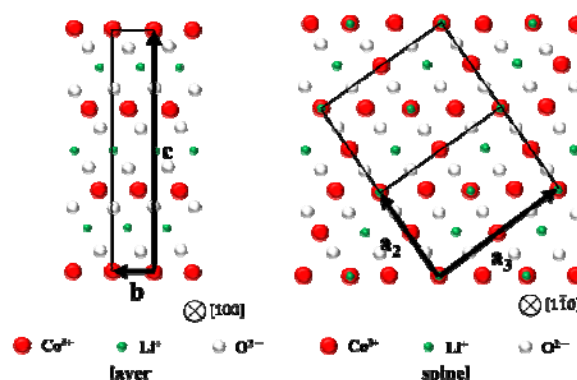


図1 LCOの層状構造(左)とスピネル構造(右)

これまで、分子プレカーサー法を用いてサファイア基板上にLCOプレカーサー溶液をスピコート法で塗布、熱処理してLCO薄膜を形成した<sup>(16)</sup>。形成したLCOの半導体としての性質をホール効果測定で確認した。しかし、非晶質な石英ガラス基板上に同方法で形成した膜のXRDパターンとラマンスペクトルは、酸化コバルトへの結晶化を示した。以上の背景から、本研究ではスプレーコート法による石英ガラス基板上へのLCO薄膜形成を試みた。さらに、得られた膜電極を組合せて、光充電型リチウムイオン電池の形成を試みた。

## 2. 実験

### 2.1 使用試薬

酢酸コバルト四水和物、酢酸リチウム二水和物は、関東化学工業株式会社、純水は、共栄製薬株式会社製を使用した。アンモニア水、イソプロパノール(IPA)は、大成化学株式会社製を使用した。ヘキサフルオロリン酸

リチウム (LiPF<sub>6</sub>) 溶液はキシダ化学株式会社を用いた。基板は旭硝子株式会社製のフッ素ドーパ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、20 × 33 mm<sup>2</sup> に切断し、イソプロパノール (大成化学株式会社) 中、超音波照射しながら 30 分間ずつ 2 回洗浄した。70°C の乾燥器中で 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 LCO プレカーサー溶液の調製

### 2. 2. 1 スプレー塗布用 LCO プレカーサー水溶液 (Saq) の調製

30 mL のスクリュウ管ビンに酢酸リチウムを 0.123 g (1.21 mmol)、酢酸コバルトを 0.313 g (1.21 mmol) を取り、水 10 g とアンモニア水 1.65 g (24.2 mmol) を加えた。室温 (27°C) で一時間 1000 rpm で攪拌し、物質比が、酢酸リチウム : 酢酸コバルト : アンモニア水 = 1 : 1 : 20 で、溶液濃度 0.10 mmol g<sup>-1</sup> の S<sub>0.1</sub> を調製した。

### 2. 2. 2 スピンコート用 LCO プレカーサー溶液 (Set) の調製

エタノールを溶媒とするスピンコート用 LCO プレカーサー溶液は、既報に従って調製した<sup>(2)</sup>。50 mL スクリュー管ビンに、酢酸リチウム二水和物を 0.64 g (6.23 mmol) 量り取り、エタノールを 10 g 加えた。ここにブチルアミンを 0.46 g (24.9 mmol) 量り入れ、室温で 1 時間、1000 rpm で攪拌後、モレキュラーシーブスを 3 g 加え、Li<sup>+</sup>濃度が 0.5 mmol g<sup>-1</sup> の Li<sub>2</sub>O プレカーサー溶液を調製した。また、50 mL スクリュー管ビンに、酢酸コバルト四水和物を 1.90 g (7.62 mmol) 量り取り、エタノールを 10 g 加えた。ここにブチルアミンを 3.35g (45.7 mmol) 量り入れ、室温で 1 時間、1000 rpm で攪拌後、モレキュラーシーブスを 7 g 加え、Co<sup>2+</sup>濃度が 0.5 mmol g<sup>-1</sup> の CoO プレカーサー溶液を得た。調製したこれらの溶液を、物質比が Co<sup>2+</sup>/Li<sup>+</sup> = 1 となる様に混合し、1 時間、1000 rpm で攪拌後、モレキュラーシーブスを 5 g 加えて Set を調製した。

## 2. 3 LCO プレカーサー膜の形成

### 2. 3. 1 スプレーコート法による LCO プレカーサー膜の形成

180°C に保持した石英ガラス基板 (20 × 20 mm<sup>2</sup>) に S<sub>aq</sub> を 1, 3, 6 g スプレー法で塗布し、プレカーサー膜 PF<sub>spray-1</sub>, PF<sub>spray-3</sub>, PF<sub>spray-6</sub> をそれぞれ形成した。スプレー条件は以下の通りである。基板からエアブラシ先端までの距離は 30 cm, 噴射速度は 30 mg s<sup>-1</sup> とし、5 秒間の噴射、20 秒間の基板温度復元処理を繰り返した。

### 2. 3. 2 スピンコート法による LCO プレカーサー膜の形成

石英ガラス基板 (20 × 20 mm<sup>2</sup>) に S<sub>et</sub> を 100 μL 滴下し、2 段階スピンコート法 (1<sup>st</sup> 500 rpm-5 s, 2<sup>nd</sup> 2000 rpm-30 s) で塗布した。

## 2. 4 LCO プレカーサー膜の熱処理

それぞれの塗布方法で形成したプレカーサー膜を、空气中で 500°C, 30 分間熱処理した。スプレーコート法で塗布・熱処理した膜は F<sub>spray-1</sub>, F<sub>spray-3</sub>, F<sub>spray-6</sub>, スピンコート法で塗布・熱処理した膜を F<sub>spin</sub> と示す。

## 2. 5 LCO 積層膜の形成

2. 4 で形成した膜 F<sub>spray-1</sub>, F<sub>spray-3</sub>, F<sub>spray-6</sub> 上に S<sub>et</sub> を 100 μL 滴下し、2 段階スピンコート法 (1<sup>st</sup> 500 rpm-5 s, 2<sup>nd</sup> 2000 rpm-30 s) で塗布した。形成したプレカーサー膜をマッフル炉で 500°C, 30 分間熱処理した。得られた膜をそれぞれ F<sub>SS-1</sub>, F<sub>SS-3</sub>, F<sub>SS-6</sub> と示す。

## 2. 6 デバイスの作製

20 × 33 mm<sup>2</sup> の石英基板上にスプレーコート法とスピンコートを用いて F<sub>spray-3</sub>, F<sub>SS-3</sub> を形成した。先に以下の図 2 の様に基板をマスキングした。

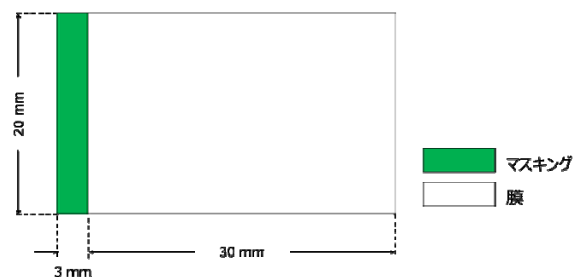


図 2 正極材用基板のマスキング

対極のチタニアは既報に従って、FTO ガラス基板上市販の TF リード Ti を 150 μL 滴下し、2 段階スピンコート法 (1<sup>st</sup> 500 rpm-5 s, 2<sup>nd</sup> 2000 rpm-30 s) で塗布した。S<sub>et</sub> も 150 μL 滴下し、同様の方法で塗布した。形成したプレカーサー膜をマッフル炉で 500°C, 30 分間熱処理した。形成した電極間に市販の LiPF<sub>6</sub>/EC-DMC 200 μL とゲル化剤 0.02 g を加熱攪拌し、調製したゲル電解液を注入した。加熱攪拌では Fine 社 magnetic stirrer F301N, 同社 THERMO F-0010D を使用し、55°C で一時間攪拌した。

## 2. 7 測定

溶液の吸収スペクトルは、リファレンスを各溶液の溶媒としてダブルビーム法を用いて UV-2800 で測定した。薄膜の結晶構造は、X 線回折装置 SmartLab (Rigaku, Japan) を用い、出力 45 kV × 200 mA の Cu Kα 線で測定した回折パターンによって同定した。X 線入射角 0.3° の平行ビーム光学系で、2θ 範囲 10-80°, ステップ幅 0.05°, スキャン速度 5° min<sup>-1</sup> の条件で測定した。膜厚は、DEKTAK-3 (Sloan) を使用し触針法で測定した。先端半

径 2.5  $\mu\text{m}$  のダイヤモンド探針を 3000  $\mu\text{m}$  走査させた。5 点測定し、最大と最小を除く 3 点の平均値を膜厚とした。また、ラマンスペクトルは、レーザーラマン分光装置 LabRAM HR-800 (HORIBA) を使用し、レーザーは J100GS-16 (Showa optronics Co. Ltd.) で測定した。5  $\times$  5  $\text{mm}^2$  に切断した膜を 0.1  $\mu\text{A}$ , 20 mV で抵抗率、キャリア移動度、キャリア密度を測定した。5 回測定し、最大と最小を除く 3 点の平均値をそれぞれの値とした。

膜の表面形態は、FE-SEM JSM-6701F (JEOL, Japan) を使用して、5 kV の加速電圧で観察した。測定試料を 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薄膜と SEM 観察用台座を接続した。カーボンペーストで接続後、デシケーター内で一晩乾燥させて観察した。各デバイスの電流印加による電圧変化は、6241A DC Voltage Current Source/Monitor (ADCMT) で測定した。定電流 500 nA の定電流印加と自然放電を 1 分間隔で繰り返す充放電試験を 30 サイクル行った。各デバイスの光照射による電圧変化は、VOAC7523H デジタルマルチメーター (IWATSU) で測定した。光照射には、LAX-Cute を使用した。1 SUN 疑似太陽光全域照射 (100  $\text{mW cm}^{-2}$ ) の光照射と暗所放置を 1 分間隔で繰り返し、30 サイクル行った。疑似太陽光照射度は、CS-20 (Asahi spectra) で設定した。

### 3. 結果と考察

#### 3. 1 プレカーサー溶液の調製

図 3 に調製した LCO プレカーサー水溶液とエタノール溶液の写真を示す。調製後から 6 ヶ月でも沈殿は生じなかった。また、これらの吸収スペクトルを図 4 に示す。



図 3 LCO プレカーサー水溶液 (左) と LCO プレカーサー溶液の外観写真 (右)

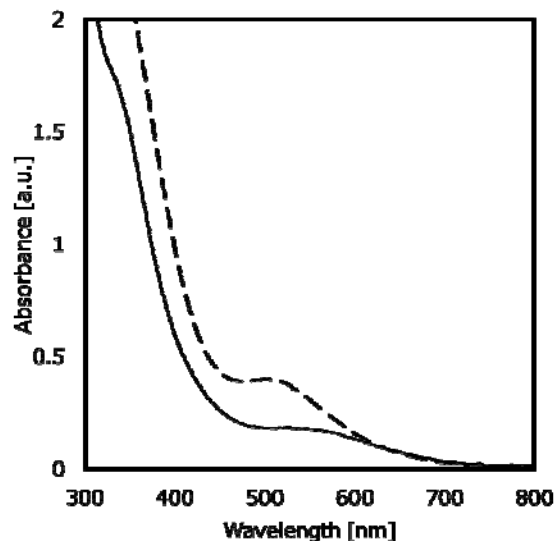


図 4  $S_{aq}$ ,  $S_{Et}$  の吸収スペクトル。溶液の金属イオン濃度はそれぞれ 4  $\mu\text{mol g}^{-1}$  とした。破線は  $S_{aq}$  を、実線は  $S_{Et}$  を示す。

LCO 水溶液は 520 nm 付近に d-d 吸収と考えられる吸収を示した。水とアルコールでは、異なる錯体が含まれると考えられる。

#### 3. 2 形成した薄膜の XRD パターン

##### 3. 2. 1 スプレーコート法で塗布・熱処理した膜の XRD パターン

$F_{\text{spray-1}}$ ,  $F_{\text{spray-3}}$ ,  $F_{\text{spray-6}}$  の XRD パターンをそれぞれ示す。各膜の  $2\theta = 19.0, 37.4, 39.1, 45.3, 49.5, 59.6, 65.5, 66.4, 69.7^\circ$  のピークは ICDD card No. 00-050-0653 の LCO に一致し、それぞれ(003), (101), (012), (104), (015), (107), (018), (110), (113)の各面に帰属できた。

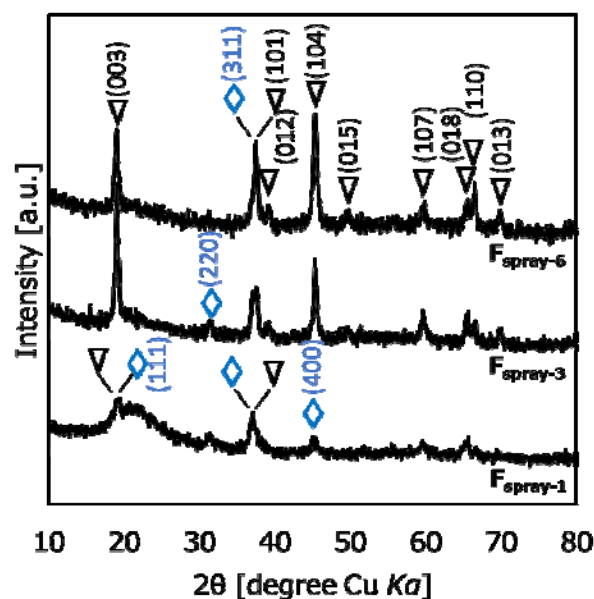


図 5 スプレーコート法で塗布・熱処理した膜の XRD パターン。▽ は LCO, ◇ は酸化コバルトを示す。

また、各膜の  $2\theta = 19.0, 31.3, 36.8, 44.8, 59.4, 65.2^\circ$  のピークは ICDD card No. 01-073-1701 の  $\text{Co}_3\text{O}_4$  に一致し、それぞれ、(111), (220), (311), (400), (511), (440) の各面に帰属できた。スプレーした溶液量の増加に伴い、酸化コバルトのピーク強度は、低くなった。

### 3. 2. 2 スピンコート法で塗布・熱処理した膜の XRD パターン

図 6 に  $F_{\text{spin}}$  の XRD パターンを示す。

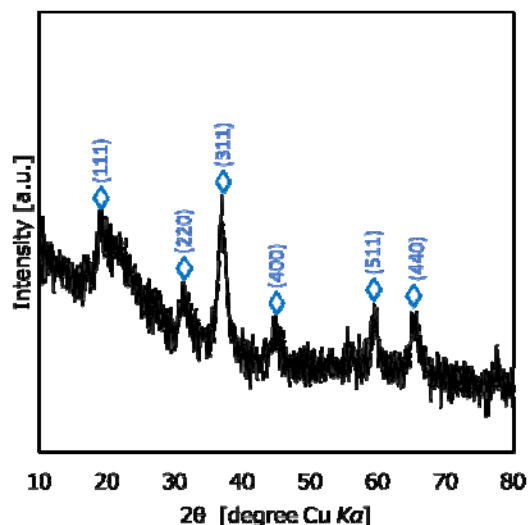


図 6  $F_{\text{spin}}$  の XRD パターンを示す。◇は酸化コバルトを示す。

スピンコート法で塗布・熱処理した膜は、酸化コバルトのみのピークに帰属できた。

### 3. 2. 3 積層膜の XRD パターン

図 7 に各  $F_{\text{spray}}$  上に  $F_{\text{spin}}$  を形成した  $F_{\text{ss}}$  の XRD パターンを示す。

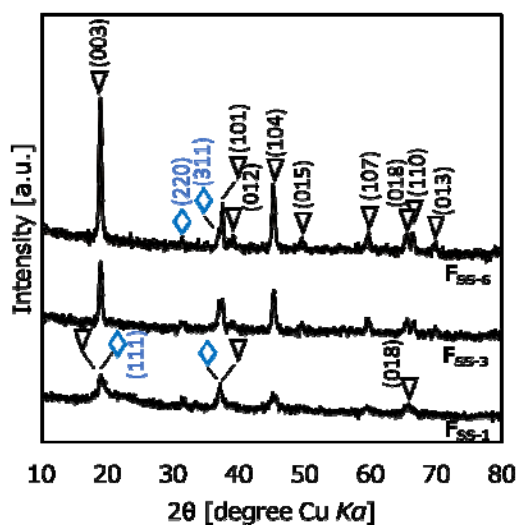


図 7  $F_{\text{ss}}$  の XRD パターンを示す。▽ は LCO, ◇は酸化コバルトを示す。

### 3. 3 形成した薄膜のラマンスペクトル

#### 3. 3. 1 スプレーコート法で塗布・熱処理した膜のラマンスペクトル

$F_{\text{spray}}$  の各ラマンスペクトルを図 8 に示す。各スペクトルの  $595$  と  $484 \text{ cm}^{-1}$  付近のピークは、積層構造の LCO に、 $691, 618, 522, 194 \text{ cm}^{-1}$  付近のピークは酸化コバルトに帰属できた。

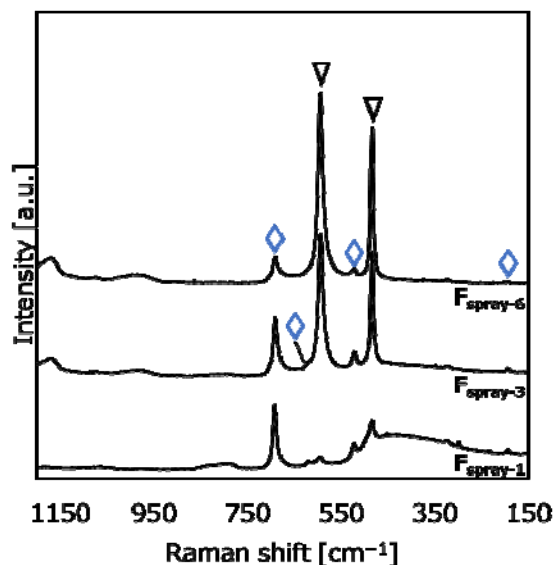


図 8 スプレーコート法で塗布・熱処理した膜のラマンスペクトル。▽ は LCO, ◇ は酸化コバルトを示す。

これらのラマンピーク面積 ( $595 \text{ cm}^{-1}$  の LCO と、 $689 \text{ cm}^{-1}$  の酸化コバルト) と酸化コバルト含有率を求めた。酸化コバルト含有率は、LCO と酸化コバルトの高純度粉末を用いた各物質の質量とラマンピーク面積 ( $596 \text{ cm}^{-1}$  の LCO と、 $689 \text{ cm}^{-1}$  の酸化コバルト) の検量線から求めた次の実験式を用いた。

$$y = 6.3745x + 1.3246 \quad (1)$$

このとき、 $y$  は LCO に対する酸化コバルトのピーク面積の比であり、 $x$  は酸化コバルトの含有率である。結果を表 1 に示す。

表 1 各  $F_{\text{spray}}$  のラマンピーク面積と酸化コバルト含有率

膜	LCO に対する酸化コバルトのピーク面積の比 [%]	酸化コバルト含有率 [%]
$F_{\text{Spray-6}}$	17	2.6
$F_{\text{Spray-3}}$	67	10
$F_{\text{Spray-1}}$	90	14



ラマンスペクトルからもわかるように、スプレー塗布量の増加に伴って、酸化コバルト含有量は小さくなった。

### 3. 3. 2 スピンコート法で塗布・熱処理した膜のラマンスペクトル

図9に  $F_{spin}$  のラマンスペクトルを示す。

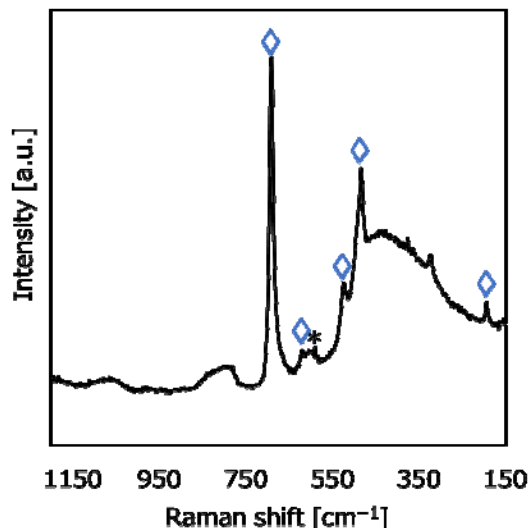


図9 スピンコート法で塗布・熱処理した膜のラマンスペクトル。▽は層状構造の LCO, \*はスピネル構造の LCO, ◊は酸化コバルトを示す。

スピンコート法で塗布・熱処理した膜は、スピネル構造の LCO をわずかに含む酸化コバルトのみのスペクトルを示した。

### 3. 3. 3 積層膜のラマンスペクトル

図10に各  $F_{ss}$  のラマンスペクトルを示す。

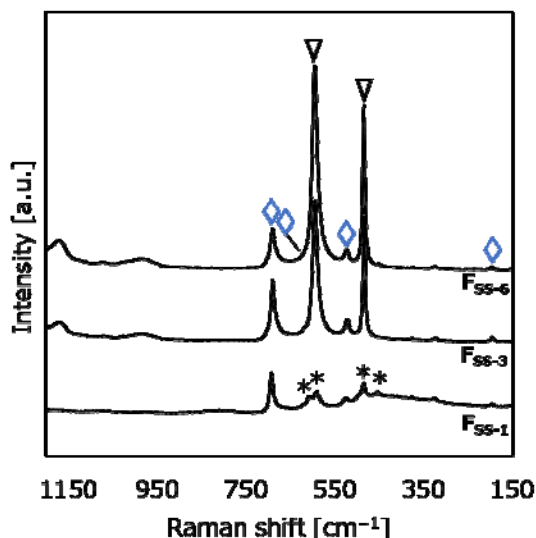


図10 積層膜のラマンスペクトル。▽は層状構造の LCO, \*はスピネル構造の LCO, ◊は酸化コバルトを示す。

先ほどと同様にこれらのラマンピーク面積 ( $595\text{ cm}^{-1}$  の LCO と、 $689\text{ cm}^{-1}$  の酸化コバルト) と酸化コバルト含

有率を求めた。結果を表2に示す。

表2 各  $F_{ss}$  のラマンピーク面積と酸化コバルト含有率

膜	LCO に対する酸化コバルトのピーク面積の比 [%]	酸化コバルト含有率 [%]
$F_{ss-6}$	18	2.5
$F_{ss-3}$	36	5.4
$F_{ss-1}$	対称データなし	

$F_{ss-1}$  については  $595\text{ cm}^{-1}$  の層状構造のピークが検出されなかったため、酸化コバルト含有率は計算していない。積層膜の形成で、酸化コバルト含有率は小さくなった。

このように、塗布方法によって石英ガラス基板上に形成される膜は異なった。スピンコート法で形成したプレカーサー膜  $PF_{spin}$  の状態は、流動性があるため、熱処理時に  $Li^+$  が基板側へ拡散し、得られた膜  $F_{spin}$  は酸化コバルトに結晶化されると考えられる。しかし、 $PF_{spray}$  では、加熱した基板上へ溶液を直接的噴霧するため、加熱基板に接近する液滴中のプレカーサーが、LCO の結晶核を形成できる組成をもつ中間体を形成できると考えられる。そのため、 $PF_{spray}$  を熱処理した膜  $F_{spray}$  は LCO に結晶化したと考えられ、スプレー法の優れた特徴の一つとも考えられる。一般に、ゾル・ゲル法を用いた純粋な層状構造を持つ LCO は、 $700^\circ\text{C}$  以上の高温熱処理で形成される<sup>(17, 18)</sup>。しかし、本研究では、プレカーサー水溶液を  $180^\circ\text{C}$  の基板上に塗布後  $500^\circ\text{C}$  の低温熱処理で形成された  $F_{spray-3}$  と  $F_{spray-6}$  は、XRD パターンとラマンスペクトルで層状構造の LCO を示した。これは、私たちの知る限りでは、化学的湿式法を用いた非晶質な石英ガラス基板上への層状構造の LCO 薄膜形成法として、初めて成し遂げられた方法である。

また、LCO は  $Li^+$  イオンの存在比が Co に対して 50% を下回ると結晶構造が  $Co_3O_4$  に変化する<sup>(19)</sup>。 $F_{spray}$  の基板界面は、 $Li^+$  イオンが石英ガラス基板へ拡散後、 $Li^+$  イオン存在比が低下し、 $Co_3O_4$  の酸化コバルトに結晶化したと考えられる。石英ガラス基板に拡散する  $Li^+$  イオンは、膜厚の増加に従い減少して、LCO に結晶化した。しかし、 $Co_3O_4$  の結晶構造はスピネル構造であり、スピネル構造の LCO との格子定数のずれ合いは 1.007% である。これらの二つの結晶構造の格子不整合性が低いいため、この層はスピネル構造の LCO に結晶化するものと考えられる。さらに膜厚の増加に従い熱力学的な自由度が増加し、熱力学的に安定な層状構造の LCO に結晶化したと考えられる。

$F_{spray-3}$  と  $F_{spray-6}$  上にスピンコート法で塗布、熱処理し形成した  $F_{ss-3}$  と  $F_{ss-6}$  は層状構造に結晶化し、 $F_{ss-1}$  はスピネル構造の LCO に結晶化した。これは、 $F_{spray}$  上に滴

下された  $S_{et}$  が熱処理中、エピタキシャル成長しながら結晶化したため、 $F_{SS}$  は  $F_{spray}$  と同様の結晶構造を示したと考えられる。これらのことから、スプレー法で塗布した膜は、下図 11 のようなイメージの膜を形成していると考えられる。

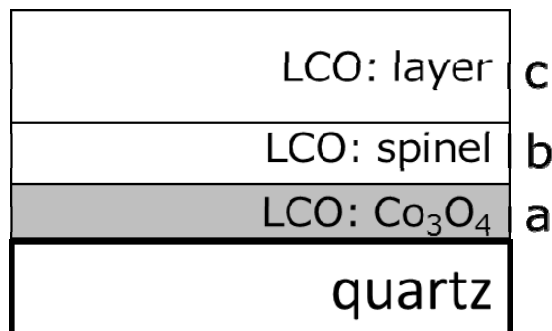


図 11 スプレーコート法で形成した膜のイメージ図

### 3. 4 ホール効果測定

次の表 3 に形成した膜のホール効果測定結果を示す。

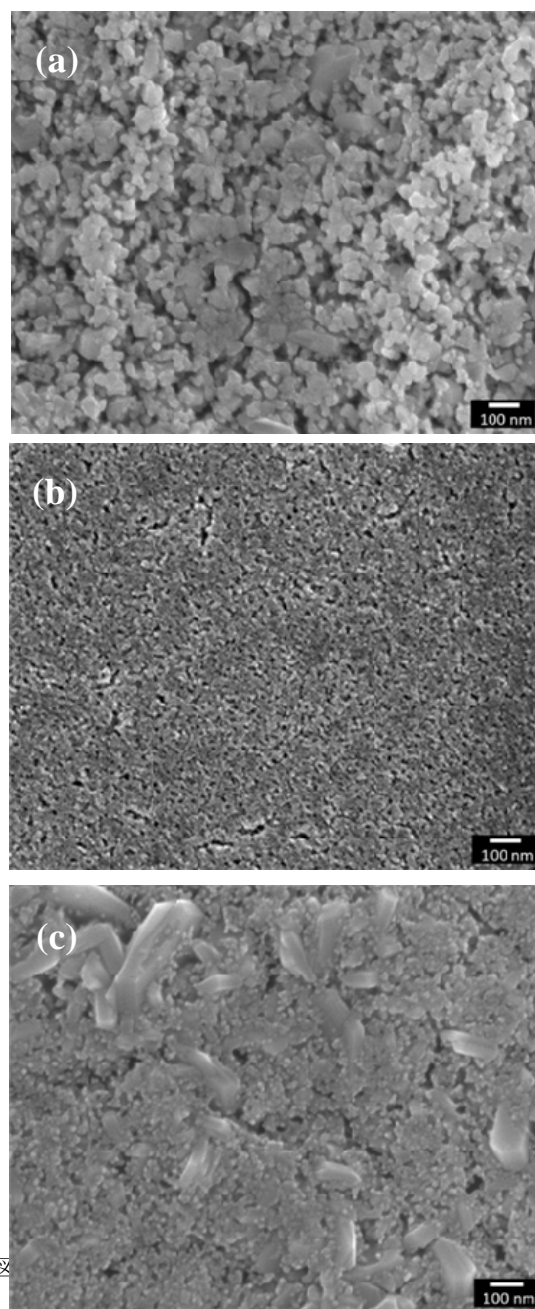
表 3 各膜のホール効果測定結果

膜	キャリア濃度 [ $\text{cm}^{-3}$ ]	キャリア移動度 [ $\text{cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$ ]	抵抗率 [ $\Omega \cdot \text{cm}$ ]
$F_{SS-6}$	$6(1) \times 10^{15}$	7(2)	170(5)
$F_{SS-3}$	$8(2) \times 10^{16}$	2(1)	35(2)
$F_{SS-1}$	$10(1) \times 10^{16}$	4(1)	10(1)
$F_{spray-6}$			$> 3 \times 10^6$
$F_{spray-3}$			$> 3 \times 10^6$
$F_{spray-1}$	$9(3) \times 10^{16}$	$10(2) \times 10^{-1}$	60(10)
$F_{spin}$	$20(2) \times 10^{16}$	0.6(1)	40(5)

酸化コバルトの  $F_{spin}$  やスピネル構造 LCO を多く含む膜は、抵抗率が低かった。一方で、層状構造の LCO に結晶化することで、キャリア移動度が高くなった。これらのキャリアは、ホールまたはリチウムイオンである。

### 3. 5 SEMイメージ

図 12 には  $F_{spray-3}$ ,  $F_{spin}$ ,  $F_{SS-3}$  の SEM イメージを示す。 $F_{spray-3}$ ,  $F_{spin}$ ,  $F_{SS-3}$  の粒径は、それぞれ 31 nm, 14 nm, 18 nm だった。スプレーコート法で形成した膜は、隙間が観察された。また、スピコート法で形成した膜も隙間は観察された。しかし、それらの粒径は小さく緻密だった。 $F_{SS-3}$  の表面は、 $F_{spray-3}$  に比べて、緻密な粒子と大きな粒子が混合した膜だった。



図

### 3. 6 電圧変化試験 (充放電試験)

#### 3. 6. 1 定電流印加による充放電試験

図 1 3 に  $F_{SS-3}$  と  $F_{spray-3}$  の定電流印加による充放電の時間と電圧の関係を示す。また、それらの平均電圧は、10 分から 60 分の電圧値で計算した。 $F_{SS-3}$  の定電流印加による充電電圧は、1.58 V を示し、放電電圧は 0.65 V を示した。また、 $F_{spray-3}$  は、過充電を起こし、最大電圧の測定設定値である 4.5 V に数秒で達した。

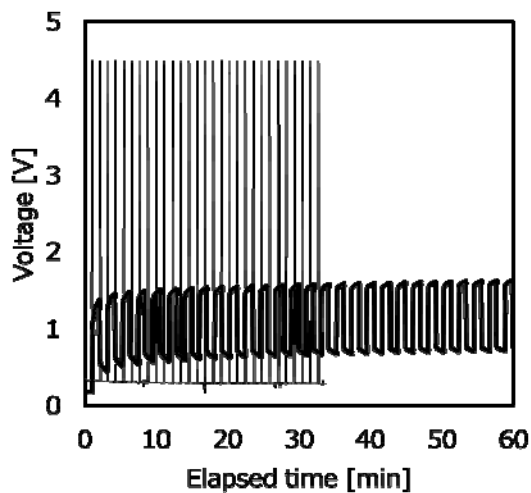


図 13 0.50  $\mu\text{A}$  の定電流印加充電と自然放電サイクルを 1 分間隔で 30 サイクル繰り返した電圧変化。太線は  $F_{SS-3}$  を、細線は  $F_{\text{spray-3}}$  を示す。

### 3. 6. 2 光照射による充放電試験

図 1 4 に  $F_{SS-3}$  と  $F_{\text{spray-3}}$  の光照射による充放電の時間と電圧の関係を示す。また、それらの平均電圧は、10 分から 60 分の電圧値で計算した。 $F_{SS-3}$  の光照射時の電圧は、1.14 V を示し、放電電圧は 1.00 V を示した。また、 $F_{SS-3}$  の光照射時の電圧は、1.04 V を示し、放電電圧は 0.96 V を示した。

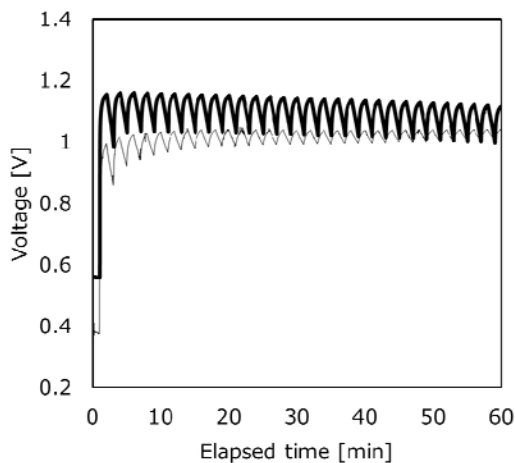


図 14 1 sun の疑似太陽光を照射と暗所放置を 1 分ずつ 30 サイクル繰り返した電圧変化。太線は  $F_{SS-3}$  を、細線は  $F_{\text{spray-3}}$  を示す。

## 4. まとめ

スプレーコート法を用いて石英ガラス基板に層状構造の LCO 薄膜を形成した。また、LCO 薄膜上にスピコート法で形成した膜も LCO が得られた。また、これらの膜は、LIB の電極兼正極活物質として動作した。また、この LIB は、光照射でも充電可能だった。以上のことから、スピコート法を用いた他の湿式法でも形成できなかった LCO 薄膜をスプレーコート法で石英ガラス基板

上に形成し、スプレーコート法の新たな特徴を見出した。

## 謝辞

本研究は、工学院大学工学研究科化学応用学専攻博士後期過程の Philipus N. Hishimone 氏と工学院大学先進工学部応用物理学科の渡會健太氏が学士論文としておこなったものです。感謝を申し上げます。

## 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) pp. 235-237.
- (5) Nagai, H., Suzuki T., Mochizuki, C., Takano, I., Honda, T., and Sato, M.: Formation mechanism of p-type  $\text{Cu}_2\text{O}$  thin films via intermediate  $\text{Cu}^0$  species derived from  $\text{Cu(II)}$  complex of ethylenediamine-N,N,N',N'-tetraacetic acid, *Science of Advanced Materials*, Vol. 6, (2014) pp. 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/ $\text{TiO}_2$  composite thin films with various amounts of Ag, *J. Mater. Sci.*, 48, (2013) pp. 7162-7170.
- (8) Sato, M., Hara, H., Nishide, T., Sawada, Y.: A Water-resistant Precursor in a Wet Process for  $\text{TiO}_2$  Thin Film Formation, *J. Mater. Chem.*, 6 (1996) 1767-1770.
- (9) Nishide, T., Sato, M., Hara, H.: Crystal Structure and Optical Property of  $\text{TiO}_2$  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  $\text{Co}_3\text{O}_4$  Thin Films on Glass Substrates via N-alkyl Substituted Amine Salt of Co(III)-EDTA Complex. *Sol. Energy Mater. Sol. Cells.*, 45 (1997) 43-49.
- (11) Sato, M., Tanji, T., Hara, H., Nishide, T., Sakashita, Y.:  $\text{SrTiO}_3$  Film Fabrication and Powder Synthesis from a Non-polymerized Precursor System of a Stable Ti(IV) Complex and Sr(II) Salt of edta, *J. Mater. Chem.*, 9 (1999) 1539-1542.
- (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) Suzuki, T, Nagai, H, Lu, L., Sato, M.: Electrical properties of partially nitrided LiCoO<sub>2</sub> thin films with an equivalent amount of Li and Co, involving small amounts of amorphous or crystallized Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Electrical properties of partially nitrided LiCoO<sub>2</sub> thin films with an equivalent amount, submitted.
- (17) Hadjiev, VG, Iliev, MN., Vergilov, IV., The Raman spectra of Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, *J Phys C Solid State Phys* 1988; 21: L199-L201.
- (18) Mendoza, L., Baddour-hadjean, R., Cassir, M., et al. Raman evidence of the formation of LT-LiCoO<sub>2</sub> thin layers on NiO in molten carbonate at 650°C, 225(2004) 356-361.
- (19) Hara, K, Yano, T., Suzuki K., et al. Raman Imaging Analysis of Local Crystal Structures in LiCoO<sub>2</sub> Thin Films Calcined at Different Temperatures, *Anal. Sci.*, 33 (2017), 853-858.
- Mitsunobu Sato, Photovoltaic lithium-ion battery fabricated by molecular precursor method, *Functional Materials Letters*, 9/ 3, 1650046, 2016.
9. 佐藤 光史, 永井 裕己, 分子プレカーサー法の厚膜成膜への展開表面技術, 69/11, 507-510, 2018.
10. 佐藤 光史, 永井 裕己, 超スマート社会のための光充電型リチウムイオン電池, 光アライアンス, 29/ 6, 33-38, 2018.
11. 永井 裕己, 光のチカラ, 電気学会誌, 138/4, 203-205, 2018.
12. 佐藤 光史, 永井 裕己, 透明電極の利用最前線～窓で充電! ハイブリッドウィンドウ～, 電気学会誌, 137/ 2, 97-100, 2017.
13. 佐藤 光史, 永井 裕己, 透明な窓が電池に 半透明なりチウムイオン電池の開発, エネルギーデバイス, 3/5, 76-80, 2016.
14. Hiroki Nagai and Mitsunobu Sato, *Advanced Coating Materials*, Wiley, 2018.
15. 永井 裕己, 佐藤 光史, リチウムイオン電池における高容量化・高電圧化技術と安全対策, (株)技術情報協会, 2018.
16. Hiroki Nagai and Mitsunobu Sato, *Modern Technologies for Creating the Thin-film Systems and Coatings*, INTECH, 2017.
17. Hiroki Nagai, Mitsunobu Sato, *Alkali-ion Batteries*, INTECH, 2016.

## 【研究成果】

- ① 発表論文
1. Hsiang-Jung Wu, Nobuki Tomiyama, Hiroki Nagai, Mitsunobu Sato, Fabrication of a p-type Cu<sub>2</sub>O thin-film via UV-irradiation of a patternable molecular-precursor film containing Cu(II) complexes, *Journal of Crystal Growth*, 509, 112-117, 2019.
2. Philipus N. Hishimone, Kenta Watarai, Hiroki Nagai and Mitsunobu Sato, Thin Film Fabrication and Characterization of Layered Rock Salt LiCoO<sub>2</sub> on Quartz Glass Spray-Coated with an Aqueous Ammonia Solution Involving Metal Acetates, *Coatings*, 9/2, 97-107, 2019.
3. Hsiang-Jung Wu, Kota Tanabe, Hiroki Nagai and Mitsunobu Sato, Photo-Induced Super-hydrophilic Thin Films on Quartz Glass by UV Irradiation of Precursor Films Involving a Ti(IV) Complex at Room Temperature, *Materials*, 12/3, 1-14, 2019.
4. Philipus N. Hishimone, Hiroki Nagai, Masato Morita, Tetsuo Sakamoto and Mitsunobu Sato, Highly-Conductive and Well-Adhered Cu Thin Film Fabricated on Quartz Glass by Heat Treatment of a Precursor Film Obtained Via Spray-Coating of an Aqueous Solution Involving Cu(II) Complexes, *Coatings*, 8/ 10, 352, 2018.
5. M.Ono, K.Sasaki, H.Nagai, T.Yamaguchi, M.Higashiwaki, A.Kuramata, S.Yamakoshi, M.Sato, T.Honda, and T.Onuma, Relation between electrical and optical properties of p-type NiO films, *Physica Status Solidi (b)*, 1700311-1-1700311-5, 2018.
6. Daichi Taka, Takeyoshi Onuma, Takashi Shibukawa, Hiroki Nagai, Tomohiro Yamaguchi, Ja-Soon Jang, Mitsunobu Sato, Tohru Honda, Fabrication of Ag dispersed ZnO films by molecular precursor method and application in GaInN blue LED, *Phys. Status Solidi A*, 214/ 3, 1600598, 2016.
7. Hiroki Nagai, Tatsuya Suzuki, Takayuki Nakano, Mitsunobu Sato, Embedding of copper into submicrometer trenches in a silicon substrate using the molecular precursor solutions with copper nano-powder, *Materials Letters*, 182, 206-209, 2016.
8. Hiroki Nagai, Tatsuya Suzuki, Yoshihisa Takahashi, Mitsunobu Sato, Photovoltaic lithium-ion battery fabricated by molecular precursor method, *Functional Materials Letters*, 9/ 3, 1650046, 2016.
- ② 学会発表
1. All-solid-state photovoltaic lithium-ion-battery by using thin films fabricated with molecular precursor method, The 25th International SPACC Symposium, 2018/11/24
2. TiO<sub>2</sub> thin film fabrication via electrospray deposition from molecular precursor solution onto a ultra-thin SWCNT film pre-coated quartz glass substrate, 2018/11/23
3. Fabrication of conductive Cu thin films using electrochemically prepared molecular precursor solutions, The 25th International SPACC Symposium, 2018/11/23
4. Epitaxial Growth of Cu<sub>3</sub>N Films on (0001)Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Substrates by Mist Chemical Vapor Deposition, The 17th International Symposium on Advanced Technology, 2018/11/14
5. Fabrication of translucent photovoltaic lithium ion battery with gel-type electrolyte, European Advanced Materials Congress (EAMC - 2018), 2018/8/22
6. Fabrication of CNT/titania composite thin films for thin-film PV-LIB electrode European, Advanced Materials Congress (EAMC - 2018), 2018/8/21
7. Fabrication and patterning of p-type Cu<sub>2</sub>O thin films by using UV-irradiation to molecular precursor film including Cu(II) complexes, The 8th Advanced Functional Materials & Devices, 2018/8/19
8. Fabrication transparent CNT/titania composite thin films having low-resistivity by molecular precursor method, The 8th Advanced Functional Materials & Devices, 2018/8/19
9. Fabrication of LiCoO<sub>2</sub> Film for Photovoltaic Lithium Ion Battery by Electrospray Deposition Method with Molecular Precursor Solution, The 8th Advanced Functional Materials & Devices, 2018/8/18
10. Application of photo-voltaic lithium ion battery-Towards the realization of a hydrogen society-, The 8th Advanced Functional Materials & Devices, 2018/8/18
11. Relationship between temperature and growth rate of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and their alloys in the growth of mist CVD, 4th International Conference on Advanced

- Electro materials (ICAE2017), 2017/11/24
12. "XPS spectra of Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and their alloys fabricated by molecular precursor method, 24th International Society of Pure & Applied Coordination Chemistry Symposium (SPACC 24), 2017/11/24
  13. Direct preparation of aqueous solutions involving Cu(II) complex of EDTA, from copper plates by electrochemical process, 24 th International SPACC Symposium, 2017/11/23
  14. Patterned Cu<sub>2</sub>O thin-film fabricated by using UV-irradiation to a molecular precursor film including Cu(II) complexes, 24 th International SPACC Symposium, 2017/11/23
  15. Electrical Resistance of a MWCNT/Cu Composite Thin-Film Fabricated from an Aqueous Solution Containing Cu(II) Complexes and MWCNT, The 16th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-16), 2017/11/2
  16. Photovoltaic, energy-storage and all-solid-state device fabricated by using precursor solutions for titania and lithium-cobalt-oxide thin-films, The 16th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-16), 2017/11/2
  17. Reduction of CuO thin films by light irradiation in an aqueous solution, The 16th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-16), 2017/11/2
  18. Transparent and conductive composite thin-film fabricated on quartz with carbon-nanotube and Titania, The 16th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-16), 2017/11/2
  19. Effect of applied voltage on the synthesis of Cu(II) complex of EDTA in aqueous solutions, from copper plates by electrochemical process, The 16th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-16), 2017/11/2
  20. Fabrication and characterization of p-type Cu<sub>2</sub>O Thin Film Transistor by using molecular precursor method, The 16th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-16), 2017/11/2
  21. Near-the surface Fermi level measured In<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> thin films by molecular precursor method, The 16th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-16), 2017/11/2
  22. Origin of free holes and visible light absorption in p-type NiO films, The 16th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-16), 2017/11/2
  23. Thickening of TiO<sub>2</sub> Film Formed by ESD Method Using Molecular Precursor Solution, The 16th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-16), 2017/11/2
  24. Fabrication of cnt/titania composite thin films on quartz glass substrate by molecular precursor method, 2017 International Symposium on Novel and Sustainable Technology (2017 ISNST), 2017/10/20
  25. Photovoltaic Lithium-Ion-Battery for Hydrogen Society, 2017 International Symposium on Novel and Sustainable Technology (2017 ISNST), 2017/10/20
  26. Fabrication of all-solid-state photovoltaic lithium-ion battery, Baltic Conference Series 2017, 2017/10/10
  27. Relation between electrical and optical properties of p-type NiO films, The 44th International Symposium on Compound Semiconductor, 2017/5/16
  28. p形NiO薄膜における電気的特性と光学的特性の関係, 第64回応用物理学会春季学術講演会, 2017/3/14
  29. Study on mist CVD growth of In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 2016 International Symposium on Novel and Sustainable Technology (2016 ISNST), 2016/10/6
  30. Novel route to cuprous oxide thin films fabrication on glass substrate using molecular precursor, 2016 International Symposium on Novel and Sustainable Technology (2016 ISNST), 2016/10/6
  31. Fabrication of vertical-injection type GaN-based MIS diodes with near UV transparent oxide electrodes, International Workshop on Nitride Semiconductors (IWN 2016), 2016/10/2
  32. Fabrication of CNT-doped Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Thin Films by Molecular Precursor Method, The 15th International Symposium on Advanced Technology (ISAT-15), 2016/10/2
  33. Cu<sub>2</sub>O thin-film fabrication from Cu(II) complex having mixed ligands by UV-irradiation, 錯体化学会第66回討論会, 2016/9/10
  34. Fabrication of Copper Thin Films by Using a SprayMethod of Aqueous Solutions Involving Copper(II)Complexes, 錯体化学会第66回討論会, 2016/9/10
  35. Embedding of copper into submicrometer trenches using the molecular precursor method, The 5th Advanced Functional Materials and Devices, 2016/8/13
  36. The electrical properties of p-type LiCoO<sub>2</sub> thin films fabricated by molecular precursor method, Fifth International Symposium on Energy Challenges and Mechanics, 2016/7/11
  37. Fabrication of Photovoltaic lithium ion battery using the molecular precursor method Fifth, International Symposium on Energy Challenges and Mechanics, 2016/7/11
- ③ 特許出願
1. 佐藤 光史, 永井 裕己, 金属膜形成用組成物および金属膜形成方法, WO2017-135330
  2. 佐藤 光史, 永井 裕己, リチウムイオン二次電池, WO2017-056326

## 耳小骨検査の正診率を向上させる検査方法及びデータ解析方法の確立

工学院大学 電気電子工学科 向井 正和

工学院大学 電気電子工学科 鷹野 一朗

工学院大学 電気電子工学科 福岡 豊

工学院大学 電気電子工学科 山崎 貞郎

東京医科大学 耳鼻咽喉科 稲垣 太郎

Study on diagnostic method using neural networks for the lesion of the auditory ossicles

Masakazu Mukai, Department of Electric and Electrical Engineering, Kogakuin University  
 Ichiro Takano, Department of Electric and Electrical Engineering, Kogakuin University  
 Yutaka Fukuoka, Department of Electric and Electrical Engineering, Kogakuin University  
 Sadao Yamazaki, Department of Electric and Electrical Engineering, Kogakuin University  
 Taro Inagaki, Otorhinolaryngology, Tokyo Medical University

**ABSTRACT** : This study proposes a classification method using a neural network for the lesion of the auditory ossicles. The precision of the conventional diagnosis of the lesion remains unsatisfactory. In particular, a fixation of ossicles is difficult to diagnose. To recognize the fixation of ossicles, the data inputted into the neural network were improved by following two approaches. One is a spline interpolation method that is used to make them with the same length between sound pressure level and phase curve. The other is to prepare many training patterns by adding random noises to them. The neural network is implemented using the MATLAB neural network toolbox. The neural network is tested using actual data to validate its effectiveness.

となっている。本研究は、伝音性難聴の診断支援にニューラルネットワークを応用することを目的とする。

### 1. はじめに

近年、人工知能技術や深層学習に注目が集まり、様々な分野への応用が期待されている<sup>(1),(2)</sup>。特に、医療分野では検査結果を用いた診断の補助に人工知能を用いる研究が広く行われている。例えば、乳がんのマンモグラフィ検査に深層学習を利用した診断支援<sup>(3)</sup>やニューラルネットワークを用いて心臓病の診断を行う方法<sup>(4),(5)</sup>などが報告されている。産業分野では自動車のエンジンの異常検知を行う研究<sup>(6)</sup>もある。このように、ニューラルネットワークを用いて、診断支援・異常検知を行うことが可能

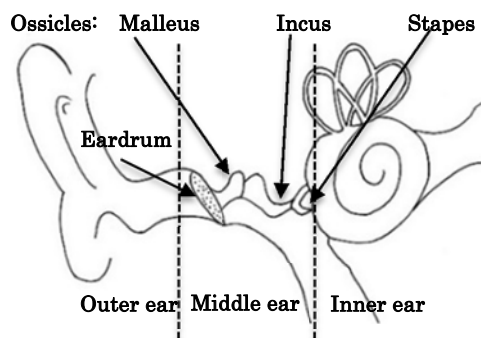


Fig. 1. Structure of ossicles.



音は空気の振動（音波）として鼓膜（Eardrum）にあたり、鼓膜および耳小骨を介して増幅され内耳（Inner ear）に伝わる。耳小骨に異常があると音の伝わりが妨げられ、伝音難聴となる。耳小骨とは、Fig. 1 に示す耳の構造の中で、ツチ骨（Malleus）、キヌタ骨（Incus）、アブミ骨（Stapes）という関節でつながった3つの骨の総称である。

伝音難聴で鼓膜が正常な場合は、耳小骨の検査が必要となるが、Fig. 1 からわかるように、耳小骨は鼓膜の内側にあるため視診が不可能である。また、CT や MRI などの画像による検査では、断片的な画像は得られるが、明らかに離断しているケースを除くと、音を伝える機能の診断が困難である。

外界から音を入力して、中耳の伝達機構がどの程度音の流れを妨げているかという音響インピーダンスを測定するインピーダンス・オージオメトリ<sup>8)</sup>という検査がある。その1種であるティンパノメトリは、外耳道内を連続的に陰圧から陽圧まで変化させインピーダンスの逆数である静的コンプライアンスを測定する。従来のティンパノメトリは、単一音を用いて測定していたが、耳小骨病変の評価にはより高い周波数の音が適していることが指摘された。そのため、入力する音の周波数を変化させて測定を行う連続周波数ティンパノメトリが開発された<sup>9)</sup>。

連続周波数ティンパノメトリでは、陰圧時と通常時の両方で、イヤフォン型のプローブから音波を入力し、鼓膜から跳ね返った音波を計測し、その差分が音圧曲線と位相曲線として得られる。この2つの曲線から特徴量を求め、耳小骨の状態を「正常」、「固着」、「離断」3つから、1つに判別する診断基準が提案され、40例のデータで固着61.0%、離断83.0%という判別率が報告されている<sup>9)</sup>。また、医師が文献<sup>9)</sup>の基準に基づいて行った実際の判別率は、正常50.0%、固着60.0%、離断88.8%で、全体で62.2%であった（45例のデータでの結果から算出）。したがって、文献<sup>9)</sup>の基準は、離断の場合には良好であるが、固着の場合には十分でないと推測される。また先行研究として、ニューラルネットワークを用いた研究<sup>10)</sup>があり、固着の判別率が61.0%、全体で61.3%という結果が得られている。しかし、こちらも固着の判別率が十分でなく、学習に用いるデータの処理に改善の余地がある。

本研究では、連続周波数ティンパノメトリの測定データを入力とし、「正常」「固着」「離断」のいずれかを出力するニューラルネットワークを作成し、先行研究で判別が困難であった固着の判別率の向上を目指す。具体的には以下の2つの方法を用いる。まず、スプライン補間を用いてデータの次元を増加させ、サンプリング間隔を合わせた学習データを作成する。さらに、ランダムノイズを印加して仮想患者データの作成を行うことで、データ数を増加させて（data augmentation）判別率の改善を図る。ここでは、データ数の増加のさせ方も検討し、「正常」「固着」「離断」のカテゴリのデータを単純に等倍して増加させた場合と、カテゴリのデータ数を均等にした場合とを

比較する。最後に、テストデータセットを用いて結果を比較し、固着の判別率を改善できることを確認する。この研究によって、ニューラルネットワークを用いた耳小骨診断の可能性を明らかにできる。本論文の構成は、まず2章で測定データの処理について述べ、3章でニューラルネットワークの構成を示す。4章で、ニューラルネットワークの判別結果を確認する。最後に、まとめと今後の課題について述べる。

## 2. データ処理

〈2・1〉 ティンパノメトリから得られるデータ 連続周波数ティンパノメトリは、陰圧時（-200 daPa）と通常時（0 Pa）の両方で、周波数を200 Hz から2,500 Hz まで変化させた音波を入力し、鼓膜から跳ね返った音波を計測し、その差分の音圧と位相のグラフを印刷する（Fig. 2）。また、文献<sup>9)</sup>に提案されている診断基準に使用できる特徴量：最低音圧時の周波数 $\omega_B$ 、最低音圧 $B$ 、ゲインクロスオーバー周波数 $\omega_L$ 、最大位相時の周波数 $\omega_P$ 、最大位相 $P$ も、前述の音圧と位相のデータから計算され、音圧と位相のグラフと共に印刷される。特徴量が診断基準に当てはまっているかで診断が行われることが多い。

東京医科大学病院において、実際の診察で連続周波数ティンパノメトリを用いて測定されたデータは、電子的でなく印刷されたデータ（Fig. 2 参照）として残されている。患者数には限りがあり、測定できる機会は多くないため、これまでに蓄積されたデータを活用する必要がある。そこで、本研究では印刷された測定データを利用する。

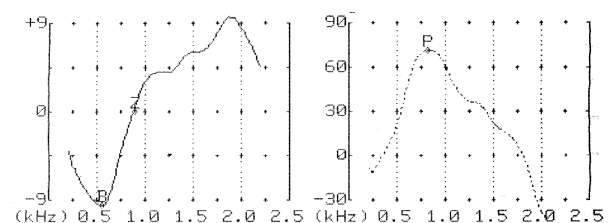


Fig. 2 Printed data (Left: sound pressure level curve, Right: phase curve).

利用する測定データは、東京医科大学病院に来院した28名の患者の両耳のデータ53例で、内訳は、正常20例、固着22例、離断11例である。ただし、測定時の判断で測定不能となった3例は処理の対象から除いた。

〈2・2〉 スプライン補間によるデータ次元の増加 印刷されたデータを計算機で扱えるようにするため、スキャナで画像データに変換する。この画像データに対して、数値変換ソフト Graphcel<sup>a)</sup>を用いて、ピクセル情報から数値データに変換する。Graphcelは、画像データの目盛やラベルなども読み取るため、不要な部分は画像の

ピクセルを白くする。この作業は手作業で、目視で確認しながら行った。読み取った値と印刷されたグラフを比較し、不自然な値が含まれていないことを確認した。

印刷されたグラフは、音圧が実線に近い破線、位相が点線である。また、印刷の解像度の問題で途切れている部分も存在する。そのため、Graphce で処理した結果得られる数値データは一定のサンプリング間隔ではなく、まばらである。また、音圧曲線と位相曲線のデータ間隔も異なっている。

上記のまばらなデータに対して、スプライン補間を用いて、値のない部分を補間する。サンプリング間隔一定とし、200 Hz から 2,500 Hz の間を音圧曲線は  $n$  分割、位相曲線は  $m$  分割する。 $n, m$  は有限な値で設定できるため、任意の次元のデータを作成できるようになる。

音圧曲線と位相曲線は、同じ周波数で関係があると考えられるため、同じサンプリング( $n=m$ )にすることが望ましいと考えられる。結果の 1 例を Fig. 3 に示す。

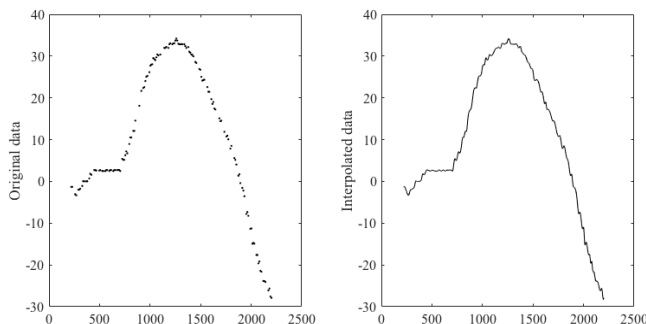


Fig. 3. Example of the spline interpolation.

〈2・3〉 学習データ数の増加 患者のデータ数は多くはなく、特に離断の場合のデータ数が少ないため、擬似的なランダムノイズを加えることで、学習データ数を増加させることを考える (data augmentation)。擬似的なランダムノイズ  $d$  を、つぎのように設定する。

$$d(k) = d_0 + D \text{rand}(k)$$

ここで、 $k$  はサンプリングステップで、 $k=1 \dots n-1$  または  $k=1 \dots m-1$ 。 $d_0$  と  $D$  は定数とし、 $\text{rand}(*)$  は 0 から 1 の乱数を発生させる関数とする。この  $d$  をスプライン補間した数値に加えて別のデータとして扱う。

〈2・4〉 学習データの作成 音圧曲線と位相曲線とともに記録されている、最低音圧時の周波数、最低音圧、ゲインクロスオーバー周波数、最大位相時の周波数、最大位相を 5 つの特徴点として 5 次元データとして扱う。

本研究で用いるデータをまとめると以下ようになる。

- ・音圧曲線 ( $n$  次元)
- ・位相曲線 ( $m$  次元)
- ・特徴点 (5 次元)

上記のデータを合わせ、計( $n+m+5$ )次元のベクトルとしたものを 1 つの学習データとする。

### 3. ニューラルネットワーク

〈3・1〉 ニューラルネットワークの構成 ニューラルネットワークは人間の脳の神経回路の仕組みを模したモデルで、層状に並べたユニットが隣接層間でのみ結合した構造であり、入力層、中間層、出力層で構成されている<sup>(11)</sup>。本論文では、Fig. 4 のニューラルネットワークに学習データと教師データを入力し学習させる教師あり学習を行う。その後、テストデータに対して正常・固着・離断の判別を行わせる。入力層のユニット数は入力次元と同じとし、中間層は 2 層で構成しそれぞれユニット数は 10、出力層のユニット数は 3 とした。中間層の 2 層にはシグモイド関数を用い、出力層にはソフトマックス関数を用いる。

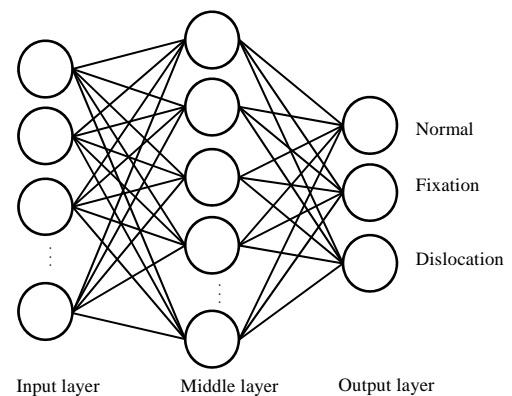


Fig. 4. Neural network.

### 4. データによる検証

〈4・1〉 検証方法 使用するデータの内訳は、正常 20 例、固着 22 例、離断 11 例であった。ここから、正常、固着、離断のデータを 1 つずつ取り出し、テストデータを 22 通り作成した。テストデータを除いたデータを学習データとした。この学習データと、実際の診断結果から作成した教師データとを、ニューラルネットワークに入力し誤差逆伝搬法による学習を行った。ネットワークの作成及び学習には、MATLAB の Neural Network Toolbox<sup>(12)</sup>を用いた。その後、除いておいたテストデータを、学習済みのニューラルネットワークに入力し、出力 (正常、固着、離断) の正誤を確認した。ランダムな初期値を用いて学習を行うため、同一データに対しても学習ごとに結果にばらつきがある。そのため、3 回検証を行い平均の値を求めたものを結果とした。

〈4・2〉 スプライン補間によるデータ次元の増加の効果 ここでは、まずスプライン補間で、入力データの次元を増加させ、音圧曲線と位相曲線の次元を合わせたことによる判別率の変化について検証した。

スプライン補間で音圧・位相曲線のデータの次元を 2,002、4,002 次元と増加させて、5 次元を加えたデータ

を用いて確認を行った。また、比較対象として、文献<sup>(10)</sup>の学習データの次元を採用し、入力次元を音圧曲線 160 次元と、位相曲線 200 次元と、特徴点 5 次元とで、合計 365 次元の学習データを用いた場合も確認した。それぞれの結果を Table 1 に示す。

Table 1 より、文献<sup>(10)</sup>の次元数である 365 次元データを用いた場合の全体の判別率は 56.1%であった。一方、2007 次元のデータを用いた場合の結果はそれよりも良好であった。さらにデータ数を増やして試したが、2007 次元を超えると結果が悪くなった。例えば入力次元が 4007 まで増加すると判別率の低下が見られた。

Table 1. Results of increasing input vector dimensions.

Input vector	Normal [%]	Fixation [%]	Disruption [%]	Total [%]
365 <sup>(10)</sup> ( $n=160$ , $m=200$ )	69.7±30.9	57.6±29.8	40.9±35.3	56.1
2,007 ( $n=1,001$ , $m=1,001$ )	72.7±41.2	60.6±40.1	42.4±41.9	58.6
4,007 ( $n=2,001$ , $m=2,001$ )	77.3±37.3	59.1±40.4	37.9±40.9	58.1

〈4.3〉データ数の増加による効果 つぎにノイズを加えてデータの数を増加させ、判別率の確認を行った。先の結果で、2,007 次元のデータを用いた場合の結果が良好であったため、入力データの次元は 2007 次元とした。このデータに、 $D=0.5$ 、 $d_0=0.5$  としたランダムノイズを加えてデータ数を増やした。計測されたデータは、正常 20 例、固着 22 例、離断 11 例で、そこから 1 例ずつを除いた、正常 19 例、固着 21 例、離断 10 例を増加させるデータとした。

まず、正常・固着・離断の全てデータ数を等倍で 10 倍に増やして全体で 500 個、数を 30 倍に増やして全体で 1,500 個、50 倍に増やして全体で 2,500 個として、出力を確認した。つぎに、正常・固着・離断それぞれのデータ数がほぼ同じになるように、それぞれの倍率を変えてほぼ 600 個ずつにして合計 1,800 個として検証した。具体的には、正常 570 個、固着 630 個、離断 600 個で、合計 1,800 個と調整した。それぞれの結果を Table 2 に示す。

Table 2. Results of increasing the numbers of data by random noises and doctor's diagnosis.

Number of data	Normal [%]	Fixation [%]	Disruption [%]	Total [%]
500	80.3±33.6	62.1±38.4	37.9±40.9	60.1
1,500	81.8±37.7	63.6±43.9	39.4±45.7	61.6
1,800	80.3±37.6	74.2±38.0	42.4±44.2	65.7
2,500	86.4±30.5	57.6±43.1	37.9±46.4	60.6
Doctor	50.0	60.0	88.8	62.2

500	80.3±33.6	62.1±38.4	37.9±40.9	60.1
1,500	81.8±37.7	63.6±43.9	39.4±45.7	61.6
1,800	80.3±37.6	74.2±38.0	42.4±44.2	65.7
2,500	86.4±30.5	57.6±43.1	37.9±46.4	60.6
Doctor	50.0	60.0	88.8	62.2

データ数を 500 個から増加させていくと、判別率は上昇していくが、2,500 個では結果が悪化している。一方、データ数を均等にした 1,800 個のデータを用いた場合は、固着と離断の判別率が向上し、全体として 65.7%という他の結果よりも高い判別率が得られた。

#### 〈4.4〉考察

##### (1) 補間の効果に関する考察

4.2 節で確認できたように、スプライン補間によりデータの次元を増加させ、音圧曲線と位相曲線の次元を合わせることで、文献<sup>(10)</sup>で示された次元が合わされていない場合よりも判別率を向上させることができた。これは、紙からスキャンした際に欠落した情報が、補間によって補われたためと考えられる。

Table 2 の最下段に実際の医師の判別結果を示す。データをスプライン補間した場合の Table 1 の結果と比べると、正常の判別率は上回ることができたが、固着は同程度、離断は大きく下回っている。これより、データの補間だけでは不十分であることがわかる。

##### (2) データ数の増加に関する考察

4.3 節のデータ数を増加させたことによる効果は、データ数を均等に約 600 個ずつにし、全体で 1,800 個とした場合の結果がもっとも良好であった。医師の判別結果と比べても、正常と固着の判別率を、それぞれ約 30%と約 14%向上させることができた。また、先行研究<sup>(9),(10)</sup>よりも判別率が改善されている。判別率の向上のためには、各カテゴリのデータ数が均等であることが望ましいと推測され、ノイズを加えて数を均等化することには効果があると考えられる。患者の測定で得られる実データを劇的に増加させることは難しい。そのため、データ数を擬似的に均等な数に増やすことで、判別率の向上に効果があることを明らかにできた意義は大きい。

一方、離断の判別率は改善できたとはいえない。離断のデータ数が正常・固着よりも少なく、個別性が高いためと考えられる。離断の場合は、正常、固着の場合よりも、物理的に耳小骨の動きが大きくなるため、音圧曲線と位相曲線のパターンが特殊になる。医師による診断では、変化が大きい特殊なパターンであれば、正常と固着を除外し、離断と判別しやすいため離断の判別率が高かったと考えられる。一方、ニューラルネットワークの診断では、一つ一つの特殊なパターンを学習し一般性を見出そうとするため、除外する判別がうまく行われず、離断の判別率が向上しなかったと考えられる。

### (3) ニューラルネットワークの重みに関する考察

ここでは、学習後のネットワークの重みから入力データのどの要素が出力に影響を与えているかを確認する。先の4.3節で得られたデータ数1,800個の場合のネットワークを用いて検討する。22通りのニューラルネットワークのそれぞれの入力から3つの出力までの重みだけを掛け合わせた数値の分布を確認する。

まず、音圧曲線と位相曲線のそれぞれ1001次元を横軸にとり、縦軸に重みの数値を示した箱ひげ図を示す。それぞれFig. 5が正常の場合の重み、Fig. 6が固着の場合の重み、Fig. 7が離断の場合の重みの分布を表している。中央のグレーの部分の下部が第一四分位数、上部が第三四分位数であり、黒い点線の下部が最小値、上部が最大値を示している。黒い点線の下部と上部の外側に存在する点は、はずれ値である。

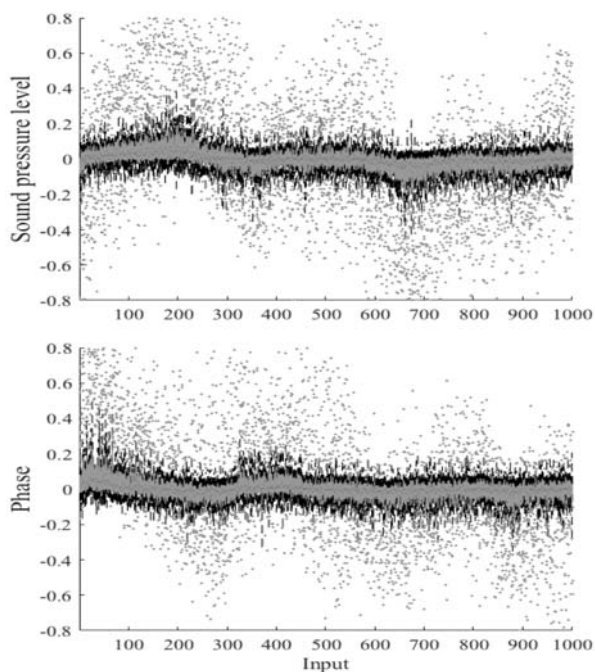


Fig. 5. Weights for the normal case.

Fig. 5より、正常と出力する時の重みは、位相曲線の低周波域が重視されていることがわかる。

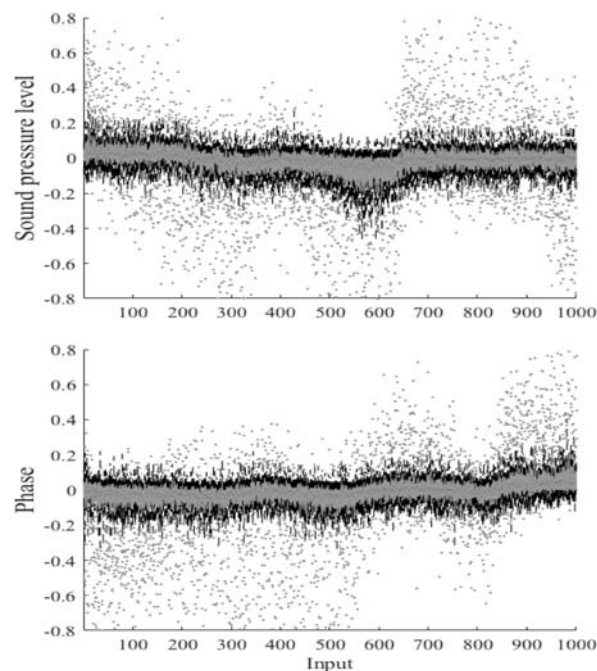


Fig. 6. Weights for the fixation case.

Fig. 6の固着と判断される場合の重みは、位相曲線の高周波域を重視していることがわかる。耳小骨が固着することで物理的に硬くなった特性が、高周波成分として現れることがあるため、この結果は自然であると考えられる。

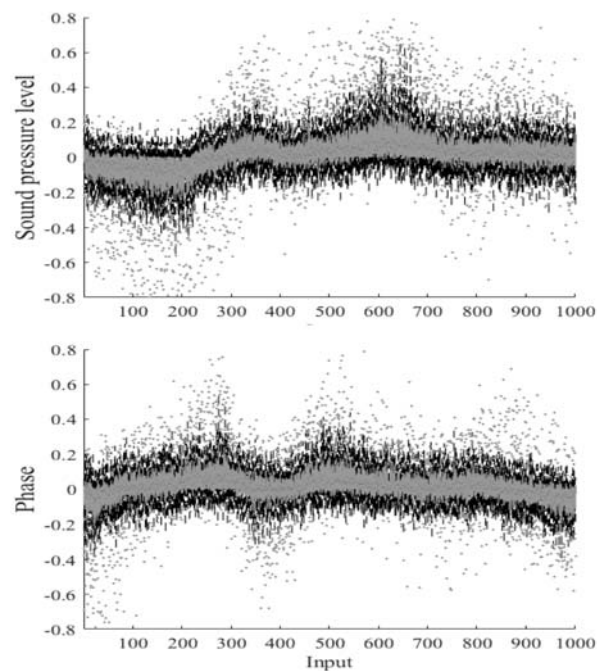


Fig. 7. Weights for the disruption case.

Fig. 7の離断の場合は、先の正常と固着の場合と比べてグレーの部分が広いことがわかる。つまり、22通りのテストパターンそれぞれで重みの数値が変わりやすいことがわかる。離断の場合の学習結果が、データセットご

とに異なっていることが現れている。

つぎに残りの 5 つの特徴点に関する重みを示す (Fig. 8)。

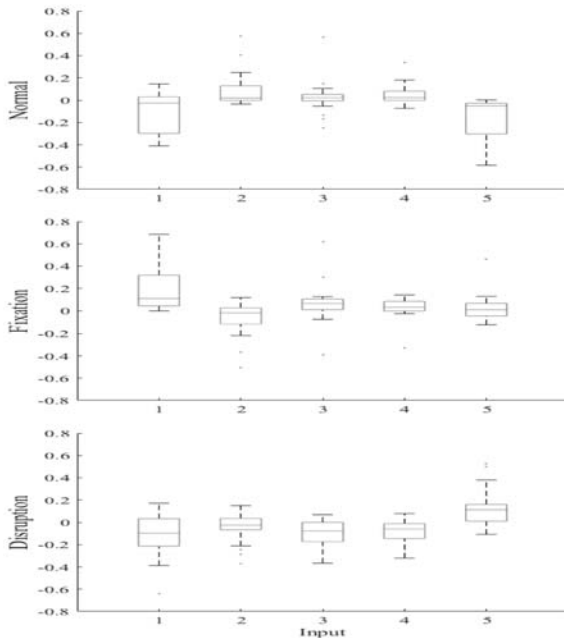


Fig. 8. Weights for the 5 characteristic points (1:  $\omega_B$ , 2:  $B$ , 3:  $\omega_Z$ , 4:  $\omega_P$ , 5:  $P$ )

Fig. 8 より, 固着と判断する場合には, 入力 1 番目の最低音圧時の周波数  $\omega_B$  が使われていることがわかる。また, 離断の場合の 5 つ目の入力である最大位相  $P$  の重みがやや大きいことが見て取れる。これは, 離断時には位相の変化が大きくなるというデータに見られる現象が診断に反映されていることを表している。

以上のように重みを解析することで, 作成したニューラルネットワークは, データの特徴を捉えていることが確認できた。文献<sup>(9)</sup>に提案され, 医師も使用している診断基準は, 5 つの特徴点のみを用いたものであるが, 今回用いた音圧曲線と位相曲線のデータが, 診断結果の向上に寄与していることが明らかになった。

## 5. おわりに

本研究では, 耳小骨の病変の診断のために, 正常・固着・離断の 3 つを判別するニューラルネットワークを作成した。印刷された実際のデータを元にし, スプライン補間を用いて音圧曲線と位相曲線のデータの次元を増加させ, 音圧と位相のサンプリング間隔と次元数を合わせた。また, ランダムノイズを加えることでデータ数を増やし, 数を均一化することで, 医師による判別結果と従来研究<sup>(9),(10)</sup>よりも, 固着の判別率を上回ることができた。特に, 固着の診断は難しいため, 意味のある結果となった。今後も測定データが追加される可能性があるため, 判別率は向上させられると期待できる。

今後は, ネットワークの構造を変更し, 正常と異常の判別を先に行い, その後に固着と離断の判別を行うという 2 段階のネットワークを作成し, 判別率が向上するか確認する予定である。また, 深層学習<sup>(13)</sup>を用いた判別や, 比較的集めやすい正常のデータを基準にして, 異常診断の手法を適用することで, 判別率の向上ができないかを検討したい。

## 参考文献

- (1) S. Chakraborty, R. Tomsett, R. Raghavendra, D. Harborne, M. Alzantot, F. Cerutti, M. Srivastava, A. Preece, S. Julier, R. M. Rao, T. D. Kelley, D. Braines, M. Sensoy, C. J. Willis, P. Gurram : "Interpretability of deep learning models: A survey of results", 2017 IEEE SmartWorld, Ubiquitous Intelligence & Computing, Advanced & Trusted Computing, Scalable Computing & Communications, Cloud & Big Data Computing, Internet of People and Smart City Innovation pp. 1-6 (2017)
- (2) H. Imaizumi, A. Watanabe, H. Hirano, M. Takemura, H. Kashiwagi, S. Monobe : "Hippocra: Doctor-to-Doctor TeleDermatology consultation service towards future AI-based Diagnosis System in Japan", 2017 IEEE International Conference on Consumer Electronics, pp. 51-52 (2017)
- (3) S. Duraisamy, S. Emperumal : "Computer-aided mammogram diagnosis system using deep learning convolutional fully complex-valued relaxation neural network classifier", IET Computer Vision, Vol. 11, No. 8, pp. 656-662 (2017)
- (4) R. Mahajan, D. Bansal : "Higher order statistics towards cardiac state diagnosis using neural network classifier", The Next Generation Information Technology Summit , pp. 103-109 (2013)
- (5) A. Patel, M. Joshi : "Heart diseases diagnosis using neural network", 2013 Fourth International Conference on Computing, Communications and Networking Technologies, pp. 1-5 (2013)
- (6) S. Kher, P. K. Chande, P. C. Sharma : "Automobile engine fault diagnosis using neural network", 2001 IEEE Intelligent Transportation Systems. Proceedings, pp. 492-495 (2001)
- (7) 小泉宣夫, 「基礎 音響・オーディオ学」, コロナ社 (2014)
- (8) 本庄巖, 「インピーダンスオージオメトリーの実際」, 医歯薬出版 (1983)
- (9) Sotaro Funasaka : "A new tympanometric system using sweep-frequency probe tones: description and clinical evaluation", Practica Oto-Rhino-Laryngologica, Vol.81, No.3, pp.313-320 (1988) (in Japanese)  
船坂宗太郎, 「耳小骨病変と連続周波数チンパノメトリー」, 耳鼻咽喉科臨床, Vol.81, No.3, pp.313-320 (1988)
- (10) K. Yamamoto and M. Mukai : "On a diagnostic method using neural networks for the lesion of the auditory ossicles", Proceedings of the Japan Joint Automatic Control Conference, Vol.60, (2017) (in Japanese)  
山本 圭太, 向井 正和 : 「ニューラルネットワークを用いた耳小骨病変の診断率向上に関する研究」, 第 60 回自動制御連合講演会 (2017)
- (11) ケルマンシヤヒバフマン, ニューラルネットワークの設計と応用, 昭晃堂 (1999)
- (12) Mathworks : "Neural Network Toolbox", <https://www.mathworks.com/products/neural-network.html> (2018.7 閲覧)
- (13) 岡本貴之, 深層学習, 講談社, (2016)  
(a) <https://www.vector.co.jp/soft/win95/business/se247204.html> (2018.12 閲覧)

## 【研究成果】

### ① 発表論文

Masataka Isowa, Masakazu Mukai, Yutaka Fukuoka, Taro Inagaki, A Study on Classification of Ossicles Lesions Using Neural Network based on

Tympanometric Data, *Artificial Life and Robotics*,  
(投稿準備中)

② 学会発表

岸祐樹, 向井正和, 低侵襲医療のための耳小骨病変  
の異常診断指標に関する一考察, 第6回医薬工3  
大学包括連携推進シンポジウム (2018)

山本圭太, 向井正和, ニューラルネットワークを用  
いた耳小骨病変の診断率向上に関する研究, 第  
60回自動制御連合講演会(2017)

向井正和, 稲垣太郎, 山崎貞郎, 鷹野一朗, 侵襲な  
く耳小骨病変を診断する新検査機器の開発—機  
械学習による診断率向上のアプローチ, 第6回  
医薬工3大学包括連携推進シンポジウム(2017)

③ 特許出願

なし





## 2. 総合研究所プロジェクト研究報告 (2019年度継続研究)



## 革新的金属基圧電複合材料の創製と特性設計手法構築

工学院大学 機械工学科 柳迫徹郎  
 工学院大学 機械工学科 久保木功  
 千葉大学 機械工学科 浅沼博  
 産業技術総合研究所 製造技術研究部門 佐藤宏司

### Fabrication of Innovative Metal-Based Piezoelectric Composite and Establishment of Its Characteristic Design Method

Tetsuro Yanaseko, Dept. of Mechanical Engineering  
 Isao Kuboki, Dept. of Mechanical Engineering  
 Hiroshi Asanuma, Dept. of Mechanical Engineering, Chiba Univ.  
 Hiroshi Sato, Advanced Manufacturing Process Institute, AIST

**ABSTRACT** : Piezoelectric ceramics are used widely as sensor and actuator materials due to its excellent mechanical-electrical energy conversion function. However, piezoelectric ceramic has poor mechanical properties such as fragility (fracture elongation of piezoelectric ceramics is almost less than 0.1%). In order to improve the mechanical properties of piezoelectric ceramics, authors developed surface oxidized nickel fiber/piezoelectric ceramics/aluminum composite. Surface oxide film of nickel fiber is worked as insulator between nickel fiber and aluminum matrix, also worked as barrier from reaction between nickel and piezoelectric ceramics during sintering the ceramics. To embed surface oxidized metal fiber and piezoelectric ceramics in aluminum matrix without losing functions, Interphase forming/bonding (IF/B) method was used. As a result, the surface oxidized nickel fiber and the piezoelectric ceramics can be embedded without fracture in aluminum matrix by using IF/B method. It is confirmed that output voltage was generated by applying impact to the fabricated composite, and it was confirmed that the piezoelectric ceramics and oxidized metal fiber were embedded without losing their function. And optimization of embedding conditions was performed.

#### 1. 諸言

圧電セラミックスはエネルギー変換材料として広く応用されている。しかし、脆性材料であるという問題を抱えており用途に制限がある。著者らはこの問題に対して、金属コア圧電ファイバ<sup>(1)</sup>を界面層形成・接合法<sup>(2)</sup>にてアルミニウム中に複合化し、機械的強度の大幅な向上に成功した<sup>(3)</sup>。しかし、出力電圧特性が圧電材料として用いる金属コア圧電ファイバの物性値および形状・寸法に依存し、用途に合わせた材料設計が不可能であることが

判明している<sup>(4)</sup>。

本研究では、上記の課題を解決するために、複合化する圧電セラミックスの形状に自由度のある、表面酸化金属繊維/圧電セラミックス/金属マトリックス複合材料 (Fig. 1) の創製を試みる。本圧電複合材料は、金属マトリックス、圧電セラミックスおよび内部電極となる表面酸化金属繊維から構成されており、要求特性に応じて各部の材料および寸法・形状を変更できる材料システムであり、上述のようにセンサ特性が任意に決定可能である。

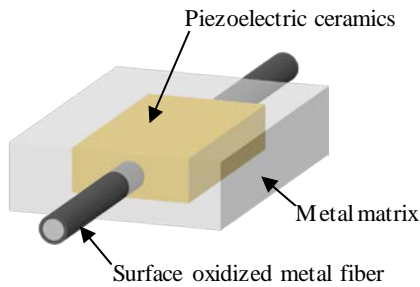


Fig. 1 Schematic of proposed innovative metal matrix piezoelectric composite.

また、上述の圧電セラミックスのぜい弱性を、機械的強度、信頼性に優れた金属材料中に圧電セラミックスを複合化することで、克服が可能である。

この圧電複合材料において、表面が酸化膜で覆われた金属繊維を内部電極として用いることが、提案する材料システムの最大の特徴となっている。従来の圧電複合材料の多くは、内部電極と外部電極となる金属マトリックスと絶縁が確保できず、高分子系マトリックスを採用することが多かったが、本研究では表面酸化膜を絶縁層として用いることにより問題を解決し、従来成し得なかった金属マトリックス、圧電セラミックス、表面酸化金属繊維の各々の材質、形状・寸法の選択性を実現する。また、内部電極は圧電セラミックス焼結時に高温にさらされ、電極材料と圧電セラミックスが反応し、圧電特性を低下させる化合物が生成される可能性がある。反応性の低い酸化膜を電極-圧電セラミックス間に設けることにより、この反応を防止する効果も期待できる (Fig. 2)。

本年度においては、提案した新規圧電複合材料の創製手法の確立を目的とし、表面に酸化膜を生成したニッケル繊維を内部電極として有する圧電セラミックスを作製し、作製した圧電セラミックスを界面層形成・接合法にてアルミニウム母材へ複合化を行った。また、圧力やインサート材の量を変化させることにより複合化条件の最適化を図った。

## 2. 実験方法

### 2.1 供試材

金属繊維として純ニッケル線 (直径: 0.5mm, 純度: 99.5%), 圧電セラミックスとしてチタン酸ジルコン酸鉛 ( $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ , PZT, 林化学工業製, MPT, 平均粒径: 0.4

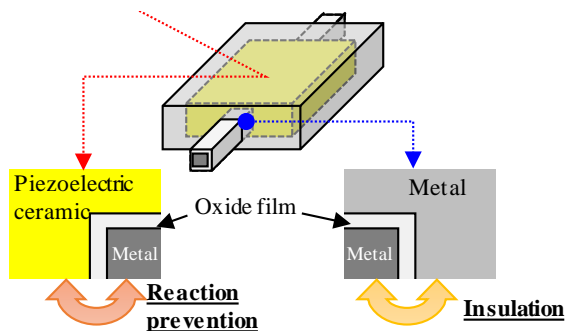


Fig. 2 Reaction prevention and insulation by oxide film.

$\mu\text{m}$ ), 金属マトリックスとして純アルミニウム板 (A1050P-O, 厚さ 0.8, 2.5 mm) および純銅箔 (純度: 99.90 % 以上, 厚さ 0.01 mm) をインサート材として用いた。また, PZT 粉はバインダー (ポリビニルアルコール水溶液, 1wt%) と重量比 1:1 で混合し, 室温で 48 h 乾燥させ, 粉碎した後ふるいにかけることで造粒を行った。

### 2.2 熱処理による金属繊維表面への酸化膜生成

内部電極として用いるニッケル繊維の表面に、熱処理により酸化膜を付与した。

ニッケル繊維を 40 mm に切断し、マッフル炉により大気中で熱処理し、酸化させた。保持時間は  $t_0 = 0.9, 1.8, 3.6, 7.2$  および 10.8 ks, 酸化温度は  $T_0 = 1073, 1173, 1273$  および 1373 K とした。酸化した金属繊維を長手方向中央で切断し、断面を走査型電子顕微鏡 (SEM) で観察することで、酸化条件が酸化膜の膜厚と構造に及ぼす影響を検討した。

### 2.3 内部電極を有する圧電セラミックスの作製

表面酸化金属繊維の周囲に PZT 粉を成形し、焼結することにより、内部電極を有する圧電セラミックスを作製した。この際に PZT の作製条件として成形圧力、焼結温度および保持時間が挙げられるが、焼結温度、保持時間に関しては材料メーカー推奨値で焼結を行い、成形圧力の検討を行った。

造粒した PZT 粉を金型に投入し、成形圧力  $P$  を 20 から 90 MPa まで 10 MPa 毎に変化させ、保持時間 60 s にて一軸成型を行った。その後、金型内に表面酸化膜金属繊維を設置し、PZT 粉を投入し、再度同条件にて一軸成型を行うことで圧粉体を作製し、得られた圧粉体をマッフル炉にて大気中で焼結した。焼結の条件は焼結温度  $T_s = 1323$  K, 保持時間  $t_s = 7.2$  ks とした。焼結後、焼結体の密度およびビッカース硬度を計測することにより評価を行った。

### 2.4 焼結体のアルミニウム中への複合化

Fig. 3 に示すように、焼結体および金属繊維を配置するためのくぼみと U 溝を、アルミニウム板 (厚さ 2.5 mm) を切削することで形成した。このくぼみの底部に銅箔を設置し、その上に焼結体および金属繊維を設置した。これらの上に、インサート材の銅箔および厚さ 0.8 mm のアルミニウム板を被せ、ホットプレス機により複合化した。ホットプレスの条件は、温度 873 K, 圧力 2.2 MPa, 保持時間 2.4 ks および真空度 100 Pa とした。

複合化後、母材外部に突出している金属繊維の表面酸化部を耐水研磨紙 (#220) で除去し、導通を確保した。この金属繊維と母材に電圧 300 V, 保持時間 1.8 ks の直流電圧を印加することで圧電セラミックスの分極処理を行った。

分極処理後、落錘試験により本複合材料の圧電セラミックスがセンサとして機能するかを確認した。作製した複合材料をバイスで固定し、鋼球 (直径 9.8 mm, 質量 3.5 g) を高さ 150 mm から落下させることで衝撃を印加し、その際の信号をオシロスコープにより計測した (Fig. 4)。

加えて、作製した試料を金属繊維と直角に切断し、断面を SEM にて観察することで材料組織の評価を行った。

### 2.5 複合化条件の最適化

複合化条件を最適化させるため、インサート材の量および

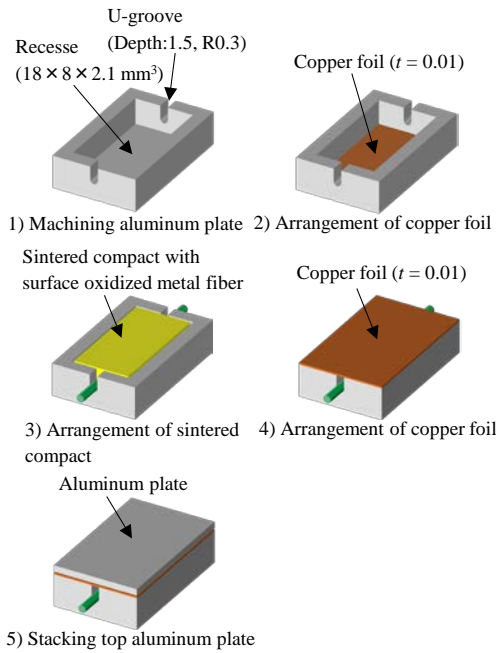


Fig. 3 Arrangement of aluminum plate, sintered compact and copper foil.

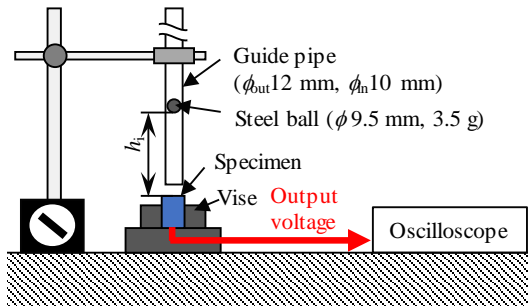


Fig. 4 Schematic of the impact test system.

圧力を変化させた。まず、インサート材の量は銅箔の厚さ  $T_1$  を 20 および 50  $\mu\text{m}$  とし、圧力を 2.2 および 4.4 MPa と変化させた。温度は 933K、保持時間 2.4 ks で N<sub>2</sub> 雰囲気において複合化を行った。なお、作製した内部電極を有する圧電セラミックスは 2 mm×2 mm の断面形状になるように切断および研磨を行ったものを複合化している。加えて、作製した試料を金属繊維に直角および水平に切断し、内部組織を SEM で観察することで評価を行った。

上記実験の結果を受けて、インサート材の量および挿入箇所を決定後、圧力を 2.2, 4.4, 6.6 および 8.8 MPa に変化させ複合化圧力の最適化を図った。評価方法は上記と同様に SEM 観察である。

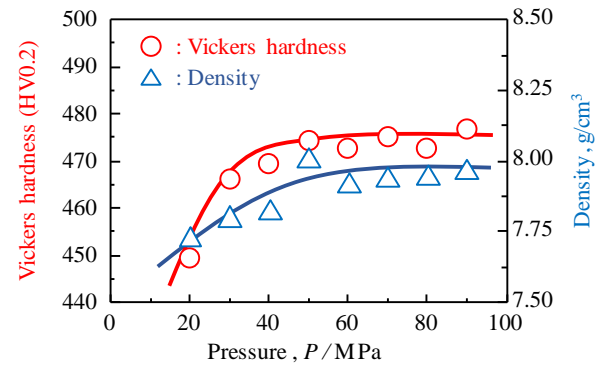


Fig. 7 Effect of pressure on Vickers hardness and density of sintered compact.

### 3. 結果および考察

#### 3. 1 熱処理による金属繊維表面への酸化膜生成

Fig. 5 に  $T_0 = 1373 \text{ K}$ ,  $t_0 = 10.8 \text{ ks}$  の条件で酸化膜を生成したニッケル繊維の SEM 像を示し、Fig. 6 に生じた酸化膜の厚さと各熱処理条件との関係を示す、Fig. 6 より各熱処理温度において膜厚が熱処理時間の平方根と線形であることが分かる。また、同図の各温度における傾きを拡散係数とし、アレニウスプロットにより、必要な膜厚を得る酸化条件の予測ができることが確認された。この結果から、内部電極に用いるための熱処理条件は膜厚が 10  $\mu\text{m}$  以

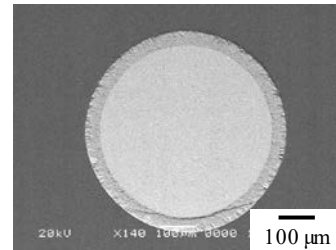


Fig. 5 Cross section of surface oxidized nickel fiber ( $T=1373 \text{ K}$ ,  $t=10.8 \text{ ks}$ )

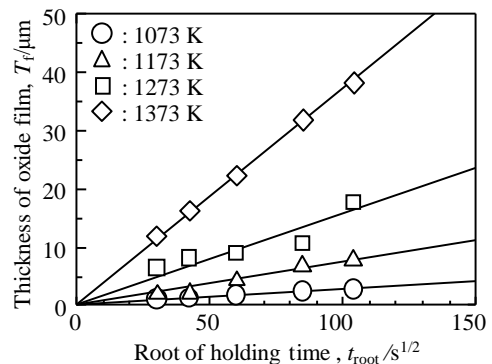


Fig. 6 Effect of root of holding time on thickness of oxide film of nickel fiber.

上得られる  $t_0 = 3.6 \text{ ks}$ ,  $T_0 = 1273 \text{ K}$  を選定し、以降の試料作製にはこの酸化条件により酸化膜を付与した金属繊維を使用した。

#### 3. 2 内部電極を有する圧電セラミックスの作製

Fig. 7 に成形圧力が焼結体のビッカース硬さおよび密度



に及ぼす影響を示す。同図から 50 MPa 以上において、ビッカース硬さおよび密度共にほぼ変化しないことが分かる。これは 50 MPa で粉体の充填密度が最大になり、50 MPa 以上に圧力を向上させても充填密度が向上しなかったためと考えられる。このことから成形圧力は 50 MPa が最適と判断した。この条件で作製された内部電極を有する圧電セラミックスの外観を Fig. 8 に示す。同図より圧電セラミックスの外径が鼓状になっていることが分かる。この鼓状変形は焼結および冷却時の圧電セラミックスとニッケル繊維の熱膨張係数の差に起因するものと考えられるため、冷却速度の低減により変形の縮小が期待できる。

### 3. 3 焼結体のアルミニウム中への複合化

Fig. 9 に作製した表面酸化ニッケル繊維/PZT/アルミニウム複合材料の外観を示す。概観を確認した結果、ニッケル繊維および酸化被膜が破断することなく複合化されていることが確認できた。Fig. 10 に落錘試験による複合材料から得られた出力電圧の波形を示す。同図から、圧電セラミックスの機能を損なうことなくアルミニウム中へ複合化することに成功していることが確認された。しかしながら出力電圧は Peak to Peak で約 5 mV と圧電材料を用いたセンサとしては極めて低い値であった。これは、金属酸化膜の誘電率が圧電セラミックスと比較して極めて低いことにより、分極時に印加された電界が圧電セラミックスに有効に負荷されなかったためと考えられる。このため、分極条件に加え、酸化膜および圧電セラミックスの厚さの最適化が必要である。また、SEM による断面観察結果を Fig. 11 に示す。Fig. 11(a)はニッケル繊維とアルミニウムが直接接触している箇所の断面であり、(b)は PZT とアルミニウムが接触している部位である。この図から、酸化膜が破壊されずに複合化されていること、

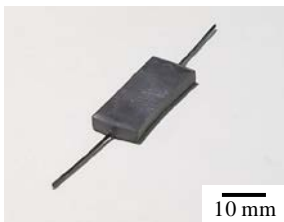


Fig. 8 Sintered compact with surface oxidized nickel fiber.

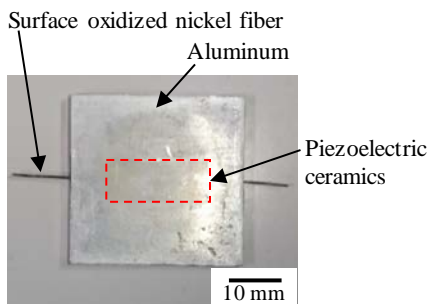


Fig. 9 General appearance of surface oxidized nickel fiber/piezoelectric ceramics/aluminum composite.

PZT と酸化膜で反応物が生成されていないことおよび

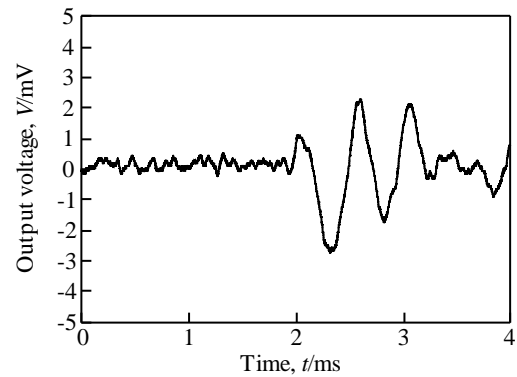
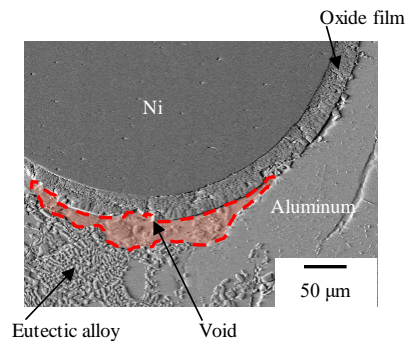
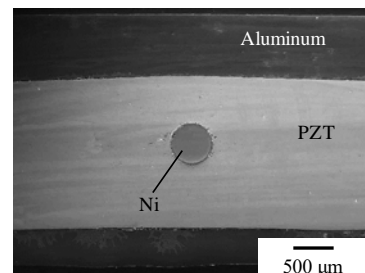


Fig. 10 Waveform of output voltage from the fabricated composite.



(a) Cross section of the composite where oxide film touch to aluminum



(b) Cross section of the center of the composite

Fig. 11 Cross sections of fabricated composite.

PZT とアルミニウムが反応することなく、また PZT に破壊が生じずにアルミニウム中に複合化できていることが確認できた。しかしながら、Fig. 11(a)において、銅-アルミニウム共晶合金の残留や酸化膜とアルミニウム間にボイドが存在していることが確認できる。これらの存在は、機械的特性を低下させる要因となるのみならず、マトリックス-圧電セラミックス間の応力伝達を阻害することによる出力電圧低下の要因ともなるため、できるだけ低減することが望ましい。

### 3. 4 複合化条件の最適化

Fig. 12 にインサート材の厚さおよび圧力を変化させた際の試料断面観察結果を示す。全条件において、共晶合金の残留がみられ、U 溝部を十分共晶合金で充填していることが確認された。特に圧電セラミックス下部、および金属繊維周辺に残留が多くみられ、 $P = 4.4 \text{ MPa}$ ,  $T_1 = 50 \text{ μm}$  では過剰な共晶合金の排出により、圧電セラミックス下部のマトリックスが破損していることが確認された。このことから、インサート材を圧電セラミックス下部へ

の挿入は適切ではないこと、 $20\ \mu\text{m}$  のインサート材の量でも十分に重点が可能であることから、 $T_1 = 20\ \mu\text{m}$  を最適な挿入量とし、挿入箇所は圧電セラミックス上部のみが適正と判断した。なお、金属繊維周辺においてみられるき裂、空隙等は圧電セラミックス焼結時において生じたものであり、複合化により生じたものではないため、複合化圧力は適正範囲内であったと考えられる。加えて、圧電セラミックスの形状が安定していないのは手作業による研磨にて加工を行っていたためで、機械加工に置き換えることにより改善可能である。

拡大されたものと考えられる。この塑性流動の大きさは画像における複合材料の厚さ減少に見て取れる。 $P = 8.8\ \text{MPa}$  においては、どちらの画像においても良好な組織が得られたが、試料中央部付近で圧電セラミックスおよび金属繊維の破断が確認された (Fig. 14)。これは圧力過剰によるマトリックスの大きな塑性流動に伴う変形に、圧電セラミックスおよび金属繊維が耐えられなかったと考えられる。以上の結果から、本実験範囲において、 $T_1 = 20\ \mu\text{m}$ 、 $P = 4.4\ \text{MPa}$  が最適な複合化条件であることが判明した。

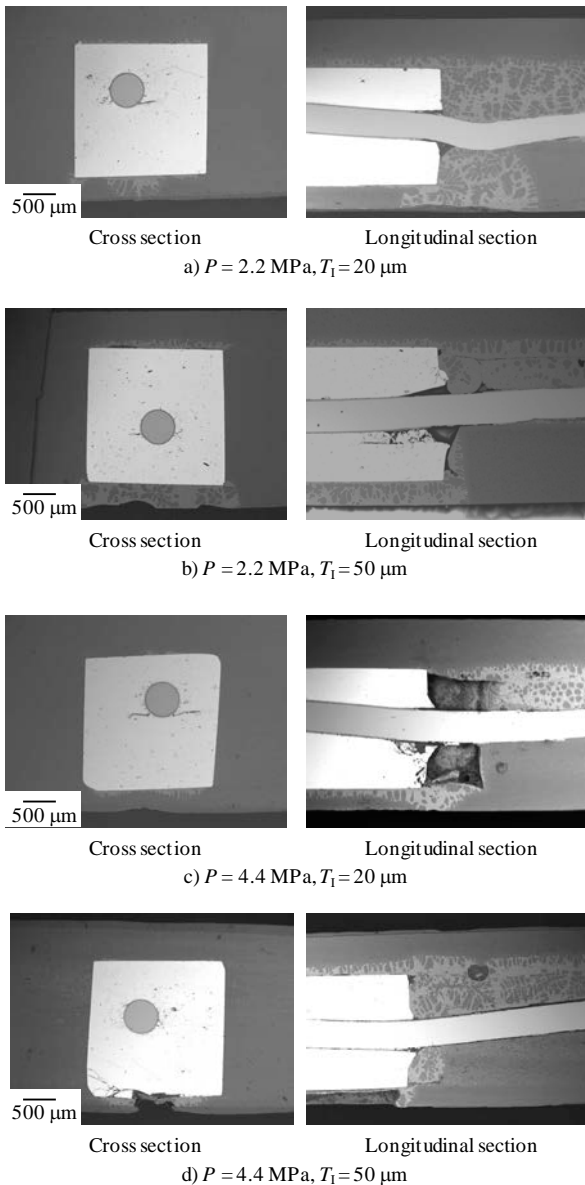


Fig. 12 Cross and longitudinal section of specimens; a)  $P = 2.2\ \text{MPa}$ ,  $T_1 = 20\ \mu\text{m}$ , b)  $P = 2.2\ \text{MPa}$ ,  $T_1 = 50\ \mu\text{m}$ , c)  $P = 4.4\ \text{MPa}$ ,  $T_1 = 20\ \mu\text{m}$ , d)  $P = 4.4\ \text{MPa}$ ,  $T_1 = 50\ \mu\text{m}$ .

上記結果を受け、複合化圧力を変化させた際の試料断面結果を Fig. 13 に示す。これら横断面観察画像から、圧力が向上により共晶合金の排出が促され、良好な組織が得られることが確認された。反面、縦断面観察画像の  $P = 4.4$  および  $6.6\ \text{MPa}$  の結果を比較すると、 $6.6\ \text{MPa}$  における空隙が大きいことが確認できる。これは、高温でのプレスによる過剰なマトリックスの塑性流動により空隙が

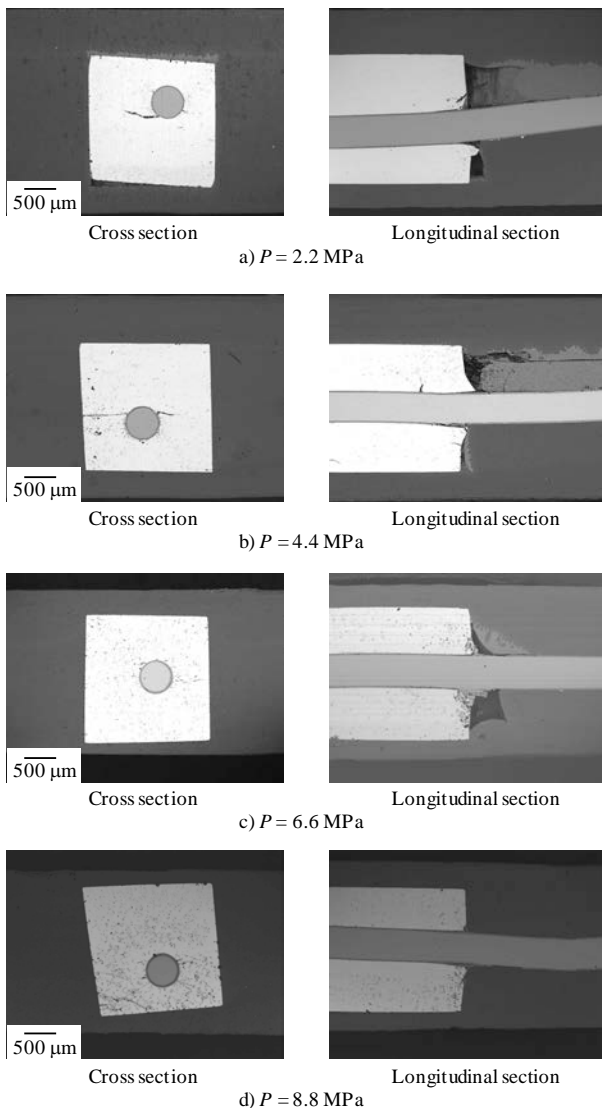


Fig. 13 Cross and longitudinal section of specimens fabricated under various pressure.

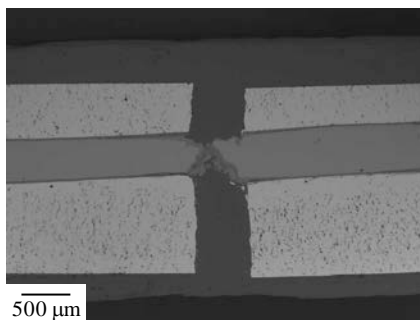


Fig. 14 Fracture part of piezoelectric ceramics and metal fiber of specimen ( $P = 8.8$  MPa).

#### 4. 結言

新たな金属基圧電複合材料として、複合化する圧電セラミックスの形状に自由度のある、表面酸化金属繊維／圧電セラミックス／金属マトリックス複合材料を提案しその創製を試みた。

結果として、下記の知見が得られた。

1) 絶縁層および反応防止の役割を持つ金属酸化膜は、金

属繊維を大気中で熱処理することで容易に得ることができる。また、生成される酸化膜の厚さは熱処理時間の平方根に比例するという放物線則に従うことが判明し、このことを利用することで任意の厚さの酸化膜を得ることができることが判明した。

2) 圧電セラミックスの焼結において、一軸成型時の圧力が 50 MPa が最適であることが分かった。また金属繊維と圧電セラミックスの熱膨張係数の差から焼結体が鼓状に変形することが判明した。

3) 界面層形成接合法を用いることで金属酸化膜および圧電セラミックスの機能を損なうことなくアルミニウム中へ複合化することに成功した。

4) 圧力およびインサート材の量などの複合化条件を最適化することで、共晶合金の残留やボイドなどを減少させ、材料組織が良好な試料を得ることができた。

#### 参考文献

- (1) 佐藤宏司, 下条善朗, 関谷忠, “チタン酸ジルコン酸鉛ファイバ, チタン酸ジルコン酸鉛ファイバを用いたスマートボードならびにスマートボードを利用したアクチュエータおよびセンサ”, 特許第 3968430 号.
- (2) Asanuma, H., “Development of metal-based smart composites,” JOM, Vol. 52, No. 10(2000), pp. 21-25.
- (3) 浅沼博, 武田直浩, 千葉高充, 佐藤宏司, “金属コア圧電ファイバ/アルミニウム複合材料の創製”, 日本機械学会第 14 回機械材料・材料加工技術講演会講演論文集, (2006), pp. 21-22.
- (4) Yanaseko, T., Asanuma, H., Sato, H., “Output Voltage Characteristics of Piezoelectric Fiber/Aluminum Composites Fabricated by Interphase Forming/Bonding Method,” Trans. Mat. Res. Soc. Japan, Vol. 39, No. 3(2014), pp. 325-329.

# 均質化とトポロジー最適化を援用した 多孔質吸音材微視構造設計法の構築

工学院大学 工学部 機械工学科 山本 崇史<sup>1)</sup>

京都大学大学院 工学研究科 機械理工学専攻 西脇 眞二<sup>2)</sup>

Optimization of microstructure of sound-absorbing poroelastic material  
by homogenization method and topology optimization method

Takashi Yamamoto, Department of Mechanical Engineering, Kogakuin University

Shinji Nishiwaki, Graduate School of Engineering, Kyoto University

**ABSTRACT:** Two optimization methods to design micro structures of sound-absorbing poroelastic media based on the homogenization method by an asymptotic expansion are proposed in this study. One is a parametric optimization method utilizing Biot's model. In this method, Biot's parameters are first identified for various micro structure of sound-absorbing material by using homogenization method and the linkage between Biot's parameters and the parameters of micro structures such as pore radius, fiber diameter and pore radius of cell membranes is derived. Then, the parameters of poroelastic materials are optimized by using transfer matrix method and genetic algorithm to maximize sound absorption coefficient at prescribed target frequency range. The other is a topology optimization method based on the density approach. In this method, the topology of a micro structure of acoustic poroelastic material is directly optimized. Design variables to describe material distributions are defined at nodes in a prescribed design domain, and are optimized to have values 0 or 1. Here, the design sensitivities that are inevitably important for the topology optimization method are derived by using the adjoint variable method.

## 1. はじめに

自動車などの輸送機器や建物など室内における静粛性の向上は、快適性を高める重要な要素であり、その代表的な方策の一つとして、多孔質吸音材が多用されている。多孔質吸音材の性能を示す代表的な特性は吸音率であり、その予測は多孔質吸音材の設計に欠かすことができない。

一般的に、基材となる固体相と、数  $\mu\text{m}$  から数百  $\mu\text{m}$  の径の流路からなる流体相が混在した構造をしており、吸音特性は微視構造に依存することが知られている。吸

音率を予測するために、これまでに適用されてきたモデルの一つは、Delany と Bazley<sup>(1)</sup> による経験則に基づいたモデルであり、必要となるパラメータは空気流れ抵抗のみである。しかし、流体相しか考慮されておらず、さらに流体相の体積分率が 100% に近い繊維系の吸音材に適用は限定される。また、Biot<sup>(2, 3)</sup>, Allard<sup>(4)</sup>, Atalla<sup>(5)</sup> によるモデル (Biot's model) も近年広く適用されている。このモデルは、固体相と流体相の両方の特性を考慮しており、弾性定数や空気流れ抵抗など 8 つのパラメータで表現されている。パラメータはマクロスケールで定義されており、多孔質吸音材の微視構造と直接関係付けることはできない。ただ、これらのパラメータの値が得られていれば、吸音率や透過損失などの音響的性能を比較的少ない計算コストで求めることができる。

1) 工学院大学 工学部 機械工学科

(〒192-0015 東京都八王子市中野町 2665-1)

2) 京都大学大学院 工学研究科 機械理工学専攻

(〒615-8540 京都市西京区京都大学桂 C3 棟)

一方、多孔質体の微視構造からマクロスケールにおける特性や支配方程式を導出することを目的とした研究がこれまでにいくつか報告されている<sup>(6)(7)(8)(9)</sup>。多くの研究は多孔質吸音材における物理現象の一部を扱ったものになっており、そのまま多孔質吸音材に適用することはできない。著者は従来の均質化法を多孔質吸音材に適用できるよう拡張し、微視構造から吸音率を直接計算する方法を提案している。本手法により、微視的なユニットセルモデルからマクロ特性を算出し、そのマクロ特性を用いて吸音率などの性能を予測することができる。しかし、多孔質吸音材の微視構造を直接設計することは可能となるものの、計算負荷が大きく、多様な微視構造を検討することは容易ではない。

そこで、本研究では、均質化法により求めたマクロ特性から Biot パラメータを同定し、Biot パラメータと空隙径、繊維径や繊維間距離などの微視構造を特徴づける寸法パラメータと関連付ける。また、それを用いて微視構造の最適設計を行う手法を提案する。

以下、2 章では本研究で提案する多孔質吸音材の微視構造の最適設計法の概略を説明し、3, 4, 5 章ではそのベースとなる多孔質吸音材の均質化について概説する。6 章では均質化法による計算から得られるマクロ特性より Biot パラメータを同定する方法について述べ、7 章では発泡系吸音材を Kelvin セルでモデル化して適用する。8 章では既存の微視構造には依存しない最適設計を行う手法として、トポロジー最適化を適用することを検討する。最後に本研究のまとめと今後の課題について述べる。

## 2. 提案する最適設計法

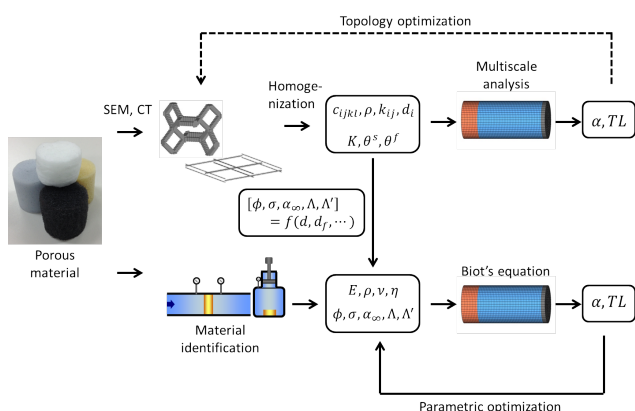


Fig.1 Process to design sound-absorbing poroelastic materials.

多孔質吸音材の吸音率や透過損失などの音響的性能を予測する手法として、現在、図に示すような 2 つの方法がある。一つは、Biot のパラメータを実験的に同定し、Biot のモデルを用いる方法である。もう一つは、SEM や X 線 CT などから得られた情報をもとに微視構造モデルを構築し、均質化法を用いる方法である。前者の方法では、微視構造を扱うことはできないが、Biot パラメータの値が得られれば、吸音率や透過損失などの音響的性能を比較的少ない計算コストで効率よく求めることができる。後者の方法では、微視構造を直接扱うことができるが、マクロ特性を算出する計算の負荷が大きく、多くの微視構造を検討することは容易ではない。

そこで、図に示すように、微視構造を取り扱うことのできる均質化法と、効率よく吸音率などの音響的性能を算出することのできる Biot のモデルを併用し、多孔質吸音材の微視構造をパラメトリックに最適化する手法を提案する。すなわち、多孔質吸音材の微視構造に対して空隙径などをパラメータにしたモデルを複数作成し、それらに均質化法を用いて流体相の等価密度などのマクロ特性を算出する。次に、Biot のモデルにおいて、得られたマクロ特性と一致するように Biot のパラメータを同定し、微視構造パラメータと Biot のパラメータを関連付ける。これにより微視構造のパラメータを変更した場合でも、容易に吸音率などの音響的性能算出することのできる。そして、ここでは遺伝的アルゴリズムを用い、吸音率が最大となる微視構造のパラメータを求める。

## 3. 多孔質吸音材の均質化

本研究で適用する多孔質吸音材に適用可能な均質化法について概略を説明する。詳細は文献<sup>(10)</sup>を参照いただきたい。

図 2 に示すように周期的な微視構造を有する多孔質吸音材を考える。ミクロスケールにおける支配方程式について、まず、固体相は線形弾性体の平衡式・構成式・変位-ひずみ関係式とし、流体相の流れ場は微小変位を仮定し線形化した Navier-Stokes の方程式とする。また、流体相の温度場は、熱力学の第一法則とし、固体相の比熱が流体相の比熱に比して十分大きく、平衡状態での温度を保持すると仮定すると、流体相のみに適用すればよい。質量保存則および状態方程式も支配方程式として考慮し、また、固体相と流体相の境界において速度、垂直応力および温度が連続であるという境界条件を課している。

漸近展開をした解を仮定し、ミクロスケールにおける

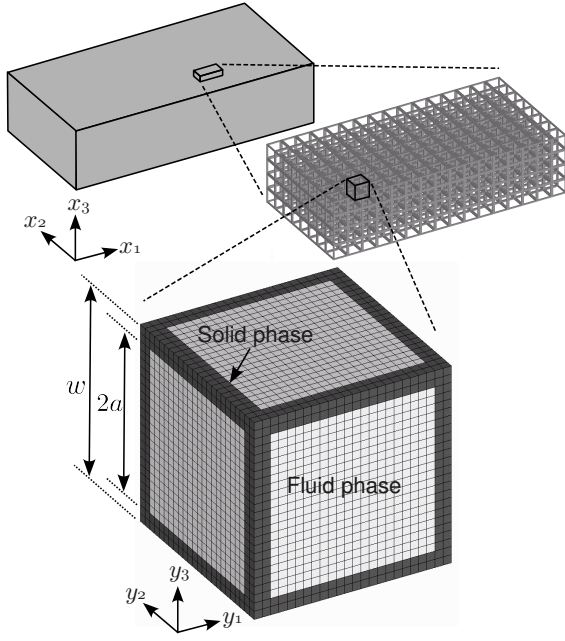


Fig.2 Schematic view of homogenization of sound-absorbing poroelastic material.

一連の支配方程式に代入すると、ミクロスケールにおける境界値問題を求めることができる。これを解いて得られた解を体積平均することでマクロスケールにおける特性を得ることができる。また、ミクロスケールにおける支配方程式を平均化することで、マクロスケールにおける固体相および流体相の支配方程式をそれぞれ導出することができる。これを解くことで吸音率などのマクロスケールにおける応答を求めることができる。

#### 4. ミクロスケールにおける基礎支配方程式

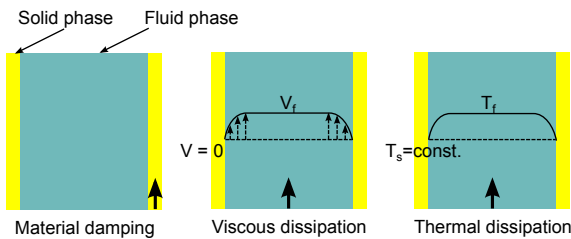


Fig.3 Dissipation mechanism in poroelastic material.

多孔質吸音材のミクロスケールにおける支配方程式について説明する。固体相は等方性の線形弾性体、流体相は圧縮性の粘性係数  $\mu^f$  の粘性流体で構成され、流体相は全て連結しているものとする。固体相の支配方程式は弾

性テンソルを  $c_{ijkl}^s$  とすると、以下に示す式で表される。

$$-\rho^s \omega^2 u_i^s = \frac{\partial \sigma_{ij}^s}{\partial x_j}, \quad (1)$$

$$\sigma_{ij}^s = c_{ijkl}^s \varepsilon_{kl}^s, \quad (2)$$

$$\varepsilon_{kl}^s = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_k^s}{\partial x_l} + \frac{\partial u_l^s}{\partial x_k} \right). \quad (3)$$

流体相の速度を  $v_i^f$ 、質量密度を  $\delta^f$ 、温度を  $\tau^f$  とすると、流体相に関する質量保存則および状態方程式はそれぞれ

$$\rho^f \frac{\partial v_i^f}{\partial x_i} + j\omega \delta^f = 0, \quad (4)$$

$$\frac{p^f}{P^f} = \frac{\delta^f}{\rho^f} + \frac{\tau^f}{T^f}. \quad (5)$$

流体相の流れ場に関する支配方程式は微小振幅であることを考慮すると、線形化された Navier-Stokes の方程式で表される

$$\rho^f j\omega v_i^f = \frac{\partial \sigma_{ij}^f}{\partial x_j}, \quad (6)$$

$$\sigma_{ij}^f = -p^f \delta_{ij} + 2\mu^f \dot{\varepsilon}_{ij}^f - \frac{2}{3}\mu^f \delta_{ij} \dot{\varepsilon}_{kk}^f, \quad (7)$$

$$\dot{\varepsilon}_{ij}^f = \frac{1}{2} \left( \frac{\partial v_i^f}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j^f}{\partial x_i} \right). \quad (8)$$

固体相の比熱は流体相の比熱に比して十分大きく、平衡状態での温度  $T_0$  を維持すると仮定すると、温度場は流体相のみを考慮すればよく、支配方程式は熱力学の第一法則より次式のように表すことができる。

$$-\frac{\partial q_i^f}{\partial x_i} = j\omega \rho^f C_v^f \tau^f + (j\omega \rho^f R \tau^f - j\omega p^f), \quad (9)$$

$$q_i^f = -\kappa_{ij}^f \frac{\partial \tau^f}{\partial x_j}. \quad (10)$$

ここで、 $C_v^f$  は定積比熱、 $R$  は気体定数、 $q_i^f$  は熱流速、 $\kappa_{ij}^f$  は熱伝導率である。固体相と流体相の境界  $\Gamma^{sf}$  における境界条件は、速度、境界垂直方向の応力、および温度の連続性から、以下の式で与えられる。

$$j\omega u_i^s = v_i^f, \quad (11)$$

$$\sigma_{ij}^s n_j^s + \sigma_{ij}^f n_j^f = 0, \quad (12)$$

$$\tau^f = 0. \quad (13)$$

ここで、 $n_i^s$ 、 $n_i^f$  はそれぞれ、 $\Gamma^{sf}$  に立てた固体相、流体相の領域外向きの単位法線ベクトルである。



## 5. 漸近展開法に基づく吸音材の均質化

### 5.1 漸近展開

微視構造は周期的であると仮定し、その単位領域（ユニットセル）を  $Y$ 、ユニットセルの大きさを  $l$  とする。マクロスケールの代表長さ  $L$  は多孔質体における波長の長さとし、ミクロスケールとマクロスケールの代表長さの比を  $\epsilon = l/L$  とする。また、マクロスケールにおける空間変数を  $\mathbf{x}$ 、ミクロスケールにおける空間変数を  $\mathbf{y} = \mathbf{x}/\epsilon$  ( $\epsilon \ll 1$ ) とする。

Gilbert ら<sup>(11)</sup> や Clopeau ら<sup>(12)</sup> が two-scale 収束論を適用し数学的に明らかにしているように、多孔質体の問題においても漸近展開形の解が成り立つ。ここでは、状態量  $u_i^s$ ,  $v_i^f$ ,  $p^f$ ,  $\tau^f$ ,  $\delta^f$  に対して、次式のような漸近展開形の解<sup>(13)</sup> を仮定する。

$$u_i^s = u_i^{s(0)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon u_i^{s(1)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon^2 u_i^{s(2)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \dots \quad (14)$$

$$v_i^f = v_i^{f(0)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon v_i^{f(1)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon^2 v_i^{f(2)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \dots \quad (15)$$

$$p^f = p^{f(0)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon p^{f(1)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon^2 p^{f(2)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \dots \quad (16)$$

$$\tau^f = \tau^{f(0)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon \tau^{f(1)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon^2 \tau^{f(2)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \dots \quad (17)$$

$$\delta^f = \delta^{f(0)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon \delta^{f(1)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \epsilon^2 \delta^{f(2)}(\mathbf{x}, \mathbf{y}) + \dots \quad (18)$$

ここで、右辺における全ての項は  $\mathbf{y}$  について周期的（ $Y$ -periodic）である。

### 5.2 境界値問題

固体相の  $\epsilon^{-1}$  のオーダーの関係式に Galerkin 法を適用すると以下に示す式を導出することができる。

$$\int_Y \left( c_{ijkl}^s - c_{ijpq}^s \frac{\partial \chi_p^{kl}(\mathbf{y})}{\partial y_q} \right) \frac{\partial \delta u_i^s}{\partial y_j} dY = 0, \quad (19)$$

$Y$ -periodic な特性関数  $\chi_i^{kl}(\mathbf{y})$  は、剛体変位を除くため  $\int_Y \chi_i^{kl}(\mathbf{y}) dY = 0$  の条件を付加して上式を解くことで求めることができる。

$\epsilon^0$  のオーダーにおける流体相の固体相に対する相対速度  $w_i^{f(0)} = v_i^{f(0)} - j\omega u_i^{s(0)}$  を考え、 $v_i^{f(0)}$  を  $w^{f(0)} + j\omega u_i^{s(0)}$  で置き換える。 $\epsilon^{-1}$  のオーダーの関係式より流体相の流れ場に関して、次のミクロスケールにおける境

界値問題を得ることができる。

$$\begin{aligned} & \int_Y \rho^f j\omega \xi_i^k(\mathbf{y}) \delta w_i^f dY + \int_Y \mu^f \frac{\partial \xi_i^k(\mathbf{y})}{\partial y_j} \frac{\partial \delta w_i^f}{\partial y_j} dY \\ & + \int_Y \frac{1}{3} \mu^f \frac{\partial \xi_i^k(\mathbf{y})}{\partial y_i} \frac{\partial \delta w_i^f}{\partial y_i} dY - \int_Y \frac{\partial \xi_i^k(\mathbf{y})}{\partial y_i} \delta p^f dY \\ & - \int_Y \frac{\partial \delta w_i^f}{\partial y_i} \pi^k(\mathbf{y}) dY = \int_Y \delta \xi_k^k(\mathbf{y}) dY \quad (20) \end{aligned}$$

ここで  $\xi_i^k(\mathbf{y})$  および  $\pi^k(\mathbf{y})$  はそれぞれ相対速度、圧力に関する  $Y$ -periodic な特性関数である。なお、 $\Gamma^{sf}$  において  $\xi_i^k(\mathbf{y}) = 0$  である。一定圧力の成分を除くため  $\int_Y \pi^k(\mathbf{y}) dY = 0$  の条件を付加して解くことで  $\xi_i^k(\mathbf{y})$  および  $\pi^k(\mathbf{y})$  を求めることができる。

$\epsilon^0$  のオーダーにおける流体相の温度  $\tau^{f(0)}$  についての関係式より、次の境界値問題を得ることができる。

$$\begin{aligned} & \int_Y \frac{1}{j\omega \rho^f C_p^f} \kappa_{ij}^f \frac{\partial \zeta(\mathbf{y})}{\partial y_j} \frac{\partial \delta \tau^f}{\partial y_i} dY \\ & + \int_Y \zeta(\mathbf{y}) \delta \tau^f dY = \int_Y \delta \tau^f dY, \quad (21) \end{aligned}$$

ここで  $\zeta(\mathbf{y})$  は温度に関する  $Y$ -periodic な特性関数であり、 $\Gamma^{sf}$  において等温条件  $\zeta(\mathbf{y}) = 0$  をみたす。

### 5.3 均質化特性

境界値問題を解き得られた特性関数  $\chi_i^{kl}(\mathbf{y})$  をユニットセル  $Y$  において体積平均をとることで、固体相の均質化された弾性テンソル  $\langle c_{ijkl}^s \rangle$  は Terada ら<sup>(14)</sup> と同様、次式により求めることができる。

$$\langle c_{ijkl}^s \rangle = \frac{1}{|Y|} \int_Y \left[ c_{ijkl}^s - c_{ijpq}^s \frac{\partial \chi_p^{kl}(\mathbf{y})}{\partial y_q} \right] dY, \quad (22)$$

ここで、 $|Y|$  は多孔質体のユニットセル  $Y$  の体積、 $\langle \rangle$  は  $Y$  における体積平均を表している。

また、ユニットセル中の流体相  $Y^f$  において  $\xi_i^k(\mathbf{y})$  の体積平均をとると、流体相の等価密度  $\rho_{ki}^{fc}$  を求めることができる。

$$\rho_{ki}^{fc} = \frac{1}{j\omega} \langle \xi_i^k(\mathbf{y}) \rangle_{Y^f}^{-1}, \quad (23)$$

ただし、 $|Y^f|$  をユニットセル中の流体相  $Y^f$  の体積、 $\langle \rangle_{Y^f}$  は  $Y^f$  における体積平均である。

流体相の等価体積弾性率  $K^f$  はユニットセル中の流体相  $Y^f$  において  $\zeta(\mathbf{y})$  の体積平均をとることで

$$K^f = \frac{\gamma^f P^f}{\gamma^f - (\gamma^f - 1) \langle \zeta(\mathbf{y}) \rangle_{Y^f}}. \quad (24)$$

と求めることができる。

#### 5.4 マクロスケールの支配方程式

均質化特性を用いて、マクロスケールにおける固体相および流体相の支配方程式をそれぞれ導出することができる。導出の詳細は文献(?, ?, 10)を参照されたい。ここでは結果のみを示す。固体相の支配方程式は次式となる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{\sigma}_{ij}^{s(0)}}{\partial x_j} + \bar{\rho} \omega^2 u_i^{s(0)} - \rho_0^f \omega^2 d_i^k u_k^{s(0)} - j\omega d_i^k \frac{\partial \psi^{f(0)}}{\partial x_k} \\ + j\omega \phi \frac{\partial \psi^{f(0)}}{\partial x_i} + j\omega k_{ij}^H \frac{\partial \psi^{f(0)}}{\partial x_j} = 0 \quad (25) \end{aligned}$$

また、流体相の支配方程式は以下のようになる。

$$\begin{aligned} \frac{d_i^k}{\rho_0^f} \frac{\partial^2 \psi^{f(0)}}{\partial x_k \partial x_i} + \omega^2 \left( \theta^f + \frac{\phi}{K^f} \right) \psi^{f(0)} - j\omega d_i^k \frac{\partial u_k^{s(0)}}{\partial x_i} \\ + j\omega \phi \frac{\partial u_i^{s(0)}}{\partial x_i} + j\omega \theta^{s,pq} \varepsilon_{pq}^{s(0)} = 0 \quad (26) \end{aligned}$$

ここで、 $\psi^{f(0)}$  は  $p^{f(0)} = -j\omega \psi^{f(0)}$  と定義されるポテンシャル関数、 $\hat{\sigma}_{ij}^{s(0)}$  は流体相との連成を考慮しない場合の固体相の応力、 $\phi$  はポロシティ、 $\bar{\rho}$  は多孔質体の平均質量密度で  $(1-\phi)\rho^s + \phi\rho_0^f$  である。また、 $c_{ijkl}^H$ 、 $k_{ij}^H$ 、 $\theta^{s,pq}$  は固体相の均質化特性、 $\theta^f$ 、 $K^f$ 、 $d_i^k$  は流体相の均質化特性である。

計算手順としては、まずユニットセルを対象にミクロスケールにおける計算を行い固体相の変位、流体相の速度および温度を求める。次に、それらをユニットセル内で平均化して上述した6つの均質化特性を算出する。最後に、マクロスケールにおける支配方程式を用いて、音響管を模擬したモデルで計算を行い、垂直入射吸音率を求める。

## 6. Biot パラメータの同定

均質化法による計算から得られたマクロ特性より、Biot パラメータを同定する手法について述べる。

### 6.1 弾性率、ポアソン比および質量密度

Biot のモデルでは、固体相は等方性の線形弾性体として扱う。ここでは、均質化法による計算から得られた均質化弾性テンソル  $c_{ijkl}^H$  を用いて、等方性線形弾性体の弾性テンソル

$$\hat{c}_{ijkl} = \begin{bmatrix} \lambda + 2\mu & \lambda & \lambda & 0 & 0 & 0 \\ \lambda & \lambda + 2\mu & \lambda & 0 & 0 & 0 \\ \lambda & \lambda & \lambda + 2\mu & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \mu & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \mu & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \mu \end{bmatrix} \quad (27)$$

の各成分との残差二乗和  $f$  が最小となるヤング率  $E$  とポアソン比  $\nu$  を求める。ただし、 $\lambda$ 、 $\mu$  は Lamé の定数で、 $\lambda = \frac{\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)}E$ 、 $\mu = \frac{1}{2(1+\nu)}E$  である。残差二乗和  $f$  は以下のように書くことができる。

$$\begin{aligned} f = (\lambda + 2\mu - c_{1111})^2 + (\lambda + 2\mu - c_{2222})^2 + (\lambda + 2\mu - c_{3333})^2 \\ + (\lambda - c_{1122})^2 + (\lambda - c_{1133})^2 + (\lambda - c_{2233})^2 \\ + (\mu - c_{2323})^2 + (\mu - c_{3131})^2 + (\mu - c_{1212})^2 \quad (28) \end{aligned}$$

$f$  の  $\lambda$ 、 $\mu$  に関する停留条件  $\frac{\partial f}{\partial \lambda} = \frac{\partial f}{\partial \mu} = 0$  より

$$\lambda = \frac{5}{18}C_1 - \frac{1}{9}C_2, \quad \mu = -\frac{1}{9}C_1 + \frac{1}{9}C_2 \quad (29)$$

と求めることができる。ただし、

$$C_1 = c_{1111} + c_{2222} + c_{3333} + c_{1122} + c_{1133} + c_{2233} \quad (30)$$

$$C_2 = 2c_{1111} + 2c_{2222} + 2c_{3333} + c_{2323} + c_{3131} + c_{1212} \quad (31)$$

である。これより、ヤング率  $E$  とポアソン比  $\nu$  は次式で求められる。

$$E = \frac{(3\lambda + 2\mu)\mu}{\lambda + \mu}, \quad \nu = \frac{\lambda}{2(\lambda + \mu)} \quad (32)$$

見かけ密度  $\rho_s$  は空孔率  $\phi$  を用いて  $\rho_s = (1-\phi)\rho_{s0}$  と求めることができる。

### 6.2 空孔率

空孔率  $\phi$  は流体相の体積分率であり、微視構造の有限要素モデルから次式で容易に求めることができる。

$$\phi = |Y^f|/|Y| \quad (33)$$

ここで、 $|Y^f|$  はユニットセルの流体相の体積、 $|Y|$  はユニットセルの体積である。

### 6.3 空気流れ抵抗

空気流れ抵抗テンソル  $\sigma_{ij}$  は流速  $v_i$  で空気を多孔質吸音材に流入させたときに  $x_j$  方向に生じる圧力損失であり次式で定義される。

$$\sigma_{ij} v_i = -\frac{\partial p}{\partial x_j} \quad (34)$$

一方、流体相の均質化計算より平均流速  $\langle w_i^{(0)} \rangle_{Y^f}$  は以下で求められる。

$$\langle w_i^{(0)} \rangle_{Y^f} = \langle \xi_i^j(\mathbf{y}) \rangle_{Y^f} \left( -\frac{\partial p^{(0)}}{\partial x_i} \right) \quad (35)$$

上の二式を比較すると空気流れ抵抗テンソル  $\sigma_{ij}$  は以下で求めることができる。

$$\sigma_{ij} = \langle \xi_i^j(\mathbf{y}) \rangle_{Y^f}^{-1} \quad (36)$$

#### 6.4 トーチュオシティと粘性代表長さ

均質化法による計算から得られる流体相の等価密度と Biot のモデルにおける等価密度の残差二乗和が最小になるよう、トーチュオシティ  $\alpha_\infty$  と粘性代表長さ  $\Lambda$  の値を同定する。Biot のモデルにおける流体相の等価密度  $\rho^{fc}$  は、 $\rho_0^f$  を空気の質量密度として次式で表される。

$$\rho^{fc} = \rho_0^f \alpha_\infty + \frac{\sigma\phi}{j\omega} G, \quad G = \left(1 + \frac{4j\omega\nu \rho_0^{f2} \alpha_\infty^2}{\Lambda^2 \sigma^2 \phi^2}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (37)$$

ここで、 $\nu$  は動的粘性係数で、 $\nu = \mu/\rho_0^f$  である。また、 $\rho_0 = 1.2\text{kg/m}^3$ 、 $\mu = 1.84 \times 10^{-5}\text{Ns/m}^2$  としている。等価密度は周波数に関する複素の関数であるから、非線形最小二乗法である Levenberg-Marquardt 法を適用する。なお、Levenberg-Marquardt 法を複素の関数に適用する場合、複素残差  $r$  の絶対値の二乗  $rr^*$  の和を最小にするものとする。Levenberg-Marquardt 法は反復計算による方法で初期値を与える必要があり、同定する未知数が 2 つの場合、初期値により得られる解が異なる場合がある。ここでは、等価密度の実部が  $\omega \rightarrow 0$  のときに一定値に収束することを利用し、同定する未知数を 1 つにする。すなわち  $\omega \rightarrow 0$  のとき

$$G \approx 1 + \frac{2j\omega\nu \rho_0^{f2} \alpha_\infty^2}{\Lambda^2 \sigma^2 \phi^2} \quad (38)$$

より、

$$\frac{\rho^{fc}}{\rho_0^f} \approx \alpha_\infty + \frac{\sigma\phi}{j\omega\rho_0^f} \left(1 + \frac{2j\omega\nu \rho_0^{f2} \alpha_\infty^2}{\Lambda^2 \sigma^2 \phi^2}\right) \quad (39)$$

$$= \alpha_\infty + \frac{2\mu \alpha_\infty^2}{\sigma\phi \Lambda^2} + \frac{\sigma\phi}{j\omega\rho_0^f} \quad (40)$$

となり、等価密度の実部は次式のように一定値  $c$  となることが分かる。

$$\alpha_\infty + \frac{2\mu \alpha_\infty^2}{\sigma\phi \Lambda^2} = c \quad (41)$$

これより、

$$\Lambda^2 = \frac{2\mu \alpha_\infty^2}{\sigma\phi c - \alpha_\infty} \quad (42)$$

となり、元の式に代入すると

$$\rho^{fc} = \rho_0^f \alpha_\infty + \frac{\sigma\phi}{j\omega} G, \quad G = \left(1 + \frac{2j\omega\rho_0^f(c - \alpha_\infty)}{\sigma\phi}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (43)$$

となり、Levenberg-Marquardt 法で同定すべき未知数はトーチュオシティの 1 つとなる。なお、一定値  $c$  は均質化法による計算から得られる。

#### 6.5 温度代表長さ

均質化法による計算から得られる等価体積弾性率と Biot のモデルにおける等価体積弾性率の残差二乗和が最小になるよう、温度代表長さ  $\Lambda'$  の値を同定する。Biot のモデルにおける等価体積弾性率  $K^f$  は次式で表される。

$$K^f = \frac{\gamma P_0}{\gamma - (\gamma - 1) \left(1 + \frac{8\nu'}{j\omega\Lambda'^2} G'\right)^{-1}}, \quad G' = \left(1 + \frac{j\omega\Lambda'^2}{16\nu'}\right)^{\frac{1}{2}} \quad (44)$$

ここで、 $\nu'$  は温度拡散率、 $P_0$  は大気圧、 $\gamma$  は比熱比であり、定圧比熱を  $C_p$  とすると  $\nu' = \kappa/(\rho_0 C_p)$  である。なお、ここでは  $c_0 = 344 \text{ m/s}$ 、 $\gamma = 1.4$  としている。等価体積弾性率も周波数に関する複素の関数で表されることから Levenberg-Marquardt 法を適用する。この場合、同定する未知数は温度代表長さの 1 つである。

#### 6.6 複素関数に拡張した Levenberg-Marquardt 法

実数関数に対する非線形最小二乗法である Levenberg-Marquardt 法を複素の関数に拡張する。すなわち、複素残差  $r_i$  ( $i = 1, 2, \dots, m$ ) の絶対値二乗和  $S = \sum_{i=1}^m r_i r_i^*$  を Levenberg-Marquardt 法と同様のアルゴリズムで最小化することを考える。データ  $(x_i, y_i)$  と係数  $\beta_j$  を有する関数  $f(x, \beta_j)$  ( $j = 1, 2, \dots, n$ ) の残差二乗和  $S$  は以下のように書くことができる。

$$S(x_i, y_i, \beta_j) = \sum_{i=1}^m r_i r_i^* \quad (45)$$

$$= \sum_{i=1}^m (y_i - f(x_i, \beta_j))(y_i - f(x_i, \beta_j))^* \quad (46)$$

係数  $\beta_j$  による偏微分は

$$\frac{\partial S}{\partial \beta_j} = \sum_{i=1}^m r_i \frac{\partial r_i^*}{\partial \beta_j} + \frac{\partial r_i}{\partial \beta_j} r_i^* \quad (47)$$

$$= - \sum_{i=1}^m (y_i - f(x_i, \beta_j)) \frac{\partial f(x_i, \beta_j)^*}{\partial \beta_j} \quad (48)$$

$$+ \frac{\partial f(x_i, \beta_j)}{\partial \beta_j} (y_i - f(x_i, \beta_j))^* \quad (49)$$

$\Delta\beta_j = \beta_j - \beta_j^{(k)}$  として、すなわち  $\beta_j = \beta_j^{(k)} + \Delta\beta_j$  として、 $f(x_i, \beta_j)$  を  $\beta_j^{(k)}$  のまわりで展開し 1 次式で近似

すると以下のように書くことができる。

$$f(x_i, \beta_j) = f(x_i, \beta_j^{(k)}) + \sum_{j=1}^n \frac{\partial f(x_i, \beta_j)}{\partial \beta_j} (\beta_j - \beta_j^{(k)}) + \dots \quad (50)$$

$$\approx f(x_i, \beta_j^{(k)}) + \sum_{j=1}^n J_{ij} \Delta \beta_j \quad (51)$$

ここで,  $\frac{\partial f(x_i, \beta_j)}{\partial \beta_j} = J_{ij}$  である.  $\Delta y_i = y_i - f(x_i, \beta_j^{(k)})$  として

$$\frac{\partial S}{\partial \beta_j} = - \sum_{i=1}^m [(y_i - f(x_i, \beta_j)) J_{ij}^* + (y_i - f(x_i, \beta_j))^* J_{ij}] \quad (52)$$

$$= \sum_{i=1}^m \sum_{l=1}^n (J_{ij}^* J_{il} + J_{ij} J_{il}^*) \Delta \beta_l \quad (53)$$

$$- \sum_{i=1}^m (J_{ij}^* \Delta y_i + J_{ij} \Delta y_i^*) \quad (54)$$

$S$  が最小のとき  $\frac{\partial S}{\partial \beta_j} = 0$  となることから,

$$\begin{aligned} & \sum_{i=1}^m \sum_{l=1}^n (J_{ij}^* J_{il} + J_{ij} J_{il}^*) \Delta \beta_l \\ & = \sum_{i=1}^m (J_{ij}^* \Delta y_i + J_{ij} \Delta y_i^*), \quad j = 1 \dots n \end{aligned} \quad (55)$$

これは  $n \times n$  の方程式になり, マトリックスで表記すると次式で表すことができる.

$$(\mathbf{J}^{*T} \mathbf{J} + \mathbf{J}^T \mathbf{J}^*) \Delta \boldsymbol{\beta} = \mathbf{J}^{*T} \Delta \mathbf{y} + \mathbf{J}^T \Delta \mathbf{y}^* \quad (56)$$

なお, 安定性のため Levenberg - Marquardt 法では次式を用いている.

$$(\mathbf{J}^{*T} \mathbf{J} + \mathbf{J}^T \mathbf{J}^* + \lambda \text{diag}(\mathbf{J}^{*T} \mathbf{J} + \mathbf{J}^T \mathbf{J}^*)) \Delta \boldsymbol{\beta} = \mathbf{J}^{*T} \Delta \mathbf{y} + \mathbf{J}^T \Delta \mathbf{y}^*, \quad \lambda \geq 0 \quad (57)$$

得られた解より  $\boldsymbol{\beta}^{(k)}$  を  $\boldsymbol{\beta}^{(k+1)} = \boldsymbol{\beta}^{(k)} + \Delta \boldsymbol{\beta}$  で更新し, 上記のプロセスを  $S$  が所定の閾値より小さくなるまで繰り返す.

## 7. 多孔質発泡材料の最適化

### 7.1 Kelvin セルモデル

図は代表的な発泡材料であるポリウレタンフォームを走査型電子顕微鏡により撮像したものである. 吸音材として使用される場合, 吸音性能を高めるため連続気泡になっていることが多い.

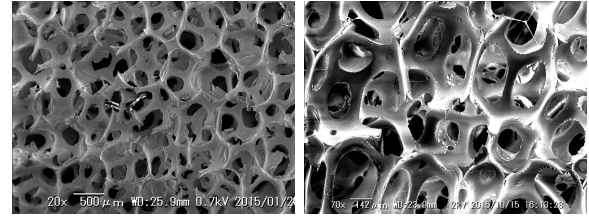


Fig.4 SEM images of typical foam materials (polyurethane foam).

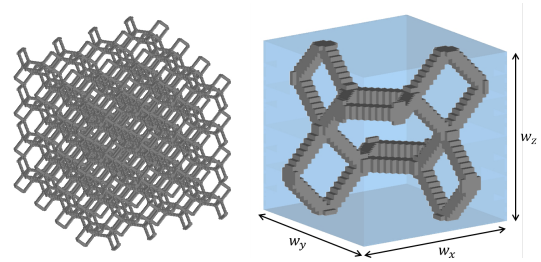


Fig.5 Finite element model of a typical foam material by Kelvin cell model.

こうした材料の微視構造を表現するものとして図に示す Kelvin セルモデルが使われている. 図 (b) には Kelvin セルモデルのユニットセルを示す. 図から分かるように, 微視構造は棒状のリガメントによる四角形と六角形で構成されている. ユニットセルの 3 辺の長さが同じで場合 ( $w_x = w_y = w_z = w_f$ ), 四角形および六角形の空孔の大きさはそれぞれおよそ  $1/3w_f$  および  $2/3w_f$  である.

### 7.2 Biot パラメータと微視的パラメータの関係式

固体相のマクロ特性であるヤング率とポアソン比, 流体相のマクロ特性である空気流れ抵抗については, 構造を単純化したりすることで解析的に表現することも検討されている. 工学的な定義が明確でないトーチュオシティや粘性特性長については, 微視構造の寸法との関係式を実験的に検討している事例もある. いずれの検討事例においても, 同一のモデルあるいは仮定に基づいて, 全ての Biot パラメータを導出している事例はない. ここでは, 本研究で提案する手法を Kelvin セルモデルに適用し, 前節と同じ方法でユニットセルモデルから全ての Biot パラメータを導出する.

ユニットセルの 3 辺の長さが同じとし, ユニットセルサイズ  $w_f$  と空孔率  $\phi$  を微視構造のパラメータにとり, ユニットセルサイズ  $w_f$  を 1, 5, 10, 20, 40, 100, 200, 300, 400, 1000  $\mu\text{m}$  の 10 種, 空孔率  $\phi$  を 0.9915, 0.9685,

0.9528, 0.9326, 0.9047 の 5 種, 合計 50 種類の微視構造を作成し, 均質化法によりマクロ特性を算出する. また, その結果より Biot パラメータの値を求め, 各 Biot パラメータと微視パラメータについての関係式を最小二乗法により以下のように得た.

$$\alpha_\infty = 1.43 - 0.43\phi \quad (58)$$

$$\sigma = 3.88 \times 10^{-3} w_f^{-2.00} (1 - \phi)^{0.355} \quad (59)$$

$$\Lambda = 0.094 w_f (1 - \phi)^{-0.359} \quad (60)$$

$$\Lambda' = 0.383 w_f (1 - \phi)^{-0.149} \quad (61)$$

$$E^s = \frac{2(1 - \phi)^2}{3(1.9 - 0.9\phi)} E_0 \quad (62)$$

$$\nu^s = \frac{\phi}{2(2 - \phi)} \quad (63)$$

なお, ヤング率とポアソン比については Warren and Kraynik の式を用いている.

### 7.3 微視構造の寸法最適化

微視構造のパラメータであるユニットセルサイズ  $w_f$ , 空孔率  $\phi$ , 固体相を構成する材料のヤング率  $E_0^s$ , 質量密度  $\rho_0^s$ , 損失係数  $\eta_0^2$  を設計変数とし, 指定周波数における垂直入射吸音率の最大化を目的に遺伝的アルゴリズムを用いて最適化する. ここでは, 2 つの周波数ラインにおける垂直入射吸音率の平均値を最大化することを考える. 周波数は, 500 Hz + 1 kHz, 500 Hz + 2 kHz, 500 Hz + 4 kHz, 1 kHz + 2 kHz, 1 kHz + 4 kHz の 5 ケースとし, 設計変数の上下限は, 現実的な材料構成を考慮して,  $0.1 \mu\text{m} \leq w_f \leq 500 \mu\text{m}$ ,  $0.90 \leq \phi \leq 0.99$ ,  $200 \leq E_0^s \leq 500 \text{ MPa}$ ,  $1000 \text{ kg/m}^3 \leq \rho_0^s \leq 2000 \text{ kg/m}^3$ ,  $0.01 \leq \eta_0^2 \leq 0.300$  とする. また, 吸音材の厚さは 20 mm とした.

Tab.1 Optimal microscopic parameters.

Freq	$w_f$ [ $\mu\text{m}$ ]	$\phi$ [-]	$E_0^s$ [MPa]	$\rho_0^s$ [ $\text{kg/m}^3$ ]
500Hz + 1kHz	62.1	0.974	500.	1832.
500Hz + 2kHz	69.4	0.969	500.	1959.
500Hz + 4kHz	51.6	0.964	349.	1843.
1kHz + 2kHz	75.1	0.989	500.	1174.
1kHz + 4kHz	66.8	0.986	221.	1262.

表 1 は, 各ケースにおける設計変数の最適値を示している. また, 図 6 は, そのときの垂直入射吸音率の周波数特性を示している. 図から 500 Hz + 4 kHz, 1 kHz +

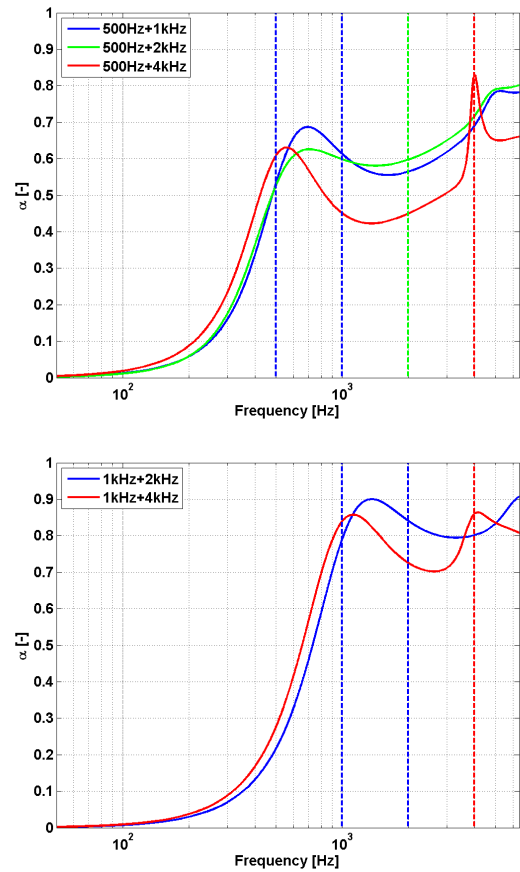


Fig.6 Optimal sound absorption coefficients for normal incident.

4 kHz のケースでは 2 つの指定周波数において吸音率の周波数特性がピークになっている. しかし, 他の指定周波数のケースでは, 吸音率の値は大きいもののピークにはなっていない.

## 8. 多孔質吸音材微視構造のトポロジー最適化

ここまでで検討してきた手法は, 既存材料をもとに構築した微視構造のパラメトリックの最適化であり, 微視構造の抜本的な設計にはつながらない. そこで, 既存の微視構造には依存しないトポロジー最適化により多孔質吸音材の微視構造を設計する方法論を構築する. まず, マクロスケールにおける材料分布は固定し, 材料微視構造のトポロジー最適化を考える. 目的関数には, 吸音材の代表特性である吸音率と等価であり, かつトポロジー最適化において扱いやすい, 散逸エネルギー和を用いる. トポロジー最適化では, 従来, 随伴変数法を用いて目的関数の設計感度を求めており, その場合, マクロスケールにおける材料特性の設計感度が必要になる. マクロス

ケールにおける材料特性は、一般的には基準となる材料特性値と、設計変数による密度関数を用いて表現され、設計感度は解析的に求めることができる場合が多い。しかし、本研究で対象としているマルチスケルトポロジ最適化では、マクロスケールにおける材料特性は、ミクロスケールにおける境界値問題の解の体積平均で求めているため、マクロスケールにおける材料特性の設計感度を陽に求めることができない。ここでは、マクロスケールにおける材料特性の設計感度を、ミクロスケールにおいても随伴変数法を適用し求める方法を提案する。

### 8.1 多孔質体固体相における散逸エネルギーの最大化

材料全体の散逸エネルギー和は正の実数値であることから、その負値を最小化することを考える。散逸エネルギーの和はマクロスケール、設計変数  $\mu_i$  はミクロスケールで定義することに注意する。 $\mu$  はミクロスケールすなわちユニットセルモデルにおける連続化した特性関数  $\mu(\mathbf{y})$  ( $0 \leq \mu(\mathbf{y}) \leq 1$ )。特性関数  $\mu(\mathbf{y})$  は、ミクロスケールモデルの各節点において定義した設計変数  $\mu_i$  ( $0 \leq \mu(\mathbf{y}) \leq 1$ ) で離散的に表現するものとする。ミクロスケールモデルおよびマクロスケールモデルの位置、節点数、要素数をそれぞれ  $\mathbf{y}, n_d, n_e$ , および  $\mathbf{x}, N_d, N_e$  とし、体積 (質量) 制約条件のもと、次式に示すマクロスケールにおける散逸エネルギー和の負値最小化問題を考える。

$$\begin{aligned} \text{Min } g &= -\frac{1}{2} \Re \left[ (-j\omega) \int_{\Omega} (\sigma_{ij}^H \varepsilon_{ij}^{H*} - \rho^H \omega^2 u_i^H u_i^{H*}) d\Omega \right] \\ \text{Subject to:} \\ \int_Y \mu(\mathbf{y}) dY - V_{10} &\leq 0 \\ \frac{\partial \sigma_{ij}^H}{\partial x_j} + \rho^H \omega^2 u_i^H &= 0 \\ \sigma_{ij}^H &= c_{ijkl}^H \varepsilon_{kl}^H \\ c_{ijkl}^H &= \frac{1}{|Y|} \int_Y \left\{ c_{ijkl}^s(\mathbf{y}) - c_{ijpq}^s(\mathbf{y}) \frac{\partial \chi_p^{kl}(\mathbf{y})}{\partial y_q} \right\} dY \\ \rho^H &= \frac{1}{|Y|} \int_Y \mu(\mathbf{y}) \rho^s(\mathbf{y}) dY \\ \int_Y \left( c_{ijkl}^s - c_{ijpq}^s \frac{\partial \chi_p^{kl}(\mathbf{y})}{\partial y_q} \right) \frac{\partial \delta u_i^s}{\partial y_j} dY &= 0 \\ c_{ijkl}^s(\mathbf{y}) &= (1 - \mu(\mathbf{y})^p) c_{ijkl}^s + \mu(\mathbf{y})^p c_{ijkl}^s \\ \rho^s(\mathbf{y}) &= (1 - \mu(\mathbf{y})) \rho_0^s + \mu(\mathbf{y}) \rho_1^s \\ \mu(\mathbf{y}) &= \sum_{i=1}^{n_d} N_i \mu_i \\ 0 \leq \mu_i \leq 1 \quad (i = 1, 2, \dots, n_d) \end{aligned} \quad (64)$$

なお、\* は複素共役を示している。 $\rho^H$  は実数であるから、 $\Re(z) = \frac{1}{2}(z + z^*)$  より、

$$\begin{aligned} 4g &= - \left[ (-j\omega) \int_{\Omega} (\sigma_{ij}^H \varepsilon_{ij}^{H*} - \rho^H \omega^2 u_i^H u_i^{H*}) d\Omega \right] \\ &\quad - \left[ (j\omega) \int_{\Omega} (\sigma_{ij}^{H*} \varepsilon_{ij}^H - \rho^H \omega^2 u_i^{H*} u_i^H) d\Omega \right] \\ &= j\omega \left[ \int_{\Omega} (\sigma_{ij}^H \varepsilon_{ij}^{H*} - \sigma_{ij}^{H*} \varepsilon_{ij}^H) d\Omega \right] \end{aligned}$$

$\mathbf{B}$  マトリックスは実数であることから、

$$\sigma_{ij}^H \varepsilon_{ij}^{H*} = c_{ijkl}^H \varepsilon_{kl}^H \varepsilon_{ij}^{H*} = \mathbf{U}^{s*T} \mathbf{K}^s \mathbf{U}^s \quad (65)$$

$$\sigma_{ij}^{H*} \varepsilon_{ij}^H = c_{ijkl}^{H*} \varepsilon_{kl}^H \varepsilon_{ij}^H = \mathbf{U}^{sT} \mathbf{K}^{s*} \mathbf{U}^{s*} \quad (66)$$

したがって、

$$4g = j\omega (\mathbf{U}^{s*T} \mathbf{K}^s \mathbf{U}^s - \mathbf{U}^{sT} \mathbf{K}^{s*} \mathbf{U}^{s*}) \quad (67)$$

### 8.2 散逸エネルギーの設計感度

音響管のマクロスケールモデルを想定すると、弾性体 (e)・音場 (a)・多孔質材 (s) のマクロスケール連成系全体の平衡式は

$$\mathbf{D}\mathbf{X} - \mathbf{F} = \mathbf{0} \quad (68)$$

$$\mathbf{D} = \begin{bmatrix} \mathbf{K}^e - \omega^2 \mathbf{M}^e & -j\omega \mathbf{C}^{ea} & \mathbf{0} \\ -j\omega \mathbf{C}^{eaT} & \mathbf{K}^a - \omega^2 \mathbf{M}^a & -j\omega \mathbf{C}^{sa} \\ \mathbf{0} & -j\omega \mathbf{C}^{saT} & \mathbf{K}^s - \omega^2 \mathbf{M}^s \end{bmatrix} \quad (69)$$

マクロスケールモデル全体の系と次元とあわせるため

$$\mathbf{D}^q = \begin{bmatrix} \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} & \mathbf{K}^s \end{bmatrix} \quad (70)$$

$\mathbf{Y}$  をマクロスケール連成系全体に対する随伴変数とし、 $\mathbf{Y}$  と支配方程式の積を目的関数に付加すると、拡張した目的関数  $g_{ext}$  は、

$$\begin{aligned} g_{ext} &= j\omega (\mathbf{X}^{*T} \mathbf{D}^q \mathbf{X} - \mathbf{X}^T \mathbf{D}^{q*} \mathbf{X}^*) \\ &\quad + \mathbf{Y}^T (\mathbf{F} - \mathbf{D}\mathbf{X}) + \mathbf{Y}^{*T} (\mathbf{F}^* - \mathbf{D}^* \mathbf{X}^*) \end{aligned} \quad (71)$$

拡張した目的関数について、設計変数  $\mu_i$  に対する感度は

$$\begin{aligned} \frac{\partial g_{ext}}{\partial \mu_i} &= (j\omega \mathbf{X}^{*T} (\mathbf{D}^q - \mathbf{D}^{q*}) - \mathbf{Y}^T \mathbf{D}) \frac{\partial \mathbf{X}}{\partial \mu_i} \\ &\quad + (j\omega \mathbf{X}^T (\mathbf{D}^q - \mathbf{D}^{q*}) - \mathbf{Y}^{*T} \mathbf{D}^*) \frac{\partial \mathbf{X}^*}{\partial \mu_i} \\ &\quad + j\omega \mathbf{X}^{*T} \frac{\partial \mathbf{D}^q}{\partial \mu_i} \mathbf{X} - j\omega \mathbf{X}^T \frac{\partial \mathbf{D}^{q*}}{\partial \mu_i} \mathbf{X}^* \\ &\quad - \mathbf{Y}^T \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial \mu_i} \mathbf{X} - \mathbf{Y}^{*T} \frac{\partial \mathbf{D}^*}{\partial \mu_i} \mathbf{X}^* \end{aligned}$$

したがって、随伴方程式

$$DY = j\omega(D^q - D^{q*})X^* \quad (72)$$

を満たす随伴変数  $\mathbf{Y}$  を用いると、目的関数  $g_{ext}$  の設計変数  $\mu_i$  に対するマクロスケールにおける感度は次式で求められる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial g_{ext}}{\partial \mu_i} = & j\omega \mathbf{X}^{*T} \frac{\partial D^q}{\partial \mu_i} \mathbf{X} - j\omega \mathbf{X}^T \frac{\partial D^{q*}}{\partial \mu_i} \mathbf{X}^* \\ & - \mathbf{Y}^T \frac{\partial D}{\partial \mu_i} \mathbf{X} - \mathbf{Y}^{*T} \frac{\partial D^*}{\partial \mu_i} \mathbf{X}^* \quad (73) \end{aligned}$$

また、

$$\frac{\partial D^q}{\partial \mu_i} = \frac{\partial D}{\partial \mu_i}, \quad \frac{\partial K^s}{\partial \mu_i} = \mathbf{B}^{sT} \frac{\partial \mathbf{C}^H}{\partial \mu_i} \mathbf{B}^{sT} \quad (74)$$

### 8.3 弾性テンソルの設計感度

固体相の均質化弾性テンソルは次式で求めることができる。

$$\mathbf{C}^H = \frac{1}{|\mathbf{Y}|} \sum_{i=1}^{N_e} \int_{Y_i} ([C^s] - [C^s][B][\Psi]) dY \quad (75)$$

固体相の均質化弾性テンソルに、 $Y$ -periodic な随伴変数マトリックス  $\Phi$  と支配方程式の積を加えると、

$$\mathbf{C}^H = \mathbf{C}^H + \frac{1}{|\mathbf{Y}|} \Phi^T (\mathbf{K}\Psi - \mathbf{F}) \quad (76)$$

自己随伴であるからことから、 $\mathbf{C}^H$  のミクロスケールにおける設計変数  $\mu_i$  に対する設計感度は次式で表すことができる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \mathbf{C}^H}{\partial \mu_i} = & \frac{1}{|\mathbf{Y}|} \sum_{i=1}^{n_e} \int_{Y_i} \frac{\partial [C^s]}{\partial \mu_i} dY \\ & - \frac{1}{|\mathbf{Y}|} \sum_{i=1}^{n_e} \int_{Y_i} \frac{\partial [C^s]}{\partial \mu_i} [B][\Psi]_{3n \times 6} dY \\ & - \frac{1}{|\mathbf{Y}|} \left( \sum_{i=1}^{n_e} \int_{Y_i} [\Phi]^T [B]^T \frac{\partial [C^s]}{\partial \mu_i} dY \right) \\ & + \frac{1}{|\mathbf{Y}|} \left( \sum_{i=1}^{n_e} \int_{Y_i} [\Phi]^T [B]^T \frac{\partial [C^s]}{\partial \mu_i} [B][\Psi] dY \right) \quad (77) \end{aligned}$$

### 8.4 多孔質体流体相における散逸エネルギーの最大化

多孔質材料の流体相において散逸するエネルギー和を最大化するトポロジー最適化を考える。散逸エネルギーの和はマクロスケール、設計変数  $\mu_i$  はミクロスケールで定義することに注意する。トポロジー最適化問題として

の定式化は以下のように書くことができる。

$$\begin{aligned} \text{Min}_{\mu} g = & -\frac{1}{2} \Re \int_{\Omega^p} (j\omega) \left( -\frac{d_i^k}{\rho_0^f} \frac{\partial \psi^f}{\partial x_k} \frac{\partial \psi^{f*}}{\partial x_i} \right. \\ & \left. + \omega^2 \frac{\phi}{K^f} \psi^f \psi^{f*} \right) d\Omega \\ \text{Subject to} & \int_Y \mu(\mathbf{y}) dY - V_{10} \leq 0 \\ & \frac{d_i^k}{\rho_0^f} \frac{\partial^2 \psi^{f(0)}(x)}{\partial x_k \partial x_i} + \omega^2 \frac{\phi}{K^f} \psi^{f(0)}(x) = 0 \quad (78) \\ & d_i^k = \rho_0^f j\omega \langle \xi_i^k(\mathbf{y}) \rangle = \rho_0^f j\omega \phi \langle \xi_i^k(\mathbf{y}) \rangle_{Y^f} \\ & K^f = \frac{\gamma P_0}{\gamma - (\gamma - 1) \langle \zeta(\mathbf{y}) \rangle_{Y^f}} \\ & \mu(\mathbf{y}) = \sum_{i=1}^{n_d} N_i \mu_i \\ & 0 \leq \mu_i \leq 1 \quad (i = 1, 2, \dots, n_d) \end{aligned}$$

目的関数  $g$  を系の動剛性マトリックスで表現すると次式となる。

$$g = -\frac{1}{2} \Re(j\omega \Psi^{fT} \mathbf{D}^f \Psi^{f*}) \quad (79)$$

$\mathbf{d}, K_f$  が複素数であることから、 $\Re(z) = \frac{1}{2}(z + z^*)$  より

$$4g = -(j\omega \Psi^{fT} \mathbf{D}^f \Psi^{f*} - j\omega \Psi^{f*T} \mathbf{D}^{f*} \Psi^f) \quad (80)$$

### 8.5 散逸エネルギーの設計感度

マクロスケールモデル全体の系と状態変数の次元を合わせるため、

$$\mathbf{D}^q = \begin{bmatrix} \mathbf{O} & \mathbf{O} & \mathbf{O} \\ \mathbf{O} & \mathbf{O} & \mathbf{O} \\ \mathbf{O} & \mathbf{O} & \mathbf{D}^f \end{bmatrix} \quad (81)$$

とおき、 $\mathbf{Y}$  をマクロスケール連成系全体に対する随伴変数とする。 $\mathbf{Y}$  と支配方程式の積を目的関数に付加すると、拡張した目的関数  $g_{ext}$  は、以下のように書くことができる。

$$\begin{aligned} g_{ext} = & -(j\omega \mathbf{X}^T \mathbf{D}^q \mathbf{X}^* - j\omega \mathbf{X}^{*T} \mathbf{D}^{q*} \mathbf{X}) \\ & + \mathbf{Y}^T (\mathbf{F} - \mathbf{D}\mathbf{X}) + \mathbf{Y}^{*T} (\mathbf{F}^* - \mathbf{D}^* \mathbf{X}^*) \quad (82) \end{aligned}$$

拡張した目的関数  $g_{ext}$  の、設計変数  $\mu_i$  に対する設計感度は、随伴方程式

$$DY = -j\omega(D^q - D^{q*})X^* \quad (83)$$

を満たす  $\mathbf{Y}$  を用いると、次式で求めることができる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial g_{ext}}{\partial \mu_i} = & -j\omega \mathbf{X}^T \frac{\partial (D^q - D^{q*})}{\partial \mu_i} \mathbf{X}^* \\ & - \mathbf{Y}^T \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial \mu_i} \mathbf{X} - \mathbf{Y}^{*T} \frac{\partial \mathbf{D}^*}{\partial \mu_i} \mathbf{X}^* \quad (84) \end{aligned}$$



## 8.6 等価密度の設計感度

等価密度に相当する相対速度の特性関数  $\mathbf{d}$  に、 $\mathbf{X}$  に対応する随伴変数を  $\mathbf{Y}$  として、系の支配方程式との積を加えると、以下のように書くことができる。

$$\mathbf{d} = \mathbf{d} - \mathbf{Y}^T(\mathbf{L}\mathbf{X} - \mathbf{F}) \quad (85)$$

随伴方程式

$$\mathbf{L}\mathbf{Y} = \left( \frac{\partial \mathbf{d}}{\partial \mathbf{X}} \right)^T \quad (86)$$

の解を用いると、ミクロスケールモデルの各節点において定義された設計変数  $\mu_i$  ( $i = 1, 2, \dots, n_d$ ) による設計感度は、次式で求めることができる。

$$\frac{\partial \mathbf{d}}{\partial \mu_i} = -\mathbf{Y}^T \frac{\partial \mathbf{L}}{\partial \mu_i} \mathbf{X} \quad (87)$$

## 8.7 等価体積弾性率の設計感度

等価体積弾性率は次式で求めることができる。

$$K^f = \frac{\gamma P_0}{\gamma - (\gamma - 1)\langle \zeta(y) \rangle_{Y^f}} \quad (88)$$

積分と微分が置換可能であるとすると、等価体積弾性率のミクロスケールの設計変数についての設計感度は

$$\frac{\partial K^f}{\partial \mu_i} = -\frac{\gamma P_0}{\gamma - (\gamma - 1)\langle \zeta(y) \rangle_{Y^f}^2} \frac{1}{|Y^f|} \int_{Y^f} \frac{\partial \zeta(y)}{\partial \mu_i} dY \quad (89)$$

均質化した特性関数  $h = \frac{1}{|Y^f|} \int_{Y^f} \frac{\partial \zeta(y)}{\partial \mu_i} dY$  に随伴変数  $\mathbf{Y}$  と支配方程式の積を加えて

$$h = \mathbf{N}_p \Theta - \mathbf{Y}^T[(\mathbf{K} + \mathbf{M})\Theta - \mathbf{F}] \quad (90)$$

とすると、 $h$  のミクロスケールにおける設計変数  $\mu_i$  による設計感度は、自己随伴問題であることから、次式で求めることができる。

$$\frac{\partial h}{\partial \mu_i} = -\mathbf{Y}^T \frac{\partial \mathbf{K}}{\partial \mu_i} \Theta \quad (91)$$

今後、これらの設計感度と、多数提案されている最適化アルゴリズムの中でも最も効率が良くとされる MMA (Method of Moving Asymptotes) を用いて、設計変数を逐次アップデートし、最適な微視構造を創出する。

## 9. まとめ

本研究では、多孔質吸音材の微視構造を直接扱うことのできる均質化法と吸音率を効率良く予測できる Biot の

モデルを併用し、多孔質吸音材の微視構造の寸法を最適化する手法を構築した。発泡材料については、Kelvin セルモデルでモデル化し、ユニットセルサイズや空孔率の微視パラメータと Biot パラメータを関係付ける式を最小二乗法により同定した。また、その関係式に遺伝的アルゴリズムを用いて、指定周波数において垂直入射吸音率を最大にする最適な微視構造パラメータを得ることができた。さらに、既存の微視構造には依存しないトポロジー最適化手法について検討し、随伴変数を二段階で用いることで、マクロスケールにおいて定義される目的関数の、微視構造において定義された設計変数に対する設計感度を求める手法を提案した。今後は、最適化アルゴリズムの一つである MMA を組み込み、最適設計を行う。

## 参考文献

- 1) M. E. Delany and E. N. Bazley. Acoustical properties of fibrous absorbent materials. *Applied Acoustics*, 3:105–116, 1970.
- 2) M. A. Biot. Theory of propagation of elastic waves in a fluid-saturated porous solid. I. Low-frequency range. *Journal of Acoustical Society of America*, 28:168–178, 1956.
- 3) M. A. Biot. Theory of propagation of elastic waves in a fluid-saturated porous solid. II. Higher frequency range. *Journal of Acoustical Society of America*, 28:179–191, 1956.
- 4) J. F. Allard and N Atalla. *Propagation of Sound in Porous Media*. Wiley, 2009.
- 5) N. Atalla, R. Panneton, and P. Debergue. A mixed displacement-pressure formulation for poroelastic materials. *Journal of Acoustical Society of America*, 104:1444–1452, 1998.
- 6) J. L. Auriault, L. Borne, and R. Chambon. Dynamics of porous saturated media, checking of the generalized law of Darcy. *Journal of Acoustical Society of America*, 77:1641–1650, 1985.
- 7) T. Levy. Propagation of waves in a fluid-saturated porous elastic solid. *International Journal of Engineering Science*, 17:1005–1014, 1979.
- 8) R. Burridge and J. B. Keller. Poroelasticity equations derived from microstructure. *Journal of Acoustical Society of America*, 70:1140–1146,

- 1981.
- 9) C. Boutin, P. Royer, and J. L. Auriault. Acoustic absorption of porous surfacing with dual porosity. *International Journal of Solids and Structures*, 35:4709–4737, 1998.
  - 10) T. Yamamoto, S. Maruyama, K. Terada, K. Izui, and S. Nishiwaki. A generalized macroscopic model for sound-absorbing poroelastic media using a homogenization method. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 200:251 – 264, 2011.
  - 11) R. P. Gilbert and A. Mikelić. Homogenizing the acoustic properties of the seabed: Part I. *Nonlinear Analysis*, 40:185–212, 2000.
  - 12) TH. Clopeau, J. L. Ferrín, R. P. Gilbert, and A. Mikelić. Homogenizing the acoustic properties of the seabed: Part II. *Mathematical and Computer Modelling*, 33:821–841, 2001.
  - 13) E. Sanchez-Palencia. *Non-Homogeneous Media and Vibration Theory, Lecture Notes in Physics 127*. Springer-Verlag, 1980.
  - 14) K. Terada, T. Ito, and N. Kikuchi. Characterization of the mechanical behaviours of solid-fluid mixture by the homogenization method. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 153:223–257, 1998.

# 体性感覚と視聴覚刺激を組み合わせた行動誘発メカニズムに関する基礎検討

工学院大学 情報学部 近藤 公久, 中島 弘史

ATR 知能ロボティクス研究所 内海 章, 須佐見 憲史

Study on Action Inducing Mechanisms with Somatosenses and Audio-Visual Stimuli

Tadahisa Kondo, Hirofumi Nakajima, Department of Informatics

Akira Utsumi, Norifumi Susami, Intelligent Robotics Laboratory, ATR

**ABSTRACT** : This project aims to construct a model of action inducing mechanisms by somatosenses and audio-visual stimuli. This paper describes results of the second year of the project. First, virtual reality system was constructed for demonstrating the moving sound reproduction. Second, attention drawing effects using moving sound was investigated. Finally, effects of somatosenses on the position recognition by comparing between haptic information and visual information. The results showed that the 3D drawing sound was prior to 2D sound, and the different driving positions might affect the drivers' recognition. These results also suggested that further investigations could achieve the aims of the project.

## 1. はじめに

本研究の目的は、視聴覚刺激と体性感覚刺激による行動誘発メカニズムを解明することにある。本申請課題では、申請者らがこれまで行ってきた視聴覚刺激による注意誘導手法を発展させ、体性感覚刺激との組み合わせにより必要な行動を素早く誘発するメカニズムを解明し、モデルを構築する。

本研究では、図 1-1 に示すように様々な場面における「漫然状態」によって引き起こされる危険状態を、「認知的乖離」および「身体的乖離」の観点に分けて検討、分析する。これまでの「認知的乖離」に対する検討に加えて、新たな視点として「身体的乖離」を加えることによって、研究の範囲が格段に広がる。

自動運転を例とした場合、運転者の“漫然状態”はこれまで運転者の認知が運転タスクから離れ必要な情報取得ができなくなる状態(「認知的乖離」)を指していたが、自動運転ではさらにハンドルやペダルから手足を離して通常の運転姿勢とは異なる体勢をとっているため緊急時に必要な操作が行えないという問題が生じる(「身体的乖離」)。さらに、このような不適切な姿勢状態は運転に必要な情報取得を妨げるため認知的乖離をさらに助長するなど両者には負の相互作用がある。自動運転システムの制御からドライバーの制御下に安全に運転移譲を行うには

「認知的乖離」、「身体的乖離」の両方を短時間で解消しなければならない。また、近未来に実現されるであろう完全自動運転の状態においても、「認知的乖離」、「身体的乖離」の状態を、安心かつ心地よい状態を維持するために必要な、システムとのインタラクションが不可欠である。さらに、人の状態を、安心して心地よい状態に導く、注意誘導や行動誘発のモデル化は極めて重要な学術的成果となりうる。

具体的には、1. 視聴覚を中心とした VR 環境を用いた注意誘導効果の検証を行い、2. 動作、姿勢が制約される条件下におけるヒトの行動誘発メカニズムを解明し、

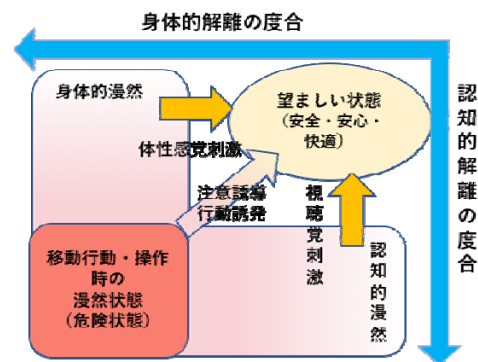


図 1 認知的／身体的乖離と注意誘導および行動誘発

3. 視聴覚と体性感覚を組み合わせた注意誘導・行動誘発システムの提案を目指す。

本報告では、2017年度の工学院大学総合研究所プロジェクト報告<sup>(1)</sup>（以後既報と呼ぶ）に引き続き、上述の最終到達目標達成のために行った、VR環境の構築、立体音響を用いた注意誘導効果の確認、体性感覚を伴う場面での運動の違いの基礎的検討結果を示す。

## 2. 立体音響収録再生システムの構築

音場の収録・再生を高精度に行うシステムの構築を進めるにあたり解決しなければならない課題は、室内・野外問わず、また音源の数や音源の指向性によらず、リアルタイムで音場の収録と再生を実現することである。本研究プロジェクトでは、既存手法をベースに、移動音源の再現方法を検討した。

本章では、既報で示したシアターの音響システムについて再度概説したのち、3節で本年度新たに検討した移動音源再現システムの検討結果を示す。

### 2.1 立体音響収録再生システムの概要

#### (1) ハードウェア

VRシアター(八王子校舎2号館1階02-156室)は、立体音響の収録・再生や音刺激を用いた心理実験などの研究を行うために、多数のマイクロホンやスピーカ、LANなどの設備が備わっている。図2-1は研究用の多チャンネル音響収録再生システムの接続図である。天井に配置した16個のマイクロホン(マイクアレイ)と32個のスピーカ(スピーカアレイ)が入出力のハードウェアの根管をなすものであり、それらが、アンプやオーディオインターフェースを介して、音響信号処理PCに接続されている。また、多チャンネル信号をリアルタイムに処理するための音響信号処理用ハードウェアシステム(DSPシステム)が備わっている。

図2-2にスピーカアレイの配置図を示す。32個のスピーカ配置は、NHK<sup>(2)</sup>の22.2chサラウンドシステム(上段9ch,中段11ch,下段3chにスピーカを配置)に加え天井面に8個のスピーカを加えた形となっている。ただし、中段と下段のスピーカについては映像投影用のスクリーンに干渉するため、天井面にずらしている。

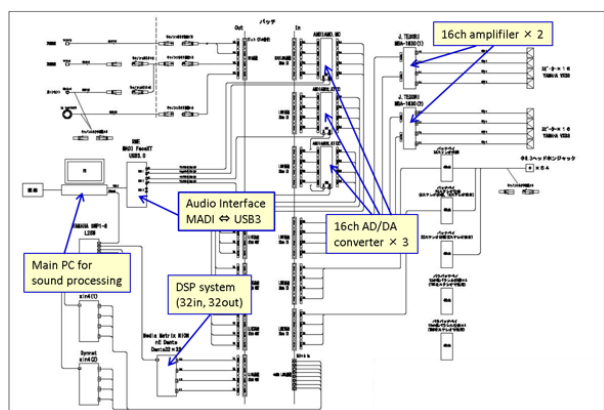


図 2-1 Design drawing for audio hardware.

DSPシステムは、MediaMatrix社のNION nEを導入している。音響用のDSPが3基搭載されているハードウェアで、安定性・保守性に定評があり、多くのスタジオやアミューズメント施設に導入されているものである。(2) ソフトウェア

制御用のPCには、各種ハードウェアの機能を調整するための制御ソフトウェアと多チャンネルの音響信号を収録・再生するためのソフトウェアが導入されており、多チャンネルの音響信号の入出力が可能である。しかし、導入されているソフトウェアだけでは、VRシアターにおける音場を収録し、再生することはできない。これはたとえば、マイクアレイで収録した16chの信号をそのままスピーカアレイの1~16chで再生しても、配置の違いや、音響特性の違いにより、収録した音場とは全く異なった音場となって再生されるためである。

DSPシステムには、DSP制御用のソフトウェアが導入されており、GUI上で機能モジュールを結線する(ネットワークプログラムを作成する)ことで、リアルタイムの音響処理が可能である。しかし、制御用のPCと同様、VRシアター用に調整されたネットワークプログラムは無いため、独自に開発する必要がある。

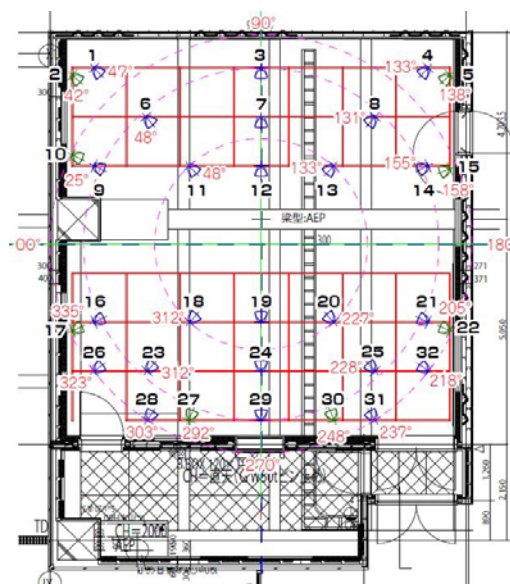


図 2-2 Arrangement for loudspeaker array.

### 2.2 構築したシステムの概要

#### (1) 仮想音源位置の再現システム

昨年度構築した、仮想音源の再生システムでは、近接した2つのスピーカによる音量差と時間差の制御(ステレオ再生でのパン制御)で開発を行った。図2-3にその概要を示す。

初めに仮想音源方向に最も近いスピーカを選択する、次に、選択したスピーカとは仮想音源位置を挟んで逆側にあるスピーカを選択する。最後に、この2つのスピーカを結ぶ線分上の位置の割合から、各スピーカの音量差と時間差をつけて、音を再生する。

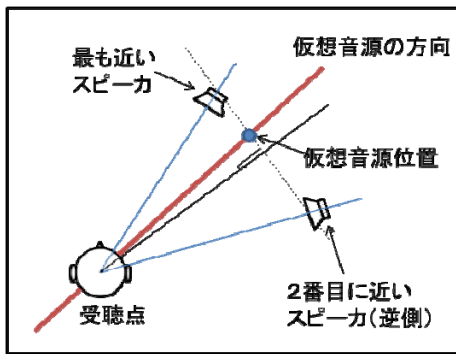


図 2-3 Virtual sound source reproduction.

(2) 移動音の再現システム

移動音の再現は、仮想音源の再現システムをベースに、再生する音源を切り出し、フレーム毎に音源位置を移動させることにより実現した。また、より方向感覚を得られる工夫として、仮想音源再生において、用いるスピーカーを受聴位置から仮想音源方向を中心とした角度範囲によって制限をかけた。

2. 3 評価実験

仮想音源の再現システムは、ITD 測定による評価実験により良好な結果が得られている<sup>(2)</sup>。本移動再現においても、聴感上において良好な方向感覚を得ることができている。しかし、移動させることで、ホイヘンスの原理による球面状で音エネルギーが広がるとすることを単純に実現したときの音圧レベルの激しい変化による違和感を生じた。そこで、この変化を低減するため、32ch 分の音の減衰量を一度加算し、本来の点音源の減衰量に合わせて補正することとした。

(1) 実験環境

音源：440Hz 定常音圧純音

移動：横移動と斜め移動 (図 2-4 で(0,0)を受聴位置とし、横移動は受聴位置を挟んで真横(-10, 0)から(10, 0)に、斜め移動は対角線状(-10, -10)から(10, 10)に移動する。)

移動速度は、横方向では 2m/s, 斜め方向では $\sqrt{2}$  m/s の定速移動とし、5 秒毎に最遠点、受聴位置、反対側最遠点を通る。

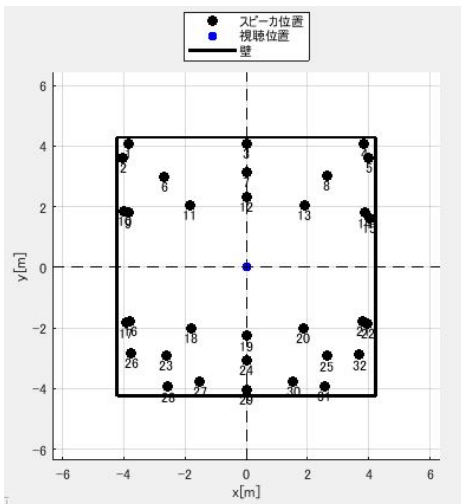


図 2-4 Speaker arrangement and hearing position  
\*室内壁よりも遠い点も仮想音源位置として指定可能

(2) 実験結果

図 2-5 に横移動時の音源波形を示す。上が暗騒音、中が補正前、下が補正後である。図から波形でも急激な音圧変化が若干抑えられていることがわかる。図 2-6 は横移動時の音圧レベル (rms) を dB で示したものであり、音圧変化の低減効果は、数 dB 程度であることがわかる。

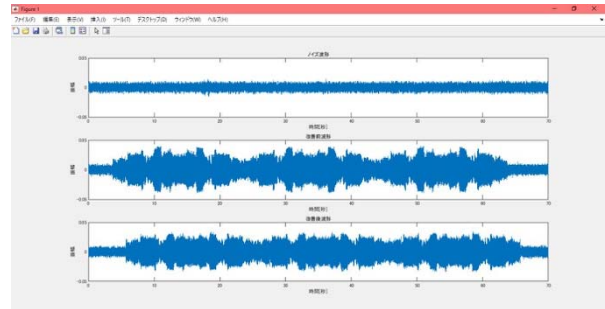


図 2-5 横移動時の音源波形

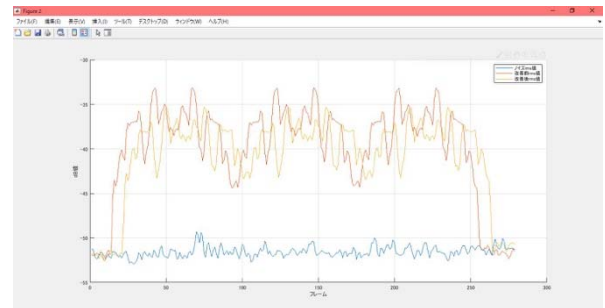


図 2-6 横移動時の音圧(rms)レベル (dB)

次に図 2-7 に斜め移動時の音源波形を示す。上が暗騒音、中が補正前、下が補正後である。図から波形でも急激な音圧変化がかなり抑えられていることがわかる。図 2-8 から音圧変化の低減効果は、5dB 程度であることがわかる。

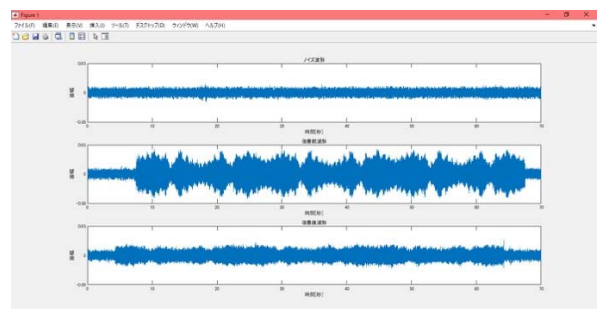


図 2-7 横移動時の音源波形

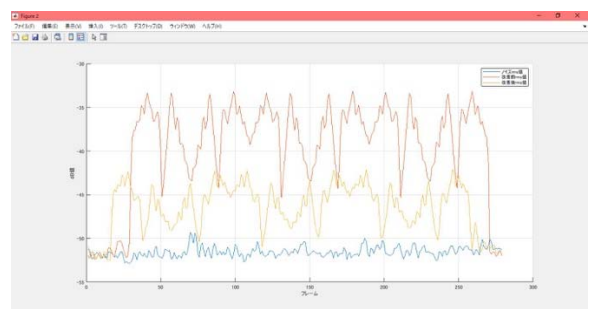


図 2-8 横移動時の音圧(rms)レベル (dB)



## 2. 4 今後の課題

移動音の再現における音圧の急激な変化は、移動感覚を乱す要因となっている。本検討において補正の効果がみられるものの、違和感は完全には解決されていない。例えば、直線的に移動しているにも関わらず歪んで移動しているように感じたり、急激に移動速度が変化する感覚が生じる。今後アルゴリズムの再検討も含め改善の必要性が残されている。

## 3. 立体音響を用いた注意誘導効果

前報<sup>(1)</sup>において、奥行き感のある移動音による注意誘導の有効性と可能性について報告した。そこで、引き続き移動音による注意誘導効果の基礎検討を行った。

本論において注意誘導とは何かしらの対象に意識が向いている状態から他の対象へ意識を向けさせる、または注意の配分を変えさせることを指す。例えば自動車運転中は、前方車両をはじめ、信号、歩行者、曲がり角、各種メーターなど様々な対象を見る必要があり、通常はその時々で必要なことに集中している。その通常状態から危険を知らせることによって注意の配分を変えさせる様な場面を想定する。

聴覚的情報呈示方法において、立体音響を用いることで、従来実現しえなかった臨場感やコミュニケーションサービスが可能になると期待されている。立体音響を用いた情報呈示方法の一つとして、高尾<sup>(3)</sup>は、聴覚、音声情報に空間的な意味づけを行い、これを車載情報機器から呈示する手法を提案した。そして音源数が増えた場合に情報獲得の向上が見られるという報告を行った。これらのことから、立体的な音を用いれば臨場感や奥行き感と言ったリアルさを運転手に感じさせ、従来の刺激より誘導効果を得られる可能性が期待されていた。

実際、前報<sup>(1)</sup>において4ch(図3-1)の誘導音による情報呈示を行い、注意誘導効果を検討した結果、移動すること、音が存在していること(持続)の効果が示された。しかし、奥行き感の効果については強い効果としては示されなかった。さらに、眼球運動測定を用いることにより、誘導による誘導時の注意を妨害しないことや、誘導効果が出るのは実施に目が移動してからの判断に大きく影響している可能性が示唆された。つまり、誘導によって尚早に注意を変化させるのではなく、事前準備として待ちの状態を確保し、事が生じてからの判断や動作開始までの時間を速くしている可能性が示された。しかし、移動音、特に奥行き方向の動きや奥行き感、引き込まれ感の有用性は示唆されるもの、明確には示されていない。

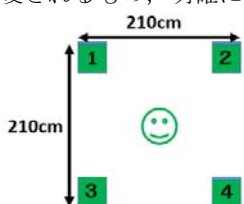


図3-1 スピーカー配置図

そこで本年度、これらの課題について取り組んだ結果について、まず、仮想的な移動音の聞こえを実験により検討する。次に、奥行き間のある移動音の注意誘導効果を検証する。

### 3. 1 実験1(方向知覚基礎実験)

日常の中では音が多く存在し、聴覚によって知覚している。聴覚による知覚が生じる時、音に対して反応するまでに一定の時間を要する。一般に反応時間とは、何らかの感覚刺激が与えられてから反応として確認されるまでの時間のことであり、聴覚の反応時間とは、音が知覚されてから、運動などの反応が確認されるまでの所要時間である。また、反応時間は、知覚情報処理部分(知覚までの時間)と運動反応部分(運動時間)に分けて考えることができる。そのため、単純反応時間は知覚時間と運動時間の和として表すことができる。一方選択反応時間は知覚時間と運動時間だけでなく識別する時間が加わると考えると、識別する時間は、選択反応時間から単純反応時間を引いた時間となる。聴覚の反応時間について、高岡ら<sup>(4)</sup>は、ヘッドホン聴取による純音 1kHz、白色雑音、母音[a]を検査音とした反応検査実験によって単純反応時間(音が出たら反応)と選択反応時間(純音 1kHz、白色雑音、母音[a]の指定されたものが呈示されたら反応)の計測を行い、単純反応時間は 186ms、選択反応時間は 283ms という結果から、識別時間は約 100ms であると示した。

音の移動や移動方向判断においては、移動を知覚するまでに要する時間はどのくらい必要であるのか、移動方向を知覚するためにはどのくらい時間が必要であるのか、などは不明な点が残されている。

そこで、移動の知覚が生じる時間や移動音の方向の判断の時間を計測することで方向判断に要する識別時間を明らかにすることができるのではないかと考えた。本研究では、音の移動変化の知覚にかかる時間を単純反応時間、音の移動方向判断にかかる時間を選択反応時間とし、音の移動変化と音の移動方向を判断する反応時間を計測することで、音の移動を識別する時間を明らかにする。これにより音の移動判断過程について、音の移動時間、音の移動方向、音の移動距離の違いから音の移動知覚の生じる時間の変化について検討する。

#### 3. 1. 1 実験方法

**実験環境と装置:** 実験は工学院大学 B-0627 教室内の簡易防音室の中で行った。D/A 変換機(TASCAM USB オーディオ/MIDI インターフェース US-20×20)を用いて誘導音を4台のスピーカーから呈示した。スピーカーは図1のように1番2番のスピーカーが置いてある辺を前方とし、1辺220cmの正方形の四隅に1番と3番、2番と4番がそれぞれ向かい合うように設置し、被験者はその対角線の交点に座った。視覚刺激を呈示するディスプレイ(PHILIPS BDM4350/11[42.51インチ])は、被験者の正面に70cmの距離に設置した。

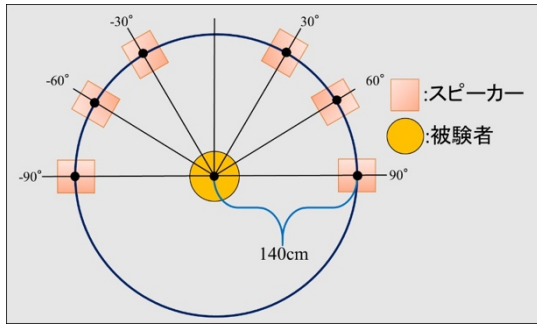


図 3-2 スピーカー配置図

**刺激：**

刺激には、森川らが示した音源定位に必要な周波数成分が含まれている帯域となる 2kHz~12kHz の帯域制限雑音を白色雑音からバンドパスフィルタを用いて作成した。2つのスピーカーの音圧変化が開始され、先行スピーカー(1)の音のレベルの減少開始から先行スピーカー(1)の音が終了するまでを移動時間とし、移動時間は 0, 400, 800, 1200ms の4条件とした(図 3-3)。また、音圧変化が開始されるまでの待ち時間(1つ目のスピーカーのみ音が呈示される時間)を 800, 900, 1000ms の3種類とした。

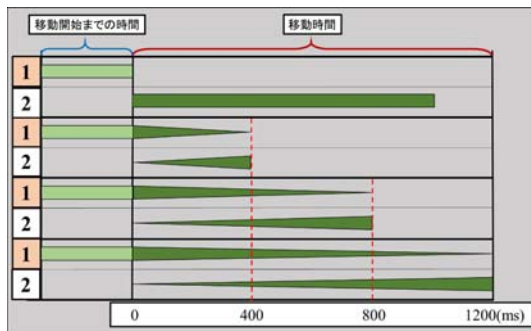


図 3-3 刺激波形模式図

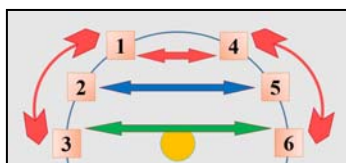


図 3-4 移動方向模式図

刺激音の移動方向は、図 3-4 に示す矢印間を移動する 10 種類とした。この時、移動方向が 1<->4, 1<->3, 4<->6 では直線距離 140cm(図 8 赤矢印), 2<->5 では直線距離  $140\sqrt{3}$ cm(図 8 緑矢印), 3<->6 では直線距離 280cm(図 8 青矢印)となる。この 3 種類を移動距離条件とした。

**被験者：**被験者は 20 代の正常な視力、聴力を有し、当日の健康状態が良好な工学院大学男子学生 10 名であった。

**手続き (移動知覚)：**被験者には、姿勢を正して中央の椅子に座ってもらい、なるべく頭を動かさないように指示した。被験者は、音が呈示され、その音が「移動した」と感じた瞬間になるべく速くボタンを押下するよう指示

された。ボタンは、テンキーボードの 5 キーを 1 回押下するように指示した。刺激呈示からキー押下までの時間を計測し、その刺激の移動開始までの待ち時間を差し引いた時間を反応時間とした。

**手続き (方向知覚)：**被験者には、姿勢を正して中央の椅子に座ってもらい、なるべく頭を動かさないように指示した。被験者は、音が呈示され、その音が「右方向か左方向のどちらに移動したか」なるべく速くボタンを押下するよう指示された。ボタンは、テンキーボードの 4 キーと 6 キーを使用し、「右方向」なら 6 キー、「左方向」なら 4 キーを 1 回押下するように指示した。図 3-5 に方向を示す。刺激呈示からキー押下までの時間を計測し、その刺激の移動開始までの時間を差し引いた時間を反応時間とした。

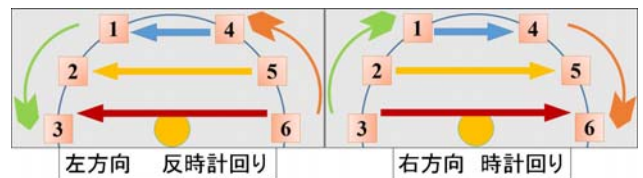


図 3-5 移動方向模式図

**3. 1. 2 実験結果**

図 3-6 に移動知覚平均反応時間 (RT), 図 3-7 に方向知覚平均反応時間 (RT) を示す。ここで等距離群とは被験者を中心とした円周上を移動し距離が等しい群, 異距離群とは被験者の正面を中心に左右を異なる距離移動する群を表す(1-4/4-1 はどちらにも入る)。

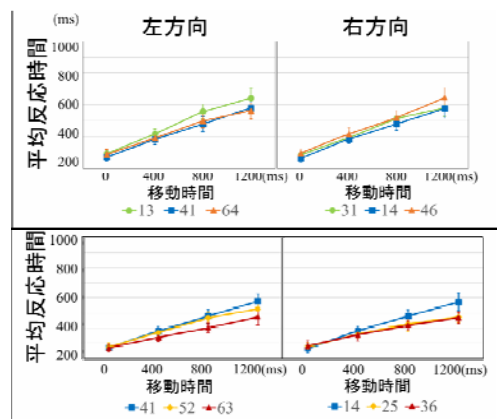


図 3-6 等距離群(上)と異距離群(下)群の移動知覚 RT

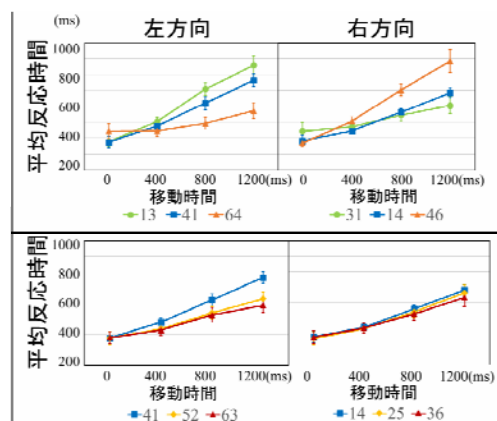


図 3-7 等距離群(上)と異距離群(下)群の方向知覚 RT



結果から、移動知覚は移動時間にほぼ比例して反応時間が遅れている。別途行った回帰分析（線形混合モデル）により、移動時間が 400ms 延びると 100ms 反応時間が遅れる傾向がある。また、移動距離が長くなる（移動速度が速くなる）と反応時間が速くなる傾向（3-6/6-3 が他より速い傾向）が若干あるがそれほど明確には現れていない。この分析の詳細は文献(小俣, 2019)に譲る。

一方、方向知覚は移動方向で大きく異なる結果となった。この違いについて次節で考察する。

### 3. 1. 3 考察

移動知覚については、移動時間にほぼ比例して反応が遅れ、移動距離の違いによって変化した。この結果は、移動知覚は、移動により音の方向(位置)の変化により、左右の耳に届く音圧レベル差(および音圧変化によって生じる音の移動距離)がある一定以上になることで生じると言える。

一方、方向知覚では、4-6/6-4 では4-6が、1-3/3-1では3-1が反応が速い。つまり、左右端から中心方向の方が、中心近辺から左右端に向けて外向きより、方向知覚が速いことを意味する。これは、本実験条件では、左右端から移動する場合には方向が一方向であることに関係していると思われるが、本実験では比較条件がないので確かなことは言えない。しかし、1-4/4-1 条件間(同じ位置の方向違い)の差は条件設定は対象であるので説明はできない。これについては予備実験として行った音の移動判断における移動元と移動先の同定実験においても、4 番のスピーカの同定率の方が 1 番よりも高く、非対称性がみられた。そこで、ダミーヘッドを用いて左右耳への到達音圧測定を実施した。その結果、1 番と 4 番のスピーカ間で音圧レベルを対称的に変化させた場合に、音圧測定値にダミーヘッドの左右に音圧レベルの非対称性は見られなかった(図 3-x)。しかし別の実験からダミーヘッドを正面方向から 5 度傾けただけでも大きく変化することが確認されている。したがって、被験者の頭の向きが正面からすこしずれるだけで結果に影響を与えることは事実であり、検討を要することがわかっている。

### 3. 2 実験 2 (奥行き感覚による注意誘導)

実験 2 では、注意誘導に用いる移動音の奥行き感が誘導効果を高めるかを検証する。音の動きをシンプルに表現するため、2ch を用いて仮想的に奥行きのある移動音を作成し、奥行き感が誘導効果を高めるのかを実験により検証する。

#### 3. 2. 1 実験方法

**被験者：**被験者は 20 歳から 23 歳までの正常な視力、聴力を有し、当日の健康状態が良好な工学院大学学生 8 名(男性 6 名女性 2 名)であった。

**実験環境と装置：**実験は工学院大学 B-0627 教室内に吸音材を張り巡らせた簡易防音室の中で行った。図 3-8 に実験状況を示す。

**刺激：**聴覚誘導刺激として 2ch によるものを使用した。誘導条件として、Caug 三和音を実験に用いた。

移動条件は、(1)音が移動しない、(2)音がターゲット刺

激の呈示される方向に移動するものの 2 種類用意した(左右は対称であると仮定)。

誘導音は、全てのスピーカーにおいて、Caug の定常音が 500ms 間 65dB(A 特性レベル)で呈示され、その後、(条件 1)中央からの音は消え、移動先のスピーカーから 1500ms かけて一定減少する音(条件 2)移動先で 500ms 定常音が流れた後、1500ms かけて一定減少する音に、移動しない条件を加えた 3 条件であった(図 3-10)。



図 3-8 実験風景 (ダミーヘッドは誘導実験後に測定のために用いたもの)

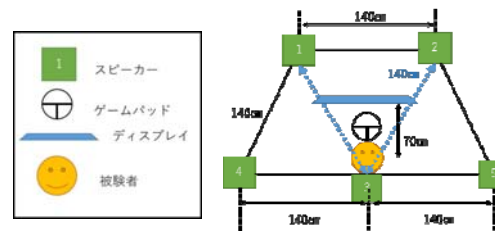


図 3-9 スピーカー配置

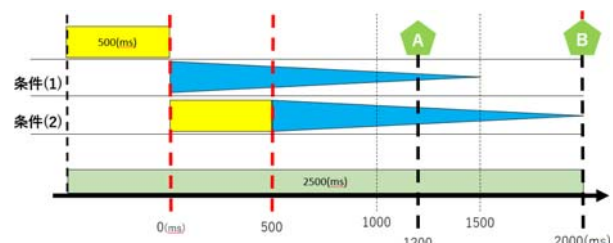


図 3-10 誘導音とターゲット呈示タイミング

**ターゲット刺激：**ターゲット刺激には五角形を用意した。ターゲットの呈示タイミングは音が移動し始めてから 1200ms, 2000ms の 2 種類である。なお、2000ms のタイミングでは、条件 1 では誘導音が消えてから 500ms 後にターゲット刺激が呈示される。

**手続き：**実験手順を図 3-11 に示す。ディスプレイに自動車走行時のフロントガラスからの風景画像(CG)を背景として呈示した。被験者は、姿勢を正して図 3-9 に示した位置に置いた椅子に着座し、ハンドルを握った状態でアクセルペダルを踏み続け、画面の中央の前方に位置する先行車を見るように教示された。その後、画面の左右どちらかにターゲット刺激が呈示された。被験者にはターゲット刺激が上向き(図 3-11, 右)のときのみアクセルペダルから足を離し素早くブレーキペダルを踏んでもらい、下向き(図 3-11, 左)の五角形だった場合アクセルペダルを踏み続けてもらった。

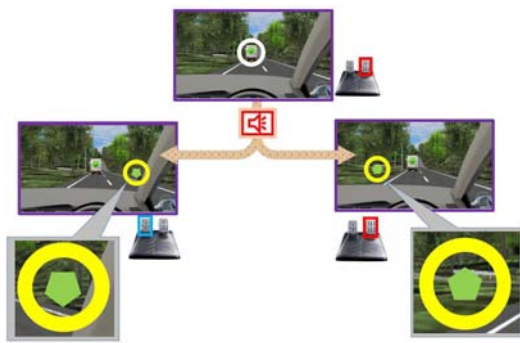
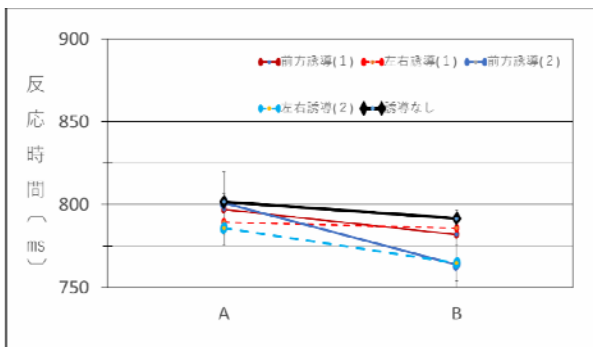


図 3-11 実験手順

### 3. 2. 2 実験結果

解析においては、左右の方向、前方左右斜め、移動無しの3条件を誘導音条件とし、左右対称への移動方向は同じデータとして扱った。なお、解析には、上下判断が正しくできたときだけのデータを用い、反応時間はターゲット刺激が呈示されてから被験者がブレーキペダルを踏むまでの時間とした。



### 3. 2. 3 考察

被験者によって誘導されやすい方向があることが示され、その方向への誘導には有意な効果が確認された。このことは、誘導効果は方向によって差があり、さらに被験者によって誘導効果がある方向が異なることが示唆された。

また、誘導中でなく誘導終了間際のみ効果が認められた。これは、奥に引き込まれる感覚がする誘導音においては、音の移動に対するターゲットの出現タイミングによって誘導効果が異なることを示している。

さらに、被験者によって誘導されやすい方向があることが示された。事後検証として、ダミーヘッドによる左右音圧レベルを測定した結果、ダミーヘッドが正面方向から5度ずれるだけで大きく左右のレベルに影響することが示された。運転中の危険を知らせる為の誘導音を考えると、常に前だけを見て頭を固定して動かさないように運転することは不可能である、その為このままでは正しく誘導することが出来ず注意誘導を行うことは困難であり、誘導音やタイミングをさらに検討する必要がある。また、実験環境として視覚呈示用のモニターを設置したがこれも方向定位や音の移動知覚に影響を及ぼしている可能性が高いことも示され、今後の課題である。

### 3. 3 実験3 (VR シアタでの方向定位の検討)

本実験の目的は、実験 1、2 で明らかとなった移動音知覚の不安定性について検討するため、部屋の音響特性が安定している VR シアタにて、仮想的移動音の知覚を反映する左右耳の音圧レベル差を検討する。

#### 3. 3. 1 実験環境

実験環境は、本報告の第 1 章で示した VR シアタにて、実験 1、2 で用いた円周上に並べたスピーカーを用い、ダミーヘッドによる音圧測定を行なった。スピーカー配列図を、図 3-12 に示す。

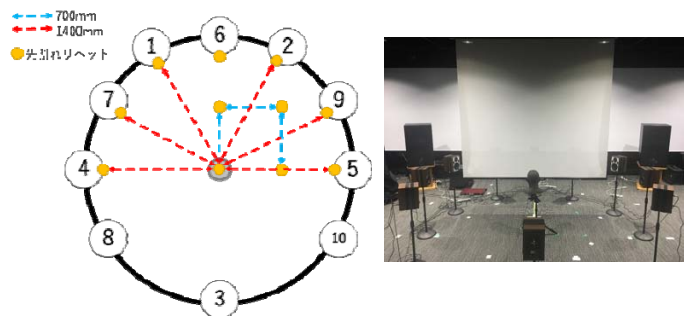


図 3-12 スピーカー配列図(左)、測定風景(音響透過スクリーンおよびダミーヘッド有)(右)

また、図 3-13a に実験環境、図 3-13b に配置のために用いた墨出しレーザーを示す。

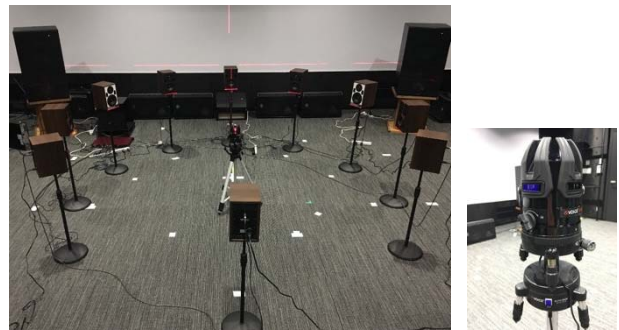


図 3-13 a) 実験環境(レーザー表示付き)、b) 墨出しレーザー

#### 3. 3. 2 測定結果

測定は、まず、本章で結果を示した実験 1 の条件 (ディスプレイなし、1-2 間、1-4 間、2-5 間、7-9 間、4-5 間を、仮現運動、400ms、800ms、1200ms で移動) で測定した。また、実験 2 に対応する条件では、ディスプレイなし、ディスプレイ有り、音響透過スクリーン有りの 3 条件で、後方 3 番から他のスピーカー全ての方向に移動させた。この音環境で、ダミーヘッドを正面、左へ 5 度、10 度、20 度回転させて録音し、左右の音圧レベルを測定した。ここでは、実験 1 については、どの条件も左右でのアンバランスはほとんど見られなかったため、実験 2 に対応して、各条件下で、後方 (3 番) から左前方 (1 番) へ移動させたときの結果のみを示す。

図 3-13a, b, c に、3-1 間を 1500ms かけて移動させたときのディスプレイなし、ディスプレイ有り、音響透過ス

クリーン設置時の結果を示す。

ここに示した状況は、後方中心（つまり音源から左右等距離）から左前方へ音が移動する。但し、音が物理的に移動するわけではなく、単に、3番と1番のスピーカーの出力レベルバランスが変化しているに過ぎない。

図からわかるように、移動開始当初は左右のレベル差は小さく状況に応じた聞こえが期待できる。移動中途まで同様の状態が続いた後、音圧レベルバランスが左側が大きくなっており、相対的に左へ移動して聞こえるようになることが期待できる。これは、次第に音の中心が左側へ移動し、つまり、1番のスピーカーの出力が上がるにつれて左耳に届く音圧レベルは上昇するが、逆に右耳は頭の影になってしまうため、右耳の音圧レベルは下がる傾向が続くと説明可能である。しかしここで、図のb)に示されているディスプレイが存在する状況では、左耳に届く音の音圧レベルの上昇がみられない。これは、ディスプレイからの反射音が耳に届くため、全体的な音圧レベルが大きく、左右差も顕著には現れない。よってこの場合、被験者には、実験者が意図した動きには聞こえないと予想される。一方、音響透過スクリーンの存在はほとんど影響を与えてないことがわかる（図3-13a, c）。

次に、図3-14a, b, cに、上と同じ条件で、ダミーヘッドの向きを少しだけ変化させたときの測定結果を示す。

ダミーヘッドを左に5度ずらすことは、首を5度回したのと同じであり、与えた音（誘導音）の方向や移動が

分かりづらい状況になる可能性が高い。図3-15a, cにみられるように、左側のレベルが最初から高い。さらに、ディスプレイがある状態では、与えた音（誘導音）の方向や移動を知覚するのは難しいことが予想される。

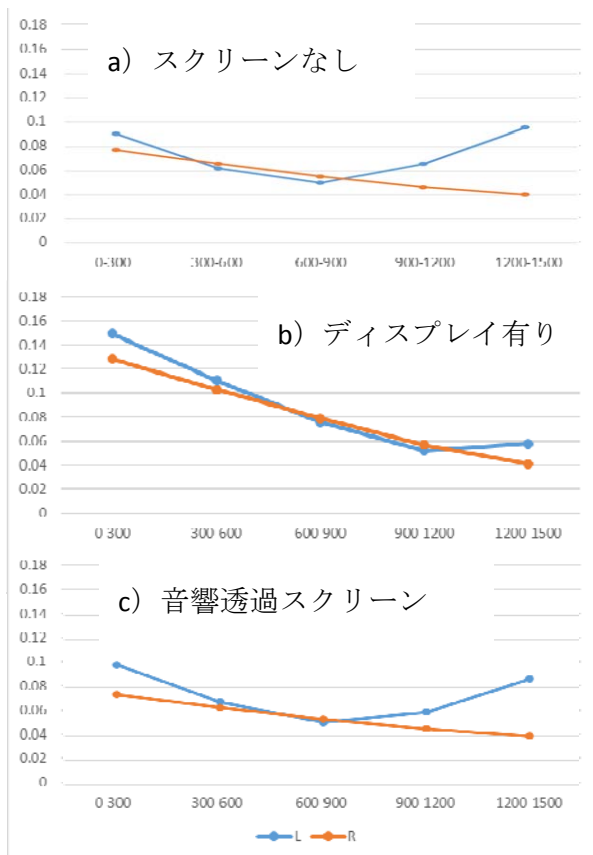


図 3-14 音圧レベル測定結果（正面）

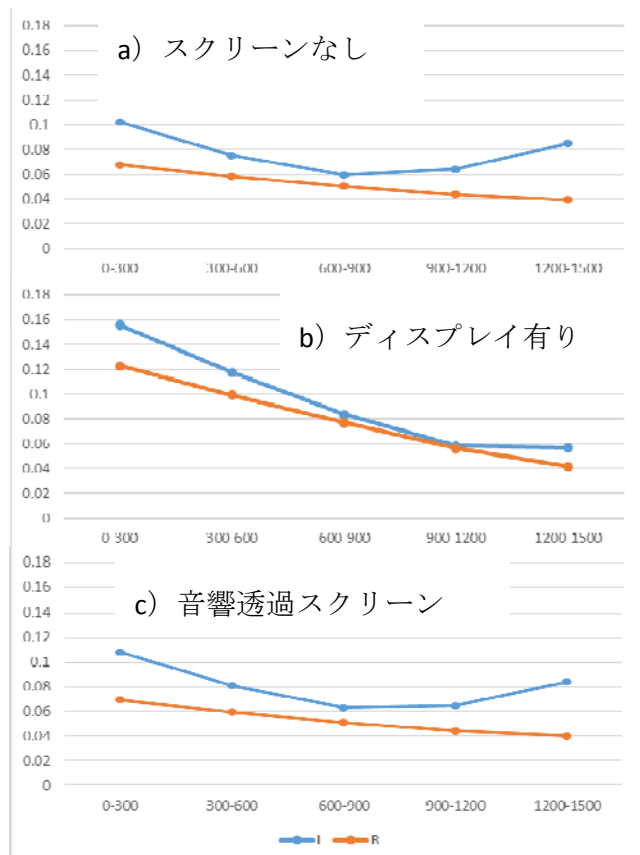


図 3-15 音圧レベル測定結果（左へ5度）

#### 4. 体性感覚フィードバックに関する基礎検討

本プロジェクトでは自動運転時に生じる“望ましい運転状態からの身体的乖離”を迅速に解消するための要素技術として体性感覚フィードバックについて引き続き検討を進めている<sup>(5,6,7)</sup>。

人間が空間を知覚する際、物理量と心理物理的な感覚量との間にズレがあることが知られている。例えば、視覚においては Helmholtz のホロプターとよばれる現象がよく知られている<sup>(8)</sup>。これは目の高さと同じ平面上において、心理物理的に等距離となる点の分布が物理的なものとは必ずしも一致しない現象である<sup>(9)</sup>。他方で人間の空間知覚は視覚によるもののほかに、体性感覚を通しても行われている。筆者らが行った研究<sup>(5,6,7)</sup>より、体性感覚を用いた空間知覚においても肩峰点を中心として物理的に等距離となる点の分布と心理物理的に等距離となる点の分布の間にズレが生じていることがわかり、さらにこの分布は重力加速度といった外的要因の影響を受けることも示唆された。

本章では、体性感覚による操作ターゲット位置の把握が（重力）加速度方向の変化によってどのような影響を受けるかについて明らかにするため、昨年度実施した「立位条件」、「仰臥位条件」に「伏臥位条件」、「右横臥位」、「左横臥位」を加えた 5 姿勢について空間知覚の差異を検討した結果について述べる。

##### 4. 1 実験

###### 4. 1. 1 実験参加者

20～25歳の学生、のべ15名を対象に実施した。すべての参加者の利き手が右手であることインタビューより確認した。実験の実施にあたり研究の趣旨について説明を行い同意を得た。

###### 4. 1. 2 実験手順

重力加速度および姿勢変化による影響を検討するため、立位状態で水平面へのポインティングを行う「立位条件」、立位条件と同様の位置関係を異なる角度で行う「伏臥位条件」、「仰臥位条件」「右横臥位」「左横臥位」の合計 5 姿勢で比較を行い、姿勢条件ごとに 3 名が実験に参加した。図 4-1 はポインティング課題を行う面と参加者の位置関係を表した模式図となっており、原点には直径 4mm の球を取り付け、その両側にはグラフィックテープを取り付けた。肩峰点の位置が原点の正面となる位置で、原点より垂直方向 20cm 上方、水平方向に 25cm 後方となるよう統制した。

前述の各姿勢となり、アイマスクを取り付けた後、原点に右手第 2 指を移動させ、原点と原点から 15cm または 25cm となる位置を交互に繰り返しポインティングを行うよう口頭で指示した。深部感覚の特性及び姿勢による影響を把握するために、ポインティングを行う際には原点を探す場合を除いて面の上を滑らせずに一度でタッチするように教示した。また、時間の経過によりズレが

大きくなるとされるドリフト<sup>(10)</sup>現象の影響を相殺するために、各条件での計測において原点の左側から右側へポインティングを行うタスクと右側から左側へポインティングを行うタスクの 2 種類をすべての参加者に対してランダムに課した。また順序が与える影響を相殺するために 15cm のタスクを先に実施する参加者と 25cm のタスクを先に実施する参加者が半数ずつとなるように設定した。

タスク遂行中の動作計測にはモーションキャプチャ (VENUS3D, 株式会社ノビテック) を用いた。マーカーは右手第 2 指の爪先端の表面に取り付け、フレームレートは 100Hz とした。

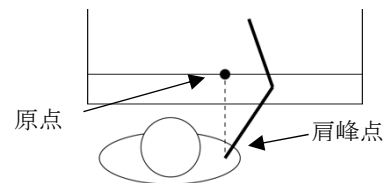


図 4-1 ポインティング課題の模式図

本実験では、参加者がタッチした場所と原点との直線距離を基に知覚距離の分析を行った。対象となるポインティング位置によって分布傾向を検討するために原点から右側に伸びる直線を基準として、 $0^{\circ} \sim 60^{\circ}$ 、 $60^{\circ} \sim 120^{\circ}$ 、 $120^{\circ} \sim 180^{\circ}$  の三方向に分割し、検討することとした。分析には「姿勢」と「角度」を要因とする繰り返しのある二元配置分散分析を行った。

###### 4. 1. 3 結果と考察

各条件における原点から回答位置までの距離の平均を角度毎に示したのが、図 4-2 である。

分散分析の結果、15cm タスクでは姿勢 ( $F(4,363)=25.4$ ,  $p<0.01$ ) と角度 ( $F(2,363)=3.58$ ,  $p<0.05$ ) が主効果として確認され、交互作用は見られなかった。Tukey-Kramer 法による多重比較を行った結果、右横臥位と左横臥位、立位と仰臥位以外の組み合わせで有意差が見られ ( $p<0.01$ )、角度においては  $0^{\circ} \sim 60^{\circ}$  と  $120^{\circ} \sim 180^{\circ}$  の間で有意差が確認された。

25cm タスクでは姿勢 ( $F(4,435)=52.9$ ,  $p<0.01$ ) と角度 ( $F(2,435)=2.67$ ,  $p<0.05$ ) が同様に主効果として確認され、交互作用は見られなかった。Tukey-Kramer 法による多重比較を行った結果、右横臥位と左横臥位、右横臥位と立位、左横臥位と立位以外の組み合わせで有意差が見られ ( $p<0.01$ )、角度においては  $60^{\circ} \sim 120^{\circ}$  と  $120^{\circ} \sim 180^{\circ}$  の間で有意差が確認された。

15cm タスク、25cm タスクともに伏臥位において回答距離が短くなり、仰臥位において回答距離が長くなっている傾向が見られた。

また、 $120^{\circ} \sim 180^{\circ}$  においても距離が長くなっていることが確認された。そのため、姿勢変化による重力加速度の向きや、体幹へのひねりといった負荷の大きさが回答距離に影響しているものと考えられる。本稿では紙数の制約から割愛するが、予備的検討として腕に重量物を取



り付けた状態で実施した実験では、負荷の有無 ( $F(1,198)=3.49, p<0.10$ ) が主効果として有意傾向が示されている。これらの結果より、重量物を取り付けた状態でポインティング課題を行うことで、回答距離が長くなっており、距離知覚への影響が示唆された。

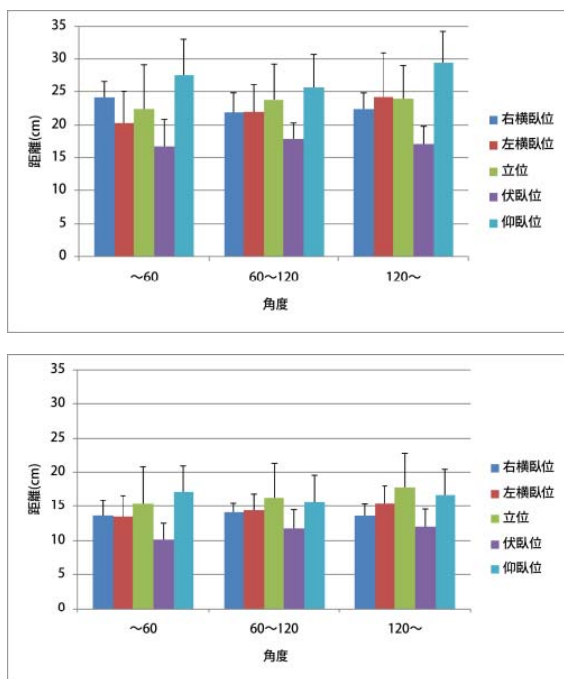


図 4-2 姿勢毎の平均ポインティング距離 (上: 15cm, 下: 25cm)

#### 4. 2 まとめ

実験結果より、負荷が距離知覚に影響を与えていることが示唆された。今後は負荷の種類を増やすことで負荷と距離知覚の関係性について検討を行う予定である。

なお、立位と仰臥位の比較においては、触覚的な手掛かりにより回答距離を提示した筆者らの先行研究<sup>(5)</sup>では、回答距離が短くなった。それに対して、今回の実験では仰臥位において回答距離が長くなっている。条件の提示方法によって、回答距離が異なっていることは既往研究<sup>(11)</sup>でも報告されている。今後は提示方法が回答距離に与える影響も考慮する必要があると考えられる。

#### 参考文献

- (1) 近藤公久, 中島弘史, チャンドラシリ, 内海章, 須佐見憲史, “体性感覚と視聴覚刺激を組み合わせた行動誘発メカニズムに関する基礎検討,” 総合研究所プロジェクト研究報告書, 25, 工学院大学総合研究所, (2018).
- (2) 松井 健太郎: 家庭用 22.2 マルチチャンネル音響再生システム, NHK 技研 R&D, No.148 (2014-11) pp. 45-54.
- (3) 高尾秀伸: 立体音響を用いた車載情報機器の音声ユーザーインターフェースの研究, 早稲田大学大学院, 人間科学研究科, 博士学位論文 (2003).

- (4) 高岡 佳弘, 長谷川 賢一, 堀内 和之, 岡本 途也, “聴覚の反応時間測定法に関する研究”, AUDIOLOGY JAPAN, 27 巻 5 号 p.609-610, 1984.
- (5) 永井正太郎, 須佐見憲史, 内海章, 山下久仁子, 岡田 明, “体性感覚版ホロプターに関する予備的検討,” 電子情報通信学会技術研究報告. MVE, vol. 118, no. 211, pp.49-52, Sep. 2018.
- (6) 永井正太郎, 内海章, 山下久仁子, 岡田明: 体性感覚版ホロプターに重力加速度が及ぼす影響, 人類働態学会第 43 回西日本地方会, 2018 年 12 月.
- (7) 永井正太郎, 内海章, 須佐見憲史, 山下久仁子, 岡田明: 姿勢変化が体性感覚版ホロプターに与える影響の分析, 信学技報, vol. 118, no. 502, MVE2018-84, pp. 179-182, 2019 年 3 月.
- (8) H. V. Helmholtz, “Treatise on physiological optics, ed. J. P. C. Southall, Section 31, Dover Publications, Inc., New York, 1925.
- (9) 大倉典子, 前田太郎, 館暲, “人間の空間知覚特性-ホロプタとアレイの知覚-, ” 日本バーチャルリアリティ学会論文誌, vol.9, no.1, pp.41-49, 2004.
- (10) J. P. Wann and S. F. Ibrahim, Does limb proprioception drift?, Experimental Brain Research, vol.91, pp.162-166, 1992.
- (11) 呉景龍, 三宅俊生, 西川禎一, “人間視触覚の空間距離知覚特性について,” システム制御情報学会, vol.13, no.8, pp.360-368, 2000.

## Ⅲ族酸化物半導体を用いた深紫外線センサーの開発

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

工学院大学 先進工学部 応用物理学科 本田徹

Institut Jaume Almera, Spanish National Research Council (CSIC), Spain, Luis Artús  
School of Semiconductor and Chemical Engineering, Semiconductor Physics Research Center,  
Chonbuk National University, Korea, Jaehee Cho

Development of Deep UV Photosensor using III-VI Oxide Semiconductor

Takeyoshi Onuma, Department of Applied Physics, Kogakuin University

Tomohiro Yamaguchi, Department of Applied Physics, Kogakuin University

Tohru Honda, Department of Applied Physics, Kogakuin University

Luis Artús, Institut Jaume Almera, Spanish National Research Council (CSIC), Spain  
Jaehee Cho, School of Semiconductor and Chemical Engineering, Semiconductor Physics Research  
Center, Chonbuk National University, Korea

**ABSTRACT** : Epitaxial growth, fundamental material property, and their correlation with the device performance were consistently studied to realize functional deep UV photosensor using III-VI oxide semiconductor. By stacking thin  $\alpha$ -(Al<sub>0.04</sub>Ga<sub>0.96</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> film on the  $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-based metal-semiconductor-metal type solar-blind deep UV photosensor, maximum responsivity of 0.2 A/W was achieved with maintaining reduced responsivity drop in the short wavelength region.

### 1. 背景と目的

波長 300 nm 以下の深紫外線光源は、殺菌・医療、公害物質の高速分解処理などへ応用されている (図 1 参照)。現状では、水銀灯が主流であるが、エネルギー効率が悪い上に大型の電源も必要になることから使い勝手は決して良いものではない。また、2013 年 10 月 10 日に熊本県で開催された国連環境計画 (UNEP) の外交会議で、水銀汚染防止に向けた国際的な水銀規制「水銀に関する水俣条約」が採択された。2017 年 8 月 16 日に発効された当条約によって、水銀を使った製品の製造・輸出・輸入が原則禁止となり、水銀使用製品の撤廃に向けた社会的

努力が研究者に求められている。

本研究では、発光デバイスの双璧をなす受光デバイスに焦点を当てる。特に波長 280 nm 以下のセンサーは、地表に届く太陽光には含まれていないためソーラーブラインド検出器と呼ばれる。当該波長の発光は、炎に含まれるため、火災センサーとしての利用が考えられる。また、人体に有害な紫外線検出、オゾンホール観測、発光デバイスの制御回路や、深紫外線通信用の検出器などへの応用も考えられる。

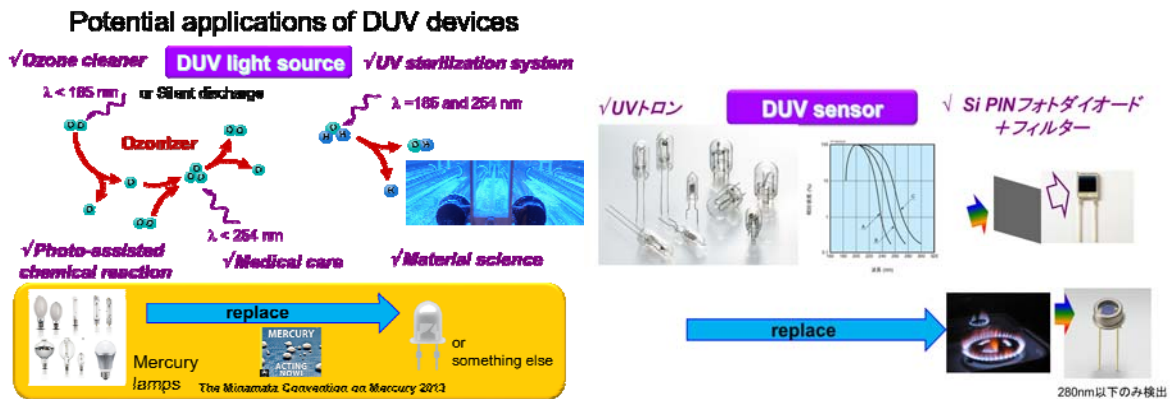


図1 期待される深紫外線デバイスの応用展開

現状の深紫外線センサーは光電子増倍管、UV トロンが主流であるが高電圧電源が必要となり小型化はできない。安価なものとして、Si PIN フォトダイオードとフィルターを組み合わせたものもあるが、感度、応答性が悪い。

代替の第一候補として、III族窒化物半導体系のAlGa<sub>2</sub>Nの利用が考えられる。実際、デバイス製作が国内外の機関で盛んに行われている。しかし、AlGa<sub>2</sub>NのAl組成が高くなると、高品質結晶を得るための結晶成長が格段に難しくなり、デバイス特性が劣化する。

そこで、本研究ではIII族酸化物半導体に着目している。Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>を中心とするIII族酸化物半導体は、図2に示すように、バンドギャップエネルギー ( $E_g$ ) が8.5 eV (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) から3.8 eV (In<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) と、紫外線領域に広く分布している。波長300nm以下では、III族窒化物半導体で結晶成長が非常に難しい高Al組成AlGa<sub>2</sub>N混晶が必要となるが、III族酸化物半導体では、バンドギャップ波長が240 nm付近の酸化ガリウム (Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) をベースとしてデバイスを製作できるメリットがある。

Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は5種類の結晶多型をもち、β-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は融液成長法による大型単結晶基板作製が可能であり、イオン注入による電子濃度制御もできることから、高耐圧、低損失のパワーデバイスを低コスト・低エネルギーで製造できる材料として世界中の研究者から注目を集めている。本

研究で注目するα-Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>は、単結晶基板は得られないが、ミスト気相成長 (CVD) 法を用いることでAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>からIn<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の全ての混晶組成領域でエピタキシャル成長を行うことができる。ミストCVD法は、安全かつ省エネルギーであり、装置構成が簡素なため、デバイス製造の低コスト化に貢献する成長技術として注目を集めている。

以上のような背景から、本研究では、図3に示す共同研究体制のもとで、以下の項目に関する研究を行うことを目的とする。

- ① Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>材料を中心としたIII族酸化物半導体の結晶高品質化
- ② 材料物性情報の乏しいIII族酸化物半導体の基礎物性評価
- ③ 比較として、高Al組成AlGa<sub>2</sub>N材料を中心としたIII族窒化物半導体の結晶高品質化
- ④ III族酸化物半導体を用いた深紫外光センサーの製作とデバイス特性評価。またAlGa<sub>2</sub>N系センサーとの比較

深紫外半導体発光・受光デバイスは図1に示すように非常に大きな市場規模を有している。本研究では、新しい材料であるIII族酸化物半導体材料に着目し、その結晶成長、物性評価、そしてデバイス応用展開までを一貫して行う。

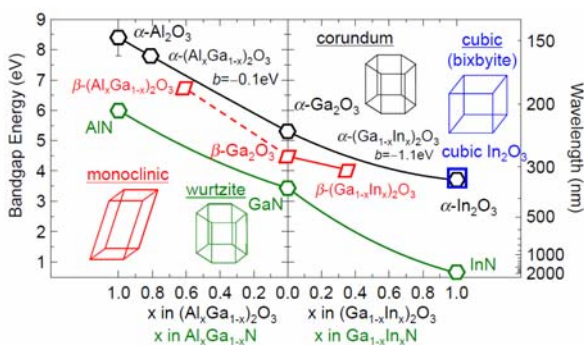


図2 III族酸化物・III族窒化物半導体のバンドギャップエネルギー

III族酸化物半導体を用いた深紫外線センサーの開発

<p><b>試料の準備・作製</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>○酸化物薄膜成長 (尾沼猛儀, 山口智広(工学院大))</li> <li>○(Al,In,Ga)N窒化物薄膜成長(比較サンプルとして) (本田徹, 山口智広(工学院大), Cho(Chonbuk National University))</li> </ul>	<p><b>結晶評価</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>○結晶構造・光学的特性解析 (尾沼猛儀(工学院大), Artus(csic))</li> </ul>
<p><b>デバイス製作</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>○デバイスプロセス, デバイス評価 (尾沼猛儀(工学院大))</li> </ul>	

図3 本研究課題の共同研究者とその役割



## 2. 研究成果

目的に掲げた各項目に対し、2018年度に行った研究成果として以下の4項目が挙げられる。

- ① Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 材料を中心としたⅢ族酸化物半導体の結晶高品質化
- ② 材料物性情報の乏しいⅢ族酸化物半導体の基礎物性評価
- ③ 高Al組成AlGa<sub>N</sub>材料を中心としたⅢ族窒化物半導体の結晶成長
- ④ Ⅲ族酸化物半導体を用いた深紫外線センサーの製作とデバイス特性評価

以下に、詳細を記述する。

### 2.1 Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 材料を中心としたⅢ族酸化物半導体の結晶高品質化

ミスト CVD 法により (0001)  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上への  $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の成長を行った。成長は、山口智広准教授、大学院生の力武健一郎君を主担当として実施した。Ga(C<sub>5</sub>H<sub>7</sub>O<sub>2</sub>)<sub>3</sub> 粉末を希塩酸溶液に溶解し、0.05 mol L<sup>-1</sup> の Ga 溶液を合成した。また、同様に Al(C<sub>5</sub>H<sub>7</sub>O<sub>2</sub>)<sub>3</sub> 粉末を希塩酸溶液に溶解し、0.05 mol L<sup>-1</sup> の Al 溶液を合成した。Ga 溶液に Al 溶液を 60、70、80 mol% と変化させて混合した。原料溶液をミスト発生装置(2.4MHz の超音波振動子)にて霧状にし、N<sub>2</sub> キャリアガスにより反応部へ輸送し 450°C で 30 分間成長した。

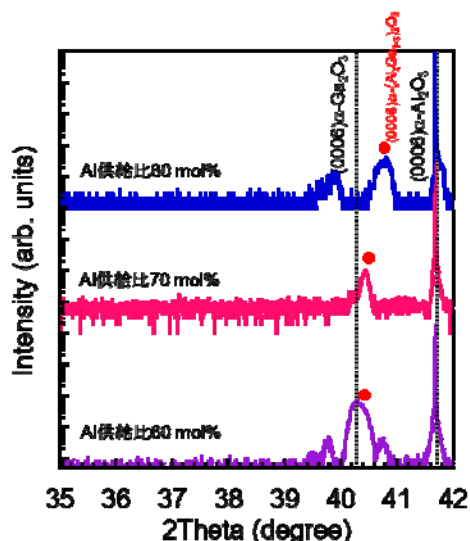


図4 (0001)  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上に成長した  $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の 2 $\theta$ - $\omega$ パターン

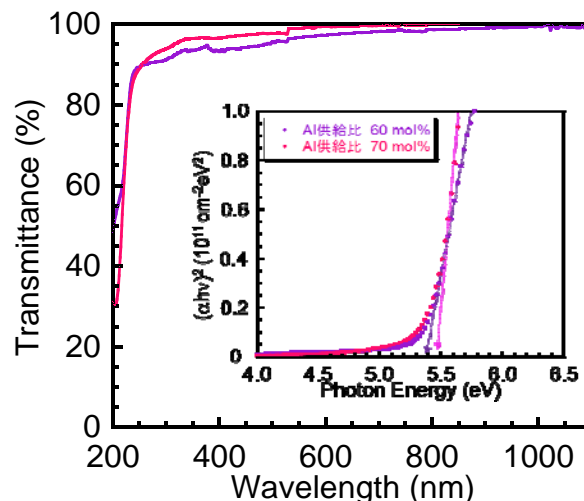


図5 (0001)  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上に成長した  $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の室温透過スペクトルと Tauc プロット

図4にX線回折の2 $\theta$ - $\omega$ パターンを示す。測定からAl供給比60、70、80 mol%で成長を行った薄膜試料でのAl組成はそれぞれ4、12、37%であることが分かった。また、断面SEM観察から成長レートは120 nm/h程度であることが分かった。図5に示すように、透過率測定から、Al組成が4、12%のとき、バンドギャップは、それぞれ5.4、5.5 eVと見積もられ、 $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の値(5.3 eV)に比べて増加していることが分かった。Al組成が37%の試料に関しては、透過率測定系が波長200 nm以上に限られているためバンドギャップを決定することができなかった。以上の結果は、ミストCVD法により $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜の成長に成功したことを示している。

### 2.2 材料物性情報の乏しいⅢ族酸化物半導体の基礎物性評価

深紫外線センサーの構造を設計する上で、材料の光学特性に関する情報は必要不可欠である。そこで、2018年度は、電界変調反射(ER)分光システムを構築し、 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>における励起子遷移構造を観測した。

ER法は、バンド構造を詳細に調査する上で大変有効な手法であるが、これまでに酸化ガリウムに適用した報告例は殆どない。そこで、まずは単結晶基板をベースとした $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ショットキーバリアダイオード用いてER法の観測を試みた。

測定に用いたショットキーバリアダイオードには、(001) Snドープ基板上にHVPE法によって成長した10  $\mu$ m厚、ドナー濃度1.7 $\times$ 10<sup>16</sup> cm<sup>-3</sup>のSiドープ層が、ドリフト層として設けられており、カソード電極にはTi/Au、アノード電極にはPt/Ti/Auが用いられている。光源には300 WのXeランプを用い、変調電界として-20 ~ -50 Vの矩形波を印加した。変調信号( $\Delta R/R$ )は、ロックイン増幅器を用いて検出した。測定は室温で行った。

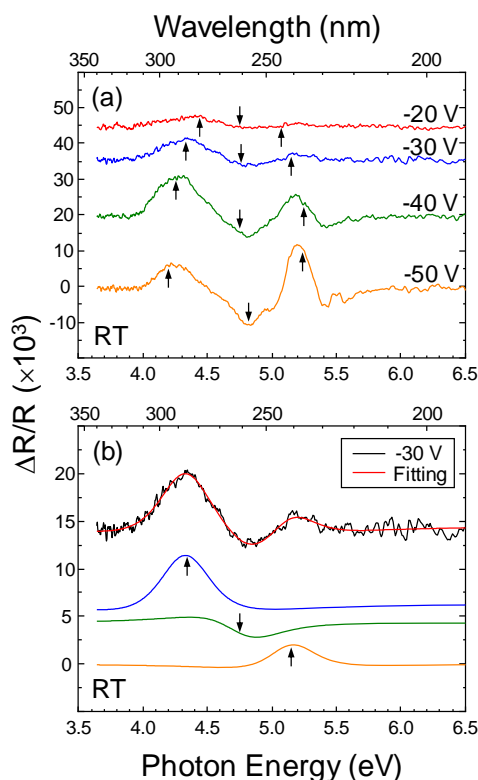


図 6 (a)  $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の室温における変調反射スペクトルと (b) -30 Vにおけるフィッティング結果

結晶の  $b$  軸が  $s$  偏光配置 (入射面に垂直) となるように配置して観測した ER スペクトルを図 6 (a) に示す。まず、全体のスペクトルをフランチ・ケルディッシュ (FK) 振動モデルで解析したが、結晶内部の電界として最大で 5.7 MV/cm と、極めて大きな値が見積もられたため、これらの波形は FK 振動に由来するものではなく、図 6 (b) に示すように、3 つの波形が重畳したものであると考えた。これらのうち、高エネルギー側の 2 つの成分は電界を変えても遷移エネルギーが殆ど変化せず、最も低エネルギー側の成分は遷移エネルギーが低エネルギー側に大きくシフトした。得られた遷移エネルギーの電界依存性を線形フィットした結果、三成分の 0 V における遷移エネルギーが、それぞれ  $4.57 \pm 0.03$  eV、 $4.71 \pm 0.04$  eV、 $4.96 \pm 0.05$  eV と見積もられた。最も低エネルギー側の成分は裾状態によるものと考えられ、後者 2 つの遷移エネルギーは、光の電場ベクトル  $E$  と  $b$  軸が平行なときの励起子遷移エネルギー [1] とよく一致した。また、最も高エネルギー側の遷移エネルギーは、変調電界の増加と共に誘電率の極大点 [2] に近づくことが分かった。以上の結果から、 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> でも、ER 法がバンド構造を調査する有効な手段であることが示された。今後は、 $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜で同様な測定を試みる予定である。

### 2. 3 高 Al 組成 AlGa<sub>N</sub> 材料を中心とした III 族窒化物半導体の結晶成長

AlGa<sub>N</sub> は、Al 組成を制御することで、Ga<sub>N</sub> のバンドギャップ 3.4 eV から AlN のバンドギャップ 6.0 eV までバンドギャップエネルギーを変化させることができる材料である。波長に換算すると 207~365 nm であり、深紫外線から近紫外線領域に相当する。RF プラズマ援用分子線エピタキシー (RF-MBE) 法による結晶成長は主に尾沼が担当し、有機金属気相成長 (MOCVD) 法による成長は Cho 博士が担当している。2018 年度は、尾沼が工学院大学に赴任して初めて、RF-MBE 装置を用いた結晶成長を開始することが出来た。まずはじめに、(0001)  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上へ 2  $\mu$ m 厚の Ga<sub>N</sub> 層を MOCVD 法により成長した Ga<sub>N</sub> テンプレート基板上へ、RF-MBE 法により Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 薄膜の成長を行った。窒素流量と RF 出力はそれぞれ 1 sccm、200 W とした。III 族原料の平衡蒸気圧は  $1.0 \times 10^{-7}$  Torr、成長時の圧力は  $2.0 \times 10^{-5}$  Torr とした。バッファ層として Ga<sub>N</sub> 層を基板温度 650°C で 20 min 成長した後、AlGa<sub>N</sub> 層を 700°C で 1 時間成長した。製作した試料に対し、XRD、分光エリプソメトリ (SE)、段差計、原子間力顕微鏡 (AFM) およびカソードルミネセンス (CL) 測定を行い評価した。SE 測定から Ga<sub>N</sub> バッファ層の膜厚は 150 nm、Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 層の膜厚は 100-200 nm と見積もられた。

図 7 (a) に (0002) 回折ピーク付近の  $2\theta$ - $\omega$  パターンを示す。成長した AlGa<sub>N</sub> 薄膜の膜厚は、臨界膜厚付近である

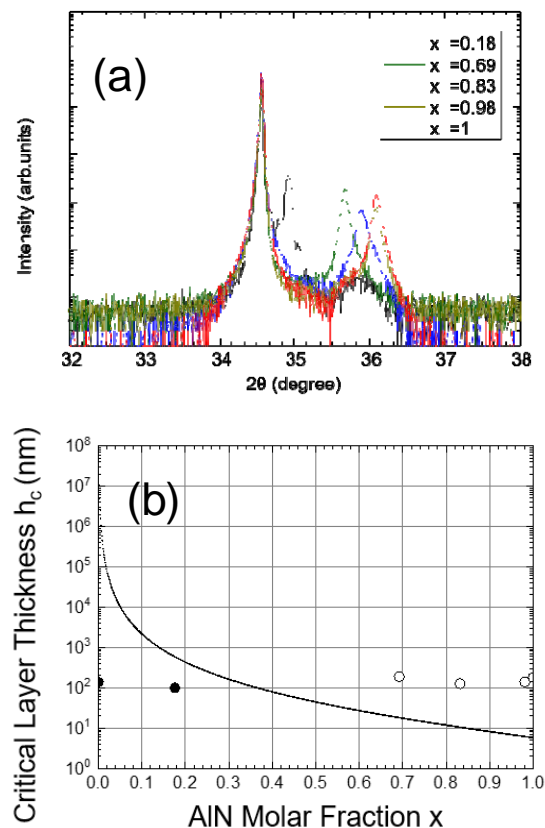


図 7 (a) (0002) 回折ピーク付近の Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 薄膜の  $2\theta$ - $\omega$  パターン、(b) People and Bean モデル [3] を用いて計算した Ga<sub>N</sub> 上の Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 成長における臨界膜厚 (実線) と成長した薄膜の膜厚 (丸印)。

ことから、面内の引っ張り歪みが内包されていることが示唆された。このため、図7(a)よりブラッグの法則に従い得られるc格子定数から単純なベガード則でAl組成を決める方法ではなく、X線逆格子空間マッピング測定から、面内と面外の格子定数を求め、混晶のポアソン比からAl組成を求める方法を採用した。その結果、図7(b)に示すように、成長したAlGa<sub>x</sub>N薄膜の膜厚は臨界膜厚を横切るように分布していることが分かった。図8(a)、8(b)にAl<sub>0.18</sub>Ga<sub>0.82</sub>N薄膜とAl<sub>0.69</sub>Ga<sub>0.31</sub>N薄膜の表面AFM像を示す。平均二乗荒さ(RMS)値はそれぞれ59.7 nmと72.9 nmであった。Ga<sub>x</sub>NテンプレートのRMS値が47.0 nmと大きいことから、これが引き継がれたことが示唆される。臨界膜厚より厚いAl<sub>0.69</sub>Ga<sub>0.31</sub>N薄膜には表面にクラックが発生していた。図9へ対称面(0002)回折、非対称面(10 $\bar{1}$ 2)回折ピークのX線ロックアップカーブ(XRC)測定で得られた半値全幅を示す。Al組成が大きくなると対称面の値は増加し非対称面の値は減少していることが分かる。このことから、Al組成が多くなると、らせん転位が増加し刃状転位の形成が抑制されることが示唆された。しかし、総じて結晶性はGa<sub>x</sub>Nテンプレートと比較し劣化していることから、今後は結晶性向上に向けた検討が必要と

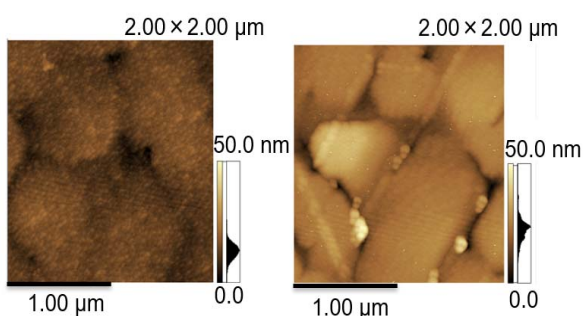


図8 (a) Al<sub>0.18</sub>Ga<sub>0.82</sub>N 薄膜と (b) Al<sub>0.69</sub>Ga<sub>0.31</sub>N 薄膜の表面AFM像

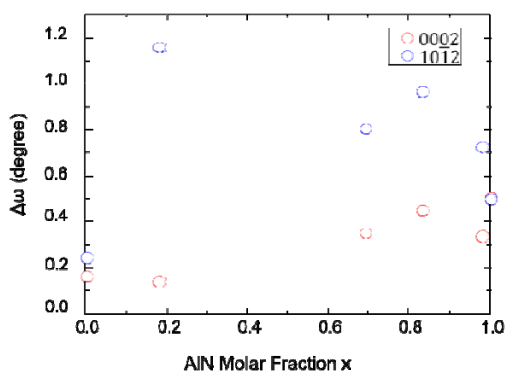


図9 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 薄膜の対称面(0002)回折、非対称面(10 $\bar{1}$ 2)回折ピークのX線ロックアップカーブ(XRC)測定で得られた半値全幅

言える。

図10にSE測定から得られた屈折率  $n$  と消衰係数  $k$  を示す。AlN モル分率  $x$  の増加に伴い各パラメータが緩やかに変化している様子が分かる。図11に Al<sub>0.18</sub>Ga<sub>0.82</sub>N 薄膜のCLスペクトルを示す。3.76 eV 付近にバンド端の発光を観測することに成功した。

## 2.4 III族酸化物半導体を用いた深紫外線センサーの製作とデバイス特性評価

昨年度までに、ミストCVD法により(0001)  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上へ無添加  $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜成長を行い、Metal-Semiconductor-Metal (MSM) 型の深紫外線センサーを製作した。図12に示すように、バンドギャップに対応する5.3 eV 付近から光応答の増加を確認し、ソーラーブラインド検出器の製作に成功した。受光感度は最大で約  $2.0 \times 10^{-1}$  A/W 程度であった。しかし、短波長域での光応答の低下が確認された。これは波長が短くなるに伴い、光の侵入深さが減少し、キャリアの表面再結合損失

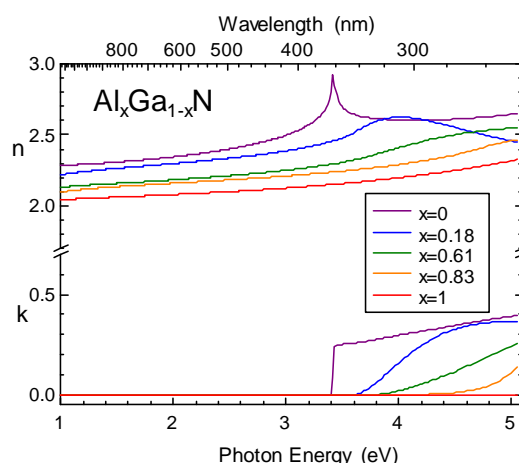


図10 Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N 薄膜の屈折率  $n$  と消衰係数  $k$ 、

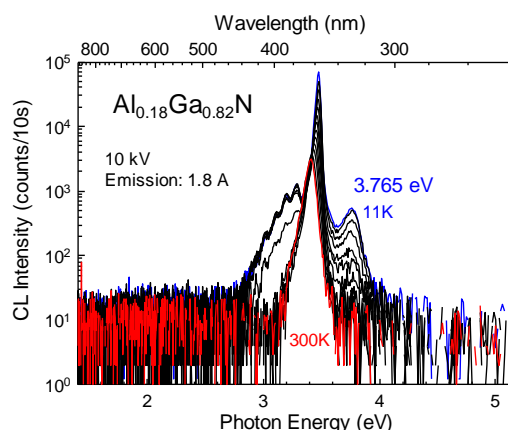


図11 Al<sub>0.18</sub>Ga<sub>0.82</sub>N 薄膜のCLスペクトルの温度依存性

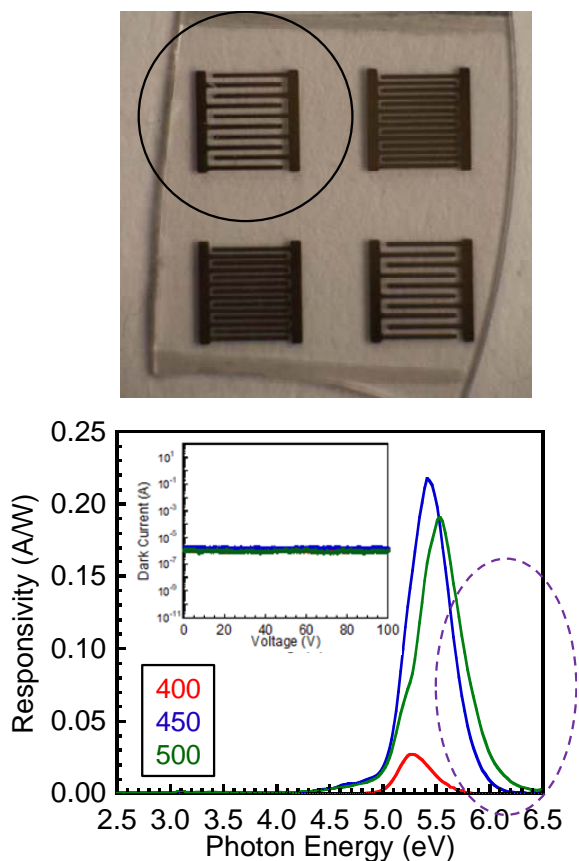


図 1 2 MSM 型深紫外線センサーの外観写真と、異なる温度で成膜した無添加 $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜により製作した MSM 型深紫外線センサーの受光感度特性の比較。破線の囲いは感度が減少した短波長域を表す。挿入図は暗電流測定結果を示す。

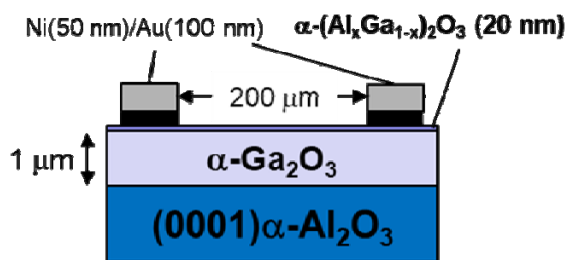


図 1 3  $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層構造をもつ MSM 型深紫外線センサーの構造

の増加が起因していると考えられる。これに対し、Yuan 等 [4] より、 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 上への $\beta$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜を成長し MSM 型センサーを製作することで、表面パッシベーション効果により、短波長側の光応答特性の改善が観られることが報告されている。そこで、2. 1 節と同様に、ミスト CVD 法により $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜上への $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜の成長を行い、同様な効果が得られるか検証することにした。

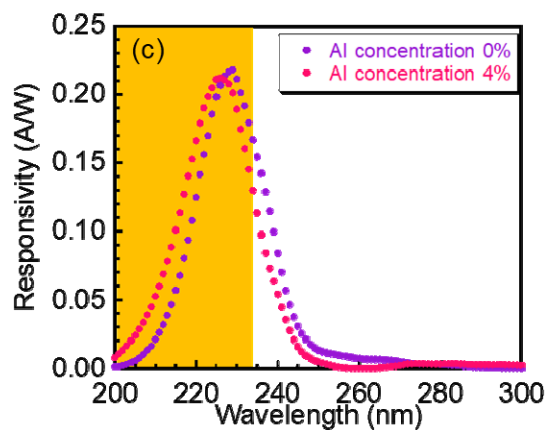
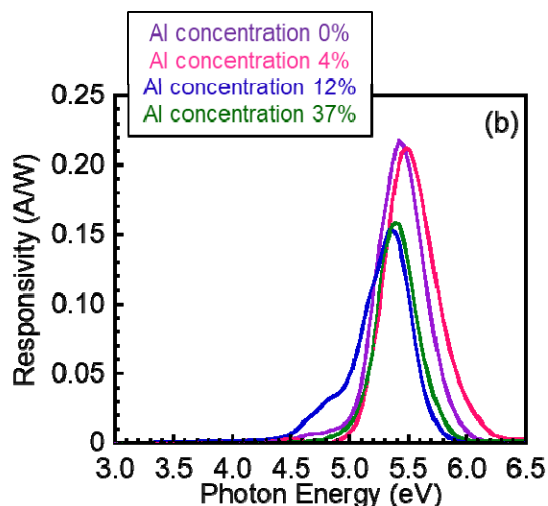
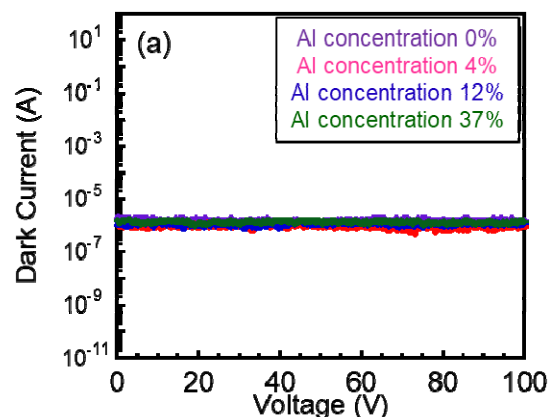


図 1 4  $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/ $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 積層構造をもつ MSM 型深紫外線センサーの (a) 暗電流測定結果、(b) 受光感度特性、(c) (b) のうち、 $x=0$  と  $x=0.04$  の受光感度特性の比較。黄色の領域は波長積分範囲を示す。

デバイス構造を図 1 3 に示す。ミスト CVD 法により (0001)  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 基板上へ 1  $\mu$ m 厚の $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜を成長し、さらに 20 nm 厚の $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 薄膜を成長した。Al 供



給比を2.1節と同様に60、70、80 mol%と変化させた。そして、電子ビーム蒸着法により、Ni(50 nm)/Au(100 nm)のMSM電極を形成した。受光感度特性を図14(b)に示す。Al供給比60 mol%( $x=0.04$ )のとき最大感度は $2.0 \times 10^{-1}$  A/Wとなり、図12に示す $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ベースのセンサーと同程度の受光感度が得られた。また、バンドギャップの増加に伴い感度波長が短波長側にシフトしていることが分かる。図14(c)に示すようにAl組成0%と4%の試料で短波長域の受光感度を波長積分し比較したところ、 $\alpha$ -(Al<sub>0.04</sub>Ga<sub>0.96</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜を積層することで約33%向上していることが分かった。しかし、Al供給比を70、80 mol%( $x=0.12$ , 0.37)とさらに増加させると、受光感度の低下が観られた。高Al組成の $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜を成長したことによる界面準位の影響や、欠陥の発生、もしくはバンドギャップの増加によるショットキー障壁高さの変化などの複数の要因が影響していると考えられる。以上より、 $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系紫外線センサーにおいても、Al組成を上手く制御して $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜を積層することにより表面パッシベーション効果が得られることが示された。

Pratiyush 他により報告された深紫外線センサーの受光感度と暗電流の関係を図15に示す[5]。比較として本研究で製作したセンサーのデータを赤丸で示す。MSM型センサーへ表面パッシベーションを採用することで、理論限界に近い受光感度が得られていることが分かる。今後も、感度向上を目指し、素子構造の改良を行う予定である。

### 3. まとめ

III族酸化物半導体材料に着目し、その結晶成長、物性評価、そしてデバイス応用展開までを一貫して行った。(0001)  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>基板上へ $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜の成長を行った。Al組成を変化させることによりバンドギャップの制御に成功した。ER分光システムを構築し、 $\beta$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>における励起子遷移構造を観測した。RF-MBE装置を用いた結晶成長を開始し、GaNテンプレート基板上へのAlGaIn薄膜の成長に成功した。AlGaIn薄膜からは紫外線領域にバンド端発光が観測された。ミストCVD法により $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜上へ $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜を積層させ、MSM型紫外線センサーを製作した。最大受光感度は $2.0 \times 10^{-1}$  A/Wとなり、理論限界に近い受光感度が得られた。また、 $\alpha$ -(Al<sub>0.04</sub>Ga<sub>0.96</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜を積層することで感度波長が短波長側へシフトし、短波長域における受光感度が約33%向上した。以上の結果より、 $\alpha$ -Ga<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系紫外線センサーにおいても、Al組成を上手く制御して $\alpha$ -(Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>)<sub>2</sub>O<sub>3</sub>薄膜を積層させることで表面パッシベーション効果が得られることを実証した。

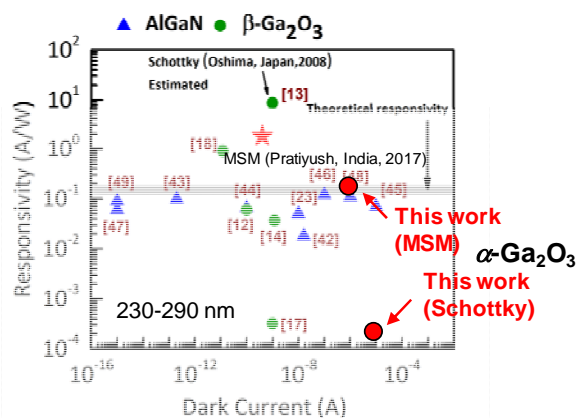


図15 深紫外線センサーの最近の報告[5]との比較

### 謝辞

ミストCVD成長に関してご助言いただいた京都大学藤田静雄教授、金子健太郎助教および工学院大学佐藤光史教授、永井裕己准教授に深く感謝申し上げます。本研究に用いたRF-MBE装置を提供して頂いた千葉大学吉川明彦名誉教授に感謝申し上げます。本研究の一部は、JSPS科研費JP16H06417、「物質・デバイス領域共同研究拠点」の共同研究プログラム(#20171119)の援助を受けて行われた。

### 参考文献

- [1] T. Onuma, S. Saito, K. Sasaki, T. Masui, T. Yamaguchi, T. Honda, and M. Higashiwaki, Jpn. J. Appl. Phys. **54**, 112601 (2015).
- [2] A. Mock, R. Korlacki, C. Briley, V. Darakchieva, Bo Monemar, Y. Kumagai, K. Goto, M. Higashiwaki, and M. Schubert, Phys. Rev. B **96**, 245205 (2017).
- [3] R. People and J. P. Bean, Appl. Phys. Lett. **47**, 322 (1985).
- [4] S.-H. Yuan, C.-C. Wang, S.-Y. Huang, and D.-S. Wu, IEEE Electron Device Lett. **39**, 220 (2018).
- [5] A. S. Pratiyush, S. Krishnamoorthy, S. V. Solanke, Z. Xia, R. Muralidharan, S. Rajan, and D. N. Nath, Appl. Phys. Lett. **110**, 221107 (2017).

## 大型蓄電池の新しい設置形態を実現する複相電解質を用いた 全固体電池開発

工学院大学 環境化学科 関 志朗

工学院大学 機械工学科 須賀 一博

工学院大学 応用化学科 大倉 利典

Development of All-solid-state Battery for Innovative Large-scaled Usages using Polymer / Inorganic Hybrid Electrolytes

Shiro Seki, Department of Environmental Chemistry and Chemical Engineering, Kogakuin University  
Kazuhiro Suga, Department of Mechanical Engineering, Kogakuin University  
Toshinori Okura, Department of Applied Chemistry, Kogakuin University

**ABSTRACT** : All-solid-state battery has high safety, compactness, high energy density and attracts attention as next generation battery. Although inorganic electrolytes has mainly investigated and exhibited high ionic conductivity, have relatively low stability between electrode and electrolyte. Also, solid polymer electrolytes has high flexibility and high stability of electrode/electrolyte interface, but exhibit low ionic conductivity. We prepared hybrid solid electrolyte that has high flexibility and mechanical property by polyether based solid polymer electrolyte and cubic- $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$  (LLZO), amorphous  $\text{Li}_{1.5}\text{Al}_{0.5}\text{Ge}_{1.5}(\text{PO}_4)_3$  (LAGP), and  $\text{Na}_3\text{Zr}_2\text{Si}_2\text{PO}_{12}$  (NZSP) composite. We measured ionic conductivity, thermal property, interfacial stability with Li (Na) metal and Li (Na) transport number by thermal and electrochemical method.

### 1. はじめに

現在二次電池の需要は高まっており、中でもスマートフォンやノートパソコンに搭載されている Li イオン電池は、エネルギー密度が高く良好なサイクル特性を示すため、自然エネルギーの変動調整用の大型蓄電池や電気自動車への普及が期待されている。この Li イオン二次電池の大型化・高容量化に伴い、電池の安全性・信頼性の向上が求められている。固体電解質を用いた全固体型リチウム電池は、高い安全性を担保し、単一外装内の積層化等による電池の高エネルギー密度化が可能である。酸化物系固体電解質のひとつである  $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$  (LLZO)は、室温で  $10^{-4} \text{ S cm}^{-1}$  程度のバルクイオン伝導度を示し、Li 金属へ安定性が高いことから、全固体電池の電解質への応用が期待されている。しかし、内部に粒界を有し、薄

膜化した際の機械的強度に乏しく、電極との界面形成が難しい。本研究では、立方晶系 LLZO と自立成形性に優れるポリエーテル系高分子固体電解質を複相化することで、自立成形性・機械的強度を担保した高分子/無機複相型固体電解質の作製を試みる。また、AC インピーダンス法を用いて複相固体電解質の Li 伝導機構及び Li 金属との界面の電気化学的挙動について考察を行う。一方、無機粒界の影響を低減すべく、非晶質系のリチウムイオン伝導体である  $\text{Li}_{1.5}\text{Al}_{0.5}\text{Ge}_{1.5}(\text{PO}_4)_3$  (LAGP) を用いた電解質の検討を行う。更に近年、Li イオン電池の需要増加に伴い Li の資源枯渇が懸念されている。そこで、地殻中に豊富に存在する Na を反応イオン種とした Na イオン電池が注目されている。そこで本研究では、Na 伝導性高分子/無機 ( $\text{Na}_3\text{Zr}_2\text{Si}_2\text{PO}_{12}$  (NZSP)) 複相固体電解質を作製し、それぞれ特性評価を行った。



## 2. 実験

### 2. 1 LLZO 系複相電解質

Ar 雰囲気グローブボックス内で、ポリエーテル系マクロモノマー(TA-210, 第一工業製薬)へ LiTfSA, DMPA(光開始剤)を[Li] / [O] = 0,1 で溶解させた。その中へ、粉末状の cubic-LLZO(豊島製作所製)を質量比で polymer : LLZO = 1:x ( $x = 0.25 \sim 2$ )の割合でそれぞれ混合した。均一溶解を得るために、アセトニトリルを適量加え、攪拌後、サイドボックスにて 12h 以上真空乾燥を行うことによりアセトニトリルを留去した。真空乾燥後の融液をガラス板の上へキャストし、UV 照射によるラジカル重合反応により、高分子/LLZO 複相固体電解質を作製した。複相電解質の電気抵抗を、印加電圧 100mV、測定温度範囲 80°C~5°Cで、AC インピーダンス法により測定した。Li 金属-複相固体電解質界面の経時安定性を測定するために、ポリエーテル/LLZO 複相固体電解質の両端に Li 箔を張り付け、コインセルへ封入・密閉した。コインセルを 60°Cの恒温槽で保持し、Li 金属界面抵抗の時間変化を、AC インピーダンス法を用いて測定した。

### 2. 2 LAGP 系複相電解質

試料調製は、すべて Ar 雰囲気下のグローブボックス内で行った。遮光性褐色瓶にポリエーテル系マクロモノマー(EO:PO=80:20)を入れ、LiN(SO<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、非晶質LAGP、DMPA (光重合開始剤)、アセトニトリル (溶媒)を加えた。ポリエーテル系マクロモノマーに対して、LiN(SO<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>)<sub>2</sub> を[Li]/[O]=0.1 の比になるようにし、LAGP を重量比 0, 5, 10, 20, 30, 40, 50, 75, 100, 150, 200, 300 wt% でそれぞれ複相化した。室温下で攪拌し、攪拌後の試料を 12 時間以上真空乾燥した。0.5 mm のテフロンスペーサー及び 2 枚のガラス板を用いて試料を密閉した後、UV 照射を 5 分間行うことでポリエーテル/LAGP 複相固体電解質を作製した。複相固体電解質のイオン伝導度を AC インピーダンス法を用いて測定した。

### 2. 3 NZSP 系複相電解質

複相固体電解質はポリエーテル系高分子の TA210 (EO:PO=8:2、第一工業製薬)、金属塩の NaN(SO<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>)<sub>2</sub>、光開始剤の 2,2-Dimethoxy-2-phenylacetophenone、無機電解質の Na<sub>3</sub>Zr<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>PO<sub>12</sub> (NZSP) をそれぞれ混合・攪拌し、ガラス板上にキャストした後に UV 照射により重合させることで作製した。NZSP は NASICON 構造を取り室温で 10<sup>-3</sup> S cm<sup>-1</sup> 程度と比較的高いイオン伝導率を示す。本研究では、NZSP を TA210 に対して 0~300wt%の範囲で複相化させた。作製した複相固体電解質は、材料表面を走査型電子顕微鏡 (SEM) およびエネルギー分散型 X 線 (EDX)、分子結合・相互作用をフーリエ変換赤外分光光度計 (FT-IR)、熱物性を示差走査熱量計 (DSC)、イオン伝導度を AC インピーダンス法で測定した。Na イオン輸率は[Na | 複相固体電解質 | Na]セルの界面を安定化させた後に低周波数領域までの AC インピーダンス測定

により、バルク抵抗と拡散抵抗を測定することにより算出した。

## 3. 結果と考察

### 3. 1 LLZO 系複相電解質

Fig. 1 に作製した高分子/LLZO 複相固体電解質 ( $x = 1$ ) の外観を示す。無機電解質組成の高い領域においても、高分子/LLZO 複相固体電解質は、室温で高い自立成形性及び機械的強度を有していることが分かる。焼結過程を伴わず無機電解質を得る方法として、高分子と複相化する手法は有効である可能性がある。



Fig. 1. Appearance of polyether/LLZO composite electrolyte ( $x = 1$ ).

Fig. 2 にポリエーテル/LLZO 複相固体電解質のイオン伝導度を示す。ポリエーテル/LLZO 複相固体電解質のイオン伝導度は温度の低下に伴い曲線的に減少する傾向がみられ、60°Cで 10<sup>-4</sup> S cm<sup>-1</sup>、30°Cで 10<sup>-5</sup> S cm<sup>-1</sup> 程度のイオン伝導度を示した。

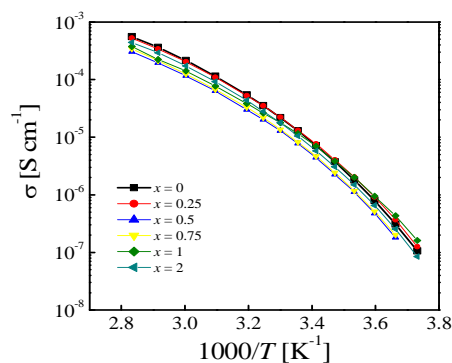


Fig. 2. Temperature dependence of ionic conductivity for polyether/LLZO composite electrolyte.

Fig.3 に 60°Cでの Li-複相固体電解質界面抵抗の経時変化を示す。Li-複相固体電解質の界面抵抗は時間経過とともに減少し、測定開始から 50 時間ではほぼ一定となった。100h 経過後も抵抗値の大きな変化は見られず、ポリエーテル/LLZO 複相固体電解質と Li 金属との間に極めて安定な界面が形成されていると考えられる。

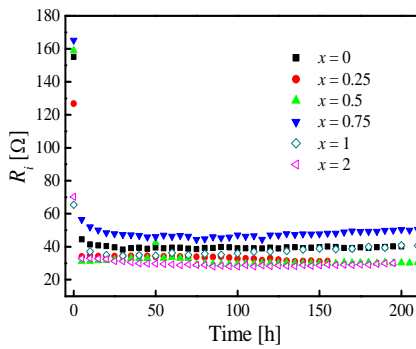


Fig. 3. Time dependence of interfacial resistance with Li metal for polyether/LLZO composite electrolyte.

### 3. 2 LAGP系複相電解質

作製した複相固体電解質の外観を Fig. 4 に示す。LAGP の複相量の増加に伴い、電解質の透明性が低下し、白色になった。

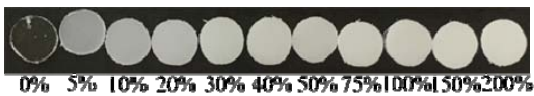


Fig.4 Appearance of polyether / LAGP hybrid films.

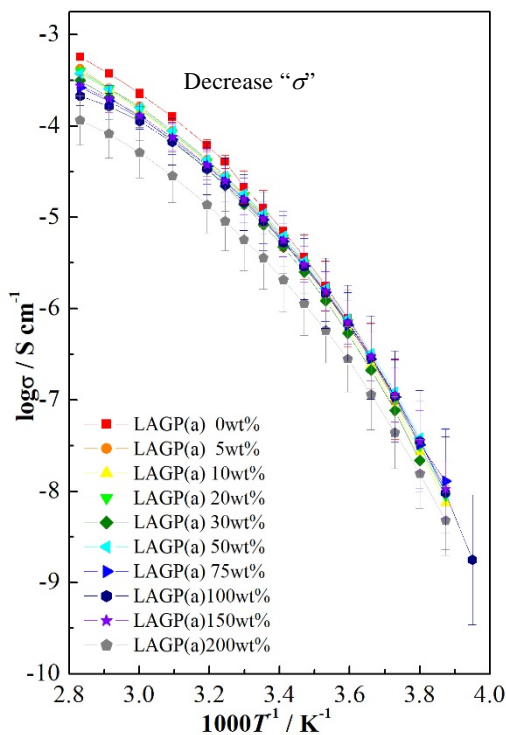


Fig.5 Ionic conductivity of P(EO/PO) and LAGP hybrid electrolytes.

イオン伝導度の温度依存性を Fig. 5 に示す。Fig. 5 より、LAGP の複相化に伴い高温 (80°C) では  $\sigma$  が大きく低下するが、低温(0°C)では 200wt%を除き LAGP の複相量に関わらず  $\sigma$  は一定の値を示した。この結果から、高分子電解質のイオン伝導性の温度依存性が、LAGP との複相化により小さくなることがわかり、低温特性の改善が示唆された。また高分子固体電解質への LAGP の複相化により、Li イオンの輸送特性が変化したと考えられる。高分子固体電解質と無機電解質では、イオン伝導性の温度依存度が大きく異なるため、複相電解質の主な伝導経路が温度によって変化する可能性などが考えられる。以上、LiN(SO<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>)<sub>2</sub> を溶解させることにより Li 伝導性を有する、ポリエーテル系高分子固体電解質へ非晶質 LAGP を複相化し、200wt%までの複相固体電解質を作成することに成功した。複相固体電解質は、60°Cにおいて 10<sup>-4</sup>~10<sup>-5</sup> S cm<sup>-1</sup> 程度のイオン伝導性を示し、伝導性能と力学的特性を併せ持つ全固体電池の電解質として期待できる。

### 3. 3 NZSP系複相電解質

複相固体電解質膜は NZSP の複相化により、無色透明から白色不透明になり柔軟性が増加した。NZSP 組成が 100wt%以上では、柔軟性が低下したことから、複相化により力学的性質が変化したと考えられる。SEM 観察では NZSP 粒子が高分子中にほぼ均一に分散しており、EDX のマッピングからも同様の結果が得られた。また、密度も NZSP 組成が高くなるにつれて増加したため、高分子中に NZSP が緻密に充填されたと推察される。Fig. 6 に複相固体電解質の DSC 曲線を示す。ガラス転移温度 ( $T_g$ ) は -25°C~-35°C の範囲で現れ、30wt%までの範囲で  $T_g$  の低下が確認された。 $T_g$  の低下により高分子内の自由体積が増加し、セグメント運動性の向上によるイオン伝導率の増大に寄与する可能性がある。一方で、NZSP が 50wt%以上の組成では、 $T_g$  の減少はほとんど確認できなかった。

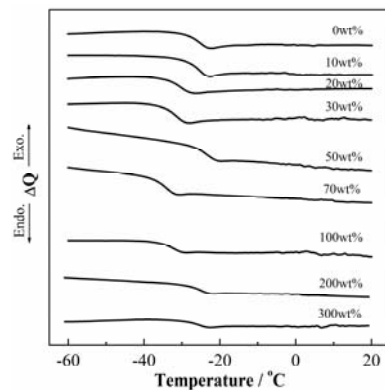


Fig. 6 DSC profiles of polyether/NZSP composite electrolyte composite solid electrolyte.

次にイオン伝導率の温度依存性を Fig. 7 に示す。イオン伝導率は、全温度域で 30wt% が最も高い値を示した。特に低温域では顕著な向上が確認でき、0wt% と比較して約 6 倍に増大した。複相量 100wt% 以上では、0wt% より低い値を示した。これは、NZSP 複相量が増加するにつれて電解質中で NZSP の連続集合により粒界が生じ、総抵抗が大きくなったためだと推察できる。粒界成分の増大により Nyquist プロットの半円弧の形状が真円に近い 0wt% と比較して楕円状となり、2 つ以上の抵抗成分が存在すると示唆される。また、イオン伝導率は高分子より NZSP の方が高いことから、Na イオンは優先的に NZSP 粒子内を通り伝導すると考えられる。Na イオン輸率は 0wt%、30wt% とともに 0.05 以下となり低い値を示し、30wt% の方がより低い値を示した。以上のことから、全固体型 Na 二次電池の低温作動化が期待できる。

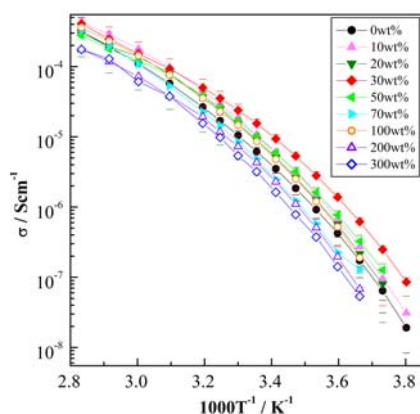


Fig. 7 Temperature dependence on ionic conductivity for polyether/NZSP composite electrolyte composite solid electrolyte.

## 謝辞

本研究の実験および考察を担当した大学院修士課程の加藤 優輝君、平岡 鋤次君、鈴木 七彩萌さん、高分子材料のご提供をいただいた第一工業製薬(株)、無機電解質材料をご提供いただいた(株)豊島製作所にそれぞれ謝意を表します。

## 参考文献

- (1) V. Palomares, et. al., *Energy Environ. Sci.*, 2012, **5**, 5884–5901.

## ガラスナノピペットのガスフローコンダクタンスの研究

工学院大学 教育推進機構 基礎・教養科 高見知秀

工学院大学 学習支援センター 関口 敦

Study on Gas Flow Conductance through Glass Nanopipette

Tomohide Takami, College of Arts and Sciences,  
Center for Promotion of Higher Education

Atsushi Sekiguchi, Learning Support Center

**ABSTRACT** : Glass nanopipette is widely used for the transfer of the various kinds of the small amount liquid less than femtoliter, and many applications have been explored. The evaluation of the inner condition of nanopipettes is necessary for the stable use of nanopipettes for these studies. However, the evaluation of prepared nanopipettes with an optical microscope is beyond Abbe's resolution limit. We proposed a new nondestructive gas flow method to test glass nanopipettes before using them. We observe the exit gas pressure of nanopipettes by changing the entrance pressure of nitrogen or argon gas up to atmospheric pressure. We have found several problems on the measurements, such as the dependence of entrance pressure increasing speed.

### 1. はじめに

ピペットは様々な体積の液体を移送するための道具として使用されてきた。[1]ピペット先端のサイズがマイクロやナノメートルまで減少すると、多くの新規な現象や応用が期待される。[2]例えば、先端内径が数百ナノメートル以下のパイレックス製ナノピペットは単一細胞への化学物質の注入に用いられており、Eppendorf 社などによって既に市販されている。しかしながら実際にこのようなナノピペットを使用すると、1回の注入の後にピペットが詰まることが頻繁に起こり、これがインジェクションの確度を下げる要因の一つとなっている。

実際に研究をする上では、ナノピペットの直径および内部の清浄度の管理および制御が必須である。[3, 4]インジェクションの高い成功率を達成するためには、注入ピペットの形状評価が重要となっている。[5]したがって、ナノピペットの形状の評価（特に先端部の穴の直径）は、これらの研究のためのナノピペットを安定して使用するために必要である。

しかしながら、光学顕微鏡を用いて調製されたナノピペットの評価はアッベの解像限界を超えている。走査型電子顕微鏡（SEM）観察では試料は導電性でなければならず、通常はガラス製のナノピペット表面を金属でコーティングした後、SEM 観察する必要がある。このため SEM 観察後に堆積ナノピペットを使用することができない。さらに、SEM を用いてガラスナノピペットの内部を画像化するためには、破壊的測定が避けられない。

使用前にガラスマイクロピペットを検査する従来の他の方法は、それらの先端を液体中に浸し、広い直径の入口に気圧を加えて先端からの気泡を観察する手法が存在する。しかしながらこの方法は、ナノピペットへ適用する場合には内径が小さすぎて適用することができない。[6]したがって、使用前にナノピペットの評価に非破壊で汚染のない測定が期待されている。

本研究は、ガラスナノピペットを使用する前に非破壊で先端部の穴径を求める試験に関する内容であって、新しい非破壊ガスフロー法を提案するとともにこの手法を検証することを目的としておこなった。

## 2. 実験

### 2. 1 コンダクタンス計測の原理

本研究は、ナノピペットの先端径を非破壊で調査し決定することにある。ここでは真空中の気体の流れのコンダクタンスを測定して、ナノピペットの先端径を見積もるまでの原理を説明する。

ここでのコンダクタンスとは、管やオリフィスの中を気体流るとき生じる気体の流れの抵抗を排気抵抗と呼び、この抵抗の逆数をコンダクタンス  $C$  といい、気体の流れやすさを表す。単位は(m<sup>3</sup>/s)である。[7]

真空中の気体の流れからナノピペットのコンダクタンスを求める方法を説明する。コンダクタンス測定の実験原理図を Fig.1 に示す。

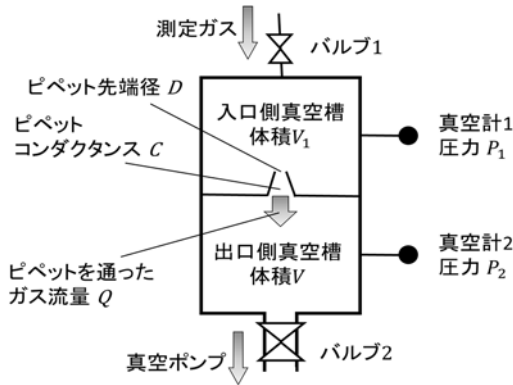


Fig.1 Schematics showing the principle how to measure the vacuum conductance through nanopipette using vacuum chambers.

あらかじめ高真空まで排気可能な真空ポンプを使用して、入口側真空槽および出口側真空槽内を十分に排気しておく。排気側のバルブ 2 を閉じ、バルブ 1 をゆっくり開いて一定流量の測定用気体を入口側真空槽内へ導入する。ここで、ナノピペット内を通過するガス流量  $Q$  (Pa・m<sup>3</sup>/s) に注目する。

一般的にガス流量  $Q$  (Pa・m<sup>3</sup>/s) は、入口側真空槽の圧力  $P_1$  (Pa) と出口側真空槽の圧力  $P_2$  (Pa) との差圧とガスが通る管のコンダクタンス  $C$  (m<sup>3</sup>/s) で決定される。すなわち、式(1)で表すことができる。

$$Q = C(P_1 - P_2) \quad (1)$$

次に、出口側真空槽の圧力変化量  $\Delta P_2$  (Pa) に注目する。出口側真空槽の体積  $V$  (m<sup>3</sup>)、時間経過  $t$  (s)、圧力変化の時間  $\Delta t$  (s) とすると、出口側真空槽の圧力上昇速度  $\Delta P_2 / \Delta t$  はガス流量  $Q$  (Pa・m<sup>3</sup>/s) と出口側真空槽の体積  $V$  (m<sup>3</sup>) との間に式(2)が成り立つ。

$$\frac{\Delta P_2}{\Delta t} = \frac{Q}{V} \quad (2)$$

ここで  $P_2$  は圧力が大変に小さい。出口側真空槽の壁に吸着した気体が再放出すること起因するガス放出から

の圧力上昇  $\Delta P_0$  を無視することができない。このため、バルブ 1 を閉じたままの状態バルブ 2 を閉じ、出口側真空槽の壁に吸着した気体が再放出すること起因するガス放出からの圧力上昇  $\Delta P_0$  (ビルドアップと呼ばれている) を測定した。 $P_2$  の値は実測した  $P_2$  の値に対して、この  $P_0$  値を引いた補正をおこなって式(3)によって算出した。

$$\frac{\Delta(P_2 - P_0)}{\Delta t} = \frac{Q}{V} \quad (3)$$

ゆえに、ガス流量  $Q$  (Pa・m<sup>3</sup>/s) は式(4)で表すことができる。

$$Q = V \frac{\Delta(P_2 - P_0)}{\Delta t} \quad (4)$$

コンダクタンス  $C$  の式(1)と式(4)を用いて  $Q$  を消去すると式(5)が得られる。

$$Q = C(P_1 - P_2) = V \frac{\Delta(P_2 - P_0)}{\Delta t} \quad (5)$$

ここからコンダクタンス  $C$  (m<sup>3</sup>/s) は式(6)で表すことができる。[6]

$$C = \frac{V}{(P_1 - P_2)} \frac{\Delta(P_2 - P_0)}{\Delta t} \quad (6)$$

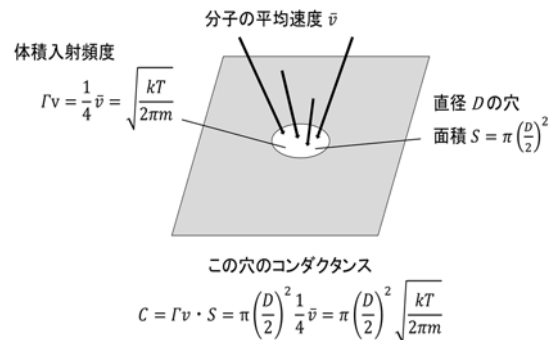
上記の式は実際にコンダクタンスを求めるために使用した。本研究で用いた実験装置において、 $V$  は 0.79432 (m<sup>3</sup>) と見積もった。

### 2. 2 穴の直径とそこを通過する気体のコンダクタンスとの関係

直径  $D$  (m) の穴を気体が通過するときの穴径  $D$  と、ここを通過する気体のコンダクタンス  $C$  との関係を示す図を Fig. 2 に示した。

Fig.2 Schematics showing the relation between the hole diameter  $D$  and the conductance  $C$  through the hole.

直径  $D$  (m) の穴を通過するときの気体のコンダクタンス  $C$  (m<sup>3</sup>/s) は、穴の面積  $S$  (m<sup>2</sup>) と気体の体積入射頻度  $\Gamma v$



(m<sup>3</sup>/(s・m<sup>2</sup>)) は気体の平均分子速度  $\bar{v}$  (m/s)、分子の質量  $m$  (kg)、ボルツマン定数  $k$  (1.28065×10<sup>-23</sup> J/s)、気体の絶対温度  $T$  (K)から以下の式(7)で表される。[8]



$$\Gamma v = \frac{1}{4} \bar{v} = \sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \quad (7)$$

また、穴の面積  $S$  (m<sup>2</sup>) は穴の直径  $D$  (m) から下記の式(8)で表される。

$$S = \pi \left(\frac{D}{2}\right)^2 \quad (8)$$

ゆえに、気体の体積入射頻度  $\Gamma v$  (m<sup>3</sup>/(s・m<sup>2</sup>)) から下記の式(9)で表される。

$$C = \Gamma v \cdot S = \pi \left(\frac{D}{2}\right)^2 \frac{1}{4} \bar{v} = \pi \left(\frac{D}{2}\right)^2 \sqrt{\frac{kT}{2\pi m}} \quad (9)$$

この式から、ナノピペットのコンダクタンス  $C$  (m<sup>3</sup>/s) を測定によって求め、測定に使用した気体の質量  $m$  (kg)、測定時の気体の絶対温度  $T$  (K) からナノピペットの先端径  $D$  (m)を算出することができる。計算時に  $(1/4)\bar{v}$  はアルゴンで 98.4(5) m/s、窒素で 117.(6) m/s の値を用いた。

### 2. 3 使用装置と器具

本実験に用いた装置と器具を Table 1 に示す。

Table 1 Apparatus and instruments used in this study.

装置	メーカー 製品名
アルゴンガス	市村酸素株式会社 高純度 Ar ガス PLT61467
窒素ガス	市村酸素株式会社 圧縮 N <sub>2</sub> ガス SLL62799
真空装置用ポンペレギュレーター	YUTAKA 精密圧力調整器 P40741C
	ヤマト産業 分析用二段圧力調整器 MSR-1B
バラトロン	MKS 高精度ダイヤフラム真空計 626CT3TQE
コールドカソードクリスタルコンベネーションゲージ	東京エレクトロン CC-10
ターボ分子ポンプ	ライボルト社 TURBOVAC 50
ドライポンプ (2台)	Kashiyama NeoDry 7E-1
バラトロン制御装置	MKS PDR2000
データロガー	TANDO Voltage Recorder VR-71 804278
バルブ	VAT 22028-KA01-0003/0447 A-1902536
	VAT 24436-Q A01-0002/0012
	VAT 22024-KA01-0003/2249
ナノピペット	Femtotips Eppendorf 5242 952.008
倒立型光学顕微鏡	OLYMPUS CKX31

本実験で使用した装置と概略図を以下の Fig. 3 と Fig. 4 に示す。

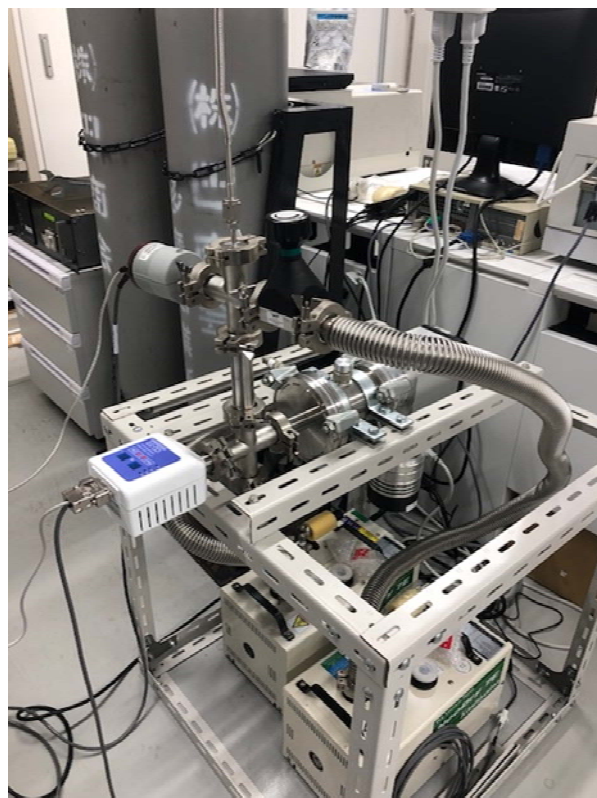


Fig.3 Photo of the apparatus used in this study.

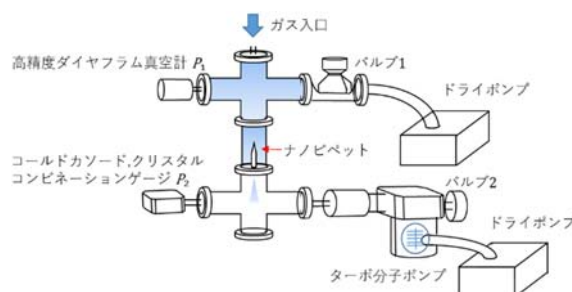


Fig.4 Schematics of the apparatus.

### 2. 4 実験準備

設置箇所がネジ状になっているナノピペットにテフロンシールテープを巻き付け、金属円盤に設置した。必要に応じて(次章で説明する)、この設置部分にエポキシ系接着剤(商品名:アラルダイト)を使用して固定しシール特性を改善した。この接着剤を充分乾燥させた後、金属円盤に設置したピペットを図のナノピペットが記されている所に設置し、装置内を真空に引いた。

ナノピペットの先端が小さいほど真空に引くのには長い時間が必要であって、通常約2~3日の放置が必要であった。実際に測定実験が可能となるには、コールドカソードクリスタルコンベネーションゲージの値が 10<sup>-5</sup> Paを確認する必要がある。この値になるまで充分に放置してから実験を行わないと、バックグラウンドの圧力  $P_0$  が大きく上昇してしまい妥当な値を得ることができない。



## 2. 5 操作手順

下記の手順で操作をおこなった。

1. コールドカソードクリスタルコンピネーションゲージで読み取った  $P_2$  の値が  $10^{-5}$  Pa になったことを確認してから実験を開始した。
2. 最初に、バラトロン制御装置(PDR2000)の電源を入れ1時間待った。次にガスボンベの上部にある栓を 1/3 左に回し開き、ストップ弁を開いた。レギュレーターの高圧側圧力計を 0 MPa 以上に設定した。データロガーの電源を入れパソコンに繋ぎ、データ解析用ソフトウェア Voltage Recorder for Windows を起動した。データロガーは Ch.1 に高精度ダイヤフラム真空計で読み取った  $P_1$  の値を、Ch.2 にコールドカソードクリスタルコンピネーションゲージ  $P_2$  の値を記録するよう設定した。
3. データロガーの記録秒数を 1 秒に設定し実験を開始した。
4. 実験を開始したらバルブ 2、バルブ 1 の順で閉め排気を止めた状態にした。
5. ガスをナノピペットの先端側から流した。
6. ナノピペットの入口側( $P_1$ )と出口側( $P_2$ )の圧力を、高精度ダイヤフラム真空計とコールドカソードクリスタルコンピネーションゲージでそれぞれ測定をした。
7. 高精度ダイヤフラム真空計の値が 9.0 V になったら、実験を終了した。

## 2. 6 実験終了時

測定実験の終了後、下記の手順で終了操作を行った。

1. 実験が終了したら、データロガーの記録を停止させガスも止めた。
2. バルブ 1、バルブ 2 の順に開き排気を開始した。
3. 実験結果をテキストファイルで保存した。
4. データロガーの電源を切り、バラトロン制御装置(PDR2000)の電源を切った。
5. 次にガスボンベの上部にある栓を 1/3 左に回し閉じ、ストップ弁を閉じた。
6. 保存した結果をエクセル上で解析した。

## 3. 結果と考察

### 3. 1 予備実験

窒素ガスを使用して実験を行い、その結果を式 (5) を用いて解析した。入口側圧力  $P_1$  に対して得られたコンダクタンスの値を Fig. 5 に示した。

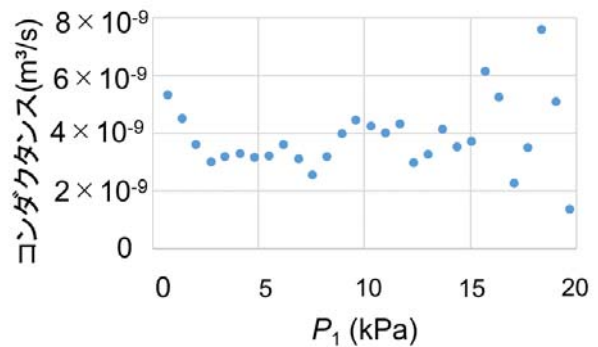


Fig.5 Entrance pressure ( $P_1$ ) dependence of the vacuum conductance through a nanopipette using nitrogen gas.

下に凸の特性が得られたが、約 3~15 kPa の領域で一定のコンダクタンス値を得る事ができた。入口側圧力  $P_1$  が 3 kPa より低い領域ではコンダクタンスが大きくなる。また  $P_1$  圧力が 15 kPa より大きい領域ではコンダクタンスはばらつく傾向が確認された。このコンダクタンスが大きくなる原因は明確ではないが、 $P_1$  より低い領域ではコンダクタンス計算に使用した出口側圧力  $P_2$  が非常に低く、測定の初期のため導入された分子が壁に吸着して  $P_2$  の値の上昇となって検出されなかった事によるものと考えられる。一方、 $P_1$  が 15 kPa より大きな領域では、後述するようにピペットの設置が不安定であることが原因で、測定値のばらつきが出ている。

以上の結果から、「コンダクタンスの値が一定になった領域」すなわち約 3~15 kPa の領域の値をコンダクタンスの測定値とし、この値を基にナノピペットの先端径を算出した。3~15 kPa の分子流領域でのコンダクタンスの平均値は  $3.2 \times 10^{-9}$  m³/s であり、25 °C における窒素分子の平均速度 470 m/s と式 (8) を用いて算出すると、先端径は 5.9  $\mu$ m と求められた。

同様にアルゴンガスを使用して実験を行い、その結果を式 (5) を用いて解析した。入口側圧力  $P_1$  に対して得られたコンダクタンスの値を Fig. 6 に示した。窒素ガスと同様に下に凸の特性があり、約 3~7 kPa の領域で一定のコンダクタンス値を得る事が出来た。アルゴンガスでも入口側圧力  $P_1$  が 7 kPa より大きい領域でコンダクタンスはばらつく傾向が確認された。しかし、 $P_1$  が 3 kPa より低い領域では、コンダクタンスが 0 kPa まで下がっている。これはガスを導入初期のため  $P_1$  とバックグラウンド値の差が小さかったことが原因である。

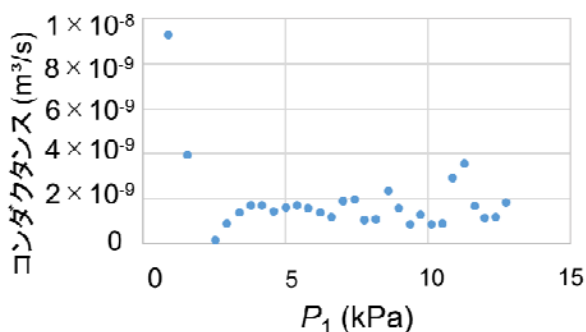


Fig.6 Entrance pressure ( $P_1$ ) dependence of the vacuum conductance through a nanopipette using argon gas.

この結果から、「コンダクタンスの値が一定になった領域」すなわち約 3~7 kPa の領域の値をコンダクタンスの測定値とし、この値を基にナノピペットの先端径を算出した。3~7 kPa の分子流領域でのコンダクタンスの平均値は  $1.5 \times 10^{-9} \text{ m}^3/\text{s}$  であり、25 °C におけるアルゴン分子の平均速度 394 m/s と式 (8) を用いて算出すると先端径は 4.4  $\mu\text{m}$  と求められた。

しかし、今回測定したピペットはマイクロピペットではなくナノピペットとされているものである。今回得られた値は 5.9  $\mu\text{m}$  および 4.4  $\mu\text{m}$  であり数百ナノメートルのオーダーではない。この原因は下記の 2 点と考えられる。

1. 先端が折れていて広がっている。
2. 先端以外の場所に漏れがある。

この原因を調査するために光学顕微鏡でナノピペットの先端を観察した。その結果を Fig. 7 に示す。

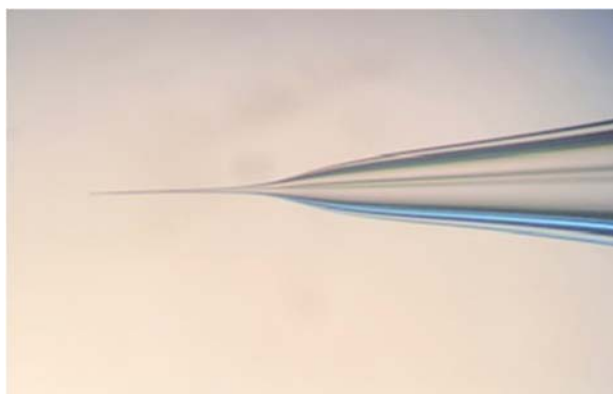


Fig.7 Optical microscope image of the pipette used for the conductance experiments shown in Figs.5&6.

この光学顕微鏡像で先端が折れている事は確認できなかった。

次に原因 2 のガス漏れの可能性を検証するために、ナノピペットの設置方法を変更した。その変更を示す図を Fig. 8 に示した。

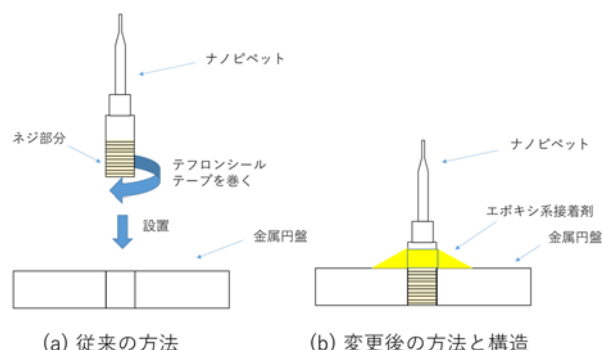


Fig.8 Modification of the setting of nanopipette to the metal base; (a) previous method and (b) modified method using an epoxy glue.

従来はネジ部分にテフロンシールテープを巻き金属円盤に設置した状態で測定していた。テフロンシールテープだけでは隙間を埋めきれないのではないのかと考えた。そこで、従来の方法を変更して、隙間を埋めるようにエポキシ系接着剤（商品名：アラルダイト）を塗布した。

次に変更後の結果を示す。ナノピペットの設置方法を変更して測定を行った。窒素ガスを使用して実験を行い、その結果を式 (5) を用いて解析した。入口側圧力  $P_1$  に対して得られたコンダクタンスの値を Fig. 9 に示す。

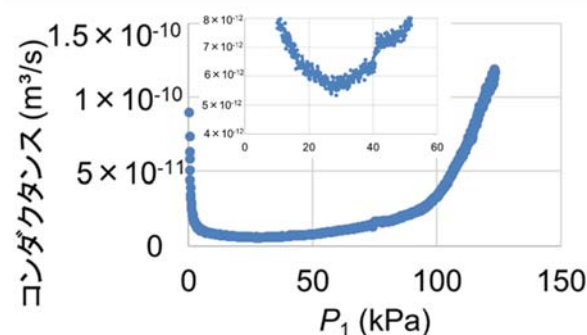


Fig.9 Entrance pressure ( $P_1$ ) dependence of the vacuum conductance through a nanopipette using nitrogen gas, where the setting method of the nanopipette between the vacuum chambers was modified as shown in Fig.8(b).

そしてコンダクタンスの値から算出したピペット内径の値の入口側圧力依存性を Fig. 10 に示す。

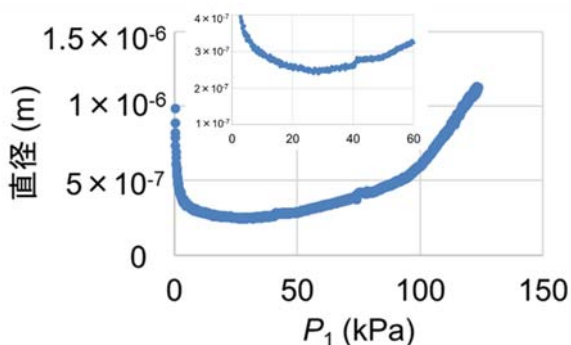


Fig.10 Entrance pressure ( $P_1$ ) dependence of the estimated nanopipette inner diameters vacuum conductance through a nanopipette using nitrogen gas, from the data shown in Fig.9, where the setting method of the nanopipette between the vacuum chambers was modified as shown in Fig.8(b).

また、ナノピペットの設置方法を変更しても同様に下に凸の特性がみられ、約 20~40 kPa の領域で一定のコンダクタンスの値を得る事ができた。42 kPa と 75 kPa の付近で値がずれる箇所があるが、そこはデータロガーの計測レンジが切り替わる点である。

以上の結果から、コンダクタンスの値が一定になった領域すなわち約 20~40 kPa の領域の値をコンダクタンスの測定値とし、この値を基にナノピペットの先端径を算出した。20~40 kPa の分領域でのコンダクタンスの平均値は  $5.94 \times 10^{-12} \text{ m}^3/\text{s}$  であり、窒素分子の平均速度 470 m/s と式(8) を用いて算出すると先端径は 252 nm となった。以上、変更後に設置したナノピペットで測定を行うとナノメートルオーダーの妥当な測定結果を得る事ができるようになった。したがって、先の実験において先端径が数百ナノメートルオーダーにならず妥当な値が得られなかったのは「2. 先端以外の場所に漏れがある。」事が原因であると判断した。ここで用いたアララルダイトは、乾燥させた状態で測定装置に設置しないとエポキシ内に含まれる低分子量の分子が残留し、装置内を低圧にする事ができないので注意が必要である。今回の実験によりナノピペットの設置方法を変更する前と比べてコンダクタンスは妥当な値が得られた。

この測定の再現性を知るために測定を複数回実施した。その結果を Table 2 に示す。

Table 2 Vacuum conductances and estimated inner diameter  $D$  using  $\text{N}_2$  gas.

	コンダクタンス $\text{m}^3/\text{s}$	先端径 nm
1 回目	$5.94 \times 10^{-12}$	252
2 回目	$4.25 \times 10^{-12}$	213
3 回目	$2.63 \times 10^{-12}$	168
4 回目	$4.12 \times 10^{-12}$	210

平均値はコンダクタンスが  $4.12 \times 10^{-12} \text{ m}^3/\text{s}$  で内径が 211 nm と求められ、標準偏差で 16%の誤差となった。

同様にアルゴンガスを用いて実験を行った結果をまとめたものを Table 3 に示す。

Table 3 Vacuum conductances and estimated inner diameter  $D$  using Ar gas.

	コンダクタンス $\text{m}^3/\text{s}$	先端径 nm
1 回目	$5.95 \times 10^{-12}$	276
2 回目	$2.93 \times 10^{-12}$	194
3 回目	$4.48 \times 10^{-12}$	239
4 回目	$5.39 \times 10^{-12}$	263

平均値はコンダクタンスが  $4.69 \times 10^{-12} \text{ m}^3/\text{s}$  で内径が 243 nm と求められ、標準偏差で 15%の誤差となった。

### 3. 2 温度効果のシミュレーションによる検討

測定時の環境温度は分子の平均速度に影響する。そこで、測定をする室温の影響をシミュレーションにより調査した。温度はコンダクタンスには影響しないため、先端径のみで考えた。窒素ガスの 1 回目の結果でシミュレーションした結果を Fig. 11 に示す。

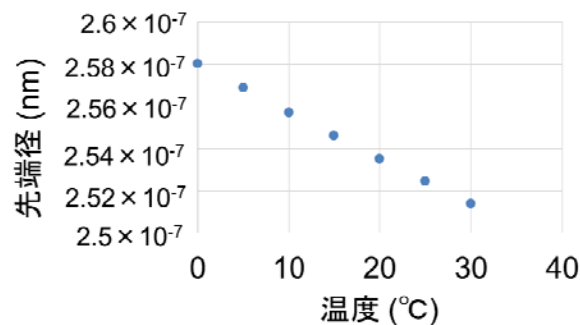


Fig.11 Simulated temperature dependence of the estimated nanopipette inner diameter using the data of  $\text{N}_2$  gas vacuum conductance shown in Table 2.

この結果から、0~30 °C で先端径は  $2.58 \times 10^{-7} \sim 2.51 \times 10^{-7} \text{ m}$  に変化することが分かった。

同様にしてアルゴンでもシミュレーションを行ったところ、0~30 °C で先端径は  $2.82 \times 10^{-7} \sim 2.75 \times 10^{-7} \text{ m}$  に変化することが分かった。

以上の事から測定時の室温の影響は有効数字 3 桁目の変化で小さいといえるが、室温が影響して多少の誤差が生じる可能性があるということが分かった。

### 3.3 入口圧力上昇速度（測定ガスの導入速度）による影響

コンダクタンスの測定結果が入口圧力上昇速度（測定ガスの導入速度）によって違いが出るのが従来の研究 [6] から指摘されていたので、その詳細を検討した。その結果を Fig. 12 に示す。

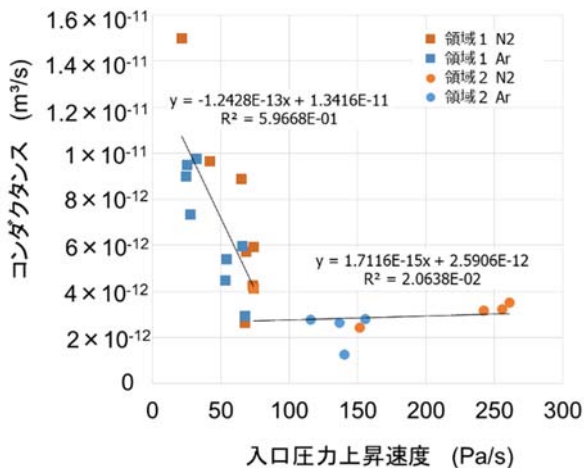


Fig.12 Entrance pressure increasing speed (Pa/s) dependence of the vacuum conductance at the decreasing dependence stage 1 (square plots) and flat dependence stage 2 (round plots), using N<sub>2</sub> (shown orange) and Ar (shown blue) gas, respectively.

入口圧力上昇速度が 100 Pa/s 以上の領域は誤差が少なく、ほぼ同じ値が得られた。入口圧力上昇速度に依存しない領域（領域 2）での測定結果から本研究ではナノピペットの先端径の見積において妥当な結果を得ている。しかし入口圧力上昇速度が 100 Pa/s 未満の領域（領域 1）では、コンダクタンスは一定の結果にはなっていないが、この原因はまだわかっていない。現時点で考えられることは、異なる種類のピペットを使用し同じ測定をすると領域 1 の傾きや一定になる入口圧力上昇速度が変化するのではないかと考えられる。この現象はピペットを流れるガスの流れ方に影響されているものではないかと考えられる。

### 3.4 先行研究との比較検討

ナノピペットではないがマイクロメートルオーダーの先端径を持っているマイクロピペットに関し、その気体のコンダクタンス測定と先端径を調査した阪上の報告 [9] がある。この報告では、大気下の外界と真空容器との間にマイクロピペットを設置し、本研究第一章で示した (1) 式と同じ式からコンダクタンスを算出している。

実験目的や方法は異なるがコンダクタンスを測定し

たことには変わらない。阪上の報告では 2.5 μm 時のコンダクタンスは  $5.94 \times 10^{-11}$  m<sup>3</sup>/s という結果であった。

我々の計算ではコンダクタンスが  $5.94 \times 10^{-11}$  m<sup>3</sup>/s の場合、先端直径は 40.1 μm となる。阪上の報告の 2.5 μm とは大きく異なっている。我々の実験では、入口側圧力が高い領域ではコンダクタンス値が極端に大きくなる傾向を確認していて、この領域で測定したコンダクタンス値は先端径の計算に使用できない。阪上の報告ではこの入口側圧力は大気圧であって、当然この測定から求めたコンダクタンス値から先端径を算出すると非常に大きな値になることは妥当である。

さらに、阪上の報告のコンダクタンス算出方法は式(1)から求めている。この式からコンダクタンス値  $C$  を算出するためには、ガス流量  $Q$  (Pa・m<sup>3</sup>/s) が決定されている必要がある。阪上は、この値は真空ポンプの排気速度 (m<sup>3</sup>/s) のカタログ値と平衡圧力 ( $P_2$ ) から算出している。真空ポンプの排気速度 (m<sup>3</sup>/s) のカタログ値は真空ポンプ直上での排気速度値であって、実際の配管・バルブを経由するとカタログ値より極端に小さな値になることは一般的に知られている現象である。このため阪上の報告の計算で使用しているガス流量  $Q$  (Pa・m<sup>3</sup>/s) の値は大きく見積もられていて、コンダクタンス値  $C$  が大きくなっていることは妥当である。

分子流領域ではコンダクタンス値は圧力に依存しなく一定である。我々の実験で確認した「入口側圧力が上昇するとコンダクタンス値が上昇する。」領域は、分子流領域から外れて中間流または粘性流の特性領域に入ったことを意味している。阪上の報告ではコンダクタンス値から先端径を求める式は分子流を仮定した式を使用して算出しているが、入口側圧力が大気圧の場合、分子流の特性ではないことがわかっている。

本研究のコンダクタンスの測定方法では、真空中にピペットを設置している。しかし、阪上の報告はピペットの先端部が外に出ている状態（すなわち大気圧の状態）で測定を行っているため、ピペット内部の清浄度が保たれない。このような測定方法の違いがコンダクタンスの値に影響が出るのではないかと考えられる。さらに、本研究で先端径の算出に使用するコンダクタンス値は入口側圧力に依存しない領域のコンダクタンス値を採用している。これは分子流領域と判断することができて、コンダクタンス値の平均を使用して算出をおこなっている。しかし、阪上の報告のコンダクタンス値は入口側圧力が大気圧であるので我々の実験結果から分子流領域のものでないと判断できる。さらに先端径を算出する際に使用している計算式は分子流領域の式である。このことから、算出に使用するコンダクタンス値は分子流領域から求めた値でなければ妥当な値を得ることができない。

先端径を精度良く求めるためには、本研究のようにピペットを真空中に設置してコンダクタンスの測定を行い、

分子流領域でコンダクタンスの値を得ることが必要である。

#### 4. ま と め

本研究では、ガラスナノピペットを使用する前に試験する非破壊ガスフロー法の提案をすることを目的として行った。今回は窒素及びアルゴンガスを用いガラスナノピペットの真空コンダクタンスを測定し、その結果から先端径を算出した。

実際の実験手法ではナノピペットの設置方法が重要なポイントであった。ネジ部分にテフロンシールテープを巻き付け金属円盤に設置しただけではガス漏れが起ってしまう。その隙間を埋めるようにエポキシ系接着剤を接着することでガス漏れが起きなくなるという確認ができた。

今回実験に使用した先端直径 200 nm 程度のナノピペットでは入口圧力上昇速度が 100 Pa/s 以上であると非破壊ガスフロー法において先端径を有効数字 2 桁の精度で値を特定することができることを確認した。

本研究では、上記のように当初の目的である非破壊測定でナノピペット先端径を求めることを実現するとともに、実際に求めた先端径が妥当な値であることを確認した。しかしながら、この実験・検証の過程で多くの未解決な現象が生じていた。測定した際に非常に低い圧力で起こるコンダクタンスが上がる現象の解明が必要である。これはナノメートルスケールの径でのみ起こる現象である。さらに、入口圧力上昇速度が 100 Pa/s 未満の領域で起こる現象も未解明である。これはピペットそれぞれに依存するものではないかと考えられる。これらの原因解明のためには、先端の詰まっていないピペットでの測定が必要とされる。また、多くのサイズのナノピペットでの測定結果を検証する必要がある。その結果と今回の結果との比較から、入口圧力上昇速度が 100 Pa/s 未満の領域で起こる現象が解明できると考えられる。

#### 5. 謝 辞

本報告で示したデータの多くは、2018 年度工学院大学先進工学部応用化学科の太田望月さんの卒業研究によるものです。ここに感謝いたします。

#### 参 考 文 献

- (1) T. Takami, B. H. Park, and T. Kawai, Nano Convergence, Vol.1, (2014) p.17.
- (2) C. A. Morris, A. K. Friedman, and L. A. Baker, Analyst Vol.135, (2010) p.2190.
- (3) C. Wei, A. J. Bard, and S. W. Feldberg, Anal. Chem. Vol.69, (1997) p.4627.
- (4) X. L. Deng, T. Takami, J. W. Son, E. J. Kang, T. Kawai, and B. H. Park, Sci. Rep. Vol.4, (2014) p.4005
- (5) H. Matsuoka, M. Saito, and H. Funabashi, in "Embryonic Stem Cells-Basic Biology to Bioengineering", ed. M. S. Kallos (InTech, Rijeka, 2011) p.149.
- (6) T. Takami, K. Nishimoto, T. Goto, S. Ogawa, F. Iwata, and Y. Takakuwa, Jpn J. Appl. Phys. Vol. 55, (2016) p.125202.
- (7) 真空ハンドブック (アルバック編, オーム社, 2002) p.40.
- (8) 松田七美男, J. Vac. Soc. Jpn. (Japanese) Vol. 56, (2013) p.199.
- (9) 阪上弘敏, イオンビームの大気取り出し(1) – ガラスキャピラリの真空コンダクタンスの研究 –, 高知工科大学電子・光システム工学科 卒業論文 (2005).



## キチン・キトサン・哺乳類キチナーゼの医薬工領域への新展開

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 免疫学教室 大野 尚仁, 山中 大輔

東京薬科大学 薬学部 病原微生物学教室 野口 雅久, 輪島 文明

New development of research discipline on chitin, chitosan and mammalian chitinases in medicine, pharmacy and engineering

Fumitaka Oyama: Department of Chemistry and Life Science, School of Advanced Engineering, Kogakuin University

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

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

**ABSTRACT** : Chitotriosidase (Chit1) and acidic mammalian chitinase (AMCase) have been implicated in various pathophysiological conditions such as chronic inflammatory diseases and food processing. Here, we directly compared the chitinolytic properties of mouse Chit1 and AMCase with *Serratia marcescens* chitinase B (*Serratia* ChiB), a well-characterized chitinase, using artificial and natural chitin substrates by combination of the colorimetric analysis and fluorophore-assisted carbohydrate electrophoresis (FACE) method. Chitinolytic activity of AMCase at pH 2.0 was stronger or comparable with that of *Serratia* ChiB under its optimal condition, indicating that AMCase can work as an efficient chitinase in the stomach. Chit1 and AMCase show different dynamics of chitinolytic properties through acidic to neutral conditions with mutual compensation abilities. *Serratia* ChiB shows about two times higher chitinolytic activity than Chit1 and AMCase. Thus, Chit1 and AMCase have relatively strong chitinolytic activities and play distinct pathophysiological functions *in vivo*.

### 1. はじめに

キチナーゼ (EC 3.2.1.14) は、 $\beta$ -1,4-結合した *N*-アセチル-D-グルコサミン (GlcNAc) の重合体であるキチンを加水分解する [1,2]。マウスとヒトでは、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) が同定されている [3-5]。

Chit1 は、ほ乳類で最初に精製、クローニングされた最初のキチナーゼで、ヒトにおいて活性化マクロファ-

ジと好中球で合成される [6-8]。AMCase は Chit1 欠損における代償酵素の探索中に発見され、その等電点が酸性側であることより名付けられた [9]。Chit1 と AMCase は、分子量 約 50 kDa の分泌タンパク質である [8,9]。両分子は、N 末端領域に触媒ドメイン (catalytic domain, CatD)、C 末端領域にキチン結合ドメイン (chitin-binding domain, CBD) より構成される。

Chit1 と AMCase は同じ組織や細胞で発現している。Chit1 はマウスの胃、眼、肺で高発現しており、AMCase は胃、顎下腺、肺で多く発現している [10]。さらに、両



酵素は単球とマクロファージで発現し、細胞外に分泌され、一部はリソソームに存在する [11]。これらの細胞において、それぞれの mRNA レベルは、サイトカインによって変動する [12]。活性化したマクロファージにおける Chit1 の発現レベルは、AMCase のそれよりも高いが、リポ多糖 (lipopolysaccharide, LPS) 処理した単球では低いことが知られている [12]。

Chit1 と AMCase は、様々な病態下において、発現が増加することから注目されている [5]。Chit1 レベルは、常染色体劣性リソソーム蓄積症であるゴーシェ病患者の血漿中で約 1,000 倍に増加する [6]。さらに、Chit1 レベルは、アテローム性動脈硬化症 [13]、糖尿病 [14]、嚢胞性線維症 [15]、慢性閉塞性肺疾患 (COPD) [16] などの慢性炎症性疾患やアルツハイマー病 [17] や喫煙者 [18] で変化する。AMCase mRNA およびタンパク質レベルは、喘息マウスモデルならびにアレルギー性肺炎の抗原誘発マウスモデルにおいて著しく増加する [19, 20]。最近、我々は、AMCase がマウスの胃と腸の条件下で主要なプロテアーゼ耐性の糖質分解酵素として機能できることを示した [21]。このように、両酵素の発現レベルは研究されているが、両酵素の機能は不明なままである。さらに、関連する疾患の病因および生理学的状態に関する哺乳類キチナーゼの寄与も、明らかになっていない。

*Serratia marcescens* は高いレベルでキチナーゼを産生するグラム陰性菌である [22]。この細菌は、キチナーゼ A (*Serratia* ChiA)、キチナーゼ B (*Serratia* ChiB) およびキチナーゼ C (*Serratia* ChiC) の三種類のキチナーゼを発現する [23-25]。これまで、*Serratia marcescens* のキチナーゼは、キチン分解およびキチン分解酵素系の分子的機構を解明するモデル酵素として利用されてきた [26-31]。さらに、*Serratia* ChiA と ChiB が、高分子量キチン基質と共にインキュベートすると、キチン分解において、相乗効果を示すことが報告されている [23, 24]。

本研究では、分光学的手法と fluorophore-assisted carbohydrate electrophoresis (FACE) 法を組み合わせ、人工および天然のキチン基質を用いて、Chit1 と AMCase のキチン分解特性を *Serratia* ChiB と直接比較した [32, 33]。

## 2. 実験材料と方法

### 2.1 Protein A-Chit1-V5-His, Protein A-AMCase-V5-His, *Serratia* ChiB-V5-His の調製

マウス Chit1, AMCase そして *Serratia* ChiB は、Protein A-Chit1-V5-His, Protein A-AMCase-V5-His, *Serratia* ChiB-V5-His として大腸菌で発現し、Ni Sepharose により精製した [34]。溶出したタンパク質を 20 mM Tris-HCl (pH 8.6) に透析し、同じ緩衝液で平衡化した HiTrap Q HP カラムに供した。カラムを 10 倍量の 20 mM Tris-HCl (pH 8.6) で洗浄し、0~1.0 M NaCl の直線濃度勾配で溶出し、精製した [34-36]。

### 2.2 タンパク質濃度測定, SDS-PAGE, ウエスタンブロットおよびキチン分解活性

タンパク質濃度の測定, SDS-polyacrylamide gel electrophoresis (PAGE) および Western blotting は、以前報告したように行った [34]。キチナーゼ活性も、以前報告したように 4-nitrophenyl *N,N'*-diacetyl- $\beta$ -D-chitobioside [4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub>] を 200  $\mu$ M の濃度で使用した [34-36]。反応は 1 M 炭酸ナトリウム 20  $\mu$ L で停止させた。遊離した 4-NP を 405 nm で測定した。4-NP のモル吸光係数は 17,700 M<sup>-1</sup> cm<sup>-1</sup> としてユニット (U) を計算した。1 酵素ユニット (U) は、各 pH で 37°C で、1 分間に 4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> から 4-NP を 1  $\mu$ mol 遊離する酵素量、と定義した。

### 2.4 キチン基質の分解と FACE 報での解析

以前報告したように、4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub>, (GlcNAc)<sub>4</sub> とコロイダルキチンを基質として使用した [34]。キチナーゼ活性は、4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> (終濃度 200  $\mu$ M) と (GlcNAc)<sub>4</sub> (終濃度 200  $\mu$ M) を各酵素 (2.1 pmol) と 37°C で、McIlvaine 緩衝液中でそれぞれ 30 分、あるいは 1 分間インキュベートすることにより測定した。高分子基質であるコロイダルキチン (終濃度 2 mg/mL) からの分解生成物を検出するために、反応は各酵素 (10 pmol) を 37°C で、同様の緩衝液中で 30 分間インキュベートした。遠心濃縮器を用いて反応液を直ちに真空下で凍結乾燥した。キチン断片の還元末端を fluorophore 8-aminonaphthalene-1,3,6-trisulphonic acid (ANTS) で標識し、生じた蛍光発色物質を PAGE によって分離した [32,37]。GlcNAc オリゴマーを標準物質として使用した。

## 3. 結果

### 3.1 大腸菌で発現した Chit1, AMCase および *Serratia* ChiB の精製

マウス Chit1 と AMCase を Protein A-Chit1-V5-His と Protein A-AMCase-V5-His の融合タンパク質として大腸菌で発現した (図 1A と B)。*Serratia* ChiB は、pET システムを用いて融合タンパク質 (T7 tag-ChiB-V 5-His) として発現した (図 1C)。

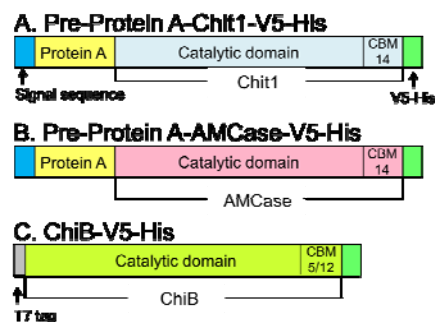


図 1. 大腸菌で発現した Chit1, AMCase および *Serratia* ChiB の融合タンパク質の模式図

三種類の融合タンパク質を Ni Sepharose column で分離し、次いで HiTrap Q HP column で精製した [34]。精製酵素 (2.1 pmol) は SDS-PAGE, 次いで Coomassie Brilliant Blue (CBB) 染色あるいは抗 V5 抗体を用いた Western blotting で解析し、目的のタンパク質が精製できていることを確認した。

### 3.2 Chit1, AMCase, *Serratia* ChiB の 4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> と比色分析を用いたキチン分解活性の比較

マウス Chit1 と AMCase は、胃 (pH 2.0), 免疫細胞のリソソーム (pH 5.0) そして、眼、肺など (pH 7.0) で発現する [10]。我々は 4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> を基質とし、pH 1.0~10.0 の範囲で融合タンパク質のキチナーゼ活性を分析した。遊離した 4-NP イオンの吸光度を 405 nm で測定した。

Chit1 は pH 5.0 と 6.0 で最も高い活性を示し、pH 2.0~3.0 では活性を示さず、中性 (pH 7.0~8.0) もしくはより酸性 (pH 4.0 以下) の条件で低下した (図 2, 青色)。AMCase は pH 2.0 (Gly-HCl buffer) で最も高い活性を示し、pH 3.0~8.0 で低い活性を示した (図 2, 赤)。一方、*Serratia* ChiB の活性は、pH 4.0~6.0 で最も高く、酸性 (pH 3.0) もしくは中性条件 (pH 7.0~8.0) で低下し、pH 2.0 で活性は消失した (図 2, 緑色)。最大活性の強さは以下の通りである: AMCase (pH 2.0) > *Serratia* ChiB (pH 5.0) > Chit1 (pH 5.0)。

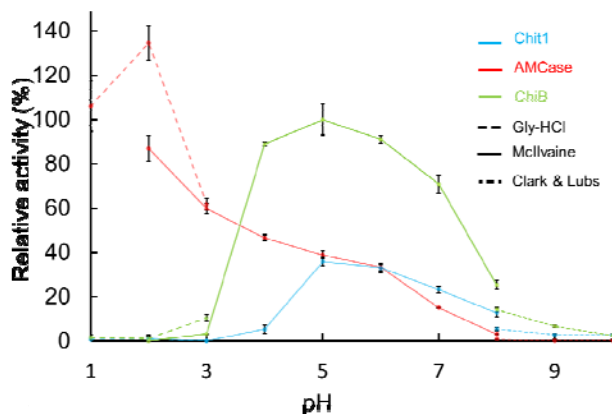


図 2. 比色法を用いた、Chit1, AMCase および *Serratia* ChiB のキチン分解活性

### 3.3 4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> と FACE 法を用いたキチン分解活性の評価

FACE 法は、簡便で、定量的かつ非常に高感度な方法で、キチン基質からの分解生成物をポリアクリルアミドゲル上で検出できる [32, 37]。ここでは、4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> から遊離し、続いて ANTS に標識された分解産物を検出した [32-34]。

Chit1 および *Serratia* ChiB は、pH 5.0 と 7.0 で基質を (GlcNAc)<sub>2</sub> に分解し (図 3A と 3C), 一方、AMCase は

pH 2.0, 5.0 または 7.0 で (GlcNAc)<sub>2</sub> を生成した (図 3B)。図 3D はこの実験の定量結果を示す。Chit1 と *Serratia* ChiB は、pH 5.0, 続いて pH 7.0 で高い活性を示し、pH 2.0 では活性を示さなかった。キチナーゼ活性は AMCase (pH 2.0), *Serratia* ChiB (pH 5.0), Chit1 (pH 5.0) の順で高かった (図 3D)。pH 5.0 と 7.0 での Chit1 の活性は、これらの pH 条件下での AMCase の活性に匹敵した。Chit1 の pH 依存性は *Serratia* ChiB と類似していた。このように、FACE 法によって得られた結果は比色分析の結果と同等であった。

さらに、AMCase により 4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> から産生された (GlcNAc)<sub>3</sub> は (図 3A), 我々の最近の報告 [33] と一致した。一方、この現象は Chit1 および *Serratia* ChiB の存在下では検出されなかった。このように、この条件下で糖転移活性を示すのは AMCase のみだった。

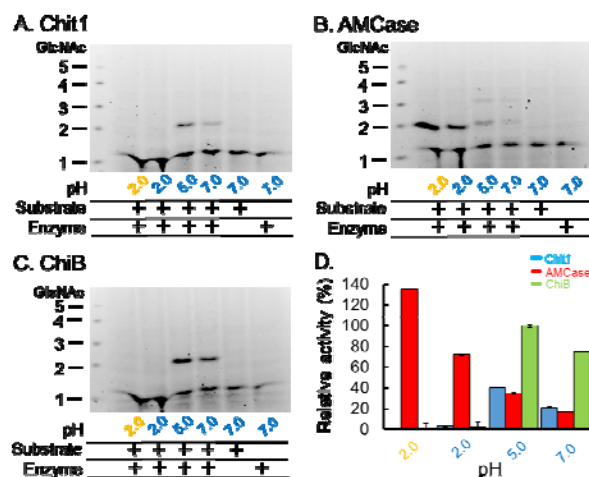


図 3. FACE 法を用いた Chit1, AMCase および *Serratia* ChiB のキチン分解活性評価。

Chit1 (A), AMCase (B) および *Serratia* ChiB (C) のキチナーゼ活性。D. 各 pH で生成された (GlcNAc)<sub>2</sub> の定量的データ。

### 3.4 (GlcNAc)<sub>4</sub> と FACE 法を用いた様々な pH 条件下でのキチン分解活性の比較

次に、基質として (GlcNAc)<sub>4</sub> を使用した。各酵素における FACE 法のバンドパターン (図 4A~C) は、図 3 の結果と類似していた。最大活性の強さは以下の通りであった: AMCase (pH 2.0) ≈ *Serratia* ChiB (pH 5.0) > Chit1 (pH 5.0) (図 4D)。

pH 5.0 および 7.0 での Chit1 の活性は AMCase の活性より低かった。4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> を用いた実験では、Chit1 の pH 依存性は *Serratia* ChiB のそれと同様であった。pH 2.0 での AMCase の最大活性は、pH 5.0 での *Serratia* ChiB のそれよりも高かった (図 2 と 3)。pH 5.0 と 7.0 での Chit1 の活性は AMCase の活性と同等であった (図 2 と 3)。このように、pH 5.0 と 7.0 における Chit1 および AMCase の比活性は、4-NP-(GlcNAc)<sub>2</sub> (図 2

と 3) と (GlcNAc)<sub>4</sub> (図 4) とでは異なっていた。これらの違いは、合成および天然の低分子量基質に対する Chit1 と AMCase の反応性が異なることを示唆していた。

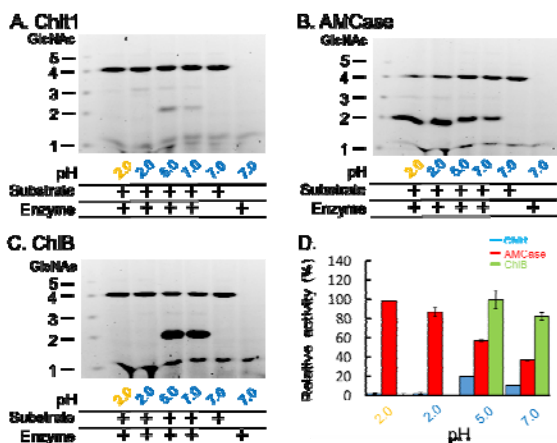


図 4. FACE 法と (GlcNAc)<sub>4</sub> を用いた Chit1, AMCase および *Serratia* ChiB のキチン分解活性評価。

Chit1 (A), AMCase (B) および *Serratia* ChiB (C) のキチナーゼ活性。D. 各 pH で生成された (GlcNAc)<sub>2</sub> の定量的データ。

### 3.5 高分子量キチン基質を用いた様々な pH での活性の比較

FACE 法により得られた高分子基質であるコロイダルキチンに対する Chit1 と *Serratia* ChiB (図 5A と C) の分解パターンは、以前の実験 (図 3 と 4) と類似していた。AMCase は pH 2.0, 5.0 および 7.0 で (GlcNAc)<sub>2</sub> を生成した (図 5B)。pH 5.0 で AMCase によって生成された (GlcNAc)<sub>2</sub> の量は、pH 2.0 (McIlvaine's buffer) でのそれより高かった (図 5D)。最大活性の強さは以下の通りである: AMCase (pH 2.0) > *Serratia* ChiB (pH 5.0) > Chit1 (pH 5.0) (図 5D)。

上記の実験と同様に、pH 5.0 と 7.0 における Chit1 の活性は AMCase の活性よりも低かった。Chit1 の pH 依存性は *Serratia* ChiB のそれと類似していた。pH 5.0 での AMCase の活性は、同じ pH での *Serratia* ChiB のに匹敵した。AMCase の活性は、低分子量と高分子基質に対して異なるパターンを示した (図 4 と 5)。また、pH 5.0 で AMCase がコロイダルキチンから生成した (GlcNAc)<sub>2</sub> の量は、pH 2.0 でのそれより高かった。対照的に、低分子量と高分子基質に対する Chit1 の活性はいずれの pH でも変化しなかった。このように、異なる基質に対する分解産物の変化は、AMCase と Chit1 が様々な pH 条件下で異なる性質を持つことを示した。

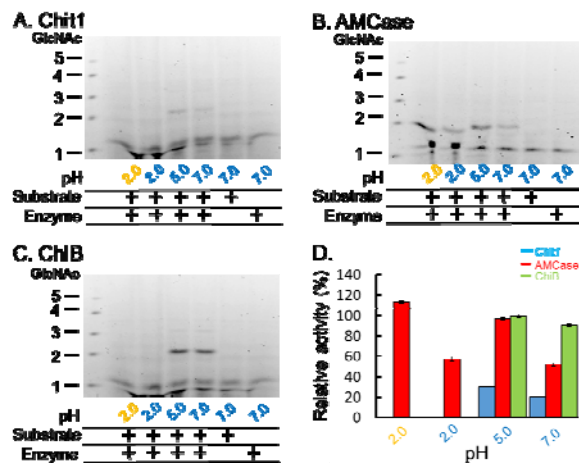


図 5. 高分子基質を使用した Chit1, AMCase および *Serratia* ChiB のキチン分解活性評価。

Chit1 (A), AMCase (B) および *Serratia* ChiB (C) のキチナーゼ活性。D. 各 pH で生成された (GlcNAc)<sub>2</sub> の定量的データ。

## 4. 考察

キチナーゼ活性は、キチン基質および pH などのいくつかの要因によって影響される。我々は Chit1 と AMCase の類似点と相違点を明らかにするために、両酵素が発現し、存在する生体内の環境に関連する pH 条件におけるそれらのキチン分解性質を直接比較した。

pH 2.0, 5.0 と 7.0 でのキチン分解活性は、比色分析 (図 2) および FACE 法 (図 3) において基本的に類似していた。このように、比色分析と FACE 法との組み合わせは、以前に記載したようにキチン分解活性および糖転移活性を特徴付けるのに有効かつ信頼性がある [32-34]。

Chit1 はよく研究されているほ乳類キチナーゼである [38-44]。カンジダ症およびアスペルギルス症の好中球減少症マウスモデルへの組換えヒト Chit1 の補充は生存率を高めた [45]。このように、ヒトとマウス Chit1 の基本的な機能は同じであることが示唆されている。この研究において、Chit1 の最大活性は AMCase の最大活性より低かった。Chit1 は病的状態において発現レベルを増加させ、肺マクロファージおよび好中球によって分泌されることによって十分に機能すると考えられる。

AMCase はマウス胃組織において高度に発現される消化酵素で、pH 2.0 において最も高い活性を示す [9, 10, 35, 46-48]。最近、我々は、AMCase およびそのトリのオルソログである Chia が、マウス、ニワトリ、ブタおよびコモンマーマウスにおいて胃腸管条件下で主要なプロテアーゼ耐性グリコシダーゼとして機能することを示した [21, 49-51]。

肺では、Chit1 は感染症に対する生物学的生体防御として機能する。AMCase はマウスの肺上皮細胞に分泌され、気道でのキチン分解に寄与することが報告されている [3]。Chit1 および AMCase の発現レベルは、COPD やアレルギー性喘息などのさまざまな慢性炎症性疾患で

は変化する [16, 52]。本研究で、酸性から中性の条件下で、Chit1 と AMCCase が異なるキチン分解特性を持つことを示した。さらに、pH 7.0 での高分子基質に対する AMCCase の活性は、Chit1 のそれよりも高かった。このように、Chit1 と AMCCase の役割は、肺を含む pH 7.0 の組織では異なることが示唆された [12]。

#### 参考文献

- [1] B.E. Koch, J. Stougaard, H.P. Spaink, Keeping track of the growing number of biological functions of chitin and its interaction partners in biomedical research, *Glycobiology* 25(5) (2015) 469-82.
- [2] M. Wysokowski, I. Petrenko, A.L. Stelling, D. Stawski, T. Jesionowski, H. Ehrlich, Poriferan chitin as a versatile template for extreme biomimetics, *Polymers* 7 (2015) 235-265.
- [3] C.G. Lee, C.A. Da Silva, C.S. Dela Cruz, F. Ahangari, B. Ma, M.J. Kang, C.H. He, S. Takyar, J.A. Elias, Role of chitin and chitinase/chitinase-like proteins in inflammation, tissue remodeling, and injury, *Annu. Rev. Physiol.* 73 (2011) 479-501.
- [4] C.L. Bueter, C.A. Specht, S.M. Levitz, Innate sensing of chitin and chitosan, *PLoS Pathog.* 9(1) (2013) e1003080.
- [5] S.J. Van Dyken, R.M. Locksley, Chitins and chitinase activity in airway diseases, *J. Allergy Clin. Immunol.* 142(2) (2018) 364-369.
- [6] C.E. Hollak, S. van Weely, M.H. van Oers, J.M. Aerts, Marked elevation of plasma chitotriosidase activity. A novel hallmark of Gaucher disease, *J. Clin. Invest.* 93(3) (1994) 1288-92.
- [7] G.H. Renkema, R.G. Boot, A.O. Muijsers, W.E. Donker-Koopman, J.M. Aerts, Purification and characterization of human chitotriosidase, a novel member of the chitinase family of proteins, *J. Biol. Chem.* 270(5) (1995) 2198-202.
- [8] R.G. Boot, G.H. Renkema, A. Strijland, A.J. van Zonneveld, J.M. Aerts, Cloning of a cDNA encoding chitotriosidase, a human chitinase produced by macrophages, *J. Biol. Chem.* 270(44) (1995) 26252-6.
- [9] R.G. Boot, E.F. Blommaart, E. Swart, K. Ghauharali-van der Vlugt, N. Bijl, C. Moe, A. Place, J.M. Aerts, Identification of a novel acidic mammalian chitinase distinct from chitotriosidase, *J. Biol. Chem.* 276(9) (2001) 6770-8.
- [10] M. Ohno, K. Tsuda, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama, Chitinase mRNA levels by quantitative PCR using the single standard DNA: acidic mammalian chitinase is a major transcript in the mouse stomach, *PLoS One* 7(11) (2012) e50381.
- [11] M. Kanneganti, A. Kamba, E. Mizoguchi, Role of chitotriosidase (chitinase 1) under normal and disease conditions, *J. Epithel. Biol. Pharmacol.* 5 (2012) 1-9.
- [12] M. Di Rosa, C. De Gregorio, G. Malaguarnera, M. Tuttobene, F. Biazio, L. Malaguarnera, Evaluation of AMCCase and CHIT-1 expression in monocyte macrophages lineage, *Mol. Cell. Biochem.* 374(1-2) (2013) 73-80.
- [13] M. Artieda, A. Cénarro, A. Ganan, I. Jerico, C. Gonzalvo, J.M. Casado, I. Vitoria, J. Puzo, M. Pocovi, F. Civeira, Serum chitotriosidase activity is increased in subjects with atherosclerosis disease, *Arterioscler. Thromb. Vasc. Biol.* 23(9) (2003) 1645-52.
- [14] A. Sonmez, C. Haymana, S. Tapan, U. Safer, G. Celebi, O. Ozturk, H. Genc, T. Dogru, I. Tasci, G. Erdem, A. Taslipinar, A. Aydogdu, M.I. Yilmaz, I. Kurt, M. Kutlu, Chitotriosidase activity predicts endothelial dysfunction in type-2 diabetes mellitus, *Endocrine* 37(3) (2010) 455-9.
- [15] G. Livnat, R. Bar-Yoseph, A. Mory, E. Dagan, N. Elias, R. Gershoni, L. Bentur, Duplication in CHIT1 gene and the risk for Aspergillus lung disease in CF patients, *Pediatr. Pulmonol.* 49(1) (2014) 21-7.
- [16] S. Letuve, A. Kozhich, A. Humbles, Y. Brewah, M.C. Dombret, M. Grandsaigne, H. Adle, R. Kolbeck, M. Aubier, A.J. Coyle, M. Pretolani, Lung chitinolytic activity and chitotriosidase are elevated in chronic obstructive pulmonary disease and contribute to lung inflammation, *Am. J. Pathol.* 176(2) (2010) 638-49.
- [17] M. Watabe-Rudolph, Z. Song, L. Lausser, C. Schnack, Y. Begus-Nahrman, M.O. Scheithauer, G. Rettinger, M. Otto, H. Tumani, D.R. Thal, J. Attems, K.A. Jellinger, H.A. Kestler, C.A. von Arnim, K.L. Rudolph, Chitinase enzyme activity in CSF is a powerful biomarker of Alzheimer disease, *Neurology* 78(8) (2012) 569-77.
- [18] M.A. Seibold, S. Donnelly, M. Solon, A. Innes, P.G. Woodruff, R.G. Boot, E.G. Burchard, J.V. Fahy, Chitotriosidase is the primary active chitinase in the human lung and is modulated by genotype and smoking habit, *J. Allergy Clin. Immunol.* 122(5) (2008) 944-950 e3.
- [19] Z. Zhu, T. Zheng, R.J. Homer, Y.K. Kim, N.Y. Chen, L. Cohn, Q. Hamid, J.A. Elias, Acidic mammalian chitinase in asthmatic Th2 inflammation and IL-13 pathway activation, *Science* 304(5677) (2004) 1678-82.
- [20] T.A. Reese, H.E. Liang, A.M. Tager, A.D. Luster, N. Van Rooijen, D. Voehringer, R.M. Locksley, Chitin induces accumulation in tissue of innate immune cells associated with allergy, *Nature* 447(7140) (2007) 92-6.
- [21] M. Ohno, M. Kimura, H. Miyazaki, K. Okawa, R. Onuki, C. Nemoto, E. Tabata, S. Wakita, A. Kashimura, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, N. Nukina, P.O. Bauer, F. Oyama, Acidic mammalian chitinase is a proteases-resistant glycosidase in mouse digestive system, *Sci. Rep.* 6 (2016) 37756.
- [22] J. Monreal, E.T. Reese, The chitinase of *Serratia marcescens*, *Can. J. Microbiol.* 15(7) (1969) 689-96.
- [23] M.B. Brurberg, I.F. Nes, V.G. Eijsink, Comparative studies of chitinases A and B from *Serratia marcescens*, *Microbiology* 142 ( Pt 7) (1996) 1581-9.
- [24] K. Suzuki, N. Sugawara, M. Suzuki, T. Uchiyama, F. Katouno, N. Nikaidou, T. Watanabe, Chitinases A, B, and C1 of *Serratia marcescens* 2170 produced by recombinant *Escherichia coli*: enzymatic properties and synergism on chitin degradation, *Biosci. Biotechnol. Biochem.* 66(5) (2002) 1075-83.

- [25] G. Vaaje-Kolstad, S.J. Horn, M. Sorlie, V.G. Eijsink, The chitinolytic machinery of *Serratia marcescens*--a model system for enzymatic degradation of recalcitrant polysaccharides, *FEBS J* 280(13) (2013) 3028-49.
- [26] T.R. Tuveng, L.H. Hagen, S. Mekasha, J. Frank, M.O. Arntzen, G. Vaaje-Kolstad, V.G.H. Eijsink, Genomic, proteomic and biochemical analysis of the chitinolytic machinery of *Serratia marcescens* BJL200, *Biochim. Biophys. Acta* 1865(4) (2017) 414-421.
- [27] H. Sugimoto, K. Nakamura, Y. Nishino, Y. Idezawa, A. Fujinuma, K. Suzuki, T. Watanabe, Differences in the roles of the two surface-exposed tyrosine residues, Y240 and Y481, of *Serratia marcescens* chitinase B during processive degradation of crystalline chitin, *J. Gen. Appl. Microbiol.* 61(6) (2015) 255-61.
- [28] K. Igarashi, T. Uchihashi, T. Uchiyama, H. Sugimoto, M. Wada, K. Suzuki, S. Sakuda, T. Ando, T. Watanabe, M. Samejima, Two-way traffic of glycoside hydrolase family 18 processive chitinases on crystalline chitin, *Nat Commun* 5 (2014) 3975.
- [29] Y.S. Nakagawa, V.G. Eijsink, K. Totani, G. Vaaje-Kolstad, Conversion of alpha-chitin substrates with varying particle size and crystallinity reveals substrate preferences of the chitinases and lytic polysaccharide monoxygenase of *Serratia marcescens*, *J. Agric. Food Chem.* 61(46) (2013) 11061-6.
- [30] T. Toratani, T. Shoji, T. Ikehara, K. Suzuki, T. Watanabe, The importance of chitobiase and N-acetylglucosamine (GlcNAc) uptake in N,N'-diacetylchitobiose [(GlcNAc)<sub>2</sub>] utilization by *Serratia marcescens* 2,170, *Microbiology* 154(Pt 5) (2008) 1326-32.
- [31] G. Vaaje-Kolstad, B. Westereng, S.J. Horn, Z. Liu, H. Zhai, M. Sorlie, V.G. Eijsink, An oxidative enzyme boosting the enzymatic conversion of recalcitrant polysaccharides, *Science* 330(6001) (2010) 219-22.
- [32] S. Wakita, M. Kimura, N. Kato, A. Kashimura, S. Kobayashi, N. Kanayama, M. Ohno, S. Honda, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, P.O. Bauer, F. Oyama, Improved fluorescent labeling of chitin oligomers: Chitinolytic properties of acidic mammalian chitinase under somatic tissue pH conditions, *Carbohydr Polym* 164 (2017) 145-153.
- [33] S. Wakita, S. Kobayashi, M. Kimura, A. Kashimura, S. Honda, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, M. Kamaya, V. Matoska, P.O. Bauer, F. Oyama, Mouse acidic mammalian chitinase exhibits transglycosylation activity at somatic tissue pH, *FEBS Lett.* 591(20) (2017) 3310-3318.
- [34] M. Kimura, S. Wakita, K. Ishikawa, K. Sekine, S. Yoshikawa, A. Sato, K. Okawa, A. Kashimura, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, D. Yamanaka, N. Ohno, P.O. Bauer, F. Oyama, Functional properties of mouse chitotriosidase expressed in the periplasmic space of *Escherichia coli*, *PLoS One* 11(10) (2016) e0164367.
- [35] A. Kashimura, K. Okawa, K. Ishikawa, Y. Kida, K. Iwabuchi, Y. Matsushima, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama, 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* 8(11) (2013) e78669.
- [36] K. Okawa, M. Ohno, A. Kashimura, M. Kimura, Y. Kobayashi, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, M. Kamaya, Y. Kino, P.O. Bauer, F. Oyama, Loss and gain of human acidic mammalian chitinase activity by nonsynonymous SNPs, *Mol. Biol. Evol.* 33(12) (2016) 3183-3193.
- [37] P. Jackson, 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.* 270(3) (1990) 705-13.
- [38] M. Di Rosa, L. Malaguarnera, Chitotriosidase: A new inflammatory marker in diabetic complications, *Pathobiology* 83(4) (2016) 211-9.
- [39] K.B. Eide, A.R. Lindbom, V.G. Eijsink, A.L. Norberg, M. Sorlie, Analysis of productive binding modes in the human chitotriosidase, *FEBS Lett.* 587(21) (2013) 3508-13.
- [40] F. Fusetti, H. von Moeller, D. Houston, H.J. Rozeboom, B.W. Dijkstra, R.G. Boot, J.M. Aerts, D.M. van Aalten, Structure of human chitotriosidase. Implications for specific inhibitor design and function of mammalian chitinase-like lectins, *J. Biol. Chem.* 277(28) (2002) 25537-44.
- [41] K.B. Eide, A.L. Norberg, E.B. Heggset, A.R. Lindbom, K.M. Varum, V.G. Eijsink, M. Sorlie, Human chitotriosidase-catalyzed hydrolysis of chitosan, *Biochemistry* 51(1) (2012) 487-95.
- [42] F. Fadel, Y. Zhao, A. Cousido-Siah, F.X. Ruiz, A. Mitschler, A. Podjarny, X-Ray Crystal Structure of the Full Length Human Chitotriosidase (CHIT1) Reveals Features of Its Chitin Binding Domain, *PLoS One* 11(4) (2016) e0154190.
- [43] P.E. Verwer, C.C. Notenboom, K. Eadie, A.H. Fahal, H.A. Verbrugh, W.W. van de Sande, A polymorphism in the chitotriosidase gene associated with risk of mycetoma due to *Madurella mycetomatis* Mycetoma--A Retrospective Study, *PLoS Negl. Trop. Dis.* 9(9) (2015) e0004061.
- [44] L.W. Stockinger, K.B. Eide, A.I. Dybvik, H. Sletta, K.M. Varum, V.G. Eijsink, A. Tondervik, M. Sorlie, The effect of the carbohydrate binding module on substrate degradation by the human chitotriosidase, *Biochim. Biophys. Acta* 1854(10 Pt A) (2015) 1494-501.
- [45] M. van Eijk, C.P. van Roomen, G.H. Renkema, A.P. Bussink, L. Andrews, E.F. Blommaert, A. Sugar, A.J. Verhoeven, R.G. Boot, J.M. Aerts, Characterization of human phagocyte-derived chitotriosidase, a component of innate immunity, *Int. Immunol.* 17(11) (2005) 1505-12.
- [46] R.G. Boot, A.P. Bussink, M. Verhoek, P.A. de Boer, A.F. Moorman, J.M. Aerts, Marked differences in tissue-specific expression of chitinases in mouse and man, *J. Histochem. Cytochem.* 53(10) (2005) 1283-92.



- [47] M. Ohno, Y. Togashi, K. Tsuda, K. Okawa, M. Kamaya, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama, 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* 8(6) (2013) e67399.
- [48] A. Kashimura, M. Kimura, K. Okawa, H. Suzuki, A. Ukita, S. Wakita, K. Okazaki, M. Ohno, P.O. Bauer, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, F. Oyama, Functional properties of the catalytic domain of mouse acidic mammalian chitinase expressed in *Escherichia coli*, *Int. J. Mol. Sci.* 16(2) (2015) 4028-42.
- [49] E. Tabata, A. Kashimura, S. Wakita, M. Ohno, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, Y. Kino, V. Matoska, P.O. Bauer, F. Oyama, Gastric and intestinal proteases resistance of chicken acidic chitinase nominates chitin-containing organisms for alternative whole edible diets for poultry, *Sci. Rep.* 7(1) (2017) 6662.
- [50] E. Tabata, A. Kashimura, S. Wakita, M. Ohno, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, Y. Imamura, S. Seki, H. Ueda, V. Matoska, P.O. Bauer, F. Oyama, Protease resistance of porcine acidic mammalian chitinase under gastrointestinal conditions implies that chitin-containing organisms can be sustainable dietary resources, *Sci. Rep.* 7(1) (2017) 12963.
- [51] E. Tabata, A. Kashimura, M. Uehara, S. Wakita, M. Sakaguchi, Y. Sugahara, T. Yurimoto, E. Sasaki, V. Matoska, P.O. Bauer, F. Oyama, High expression of acidic chitinase and chitin digestibility in the stomach of common marmoset (*Callithrix jacchus*), an insectivorous nonhuman primate, *Sci Rep* 9 (2019) 159.
- [52] M.A. Seibold, T.A. Reese, S. Choudhry, M.T. Salam, K. Beckman, C. Eng, A. Atakilit, K. Meade, M. Lenoir, H.G. Watson, S. Thyne, R. Kumar, K.B. Weiss, L.C. Grammer, P. Avila, R.P. Schleimer, J.V. Fahy, J. Rodriguez-Santana, W. Rodriguez-Cintron, R.G. Boot, D. Sheppard, F.D. Gilliland, R.M. Locksley, E.G. Burchard, Differential enzymatic activity of common haplotypic versions of the human acidic mammalian chitinase protein, *J. Biol. Chem.* 284(29) (2009) 19650-8.



# 固有ひずみ理論とX線回折を用いた 摩擦攪拌接合継手に対する3次元残留応力の非破壊評価

工学院大学 機械システム工学科 小川 雅

オックスフォード大学 Department of Engineering Science Alexander M. Korsunsky

Non-destructive estimation of three-dimensional residual stresses  
for FSW joints using the eigenstrain methodology and X-ray diffraction

Masaru Ogawa, Department of Mechanical Systems Engineering, Korgakuin University  
Alexander M. Korsunsky, Department of Engineering Science, University of Oxford

**ABSTRACT** : In recent years, friction stir welding (FSW) technique has attracted attention as a method to joint plates made of aluminum alloy A7075. However, FSW is not used in the airline industry, because the three-dimensional residual stresses after welding are unknown. In this study, the eigenstrain reconstruction method was used to evaluate the three-dimensional residual stress of a friction-stir-welded plate made of A7075. In this method, three-dimensional residual stress distributions are calculated from eigenstrains using an inverse analysis. The eigenstrains can be estimated from elastic strains measured by diffraction methods such as neutron diffraction and high-energy synchrotron X-ray diffraction. In this study, a portable X-ray diffractometer was used to measure surface elastic strains. Note that eigenstrains were approximated using the logistic functions to reduce unknown parameters. To evaluate the estimation accuracy of the proposed method, the estimated residual stresses on the back surface were compared with the residual stresses measured by X-ray diffraction. As a result, residual stresses were estimated with higher accuracy. The results of this study clarify that room exists for improving the functional approximation of the eigenstrains.

## 1. はじめに

摩擦攪拌接合(Friction Stir Welding, FSW)は、英国のTWI (The Welding Institute) によって開発された比較的新しい接合方法である<sup>(1)</sup>。ショルダとプローブと呼ばれる部分からなる特有な形状のツールを高速回転させながら材料表面に接触するまで押し込み、そのときに発生する摩擦熱によって材料を軟化させ練り混ぜ接合をする接合技術である (Fig. 1 参照)。摩擦熱を利用するため部材の融解を伴わない為、接合部の熱影響を抑制できアーク溶接などの接合に比べ溶接後の変形が非常に少ないことが特徴で

ある。そのため、現在鉄道車両、土木建造物、自動車を中心に様々な産業分野で活用されている<sup>(2)</sup>。

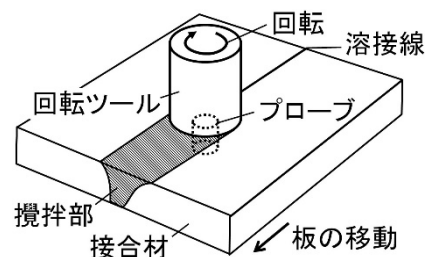


Fig. 1: Illustration of friction stir welding.

しかし、航空機のボディーの接合にFSWは積極的に利用されていない。その理由の1つとして、疲労き裂の進展速度の評価に必要な3次元の残留応力場が非破壊に定量評価できていないという問題がある。例えば、X線回折法では部材表面の残留応力の値しか計測することができない。中性子回折法は3次元の残留応力分布を非破壊に評価することができるが<sup>(3)</sup>、専用施設が必要になるため、現場利用が不可能である。

ここで、非破壊、現場利用、3次元の残留応力分布の測定この3つを可能とするX線回折を用いた固有ひずみX理論に基づく3次元残留応力の定量評価法が提案されている(Table 1 参照)<sup>(4)</sup>。この方法は、部材表面の弾性ひずみから3次元の固有ひずみを<sup>(5)</sup>の推定し、それをFEM(有限要素法)モデルに初期ひずみとして加えることによって部材全域の残留応力を推定する方法である。ここで扱う固有ひずみ(Eigen-strain)とは、均一に生じた場合には内部に応力を生じさせない仮想の非弾性ひずみのことであり、熱ひずみや塑性ひずみといった物理的な非弾性ひずみ(Inherent strain)と必ずしも一致するとは限らない。推定に必要なパラメータは材料のヤング率とポアソン比のみであり、温度依存性のパラメータや複雑な構成方程式を要する熱弾塑性シミュレーションとは異なる。

Table 1: The advantages of the proposed method.

残留応力評価法	3次元	現場利用	非破壊
X線回折	×	○	○
中性子回折	○	×	○
切断法	○	○	×
本手法	○	○	○

先行研究では、溶融溶接部材に対して本手法が適用され、残留応力の評価が行われたが十分な推定精度が得られなかった<sup>(6)</sup>。その原因として、溶接時の溶接揺動により固有ひずみ分布が比較的複雑になってしまったことが考えられた。それに対して、FSW接合は自動接合であり、溶接揺動がなく、接合線方向に比較的均一な接合ができると考えられる。また、溶接余盛が発生せず、固有ひずみが発生する溶接線近傍においても、非破壊にX線回折により計測することが可能である。

本研究では、航空機で利用されているA7075のFSW接合平板を対象に本手法を適用し、その推定精度を評価するとともに、その推定精度を向上させるための計測位置について検討を行う。

## 2. X線回折を用いた3次元残留応力推定法

### 2.1 固有ひずみ理論

部材全域の弾性ひずみベクトル $\{\epsilon_{e\_all}\}$ と部材全域の固有ひずみベクトル $\{\epsilon_e^*\}$ の間には、弾性応答行列 $[R_e]$ を介して(1)式のように表される。

$$\{\epsilon_{e\_all}\} = [R_e]\{\epsilon_e^*\} \quad (1)$$

ここで、 $[R_e]$ の*i*番目の列の成分は、 $\{\epsilon_e^*\}$ の*i*番目の成分を1、他をすべて0とした単位固有ひずみ

$$\text{unit}\{\epsilon_e^*\}_i = \{0, \dots, \epsilon_{ei}^* = 1, \dots, 0\}^T \quad (2)$$

を対象モデルに負荷した際の弾性ひずみとして決定することができる。すなわち、弾性応答行列は部材の材質(ヤング率とポアソン比)と形状がわかれば取得することができる。さらに、この関係から部材表面の一部の弾性ひずみ $\{\epsilon_e\}$ と部材全域の固有ひずみ $\{\epsilon^*\}$ とを関係づける弾性応答行列 $[R]$ を抽出することができる。つまり、次式を得る。

$$\{\epsilon_e\} = [R]\{\epsilon^*\} \quad (3)$$

従って、部材表面の弾性ひずみから部材全域の固有ひずみ分布を推定する逆問題<sup>(9)</sup>は、次式により表される<sup>(4)</sup>。

$$\{\epsilon^*\} = [R]^{-1}\{\epsilon_e\} \quad (4)$$

そして、部材全体の固有ひずみの推定値が求まれば、FEMモデルにそれを初期ひずみとして入力する弾性計算により、部材全域の残留応力分布を推定することができる。これまで、中性子回折法などの高エネルギーな回折手法により計測した内部の値から固有ひずみを推定する方法についても検証されている<sup>(10)-(14)</sup>が、本手法は部材表面の値のみから推定する方法である。

### 2.2 固有ひずみの関数近似<sup>(15)</sup>による未知数削減

本研究による逆問題は、部材表面の2次元情報から部材全域の3次元の固有ひずみ分布を推定するため、そのままでは比較的高い推定精度を得ることができない。そこで、溶接接合に伴う固有ひずみ分布は溶接線から遠ざかるにしたがって減少するという傾向を元に、固有ひずみを減衰関数により表現する。具体的には、以下に示すような4種類のLogistic関数の線形結合により、各成分の固有ひずみの値を推定する。

$$\{\epsilon_s^*\}(y) = \sum_{i=1}^4 \frac{\{a_{si}\}}{1 + \exp(p + q_i y)} \quad (5)$$

$$p = -5.0, \quad q_1 = 0.60, \quad q_2 = 0.40, \quad q_3 = 0.30, \quad q_4 = 0.25$$

ただし、添え字の*s*は接合線方向(x)、接合線垂直方向

(y), 板厚方向(z)を示し.  $\{a_{sij}\}$ は未知係数ベクトルである. また, 定数の $p$ と $q_i$ は固有ひずみの存在領域が高々40 mm 程度であること<sup>(15)</sup>を考慮して, 4つの Logistic 関数が y 方向に 0~40 mm の範囲でほぼ等間隔に分布するように定めた定数である (Fig. 2 参照). さらに, 本研究では, 固有ひずみが板厚方向や溶接線方向に分布する場合も推定可能である<sup>(4)</sup>が, 簡単のため, 板厚方向に固有ひずみが一定であるとし, また溶接線方向においても, 後述の通り均一であるとして未知数を削減した. このように, x, y, z の 3 方向成分の固有ひずみをそれぞれ 4 つの Logistic 関数で近似することにより, 求めるべき未知数の合計を 12 とした. なお, 逆問題解析において, 一般的な安定化手法であるチホノフの適切化手法<sup>(9)</sup>を適用し, その適切化パラメータの値を L カーブ法<sup>(16)</sup>により決定した.

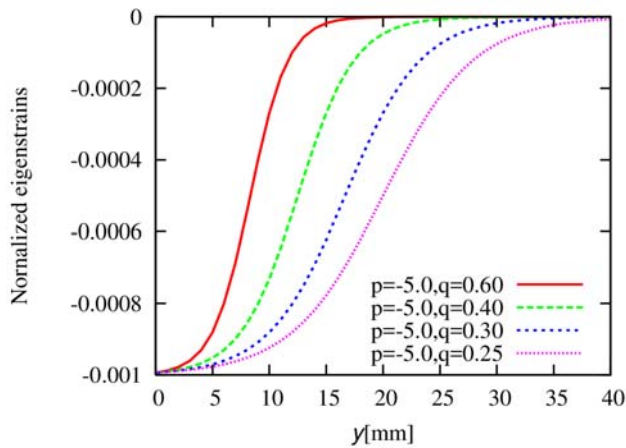


Fig. 2: Four kinds of normalized eigenstrains based on logistic function.

### 3. X線回折法による表面計測

#### 3. 1 供試材

応力除去焼きなましを施した2枚のアルミニウム合金 A7075-O 材を Table 2 に示す摩擦攪拌接合条件により接合し, 溶接開始部と終端部を放電加工により切断することにより, 320×240×5 mm<sup>3</sup>の大きさの FSW 接合平板とした (Fig. 3 参照).

#### 3. 2 X線回折法による表面計測

本研究では, 摩擦攪拌接合時におけるツール挿入面 (上面, z=5mm) の弾性ひずみを X線回折装置により非破壊計測し, 本手法により部材全域の残留応力分布を推定するが, 本手法の推定精度を評価するために, その反対側の面 (下面, z=0mm) の残留応力の推定値と直接 X線回折装置により計測した実測値との比較を行う. 推定に用いる部

Table 2: Friction stir welding (FSW) conditions.

ツール回転速度	1000 rpm
溶接速度	200 mm/min
前傾角	3 deg
ツール挿入深さ	4.65 mm
ショルダ径	φ14 mm
プローブ寸法	4.5 mm (M5)

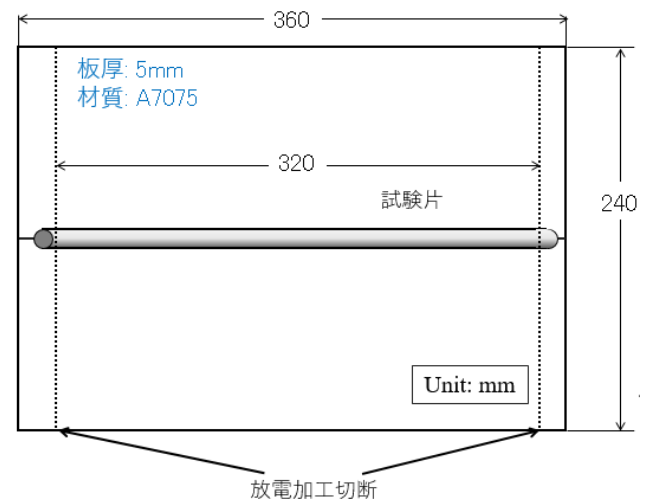


Fig. 3: The electro discharge machining (EDM) cutting of the test piece.

材上面の計測位置を Fig. 4 に示す. 各測定点において, x 方向 (溶接線方向) と y 方向 (溶接線に垂直方向) の 2 つの残留応力成分を  $\cos \alpha$  法に基づく計測法により, それぞれ測定を行った. 用いた可搬型 X線残留応力計測装置は, パルステック工業製の  $\mu$ -X360n である. X線回折による残留応力計測条件は Table 3 に示す通り, 一般的なアルミニウム合金の計測条件である.

#### 3. 3 X線回折法による計測結果

溶接線方向 (x 方向) 成分と溶接線垂直方向 (y 方向) 成分の残留応力の推定結果をそれぞれ Fig. 5 と Fig. 6 に示す. これらの計測結果から, 1 $\sigma$  の計測誤差の範囲を示す範囲が比較的小さく, 比較的信頼性の高い計測ができていることがわかる. また, 溶接線の中央部 (x=160mm) に対して, x 方向にほぼ対称の分布となっていることがわかる. このため, 摩擦攪拌接合は自動溶接プロセスであることから, 残留応力の原因となる固有ひずみが溶接線方向にほぼ均一に生じている可能性が高いと考えられる. これに基づき, 本研究では固有ひずみを推定する際, 溶接線方向に固有ひずみが均一に生じたと考え, 固有ひずみが溶接線方向に均一として, 未知数の削減を行った.

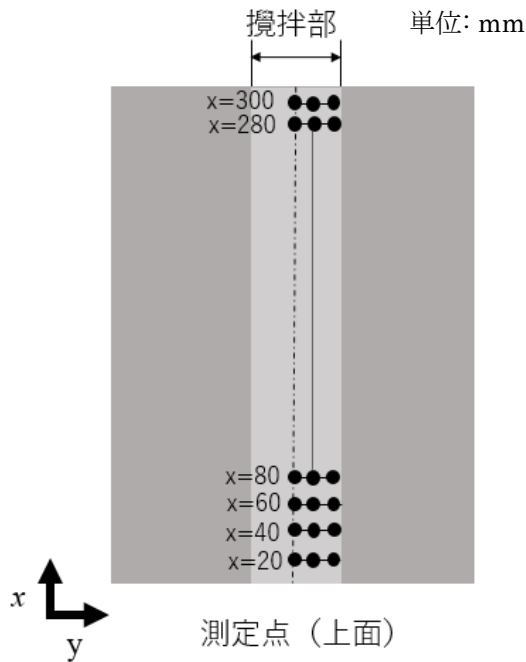


Fig. 4: Measurement points on the top surface ( $z=5\text{mm}$ ) by X-ray diffraction (XRD).

Table 3: Measurement conditions by XRD.

手法	$\text{cos}\alpha$
線源	Cr
電圧	30.00 [kV]
電流	1.20 [mA]
回折角 ( $2\theta_0$ )	139°
入射角 ( $\alpha$ )	25°
照射面積	2φ [mm]

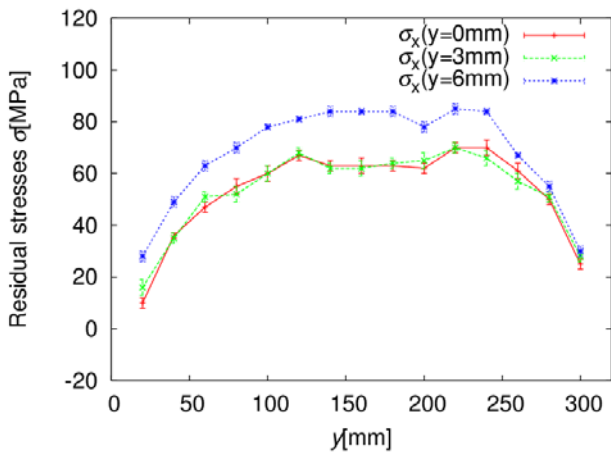


Fig. 5: Residual stress distributions in the welding direction on the top surface at  $z=5\text{mm}$ .

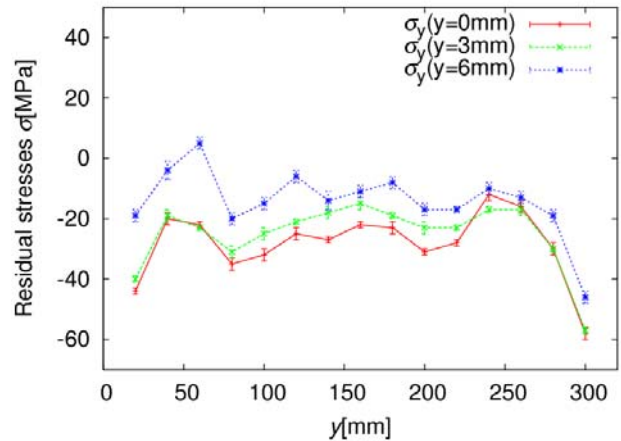


Fig. 6: Residual stress distributions in the perpendicular to the welding direction on the top surface at  $z=5\text{mm}$ .

#### 4. 本手法の残留応力の推定精度の評価と考察

部材上面( $z=5\text{mm}$ )の測定結果より本手法を用いて求めた下面( $z=0\text{mm}$ )の残留応力の推定結果と、下面を直接X線回折法により実測した結果を比較したものを Figs. 7~10 に示す. Fig. 7 と Fig. 8 は、それぞれ部材下面の溶接線中央 ( $x=160\text{mm}$ ) における  $\sigma_x$ 、および  $\sigma_y$  である. また, Fig. 9 と Fig. 10 は、それぞれ溶接線 ( $y=0\text{mm}$ ) における  $\sigma_x$ 、および  $\sigma_y$  である. 全体的に母材部の実測値は計測誤差の範囲が広く、比較的信頼性の低い残留応力分布となっているため、推定精度の検証には不十分であると考えられる. そのため、重要となるのが溶接線付近の摩擦攪拌部の推定精度であると考えられる. Fig. 7 においては、 $x$  方向成分の残留応力である  $\sigma_x$  の推定値は実測値の傾向を概ね再現することができている. Fig. 8 より、 $y$  方向成分の残留応力においても、概ねの分布傾向を表現できていると考えられる.

一方, Fig. 9 においては、正しく計測値の傾向を再現できているとは言えない. この差異の原因として、固有ひずみの厚さ方向分布の考慮が考えられる. 本研究では、固有ひずみの未知数の数を削減するために、固有ひずみが厚さ方向に一定であるとした. 仮に、固有ひずみが厚さ方向にも一定に分布しているならば、Fig. 5 の  $y=0\text{mm}$  の箇所での実測値と Fig. 9 の実測値とが同じ分布となるはずである. しかしながら、これらの分布に差が生じていることから、実際に固有ひずみ分布が厚さ方向に分布を持っていることがわかる. 今後は固有ひずみが厚さ方向にも分布を持つように未知数を設定し、問題を解く必要がある. なお, Fig. 6 の  $y=0\text{mm}$  における実測値と Fig. 10 の実測値にも若干の差異が生じていることから、固有ひずみの厚さ方向分布を考慮する必要性が認められる. また, Fig. 10 の残留応力の推定値と実測値との比較から、 $\sigma_y$  においては、概ねの傾向をとらえることができていることがわかる.

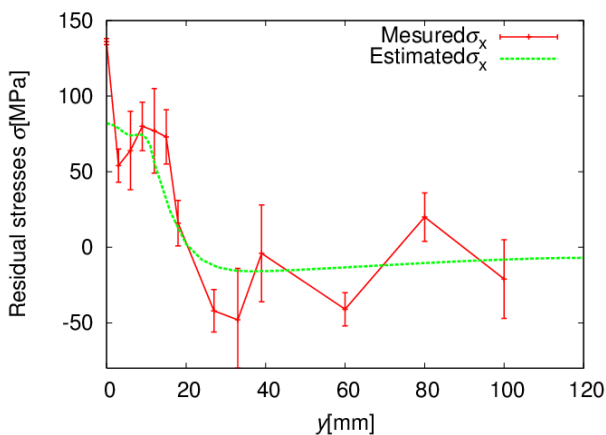


Fig. 7: Residual stress distributions in the welding direction on the bottom surface at  $x=160\text{mm}$  and  $z=0\text{mm}$ .

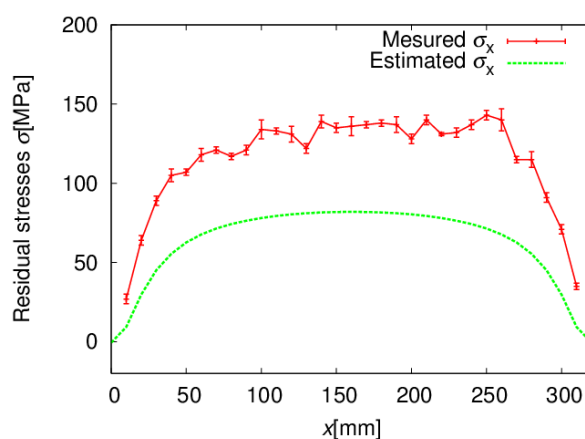


Fig. 9: Residual stress distributions in the welding direction on the bottom surface at  $y=0\text{mm}$  and  $z=0\text{mm}$ .

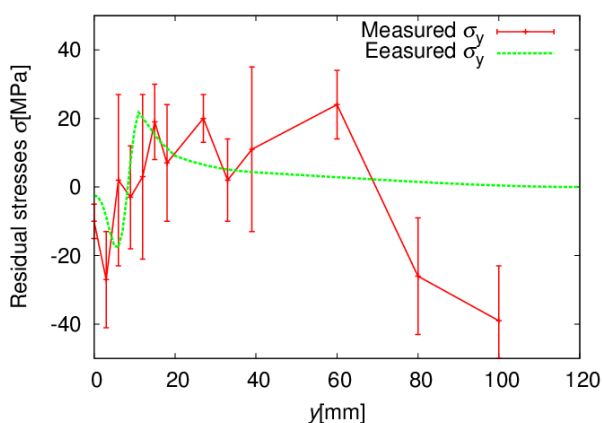


Fig. 8: Residual stress distributions in the welding direction on the bottom surface at  $x=160\text{mm}$  and  $z=0\text{mm}$ .

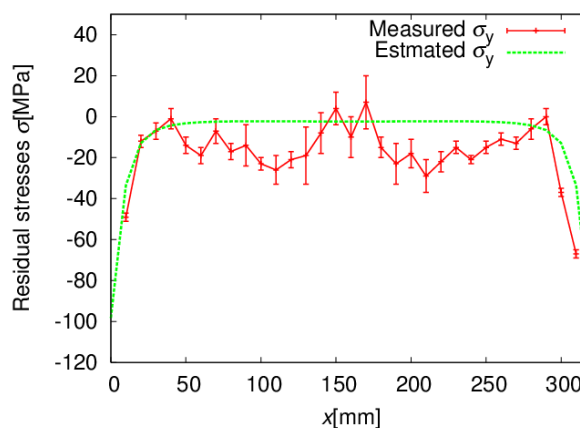


Fig. 10: Residual stress distributions in the welding direction on the bottom surface at  $y=0\text{mm}$  and  $z=0\text{mm}$ .

## 5. 母材部の計測情報量の追加

前述の本手法の推定精度は、部材上面における  $y=0, 3, 6\text{mm}$  の摩擦攪拌部における3列計測値に基づいて本手法を適用した。その結果、概ねの残留応力の傾向をとらえることができたが、必ずしも十分な推定精度であるとは言えない。一般的に、未知推定量の数に対して有効な計測情報数が多ければ多いほど、推定精度を向上させることができることから、本章では、計測情報量を増やした際の残留応力の推定精度について考察する。

追加した計測点は Fig. 11 に示すように、上面 ( $z=5\text{mm}$ ) の  $y=9\text{mm}$  の列である。その際の計測した残留応力分布を Fig. 12 に示す。この図に示されるように、比較的計測誤差の範囲が広いことから、摩擦攪拌部に比べて計測精度が低いことがわかる。これは前述の通り、母材部の特徴である。X 線残留応力計測時に得られるデバイ環の傾向から、回折強度を十分に得られていないことから、母材部においては結晶粒が比較的粗大であることが予想される。

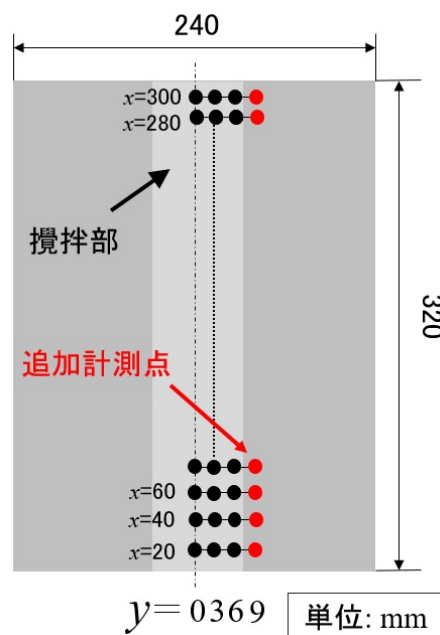


Fig. 11: Additional measurement points on the base metal.

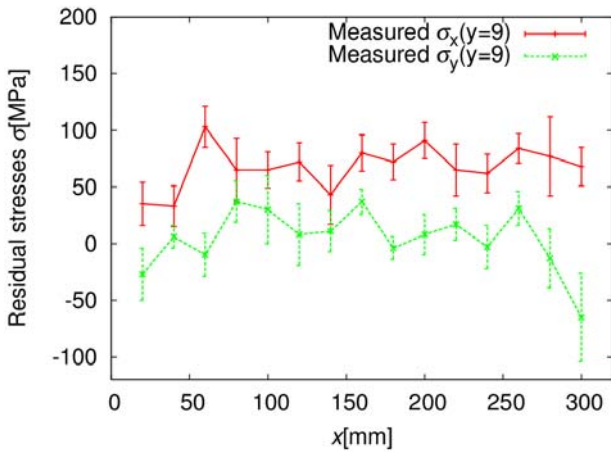


Fig. 12: Residual stresses measured at  $y=9\text{mm}$  on the top surface ( $z=5\text{mm}$ ).

部材上面( $z=5\text{mm}$ )の追加計測情報を含めた際の下面( $z=0\text{mm}$ )の残留応力の推定結果と、下面を直接 X 線回折法により実測した結果を比較したものを Figs. 13~16 に示す。Fig. 13 と Fig. 14 は、それぞれ部材下面の溶接線中央 ( $x=160\text{mm}$ ) における  $\sigma_x$ 、および  $\sigma_y$  であり、青で示した推定値が追加計測情報を用いて算出した残留応力分布である。また、Fig. 15 と Fig. 16 は、それぞれ溶接線 ( $y=0\text{mm}$ ) における  $\sigma_x$ 、および  $\sigma_y$  である。この結果から、母材部の計測情報を増やしたとしても、ほとんど残留応力の推定値は変化しなかった。推定精度を向上させるためには、なるべく固有ひずみの値の大きい箇所を計測することが重要であるが、比較的計測精度の低い母材部においては、固有ひずみの値の大きい溶接線に最も近い  $y=9\text{mm}$  の列を計測しても、推定精度にほぼ影響しなかった。したがって、母材部の計測精度の低い部材の摩擦攪拌接合材に対して本手法を適用する際には、比較的精度よく計測できる摩擦攪拌部のみを計測値だけでよいと考えられる。

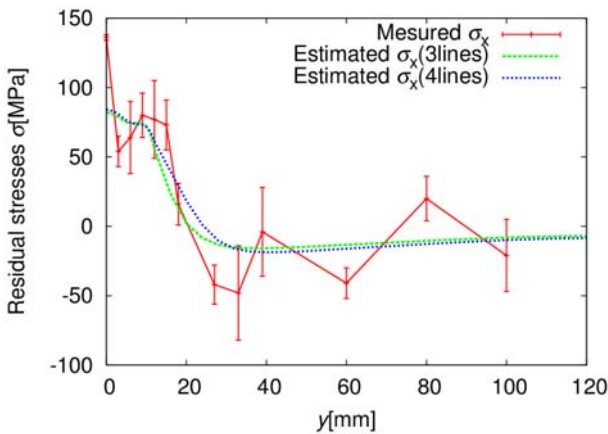


Fig. 13: Residual stress distributions in the welding direction on the bottom surface at  $x=160\text{mm}$  and  $z=0\text{mm}$ .

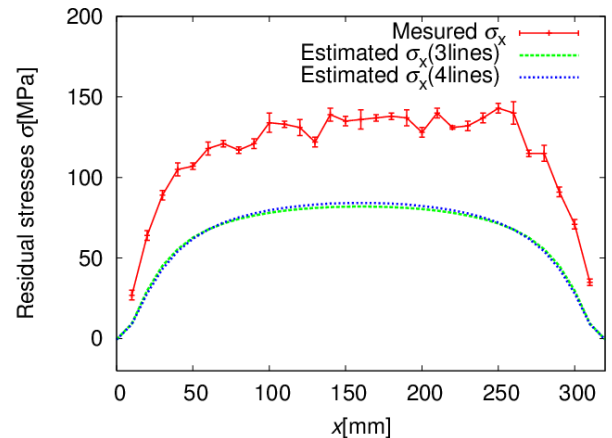


Fig. 15: Residual stress distributions in the welding direction on the bottom surface at  $y=0\text{mm}$  and  $z=0\text{mm}$ .

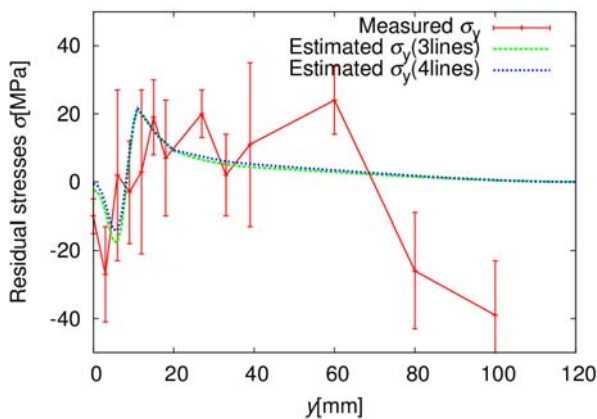


Fig. 14: Residual stress distributions in the welding direction on the bottom surface at  $x=160\text{mm}$  and  $z=0\text{mm}$ .

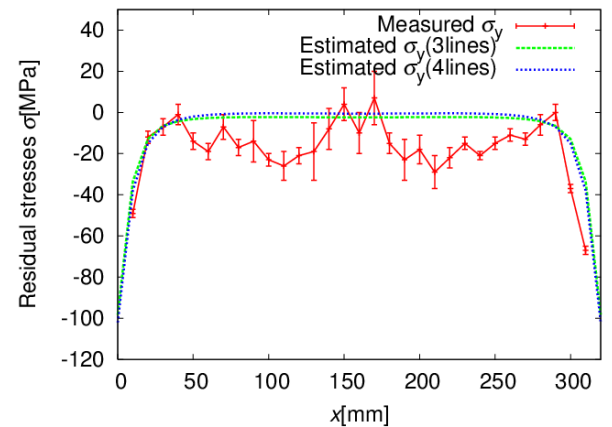


Fig. 16: Residual stress distributions in the welding direction on the bottom surface at  $y=0\text{mm}$  and  $z=0\text{mm}$ .



## 6. まとめ

これまで、X線回折を用いた3次元残留応力推定法は、その理論が示され、数値解析により有効性が評価された。手法の実用化においては、その実証実験が求められている。本研究では、航空機分野において、リベットの代替技術として注目されている摩擦攪拌接合材に対して、本手法の有効性を示すために、航空機で用いられているA7075の溶接平板を対象としてX線回折法による表面計測を行い、内部の3次元残留応力分布を推定した。本手法の推定精度を評価するために、推定のために計測した面とは反対側の面の推定値と直接X線回折法により計測した実測値とを比較した。本研究の成果を以下のようにまとめる。

- (1) 摩擦攪拌部において計測した残留応力の計測値に基づいて推定した残留応力分布は、比較の実測値の傾向を捉えることができた。ただし、母材部については、比較的計測精度が低かったため、推定精度の評価において、有効な検証材料とすることができなかった。
- (2) 部材上面と下面の残留応力分布の傾向が異なっていたことから、固有ひずみ分布は厚さ方向に分布することが考えられる。
- (3) 溶接線の中央部を境に対称な残留応力分布が観測され、FSW接合プロセスが自動溶接であることから、固有ひずみは溶接線方向に均一であることが予想される。
- (4) 比較的計測精度の低い母材部の情報を本手法の推定に用いたが、ほとんど推定精度が変わらなかった。そのため、今回対象とした接合部材においては、摩擦攪拌部だけの計測で十分であると考えられる。

## 謝辞

本研究の一部はJSPS科研費17K06044の助成を受けたものです。また、研究の遂行に際して、工学院大学教授の大石久己先生には、研究環境におけるご支援を賜りました。ここに感謝の意を表します。

## 参考文献

- (1) 溶接学会：摩擦攪拌接合-FSWのすべて-，産報出版，pp.3-29 (2006)。
- (2) 大石郁，藤井英俊：FSW技術と自動車への適用例，まてりあ，Vol. 53, No. 12 (2014)，pp. 603-607。
- (3) 鈴木環輝，杉山昌章，及川初彦，野瀬哲郎，今福宗行，友田陽，鈴木裕士，盛合敦：中性子回折法による鋼材溶接部の残留応力評価技術，新日鉄技法，Vol.390，(2010)，pp.49-53。
- (4) 小川雅：X線回折を用いた深さ方向の溶接残留応力分布の非破壊評価，日本機械学会論文集，Vol.80，No.815 (2014)。
- (5) Mura, T.: Micromechanics of defects in solids,

Martinus Nijhoff Publishers, (1987), pp. 1-15.

- (6) 上田幸雄，福田敬二，谷川雅之：固有ひずみ論に基づく3次元残留応力測定法，日本造船学会論文集，No. 145 (1979)，pp. 203-211。
- (7) A.M. Korsunsky, A Teaching Essay on Residual Stresses and Eigenstrains, Butterworth-Heinemann (2017)。
- (8) 小川雅，石井丈紘，古迫誠司：X線回折を用いた固有ひずみ理論に基づく3次元残留応力推定手法の有効性評価，材料，Vol. 64, No. 11 (2015)，pp. 932-939。
- (9) 久保司郎：逆問題，培風館，(1992)。
- (10) Uzun, F. and Korsunsky, A. M.: On the identification of eigenstrain sources of welding residual stress in bead-on-plate inconel 740H specimens, International Journal of Mechanical Sciences, Vol. 145, (2018)，pp. 231-245。
- (11) Jun, T.-S. and Korsunsky, A. M.: Evaluation of residual stresses in 12%-Cr steel friction stir welds by the eigenstrain reconstruction method, Journal of the Korean Society of Manufacturing Technology Engineers, Vol. 24, No. 1 (2015)，pp. 15-22。
- (12) Jun, T.-S., Venter, A. M. and Korsunsky, A. M.: Inverse eigenstrain analysis of the effect of non-uniform sample shape on the residual stress due to shot peening, Experimental Mechanics, Vol. 51 (2011)，pp. 165-174。
- (13) Jun, T.S., and Korsunsky, A. M.: Evaluation of residual stresses and strains using the Eigenstrain Reconstruction Method, International Journal of solids structures, Vol.47, (2010)，pp. 1678-1686。
- (14) Korsunsky, A. M., Regino, G. M. and Nowell, D., Variational eigenstrain analysis of residual stresses in a welded plate, International Journal of Solids and Structures, Vol. 44 (2007)，pp. 4574-4591。
- (15) 上田幸雄，麻寧緒：固有ひずみの関数表示法および推定法—固有ひずみ分布の関数表示による残留応力の推定法と測定法(第1報)—，溶接学会論文集，Vol. 11, No. 1 (1993)，pp. 189-195。
- (16) Hansen, P. C.: Analysis of discrete ill-posed problems by means of the L-curve, SIAM Review, Vol. 34, No. 2 (1992)，pp. 561-580。

## 2018年度研究成果

### 国際会議

- (1) Yamawaki, D., Ogawa, M. and Korsunsky, A. M.: Nondestructive estimation of three-dimensional residual stresses for an FSW joint using X-ray diffraction and the eigenstrain reconstruction method, European Conference on Residual Stresses (ECRS10), 2018年9月14日。

### 国内発表

- (2) 山脇大輝，福島郁弥，Korsunsky, A. M., 小川雅：X線回折を用いた3次元残留応力の非破壊推定法の摩擦攪拌接合材に対する適用の研究，日本材料学

会関東支部 2018 年学生研究交流会, 2018 年 10 月 13 日.

- (3) 小川雅, 研究協力者: 山脇大輝, Korsunsky, A.M.:  
溶接構造物の疲労寿命予測のための X 線 3 次元  
残留応力推定法, イノベーション・ジャパン 20  
18, JST, 2018 年 8 月 30 日, 31 日.

## 拡張ヒッグスセクターを伴う新物理学模型とその現象論的性質の探求

工学院大学 教育推進機構 進藤哲央

工学院大学 教育推進機構 加藤潔

工学院大学 教育推進機構 渡部隆史

National Taiwan University Cheng-Wei Chiang

University of Southampton Stefano Moretti

Phenomenological study of new physics models with extended Higgs sector

Tetsuo Shindou, Kogakuin University  
 Kiyoshi Kato, Kogakuin University  
 Takashi Watanabe, Kogakuin University  
 Cheng-Wei Chiang, National Taiwan University  
 Stefano Moretti, University of Southampton

**ABSTRACT** : Higgs sector is a probe of new physics beyond the Standard Model of elementary particles. We investigate several new physics models with an extended Higgs sector, which are well motivated by unsolved problem in the Standard Model, such as a generation mechanism of neutrino masses, a candidate of the Dark Matter, a mechanism for the baryon asymmetry of the Universe, and so on. We explore the detail of such models theoretically and experimentally. For the theoretical studies, we have mainly studied the following topics: (1) Scenarios with Dark matter in the minimal supersymmetric standard model (MSSM) and their phenomenological consequences, (2) a UV picture of a composite Higgs model which leads to tiny neutrino masses, (3) Dark Matter candidates in the three Higgs doublet model with  $Z_3$  symmetry. We have also contributed to developments of the detector for the International Linear Collider (ILC). The ILC is expected as a very powerful tool to explore Higgs sector of both the Standard Model and new physics models.

### 1. はじめに

素粒子標準模型は、非常に多くの素粒子現象を説明することができるゲージ理論に基づいた模型であり、2012年7月のヒッグス粒子の発見によって、そこに含まれるべき基本粒子が全て発見された。また、2019年5月段階では、素粒子標準模型に含まれないような、新しい新粒子は未発見である。これらのことから、素粒子標準模型は、

実験的に確立した模型となったと言える。

しかし、素粒子標準模型には未解決の問題点がいくつかあり、それらをいかに解決していくかが世界中で活発に議論されている。例えば、ニュートリノ質量、宇宙の暗黒物質、宇宙のパリオン数などは、素粒子標準模型では説明できない現象であり、これらを説明できるように模型を拡張し、標準模型を超える新物理学模型を構築する必要がある。

標準模型の問題点を解決するような新物理学模型の多くは、ヒッグスセクターの拡張を伴う。このため、ヒッグ

スセクターの有様を理論的・実験的に詳細に調べることは、真の新物理学モデルの姿を決定していくために非常に有効である。言い換えれば、ヒッグスセクターの物理は新物理学探索のための窓であるといえる。

ヒッグスセクターの精密測定によって、標準模型の予想からのずれが見つかれば、それは新物理学モデルの詳細について大きなヒントとなる。現在、ヨーロッパで稼働中の LHC 実験は、標準模型に含まれないような未知の新粒子探索を行うと同時に、ヒッグスセクターの詳細についても非常に多くのデータを取り、その解析を行なっている。そこで得られた情報は、新物理学モデルの構築や制限に大きく寄与している。未知の新粒子が LHC で発見されていないことから、素朴には、それらの質量は TeV スケール程度かそれより大きいと期待される。このような状況で、多くの模型においては、ヒッグス粒子の結合定数に現れる新物理学モデルの影響は素朴には%レベルであることが予測されるため、0.1%レベルの精密測定を行うことができれば、大変有用な情報を得られると期待できる。しかし、LHC はハドロン衝突型加速器であるがために、ヒッグス粒子の結合定数について、0.1%レベルの精密測定を行うことは大変困難である。

現在、国際共同プロジェクトとして計画中の ILC 実験は、0.1%レベルでヒッグス粒子の結合定数測定ができる実験であり、その建設に向けて世界中で真剣な議論が展開されている。特に、日本は ILC 建設の唯一の候補地であるため、ILC を日本に誘致するか否かについての議論が国内で慎重かつ急ピッチに行われている。もし将来、ILC 実験が建設され稼働すれば、ヒッグスセクターを窓とした新物理学モデルの探索に大きな弾みがつくであろう。

このような状況に鑑みて、本研究計画では標準模型で未解決の諸問題を解決するような新物理学モデルの候補を考え、それらの現象論的性質を詳細に研究し、現在および将来の様々な実験によってそれらの新物理学モデルを分類し、新物理学モデルの真の姿を絞り込んでいくための研究を行う。また、同時に ILC 実験の検出器開発にも携わっていく。

2018 年度は、以下のテーマについて研究を行なった。

- (1) 暗黒物質の性質を説明できるような超対称性標準模型の現象論的性質を調べる。
- (2) ニュートリノ質量をループ効果で説明できるような複合ヒッグス模型について現象論的性質を調べる。
- (3) 有効理論的な拡張ヒッグス模型において暗黒物質の性質を説明できる可能性を調べる。

## 2. 超対称性標準模型

超対称性標準模型は、標準模型にフェルミオンとボゾンの対称性(超対称性)を導入した模型であり、新物理学模型の有力候補の一つである。この模型のヒッグスセクターは、2重項が2つ含まれるような拡張ヒッグスセクターとなっている。陽子崩壊を防ぐために導入される R パリティという離散対称性が破れないと仮定することにより、最も軽い超対称性粒子(標準模型に含まれる粒子のパ

ートナーとして模型に導入される新粒子)が暗黒物質の候補となり得る。

本研究では、この超対称性標準模型において、暗黒物質の残存量を正しく再現できるようなシナリオを選び、その現象論的性質を研究した。

文献(1)では、標準模型ヒッグス粒子以外に模型に登場する重いヒッグス粒子たちが寄与することで、宇宙の熱史において現在観測されている暗黒物質の残存量が再現できるシナリオに注目した。このとき、ラグランジアンのパラメータには一般に CP を破るような位相が現れる。多くの研究では、簡単のためにこの CP 位相を 0 に置いた解析がなされるが、我々の研究では CP 位相を残した解析を行なった。実際、CP 位相の値によって、暗黒物質を地下実験によって直接検出する際のイベント数の予想が影響を受けるので、CP 位相を含む解析を行うことは重要である。一方、CP 位相が含まれている場合には、電子などの電気双極子モーメントの値に大変大きな寄与が現れる。電気双極子モーメントはすでに大変厳しい上限が実験によって得られており、将来さらに上限が下がると期待されるため、我々が考えているシナリオを探索する上では、強力なツールとなり得る。我々は、これらの測定に関する理論の予測を調べることで、暗黒物質粒子以外の新粒子が極めて重い場合であっても、CP 位相の値が強く制限されていることを発見した(図1)。

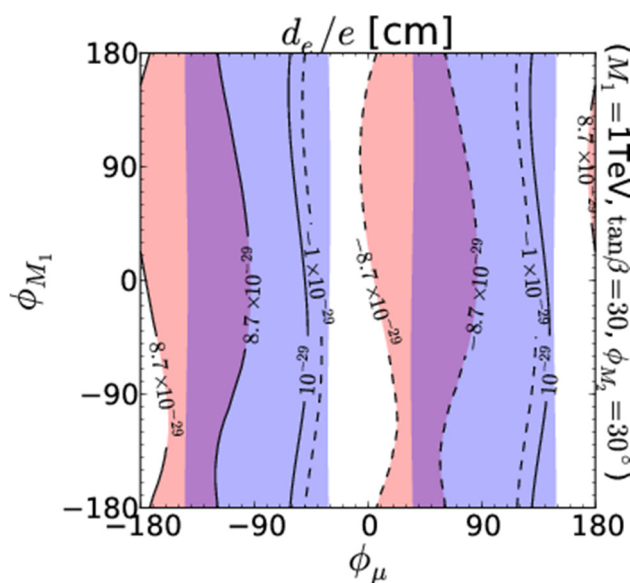


Fig.1 暗黒物質の残存量を説明できるような超対称性模型における CP 位相の制限の図。文献(1)より引用。

文献(2)では、上記のシナリオとは異なり、宇宙初期における他の超対称性粒子の寄与によって暗黒物質の残存量が再現されるような状況を考え、ILC 実験によって、このようなシナリオがどのように検証されるかを示した。特に、 $e^-e^+ \rightarrow Zh$  および  $e^-e^+ \rightarrow \nu\bar{\nu}h$  のようなヒッグス粒子

が1つ生成されるプロセスに注目して解析し、1-loopの寄与を見積もり、それが重要な寄与を与えることを示した。

ILC実験は0.1%レベルの精密さでヒッグス粒子に関係する物理量を測定できるマシンであり、ILCの稼働に備えて様々な理論予測を行う際には、ループレベルの計算が不可欠になる。このような計算を効率よく行うための計算ツールの開発もまた、本研究計画では重要な研究課題となっている。文献(3)では、このような計算ツールにおいて、ループ計算を効率よく行うための計算アルゴリズムに関する研究を行なった。

### 3. 複合ヒッグス模型とニュートリノ質量

微小ニュートリノ質量の起源は、標準模型を超える物理を考える上での大きな動機であり、様々なシナリオが考えられている。本研究では、ループ効果によって微小なニュートリノ質量を生成する模型群についての研究を行なった。

ループ効果によって微小質量を生成するような模型は、現象論模型として考えられることが多いが、本プロジェクトの代表者である進藤は、ゲージ原理に基づいたより基本的な理論によって、そのような現象論模型を基礎づけられないかについての研究を、国内外の共同研究者たちと継続して行なってきた。

文献(4)は、このような研究をまとめたミニレビューである。ここでは、ループ効果によってニュートリノ質量が生成されるような現象論模型についての紹介を行い、それらの1つについて、超対称性ゲージ理論に基づく基礎づけを行える可能性を示した。この模型では、有効理論に現れる、標準模型ヒッグス粒子を含むヒッグスセクターのスカラー粒子は、より基本的な新粒子の複合粒子として記述され、大変豊富な現象論的性質を有している。この現象論的性質について、現時点までに解析したことについても文献(4)に簡潔にまとめてある。この研究テーマは、今後も本プロジェクトの一部として継続していく。

### 4. 拡張ヒッグス模型における暗黒物質の可能性

有効理論としての拡張ヒッグス模型を考える。特に、ヒッグス多重項が複数含まれるような模型に注目する。本研究では、特に、3つのヒッグス2重項を含む模型に注目する。3つのヒッグス2重項が含まれる模型では、暗黒物質の安定性を保証するための離散対称性を導入する際のバリエーションが豊富である。本研究では特に、3つの2重項に対してZ3対称性を課す場合に注目する。このような状況においては、暗黒物質の候補が1種類ではなく、2種類現れる可能性があり、2種類の暗黒物質がお互いに寄与しあうことにより、残存量の計算や直接検出の予言などに影響が現れる。この研究は現在進行中の研究であり、近々論文としてまとめて公表する予定である。またこのテーマについては、進藤とS. Morettiのグループが共同で行なっている。

3つのヒッグス2重項を含む模型以外にも、ヒッグスセクターの拡張には多様な可能性がある。標準模型で未解決の問題と絡めて、様々な可能性を議論し、現象論的性質に基づいて模型の分類を行う研究は、上記テーマ以外にも本プロジェクトの一部として議論している。進藤とC-W. Chiangのグループは主として、このような可能性の追求を2019年度以降も行なっていく予定である。

### 5. まとめ

2018年度は、超対称性標準模型における暗黒物質の可能性に注目した研究を特に注力して行なった。また、これ以外にも複合ヒッグス粒子を含む模型や、他の拡張ヒッグスセクターの可能性についても研究を行い、成果をあげることができた。また、渡部がILC実験のメンバーとして行なっているILCの検出器開発も着実に進んでいる。

2019年2月には、大阪大学においてヒッグスセクターと新物理に関する国際会議“Higgs as a Probe of New Physics 2019”<sup>(5)</sup>が開催されたが、本プロジェクトもこの会議の開催に協力した。この国際会議には、国内外から120名のヒッグス物理研究の専門家が参加し、大変活発な議論が行われた。また、会議内ではILC実験に関するシンポジウムも企画した。

ILC実験に関しては、3月7日に文部科学省が関心をもって国際協力に関する議論に注視し、誘致の可否の議論を継続していくという見解を発表した。ILC計画が実現するかどうかは、今後の1-2年にかかっているといっても過言ではない。本研究計画は、このような社会情勢において、極めて時宜を得たプロジェクトである。2019年度も、2018年度に引き続いて研究計画を強力に推進し、成果をあげていきたい。

### 参考文献

- (1) T. Abe, N. Omoto, O. Seto, and T. Shindou: Electric dipole moments and dark matter in a CP violating MSSM, *Phys. Rev. D* 98 (2018), 07029.
- (2) Y. Kouda, T. Kon, Y. Kurihara, T. Ishikawa, M. Jimbo, K. Kato, and M. Kuroda: One-loop effects of Minimal Supersymmetric Standard Model particles in  $e^+e^-$  to  $Zh$  and  $e^+e^-$  to  $\nu\nu$  h at the international Linear Collider, *PTEP*, 2018(2018), 083B03.
- (3) E. de Doncker, F. Yuasa, K. Kato, T. Ishikawa, J. Kapenga, O. Olgabemi, Regularization with Numerical Extrapolation for Finite and UV-Divergent Multi-loop Integrals, *Comput. Phys. Commun.* 224 (2018) 164-185.
- (4) T. Shindou: A UV Picture of a Loop Induced Neutrino Mass Model and Its Phenomenological Consequences, *Front. In Phys.* 6 (2019) 159.
- (5) <http://www3.u-toyama.ac.jp/theory/HPNP2019/>





### 3. 総合研究所科学研究費採択奨励研究報告 (2018年度)



## 光化学反応による Cu/CNT 微細配線の形成

応用物理学科 准教授

永井 裕己

本研究の目的は、第 5 期科学技術基本計画がめざす超スマート社会に向けた次世代 LSI の駆動に必要な大電流にも対応できるカーボンナノチューブが分散した銅微細配線の光形成を、簡便な化学的湿式法の分子プレカーサー法で試みる。シリコン基板上に回路を多数集積した LSI に代表される半導体デバイスは、現代社会を支えるスマートフォンなどの高度な情報処理機能をもつ電子機器の発展に寄与してきた。現在の配線材料として、主に銅(Cu) が用いられている。近年は、LSI の高集積化によって、最小線幅 20 nm 以下の微細配線が実現している。しかし、このまま微細化を進めても、配線技術の限界のために、数年後には LSI の性能向上は限界に達すると予測されている。

2013 年に産総研は、電気メッキ法で銅を析出させて、単層カーボンナノチューブと Cu の複合材料を作製した。この複合材料は、Cu と同程度の電気伝導度をもちながら、Cu の 100 倍まで電流を流すことができる。産総研の報告によれば、この複合材料の作製は、Cu を CNT 構造体の内部にまで満遍なく形成する必要がある。

これまでに当研究室は、分子プレカーサー法による銅薄膜形成を報告した。この薄膜形成用の溶液に含まれる銅錯体は特有の d-d 吸収帯と電荷移動吸収帯をもち、特に後者が関わる紫外光領域の低温光照射で化学反応を引き起こすことが期待される。本年度は、先に銅プレカーサー水溶液の調製を検討した。銅(II)のプロピルアミンとエチレンジアミンの混合配位子錯体を含む新たなプレカーサー膜への紫外光照射によって、Cu<sub>2</sub>O 多結晶薄膜形成を達成した。さらに、照射時にプレカーサー膜の一部分は、紫外光が遮蔽されるようにしてパターン形成を試みた。その結果、遮光部分を水洗によって除去して、Cu<sub>2</sub>O 薄膜のパターン形成に成功した。これは、プレカーサー膜中の安定な錯体は、ゾルゲル法の原理である含金属イオン成分の加水分解せずに存在し、かつ水溶性を保っていることを利用したもので、パターンニングに水洗を用いた初めての例である。紫外光照射で形成した膜をさらに熱処理して得た Cu<sub>2</sub>O 薄膜の電気抵抗率、キャリア濃度、ホール移動度は、それぞれ  $1.4(2) \times 10^2 \Omega \text{ cm}$ ,  $8(3) \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ,  $0.9(3) \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  を示した。以上のことから、光反応による膜形成を達成した。

今後は、光反応による膜形成を達成したことから、金属銅薄膜の形成とパターンニングを試みる。

## 高齢者に対する自重での伸張性筋活動を主とした筋力トレーニングの効果

保健体育科 准教授  
桂 良寛

筋を伸ばしながら力を発揮する伸張性筋活動は、大きな筋肥大をもたらすが、筋損傷や筋肉痛を誘発する原因にもなる。そのため、特に高齢者に対する筋力トレーニングを行う際には、積極的に用いられていない。しかし近年、高齢者であっても安全で効果的に実施できることが、レッグエクステンションマシンや階段を用いた研究で報告され始めている。我々は、更に汎用性を高めるため、体重のみを利用した新たな伸張性筋力トレーニングを開発し、一般的な短縮性筋活動を主とした筋力トレーニングと比較して、筋機能や身体機能を安全に向上させることができるかどうかについて検証を行った。

対象は、東京都町田市の集合住宅在住の高齢者 17 名(65-84 歳)を、伸張性筋力トレーニングを行う群(Eccentric training group: ECC)9 名と、短縮性筋力トレーニングを行う群(Concentric training group: CON)8 名に分割した。両群のトレーニング内容は、チェアスクワット、片足スクワット、膝開き、膝閉じ、肘伸ばし、肘曲げ等の 8 種目とし、週 1 回の頻度で 11 週間実施した。ECC では、パートナーによって短縮性筋活動よりも伸張性筋活動が強調され、CON では伸張性筋活動よりも短縮性筋活動が強調される特徴がある。伸張性筋力トレーニングによる筋損傷、筋肉痛を防ぐため、先行研究と同様に、低負荷、低速度、小さい関節可動域からの動きを介入前にトレーニングし、これらを 1 週目から徐々に増加させていった。大腿部の筋厚(MT)、脚伸展筋力(MVC)、30 秒椅子立ち上がりテスト(CS)、Timed up and go(TUG)、2 分間ステップテスト(2MS)、長座位体前屈(SR)、開眼、閉眼での重心動揺検査(Bal-EO or EC)等の体力測定、筋肉痛を評価する Visual analog scale(VAS)を介入前後に実施し、比較検討を行った。

各項目における介入前後の変化率の比較では、MT (ECC:  $21.6 \pm 9.2\%$  vs CON:  $6.7 \pm 7.1\%$ )、MVC ( $38.3 \pm 22.6\%$  vs  $8.2 \pm 8.4\%$ )、CS ( $51.0 \pm 21.7\%$  vs  $34.6 \pm 28.3\%$ )、TUG ( $16.7 \pm 9.9\%$  vs  $6.3 \pm 7.7\%$ )、2MS ( $9.9 \pm 6.0\%$  vs  $6.0 \pm 7.3\%$ )、Bal-EC ( $35.1 \pm 6.7\%$  vs  $8.8 \pm 16.2\%$ )において、ECC が CON よりも有意( $P < 0.05$ )な改善を示した。また VAS については、両群共に各週のトレーニング後の値は 5mm 以下と小さかった。これらの結果は、高齢者に対する自重での伸張性筋力トレーニングが、短縮性筋力トレーニングよりも下肢筋力、筋持久力、移動能力、静的バランス機能を向上させ、身体機能の維持、向上に繋がることを示しており、今後の高齢社会において重要なトレーニングの一つとなりうることを示唆された。

## 背面処理に基づいたカードベース暗号

システム数理学科 教授  
真鍋 義文

暗号プロトコルは通常、計算機で実行されるがその処理はユーザにとってはブラックボックスになり、通常のユーザが処理内容の正しさを検証することは困難である。また、計算機が使えない状況では暗号プロトコルの実行は不可能となる。これらの問題を解決するため、トランプのような物理的なカードを用いて暗号プロトコルを実行する研究が行われている。

本研究では、背面処理と呼ぶ、暗号プロトコルを実行する各プレーヤーが、他のプレーヤーから見えないところで行う処理を導入することによる効率化を検討する。新たな3種類の背面処理プリミティブを導入することにより、論理積・排他的論理和・コピーという基本的論理演算がすべて理論的最小枚数の4枚のカードで実現可能であることを示した[1]。これらの基本的論理演算の組み合わせで任意の関数を実現可能である。コピーおよび論理積については、背面処理を利用可能でない従来モデルの元では、一様なシャッフル(プレーヤーが特別な器具を利用せずに行える、カードのシャッフル処理)のみを用いた、有限時間で必ず終了するプロトコルはカード4枚では実現不可能であることが証明されているため、この結果は背面処理の優位性を示すものである。

また、各プレーヤーが持つ値を計算アルゴリズムに与える入力処理を行うプロトコルでは、他のプレーヤーに入力値を知られないことが必要である。この目的にも背面処理を利用可能である。この処理を背面入力処理と呼ぶ。背面入力処理を用いることにより、2者間の金持ち比べプロトコルを、カード4枚で実現するプロトコルを新たに示した[2]。このプロトコルはプロトコルの終了時までカードの開示処理が全く行われないう開示性を有している。無開示性は完璧なセキュリティが自明に達成される点で好ましい性質である。

(参考文献)

[1] Hibiki Ono and Yoshifumi Manabe: ‘‘Card-based Cryptographic Protocols with the Minimum Number of Cards Using Private Operations,’’ Proc. of 11th International Symposium on Foundations & Practice of Security (FPS 2018) (Nov. 2018).

[2] Hibiki Ono and Yoshifumi Manabe: ‘‘Efficient Card-based Cryptographic Protocols for the Millionaires’ Problem Using Private Input Operations,’’ Proc. of 13th Asia Joint Conference on Information Security (AsiaJCIS 2018), pp.23-28 (Aug. 2018).

## 拡張複合ヒッグスセクターをともなう新物理学模型の現象論的性質

基礎・教養科 教授  
進藤 哲央

本研究では、拡張されたヒッグスセクターを伴うような、様々な新物理学模型について、現象論的特徴を調べ、それらを足がかりにより基本的な新物理理論の構築を目指すことを目標に研究を行なった。具体的には、(1) 複合ヒッグスを含むような模型の現象論研究と UV 描像の探求、(2) 超対称性標準模型における暗黒物質の可能性と、将来実験による検証可能性、(3) 3つのヒッグス 2 重項を含む模型における暗黒物質の研究および、フレーバー物理への寄与に関する研究の 3つのテーマについての研究を行なった。それぞれについて、現時点で得られている成果は以下の通りである。

### (1) 複合ヒッグスを含むような模型の現象論研究

複合ヒッグスを含むような模型の UV 描像として、超対称性ゲージ理論に基づく強結合理論を考え、この枠組みにおいて低エネルギーでどのような現象論が展開されるかについては、これまでも継続して研究を行ってきた。2018年度は、特にニュートリノ質量の生成に注目した研究を行い、これまでの研究成果とあわせて、査読付き雑誌にレビュー論文 1 本 (T. Shindou, “A UV picture of a loop induced neutrino mass model and its phenomenological consequences”, *Front. In Phys.* 6 (2019) 159) を掲載した。

### (2) 超対称性模型における暗黒物質と現象論の研究

超対称性模型において、重いヒッグス粒子の交換にの効果により、暗黒物質の残存量を再現できるシナリオに注目し、そのシナリオにおける電気双極子モーメントの測定からの制限を議論した。この結果をまとめ、査読付き論文 1 本 (T. Abe, N. Omoto, O. Seto, T. Shindou, “Electric dipole moments and dark matter in a CP violating MSSM”, *Phys. Rev. D* 98 (2018), 075029) を出版した。またこの論文に基づいて国内学会発表 1 件、国際会議発表 2 件を行い、プロシーディングス 1 本を出版した。

### (3) 3つのヒッグス 2 重項を含む模型における現象論研究

3つのヒッグス 2 重項を含むような拡張ヒッグス模型において、 $Z_3$  対称性を課した場合の暗黒物質の振る舞いについて研究を開始して、現在継続中である。



## 対話システムにおける対話破綻のメディア依存効果に基づく マルチモーダル行動デザイン

システム数理学科 教授  
大和 淳司

昨年度は複数台ロボットを用いた対話システムにより対話破綻の回避ないし緩和の効果があることが確認できたが、対話における主観的な受け止め方全体としての結果であり、どのような要因の変化が破綻回避に繋がっているのかについては計測、分析が行えていなかった。そこで今年度は、この点について詳細な分析を進めた。従来、ロボット複数台との対話において「対話感の向上」と呼ばれる効果が確認されている。ここで「対話感」とは主観的な「ロボットと十分に対話できたという感覚」とされているが、「対話感」自体が総合的な指標であることから、ロボットとの対話感向上を目的としてどのような要因を強化することが望ましいかを検討するため、より個別具体的な分析が必要であると考えられる。

今回はこの目的のため「対話をしようという意欲」がどのように変化するかに着目した。対話意欲は人同士の複数人対話においてその表出分析やモデル化の研究が行われており、比較検証に適するものと考えられる。今回は、対話意欲がロボット1台対話と2台対話でどのように変化するか、また複数台化にあたり、状況認識が複雑化する影響がでるのか、について検討した。実験にあたり、対話意欲を計測する必要がある。主観的な評価として、ユーザに入力を教示することとしたが、入力の手間を極力軽減するために入力デバイスに工夫を行った。また、主観的な意欲のみならず、客観的な指標が得られることが望ましい。今回は唾液アミラーゼ活性に着目した。これはストレス指標として様々な実験で用いられている実績があり、比較的簡易な計測が可能である。対話意欲とストレス指標の関係については、なお今後も検討する必要があるが、客観計測に向けた試みとしてはある程度意味のある結果が得られたものとする。

実験の結果、ロボット複数台との対話において主観的には対話意欲が向上することが確認できた。また複数台であっても、ロボットのジェスチャを停止した実験においては、対話意欲は1台時よりもむしろ低下した。これは対話状況認識において、複数台化がむしろマイナスの効果があったためであると考えられる。実際、2台対話においてロボットのジェスチャがない場合は、直前の発話が2台のどちらのロボットであったかが正しく認識できない割合が14%あった。当然ジェスチャ有りの条件では100%正しく認識できるのに比べ、状況認識の困難さが増していることが伺える。また、唾液アミラーゼ活性によるストレス値は、対話意欲が高い場合には対話量が多い群で低下し、対話意欲が低い群では対話量が少ない群で低下することが観測された。

本研究では電子情報通信学会HCGシンポジウム等において学生主著の対外発表3件を実施し、奨励研究費を実験機材、消耗品等に活用した。

## 増大するノード内並列性を活かすタスク並列型代数的多重格子法

コンピュータ科学科 准教授

藤井 昭宏

1 ノードの計算機のコア数は増大し、多くの CPU コアを十分に使い切るプログラム実装手法が重要になってきている。また、多重格子法というと通常は連立一次方程式を解くための手法であったが、近年それが拡張され、時間積分の並列化手法としても利用されるようになってきた。本研究ではまずノード内並列性を活かすため、通常の実装手法の主要な構成要素である、疎行列ベクトル積演算を対象に、タスク並列型の高効率な処理手法を考案した。さらに時間積分の並列化手法としての多重格子法についても研究を進め、クリロフ部分空間法の前処理として用いたときの収束性や並列性を考察し、新規な時間積分並列化手法を他大学との共同研究の中で考案した。以下に主な研究成果について記述する。

- (1) 対称疎行列ベクトル積におけるタスク並列化による効率的な実装手法を明らかにした。研究のベースとして使用したものは、Hierarchical Diagonal Blocking 形式であるが、それに対して、タスク間の依存関係をなるべく独立にする工夫をすることで、Intel の MKL ライブラリと比較しても 2 倍以上高速になる場合もあることがわかった。
- (2) 科学技術シミュレーションなどの時間積分の並列化手法に MGRIT 法が知られているが、時間ステップ幅が大きい場合には収束が不安定になることが多い。そこで MGRIT を GMRES 法の前処理として適用することで、どの程度安定化するか、また並列性への影響を調べた。結果、MGRIT 自身が不安定な挙動をする問題のときに、GMRES 法の前処理として適用することで、収束性が安定し、より高速になるケースもあることもわかった。
- (3) 非線形関数における時間積分では通常は 1 タイムステップを進めるために、ニュートン法が用いられる。複数の時間ステップを同時に進めることを考えるため、すべての時間ステップで同時にヤコビ行列を計算し、解の更新も全ての時間ステップで同時に行うことを考案し、新規の手法として提案した。単純なテスト問題での結果であるが、十分に有効性を発揮できるケースがあることを確認した。

## 原始惑星系円盤における詳細構造の研究

基礎・教養科 准教授  
武藤 恭之

年齢が 100 万年から 1000 万年程度の、生まれたての若い星の周囲には、ガスと塵（ダスト）から成る薄い回転円盤が存在する。この円盤を、原始惑星系円盤という。惑星は、原始惑星系円盤の中で、ダスト粒子が成長することによって形成される。したがって、惑星形成過程の理解のためには、原始惑星系円盤の理解が必須である。

本研究では、ALMA 望遠鏡やすばる望遠鏡を用いた、原始惑星系円盤の詳細構造に関する観測的研究と、原始惑星系円盤におけるガスの流体力学的過程に関する理論的研究を行っている。観測的研究においては、いくつかの個別天体の研究を行い、複雑な構造が見いだされた。

- ALMA 望遠鏡による MWC758 周囲の原始惑星系円盤の構造の観測では、離心率を持った穴構造などの複雑な構造が見いだされた (Dong et al. 2018)
- ALMA 望遠鏡による J1604 周囲の原始惑星系円盤の構造の観測では、大きな穴構造を持った外側円盤に加え、中心星付近に、外側円盤に対して傾いた円盤の存在が示唆された (Mayama et al. 2018)
- すばる望遠鏡による LkHa 330 星周囲の原始惑星系円盤の構造の多波長観測では、非軸対称構造が見いだされたことに加え、中心付近に何らかの構造があることが示唆された (Uyama et al. 2018)

理論的研究においては、原始惑星系円盤における構造形成に関する研究を行った：

- 原始惑星系円盤における非軸対称構造の原因の可能性の一つとして考えられる、ロスビー波不安定性によって引き起こされる構造について、基礎的な研究を行った (Ono et al. 2018)
- 星形成・円盤形成・円盤進化までの過程を一つの枠組みの中で扱うモデルを提唱し、星形成の初期段階において、原始惑星系円盤が様々な構造を持ちうることを示した (Takahashi and Muto 2018, 本学において受け入れている、ALMA 共同研究事業による研究員との共同研究)

以上のように、「原始惑星系円盤の構造」を大きなキーワードとして、近年、様々な発見がなされている原始惑星系円盤について、その姿やそこで起こる物理過程を明らかにしようとする研究を行ってきた。2018 年度は、上述したものを含め、12 本の論文が共同研究として出版された。

## テキスタイル電極による発汗状態のモニタ技術の開発

電気電子工学科 教授  
福岡 豊

熱中症による死者数は増加傾向にある。75歳以上の高齢者では、他の年代に比べて死亡率が高い。従って、高齢化によって熱中症対策の重要性が高まっているといえる。発汗は熱中症に与える影響が大きい要因である。種々の発汗計測法が提案されているが、熱中症の対策には用いられていない。研究代表者らは、長年にわたってテキスタイル電極を用いたモニタ技術の開発に携わってきた。

本研究計画では、熱中症の早期発見を目指し、容量性結合電極によるモニタ技術を発展させてテキスタイル電極を用いた発汗状態のモニタ技術の基礎を確立することを目的とする。具体的には

① 発汗状態の検出原理、② 電極素材、③ 検出回路、④ 多点計測の実装法について、患者シミュレータおよび生理食塩水を用いて検討する。これは再現性を確保するためである。

計画の初年度として、①の検出原理について基礎的な検討を行った。具体的には、生理食塩水の量を0.05～1.00 mlと変えながら、食塩水の量と心電図振幅との関係をプロットした。心電図は双極誘電法を用いて記録した。電極の大きさは6.0 cm×6.0 cmとした。絶縁物としては市販の布（綿100%）を使用した。心電図の振幅はRS波高値で定義した。5周期の平均を求め、その生理食塩水量での振幅とした。同じ生理食塩水量で5回測定をくり返した。

生理食塩水量が0.05 mlのときの心電図振幅の平均および標準偏差は $0.0907 \pm 0.011$  Vであった。同様に、0.25 ml, 0.50 ml, 0.75 ml, 1.00 mlのときの振幅は、 $0.929 \pm 0.011$  V,  $0.946 \pm 0.009$  V,  $0.963 \pm 0.007$  V,  $0.956 \pm 0.006$  Vであった。0.05～0.75 mlまでは、ほぼ直線的に増加したが、1.00 mlにおいては、振幅は若干の減少を示した。

実験結果から、生理食塩水の量に応じて心電図の振幅が変化することが確認された。この結果は、本原理を発展させることによって、発汗状態の推定が可能であることを示唆している。しかしながら、食塩水量の変化に対する振幅の変化量は小さく、今後の改善が必要である。本年度は生理食塩水（塩分濃度0.9%）を用いたが、汗の模擬により適した材料の採用や電極面積の検討など、多くの検討事項が残されている。また、1.00 mlで振幅が減少する原因は現時点で不明であり、この点についても検討する必要がある。次年度以降に、このような点について検討する予定である。

## カロテノイド蓄積を指標とする二次代謝産物生合成の 制御機構の解明

生命化学科 准教授

油井 信弘

生物は独特な二次代謝産物を生合成するが、微量にしか作られない有用物質については効率的生産方法が求められる。例えばある種の光合成微生物において、窒素源の欠乏が引き金となり、機能性脂質のテルペノイド（カロテノイドなど）の蓄積が促進される。これまでに生合成遺伝子が単離され生合成経路は解明されてきているが、その生合成制御機構はほとんど未解明のままである。将来的に、二次代謝産物生合成の制御機構の情報を基に二次代謝産物の大量生産系の構築を目指していくが、本研究課題では、気生微細藻類のカロテノイド蓄積を指標としてテルペノイド生合成を制御する新規の内因性生理活性物質を発見し、作用解析することを目的とした。そこで、気相条件下における気生微細藻類 *Coelastrella* sp. KGU-Y002 株のカロテノイド生産を検討した。

BB培地において前培養した気生微細藻類 *Coelastrella* sp. KGU-Y002 株の藻体をフィルター上に集め、細胞フィルムを作製し、シャーレの中に滅菌水 12.5 mL を含ませた脱脂綿を敷き、その上に細胞フィルムを乗せた。暗所下または明所下（40、100、または 200  $\mu\text{mol photons m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ）温度 25℃ の気相条件で 7 日間静置したところ、KGU-Y002 株は、明所下においてバイオマス量を 3 倍程増加させたが、暗所下では変化しなかった。また明所下において、クロロフィル含有量は培養開始時から半分以下になり、とくに強光下ではクロロフィル含有量が 5 分の 1 以下にまで減少した。総カロテノイド含有量は培養開始時より 5 倍ほど増加し、その中でカロテノイドのエステル体の含有量は光強度 40  $\mu\text{mol photons m}^{-2} \text{s}^{-1}$  で最大となった。各光条件において脂肪酸含有量とエステルの蓄積とが正に相関していたため、脂肪酸の生合成がカロテノイドのエステル合成に影響していたと考えられる。今後は、カロテノイドのエステル化反応を促進させるために、塩添加を添加するなどカロテノイドの生産に影響を与えるさらなる培養条件を検討していく。

## 表面微細構造の異方性を利用した液滴輸送の研究

機械システム工学科 教授  
鈴木 健司

本研究は、材料表面における液滴の自発的な輸送、および低エネルギーでの液滴操作を実現するため、以下の3点を目的としている。

- ① 生物の表面の微細構造を規範として、マイクロメートルからナノメートルの異方性を持った微細構造を製作することにより、表面の濡れの異方性を発現させ、液滴輸送が可能な表面を創成する。
- ② 微細構造と表面の濡れの異方性の関係を明らかにし、液滴輸送のメカニズムを解明し、濡れの異方性を持つ表面の設計指針を示す。
- ③ 表面の濡れの異方性と、重力、振動、エレクトロウェッティングなどの液滴のアクティブ制御を組み合わせ、液滴の混合、分離、生成、輸送等が可能なデバイスを開発する。

目的①、②に関しては、蝶の翅の鱗粉とよばれる構造を参考にして、水滴が一定の方向に移動しやすい表面の製作を行った。フォトリソグラフィとシリコンの深掘りエッチング技術を利用して、直径と高さがそれぞれ数十 $\mu\text{m}$ 、傾斜角 $30^\circ \sim 60^\circ$ の傾斜円柱の配列構造を形成し、撥水剤を浸漬塗布することにより異方性を持つ撥水性表面を製作した。表面の撥水性を評価した結果、接触角は約 $145^\circ$ で異方性は見られなかったが、転落角は順方向に $18^\circ$ 、逆方向に $23^\circ$ の異方性が見られた。この技術を発展させることにより、水滴が一方方向に自発的に移動する表面を創成できると考えられる。

また、目的③に関しては、基板表面の濡れ性を電氣的に制御して液滴操作を行う EWOD (Electro wetting on dielectric) 技術を利用して、比較的大きな液滴から一定量の微小液滴を分離、生成するデバイスを製作した。液滴生成量の精度（正確性と再現性）を向上させるため、電極の形状、電圧印加パターン、スペーサーの厚みに着目し、これらを変化させてその影響を調べた。電極形状に関しては、液滴の切断位置を一定にするためにブリッジ形電極を採用し、さらに切断の際に生じる余剰の液滴を回収するための電極を設けることにより、実際の生成量と設計値との誤差を低減し、再現性を向上させた。また、電圧印加パターンとスペーサーの厚みについても最適値を見出し、トータルとしてデバイスの精度を向上させることができた。液滴生成は、マイクロ流体デバイスや化学分析デバイスにおいて重要な要素の一つであり、本研究の成果はこれらのデバイスの性能向上に大きく貢献するものと考えられる。



## Brain-Computer Interface を活用した新しい認知機能評価

コンピュータ科学科 教授

田中 久弥

我々は、文字入力型 BCI を用いた認知症スクリーニングツールの開発を目指している。文字入力型 BCI を用いて認知症をスクリーニングできれば、導入コストおよびランニングコストが安価な検査ができ、検査説明を自動化することで人的コストの削減も期待できる。また従来手法である神経心理学検査は実施に 1 時間程度かかるのに対し、文字入力型 BCI によるスクリーニングは 30 分程度で実施可能であるため、診療時間の大きな短縮が期待できる。本研究では、文字入力型 BCI を用いた認知症スクリーニングツールの開発のために、文字入力型 BCI における文字推定原理を考慮した加重平均距離 Spelling-Error Distance Value (SEDV) を求め、高齢者における注意集中の低下を可視化および数量化した。また SEDV を従来手法である神経心理学検査の得点と比較することで、文字入力型 BCI を用いた認知症スクリーニングの妥当性を検討した。実験は東京医科大学病院高齢診療科外来を受診した健常、軽度認知機能障害、アルツハイマー型認知症のいずれかである 70 代から 90 代の患者 24 名(年齢  $80.3 \pm 4.7$  歳(ただし 1 名年齢不詳のため平均年齢に含まず)、MMSE  $22.8 \pm 4.9$  点)を対象に実施した。実験は東京医科大学の倫理審査委員会の承認を得た上で実施した(ブレインコンピュータインタフェース (BCI) を用いた認知症の早期診断 2016-083)。なお、被験者には事前に研究参加への同意を紙面で得た上で実験を実施した。また、実験と同日中に臨床心理士によって神経心理学検査を実施した。SEDV の検証として、神経心理学検査(MMSE, FAB, TMT, DST)との回帰分析を行った。その結果、MMSE の得点が低下するに従って SEDV が増大する有意な負の相関が示された( $r = -0.41, p < 0.05$ )。また、FAB の得点が低下するほど SEDV が増大する有意な負の相関が示された( $r = -0.65, p < 0.001$ )。また、被験者を認知機能低下レベルで L0 から L4 に群分けし検証したところ、L0 と L4 間で SEDV が平均 2.58 文字、L1 と L4 間で SEDV が平均 2.89 文字の差があった。このことから、認知機能の低下が著しい群間で SEDV が注意集中の低下の指標になりうることを示した。更に、前頭葉機能の低下が著しい群間で SEDV がその評価指標になりうるということが分かった。一方で、本研究の狙いである健常と MCI あるいは健常と認知症の判別については、各神経心理学検査の得点を説明変数とした場合、その関係を統計学的に明らかにすることができなかつたため、今後、BCI で計測される P300 潜時を指標として調査をする必要がある。

## 非線形音場中に浮遊する多成分液滴の物質輸送現象

機械工学科 准教授  
長谷川 浩司

近年、分析化学、生物、医学・創薬分野、さらには物質科学分野をはじめとした幅広い分野において、非接触流体制御技術が注目されている。特に、非接触流体制御技術の1つである音場浮遊法は、容器壁面からの汚染の影響を抑制することや流体次第では人体への危険が回避可能であるという利点に加え、静電浮遊法や電磁浮遊法などのその他の浮遊法と比較して制御対象流体に制約がないことから積極的な活用が望まれている。しかしながら、浮遊液滴には、大変形や微粒化の発現に加え、非線形効果である音響流との連成により、従来とは異なる熱・物質輸送が発生することが明らかとなっている。このような浮遊液滴の非線形ダイナミクスが非接触流体制御に及ぼす影響については、限定された理論的や数値解析的な知見は拡充されてきたものの、実験技術上の困難が主な理由となって、実験的知見をベースにした複合現象に対する網羅的理解が乏しいのが現状である。

本研究では、非接触流体制御技術の1つである音場浮遊法を活用し、多成分液滴の物質輸送現象（蒸発挙動）に着目し、それらの非定常かつ局所での輸送現象を特定し、制御可能範囲を明らかにすることで、より革新的かつ高精度な非接触流体制御技術の基礎を確立することを目的とした。これまでの申請者らの先行研究によって音響流の発現に伴う浮遊液滴の物質輸送の促進および現象の連成が示されており、非線形性を有する複合現象の解明および最適制御に取り組んできた。これまでの研究を発展させる形で、従来は限定的かつ1成分のみであった液滴の種類を多様化および複数液滴を予混合し、多成分化することで実験情報を拡充するとともに、現象を説明するために既存理論の拡張に成功した。得られた成果は、査読付英文雑誌に掲載（本学学生が筆頭著者）されるとともに、国際学会で1件、国内学会で4件の発表を行った。

以上のように得られた成果は、より革新的かつ高精度な非接触流体制御技術の基礎の確立に資するものとする。今後、より詳細な物理現象の把握のためには、マッハツェンダー干渉計などの光干渉計を活用し、高時空間分解能下での非接触で物理量計測をすることで浮遊液滴の界面近傍局所における熱物質輸送の時空間変動を定量的に明らかにする必要がある。

## ナノファイバ繊維層を担持した新たな空気清浄用フィルタ沝材の開発

環境化学科 助教

中山 良一

本研究では、従来の空気清浄用フィルタ沝材（HEPA フィルタ沝材、PTFE 沝材、エレクトレット沝材）と本研究で検討しているナノファイバ沝材を担持したフィルタ沝材の捕集性能を比較することで、ナノファイバ沝材の空気洗浄用フィルタとして最適な充填構造を評価した。その結果、得られた知見を以下に示す。

### 【持量の異なるナノファイバ沝材と従来の空気清浄用フィルタ沝材との沝過性能の比較】

- 1) 同じ担持量で比べると性能評価指標が PVDF ナノファイバ沝材 > Nylon6 ナノファイバ沝材の順となった。今回検討したナノファイバ沝材のうち PVDF ナノファイバ沝材は、従来の空気清浄用フィルタ沝材と同等の性能を有することが示された。
- 2) Nylon6 ナノファイバ沝材は担持量の増加に伴って性能評価指標が低くなり、特に低風速条件でその差が顕著に表れた。一方、PVDF ナノファイバ沝材は担持量  $W_s=0.5 \text{ g/m}^2$  の性能評価指標が最も高く、それ以上の担持量の沝材では性能に顕著な差は見られなかった。

### 【低担持量のナノファイバ沝材を積層した場合と同一担持量の単一層沝材の沝過性能の比較】

- 1) Nylon6 ナノファイバ沝材を 2~4 枚重ね合わせた時の透過率は同じ担持量の 1 枚の沝材の透過率より低くなった。PVDF ナノファイバ沝材は 2, 3 枚重ね合わせた時の透過率は同担持量の 1 枚の沝材の透過率より低くなったが、4 枚重ね合わせた時の透過率は同担持量の 1 枚の沝材の透過率より高くなった。
- 2) Nylon6 ナノファイバ沝材を 2, 3, 4 枚重ね合わせた時の性能評価指標は同じ担持量の 1 枚の沝材より高くなった。PVDF ナノファイバ沝材は 2, 3 枚重ね合わせた時の性能評価指標は同担持量の 1 枚の沝材より高くなった。一方、4 枚重ね合わせた時の性能評価指標は同じ担持量  $W_s=2.0 \text{ g/m}^2$  の 1 枚の沝材より低くなった。

## プラズマアクチュエータの形状配置・駆動方法の 多元的工夫に基づく高性能剥離制御技術

機械理工学科 准教授  
佐藤 允

「翼」に代表される様々な流体機器においては、流れが物体表面から離れてしまう「剥離流れ」がしばしば生じる。物体周りの流れをコントロール(制御)することで、剥離流れの抑制を実現できれば、流体機器の性能向上と騒音低減に大きく貢献できる。現在に至るまで流れの制御に関する研究は様々なアプローチで行われている。特に近年では、誘電体バリア放電プラズマアクチュエータ(DBDPA)やシンセティックジェットといった比較的サイズの小さいデバイスを用いた流体制御技術が世界中で盛んに研究されている。

DBDPAを用いた流体制御では、流れの方向にPAを配置することによって、従来のボルテックスジェネレータと同様の効果を示す、ボルテックスジェネレータ型プラズマアクチュエータ(VG-PA)や、スパン方向に一樣に設置したスパン型プラズマアクチュエータ(SP-PA)が主流である。既往研究より、SP-PAではPAの設置位置と流れ場の剥離点位置の関係が制御効果に極めて大きな影響を与えるため剥離点近傍にPAを設置することが重要であること、間欠的に駆動を行う「バースト駆動」が「連続駆動」よりも制御効果が高くなることが明らかになっている。一方、VG-PAではPAの設置位置と剥離点位置の影響は小さく、剥離点近傍にPAを設置する必要がないこと、VG-PAでは「連続駆動」による縦渦の生成が効果的な制御には重要であるため、投入運動量がSP-PAの数10倍になることが明らかになっている。これらの知見より、SP-PAとVG-PAの相補的使用(VG-to-SP)により、各PAが有する問題の解決が図れるものと考えられる。

本研究では、Jukesらによって行われたVG-PAによる剥離制御実験をLarge-eddy simulation(LES)によって再現し、その制御効果を検証するとともに、VG-PAとSP-PAを併用した場合の効果を数値実験によって示す。本結果をSP-PAのみでの制御およびVG-PAのみでの制御と比較することでSP-PAとVG-PA併用の有用性について検討した。

本研究により以下の知見が得られた。

(1)剥離抑制効果はVG-PAのみを用いた場合が最も高く、ついでVG-to-SPを用いた場合、SP-PAのみを用いた場合となった。(2)VG-to-SPによる制御方法は、制御開始時に剥離を抑えるプロセスをVG-PAが担い、その後の付着を維持するプロセスをSP-PAが担う形となった。(3)VG-PAは必要とする投入運動量は大きい剥離点位置の影響が小さいため、剥離せん断層を翼面に引き寄せるというプロセスに適している。(4)剥離を抑えた後に付着流れを維持するプロセスでは、投入運動量の小さいSP-PAでも適切なバースト周波数を用いることで可能である。

今後、付着流れを維持するためのSP-PA最適駆動条件や、複数のSP-PAを用いた場合の制御について検討していく予定である。

# 革新的低比誘電率水系電解液の実現と 次世代リチウムイオン電池の創製

環境化学科 准教授

関 志朗

本研究では、現在実用化されている Li 系蓄電池の電解質に対する既存概念を脱却し、その製造方法をはじめ、コストやあり方自身を変革すべく、輸送・反応・特異性をそれぞれ切り分けた分析・解析技術を構築し、これを基にした環境負荷の少ない、特殊製造ラインなどが不要な水系溶媒による蓄電池や超高容量蓄電池に代表される新機構電池を実現させることを目的とする。要素技術として電解質の高速イオン伝導及び電解質/電極界面での安定な酸化還元を其々達成させ、目的の新機構電池の実現へつなげることにより、省エネルギー・低炭素社会を実現する次世代型蓄電デバイスを提案・創出することが、本研究の狙いである。本研究は、現代社会の要請に応える研究課題であると同時に、分子デザイン・電気化学・溶液化学・熱力学分野等を広く跨ぐ研究分野であり、これらの境界領域での新学理の構築を最終的な目標としたい。

2018 年度は  $H_2O$  (水) と汎用的な Li 塩である、 $LiN(SO_2CF_3)_2$  の混合物を調製し、その組成依存性を熱物性、輸送特性の面から調査した。通常、水の沸点は  $100^\circ C$  であることは有名な事実であるが、これに Li 塩を高濃度で溶解させることにより、水自身の沸点が著しく向上することが明らかになった。また、低比誘電率溶媒 (アセトン、エタノール、THF 等) 中に高濃度に Li 塩を溶解させた際に最もその熱安定性が向上し、溶媒自身の沸点が約 300 K も上昇する現象が見いだされた。これは既に溶媒自身の化学的特性は失われたと考えて良い物性変化であると考えられる一方、溶媒-塩の間における配位能力 (錯イオン形成能) 自身は既存有機電解液より弱いと結論できる。即ち、実際の電池の充放電反応に置き換えて考える際には、誘電率の低い溶媒を使用する方が電極/電解質界面における溶媒和・脱溶媒和反応が容易になると期待できる。この知見を基に、今後は非水系電解液に限らない革新電池系を探索してゆく。

## 近代東アジアにおける探偵小説の翻訳ディスクールをめぐる 文化研究

国際キャリア科 教授  
吉田 司雄

本研究の目的は、探偵小説など大衆文学の「翻訳」「翻案」に注目することで、従来一国文学史の枠内で考えられてきた東アジア圏の近代文学形成過程を解きほぐし、あわせて西洋文学の影響や模倣といったタームを多用してきた比較文学の方法論を再審に付すことで、文学研究の新たな地平を開拓することである。何より「翻訳」とは原典の意味を正しく伝える透明な入れ物というよりは、人種や言語間の非対称性や不平等と切り離すことができない歴史的な営みなのであり、そこから抵抗や恭順の痕跡を読み解くことで、日本植民地時代の韓国や台湾を始めとする東アジア大衆文化の歴史的文化的位相に新たな照明をあてることができるはずである。以上の問題意識に立ち、これまでも台湾や韓国の研究者と共同研究体制をとってきた。そして、日本学術振興会の二国間交流事業共同研究（平成 30～31 年度）に採択され、「日韓における翻訳大衆文学のディスクール研究」という研究題目で、Jaejin Yu（兪在真）を研究代表者とする韓国の研究チームとの共同研究をスタートすることができた。

二国間交流事業とは別に、韓国・高麗大学校の Jaejin Yu とは 2019 年 3 月 21 日～24 日にアメリカ合衆国コロラド州デンバーで開催されたアジア研究学会 (Association for Asian Studies) に参加し、3 月 22 日にエルサレム・ヘブライ大学の Jooyeon Rhee を含む三人にミネソタ大学の Baryon Posadas をディスカッサントに加えてのパネル発表「Outlaws, Spies, and Detectives in the Japanese Empire : Detective Fiction in Japan and Colonial Korea」を行った。Jooyeon Rhee の発表タイトルは「An Uncanny Empire: Doppelgänger in Kim Naesōng' s Detective Fiction in Late Colonial Korea」というもので、早稲田大学在学中の 1935 年に日本語の創作探偵小説「楕円形の鏡」でデビューし、1936 年朝鮮半島に戻ったのちは韓国語の探偵小説を執筆した Kim Naesōng(金来成)の戦中期の小説「台風」(1942～43 年)のドッペルゲンガー表象を読み解こうとしていた。Jaejin Yu の「Detective Fictions by Japanese Writers in Colonial Korea : The Case of Keijō [Seoul] Detective Fiction and Hobby Circl」は植民地時代の朝鮮半島における日本人作家の創作を調査したものである。私自身の発表タイトルは「Colonialism and Japanese Detective Fiction: Focusing on Edogawa Rampo' s “The Twins”」というもので、江戸川乱歩の初期短編「双生児」(1924 年)の語りの構造に着目したのだが、三者三様の方法に抛りながら、共通の課題を多面的に照射できた点は大変有意義であったと考えている。



## マイクロ流体デバイス研究のための基盤構築

機械システム工学科 助教

金田 祥平

マイクロ流体デバイスは、MEMS(MicroElectroMechanical Systems)で培われた微細加工技術を用いて、樹脂・ガラス・シリコン等の基板上に数百 nm から数百  $\mu\text{m}$  の幅の微小流路を形成した小型デバイスの総称である。これまでに研究代表者は、iPS 細胞由来運動神経細胞を培養することで、生体内に存在する組織と似た束状の運動神経組織を形成するデバイス技術や(*Stem Cell Rep* 2017), iPS 細胞の凝集体の一部のみを選択的に分化誘導するデバイス技術(*Biomicrofluidics* 2017)を開発してきた。

研究代表者は 2018 年 4 月に本学に着任したが、本学においてもマイクロ流体デバイス研究を実施すべく、本奨励研究費により、マイクロ流体デバイス研究に必要な実験装置・器具をはじめとした研究環境の整備を行った。具体的には、研究代表者が汎用するシリコンゴム製のマイクロ流体デバイス製作において、未重合のシリコンゴムの脱泡作業に必要な真空デシケータやシリコンゴムの熱重合を行うためのホットプレート、デバイス実験における微小流路内の蛍光観察に必要な蛍光フィルターキューブ、精密な流量制御を伴い微小流路に送液を行うためのシリンジポンプのコントローラなどを導入した。また、消耗品としては、デバイス上の微小流路と細胞との接着性を向上させるためのコーティング試薬などを購入し、マイクロ流体デバイス研究を実施するための基盤が確立できた。

これらの実験装置・器具を用いて、機械システム工学科の学生 4 名の卒業論文にかかる教育研究を行い、従来は長さが 6 mm にとどまっていた運動神経束状組織をより伸長する手法や、束状の感覚神経組織を形成するための技術、がん細胞凝集体の一部に抗がん剤を作用させる技術や光遺伝学技術を用いて遺伝子発現を制御する技術などに関して新たな知見を得た。

