

**千葉工業大学**

**プロジェクト研究年報**

**2021年**



千葉工業大学  
プロジェクト研究年報

2021年度



## 〔先端研究推進プロジェクト助成金 (Ⅰ)〕

光電気化学水分解用タンデム型セルの劣化メカニズムの解明と改善	内田 史朗 …… 1
--------------------------------	------------

## 〔先端研究推進プロジェクト助成金 (Ⅱ)〕

金属系熱電材料の研究開発	齋藤 哲治 …… 3
クモヒトデを規範とした水底移動ロボットの研究	青木 岳史 …… 5
アーキアが特異な膜脂質をもつに至った理由の解明に向けた脂質生成酵素解析	根本 直樹 …… 7
エピトランスクリプトーム解析による骨格筋機能障害の病態解明	川西 範明 …… 9
データ科学と認知科学の融合によるプログラム支援情報基盤の研究開発	田隈 広紀 …… 11

## 〔先端研究推進プロジェクト助成金 (Ⅲ)〕

抗腫瘍活性を有する微生物二次代謝産物の作用機構の解明 -進化発生生物学的解析による新たなアプローチ-	成田 隆明 …… 13
生活上の価値観と新型脅威への対処方法 -環境配慮に関連した予備解析-	木村 大 …… 15
GPUのための新しいアルゴリズムによる電子回路シミュレータ SPICE の高速化技術	富永 浩文 …… 17

## 〔科研費採択者助成金〕

高靱性な固体酸化物形燃料電池の電極製造に向けた新しい設計基盤の構築	原 祥太郎 …… 19
太陽熱蒸留システムにおける界面現象の制御	亀谷 雄樹 …… 21
ナノ材料を用いたナノギャップ NMES 素子の動作機構解明と記憶素子応用技術の開発 -フラーレン (C <sub>60</sub> ) からつくる不揮発性メモリー-	菅 洋志 …… 23
電磁浮遊法を用いて測定したジルコニウムおよびジルカロイ融体の表面張力	小澤 俊平 …… 25
アルミニウム合金で観察された新奇な電磁分離現象の発現条件とその理解	田村 洋介 …… 27
酸化スズ薄膜結晶の酸素欠損補償によって実現される 1ppb 感度の呼気ガスセンサ	安藤 毅 …… 29
光応答性ヤヌス粒子を用いたピッカリングエマルジョンの調製および内包物放出制御	柴田 裕史 …… 31
カルベン配位子を基盤とする異種二核金属錯体触媒の開発	原口 亮介 …… 33
人口減少・災害リスク・新たな移動手段の普及を踏まえた都市施策の評価手法の開発	佐藤 徹治 …… 35
ロボットから人間の2足歩行に応用する安定化ペースメーカーの研究	米田 完 …… 37
繊維芽細胞増殖因子 FGF5 と受容体の相互作用およびアプタマーの阻害機序の解明	坂本 泰一 …… 39

臨床検査室の品質と能力を確保する実践的な質マネジメントシステムの開発	佐野 雅隆	41
------------------------------------	-------	----

## 〔科学研究費助成事業〕

周波数シフトテラヘルツ波による建築物非破壊診断	水津 光司	43
-------------------------	-------	----

拡張可能な学習支援システムのための分散マルチプラットフォームアーキテクチャの研究	仲林 清	45
------------------------------------------	------	----

〔科学研究費助成事業一覧〕		47
---------------	--	----

〔先端研究推進プロジェクト助成金（Ⅰ）〕







研究項目 : 先端研究推進プロジェクト助成金 (I)

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/2/27

研究課題名 (和文) : 光電気化学水分解用タンデム型セルの劣化メカニズムの解明と改善

研究課題名 (英文) : Elucidation and improvement of deterioration of tandem cell for photo-electrochemical water splitting

研究者 : ○内田 史朗	千葉工業大学
UCHIDA Shiro	工学部 先端材料工学科 教授
井上 泰志	千葉工業大学
INOUE Yasushi	工学部 先端材料工学科 教授
亀谷 雄樹	千葉工業大学
KAMEYA Yuki	工学部 機械工学科 准教授

## 1. はじめに

近年、化合物半導体太陽電池セルを用いた人工光合成反応によって水素を生成する研究が盛んにおこなわれている<sup>1-3)</sup>。この水素生成反応は多接合タンデム型太陽電池セルに触媒を担持し、太陽光を照射する事で水素と酸素を生成する水の電気分解を誘起する化学反応であり、次世代のエネルギー源である水素が太陽光エネルギーだけで永続的に創出する事が期待される。しかしながら、現状この生成システムには依然として大きな課題がある。もちろん、化合物半導体や触媒 (Pt 等) が高価である事も課題であるが、システム原理上次のような2つの課題が挙げられている。

一つ目は、セル表面上の侵食劣化である。水素生成反応時に担持した触媒が侵食劣化や脱離を起し、触媒電極近傍のセル保護膜が変色劣化する事がある。2つ目には、水素生成効率の課題がある。現状この手法での太陽光水素エネルギー変換効率 (STH) は世界最高値で19.3%<sup>2)</sup>であるが、集光型太陽電池から得られた電力を用いて直接水の電気分解を行った場合のSTH=24.4%<sup>3)</sup>を下回っている。また、反応中に触媒担持した表面で生成した水素が気泡となって配線電極近傍に付着し、次の反応を阻害するという課題がある。

本研究では、これらの耐久性に関する課題と水素生成効率に関する課題の対策について新しいセル構造を提案し、その作製プロセスについて検討したのでこれを報告する。

## 2. 研究の内容

これまでの水素生成セルの構造は図1 (a) に示すような太陽電池セルの表面のグリッド電極上に触媒を担持し、電極以外の部分は反射防止膜を兼ねたTiO<sub>2</sub>保護膜で形成されたものが主流であった。しかしながら、10時間以上光照射を続けると電極上の触媒が侵食劣化する<sup>2)</sup>、保護膜のTiO<sub>2</sub>が触媒電極近傍で変色或する<sup>4)</sup>などの劣化現象が報告されている。この劣化原因は触媒金属が局所的に存在している為に、その部分

で酸化還元反応が強く起こる為と想像できる。この対策として、触媒金属をセル表面上に局在させるのではなく分散担持する方法が考えられるが、触媒金属を表面上に分散担持しその面積を増やしすぎると表面反射率が高くなり、効率を下げってしまう可能性がある。

そこで本研究では、図1 (b) のような水素生成セル構造を最終目標としてこの構造の形成プロセスについて検討する事にした。この構造では、保護膜であるTiO<sub>2</sub> (或いはTiO<sub>x</sub>N<sub>1-x</sub>) を細線上の微細形状に形成することで分散担持した金属触媒の表面積を広げつつ、光の取り込み効率を上げ (反射率を低く保ち) る事が可能であると考えている。本稿では、この形成プロセスについて検討した以下の内容を紹介する。

- 1) 金属触媒の分散担持方法の検討
- 2) TiO<sub>x</sub>N<sub>1-x</sub>の微細加工技術
- 3) TiO<sub>2</sub>の微細加工による気泡付着力低下

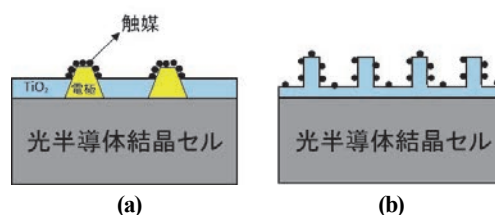


図1. 光半導体セルの表面構造  
(a) 従来構造、(b) 新規構造

### 2.1 金属触媒の分散担持方法の検討

図1 (b) のような構造を作製し酸化還元反応を起こすには電子やホールがTiO<sub>2</sub>層を伝導する必要がある。TiO<sub>2</sub>層は半導体層として電気伝導性はあるが高抵抗層となる為にキャリアをトンネル的に通過させる必要があり、ボトムのフラット部分や線状 (微絨毛) 構造部分はナノ構造であることが望まれる。従って、今回は、フラットなCu基板に10nmのTiO<sub>2</sub>をALD (Atomic Layer Deposition) にて製膜し、触媒金属としてロジウム (Rh) を分散担持する実験を試みた。

0.5mol/LのKCl溶液に塩化ロジウムRhCl<sub>3</sub>を20mg加えて作製したメッキ液にTiO<sub>2</sub>を製膜したCu板にチョッパーを用いた光パルス光を照射しながら、対向電極にPtを使用して電解めっきを施した。光パルスの照射は太陽光強度の10倍の光をDuty比50%、チョッパーホイール回転数200rpmで行った。図2(a)にTiO<sub>2</sub>表面のめっき後のSEM写真を示す。200~500nm程度のナノ粒子が分散して担持された様子が観察された。このナノ粒子をEDX分析したところ図2(b)に示すようにRh元素であることが確かめられた。この結果から、この光パルス照射電界めっき法で新規構造作製に有効なプロセスを確立することができた。

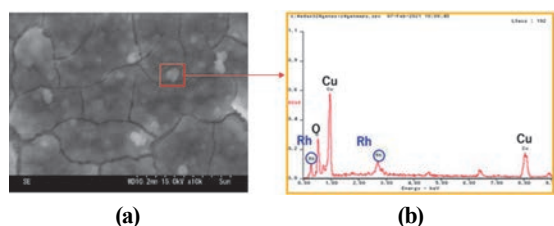


図2 光パルス照射法によるRhナノ粒子の分散担持  
(a)めっき後のSEM像、(b)ナノ粒子のEDX分析

## 2.2 TiO<sub>2</sub>N<sub>x</sub>の微細加工技術

真空蒸着法において開発された斜入射堆積法は、幾何学的な自己遮蔽効果により、離散的柱状構造を容易に形成可能であることが知られているが<sup>5)</sup>、酸化チタン等の化合物薄膜は、真空蒸着法による成膜が困難である。そのため今回は、反応性スパッタリング法に斜入射堆積法を適用し、酸化チタン膜の形成を試みた。しかし、一般的な垂直堆積膜より表面凹凸が大きいものの、離散的柱状構造は形成されなかった。もともと、プラズマの存在によって自己遮蔽効果が低減される環境ではあるが、窒化インジウム薄膜における離散的柱状構造化の成功例<sup>6)</sup>を考慮すると、結晶性が高く、優先配向性が強ければ、自己遮蔽効果を補償するように離散的な結晶粒成長が起こると考えられる。そこで、酸化チタンの代わりに、良好な結晶性が報告されている窒化チタンを斜入射堆積反応性スパッタリング法により堆積したところ、図3(a)(b)に示すように、非常に明確な離散的柱状構造の形成に成功した。この窒化チタン膜は、極めて強く(100)面に配向しており、スパッタリング成膜において離散的柱状構造化を成功させるためには、結晶性の向上と優先配向性が不可欠であることが確かめられた。

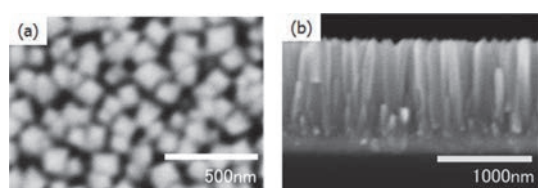


図3 斜入射堆積窒化チタン薄膜のSEM画像  
(a)表面からの観察、(b)断面観察

## 2.3 TiO<sub>2</sub>の微細加工による気泡付着力低下

水素生成反応で電極から生成する水素気泡の付着を防ぎ電極表面での物質輸送を促進する手法について検討した酸化チタン微細構造面の概要を図4に示す。

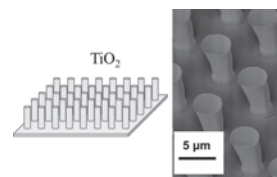


図4 TiO<sub>2</sub>の微細構造

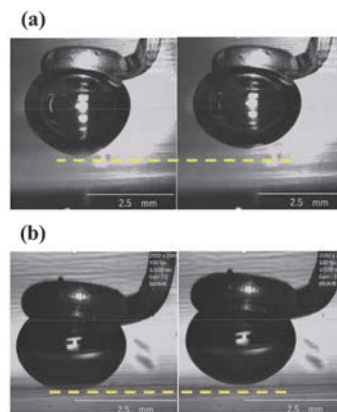


図5 気泡付着特性の比較 (a)平坦面 (b)微細構造面

円柱形の構造が周期的に配列されている。この微細構造が気泡の表面付着特性に与える影響を評価するため、金属細線で保持した気泡を酸化チタン表面に付着・離脱させる過程において気泡の変形の様子を観察した。その結果が図5であり、気泡の最終接触位置を破線で示されている。平坦面(a)では気泡の付着が比較的強いため離脱直前に気泡の変形が顕著であるが、微細構造面(b)では変形が極めて小さく離脱が円滑に行われている。微細構造の形成により気泡付着が低減され物質輸送を促進できる可能性が示唆された。

## 3. まとめ

本研究では半導体セルへの光照射による水素生成プロセスの耐久性と水素生成効率という課題解決に向けて新しい構造を提案し、その構造を作製する為のプロセス形成の検討を行った。その結果、対策用の新規構造作製に必要なプロセスを確立する事が出来た。

本研究に関する主な発表論文

- (1) 三上雄一他、2020年応用物理学会秋季学術講演会オンライン開催、10a-Z15-4

参考文献

- (2) W-H Cheng, ACS Energy Letters 3 (2018) 1795.
- (3) A. Nakamura, et al. Applied Physics Express, 8, 10, 107101 (2015).
- (4) S. Okamoto, et al, J. Phys. Chem. C 121(3), 1393 (2017).
- (5) K. Robbie et al, Rev. Sci. Instrum, 75, 1089 (2004).
- (6) 山崎純一 他, 表面技術, 第57巻 (2006) 459-460.

# 〔先端研究推進プロジェクト助成金（Ⅱ）〕





研究項目 : 先端研究推進プロジェクト助成金 (Ⅱ)  
研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/9/30  
研究課題名 (和文) : 金属系熱電材料の研究開発

研究課題名 (英文) : Study of thermoelectric materials

研究者 : 齋藤 哲治 千葉工業大学  
SAITO Tetsuji 工学部 先端材料工学科 教授

### 1. はじめに

日本では年間に、原油換算にして数億klもの一次供給エネルギーを消費しているが、その70%以上が未利用のまま廃熱として大気中に廃棄されている。しかし、廃熱エネルギーは総量で莫大であっても、例えば自動車一台から棄てられる熱量は少量である。地球温暖化ガス削減のため、この希薄な廃熱エネルギーを効率良くしかも安価で回収する技術が求められている。熱電材料は廃熱のスケールに依らず一定の変換効率で発電が可能であるため、薄く広く分散した廃熱回収用の発電技術として熱電材料が注目されている。現在、ガソリン自動車の化石燃料エネルギーのうち動力として使用されているのは30%程度であり、廃熱として棄てられているエネルギーは多い。科学技術動向研究センターの試算によると、熱電発電効率10%でCO<sub>2</sub>低減量が2千万トンと自動車のCO<sub>2</sub>排出量(約2億トン)の10%も低減できる。この低減量は日本の温室効果ガス削減目標(CO<sub>2</sub>換算)の約25%にも達する。そのため、廃熱エネルギーを回収して有効活用することが求められている。

これまでに熱電材料としてBi-Te化合物が開発され、ペルチェ素子(電気を冷却に変換)として使用されている。しかし、これらの熱電材料を熱電発電に使用するには、機械的強度が弱いこと、希少元素に依存するため原料コストが高いこと、また重元素の材料であるため低融点や毒性など環境に悪影響を及ぼすこと、高温で酸化や分解を起こすことなど様々な問題がある。そのため、工場や自動車などの排熱を有効利用できる新しい熱電材料の研究開発が求められている。本研究では、環境にやさしく、比較的成本が安く、機械的強度も高い新しい熱電材料として金属系熱電材料を開発することを目標とする。なお、金属系熱電材料としてはFe系ホイスラー合金の作製を試みた。

### 2. 実験方法

アルゴン雰囲気中金型鑄造法により試料合金インゴットを作製した。なお、試料合金インゴットとしてはFe-Ti-Sn系ホイスラー合金を作製した。また得られた試料合金インゴットをタンタル箔に包み込んだ後、アルゴン雰囲気中1073Kで24時間均質化熱処理を行った。

得られた試料の結晶構造はX線回折装置(XRD)で、得られた試料の熱的性質は熱分析装置(DTA)で、得られた試料の組織は透過型電子顕微鏡(TEM)で調べた。また得られた試料の熱電特性は熱電特性評価装置(ZEM)で調べた。

### 3. 結果および考察

まず、金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金がホイスラー構造を示すかどうかを調べた。図1に金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金および金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料のX線回折図を示す。金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金のX線回折図にはFe<sub>2</sub>TiSnホイスラー相の回折ピークだけ

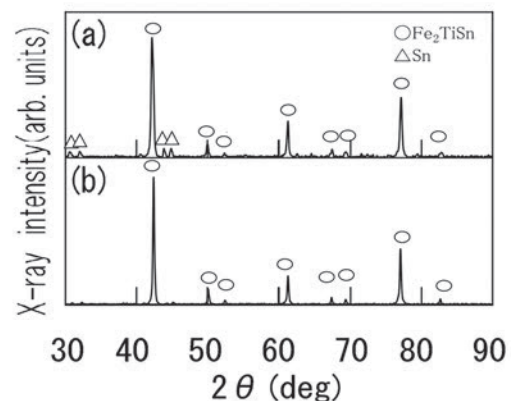


図1 金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金および金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料のX線回折図

ではなく、Sn相の回折ピークも見られる。それに対して、金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料のX線回折図には $\text{Fe}_2\text{TiSn}$ ホイスラー相の回折ピークしか見られない。このことより、金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施すことにより目的とする $\text{Fe}_2\text{TiSn}$ ホイスラー相からなる試料が得られることがわかった。なお、金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料が $\text{Fe}_2\text{TiSn}$ ホイスラー相からなることを透過型電子顕微鏡による電子線回折で確認した。

次に、金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料が熱電特性を示すかどうかについて調べた。まず、金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料の電気抵抗を調べた。図2に金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料の電気抵抗の温度依存性を示す。金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料は温度に依らず低い抵抗値を示し、電気的良好な導電体であることがわかった。

そこで次に、金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料のゼーベック係数を調べた。このゼーベック係数は熱を電気に変換する割合(単位V/K)であり、熱電材料としてはゼーベック係数が大きいことが重要

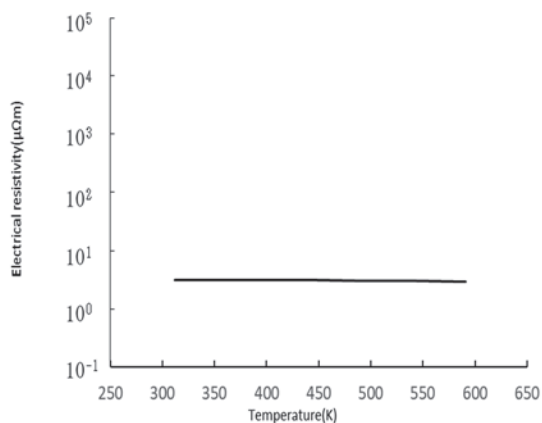


図2 金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn合金に熱処理を施した試料の電気抵抗の温度依存性

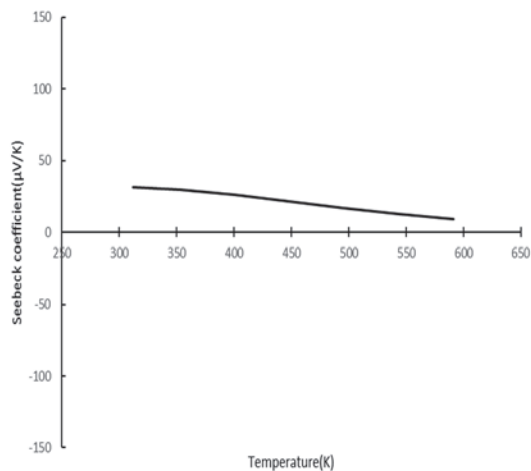


図3 金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料のゼーベック係数の温度依存性

である。図3に金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料のゼーベック係数の温度依存性を示す。金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料は室温で $30\mu\text{V/K}$ 程度を示すことがわかった。また、金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施した試料は正のゼーベック係数を示すことがわかった。得られた試料のゼーベック係数の値はまだ十分に高いとは言えないので、今後も引き続きFe系ホイスラー合金のゼーベック係数の向上を図ってきたい。

#### 4. まとめ

本研究では、環境にやさしく、比較的成本が安く、機械的強度も高い新しい熱電材料としてFe系ホイスラー合金の作製を行い、その構造と熱電特性を評価した。

金型鑄造法により作製したFe-Ti-Sn系合金に熱処理を施すことにより $\text{Fe}_2\text{TiSn}$ ホイスラー相からなる試料が得られることがわかった。また、得られた試料の良好な導電体であり、 $30\mu\text{V/K}$ 程度の正のゼーベック係数を示すことがわかった。

#### 本研究に関する主な発表論文

- (1) T. Saito and D. N. Hamane, "Magnetic and thermoelectric properties of melt-spun ribbons of  $\text{Fe}_2\text{XAl}$  (X = Co, Ni) Heusler compounds", J. Appl. Phys., vol.124, pp.075105-1-4 (2018).
- (2) T. Saito and S. Kamishima, "Magnetic and thermoelectric properties of Fe-Ti-Sn Heusler alloys", IEEE Trans. Magn., vol. 55, pp. 2900104-1-4 (2019).
- (3) T. Saito, and D. N. Hamane, "Magnetic and thermoelectric properties of  $\text{Co}_2\text{MnT}$  (T = Ga, Si) Heusler compounds", Physica B, vol.603, pp.412761-1-4 (2021).

#### 参考文献

1. Y. Nishino, M. Kato, S. Asano, K. Soda, M. Hayasaki, U. Mizutani, "Semiconductorlike Behavior of Electrical Resistivity in Heusler-type  $\text{Fe}_2\text{VAl}$  Compound" Phys. Rev. Lett. 79 (1997) 1909.
2. M. Kato, Y. Nishino, U. Mizutani, A. Asano, "Electronic, magnetic and transport properties of  $(\text{Fe}_{1-x}\text{V}_x)_3\text{Al}$  alloys" J. Phys. Condens. Matter 12(2000) 1769.



研究項目 : 先端研究推進プロジェクト助成金 (II)  
研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/9/30  
研究課題名 (和文) : クモヒトデを規範とした水底移動ロボットの研究

研究課題名 (英文) : Study of underwater mobile robot based on brittle stars

研究者 : 青木 岳史 千葉工業大学  
AOKI Takeshi 先進工学部 未来ロボティクス学科 教授

## 1. はじめに

水中での探査や監視を行うロボットとしては、水中を航行して情報収集を行う AUV や ROV の研究は盛んに行われているが、水底を移動するロボット[1]の研究はほとんど行われていない。海底や川底などは起伏のある地形であり、かつ砂などの軟弱地盤も混在するため、陸上での移動機構をそのまま適応するのは難しい。しかし水流のある環境下で長時間の定在が必要となる監視業務や、海底での掘削による資源回収作業では、水底を拘束条件として使用できる点は非常に有効であり、水底を移動できるロボットの研究は必要であると考えられる。

クモヒトデは柔軟に変形する脚が生成する運動の組み合わせによって全方向への移動を実現し、脚が地形に依って変形するために対地適応性が高い。またクモヒトデの脚はタコやイカのような軟体動物の脚とは異なり、腕骨と呼ばれる骨を中心として外側に筋肉を配置する構造となっているため、自重を腕骨に分散して支えることができる。また脚の往復運動によって移動動作を実現するため、スクリュウや車輪などの無限回転機構と比較して水中に浮遊する水草等が絡まる危険性が無く、水底での調査ロボットへの応用が期待できると考える。これまでに生物模倣のロボットとしてクモヒトデを扱った研究は国内外で複数例報告されているが、そのほとんどがクモヒトデの動作計画や機能再生などの生態についての研究[2][3]であり、長い腕部の構造や動作を再現した研究は無い。

本研究では 5 本の長く柔軟な脚を持つクモヒトデの生体に着目し、図 1 に示すような水底での長時間の定在により水中の探査や監視を可能とし、かつ不整地である水底での移動性能に優れた水底移動ロボットの実現を目的とする。また生物模倣からのアプローチではなく、力学的なアプローチにより水底での最適な歩容を明らかにし、少ない能動自由度によって実現することで実用機へ発展させる。

## 2. 歩容の省自由度化と脚機構の試作

クモヒトデの平地での歩容を観察すると、5 本の腕で揺くことで移動しているように見えるが、見方を変えると長い腕部の中間点を接地させて胴体を持ち上げ、中間点を滑らせることなく移動したい方向へ胴体運んでいる (図 2)。そして腕部の先端は地面との摩擦を減らすために地面から浮かせて、波を伝播するようにして根元へ追従させてい

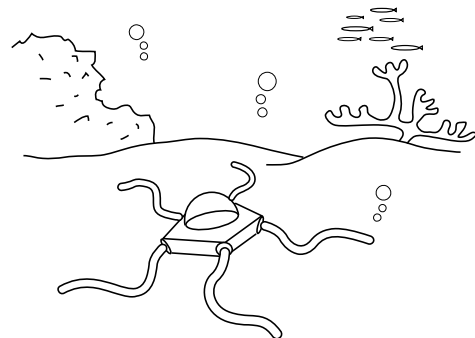


図1 クモヒトデ型水底移動ロボット

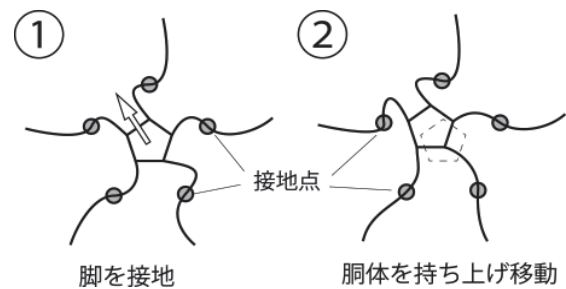


図2 クモヒトデの歩容

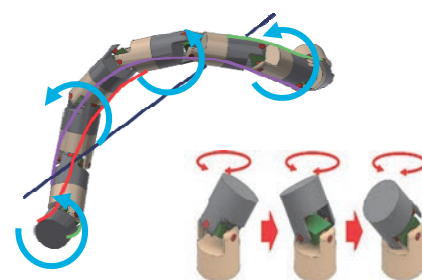


図3 螺旋捻転運動

る。この一連の動作をシンプルに実現できれば、腕部の省自由度化が可能となる。

クモヒトデの脚を連続体として機械的に再現するためには、多くの自由度を直列に配置した脚構造によって連続的に湾曲した脚の曲線を再現する必要があり、実用的なロボットへの発展を考えると現実的ではない。そこでクモヒトデの脚の動作を、螺旋形状を連続的に伝播する螺旋捻転運動として仮定し、この螺旋捻転運動を少ない自由度で定期的生成する。図 3 に示すように複数の自在継手を直列

に連結して螺旋形状を形成し、さらに自在継手の表面へ螺旋状に配置した複数本の伸縮可能なアクチュエータによって駆動すると、体幹を捻じることなく螺旋形状を回転させることができる。螺旋捻転運動では地面との接地点を順に伝播することができるため、摩擦の影響を受けることなく全体を移動させることができ、かつ圧力が分散するので軟弱地盤上でも動作可能となる。そして5本の脚で生成する螺旋捻転運動の組み合わせによって全方向移動を実現する。これまでの研究では螺旋捻転運動を実現するために、楕円体によるジョイントによって捻じり方向の自由度を規制した腕骨を基礎として、ワイヤ駆動と空気圧駆動の連続体脚の機構を開発した。腕骨は使用する材料や造形後の特性に応じて光造形機とFDM方式の3Dプリンタを併用してきた。図4に示す連続体脚は光造形によって単位節（腕骨）を製作し、単位節の断面に120度等配で配置したシリコン製の気室を加圧することによって任意の方向へ屈曲する。この単位節を連結する際に気室を螺旋となるように捻じることによって螺旋捻転運動を実現した。しかし単位節当たりの屈曲角を大きく得られないという問題点が発生した。

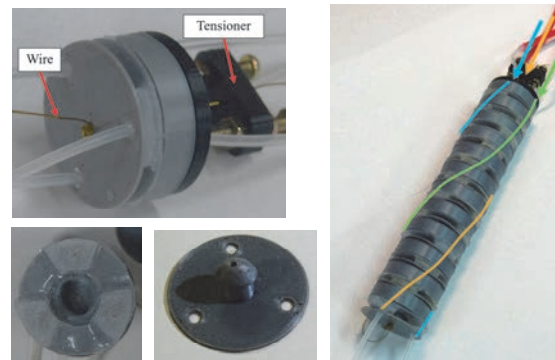


図4 光造形装置による連続体脚の試作（空気圧駆動）

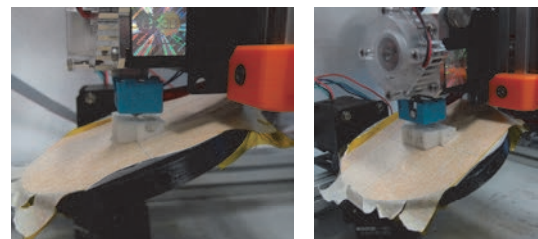


図5 開発した4軸3Dプリンタによる造形

### 3. 屈曲角の拡大

動作に必要な可動範囲を持つ連続体脚を新たに製作するために、腕骨や外皮を出力するFDM方式の3Dプリンタと、空圧によって膨張する気室をシリコンによって造形する光造形機を使用して、新しい構造の単位節を開発した。FDM方式では薄肉の造形により変形量を拡大させるために、層間の耐剥離強度の高い方向での造形が可能な4軸3Dプリンタ（図5）の開発を進めてきた。3Dプリンタは積層方向によって層の結合力が異なり、既存の3Dプリンタでは積層方向が限定されるため、連続体脚の構造に最適な造形が困難であった。そこで本研究ではテーブルに1自由度追加した4自由度の3Dプリンタの開発を進め、出力した扇形断面のモジュールを組み合わせて脚の円断面とし、最適な積層方法での連続体脚の製作を可能とした。

図6に試作したモジュールを示す。FDM方式により造形した扇形断面の外殻の内部へシリコン製の気室を配置し、気室の膨張によって外殻外側の折れ曲がった支柱が延ばされて内側へ屈曲する。今後は円断面へ組み合わせた状態での動作実験を行い、屈曲角のさらなる拡大を目指す。

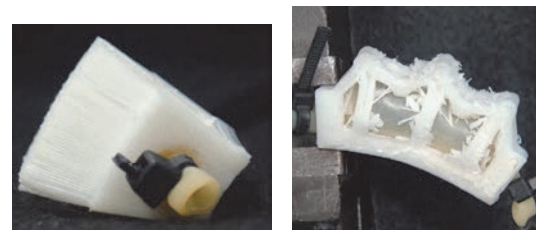


図6 扇形の断面を持つ単位節による屈曲動作

### 4. おわりに

本研究では、水底での長時間の定在により探査や監視を可能とし、かつ水底での移動性能に優れた水底移動ロボット開発するために、5本の長く柔軟な脚を持つクモヒトデ型のロボットの開発に着手した。そして少ない能動自由度によって脚機構を実現するために、螺旋捻転運動を行う連続体脚の検討と試作を行った。

最後に、本助成により科学研究費基盤研究(C)「長期間の調査・監視を目的としたクモヒトデ型水底移動体の開発」が採択されましたので、ここに感謝を申し上げます。

### 本研究に関する主な発表論文

- (1) 小林, 青木: “外骨格型ソフトアクチュエータのための多軸3Dプリンタの開発”, 日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会2020, 1P2-J13, 2020
- (2) 小林, 青木: “クモヒトデを規範とした連続体脚ロボットの開発 -連続体脚の省自由度化に有効な螺旋の検討”, 日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会2021, 2P3-H16, 2021

### 参考文献

- [1] トピー工業株式会社 News Release: 世界初のフリッパー型全方向移動クローラーを開発、海洋資源調査に展開 -JAMSTEC、日産自動車と共同研究-, 12, 19, 2020
- [2] H. C. Astley: “Getting around when you re round: quantitative analysis of the locomotion of the blunt-spined brittle star, *Ophiocoma echinata*,” *Experimental Biology*, 215, 1923-1929, 2012
- [3] Y. Matsuzaka et al.: “Non-centralized and functionally localized nervous system of ophiuroids: Evidence from topical anesthetic experiments,” *Biology Open*, 6(4), 425-438, 2017



研究項目 : 先端研究推進プロジェクト助成金 (II)

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/9/30

研究課題名 (和文) : アーキアが特異な膜脂質をもつに至った理由の解明に向けた脂質合成酵素解析

研究課題名 (英文) : Analysis of lipid biosynthetic enzymes in Archaea to elucidate the reason why Archaea have specific membrane lipids

研究者 : 根本 直樹  
NEMOTO Naoki

千葉工業大学  
先進工学部 生命科学科 准教授

## 1. はじめに

全ての生物は細胞からなり、酵素による生化学反応によって代謝し生きている。そのため、現存する生物の祖先は、単一の起源であったと考えることができる。しかし、細胞を包む細胞膜脂質の構成分子は、生物ドメインによって違いがみられる (図 1)。これは、異なる膜脂質合成経路の成立が生物ドメインの分岐と関連して起こったと考えることができるが、そのようになった経緯は不明である。脂質分子の違いは、生成に関わる一連の酵素とその遺伝子が全く異なることによる。なぜアーキアだけ細胞膜の脂質分子種が異なるかを明らかにできれば、アーキアというドメインが存在する理由と誕生の経緯、また原始生命体の誕生といった生命の起源の問題についても迫ることができるので、学術的に意義がある研究課題であると考えて遂行した。

本研究課題では、なぜアーキアだけが細胞膜の脂質分子種が異なるかを解明することを目指して、アーキアがもつ脂質合成関連酵素に注目し、以下の2つの研究を実施した。①アーキアがもつエーテル脂質合成の要の酵素について、活性部位の残基の変異体や基質結合状態のX線結晶構造解析による立体構造解明および相同性をもつ酵素との分子系統解析を行い、本酵素の成立の経緯解明を目指すこと、②アーキアがもつ機能不明なエステル脂質合成酵素ホモログのX線結晶構造解析による立体構造解明および活性測定による機能解明を行い、進化学的に関連がある酵素を明らかにすること。この2つの研究によるアーキアがもつ脂質合成関連酵素の解析で、なぜアーキアが特異な膜脂質をもつに至ったか解明することを目指した。

## 2. 研究の内容

### (1) アーキア由来エーテル結合形成酵素の解析

アーキアのエーテル結合形成酵素 (geranylgeranyl glyceryl phosphate synthase, GGGPS) は、アミノ酸配列の配列相同性から大きく2つのグループに分けられる。研究者は、そのうちグループ2に属するGGGPSについて、好熱好酸性

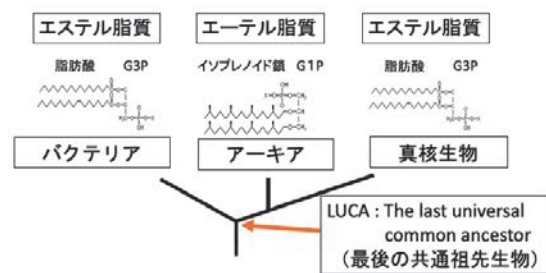


図 1. リボソーム RNA の塩基配列情報に基づくドメインの系統関係および細胞膜脂質分子構造の比較

LUCA がもつ膜脂質がエーテル脂質とエステル脂質のどちらの脂質分子で構成されていたかは、今のところ不明であり、その解明を目指した。G1P と G3P は互いにグリセロリン酸の光学異性体

アーキア *Thermoplasma acidophilum* から新規に遺伝子を同定し、酵素反応の至適条件を決定した (1)。*T. acidophilum* 由来 GGGPS (TaGGGPS) は、2量体としてはたらくこと、多種のアーキア由来 GGGPS とのアミノ酸配列の比較から、高度好塩性アーキアがもつ GGGPS は、TaGGGPS とは配列相同性がやや低く、異なるグループとして分けられること。また、アーキアの脂質合成の要の酵素であるにも関わらず、バクテリアの一部が配列相同性をもつタンパク質をもつことなどを明らかにした (1)。

さらに X 線結晶構造解析によって、TaGGGPS と基質 G1P との共結晶構造を明らかにし、TaGGGPS が TIM バレル構造をもつ 2 量体酵素であること、活性中心のアミノ残基が適切な位置で基質認識を行うことによって、G1P の 3 位の水酸基が、もう一つの基質 GGPP と結合しやすい位置に向いていることを明らかにした (2)。

本研究課題では、GGGPS の活性中心の残基が、グループ 1 とグループ 2 で一部が異なることに注目して、グループ 2 の TaGGGPS の残基に変異を導入し、グループ 1 の活性中心となった変異体 GGGPS の解析を行い、2 つのグループに分岐した理由の解明に取り組んだ。活性中心の残基は 2 箇所に違いが見られたため、片方だけを変異させたものと両方とも変異させたものと 3 種の変異体 GGGPS を作成し、解析した。

その結果、3種の変異体GGGPSのうち、2種(変異体A, B)では、活性中心の残基の変異により、活性の大きな低下がみられたが、1種(変異体C)では活性中心の残基を変異させても活性は維持され、低下はみられなかった。酵素の活性中心の残基を変異させた場合、通常は著しい活性の低下が起きることから、グループ1とグループ2のGGGPSでは活性中心の残基の空間的配置が概ね一致しているため、変異体Cの変異が許容されたことが示唆された。またこのとき、変異体Cの多量体形成状態に変化がみられたことから、酵素活性の点では変異体Cの変異は許容されたものの、立体構造の安定性の点では変異が許容されず、グループ1とグループ2のそれぞれの活性中心が異なる残基となったことが示唆された。これら3種の変異体については、X線結晶構造解析による立体構造の解明を進めており、変異導入による活性中心の空間的配置に変化が生じたかどうかや多量体形成状態に与える影響について引き続き解明を目指している。

## (2) アーキア由来エステル脂質合成酵素ホモログの解析

アーキアはエステル脂質を細胞中にもたないが、エステル脂質合成酵素をコードする遺伝子と高い相同性を示す遺伝子をほとんどのアーキアがもつと報告されている(3)。研究者は、好熱好酸性アーキア *T. acidophilum* および高度好熱性アーキア *Sulfurisphaera tokodaii* を研究対象として、ゲノム配列情報からエステル脂質合成酵素をコードすると推定される遺伝子を探索した。その結果、エステル脂質合成に関わる7つの反応酵素の遺伝子のうち、1つを除いてホモログ遺伝子が見つかった。しかも、バクテリアでは通常1種類ずつしか遺伝子をもたないところ、アーキアでは、複数(遺伝子によっては最大5つ)のホモログ遺伝子が見つかった。研究者は、*T. acidophilum* 由来カルボニル還元酵素(Ta0441)に注目して、アーキアにおける本酵素の機能解明を目指した研究を行った。

Ta0441 は、アミノ酸配列情報からカルボニル還元酵素の特徴であるSDRファミリーに属し、補酵素NADHを利用した還元反応を担う酵素であることが示唆された。大腸菌を用いたタンパク質発現系を構築し、精製酵素を得て活性測定およびX線結晶構造解析のための結晶化スクリーニングを行った。結晶化スクリーニングでは微結晶が得られる条件が決定できたものの立体構造解析には至らなかった。そのため、立体構造予測サイト(I-TASSER: <https://zhanglab.ccmb.med.umich.edu/I-TASSER/>)を利用して予測構造から機能について検討を行った。その結果、立体構造既知の酵素の中では枯草菌由来のエステル脂質合成酵素と最も類似していることが明らかとなった。しかしながら、基質結合状態の立体構造が解明されていないため、バクテリア由来酵素とアーキア由来酵素との間で基質認識に関わる残基が一致しているかどうかは分からなかった。

Ta0441の精製酵素を調製し、予想される基質の1つであるアセトアセチルCoAの還元反応活性の測定を試みたが、試した反応条件では、いずれも還元反応の活性を検出することができなかった。適切な反応条件を見つけられなかった可能

性があるものの、バクテリアのエステル脂質合成酵素とは異なる基質と反応する、別の役割をもつ酵素である可能性が考えられた。

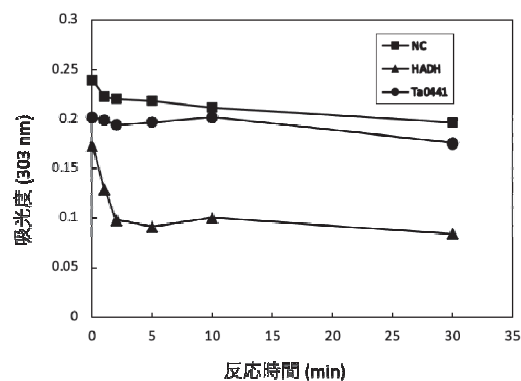


図2. アセトアセチルCoAを基質としたTa0441の活性測定結果

NC:ネガティブコントロール(酵素なし), HADH:ポジティブコントロール(ヒト由来カルボニル還元酵素) アセトアセチル CoA の減少により酵素活性検出を試みた。HADH に対して Ta0441 が存在する条件では活性を示していない。

## 3. まとめ

本研究課題の遂行により、アーキア由来GGGPSは、活性中心の残基において許容される変異を確認でき、その際に立体構造全体に変化をもたらす可能性が示唆された。このことからGGGPSでみられる2つのグループの特徴である活性中心の残基の違いは、グループ成立の経緯と関わることを示唆された。アーキア由来エステル脂質合成酵素ホモログの解析では、真の基質の同定には至らなかったが、バクテリア由来エステル脂質合成酵素とは異なる基質に反応する可能性が示唆された。

先端研究推進プロジェクト助成金(II)の支援により、酵素の結晶化条件の検討および酵素活性測定条件の検討を行うことができた。本研究課題が目指すアーキアが特異な膜脂質をもつ理由の解明には更なる解析が必要であり、引き続き研究を行う。

## 参考文献

- (1) Naoki Nemoto *et al.* Purification and characterization of Geranylgeranyl glyceryl phosphate synthase from a thermoacidophilic archaeon, *Thermoplasma acidophilum*. *J. Biochem.* **133**, 651-657, (2003).
- (2) Naoki Nemoto *et al.* Crystal structure of (S)-3-*O*-geranylgeranyl glyceryl phosphate synthase from *Thermoplasma acidophilum* in complex with the substrate *sn*-glycerol 1-phosphate. *Acta Cryst.* **F75**, 470-479, (2019).
- (3) J. Lombard *et al.* An ACP-independent fatty acid synthesis pathway in Archaea: implications for the origin of phospholipids. *Mol. Biol. Evol.* **Nov. 29**, 3261-3265, (2012).

研究項目 : 先端研究推進プロジェクト助成金 (II)

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/9/30

研究課題名 (和文) : エピトランスクリプトーム解析による骨格筋機能障害の病態解明

研究課題名 (英文) : Elucidation of the pathology of skeletal muscle dysfunction by epitranscriptome analysis

研究者 : 川西 範明

千葉工業大学

KAWANISHI Noriaki

先進工学部 教育センター 准教授

## 1. はじめに

メタボリックシンドロームを病態基盤とする生活習慣病は様々な合併症を併発するが、特に高齢者においては不活動も寄与することにより骨格筋量が低下する加齢性筋肉減弱症“サルコペニア”と呼ばれる症候群も発症する危険が高くなり、その末期には生活の質を著しく低下させる。したがって、加齢による骨格筋の機能低下や、運動や栄養による骨格筋の機能維持・向上の分子メカニズムを解明することは、国民の健康寿命の延伸を目指した予防・治療法の技術開発に重要と言える。

現在までに DNA メチル化やヒストン修飾などのエピジェネティックな変化が代謝性疾患などの発症や進展に関与することが明らかにされてきた。DNA の修飾は転写活性を正あるいは負に制御することで、メッセージ RNA (mRNA) の発現を調節して様々な生理機能に影響を及ぼすことが知られている。DNA メチル化酵素の遺伝子改変マウスを用いた研究により、骨格筋での DNA のエピジェネティックな変化がミトコンドリア機能や筋サテライト細胞の増殖・分化を調節することが明らかになってきている。これまでに著者らは、次世代シーケンサーを用いたゲノムワイドな DNA メチル化解析により、加齢に伴うマウス骨格筋での DNA メチル化の変動の検証を進めてきた。その結果、高齢マウスは若齢マウスと比較して骨格筋の全ゲノム DNA のメチル化レベルが顕著に高いことを見出した。したがって、加齢が骨格筋の DNA のエピジェネティックな変化を生じさせることで、骨格筋機能の調節に関与する可能性が示唆される。しかし、これらの DNA 修飾の変化のみでは骨格筋の機能障害の分子機序の全容を解明するには至っていない。

近年、次世代シーケンサーを利用したシーケンス技術の発展により、mRNA やマイクロ RNA (microRNA) などのトランスクリプトームにもメチル化やアセチル化など様々な修飾の変化(エピトランスクリプトーム)が生じることが見出されてきた(1)。重要なことに、RNA の修飾状態はメチル化酵素など修飾酵素の働きによりダイナミックに変動して、タンパク質への翻訳制御や RNA の分解を調節することで疾病の発症や進展などの様々な生命現象に関与することが解明されつ

つある(2)。加齢による骨格筋の機能障害においても RNA 修飾の変動が重要な役割を担う可能性が考えられる。そこで、本研究では加齢に伴う骨格筋の RNA メチル化の変動について検討することを目的とした。

## 2. 研究の内容

### (1) 研究方法

実験には C57BL/6 雄マウスを用いた。4 カ月齢の若齢マウスおよび 27 カ月齢の高齢マウスから下腿の大腿四頭筋を麻酔下で採取した。

骨格筋から RNeasy Mini Kit (Qiagen) を使用して、Total RNA を抽出した。RNA を N6-メチルアデノシン抗体で補足して、メチル化 RNA を濃縮・精製した。精製した RNA 濃度を定量することで、骨格筋の RNA メチル化レベルを評価した。また、RNA は High-Capacity cDNA Reverse Transcription Kit (Thermo) を用いて cDNA の逆転写した後に、各種のメチル化酵素プライマーおよび PowerUp SYBR<sup>TM</sup> Green Master Mix (Thermo) を用いて mRNA を増幅した。mRNA 発現量はリアルタイム PCR 法により定量した。

2 群間の差は t 検定により統計解析を行った。有意水準は  $p < 0.05$  とした。

### (2) 研究結果

若齢マウスと高齢マウスの骨格筋における全 RNA のメチル化レベルの違いを検証した結果、高齢マウスは若齢マウスと比較して骨格筋の RNA のメチル化レベルが有意に高値を示した (図 1)。

また、若齢マウスと高齢マウスの骨格筋における RNA のメチル化を促進する酵素およびメチル化を抑制する酵素の mRNA 発現量の違いを検証した。その結果として、RNA メチル化を促進する酵素である methyltransferase-like protein (METTL)3 および METTL14 の mRNA 発現量は、若齢マウスと比較して高齢マウスで高値を示した (図 2)。また、RNA メチル化を抑制する酵素である AlkB homolog (ALKBH)5 および fat mass and obesity-associated protein (FTO) の mRNA 発現量は、若齢マウスと高齢マウスで違いは見られなかった (図 2)。

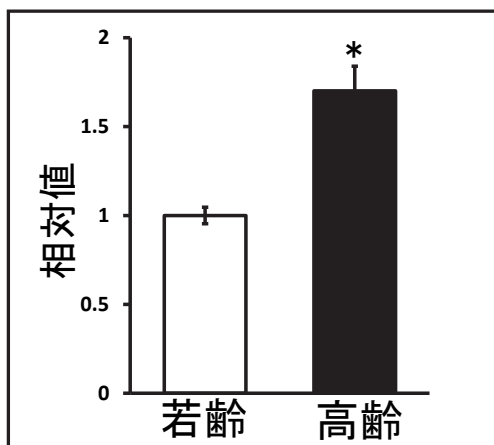


図1. 加齢によるマウス骨格筋のRNAメチル化レベルの変動

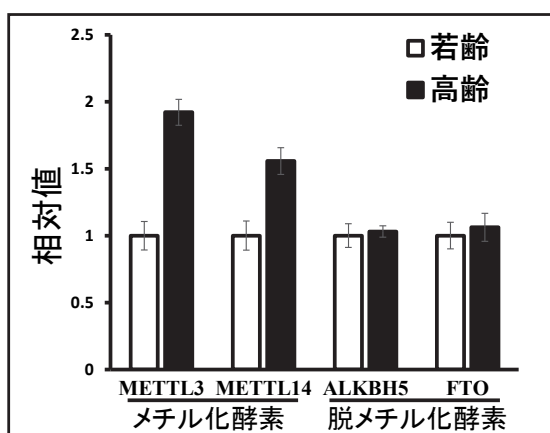


図2. 加齢によるマウス骨格筋のメチル化酵素のmRNA発現量の変動

### 3. まとめ

本研究では、加齢による骨格筋のRNAのメチル化の変動を検証した。骨格筋の全RNAのメチル化レベルは加齢により増加することを見出した。また、メチル化を促進する酵素のmRNA発現量が加齢により増加することを見出した。これらの結果は、加齢に伴うRNAメチル化酵素の発現の変化が、骨格筋のメチル化レベルの変動を制御する可能性を示唆している。本研究により、骨格筋の全RNAのメチル化レベルが加齢によって変動することが明らかになったが、mRNAやmicroRNAなどの各種エピトランスクリプトームの単一遺伝子レベルでのメチル化などの修飾状態の変動の全容については現在のところ不明である。今後は大規模並列シーケンサーを使用することで、どの特定のmRNAやmicroRNAの修飾状態が変動するのかについての解明を進めることにより、骨格筋の機能障害におけるエピトランスクリプトームの役割の解明が求められる。

### 参考文献

- (1) Emily M Harcourt, Anna M Kietrys, Eric T Kool. Chemical and structural effects of base

modifications in messenger RNA. *Nature*. 18; 541: 339-346. 2017.

- (2) Ian A Roundtree, Molly E Evans, Tao Pan, Chuan He. Dynamic RNA Modifications in Gene Expression Regulation. *Cell*. 15; 169(7): 1187-1200. 2017.



研究項目 : 先端研究推進プロジェクト助成金 (Ⅱ)  
 研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/9/30  
 研究課題名 (和文) : データ科学と認知科学の融合によるプログラム支援情報基盤の研究開発  
 研究課題名 (英文) : Development of Program Management Platform Merging Data Science and Cognitive Science  
 研究者 : 田隈 広紀 千葉工業大学  
 TAKUMA Hironori 社会システム科学部 プロジェクトマネジメント学科 准教授

1. はじめに

イノベーションとは新たな価値を社会実装する取り組みであり、この実現には斬新な発想・発明を、複数のプロジェクトによって価値システムとして設計・実装・運営していく必要があり、こうした活動を「プログラム」と呼ぶ。また「プログラムマネジメント」とはプログラムの一連の取り組みを支援する科学技術であり、全世界の成長戦略・社会問題解決の拠り所となる知見として注目を集めている。

本研究項目の研究者らは、このプログラムマネジメントの理論に基づくウェブ情報学・サービス情報学分野の応用研究として、下記の知見の明確化に取り組んでいる。

- ① 参画・議論・内省を促進するUI・UX デザイン
- ② 意見の収集と反映を支援する知識マネジメント手法
- ③ 業績評価指標の設定を支援する推薦システム方式

本研究項目では特に③の実装方法の具体性・適切性を高めるため、評価指標抽出エンジンに関連する要素技術の明確化と論文等での公表を実施した。

2. 研究の内容

本研究項目ではプログラムの評価指標を抽出するエンジンを実装するうえで必要となる下記の知見を研究した。

(1) 業績評価指標の因果構造を推定するアルゴリズム

まずプログラムの業績を評価する「指標」の因果構造を推定する手法を確立するため、確率的事象の伝播をモデリングする数理手法である「ベイジアンネットワーク」の適用性を検討した。992 件の製品・サービス開発プログラムの実績データを基に図1のベイジアンネットワークを構成し、その形状から推定できる「マネジメントの要点」が、権威ある関連論文の記述と整合するか確認した。この結果、ベイジアンネットワークの形状から抽出した下記の「マネジメントの要点」が、3 編以上の権威ある関連論文の主張と一致することを確認した (詳細は参考文献(1)を参照)。

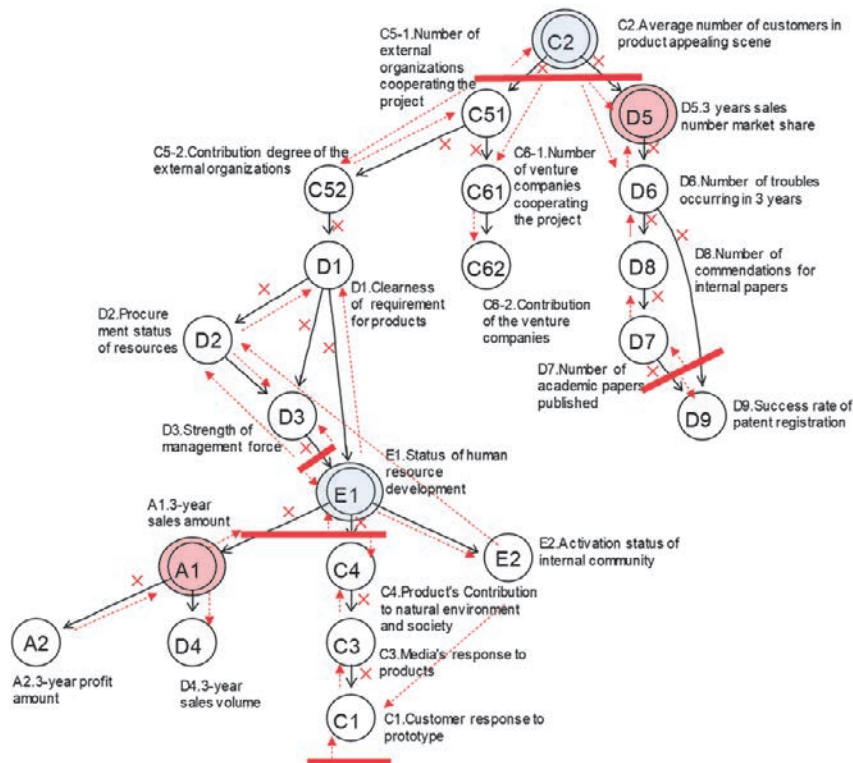


図1 ベイジアンネットワークを用いた製品・サービス開発プログラムの業績評価指標の構造<sup>(1)</sup>

【図1 から抽出したマネジメントの要点】

- ① 売上向上に貢献する人材育成マネジメント  
 要求の明確さ・管理強度・環境や社会への貢献・社内

コミュニティの活気が高まると人材育成が促され、売上・利益・販売数が向上する、といったことが推定された。ただし売上・利益・販売数との相関関係が大き

く向上するのは、人材育成の仕組みを「中程度」充実させるまでである。

- ② 市場シェア向上に貢献する知的財産マネジメント  
特許登録の「成功率」が向上すると、社内外の論文好評の件数が高まり、その影響で不具合件数が増加するが、3年間の市場シェアが高まることが推定された。
- ③ 売上と市場シェアに貢献する外部連携マネジメント  
外部組織の多様性と顧客アピールの頻度が、売上・利益及び市場シェアの経済的価値へ伝播することが推定された。ただしその取り組みが「中程度」以下の場合にはかえって悪化することも推定されたため、外部連携を行う際は、それを成功裏に導くためのマネジメントを入念に施行することが推奨される。

(2) LDA による「企業属性の影響」の精緻化

業績評価指標間の関係有無・強弱は、プログラムを実施する組織の企業属性（規模・業種等）によって異なることが推定される。上記(1)の研究では、この影響の有無を階層クラスタ分析によって生成したノードを入れ込むことによって表現（図1の赤の境界がある箇所が影響を受ける部分）したが、特定のケースで確率伝播の算出を阻害することが課題となっていた。よってこの課題をクリアした形で企業属性による影響を業績評価指標の構造に入れ込むことを目的に、LDA（Latent Dirichlet Allocation）を用いた「トピックノード」を生成し、それを図2のようにベイジアンネットワークへ導入する手法を研究した。そしてこのベイジアンネットワークの確率伝播構造が年商・業種を踏まえたドメイン知識とより一致し、かつ他の特定ケースでの係数算出を阻害しなくなることを確認した。詳細は参考文献(2)を参照されたい。

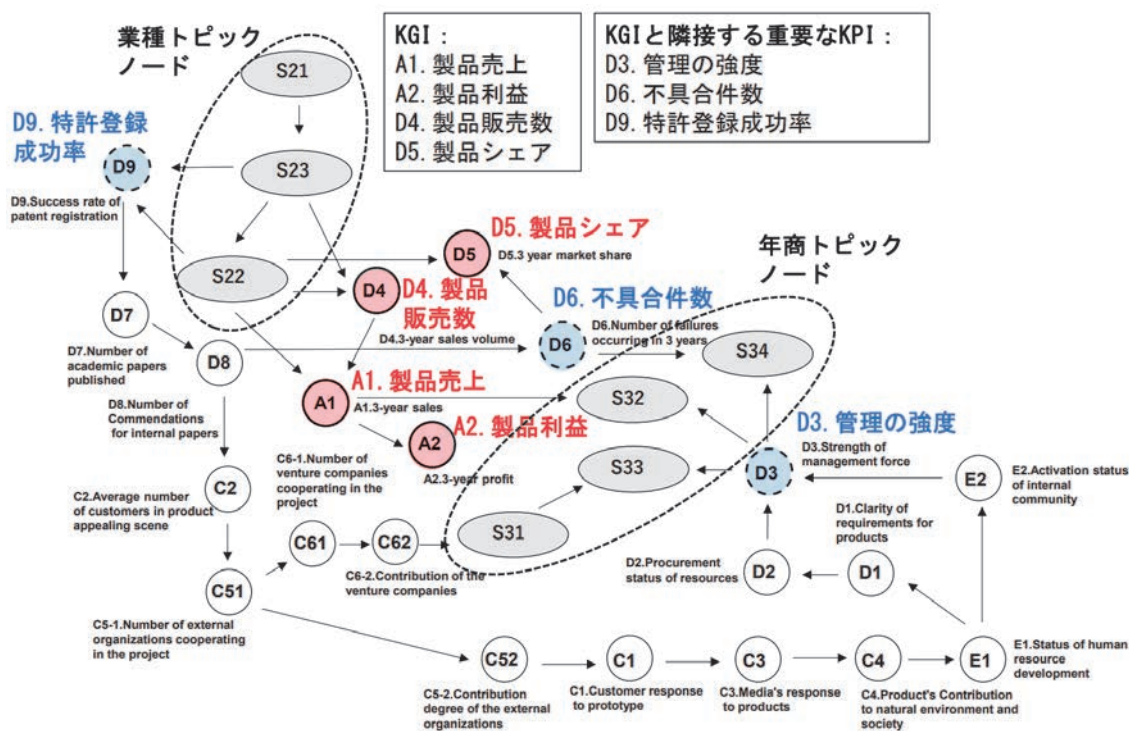


図2 LDA トピックノードを導入したベイジアンネットワークの構造<sup>(2)</sup>

3. まとめ

本研究項目では製品・サービス開発プログラムの中間・最終評価の基準となる業績評価指標を科学的に推定する手法の確立に向け、ベイジアンネットワーク及びLDA分析を用いた指標の構造化・精緻化に取り組んだ。今後この結果を足掛かりに、さらに数理と認知の科学技術に立脚したプログラムマネジメント支援基盤の社会実装に取り組み、日本を起点とする社会イノベーションの創出につなげていく。

参考文献

- (1) Hironori TAKUMA, and Yutaka IWAKAMI: Modeling of

Value Indicators and Extraction of Key Management Points in Product Development using Bayesian Network and Hierarchical Clustering, Journal of International Association of P2M, Vol.15, No.1, pp.1-22, 2021.

- (2) Yutaka IWAKAMI, Hironori TAKUMA, and Motoi IWASHITA: Analyzing Enterprise Attribute-Development KPIs/KGIs by Bayesian Network-Leveraging LDA, International Journal of Project Management and Productivity Assessment, Vol.9, No.2, pp.48-67, 2021.

# 〔先端研究推進プロジェクト助成金（Ⅲ）〕







研究項目 : 先端研究推進プロジェクト助成金 (Ⅲ)  
研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/9/30  
研究課題名 (和文) : 抗腫瘍活性を有する微生物二次代謝産物の作用機構の解明  
-進化発生生物学的解析による新たなアプローチ-

研究課題名 (英文) : Evolutionary developmental approach to elucidate the mode of action of a microbial secondary metabolite with antitumor activity

研究者 : 成田 隆明 千葉工業大学  
NARITA Takaaki 先進工学部 生命科学科 助教

## 1. はじめに

細胞性粘菌 *Dictyostelium discoideum* が合成する二次代謝産物 Differentiation Inducing factor-1 (DIF-1) は、哺乳類の腫瘍細胞に対して *in vitro* で強力な増殖抑制作用などを示すことが知られている<sup>1</sup>。その医学的重要性から、DIF-1 のターゲット因子や受容体探索が長年続けられているが、特に受容体に関しては、DIF-1 発見から約 40 年が経過した現在も不明である。

DIF-1 は、*D. discoideum* の柄細胞の一部を分化誘導するポリケタイド化合物であり、その生合成経路の最初のステップはポリケタイド合成酵素 St1B が担っている<sup>2</sup>。DIF-1 のような低分子化合物の場合、その受容体を同定するために結合アッセイを試みても、非特異的な結合を避けることができず、その判断は「候補遺伝子をノックアウトすると、DIF-1 欠損時と同様の表現型 (DIF-less phenotype) を示すかどうか」が大きな指標となる。St1B 遺伝子を欠損させた *D. discoideum* は、basal disc と lower cup と呼ばれる細胞型が欠失することから、この表現型が DIF-less phenotype の指標となっているが、そもそも細胞性粘菌という生物種全体を見た場合、大半の種は basal disc や lower cup を持たない<sup>3</sup>。しかし、DIF-1 合成を担う St1B 遺伝子は細胞性粘菌の種間を超えて保存されており、*D. discoideum* の近縁種である *D. purpureum* も DIF-1 を合成していると考えられるが、その子実体は DIF-1 により誘導される細胞型を持たない<sup>4,6</sup>。つまり、DIF-1 には未知の生理機能が存在していると考えられ、それこそが DIF-1 本来の役割であるのかもしれない。本研究は、*D. purpureum* における DIF-1 の生理機能と作用機構を明らかにする進化発生生物学的解析により、DIF-1 作用機構をさらに理解することで、DIF-1 受容体の発見の足掛かりとすることを目指している。

## 2. 研究の内容

(1) *D. purpureum* における St1B 遺伝子の時間的発現パターン解析

DIF-1 合成を担う St1B 遺伝子は、*D. discoideum* においては細胞分化が開始する発生中期～後期に発現する。そこで、*D. purpureum* における St1B 遺伝子 (*Dp-st1B*)

の時間的発現パターンを RT-PCR により解析したところ、*D. discoideum* と同様、発生中期～後期にかけて強い発現が見られたが、単細胞期にも発現が確認された (図1)。また、培養条件の異なる *D. purpureum* 単細胞アメーバにおける *Dp-st1B* の発現を比較したところ、寒天培地上で培養した細胞ではあまり発現が見られず、液体中で振盪培養した細胞では発現が上昇していた。加えて、この *Dp-st1B* の単細胞期における発現の変化は、単細胞アメーバの餌となるバクテリアの違いが原因ではないことも示唆された (図2)。

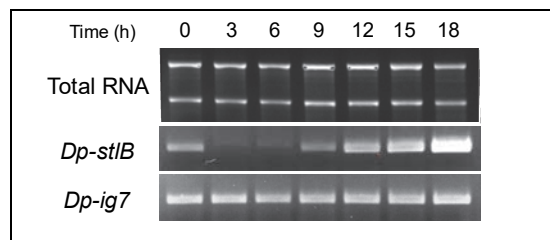


図1 *Dp-st1B* の時間的発現パターン

グラム陰性菌 (*Klebsiella aerogenes*) 懸濁液中で培養した *D. purpureum* 単細胞アメーバを発生させ、発生時間ごとの *Dp-st1B* の発現を RT-PCR により解析した。

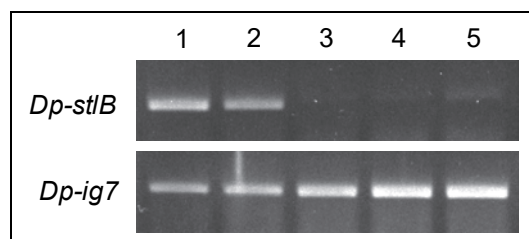


図2 培養条件の違いによる *Dp-st1B* の発現変化

培養条件の異なる *D. purpureum* の単細胞期における *Dp-st1B* の発現を RT-PCR により解析した。1: グラム陰性菌 (*K. aerogenes*) 懸濁液中での液体振盪培養, 2: オートクレーブ処理したグラム陰性菌 (heat-killed *K. aerogenes*) 懸濁液中での液体振盪培養, 3: 寒天培地上でのグラム陰性菌 (*K. aerogenes*) との二員培養, 4: 寒天培地上でのグラム陽性菌 (*Bacillus subtilis*) との二員培養, 5: 寒天培地上での heat-killed *K. aerogenes* との二員培養

(2) *D. purpureum*における St1B 遺伝子破壊株の単細胞期における表現型解析

*D. purpureum*においては、形質転換技術が未確立であったため、*D. purpureum*における遺伝子破壊は不可能であった。しかし、これまでに我々は *D. purpureum* における形質転換技術を確立し、*Dp-st1B* 破壊株の作製に成功している (unpublished data)。そこで、*Dp-st1B* の発現解析結果をもとに、*Dp-st1B* 破壊株の単細胞期に焦点を当て、その細胞増殖について野生株との比較を行った。寒天培地上での二員培養時と、液体振盪培養時における単細胞アメーバでは *Dp-st1B* の発現が変化していたことから、寒天培地上での *K. aerogenes* と二員培養時 (図3) ならびに heat-killed *K. aerogenes* 懸濁液中での液体振盪培養時 (図4) における細胞増殖の比較を行った。その結果、*Dp-st1B* 破壊株の細胞増殖は、どちらの条件でも野生株と大きな変化は見られなかった。このことから、*Dp-st1B* の産物であると考えられる DIF-1 は、*D. purpureum* の細胞増殖には関与していないことが明らかになった。

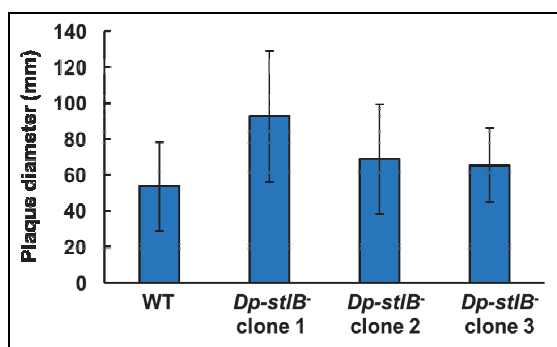


図3 寒天培地上における *Dp-st1B* 破壊株の細胞増殖野生株および *Dp-st1B* 破壊株の胞子を栄養寒天培地に *K. aerogenes* と共に広げ、4日後、出現した plaque サイズを画像解析ソフトウェア imageJ を用いて測定した。

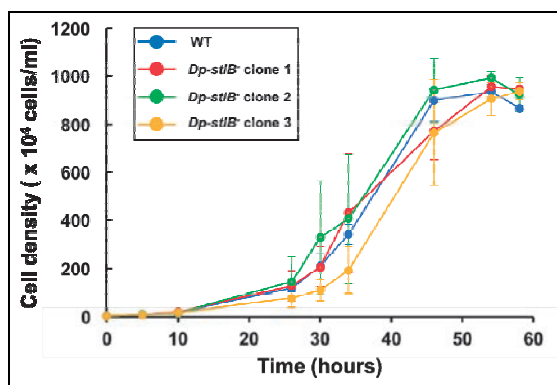


図4 液体振盪培養時の *Dp-st1B* 破壊株の細胞増殖野生株および *Dp-st1B* 破壊株 ( $5 \times 10^4$  cells) を 10 ml の heat-killed *K. aerogenes* 懸濁液 ( $OD_{600}=10$ ) 中で  $22^\circ\text{C}$ , 150 rpm で振盪培養し、各時間の細胞数をヘモサイトメーターを用いてカウントした。

3. まとめ

進化発生生物学解析という新たなアプローチから DIF-1 作用機構をさらに理解する一步として、本研究では *D. purpureum* における *Dp-st1B* の発現解析ならびに *Dp-st1B* 破壊株の表現型の解析を行った。*Dp-st1B* の発現解析結果から、単細胞期に *Dp-st1B* の発現が確認され、さらにその発現は培養条件によって変化するという新たな知見が得られた。これは、*D. discoideum* では全く確認されていない現象であり、DIF-1 にはこれまで知られていない生理機能が存在することを強く示唆する結果であった。しかし、*Dp-st1B* 破壊株の細胞増殖には変化が見られなかったことから、*Dp-st1B* の産物と考えられる DIF-1 は、*D. purpureum* の単細胞期において細胞接着や細胞骨格制御などに関与している可能性も視野に入れ、今後さらなる解析を進めてゆく予定である。

また、*D. discoideum* と同様、*Dp-st1B* は発生中期～後期にかけて次第に発現が上昇していたことから、DIF-1 は *D. purpureum* においても細胞分化などの現象に関与していることが示唆された。しかし、現在までに *Dp-st1B* 破壊株の子実体形成において表現型の欠損は確認されていない。今後は、*Dp-st1B* 破壊株の単細胞期の表現型だけでなく、細胞分化を含む子実体形成過程における表現型の解析も進め、*D. purpureum* における DIF-1 の生理機能を明らかにし、DIF-1 作用機構のさらなる理解へと繋げてゆきたい。

参考文献

- (1) 久保原 禎, 細胞工学, 26(9):1052 (2007)
- (2) Saito T et al., DIF-1 induces the basal disc of the *Dictyostelium* fruiting body, *Dev Biol*, 317(2):444-453 (2008)
- (3) Schilde C et al., A well supported multi gene phylogeny of 52 dictyostelia, *Mol Phylogenet Evol*, 134:66-73 (2019)
- (4) Heidel AJ et al., Phylogeny-wide analysis of social amoeba genomes highlights ancient origins for complex intercellular communication, *Genome Res*, 21(11):1882-1991 (2011)
- (5) Sugang R et al., Comparative genomics of the social amoebae *Dictyostelium discoideum* and *Dictyostelium purpureum*, *Genome Biol*, 12(2):R20 (2011)
- (6) Motohashi KA et al., Identification of des-methyl-DIF-1 methyltransferase in *Dictyostelium purpureum*, *Biosci Biotechnol Biochem*, 76(9):1672-1676 (2012)

---

研究項目 : 先端研究推進プロジェクト助成金 (Ⅲ)  
研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/9/30  
研究課題名 (和文) : 生活上の価値観と新型脅威への対処方法 -環境配慮に関連した予備解析-

研究課題名 (英文) : Life values and how to deal with new threats - Preliminary analysis related to environmental consideration -

研究者 : 木村 大 千葉工業大学  
KIMURA Dai 附属研究所 共同研究員

---

## 1. はじめに

我が国は地震や台風などの自然災害に見舞われることが多く、2019 年後半に中国でコロナウイルスによる感染症が広まりはじめた。人類が未経験したことのない自然災害や感染症、さらには地球の環境変化による影響を本研究では新型脅威と呼ぶことにした。このような未だ人類が未経験したことのない脅威に対する対処行動が重要となる。新型脅威への対処は意識を持って取り組むことが重要である。しかし、対処行動を社会に浸透させるために、継続性をもたせることとあわせ日常生活の中で、無意識に実践されるようにならなければ効果をもたない。新型脅威に対する行動を検討するためには、先行研究で蓄積された知見のさらに根底ある価値観に迫る必要があると考えた。

価値観といっても多種多様な意味がある。そこで、本研究では、生活習慣、購買行動、ライフスタイルなどにおける望ましい状態を規定するものとして、生活上の価値観に焦点をあてた。国民の保有する「生活上の価値観」を明らかにし、新型脅威への認識や態度と現状の対処行動および将来予測される行動との関係を質問調査と統計解析により明らかにする必要がある。

## 2. 研究内容

### 2.1 著者の先行研究による設問の選定

本稿では本調査にむけた設問作成のために、著者のこれまで実施した研究調査の中から、新型脅威と生活上の価値観の関係の解明に寄与するものを選定した。新たな解析を実施することで、本調査に向けた設問作成に寄与すると考えたためである。新型脅威の中でも、地球環境問題に絞ったうえで解析を進めた。地球環境問題に関して、その対処行動といえる環境配慮への態度と価値観の関係について解析を行った。

手順として、著者のこれまでの研究において環境配慮行動と生活態度の関係を検討した調査結果を用いることとした。この調査解析での生活態度とは先行研究をもとに独自に生活態度項目を設定したものである。そのため、生活態度に関する設問群を再解析する

ことで、今後行う本調査での生活上の価値観に関する設問設計に寄与すると考えられる。

### 2.2 生活上の価値観について

これまでの研究において生活態度を問う設問群の回答結果に対し因子分析を行った。因子抽出方法はアルファ因子法で、バリマックス回転により複数回実施した。因子構造を確認したところ、4 因子構造が妥当であると判断した。因子 1 は 4 項目で構成され、「自分の努力の結果として、他人と格差が生じても仕方がないと思う」、「議員選挙の投票によって社会を変えることができると思う」といった設問は、社会の在り方や合理性を示す設問で構成されていると考えられる。そこで、因子 1 を「社会合理」とした。因子 2 は流行を意識すると考えられる。「新しい流行の商品が気になる」をはじめ、社会で重要視されている個人情報保護に対する態度を示すと考えられる「暗証番号はセキュリティ確保のために頻繁に変更している」といった設問で構成されていた。因子 2 を「流行感度」とした。因子 3 は 4 項目で構成され、「インターネットを使って情報収集をよくする方だ」、「日用品や食料品は、安いときにまとめ買いする」といった情報収集や経済に意識が向いていると考えられる。因子 3 を「情報経済」とした。因子 4 は、自分よりも弱い立場の人々への援助や互いに助け合うことに意識が向かっていると考えられる設問で構成されていたが、 $\alpha$ 係数が低いため項目の設定は行わず分析から除外した。因子分析と信頼性分析の結果に基づき、日常生活観を示す 3 因子の回答結果に 1 点から 7 点を付与し得点化した。

### 2.3 環境配慮への態度

環境配慮への態度は、環境問題への認識や環境配慮行動への考え方、環境問題に関する意識など一様ではないと考えられる。本稿では、日常生活観に応じて環境配慮への態度の違いが生じると想定している。そこで、まず環境配慮への態度の性質分けを試みた。例えば、広瀬モデル<sup>1)</sup>では「環境リスク認知」、「責任帰属認知」、「対処有効性認知」、「目標意図」に分類してい

る。本研究では先行研究を参考に複数の環境配慮への態度に関する設問を作成した。そして、独自に環境配慮への態度について分類するため、回答の因子分析を行った。因子抽出方法は信頼性分析の際に高い $\alpha$ 係数となるようにアルファ因子法、バリマックス回転により行った。因子1に高い負荷量を示した設問は、日頃から環境問題を意識し、環境配慮行動へのイメージや環境配慮行に対する同意を示すと考えられる設問で構成された。そこで、因子1を「環境意識」とした。因子2は、現在進行している環境問題への認識や回答者自身が環境問題をとらえていると考えられる設問で構成されていると考えられるため、「環境問題認識」とした。因子3は、実際の環境配慮行動について問う設問で構成されていると考えられるため、「環境行動」とした。因子4は環境配慮への不和を示すと考えられる設問で構成されている。しかし、因子4は $\alpha$ 係数が低いため、項目を設定しなかった。前述の3因子を解析対象とした。因子分析と信頼性分析の結果に基づき、3因子の環境配慮への態度について、回答結果に1点から7点を付与し得点化した。

#### 2.4 価値観と環境配慮行動の関係

3つの日常生活観と各環境配慮への態度の関係を検討するため、はじめに相関分析を行い、結果を表1に示した。環境配慮への態度における「環境意識」は、日常生活観の「社会合理」や「流行感度」との間に高い正の相関がみられた。つぎに「環境問題認識」は、「情報経済」との間に正の相関がみられた。

表1 価値観と環境配慮への態度の相関分析

	社会合理	流行感度	情報経済
環境意識	0.518**	0.511**	0.342**
環境問題認識	0.293**	0.253**	0.335**
環境行動	0.357**	0.339**	0.397**

\*\*= $p < 0.01$

つぎに、3つの日常生活観が環境配慮への態度に及ぼす影響を検討するため重回帰分析を行った。結果を表2から表4に示した。「環境問題認識」と「環境行動」について、決定係数( $R^2$ )が「環境意識」よりも低い結果であったが、それぞれ「情報経済」の日常生活観が有意な正の係数を示した。環境行動を促すきっかけとして、環境問題を広く認識させる情報発信が有効となる可能性が考えられる。「環境意識」に対し、「社会合理」と「流行感度」の標準偏回帰係数( $\beta$ )が有意であり、「情報経済」よりも高い係数を示した。環境問題について解決に取り組もうとする姿勢を社会全体として意識し、環境問題について流行性を意識していると考えられる。

表2 環境意識の重回帰分析結果

	B	SE B	$\beta$
説明変数			
社会合理	0.35	0.03	0.322***
流行感度	0.28	0.03	0.305***
情報経済	0.11	0.03	0.103***
$R^2$	0.358***		
基準変数：環境意識			
*= $p < 0.05$ , **= $p < 0.01$ , ***= $p < 0.001$			

表3 環境問題認識の重回帰分析結果

	B	SE B	$\beta$
説明変数			
社会合理	0.22	0.05	0.165***
流行感度	0.08	0.04	0.072*
情報経済	0.33	0.04	0.246***
$R^2$	0.149***		
基準変数：環境問題認識			
*= $p < 0.05$ , **= $p < 0.01$ , ***= $p < 0.001$			

表4 環境行動の重回帰分析結果

	B	SE B	$\beta$
説明変数			
社会合理	0.25	0.05	0.184***
流行感度	0.16	0.04	0.137***
情報経済	0.38	0.04	0.275***
$R^2$	0.221***		
基準変数：環境行動			
*= $p < 0.05$ , **= $p < 0.01$ , ***= $p < 0.001$			

### 3. まとめ

新型脅威への対処行動に影響を及ぼす生活上の価値観を明らかにすることを目的とし、本調査における設問設計のための予備解析を行った。著者が以前行った調査結果を再解析し、生活態度を問う設問群から生活上の価値観を問うことができるような設問を抽出した。解析の結果、生活上の価値観と考えられる3つの項目を抽出した。新型脅威の一例として、環境配慮への態度と生活上の価値観の関係を明らかにした。それぞれの生活上の価値観とした項目と環境配慮には関係があると考えられる。本稿で抽出した生活上の価値観項目を考慮しつつ、より詳細に新型脅威に影響を及ぼす生活上の価値観項目を抽出できるように、本調査に向けた設問作成をする必要がある。

#### 参考文献

[1] 広瀬幸雄: 社会心理学研究 10 (1), 44-55, 1994



研究項目 : 先端研究推進プロジェクト助成金 (Ⅲ)

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/9/30

研究課題名 (和文) : GPUのための新しいアルゴリズムによる電子回路シミュレータ SPICE の高速化技術

研究課題名 (英文) : Speed-up Method of electronic circuit simulator SPICE with new algorithm for GPU

研究者 : 富永 浩文

千葉工業大学

TOMINAGA Hirubumi

付属研究所 共同研究員

## 1. はじめに

本研究の目的は、電子回路シミュレーション SPICE[1]で解く必要のあるランダムスパース方程式の求解に着目し、求解を高速化するためのアルゴリズムを開発することである。

電子回路シミュレーションは、回路情報から修正節点解析法を用いて回路方程式を生成し、数値積分法により差分化、Newton-Raphson 法を用いて線形化し連立一次方程式を生成する。この連立一次方程式は、何度も解く必要があるが、スパース性が高く回路ごとに行列形状が変化し、数値安定性も求められるため、高速な求解が可能な反復法を用いることができない。このため、直接法による求解が行われることから、高速化が困難な分野であることが知られている。この問題を解決する手法のひとつにシンボリック分解に基づく並列性を抽出し、高速化するアルゴリズムに拡張ベクトル化 LU 分解法がある[2]。

筆者は、数値解析において高い演算性能を発揮できる NVIDIA 社の GPU と拡張ベクトル化 LU 分解法の考え方を利用した手法を提案している[3]。また、拡張ベクトル化 LU 分解法の低い並列性しか得られないベクトル命令を高速に実行するために、CPU と GPU が 1 チップに搭載されている NVIDIA の Jetson TX1 に着目し、計算カーネルを閾値により切り替えるアルゴリズムを提案し、[3]よりも更に計算を高速化している[4]。一方で、文献[4]では、切り替えるアルゴリズムの閾値を一律 32 としており、CUDA の実行を考慮した際に、その有効性に疑問が付く。このため、本稿では、CUDA のハードウェアを考慮した閾値の設定に関して予備調査を行う。

## 2 Jetson TX1

Jetson TX1 は、TegraX1 を搭載する開発ボードである。TegraX1 は、ARM Cortex A57 CPU と NVIDIA Maxwell GPU を搭載する異種混合マルチプロセッサである。TegraX1 のブロック図を図 1 に示す。TegraX1 は、CPU と GPU で共有可能な 4GB のメモリを搭載する。このため、一般的な CPU と GPU がバスで接続された環境とは異なり、CPU と GPU でメモリを共有していることから、

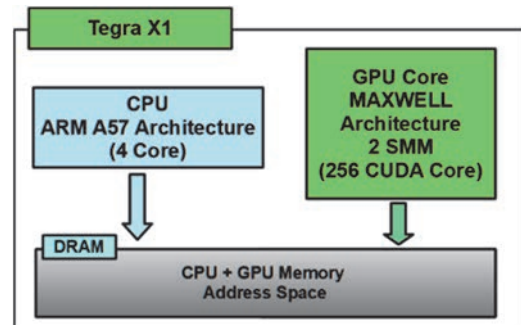


図 1. Jetson TX1 アーキテクチャ

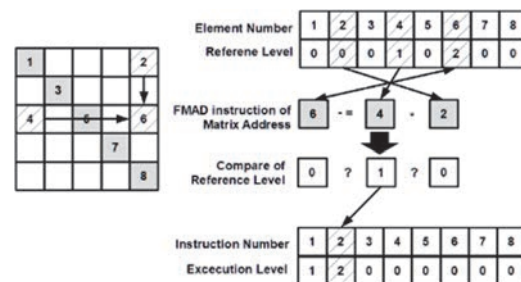


図 2. 積差演算の実行レベルの決定

CPU-GPU 間のメモリ転送はとても高速である。本機能を利用するためには、CUDA の UnifiedMemory を利用した `cudaMallocManaged` API を利用する。

## 3. CUDA のための並列性の抽出

提案手法では、拡張ベクトル化 LU 分解法に基づいた並列性の抽出を行う。拡張ベクトル化 LU 分解法は、Maximum Vectorized Algorithm (MVA) 法を拡張したベクトル計算機向けの手法であり、LU 分解法の演算をマシンコードとして生成、ベクトル化し、実行することでランダムスパース方程式を高速に求解することができる手法である。本手法の特徴は、LU 分解法が以下式(1)に示すような 2 種類の演算で計算できる点に着目し、2 種類の演算に対応するベクトルコードを生成する。

$$\begin{cases} a = a \div b \\ a = a - b \times c \end{cases} \quad (1)$$

拡張ベクトル化 LU 分解法における演算のベクトル化は、シンボリック分解に基づいた要素間の依存関係をレベルの情報を用いて行う。レベルの決定の例を図 2 に示す。要

素ごとにレベルを確認し、中でも一番レベルの高い数値を自身の演算の実行レベルとして設定する。すべての演算の実行レベルが決定すると、同じ実行レベルの演算同士をまとめてベクトル命令を生成する。CUDAを用いた拡張ベクトル化LU分解では、生成した演算命令を配列に格納する。

拡張ベクトル化LU分解法で生成したベクトル命令をCPUとGPUで命令の処理を切り替えるためには、実行レベルごとの並列度を閾値として、カーネルを切り替えることで実現する。本アルゴリズムは、閾値以下の並列度ならばCPUでベクトル命令を処理し、閾値以上の並列度ならばGPUでベクトル命令を処理する。

#### 4. ベクトル長の評価

拡張ベクトル化LU分解法から抽出された並列性を評価するために、電子回路シミュレータで解く方程式を求解する。求解する方程式は、Florida Sparse Matrix Collection[5]より回路問題である add32, circuit3, memplus である。図 3~5 にそれぞれの問題のレベルごとの並列度を示す。また、オレンジ色の線は、CUDA の最適な実行を可能にするスレッドブロックのサイズなどを予測計算できるツールである CUDA Occupancy calculator[6]を利用して予測される最適なスレッドブロックサイズを計算した。本結果より、スレッドブロックサイズ 256 と閾値を設定した場合の結果を示している。

評価の結果、問題によってレベルごとに並列性の性質が大きく異なることが確認できる。また、閾値を 256 とした場合、閾値を下回る計算が add32, circuit3 では多いことがわかる。このような問題は、閾値を用いてカーネルをCPUに切り替えて実行することで計算を高速化できると考えられる。また、複数のベクトル命令で並列度の高いレベルがあることも確認できるため、CUDA を利用した高速化が可能であると言える。一方で、閾値よりも大きく変化のない並列度を持つレベルも存在することが確認できる。このようなベクトル命令をCUDAで実行すると、十分な性能が得られないことが考えられる。CUDAは、スレッドブロックを複数起動することで、データ転送を含むスレッドブロックの起動オーバーヘッドを隠蔽し、処理を高速化する。このため、スレッドブロックの生成数（並列度/閾値で計算できる値）が多くない場合は、オーバーヘッドが隠蔽できずに十分な高速化が得られない可能性がある。このため、CUDAのアーキテクチャに合わせて適切な閾値とスレッドブロック数に関して最適化することで、更なる計算の高速化につながると考えられる。

#### 5. 総括

本稿では、閾値を用いた切り替えによるCUDAを用いた拡張ベクトル化LU分解法を高速化するために、並列度を調査した。評価の結果、提案手法におけるCUDA実

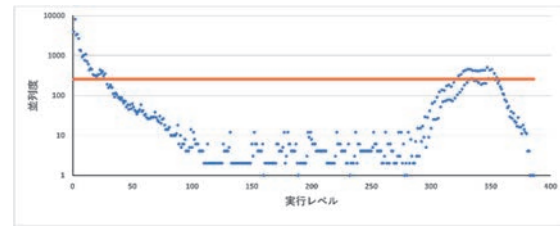


図 3. add32 のレベルごとの並列度

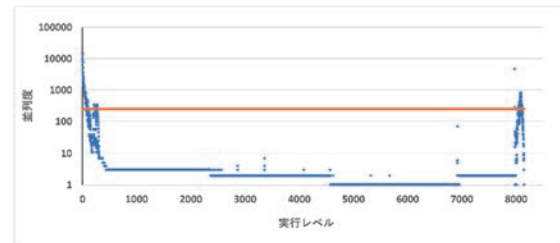


図 4. circuit3 のレベルごとの並列度

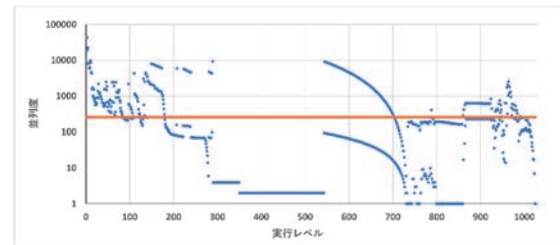


図 5. memplus のレベルごとの並列度

行を最適化するために、並列度における閾値を調整することで、文献[4]の手法に比べ計算をより高速化できると期待できる。

#### 参考文献

- [1] NAGEL, L. W.: SPICE2: A Computer Program to Simulate Semiconductor Circuits, *Ph. D. dissertation, University of California at Berkeley*, 1975.
- [2] Yamamoto, F. and Takahashi, S.: Vectorized LU Decomposition Algorithms for Large-Scale Circuit Simulation, *IEEE Transactions on Computer-Aided Design of Integrated Circuits and Systems*, Vol. 4, No. 3, pp. 232-239, 1985.
- [3] Hirobumi, T. and Yoshitaka, M.: The Speed-up Method Solving Randomsparse Equations Using Instruction-level Parallelism by the CUDA, *Information Processing Society of Japan. Transactions on programming*, Vol. 7, No. 1, pp. 10-17, 2014.
- [4] H. Tominaga, A. Nakamura, and Y. Maekawa, "Evaluation of emva using the instruction-level parallelism on tegra x1," in *2018 Sixth International Symposium on Computing and Networking Workshops (CANDARW)*, pp. 239-242, 2018.
- [5] T. A. Davis, and Y. Hu, "The university of florida sparse matrix collection," *ACM Trans. Math. Softw.*, vol. 38, no. 1, pp. 1:1-1:25, 2011.
- [6] NVIDIA Corporation: CUDA Occupancy Calculator, available from <<https://docs.nvidia.com/cuda/cuda-occupancy-calculator/index.html>>

[科研費採択者助成金]







研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/2/27

研究課題名(和文) : 高靱性な固体酸化物形燃料電池の電極製造に向けた新しい設計基盤の構築

研究課題名(英文) : Development of the basis of design technique toward the fabrication of high-tough electrode in solid oxide fuel cells

研究者 : 原 祥太郎

千葉工業大学

HARA Shotaro

工学部 機械工学科 准教授

## 1. はじめに

固体酸化物形燃料電池(以下 SOFC)の電極は、電解質基板上で電極粉末を焼結することにより製造され、その界面近傍、数十ミクロン領域の多孔質微細構造が電気化学反応に寄与する。また、SOFCの作動温度は700°C以上と高温であり、製造時の焼結温度から作動温度への温度変化や、作動温度から常温への温度変化により、電極内部に熱応力が生じるが、こうした内部応力も電極の微細構造に大きく依存し、時に電極の破壊につながる。よって、電気化学特性だけでなく機械的特性にも優れた電極の微細構造設計が設計現場では求められているものの、現状では実験をベースとしたトライアンドエラー方式の設計にとどまっている。

そこで本研究では、機械的特性に優れた微細構造を製造するための新しい設計フレームワークの確立を目指す。この目的に向け、本研究期間ではまず、集束イオンビーム走査型電子顕微鏡(FIB-SEM)を用いて電極の三次元再構築像を取得した。つづいて、電極の微細構造と機械的特性の関係を明らかにするため、FIB-SEMで得られた三次元再構築像に有限要素法解析を適用し、焼結体の機械的特性を評価した。さらに、実構造だけでなく、電極製造シミュレーターを用いた仮想的な微細構造も生成し、得られた構造の機械的特性を評価した。

## 2. 研究の内容

### (1) 電極微細構造の三次元再構築化

空気極材料にはLa<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub>(LSCF)粉末を、電解質材料には酸化銅を添加させたガドリニアドープセリア(GDC)粉末を使用した。GDC基板を900°Cで仮焼結後、LSCFスラリーを塗布し、得られたLSCF/GDC積層体を1000°Cで一体焼結させた。続いて試料の樹脂埋めを行った。最後に、クロスセッションポリリッシャ研磨により、断面出しを行った後、FIB-SEM(JIB-4600F)を用いて再構築した。

一体焼結させたLSCF/GDCサンプルについて、LSCF部の三次元再構築像を得た。図1に20分間焼結させたFIB-SEM三次元再構築像の一例を示す。

### (2) 電極の機械的特性評価

得られた試料について、超微小硬度計(SHIMADZU社製:DUH-211)を用いて押し込み試験を行い、弾性率や硬さといった基礎物性値を評価した。この時、圧子には三

角錐圧子を用い、試験力は1961mNとした。得られた最大負荷試験力とその際の圧痕の深さから硬さを、除荷開始時の接線情報から弾性率を取得した。また、押し込み試験は1サンプルにつき5回評価した。図2にLSCFバルク材における弾性率と硬さの密度依存性を示す。密度が高くなるにつれ弾性率、硬さが高くなるということがわかる。

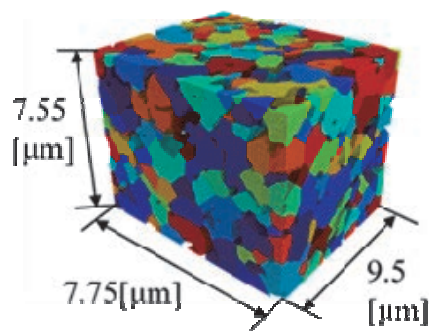


図1 LSCF 焼結体の三次元再構築像

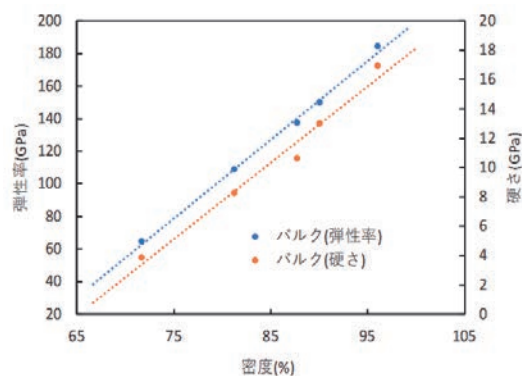


図2 LSCF 空気極材料の弾性率と硬さの密度依存性

### (3) 有限要素法解析による電極構造の機械的特性評価

FIB-SEMで取得したボクセルサイズ25nmの連続断面写真に対し、画像処理ソフトimageJを用いて適切なフィルタリング処理を行い、一辺150ボクセル程度の三次元構造モデルを作成した。続いて、メッシュ生成汎用ソフトHyperMeshを用いて多孔モデルに対し四面体メッシュを生成した後(図3)、汎用コードMarc Mentatで弾性有限要素法解析を行った。図3の面1をx方向固定、面2をy方向固定、面3をz方向固定とし、面4に10pixel相当のx方向強制変位を与えた[1]。面4上の節点反力の総和を求め、フックの関係からヤング率を求めた。この時、完全に緻密なLSCFの物性値はヤング率190GPa、

ポアソン比0.31とした。まず、異なるメッシュサイズの予備解析を行い、メッシュサイズはヤング率が十分に収束するサイズとした。続いて、異なる密度のFIB-SEM三次元多孔像データのヤング率を求めた。図4に結果を示す。解析値と実験値の一致が見られ、解析が妥当であることがわかった。また、ヤング率と密度の間に線形関係が成り立つこともわかった。

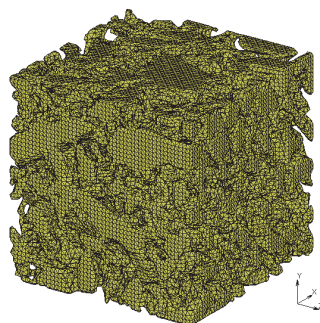


図3 実構造有限要素法解析モデル

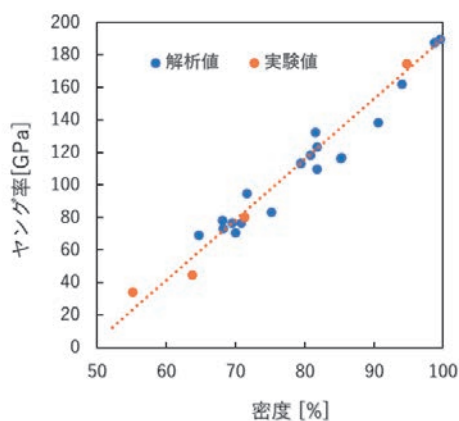


図4 解析結果と実験値との比較

#### (4) 焼結解析を活用した電極構造の機械的特性評価

焼結シミュレーションを用いて電極製造中の三次元微細構造を計算機上で作成し(図5)[2-5]、得られた多孔体構造のヤング率を有限要素法解析で評価した。本研究では、焼結シミュレーションにはキネティックモンテカルロ法(KMC法)を使用した。KMC法では、微細構造をボクセル化した後、①粒成長、②表面拡散、③空孔の生成と消滅、といった焼結アルゴリズムに従ってボクセル交換を行いながら微細構造の時間発展を解く。ここで、KMC解析の初期入力構造には、400°Cで仮焼結したFIB-SEM三次元再構築像を用いた。図4に、本手法で算出したヤング率の結果を示す。FIB-SEM実構造から直接求めたヤング率と比較したところ、両者はよく一致した。このことから、焼結解析と有限要素法解析とを組み合わせる本提案手法を用いれば、焼結に伴う構造特性の変化だけでなく、機械的特性の変化も定量的に予測することが可能になるといえる。また、一つの初期構造を時間発展させる本解析からも、焼結が進展するにしたがってLSCFのヤング率は単調に増加し、密度とヤング率との間には比例関係が成立することがわかった。

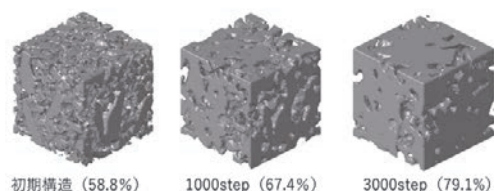


図5 KMCシミュレーションで得られた微細構造

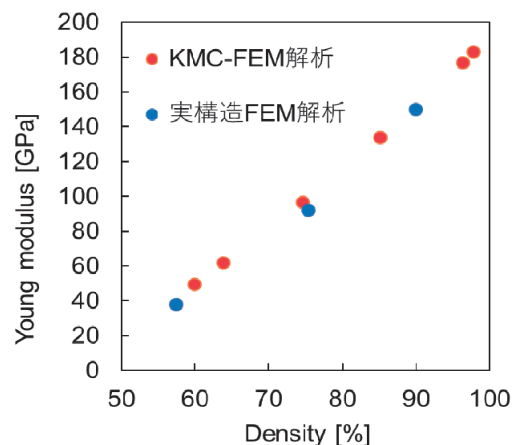


図6 焼結解析と有限要素法の組み合わせ解析から得られたヤング率

### 3. まとめ

微細構造三次元構築化技術、焼結シミュレーション解析、有限要素法技術を組み合わせ、多孔質電極の機械的特性の一つであるヤング率を定量的に予測する方法を提案し、提案手法の妥当性を示した。今後、他材料の解析あるいは熱応力評価にも同様の手法を適用し、電極製造プロセスの機械的特性と製造条件との相関を明らかにする予定である。

### 参考文献

- (1) Z. Chen, X. Wang, V. Bhakhri, F. Giuliani, and A. Atkinson, *Acta Mater.*, 61 [15] 5720-34 (2013).
- (2) Z. Yan, Y. Kim, S. Hara and N. Shikazono, *J. Power Sources*, 346, (2017) 103-112.
- (3) Z. Yan, S. Hara, N. Shikazono, W. Negishi and A. Kajihara, *J. Euro. Ceram. Soc.*, 39, (2019) 4850-4863.
- (4) S. Hara, A. Ohi, N. Shikazono, *J. Power Sources*, 276, 105-112, (2015)
- (5) Z. Yan, A. He, S. Hara and N. Shikazono, *Energy Conversion and Management*, 190, (2019) 1-13.

研究項目 : 科研費採択者助成金  
研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/2/27  
研究課題名(和文) : 太陽熱蒸留システムにおける界面現象の制御

研究課題名(英文) : Interface engineering for solar thermal distillation system

研究者 : 亀谷 雄樹 千葉工業大学  
KAMEYA Yuki 工学部 機械工学科 准教授

## 1. はじめに

地球規模での課題としてエネルギーと水資源の確保は重要であり、海水淡水化などの水処理プロセスにおいて化石燃料の消費量低減と再生可能エネルギーの導入を促進することは、持続可能な水利用システム構築を目指していく上で望ましい<sup>(1)</sup>。

太陽熱で駆動される蒸留システムは、太陽熱で水を蒸発させる蒸発器と、蒸気を凝縮させるコンデンサにて構成される<sup>(2)</sup>。日射の光熱変換は先行研究も多く、近年では蒸発器について理論的上限である 1.6 L/(m<sup>2</sup>h) に近い蒸発量が実証されている<sup>(3)</sup>。一方、コンデンサでの凝縮速度は、蒸発速度の 25%程度にとどまることが報告されており<sup>(4)</sup>、現在はコンデンサ性能の向上が課題となっている。

コンデンサの凝縮面は、凝縮水が連続的に生成し、同時に蒸気の凝縮熱で加熱されるため、背面(放熱面)から周囲環境への放熱を要する<sup>(5)</sup>。放熱面の工夫を試みた実験報告では、十分な性能向上には未だ至っていない<sup>(6)</sup>。よって、放熱面と凝縮面とを併せて検討することにより、コンデンサ性能を決定する因子の包括的な解明を行い、周囲環境条件に応じて性能を引き出すコンデンサ設計手法の体系的な確立ができると考えられる。

そこで本研究では、コンデンサを構成する凝縮面と放熱面の検討を進めることとした。本稿では、凝縮面に関する取組みについて報告する。コンデンサにおいて凝縮水の輸送が適切に設計できる技術の構築を目指し、安価で大面積へ展開可能な手法の確立を目的とした。提案する機能面の妥当性を検証するため、実験的な検討を実施した。

## 2. 凝縮面の実験的検討

固体面上における液滴の凝縮は、典型的な二つの形態として膜状凝縮と滴状凝縮の区別が生ずる。凝縮により固体表面に凝縮液が付着するとき、親水性領域では凝縮液が面上に広がり、薄膜を形成する膜状凝縮現象が起こる。一方、疎水性領域では凝縮液が広がらずに表面張力の働きによって、切り欠き球形の液滴となって面上に付着する滴状凝縮現象が起こる。蒸留装置において、効率的に蒸留させるためには、この凝縮面における働きが重

要となってくる。凝縮面の伝熱性能を向上させるためには液滴のサイズを小さくし、熱抵抗を小さくすればよい。そこで、膜状凝縮現象が起こる親水性領域と滴状凝縮が起こる疎水性領域を掛け合わせた親疎水ハイブリッド面を形成することで、疎水性領域の液滴の大きさをコントロールし、伝熱性能の向上が可能となる。加えて、表面パターンを適切に設計することにより、凝縮水の排水経路の制御を行うことも可能と考えられる。

本研究では、Cu板(縦:10mm,横:50mm,厚さ:0.50mm)を表面加工して凝縮面の検討を実施することとした。試料として用いる親疎水ハイブリッド面の作製プロセスの概略を図1に示す。

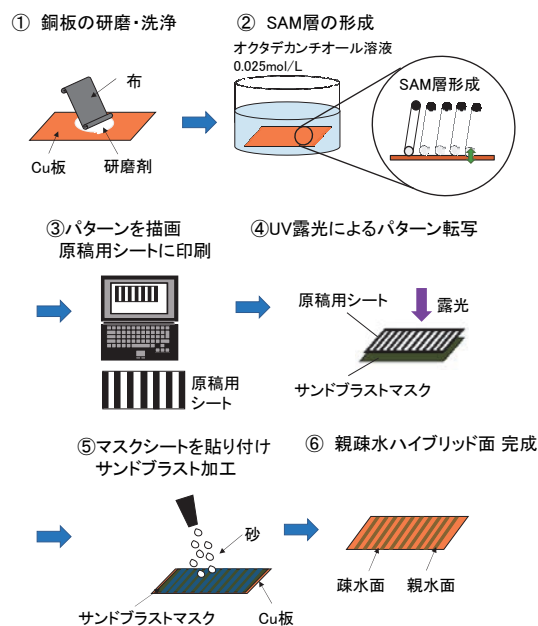


図1. 設計した凝縮面の製作プロセス概要

はじめに Cu 板を研磨剤を用いて鏡面仕上げする。仕上がった Cu 板を 1-オクタデカンチオール(0.025mol/L)溶液に浸し、表面に自己組織化単分子膜(SAM層)を形成させる。SAM層とは、固体基板表面へ物理・化学吸着した有機分子が分子間の相互作用によって自発的に集合して形成された層である。1-オクタデカンチオールによって秩序付けられた機能性部位が水と疎水特性を示すことを利用し、Cu板表面に疎水性領域を形成できる。



続いて、設計した表面パターンを描画しサンドブラストマスクに写し、サンドブラスト加工の準備をする。あらかじめ選定された粒度を持つ研削材を用いてサンドブラスト加工を行い、表面加工をする。最後にサンドブラストマスクを剥離し、ハイブリッド面が完成する。

製作した親疎水ハイブリッド Cu 板の一例を図 2 に示す。図 2(a)はサンドブラストによる光沢の違いが確認できる試料表面の写真であり、図 2 (b) は走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて親水部と疎水部の境界を観察した画像である。親水性領域ではブラスト加工したことにより粗さがありザラついた表面になっており、疎水性領域では SAM 層形成前に鏡面仕上げしたことにより、少し光沢のある表面になっている。SEM 像からは、親水性領域と疎水性領域で明確な境界線ができていことがわかる。親水性領域では、サンドブラスト加工でできた凹凸による明暗がはっきりと分かれており、疎水性領域では数カ所クラックが見られるだけである。また、Cu 板全体に一樣な加工ができていことも確認することができた。

以上のように作製された試料を用いて、表面での凝縮水の様子を観察した。観察結果の一例を図 3 に示す。図 3(a) は 1 次元的なパターンとして設計した表面における凝縮水の写真である。疎水域では水滴が形成されている一方で、親水域では膜状に水が表面を覆っている様子が確認でき、意図した表面性状を得られていることが確認できた。図 3(b)は、水滴サイズ分布を取得するために実施した画像解析の様子を示している。表面上の水滴サイズ分布を用いることで熱の輸送特性を評価することができるため、観察結果の解析を実施している。

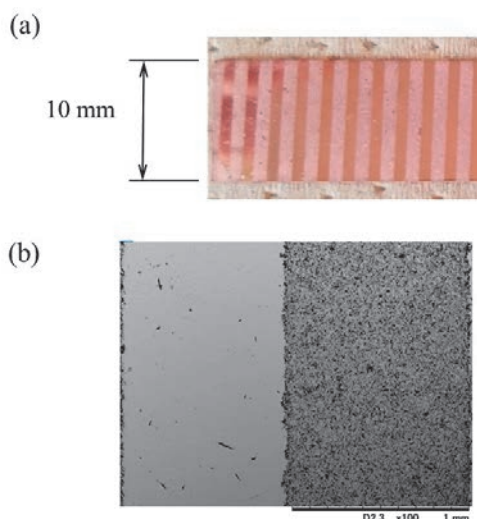


図 2. 作製した試料の例 (a) サンドブラストによる光沢の違いが確認できる写真 (b) 親水部と疎水部の境界を観察した SEM 像

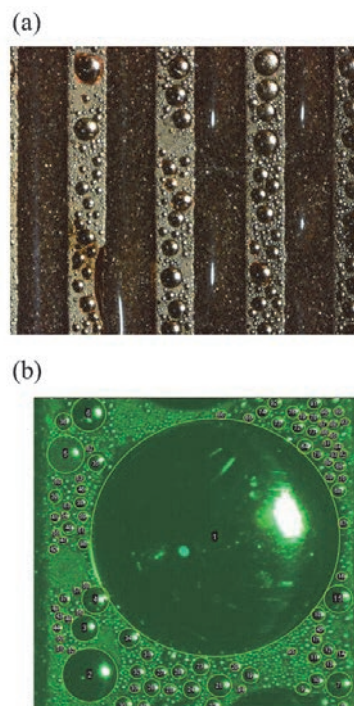


図 3. 作製した試料表面における凝縮水の観察結果例 (a) 1 次元パターン上の凝縮水 (b) 水滴サイズ分布取得のための画像解析の様子

### 3. まとめ

本研究では、提案した凝縮面の機能実証から着手することとし、実験的検討を行った。実験試料の作製プロセスを構築し、目的通りの機能性が発現されることを確認し、研究基盤を構築することができた。今後は表面パターンの詳細な設計を行うことでさらなる性能向上を目指し、実用的な機能面の開発へ向けて取り組む予定である。

太陽熱利用の工学的な観点からは、高温場を形成する集熱だけでなく、周囲環境への放熱を制御する技術を確認することで、新たな太陽熱利用システムに関する展望が開ける。我が国が Society 5.0 で目指す脱炭素社会の実現へ向かう中、再生可能エネルギー利用の可能性を示す技術として波及効果が期待される。

### 参考文献

- (1) Sacco et al., *J Clean Prod* 175 (2018) 38.
- (2) Pang, et al., *ACS Energy Lett* 5 (2020) 437.
- (3) Ni et al. *Nature Energy* 1 (2016) 16126.
- (4) Gupta et al. *Am J Eng Res* 2 (2013) 203.
- (5) Ni et al., *Energy Environ Sci* 11 (2018) 1510.
- (6) Zhou et al. arXiv:1804.10736v3 (2018).

研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/2/27

研究課題名 (和文) : ナノ材料を用いたナノギャップNMES素子の動作機構解明と記憶素子応用技術の開発  
-フラレーン (C<sub>60</sub>) からつくる不揮発性メモリ-

研究課題名 (英文) : C<sub>60</sub>-Nanowire Two-State Resistance Switching

研究者 : 菅 洋志

千葉工業大学

SUGA Hiroshi

工学部 機械電子創成工学科 准教授

## 1. はじめに

ナノスケールで発現する興味深い機能を備えたナノマテリアルが発見される度に、エレクトロニクスへの応用が期待される。それは、同時に「1 nm 程度の極微小材料からどのように素子を作製するのか?」という探究のはじまりとなる。本研究は、ナノ炭素材料の一つであるフラレーン (C<sub>60</sub>) を対象にした、Nano Material Electro system の原理実験で、フラレーン自己組織化細線 (C<sub>60</sub>細線) から、2 端子素子を作製し、C<sub>60</sub>細線素子に生じる負性微分抵抗 (NDR) と 2 状態の抵抗スイッチ動作を繰り返し観測することに成功した。C<sub>60</sub>細線素子は、特別な極低温ではなく室温で動作し、数 100 回の繰り返しスイッチ動作を容易に示すなどの特徴を持つことも確認した。

## 2. フラレーンのエレクトロニクス

半導体素子の進歩は微細化と高集積化により実現しており、近い将来も、ナノ材料の自己組織化に代表されるボトムアップ技術などにより、さらなる微細構造化が進むことが予想されている。フラレーン C<sub>60</sub> (以下、C<sub>60</sub>) は、化学的に安定した直径 0.7 nm の材料で、その特徴的な電子状態から電気デバイスの最小構成要素として期待されている。<sup>1</sup>

これまで、フラレーンの電子物性計測は多くの研究がなされており、そのなかには、走査型トンネル顕微鏡 (以下、STM) の針先の C<sub>60</sub> 1 粒を抵抗スイッチ動作させる報告があり、<sup>2,3</sup> 超高真空や極低温環境における、探針を使った単一 C<sub>60</sub> の抵抗スイッチ動作など、C<sub>60</sub> 単分子デバイスの創成を予感させる報告もなされている。<sup>4,5</sup> しかし、通常温度かつ通常真空状態で、ソース・ドレイン電極を持つ固定電極素子として動作する報告はない。特に、C<sub>60</sub> の直径が 1.0 nm 以下であることから、電子素子への作り込みは困難で、最新微細加工技術をもってしても、C<sub>60</sub> への接続を高い再現性で作るのは困難を極め、検証素子数個を作るのが限界である。そこで、本研究では、C<sub>60</sub> を用いたデバイスを実現するため、ソース・ドレイン電極を備えた 2 端子素子構造を提案する。

## 3. 液-液界面析出法による C<sub>60</sub> 細線デバイスの作製

直径 0.7 nm の C<sub>60</sub> を電子素子に単体で直接的に実装することは極めて困難であるが、C<sub>60</sub> を結晶化させて大きくすることで格段に容易になる。STM 系で確認されたフラレーンスイッチをデバイス上で実現し、その動作現象を確認するため、液-液界面析出法による C<sub>60</sub> 細線作製と C<sub>60</sub> 細線デバイスの作製法を考案した。

C<sub>60</sub> 細線結晶 (以下、C<sub>60</sub> 細線) については、宮澤らによって確立された液-液界面析出法で合成された。<sup>6</sup> 良溶媒と貧溶媒が相互に拡散することで C<sub>60</sub> の過飽和溶液が維持され、C<sub>60</sub> 細線の自己組織化成長が促進される。自己組織化 C<sub>60</sub> 細線を利用し、SiO<sub>2</sub> 膜上に C<sub>60</sub> 細線素子を作製した (図 1)。溶媒に分散させた C<sub>60</sub> 細線を SiO<sub>2</sub>/Si 基板の上に分散させ、複数本のタングステンワイヤー (以下、W ワイヤ) をグリッド状に配置する。この W ワイヤを蒸着シャドウマスクとして、4.0×10<sup>-4</sup> Pa 以下の圧力環境下で金を真空蒸着し、膜厚 600 nm 程度の薄膜を形成した。蒸着後、W ワイヤを除去し、光学顕微鏡で観察して C<sub>60</sub> 細線が隣接する Au 電極に橋渡しできている部分を特定した。

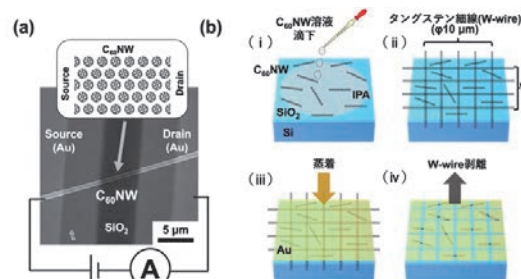


図 1. (a) ソース電極とドレイン電極間に架橋した C<sub>60</sub> 細線素子の SEM 写真. (b) C<sub>60</sub> 細線素子の製作手順概略図

## 4. C<sub>60</sub> 細線の導電性制御手法

C<sub>60</sub> 細線のキャリア移動度は、0.020~11 cm<sup>2</sup> V<sup>-1</sup> s<sup>-1</sup> の範囲で報告されているが<sup>7,9</sup>、これは C<sub>60</sub> 細線のドメインサイズ、不純物密度、C<sub>60</sub> の格子秩序に強く依存している。本研究においても、成長したばかりの C<sub>60</sub> 細線は導電性が低く、試作した C<sub>60</sub> 細線素子の多く (99%以上) が染色縁体であった。この問題に対して、

フラーレンに特有の電子照射に対するポリマー化「C<sub>60</sub>-C<sub>60</sub>連結」に注目し、照射する電流量による導電性の制御手法を見いだした。

C<sub>60</sub>細線素子に電子ビーム(以下,EB)照射すると、C<sub>60</sub>細線の電流が爆発的に増加し、照射前の約120倍になった。C<sub>60</sub>細線の電流はEB暴露量に依存し、暴露量の増加とともに電流が増加することがわかった。EB照射により、C<sub>60</sub>細線中に「C<sub>60</sub>-C<sub>60</sub>連結(重合)」が形成した効果と考えられる。EB照射後、C<sub>60</sub>細線の電流-電圧(*I-V*)特性は、大電圧領域で非線形な増加を示し、電流経路に沿って追加の二量体化が刺激されたことを示している。電流が臨界値(通常100 μA)に達すると、*I-V*特性は再現性のある負性微分抵抗(NDR)を示した。NDRの観察には、EBによる十分なC<sub>60</sub>-C<sub>60</sub>重合による電流が必須で、増加した電流でNDRを引き起こす非線形電流増加が導かれる。

### 5. C<sub>60</sub>細線の抵抗スイッチ特性

NDRが発現するC<sub>60</sub>細線の2端子素子は、双安定した導電状態であり、低抵抗状態(以下、LRS)と高抵抗状態(以下、HRS)の2つの抵抗状態を、外部の電圧印加で可逆的に再現できる。この双安定のそれぞれの状態に合わせて外部電圧を印加すると、図2に示すような抵抗の連続的な切り替えを実現できる。スイッチ動作のための電圧シーケンスは「セット」、「リセット」、「リード」という3つの異なる電圧で構成される(図2(a))。セット電圧はNDRのピーク電圧から決め、読み取り電圧は、読み取りで導電性に変化を起さないように0.2 V等の小さな値に設定した。なお、設定電圧での過電流による損傷を避けるため、測定プログラムでは回路コンプライアンスを60 μAに設定した。セット電圧が印加されると、C<sub>60</sub>細線の導電性は高くなりLRSになる(図2(b))。今回、明確なLRSを得るためにダブルセット方式を適用した。

リセット電圧を印加すると導電性が低下し、C<sub>60</sub>細線はHRSを維持する(図2(c))。このリセット電圧後のC<sub>60</sub>細線の抵抗値、即ち、HRSになった後の抵抗値も、読み出し電圧(0.2 V)で測定し、図2(d)にプロットした。セット電圧とリセット電圧の交互印加で、LRSとHRSが連続して繰り返されている。スイッチ100回繰り返しても、LRSとHRSは明瞭で、LRS/HRSの電流比は10であり、C<sub>60</sub>細線は高い再現性でのスイッチ動作が得られる。これらの現象は、C<sub>60</sub>細線内のC<sub>60</sub>ポリマーネットワークの重合・解重合に起因する導電性の変化であり、外部入力によってC<sub>60</sub>細線の導電性をスイッチできたことを示唆している。

### 6 終わりに

本研究では、単一フラーレンスイッチを駆動するための自己組織化フラーレン細線の原理実験を行った。液-液界面で合成したC<sub>60</sub>細線を用いた2端子構成の

*I-V*特性を室温で測定した。あらかじめ設定したEB照射手順で初期伝導経路を形成し、非線形大電流を活性化させると、C<sub>60</sub>細線のNDRが観測された。NDRが得られると、入力電圧を印加することで2状態の抵抗スイッチを繰り返し観測することが出来た。この2状態の抵抗スイッチは、C<sub>60</sub>の重合と重合乖離を制御して、C<sub>60</sub>細線内の支配的な伝導パスを接続/切断することに基づいて説明された。この動作では、支配的なC<sub>60</sub>の相対的な距離がC<sub>60</sub>細線の伝導性を変化させていることから、今後のサブナノメートルの素子創成への展開が期待できる。

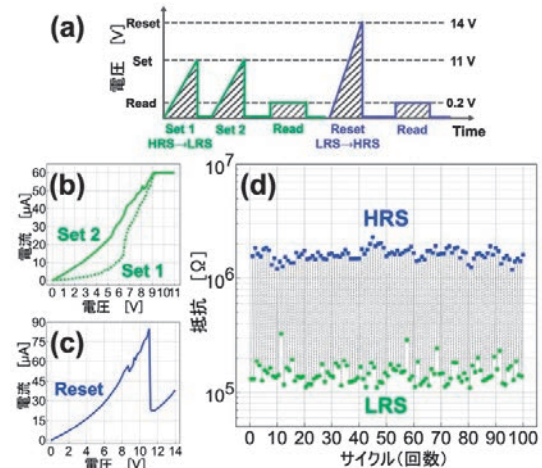


図2. (a) 抵抗スイッチ試験の電圧サイクルのシーケンス. (b) Set (HRS→LRS) 操作時の*I-V*特性: 電圧印加は2回行いそれぞれをSet 1とSet 2に示す. (c) Reset (LRS→HRS) 操作時の*I-V*特性 (d) スイッチ100サイクルの抵抗遷移.

### 本研究に関する主な発表論文

- (1) Umeta, Y.; Suga, H. *et al.* C<sub>60</sub>-Nanowire Two-State Resistance Switching Based on Fullerene Polymerization/Depolymerization, *ACS Applied Nano Materials* **2021**, 4, 820.

### 参考文献

- (1) Kroto, H. W.; Heath, J. R.; O'Brien, S. C.; Curl, R. F.; Smalley, R. E. *nature* **1985**, 318(6042), 162-163.
- (2) Park, H. *et al.* *Nature* **2000**, 407, 57-60.
- (3) Chandler, H. J.; Stefanou, M.; Campbell, E. E. B.; Schaub, R. *Nature Communications* **2019**, 10, 2283.
- (4) Jaros, A.; Bonab, E. F.; Straka, M.; Foroutan-Nejad, C. *J. Am. Chem. Soc.* **2019**, 141, 19644-19654.
- (5) Zhang, K.; Wang, C.; M.; Reed, M. A.; Wang, B. *et al.* *Nature Nanotechnology* **2020**, 15, 1019-1024.
- (6) Miyazawa, K. *et al.* *Mater. Res.* **2002**, 17, 83-88.
- (7) Ogawa, K.; Kato, T.; Ikegami, A.; Tsuji, H.; Aoki, N.; Ochiai, Y.; Bird, J. P. *Appl. Phys. Lett.* **2006**, 88, 112109.
- (8) Li, H.; Tee, B. C-K.; Lee, S. Y.; Bao, Z. *J. et al. Am. Chem. Soc.* **2012**, 134, 2760-2765.
- (9) Miyazawa K. *Proc. NAP* **2015**, 4, 02CBNM02.



研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/2/27

研究課題名(和文) : 電磁浮遊法を用いて測定したジルコニウムおよびジルカロイ融体の表面張力

研究課題名(英文) : Surface tension of molten zirconium and zircaloy measured by electromagnetic levitation

研究者 :	○小澤 俊平	千葉工業大学
	OZAWA Shumpei	工学部 先端材料工学科 教授
	鈴木 岳大	千葉工業大学
	SUZUKI Takahiro	工学研究科 機械サイエンス専攻 博士前期課程
	清宮 優作	千葉工業大学
	SEIMIYA Yusaku	工学研究科 機械サイエンス専攻 博士前期課程
	品澤 遼	千葉工業大学
	SINAZAWA Ryo	工学研究科 機械サイエンス専攻 博士前期課程

## 1. はじめに

福島第一原子力発電所で発生した炉心溶融およびメルトダウンの事故処理および、今後の安全対策のために、数値シミュレーションを用いた溶融過程および現状予測が行われている。信頼に足るシミュレーション結果を得るためには、パラメータとして使用する正確な熱物性データが必要となるが、燃料被覆材であるジルカロイについては、メルトの表面形状、マランゴニ対流、毛細管現象等を考慮するために必要な表面張力データが一つも報告されていない。その上、その主成分であるジルコニウムについてさえ、表面張力やその温度係数の報告値には大きなばらつきがあり、正確なデータが整備されているとは言い難い。この理由の一つとして、ジルコニウムの融点やジルカロイの液相線温度は2000 K以上の高温であるため、静滴法に代表される従来の容器法による測定では、試料と測定器具の化学反応が避けられない可能性が考えられる。また、金属性融体の表面張力に対して強力な表面活性効果を示す酸素が、雰囲気中に存在することが考慮されていない問題もある。

本研究では、容器からの汚染を回避でき、かつ、雰囲気を制御できる電磁浮遊法を用いて、ジルコニウムおよびジルカロイ融体の正確な表面張力を測定するとともに、それに対する雰囲気酸素分圧の影響を明らかにすることを目的とした。

## 2. 実験方法

本研究では、試料として質量純度が97.8~99.9%のジルコニウム(Zr)、ジルカロイ2(Zry-2)およびジルカロイ4(Zry-4)を用いた。また比較のために、今回使用したZry-2およびZry-4の主成分を模擬して、純度97.8%のジルコニウムと純度99.9%の錫からアーク炉によって溶製したZr-1.44%Sn合金も用いた。これらのインゴットを、約650mgの角状に切り出し、 $P_{O_2}=10^{-7}$  atmのAr-Heガスフロー雰囲気(2 L/min)で電磁浮遊させた。この時、雰囲気酸素分圧( $P_{O_2}$ )は、チャンバの入口に設置されたジルコニア式酸素センサによって確認した。浮遊試料が溶融した後、波長が940 nmの半導体レーザー照射による補助加熱を重畳し、その出力を調整することで試料温度を一定制御した。その際、試料温度は

単色放射温度計で測定した。試料温度が一定となった後、液滴形状の時間変化を、上部から高速度カメラ(500FPS)で記録した。得られた画像を解析して、液滴の回転を考慮しながら、 $l=2$ モードの $m=0, \pm 1, \pm 2$ 振動周波数および並進運動周波数を同定した<sup>1)</sup>。またこれらの振動周波数から、Rayleighの式<sup>2)</sup>と、CummingsとBlackburnの補正式<sup>3)</sup>を用いて、表面張力を算出した。

## 3. 結果および考察

ジルコニウムは酸素溶解度が大きいので、高温での表面張力測定中に酸素溶解度が時間依存を示す場合には、それが表面張力に影響する可能性がある。そこで、電磁浮遊溶融させたジルコニウム融体を、 $P_{O_2}=10^{-7}$  atmのAr-Heガスフロー中で保持した際の酸素溶解度の時間変化を調べた。その結果、2300 Kのジルコニウム融体をこの雰囲気において20分以上保持しても、酸素溶解度および表面張力には変化が見られなかった。この結果から、 $P_{O_2}=10^{-7}$  atmのAr-Heガスフロー雰囲気では、ジルコニウム融体への酸素溶解が殆ど進行しないと判断し、今回の表面張力測定は、全てこの雰囲気で行うこととした。

図1に、電磁浮遊法で測定したジルコニウムおよびジルカロイ融体の表面張力と温度の関係を、報告値<sup>4))</sup>と共に示す。本研究では、過冷却域を含むおよそ1850 Kから最高2700 Kのこれまでで最も広い温度範囲で表面張力測定を達成した。このような測定温度範囲の拡張から、表面張力の温度係数に関する測定の不確かさが、従来よりも低減されたと言える。

金属融体の表面張力は、僅かな表面吸着物質によって大きく低下するため、たいてい電磁浮遊法により試料が容器から汚染されることを完全に抑制したとしても、それは試料純度の影響を受ける可能性がある。そこで、これについて調べるために、公称純度が97.8%~99.9%のジルコニウム融体の表面張力と温度の関係を測定した。なお、これらのジルコニウムに含まれる不純物の殆どが、ハフニウムであった。試料純度が99.9%のジルコニウム融体の表面張力(●)は、温度上昇に伴って線形に低下した。これは、Ishikawaら<sup>1))</sup>のグループが静電浮遊法

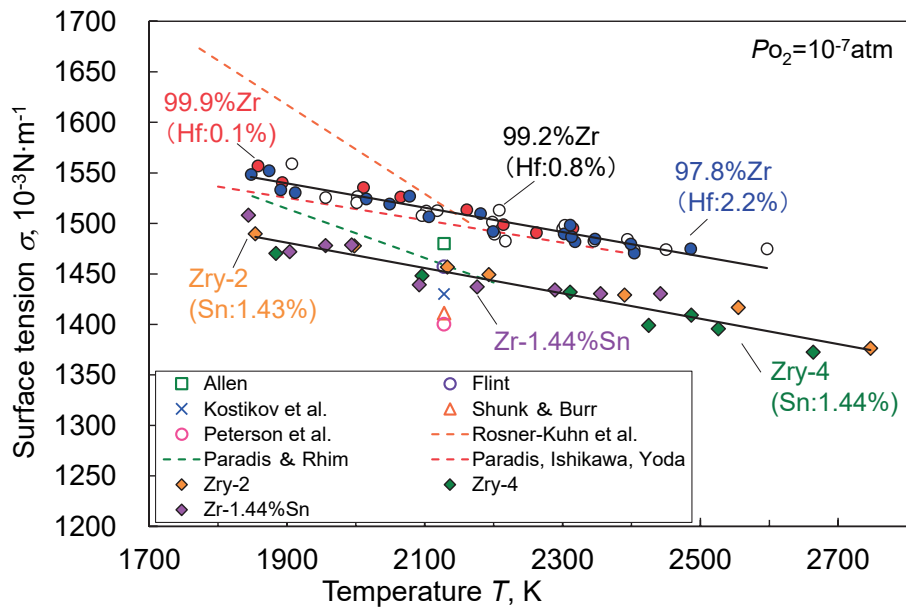


図1 電磁浮遊法で測定したジルコニウムおよびジルカロイ融体の表面張力と文献値との比較<sup>41)</sup>

を用いて測定した結果(---)と良く一致していた。また、試料純度が97.8% (●)まで低下しても、それは表面張力に影響しないことが分かった。

ジルカロイ2融体の表面張力(◆)は、ジルコニウム融体の表面張力よりも低くなった。また、それとほぼ同じ結果が、ジルカロイ4融体(◇)および、アーク炉で溶製したZr-1.44%Sn合金融体(◆)においても測定された。ジルカロイの耐食性向上のために添加されている錫は僅かではあるものの、その表面張力はジルコニウム融体のそれと比べて遙かに低い。また、今回用いたジルカロイジルカロイ2、ジルカロイ4、Zr-1.44%Sn合金の錫含有量が殆ど同じであることから、これらの表面張力が、ジルコニウム融体のそれよりも低下した理由は、錫が表面吸着したためであると考えられる。

さらにジルカロイ4融体では、水素脆性を抑制するために、ジルカロイ2よりもニッケル含有量が少なく制御されているが、これらの表面張力がほぼ同じとなったことから、ジルカロイ2に含まれる程度のニッケルは、表面張力に影響しないものと思われる。

#### 4. まとめ

本研究では、電磁浮遊炉を用いた液滴振動法により、ジルコニウムおよびジルカロイ融体の正確な表面張力測定を試みた。その結果、過冷却域を含む従来よりも広い温度範囲での測定データを得た。 $P_{O_2}=10^{-7}$  atmのAr-Heガスフロー雰囲気では、ジルコニウム融体の表面張力は、温度上昇に対して線形に低下した。また、不純物として主にハフニウムを含む、純度が97.8%~99.9%のジルコニウム試料では、表面張力の温度依存性はほぼ同じになった。

ジルカロイ2、ジルカロイ4、Zr-1.44%Sn合金融体の表面張力は、ジルコニウム融体のそれよりも低くなった。これは、これらの材料に含まれる錫の表面張力が、ジルコニウム融体のものに比べて著しく低いためであると考えられた。また、ジルカロイ2およびジルカロイ4の

ニッケル含有量の差は、表面張力に影響しないことが分かった。

#### 謝辞

本研究の一部は、JSPS 科研費 15H04136, 20H02453 の助成によるものである。またジルカロイ2は、日本原子力研究所に提供して頂いた。ご協力くださった伊奈川潤博士(原子力開発研究所、西副史教授(茨城大))に感謝する。

#### 参考文献

- (1) S. Ozawa *et al.*, *J. Apply. Phys.*, 106 (2009) 034907.
- (2) Lord Rayleigh, *Proc. R. Soc. London*, 29 (1879) pp. 71-1879.
- (3) D. L. Cummings and D. A. Blackburn, *J. Fluid Mech.*, 224 (1991) pp.395-416
- (4) B. C. Allen, *Trans. Metall. Soc. AIME*, 227 (1963) p. 1175
- (5) O. Flint, *J. Nucl. Mater.*, 16 (1965) pp. 260-270.
- (6) V. I. Kostikov *et al.*, *Izv. Vys. Uch. Sav. Chem. Met. (USSR)* 3 (1972) pp. 25-27.
- (7) F. Shunk and A. Burr, *ASM Transactions Quarterly*, 55 (1962) pp. 786-789.
- (8) A. Peterson *et al.*, *J. Appl. Phys.*, 29 (1958) pp. 213-216.
- (9) M. Rosner-Kuhn *et al.*, *Surf. Sci.* 443 (1999) pp. 159-164.
- (10) P-F. Paradis and W-K. Rhim, *J. Mater. Res.*, 14 (1999) pp. 3713-3719.
- (11) P-F. Paradis *et al.*, *Int. J. Thermophysics*, 23 (2002) pp. 825-842.



研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/3/31

研究課題名(和文) : アルミニウム合金で観察された新奇な電磁分離現象の発現条件とその理解

研究課題名(英文) : Novel occurrence of magnetic separation phenomena observed in aluminum alloy and its condition and elucidation

研究者 : 田村 洋介

千葉工業大学

TAMURA Yosuke

工学部 先端材料工学科 教授

## 1. はじめに

アルミニウムはリサイクル率の高い材料として知られ、新塊製造時のわずか3%程度のエネルギーで再生可能である。しかしスクラップに付着している塗料や異物、および不純物元素の多くは溶湯中で金属間化合物や不溶性の非金属介在物を生成する(以下、固相粒子と記す)。これら固相粒子は材料の機械的性質、成形性および耐食性を害するため、材料の回収およびリサイクル過程において、その混入を極力抑えなければならない。また溶融金属から固相粒子を分離するプロセス技術の確立も不可欠と言える。

溶融金属中の固相粒子を分離するプロセスとして、いくつかの物理的な方法が考えられている。その1つに電磁力を利用したものがある<sup>1)</sup>。溶融金属と固相粒子間の電気抵抗率に差がある場合、理論的には電磁力によって固相粒子を一端に分離できる。著者等は、過共晶組成から成る Al-10Fe 合金中の初晶  $Al_3Fe_4$  を介在物に見立て、その電磁分離効果を検証した<sup>2)</sup>。その結果、所定の条件において、初晶  $Al_3Fe_4$  が鋳塊の一端ではなく、表層に偏析することを明らかにした。

Al-Si 系合金は、アルミニウム合金鋳物やダイカスト製品として多用されており、亜共晶側から過共晶側までの幅広い組成域で実用合金が規格されている。著者により発見された現象が過共晶 Al-Si 合金でも確認されれば、リサイクルのみならず汎用の新しい材料開発へと繋がる可能性もある。本研究では、Al-10Fe および Al-25Si 合金において、電磁力が凝固組織に及ぼす影響を調べると共に、Al-10Fe 合金で確認された電磁分離現象に関する理解を深めるための知見を蓄積することとした。

## 2. 実験方法

### (1) 試料とその配置

図1および図2に、それぞれ Al-Fe 系および Al-Si 系二元状態図を示す。本研究では、初晶  $Al_3Fe_4$  および初晶 Si の分布に着目した。そのため各合金とも過共晶組成とし、Al-10Fe および Al-25Si 合金を実験材料とした。Al-10Fe 合金および Al-25Si 合金を直径 18mm、長さ 90mm の丸棒に切削加工し試料とした。試料を長さ 120mm、内径 20mm のムライト管に入れ、その両端にセラミック接着剤を塗布し、黒鉛電極で塞いだ。さらに接着剤を加熱硬化させてから、銅板にそれをボルトとナットで固定した。その後、銅板に固定した試料を電気

炉に入れて溶解した。

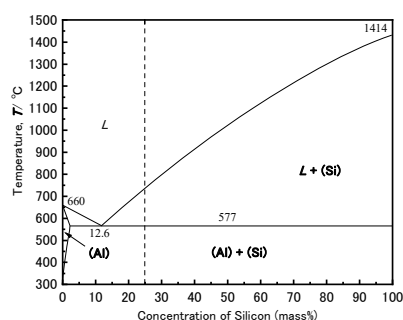


図1 Al-Fe 系状態図

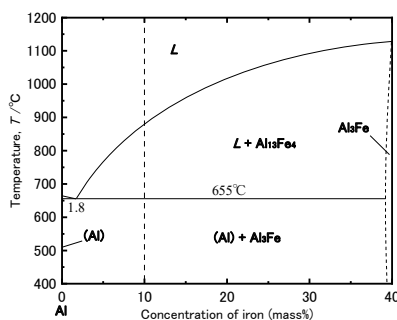


図2 Al-Si 系状態図

電気炉において溶解保持した試料を外取りに取り出した後、直ちに永久磁石(0.54 T)の磁極間に静置し、直流電流と静磁場を印加した。以後、これらを同時に印加する場合を「電磁力を印加」と記す。電流、磁場および電磁力の印加温度は以下の通りである。電流値はいずれも 100 A とした。

【Al-Fe 合金】 1000 °C, 800 °C, 750 °C

【Al-Si 合金】 900 °C, 800 °C, 700 °C

なお電流密度  $J$  と磁束密度  $B$  により、溶融金属には図3に示す方向に電磁力密度  $F (=J \times B)$  が作用する。凝固が完了した試料はファインカッターで切断し、粗研磨およびバフ研磨後、マクロ組織観察を行った。

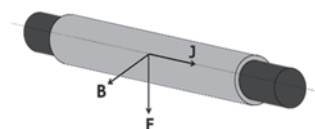


図3 試料配置と電磁力の方向

### 3. 結果及び考察

図4は、「実験前のAl-10Fe合金試料」と「1000℃で電磁力を印加した試料」の断面マクロ組織写真である。前者において、針状の初晶 $\text{Al}_3\text{Fe}_4$ は組織全体に亘って均一に分布しているが、後者において、それは表層にのみ偏析していた。このように実験前後で、初晶 $\text{Al}_3\text{Fe}_4$ の分布は明らかに異なる。また表層における初晶 $\text{Al}_3\text{Fe}_4$ の偏析は、電流のみ、あるいは電場のみを印加しても得られない。したがってそれは電磁力の作用に起因するものと考えられる。図5は750℃および800℃で電磁力を印加した試料の断面マクロ組織写真である。各試料とも図4(a)と同様、針状の初晶 $\text{Al}_3\text{Fe}_4$ が組織中ランダムに分布していた。このように同じ電磁力を印加しても、印加温度によってその効果ははっきりと分かれた。1000℃において、Al-10Fe合金は完全に液相状態である。一方、750℃と800℃では、共に固液二相となっている(図1参照)。つまり完全な液相状態から電磁力を印加すると、初晶 $\text{Al}_3\text{Fe}_4$ は試料外周部に偏析するが、固液二相状態で電磁力を印加してもその効果は得られない。図6は、「実験前のAl-25Si合金試料」と「900℃で電磁力を印加しながら凝固させた試料」の断面マクロ組織写真である。実験前の鑄塊断面には、初晶Siが組織全面に均一に分布していた(黒い斑点状)。一方、900℃で電磁力を印加した場合、初晶Siが鑄塊表層に偏析していた。このようにAl-25Siの場合もAl-10Fe合金と同様の現象が確認された。

密度 $\rho_p$ の粒子が密度 $\rho_L$ の熔融金属中を鉛直下向きに運動しているとき、粒子には鉛直上向きに抗力 $D$ が作用する。例えば粒子形状を球、体積 $V$ 、重力加速度 $g$ 、粒子に作用する重力の大きさを $\rho_p g V$ 、鉛直上向きに働く力を正とすれば、以下に示す運動方程式を立てることができる。

$$\rho_p V \left( \frac{du}{dt} \right) = \rho_L g V + \frac{3}{4} V | \mathbf{J} \times \mathbf{B} | + D - \rho_p g V \quad \dots (1)$$

左辺の $du/dt$ は粒子の加速度である。ここで熔融金属の電気伝導率を $\sigma_L$ 、固体粒子の電気伝導率を $\sigma_p$ とする。一般に分離対象となる粒子は、非金属介在物や金属間化合物である。ゆえに、 $\sigma_L > \sigma_p$ を仮定できる。導電性粒子の場合、 $\mathbf{F}$ によってそれ自体に力が発現する(体積力)。そのためLeenov等の理論に基づくと、(1)式は以下のように書き換えられる。

$$\rho_p V \left( \frac{du}{dt} \right) = \rho_L g V + \left( \frac{-3\sigma_p}{2\sigma_L + \sigma_p} \right) V | \mathbf{J} \times \mathbf{B} | + \left\{ 1 - \frac{1}{2} \left( \frac{\sigma_L - \sigma_p}{2\sigma_L + \sigma_p} \right) \right\} V | \mathbf{J} \times \mathbf{B} | + D - \rho_p g V \quad \dots (2)$$

(2)式において、右辺の第2項は体積力及び第3項は表面力の大きさに相当する。ここで体積力と表面力は、それぞれ常に下向き及び上向きに作用する。また溶湯から晶出する粒子を静止状態と見なせば $D = 0$ となる。したがって(2)式は、(3)式のように書き換えられる。

$$| \mathbf{J} \times \mathbf{B} | > \frac{2}{3} f (\rho_p - \rho_L) g \quad \dots (3)$$

ここで、

$$f = \frac{2 + \left( \frac{\sigma_p}{\sigma_L} \right)}{1 - \left( \frac{\sigma_p}{\sigma_L} \right)} \quad \dots (4)$$

である。(4)式によると、 $f$ は $\sigma_p / \sigma_L = 0.8$ を超えた辺りから急激に増加するため、そこから先は粒子の上昇・分離が困難になる。一方、それ以下では $f$ の増加率が小さく、非導電性粒

子を仮定して分離に要する力を見積もることができる。

$\text{Al}_3\text{Fe}_4$ は金属間化合物、Siは半導体であり、それぞれ高温での電気抵抗率は不明である。しかしAlは銀に次ぐ良導体であり、室温における電気抵抗率は $2.65 \times 10^{-8} \Omega\text{m}$ と極めて小さい。そこで $\text{Al}_3\text{Fe}_4$ およびSiを非導電性粒子と仮定すると、いずれも試料上端に偏析すると推測される。しかし初晶 $\text{Al}_3\text{Fe}_4$ および初晶Siは試料外周部に均一に偏析した。したがって本実験結果を既存の理論のみを用いて理解することは困難である。

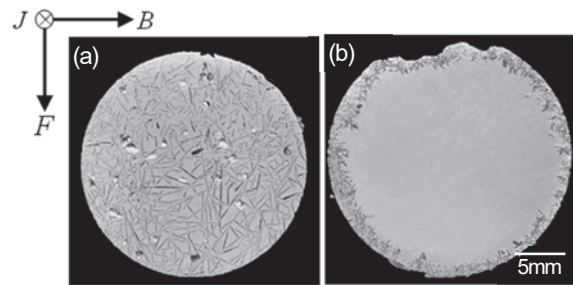


図4 Al-10Fe合金の断面マクロ組織

(a) 実験前, (b)1000℃で電磁力印加

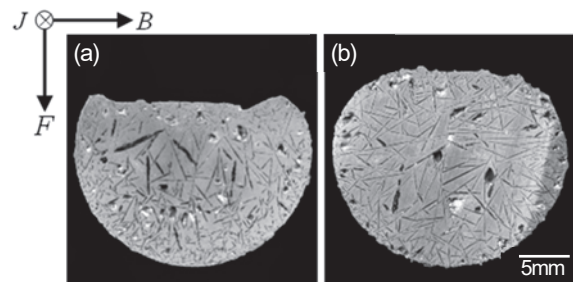


図5 Al-10Fe合金の断面マクロ組織

(a) 750℃電磁力印加, (b)800℃で電磁力印加

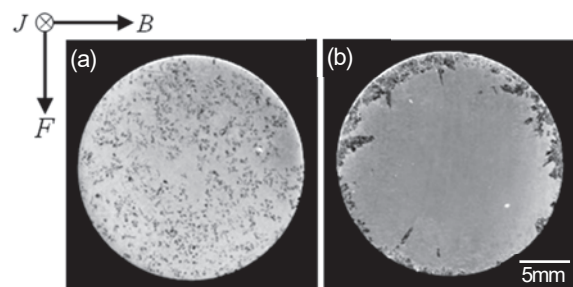


図6 Al-Si合金の断面マクロ組織

(a) 実験前, (b)900℃で電磁力印加

### 4. 結言

Al-10Fe合金のみならず、Al-Si合金においても初晶は試料外周部に偏析した。また電磁力印加温度とその効果の間には明確な関係が認められた。しかし当該現象を既存の電磁分離理論のみから予測することは難しい。他の観点からも当該現象を検討する必要がある。

### 参考文献

- (1) D. Leenov and A. Kolin: J. Chem. Phys. **22** (1954) 683-688.
- (2) Y. Tamura, H. Soda and A. McLean: Materials Transactions, **60**, 1659-1665.

研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/2/27

研究課題名 (和文) : 酸化スズ薄膜結晶の酸素欠損補償によって実現される 1ppb 感度の呼気ガスセンサ

研究課題名 (英文) : 1 ppb range expired gas sensor by compensating oxygen defect in tin oxide thin crystal

研究者 : 安藤 毅  
ANDO Ki

千葉工業大学  
工学部 電気電子工学科 准教授

## 1. はじめに

酸化半導体はその結晶に酸素欠損を生じやすく、高品質な結晶を得ることが困難であるほか、その欠陥由来の電子が生じやすく、一般的に p 型の電気伝導性を得ることが難しい。一方で酸化半導体は、その酸素欠損部位に対して空気中の酸素の化学的吸着が起こる際、また、その酸素が他のガス種と置き換わる際に、ガス分子が半導体に対して電荷の授受を行う。これによる導電性の変化を用いたガスセンサとしての利用が盛んであり、酸素欠損が生じやすい欠点を逆手に取った応用である。

従来の酸化半導体式ガスセンサでは、球状、ナノロッド状などの形態の粒子が、疎に接触した状態の薄膜を用いることが一般的である。その接触点が酸素吸着による電子の束縛によって空乏層を形成し、また、ガス吸着によって導通が回復することで、膜水平方向の導電率が大きく変化するため、感度よくガス検出を行うことが可能である (図 1)。そこで、より真性半導体に近いものを利用すれば、同数のガス分子の吸着に対し半導体中の電子密度の変化が図 2 のように相対的に大きく表れることから、私は半導体結晶品質の向上により酸化半導体式ガスセンサの感度向上を目指し、研究を行っている<sup>(1)</sup>。

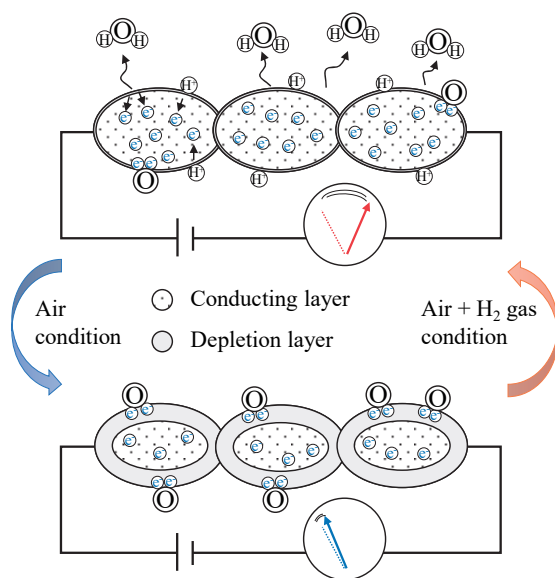
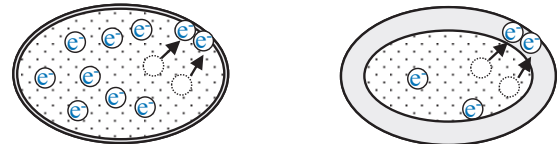


図 1 酸化半導体式ガスセンサの動作原理



電子密度の大きい半導体

真性半導体に近い半導体

図 2 半導体の電子密度による導電性の変化イメージ

## 2. 研究の内容

酸化スズ薄膜結晶の酸素欠損補償によって、電子密度の低い高品質な半導体薄膜を作成し、その薄膜をガスセンサ応用することによって微量なガス分子の吸着に対しても、相対的に大きな導電性の変化を期待し、最終的に 1ppb 感度の呼気ガスセンサを実現する計画で、2020 年度より科研費に採択された。その目的を達成するために、採択者助成金の補助を得て、酸化半導体成膜用の真空装置の作成を行った。

作成した装置図を図 3 に示す。真空排気はロータリーポンプとターボ分子ポンプにて行い、到達圧力は  $10^{-5}$  Pa 程度である。真空圧力の監視は電離真空計にて行う。成膜手法には高周波マグネトロンスパッタリング法を採用し、Ar ガスを用いてスパッタを行う。ガス流量はマスフローコントローラを用いて制御する。ターゲットは酸化スズの焼結体を利用し、基板は石英ガラス基板、アルミナ基板、およびサファイア基板である。これまでの研究成果<sup>(2)(3)</sup>より、基板温度が高いほど結晶性良く成膜ができるため、 $1000^{\circ}\text{C}$  以上まで加熱可能なランプヒータを導入し、基板加熱を行う。同時に、高温プロセスによって脱離しやすい酸素の欠損の補償のため、プロセス中に酸素および窒素ガスを導入する。

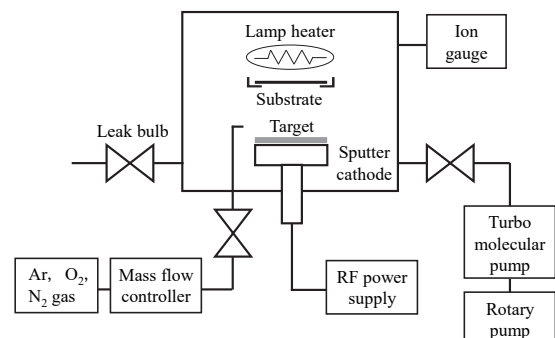


図 3 作成したスパッタ装置の模式図

現在、この装置の運用を開始し、酸化スズ薄膜の成膜、および、得られた薄膜の半導体物性評価、および、ガスセンサ特性評価を行っているところである。その成果については、追って報告する。

#### 参考文献

- (1) 安藤 毅, 篠田 宏之, 六倉 信喜, UHV スパッタエピタキシー法によって成長した高配向性 SnO<sub>2</sub> 層, 第 80 回応用物理学会秋季学術講演会, 18p-PB5-30, 2019 年 9 月
- (2) Ki Ando, Naoki Hukuda, Hiroyuki Shinoda and Nobuki Mutsukura, "Sub-Ppm Gas Sensitivity and Electrical Properties of Highly (100)-Oriented SnO<sub>2</sub> Thin Film on Sapphire Substrate," ECS Meeting Abstracts, Volume MA2020-01 (2020)
- (3) Ki Ando, Toshiya Kumei, A.-I. Mizuno, Hiroyuki Shinoda and Nobuki Mutsukura, "Properties of Highly *c*-axis Oriented Single-crystalline ZnO Layers Grown by Sputter Epitaxy for Hydrogen Gas and UV Sensors, " Sensors & Transducers, Vol. 229, Issue 1, pp. 32-38 (2019)



---

研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/2/27

研究課題名 (和文) : 光応答性ヤヌス粒子を用いたピッカリングエマルジョンの調製および内包物放出制御

研究課題名 (英文) : Preparation and demulsification control of Pickering emulsions using photo-responsive Janus particles

研究者 : 柴田 裕史

千葉工業大学

SHIBATA Hirobumi

工学部 応用化学科 准教授

---

## 1. 緒言

ピッカリングエマルジョンとは、液/液または気/液界面に吸着した微粒子により安定化されたエマルジョンであり、医薬品、食品、化粧品および触媒として化成品分野への応用が期待されている。このとき、微粒子は界面活性剤と同様の挙動と機能を示すこととなる。ピッカリングエマルジョンは通常のエマルジョンとは異なり、一度界面に吸着した微粒子は、その界面から脱着することはなく、長期にわたり安定であるため、内包物質の放出を伴うドラッグデリバリーシステム (DDS) のキャリアーなどへの応用には向かない。そのため、光などの外部刺激によりエマルジョンの形成および解乳化を能動的に制御できるシステムを構築することが望まれている。

一方、ヤヌス粒子とは、一つの粒子の表と裏で表面の組成や物性の異なる異方性粒子である。この表裏の異なる物性や組成に基づき、界面活性を示し、多様な自己組織化構造を形成するなど、様々な振る舞いすることが知られている。そのため、広範な分野から高い注目を集めている。ヤヌス粒子を調製するための代表的な方法として、Langmuir-Blodgett (LB) 法などにより単粒子膜を形成してから表面修飾を行う方法が知られている。LB 法では気/液界面に微粒子を展開した後、その微粒子を基板上にすくうことで単粒子膜を得ることができる。その後、シランカップリング剤などによる化学的手法、または、金属蒸着などの物理的手法のいずれかにより単粒子膜の表面修飾を行うことでヤヌス粒子を得ることが可能となる。しかし、この手法では、トラフと呼ばれる専門的な装置、高度な技術が必要なだけでなく、一度に調製できるヤヌス粒子の数が少ないため、ヤヌス粒子を含む製品を実用化するためには、簡便かつ大量に調製することができ

る方法が必要である。

そこで本研究では、まず、Oil in Water (O/W) エマルジョンを用いた簡便かつ大量にヤヌス粒子を調製する方法について検討を行うことを目的とした。また、この手法を用いて、チタニア (TiO<sub>2</sub>) /シリカ複合ヤヌス粒子の調製についても検討を行うこととした。ここで、チタニアは、暗所下において水に対して低い濡れ性を示すが、紫外光照射下において光誘起超親水性表面を形成することが知られている。これは、紫外光により低親水性と高親水性のスイッチングができることを示す。つまり、チタニア/シリカ複合ヤヌス粒子は、暗所下ではシリカの親水性表面とチタニアの低親水性表面からなるヤヌス粒子としての性質を、紫外光照射下ではチタニアの超親水化に伴った親水性粒子としての性質を発現することとなる。そのため、このチタニア/シリカ複合ヤヌス粒子を用いて O/W ピッカリングエマルジョンを調製することができれば、暗所下では複合粒子のヤヌス粒子としての性質から安定なエマルジョンが形成すると考えられる。一方、紫外光照射下においては、親水性粒子としての性質から、複合粒子は水相に分散し、油滴の安定化に寄与できなくなり、油相と水相に 2 相分離することとなる。その後、暗所下で攪拌することで、再度エマルジョンが形成すると考えられるため、紫外光を外部刺激としたエマルジョンの形成および解乳化の能動的な制御が可能になると考えられる。そのため、チタニア/シリカ複合ヤヌス粒子を用いた O/W ピッカリングエマルジョンの乳化-解乳化の制御についても検討を行うことを目的とした。

## 2. 実験方法

### 2.1 球状シリカ粒子の調製

エタノール、アンモニアを含むイオン交換水に、シリカ源となるテトラエトキシシラン (TEOS) を加えた。この混合溶液を 48 時間、室温で攪拌し、エタノール中で超音波処理 10 分、遠心分離 10 分を順に 3 回繰り返すことで球状シリカ粒子を得た。

### 2.2 O/W ピッカリングエマルジョンを用いたヤヌス粒子の調製

2.1 で得られた球状シリカ粒子とパラフィンワックスを 75°C で攪拌した。その後、イオン交換水を加え、さらに 75°C で 2 時間の攪拌処理を行った。得られたエマルジョンを室温まで冷却し、シリカ粒子が表面に吸着している油滴を固化させた。固体の油滴を吸引ろ過により回収した後、シランカップリング剤である 3-アミノプロピルトリメトキシシラン (APTES) エタノール溶液に浸漬させることで、油滴表面に固定化されているシリカ粒子の表面修飾を行った。表面修飾処理後、1,3,5-トリメチルベンゼンによりパラフィンワックスを除去することで、APTES で修飾された球状シリカヤヌス粒子を調製した。

## 3. 結果

### 3.1 球状シリカ粒子の調製

調製した試料の SEM 像において、約 500 nm の球状シリカ粒子が形成している様子が観察された。また、FT-IR スペクトルにおいて、Si-O 伸縮振動および Si-O-Si 伸縮振動が観測されたことから、シリカが形成していることがわかった。以上の結果より、粒径 500 nm 程度の均一な粒子径を有する球状シリカ粒子の調製に成功していることが明らかとなった。

### 3.2 O/W ピッカリングエマルジョンを用いたヤヌス粒子の調製

まず、3.1 で得られた球状シリカ粒子を用いて、パラフィンワックス表面へのシリカ粒子の固定化について検討を行った。図 1 に室温まで冷却した後、回収した固体の油滴表面の SEM 像を示す。ワックス表面に球状シリカ粒子が吸着している様子が観察された。また、回収したワックスを半分に分断し、分断面の SEM 観察を行ったところ、ワックス内部に球状シリカ粒子は存在せず、ワックス表面のみに吸着している様子が観察された。以上の結果より、固体のワックス表面にシリカ粒子を固定化することに成功していることが明らかとなった。

次に、シリカ粒子が表面に固定化された油滴を、シランカップリング剤である APTES エタノール溶液に浸漬させ、シリカ粒子の表面を修飾した。表面修飾処理を行った粒子を、水相と油相からなる二相分離溶液

に添加し、分散特性について検討を行った。表面処理を行っていない親水性のシリカ粒子、および、全面を表面修飾処理したシリカ粒子は、水相および油相にそれぞれ分散していた。一方、ワックス表面に固定化させた後、表面修飾処理を行ったシリカ粒子は、水相と油相の境界面に分散している様子が観察された。この結果より、O/W ピッカリングエマルジョンを用いて調製された粒子は、シリカ表面と APTES で修飾された表面からなる球状シリカヤヌス粒子であることが明らかとなった。

## 4. まとめ

本年度は、ヤヌス粒子を合成するために、O/W ピッカリングエマルジョンを用いた調製方法について検討を行った。その結果、簡便に大量の球状シリカヤヌス粒子の調製を行うことに成功した。

今後は、本研究で確立した方法を用いてチタニア/シリカ複合ヤヌス粒子を調製し、紫外光照射下におけるチタニアの濡れ性の変化に基づいた乳化-解乳化などの物性について検討を行う予定である。

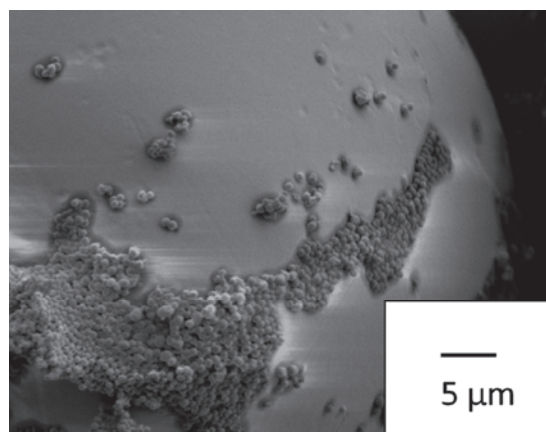


図 1 固体の油滴表面の SEM 像



研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/2/27

研究課題名(和文) : カルベン配位子を基盤とする異種二核金属錯体触媒の開発

研究課題名(英文) : Development of Bimetallic Complexes Bearing Carbene Ligands

研究者 : 原口 亮介

千葉工業大学

HARAGUCHI Ryosuke

工学部 応用化学科 助教

## 1. はじめに

メソイオニック性を有する NHC 配位子としてトリアゾリリデンが近年注目を集めている。<sup>1</sup> 最も広く利用されている NHC であるイミダゾリリデンと比べ、電子供与能が強力であり、前駆体であるトリアゾリウム塩が簡単に合成できることから、錯体化学や触媒化学の分野での利用が近年増加している。しかし、これまでに報告されてきたトリアゾリリデン金属錯体の多くは、単一の金属のみ有するものであり、異なる二種類以上の金属を有するトリアゾリリデン金属錯体の合成例はほとんどない。このような複数の金属元素を含むトリアゾリリデン錯体は、異なる金属が協奏的に基質と相互作用・電子移動を起こすことで、単一金属を用いた場合では困難な触媒反応の創出につながるかと期待される。このような背景のもと著者らは、鉄と銅を分子内に有するトリアゾリリデン金属錯体を新たに設計した。鉄は地球上に豊富に存在する元素であり、ルイス酸触媒として古くより有機合成に利用されている。また、銅触媒を用いたアルケンのホウ素化反応は、様々な官能基に変換可能な炭素-ホウ素結合を効率的に構築できるため、合成化学上重要な反応である。そこで、鉄をルイス酸部位とする銅トリアゾリリデン錯体が合成できれば、銅と鉄の協奏的な基質活性化を経由して、高効率に反応を促進できないかと考えた。今回我々の研究グループは、図1に示す鉄と銅を含む異種二核金属錯体を合成し、メチルシンナメートのポリル化反応をモデルとしてその触媒機能を明らかにした。また、面不斉部位を有する骨格を用いることによる、エナンチオ選択性についても併せて調査した。

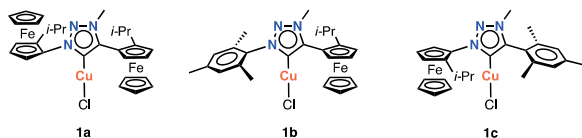


図1 今回合成した鉄-銅複合カルベン金属錯体の合成

## 2. 研究の内容

### (1) 銅と鉄を有するトリアゾリリデン金属錯体の合成

まず始めに、銅と鉄を有するトリアゾリリデン金属錯体の合成を検討した。面不斉フェロセニル基を有するトリア

ゾール **5** については過去の研究で既に開発しており、その方法に基づいて合成した。<sup>2</sup> 次に、図2に示す合成スキームにより銅-鉄複合トリアゾリリデン金属錯体の合成に成功した。

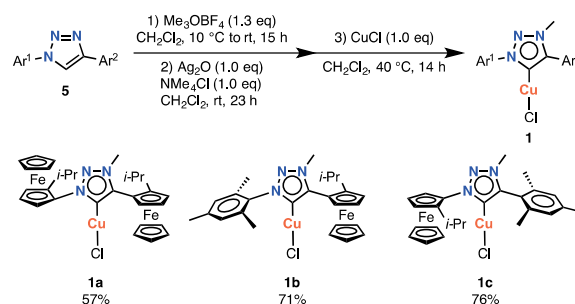


図2 今回合成した鉄-銅複合カルベン金属錯体の合成

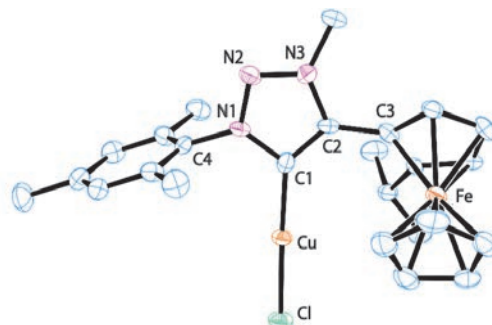


図3 今回合成した鉄-銅複合カルベン金属錯体**1b**のX線単結晶構造解析

まず、トリアゾール **5** をジクロロメタン溶媒中、室温で15時間トリメチルオキソニウムテトラフルオロボレートと反応させることで、面不斉トリアゾリウム塩を得た。その後、テトラメチルアンモニウムクロリド存在下、ジクロロメタン溶媒中、室温で23時間酸化銀と反応させることで、銀-鉄複合カルベン錯体を得た。最後に、これをジクロロメタン溶媒中、40 °Cで14時間塩化銅と反応させることで、目的の銀-鉄複合カルベン錯体 **1** を得た。なお、錯体 **1** の生成は<sup>1</sup>H NMR および<sup>13</sup>C NMR により確認した。最終的には図3および図4に示す単結晶 X 線構造解析によりその構造を明らかにした。ただ、錯体 **1a** については適切な単結晶を作れなかったため、X 線結晶構造解析を行うことはできなかった。

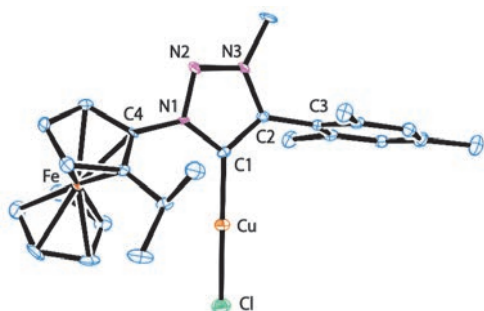
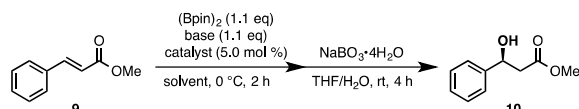


図4 今回合成した鉄-銅複合カルベン金属錯体 **1c** のX線単結晶構造解析



entry	[Cu]	base	solvent	yield <sup>b</sup> (%)	ee <sup>c</sup> (%)
1	<b>1c</b>	NaOtBu	THF	53	47
2	<b>1d</b>	NaOtBu	THF	23	–
3	<b>1c</b>	KOtBu	THF	53	52
4	<b>1c</b>	LiOtBu	THF	52	52
5	<b>1c</b>	NaOtBu	CH <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub>	51	44
6	<b>1c</b>	NaOtBu	Et <sub>2</sub> O	38	53
7	<b>1c</b>	NaOtBu	Toluene	36	25
8	<b>1b</b>	LiOtBu	THF	50	52
9	<b>1a</b>	LiOtBu	THF	45	60

[a] 収率は単離収率により求めた。[b] エナンチオ過剰率については、単離した **10** を HPLC 解析することにより算出した。

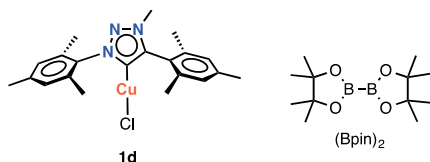


表1 不斉ボリル化による触媒活性評価

#### (2) 銅-鉄複合カルベン錯体の触媒活性評価

合成した錯体 **1a-1c** について、メチルシナメートの不斉ボリル化反応をモデルに触媒活性評価を行った(表1)。なお、ボリル化生成物は空気下で不安定なため、酸化処理を行い、 $\beta$ -ヒドロキシエステルとして生成物を得ている。まず、錯体 **1c** を触媒に本反応を行うと、目的生成物 **10** が収率53%、エナンチオ過剰率47% ee で得られた。この結果は、銅-鉄複合カルベン錯体の触媒機能を明らかにした初めての例である。続いて、フェロセン部位を有さない **1d** を触媒に用いると反応効率は大きく低下した(entry 2)。この結果は、鉄が反応促進に関与していることを示唆している。次に、本反応の添加剤である塩基の効果について調査した。様々なアルカリ塩基を検討したが、同程度の収率・選択性で生成物を与えることがわかった。次に、溶媒効果を調査した。THF 以外にジクロロメタン、ジエチルエーテル、トルエン、

THF など様々な溶媒を検討したが、収率と選択性の観点から最適溶媒はTHFであることがわかった。最後に、錯体 **1a** および **1b** を本反応の触媒として、錯体構造が及ぼす触媒活性・選択性への影響を調査した。その結果、フェロセニル置換基の位置が異なる錯体では同程度の収率・選択性を示した一方で、フェロセニル基を2つトリアゾール環に有する **1c** は最も良い選択性を示した。今後は、触媒構造のさらなる検討・最適化を行うことで、高収率・高選択性で生成物を与える反応条件を明らかにしていく。

#### 3. まとめ

本研究では、銅と鉄を含む新たなトリアゾリデン金属錯体を新たに設計し、その合成法を開発した。また、X線単結晶構造解析により、その立体構造について詳細を明らかにした。さらに、メチルシナメートの不斉ボリル化反応をモデルに、その触媒活性およびエナンチオ選択性を評価した結果、2つの面不斉フェロセニル基を有するカルベン金属錯体が最も良い選択性を示すことを見いだした。また、フェロセニル基を有さない銅-トリアゾリデン錯体との触媒活性を比較することで、フェロセニル基が反応を効率的に進行させるために重要であることがわかった。

#### 参考文献

- (1) Frenking, R. H. Grubbs and G. Bertrand, *Organometallics*, 2011, 30, 2617; (b) B. K. Keitz, J. Bouffard, G. Bertrand and R. H. Grubbs, *J. Am. Chem. Soc.*, 2011, 133, 8498; (c) E. C. Keske, O. V. Zenkina, R. Wang and C. M. Crudden, *Organometallics*, 2012, 31, 6215; (d) J. Huang, J.-T. Hong and S. H. Hong, *Eur. J. Org. Chem.*, 2012, 6630; (e) A. Bolje and J. Kos̃mrlj, *Org. Lett.*, 2013, 15, 5084; (f) M. Gazvoda, M. Virant, A. Pevec, D. Urankar, A. Bolje, M. Koc̃var and J. Kos̃mrlj, *Chem. Commun.*, 2016, 52, 1571;
- (2) Haraguchi, R.; Hoshino, S.; Yamazaki, T.; Fukuzawa, S.-i. Chiral triazolylidene-Pd-PEPSSI: synthesis, characterization, and application in asymmetric Suzuki-Miyaura cross-coupling. *Chem. Commun.* **2018**, 54, 2110.

研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/2/27

研究課題名(和文) : 人口減少・災害リスク・新たな移動手段の普及を踏まえた都市施策の評価手法の開発

研究課題名(英文) : Development of evaluation method of urban policies considering depopulation, disaster risk and spread of new modes of transportation

研究者 : 佐藤 徹治  
SATO Tetsuji

千葉工業大学  
創造工学部 都市環境工学科 教授

## 1. はじめに

本研究は、地方都市の人口減少に対応した財政負担軽減や災害リスク軽減のための都市施策を評価する手法を開発することを目指している。評価手法は、施策有無別の時系列の都市内人口分布を推計可能な準動学立地均衡モデル、費用便益分析で構成されるものとする。本研究のモデルは、既往研究のモデルでは考慮されていない地方都市における住宅タイプ毎の土地・住宅市場における需要と供給の均衡・不均衡の実態、自動運転などの新たな移動手段の普及を踏まえたものとする。

本助成金による研究では、研究の第1段階として、世帯の自動車保有・非保有別の転居先地域選択行動の違いを考慮したモデルを構築し、自動運転普及時のシミュレーション方法を検討した。また、新潟県新潟市を対象とする実証モデル構築のため、転居行動に関する住民アンケート調査、調査結果に基づくモデルのパラメータ推定を行った。

## 2. 転居先地域選択行動モデルの検討

### (1) 従来モデル

住宅地の立地均衡モデルは、都市内のすべてのゾーンにおける世帯の土地需要(転居先選択行動に基づく)、不在地主の土地供給、地代調整を通じた需給均衡を定式化したものである。近年の既往研究(例: 佐藤 2019)では、転居意思の有無により世帯を転居世帯と留保世帯に分け、転居世帯のみを土地需要の対象としているものが多い。

立地均衡モデルにより、都市のコンパクト化を意図した居住誘導施策などの都市施策の有無別の都市内人口分布をシミュレーションすることができる。準動学立地均衡モデルは、各期の立地均衡モデルとコーホート要因法を組み合わせ、都市内の社会移動を立地均衡モデル、自然増減と都市外からおよび都市外への社会移動をコーホート要因法で推計し、時系列のシミュレーションが可能となるようにしたものである。

従来モデルにおける世帯の転居先地域選択行動は、(2)式の各ゾーンの部分効用に基づく(1)式のロジットモデルで表される。ここで、 $i$ はゾーン、 $t$ は期を表す。また、 $P$ は転居先地域選択確率、 $V$ は部分効用、 $\tau$ はその他の効用(部分効用で評価できないゾーン固有の魅力を表す調整項)、 $r$ は地代、 $I$ は所得、 $\mathbf{Z}$ は居住地域評価指標ベクトルを表す。

$$P_{i,t} = \frac{\text{EXP}(V_{i,t} + \tau_i)}{\sum_i \text{EXP}(V_{i,t} + \tau_i)} \quad (1)$$

$$V_{i,t} = f(r_{i,t}, I_{i,t}, \mathbf{Z}_{i,t}) \quad (2)$$

### (2) 自動車保有・非保有世帯別の転居行動

本研究では、自動車保有世帯と非保有世帯では、転居世帯の比率、転居先地域選択の要因、各要因の重視度が異なると考える。このため、転居世帯比率を自動車保有・非保有世帯別に設定するとともに、部分効用関数は(3)式のとおり、自動車保有・非保有世帯別に構築する。

$$V_{i,c,t} = f(r_{i,t}, I_{i,c,t}, \mathbf{Z}_{i,c,t}) \quad (3)$$

ここで、 $c$ は自動車保有の有無を表す。(3)式は、自動車保有・非保有の状況によって、世帯の所得、居住地域評価指標、各変数のパラメータ(=各要因のウエイト)が異なること、したがって、転居先地域選択時の各ゾーンの部分効用や転居先地域選択行動も異なることを示している。

### (3) 自動運転普及時のシミュレーション方法

本研究では、将来のある時点以降、すべての世帯がレベル5の完全自動運転車を保有またはシェアリングサービスとして利用できる状況を想定する。このような状況においては、すべての世帯が現在の自動車保有世帯と同様の転居行動を取ると仮定することができると考えられる。したがって、自動運転普及時においては、転居世帯の比率を現在の自動車保有世帯の転居世帯比率に設定するとともに、すべての世帯が自動車保有世帯の部分効用関数に従って行動するものとして、(3)式とその他の立地均衡モデルの関数、コーホート要因法を用いてシミュレーションを行う。

## 3. 新潟県新潟市を対象とする実証モデルの構築

### (1) 転居世帯比率と居住地域評価指標

実証モデルの構築に当たっては、都市内転居世帯比率と居住地域評価指標を自動車保有・非保有世帯別に設定する必要がある。居住地域評価指標については、(3)式の部分効用関数のパラメータをL18(2<sup>1</sup>×3<sup>7</sup>)直交表を用いたプロファイル調査およびコンジョイント法により推定することを想定すると、7項目を選定する必要がある。

本研究では、都市内転居世帯比率の設定と7項目の選定は、新潟市民を対象とするアンケート調査に基づき行った。調査は、2020年11月上旬に、民間リサーチ企業に依頼して新潟市在住の登録モニターを対象にオンラインで実施し、300サンプルを回収した。

調査結果に基づき、都市内転居世帯比率(5年間)は、自動車保有世帯で18.00%、非保有世帯で38.01%とした。自動車保有世帯の住居地評価指標は、総合スーパー・大型商業施設までの所要時間(自動車)、都心部までの所要時間(自動車)、最寄り駅・停留所までの所要時間(徒歩)、町医者・クリニックまでの所要時間(自動車)、洪水による想定浸水深、国道へのアクセス時間(自動車)、市街化区域ダミー(市街化区域:1、その他:0)とした。自動車非保有世帯の指標は、「国道へのアクセス時間」に変えて「最寄り駅・停留所の公共交通の運行頻度」とした以外は自動車保有世帯と同指標(ただし、移動手段はすべて公共交通)とした。

#### (2) 部分効用関数のパラメータ推定

自動車保有・非保有世帯別に設定された(3)式のパラメータ推定を行うため、新潟市民を対象にプロフィール調査を実施した。調査では、自動車保有世帯、非保有世帯それぞれに対して、地価(地代の代理変数)および選定された7項目の新潟市内の実態に即した3水準(ただし、市街化区域ダミーは1と0の2水準)のデータ、L18(2<sup>1</sup>×3<sup>7</sup>)直交表を用いて、仮想的な18地域のプロフィールを作成し、各地域の居住意向を4段階評価で尋ねた。自動車保有世帯向けの調査票(一部抜粋)を図1に示す。

調査は、2020年12月上旬に、民間のリサーチ企業に依頼してオンラインで実施し、保有世帯300サンプル、非保有世帯50サンプルを回収した。保有世帯、非保有世帯の(3)式のパラメータ推定結果をそれぞれ表1、表2に示す。

#### 4. まとめ

本稿では、地方都市における人口減少や将来の自動運転等の新たな移動手段の普及を踏まえた都市施策の評価手法の開発に向けて、新たな準動学立地均衡モデルを検討した。自動車保有世帯と非保有世帯に分けて転居行動を定式化し、自動運転普及後には非保有世帯が保有世帯と同様の転居行動を行うと仮定することで、自動運転の普及が将来の都市内人口分布に及ぼす影響を分析できることを示した。また、新潟県新潟市を対象とする実証モデルの構築に向けて、アンケート調査を実施し、その結果に基づいて居住地域評価指標の選定、部分効用関数のパラメータ推定を行った。

新潟市を対象とする実証モデルは、4次メッシュ(500m四方)を単位地域(ゾーン)として構築する。モデル構築に際しては、今回の自動車保有・非保有世帯別の転居比率、パラメータ推定結果に加え、住宅地の需要面積、供給可能面積、地価、各施設までの所要時間等のモデルに含まれるすべての変数の基準年次のデータをすべてのゾーンで収集する必要がある。

	総合食品スーパー・大型商業施設までの所要時間(自動車)	都心部(JR新潟駅)までの所要時間(自動車)	最寄り駅・停留所までの所要時間(徒歩)	地価	除雪に関する負担(市街化区域)	住みたくない	住みたかくな	どちらかといえ	どちらかといえ	住みたい
1	10分	10分	5分	2.5万円	市街化区域	1	0	3	4	0
2	10分	20分	10分	5万円	市街化区域	1	0	3	4	0
3	10分	40分	20分	7.5万円	市街化区域	1	0	3	4	0
4	20分	10分	5分	7.5万円	市街化区域	1	0	3	4	0
5	20分	20分	10分	2.5万円	市街化区域	1	0	3	4	0

図1 自動車保有世帯向けプロフィール調査票(一部抜粋)

表1 自動車保有世帯の(3)式のパラメータ推定結果

所得	0.0001	(3.503**)	
地価	-0.0424	(-6.675**)	
所要時間 (自家用車)	大型商業施設	-0.0263	(-16.547**)
	都心部	-0.0100	(-9.650**)
	町医者	-0.0089	(-3.232**)
所要時間 (徒歩)	最寄り駅・停留所	-0.0103	(-4.297**)
洪水リスク	-0.1302	(-8.522**)	
国道アクセス	-0.0083	(-2.621**)	
除雪に関する負担	0.1711	(6.591**)	
定数項	3.3510	(44.422)	
決定係数	0.0965		

表2 自動車非保有世帯の(3)式のパラメータ推定結果

所得	0.0009	(6.487**)	
地価	-0.0687	(-4.788**)	
所要時間 (公共交通)	大型商業施設	-0.0233	(-9.763**)
	都心部	-0.0097	(-6.779**)
	町医者	-0.0189	(-2.087*)
所要時間 (徒歩)	最寄り駅・停留所	-0.0059	(-4.017**)
洪水リスク	-0.1423	(-4.131**)	
運行頻度(公共交通)	-0.0082	(-2.881**)	
除雪に関する負担	0.2111	(3.606**)	
定数項	3.4983	(23.593)	
決定係数	0.2296		

注) ( )内はt値。

\*\* : 1%水準有意、\* : 5%水準有意。

本研究に関する主な発表論文

- (1) 岡田和磨、太田圭祐、佐藤徹治: 自動運転等の新たな交通手段の普及に対応した都市内人口推計モデルの改良、土木計画学研究・講演集(CD-Rom)、Vol. 63、45-3、2021.6

参考文献

- (1) 竹間美夏、佐藤徹治: 立地適正化計画に基づく居住誘導施策検討のための都市内人口分布推計手法の開発—愛知県豊橋市を対象として—、都市計画論文集、Vol. 52、No. 3、pp. 1124-1129、2017. 10



研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/2/27

研究課題名(和文) : ロボットから人間の2足歩行に応用する安定化ペースメーカーの研究

研究課題名(英文) : Research on dynamic stability pace-maker for biped robot to a human

研究者 : 米田 完  
YONEDA Kan

千葉工業大学  
先進工学部 未来ロボティクス学科 教授

## 1. はじめに

ロボットの2足歩行も、人間の歩行も、ともに適切なリズムで少し揺れながら適度な歩幅で歩くことが好ましい。これまで、歩行を補助して歩きやすくするために、おもりの加減速の反力を利用する「慣性アシスト」の手法を探求してきた。本研究はこれを発展させ、長周期で歩幅の大きい歩行を安定させる「安定化ペースメーカー」を実現するため、安定化アシストの制御法と機構について検討を行っている。

## 2. 2点接地倒立振り子モデルによる検討

### (1) 2点倒立振り子のモデル

健常人の急ぎ足でないゆっくりとした歩行は、体格から決まる体の固有の振動的運動の範囲で比較的長い周期をもち、歩幅が大きめで効率が良くなっていると考え、このような歩行を安定して維持させることを試みる。本研究では2足歩行のリズムをつくり出す基本的な制御法を検討するため、図1のような2つ足先を持つ2点接地倒立振り子で左のように足先でキックを行うもの、右のようにホイール回転の反トルクで慣性アシストを行うものを考える。

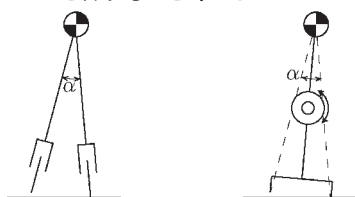


図1 キックアシスト(左)と慣性アシスト(右)

### (2) シミュレータによる制御手法の比較

シミュレータの作成にあたり以下のように仮定する。2点接地倒立振り子の質量は図1のように腰部のみに集中しているとする。片足支持の間中は重力によって遊脚上昇中は減速、遊脚下降中は加速が生じる。支持脚切り替え時には、リムレスホイールの脚切り替えと同様に、遊脚が接地した部分からの衝撃力によって瞬時に腰部質点の運動方向が変わるが、このときの運動エネルギーは、

$$E_{i+1} = \cos \alpha \cdot E_i \quad (1)$$

$E_{i+1}, E_i$  : 切替直前と直後の運動エネルギー

$\alpha$  : 脚の開き角 (図1)

となる。これらをもとに作成したシミュレータによる各種アシスト制御法の比較を以下に示す。なお、パラメータは重心高さを0.8m、左右の接地点距離を0.3m、質量を1kgとしている。

### A. 定角運動量アシスト

はじめに、脚切り替えごとに一定の角運動量を瞬時に与えるアシストについて計算した。ホイールの加速を一定時間で行った場合も、瞬時のものが定時間に延びただけではほぼ同じである。図2のように初期条件として大きめのロール角を与えた場合でも一定値に収束している。なおここでのロール角は左右の脚のロール角の平均値と定義している。

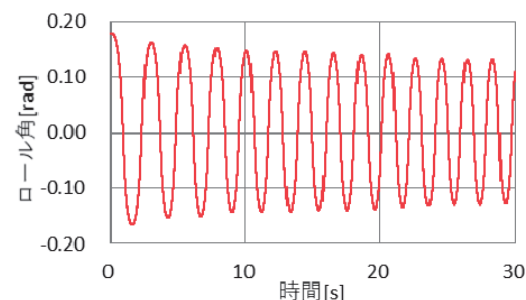


図2 定角運動量アシストのシミュレーション

### B. 定ストロークアシスト

脚切り替え時から脚先高さが既定の値になるまでの間だけ一定トルクのアシストを加えた場合の運動を算出した。これは足先に定ストロークのキック機構を付けたものに相当する。また実機では脚高さを計測して規定値に達するまでホイール加速によるアシストを行うことを試みたが、これも同じ効果となる。周期が長く遊脚の初期速度が大きな場合ほどアシスト量が小さくなるため、そのフィードバックによって周期が安定するものと思われる。

### C. 高さと時間のハイブリッドアシスト

一步の途中でアシスト方向を逆転させる制御法を試みた。アシストは、遊脚を上げる方向に行えば現在の一步の遊脚高さを増し、遊脚時間を増やす効果があるが、逆に遊脚を下げる方向に行うことも有効で、遊脚の降下速度が増し、その後の脚切り替えを経て、次

の一步の運動の初速度が大きくなる効果がある。そこで新たな方法として、遊脚高さが規定値になるまでホイール加速によって遊脚を上げる方向にアシストし、その後は遊脚開始時からの経過時間が規定値になるまで遊脚を下げる方向にアシストするようにホイールの減速すなわち逆方向に加速を行う。前項で示したように遊脚初期速度が速いほど上昇アシスト量が減少することに加え、遊脚初期速度が速いほど高さが規定値になるのが早いため、その後の規定時間までの下降アシスト量が增大するフィードバック効果がある。シミュレーションの結果を図3に示す。同図(b)はアシストした角運動量および重力により供給された角運動量である。なお、全体の角運動量はこれらよりはるかに大きく、ピーク時は $0.46[\text{kgm}^2/\text{s}]$ 程度である。

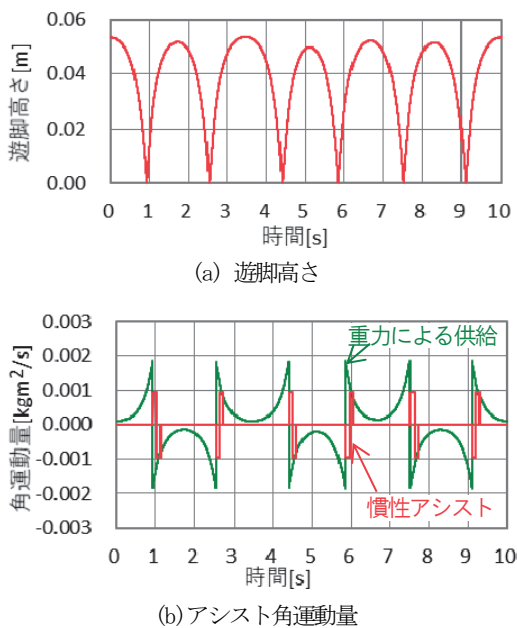


図3 ハイブリッドアシストのシミュレーション

これら3つの制御手法について、運動がほぼ定常状態となる20秒後から30秒後までの間の最高遊脚高さを比較したものが図4である。横軸はそれぞれの手法におけるアシストの強度の相対値を示しており、基準の強度1は、アシストの最大可能値すなわちアシストが過大になって反対側に倒れてしまうことのない限界の値である。遊脚高さを大きな値で保つことは長周期の歩行を保つこととなる。また、アシスト強度の変化で遊脚高さがあまり変化しないほうが、外乱による乱れが小さく、運動を継続しやすいことになると考える。図4より、定角運動量アシストよりも定ストロークアシストのほうが若干、アシスト強度変化による遊脚高さ変化が小さいが、提案するハイブリッド制御はさらに変化が小さい。また同図には切り替えを行う遊脚高さや経過時間の設定値を変えたものも併せて示したが、設定値による違いはほとんど見られない。

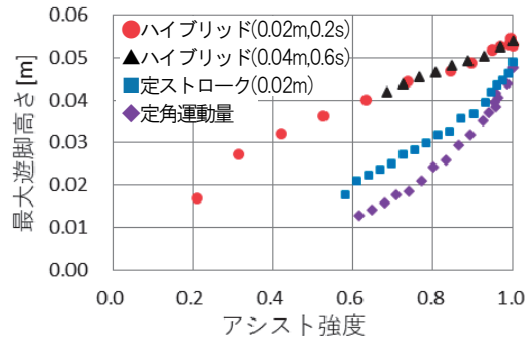


図4 アシスト制御法による比較

### (3) 実験機による測定

定ストロークアシストについて、実験機による測定を行った。そのようすを図5に、ロール角を図6に示す。長周期の左右揺動運動が安定して継続できている。

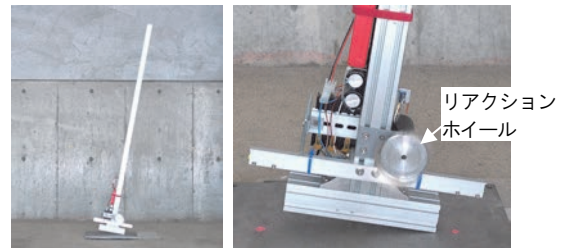


図5 実験機全景(左)と下部詳細(全高1640mm)

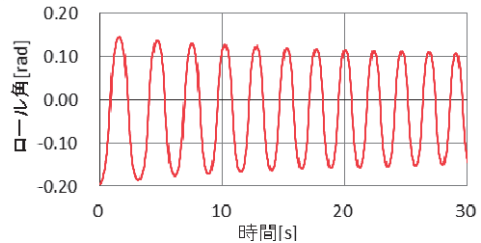


図6 定角ストロークアシスト実験のロール角

### 3. 2足歩行ロボットへの適用

上記の結果をもとに2足歩行ロボットにおけるアシスト方法を検討する。元となる弱い歩行運動を生成する足先キックに加えて、上記の高さと時間のハイブリッド制御によるアシストを行う。その機構として、単純ホイール回転(リアクションホイール)、市販のジャイロスタビライザーをモータで回転させる(2自由度コントロールモーメントジャイロ、自作の高速回転ジャイロの軸方向を変化させる方法(1自由度コントロールモーメントジャイロ)の3種を試みる。

### 4. まとめ

長周期の安定した歩行を行うためには、遊脚高さや時間を計測して、遊脚前半に上昇方向、後半に下降方向の角運動量を与えるハイブリッド制御が有効であることを明らかにした。今後は2足歩行ロボットによってハイブリッドアシストを実現し、安定した長周期と大きな歩幅が実現できることを検証する。



研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2020/9/30 or 2020/2/27

研究課題名 (和文) : 繊維芽細胞増殖因子 FGF5 と受容体の相互作用およびアプタマーの阻害機序の解明

研究課題名 (英文) : Study of the mechanism of the interaction between fibroblast growth factor 5 and receptors and the inhibition by aptamers

研究者 : 坂本 泰一 千葉工業大学  
SAKAMOTO Taiichi 先進工学部 生命科学科 教授

### 1. はじめに

繊維芽細胞増殖因子 (fibroblast growth factor; FGF) は、様々な細胞や組織の増殖や分化の過程において重要な役割を担う成長因子であり、血管新生、創傷治癒、胚発生などを促進する働きを持つ。ヒトでは 22 種類の FGF が同定されており、そのうち 15 種類が FGF 受容体 (FGFR) に作用すると考えられている。一方、FGFR には 7 種類のタンパク質がある。細胞特異的な FGF の作用発現のためにはそれぞれ異なるシグナル伝達を担う FGFR が存在し、それぞれの FGF と FGFR は特異的に相互作用すると考えられている (図1) (Ornitz *et al.*, 1996)。また、8つの組み合わせ (図1の太字下線) の FGF と FGFR の複合体の X 線結晶構造が明らかとなっており、どのような相互作用によってそれらの特異性が産み出されるのか明らかになっている (Plotnikov *et al.*, 1999)。しかし、特異性の原因が明らかになったのは、わずかに 8つの組み合わせだけであり、その全体像は明らかになっていない。そのため、FGF は非特異的成長因子とよばれている。

毛は生えて抜け落ちるサイクルを繰り返しており、これを毛周期という。毛周期には、毛が伸びる成長期、成長速度が鈍化して抜ける準備をする退行期、成長が完全に停止し抜け落ちるまでの休止期がある。周期は繰り返しまわり、抜け落ちたところからは新たに毛包が生え始め、成長し伸びていく。毛髪の成長期は5-7年ほど続き、その後3週間ほどの退行期を経て、約3カ月の休止期となる。本研究で着目している FGF5 は 268 個のアミノ酸からなる 27.1 kDa のタンパク質であり、毛周期の成長期から退行期への移行を促進することが明らかとなっている (図2) (Higgins *et al.*, 2014)。FGF5 は毛乳頭細胞にある FGFR1c に結合して作用するが、病気との関りが少ないと考えられてきたため、他の FGF に比べて研究の報告は少ない。また、FGF5 が不安定で調製が容易ではなかったため、立体構造は明らかとなっていない。近年、FGF2 と同様に FGF5 が血管新生を促進することが報告され (Seo, H.-R. *et al.*, *Sci. Rep.*, 2016)、様々な病気に関与することが示唆されている。

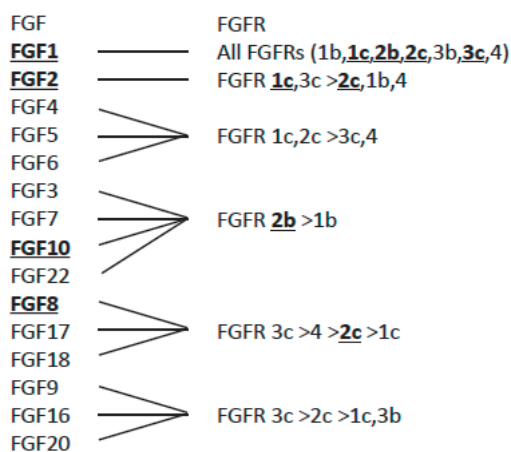


図1 FGF と FGFR の特異的な結合

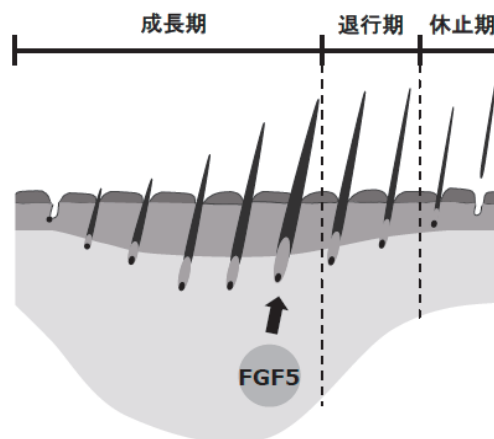


図2 FGF 5 による脱毛の促進

アプタマーは、複雑な三次元立体構造を形成することで標的分子に結合する一本鎖の核酸分子である。標的となる分子は、タンパク質、ペプチド、炭水化物、脂質、低分子化合物、金属イオンなど多岐にわたる。その高い結合能と特異性から、医薬品や診断薬、分離剤などさまざまな分野で実用化されている。アプタマーは、試験管内分子進化法 (Systematic Evolution of Ligands by EXponential enrichment: SELEX) によって、ランダム配列を含む核酸ライブラリーから、特定の標的に対する強い親和性と特異性に基づいて選別される。アプタマー医薬品は、低分子製剤のように化学合成でき、抗体医薬品のように特異性が高いことから副作用が少ない次世代型分子標的薬として注目されている。FGF2を標的としたアプタマーが開発されており (Jin, L. *et al.*, 2016), 加齢黄斑変性症の治療薬として臨床試験が進められている。

我々は、FGF5に結合するアプタマー (解離定数  $K_d$  = 約 0.1 nM) の取得に成功している (図3) (Amano, R. *et al.*, 2021)。このアプタマーはFGF1, FGF2, FGF4およびFGF6には結合しないことから、非常に特異性が高いことが明らかとなっている。また、FGF5によるNIH3T3細胞の増殖を阻害することを確認している。FGF5に結合するアプタマーは、標的タンパク質を厳密に識別するが、どのように識別しているかは明らかになっていない。そこで本研究では、アプタマーとFGF5の複合体、FGF5とFGFR1cの複合体の立体構造を明らかにし、アプタマーがFGF5とFGFR1cの相互作用を阻害する機序を明らかにすることを目的とした。

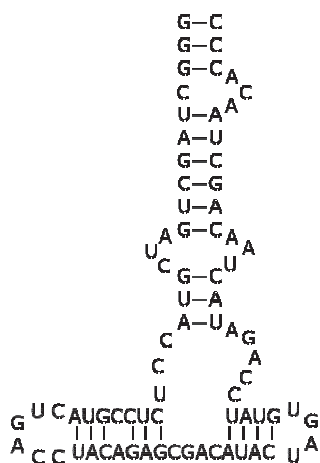


図3 アプタマーの二次構造

## 2. 研究の内容

### (1) アプタマーの調製

アプタマーを調製する際の鋳型DNAを委託合成し、T7 RNAポリメラーゼを用いた試験管内転写系によりアプタマーを調製した。本研究のアプタマーは、ヌクレアーゼに対する抵抗性を上げるため、CとUのリボースに2' F修飾を施している。これらの修飾ヌクレオチドを取り込みやすいようにT7 RNAポリメラーゼの変異体を用いた。転写合成後は、ポリアクリルアミドゲル電気泳動 (PAGE) により精製した。

### (2) FGF5の調製

FGF5については、大腸菌を用いた大量発現系により調製した。大腸菌 BL21 (DE3) 株を FGF5 の発現ベクター pET-GRP-3C-hFGF5 (21-242)-His により形質転換した後、大量培養し、発現誘導した。集菌後、大腸菌を超音波破砕し、Ni-NTA カラムにより精製した。さらに、カードランビーズのカラムに結合させた後、HRV 3C プロテアーゼにより GRP と hFGF5 を切断し、溶出した。

### (3) FGFR1cの調製

FGFR1c については、浮遊 293 細胞を用いた大量発現系により調製した。293F 細胞を発現ベクター pcDNA-SecreconAA-hFGFR1 (142-356)-His により形質転換した後、Expi293 Expression System により FGFR1c の発現を誘導した。培地に分泌した FGFR1c を Ni-NTA カラムにより精製した後、ゲルろ過カラムクロマトグラフィーにより精製した。

## 3. まとめ

立体構造解析には、大量の試料が必要である。そこで、構造解析に必要なアプタマーおよび FGF5 と FGFR1c を調製することに成功した。現在、結晶化を試みている。アプタマーと FGF5 の複合体、FGF5 と FGFR1c の複合体の結晶を作成した後、X線結晶構造解析をおこなう予定である。

## 本研究に関する発表論文

Amano R, Namekata M, Horiuchi M, Saso M, Yanagisawa T, Tanaka Y, Ghani FI, Yamamoto M, Sakamoto T., Specific inhibition of FGF5-induced cell proliferation by RNA aptamers, *Sci Rep.* (2021) **11**, 2976.

## 参考文献

- Ornitz DM, Xu J, Colvin JS, McEwen DG, MacArthur CA, Coulier F, Gao G, Goldfarb M, Receptor specificity of the fibroblast growth factor family, *J. Biol. Chem.* (1996) **271**, 15292-15297.
- Plotnikov AN, Schlessinger J, Hubbard SR, Mohammadi M., Structural basis for FGF receptor dimerization and activation, *Cell*, (1999) **98**, 641-650.
- Higgins CA, Petukhova L, Harel S, Ho YY, Drill E, Shapiro L, Wajid M, Christiano AM, FGF5 is a crucial regulator of hair length in humans, *Proc Natl Acad Sci USA.* (2014) **111**, 10648-10653.
- Seo HR, Jeong HE, Joo HJ, Choi SC, Park CY, Kim JH, Choi JH, Cui LH, Hong SJ, Chung S, Lim DS, Intrinsic FGF2 and FGF5 promotes angiogenesis of human aortic endothelial cells in 3D microfluidic angiogenesis system, *Sci Rep.* (2016) **6**, 28832
- Jin L, Nonaka Y, Miyakawa S, Fujiwara M, Nakamura Y., Dual Therapeutic Action of a Neutralizing Anti-FGF2 Aptamer in Bone Disease and Bone Cancer Pain, *Mol Ther.* (2016) **24**, 1974-1986.

---

研究項目 : 科研費採択者助成金

研究期間 : 2020/6/25 ~ 2021/2/27

研究課題名(和文) : 臨床検査室の品質と能力を確保する実践的な質マネジメントシステムの開発

研究課題名(英文) : Development of Practical Quality Management System for Clinical Laboratories

研究者 : 佐野雅隆

千葉工業大学

SANO Masataka

社会システム科学部 経営情報科学科 准教授

---

## 1. はじめに

臨床検査業務における質は、診断に与える影響が大きいと、その確保が重要な課題である。これまで、Process Oriented Analysis Method for Medical Incident(以下、POAM) [1][2]に基づき、プロセスに着目した分析および対策を立案する方法を実際の検査事故に適用し、事故状況を可視化することで、質の向上に取り組んできた。

近年では、ISO 15189 に基づいて臨床検査(一般検査、血液学的検査、生化学的検査、免疫学的検査、微生物学的検査、病理学的検査など)を実施する臨床検査室の技術能力を決定することが行われており、公益財団法人日本適合性認定協会が臨床検査室の審査を行い、臨床検査を行う能力を有していることを認定している[3]。

本研究ではISO 15189 に基づいて品質マネジメントシステムを構築している病院の協力を得て、文書体系のあるべき姿について考察することを目的とする。

## 2. 研究のアプローチ

標準化に向けた業務分類単位でのあるべき文書の持ち方の検討を行い、文書を管理する上での指標の設定に必要な要件を具体化する。とくに、検査業務における標準要素の抽出、標準的な文書の持ち方を導出するには、ISO 15189 に基づく質マネジメントシステムを構築している病院を対象にして研究をすすめる。文書体系と規格の要求事項との対応付けを元にした文書であるRFM 35を分析することで、標準的文書の体系と文書の名称・もつべき機能について整理する。

本研究の元となっている科研費の採択課題については、質マネジメントシステムの実践において、監査などについてもあるべき姿を考察することであるが、新型コロナウイルス感染症のA/B起用を受け、PCR検査等の立ち上げや院内への訪問制限がある中で、遠隔での打ち合わせと資料提供体制を準備することも本研究での準備として行うこととした。

## 3. 研究結果

研究の準備に当たっては、これまでの研究協力体制を維持するために、オンラインを活用した打ち合わせ・資料提供のお願いを実施できた。新規に研究体制を構築することは、オンラインでは困難であることも想定される。今回の取り組みを生かして、資料の安全なやりとり等に活用する。

まず、ISO規格の要求事項と病院の文書体系を整理することで、明らかにできる範囲を検討した。図1は、規格の要求事項と、これまで研究してきたQMS-H(Quality Management System for Healthcare) [4]とISOの関係、また文書と品質マニュアルの関係を図示したものである。

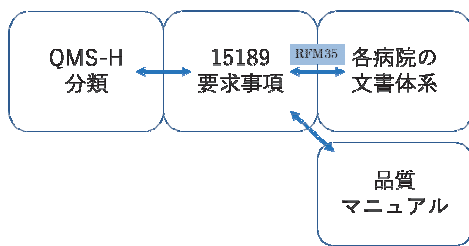


図1 規格の要求と文書の整理

とくに、ISO 15189 の申請にあたって、RFM35 が準備されていることから、RFM35 に基づいた分析を実施する。表 1 に示すように、ISO15189 の要求事項に対応している文書が何かを示している。

表 1 RFM35 と文書の対応関係(一部)

要求事項	適用区分	適合性			対応する文書(RFM35)のリスト及びリンク	JABのコメント
		適	不適	該当		
<b>A. 手続管理</b> (1) 次のJABの認定に関する基準を満たしていますか。 ① ISO 15189 ② JAB RM200 ③ JAB RM300 ④ JAB RM300 ⑤ 提供する分野別の補足基準 (2) これらは、どこに保管していますか。 (3) これらは、関係職員がすべていつでも利用できますか。						
<b>B. 要求</b> B.1 管理上の要求事項 B.1.1 組織及び管理主体責任 B.1.1.1 組織 B.1.1.2 職務 B.1.1.3 権限 B.1.1.4 職務説明書(職務)「検査科」は、臨床的施設設備、又は臨床施設設備や移動施設設備で作業を行う際の、この施設設備の要求事項も満たさなければなりません。 B.1.1.5 臨床設備 検査室又はそれを一部分として包含する組織は、その臨床的施設設備に関する法的責任を有する存在でなければなりません。 B.1.1.6 管理行動 検査室管理主体は、以下も確保するための取組を実施しているか確認してください。 (a) 検査室の能力、公平性、透明、又は業務上の健全性(安全に懸念がある状態)に対する信頼を醸成するための具体的な取組が実施されていること。 (b) 管理主体及び委託は、業務の品質に影響をもたらし得るあらゆる不備を管理上、財務上又はその他の方法で是正する責任を負っていること。						

以上の資料を病院に提供していただき、ISO15189 のそれぞれの要求事項をどのように満たしているか、またその文書名との対応関係を明らかにした。結果の一部を表 2 に示す。

表 2 要求事項に基づく文書名

ISO15189 要求事項 No.	関連文書
4.1.2.4	検査科品質方針策定と管理手順
4.1.2.4	検査科品質マネジメントの見直し規定
4.1.2.4	検査科目標管理記録
4.1.2.4	検査科マネジメントレビュー実施規定
4.1.2.4	検査科マネジメントレビュー実施手順書
4.2.1	業務文書・記録管理規定
4.2.1	検査科文書・記録管理規定
4.2.1	検査科マネジメントレビュー実施規定
4.2.1	検査科マネジメントレビュー実施手順書
4.2.1	検査科品質方針策定と管理手順
4.1.1.3	川口市職員倫理規則
4.1.1.3	川口市職員就業規則

表 2 に示すように、それぞれの要求事項に対して文書が作成されていることが明らかとなった。また、一つの要求事項に対して、複数の文書で対応していることも把握できた。一方で、規定と手順書など、文書が細分化されていることも明らかとなった。これを標準的な文書として示すことができるかは、また統合する際どのように実施するのがよいかなどの、質マネジメントシステムの実践における課題を抽出することができた。これらの点については、今後も検討を続ける予定である。

#### 4. 考察

研究開始時点の目標を変更し、オンラインでも実施可能な研究をすすめることとなったが、規格との対応関係を整理し、文書についての要求を整理することができ、今後の研究体制の充実にもつながったものと考えられる。

標準的な文書であるかどうかの検証や、文書体系に基づいた質マネジメントシステムの実践に向けた監査の方法論を検討するための土台ができたといえる。

謝辞 科研費採択者補助金に採択いただき、オンラインでの会議の実施準備を含めて本研究課題の遂行を支援していただいたことについて感謝いたします。また、資料を提供いただいた病院の方にも感謝いたします。

#### 参考文献

- [1] 佐野雅隆(2014)：“プロセスに着目した与薬事故分析手法の導入・推進”，「品質」，44，1，pp81-83
- [2] 佐野雅隆ら(2009)：“業務プロセスに着目した与薬事故分析手法の提案”，「品質」，39，2，pp.98-106
- [3] 公益財団法人日本適合性認定協会 [https://www.jab.or.jp/service/clinical\\_examination/](https://www.jab.or.jp/service/clinical_examination/) (2021/2/27 アクセス)
- [4] 田中宏明，金子雅明，佐野雅隆 「医療安全と業務改善を成功させる病院の文書管理実践マニュアル」，メディカ出版、2017

〔科学研究費助成事業〕







---

研究項目 : 科学研究費助成事業 (基盤研究 (A))  
研究期間 : 2018/4/1 ~ 2021/3/31  
研究課題名 (和文) : 周波数シフトテラヘルツ波による建築物非破壊診断

研究課題名 (英文) : Nondestructive diagnosis of buildings by frequency shifted terahertz waves

研究者 : ○水津 光司 千葉工業大学  
SUIZU Koji 工学部 情報通信システム工学科 教授  
枚田 明彦 千葉工業大学  
HIRATA Akihiko 工学部 情報通信システム工学科 教授  
内海 秀幸 千葉工業大学  
UTSUMI Hideyuki 創造工学部 都市環境工学科 教授  
長 敬三 千葉工業大学  
CHO Keizo 工学部 情報通信システム工学科 教授  
陶 良 千葉工業大学  
TOH Ryo 工学部 電気電子工学科 教授  
中林 寛暁 千葉工業大学  
NAKABAYASHI Hiroaki 工学部 情報通信システム工学科 准教授  
佐藤 宣夫 千葉工業大学  
SATOH Nobuo 工学部 機械電子創成工学科 教授

---

## 1. はじめに

高度成長期に建設された構造物の老朽化や、震災による構造物の劣化による事故が相次いでおり、社会的な問題として顕在化しつつある。これらの事故を未然に防ぐためには、迅速かつ理学的計測による定量評価が重要である。現在は主に打音による診断が行われているが、人的および時間的な点でコストがかかることや定量性に欠けることから、超音波計測などの理化学的計測法が開発されつつある。電波と遠赤外の間際に位置するテラヘルツ波は、透過性と空間分解能に優位性があり、構造物表面付近の検査に適している[1]。ただし、一般的に普及しているテラヘルツ時間領域分光装置を用いた場合、測定距離レンジに対する原理的な制約がある。さらに、材料の吸収特性および屈折率に強い周波数依存性がある場合、反射パルス波形がくずれ、位置測定が困難になる。このように、テラヘルツ波自体は非破壊検査に取って有望であるが、物理的な問題点および測定器としての問題を抱えている。

光領域での距離計測では、周波数シフト帰還型レーザー (Frequency Shifted Feedback laser : FSF レーザー) を用いた周波数領域リフレクトメトリ (Frequency Domain Reflectometry : FDR 計測) を実施することで、測定器からの距離に大きな幅のある対象であっても、ミリメートル未満の精度での精密距離計測が実現されている[2]。FSF レーザーとは、超高速に周波数が変化する特殊なレーザー光源であり、距離計測において多くのメリットを有している。本研究では、FSF レーザーのユニークな特性をテラヘルツ波に転写することで、測定距離レンジに原理的な制約の無い精密距離測定を実現した。

## 2. 研究の内容

### (1) 光源/検出系開発

FSF レーザー光と、中心周波数の差がテラヘルツ波となるように設定した単色レーザー光を合波し、単一走行キャリアアフォトダイオード (Uni-Traveling-Carrier Photo Diode: UTC-PD) に入射することで、FS テラヘルツ波が放射される。マイケルソン干渉計を構築し、合波後のテラヘルツ波をショットキーバリアダイオード (Schottky Barrier Diode: SBD) 検出器で検出することで、干渉計の光路差に応じた RF ビート信号が得られ、この信号の周波数解析することで距離情報の取得が可能となる。信号対ノイズ比の向上および計測可能な距離レンジの拡大を目指し、テラヘルツ波増幅器を導入し、FS テラヘルツ波の出力を約 30dB 増幅させた。さらに、SBD 検出の電流プリアンプに広帯域性能を有するものを使用し、周囲環境ノイズの少ない高次ビート信号の帯域を計測対象とすることで、ノイズの低減を試みた。

### (2) 信号解析

欠陥位置が未知の対象に対して遠隔かつ非破壊で 3 次元断層像を構築するには、コリメートされたテラヘルツ波ビームを照射することになる。この場合、面内方向に関しては、テラヘルツ波ビームの直径=分解能となる。コリメートビームの場合には 10mm 程度の大きさとなる。このような状況においては、電波や超音波領域で利用されている合成開口の手法が有効である。電波領域では到来方向を推定する MUSIC 法 (Multiple Signal Classification) 等、高精度な到来波推定法が研究されている。また、超音波領域では相関合成法等、映像コントラストを上げる解析法が研究されている。本手法を適用することで、コリメートビームを

用いながらテラヘルツ波長と同程度 (1mm 程度) の高分解能化の実現に取り組んだ。また、POLAR 法 (POLARimetric Synthetic Aperture Radar) とは、電波照射および検出時に偏波制御を行い、偏波シグネチャを解析することで、反射体の形状を推定する手法である。本手法は、コントラストの得られにくい対象に対して極めて有効であり、欠陥形状の推定精度向上に取り組んだ。

### (3) 建築資材解析

建築物資材として重要なコンクリートに対し、内部空隙密度や乾燥過程における水分含有量をパラメータとし、テラヘルツ波帯における反射性、透過性などの基礎的な材料評価を実施することで、非破壊検査において基盤となる情報を蓄積する。かつ、人為的に欠陥部位を生成したコンクリートを測定対象として、FS テラヘルツ波による非破壊検査時の問題点の抽出および改善のフィードバックを行い、新規手法としての有用性の確立に取り組んだ。

## 3. 研究成果

### (1) 光源/検出系開発

FS テラヘルツ波出力を3桁以上増強させ、10mW を越える光源高出力化に成功した。これにより、20dB を越えるSN比の向上に成功し、ビート信号計測時間を200秒から1秒程度に大幅に短縮する事に成功した。当初は10mm程度であった測定距離レンジも、3m オーバーへと大幅な拡大に成功した (図1)。尚、現在の測定レンジは光学定盤の大きさで制約されており、SN比から考えると10mを越える距離での測定も十分可能である。

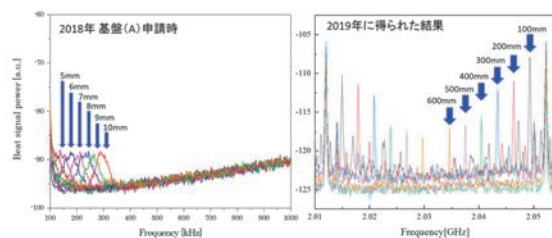


図1 研究開始前後での距離情報を有したRFビート信号の比較

### (2) 信号解析

THz-TDS を用いた高分解能イメージング技術において、偏波方向による反射体間の虚像の削減および凹レンズによる有効映像領域の拡大に成功した。層状誘電体の裏にある金属サンプルのイメージング探査に挑戦し、誘電体による伝搬経路歪みの補正手法を提案しその効果を確認できた。複数の相関次数を用いた映像結果の合成によって探査対象によらない相関次数のロバスト化を図った。不要波成分を推定するための複素スペクトルモデルの有効性を確認でき、基準信号の位相成分を取り入れることで距離測定のSN比向上の可能性を見出した。

円弧状合成開口アレーの信号を複数の仮想的な等間隔直線アレー信号に変換して相関低減処理を適用する位置推定法を考案し、従来識別できなかった波長間隔程度のターゲットを識別できることを確認した。複数の仮想的アレー信

号に変換する手法を適用し、ターゲット分離ができることを確認した。圧縮センシングの一手法であるFISTAにより、位置と反射電力を同時推定できることを確認した。測定信号を、仮想的に生成したアレー信号に変換して空間平均を行う手法を適用し、ターゲット分離性能を改善できることを確認した。

THz-TDS に偏波解析を導入し、新たなターゲット識別手法を確立した。かつ、金属平板を用いた校正量を用いることで識別精度が向上することを明らかにした。また、合成開口処理を導入 (THz-POLSAR) することで、焦点ずれを起こすことなく、アジマス方向に構造変化を持つターゲットの識別能力向上を実現した。

紙で覆われたコンクリート表面のサブミリ幅の亀裂の検知に向けて、近接場散乱を使用した非破壊ミリ波イメージングを実施した。紙の厚さやアンテナ高さを精密に制御することにより、ミリ波像におけるひび画像のコントラストを10dB以上向上することができた。プローブ信号に60-90GHzのスペクトル信号を使用し、紙の厚さに依存する定在波が発生する周波数で計測することでも、ひび画像のコントラストを10dB以上向上することができた。

### (3) 建築資材解析

水分含有率の異なるコンクリートサンプルに対し、THzエリプソメトリにて複素屈折率測定を実施した。乾燥過程および応力印加時における屈折率の変化が確認された。コンクリートによる反射テラヘルツ波の強い偏光依存性に着目することで、応力付加情報を抽出できる可能性を見出した。

IMPATTダイオードによるTHz光源を、カンチレバー・プローブの走査領域下に直接照射できるようなアライメントを可能とする光てこヘッドを設計、作製した。ケルビンプローブ法による電位計測のための電圧フィードバック回路を再設計した。ケルビンプローブ法による電位計測のための電圧フィードバック回路を再設計し、低ノイズ化を図ることができた。

## 本研究に関する主な発表論文

- (1) Y. Kamagata, H. Nakabayashi, K. Suizu, and K. Cho, IEICE Commun. Express, 7, 266 (2018).
- (2) K. Sato, R. Toh and K. Suizu, Jpn. J. Appl. Phys., 57, 122502 (2018).
- (3) A. Hirata, M. Nakashizuka, K. Suizu, and Y. Sudo, IEICE Trans. Electron., E103.C, 216 (2020).
- (4) N. Ishizaki, R. Toh, and K. Suizu, Jpn. J. Appl. Phys., 59, 122003 (2020).
- (5) 水津光司, 非破壊検査, 69, 502 (2020).
- (6) K. Cho, K. Watakabe, H. Nakabayashi and K. Suizu, Jpn. J. Appl. Phys., 60, 72001 (2021).

## 参考文献

- (1) 碓智文, 福永香, 検査技術, 18, 23 (2013).
- (2) K. Nakamura, T. Hara, M. Yoshida, T. Miyahara, H. Ito, IEEE J. QUANTUM. ELECTRON., 36, 305 (2000).

---

研究項目 : 科学研究費助成事業 (基盤研究 (A))  
研究期間 : 2020/4/1 ~ 2021/3/31  
研究課題名 (和文) : 拡張可能な学習支援システムのための分散マルチプラットフォームアーキテクチャの研究

研究課題名 (英文) : Research on Distributed Multi-Platform Architecture for an Extensible Learning Support System

研究者 : ○仲林 清 NAKABAYASHI Kiyoshi	千葉工業大学 情報科学部 情報ネットワーク学科 教授
森本容介 MORIMOTO Yosuke	放送大学 教養学部 准教授
池田 満 IKEDA Mitsuru	北陸先端科学技術大学院大学 知識科学研究科 教授
瀬田和久 SETA Kazuhisa	大阪府立大学 人間社会システム科学研究科 教授
田中孝治 TANAKA Kouji	金沢工業大学 情報フロンティア学部 講師
田村恭久 TAMURA Yasuhisa	上智大学 理工学部 教授

---

## 1. はじめに

教育品質向上や内容豊富化のために、学習コンテンツや学習方略記述の流通再利用性が不可欠である。一方、学習支援システムには機能拡張性が求められる。しかし、流通再利用性と機能拡張性の両立は一般に困難である。そこで、報告者は「教材オブジェクト」と呼ぶ概念を導入した学習支援システムアーキテクチャ ELECOA (Extensible Learning Environment with Courseware Object Architecture) を提案した。機能追加の際は新規の教材オブジェクトを追加する。既存コンテンツは既存教材オブジェクトを使用して動作するため機能追加の影響を受けず、機能拡張性を向上できる。これを活用し、SCORM 規格準拠の独習環境、グループ型作問学習環境などを実装した。さらに、各種学習制御に共通する教材オブジェクト間の基本通信パターンを見出した。これによって、個別に開発された独習用コンテンツをグループ学習で再利用できること、グループ型作問学習など実用的な学習環境が実現できることを示した[1]。

以上を踏まえ、本研究では、再利用可能な教材オブジェクトが、Web サーバやスマートフォンなどの複数プラットフォームに分散・連携するマルチプラットフォーム学習環境の検討・開発を行う。

## 2. 教材オブジェクトのデザインパターン

対象とする学習制御構造は木構造型で、各ノードに教材オブジェクトを配置する。サブツリーの再利用を可能とするため、教材オブジェクトの通信は、親子間に限定する。親子間通信を組み合わせ、「シーケンシング処理」、「ロールアップ処理」、「ポストコンディションルール処理」、「学習コマンドリスト生成処理」に対応する4つの共通的な通信パターンを定義する[1]。これを実装した教材オブジェクトは自由に組み合わせることができ、新たな学習制御機能を容易に追加できる。

この通信パターンを満たすための教材オブジェクトのデザインパターンを図1に示す[1]。Leaf, Block, Root は木構造の各ノードの教材オブジェクトである。各ノードは、親子間通信を行う隣接通信層、4つの通信パターンを実装する基本通信層、教材オブジェクト固有の学習制御機能を実装するアプリケーション層からなり、全体としてレイヤ型のデザインパターンを構成する。隣接通信層のインスタンスは通信の内容には関知しない。学習者のコマンドを左端の Command Entry が受け取り、4つの通信パターンを起動する。学習制御処理は、4つの通信パターンに対応した基本通信層から起動されるアプリケーション層のメソッドで実行される。

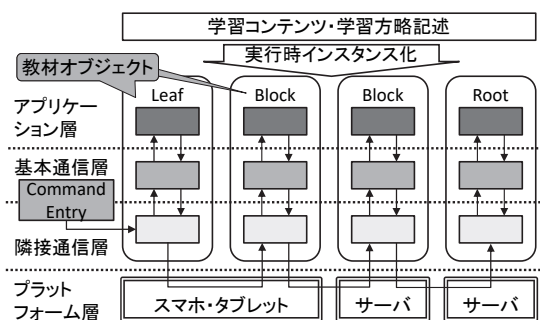


図1 レイヤーデザインパターンによる教材オブジェクト間通信

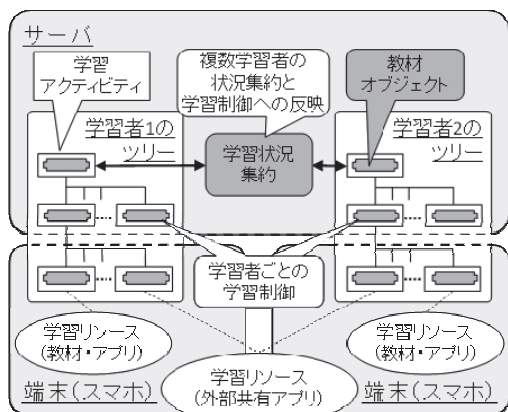


図2 分散マルチプラットフォーム学習環境

### 3. 分散マルチプラットフォーム学習環境

図1のデザインパターンでは、隣接通信層と各教材オブジェクトの学習制御を実装する基本通信層、アプリケーション層が明確に分かれている。従って、物理的な通信手段を上位層から隠ぺいすれば、教材オブジェクトの学習制御機能がサーバ、スマートフォン、電子教科書など、複数プラットフォームで再利用可能な分散マルチプラットフォーム学習環境を実現できる[2]。この学習環境の構成イメージを図2に示す。コンテンツツリーは、サーバとスマートフォンなどにまたがって配置される。通常は、端末がサーバと通信してグループ学習のための学習制御が行われ、端末がオフラインになった場合も、端末上の教材オブジェクトによって独習が可能である。

このような分散マルチプラットフォーム学習環境を実現するうえで検討すべき課題を挙げる。

- (1) 分散プラットフォームアーキテクチャ
- (2) 教材オブジェクト間通信最適化方式
- (3) 教材オブジェクト動的再配置方式
- (4) 実用的学習支援環境への適用

2020年度は、2019年度的设计・実装結果を受けて研究を進めた。「(2)教材オブジェクト間通信最適化方式」については、実装済の「最適化方式1: ロールアップ処理での学習状態変化の影響を考慮して、上位ノードの通信を省略する方式」に加え、「最適化方式2: 学習状態を上位に伝搬させるロールアップルールやポストコンディションルールを学習実行前に評価して、ルール実行の条件を洗い出しておくルールプリコンパイル方式」を実装した。SCORM規格の100種のテストケースを用いた評価で、最適化なしの場合に比べて約80%の通信を削減でき、特にコンテンツツリーのルートに近い部分の通信を削減できることを確認した。

また、「(3)教材オブジェクト動的再配置方式」について詳細設計・実装を行った。これによって、教室のようにサーバと直接通信が可能な環境では、グループ学習などが円滑に実施できるように、サーバ上で教材オブジェクトを動作させて学習者間の通信オーバーヘッドを低減し、家庭や移動中などサーバと通信できない環境では、サーバ上の独習教材部分をスマートフォンなどにダウンロードして学習を継続することが可能となった[2]。オンライン・オフライン環境の画面例を図3に示す。

さらに、「(4)実用的学習支援環境への適用」について、本学習支援システムを用いた学習シナリオの検討を行い、独習とグループ型作問学習を組み合わせた反転学習型学習シナリオを実装した[2]。

### 参考文献

- [1] 仲林 清, 森本容介 (2018) 拡張性を有する学習支援システムにおける再利用性向上のための教材オブジェクトデザインパターンの設計と実装, 教育システム情報学会誌, 35(3), 248-259.
- [2] 仲林 清, 森本容介 (2021) 拡張性を有する学習支援システムアーキテクチャに基づく分散マルチプラットフォーム学習環境の設計と試作, 教育システム情報学会研究報告, 35(6), 1-8



図3 画面例 左: ブラウザ オンライン 右: スマートフォン オフライン

# 〔科学研究費助成事業一覽〕







## 科学研究費助成事業一覧

No.	種目	氏名	研究課題名
1	新学術領域研究 (研究領域提案型)	安武 伸俊	重力波の理論計算へ向けたクォーク＝ハドロン相転移の色分子力学による導出
2	基盤研究(A)	水津 光司	周波数シフトテラヘルツ波による建築物非破壊診断
3	基盤研究(A)	仲林 清	拡張可能な学習支援システムのための分散マルチプラットフォームアーキテクチャの研究
4	基盤研究(B)	原 祥太郎	高靱性な固体酸化物形燃料電池の電極製造に向けた新しい設計基盤の構築
5	基盤研究(B)	小澤 俊平	二元系合金融体の表面張力に及ぼす組成および酸素吸着の影響解明
6	基盤研究(B)	渡邊 宇外	ミトコンドリアゲノムから探る樹木の形成層活動と二次木部形成
7	基盤研究(B)	谷本 茂明	マルチペリメータラインに基づく多層防御セキュリティシステムの研究開発
8	基盤研究(B)	國宗 永佳	教育実践研究と教授・学習支援システム研究とのマッチングプラットフォームの開発
9	基盤研究(B)	枚田 明彦	機能性誘電体層集積導波管スロットアレーアンテナとその近接テラヘルツ無線応用の研究
10	基盤研究(C)	小林 学	橋梁・機械技術を中心とした技術の内的・外的要因の分析に関する研究
11	基盤研究(C)	安武 伸俊	現実的な相互作用を反映した色分子力学によるクォーク＝ハドロン相転移の解明
12	基盤研究(C)	手嶋 吉法	3D ジグソーパズルの設計理論の構築及び製作法
13	基盤研究(C)	上田 隆一	自律ロボットが情報の不確かさを克服して危険を回避しタスク達成するための行動決定法
14	基盤研究(C)	鈴木 進	大気汚染物質による窒素準安定励起分子の失活レート係数測定
15	基盤研究(C)	安藤 毅	酸化スズ薄膜結晶の酸素欠損補償によって実現される 1ppb 感度の呼気ガスセンサ
16	基盤研究(C)	佐藤 徹治	人口減少・災害リスク・新たな移手段の普及を踏まえた都市施策の評価手法の開発
17	基盤研究(C)	望月 悦子	調光・調色制御による動的 LED 照明空間の最適化
18	基盤研究(C)	藤木 竜也	地方所在の中央官庁高官官舎にみる「和洋館並列型住宅」の特質と展開に関する研究
19	基盤研究(C)	喜多村正仁	提携影響力を考慮した複合的コンフリクト分析方法の開発
20	基盤研究(C)	佐野 雅隆	臨床検査室の品質と能力を確保する実践的な質マネジメントシステムの開発
21	基盤研究(C)	井上 泰志	反応性プラズマ環境下の斜入射堆積法によるナノ構造化薄膜堆積技術の確立
22	基盤研究(C)	柴田 裕史	光応答性ヤヌス粒子を用いたピッカリングエマルジョンの調製および内包物放出制御
23	基盤研究(C)	田村 洋介	アルミニウム合金で観察された新奇な電磁分離現象の発現条件とその理解
24	基盤研究(C)	菅 洋志	ナノ材料を用いたナノギャップ NMES 素子の動作機構解明と記憶素子応用技術の開発
25	基盤研究(C)	亀谷 雄樹	太陽熱蒸留システムにおける界面現象の制御
26	基盤研究(C)	坂本 泰一	繊維芽細胞増殖因子 FGF5 と受容体の相互作用およびアプタマーの阻害機序の解明
27	基盤研究(C)	藤原 明広	時空間永続証明システムのためのブロックチェーン基盤技術の開発と偽情報対策への応用
28	基盤研究(C)	大川 茂樹	音響計測・音響制御におけるロボティクス技術の利用に関する基礎的研究
29	基盤研究(C)	米田 完	ロボットから人間の2足歩行に応用する安定化ペースメーカーの研究
30	基盤研究(C)	熊本 忠彦	ツイート投稿者の感情を推測するための統合的な基盤技術に関する研究
31	基盤研究(C)	山崎 治	複数テキストからの学習に対する図の活用による支援の基礎的研究
32	基盤研究(C)	浜野 志保	近代ドイツにおけるダウジングの流行
33	基盤研究(C)	徐 春暉	投資時間の不確実性を取り入れたポートフォリオ選択問題に関する研究
34	基盤研究(C)	松井 伸介	AFM 触針スクラッチ加工による加工現象の研究
35	基盤研究(C)	宮田 高道	確率的非分解型テンソル復元とその画像・信号処理への応用
36	基盤研究(C)	鎌倉 浩嗣	イメージセンサ型可視光通信のための通信範囲拡大技術
37	基盤研究(C)	中静 真	結合畳み込み型辞書学習によるクロスモーダル信号確定と非接触センシングへの応用
38	基盤研究(C)	安川 雪子	ホットスポットと量子効果の増強を起源とする新原理磁気物質：センサ材料の新開発
39	基盤研究(C)	鴻巣 努	タイおよびベトナムにおける現地採用人材のワークモチベーションに関する研究
40	基盤研究(C)	齊藤 史哲	コネクションリストモデルを用いた消費者語彙における感性情報の抽出と共感構築
41	基盤研究(C)	秋葉 知昭	多次元多状態に拡張した多目的ネットワークの統一的最適設計方法の研究
42	基盤研究(C)	滝 聖子	ワークライフバランス支援のための技術・技能・健康のコミュニケーションデザイン
43	基盤研究(C)	世木 秀明	音声知覚特性を考慮した聞き取りやすく情報伝達に優れた放送方式に関する研究
44	基盤研究(C)	金田 晃一	ヒトは水中環境で自身の身体動作をどの程度再現できるのか？単関節動作による検討
45	基盤研究(C)	秋田 剛	デジタル画像相関法を用いた有限要素解析モデルのデータ同化に関する研究
46	基盤研究(C)	竹本 浩典	オペラ歌唱における音道と横隔膜の制御に関する研究
47	基盤研究(C)	飯田 一博	音の高精度バーチャルリアリティを実現するための個人化頭部伝達関数の生成
48	基盤研究(C)	三浦 元喜	プログラミング教育における細粒度活動履歴に基づくラーニングアナリティクス
49	基盤研究(C)	五明美智男	地域環境リテラシーと社会人基礎力を高める環境調査手法の開発・活用に関する実践研究
50	基盤研究(C)	瀧野日出雄	光学面精密創成用小径イオンビーム加工技術の開発
51	基盤研究(C)	青木 岳史	災害救助活動の支援を目的とした柔軟変形ロボットの開発
52	基盤研究(C)	佐波 孝彦	移動体通信における通信路情報に基づくポーラ符号化法とその応用
53	基盤研究(C)	熱海 武憲	可視化されたロバスト機構・制御系統合化設計法の確立と次世代HDDへの応用
54	基盤研究(C)	藤田 茂	軽量 N パーティ秘匿関数計算の一般化に基づくセキュアな IoT モデルの提案
55	基盤研究(C)	八島 由幸	画像圧縮符号化への機械学習応用に関する研究
56	基盤研究(C)	清水 邦康	振動モード間の共鳴を基礎とした結合振動子系にみられる波動解析への新たな展開
57	基盤研究(C)	王 志東	生物の群逃避行動を模倣する群ロボットの反射的振る舞いの高速伝播メカニズムの実現
58	基盤研究(C)	亀田 豊	河川、内湾水中マイクロプラスチック挙動解明と代替物質利用による将来濃度予測
59	基盤研究(C)	木村 博子	省略現象と東北方言の考察に基づく、格助詞・後置詞・前置詞特性の解明

60	基盤研究(C)	有本 泰子	感情の連続的な変化を推定するリアルタイムマルチモーダル感情認識システムの構築
61	基盤研究(C)	東山 幸司	二重ベータ崩壊の半減期評価のための原子核構造の精密計算
62	挑戦的研究(開拓)	安藤 昌也	人間中心設計と人類学の対話によるシステム設計思想：HCDを多元化する挑戦的試み
63	挑戦的研究(萌芽)	國宗 永佳	プログラム動作の理解を表出する課題における誤答原因推定手法の開発
64	若手研究	木島 愛	凝結表現の日仏データベース構築
65	若手研究	福島 尚子	学校財務経営の法社会学的分析
66	若手研究	原口 亮介	カルベン配位子を基盤とする異種二核金属錯体触媒の開発
67	若手研究	大貫 俊彦	明治二〇年代の元禄文学復興における内田不知庵の芭蕉及び蕉門俳諧の評価に関する研究
68	若手研究	小山 勇也	ウェアラブルセンサとVRによる無拘束な介護動作の教示学習支援システムの開発
69	若手研究	高木 彩	萌芽技術に対するリスクの認知機構の解明
70	若手研究	蛭子 彰仁	超幾何級数の値
71	若手研究	佐藤 和	運動学習効率の向上に高圧酸素曝露は貢献するか
72	若手研究	川西 範明	免疫系に着目した運動トレーニングによる熱産生機能向上のメカニズムの解明
73	若手研究	信川 創	神経ネットワークダイナミクスに着目した認知症の早期診断システムの構築
74	若手研究	藤井 浩光	緊急災害対応における無人化施工のためのオペレータ支援システム
75	国際共同研究強化(A)	安川 雪子	局在表面プラズモン共鳴から励起されるホットスポット電界による磁気物性の操作
76	研究活動スタート支援	木下 雅之	複数カメラを用いた可視光通信システムの高度化
77	研究活動スタート支援	大野 遼	シリカ鉱物を用いた隕石の熱史の定量的な制約手法の開発

\*各センターを除く

\*プロジェクト研究年報への掲載は任意である

---

---

千葉工業大学 プロジェクト研究年報 2021年

Vol.18

令和3年9月発行

編集発行：千葉工業大学 附属研究所

---

---



千葉工業大学

CHIBA INSTITUTE OF TECHNOLOGY

〒275-0016 千葉県習志野市津田沼2-17-1

2-17-1, Tsudanuma, Narashino, Chiba 275-0016, Japan

Tel:047-478-0325

Fax:047-478-0434