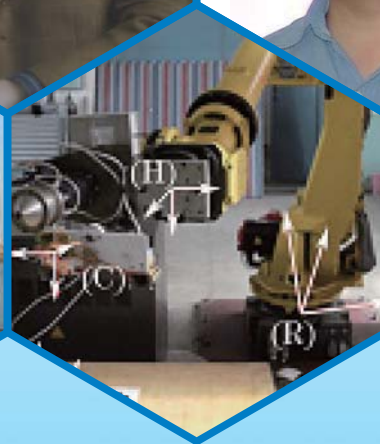
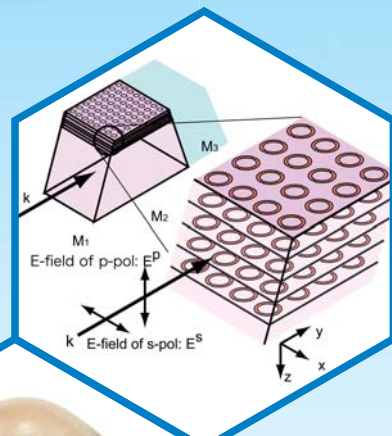


中国・日本科学最前線

— 研究の現場から —

2012年版



独立行政法人 科学技術振興機構 (JST)
中国総合研究センター

目次

材料科学

- 色素増感型太陽電池の研究現状及び展望…………… 3
孟 庆波（中国科学院物理学研究所再生可能エネルギーセンター 副主任）
- 機能性高分子材料の研究及びその応用…………… 13
金 明（同济大学材料科学・工学部機能性高分子材料研究所 准教授）
- 半金属一次元ナノ熱電材料研究の進展…………… 17
李 広海（中国科学院固体物理研究所 ナノ材料・ナノ構造研究室 主任）
- 高分子ナノ材料研究最前線…………… 21
西 敏夫（東北大学原子分子材料科学高等研究機構 教授）
- プラズモニック・メタマテリアル…………… 25
田中 拓男（独立行政法人理化学研究所 田中メタマテリアル研究室）
- 次世代ナノ電子デバイスの研究開発シナリオ
～新デバイス材料としての機能性酸化物の適用を例にとって～…………… 29
秋永 広幸（産業技術総合研究所・ナノ電子デバイス研究センター）
- 電子ペーパーのカラー化に向けた新ナノ複合材料（有機／金属ハイブリッドポリマー）の開発…………… 33
樋口 昌芳（（独）物質・材料研究機構 独立研究者／グループリーダー）

バイオエネルギー技術

- バイオリファイナリー細胞工場の科学的基盤…………… 39
馬 延和（中国科学院微生物研究所 研究員）
- バイオブタノール製造技術の現状と展望…………… 43
楊 晟（中国科学院合成生物学重点实验室 研究員）
- エネルギー微生物油脂技術の進展…………… 49
趙 宗保（中国科学院大连化学物理研究所 研究員）
- セルラーゼとリグノセルロースの生分解変換に関する研究の進展…………… 53
方 翀（山東大学生命科学学院、微生物技術国家重点實驗室、国家糖工学技術研究センター 教授）

- 酵素法によるバイオディーゼル合成の工業化プロセスに関する研究…………… 57
譚 天偉（北京化工大学 副学長）

地震予測研究

- 四川大地震原因はダム貯水なのか…………… 63
陳 颺（中国地震局地球物理研究所 院士）
- 粒状媒質中の地震前兆探測と前兆応力-ひずみの伝播モデル…………… 67
陸 坤権（中国科学院物理研究所 研究員）
- 大地震の二次災害の研究…………… 73
趙 振東（中国地震局工程力学研究所 研究員）
- 地震前兆現象の判断根拠…………… 77
邱 沢華（中国地震局地殻応力研究所地震観測予報研究室チーフエンジニア）
- 中国大陸強震動観測…………… 81
蘆 大偉（中国地震局地殻運動モニタエンジニアリング研究センター プロジェクトチーフ）

海洋開発技術

- 海底淡水資源の存在条件と舟山海域海底淡水資源の分布…………… 87
張 志忠（青島海洋地質研究所 研究員）
- 海洋エネルギー発電技術の現状と展望…………… 91
遊 垂戈（中国科学院広州エネルギー源研究所海洋エネルギー実験室 主任）
- 海浜地形変化と海岸浸食のメカニズム
～Progresses on Study of Nearshore Processes and Coastal Erosion Mechanisms～…………… 97
陳 子燦（中山大学水資源と環境学科 教授）
- 深海の超好熱微生物の多様性とその資源的潜在能力…………… 101
肖 湘（上海交通大学生命科技学院 教授）
- 高い空間解像度に基づく熱汚染リモート・センシングの研究の現状…………… 105
趙 冬至（国家海洋環境監視センター 研究員）
- 海水淡水化と経済の持続的発展におけるその役割…………… 111
王 世昌（天津大学化工学院 教授）

宇宙科学

- 現代の宇宙用光学リモートセンサの応用と発展…………… 119
胡 君（中国科学院長春光学精密機械・物理研究所 研究員）

- 中国の次世代月探査衛星による重力測定計画に関する研究……………123
鄭 偉（中国科学院測量・地球物理研究所 副研究員）
- 嫦娥1号のレーザ測距データ及び月全球のDEMモデル……………127
李 春来（中国科学院国家天文台長補佐）
- 火星EDLの航法、誘導、制御技術の概要及び展望……………133
李 爽（南京航空航天大学 副教授）
- 構造軽量化を実現した新型成層圏飛行船研究の進展……………137
譚 惠豊（ハルビン工業大学航天学院複合材料・構造研究所 副所長）

電子情報技術

- 生物誘導によるロボット歩行制御に関する研究の進展」……………143
陳 啓軍（同済大学控制科学・工程系 教授）
- 大口径光ファイバレーザ装置の新たな展開……………149
楼 祺洪（中国科学院上海光学精密機械研究所 研究員）
- スパムメール対策方法の研究の進展……………153
譚 營（北京大学信息科学技术学院 教授）
- 光ファイバセンサに対する放射線の影響に関する研究の状況……………159
周 次明（武漢理工大学 教授）
- 表面プラズモンポラリトンにより強化された薄膜太陽電池性能に関する研究の進展……………165
陳 鳳翔（武漢理工大学副教授）
- 情報科学技術の長期的傾向及びわが国の戦略的方向性……………171
李 国傑（中国工程院院士 中国科学院計算技術研究所所長）

ナノ材料科学

- ナノ系難燃高分子材料：現状、問題及び展望……………179
方 征平（浙江大学寧波理工学院高分子材料・工程研究所 所長）
- ナノ材料による細胞の構造及び機能への影響に関する研究……………183
梁 偉（中国科学院生物物理研究所 研究員）
- イオンドープにより改質されたナノTiO₂光触媒の研究……………187
施 惠生（同済大学環境材料研究所所長）
- リチウムイオン電池のナノフィルム電極材料」……………191
傅 正文（復旦大学化学系 教授）
- ナノテクノロジーの標準化プロセス及び倫理的問題……………197
沈 電洪（中国科学院物理研究所国家ナノ科学センター研究員）

- 台頭しつつあるRNAナノテクノロジー 201
肖 守軍（南京大学配位化学国家重点実験室 副主任）

ナノ技術

- 光電気機能性結晶材料の研究の現状 209
王 継揚（山東大学晶体材料国家重点実験室 教授）
- 先進原子力システムにおけるナノ材料及びナノテクノロジーの実用化の可能性 217
石 偉群（中国科学院高エネルギー物理研究所副研究員）
- 生分解性マグネシウム合金の研究現状及び展望 221
鄭 玉峰（北京大学工学院材料科学・工程系 教授）
- 形状記憶複合材料及びその空間展開可能構造における応用 225
冷 勁松（ハルビン工業大学複合材料・構造研究所 教授）
- 中枢神経再生材料の研究の状況 231
崔 福齋（清華大学材料科学工程系再生医学・生体材料研究所 所長）

レーザー技術

- 材料力学特性のレーザ制御 237
陳 光南（中国科学院力学研究所 研究員）
- 一次元の有機マイクロ・ナノ光機能性材料の研究 243
姚 建年（中国科学院化学研究所研究員、中国科学院院士）
- レーザ光を用いたナノ製造技術の応用 247
鐘 敏霖（清華大学機械工程系レーザ加工研究センター・先進成形製造教育部重点実験室 教授）
- 多波長レーザ照射によるフォトニック集積回路技術 251
祝 寧華（中国科学院半導体研究所研究員）
- 共振吸収型導波路アレイの原理、特性、製作及び利用 257
周 建英（中山大学光電材料・技術国家重点実験室教授）
- グラフェンを可飽和吸収体に用いた超高速モード同期固体レーザの研究 263
何 京良（山東大学結晶材料国家重点実験室 教授）

ロボット技術

- 社会的知能に関する科学の形成及び発展 269
戴 汝為（中国科学院自動化研究所・中国科学院院士）
- サイバー物理システムの発展の概要 275
林 峰（同済大学電子情報工程学院特任教授、米国・ウェイン州立大学教授）

●外科手術用ロボットの実用化及び研究の現状……………	281
張 詩雷（上海交通大学医学院附属第九人民医院口腔顎顔面外科副教授、副主任医師）	
●レーザ再製ロボットのマシンビジョン技術の現状……………	285
楊 洗陳（天津工業大学教授、博士課程指導教員、レーザ研究所所長）	
●物連網の技術的思想及び応用戦略に関する研究……………	293
朱 洪波（南京郵電大学副校長。教授、博士課程指導教員）	

材料科学

多能性幹細胞の樹立と応用

Profile



孟 慶波 Meng Qingbo ●中国科学院物理学研究所再生可能エネルギーセンター副主任

1964年10月吉林に生まれる。1987年吉林大学物理学部を卒業し、1997年中国科学院長春応用化学研究所で博士学位を取得する。1987年～1997年中国科学院長春応用化学研究所で研究実習員、助理研究員を務め、1997年～1999年中国科学院物理研究所でのポストドクターを経て、1999年～2002年、日本科学技術庁特別研究員（STA Fellow）、東京大学及び神奈川科学技術アカデミーで専任研究員を務める。2001年に中国科学院「百人計画」に入選し、研究員、博士生导师を務める。2005年中国科学院「百人計画」優秀賞を受賞し、2007年国家傑出青年基金を獲得した。現在中国科学院物理研究所クリーンエネルギーセンター副主任、クリーンエネルギー実験室主任を務める。中国再生可能エネルギー学会理事、中国再生可能エネルギー学会光化学委員会委員、[Electrochemical Communications] 誌編集委員。

近年、J.Am.Chem.Soc.、Adv.Mater.、Appl.Phys.Lett.、Chem.Comm.、J.Phys.Chem.BなどSCIに収録されるハイレベルな学術誌に70本余りの論文を発表し、国内外の同分野の研究者に広く認められており、被引用数は700以上である。中国特許32件、日本特許1件を出願、うち9件に特許権が付与されている。

共著者：Dongmei Li；Yanhong Luo

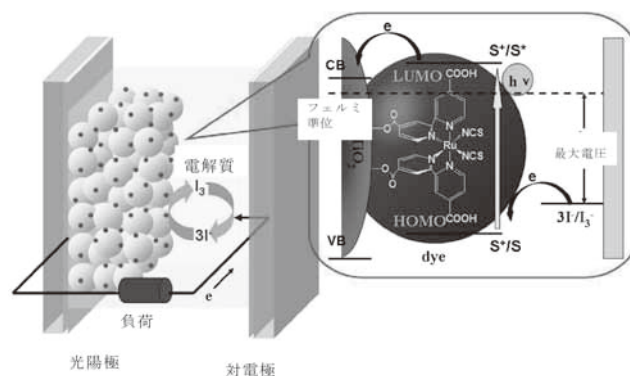
要約

本論文は基本原料である光陽極、色素、電解液及び対電極を含む、色素増感型太陽電池（DSC）の研究に関する進歩の概要を提示し、アップサイジング・テクノロジー及びDSC全体についての最近の開発並びに進展を検証した。

1. はじめに

現在、人間の生活は石油、石炭及び天然ガスと言った日常のエネルギー源に依存している。世界中の年間のエネルギー消費はすでに400エクサジュールを越えていて、人口の増加に伴ってより拡大することが予想されている[1]。特に、発展途上国におけるエネルギー需要は劇的に増加しており、結果的にエネルギー不足と炭素に富む化石燃料の枯渇を加速させている。さらに、増加する燃料の使用から派生する悲惨な環境汚染及び「温室効果ガス」を原因とする気候の変化が人々の注目を集めている。従って、このような「エネルギー危機」を解決する有効なエネルギープランが見いだせなければ、人間の生活の質は近い将来脅威にさらされる。幸いにも、太陽エネルギーの供給はとてつもなく大きく、このエネルギー問題を環境に優しい形で解決することができるかも知れない。太陽光を電力に転換する太陽光発電（PV）は、1950年代後半[2]に最高の半導体材料としてシリコンが開発されてから日増しに注目を浴びている。現在すでに、シリコンを原料とした太陽光発電は世界の90パーセント以上の市場を占めている[3]。しかし、シリコンを原料とする太陽光発電のモジュールコストはまだ非常に高く、原料が世界的に一段と安くならなければ、幅広いアプリケーションを実現するのは難しい。このように、より少量の原料を使用し、より安価に精製できる材料を使用する太陽光発電技術が望まれている。一言で言えば、廉価で扱いが容易な太陽電池の希求が、新しい太陽光発電の設計につながる。色素増感型ナノ多孔質膜

をベースとする新しいタイプの太陽電池（色素増感型太陽電池（DSC）が、1991年にグレッツェル教授（Prof. M. Grätzel）[4]により発明された。それ以来、この新しいタイプの太陽電池は、その廉価性、安易な製造方法及び相対的に高い変換効率性から、いくつもの分野での研究開発に大きな影響を及ぼした[5]。



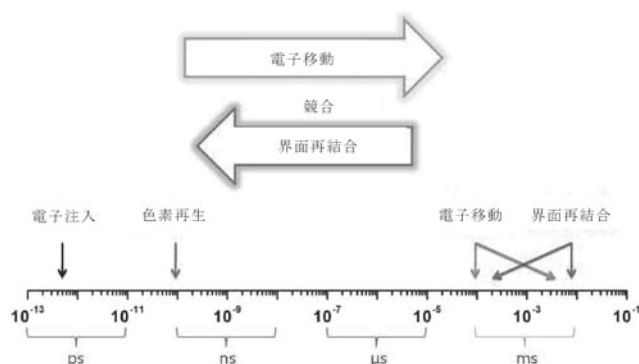
◎図1 DSCの構造及びエネルギーレベル略図

2. 色素増感型太陽電池（DSC）の作動原理

色素増感型太陽電池は多要素装置であり、単層の色素分子で覆われたナノ結晶多孔質半導体酸化膜（殆どがTiO₂）、レドックス対（I₃⁻/I⁻）を含む電解質、および対電極が主な構成である。その作動原理を図1に示している。いくつかのプロセスがその仕組みの中に含まれていて、まず、色素が光子の吸収により励起し、素早くTiO₂の伝導帯に電子を注入する。その後、電子は外部回路を通り対電極に到達し、そこでI₃⁻イオンが還元される。最終的に色素分子はI⁻により再生される。これらの正反応の他にもまた、励起状態の色素の減衰や注入された電子と励起した色素あるいはI₃⁻イオンとの再結合を含むいくつかの望ましくない逆反応が存在する。事実、発電は正反応と逆反応との間の動的競合の産物であり、効率的な

セルは正反応を促進し、逆反応を弱めるものである[6]。

DSCはこれまでのシリコンをベースとしたPVとは異なり、その光吸収及び電荷分離プロセスは、光捕集材としての増感剤及び電荷輸送キャリアとしての半導体材という二種類の異なった物質の助けを得て達成される。このユニークな特徴はDSCにおける光合成電子移動プロセスの熱力学、特に、電子的に励起された色素からの超高速の電荷注入及びレドックス対による酸化した色素の素早い還元の原因する、図2を参照[7]。色素増感型太陽電池はp/n接合PV装置と比較しても、技術的にも経済的にも代替となる概念を提供する。DSCの物理的プロセスの完全な理解の上に立ち、DSCを構成するいくつかの成分を注意深く設計することが、光から電気への変換効率を向上させるために極めて重要である [8]。ここでは、DSCの材料及び技術的開発に関連して、主に4つの部分に取り組むが、我々の最近の成果を含む代表的な例にもハイライトを当てる。



◎図2 DSCの光から電気への変換における動的プロセス

3. 色素増感型太陽電池 (DSC) の開発

3.1 光陽極

ナノ結晶半導体光陽極は光子を電気エネルギーに変換する際に重要な役割を担っている。それは色素ホルダーであり、光の捕集や光生成による電子注入及び収集に必要不可欠であると同時に、いくつかの望ましくない電子再結合を含んでいる。二酸化チタン (TiO_2)、酸化亜鉛 (ZnO)、酸化錫 (SnO_2)、五酸化ニオブ (Nb_2O_5) 等の各種の半導体材料はDSCの光陽極として使用されている[9]。これまでのところ、アナターゼ型二酸化チタン (anatase TiO_2) がDSCにもっと適した材料であり、最高の光電変換性能を提供している。一方で、酸化亜鉛 (ZnO) はその高い電子移動能力及び電子拡散の早さにより、二酸化チタン (TiO_2) の理想的な代替材料とされている[10]。DSC光陽極への需要は多重である。DSCへの二酸化チタンナノ粒子膜の導入が早期に成功したのは、色素コーティングに大きな表面積を提供できたからである [4]。また、光路長や多孔性、機械的強度及び粒子結合性と言ったそ

の他の要素も光電変換性能に大きく影響する。ここでは光電変換性能の向上を図るために光陽極を製造するいくつかの方法を紹介する。

3.1.1 光陽極の光学設計

色素の光捕集効率が高効率DSCにとって非常に重要なことは良く知られている。一般的に、色素分子はより長い波長領域では相対的に吸収率が低い [11]。光散乱効果を持つ大きな粒子が光陽極に組み込まれると、光路長は拡大し、同様に色素の光応答が拡大し、光捕集効率もまた顕著に高まる。光が光陽極の中で散乱、あるいはセルの後で反射すると光路長は膜の厚さよりも大きくなる。散乱が光の捕集及びDSCの光電変換性能に及ぼす影響を良く理解するために、MIE理論をベースとしたいくつかのモデルあるいは4流動モデルが開発された[12]。最近、我々は光学プロセスと電気化学プロセスを相互に関係づけたモデルを開発した [12d]。このモデルでは、光学的吸収及び散乱のプロセスを記述するために4流動モデルを採用し、一方でDSCにおける電気化学プロセスを記述するために一つの一次元電気モデルを使用した。このモデルは光起電パラメータと色素増感型太陽電池 (DSC) を量的に相関づけるために使用される。計算結果によると、対電極の逆拡散反射面あるいは光陽極における大小粒子の適切な混合は光束の拡散性を大きく高め、大きくDSCの短絡電流密度 (JSC) 及び最終的な変換効率を増加させる。この理論的結果はまた各種のグループによる実験的研究によっても実証されている [13]。

3.1.2 界面をマスターする

再生可能な光電気化学プロセスにとって、暗反応はできるだけ少なく抑える必要がある。導電性ガラス・電解質界面で起こる再結合は光電変換性能、特に固体DSC⁵⁾に大きな影響を及ぼすことが明らかになっている。現在、導電性ガラスと多孔性 TiO_2 層との間の薄い TiO_2 下層を使用してこの種の再結合を低減することができる [14]。また、この下層は効率的な分離及び電子収集を保証するために、導電性ガラス表面を完全にカバーするとともに、十分に薄い必要がある。 TiO_2 下層を作成するために、スプレー熱分解法、回転塗布法、浸潤塗装並びにスクリーン印刷法と言ったいくつかの方法が使用された [14-15]。ここで、下層の厚さがペースト成分を変えることで容易に制御できることや、オプションのパターンが大きなサイズのDSCについても設計できることから、スクリーン印刷法の魅力に注目しておきたい。

3.1.3 光陽極の新構造

ナノ粒子をベースとした光陽極膜は、まだ幅広く殆どの効率的な色素増感型太陽電池で使用されているが、ナノ結晶粒子膜の構造的無秩序性が自由電子を散乱させ、このことにより電子移動を低減させている。このため、効率を向上させ、この装置を良く極めるために、新しい材料及びナノ規模の構造が開発されてきている。ナノ

チューブ構造は半導体-電解質界面でのイオン拡散に対する電子の浸透経路を提供し、ゾルゲル法や超音波化学及び界面鋳型法と言った様々な異なった方法で、DSC用のナノチューブ構造が製造されてきた [16-17]。例えば、光陽極酸化により、Ti金属基板上のTiO₂ナノチューブがDSCに使用され、7%以上の変換効率を達成した [18]。TiO₂逆オパール構造の相互接続細孔は増感剤及び正孔輸送材の浸潤をより良く導くと考えられている。このような光陽極を使用することによって、CdSe増感太陽電池の変換効率は2.8パーセントを示す [19]。

3.1.4 可塑性のDSC低温製造技術

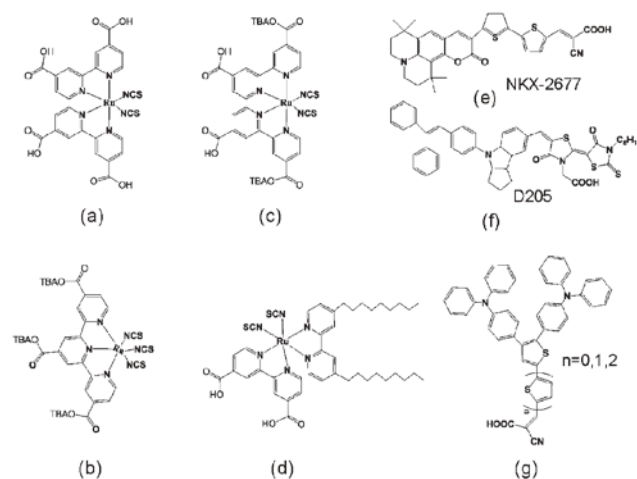
これまで、廉価でいくつかの技術的優位性を持つプラスチック基板を使った軽量で可塑性のあるDSCが、次のような理由でより多くの注目を集めてきた。つまり、(1) DSCのコストは伝導性高分子を用いたプラスチックを使用することによってより低減できる、(2) ロールツーロール方式での大量生産が可能になる、(3) 将来的に幅広く商品化できれば、より多くの市場（例、建築及び装飾市場）を対象にできる [20]。しかし、通常のプラスチック基板は、導電性ガラスを使って高効率のDSCを製造する時の温度である450度の高温に耐えられない。そのため、低温製造技術を開発することが課題となっている。ナノ粒子と表面の活性化の間の相互関連がこの低温プロセスにおける二つの重大な要素である。紫外線照射、電気泳動堆積、化学的焼結、圧縮、低温焼結、水熱結晶化、マイクロ波照射等々の種々の低温製造技術が開発されてきた [21]。最近、我々は室温で酸化亜鉛光陽極を製造する簡易な方向を開発した [20a]。全ての作業は水溶液の中で行った。ITO/PET基板（インジウムスズ酸化物ポリエチレンテレフタレート）で製造された可塑性のあるDSC及びゲル電解質は3.8パーセントの効率を挙げる。一方、ステンレス基板と言った他の基板も調査したが、裏面照射をしばしば使用せざるを得なかった [21a]。

3.2 色素増感型太陽電池 (DSC) 用の色素

DSCでは吸収された色素は光捕集中間体として働き、太陽照射を吸収し半導体の伝導帯に励起状態電子を注入する。効率の良いDSCを得るには、対象となる色素は幅広い吸収スペクトル（可視及び近赤外域太陽光照射）、適切な基底、及び励起エネルギー状態、また20年間、自然光に暴露されている状態に相当する照明下最小限108回の酸化還元ターンオーバーに耐える長期間の安定性、無毒性、及び半導体表面上に確実に吸収される等々のいくつかの要件を満足させる必要がある [22-24]。DSC用の増感剤の合成に対する取組みは、1) 機能ルテニウム (II) ポリピリジル錯体、2) 無金属・有機性ドナーアクセプタ (D-A) 染料、及び 3) 無機量子ドット (QD) の三つの分野に集約される。

変換効率及び長期安定性に関しての最高の光電変換性能はこれまでポリピリジル錯体により達成された。最初

の高性能なルテニウムポリピリジル錯体は1993年に報告されたN3 (4,4'-ジカルボン酸-2,2'-ビピリジン) ルテニウム (II) である [25]。その後、N719 [26]、Z907 [27]、及びブラックダイ色素 [28] 等の多くのポリピリジルルテニウム錯体が、ポリピリジル配位子を変更することによって合成された。その結果、DSCの効率は11.1パーセントに改善された [29, 30]。より最近の研究では、疎水性配位子のp共役を拡張することで光捕集能力を高めることに焦点が置かれた。DSCの11.9パーセントという効率新記録は、4,4'-ビス (5-ヘキシルチオフェン-2-イル) -2,2'-ビピリジン配位子でできたC101色素 (図3) を使って達成された [31]。これらのルテニウム色素の高い性能にも関わらず、ルテニウムが高価なことから、他の代替物が開発されている。この中で、もっとも期待が持てるのは自然物、合成物如何に関係なく有機色素である。吸収帯及び有機色素の安定性は有機化学者により開発される精緻な分子設計並びに合成戦略により容易に向上できる。スペクトル範囲及び吸収率の課題に取り組む色素にはインドリン、クマリン、トリフェニルアミン及びその他の期待が持てる構造 (図3) が含まれる [32-35]。有機色素を使って6から9.5パーセントという目覚ましい光電変換性能が得られた。現在までのところ、高い性能を発揮している有機色素はインドリンである [34]。



◎図3 いくつかの一般的な色素 (a) N3 (b) ブラックダイ色素 (c) N719 (d) C101 (e) クマリン色素 (f) インドリン色素、及び (g) 我々のD-n-A色素 (TBA=塩化テトラ-n-ブチルアンモニウム)

我々はビストリフェニルアミン配位子群 (図3) を持つ新規の有機色素を設計し合成した。光増感剤色素で製造したDSCは、モノ-TPA代替相当のドナーアクセプタ色素よりも高い開放回路電圧及び電気光変換効率を示した。これらの色素の中の疎水性ビストリフェニルアミン配位子群は、I₃⁻のナノ結晶TiO₂膜表面への接近を事実上抑制した。もっとも有望な新規色素は5.06パーセントの電気光変換効率、10.25 mA cm⁻²の短絡光電流密度、0.678

Vの開放回路電圧、及び0.73の曲線因子を示した [35]。

最近、CdS [36]、PbS [37]、及びCdSe [38] といった量子ドット (QD) 半導体が、(1) サイズと成分を変えることで有効バンドギャップを容易に調節できる、(2) 多重励起子生成及びエネルギー移動をベースとする電荷収集、(3) 多層又は、ハイブリッド増感剤を作るというような特殊な優位性により、使用されている[39]。QD増感剤として、CdS、及びCdSeは好特性を持つとされる有望な材料である。TiO₂膜上でCdS及びCdSeの二つの増感剤を使用することで、4.22パーセントの最高のエネルギー変換率が達成される。これはQD増感太陽電池への開発潜在力の大きさを示すものである [38]。

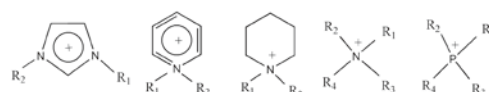
3.3 色素増感型太陽電池用電解質の開発

色素増感型太陽電池では、電解質が電荷輸送及び色素再生を担当する。現在はまだ、I₃⁻/I⁻レドックス対がもっとも効率的な電荷中間体であり、「ローテク」の製造プロセスを実現するための重要な要素である。また、セルの動力学及び光電変換性能に大きな影響を及ぼしている。アセトニトリルを原料とする電解質が最大の効率を上げる可能性があり、いくつかの廉価で環境に優しい液体電解質も調査の対象となった [40]。しかし、セルの実用的開発に当たっては、液体電解質はいくつかの難点を持っている [41, 42]。特に高速ロールツーロール連続製造法がDSCの大量生産に導入される際には、液体電解質の使用は大規模なDSCの生産を大きく遅らせる結果になる [43]。その結果、このガラスからプラスチックへの転換により固体電解質の模索を促進することとなる。

3.3.1 固体電解質の一般設計

固体電解質は将来的な大量生産のための液体電解質の理想的な代替品である。一般的に固体電解質は、(1) 規則的な色素の再生を維持する高いイオン伝導性、あるいは正孔転送率、(2) 良好な安定性、(3) 可視光線領域での吸収性が強いこと、及び (4) TiO₂・色素・電解質界面との良好な物理的接触と言った必要不可欠な条件をまず満たす必要があり、いくつかの固体電解質がこの10年の間に設計されてきた。固体電解質は一般的に、準固体電解質及び固体電解質の二つに分かれている。高分子イオン性ゲル及びプラスチック結晶系等が準固体電解質である [44-47]。液体電解質を原料としたDSCのシーリング性及び長期の安定性に関連する課題を解決するために、ポリマーあるいは、物理的に架橋されたゲル電解質と呼ばれるナノ粒子を固体化した電解質が初めて開発された。この種の電解質の特徴は、有機溶媒がナノ粒子 (SiO₂, TiO₂等)、あるいは高分子網目に閉じ込められ、揮発性成分の蒸発を遅らせることにある。ポリ (エチレンオキシド)、ポリ (アクリロニトリル)、ポリ (ビニルピロリジノン)、ポリ (ビニリデン炭酸塩) 等のいくつかのポリマーが通常使用されている [48]。ホットマトリックスを使用した均一ゲルは高いイオン伝導性を示した

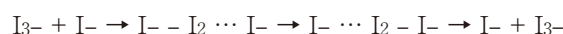
が、機械的特性が良好でなく、電気接点故障や装置の性能低下につながった[49]。この方法を改善するために様々な異なった方法が使用された [50, 51]。現在は、ゲル電解質と電極との間の界面伝導性を改善するためにゲル化前後に種々の粘性剤が使用され、より化学的に架橋されたゲル電解質がDSCに適用されている [52]。この方法は簡単で扱いが容易であるが、反応速度が時に早すぎて、DSCの全ての部分のTiO₂膜を湿潤できなかった。このため、いくつかの潜在的なゲル電解質前駆体 (L-Gel-Pre) が、この状況を改善するために使用された [53, 54]。



アニオン: Cl⁻, Br⁻, I⁻, SCN⁻, [N(CN)₂]⁻, PF₆⁻, BF₄⁻, CF₃SO₃⁻, AlCl₄⁻, Al₂Cl₇⁻等

◎図4 異なったイオン性液体の例

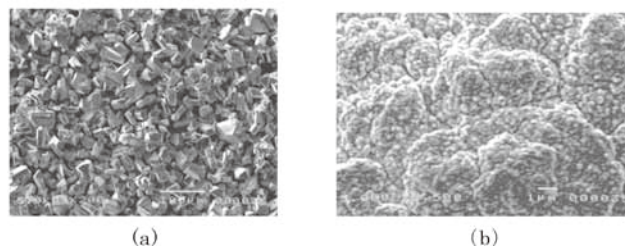
イオン性液体を使った電解質を使用することで準固体DSCの改善が実現可能である。イオン性液体は、高い化学的、熱的安定性及び不燃性や幅広い電気化学的窓を持つことから、固体電解質の理想的な成分として考えられてきた [55]。種々に異なるイオン性液体の中で、図4で示すようにイミダゾリウム系イオン性液体がDSCの中で幅広く使用されてきた [45a]。しかし、相対的に高い粘性がI₃⁻/I⁻レドックス対の拡散速度を遅らせ、性能の低下につながっている。二元IL電解質及びイオン性液晶と言ったイオン液系成分電解質が開発された [45b, 56-58]。いくつかの研究グループはイオン性液体準固体電解質を含むセルの電荷輸送特性を詳細に調査した [55a, 59]。その結果、イオン性液体系電解質における効率的なI₃⁻及びI⁻輸送は、次に示すようなGrotthus型電荷交換機構 (ポリヨウ素イオン結合電子交換機構) により合理的に実現されていることが分かった [59]。



準固体ゲル電解質にとっての最大の問題は、ゲル系が一般に熱力学的に不安定であることから、その安定性にある。長期の保管あるいは外気への暴露の下で、溶媒の流失は不可避で、変換効率の低下につながっている。従って、高温下においても準固体DSCは不安定で完全な密閉性が必要である。これについては、全ての固体定電解質は液体及び準固体電解質に対し、いくつかの実用的な優位性を持っている。

固体電解質は主に正孔輸送材料 (HTM) を対象としている [60]。原則的には、p-型半導体的挙動を持つ材料がカチオン色素よりの正孔を許容できれば、DSCの液体電解質を代替することが、理論上可能である。HTMをベー

スとする固体DSCでは、液体電解質をベースとするDSCでのイオン輸送の代りに、キャリア輸送は典型的に電子的である [61]。従来の正孔輸送材料は、より高い正孔移動度を持つ無機 *p*-型材料 (例. CuI 及び CuSCN) であるが、これらの晶析速度は速すぎる。これらが直接的にDSCに適用されると、結晶サイズ及び結晶成長速度の制御は、非常に困難になり、図5aに示すようにTiO₂の細孔充填が不完全になる。このように、効率は1パーセント以下となる [62]。溶融塩 (1-メチル-3-エチルイミダゾリウム・チオシアナート及びトリメチルアミン・ヒドロチオシアナート) が、CuI結晶成長を制御する結晶成長抑制剤として成功裏に使用されてきた。このCuI・溶融塩合成電解質は、図5bに示すよう色素増感アノードTiO₂の細孔充填を大きく利用し、光から電気への変換効率は3.8パーセントにまで向上した [63]。4.5パーセントまでのより高い効率がつい最近、honnoによって達成された [64]。

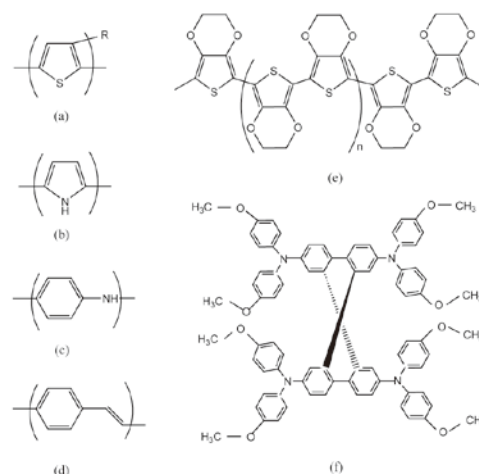


◎図5 SEMイメージ 染色された多孔質膜上のCuI結晶のイメージ
— (a) CuIのない溶融塩 (b) CuI/1-メチル-3-エチルイミダゾリウム・チオシアナート複合電解質

無機正孔輸送材料と比べて、有機分子固体とポリマーは異なった技術的目的に合うように、化学的に調節し、変えることができると言った魅力的な多様性を示す。図6に化学構造を示すポリピロール、ポリチオフェン、ポリアニリン等のいくつかの導電性高分子はDSC上で試みがされた [65]。これらの材料は金属、あるいは半導体の精緻な電氣的、電子的及び光学的特性及び、従来の高分子の良好な機械的性質をも示す。いくつかの結果は固体DSCへの適用の可能性を示した [66]。一番の難点は電解質とナノ結晶多孔質膜の間の伝導性の悪さである。二つの代表的な有機正孔伝導体、2,2',7,7'-テトラキス (N,N-ジ-*p*-メトキシフェニル-アミン) -9,9'-スピロ-ピフルオレン (spiro-MeOTAD) が、図6e, fのようにDSCに適用された。液体電解質の代替として初めてDSCへの適用が成功してから、効率は4パーセントにまで向上した [67-68]。一般的に正孔伝導体の高いモビリティ及び良好な細孔充填が高効率値を実現するための重点課題である。その後、色素・HTM界面での正孔移動効率を決める要素と装置の性能との相関が研究され、光電流は直接的に正孔移動効率と正比例することが判明した。この正孔移動効率は染色された多孔質膜への界面電荷移動及び正孔浸透

に依存する。このように、HTMで組み立てられた固定DSCについては、正孔移動度を向上させるよりむしろ、細孔充填性の最適化及び界面エネルギー論に取り込むべきである [69]。

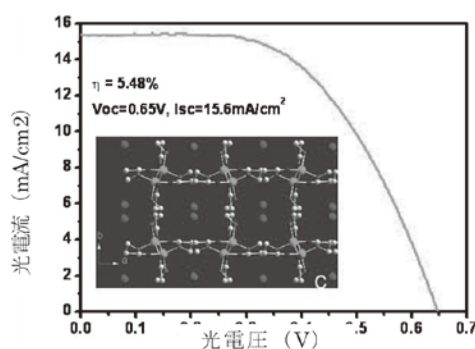
かなりの進展にも関わらず、伝導材料の半導体多孔質膜への浸透の不良性及び電荷キャリアの拡散距離を制限する有機HTMの低い伝導性が常に、固体DSCの変換効率に大きな影響を与えてきた。最近、我々は図7に示すように、[Li(HPN)₂]/SiO₂ (HPN=3-ヒドロキシプロポニトリル), LiI-CH₃OH/THT/SiO₂, LiI-C₂H₅OH/SiO₂系等のLiI添加化合物をベースとした固体成分電解質を開発した。有望な候補としてDSCは6パーセント以上の変換効率を示した [70]。



◎図6 正孔輸送性も持ついくつかの導電性ポリマーの化学式

(a) R-置換ポリチオフェン (R-置換PTTh)、(b) ポリピロール (PPy)、(c) ポリアニリン (PAn)、(d) ポリ (パラフェニレンビニレン) (PPV)、(e) ポリ (3, 4-エチレンジオキシチオフェン) (PEDOT)、(f) 2,2',7,7'-テトラキス (N,N-ジ-*p*-メトキシフェニル-アミン) -9,9'-スピロ-ピフルオレン (spiro-MeOTAD)

付加化合物をベースとする固体電解質にはその他の固体電解質と比べ、いくつかの優位性がある。まず、ヨウ化物及び三ヨウ化物イオンチャネルを提供する結晶相に一定の高い秩序をもたらすことで、システムの中の電荷キャリアの自由空間を増加させる。二番目に、付加化合物電解質は25度で10⁻³ Scm⁻¹に近い高いイオン伝導度を提供する。三番目として、SiO₂と言った無機質のナノ粒子が、一様な固体電解質を提供している間、付加化合物の結晶化速度を遅らせることができる。一方で、このように小さなサイズのナノ粒子は電解質の導電性を増加すると考えられている。四番目は、合成方法の易しい取扱いにある。さらに重要なのは低コストで環境に優しい固体成分電解質が小さな有機分子を注意深く選択することで製造できることである。このように、この種の固体成分電解質は固体DSCにおいて高い潜在能力を持っている。



◎図7 光電流密度 Vs. $[\text{Li}(\text{HPN})_4]/\text{I}_2/15\text{wt}\% \text{ SiO}_2$ 電解質で組み立てられたDSC光起電力曲線
差し込み図
— c軸に沿った $[\text{Li}(\text{HPN})_2]$ のX線結晶構造プロット [70a].

3.3.2 従来の I_3^-/I^- 対の代替のレドックス対

さらに、DSC用の電解質にとっては、有機溶媒を取り換えるだけでは不十分であり、適切な非腐食性の新しいレドックス対を探すことがまた、DSCの開発を促進するために重要である。フェリシニウム/フェロセン($\text{Fc}^{+/0}$)、 $(\text{SeCN})_2/\text{SeCN}^-$ 及び $(\text{SCN})_2/\text{SCN}^-$ 、2,2,6,6-テトラメチル-1-ピペリジニルオキシ (TEMPO) 並びに一連の $\text{Co}^{\text{II/III}}$ ポリピリジル複合体等といった代替の非ヨード系レドックス対がすでに実現された[71]。これらのいくつかは良好な変換効率を示したが、レドックス対と装置の安定性並びに効率性が満足なものでなかった。

3.4 DSCにおける対電極

対電極 (CE) は外部回路から届く電子を I^-/I_3^- レドックス対を含む電解質に輸送する機能を持つ。効率的な対電極 (CE) は、(1) 良好な触媒活性作用 $\text{I}_3^- + 2\text{e}^- \rightarrow 3\text{I}^-$ 、(2) 化学・電気化学的安定性、及び (3) 機械的に安定性があり頑丈と言った特性がなければならない。電荷輸送過電圧を最小限にするために、触媒活性の高い材料を使用し、 $\text{I}_3^- + 2\text{e}^- \rightarrow 3\text{I}^-$ 反応速度を高めた。裸の電導性 (ITO、あるいはFTO) ガラス上の、還元反応 $\text{I}_3^- + 2\text{e}^- \rightarrow 3\text{I}^-$ は、極端に遅い。従って、電荷輸送過電圧を最小限にするために、伝導基板上に触媒材料をコーティングし、反応速度を高めた。イオダインの高い腐食性のために、アルミニウム、鉄及びニッケルのように多くの金属は対電極用に使用できない。通常は電導性ガラスにPtを装填し、イオダイン・トリオダイン対との電子交換を促進する。触媒及び接着性能はPtがTCO表面上に乘せられている状態に依存する。これはスパッタ法、電気化学的及び熱蒸着により実施できる。分厚く、スパッタしたPt層は接着性が低く、電気化学的及び熱蒸着により作られたものよりも電荷輸送抵抗が低い。しかし、Ptは非常に高価で、またヨウ化物溶液で腐食する可能性がある [72]。将来の大規模な電気変換システムでは、豊富にあり操作が容易な材料を好適とすることになる。従って、高い電導性、良好な化学的安定性、及び三ヨウ化物イオンに対する触媒

活性作用を示す廉価な、CE用材料を開発する必要がある。

グラファイト、カーボンブラック、活性炭 (AC)、硬炭素球、カーボンナノチューブ及びフラーレンと言った安価な炭素質触媒材料が、CEを製造するために、Ptを代替するものとして使用されてきた。炭素CEの性能を左右する主要な要因として、表面積、膜の厚さ及び電導性が考えられてきた。1996年にグラッツェル (Grätzel) 教授グループが低コストのグラファイトパウダーとカーボンブラックを成分とする炭素CEを開発し、6.7パーセントの変換率を達成した [73]。この種のCEを使用したDSCの効率はPt対電極を使用するセルの効率の70パーセントであるが、低コストの対電極 (CE) への開発に道を拓いた。グラッツェル教授はさらに、ナノサイズのカーボンブラックを使用したCEを作成し、9.1パーセントの最高効率値を達成した。これは非常に刺激的な結果であり、炭素電極を使ったDSCの効率性記録でもある [74]。

炭素膜の電気化学的活性は炭素材料の表面積に大きく影響されることから、我々は最近、CE製造用に $800 \text{ m}^2\text{g}^{-1}$ という高い表面積を持った新しい炭素材である硬質炭素小球 (HCS) を導入した。この硬質炭素小球CEのレドックス電流密度はスパッタPt電極を使ったものより高いことが示され、硬質炭素小球CEを使ったDSCは5.7パーセントの効率を示した。これは、効率6.5パーセントのスパッタPt対電極のセルの87.7パーセントである [79]。適応性のあるDSCを製造するための要件を満たすために、Fドーパ酸化せず電導性ガラス上にバインダーを使用しない有機炭素スラリーをコーティングすることで、容易な低温方法が最近、開発された [81]。炭素スラリーは四塩化すず (SnCl_4) 水溶液中に、ボールミルで活性炭を分散することにより製造する。ボールミルの作業の間、 SnCl_4 は加水分解し、製造中に炭素粒子を結合するために、無機性の「接着剤」として機能するスズ酸化ゲルに転換する。この炭素電極を使用する色素増感型太陽電池は6.1パーセントの効率を達成するが、これはスパッタPtを対電極として使用するセルの効率に匹敵する。より最近では、基板として産業用の適応性のあるグラファイト・シートを、触媒材料として活性炭を使用してDSC用の適応性のある純粋な炭素CEが製造された [82]。このCEは、可塑性グラファイトの高い電導性と活性炭の高い触媒性を組み合わせることにより、非常に低いシリーズ抵抗 (R_s) 及び電荷輸送抵抗 (R_{ct}) を示す。このCE用のシリーズ抵抗及び電荷輸送抵抗はそれぞれ、白金メッキのふっ素ドーパ酸化せず膜ガラス (Pt/FTO) の四分の一及び三分二である。このCEを使って製造されたDSCの太陽光から電気への変換効率はより高い。それぞれの値は、Pt/FTOをベースとする装置の6.8パーセントと匹敵する6.9パーセントである。

PEDOT (ポリ (3,4-エチレンジオキシチオフェン)、ポリピロール、及びポリアニリンと言った導電性ポリマー

は、また色素増感型太陽電池のCEとしても使用できる [83-89]。Pt対電極と比較して、導電性ポリマーの相対的な性能は、合成方法、電解質、ポリマーと基板との間の相互作用、あるいはドーピング対イオン特性と言った様々な要因に依存する。

Y. Shibataらは [83]、CEに市販のPEDOT-PSS (ポリ (スチレンスルホネート)) を使用した種々の電解質を使うセルと熱蒸着Ptの性能を比較した。液体有機電解質においては、PEDOT-PSS CEを使ったDSC用の J_{SC} (短絡光電流密度) とセル効率は、Pt CEを使ったセルよりも低かったが、ゲル電解質においては、Pt CEを使ったセルよりも良好だった。PEDOT-PSS CEとゲル化剤であるテトラブプロモ・メチルベンゼン (B4Br) との間の特別な相互作用が J_{SC} 増加の原因だと推定される。

一方、Saitoらは [84]、トシレートアニオンを使ってドーブされたPEDOTの使用はPtの性能に匹敵させるために必要であったと報告し、より低い分子量のドーバントの使用によって、三ヨウ化物アニオンのPEDOT層への透過が可能なることを提言した。Dengらもまた、 SO_4^{2-} 、 ClO_4^- 、 BF_4^- 、 Cl^- 、p-トルエンスルホン酸塩 ((TsO⁻) 等、種々の対イオンでドーブされたイン・サイチュー電解重合ポリアニリン膜 (PANI) の電気化学的特性を調査した。彼らは異なったドーピング対イオンが電解重合ポリアニリン膜 (PANI) の形態、つまり、電気化学的活性に大きな影響を及ぼすと報告している。多孔性で細孔直径が数マイクロメートルある SO_4^{2-} -アニオン膜でドーブされた電解重合ポリアニリン膜 (PANI) は、対電極 (CE) としてのPtと比較して、 I_3^- の削減用により高い還元電流及びより低い電荷輸送抵抗を持っている。

しかし、異なったアニオンを使用する電気化学的に合成されたPEDOTの研究では、ポリマーとFTO基板の間の相互作用がDSCを決定づけると示唆している [89]。CE反応における導電性ポリマーの正確な役割は完全にはまだ理解されていないことから、更なる調査が必要となっている。

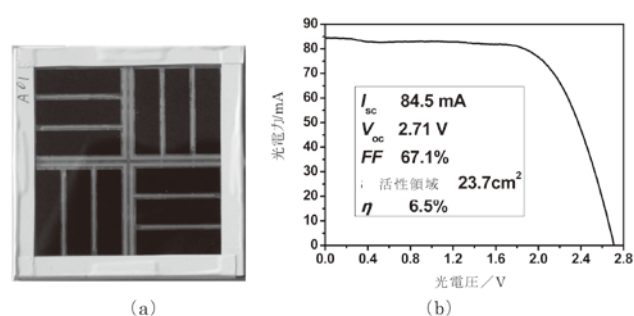
3.5 色素増感型太陽電池モジュールとインテグレーション

知られているように、DSCはその他の薄膜太陽光発電よりも性能価格比が高い。小さいDSCのエネルギー変換率の最高値はすでに11パーセントを超え、再生産可能な方法で、産業的に生産する努力がされてきた。STA (オーストラリア)、INAP (ドイツ)、ECN (オランダ)、Solaronix (スイス)、EPFL (エコール・ポリテクニク、フェデラル・ローザンヌ)、Sony (ソニー)、Sharp (シャープ)、Hitachi (日立製作所)、Fuji (富士フイルム) 等の有名な企業や団体が技術的な努力を続けてきた [90]。中国では、2004年に初めての500WのDSC発電所が建設された。これらは全て、将来的に有望な展望を示している [91]。

DSCモジュールのサイズを大きくすることは、セルの

商業化のために重要な取組みの一つである。まず、セルの大きさと基板の電導性がDSCモジュールの内部抵抗の問題となり、充填要素及びエネルギー変換率に大きく影響を及ぼす [92]。セルのサイズを大きくする方法として、Z及びW設計と並列接続あるいは直列接続セルモジュールとの3要素積分法が通常採用される [93]。セルの活性表面を最大化するために、並列格子モジュールが最初の実験であった。モジュールレベル (180mm×100mm) では6パーセント以上の効率が得られた [93]。課題は現在でも、セルを薄くすることで、どのように曲線因子を増加させるかである。Wシリーズ設計ではそれぞれの基板上で全ての電流を蓄積することで、どちらのセルに照明が当てられていようと、理論的に同一の出力が得られる。Wシリーズ設計はシンプルで、より良い曲線因子を提示し、相互接続を回避できる。しかし、それぞれの独立したセルに、交互バイアスが適用される。もちろん、これには完全なシーリングが必要となり、製造上及び性能上の弱点が無視できない。作用極及び対電極が同じ基板上に載せられなければならないので、製造プロセス及び後処理が複雑になる。裏面照射と前面照射の間の違いを考えると、この設計は同様のZ型直列接続モジュールの80パーセントの性能だと考えられる。Z型直列接続は、ガラス・金属、プラスチック・プラスチック等と言った異なる基板にも使用できる。また、相対的に少ないIRロスで高い出力を得ることができる。さらに、色素コーティングがより安易に制御できることから、作用極及び対電極を別々に最適化することが可能である。しかし、接続不良による高い直列抵抗から派生するより低い曲線因子はまだ大きな問題である。

最近、直列と並列を同時に組み入れた新しいDSCモジュールが我々のグループによって設計された (図8)。DSC活性面積は23.7cm²である。屋外でテストを行ったセルは6.5パーセントの変換効率を示した。この新しい設計の優位性は簡単な操作と高効率性である [94]。一番重要なのは高電圧と大きな電流が同時に得られることであり、種々異なった幅広い適用への道を開くものである。



◎図8 我々のDSCモジュールの写真 (a) 及び、太陽光下でのI-V特徴 (b)

4. 今後の展望

高効率、良好な安定性、及び廉価な最適なコンビネーションが色素増感型太陽電池 (DSC) の将来を決めることになる。現在の液体電解質を使ったDSCのコンセプトは最適に近いものに思われるが、液体電解質の気密シーリングやRu色素、Pt電極、及び電導性ガラスが高価なことと言ったいくつかの技術的な課題が更なるDSCへの適用を遅らせている。固体電解質や有機色素及び炭素CEを開発することで、これらの問題を解決する努力が払われてきた。さらに、生産コストを低減するために、素早くロールツーロールのコーティング生産ラインを使用できる適応性のあるDSCに対する研究がなされてきた。

すでに概要を述べたように、DSCの光電変換性能は相対的なエネルギーレベル及び界面での電子移動プロセスの動力学に依存している。DSCの効率を向上し、実用的適用を容易にするためには、1) エネルギーマッチングを

保証するために、予期される電位で、半導体、色素、レッドボックス中間体及びCEと言った構成要素材料を最適化する、2) 界面での動力学的電子移動プロセスをより良く制御するための新しい技術を開発する、こういった取組みがなされなければならない。さらに、環境適合性、及び低コストの面も同時に、DSCの商業化促進の中で考慮する必要がある。

謝辞

著者たちは中国自然化学財団 (No. 20725311, 20673141, 20703063, 20873178 及び20721140647)、中国科学技術部 (973計画、No. 2006CB202606 及び863計画No. 2006AA03Z341)、並びに中国科学院及び中国科学院革新プログラムの100才能計画から授かった財政的援助に感謝する。

参考文献

- 1 M. Grätzel, Chem. Lett., 2005, 34, 8.
- 2 D. M. Chapin, C. S. Fuller and G. L. Pearson, J. Appl. Phys., 1954, 25, 676.
- 3 M. A. Green, K. Emery and Y. Hishikawa Y et al. Prog. Photovolt. Res. Appl., 2009, 17, 85.
- 4 B. O' Regan, M. Grätzel, Nature, 1991, 353, 737.
- 5 M. Grätzel, Phil. Trans. R. Soc. A 2007, 365, 993.
- 6 M. Grätzel, Nature, 2001, 414, 338.
- 7 M. Grätzel, Inorg. Chem. 2005, 44, 6841.
- 8 Y. Luo, D. Li, Q. Meng, Adv. Mater. 2009, 21, 4647.
- 9 R. Katoh and A. Furube et al, J. Phys. Chem. B, 2004, 108, 4818.
- 10 U. Ozgur, Y. I. Alivov and C. Liu et al. J. Appl. Phys., 2005, 98, 041301.
- 11 S. Hore, C. Vetter and A. Hinsch et al, Sol. Energy Mater. Sol. Cells, 2006, 90, 1176.
- 12 a) A. Usami, Chem. Phys. Lett. 1997, 277, 105; b) J. Ferber and J. Luther, Sol. Energy Mater. Sol. Cells 1998, 54, 265; c) G. Rothenberger, P. Comte and M. Grätzel, Sol. Energy Mater. Sol. Cells 1999, 58, 321; d) X. Z. Liu, Q. B. Meng and A. Fujishima et al, Chin. Phys. Lett. 2004, 21, 1384.
- 13 a) Z. S. Wang and H. Arakawa et al, Coord. Chem. Rev. 2004, 248, 1381; b) N. Koide and L. Y. Han et al, J. Photochem. Photobiol. A 2006, 182, 296.
- 14 a) X. Z. Liu and Q. B. Meng et al, Chin. Phys. Lett. 2006, 23, 2606; b) S. Lee and K. J. Kim et al, Sol. Energy Mater. Sol. Cells 2001, 65, 193; c) J. N. Hart and Y. B. Cheng et al, C. R. Chimie 2006, 9, 622.
- 15 A. Burke and S. Ito et al, Nano Lett. 2008, 8, 977.
- 16 M. Paulose and K. Shankar et al J. Phys. D 2006, 39, 2498.
- 17 K. Shankar, G. K. Mor, H. E. Prakasam et al, Nanotechnology 2007, 18, 065707.
- 18 S. Ito and M. Grätzel et al, Chem. Commun., 4004, 2006.
- 19 L. J. Diguna and T. Toyoda et al, Appl. Phys. Lett., 91, 023116, 2007.
- 20 a) X. Z. Liu and Q. B. Meng et al, Chem. Commun. 2007, 2847; b) T. Miyasaka and Y. Kijitori et al, J. Electrochem. Soc. 2007, 154, A455; c) H. Lindström, A. Hagfeldt et al, J. Photochem. Photobiol. A 2001, 145, 107; d) D. Zhang and H. Minoura et al, Adv. Mater. 2003, 15, 814.
- 21 a) M. G. Kang and K.-J. Kim et al, Sol. Energy Mater. Solar Cells, 2006, 90, 574; b) T. Yoshida and A. Shinada et al. J. Electrochem., 2002, 70, 453; c) S. Uchida and M. Tomiha et al. J. Photochem. Photobiol. A: Chem, 2004, 164, 93; d) D. S. Zhang and T. Yoshida et al, Chem. Lett., 2002, 874; e) C. Longo and M.-A. De Paoli et al, J. Photochem. Photobiol. A: Chem. 2003, 159, 33; f) H. Lindström and A. Holmberg et al, Nano. Lett., 2001, 1, 97; g) T. Miyasaka and T. N. Murakami et al. Chem. Lett., 2002, 31, 1250; h) D. Zhang and T. Yoshida et al. Adv. Mater. 2005, 17, 2349; i) M. Durr and A. Schmide et al. Nature Mater., 2005, 4, 607.
- 22 A. Hagfeldt, M. Grätzel, Acc. Chem. Res. 2000, 33, 269.
- 23 L. M. Gonçalves, V. D. Bermudez, et al. Energy Environ. Sci. 2008, 1, 655.
- 24 A. Mishra, M. K. R. Fischer, et al. Angew. Chem. Int. Ed. 2009, 48, 2474.
- 25 M. Nazeeruddin, A. Kay, et al. J. Am. Chem. Soc. 1993, 115, 6382.
- 26 M. Grätzel, J. Photochem. Photobiol. A 2004, 164, 3.
- 27 P. Wang, B. Wenger, et al. J. Am. Chem. Soc. 2005, 127, 6850.
- 28 M. K. Nazeeruddin, P. Péchy, et al. Chem. Commun. 1997, 1705.
- 29 M. Grätzel, Inorg. Chem. 2005, 44, 6841.

- 30 Y. Chiba, A. Islam, et al. *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2* 2006, 45, L638.
- 31 Y. Cao, Y. Bai, et al. *J. Phys. Chem. C* 2009, 113, 6290 and the references in.
- 32 K. Hara, K. Sayama, et al. *Chem. Commun.* 2001, 569.
- 33 D. Kuang, S. Uchida, et al. *Angew. Chem. Int. Ed.* 2008, 47, 1923.
- 34 S. Ito, H. Miura, et al. *Chem. Commun.* 2008, 5194.
- 35 F. Zhang, Q. B. Meng, et al. *Dyes and Pigments* 81 (2009) 224-230.
- 36 Q. X. Zhang, Q. B. Meng, et al. *Electrochem. Commun.* 2010, 12, 327.
- 37 H. J. Lee, H. C. Leventis, et al. *Adv. Funct. Mater.* 2009, 19, 2735.
- 38 Y. L. Lee, Y. S. Lo, *Adv. Funct. Mater.* 2009, 19, 604.
- 39 A. J. Nozik, *Physica E-Low-Dimensional Systems & Nanostructures*, 2002, 14, 115.
- 40 X. Liu, D. Qin, Q. Meng et al, *Electrochem. Commun.* 2007, 9, 1735.
- 41 (a) Y. Chiba and L. Han et al, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 2006, 45, L638; (b) M. K. Nazeeruddin and M. Grätzel et al, *J. Am. Chem. Soc.*, 2005, 127, 16385.
- 42 M. Grätzel, *Inorg. Chem.*, 2005, 44, 6841.
- 43 A. F. Nogueira and M.-A. De Paoli et al, *Coord. Chem. Rev.*, 2004, 248, 1455.
- 44 P. Wang and M. Grätzel et al, *Chem. Commun.*, 2002, 2972.
- 45 (a) M. Gorlov and L. Kloo, *Dalton Trans.*, 2008, 2655; (b) P. Wang and M. Grätzel et al, *J. Am. Chem. Soc.*, 2005, 127, 6850.
- 46 Y. Bai and P. Wang et al, *Adv. Mater.*, 2008, 7, 626.
- 47 Q. Dai and D. R. MacFarlane et al, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 2005, 44, 313.
- 48 (a) G. Nazmutdinova and P. Wasserscheid et al, *Solid State Ionics*, 2006, 177, 3141; (b) J. H. Kim and Y. S. Kang et al, *Solid State Ionics*, 2005, 176, 579.
- 49 (a) F. Cao and P. C. Searson et al, *J. Phys. Chem.*, 1995, 99, 17071; (b) P. Judeinstein and C. Sanchez et al, *J. Mater. Chem.*, 1996, 6, 511; (c) Y. Ren and S. Cai et al, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 2002, 71, 253.
- 50 E. Stathatos and P. Lianos et al, *Adv. Mater.*, 2002, 14, 354.
- 51 a) M. A. Karim and S.-H. Jin et al, *Chem. Commun.*, 2008, 16, 1929; b) C.-W. Tu and K.-F. Lin et al, *Eur. Polymer J.*, 2008, 44, 608.
- 52 (a) S. Murai and S. Hayase et al, *Chem. Commun.*, 2003, 1534; (b) T. Kato and S. Hayase et al, *Chem. Commun.*, 2005, 363.
- 53 T. Kato and S. Hayase et al, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, 2006, 179, 42.
- 54 L. Wang and Y. Lin et al, *Chem. Commun.*, 2005, 5687.
- 55 a) N. Papageorgiou and M. Grätzel et al, *J. Electrochem. Soc.*, 1996, 143, 3099; b) N. Yamanaka, R. Kawano and S. Yanagida et al, *J. Phys. Chem. B*, 2007, 111, 4763; c) P. Wang and M. Grätzel et al, *J. Am. Chem. Soc.*, 2003, 125, 1166; e) P. Wang and M. Grätzel et al, *Nat. Mater.*, 2003, 2, 402.
- 56 P. Wang and M. Grätzel et al, *Chem. Mater.*, 2004, 16, 2694.
- 57 a) P. Wang and M. Grätzel et al, *J. Am. Chem. Soc.*, 2003, 125, 1166; b) P. Wang and M. Grätzel, *Nat. Mater.*, 2003, 2, 402.
- 58 N. Yamanaka and S. Yanagida et al, *Chem. Commun.*, 2005, 740.
- 59 a) J. E. Kroeze and J. R. Durrant et al, *J. Am. Chem. Soc.*, 2006, 128, 16376; b) T. Oda and S. Hayase et al, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells*, 2006, 90, 2696; c) W. Kubo and S. Yanagida et al, *J. Phys. Chem. B*, 2003, 107, 4374.
- 60 Y. Saito and S. Yanagida et al, *Coord. Chem. Rev.*, 2004, 248, 1469.
- 61 S. A. Haque and J. R. Durrant et al, *Adv. Funct. Mater.*, 2004, 14, 435.
- 62 a) K. Tennakone and P. M. Sirimanne et al, *Semicond. Sci. Technol.*, 1995, 10, 1689; b) B. O' Regan and D. T. Schwartz, *J. Appl. Phys.*, 1996, 80, 4749; c) B. O' Regan and D. T. Schwartz, *Chem. Mater.*, 1998, 10, 1501; d) K. Tennakone, G. R. R. A. Kumara and V. P. S. Perera et al, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 1998, 31, 1492; e) K. Tennakone, G. K. R. Senadeera and L. A. A. De Silva, *Chem. Mater.*, 1999, 11, 2474.
- 63 a) G. R. A. Kumara and K. Tennakone et al, *Langmuir*, 2002, 18, 10493; b) Q.-B. Meng and A. Fujishima et al, *Langmuir*, 2003, 19, 3572.
- 64 A. Konno et al, *International Japan-China Workshop of Sensitized Solar Cells*, 2010, Tokyo.
- 65 a) G. K. R. Senadeera and S. Yanagida et al, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, 2006, 184, 234; b) X. Tan and Q. B. Meng et al, *J. Phys. Chem. B*, 2004, 108, 18693; c) Y. P. Wang and J. Kumar et al, *Chem. Mater.*, 2006, 18, 4215.
- 66 a) E. Lancelle-Beltran and C. Sanchez et al, *Adv. Mater.*, 2006, 18, 2579; b) E. Lancelle-Beltran and C. Sanchez et al, *Eur. J. Inorg. Chem.*, 2008, 6, 903.
- 67 a) G. K. R. Senadeera and S. Yanagida et al, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, 2006, 184, 234; b) J. Xia and S. Yanagida et al, *J. Am. Chem. Soc.*, 2008, 130, 1258.
- 68 a) L. Schmidt-Mende and M. Grätzel et al, *Appl. Phys. Lett.*, 2005, 86, 013504; b) D. Poplavskyy and J. Nelson et al, *J. Appl. Phys.*, 2003, 93, 341; c) H. J. Snaith and M. Grätzel et al, *Adv. Mater.*, 2007, 19, 3643.
- 69 J. E. Kroeze and J. R. Durrant et al, *Adv. Funct. Mater.*, 2006, 16, 1832.
- 70 a) H. Wang and Q. Meng et al, *J. Am. Chem. Soc.*, 2005, 127, 6394; b) H. Wang and Q. Meng, *Chem. Commun.*, 2004, 2186; c) H. L. An and Q. B. Meng, *Electrochem. Commun.*, 2006, 8, 170; d) B. F. Xue, Q. B. Meng and A. Fujishima et al, *Comptes Rendus Chimie*, 2006, 9, 627; e) B. F. Xue, Q. B. Meng and A. Fujishima et al, *Chin. Phys. Lett.*, 2004, 21, 1828; f) B. F. Xue, Q. B. Meng and A. Fujishima, *Photochem. Photobiol. Sci.*, 2004, 3, 918.
- 71 a) G. Oskam and P. C. Searson et al, *J. Phys. Chem. B* 2001, 105, 6867; b) S. Cazzani and C. A. Bignozzi et al, *J. Am. Chem. Soc.* 2006, 128, 9996; c) S. Hattori and S. Yanagida et al, *J. Am. Chem. Soc.* 2005, 127, 9648; d) S. A. Sapp and C. A. Bignozzi et al, *J. Am. Chem. Soc.* 2002, 124, 11215; e) H. Nussbaumer and M. Grätzel et al, *Chem. Eur. J.* 2003, 9, 3756; f) Z. Zhang and M. Grätzel et al, *Adv. Funct. Mater.* 2008, 18, 341.
- 72 E. Olsen, G. Hagen, et al. *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* 2000, 63, 267
- 73 Kay, M. Grätzel, *Sol. Energy Mater. Sol. Cells* 1996, 44, 99.

-
- 74 T. N. Murakami, S. Ito, et al. *J. Electrochem. Soc.* 2006, 153, A2255.
75 J. K. Chen, Q. B. Meng, et al. *Carbon*, 2009, 47, 2704.
76 K. Suzuki, M. Yamaguchi, et al. *Chem. Lett.* 2003, 32, 28.
77 J. E. Trancik, S. C. Barton, et al. *Nano Lett* 2008, 8, 982 .
78 T. Hino, Y Ogawa, et al. *Carbon* 2006, 44, 880.
79 Z. Huang, Q. B. Meng, et al. *Electrochem. Commun.* 2007, 9, 596.
80 K. X. Li, Z. X. Yu, Y. H. Luo, D. M. Li, Q. B. Meng, *J. Mater. Sci. Technol.* 2007, 23, 577.
81 K. X. Li, Q. B. Meng, et al. *Electrochem. Commun.* 2009, 11, 1346.
82 K. X. Li. *Preparation and Study on Counter Electrodes for Dye-Sensitized Solar Cells* (Ph D thesis) Beijing: Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, 2009.
83 Y. Shibata, S. Hayase, *Chem. Comm.* 2003, 2730.
84 Y. Saito, W. Kubo, et al. *J. Photochem. Photobio. A Chem.* 2004, 164, 153.
85 J.M. Pringle, V. Armel, et al. *Aust. J. Chem.* 2009, 62, 348.
86 Q. H. Li, J. H. Wu, et al. *J. Power Sources* 2008, 181, 172.
87 Q. H. Li, J. H. Wu, et al. *Electrochem. Commun.* 2008, 10, 1299.
88 Z. P. Li, B. X. Ye, et al. *Electrochem. Commun.* 2009, 11, 1768.
89 J. B. Xia, N. Masaki, et al. *J. Mater. Chem.* 2007, 17, 2845.
90 H. Tributsch, *Coord. Chem. Rev.* 2004, 248, 1511.
91 L. Hu, S. Dai et al, *J. Phys. Chem. B* 2007, 111, 358.
92 a) S. Handa and S. A. Haque et al, *Adv. Funct. Mater.*, 2007, 17, 2878; b) E. Ramasamy and D. Y. Lee et al, *J. Power Sources*, 2007, 165, 446.
93 G. E. Tulloch, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.* 2004, 164, 209.
94 Z. X. Yu, Q. B. Meng, et al. *Mater. China* 2009, 28, 7.
-

機能性高分子材料の研究及びその応用

•Profile•



金 明 Jin Ming ●同済大学材料科学・工学部機能性高分子材料研究所准教授

1976年8月生まれ。2004年、吉林大学有機化学専攻で理学博士の学位を取得。2004～2006年、日本神奈川科学技術アカデミーのJSPS研究員となり、指導教官の藤島昭教授に師事。2006～2008年、フランスに留学し、光化学分野の研究に携わる。2008年11月に帰国し、同済大学材料科学部で教鞭を執る。主な研究方向は2光子吸収の性質を持つ有機分子とポリマーの調製及びその性質の研究、燃料電池用のプロトン導電膜材料の研究等。これまでに50編余りの論文を発表。

1. 概説

機能性高分子材料は一般に物質、エネルギー、情報を伝達、変換又は貯蔵する作用を持つ高分子及びその複合材料を指す。また、従来の力学的性能を踏まえ、さらに化学反応活性、感光性、導電性、触媒性、生物相容性、薬理性、選択分離性、エネルギー変換性、磁性等の機能を備えた高分子及びその複合材料を具体的に指すこともある^[1]。機能性高分子材料は1960年代に登場した新興領域であり、これは高分子材料が電子、バイオ、エネルギー等の領域に浸透した後に開発され、次々と現れた新しい材料である。近年、機能性高分子材料の年成長率は一般に10%以上に達し、そのうち高分子分離膜と生物医用高分子の成長率は50%に達する。これと伝統的な高分子材料はいずれも高分子分野の研究者が社会に目を向け、新材料に対する需要に応える形で生まれた研究領域である。両者の違いは機能性高分子領域が特殊な用途を持ち、且つ使用量も多くない微細高分子材料を研究するのに対し、高分子領域は適用性の広い汎用高分子材料の研究に着目した点にある。機能性高分子材料は2種類に分かれる。1つは従来の高分子材料を基礎とし、これに一段と高い性能と機能を持たせた高分子材料であり、もう1つは新しいタイプの機能を備えた高分子材料である。

中国の機能性高分子研究はこれまで新しい機能性高分子化合物の合成及び応用により多くの注意が払われてきたが、現在、研究の重点は高分子構造とその機能との関係に置かれている。その他、学際的な研究活動も増えている。中国で進められている機能性高分子に関する主な活動には電子ポリマー（導電性、発光、非線形光学材料）研究、磁性高分子研究、高分子液晶研究、インテリジェント高分子ゲル研究、機能分離膜研究、吸着・分離機能樹脂研究、高分子触媒研究、相転移エネルギー蓄積材料研究及び医用機能材料（医療材料、薬物緩慢放出材料）研究等がある。これらの分野の研究はいずれも比較的大きな進展を得た。以下、代表的な機能性高分子材料について簡単に紹介する。

2.1 光機能性高分子材料^[2]

光機能性高分子材料は光の伝送、吸収、蓄積、変換を

行うことのできる高分子材料を指す。現在、この高分子材料は光加工、光記録、光伝導、光表示等の分野で幅広く応用されており、具体的には感光性樹脂、フォトクロミック材料、光ファイバー及び光分解材料等が含まれる。

感光性樹脂は光分解の特性を持つポリマー、又は光重合や光架橋の特性を持つモノマーを利用して画像を生成する非銀塩感光材料を指す。実用的な感光性樹脂体系の中では2種類の変化を同時に発生させることもでき、例えば光重合と光架橋、光分解と光架橋等である。感光性樹脂を調製する方法には次の3種類がある。1) 高分子化合物自体が感光性官能基を持っており、例えば、ポリビニルアルコール、ラウリン酸エステルは光を照射した時に分子間の架橋反応が生じ、溶剤処理した後、レリーフ画像を作製することができる。2) 高分子化合物の中に感光性化合物を添加し、光を照射して高分子化合物と反応させる。例えば、ゼラチン又はポリビニルアルコールの中に二クロム酸塩を添加し、環化ゴムの中にジアゾ化合物を添加する。3) 光重合能力を持つアルケン類モノマーによって光重合を直接行い、感光性樹脂を調製する。感光性樹脂は印刷工業での製版に広く応用されており、光耐食剤（則ちフォトレジスト）、紫外光硬化塗料、感光性インク、光硬化接着剤等を作製するのに用いる。特にフォトレジストは集積回路の調製において非常に重要な「化学増幅」効果を発揮しており、これは現代の科学を進展させる上で不可欠な基礎材料となる。中国ではマイクロエレクトロニクス産業と薄型ディスプレイ産業が急速な発展を遂げ、フォトレジスト材料や高純度試薬等の産業チェーンの中で関連付帯企業の設立と発展が導かれた。特に2009年におけるLED（発光ダイオード）の急速な普及は、フォトレジスト産業の発展を力強く後押しした。中国のフォトレジスト産業市場は従来の個別デバイス、IC、LCD（液晶パネル）にLEDが加わり、さらに太陽電池も潜在的な市場として登場しつつある。中国のフォトレジスト市場は2010年時点で既に20億元を超えており、国際市場で10%以上のシェアを占める。中国の関連産業のフォトレジストに対する需要量から見ると、現在は紫外線フォトレジストが中心となっている。その中で中小

規模集積回路（ $5\mu\text{m}$ 以上の技術）及び大規模集積回路（ $5\mu\text{m}$ 、 $2\sim 3\mu\text{m}$ 、 $0.8\sim 1.2\mu\text{m}$ 技術）生産企業、個別デバイス生産企業の紫外線ネガティブレジストに対する需要総量はそれぞれ100t/年～150t/年に達する。また、集積回路、液晶パネルに用いられる紫外線ポジティブレジスト及びLEDに用いられる紫外線ポジティブ・ネガティブレジストの需要総量は700t/年～800t/年の間にある。その他、超大規模集積回路（超LSI）用の深紫外248nm（ $0.18\sim 0.13\mu\text{m}$ 技術）と193nm（90nm、65nm及び45nmの技術）のフォトレジストもIntel大連等で数本の大型ラインが設置されたのに伴い、需要量が徐々に伸びつつある。

フォトクロミック高分子材料は一定の波長の光を照射した時に色の変化を起こし、別の波長の光又は熱を作用させると再び元の色に戻る発色団が含まれている材料の総称である。例えば、スピロピラン類化合物は有機フォトクロミック材料の中で最も早く応用され、最も幅広く使われている体系の1つである。紫外光を照射した時、無色のスピロピラン構造の中でC-O結合が断裂・開環し、分子の一部に回転が生じ、共平面のメロシアニン構造が形成されて呈色する。吸収スペクトルはそれに応じて赤い方に移動する。可視光又は熱を作用させると、開環体はスピロ構造に再び戻ることができる。情報記憶素子、装飾・保護包装材料、自動現像ホログラム及び軍事の各分野で非常に大きな応用価値を持つ。わが国はフォトクロミック材料を863ハイテク計画に組み入れており、国内の一部の研究機関がこの分野で活動を繰り広げ、喜ばしい成果を収めた。

2.2 電磁機能性高分子材料^[3]

電磁機能性高分子材料は主に導電性高分子材料、高分子磁性体、光伝導材料、圧電材料、熱電材料及び磁気記録材料等を含む。

一般に言われる導電性高分子材料は主に構造型導電性高分子を指しており、高分子構造自体が提供する導電性キャリアーに依拠して電気を伝導する（この構造自体は『ドーピング』によって導電機能を持つようになる）。その他、導電性を備えない高分子材料にカーボンブラック、金属粉、箔等を添加することで電気伝導が実現される複合材料も導電性高分子材料に含まれる。構造型導電性高分子にはポリアセチレン、ポリパラベンゼンアセチレン、ポリアニリン、ポリピロール、ポリチオフェン等がある。そのうちポリアニリンは原料を手に入れやすく、合成が簡単で、電気伝導率が高く、環境安定性に優れているため、二次電池、電気呈色、帯電防止、マイクロ波吸収、防食、防汚等の分野での幅広い応用が期待されている。一方、複合型導電性高分子の中で、高分子材料自体は導電性を持たず、接着剤の役割を果たすだけである。この点が構造型導電性高分子と異なる。その導電性はカーボンブラック、金属粉末等の導電性物質を混合することによって得られる。複合型導電性高分子は調製しやすく、実用性が

比較的高く、導電性ゴム、導電性塗料、導電性接着剤、電磁波遮蔽材料、帯電防止材料を作るのに用いられ、多くの分野で重要な役割を發揮している。

高分子磁性材料も構造型と複合型の2種類に分けることができる。構造型とは無機類磁粉を添加しない状況の下で、高分子材料自体が強磁性を備えていることを指し、主には純有機磁性高分子、金属有機錯体型磁性高分子、ジメタロセン磁性高分子等で構成される。複合型は磁粉材料と合成樹脂及びゴムの2つの部分から成る複合型磁性材料であり、充填する主な磁粉材料はフェライト類とレアアース類である。磁性高分子特有の非常に優れた性能に基づき、それは将来、次の幾つかの分野で幅広く応用される見通しである。1) 膜を形成することのできる磁性高分子の特徴を生かし、亜分子レベルで均質の高分子磁性膜を形成すれば、磁気記録の密度を大幅に高め、情報記憶量の多い光ディスク、磁気テープ等の機能性記憶材料を開発することができる。2) 磁性高分子と導電性材料を複合すれば、電気・磁気二重損タイプの軽質・広帯域マイクロ波吸収剤を作製することができ、今後、宇宙、電磁遮蔽及びステルス材料等の分野で重要な用途が得られるであろう。3) 磁場の変化を利用して温度、溶剤、ガス等を制御するセンサ及び光、熱の制御を受ける新しいタイプの電磁流体の開発。4) 低密度で任意に加工することのできる磁性高分子が誕生すれば、生物体内に薬物を特定の方向に送り込み、治療効果を大幅に高めることができ、医療事業の変革を引き起こす可能性がある。5) 低磁損・高周波のマイクロ波通信装置の開発。このように応用の見通しが明るいことから、現在、構造型高分子磁性材料に対する研究が盛んに行われている。

2.3 生物医用高分子材料^[4]

生物医用高分子材料は人体の内臓、体外器官、薬物の剤形及び医療器械を作るのに用いられるポリマー材料である。医用高分子、薬用高分子、バイオニック高分子の3種類に分けることができる。

医用高分子は高分子材料科学が医学と生命科学に浸透し、高分子材料が医学領域に幅広く応用される過程で徐々に発展してきた主要な機能性高分子材料である。分子設計の方法を通じ、生物医学機能を備えた理想的な医用高分子材料を合成することができ、その見通しは非常に明るい。現在、医用高分子は急速に発展しつつあり、人工臓器の分野では大脳を除き、人体のほぼ全ての部位と臓器を高分子材料で代替させることができる。例えば、生分解性の天然高分子材料で作製した人工皮膚——複合シエル多糖類組織工学皮膚は、中国国家薬品・バイオ製品検定所の製品品質検査に合格した後、臨床試験が既に始まっている。

高分子薬物は1950年代初期に登場した新しいタイプの薬物であり、毒性が低く、効率が高く、緩慢に放出され、効果が長続きするといった特徴を持つ。合成高分子薬物

で伝統的な低分子薬物に代替させ、又はこれを補完することは薬物学が目指す重要な分野となっている。その1つは薬物助剤である。即ち高分子材料自体は不活性で、薬の作用に関与せず、増粘、表面活性、崩壊・分解、接着、付形、潤滑、包装等の役割を果たすだけである。又は人体内で「薬庫」の役割を果たし、薬物を緩慢に放出してその作用時間を延ばす。もう1つはポリマー薬物である。即ち低分子薬物を不活性・水溶性のポリマーによって分子キャリアーとした後、薬性を備えた低分子化合物を共有結合又はイオン結合によってキャリアーの側基と連結し、ポリマー薬物を作製する。

医薬高分子は次の3つの分野で発展の動きを見せている。①生物相容性と血液相容性を満足させる材料の研究開発。ポリオレフィン、ポリシロキサン、フッ素炭素重合体及びポリウレタンを重点とする。②薬物放出制御、人工臓器、医療器械及び出産コントロール用の材料の開発。③小型化、携帯式、埋込式等のタイプの人工器官装置を発展させる。

2.4 吸着・分離機能性高分子材料

この種の材料は主にイオン交換樹脂、高分子吸着剤及び高分子凝集剤を含む。

イオン交換樹脂は最初に工業化された機能性高分子材料である。各種の官能化を経たポリスチレン樹脂の主鎖に大量の官能基が付いている。大量の H^+ を帯び、各種の陽イオンに交換できるものを陽イオン交換樹脂と呼び、 OH^- イオン構造を含み、各種の陰イオンに交換できるものを陰イオン交換樹脂と呼ぶ。それは主に水の処理に用いられる。薄膜に調製された時のイオン交換膜はさらに飲用水の処理、海水の淡水化、廃水の処理、マンニトール、クエン酸糖液の不活性化、牛乳と醤油の脱塩、酸の回収に用いる他、電解隔膜や電池隔膜とすることができる。特に日増しに発展しつつあるリチウムイオン電池とプロトン導電性燃料電池の分野^[5]での応用が広がっている。

高分子吸着剤は主に幾つかの特定のイオン又は分子に対して選択性の親和作用を持つ高分子材料を指しており、外観形態から見ると、ミクロ孔型、マクロ孔型、ポプコーン型、マクロ網状等の各種樹脂がある。主には吸水性高分子と吸油性高分子に分けることができる。高吸水性樹脂の研究は1960年代に始まった。工業及び日常の応用分野（例えば使い捨てのおむつ）の他、高吸水性樹脂は中国西部の砂漠化の改善に大きく役立つことが期待されており、その主な機能は次の通り。①土壌改良剤。高吸水性高分子材料を土壌と混合すれば、土壌の団粒構造を促進し、通水、通気、保水性を高め、土壌の水分保持、湿度保持及び肥効保持能力を改善することができる。高吸水性高分子物質に0.3%～0.4%のゲル液を配合し、深さ10cm～15cmの砂漠の中に入れ、又は土壌と直接混合すれば、野菜や一般農作物を栽培することができる。②肥効保持剤。高吸水性高分子物質を化学肥料と混

合し、土壌の中に施肥すれば、化学肥料の流失を防止し、その利用率を高めることができる。③砂漠緑化剤。高吸水性高分子物質と粘土、水で保水剤を作り、これを農用土と混ぜれば、土壌中の水分をうまく保ち、砂地緑化の目的を達成することができる。

吸油性高分子樹脂は新しいタイプの機能性高分子材料であり、各種の油に対し、少ない場合は自重の数倍、多い場合には百倍近くを吸収することができる。油を吸収する量が多く、その速度が速く、且つ保持能力が高いため、工業の廃液処理及び環境保護の分野で幅広い用途を持つ。その他、ゴム改質剤、オイルミスト濾過材料、芳香剤と殺虫剤の基材、紙添加剤を作製することができる。

凝集沈降法は現在、国内外で水質処理効率を高めるのに広く用いられている経済的且つ簡便な水質処理方法である。高分子量を持つ高分子凝集剤は、コロイド微粒子及びその他の浮遊粒子が凝集して無定形のプロックとなり、沈降するのを促進することができる製剤である。分子の総電荷に基づき、凝集剤は通常、陰イオン、陽イオン及び非イオンの3種類に分けることができる。陰イオン凝集剤の多くはポリアクリルアミド構造を基礎としたものである。陽イオン凝集剤は一般に側基又は側鎖が正電荷を帯びた陽イオンポリ電解質である。主な非イオン凝集剤にはポリアクリルアミド、ポリ酸化エチレン、ポリ酸化プロピレン等がある。高分子凝集剤は良好な凝集効果、脱色効果、簡便な操作等の利点を持つことから、水処理技術において非常に重要な地位を占め、ますます広く応用されている。

2.5 高分子機能膜材料^[6]

高分子機能膜はその機能と性質に基づき、5種類に分けることができ、分離、触媒等の分野で非常に重要な意義を備えている。以下、簡単に紹介する。

- (1) 逆浸透膜: 逆浸透膜の主なもの是非対称膜、複合膜、中空繊維膜である。非対称膜の表面活性層にあるミクロ孔は非常に小さく（約2nm）、マクロ孔の支持層は海綿状構造をしている。複合膜は超薄膜、多孔支持層等で構成される。超薄膜は非常に薄く、0.4mmしかなく、流動抵抗を低め、水透過速度を高めるのに有利である。中空繊維の逆浸透膜は直径が極めて小さく、壁厚と直径の比がかなり大きいいため、支持を必要とせずに比較的高い外圧力に耐えることができる。逆浸透膜の主な材料は酢酸セルロース、ポリアミド、ポリベンズイミダゾール、無機化ポリベンゼンエーテル等である。逆浸透装置は海水の脱塩への応用に成功しており、飲用水レベルの品質に到達した。海水淡水化の原理は溶剤は通すが、溶質を通さない半透膜を利用し、海水と淡水を分離するというものである。
- (2) 限外濾過膜: 限外濾過膜は1～20nmの細孔を持つ多孔質膜を指し、それは溶液の中に含まれるウイ

ルス、高分子コロイド等の微粒子をほぼ完全に捕捉・分離することができる。限外濾過膜の分離性能はその捕捉する物質の分子量の大きさによって定義される。限外濾過膜の分離技術は主に溶液中の大分子、コロイド微粒子を分離するのに用いる。膜のふり分け作用を通じ、溶液中の膜孔より大きい大分子溶質を捕捉する。これは溶質分子と小分子溶剤を膜によって分離することになる。

- (3) 精密濾過膜：精密濾過膜は孔径範囲が $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$ の多孔質分離膜を指す。それは細菌、コロイド及びエロゾル等の微小粒子を流体からほぼ完全に分離・除去することができる。
- (4) 気体分離膜：気体の分離に常用される高分子膜であり、それは非対称又は複合の膜である。その膜表面層は緻密な高分子層となっており、即ち非多孔質の高分子膜である。このような膜材料は優れた浸透性を持つ必要がある。
- (5) 触媒膜：膜反応器の中で、膜のキャリアー機能を利用し、触媒を膜の表面又は膜内に固定して触媒膜を調製する。一部の膜材料はそれ自体が触媒活性を備えている。反応が水素添加、脱水素、酸化及び酸素生成関連の体系に及ぶ時は金属膜、固体電解質膜を採用することが多く、これらの膜は水素と酸素を選択的に透過させる能力を持つ。隔膜触媒技術の有効性を示す主な特徴は生産率と選択率である。生産率は隔膜を通過する、及び隔膜表面における反応物と生成物の分離率によって決定される。

2.6 インテリジェント高分子材料（環境センシティブ高分子材料）^[7]

インテリジェント材料システムとその構造は近年、国際的な脚光を浴びている研究テーマの1つであり、初めて発表された時、各分野の専門家・学者はこれに強い関心を示した。このシステムの核心となるのはインテリジェ

ント材料（Intelligent Material）であり、これは外部の変化に対し、安定した設計可能な応答機能を持つ材料である。インテリジェント材料は「環境の変化を感知し（検知又は発見の機能）、自己判断と自己結論を通じ（思考又は処理の機能）、自己命令と自己実行を実現する（実行の機能）ことのできる新しいタイプの材料」と定義することができる。インテリジェント材料は熱硬化性樹脂又は熱塑性樹脂を用いることができ、そのセンサ、ブレーキは幾つかの特異性能を備え、且つ外部条件の変化に伴って変化することのできる機能材料を選択しなければならない。主には非金属材料と一部の電磁、光学プラスチック、例えば圧電性ファイバー、圧電性セラミック、光ファイバー等があり、それは今後、宇宙、航空等の分野で幅広く応用されることになる。

3. 結びの言葉

機能性高分子材料は将来の材料科学とエンジニアリング技術の分野における重要な発展方向となる。現代の学際科学という特徴は新しいタイプの機能性高分子の研究と発展を促し、また、新しい世代の機能性高分子を生み出した。高分子材料は構造上、複雑性と多様性を備えているため、分子構造、凝集体構造、混合、複合、界面、表面さらには外観構造等の多くの面において、単一又は複数の構造の総合利用を行うことができる。その他先端技術の材料への要求を最大限満たし、そうした技術のためにより多くの、より良い機能を提供していく。ナノテクノロジー研究の深まりに伴い、分子、さらには原子レベルでの材料の機能構造設計、複合・加工生産も可能となった。材料の機能は今後、一層の広がりを見せ、かつてないイノベーションが現れることになる。新しい世代の機能性高分子材料は春が既に訪れているのだと言えることができる。21世紀のハイテク、例えば電子技術、バイオ技術、生命科学の研究に対して深遠な影響を及ぼすに違いない。

参考文献

- 1 羅祥林、機能性高分子材料 [M]、化学工業出版社、2010
- 2 張東華、石玉、李宝銘、[J] 化工新型材料、2004、32(12)、5-8
- 3 省部博之編、曹鑄訳、導電性高分子材料 [M]、北京：科学工業出版社、1989
- 4 高長友、顧忠偉、[J] 中国科学：化学、2010、40(3)、195-196
- 5 Haiyan Pan, Hongting Pu, Decheng Wan, Ming Jin, Zhihong Chang, journal of power sources, 2010, 195(10):3077-3083
- 6 趙文元、王亦軍、機能性高分子材料化学（第2版）、北京：化学工業出版社、2003
- 7 李青山、機能性・インテリジェント高分子材料 [M]、国防工業出版社、2006

半金属一次元ナノ熱電材料研究の進展

•Profile•



李 広海 Li Guanghai ●中国科学院固体物理研究所 ナノ材料・ナノ構造研究室主任

1960年9月生まれ。中国科学院固体物理研究所、ナノ材料・ナノ構造研究室主任。安徽省ナノ材料・技術重点实验室主任、研究員、博士課程院生指導教官。1997年、中国科学院固体物理研究所の物性物理専攻で、理学博士の学位を取得。

低次元ナノ材料とナノ構造の研究に主に従事、科学技術省、基金委員会、中国科学院及び地方の20件余りの科学研究プロジェクトを主宰又はこれに参加。Adv.Mater.、Nano Lett.、Small、Phys.Rev.B、Appl.Phys.Lett.、J.Phys.Chem.等の刊行物に100編余りの研究論文と総合解説論文を発表。10件余りの国家発明特許を出願、そのうち6件で特許を取得。主要メンバーとして国家自然科学2等賞、中国科学院発明2等賞、中国科学院科学技术進歩3等賞及び安徽省自然科学2等賞をそれぞれ1回受賞。

要旨

理論と実験で証明されたように、ナノ線、超格子等の低次元ナノ構造材料は熱起電力と熱電効率を著しく高めることができ、これにより、熱電性能指数の向上という難題を解決するための一筋の希望の光が現れ、熱電材料研究の世界的なブームをもたらした。近年、各国は大量の人力と物力を投入し、ナノ熱電材料の研究と開発に力を注ぎ、性能指数の高い熱電材料を製造することを目指している。本論文では半金属一次元ナノ熱電材料分野におけるわがチームの最新の研究成果を主に紹介することとし、1)単体と合金のナノ線配列、2)ヘテロ接合と超格子のナノ線配列、3)ナノ管の熱電輸送特性について述べる。最後に、我々のこれまでの活動を踏まえ、今後の研究方向とその見通しを示す。

1. 序文

世界のエネルギー需要に対する急激な増大に伴い、人々は再生可能エネルギーと持続可能な発展のためのエネルギーの研究により多くの注意力を向けるようになった。その中で、熱電材料と熱電装置は殊の外注目されている。熱電材料と熱電装置は廃棄される熱エネルギーを電気エネルギーに転化するのに用い、廃エネルギーの利用を実現できる他、エアコンの製造で冷却に用いることもできる。しかし、現在の熱電材料は熱電変換効率が低いため、その幅広い応用が限られている。近年の理論研究と実験結果から、低次元ナノ熱電材料は高い熱電性能指数を備えていることがわかった [1、2-4]。このため、新しい世代の高性能熱電材料となる可能性がある。

1993年、MITのHicksが一次元量子線はバルク材、量子井戸及び超格子の薄膜より優れた熱電性能を持つことをまず理論面から証明した [1]。その後、この研究チームはBiナノ線について系統的な理論研究を進めた [5]。研究の過程で、同チームはBiナノ線のサブバンド構造と半金属-半導体転移を計算し、ナノ線の直径が50nmより小さい時、Biナノ線は半金属から半導体に転移することがわかった。さらにこれを踏まえ、彼らはBiナノ線の熱電性能指数がナノ線の直径、成長方向及びキャリアー濃度

に従って変化することを計算した。ナノ線の直径が5nmより小さい時、最適の熱電性能指数は6を超えることが可能となる。

ここで我々は半金属一次元ナノ材料分野におけるわがチームの最新の研究成果を主に紹介する。論文は3つの内容に分かれる。第1部は半金属一次元ナノ材料の制御調製、第2部は半金属一次元ナノ材料の成長機構と物性の研究であり、第3部ではBi基ナノ管理論における我々の研究状況を紹介する。最後に、今後の研究方向と見通しを示すものとする。

2. 研究の状況

2.1 半金属一次元ナノ熱電材料

半金属ナノ線の熱電性能はその直径と関係があるだけでなく、その配向とも密接に関係している。直径と配向を制御できる単結晶ナノ線を調製することが第一に重要な研究テーマとなった。近年、半金属ナノ線配列を調製する各種の方法が既に確立されているが、秩序を持ち、配向を制御できる大面積の半金属単結晶ナノ線配列を合成することは依然として大きな困難を伴い、特に直径の小さいナノ線の合成が難しい。わがチームはパルス電解析出技術を採用し、酸化アルミニウム型板と結び付け、単結晶Bi、Sb、Bi基合金及びヘテロ接合と超格子のナノ線配列を調製することに成功した。

1) Bi、Sb単結晶ナノ線配列

わがチームはパルス電気化学析出技術を採用し、Bi、Sb単結晶ナノ線配列を調製した [6-8]。また、パルス電気パラメータの調節を通じ、孔径80nmの型板で直径7nm～80nmのBi単結晶ナノ線を調製することに成功し、Biナノ線の直径と配向の変調制御を実現した。直流や交流等の技術に比べ、パルス電解析出技術はナノ線の直径と配向を制御するのに便利であるだけでなく、合成した単結晶ナノ線の結晶品質も非常に高い。この研究により、既存のパルス電解析出技術が発展した。それは直径と配向の異なる半金属単結晶ナノ線配列の合成に新たな道筋を示し、孔径の小さい酸化アルミニウム型板の合成とその後の電気化学析出が比較的難しいという問題を解決した

けでなく、ナノ線の寸法と配向に関する物理的性能の研究を進めるための基礎を定めた。我々の研究は同時に又、簡単な高温焼なましの手段を用いれば、単結晶Biナノ線のBi/Bi₂O₃コアシェル・ナノ線及び単結晶Bi₂O₃ナノ管への転移を実現できることをはっきりと示している [9]。

2) Bi、Sb単結晶ナノ管配列

わがチームは酸化アルミニウム型板の表面にスパッタリングして電極とした金膜の厚さを制御することを通じ、また、パルス電気化学析出技術を用い、直径と壁厚を制御できるBi、Sb単結晶ナノ管配列を型板の中で直接調製した [10、11]。ナノ管の外径は型板の孔径によって制御され、その壁厚は金膜の厚さと電解析出の時間によって制御される。型板の中でナノ管を合成するゾル・ゲル及び無電解析出といった通常の技術に比べ、この技術は型板孔の内壁に対する特別な処理を事前に施す必要がなく、ナノ管の中に外部から不純物が入るのを防ぐことができる。我々は孔径の小さい酸化アルミニウム型板ではナノ管を合成するのが難しいという問題を解決しただけでなく、ナノ管の結晶性もうまく制御したのである。

3) Bi、Sbホモ接合ナノ線配列

酸化アルミニウム型板孔の形状を変えない条件の下、パルス電気パラメータを調節することを通じ、同一孔径の型板の中で、直径の異なるBi/Bi、Sb/Sbホモ接合ナノ線配列を調製した [12、13]。また、段階的なパルス電気化学析出技術と化学腐食拡孔技術を採用して、直径の異なるSb単結晶ナノ線ホモ接合配列を調製した。各接合の直径と長さは対応する腐食時間によって決まる [14]。ナノ線のホモ接合は将来のナノ電子装置に応用する面で非常に明るい見通しがある。

4) 半金属合金単結晶ナノ線配列

Dresselhausチームは理論計算と実験結果に基づき、純粋なBiナノ線に比べ、Bi_{1-x}Sb_x合金ナノ線はよりよい熱電性能を示しており、しかも直径の変化に伴い、半金属-半導体の転移が同じように発生すると発表した [15]。このため、関係者はBi_{1-x}Sb_x等の合金ナノ線に対する研究に取り組み始めた。圧力注入法を採用し、又は有機溶液の中で直流電解析出技術を用い、多孔酸化アルミニウム型板と結び付けることを通じ、Bi_{1-x}Sb_x合金ナノ線が得られた [16、17]。しかし、圧力注入法は合成過程で型板に対する損傷が非常に大きく、しかも型板の孔径が減少するのに伴い、物質を孔の中に圧入するのが難しくなる。また、有機溶剤は揮発しやすく、人体への有害成分が発生する。このため、水溶液の中で如何に「グリーン化学」手段を用い、高品質のBi_{1-x}Sb_x合金ナノ線を合成するかが各研究者の努力目標の1つとなった。わがチームはパルス電解析出技術を採用し、成分を調節でき、選択方位を備えるBiSb [18-20]、BiTe [21]、ZnTe [22]、InSb [23]等の合金単結晶ナノ線配列を水溶液の中で成長させ、有効な析出電位が合金ナノ線の直径と成分を制御する主要

ファクターであることを発見した。

5) Bi/BiSb超格子ナノ線のエピタクシー成長制御

ナノ熱電材料はその対応するブロック材料に比べ、熱電性能面で顕著な向上が得られる。超格子ナノ線熱電材料は一般の単体及び合金ナノ線より高い性能指数を持ち、温度差発電、熱電冷却等の多くの重要な分野で応用の見通しが明るい。このため、近年、材料科学の研究者から高い評価を受けている。多種の超格子ナノ線の成長方法が既に確立されているが、半金属超格子ナノ線の成長について言うなら、現在主に採用されているのは電気化学方法である。単一の電解槽による電気化学析出法を採用し、多孔膜の中でBi/Sb [24] 及びBiTe/BiSbTe [25]の超格子ナノ線の成長を実現させた。しかし、直流電解析出方法自体の限界性により、例えば結晶性が低く、界面が余り平滑でなく、同時に周期も一致しないため、高いZTの値を追求するという技術的要求を満たすのが難しかった。わがチームはリアルタイムの電気量制御によるパルス電気化学析出技術を開発し、周期、直径、成分を制御できるBi/BiSb超格子ナノ線を設計するとともに、それらをエピタクシー成長させた [26、27]。変調時間を改めれば、超格子ナノ線の周期と各セグメントのナノ線の長さを制御でき、また、電気量制御のパルス変調電気化学析出法を用いれば、Bi/BiSb超格子ナノ周期の一致性をうまく保持できることを発見し、伝統的なパルス電気化学析出技術では超格子周期を制御できなかった問題が解決された。開発したリアルタイムの電気量制御によるパルス電気化学析出技術はその他体系のエピタクシーを設計・成長させる上で大いに参考的意義がある。

2.2 半金属一次元ナノ材料の成長機構と物性の研究

1) 超格子構造-電気化学析出によるナノ線成長のモデル構造

型板の電気化学析出に基づく単結晶ナノ線は一次元ナノ材料を制御合成する重要な方法である。単結晶ナノ線の成長機構は現在、三次元成長から二次元成長への転移パターンに従うことが広く認められ、二次元成長は平面の成長パターンであることが認められている。現在の実験技術では電気化学析出による単結晶ナノ線の成長過程を直接観察することが難しく、目下の所、この分野は空白部分となっている。これを直接観察できるようにするための研究方法を確立することは非常に重要である。わがチームは周期の小さいBi/BiSb超格子ナノ線を合成することを通じ、それぞれ異なる成長パターンを観察した。例えば平面成長パターン、斜面成長パターン及び曲面成長パターン等である [27]。また、熱力学、動力学及び結晶成長理論等の面から観察した現象について分析を進めた。その結果、電気化学析出の過程において、熱力学が主導的地位を占めるなら、ナノ線は平面成長パターンを示し、動力学が主導的地位を占める場合は非平面成長パターンを呈することがわかった。外部に干渉条件が存在

する場合、非平面成長パターンは平面成長パターンに転移させることができ、逆もまた然りである。この研究は超格子ナノ線がモデル構造の1つであることをはっきり示しており、電気化学析出による単結晶ナノ線の成長機構を深く理解し、新たな結晶成長理論を発展させる上でも重要な指導的役割を持つ。

2) Bi/Sbヘテロ接合ナノ線配列の電気輸送特性

わがチームは段階的なパルス電解析出の方法を採用し、Bi/Sbヘテロ接合ナノ線配列を調製した。I-Vの測定で明らかのように、バイアス電流が比較的小さい時、このヘテロ接合ナノ線配列はマイクロキャパシタンスの特性を示し、バイアス電流が比較的大きい時はオーム接触として現れる。また、抵抗温度曲線からわかるように、Bi/Sbナノ線は低温の時、温度の上昇に伴って抵抗が下降を続け、半導体の特性を示すが、温度が210Kまで上昇すると、抵抗は温度の高まりと共に大幅に上昇し、金属の特性を示す。これは温度の変化に伴い、ナノ線の特性が金属と半導体の間で変換できることを物語っており、即ち温度制御による金属/半導体スイッチの特性となる [28]。

3) Sbナノ線とBiナノ管の電気学的性能

わがチームは直径の異なるSbナノ線の電気輸送性能を研究した。その結果、ナノ線直径の減少に伴い、抵抗温度係数は大から小に変わるとともに、正から負に転移する動きが現れ、ナノ線の直径が15nmより小さい時、抵抗温度係数は正から負に変わり、半導体の特性を示すことがわかった。これによって導かれた転移の臨界寸法は15nmとなる [29]。単結晶Biナノ管について言うなら、電気輸送測定試験からわかるように、ゼロ磁場の状況下において、それはナノ管壁厚の減少に伴い、壁厚が15nmの時に半金属-半導体の転移を起こす。また、伝統的なBiナノ線に比べ、単結晶Biナノ管の抵抗はその直径に対する依存性がより小さいものとなる。今回の結果はナノ管熱電材料の合成と物性の探究に新たな研究テーマを与えた [10]。

4) Biナノ線の熱膨脹行動

わがチームは温度変化エックス線回折計を採用し、Biナノ線の熱膨脹行動について系統的な研究を行った。その結果、Biナノ線の熱膨脹性能はナノ線の直径に依存するだけでなく、ナノ線の配向にも強く依存していることを発見した。温度の上昇に伴い、各種直径のBiナノ線の熱膨脹率はいずれも正から負への転移を起こし、且つその転移温度はナノ線直径の増加に伴って上昇し、室温の熱膨脹率はかさ密度の増加に伴って上昇した。また、配向の異なるBiナノ線はそれぞれの方位の熱膨脹行動を有し、熱膨脹率は低温の時に正となり、高温の時に負に変わることがわかった。直径の増加に伴い、熱膨脹率の正から負への転移温度は高温に向かって移動する [8、30]。その他、Biナノ線の線熱膨脹率と体膨脹率はいずれも対応するブロック材料より小さく、且つその体膨脹率

はブロック材料と同じ温度依存関係を持つことが実験で初めて証明された [31]。

2.3 Bi基ナノ管の熱電輸送特性の研究

ナノ管は中空構造であることから、ナノ線に比べ、より顕著な寸法効果を持つ。このため、ナノ管はより低い格子熱伝導率及び、ナノ線と異なる電子輸送行動を持つことになり、高い熱電性能指数を得ることが期待できる。わがチームは理論面からBi、BiTeナノ管のエネルギー帯構造、半金属-半導体転移、熱電輸送特性について研究を行った。

1) Biナノ管

我々の理論計算が示しているように、Biナノ管のサブバンド構造はナノ管の直径と厚さに依存しており、ナノ管の直径が比較的大きい時（例えば200nm）、Biナノ管のサブバンド構造は厚さに対してのみ顕著な依存が見られる。Biナノ管のサブバンド構造はナノ管の成長方向と温度に依存しており、温度の上昇に伴い、半金属-半導体転移を発生させる臨界厚さも減少する。温度の上昇に伴い、臨界厚さは減少するのである。ナノ管の寸法が小さくなるほど、ゼーベック係数は大きくなる。また、寸法の減少に伴い、ナノ管フォノンの境界散乱が強まり、ナノ管の熱伝導率は減少する。Biナノ管の熱電性能指数はナノ管の幾何パラメータ、成長方向及びキャリア濃度に依存しており、3回対称軸の方向に沿って成長するナノ管が最も高い性能指数を持つ。ブロックBiの熱電性能指数に比べ、ナノ管は最適熱電性能指数が著しく向上しており、且つ同じ直径のBiナノ線より高い。直径10nm、厚さ2nmのBiナノ管は、熱電性能指数が6を超えることが可能となる [32]。

2) BiTeナノ管

我々の理論研究から明らかのように、寸法効果はBiTeナノ管のゼーベック係数を増やし、フォノン熱伝導率を減らし、熱電性能指数を高めるとともに、最大のゼーベック係数と熱電性能指数を高温端に移動させる。キャリア濃度はナノ管の熱電性能指数に顕著な影響を持つ。適切なキャリア濃度はゼーベック係数と熱電性能指数を高め、そうでない場合は逆の結果となる。bisectrixの方向に沿って成長するBiTeナノ管は[015]の方向に沿って成長するBiTeナノ管に比べ、熱電性能指数が高くなる。温度は熱電輸送係数と熱電性能指数に対しても重要な影響を持つ。このため、BiTeナノ管の熱電性能指数を最大化するには、ナノ管の幾何寸法、成長方向、キャリア濃度及び温度も同時に最適化しなければならない。

3. 中間のまとめ

以上、半金属一次元ナノ熱電材料の調製分野におけるわがチームの最新の研究成果を紹介した。近年、低次元ナノ材料は熱電材料開発の重点となっており、理論面でも実験面でも研究の余地が大きい。研究の深まりに伴い、

ナノ熱電材料の熱電性能が一段と向上するものと信じている。超格子体系は熱電性能指数を大幅に高めることが既に証明されているため、今後発展させる重点分野の1つとなるであろう。これには一層複雑な二次元と三次元の超格子ナノ線及び超格子ナノ管がある。熱電材料の産業化を実現するため、理論と実験の2つの側面から低次元超格子体系のミクロ構造及び調製工程がその熱電性能に及ぼす影響を研究し、また、装置の調製工程に対する研究を強化する必要がある [33]。

参考文献

- 1 L. Hicks and M. Dresselhaus, Phys. Rev. B 47, 16631(1993).
- 2 D. Broido and T. Reinecke, Appl. Phys. Lett. 70, 2834(1997).
- 3 L. Hicks, T. Harman and M. Dresselhaus, Appl. Phys. Lett. 63, 3230 (2009).
- 4 L. Hicks, T. Harman, X. Sun, M. and Dresselhaus, Phys. Rev. B 53, 10493 (1996).
- 5 Y. Lin, X. Sun and M. Dresselhaus, Phys. Rev. B 62, 4610(2000).
- 6 Y. Zhang, G. H. Li, Y. C. Wu, B. Zhang, W. H. Song and L.D. Zhang, Adv. Mater. 14, 1227 (2002).
- 7 L. Li, Y. Zhang, G. H. Li and L.D. Zhang, Chem. Phys. Lett. 378, 244(2003).
- 8 L. Li, Y. Zhang, Y. W. Yang, X. H. Huang, G. H. Li and L. D. Zhang, Appl. Phys. Lett. 87, 031912(2005).
- 9 L. Li, Y. W. Yang, G. H. Li and L. D. Zhang, Small 2, 548(2006) .
- 10 L. Li, Y. W. Yang, X.H. Huang, G. H. Li, R. Ang and L. D. Zhang, Appl. Phys. Lett. 88, 103119(2006).
- 11 L. Li, Y. H. Xiao, Y. W. Yang, X. H. Huang, G. H. Li and L. D. Zhang, Chem. Lett. 34, 930(2005).
- 12 L. Li, Y. Zhang, G. H. Li, W. H. Song and L. D. Zhang, Appl. Phys. A 80, 1053 (2005).
- 13 L. Li, Y. H. Xiao, Y. W. Yang, G. H. Li, Y. Li and L. D. Zhang, Chem. Lett. 34, 1274(2005).
- 14 Y. Zhang, L. Li and G. H. Li, Nanotechnology 16, 2096(2005).
- 15 Y. M. Lin, O. Rabin, S. B. Cronin, J. Y. Ying and M. S. Dresselhaus, Appl. Phys. Lett. 81, 2403 (2002).
- 16 A. L. Prieto, M. M. Gonzalez, J. Keyani, R. Gronsky, T. Sands and A. M. Stacy, J. Am. Chem. Soc. 125, 2388(2003).
- 17 M. M.Gonzalez, A. L. Prieto, M. S. Knox, R. Gronsky, T. Sands and A. M. Stacy, Chem. Mater. 15, 1676(2003).
- 18 L. Li, G. H. Li, Y. Zhang, Y. W. Yang and L. D. Zhang, J. Phys. Chem. B 108, 19380(2004).
- 19 X. C. Dou, Y. G. Zhu, X. H. Huang, L. Li and G. H. Li, J Phys. Chem. B 110, 21572(2006).
- 20 X. C. Dou, G. H. Li, X. H. Huang and L. Li, J. Phys. Chem. C 112, 8167 (2008)
- 21 L. Li, Y. W. Yang, X. H. Huang, G. H. Li and Lide Zhang, Nanotechnology 17, 1706(2006).
- 22 L. Li Y. W. Yang, X. H. Huang, G. H. Li and L. D. Zhang, J. Phys. Chem. B 109, 12394(2005).
- 23 Y. W. Yang, L. Li, X. H. Huang, G. H. Li and L. D. Zhang, J. Mater. Sci. 42, 2753 (2007).
- 24 F. H. Xue, G. T. Fei, B.Wu, P. Cui and L. D. Zhang, J. Am. Chem. Soc. 127, 15348(2005).
- 25 B. Yoo, F. Xiao, K. N. Bozhilov, J. Herman, M. A. Ryan and N. V. Myung, Adv. Mater. 19, 296(2007).
- 26 X. C. Dou, G. H. Li, H. C. Lei, X. H. Huang, L. Li and Ian W. Boyd, J. Electrochem. Soc. 156, (2009) K149.
- 27 X. C. Dou, G. H. Li and H. C. Lei, Nano Lett. 8, 1286(2008).
- 28 Y. Zhang, L. Li and G. H. Li, Nanotechnology 16, 2096(2005).
- 29 Y. Zhang, L. Li, G. H. Li, Y. C. Wu, Z. G. Sheng and L. D. Zhang, Phys. Rev. B 73, 113403 (2006).
- 30 Y. G. Zhu, X. C. Dou, X. H. Huang, L. Li and G. H. Li, J. Phys. Chem. B 110, 26189(2006).
- 31 C. J. Tang, G. H. Li, X. C. Dou, Y. X. Zhang and L. Li, J. Phys. Chem. C 113, 5422(2009).
- 32 G. Zhou, L. Li, and G. H. Li, Appl. Phys. Lett. 97, 023112 (2010).
- 33 L. Li, X. C. Dou and G. H. Li, Rec. Pat. Nanotech. 4, 181(2010).

高分子ナノ材料研究最前線

•Profile•



西 敏夫 にし としお ●東北大学原子分子材料科学高等研究機構 教授、主任研究員

- ・東北大学原子分子材料科学高等研究機構、教授、主任研究員
- ・東京大学名誉教授（2003年～）
- ・東京工業大学名誉教授（2008年～）
- ・1967年：東京大学大学院工学系研究科応用物理学専攻修士課程修了
- ・1967年～1980年：プリヂストンタイヤ（株）研究開発本部
- ・1972年：工学博士（東京大学）
- ・1972年～75年：ベル研究所客員研究員
- ・1980～2003年：東京大学工学部物理工学科 専任講師、助教授、教授
- ・1985年：IBM Summer Faculty Fellow
- ・2003・2008年：東京工業大学大学院理工学研究科、有機・高分子物質専攻教授
- ・2008年～現職
- ・1995～97年：（社）日本ゴム協会会長
- ・2000～2002年：（社）高分子学会副会長
- ・2005年～：最高裁判所専門委員、2006年～：日本学術会議連携委員
- ・PR：ポリマーアロイ、高分子ナノテクノロジーの開拓
- ・ISO/TC45/SC4/WG9 免震ゴムの議長、日本発の免震ゴムのISO化達成

共著者：中嶋 健（同准教授）、陣内 浩司（京都工芸繊維大学工芸科学研究科 准教授）

1. はじめに

高分子ナノ材料の研究開発は、日本、中国を始めとして世界各国で盛んに研究されている。それらは、非常に多面的で簡単にはまとめられないが、標準的には我々が2005年に高分子学会から高分子先端材料One Pointシリーズのひとつとして出版した、「高分子ナノ材料」¹⁾が基本となろう。実際、ネット検索で「高分子ナノ材料」と入れると53,100件中からトップに我々の本が現れる。

今回は、2005年以降について、日本の進歩を中心として我々自身の研究を含めてまとめた。特に、日本に関しては、高分子学会のなかに高分子ナノテクノロジー研究会が2002年から発足し、活発に研究会、講演会などを行っている。この辺の活動も参考にして頂けると助かる。また、高分子ナノ材料の発展には、高分子ナノテクノロジーの発展が不可欠である。これも同様に「高分子ナノテクノロジー」というキーワードでネット検索すると33,800件あり、トップに「高分子ナノテクノロジー研究会」が現れる。

一方、高分子ナノ材料の基本は、ポリマーアロイ、ブレンド、コンポジット（略称ポリマーABC）である。ポリマーABCに関しては、1992年から2002年まで活動した高分子学会のポリマーABC研究会が、2001年1月1日に発行したB5版1,260ページに及ぶ「ポリマーABCハンドブック」²⁾がある。この本は、1冊62,790円と高価にもかかわらず専門書としてはベストセラーとなり、在庫も殆ど無いという。現在改訂版として「高分子ナノテクノロジーハンドブック（仮称）」を計画中で、高分子ナノテクノロジー研究会から近年中に出版予定である。尚、高分子ナノテクノロジー研究会は、高分子ABC研究会を母体にして、時代の流れに応じて改称したものである。勿論、ネッ

ト検索で「高分子ABC」と入れると、約135,000件からトップにこの本が現れる。

2. ポリマーアロイ・ブレンドの発展

ポリマーアロイの大きな分野のひとつに、ブロック共重合体によるマイクロ相分離構造を利用した熱可塑性エラストマー（TPE）という領域がある。これに関してはNPOナノ構造ポリマー研究協会の中に、TPE技術研究会が2006年6月から発足し、現在までに5回の公開講演会、23回の研究会を開くなど活発に活動している。これも「TPE技術研究会」でネット検索すると、206,000件中トップに現れる。

最近のトピックスとしては、リビング重合を工業規模で成功させて年産1万トン規模で生産され始めた、カネカのスチレン・イソブチレン・スチレンブロック共重合体³⁾がある。これは、ガスバリア性、振動吸収性に優れたTPEとして注目されている。また同様にクラレは、透明なTPEとしてポリメチルメタクリレート（PMMA）とポリnブチルアクリレート（PnBA）ブロック共重合体⁴⁾を量産化する。アクリル系TPEでナノサイズのマイクロ相分離のため、ポリスチレン（PS）やポリカーボネート（PC）以上に透明で、PMMAと殆ど同じ位透明である。従って、極めて透明なエラストマー材料が出現した事になる。

一方、TPEでは、物理架橋の役割をするハードセグメントとゴム物性を示すソフトセグメントからなるブロック共重合体が基本であるが、どちらかのセグメントと相溶する高分子がある場合は、両者を接着剤無しで接着⁵⁾できる。例えば、スチレン・ブタジエン・スチレン（SBS）共重合体とPS板などである。この性質を積極的に利用すると、表面が柔軟で内側が硬い複合材が射出成形で可能

となる。これをオーバーモルディングと呼ぶが、自動車内装部品等に使われ始めている⁶⁾。この様な手法により、高分子ナノ材料の用途が拡大しつつある。

さらに、TPEでは、今まで主流であったSBSやスチレン・イソブレン・スチレン (SIS) ブロック共重合体だけでなく、オレフィン系のマルチブロック共重合体⁷⁾ など複雑な構造を持った高分子ナノ材料が次々と現れて来ている。

ポリマーアロイの分野では、混練条件を精密制御したり、反応押し出し (リアクティブプロセス) を用いて、相分離構造をナノスケール化した高分子ナノアロイが東レを中心に開発され、実用化が進んでいる。例えば、NEDOによる精密高分子技術プロジェクト (2000年～2007年) では、東レ、山形大、東工大、京都工芸繊維大、産総研などの産学官連携により、非粘弾性ポリマーアロイ (NOVA) が開発された⁸⁾。これはポリアミドとポリオレフィン系エラストマーのポリマーアロイで、L/D=100という特殊な二軸押出機を用いることによって、複雑な相構造をナノスケールで制御したものである。これによって、普通はプラスチックとしてふるまうが、衝撃時にはゴムのような挙動を示す新規なポリマーアロイが開発された。さらに、これらの技術を複合したTPEとのポリマーブレンド、架橋を導入したTPVなど目的に応じた多様な高分子ナノ材料が開発されている。

3. ポリマーコンポジットの発展

各種のナノ粒子、ナノファイバー、ナノシート、3次元共連続構造などによるポリマーナノコンポジットというかたちの高分子ナノ材料の開発は枚挙にいとまがない程多くなって来た。昔から知られているカーボンブラックやシリカナノ粒子による複合も、混合方法、ナノ粒子の表面処理やカップリング剤の最適化や分子設計、さらにはマトリックスとなる高分子の両末端機能化による粒子表面との相互作用増強などにより、ナノ粒子の分散状態制御が可能になりつつある。このようなナノ階層制御により、超低燃費タイヤ用ゴム材料の開発⁹⁾ などが急速に進んでいる。

一方、カーボンナノチューブ (CNT) による高分子複合材料の開発も進み、半透明導電性プラスチック、高温高圧下で使用可能なフッ素系ゴムシール¹⁰⁾ などが現れている。特に後者は、これを石油掘削用装置のシールに用いると、今迄より深部からの採油が可能になり、石油埋蔵量の大幅な増加につながると期待されている。このように、高分子ナノ材料をメガテクノロジーへと展開するのは新しい視点¹¹⁾ として注目されている。同様な事は、高分子ナノ材料によって、建物や橋梁を地震から守る免震用積層ゴムを高性能化するという目標にも現れている¹²⁾。特に、CO₂発生抑制に大きく貢献する原子力発電所の免震化も注目され、2010年11月には、柏崎で原子力発電設備の耐震、免震化の国際シンポジウムまで開かれるよ

うになった¹³⁾。

さらに、ナノシートと見なされる層状化合物であるクレーやグラフェンを使ったナノコンポジット材料の進展も著しい。例えば、日本発の技術であるクレーの一種である層状鉱物のモンモリロナイトを、一層ずつはがして高分子やゴム中に分散させ、高弾性率化させた高分子ナノ構造体は、自動車材料へ応用され始めたし、ゴム中に分散させガスバリア性を高めたナノ材料は、自動車用タイヤのインナーライナーに使われ始めた。

一方、ナノ粒子を使ってポリマーの屈折率を上げる試みや、高熱伝導性フィラーを電場や磁場を使って配向させた放熱シート、異方導電性フィルム等に関する研究も盛んに行われている。個別の高分子ナノ材料の紹介はきりがないので、以下では、これらの研究の共通基盤となる高分子ナノテクノロジーの最前線について簡単にまとめる。

4. 高分子ナノテクノロジーの発展

高分子ナノ材料の研究で重要なのは、

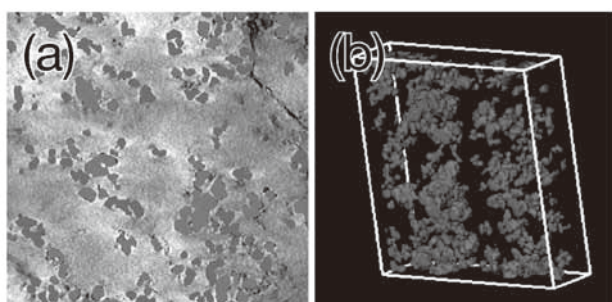
- ・ ナノ構造解析
- ・ ナノ物性解析
- ・ ナノ材料開発
- ・ 高分子ナノ材料の成型、加工技術
- ・ 大規模な計算機によるシミュレーション

などの高分子ナノテクノロジーの発展である。

特に、これらにより、高分子ナノ材料中の複雑な構造の三次元可視化、ナノ材料中の多相構造の空間的分散・配向状態の定量的な解析とシミュレーション、多相界面の制御、多相のナノスケールでの物性マッピング等が可能になりつつある。ここでは進展が著しい二例の紹介に留める。

1) 電子線トモグラフィーによる三次元電子顕微鏡 (3D-TEM) による高分子ナノ材料の構造解析¹⁴⁾

高分子材料の3D-TEMに適したシステムが開発され、実際の高分子ナノ材料の研究開発に活用され始めた。基本は、透過型電子顕微鏡 (TEM) 中で、試料を±60～70°で1°きざみ程度で回転させ、三次元像を再構成するものである。図1(b)に、ゴム中にカーボンブラック (青)、シリカ (赤) ナノ粒子を分散させた系の3D-TEM像を示す¹⁵⁾。ここで、画面の大きさは、726×726×107nmである。これにより、カーボンブラックもシリカも一次粒子径は約20nmであるが、それらは単一粒子で分散しているのではなく、多くの一次粒子が凝集したアグロメレートを形成して分散していることがわかる。この様な系の最適化には、アグロメレートの解析、これらの空間分散状態の制御が必要であるが、今迄この様な情報は得られていなかった。参考までに今迄のTEMでは、図1(a)の様な情報しか得られず、ナノ粒子が三次元的にどう分散しているかは不明であった。3D-TEMの活用により、より優れた高分子ナノ材料



◎図1 カーボンブラック(CB)とシリカナノ粒子充てんゴム中のCB(青)とシリカ(青)のTEM像¹⁵⁾。(a)二次元像, (b)三次元像。(726×726×107nm)

が開発されると期待されている。この手法は、ブロック共重合体のミクロ相分離構造の三次元解析¹⁴⁾、クレー配合高分子ナノ材料の解析¹⁵⁾その他に応用され始めている。

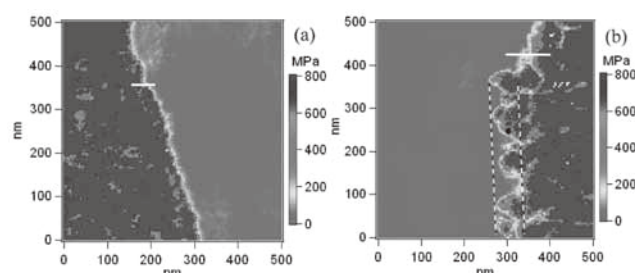
2) ナノ物性解析としてのナノ力学物性マッピング

3D-TEMによって高分子ナノ材料の複雑な三次元構造がわかったとしても、そのナノ領域で材料の物性がどうなっているのかは不明である。最近、原子間力顕微鏡(AFM)をベースにしてそのForce-Distance曲線を試料各部で解析し、それをマッピングする手法が開発された¹⁷⁾。これにより、高分子ナノ材料の複雑な構造の各部分での弾性率、凝着エネルギー、粘弾性、変形量、試料の真の凹凸像などを同一場所で一回の測定でナノスケールでマッピング可能となった。例えば、図2(a)に、ポリアミド(PA6)とポリオレフィン系エラストマー(POE)ブレンドの界面での弾性率マッピングを示す¹⁸⁾。これを高性能化するために、POEに無水マレイン酸をグラフトすると、界面は図2(b)の様に劇的に変化する。界面の厚みで言えば、約7.6nmから48nmと厚くなる。同時にPA6相の大きさ、分散状態も劇的に変化する。この様な手法によって、高分子ナノ材料で最重要な問題である界面制御とその解析方法が確立されつつある。

現在では、これらの三次元情報をもとにして、高分子ナノ材料中でナノスケールでの三次元有限要素法を用いて、ナノから巨視スケールの物性を予測し、その最適化を試みることで可能になって来た。これらの手法は、個別の高分子ナノ材料に適用可能である。従って、これからは、巨視的に見れば普通の高分子材料と見えるが、内部のナノ構造が制御され、今までに無い特性を持った実用に耐える高分子ナノ材料が次々に現れてくると期待されている。

5. おわりに

高分子ナノ材料は極めて多岐にわたるのでこれからも新しい材料がここで述べた手法などを基にしていろいろ現れて来るであろう。新しい発想としては、例えば架橋点を化学結合ではなく、環状分子を組み合わせると可動と



◎図2 ポリマーブレンド界面のナノ力学物性マッピング¹⁸⁾

(a) ポリオレフィンエラストマー(POE) / ポリアミド(PA6)
(b) 無水マレイン酸グラフトPOE / PA6

した環動高分子がある¹⁹⁾。この方法でゲルを作成すると、今迄にない高い膨潤性、高伸張性等が得られる。最近は、これをゴム状物質に応用し、傷修復性塗料まで開発されている。勿論高分子ナノ材料は、目的に応じて設計可能なので、今後はどのような方面を重視するかも大切である。これからの方向としては、

- ・エレクトロニクス・ITイノベーション
- ・バイオイノベーション
- ・グリーンイノベーション

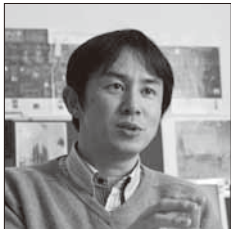
などに向けた高分子ナノ材料の研究開発が求められていると考えている。

参考文献

1. 西 敏夫, 中嶋 健:「高分子ナノ材料」, 高分子学会編高分子先端材料One Pointシリーズ, 共立出版, 2005年3月.
2. 高分子学会編:「ポリマー ABCハンドブック」, エヌ・ティー・エス出版, 2001年1月.
3. 中林裕晴:日本ゴム協会誌, 83, 284 (2010).
4. B. K. Chapman, T. Kurihara, K. Hirata: 9th. TPE. TOPCON, No. 6-1, Sep. 2010, Akron, USA.
5. 六田充輝:日本ゴム協会誌, 83, 296 (2010)
6. M. R. Sadeghi, S. Lattime, R. L. Pfaffle: 9th. TPE. TOPCON, No. 5-1, Sep. 2010, Akron, USA.
7. L. Weaver, A. Batra, K. R. Hollabaugh, J. M. Rego: 9th. TPE. TOPCON, No. 4-1, Sep. 2010, Akron, USA.
8. 中浜精一監修:「精密高分子の基礎と実用化技術」, シーエムシー出版, 2008年11月.
9. NEDO, ナノテクチャレンジプロジェクト,「三次元ナノ階層構造制御による超低燃費タイヤ用ゴム材料の研究開発」(2009年~2011年)
10. M. Endo, T. Noguchi, M. Ito, K. Takeuchi, T. Hayashi, Y. A. Kim et al.: Adv. Funct. Mater. 18, 3403 (2008).
11. T. Nishi, K. Nakajima, H. Jinnai: IRC 2009, Nuremberg, Germany.
12. T. Nishi, J. M. Kelly, F. L. Zhou: ISO Focus, 6, 26 (2009).
13. 1st. Kashiwazaki International Symposium on Seismic Safety of Nuclear Installations, Nov. 2010, Kashiwazaki, Niigata, Japan.
14. H. Jinnai, R. J. Spontak, T. Nishi: Macromolecules, 43, 1675 (2010).
15. H. Jinnai, Y. Shinbori, T. Kitaoka, K. Akutagawa, N. Mashita, T. Nishi: Macromolecules, 40, 6758 (2007)
16. H. Nishioka, K. Niihara, T. Kaneko, J. Yamanaka, T. Inoue, T. Nishi, H. Jinnai: Composite Interfaces, 13, 589 (2006)
17. K. Nakajima, T. Nishi:「Polymer Physics, From Suspensions to Nanocomposites and beyond」, Ed., by L. A. Utracki and A. M. Jamieson, John-Wiley & Sons., 2010.
18. D. Wang, S. Fujinami, H. Liu, K. Nakajima, T. Nishi: Macromolecules, 43, 5521 (2010).
19. 伊藤耕三: 高分子論文集 65, 445 (2008).

プラズモニック・メタマテリアル

•Profile•



田中 拓男 たなか たくお ●独立行政法人理化学研究所 基幹研究所 田中メタマテリアル研究室 准主任研究員

1968年3月生まれ。

1996年3月 大阪大学大学院工学研究科博士後期課程修了 博士（工学）

1996年4月 同大基礎工学部助手

2003年4月 理化学研究所 研究員

2008年4月 理化学研究所 准主任研究員

<専門>

メタマテリアル、ナノフォトニクス、応用光学

1. はじめに

プラズモニック・メタマテリアル（以下メタマテリアル）という人工光学物質を紹介する。メタマテリアルの実体は、金属のナノ構造体をホストとなる物質中に無数に埋め込んだ一種のナノ金属構造体である。ただ、その個々のサイズを光の波長より充分小さく設計すると、それらは光には見えなくなり、光にとってはあたかも均質な物質のように振る舞う。これが、メタ”構造体”ではなくメタ”マテリアル”と呼ぶ理由である。

メタマテリアルでは、ナノ金属構造体と光波との相互作用を利用して、埋め込んだ金属の構造（形）を変えることで物質の光学特性（電磁気学的特性）を制御できる。そして、その構造をうまく設計すれば、自然界に存在する物質には見られない特異な光学特性を人工的に発現させることができる。さらに、新たな光学特性を人工的に付加した物質は、全く新しい光学現象を通して、新しい光機能デバイスの実現に繋がる。本稿では、メタマテリアルの動作原理について触れた後、メタマテリアルの応用技術や加工手法を紹介する。

2. 物質の光学特性－屈折率

光学の分野で重要な物理量である物質の屈折率 n は、電磁気学的には比誘電率 ϵ と比透磁率 μ の2つを使って、

$$(1) \quad n = \sqrt{\epsilon} \times \sqrt{\mu}$$

で与えられる。しかし可視光の領域では、 μ はいつも1.0なので、

$$(2) \quad n = \sqrt{\epsilon}$$

で良いとされる。式が簡単になるのは良いが、自由度という観点からは、2つしかない自由度の片方を失うのは大きな損失である。

屈折率の定義がこのような簡略化されるのは、物質が光の磁場成分と相互作用しないからだと説明される。よ

く知られるように、物質の磁性の起源は、物質内の原子核や電子のスピンと軌道運動である。これらはどれも可視光のような高い周波数には追従できないので、自然界に存在するほぼ全ての物質は光の磁場成分に応答することができない。その結果物質の透磁率は真空の透磁率と等しくなり、 μ は1.0になる。

3. プラズモニック・メタマテリアルを用いた人工磁性材料

では、1.0に固定されている物質の比透磁率（ μ ）を、変化させるにはどうすれば良いか？ μ を1.0から変化させるということは、光の周波数で変化する磁場に応答できる人工的な「磁性」を物質に与えることに対応する。そのためには、磁性を生み出すカラクリが必要であり、プラズモニック・メタマテリアルの場合は、物質の磁性の起源の1つである電子の軌道運動を模倣することでこれを実現する。すなわち、金属をリング状に加工して、電子が環状運動する軌道を作る。要するにコイルである。これに外部から光を照射して磁場を印加すると、電磁誘導の原理で金属リング内に電流が流れて、金属リングは新たな磁場を作り出す。ただ電流といっても周波数が高いので、電子は、流れているというよりは、金属内で集団的に振動しているだけである。さらに、金属リングに適当な切れ目を入れると、この切れ目部分がコンデンサーとして働いて、金属リング全体がLC共振回路として動作し、その共振周波数の光と強い共鳴相互作用を起こす。この素子を光の波長より小さなサイズで設計して、ホストとなる物質中に3次元的なアレイとして集積化すると、光は個々の共振器の存在は感知できないが、その効果は有効であり、共振器アレイは光の磁場成分と相互作用する新しい物質として機能してその巨視的な比透磁率が1.0から変化する。これがメタマテリアルの動作原理である（図1）。

この動作原理に基づくメタマテリアルは、1999年にPendryが提案し、2000年にSmithが4 GHzのマイクロ波領域において実験的に示した[1、2]。彼らが提案した共振器構造はSplit Ring Resonator（SRR）と呼ばれる同

心円リング型のもので、磁場を受けるアンテナ部がインダクタンス (L) とキャパシタンス (C) で接続された共振回路である (図2 (a))。SRRはその共振周波数と一致した周波数の光を強く吸収する。これは、 μ の虚数部がその周波数付近で大きく変化することに対応するが、 μ の虚数部が変化すると実数部も変化する (図2 (b))。そして透磁率の実数部の変化は共振器のQ値が高いほど大きくなる。

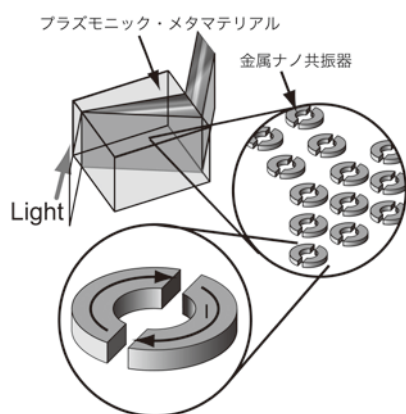
メタマテリアルの構造設計における電磁気学的解析の詳細は、スペースの関係で書く事ができないので、参考文献を参照いただくことにして、次章では、メタマテリアルを用いて透磁率を制御した物質を作れば、それがどんな事に応用できるかに話題を移す [3-5]。

4. 偏光無依存ブリュースター素子への応用

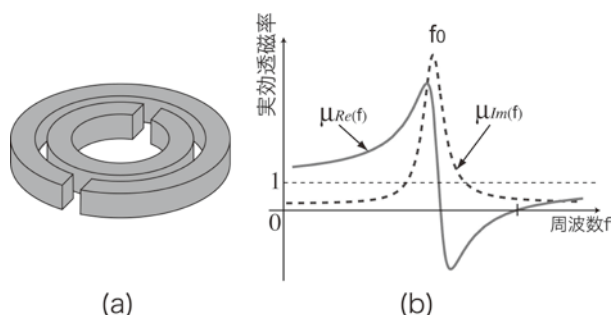
屈折率の異なる物質の境界面に光が入射すると、その一部が境界面で反射される。この光の反射は一般には避けることができないが、うまく条件を描えと反射光がゼロになる現象がある。これがブリュースター現象である。その条件とは1)光がある特定の角度 (ブリュースター角) で物質界面に入射しており、かつ2)その偏光方向が入射面に垂直なp偏光であることである (図3(a))。すなわち、反射率がゼロとなるブリュースター現象は、s偏光の光では決して起こらない現象である。しかし、物質の

比透磁率が1.0から変化した物質の境界面では、s偏光にブリュースターが発現するようになる (図(b))。もちろん先に述べたように、光周波数において透磁率が1.0以外の値をもつ物質は自然界には存在しないが、メタマテリアルなら作り出すことができる。

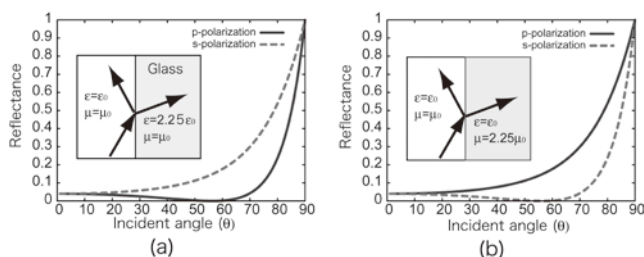
p偏光とs偏光のブリュースターを使うと、物質境界面における光の反射をその偏光状態に関係なく抑制することができる [6]。そのためのメタマテリアルの構造を図4に示す。これは一軸性結晶のように光学的な異方性を持つ構造である。この異方性メタマテリアルを用いたp、s両偏光に対するブリュースター素子の設計例として、光波が真空中からガラスへ伝搬する状態を仮定し、その境界面にメタマテリアルを挿入したモデルで設計を行った。その1つを図5に示す。真空から入射した光は、メタマテリアルの境界面でp、sそれぞれの偏光に応じて異なる方向へ屈折した後、メタマテリアルの中を異なる方向に伝搬する。そしてガラスの境界面において再度屈折し、p、s両偏光が同じ出射角でガラス中へと透過する。この設計例における境界面での反射率は、いずれの偏光に対しても計算誤差によって生じた 2×10^{-5} 以下の値であり、物質境界面での光の反射は100%無効化されていることが確認できた。例えばこのようなメタマテリアルでできた無反射光素子を光ファイバーの先端に取り付けば、図6に示すように光の偏光方向に関係なく、



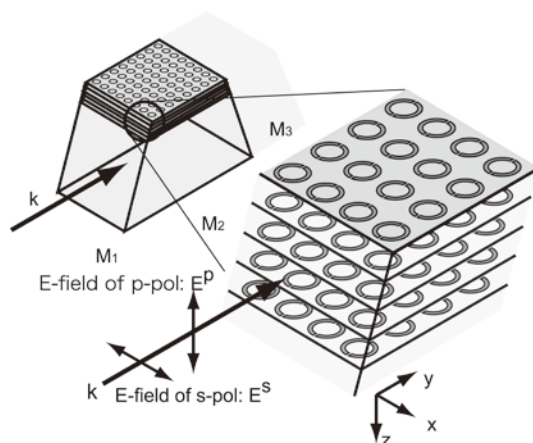
◎図1 プラズモニック・メタマテリアル



◎図2 Split Ring 共振器による透磁率制御



◎図3 p、s偏光のブリュースター現象



◎図4 ナノ共振器アレイを積層させた異方性メタマテリアル

光ファイバーに無反射で光をカップリングさせることができるようになる。

5. メタマテリアルを用いた屈折率制御

冒頭で述べたように、本来、物質の屈折率は比誘電率と比透磁率で決定されるはずであるが、光の周波数では比透磁率が1.0に固定されているので、屈折率は比誘電率だけで決まってしまう。しかし、メタマテリアルを用いて物質の比透磁率も制御できれば、高い屈折率や低い屈折率を持つ物質をより自在に作り出すことができるようになる。

メガネなどに利用されているプラスチックレンズを例に議論する。現在プラスチックレンズに利用されている樹脂の屈折率は、高いものでも1.76程度である。この屈折率をあと0.04上げて1.80にしようとする、比誘電率に換算して3.10から3.24まで0.14も上げなければならず、これは容易ではない。しかし、1.80と1.76の比はわずかに1.023であり、これを比透磁率の変化で賄うなら、比透磁率を1.0から0.046だけ上げて、1.046にするだけで済む。

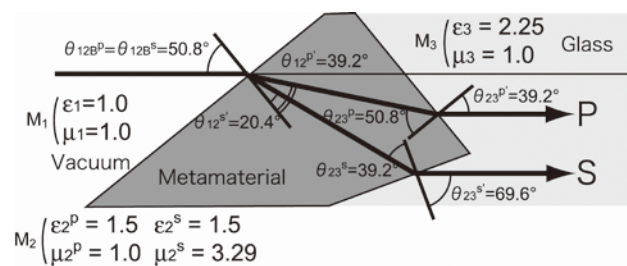
図7は横軸と縦軸に ε と μ の平方根を取ったものである。このグラフ上に様々な物質の存在位置をプロットすると、物質の位置と原点とで決まる四角形の面積が屈折率に対応する。物質の屈折率を制御する時、これまでは ε しか変化させることができないので、屈折率の制御と

は高さ1.0で固定された長方形の横の長さだけを変えることに対応し自由度が少なかった。しかし、もし μ も変化させることができれば、図の縦方向の変化も屈折率制御に利用することができ、結果的に高い屈折率や低い屈折率など、より自由自在に屈折率を制御できるようになる。

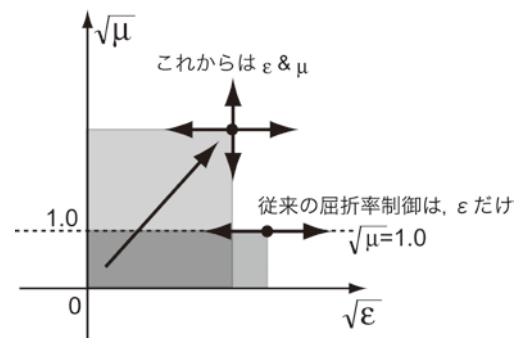
6. メタマテリアルの加工法

メタマテリアルを作製するには、(i)高い導電率を持つ金属を、(ii)ナノサイズでデザインされた共振器の形状に加工し、(iii)これを3次元的なアレイ構造としてホスト材料中に集積化させなければならない。しかし、現在の微細加工技術にとって、この要求を実現することは困難である。例えば、光リソグラフィー法や電子ビームリソグラフィー法を使えば、ナノメートルスケールの金属のパターニングは不可能な事ではない。しかし、これらは2次元パターンの縮小転写技術なので、3次元的な構造体を加工することができない。このような加工技術における問題、特に加工形状の3次元性の問題を解決するため、我々はレーザーを用いて立体的な微細金属構造を3次元空間中に直接作り出す新しい加工技術の提案を行った〔7-9〕。

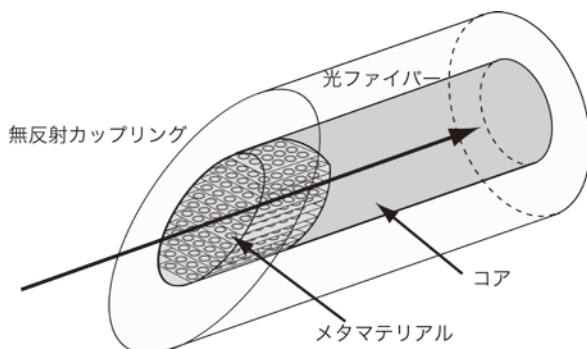
我々が開発した手法は、図8に示すように金属イオンをホストとなる物質中に分散させ、この材料中に近赤外の波長を持つフェムト秒チタンサファイアレーザー（波



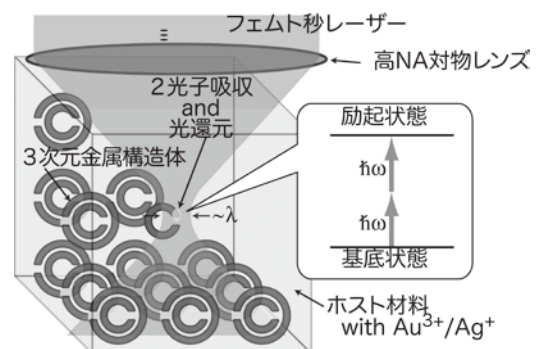
◎図5 偏光無依存プリュースター素子



◎図7 ε と μ の両方を用いた物質の屈折率制御



◎図6 光ファイバーへの光の偏光無依存無反射結合

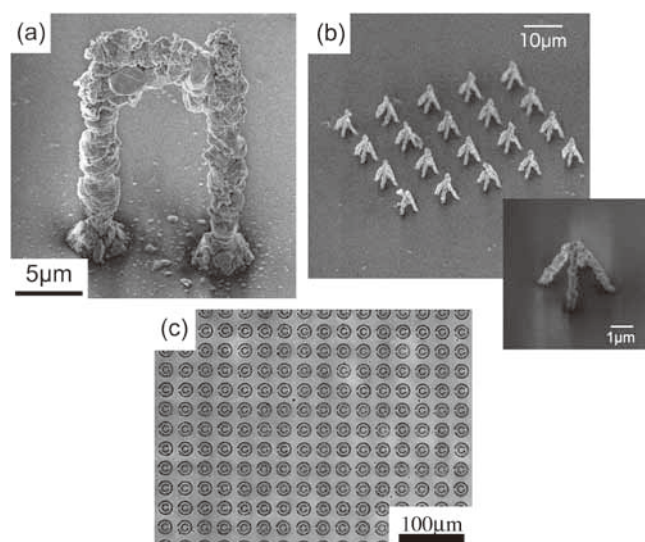


◎図8 2光子還元法を用いた3次元金属ナノ加工

長800nm)を集光照射するというものである。金属イオンとは、具体的には銀イオン(Ag^+)や金イオン(Au^{3+})である。これらのイオンは紫外線のみを吸収して近赤外光は吸収しないが、極短パルスレーザーを集光して光子密度が高い状態を作ると、物質が2つの近赤外光子を同時に吸収して紫外光に相当するエネルギー準位の電子励起が起こる。これが2光子吸収と呼ばれる現象である。そして吸収された光のエネルギーは金属イオンを還元させて金属の析出が起こる。この2光子吸収が起こる確率は光の強度分布の2乗に比例するので、金属イオンの還元は、光強度の高いレーザースポット部においてのみ局所的に起こる。そして、このレーザースポットを3次的に走査すれば、3次的な金属構造を自在

に描画することができる。

図9に本手法で作製した金属構造体の例を示す。図(a)、(b)は、銀イオンの水溶液中にレーザー光を集光して作製したマイクロゲート構造とマイクロピラミッドアレイである。いずれも完全な3次元形状を持ちガラス基板上に自立している。またピラミッドを構成する4本のロッドの線幅は200nm程度しかないが、それでも十分な物理的強度を持っており電気抵抗も低い。図(c)は Au^{3+} をドーブしたPoly-methyl-methacrylate樹脂をガラス基板上にフィルム状に塗布した後、その中で金の共振器アレイ構造を直接作製したものである。このように、物質中に直接金属構造を生成できる微細加工技術は、筆者の知る限り他にはない。



◎図9 2光子還元法で作製した金属構造

7. メタフォトニクス

プラズモニック・メタマテリアルが切り開く新しい光学物質と、それが生み出す新規な光学現象や新しい光学素子への展開について述べた。物質に人工的な磁性を与え、その透磁率の操作できるメタマテリアル技術は、透磁率方向に大きな制約を受けている自然界の物質の光学特性を大幅に拡張する。メタマテリアルが自由に手に入ると、物質の比透磁率が1.0であるとされていたこれまでの光の世界は「古典的な狭い光の世界」になって、もっと広い新しい光の世界が実現される。我々はその新しい光の世界で実現される光技術を「メタフォトニクス」と名付けた。この世界には、我々がまだ知らない光機能や光学現象などがまだまだたくさんある。これらを1つずつ探し出してゆくこともこの研究の楽しみの1つである。

参考文献

1. J. B. Pendry, A. J. Holden, D. J. Robbins, and W. J. Stewart: IEEE Trans. Microwave Theory Tech. 47 2075 (1999).
2. D. R. Smith, W. J. Padilla, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser, and S. Schultz: Phys. Rev. Lett. 84 41847 (2000).
3. A. Ishikawa and T. Tanaka, Opt. Commun. 258 300 (2006).
4. A. Ishikawa, T. Tanaka, and S. Kawata: Phys. Rev. Lett. 95 237401 (2005).
5. A. Ishikawa, T. Tanaka and S. Kawata: J. Opt. Soc. Am. B 24 510 (2007).
6. T. Tanaka, A. Ishikawa, and S. Kawata, Phys. Rev. B 73, 125423 (2006).
7. T. Tanaka, A. Ishikawa, and S. Kawata, Appl. Phys. Lett. 88, 81107 (2006).
8. A. Ishikawa, T. Tanaka, and S. Kawata, Appl. Phys. Lett. 89, 113102 (2006).
9. Y. Cao, N. Takeyasu, T. Tanaka, X. Duan, and S. Kawata, Small 5, 1144 (2009).

次世代ナノ電子デバイスの研究開発シナリオ ～新デバイス材料としての機能性酸化物の適用を例にとって～

•Profile•



秋永 広幸 あきなが ひろゆき ●独立行政法人産業技術総合研究所ナノ電子デバイス研究センター副研究センター長

1960年9月生まれ。安徽省ナノ材料・技術重点実験室主任、研究員、博士課程院生指導教官。1997年、中国科学院固体物理研究所の物性物理専攻で、理学博士の学位を取得。

低次元ナノ材料とナノ構造の研究に主に従事。科学技術省、基金委員会、中国科学院及び地方の20件余りの科学研究プロジェクトを主宰又はこれに参加。Adv.Mater.、Nano Lett.、Small、Phys.Rev.B、Appl.Phys.Lett.、J.Phys.Chem.等の刊行物に100編余りの研究論文と総解説論文を発表。10件余りの国家発明特許を出願、そのうち6件で特許を取得。主要メンバーとして国家自然科学2等賞、中国科学院発明2等賞、中国科学院科学技术進歩3等賞及び安徽省自然科学2等賞をそれぞれ1回受賞。

1. はじめに

微細化に伴うMOSFET (Metal-Oxide-Semiconductor Field Effect Transistor)の高性能化とその微細化限界を克服するための研究開発は、次世代半導体エレクトロニクス分野における中心課題となっている。それでは、シリコン(Si)とその酸化物であるSiO₂によって支えられてきた半導体エレクトロニクスの研究開発において、トランジスタのゲート長が20nmより小さくなった世代においても持続的な発展を堅持できるであろうか？多くの方々が、NOというシナリオを描き、次世代ナノ電子デバイスに対しては、全く新しい材料の導入と実装が図られるようになってきた。HfAlONやHfO₂等、いわゆるhigh-k材料はその典型例であろう。このような酸化物においては、SiO₂と同様、定比化合物であることによって、絶縁性、高誘電性等の特性が発揮されることとなる[1]。

さらに、最近になって、上記とは全く正反対の考え方を新規酸化物適用の場に導入することで、次世代ナノ電子デバイス研究開発を推進しようとする試みがなされるようになった。即ち、酸化物に積極的に欠陥を導入し、その欠陥の空間分布をナノメートル領域で制御するという技術である。本寄稿では、この新しい技術とその考え方についてご紹介する。より具体的には、以下の2つの話題をご提供する。(1) 高速・低消費電力の不揮発性ランダムアクセスメモリReRAM (Resistance Random Access Memory)、(2) Redox トランジスタ。これらの新デバイスは、金属/酸化物ヘテロ界面を単位構造に持っており、その界面近傍の酸素欠損量が電界あるいは電流誘起で増減することにより動作する。

2. 高速・低消費電力の不揮発性ランダムアクセスメモリReRAM [2]

現在のところ、半導体エレクトロニクスの分野で最も重要なメモリは、DRAM (Dynamic RAM)、SRAM (Static RAM)とフラッシュメモリの3つと言うことが出来るであろう。前2者は集積化と高速化が進んでおり、パソコンを

例にあげればCPU(Central Processing Unit: 中央処理装置)に近いところで用いられている。DRAMとSRAMの書換回数は実用上無限であると考えられているが、電源が供給されていないとデータを保持できない、即ち揮発性のメモリであるという欠点を持っている。一方、フラッシュメモリはUSBメモリとして用いられていることからわかるように不揮発性のメモリであるが、素子単体の動作速度を比較するとDRAMと比べて3桁以上も遅い。最近では、フラッシュメモリの超高密度化、多値化が進み、SSD(Solid State Drive)としてHDD(Hard Disk Drive)の置換えも進んでいるが、動作速度が遅いことに加え、書換回数が数千回程度にまで落ちてきており、様々な回路上の工夫が必要となっている。そして、この3者すべてにおいて、微細化、即ち大容量化を目指した研究開発の速度が鈍化している。このような事情により、次世代ナノ電子デバイスとして様々な新規メモリが提案され、研究開発が活発に行われている。ReRAMはそれら新規メモリの1つであり、超大容量、高速動作、低消費電力を同時に満たす最も有望な不揮発性メモリとして注目を集めている。

ReRAMは、NiOなど遷移金属酸化物にて観察される抵抗スイッチ効果をその動作起源としている。抵抗スイッチ効果そのものは1960年代に報告されており、その学術的研究の歴史は古い一方、この効果を実際の集積化メモリに応用しようとする試みは2002年になるまでなされていなかった。さて、ReRAMは、金属電極で酸化物層を挟んだいわゆるMIM(Metal Insulator Metal)構造からなっている。典型的な動作モデルとして、両電極層間に金属フィラメントが析出することによって抵抗が減少し、そのフィラメントが遮断されることによって高抵抗化がなされるとする「フィラメントモデル」、あるいは、金属/酸化物界面の電子状態変化によってショットキー障壁高さが増減することで抵抗変化が起きるとする「界面モデル」があった。さらには、SrTiO₃や(Pr,Ca)MnO₃などペロブスカイト系酸化物をはじめ、様々な材料でこの抵抗スイッチ効果が観察されたこともあって、動作原理に関

する議論は収束せず、ReRAM実用化研究開発の最大のボトルネックは動作起源の解明であると評価された時代もあった。しかしながら、2008年以降、実デバイスによる原理実証や界面電子状態の評価技術が高度化したことにより、このReRAMの動作起源が明確になった。さらに、 HfO_2 、 TiO_2 、 Ta_2O_5 などhigh-k材料としてナノエレクトロニクスにおける技術開発が進んでいる材料系でもReRAM動作が報告され、CMOSプロセスとの整合性が極めて高く、同時にビットコスト競争力にも優れているという特徴を持っていることが示された。

図1は、ReRAM動作を説明したものである。図1(a)においては、基礎研究開発レベルで用いられる1ミクロン程度の素子サイズを想定している。通常、酸素ガスを導入してスパッタ法などにて成膜した直後の酸化物は高抵抗状態にあり、よって、MIM構造の電極間抵抗も高抵抗状態にある。この状態において、ある一定レベルの電圧を印加すると、ソフトブレイクダウンが起きて、酸化物層に欠陥が誘起されると同時に、金属的伝導を示す導電パスが形成される。これがフォーミングと呼ばれる初期化プロセスである。ここで、ReRAMの高速・低消費電力な安定動作を狙うためには、“金属電極の酸化物”がMIM構造の酸化物と酸素イオンの授受をすることが出来るように界面構造を設計する必要がある。図1においては、電極の金属元素の方が、酸化物層の金属よりも酸化ポテンシャルが低い、即ち酸化しやすいものを選択した場合に相当している。低抵抗化したMIM構造に電流を流すことにより、元々、酸化のしやすい金属電極側の酸化物超薄膜においては、陽極酸化プロセスによって定比化、すなわち高抵抗化が起き、結果としてMIM構造全体が高抵抗状態になる(Resetと呼ばれる)。その後は、この界面におけるフィラメントの蛇口を電圧印加で開け(この低抵抗化をSetと呼んでいる)、陽極酸化によって閉めることにより、メモリのON/OFFが実現されることになる。これが、「フィラメントモデル」と呼ばれるものである。一方、このフィラメントのサイズは、Setプロセスにおける電流値によって制御出来ることも明らかになっている。例えば、1本のフィラメントサイズを10nm程度に小さくすることが出来る。その場合、フィラメントの中においては、図1(b)に示すように、まさに界面全体で酸化還元反応が起き、その結果として金属/酸化物界面を横切る方向での電気抵抗が増減することになる。即ち、「界面モデル」である。少なくとも HfO_2 、 TiO_2 、 Ta_2O_5 などの2元系酸化物からなるReRAMにおいて、このUnifiedモデルは素子設計指針を与えるものになっており、ReRAMの実用化研究開発を一気に加速する原動力となった。フィラメントサイズを10nm以下にすることが出来るという事実は、この半導体メモリが微細化トレンドにおける20nm世代においても十分に“使える”メモリであることを端的に示している。微細化速度が鈍化している各種メモリを置換える新メモリと

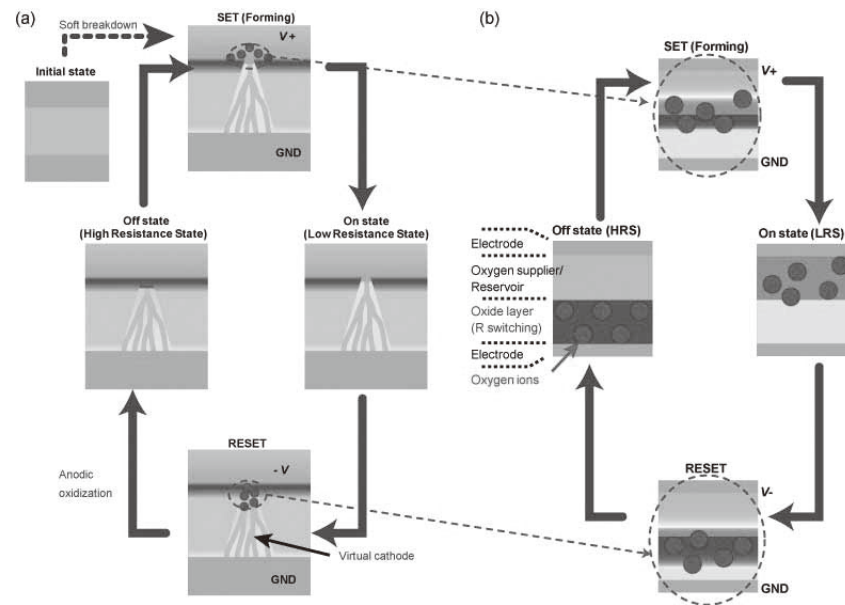
して注目を集める所以である。

3. Redox トランジスタ [3]

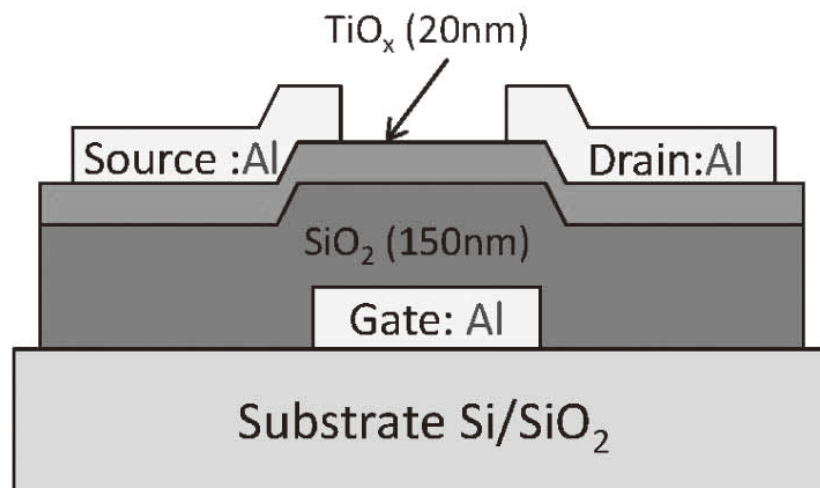
前節で述べた以外のReRAMの特徴として、巨大なON/OFF比があげられる。これはメモリ実用化において、ON/OFF状態の信頼性確保(書換回数、熱耐性などを含む)に有利であるのみならず、Set/Reset電流を制御することによって、ReRAMに多値情報を保存できることも示している。そして、この特性を、さらに3端子素子にて制御しようとする試みがなされるようになってきた。即ち、 TiO_2 等の機能性酸化物をチャネル層とし、チャネル層にゲート電圧を印加することによって、そのチャネル層の電気伝導を不揮発に変化させる試みである。図2には現在試作中の3端子素子断面構造を示した。ReRAMにおいては金属/酸化物界面でなされていた酸素イオンの授受を、チャネル層にゲート電圧を印加することで制御する素子である。ナノ電子デバイスに、電界(電流)で制御する広義の酸化還元反応を適用していることから、この新しい3端子素子をReFET (Redox Field Effect Transistor: 酸化還元型電界効果トランジスタ)と呼んでいる。我々は、すでにPt / TiO_2 / Pt MIM構造において電界印加により酸化物層における酸素欠損分布を変え、その結果として、2つの金属/酸化物界面の特性をオーミック特性⇔整流特性間で不揮発に変えられることを実証した[3]。この効果をFETにおけるチャネル層に適用することにより、不揮発性動作、即ち、ある状態を設定した後は新たな電力供給を必要としない超低消費電力トランジスタの実現が期待される。

4. おわりに

本稿では、酸素イオン(あるいは酸素欠陥)を、電界印加あるいは電流によって生成・消滅させることにより、次世代ナノ電子デバイスが実現できることを示した。固体化学的な表現を使えば、機能性酸化物という新しい材料が半導体デバイスに適用されることを介して、電界・電流誘起の酸化還元反応が半導体テクノロジーに導入されたということも出来るであろう。ナノ電子デバイスの未来シナリオを完全に描くことは困難ではあるが、新材料導入を一步一步着実に進めることにより、私たちが求める姿を具体的に得ることが出来るに違いない。



◎图 1



◎图 2

参考文献

- 1 International Technology Roadmap for Semiconductors, 2009 Edition (<http://www.itrs.net/>).
- 2 Akinaga and Shima, Proceedings of the IEEE, 98 (12), 2237-2251 (2010).
- 3 Shima et al., Appl. Phys. Lett. 94 (8), 082905 (2009).

電子ペーパーのカラー化に向けた新ナノ複合材料 (有機／金属ハイブリッドポリマー) の開発

●Profile●



樋口 昌芳 ひぐち まさよし ●独立行政法人 物質・材料研究機構国際ナノアーキテクトニクス研究拠点独立研究者／グループリーダー

1969年5月生まれ。1998年 大阪大学大学院工学研究科物質化学専攻修了 博士（工学）。同年、慶應義塾大学理工学部化学学科助手。専任講師を経て、2004年物質・材料研究機構 主任研究員。主幹研究員等を経て、2009年より現職。2007年10月より科学技術振興機構（JST）さきがけ研究員、2010年10月よりJST-CREST研究代表者を兼任。専門は、高分子錯体化学。受賞歴：日本化学会進歩賞（2003年）、文部科学大臣表彰若手科学者賞（2006年）、高分子学会日立化成賞（2008年）、丸文学術賞（2010年）等を受賞。

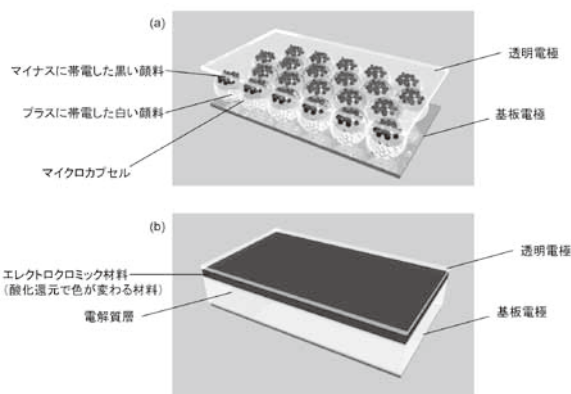
1. 電子ペーパー

液晶を搭載した電子書籍に比べ、電子ペーパーを用いた電子書籍は軽量でかつ省電力である。また、バックライトを用いない目に優しい反射型のディスプレイであるため長時間の読書に向いている。電子ペーパーは、電源を切っても表示が続く次世代ディスプレイであり、将来新聞や雑誌の替わりを果たすと期待される。理想の電子ペーパーは、まさに「紙」と同様の軽さやフレキシビリティを有するディスプレイと言えるが、それは未だ実現されておらず、様々な表示方式の研究が行われている。^{1,2)}

商品化が進んでいるマイクロカプセル方式の場合、図1aに示すようにマイクロカプセルの中に帯電した黒と白の粒子が入っており、電圧を印加することでプラス側の電極にはマイナス電荷を有する黒粒子が近づき、反対にマイナス側の電極にはプラス電荷を帯びた白粒子が近づく。電極上で＋と－の部分を中心に制御することで、読書に十分な解像度での黒白表示を達成している。現在の（マイクロカプセル型の）電子ペーパーがカラー化に対応しにくい点を欠点として挙げて、電子ペーパーの将来を危惧する声もある。³⁾ そのため現在、電子ペーパーのカラー化が重要な開発テーマになっている。しかしながら、電子ペーパーではバックライトを使用しないので、液晶ディスプレイのように単にカラーフィルタを用いると明るさが著しく低下する。また、昨年末には富士通フロンテックからカラー電子ペーパーを搭載した世界初の電子書籍（FLEPia）の一般販売が開始されている。この電子ペーパーは富士通が開発したコレステリック液晶を用いたタイプであり、RGBの3つの独立したデバイス層を重ね合わせることでカラー化している。また、2010年5月にはコントラストと書き換え速度の向上に関するプレスリリースもなされており、今後の技術開発の進展が期待される。⁴⁾

一方、電極間に挟まれた物質の電気化学的酸化還元（物質変化）によって、表示色を変える方式もある。例えば、エレクトロクロミック方式の場合、表示をつかさどるエ

レクトロクロミック層は2枚の電極のうち片側のみ（通常、透明電極側）に塗られている（図1b）。酸化によって色を変えるエレクトロクロミック材料を用いた場合、その物質が塗られた電極にプラス電位を印加することでエレクトロクロミック材料は酸化され色が変化する。その状態から逆にマイナス電位を印加することで、酸化されていたエレクトロクロミック材料は還元され元の色に戻る。また、電極間には、エレクトロクロミック材料の酸化還元（電子の出し入れ）に伴うイオン移動を補償するために、電解質層が必要となる。



◎図1 デバイス構造の異なる電子ペーパー

(a) マイクロカプセル方式、(b) エレクトロクロミック方式

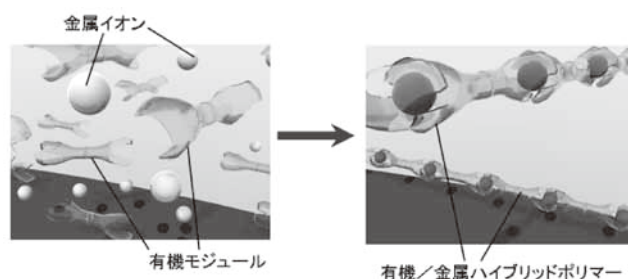
2. エレクトロクロミック材料

エレクトロクロミック材料としては、酸化モリブデンに代表される無機系物質と、ビオロゲンや π 共役系高分子などの有機系物質に大別される。酸化モリブデンなどは、車の防光ミラーへの実用化が果たされているが、一方で、有機物質を用いた汎用的な実用化例は見当たらない。

現在有機系エレクトロクロミック材料としては、PEDOT（ポリ（3，4-エチレンジオキシチオフェン））に代表されるポリチオフェン系エレクトロクロミック材

料が改良を重ねられ、有機合成や高分子合成の研究グループで現在でも広く研究が行われている。⁵⁾ 無機系エレクトロクロミック材料としては、産総研の川本らがプルシアブルーのナノ粒子を作製し、それを用いたエレクトロクロミック素子の作製に成功している。⁶⁾

一方近年、配位結合などの非共有結合により高分子集合体を形成させる超分子化学やナノ粒子化学の研究が進んできている。筆者らは、高分子錯体の中でも、配位結合により高分子鎖が形成される「有機／金属ハイブリッドポリマー」(図2)の研究の途中で、ビス(ターピリジン)類と鉄イオンやルテニウムイオンの錯形成によって得られたハイブリッドポリマーが優れたエレクトロクロミック特性を有することを発見した。⁷⁻¹²⁾



◎図2 有機モジュールと金属イオンの錯形成に基づく有機／金属ハイブリッドポリマー形成の模式図

3. 有機／金属ハイブリッドポリマー

錯形成によりポリマー主鎖を形成させるため、有機／金属ハイブリッドポリマーの合成は非常に簡単である。例えば、有機配位子としてビス(ターピリジン)ベンゼンを用い、酢酸鉄(II)と酢酸溶液中で混合し、24時間120度で加熱攪拌すると、錯形成に基づいて溶液の色が紫色に変化する。反応後、溶媒を留去することで鉄イオンを含む有機／金属ハイブリッドポリマー(FeL1-MEPE)が定量的に得られる。このポリマーの紫色は、金属イオンからビス(ターピリジン)ベンゼンへの電荷移動吸収(M L C T)による発色であり(吸収波長:580nm)、ポリマーが形成することで初めて生じる色である。得られたハイブリッドポリマーは、金属のカウンターアニオンを多量に含んでいるため、水やメタノールといった極性溶媒に高い溶解性を示す。

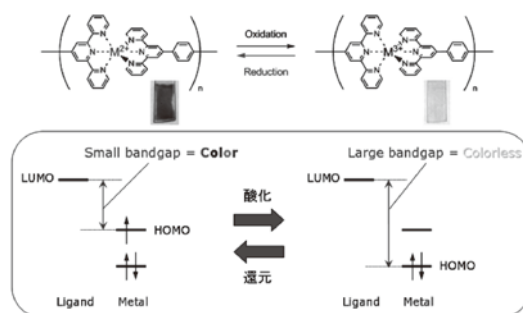
ハイブリッドポリマーは主鎖に金属イオンを含むためにレドックス活性(酸化還元活性)である。例えば、FeL1-MEPEの酸化還元電位は0.77 V vs. Ag/Ag⁺。これは鉄イオンの+2価と+3価の間の酸化還元に基づくものである。そして興味深いことに、ITO上に製膜したこのポリマーを電極として用い、電解質を含むアセトニトリル溶液中で1 Vの電圧を印加すると、この青色のフィルムが透明に変化する現象を見出した(エレクトロクロミック変化)(図3)。これは、ポリマー中の鉄イオンが電気化

学的に+ 3 価に酸化され、電荷移動吸収(580nm)が消失したために生じた変化と考えられる。逆に、この透明フィルムに0 Vの還元電圧を印加すると、フィルムは再び元の紫色に戻る。このエレクトロクロミック変化は可逆であり、4000回程度発色と消色を繰り返しても応答性に変化はない。

このポリマーのエレクトロクロミックの大きな特徴は、発色が金属イオンから有機モジュールへの電荷移動吸収に基づいているため、ポリマー中の金属イオンの酸化還元により発色⇔消色変化を起こすことができる点である。従来の有機エレクトロクロミック物質の場合、酸化還元に伴う物質の構造変化によって色を変えているため、水分や酸素が存在する大気下では劣化が起こりやすい。一方、ハイブリッドポリマーでは有機部位の構造変化がないために、繰り返しの安定性が格段に向上し、従来の有機材料の最大の問題点を克服している。

ハイブリッドポリマーの場合、発色は金属イオンから有機モジュールへの電荷移動吸収に基づいているため、金属イオンと有機モジュール間のポテンシャルギャップの大きさによって色が決まる。そのため、金属イオンを変えたり有機モジュールに電気供与基や吸引基を導入することで、電荷移動吸収のバンドギャップを制御し様々な色を有するハイブリッドポリマーを合成することができる。また、錯形成によってポリマー鎖を形成されるために、一つのポリマー鎖に2種類以上の金属イオン種を導入することも可能である。このようなポリマーフィルムでは、印加電圧を変えることにより、金属イオンの酸化還元電位の違いを利用して、3種類以上の色を表示することができる。このようなポリマーを用いれば、電子ペーパーの簡素化・薄膜化が実現できると期待される。

ハイブリッドポリマーの分子量は溶媒によって変化するが、FeL1-MEPEの場合、水中で数十万と非常に大きい。我々は、有機溶媒に溶解するゲル電解質を用いることで、エレクトロクロミック固体デバイスを作製に成功した(図4)。これまでに10インチサイズのデバイスや、5段階で表示パターンが変わるデバイス、デジタルディスプレイの作製に成功している。



◎図3 金属イオンの酸化還元に基づくエレクトロクロミック変化(上段)。金属イオンが酸化されることで電荷移動吸収のバンドギャップが広がり、ポリマー色が消える仕組み(下段)



◎図4 有機／金属ハイブリッドポリマーを用いたエレクトロクロミック型固体表示デバイス

4. 将来展望

電子ペーパーのカラー化にはどの方式が優れているのか、またカラー化されることで電子ペーパーの需要がどれくらい増えるのかは現在はっきりしない。しかし、急速なグローバル化の中では、スピーディーかつ魅力的な商品及びコンテンツ開発が益々重要になってきている。電子ペーパーにおいても、実用化する上で、単に要素技術が優れているだけでは不十分であり、企業間のコラボレーションや買収を基本にした戦略性が求められている。日本には優れた最先端表示技術が数多くあり、それらの技術が5年後、10年後、電子ペーパーの世界標準として花開くことを切望している。

また、今回紹介した通り、エレクトロクロミック材料は新たな展開を見せ始めている。次世代ディスプレイである電子ペーパーのカラーや、スマートウインドウ（調光ガラス）など多彩な用途に今後利用されていくであろう。

参考文献

- 1 「電子ペーパー実用化最前線」エヌ・ティー・エス(2005).
- 2 「2009電子ペーパー技術大全」Electronic Journal別冊(2008).
- 3 小谷卓也、日経エレクトロニクス6月号, 71 (2010).
- 4 <http://pr.fujitsu.com/jp/news/2010/05/7.html>
- 5 P. M. Beaujuge, J. R. Reynolds, Chem. Rev., 110, 268 (2010).
- 6 A. Omura, H. Tanaka, M. Kurihara, M. Sakamoto, T. Kawamoto, Phys. Chem. Chem. Phys., 11, 10500 (2009).
- 7 M. Higuchi, D. G. Kurth, Chem. Rec., 7, 203 (2007).
- 8 F. Han, M. Higuchi, D. G. Kurth, Adv. Mater., 19, 3928 (2007).
- 9 F. Han, M. Higuchi, D. G. Kurth, J. Am. Chem. Soc., 130, 2073 (2008).
- 10 M. Higuchi, 高分子論文集, 65, 399 (2008).
- 11 M. Higuchi, Y. Akasaka, T. Ikeda, A. Hayashi, D. G. Kurth, J. Inorg. Organomet. Polym. Mater., 19, 74 (2009).
- 12 M. Higuchi, Polym. J., 41, 511 (2009).

バイオエネルギー技術

バイオリファイナリー細胞工場の科学的基盤

•Profile•



馬 延和 Ma Yanhe ●中国科学院微生物研究所 研究員

「973」計画プロジェクト首席科学者。現在、中国科学院微生物研究所研究員、中国科学院天津工業生物技術研究所（籌）副所長、工業酵素国家工学実験室主任、微生物資源前期開発国家重点実験室副主任。1961年10生まれ、2005年、江南大学生物工学専攻博士号取得。国家生物産業発展コンサルティング専門家委員会副秘書長、中国生物工学会副理事長、中国科学院工業生物技術専門家委員会副主任、国際定期刊行物Saline Systems 副編集長、Appl Environ Microbiol及びBiotech 編集委員を担当。2000年度国家科学技術発明二等賞受賞。主に極限微生物の研究と利用に従事、工業バイオテクノロジーの発展に尽力。重要な応用価値を有する多くの極限微生物の新たな機能遺伝子を発見、同定し、その環境適応メカニズムを解明。J Biol Chem, J Bacteriol, Appl Environ Microbiol, Proteomics, Extremophiles 等の国際専門刊行物に論文50篇余りを発表、発明特許20件余りを出願。

石油精製を基盤とした現代の工業体系は国家の経済発展の支柱であるが、再生不可能な化石資源への過度な依存のせいで、社会経済の持続可能な発展はまさにエネルギー資源の不足、生態環境の悪化という未曾有の困難に直面している。一方、バイオリファイナリーは生物という再生可能な資源を原料基盤として、エネルギーと化工製品を生産する新しいタイプの工業モデルであり、新たなバイオベース産業を創造する最も将来的可能性のある道と考えられている。エネルギー・資源・環境問題が日々深刻化するにともない、バイオリファイナリーはすでに世界各国の戦略的研究となっている。比較ゲノミクス、システムバイオロジー、高速計算技術の発展は、我々のためにDNA配列に基づいたタンパク質情報と、生物体外の生物物理及び生物化学的知識を提供している。生物体、特に微生物の潜在能力を発揮させるには、生物系統全体の枠組みの下で、微生物の遺伝子、タンパク質、ネットワーク及び代謝過程の本質を解析し、分子、細胞、生態系という尺度の上で、多水準、多段階的に微生物を認識、改造するとともに、微生物の広範な物質分解変換と卓越した化学合成能力を利用し、人工制御の組み換えと最適化によって、微生物の細胞代謝の物質の流れとエネルギーの流れを再分配し、微生物を名実ともに備わった一つの細胞工場に改造し、生物エネルギー及び、石油化工原料に代わるプラットフォーム化合物を効率よく調製することがぜひとも必要である。したがって、細胞工場はバイオリファイナリーの生物学的中核技術であり、その発展はバイオリファイナリーが徐々に伝統的な石油精製にとって代わることを促し、人類の直面している日々深刻化するエネルギー・資源・環境問題を解決するであろう。

1. バイオリファイナリー細胞工場の直面している重要な問題

経済の持続可能な発展には、高効率で経済的な現代のバイオリファイナリー技術体系が必要である。バイオリファイナリー過程の鍵は、バイオマスの利用率と製品の指向的合成能力を高めることにあり、この技術上のボトルネックを解消する鍵は、指向的変換・合成能力を有す

る細胞工場を設計、構築、適性化することであり、それにはバイオリファイナリー細胞工場の構造、コントロール、性能等方面の鍵となる問題を解決することが必要である。

1.1 微生物糖代謝の分子基盤と相互作用

バイオリファイナリー技術のボトルネックとなっている問題の一つは、リグノセルロースの生物学的利用・変換能力であり、微生物の代謝能力を高めることは我々の直面している主要な任務である。現在、自然界にはなぜ五炭糖と六炭糖を同時に、かつ等価に代謝できる微生物が一つもないのかということを、我々はまだ十分に理解できていない。さまざまな微生物の細胞内の物質分解・変換メカニズムについても、あまりよくわかっていない。また、生物体内の代謝経路は往々にして、一つの酵素またはタンパク質によって制御されているのではなく、経路中の分子の相互作用の影響と全局的制御を受けている。微生物代謝ネットワーク中の代謝物ノードの間、代謝物と酵素の間、酵素と補因子の間、酵素と酵素の間の相互作用を理解していなければ、改造すべき鍵となるノードを探し出すことにより、微生物の代謝能力を最適化するという事はできないのである。

1.2 細胞工場のコントロールシステム

微生物による大口化学品合成の経済性の問題は、バイオリファイナリーの不足と石油精製の競争における主要な問題であり、微生物の代謝産物が過量に合成できないことは、その長期にわたる進化及び生存本能と関係がある。微生物は一つの立体的細胞工場として、その代謝経路は往々にして独立したものではなく、複雑な代謝ネットワークの中に存在しており、かつ種々さまざまなコントロールネットワークの制約と制御を受けているため、微生物代謝はその自然の使命を達成することにのみ忠実で、産業的期待とは遠くかけ離れたものとなっている。全体的に言って、今日、微生物代謝のコントロールに対する認識にはまだまだ限りがある。したがって、バイオリファイナリーに用いる高効率の細胞工場を構築するには、さらに生物の代謝メカニズムを理解した上で、細胞のコントロールメカニズムについて認識し、遺伝子の発現コン

トロールネットワークを再構築し、それによって、代謝経路と合成システムをどう合理的に設計するかをよりうまく指導し、細胞代謝の物質の流れとエネルギーの流れを分配し直し、化学品の合成効率を高めることが必要である。

1.3 細胞工場の構築

バイオマス資源を利用して化石資源を代替させるには、さらにバイオリファイナリーの能力範囲の問題を解決し、多様な化学品体系を確立することにより、産業ニーズに応えることが必要である。微生物代謝の分子基盤、相互作用、コントロールメカニズムを発見、認識し、微生物細胞工場の設計のために理論基盤を築くにあたって、より重要なことは、生物合成システムの構築・最適化原理をさらに一歩進んで理解・把握し、さまざまな経路の組織戦略と遺伝子改造方法を開発・開拓することによって、有効な細胞工場を作り出し、それに一種類または多種類の化学品を過量に蓄積させること、さらには、それが元来決して合成しない製品も生産させて、伝統的石油加工製品の生物合成経路のニーズを満たし、それにより、微生物を一つの名実ともに備わった細胞工場にしなければならないということである。

1.4 細胞工場の最適化（産業適応能力の向上）

大口化学品のバイオリファイナリープロセスは往々にして、収量が十分に高く、培養基組成及び操作工程が十分に簡単であることが求められるが、それは産物の生産速度、収率、最終濃度を上げ、工業菌株の栄養要求性を下げ、かつその基質及び産物の耐性を高めること、すなわち細胞工場の産業適応能力を高めることが要求されるということである。細胞工場の適応能力を高めることによって、初めてその実際の産業応用能力を実現し、高収量、高効率の経済的な現代工業のバイオテクノロジー産業の発展のために、サポートを提供することが可能になるのである。

2. バイオリファイナリー細胞工場についての研究の進展

2.1 微生物の糖代謝変換

バイオマスは成分の多様化と構造の複雑性のせいで、微生物によって完全に利用されることが非常に難しい。植物繊維材料の加水分解液中では、グルコースが約65%、キシロースが約25%を占めるが、セルロースの加水分解液からグルコースとキシロースを別々に分離してくることは非常に難しく、操作コストも高い。したがって、五炭糖に対する微生物の利用を実現すること、特に五炭糖／六炭糖の同時利用を実現することは、バイオリファイナリー過程のコストを低減させることになる。

現在、ペントース（五炭糖）代謝についての研究は、主にペントース代謝経路の導入に集中している。アメリカとオーストラリアの研究者は、大腸菌における五炭糖

（キシロースとアラビノース）利用の経路をザイモナスモビリスに導入し、さまざまな糖代謝経路の組み換えを実現し、工学的細菌に木屑加水分解液（主要成分はキシロース）を利用してエタノールを生産させた。オランダの研究者は酵母菌に外界由来のキシロースイソメラーゼを導入し、構築された工学的細菌は合成培養基の中でキシロースを利用して成長し、グルコースを用いて培養するのと同程度の収量を達成することができた。この結果もまた、簡単な代謝工学的改造を経れば、高効率のペントース発酵酵母の工業菌株が得られるということを証明している。キシロースの膜貫通輸送はキシロース利用におけるもう一つの障害と考えられており、しかもかなり重要な制限要因である可能性がある。研究者は一株の工業菌株について、キシロース制限の条件下でのナチュラルスクリーニングを行い、グルコース存在下におけるキシロース利用速度の高い菌株を獲得し、混合糖発酵によるエタノール収率が0.49g/gに達した。この分野では、国内外の研究はいずれも相対的に少なく、キシロース輸送システムについての理解が比較的に浅いため、当該分野は新たな研究の焦点になる可能性がある。中国科技部973計画「バイオリファイナリー細胞工場の科学的基礎」の支援の下、中国の科学研究者は有芽胞桿菌、クロストリジウム・サーモセラム、クロストリジウム・アセトブチリカムを対象として、膜プロテオミクス研究を行い、クロストリジウム・サーモセラムの膜タンパク質の中から35個のタンパク質複合体を発見した。これを踏まえて、ゲノム、プロテオーム、トランスクリプトームのレベルから分析を行い、差次的プロテオーム解析により、大量の遺伝子が差次的に発現されていることを発見し、糖代謝のコントロールメカニズムを認識するための情報を提供した。我々はさらにタンパク質輸送活性を評価する一組の高フラックス・スクリーニング体系を確立し、キシロースの輸送タンパク質の分子改造を行った。得られた突然変異株のキシロース輸送基質類似物の能力は、野生型の8倍に高まった。

2.2 細胞代謝ネットワーク及びコントロールネットワーク

大腸菌、乳酸菌、バシラス・サブチリス、コリネバクテリウム・グルタミカム、酵母菌、黒色アスペルギルスなど多くの重要な工業微生物の高解像度代謝ネットワークが、相継いで確立されている。これらのネットワークを利用して、ネットワークのトポロジー特徴を計算したり、線形モデルを構築したりすることができる。これらの代謝ネットワークモデルは、我々がシステムレベルから複雑な微生物代謝機能を認識し、細胞の生理学的属性を認識し、遺伝的变化または環境変動後の細胞の代謝応答を予測し、形質転換したターゲット遺伝子をバーチャルスクリーニングして、細胞工場の設計と構築の指導に用いることを可能にし、また新しい生物メカニズムの発

見を促進することも可能にした。

韓国の研究者はルーメン細菌のゲノム配列を測定するとともに、代謝ネットワークを再構築した。代謝流束解析から、二酸化炭素消費、PEPカルボキシラーゼ反応とコハク酸生成には密接な関係があることがわかった。ネットワークの遺伝子ノックアウト予測と実際の測定結果は、ぴったり合致した。Jens Nielsenの研究チームは酵母菌代謝ネットワークについてのシミュレーションを通じ、エタノール収量を高める代謝工学的戦略—酸化還元代謝を変えてグリセロール産生を減らし、エタノール収量を増やすこと—を提示した。コンピュータシミュレーションの指導の下、グリセロール産生は40%低下し、キシロース、グルコース混合培養基におけるエタノール収量は25%増加した。環境因子及び32株の遺伝子ノックアウト工業菌計266種の組合せの下におけるトランスクリプトームの定常状態または動態の変化を測定することにより、古細菌*Halobacterium salinarum*の動態コントロールネットワークモデルを構築し、得られたネットワークは9種の環境因子と72個の転写調節因子に応答することができた。このモデルが他の147の独立した実験によって得られるトランスクリプトーム・データをきちんと予測することができたことは、このデータドリブンによって確立されるコントロールネットワークがすでに相当完備していることを示している。中国の研究者は代謝ネットワークのフラックスバランス解析という手段を通じ、*E.coli*ゲノム尺度の*in silico*モデル*iJR904* (904個の遺伝子、931の反応、625個の代謝物) を使用して、コハク酸の理論的最大収率が1.60mol/molグルコース (乾式試験) であることを究明した。実験で測った代謝フラックス (湿式実験) と比較することにより、さらに一歩進んだ代謝工学の3つの標的キー遺伝子と経路 (PTS、ピルビン酸カルボキシル化経路、グリオキシル酸サイクル) を確定し、最終的に代謝工学的操作を通じて、工業菌株のコハク酸収率は1.29mol/molグルコースに達し、当該モデルが良好な予測及び指導価値を有していることが実証された。

2.3 細胞工場の構築

DNA組み換え技術、代謝工学、システムバイオロジー、合成生物学技術の急速な発展にともない、細胞工場の構築は理論予測から実際の操作、さらには工業化生産まで、いずれも長足の進展を遂げてきた。細胞工場合成システムの構築戦略は二種類に分かれている。一つは細胞自身の代謝ネットワークを改造し、標的製品を専一に生産する合成システムを再構築することである。現在、研究者たちはD-乳酸、ピルビン酸、酢酸、コハク酸、ブタノール、1,2-プロピレングリコール、L-バリン、L-スレオニンなどの製品を生産する大腸菌細胞工場、各種アミノ酸を効率よく生産するコリネバクテリウム・グルタミクム細胞工場、ブタノール、1,3-プロピレングリコールを効率よく生産するクロストリジウム・アセトブチリカ

ム細胞工場、エタノールを効率よく生産する好熱性細菌 (*Thermoanaerobacterium saccharolyticum*) 細胞工場の構築にすでに成功している。もう一つの細胞工場構築戦略は、新しいタイプの代謝経路を導入し、細胞中に一つの新しい合成システムを構築することにより、それ自体には決して合成できない製品を生産させるというものである。この戦略もまた三つの段階に分かれている。一つ目は微生物の天然代謝経路を異種宿主菌に導入し、それ自体では合成できない天然製品を生産できるようにするものであり、現在、研究者らはすでに大腸菌とサッカロマイセスセレヴィシエの中に、エタノール、L-乳酸、キシリトール、L-アラニン、1,3-プロピレングリコール、イソプロパノール、ブタノール、ヨモギズメノカタビラ酸、フラボノイド類化合物の合成システムを構築することに成功している。第二段階は、微生物の天然合成経路を拡張して、非天然製品を生産させること、すなわち、定性的に進化改変した合成経路中の鍵酵素の触媒特異性を利用するか、またはバイオテクノロジーの組み合わせを利用して、さまざまな微生物の合成遺伝子を整理統合することであり、いずれも新しい化合物を生産することができ、この方法はすでに新しいタイプのカロチンを生産する大腸菌細胞工場を構築することに成功している。第三の段階は非天然経路のデ・ノボ設計 (*de novo design*) であり、すなわち、細胞工場の合成能力をよりいっそう拡張するには、既存の天然合成経路の制限を打破し、非天然の高効率な合成経路をあらためて設計することが必要である。James Liaoの研究チームは大腸菌代謝ネットワークにケト酸脱炭酸・還元経路を導入し、一つの新しいタイプの長鎖アルコール合成経路を設計した。Cargill社は非天然の酵素触媒反応 (アラニンイソメラーゼ) を開発することにより、一つの新しいタイプの3-ヒドロキシプロピオン酸合成経路を設計した。中国の技術者はすでに、エタノール、ピルビン酸、コハク酸を生産する大腸菌、3-ヒドロキシプロピオン酸を生産するカンジダ菌、エタノールを生産するザイモモナスモビリス、ブタノールを生産するクロストリジウム・アセトブチリカムなどの細胞工場モデルを構築することに成功している。リポアミドデヒドロゲナーゼ遺伝子の欠けた大腸菌を構築し、炭素源として高濃度のキシロースまたは果糖を利用し、ピルビン酸が生産できるようになった。大腸菌中にザイモモナスモビリスのピルビン酸デカルボキシラーゼとエタノールデヒドロゲナーゼを発現させたところ、エタノール収量が26倍になった。グリセロールデヒドラターゼ、アルデヒドデヒドロゲナーゼ遺伝子を *Candida glycerinogenes* 細胞に導入し、3-ヒドロキシプロピオン酸細胞工場を構築し、糖質原料から3-ヒドロキシプロピオン酸への直接的変換を実現した。ザイモモナスモビリス中にキシロースイソメラーゼ、キシロースキナーゼ、トランスアルドラーゼを発現させ、組み換え菌によるエタノール収量を44.7%

増やした。ザイモナスモビリスの遺伝子チップの解析結果に基づき、ザイモナスモビリス中のフルクタンインペルターゼ遺伝子をノックアウトしたところ、エタノール収量が19%高くなり、スクロースがエタノールに変換する収率が80%から95%に高まった。このほか、クロストリジウム・アセトブチリカム中にギ酸デヒドロゲナーゼ遺伝子を発現させたところ、細胞内NADHの濃度が上がり、工業菌株によるブタノールの代謝の流れが強化され、グルコースに対する変換率が27%高まった。

2.4 細菌工場の最適化

高効率の細胞工場は優れた産業適応能力を具えていなければならない。現在、微生物の生理的性能の最適化と、産業適応能力の向上に用いる戦略は主として二種類ある。一つ目は、代謝技術の進化であり、外国の研究者はこの技術を利用して、大腸菌細胞工場のエタノール、D-乳酸、L-乳酸、L-アラニン、コハク酸生産の産生速度、収率、最終濃度を大きく高め、栄養要求性を引き下げ、基質と産物の耐性及び、リグノセルロース加水分解液中の毒性物質に対する抵抗力などを高めてきた。二つ目は、グローバル・パータベーション技術であり、それは目的をしばって微生物ゲノムに突然変異を引き起こし、高フラックス・スクリーニングのターゲットの生理的機能と結びつけることにより、遺伝的背景のはっきりした代謝工学的細菌を得ることができ、かつ最適化した生理的機能をその他の細胞工場に手軽に移すことができる。グローバル・パータベーション技術には主に、トランスポゾン突然変異、プラスミドのコードするゲノムライブラリー、グローバル転写機構改造、転写因子改造、リボソーム改造、ゲノム再編成技術などがあり、これらの技術もすでに細胞の抵抗機能の向上、ターゲット製品の合成の最適化にうまく活用されている。研究者は大腸菌、クロストリジウム・アセトブチリカム、コリネバクテリウム・グルタミクム等モデルの細胞工場の最適化を行い、現在すでに細胞工場の生理的機能、抵抗力、生産能力を高める一連の鍵となるターゲット遺伝子の同定に成功している。放射線耐性遺伝子 (*irrE*) をザイモナスモビリスにクローニングし、組み換え菌株の抵抗力 (高温耐性、高糖耐性、エタノール耐性、副産物耐性) を著しく向上させた。遺伝子発現システムを最適化し、コリネバクテリウム・グルタミクム中にPHAを蓄積することにより、細胞の乾燥重量を10%増やし、グルコースの消費を13%増やし、グルタミン酸の収量を23%増やすことができた。コリネバクテリウム・クルトゥナム、クレブシエラ菌、バシラス・サブチリス中にビトレオシラヘモグロビンを発現させたところ、宿主細胞の酸素に対する利用率が高まり、グルタミン酸、2,3-コハク酸、リボフラビンの収量が15～25%増加した。これらの成功の実例からも明らかなように、代謝工学によって微生物細胞を改造し、微生物の広範な物質分解変換及び卓越した化学合成能力を深く掘り起こし、

それを名実ともに備わった細胞工場にすることは、完全に実現可能なのである。

3. 展望

近年、グローバルな産業革命は炭水化物を基盤とした方向に向かって発展しつつあり、それはすでに社会の持続可能な発展の一つの重要な趨勢となっている。現有の技術はすでに数日間のうちに50kb以上の長さのDNA断片を合成することができ、遺伝子合成の費用もすでに0.5米ドル/核酸塩基まで下がり、低廉な価格と高速・高効率なDNA合成技術は、すでにゲノムの大規模合成のため、それによる人工生命・細胞の構築のために可能性を提供している。2008年、J.Craig Venter研究所はマイコプラズマジェニタリウムゲノムの合成とスプライシングを初めて完成させたが、これは生命科学研究におけるもう一つの里程碑であり、また再生可能なバイオマス資源を利用した石油加工製品生産のために新たな基礎を築いた。予想可能な未来において、分子生物学、システムバイオロジー、合成生物学の急速な発展という背景の下で、ゲノム情報と遺伝子発現、分子機械、代謝経路、代謝ネットワークコントロール及び細胞機能の再構成原理をさらに理解することによって、細胞は完全に改造され、ひいては完全に創造されることさえできるようになり、それによって人造細胞工場が構築され、人類社会の持続可能な発展のために巨大な貢献を果たすことになるであろう。

バイオブタノール製造技術の現状と展望

•Profile•



楊 晟 Yang Sheng ●中国科学院合成生物学重点实验室研究员

中国科学院上海生命科学研究院湖州工業生物技術センター及び上海工業生物技術研究開発センター主任。1973年3月生まれ。2000年、中国科学院上海生物化学研究所を卒業し、生化学・分子生物学博士号取得。2006年、DuPont Young Professor Award 受賞。現在、中国微生物学会酵素工学専門委員会副主任委員、上海市生物工学会副秘書長、中国科学院天津工業生物研究所（籌）學術委員会委員等の職務を担当。現在は主に酵素工学、代謝工学、合成生物学等の研究に従事。すでに論文20篇余りを発表し、30件余りの特許を申請。

ブタノールは重要な大口化工原料であるだけでなく、エタノールの後に続く、将来的な発展可能性の極めて大きい一つの次世代液体燃料でもある。溶媒産生クロストリジウムClostridiaの嫌気発酵によって、適切な炭水化物をアセトン（Acetone）、ブタノール（Butanol）、エタノール（Ethanol）等溶媒に変換できることから、この種の溶媒生産技術はABE発酵と略称されている。

1. バイオブタノール製造の歴史と現状

ブタノールの生物学的調製は第一次世界大戦中にまでさかのぼることができ、溶媒産生クロストリジウムの嫌気発酵によって産生したブタノールを出発原料としてブタジエンゴムを合成することは、当時の合成ゴム生産の理想的な方法であった。したがって、合成ゴムの大規模生産と同時に、トウモロコシ粉等の炭水化物を基質とした溶媒発酵が急速に発展を遂げ、一時はアルコール発酵に次ぐ世界で二番目に大きな発酵工業にまで発展した。だが、20世紀50年代から、石油工業による打撃を被って、ABE発酵は次第に衰退し、ヨーロッパ、北米、日本などでは徐々に生産が停止されていった。一方、中国は、当時の特殊な経済・政治環境から、依然としてABE発酵による生産を行っていた幾つかのごく少数の国々の一つであった。近年、国際原油価格の激しい変動にともない、また石油資源の再生不可能性についての共通認識に基づいて、発酵法によるABE生産技術があらためて広範な関心を引き起こしている。ここ数年、国内ですでに11社のABE発酵企業が建設され、あるいは生産を再開し、さらに5社が設立準備中であり、操業開始後には、国内のABE発酵生産は年産100万トンの規模に達する見込みである。

クロストリジウム属菌Clostridiaは溶媒産生工業菌株の唯一の供給源である。我が国の穀物、イモ類を主とした農業生産状況を踏まえ、溶媒発酵菌種の多くはクロストリジウム・アセトブチリカムであり、しかも、たとえば中国科学院微生物研究所のAS 1.70、上海溶媒廠のアンチファージ能力を持った新抗-2号のように、国内の研究所や工場が自ら選抜育成し、馴養を行っている。これらの菌種が産生する溶媒中の3つの成分、ブタノール、アセトン、

エタノールの比率はいずれも6:3:1である。「第7次5か年計画」の期間中、中国科学院上海植物生理生態研究所の研究員、焦瑞身、楊蘊劉らは、土壌サンプルの分離と突然変異誘発スクリーニングによって、ブタノール比率の高い菌株EA 2018を得たが、その溶媒中の3つの成分、ブタノール、アセトン、エタノールの比率は7:2:1で、デンプン変換率は伝統的菌株に比べて5%高くなっている。

2. 現在のバイオブタノール製造の中で直面している問題

上に述べたように、石油化学工業の急速な発展により、石油系ブタノールの激しい競争に直面し、ABE発酵製品は経済面で不利な立場に置かれている。ブタノール発酵が経済競争力を失うに至った主な原因は、1) 発酵に用いる炭素源のコストが高めである。2) 発酵液中のブタノール濃度が低い。3) 発酵過程におけるブタノールの選択性が高くない、ということである。以下、これらの問題について分けて述べることにする。

2.1 食糧原料のコスト高

伝統的発酵法によるブタノール生産のプロセスには、主なものとして、溶媒の連続発酵、産物及び副産物の蒸留法による分離抽出、生産過程における環境保護措置などが含まれている。現在、中国国内の嫌気発酵生産によるバイオブタノール製造の主な原料は、トウモロコシ、穀物、サツマイモ等のデンプン質食糧資源である。近年、国内におけるトウモロコシ等食糧作物を原料とするバイオリファイナー産業の急速な発展により、全国的な食糧価格の急速な上昇が一定程度もたらされ、バイオブタノールの生産コストが大幅に増加する結果となった。同時に、国は食糧価格の安定と食糧の安全を守る戦略への配慮から、トウモロコシ等食糧作物の大規模な使用によるバイオエネルギーの発展を制限するようになった。したがって、いかにしてブタノールの原料変換率を高め、安価な非穀類原料を利用してブタノールを生産することにより、その生産コストを下げるかということは、この産業がどうしても直面せねばならないボトルネックとなっている。

2.2 ブタノールの毒性がもたらす低い産物濃度

伝統的なABE発酵において生成されるのは3つの産物（アセトン、ブタノール、エタノール）であり、溶媒の3つの成分中の主産物であるブタノールの濃度を高めることは、発酵法によるブタノール製造のコストを下げる手段の一つである。だが、伝統的なクロストリジウム・アセトブチリカムによる発酵生産におけるブタノールの最終濃度は13～14g/L前後にとどまっており、この閾値を超えるのがむずかしい原因は、生成される溶媒、特にブタノールの溶媒産生クロストリジウム細胞に対する害毒作用にある。外国で報告された、クロストリジウム・ベージェリンキ*C.beijerinckii* BA101のMP2培養基及び発酵コントロール条件の下におけるブタノール産物濃度が20.9g/L（総溶媒32.6g/L）に達することができたというのが、現在報告されている中で最も溶媒収率の高い菌株であるが、ただし、これは特殊な培養基と培養条件の下で得た結果であり、工業的応用の可能性はまだ備わっていない。溶媒産生クロストリジウム自体のブタノール耐性を高めるために、Tomasらはクロストリジウム・アセトブチリカム中に、熱ショックタンパク質をコードしているgroESL遺伝子を過剰発現させ、菌体細胞に対するブタノールの阻害作用を85%低下させるとともに、最終的に産物濃度を33%引き上げた。Bordenらはクロストリジウム・アセトブチリカム中に、ゲノムDNAライブラリー由来の、スリーニング過程で確定したブタノール耐性と関連のある2個の遺伝子を過剰発現させ、組み換え菌体細胞のブタノール耐性レベルをそれぞれ13%、81%高めることができた。上海ブタノール協業チームの趙静波とオハイオ州立大学の楊尚天らは共同で、ファイバーベッド固定化バイオリクターを利用して、ブタノール生産菌株の馴化を行い、その中に固定した菌体細胞が、溶媒生成時期におけるブタノール、有機酸、オートリシン等阻害物に対する抵抗能力を絶えず高めるようにし、最終的にブタノール耐性とブタノール収量がともに著しく向上した突然変異株を得た。この菌株のP2培養基におけるブタノール発酵の最終濃度は、21g/Lに達することができる。この突然変異株とファイバーベッドリアクターの固定化発酵技術が結びついた時、P2培養基におけるブタノール発酵の最終濃度は24～29g/Lにも達する。全体的に言えば、遺伝子工学及び代謝工学の手段によって、溶媒産生クロストリジウムのブタノール耐性を一定程度向上させることができるものの、このような「向上」は菌株自身の条件による制限もかなり大きく受けている。現在の工業規模の溶媒発酵についていえば、発酵液中の総溶媒が20g/Lに達すると、クロストリジア細胞の代謝はただちに停止し、ブタノール比を60%または70%として計算すると、最終的なブタノール濃度は12～14g/Lの間となるが、これは現有の工業菌株がいま一歩越えることのできないブタノール耐性レベルである。したがって、伝統的なABE発酵に

おける低い産物濃度は、すでに発酵の経済性に影響を及ぼす重要な要因の一つとなっている。

2.3 発酵産物中のアセトン、エタノール副産物

現在、伝統的なクロストリジウム・アセトブチリカムによるABE発酵プロセスにおいては、60%がブタノールであるほか、同時にさらに30%のアセトンと10%前後のエタノールがある。ABE発酵の産物の中では、ブタノールの商業価値が最も高く、副産物のアセトンとエタノールは低価値産物に属する。同時に、産生される酢酸と酪酸は回収することができず、そればかりか原料の変換効率を下げ、生産コストを増やす。したがって、発酵産物の濃度をさらに大幅に高めることが不可能な状況の下で、いかにして発酵過程における主発酵産物としてのブタノールの生合成の選択性を高めるか、副産物の量を減らすことによってブタノールの比率を高め、食糧消費を下げるかということは、バイオブタノール発酵産業の経済性と競争力を高める上で有効な手段であるといえる。だが、前述のブタノール耐性は依然として、一つの避けることのできない、どうしても考慮せねばならない重要な問題である。中国科学院上海生命科学研究院の科学研究者は、伝統的な突然変異誘発方法によって、高ブタノール比率のクロストリジウム・アセトブチリカムEA2018を得、産物のブタノール、アセトン、エタノールの比率は7.2:1となり、伝統的菌株のブタノール比率よりも10%高くなったが、その発酵総溶媒の濃度から見れば、ブタノールの濃度はなお14g/L前後にとどまっており、いわゆるブタノール耐性の閾値を突破するには、さらに大きな努力が必要である。

3. 研究の進展と応用

中国科学院上海植物生理生態研究所の研究者は、前世紀50年代から、アセトン・ブタノール連続発酵調製技術について研究し、国家「第7次5か年計画」への取り組み期間中、突然変異誘発スクリーニングによって、高ブタノール比率のEA2018菌株を手に入れ、かつて河北省、山東省などで工業化連続発酵生産への応用に成功し、その規模は6000トン/年に達し、さらに2010年には当該特許菌株の全ゲノム・シーケンシングを達成した。同研究所の中国科学院合成生物学重点实验室の楊蘊劉、姜衛紅、楊晟の研究チームは共同でテーマに取り組み、上海バイオブタノール協業チームを作った。この協業チームの主な技術構想は、現在のバイオブタノール製造の中で直面している問題に的をしぼり、ブタノール産生発酵菌株の遺伝子改造及び発酵、製品回収プロセスの最適化によって、次の3つの目標を実現するというものであった。1) 製品中のブタノールの比率を高める。2) 廉価な代替原料を見つける。3) 発酵産物の濃度を高める。こうして、伝統的発酵法によるブタノール製造過程における制限的ボトルネックが克服され、次いでバイオブタノール生産の経済

性が高められた。

3.1 ブタノール比率の向上

ブタノール比率の向上は、微生物ブタノール合成経路の再構築と最適化によって実現することができる。古典的なブタノール代謝経路は、溶媒産生クロストリジウムに由来している。溶媒産生クロストリジウムは、60%～70%のブタノールを生成するほか、さらに20%～30%のアセトン、10%のエタノールという2種類の低価値副産物を生成する。ブタノール経路の再構築と最適化によって、アセトンとエタノールの合成量を減らし、菌株の既存の比較的高い変換効率を保った上で、総溶媒に占めるブタノールの比率をさらに引き上げ、ブタノール生産の経済競争力を増強できる可能性がある。

副産物アセトンの生合成量を減らすために、Janati-Idrissiらは伝統的な化学的変異誘発手段により、アセトンを産生しない突然変異株 *Cacetobutylicum* 2-BrBulを得たが、しかしブタノール比率も同時に低下してしまった。ある研究報告によれば、メガプラスミドpSOLを失くした、溶媒を産生しないクロストリジウム・アセトブチリカムの退化株M5またはDG1において、*adhE*遺伝子を過剰発現させ、ブタノール経路を再構築することにより、ブタノール産生を回復することができ、ブタノール比率は90%以上にすることができるが、ただしブタノール濃度は野生型の半分であった。Papoutsakis研究室はM5の中に*adhE*遺伝子を過剰発現させた組み換え菌に対する発酵最適化により、ブタノール比率を85%に持っていき、濃度も野生型株とほぼ同じであったが、ただしさらなる代謝コントロールの効果は極めてわずかであった。

上海バイオブタノール協業チームは、アセトン合成経路の鍵酵素（アセト酢酸デカルボキシラーゼ）の遺伝子をノックアウトすることにより、アセトンの産生を基本的に遮断し、さらに発酵の最適化によってブタノールの比率を85%以上にまで高めた。

3.2 バイオブタノール調製における原料源の開拓

3.2.1 キャッサバ、キクイモなどの非食糧原料

イモ類はデンプン含有量の高い農作物で、キャッサバ、サツマイモ、ジャガイモなどがあり、世界各地でも我が国でも大量に栽培されている。イモ類原料の市場価格は、トウモロコシ、小麦などの穀類原料に比べて安いと、すでにバイオエタノールの生産に大量に用いられている。いくつかのバイオブタノール生産企業も、トウモロコシ原料の中にイモ類原料を混入して発酵を行うことにより、トウモロコシの使用量を減らしている。

キクイモは一種の多年生草本植物で、中国語で通称を洋姜、鬼子姜という。キクイモはバイオマスがきわめて大きく、1ヘクタール当たり30～75トンのキクイモ塊茎を生産することができる。生のキクイモ塊茎はポリフルクトースを豊富に含み、極めて大きな開発潜在力を有する一つの野生資源であり、微生物発酵によるバイオ化学

品生産のすぐれた糖資源である。

小麦Bデンプンはテーリング、可溶性デンプン、小麦スキージ、アミロデキストリンとも呼ばれ、小麦デンプン加工及び小麦を原料としたアルコール発酵の副産物であり、ブタノールの発酵生産に用いることができる。国内の天冠集団は、上海バイオブタノール協業チームの *Cacetobutylicum* EA 2018菌株を譲り受けるとともに、Bデンプン糊とトウモロコシによるブタノール混合発酵プロセスを開発し、さらには単独にBデンプン糊を原料として行うバイオブタノール生産を実現した。

3.2.2 木質繊維原料

リグノセルロースは最も応用潜在力を有する一つの発酵原料として、一般に広く認められている。近年、外国ではリグノセルロースによるアセトン、ブタノール、エタノールの調製をめぐる研究が多く報告されている。現在の研究の進展具合を総合すると、リグノセルロースによるブタノール変換製造のプロセスルートは、原料前処理と単糖への加水分解、糖液発酵によるブタノール生成、産物の蒸留回収等にまとめることができる。上記のプロセスルートは実行可能性を具えているが、ただし依然として多くの克服すべき技術上のボトルネックがある。菌種についてだけ言っても、ペントース、ヘキソースの同等利用は早急に解決すべき課題の一つである。

木質繊維原料の中のヘキソースは主としてグルコース（セルロースの主要成分）であり、ペントースは主としてキシロースとアラビノース（ヘミセルロースの主要成分）である。このうち、グルコースは最も主要な成分であり、その次はキシロースで、アラビノースは含有量が比較的小さい。溶媒産生クロストリジウム（*Cacetobutylicum*, *C.beijerinckii*）は天然のキシロース利用能力を具えているが、グルコースと比べると、キシロースには代謝能力が不足しており、そのことはキシロースを唯一の炭素源として発酵させると、溶媒収率と生成速度が低くなることに具体的に表れている。キシロースは木質繊維原料の中で含有量がグルコースに次ぐ、最も主要なペントースであることを考えると、溶媒産生クロストリジウムのキシロース代謝工学に関する研究を展開することには重要な意味がある。上海バイオブタノール協業チームは、比較ゲノミクス及び分子生物学の実験を通じて、*Cacetobutylicum* ATCC 824のキシロース代謝経路中のキシロースイソメラーゼ遺伝子 $xylA$ とキシロースキナーゼ遺伝子 $xylB$ を同定するとともに、*C. acetobutylicum* ATCC 824中においてグルコース輸送速度を抑制し、キシロース経路遺伝子の発現を強化することにより、グルコース、キシロース、アラビノースというリグノセルロースの中で最も重要な3種類の単糖ユニットの同等な、高効率の利用を実現した。

このほか、上海バイオブタノール協業チームはATCC 824中の $ccpA$ 遺伝子をノックアウトすることにより、菌

株に固有の炭素異化代謝産物抑制 (Carbon Catabolite Repression, CCR) を取り除き、グルコース-キシロース混合炭素源の同等利用を実現した。上記の研究結果は、代謝工学的手段によって、木質繊維加水分解液の混合発酵に適用できる工業菌株を構築するための新たな構想を提供した。

3.3 ABE発酵液中のブタノール濃度の向上

3.3.1 低温発酵-産物ガスストリッピング技術

ブタノールは菌体細胞に対し比較的大きな毒性を持っており、菌株の遺伝子改造によってそのブタノール耐性を増強することは、ブタノール生合成の選択性と産物濃度を高めるために有利な条件を作り出す。産生菌株に対する発酵産物ブタノールの阻害作用を低減させるために、発酵及び下流プロセスの改善によって、発酵液中のブタノール毒性を軽減し、ひいては発酵終点のブタノール濃度を高めることもできる。本協業チームは変温発酵によって溶媒収量の大幅な増加を実現し、クロストリジウム・アセトブチリカムEA2018によるトウモロコシのバッチ当たり発酵総溶媒収量は28.0g/Lに達することができ、内訳はブタノール20.1g/L、エタノール3.4g/L、アセトン4.5g/Lであった (データ未発表)。だが、温度調節技術を用いてブタノールの高収量を実現する過程では、温度の低下がクロストリジア細胞の代謝を低迷させるため、発酵周期が長くなり、細胞の生産強度が下がる可能性がある。また、降温操作は工業応用の角度からいえば、エネルギー消費を増やし、設備の前期投資を増大させることになるため、ブタノール収量の増加と生産運転コストの間の経済バランスを総合的に考慮する必要がある。

発酵-産物ガスストリッピング (Gas-stripping) 結合技術を採用することも、溶媒の毒性を下げる有効な方法である。この方法は発酵によって産生するガス (H_2 , CO_2) または外界から通入した不活性ガスを利用して発酵産物を捕捉し、発酵液中の溶媒量を減らし、集めた溶媒を凝縮装置に送って回収し、一方、ガスは発酵体系へ環流し、引き続き発酵産物を回収することができる。本協業チームは*C.acetobutylicum* EA2018のバッチ式トウモロコシ発酵-ガスストリッピング結合技術によって、ABE発酵産物の濃度を30g/Lにまで高め、うちブタノールは20g/Lであった。

3.3.2 ブタノール高耐性菌株中での異種ブタノール経路の構築

伝統的なブタノール発酵における産物濃度の増加は、主に菌株のブタノール耐性の差によって制約される。主要な溶媒産生クロストリジウムである*Clostridium acetobutylicum*のブタノール耐性限度は2% (V/V) を下回っている。菌体細胞のブタノール耐性についての研究結果から見ると、この表現型は多くの遺伝子によって決定され、しかも非常に複雑なコントロールネットワークを有しているため、現在の菌株のブタノール耐性改造に

は一定の困難が存在している。

これまでの研究により、*Lactobacillus brevis*, *Lactobacillus delbrueckii*といった一部の菌株は、現在の溶媒産生クロストリジウムより明らかに高いブタノール耐性を持っていることが発見されているが、それは高ブタノール耐性の菌株が自然界に存在していることを示している。本協業チームは馴化及びスクリーニング等の戦略により、2株のブタノール耐性菌株を得たが、同定の結果、それらはいずれも乳酸桿菌属*Lactobacillus*に属していた。これを踏まえ、一つの乳酸菌ライブラリーのブタノール耐性についての検出測定によって、そのうち大部分の菌株は溶媒産生クロストリジウムよりも明らかに高いブタノール耐性を持っていることがわかったが、これは乳酸桿菌属が一つの総体として、比較的高いブタノール耐性を持っている可能性があることを示唆している。同時に、得られた数株のブタノール耐性限界が3% (V/V) を上回る菌株は、ブタノール経路を構築する宿主菌の候補者となる潜在能力を有している。

ブタノール合成経路がすでに*Escherichia coli*, *Saccharomyces cerevisiae*, *Pseudomonas putida*及び*Bacillus subtilis*, *Lactobacillus brevis*に導入されることに成功し、かつブタノール生合成の研究に用いられ、すべての上記の菌株が発酵後に微量のブタノールを得ることかできているということは、非自然宿主によるブタノール生産が実行可能であることを証明している。もちろん、異種ブタノール合成にも、酵素タンパク質コード遺伝子の合理的選択、遺伝子の有効な発現、代謝中間産物のバランス、競争的経路の完全なノックアウト等といったさまざまな困難が存在しており、今後も依然として、合成生物学、代謝工学、タンパク質工学等の手段に基づいて、ブタノールの産物濃度を高める必要がある。最近の、アメリカの研究者が大腸菌発酵による正ブタノール生産に突破口を開いたという報告は、注目に値するものである。

4. 展望

ブタノールは一つの重要な化学品、次世代のバイオ燃料として、その生物学的調製法はすでに世界的規模での研究の焦点となりつつある。現在、早急に解決が必要なのは、バイオブタノール製造コストのさらなる低減により、石油化学合成ルートに対する市場での競争優位を得るということである。

我が国の農産品栽培構造に基づき、伝統的なABE発酵において最もよく使われている基質は、主にトウモロコシ、イモ、穀物などデンプン質原料であるが、これらの農産品は一定程度、日常の食糧にすることができ、また家禽家畜の飼料や工業用穀物としても使われている。国家の食糧の安全という問題を考えると、バイオブタノール産業の発展の活路は、非穀類基質の高効率な利用、リグノセルロースの溶媒発酵への使用、工業化された一定

規模の生産レベルの達成にある。セルロース・ブタノールの生産プロセスが、今なお産業化が難しく、改善を待たねばならないという条件の下では、トウモロコシの代わりにキャッサバ、キクイモ等の非食糧作物で溶媒発酵を行うのも、一つの選択可能な措置である。だが、リグノセルロースの加水分解についての研究の深まりと、セルラーゼのコスト低下にともない、この種の再生可能資源をブタノールの発酵生産に用いることは、必然的な発展の趨勢となるであろう。

ブタノール発酵の経済競争力を強めるためには、廉価な原料とそれに見合った生産菌を採用するだけでなく、発酵のブタノール濃度（Concentration）、基質変換効率（Yield）、生産強度（Productivity）のどれを高めるにも、新しいタイプの生産菌種を育成・構築することが極めて重要であり、一方、遺伝子工学、代謝工学など、現代の分子生物学の技術はこの目標の実現のために可能性を提供している。

エネルギー微生物油脂技術の進展

•Profile•



趙 宗保 Zhao Zongbao ●中国科学院大連化学物理研究所研究員

中国科学院大連化学物理研究所研究員、博士課程指導教員。1968年9月生まれ。1998年、中国科学院上海有機化学研究所にて理学博士号取得。専門は有機合成。1998年～2003年、アメリカUniversity of Minnesota、University of Texas at Austinで、相次いでポスドク研究に従事。研究分野は生物有機化学及び微生物代謝工学。2004年、中国科学院「百人計画」の称号を獲得、さらに第13次「国外傑出人材導入」の選抜支持獲得。中国再生可能エネルギー学会バイオマスエネルギー専門委員会理事、中国化学会化学生物学専門委員会委員、アメリカ化学会、中国化学会、中国生物工学会会員。現在、主にエネルギーバイオテクノロジー、分子微生物学、ケミカルバイオロジーの研究に従事。代表的研究内容は、バイオマスBDF、イオン液体におけるバイオマスの化学的変換、産油酵母系生物学の研究、コエンザイムの化学的改造とコエンザイム工学。すでに学術論文100篇余りを発表、特許30件余りを出願。

石油資源への過度な依存は、国のエネルギーと経済の安全を脅かすだけでなく、深刻な生態環境問題をもたらしてきた。再生可能エネルギーの技術を進展させ、化石資源の消費を減らすことは、広く関心を集めている。バイオディーゼルは性能の優れた、化石ディーゼルに直接代わることでできるバイオ燃料製品であり、その主な化学成分は長鎖脂肪酸（メチル）エステルである。現在、バイオディーゼル生産は動植物油脂、たとえば、大豆油、菜種油、パーム油などを原料としている。だが、植物油脂は長年にわたり、主に食用及び油脂化工産業のために用いられてきた。統計によれば、世界の植物油年産量は約1.4億トンしかなく、その資源総量は大規模なバイオ燃料生産には明らかに適さない。したがって、新しいタイプの油脂生産技術を進展させることにより、バイオディーゼル産業の持続可能な発展を促すことが早急に求められている。

代謝プロセスを通じて炭水化物などの有機物を油脂に変換することは、細胞に必須な生物学的プロセスの一つである。少数の微生物は細胞内で細胞乾燥重量の20%を超える油脂を合成し、貯蔵することができ、この表現型を持つ微生物は産油微生物と呼ばれる。酵母及び真菌類真核産油微生物の蓄積する油脂は、通常の植物油により近い脂肪酸組成を有し、バイオディーゼル生産に特に適している。搾油用植物の栽培と比べて、微生物を利用した油脂生産には、周期が短い、連続生産が可能、自然界の豊富な炭水化物資源を一定の規模で利用できる、といった際立った特徴がある。微生物を通じて油脂及び関連の脂肪酸代謝誘導体を生産することは、バイオディーゼル産業の持続可能な発展とバイオマス資源の利用にとり、重要な意義を有している。

2003年以来、中国科学院大連化学物理研究所の趙宗保教授とそのチームは、エネルギー微生物油脂というテーマをめぐり、系統的かつ突っ込んだ研究を展開してきた。本文章は趙教授の研究を中心に、当該分野の収めてきた進展を簡単に紹介するものである。

1. エネルギー微生物油脂技術の原料と菌株

グルコースは一般に、微生物が成長するのに最も適した炭素源であり、グルコースを炭素源として産油微生物を培養する研究は非常に多く、菌体の油脂含有量は60%以上に達することができる。だが、グルコース及びデンプン質原料を利用してエネルギー油脂生産を大規模に行えば、「食糧を人と争い、土地を食糧と争う」という局面を招くことは避けられず、一連の社会・経済問題を生み出すことになる。したがって、エネルギー微生物油脂技術については、農林廃棄物や非食糧糖質原料の加水分解液及び、工業廃棄物中の有機質といったその他の大口原材料に注目する必要がある。伝統的発酵産業の成分の比較的是っきりした原料と比べて、上記の原料は炭水化物を含有しているほか、さらに大量の非糖成分を含有しており、それらは微生物の成長、代謝、産物生成に対する影響が非常に複雑である。そのため、菌株の基質利用基準が広く、総合的抵抗力が高く、産物変換率が高いことが要求される。

1.1 リグノセルロース原料を利用した油脂生産

リグノセルロース原料は主に、セルロース、ヘミセルロース、リグニンの3つの部分によって構成されている。物理/化学的処理により、リグノセルロースは単糖を含有する原料（加水分解液）に変換し、微生物培養に用いることができる。リグノセルロース加水分解液には、2つの際立った特徴—加水分解副産物を含有している、ヘキソースとペントースが共存している—がある。リグノセルロースの加水分解副産物には、フルフラール、ヒドロキシメチルフルフラール、酢酸、フェノール類物質などがあり、これらは微生物の成長と代謝に影響を及ぼす。したがって、抵抗力の優れた産油菌株をスクリーニングすることが必要である。華東理工大学の鮑傑らが産油酵母に対する各種副産物の影響について考察したところ、酢酸、蟻酸、フルフラール、バニリンの毒性が比較的強いことがわかった。国家973計画（訳注：国家重点基礎研究発展計画）と中国科学院知識イノベーション事業の重要な方向性を持つプロジェクトの支援の下、趙教授

の研究室は油脂発酵に対する加水分解副産物の影響について考察し、多種の加水分解副産物が併存している場合でも、*Rhodospiridium toruloides*の細胞内における油脂蓄積は65%に達し得ることを発見したが、これは当該菌株の抵抗力が強いことを示している。華南理工大学の宗敏華らは、脱毒処理を経たワラの加水分解液を利用して *Trichosporon fermentans* を培養し、菌体の油脂含有量は40%に達した。将来は、突然変異誘発や進化工学的戦略を通じて、菌株の加水分解副産物に耐える能力をいっそう高め、リグノセルロース加水分解液をより有効に利用して油脂を生産することができる。

リグノセルロースの加水分解液には通常、グルコース、キシロース、アラビノース、マンノース、ガラクトースが含まれている。加水分解液のヘキソースとペントースが共存するという原料特性は、生化学的変換に対して課題を突き付けている。それは、微生物は往々にしてグルコースを優先的に利用したあとで、キシロースを利用するからであり、微生物の中には、キシロースや加水分解液中に出現する上記の他の数種の単糖を利用することが難しいものさへあるからである。微生物に単糖基質に対する明らかな偏好性または専一性が存在している場合、加水分解液を原料として生物学的変換を行うと、発酵周期が長い、基質利用率が低い、産物収率が低い、廃水処理コストが高い等の問題が起きることになる。中国科学院「百人計画」及び国家863計画（訳注：国家ハイテク研究発展計画）プロジェクトの支援の下、趙教授の研究室は11株の産油酵母をスクリーニングし、それらがグルコース、キシロースを含む多種の単糖を利用できることを発見した。培養基組成及び発酵条件の最適化により、グルコースとキシロースを炭素源とした *Lipomyces starkeyi* の培養においては、糖利用率、菌体の油脂含有量がそれぞれ99%、52%に達した。多種の炭素源が併存しているとき、グルコースは微生物がその他の炭素源を利用するのを阻害するが、これはグルコース効果と呼ばれる。グルコース効果は基質の利用に延滞期を出現させ、発酵周期を長くし、プロセスの経済性を悪くする。したがって、ペントースとヘキソースの菌株を同時に利用できることを発見したことは、リグノセルロース原料の生物学的変換にとって極めて重要である。趙教授の研究室はスクリーニングの結果、*T. cutaneum* はグルコースとキシロースを同時に変換することができ、基質の利用にも産物蓄積にも延滞期が出現せず、しかも混合糖の発酵時間は同糖濃度の単糖の発酵時間と大差がなく、菌体の油脂含有量は59%に達するということを発見した。

1.2 キチン系バイオマス及びクイモ等高糖性植物を利用した油脂生産

キチンは中国語で甲殻素ともいい、主に節足動物（エビ、カニなど）や軟体動物の中に存在している。自然界における含有量がセルロースに次いで多い一種の多糖で

あり、また地球上で埋蔵量が最も豊富な含窒素有機化合物でもある。キチンの加水分解によって得られるN-アセチル-D-グルコサミン（GlcNAc）とグルコサミンは、生物学的変換による燃料及びバイオベース化学品調製の重要な潜在的原料である可能性が高い。趙教授の研究室はスクリーニングを通じて、*Cryptococcus albidus*, *C. curvatus*, *T. fermentans*, *T. cutaneum* を含む多くの産油酵母は、GlcNAcを油脂に変換し、細胞内に蓄積することができ、菌体の油脂含有量は40%以上に達するということを発見した。発酵条件の最適化により、*C. curvatus* 菌体の油脂含有量と油脂収率はそれぞれ54%、16%に達した。

クイモは一種の耐瘠土、耐寒、耐干ばつの多年生植物で、沿海砂浜地、塩・アルカリ土地で栽培することができる。クイモの主要成分はフラクトオリゴ糖で、加水分解して単糖になりやすい。中国科学院知識イノベーション事業の重要な方向性を持つプロジェクトによる支援の下、趙教授の研究室はクイモを原料とし、酸処理によってクイモエキスを得、*R. toruloides* の培養に用いたところ、全糖利用率は95%にも達し、菌体の油脂含有量は40%に達した。15L発酵タンクにおいて、反復補給方式によりクイモ加水分解液を補充したところ、油脂含有量は57%に上昇した。中国海洋大学の池振明らは、イヌリナーゼ遺伝子を *Yarrowia lipolytica* に導入し、イヌリンとクイモ抽出物を利用して微生物油脂を生産し、菌体の油脂含有量がそれぞれ48%、50%に達した。クイモを原料として油脂を生産すれば、原料供給源の問題が部分的に解決できるだけでなく、同時に砂浜、塩・アルカリ土地の放置問題を解決する上でも有効である。

2. 油脂発酵コントロール戦略の新たな進展

今日、産油微生物の遺伝的背景に対する認識は非常に限られているため、油脂の蓄積代謝の分子ターゲット的コントロールを行うことは今なお困難である。そのため、産油微生物の発酵コントロールについては、主に生物化学工学的的方法に依存し、すなわち培養基の栄養可用性と環境条件をコントロールすることによって、油脂の生合成を促そうとしており、これは発酵工学において最も一般的に用いられている戦略でもある。

2.1 培養基の栄養制限による油脂蓄積のコントロール

現在、産油微生物は窒素制限の条件下で油脂を過量に蓄積すると考えられている。したがって、油脂発酵において最もよく用いられるコントロール戦略は、培養基の窒素供給を変えること、すなわち培養基のC/N比を変えることである。中国科学院「百人計画」プロジェクトの支援の下、趙教授の研究室では *R. toruloides* の油脂含有量に対するC/N比の影響について研究し、油脂含有量はC/N比の増大にともなって高くなり、最適化により、C/N比が420になったとき、油脂含有量は76%に達するというこ

とを明らかにした。ギリシャの研究者Papanikolaouらは、多種の栄養元素を制限した培養基における*Mortierella isabellina*油脂の蓄積について考察し、C/N比が83から133に増加したとき、油脂含有量は50%から56%に増えるということを発見した。

趙教授の研究室は*R.toruloides*の発酵条件を最適化した際、 KH_2PO_4 の濃度を下げると菌体の油脂含有量を著しく高めることができることを発見した。当該酵母の産油に対するさまざまなC/P比の影響を考察した結果、リン制限もまた油脂蓄積コントロールの有効な戦略であることが明らかになった。培養基の最初のC/N比を22とし、最初のC/P比を72から9552に引き上げたところ、油脂含有量は21%から62%に上がった。このほか、イオウ制限についての初歩的模索でも類似の結論が得られた。培養基の最初のC/N比を28とし、最初のC/S比を150から46750に引き上げたところ、油脂含有量は20%から58%に高まった。リンとイオウは核酸、タンパク質、コエンザイムの合成に必須の元素であり、この2種類の元素が不足すると細胞増殖が抑制されることになるが、ただし脂肪酸と油脂の合成代謝は依然として比較的活発であり、そのため細胞内の油脂蓄積がもたらされる。

非窒素制限コントロール戦略は、窒素含有量の豊富な天然原料や廃棄物等を利用した油脂生産にとり、重要な意味を持っている。先に言及したキクイモエキス、キチン加水分解産物などは、全窒素含有量が比較的高く、産油微生物の培養に直接用いると、往々にして菌体の油脂含有量が低下する。適切な技術を用いてリン源を除去し、原料のC/P比を高くすると、基質をより効果的に油脂に変換することができる。

2.2 小分子による油脂蓄積のコントロール

さまざまな栄養の制限要素が油脂蓄積を促進できるだけでなく、小分子もまた産油微生物のコントロールに用いることができる。日本の研究者Kimuraらは*L.starkeyi*の産油能力に対するさまざまな香料成分の影響について考察し、アネトール、テルピネオール、アセトフェノン等が産油微生物を成長させたり、油脂蓄積を10%～46%高めたりすることができることを発見した。趙教授の研究室は、*L.starkeyi*の産油能力に対する真菌クオラムセンシング分子トリプトフォールの影響について研究した。接種を行い36時間培養した後、培養基に100 $\mu\text{mol/L}$ のトリプトフォールを添加したところ、バイオマス、油脂量、油脂収率係数がそれぞれ、7.4%、13.9%、14.2%増加し、そのうえ発酵時間も13.3%短縮した。これからわかるように、発酵過程で小分子化合物を使用することにより、油脂生産効率を高めることができ、さらには産物中の脂肪酸の相対含有量を調節することさえできる。小分子による油脂蓄積のコントロールは簡単容易なだけでなく、産油微生物の油脂代謝コントロールの分子基盤を研究する上でも重要な価値を有している。

2.3 さまざまな発酵モデルを応用した油脂発酵コントロール

趙教授の研究室は、油脂発酵の強さを高める方法について研究した。間欠補給方式により*R.toruloides*を培養するにあたり、144時間に材料補給を5回繰り返したところ、油脂生産強度は0.36g/(L·h)であった。連続的に流加する補給方式を採用し、グルコース濃度を5g/Lに抑えたところ、同じ時間内の油脂生産強度が0.57g/(L·h)に上昇した。反復－材料補給－バッチ式培養の方式を用い、358時間培養したところ、平均油脂生産強度は0.55g/(L·h)であった。また、発酵時間を短縮し、原料消費を減らすため、彼らはさらに細胞増殖と油脂蓄積の分離した二段階培養モデルを提示し、微生物油脂の調製に用いた。増殖段階で得られた*R.toruloides*細胞を直接再懸濁してグルコース水溶液中に接種し、通気培養したところ、菌体内に速いスピードで油脂が蓄積し、最終的油脂含有量が55%を超えることを発見した。二段階培養モデルは窒素源及びその他の補助原材料を節約し、油脂発酵生産における廃液排出を削減することができる。しかも、油脂蓄積段階にほとんど細胞増殖がないため、炭素源がすべて油脂生産に用いられ、産物収率が高い。

3. 産油真菌の油脂蓄積メカニズムに関する研究の進展

産油微生物、特に産油酵母の油脂過量蓄積メカニズムについては、今のところまだ主として生化学のレベルにとどまっている。一般に、産油酵母ミトコンドリア中のイソクエン酸デヒドロゲナーゼ (ICDH) は、AMPのアロステリック調節を受けるとされている。細胞内の窒素源が欠乏すると、AMPはデアミナーゼの作用の下でイノシン酸とアンモニアに変換され、ミトコンドリア内のクエン酸蓄積を引き起こし、さらに細胞質質内へと輸送される。クエン酸はATP-クエン酸リアーゼ (ACL) によって、アセチルCoAとオキサロ酢酸に変換される。アセチルCoAは脂肪酸合成酵素 (FAS) の作用の下で脂肪酸アシルCoAと油脂の合成を達成し、一方、オキサロ酢酸はリンゴ酸デヒドロゲナーゼによってリンゴ酸に還元され、さらにリンゴ酸酵素 (ME) による酸化的脱炭酸を経てピルビン酸を得、さらにNADPHを放出する。研究から明らかなように、産油微生物の油脂蓄積はMEの代謝コントロールと関連があり、MEが抑制されると、油脂の蓄積は低下する。これは、代謝ネットワークの中にはNADPHを生成できる多くの反応があるものの、脂肪酸合成の炭素鎖延伸に必要なNADPHは、ほぼ全面的にMEの触媒反応から来ているためである。

大連化学物理研究所の資金援助の下で、趙教授の研究室は最近、産油酵母*L.starkeyi*のIDHをコードする遺伝子のクローニングを行い、蛍光定量PCR技術により、転写レベルにおいてIDH活性と細胞内油脂蓄積の関係を検証

した。産油酵母*R.toruloides*のIDHをコードする遺伝子を分離、同定し、*S.cerevisiae*の遺伝子置き換え実験を通じてわかったことは、*R.toruloides*のIDH活性の異種発現は培養環境C/N比のコントロールを受け、かつ細胞内の油脂含有量とも密接に関連しているということである。このほか、*L.starkeyi*由来の1個のME遺伝子を分離し、さらにこれに対応する組み換えタンパク質の生化学的性質について研究した。

産油微生物の組織立った学術的研究はまだ初期の段階にある。趙教授の研究室は油脂発酵過程の差次的プロテオミクス研究を展開した。窒素制限培養を利用して*R.toruloides*と*L.starkeyi*の油脂蓄積を誘導し、二次元液体クロマトグラフィー/タンデム質量分析法によって、それぞれ異なる培養段階の細胞のプロテオームを解析し、比較と半定量的プロテオミクス解析を行った。*R.toruloides*サンプルの中から114種類の差次的に発現したタンパク質を同定したが、うち46種のタンパク質は油脂合成プロセスにおいて、発現レベルに顕著な変化があった。*L.starkeyi*サンプルの中から289種の差次的に発現したタンパク質を同定したが、うち81種のタンパク質は油脂合成過程において、発現レベルに著しい変化が見られた。これらの結果は、油脂蓄積代謝に対する培養環境の窒素欠乏の影響を物語っているだけでなく、細胞内の油脂代謝メカニズムについての突っ込んだ検討及び産油微生物の改造のために、重要な情報を提供している。

4. エネルギー微生物油脂技術に存在する問題と展望

発酵法による油脂生産には、周期が短い、連続運転が可能、原料が豊富、生産の潜在能力が大きい等の際立ったメリットがある。だが、微生物油脂の一定規模の生産は、今なおいくつかの問題に直面している。その第一は、発酵原料の問題である。エネルギー油脂の発酵にはどうしても、リグノセルロース原料、工業有機廃棄物などを含み、その他の非食糧原料を使用しなければならない。全体として、リグノセルロース資源を処理して発酵可能な原料にする技術はまだ成熟していない。原料問題については、産油菌株の原料適合性と抵抗力について特に注意を向ける必要がある。将来の事業においては、複雑な原料条件の下での産油微生物の成長代謝法則を研究し、油脂発酵にマッチした原料処理方法を確立し、産油菌株の基質利用能力を改造しなければならない。さらにエネルギー油脂発酵は、新たな生物化学工学の問題にも直面している。油脂は微生物の細胞内産物であって、自然に細胞外に分泌させることはまだ不可能であり、分離抽出プロセスを経ることによって、初めて発酵マッシュ液から回収することが可能になる。高密度の油脂発酵を行う際には、酸素伝達など技術的な問題が非常に顕著となる。したがって、伝統的な突然変異誘発手段または現代の分子生物学的手段によって、油脂を含む脂肪酸代謝誘導体

を分泌する菌株を創製することは、産物分離の簡便化、収率向上、エネルギー油脂の連続生産実現にとって重要な意味がある。バイオディーゼル調製技術からだけ見れば、産油微生物桿菌体を直接利用してバイオディーゼルのメチルエステル化調製を行うことは、油脂抽出のステップを省くことになり、バイオディーゼルの総生産コストを下げる可能性もある。

コストが高いことは、エネルギー微生物による油脂生産の制約要因の一つである。しかし、今のところまだ、エネルギー微生物油脂の随伴産物の価値が考慮されることは比較的少ない。バイオリファイナリー及びグリーンケミストリーの理念にしたがい、原料から油脂の発酵変換を経て得られる物質は、さらに「食べ尽くし搾り尽くす」という方式によって、多種の製品に変換しなければならない。また、合成生物学の理念を応用して、油脂を含む脂肪酸代謝誘導体を生産する菌株を構築し、産物の化学構造と組成を設計することも、技術の経済性を著しく改善する可能性がある。たとえば、日本のYasushi Kamisakaらは*S.cerevisiae*の転写因子SNF2をノックアウトして、ジアシルグリセロールアシルトランスフェラーゼをさらに過剰発現させ、突然変異株の油脂含有量を30%まで高めた。注意すべきことは、モデル材料は遺伝子操作が行いやすいが、しかしそれらは脂肪酸代謝誘導体を産生する能力が、既知の産油微生物菌株よりもはるかに低いということである。中国科学院知識イノベーション事業の重要な方向性を持つプロジェクトの支援の下で、趙教授の研究室は産油能力の際立っている*R.toruloides*をモデルとして、すでに産油酵母の遺伝子操作方法の研究と、栄養要求性株の構築に着手している。産油微生物遺伝子工学及び、ターゲット性菌株改造についての研究を展開することは、将来の重要な研究方向の一つとなるであろう。

以上を要するに、現代のバイオテクノロジーと合成生物学の絶え間ない発展にともない、バイオリファイナリー及びグリーンケミストリーの理念の指導の下、エネルギー微生物油脂技術の経済性は引き続き改善されていき、最終的にバイオ燃料生産の確かな技術となるに違いない。

セルラーゼとリグノセルロースの生分解変換に関する研究の進展

•Profile•



方 翹 Fang Xu ●山東大学生命科学学院、微生物技術国家重点実験室、国家糖工学技術研究センター教授

1974年3月生まれ。2006年3月、京都大学にて農学博士号取得。2006年5月～2009年4月、日本国立産業技術総合研究所(AIST) バイオマス研究センター(BTRC)にて研究員着任。2009年5月より現在まで、山東大学微生物技術国家重点実験室、国家糖工学技術研究センターにて教授兼博士課程指導教員を担当。中国微生物学会、日本農芸化学会、日本生物工学会正会員。「985プロジェクト」資源バイオテクノロジー科技イノベーションプラットフォーム学術中堅、教育部「新世紀優秀人材」、山東省の海外イノベーション起業人材導入「万人計画」第一段階、「泰山学者海外特別招聘専門家」等の栄誉を授与。現在、主にバイオマスエネルギー技術、微生物育種等分野の研究に従事。すでに学術論文30篇余りを発表、一部の専門著作編集業務に参加。

共著者：曲 音波

21世紀に入って以来、人類はエネルギー、資源、環境等の方面でますます深刻化する課題に直面している。中国の問題は特に際立っている。一方で、中国の石油の対外依存度はすでに50%を超え、大部分の石油消費が輸入に頼らなければならない、国家のエネルギーの安全と経済の安全は保証を得られないでいる。同時にまた、鉱石燃料の大量使用は環境を甚だしく汚染しており、中国が石油に代わる再生可能資源を探すことは、すでに差し迫った急務となっている。バイオマス資源は大量に再生ができ、その利用過程で生じるCO₂も植物に吸収され、炭素閉鎖循環を形成し、環境に影響を及ぼすことがない。そのため、化学工業はすでに石油資源からバイオマス資源への歴史的、革命的な変化を遂げ始めている。

しかしながら、今日のバイオ燃料と大口バイオ化学品は主に、デンプン、糖、油脂から生産されているため、「食糧を人と争い、土地を食糧と争う」という問題が存在し、ことごとく論議をかもしている。中国が食糧の安全を保障することは一貫して国家の主要な任務であり、非食糧原料、特に植物バイオマス主体(細胞壁)のリグノセルロース部分によるバイオ製品生産を発展させることがどうしても必要である。リグノセルロースの3種類の主要成分の単体は各種の糖と芳香族化合物で、いずれも液体燃料や化工製品の生産に用いることが期待できる。したがって、バイオ化工産業の原料もまた、食糧・食用油原料からセルロース原料へという歴史的・革命的転換の実現に直面している。

アメリカ政府はセルロース系エタノールの発展を強力に支援し、しかもその関連技術はすでに大きな進展を示している。低い酵素使用量(15FPA IU/g グルカン)という前提の下で、セルロース及びヘミセルロースの糖収率はいずれも>90%に達することができ、エタノール製品の単位当たり酵素使用コストはすでに0.2米ドル/ガロンまで下がっている。

我が国の作物わらは決して有効利用されてはならず、

収穫シーズンにはしばしばその場で焼却され、深刻な環境汚染を引き起こし、一つの大きな社会的公害となっており、新たな高効率利用の道を見つけることが早急に求められている。そして、この問題を解決する最も将来性のある案の一つが、わらを分解して発酵性糖に変換し、さらに発酵によって、人類が差し迫って必要としている液体燃料及び化工製品を生産するというものである。

わら等のリグノセルロースからエタノール等の加工製品を抽出するには、まず酸または酵素加水分解法を用いて、リグノセルロースを発酵性糖に変換しなければならない。酸加水分解法の糖収率は往々にして60%を下回り、しかも酸加水分解過程では大量の発行阻害物質が産生し、加えて設備投資がかなり高く、環境負担が過大である等の問題もあるため、大規模な産業化を行うことは難しい。酸による加水分解プロセスと比べて、酵素による加水分解には、反応条件が穏やか、環境に優しい、産物が専一である、糖収率が高い(変換率>90%)、設備投資が低い等のメリットがあり、そのため世界各国の重点的研究開発の焦点の一つとなっている。酵素加水分解法はまず、有効な物理化学的前処理によって、セルロース、ヘミセルロース、リグニン等、高分子の相互結合によって形成されている天然の障壁を打ち破らなければならない。その上で、セルラーゼを利用して前処理後のリグノセルロースを分解し発酵性糖にする。国内にはすでに多くのセルロース生物変換試験装置が相次いで建設されているが、技術蓄積が不十分で、生産コストが高すぎる(エタノールt 当たり生産コストが7000元以上)ため、本当の意味での工業化を実現することができない。リグノセルロース分解コストの高すぎの原因を招いている主な技術上のボトルネックは、加水分解過程のセルラーゼ使用量がかかなり多いことであり、酵素分解効率の改善を待たなければならない。

生産におけるセルラーゼの使用量を減らし、酵素加水分解の効率を高め、工業生産におけるセルラーゼのコス

トを下げるために、世界各国の科学者はセルラーゼ及びリグノセルロースの生分解変換をめぐる、広範な研究を展開している。本文章は、以下のいくつかの方面の研究の進展及び解決すべき問題を重点的に紹介するものである。

1. セルラーゼ系の組成とその協同作用

セルラーゼは複雑な酵素系という一つの大きなカテゴリーの総称である。セルロース分解酵素はその触媒機能によって大きく3種類——エキソ- β -1,4-グルカナナーゼ (exo- β -1,4-glucanases, EC3.2.1.91) [セロビオヒドロラーゼ (Cellobiohydrolases) ともいい、CBHと略称] と、エンド- β -1,4-グルカナナーゼ (endo- β -1,4-glucanases, EC3.2.1.4) [EGと略称] と、 β -グルコシダーゼ (β -1,4-glucosidases, EC3.2.1.21) ——に分けることができる。長期にわたる研究によれば、結晶セルロースの徹底的分解には少なくともこの3組のセルラーゼの協同作用が必要であることが明らかである。CBH (セロビオヒドロラーゼ) はセルロース結晶部位を加水分解することができ、セルロース鎖の (CBH I の場合) 還元端あるいは (CBH II の場合) 非還元端から持続的加水分解を開始し、セロビオースを放出する。エンドグルカナナーゼ (EG) は主にセルロースの非結晶部位に作用し、セルロース鎖中のグリコシド結合をランダムに加水分解し、セルロース長鎖を切断し、大量のさまざまな重合度のセルロース短鎖に変換し、セルロース分子の重合度を低下させ、セロビオヒドロラーゼ (CBH) の作用に供することのできるセルロース鎖の末端数を増加させる。 β -グルコシダーゼは主にセロビオースと可溶性セロオリゴサッカライドを加水分解し、最終的にセルロースを利用可能なグルコースに変換する。天然セルロース材料の組成と構造はさまざまであるため、その分解に必要なセルラーゼのそれぞれの成分同士及び、セルラーゼとその他の分解酵素の活性の最適比率もそれぞれ異なり、統一した基準を出すことは難しい。

実際、工業用のセルラーゼ製剤には多くのヘミセルラーゼも含まれており、それにはキシラナーゼ、キシロシダーゼ、マンナナーゼ、マンノシダーゼ、アラビノフラノシダーゼ、フェルラ酸エステラーゼ、アミラーゼ、プロテアーゼ等がある。セルラーゼ製剤は数十種類のたんぱく質を分離純化することができ、大半はセルロースの分解と関連がある。単一の酵素系成分では天然リグノセルロース基質の最終分解を単独で達成し、天然リグノセルロース基質をグルコース等の単糖に分解するということはできず、数種類のセルラーゼ系成分の共同作用の下でのみ初めて達成することができる。この理論基盤を踏まえ、多くの実験による検証を経て、研究者らは、セルラーゼ酵素系成分の再構築を通じて分解酵素系を最適化し、セルロース基質に対する分解効率を高め、酵素使用量を低減

させるという戦略を提示した。セルラーゼ酵素系成分の再構築とは、何種類かの由来の異なる、それぞれのタイプのセルラーゼ系の特徴に対する十分な理解の上に立って、各種成分を異なる比率で混和し、酵素分解の条件を調整することにより、基質に対し最高の分解効果を上げるという目的を達成することを指す。多数の研究によれば、トリコデルマリーゼイの産生するセルラーゼ酵素系中の β -グルコシダーゼは活性が低すぎるため、そのエンドグルカナナーゼ (EG)、セロビオヒドロラーゼ (CBH) の活性を阻害し、セルロースの変換率と加水分解速度を下げてしまうことが証明されている。実験から明らかにように、トリコデルマリーゼイ由来のセルラーゼに適量の β -グルコシダーゼを添加すると、セルラーゼのセルロース分解効率と速度を大きく高め、グルコースの変換率を高めることができる。

他方で、天然リグノセルロース中に存在するヘミセルロースも、セルロースの分解効率に対し重要な影響を及ぼす。あるデータによれば、セルラーゼの加水分解過程において、高濃度のキシロオリゴサッカライドはセルラーゼ活性を阻害してしまう。一方、酵素系中のキシラナーゼとキシロシダーゼの比率を増やすと、このような阻害を減らし、セルロースの変換率を高めることができる。陳洪章らは、フェルラ酸エステラーゼの添加によって、蒸気爆発処理後の稲わらのヘミセルロースとリグニン間のエステル結合の一部を打ち破ることができ、稲わらの中のセルロースとヘミセルロースの加水分解速度が高められたことを報告した。これらの結果は、天然リグノセルロースの分解過程においては、ヘミセルラーゼとセルラーゼの間に協同効果が発生し、セルロースとヘミセルロースの変換が促進されるということを示している。

近年、ノボザイムズ社の研究者らは、トリコデルマリーゼイ由来のセルラーゼに少量のGH61ファミリーのグリコシダーゼを添加すると、トウモロコシわらの加水分解効率を高める上で有効であることを発見した。さらなる実験によって証明されたところによれば、全酵素量の5%に満たないGH61タンパク質を加えると、加水分解作用に必要なセルラーゼ使用量を元々の1/2に減らすことができる。より長い酵素分解時間、より高い加水分解程度、より多い固体セルロース量という状況の下では、GH61タンパク質の添加は、必要なセルラーゼタンパク質量が減少するという現象をいっそう明らかなものにする。

セルラーゼ及び一部のその他のタンパク質の協同作用も、国内外の学術研究の関心の的となっている。そのメカニズムは今なお十分に明確ではないが、すでに得られている成果は、2種類のメカニズムの存在する可能性があることを示している。その1つは、一部のタンパク質の添加がセルロースに対するセルラーゼの「可及性」を増すこと、すなわちセルラーゼと基質の反応の確率を増すことである。もう1つは、一部のタンパク質がセルラーゼの

安定性を高め、セルラーゼの失活を減らすことである。セルラーゼとその他のタンパク質の協同作用のメカニズムについての研究は、セルラーゼの用量を減らし、リグノセルロースの酵素分解効率を高め、セルラーゼの機能を改良するための重要な理論的根拠を提供することができるので、より突っ込んだ、緻密な研究を行うことが必要である。

2. セルラーゼの糖化力の評価

セルラーゼ活性にはさまざまな表示方法がある。酵素製剤企業はよく、高重合度のセルロース誘導体——カルボキシメチルセルロース（CMC）を基質として、セルラーゼ中のエンドグルカナーゼ（EG）活性を測定している。だが、セルロースの分解過程において、セルラーゼ中のエンドグルカナーゼ活性は、セルロースの分解効率を真に反映できるというわけではない。そのため、現在、国際的に最も普通に用いられている方法は、Whatman濾紙No.1を基質として、多成分セルラーゼの協同作用が反映できる濾紙酵素活性を測定するというものである（Filter paper assay, FPA）。この方法のメリットは、(1) 基質が一般に使われていて入手しやすい。(2) 基質が適度なセルラーゼ分解感受性を具えている。(3) 手順が相対的に簡単で、余った基質を取り除く必要がない、ということである。だが、濾紙自体の構造が決して単一ではなく、加水分解しにくい結晶部位と加水分解しやすい非結晶部位に分かれているため、その加水分解過程曲線は決して線形ではない。国際純粋・応用化学連合会（International Union of Pure and Applied Chemistry, IUPAC）によって確立され、発表された方法は、1時間に50mgの濾紙サンプルから2mgのグルコースを析出する（濾紙の約4%が加水分解される）ことにより、セルロースの無定形部位にも結晶部位にも一定程度の加水分解が発生し、それによってより正確に酵素の組成と含有量が反映されるよう保証することを要求している。この要求を満たすためには、加水分解の前に必ずセルラーゼ濃度の調整を繰り返し、当該の加水分解比率にちょうど到達させることが必要であり、したがって測定の手順と難度が増している。

注目し値するのは、前に述べたように、セルラーゼ系中の β -グルコシダーゼ活性はリグノセルロースの分解速度に対し大きな影響を及ぼすということであり、したがってセルラーゼ系中の β -グルコシダーゼ活性を理解することは、非常に重要でもある。その酵素活性の測定方法は一般に、さまざまな発色または蛍光基団を有する β -グルコシダーゼ誘導体（たとえば、pNPG）を基質とし、基質を1分間加水分解して還元糖または発色基団 $1\mu\text{mol}$ を産生するのに必要な酵素量を1個の活性単位（IU）とする。同時に、エンドグルカナーゼ（EG）とセロビオヒドロラーゼ（CBH）はともにセロビオースを加水分解することができないので、 β -グルコシダーゼ活性はセロビオース

の加水分解を通じて測定することができる。 β -グルコシダーゼ酵素活性と濾紙酵素活性の比率は、セルロース分解の速度と程度に対する影響が非常に大きいため、この比率はセルラーゼ製剤の品質の重要な指標となっている。通常、この比率は1を上回っていただなければならない。

実際の応用において、人々は依然として濾紙酵素活性の測定及びCMC酵素活性によってセルラーゼ製剤の糖化能力を表すことに慣れているが、しかし、多くの実験が証明しているように、CMCまたは濾紙酵素の活性単位では、天然リグノセルロース系基質に対するセルラーゼの糖化能力を正確に反映するのはむずかしい。これはリグノセルロース系基質自体とセルロース分解酵素が、どちらも非常に複雑な体系であるのに対し、濾紙及びCMC酵素活性などの酵素活性単位が、ともにセルラーゼと単一の比較的純粋な基質の反応のデータに基づいて計算されているからである。もう一方で、それぞれの基質（それぞれの前処理方法と程度を含む）にはそれぞれ異なる分解酵素系の組成が必要である。さまざまな天然基質を採用して得られるセルラーゼの糖化能力の結果も、正確に比較し合うことは非常に難しい。そこで、アメリカエネルギー省は最近提出したセルラーゼ開発計画の中で、一つの明確なサンプル（指定の希酸処理法で処理を行ったトウモロコシわら）に的をしぼり、指定の方法にしたがってそれぞれのセルラーゼの糖化能力の比較を行わねばならないことを、すでにはっきりと指摘している。中国のセルラーゼ及びセルロースバイオリファイナリー産業の発展を促すために、国情に適した、指定の前処理を経た天然リグノセルロースを基質としたセルラーゼの一般的評価方法を制定すべきであることを提案する。

3. セルラーゼの構造と機能

各種のテスト手段及び分子生物学の進歩にともない、研究者はセルラーゼの各酵素成分の構造と機能について、突っ込んだ探究ができるようになった。このうち、結晶セルロースの解重合または解鎖は、セルロースの酵素分解過程の律速反応のステップである可能性があり、したがってセロビオヒドロラーゼ（CBH）、特にCBH Iは研究の焦点の一つである。

長年にわたる研究の結果、セロビオヒドロラーゼは2つの独立した活性構造ドメインを具えていることがすでに知られている。それは触媒機能を有する1つの構造ドメイン（Catalytic domain, CD）と、セルロース結合機能を有する1つの構造ドメイン（Cellulose binding domain, CBD、またはCarbohydrate binding module, CBMという）で、両者の間是一个の高度にグリコシル化したリンカーペプチド（Linker）によってつながっている。多数の研究が証明しているように、CBHが結晶セルロースを効果的に分解し、セロビオースを産生することができるのは、まず最初にCBDを利用してCBHを結晶セルロース

の表面に吸着させ、そのあとで、1本のデキストラン鎖（セルロース）が素早く正確にCD内の基質結合部位と触媒部位を持った「トンネル」に入り、セロビオースが正確にデキストラン鎖上から切断され、放出されてくるのと同時に、CBH分子がデキストラン鎖に沿って2個のグルコース単位を前方へスライドさせるからである。山東大学の王祿山の研究がさらに明らかにしたところによれば、CBDはセルロースに対する加水分解活性は持っていないが、結晶セルロース構造をやわらかくする能力を具えている。2009年、東京大学准教授の五十嵐圭日子博士は、CBHが結晶セルロースを分解する動態過程を高速原子間力顕微鏡で初めて直接撮影するとともに、詳細な観察を行い、CBDを失ったCBH I 分子の持続的分解速度は完全なCBH I 分子と比較して、それほど大きく違ってはいないということを発見した。また、CBH I 分子のスライディングは、活性中心の酵素加水分解反応に付随して同時に行われるのであり、一方、CBDは吸着作用を利用して酵素分子の基質における濃度を大きくするのであることを証明した。多数の研究成果によって、我々はセルラーゼの作用メカニズムについてより深く理解するようになったが、しかしセルラーゼが基質上において持続的に運動し、分子鎖間の水素結合を切断する原動力源は依然として一つの謎である。そして、この謎の答えの解明は、我々が分子改造技術を利用して酵素の分子変換効率を高めるための、正しい理論的指導を提供してくれるであろう。したがって、CBHという数億年の進化を経て出来上がった高効率の「分子機械」の作用メカニズムは、我々がさらに突っ込んだ研究をしていくに値するものである。

4. セルラーゼ生産技術

セルラーゼはアミラーゼと同様、酵素製剤商品が売られているが、同じエタノール収量について、セルロース系エタノール生産の採用するセルラーゼのコストは、デンプン系エタノールにおけるアミラーゼのコストの50～200倍である。そのため、現在、酵素製剤会社からセルラーゼの商品酵素剤を購入して、リグノセルロース分解産糖に用いた場合、経済的に商業化の要求を達成することができない。近年、多くの科学者は、現場生産（On-site production）方式によってセルロース系エタノール生産におけるセルラーゼ・コストを下げる方法の採用を提起している。すなわち、エタノール工場内にセルラーゼ作業場を建設する方式を採用し、まず工場内で前処理を行ったリグノセルロースの一部を原料として、有酸素の酵素産生発酵を行い、酵素活性がピーク値に達したか、または各種の酵素成分が最適な組み合わせにあるときに、いかなる処理も行わず、酵素を含んだ粗発酵液をじかに新しいセルロース原料と混合し、加水分解産糖または同時糖化発酵の後続工程に入るのである。このプロセスのメリットは、産生した粗酵素液が分離、貯蔵、輸送を経る

必要がないということにある。そのため菌糸除去、濃縮、調合（タンパク質保護剤、抗菌剤、安定剤等化学薬品の添加）、貯蔵、輸送などの不要な高い費用が省かれ、粗酵素液を直接、下流工程に用いることができる。

セルラーゼ現場生産技術の核心は、優良なセルラーゼ工業生産菌株である。山東大学の曲音波らは早くも1979年に、腐乱したセルロースサンプルの中から一株のセルラーゼ高収率のペニシリウム・デカンペンス *Penicillium decumbens* 株をスクリーニングしたが、これは我が国が自主知的財産権を持っているセルラーゼ工業菌株であり、国内で広く研究、応用されてすでに30年になる。これは天然リグノセルロースを分解する比較的完全な酵素系を分泌することができるだけでなく、トリコデルマリーゼイに比べて、多めの β -グルコシダーゼを産生することができる。同時に、ペニシリウムの成長速度はトリコデルマよりも速い。近年、ペニシリウム・デカンペスのセルラーゼ合成コントロールに関連した研究が、一連の進展を遂げている。そのゲノムシーケンシング作業もすでに完成し、ゲノム解析作業が整然と進行しているところである。研究の中で、ペニシリウム・デカンペンス・ゲノムに含まれているセルロース結合性モジュール（CBM1）の分解酵素の種類は、アスペルギルス、トリコデルマリーゼイよりも明らかに高いことが発見されたが、このことは当該菌酵素系の将来における大きな応用の可能性を示している。

長期にわたる育種改良と発酵プロセスの最適化の結果、ペニシリウム・デカンペンス変異菌株の最も高い濾紙酵素活性は18.9FPU/mLに達し、最も高いセルラーゼ産生速度は160.0FPU/h・Lに達した。同時糖化発酵とフェドバッチ技術の使用により、我々はすでにセルロース系エタノールのペニシリウム・デカンペンス・セルラーゼ用量を6.4FPU/g・セルロース基質まで減らし、エタノール濃度、収率、セルロース変換率をそれぞれ57.6g/L、25.0%、76.8%にまで持っていくことに成功しており、セルロース系エタノール生産技術はすでに一定の経済競争力を具えている。

現在、エネルギーと環境の圧力の下で、我が国はリグノセルロース分解産糖技術の産業化を早急に迫られている。我々は自主知的財産権を有する工業菌株（たとえば、ペニシリウム・デカンペンス）を中核とし、外国の成功と失敗の経験を参考にし、中国の国情を十分に考慮し、原料と人件費の低コストという優位性を発揮して、完全に自主知的財産権を持つ、我が国の国情に合ったリグノセルロース分解産糖技術を開発しなければならない。そうして初めて、我が国は将来の経済発展の中でイニシアチブをとり、我が国の工業を環境保全型工業へと転換させることができるのである。

酵素法によるバイオディーゼル合成の工業化プロセスに関する研究

•Profile•



譚 天偉 Tan Tianwei ●北京化工大学副学長、教授、博士課程指導教員

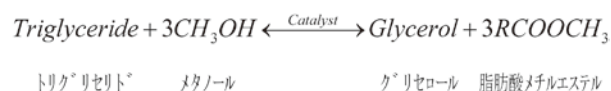
1964年2月生まれ。1993年3月、清華大学にて生物化工博士号取得。1993年5月～1995年5月、北京化工大学にてポスドクを務めた後、同大に勤務。1997年3月～8月、1998年1月～4月の2回、スウェーデンUppsala大学に赴き訪問学者研究に従事。かつて「973計画」首席科学者を務め、栄えある教育部特別招聘教授、長江学者、国家傑出青年基金受賞者、国家教学名教師等に選ばれる。第一著者として国家技術発明賞二等賞2件、中国石油・化工協会技術発明一等賞など、省・部級科学技術賞8件を受賞。2009年、談家楨生命科学イノベーション賞を受け、2010年、中国科学技術協会より全国優秀科学技術工作者の称号を授与。主な研究分野は、バイオベース化学品、バイオエネルギー、生物材料等を含む工業バイオテクノロジー。SCI収録学術論文168篇、EI収録論文221篇を発表。相次いで国内外の発明特許37件を出願し、すでに中国の発明特許16件を取得。

経済危機後の世界経済の回復にともない、人類のエネルギー需要量が増加し続けているのに対し、すべてのエネルギー消費の中で常にトップの座を占めてきた石油化学エネルギーは埋蔵量に限りがあり、このことは直接、今日の世界におけるエネルギー価格の上昇を招いている。エネルギーの安全と環境保護の観点から考えれば、石油代替エネルギーを成長させることは、世界の多数の国々がエネルギー供給の逼迫を緩和し、気候温暖化に対処する（温室ガス削減）ための重要な措置である。バイオマスエネルギーは再生可能でクリーンであるだけでなく、大規模生産と燃料代替輸送が直接行えるエネルギー製品であり、エネルギーと物質的生産（バイオベース製品）の提供機能を併せ持っている。バイオマスは有機廃棄物や汚染物質を原料として、資源の循環利用と環境保護の結合を実現することができる。

バイオディーゼル(Biodiesel, fatty acid methyl esters)は油脂と短鎖アルコールを基質として、エステル交換反応によって得られる脂肪酸短鎖アルキルエステルである。バイオディーゼルは環境に優しく、安全で、燃焼性能がずば抜けており、環境共生型の再生可能な一つのバイオマスエネルギーである。バイオディーゼル中の有害物質（イオウ、灰分など）の含有量は中品質有煙炭の1/10前後にすぎず、バイオディーゼルを採用した燃焼排ガス中の粒子状物質は石油化学系ディーゼルの20%、有害有機物排出量は1/10しかなく、SO₂、鉛など有害物質を排出しない。したがって、バイオディーゼルの開発利用は高度にクリーンなエネルギー技術であり、温室ガスの排出を減らし、地球環境の悪化を防ぐ一つの有効な選択である。バイオディーゼルは日増しに重要な再生可能燃料油ともなっており、これを用いて石油化学ディーゼルを代替することは、すでに国内外のエネルギー転換の必然的趨勢となり、我が国においても同様に巨大な市場潜在力と将来的な発展可能性を有している。

現在、バイオディーゼルの合成に最もよく用いられている方法は、油脂と短鎖アルコール類によってエステ

ル交換反応を行い、脂肪酸短鎖アルキルエステルを合成するというものである。エステル交換反応は加アルコール分解とも呼ばれ、加水分解の過程に類似し、一つのアルコールを用いてエステル分子中のアルコールに置き換え、それによって基質油脂の粘度を低下させる。メタノールを上記の反応に用いた場合は、メタノリシスと呼ばれる。油脂中の主要成分はトリグリセリドで、1モルのトリグリセリドと3モルのメタノールが触媒または高温高压の下でエステル交換を行い、3モルの脂肪酸メチルエステルと1モルのグリセロールを生成する。その反応は下の化学式によって表すことができる。



加アルコール分解反応は、アルカリ、酸または酵素触媒によってその達成が触媒される。アルカリ触媒にはNaOH、KOH、炭酸塩及び、ナトリウム、カリウムの対応するアルコール類化合物、たとえばナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド等がある。硫酸、スルホン酸、塩酸は通常、酸性触媒として用いられ、リパーゼもよく生物触媒として使用される。アルカリ触媒のエステル変換反応は酸触媒、酵素触媒よりも反応のスピードが速く、反応時間が短めで、実際の生産の中で最も広く応用されている。だが同時に、化学法にはたとえば、エネルギー消費が高い、グリセロールの分離が比較的難しい、触媒過程及び産物分離精製過程で多くの廃液が生じるなど、いくつかの欠陥もある。

酵素法によるバイオディーゼル合成は、エステル変換反応を触媒できるというリパーゼの機能を利用して、エステル交換反応を達成するプロセスである。酵素法には、反応条件が穏やかである、環境に優しい、多種の油脂を処理できる、副産物が少ない、製品が抽出・精製しやすい等のメリットがあり、現在すでにバイオディーゼル研究の重要な方向となっている。だが、現在、バイオディー

ゼルの酵素法合成を制約しているキーポイントは、触媒リパーゼのコストが比較的高いことにある。基質のメタノール、エタノール等短鎖アルコールには、リパーゼの活性に対してかなり強い阻害作用があり、リパーゼは短鎖アルコールの中では失活しやすく、触媒の寿命が比較的短い。反応過程で産生する副産物グリセロールはリパーゼの表面に付着し、基質と触媒の接触を妨げることによって、反応効率を低下させる。リパーゼの操作安定性を高め、触媒の使用コストを下げるために、先人は多くの研究活動を行ってきた。まず酵素を固定化するさまざまな手段を用いて、生物触媒の使用寿命を延ばした。メタノール等短鎖アルコールのリパーゼに対する毒性を低減するために、メタノールのバッチ投入、溶剤選択、アシル基受容体の選択という3種類の方策をよく採用する。このうち、メタノールのバッチ投入という方法は実現がしやすく、メタノールの濃度を効果的に下げることで、最終的な反応変換率を上げることができると、広く応用されている。また、tert-ブタノール系を用いてメタノールとグリセロールの油脂中における溶解度を改善し、メタノールの毒性とグリセロールの付着を避ける研究者もおり、したがってこの系における酵素の操作安定性は良好である。メタノールの代わりに酢酸メチルが反応に参加しても、リパーゼに対する極性基質の毒性を防ぐことができるが、ただし反応速度はかなり遅くなる。全体的に言って、バイオディーゼルのリパーゼ触媒合成についての多くの研究は、今なお実験室段階にあり、リパーゼのコストは相変わらずかなり高い。高効率の安定した廉価なリパーゼの生産と調製は依然として、バイオディーゼルの酵素法生産の工業化を制約しているキーポイントである。

当チームは多年にわたる選択育成を経て、脂肪酸エステルに適した専一的なカンジダリパーゼを得るとともに、一つの新しい膜固定化方法を開発し、当該のリパーゼを織物膜上に固定した。この固定化リパーゼは現在、国内外でエステル化反応に用いられている、コストパフォーマンスの比較的高いリパーゼであり、酵素法によるバイオディーゼル合成の触媒コストを大きく引き下げた。

1. バイオディーゼル生産用リパーゼの菌種選抜育成及び発酵生産

我々はまず、得られた原始菌株に的をしぼって、化学的変異誘発技術を用い、選抜育成によって高収率カンジダリパーゼ菌種Candida sp.99-125を得た。リパーゼの一部のアミノ酸配列に基づいてプライマーを設計し、PCR法での増幅によってリパーゼの成熟ペプチドの配列を得たが、当該リパーゼの成熟ペプチドのアミノ酸配列は301個のアミノ酸から構成されていた。この配列をpPICZ α A担体中にクローニングし、その上でピキア酵母の中へ形

質転換し、リパーゼの分泌組み換え発現を行った。組み換えプラスミドでピキア酵母GS115を形質変換した後、プラスミドpPICZ α A上のZeocinを利用してマーカーをスクリーニングし、高い抗生物質濃度 (500 μ g/mL Zeocin) によって、リパーゼ高収率菌株Y1Lipの2個のマルチコピー菌株のスクリーニングと獲得に成功した。震盪フラスコ酵素生産実験で実証されたところによれば、細胞外組み換えリパーゼの活性は350U/mLに達することができ、5L発酵タンク内の発酵液中の酵素活性は11000U/mLに達し、組み換えタンパク質含有量は2.3g/L発酵液に達した。優良菌株の選育及び、対応する遺伝子工業菌の構築は、高活性リパーゼの大規模な発酵生産のために基礎を築いた。

研究の結果、油脂のリパーゼ誘導を利用した合成方法は、リパーゼ収量を著しく高められることがわかり、界面応答方法によってリパーゼ発酵プロセスを最適化したところ、小型タンクのリパーゼ収量は9000IU/mL以上に達することができた。1m³の生産タンクにおいて拡大テストを行うことに成功し、リパーゼ発酵レベルは8200IU/mLに達し、これを基礎にさらに5m³発酵タンクにまで拡大したところ、リパーゼ活性はいずれも8000IU/mL以上であった。発酵レベルの向上は触媒のコストを大きく引き下げ、リパーゼのコストはすでに60元/kgに下がり、国内外の商業化済みの同類のリパーゼ製品よりもはるかに低くなった。2007年、このリパーゼは商業化の実現に成功し、バイオディーゼル、機能性油脂や食品添加物の中にも広く応用されるようになった。

2. リパーゼの固定化

吸着法による酵素の固定化には、操作が簡単、担体が反復利用しやすい、酵素活性の損失が小さい、コストが比較的低い等のメリットがあり、現在最も一般的に採用されている一つの固定化方法である。我々が自主開発した酵素固定化は一つの新しい膜固定化方法で、廉価な織布を用い、表面改質を経て、当該のリパーゼを織物膜上に固定する。また、織物膜表面の親疎水性が固定化酵素の酵素活性と安定性に与える影響についてさらに研究を進め、疎水界面の活性化作用を利用して、固定化酵素の有機相における触媒活性を高めた。改質剤を利用して担体の表面処理を行い、担体の表面疎水性を高めた。表面改質を行った担体が調製する固定化酵素は、10% (V/V) という高い含水量体系の中でも依然として高い触媒活性を維持し、反復使用の安定性が2倍に伸び、バイオディーゼルの酵素合成体系におけるリパーゼの耐性が大きく高まった。

3. バイオディーゼルの工業化生産用酵素リアクター及びプロセス

リパーゼの高効率発現システム構築、リパーゼ発酵プ

ロセスの最適化、新型固定化方法についての研究を踏まえて、当該の固定化酵素織布をバイオディーゼルリアクターに応用した。酵素織布を36目のステンレススチールネットの上に平らに広げ、緊密な筒状に巻き、充填層型リアクターの中に入れ、リアクター外側はジャケットが水浴により35℃～40℃の定温に保つ。反応基質を40℃で十分に攪拌し、溶かして均一に混ぜた後、リアクター底部から充填層に注入すると、反応液は充填層を経て頭頂部から流出する。このような形で充填すると、流体の圧力を減らすと同時に、液体リディストリビューターの役割も果たせる。このリアクターは、操作圧力が小さい、反応液のリアクター内における分布が均一である、固定化酵素の利用率が高い等のメリットを具えている。植物油、廃油等原料によるバイオディーゼル生産の変換率はいずれも90%以上に達し、最も高い変換率は96%に達した。反応条件を最適化した場合、この固定化酵素は10日間以上連続で使うことができ、良好な操作安定性を示した。

この固定化酵素によるバイオディーゼル触媒反応は時間が比較的長いので、試みに攪拌タンク式リアクターを用いてリパーゼの使用効率を高めてみた。実験室の5L三つ口フラスコ試験を踏まえて、リアクターを40倍に拡大し、攪拌タンクの体積を200Lに拡大した。原料油150kg、酵素480gを投入したところ、最適条件の下で、産物中のメチルエステル含有量は85%となった。さらにリアクターを1m³の規模に拡大し、毎回、原料油818kg（酸価133mg KOH/g）、固定化酵素3.2kgを投入したところ、最適な反応条件の下で、最終産物の酸価は24.97mg KOH/g、メチルエステル含有量は85%に達した。計算の結果、この拡大実験でのメチルエステル生産トン当たりの酵素必要量は4.2kg酵素/トン・メチルエステルで、結果の反復性は良好であった。工業規模の5m³攪拌タンクにおいてさらに拡大しても、似たような結果が得られたことは、この方法が工業的にも大いに実行可能であることを示している。

4. バイオディーゼルの分離と精製

バイオディーゼルの分離精製について、液膜降下式蒸発装置と直列スクレーパー式薄膜蒸発装置のプロセスを採用した。液膜降下式蒸発装置を利用して粗産品のメタノール、水など、低沸点物質を分離除去し、そのあと、スクレーパー式薄膜蒸発装置または分子蒸留装置を利用して脂肪酸メチルエステル、すなわちバイオディーゼルの分離する。この方法で分離した産品中のメチルエステル含有量は97%を上回り、収率は85%を上回った。分離後のバイオディーゼル、粗メチルエステルは、脱酸、真空脱水を経た上で、その低温性能と酸化安定性能を調整する抗凝固剤、抗酸化剤を加えると、バイオディーゼル製品が得られる。このプロセスによって製造されたバイオディーゼルは、その製品の各項指標がドイツのバイオ

ディーゼル生産基準に完全に合致しており、生産コストは化学法と同程度だが、エネルギー消費と三廃（固形廃棄物、廃ガス、廃液）の排出は大きく低減された。

5. 産物グリセロールの利用

—— 副産物の高付加価値化

バイオディーゼルの生産コストをさらに下げるために、副産物のグリセロールに選択的なデヒドレーションを行い、1,3-プロピレングリコールを調製した。クレブシエラ菌*Klebsiella pneumoniae*を研究対象として、微生物代謝経路の改造を行い、一株の1,3-プロピレングリコール高収率の組み換えクレブシエラ菌を構築した。続いて、酵素触媒工程の廃グリセロールに前処理を施し、簡単な減圧蒸留濃縮によってメタノールを除去した。震盪フラスコ発酵の結果によれば、前処理を経たグリセロール溶液は1,3-プロピレングリコールの発酵に用いることができ、しかも産物濃度は純グリセロールを使用した場合とほぼ同じであることを示していた。そのあと、30Lの発酵タンクでバッチ式発酵を行ったところ、最終発酵液中の1,3-プロピレングリコールの収量は76.1g/Lに達した。これからわかるように、バイオディーゼル副産物のグリセロールを原料として、1,3-プロピレングリコールの発酵に用いると、グリセロールの総合利用がかなりうまく実現でき、製品の付加価値を上げ、プロセス全体のコストを下げることができる。

6. 酵素法によるバイオディーゼル合成の将来性

酵素法によるバイオディーゼル合成は、その反応条件が穏やかで、反応過程が環境に優しい等のメリットにより、近年、研究の大きな焦点となっている。酵素法によるバイオディーゼル合成の鍵は、触媒リパーゼの活性と安定性にある。現在研究中の比較的应用範囲の広いNovozym435リパーゼは、そのコストが比較的高いため、工業生産における採用は限られている。遺伝子工学技術を利用して現有のリパーゼの改造を行えば、触媒活性のより高い、短鎖アルコールに対する耐性能力のより強いリパーゼを得ることができる。たとえば、我々は多年にわたる研究の結果、一つの新しい高効率のカンジダリパーゼを開発することに成功し、菌種の選育、遺伝子組み換え菌の構築、発酵プロセスの最適化と拡大によって、最終的に5m³タンクにおけるリパーゼ発酵活性は8000IU/mL以上となり、リパーゼのコストはわずか60元/kgとなった。廉価な不織布や絹布などを用い、表面改質によって、リパーゼを安価な膜布に固定することに成功し、使用済みの膜布は洗浄後、何度も繰り返し使用することができる。固定床と攪拌タンクの中で別々にバイオディーゼル合成反応を行ったところ、自製の固定化リパーゼは良好な触媒性能を示した。バイオディーゼルは分離精製・調整を経た後、その製品の各項指標がドイツのバイオ

ゼル生産基準に完全に合致し、生産コストは化学法と同程度であるが、エネルギー消費と三廃（固形廃棄物、廃ガス、廃液）の排出は大きく低減した。副産物グリセロールがクレブシエラ菌による発酵とデヒドレーションを経て、1,3-プロピレングリコールを調製できることは、バイオディーゼル生産全体のプロセスコストを下げ、製品の付加価値を高めている。

中国の原料油脂価格の上昇変動にともない、バイオディーゼル産業の利益は低く抑えられてきた。一方、脂肪酸メチルエステルは一つの応用範囲の広い化学工業中間体であり、皮革化工や日用品化工産業に大量に応用され、これを中間体としてさらにその他のエステル、アンモニア塩、スルホン酸エステル、高炭素脂肪族アルコール等に変換することができる。バイオディーゼルの大量の不飽和二重結合を含んでいるという構造上の特徴を利用して、高付加価値のファインケミカル、たとえば、ダイマー酸メチルエステル、エポキシメチルエステル、生分解可能な潤滑油、高級皮革用メチルエステル剤、界面活性剤などを生産することは、バイオディーゼルの総合的経済効果と市場競争力を高める有効な手段の一つであり、バイオディーゼル生産産業の持続可能な成長の重要な方向でもある。

地震予測研究

四川大地震原因はダム貯水なのか

•Profile•



陳 顥 Chen Yong ●中国科学院院士

1942年12月生まれ。1965年に中国科技大学を卒業、1993年中国科学院院士、2000年第三世界科学院院士。中国地震局地球物理研究所所长、国家地震局副局长、国際地震学と地球内部物理学連合会（IASPEI）地震予報と地震災害委員会主席、中国地震学会理事長などを歴任。現在は、国家地震局科学技術委員主任、中国地球物理学会理事長。長期にわたり地震学と岩石物理学を研究。主な研究分野は、震動波で地下の構造と物性を測定する理論と方法及び環境・エネルギー・災害減少における潜在応用。ここ数年の研究の重点は地震レーダーの研究であり、都市地球物理学の発展に尽力。論文は百本近くあり、著書は『The Tangshan Great Earthquake of 1976 – an Anatomy of Disaster』、『Seismic Hazard and Risk Analysis: A Simplified Approach』、『岩石物理学』、『分形幾何学』など多数。

2009年1月16日付の『サイエンス誌』「今週のニュース」コラムで、「四川大地震の人為的な原因」と題する報道が掲載され、「紫平鋪ダムが四川大地震を誘発した可能性も」と報道している。四川大地震発生半年後、海外において、似たような報道（イギリス「Telegraph」ウェブサイト、アメリカ『ニューヨーク・タイムズ』など）は、急に多くなってきた。

紫平鋪ダムは四川岷江の都江堰上流約6キロのところに位置する大型の水利施設であり、成都市からは約60キロ離れている。2001年3月に着工し、2005年9月に貯水し、2006年に竣工した。紫平鋪ダムの貯水容量は11.12億立方メートルで、コンクリート堤の高さは156メートルにも達し、国内において有数の高さである。紫平鋪ダムは、2008年5月12日に起きた四川大地震の震央より数キロしかなく、四川大地震は紫平鋪ダム貯水によって誘発されたのではないかと、との疑問が浮かぶ。

ダム貯水による、ダム付近における地震活動度（地震の発生頻度と地震のマグニチュード）の高まりは、「ダム誘発地震」または「ダム地震」という。初めてのダム誘発地震の記録は、1931年ギリシアのマラソンダムである。注水またダム建設などの人工工事によって地震が誘発されるかもしれない、ということはその時から知られるようになった。全世界において作られた大・中型ダムの数は1万を超えているが、地震を誘発したダムの数は101に留まっている。ダム誘発地震の多くは、中小地震で、ダムへのダメージは小さい。その中、破壊力の強い地震を誘発したダムの数は18件であり、誘発した最も強い地震のマグニチュードは6.5である。

国内外で起きた100を超えるダム誘発地震を統計・帰納してみると、ダム誘発地震の特徴を次のようにまとめることができる。

1. ダム誘発地震の震央は、ダムとその周囲にしか分布していなく、ほとんどはダムとその近く5キロ以内の範囲に位置する。震源の深さはほとんど5キロ以内であり、10キロを超える事例は少ない。四川大地震の震央から紫平鋪ダムまでの距離ははるかに5キロを超えている。紫平鋪ダムは、地震活動度の高い地区に位置して

おり、ダムが建設される前の歴史記録から見ると、その近くに少なくとも5回もの大きな地震が発生している。1657年に汶川で起きたマグニチュード6.5の地震は、紫平鋪ダムから30キロ離れている。1748年に汶川で起きたマグニチュード5.5の地震も、紫平鋪ダムから30キロ離れている。1787年12月に瀘県で起きたマグニチュード4.75の地震は、紫平鋪ダムから5キロ離れている。1970年2月に大邑西で起きたマグニチュード6.2の地震は、紫平鋪ダムから55キロ離れている。1970年3月に蘆山長石壩で起きたマグニチュード4.7級の地震は、紫平鋪ダムから51キロ離れている。ダム建設中の地震を観測するため、貯水する前に、四川省地震局によって作られた紫平鋪ダム遠隔測定地震ネットワークは、2004年8月16日から地震情報を収集し、2005年6月27日に検査の上引き取られ、作業が始まった。四川省地震局ダム誘発地震研究所の統計した紫平鋪ダム地区の地震活動度のデータから見ると、紫平鋪ダムの貯水により、水位の変化があったが、地震の頻度とマグニチュードには大きな影響はない。貯水前と貯水後のデータを比較してみると、2005年10月1日の貯水開始日から2008年4月までの2年7ヶ月の間に、紫平鋪ダムとその周辺地区の地震活動は、長年における当地域の地震の頻度と強さは、正常な変動範囲内にある。紫平鋪ダム貯水後、ダム及びその周辺地区においては、地震活動度が明らかに高まる観測はない。

2. ダム誘発地震の震度は低い。世界的に、今までダムが誘発した最も強い地震はマグニチュード6.5であり、それは1967年12月にインドのコイナ(Koyna)ダム誘発地震だった。比較的安定しているデカン高原地区で発生した地震であり、震央はダムの南3キロの処にある。コイナダムの堤の高さは103メートルで、1962年に貯水開始後、約450回の地震が発生している。世界範囲からみると、圧倒的多数（80%以上）のダム誘発地震はマグニチュード5以下であり、比較的弱い地震である。マグニチュード5.0～5.9の地震のケースが10件あり、マグニチュード6.0～6.5の地震は4件しかなく、インドのコイナダム誘発地震のマグニチュード6.5と、ギリシア

Kremastaダムのマグニチュード6.2と、中国新豊江ダムのマグニチュード6.1と、ザンビアとジンバブエの国境にあるカリバダム（Kariba Dam）のマグニチュード6.1である（表1を参照）。四川大地震はマグニチュード8.0で、史上最強のダム誘発地震のエネルギーの200倍にのぼる。

3. ダム誘発地震の割合が小さい。国内外の地震・地質専門家らが認めているダム誘発地震は約100件程度あるが、世界ダム会議に登録している3.5万のダム数（大、中、小型ダムを含む）の3%しか占めていない。

4. ダム誘発地震は、「前震—本震—余震」との三段階に分けることができる。ダム誘発地震の場合、ダム貯水中の段階において、弱い地震（前震）が発生し、その後地震の頻度が徐々に高まり、震度も高くなる。表1から見ると、本震の発生の期日は、ダム貯水水位が初めて最高水位になる期日と一致していることが分かる。その後、地震は徐々に弱くなり、余震の段階に入る。すべてのダム誘発地震は、「前震—本震—余震」との三段階に分けており、まだ例外はない。それと違い、ダム貯水と無関係の地震のほとんどは、前震—本震—余震との三段階特徴がない。全世界の地震統計によると、前震のある大地震は全体の5%にもなっていない。2008年の四川大地震の発生日は、紫平鋪ダム貯水初期の2005年でもなく、ダム水位の高い時期でもない（5月12日は増水期前であり、ちょうど水位の低い時期であった）。もっとも重要なのは、四川大地震には、前震がなく、前震—本震—余震の特徴を持っていない。

四川大地震を今までのダム誘発地震と比べると、現象学から見て明らかに違っている。地震の震度、震央の位置、前震の無さなどからみると、四川大地震はダム誘発地震の特徴と一致していない。

5. 四川大地震は逆断層によって引き起こされた。しかし、今まで逆断層型のダム誘発地震のケースはない。

上述の分析において、現象学の角度からほとんどのダム誘発地震の特徴を考察し、四川大地震と比較した。この部分では、「貯水」と「地震」の関係性を力学の角度から分析してみたい。

地震は断層の突然な動きによって発生するものである。断層面を境にし、上側の岩盤を上盤と言い、下側の岩盤を下盤という。地震発生の際、断層の動き方は大きく三種類に分けられている。断層面を境にし、水平方向にずれる動き方は、横ずれ断層という。上盤が下盤に対してのし上がる動き方は、逆断層という。上盤が下盤に対して、ずり下がる動き方は、正断層という。

ダムの貯水は地面に対する負荷となり、深い地下において水平方向の引く力が発生する。この力は、横ずれ断層と正断層を引き起こしやすいため、ダム誘発地震のほとんどは横ずれ断層型かまたは正断層型である。四川大地震は逆断層型であり、深い地下において強い押す力（引く力ではない）の作用で、上盤が下盤に対し、のし上がった。逆断層型は海洋にはよくあるが、大陸においては極めて少ない。大陸で発生した四川大地震だが、海洋断層の動き方と同じ特徴を持っている。これは、まさに四川大地震がほとんどの大陸地震と違う点であり、四川大地震を通じて大陸動力学を研究する意義でもある。

徐光宇などは世界中のダム誘発地震と震源メカニズムのデータを収集して分析した。ダム誘発地震の震源メカニズムは、主に横ずれ断層型と正断層型との2種類があり、前者は後者より多いことが分かった。徐光宇の本には逆断層型のダム誘発地震は2か所記載されているが、それについて本論文では次のように説明したい。

ダム名	高さ(m)	貯水容量(10^8m^3)	貯水開始期日	初地震の期日	最強の誘発地震の発生	地震のマグニチュード
Koyna, インド	103	27.8	1962.6	1963.10	1967.12	6.4
新豊江, 中国	105	115	1959.10	1959.11	1962, 3	6.1
Kinnersani, インド	61.8		1965	1965	1969.4	5.3
キーロコエ, ソ連	233	27.8	1974.7		1974.12	5.1
Marathon, ギリシア	63	0.4	1929.10	1931	1938	5.0
Kremasta, ギリシア	165	47.5	1965.7	1965.12	1966.2	6.2
Monteynard, フランス	155	2.75	1962.4	1963.4	1963.4	5.0
銅街子, 中国	74	3	1992.4	1992.4	1994.12	5.5
Bajina Basta, ユーゴスラビア	89	3.4	1967.6	1967.7	1967.7	5.0
Kariba, ザンビア	123	1750	1958.12	1959.6	1963.9	6.1
Aswan, エジプト	111	1640	1968		1981.11	5.6
Orville, アメリカ	235	4.4	1967.11		1975.8	5.5
Volia Grande, ブラジル	56	23	1973		1973	5.0

◎表1 主なダム誘発地震のリスト

1967年インドのコイナダム誘発地震の本震は横ずれ断層型であり、その後数回の逆断層型の余震があった。1977年アメリカサウスカロライナのモンティセロダム（4億 m^3 の中小ダム）の貯水により、マグニチュード2.6—2.8の地震が発生した。誘発したマグニチュード2.8の地震と貯水前の自然地震の余震を区別することは簡単ではない。以上の2つの特例を除き、ダム貯水によって誘発した逆断層型の地震（特に本震）はまだ記録されていない。

ダム貯水と地震の誘発との関係性は、非常に複雑な問題であり、今までたくさんの研究論文と報道が発表されているが、その多くの問題についてまださらなる深い研究をしなければならない。本論文は、ダム貯水と地震発生的一般論的な分析ではなく、四川大地震と紫平鋪ダムに限定する分析を行った。初步結論は、現象学と力学の分析からみると、四川大地震は今までのダム誘発地震と大きく違い、四川大地震はダム貯水によって誘発された地震ではないことである。

粒状媒質中の地震前兆探測と前兆応力 — ひずみの伝播モデル

•Profile•



陸 坤權 Lu Kunquan ●中国科学院物理研究所 研究員

1964年北京大學物理學部卒業、1964–1967年中国科学院物理研究所大学院生、1979–1981年アメリカワシントン大学物理学部訪問学者。中国科学院物理研究所結晶室責任者、中国科学院物理研究所學術委員会副主任、ソフト物質物理実験室學術委員会主任などを歴任。最初結晶成長とエックス線吸収微細構造 (XAFS) の研究を携わったが、1990年以降液体とソフト物質の物理研究に着手。論文発表数は240余り、著書は『ソフト物質物理学序論』など。現在主な研究分野は液体構造と性質、EF (Electrorheological Fluids)、粒状物質。

地震は人々の命や財産に巨大な損失をもたらす自然災害である。中国の地震被害による損失は特に重大である。昔から、人々は多大な努力をして、地震前兆情報の観測を通して、地震予報の方法を探求してきた。現在、地震予報はまだ解決されていない科学的な難問だと思われる。この難問の解決は、信頼できる地震前兆現象とその法則性が得られるかどうか、およびその物理学的な構造を見定められるかどうかによって決まる。

本論では粒状媒質の中での地震前兆現象の探測方法を紹介し、過去の例から得られた地震前兆現象が特定の地震と対応することを説明し、模擬実験と実際に探知した結果の比較研究をする。更に、粒状物質の運動特性により、地震前兆応力–ひずみ情報の伝播モデルを提示して、探測した地震前兆現象の物理学的な本質に対して初歩的段階の分析と議論をする。

採用した探測方法では、探知器を粒状媒質に挿入して、地殻岩石層を粒状物質として解釈しデータ処理する。粒状物質とは、普遍的に存在する一種の粒状物質体系であり、一般の固体及び流体と異なり、独特な運動特性を持っているものとして、物理学的に広くその性質が研究されているものである。地震発生と粒状物質の特性を結びつけた研究は、近年地球物理学界において重視されている。本論では、粒状物質の特性と運動法則に基づいて、地震前兆現象の探測を行い、地震前兆現象の伝播メカニズムを説明する。

1. 探測方法と探知器

岩石の中で地盤ひずみを測定する一般的な方法と異なり、ひずみセンサーを土層の砂穴に取り付けて探測し、地震発生前後の地層のひずみ変化プロセスを観測する。

外的ノイズの少ない場所を選び、地表面の古い土層で深さおよそ4 m、直径およそ2 mの丸い穴を掘り、穴に厚さ3 m以上の建築用の洗い砂を詰めて、底の部分では少なくとも厚さ1.5 mの砂を周りの土層と密接させる。穴の底から約1 mの所に探知器を三基埋めて、それらの

探知器の方位特性が、それぞれ南–北、東–西と一つの対角線方向を指し示すように設置する。3基は約0.5 mの間隔で直線上に、あるいは一辺1 mの三角形に並べて設置する。探知器を埋めたのち、砂を強く押さえる。探知器の円筒形の外殻はステンレス製で、厚さは1–5 mm、外径はおよそ0.15 m、高さは0.4 mである。水漏れを防ぐために外殻を密封する。円筒の応力変形を測るために、探知器の中にSW–1型の自製のひずみセンサーを取り付ける。典型的なセンサーでは、1mVの出力が 2.2 ± 0.4 nmの変位に対応し、線形領域が4 μ mより大きく、測量感度が2 nmより高い。外力による円筒の変形がセンサーの抵抗を変化させ、ブリッジ回路で電圧信号を出力する。センサーから出力した電圧信号は増幅とフィルタリングをせずに、データ収集システムによって自動的に記録される。サンプリングする時間間隔は1秒である。センサーで円筒の変形値を記録して、それによって、地層のひずみ情報を得る。ファインチューニングによってセンサーのゼロポイントを調整する。

探知器は外からの作用に対して方向的に敏感であるという特性を持っている。円筒の外殻の変形が小さければ、探知器の応答は線形伸縮性応答であると近似する。センサーの軸の方向に沿って外力を加えるとき、センサーは圧縮ひずみ信号を生じる。センサーの軸に垂直な方向に外力を加えたとき、探知器の外殻はセンサーに引張りひずみ信号を出させる。外力を除去すれば、探知器の外は砂であるために、円筒の形は元に戻りセンサーをゼロポイントに戻す。探知器の方位を変えて埋めれば、違った方向のひずみが測定できるので、地震前兆応力の方向性が判別できる。

2. 地震前兆探測の実例

前述の粒状媒質中の探測方法を用い、今まで遼寧と北京で1-2の稼働できる試験測量場を設置して、地震前兆現象を複数回捕捉できた。捕捉した現象のうち、1999年遼寧省岫岩M5.4の地震と、2004年インドネシアM8.7の地震、

2008年汶川M8.0の地震などの地震前兆現象のデータが比較的完全で、法則性を持っている。その中で、1999年11月29日に岫岩で起こったM5.4の地震が探測場に近い（営口の探測場は震源地に僅か43キロ）ことから、得た前兆現象情報は確実である。2004年12月26日のインドネシアM8.7と2008年5月12日の汶川M8.0の巨大地震の場合も、震源地から数千キロ離れていたにもかかわらず、はっきりした前兆現象を検出した。

探測したインドネシアM8.7の地震を例にして説明する。遼寧省新民（震源地からおおよそ5300キロ）と北京電業中学校（震源地からおおよそ4800キロ）の探測場の記録によって、得た前兆現象と起こった地震の確実な対応関係および現象の主な特徴を分析した。遼寧省新民の探測記録では、2004年1月から2004年11月中旬まで、探知器が記録した圧縮ひずみの数値はしだいに上昇してきたが、地震発生前約1ヶ月の間、低下しつつあり、12月24日に最小値に達した（地震は12月26日に起った）。北京電業中学校の探測場の記録も同様である。本論では二つの探測場で実際に記録された地震前兆現象情報図（図1）を掲載する。

北京と新民は600キロ離れているにもかかわらず、検出された2004年12月26日インドネシアM8.7の巨大地震の前兆現象の主な特徴が一致しており、同じ地震前兆現象と確定した。北京と新民の探測場では、それぞれ南－北と東－西方向を指す探知器の信号が最も敏感なことから、探知器は地層の中のひずみ方向に対して判別機能を持っていると判明した。

3. 粒状媒質中のアップロードとひずみ探測実験

採用した方法で検出した信号の本質と地震前兆に敏感な原因を究明するために、模擬実験をした。屋外の地面の土層に直径2m、深さ2mの円形の穴を掘って、中に厚さ1.8mの建築用の洗い砂を入れる。砂粒の平均直径は0.28mmである。砂の高さ0.9mのところに指示する方向の違う探知器を3基埋めて、間隔0.5mで、方向性を45°づつ変えて直線上に並べて設置する。探知機を埋めたのち、砂を強く押さえ、各探知器のゼロポイントを調整する。液圧プレスでゆっくり鋼板を押し、砂に水平方向の力を加えて、探知器のひずみ応答を観測する。液圧プレスの作用力を力センサーで記録し、加えた作用力及び各探知器のひずみ変形応答曲線を得る。

理論と実験の結果から、バルク係数 k は粒状堆積分數 ϕ と受ける応力 τ の関数であり、密封されているとき、大体 $k \propto \phi^{2/3} \tau^{1/3}$ である。普通の状況では、固まっていない砂なら、 k は数十MPaで、固まっている砂なら、 k は数百MPaあるいはもっと高い数値に達する。

実験では、砂は圧力を受ける状態にあり、探知器の壁の弾性、設置された位置と方位にもよっている。一定の範囲内では、力と変形は線形応答であると近似している

ので、システムを弾性体として扱え、算出したシステムの当量バルク係数は $k_{eff} \approx 1.2 \text{ GPa}$ である。この結果から、実験及び実際の地震前兆現象探測システムの当量バルク係数 k_{eff} は普通の岩石のバルク係数（典型的な数値は50GPa）よりおよそ40倍、あるいはもう少し低いと判明した。即ち、この方法で探測した応力－ひずみ応答の感度は岩石のよりずっと高い。

以上述べた実験の結果から見ると、この探測方法で検出した信号は応力によるひずみだと分かった。同じ応力の場合では、粒状媒質の中で検出したひずみ値は岩石中のより数十倍以上高い。同時に、違う方位に探知器を設置することによって、応力の方向が区別できる。これらの特性は地震前兆現象の探測に有利である。

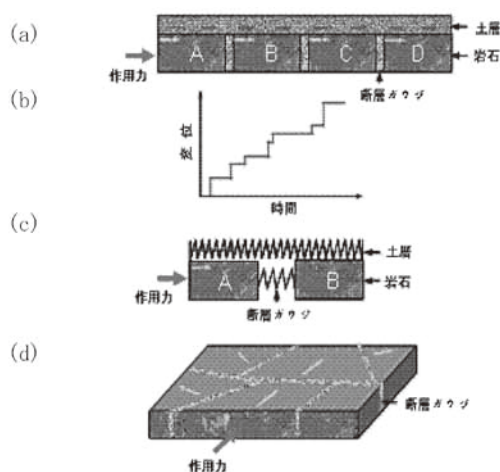
4. 地震前兆応力－ひずみ情報の伝播モデル

前に述べたように、採用した方法で検出した前兆現象情報は特定の地震と対応関係を持っていて、実験で探知したのはひずみ情報だと判明した。更に、この方法がひずみ測量に敏感である原因も説明された。しかし、この地震前兆現象探測方法を信じるにはまだ疑問点が3点残っている。1. どうして震源地からかなり離れている土層の中でひずみ前兆現象信号が検出できるのか。この信号はどのように伝わってきたのか。2. どうして岩石の中に高い感度のセンサーを取り付けても、その前兆ひずみ信号が検出できないのか。3. 異なった場所に設置された粒状媒質探知器が得た前兆現象情報の形はどうして異なるのか。これら質問の本質は地震前兆応力－ひずみ情報の伝播メカニズムにある。粒状物質研究と地球物理学の既存知識により、以下のような地震前兆の応力－ひずみ伝播モデルを提示して、上に述べた疑問に答える。

普通の見方では、浅発地震は地殻の弱い部分が外力の作用で破壊されあるいはずれて引き起されたものである。地震発生前、震源域の応力は持続的に数ヶ月、数年、ひいては数十年にわたって蓄積する。それに伴うひずみは次々に外へ広がり、地層中に圧縮変形を成しているから、一定の範囲で、ある地震前兆現象が観測できる。例えば、地下水水位の変化などである。しかし、地殻岩石層の構成は複雑で、プレート、断層と断層間の断層ガウジ（fault gouge）からなっており、大きさ、形、厚さと材質もそれぞれ違う。その中の断層ガウジは岩石の角礫などの粒子状物質で構成され、岩石に比べると比較的柔らかい部分であるので、これら粒子状物質のバルク係数は岩石よりずっと小さい。実際の地震が生じるプロセスではスケールの範囲が広い。従って、地震前兆応力－ひずみ伝播といった準静力学の問題で、地殻のプレートと断層の体系を大スケールの粒状物質体系と見なすべきであり、地殻岩石層を均一的連続的な媒質として処理できないのである。

前兆応力－ひずみがどのように外へ広がり、伝播する

のかを描くため、図1で説明する。地震の蓄積した応力が岩石を押す時、図1(a)の岩石Aは周りの摩擦力と断層ガウジの抵抗力に抗して、均一的連続的な運動とは異なるスティック・スリップ (stick-slip) 移動を発生する。このスティック・スリップ変位の時間による変化関係は図1(b)のように示される。A-B間の断層ガウジが圧縮され、図1(c)の岩石間はスプリングが圧力を受けたときと同じである。粒子状物質からなる断層ガウジの密度と応力はますます大きくなる。バルク係数がほぼ $\phi 2/3$ $\tau 1/3$ に従って一定の程度増加して、断層ガウジによって岩石Bにかかる作用が抵抗力を越える数値に達したとき、岩石Bもスティック・スリップ移動が発生する。このように、次々にそのさきの岩石にスティック・スリップ変位を発生させていく。バルク係数が大きい岩石ブロックでは剛体に似た運動となり、剪断ひずみと変位は主にブロック周辺と隙間に現れる。岩石内部の応力あるいはひずみの増量はとても小さい。多くの観測事実はすでにブロックのこういった運動の特徴と形を証明している。断層にまたがるクリープひずみ測量方法で地震前の断層間の突然変位が測定できて、中国の鮮水川断層帯のクリープひずみの観測結果、及びアメリカParkfield試験場で断層クリープひずみ測量によって得た数十日のうちに何回も起ったジャンプひずみは全てこの類の断層スティック・スリップ変位による典型的な事例である。



◎図1 地震の蓄積した作用力による岩石ブロックのスティック・スリップ変位、土層変形と応力ひずみ伝播図

岩石ブロックのスティック・スリップ移動を検討するとき、岩石ブロックが受ける摩擦力とほかの抵抗力（岩石ブロックとマンツルの間の摩擦力、岩石ブロックの間の摩擦力と抵抗力を含む）に言及しなければならない。地震を生み出す過程の中に、マンツルそのものも大地構造力の駆動で運動している。そして、マンツルは密度が岩石層より高く、流動性も強い。従って、岩石ブロックとマンツルの間の摩擦力は固体よりずっと小さい、ひい

ては岩石ブロックに駆動の作用もある。言い換えれば、仮に岩石ブロックとマンツルの間で固体間に似ている摩擦作用が起るとすれば、摩擦力はかなり強い。例えば、面積 $100 \times 100 \text{ km}^2$ 、厚さ 10 km の岩石ブロックに対して、もし密度を $2.75 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、摩擦係数を 0.2 にしたら、克服する摩擦力は $5.5 \times 10^{17} \text{ N}$ に達する。即ち、岩石ブロックの断面で受ける応力は凡そ 0.55 GPa である。だが、実際の観測では、岩石中にはこんな大きな応力変化が見出されなかった。従って、岩石ブロックはおそらく水面上の密集する浮氷に似ている運動をしている。

岩石の中で明確な地球固体潮汐 (solid earth tide) ひずみが測定できる。典型的なひずみ値は 2×10^{-8} であり、岩石中の応力変化はおおよそ 1 kPa に相当し、かなり小さい応力起伏である。固体潮汐ということは地球に天体の力で収縮と膨張変形が起り、岩石が対向と反対方向に圧力を受けるということである。しかし、地震前兆応力は岩石ブロックに全体的なスティック・スリップ変位を発生させるので、岩石内部に受ける圧力はそれほど強くない。これは岩石の中で固体潮汐ひずみは検出できるが、地震前兆ひずみ情報が容易に探知できない原因である。一方、震源に遠い所で、震源域を動力源として、動力源から r のところの応力はおおよそ r^{-1} の関係で減るので、岩石の中で地震前兆を探知するのは更に難しい。

上述した原因によって、精度が高い器械を使っても、岩石の中で信頼できる地震前兆応力あるいはひずみ変化の法則性は探知できなかった。

図1(a)のように、地殻岩石層の上は地表土層である。岩石ブロックは変位を生じるとき、境界面の摩擦によって、土層に剪断変形作用を施して、岩石の変位方向に沿って圧縮変形を起こさせる。土層は均一ではないが、広い範囲では連続的な媒質と見なされる。土層の厚さは岩石ブロックのスケールよりずっと小さい、且つ岩石層よりずっと薄い。よって、岩石ブロックの変位は土層に著しい圧縮変形を与える。図1(c)のスプリングモデルはこの力の作用関係を表す図である。岩石層の中での水平作用は粒状物質のフォース・チェーンの伝播方式で伝播し、図1(d)はこの類の作用と変位方向変化を表している。岩石ブロックの間も切線方向に沿ってずれ変位が起る可能性もある。従って、上の土層の中に、圧縮ひずみだけでなく、切線方向のひずみの影響もある。

プレートと断層のスケールは数十キロ、数百キロ、ないし数千キロであり、外力の下で次第に時には遅い、時には早い全体的なスティック・スリップ移動をしている。同じブロック（ひいては幾つかのブロック）の各所の移動は同時に行われる。幾つか大きいスケールのブロックが同時に運動するという観測事実はおそらくこの移動によるものである。違うブロックの移動方向は図1(d)のようである。震源から観測場へ方向と違うときもある。それは地質状況によって決まる。土層の中の砂穴に設置さ

れた探知機の方向敏感性は下の岩石ブロック移動の方向だけでなく、周りの地質関係にも関わっている。

毎回ブロック全体のスティック・スリップ変位のスケールの大きさは μm 級より小さいものから mm 級までである。比較的大きな地震の前兆応力を積み重ねているブロックの移動は相当大きい場合もある。積み重ねた地表の変位はGPSで探知できるが、しかし、今の解像力ではまだ容易に毎回のスティック・スリップ変位は測定できない。ブロックの移動は必ず土層の変形を引き起こす。使った探知器は感度がおよそ 2nm 、即ち探測するひずみ値は 1.3×10^{-8} であるので、この前兆変化が測定できる。ある場合、実際に探知した前兆変形値は長い時間で大きさ μm 級まで積み重ねられて、センサーは飽和状態に達する。前に述べたように、大地震に対して、数千キロ離れた所で測定した土層のひずみ値は 10^{-5} 級に届く。地質状況の違いによって、各岩石ブロック変位の大きさと方向は異なる。土層中の変形値は位置と土層の性質に関わっている。だから、各探測場で探知した前兆現象情報にも当然格差が現れる。

従って、探知したのは地震前兆応力の伝播による土層のひずみである。探知器を直接粘土の中に入れる方法ではなく、土層のなかに砂を埋めて、探知器をその中に入れる方法を使用するのは、粘着性を持つ粘土は押された後、元に戻りにくい塑性変形が起るからである。粒状物質の分散特性は探知器の筒の伸縮性変形を、押されてから元に戻らせる。一定の範囲内で、応力とひずみは線形に近似できる応答を維持する。

ここに述べたモデルでは、前兆応力は地表に沿って伝わるのではなく、地下岩石ブロックの剪断変位の作用を通して、探測場の地表土層まで伝播してきたことを示した。従って、地表の山、川、湖、海などの地形は探測する情報に根本的な影響を与えていない。

5. 考察

2004年インドネシアM8.7の大地震が起る前に、震源域の応力が次第に蓄積され、地殻の岩石ブロックにスティック・スリップ移動を引き起こした。このブロックの移動は応力の蓄積によって、次々に伝わっていく。蓄積された応力が一定の数値に達すると、探測場付近のブロックも移動して、剪断変位作用を通して、土層に圧縮変形が生じる。大地震に対して、それを生み出すとき生じたひずみの影響は数千キロまで届くので、遼寧と新民の探測場でも明らかな変形信号が測定でき、それに、応力の蓄積によってますます強くなる。この二箇所記録した変形とひずみ値はそれぞれ 1900nm 、 1.3×10^{-5} と 800nm 、 5.3×10^{-6} であり、土層中のひずみが積み重ねられた度合いを示している。異なる地震の探測、あるいは異なる場所での同じ地震の探測は、地震が生じる状況と応力-ひずみが伝播するときの地質環境の影響を受ける。それに、探

知器の埋設条件にも関わっている。それ以外に、探測するとき、つねにはほかの地震が成長したり、地震が発生したりするので、観測した結果に干渉と信号の付加が生じる。その影響はこれら地震の大きさと距離に関わっていて、実際に探測するとき、注意しかつ区別すべきである。

図1のモデルは探測場の位置の選択と前兆情報方向の判断に根拠を提供した。探知器をブロックの境界から少し離れた場所に埋めれば、ブロックの間の相対的な変位がかなり大きくなる可能性がある。そうであれば、土層の変形がさらに明らかで、よりよい変形情報を得るのに有利である。探知器の埋設場所は密度が比較的の高い土層のほうがいい。探測場付近の断層など地質状況と周辺の地表環境が詳細に把握できれば、異なる方位の探知器の前兆現象信号の特徴及び方向敏感性を分析するのに役立つ。

今まで述べた問題は応力-ひずみ伝播についてであり、言及した粒状物質の特性は二種類ある。その一、地殻岩石ブロックを粒子状体系と見なしているが、こういう場合には粒子のスケールは大きい、粒子の数は比較的に少ない。関与するのはフォース・チェーン構造とスティック・スリップ移動である。これは地殻岩石を連続的な媒質として扱うのとは本質的な違いがあるので、異なった法則性を持っている。ブロックのフォース・チェーン構造は探測場の探測感度も決めている。フォース・チェーンが強いブロックは必ず大きなスティック・スリップ変位を引き起こす。従って、対応する土層の観測場でははっきりした前兆現象情報が得られる。その二、探測するとき、探知器を砂穴の中に埋めるため、大量の粒状物質体系に対応している。この場合、粒状物質を準連続媒質として扱っても、土層と砂は当量バルク係数が低い散逸体系であるので、周波数の低い準静的応力-ひずみは伝播しやすい。これは地震波が岩石の中で伝播する状況とも異なる。

地殻の構造が複雑なので、地震前兆応力-ひずみの伝播と探測は地震の類別、ブロックの分布および探測環境と緊密に関連している。震源と探測場の関連する地層の地質構造を深く研究すれば、探測した前兆現象と発生した地震の対応関係を判断するのに非常に役に立つ。一方、この方法で異なる探測場で探測した前兆ひずみ情報の分析を通して、地質状態の認識にも価値ある資料を提供することができる。

6. 結論

地表の砂穴に埋設した探知器で地震前兆情報を探知した。特定の地震と対応していて、それに法則性と方向敏感性を持っている。実験と分析によって探知した情報は、地震が成長するあるいは地震が発生したときに生じたひずみ値の変化だと明示した。地殻のブロックと断層からなる体系を粒状物質体系と見なして、粒状物質の特性と

運動法則により、地震前兆の応力一ひずみ拡大と伝播モデルを提示した。地震が蓄積した作用力は岩石ブロックの全体的なスティック・スリップ移動を起こし、それから、順番にほかのブロックを押して、変位を発生させる。それに、剪断ひずみの作用を通して、土層に圧縮変形を生じさせる。粒状物質に埋設した探知器はこのようなひずみ信号が測定できる。地震発生後、応力は弱くなり、地層も元の弛緩状態に戻る。探知した地震前兆情報は普遍的と思われる浅発地震の成長と発生の物理モデルと一致している。地層中の前兆応力一ひずみ伝播方式の分析を通して、粒状物質と岩石の性質を比較して、使用した方法で地震の応力一ひずみ前兆情報が探知できるが、岩石の中ではこのような情報が探知しにくい理由を説明した。提示した方法は浅発地震の前兆現象情報の探測に明確な効果があり、その物理的メカニズムについても初歩的段階の議論をしたが、地震に関わる問題は複雑で、深く研究すべき問題はまだ多い。探測方法の絶え間ない改良、多くの探測場の設置、より多くの実際の地震前兆現象情報の獲得、関連する研究の強化を通して、この方法は地震前兆現象情報探測を実現させる有効的な道になると信じる。

大地震の二次災害の研究

●Profile●



趙 振東 Zhao Zhendong ●大連大学教授

1946年8月生まれ。1970年中国科学技術大学を卒業。1970年～2007年にかけて中国地震局エンジニア力学研究所勤務。2007年から今まで大連大学勤務。1986年～1990年中国政府の派遣研究者として京都大学、竹中技術研究所で研究。1995年に教授、1999年に博士課程指導教官。主に構造と媒介などの相互作用、接触問題非線形性、エンジニア構造地震反応分析、都市総合防災、震災予測、耐震鑑定などについて研究。1990年以来、中国の国家レベルのプロジェクトは4つ、部レベルのプロジェクトは6つ主宰。それらは中国の重要な基礎研究プロジェクト(973)と自然科学基金とサーフィスプロジェクト、科技部公益特別プロジェクト。発表した論文は80篇以上、省レベル科技進歩賞一等賞は1回、二等賞は2回、三等賞は4回受賞。1999年から、政府による中国国务院政府の特別手当を享有。

共著者：王桂萱、余世舟、趙傑

大地震の災害は、建物の倒壊にとどまらず、火災、水害、有毒ガスの漏えいと拡散、爆発、土砂崩れ、土石流、津波などの二次災害にも及ぶ恐れが十分ある。二次災害の種類は多いが、それを引き起こす原因も異なり、災害が起きてから、広がるプロセスも異なり、それによる損失も異なる。それゆえ、総合的な数学的物理学的なモデルでシミュレーションをするのは難しい。二次災害の特徴によって、それぞれの研究をする必要がある。

中国の高度経済発展とともに、都市化も進んでおり、人口と財産も都市に集中してきている。都市では燃えやすい、爆発しやすい危険源がどんどん増え、その規模も大きくなってきた。都市部において直下型または近海の壊滅的な地震が起きたら、二次災害が起こる恐れも一段と高まる。それで、震災二次災害についての対策と研究が必要になってきた。

本文では、いままでの研究を踏まえ、二次災害の研究状況を総合的に述べたい。とくに二次災害の火災や、水害、有毒ガスの漏えいと拡散、爆発、山地災害、津波などについての研究と重要な成果を述べることにする。現在の震災二次災害の研究における問題点を指摘し、これからの研究を提案しようと考えている。

1. 震災二次災害

壊滅的な地震によって、建物が壊されたり、建造物や基礎施設も壊されたりという恐れ他に、死傷者が出る可能性もある。それに二次災害を伴う可能性がある。主な二次災害は、火災、水害、腐蝕物質と有毒ガスの漏えい、爆発、放射性物質汚染、土砂崩れ、土石流、津波などである。二次災害が起きたら、その破壊力と影響力は恐ろしい。地震による直接的な物質と人員の損失を超えた場合もあり、地震の救済が困難になることもある。

世界の地震史をさかのぼると、二次災害は大昔にもある。その最も大きな二次災害は、この100年以内に起きた都市の震災二次災害である。たとえば、1923年9月1日、関東地方に起きたマグニチュード8.3の地震である。地震の後、東京と横浜に400個所の火災が起きて、大規模

な火事になった。横浜はほぼ焼失した。東京の2/3の地域は灰になってしまった。地震による死亡者は10万人にも上るが、その90%は火災によるものであった。破壊された70万棟の家屋のうち、50万棟は火災によるものであった。1964年新潟地震では、新潟市のガスタンクの破壊と電力支障による火災が起きて、その付近の工場に引火し、広範囲に火災が広がり、500人以上の死者が出た。80基の石油タンクが焼失し、75%のガス供給施設と11個所の変電所が破壊した。1994年、アメリカのノースリッジ地震では、グラナダ・ヒルズの22センチものガスポンプが破裂し、ガスが漏えいして、トラックに引火し、その付近の17棟の住居ビルが焼失した。1995年の阪神淡路地震、台湾の集集地震、それぞれ多くの二次災害が起きた。2003年中国四川省汶川の大地震では、深刻な岩崩れ、土砂崩れなどの災害が起き、堰き止め湖を現出させた。幸い早く適宜な処置をし、重大な水害にはならなかった。2011年3月東日本に起きた大地震は、地震観測史上最大の津波が発生し、大津波が及ぶところ建物は全滅した。それに、世界を震撼させる緊迫した核危機が起き、重大な放射性物質汚染となった。今回の地震では、前にも述べた火災や、水害、有毒ガスの漏えい、爆発、放射性物質汚染、津波などの災害が起きた。

経済発展に伴って、中国の都市では地震による災害の危険源がますます多くなってきた。その災害源には、燃えやすい、爆発しやすい、有毒物質、放射線成物質などの危険源が特に重視されねばならない。現在、危険源には設備の老化、期限済み、管理不全などの問題がある。近年、危険化学品事故が頻繁に起きていて、地震、経済高度発展、人口過密などを考えると、潜在的な震災二次災害がさらに深刻になり、社会と公共の安全を脅かしている。

地震そのものの要素が、不確かで、複雑であり、重大危険源による火、水、爆発、毒、放射性物質汚染など典型的な二次災害の研究は多くの研究分野の協力が必要であり、研究の遂行には問題も多い。今までの研究成果はそれほど多くはないので、これでは震災の予防、緊急対

策には満足ではない。このため、危険源の管理の強化、震災後の危険性の定量分析と予測、評価方法を研究し、直観的、定量的な災害のプロセスと結果を提供する数値シミュレーションが急務となっている。

2. 研究の現状

地震には、不確定であり、蓋然性が低いという特徴があるので、研究に利用できるような二次災害のデータは不十分である。それに、二次災害の種類が多く、その研究範囲や手段も多く、その研究分野の融合が必要となり、多くの問題点が存在する。そのため、二次災害についての研究はまだ多くない。国内外のこれまでの研究では関連する理論とモデルは一般自然災害の研究成果に沿っていて、地震の要素はあまり考えられていない。

●二次火災

地震火災は地震二次災害の最も典型的な災害であり、火災の特殊な形式でもある。その研究は一般的な火災の研究成果と切り離せないが、簡単なモデルがある森林火災の延焼については、多くの研究成果がある。国内外ではGISに基づいた延焼のシミュレーションが多いが、都市火災のシミュレーションに使用できるモデルもある。国外では、ホイヘンスの原理が20世紀90年代に火災の延焼プロセスのシミュレーションに広く使用されてきた。それをもとに、GIS型の延焼モデルが開発された。国内では、中国技術大学が、さまざまな研究をして、Arcviewプラットフォームで森林火災の延焼モデルを開発した。このモデルは坂の斜面の角度、風向きなどの要素を考慮に入れている。ほかの研究所も森林火災延焼についてのモデルを開発した。しかしそのモデルは、森林を燃やす媒介は単一であり、火を止める要素をあまり考えていないので、火がずっと全部の森林が燃えるまで延焼する。

国内では、都市地震の二次災害の火災についてのモデルは少ない。アメリカでは、それぞれの要因で起こった地震を同じシミュレーションで表わすのは容易ではないと考える研究者がいる。彼らは、その起きうるさまざまな原因に応じて、別々の数値モデルを立てるよう主張する。そういうモデルは地震の後の火災の発生と延焼の多様の要素の関連は考えられていない。日本の浜田は建物についての調査を行い、都市延焼速度式を開発した。それに基づいて、アメリカ緊急事務管理局はGISに基づいて、地震の二次火災延焼速度式FFE (HAZUS99に含まれる)を開発した。その延焼速度式は、建物が規則的に並んでいて、その間の距離は同じで、その建物は全部燃えて、建物の属性も同じであると仮定しているため、火災は円形に進んで延焼することになる。名古屋市消防局は関連する大学と共同開発をし、名古屋市の地震災害予測システムを開発した。それによれば、火災電話で迅速に地図に出火地を確定し、火災延焼範囲の予測をシミュレーションする。

中国の趙振東、余世舟らは都市地震の火災出火点の確率についての予測モデルについて研究し、地震の二次火災について、建物出火点と地面での延焼加速度 (PGA) との二次関係式を出した。かれらは、二次火災発生の確率モデルについても研究している。GISに基づいて、建物セルが出火する確率を求めている。同時に二次火災の地域危険性を研究し、建物のセルについて二次火災が発生する確率を確定し、都市の自然行政区域をセルにし、同じ地域の人口密度、財産分布密度などの危険性に影響する要素を考慮に入れ、火災の危険指標を計算している。ここでは、異なる地域の特徴と需給を考慮して、危険性に影響する要素を加えている。閾値を与える方法で、その地域が二次火災の発生するリスクの高いエリアかどうかを確定することができる。許建東らは伝統的な延焼式と統合して、ArcViewプラットフォームにおいて、GISに基づいた都市二次火災延焼形式を開発した。

●二次水害

本研究は、水利、水文の研究に基づいている。アメリカ地質調査局 (USGS) は、GIS、CCHE2Dモデルを利用し、1993年のミシシッピ川洪水の影響を分析している。アメリカミシシッピ大学国家水科学と工学コンピュータセンターはCCHE2Dモデルを用いて洪水推進の数学シミュレーションを行っている。アメリカテネシー州のシュルビーピルの降雨径流の計算結果を利用し、地質構造と地下水の特徴、地下水質と水量の地表での特徴、ARC/INFOソフトウェアプラットフォームに人々の地表活動による地上水と地下水汚染、異なる降雨量によって起こりうる洪水とその水没範囲を予測する。日本では、RAMS™デジタルシミュレーションシステムを洪水の予防と分析、予報、観測に広く使用している。

関連する研究をする中国の学者もいる。馮民権らは蓄滞洪区の洪水をシミュレーションして研究を行っている。王新宏らは、Preissmannの4ポイントリニア陰的スキームでSaint-Venant 方程式を活用した。鄧程林らは、「太子河流域のダム群防災高度研究」において、洪水の数値シミュレーションをしている。龍志雨、謝正輝らは、改善したTOPKAPIモデルで淮河流域の洪水を数値シミュレーションしている。

●二次震災の有毒ガス漏えいと拡散

地震の二次災害の有毒ガス漏えいと拡散については、環境流体力学の質量密度輸送モデルを理論根拠として用いている。主なモデルはKモデル (勾配輸送モデル) や、ガウス (Gauss) モデル、ランダム輸送モデル、急流拡散の統計学の形容—タイラー (Taylor) 公式などである。

国際的に流行している有毒ガス漏えいと拡散モデルはALOHA、SLAB、DEGADISなどである。イタリア電力署 (ENEL) Giuseppe Brusasca博士らのチームは先進的な粒式モデルを開発した。ラグランジュの粒の半不規則性運動を利用して、大気の雲流拡散をシミュレーション

した。モンテカルロ法を利用して、粒が排出源から計算域に拡散し、運送や、拡散、化学反応、地面沈澱プロセスについてシミュレーションした。

中国北京都市危険源コントロール技術研究センターでは、重い気体漏えいの風洞実験と、拡散モデル、有毒ガス漏えい、拡散モデルについて研究している。また、北京大学環境科学センターと、風洞シミュレーションについて2年間連携して研究している。このシミュレーションによって、異なる条件についての出力と分析ができる。2次元画像で平面汚染拡散領域を表わしたり、3次元画像で立体汚染拡散領域を表したりすることができる。

都市大気汚染のシミュレーションについて、欧米では20年来、多くの大気組成のモデルを発展させてきた。ラグランジュの汚染拡散型からオイラーの三次元域化学流れモデルに発展させてきた。よく使われていたオイラーモデルはSTEM-II、RADM2、CAMx、CITとUAM-IVなどである。最初のモデルは主に具体的な汚染問題に対して開発されたが、新しい大気組成モデルであるModel-3/CMAQは古いモデルの欠点を補完している。オゾン、酸の沈降、エアロゾルなどのを含めた総合的なモデルを開発した。近年、ラグランジュ・オイラー総合モデルは大いに発展している。Peters (1995) は、年来のオイラーモデルの現状と進展を評価した後、総合モデルから次世代の化学輸送モデルに新しく、ユニークな方法を提供する可能性があるとして述べている。現在では、このモデルを用いて大気汚染の転化と流れの研究をする諸外国の研究者は多い。たとえば、Hess (1989) はメルボルン（オーストラリア）の光化学スモッグを研究した。Pressman (1991) はヨーロッパの窒素酸化物の化学変化と流れ域について研究した。Stein (2000) は化学変化のプロセス（たとえばC B 4）と結合して、更に複雑な化学変化プロセスを研究している。しかし、ラグランジュ・オイラー総合モデルについての研究は中国国内ではまだ少ないようである。

中国ではハイレゾ気象モデルMM5と地域化学モデルRADMを利用して、都市及びその周辺の一次、二次汚染物（オゾン、硫酸塩など）についてシミュレーションしている。動力学、熱力学モデルを市街地と建築群の風環境と熱環境の研究、市街地の大気汚染の流れと拡散の計算に利用している。ラグランジュの軌跡拡散モデルを利用して、北京の大気の大気汚染物の流れと拡散をシミュレーションしている。趙新東、余世舟らは有毒ガスの漏えいする確率を研究した。普通、有毒ガスの漏えいする確率は、二つの要素で決まる。一つは、有毒ガスの発生源のリスクのレベルであり、もう一つは消防能力である。一般的に、有毒ガスのリスクのレベルが高いほど、漏えいする確率が高くなり、消防レベルが高いほど、有毒ガスの漏えいする確率が低くなる。新東、余世舟らは、連続的安定的な漏えいと拡散モデル、有限期間安定漏えい

と拡散モデル、瞬時漏えいと拡散モデルを開発した。

●二次爆発

地震二次災害のうち爆発の災害の研究は少ないようだが、その論理的な根拠は、爆発災害の衝撃波の損害——破壊原則（よく見られるのは、超圧原則、衝撃原則、圧力——衝撃原則）であるが、あまり地震の影響を考えていないようである。

衝撃波による人に対する直接的な損害は肺、耳と体全体の損害である。Pietersenは1990年に肺の損害による致死半径を構想した。Baker、Cox、Westine、KuleszとStrehlowは、LLovelace基金研究者の結果をもとに、肺損害による死亡者の出現カーブを導き出した。それに、適切な条件のもとに、頭部衝撃死亡率が50%のカーブと、体の衝撃死亡のカーブを導き出した。EisenbergとHirschは、50%の耳の鼓膜の破裂を引き起こす入射超圧を導出した。WhithersとLeesは、歴史上の大量の爆発ケースをもとに、統計分析した。その結果として、爆発源の質量、室内の人員密度と建物倒壊による死亡者の数の関係を導出した。

中国では、宇徳明らは、爆薬による爆発の衝撃波、熱放射と家屋倒壊損害の関係を導出した。燃えやすく、爆発しやすい、有毒な危険品の保管、運送のプロセスのリスクを定量的に評価した。朱建華は爆発波による破壊、損害の効果評価を導出した。趙振東、余世舟らは、地震二次災害爆発数値シミュレーションのモデルを開発して、二次災害の爆発の潜在的な危険エリアを導出した。その結果として、爆発による人員の死亡者、重症、軽傷の危険エリアと安全エリアを推定した。さらに、建物の損害エリア、破壊の甚大な危険エリアを導出した。

●二次震災の山地災害

地震二次災害の山地災害には、いろいろな地質災害が含まれる。それには、土石流、岩石崩壊、地すべりなどがある。土石流についての研究が一番多い。近年、土石流の形成と運動のメカニズムを追及するため、アメリカや、日本、ニュージーランド、中国の専門家が土石流理論モデルを用いて多くのシミュレーション研究を行っている。そこでは、2次元不規則流れのモデルを開発している。しかし、この実験と結論は、泥石流、水石流という極端なモデルに限られている。その二つのモデルの間の土石流は、粒子の大きさが異なり、さらに複雑になっている。現在の経験と理論に基づいて、砂礫が土石流に与える役割と影響を解釈するとき、土石流についての数学モデルは、ほとんど粘性の弱い粒の媒介物、大きさの範囲が狭い粒、プラスチックの粉の粒子、ガラスシミュレーションの粒を用いて、シミュレーションを行ったものである。中国では、かなりの高濃度で、大きさの範囲が広く、粘性が強い土石流がある。それについてのシミュレーションは始まったばかりである。現地の観測とサンプリングの採取を行い、それを用いたシミュレーションは、

まだなされていない。雲南の蔣家溝の土石流研究処は、異なる流れの状態、高濃度の粘性のある土石流の採集と実験分析を行い、この方面の研究の不足を補っている。高濃度の流体の研究に、ビンガム塑性体モデルは広く使用されている。たとえば、Obrien、Qian、費祥俊と康志成らは、それについての研究を行っている。

雲南地理研究所の唐川では、国内で、最初に土石流数値シミュレーションを行った。ナビエ-ストークス方程式の基本原則と銭寧泥砂理論をもとに、土石流の2次元変動の実流の方程式を立て、土石流の数値シミュレーションのソフトを開発した。精華大学の呉保生は、アメリカ連邦高速道路局の河流シミュレーションと橋の土台を洗い流す流れのシミュレーション（BRI-STARS）をもとに、土石流のシミュレーションの計算能力を高めた。実際に観測した土石流の資料でシミュレーションを実証している。

中国科学院成都山地災害と環境研究所では、数値シミュレーションとGISの土石流の危険性の動的な分類方法について研究した。土石流の容重と流変性を考慮に入れて、土石流の危険性の動的な分けモデル、土石流モメンタムと土石流の衝撃が建物に対する破壊の影響力のモデルを開発した。GIS技術をもとに、建物の数値標高モデル（DEM）を構築した。建物の影響による土石流の運動数値シミュレーションの方法を開発した。

●二次災害の津波の研究

日本電力中央研究所は津波が発生するとき、津波の高さが正確に予測できるシミュレーションを開発した。シミュレーションは、地上地震計と海底の地震計のデータを参照し、海底の断層の長さや深さを推測し、それに基づいて、立体的に地殻変動の計算方法を利用して、海底の断層のすべりの方向と大きさを算出し、発生する津波の高さを推定する。1993年、北海道南西沖地震で津波が発生した際、研究者たちはシミュレーションシステムで津波が奥尻島に到達するときの高さを正確に予測できた。

アメリカ南カリフォルニア大学の津波研究ゼミでは、津波を分析し、モデルを作成し、数値シミュレーションの結果を導出した。

中国上海交通大学船舶及び海洋工学学院の廖世俊博士も、津波と暴風の数値シミュレーションを研究した。最近、東日本ではマグニチュード9.0の大地震大津波が発生し、多くの研究者が津波についての研究に着手するようになった。

地震前兆現象の判断根拠

•Profile•



邱 澤華 Qiu Zehua ●中国地震局地殻応力研究所観測予報研究室チーフエンジニア、研究員

1959年9月生まれ。1982年北京大學地震地質学部を卒業、中国地震局地殻応力研究所に入所。2004年北京大學地震地質学部地球動力学の博士号を取得。1998年10月—1999年10月、東京大學地震研究所の訪問学者。2009年1—7月、東京大學地震研究所高級研究者。主な研究領域は地震成因とボアホールひずみ観測。国内外の学術シンポジウムで四十余りの論文を発表。地震成因の研究では、構造陥没地震成因理論を提出。著書は『構造陥没地震』。2001年から中国地震局のボアホールひずみ観測網の管理を担当。

1. はじめに

海域地震予報の成功により、中国の地震研究者にはかつて地震予報に対し自信満々な時期があった。しかし、唐山大地震の予報は全くできなかったため、研究者の地震予報に対する自信も急になくなった。その原因は何かというと、海域地震予報にはしっかりとした研究基盤が構築されていなかったからである。最近、王克林などの学者により、海域地震予報のプロセスに対する詳しい調査が行われ、海域地震予報の研究基盤の弱さが明らかにされた。

地震予報の基礎は地震前兆現象の観測だとされている。現在、地震予報の研究基盤は全体からみるとまだしっかりとされていない。「弱い地震が頻繁に起れば、大地震が来る」という経験論的な事実は確かだが、このような地震前兆は普遍性を欠いており、普遍性のある前兆を研究する必要がある。今まで、数多くの文献に登場しているいわゆる「地震前兆」は、厳密に研究・検証されておらず、これらの「地震前兆」に関するデータはそのまま人々に伝えられてしまい、大衆と政府に間違った情報を提供している。つまり、このような研究基盤は全く信用できないものである。Gellerなどの学者によって地震予報可能性が否定され、Parkfield地震予報実験において明らかな地震前兆は確認されておらず、汶川地震のときも全く予報できなかったなどのことより、今までの地震前兆の研究はすべて否定されてしまった。

近年、地震予報は各方面から疑問視されている。それは、中国だけではなく、元IASPEI主席のWyssをはじめ、地震予報可能と主張する外国の学者も説得力のない反論しかできない。地震予報の将来性についても、はっきりした主張はない。これら事実から、地震予報の研究基盤の弱さが分かる。

地震予報は重要であるため、中国はかつて一気にすべての問題を解決しようとした。しかし、数十年にわたり様々な経験をした中国人は、地震予報がいかに複雑なものかわかった。これからは、根本的に考え方を変え、この難問をいくつかの課題に分け、筋道を整理してから、一步一步進んでいかなければならない。何より重要な

は、地震前兆の研究と地震予報の研究をきちんと区分し、前者を後者の基礎にすることである。

宇宙のすべてのものの間には、普遍的な関連性があり、それによって人類が世界を認識する。地震と地震発生前の現象の間にも当然関連性があり、この関連性を借りて地震を予報する。一方、地震予報の基盤となる様々な問題は、哲学によって解決するのではなく、地震前兆に対する細かい観測と選別によってはじめて解決できる。これは態度の問題だけではなく、方法論の問題でもある。

地震予報の基盤となる地震前兆は、様々なケースからなっている。地震予報の信頼性は、これらケースの信頼性によって決まる。地震前兆のケースを選別するには科学的な根拠が必要である。

2. 専門家の断片的な主張を判断根拠にしない

確実な判断根拠のない場合、専門家の主張を地震前兆の判断根拠にするのは、非常に普遍的なやり方である。近年、中国地震学界における、「地震前駆波」に対する盲目的・崇拜に近い過剰な信頼はその典型例として挙げられる。

いかに権威のある学者であれ、誰もがミスを犯す可能性がある。例えば、崑崙山山口西のM8.1の地震が発生する前、一部の学者は新疆の地震観測網で観測されたある異常変化を間違って地震前兆と見なしていた。なぜそうしたかと言うと、その変化は地震発生に近く、ほかの幾つかの観測場でも似ている変化が観測されたからだという。その理屈は理解できるが、これを「地震前駆波」と結びつけるのはあまりにも無理がある。多くの研究者が「地震前駆波」に便乗したのも、様々ないわゆる「権威者」がそう主張しているからである。その代表的な学者は、「地震前駆波」という概念を提出した有名な地震学者金森博雄（Kanamori & Cipar）である。その後、「地震前駆波」は非常に流行っている概念となり、多くの関連文献には、ほとんどの「地震前兆現象」が「地震前駆波」と呼ばれていた。

仮に地震の前駆波は数万キロまで伝わるのであれば、地震予報が実現可能な問題になる。この仮説を真剣に分

析し、高精度ボアホールひずみの観測データを全面的に分析したが、M7以上の地震の「前駆波」を確認することはできなかった。前出した新疆地震観測網で観測された異常変化も、気象変化によるものだと訂正された。

Kanamori & Ciparは1960年のチリ地震に基づき「地震前駆波」概念を提出した。その時、Ms8.3の本震が発生する前に、Ms6.8の地震が発生した。本震発生前に異常な波形が観測され、その周期が数分間であった。その波形はMs6.8の前震に関わる可能性があると思われ、この前震には巨大なエネルギーを持つスロー地震が存在する可能性を指摘している。この観点は国際的にあまり賛同を得ていない。Kanamori & Ciparによって観測された異常変化と新疆観測網で観測された異常変化の波形が全く違い、前者は単なる簡単な波形であるに対し、後者は密集した波形であった。

中国の研究者が「地震前駆波」概念の同調者になったのは、中国の地震研究者の研究がしっかりしていないからである。結果としては、地震前兆を判断する場合、権威のある専門家の断片的な主張を判断根拠にしてはいけなことが分かる。

3. 仮説を判断根拠にしない

専門家の主張を判断根拠にするのと同様、仮説を判断根拠にするのも非常に普遍的なやり方である。権威者の主張と比べると、仮説は一定の客観性を持つが、真実と比べれば仮説は主観的である。

ある「異常」が地震前兆だと主張している多くの学者は、「異常」そのものの真実性を確かめるのではなく、主に「異常」と「理論」の関連性の証明に力を入れている。これらの学者は、観測した曲線をいくつかの段階に分け、「乾式」、「湿式」、断層クリープスリップ、スロー地震、前駆波、地震触発応力など、格好良さそうな概念を導入し、曲線を応力の累積段階、調整段階、加速段階、バランスを失う段階などに分けることを通じて、研究のハイレベルと合理性を誇示しようとしている。

実は、これらの研究は、何の意味もないのである。

地震予報はまだはっきりしていない段階において、いわゆる「理論」はすべて仮説にすぎない。仮説である以上、真実として実証されるかもしれないが実証できない可能性もある。仮説を真理として信じてはいけな。信じてはいけないうわゆる「理論」で、真実かどうか知らないいわゆる「異常」を分析する、というのはあまりにも価値のない研究である。

仮説は、多くの実践で検証しなければならない。仮説で地震前兆を解説したり、地震予報の参考にしたりしてはいけな。まず真実性が確かめられた地震前兆の異常事例を多く収集し、それに基づき仮説立てる、または、様々な仮説を選別し、地震前兆・地震予報の参考になる理論を探し出す、というのは合理的な研究手順であろう。

4. 統計データを判断根拠にしない

統計データで地震前兆を考察する研究方法は、一番みんなの信頼を騙し取りやすい。これらの学者は多大の努力を払い、膨大なデータを分析し、多くの文献を調べた上で結論を出しているため、この結論を信じていいだろうと思われる。が、実はこの研究方法には問題があり、その結論ももちろん信じてはいけな。現在、中国の多くの政策はこれらの統計結果に基づいているため、「大躍進的」な目標が作られてしまったのである。

中国の統計データはともかく、まずWyss & Harbermaが主張している地震発生前の静穏化（precursory seismic quiescence）を例にして見てみよう。17の地震の例（M4.7～8.0）が挙げられ、統計のデータによって、それは「最も期待できる（most promising）」地震前兆だと証明しようとした。Wyss & Harbermanの統計のデータだけを見れば、地震発生前の静穏化がはっきりとした地震前兆だと思えるかもしれない。しかし、USGSのReasenberとStanford大学のMatthewsは全く異なる統計データを発表している。この統計データは37の地震例（M5.3～7.0）の分析によるもので、系統的な、普遍性のある、信頼できる地震前兆異常は存在していないことを示している。

ここで強調したいのは、研究の結論ではなく、研究方法である。学者らの結論の正確性を判断する気はないが、上述した分析から、統計データは地震前兆の判断根拠にならないことがわかる。地震発生前の静穏化とはいったい何か、まだ合意されていない問題であり、客観的な判断根拠もないのである。

信用できる統計データは膨大で確実なサンプルに基づいたものであり、信用できるサンプルは信用できる根拠に基づいているのである。はっきりとしたサンプルははっきりとした判断根拠によって構築されるものである。判断根拠のない研究基盤に基づいた統計は、いわゆる「手抜き工事」と同様である。

中国では「消耗戦より殲滅戦」などのことわざがある。まさにその通りであり、説得力の弱い根拠をたくさん獲得するより、むしろきちんと説得力のある根拠を1つでも獲得したほうがよいのである。

5. 地震前兆異常の三つの客観的な判断根拠

地震前兆を判断する場合、地震前兆異常の客観的な属性に基づき、「異常」であるかどうかを判断するのである。これもよくある手法である。

判断根拠1：正常変化との対比

異常とは、正常ではないことである。よく発生し、法則性のある物事を「正常」だという。一方、めったに見られなく、真相が分からないものは異常と呼ばれている。

「地震前兆異常」現象は研究されているが、それは本当の異常変化であるかどうかを判断するのに、正常変化と対比する必要がある。そのため、ある現象が異常変化

だと主張する際、対比のため正常変化についてきちんと説明しなければならない。異常変化は正常変化とはっきりした違いがある。ここで、2つの説明を加えたい。

- 1) 観測期間をきちんと説明しなければならない。観測期間が長いほどデータの正確性が確保できる。季節性の変化がよくあるため、観測期間は少なくとも一年間以上継続する必要がある。観測データを積みあげると、季節との関連もわかる。この規則的な変化を把握しなければ、異常変化も認識できない。短い期間の観測データは信用できない。今まであった多くの教訓は、観測期間が短いせいだとされている。
- 2) 観測の範囲を説明しなければならない。複数の観測場で広い範囲の観測をしなければ、正常変化との対比もうまくできない。一つの観測場のデータを数年間分析しても、「異常」を正確に把握することができないだろう。

判断根拠2：妨害要素がないか

ある変化が異常変化だと確定しただけでは、まだ終わりではない。その異常変化は本当に地震と関わっているかをきちんと考察しなければならない。地震と無関係で、妨害要素によって起きた異常変化も十分あるため、それを明らかにする必要がある。

- 1) 観測設備の故障。観測システムには、様々な故障が起きる可能性がある。故障であるかどうかについては、観測場の管理者や機械専門家が判断できる。
- 2) 環境の変化。環境の変化というのは比較的複雑であり、人為的な影響と天気の変化との二つに分けることができる。人為的な影響は、器械の点検、回りの工事、灌漑により地下水の吸い上げなどがある。天気の変化について、気温の変化、気圧の変化、風、雨などの要素がある。観測場の観測者によって、きちんと天気などの環境変化を考察しなければならない。そのほか、データのある数値の変化について、きちんと環境などの妨害要素に関する観測も行わなければならない。それによって、データの数値変化の原因を明らかにし、妨害要素との関連の有無も確定できる。

妨害要素の影響をきちんと排除すれば、この異常は地球の構造的運動によるものかもしれないと考えられる。しかし、厳密に言うと、排除できるのは既知の妨害要素だけであり、未知の影響に対しては、証拠がなく、関連する観測が不十分であるため、疑問が残る。

判断根拠3：地震との関連性

今の研究では、地球の構造的異常運動が必ずしも地震を起こさないかもしれない。つまり、様々な妨害要素の影響を排除したからと言って、異常な構造的運動は地震前兆異常変化ではない可能性もある。この異常変化の地

震との関連性をきちんと考察し、その関連性が確定できてはじめて地震前兆だと言える。

時間的には、ほかの物事と同様、地震にも準備、発生、減衰との三段階がある。つまり、地震発生前、地震発生時と地震発生後の変化により、ある異常変化の地震との関連性を考察できる。この関連性について、次の三つの方面から考察できる。

- 1) 観測した異常変化は地震発生に近づくほど強くなる。または、地震発生直前に現れる。
- 2) 地震発生時の異常変化は地震発生前の異常変化より著しい。一般的には、地震発生時の変化を観測できない器械は地震前兆の異常変化も観測できない。
- 3) 地震発生後、異常変化の減衰が観測できる。

地域的には、異常変化の発生区域は大体震源区域の中心またはその辺りにある。または、著しい異常変化は震源地域で発生し、周辺地域の異常変化はそれほど著しくない。

特徴から見ると、地震の準備、発生、減衰の各段階において、ある特定の数値の変化にはある程度の連続性と一貫性があれば、それは異常変化と地震の関連性の判断証拠となるだろう。

6. 客観的な判断根拠の応用

実際に異常変化の検証を行うさい、地震と無関係な要素を排除し、関係のありそうな要素を選別し、積み上げなければならない。数十年間の経験から言うと、数多くの無関係要素に左右され、貴重な資源と時間を無駄にさせ、地震予報の研究と政策設定にもマイナス影響を与えている。

上述した三つの客観的な判断根拠により、無関係な異常変化を排除することができる。一般的には、ある異常変化は本当に地震前兆異常変化であるかどうかを認定するさい、これらの判断根拠を三つとも同時に運用しなければならない。三つの判断根拠が全て成り立つ場合、その地震前兆異常変化は相当確定できると考えられる。

IASPAIによる地震前兆に対する研究からみると、地震前兆変化を認定するには、演繹法は通用しない。研究者らは帰納法で研究しなければならない。地震前兆変化の証拠となる事実を多く収集し、反対の事実を多く排除したら、その証拠の説得力が強くなる。

上述した三つの客観的な判断根拠について、それぞれの重要性は異なっている。中核的な意味を持っているのは地震との関係性である。地震そのものは異常現象であり、地震前兆も当然異常現象でなければならない。何より重要なのは、観測データの正確性である。実際には多くの観測データは必ずしも正確とは言えない。理想的な観測データを獲得するには、高解像度、高度なサンプリングの観測装置だけではなく、好運（ちょうど震源地域

に設置され、うまく稼働している)も必要である。

ある地震において、ある前兆異常変化は二つ以上の観測場で確定できたら、この変化は比較的に広い地域で発生し、空間的には一定の普遍性を持っていることを意味する。一方、異なる地震において、似ている前兆異常変化が観測される場合、この変化は時間的に一定の普遍性を持っていると言える。異常変化には普遍性があるからこそ、地震予報に役立つのである。

7. 終わりに

現在、地震研究者にとって迫られた問題は、地震には一体はっきりとした前兆があるかという問題である。その問題を解決するには、どのような根拠で地震前兆を判断するのかは重要である。それは地震予報の基盤を固めるためにもなる。これらの根本的な問題に答えないで、前兆異常変化の地震予報上の意味だけに注目する考察は、こんがらかっている研究にすぎない。

この問題を解決するため、地震前兆の研究と地震予報の研究をきちんと区分する必要がある。異常変化は地震前兆であるかどうかをまず確定する。地震前兆の判断根拠を明確にし、そして信用できる地震前兆のケースを積み上げ、深く研究することである。このやり方を通じて地震予報の基盤が固まっていく。

地震予報研究の基礎は地震前兆研究であり、地震前兆研究の前提は正確な観測データである。観測レベルが低かったため、地震前兆研究が軽視されていた。低解像度、低サンプリングレート、補助観測なしなど観測設備の不完備によって、観測データの正確性は非常に限られていた。これらの観測データに対して深い研究がおこなわれていなかった。ここ数年、中国の地震前兆観測はデジタル化され、比較的に連続的、安定的な高精度、高サンプリングレートの観測データの入手が可能となってきた。観測技術の進歩によって、汶川地震の前兆異常変化データの抽出が実現できた。

中国大陸強震動観測

•Profile•



盧 大偉 Lu Dawei ●中国地震局地球物理研究所地殻運動観測工程研究センター プロジェクトチーフ

1980年3月生まれ。2005年中国地質大学を卒業。中国デジタル強震台ネットプロジェクトのチーフ、強震動観測技術と応用委員会の委員。主に地震工学および強震動観測技術の応用研究。『中国デジタル強震台ネットプロジェクト完成報告』を主筆、『強震動観測技術規格』、『強震動台ネット運営管理方法』などの業界規定の編集に参加。『汶川マグニチュード8.0の地震の未校正加速度記録』など3冊の著作を編集。『Earthquake Science』、『応用基礎と工学科学学報』、『世界地震工程』などの研究誌に『Ms8.0 Wenchuan ground motion attenuation』、『汶川に強余震の震動ピーク数値の減衰関係』、『震動台実験による強震義の一致性研究』など10篇以上の技術論文を発表。

1. はじめに

強震動観測は、地震動の特徴と工学的構造の地震に対する反応の特徴を知るための主要手段である。中国は世界において地震災害の最も深刻な国の一つである。地震による建物や施設の崩壊は、人員死傷と経済損失の要因となっている。強震動観測を展開し、実際の強震動のデータを蓄積し、地震動減衰の規則性の確定、実験地の地盤反応の研究、構造物の耐震性能の分析、地震リスクの分析と地震帯の認定を行い、建物の構造の耐震設計に科学的な根拠を提供することは、重要な意味がある。近年、社会経済とデジタル観測技術の発展に伴い、強震動観測網の規模が大きく拡大し、分布密度も高くなってきた。強震動観測の地震工学における役割が大きくなり、その応用範囲も拡大した。強震動観測は、震災予防・救急のための重要な基礎となった。

2. 強震動観測の現状

2.1 世界における強震動観測の現状

1933年に世界初の強震動観測台が設置されて以来、全世界には3万台にも上る数の強震動観測用機器が設置されている。アメリカには強震計が5000台以上設置され、その中で工学的構造用のものは400台もある。現在実施されているANSS計画では、26個所の地震リスクの高い都市に7000台の強震計が地表と構造物に設置されている。その中、構造物用の地震計は3000台を上回る。中国台湾では、700台以上の強震計が自由音場に設置され、構造物用は100台以上あり、都市にある近隣する自由音場の平均距離は、3キロ近くとなっている。日本では強震動観測装置は5000台近くもある。

強震動観測の応用分野は、震度速報、地震警報、震災迅速認定、地震救急反応と知能制御、安全構造診断などに及んでいる。たとえば、メキシコシティ、東京、台北にはそれぞれリアルタイムの強震動観測網に基づく都市地震予報システムが設置されている。東京ガスが震災後のガス輸送管システムの損害状況を把握するSIGNALシステムと高密度の地震観測をリアルタイムで実施するSUPREMEシステムを設置している。

2.2 中国大陸強震動観測の現状

(1) 現在の観測規模

中国地震工学界は強震動の観測を重視している。現在、地震機構及びほかの部門と企業は、移動実験エリアと建物、橋梁、ダムなどの建築物に2000台以上もの強震動観測装置を設置している。その中には、移動実験エリアの地表強震動記録を得るための移動実験エリア強震動装置、震度速報を目的とする大都市地震震度速報装置、特殊実験エリアの地面の強震動の特徴を得るための活断層影響測定装置、地震動の減衰測定装置、音場残響測定装置、地形による影響測定装置、構造地震反応データを得るための構造耐震性能研究装置、構造設計方法の改善を目的とする典型建築地震反応装置、大型橋梁地震反応装置、大型ダム地震反応装置、及び地震の迅速対応を目的とする原子力発電所・高速道路・ガスや石油の輸送管・化学工場などにおける特殊建築防災安全設置、などがある。その多くは、自由音場の強震動装置に限られており、特定目的の測定装置は、少数のいわゆる「模範プロジェクト」にしか見られない。強震動流動的観測基地に大量の先進設備が配置され、リアルタイムで大規模な地震救援の動的観測ができ、近くの音場の震動記録を得るレベルが高くなった。そして、地震時の救済に根拠のあるデータが提供できる。中国は、基準に沿った、科学的なデータ処理ソフトを開発し、強震動記録データベースを作り、迅速かつ有効なデータの共有に力を入れている。これまでの努力により、中国強震動観測は規模と能力において大きく改善された。特に強調したいのは、汶川のマグニチュード8.0の大地震で、強震動観測網が2万以上の本震、余震の加速度の記録を獲得し、強震動のデータベースを充実させた。また、中国の強震動の加速度の記録において、独創的な学術意義を持っている。

その他、現在実施している「中国地震背景の実験エリア探査プロジェクト」では、240台の強震動観測装置を設置する予定である。首都圏、蘭州警報装置、移動エリア観測台はそれぞれ80個所ある。広東、江蘇、陝西、重慶、内モンゴルなどの地域の地方政府は強震動観測装置の設置に力を入れており、各地において規模拡大の傾向である。

(2) 関連規定

強震動観測は地震工学において重要な意味と役割があり、関連する法律法規、技術基準の基礎となっている。

2009年5月1日から実施された『中国人民共和国防震减灾法』修正案に次のように規定されている。「ダム、油田、原子力発電所などの重要建設工事には、国务院の関連規定により、専用の地震観測網または強震動観測装置を設置しなければならない」、「国が全国の震度速報システムの建設を支持する」。

2004年に公表された『地震観測管理条例』の規定によると、「原子力発電所、ダム、特大橋梁、発射タワーなどの重要な建設工事には、国家関連規定により、強震動観測装置を設置しなければならない」。国家基準GB50267-97『原子力発電所耐震設計規範』と電力業界基準DL5073—2000『水工建築耐震設計規範』には、強震観測システムの設置は義務付けられている。GB 50011-2001『建築耐震設計規範』、SL60-94『土石ダム安全観測技術規範』は、強震観測システムの設置基準の運用を進めている。強震動観測システムの設置を要求している地方法規（北京、上海、河北、重慶、江蘇、広東など）もある。

2.3 先進国とのギャップ

中国は強震動観測について大きな成長を遂げてきたが、広い国土、地震活動範囲の広さ、経済発展の不均衡などの制約で、強震動観測はネットワークの規模と密度、観測技術、強震動記録の獲得能力と質、データの蓄積、エンジニアリングサービスなどの面において、日本、アメリカ、中国台湾などの先進国や先進地域とのギャップはまだ大きい。

(1) まだ防災減災のニーズを満たしていない強震動台とネットの数と分布

「第11次五カ年計画」プロジェクトが完成しても、重点的な監視、防御領域をカバーする密度は19台/万平方メートルであり、重点的な監視・防御領域は全国土の10%しか占めていない。全国の密度は1.9台/万平方メートルになる。ほかの地震多発国の密度とはかなりの格差がある。日本と比べれば、密度は日本の1/67である。地震工学研究と防災減災のニーズに対して十分に应えていない。

(2) 耐震理論研究および構造そのものの耐震のニーズを満たしていない地震工学専門台

構造震動台、実験エリア拡大効果震動台、液化震動台、土一基礎一構造総合作用震動台を含めた震動台の数は限られている。それらは主に模範を示す機能として使われ、全国において50台以内である。ほかの地震多発国と比べれば、格差は大きい。アメリカと比べれば、その1/68にすぎない。それに、経済の高度発展に伴い、新型の複雑な構造が大量に現れてきた。現在の震動台は耐震理論研究と構造物そのものの耐震のニーズに应えられていない。

(3) さらに向上させる必要がある現在の強震動台網技術システム

中国の現在の観測用強震動台網は、近くの地面運動の加速度記録を獲得し、耐震工学に基礎データを提供することを目的としている。技術システムはほぼこのニーズを満足させるが、震度速報システムと地震警報システムを建設するというニーズは満たされていない。その密度と技術システムを向上させる必要がある。強震動観測の応用分野は広く、現実社会へのサービス能力をさらに高める余地が十分ある。日本、アメリカ、ニュージーランドなどの国において、国家強震動観測技術システムはすでに進んでおり、震度速報、地震警報、構造物の観測と診断に広く応用されている。

3. 強震動観測の発展態勢分析

防災の基礎として、強震動観測と応用は社会と各級政府に重視され、今までにない成長のチャンスに直面している。中国の現状に応じた正確な成長策によって、中国の強震動観測の成長を加速させることができる。強震動観測記録は防災システムを構築する重要なデータとなる。同時に強震観測の情報は救援システムの重要な参考指標となる。強震動観測は、その二つのシステムのニーズに応じて大きく成長することができる。これからの発展と建設はその二つのニーズに応じるべきである。

強震動観測は科学的な震災の予防、救援、復旧などにとって不可欠なものである。強震動観測によって、震源メカニズム、距離、地震エリアの違う地区の地震データが獲得できる。そのデータは、震源メカニズム、震動の弱まりの特徴、地震帯の研究、耐震設計、重要プロジェクト耐震性能分析と実験研究、工学構造地震反応研究、工学耐震方法と技術の研究に利用できる。これらは地震の安全評価、地震動変数区分図の編成、工学構造耐震設計規範の制定の根拠となる。それによって、構築の耐震予防基準の確定はより科学的になる。近年、リアルタイム、またはリアルタイムに近いデータを伝送するデジタル強震計が広く運用されたことと、強震動観測台ネットの規模と密度が顕著に高くなったことによって、強震動の観測は、近場の地震学と地震工学の研究に基礎データを提供するだけではなく、災害減少にもつながっている。たとえば、震度速報、地震警報、災害認定、構造物の健全性の観測と診断、地震救急反応とAI制御などがある。強震動観測の応用領域の広がりにつれ、災害軽減の役割が大きくなった。

要するに、強震動観測の重要課題は、強震動観測関連法律の制定、強震動観測の技術サポートシステムの建設、重要工事の地震緊急処置プロジェクトの建設、強震動観測の社会サービスシステムの建設、強震動観測国際連携と人材育成などがある。

4. 強震動観測の成長の方針と今後の方向

4.1 指導方針

強震動観測の成長計画は、規模、応用、メカニズム及び法規作成において、国の防震防災計画と合致しなければならない。それは、強震動観測が健全・順調・有効に成長することにつながる。強震動観測及びその応用の特徴と関連し、技術の革新と難問解決を通じ、強震動観測を支える技術レベル、観測のレベル、社会サービスのレベルを高めなければならない。調和発展を通じて、国、地方、社会レベルの力を合わせ、合理的な計画を立て、観測地の規模を拡大し、強震動観測のレベルを高めなければならない。国際連携を通じて先進国から進んだ技術を導入し、中国の強震動観測のレベルの向上を図らなければならない。

4.2 成長方向

(1) 法律法規の強化、業種基準の完備

立法部門と連結し、中国の地震工学を発展させるため、経済力、科学技術のレベルと関連し、完璧な法律法規を作り、監督と管理のレベルを高めるべきである。重要な建設プロジェクトに強震動観測設備を導入すべきである。一方、関連する業種の耐震設計の基準を修正し、地震発生時の安全のため、強震動設備配置密度の基準を明確にすべきである。それと同時に、強震動観測の関連技術の規定と基準を作り、観測台の建設に関連技術の指導を提供すべきである。観測台の建設、運営、管理、応用の基準化、標準化、順序化を実現し、観測の効果を高めるのである。

(2) 観測台の計画的配置と、観測台の規模拡大と密度上昇の実現

全国に観測台を計画的に配置し、資金投入を拡大し、計画的・段階的に、観測台の密度上昇と専用観測台の配置に力を入れ、中国の強震動観測のレベルを高め、強震動の観測データを蓄積しなければならない。国の資金投資を確保し、地方政府と企業など多く方面の資金投入を吸収し、観測装置の配置と技術指導を強化する。観測データを共有し、ともに強震動観測の発展を進める。

(3) 強震動観測技術サポートシステムの設置と、観測レベルの向上

強震動観測の応用研究を展開し、異なるニーズに応じて、通信、先進設備の開発、設備の安定性などの面において技術研究の推進を強化し、強震動観測技術のサポートシステムを完備する。システムの機能を充実させ、高震動観測関連のソフトウェアとデータベースを作る。国際連携、「産学研」連携を通じて、技術サポートの能力を高める。

(4) 人材育成の推進

人材育成の仕組みを構築し、国際連携と技術促進、交流を通じて、職務レベルを高め、優秀な強震動観測チームを作る。同時に、地方の強震動観測チームの建設と人

材育成を推進し、地方と企業のサービス能力を改善する。

(5) 強震動観測のサービス意識とレベルの向上

地震地図作成、耐震設計の基準修正、工学耐震設計などの分野において、強震動記録の利用研究を行う。同時に、震度速報、地震警報、災害認定、緊急処置、構造診断などの分野における強震動観測の研究を強化し、強震動観測の社会サービスの品質を向上させる。

5. 強震動観測の目標

5.1 全般的な目標

強震動観測と社会サービスのレベルアップを中心に、関連する法律法規の強化を通じて、技術基準をつくり、強震動観測の建設と発展を進める。新しいセンサー技術と観測理論を研究し、地表、深い井戸、構造、海洋の観測を展開する。合理的な技術選別を通じて、新しい発想を集め、強震動の観測台網を発展させる。国際連携、国際交流、人材育成を通じて、戦略的に中国の強震動観測人材を育成する。強震動の観測と診断システム、重要工事の地震緊急処置システムの建設に力を入れる。科学技術の成果を社会に運用させ、社会サービスのレベルを高める。

5.2 段階的な目標

段階的な目標は、強震動観測網の規模の拡大と社会サービスシステムの建設に着目しなければならない。国家地震防災のニーズに応じて、法律法規、技術基準を公表する。強震動の観測領域の科学技術の革新を目指し、観測台網の建設と応用にさらに力をいれ、全面的に観測能力を高める。基礎理論と応用研究を進め、データの収集とその技術開発に力をいれ、知的財産権のある強震動観測技術を開発する。地方の強震動観測人材の育成を強化し、強震動科学技術領域の専門家チームと技術管理チームを充実させる。

ここで今後の発展目標を述べることにする。規模と密度をさらに高め、観測点の平均距離を25キロメートル以内にする。技術レベルをさらに高め、迅速に強震動の観測記録を獲得する技術手段とメカニズムを構築し、地震発生後の一時間内で、国の強震動台網センターから指揮機構に最初の強震動データ分析結果を送らなければならない。社会へのサービスレベルを高め、違う業種のニーズに応じてデータを共有し、地震緊急対処システムが広く利用されるように進める。

5.3 重点発展領域

(1) 強震動観測関連技術の標準化の研究

今の段階において技術基準の制定と修正が急務である。たとえば、強震動台の建設基準、強震動観測器械の基準、強震動台基礎建設の設定基準、強震動観測の規程、強震動観測データの基準などがある。観測台の建設と強震動観測関連技術開発を指導し、強震動観測と管理の標準化、順序化を実現し、観測のレベルを高める。同時に、

強震動の応用サービスにも関連基準システムを導入する。

（2）構造の健全観測と診断の技術開発

典型的かつ重要な構造物に地震反応台を設置し、構造物の健全観測、診断技術を開発する。たとえば、観測台の設置技術、データ処理技術、構造自身震動の特徴（自身震動の周波数、振動型、ダンピング）、伝達関数、自己相関と相互相関関数、振動スペクトル（応答スペクトル、Fourierスペクトル、パワースペクトル）などがある。

（3）重要な工事現場の地震緊急処置技術開発

典型的な重要工事を選別し、地震の緊急処置システムの建設を展開する。その中心となる技術と手法を研究し、地震の緊急処置の社会サービスと法律法規を制定する。たとえば、違う処置モデルの特徴と機能、遠距離と現地の警報技術、多種類の観測手段の総合警報技術、地震警報及び緊急処置の補助策の技術、地震情報検索と緊急処置の連鎖技術、地震緊急処置レベルの基準とリスクの分析などがある。地震前の防災と二次震災の防災と緊急避難に方法を提供する。

（4）地震動による影響範囲の迅速判定技術

密度の高い強地震動観測台網をもとに、地震動による影響範囲を迅速に確認できるシステムを構築する。たとえば、強震動観測台網の最適化、地震動台のデータをリアルタイム伝送技術、地震動加速度のリアルタイム対処技術、地震動影響範囲の確定方法、地震動影響範囲画像生成と発布システムの開発などがある。さらに、破壊力の強い地震による震動の影響範囲を迅速に判定する技術の発展を推進し、中国の耐震政策決定能力を高める。

6. 終わりに

社会発展と科学技術の進歩に伴い、強震動観測に対する認識が深まってきた。強震動の記録データの応用はさらに深まり、新しい内容、方法、技術が次々に現れてきている。強震動観測の成長は今までにないチャンスと挑戦に直面している。強震動観測を成長させるには、地震関連各部門の協力と連携が必要である。時代とともに、強震動観測の成長と応用をさらに向上させ、地震防災事業に貢献していくことであろう。

海洋開発技術

海底淡水資源の存在条件と舟山海域海底淡水資源の分布

•Profile•



張 志忠 Zhang Zhizhong ●青島海洋地質研究所 研究員

1965年4月生まれ。1999年7月、中国地質大学地質工学専攻卒業、工学修士号取得。2002年6月、中国地質大学（北京）地質工学専攻の工学博士号を取得。1987年7月-1996年8月、石炭工業部147地質隊隊員。2002年7月から青島海洋地質研究所国土資源部海洋オイルガス資源と環境地質重点実験室研究員。主に海洋地質、水文地質の調査研究に従事。『地質評論』、『中国地質大学学报』、『海洋地質及第四紀地質』などの研究誌に30数本の論文を発表。2部の専門著書の編者。

中国は海洋大国の一つであり、18000キロメートルを超える海岸線を持っている。海岸地区は人口密度の高い地区であり、経済レベルの高い地区でもある。中国の領海には多くの島が分布しており、面積が500km²を超えている島は6500を超えており、面積が500km²以内の島と島礁の数は10000を超えている。これらの島の資源が豊かであると同時に、戦略位置も重要であり、中国の海洋経済と社会発展の重要な要素となっている。しかしこれらの島はほとんど大陸から遠く離れており、交通不便と淡水資源不足などは深刻な問題となっている。その上、海底パイプの給水が困難であり、海水淡水化の造水コストも高い。淡水資源不足などの問題は、中国の海岸都市・島の経済と社会発展に大きな影響を与えている。そのため、中国の近海海域の第四紀海底淡水資源の調査と研究が必要になっている。

大陸棚海域の海底淡水資源は、比較的閉鎖的な陸相地層の環境に存在していると考えられる。本論文では、中国の黄海、東シナ海の大陸棚海域の第四紀気候と陸海環境とその変化を総括し、中国近海の海底淡水資源の存在条件を分析し、舟山北部海域の海底にある長江古河道の分布と淡水資源分布に関する調査結果を考察する。

1. 第四紀の気候変動と黄海・東シナ海の変遷

第四紀において、中国近海の気候は氷河期と間氷期の繰り返りであり、このような気候変化は海面の昇降と陸・海の変遷につながっている。氷期においては、気候が寒いため、海水は大量に蒸発し大陸において氷河が形成され、海面が低下し、陸相地層が現れる。暖期・間氷期において、氷河の融解により海面が上昇し、海相地層が現れる。

第四紀の初期において、第3紀末期の安定したあたたかい環境から、寒暖繰り返しの環境に変わる。前期更新世から後期更新世まで、中国海域において、「寒い」―「あたたかくて湿っぽい」―「寒い」―「あたたかくて湿っぽい」―「冷たくてやや乾燥」―「あたたかくて湿っぽい」

い」―「寒くて乾燥」―「あたたかくて湿っぽい」―「寒くて干ばつ」との過程で気候変動が発生している。気候変化により、海面の変化と海岸線の変化が発生した。南北により気候が異なるため、各海域の気候もそれぞれ違っていた。

黄海・東シナ海において、気候の変化は基本的に同じだった。前期更新世において、中国近海の大陸棚はほぼ陸地との形であり、後期更新世の初期の気候は寒期であり、前期更新世の中期において、河川とデルタ堆積の浜海平原であった。前期更新世の末期において、あたたかくて湿度の高い気候であり、海水の侵入が発生した。中期更新世において突然の海水侵入があった。後期更新世において、初期と中期は暖期であり、末期は寒期であった。後期更新世から、中国東部沿海において3回もの大規模な海進が発生し、3回の海進の間には、2回の大規模な海退が発生した。末次氷河期の最盛期において、海面は130-160メートル程度低下した。黄海全域は陸地となり、東シナ海において、大陸になっていないのは、沖縄海だけだった。これらの地区において、長時間の風化、浸食により、河川、湖、河道が形成され、風化・浸食地形面が形成された。後期完新世に入ると、気候が明らかに暖かくなり、海水は現在の海岸線近くまで上昇した。この時期において、黄海・東シナ海の大陸棚が基本的に海相地層との形であった。

2. 海底における第四紀淡水資源の存在条件

大陸棚は沿岸に近い浅海地帯であり、陸地から観測できる岩石層と構造は浅海の奥まで続く。中国近海海域海底の第四紀淡水資源は、比較的閉鎖的な厚層陸相地層の近海環境に存在する可能性が高い。陸相地層の砂層、特に古河道にある厚い砂層には、飲用可能な淡水資源が存在する可能性が高い。

寒い氷河期において、海水は大量に蒸発し海面が低下し、陸地が広がり、もとの大陸棚は陸地に変わった。河口は海の奥まで広がり、もと大陸棚の下に主流と支流河

谷が現れた。漸新世の末期から青藏高原の上昇に伴い、中国の地形はおよそ「西高東低」の形となった。氷河期において、海岸は東へと進み、河川も東へ延びた。河床は次第に深まり、河水の砂などは河床に堆積し、大きい砂粒からなる河道が形成される。間氷期において、海面の上昇に伴い、砂河道と陸相地層は急速に埋められ、埋蔵型古河道が形成される。河道の砂層には密封淡水が存在している可能性が高い。前期更新世の早期・中期、中期更新世、後期更新世の末期などにおいて形成された陸相地層には、海底淡水が存在する可能性もある。暖期・間暖期において、氷河の融解により海面が上昇し、海水は沿岸陸地に上がった。大陸棚区において、氷河期に大陸棚に流れ込んだ河川は地下河となり、陸相地層の上にさらに陸相・海相過渡地層と海相地層が現れる。

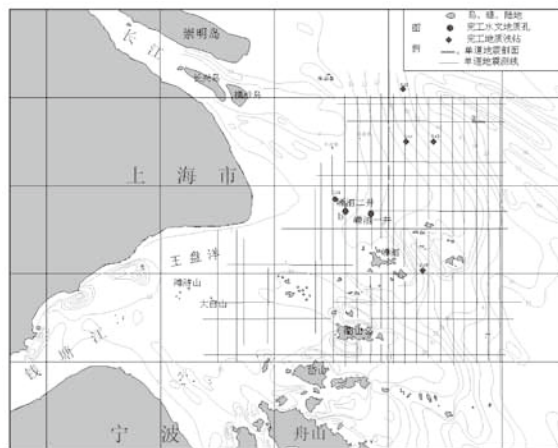
中国近海海域において、第四紀の淡水資源が存在するには、いくつかの基本条件が必要である。一つ目は、厚層の陸相地層の環境である。厚層の陸相地層の環境があるからこそ、砂層には大量の淡水孔隙水の存在可能性があるのである。二つ目は、密封または閉鎖的な環境である。中国海底大陸棚にある第四紀の沈殿物は、海相・陸相地層の繰り返しによってできたものであり、陸相地層にある淡水資源の周りに、透水性の低い粘着地層の存在が必要となる。密封または比較的閉鎖的な環境がなければ、淡水と海水の間に拡散と混合が発生してしまい、淡水の存在は不可能となる。三つ目は、大型の古河道または厚い砂層の存在である。第四紀において、海面の上昇と低下の繰り返しにより、海面の拡大と陸地の拡大は何度も繰り返され、巨大規模の古河道埋蔵が発生している。埋蔵された古河道の砂層の隙間が大きく、透水性が高く、陸地の地下淡水とつながっている可能性がある。周りの粘着地層の密閉性がよければ、大量の淡水資源が存在する可能性が高い。そのため、厚い砂層は海底第四紀淡水資源調査の主要対象となっている。

3. 舟山北部海域の海底淡水資源に関する研究

舟山市は、長江口三角州の東南、杭州湾にも近い近海地域にあり、旅行、港、漁業の名所である。舟山群島にある1390の島の中、居住者のいる島数は98である。舟山市の東北部に位置し、舟山島から遠く離れている嵊泗県は、深刻な水不足に直面している島の一つである。外部からの送水は極めて困難であり、海水淡水化コストも非常に高く、貯水設備を作るには空間制限があるため、現地住民は深刻な水不足に苦しんでいる。20世紀90年代から、浙江省地質鉱物局と上海海洋地質調査局などの機関が、舟山北部の海域で水文地質調査ボーリングを行い、海底淡水資源に関してある程度資料を集めた。しかし、第四紀の地層分布、沈積環境、古河道の分布、含水層の水文地質的特徴などの関連資料は限られている。青島海洋地質研究所は2009年に実施した国土資源調査プロジェ

クト「舟山海域における海底淡水資源の調査と評価」は、これらの問題を解決しようとしている。

「舟山海域における海底淡水資源の調査と評価」プロジェクトは、2009年にDelph Seismicデジタル地震情報収集システムを導入し、エアガン震源で、2000PSIの圧力と6sの動作間隔で、次のようなデータを作った（図1）。



◎図1 舟山北部海域において地震情報収集システムで収集したデータ

3.1 当地区の地質・水文地質の概況

舟山北部と上海長江三角州に近い海域において、第四紀の地層は四つの「統」に分けることができる。それぞれ前期更新統 Q_1 、中期更新統 Q_2 、晩期更新統 Q_3 、全新統 Q_4 である。そして、十つのグループ（ Q_1^1 、 Q_1^2 、 Q_1^3 、 Q_2^1 、 Q_2^2 、 Q_3^1 、 Q_3^2 、 Q_4^1 、 Q_4^2 、 Q_4^3 ）に分けることができる。 Q_1 地層は主に洪積地相と湖相地層であり、南匯濱岸地帯 Q_1^3 の上段において、陸相・海相過渡地層が見られる。 Q_2 の Q_2^1 は河口相の地層であり、 Q_2^2 の下段は河湖の地層であり、中段・上段においては陸相・海相過渡地層がみられる。 Q_3 の Q_3^1 は陸相・海相過渡地層であり、 Q_3^2 の下段・中段は浜海の深い湖と海岸の浅い海の地層がみられ、上段は湖の地層である。 Q_4 地層においては、潮汐河道、浜海、浅海などの地層がみられる。

地質時代、水動力の条件と成因により、上海地区の第四紀含水層は、7つに分けることができる。それぞれ完新統含水層、晩期更新統含水層、中期更新統含水層（第1、2、3含水層）、中期更新統含水層（第4、5含水層）である。浅い第1、第2、第3の含水層の水質それほど良くなく、深い所にある第4（160.0～180.0m）と第5（250.0～280.0m）の含水層の淡水水質は最も良い（鉱化度は1 g/L以内）。第4と第5の含水層は、上海地区の飲用水源となっており、採掘量が非常に大きい。第4の含水層は、主に早期更新統地層と晩期古河道の地層であり、断水は安定している。20～40mの粘土隔水層の存在により、この含水層と上部含水層の間の水分交換は遮断されている。

第四紀において、上海市の気候は6つの寒期、5つの暖

期、最終氷期に分けられている。前期更新世の初期において、1番目の寒期が現れた後、前期更新世中期と末期においてそれぞれ第2・第3の寒期と第1・第2の暖期が現れたが、この2つの暖期において海の拡大規模は小さく、上海東部沿海に薄層海相層がみられる。その他の地区は主に陸地、湖、河川の環境だった。中期更新世の第3の暖期において、海の拡大規模が大きく（範囲は上海ほとんどの地区に及ぼす）、陸相含水層の淡水のほとんどはその影響を受け、海水または塩水の状態となった。第四紀の地質・水文地質に関する研究を通じて、前期更新世において上海地区には2本の古河道の存在が確認された。北部にある古河道は、「瀏川—南匯」古河道であり、江蘇省の瀏河から、川沙、南匯を通り、南匯の泥城角と東海農場一帯で海に入る。南部にある古河道は、「楓涇—奉城」古河道であり、西の楓涇一帯から上海地区に入り、金山、松江を通り、南匯の新場に南へと転向し、奉賢五四農場、燎農場一帯で杭州湾に入る。

調査が実施された海域の島礁は、主に火山岩、花崗岩、丘陵地などの地形であり、比較的大きな島の間の谷・浜海一帯には、淡水の存在可能な物質が存在している。大きな島の間の大きな谷地区には、第四紀の淡水が存在しており、単一坑井の水量は1000m³/dまで達している。ただ、分布範囲は限られているため、給水量も高くないと考えられる。10km²以内の島には、淡水の分布は確認されていない。

3.2 舟山北部海域における第四紀地層と古河道の分布

2009年に舟山北部海域において地震情報収集システムによりデータが収集され、沈積地質学、地震地質学、地層学の理論に基づき、当地域の調査井（嵎泗1号井、嵎泗2号井、CH1、CJ3、CJ4、CJ5）の資料を参考し、当地域の第四紀地層を14の地震反射面（上からそれぞれT0～T13）と14のユニット（U1～U14）に分けることができる（図2参照、位置は図1のaの所である）。ユニットU1、U3、U5、…、U13は海相の地層であり、ユニットU2、U4、U6、…、U14は陸相の地層である。U1～U5はそれぞれ酸素の同位元素の1号から5号のまでの地層に当たるものであり、U6以下の部分については、資料が少ないため、正確な時代確認はできていない。

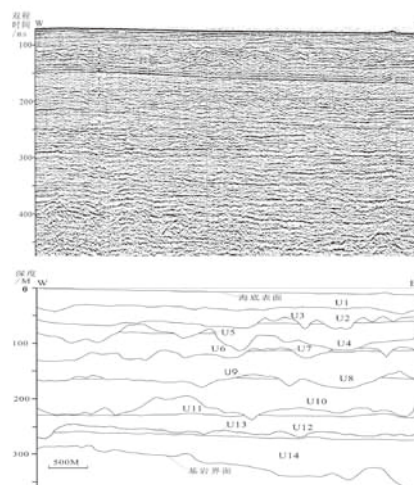
舟山北部海域においては島礁の数が多く、海底は激しく起伏している。海底の第四紀地層の厚さは0～320mであり、地層の厚さの分布も激しく変化している。多くの地区において、地層の構成要素は完備されていない。

2009年の地震情報データの切断面からみると、異なる規模、異なる時代の古河谷または谷型地形がみられる。一部の地域において、複雑な河谷地形がみられており、河谷にはさらに河谷がみられ、または複数の河谷が合成されている形もみられる（図2）。嵎泗1号井、嵎泗2号井の地質調査の結果から分析すると、当海域における前期更新世の中期・末期（上海地区の第4含水層に当たる）、

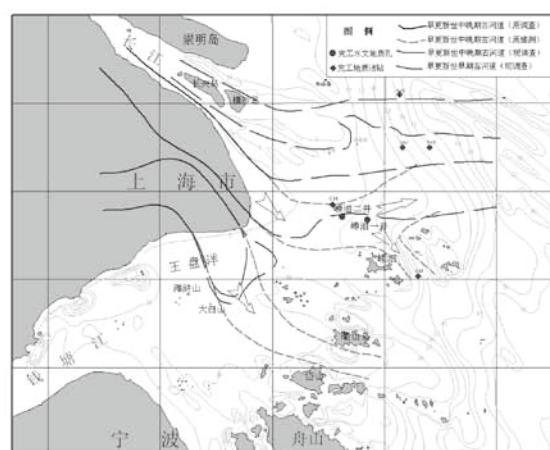
前期更新世初期（上海地区第5含水層に当たる）の古河道の位置が確定できた。

前期更新世の中期・末期において、北部の古河道は南匯東部から東シナ海大陸棚まで伸び、大戦洋北部に入り、嵎泗列島と嵎泗2号の北部を通り、牛皮礁、鶏骨礁南部の海域まで伸びている。南部の古河道は奉城で灘澚山、大白山北部の王盤洋に入る。これは、今までの研究とかなり違った結果となっている。

前期更新世の初期において、北部の古河道は長興島、横沙島から東シナ海大陸棚まで延び、牛皮礁、鶏骨礁西北部の東まで伸びている。南部の古河道は前期更新世の中期・末期の古河道の位置と一致しており、同じく灘澚山、大白山北部の王盤洋にあるが、分布範囲は中期・末期より小さい（図3）。



◎図2 第四紀のユニット分布（地震調査の切断面と解説切断面）



◎図3 舟山北部海域の海底古河道の位置に関する研究結果

上述した古河道分布は、主に2009年の2230km単道の地震調査データに基づき分析しているものである。今までの海底の古河道位置に対する推測は、海底の地形と一部の調査データに基づいており、信頼性の基盤が弱いと考えられる。

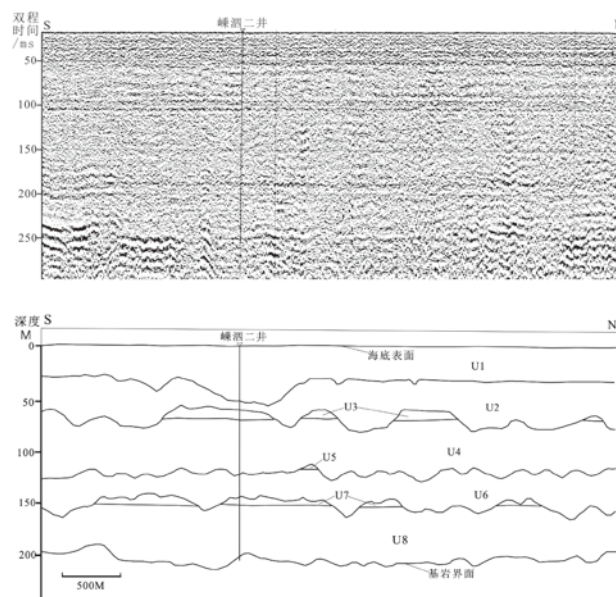
3.3 舟山北部海域の海底淡水資源

地層と沈積環境から分析すると、上海に近い舟山嵎泗付近の海底淡水はほとんど前期更新統の河川相の地層に分布している可能性が高い。中期・晩期更新統の地層は河口、陸海の繰り返し、浅海などの形だったため、海水の影響を受けた淡水は塩水となっている。海底の淡水資源は、第四紀地層下部の前期更新統地層に分布している可能性が高い。

舟山嵎泗付近海域での調査結果により、1993年1月から2月までの間、上海海洋地質調査局は嵎泗の北部15 kmの所で「嵎泗一号井」（北緯30° 53′ 34.88″、東経122° 25′ 25.05″）を作り、第四紀地層の厚さは191.5mだと確定し、前期更新統の第四地層 Q_1^{3c} 、第五地層 Q_1^{3b} 、第六地層 Q_1^{3a} などの地層において吸水作業を行い、第四（ Q_1^{3c} ）、第六（ Q_1^{3a} ）、第七（ Q_1^2 ）地層（上海地区の第四含水層に当たる）には淡水が分布していることが分かった。

2007年5月から6月まで、中国石炭地質総局第三水文地質チームは「嵎泗二号井」（WGS-84：北緯30° 54′ 12.5147″、東経122° 18′ 42.3918″）を作り、第四紀地層の厚さは201.0mだと確定し、地層を早期更新世（ Q_1 ）、中期更新世（ Q_2 ）、後期更新世（ Q_3 ）、後期完新世（ Q_4 ）に分けている。また、次の3つの含水層が確定された。第I含水層（上海地区の第1、第2含水層に当たる）は、海底の粘着性地層以下の41.50～57.35mに位置している。第II含水層（上海地区の第3含水層に当たる）は70.00～125.00mであり、第III含水層（上海地区の第4含水層に当たる）は139.33～182.00mの所に位置している。吸水実験（濾過水道管直径219mm）を通じて、第I含水層の水量 $30.7\text{m}^3/\text{h}$ 、鉱化度 1.277g/L 、水質タイプCl、 $\text{HCO}_3\text{-Na}$ 、Ca型などのデータを入手し、飲用水基準に近く、水質が良く、飲用水源になりうることが分かった。第III含水層の場合、水量 $119.3\text{m}^3/\text{h}$ 、鉱化度 8.131g/L 、水質タイプCl-Na型などのデータが分かり、微量の海水が入っていることが分かった。

2009年の「嵎泗二号井」の調査切断面b（図4、位置は図1を参照）からみると、第四紀地層はU1～U8と8つのユニットに当たることが分かる。上述した14のユニットと比べると、下部の6つのユニットは確認されていない。岩屑と岩石標本に対する分析から、「嵎泗二号井」の下には後期完新世が存在していることが分かったが、地震調査データからみると、早期更新統の構成要素は完備されておらず、「嵎泗二号井」吸水実験の第III含水層は上海地区の第4含水層に当たっておらず、第3含水層と第4含水層の混合層である可能性が高い。「嵎泗二号井」実験において、含水層の間の密閉性が低いと、一定の水交換が存在している。切断面全体から見ると、「嵎泗二号井」付近海域のU8ユニットとU8ユニット以下の前期更新世第四含水層には、淡水資源が存在している可能性が高いと考えられる。



◎図4 「嵎泗二号井」の切断面（地震調査の切断面と解説切断面）

2009年の調査結果からみると、舟山北部の海域の西部にある銭塘江口の北側、嵎泗列島と「嵎泗二号井」の北部、嵎泗東北部海域の第四紀地層、前期更新世の古河道などには、海底淡水資源が分布している可能性が高く、今後の調査の重点にすべきである。

4. 結論

第四紀において、中国近海の気候は氷河期と間氷期の繰り返しであり、黄海・東シナ海の大陸棚は海相、陸相の地層の繰り返しとなっている。海底の第四紀淡水資源は、主に近海にある閉鎖的な古河道地層に存在していると考えられる。

舟山北部の海域における第四紀地層は、主に14のユニットに分けることができる。2009年の調査データにより、前期更新世の中期・末期と初期の古河道の位置を確定できた。付近陸地の水文地質データと舟山北部の海域調査の研究成果により、調査実施地区の西部の銭塘江長口の北側、嵎泗列島と「嵎泗二号井」の北部の前期更新世の古河道などには、海底淡水資源が分布している可能性が高いと考えられる。

海洋エネルギー発電技術の現状と展望

•Profile•



遊 亜戈 You Yage ●中国科学院広州エネルギー研究所海洋エネルギー実験室主任、研究員

1956年3月生まれ、1988年にハルビン工程大学船舶構造力学専攻で工学修士を取得。1988年から波エネルギー利用関連の研究を始め、十数件の国家科学技術計画プロジェクトを担当・完了、波エネルギー発電装置2基、波エネルギー発電所1カ所、波エネルギー、風力エネルギー、太陽発電装置からなる海島再生可能独立発電所1カ所の建造に従事。

共著者：李 偉、劉 偉民、李 曉英、呉 峰

はじめに

海洋エネルギーとは、海水を拠り所とするエネルギーをいう。海洋は様々な物理・化学プロセスを通じてエネルギーを受容、貯蔵、発散しており、こうしたエネルギーは波、海流、潮汐、温度差といった形式で海洋中に存在している。

海洋エネルギーはクリーンな再生可能エネルギーで、その開発と利用はエネルギー危機や環境汚染問題の緩和に重要な意義があることから、世界的な注目を集め、大きな支援のもとで海洋エネルギー発電技術の開発が進められてきた。各国の科学技術者の努力により、海洋エネルギー発電技術はここ数年、飛躍的な進歩を遂げ、試験発電所が次々と商業化されている。近い将来、海洋エネルギー発電技術がますます成熟するのに伴い、さらに多くの海洋エネルギー発電システムがネットワーク接続され運用されるだろう。海洋の量は巨大で、海洋エネルギーがエネルギー供給の重要な構成部分となるのは間違いない。

本稿では各種海洋エネルギー発電システムの主な技術原理や特徴、技術発展の現状を総括、評価し、最後に海洋エネルギー利用の意義と展望を明らかにする。

1. 波エネルギー発電システム

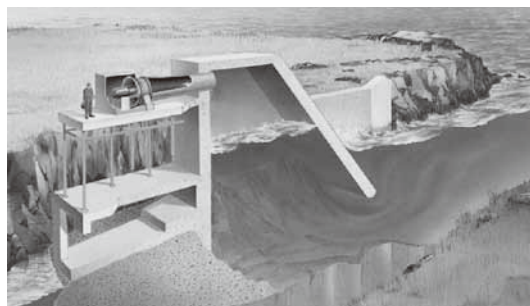
通常の波エネルギー発電システムは波エネルギー吸収装置及びエネルギー変換（Power Take-Off）装置からなる。波エネルギー吸収の原理に基づく、現在の世界の波エネルギー利用技術は振動水柱技術、振り子式技術、ラフト式技術、タップチャン技術、ポイント・アブソーバー（振動浮き）技術、ソルターカム式技術等に分けられる。

1.1 振動水柱技術

振動水柱（Oscillating Water Column, OWC）は空気室を通じて波エネルギーを吸収する（図1）。波の作用下で空気室の水柱が上下に振動し、空気室内の空気を通じて対称翼型タービン発電機を駆動して発電する。長所は転換装置が海水と接触しないため、安全でメンテナンスが便利な点だ。欠点は二次エネルギー変換効率が低い点

にある。

ここ数年に建設された振動水柱式波エネルギー装置には、英国の500kW固定式発電所LIMPET（図2）、ポルトガルの400kW固定式発電所、オーストラリアの500kW浮体式装置（図3）、中国の100kW固定式発電所などがある。研究中のものには英国の浮体式装置SPERBUOYやMRCがある。



◎図1 振動水柱波エネルギー装置のイメージ図



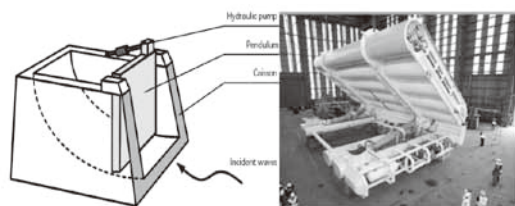
◎図2 LIMPET発電所（英国500kW）



◎図3 振動水柱装置（オーストラリア、500kW）

1.2 振り子式技術

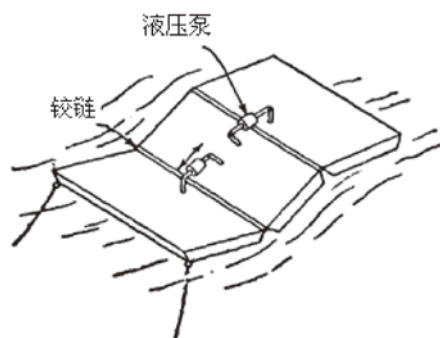
振り子式には、PendulumとBottom Hingedの二種類がある。振り子板が波の作用下で前後に揺れ、液压シリンダー、アキュムレータ、油圧モーター、発電ユニットからなる液压式エネルギー転換装置を駆動して電力を得る。Pendulumの連結点は水面上に、Bottom Hingedの連結点は海底に位置する。振り子式技術の長所は構造が簡単で製造しやすい点だが、欠点は波エネルギーを捕集すると同時に波を立てるため、効率が低下することである。建設された振り子式装置としては日本の5kW Pendulumや400kW海底固定式装置Oysterがある（図4）。



◎図4 左：Pendulum、右：Bottom Hinged

1.3 ラフト式技術

ラフト式（Raft、図5）技術は接続された複数の筏体で波エネルギーを捕集する。ラフト式装置は波の向きに沿って配置され、隣り合ったラフトが波の動きによって生じた角度を運動に変えて液压式エネルギー転換装置を駆動し発電する。図5のような伝統的なラフト式技術は斜めの波により連結部分の受ける力が大きすぎて破壊されることが多いため、2つの角変位自由度を持つ改良式ラフト式が開発され、耐久力が大幅に向上した。欠点は装置を波の向きに沿って配置するため、垂直波に沿って配置する装置より効率単位の材料使用量が大きくなり、製造コストが大きくなりがちな点である。



◎図5 伝統的なラフト式波エネルギー装置イメージ図

現在存在するラフト式装置には英国の波ポンプMcCabe Wave Pump（図6）やスコットランドの波力発電装置Pelamis（海蛇）（図7）がある。前者は単自由度連結の伝統的なラフト式装置で、後者は複数自由度連結の改良

ラフト式装置だ。3つの海蛇装置からなる波エネルギー発電所がポルトガル北部で商業運用されている。



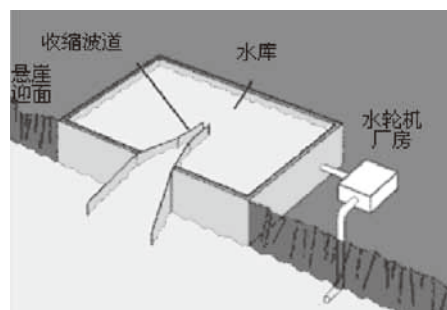
◎図6 波ポンプ（英国、400kW）



◎図7 海蛇式波力発電システム（英国、750kW）

1.4 タブチャン技術

タブチャン（Tapchan）装置はタブチャン（TAPCHAN: Taped Channel Power Plant）を利用して波の一部分を高位のダムに導き、水流エネルギー（水力）に変えた上でタービン発電機を利用して発電するものである（図8）。長所は一次変換に可動部品がなく、信頼度が高く、メンテナンス費用が小さく、大波の時もシステムの出力が安定している点である。



◎図8 タブチャン装置イメージ図

現存するタブチャン発電所にはノルウェーの350kW沿岸固定式装置（図9）やデンマークの20kWの浮体式装置Wave Dragon（図10）がある。前者は地形面での要求が

高く、普及が難しい。後者は波の状況に応じて高位ダムの高度を調節可能で、タービン起動圧力は水頭が0.2mなので、波の状況に対する適応性が高い。欠点はサイズが巨大で建造が難しい点である。現在Wave Dragonはデンマーク北部Nissum Bredningの海湾で長年にわたる海での発電試験を実施中で、中国とアイルランドで同技術の普及を計画中である。



◎図9 タブチャン装置（ノルウェー、350kW）



◎図10 Wave Dragon（デンマーク、20kW）

1.5 ポイント・アブソーバー（振動浮き）技術

ポイント・アブソーバー（Point Absorber）式装置は水面や水面下の浮きを利用して波エネルギーを吸収、液圧転換装置や機械転換装置、リニアモーターを通じて発電する（図11）。ポイント・アブソーバー技術は効率が高いが、波への抵抗力が弱い。

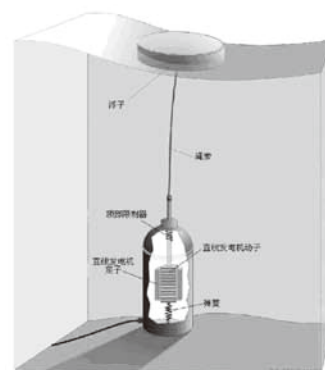
現在存在するポイント・アブソーバー式装置には英国のAquaBuOY、米国のPowerBuoy（図12）、オランダのArchimedes Wave Swing(AWS)がある。

1.6 ソルターカム式技術

ソルターカム式装置は英国のSalter教授が発明した、特殊な外形を持つ波エネルギー装置である（図13）。同装置はある種の方法で結ばれた支柱軸と軸の周りを往復回転するフロー室（通称ダック）を持ち、ダックを通じて波エネルギーを吸収する。ダックの断面後部はアーチ型、中心は軸心に位置し、支柱軸は波に対して垂直方向に設置される。波の作用の下で、ダックと支柱軸間の液圧転

換装置を駆動して発電する。

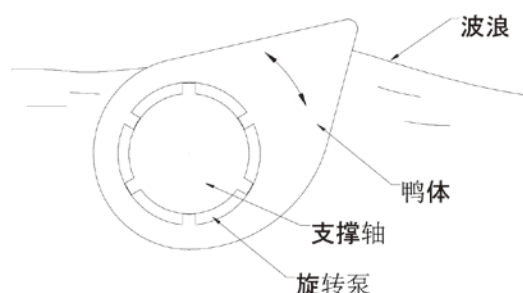
ソルターカム式装置は多くの波に対して高い転換効率を持つが、波への耐久力の向上が待たれる。最近建造されたソルターカム式装置には中国科学院広州エネルギー研究所の10kW浮体式装置がある（図14）。



◎図11 ポイント・アブソーバー装置イメージ図



◎図12 PowerBuoy（米国、40kW）



◎図13 ソルターカム式装置イメージ図



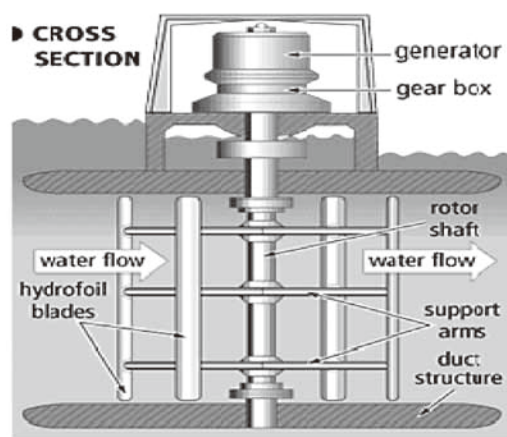
◎図14 中国10kW浮体式ソルターカム式装置

2. 潮流エネルギー、海流エネルギー技術

潮流エネルギー発電装置はタービン回転軸と水流方向の空間関係に基づき平行軸(Axial flow)式と垂直軸(Cross flow)式の2つの構造に分類できる。作動原理はブレードへの水流の作用力を利用してペーンホイールを駆動し、発電機で発電する。

2.1 垂直軸式潮流エネルギー発電システム

現存する垂直軸潮流エネルギー装置にはカナダのBlue Energy社開発のDavisタービン(図15)、イタリアのアルキメデスブリッジ社とナポリ大学が共同で開発した130 kW装置Koboldがあり、海での実験効率は23%に達している。中国のハルビン工程大学が2002年に建造した70kWツインローター浮体式装置、2005年建造の40kW潜水式装置、中国海洋大学が2008年に建造した5kW弾性ブレード浮体式装置はいずれも海での運用発電テストを実施中である。



◎図15 Davis四ブレード垂直軸タービン

上述のタービンの欠点は、トルクが回転角につれて周期的に変化することである。米国のGCK Technology社はらせん形ブレードを持つ垂直軸タービン(Gorlov Helical Turbine)を開発して上述の欠点を克服、韓国で1MWユニットの海での試験を行っている。

2.2 平行軸式潮流エネルギー発電システム

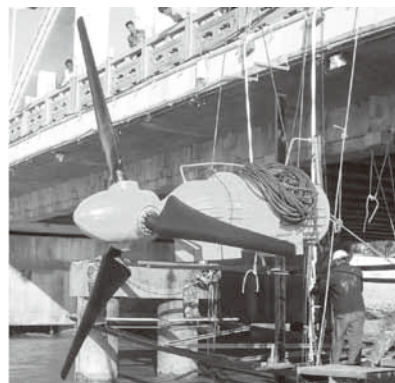
垂直軸構造に比べて、平行軸潮流エネルギー発電装置は効率高く、始動性能がよく、トルクが安定しているという長所があるが、ブレードピッチの変更や方向回転することで初めて双方向の潮流エネルギーを捕集できる。ブレードピッチの変更技術を採用したものには英国のMarine Current Turbine社が2003年に建造した300kW単台装置Seaflowや、2008年に建造した1.2MW複数ペーンホイール装置Seagen(図16)、ノルウェーのHammerfest Strom社が2003年に建造した300kWネットワーク接続型発電装置、米国Verdant Power社が2003年に建造した35 kW潮流エネルギー発電装置がある。



◎図16 Seagenの構造イメージ図

潮流の往復プロセス中の流線の偏差を克服して効率を高めるため、カナダのClean Current Power Systems Incorporated社やアイルランドのOpenhydro社はタービン外に導流フィルターを加えている。後者は無軸や関連電気機械の設計も採用し、それぞれ海上試験を実施している。

国内では1970年代に、何世鈞が初めて浮体式平行軸潮流エネルギー発電サンプル機の実地テストを行い、最大出力は5.7kWだった。浙江大学が2009年に建造した25 kW潮流エネルギー発電ユニット(図17)は、海上試験の最大瞬間発電効率が30kW近くに達した。東北師範大学は海洋探査機用の2kW低流速海流発電装置を開発して海での関連試験を実施した(図18)。



◎図17 水面下風車のサンプル機(25kW)



◎図18 低流速海流発電装置(2kW)

3. 潮汐エネルギー技術

潮汐エネルギー発電は低水頭水力発電の原理を採用している。堤防を作ってダムを形成し、堤防両側の水位差を利用して水頭を形成、タービン発電機を駆動して発電する。

国外で最も早く潮汐発電を利用したのは、ドイツが1912年に建造したビューズム潮汐発電所である。最も有名なのはフランスが1966年に建造した総設備容量24万kWのランス河口潮汐発電所で、年平均発電量は5.44億kWh、現在まで40年以上にわたって運用されている。

その後は米国、英国、カナダ、旧ソ連、スウェーデン、デンマーク、ノルウェー、インド、韓国などが引き続き研究を実施、運用中、建設中、建設予定、設計中の潮汐発電所は139カ所に達し、計画設計段階の潮汐発電所10カ所はいずれも10万kW～100万kWクラスだ。韓国は現在、世界最大のShihwa大型潮汐発電所を建設中で、総設備容量は260MW、毎年原油90万バレル近くを節約可能と予測されている。

中国の潮汐エネルギー利用の最も早い歴史は1000年以上前の「潮汐磨」まで遡る。センサス資料の統計によると、中国大陸沿海には200カ所近くの湾や河口があり、開発可能な潮汐エネルギーの年発電総量は600億kWh、総設備容量は20GWに達するが、これまで開発されたのは1%以下で、開発の潜在力は巨大である。

中国で最も成功した潮汐発電所は1980年代に建造された江夏潮汐発電所で、総設備容量は3.9MW。現時点でフランスのランス潮汐発電所とカナダのアナポリス潮汐発電所に次ぐ世界3位、アジアでは最大の潮汐発電所である。

名称	所在地	設備容量 (MW)	運用方式	建設時期
ランス	フランス	24×10	単独ダム 双方向	1967年
アナポリス	カナダ	20	単独ダム 一方向	1984年
キスラヤ湾	旧ソ連	2×0.4	単独ダム 双方向	1968年
江夏	中国浙江	0.5+0.6 +4×0.7	単独ダム 双方向	1985年
沙山	中国浙江	0.04	単独ダム 一方向	1959年
幸福洋	中国福建	1.28	単独ダム 一方向	1989年
海山	中国浙江	2×0.075	複数ダム 連続	1975年
白沙口	中国山東	0.96	単独ダム 一方向	1978年
瀏河	中国江蘇	2×0.075	単独ダム 双方向	1976年
岳浦	中国浙江	4×0.075	単独ダム 一方向	1971年
果子山	中国広西	0.04	単独ダム 一方向	1977年

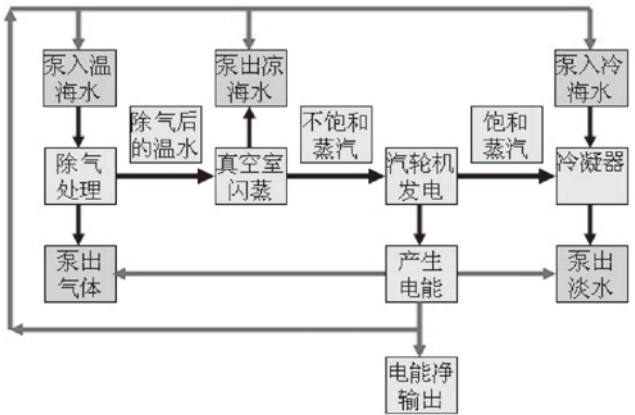
◎表1 国内外で建設済みの主な潮汐発電所

4. 温度差エネルギー利用

海洋の温度差エネルギー利用の基本原理は、海洋表面の暖水（26～28℃）を利用してある種の作動物質を加熱して気化させ、蒸気タービンを駆動して動力を得るというものである。同時に海底から採取した冷海水（4～6℃）を利用して作動後の排気を凝縮し、再び液体にする。作動物質とフローの違いに基づき開式循環、閉式循環、混合式循環に分類できる。

4.1 開式循環

開式循環（図19）は表層の暖水を作動物質とする。真空蒸発室を採用し、約2.4kPaの絶対圧の蒸気を産出、同時に電力と淡水を得る。しかし海水を作動物質とするため、沸点が高く、蒸気タービンの作動圧力が低く、蒸気タービンのサイズが大きくなり、機械のエネルギー消費が大きくなって、システムが算出するエネルギーが低下する。システムが算出するエネルギーがシステムのエネルギー消費を下回る場合、マイナス出力となる。現在世界で出力最大の開式循環温度差エネルギー発電システムは1993年に米国ハワイで建造されたシステムで、出力は50kW。

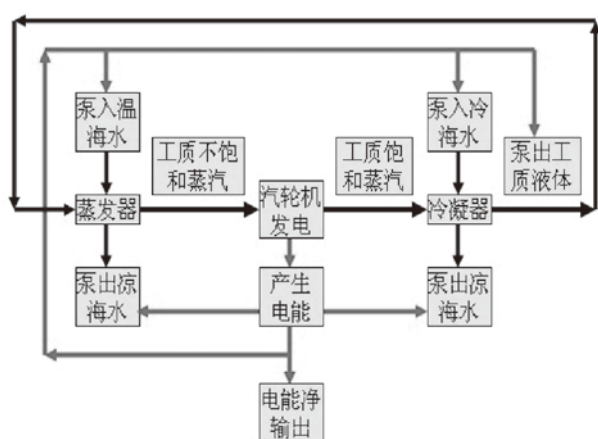


◎図19 開式循環イメージ図

4.2 閉式循環

閉式循環（図20）ではアンモニアなど沸点の低い作動物質を採用して蒸発、凝縮、発電を行う。長所は、作動物質の沸点が低く、暖水の温度下で高い圧力の下で蒸発ができるほか、低い圧力下でも凝縮が可能であるため、蒸気タービンの圧差向上や蒸気タービンのサイズ縮小、機械のエネルギー消費低減、システムの変換効率向上につながることである。一方、欠点は発電と同時に淡水を得られないことである。

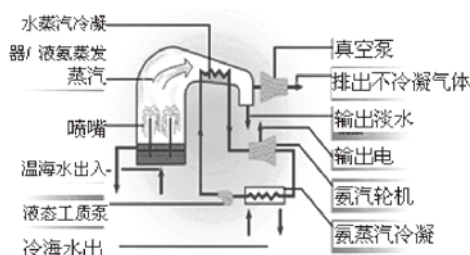
中国は「第11次五カ年計画」期間に閉式海洋温度差エネルギーの利用研究を実施、現在15kW閉式温度差エネルギー発電装置を建造中で、発電所の廃熱と海水間の温度差を利用して試験を行なっている。



◎図20 閉式循環イメージ図

4.3 混合式循環

混合式循環システム（図21）には開式循環と閉式循環が同時に含まれる。そのうち開式循環システムの凝縮装置は閉式循環の蒸発器で、水蒸気が凝縮して放出された潜熱が閉式システムの液体作動物質を加熱し、気化を生じさせる。



◎図21 混合式循環システム

混合式循環システムは開式循環と閉式循環の長所を総合したものである。開式循環を採用して淡水を得るだけでなく、閉式循環も採用して動力も獲得、効率が高く、機械の消耗が小さい。

天津大学は2005年に混合式海洋温度差エネルギー利用システムの理論研究課題を完了、試験用の小型化200Wアンモニア蒸気タービンを開発した。

5. 海洋エネルギー利用の展望

5.1 各種海洋エネルギー技術の評価

現在の技術成熟度から言えば、潮汐エネルギー発電技術が最も成熟し、商業開発段階に到達している。波エネルギーと潮流エネルギーは依然として技術攻略段階にあり、温度差エネルギーは研究初期である。

開発への投入から見ると、波エネルギー、潮流エネルギー装置はサイズが小さく、柔軟に利用可能で建造しやすく、一度の投資が小さく、環境への影響が小さいため注目を集めている。ここ数年で投入が拡大し、技術の発

展が速い。潮汐エネルギーは一度の投資が大きく環境への影響も大きい、技術が成熟して信頼度が高く、排出削減に役立ち、これも注目されて投入が拡大している。温度差エネルギーの利用には表層の海水と深部の海水をつなげる必要があり、施工が複雑で技術的な難易度が大きく、一度の投資が大きく、技術がまだ成熟していないため、現段階での投入は小さい。

5.2 海洋エネルギー利用の意義

エネルギーは世界の経済成長の原動力である。しかし化石エネルギーの過剰な使用は化石エネルギーの枯渇を招くだけでなく、地球環境にも深刻な被害を与え、温室効果や酸性雨、オゾン層破壊、大気中の浮遊颗粒物汚染と、それらに伴う生態環境の破壊が日増しに深刻になっている。海洋エネルギーは大量に存在し、ノーカーボンの再生可能エネルギーの一つであり、世界の開発可能量は現在の電力使用量を大きく上回っている。海洋エネルギーの大規模な開発は世界のエネルギー枯渇や環境悪化といった問題を解決する有効な手段である。技術が成熟を続けるのに伴い、海洋エネルギー発電のコストは減少を続け、経済建設において役割を発揮することが期待できる。

海洋エネルギーの利用は海洋資源開発能力も増強できる。大陸から離れた海洋では、海洋エネルギーが全てのエネルギーのうち最も便利で廉価なエネルギーである。海洋エネルギー技術の発展は海洋開発のコストを大きく引き下げ、海洋資源開発能力を向上させることができる。

5.3 海洋エネルギー開発で注意を要する環境問題

海洋エネルギー利用は環境を改善するが、海洋エネルギー開発プロセスにも潜在的な環境問題が存在する。例えば、潮汐発電所は潮位差や潮流、水温、水質などを変化させ、こうした変化が浮遊生物やその他有機物の成長やその地区の魚類の生活などに影響を与える可能性がある。同時に、防潮堤の建造も河口に環境問題をもたらす可能性がある。地下水や排水への影響、海岸の浸蝕激化などである。

海洋開発による環境問題を避けるために、まず海洋エネルギー開発技術の基礎研究を強化し、環境へのマイナスの影響を引き下げるための実行可能なプランを提出する必要がある。また国家は関連の政策法規の制定を通じて、海洋エネルギーに対する短絡的な開発を防止すべきである。

海浜地形変化と海岸浸食のメカニズム

～ Progresses on Study of Nearshore Processes and Coastal Erosion Mechanisms ～

•Profile•



陳子樂 Chen Guanyi ●中山大學の水資源と環境學科教授

1952年10月生まれ。1988年中山大學地球と環境科學學院修士課程修了、修士。1999年、アメリカハワイ大學訪問學者。2000年、フロリダアメリカ地質調査局海岸地質と地區海洋研究中心訪問學者。現在、教育部大學港口航路と海岸工事專門教育指導分委員會委員、『海洋通報』編集委員、中國海洋と湖沼學會理事、廣東省海洋と湖沼學會常務理事、國家海洋局第三海洋研究所客員研究員。主要な研究領域は河口海岸地形動力學、河口海岸の水環境、極限水文氣象事件の分布と予測。國家自然科學基金プロジェクト（海洋科學領域）4件と廣東省自然科學基金プロジェクト3件の代表。現在は國家重點基金プロジェクトと廣東水利革新プロジェクトそれぞれ1件を担当。發表論文数は100本以上。1998年、國家海洋局海洋科學技術進步3等賞。2008年、水利部珠江水利委員會科學技術進步1等賞。

1. はじめに

海岸地帯の環境保護、資源開発・利用は人口増加、陸地資源の枯渇、環境汚染、経済の持続可能な発展などの問題を解決する上で、優先すべき戦略的選択である。しかし、ここ数十年、地球の気候変動、河川、海岸の変化など複数の要素が複雑に絡み合い、世界各地の砂質海岸が浸食されているため、海岸地帯の経済と社会の持続可能な発展が脅かされている。21世紀に入り、地球の気候変動の異常が日増しに顕在化する中、海面の上昇や、規模・頻度の拡大が予想される高潮により、海岸の浸食がさらに進行するとみられ、海岸線の後退およびその推移が広く注目されている。UNEP（国連環境計画）本部が1991年に発表した『環境現状』は「地球温暖化は海面の上昇を加速し、（中略）深刻な社会的・経済的な被害を招き、島と沿海地区に悪影響を与える」と指摘している。国際連合教育科学文化機関（UNESCO）も、海岸浸食が臨海地域の経済・社会の持続可能な発展にもたらす脅威を重く見ており、「海岸地区と小島群（CSI）の環境と発展」プロジェクトを特設して、海岸浸食と海岸変遷の観測、データ分析、資源評価などの研究を資金援助している。現在、海岸浸食のメカニズムとその変化は、海岸地帯の陸海相互作用に関する研究の重要な項目となっている。

海岸地帯の陸海相互作用、特に海岸侵食のメカニズムを研究するには、海浜地形変化を明らかにする必要がある。20世紀80年代以降、欧米諸国の学者は海浜地形変化の研究に力を入れており、多くの成果を出している。1989年4月と1998年9月に、欧米諸国から同分野で最も著名な研究者、技術者ら数十人がFloridaのSt. Petersburgに集まり、シンポジウムを開催。海浜地形変化の研究概況と問題を議論し、向こう10年間の研究課題を明確にした。そこではハイ・テクノロジーと精度の高いデータに基づいた研究が主流であり、大規模な研究プロジェクトが多数展開された。例えば、米国で実施された海岸浸食研究には、機械搭載のレーザーライダー（LIDAR）が導入され、1997-98El Nino期間の全米の海岸浸食データが

収集された。米ノースカロライナ州のDuckにある現場研究施設（Field Research Facility、略称FRF）は、水陸両用車（CRAB）を用いて30年間にわたり海浜地形変化を観測・研究している。多くの研究成果を収め、米国の海岸帯の管理に役立つ貴重なデータ資料や重要な理論的根拠を提供した。似たような状況は、オランダのJARKUSで数十年間にわたり行われている地形断面の観測にもみられる。1997年10月から2001年3月まで海岸の泥砂の動きとそのメカニズムの解明を目的に行われたプロジェクトCOAST 3Dには英国、オランダ、フランス、スペイン、ベルギーのヨーロッパ5カ国が参加した。ここから現場観測に対する関心の高さがうかがえる。

砂質海岸の浸食は、中国の沿海地区においても広く発生している海洋災害の一つである。2003年に国家海洋局によって実施された「重点海岸における海岸浸食観測プロジェクト」の観測結果によると、海岸浸食が海岸の道路、施設、耕地、防護林、海水浴場、漁港、ひいては居住区に深刻な損害と脅威をもたらしている。丘陵台地の岩岬からなる大小さまざまな湾は華南ないし中国の砂質海岸の重要な種類であるが、現在はひどく浸食されている現状にあり、しかも悪化傾向にある。関連データを体系的に収集し、データ分析能力を向上させることは、海岸浸食の変化に関する研究を展開し、海岸地帯における防災対策・管理システムを構築する上での前提条件となっている。

2. 砂質海岸地形変化の尺度と近岸地形の動力学的特徴

2.1 砂質海岸地形変化の尺度

砂質海岸の近代的な地形変化の尺度は異なっている。本論文でいう「小尺度地形変化」とは、期間尺度が数時間から数日までであり、空間尺度は百メートル以内の地形変化のことである。「小尺度地形変化」は、高潮などの極端な状況に起きるものである。一方、「中尺度地形変化」はバーム（beach berm）、rhythmic barsなどの形として

いる。「大尺度地形変化」の時間尺度は数年間から数十年間の間に発生し、空間尺度は一般的に数キロメートルから数十キロメートル以上の岸線において発生している。これから数年、数十年後の海岸地形変化を予測するには、多くの課題が残っている。「Bruun法則」による予測は、普遍的に採用できる法則ではない。異なる「尺度」の海岸地形変化の本質は、海岸地形・形態と近岸地形の動力学的要素の間の非線型関係による安定性の問題であり、次の三つの問題に分けて解説できる。

(1) 外部環境

外部環境とは、海岸・海洋の環境条件およびその時間・空間の変化をいう。天気、気候、天文などの外部影響要素は近岸地形の動力学的要素の基本となっている。海岸の時間と空間変遷の度合いと頻度は次の3つの原因とつながっていると考えられる。

a. 海岸線の最初の状態

その地域の地質的特徴、岸線の形態、近岸海底の地形特徴など地形の状態

b. 海岸内部にある沈泥と砂の量

c. 波、流れ、潮、風など、海岸の外部からのエネルギーの強さ、頻度などの要素

(2) 海岸システムの内部

水流の動力と海岸形態との相互作用によって形成された、異なるタイプの地形とその組み合わせである。上述した2つの要素は互いに因果関係にあり、環境により常に変化している。

(3) 海岸システムは長期的変化を経て、新しい海岸環境に適応した動力学的環境と地形環境の形成に向かう。

海岸の時空変遷に対する研究によると、近海海域の波浪と波の流れは、決定的な役割を果たしており、中大陸棚 (middle continental shelf 中陸棚) 海域の海底において、極端な嵐の影響で異常な沈泥と砂の動きが発生する。海岸沈泥の堆積の角度から、上述した時空の尺度を次のように分類することができる。

(1) 短期動力効果のプロセス

あらしと波に対する海岸の反応、つまり砕波帯と波打ち帯のプロセスである。

(2) 中期動力効果のプロセス

年周変化、つまり海岸、砕波帯、近岸帯の間の沈泥の流動である。

(3) 長期にわたる大尺度の動力効果のプロセス

温暖化など地球規模の変化が海岸の沈泥と海岸環境の長期変化に対する影響である。

2.2 海岸地形の動力学的特徴

海岸地帯変化の研究対象、範囲、内容などにより、近岸地形の動力には確定性とランダム性との特徴がある。海岸の環境における地形動力には次の特徴がある。

(1) 主要なエネルギーは入射波の周波帯からきており、

砕波帯と非砕波帯の影響で発生した沈泥の振動と流れである。

(2) 次の変動は目立つ

①垂直海岸の定常波、前進波、沿岸方向のエッジ波

②周期は25秒から250秒の長周期重力波

③周期が入射波の2倍であるサブハーモニックなどが含まれている。

(3) 沿岸流、補償流など、入射波エネルギーの減衰により形成された環流システムである。

(4) 潮流、風場などの非海浜流 (海浜流: wave-induced current) の要素が加わる。

全体からみると、近岸地形の動力プロセスは非常に複雑なシステムであり、複雑な砂浜、砕波帯などの要素が複雑に絡み合っており、多尺度の海岸変遷と海岸浸食が発生している。

3. 砂質海岸浸食の動力プロセスとメカニズム研究

海岸浸食のメカニズムに関する先行研究は次のようにまとめることができる。

3.1 長周期重力波と海岸浸食

長周期重力波 (infragravity waves) とは、通常の風波の周波より低く、周波数は0.04 ~ 0.004Hzの間にある低周波である。今までの研究によると、長周期重力波は沿岸波浪の重要なエネルギー源となっている。海水が深ければ深いほど、そのエネルギーの量は小さい。高エネルギーの暴風波が発生する時、低周波が決定的な影響を発揮し、砕波帯において長周期重力波のエネルギーが大幅に減衰することはない。大量の沈泥と砂の流動は長周期重力波帯に発生し、海岸浸食などを引き起こす主な原因となっている。

長周期重力波が多くの研究者に注目されているもう一つの理由は、砂浜砕波帯の周期性特徴の定量的考察のためである。たとえば、三日月形など異なる形態の砂堤の形成と変化を考察する際には、長周期重力波が多く採用されている。その他、長周期重力波の形成メカニズムに関する研究では、近岸地帯の変形などを考察しており、近岸の地形動力プロセス研究の重要な項目となっている。関連文献には、海浜地形変化と長周期重力波の形成メカニズムについての研究と論述は多くある。

3.2 沿岸循環、Wavesetup効果、海岸浸食

砕波帯における波浪の伝播実験により、風成海流の要素など、沿岸循環システムが複雑系であることが証明された。特に重要なのは、この沿岸循環の環流は単なる入射波による安定的な平均流ではなく、近岸波、流れ、地形の間の相互影響により、駆動力と地形変化の間に相互の因果関係が存在していることである。

現場観測を分析すると、砕波帯による沿岸の流れは一般的には不安定である。この不安定性とは、横波 (shear waves) によるものである。1分から10分間の周期性があ

り、Root-mean-square velocityは数十センチメートル/秒に達する場合もある。暴風波の発生時において横波(shear waves)の不安定性により、沿岸の垂直方向に強渦流が発生し、Wavesetup効果により逆流(undertow)と離岸流(rip currents)が発生し、暴風波の発生時の海岸浸食の原因の一つとなっている。

3.3 砕波帯地形の動力状態と浸食方式

WrightとShortなどの研究者がオーストラリアの砂質海岸地形の動力プロセスを体系的に研究し、砂浜・砕波帯地形の動力状態を次の6つに分類している。高度消散型、高度反射型、中間状態(沿岸砂堤の凹溝状態、周期性砂堤・砂浜、横方向の砂堤と離岸流、low-tide platformとの4つの状態)である。6種類の砂浜状態の間には、砕波尺度のパラメータ k_s により異なる状態の間の変換が考察され、三つの浸食方式が発見された。Sunamuraは地形変遷を八つの段階に分けて研究しており、それぞれの段階における砕波帯動力指数 k_s との関連を考察している。このような研究手法は、海岸浸食研究に極めて大きく貢献している。

Ranasingheなどの学者はオーストラリアにある中型海岸砂浜の状態を撮影し、その映像を分析している。90%の映像の分類はWrightなどによる分類と一致していることが分かった。浸食によりLBT(longshore bar trough)などの砂浜状態が形成され、暴風波の発生後において、LTT(low tide terrace)地形に変貌したことが分かった。今まで砕波帯地形の動力状態と浸食方式の実証研究が多く行われている。

3.4 沿岸流、砂の移動、海岸の長期変化

この分野の研究のほとんどは、海岸の動力学的原理を採用している。近岸の水中地形、岸線の形態、建築物による波浪の屈折・回折効果に基づき、海岸長期変化の数値モデルを作っている。岸線変化の数値とデータに基づき、海岸波動力の自然効果と建築物など人工的な影響の下の海岸線の長期変化傾向を予測している。実用価値のある岸線変遷モデルの多くは、線型モデルであるが、まだいくつかの問題が残っている。

- a. 線型モデルは平衡海浜断面モデル理論に基づいており、アメリカ東海岸とメキシコ湾の特徴に基づきDean平衡海浜断面モデルにまとめられたが、これは中国の比較的閉鎖的な波浪環境に適用できるかどうかはまだ明らかにされていない。そのため、異なる海岸環境条件に適応できる平衡海浜断面モデルが必要となっている。
- b. 水流の動力に対する地形の影響は反映されていない。地形の長期的変化を考察するには大きな誤差が生じてしまう。岸線の変遷の期間的尺度は通常10年以内としている。

3.5 海岸浸食の究極平衡形態の規則

砂質海岸のほとんどは、波浪と水流の影響で非対称なアーチ形の海湾の形である。20世紀50年代から、多くの

研究者はその平面外形に基づき異なる命名をしている。たとえば、「ㄱ形海湾」、「半分ハート形海湾」、「対数螺旋線海湾」、「鋸歯形海湾」、「アーチ形海湾」、「袋形海湾」など多数ある。Yassoは観測データに基づき対数螺旋モデルをはじめて発表している。その後、研究者は大量の観測データの分析と実験を通じて、海岸浸食の究極平衡形態を予測するための複数の公式を発表している。典型的なモデルの例は、放物線形モデル、楕円形モデル、形態要素モデルなどである。平衡形態の規則は、海岸の長期変遷・浸食の予測、防災・護岸工事、自然に近い平衡海岸形態作りなどの面において多く採用されている。海岸の平面平衡形態の規則は、砂質海岸の浸食と安定を明らかにするための重要課題となっている。

海岸の平面平衡形態モデルから、海岸の平面平衡規則に関する研究の新しい可能性が見て取れる。理論面において海岸研究に新しい研究方法を提示してくれると同時に、実用面においても有意義である。数値モデルに基づいた経験的な公式には、メカニズムの分析が不十分である。放物線形モデル、楕円形モデル、形態要素モデルなどは岸線の形と一致させて分析されているが、岸線の形態とこれらの関数との関係性について十分分析されていない。実際には、岬間岸線変化は複雑な非線型動力システムであり、海湾の平衡形態は単なる数理的関数で解説できるものではない。現在の岸線平面平衡形態モデルは、海湾の安定性を判断するにはまだ明らかにされていない問題が残っている。問題の一つは、主波向の確定である。ほとんどの天然海湾において、入射波の方向は様々であり、特に季節風環流の影響を受けている華南の海岸地帯において季節の影響を受けるが、今までのモデルにおいては入射波の方向の確定は明らかにされていない。もうひとつの問題は、「岬角」の定義は明確ではなく、位置確定は困難である。現在のモデルにおけるこれらの欠点を考慮し、「岬角」を新たに定義する研究者もいる。モデルの指数と主波向の確定方法を明確にし、華南の代表的な海湾をサンプルにし、「岸線平衡形態神経ネットモデル」が打ち出された。模擬海湾と海南島場海湾との対照研究を通じて、「神経ネットモデル」が放物線モデルより理想的なモデルであることが明らかにされた。

4. 終わりに

現在、地形の動力学的方法は、各国において海浜地形変化研究の主な研究手法となっている。本論文は、海岸環境の多尺度変遷の角度から、砂質海岸の浸食の地形動力学メカニズムにおける五つの研究成果を紹介した。

地球温暖化による海面の上昇、海洋事件、海岸浸食などの問題に直面し、砂質海岸の変化に対する研究にはまだ課題が多く残っている。中国においては、海浜地形変化、長周期重力波、沿岸循環、Wavesetup効果、砕波帯地形の動力状態と浸食方式に関する研究はまだ少ない。

海岸の長期変化と海岸浸食の究極平衡形態についての研究はまだ不十分である。代表的な海岸をサンプルにし、長期にわたる観測プロジェクトを実施し、立体的な方法と新技術を導入し、波、流れ、潮、風などの海岸の動力学的要素を観測しなければならない。継続的な観測を通じて、当地区における地形、岸線形態、沈泥の特徴との関連性を把握する必要がある。高精度のデータ収集・管理システムを導入し、当地区の海岸環境問題に対して動力学、ランダム手法、統計などの研究方法を総合的に採用し、海岸浸食の分析と予測を行わなければならない。

深海の超好熱微生物の多様性とその資源的潜在能力

•Profile•



肖 湘 Xiao Xiang ●上海交通大学生命科技学院教授

1968年10月生まれ。1998年に華中農業大学生命科技学院を卒業、分子生物学の博士学位を取得。1998-2001年：ドイツ Osnabrueck大学でポストドクターとして研究に従事。1998-2008年：国家海洋局第三海洋研究所に勤務、海洋生物遺伝資源重点实验室の副研究員、研究員、主任を歴任。2009年-現在：上海交通大学生命科技学院教授。

国内における系統的な深海微生物研究の第一人者、SCI論文の発表数は50本あまり。2006年には国家傑出青年基金を取得、2008年には中国大洋深海生物調査首席科学者を担当、2009年の論文2本がウェブサイトNature China上で注目論文に選出、優秀論文として推薦。

深海熱水噴出孔のチムニーは、地殻内のマグマと海水の相互作用を通じて形成された特殊な地質構造であり、この環境は初期の地球環境に類似しているとされている。チムニーの噴出口からはガスや金属イオンが絶えず噴出し、温度勾配と化学物質の濃度勾配を形成している。近年、環境ゲノミクスの発展に伴い、ますます多くの熱水域で珍しい微生物群集が発見されている。しかし、深海の熱水生育環境は複雑かつ極端であるため、人工的に純培養できる菌株は極めて少なく、統計学的に見るとほとんどゼロに近い。このため、工学技術を十分に利用して深海環境のシミュレーションと微生物培養を行い、環境ゲノミクスと結びつけることは、深海の超好熱微生物の多様性及びその資源的潜在能力を十分に理解する上で役立つ。

1. 熱水生態系における微生物多様性の研究

2006年、ファン・デ・フーカ海嶺にて行われた潜水船「アルビン (Alvin)」による科学調査で、我々は強烈な勢いで噴出する小さなチムニー（噴出温度は310℃）にコーン型のキャップを設置した。高温の流体はキャップの中央部分から噴出し、数日後にはキャップの頭頂部に新たなチムニーが形成された。この新チムニーはProto-Oと名づけられ、キャップ内の硫化物と無水石膏はProto-Iと名づけられた。Proto-Oは海水と絶えず交じり合う多孔質のチムニーの代表であり、一方のProto-Iはキャップによる隔離で海水との混合が阻止され、チムニーの元来の硫酸塩と硫化物の構造がよりはっきりと見て取れる。このチムニーは誕生から15日間後に回収され、後続研究が行われた。

Proto-OとProto-Iの生物量は非常に少なく、DNA含有量はわずか5-10ng/g（湿重量）だった。一方、成熟したチムニーである4143-1は生物量が比較的豊富で、DNA含有量は200ng/gに上った。成熟したチムニーには、 4.6×10^9 copies/g（湿重量）の細菌の16S rRNA遺伝子と、約 10^4 copies/g（湿重量）の古細菌の16S rRNA遺伝子が含まれていた。Proto-OとProto-IからはPCR産物を取得できなかった。

4143-1のサンプルの細菌群集にはgamma-、epsilon-、alpha-、delta-Proteobacteria、Nitrospirae、Bacteroidetes、Planctomycetesなどが含まれる。古細菌群集は相対的にシンプルで、ユリアーキアを豊富に含んでいる。未確定のユリアーキア・クラスター（Unidentified Euryarchaea cluster）とThermococcusのクローンライブラリにおける割合はそれぞれ51%、42%で、含有量が最も多かった。

新チムニーのDNA含有量は非常に少ないため、GeoChipによるハイブリダイゼーションの前に、十分なDNA量を確保するべく詳細な全群集ゲノム増幅（WCGA）が行われた。GeoChip上には細菌由来の遺伝子8371個、古細菌由来の遺伝子594個があり、ハイブリダイゼーションの結果、Proto-Iからは113個の遺伝子が、Proto-Oからは504個の遺伝子が、そして成熟したチムニーである4143-1からは5414個の遺伝子が検出された。チムニーの生長過程では、炭素、窒素、硫黄代謝に関連する遺伝子が短期間に大きな変化を遂げていることが観測された。この変化は、チムニーの流体と周囲の海水が混合することによって形成された化学物質の濃度勾配によってもたらされたと思われる。

ファン・デ・フーカ海嶺の硫化物サンプルである4143-1のメタゲノムライブラリのフォスミドクローン2880個に対して454ハイスループットシーケンシングを行ったところ、計308,034の配列データを取得、長さは平均227bpだった。域（ドメイン）レベルでは、対応する分類群に分布するEGT遺伝子が61809個あるが、門・綱・目・属レベルでは、対応する分類群に分布するEGT遺伝子の数はそれぞれ54337個、44149個、31923個、23093個となっている。

域レベルでの分類構造：

細菌の遺伝子の割合が85.88%にのぼることから、この環境では細菌が主な構成要素であることがわかる。真核生物の遺伝子は4.18%を占めた。さらなる分析により、これら真核生物の配列の断片は、トリパノソーマなど、いくつかの原生生物の配列であることがわかった。古細菌の遺伝子はこの環境において1.24%を占めた。このうち、大多数（約95%）のEGT遺伝子はユリアーキオータ門に

分布し、クレンアーキオータ門はわずかだった。1.17%のEGT遺伝子はウイルスの分類群に分布した。

門レベルでの分類構造：

真核生物及びウイルスの配列が分類に及ぼす影響を除外するため、原核生物のEGT遺伝子（pEGT）のみについて研究した。すなわち、同分類群におけるEGTの数を同分類レベルにおける全てのpEGTの数で割った数となる。門レベルでは、プロテオバクテリア門の割合が最も多く、総pEGT数の75%を占めた。次に、バクテロイデス門が続き、総pEGT数の4.59%を占めた。その他、フィルミクテス門が2.46%、アクチノバクテリア門が1.36%を占めた。シアノバクテリア門、airborne microbe門の割合は比較的少なく、それぞれ0.86%、0.88%だった。

綱レベルでの分類構造：

ガンマプロテオバクテリア綱は同分類レベルで占める割合が最も多く、pEGT数の29%を占めた。その他、アルファプロテオバクテリア綱は14.6%、ベータプロテオバクテリア綱は9.8%、デルタプロテオバクテリア綱は4.7%、イプシロンプロテオバクテリア綱は1.9%で、割合はいずれも比較的高かった。ガンマプロテオバクテリア綱のpEGTは59の属からなり、アルファプロテオバクテリア綱、ベータプロテオバクテリア綱、デルタプロテオバクテリア綱、イプシロンプロテオバクテリア綱のpEGTはそれぞれ44、22、13、4つの属からなる。

目レベルでの分類構造：

クロマチウム目の割合が最も多く、同分類レベルのpEGT全体の6.3%を占めた。その他、バークホルデリア目、アルテロモナス目、リゾビウム目、ロドスピリウム目も比較的高く、それぞれ4.6%、4.5%、4.4%、4.2%を占めた。

属レベルでの分類構造：

Nitrosococcus属が最も多く、8.1%を占めた。シェワネラ属、シュードモナス属、Methylcoccus属、アルカリリムニコラ属も比較的高く、それぞれ4.4%、4.0%、2.3%、2.1%を占めた。

2. 超好熱微生物の培養

熱水環境で培養できる主な深海古細菌にはテルモコックス科がある。テルモコックス科は幅広く分布し、多様性も豊富で、様々な環境で主導的な地位にある。このことから、同群集が非常に重要な生態作用及び、極めて強い環境適応能力を持つことがわかる。我々は、好圧性細菌数株と絶対好圧性細菌1株を含む、テルモコックス科の古細菌50株あまりを分離した。深海熱水のサンプルを10mlのTRM培地中に直接接種し、85℃と95℃で培養した。ほとんどのサンプルは接種から12～24時間後に混濁が見られた。顕微鏡検査により、多数の菌が黒い球形をしていることがわかった。一部の細胞は分裂中のため双球形をしており、細胞のサイズはほとんど同じで、運動

性を備えていた。嫌気管からサンプルを取り出す際、強烈なH₂S臭があった。集積培養物に対し、希釈・ロールチューブ法による培養を行い、希釈倍率は約10000で、顕微鏡検査により得た細胞濃度に基づき調整した。接種後、12～24時間でコロニーが出現した。

108℃/30MPaでの集積培養は、ピュロコックス属を分離させるのにとっても有効な方法である。Guaymas海盆の熱水排水口では、テルモコックス属の多様性が高く、ピュロコックス属の多様性は低い。このほか、今研究により、油を含む熱水系中のテルモコックス科群集と、油を含まない熱水系中のテルモコックス科群集には大きな差がないことがわかった。つまり、油が含まれるかどうかは、テルモコックス科群集の分布に影響する決定的な要素ではない。このため、テルモコックス科群集には多環芳香族炭化水素に対する比較的強い耐性があり、油を多く含む環境にも適応できると推測される。遺伝子マーカーの研究においては、EF-2は異なる近縁菌株間でちょうど良い差異があり、異なる菌株の系統発生関係を適切に反映できることから、テルモコックス科の分類研究において、16S rDNAの代替となる遺伝子マーカーとなりえる。

Pyrococcus yayanossi CH1は現在世界唯一の、偏性好圧性を持つ超好熱古細菌である。同細菌は、大西洋リッジにある水深4100メートルのAshadze熱水域で分離された偏性嫌気性古細菌であり、その細胞は球状で、菌のサイズは1.0μm×1.5μm、鞭毛を有し、遊動性を備え、単体または対で配列し、一部は串状に配列する。生育温度範囲は80～107℃で、最適温度は98℃。生育圧力範囲は15～150MPaで、最適圧力は52MPa、150MPaの圧力下でも生育が可能だ。生育pH範囲は6.0～9.5で、最適値は7.5-8.0。生育塩分濃度範囲は2.5%～5.5%で、最適濃度は3.5%。最適の生育条件下では、世代時間が最短で44分、最大細胞濃度は8×10⁸/mLに達する。単体硫黄は生育に必須ではないが、生育を促進することができる。従属栄養培養するためには、ペプトン、トリプトン、酵母エキス、牛肉エキス、ブレインハートインフュージョン、カゼイン加水分解物などのたんぱく質類を利用する必要がある。G+C含量は49.0±0.51%。OriCナンバーはEU682400（275bp）。16S rDNAナンバーはEU682399（1424bp）。

3. 熱水環境の微生物酵素源の潜在能力と将来の展望

Guaymas海盆の熱水排水口のチムニーに対してPyrosequencingメタゲノムシーケンシングを行い、メタゲノムFosmidライブラリを構築した。個体群の構造統計分析により、Guaymas海盆のチムニーの微生物多様性は、同地区の堆積物及びその他の地区のチムニーよりも低いことがわかった。その他の地区と同じく、プロテウス菌が個体群の中で優位を占めており、中でもδサブグループが大多数を占めたほか、γ、εサブグループも重要な位置を占めている。古細菌のサンプルはクレンアーキア

とユリアーキアに集中しており、中でもアーケオグロブス目が多かった。このほか、ごく少ない一部の配列はその相同種属がなかなか見つからなかった。これは、まだ未発見の新菌が存在していることを意味する。アミラーゼ、リパーゼ、プロテアーゼ、DNAポリメラーゼなど、応用価値のある酵素の機能分類及び、相同遺伝子の種の由来について分析を行った。

グリコシドヒドロラーゼ：

アミノ酸配列がグリコシドヒドロラーゼに類似するコンティグ配列52本を取得した。このうち、アミラーゼは24本、グルコシダーゼは16本、ガラクトシダーゼは4本、セルラーゼ、ラムノシダーゼ、グルカナーゼは各2本、マンナナーゼ、キシラナーゼは各1本。多糖分解酵素のうち、海洋中に幅広く存在するキチナーゼは得られなかった。取得したグリコシドヒドロラーゼのコンティグ配列は、その相同配列のうち、40本が細菌由来のもので、それぞれプロテオバクテリア門、テルモトガ門、フィルミクテス門、緑藻植物門、クロロフレクスス門、ニトロスピラ門、クラミジア門、アシドバクテリウム門、デिनコッカス-サーマス門だった。また、1本はクラミジア由来、11本は古細菌由来で、主にユリアーキア、クレンアーキアだった。

アミラーゼ：

アミラーゼ遺伝子に類似したコンティグ24本のうち、相同性で対比したところ、13本は α -アミラーゼ、7本はブルナーゼだった。イソアミラーゼとグルコアミラーゼも2本ずつで、 β -アミラーゼは取得できなかった。うち、一部の配列では、対応する酵素遺伝子のアミノ酸配列との相同性がいずれも40%以下であるため、新酵素と思われる。

リパーゼ/エステラーゼ：

リパーゼ/エステラーゼの配列は8本得られた。相同配列はいずれも細菌由来のもので、うち7本がプロテオバクテリア門、1本がフィルミクテス門。予測される機能も単一的で、ほとんどがI型、III型のリパーゼだった。

プロテアーゼ：

計196本のコンティグがプロテアーゼ遺伝子と類似しており、機能別に分けると、システインプロテアーゼが14本、セリンプロテアーゼが35本、メタロプロテアーゼが68本、アスパラギン酸プロテアーゼが12本、カルボキシペプチダーゼが5本、アミノペプチダーゼが3本だった。このほか、28本のコンティグが分類できなかった。これらのプロテアーゼのうち、46本が古細菌由来、大部分がユリアーキオータ門で、その中でもテルモコックス属が主だった。その他は細菌由来で、ほとんどがプロテオバクテリア門だった。188本のコンティグはDNAポリメラーゼに類似しており、取得したDNAポリメラーゼ遺伝子の断片はほとんどがDNAポリメラーゼIIIだった。相同遺伝子は多くがプロテウス菌由来で、その他好熱古細菌、細

菌由来のものもあった。

アミラーゼ遺伝子の増殖：

何段階にもわたる増殖を経て、コンティグが44769内に含まれるアミラーゼ遺伝子の全配列を取得した。環境ゲノムDNAをテンプレートに用いて、同遺伝子配列両端のプライマー配列であるamyA-FとamyA-Rに基づきPCR増殖を行い、2k bの断片を得た。この断片をTAクローニングした後、陽性クローンを選び出し、陽性クローンのプラスミドを抽出し、MspI / RsaIで消化を行い、7種類の異なるバンディング・パターンを得た。全てのバンディング・パターンから1つずつのプラスミドを選びシーケンスを行い、7本の比較的完全なアミラーゼ配列を取得した。配列の対比により、その相同配列のほとんどが好熱古細菌のアミラーゼ遺伝子であることがわかった。

深海の新構造化合物：

深海熱水噴出口の付近には、密度と生物多様性が非常に高い生物群集が存在している。これら生物群集における各種の生命体は、化学合成作用と生育スピードの差異から、浅海生物と比べて独特な代謝メカニズムを持っており、このため構造の新規性を持つ小分子を生産できる。単純な浸透圧調節分子または脂質から、複雑な二次代謝産物にいたるまで、様々なものが発見されている。例えば、好熱性放線菌から分離された化合物Thermorubinは、キサントンとアントラセンの特徴を持ち、グラム陽性菌に対してとても強い選択性抗菌作用を持つ。グラム陰性菌に対する抗菌作用はとても弱く、酵母と真菌に対してはほとんど抗菌作用がない。Thermoactinomyces strain TM-64はチアゾール核を有するアルカロイドTM-64を生合成でき、その構造解析は全合成を通じて確認できる。好熱菌Bacillus stearothermophilus UK563からは、抗腫瘍性を持つ三硫化物BS-1を分離した。ビス2-ヒドロキシエチル三硫化物の構造特徴を持つこの化合物は初めて天然由来で取得したもので、薬理学研究により、同化合物がマクロファージの細胞溶解を活性化できることがわかった。このほか、酸性環境で生育する耐酸性古細菌Pseudomonas cocovenenansからは、構造の新規性を持つラクタムスルホン酸塩化合物・MM42842を分離した。深海の底に生育するAspergillus fumigatus strain BM939は巨大な水圧に耐え、構造の新規性を持つ一連の代謝物を生産できる。例えばtryprostatin Aという同化合物は細胞周期を遮断する作用がある。

超好熱微生物の新構造化合物を分離する上で要となるのは、極限の高温・高圧条件下における微生物の大規模な培養だ。その培養規模は10-100lに達する必要がある。しかし、現在の培養体積は一般的に500ml以下であり、新しいバイオリクターの設計に向けて、高い要求が提起されたこととなる。このほか、深海熱水サンプルの分離効率を高める必要がある。例えば高温・高圧環境下での流動培養法を通じて熱水の物理的および化学的環境の

シミュレーションを実現すれば、極限環境微生物の分離または集積培養効率を高めることができる。単細胞シーケンス技術と環境ゲノミクス・メタボロミクス技術を組み合わせることで、深海超熱水微生物の更なる遺伝子・代謝物情報を得ることができる。

高い空間解像度に基づく熱汚染リモート・センシングの研究の現状

•Profile•



趙 冬至 Zhao Dongzhi ●国家海洋環境監測センター研究員

1964年12月生まれ。1982-1989年、蘭州大学学部・修士課程（自然地理学科修士）。2004年、華東師範大学河口海岸国家重点実験室博士課程修了（自然地理学科博士）。1989-1996年、甘肅省科学院地質自然災害予防研究所。1996年から、国家海洋環境監測センター海洋リモート・センシング監測室主任、研究員、海洋リモート・センシング要素評価工作グループの首席専門家。大連海事大学客員教授、中国リモート・センシング協会環境リモート・センシング分会副理事長、遼寧リモート・センシング応用協会副理事長、国家自然科学基金審査員。『リモート・センシング学報』、『熱帯海洋学報』、『海洋環境科学』編集委員。

主な科学研究領域：汚染/赤潮水体のスペクトル測量技術と特徴研究、水体生物-光学計算方法研究、海洋生態環境要素の衛星リモート・センシング監視測定技術、環境災害（赤潮、石油漏れ、海岸浸食など）の衛星リモート・センシング監視測定技術、海洋-空気の二酸化炭素の衛星リモート・センシング監視測定技術、海洋生態環境（河口、滨海湿原、マングローブ、サンゴ礁など）の衛星リモート・センシング監視測定と生態評価技術、海洋エアゾール現場と衛星リモート・センシング監視測定技術、衛星海洋環境応用工学、GISと衛星リモート・センシングソフトウェア開発・赤潮分布、災害の早期警報・予測・リスク・損失評価。

国家自然科学基金、国家科学技術難関攻略計画、「863」計画など50数項目の科学研究プロジェクトを担当。100数本の論文を発表、8部の著作を出版。海洋衛星リモート・センシング監視測定国家と業界技術規格など20数件の規格を担当。国家海洋局などの省庁の科学技術成果賞10項目を獲得。新型実用特許1件、ソフトウェア著作権2件、遼寧省科学技術成果1件。

共著者：王 祥

熱汚染とは、石炭・石油などによる工業生産に伴って発生する熱エネルギーが、大気中や海水中に放出され、気温や海水温を上昇させる現象である。沿海地区の開発と経済発展に伴い、海水の熱汚染問題はますます深刻になっている。火力発電所、原子力発電所などからの冷却水の排出、石油、化学工業、製紙のなど工業廃水にも大量の熱エネルギーが入っている。熱エネルギーが水体に排出された後、水温の上昇により、生物の異常と死亡を招く恐れがあり、生態環境に対する影響は深刻である。そのため、熱汚染に対する研究は非常に重要であり、意義のあることである。

リモート・センシングによる海水面温度の観測は、熱汚染を監視・測定する手段の一つである。1800年、イギリス人科学者ハーシェル氏（Herschel）により赤外光が発見された。200年以上が経った現在、赤外線技術は急速な発展と進歩を遂げた。TIROS-II 気象衛星が打ち上げられた20世紀60年代から、人類は赤外線リモート・センシングで海水面温度の観測を行ってきた。今まで、AVHRR、MODISなど多くの赤外線リモート・センシングデータは海水面温度の観測に運用されている。4キロメートルの解像度のMODIS Terra/Aquaなど多くの海水面温度の観測製品が作られた。しかし、数キロメートルの解像度の設備は、海岸と陸地にある水体など狭い地区を観測するには、まだ技術力的には不十分である。赤外線リモート・センシング技術の進歩と解像度の高まりに伴い、海外にはTMの120m、ASTERの90m、ETM+の60mなどの高い空間解像度の熱赤外線リモート・センシング設備が現れた。中国において、熱赤外線技術はまだ遅れているが、CBERS-02 IRMSSの156m、HJ-1B IRSの300mなど比較的高い解像度

の熱赤外線リモート・センシング設備が作られた。沿海地区の熱汚染リモート・センシングの参考となると考え、本論文は、熱汚染リモート・センシングの観測における高い空間解像度の衛星の運用の現状を紹介する。

1. 関連理論

1.1 海水面温度について

海水面温度SST（Sea Surface Temperature）とは、海洋表層の一定の深さの水体の温度のことである。深さにより、「表皮水温（Skin temperature）」と「現場水温（Bulk temperature）」に分けられている。「表皮水温」とは、海の表面の温度のことである。杜勇などの研究によると、「海面の赤外線輻射は海表面の水分子を通じて把握されるものであり、衛星リモート・センシングの観測温度は海水の表皮水温である。赤外線技術による観測は、0.1ミリメートル以内の深さの水温の観測である。中国において、「現場水温」の定義は統一されておらず、一般的には0.5～1.0mの深さの海水温度を「現場水温」と称している。海外の場合、0.5～1.5mの深さの水温を「現場水温」と称するのが一般的である。「現場水温」は接触方式の温度測定によって測定されるのが一般的である。

1.2 熱赤外バンド海水面温度の逆演繹法

自然界において、熱力学温度（Kinetic temperature）より温度の高い物体から常に一定のエネルギーの電磁波が放射されている。その電磁波のエネルギーと波長のスペクトル密度は温度の関数となっている。温度が高くなると、電磁波のエネルギーも増大し、エネルギーの最大波長が短くなる。Planck法則によると、黒体輻射スペクトルの特性は次のようにまとめることができる。

$$(1) \quad B_{\lambda}(T) = \frac{hc^2}{\lambda^5 (e^{hc/\lambda kT} - 1)}$$

ここで、 $B_{\lambda}(T)$ は黒体放射スペクトルの強さ、 λ は波長、 h はプランク定数、 c は光速、 k はボルツマン定数、 T は熱力学温度である。

Planck法則から、黒体放射スペクトルの強さ、温度、波長の定量的関係が分かる。上記の公式によると、温度が確定された後、Planck法則によってエネルギー源のスペクトル分布を明らかにすることができ、そのエネルギーのピーク時の波長を推定することが可能である。逆に、物体のエネルギー分布と放射スペクトルの強さから、物体の実際温度を知ることができる。これは、海水面温度が逆演繹法でわかる理論基礎となっている。リモート・センシング逆演繹法で推定した海水面温度の熱赤外バンドの波長範囲は10.4～12.5 μm である。

2. 衛星熱赤外SST逆演繹法

TIROS-IIが打ち上げられて以来、学者たちは衛星リモート・センシング技術とデータに基づく温度逆演繹法研究を行ってきた。リモート・センシング応用研究の深まりに伴い、放射率（emissivity）が決まっている場合、放射線輸送方程式に基づく多くの逆演繹法が運用されている。その代表的な3つの方法をここで紹介する。

2.1 単一熱赤外バンド法

単一熱赤外バンド法とは、衛星リモート・センシングの熱赤外バンドに基づき、温度の逆演繹を行う方法であり、おもに単一バンドのリモート・センシング設備で運用されている。この方法では、大気湿度、温度などのデータに基づき、一定の大気モデルで大気放射と大気透過度を推定し、放射線輸送方程式によって対象の放射光度を

算出する。その体表的な例は、Wengなどによる逆演繹法、覃志豪などによる計算方法、Jimenez-Munozなどによる普遍熱赤外バンド法などがある。

2.2 「Split Window法」

「Split Window法」は1975年にMcMillinによって発表され、もっとも早く水体表面温度の逆演繹法計算に運用された。「Split Window法」では、少なくとも2つのバンドの衛星熱赤外放射のデータに基づき、2つのバンドにおける大気の吸収率の違いを利用し、大気の影響を排除・較正する。2つのバンドの放射の光度の線形結合で温度を算出する。隣接する赤外線バンドによる方法がリモート・センシング設備に運用されている。「Split Window法」は次のようにまとめることができる。

$$(2) \quad T_s = A_0 + A_1 T_4 + A_2 T_5$$

ここで、 T_s は地表温度、 T_4 と T_5 はそれぞれ隣接する2つの赤外線バンドの光度温度、 A_0 、 A_1 、 A_2 は大気状況による放射率の係数である。

この「Split Window法」の改良の研究も進んでいる。たとえば、BeckerとLiは「局地におけるSplit Window法」を発表し、WanとDozierは「通用Split Window法」を打ち出し、NiclosなどはMODIS-31、32バンドのデータに基づく逆演繹法研究を行っている。

2.3 多角度法

多角度法は単一バンドの多角度法と多バンドの多角度法からなっている。単一バンドの多角度法の場合、異なる角度から同一物体に対して観測する際、大気ルートの違いにより、大気吸収も異なり、違う角度から観測した光度の線形組み合わせで大気の影響の排除・訂正が可能となる。多バンドの多角度法はどの角度から観測しても

センサ バンド番号	Landsat-5 TM Band 6	Landsat-7 ETM+ Band 6	Terra ASTER Band 10 11 12 13 14	HJ-1B IRS Band 8	CBERS-02 IRMSS Band 9
帯域幅 (μm)	10.4 ~ 12.5	10.4 ~ 12.5	10 8.125 ~ 8.475 11 8.475 ~ 8.825 12 8.925 ~ 9.275 13 10.25 ~ 10.95 14 10.95 ~ 11.65	10.5 ~ 12.5	10.4 ~ 12.5
空間解像度 (m)	120	60	90	300	156
幅 (km)	185	185	60	720	119.5
期間 (天)	16	16	16	31	26
放射計測校正公式	$L = G \cdot DN + B$	$L = G \cdot DN + B$	$R = C_0 + C_1 N + C_2 N^2$	$L = (DN - b) / g$	$L = G \cdot DN + I$
放射計測校正係数	$G = 0.055158$ $((W / \text{m}^2 \text{sr } \mu\text{m}) / \text{DN})$ $B = 1.2378$ $(W / \text{m}^2 \text{sr } \mu\text{m})$	低ゲイン: $G = 0.067087$ $((W / \text{m}^2 \text{sr } \mu\text{m}) / \text{DN})$ $B = -0.07(W / \text{m}^2 \text{sr } \mu\text{m})$ 高ゲイン: $G = 0.037205$ $((W / \text{m}^2 \text{sr } \mu\text{m}) / \text{DN})$ $B = 3.16$ $(W / \text{m}^2 \text{sr } \mu\text{m})$		$g = 61.472$ $(\text{DN} / W \text{m}^{-2} \text{sr}^{-1} \mu\text{m}^{-1})$ $b = -44.598(\text{DN})$	$G = 8.53$ $(\text{DN} / W \text{m}^{-2} \text{sr}^{-1} \mu\text{m}^{-1})$ $I = 44.92(\text{DN})$

◎表1 衛星センサ熱赤外バンドの比較

特定な地区の地表温度は一致していることに基づいている。異なるバンド、異なる角度における大気効果の異なりによって大気の影響を排除・校正し、地表温度を逆演繹する。たとえば、ATSRセンサの $11\mu\text{m} \cdot 12\mu\text{m}$ バンドで、 0° と 55° の観測角度で観測したデータに基づき、次のような多バンド多角度の方程式にまとめることができる。

$$(3) \quad \begin{aligned} T_s &= A_{0,\theta} + A_{1,\theta} T_{\theta}^{11} + A_{2,\theta} T_{\theta}^{12} \\ T_s &= A_{0,\theta} + A_{1,\theta} T_{\theta}^{12} + A_{2,\theta} T_{\theta}^{11} \end{aligned}$$

ここで、 T_s は地表温度、 T_{θ}^{11} 、 T_{θ}^{12} はそれぞれ $11\mu\text{m}$ 、 $12\mu\text{m}$ バンドの光度温度； $A_{0,\theta}$ 、 $A_{1,\theta}$ 、 $A_{2,\theta}$ は地表発射率と大気状態による係数である。

3. 高い空間解像度衛星データSST逆演繹法

3.1 Landsat TM/ETM+ SST逆演繹法

Landsat TM/ETM+は単一の熱赤外バンドであり、そのバンドの設定は $10.4 \sim 12.5\mu\text{m}$ にされており、解像度が異なっている（表1を参照）。上述した各種の計算方法の中、単一熱赤外バンド法に適合している。

3.1.1 覃志豪による単一ウィンドウ計算方法

放射線輸送方程式における大気データの影響を排除するため、Landsat TM6に対して温度逆演繹の単一ウィンドウ計算方法が覃志豪などにより発表された。その絶対誤差は 0.4°C 以内という。計算方法の方程式はつぎのとおりである。

$$(4) \quad \begin{aligned} T_s &= \frac{1}{C_6} \{ [a_6(1 - C_6 - D_6) + b_6(1 - C_6 - D_6) + C_6 + D_6] T_6 - D_6 T_a \} \\ C_6 &= \tau_6 \varepsilon_6 \\ D_6 &= (1 - \tau_6) [1 + \tau_6 (1 - \varepsilon_6)] \end{aligned}$$

ここで、 T_s は地表温度、 a_6 、 b_6 は復帰係数である。具体的には、 $a_6 = -67.35535$ 、 $b_6 = 0.458608$ である。 ε_6 は地表放射率、 τ_6 は大気透過度、 T_6 はセンサの光度温度、 T_a は大気平均温度、 T_0 は低層気温である。

覃志豪などは、大気中の水蒸気の含有量と低層気温に基づき、大気透過度と大気平均温度の推定方程式を発表している。（表2、表3を参照）

切断面	水蒸気の含有量 w (g/cm^2)	大気透過度推定方程式
高温切断面	0.4 ~ 1.6	$t_6 = 0.974290 - 0.08007w$
	1.6 ~ 4.0	$t_6 = 1.031412 - 0.11536w$
低温切断面	0.4 ~ 1.6	$t_6 = 0.982007 - 0.09611w$
	1.6 ~ 4.0	$t_6 = 1.053710 - 0.14142w$

◎表2 覃志豪などによるLandsat TM6の大気透過度推定方程式

大気モデル	大気平均温度推定方程式
1976年のアメリカ標準大気	$T_a = 25.9396 + 0.88045T_0$
熱帯大気	$T_a = 17.9769 + 0.91715T_0$
中緯度夏季大気	$T_a = 16.0110 + 0.92621T_0$
中緯度冬季大気	$T_a = 19.2704 + 0.91118T_0$

◎表3 覃志豪などによるLandsat TM6の大気平均温度推定方程式

3.1.2 刑前国などによる改良計算方法

刑前国などは、覃志豪の方法に基づく計算方法の改良を発表し、Landsat TM/ETM+データを利用し海岸海水温度の逆演繹を行った。その後、Landsat5 TM通過当日、大亜湾海域において海表温度の同時測量を行った。水温は水面下0.5mの深さにおける20箇所の温度に基づいており、それぞれの実測温度は $16.47^\circ\text{C} \sim 18.45^\circ\text{C}$ であった。逆演繹によるそれぞれの温度は、実測温度より 2.40°C 低いことが分かった。Landsat7 ETM+については、同日衛星通過時のMODIS Terra TIRデータによるSST結果と比較したら、両者の違いは $0.23^\circ\text{C} \pm 0.57^\circ\text{C}$ であった。その計算方法の方程式（4）の示しているとおりである。

刑前国の計算方法は、今まで大気モデルによる大気温度と水蒸気の含有量の方法を推定する方法をやめ、大気平均温度と水蒸気の含有量を推定する通用モデルを提示した。

$$(5) \quad T_a = \frac{1}{w} \int_0^z 1000 T_z \rho_{vz} dz$$

$$(6) \quad w = \int_0^z 1000 \rho_v dz$$

ここで、 w は水蒸気の総量、 T_z は地表まで $z(\text{km})$ のところの大気温度、 ρ_{vz} は地表まで $z(\text{km})$ のところの単位体積の水蒸気量、 z は高さ (km) 、 ρ_v は海表面の水蒸気の含有量である。

3.1.3 Y.Sugaなどの計算方法

Y.Sugaなどは日本西部広島湾地区のLandsat7 ETM+熱赤外バンドのデータに基づき逆演繹を行い、low/high gain状態における放射光度と温度転換の近似方程式を発表している。地面における同時観測データをもとに、逆演繹の結果が検証された。Low gain状態のデータ相関係数は $0.9821 \sim 0.9994$ であり、high gain状態の係数は $0.9653 \sim 0.9987$ である。夏季における温度差の変化は $+0.7^\circ\text{C} \sim -1.5^\circ\text{C}$ 、秋季は $+0.4^\circ\text{C} \sim -0.9^\circ\text{C}$ 、冬季は $-1.6^\circ\text{C} \sim -3.4^\circ\text{C}$ 、春季は $+0.5^\circ\text{C} \sim -0.5^\circ\text{C}$ である。冬季の温度差が比較的大きく、その他の季節の温度差は $0 \sim 1.5^\circ\text{C}$ の間にあることが分かった。計算方法の方程式は次の通りである。

$$(7) \quad \begin{aligned} T &= c_2 / [\lambda \ln \{ (\tau_\lambda \varepsilon_\lambda c_1 \lambda^{-5} / \pi L_\lambda) + 1 \}] \\ c_1 &= 2\pi h c \\ c_2 &= h c / k \end{aligned}$$

ここで、 λ は波長、 L_λ はバンドスペクトルの輻射度、 h はプランク定数、 k はボルツマン定数、 T は地表温度、 c は光速、 τ_λ は大気透過率、 ε_λ は発射率である。

Y.Sugaなどがlow/high gain状態における光度と温度の転換の近似方程式を発表している。

$$(8) \quad \begin{aligned} L_{\text{lowgain}} &= 4.5623e^{-4} \times T^2 - 0.2559 \times T + 44.8410 \\ L_{\text{highgain}} &= 4.9406e^{-4} \times T^2 - 0.2794 \times T + 48.3504 \end{aligned}$$

3.2 CBERS-02 IRMSS SST逆演繹法

CBERS-02 IRMSSの熱赤外輻射の特性(表1を参照)に基づき、張勇らはJimenez-Munozなどによる普遍単一バンド方法を改良し、温度逆演繹実験を行った。2004年8月17日に青海湖の野外実測データに基づく逆演繹検証によると、リモート・センシングによる逆演繹温度は実際に測った水温と0.09℃の差がある。その計算方法は次の通りである。

$$(9) \quad \begin{aligned} T_s &= \gamma [\varepsilon^{-1} (\phi_1 L_{\text{sensor}} + \phi_2) + \phi_3] + \partial \\ \gamma &= \{ C_2 L_{\text{sensor}} / T_{\text{sensor}}^2 [\lambda^4 L_{\text{sensor}} / C_1 + \lambda^{-1}] \}^{-1} \\ \partial &= -\gamma L_{\text{sensor}} + T_{\text{sensor}} \end{aligned}$$

ここで、 L_{sensor} はセンサの受けた熱輻射の強さ、 T_{sensor} はセンサ光度の温度、 λ は有効波長である。

$C_1 = 1.19104356 \times 10^8 (\text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{sr}^{-1} \cdot \mu \text{m}^{-1})$; $C_2 = 1.4387685 \times 10^4 (\mu \text{m} \cdot \text{K})$ 。

ϕ_1 , ϕ_2 , ϕ_3 は大気にある水蒸気の含有量 ω の関数であり、以下の公式によって算出される。

$$(10) \quad \begin{aligned} \phi_1 &= 0.14714\omega^2 - 0.15583\omega + 1.1234 \\ \phi_2 &= -1.1836\omega^2 - 0.37607\omega - 0.52894 \\ \phi_3 &= -0.04554\omega^2 - 1.8719\omega - 0.39071 \end{aligned}$$

張勇などはIRMSSセンサの熱赤外バンドのスペクトル関数に基づき、Jimenez-MunozとSobrinoによるセンサバンド関数と水蒸気含有量関連の大気状態の方程式を発表し、CBERS-02 IRMSS TIRに通用する大気状態方程式を提示した。

$$(11) \quad \begin{aligned} \phi_1^{\text{IRMSS9}} &= 0.01642\omega^3 - 0.00662\omega^2 + 0.13314\omega + 0.99253 \\ \phi_2^{\text{IRMSS9}} &= -0.10563\omega^3 - 0.33896\omega^2 - 1.91005\omega + 0.23545 \\ \phi_3^{\text{IRMSS9}} &= -0.05495\omega^3 + 0.39116\omega^2 + 0.98775\omega - 0.08896 \end{aligned}$$

3.3 ASTER SST逆演繹法

ASTER TES (Temperature/Emissivity Separation) 方法は、ASTER温度製品のメーカーがよく利用している逆演繹法である。熱赤外線の高スペクトルまたは多スペクトルへの観測に基づく温度と発射率の計算法である。

ASTER TES計算法は主に4つ部分からなっている。まず、最大発射率 ε_{max} を推定し、NEM (Normalized Emissivity Method) モジュールによって目標の表面温度 T_b を予測し、輻射光度 L_b から大気の輻射 $(1 - \varepsilon_{\text{max}}) S_{\downarrow b}$ を取り除き、目標温度の推定値と目標の輻射光度を明らかにし、反復最適化の方法で反射の環境輻射を取り除く。その次に、RAT (RATIO Algorithm) モジュールを通じて、バンド放射率 ε_b とすべてのバンドの平均値で「相対放射率 β_b 」を算出する。次に、MMD (Maximum-Minimum Difference) と最小放射率の関係を通じて最小の放射率 ε_{min} を確定する。最後、反射のAtmosphere Downward Radianceと放射率との偏差を確認する。研究結果によると、逆演繹温度の誤差は1.5K以内であり、放射率の誤差は0.015以内となっている。具体的には次の計算公式の示しているとおりでである。

$$(12) \quad T' = \max(T_b)$$

$$(13) \quad T_b = \frac{c_2}{\lambda_b} [\ln(\frac{c_1 \varepsilon_{\text{max}}}{\pi R'_b \lambda_b^5} + 1)]^{-1}$$

$$(14) \quad \varepsilon'_b = \frac{R'_b}{B_b(T_b)}$$

$$(15) \quad R'_b = L'_b - (1 - \varepsilon_{\text{max}}) S_{\downarrow b}$$

$$(16) \quad \beta_b = \frac{\varepsilon_b}{\sum_{b=1}^5 \varepsilon_b / 5}$$

$$(17) \quad MMD = \max(\beta_b) - \min(\beta_b)$$

$$(18) \quad \varepsilon_{\text{min}} = 0.994 - 0.687 \times MMD^{0.737}$$

$$(19) \quad \varepsilon_b = \beta_b \left[\frac{\varepsilon_{\text{min}}}{\min(\beta_b)} \right]$$

ここで、 R' 、 T' 、 ε' はIterative Processingにおける R 、 T 、 ε 計算の中間変数、 C_1 、 C_2 はPlanck定数、 λ_b はバンドの中央波長、 $B_b(T_b)$ は温度 T_b の黒体放射、 L'_b はセンサが観測した輻射の強さ、 S_{db} は大気Downward Radianceである。

3.4 HJ-1B SST逆演繹法

中国は2008年9月6日に環境観測と災害減少を目的とするHJ-1A/1B衛星を打ち上げた。そのなか、HJ-1Bの搭載している赤外マルチスペクトルカメラ(IRS)は単一の熱赤外線バンドである(表1を参照)。打ち上げ後の経過期間はまだまだ短いため、衛星のデータの逆演繹計算成果はまだ少ない。代表的なのは段四波などによるHJ-1B データに基づく単一バンドの計算方法である。

段四波などは覃志豪とJimenez-Munozの計算方法を参考にし、HJ-1Bの熱赤外線のスペクトル特性に基づき、計算方法を改良した。改良された計算方法に計算方法の精度評価、指数敏感性分析、計算誤差分析などが加えられた。段四波などが温度逆演繹に使用したHJ-1B 熱赤外線リモートセンシング画像は、衛星搭載の AHSアナログデータに基づいて作られたものである。改良された覃志豪の方法で温度逆演繹を行った際、パラメーター地表放射率の誤差は0.01、大気透過率の誤差は0.02、大気平均温度の誤差は2Kであった。逆演繹による温度の範囲は299.9K～352.7Kであり、アナログ温度の範囲(301K～352K)に非常に近いことが分かった。温度の差値は-0.95Kと-1.25K近くに集中しており、逆演繹温度はアナログ温度より1.2K低いことが分かった。改良されたJimenez-Munoz計算方法で逆演繹を行った際、パラメーター地表放射率の誤差は0.01、大気水蒸気の含有量の誤差は0.2g/cm²であった。逆演繹による温度の範囲は300.0K～352.5Kであり、アナログ温度の範囲の301K～352Kに近い。温度の差は-0.65Kと-0.85K付近にあり、逆演繹温度はアナログ温度より0.8K低いことが分かった。

3.4.1 覃志豪の方法の改良

方程式(4)の計算方法に基づき、段四波などはその計算方法を改良した。その中、係数 a_6 、 b_6 は次のように修正された。画像温度の変化範囲は0～30℃にある際、 $a_6=-60.8969$ 、 $b_6=0.439078$ という。変化範囲は20～50℃の間にある場合、 $a_6=-68.3301$ 、 $b_6=0.464012$ という。大気透過率の推定は次のように改定された。

$$(20) \quad \tau_6 = 0.9821 - 0.1241\omega$$

ここで、 τ_6 は大気透過率、 ω は水蒸気の含有量である。地面に近い大気温度 T_0 により大気平均温度 T_a を推定する方程式の改正は、表4の示しているとおりである。

大気モデル	大気平均温度推定方程
熱帯大気	$T_a = 22.13009 + 0.89852T_0$
中緯度夏季大気	$T_a = 20.43072 + 0.90507T_0$
中緯度冬季大気	$T_a = 24.70005 + 0.88894T_0$
1976年のアメリカ標準大気	$T_a = 32.58992 + 0.85112T_0$

◎表4 大気平均温度推定方程

3.4.2 Jimenez-Munozなどの方法の改良

方程式(9)の計算方法に基づき、段四波などはその計算方法を改良し、水蒸気の含有量の関数 ϕ_1 、 ϕ_2 、 ϕ_3 を次のように改定した。

$$(21) \quad \begin{aligned} \phi_1 &= 0.0412\omega^2 - 0.0936\omega + 0.9856 \\ \phi_2 &= -0.7174\omega^2 - 0.8812\omega - 0.3941 \\ \phi_3 &= -0.2639\omega^2 - 0.6499\omega - 0.4703 \end{aligned}$$

ここで、 ω は水蒸気の含有量である。

3.5 逆演繹精度の影響因子

熱赤外バンドの温度の定量逆演繹は、多くの要素の影響を受けている。

熱赤外リモートセンシングの理論の基礎は、地表熱量の平衡である。その中、地表温度は多くの要素に左右されている。つまり、温度変化を発生させるのは、太陽輻射と大気輻射だけではなく、大気急流とUNDERLYING SURFACE'S CHARACTERISTICS などの影響も受けている。そのため、定量温度逆演繹モデル指数はすべての影響因子を含めなければならない。

まず、表面放射率の不確定な面である。地表放射率は、地表成分、物理状態、観測視角、波長変化などの要素と関連しているため、実験室でも野外でも連続的に放射率を測定することは困難である。

そして、大気影響効果の較正は極めて複雑である。熱赤外センサによる測量値は、地表放射率、地表温度の影響を受けているだけではなく、地表とセンサ間の大気の構造の影響をも受けている。そのため、大気の影響効果を較正するのは極めて困難である。「Split Window法」においては、隣接するバンドの大気の異なる吸収率で校正できるが、単一バンド法の場合、単一のバンドのデータしかないため、その他の大気較正方法で大気の影響を排除するしかない。

その他、熱赤外リモートセンシングの空間解像度は視光線と近赤外バンドよりはるかに低い。低い空間解像度により、複合画像が生じる。これにより、理論的な分析は困難となり、つまり異なる温度の複合画像の放射率を定義するのは困難である。それと同時に、実際の測量と定量計算も困難となっている。実際の運用の場合、その代わりに複数の輻射率の平均値を使うのが一般的である。

最後に、データ検証の誤差が存在している。衛星で観測しているのは海洋の「表皮温度 (skin temperature)」であり、その深さは1mm以内となっている。船舶測量の「現場水温 (bulk temperature)」は0～0.5mの深さの温度であり、両者の間の差は平均的には0.3K前後であり、実際には-1.4～+1.2Kに達することもある。

4. 問題点と展望

熱赤外線のリモート・センシングは複雑なシステム工学であり、地表の放射率測定と一定範囲内の放射率の推定などの困難が存在しているが、精確化・定量化は今後の研究方向である。熱赤外リモート・センシングの技術をさらに高めなければならない。

逆演繹、地表温度、放射率を分離することは今後の課題となっている。異なる熱赤外バンドにおける大気スペクトルは、「N+1」個の未知数のN個の連立方程式を構成する。一定の仮定を通じて「N+1」個の未知数を算出することができ、つまり地表温度と放射率を同時に算出することができる。それについて研究者らの意見は一致していない。

大気指数の逆演繹と大気影響の較正は、リモート・センシング定量化における重要な手続きである。リモート・センシング情報には、多くの大気影響要素が入っている。大気指数の測定は困難である同時に、測定値の誤差が大きいため、大気影響要素の較正はリモート・センシング定量化の焦点となっている。現在の熱赤外線定量リモート・センシングにおいて、主に2つの大気影響校正技術が運用されている。1つは「Split Window」技術であり、もう1つは逆演繹である。これらの方法はリモート・センシングに基づき、リモート・センシング設備の各バンドの情報からできるだけ多くの大気情報を収集し、大気吸収などの影響に対する較正を行っている。

放射率の方向とその測量は今後の課題となっている。地物の輻射の方向が異なるため、大気校正の改善とつながっている。多角度、多スペクトル、多極化のリモート・センシングはより信頼できる情報を提供してくれる。地物の放射率を直接測量することによって、放射率の分布、多角度の放射率などの情報を入手することが可能となる。このような研究構想の実現は、定量的熱赤外リモート・センシング研究に大きく貢献することであろう。

リモート・センシング施設の重要問題への取り組みも今後の課題である。リモート・センシング施設のスペクトル解像度と空間解像度がさらに改善されるため、地物スペクトルの特性と一定地区の熱汚染の研究はさらに進むことであろう。それと同時に、赤外線のレーザーライダーの開発と応用により、赤外線リモート・センシングの研究も前進すると考えられる。空間解像度と情報量など面において画期的な発展が期待できる。

リモート・センシング施設の精度を高めることも重要

である。設備が宇宙で運行されるため、設備老化などの原因で精度が低下することがある。設備の精度の保障ができなければ、リモート・センシングの研究もうまくできない。今後は、リモート・センシング施設の精度を高めなければならない。

データ検証の誤差を低減させることも重要な課題である。現在、海表面温度の逆演繹、船舶測定データなどの面において問題が残っており、海水温度のデータには誤差が存在している。今までのデータやArgoなど信頼できる測量データを通じて誤差を低減させるのが現在のやり方であるが、今後は逆演繹の計算方法などを通じて誤差を低減させる必要がある。

海水淡水化と経済の持続的発展におけるその役割

●Profile●



王 世昌 Wang Shichang ●天津大学化工学院教授

1934年11月生まれ。1963年天津大学大学院卒（化学工学専攻）。天津大学学位評定委員会副主任、同大学大学院副院長、同大学海水淡水化・膜技術研究センター主任を歴任。「膜科学と技術」副編集長、中国海洋学会理事、中国海水淡化化学会副理事長および名誉理事、中国脱塩協会副理事長、国際脱塩協会（IDA）理事などを兼務。主に分離工学、海水淡水化、膜・膜分離技術、逆浸透法におけるエネルギー回収技術などを研究。国家自然科学基金の重点プロジェクト、第9次～第11次5ヵ年計画の複数の海水淡水化および膜技術に関する科学技術難関プロジェクトを主導。国家科学技術進歩賞2等、国家教育委員会科学技術進歩賞2等、天津市自然科学賞1等、国家發明展覽会銀賞などを受賞。国家人事部から「国に顕著な貢献をした専門家」として認定。論文200編余り。「海水淡水化工程」編集長。共著に「塔槽」、「現代塔槽」など。

中国は淡水資源が乏しいだけでなく、分布も均一でない。1人あたりの平均使用可能水量が少ないうばかりか、時季および地域的分布の上でも均衡がとれていない。この10年間、地域経済の急速な成長に加え、数年間連続で降雨が少なく、さらにいくつもの水源で汚染が深刻であることから、水の需給バランスの矛盾が顕著となっている。2000年代初期の統計によれば、中国のミドルクラス以上の都市610ヶ所のうち、程度の差こそあれ、水不足に直面する都市は400ヶ所余りに達しており、中でも人口100万人以上の大都市32ヶ所のうち、長期にわたり水不足に苦しんでいる都市は30ヶ所もある。北京市の1人あたりの平均水資源量は200ml足らずで全国平均のわずか8分の1であり、世界平均の30分の1しかない。天津市、瀋陽市などの都市や、遼東半島および山東半島が属する環渤海経済圏では人口が密集し、経済が急速に発展していることから、水不足の問題がすでに経済成長を制約する要素となっている。また、浙江省や福建省ならびに広東省沿岸などの南部地域でも、ここ数年、淡水資源の不足や汚染が経済の持続的発展を妨げる深刻な障害となっている。

世界的な水不足の状況も顕著である。国連の専門家の推定によれば、地球では10～15億人の飲料水が不足しており、さらに多くの地域や国が水不足のために発展スピードや生活の質の低下という問題に直面している。

水資源の危機を解決するために、人々の考えが広大な海洋に至り、海水の淡水化に思い至るのは自然の成り行きである。国連の1985年のレポートによれば、海水の淡水化はすでに①1950年代の発見段階②1960年代の開発段階③1970年代以降の商用・実用化段階—の3つの成長段階を経ている。このため、海水の淡水化技術は早いうちから世界にとって、特定の条件下では淡水不足の危機を解決するための信頼できる技術となっていた。しかし、これは主に中東地域の砂漠・油田地帯を対象としていた。海水の淡水化技術が真の意味で中東地域の枠から出て、世界のどの地域でも使用でき、かつ、コスト面からも利用可能な技術となるには、長い研究の道のりがまだ必要であろう。

1. 海水の淡水化方法およびエネルギー消費

1.1 海水の淡水化方法

ここで言う海水の淡水化技術には、海水のみならずかん水の淡水化や工業用水の除塩も含まれる。海水の淡水化方法は数十種類あるが、現在、工業で利用されているのは主に以下の数種類である。多段フラッシュ法(MSF)、逆浸透法(ROまたはSWRO)、多重効用蒸発法または多重効用蒸留法(MEまたはMED)および蒸気圧縮法(VC)。これ以外では電気透析法(EDまたはEDR)がある。後者は基本的にかん水の淡水化に用いられる。

1.1.1 逆浸透法 (RO, SWRO)

海水に圧力を加え、淡水を浸透膜に通すことで海水中の無機塩を濾しとどめる淡水化方法であり、膜法とも呼ばれる。海水あるいはかん水、また大型装置、中型装置、小型装置のいずれにも適用でき、海水の淡水化技術ではこの20年で最も急速に発展したものである。中東地域の国々のほか、北米、アジアおよびヨーロッパにおいても、大・中型の装置はすべて逆浸透法を最初の選択としており、現時点では中国でも最優先で選択する方法である。

1.1.2 多段フラッシュ法 (MSF)

加熱した海水を、圧力が段階的に低くなる複数の蒸発室で順次蒸発させ、蒸気を凝縮して淡水を得る。現時点では、多段フラッシュ法が技術的に最も成熟しており、運転の安全性が高く、大型および超大型の淡水化装置に適しており、主に湾岸諸国で採用されている。MSFは常に火力発電所に併設して建設・運転され、ガスタービンの低圧抽気を熱源とする。現時点では、1機あたりの生産水量は日量10×104t規模に達している。

1.1.3 多重効用蒸発法 (ME)

加熱した海水を、複数の順次連結した蒸発缶に通して運転する蒸発工程であり、この技術も主に火力発電所と併設して運転されるが、生産水量は一般的に日量約2×104tの規模である。2種類の方法があり、そのうちの1つは効用拡散型で、1970～80年代に盛んに採用され、垂直管型(VTE)と呼ばれる。操作温度は一般的に高く、ピーク時温度は100～120℃で、ヨーロッパおよびアジアの一部の火力発電所で使用されている。もう1つは低温多重効

用蒸留 (LTMED) で、ピーク時温度は約70℃。後者は前者に比べて競争力があり、蒸留法の中で省エネ性能が最も高い方法である。

1.1.4 蒸気圧縮蒸留法 (VC)

蒸気によって生じた蒸気を適度に加圧し温度を上昇させた後、蒸発器の加熱蒸気とし、凝縮して淡水を得る。電力または蒸気で駆動し、省エネ性能の最も高い淡水化方法の一つでもあるが、規模は一般的に小さく、生産量は多くが日量1千トン級以下である。

このほか電気透析法 (ED) や冷凍法がある。電気透析法 (ED) は、陽イオン交換膜と陰イオン交換膜を配列し、直流電流を通すことにより、淡水を得る方法で、主にかん水の淡水化に用いられる。冷凍法は自然冷凍と人工冷凍があり、理論上は最も省エネ性能が高い方法であるが、現時点では実用規模に至っていない。

現在、大規模な海水の淡水化プラントでは主に逆浸透法、多段フラッシュ法および多重効用蒸発法を採用している。しかし、水質およびエネルギー条件の地域差により、淡水化方法の選択では、それぞれで政策の重点が異なる。

1.2 主な淡水化方法のエネルギー要件

多段フラッシュ法、多重効用蒸発 (蒸留) 法および蒸気圧縮蒸留法は、いずれも「熱利用法」である。このうち、前者の2方法で共に用いられる消費エネルギーのパラメータは「造水比」であり、「蒸発率」とも呼ばれる。これは、蒸発装置の総蒸発量 (生産水量) に対して必要とされる熱量と、加熱のため供給される飽和蒸気の熱量 (H) との比として定義され、 $(r=D \cdot L/H)$ で表される。式中のDは淡水の生産水量であり、Lは淡水の気化潜熱である。

一般的には便宜上、蒸気1トンあたりで生産される淡水のトン数を造水比としている。装置の造水比は、実質的には多段フラッシュ法の蒸発室数、または多重効用蒸留法の効用数に「変換」されている。設計上、蒸発室数または効用数が多いほど造水比も高くなり、消費熱量が少なくなる。逆に、造水比が低いほど、消費熱量が高くなる。蒸発室数または効用数が多いほど明らかに設備コストが上昇する。このため、上記の諸パラメータの間にはプロセス改善の問題が横たわっており、一面だけを見て強調することはできない。

実際の設計においては、中東の産油国が用いる造水比は比較的低く、通常は8であり、これはエネルギー費用が安価なためである。非産油国の造水比は一般的に8～10で設計され、中には少数であるが13のものもある。この原理は、多段フラッシュ法または低温多重効用法のいずれでも同様であるが、両者は消費電力の上では大きな差がある。現時点では、多段フラッシュ法は淡水化の生産水量1トンあたりの消費電力は約3kWhであるが、低温多重効用法は一般的に1 kWhである。消費電力でいくぶん差があるとはいえ、最終的な総コストの面では、多段フ

ラッシュ法は中東地域では装置の規模が非常に大きく、電力と生産水量との全体面で合理化されているため、淡水化コストは尚も低温多重効用法を下回るとみられる。しかし、規模が小さい場合で両者を単純に比較すると、低温多重効用法が比較的利益である。

逆浸透法は常温下で実施され、海水の加圧と輸送が必要となる消費電力しか要求されない。1980年以前は、淡水の生産水量1トンあたりの消費電力は8.0kWhを上回っていたが、ここ20年間の透過量の高い半透膜と高塩系排水・エネルギー回収装置の発達ならびに高圧ポンプの効率化により、逆浸透法本体 (取水および排水を含まない) の淡水化における生産水量1トンあたりの消費電力は2.0～3.0kWhにまで低減され、海外の一部の模範的装置に至っては2.0kWh以下にまで減少している。現在、わが国で建造されている海水の逆浸透法を用いた大型・中型の淡水化装置の本体の消費電力は、いずれも4.0kWhを下回る。

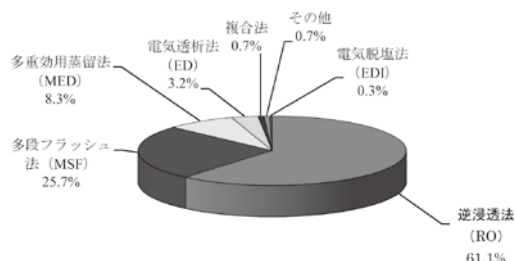
2. 世界の海水淡水化技術の発展状況

半世紀にわたる発展を経て、世界ではすでに150ヶ国の人口数億人が淡水を飲用・使用しており、先発エリアである中東地域のほか、米国、ヨーロッパ、日本などのいずれの先進国・地域においても、海水淡水化技術は大々的に発展し、実用化されている。

2009年までに、世界ではすでに海水淡水化装置が14,451基建設され、淡水の総生産能力は $5,990 \times 10^4 \text{t/d}$ に達している。このうち3分の2が海水の淡水化に、3分の1がかん水の淡水化に使用されている。一般的に、年間成長率は10%以上であり、2008年の成長率は12.3%であった。

世界の10大海水淡水化プラントはいずれもサウジアラビアとアラブ首長国連邦にある。世界中で現在建設中の淡水化プラントは244ヶ所あり、生産能力は $910 \times 10^4 \text{t/d}$ に達する。現在設計中のRas Azzour海水淡水化プラント (サウジアラビア) の設計生産能力は $102.5 \times 10^4 \text{t/d}$ である。

淡水化の実用は、すでに生活および工業分野に広く及んでいる。現在、世界全体の淡水のうち66.2%が都市行政による給水に、23.5%が工業に、5.5%が発電所に、そして1.7%が農業に用いられ、その他の部分はレジャー産業や軍事部門に使用されている。各種海水淡水化技術の採用状況は図1のとおりである。



◎図1 各種海水淡水化技術の世界での実用状況

図1から分かるように、逆浸透法（RO）はすでに61.1%を占め、多段フラッシュ法（MSF）が25.7%でこれに次ぎ、多重効用蒸留法（MED）が8.3%を占める。しかし、これは淡水化技術全体を示したもので、かん水の淡水化も含まれている。海水を原料とするものだけについて言えば、多段フラッシュ法と海水逆浸透法（SWRO）の占める割合はほぼ同等である。これは、逆浸透法はかん水の淡水化と工業用水の除塩に大量に用いられる一方、多段フラッシュ法は海水の淡水化にしか用いられないためであり、しかもほとんどが大規模な装置で中東地域において使用されるためである。同様の理由で、多重効用蒸留法の割合もやや高まる。

先に述べたように、海水淡水化技術の実用では中東地域が最大の市場であるが、先進国・地域の市場も同様に大きい。表1に世界の10大海水淡水化市場を示す。

順位	国名	市場シェア (%)
1	サウジアラビア	16.5
2	米国	14.0
3	アラブ首長国連邦	12.5
4	スペイン	8.9
5	クウェート	4.2
6	中国	4.0
7	日本	2.6
8	カタール	2.4
9	アルジェリア	2.3
10	オーストラリア	2.0

◎表1 世界の10大海水淡水化市場

表1で示すとおり、米国は世界第2位、中国は第6位、日本は第7位である。このうち、米国は主に膜法を採用して沿海地域の汽水やかん水、ならびに西部地域の河川における高濃度の塩分汚染水を大量に処理している。わが国の海水淡水化装置の生産能力は約 $35 \times 10^4 \text{t/d}$ であるが、膜法によるかん水の淡水化及び工業用水の除塩能力は、海水の淡水化能力をはるかに上回る。

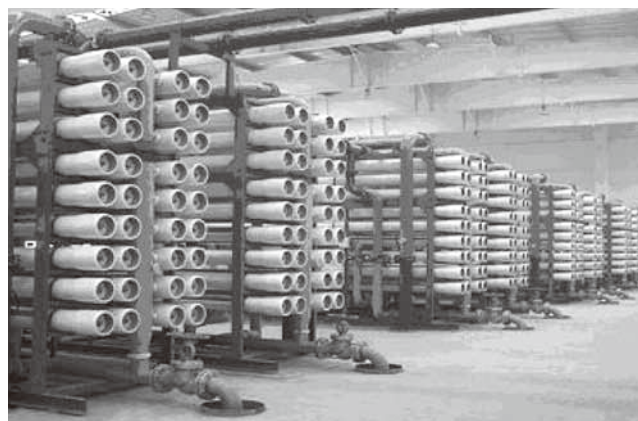
3. わが国の海水淡水化産業の発展状況

2009年末現在、中国の海水淡水化の総生産能力（海水淡水化のみ）は約 $40 \times 10^4 \text{t/d}$ であり、大連、河北、天津、青島、浙江、福建及び広東などの沿海地域に分布する。建設中の設備の生産能力は約 $30 \times 10^4 \text{t/d}$ で、設計又は契約段階の設備の生産能力は約 $10 \times 10^4 \text{t/d}$ である。

現在、生産された淡水は主に工業に使用され（発電所および石油化学工場。72.2%）、都市行政による給水がこれに次ぐ（25%）。全体的に言えば、中国は逆浸透法（RO、86%）を最も多く採用しており、低温多重効用蒸留法

（MED、7.7%）がこれに次ぎ、さらに多段フラッシュ法（MSF、2%）が続く。このうち、渤海沿岸（天津、黄驊、曹妃甸）では低温多重効用蒸留法と多段フラッシュ法のいずれも用いられているが、これは中国では冬季・春季の水温が過度に低く長期間 10°C 以下にある（ 0°C 近くまで下がることさえある）ことに加え、渤海は汚染が深刻であることから、膜法を採用すると前処理のコストが高つくためである。膜の透水能力は非常に低く、この点で蒸留法のほうが効果的である。しかし、発電所から排出される温かい海水を膜法の原料水に用いれば、冬季でも水温は 10°C 前後に達するため、逆浸透法も依然として良好な技術的・経済的効果を有している。

海水淡水化産業で最も重要なのは設備製造業と淡水化プラントの建造技術であり、この分野における一国の技術レベルと競争力を表す。わが国はこの10数年で製造業の分野でめざましい発展を遂げ、海水半透膜および圧力容器の生産ラインを建造し、中には海外に輸出されたものもある（図2参照）。低圧膜（前処理および工業用水処理用）のメーカーはすでに数社あり、国際的に見ても先進レベルに達している。生産水量が日産1万トン級の蒸留法装置もすでに国内製造が始まっており、日量1千トン級の装置はすでにプラント化して輸出されている。中国の海水淡水化産業は基本的に確立されたと言えるが、大型・中型装置の設計能力や、エネルギーと淡水化のシステム工学、さらには大型装置の製造や開発能力などで依然として大きく遅れており、先進的な技術レベルに追いつくまでの道は長い。



◎図2 わが国の逆浸透法・海水淡水化装置

国の計画によれば、中国の海水淡水化産業では、海水淡水化だけに着目すれば、2020年までに生産能力は $300 \times 10^4 \text{t/d}$ に達する見込みだが、これにかん水の淡水化および工業用水の除塩を加えると、海水淡水化技術による総生産能力は $800 \times 10^4 \sim 900 \times 10^4 \text{t/d}$ に達する可能性があり、これは米国の現在の淡水総生産能力に相当する。

中国経済は持続的発展においてさまざまな資源不足問題に直面しているが、なかでも最も逼迫しているのは淡水資源である。関係筋の予測では、21世紀半ばまでにわが国は中進国の仲間入りをし、水使用量の節約を前提としても、今後30年余りで必要となる給水量は現在の総給水量の1.5倍となる。現有資源の調整だけでは、これほど大量のニーズに対応できないことは火を見るより明らかだ。

このため、わが国の中で経済が発達し、人口が集中する東南部の沿海地域で新たな淡水資源を開発することは、上記問題の解決と国の壮大な発展目標の達成に非常に有効である。

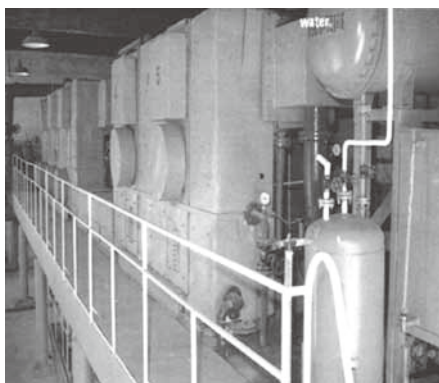
このほか、海水淡水化産業自体が設備製造業や国内外の工事建設・サービス業を包括するうえ、さまざまな分野の発展を牽引する大規模な産業体系であるため、国民経済の発展に占める位置と役割は過小評価できない。このことはすでに米国や日本、ヨーロッパなどの国々が証明している。

4. 近年のわが科学研究グループの研究状況

1970年代以降、天津市は水不足の影響を受け、工業・農業・生活用水のいずれも非常に逼迫している。国と関係当局の支援のもと、天津市膜技術・海水淡水化重点实验室は海水淡水化に関する一連の研究開発を行っている。

4.1 多段フラッシュ型装置

図2は1970年代に開発した中国初の日産100トン級多段フラッシュ型装置のパイロット機である。これを土台に、1980年代には中国初の工業規模の海水淡水化多段フラッシュ型プラントを建造した（1機あたり3,000t/d）。運転に成功してから長年が経過しており、さまざまな面で性能は良好である（図3）。発電所のボイラに給水して淡水を生産するコストは、地表水を原料とした従来の方法に比べて約25%減少しており、莫大な経済効果を得ている。これはわが国にとってイノベーションであり、海水淡水化産業の発展に重大な影響をもたらすとともに、海水淡水化技術の中国初の工業面での実用は、同技術の発展と新たな淡水資源の開拓のモデルとなった。また、海水淡水化技術と発電所の融合として、事業例を示すものとなった。



◎図3 パイロット型の日産100トン級多段フラッシュ型海水淡水化装置

4.2 逆浸透法のエネルギー回収装置

海水淡水化技術において膜法は急速に発展し、国内外で広く採用されたが、その主な理由は逆浸透法による淡水化のエネルギー消費が大幅に減少したためである。消費水量・電力の急速な減少に主に貢献したのは、高濃度塩水・余剰圧力エネルギー回収装置の発展と実用である。逆浸透法の通常の操作圧力は約6.5MPaであるが、膜材料から排出される高濃度塩水の圧力も非常に高い（上記の操作圧力をやや下回る程度）、圧力エネルギーの大きい高圧塩水が減圧バルブを透過して直接排出された場合、システム回収率40%で計算すると、余剰圧力の約60%が浪費されることになる。このため、エネルギー回収装置を利用して塩水の余剰圧力を効率よく利用すると、逆浸透法による海水淡水化システムのエネルギー消費を大幅に減らせることから、コスト圧縮の面で非常に重要である。

中国が現在保有する逆浸透法エネルギー回収装置は、すべて米国企業2社の製品であり、他の国も基本的に同様である。現在、逆浸透法による海水淡水化システムの鍵となる設備投資では、膜、エネルギー回収装置、高圧ポンプが各約3分の1ずつを占める。

天津大学は2000年以降、バルブ型の容積移送式エネルギー回収技術および装置の研究開発をいち早くスタートさせ、一連の発明で特許を獲得している。国の科学技術部の「第10次5ヵ年計画」、「第11次5ヵ年計画」および天津市科学技術委員会の資金援助を受け、中国初の知的財産権を持つ、日産100トン級および1000トン級のエネルギー回収装置の開発に成功した。各装置の回収効率は90%および93%である。図4は最近、開発に成功した1000トン級の並列型装置である。

当該プロジェクトの成功により、エネルギー回収装置が中国の海水淡水化分野において重要なハイテク製品となることが期待され、中国の逆浸透法設備のプラント化能力と技術レベルは向上するだろう。

4.3 海水淡水化の新技術・方法の研究

海水の淡水化技術はすでに大規模に実用化されているとは言え、新たな淡水化方法やエネルギー技術、環境影響の低減、高濃度塩水の综合利用、コージェネレーションとシ

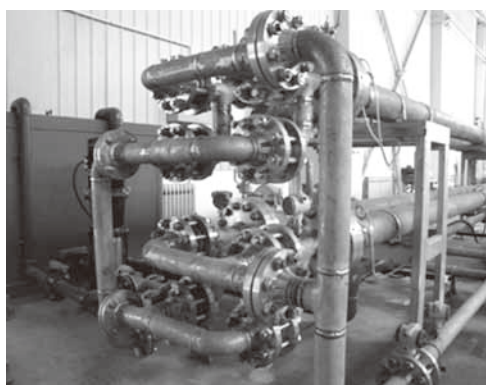


◎図4 発電所用の多段フラッシュ型海水淡水化装置（3000m³/d）

ステム工学など、いずれの面でもさらに研究を要する課題があり、依然として大きなイノベーションが必要である。近年、われわれは以下の6分野で、国家科学技術部、国家自然科学基金委員会の重点基金および天津市科学技術委員会の資金援助を受けており、重要な研究成果を上げている。①露点蒸発淡水化技術および高濃度不活性ガス条件下の熱伝導研究②透過量の高い海水淡水化蒸留技術と高濃度塩水の利用技術の研究③低温多重効用蒸留装置および工学的設計④膜の新素材および製造技術の研究⑤自然冷凍による淡水化および工学的実用化の研究⑥電気脱塩（EDI）技術の研究。

5. 結論

- (1) 水不足問題が中国経済の持続的発展を制約する要素となっている中、海水の淡水化は経済が発展し、人口が集中している沿海地域の重要な補充水源となる。
- (2) 過去10年間で、中国の海水淡水化産業は基本的に確立され、今後10年間で日産数百万トン規模の実現を目指す。淡水化技術の製造業も徐々に国際競争の重要な一角となりつつある。
- (3) 海水淡水化産業を理性的にとらえる。水不足問題の解決において、海水の淡水化は唯一の方法でなく、各条件下で異なる解決方法がある。新たな産業・市場の形成にはニーズ、研究、開発および普及のプロセスが必要であり、急速すぎる実用化や過度の投機は技術と市場の安定的発展にマイナスとなる。



◎図5 逆浸透法のエネルギー回収装置（日産1000トン級）

宇宙科学

現代の宇宙用光学リモートセンサの応用と発展

•Profile•



胡 君 Hu Jun ●中国科学院長春光学精密機械・物理研究所研究員

1952年8月生まれ。1980年7月、吉林大学卒業（コンピュータ科学専攻）後、長春光学精密機械・物理研究所で研究に従事。現在、吉林省製造業情報化専門家、吉林省アニメ・ゲーム産業技術イノベーション戦略聯盟理事・専門家。主に、コンピュータ・スマート制御及び情報処理、宇宙用光学リモートセンサのシミュレーション試験技術を研究。国家重点科学技術研究/事業、国家「863」工程、国防化学工業委員会重点事業、吉林省重点科学技術事業など多数事業を担当。

現代の科学技術の急速な発展に伴い、各国は、宇宙からの対地・対空観測には国境がないという条件を十分に活かして、宇宙用光学リモートセンサを発展させてきた。宇宙用光学リモートセンサは主に、画像情報記録を利用したイメージセンシングシステムによりターゲット探査の目的を実現する。一般にフル・フレーム型イメージカメラ、パノラマ型イメージカメラ、スキャナ型イメージカメラ、マルチ分光器（分光光度計）、エシエル分光器、干渉分光器、放射計、イメージ分光器、赤外線カメラ、赤外線マルチスペクトル型イメージカメラなどに分けられる。宇宙用光学リモートセンサの地上分解能はカメラの種類と軌道高度、画像解像度により異なるが、現在は0.1m～5mのものが多く、発展の趨勢から見れば、スペクトルや軌道高度ごとの分解能は年々大幅に向上している。

光学リモートセンサは、宇宙探査機でターゲットのリモートセンシング観測・探査を行う際の重要な搭載機器として、一般にスペースシャトルや人工衛星、宇宙船、宇宙ステーションなどの宇宙探査機に搭載される。軌道高度は150km～1,600,000kmで、よく用いられるのは次の衛星である。(1) 地球周回軌道衛星。軌道傾斜角はゼロで、地球の赤道上空35,786kmを円軌道で地球の自転速度と同じ速度で運行しており、地球表層の特定のエリアに対する連続観測の目的を実現する。(2) 極軌道衛星。地球または他の天体の南北極を巡って飛行し、傾斜角は90°である。この軌道で運行する衛星は地球両極の上空を毎周通過し、地球表層全体を俯瞰できる。(3) 太陽周回軌道衛星。探査機の軌道平面と太陽とが相対的に固定した方向を終始維持し、その軌道平面は地球の自転軸の周りを旋回し、運行方向は地球の公転方向と同一で、旋回角速度は地球の公転の平均角速度に等しく、軌道傾斜角は90°に近い。衛星は両極付近を通過するため、近極地太陽周回軌道衛星ともいう。

現在の光学リモートセンサは単一機能・単一波長域（スペクトル）・単一品種から発展を見せ、比較的小型の光学リモートセンサはすでに搭載機器一体型の小型光学リモートセンサに進化し、比較的大型の光学リモートセン

サはマルチスペクトル・多品種・フルスペクトルの対空・対地の大型光学リモートセンサに進化している。目下、これら2種類の光学イメージセンサが主流・趨勢となっている。性能的には大口径、広視野幅、高分解能、スマート化、自動識別などに向けて発展しており、多機能・多品種・マルチスペクトル化が進んでいる。

1. 光学リモートセンサの応用遷

1.1 地上観測のイメージセンシング

宇宙用光学リモートセンサの起源は軍事面での応用にあり、宇宙用搭載機器の最高レベルは偵察用カメラの研究開発レベルに代表される。米国のKH-1型偵察衛星の打ち上げ成功は、この技術が軍事分野で応用され始めたことを示し、KH-12型まで打ち上げられた。現在、米国の軌道上で機能させている偵察カメラは主にKH-12型偵察衛星に搭載されているカメラで、可視光分解能は0.1m～0.15m、赤外線分解能は0.6m～1mでスクロールイメージング機能を有し、運行軌道の東西両側エリアのイメージングができる。米国はさらにKH-13型衛星を発表した。KH-13型衛星の分解能は0.1m～0.15m、視野幅はKH-12型の8倍に相当する50kmであり、光学式偵察装置と合成開口レーダも搭載し、イメージ分解能を保証すると同時に地上視野幅を拡大した。

立体地図用カメラは一般に1台または数台のCCDカメラで構成され、カメラの組み合わせ方式によって撮影・測定原理が異なり、シングル、デュアルまたはトリプルのリニアアレイカメラに分けられる。このうち、シングル・リニアアレイカメラは隣接する軌道の傾斜を観測することにより幾重にも重なる立体を形成し、立体地図マッピングにおける3Dデータ取得の目的を達成する。例としてはフランスのSPOT14系衛星搭載のカメラがある。デュアル・リニアアレイカメラは一定の交角を有する2台のリニアアレイカメラにより構成され、長所は3Dデータ獲得時に衛星の指向方向を動かす必要がない点にある。例としてはフランスのSPOT5衛星搭載のカメラがある。トリプル・リニアアレイカメラは撮影した画像から外部標定要素を再構築する特徴を有し、例としてはドイツの

MOMSシリーズの立体地図用カメラがある。

資源探査カメラは一般に商業用衛星に搭載される。Ikonos-2衛星は分解能1mを有する初の地上観測用民間衛星であり、重量はわずか817kgである一方、衛星直下点のパンクロ画像分解能は0.82m、視野幅は11kmで、ピッチ・スクロール姿勢機動幅は $\pm 50^\circ$ 、最大旋回速度は $4^\circ/\text{s}$ 、再訪周期は3日を下回った。Pleiades-1はヨーロッパ初の分解能1mの商用光学式リモートセンシング衛星であり、パンクロ画像分解能は0.7m、視野幅は20kmに達し、衛星全体で $\pm 40^\circ$ の傾斜角で前後視野ともイメージングができ、3D立体イメージ能力を有する。再訪周期は1日を下回り、地表制御地点を用い、1mの定位精度を獲得できる。

警報カメラは大きく分けて赤外線と紫外線の2種類がある。赤外線警報カメラは受信動作方式すなわちターゲットが発する赤外線放射を探査して追跡する方式を採用しており、対電子妨害能力が強いうえに作動距離が長く、地球周回軌道上で地球表層のミサイルやロケットの発射活動を探査することができる。紫外線警報カメラは誤警報率が低く、低温冷却を要さず、スキャンングを要さず、体積が小さく重量が軽いという特徴がある。紫外線式ミサイル接近警報システムは素描式とイメージ式の2世代のイノベーションを経て、海外ではすでにイメージ式が主流となっている。例として、米国のAAR-54システムがある。

気象観測カメラは高分解能の多波長走査放射計、赤外分光計、マイクロ波放射計などで地球を観測することにより気象データを取得し、地球環境をリモートセンシングで観測する。極軌道気象衛星と静止気象衛星の2種類に分かれ、気象条件や自然環境、国の行政区分境界などの制約を受けず、迅速・連続的かつ長期間にわたり、全球のすべての時間帯の多方位にわたる全天候観測を行うことができる。例として米国極軌道環境観測衛星システム(NPOESS)、静止地球環境観測衛星(GOES)、ヨーロッパのMeteosat気象衛星・Metop気象衛星・Envisat環境観測衛星、ロシアの流星(Meteor)極軌道気象衛星シリーズ・電子-L(Elektron-L)静止気象衛星などがある。

1.2 宇宙観測のイメージセンシング

宇宙望遠鏡は地球の大気圏上で運行するため、地上望遠鏡とは比べようのない利点があり、取得データは大気の乱流などの干渉を受けず、視界は非常に良く、大気の散乱による逆光がないため、他の惑星や恒星の高分解能な観測に新風を吹き込んだ。ハッブル宇宙望遠鏡はモジュール化設計を採用し、カメラや分光計、航法センサなどの精密なさまざまな設備を装備しており、可視光や赤外線光、紫外線光を効果的に反射することができるため、観測スペクトルを紫外線スペクトルから赤外線スペクトルまで伸ばすことができた。JWST宇宙望遠鏡は2014年に打ち上げが予定されている、ラグランジュ点L2の赤外線に位置する宇宙望遠鏡で、口径は6.5m、スペクトル

は赤外線を主とし、観測波長は600nm～5000nmで、中赤外探査機MIRI、近赤外探査機NIRCam、近赤外分光計を装備する。中国は、地球以外の天体で実施する宇宙探査活動を深宇宙探査と呼んでいるが、深宇宙探査ミッションの中では、月探査衛星「嫦娥」を例に月を主目的とする探査ミッションが最も数多く実施されており、金星と火星がこれに次ぐ。

2. 光学リモートセンサの開発

2.1 高性能な光学リモートセンサ

宇宙からの偵察カメラの主な性能指標は地上のピクセル分解能、撮影対象の視野幅及び光学システムの品質、すなわち光学変調伝達関数(MTF)の品質である。探査機の高度に影響しない状況下で地上のピクセル分解能、撮影対象の視野幅及びMTFの品質を向上することは、現在及び将来の主な研究課題であり、宇宙からの光学リモートセンシング研究の発展の道筋である。

宇宙からのCCDカメラが規定の地上ピクセル分解能に達するには、CCDカメラの地上サンプル間隔距離が規定値を満たすことが求められる。地上サンプル間隔距離Gと軌道高度、CCDピクセルサイズ、カメラの焦点距離との関係は次の式の通り。

$$(1) \quad G = \frac{Ha}{f}$$

式中のHは軌道高度、fはカメラの焦点距離、aはCCDカメラのピクセルサイズである。式から明らかなように、Hとaが確定している場合、fが長く、カメラの瞬間視野が小さく、地上のサンプリング距離が小さいほど、分解能は高くなる。このほか、Gの大きさと良し悪しはCCDカメラのMTF、信号対雑音比(SNR)、カメラの構造に関係する。

水平方向のスキャナミラーがない宇宙からのカメラにおいて、地表の視野幅はCCDをつなぎ合わせたあとの全体の長さに対応する地表の視野幅に等しく、CCDをつなぎ合わせたあとの全体の長さとして地表の視野幅との比率はいずれもHと直接関係する。Hが高ければ高いほど視野幅はより広く、(1)の式に基づけば、Hが高ければ高いほど宇宙からのカメラの地表分解能の損失はより大きくなる。以上から明らかなように、宇宙からの光学リモートセンサの設計においては、CCDカメラの地表視野幅と比較的高いところからの地表分解能との矛盾を解決し、地表分解能への影響を極力抑えると同時に、地表視野幅を拡大する必要がある。例として、水平方向のスキャナミラーの機能を増やすなどの方法がある。

宇宙用カメラの性能を決める非常に重要な点は、カメラの光学システムにおけるイメージ品質で、イメージ品質は主にシステムの収差の大小と関係がある。光学伝達関数を用いてイメージ品質を評価することは比較的良好

方法であり、物体を各周波数のスペクトルで構成されると捉え、すなわち物体の明視野分布関数をフーリエ基数またはフーリエ積分の形式に展開する方法である。光学伝達関数は光学システムの効果と関係するため、同関数を用いて光学システムの品質を評価すれば信頼性の高い効果を得ることができ、光学イメージの品質を客観的に示すこともできる。

2.2 総合的な光学リモートセンサ

ここ数年、衛星・搭載機器の一体化、マルチスペクトル光学イメージセンサ、対空対地一体型構造など総合的な光学リモートセンサに関する技術は大きく発展し、特にマルチスペクトル光学イメージセンサに関する技術が飛躍的に進歩したため、宇宙で現在運行中の光学イメージセンサは比較的大きな割合を占めるまでになった。

宇宙技術、特に有人宇宙飛行技術の急速な発展によって、現在では、マルチスペクトル宇宙用光学イメージセンサが宇宙空間でより多くの科学実験を行い、宇宙空間と地球物理学をより便利かつ効果的に研究する上での主な方向となっている。たとえば、典型的なモジュール化構造の天体望遠鏡である米ハッブル宇宙望遠鏡は紫外線、可視光、近赤外線などのスペクトル（115～2500nm）を含むマルチスペクトル宇宙用光学イメージセンサで、天文学的科学研究に用いられる。

現代の宇宙用光学リモートセンサは、すでに地球物理学及び銀河系の研究における重要な補助手段となっており、ここ数年、対空・対地一体型構造の総合的な光学イメージセンサの研究が検討課題に組み入れられた。このような構造のシステムは機能性が高く、オプト・メカトロニクス構造が複雑で、ほとんどすべての光学スペクトルを対象範囲とし、搭載される機器設備の種類は多く、光学イメージセンサシステムの総合的なプラットフォームを形成している。このような光学を主とする共有構造には、2つのプランが考えられる。一つ目は対空・対地共通のオプト・メカトロニクス構造・直接分離で、二つ目は2D回転構造を通じた対空・対地への転換の実現である。当該プラットフォームでは統一的なオプト・メカトロニクス・システムのもとで分光を行って10あまりの光学チャネルに分割することでほとんどすべてのスペクトルを網羅するため、実現には一定の難度がある。

2.3 マルト型光学リモートセンサ

スマート型光学リモートセンサには主に自動識別技術とパラメータ適応調整技術がある。自動識別技術には、地上風物の識別、カメラの作動条件の認識及び撮影環境に対する確認がある。自動識別技術は人工知能理論、制御理論及び図像学などの多くの研究分野が関係し、マルチスペクトル画像、分布式画像、画像処理、モジュールの識別、スペクトル分析、画像分解能などのさまざまな技術を含み、進化的計算法、ニューラルネットワーク及びさまざまなスマート型処理方法が取り入れられてい

る。ターゲットの自動識別を実現するプロセスでは、地表のターゲット、宇宙環境及び作動条件など異なる状況に基づき理論モデル又は計算法を提示することが必要で、地物や空中浮遊物及びそれらが置かれていた地点や種類を自動認識し、リアルタイムで保存・転送することができる。

パラメータ適応調整技術には、外部光照射条件への適応があり、調光パラメータのフォーカスを自動的に完了できる。画像内容に基づき、画像の解像度評価を踏まえてフォーカス面の位置を適応調整し、外部条件の変化に基づき、軌道上のパラメータ標定を再度実現する。リモートセンシングの画像精度の向上に伴ってデータ量が増加し続けているため、限りある保存容量や衛星の送信帯域幅と、大量のリモートセンシング画像データの保存・処理との間の矛盾は日増しに顕著になっている。軌道上ターゲットの自動識別技術の発達は、この矛盾を緩和する重要な手段である。使用者はさまざまであるため、大量のリモートセンシング画像データのすべてに必要な情報が含まれているわけではなく、データ量は情報量と等価ではない。従って、実際の応用目的に基づいて価値のあるデータのサブ集合、すなわち関心エリアを識別し、それぞれに異なる処理を行った後に各使用者に提供する。軌道上ターゲットにおける関心エリアの自動識別技術は、総合性、スマート化かつ多分野の交差する研究領域であり、当該技術はターゲットの自動識別、マルチスペクトル画像、赤外線画像、レーザレーダ、分布式画像、画像処理などの多数の技術と関係する。

マルチスペクトル画像技術の基本構造は、1つのCCD上に多数のスペクトルが含まれ、この多数のスペクトルで同時に画像を採集することができることから、構成されたマルチスペクトル画像は単一スペクトル又はフルスペクトル画像よりも価値が高い。マルチスペクトルにより、宇宙用カメラの全天候観測能力を効果的に向上することができる。また、地物のタイプによりスペクトルの反射・吸収特性が異なることから、マルチスペクトル・宇宙用カメラを通じてより良く地物を識別できる。可視光、近赤外線及び短波赤外線スペクトル（0.4 μ m～3 μ m）でリモートセンサが測定を行うのは地表の大気・雲の反射又は放射の量である。中波赤外線スペクトル（3 μ m～5 μ m）は太陽反射から熱放射に到達する過渡エリアであり、5 μ mを上回ると地球そのものの放射熱が主導となり、太陽光源に直接依存しないため、長波赤外線、マイクロ波スペクトルリモートセンサは夜間のみならず昼間も画像を収集できる。

パラメータ自動調整技術には、オートフォーカス、自動ドリフト補正、自動調光が含まれ、軌道上におけるリアルタイムのドリフト補正と調光理論では中国はすでにある程度のブレイクスルーがあるが、軌道上におけるオートフォーカス技術はパラメータ調整技術の難所となつて

いる。フォーカスシステムは宇宙用カメラの画像品質を決定づける重要な要素である。宇宙用カメラが置かれる積載・運行環境（たとえば衝撃、オーバーロード、振動、圧力、温度など）は非常に複雑で、環境変化と温度の変動の影響に比較的敏感である。環境の変化により、カメラのフォーカス面はさまざまな程度で焦点からのずれが発生するため、比較的複雑な環境下での画像品質を補償するためには、変化したカメラフィールドに修正を加える必要がある。中国では、実験室で軌道上における地上フォーカスの調整を実現し、同時に地表で長焦点カメラの動態撮影分解能を応用して発生器、コンピュータネットワークシステム、探査機シミュレーション装置、コリメータ、画像高速採集・保存システムを検査し、（全性能ではないが）準動体フォーカスを実現した。

3. 現代の光学リモートセンサシステムにおける重要技術

カメラの反射鏡構造の軽量化設計は、現代の光学リモートセンサシステムの重要技術である。現在、地上大型望遠鏡の設計は海外ですでに口径最大10mに達し、6m級を実現しており、ここから宇宙大型望遠鏡の設計の難しさが見て取れる。宇宙の空間条件下で、探査機が搭載できる設備重量には制約がある。このため、一方ではCFRC素材などより合理的な新型の高分子炭素繊維複合素材を模索する必要がある、もう一方では鏡体構造の設計でさらに厳しく軽量化を行う必要がある。従来型の設計ではハニカム・サンドイッチ構造が採用され、ハニカム構造の幾何学形状による反射鏡の剛性と減量化率への影響に関する研究は多くの研究者を引きつけているが、現時点では統一的な定論はまだない。

望遠鏡口径のさらなる大型化に伴い、宇宙の空間条件下でより軽くて薄い主鏡設計及び展開型設計により、光学活性技術の採用がトレンド及び必然のものとなった。たとえば、主鏡6.5mのJWSTは高精度な鏡面を保証するために光学活性技術を採用している。光学活性技術の最大の難所は波面センシング技術であり、たとえば古典的な干渉測定技術と比較的最先端の画像処理技術（たとえばPR及びPD技術）がある。これら観測手段の入力対象はいずれも天体がターゲットで使用範囲が比較的限られているが、地上観測時の自然の景観が入力される状況下での観測技術は未成熟で、今後のさらなる研究が待たれる。

テラヘルツ（THz）波はすでに、新しいスペクトル探査範囲へのチャレンジとなっている。より多くのターゲット景物から有用な情報を獲得するためには、リモートセンシングシステムにさらに高い空間分解能が求められるほか、より広いスペクトル範囲、より高いスペクトル分解能と放射分解能がますます注目されており、さまざまな角度や側面から情報を得ることが宇宙リモートセンサの探査技術の発展におけるもう一つの着眼点となってい

る。宇宙リモートセンサの作動スペクトルは、マイクロ波から γ 照射線に至るまでほとんどすべての電磁波スペクトルを対象範囲として網羅しているが、現在、適用範囲は主に赤外線、可視光線から紫外線までのスペクトルに集中しており、遠赤外線からサブミリ波までのスペクトルは技術的理由から長年ほぼ空白の状態、THz波と呼ばれていた。衛星によるTHzの宇宙画像及び天文研究は始まったばかりで、連続波によるTHz画像技術を通じてTHz波の透過特性を利用し、THz連続波イメージシステムを構築し、光学などのイメージ技術と一定の相補性を有するTHzイメージ技術を実現する。

宇宙イメージセンサの追跡及び凝視性能を実現するために、宇宙カメラには非常に高い指向精度及び制御精度が求められる。ハッブル宇宙望遠鏡を例にとると、制御指向精度は0.01"に達し、24時間の凝視時間内の安定度は0.007"で、他の多くの地上望遠鏡設備の性能を上回っている。このため、制御手段と制御設計をより高く要求すること、なかでも複合軸の制御技術と精確な衛星誘導技術が実現の鍵となる。

軌道上のスマート処理技術における最も主要な最先端技術は、ターゲット自動識別技術である。リモートセンシング画像に対するヒトの生理・視覚・論理・心理などのさまざまな階層の認知プロセスをシミュレートし、心理法則と認知モデルを探索し、宇宙空間情報の認識理論と宇宙空間要素の関係モデルをベースにターゲット画像の色、形状、模様及びスペクトルなどの特徴を分析し、画像のスマート解釈と自動識別を実現する。スマート処理はスマート・コンピューティング理論、知識工学、エキスパートシステムなど、多分野の知識が交錯する学際的な共通の重要技術である。

以上を総括すると、宇宙用光学リモートセンサには軍事偵察用カメラ、立体地図用カメラ、気象・海洋観測カメラ、陸地資源探査カメラ、宇宙の天文・深宇宙ターゲット用の探査カメラなどの宇宙用光学式センサが含まれる。国内外の宇宙船、光学イメージセンサ、宇宙探査機への実用状況の描写と分析を通じて地上ターゲットの自動識別技術、マルチスペクトル・多分解能設計技術、スマート制御技術、対空対地一体型構造の設計技術、高分解能・広視野幅・高画質品質技術、大口径の処理工程技術を打ち出すことが宇宙探査技術における将来の実用と研究の方向性である。

中国の次世代月探査衛星による重力測定計画に関する研究

•Profile•



鄭 偉 Zheng Wei ●中国科学院測量・地球物理研究所 副研究員

1977年生まれ。2007年、華中科技大学物理学院で博士号取得。2008.02.01～2010.07.31、京都大学防災研究所でポストドクターとして研究（外国人特別研究員）。現在は衛星の精密な軌道設定、衛星重力測定による逆解析に基づく地球、月、火星重力場の理論及び方法等の研究に従事。これまでに国家自然科学基金青年事業、中国科学院知識イノベーション事業の重要領域青年人材事業、日本学術振興会（JSPS）学術基盤形成事業、国家自然科学基金重点事業、国家863計画、中国科学院知識イノベーション事業の重要領域事業などを主宰または参画。最近3年間は筆頭執筆者として国際的に権威ある専門誌「Journal of Geodynamics」、[Planetary and Space Science]などで研究論文40編あまりを発表。このうち、SCI（Science Citation Index）に16編収録。SCIとの合同発表論文は10編あまり。現在は「Advances in Space Research」、「地球物理学報」、「宇宙航空学報」等の国内外の権威ある専門季刊誌の論文審査委員。

月重力場は月の表層と内部物質の空間分布、運動、変化を反映するため、その精密な構造を明らかにすることは宇宙航空学や天文学、空間科学、惑星科学、地球科学、生命科学、国防建設などのニーズに応えるだけでなく、月の形状・地形と内部構造の研究、月面土壌の新エネルギーと資源の探索、月面宇宙環境の分析（電磁、微粒子、高エネルギーなど）、月と地球-月システムの起源ならびに進化史の検証などに重要かつ豊富な情報資源を全人類にもたすものである。

月探査衛星による重力場の逆解析とは、月探査衛星による観測データ（Doppler-VLBIによる軌道上の位置・速度、衛星間測距計による衛星間距離・速度、加速度計による非保存力、恒星センサによる衛星姿勢等）と月重力場モデルにおける重力ポテンシャル係数との関係を分析することにより、衛星の運動観測方程式を構築して解を求めることをいい、さらには月の重力ポテンシャル係数を回復させ、高精度かつ高い空間分解能を備えた月重力場の逆解析を最終目的とする。月重力場の精密な測定は世界の月探査計画における重要要素であり、月探査器の軌道設計の最適化及び有人飛行船の月面における理想的な着陸地点の的確な選択を決定づける。月探査衛星は、月重力場の作用のもと円に近い極軌道で周回するため、精密な軌道設計には精密な月重力場パラメータが必要である。逆に、衛星軌道の摂動を精密に測定するのに摂動の追跡観測データを利用すれば月重力場パラメータの精度を高めることができるため、両者は補完関係にある。月の海及び盆地には重力異常が顕著な「マスコン（mascon）」が数多く存在するため、月重力場の分布は極めて不均一である。月重力場の探査は現在もなお主に月周回衛星による軌道摂動の観測に頼っている。月は自転周期と公転周期が同じという特性を持つため、現時点では人類は月の表側の重力場異常しか直接観測することができず、月の裏側の重力場異常はコロケーションを通じて補足的に確定するよりほかない。

国際的な月探査衛星による重力測定計画の実施と広がり、中国にとってチャンスでもあり試練でもある。チャンスとは、海外で長期にわたり蓄積されてきた月探査衛星による重力測定の進んだ経験を中国が早急に取り入れ、将来の月探査衛星による重力測定計画の実施を積極的に推進し、中国による月重力探査衛星の独自開発を加速することにより、月探査衛星による重力測定計画の実現を通じて関係分野の発展を牽引することができることを指す。一方、試練とは、衛星搭載機器の研究開発、観測手段の研究及び観測データの処理が比較的立ち遅れている現状を指す。これに比べ、これまでに宇宙航空学、天文学などの分野で国内外の数多くの研究者が月の重力場測定について幅広く研究してきた。この目的に基づき、中国が将来、レーザ干渉による衛星間測距原理に基づく次世代の月探査衛星によって、重力測定計画を実施することを本稿は提案する。本稿の研究は、中国の今後の第二期、第三期、第四期の「嫦娥計画」及び有人月面着陸計画の成功において重要な参考となるばかりでなく、世界の将来的な月、火星及び太陽系のその他の惑星の探査計画の発展にも一定の参考価値があろう。

1. 月重力の衛星観測モデルの実現可能性

1.1 Doppler-VLBIシステムによる直接追跡観測モデル

観測モデルの原理は次のとおりである。最初に、Doppler-VLBIシステムで低軌道の月重力探査衛星をリアルタイム追跡することにより、ドップラー効果により距離及び速度を測定し（経度方向の観測に敏感）、VLBI遅延時間及び遅延率（緯度方向の観測に敏感）の観測値と統合して衛星軌道位置 $\mathbf{r}$ を得る。次に、搭載加速度計により月重力探査衛星の受ける非保存力 $\mathbf{f}$ （軌道高度の姿勢制御力、月の放射圧、太陽光圧、宇宙線及び粒子圧など）を測定する。さらに、保存力モデル $\mathbf{F}$ （太陽-地球間重力、月の固体潮汐力など）を構築する。最後に、 $\mathbf{g} = \ddot{\mathbf{r}} = \mathbf{f} + \mathbf{F}$ により月重力場を確定する。目下、搭載加速度計

の開発精度が向上し続けているのに伴い（たとえば、フランス国立宇宙研究センターの開発した静電支持加速度計（Electrostatically Suspended Accelerometers）の精度は $10^{-13}\text{m/s}^2/\text{Hz}^{1/2}$ に達する）、非保存力の観測精度は高精度、高空間分解能での月重力場の逆解析に対するニーズを満たすようになったが、Doppler-VLBIシステムの軌道決定精度（dm級）の制約により、Doppler-VLBIシステムの直接追跡による観測モデルでは月重力場の精度を実質的に引き上げることはできない。このほか、月の自転周期と地球に対する公転周期が同じであるため、Doppler-VLBIシステムの直接追跡による観測モデルでは、遠月点まで飛行する重力探査衛星の軌道を測定することができない。つまり、Doppler-VLBIシステムの直接追跡による観測モデルは、月重力場の精密測定に対する概念実証及び技術試験でしかなく、精度及び空間分解能の上で現行の月重力場観測モデルに大きく貢献することはない。

1.2 SGG-Doppler-VLBIシステムによる観測モデル

観測モデルの原理は次のとおりである。Doppler-VLBIシステムで低軌道の月重力探査衛星をリアルタイム追跡すると同時に、衛星に搭載された重力傾斜計を利用して衛星軌道高度における重力ポテンシャルの微分代数を直接測定し、非保存力補償システムを通じて重力探査衛星が受ける非保存力を遮断し、最終的には上記月探査衛星の測定値を統合し、衛星の重力傾斜（SGG）原理に基づき月重力場を観測する。月探査衛星の重力傾斜計の測定精度に対する要求は比較的高いうえ、中国は現在、高精度の重力傾斜計の研究は始まったばかりでまだスタート段階にあるため、SGG-Doppler-VLBIシステムによる観測モデルは現時点では中国の国情に合わない。しかし、SGGは月重力場の特性を探索可能という特徴を持ち、構造が精密で進化過程にある新技術・新分野であるため、徐々に発展して月の重力傾斜測定の理論、方法、搭載機器及び実用について専門的に研究するための新興科学となりつつある。そのうえ、衛星に搭載される重力傾斜計が重力ポテンシャルの微分代数を直接測定できることから、月重力場の中高周波数信号の減衰効果を効果的に抑制できるため、SGG-Doppler-VLBIシステムによる観測モデルは将来的に中国で優先的に選択される、潜在性のある月探査衛星の重力測定モデルの一つとして期待される。

1.3 SST-HL/LL-Doppler-VLBIシステムによる観測モデル

SST-HL/LL-Doppler-VLBIによる観測システムは、地上Doppler-VLBIシステム、相互に追跡し合う低軌道の月重力探査双子衛星、Doppler-VLBIシステムと低軌道双子衛星を連携する高軌道の中継衛星群（地球のGPS衛星システムに類似）により構成される。観測モデルの原理は次のとおりである。高軌道の中継衛星群による、低軌道の月重力探査双子衛星に対する精密な追跡・定位を利用し、同時に観測信号を地上のDoppler-VLBIシステム観測制御

ステーションに返送し、非保存力補償システムにより月重力探査双子衛星が受ける非保存力を遮断し、姿勢・軌道制御システムを通じて双子衛星及び搭載機器の空間3D姿勢を測定する。低軌道双子衛星は同一軌道平面上で前後して互いに追跡して編隊飛行を行い、衛星間測距計を利用して高精度に衛星間距離（共軌道月重力探査双子衛星の軌道摂動差）を測定することで、月重力場を高精度かつ高い空間分解能で逆解析する。

SST-HL/LL-Doppler-VLBIシステムによる観測モデルの長所は次のとおりである。(1) 2組の衛星の追跡による衛星の高低（SST-HL）観測モデルを含むと同時に、差分原理をもとに2つの低軌道月重力探査衛星間の相互運動を測定するため、得られる月重力場の精度はSST-HL単独追跡モデルより少なくとも1オーダー高い。(2) 月重力場の逆解析精度は主に高精度の衛星間距離 ρ と衛星間速度 $\dot{\rho}$ に敏感であるため、軌道決定精度に対する要求を適度に緩和できる。(3) 中長波の月重力場に対する探査精度が比較的高い一方、技術要求は比較的低く実現が容易で、月重力場の測定速度が速く、代価が低く、効率も高い。(4) 高い精度で遠月点の月重力場信号を探索できるうえ、地球重力観測衛星GRACEシステム全体の貴重な経験を参考にできる。これらの理由から、中国の将来的な月観測衛星による初期段階の重力測定計画では、中国特有のSST-HL/LL-Doppler-VLBIシステムによる観測モデルの採用が比較的適切と言える。

2. 月探査衛星の重要搭載機器及び地上Doppler-VLBIシステムとの最適な組み合わせ

中国は高精度な衛星レーザ測距装置、非保存力補償システム等の搭載機器及び地上Doppler-VLBIシステムなどの研究開発の面で世界の先進レベルとなお一定の開きがあるうえ、これら技術は海外から導入することはできず独自に解決するよりほかない。また、これら技術の実現は中国が月観測衛星による初期段階の重力測定計画で成功を収めるか否かを直接決定づけるため、中国はまず高精度の月重力探査衛星搭載機器の研究開発及び地上Doppler-VLBIシステムの構築を行う必要がある。

2.1 衛星レーザ測距装置

SST-HL/LL-Doppler-VLBI追跡観測モデルにおいて、現在、国際的に採用されているのは一般にマイクロ波測距とレーザ測距の2つのモデルである。マイクロ波衛星間測距モデルの長所は衛星姿勢のリアルタイム制御技術と指向性精度に対する要求が比較的低い点であり、短所は衛星間距離と速度の測定精度が相対的に低い点である。衛星レーザ測距モデルが採用するレーザビームの方向性は強く、月重力探査衛星のシステム全体に対する姿勢制御の要求は比較的高いものの、衛星間距離と速度の観測精度を大幅に引き上げられる（少なくとも3オーダー）。衛星レーザ測距装置は、中国の今後の月重力探査衛星に

おける最も重要な搭載機器であり、その測定原理は次のとおりである。衛星間測距計の測定精度を向上し、信号による遅延効果を削除するため、衛星レーザ測距装置は両側波帯測定モデルを採用する。まず、月重力探査双子衛星の衛星レーザ測距装置がそれぞれ相手側に向かって2種類の異なる周波数のレーザ信号を送信する。次に、双子衛星がそれぞれ受信したレーザ信号を地上の超高安定発振器(USO)で生じさせた対応する参考周波信号と波動混合処理(信号相乗)し、ローパスフィルタを通じて周波差信号を保留し、データ処理器に送信する。最後に、デジタル位相ロックループを利用して周波差信号を追跡して位相変化の解を得て、測定結果を地上追跡ステーションに返送して総合処理を行う。月重力探査双子衛星の軌道は非保存力の摂動を受けるほか、主に月の静態及び経時変化重力場の総合影響を受ける。共軌道の月重力探査双子衛星は異なる軌道位相で月質量システムの影響に敏感であるため、双子衛星間には微小な軌道摂動差が生じ、これが共軌道の月重力探査双子衛星の連線方向の距離 ρ_{12} 、速度 $\dot{\rho}_{12}$ 、加速度 $\ddot{\rho}_{12}$ をリアルタイムで変化させ、月重力探査双子衛星の衛星レーザ測距装置が高い精度でこの距離変化 $\Delta\rho_{12}$ 、速度変化 $\Delta\dot{\rho}_{12}$ 、加速度変化 $\Delta\ddot{\rho}_{12}$ を測定できる。衛星間の距離差、速度差、加速度差の精密な測定を通じて月重力場の高周波信号は拡大されるため、月重力場の高調波要素の測定精度が効果的に引き上げられる。レーザ測距装置の研究開発と実用は、国際的にもSST-HL/LL-VLBI追跡モデルの今後の発展の主流であり、高精度、高空間分解能、かつ、全周波数域にわたる次世代の月重力場観測モデルの構築において重要な保証である。

2.2 非保存力補償システム

月探査衛星による重力測定において、月重力探査衛星をセンサとして高精度に月重力場を観測する上での最大の弱点は、衛星高位地点における重力場の成分指数減衰 $[R_m/(R_m+H)]^{4/l}$ である(R_m は月の平均半径、 H は月探査衛星の軌道高度、 l は月重力ポテンシャルの球面調和関数ごとの展開レベル数を示す)。この弱点を克服して高精度に月重力場を逆解析するために、現時点で最も有効な方法は低軌道の重力探査衛星を採用することである。しかし、月独特のMascon現象の影響により、衛星軌道高度が漸減(50~1000km)するにつれ月重力探査衛星の軌道高度と3D姿勢、衛星軌道を効果的に調整するために軌道・姿勢マイクロ推進機が頻繁にジェット噴射をすることから、不安定な衛星飛行環境が各搭載機器の観測精度に大きく影響する。同時に、月の熱容量と熱伝導率は非常に低いので、月重力探査衛星に作用する月の放射圧も徐々に増大する。このほか、月には大気圏による天然の保護障壁が欠落しているため、月重力探査衛星に対する大気阻害作用が低減されたとしても、太陽光圧と宇宙線粒子流による月重力探査衛星への影響は軽視できない。このため、衛星の受ける非保存力が高精度に排除され、月重

力場の逆解析精度と空間分解能が保障される前提なら、各重要搭載機器(衛星間測距計、衛星搭載加速度計等)の研究開発の難易度は適度に低減され、不必要な労力、資源及び財力の浪費を避けることができる。月重力探査衛星の非保存力の効果的な排除方法は、一般に非保存力の後期修正技術とリアルタイム補償技術の2通りである。

非保存力の後期修正技術の原理は次のとおりである。まず、前期の月重力場測定の過程において搭載加速度計を通じて衛星が受ける非保存力データを取得。次に、後期の月重力場の逆解析方程式において衛星が受ける非保存力 f の作用を外力の合計 F から控除する。この技術の長所は、非保存力の除去が前期測定と後期修正の2つの段階に分けて完了することである。月重力探査衛星は飛行過程で衛星の受ける非保存力についてのみに加速度計で測定すればよく、リアルタイムで補償する必要がないため、搭載機器の研究開発における難易度がある程度低減できる。一方、欠点は衛星軌道の高度の漸減に従い、月重力探査衛星に作用する非保存力(主に軌道高位における姿勢制御力、月放射圧)が急激に増大する点である。

非保存力の補償システムは、一般に衛星搭載加速度計、軌道・姿勢マイクロ推進機及びリアルタイム制御マイクロ処理システムの組み合わせで構成され、基本原理は次のとおりである。まず、衛星搭載加速度計により衛星の受ける非保存力を測定する。次に、リアルタイム制御マイクロ処理システムが加速度計の測定した非保存力を軌道・姿勢マイクロ推進機の期待推進力及びトルクに転換する。最後に、軌道・姿勢マイクロ推進機で衛星の受ける非保存力をリアルタイムで補償する。この技術の長所は、月重力探査衛星システムと搭載機器の非保存力作用が補償システムにより効果的に遮断される点にあり、衛星システムと搭載機器に静的な作動環境を提供することで測定精度を保証すると同時に、衛星の軌道高度を効果的に低減できることから、中短波の月重力場信号の減衰を抑制できる。一方、欠点は搭載機器に非保存力補償システムを新たに追加した点であり、月重力探査衛星の開発難度をやや高めている。

中国は将来の月探査衛星による重力測定計画で、非保存力補償システムを採用するべきだろう。長所は、衛星以外の重要な搭載機器の開発難度(動態測定範囲を適切に短縮することで測定精度を保証)と月重力探査衛星の軌道高度が効果的に低下したため、中高周波帯における月重力場の測定精度にさらなる向上が見込めることである。

2.3 地上Doppler-VLBIシステム非保存力補償システム

月全球の規則的かつ高密度で、高精度、高空間分解能の全周波帯にわたる月重力場データを取得するには、次の3つの基本原則を満たす必要がある。第一に、月重力探査衛星の3D空間要素(位置及び速度)を連続的に、かつ高精度で追跡すること。第二に、月重力探査衛星に作用する非保存力を精密に測定または補償し、精確にモデル化

すること。そして第三に、衛星の軌道高度を極力下げる（50～200km）である。これら3つの基本原則のうち、月重力探査衛星の3D空間要素を連続的に、かつ高精度で追跡することは月重力場の高精度かつ高空間分解能な逆解析が必要となる前提かつ重要な基盤であり、実現にはDoppler-VLBIシステムを経る必要がある。月の重力測定では、衛星レーザ測距装置、非保存力補償システム等の重要な搭載機器の精度指標は、地上Doppler-VLBIシステムの軌道設定精度と厳格にマッチングする必要がある。もし、ある搭載機器の精度指標がその他の搭載機器より高い場合は、誤差原理に基づき知られるとおり、精度指標の高い搭載機器はそのよさを発揮できず、他の機器とマッチングする部分の精度でしか月重力場の逆解析精度に貢献しなくなる。現時点では、衛星レーザ測距装置、非保存力補償システム等の重要な搭載機器の精度指標は、いずれも将来の月重力測定計画における重要な搭載機器の各精度指標のマッチング要求を満たすことができる。しかし、Doppler-VLBI本体の動態軌道設定の精度指標（dm級）は相対的に低く、軌道設定精度が次世代の高精度かつ高空間分解能の月重力場モデル構築における主要な誤差源となっていることから、Doppler-VLBIの軌道設定精度のさらなる向上が待たれる。

3. 月探査衛星の軌道パラメータ設計の合理化

月探査衛星の軌道パラメータ（軌道高度、衛星間距離等）設計の最適化は、中国が将来、月探査衛星による重力測定計画で成功を収めるための重要な要素及び保証である。

3.1 軌道高度

月探査衛星の軌道高度はそれぞれ異なるレベルの重力ポテンシャルに敏感であるため、現存の月重力場探査器は特定の軌道高度エリア内でしかその優位性を発揮できず、軌道範囲の外では基本的に無力である。もし、中国の将来的な月重力探査衛星も現存の探査機の軌道高度の範囲内で設計されるなら、月重力場の逆解析精度が現存の探査機を上回らない限り測定効果は単純な重複に終始し、月重力場測定精度の向上に実質上貢献しない。このため、将来の軌道高度は現存探査機の死角を極力選択し、相補体制を構築すべきである。中国の将来的な月重力測定計画では非保存力補償システムを採用してもよいが、一定の測定精度をもつ非保存力補償システムは月重力探査衛星に作用する非保存力を完全に相殺できず、同時に軌道・姿勢マイクロ推進機の頻繁なジェット噴射も衛星搭載燃料の大幅な浪費をもたらすため、衛星の軌道高度を適切に下げることは月重力場の逆解析精度の向上に効果的であり、その代価はある程度衛星の使用壽命を犠牲にすることである。誤差理論により知られるように、観測データが n 倍増加しても月重力場の測定精度は約 $1/n$ しか向上しないため、月重力探査衛星の軌道高度を適切に下

げたことによる衛星の使用壽命の短縮は、月重力場の逆解析精度に本質的な影響をもたらさない。このため、中国の将来的な月重力探査衛星の高度設計は、50～100kmが最も適切であろう。

3.2 衛星間距離

SST-HL/LL-Doppler-VLBIモデルにおいて、衛星間距離を適切に縮めることは月重力場の高周波数帯の逆解析に役立つが、衛星間距離の設計が短すぎると双子衛星の共通の誤差を打ち消すと同時に月重力場からの信号も部分的に差分されて信号対雑音比が比較的低くなるため、短すぎる距離設計は月重力場の低周波数帯の確定に不利である。衛星間距離を適切に伸ばすと月重力場の低周波数帯の信号対雑音比に有利であるが、衛星間距離の設計が長すぎると今度は測定ノイズが急増し、衛星軌道と姿勢の測定精度に対する要求が高まるため、高周波数帯の測定に不利である。非保存力補償システム及び衛星レーザ測距装置を採用する可能性があることから、中国の将来的な月重力探査衛星の軌道高度は効果的に下げられ、中短波の月重力場の逆解析に資するだろう。このため、中国の将来的な月重力探査衛星の衛星間距離の設計は、100±50kmが適している。

4. シミュレーション研究の先行実施

科学技術の日進月歩、特にコンピュータやマイクロエレクトロニクス、各種運動シミュレータの急速な発展につれ、衛星システムのシミュレーションも日増しに整備されてきた。シミュレーション技術を中国の月重力探査衛星の研究開発及び運行の全過程に応用することを提案する。プランの検証に始まり、システム設計、部品の研究開発、製品検査、実用、故障分析等の各段階で異なるタイプのシミュレーション実験を実施することで、研究開発の質を高め、開発期間の短縮とコストの抑制という目的が達成できる。

4.1 必要性

真空に近い環境条件下において、全衛星状態で各分化システムの技術性能と機能の有効性をデモンストレーションすることで、月重力探査衛星の全システム設計と性能上の欠陥について打ち上げ前に検査及び修正を行うことができ、開発段階で衛星全体に対するリスクを効果的に低減し、各分化システムと全システムとの両立性及びシステムパラメータと構造の合理化を飛行前に確保し、故障の分析と対策に効果的な手段を提供できる。

4.2 実現可能性

現代のコンピュータ技術や高水準のシミュレーションソフト（MATLAB）、並びに各種の高精度かつ信頼性の高い環境シミュレーション設備により、物質的条件は十分に提供されている。また、中国にはすでに、衛星ハードウェアの研究開発及びシミュレーション実験に従事する科学チームも存在する。

嫦娥1号のレーザ測距データ及び月全球のDEMモデル

•Profile•



李 春来 Li Chunlai ●中国科学院国家天文台長補佐

1965年生まれ。研究者、大学院（博士課程）指導教員。中国科学院国家天文台長補佐、月・深宇宙探査科学応用センター主任、中国月探査第3期プロジェクト副総設計師、中国月探査プロジェクト地面応用システム総設計師などを担当。1985年に中南碭冶学院（現在の中南大学）地質系を卒業。1988年8月～2001年12月、中国科学院地球化学研究所・天体化学専攻（大学院課程終了後、研究に従事）。1993年10月～1995年10月、同所副研究員、博士課程指導教員、研究室主任。2002年1月、中国科学院国家天文台に移り現職。長年にわたり地球化学及び天体化学の研究に従事。月探査科学及び応用課題を長く研究。現在は月探査、隕石学、空間断片、スペースデブリ、隕石衝突、惑星リモートセンシングなどを主に研究。発表論文40篇あまり、専門書の著書・共著書は4冊。

嫦娥1号（Chang' E-1、略称CE-1）は中国初の月周回探査機である。2007年10月24日18時5分に長征3A型運搬ロケットによる宇宙への打ち上げが成功し、中国の深宇宙探査の幕が開いた。CE-1は地球を周回する軌道修正飛行を6日間行った後、10月31日に月遷移軌道に入り、11月5日に月重力場に捉えられ月周回軌道に入った。2007年11月20日16時49分、CE-1に搭載されたCCD立体カメラが作動を開始して中国初の月面画像を撮影し、11月28日2時22分にはレーザ高度計（Laser Altimeter、略称LAM）が作動を開始してCE-1から月面までの最初の測距データを取得した。2008年10月24日までにCE-1は1年間の飛行任務を計画通り終え、搭載機器のCCD立体カメラ及びレーザ高度計などの科学探査器から価値の高い探査データを大量に取得し、各科学探査任務を滞りなく終了した。2009年3月1日、CE-1が月面の「豊かの海（Mare Fecunditatis）」の予定されたエリアに落下するとともに、輝かしい「月探査の旅」は終わりを迎え、これをもって中国の月探査計画の第1期プロジェクトに幕が下りた。本稿では、主にCE-1のレーザ高度計のデータ取得状況、処理及び初歩的な探査結果を分析する。

1. レーザ高度計及びそのデータ特性

レーザ高度計とは、レーザの発射と反射の時間差を利用して反射体との間の距離を計測する機器である。CE-1のレーザ高度計は上海技術物理研究所が開発し、CE-1から月面までの距離データの取得ならびに月面の地形測量・マッピングに用いられ、CCD立体カメラによる月面3D映像制作を補助する。CE-1搭載のレーザ高度計の主な技術性能及びパラメータは表1のとおり。

2. CE-1のレーザ高度計データの時間的・空間的特性

レーザ高度計はCE-1が軌道飛行を行った1年余りの間、測距データを絶えず取得していたのではなく、段階別に連続して作動していた。2008年12月4日の時点で、レーザ高度計により軌道探査データ1000件余り、一次測距データ約912万件を取得し、空間データにおいては月全球を網羅した。CE-1のフットプリントは、月面において衛星直下点の方向に沿って時間ごとに連続配列される一連の点である。CE-1は極軌道及び円軌道を採用したため、探測周期全体の軌道傾斜角は約88.2°で、軌道周回周期は2、衛星直下点軌跡は中低緯度地区では経度方向と基本的に平行で、高緯度地区では交差点が密集した。CE-1の軌道高度は約200kmで、レーザ高度計による測距繰り返し頻度は1Hzであったため、レーザ測高データの衛星直下点に沿った軌跡方向（経線方向に近似）の測距間隔は約1.4km、垂直軌道方向（緯線方向に近似）の測距間隔は約17.8kmで（嫦娥1号の衛星直下点軌道間距離は約35.5km、軌道周回周期は2）、かつ、緯度の増減に従い、南北緯60°付近のデータ測距間隔は（緯線方向に）約3km、南北緯80°付近のデータ測距間隔は（経線方向に）900mに達する。

LAMデータの月面網羅状況の統計を取るため、われわれは月面を等間隔の規則的な格子に区分し、LAMデータ912万点の全月面における空間的網羅状況を集計した。その結果、3km格子内に1点以上の一次測高データを含む格子は51.6%を占めた。データ網羅密度から見ると、低緯度地区のデータ網羅密度は比較的低く、緯度の増加に伴い密度は漸増し、両極地区が最大となった。

パラメータ	数値	パラメータ	数値
距離測定範囲	200km±25km	パルス繰り返し頻度	1Hz
フットプリント直径	f200m未満	受信望遠鏡口径	140mm
レーザ波長	1064nm	送信望遠鏡口径	40mm
レーザ出力	150mJ	望遠鏡焦点距離	538mm
パルス幅	5～7ns	距離識別率	1m
ビーム拡散角	0.6mrad	距離測定精度	5m

◎表1 レーザ高度計の主な技術性能及びパラメータ

3. レーザ高度計データの処理

レーザ高度計は衛星軌道でレーザの送受信時間を計測した後に距離データに直接変換するため、LAMの一次データは衛星の固体月面に対する測距値となる。しかし、この一次データには「標高」の概念が必要となるため、一連のデータ処理を経る必要がある。これには主に無効データの削除、システムの修正、幾何学的定位及び標高計算などがある。

3.1 無効データ及び冗長データの削除

軌道設計及び実際の軌道測定データに基づけば、CE-1の軌道高度は $200\text{km} \pm 25\text{km}$ の範囲にあり、月面地形の最大起伏は 20km であるため、レーザ高度計の合理的な測距値もこの範囲内にあるはずである。異常信号、月面のノイズ、月面地形の非平坦さ、信号対雑音比などの原因により、一部の測距値示度がこの範囲を超えるとわれわれはこれを無理数と見なし、削除する必要がある。このほか、測距データの精度を確保するため、毎回のレーザ測距時（レーザ送受信をもって1回とする）にLAMは必ず3回分のサンプルを取るため、毎回2点の冗長測距データを削除する必要がある。

3.2 システムの修正

CE-1の打ち上げ前に、LAM地表実証試験により機器の測距データのシステム修正係数（水晶振動子による量的誤差）及びシステム補正係数（電子システムの遅延によるシステム誤差）が測定されていたため、一次測距データに対するシステム修正の際にこれ修正データを使用する必要がある。

3.3 LAMデータの幾何学的定位及び標高計算

レーザ高度計の測距データは空間概念を有するデータポイントであり、その空間位置は機器、衛星及び月面測定システムのパラメータにより観測方程式を構築して計算する必要がある。LAMデータの空間定位に関係する主なパラメータには、データ取得時刻における衛星軌道データ、衛星の姿勢パラメータ、機器の幾何学的パラメータ、機器の設置データ、月の自転及び方向集中度パラメータなどがある。CE-1の軌道データには地心J2000システムを採用し、姿勢パラメータを軌道座標系とする。高度計設置に関する幾何学的パラメータには衛星本体の座標系を採用し、各座標系の測定値は月固体座標系に統一的に変

換してフットプリントの空間位置を算出し、その後月面のフットプリントの月固体座標系データを大地座標系に変換し、最終的にLAMデータの月面地理座標及び標高値を得る。国際天文学連合 (IAU) と国際測地学協会 (IAG) の提案に基づき、月の大地測定システムは球体の月固体座標系を採用し、参考とする回転楕円体は正球体で半径は 1737.4km を採用し、本初子午線を月正面の見かけ中心（中央の入江、Bay of the center）に設定し、経緯度方向などの定義は地球と相似の方法を採用する。これにより、CE-1のレーザ高度計データはもともとの測距データから月固体座標系下の経緯度値と半径 1737.4km の正の月球体表面の標高値に変換される。

4. LAMデータの精度分析

レーザ高度計データの観測方程式から、フットプリントの月面座標と標高値の精度に影響を及ぼす主要要素には、衛星からフットプリントまでの距離（機器による測距値）の精度、衛星ベクトル（軌道測定値）の精度及び機器観測方向の測定精度（姿勢測定値、機器設置パラメータにより決定）が含まれることがわかる。このほか、機器システムのノイズ、月面地形の起伏などもレーザ測距データの精度に一定の影響をもたらす。表2ではCE-1及び測定データに基づき、嫦娥1号のレーザ標高データに関する各種誤差原因及び誤差を計算した。

表2の計算結果から、衛星軌道及び姿勢の測定精度がLAMデータの精度に影響を及ぼす最も重要な要素であることがわかる。誤差の伝播法則に基づくCE-1のレーザ測距データの最終計算結果は以下のとおりである。

- (1) 円弧データの測定・制御がある状況下では、LAMデータの標高誤差は 21m (1σ)、平面位置の誤差は 224m (1σ) である。
- (2) 円弧データの測定・制御がない状況下では、LAMデータの標高誤差は 60m (1σ)、平面位置の誤差は 445m (1σ) である。

大多数のLAMデータは円弧データの測定・制御がない状況下で得られたため、CE-1のレーザ高度計データの誤差は円弧データの測定・制御がない状況下でのデータ制度を採用する。すなわち、標高誤差は 60m (1σ)、平面位置の誤差は 445m (1σ) である。

誤差原因	測定機器	測定精度	誤差計算結果	
			月中心方向(標高)	平面
軌道測定誤差	USB及びVLBI 双方で測定	円弧データの測定・制御あり	$20\text{m}(1\sigma)$	$179.6\text{m}(1\sigma)$
		円弧データの測定・制御なし	$60\text{m}(1\sigma)$	$424\text{m}(1\sigma)$
姿勢測定誤差	星センサ	起動座標系、 0.15° (3σ) 上回る	$<1\text{m}$	$129\text{m}(1\sigma)$
時間測定誤差	星時計	5ms	$1\text{m}(1\sigma)$	$8\text{m}(1\sigma)$
設置機器の測定誤差	コリメータ	設置誤差 $20''$ (3σ)	$<1\text{m}(1\sigma)$	$14\text{m}(1\sigma)$
機器の測距誤差	レーザ高度計	$5\text{m}(1\sigma)$	$5\text{m}(1\sigma)$	$1\text{m}(1\sigma)$

◎表2 CE-1のレーザ高度計による月面標高測定の誤差分析

5. 月全球のDEM処理及び地形図の作成

月面の数値標高モデル（DEM）の作成は月面形状・地形に対するデジタルモデリングの一種である。われわれは2007年11月28日から2008年12月4日までに得た約912万点のレーザ高度計による測高データを選択し、規則的な格子モデルを採用して月全球のDEMモデルを作成した。月全球のDEMモデルのデータ処理は、主にデータのフィルタリング、空間分解能の分析、補間及び作図の3つの手順を経る。

5.1 LAM標高データのフィルタリング

機器システムのノイズ、月面地形の起伏、衛星軌道及び姿勢測定など、複数の段階のいずれにも誤差は存在するため、LAMの一次標高データは誤差を避けられない。一次データからDEM処理過程までのデータ誤差は伝播により拡大され、標高データ中に明らかな標高特異点をもたらし、著しいずれやねじれ現象が生じることさえある。

標高散布における特異点データを効果的にフィルタリングするため、われわれは月全球の表面を南極（S60～S90°）、北極（N60～N90°）、中緯度の月の海（S70～N70°、W95～E95°）、中緯度の月の陸（S70～N70°、W180～W85°、E85～E180°）の4エリアに分割し、異なる標高閾値を採用してそれぞれにフィルタリング処置を実施した。フィルタリングプロセスは単軌道フィルタリングとエリアフィルタリングの2つのプロセスで完了する。

5.2 データの補間

上記フィルタリングを経てレーザ測高データの特異点が削除されたことにより、標高データに対する補間処理に用いることができ、月全球の規則的な格子におけるDEMモデルが作成できる。

われわれは各種補間計算法による内的精度、標高3次元化図、地形解剖について実験と比較を行った結果、クリギング補間による内的精度は200m以内に達し、嫦娥1号の

LAMデータの応用に最も適していることが明らかになった。このため、われわれはクリギング（kriging）補間法を月全球のLAMデータ処理に採用した。

5.3 DEM格子の大きさ及びその精度分析

CE-1レーザ測高データによる地図作成能力を分析し、月全体のDEM空間分解能を確定するため、われわれは格子の大きさが異なる状況下の標高データの測定誤差とDEMの精度について実験を行った。表3では、月全球の表層の8km、7km、6km、5km、4km、3km、2km格子における測距データの有無の確率及びDEM標高誤差を示した。この結果、格子が3kmを上回る状況では実際の測距データが存在する確率は50%を上回り、DEM標高誤差は58.6m（ 1σ ）より優位で、高度計の標高測定の実際の誤差を60m（ 1σ ）下回ることが分かった。このため、3kmを規則的な格子の大きさに選択して月全球のDEM製図を行えば標高測定の誤差を補うことができる。

データ網羅率のDEM空間分解能に対する影響を検査するため、われわれは南半球の高緯度地区、赤道付近、北半球の高緯度地区の3つの実験地区を選択し、30%、50%及び100%のデータ網羅率下でのそれぞれの標高測定値の相関性とデータ誤差を分析した。

分析の結果、データ網羅率30%による標高誤差は251m（ 1σ ）に達し、レーザ高度計の標高誤差（60m（ 1σ ））をはるかに上回ったものの、データ網羅率50%によるDEM標高誤差は58.6m（ 1σ ）で高度計の誤差を下回ったため、各地区におけるフットプリントのデータ網羅率が50%以上に達した際に作成されたDEMモデルの精度がレーザ高度計による月面標高の測定精度を満たすことがわかった。上記データの空間特性に対する分析結果によれば、格子間隔3kmにおける月全球のデータ網羅率は51.6%に達する。このため、CE-1のレーザ高度計データは空間分解能3kmの月全球のDEMモデルを作成できる。

	8km格子	7km格子	6km格子	5km格子	4km格子	3km格子	2km格子
測高データ網羅率 (%)	90.3	86.3	81.0	73.6	64.1	51.6	34.0
DEM標高誤差(m)(1σ)	35.2	40.3	42.1	48.3	55.3	58.6	234.2

◎表3 月全球の異なる大きさの規則的な格子を用いたレーザ高度計の実際の測距データによる網羅率の統計表

データ出典元	月面の最高地点			月面の最低地点			最大 標高差 (km)
	経度	緯度	標高(km)	経度	緯度	標高(km)	
CE-1(本稿)	158.656° W	5.441° N	10.629	172.413° W	70.368° S	-9.178	19.807
SELENE(日本)	158.64° W	5.44° N	10.75	172.58° W	70.43° S	-9.06	19.81
CE-1 (上海天文台)	158.625° W	5.375° N	10.44	148.625° W	61.375° S	-8.63	19.07
ULCN2005 DEM	160.656° W	3.344° N	7.939	169.719° W	69.781° S	-8.910	16.849

◎表4 月面の最高地点、最低地点、最大標高差の測定結果の比較

6. 月の最大標高データの測定及び分析に関する比較

CE-1のレーザ高度計DEMモデルより月面地形の最高点、最低地点ならびにそれらの位置を分析したところ、いずれも月の裏側に位置することがわかった。最高点はコロレフ (Korolev) とディリクレ・ジャクソン盆地 (Dirichlet-Jackson) に隣接する隆起構造上にあり、エンゲリガルト (Engel' gardt) クレータの東縁に沿って位置し、経度 158.656° W、緯度 5.441° N、標高 $+10.629$ kmであった。2番目に高い地点の座標は経度 159.191° W、緯度 6.062° N、標高 $+10.271$ kmであり、3番目に高い地点の座標は経度 159.804° W、緯度 6.007° N、標高 $+9.576$ kmであった。月面地形の最低地点はいずれも南極エイトケン盆地 (South Pole-Aitken Basin) 内の3つのクレータ底部にある。最低地点はアントニアディ (Antoniadi) クレータ底部の南縁近くの低地にあり、経度 172.413° W、緯度 70.368° S、標高 -9.178 kmであった。2番目に低い地点はベリングズガウゼン (Bellinsgauzen) クレータ内の東南縁にあるクレータの底部にあり (経度 148.483° W、緯度 61.009° S、標高 -8.973 km)、3番目に低い地点はルメートル (Lemaître) クレータ内のルメートルF (Lemaître F) 底部にあった (経度 159.804° W、緯度 61.543° S、標高 -8.748 km)。月全球の最大標高差は 19.807 kmであった。

最高点、最低地点及びその位置の正確さを検証するため、われわれはDEMモデル及び一次測距データの再検証を行い、かつ、画像データと結合してさらに検査を実施した。最高点のレーザ測高データは北京時間2007-12-22 T12:19:51.727に得られたもので、フィルタリング過程において当該データは有効に維持された。当該データの一次標高値は 10.632 kmで、補間後のDEMモデル上の対応位置における標高値は 10.629 kmであった。同一の衛星直下点軌跡における、当該ポイントと連続的に観測した前後2つのフットプリント標高値は順に 10.345 km、 10.528 kmならびに 10.597 km、 10.513 kmであった。最も近い (約5km) もう1本の軌道データでは、当該ポイント付近のレーザフットプリントの標高値は 10.619 kmであったことから、本稿で見られた最高点はデータ特異点ではなく、月面の実際の標高測定データであることが分かる。

最低地点データは北京時間2008-07-15 T13:52:29.778に得られたもので、最高点と同様の検査過程を経て、当該データも特異点ではなく実際の標高測定データであることがわかった。

このほか、最高点と最低地点のデータの信憑性についてさらに調べるために、われわれはこれらデータポイントをCE-1衛星のCCD画像上にオーバーレイしたところ、両者と月面地形特徴が一致したことから、最高点と最低地点の位置は正確であるとわれわれは考える。

表4の統計結果に基づけば、本稿でいう月面最高点の位置と標高データは日本のSELENEの結果と最も近く、ULCN2005 DEMの結果から最も離れる。平野松らのいう

「最高点」は本稿及び日本の結果と比較的近いが、「最低地点」の結果は本稿でいう3番目に低い地点に比較的近く、実際の最低地点の位置とは異なる。CE-1とSELENEはいずれも測距繰り返し頻度1Hzを採用し、測定点と軌道との間隔も近かったため (それぞれ約 17.8 km、 15 km)、両者の測距データの網羅分解能も同一であるはずだが、両者の最高点データは標高値で 121 mの差があり、平面位置の差は約 484 mであった。CE-1のレーザ測距データの標高測定精度は 60 m (1σ)、平面位置誤差は 445 m (1σ)であることを考慮するなら、CE-1とSELENEの最高点の標高データ差はCE-1の標高データ誤差の標準差のわずか2倍、平面データ誤差の標準差のわずか1倍でしかないため、双方のデータは弁別し難く、同一測定点のデータであるかもしれず (両者の差は測定誤差によるとも考えられる)、あるいは位置と標高の近い2つの測定点のデータであるかもしれない。

CE-1とSELENEの最低地点の平面位置の差は約 5.38 kmで測定誤差をはるかに上回るため、CE-1とSELENEモデルで得られた2つの最低地点は異なる地点の測定データであるとわれわれは考える。本稿のCE-1モデルの最低地点はSELENEより 118 m低く、CE-1標高データ誤差の2倍の標準偏差の範囲にあるとは言え、CE-1のレーザフットプリントの位置が月面の実際の最低地点の位置により近い (あるいは全く同等である) 可能性が極めて高い。

7. 結論

- 7.1 1年4ヶ月間の軌道飛行を経て、嫦娥1号は科学探査を成功裡に終えた。レーザ高度計は1000件あまりの軌道探査データを取得し、約912万点の有効な一次測距データが月全体の空間データを網羅した。
- 7.2 CE-1のレーザ高度計による月面のフットプリントにおける標高と平面位置の測定精度は、それぞれ 60 m (1σ) と 445 m (1σ) であった。
- 7.3 月全球の格子間隔 3 kmにおけるCE-1レーザ高度計による測高データの空間網羅率は 51.6% に達した。DEM標高測定誤差は一次データの測定誤差を下回り、空間分解能 3 kmの月全球DEMモデルを独自に作成した。
- 7.4 データ処理において、単軌道フィルタリングには地学的統計法を、エリアフィルタリングには移動局面フィルタリング法を用い、偶発的な誤差を効果的に削除した。データ補間にはクリギング法を採用し、内的精度は 200 m以内に達し、一次測高値を効果的に維持した。
- 7.5 CE-1レーザ高度計により作成された月全球DEMモデルは、地形の細かい点まで表現レベルが明確で識別しやすく、ULCN2005 DEMモデルより明らかに優れている。SELENEモデルと並び、現時点で同種のデータの精度と分解能が最も高いデータである。

- 7.6 CE-1レーザ高度計によるDEMモデルから得られた月全球の最大標高差は19.807kmであった。月の最高地点はコロレフ（Korolev）とディリクレ・ジャクソン盆地（Dirichlet-Jackson）の2大衝突盆地の間の隆起構造上にあり、経緯度は 158.656° W、 5.441° N、で、標高は+10.629 kmであった。最低地点は南極エイトケン盆地（South Pole-Aitken Basin）内のアントニアディ（Antoniadi）クレータ底部の南縁近くの低地にあり、経緯度は 172.413° W、 70.368° Sで、標高は-9.178 kmであった。日本のSELENEのDEMモデルの結果と比較すると、CE-1のDEMモデルの最高地点とはわずかの差しかなく、最低地点とは標高値が同じであったが平面位置の差が5.38kmだったため、異なる最低地点と考えられる。

火星EDLの航法、誘導、制御技術の概要及び展望

●Profile●



李 爽 Li Shuang ●南京航空航天大学 副教授

工学博士。2007年、ハルビン工業大学航天学院卒（飛行機設計専攻）。2010年、江蘇省の「青藍プロジェクト」で優秀青年中核教師の育成対象に選出。主に、宇宙探査機の動力学と制御、深宇宙探査に関する教育と研究に従事。研究責任者として、国家自然科学基金（青年基金）、教育部博士学位授予与機関基金（新教師類）、中国博士後科学基金（一等）、江蘇省博士後基金、南航創新基金で各1テーマを担当。筆頭執筆として学術論文30編あまりを発表、うちSCIに9編、EIに20編収録。発明特許2件。国家自然科学基金の審査専門家。IEEE T AERO ELEC SYS、ADV SPACE RES、J INTELL ROBOT SYST、AIRCRAFT ENG AEROSP TEC、自動化学報、航空学報、宇航学報、系统工程及び電子技術、空間科学学報などの審査専門家。

0. はじめに

社会経済の発展と宇宙開発技術のたゆみない進歩に伴い、太陽系の他の天体を探索することで地球に対する理解と認識を深めたいという人類の望みは一層強まってきている。地球から最も近い惑星の一つである火星はさまざまな面で地球と類似しているため、人類が深宇宙探索を行う際の最初のターゲットとなっている。1962年にソ連は最初の火星探査機「マルス1号」を打ち上げ、1971年には「マルス3号」が探査機の火星着陸に初成功した。その後、米国、ヨーロッパ、日本が「バイキング号」、「マーズ・パスファインダー号」、「のぞみ号」、「マーズ・エクスピレス号」、「スピリット号」、「オポチュニティ号」、「フェニックス号」などいくつもの火星探査機を相次いで打ち上げた。火星探査活動は人類の深宇宙探査において、近年最もホットな話題となっている。

この40年間、ソ連、米国、ヨーロッパ及び日本により合計37回の火星探査が行われたが、ミッションの3分の2が失敗に終わっている。突入、降下及び着陸（EDL：Entry, Descent, Landing）は火星探査ミッションの中で最も重要なフェーズの一つであり、なかでも航法、誘導、制御技術はEDLの難点で、ミッション全体の成否を直接決定づける。現在までの火星着陸ミッション16回のうち着陸に成功したのはわずか6回で、成功率は4割に満たない。変化の激しい地理環境（突風や砂嵐など）及び火星の大気密度の不確実性が成功を妨げる最大の障害となっている。大多数の火星の突入、降下及び着陸フェーズで現在までに採用されているのは慣性航法技術であり、軌道に対して制御を行わずエアバッグを利用して着陸時の衝撃を緩和する。従来の火星着陸で採用された慣性航法技術は装置の誤差とドリフトの影響で航法精度が低く、着陸軌道を制御しない限り着陸偏差を修正できないため（着陸誤差は楕円300km～100km）、エアバッグを利用した着陸では有効な搭載機器の質量とサイズに一定の条件が求められた。現行の火星EDLの航法、誘導、制御技術では将来の有人火星着陸またサンプルリターンにおける着陸精度及び安全性の要求を満たすことはできないため、次世代の火星EDLの航法、誘導、制御技術を発達さ

せる必要がある。

本稿では、過去に着陸に成功した火星探査機の航法、誘導、制御技術を典型例とし、火星EDLの航法、誘導、制御技術の歴史と現状を系統立てて概観し、既存技術の長所・短所について対照分析を行う。そして、将来の無人サンプルリターン、有人着陸及び火星探査基地ミッションを潜在的な実用目標として、次世代の高精度な火星EDLの航法、誘導、制御技術を全面的に分析し、展望する。

1. 火星EDLの概要

一般的に火星の大気高度は125kmと考えられているため、火星EDL（Entry, Descent, Landing）フェーズは探査機が上記高度に達した時から始まり、突入（Entry Phase）、降下（Descent Phase）及び着陸（Landing Phase）を順に経るものとされる。

火星の大気状況には、変わりやすい気候やたびたび吹く強風、砂嵐など大きな不確実要素が存在するうえ、劣悪な空力加熱環境も探査機にとって非常に大きな試練である。火星EDLの直面する主な困難は次の5点に表れている。(1) 火星の大気は希薄で、密度は地球の約1%、表面気圧は地球のわずか0.7%しかない。EDLフェーズ全体の経過時間が短いわりに状態変化が速いため、減速性能に対する要求が高く時間も限られている。(2) 地球－火星間の通信遅延は約10分であるのに対しEDLの全フェーズは6～8分しか持続しないため、着陸探査機には自立した航法、誘導、制御技術を備える必要がある。(3) 火星の環境は複雑で変化が激しく、現時点では理解が限られ不確実要素が多いため、信頼性に対する要求が非常に高い。そのため着陸探査機の航法、誘導、制御システムには一定の適応能力が求められる。(4) 探査機のデータ処理及びメモリ容量は限られることから、一部の複雑かつ精密な航法、誘導、制御計算の実用が制約を受ける。(5) 相応するシミュレーション環境及びデータが不十分なため、実際に即した実験のしようがなく、事前の予測と仮定に頼るよりほかない。

2. 火星EDLの航法、誘導、制御技術の歴史

火星の着陸に成功して探査活動を実施している探査機は現時点で6機あり、それぞれ「バイキング1号」(Viking 1)、「バイキング2号」(Viking 2)、「マーズ・パスファインダー号」(MPF)、「マーズ・エクスプロレーション・ローバー A」(スピリット号、MER-A)、「マーズ・エクスプロレーション・ローバー B」(オポチュニティ号、MER-B)、「フェニックス号」(Phoenix)である。

突入フェーズ (Entry Phase) では「バイキング号」が揚力体の設計を採用したのを除き、他のミッションはすべて無揚力の弾道式突入を採用している。また、「バイキング号」を含むすべてのミッションで閉ループを用いない誘導制御システムを採用し、再突入軌道に対していかなる制御も行わなかった。「バイキング号」と「フェニックス号」は自律の姿勢制御システムを持つが他の探査機にはない。火星の過酷な空力加熱環境の制約により、従来の火星再突入で使用する航法センサは慣性計測装置 (IMU, Inertial Measurement Unit) しかなかった。初期状態に大きな不確実性が存在し、ジャイロスコープと加速度計のドリフト量は未知数であったため、外部の空力環境の激しい変化のもとではIMUに基づく推測航法では航法精度が低い。閉ループを用いない軌道制御では再突入軌道が予定軌道から逸脱した後すぐに修正できないため、ミッションの着陸精度に対する要求 (誤差楕円が一定の数値を下回ること) を満たすためには、再突入時の探査機の状態推測値がEDL開始前にディープスペースネットワークを通じて探査機に高精度に伝達されている必要がある。

現在、降下フェーズ (Descent Phase) で用いられているのはディスク・ギャップ・バンド式超音速パラシュートで、構造的に超音速での安定性が良好だが減速効果は芳しくない。パラシュートの素材と構造上の制約により開傘時のマッハ数は大きすぎずはならず、現在の技術レベルでは開傘時はマッハ2.5を上回らないことが要求される。これにより探査機の滞空時間が短くなるうえ、突風の影響を受けやすく、機動能力がなくなりやすいことから、着陸時の楕円誤差半径が比較的大きくなってしまふ。「バイキング号」と「フェニックス号」は姿勢センサと水平速度のためにドップラーレーダを搭載した。一方、「マーズ・パスファインダー号」と「マーズ・エクスプロレーション・ローバー」は質量の制約からドップラーレーダを搭載しなかったが、「マーズ・エクスプロレーション・ローバー」には光学航法カメラが搭載され、降下時の画像処理により水平速度を推算した。「バイキング号」と「フェニックス号」はエンジン降下による着陸を採用したため、最後の着陸フェーズで姿勢制御を行う必要があり、着陸速度はゼロに近かったが、「マーズ・パスファインダー号」と「マーズ・エクスプロレーション・ローバー」が採用したのはロケットによる減速とエアバッグ

との組み合わせにより着陸時の衝撃を緩和する方式で、姿勢制御を必要としなかった。これら火星ミッションの着陸機はいずれも障害検知能力と忌避能力を持たなかったため、着陸時の安全性能は低かったうえ、質量は小さく、着陸地点の海拔が低かったため、着陸誤差は非常に大きかった (数百kmオーダー)。加えて、着陸フェーズでは外部環境の影響を大きく受けることから、今後のサンプルリターンや有人火星着陸、火星基地などのミッションにおける着陸精度や安全性の要求を満たすことはできない。

3. 火星EDLの航法、誘導、制御技術の展望

NASAは2011年秋に打ち上げを予定している「マーズ・サイエンス・ラボラトリー」(MSL, Mars Science Laboratory)で、既存の技術をベースにいくつかの新技术を採用している。このほか、NASAやESAの今後の火星探査計画に含まれるサンプルリターンや有人火星着陸ミッションにはさらに質量の大きな着陸機が要求され、着陸海拔もさらに高くなるうえ、高精度な着陸及び自律的な障害忌避能力が要求される。これらミッションの「過酷な」要求を満たすために、高精度で自律的なEDL航法、誘導、制御技術は不可欠である。

現行の火星EDL航法、誘導、制御技術における問題及び将来の発展について、本稿では主に次の7つの面に分けて実現可能な解決の道筋を系統立てて概観する。

3.1 新たな非線形性評価による計算法を開発し、探査機の状態推測に対する精度を高める。

従来の火星EDLで採用した推測航法ではIMUの出力角速度と加速度情報に対して積分を行い、姿勢、位置及び速度の状態量を得たが、慣性計測装置のドリフトと偏差の影響が大きかったうえ、誤差が時間に伴い累積したため、外部からの修正がない状況下では正確な推測状態量を得るのが非常に難しかった。この難題を解決するため、IMU測定出力を外部からの測定情報として、動力学モデルにより帰納された推測状態量を修正することができる。これらの方法を用いれば従来の推測航法で誤差が時間に伴い累積し、伝播する問題を効果的に解決することができるが、正確な数式モデルが必要となる。EDLのプロセスにおいて、火星の地理環境パラメータの正確さはモデルの正確さに影響を及ぼす重要な要素の一つである。これらパラメータの不確実性は、マルチモデル適応またはニューラルネットワークを利用してパラメータを推測することにより正確さを高めることができる。現在、プロジェクトで応用されている誘導フィルタの大部分は拡張カルマンフィルタ (EKF) であるが、EKFの線形化処理ではシステムの非線形性が強い際は誤差が大きくなる可能性がある一方、粒子フィルタ (PF) やUnscentedカルマンフィルタ (UKF) には線形化のプロセスがなく、この問題を適切に回避できるために推測精度を大幅に向

上できる。しかし、PF、UKFはEKFに比べ計算の負担が大きいことから、現在の研究では、いかに計算の複雑さを減らして効率を向上し、実用に移すかに重点をおくべきである。

3.2 新たな航法の組み合わせ方を発達させることにより、相対的な航法精度を向上させる。

火星軌道上の潜在的または既存の航法標識資源を利用し、たとえば火星の航法ネットワークまたは火星ミッションの軌道上で運行するオービタは、衛星間測定及び通信の組み合わせを通じてナビゲートすることができる。現在のところ、慣性計測に基づいた推測航法は火星の突入フェーズで採用される唯一の航法で、航法誤差は時間に伴い累積して伝播されることから、外部測定によるドリフトと偏差の修正に迫られているため、IMUに衛星間無線測定を加える組み合わせ航法は非常に良い選択肢の一つと考えられる。着陸機の耐熱シールドが投棄された後は、レーダ高度計、光学カメラ、レーザレーダなどの航法センサにより高度、画像、速度などの情報が得られるが、これら計測情報を利用していかに正確な航法情報を得るかが現在の火星EDL航法、誘導、制御技術研究の関心事の一つである。光学航法カメラ、レーザレーダ、IMUによる航法測定にはいずれも位置、速度、姿勢などの情報が含まれるため、複数のセンサによる情報融合技術を通じて、各種有用な航法測定情報を総合的に利用することで航法精度を向上させることができる。近年、航法カメラは重量が軽く、エネルギー消費が小さいなどの特徴から航空宇宙分野で広く採用されており、陸エリアの地形情報のみならず、適切な画像処理を経て得られた位置、速度、姿勢などの情報について視覚的航法[23]を実施できる。得られた情報の種類により、画像処理方法は大きく次の3種類に分けられる。一つ目は、リアルタイムで得られた降下画像と火星表層の既知の地形情報を比較し、地形照合計算法を運用して探査機の位置情報を確定すること。二つ目は、ある特定地点を追跡することで水平運動の速度情報を確定すること。三つ目は、画像中のいくつかの特定地点の相対位置により姿勢情報を確定することである。光学／視覚的航法の重要技術としての画像処理計算法には、一般的に処理量が多いという欠点があり、これが光学／視覚的航法の普及に制約をもたらしている。視覚補助慣性航法は視覚と慣性航法の長所を統合すると同時に、単一の航法による不足を克服することで、相対的な航法精度と信頼性を高めている。

3.3 軌道誘導と制御により突入状態のリアルタイム修正を実現する。

次世代の火星探査機は基本的に「バイキング号」の揚力体構造の設計理念を受け継いでおり、重心が圧力中心から一定距離離れていることで探査機が一定の迎角（トリム迎角）で飛行し、生じる揚力により突入軌道に対して一定の制御と修正を行う。「バイキング号」は揚力体構造の設

計を採用したとは言え軌道のリアルタイム制御はせず、より良好な減速効果のみを目的としていた。ロール角の制御を通じて軌道を制御することで着陸地点の分散誤差を減らし、着陸の安全性を高めることができる。火星EDL軌道の誘導・制御方法は非常に多いが、大きく次の2つに分類できる。一つ目は基準軌道を追跡する方法で、あらかじめ既知のデータにより基準軌道を設計しておき、その軌道を追跡するよう探査機を制御する。二つ目は状態推測に基づき軌道を修正する方法で、現在の状態と動力学モデルに基づき終着時の状態値を予測し、終着状態の期待値との差により現行軌道を修正する。基準軌道追跡の長所はシンプルで実現が容易であることだが、欠点は線形化に基づくため基準軌道と実際の軌道との差が大きい場合に線形化仮説が成立せず、誘導・制御誤差が拡大する点にある。また、基準軌道追跡法には固定された1本の基準軌道があるのみで、空気動力学と大気密度パラメータに大きな変化がある場合に、効果的な制御という目的を達成できない点にある。一方、状態推測に基づき軌道を修正する方法の長所は、探査機の状態や大気パラメータが変化した場合に既存の予定軌道を変更して誤差を減らせ、制御システムに対する要求が低く、一定の環境適応能力がある点にある。しかし、欠点も非常に明かで、この方法は正確な動力学モデルと大気モデルにより探査機の終着時の状態を予測しなければならない。現在の火星の地理環境に対する理解と探査機のデータ処理能力を鑑みれば、一つ目の方法が近い将来の火星EDLミッションによりふさわしいが、二つ目の方法のほうが将来性があり、次世代の火星EDLミッションにおける突入軌道誘導及び制御プランとして最初の選択肢となろう。

3.4 探査機の飛行状態や迎角、横滑り角、マッハ数、温度などの相関パラメータについてリアルタイム測定を実施する。

「バイキング号」では動態圧力変換器を使用しており、状態精度に顕著な向上は見られなかったものの、制御システムのロバスト性[22]を大幅に向上させた。2012年に着陸予定の「マーズ・サイエンス・ラボラトリー」では、耐熱シールドにはめこまれた温度圧力センサをEDLプロセス関連データの収集に使用する。これら測定データを通じて、火星の大気モデルを一層正確にして不確実性を減らすことができ、最終的には迎角、横滑り角、マッハ数、動態圧力、温度などのリアルタイム計測ができ、誘導・制御精度を効果的に高められる。

3.5 新型の超音速・減速パラシュートを進化させ、降下フェーズにおける軌道制御を実現し、環境などの不利益な要素による影響を減らす。

これからの着陸探査機では質量が増加するため、従来の円型パラシュートでは素材と構造上の制約により開傘時のマッハ数が低減するうえに機動能力がないことから、将来的に要求される正確な着陸の必要を満たすことができず、新型の超音速・減速パラシュート[38]の研究に

迫られている。新型のパラフォイルは適切な機動能力を提供することができ、アポジキックモータとの組み合わせで、誘導と制御により探査機の制御可能な降下を実現する。もう一つの全く新しい減速方式は膨張減速機であり、エアバッグの膨張により増大された抵抗係数により減速効果を達成する。この方法ではマッハ5のときに開傘する。素材と関係分野の発展に伴い、当該技術は将来的に超音速フェーズでも使用できる可能性がある。従来型のパラシュートに比べ、膨張減速機の空気動力学性能は安定しているためパラシュートの動揺現象が生じず、探査機と搭載機器に対する衝撃が小さく、超音速状態における減速効果も良好で滞空時間が長く、探査機のより早い段階での熱シールド投下を保证するため、より多くの航法計測情報を提供する。また、膨張減速機の制御性は良好なため、姿勢と軌道制御を行いやすい。一方、欠点は質量が減速パラシュートより大きい点、質量が比較的小さい探査機にはふさわしくない点にある。パラシュートの亜音速における減速性能が良好である特徴と合わせ、火星EDLプロセスでは超音速の膨張減速と亜音速パラシュートとを組み合わせる方式を採用することができる。火星の大気は稀薄であるため空気動力学に基づく減速効果には限りがあるが、パラシュートの代わりに逆推進ロケットを使用すれば減速性能を向上させると同時に降下制御も実現できることから、当該技術の利用を考慮してもよいが、まだ検証段階にある。従来型では最後の着陸フェーズで一般的に逆推進ロケットによる減速かエアバッグによる緩衝を採用しているが、当該着陸方法の欠点は着陸機の質量が大きくなりシステムが複雑で、信頼性が低い点にある。熱気球による新たな減速・着陸システムは軟着陸を実現できるのみならず、複数回の機動や他の着陸したい地点での着陸も可能である。エンジン減速による着陸と比べ、熱気球着陸システムでは探査機の質量が非常に大きくなるが、製造費は比較的安く、現時点ではロシアの探査機ですでに実験が行われている。

3.6 探査機は障害検知・回避能力 (AHDA) を必ず装備している必要がある。

火星表層の地形は複雑で、岩石や勾配、渓谷などの障害物が至るところにあるため、これら潜在的な障害を自主的に検知し、回避できるか否かは火星の安全な着陸において大変重要である。AHDAの鍵となる技術には2つの点がある。一つ目は、各種航法センサの測定情報から障害エリアと安全エリアを識別し、安全な着陸地点を選定することであり、二つ目は、探査機を自律制御して選定した安全な着陸地点まで誘導することであり、同時に最適な燃費という制約と外部環境による不利益な影響も考慮しなければならない。現時点までに打ち上げられたすべての火星探査機には自律障害検知・回避能力は備えられていない。NASAの「マーズ・サイエンス・ラボラトリー」では「スカイクレーン」(sky crane) という着陸方

式を採用し、初歩的な自律障害検知・回避能力を装備する予定である。

3.7 適応制御やニューラルネットワークなどのインテリジェントコントロールを応用して探査機制御システムの性能を高める。

軌道制御、姿勢制御、エンジン制御などの制御に関する問題はEDLの全プロセスに共通であるため、制御システムの性能の良し悪しが探査ミッション全体の成否に直接関係する。火星EDLの3つのフェーズ（特に突入フェーズ）において探査機の状態パラメータの動態変化は急速であるうえに、動力環境も複雑で変化が激しいことから、各種パラメータの数値に大きな変化が生じるため、高精度なEDLではシステムの反応が迅速で誤差が小さく、ロバスト性が強く、同時に燃費の最適性、ルートのも最適性などの制約条件を満たすことが要求されており、従来型の制御方法ではこれらの「過酷な」要求を満たしようがない。一方、適応制御やニューラルネットワーク制御なら、外部干渉のある条件下でも比較的良好に予定の制御目標を達成することができるため、良好な環境適応能力と一定のインテリジェンスは当該問題について将来取り得る解決の道筋である。

結論としては、探査機のデータ処理及びメモリ容量の向上と火星探査ミッションの進化につれ、火星EDLの航法、誘導、制御技術はより精密で、信頼性が高く、複雑で、よりインテリジェンスな方向を目指して進化する必要がある。

4. 終わりに

EDLフェーズは火星ミッション全体で最も重要なフェーズであり、ミッション全体の成否を決定づける。なかでも、これと関連する航法、誘導、制御技術もまた火星EDLにける中核技術の一つであり、火星の着陸成功において他に代えられない役割を担っている。本稿では過去及び現在の火星EDLの航法、誘導、制御技術について系統的に回顧・概括し、将来の高精度な火星EDLの航法、誘導、制御技術について全面的な展望と分析を行った。

わが国がすでに人工地球衛星と有人飛行船の帰還技術を掌握していることは、火星EDLの航法、誘導、制御技術の研究において一定の助けとなる。しかし、火星の大気と地理環境は地球と大きく異なるため、火星の高精度な突入、降下、着陸における航法、誘導、制御は依然として多くの技術的な難題に直面している。それら難題には、エア駆動減速技術や超音速開傘技術、高精度な航法技術、自律障害検知・回避技術などがある。このため、わが国の現状と既存の技術力を結合して火星EDLの航法、誘導、制御技術について系統的かつ掘り下げた研究を行い、将来の火星探査ミッションに必要な技術支援を提供する必要がある。

構造軽量化を実現した新型成層圏飛行船研究の進展

•Profile•



譚 惠豊 Tan Huifeng ●ハルビン工業大学航天学院複合材料・構造研究所副所長、教授

1969年11月生まれ。1997年、ハルビン工業大学博士課程卒（複合素材専攻）。2003～2004年、ドイツ・ミュンヘン工科大学客員研究員。1994年～ハルビン工業大学航天学院複合材料・構造研究所にて教育・研究に従事。主に飛行船の構造及び素材、空中ガス充填・展開構造、軟性複合素材などを研究、論文80編あまりを発表。国家科学技術研究の20事業を担当。現在、黒竜江複合素材学会事務局長、黒竜江省力学研究所副事務局長、国家事業審査専門家、米国 AIAA 会員。

成層圏飛行船は飛行高度や遮蔽性、機体維持能力、視野幅、コスト、運行寿命、設備周期、機動性、情報の送受信能力、迅速な配備・移動などの面で優位性があり、軍用・民用価値が非常に高い。米国、日本、韓国、EUなどはいずれも、成層圏を制するための戦略目標として、成層圏飛行船という先端科学技術を非常に重視し、成層圏プラットフォームのフィジビリティ・スタディ及び飛行検証試験を相次いで実施している。

各国の状況によれば、成層圏飛行船の大型化こそ、成層圏環境における飛行船の長時間運行を実現するために各国が現在採用している方法である。成層圏飛行艇の研究は抵抗力、重量、抵抗力の克服に必要なエネルギーの間の相互関係の問題に直面している。飛行船の構造の軽量化は、飛行船の重量を根本的に低減できることから、飛行船を上昇させるのに必要な気囊の体積を抑えることができる。そのため、この相互関係の連鎖を断ち切る重要な部分となっている。

現在、気囊素材性能の直接的な改良、飛行船の構造の変更及び空中展開方式の採用が飛行船の軽量化実現のために各国が競っている方法である。

1. 気囊素材性能の改良による軽量化方法

気囊素材は成層圏飛行船の重量及びサイズを制御する基礎である。気囊素材の重量減少により飛行船の重量及びサイズを根本的に低減できるため、設備、飛行制御、エネルギー、コストなどの面で難度と要求が大幅に低減される。

飛行船は成層圏という特殊な環境で運行するため、気囊素材は軽くて強く、気象（高温・低温・湿度・強力な紫外線放射・オゾンなど）への耐性が高く、ヘリウム漏洩耐性が強く、抗折皺性・抗クリープ性・抗切断性が高く、縫合性能及び補修性能が強いなどの要求を満たす必要がある。このため、現在の飛行船の気囊素材は多くが多層式の軟式複合素材であり、主に抗気候層、抗ヘリウム漏洩層、主構造層（重量支持層）、貼付層で構成される。重量支持層の強度部分は主に単層又は多層のニット繊維であるため、構造支持繊維と繊維貼付技術の改良が気囊素

材性能の向上の鍵である。

1.1 米国の高高度飛行船

高高度飛行船（HAA）は米国軍の支援する開発事業で、主に飛行船プラットフォームの検証に用いられる。HAAでは一貫して強度重量比の高い気囊素材の研究に力を入れており、高強度のニット繊維の開発こそ研究のプレイクスルーである。

1.2 日本の成層圏飛行船

日本の成層圏プラットフォーム事業では低空試験機飛行試験により気囊ニット素材の残留強度及び試験方法の研究を行い、気囊素材の各性能の改善により気囊構造の軽量化を図っている。

1.3 米国のISIS計画における飛行船

2006年、米国はISIS（Integrated Sensor Is Structure）飛行船計画をスタートさせた。当該飛行船の関心の重点は搭載機器の効率性であり、効果的な機器搭載（レーダーセンサ）と気囊の多層化集積技術により構造の軽量化を実現し、搭載機器の利用効率を高めることにある。設計要求に基づけば、ISIS飛行船プラットフォームの有効荷重はプラットフォーム重量の30%～40%を占める。

気囊素材の改良による素材重量の軽減は、飛行船の構造軽量化を実現する直接的かつ効果的な道筋である。素材性能の研究により構造軽量化を実現する方法は、応用リスクを大幅に抑えることができる。気囊素材の性能に関する研究には良好な技術基盤があり、成果が明らかで、また、人々が注目する研究の重点であるため、将来、飛行船の構造の軽量化に向けた研究で重要な推進的役割を発揮するであろう。

しかし、気囊素材性能の改良による飛行船の構造の軽量化をめぐる研究は、重量、費用対効果、メンテナンスの難度、製造・利用コストなど一連の複雑な問題に直面する可能性がある。同時に気囊素材の向上に伴い、改良による軽量化効果は徐々に薄れることから、研究開発周期は徐々に長くなると予想される。また気囊素材の向上には関連する性能試験技術が必要となる。

2. 飛行船の構造の変更による軽量化方法

成層圏飛行船の構造の特徴と運行プロセスに基づき、飛行船の従来の構造形式を変更することで構造軽量化を実現した研究者もいる。

2.1 ドイツの分節式蠕虫型飛行船

従来型の成層圏飛行船はエア駆動による曲げモーメントに耐えるために高い圧力差を必要とするが、それは同時に気囊に高い張力を要求するため、気囊の構造重量を増やすことになる。ドイツのシュトゥットガルト大学の研究者は飛行船の気囊構造から着手して分節式蠕虫型（Air worm型）飛行船というコンセプトを提起し、飛行船構造の軽量化を実現した。

分節式蠕虫型飛行船では飛行プロセスで船体を受けるエア駆動及びエア駆動のモーメントを低減することで、気囊の外形を維持するのに必要な内外圧差を抑え、船体の構造重量の均一な分布により静態負荷を低減している。また、操舵装置のない構造により荷重分布の均一化と構造重量の低減をさらに実現すると同時に、分節により気囊の長さが抑えられたことから、当該飛行船は非常に優れたバランスと機動特性を持つに至った。

しかし、分節式蠕虫型飛行船では、分節された気囊をつなぐ部品が必要であるため、連結部品の重量、信頼性及び各分節気囊の同時制御についてはさらなる研究が必要である。

2.2 中国の変形飛行船

成層圏飛行船の開発目標及び評価要求は、従来型の飛行船設計構想で到達できる極限をはるかに上回るため、慣例の設計プランを打ち破り、革新的な方法を採用して構造軽量化問題を解決する必要がある。

2008年、中国の李曉陽博士が変形飛行船という新たなコンセプトを発表した。変形飛行船は気囊素材に対する過酷な要求を低減し、気囊容積の変化に対する適応制御を実現した。このほか、上昇高度の調節に副気囊とバラストを必要としないため、運行プロセス全体における飛行船の重量変化は小さくなり、制御にとって非常に有利に働く。変形飛行船は気球と飛行船という2つの異なる飛行体の長所を兼ね備えており、飛行船の気囊構造軽量化に向けて顕著な推進効果がある。

しかし、変形飛行船は機械式の剛性可変式フレーム構造を採用しているため、構造の軽量化、折畳・展開時の信頼性、気囊連結の整合性・信頼性のいずれにおいてもモデル試験を行い実証する必要がある。また、気囊の内部圧力及びフレーム構成部品の同時制御についてもさらなる研究を要する。

2.3 日本のカボチャ型組み合わせ式飛行船

カボチャ型気球とは、米国NASAの超長期滞空気球（ULDB）で採用された新型構造で、今後の高空気球の開発の趨勢である。日本人研究者の提起する組み合わせ式飛行船構造のコンセプトは、まさにこのカボチャ型気球

の原理に基づく。

カボチャ型組み合わせ式飛行船は、軽質なロードテープを追加して気囊構造を変更し、気囊の表面張力を分散することで、気囊構造の軽量化要求を実現した。しかし、試験の結果、縦方向と環状方向のロードテープの連結部分は効力を失いやすいことがわかった。また、軟式ロードテープは突風による気囊の変形を吸収できず、半径の突起が気囊のエア駆動外形に影響する、

上述の研究はいずれも、飛行船の従来の構造の変更を通じて気囊の表面張力を低減することで、気囊素材の強度要求を低減し、気囊構造の軽量化という目的を達成している。しかし、これら研究は基本的にまだ構想・設計段階にあり、より進んだモデル試験による検証が必要である。

3. 空中展開式による軽量化方法

成層圏飛行船の多くは軟式飛行船を採用しているため、上昇過程における強度・剛性条件を満たすためには気囊の張力を向上する必要がある。一方、成層圏の高度で必要とされる気囊素材の強度・剛性要求はそう高くないため、米国の研究者は空中で飛行艇を展開するという構想を提起した。空中展開式飛行船は成層圏飛行船の従来の構造を変えず、上昇方式を変更するだけで気囊素材の減量という目的を達成する。

3.1 米国の探査機飛行船

探査機（SOUNDER）飛行船は、米国テキサス州のサウスウェスタン大学が提起する成層圏飛行船の設計理念である。この飛行船の発射方法は科学気球の発射方法と類似し、発射前の内部残留は総体積の5%のヘリウムであり、飛行船高度の上昇につれてヘリウムが膨張し、飛行船の気囊を完全に展開させる。ミッション終了後は、パラシュートを利用してペイロードキャabinを回収し、火工品装置を用いて気囊を展開させる。

3.2 米国の高空偵察探査機

米国ジョーンズ・ホプキンス大学の「高空偵察探査機（HARVe）」飛行船計画は、気球形状に類似した探査機及びその他センサを飛行機または攻撃能力を持たないミサイル上に搭載し、当該飛行機またはミサイルを利用して高空域まで運搬した後に放出し、HARVeが自律的に気体を充填して推進システムとセンサを起動した後に運行エリアに突入する方法であり、太陽光発電充電電池により昼夜を通じてエネルギーが供給される。

3.3 米国の高高度監視用飛行船

米国の高高度監視（HiSentinel）プロジェクトは、20km以上の高空域で飛行可能な、無人、非係留、ガス充填式の太陽光発電飛行船に関するフィージビリティ及び潜在的な軍事応用価値を検証するものである。当該プロジェクトでは戦術通信、諜報偵察及び監視に利用される低コストで軽積載（44～440kg）、かつ長い航空時間（30日間）の太陽光発電による成層圏飛行船を重点的に開発

した。高高度監視用飛行船計画はSOUNDERプロジェクトから発展したもので、レーベン社（Raven）のこれまでの開発技術を十分に受け継いでいる。高高度監視用飛行船は野外配備の必要を考慮して設計されており、上昇の際に部分的にヘリウムを充填するだけでヘリウムが膨張して気嚢に充填するようになっているため、大型飛行機倉庫などの専用の設備を必要とせず、軍事行動や野外配備が容易である。

空中展開式飛行船の気嚢設計では運行高度における環境条件のみを考慮し、低空時の大気による気嚢への影響を回避したことから、気嚢素材の強度に対する要求を大幅に緩和し、気嚢構造軽量化の目的を達成した。また同時に、地上停泊時の大型飛行船保管の困難を克服した。

しかし、現有の空中展開式飛行船は、気嚢素材の強度要求の低減に対する限界、大型化に向けた困難、上昇過程での失敗率の高さ、回収難度が高いなどの欠点を抱えている。

3.4 中国のガス充填フレームを装備した空中展開式飛行船

ハルビン工業大学の譚恵豊及び研究チームは、ガス充填フレームを装備する展開可能な新型の飛行船というコンセプトを打ち出した。当該飛行船では軟式飛行船の気嚢構造を変更してガス充填フレーム・システムを追加した。上昇時に補助気球を利用し、予定高度に到達した後は留保していたヘリウムガスで飛行船を完全に展開させ、フレームにガスを充填することでガス充填フレーム

飛行船の完成形を形成する。ガス充填フレーム飛行船の展開後はフレームの荷重能力を利用して飛行船の外形を保ち、飛行船の形状剛性を維持すると気嚢圧は大幅に低下する。低気嚢圧は気嚢素材の受ける荷重を大幅に低減するため、ガス充填フレーム飛行船では強度要求の低い、より軽い気嚢素材の採用が可能になる。

現在、ハルビン工業大学はすでにガス充填フレーム飛行船の検証用試作機の設計及びさまざまなコンディションにおける飛行試験を終了し、ガス充填フレーム・システムの設計・分析技術を研究し、地上シミュレーション、空中展開試験及び低気嚢圧飛行試験を実施し、ガス充填フレーム飛行船の利点と実現可能性を検証した。図1を参照されたい。

4. 総括及び展望

構造軽量化研究は、成層圏飛行船の今後の開発における趨勢である。気嚢素材性能の改良、飛行船の構造方式の変更及び空中展開方式の採用という、飛行船の構造軽量化を実現するための3つの方法にはそれぞれ特徴があり、現行の成果における不足を補うため、ターゲット研究が引き続き進められる。構造軽量化を実現する方法の選択とイノベーションが、成層圏飛行船の研究開発の中心となるだろう。新型の空中展開式飛行船の利点は顕著で、発展の潜在力がある。さまざまな軽量化方法の紹介と比較を通じ、成層圏飛行船の発展に実現可能な解決方法を提供したい。



◎図1 ハルビン工業大学の採用した超軽量気嚢・ガス充填フレーム飛行船試作機の低圧飛行試験

電子情報技術

生物誘導によるロボット歩行制御に関する研究の進展

•Profile•



陳 啓軍 Chen Qijun ●同済大学電子・信息工程学院院長

1966年10月生まれ。1999年、同済大学電気工学系卒、博士号取得。ドイツUniversity of Hagen客員教授（2002）、米国UC Berkeley訪問学者（2008）、スイス・チューリッヒ工科大学訪問学者（2010）。主な研究分野は、知能ロボット及びそのシステム、組み込みシステム、ネットワーク化システム及びその応用等。編著書2冊、発表論文170本以上。上海市科学技術進歩賞の1等賞を1回、2等賞を2回、教育部科学技術進歩賞の1等賞を1回受賞。教育部新世紀優秀人材計画、上海市優秀学術リーダー計画、上海市曙光学者計画、上海市曙光跟踪計画に入選。国务院政府特殊補助金を取得。現在は、全国專業標準化技術委員会委員、中国自動化学会理事、中国自動化学会集成自動化技術專業委員会副主任兼事務局長、中国自動化学会ロボット協議工作委員会常務委員、中国自動化学会智能自動專業委員会常務委員、中国人工智能学会智能製造專業委員会常務委員、中国人工智能学会智能ロボット專業委員会常務委員、上海市自動化学会理事、上海市自動化学会智能自動化專業委員会主任。

0. 序言

歩行制御は、サービスロボットの実用に困難をもたらす核心及びキーポイントであり、長きにわたりロボット技術研究の重点及び難点となっている。現在は主に関節運動軌道に基づく設計方法が採用されているが、この開ループ制御方法には、次のように大きな限界がある。すなわち、(1) 特定の材質でできた地面にしか適応できず、材質が変わったり地面が不規則である場合に歩行品質に著しい影響を与える。(2) 一連の適切なパラメータを最適化するのに長い時間がかかる。一連の歩行モデルをあらかじめ設計し、環境に応じて歩行パラメータを切り換えるという方法が提示されたことがあるが、この方法では一定の改良があるとは言え、未知の環境下でロボットが歩行する上で遭遇するさまざまなモデルに完全に対応することはできないことから、依然として従来型のプログラミング作業機構で、ロボット適応歩行における根本的な問題を解決することはできない。

歩行問題の解決には新たなメカニズムを模索し、「プランニング+プログラミング」という従来型のモデルを打破する必要がある。自然はヒトと動物に卓越した運動能力を与えている。動物の歩行・走行・遊泳・飛行には規則的な表現形式があり、高い安定性と環境適応性がある。動物の律動挙動は低次の神経中枢による自励挙動であり、脊髄または胸腹部神経節にある中枢パターン発生器（Central Pattern Generator, CPG）で制御されると生物学者たちは考える。CPGはニューロンで構成される振動ネットワークであり、ニューロン間の相互抑制を通じて安定した位相のインターロック関係を生じさせ、かつ、自励振動を通じて躯体関連部位を刺激して律動運動を生じさせることができる。CPG中の各ニューロン間のシナプス結合には可塑性があるため、CPGネットワークは多種の出力方式を表出し、様々な運動モデルを実現するよう動物を抑制する。

生物界のこれら表現に基づき、ロボット分野の研究者たちは徐々にCPGの概念をロボットの運動制御に導入し始めた。動物の運動制御ネットワークを通じて、主に

CPG、高次制御中枢及び反射調節ネットワーク等の生物システムについて工学的シミュレーションを行うことにより、より自然で、調和が取れ、環境適応性のあるロボットの運動を実現できる。CPGは一種の運動制御機構であり、その特徴は以下の通りである。すなわち、(1) 自励的に律動信号を生じることができる。CPGネットワークは、上位からの命令及び外部フィードバックがない状況下でも安定的な律動運動制御信号を自発的に発することができる一方、フィードバック及び上位からの命令はCPGの出力挙動を調節することができる。このため、CPGメカニズムをロボットの歩行制御に用いると、開ループ制御（例：平地での歩行制御）のみならず、フィードバック及び高次制御の下で閉ループ適応制御（例：複雑な環境での歩行制御）を行うことができる。(2) 分散制御。CPGネットワークはネットワークパラメータの調整を通じて、安定的で自然な複数回路の位相関係を同時に生じさせることができる。また、位相インターロックを通じてさまざまな出力モデルを実現できるため、ロボットの方向制御において多様な歩行態勢を実現できる。(3) 動態システムパラメータに基づき機構を調節する。CPG法では「神経システム-本体-環境システム」という動態システムを限定的なパラメータ内に凝縮し、パラメータの調節を通じて所期の出力特徴を得ることができるため、システム全体についてモデリングする必要がなく、複雑な運動学及び逆運動学的計算を回避することができる。

CPG法のこれら特徴は歩行ロボットの歩行制御に非常によく適合する。CPGに基づく生物誘導による歩行制御方法の提示により、多くのロボットの環境適応的歩行の実現に新たな発想がもたらされた。本稿は、動物の歩行メカニズムをもとにCPGの生物学的研究の進展を紹介することで、一歩踏み込んで制御及び工学的視座からCPGの工学的シミュレーション及び工学的応用を系統立てて概観し、この生物誘導という方法のロボット歩行制御分野における研究の現状と問題を指摘する。

1. CPGの生物学的研究

最も有名なCPGメカニズムの検証実験は、1911年にBrownが除脳ネコに対して実施した運動メカニズムの検証に遡る。Brownの研究によれば、ネコは脊髄を横切し、かかとの神経を切断した後も、くるぶしの伸筋及び屈筋は依然として交互に伸縮できるため、脊髄は歩行中枢と関係があると認識された。実験により、ネコの脚で発生する運動モデルは、正常なネコが自転車に乗って行う運動モデルに相似することがわかった。さらに重要なのは、車輪の回転速度が上昇し続けている間は、新たな速度に適応するべく、ネコも絶えず歩行姿勢を変換し続けていることである。このことから、脊髄にはある種の運動モデル発生機構が存在するうえ、大腦による制御を失っても、なお律動運動モデルを生じうることがわかる。Brownの実験により中枢制御学説が検証された後、1960～70年代に、多くの研究者はCPG神経電気回路とネットワーク構造の識別に力を注いだ。1966年にSkinによりCPGが動物の律動運動を制御する理論を明確に提示されると、GrillnerらはSkinの観点についてさらに考察したうえ、CPGには若干のニューロン又は小規模神経ネットワークが含まれ、適切な生理条件下で自律振動することを指摘した。現在のところ、多くの高等脊椎動物のCPG構造はなお完全には明らかにされていないが、大量の実験により、多くの無脊椎動物の胸腹部神経節及び脊椎動物の脊髄中にはCPGが存在することが証明されている。

CPGの存在が証明されると、研究者たちはCPGの特徴に注目し始めた。生物学者はすでに、CPGは一連の介在ニューロンで構成された振動ユニットであり、CPGネットワーク全体は神経振動子と多重の反射フィードバック回路システムの連結により構成された複雑な分散型神経ネットワークであることを証明していた。CPGネットワークは自励的に律動信号を発生できるとは言え、CPGを構成する神経ネットワーク構造とシナプス強度の変化は、脊髄より上位の構造、例えば中脳、脳橋、視床下部の歩行運動野、小脳及び脳幹のある部分に伝達される情報により制御される。また、CPGに対する外部情報による影響については、大量の実験及び文献により立証されている。Delcomynによれば、CPGは高次制御信号及び外部フィードバックのない状況下でも、安定した振動挙動を自律的に発生するが、高次制御信号及び外部フィードバックはCPGを調節し、安定させる作用がある。Masakazuによれば、CPGの振動挙動は外部入力信号と連合でき、出力は入力信号の振幅、周波数及び多数の入力間の位相関係により決定される。Selverstonらによれば、CPGの挙動はネットワークの集合的挙動であり、すなわちCPG中の各振動子には各々の振動周波数があるが、CPGネットワークの挙動は統合性を表現し、同一周波数により振動することができる。Drewは、神経生理学及び生物機械学の面

からCPGメカニズムについて概観し、次のように結論づけた。すなわち、(1)動物の体内にはCPGネットワークが存在する。(2)CPGネットワークは多数の相互に連結するユニットから構成され、一つまたは多数のユニットを用いてある種の自由度を制御でき、これによって運動の柔軟性を保証することができる。(3)CPGネットワークは独立的に律動信号を発生できる一方で、動物の高次神経中枢及び環境フィードバック情報によりネットワークの出力を制御することができる。

2. CPGの工学的シミュレーションと特性分析

制御の観点から見れば、動物の歩行制御ネットワークはフィードフォワードにフィードバックを加えた制御システムと見なすことができる。大腦、小脳、脳幹等の上位中枢による制御命令はフィードフォワード制御作用を果たして運動の開始を制御し、身体感覚受容器の情報はフィードバック制御信号として調節及び安定化の役割を果たす。工学的観点から見れば、CPG神経電気回路は一連の相互に連結した振動子により構成される分散型システムと見なすことができ、位相連合の実現により律動信号の発生を実現し、振動子間の連結関係を変えることで異なる位相関係を持つ時空配列信号を生じさせ、さまざまな運動モデルを実現できる。この分散制御機構はロボットの歩行制御に非常によく適合するため、工学的シミュレーションCPGによる神経回路及び制御機構のロボットへの応用は科学界で注目を集めるテーマとなり、ロボットの歩行制御に新たな制御方法を提供した。

2.1 CPGの工学モデルの紹介

2.1.1 ニューロンに基づくCPGモデル

ニューロンモデルの研究は、ニューロンの電気生理学的な動態特徴に対する研究に端を発する。最も有名なモデルはHodgkin及びHuxleyの提示したH-Hモデルである。H-Hモデルには多数のパラメータが含まれ、それぞれのパラメータはすべて、細胞膜に固有の特徴または外部の物理環境と対応する。モデルに含まれるパラメータの変化に応じ、H-Hモデルではさまざまな性質の動態挙動、例えば周期的に連続動作する電位等を表現することができる。多くの研究者はH-Hモデルのこの特性に基づき、非線形動力学システムの理論を利用してH-Hモデルの動態特徴を分析し、さらにはCPGユニットを用いて動物の運動メカニズムを研究した。この種のニューロンモデルの安定性解析、分岐解析及び制御に関する文献も大量に発表され、この後、H-Hモデルを基礎に関連研究を行う研究者が相次いで登場した。FitzHugh及びNagumoは、H-H四要素モデルを二要素に簡略化し、有名なFitzHugh-Nagumoモデルを発表した。

ドレイン積分器は、モデルがシンプルであり、ニューロンの挙動を基本的に描写できるため、ニューロンのシミュレーションによく利用される。しかし、ドレイン積

分器モデルではニューロンの疲労及び自己抑制特徴をシミュレートできないため、多くの研究者はドレイン積分器の微分方程式を改良した後にニューロンをシミュレートする。比較的有名なモデルは日本人研究者のMatsuokaが発表した振動子モデルであり、このモデルはドレイン積分器の微分方程式にニューロンの疲労特性をシミュレートした適応項を加えている。Matsuokaはこのモデルの動態特性及び周波数、モデル生成機構を詳しく分析し、適応項が持続的な振動の発生に大きく作用することを指摘し、この数学モデルはCPGの生物学的特性を比較的良好にシミュレートできることを証明した。MatsuokaモデルはすでにCPGの研究及びロボットの歩行制御に広く応用されている。KimuraらはMatsuokaモデルを改良し、2つのニューロンの相互抑制により構成される振動子を採用した。2つのニューロンはそれぞれ動物の屈筋及び伸筋により制御されるニューロンに相応し、2つのニューロンの出力を相互に減じることで振動子の出力とした。このような出力はプラスマイナスの値を有する。

ニューロンの振動に基づくCPGモデルの生物学的意義は比較的確であり、特にMatsuokaモデルはCPGの生物学的特性を非常によく表現する。環境からのフィードバック情報と高次制御情報はこの種のモデルで非常によく連結する。例えば、Matsuokaモデルではフィードバック項及び高次刺激信号を利用してCPGの出力を制御する。この種のモデルの実用上の問題は、パラメータ設計及びネットワークの特徴解析が比較的複雑な点にある。

2.1.2 非線形発振器に基づくモデル

動物の律動運動の主な特性は周期性にあるため、CPGモデルの主な役割は周期的な振動信号を発信することにある。この特徴に基づき、周期的な振動を発生できる振動子がCPGのシミュレーションに広く用いられる。例えば、位相振動子Kuramotoモデルは、さまざまな同期出力モデルを提示することができる。多数の相互に連結したKuramoto振動素子については、連結強度が比較的小さい場合にシステムは統合性を欠くが、連結強度が比較的大きな値に達すると一定数のKuramoto振動素子に同期現象が現れる。Kuramotoモデルに基づき設計されたCPGネットワークは、主にこの同期特性を利用している。Hopf高調波振動子モデルもCPGモデルによく利用されるが、その主な長所は出力信号の振幅と周波数を容易に制御できる点にある。VDP及びRayleigh振動子は2種類の非常に似た弛緩振動子で、豊富な波形の信号を発生させ、動物の歩行に要求される制御信号により相似させることができるため、研究者たちの注目を集めている。連結後のVDP及びRayleigh振動子はパラメータの調整を通じてさまざまなリミットサイクル形式を実現できるため、CPGユニットモデルに用いるとさまざまなモデル制御を実現できる。

リミットサイクル特性を有する振動子をCPGユニッ

トとして用いるのは、CPGのシミュレーションで現在よく用いられている方法である。主に全体の特性から考慮して振動子の連結方式を検討し、システムパラメータを調整することでネットワークの出力を動物のCPGネットワークの全体的な出力特性に近づける。その長所は、位相構造の調整により比較的容易にさまざまな出力モデルを実現できる点にあり、設定すべきパラメータが総体的に少なく、モデルも比較的成熟している点にある。しかし、このシミュレーション方式はニューロンに基づいたCPGシミュレーション方式に比べ、生物学的意義及び指導が欠乏するという欠点がある。

2.2 CPG工学モデル特徴分析

生物のCPG神経電気回路の挙動を工学的にシミュレートすることで、工学的モデルをロボット工学に応用するには、工学的モデルの特性分析が必要なだけでなく、各モデルのパラメータの出力に対する影響の傾向とモデルが安定作動状態を生じる条件を理解する必要があるうえに、CPGネットワーク全体の構築方式を研究する必要がある。ネットワークの構築については、現時点では標準となる方法はない。設計時には、一般に次の点を考慮する必要がある。

- (1) ユニットモデル。主にモデリング方式及びユニット数を考慮する。
- (2) ネットワークの位相構造。主にCPGの連結方式、位相構造の設計、CPGユニットの出力信号の同期の保証を考慮し、かつ、一定の位相差を維持し、さまざまな歩行態勢モデルを発生させる。
- (3) パラメータの影響。モデルのパラメータ及び外部入力信号のパラメータの影響である。システム全体の出力に対するパラメータの影響及びパラメータをいかに設計してシステムを安定作動状態に置くかを検討する。
- (4) フィードバック信号のアクセス方式。環境フィードバック情報をどのように連結するかについては、現時点では準拠すべき一定の規則は存在しない。

CPG法の難点は、以上の各要素が相互に連結するため、それぞれの影響を総合的に考慮しなければならない点にある。ネットワーク全体の微分方程式には非線形かつ強連結・高次元という特徴があり、現時点では理想的な分析方法は存在しない。現在、工学的に採用されている分析方法は主に暗探法、進化的アルゴリズム及びコンピュータ・シミュレーション法である。工学的に応用する際、以上いくつかの方法は必要に応じて組み合わせ応用してよい。例えば、まずはコンピュータ・シミュレーション法でパラメータの大まかな範囲を得て、得られた範囲に基づき今度は進化的アルゴリズムを利用してパラメータを最適化し、その後パラメータを実際に応用する際は制御効果に応じて局部的にパラメータを調整し、最終的にロボットの制御要求を満たす。

3. ロボット歩行制御におけるCPGの採用

CPG制御の基本概念は、ロボットの関節の位置、力/モーメントまたは速度等の制御信号としてCPG出力信号を利用することにあり、多数のCPGユニットで構成されるCPGネットワークはロボットの多関節協調を制御することができる。CPGネットワークは位相インターロックを経てさまざまな種類の安定的かつ自然な位相関係を発生させることができ、多くの関節を協調的に運動させることで、さまざまな運動モデルを実現する。また、CPGネットワークは各種センサの信号にアクセスしやすく、環境情報を提供し、制御戦略の環境適応性を向上させる。さらに、このテーマは生物学、神経生理学、認知神経科学、生体工学、ロボット学等の多数の分野にまたがる探究的な研究であり、ロボットの歩行制御に新たな理論と方法を提供すると同時に、生物型ロボットの研究を通じ、翻って動物の運動制御メカニズムを理解することができる。

CPGの工学的応用は主に1990年代以降に始まった。この分野の主な研究ポイントは基本歩行姿勢の発生、歩行姿勢の転換及び環境適応型歩行制御に集中した。ロボットの関節制御へのCPG法の採用に際し、いかにCPGを使用するかについては、現時点では主に次の2種類の方法がある。一つ目は、CPGを各関節に配分し、各ユニット間が相互に抑制することでCPGネットワークを形成し、抑制加重平均の設計を通じてさまざまな運動モデルを生じることができる。これが比較的よく利用される分散制御方法である。二つ目はCPGをロボットの歩行プロセスで周期性変化を持つ法則や歩行姿勢の変化を反映できる固有値に配分することで、外部刺激がこの変数に直接影響を与え、環境適応型運動モデルを発生する方法である。例えば、CPGでロボットの足裏軌道を制御し、その足裏軌道をもとに関節制御信号を逆運動学により得れば、外部刺激は適時に足裏軌道に反映されるため、環境に適応する関節制御信号を得ることができ、環境適応型歩行の目的を達成できる。

スイス連邦工科大学ローザンヌ校のIjspeertら研究チームはイモリの運動メカニズムについて研究及びシミュレーションを行い、イモリの生物機械モデル及び神経制御モデルを構築し、水陸両用運動方式を実現できるロボットsalamanderを設計した。CPGに基づき設計した制御システムによりイモリの遊泳、爬行の2種類の運動方式を実現でき、直流入力信号の変更によりsalamanderの運動の速度、方向、歩行姿勢を変更できる。チューリッヒ工科大学はヘビ型ロボットWormBotを開発し、主に分散制御システムを利用して多数の自由度を協調させ、制御した。CPGメカニズムのsalamanderロボット及びヘビ形ロボットにおける応用の成功は、生物誘導メカニズムによる歩行ロボットの歩行制御研究に基礎を築いた。4足歩行ロボットにおけるCPG法の研究成果は非常に顕著で、なかでもKimura研究グループの貢献は非常に大きい。Kimura

らは1994年からCPGの制御戦略に基づき、動物のCPG律動運動制御ネットワークと伸展反射、屈筋反射、姿勢反射等のメカニズムと組み合わせることで4足歩行ロボットの複雑な地形条件下での動態歩行を実現した。制御ネットワークの設計において、CPGネットワークはMatsuokaモデルを採用して構築し、基本律動運動ジェネレータとした。CPGの出力をロボットのモーメントまたは位相制御信号と見なし、かつ、システムに関節角、姿勢角等のフィードバック情報を導入して、CPGとフィードバック・ネットワークとの相互連結を実現し、環境適応型歩行制御を実現した。近年、CPGに基づくヒト型ロボットの研究も多くの研究者に重視されている。Tagaらが構築した「神経-筋肉-骨格」のヒトの2足歩行モデルはヒト型ロボットの研究に大きく貢献した。また、運動の出力は神経制御システム、「筋肉-骨格」システム及び環境の3者間の相互関係の結果、律動運動は一つの総合的なリミットサイクルの形式でシステム全体に伝導されることを指摘した。Tagaのヒトの2足歩行モデルはヒトの2足歩行の制御機構を基本的に表現でき、2足ロボットの発展に基礎を築いた。

同済大学ロボット・知的システム実験室は近年、生物誘導方法により、ロボットの未知の環境下での適応歩行の問題解決を模索しはじめた。主な研究成果は以下のとおり。すなわち、(1)CPGネットワークを構築し、2足及び4足歩行ロボットの多様なモードにおける歩行制御及び歩行姿勢の間の相互転換を実現した。(2)CPG出力を直接関節制御信号に用いる際に生じる弊害を解決するために、筋肉の記憶効果メカニズムとCPGが相互に融合する制御戦略の導入を提起した。すなわちCPG出力は同期信号としてのみ利用し、実際の制御信号は別のユニットの振動子のオンライン学習により完成させることで、関節の制御精度が低いという問題を完全に解決し、かつ、フィードバックの導入をしやすくした。(3)CPG-ZMP混合に基づく制御方法を研究した。シンプルなCPG制御ではロボットの歩行プロセスにおける重心変化の問題を解決するのは非常に難しい。このため、ZMP方法とCPG方法の長所をよく組合せ、CPGを利用してロボットの重心軌道をプランニングし、かつ、ZMPを利用して制御システムの最適パラメータを最適化することで、最終的にロボットの安定歩行を実現する。(4)CPG及び運動学の混合制御に基づく方法を研究した。関節運動軌道の設計方法とCPG法の長所をよく結合させ、CPGの出力信号を位相変調信号として利用してロボットの脚部運動の立脚相と遊脚相の時間を変調させることで特定の環境、たとえば坂や階段面の歩行等に適応させるという目的を達成する。

4. 生物誘導方法の研究の方向

(1) 動物の歩行制御メカニズムの研究

Ijspeertは論文の中で、生物を模倣した制御メカニズ

ムによる動物の歩行制御研究は生物学の研究成果を基礎としており、同時に生物学の発見を検証する手段とすることもできるため、両者の発展は相互に影響するものであることを指摘している。生物誘導方法によるロボットの歩行制御は多分野から相互に伸展した探究テーマであり、検討すべき未知の分野が多く存在する。また、現在の研究は主に動物の歩行メカニズムの部分的な複製に過ぎず、動物の歩行メカニズムをさらに形象的シミュレートするためには、高次制御中枢及び外部反射回路等を含む歩行制御システム全体をシミュレート・応用して初めて、動物の適応型歩行を複製できる可能性がある。現在、生物誘導方法には完全な理論体系はなく、各モジュールのモデリング方式にも標準的な方法は形成されていない。関連性のある学際分野の発展に伴い、生物メカニズムの誘導による制御方法はさらなる研究が待たれる。

(2) 機械電気システムにおける制約及び制限

シミュレーション実験段階では、ロボット本体の機械及び電気特性による制限が常に軽視されるが、これもシミュレーション実験結果と実際の実験結果の間で誤差が生じる原因の一つである。ロボットの機械本体の運動に対する影響は非常に大きく、制御ネットワークと機械システムの間には非線形連結が存在し、制御システムの特性と機械システムの動態特性は相互に影響しあう。さらには、生物型ロボット本体と有機生物体には本質的な違いが存在する。目下、ロボットの関節はすべて電気機械システムにより制御されるが、生物の関節は電気機械によるものではなく、筋肉の収縮により運動する。このような人工筋肉の研究により、合理的な機械構造を設計することは、生物誘導による制御方法を保証するハード面での基礎となる。この面に対する関心が現時点では比較的薄いことが生物誘導による制御方法の制約となっている。

(3) 特定の制御信号を発信する方法

工学上、CPGの出力信号は一般的に関節の角度またはモーメントを制御するのに用いられる。ある種の応用、例えば、ヘビ型機械の全身爬行は、基本的な正弦波または疑似正弦波出力により要求を満たすことができるかもしれないが、ロボットの歩行のような技巧要求の高い運動については、関節の制御は正弦波信号だけでは完了しない。このため、いかにCPGの発信する特定の制御信号またはCPG位相インターロック情報を通じて、特定の制御信号と互いに連結させるかが非常に重要な一歩であり、さもないとロボット歩行の柔軟性の実現は非常に難しい。

(4) システムの特性分析

制御ネットワーク、ロボット及び環境を含むシステム全体の動態特性分析は複雑な問題であり、適切な制御信号を発信できるか否かに関係する、解決の待たれる重要な問題である。制御ネットワークの非線形特性及びロボッ

トの複数剛体システムの動態特性の複雑さにより、パラメータを設定してシステムを安定作動状態におくのは比較的困難であり、現時点ではまだ広く認定された工学的解決方法はない。CPG法で解決されるべき重要な問題はパラメータの設定により適切な制御信号を発信することであるため、系統のかつ汎用性のあるパラメータの設定方法についての研究が急務である。

(5) 環境情報の融合メカニズム

CPGは自発的に出力信号を発信できるため、従来型の人工プランニング・設計方法に比べてフィードバックへの依存がやや少ない。このこともCPG法の長所となっている。現在、多くの研究は往々にして動物の歩行メカニズムの部分的シミュレーションに過ぎず、真の生物誘導による制御を実現しようとしている。従来方法に比べ、生物誘導方法の最大の長所は環境適応性であるため、われわれは歩行メカニズムに適用する制御ネットワークに基づくシミュレーションに関心を寄せるべきである。CPG制御をベースに、動物の高次制御モジュールと環境との融合情報及びロボット本体の情報のフィードバックモジュールを追加して初めて、歩行メカニズムの複製を真に実現できる。現時点では、各モジュールのモデリング及び融合方式には規範となるルールは存在しない。

5. 結論

制御の複製は、ロボット生体工学研究の重要な一面である。本稿はCPGに基づく生物誘導制御方法に注目し、CPGの生物学的メカニズム及び工学的シミュレーション、ならびにロボット歩行制御における応用の現状を系統立てて紹介したうえで、問題と研究の方向性を指摘した。動物のCPG歩行メカニズムは、ロボットの歩行制御に新たな理論と方法を提供し、ロボットの運動性能及び環境適応性を向上する一方、この研究には学際的で統合的な特徴があるため、CPGメカニズムに基づいたロボット歩行制御方法の研究は、翻って他の学問分野の発展についても促進作用をもたらす。

大口径光ファイバレーザ装置の新たな展開

•Profile•



楼 祺洪 Lou Qihong ●中国科学院上海光学精密機械研究所研究員

1942年7月生まれ。1964年、中国科技大学卒（量子・電子工学専攻）。卒業後、現在に至るまで上海光学精密機械研究所に勤務。1980年～82年、米国カリフォルニア大学客員研究員。1990年～91年、日本工業研究所客員教授。主に、炭酸ガスレーザ、エキシマレーザ、レーザと物質との相互作用について研究。現在は主に、光ファイバレーザおよびセラミックレーザを研究。7事業で自然科学賞および科学技術進歩賞を獲得。著書は「パルス放電による気体レーザ装置」、「高出力の光ファイバレーザ及びその実用」。発表論文300本以上、SCIに100本以上収録。1988年、3大索引（SCI、EI、ISTP）に論文が多数掲載された中国人研究者の上位10位入り。現在は、「中国レーザ」、「レーザ技術」、「強レーザ及び粒子線」、「High Power Laser Science and Engineering」等の雑誌の編集委員を務める。上海市欧美同学会の常務理事を長く務める。

共著者：周 軍、張 海波、袁 志

1. 序

光ファイバにおける光の全反射・伝送現象は早くから知られているが、初期の光ファイバは減衰が大きかった（約1000dB/km）ため、医療機器の現像用部品を除き、長距離環境下での使用は難しかった。1970年代になって光ファイバの減衰率は20dB/kmまで低減され、現在製造中の通信用光ファイバでは減衰は0.1dB/kmで、波長も1.55 μ mまで引き下げられた。この進歩は、光ファイバ通信に革命的な変化をもたらした。スウェーデン王立科学院は2009年10月6日、同年のノーベル物理学賞をチャールズ・カオ（高錕）、Wielaard BoireおよびGeorge Smithに授与することを決定した。カオは「ファイバにおける光の伝送および光学通信面への利用」において革新的な業績を収め、この成果により遂には光通信システムが発明され、現在のインターネットの発達に道を開いた。減衰の少ない光ファイバの登場により、人々は光ファイバ素材に直接レアアースイオンをドーピングした上でのレーザの出力を望むようになった。1980年代、シングルモード・レーザ・ダイオードをポンプ源とし、シングルモード・光ファイバにおいて数10mWのレーザ出力を獲得し、中でも作動波長が1550nmのErドープ光ファイバ増幅器が光通信で非常に有用な信号増幅コンポーネントとなった。シングルモード・光ファイバのコア径は非常に小さく、一般に10 μ m以下であることから、さらに大きな出力で光ファイバのコアに注入しようとした際に技術的問題に直面したため、1988年にダブルクラッド・光ファイバが登場し、微細なコア径を維持しつつ、ポンプ光を数百nm規模のインナークラッドに送り込めるようになった。この技術的ブレイクスルーによって、10数年のうちに光ファイバレーザの出力は急速に向上し、現在では連続出力を行う光ファイバレーザの出力はすでに1000ワット以上に達している。光ファイバのコアが耐容可能な出力はコア径と関係するため、光ファイバレーザの出力をさらに向上させる方法としては(1)超大規模モデルのダブルクラッド光ファイバを設計して光ファイバのミドル・ローモードのコア径を拡大する(2)光ファイバのコア径を拡大し、

さまざまな方法を併用してビーム質量を変更する——の2種類がある。本稿では、この2種類の方法を紹介し、実験結果の一部を示す。

2. ダブルクラッド・光ファイバの設計

既存のダブルクラッド・光ファイバはコア径が小さい時しかシングルモード出力を実現できなかったため、コアサイズもこれら光ファイバレーザのシングルモード出力の制約であった。そこでコア径が大きくてもシングルモード出力を実現できる光ファイバを設計することはできないだろうか考えた研究者らは、この魅力的な構想を実現するための設計方法として、以下の4種類を提案した。

2.1 ヘリカルコア光ファイバ

ヘリカルコア光ファイバの原理は、光ファイバのコイルや曲げを利用してモード制御を行う原理と類似し、違いはヘリカルコア光ファイバの場合は光ファイバを引き延ばす際にコアを人為的にらせん状に引っ張る点にある。つまり、プリフォームを引き延ばして光ファイバを作ると同時に、このプリフォームの中心軸に沿って定速でプリフォームを回転させるのである。完成したヘリカルコアのピッチはこの回転速度により決まる。2003年にSohらは、ヘリカルコア光ファイバのモード減衰について初歩的な理論シミュレーション計算を行い、2005年にJiangらはヘリカルコア・ダブルクラッド・光ファイバ理論をさらに進歩させた。2003年にP.Wangらは、ほかに先駆けてヘリカルコア・ダブルクラッド・光ファイバを利用してシングルモード出力を実現した。P.Wangらが作成したヘリカルコア・ダブルクラッド・光ファイバのコア径は26 μ mで、データ孔径（NA）は0.14（作動波長が1047nm時の正規化周波数は $v=11$ ）、コアピッチは5.2mm、偏心率は130 μ mで、インナークラッド層の直径は400 μ m、光ファイバ長は3mであった。ポンプ出力が2.2Wのとき、光ファイバレーザの出力は350mWで、ビーム質量M2因子は1.1を下回った。2006年には、この方法を利用して60.4Wのシングルモード出力を実現した。

2.2 多層クラッド光ファイバ

光ファイバ通信システム中の光ファイバ伝送効率を向上させるため、V.Rastogiらは2001年、特殊構造を持つ一種の新型光ファイバ「多層クラッド光ファイバ (SCF)」を発表した。SCFはコアとクラッドからなり、コアは均一な屈折率 n_1 を有し、クラッドは周期分布的な角度幅 $2\theta_1$ を有する高い屈折率エリア n_1 と、媒質と角度幅が $2\theta_2$ の低い屈折率エリア n_2 の媒質からなる。各エリアにおける周期のデューティ比は $\Lambda = 2\theta_1 + 2\theta_2$ 、円周のデューティ比は $\gamma = 2\theta_2 / \Lambda$ である。加工が難しいため、当該構造の実用には難度を伴う。

2.3 特殊コアドープ光ファイバ

大規模モデルの光ファイバは、モードによりコア内の分布が異なる。コアの径方向でドーパント・エリアおよびドーパント・イオンの濃度分布を制御し、基本横モードで比較的大きなゲインを得られるようにすれば、他の高次モードのゲインが非常に小さくなり、光ファイバ内で振動を生じるのは主に基本横モードとなる。1998年にH.L.Offerhausらが初めてこの方法を提起し、コアのドープ直径が約 $40\mu\text{m}$ のとき、得られたビーム質量M2因子は2.0のレーザ出力であった。1999年にJ.M.Sousaらはレアアースイオン・ドープの空間分布の最適化設計を行い、実験で3本の光ファイバを製作したが、これら光ファイバにはすべて同一のステップ屈折率を採用して設計し、コア開口数は0.2、インナークラッド直径は $125\mu\text{m}$ で、コアにはErをドープし、コア径はそれぞれ $5\mu\text{m}$ 、 $12\mu\text{m}$ 、 $23\mu\text{m}$ とした。コア径が $12\mu\text{m}$ と $23\mu\text{m}$ の2本の光ファイバはいずれもマルチモード・光ファイバであったが、実験結果で得られたのはいずれもシングルモード出力で、出力ビーム質量のM2因子はそれぞれ1.1と1.2であった。

2.4 ゲインガイド・光ファイバ

既存の光ファイバコアの屈折率はクラッドよりも高いため、ビームが両者の屈折率差という制約のもとで伝送されることから、インデックスガイド・光ファイバと呼ばれる。2003年にA.E.Siegmanがゲインガイド(GG)・光ファイバの概念を提起し、モードの違いにより光ファイバ内で有するゲインと損失が異なる特性を利用し、モードフィルタを得る目的を果たした。2006年に彼らは新型の光ファイバを発表した。この光ファイバは、屈折率およびゲインによるガイドの原理を利用したもので、既存の光ファイバとの最大の違いは、コアの屈折率がクラッドより低いことで大口径コアにおけるシングルモード出力を実現できる点にある。クラッドから見ればコアの屈折率は負であるため、負の屈折率を持つ光ファイバとも称される。この光ファイバの正規化周波数 v は複素数であり、この光線ではゲインガイドを採用してモード伝送を実現する。適切なパラメータを採用すればLP01のシングルモード振動を実現できる。例えば、設計された光ファイバクラッドの屈折率は1.5734、コア径は $100\mu\text{m}$ で、Nd

をドープしたところ屈折率は1.5689で、クラッドに比べて0.35%低く、光ファイバ長は10cmの場合には、0.75mJの1052nmレーザ出力が得られ、ビーム質量のM2因子は ≤ 2 となった。

3. 大口径光ファイバレーザ装置のモード制御技術

大規模マルチモード光ファイバレーザ装置における高次モードの振動を可能な限り抑制するために得られる必要な基本横モード出力について、各国の研究者はさまざまなモード制御方法を採用している。これらの方法は大きく2種類に分類できる。一つ目は、すでに引き延ばしが完了している光ファイバに対してモード制御を行う方法で、外部モード制御技術と呼ばれ、もう一つは光ファイバの内部構造について設計を行った後に引き延ばしを行うため、完成した光ファイバは通常の光ファイバよりも大きいコアサイズを有すると同時に、シングルモード出力を保証される。これら2つの技術の中で、多くの技術は互換性があり、2種類または複数の技術を同時に採用することで最良の出力を得ることができる。外部モード制御技術は、既存の大規模マルチモード光ファイバレーザ装置についてモード制御を行い、高次モードの筐体内での振動を抑制することで、基本横モードのレーザ出力の獲得を期待する。特殊筐体構造や光ファイバの巻き付け・曲げおよび光ファイバの双円錐等を採用する方法でモード制御を行う方法などはいずれもこの種に属する。

3.1 特殊筐体構造法

大規模マルチモード光ファイバの外側に光学部品を付け加えてレーザ共振筐体を構成し、特殊に設計された外部筐体構造を用いて、その中の高次モードで高位減衰を生じさせ、基本モードに筐体内でのみ振動を生じさせることにより、最終的にシングルモード出力の目的を実現する。1996年にU.Griebnerらは特殊な外部筐体を採用し、長さ13mmのマルチモード光ファイバ1本を用い、マルチモードNd3+ドープ・光ファイバレーザ装置の近回折限界における出力を実現した。実験で採用されたマルチモードNd3+ドープ・光ファイバのコア径は約 $100\mu\text{m}$ 、開口数は0.44、作動波長1053nmでは1000回を上回る横モードの振動を支持できる。908nmレーザ・ダイオード・ポンプ光はビッグテイルから出力された後にコリメータを経てフォーカスされ、光ファイバに直接注入される。ポンプ端のダイクロイックミラーはレーザ波長1053nmで強く反射し、ポンプ光808nmを高く透過するが、透過率は93%を上回り、出力端のダイクロイックミラーの1053nmレーザに対する反射率は96.8%で、ポンプ端の光ファイバ端面とダイクロイックミラーM1が緊密に接する場合も、光ファイバ出力端面とダイクロイックミラーM2の間には一定の距離がある。さまざまなレーザモードに対し、光ファイバ出力端から出力された後のフレネル(Fresnel)回折損失 γ は異なり、その大きさは光ファイバ出力端面とダ

イクロイックミラー M2の間の距離と相関性がある。距離が $150\mu\text{m}$ の時は、基本横モードのFresnel回折損失が約0.4%である一方、高次モードのFresnel回折損失はいずれも1.0%を上回ったため、高次モードの効果的な識別が実現できる。

中国科学院上海光学精密機械研究所は、凹面外筐体技術を採用することにより、コアの太いマルチモード・ダブルクラッド光ファイバ中で高ビーム質量のレーザ出力を得た。比較的太いコアを有するマルチモード・ダブルクラッド光ファイバに対し、そのレーザモードは非常に劣り、シングルモード出力とは異なった。光導波管理論に基づけば、光ファイバにおける低次モードおよび高次モードの差は発散角の大きさにあり、低次モードの発散角は、光が自由空間で伝播する際の光ファイバのコア径に決定される回折角によるため、伝播方向を制限する共振筐体を採用することで、モードの選択により、光ファイバレーザをシングルモードにすることができる。このために、平面のダイクロイック片を中心にコーティングを施してある凹面鏡に変更し、コーティング層がレーザを強く反射し、ポンプ光を高く透過するようにする。凹面鏡に照射されたレーザは、中心の低次モードの部分が筐体内に反射され、振動を生じさえすれば、ビーム質量向上の作用を果たすことができる。

実験装置は図6を参照。ダイオード・レーザ装置の発する平行光束は、空間フィルタを経て、非球面レンズから光ファイバに進入してポンプ運動を行う。中心をコーティングした凹面鏡は筐体に充当してフィードバックを提供すると同時に、モード制限の役割を果たす。出力端の光ファイバ端面はもう一つの筐体鏡に充当し、4%のFresnel反射を提供する。逆方向のポンプ構造を採用して、中国製の20mダブルクラッド光ファイバ利用して実験を行ったところ、さまざまなコーティング・エリアの凹面外部筐体に対応し、さまざまなビーム質量におけるレーザ出力を実現し、ビーム質量因子は2.56から1.3に改善された。使用された光ファイバのパラメータはD型で、インナークラッドのサイズは $650/600\mu\text{m}$ で開口数は0.37、コア径は $43\mu\text{m}$ で開口数は0.08であった。

3.2 シード光注入方法

シード光源から出力されたレーザが基本モードまたはシングルモード直線偏光である場合は、マルチモードNd³⁺ドープ光ファイバに直接注入して増幅させ、最終的にシステム全体で近回折限界のレーザ出力を実現できる。1999年、I. Zawischaらは主発振器出力増幅器(MOPA)技術を利用し、マルチモードNd³⁺ドープ光ファイバを採用してシングルモード・シード光を増幅させ、基本横モード・レーザ出力を得た。シングルモード・シード光の作動波長は1064nmで、2波長波長板を経てシングルモード偏光に変換され、さらにコリメータおよび集束系を経て光ファイバに注入された。光ファイバのコア径は $11\mu\text{m}$

で、開口数は0.16、作動波長1064nmの $v \approx 5$ であった。また、インナークラッド直径は $400\mu\text{m}$ 、開口数は0.38、光ファイバ長は30mであった。最終的に出力されたレーザのビーム質量因子は約1.1であった。これ以外にも、他の研究チームがこの方法を採用してシングルモード・横モード出力を実現したとの報道もなされている。これら技術は光ファイバ増幅器中での使用に限られるものの、非常に効果的なモード選択技術の一つでもある。現在では、多極の増幅技術を採用することで1万ワット以上の出力を得ることができるうえ、良好なビーム質量を維持することができる。

3.3 光ファイバ巻き付け法

ダブルクラッド光ファイバにおいては、コアおよびインナークラッド界面で全反射条件を満たす光だけがコア内部で伝送される。大規模マルチモード光ファイバにおいては、光ファイバ中に基本横モードおよびその他一部の高次モードが存在する場合、それらの伝送ルートはそれぞれ異なる。さまざまな条件下で、高次モードは巻き付けにより敏感である。光ファイバを一定の大きさに巻き付けた際、もともとの導波光の中でモードの比較的高い部分は、コアおよびインナークラッド界面で全反射条件を満たさなくなり、クラッドからの逸脱により、高次モードの損失が基本横モードよりずっと高くなる。図8で直感的に見られるように、現行の巻き付け程度の下では、高次モードの一部のエネルギーがクラッドから逸脱するものの、基本横モードは基本的に影響を受けない。2000年にJ. P. Koplowらがマルチモード光ファイバ増幅器を採用し、光ファイバの巻き付け法を利用してシングルモード出力を得た。彼らは光ファイバをさまざまな直径の円柱体に巻き付けることで分布式空間フィルタの効果を生じさせ、適切な円柱体半径を選択することでその他の高次モードを抑制し、光ファイバレーザ装置の基本横モード運行を維持することができた。D. Marcuseの曲げ損失理論に基づき、一定の基本モードLP₀₁損失(γ_{01})について、彼らが相応する高次モードLP₁₁のモード損失係数を計算した結果、LP₀₁モードの非常に小さな曲げ損失を実現するには、高次モードの損失を向上することで実現することができ、その際の光ファイバのコア径は50～100 μm の範囲(対応する v 値は12～14)に達しても良いことがわかった。これに対応する曲げ半径は1.7～3.7cmである。

実験で採用したダブルクラッド光ファイバ長は6m、コア径は $25\mu\text{m}$ 、開口数は0.10(作動波長1064nm時の $v \approx 7.4$)で、インナークラッドは六角形で外径は $200\mu\text{m}$ 、開口数は0.47であった。ポンプ源は作動波長974nmの半導体レーザ装置で、シード源は1064nmで、シングル・縦モードNd:YAGレーザ装置である。巻き付け直径が1.58cmの時の出力ビーム質量M²因子は 1.09 ± 0.09 であった。この方法は光ファイバの連続増幅によるシングルモード出力の実

現に用いられるだけでなく、パルス光ファイバ増幅器にも同様に適用された。

中国科学院上海光学精密機械研究所は、巻き付け法によるモード制御技術について系統的な実験および理論研究を行った。通常の端面ポンプの直線筐体構造を採用し、武漢郵電科学院より提供されたYbドープ・ダブルクラッド光ファイバをレーザ媒質とした。光ファイバのパラメータは、D型インナークラッドサイズは $650 / 600 \mu\text{m}$ 、開口数は0.48で、Ybドープ・コア径は $43 \mu\text{m}$ で開口数は0.08（作動波長1090nm付近の v は約9.9）、光ファイバ長は約8mであった。その他の条件を変えずに維持した条件下で、光ファイバを巻き付ける円柱体の半径が165mmおよび52 mmの場合を相次ぎ実験した後、レーザ機器の出力性能について測定を行った。その結果、ポンプ出力が380Wで巻き付け半径が165mmおよび52mmの時の光ファイバレーザ装置の出力は217Wおよび160Wであった。対応する光ファイバレーザ装置の最大出力効率は約26%減少したとは言え、ビーム質量因子の向上により、ビーム輝度は当初の3.41倍になった。

3.4 光ファイバ双円錐法

Haasらが提起したもので、1本のマルチモード光ファイバの両端においてコアに直接に1本のシングルモード光ファイバをはんだ付けする。その目的は、マルチモード光ファイバの帯域幅を向上させることで、光波がこのはんだ付けされた光ファイバで伝送される際に、シングルモード光ファイバをひとつの光学的ピンホールと見なすことにある。コアの直径が異なることから、このモードフィルタは光ファイバの連結点で高い減衰を生じることができる。後に、研究者たちはこのMF機能は既存の光ファイバ双円錐技術で実現できることを見いだした。つまり、1本の光ファイバのコアサイズを小さくすることで、光ファイバの双円錐部分にMFを導き入れたのである。光ファイバの双円錐プロセスにおいて、光ファイバのコア径はクラッドと同様に比率の縮小に伴い小さくなるが、光ファイバ双円錐がどの程度まで小さくなるかは、双円錐エリアではシングルモード伝送を支持することだけから決まるため、光ファイバの双円錐部分も一つの光学的ピンホールと見なすことができる。このピンホールの大きさはちょうどシングルモード伝送が可能な大きさで、すでに存在する高次モードではピンホールを通過できないため、最終的に光ファイバレーザ筐体ではシングルモード振動のみが出力可能となる。

1999年、英国サザンプトン大学の研究者が初めて光ファイバ双円錐を採用し、大規模マルチモード光ファイバレーザ装置による疑似シングルモード出力を実現した。彼らは光ファイバレーザ装置の出力端を引き延ばして双円錐エリアを形成した。双円錐エリア長は3cmで直径の最小ポイントは $70 \mu\text{m}$ とした。実験に用いられた光ファイバのコア径は $15 \mu\text{m}$ 、開口数は0.15（作動波長1080nmの v

≈6.7）、インナークラッド直径は $200 \mu\text{m}$ 、長さは10mであった。実験では双円錐の前後で光ファイバレーザ装置の出力効率とビーム質量をそれぞれ測定した。双円錐の前の光ファイバレーザ装置の傾斜度は85%、ビーム質量M2因子は2.6、最大出力は11Wであった。また、双円錐の後ろの光ファイバレーザ装置の傾斜度は67%、ビーム質量M2因子は1.4、最大出力は9Wであった。双円錐の後ろの最大出力損失は20%でその輝度の増加は双円錐の前の3.5倍であった。

中国科学院上海光学精密機械研究所は双円錐法のモード制御技術に関し、武漢郵電科学院の提供したYbドープ・ダブルクラッド光ファイバを用いて双円錐法のモード制御技術の実験・研究を実施した。光ファイバのインナークラッドはD型の $650 / 600 \mu\text{m}$ 、開口数は0.48とし、Ybドープ・コアの直径は $43 \mu\text{m}$ 、開口数は0.08（作動波長1090nm付近の v は約9.9）、光ファイバ長は約12mであった。実験では、光ファイバレーザ装置の双円錐の前と後ろにおけるビーム質量因子をそれぞれ測定したところ、双円錐の前後のビーム質量M2因子は、それぞれ 3.06 ± 0.10 および 1.13 ± 0.01 であった。ビームウエストに対応する位置は基本的に変化が生じず、双円錐の前と比べ、双円錐の後方のビームウエスト半径にやや減少が見られ、その発散角は大幅に減少した。実験では、同時に光ファイバレーザ装置の双円錐の前後における出力を測定したところ、最大ポンプ出力が119.1Wの時の対応する出力はそれぞれ77.9Wおよび56.4Wであった。ビーム質量が大幅に増加したため、双円錐の後ろの最大出力は約30.6%減少したものの、そのビーム輝度は双円錐の前の約5.26倍であった。

4. 結論

光ファイバレーザの1本当たりの連続出力は、すでに1万Wを上回っている。超大規模光ファイバの最適化設計を通じ、光ファイバの出力をより向上できるだけでなく、同時に光ファイバレーザの比較的良好なビーム質量を保証することができる。また、モード制御技術を通じ、大規模光ファイバレーザ装置の高次モードにおける振動を効果的に抑制できるため、期待される基本モード出力を得ることができる。実験結果に基づけば、光ファイバの効率のさらなる向上は実現可能である。

スパムメール対策方法の研究の進展

•Profile•



譚 營 Tan Ying ●北京大学信息科学技术学院教授

1997年、東南大学無線電気工学系博士課程修了、工学博士。1999年、香港中文大学副研究員。2000～2003年、合肥電子工程学院スマート情報システム研究所所長、教授、博士課程指導教員。2004～2005年、香港中文大学副研究員。2006年から北京大学に勤務。主な研究分野は文計算知能、機械学習、群知能、知的情報処理、データマイニング及び知識発見、コンピュータ情報セキュリティなど。発表論文200本以上、単著書多数、特許2件。科学研究事業20項目余りを主宰・担当。

はじめに

スパムメール検出技術及び方法に関する研究は国内外の関心事で、必要性和重大な意味がある。スパムメール対策技術の研究において、研究者たちは数多くの特徴抽出方法及びスパムメール検出・フィルタリング方法を提示してきた。本稿では、スパムメール対策技術及び方法に関する研究の現状を総括し、現行のスパムメール対策技術、スパムメール対策システムの評価規範及び標準データを重点的に紹介する。

スパムメールの検出システムにとって、メールの特徴抽出は極めて重要な段階であり、ひいてはパターン認識方法の選択や分類器の使用・設計より重要と言える。メールの特徴抽出方法の正確さ、識別可能性、安定性及び自己適応性は、システム全体の分類効果及び性能に直接影響を与える。中国インターネット協会の2008年第4四半期中国スパムメール対策調査の統計によれば、ユーザが受け取るスパムメールの本文形式は主に、画像+テキスト形式、純テキスト形式、純画像形式の3種類である。本章ではテキストによるメールの特徴抽出方法、画像によるメールの特徴抽出方法、行為によるメールの特徴抽出方法について総括的に述べる。

1.1 本文に基づくメールの特徴抽出方法

本文によるメールの特徴抽出方法には、一般に以下の2つの段階が含まれる。(1) 単語による選別(terms selection)。語句の重要性(識別可能性)に基づいて特有の単語についてソートをかけ、識別可能性の良い特有の単語を選択してから次の段階に進む。(2) 特徴抽出及び表示であり、メールの特徴を抽出し、統一された形式で表示する。

1.1.1 本文の単語による選別方法

メールデータベース中のメールからは単語を区切る段階を経た後に大量の単語が抽出される。単語による選別の過程を経ないと特徴次元が高過ぎるという問題が起き、次元による障害が引き起こされる。単語による選別では、特徴次元及び計算の複雑さを緩和できる一方、ノイズ(識別性の低い単語)による悪影響も低減できる。よく使われる選別方法には、情報利得(Information Gain, IG)、

索引語頻度の分散(Term Frequency Variance, TFV)、文書頻度(Document Frequency, DF)、免疫凝縮(Immune Concentration, IC)及びその他の単語による選別方法がある。

1.1.2 本文の特徴による抽出方法

主に以下の数種類がある。袋詰めの単語法(Bag-of-words, BoW)、多項式二次元ハッシュ(Sparse Binary Polynomial Hashing, SBPH)、直交疎Bigram(Orthogonal Sparse Bigrams, OSB)及び人工免疫システムに基づいた方法(Artificial Immune System, AIS)。

1.2 画像に基づくメールの特徴抽出方法

スパムメール検出システムによるフィルタリングを避けるために、スパムメールの送信者は画像メールを用いて広告情報を送信することがある。この種のスパムメールを検出する鍵は、有効な画像特徴の抽出にある。現在、画像の特徴に基づく抽出の研究はまだ初歩段階にある。よく使われる画像特徴には、画像のプロパティ、画像のエッジ、文字、モアレ、異質性及びノイズなどがある。

1.3 アクションに基づくメールの特徴抽出方法

アクションに基づくスパムメールの検出技術は新型のスパムメール・フィルタリング方法であり、抽出されたスパムメールと正当なメールとで異なるアクション特性に基づきスパムメールをフィルタリングする。アクションに基づくスパムメール対策技術でよく使われる方法を概観すると、よく利用されるメールのアクション特性として次の4つが挙げられる。(1) メールヘッダー情報及びシステムログ(2) 添付ファイル(3) ネットワーク(4) ユーザのアクション。

2.1 法的手段

スパムメールによりもたらされる巨大な損失に対応するために、一部の国は関連の法律を制定してメールの送信行為を標準化し、スパムメールの数を減らす努力をしている。米国は2003年にスパムメール対策法案「未承諾のポルノグラフィーおよびマーケティング攻撃に対する規制法」(Controlling the Assault of Non-Solicited Pornography and Marketing Act, CAN-SPAM Act)を制定した。この法律ではメールのヘッダー情報の偽装、

メールアドレスの騙取及びメールアドレスに対する攻撃などの行為を明確に禁じると同時に、商業用メールには必ず配信停止のリンク先を張ることを要求している。しかし、Gansterer W及びGrimes G Aの論文によれば、当該法律はスパムメールの数の抑制に顕著な効果を示しておらず、配信停止のリンク先があることで逆にスパムメール作成者が有効なメールアドレスを確認するのに役立っている。

オーストラリアでは電気通信法第107条で個人と企業に分けて規定しており、受信者の承諾を得て初めて個人に対してスパムメール（商業用メール及び受信者数が50人を上回るメール）を送信できる。しかし、企業宛てのメールは規制がややゆるく、配信停止のリンク先を含んでいれば企業にはスパムメールを送信してよいことになっている。

欧州議会では2002年6月にプライバシー及び電子通信に関する指令が承認され、受信者の同意を得ない限りその人物にスパムメールを送信することを禁じた。

これら法律・条文の制定及び実施により、スパムメール問題はある程度改善がみられたが、徹底的な根絶には至らなかった。したがって、より効果的にスパムメールをフィルタリングし、メール通信の便利さを保障するには、これら法律と他の技術や手段を結びつけることが必要となる。

2.2 シンプルな方法

スパムメール対策の研究の初期に、人々はスパムメールの基本特性及びスパムメール作成者が用いる基本的な手段に対する観察を通じて、いくつかのシンプルな方法を人工的に作り出した。これらの方法は、早期のスパムメール対策業務で重要な役割を果たした。

1) アドレス保護

Hoanca Bは2006年に比較的簡単なスパムメール対策技術を提起した。それは、公開されたメールアドレスの形式を変更することでスパムメールを予防するものであった。例えば、メールアドレスをusername@domain.comからusername#domain.comに、またはusername AT domain.comなどの形式に変更する。時にはさらに、「.」をDOTに書き換える。こうすれば、スパムメール作成者がクローラ技術によりホームページ上のメールアドレスを取得するのをある程度防ぐことができる。

しかし、これら技術の防護能力は非常に低い。スパムメール送信者はメールアドレスを収集する際に簡単な識別コードを加えるだけで、依然として正当なメールアドレスを抽出できるからだ。現在では、辞書攻撃によってメールアドレス収集プログラムでメールサーバのアカウントを推測できるほか、HP以外でもネットワーク上の文書（例えばDOC、JPEG、PDF、XLS、RTF、PPTなど）に含まれるメールアドレスを抽出することも可能である。

2) キーワードフィルタリング

キーワードフィルタリング技術では、それぞれのメールにあらかじめ定義したキーワード（例えば、レシート、セールス、Viagraなど）が存在するか否かを検知することによって、メールのタイプを判断する。当初は完全マッチングの方法（例えば「Viagra」は「Viagra」とのみマッチングし、「Viiaagra」とはマッチングしない）を採用していたが、この場合スパムメール作成者はマイナーチェンジを行うだけで、これらキーワードを容易に回避できてしまう。

そこで、正規表現に基づくモデルとのマッチング方法が徐々に採用されるようになった。ワイルドカードパターン「V*i*a*g*r*a」は「V-i-agra」、「Viiaagra」、「Viagra」などのキーワードとマッチングする。これらのパターンマッチング方法により効果的にキーワード・データベースのサイズを小さくできるうえ、一定の範囲でスパムメールのマイナーチェンジに対応できる。

3) ブラックリスト及びホワイトリスト

これら2つの方法は、送信者のステータスに基づく簡単な識別方法であるが、ステータス情報が偽装された場合は完全にその効果を失う。

ブラックリストとは、特定のIPアドレス、TCP接続またはドメイン名から送信されたメールを拒否することでスパムメール送信者からのメールをフィルタリングする方法である。しかしスパムメール送信者は、メールのヘッダーに含まれるこうした情報を、その他の人物のアドレス情報に偽装して送信することがある。この場合、無実の人物のメールがフィルタリングされてしまう。

ホワイトリストとは、特定のIPアドレス、TCP接続またはドメイン名から送信されたメールだけを受信し、他に由来するメールを拒絶する方法である。しかしホワイトリストは、初めて連絡を取る場合、最初に確認要求メールを送信しなければならない、利便性に欠ける。

4) グレイリスト及び誰何・応答 (Challenge-Response)

グレイリストとは、サーバに記録のないメールに対して一時的エラーの応答を出す方法である。正当なメールの場合は、正確に配置されたMTAで当該応答を受信したのちに再度当該メールを送信し、サーバが一定時間内に再度当該メールを受信した場合に、送信が成功したものとする。一方、スパムメールの場合は、メールは往々にしてオープンリレー（Open-relay）の方法で送信され、エラーの応答を受けたからと言って再度送信されることはないため、受信者への送信が成功することはない。当該方法の欠点は、正当なメール送信に対してわずかながらも遅れをもたらすことである。

誰何・応答 (Challenge-Response) とは、ホワイトリストをベースに誰何・応答技術を付け加える方法である。この方法でも一つのホワイトリストを同じように維持することができる。ホワイトリストに由来するアドレスか

らのメールは送信されるが、リストにないメールアドレスから送信されると、サーバは送信者に「チューリング・テスト」を返信する。送信者がテストに通過するとメールは順調に送信され、かつ、相応する送信者アドレスがホワイトリストに加えられる。スパムメールの作成者は一般的に、偽装した送信者アドレスを用いて遡及追跡を逃れるため、応答テストを受信することはない。

この2つの方法の設計は、正当なメールとスパムメールでは送信時に異なる応答を示すことに基づいており、スパムメールは応答不足を正確に示せないことを利用し、メールタイプの判別を行う。しかし、この2つの方法の欠点は、応答によって正当なメールの送信に遅れがもたらされ、かつ、ネットワーク帯域幅を占拠することにある。

2.3 スマート型スパムメール検出技術

1) 単純ベイズ法 (Naive Bayes)

この方法はシンプルかつ効果的で、商業用ソフトウェアで最もよく利用されている。またスパムメールの処理で最も効果的な方法の一つであり、高い検出精度 (precision) 及びリコール率 (recall) が得られることが、大量の実績で証明されている。多項式モデルによってベルナール (Bernoulli) モデルを使うより高い正確度 (accuracy) が得られるとの研究もある。伝統的な単純ベイズ法からは多くの亜種モデルが派生している。Raju Shresthaらは、さまざまな位置に出現する同一のキーワードの内的関連特性を利用して分類を行い、キーワードの共重み付け (co-weighting) を算出し、性能の向上を得る。Liらは、ユーザのフィードバックにより改良された Naive Bayes法に基づき、相対的に低い誤検出率 (false positive) と良好な性能を獲得した。

2) k近傍法 (k-Nearest Neighbors, k-NN)

Sakkisらはk近傍法 (伝統的な怠惰学習方法の一つ) をスパムメール検出の分野に応用した。彼らは実験の方法で領域の大きさ (kの大きさ)、特徴次元及び訓練サンプル集合の大きさによる検出器の性能への影響を研究した。その研究論文によれば、k近傍法の平均的性能は、ベイズ法に勝る。

3) Boosting Trees

Schapire及び Singerは、まずこの方法を本文の分類に応用し、さまざまな基本仮説 (base hypotheses) の組み合わせにより、マルチクラス (multi-class) 及びマルチラベル (multi-label) の分類問題を処理した。Carreras及び Marquezは、AdaBoost計算法を用いたスパムメール対策によるメールのフィルタリングを実現した。2つの公共データ集合 (PU1 corpus和 Ling-Spam corpus) による実験をベースに、Boosting Trees法が性能面で Naive Bayes、Decision Trees及び k-NN計算法より優れているとの結論を導いた。しかし Nicholasは、decision stumpsによる Boosting Trees及び AdaBoostは、正確度と速度のいずれにおいても Naive Bayesに劣るとしている。

4) サポートベクターマシン

(Support Vector Machine —SVM)

DruckerらはSVMに基づいたフィルタを実現した。その研究によれば、SVMフィルタ及び Boosting Treesフィルタのいずれも最も低いエラー率 (error rates) を実現できるが、Boosting Treesのほうがより長い訓練時間を要した。Ruan及び Tanは、SVMユニット及びそのスライドウィンドウ技術によりスパムメールの常時監視を実現した。

5) Ripper

他の分類方法と異なり、Ripperは特徴ベクトルを必要としない。この方法は、訓練サンプルから分類法則を集中的に帰納し、一連のif-thenルールで構成される。

6) Rocchio

このタイプの分類器では、規範化されたTF-IDFを用いて訓練サンプルのベクトルを表示する。この方法の長所は訓練及びテスト段階のスピードが比較的速いことで、短所は訓練サンプル集合上で最適閾値 (optimum threshold) 及び最適 β を検索する際に余計に訓練時間がかかり、かつ、これらパラメータの訓練サンプル集合上での一般化特性が低いことにある。

7) テキストクラスタリング

Minoru Sasakiらは特徴空間モデルに基づくテキストクラスタリングの方法を提起し、spherical k-meansアルゴリズムを用いて異なるクラスタを自動的に算出し、かつ、抽出された質量中心ベクトル (centroid vector) にカテゴリ表示を割り当て、算出された新たなメール・ベクトルと質量中心ベクトルの距離を通じて分類を完了させた。この方法は、Ling-Spam corpusで比較的良好な試験性能を獲得している。

8) メタヒューリスティクス (Meta-Heuristics)

Chi-Yuan Yehらは、キーワードに基づく機械学習方法に対してキーワードの変化がもたらす性能上の影響について、スパマー (スパムメールの送信者) の行為を識別特徴としてメールの分類を行う方法を提起した。これら行為の特徴はMeta-Heuristicsを通じて描写できる。与えられたMeta-Heuristicsをもとに新たな113特徴が抽出された。実験結果によれば、この方法はキーワードに基づくフィルタリング法より優れており、訓練時間にも明らかな短縮が見られる。

9) 人工ニューラルネットワーク

(Artificial Neural Network—ANN)

James Clarkらは、人工ニューラルネットワークを用いてメールを自動的に分類した。彼らの開発したシステム Lingerは、Ling-Spam corpusで比較的高い正確度、リコール率及び検出精度を得たが、PU1 corpus上のシステムで得られた性能にはやや低下が見られた。Ian Stuartらは単語と情報の描写の特徴に基づき、人口ニューラルネットワークを用いる方法でメールを分類した。実験結果によ

れば、この方法ではさらに、特徴データ集合に対する適切な拡充または修正を行い、性能の向上を得る必要がある。

10) 人工免疫システム

(Artificial Immune System—AIS)

Andrew Seckerらは、免疫に基づくメール分類アルゴリズムAISEC (Artificial Immune System for E-mail Classification) を提起した。当該アルゴリズムは、ユーザの関心のあるメールと関心のないメールを識別することを目的とする。改めて訓練をする必要がない前提で、アルゴリズムは連続的にe-mailに対して分類処理を行うことができ、ユーザの関心の変化を適時追跡することができる。

Terri Odaらは、人工免疫モデルをスパムメールの処理に応用し、主に免疫による自己/非自己 (self/non-self) の検出原理及び検出器 (detector) の概念を利用した。実現したメールのフィルタリングシステムの中で、まず様々なソースの中から遺伝子ライブラリを構築した。これらソースには言語の中の単語、つまり、収集したメール中の単語やフレーズ、スパムメールに含まれる連絡情報、メールヘッダーの情報などが含まれる。システム初期化の過程で、無作為法を用いて遺伝子ライブラリから抗体 (antibody) 及び関連のリンパ細胞 (lymphocyte) を生成し、生成の過程で相似する抗体の重複生成を許容しない。各リンパ細胞は抗体に対する属性を持つほか、msg_matched及びspam_matchedという二つの属性と関係し、それぞれリンパ細胞とマッチするメールの数とスパムメールの数を表すのに用いられる。リンパ細胞の訓練過程で、マッチングが発生したリンパ細胞についてmsg_matched及びspam_matchedの2つの属性の値を修正する。システムの運行過程で、加重平均値の評価方法を用いてメールのタイプを判断した。これら評価方法では、マッチング回数の多いリンパ細胞が点数上、比較的大きな加重を持つ。

Tanが率いる研究チームは最近、免疫濃度に基づくメールの特徴の抽出方法を提起し、スパムメールの特徴に対する評価能力を大きく向上させた。さらなる細分化処理を経て、局分濃度に基づくメール特徴の抽出方法を提起し、スパムメールに対する検出性能を向上させた。同時に、彼らは最新の群知能技術をスパムメールの特徴抽出及び検出に導入し、喜ばしい進展を得ている。

3. 性能評価方法及び標準データ集合

3.1 性能評価方法

スパムメールの検出技術は今なお国内外の研究における関心事の一つであり、大量の関連研究が絶えず発表されている。スパムメールのフィルタリング方法を比較し、適切な方法の選択に資するため、研究者たちはさまざまなフィルタリング方法・システムの性能について一定の

評価基準を提起している。本章では、主な性能評価方法をいくつか紹介・分析し、いくつかの標準的なデータ集合を提示する。

1) スпамメール・リコール率 (Spam recall)

この基準では、アルゴリズム・モデルで正確に検出され、分類されたスパムメールの割合を評価できる。スパムメール・リコール率の高いシステムモデルであれば、さらに効果的にスパムメールをフィルタリングすることができ、スパムメールの人々の生活に対する障害を効果的に削減できる。以下にスパムメール・リコール率の計算方法を示す。

$$R_s = \frac{n_{s \rightarrow s}}{n_{s \rightarrow s} + n_{s \rightarrow l}},$$

式中の $n_{s \rightarrow s}$ は正確に分類されたスパムメールの数を、 $n_{s \rightarrow l}$ は誤って正当なメールに分類されたスパムメールの数を示す。

2) スпамメール検出精度 (Spam precision)

この基準では、システムによるスパムメール検出精度、つまり、システムがスパムメールとして分類したメールの中で、正確に分類された割合を評価する。この基準はまた、システムが誤って分類した正当なメールの割合を反映できる。システムのスパムメール検出精度が高いほど、そのシステムが誤って分類する正当なメールの数は少ない。スパムメール検出精度の計算方法は以下の通りである。

$$P_s = \frac{n_{s \rightarrow s}}{n_{s \rightarrow s} + n_{l \rightarrow s}},$$

式中の $n_{l \rightarrow s}$ は正当なメールで誤ってスパムメールに分類された数を表す。

3) 正当なメールのリコール率及び検出精度

(Legitimate recall and Legitimate precision)

スパムメールの検出は2種類のメール (正当なメール及びスパムメール) と関わるため、これら2種類の基準はスパムメールのリコール率及び検出精度と対称の関係にあり、計算式も対称に導き出すことができる。

4) 正確度 (Accuracy)

この基準では、メールのフィルタリングシステム全体の性能を反映することができ、正しく分類されたメール (正当なメール及びスパムメールを含む) の割合を表すことができる。この基準は、以下のように定義される。

$$A = \frac{n_{s \rightarrow s} + n_{l \rightarrow l}}{n_l + n_s},$$

式中の $n_{l \rightarrow l}$ は正確に分類された正当なメールの数を、 n_l

及び n_s はそれぞれで正当なメール及びスパムメールの合計数を表す。

5) 加重平均検出精度 (Weighted Accuracy)

研究者の観察によれば、正当なメールの逸失（システムに誤ってフィルタリングされたもの）は人々が生活の中で重要な情報を逃すことを意味するため、スパムメールの分類の誤りに比べてはるかに深刻である。正当なメールの重要性を反映するため、研究者たちは検出精度を基礎に、次の加重平均検出精度を定義づけた。

$$A_w = \frac{n_{s \rightarrow s} + \lambda n_{l \rightarrow l}}{\lambda n_l + n_s},$$

式中の λ は正当なメールの重要性を表すパラメータである。この値が大きいほど、該当する状況下での正当なメールの重要性がより高いことを説明している。 λ は一般的に9、99または999の値を取る。 λ の値が999であるなら正当なメールが該当する状況下で非常に重要であることを示し、1であるなら加重平均検出精度と検出精度の基準は等価であることを示す。

6) F_β 評価

スパムメールのリコール率及び検出精度はシステムの一面しか反映できず、このうちのある基準が強い場合はシステム全体の性能を反映できない。この問題を解決するため、 F_β 評価はこれら2種類の基準の融合として定義された。式を以下に示す。

$$F_\beta = (1 + \beta^2) \frac{R_s P_s}{\beta^2 P_s + R_s},$$

式中の β は検出精度の加重平均を表し、検出精度のリコール率に対する重要性を反映する。大多数の研究では β は1の値を取る。この場合、われわれは当該基準を F_1 評価という。

3.2 標準データ集合

2000年にAndroutsopoulosらはLingSpamデータ集合を整理し、発表した。このデータ集合は早期からある典型的なメール分類データ集合の一つである。

►LingSpam：このデータ集合には合計で2893通のメールが含まれ、このうち正当なメールは2412通で、スパムメールの割合は16.63%である。このデータ集合のメールはすべて事前処理を経ており、すべてのヘッダー情報（タイトルを除く）、HTMLタグは削除されている。このデータ集合における不足は、正当なメールの内容は大部分が言語学的话题に関係する点にある。このデータ集合を使用してメールの検出システムを評価すると過度に楽観的な評価が得られる。

2004年にAndroutsopoulosらはPUシリーズの典型的なデータ集合を収集・整理し、発表した。このデータ集

合は、現行の各種スパムメールフィルタリングシステムの性能評価に広く応用されている。PUシリーズのデータ集合には、次の4つの独立したデータ集合が含まれる。

- PU1：このデータ集合には1099通のメールが含まれ、このうちスパムメールは481通である。このデータ集合に含まれる正当なメール及びスパムメールはすべて英文メールである。正当なメールは文中の筆頭執筆者[14]が36ヶ月の時間をかけて収集したもので、スパムメールは彼が22ヶ月の時間をかけて収集したものである。
- PU2：このデータ集合には721通のメールが含まれ、このうちスパムメールは142通である。PU1と同様、このデータ集合に含まれるメールもすべて英文メールである。共同執筆者のうちの一人が22ヶ月の時間をかけてこれらメールを収集・保存した。
- PU3：このデータ集合には4139通のメールが含まれ、このうちスパムメールは1826通である。PU1、PU2と異なり、このデータ集合には英文メールと非英文メールが同時に含まれる。データ集合に含まれる正当なメールは第二執筆者が収集し、スパムメールは他のメールデータ集合に由来する。
- PUA：このデータ集合には1142通のメールが含まれ、このうちスパムメールは572通である。PU3と同様、このデータ集合にも一部、非英文メールが含まれる。また、スパムメールは他のメールデータ集合に由来する。データ集合に含まれる正当なメールは別の共同執筆者が収集し、提供したものである。Medlockは、大規模なメールデータ集合、GenSpamを整理し、発表した。
- GenSpam：このデータ集合は次の3つの部分から構成される。(1) 正当なメール8018通とスパムメール31235通を含む訓練サンプル集合 (2) 正当なメール754通とスパムメール797通を含むテストデータ集合 (3) 正当なメール300通とスパムメール300通を含む適合データ集合。(3)の適合データ集合はスパムメールフィルタリングシステムの動態性、自己適応性をテストするのに用いられる。ZH1データ集は中国語のメールデータ集であり、含まれるメールはすでに中国語の単語分割処理が施されている。処理後の単語は整数が割り当てられ、メール受信者のプライバシーを保護している。
- ZH1：このデータ集合には1633封のメールが含まれこのうち正当なメールは428通で、スパムメールの割合は73.79%であった。データ集合に含まれる正当なメールの平均の長さは819.06単語で、スパムメールの平均の長さは819.06単語であった。最も短いスパムメールは819.06単語で、最も長いものは32810単語であった。(※訳注:この段落、文脈上、数字がおかしいと思います。同じ数(819.06単語)が3ヶ所もあります。)

4. 総括及び展望

現行のスパムメール対策技術においては、スマート型スパムメール対策技術が依然として最も効果的で、将来性がある。法的手段及びシンプルな方法はいずれも、定義の特徴と一致する一部のスパムメールに対してしか一定の効果がなく、しかも自己適応性を持たないため、スパムメールの騙取を効果的にフィルタリングできない。スマート型スパムメール対策技術ではメールの特徴に基づく抽出方法が非常に重要な役割を果たし、スパムメール対策システムの各種性能に直接影響する。

メールの特徴抽出は、スパムメール対策システムの中核部分であり、システムの分類性能において決定的な役割を果たす。目下、大多数のメールはテキスト、画像タイプに集中しているため、テキスト、画像を対象としたメールの特徴抽出方法には良好な実用の可能性があり、現在の研究の関心事である。アクションに基づくメールの特徴抽出方法はメールのタイプと関係しない特徴抽出方法である。この方法は、スパムメール及び正当なメールの発信プロセスで現れる各種アクションを区別することによってスパムメールをフィルタリングするもので、効果的かつロバスト性の強い方法であり、さらなる研究に値する。新たなメールの特徴抽出方法の研究は、スパムメール対策システムの発展を大きく推進するであろう。

現行のスパムメール対策関連法では、スパムメールの送信行為に一定の規制を設けている。しかし、現行の関連法ではスパムメール問題を根本的に解決することは全くできず、スパムメール対策技術の連携的支援が必要である。現行の関連法もさらなる整備が急がれる。

スマート型スパムメール対策技術は、シンプルなスパムメール対策方法を発展させて得られた新たなスパムメール対策技術である。この技術はメールの特徴抽出を基礎に、最新の機器学習方法等のさまざまなスマート技術を運用してメールのタイプ（スパムメールであるか否か）について分類を行うことで、スパムメールをフィルタリングする。新たなスマート型技術の提起及びスパムメール対策分野における応用は将来の研究の趨勢であり、将来性は大きい。

光ファイバセンサに対する放射線の影響に関する研究の状況

•Profile•



周 次明 Zhou Ciming ●武漢理工大学教授

光ファイバセンシング技術国家工程実験室 機器・ネットワーク研究室主任。1973年5月生まれ。2003年、華中科技大学物理電子学専攻卒（工学博士）。2011年、カナダ・トロント大学客員教授、S PIE会員。国家自然科学基金重点プロジェクト2件、湖北省自然科学基金重点プロジェクト1件を主管。「863計画」などの各種研究プロジェクト10数件に成功。省レベルの科学技術賞の1等賞（2件）および2等賞（2件）を獲得。発表論文30編余り。主な研究分野：光ファイバ電流センサ、新型光ファイバセンサとその実用、光ファイバレーザ、光ファイバセンシングによるモノのインターネット（IoT）。

共著者：張 方、丁 立、姜 徳生

1. はじめに

宇宙や核反応、高エネルギー素粒子実験等の環境下で、各種機器・設備はさまざまなレベルで α 線、 β 線、 γ 線や電磁パルス等の粒子による放射線照射を受け、機器の素材や特性に著しい変化が生じる可能性があることから、深刻なシステム故障を引き起こし、設備の安全性に脅威となることさえある。しかし、放射線などの影響により、作業員が当該環境下で部品またはシステムを直接修復することができず、莫大な経済的損失をもたらすこともある。例えば、宇宙空間で作動する衛星はいったん軌道に投入されると衛星内の設備の修復はほとんど不可能であり、特に、強い放射線環境に直接さらされる各種部品の温度、応力変形、変位などのパラメータについては、オンライン観測をリアルタイムで実施する際は、センサの耐放射線性能に対する要求がさらに高くなる。このため、これら機器・設備に対する放射線の影響を詳細に検討し、かつ、設計や設置に際しては特別な措置を講じる必要があり、特に当該環境で実用化される各種センサに大きな関心が集まっている。

光ファイバセンサは、光ファイバを利用して外界物理量およびその変化を観測すると同時に、光ファイバにより被験パラメータを帯同する光信号を遠隔端末まで伝達し、センシングと送信の一体化を実現した新型センサとなっている。数十年間の発展により、光ファイバセンサは国内外で広く重視され、海外ではすでに軍用および民用分野の一部で実用化されて良好な成果を得ており、従来のセンサでは実用化が難しかった劣悪な環境下でも高い将来性のある一種のセンサとして広く認識されている。放射線環境下における光ファイバセンサは重要な研究分野の一つであり、国内外ですでに、放射線環境下における各種主要光ファイバセンサの特性について多くの研究が行われているうえ、その一部は実用化されている。本稿では、ファイバブラッググレーティングセンサ（FBG）、ファブリ・ペロー式（FP）光ファイバセンサ、分布型光ファイバセンサならびに放射線環境下における

光信号の性能およびいくつかの実験結果を総合的に紹介することで、放射線環境下における光信号の伝送および耐放射線光ファイバセンサの研究開発のために参考情報を提供する。

2. ファイバブラッググレーティングセンサ（FBG）

FBGの基本原理は、外界環境の作用によりBraggの中心波長にドリフトを生じさせ、この波長のドリフト量を測定することにより外界の温度、応力などの変化を測定するものである。FBGは軍用および民用分野ですでに多くの実用例があり、放射線環境下での実用研究も多くなされているが、光ファイバ回折格子に対する放射線の作用メカニズムについては今なお論争がある。例えば、K. Fujitaらは、光ファイバ回折格子に対する放射線の影響には、光ファイバそのものの化学組成と回折格子の書き込み方法が関係すると考える。そのため、位相マスク法を用いて各光ファイバ上に回折格子を書き込んだうえ、ファイバブラッググレーティングセンサ（FBGs）を中性子と γ 線の放射線環境下にそれぞれ置いて測定を行った。中性子の放射線環境下では、中性子流量の増加につれて波長は軽微な増加傾向を示す。流量と波長の関係は図1のとおりである。流量が $1.0 \times 10^7 \text{ n/cm}^2$ を超えるとGr2の波長は明らかに変化し、かつ、この変化は可逆性を呈する。これらの変化は、応力または回折格子の湾曲によるもので、放射線によるものではない。当該実験は、 γ 線照射と中性子照射の結果は基本的に同じであり、放射線により波長のシフトが引き起こされ、かつ、このシフトは予測・修正可能であることを証明している。

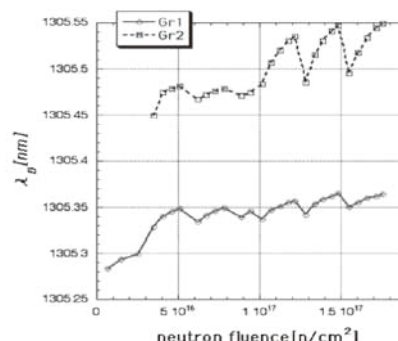
しかし、Henning Henschelらは、放射線による回折格子の波長のシフトと光ファイバの化学組成との関係は小さいと考える一方、光ファイバの水素負荷プロセスにおいて、水素圧力の強度により波長の変化に違いが生じ、さらに回折格子の書き込みプロセスにおける光ファイバの張力の増大により回折格子屈折率の増大がもたらされ、回折格子の放射線感受性に影響する可能性がある

考えている。Henschelらはコーニング社とFiberLogix社の光ファイバにそれぞれ異なる圧力で水素を負荷し、回折格子の書き込み時には、被験光ファイバに標準張力と受容可能な最大張力をそれぞれ印加し、回折格子に書き込んだ後に一部の回折格子を改めてコーティングした。照射前後の回折格子の波長の変化を比較すると、照射時間内のBragg回折格子のピークは高くなり、水素負荷をしなかった回折格子の波長シフトは小さくなり、水素負荷圧力が100barと200barの回折格子には顕著な変化はなかった。しかし300bar時では、コーニング社の光ファイバの変化は非常に小さいが、FiberLogix社の光ファイバには100barと200bar時と比べ明らかな変化が見られた。回折格子書き込み時の張力の変化は、コーニング社の光ファイバにはほとんど影響がなく、FiberLogix社の光ファイバでは、張力が最大の時の光ファイバの波長シフトが24%減少した（図2と図3を参照）。

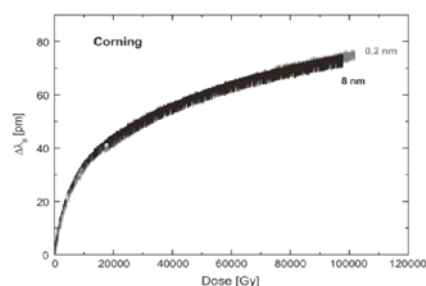
このため、光ファイバ回折格子に対する放射線の作用メカニズムに関する研究は、なお継続して進める必要がある。さまざまな放射線量やドーパント、コーティング素材、そして書き込み方法による光ファイバ回折格子の耐放射線性能に対する影響についての研究はすでに大量の実験結果を見ている。A. Gusarov, Fernandezらはそれぞれ一連の実験の結果、高強度の γ 線放射線環境下では、放射線は光ファイバ回折格子の波長のシフトにのみ影響し、長時間にわたり低強度の放射線照射を受けた回折格子における光ファイバの感光性の変化は小さい一方で、さまざまなコーティング素材及びドーパントを施したコアについては、ベアファイバは最も低い放射線感受性を示し、ormocerコーティングを有する光ファイバ回折格子に最大のピーク値オフセットが見られることを発見した。さらに、さまざまなドーピングを施したコアを有する光ファイバ回折格子を核放射線環境下において安定性を観察したところ、水素を負荷した回折格子に比較的高い放射線感受性があり、高濃度のGeドープ光ファイバがより安定していることがわかった。回折格子に書き込まれる従来型のレーザは強度の低い紫外線レーザであったが、A. Gusarovらは強度の高い紫外線フェムト秒レーザを採用してさまざまなタイプの光ファイバに回折格子を書き込んだところ、 γ 線照射環境では、すべての光ファイバの波長のシフトがほとんど同一であり、異なるタイプの光ファイバの回折格子の強度には非常に小さなシフト差しかなくことがわかった。これらの紫外線照射技術は、放射線環境下における回折格子の研究に、さらなる実用化の可能性を提供した。

つまり、上記の放射線環境下におけるファイバブラッググレーティングセンサの研究結果によれば、FRBに対する γ 線照射の影響の特徴は、Braggピーク値の長波長側へのシフトである。センサの耐放射線性能は光ファイバ素材、ドーパント濃度および回折格子の書き込み方法と相関性が

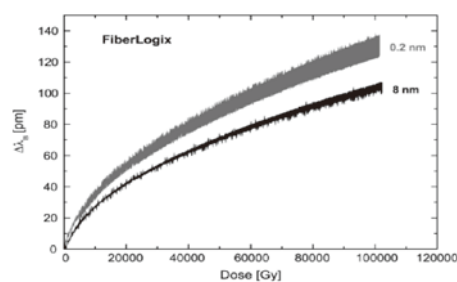
あるだけでなく、回折格子書き込みプロセスにおける水素負荷の強さや光ファイバ張力、回折格子の再コーティングプロセスの違いによりある程度の差が生じる。



◎図1 中性子流量に対する波長の変化



◎図2 コーニング社の光ファイバの波長シフト



◎図3 FiberLogix社の光ファイバの波長シフト

このため、光ファイバ回折格子に対する放射線の作用メカニズムに関する研究は、なお継続して進める必要がある。さまざまな放射線量やドーパント、コーティング素材、そして書き込み方法による光ファイバ回折格子の耐放射線性能に対する影響についての研究はすでに大量の実験結果を見ている。A. Gusarov, Fernandezらはそれぞれ一連の実験の結果、高強度の γ 線放射線環境下では、放射線は光ファイバ回折格子の波長のシフトにのみ影響し、長時間にわたり低強度の放射線照射を受けた回折格子における光ファイバの感光性の変化は小さい一方で、さまざまなコーティング素材及びドーパントを施したコアについては、ベアファ

イバは最も低い放射線感受性を示し、ormocerコーティングを有する光ファイバ回折格子に最大のピーク値オフセットが見られることを発見した。さらに、さまざまなドーピングを施したコアを有する光ファイバ回折格子を核放射環境下において安定性を観察したところ、水素を負荷した回折格子に比較的高い放射線感受性があり、高濃度のGeドーピング光ファイバがより安定していることがわかった。回折格子に書き込まれる従来型のレーザは強度の低い紫外線レーザであったが、A. Gusarovらは強度の高い紫外線フェムト秒レーザを採用してさまざまなタイプの光ファイバに回折格子を書き込んだところ、 γ 線照射環境では、すべての光ファイバの波長のシフトがほとんど同一であり、異なるタイプの光ファイバの回折格子の強度には非常に小さなシフト差しかないことがわかった。これらの紫外線照射技術は、放射線環境下における回折格子の研究に、さらなる実用化の可能性を提供した。

つまり、上記の放射線環境下におけるファイバブラッググレーティングセンサの研究結果によれば、FRBに対する γ 線照射の影響の特徴は、Braggピーク値の長波長側へのシフトである。センサの耐放射線性能は光ファイバ素材、ドーパント濃度および回折格子の書き込み方法と相関性があるだけでなく、回折格子書き込みプロセスにおける水素負荷の強さや光ファイバ張力、回折格子の再コーティングプロセスの違いによりある程度の差が生じる。

3. F-Pセンサ

ファブリ・ペロー式光ファイバセンサ (F-Pセンサ) の基本原理は、F-Pハウジング上で作動する外界物理量に変化が生じた際に、ハウジングの長さもこれに伴い変化し、出力される干渉縞に変化が生じるため、観測された回折格子の大きさと方向により、外界物理量の変化の大きさを求めることができる。Francis Berghmansらは、線量率114 Gy/h及び3.4k Gy/hでF-P温度・応力センサに照射を行ったところ、温度センサで検測された温度値に明らかな降下が見られ、照射を停止した後もわずかしき回復しなかった。これは、放射線照射による波長選択の吸収により引き起こされたものである。応力センサについては、受けた総線量の違いにより、測定結果について放射線により信号の減衰がもたらされ、かつ、有効波長域の干渉縞が消去され、当該センサは放射線照射を受けた後は正常に作動しないことがわかった。そのうえ、この減衰は照射された総線量とは相関性がなく、3つのF-Pセンサで生じた現象は一致するものであった。

温度センサの実験において、光ファイバの熱光学係数が温度変化を計る重要な要素である。Cheng -Chih Laiらは、照射前後のコーニング社のシングルモード・光ファイバの熱光学係数の変化を測定・分析した。そこから得られた結果によると、照射後にすべてのセンサの測定結果は基本的に同じになるうえ、出力される信号は0-150℃

の範囲内で周期的な変化を呈し、信号の強度と温度変化の相関を示す理論曲線は基本的に一致する。さらに、これらF-P温度センサは熱光学係数の相対変化量が3%を下回り、放射線量が1 MGyを上回らない環境下に適応することが分かった。

Han ying Liu及びDon W.Millerらは別の種類のF-Pセンサを紹介しており、これらセンサには独自のシグナル処理技術及び動力損失を低減させる特性があり、放射線量が133Mradを上回る際も、センサの性能には顕著な後退は見られず、正常に作動する。

このため、F-Pセンサは比較的大きな線量の放射線 (3.3kGy) を受けると温度の誤差が大きくなり、有効区間の信号の減衰も深刻であるが、低線量の放射線環境下では良好な測定効果を示す。信号処理と動力損失の低減技術に改善があれば、放射線レベルの高い環境下でも良好な測定効果を示すだろう。

4. 分布型光ファイバセンサ

グレーティングセンサおよびF-Pセンサと比較すると、分布型光ファイバセンサは光ファイバ全線をセンシングメディアとしており、分布型の測定を実現でき、波長変化の制約を受けることもないため、放射線環境下での実用において将来性が見込める。レイリー散乱光センサは製造及び使用上の不便、温度測定範囲の狭さなどの要素から、センシング技術における研究及び実用が徐々に減少し、現在はブリルアン散乱光を利用した光ファイバセンサとラマン散乱光型光ファイバセンサが研究の中心となっている。

4.1 ブリルアン散乱を用いた分布型光ファイバセンサ

媒介分子の内部に一定形式の振動が存在し、媒介の屈折率に時間的・空間的な周期性起伏が生じることから、自発の音響波動場が生じ、光が光ファイバ媒介に指向入射された際に当該音響波動場の作用を受け、ブリルアン散乱が生じる。外界気温または応力に変化が生じると、ブリルアン周波数がこれに伴って変化する。

放射線の影響で非常に大きな放射線の吸収が生じ、動力損失が増大したとしても、ブリルアン型センサは周波数調整を受けるため、放射線環境下でも非常に高い実用の潜在性がある。目下、ブリルアン型センサは比較的新しい光ファイバセンサの一種であり、放射線環境下での研究および実用例は少なく、まだスタート段階にある。Dario Alasiaらはブリルアン型センサに対する核放射の影響を研究している。実験には標準的なGeドーピング光ファイバを採用し、光ファイバを長さ50mの4段階のサンプルに分け、27 kGy/hの線量で同時に照射したが、4段階の光ファイバが吸収した放射線の総線量は異なった。実験結果によれば、放射線に誘導された動力損失がSN比に影響を及ぼし、放射線総線量の増大に伴ってブリルアン周波数および線幅が非線形的な増加を呈した。放射線量が最大の

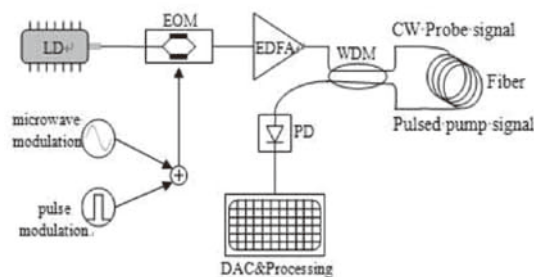
時（約10MGy）、ブリルアン周波数および線幅の変化は約5MHzであった（表1参照）。

	Reference	Sample 1	Sample 2	Sample 3	Sample 4
Dose	0 MGy	0.33 MGy	0.97 MGy	4.7 MGy	9.9MGy
Brillouin frequency (GHz)	10.8413	10.8417	10.8426	10.8451	10.8462
Brillouin linewidth (MHz)	43.2	43.6	44.4	46	48

◎表1 ブリルアン散乱の特徴的パラメータ

このため、実用化においては、放射線によるブリルアン周波数のシフトは非常に小さく、周波数が調整された光ファイバセンサの耐放射線レベルは比較的高いことを物語っている。しかし、ブリルアン光ファイバセンサに対する放射線の影響は、FBGに対するそれと同じであるか否かについては光ファイバの素材やドーパント、コーティングなどの要素と関係し、さらなる研究の価値がある。

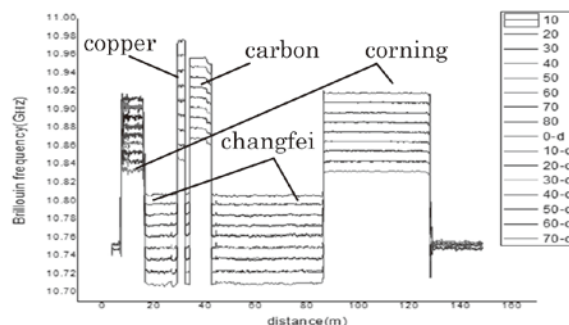
よって、われわれは数種類の異なるコーティング素材を用いた光ファイバについて初歩的な実験を行った。炭素コーティング光ファイバ、銅コーティング光ファイバ、コーニング社の汎用光ファイバ、長飛社（※長飛光纜。中国の光ファイバメーカ。）の光ファイバを6段階に分けて0.1mSv/hの放射線環境下におき、それぞれ1～6ヶ月間放射線を照射した。実験ではDiTeSt STA-Rブリルアンセンサを用いた。センシング原理は図4のとおりである。



◎図4 ブリルアンセンサ装置

放射線照射後の光ファイバをすべて未照射の光ファイバと溶接し、温度試験室に一緒に入れてブリルアンセンサを用いて計測を行った。温度循環範囲は0℃～80℃で、10℃ごとに1回計測したところ、図5のような結果が得られた。放射線照射後の炭素コーティング光ファイバのブリルアン周波数は照射前に比べて約4MHz変化し、Dario Alasiaらの研究結果と基本的に一致した。しかし、依然として約1MHzの差があるのは、光ファイバのコア素材、コーティング素材または放射線照射線量と関係するものであろう。光ファイバの一部の突起部分は光ファイバ同士を溶接したポイントであり、光ファイバのその他の部分は照射前後でほとんど変化がなかった。銅コーティング光

ファイバは10℃ごとのブリルアン周波数の変化が他の光ファイバと比べてやや大きかったが、これはコーティング素材そのものによるもので、放射線照射と関係しない。これら数種類の光ファイバのブリルアン周波数が比較的高い放射線環境下でどのように変化するかについては、現在研究を進めている。



◎図5 温度循環試験

4.2 ラマン散乱型光ファイバセンサ

ラマン散乱は応力に敏感でないが温度には敏感であるため、温度センサとしてよく使用される。冷却構造循環による熱疲労損傷を正確に推測するために、温度観測の必要性は高い。Fredrik Jensenらが、原子力発電所の原子炉冷却循環試験にラマン温度センサを用いて観測を行ったところ、原子炉の温度が80℃以下に維持された場合に、ラマンセンサに対する放射線の影響は小さく、室温環境下と比べて、システムが300℃であったときの放射線による損傷は10倍低減された。実験結果によれば、放射線照射が200R/hのときは、ラマンセンサは原子炉の冷却循環に用いることができ、放射線の影響も比較的小さい。

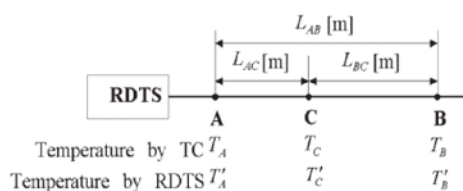
Atsushi Kimuraらによれば、放射線によりラマン散乱のストークス光とアンチストークス光に変化が生じるため、これら変化によって生じる誤差を消去するために、彼らは2種類の修正装置を用いてラマンセンサを改良した。そのうちの1つは熱電対修正装置（図6参照）であり、もう一つはループ型修正装置（図7参照）であった。

試験で得られた誤差値および損傷値は、放射線照射線量の増加に伴い飽和状態に向かった。また、試験により、Fドーパ光ファイバのほうがOHドーパ光ファイバよりも耐放射線性能があるうえ、いずれの修正装置も温度測定に使用できるが、温度が急激に変化する場合は、ループ型装置の方が熱電対装置より安定性があり、正確であることがわかった。

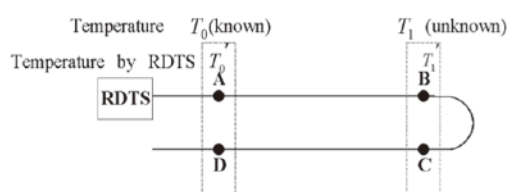
しかし、修正技術によりシステムの複雑さが増大するうえ、劣悪な環境下では取り付け費用が高額になるため、A. Fernandez、P. Rodeghieroらは、商業用のマルチモード・光ファイバの両端におけるラマン計測の方法により放射線照射で生じる損傷と誤差を解決し、特別な修正技

術を必要としない方法を提案した。両端計測はシステム計測の正確さを高めることができ、かつ、光ファイバそのものの強度の強度により、当該システムは放射線環境下での実用に一層適したものとなった。

試験の結果、ラマンセンサはその温度に対する感受性と分布型計測原理により、冷却循環システム、原子量廃棄物の処理、大型の原子力施設における計測などの放射線環境下で使用できることが分かった。



◎図6 熱電対修正装置



◎図7 ループ型修正装置

5. 光ファイバの伝送に対する放射線の影響

光ファイバセンシングシステム全体の中で、光ファイバの伝送は極めて重要な部分であるため、放射線環境下におけるさまざまな光ファイバの伝送によるパフォーマンスの研究はシステム全体における必要性が高い。先行研究によれば、光ファイバのコーティング素材は回折格子の感光性に影響することから、その耐放射線性能にも影響を及ぼすことや、放射線照射による損傷は光ファイバのドーパントと密接に関係すること、また、光ファイバモデルの選択と放射線量率の違いにより、光ファイバの耐放射線性能にも変化が生じることが分かっている。

光ファイバの伝送に対する放射線の影響は、主に損傷および蛍光効果の発生にある。光ファイバは光ファイバセンサの重要な構成部分として、システム全体の耐放射線レベルに重要な役割を果たすため、異なる放射線量レベルと実用環境に応じてふさわしい光ファイバの伝送方法を選択し、伝送過程におけるセンシング信号のひずみを極力減らす必要がある。

6. 終わりに

核放射環境下におけるパラメータ計測および観測制御は、長らく解決の難しい問題であったが、光ファイバセ

ンサの発展により、選択可能な新技術が提供された。光ファイバ回折格子は複数ポイントでの観測が可能な上に構造がシンプルである。しかし放射線の影響により被験パラメータ情報にbragg波長がもたらされるうえ、これらの影響度は光ファイバ素材やドーパント濃度、光ファイバ回折格子の書き込み方法など多くの要素と関係し、さらには光ファイバ回折格子のコーティング過程とも関係するため、さらなる研究が必要である。F-Pセンサおよびラマンセンサは放射線レベルの低い環境下での測定効果が比較的良好。試験により、周波数調整センサであるブリルアン型センサは、ブリルアン周波数に対する核放射線の影響が小さく、その測定距離や精度も優れており、将来性が見込めることが初歩的に明らかになった。

表面プラズモンポラリトンにより強化された薄膜太陽電池性能に関する研究の進展

•Profile•



陳 鳳翔 Chen Fengxiang ●武漢理工大学副教授

1979年11月生まれ。2005年4月、上海交通大学太陽エネルギー研究所卒、光学専攻理学博士号取得。卒業後、武漢理工大学理学院物理科学・技術系講師、後に準教授。主な研究分野は高効率太陽エネルギー電池のシミュレーション、製造及び試験。関連論文20本以上。国際的な英文学術専門書の1章分を執筆。

共著者：汪 礼勝、祝 雲洛

1. はじめに

近年、世界のエネルギー消費の急増及び環境汚染の深刻化に伴い、世界各国は太陽光の利用をますます重視している。世界の太陽電池生産量は年平均約 40%のスピードで成長しており、2008年に世界の太陽電池生産量は5GWを超え、2015年までに20GWを超えると予想されている。しかし、現時点では太陽光発電のコストは火力発電、水力発電などに比べてはるかに高いため、変換効率の向上とコストの削減が太陽電池の調製において考慮すべき2つの主要要素となっている。高品質素材の節約及びコスト削減のため、高効率な薄膜太陽電池の発展が太陽電池の研究開発における方向性及び主流となっている。すべての薄膜太陽電池は光バンドギャップの近く、特に非直接バンドギャップの半導体シリコンの吸収は比較的弱い。このため、太陽光の吸収を十分に増強することは薄膜電池の光・電気変換効率の向上に重要な役割を持つ。

従来型の結晶シリコン太陽電池については、化学的腐食によりシリコン片表面にピラミッド構造（すなわちテクスチャ構造）を調製する、または太陽光の反射を低減する反射防止膜をシリコン片表面に調製することで、太陽光の吸収及び利用を強化できる。しかし、これらの方法は薄膜太陽電池には適用できない。最近、研究者たちは金属ナノ粒子の表面プラズモンポラリトン増強によるシリコン薄膜電池の強化や有機半導体太陽電池の光吸収による電池変換効率の向上に関心を寄せている。入射光が金属の表面に照射され、自由電子が電磁場の駆動のもとで金属と媒質の界面で集合振動することで表面プラズモンポラリトンを生じ、それらは局部的に金属ナノ粒子の周囲または平坦な金属表面で伝導することができる。貴金属（金、銀、銅等）ナノ粒子により励起される表面プラズモン共鳴周波数は主に電磁スペクトルの可視光または赤外線域にあるため、表面プラズモンポラリトンを利用して太陽電池の光吸収を増強できる。銀ナノ粒子は可視光域で最小の吸収係数を持つため、薄膜太陽電池の光トラッピング構造の主な素材となりうる。表面プラズ

モンポラリトンは独特の光学特性を持つため、太陽電池分野の実用面で将来性があり、世界の研究の焦点となっている。

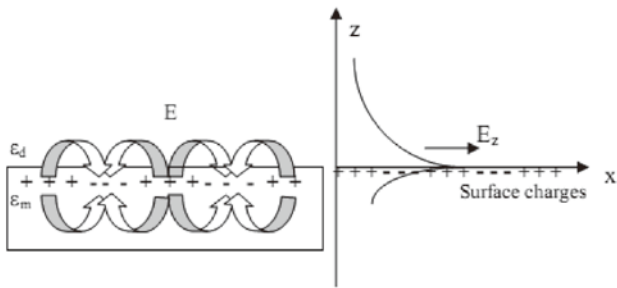
2. 表面プラズモンポラリトンによる光吸収向上の原理

表面プラズモンポラリトンには、表面プラズモンポラリトン（Surface Plasmon Polariton, SPP）と局在プラズモン（Localized Surface Plasmon, LSP）の2種類の形式がある。SPPは、金属表面の自由電子と電磁場の相互作用により生じる電子疎密波で、金属表面に沿って伝導する。マクスウェルの電磁方程式に境界条件を結合させると、金属と媒質の平坦界面上に伝導するSPPの波長分散関係が算出できる。

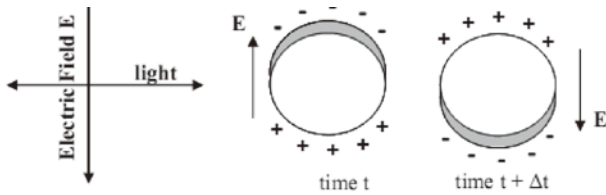
$$(1) \quad k_{spp} = k_0 \left(\frac{\epsilon_d \epsilon_m}{\epsilon_d + \epsilon_m} \right)^{1/2}$$

式中の媒質誘電率 ϵ_d は実数であるが、金属の誘電率 ϵ_m は複素数である。金属の依存周波数の誘電率 ϵ_m の実数部分と媒質素材の誘電率 ϵ_d の絶対値は等しいが、プラスマイナスが反対になると金属と媒質素材の界面でSPPが生じる。可視光が銀の表面に照射して生じたSPPは表面に沿って10～100 μm 伝導し、近赤外線に対しては1mm伝導できる。SPPは、表面局部と近接場で増強するという2つの独特な性質を持つ（図1を参照）。表面プラズモン共鳴効果は、局在場の強度を入射場より数オーダー高くする。表面プラズモン共鳴の際、入射光のエネルギーの大部分は表面プラズモン波に結合して反射光のエネルギーを急激に減らすことは、太陽電池の光吸収促進に応用できる。

入射光照射下では、金属の平坦面で表面プラズモン共鳴を発生させられるだけでなく、金属ナノ粒子または金属表面に微細構造または欠陥があっても局在化した表面プラズモン共鳴を生じることができる（図2を参照）。



◎図1 SPPが励起された際の金属-媒質界面上の分極電荷分布及び電場概略図



◎図2 入射光が励起した金属ナノ球状粒子により形成された局在化表面プラズモンポラリトン共鳴

金属ナノ粒子は、可視光域で非常に強い広帯域光の吸収特性を示す。これは、実質的にはフェルミ準位付近の伝導帯上の自由電子に電磁場の作用で集合振動が発生し、共鳴状態で電磁場のエネルギーが金属自由電子の集合振動エネルギーに効果的に変換されている。金属ナノ粒子表面のプラズモン共鳴はナノ粒子表面に限定され、LSP共鳴と呼ばれる。媒質中の球状金属ナノ粒子の直径 d と入射光の波長 λ が $d \ll \lambda$ を満たすとき、ナノ粒子は入射光との相互作用で静電双極子と近似を取ることができる。このとき、誘電体球の分極率は次の式で表される。

$$(2) \quad \alpha = 4\pi a^3 \frac{\epsilon_m - \epsilon_d}{\epsilon_m + 2\epsilon_d}$$

式中の a は金属ナノ粒子の半径、 ϵ_m は粒子の誘電率、 ϵ_d は粒子周囲の媒質の誘電率である。 $|\epsilon_m + 2\epsilon_d|$ が最小の時、分極率は最大値に達することで共鳴の増強を生じるため、共鳴周波数 ω_{spr} の満たす関係式： $\text{Re}[\epsilon_m(\omega)] = -2\epsilon_d$ が存在する。金属粒子の誘電率はDrudeモデルを用いて示せると仮定すると、次の式で表すことができる。

$$(3) \quad \epsilon_m(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma)}$$

式中の ω_p はプラズモン周波数、 ω は入射光の角周波数、 γ は減衰係数である。球状金属ナノ粒子と入射光の相互作用により表面プラズモン共鳴が発生した時は、その表

面プラズモン共鳴周波数 ω_{spr} は次の式で表すことができる。

$$(4) \quad \omega_{spr} = \frac{\omega_p}{\sqrt{1 + 2\epsilon_d}}$$

上の式で見られるように、表面プラズモン共鳴周波数は電気媒質環境に対して大きな依存関係を持つ。ナノ粒子周囲の媒質の ϵ_d が増加した時、その共鳴周波数 ω_{spr} に赤方偏移が表れる。このほか、表面プラズモン共鳴周波数はナノ粒子の材料、形状、サイズ及び粒子間の距離と密接に関係する。

準平衡近似下で、共鳴の増強による分極化は金属ナノ粒子周囲の電場の強化を引き起こし、その大きさは金属表面からの距離に伴い急速に減衰する。さらに、共鳴の増強による分極化は金属ナノ粒子の光の散乱及び吸収効率の増加を伴う。次の計算式により散乱断面 C_{sca} 及び吸収断面 C_{abs} が得られる。

$$(5) \quad C_{sca} = \frac{2\pi}{\lambda} \text{Im}[\alpha]$$

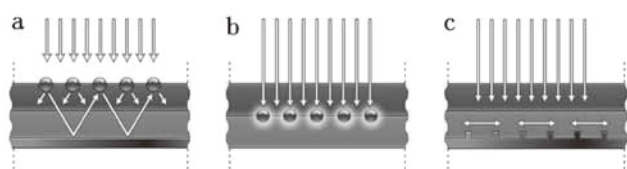
$$(6) \quad C_{abs} = \frac{1}{6\pi} \left(\frac{2\pi}{\lambda} \right)^4 |\alpha|^2$$

上記2つの式により、双極子プラズモンが共鳴するとき、金属ナノ粒子の吸収および散乱は共鳴により強化されることが説明される。 $a \ll \lambda$ の金属ナノ粒子は $C_{abs} \propto a^3$ 及び $C_{sca} \propto a^6$ である。この光波長のより小さい金属粒子（サイズ： $a < 50\text{nm}$ ）はさらに光波を吸収しやすいため、金属粒子中の消光は主に吸収により支配される。しかし、金属粒子が100nm前後まで大きくなると、消光は主に散乱により支配される。この性質を利用して、金属ナノ粒子を薄膜太陽電池中に集積して光吸収を強化することができる。しかし、金属粒子が大きくなり過ぎると効率の遅延及び高次多極励起モデルの増加を導き、金属粒子の効果的な散乱が減少する。このため、金属粒子による光の散乱を最大限増強するためには、半導体吸収層中の金属ナノ粒子のサイズの設計を最適化する必要がある。

3. 研究の進展

従来の結晶シリコン太陽電池と比べて高効率な薄膜太陽電池の半導体吸収層はさらに薄いため、極力多くの太陽光を吸収して光電流を強化するためには光トラップ

グ技術を採用する必要がある。金属の表面プラズモンポラリトンは独特の光学特性を持つため、多くの研究グループは理論及び実験の両面から金属ナノ構造体系の利用による太陽電池感光性材料の光吸収の促進を検討した結果、光電流の顕著な増強効果が得られた。金属の微細構造により励起された表面プラズモンポラリトンによる光吸収の増強は、主に次の3つのメカニズムによる。(1) 金属ナノ粒子の散乱 (図3aを参照)。(2) 近接場の増強 (図3bを参照)。(3) SPPモードによる光吸収の増強 (図3cを参照)。現在、前者2つのメカニズムは無機、有機太陽電池器材の光トラッピングに広く応用されている一方、SPPモードで光吸収が増強された太陽電池器材は比較的少ない。



◎図3 薄膜太陽電池の表面プラズモンの光トラッピング概略図

3.1 金属粒子の散乱

表面プラズモン共鳴の際、金属ナノ粒子の散乱断面はその幾何学的断面よりはるかに大きい。例えば、共鳴時の空気中の銀ナノ粒子の散乱断面はその幾何学的断面の約10倍である。金属ナノ粒子の散乱は半導体の光トラッピングにおいて非常に重要である。一般にサイズの大きい粒子ほど光の散乱に有利である。例えば、直径100nmの銀粒子の反射率 ($C_{sca}/(C_{sca}+C_{abs})$) は90%を上回る。金属粒子の位置が2種の媒質の界面に近いとき、金属粒子から散乱される光線は優先的に誘電率の高い媒質中に入射する。散乱光は一定の傾斜角で半導体の中を伝導され、効果的に光路を増やす。仮に太陽電池に金属の背面反射による接触があり、入射光が半導体薄膜中で往復伝導したとしても、光線を増やせば光路の長さ方向で効果的に伝導され、これにより電池の光吸収が強化される。2006年、Derkacらは50-100nmの金ナノ粒子を薄膜アモルファスシリコン太陽電池のITO層上に堆積させ、金属ナノ粒子を亜波長としてエレメントに散乱させ、太陽光の自由伝導による平面波をアモルファスシリコン太陽電池の吸収層内に結合及び制限することで、短絡電流を8.1%、電池効率を8.3%増加させた。

2007年、Pillaiらは銀粒子を1.25SOI太陽電池及びシリコン平面電池上に堆積させる実験により、近赤外線域の光電流はいずれも増加することを見出した。重量厚さ (mass thickness) 16nmの銀粒子を堆積させたSOI太陽電池は入射波長1050nmのとき光電流がほぼ16倍増加し、同じ厚さ

の銀粒子のシリコン平面電池は入射波長1200nmのとき光電流が7倍増加した。重量厚さの増加に伴い、粒子は球形状体を失い扁平になりやすい。球状粒子の赤方偏移は比較的小さいが、粒子が扁平になるほど赤方偏移は大きくなり、表面プラズモン共鳴ピークはより幅広くなる。このため、銀粒子の重量厚さが12nmから16nmに増えるにつれ、光の散乱は徐々に強まり、太陽スペクトル全体で電池はより多くの太陽光を吸収する。実験では、これら2種類の電池は太陽スペクトル全体で光電流にそれぞれ33%及び19%の増加が見られた。2008年、Moulinらは長さ300nm、高さ50nmの楕円形銀ナノ粒子を薄膜微結晶シリコン太陽電池の背面glass/Ag/TCO層上に集積させることを公表した。また、TCO層の光トラッピングを回避するため、ガラス上に銀を直接堆積させた。2種類の構造の中で、背面に接触する銀ナノ粒子の光の散乱により光線の電池内での光路が増えたため、光の反射が減り、微結晶シリコンの光吸収が増え、長波範囲で電池に対応する量子効率が増した。2009年、Maria Losurdoらはa-Si:H(n)/c-Si(p)ヘテロ接合太陽電池上20nmの金ナノ粒子をスパッタリングして堆積させたところ、短絡電流が20%増加し、出力効率が25%、曲線因子が3%向上した。粒子を20nmから30nmに大きくしたところ、金ナノ粒子の光散乱が強化され、双極子の表面プラズモン共鳴モードの赤方偏移が572nmから578nmに変化し、ヘテロ接合太陽電池の光吸収が強まり、太陽電池の性能が向上した。

また、2008年にDerkacsらはナノ粒子の散乱もInP/InGaP量子井戸構造の太陽電池の性能を高め、銀及び金粒子を使用するとそれぞれ効率が17%及び1%向上することを発見した。Nakayamaらは銀ナノ粒子を薄膜GaAs太陽電池上に堆積させたところ、電池の光吸収を向上させることで電池の短絡電流が8%増加し、電池効率と曲線因子もこれに応じて上昇した。この実験結果により、電池性能の向上はナノ粒子のサイズと密度に依存することがわかった。2010年、Imongem M.Pryceらは2.5nm単一接合のInGaP量子井戸構造の太陽光装置の表面に100nmの銀ナノ粒子配列を堆積させた。AM1.5スペクトル下で、厚さ200nmのp-GaN発射層の銀ナノ粒子配列太陽電池では、短絡電流は0.223mA/cm²から0.237mA/cm²に増加して6%上昇し、電池の外部量子効率も54%まで上昇した。電流の増加は、銀ナノ粒子による光の散乱及び光トラッピングの増加と、電池表面のキャリア収集効率の向上との相乗効果である。

3.2 近接場の増強

半導体材料中の微小ナノ粒子 (直径5-20nm) は太陽光入射の効果的な亜波長アンテナとして近接場の増強を実現でき、表面プラズモン波の近接場を半導体層と結合することで有効な吸収断面を増やす。アンテナで効率的にエネルギーを変換できるようにするために、半導体材料の吸収率は非常に高くする必要がある。なぜなら、吸

収されたエネルギーは金属の電気抵抗中に消散してしまうからである。このため、微小金属ナノ粒子の励起による表面プラズモンポラリトン局在場の強化は有機、染料による太陽電池の増感及び無機太陽電池中の直接バンドギャップによく用いられる。

2000年、Westphalenらは銀クラスタ化合物をITO-亜鉛フタロシアニン染料 (ZnPc) を施した太陽電池上に堆積させたところ、5nmAgのZnPc電池は金属粒子ZnPcのない電池より消光が強化されたことを発表した。これは金属ナノ粒子の周囲で表面プラズモンポラリトン共鳴が非常に強い局在場の強化を引き起こすことで、半導体材料周囲の光吸収が増強され、短絡電流が上昇したことによる。2004年、Randらが研究段階で微小な銀ナノ粒子 (5nm直径) を超薄型有機太陽電池中にはめ込んだところ、光照射下で金属ナノ粒子の表面に局在プラズモン共鳴が発生し、近接場の増強効果が生じたことや、有機薄膜層と太陽電池の接合部付近での半導体の光吸収が促進されたことにより電子正孔対の生成が増え、電池の効率が向上した。2007年、Kondaらは金ナノ粒子の表面プラズモンポラリトン励起によりn-CdSe/p-Siヘテロ接合ダイオードの光電流を増強させた。2008年、Morfaらは銀ナノ粒子層を堆積した有機体ヘテロ接合太陽電池の変換効率が1.7倍向上したことを発表した。2001年、Wenらは表面プラズモン効果を染料により増感されたTiO₂薄膜太陽電池の強化に用いることを研究した。実験の結果、3.3nmの銀粒子は可視光域で光の共鳴を強化し、電流密度を増加させたが、銀粒子が6nmまで増加すると電流密度は逆に減少した。実験の結果、サイズの小さい金属ナノ粒子のほうが周囲の局在場は強く、半導体材料がより多くのエネルギーを吸収することがわかった。相似する構造としては、2008年にHäggglundらが金ナノ粒子表面プラズモンポラリトンにより局在場を強化し、染料増感太陽電池の電荷キャリア発生率を向上させた。

3.3 表面プラズモンポラリトン

金属ナノ粒子の光散乱の利用及び近接場の強化による太陽電池の光吸収促進に関する研究と同時に、表面プラズモンポラリトン (SPP) の太陽光発電装置への応用についても研究が行われた。半導体吸収層の背面に金属膜をめっきすると、入射光に励起されたSPPが金属及び半導体界面に沿って伝導され、SPPの場分布は金属及び半導体中で指数関数的減衰を呈するうえ、界面上では高度に局在するため、SPPは半導体吸収層で効率的に光をトラップし伝導する。2008年、Ferryらはシリコン層下方で金属亜波長の溝構造を設計した。入射光の励起により金属及びシリコン界面で高度に局在するSPPモードが伝導されることで、溝付近の局在場が強化され、電池の光吸収が向上した。厚さ150nmのシリコン層と幅100nm、深さ50nmのAg溝構造を有する太陽電池に対するシミュレーション分析の結果、共鳴ピークが580nmに移動し、かつ、

長波 (～1100nm) での吸収増強因子は2.5であった。2009年、Biswasらは理論上で最適化されたパラメータに基づき、フォトリソグラフィによりc-Si上で表面プラズモン光子結晶格子を形成した後に、熱蒸発、スパッタリング及びPECVD技術により周期性のある銀背面反射層を堆積したa-Si:H薄膜太陽電池を発表した。入射光が太陽電池に照射されると、光波は周期性のある銀背面反射層を経て銀とa-Si:Hの界面で励起されてSPPモードを形成し、光エネルギーを高度に局在する場合エネルギーと結合させることで、電池の光吸収を増加した。実験の結果、波長720nm付近の外部量子効率8倍増加したうえ、波長760nm付近では二次共鳴が観察され、外部量子効率は約6倍増加した。2009年、Jin-A Jeongらはヘテロ接合有機太陽電池の薄膜基板上にITO-Ag-ITO多層電極を堆積させたところ、その実験結果では太陽電池の電流密度と変換効率はいずれも向上し、その原因は最適化された銀膜表面プラズモンポラリトン共鳴と反射の減少により光の透過率が大幅に向上したことによる。この実験では、銀膜の厚さが光の透過率に大きく影響することが分かった。

3.4 理論シミュレーション

表面プラズモンポラリトンによる太陽電池性能の向上に関する研究においては、研究者たちはさらに大量の理論検証を行っている。2008年、Lu Huらは広く知られるミー散乱理論及び双極子近似に基づき球形銀粒子をはめ込んだシリコン中の表面プラズモンポラリトンによる光吸収の増加を分析した。計算の結果、10nmの銀粒子に対する共鳴周波数付近のシリコンの光吸収は50倍に増加した。さらに、分析の結果、表面プラズモン場は粒子周囲の球形電子殻層中に集中し、電子殻層の厚さが粒子半径の0.26倍の局在場における増強が最大であることが分かった。R.Najjarらは多重多極法 (Multiple Multipole method, MMP) により背面反射層に半径20nmの銀粒子を堆積したa-Si:H太陽電池についてシミュレーションを行ったところ、波長700nm付近のa-Si:H電池の光吸収が大幅に増加した。

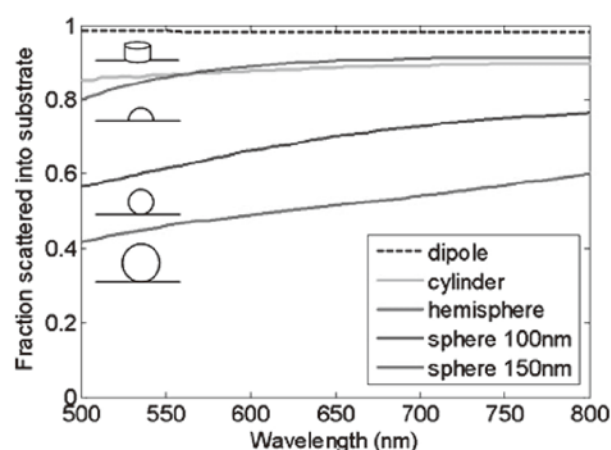
2008年、Catchpoleらは、時間領域差分法 (FDTD) と完全整合層の界面条件を用いて、Agナノ粒子への光の直角入射による散乱についてシミュレーション計算を行った。図4にさまざまな形状、サイズのAgナノ粒子散乱比と波長との関係を示す。このうち、Agナノ粒子は10nmSiO₂とSi基板の間に堆積する。図から、直径100nmの円柱形及び半球状粒子 (図には直径を示していない) の散乱比は直径100nm及び150nmの球状粒子の散乱比をはるかに上回り、しかも球状粒子の散乱比は直径の増加につれて明らかに減少することが分かる。円柱形及び半球状粒子の高い散乱比は、それらと基板との平均間隔が球状粒子よりはるかに小さく、より多くの効果的に結合した散乱光をシリコン材料に取り入れられるためである。理論シミュレーションにより、太陽電池の光トラッピング効果は表面プラズモン共鳴波長付近で最も顕著で、かつ、周囲の

媒質の誘電率を変えることで調節できることが分かった。

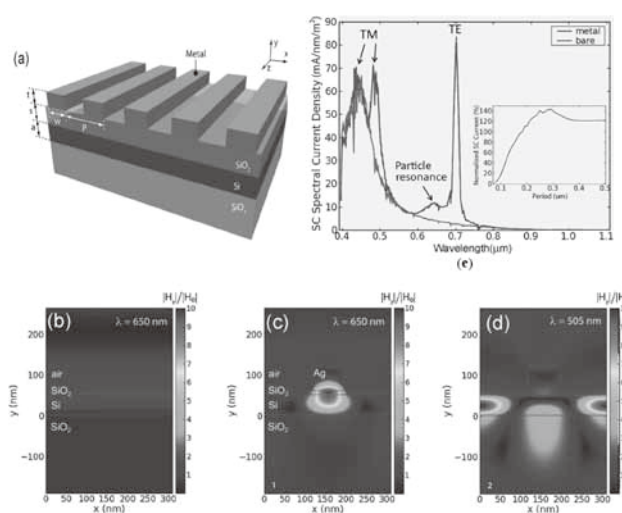
2009年、Ragip A. Palaらは周期性界面条件と完全整合層界面条件に基づき、時間領域差分法 (FDTD) を採用して図5aに示した薄膜太陽電池に対して全磁場における電磁シミュレーションを行った。シミュレーションで設定した銀帯配列は厚さ $t=60\text{nm}$ 、幅 $w=80\text{nm}$ 、横向周期 $p=310\text{nm}$ 、シリコン膜間距離 $s=10\text{nm}$ であった。図5b、c、dでは金属構造がない場合と入射波長が異なる場合の銀帯周囲の場分布を示す。図から、入射波 650nm に対しては、場の集中的な増強は銀帯付近のシリコン層中に現れることが分かる。逆に、波長 505nm に対しては、銀帯は効果的に光をトラップしシリコン層に進入する。金属構造がないときは、これら2種類の波長状況下のシリコン薄膜の実際の光吸収はそれぞれ5倍及び7倍増加する。シリコン薄膜電池モデル構造中の5つのパラメータ (t , w , P , s , a) は、いずれも電池のエネルギー変換効率に影響する。図5eに銀帯の有る/ない状況下での短絡電流の密度と波長との関係を示す。図の銀帯配列周期は $p=295\text{nm}$ である。図から、銀帯のあるときはTM、TEモード結合及び表面プラズモン共鳴が表れることがはっきりわかる。図5eの挿入図中に正規化短絡電流の密度と配列周期の関係を示す。配列周期が 295nm の時、正規化短絡電流の密度は143%に接近し、すなわち短絡電流が43%増加する。配列周期が増加すると、正規化短絡電流の密度は再び100%に戻る。

4. まとめと展望

本稿は、表面プラズモンによる薄膜太陽電池の光吸収の増強原理及び最近の研究成果を紹介した。理論シミュレーション分析及び実験による研究結果によれば、金属ナノ粒子の光散乱、近接場の強化及び高度に局在するSPPモードを利用することで太陽光発電装置の半導体層の光吸収を増加し、太陽電池の変換効率を引き上げることができる。表面プラズモンポラリトン共鳴周波数は、ナノ粒子の材料、サイズ、形状、粒子間距離及び周囲の媒質の性質等の要素に影響されるため、これらのパラメータをコントロールすることで共鳴周波数またはプラズモンポラリトンの伝導特性を調整し、より効率的な太陽電池を設計する必要がある。また、金属ナノ構造に励起される表面プラズモンポラリトンにより強化される太陽電池の光吸収の物理メカニズムについて深く研究する必要がある。表面プラズモン光子学理論の研究の進展および微細加工技術の発展に伴い、より安価で効率的な薄膜太陽電池が太陽光発電市場に進出するだろう。



◎図4 さまざまな形状、サイズのAgナノ粒子散乱比と波長との関係



◎図5 シリコン薄膜電池構造の概略図及びシミュレーション結果

情報科学技術の長期的傾向及びわが国の戦略的方向性

•Profile•



李 国傑 Li Guojie ●中国科学院計算技術研究所所長、研究員、中国工程院院士

1943年5月生まれ。1968年、北京大学卒業。1981年、中国科学院工学修士。1985年、米国パデュー大学博士号取得。1987年に帰国し、中国科学院計算技術研究所に就職、1989年に研究員に就任。1990年、国家智能コンピュータ研究開発センター主任。1999年12月、中国科学院計算技術研究所所長。主にコンピュータシステム構造、並列アルゴリズム、人工知能、コンピュータネットワーク等の研究に従事。発表論文 100本以上、英文専門書を4冊共著。論文集「創新求实録」を出版。曙光1号並列コンピュータ、曙光1000大規模並列マシン、曙光2000/曙光 3000スーパーサーバーの開発を主宰。曙光4000スーパーサーバー、曙光5000A高性能コンピュータの開発を主導。このうち、曙光1000は 1996年の中国科学院科学技術進歩特別賞と1997年の国家科学技術進歩一等賞を獲得。中国科学院計算技術研究所が開発に成功した高性能なLoongson汎用CPUの開発を主導。現在曙光公司董事長、中国コンピュータ学会理事長、国家情報化専門家コンサルティング委員会の情報技術・新興産業専門委員会副主任、英文学術誌「Journal of Computer Science and Technology」編集長、中国科学院学位委員会副主席、中国科学技術大学コンピュータ学院院长等を兼務。

1. 情報科学技術に対する認識の変化

半世紀余りにわたる研究と実践を経て、情報科学技術に対する科学技術界の認識に大きな変化が生まれた。新しい認識には以下の点がある。

1.1 情報科学技術の内包重視から外延重視への転換

コンピュータ科学は現代の科学体系の重要な基盤の一つである。この数十年で情報技術は急速に発展し、広く普及している。今では、情報は最も活発な生産要素及び戦略的資源となっており、情報技術は人類の生産方式、認識様式及び社会生活様式に強い影響を与え、情報技術とその実用レベルは一つの国の総合的な競争力を測る重要な指標となっている。情報科学技術は典型的な汎用技術であり、数学、物理学、化学、天文学、地学、生物学と平行する学問分野であるだけでなく、多くの学問と関連性を持つとともにほとんどすべての学問をバックアップしており、もはや情報収集、保存、処理を主とする単独の学問にとどまらず、社会、健康、エネルギー、材料等の他の分野と緊密な関係を持つに至っている。21世紀の情報分野はまるでエネルギー分野のように、その外延には多くの学問分野がある。

21世紀の情報技術の新たな発展の方向性には、次の点がある。すなわち、エンジニアリングによる規模の効率を引き続き拡大するとともに、情報技術の多様性、開放性及び個性化をより重視し、情報技術の恩恵がさらに一般に行きわたるようにすること。情報技術の市場競争力と経済効率を重視するとともに、生態系と環境への影響をさらに重視し、限りある自然資源と無限の知的資源の共有、共存と持続的利用を模索すること。周辺社会に対する認識とその改善を重視するとともに、医学と人類の健康に関係する情報科学技術をより重視すること。生産力を決定づける要素として技術を重視するとともに、特にナノテクノロジー、生命科学及び認識科学等との学際的研究において、情報科学による研究的模索をより重視すること。そして、科学と技術の緊密な融合を引き続き重視するとともに、情報技術と人文・芸術分野との融合、

さらには情報技術の倫理道德面での研究と情報技術の社会的影響面における法的管理・監督をより重視することである。

1.2 「狭義の道具論」から「計算的思考」への転換

長い間、コンピュータと情報ネットワークはハイテクな道具と見なされ、情報科学技術も専門性の非常に高い道具を研究する学問としてその立場を確立してきたが、このような社会認識はネガティブな「狭義の道具論」を導きがちである。情報科学技術の普及により、社会全体に「計算的思考」(Computational Thinking) が広まった。これは一種のユビキタス的な思考で、各人の基本技能である。計算的思考ではすべてのことは計算可能であると考える、物理界に始まり人類社会、果ては知的活動まですべてはシミュレーションでき、すべては計算のある種の形式として認識できることを強調する。米国カーネギーメロン大学の周以真 (Jeannette M. Wing) 教授によれば、計算的思考とは概念的思考でありルーティンの思考ではなく、ヒトの思考でありコンピュータの思考ではなく、数学とエンジニアリングが相補的に融合した思考であって純数学的思考ではなく、すべての人を対象とした思考法であり、コンピュータ科学者だけの思考にとどまらない。

1.3 「ヒトと機械の共生」から3次元モデルに基づく新たな情報世界観への転換

現在使われている情報システムの多くは依然として40年余りに前に提起された「人と機械の共生」という思想に基づいているが、今日の情報社会は1人1台で構成され、分業体制が明確な「人と機械の共生」システムとはすでにかけ離れ、複数の人が複数の機械を扱い、複数のモノにより構成される動的・開放的なネットワーク社会となっている。すなわち、物的世界、情報の世界、人類社会により3次元的な世界が構成されており、これが新たな情報世界観を形成している。

この劇的な変化が情報科学に本質的な変化をもたらした。情報科学は人・機械・モノで構成される社会の情

報処理プロセスを研究する必要がある。われわれは次の基本的な問題に答えなければならない。WWW (World Wide Web) はコンピュータシステムと見なすことができるか。WWWの計算可能性とは何か。「モノのインターネット」(モノのインターネット。中国版ユビキタスネットワークのこと) とマッチするコンピュータの命令セットとは何か。人・機械・モノ社会において「計算」はいかに定義されるべきか。それはチューリングマシンに過ぎないのか、等の問題がある。人・機械・モノの3次元的世界における計算問題を研究するには、従来の計算科学に基づく集中的仮説や当初仮説の確定、機械による仮説の再現、精密な結果に基づく仮説のいずれにもブレイクスルーが必要であり、チューリングマシンモデルで突破できなかった概念を変える必要がある。

現在、主流となっているコンピュータ科学の教科書によれば、チューリングマシンでできないことは将来のコンピュータにもできない。実際、チューリングマシンモデルは計算を入力から出力に至るまでの関数と見なし、終わりのない計算には意味がないと考える。しかし、ネットワーク環境においては、計算そのもの(プロセス)は、外界と絶えずインタラクションを取る中で指定された計算ミッションを完了させる。この種のインタラクティブな並列計算に対しては、従来の「関数」に基づく計算理論では太刀打ちできない。実際の並列システムの設計と分析に対し、堅実な理論的基盤をいかに提供していくかが今後数十年間、コンピュータ科学が直面する大きな試練となっている。アルゴリズムの研究の重点は、単一アルゴリズムの設計・分析から複数のアルゴリズムによるインタラクション及びシナジー効果に移るだろう。

1.4 情報科学技術の重点的研究分野の転換

長い間、情報科学技術研究の主な目標は情報機器とシステム性能の向上にあった。ムーアの法則の示した研究方向は主に半導体チップの集積度を引き上げることにによりクロック周波数と性能を高めることにあった。現在、CMOSデバイスのクロック周波数の向上には消費電力の制約があり、メーカーがノルマ以上の利益を追求するた

め、ユーザーに絶えずバージョンアップ製品を購入させるような状況には変化が訪れるだろう。今後、情報技術の発展で主に注力すべき方向は電力消費、コスト及び体積(専有面積)の低減と使いやすさ、効率及び性能の向上である(図1参照)。すなわち、図1の左下から右上の方向に向かうことになろう。

2. 大きなブレイクスルーに直面する情報科学技術

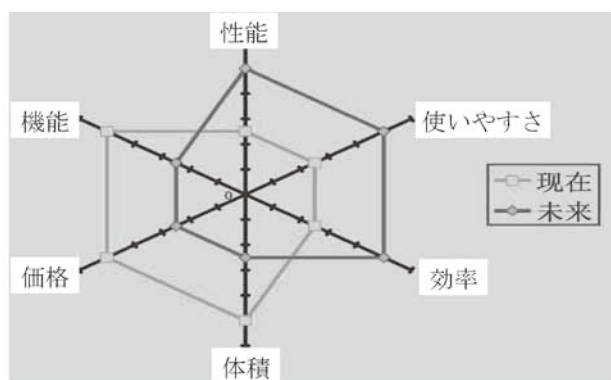
2.1 情報科学技術が直面する新たな革命

これまでの数十年間、情報技術は長らく情報科学の先頭を走ってきた。旧ソ連の経済学者コンドラチェフが主張した経済の長期波動理論に基づけば、21世紀前半に情報科学はブレイクスルー的な発展を見せ、後半には科学のブレイクスルーに基づく新たな情報技術革命が起きるものとわれわれは予測する(図2参照)。

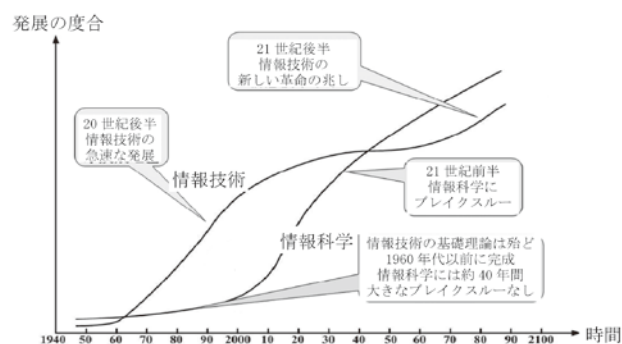
中国科学院情報領域戦略研究グループが1年余りの戦略的研究を経て得た基本的な判断は次のとおり。

- 1) 情報技術は、半世紀間にわたる急速な発展の後、量の拡大と改良だけが主となるような機械や電力技術に代表される従来型の産業技術とは異なり、新たな情報科学革命に直面することになるだろう。21世紀全体を通じて、情報科学と技術はバイオテクノロジー、ナノテクノロジー、認知科学等の技術と融合して活力を発揮し続け、国民経済の発展を下支えまたは牽引し続け、人々の生活様式を変えるだろう。
- 2) 集積回路、高機能コンピュータ、インターネットまたはメモリのいずれも、2020年ごろに既存技術の延長線だけでは越えがたい障害(情報技術の壁)にぶつかるだろう。このことは、重大な科学的問題の発見と原理的なブレイクスルーの可能性をはらんでいる。いわゆる情報技術の壁とは、並列化と拡張可能性における困難、情報処理における高い電力消費、そして複雑な情報システムの安全性に対しては信頼性が低いことにある。

2020年ごろにはムーアの法則はもはや効力を失うだろう。集積回路は現在まさに「ポスト・ムーア時代」に突



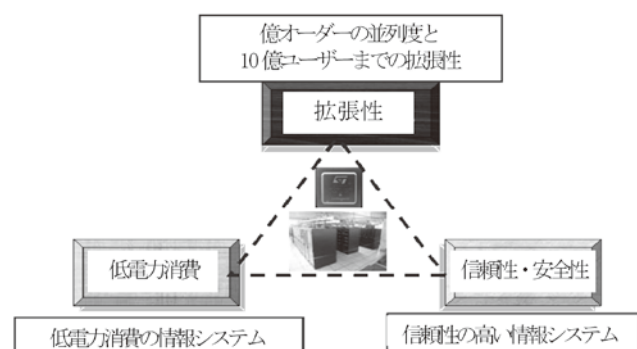
◎図1 情報科学技術の研究方向の変化



◎図2 20～21世紀の情報科学及び技術の発展傾向

入し始めているため、われわれも「Beyond CMOS」からより多くの新しい活路を見いださなければならない。コンピュータも徐々に「ポスト・PC」時代に突入し始めているため、端末装置も「高価で大型で全体を網羅するもの」から「安価で小型で個別化」に向けて転換し、電力消費の低減が主な目標となるだろう。2020年以降は、スーパーコンピュータの「千倍の法則」がもはや効力を失い、既存技術を基盤に改良が加えられるだけとなるため、2030年までにZettaflops級 (10^{21} flops) のコンピュータを造り出すことはできないだろう。「ポストIP」時代への突入は発展において避けられないプロセスであり、TCP/IP プロトコルの限界を真の意味で突破するには15～20年の時間が必要となる。

情報技術は次の3つの面で革命的なブレイクスルーが必要となる。一つ目には拡張性であり、億オーダー、さらには百億オーダー、千億オーダーの並列性にまで拡張でき数十億のユーザーに恩恵が及ぶこと。二つ目には低電力消費性であり、エネルギー効率値(performance-to-power ratio)を数オーダー引き上げる必要がある。そして三つ目には信頼性・安全性であり、自動検知、自動診断、自動修復が可能な信頼性の高いシステム(図3参照)の開発に力を入れなければならない。



◎図3 情報分野で重点的に突破すべき3つの方向性

2.2 10～15年間の戦略的チャンス

上記の分析に基づき、情報分野の科学技術者は2020年までに「情報技術の壁」を攻略する中核的技術を積極的に模索し、情報システムの拡張性、低電力消費、安全性及び使い勝手のよさなどの難題を重点的に解決する必要があるとわれわれは考える。2020年以降にどのような技術が新たな主流となるかは徐々に明らかになるだろう。2020年～2035年は情報技術にとって天地が入れ替わるほどの大変革期となり、2035年～2050年には科学的発展観に見合う新たな情報ネットワークシステムが徐々に形成されるだろう。

このような結論はわれわれに重要な啓示をもたらす。すなわち、歴史がわれわれに与えたまたとないチャンス

は、今からたった10～15年しかない。この15年を逃すと、わが国では21世紀前半までの情報産業大国化の実現は難しくなり、近代化の道筋にも不利な影響をもたらすだろう。

3. U社会とネットワーク科学技術の発展

3.1 「どこでも、誰でも恩恵が受けられる情報ネットワークシステム」の構築

わが国の2010年～2050年までの情報科学技術発展の全体目標は、情報技術の飛躍的变化というチャンスをつかみ、自主イノベーションと持続可能な発展能力を向上させ、国全体の情報社会化を実現すること、ならびに殆どの中国人が情報ユーザーとなり、情報を中国経済と社会の発展における最も重要な資源とし、社会全体の情報化レベルを海外の先進国に近づけることである。

情報社会の発展は大きくe社会とu社会の2つの段階に分けられる。e社会は情報社会の低次段階であり、u社会は高次段階である。2020年までに、わが国は情報社会の実現に向けて確固たる基盤を固める必要があり、これをe社会と言う。2020年以降の目標はu社会への移行である。Uには3つの意味がある。一つ目はUniversal、すなわち全国民に普及し、恩恵を与えることであり、二つ目はUser-Oriented及びUser-Centric、すなわちユーザー志向またはユーザー中心という考え方で、三つ目はUbiquitous、すなわちどこでもネットワーク通信及びサービスを受けられることである。

これからの数十年間、わが国の情報科学技術の発展における全体目標とミッションは「どこでも、誰でも恩恵が受けられる情報ネットワークシステム」の構築にあり、その略称はU-INSシステム(Universal, User-oriented, Ubiquitous Information Network Systems)である。U-INSシステムには次の6つの内容がある。すなわち、(1)革命的な情報機器及びシステムを持つこと、(2)一般民衆向けで、すべての人に恩恵を与えるネットワークシステムであること、(3)安全で信頼性が高く、個別化したネットワークサービス技術であること、(4)産業のレベルアップとデジタル知識産業の発展の下支え、(5)ネットワーク科学及び新たな情報科学、(6)国と社会情報ネットワークの安全システムである。以上の体系は、21世紀前半にわが国が全面的に情報社会化する上で重要な戦略的需要を示すもので、情報分野で重点的に発展させるべき科学技術をも含んでいる。わが国は今後40年間、すべての人に恩恵を与え、ユーザーを中心とし、いつでもどこでもサービスが受けられる情報ネットワークシステムに強く注目し、積極的に発展させる。

3.2 21世紀におけるネットワーク科学技術の革新

20世紀のシステム理論、情報理論及びサイバネティックスの発展を受け継ぎ、21世紀には新たなネットワーク理論(Net Theory)が打ち出された。この理論はネット

ワーク全体を一つの複雑かつ巨大なシステムと見なしてその法則を見出すことで、ネットワークの発展と普及に計り知れない影響をもたらすだろう。インターネットを設計した人物は歴史上に存在するわけではなく、Internetは自ら進化して出現（emerge）したものである。今後、ネットワークは必ずやネットワークに対する深い理解の上に構築される必要がある。そのためには、ネットワークのプロトコル層を理解する必要があるだけでなく、ネットワークの動力学的挙動や制御性、安全性、ロバスト性及び進化の法則も理解する必要がある。

現時点で、ネットワーク分野での引用率が最も高い論文6本のうち4本はScience、Nature及びReviews of Modern Physics誌に掲載されており、いずれもネットワーク分野の学術誌ではない。有名なScale Free ModelはInternetの実際の状況にまったく適合しない。真のネットワーク科学を発展させるには、Network Science Community 及び Network Research Communityで互いに交流するしかネットワークに対する正確な認識を得る方法はない。ネットワーク科学は人・機械・モノという3次元的世界におけるネットワーク共生の法則を研究し、モデルと計算理論を表現する新興分野であり、経済、社会などの情報科学と関連性のある分野が直面する科学的問題をカバーする。ネットワーク科学は、ネットワーク情報理論の新たな概念及び新たな理論体系の発展を打ち出すだろう。

FIND (Future Internet Design) 計画はアメリカ国立科学財団 (NSF) ネットワーク技術及びシステム研究計画 (NeTS Research Program) における長期研究に関する新たな提案である。FINDは15年後の世界のネットワークの需要はいかなるものかを検討するために学術界を招請し、ネットワークの現状という制限を離れて普遍的な心理で未来を構想することを求め、主に次の5つの問題に注力することとした。

- ネットワークにパケット交換を採用し続けることの是非
- エンドツーエンド原理の変更の是非（エンドツーエンド原理の提唱者、Clark 教授は2009年の第1回 FINDワーキングミーティングで、E2E原理をtrust-to-trust原理に改めることを提案した。すなわち、適応するインテリ機能は必ずしも端末にではなく、任務を全うできることが十分に信頼できる装置におけばよいとする考え方である。）
- ルーターとパケット転送を分けることの是非
- 輻輳制御と資源管理の問題
- ユーザー識別とルーターの問題

これらの内容はインターネットの根本原則に関係する。FINDプロジェクトの研究内容はわれわれに深い啓発を与える。すなわち、情報分野の科学研究は現行プラットフォームの補修にとどまらずに果敢に挑戦し、革命的

な技術によるモデルチェンジを検討しなければならない。

FINDの設計は他のエンジニアリングデザインと異なり、具体的なターゲットのある人工物の設計と違って環境の設計であり、われわれの希望を引き出すようなネットワーク製品及びサービスである必要がある。このため、われわれはまだ予測されていない、今後変化する新たな理論に順応する必要がある。

3.3 ユビキタスなセンサネットワークと「モノのインターネット」

センサネットワークはデジタル世界と物的世界の架け橋であり、物的世界における情報収集と処理を主に実現するものをサイバーフィジカルシステム (Cyber Physical System, CPS) または「モノのインターネット」という。これはデジタル世界と物的世界の相互ネットワークシステムであり、主な機能は監視と制御である。センサネットワークとサイバーフィジカルシステム研究の重なり合う部分は大きいが重点は異なる。前者の重点はセンシングとネットワークにあり、後者は計算と制御に重きをおき、いずれも将来のユビキタスネットワークにおける重要な要素である。センサネットワークとモノのインターネットは典型的な学際研究分野であり、通信、工学、マイクロマシン、化学、生物学など様々な分野と関係する。

東京大学の坂村健教授が語るように、携帯電話を自然界の魚類（約3万種）に例え、PCを魚類より高等な各種生物（約2万種）に例えるなら、モノのインターネットの端末（RFIDラベルが貼られている各種製品を含む）は自然界の昆虫（約100万種）に例えられる。モノのインターネットの端末：携帯電話：PCの比率は100:3:2である。モノのインターネットの普及はインターネットに接続する端末の数を100倍にまで増やす。しかし、指摘すべきは携帯電話網やPC網ほどの巨大かつ統一的なモノのインターネットは今後も登場することではなく、各種の応用的なモノのインターネットは規模のあまり大きくないネットワークに過ぎず、各種センサまたはRFIDはNiche Marketに過ぎないだろうが、すべてを合計すると規模は巨大になる。このため、モノのインターネットの発展には、携帯電話やPCを発展させた際と異なる考え方が必要である。

大量の組み込み装置やセンサが情報システムに導入されるにつれ、ユーザー端末における各センサの設置台数は数万個もの多さに達した。これら組み込み装置やセンサが発信する大量の情報を保存し、検索し、照合し、取りまとめ、分析することは、21世紀の情報分野における新たな挑戦となろう。わが国はセンサ、電波方式認識 (RFID)、センサネットワークの応用などの面で海外の先進レベルと大きな差があるため、センサネットワークとモノのインターネットの中核技術で早期にブレイクスルーを果たし、技術標準においてさらなる発言権を勝ち取らなければならない。

3.4 クラウドコンピューティングの登場の歴史的必然性

情報技術分野はマクロ的には長周期の現象を示しており、すなわち15～20年ごとに計算モデルの主流が集中と分散の間で交代する現象が現れる。この種の現象は三国演義の「合して久しければ必ず分かれ、分かれて久しければ必ず合す」にちなんで「三国の法則」と呼ばれる。現在、相当程度分散している情報センターの状態は、前世紀初頭に米国で電気産業がはじまったころの状態と酷似し、情報ネットワークは電力ネットワークと同様に、分散－集中－分散という螺旋式の変遷プロセスを経なければならないようだ。

クラウドコンピューティングは「三国の法則」と呼ばれるマクロ法則と合致する、一定の必然性のあるネットワークコンピューティングの新たな段階である。集中と分散の双方を含み、主なモデルは集中的公共サービスである。将来的には「集中→分散」への転換の可能性もある。なかには「クラウドコンピューティングはソフトウェアのメインフレームである」と言う専門家もいる。クラウドコンピューティングもまた、情報社会に向けてわが国が必ず通るべき段階の一つである。クラウドコンピューティングはユーザーの要求とソフトウェアのサービスへの転換という発展の方向性に適合するもので、情報システム集合の趨勢を体現している。

クラウドコンピューティングが「ホット」になった理由は次の三つである。一つ目はインターネットの普及である。例えば、ブロードバンドの保証という面で見れば、帯域がより広くなったばかりでなく24時間切断されない接続が保証された点にある。二つ目はメモリコストの急速な低下であり、三つ目は、インターネットが人々の伝統的な思考習慣を変化させたことである。例えば、人々はネット上の有料購読サービスに徐々に慣れてきている。しかし、クラウドコンピューティングが「ホット」になった真の牽引役はニーズである。ユーザーはサーバーやメモリを購入する必要がないばかりかデータセンターを構築する必要もなく、使用量に基づき費用を支払えばよいだけで、使いたいだけ使えると言うこれらの長所は、ユーザーにとって相当な魅力であることは疑いようがない。分散処理技術と仮想化技術の進歩はクラウドコンピューティングの重要な推進力であり、特にVMwareに代表される仮想化技術のサプライヤーたちの強力な後押しでx86プラットフォームの仮想化技術は徐々に成熟して普及し、データセンターの統合を時間や労力のかからないものとしたこともクラウドコンピューティング・プラットフォームの構築に良い条件となった。

クラウドコンピューティングは今や最もホットな話題となっており、その鍵は資源の集中と仮想化技術にあることは重視しなければならない。クラウドコンピューティングは国の情報インフラにかかわる基本的な安全問題であり軽視してはならない。自主的にコントロール可能な

クラウドコンピューティング・センターを構築する必要がある。ネットワーク情報技術の長期的発展目標は真の意味でユーザーを中心にすることであり、サービスプロバイダを中心におくことではないはずだ。形を変えたClient-Server構造や仮想のMainframe構造は理想的な構造とはならないだろう。情報はエネルギーとは異なり無限に共有しても量が減らないことを根本性質とするため、理想的な情報サービスモデルは電力とは異なるかもしれない。このため、われわれは情報の本質に見合う法則と、真の意味でユーザーを中心にすえたネットワーク体系を模索する必要がある。

4. わが国の情報分野の戦略的方向性である飛躍的発展

4.1 人々の戦略的方向性により決定づけられるハイテクの進歩

より全面的な視点から技術革新を認識すれば、技術の進歩は人々の戦略的方向性によりかなりの程度決定づけられることがわかるだろう。技術が真の意味で成就するために唯一有効な方法とは、システム全体の技術基盤を変更することである。これは人の側の問題で技術的問題ではなく、人間でなければ解決できない。これは間違いなく大きなチャレンジであり、科学技術の形式及びその効果を根本的に振り返ることで、より民主的・平等・人道的で、より創造性を持って社会と調和する現実的な路線を構築することが求められている。新技術の広まりは自発的な市場行動ではなく、人々の戦略的方向性により決まる。技術は問題点でも解決の道筋でもなく、真の問題は政治、道徳と文化にある。技術革新の主な原動力は経済と社会発展からくるニーズであり、現実から離れたいわゆる新技術は往々にしてバブルとなる。

4.2 国力にふさわしい貢献

オランダGroningen大学の有名な経済学の教授A. Maddisonは次のように予測する。すなわち、国際的に流行している購買力平価説（PPP）に基づき計算すると、中国の経済規模は2015年には米国を上回ってその107%となり、2030年には米国比138%となり世界のGDPの23%を占める。

中国科学院の穆荣平研究員の提唱する工業化とGDPの関係（表1参照）によれば、わが国の先進地域はすでに技術創造を主とする段階に突入している。実際、EIC（エコノミスト・インテリジェンス・ユニット）が「エコノミスト」誌に掲載したIT産業競争力ランキングでわが国は明らかな進歩を見せており、2009年は39位であった。しかし、R&D環境とITインフラの得点は依然として低かった。今後は、情報分野で国力にふさわしい革新的な貢献を勝ち取るために努力し、科学技術ナショナルチームは「天地が入れ替わるほどの」研究成果を上げるよう尽力する必要がある。

工業化レベル	第一段階	第二段階	第三段階
経済指標： 1人あたりGDP	<300米ドル	300-4750 米ドル	>4750米ドル
技術指標： GERD/GDP	<1%	1-2%	>2%
技術革新の段階	主に技術使用	主に技術改良	主に技術革新

◎表1 工業化レベルとGDPとの関係

4.3 下支え役と牽引役の「双方」から固めることの必要性

中国の2006年～2020年までの科学技術発展計画綱要で掲げられた2つの最重要目標とは、経済に対する科学技術の貢献率を60%まで引き上げ、技術の海外依存度を30%まで引き下げることである。すなわち、科学技術の貢献率を毎年少なくとも1～2%引き上げ、海外依存度を毎年少なくとも1%引き下げる必要がある。これは中国の科学技術発展大綱で定められたものだが、国務院発展研究センターの統計によれば、わが国の2002-2006年の第二次産業に対する科学技術の進歩による貢献率は1990年代の37.8%から10%まで下がった（投資貢献率が82%を占めた）。国際的な金融危機に対応するべく、近年、国はインフラ建設に対する投資を強化しているため、全要素貢献率（すなわち科学技術の貢献率）向上の難しさはさらに拡大している。

国の中長期的な科学技術発展計画大綱では科学技術の発展に関する方針を16文字で定めている。すなわち「自主创新、重点跨越、支撑发展、引领未来」（自主创新し、飛躍に重点をおき、発展を下支えし、未来を牽引する）である。しかし、実際には多くの研究者は発展の下支えのみを重視し、飛躍的發展や将来性への牽引役を軽視しがちである。今後10年間はこの傾向を正して下支えと牽引の「双方」から固めていく必要がある。

改革開放から30年来の情報科学技術の発展の歴史を振り返ると、科学技術界は追随・模倣という思考様式から脱却しておらず、自主的にコントロールできる基礎的な情報技術のプラットフォームをこの30年間確立していない。われわれは技術革新のさまざまなモデルを統一的に計画し、技術革新のレベルを高め続けなければならない。

4.4 真なる自主革新、科学発展への道

今後10年間は中国の情報企業が遅れを取り戻す良い時期である。チップ、コンピュータ、ネットワークから情報サービスシステムに至るまで、今後10年で中国は新たな道を切り開き、自主的な情報技術体制を確立するだけの实力がある。中国のネットワークサービス体制は中国独自の問題をターゲットとする必要がある。現在、われわれが直面する最大の問題は情報化と工業化の融合であり、経済構造の転換とレベルアップである。

開放を原則に自主的にコントロール可能な情報技術の基礎プラットフォームを構築することは「ユートピア」的な空想であると多くの人は考えるが、実現できるか否

かの鍵は技術ではなく、政治家の決意と牽引役の熱意や根気による。科学技術の競争はすでに白熱しているため、われわれは可能な限り自らの研究環境を改善し、科学技術への投資を可能な限り拡大する必要がある。中国特有の自主革新の魂は、刻苦奮闘する努力の精神と強者に打ち勝つ革命意識にあり、これが鍵となるだろう。

5. 結論

21世紀前半の情報科学技術は新たな革命を迎えるだろうが、わが国の科学技術界に与えられた貴重なチャンスの期間はあと10～15年しかない。今後15年の間に、わが国の情報分野の研究者は思想をより解放して考え方を換え、「情報技術の壁」を攻略する決意を固め、中核技術をつかんで飛躍的な発展を実現し、経済と科学技術の発展における未来の高地を奪取し、わが国の経済をイノベーションに牽引された内需主導の成長軌道に乗せる必要がある。

ナノ材料科学

ナノ系難燃高分子材料：現状、問題及び展望

•Profile•



方 征平 Fang Zhengping ●浙江大学寧波理工学院高分子材料・工程研究所所長、教授

浙江省プラスチック・エンジニアリング学会理事長、中国プラスチック加工工業協会・エンジニアリングプラスチック専門委員会副理事長。1963年9月生まれ。1979年、復旦大学化学系に勤務。1986年、復旦大学材料科学研究所（修士号取得）、杭州大学化学系で教職。1997年、教授に昇進。1998年、浙江大学高分子複合材料研究所に勤務、長く所長を務める。2008年、浙江大学寧波理工学院高分子材料・工程研究所に勤務。多成分・多相高分子材料の構造と性能、高分子材料の混合及び複合による改質、高分子ナノ材料の研究に長く従事。学術論文200本以上を発表、うちSCIに130本以上収録。H指数は17。教材、専門書4冊を出版。発明特許10件。

ナノ系難燃高分子複合材料はナノ材料の重要な分枝であり、1976年にナノ系粘土による難燃性ナイロンの初めての特許が発表されて以来、ナノ系難燃技術は急速に発展し、特に1990年代以降、ナノ系難燃技術は難燃分野の研究で重要な関心事となっている。ナノ技術のたゆみない発展に伴い、次々に新しいナノ系難燃システムが登場し、かつ急速に発展している。従来型の難燃剤に比べ、ナノ系難燃システムの最も顕著な特徴は極めて少量（5%未満）のナノ系難燃剤を添加するだけで材料の燃焼性能を明らかに低減できるうえ、材料の機械特性も向上する点にある。一般の難燃剤は添加すると材料の力学的強度に大きく影響する点と異なる。

ナノ系難燃剤は次元により3種類に分けられる。すなわち、① 一次元ナノ材料：カーボンナノチューブ（Carbon Nanotubes）及び各種ウィスカー。例えば、マグネシウム塩及び硫酸カルシウム・ウィスカー等。② 二次元ナノ材料：層状粘土。例えば、モンモリロナイト（Montmorillonite, MMT）、カオリン（Kaolinite）、酸化黒鉛、層状複水酸化物（Layered Doubled Hydroxides, LDH）等。③ ゼロ次元ナノ材料：ナノ水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、二酸化チタン、二酸化ケイ素、多面体オリゴマーシルセスキオキサン（Polyhedral Oligomeric Silsesquioxanes, POSS）、フラーレン（C₆₀）等である。

1. 層状ケイ酸塩ナノ系難燃システム

1980年代、日本のトヨタ社の実験室が最初にナイロン6/層状粘土ナノ複合材料を合成し、極めて少量の粘土を加えるだけで材料の熱安定性能と力学性能が顕著に向上することを発見した。その後、ポリマー/層状ケイ酸塩ナノ複合材料（PLSN）が工業界及び研究界から高く注目されるようになった。1990年代、Giannelisら是有機溶剤を必要とせず、熔融ブレンドの方法でもPLSNが調製できることを発見した。これにより各種ポリマーナノ複合材料の調製、特性、メカニズムの検討とモデルの構築、そして自動車工業や難燃材料等の分野への応用研究が盛んになった。

1976年、日本人研究者Fujiwara及びSakamotoらは、ナイロン-6のナノ複合材料の特許出願書類で初めてPLSNは難燃性能の分野で実用的潜在力があることを報告した。しかし、1990年代になって、アメリカ国立標準技術研究所（National Institute of Standards and Technology, NIST）が先頭に立ち、初めてPLSNの燃焼挙動について系統的に研究するまで、PLSNの難燃性能に関する系統的な研究は行われなかった。彼らは、PLSNはポリマーの燃焼性低下の面で他の追随を許さないことを発見した。粘土の高分子における実用により発展したPLSN材料は、難燃高分子材料に新たな道筋を切り開いたことから、次世代の高性能難燃高分子材料となる可能性があり、Gilmanらが難燃技術の革命の一翼を担った。

PLSNの調製方法はたくさんあるが、現在汎用されている方法は主に層間複合法（intercalation compounding）である。複合のプロセスにより、この方法は層間重合法（intercalation polymerization）とポリマー層間法（polymer intercalation）の2種類に分類される。前者はモノマーで分散させ、層間に層状ケイ酸塩ラメラを挿入して層間でin situ重合を行い、かつ、ケイ酸塩ラメラを層間挿入又は剥離させてラメラとポリマー基体のナノスケールでの複合を実現する。後者はポリマー容体又は溶液と層状ケイ酸塩の混合によりケイ酸塩をナノレベルのラメラに剥離し、かつポリマー基体中に均一に分散させる。調製されたPLSNには2種類の構造があり、一つは層間型（intercalated）でもう一つは剥離型（exfoliated）である。層間型は異方性材料となるが、剥離型には一般的に顕著な強化作用がある。ポリマー容体の層間挿入は、ポリマーがその軟化温度を上回る環境下で剪断力の作用によって層間に直接挿入されることによりケイ酸塩ラメラの中間に挿入されるもので、プロセスが簡単のため、広く実用されている。

ナノ系難燃技術がナイロンで成功をおさめた後、PLSNは他のポリマーシステムに急速に拡大した。ナイロンのほか、ポリプロピレン（PP）、ポリスチレン（PS）、ポリエチレン（PE）、エチレン-酢酸ビニルコポリマー（EVA）、ゴム類、ポリメタクリル酸メチル（PMMA）、ポリエステ

ル、ポリウレタン (PU)、エポキシ樹脂 (EP) 等のポリマー及びその合金/粘土ナノ複合材料のいずれの難燃性能とも多数の関連事例がある。現時点で、すでに多くのポリマー/層状ケイ酸塩ナノ複合材料の難燃性能分野に関する要約及び専門書が存在する。現在、PLSNに関する研究は主にナノ材料の調製方法、ミクロ構造、有機層間剤の処理、残留炭素構造の分析等、材料の難燃性能に対する影響に集中している。世界でもこの分野で大きな影響力を持つ研究グループが多数登場しつつあり、これにはアメリカ国立標準技術研究所 (NIST) のGilman及びKashiwagiや、Marquette大学のWilkie、ニューヨーク工科大学のLewin、フランスのBourbigot、ベルギーのBayer、イタリアのCamino及びZanetti、カナダのUtracki、中国科学技術大学の胡源教授、北京理工大学の王建祺教授らが率いる研究グループがある。

このうち、Wilkieの研究グループはスチレンを含むポリマー型又はオリゴマー型のさまざまな層間剤を合成し、剥離型のPS、PE及びPPナノ複合材料の調製に使用した。研究の結果、PS以外なら剥離型複合材料を調整できるほか、PE及びPPは基本的に層間型の複合材料しか得られず、モンモリロナイト含量が5wt%の時、PSの熱発生速度ピーク値 (PHRR) は約40%減少すると同時に、さまざまな層間剤により処理されたモンモリロナイトはPPの難燃性能に大きな影響を及ぼすことが分かった。例えば、20wt%のMAPS-clayを添加するとPHRRを約60%減少させられる一方、含量が同等のLauryl-モンモリロナイトでは約40%しか減少させられなかった。しかし、粘土含量の増加につれ、複合材料の引張強さ等の力学性能に漸減の傾向が見られた。

北京理工大学の王建琪らはX-放射線光電子分光法を採用してポリマー粘土複合材料の熱処理及び燃焼挙動を研究した結果、ナノ複合材料中の粘土が高温下で分解し、形成された酸化ケイ素のグループは表面遷移すると表面のケイ素、酸素原子が富化され、炭素原子の相対濃度が低下して遮断層を形成し、後にポリマー表面と外界熱源間の熱伝導を遮断することで材料の燃焼プロセスを緩和し、材料の難燃性能を向上させることがわかった。

また、中国科学院長春応用科学研究所の唐涛らもPLSNの触媒難燃システムについて系統的な研究を行った結果、PP/clayナノ複合材料中に少量のニッケル触媒剤を加えると複合材料の難燃性能を大幅に向上できるのみならず、PPをコストパフォーマンスの高いカーボンナノチューブに変換させられることを発見し、ナノ触媒による難燃に新たな考え方を切り開いた。また、さらに分析したところ、モンモリロナイトは2種類の作用を果たすことが分かった。一つ目は熱分解を受けて固体酸 (プロトン酸) を酸性化すること、二つ目はPP分解産物の拡散阻止であり、これによりニッケル触媒剤が触媒としてPP基体の分解産物をカーボンナノチューブに変換する助けになる。

これを基盤に、分子篩 (HZSM-5及びH-beta等) によりモンモリロナイトをニッケル触媒剤と置換してポリプロピレン複合材料を複合・調製したところ、分子篩の存在により、ニッケル触媒剤の触媒作用によるPP分解産物としてのカーボンナノチューブの生成に必要とされる固体酸が提供されるだけでなく、少量の分子篩とニッケル触媒剤がPPのPHRR (60 %~70 %) を大幅に低減させ、ポリマーの難燃性能を顕著に引き上げることを発見した。

PLSNの難燃性能は主にPHRRの大幅な低下、炭素層構造の緻密化・硬化、炭素生成量の増加、質量損失率の減少等に現れる。

われわれ浙江大学の方征平が率いる研究グループは、多相・多成分ポリマーにおける、ナノ粘土と従来型難燃剤との相乗効果による難燃作用について大量の研究を行った。その結果、溶融ブレンドプロセスにおいて、ナノ粘土は基体ポリマー及び高分子難燃剤 (臭素化エポキシ樹脂BER及び合成された新型・膨脹型高分子難燃剤PDSPB) との間で優先的な層間挿入の挙動が存在し、ABS樹脂及びこれら高分子難燃剤との共存情况下で、モンモリロナイトは高分子難燃剤と優先的に層間挿入され、かつモンモリロナイトがABS樹脂中で形成する層間構造に対応し、ABS、高分子難燃剤、モンモリロナイトの三元難燃システム中で剥離型構造を形成した。この種の挙動はシステムの難燃効果に顕著な影響を及ぼす。PDSPBと有機モンモリロナイトのABS樹脂に対する相乗効果による難燃効果は明らかである。システム熱安定性を向上させると同時に、残留炭素量を明らかに増加させる。両者の相乗効果は、燃焼プロセスにおけるシステムの熱発生速度をさらに低下させるだけでなく、材料の燃焼プロセスにおける総放熱量、平均質量損失率、平均煙密度等の難燃性パラメータを著しく改善した。ABS/PDSPB/OMT難燃システムは熱分解プロセスにおいて、モンモリロナイトの分解により産生した $Al_2O_3 \cdot SiO_2$ は、PDSPBにより産生されたリン酸との相乗効果によりsilicoaluminophosphates (SAPO) を生成し、これによりシステムの抗酸化性を一層向上させた。モンモリロナイト層間の有機層間剤による熱分解では更にプロトン酸が生成され、システムの触媒架橋による炭素生成プロセスをさらに促進した。このことから、ナノ粘土と難燃剤の相乗効果は非常に複雑な物理的、化学的プロセスであることがわかる。ナノ粘土は、一般的に極性の高い難燃剤に優先的に層間挿入して剥離されたラメラ構造を形成する。この研究結果は、極性の弱いポリマー (PP、PE等) /ナノ粘土の難燃システムの構築に斬新な考え方を提供した。

2. カーボンナノチューブ難燃システム

1991年にカーボンナノチューブ (Carbon nanotubes, CNTs) がIijimaにより発見されて以来、CNTsはその特有の力学、電気学、磁気学、光学及び熱学的性質により、

物理、化学、機能性材料、ナノ電子機器、生物学等の分野で広く実用の可能性が期待されてきた。CNTsには一層又は多層のグラファイトコイルにより形成された中空の筒形構造があり、構造中の大部分の炭素原子にはsp²混成が採用され、少量のsp³混成を混合している。カーボンナノチューブは基本的に極性を持たないため、熱可塑性ポリマー、特にPP、PE等と良好な相容性があり、このことにより新世代のクリーン型・ハロゲンフリー、低煙、高性能なポリマー難燃材料に新たな道筋を提供した。

ポリマー/カーボンナノチューブナノ複合システムの難燃性能は2002年に初めて報告された。KashiwagiらはPP/CNTナノ複合材料の難燃性能を研究したところ、カーボンナノチューブで有機改質層状ケイ酸塩を置換した後に2つの顕著な長所が現れることを見出した。すなわち、(1)分散が容易である。有機化処理の必要がない。(2) PP-g-MAH等の相溶化剤を必要としない。そのうえ、カーボンナノチューブにわずか0.5%添加した時さえも材料の熱発生速度及び質量損失率を大幅に引き下げた。有機粘土の添加はシステムの点火時間を低下させたのに比べ、ポリマー/カーボンナノチューブ複合システムの点火時間は基本的に不変であった。われわれはABS/MWNTシステムでも類似の現象を見出したため、カーボンナノチューブはPP/粘土複合システムに比べ、難燃分野において効果的であることが分かった。その後、ポリマー/カーボンナノチューブ難燃システムに関する報告が次々になされ、単層カーボンナノチューブは多層カーボンナノチューブに比べて難燃分野で効果があることが分かった。

ほとんど同じ時期に、BayerらはEVA/CNT/clay三元難燃システムを調製した結果、カーボンナノチューブは層状ケイ酸塩との間に相乗的な難燃効果があり、カーボンナノチューブと有機化粘土が同時に存在するときに、炭素層表面の割れ目密度が最も小さく、かつ、熱発生速度ピーク値がより低いことが分かった。Duboisらはカーボンナノチューブの平均サイズのEVA難燃性能に対する影響を研究した結果、ボールミル後のCNTsは材料の引火時間を倍近く延長した。Duboisらは、ボールミルはCNTsの長さを短縮すると同時に、CNTs表面にフリーラジカルを産生させて点火時間を延長したものと考えた。

浙江大学の方征平が率いる研究グループは、カーボンナノチューブと有機化モンモリロナイトの配合により、難燃ABS樹脂中の難燃剤間に存在する相乗効果について検討した。両者が単独に存在する難燃システムと比べ、カーボンナノチューブと粘土の同時存在はポリマーに優れた熱安定性能を与えるだけでなく、燃焼により形成された炭素層の致密化レベルの向上により難燃性能をさらに優れたものにした。研究の結果、有機モンモリロナイト(OMT)と多層カーボンナノチューブの同時存在によりモンモリロナイトのABS基体中の分散が改善でき、MWNTsはOMT層間に挿入でき、層間距離を拡大させて

層間/剥離型構造へと変化させることができた。その上、OMTとMWNTsの同時存在はシステム残留炭素のグラファイト化レベルを促進できるため、システムの抗酸化能力及び難燃能力を一層強化できた。

この研究グループは更に合成した膨張型難燃剤PDSPB及びPDMBPSについて、化学的方法によりカーボンナノチューブ表面にグラフトしてMWNT-PDSPB及びMWNT-PDMBPSを得た。MWNT-PDSPBはPDSPBをシェルとし、カーボンナノチューブをコアとする典型的なコア-シェル構造である。グラフト後のMWNT-PDSPBはDMF等の溶剤中で良好な溶解能力及び分散性を有し、かつ、熱を受けた際も良好な熱安定性及び炭素生成能力があった。ABSナノ系難燃システム中でカーボンナノチューブの分散は顕著に改善され、MWNT-PDSPBは含量が0.2%の際にシステム内で効果的なネットワーク構造を構築できただけでなく、もともとのMWNT含量が1%で初めて実現しうる難燃効果を得ることができた。その上、改質後のカーボンナノチューブはポリマー中での分散が良好で、かつ、ポリマーと強い界面作用があり、システムの力学性も同時に向上された。膨張型難燃剤PDMBPSもPP基体中で同様の難燃効果を示した。

フラーレン難燃システム

Krusicは1991年、フラーレン(C₆₀)の極めて高いフリーラジカルの捕捉能力について初めて報告した。C₆₀分子1つで少なくとも34個のフリーラジカルを捕捉できたため、「ラジカルスポンジ」と呼ばれた。ポリオレフィンの分解及び燃焼は、一般的にはフリーラジカル結合のβ-scission方式により行われたため、C₆₀分子のフリーラジカルに対する高い親和性及びポリオレフィンの分解燃焼特性を考慮すれば、C₆₀はPPの熱性能及び燃焼性能に非常に大きな影響を及ぼすことは想像に難くない。

浙江大学の方征平が率いる研究グループは、C₆₀のPP中での分散及びC₆₀のPPに対する熱性能及び難燃性能の影響について、他に先んじて研究した。また、C₆₀がPPの熱性能及び難燃性能を向上させる作用メカニズムについて深く検討した。その結果、C₆₀は極めて低い添加量でもPPの熱安定性を向上させることができ、かつ、PPの熱酸化分解温度を大幅に引き上げ、PPの熱性能向上の面ではカーボンナノチューブ及びナノ粘土さえも上回る。C₆₀は極めて低い添加量でPPの点火時間を延長でき、PP燃焼による熱発生速度ピーク値(PHRR)大幅に低下させた。1.0 wt%の添加量ではPHRR値は42%減少した。研究の結果、C₆₀がPPの熱性能及び難燃性能を向上させるメカニズムは、主にC₆₀のフリーラジカルに対する高い活性、すなわちフリーラジカル捕捉メカニズム及び高温下で架橋網状構造を構築可能であることによる。

さらに、合成した膨張型難燃剤(PDBPP)を化学的に修飾したC₆₀から得たC₆₀-d-PDBPPのグラフト率は70%に達し、C₆₀とPDBPPの間には顕著な相乗難燃効果があるこ

とを示した。PDBPPのC₆₀に対する化学的改質により、C₆₀のPP基体中における分散が増加しただけでなく、システムの熱安定性が向上され、かつ、システムの燃焼速度及び熱発生速度が明らかに低下した。

カーボンナノチューブとC₆₀はポリマー難燃分野でそれぞれ長所があるため、当該研究グループは3段階の化学的グラフト法によりC₆₀をカーボンナノチューブの表面に修飾したところ、カーボンナノチューブの有機溶剤中での溶解性を向上させただけでなく、ナノ複合材料の熱発生速度をさらに低下させることができた。これは、カーボンナノチューブのネットワーク構造の遮断効果とC₆₀によるフリーラジカル捕捉との間の相乗効果による。

3. その他のナノ系難燃システム

上述のナノ系難燃剤のほか、難燃ポリマーに使用できるナノ粒子には多面体オリゴマーシルセスキオキサン(POSS)、層状複水酸化物(LDH)、 α -硫酸ジルコニウム等がある。

多面体オリゴマーシルセスキオキサン(POSS)は新型難燃剤として近年すでに報告されている。POSSは一般に優れた熱安定性を有し、なかでもオクタメチルシルセスキオキサン(T8)は熱分解後に二酸化ケイ素となるため、優れた耐熱性を有する。CaminoらはPP/POSSナノシステムの難燃性能を研究した結果、Al基POSSだけがPPに良好な難燃性能を示す一方、純POSS及びZn基POSSには難燃効果がないことがわかった。POSSの難燃メカニズムは、POSSが難燃材料として燃焼する際にPOSSはポリマー表面に徐々に移行して一種のセラミック層を形成し、このセラミック層は外界の酸素と熱量を隔離して伝熱ポリマーに拡散することで下層のポリマー基体を効果的に保護するものと一般的に考えられている。POSS高分子モノマーはポリマーのプレポリマーとなりうるため、固化後に特定の機能を持つ高分子材料を得られるほか、共重合、グラフト等の反応により高分子の側結合又は主結合を取り入れ、シルセスキオキサンが改質されて出来た高分子材料を得られることから、POSSと他の難燃剤の組み合わせは、難燃分野で幅広い将来性があることが分かる。

現在、ポリマー/層状複水酸化物及びポリマー/ α -硫酸ジルコニウムナノ系難燃システムに関する研究も行われ始めており、層状複水酸化物(LDH)のポリマーに対する難燃作用は粘土と類似する。しかし、層状ケイ酸塩に比べ、LDHは α -ZrP層間との電荷密度が高く、層と層の間の相互作用が強いため、ナノ複合材料とらしくない。このため、さらなる研究が待たれる。

4. 問題の存在及び展望

ナノ系難燃技術は1990年代以降、基礎研究及び製品開発のいずれも顕著な進歩を遂げているが、ナノ系難燃ポリマーの研究が広く実用されるには、なお長期かつ複雑

なプロセスを要する。現在、ナノ系難燃ポリマーシステムに関する研究には依然として多くの解決又は改善を要する問題が存在する。

- (1) 現在、粘土の有機層間剤は依然として燃えやすい長鎖アルキルアンモニウム塩が主であり、難燃性能の向上を目的とする有機層間剤が欠乏している。その上、アルキルアンモニウム塩は燃えやすいだけでなく熱安定性も低いため、温度が高いと分解されやすく、燃焼時の点火時間が短縮され、加工温度が高い工程でのプラスチックへの実用に適さない。このため、難燃機能を有する有機層間剤を設計・合成して粘土を処理することは、難燃PLSNの重要な方向性の一つである。
- (2) 現在、ナノ系難燃メカニズムには依然として系統的な説明が存在しない。粘土システム遮断層メカニズム、フリーラジカル捕捉メカニズム及びカーボンナノチューブシステムのネットワーク構造に関する大まかな説明のほか、ハイポリマーの精密構造、燃焼プロセス中のシステム粘性・弾性の変化、燃焼後の残留炭素の精密構造及びそのシステム難燃性能に対する影響などのさらなる研究が待たれる。
- (3) ナノ系難燃技術は、コーン熱量計法試験で材料の熱発生速度及び質量損失率を効果的に低下できるとはいえ、例えば垂直燃焼実験(UL 94)及び極限酸素指数試験(LOI)等の従来型の難燃実験では満足な結果が得られない。このため、多種の難燃メカニズムと多種の燃焼試験方法の間の関連性を研究する必要がある、これを基礎にナノ系難燃剤と従来型の難燃剤とを配合し、長所を取り入れ短所を補うことで相乗効果による難燃実現の目的を達成する。相乗難燃効果は、現在すでにナノ系難燃システム発展の重要な方向性となっている。

ナノ材料による細胞の構造及び機能への影響に関する研究

•Profile•



梁 偉 Liang Wei ●中国科学院生物物理研究所研究員

1966年2月、河南省新蔡県生まれ。2000年9月、上海医薬工業研究院卒（薬剤学博士）。2000年～2004年、米国ミネソタ大学、ハーバード大学医学部、北京大学で博士研究員。現在はタンパク質・ポリペプチド医薬品実験室副主任、中国生物物理学会第9期理事会理事、中国生物物理学会分子イメージング学専門委員会副主任委員、中国薬学会薬剤専門委員会委員、「ナノ科学及び技術」叢書・編集委員会委員等を兼任。発明特許9件。国際的に重要な学術誌で論文 30本以上を発表。

共著者：王 静

1. はじめに

ナノ材料の研究及び実用はここ10年で急速に発展した。将来性のある新型ナノ材料が大量に開発されて頭角を現し、多くのナノ材料アセンブリもさまざまな分野で広く実用化されている。研究と実用の広まりにつれ、ナノ材料の生物学的安全性及び実用面での特異性がますます注目を集めている。ナノ材料による細胞の構造及び機能への影響に関する基礎研究は、安全性の解明と実用性の指南に必要とされる前提条件である。国内外の関連する研究成果を総括することで、本稿では一部の有機及び無機ナノ材料による細胞膜、細胞骨格及び細胞核等の亜細胞の構造ならびに細胞死、生長と分化、接着・転移及びシグナル伝達等の細胞の機能への影響を概観する。

2. ナノ材料による細胞の構造への影響

2.1 細胞膜

細胞膜は細胞の主な防御壁であるばかりでなく、細胞・環境間の物質・情報交換を担う大きなプラットフォームでもある。ナノ材料が細胞と作用する第一の段階はまさに細胞膜への作用であり、これには膜脂質及び膜タンパク質がある。

2.1.1 膜脂質

リン脂質二重層は細胞構造の境界を構成し、細胞の完全性と内部環境の安定性を維持する。細胞膜表面の脂質にはゲル相と流動相の2つの相が存在する。ナノ材料は細胞膜と接触する際に一定の圧力を生じ、膜脂質に相転移を生じさせる可能性がある。Wang Bらは、蛍光共鳴エネルギー移動及び等温滴定微量熱技術により、20nmの帯電したポリスチレンナノ粒子はリボソームに非特異的に吸着した後、リボソームに接触点で相転移が生じたことを観察した。リン脂質膜における相転移の発生はナノ粒子の表面電荷と関係があり、リン脂質の種類及びナノ粒子の大きさとは関係しない。負電荷を持つナノ粒子はリン脂質膜を流動相からゲル相に相転移させ、正電荷を持つナノ粒子はゲル相から流動相に相転移させる。ナノ材

料は膜脂質の相転移を誘導する以外に、リン脂質二重層を「貫通」するものもある。Roiter Yらは原子間力顕微鏡技術を用いて、ジミリスチルホスファチジルコリン（DMPC）膜には1.2~22nmのシリコンナノ粒子の作用により穿孔が形成されることを観察した。無機材料のほか、一部の有機ナノ材料も同様に膜に穿孔を導く。Leroueil PRらは陽イオンの有機ナノ粒子が人工膜と細胞膜を「貫通」する現象について報告した。ナノ粒子の大きさ、電荷及び表面修飾は、細胞膜の「貫通」作用に影響を及ぼす。

2.1.2 膜タンパク質

膜タンパク質は種類が非常に多く、膜を越えた物質の輸送や細胞表面におけるシグナル伝達の主な担当者である。膜タンパク質は、作用メカニズムの違いにより、イオンチャネル、キャリアタンパク質及び受容体タンパク質の3つに大きく分類される。

（1）イオンチャネル

イオンチャネルは選択的にある種の、またはいくつかの種類のイオンを移動させて膜内のイオン強度を維持し、膜電位を安定させる。Park KHらは、カーボンナノ材料はカリウムイオンチャネルを抑制するが、この種の抑制作用はカーボンナノ材料の形状、粒子径及びカリウムイオンチャネルの種類と密接な関係がある上に可逆性があることを報告した。筆者が3種類のカーボンナノ材料を比較した結果、0.72nmの球形フラーレンのカリウムイオンチャネルに対する閉塞作用は直径1-10nmの単層カーボンナノチューブの2-3倍であり、直径10-15nmの多層カーボンナノチューブには閉塞作用はないことがわかった。カリウムイオンチャネルのタンパク質とカーボンナノ材料の相互作用についてシミュレーション計算した結果、カーボンナノ材料は物理的にカリウムイオンチャネルの「入り口」を閉塞し、カリウムイオンを細胞から正常に流入できないようにしている。物理的な閉塞作用のほか、ある種のナノ材料は細胞に酸化圧力を生じさせ、ある種のイオンチャネルの構造と機能に変化をもたらす。例えばCdSe量子ドットのもたらす酸化圧力はN型カルシ

ウムイオンチャネルを活性化させ、電圧によりナトリウムイオンチャネルのゲートを制御し、細胞外のカルシウムを大量に流入させることで細胞内のカルシウムイオン濃度が急速に上がるが、L型・T型カルシウムイオンチャネルとカリウムイオンチャネルでは顕著な変化はない。

(2) キャリアタンパク質

キャリアタンパク質は立体配座の変化を通じて、ある特定の分子に膜を越えて移動させる、もう一つの大きなタンパク質の分類であり、多剤耐性タンパク質Pgp、グルコース輸送担体、コリン輸送担体、チアミン輸送担体等がある。多剤耐性タンパク質Pgpは多くの低分子抗がん剤のポンプ排出を促すため、細胞内の薬剤有効濃度が低下し化学療法を失敗に導く。Dong XWらは、界面活性剤Brij78を含む中空ナノ粒子は、CMCをはるかに下回る濃度で細胞内ATPを当初レベルの80%まで引き下げることによりATP依存性Pgpタンパク質の活性を抑制し、ドキシソルビンやパクリタキセル等の低分子薬剤の抗腫瘍効果を大幅に引き上げることを発表した。キャリアタンパク質は多剤耐性タンパク質に加え、グルコース、アミノ酸、コリン等、多数の基本栄養素の輸送担体でもある。血液脳関門の高さがある種の栄養素の輸送担体を表すことを考慮すれば、これらキャリアタンパク質は常に薬剤を脳のターゲットに送り込み血液脳関門の阻害作用を克服している。Dufes Cらは重要な機能を有する神経ペプチドをパルミトイルグルコサミンで構成されるナノ粒子でコーティングすることにより、神経ペプチドは加水分解により効力を失いやすいという欠点を解決しただけでなく、GLUT1の標的化により薬剤の脳内滞留量を58%増加させた。Fenart Lらはマルトデキストリンナノ粒子表面にレシチンをコーティングしたところ、コーティングされたナノ粒子は脳皮質の単層細胞を透過する速度がコーティングされていないナノ粒子の3.4倍であることを発見した。Lockman PRらはチアミンリガンドで修飾されたナノ粒子は、脳内での滞留量が2倍増加することを発見した。

(3) 受容体タンパク質

受容体タンパク質は特異的なリガンドと結合した後に、シグナル伝達に誘導され川下の生物学的効果を生じる。Dobrovolskaia MA及びMcneil SEは、ナノ材料がマクロファージに貪食されると生じる免疫反応の法則をまとめた。～90nmのマノースにコーティングされたナノラテックス、～130nmマノース-キトサンナノ粒子及び～200nmのグルコース-マンナン粒子はマノース受容体ルートを通じてマクロファージに貪食され、20nm、50nm及び100nmの脂質ナノ粒子は補体受容体ルートを通じて貪食される。フラーレン誘導体はFcγ受容体ルートを通じて貪食される。これら3つのルートはいずれもマクロファージに免疫反応を生じさせ、炎症因子を放出する。ナノ粒子はスカベンジャー受容体という典型的なルート

を通じてマクロファージに貪食された場合には細胞が刺激されず炎症因子を生じない。例としては、10-20nmの超常磁性酸化鉄ナノ粒子及び～35nmのコロイド金ナノ粒子がある。

2.2 細胞骨格

細胞骨格は細胞の形態を維持するだけでなく、細胞の内部構造の秩序を保つうえ、多くの重要な生命活動と関係する。例として、腫瘍細胞の接着・転移や神経細胞のシグナル伝達等がある。近年、ある種のナノ材料は細胞骨格の秩序ある構造を破壊して細胞の機能に一定の影響をもたらす事が発見された。Huang XLらは、長い棒状の単分散・メソポー・カーボンナノチューブはA375メラノーマの細胞骨格を破壊してマイクロフィラメントを無秩序に断裂して細胞膜付近を収縮させ、細胞骨格構造の破壊に伴い腫瘍細胞の一部機能も影響を受け、細胞のタンパク質接着パフォーマンスが不調となり、転移能力も低下することを発見した。Pisanic II TRらは、神経細胞上で低濃度のFe₂O₃ナノ粒子はPC12神経細胞内のマイクロフィラメントの数を減少させ、濃度の高まりに伴い、シナプスまで伸びていた微小管もほとんどすべてが消失することを見出した。神経細胞の細胞骨格が損傷を受けた結果、細胞の神経生長因子等の生化学的刺激に対する応答能力は低下した。

2.3 細胞核

細胞核は遺伝物質のストレージとして細胞で最も重要な「心臓」部分であり、細胞のすべての生命活動をコントロールする。ナノ材料の亜細胞毒性の研究の進展に伴い、細胞死を引き起こさない前提では、ナノ材料は細胞核に染色体断裂、DNA鎖の破壊、点変異等の一連の変化を生じさせ、細胞の発がんを導いたり遺伝の安定性に影響を及ぼしたりすることが明らかになった。これらの現象は遺伝毒性 (genotoxicity) と定義づけられる。ナノ材料によるDNAの損傷は直接作用と間接作用に分類される。直接作用とは、ナノ材料が細胞膜と核膜を貫通して細胞核に達し、DNAまたは核タンパク質に直接作用して損傷をもたらすことをいう。一部のナノ材料は通常の状態下では細胞核に侵入できないものの、生殖細胞の減数分裂の過程で核膜が消失する際にDNAと接触して損傷をもたらす。間接作用とは、ナノ材料が細胞の酸化圧力、炎症反応またはDNAの修復異常等を通じてDNAに損傷を与えることをいう。一部のナノ材料は遷移金属イオンを放出し、細胞内の酸素を強い酸化能力を持つ活性酸素種ROS (reactive oxygen species) に転化して細胞核内のDNAやタンパク質等の高分子を酸化させ、DNA断裂は水平方向に結合され、塩基が修飾される可能性がある。酸化圧力の蓄積と増長により、MAPK及びNF-κB等のシグナル伝達経路が活性化されて炎症因子の放出が促され、細胞に炎症反応が生じる。炎症はDNAの損傷を激化させて染色体を断裂させ、点変異を生じさせ、DNA付加物を

形成する一方で、DNAの修復を抑制し、塩基の異常なメチル化を導き、遺伝子の正常なパフォーマンスに変化をもたらす。DNAの損傷はDNA修復を活性化させ、より深刻な細胞周期停止または細胞のアポトーシスの発生を回避する。DNAの修復は細胞が遺伝の完全性と細胞の存続を確保する上で重要な要素である。修復プロセスにおいては、p53タンパク質が最初に応答し、一連のDNA修復の調節に関係する遺伝子の転写と伝達を起動させる。DNAの修復プロセスが妨害されると、細胞は発がんし、または細胞死が生じる。

3. ナノ材料による細胞の機能への影響

3.1 細胞のアポトーシス及びオートファジー

アポトーシス (apoptosis) 及びオートファジー (autophagy) はプログラム細胞死の2つの方式である。アポトーシスとは、細胞が細胞内外のシグナルを受け取って行われるプログラムされた死であり、最終的にアポトーシス小胞が形成されるプロセスである。オートファジーとは、細胞内で形成されたオートファジー泡とリソソームが融合し、細胞内の破損した高分子又は細胞小器官を分解するプロセスである。通常レベルのオートファジーは細胞の自己防衛の一つの方法であるが、過度のオートファジーは細胞死を引き起こす。ナノ材料により導かれる細胞のアポトーシスに対する主な見方は、ナノ材料のミトコンドリアにおける蓄積、ROS生成の誘導、酸化圧力の発生、アポトーシス誘導シグナルの起動である。プロテオミクス及びゲノミクスの研究によれば、細胞の酸化圧力は低い方から高い方まで3つの段階に分けることができる。第1段階は、細胞がNrf-2タンパク質の活性化を通じて抗酸化酵素により自己防衛を行う。第2段階は、細胞がMAPK及びNF- κ Bのカスケード反応を活性化させて炎症因子を放出し、炎症反応を生じさせる。第3段階は、ミトコンドリアで膜穿孔が生じ、呼吸鎖が破壊され、膜電位が低下する等の変化により細胞核のDNAが損傷され、細胞がアポトーシスに向かう。銀でコーティングされた金ナノ粒子、フラーレン、ブロック共重合体ミセル及びカーボンナノチューブ等は、いずれもこのメカニズムにより細胞のアポトーシスを導くことが報告されている。理化学的性質の異なるナノ材料により選択されるアポトーシスのルートには違いがある。TiO₂はcaspase-8/Bid及びミトコンドリアを活性化させるルートでアポトーシスを導くが、量子ドットはFas及び脂質の過酸化を増長させることによりアポトーシスを導く。近年、研究の進展に伴い、一部のナノ材料は細胞のオートファジーを引き起こしうることが徐々に発見されている。Wen LPらのグループは酸化ネオジム、フラーレン・ナノ結晶及び多数のレアメタル酸化物のナノ結晶は、いずれも腫瘍細胞にオートファジー性の細胞死をもたらすことを発見したうえで、特殊なナノ材料により細胞のオートファ

ジーを導き、抗がん剤による腫瘍治療を補助する可能性を提案した。このほか、Li CGらは、ポリアミドアミン (PAMAM) デンドリマーはAkt-TSC2-mTORルートの抑制によりオートファジー性の細胞死を促進しうることを見出した。Stern STらの研究でも2種類の異なるコアを持つ量子ドットは、いずれもブタの腎臓細胞にオートファジーを生じさせることが示され、かつ、細胞のオートファジーを引き起こしたのはある種のナノ材料の共性であるだろうことが報告された。

3.2 幹細胞の生長及び分化

幹細胞とは、自己複製能を持つ多分化能細胞であり、一定の条件下で多種の機能細胞への分化が導かれるものをいう。生物学的適合性を有するナノ材料により体内細胞の生長環境をシミュレートすることができ、幹細胞を支持するプラットフォームが提供できるばかりでなく、幹細胞の生長と指向的分化の制御に関与できる。広く研究対象とされる間質性幹細胞MSC (mesenchymal stem cell) は、骨髄に由来する多能的な分化能を持つ非造血幹細胞であり、誘導によって神経細胞、造骨細胞、肝細胞、線維芽細胞及び脂肪細胞等に指向的に分化しうる。神経誘導因子の作用下では、MSCは、直径230nmのPLCL/Collナノファイバー状フレーム上のほうが、直径620nmのPLCLフレーム上より生長が80%加速し、かつ、神経様細胞が現れた。ナノ材料は、特異的な誘導因子の作用下でMSCの分化に影響するだけでなく、自ら誘導因子となってMSCの指向的分化を促進できるものもある。Oh Sらは、造骨誘導因子のない状況下で、TiO₂ナノチューブはヒトのMSCの造骨細胞への分化をコントロールできる上に一定のサイズ効果があることを観察した。直径30nmのTiO₂ナノチューブは細胞の接着性を促進するも分化は誘導せず、直径70-100nmのTiO₂ナノチューブは細胞の接着性を低下させたものの細胞の伸長を10倍促進させ、かつ、最終的に造骨細胞に分化した。もう一つの考え方としては、インテグリンの凝集と接着斑の形成によるMSCの生長と分化に対する影響を考慮するなら、直径の小さいTiO₂ナノチューブのほうがMSCの生長と分化により有利なはずである。Park Jらは、直径15nmのTiO₂ナノチューブがラットのMSC接着、生長、転移及び造骨細胞への分化を最も強力に誘導し、直径70-100nmのナノ粒子によるMSCの指向的分化能力は明らかに低下することを観察した。材料の調製方法の違いやその他未知の要素による干渉を考慮するなら、これらの議論にはさらなる検討が必要となろう。

3.3 腫瘍細胞の接着及び移動

転移は悪性腫瘍のバロメータであると同時に、腫瘍患者の高い死亡率の主な原因である。腫瘍転移の大まかなプロセスは、原発巣腫瘍細胞が基底膜を襲撃し、血管又はリンパ管に侵入して免疫の監視を逃れて行き来し、最終的には血管内皮細胞に接着して貫通し、増殖して転移巣を形成する。細胞の接着及び移動能力は腫瘍転移の効

率を決定づける。ナノ材料は輸送担体としてさまざまな薬剤を搭載し、さまざまなリガンドと連結して定点的かつ効率的に腫瘍部に到達し、腫瘍細胞の生長、接着及び転移を抑制することができる。多くの腫瘍細胞のMAPKシグナル伝達経路の活性化レベルは高いことを考慮し、Basu Sらはシスプラチンを搭載したPLGAナノ粒子表面にMAPKシグナル伝達経路に特異的な抑制剤を連結させたところ、B16/F10腫瘍の生長に対する抑制作用が明らかに高まった。最近、Veisheh Oらは薬剤を搭載したナノ材料による腫瘍転移の抑制研究において成果を挙げた。高い転移性を有するC6グリオーマ細胞は、マトリックスメタロプロテアーゼMMP-2の分泌により細胞外基質を分解して転移を促し、MMP-2と特異的に結合するリガンドは36個の残基で構成されるポリペプチドである。筆者はFe₂O₃ナノ粒子表面にも当該ポリペプチドを連結させてそのPEG化を保護し、腫瘍の転移を特異的に抑制する薬物担体ナノ粒子を調製した。この種のポリペプチドとカップリングされたナノ粒子と遊離ポリペプチドを比較すると、細胞内の滞留量が増加しただけでなく、腫瘍細胞の移動を抑制する能力も大幅に強化された。

3.4 神経細胞のシグナル伝達

神経細胞はニューロンとも呼ばれており、細胞体とシナプスにより構成され、情報の接收、統合、伝達及び出力により細胞間の情報交換を実現する。良い生物学的適合性を有するカーボンナノチューブは神経細胞のシグナル伝達を促進しうる事が多くの実験により証明されている。Cellot Gらは、カーボンナノチューブ表面とガラス表面で生長した神経細胞が電流パルスを受信した後に生じた活動電位を比較したところ、前者の後脱分極が大幅に強化されたことを発見した。この種の効果は、例えば酸化すずのようカーボンナノチューブと相似する特性を持つ伝導性物質、又は非伝導性物質のいずれの表面にも現れないことから、カーボンナノチューブの神経細胞に対する作用には特異性があることが説明される。Mazzatenta Aらも電気刺激信号は単層カーボンナノチューブを通じて神経細胞表面に伝達され、かつ、細胞の応答を強化することを発見した。Keefer EWらは、カーボンナノチューブを用いて電極表面を修飾したところ、神経細胞の電気刺激と応答シグナルのいずれも強化されたことを見出した。カーボンナノチューブが神経細胞のシグナル伝達を促進するメカニズムについては、目下2つの見方がある。一つは神経細胞とカーボンナノチューブの間で形成される緊密な接触により神経細胞の電気生理活性が高まるという見方で、もう一つは、カーボンナノチューブは細胞体とシナプスの構造を改えることにより脱分極を強化するという見方である。

4. まとめと考察

ナノ材料と細胞の相互作用は複雑な生物学的プロセス

である。ナノ材料は細胞により摂取、代謝及び分解される一方、細胞の構造及び機能もナノ材料の影響を受ける。現在、ナノ材料による細胞の構造及び機能への影響に関する研究は依然としてスタート段階にあり、まだ十分に重視されていない。ナノ材料の細胞に対する作用に関する基礎研究は、材料の生物学的安全性を検討し、ナノ材料アセンブリの合理的な設計及び最適化の上で重要な指導的意義を持つ。本稿では、近年のナノ材料及び細胞の相互作用に関する研究の進展を総括し、次の結論を得た。

- (1) ナノ材料は細胞膜、細胞骨格及び細胞核等の亜細胞の構造に影響を及ぼす。細胞膜の脂質二重層はナノ材料と接触後、物理的性質に変化が生じ、安定性及び完全性が破壊される。ナノ材料はある種の膜表面ルートのタンパク質を選択的に活性化又は閉塞し、リガンドに連結した後に細胞膜表面の受容体又はキャリアタンパク質と特異的に結合してさまざまな細胞の応答を導く。ナノ材料は細胞骨格の秩序ある構造を破壊することで細胞骨格が関与するいくつかの生命活動に影響を及ぼす。ナノ材料が細胞核内の高分子と直接的又は間接的に作用して一連のDNA損傷をもたらすことを「遺伝毒性」と定義する。
- (2) ナノ材料は細胞のいくつかの重要な生理的機能に影響を及ぼす。ナノ材料はアポトーシス又はオートファジーによりプログラム細胞死を引き起こす。ある種のナノ材料は幹細胞の指向的分化を促進し、又は自ら導くことができる。抗腫瘍薬を搭載したナノ材料は、ある種のリガンドと結合した後に腫瘍細胞の増殖、接着及び移動を特異的に抑制することができる。カーボンナノチューブは、神経細胞の電気生理活性を特異的に抑制し、シグナル伝達を促進できる。

ナノ材料の形状、大きさ、構成及び表面性質等の理化学的要素は、先に述べた細胞の生物学的効果において非常に重要な役割を果たす。今後の研究において、われわれは単体のナノ材料による細胞への特異的作用について深く分析するだけでなく、細胞に対するナノ材料の影響について、共通性を持つ普遍的作用を総括する必要がある。

イオンドープにより改質されたナノTiO₂光触媒の研究

•Profile•



施 恵生 Shi Huisheng ●同済大学環境材料研究所所長、教授、博士課程指導教員

1953年2月生まれ。1978年、同済大学にて研究。1982年、中国建筑材料科学研究院にて研究。1993年、同済大学無機非金属材料専攻、博士号取得。1985年から現在まで、同済大学教員。1996年、ドイツRWTH Aachen Universityにて客員教授。主な研究分野は、生態環境材料、土木エンジニアリング材料、固体廃棄物の資源化。国家重点基礎研究(973)プロジェクト、国家ハイテク研究発展計画(863)プロジェクト、国家自然科学基金事業等の中国の国家レベルの重大・重点科学研究事業を主宰。国内外で学術論文 300編以上を発表。「コンクリート混合剤実用技術大全」、「土木エンジニアリング材料—性能、実用と生態環境」、「材料概論」、「土木エンジニアリング材料試験精選」、「エコセメント及び廃棄物の資源化利用技術」、「土木エンジニアリング材料」、「セメント系材料の科学」等の専門書を主編。

共著者：王 程

1972年、Fujishimaらは酸化チタンを光触媒として水を分解して水素を生成できることを初めて報告した。1976年、CareyらはTiO₂を光触媒としてポリ塩化ビフェニルを分解し、環境保護分野における光触媒技術の実用を切り開いた。その後、各国の科学者たちは二酸化チタンを代表とする半導体の光触媒材料について、抗菌・除臭、廃水中の有機汚染物質の分解、重金属イオン廃水の処理、空気清浄化等の分野で次々に研究を行い、広く実用化させた。光触媒の酸化技術による古くからの汚染物質処理技術には多くの長所がある。すなわち、(1) 汚染物質を完全に鉱化・分解できること。(2) 二次汚染を生じないこと。(3) 材料を連続的かつ安定的に利用できるため、コストが低いこと。(4) 常温・常圧下で反応が行われることである。良質な光触媒は次の条件を満たす必要がある。すなわち、(1) 光触媒としての活性を有すること。

(2) 可視光及び(又は)近紫外線を利用できること。(3) 光触媒としての安定性(光腐食を生じない等)があること。(4) コストが低廉であること。(5) 毒性がないことである。現在研究されている半導体の光触媒においては、TiO₂は上記の条件をすべて満たすため、最も理想的な光触媒と考えられている。しかし、TiO₂のバンドギャップは約3.2 eVであるため紫外線による刺激を必要とし、そのうえ、生成された電子-正孔対は非常に複合されやすいため光触媒性能に低下が生じ、実用が制限されている。ナノTiO₂に対するイオンドープによる改質は、これらの問題解決の有効な道筋である。イオンドープによるナノTiO₂光触媒の改質に関する研究の現状を紹介する。

1. 単一イオンドープ

1.1 遷移金属イオンドープ

遷移金属イオンをTiO₂結晶格子中に取り入れてTi⁴⁺と置換すると、ドープされたほとんどのイオンのエネルギー準位はTiO₂価電子帯と伝導帯との間に位置し、結晶体の電子-正孔対に対する捕獲率を高めると同時に両者の複合率を引き下げ、これによりTiO₂の光触媒活性を向上させる。GhasemiらはCr、Mn、Fe、Co、Ni、Cu及びZn等

の遷移金属イオンをドープしたナノTiO₂について研究を行った結果、遷移金属イオンをドープしたナノTiO₂は、ドープしていないTiO₂に比べて小さい結晶粒子サイズ及び高い比表面積を有し、材料の光感応範囲は可視光エリアまで拡張され、光触媒活性は純TiO₂を上回ることが分かった。Cr³⁺をドープしたナノTiO₂はほぼルチル構造であるが、依然として良好な光触媒活性を有する。これは、Cr³⁺はアナターゼのルチルへの転換を加速できるため、Cr³⁺がTiO₂結晶格子中のTi⁴⁺の位置と置換されることにより、材料はさらに低いバンドギャップを持つことができ、かつ、電子-正孔対の複合率を引き下げることにより材料の光触媒活性が活性されるためである。Fe³⁺をドープしたナノTiO₂は、他の金属イオンをドープしたTiO₂に比べて小さい結晶粒子サイズ、大きい比表面積及び小さいバンドギャップを有するため、Fe³⁺をドープしたナノTiO₂は高い光触媒活性を示す。この結果はChoiらが報告した研究成果と一致する。Choiらは21種類の異なる金属イオンをドープしたナノTiO₂の光触媒活性を研究した結果、Fe³⁺をドープしたTiO₂がより高い光触媒活性を示すことを見出した。

1.2 希土類金属イオンドープ

希土類元素は豊富なエネルギー準位及び4f電子跳躍特性を有し、電子配置を生じやすく、酸化物は多結晶型であり、熱安定性は良好で吸着選択性が強い等の特徴がある。TiO₂結晶中に希土類元素を取り入れると結晶体が形成され、結晶格子にひずみが生じることによりTiO₂結晶型が変換し、結晶粒子サイズ、バンド構造、電子-正孔対の運動状態及び寿命等に影響を及ぼす。XuらはLa³⁺、Ce³⁺、Er³⁺、Pr³⁺、Cd³⁺、Nd³⁺、Sm³⁺等の希土類金属イオンをドープしたナノTiO₂を採用した結果、希土イオンをドープしたナノTiO₂は吸着性能が向上し、波長吸収により赤方偏移が生じ、界面電荷の変換効率が高まることで光触媒活性が向上した。Gd³⁺をドープしたナノTiO₂により形成されたGd₂O₃及びTiO₂は、界面の活性水酸基の増加により界面電子の変換効率が向上するため、他の希土をドープしたTiO₂よりも高い光触媒活性を示す。希土

イオンのドーピング量はナノTiO₂光触媒活性に影響をもたらす重要な要素である。Zhangらはランタン系希土イオンをナノTiO₂にドーピングした結果、ランタン系希土イオンのドーピングによりアナターゼのルチルへの変換が抑制され、高温下におけるナノTiO₂比表面積の低下が緩和され、ナノTiO₂の熱安定性が向上した。相転移には希土イオン半径が大きく影響し、イオン半径が大きい程アナターゼのルチルへの相転移への抑制効果が大きい。高温焙焼を経てランタン系希土イオンは酸化物を形成し、イオン半径の大きい希土イオンは配位数の高い希土酸化物を形成する傾向にある。ランタン系希土イオンでドーピングした後、ナノTiO₂の光触媒活性は向上する。Paridaらの研究によれば、La³⁺ドーピングによりナノTiO₂の吸着性能は高まり、波長を吸収して赤方偏移され、比表面積が増大し、結晶粒子サイズが低下し、電子-正孔対の複合率が引き下げられることにより、光触媒性能は高まる。

1.3 非金属イオンドーピング

2001年、AsahiらはTiO₂中のOイオンの位置をNイオンで置換すると、NをドーピングしたTiO₂のバンドギャップが低下することにより可視光範囲下で光触媒活性を持つことを指摘し、非金属イオンにドーピングされたナノTiO₂研究の分野を開拓した。Diwaldらによれば、NドーピングはナノTiO₂のバンドギャップを約3.0eVから2.4eVに低下させることにより、光触媒反応範囲を可視光エリアにまで拡大する。Nドーピングのほか、現在研究されている非金属イオンドーピングには、さらにF、S及びC等があり、いずれも良好な可視光触媒活性を示す。

2. イオン共ドーピング

これまでの研究の大部分は単一イオンドーピングの採用によるナノTiO₂の改質に集中したが、近年の研究によれば、2種類の異なるイオンにより共ドーピングされたナノTiO₂は単一イオンをドーピングしたTiO₂より高い光触媒性能を示す。現在までに研究されている、ナノTiO₂共ドーピングに用いられるイオンには、バイメタルイオン、2つの非金属イオン、2つの希土イオン、ならびに金属イオンと希土イオン、金属イオンと非金属イオン、希土イオンと非金属イオンの組み合わせ等がある。

2.1 バイメタルイオンドーピング

バイメタルイオンでドーピングしたナノTiO₂のメカニズムについては主に2つの見方がある。一つ目は、ドーピングした2種類の金属イオンはそれぞれ電子及び正孔の捕獲トラップに充当されるため、両者の複合を阻止することで光触媒性能が向上される。もう一つは、ドーピングした金属イオンの片方がTiO₂の光感応範囲を拡大する作用を生じ、もう片方の金属イオンが電子又は正孔の捕獲トラップに充当することで、電子と正孔の複合率を低下させ、2種類の金属イオンの相乗効果により光触媒性能が高まるという見方である。

Katoらの研究によれば、Sb⁵⁺/Cr³⁺を共ドーピングしたナノTiO₂の光触媒性能はCr³⁺をドーピングしたナノTiO₂を上回る。これは、Sb⁵⁺をドーピングしたイオンが材料の電荷バランスを維持したためである。EstrellanらはFeとNbを共ドーピングしたナノTiO₂を研究した結果、FeイオンはTiO₂のバンドギャップを低下させることにより材料に可視光感応性を持たせ、Nbイオンのドーピングにより電子の捕獲を可能にし、電子-正孔対の複合を抑制することで、電子-正孔とH₂O分子との反応によって、酸化性能の捕獲に強い水酸基フリーラジカルを生成した。FeとNbを共ドーピングしたナノTiO₂は可視光下で良好な光触媒性能を有した。Shiらは活性炭素繊維の表面でFe³⁺/Ho³⁺を共ドーピングしたナノTiO₂薄膜を調製した結果、Fe³⁺/Ho³⁺共ドーピングサンプルは未ドーピングサンプルに比べて光触媒性にやや向上が見られ、かつより安定していることがわかった。Fe³⁺/Ho³⁺共ドーピングはさらにTiO₂薄膜の破裂を抑制できるが、そのメカニズムはさらなる研究を待つ。

2.2 2つの非金属イオンドーピング

非金属イオンドーピングはTiO₂の可視光感応範囲を効果的に拡大できる。2つの非金属イオンをドーピングしたTiO₂は、現在のTiO₂改質研究分野における関心事の一つである。Linらの研究によれば、P及びNのドーピングはいずれもTiO₂の光感応範囲の可視光エリアへの拡張をもたらし、NドーピングTiO₂の光触媒性能はPドーピングTiO₂を下回り、N、P共ドーピングTiO₂の紫外線及び可視光条件下での光触媒活性はいずれもやや向上した。これは、O-P-N結合の形成によるものである。LuoらはBr-Cl-TiO₂光触媒を調製したところ、Br、Cl共ドーピングはTiO₂のバンドギャップの低下をもたらし、光触媒性能が向上した。ChenらはC-TiO₂、N-TiO₂及びC-N-TiO₂をそれぞれ調製し、かつ、三者の光触媒性能を対比したところ、C、N共ドーピングTiO₂は他の2種類の単一ドーピングTiO₂に比べて高い光触媒性能を持つことが分かった。YangらはC、N共ドーピングナノTiO₂を採用した結果、C、N共ドーピングナノTiO₂は可視光を吸収し、かつ、未ドーピングナノTiO₂に比べて高い比表面積を有し、Cイオンが光活性剤の作用を果たすことがわかった。NイオンはTiO₂結晶格子中のOを置換し、O2pよりやや高い価電子帯で新たなエネルギー準位を形成する。C、N共ドーピングは電子-正孔対の複合率を抑制し、材料の可視光感応範囲を拡大し、かつ、光触媒性能を強化した。ShenらはBr、Nで共ドーピングしたナノTiO₂を調製し研究した結果、Br、NイオンはTiO₂結晶格子に取り入れられるとTiO₂より上の伝導帯で新たなエネルギー準位を形成することで伝導帯の位置を引き上げた。このため、Ti-O-N結合及びTi-O-Br結合を形成し、TiO₂の電荷バランスは破壊される。新たな電荷バランスを構築するために、Br-N-TiO₂は触媒中で酸素空孔、Ti³⁺及びF-中心を形成する（電子を捕獲する酸素空孔はF-中心となる）。F-中心とTi³⁺エネルギー準位は伝導帯の下に位置し、伝導帯のエネルギー準位を低下させるこ

とによりBr-N-TiO₂光触媒のバンドギャップを低下させ、可視光感応性を拡大する。

とはいえ、2つの非金属イオンの共ドーピングすべてがTiO₂光触媒性能を向上させるわけではない。Herreraらはチオ尿素及び尿素を原料に、ボールミル法を採用してTiO₂を改質し、N-S-TiO₂光触媒を調製した。その結果、N-S-TiO₂の光触媒性能は未ドーピングサンプルの光触媒性能に相当したが、N-TiO₂光触媒性能は未ドーピングサンプルに比べやや低下した。

2.3 2つの希土イオンドーピング

他のイオンのドーピングにくらべ、2つの希土イオンによる共ドーピングの研究は比較的少ない。周芸らはEu²⁺、Gd³⁺イオンにより共ドーピングしたナノTiO₂を研究した結果、Eu²⁺、Gd³⁺の2種類の希土イオンを混合してドーピングしたものは相乗効果があることがわかった。Gd³⁺は活性化イオンとしてTiO₂表面で増感剤となる一方、Eu²⁺は電子輸送体として電子と正孔の複合率を効果的に引き下げる。純TiO₂とEu²⁺又はGd³⁺で単ドーピングしたTiO₂触媒を比べると、Eu²⁺とGd³⁺の混合ドーピングはTiO₂の波長吸収範囲を拡大するため、太陽光を反応光源として利用できる見込みがある。趙斯琴らの研究によれば、Eu³⁺とY³⁺の2つの希土イオンによる共ドーピングはEu³⁺又はY³⁺の単一成分によるドーピングに比べTiO₂ナノ結晶の結晶型の変換をより効果的に抑制して比表面積を増加させることができ、Eu³⁺とY³⁺による共ドーピングは単一成分によるドーピングに比べてTiO₂ナノ粉末の光触媒活性をより効果的に高めることができる。

2.4 金属-非金属イオン共ドーピング

YangらはV、C共ドーピングナノTiO₂を調製して研究した結果、Cイオンは光増感剤としての作用を果たし、Vドーピングによるエネルギー準位は価電子帯と伝導帯の間に位置した。V-C-TiO₂は可視光、又は無光照条件下でさえも良好な光触媒性能を示した。Shenらの研究によれば、W、N共ドーピングナノTiO₂の光感応範囲は650nmに赤方偏移でき、光触媒性能は未ドーピングサンプルに比べて大きく向上した。Wドーピングによるドナー準位の形成、Nドーピングによるアクセプタ準位の形成及び酸素空孔によるF-中心の形成は、いずれも可視光による影響をもたらす。Hao及びCongらはそれぞれFe³⁺、N共ドーピングナノTiO₂を調製して研究した結果、Fe³⁺、N共ドーピングナノTiO₂の比表面積は比較的大きく、結晶粒子のサイズは比較的小さいことが分かった。Fe³⁺ドーピング比率の上昇に伴って材料の比表面積は下降する。Fe³⁺、N共ドーピングはTiO₂のバンドギャップを引き下げ、電子-正孔対の複合を抑制することで材料の光触媒性能を引き上げた。Hamadanianらの研究によれば、Cu、S共ドーピングはナノTiO₂結晶粒子を減少させ、光感応範囲を拡大し、かつ、光触媒性能を引き上げるが、Cu-S-TiO₂光触媒性能はいずれも未ドーピングTiO₂、Cu及びSの単ドーピングナノTiO₂を上回り、Cu、S共ドーピングはTiO₂の相

転移を抑制した。

2.5 金属-希土イオン共ドーピング

YangらはFe³⁺、Eu³⁺による共ドーピングナノTiO₂光触媒材料を調製して研究した結果、Fe³⁺、Eu³⁺による共ドーピングイオンはナノTiO₂半導体の電荷分離及び界面電荷の転移に重要な役割を果たし、Fe³⁺及びEu³⁺はそれぞれ捕獲正孔及び電子の作用を果たし、電子-正孔対の効果的な分離を実現することでナノTiO₂の光触媒性能を引き上げた。馬明遠らは純TiO₂、FeドーピングTiO₂、CeドーピングTiO₂、Ce、Fe共ドーピングTiO₂の光触媒性能を比較した結果、Fe、Ce共ドーピング後のTiO₂の光触媒性能は明らかに向上した。原因は、Fe、CeドーピングはTiO₂結晶粒子の成長を抑制できるばかりでなく、TiO₂の熱安定性及び比表面積を向上させ、かつ、TiO₂の波長吸収範囲を可視光エリアにまで拡大し、電子輸送体の複合率を引き下げられるためである。共ドーピングはTiO₂の光触媒性能の向上に二重の効果をもたらし、Fe/Ce-TiO₂の光触媒活性をFe-TiO₂及びCe-TiO₂よりはるかに上回らせられる。

2.6 希土-非金属イオン共ドーピング

ShenらはCe、Nの共ドーピングによるナノTiO₂を調製して研究した結果、N原子はTiO₂の結晶格子に取り入れられることでTiO₂の構造を改質させ、可視光感応範囲を拡大した。CeイオンはCe₂O₃の形式でTiO₂結晶表面に分布し、電子-正孔対の複合を抑制し、TiO₂の光触媒性能を引き上げた。Yuらの研究によれば、Ce、Nイオンで共ドーピングしたナノTiO₂は、Ce、NイオンがTiO₂結晶格子中に取り入れられてバンドギャップを2.21eVまで低下させ、かつ、電子-正孔対の複合を抑制することで、ナノTiO₂の光触媒活性を強化した。HuangらはSmとNで共ドーピングしたナノTiO₂を研究した結果、Nのドーピングにより材料の可視光感応範囲が拡大され、希土イオンSmのドーピングにより電子を捕獲でき、電子と電子正孔の複合が抑制され、材料の光触媒活性が引き上げられた。

3. 問題の存在及び展望

現在、ナノTiO₂光触媒イオンのドーピングによる改質の研究は、単一イオンドーピングから2種類さらには多種類のイオンによる共ドーピングにまで発展している。研究においては、さらに以下の分野に注目する必要があるだろう。

- (1) イオンの共ドーピングによるナノTiO₂の改質メカニズムについては、さらなる研究が待たれる。例えば、共ドーピングにおいてドーピングされた2種類のイオンの作用メカニズム、ドーピングされるイオンの量と割合によるTiO₂構造及び性能への影響メカニズム等。
- (2) 改質の手段はともに結び付けて研究する必要がある。例えば、イオンによるドーピングと半導体の複合、貴金属の沈積及び表面の光増感等、さまざまな手段を結び付けてナノTiO₂を改質すれば、より性能の良い光触媒を獲得できる可能性がある。

- (3) イオンドープによるナノTiO₂光触媒の改質に関する研究は、ほとんどが材料の調製、特性及びメカニズムの分析等の分野に集中している。調製された光触媒の重複利用の可能性及び安定性については、さらなる研究が待たれる。
- (4) ナノTiO₂粉末には凝固しやすく回収しにくいという欠点があるため、固定化担持する必要がある。しかし、現在研究されているナノTiO₂のイオンドープによる改質は、ほとんどがナノTiO₂粉末を対象に実施されており、キャリアとTiO₂及びドープされるイオンとの間も相互作用が生じる可能性があることから、材料の光触媒性能にも影響する可能性がある。

リチウムイオン電池のナノフィルム電極材料

•Profile•



傅 正文 Fu Zhengwen ●復旦大学化学系 教授

1998年、復旦大学卒（理学博士）。2000-2001年、北海道大学量子界面エレクトロニクス研究センターで博士研究員。2004年、ワシントン大学化学科で客員研究員。主に、全固体薄膜イオン電池の調製及びそのエネルギー貯蔵、太陽光薄膜材料の物理的・化学的研究に従事。国内外の重要な学術的定期刊行物等で論文130本以上を公表。引用は600回以上。1999年、上海市科学技術進歩三等賞。2005年、国家級教育成果賞二等賞。2009年、上海市自然科学賞三等賞。

共著者：周 永寧

1. はじめに

リチウムイオン電池は軽量、高電圧、高容量、効率の高さ、放電の安定性、環境にやさしいなどの長所により、移動エネルギー貯蔵システムの中で潜在力が最も高いと認識されている。電極材料はリチウムイオン電池の中で中核的な構成部品の一つであり、電池性能に決定的な役割を果たす。新しい電極材料の模索と既存の電極材料の改良がこの分野における研究の主な目標となっている。近年、ナノテクノロジーの急速な発展に伴い、ナノ材料はその素材により異なる特殊性能によりさまざまな分野で広く注目されている。リチウムイオン電池の電極材料としてのナノ材料の運用にはその特殊性能による強みがある。例えば、ナノフィルム電極の厚さは一般に200nm未満で、粒子サイズは50nm未満である。この種の電極材料は充電・放電のプロセスでリチウムイオンと電子の輸送・拡散距離を大幅に短縮し、かつ拡散速度を向上させることができる。ナノ材料は、その大きな比表面積と多くの結晶粒界の存在のために、大量のリチウムイオンを急速に吸収・貯蔵できる一方で材料構造の悪化をもたらさない。このため、ナノテクノロジー及びリチウム電池の多くの研究者たちは、新型のナノ電極材料を共同で開発している。

全固体薄膜リチウムイオン電池は薄膜化されたリチウムイオン電池の一種で厚さは20マイクロメートル未満であり、スマートカード、センサ、マイクロエレクトロニクス及びマイクロマシンシステム等の分野及びこれとマッチングするマイクロ電源として、軍事、医学、宇宙工学分野で実用化されている。電極材料の調製は一般的に、汎用されている液体電解質を用いたリチウムイオン電池の電極材料を薄膜化することにより実現されるが、薄膜電極材料の電気抵抗は一般に非常に小さく、カーボンブラック等の添加剤や接着剤をさらに加える必要がないため、薄膜電池の電極材料は一般に比較的純粋であり、電極活性物質の電気化学的属性的の研究にとって条件がよい。

ナノフィルム電極材料の研究は、薄膜リチウムイオン電池の電極としての電気化学的特性のみならず、体積の

大きいリチウムイオン電池の電極材料の反応特性について研究する際の特有の方法である。本稿では、当実験室が近年、ナノフィルム電極材料について実施したいくつかの研究成果を含めて、ナノフィルム電極材料に関する研究の現状を全面的に紹介する。

2. ナノフィルム電極材料

2.1 LiMO型ナノフィルム電極

LiMO型電極材料は最も広く実用されているリチウムイオン電池正極材料の一つで、主に層状構造とスピネル構造で構成される。このうち層状構造の LiCoO_2 は、現時点で商業化に最も成功した正極材料である。Tarasconらは、 LiCoO_2 薄膜が薄膜リチウムイオン電池の陰極として利用できることを米国特許で最初に報告した。Dahnらは、レーザアブレーションによる積層法で初めて LiCoO_2 薄膜電極の調製に成功し、最終焼きなまし工程で LiCoO_2 には高温相のほか低温相も存在することを見出した。われわれの研究グループは、高周波マグネトロンスパッタリング法を採用してアモルファス及び傾向の異なる多結晶 LiCoO_2 薄膜を調製した結果、焼きなまし温度の上昇につれて LiCoO_2 薄膜の結晶化度も高まることを見出した。 Li/LiPON/LiCoO_2 全固体薄膜リチウム電池の電気化学試験結果によれば、比較的高い電流密度下での循環の際は、700℃の高温焼きなまし工程を経て調製された多結晶 LiCoO_2 薄膜リチウム電池が最も優れた電気化学性能を示した。3.8～4.2Vで顕著な充放電プラットフォームが出現し、放電容量は $55.4 \mu\text{Ah}/\text{cm}^2 \mu\text{m}$ に達し、循環性能は良好に維持された。

層状構造の LiMO_2 型材料のほか、スピネル構造の LiMn_2O_4 も薄膜電池の正極材料として研究された。Striebelらはパルスレーザー堆積法で LiMn_2O_4 薄膜を調製したところ、薄膜は $56 \mu\text{Ah}/\text{cm}^2 \mu\text{m}$ の可逆的比容量を有し、300回以上循環可能という電気化学特性を示した。われわれの研究グループは試みに ZrO_2 をドーブした LiMn_2O_4 薄膜を調製した結果、 ZrO_2 のドーブにより LiMn_2O_4 薄膜粒子サイズを効果的に縮小できることを発見した。われわれは $\text{LiMn}_2\text{O}_4/\text{LiPON}/\text{Li}$ 及び $\text{LiMn}_2\text{O}_4\text{-ZrO}_2/$

LiPON/Li全固体電池をそれぞれ調製したところ、ZrO₂のドーピングにより、もともとは4.0Vと3.0Vの2つの放電プラットフォームに位置していたLiMn₂O₄が3.0-4.0V間に位置する1つの傾斜的放電プラットフォームに変化するという電気化学特性を示した。これは、ZrO₂のドーピングによりLiMn₂O₄の粒子サイズが効果的に縮小され、電極材料中の結晶粒界を大幅に増加させることによって電気化学反応プロセスにおける動力学的特性が変わったことによる。可逆的比容量は53 μAh/cm² μmであった。この種の変化は薄膜電池の商業的実用化に資する。

2.2 LiFePO₄型ナノフィルム電極

LiFePO₄はオリビン構造を有する正極材料であり、充放電プロセスで構造が安定しているため、大電流に適し、最も発展性のある正極材料として認識されている。しかし、現時点ではLiFePO₄薄膜電極の研究に関する報告は比較的少ない。Sauvageらはパルスレーザー堆積法により、良好な結晶性を有するLiFePO₄薄膜の調製に最も早く成功した。厚さは約300nmで、水性電解質及び非水性電解質のいずれにも優れた電気化学性能があることが見出された。Chiuはマグネトロンスパッタリング法による調製条件のLiFePO₄薄膜性能に対する影響を研究した結果、-20Vのバイアス電圧下で堆積し、500℃で焼きなましたLiFePO₄が最も優れた電気化学性能を示し、容量は170mAh/gに達した。

LiFePO₄の優れた電気化学性能及び安定した構造に鑑み、多くの研究グループが構造の類似する他のポリアニオン正極材料の調製を試みている。Westらは高周波マグネトロンスパッタリング法を用いてLiCoPO₄薄膜を調製し、かつ、LiCoPO₄/LiPON/Li構造による全固体薄膜電池の電気化学性能について初めて研究した結果、放電電位は4.8Vに達したが、比容量はわずか11 μAh/cm² μmであった。われわれの研究グループは高周波マグネトロンスパッタリング法を用いてWO₄²⁻ポリアニオン・フレームのCuWO₄及びLiFe(WO₄)₂ナノフィルムを調製したところ、CuWO₄薄膜粒子のサイズは約20nmであった。電気化学特性試験の結果、放電プロセスには2.5V及び1.6Vに位置する2つのプラットフォームがあり、それぞれCu²⁺/Cu及びW⁶⁺/W⁴⁺の電気化学反応に対応した。CuWO₄/LiPON/Li全固体電池は、最初の可逆的比容量が約65 μAh/cm² μmであり、循環が進むにつれて容量の減衰が比較的顕著になるという特徴を示した。LiFe(WO₄)₂ナノフィルムもこれと同様、2つの放電プラットフォームを示した。それぞれ3.0V及び1.5Vに位置し、Fe³⁺/Fe²⁺及びW⁶⁺/W^{x+} (x=4或5)の電気化学反応にそれぞれ対応する。これを正極に使用して調製された全固体電池は、150回の循環を経てもなお、容量は56 μAh/cm² μmを維持した。関心深いのは、この種のポリアニオン型正極材料は電気化学プロセスで2個の活性中心を示し、これには遷移金属Cu、Feの原子価の変化のみならず、Wの原子価の変化も含まれることで

ある。

2.3 MX型ナノフィルム電極

近年、ある新型の電極反応メカニズムが研究者たちから広く関心を集めている。それはナノ粒子に基づく変換反応メカニズムで既存のリチウム脱埋め込みメカニズムとは異なる。電気化学的充放電プロセスにおける反応式は一般に次のとおり。



MXが放電を経た後の生成物は一般的にナノレベルの金属粒子及びLi_nX化合物であり、金属粒子はLi_nX中に高度に分散する。充電のプロセスでMXはまた可逆的に生成されうる。これはナノ効果に基づく新たな電気化学反応メカニズムである。この種の反応メカニズムに基づく電極材料は非常に大きい可逆的比容量を持つ。例えば、ナノCoOの可逆的比容量は600mAh/gに達する。近年、この種の新型ナノ電極材料を薄膜電極とする研究も広く行われている。

2.3.1 金属酸化物MOナノフィルム電極

2000年、Tarasconの率いる研究グループは、ナノ粒子の遷移金属酸化物は常温下でリチウムと可逆的電気化学反応を起こすことを初めてNature誌上で発表した。彼らの研究によれば、CoO、Co₃O₄、FeO、NiO等の遷移金属酸化物中にはいずれも類似の電気化学反応メカニズムが存在する。Dahnらは、in situ XRD及びin situ Mossbauerスペクトルを用いてナノ粒子で構成されるα-LiFeO₂、β-Li₅FeO₄、CoO粉末電極を研究した結果、充放電プロセスでLi及び遷移金属原子の相互置換が存在することが同じように証明された。われわれの研究グループは、この種の新型の変換反応メカニズムによる電極材料を原料とした薄膜について最も早期に研究を行った。パルスレーザー堆積法により、われわれはNiO、ZnO、Ta₂O₅、Co₃O₄ナノフィルムを調製し、電気化学性能及び反応メカニズムを研究したところ、これら金属酸化物薄膜にはいずれもこの種の電気化学反応メカニズムが存在することが分かった。これら反応メカニズムに対する認識が深まるにつれ、われわれはこの反応メカニズムを他のタイプの金属酸化物にも応用できないかと考え始めた。その後、われわれはパルスレーザー堆積法によりSnO₂、Sb₂O₃、In₂O₃とGeO₂ナノフィルムを調製し、かつ、それらとLiの反応メカニズムを研究したところ、これら薄膜電極が1.0V以上にまで充電されたのちは、一部のLi₂Oが分解され、かつ、新たに金属酸化物が生成されることが分かった。このことにより、この種の新型の変換反応メカニズムはナノレベルの遷移金属酸化物中に存在するのみならず、p系金属の酸化物中にも同様に存在することが見出された。

2.3.2 金属フッ化物MFナノフィルム電極

Liらは、これら変換反応メカニズムは遷移金属フッ化物中にも同様に存在することを最初に報告した。彼らはTiF₃及びVF₃に関する研究により、充放電プロセス中の

TiF₃及びVF₃は可逆的に分解・形成されうることを見出した。容量は約500～600mAh/gで理論上の反応電位は3V近く又はそれを上回り、リチウムイオン電池の正極材料となりうる。しかし、金属フッ化物は伝導性が非常に劣っていることが電気化学プロセス中の動力学的特性に著しく影響するため、金属フッ化物電極は充放電プロセスにおいて顕著な分極現象を示す。この種の電極の伝導性を引き上げるため、Badwayらは高エネルギーボールミリング法によりFeF₃/Cナノ粉末電極材料を調製したところ、動力学的特性が大幅に改善され、2.8-3.5Vの間で200mAh/gに達する可逆的比容量が得られた。これは、Fe³⁺がFe²⁺の変換されるプロセスに対応する。われわれは最も早期にCoF₂、NiF₂、MnF₂及びCuF₂薄膜電極材料を調製し、電気化学性能及び反応メカニズムを研究した。薄膜粒子のサイズは約20～50nmで、電気化学プロセスを研究した結果、CoF₂と他の3種類の薄膜材料は異なる反応メカニズムを示した。これら4種類の薄膜電極は最初の放電プロセスでいずれも金属粒子(Co、Ni、Mn、Cu)及びLiFを形成した。充電プロセスにおいて、Ni(Mn、Cu)及びLiFは反応後、改めてNiF₂(MnF₂、CuF₂)を形成したが、Co及びLiFは反応後も可逆的にCoF₂を形成せずにCoFを形成した。その後の可逆的循環はCoF及びLiFの相互変換プロセスであった。

2.3.3 金属窒化物MNナノフィルム電極

金属窒化物は金属リチウムと相似し、低く、平坦な充放電プラットフォームを示し、かつ、良好な可逆性と比較的大きな可逆的比容量を有する。その反蛍石構造又はLi₃N構造により良好なりチウムイオン流動性が生じ(イオン伝導率は約10⁻²S/cm)、期待に値するリチウムイオン電池陽極材料と見なされている。Batesらは最初にSn₃N₄及びZn₃N₂を全固体薄膜リチウムイオン電池の陽極材料にした。Amatucciの研究グループはZn₃N₂、Ge₃N₄及びCu₃Nのリチウム電気の化学反応を詳細に研究したところ、Cu₃N及びLiの電気化学反応と遷移金属酸化物の反応は類似し、ナノCu粒子により作動するLi₃N/Cu₃N変換反応によるものであることが見出された。Cu₃Nの完全に可逆的な反応と異なり、Zn₃N₂の最初の放電容量及び可逆的比容量はそれぞれ1325mAh/g及び555mAh/gであり、大きな不可逆的比容量の損失が存在する。XRDの結果によれば、放電プロセスでZn₃N₂はまずLiと反応し、かつ最終的にはLiZn及びβ-Li₃Nに変換されるとは言え、その後の充電プロセスにおいてもZn₃N₂構造は回復される訳ではなく、LiZnはその一部の金属Zn及び三元化合物LiZnNに変換される。Ge₃N₄のリチウム電気化学反応において、Ge₃N₄はLiと反応し、かつ、リチウム化反応が完了した後にLi-Ge合金及びα-Li₃Nを生成しうるとは言え、ここでのα-Li₃Nは電気化学的に「不活性」であり、その後の可逆的反応はLi-Ge合金及び金属Geの間でしか行われぬ。

われわれの研究チームはパルスレーザー堆積法及び

マグネトロンスパッタリング法を採用し、VN、CrN、Mn₄N、Fe₃N、Co₃N及びNi₃Nを含む一連の遷移金属窒化物薄膜を調製し、かつ、それらのリチウム電気化学反応メカニズムを研究した。その結果、VN、CrN及びMn₄Nについては可逆的の反応が金属窒化物及び金属/Li₃Nの間で実現する一方で、Fe₃N、Co₃N及びNi₃Nについては、最初の放電で不可逆のプロセスで生成される金属粒子はLi₃N気質中に分散するものの、その後の可逆的の反応では一部の金属粒子が窒化され、金属含量の少ない窒化物を生成することが分かった。他のもう一部の金属粒子は「活性傍観者」的な役割を果たす。例えば、Ni₃N薄膜は充放電循環を経てNiNを形成し、その後の可逆的循環プロセスはNiN及びNi-Li₃Nの可逆的変換の中で進行する。

2.3.4 金属セレン化物MSeナノフィルム電極

金属セレン化物は、リチウムイオン電池の電極材料としてわれわれ研究グループが最初に提示した。近年、われわれは一連の金属セレン化物ナノフィルムを次々に調製し、電気化学性能及び反応メカニズムを研究したところ、金属セレン化物には一般的にいずれも一定の電気化学的な反応特性があるが、反応メカニズムには明らかな違いが存在することを発見した。

Sn及びSbを含む負極材料はp系金属中で最も関心高く研究されている材料であるため、われわれは最初にSnSe薄膜及びSb₂Se₃薄膜を調製して研究したところ、p系金属セレン化物MSe_x(M=Sn、Sb)及びLiの電気化学反応は(1)金属セレン化物の分解/生成反応及び(2)金属のリチウム合金化/脱リチウム化反応の2段階の反応により表現されることがわかった。充電プロセスにおいて再度金属セレン化物を生成できることから、電気化学反応の可逆性は良好であるため、この材料の可逆的比容量は比較的大きく、2回の前循環における不可逆的比容量の損失は比較的小さいことが分かった。

d系の遷移金属セレン化物については、われわれは主にFeSe、NiSe₂及びMnSe薄膜を研究した。p系金属と異なり、d系遷移金属はLiとの反応で相応のリチウム合金類物質を生成できないため、リチウムの電気化学反応で異なる特徴を示す。研究の結果、FeSeの反応は比較的シンプルで、FeSeとFe/Li₂Seシリーズとの間の単純な可逆的変換でしかないことがわかった。一方、NiSe₂とNi/Li₂Seの完全変換の関係は複雑で、2つの反応中間相β-NiSe及びNi₃Se₂を経た。α-MnSeは最初の放電では完全に分解されず、リチウムを豊富に含むLi_xMnSe相を形成したうえに、その後の充電プロセスでは、もともとのα-MnSe相はFeSe及びNiSe₂システムのように再度生成されず、生成物はMnSeの別の結晶構造であるβ-MnSe相であった。

われわれはds系の遷移金属セレン化物についても研究を行った。同じ遷移金属とは言え、ds系の元素はd系の元素と一部で異なる科学的性質を持つ。研究の結果、ds系の遷移金属セレン化物Ag₂Se及びZnSeのリチウム電気化

学反応はp系の金属セレン化物と類似し、セレン化物の分解/生成反応及び金属のリチウム合金化/脱リチウム合金化反応の2段階の反応として表現できることが分かった。しかし、p系の金属セレン化物と比べると、ds系の金属セレン化物の最初の2回の循環における不可逆的比容量の損失は大きく、循環性能は明らかに劣る。一方、Liとの反応でリチウム合金を形成できないCuについては、Seとの反応によりCu₂Se、CuSe及びCuSe₂という3種類の安定したセレン化物を形成することができ、このうちCuSe及びCuSe₂はいずれもLiと異相の電気化学反応を生じてCu₂Se及びCu₃Se₂を形成することができるため、Cu₂SeはLiと変換と類似する反応を生じてLi₂Se中に分散するナノCu粒子を得られる。

2.3.5 金属リン化合物MPナノフィルム電極

カナダのNazarが率いる研究グループは、MnP₄、FeP₂、CoP₃、Cu₃P等の一部の遷移金属リン化合物の電気化学的挙動を最初に研究した。その結果、これら遷移金属リン化合物のリチウム電気化学反応はそれぞれ異なった。MnP₄とLiの電気化学反応はMnP₄とLi₇MnP₄結晶体との間で変換される一次元のトポロジ反応によるもので、FeP₂は第一次放電反応後もFe-P結合が完全に断裂しないものの“Li-Fe-P”で表示できる三元準安定化合物を生じ、可逆的比容量は1250mAh/gであった。CoP₃に対しては、ナノCo粒子は充電反応中に再度リン化されず、「活性化の傍観者」としてLi₃PとLiPの間の変換反応を促進するものと彼らは考えた。また、Cu₃Pに対しては、Cu₃PとLiの間で発生するのは完全に可逆的な「トポロジ」置換反応であり、Cu₃Pは反応中にまずLi₂CuPを生成した後にさらにLi₃Pを生成すると彼らは考えた。

われわれの研究グループは、パルスレーザー堆積法により、CrP、Sn₄P₃及びInPナノフィルムのリチウム電気を調製して化学的挙動を研究した結果、InP及びSn₄P₃は相似する電気化学反応プロセスを有することがわかった。最初の放電プロセスにおいては、いずれもLi₃P及び金属単体を生成した。充電後はいずれもさらに可逆的にInP及びSn₄P₃を生成したが、CrPシステムにおいては、放電により生成されたLi₃Pは金属Crとの反応でCrPを生成しないどころか、Li₃P自身の脱リチウム化によりLiPを生成した。その後の可逆的プロセスはLi₃P及びLiPの相互変換であった。

2.4 リチウム含有ナノ複合薄膜電極

2002年、Dahnが率いる研究グループはリチウム含有不活性基質及び遷移金属による新型複合電極材料を最初に報告した。彼らは高エネルギーボールミリング法によりLi₂O又はLi₂Sと遷移金属(Co, Fe)を混合し、Li₂O-M及びLi₂S-M複合電極を調製した結果、相当な電気化学活性を有することが分かった。最初の放電容量はいずれも約600mAh/gに達し、一定の可逆性があった。この種の電極の長所は、リチウムを含む電極材料であって、リチウム

イオン電池のリチウム源としてより適切に正極材料と整合することにある。もう一つの特徴は、LiX化合物及び金属単体そのもののいずれも高い安定性があり、全固体リチウムイオン電池の負極材料として金属リチウムより安全な点にある。

われわれの研究グループはパルスレーザー堆積法により、LiX (X=F, O, S, N) 及び遷移金属M (Fe, Co, Ni) により構成される一連のLiX-Mナノ複合薄膜を調製し、電気化学性能及び反応メカニズムを研究した。LiF-Co薄膜及びLiF-Ni薄膜はそれぞれ546mAh/g及び313mAh/gの可逆的比容量があった。電気化学反応メカニズムの研究により、LiF-Mナノフィルムには充放電循環プロセスでいずれもLiFの可逆的分解及び生成のプロセスがあることが分かった。

Li₂S-Coナノフィルムの研究の結果、充電後に多結晶体のCoS₂及びS単体を形成することが分かった。その後の可逆的循環プロセスにおいて、電気化学反応メカニズムには、CoS₂中Liイオンのはめ込み及び脱離が含まれるだけでなく、Li₂Sの可逆的形成及び分解プロセスが存在し、可逆的比容量は819mAh/gに達した。われわれはLi₃N-Coナノフィルムの電気化学反応のプロセスについても検討したところ、充電プロセスではLi₃Nに分解が生じ、かつ、Coと化合してCo₂Nを形成した。放電プロセスでは主に三元化合物Li_{2.57}Co_{0.43}Nを形成し、かつ、少量のLi₃Nも生成された。その後の可逆的プロセスでは主にLi_{2.57}Co_{0.43}N及びCo₂Nの可逆的相互変換が生じた。これらの研究はいずれも、ナノレベルの遷移金属は電気化学反応プロセスでLiX (X=F, O, S, N)の分解を促し、かつ、充放電プロセスで可逆性を有することを示した。このことは、ナノ金属粒子は室温下でLiX不活性基質の分解を促しうることにより直接的な証拠を提供した。

それでは、ナノレベルの非金属粒子もLiXの不活性基質の分解を促すことができるのだろうか？この問題に答えるために、われわれは試みにLi₃N-Siナノ複合薄膜を調製したところ、電気化学特性試験の結果、これら薄膜は最初の充電プロセスで528mAh/gの容量を得ることができ、充電プラットフォームは4.3V前後であることがわかった。充電産物は多結晶体の六方構造のSi₃N₄であった。放電後はLi₃N-Coナノフィルムの放電産物と類似し、Li₅N₃Siの三元化合物の一種を形成した。その後の可逆的循環プロセスはLi₅N₃Si及びSi₃N₄の相互変換で、可逆的比容量は約700mAh/gであった。

3. まとめと展望

本稿では近年のナノフィルム電極材料研究の進捗状況を紹介した。全固体薄膜リチウムイオン電池の電極材料は電子とイオンの混合輸送、貯蔵及び電荷の変換、電気化学プロセス中の相変換、固体電解質の界面反応等の多くの複雑な要素にまで関係が及ぶ。ナノフィルム電極材

料は、動力学上の優位性や新しいリチウム貯蔵メカニズム及び反応特性、ならびにナノ構造上の特徴から、エネルギー貯蔵システムの研究でますます重要な役割を担うようになった。しかし、ナノ電極材料そのものにもいくつか欠点がある。例えば、熱力学的安定性が劣ったり、電気化学反応で容易に結合して活性を失いやすかったりする点、それから操作性や保存性に対する要求が高い等の点がある。将来のナノフィルム電極材料研究のポイントとして、次の点が挙げられる。1. 新たな電極材料の合成及び開発。2. 電極材料のナノ構造の最適化又は表面性質の改質。3. ナノサイズ効果の電気化学的挙動に対する作用の研究の進展による、新たなリチウム貯蔵メカニズムの開発。薄膜調製技術及びナノテクノロジーの一層の発展に伴い、各種新型の正負極材料は続々と登場するだろう。ナノフィルム電極材料はリチウムイオン電池分野に新たなチャンスと活力をもたらすだろうとわれわれは信じる。

ナノテクノロジーの標準化プロセス及び倫理的問題

●Profile●



沈 電洪 Shen Dianhong ●中国科学院物理研究所研究員、国家ナノ科学センター研究員（兼務）

1941年1月生まれ。1964年、北京大学物理学部卒。中国科学院化工冶金研究所研究員補佐、中国科学院自動化研究所副研究員、中国科学院物理所研究員、表面物理学国家重点實驗室副主任を歴任。1980～2003年にかけ、大阪大学産業科学研究所、米国アリゾナ大学物理学部、静岡大学電子工学研究所、ドイツ・カールスルーエ研究センター・ナノテクノロジー研究所で訪問学者・客員教授を務め、研修・研究に従事。主な研究分野はナノ・マイクロ技術の基礎研究、巨大磁気抵抗効果（GMR）の材料と物理学、高密度包装材料の界面物理に関する研究、高温超電導物質の表面・界面に関する研究。Japanese Journal of Applied Physics、Modern Physics Letter、Applied Physics A、Chinese Physics等で論文60本以上を発表。1997年から全国マイクロビーム分析標準化委員会・表面化学分析標準化技術委員会の主任委員を務め、表面分析の標準化研究作業に従事。2005年に全国ナノテクノロジー標準化委員会の副主任委員を務め、ナノテクノロジーの標準化作業に従事。

1. 問題提起

ナノテクノロジーは人類の生活と生産のさまざまな分野に関係する。20世紀末にナノテクノロジーは急速に発展し、ナノ素材の多くに特殊な性能があることが見出された。セラミックス、マイクロエレクトロニクス、バイオテクノロジー、光電気、化学工業、医学、分子の自己組織化及び光学等の実用面で幅広い将来性があり、科学技術上の多くの難題を解決でき、人々に幸せをもたらした。この新技術により、人々の生活のさまざまな分野に大きな進歩がもたらされることが期待されている。一方、遺伝子工学、クローン技術及び原子核物理学の発展により多くの倫理的問題が発生したことから、ナノテクノロジーの進歩でも倫理面でのとまどいに直面するのではないかと人々は懸念している。ナノテクノロジーの発展では合理的な規範と正しい運営方針により、健康的で調和のとれた社会の発展を導くことが望まれている。ナノテクノロジーは豊かで調和のとれた世界を創造し、人々が十分な食料、安全な飲料水、そして清潔で安全な生活環境を享受できるよう全人類に対し奉仕しなければならない。

米国を主とする西洋の国々は2004年6月以降、「責任あるナノテクノロジー研究開発に関する国際対話」を数回にわたり開催した。第1回は2004年6月17～18日に米国バージニア州アレクサンドリアで開催され、25の国、地域及び国際機関の代表が出席した。主な議題はナノテクノロジーと人類の健康・安全との関係、環境に対する影響・ハザード・リスク、社会経済と倫理への影響であった。また、ナノテクノロジーと発展途上国の問題についても特に話し合われた。

第2回は2006年6月26～28日に東京で開催され、23の国、地域及び国際機関の代表が参加し、各国のナノ分野のリーダーたちが責任あるナノテクノロジーとの研究・開発について非公式な対話を行った。参加者は5つの分科会、すなわち、環境・健康・安全（EHS）、倫理・法律・社会問題（LSI）、教育・能力建設、発展途上国の問題、標準化に分かれた。第2分科会では中国科学院高エネルギー物理研究所ナノ安全実験室の趙宇亮主任が“China's Development for the

Safety Assessment of Manufactured Nanomaterials” というテーマで発表した。当時、国際標準化機構ナノテクノロジー標準化技術委員会（ISO/TC229）は成立後1年に満たなかったが、委員長が招聘されて参加した。

2008年3月11～12日にはブリュッセルの欧州議会で第3回会議が開催され、49の国、地域及び国際機関から代表97人が出席した。会議では主に、世界規模で1つの適切な枠組みをデザインしてナノテクノロジー専門の公共政策を策定することや、ナノテクノロジーで存在する問題の認識について互いに意思疎通すること、ナノテクノロジーに起因する問題について検証可能な評価方法を構築し、かつ、責任ある国際対話を確保することについて話し合われた。この会議では、国家ナノテクノロジー科学センター主任の王探研究員が“Progress on Responsible Research and Development of Nanotechnology in China”というテーマで発表し、中国のナノテクノロジー指導委員会や、ナノテクノロジーの健康、環境・安全面における中国の研究や標準化の進捗状況ならびにナノテクノロジーと一般市民とのつながり等の問題について説明した。

2. 標準化作業の主な任務

生産、貿易及び公共生活等の社会活動において、一定の範囲内で最善の秩序を得るために協議により制定され、かつ、公証機関により認可され、繰り返し使用される共通の規範的文書を「標準」という。標準は科学、技術及び経験に基づく総合的成果を基礎に、共通の最大効果を求めることを目的としている。一定の範囲内で最大の秩序を得るために、実際の、または潜在的な問題に対して共通の、ならびに繰り返し使用される規則を制定することを「標準化」といい、これには標準の制定、公布及び実施のプロセスが含まれる。標準化の重要性は、製品や生産過程、サービスの実用性の改善、貿易障壁の撤廃ならびに技術協力の促進にある。標準化の本質と目的は、標準の制定、公布及び実施を通じて、統一された最善の秩序と社会効率を獲得することである。

標準化の主な役割は、科学的管理の基礎を築くだけでなく経済全体の発展を促し、経済効率を高めることにあ

る。さらには、科学研究では研究作業の重複を避けることができ、製品設計では設計期間を短縮でき、生産プロセスでは科学的かつ秩序ある基礎の上に生産を進めることができ、管理規範では統一性や調和を促進し、効率を高めることができる。また更に、標準化は自然資源の合理的な利用や生態環境の維持、人類社会の既存利益・長期的利益の確保、製品品質の保証、消費者利益の保護などを促し、生産に関わる社会の各構成要素を調和させ、順守すべき共通規則を構築し、秩序を安定させる。

標準化は貿易障壁の撤廃、国際的な技術交流と貿易の発展、国際市場における製品の競争力向上に大きな役割を果たすだけでなく、健康や生命の安全を保証する上でも重要な役割を果たす。環境標準、衛生標準及び安全標準を多数制定し、必要に応じて法的手段により強制的に取り締まることは、国民の健康と生命・財産の安全を保障する上で重要な役割を果たす。このため、ナノテクノロジーの標準化体系を整備することで、ナノテクノロジーの倫理的問題に対する人々の疑惑を消すことができるかもしれない。

3. ナノテクノロジーの健康、安全及び環境面における標準化作業

国際標準化機構ナノテクノロジー標準化委員会 (ISO/TC 229) は2005年11月に成立し、事務局は英国規格協会 (BSI) に置かれている。ISO/TC 229には成立と同時にナノテクノロジーの用語、測定法と評価、健康・安全・環境という3つのワーキンググループが置かれた。健康・安全・環境ワーキンググループ (ISO/TC 229/WG3) の主旨は、ナノテクノロジーの健康・安全・環境面に関係する標準を発展させることにあり、すでに国際標準ISO/TR 12885:2008 “Nanotechnologies-Health and Safety Practices in Occupational Settings Relevant to Nanotechnologies” を公布している。

このワーキンググループが現在取り組んでいる標準には、「ナノ素材サンプルのエンドトキシンに関する体外系統試験」、「発生したナノ粒子をナノ毒性学試験に用いるための標準」、「ナノ粒子吸引室の測定標準」、「ナノ素材のリスク評価体系」、「人工的に製造されたナノ素材の安全処理ガイダンス」及び「ナノ素材の安全データベース」等がある。このほか、ナノテクノロジーの持続可能な発展ワーキンググループを設置し、主にナノテクノロジーの発展によるマイナス影響、特に環境破壊の問題をいかに減らすか、を主に検討することとした。

わが国では2005年5月、ISOに先立ち全国ナノテクノロジー標準化技術委員会 (SAC/TC279) を設置し、その後もなくナノ素材標準化分化技術委員会とその他4つのナノテクノロジーの測定・加工技術と関係する標準化ワーキンググループを設置した。SAC/TC279の成立記念式典の際に、ナノテクノロジー・バイオ製薬標準化準備グルー

プの設置が提案された。

この分野の及ぶ範囲は広く、協調作業に時間がかかるため、全国ナノテクノロジー標準化委員会の傘下にナノテクノロジー健康・安全・環境標準化ワーキンググループが2010年3月に設置された。このワーキンググループは中国医学科学院基礎医学研究所の管轄下であり、ナノテクノロジーの医学的・生物学的効果ならびにナノ素材・ナノ製品の生産・包装・輸送・使用プロセスにおけるヒト・環境の安全性に対する影響の標準化作業を行う。実際に、わが国ではナノ粒子製造における湿式法、検査法及び労働者保護技術の分野ですでに国家標準または業界標準を30件公布している。これら標準・法規はナノサイズの粒子を対象に特に制定されたものではなく、マイクロメートル以下の粒子を対象としたに過ぎないが、ナノ粒子の製造にも同じように使用される。当然ながら、ナノサイズの粒子の製造、検査及び労働者保護技術に対する要求はより高くなる。

中国科学院高エネルギー物理研究所は2001年11月に「ナノ物質の生物毒性に関する研究レポート」を発表した。中国科学院は「科学的発展観」の見地から、ナノ素材の安全性研究について明確な見解を持ち、かつ、多くの分野にわたり整備を行った。国家科学技術部、国家自然科学基金委員会及び国家ナノ科学センターもこの分野の研究作業を支援した。中国科学院、中国医学科学院、軍事医学科学院、中国医科大学、北京大学、東南大学等の研究機関もナノ素材の生物学的効果と毒性に関する研究を行っている。

2004年11月30日から12月2日まで、「ナノ物質による生物学的効果」をテーマとする第243回香山科学会議が北京で開催された。中国科学院の白春礼院士、北京大学の劉元方院士、中国科学院武漢分院の葉朝輝院士、中国医学科学院の強伯勤院士及び中国科学院高エネルギー物理研究所の趙宇亮研究員が座長を務め、ナノ科学、生物学、化学、医学、物理学、環境学等のさまざまな分野の専門家40名余りが会議に招待された。中国科学院高エネルギー物理研究所ナノ生物作用実験室の研究者が特別報告を行い、高エネルギー物理研究所の最新の研究成果と今後の研究計画を紹介した。2007年11月27～29日には「ナノテクノロジーと環境安全」をテーマとする香山科学会議の第314回学術シンポジウムが北京で開催され、解思深、魏複盛、張先恩及び劉錦准研究員が座長を務め、物理学、化学、材料学、環境学、情報・生命科学等の研究機関及び企業から40名余りの専門家が招待された。参加者は「ナノ素材の環境リスク及び安全性評価」、「ナノテクノロジーと環境管理・修復」、「ナノ検査技術と環境モニタリング」の3つのテーマについて討論し、ナノテクノロジーと環境安全分野におけるわが国の研究について、次の提言がなされた。すなわち、(1)現行の技術レベルでナノテクノロジーと環境の安全性に関する公共の研究プラットフォーム

ムを構築し、国内のナノテクノロジー及び環境分野の専門家に学際的研究のための公共の場を提供する。(2)新しい環境モニタリング及び安全性評価体系を構築する。(3)国の関連政策においては、ナノテクノロジーと環境安全問題を重視し、支援を強化すること。これら提言をきっかけに、科学技術部はナノテクノロジーの生物学的安全性分野における科学技術事業と研究を大々的に支援するようになった。

全国ナノテクノロジー標準化技術委員会とナノ・バイオ製薬標準化準備ワーキンググループはそれぞれ2006年3月23日及び2007年7月16日に中国科学院物理研究所及び中国疾病対策予防センター（中国CDC）職業衛生・中毒制御研究所において、ナノテクノロジーと健康・安全・環境問題に関するシンポジウムを開催し、国家環境保護総局、中国疾病対策予防センター（中国CDC）職業衛生・中毒制御研究所、中国疾病対策予防センター環境・健康関連製品安全研究所、中国医薬品・バイオ製品製品検査所、中国医学科学院、軍事医学科学院、北京大学、清華大学、中国医科大学、冶金工業情報標準化研究院、北京理化分析試験センター、中国科学院物理研究所、中国科学院高エネルギー物理研究所、中国科学院生態環境センター、国家ナノ科学センターの代表が参加した。2回のシンポジウムで、参加者は各機関で関心を集めているナノテクノロジーと関連製品の健康・安全・環境面における状況やわが国におけるナノテクノロジーの健康・安全分野における研究の進捗について情報交換した。ナノテクノロジーの健康・安全・環境問題は、国家標準化管理委員会の「第11次5ヵ年計画」にもリストアップされている。

標準化の問題は科学技術の問題だけでなく、管理学、法律学、倫理面での問題とも関係するため、自然科学、エンジニアリング、人文・社会科学分野をつなぐ架け橋やきずなであるとも言える。ナノテクノロジーの健康・安全・環境標準化ワーキンググループの成立により、社会科学と自然科学それぞれの研究者によるナノテクノロジーの倫理問題での交流と意思疎通がより促進されるだろう。ナノテクノロジーの標準化には倫理学研究者と法律専門家による関与とアドバイスが必要である。自然科学と社会科学の専門家は手を携え、ナノテクノロジーの持続可能な発展と生活の向上に向け、共に貢献しなければならない。

台頭しつつあるRNAナノテクノロジー

•Profile•



肖 守軍 Xiao Shoujun ●南京大学配位化学国家重点実験室副主任、教授

1963年12月生まれ。1985年、復旦大学本科卒。1988年、同校修士課程卒。1999年、スイス・チューリッヒ工科大学（Swiss Federal Institute of Technology Zurich）材料科学領域（博士号取得）。スイスInterstate University of Applied Sciences of Technology Buchs、米国ミネソタ大学、Fluidigm Corp.研究開発部にて研究。東南大学生物医学工程系で助教、講師、准教授を歴任。2003年～現在、南京大学教授。主な研究分野は、表面化学、バイオチップとバイオセンサ、DNA/RNAナノテクノロジー等。発表論文100本以上。

RNAナノテクノロジーの歴史はニューヨーク大学のSeeman教授が30年前に切り開いたDNAナノテクノロジーに遡る。Seeman教授のグループは数本の合成した一本鎖DNAを用いて生物学的に存在する、又は自然由来のものに類似する構造モチーフを構築した。例としては、ホリデイモデル類似物や三角形、平行四辺形等がある。それから、構造モチーフ又は建築モジュールを用いてマイクロ・ナノスケールの立方体、「ボロミアンリング」、2次元陳列構造及び3次元結晶体を構築し、さらにこの10数年でウイルスDNAをテンプレートとした2次元及び3次元のDNA折り紙を組み立てる技術やDNAナノロボット、DNA陳列をフレームにした機能ユニットを発展させた。RNAナノテクノロジーはDNAナノテクノロジー模倣して発展したが、より複雑なRNA3次元構造がRNAナノ構造の課題を増大した。例えば、一本鎖DNAは一般的に1次元ライン状の無秩序な蓄積に過ぎず、確定した二次構造を持つことは非常に少ないが、一本鎖RNAは異なる。自然界の大多数の一本鎖RNAには確定した二次構造があり、「クローバー構造」こそ一本鎖RNAの二次構造のイメージである。tRNA、mRNA及びリボザイムの触媒作用等、RNAの持つ機能の多様性により、RNAナノテクノロジーは薬物送達、遺伝子治療及び細胞学的干渉等の応用分野で重要な意義を持つだろう。RNAはアデニン（A）、ウラシル（U）、グアニン（G）、シトシン（C）で構成されるリボ核酸高分子の一種であり、有名なWatson-Crick型DNA塩基対（A-T, G-C）の二重らせん構造と完全には一致しない。さらに、RNAの二次構造にはある種の非典型的な塩基対が往々にして現れ、これによりRNA分子はしっかりとした構造に折りたたまれる。これがナノテクノロジー分野のRNAがDNAと区別される顕著な特徴である。RNA/RNA、RNA/DNA、DNA/DNAの3種類の二重らせんの中では、RNA/RNAが最も安定した構造である。DNA及びRNAナノ構造は基底から上部に向かった「自己組織化」技術であり、テンプレート法と非テンプレート法の2つの方法がある。テンプレート法とはRNAの特殊な外力、構造及び限定された空間の作用のもとでの分子間の相互作用であり、例えばRNAの転写、交雑、複製、成

形及びphi29 pRNA-U6の形成がこれに含まれる。非テンプレート法とは数多くのモノマーが一つの体系内で物理的、化学的又は生物学的なさまざまな相互作用により、エネルギーの比較的小さなナノ構造を自主的に組み立てることをいい、化学結合、共有結合、RNAの環/環相互作用等がこれに含まれる。Seeman教授がDNAナノテクノロジーで使用する建築モジュールのDNAタイルは4～6個の塩基の粘性末端を「ほぞ」（突起）として構築したものであり、溶液中に安定的に存在するRNAナノ構造を構築するのにこれら4～6個の塩基の粘性末端で充分である。ある状況下では、2個の塩基の粘性末端でもRNA複合体の形成を促すことができる。さらに、RNAはある種の特殊な三次構造を形成してRNA/受容体の相互作用とRNAフィブリルの形成を制御し、合成リボザイムを作りだすことができる。最近、ある企業が80個の塩基で構成される合成RNAをすでに提供可能であることを発表した。典型的なRNAには分子内又は分子外との相互作用に用いる大量の一本鎖環状構造が含まれ、これらの環はナノ構造を組み立てるほぞとなり得るため、ナノ構造を構築し、組み立てる際に外的なほぞ（又は楔、釘等）は重要とならないだろう。RNA中の一本鎖環は他の構造モチーフとともにさらに複雑な二次・三次構造を構築できるため、RNAの分子構造と機能の多様性及びその低エネルギーの折りたたみ構造は、現在台頭しつつあるRNAナノテクノロジーにとって重要な意味を持つ。RNA分子は、生物学的機能を持つさまざまな種類のナノ構造を構築することができる。

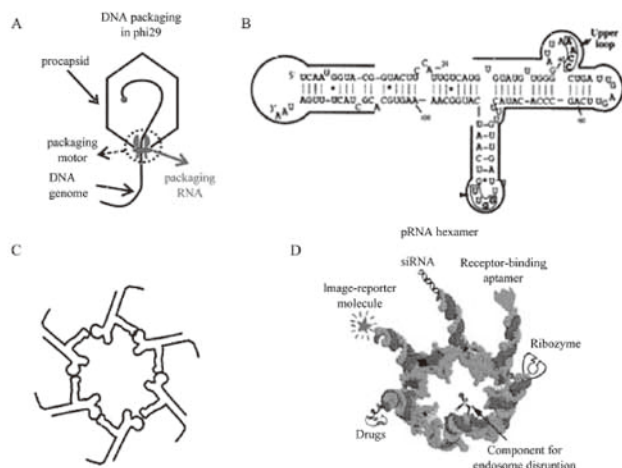
DNA及びRNAナノ構造の調製には、プログラム化され、アドレッシング可能で、かつ予測可能な建築モジュールを使用する必要がある、これら少数の数本のDNA及びRNA鎖で構成された建築モジュールは、事前の設計に基づき、試験管内または細胞体内で自己組織化してマイクロ・ナノオーダーの一次・二次・三次構造となり得る。DNA及びRNAナノテクノロジーはともに基底から上部に向かう分子の建築技術を確立し、生物学上の高分子とバイオテクノロジーを成功裡に結び付けてナノテクノロジーに応用できるだろう。そして、この成功はナノテク

ノロジー分野で重要な意味を持ち、かつ、時代を超える技術革命となるだろう。

各種RNAナノ構造の形成の方法と有名な実験について、以下に紹介する。

1. phi29ファージ的pRNAナノモーター及びそのRNA誘導体分子の自己組織化ナノテクノロジー

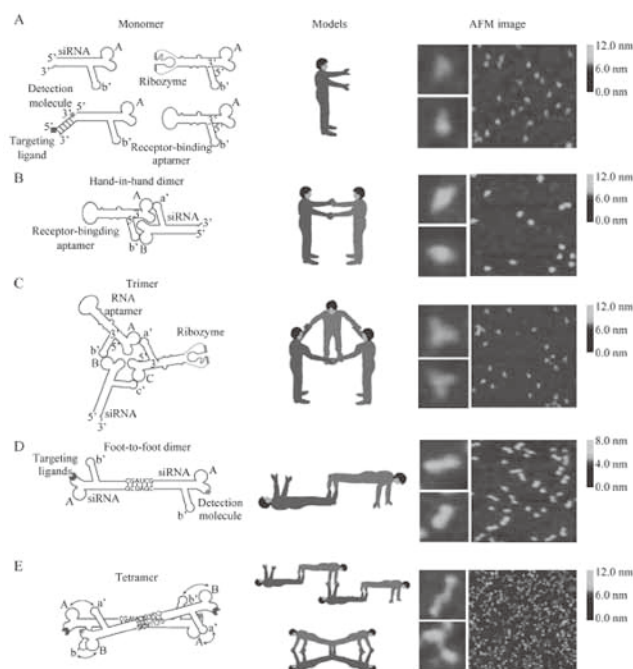
1つ目の方法は、天然RNA分子を利用してナノ構造を構成するもので、すなわち細胞内でさらに高次のポリマーを形成する。phi29ファージのDNAはモーター中のpRNAを組み立て、2つの環の左右のインタロックの手-手（握手）の相互作用の自己組織化により六量体を構成し（図1）、ショウジョウバエの胚のbicoid mRNAは手-腕の相互作用により二量体を形成し、大腸菌のノンコーディングRNA DsrAはパリンドローム配列により絞様状の図案と束状の凝集体を組み立てる。体内で組み立てられたRNAを模倣して体外で組み立てられたナノ粒子については12年前に報告されているが、非典型的HIV吻合リングのメカニズムも後述の「tectoRNA」建築技術の設計を促進している。DNAと比べて相対的に単一な二重らせん構造から言えば、天然のRNAは数多くの機能を全うするべく、驚くほど多種多様な三次構造を表出している。



◎図1 phi29ファージ中でDNAを輸送するpRNAナノモーター

自然界に存在し、すでに解読されているRNA分子モジュールを使用したRNAナノ構造の構築は真っ先に思いつくはずであり、RNAナノテクノロジーの発展もこの路線で進められてきた。生物学者たちは各種のRNAモジュールの配列、構造及び相互作用のメカニズムについてすでに長年研究している。例えば環/環の相互作用や三次構造の連結、特殊なモジュールの構築についてはすでに詳しく解読されており、新たな性質と構造を持つRNAナノ粒子の構築に使用できる。pRNAナノモーターの構築に啓発され、研究者たちはpRNAの配列にわずかに修正を加え、

RNA二量体、三量体及び四量体のナノ構造を構築した。図2に彼らの組み立てた原理モデル、アニメーションによるイメージ及びAFMで観察された実験画像を示す。その原理は、手と腕の左右のインタロックの環/環の相互作用ならびに脚部の塩基対を使用したものである。



◎図2 改造pRNA分子で形成されたモノマー、二量体、三量体及び四量体

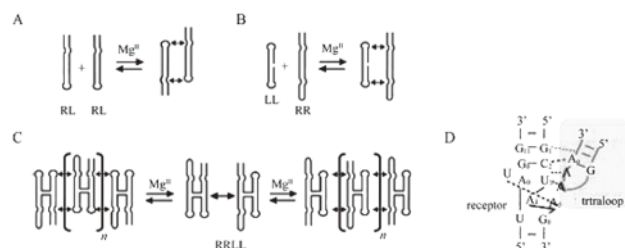
左から右へ：phi29 pRNAを用いて体内で組み立てられた左-右インタロック環とパリンドローム配列を持つsiRNA・リボザイム・アプタマー及びその他のRNA分子でナノ粒子を組み立てる原理、ヒト・アニメーションモデル、AFM図。

2. DNAを模倣したRNAナノ構造技術

2つ目の方法は、比較的成熟したDNAナノテクノロジーの原理をRNAナノ構造に応用するものである。RNAとDNAの折りたたみの性質は完全には一致しないが、DNAのナノ建築技術の原理をRNAナノテクノロジーに応用することはできる。三次元結び目及び四次元結び目を用いてさまざまな様式の新たなRNAナノ構造を構築する技術とDNAの分枝機構の構築は似ているため、RNAとDNAのモジュールはいずれもタングラムの構築に用いることができ、RNAとDNA分子はいずれも二次元平面上の縦方向に延びることでナノチューブとその束を構成し、RNAの二重らせんに突起を挿入することで結び目の束を形成することができる。その後、DNA鎖上で塩基を挿入・削除して手としてのDNA束を形成することもできるが、RNAの突起は非典型的な塩基対であるため、より堅固である。DNAのねじれは、2本の二重らせん又は4本の一本鎖間の相互作用を要求する。

人工的に設計され、組み立てられたRNAナノ構造の典型的な研究についてはJaegerらが発表している。彼らの

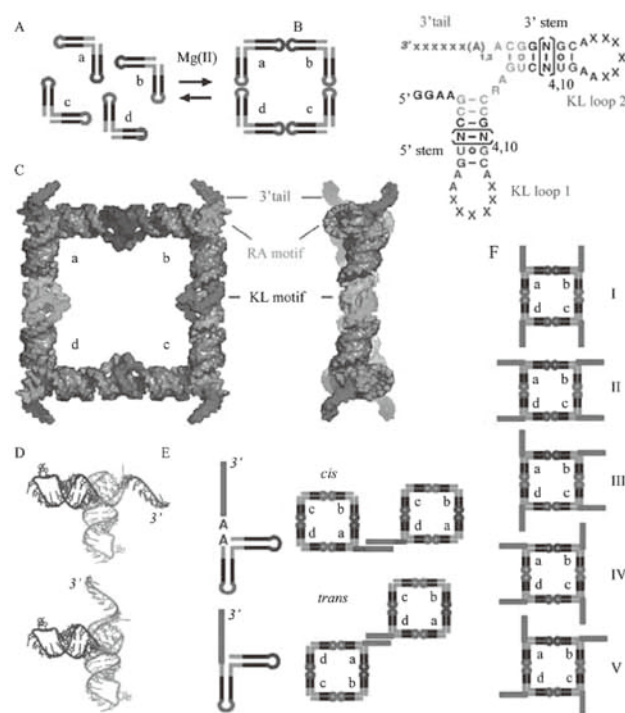
言うRNA構造技術の分子建築モジュールは、二次構造を持つ1本の「tectoRNA」である。Jaegerらは小RNA分子構造の二量体と一次元の線形ポリマーを利用した。RNA分子はDNAテンプレートを用いて体外で転写して合成したものである。図3にその組立て原理を示す。



◎図3 RNA-tectonicsの組立て原理

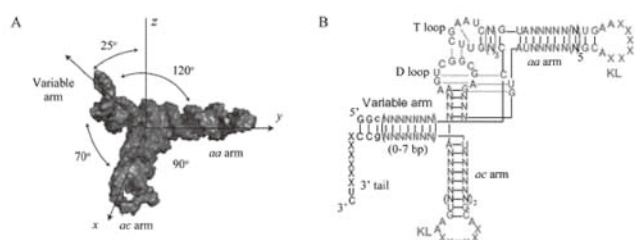
RNAを用いて構築されたモジュールで可視化された二次元の網状タングラム迷路 (jigsaw puzzle) 図案を組み立てることはRNAナノテクノロジーの有名な例の一つであり、Jaegerらが先に述べた「tectoRNA」を基礎にしたものを報告している。彼らはRNAモジュールを用いて正方形を形作り、その後、正方形モジュールを用いて二次元の網状配列を構築した。tectoRNAは一本のRNA鎖であり、文献から啓発されたものである。彼らは構造がすでに知られているリボソームの結晶体から2つの小さなRNA構築モジュールを選択した。その構造は図4 (B) のとおりで、それぞれのtectoRNAには2つの機能エリア、すなわちKL及びRA機能エリアがある。KLには11個の塩基で構成されるヘアピンループが2つある。直角に配置されるRA機能エリアの配列は公認のもので、図4 (B) に黄色の配列で示しており、この中で折りたためるのは対になっていない2つのAA塩基である。両側を線で囲んだ対をなす塩基 (N-N) 4,10はステム (stem) の一部で、ステムと称するエリアはKLとRAをつなぐ配列であり、ステムの長さは調節可能である。Jaegerらは9個 (10ナノメートル。STと示す) 又は15個 (13ナノメートル。LTと示す) の塩基対を連結するステムとして用い、1つのtectoRNA内の2つのヘアピンループとまた別のtectoRNA内で対応するヘアピンループとの間で非共有の環-環結合を生じさせることで準正方形を形成した。この正方形は完全に平面ではなく、4つの角のRAエリアから、対をなしていない一本鎖が設計に基づきさまざまな方向に伸び、図4 (C) のようにより正方形に近いローテーブルの形になる。設計された準正方形「tectosquares」の4本の脚は粘性末端 [図4 (C)] であり、3' 端のステムループの部分から伸びてきたもので、5' 端に比べてさらに制約を受けて方向性のあるものと考えられ、ただRA機能エリアの配列を転移させるだけで、3' 末端の方向を90°変更できる。このほか、塩基の長さのわずかな変化により粘性末端の半巻きらせん

を増加又は減らすことで、対をなしたtectoRNAの方向を変化させることができる。例えば、2つのシス型 (cis) 配列のtectoRNAをトランス型 (trans) 配列に変化させ、準正方形tectosquareの安定性を温度勾配のある電気泳動を用いて検査し、AFMを用いてその形態を特徴づけることができる。例えば、LTは一辺の長さが 13 ± 3 nm、夾角が $70 \sim 110^\circ$ 、中心の空洞の直径が 3 ± 1 nmの準正方形を構成した。実験で、Jaegerらは12個の3' 端で塩基を6個もつ粘性末端を設計することで、9つの異なる周期構造を構築した。粘性末端の結合自由度はKLに比べ2オーダー低く、KLは 60° で解体するが結合した粘性末端は 35° で解体する。3' 端の粘性末端の長さが塩基12個の時はその正方形モジュールはシス型配列で構築され、3' 端の粘性末端の長さが塩基10個の時はその正方形モジュールはトランス型配列で構築され、異なる配列を組み合わせることで多様なナノ配列図案を得ることができる。ナノ配列のサイズは3' 端の方向と大きく関係する。例えば、図4 (F) 中のI (0.5~1マイクロメートル) はII (0.05~0.1マイクロメートル) で構成される配列より約10倍大きい。



◎図4 正方形建築モジュールの構造と配列の原理

最近、JaegerらはtRNA分子を用いて立方体や八面体等の多面体の立体構造を構築することについて報告した。図5 (B) はtRNA分子の配列であり、その立体構造は図5 (A) で示されるようにacとaa腕は互いに垂直であり、多面体と網状構造はacとaa腕上の2つのKL吻合リングのマッチングと可変腕上の3' テイル (tail) の塩基マッチングにより構築される。



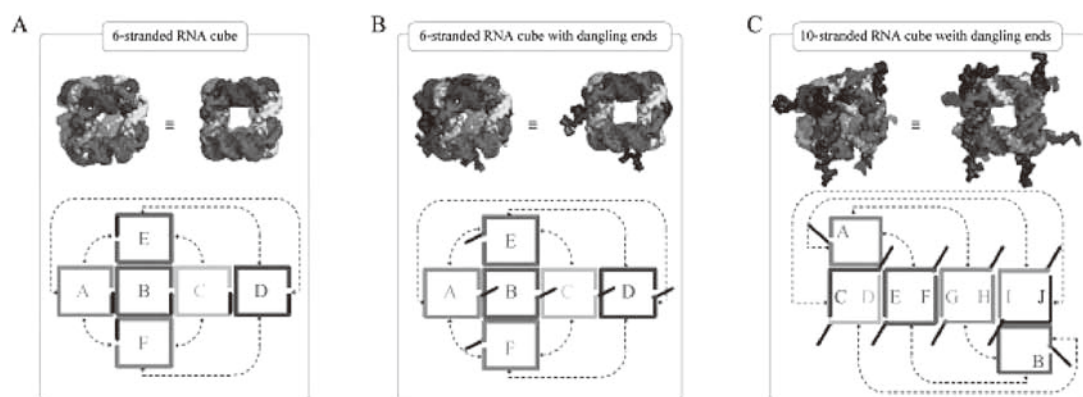
◎図5 tRNA分子の立体位置関係 (A) とtRNA分子の配列 (B)

3. 設計のプログラム化と数学的計算

3つ目の方法は、RNAナノ構造の構築プロセスで数学的計算法及びコンピュータによる設計のプログラム化を利用することである。原始的な材料から自己組織化したナノ材料の外観やパーツしか選択しなかった従来の方法に比べ、次世代の分子建築モジュールは設計が先立つべきである。例えば、現在の大規模集積回路 (LSI) の設計に学び、又は模倣して既知の特性を持つRNA分子モジュールを設計し、これらモジュールを用いて必要なナノ構造を構築する。計算法を利用した組立ては3段階に分かれる。つまり、まず計算を行い、それからRNAモノマー分子を合成し、最後に組立てを行う。計算と設計を経たRNA配列は固相合成又は分子生物学の転写方法により合成され、RNAナノ構造はテンプレート法及び非テンプレート法により自己組織化され、構造が解読されているRNAの豊富なデータベースはRNAモジュールに用いられる。例えば、最近報告されたRNA立方体がまさにその一例で、RNA配列は計算により最適化されて動力学的捕獲を回避し、数本のRNA鎖は確定されたモデルにより相互間で自己組織化して立方体を形成した (図6)。これは、Seeman教授のDNA立方体の再現と見なすことができるが、DNAナノテクノロジーと異なるのは、RNAの合成能とRNAの自己組織化を統合させ、かつ、体外の転写プロセスで自己組織化されたRNA立方体を生じることである。

4. RNAナノテクノロジーの実用、課題及び展望

RNA構造の多様性、交雑時の自由エネルギーの低さと安定性、配列の可塑性及び構造制御の選択性により、RNAはナノテクノロジーの実用で理想的な材料となっている。RNAのナノ構造の組立てには機能体の接合、モジュールの架橋、モノマーのマーキング及び核酸の修飾等がある。RNAの合成には化学合成法及び酵素合成法があり、過去に著しい進歩を遂げたといえ、DNAのコストパフォーマンスに比べるとはるかに低く、現在、商業的に合成されたRNAはわずか40～80個の塩基配列しか提供できない。RNAの固相合成による生産率は低いため価格も高価となるうえに、改善には莫大な精力を注ぐ必要がある。RNAマーカーについて言えば、5'又は3'端の蛍光マーカーを優先的に検討する必要がある。なぜなら、それらは物理的な立体障害を回避し、化学的に合成されたRNAは末端の修飾に困難をきたさないが、酵素で合成された長鎖RNAマーカーには課題がある。酵素合成法による5'端マーキングの1つの方法は、転写の開始にのみ使用できて鎖の伸びたグアニル酸 (GMP) 及びアデニル酸 (AMP) には使用できず、RNA蛍光マーカーでは新試薬tCTPを用いることができ、T7 RNAポリメラーゼを用いて体外で合成される。RNaseリガーゼIIは既存のT4 DNAリガーゼに比べ良好な代替品であり、2つの合成RNAを連結させて長鎖RNAを生じることができる。酵素合成法では3'端の不均一性が依然として難題であったが、その解決方法の一つは配列の転写を延長した後にリボザイム、脱酸素リボザイム又はRNase Hを用いて設計された遺伝子座で切断するものである。tRNAキャリアを用いれば細菌内でもRNA複合体を大規模に生産できる。RNAナノテクノロジーの成熟につれ、RNAの工業生産量は増加し、コストが低減されることが予測される。このほか、RNA分子の機械的安定性はDNAより良いことが証明されているとはいえ、天然のRNA分子はRNaseに非常に敏感であり、特に体内及び血清内で非常に不安定であることがその実用を妨げている。RNAの安定性の改善は



◎図6 小RNA分子塩基の相互マッチングの設計を通じて得られた立方体

時とともに大幅な進展を見せており、5-Br-Ura及び5-IUraの修飾、リン酸の架橋（SH基を有するリン酸及びリンホウ酸）、2'-F、2'-O-メチル基、2'-アミノ基修飾などのC2'の修飾はいずれも検討されたことがあるほか、ペプチド核酸、ロックド核酸（LNA）及びそれらの誘導体等も検討されたことがあり、3'端の閉鎖も二重らせんの塩基対形成の選択制を改変した。これらの方法の中で、2'-Fの修飾が最も好感された。それは、RNAの折りたたみ機能における副作用がわずかだったためである。

現在、いくつもの機能を持つ多様なナノ粒子に関する報告は数多くなされているが、均一に生産され、構造が明快で、レシオメトリックな機能集団としてのナノ薬剤は依然として難しい課題であり、構造や計量が不明確な如何なるナノ粒子も予想不能な副作用及び非特異的な毒性をもたらす可能性がある。RNAナノテクノロジーでは、構造と計量が明確なナノ粒子を均一かつ大規模に複製することができるため、安全性と品質コントロールを保証できる。薬物のターゲッティング輸送により低濃度での薬物供給が実現し、副作用が低減される。多重性は漢方薬の複方療法と相似し、混合薬剤に相乗効果を生じさせる。多重性の重要な長所は、単一な管理の下で同一のナノ粒子中で治療とその効果の計測を一本化できることである。

ナノサイズのRNA構造のもう一つの長所は、病変組織に効率的に輸送されることにある。多くの研究によれば、10~50ナノメートルのナノ粒子は非ウイルスキャリアの最適化サイズであり、このようなナノ粒子は十分に大きいため一定時間、体内に滞留することができる一方、小ささもちょうどよく、指標分子の誘導下でエンドサイトーシスにより細胞膜を通り抜けることができる。この種の新たなRNAナノ粒子の輸送能力は薬物動態学や薬物熱力学、生物学的分布及び薬剤の安全性能等を改善できる。また、タンパク質を含まないため、薬剤投与後の抗体生成を回避することができる。このように、RNAナノ粒子はがん等の慢性疾患やウイルス感染、遺伝性疾患等に対して多数回の治療を施すことができる。これらRNAの遺伝子制御機構のコントロールは、今後の遺伝子治療における福音である。

RNAナノ医薬品の新機能には、疾病治療時の細胞識別及び結合、受容体のエンドサイトーシス調製による薬物のターゲッティング輸送、遺伝子の細胞内における代謝の抑制及び制御、核膜の貫通及び血管-脳障壁の通過等が含まれる。細胞内の輸送及び生命活動において、RNAはDNAに比べてはるかに安定している。例えば、エンドソームは生体輸送の重要な方法の一つであるが、遺伝子キャリアとしてのDNA又はRNAのナノ粒子は、まず細胞表面の受容体に識別され、その後エンドソームを通して細胞内に運ばれる。エンドソームのpHは4.3から5.8の間で、DNAは酸性環境下でプリン塩基のプロトン化により

脱プリン化が導かれ、プリン塩基を失ったDNAは切断されやすい。しかし、酸性環境下でRNAは安定的に存在でき、かつ、エンドサイトーシスにより細胞体内に送り込まれる。RNAは分子の形式で存在するほか、生体内で自己組織化してナノ粒子となることができる。一方、DNAの体内合成は主にDNAの複製及びRNAの逆転写によるが、RNA分子はDNAテンプレートにより転写されるため、誘導可能なプロモーター及び適切なターミネーターを使用すれば、RNA分子は制御されて合成されうる。例えば、転写プロセス中の川上・川下の最終段階でδリボザイムを用いてシス切断すれば転写されたRNAをあらかじめ設計した長さに制御することができ、二量体や六量体のような天然のRNAナノ粒子はphi29ファージ内で発現し、pRNA及びtRNAの配列もsiRNA、リボザイム、アプタマー等の機能性RNA及び核酸の開閉を導き、体内でナノ粒子を構成する。

RNA構造の多様性は多くの長所をもたらすとはいえ、多様性はRNAの構造及び折りたたまれたナノ構造の予測に大きな課題をもたらし、その原因は非典型的な塩基対にある。このため、RNAの折りたたみ及びナノ構造の規則性にはさらなる分析及び整理が必要である。現在使われているZukerの予測方法は実験データに基づくが70%の正確性しかないことから、三次元及び四次元RNA構造の予測はさらに難しいことは明らかである。コンピュータに支援されたRNAナノテクノロジーの分子設計の強化が待たれる。

RNAナノ粒子の体内毒性には、さらなる研究が待たれる。新陳代謝及び生物学的適合性を考慮するなら、必ずしも最も安定したRNAナノ構造が体内で最も有用であるとは言えず、化学的に修飾された塩基の割合を調節することで、ナノ粒子に体内で適切な滞留時間を持たせることが最も説得力を持つだろう。

つまり、天然及び合成されたRNA分子は予定された構造に折りたたまれることができ、これら構造は多機能性RNAナノ粒子に自然に形成されうる。RNAナノテクノロジーの長所は以下のとおりである。すなわち、(1) 自己組織化により二次元構造を形成し、特に三次構造で実現可能性を有すること (2) 単体の固体分子がさまざまな階層で折りたたまれ、かつ、特異的な三次構造との相互作用能力を有すること (3) 明確な構造と計量可能な機能集団としてのナノ構造を有すること (4) 多重機能性。(5) 薬物のターゲッティング輸送。(6) タンパク質を必要としないこと (7) 治療及びその効果の計測を一つのナノ粒子中に一本化することができること、等である。RNAナノテクノロジーのブームは高まり続けており、医学、バイオテクノロジー、合成生物学及びナノテクノロジーの分野で今後、重要な役割を演じるだろう。

ナノ技術

光電気機能性結晶材料の研究の現状

•Profile•



王 継楊 Wang Jiyang ●山東大学晶体材料国家重点實驗室教授

1946年生まれ。1968年、南京大学化学系卒業。長期にわたり機能性結晶の調製、特性解明、応用研究等に従事。国家“973”、“863”、国家自然科学基金等の重大事業を担当。NdPP、PrPP、NAB、NYAB系列、KTP系列、KTN系列、LGS系列、化学計量比LiNbO₃等のさまざまなレーザ、非線形性光学、電気光学及び自己周波数通倍結晶を成長。国内外の学術誌で論文300本以上を発表。



呉 以成 Wu Yicheng ●中国科学院理化技術研究所研究員、中国工程院院士

1946年生まれ。1970年、中国科学技術大学卒業。1986年、中国科学院福建物質構造研究所卒業、理学博士号取得。長期にわたる無機非線形性光学結晶材料の研究、新型の非線形性光学材料の探索、結晶の成長及び非線形性光学特性の研究、結晶構造と非線形性光学性能との相互関係等の分野で顕著な業績。発表論文100本以上、中国発明特許12件、米国発明特許3件、日本発明特許2件。「新型非線形性光学結晶LBO」の第2発明者、「新型非線形性光学結晶CBO」の第1発明者、「新型非線形性光学結晶LCB」の第1発明者。

1. はじめに

機能性結晶は機能性材料の重要な要素であり、光、熱、電気、磁力、力学等のさまざまなエネルギー形式を転換させる重要な媒体である。光電気機能性結晶は種類が多く、それぞれの機能・性質に基づき光学結晶、レーザ結晶、非線形性光学結晶、電気光学結晶、圧電性結晶、シンチレーション結晶、磁気光学結晶等に分類できる。光電気機能性結晶はマイクロエレクトロニクス、オプトエレクトロニクス、通信、宇宙工学等のハイテク分野及び軍事技術における中核的材料として広く重視されている。わが国の光電気機能性結晶研究・応用は国際的にみても先進レベルにあり、特に無機・非線形性光学結晶の研究は世界のトップレベルにある。

光電気機能性結晶は現在、周波数帯の拡大、高出力、短パルス、複合化、小型化等の面で発展しており、更に大きな結晶及び質量が要求されるうえ、機能性結晶は複雑かつ劣悪な環境下での長期間にわたる実用化が求められている。

本稿では、現在重視されている数種類の機能性結晶に関する研究及び応用の現状について述べる。

2. レーザ結晶材料に関する研究の現状

半導体レーザ装置及び光ファイバレーザ装置は急速に発展したが、レーザ結晶は依然として全固体レーザ装置で用いられる最も基本的なレーザ基質材料である。最も広く利用されているのはNd:YAG、Nd:YVO₄、Ti:Al₂O₃の「3大基礎レーザ結晶」である。Nd:YAGは高・中出力レーザ装置に、Nd:YVO₄結晶は低出力の小型全固体レーザ装置に、Ti:Al₂O₃はチューニング可能な超速レーザ装置に用いられている。わが国はCe,Ndダブルドープ及びCr⁴⁺、

YbダブルドープYAG結晶の開発に貢献し、Nd:YVO₄の大量生産技術におけるブレイクスルーによりNd:YVO₄の応用を促進し、Nd:YVO₄/KTP光学接着技術を発展させ、小型全固体周波数通倍レーザ装置の産業化を実現した。Ti:Al₂O₃の温度勾配法による成長技術でも一定の特色を有する。

高い平均出力密度の固体レーザ装置で用いられるレーザ結晶としてはNd:YAG、Nd:GGGまたはYb:YAG結晶が主で、Nd:YAG透明セラミックスまたはYbガラス光ファイバが補助的に使用されてきた。大スケールのNd:YAG結晶成長技術はすでに大きな進展を見せている。中国科学院上海光学精密機械研究所は温度勾配法を用いてYAG類の結晶を成長させたところ、「結晶核の芯」を回避でき、成長させたNd:YAGは2005年の2kWを上回る出力を実現した。同年、清華大学はLDポンプYb:YAGを採用したところ、やはり1kWを上回る連続出力が得られた。2006年、中国工程物理研究院はLDポンプNd:YAG熱容量レーザを採用したところ、3kWを上回る出力が得られた。中国科学院安徽光学精密機械研究所と山東大学は大スケールNd:GGG結晶の成長の研究で進んでいる。山東大学は独自に製造したチョクラスキー装置を用いて直径70mm、重さ8kgに達する良質なNd:GGG結晶の成長に成功し、シングルモードLDポンプでkWオーダー以上のレーザ出力を得た。

Nd³⁺:YVO₄は優れたレーザ基質結晶であり、LBO、BBO、KTP等の非線形性結晶と配合して使用され、近赤外に始まり、緑色、藍色から紫外に至るまでの全固体レーザ装置を調製でき、小出力の全固体レーザ装置において最初に選択されるべき、優れたレーザ結晶材料である。

研究者たちは、結晶の代わりに透明セラミックスを採

用してレーザ作動物質とすることを長らく試みてきた。中国科学院上海珪酸塩研究所、物質構造研究所、東北大学、山東大学、北京中材人工晶体研究院等はNd:YAGセラミックスについて研究した結果、粉末材料の調製、成型、焼結等で多くの経験及び進展を得ることができ、Nd:YAG透明セラミックスの調整に成功し、kWオーダーの有効レーザ回転を実現した。中国科学院理化技術研究所はNd:YAGセラミックスのレーザ回転、特にポンプ源の波長と出力との関係で特色ある研究を行っているうえ、良好な結果を得ている。

高い平均出力を持つレーザ装置に関する基本的な構想に基づき、マイクロチップ (microchip) またはディスク (disk) レーザ装置技術は発展した。ドイツの研究者がLDポンプYb:YAG結晶ディスクを採用したところ、10kW近いレーザが得られた。米国の研究者は多数のディスクを組み合わせたレーザ装置により、100kWないしそれを上回るレーザを得た。ガーネット結晶の活性化イオン濃度は低いため、レーザ装置は多数回の反射を経て初めて飽和・吸収に至った。高ネオジム濃度レーザ結晶、特に自己活性化レーザ結晶を発展させることによりレーザ装置の構造を簡略化できる。NdAl₃(BO₃)₄は典型的な自己活性化レーザ結晶であり、非常に高いNd³⁺濃度を有する一方で蛍光消光がほとんどない。中国科学院理化技術研究所は山東大学と提携し、波長885nmのLDポンプ4×4×0.39mm³NAB結晶のマイクロチップを用いたところ、最高レーザ出力は4.64Wに達し、スロープ効率は64%、光-光転換効率は57%であった。

中国科学院上海光学精密機械研究所及び上海珪酸塩研究所は、イッテルビウム・ケイ酸ガドリニウム (Yb³⁺:Gd₂SiO₅) ドープにより連続的かつチューニングされ、Q調節され、成形機能を持つレーザ出力で、かつ、低閾値・広い波長帯域・超速のレーザ出力を実現した。974nmLDポンプを用いたところ、閾値はわずか77mW、スロープ効率は86%で、97nmの広い波長帯域の出力を実現し、かつ、連続成型機能343fsのレーザパルス出力を実現した。Yb:LYSO混合結晶中では1033nmから1111.1nmの広い波長帯域のレーザ出力が得られ、波長帯域は81.1nmであった。ドイツと協力して、Yb³⁺,Na⁺:CaF₂をLDポンプCPAの超強力・超短周波レーザシステムに用いたところ、パルス幅192fs、ピーク値出力1TWの出力を実現した。山東大学はドイツと協力し、Yb:LuVO₄中で成形機能を持つレーザ出力を実現したところ、パルス幅は58fsであった。無秩序性を向上させると超短パルスレーザの発生に有利であるという考えに基づき、山東大学はネオジム及びイッテルビウムをドープした無秩序構造Ca₄(NbGa)_{2-x}Ga₃O₁₂, (CNGG) 及びCa₄LiNb_(1.5+x)Ga_(3.5-2x)O₁₂, (0<x<0.75, CLNGG) 結晶を成長させたところ、この種のネオジム・ドープされた無秩序構造結晶中で初めて660fsの超短パルスレーザが得られ、Nd:CLNGG結晶中においても900fsの超速レー

ザ出力が得られた。

レーザ自己周波数通倍結晶の研究も大きな進展を見せた。山東大学はYb:YAB結晶中に976nm LDポンプを採用し、1.1W連続グリーンレーザ出力を実現したところ、自己周波数通倍出力による光-光転換効率は10%であった。中国科学院理化技術研究所はLa₂CaB₁₀O₁₉(LCB)結晶を発見し、LDポンプ8%Nd:LCBO結晶を採用して100mWを上回る自己周波数通倍出力のグリーンレーザを得た。ポンプX方向の結晶時には、Ca²⁺及びLa³⁺格位Nd³⁺にそれぞれ対応する1068.7nm及び1051.4nmの2種類の波長レーザが得られ、両波長間の周波数差は4.6THzに達した。山東大学は、希土類カルシウムオキソボレートCa₄O(BO₃)₃(RECOB, RE=Y, Gd)結晶のレーザ自己周波数通倍について多くの研究を行ったところ、これら2種類の結晶には空間分布において有効な非線形性係数が存在することがわかった。LDポンプ3×3×8mm³Nd:GdCOBの採用により得られたワットオーダーを上回る連続自己周波数通倍グリーンレーザ出力は、現時点でNd自己周波数通倍レーザの最高出力であり、ディスプレイ等の面で応用の将来性がある。中国科学院福建物質構造研究所は、四ホウ酸ナトリウム・レーザ結晶及びレーザ自己周波数通倍結晶について多数の研究を行った結果、チョクラルスキー法で成長させたNd³⁺:LaSc₂(BO₃)₄(NLSB), 3at%Cr⁴⁺:LSB結晶には非常に広い発射帯(780-1120nm)があり、蛍光寿命は17μsで可能性豊かなチューニングレーザ結晶であることがわかった。彼らはまた、チョクラルスキー法によりNd³⁺:Li₆Gd(BO₃)₃単結晶を成長させた。

3. 非線形性光学結晶材料の研究状況

一般的に、一つのレーザ装置はある特定の波長のレーザしか出力できないため、非線形性光学効果によりさまざまな波長のレーザを得るのが現在最もよく使われている方法である。米国は1970年代後期に水熱法で成長させた、総合的に性質の優れたチタニルリン酸カリウム(KTiOPO₄,KTP)結晶を開発した。わが国は溶塩(高温溶液)法によるKTPの大量成長技術を初めて構築し、低コストかつ高品質な結晶を獲得したため、この結晶は広く応用されるようになった。1980年代に「マイナスイオン基理論」が発表されると、わが国の非線形性光学結晶の模索、成長及び応用は大きな成果を見せ、β-メタホウ酸バリウム(BBO)、三ホウ酸リチウム(LBO)、K₂Al₂B₂O₇(KABO)、KBe₂BO₃F₂(KBBF)等の新たな結晶が次々に発見された。なかでも、BBO及びLBOは広く応用されている、世界的に有名な「中国産」の結晶である。KBBFは、現時点で世界で唯一、ネオジム・レーザ装置1.064μmの6倍率に実際に応用されている結晶であり、これを基礎に深紫外レーザ(DUV)分光学等の新たな研究分野が開拓された。

陳創天の研究グループは、高温溶剤を用いた温度振動

法により厚さ3mm超のKBBF単結晶を、福建物質構造研究所は水熱法により厚さ6mm超のKBBFを成長させた。研究の結果、水熱法によるKBBFの周波数通倍効率率は溶剤法より1-2オーダー低く、結晶の厚さが増しても効率が上がることはないことがわかった。現時点で実用価値があるのは、依然として溶剤法により得られたKBBF結晶である。2008年、 $14 \times 6 \times 2.1 \text{ mm}^3$ のKBBFを用いてプリズムカップリング装置によりNd:YVO₄レーザ6倍率の177.3nm出力を実現したところ、出力は12.95mWに、転換効率は0.37%に達した。ピコ秒Nd:YAGシステムでは177.3nmの光の出力は34.7mWに、転換効率は0.82%に達し、冷却条件下で長時間安定的に使用できた。さらに、Ti:Sapphireレーザによる調整可能な4倍率の連続高調波光（波長範囲は185nm-200nm）のワット級出力を実現した。177.3nm光源は一連の先進的機器、すなわち超高解像度の光電子分光装置、スピン分解・角度分解光電子分光装置、光子エネルギーを調節可能な深紫外レーザ光電子分光装置、深紫外レーザ・ラマン分光装置、深紫外レーザ光反射電子顕微鏡等で採用されている。光電子分光装置中で、超伝導状態における超伝導物質のクーパー対の形成が初めて直接観察され、超伝導物質CeRuの超伝導バンドギャップが観察されたことは、超伝導物質のメカニズム研究に新たなデータを提供した。KBBFの非線形性光学効果は主にマイナスイオン原子団 $(\text{Be}_2\text{BO}_3\text{F}_2)_n \rightarrow \infty$ によるもので、マイナスイオンの置換によりRbBe₂BO₃F₂ (RBBF) 及びCsBe₂BO₃F₂ (CBBF) という新たな結晶が得られた。RBBFは三方晶系、R32空間群、遮断波長は160nm、最短周波数通倍波長は170nm、結晶厚さは2mmに達し、潜在力のあるDUV結晶である。すでにCBBF単結晶が成長されており、紫外遮断縁は150nm付近である。

中国科学院理化技術研究所は新たな方法を採用し、世界最大の $170 \times 160 \times 79 \text{ mm}^3$ 、重さ1596gのLBO単結晶を90日間で成長させ、さらに重さ190gの全透明の三ホウ酸セシウム (CsB₃O₅, CBO) 単結晶を成長させ、 $5 \times 5 \times 34 \text{ mm}^3$ 結晶で103Wの355nmレーザ出力を得た。

赤外非線形性結晶は、非線形性光学結晶研究の関心事である。リン化亜鉛ゲルマニウム (ZnGeP₂, ZGP) は、最も多く実用されている赤外結晶である。四川大学では $\Phi 20 \text{ mm} \times 30 \text{ mm}$ のZGPを成長させたところ、2-12 μm の透過率は55%を上回った。ハルビン工業大学では $\Phi 22 \text{ mm} \times 90 \text{ mm}$ のZGPを成長させたところ、0.7 μm -12 μm の透過率は56%に達し、 $6 \times 6 \times 15 \text{ mm}^3$ のOPOパーツを加工したところ、2 μm 光ポンプで3.8 μm ~ 4.5 μm のレーザ出力を生じた。中国工程物理研究院は、 $5.5 \times 6.0 \times 18.0 \text{ mm}^3$ で ($\theta = 55^\circ$, $\phi = 0^\circ$) ZGP結晶をI類と整合させて繰り返し周波数OPOを調製したところ、5.2Wの2 μm 光ポンプで10mWの中赤外出力が得られ、2 μm から3 ~ 5 μm の光-光転換効率は12%で、繰り返し周波数は4kHzであった。チオインジウム酸リチウム (LiInS₂) の透過率は0.35-12.5 μm で、d₃₂

(10.6 μm) は15.8pm/Vに達し、抗光損傷閾値は他の結晶に比べ1-2オーダー高かった。山東大学は、創造性豊かな考えから、高圧釜を採用して大量の高純度単相LIS多結晶材料を合成し、ブリッジマン法を用いて直径が10mmを上回り、長さが40mmを超えるLIS単結晶を成長させたところ、0.39-12.5 μm 波長域は透明で、透過率は55%を上回った。

新たな赤外非線形性結晶を模索する中で、武漢大学と理化技術研究所は赤外結晶の光損傷メカニズムに対する認識から出発し、2元金属のハロゲン化物MAX_nの中からCsCdBr₃、Cs₂Hg₃I₈、HgBr₂、KSbF₁₀等の新たな結晶を見出した。CsCdBr₃は0.3-20 μm を透過し、非線形性効果は3KDPd₃₆であった。黄色Cs₂Hg₃I₈は0.5-25 μm を透過し、非線形性効果はKTP結晶と同じで、位相整合が実現できた。HgBr₂は0.4-20 μm を透過し、非線形性効果はKDPd₃₆の11倍で、位相整合が実現でき、抗光損傷閾値は0.3GW/cm²であった。デザインされたNaSb₃F₁₀は0.25-7.8 μm を透過し、レーザ傷閾値は1.3GW/cm²で、LIS閾値の10倍であった。

山東大学は、溶塩法を用いて新たな酸化物BaTeMo₂O₉ (BTM) $40 \times 30 \times 30 \text{ mm}^3$ 赤外非線形性結晶を成長させたところ、0.5-5.3 μm を透過し、d₃₁=10.18、d₂₄=3.64、d₁₅=1.91pm/Vが観察された。主な平面上の最大有効非線形性係数はd_{eff}=10.36pm/Vで、主な波長域でI類とII類の位相整合が実現できる。中国科学院福建物質構造研究所は、赤外非線形性結晶BaGa₄S₇について報告した。透過範囲は0.36 μm ~ 13 μm で、検知された粉末周波数通倍効果はLiInS₂と同等で、比較的高いレーザ損傷閾値を有した。

4. 電気光学結晶の研究状況

電気光学効果とは、結晶の屈折率が外部電場により変化が生じる現象をいう。屈折率と外部電場が正比例の変化を示す場合を線形電気光学効果またはポッケルス (Pockels)効果と言い、外部電場の二次方向と正比例の変化を示す場合を二次電気光学効果またはカー (Kerr)効果と言う。1960年代にレーザが発見されてから現在に至るまで、総合的な性質に優れた電気光学結晶は少なく、リン酸二重水素カリウム(KD₂PO₄, DKDP)とニオブ酸リチウム(LiNbO₃, LN)結晶の2種類しかない。

BBOは1985年に中国で発見された初めての「中国発」結晶であり、三方晶系に属し、3m結晶結晶点群で、透過光の波長域は189nm-3.5 μm で、線形電気光学係数 γ_{22} は2.2pm/V、 $6 \times 6 \times 20 \text{ mm}^3$ 半波長電圧 $V_{\lambda/4}$ は7.7kV、光損傷閾値は50GW/cm² (@1064nm) である。水平効果を採用して調製された電気光学Qスイッチは、高出力全固体レーザ装置に適用された。D. Nickelら及びG. D. Goodnoらはそれぞれ2回、結晶及びBBO結晶の断面積を減らす方法を採用して結晶の半波長電圧を減少させた。C. Stolzenburgらは、Yb:YAGマイクロチップレーザ装置中で $6 \times 6 \times 20 \text{ mm}^3$ のBBOを採用して電気光学Qスイッチとし、長さ7mmのI

類位相整合LBO周波数通倍により、最高で102Wの515nm周波数通倍グリーンレーザ出力を得た。現在、すでに商業用BBO結晶電気光学Qスイッチ器材が応用可能である。

チタニルリン酸カリウム (KTiOPO₄, KTP) と RTP は、いずれも優れた非線形性結晶であり、斜方晶系に属し、mm²結晶点群で、0.35-4.5 μm (KTP) 及び0.35-5.1 μm (RTP) を透過する。KTP及びRTPの電気光学係数 γ_{23} はそれぞれ15.7pm/V及び17.5pm/V、 γ_{33} はそれぞれ36.3pm/V及び40.5pm/Vである。KTPは電圧印加後に破壊または損傷が生じやすいため、結晶の電気光学的応用が制限を受けている。RTPのZ方向導電率は低く、抗光損傷閾値は高く、損傷が生じにくいことから、RTP結晶電気光学Qスイッチはすでに商業化実用されている。2001年、M.Rothらはトップシード法を用いて溶剤チョクラルスキー法による電気光学用KTP結晶の成長をバックアップする方法を報告した。2008年、M. Tseitlinらは、高インピーダンス単磁区RTP単結晶（重さ330g）を成長させ、これは電気光学スイッチの応用に適することを報告した。2009年、M. Roth及びM. Tseitlinは、応用上の必要に基づき[100]シードを採用し、K₆P₄O₁₃またはRb₄P₄O₁₃で構成された溶剤体系中でKTP及びRTP結晶を成長させたところ、特にRTP結晶が電気光学Qスイッチの制作に適した。溶剤体系内にPbOを加えたところ、損傷の発生を効果的に抑制することができたが、サイズ及び質量の同一な2つのRTP結晶を必ず使い、90°に回転して配置し、自然の複屈折を埋め合わせ、温度変化による複屈折を防止しなければならない。X方向のシードから成長したRTP結晶がこの応用に適する。

ケイ酸ガリウムランタン (La₃Ga₅SiO₁₄, LGS) は、レーザ、圧電気及び電気光学等の性質を有する多機能性結晶であり、さらには旋光性も有する。旋光性によって入射光の偏光面が旋回し、電気光学スイッチの設計が複雑化する。LGSは32結晶点群に属し、紫外線吸収縁は242nm、検知されたLGS電気光学係数 $\gamma_{11}=2.3\text{pm/V}$ 及び $\gamma_{41}=1.8\text{pm/V}$ で、水平方向の電気光学効果を利用して電気光学Qスイッチを制作した場合、アスペクト比は4:1-5:1間で、半波長電圧は3000-4000Vである。LGS電気光学Qスイッチは、結晶のZ方向に沿って通光し、X方向に沿って電場が印加されるため、LGSには旋光性があることを考慮し、線形偏光を利用して結晶を往復2回透過すると、結晶の旋光性による通光に対する影響を克服することができる。LGS電気光学Qスイッチの性能はDKDP電気光学Qスイッチと同等で、レーザ装置の局部発信出力が520mJの時、出力は359mJに達する。LGS電気光学Qスイッチの最高周波数は50kHzに、最高出力は7.5Wに達し、パルス幅は46nsで、連続出力は約10Wに達しうる。双端面ポンプ方式50kHzを用いた場合、最高出力は12.5Wに達し、パルス幅は依然として46nsで、連続出力は13.2Wに達しうる。

現在、電気光学結晶は非線形性結晶の研究モデルを借

り、マイクロ構造から出発して、高い電気光学効果を有する原子団及び構造の生産に有利な、新たな電気光学結晶を模索する必要がある。マクロ対称性による結晶の電気光学的応用に対する制約に基づき、優れた電気光学結晶を得られる対象結晶点群を研究し、機能性結晶の相互及び複合効果を考慮し、旋光性を有する結晶の中で新たな電気光学結晶を模索する。これらの作業はいずれも進行中で、一部にはすでに進展も見られている。

5. 光学超格子材料の研究状況

光学超格子は、準位相整合材料または非線形性光子結晶とも呼ばれ、主に強誘電性結晶LiNbO₃、LiTaO₃及びKTiOPO₄に集中している。強誘電性結晶による光学超格子の調製方法は多数存在するが、よく用いられるのは常温下での分極法である。複屈折の位相整合に比べ、マイクロ構造設計を通じて準位相整合を利用する方法では、透明波長域全体で周波数通倍、ビート周波数及びパラメータ振動プロセス等が実現でき、かつ、複屈折の位相整合で周波数変換した結晶（例えばLiTaO₃）で位相整合が実現され、非線形性光学効率が高まり、かつ、多数の非線形性パラメータプロセスによるカップリングが実現でき、パラメータ波の波面における配列が実現できる。

南京大学は準周期的な光学超格子を取り入れ、多重の準位相整合によりカップリングパラメータプロセスを実現するという構想を打ち出した。準周期的な光学超格子を利用して、2つまたはさらに多くの光パラメータプロセスを1つの結晶中に集約する。準周期的な光学超格子が提供する2つの異なる逆格子ベクトルにより、周波数通倍及び和周波数プロセスで同時に準位相整合条件を満たすことができる。Fibonacci準周期的な光学超格子を用いて3倍率を直接検証したところ、特殊に設計した設備の光学超格子で三原色が形成された。化学計量比LiTaO₃超格子を用いてレーザ周波数変換機器を作成し、調製された赤、緑、青の単色及び赤緑青の三原色（類白色）レーザ装置はワット級の出力に達した。第一案ではNd³⁺の2つの波長（1342nmと1064nm）のレーザ装置を光源に、1つの光学超格子を用いて1342nm周波数通倍と3倍率、1064nm周波数通倍のレッド、ブルー及びグリーンレーザを得て、結晶温度等を調節して三色光間のエネルギー分配を調節することで出力が1Wを上回る全固体三原色原型の類白色レーザ装置を調製した。第二案では532nmグリーンレーザをポンプ光に光学超格子を入力し、OPOにより633nm信号光（レッドレーザ）と3342nm遊休光を得たのちに、さらにポンプ光と遊休光と周波数で459nmのブルーレーザを生じ、1Wを上回るホワイトレーザを得た。転換効率は30%を上回った。

情報科学分野においては、光子は電子の後を継ぐ、さらに優れた情報キャリアである。南京大学は、ホイヘンスの原理を光学超格子に用いて設計し、非線形性光学機

器を製造する新たなプランを提起した。周波数通倍光のフォーカスを例に、光学超格子中で基本周波数光を伝播する際、その波面上のすべての点を基本周波数の光の波源を見なすと同時に、周波数通倍波の波源と見なす。光学超格子マイクロ構造を適切に設計することで、1つの光学超格子で多数の機能を同時に全うすることができる。例えば、周波数通倍、偏向、フォーカスを一体に集めることができる。

結晶内部の欠陥またはその他の非均一性により光の散乱が生じるが、これには弾性散乱と非弾性散乱が含まれる。非線形性プロセスが弾性散乱光に関わる際、光学超格子は弱弾性信号を顕著に強め得る。その原理は、微弱な弾性散乱光と入射光間で和周波数が実現可能なことにより、準位相整合条件下でこれらと和周波数の効率是非常に高くなる。六角分極における二次元光学超格子中ではさまざまな空間分布のテーパ形状の第二次高調波が観察され、投影スクリーン上では単環または複環が出現するが、これは準位相整合に關与する逆格子ベクトルと基本波が共線性か非共線性であるかにより決まる。このような明瞭なテーパ形状の高調波ビームは、赤外波長域の弾性光を可視光に直接変換するが、その強弱は散乱光の強度に正比例する。この方法を利用して検知された弾性散乱はタンタル酸リチウムに分布し、結晶の質量とマイクロ構造特性に対し効果的な方法を提供する。これは、1次元準周期的な光学超格子中でも観測される現象である。テーパ形状のビームは光学マイクロ操作、光情報処理、光学的加工及び量子光学等の分野に利用できる。

導波管構造中の非線形性周波数通倍プロセスは、短波長における新たな関連光源を得るための重要な道筋である。導波管中では、基本波の伝播速度は基板における周波数通倍波の伝播速度より速く、このことによって一定の角度で基板まで放射しうる周波数通倍波が生じうる。このとき、基本波が主導モデル、周波数通倍波が放射モデルであり、素粒子物理のCerenkov放射に相似するため、Cerenkov周波数通倍と呼ばれる。南京大学は1次元の超格子Cerenkov周波数通倍理論を二次元の超格子周波数通倍及び和周波数の発生にまで拡大させた。1064nm基本波光に対してはマルチビーム周波数通倍グリーンレーザが観察されたが、放射角に制限がなかったため、位相整合に多数の形式の可能性がある、1つの逆格子ベクトルを添加可能であると同時に、逆格子ベクトルを添加しない、または1つの逆格子ベクトルを減じることでも可能であった。和周波数プロセスでは更に多くの種類のCerenkov放射現象が示され、入射光には2つの周波数の異なる基本波が含まれ、非線形性プロセスで周波数通倍波を生じるほか、和周波数も生じた。入射波長が1064及び1319nmのときに、多色の「クリスマスツリー」が観察された。非線形性Cerenkov放射は全く新しい方向性であり、連続光源及びもつれ光源を提供する新技術となる可能性があること

から、重要な科学的意義と応用の将来性がある。

6. シンチレーション結晶の研究状況

高エネルギー放射線が通過する際に、蛍光パルスの放出を励起しうる結晶のことをシンチレーション結晶と言う。これはX線、 γ 線、中性子及びその他の高エネルギー粒子の探索に用いられる。無機シンチレーション結晶には、密度が高く、安定性及び性質が優れている等の長所があり、シンチレーション材料の主体となりうる。よく用いられるシンチレーション結晶には、ヨウ化ナトリウム (NaI:Tl)、ヨウ化セシウム (CsI:Tl)、フッ化バリウム (BaF₂)、ゲルマニウム酸ビスマス (Bi₄Ge₃O₁₂)、タングステン酸鉛 (PbWO₄)、アルミン酸イットリウム (YAlO₃:Ce) 等がある。

シンチレーション結晶は、わが国が優勢を誇る研究分野であり、「中国製」シンチレーション結晶が絶えずさまざまな国際プロジェクトに送り込まれている。例えば、欧州合同原子核研究機関(CERN)の電子陽電子コライダーのBGO結晶、日本のBelle実験及び米国のBabar実験のCsI(Tl)結晶等は国際的に良好な評判があり、莫大な経済効果を生んでいる。

ゲルマニウム酸ビスマス (BGO) は、最も多く応用されているシンチレーション結晶であり、高エネルギー物理及び放射線医療現像装置に用いられている。CERNが製造した電子陽電子コライダー中のBGO用量は12 000根(1.5 m³)に達し、わが国の結晶産業の国際化に向けたマイルストーンとなっている。ケイ酸ビスマス (Bi₄Si₃O₁₂, BSO) には良好な機械的性能と化学的安定性があり、減衰時間の短い新型シンチレーション結晶である。第三世代シンチレーターと称される、セリウムをドーブしたレアアース正ケイ酸塩結晶RE₂SiO₅は優れたシンチレーション性能を有し、Lu₂SiO₅ (LSO)、Gd₂SiO₅ (GSO)、Y₂SiO₅ (YSO) 等は良好な実用化の将来性がある。

わが国のタングステン酸鉛 (PWO) 製造技術及び研究は大きな進展を見せており、CERNは世界最大のハドロン衝突型加速器LHC中の重要なエンドキャップのPWO結晶で協力し、国家レベルの共同事業へとレベルアップさせた。CdWO₄ (CWO)は優れたシンチレーション検出器の材料であり、低温検出において宇宙に存在する弱い相互作用を有する重粒子(WIMP)の証明及び暗黒物質の低温熱容量計の材料の探索に選定されたが、下降法により $\Phi 40 \times 70$ mmのCdWO₄は不純物イオンを含むため、改善が待たれている。タングステン酸亜鉛 (ZnWO₄) は2 β 崩壊、暗黒物質及び α 、 β 崩壊の検出等の面で潜在の実用性があり、現在、 $\Phi 50$ mm $\times 100$ mm結晶を作成できる。

CeをドーブしたLaCl₃、LaBr₃、LuBr₃、RbGd₂Br₇、LuI₃等はNaI:Tlより高い発光効率と短い減衰時間を有するため、医療向け現像機分野で大きな将来性がある。アルミン酸塩で比較的多く研究されているシンチレー

ション結晶はYAP:Ce, LuAP:Ce, GdAP:Ce, YAG:Ce等である。YAP:Ceの光出力は温度変化に伴い小さくなるため、石油油井の探索や高温・極限条件下での応用に適し、高い時間分解性能が求められる医療設備、プロトン検出器でも実用化の見通しがある。上海光学精密機械研究所は、2009年にチョクラスキー法を用い高質量のYAP結晶を成長させた。YAG:Ceは応用軽い荷電粒子の検出、医療用現像、 γ 撮影、陽子線放出断層撮影走査 (PET)、コンピューター断層撮影 (CTS) に採用される。わが国は温度勾配法により $\Phi 100\text{mm}$ の高質量YAG:Ce結晶の成長に成功しており、これは軽電子検出の分野でCsI: Tl及びBGO結晶に取って代わる可能性がある。

7. PMN-PT緩和型強誘電性単結晶の研究状況

緩和型強誘電性単結晶 $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{-}x\text{PbTiO}_3$ (PMN-PT) の d_{33} 及び k_{33} はそれぞれ2500pC/N及び92%以上に達し、最大応力変形量はPZTセラミックス ($\text{PbZr}_{1-x}\text{Ti}_x\text{O}_3$) を1オーダー上回り、既存の圧電気セラミックスに取って代わり、新世代の高性能医療用超音波変換器、水中音波変換器、固体圧電気駆動装置等を製造しうる。中国科学院上海珪酸塩研究所は1997年にブリッジマン法により大スケールのPMNT単結晶を成長させ、米国のGE社、Siemens社及びPhilips社、日本の東芝等はこれら単結晶を既存の圧電気セラミックスの代わりに採用し、新世代の医療用Bプローブを開発した。米国、日本等の国家レベルの研究機関や企業は緩和型強誘電性単結晶の高技術分野における応用の将来性を好感し、緩和型強誘電性単結晶の設備、構造特性及び応用のための研究を進めた。緩和型強誘電性単結晶の基礎理論、設備及び機器への応用 (医療用Bプローブ、軍事用ソナー等) 研究を系統的にオーガナイズし、この分野における研究と開発を促進した。中国科学院上海珪酸塩研究所、福建物質構造研究所、西安交通大学、中材人工結晶研究院等もこの種の結晶の成長と応用に関する研究を進めた。中国科学院珪酸塩研究所は、さまざまな単結晶を成長させただけでなく、PMNT単結晶による高性能な医療用変換器、圧電気変圧器、超音波モーター等の機器の原型を製造し、かつ、水中音波変換器を共同で開発し、一部はすでに実用化されている。

新型の強誘電性緩和型単結晶の研究においては、PMN-PTと同種のカルシウム・チタン鉍構造を持つ $\text{A}(\text{B}_1\text{B}_2)\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ ($\text{B}_1=\text{Mg}^{2+}, \text{Zn}^{2+}, \text{Sc}^{3+}, \text{In}^{2+}, \text{Yb}^{3+}, \text{A}_2=\text{Nb}^{5+}, \text{Ta}^{5+}$) 結晶が広く研究されている。PZN-PTは高压電気係数、大きな機械電気カップリング係数及び誘電率を有するため、中国科学院上海珪酸塩研究所は、改善ブリッジマン法を用い、PbOを主溶剤とする体系の中で $\Phi 30 \times 25$ (mm) のパイロクロア相PZN (91) -PT (9) 単結晶を成長させた。

研究者たちは高いキュリー点の強誘電性緩和型単結晶の新たな体系、すなわち $\text{Pb}(\text{Yb}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PYN-

PT)、 $\text{Pb}(\text{In}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{O}_3\text{-PbTiO}_3$ (PIN-PT)、 $\text{Pb}(\text{Sc}_{1/2}\text{Nb}_{1/2})\text{-PbTiO}_3$ (PSN-PT) 体系を発展させた。この種の材料のキュリー点はいずれもより大きく引き上げられた。しかし、結晶の成長と材料の成分構成、均一性の制御はいずれもやや難しかった。2元型を基礎に3元型の強誘電性緩和型単結晶の成長及び性質を研究したところ、3元型体系のほうが結晶の成分と特性がよりよく調整できたものの、単結晶の成長難度も増した。研究対象にはPIN-PMN-PT、PSN-PMN-PT等があり、研究の結果、キュリー点はやや上昇し、圧電気性質にも改善が見られた。例えば、PIN-PMN-PTの直径は45mmで、長さは100mmに達し、検出されたキュリー点と退分極温度は非常に高く、圧電気性質と保磁力場も向上し、温度変化の影響も比較的小さく、性質は安定していた。

8. 展望及び提案

光電気機能性結晶の探索、成長、特徴、応用は、わが国が世界をリードする技術を有する分野の一つである。1950年代のフォローアップ・模倣に始まり、1970年代以後は独自研究による、特色ある光電気機能性結晶の路線を歩み始め、材料科学や凝縮系物理学、固体化学等の分野から、発想の豊かな優れた人材を集めて研究グループを構成し、一致団結して全力を尽くし、広く注目される一連の成果を収めた。材料の応用性質から出発し、分子設計、結晶工学を通じて新たな非線形性光学結晶を探索し、新たな結晶成長方法を発展させ、結晶の成長と後処理技術を改善することで、工学的に応用可能な結晶製品を得ることができた。これまでの半世紀で機能性結晶の研究と応用は融合され、スタートの創造段階からハイテク産業での応用に至るまでの全プロセスが整備され、かつ、新たな研究分野とハイテク技術の発展を牽引するまでとなった。これは、わが国の光電気機能性結晶の発展に対する啓示であり、わが国の基礎研究の発展において避けて通れない道である。

近年、光電気機能性結晶の基礎研究は国際的に非常に重視され、産業、特に半導体産業との融合が非常に重視されている。GaN、ZnO等の結晶の成長は低炭素社会や省エネに資するものとして大きなブレイクスルーであった。わが国が機能性結晶の探索と発展において持つ優位性は局部的である。国際的な競争は激しい。われわれはこの点をはっきりと認識し、わが国の特徴と優位性を一層発展させなければならない。

光電気機能性結晶の研究において解決と発展が待たれる科学的課題には、次のものがある。すなわち、結晶工学理論をさらに発展させ、理論の応用範囲を拡大すること。結晶の成長に関する基本的理論研究を重視し、新たな結晶の成長方法と技術を発展させ、結晶の成長設備の研究開発を強化し、結晶の原料から加工、後処理、検査、コーティング等の全プロセスの融合を強化し、結晶機器

及び応用に関する研究を強化することで、わが国の光電気機能性結晶研究の発展及び産業化レベルを向上することである。

先進原子力システムにおけるナノ材料及び ナノテクノロジーの実用化の可能性

•Profile•



石 偉群 Shi Weiqun ●中国科学院高エネルギー物理研究所副研究員

1976年8月生まれ。2002年、中国原子力エネルギー科学研究院核燃料サイクル・材料専攻、修士号取得（研究分野：使用済み核燃料の後処理化学）。2007年、清華大学で化学博士号取得（研究分野：バイオ分子の放射線化学）。主に、アクチニウム系元素の化学と放射性廃棄物処理を研究。2007年10月～2007年12月、東京大学及び日本原子力研究所で客員研究員。2008年10月～2009年12月、スイス・チューリッヒ工科大学（ETH-Zurich）でポストドク研究。国際的な学術専門誌Inorg.Chem, Dalton Trans, Radiat.Res, J.Mass.Spectrで論文を多数発表。

1. 概論

社会の近代化の加速に伴い世界のエネルギー需要も急速に拡大しているが、化石燃料の枯渇と持続不可能性により、新エネルギーへの依存をさらに強めている。原子力は、二酸化炭素の排出が極めて低いことと潜在性が非常に高いことから、多くの国でますます重視されている。2011年2月現在、世界で配備されている原子炉は442基に、原子力発電所の発電設備容量は375GWに達している。原子力発電産業の急速な拡大により、原子力の安全性や核の拡散に対する注目が高まっている。現役の原子力発電所の耐用年数の最大化、原子力が他のエネルギー需要を満たす友好的なインターフェースを提供できるか否か、そして使用済み核燃料の適切かつ効果的な処理は、原子力の発展において直面する課題である。これらの課題に対応するために、今後、先進原子力システムには新素材技術及び新たな化学的処理技術が必要であり、なかでもナノ材料及び技術は今後の原子力の発展で重要な地位を占めると考えられている。

ナノ材料は、近年広く重視されている新機能材料の一つである。ナノ材料には量子サイズ効果及び量子トンネル効果があるだけでなく、他の汎用材料に比べて表面積が大きく、表面原子もやや多いため、一般的な材料と異なる独特の物理化学的性質を呈する。ナノ材料技術は実用の可能性が高いため、主な原子力国家をはじめ世界中の国々が先進原子力システムにおけるこの技術の実用基礎研究にますます注目している。なかでも、米国は成長戦略の面から特に重視している。ロシア、フランス、ドイツ、日本などの国々の原子力研究機関もナノ材料技術研究に従事する機関及び関連する研究プラットフォームを設立している。近年報告された論文によれば、ナノ技術はすでに核燃料サイクルのさまざまなプロセスでの採用が試みられており、将来の先進原子力システムにおいて広く採用される潜在性があることを示している。

2. 先進的核燃料の製造におけるナノ材料及び技術の実用化

核燃料エレメントは原子炉の核心的な要素である。核燃料の設計及び製造には非常に大きな課題がある。第一に、核燃料の成分及び構造は安定性、エネルギー変換効率、核燃料エレメントの燃料消費と耐用年数に直接影響を及ぼす。第二に、核燃料は長期間にわたり強放射線、高温、強腐食等の極限条件下で作動するため、核燃料の結晶構造は不安定になりやすい。したがって、核燃料の研究開発及び認証はその複雑性及び課題の難しさから、非常に時間がかかる難しい仕事である。極限条件下で安定的に作動する先進的核燃料こそ、研究者たちの目標である。

長期にわたり、核燃料の研究開発は主に経験に基づき行われてきたが、その原因の一つは核燃料材料の物理化学的性質及び変化のメカニズムが完全に解明されていないことにある。量子サイズ及び構造が制御可能な自己組織化ナノ材料は、先進的核燃料の設計及び合成に新たな研究の道筋を提供した。米国フロリダ大学のWuらは、さまざまなナノ孔を持ち、かつ、孔径が調整可能な UO_2 ナノ結晶を合成した。 UO_2 燃料は現在、大多数の熱中性子炉で使われている燃料であり、ナノ孔により燃料の伝熱性能を改善できるのみならず、一定量の分裂産物を収容でき、燃料エレメントの急速すぎる膨張・失効をある程度防止できることから、重要な研究の方向性の一つとなっている。米国ノートルダム大学のBurns研究グループはアルカリ性水溶液におけるウラン、ネプツニウム等のアクチニウム系元素の酸化物及び過酸化物の分子集合体の挙動について研究した。Burnsの研究結果によれば、ウラン、ネプツニウム過酸化物は分子集合してナノ球構造のアクチニウム系クラスター化合物となりうる。ナノ球中のアクチニウム系元素原子を直接連結させれば、フラーレンに類似する一連の構造が得られる。これらアクチニウム系元素のクラスター化合物は環境中で構造が安定しているだけでなく、フラーレンと同様に秩序的な多孔質構造を有する。Miroらは密度汎関数計算の手法を用いてウラニル-過酸化物のナノビームの形成

メカニズムを研究した。これらナノ構造を有するアクチニウム系元素結晶の研究は、アクチニウム系元素固体の物理化学的性質を深く理解する手がかりを提供するため、これを基礎に潜在性のあるナノ核燃料を発展させることができる。しかし、これらアクチニウム系元素の多孔質ナノ材料の多くは水熱法または溶媒熱調製法により調製され、高温条件下での化学構造は不安定である。このため、既存の合成・調製方法を改善し、より良い熱安定性及び放射安定性を持たせることが今後の目標となる。

近年、フラーレン及びその誘導体は広く注目を集めるナノ材料の一つとなっている。フラーレン分子が発見された当初、研究者たちは中心が空洞の炭素ケージを用い、ある種の金属イオンを包んで金属内包フラーレン（以下、「M@Cn」と略す）を調製することを考えた。この材料は電子、エネルギー、バイオ医学等の分野で幅広い実用化の可能性がある。アクチニウム系元素による金属フラーレンの合成及び関連形質の研究も、アクチニウム系元素の化学研究における関心事の一つである。Guoらはレーザー脱離及びアーク放電の手法を用いて初めてウランフラーレンU@C₂₈及びU@C₆₀を調製し、その後DienerがU@C₈₂を合成した。中国の趙宇亮はさまざまな超ウラン元素を内包する金属原子による新型の金属フラーレンの合成及び分離に世界で初めて成功した。さらに、その物理化学的性質を基本的に明らかにした結果、化学式はM@C₈₂で示すことができ、アクチニウム系金属原子もフラーレンC₈₂の安定性を高めることが分かった。現在、研究者たちはフラーレンを用いて2つまたは多数のアクチニウム系元素原子を内包する研究に関心を寄せているが、実験段階におけるこの種の金属フラーレン分子の合成にはまだ誰も成功しておらず、フラーレンで2つのウラン原子を内包する可能性を量子化学的計算手法により検討した研究者がいるに過ぎない。アクチニウム系元素を用いた金属フラーレン材料による先進的核燃料技術は重要な潜在的可能性があることが予測できるが、しかし、アクチニウム系元素による金属フラーレンには、突破しなければならない2つの難題がある。一つは分離の難しさであり、もう一つは調製効率の低さである。

金属燃料と比べ、金属酸化物燃料は熱伝導性能が一般的に劣るが、核燃料のナノドープ技術は酸化物燃料の熱伝導性能を改善できるため、ロシアのKurinaらは、UO₂燃料ペレットにSnO₂ナノ粒子をドープしたところ、高温条件下でのUO₂の熱伝導能力を2.3倍引き上げることができた。ThO₂中にCe、W、Mo、Mn等の金属をドープして調製されたナノ複合物に関する研究論文も報告されている。

3. 先進的核燃料の後処理におけるナノ材料及びナノ技術の採用

核燃料の後処理は核燃料サイクルの中心プロセスであり、環境に対する原子力の安全性及び持続可能な発展

に重要な意味を持つ。使用済み核燃料には化学的性質の異なる数十種類の放射性核種が含まれ、一部の核種の化学原子価は複雑かつ非常に変化しやすいうえ、化学処理プロセスは全体を通じて強い放射線環境下で進行するため、使用済み核燃料の後処理は難易度が非常に高い。そこで、核種の効率的な富化、分離、回収において、機能化されたナノ材料が重要な役割を果たす。

放射性核種の分離へのナノ材料の採用に関する研究論文は数多く報告されており、なかでも研究者たちは磁性ナノ材料を重視している。香港科技大学のWangらはビスリン酸基を有する有機分子をFe₃O₄ナノ磁性材料の表面に修飾し、この材料を利用して血液中のUO₂²⁺を非常に効率的に抽出した。しかし、使用済み核燃料の実際の後処理プロセスの多くは強酸性環境下で行われるにもかかわらず、Fe₃O₄ナノ磁性材料は酸性環境下で安定性が悪い。また、このナノ粒子は凝集が生じやすいため、後処理中における磁性ナノ粒子の直接的な採用には比較的限りがある。米国アイダホ大学のQiang研究グループは磁性ナノ粒子の改善を試み、まずはスクレオカプシド構造を持つFe₂O₃磁性ナノ材料を設計し、合成した。この材料は凝集を生じにくい。このほか、彼は磁性ナノ粒子の表面に耐酸性を持つSiO₂膜を組み合わせ、使用済み核燃料の後処理プロセスの酸性環境に対応させた。そして最終的にはSiO₂膜上でさまざまなキレート剤をつなぎ合わせ、この磁性ナノ粒子でPu、Np、Am等の核種の吸着を試みたところ、比較的良好な結果が得られた。

カーボンナノチューブ（CNT）は、もう一種類の強く注目されるナノ材料である。CNTには一定の吸着富化能力があるため、酸性溶液中で性質が安定しているうえ、炭素材料は完全燃焼し固形廃棄物の生成量が比較的小ないため、使用済み核燃料の後処理において実用化の可能性が非常に高い。王祥科は多壁カーボンナノチューブ（MWCNTs）をアクチニウム系元素イオンの吸着及び富化に初めて使用した結果、MWCNTsは放射性核種U(VI)、Eu(III)、Am(III)のいずれにも非常に強い吸着及び富化能力を有することが分かった。彼らはさらに化学的改質、プラズマのグラフト改質等、多数の手法によりさまざまなタイプのMWCNTs複合材料を調製したところ、マクロ的な吸着実験によりMWCNTs複合材料はカーボンナノチューブより優れた吸着性能を有することが分かった。実験結果によれば、MWCNTsは核種に対する吸着の選択性で相対的に劣り、核種の分離に直接使用するにはなお一定の距離がある。つまり、ナノ材料を高レベル放射性廃液（HLLW）中の核種の吸着及び分離に応用するには、ナノ材料に耐酸性が要求されるのみならず、ナノ材料を有機化・機能化させ、さまざまな核種の吸着に対して選択性を持たせる必要がある。

近年、重金属吸着分野におけるメソポアを持つナノ材料の採用が多く、研究者から関心を寄せられている。メ

ソポア材料は孔径が2.0～50nmの多孔質ナノ材料を指す。現時点において、メソポア材料は光化学、バイオシミュレーション、触媒、分離等の分野で、重要な応用価値と幅広い採用の可能性があることが明らかになっている。メソポア材料は比表面積が大きく、孔径の高さが均一で調整可能であり、かつ、次元秩序を有する等の特徴があるため、重金属の選択的吸着及び分離を実現できる理想的なナノ材料である。

現在、比較的多く研究されているのはメソポア酸化ケイ素材料である。この材料は良好な科学的安定性及び熱安定性を有する上に合成が簡単で、化学的修飾が容易である。また、酸化ケイ素材料は耐放射性があるため、核燃料の後処理等の強い放射線環境下での使用に適している。メソポア酸化ケイ素材料の放射性核種の吸着及び分離については、多くの研究者が良好な実用化の可能性を示唆している。Gupta研究グループはメソポアモレキュラーシーブMCM-41及びMCM-48の UO_2^{2+} に対する吸着挙動を研究した結果、メソポア・ケイ素は UO_2^{2+} に対する吸着能力が非常に強く、なかでもMCM-48は UO_2^{2+} に吸着した後、Uの重量パーセントが約12.5%に達することが分かった。Dyerらはヘテロ原子を含むMCM-41の Sr^{2+} 、 Cs^+ 、 Pu(IV) 、 Am(III) に対する吸着挙動及びその陽イオン交換吸着メカニズムを研究した結果、複合MCM-41材料はこれら核種のいずれにも良好な富化能力を有することを明らかにした。

メソポア・ケイ素の吸着容量及び選択性を高めるには、メソポア・ケイ素の修飾による有機機能化は合理的な選択の一つである。既存の修飾方法には有機機能分子の共重縮合、機能分子のグラフト及びメソポア表面の単分子層の自己組織化等がある。Yousefiらは、5-ニトロ-2-フランメタノール分子とAPS-MCM-41を縮合してU(VI)及びTh(IV)の吸着と富化に応用した結果、修飾後の材料による吸着スピードは明らかに向上することがわかった。Leeらはカルボキシメチル化ポリエチレンイミン (CMPEI) 高分子を非共有結合の手法により秩序化メソポアMSU-Hの表面にグラフトした結果、修飾後の材料はU(VI)に対する吸着性能が明らかに向上することが分かった。米国のFryxell研究グループはメソポアをキャリアに用いた単分子層の自己組織化方法 (SAMMS) を発展させた。この手法では、メソポアのすべての空隙の界面で有機機能シラン分子の単層における秩序的自己組織化を実現した。この研究グループはMCM-41を基底に一連の有機リガンドにより修飾されたSAMMSメソポア・ケイ素を調製し、かつ、U(VI)、Np(V)、Pu(IV)、Am(III)等のアクチニウム系元素イオンの選択的吸着に応用した結果、良好な効果が得られた。

核燃料の後処理の主な目的は、各種放射性核種の分離を行うことにある。核燃料の後処理におけるナノ材料の応用技術の基本はイオン交換または固相抽出である。固

相抽出は、分離の面で明らかな利点があるとはいえ、材料交換の難しさ、固形廃棄物量が比較的大きい等の問題がある。このため、高効率で耐放射性があり、かつ、リサイクル使用が可能で分解されやすいナノ材料こそ、今後の研究における重要な目標である。

4. 放射性廃棄物処理及び管理におけるナノ材料及び技術の応用

放射性廃棄物の安全な処理は核燃料サイクルにおける重要なプロセスである。先進的な放射性廃棄物は、以下の特徴を持つと考えられる。すなわち、放射性核種に対する積載容量が大きく、処理が容易で、一定の放射線安定性及び化学構造の柔軟性があり、構造が安定で、天然鉱物の構造を有する等の特徴である。ナノ材料技術においては、さまざまな構造及び性質を持つアクチニウム系元素による複合材料をナノサイズから設計・合成することができ、一部を放射性廃棄物の処理及び管理に採用できるうえ、特殊な物理化学的性質を有するいくつかのナノ材料に至っては、放射性廃棄物を廃棄物から宝の物質に変えることもできることから、触媒及び分析検査の分野で重要な役割を果たす。

現在、さまざまな新型アクチニウム系元素の無機複合ナノ材料の合成及び性質の研究が放射性廃棄物の処理における基礎研究で関心事の一つとなっている。研究報告が比較的多いのはアクチニウム系元素と他の重金属元素で形成される複合酸化物、ケイ酸塩及びリン酸塩等である。Linらは開放的な多孔質構造と良好な熱安定性を有するウラニル・ゲルマン酸塩結晶を始めて合成した。このナノ材料の合成は、安定な放射性廃棄物の合成・調製に手がかりを提供しただけでなく、有機触媒分野で重要な実用化の可能性を示した。ロシアのAlekseevらは硫酸またはセレン酸溶液中で規則的な多孔質構造を有する2種類のミクロポア・ウラン含有複合ナノ結晶を合成した。ロシアのKrivovichevは、硝酸ウラニルのセレン酸溶液中で、室温下で黄色透明な結晶を合成した。この結晶も同様に秩序化ナノ・ミクロポア構造を有する。これらのウラン含有・新型多孔質ナノ材料の合成は、劣化ウラン及び後処理後のウランの合理的な利用に新たな道筋を提供した。

金属有機構造体 (Metal Organic Frameworks, MOFs) は、近年非常に盛んに研究されている開放型の多孔質ナノ材料であり、非常に大きな比表面積と良好な吸着性能により、触媒、気体の吸着、センシング及び分離等の分野で重要な役割を果たしている。無機分子ふるいに比べ、MOFs材料は適切な金属錯体と有機リガンドの選択を通じて、フレーム構造の制御性を実現できる。

現時点では、アクチニウム系元素を金属源とし、多様なトポロジー構造と配位環境を有するMOFs材料の研究はまだ少ない。一方、放射性廃棄物処理分野におけるナ

ノチューブ構造を有するアクチニウム系無機骨格材料の採用は、いくつか報告されている。イギリス・オックスフォード大学のO' Hare研究グループは一連のウラン・トリウムMOFs材料を発展させた。これには、ピペラジンをリガンドとするウラン含有MOF、3,5-ピリジンジカルボン酸をリガンドとする第一世代トリウム含有MOF (TOF-1)、1,3,5-トリメシン酸を有機リガンドとする第二世代トリウム含有MOF (TOF-2) がある。MOFsは、アクチニウム系元素イオンそのものを固定し、構造を安定させ、アクチニウム系元素の環境中への遷移を予防するのみならず、他の放射性核種を吸着できることから、放射性廃棄物の処理に非常に有利である。しかし、MOFs材料の欠点は耐酸性がなく、リガンド構造に対する要求が厳しくなる点にある。また、一般的に多孔質ナノ材料には脱着プロセスに難があり、テーリング現象が深刻である等の問題があることから、吸着-脱着プロセスでいくぶん不利な点がある。

5. 核種識別及び検査におけるナノ材料及び技術の採用

ナノ技術の発展に伴い、研究者たちの関心はすでに、さまざまな特徴を持つナノ材料の調製からナノ機器やナノ検査技術の方向に移っている。高感度で操作のしやすい放射性核種の検査方法は、核燃料サイクル体系のさまざまなプロセスにおける安全な運行及び原子力の環境に対する安全性において非常に重要である。このため、高感度のナノセンサは原子力分野で応用の見通しが高い。米国イリノイ大学のLuらは、ナノ金粒子を基にしたバイオセンサを用いてウラニルイオンを検査した。この研究グループは、ナノ金粒子に結合しうるDNA酵素を選択した。このDNA酵素はウラニルイオンを選択的に識別し、かつ、結合できる。この種のバイオナノセンサは濃度50 nMのウラニルイオンを検査できる上、ウラニルイオンだけを選択的に識別できることから、優れた選択性を持つことが分かる。また、このセンサは呈色に要する時間が短く、室温下で操作できることから、簡易式センサに発展させ、環境中のウラニルイオンの検査分析に採用できる可能性がある。

6. 結論及び展望

これまでの紹介に基づけば、ナノ材料技術は核燃料サイクルのさまざまなプロセスで重要な実用化の可能性のあることは想像に難くなく、将来、先進原子力システムで重要な役割を果たす可能性が高い。世界的に見れば、原子力分野におけるナノ材料技術の応用に関する基礎研究はまだ始まったばかりであり、解決の待たれる重要な科学的難題がなお多数存在する。研究の進展に伴い、ナノ材料及び技術の利点は十分に発揮されるだろう。

生分解性マグネシウム合金の研究現状及び展望

•Profile•



鄭 玉峰 Zheng Yufeng ●北京大学工学院材料科学・工程系副主任、教授

1973年8月生まれ。1998年9月、ハルビン工業大学で博士号取得（材料学専攻）。主な研究分野は生体医療用材料・医療用機械、先進的機能性材料。国及び政府主導の事業20件余りを担当。中国高等教育科学技術二等賞1件、発明特許2件、実用新案特許5件を取得。SCI論文を200本以上発表、引用は2200回以上、著作5件。現在、Materials Letters、Journal of Biomedical Materials Research-Part B: Applied Biomaterials、Journal of Materials Science & Technology、Acta Metallurgica Sinica (English Letters) 等の学術誌で編集委員を担当。

1. 背景

医療用金属材料には良好な機械的性質があり、セラミックス及び高分子材料に比べ荷重部位のインプラント材料により適しているため、将来的にも生物材料分野で重要な地位を占めるであろう。しかし、その実用化にはいくつかの欠点が存在する。すなわち、(1) 腐食により生じた毒性金属イオン又は粒子の放出による炎症の発生。(2) 金属材料の弾性率が大き過ぎるため、埋め込み時に「応力遮断」現象が生じること。(3) 血管足場、骨釘、骨プレート、骨ピンのような一時的なインプラント材料として用いる際、体外に取り出すための二次手術が必要となるため、患者に経済的・身体的負担を与えることである。

マグネシウム及びマグネシウム合金は生体用医療材料として、現行の生体医療用金属材料より数多くの優れた性質を有する。すなわち、

- (1) ヒトのマグネシウム体内含有量の正常値は25gであり、半分は骨格中に存在する。マグネシウム(1.738g/cm³)及びその合金(1.75~1.85g/cm³)は密度が低く、医療用チタン合金密度の1/3未満であり、ヒトの皮質骨(1.75g/cm³)と極めて近い。
- (2) マグネシウム及びマグネシウム合金には高い比強度及び比剛性があり、ヤング率は約45GPaで医療用チタン合金の弾性率(109~112GPa)の1/2に満たず、骨インプラントの応力遮断を効果的に緩和できる。
- (3) マグネシウムはヒトの体にとって重要な必須元素であり、生命の維持、身体健康と極めて密接な関係を有する。Mgはヒトの細胞内で2番目に重要な陽イオンであり（最も重要な陽イオンはK）、含有量はKに次ぐ。マグネシウムには多くの特殊な生理的機能があり、体内のさまざまな酵素を活性化し、神経の異常な興奮状態を抑制し、核酸構造の安定を維持し、体内のタンパク質の合成、筋肉の収縮、体温調整に関わる。マグネシウムはさらに、カリウム、ナトリウム、カルシウムの細胞内外の移動に関わる「イオンチャネル」にも影響し、生体膜電位を維持する役割もある。

マグネシウムの化学的性質は非常に活発であるうえ(-2.36V SCE)、腐食媒質中で生じる酸化皮膜が軟らかく多孔質であるために(PBR=0.8)、マグネシウム及びマグネシウム合金の耐腐食性はやや劣っており、塩素イオンを含むヒトの生理環境ではこの傾向が特に顕著である。この問題は工業用マグネシウム合金の欠点として長らく認識されてきており、生体医療分野でのインプラントとしての実用化においても最大の障壁となってきた。20世紀初め、マグネシウムは臨床への応用が試みられており、例えばLambotteは1907年に純マグネシウム及び金メッキした鉄釘を用いて下腿骨の骨折部位の固定を試みたが、純マグネシウムは体内で急速に腐食し、術後8日で純マグネシウム釘は劣化して崩れたうえ、皮下で大量のガスを発生した。一方で、ステンレス及びチタン合金等はより優れた機械的性質を示し、耐腐食性に優れた材料が登場したため、生体医療用マグネシウム及びマグネシウム合金は歴史の舞台から一時姿を消した。21世紀に入ってから、マグネシウム合金の研究及び応用は急速に発展し、マグネシウム合金の腐食に関する理解が深まるにつれ、ヒトの体内におけるマグネシウム合金の腐食速度は完全に制御可能となった。このため、医療用マグネシウム及びマグネシウム合金は再び研究者たちに重視されるようになり、その易腐食性という特徴を生かして生分解可能な医療用金属インプラントとして発展させることが期待された。先進的な合金製錬及び加工技術によってマグネシウム及びマグネシウム合金の腐食速度を制御し、高い強度という金属材料としての特徴を一定期間発揮してインプラントとしての機能（新骨組織形成の誘導または血管狭窄の支柱等）を全うするだけでなく、ヒトの病変部位を自ら修復すると同時に体内で徐々に腐食して分解され、かつ、溶出した金属イオンは体内で吸収され、または体外に排泄され、自己修復を完了する際に、「異体」としての金属材料も体内で完全に分解されて消失する。分解メカニズムは医療用高分子材料と全く異なるが、強度の低さ及び難分解性という医療用高分子材料の弱点を克服でき、「生体内腐食性及び生分解性」及び「比較的高い荷重強度」の両立が実現できる。

2003年、ドイツ人のHeubleinらはAE21マグネシウム合金（Al2%及びレアアース1%含有）を用いて冠動脈足場の原型を調製し、ブタの冠動脈に埋め込んだところ、新生内膜の形成のため、フォローアップ35日目の冠動脈造影検査の結果は、フォローアップ10日目に比べ管腔損失率40%($p<0.01$)となった。また、血管内超音波の結果、血管再生足場の機械的完全性の消失のため、35-56日目に25%の管腔再肥大($p<0.05$)が生じた。この結果から、生分解性マグネシウム合金製の血管足場は永久的金属足場の代替物の選択肢として提供可能であることがわかった。この報告がきっかけで、耐腐食性で劣っているという特徴を逆手に取り、ヒトの体内で吸収され分解され得る材料として使用できるという見地から、マグネシウム及びその合金は生物材料の研究者たちから広く注目されるようになった。

その後、生体医療用マグネシウム合金の研究は急速な発展を見せ、ドイツ、スイス、日本、オーストラリア、米国、英国、ニュージーランド、トルコ及び中国の生物材料の研究グループによって、さまざまな学術誌上で関連論文が数百本報告されているが、年代順にフォローすると、「in vitroからin vivoへ、動物からヒトへ、末梢血管から心血管へ」、そして、「研究内容は年々深まり、論文数も年々増加する」ように発展しつつあることが明らかに見て取れる。更に喜ばしいことは、これまでに世界中のいずれの実験でも、血液及び骨環境下の短期試験でマグネシウム合金に関連して悪い結果が出ていないことである。生物材料に関わる世界中の研究者はマグネシウム合金の生体医療向けフィジビリティについて肯定的な見解を示している。例えば、英国ロンドン王立協会フェローのD.F.Williams (Biomaterials誌主編)は2006年に“New Interests in Magnesium”というテーマの論文で、「既存の外科インプラント材料の腐食産物には潜在的リスクがあると考えられているが、マグネシウムの腐食産物は有害どころか、生理的に有益である可能性が高い」旨をはっきりと指摘している。

2. 生分解性マグネシウム合金の研究の現状

2.1 工学用マグネシウム合金体系に対する直接的な生物学的評価

現在、研究者たちの関心は、工業分野で比較的成熟したMg-Al系、Mg-RE系マグネシウム合金の生体医療用途としての評価に主に集中している。Witteはポリ乳酸を対照群に、4種類のマグネシウム合金、すなわちAZ31、AZ91、WE43、そして独自に開発したAl 4%、Li 4%、RE 2%含有LAE442マグネシウム合金（レアアースの構成比率：セリウム51%+ランタン22%+ネオジム16%+プラセオジム8%）の動物体内における腐食挙動及び骨反応について研究した。その結果、モルモットの大腿骨髄腔内部に埋め込んだマグネシウム合金棒はいずれも生分解反応を

示した。術後1週間でマグネシウム合金棒の周囲には皮下気泡が観察された。皮下気泡はその後2-3週間で徐々に消失し、モルモットへの悪影響は観察されなかった。実験の結果、マグネシウム合金の腐食層にはカルシウムとリンが豊富に含まれ、周囲の骨組織と直接接触することが観察された。対照群のポリ乳酸と比べ、マグネシウム合金棒の周囲には高い鉱化付着率と骨重量の増加が見られた。また、実験結果を3次元復元したところ、AZ91Dは18週後に完全に分解されたが、LAE442は比較的完全な外形を維持することがわかった。

また、Biotronik社はレアアースWE43マグネシウム合金を用いて吸収可能な血管足場AMS(Absorbable Magnesium Stent)を調製し研究した。316Lステンレス製血管足場と比較したところ、AMS足場をブタの冠動脈に埋め込んでから4週間後の血管造影検査の結果、最小管腔内径(1.49mm)はステンレス群(1.34mm)を上回ることが分かった。その後の報告ではAMS足場の具体的な成分は説明されなかったが、合金に用いた主な元素は、依然としてZr、Y、REであった。ErbelはAMS足場(長さ10-15mm、直径3.0-3.5mm)71個を患者63人に埋め込んだところ、気管狭窄率は $61.5 \pm 13.1\%$ から $126 \pm 5.6\%$ まで低下し、術後1年たっても血栓、心筋梗塞、または死亡例は見られなかった。

2.2 元素の毒性に基づく新型医療用マグネシウム合金体系の設計及び研究開発

現在までに開発された商業用マグネシウム合金の大部分にはAl及びレアアース元素が含まれるが、Alは神経毒性を持つ元素で、レアアース元素は脳で富化されやすいため、生物材料の研究者たちは無毒性または低毒性元素を含む新型のマグネシウム合金を独自に開発している。

Liはさまざまなカルシウム含有量及び加工状態のマグネシウム・カルシウム合金の力学的性質、耐腐食性、細胞毒性及び体内における腐食・分解性について試験をした結果、カルシウム含有量の増加につれ、マグネシウム・カルシウム合金の強度、塑性、耐腐食性は低下した。Mg-1Caには細胞毒性がなく、術後3ヶ月でインプラントは完全に分解され、インプラント周囲には新骨形成が観察され、血清中のマグネシウム含有量には明らかな増加は見られなかった。

Guは9種類のマグネシウム2元合金(Mg-Al, Mg-Ag, Mg-In, Mg-Mn, Mg-Si, Mg-Sn, Mg-Y, Mg-Zn, Mg-Zr)の力学的性質、腐食・分解性及び生体適合性について研究した。その結果、Mg-1Al、Mg-1Sn、Mg-1Znは線維芽細胞(L-929和NIH3T3)及び骨芽細胞(MC3T3-E1)に対して細胞毒性を持たず、Mg-1Al及びMg-1Znはヒト臍帯静脈内皮細胞(ECV304)及び血管平滑筋細胞(VSMC)に対して細胞毒性を持たないことが分かった。血液適合性試験の結果、Mg-1In、Mg-1Mn、Mg-1Si、Mg-1Yの溶血率は5%を下回り、合金サンプル表面に接着した血小板は円形を呈

し、少量の仮足があった。

HortはMg-Y及びMg-Gdのレアアース・マグネシウム2元合金の力学的性質及び耐腐食性を研究した。その結果、局部的凝固法により調整されたMg-Yマグネシウム合金には高い純化作用があるうえ、合金の力学的性質及び耐腐食性を向上させ、結晶粒度を向上させ、デンドライト2次アーム間隔を狭め、操作が簡単という利点があることがわかった。実験の結果、Mg-Gd2元合金の降伏強度は33～200MPaに、引張強度は79～250MPaに、圧縮降伏強度は38～216MPaに、圧縮破断強度は157～395MPaに制御でき、力学的性質の比較的大きな変化範囲により、さまざまな部位及び機能の骨インプラントとしての条件を満たせることが分かった。

2.3 表面改質マグネシウム合金による腐食速度の制御

現在研究されているマグネシウム合金のすべてに、腐食速度が速すぎ、分解速度が組織の修復速度を上回るという問題が存在する。マグネシウム合金をインプラント材料として用いる場合は耐腐食性を一層高める必要があるため、生物材料の研究者たちは表面改質という方法を用いてマグネシウム合金の腐食速度の低減を試みている。

Guはアルカリ・熱法（ Na_2CO_3 、 Na_2HPO_4 、 NaHCO_3 溶液に24h浸漬、773Kを12h熱処理）によりマグネシウム・カルシウム合金の表面改質を試みた結果、 NaHCO_3 アルカリ・熱処理後のマグネシウム・カルシウム合金の表面には緻密なMgO層が形成された。膜厚は約26 μm で、このプロセスで得られたサンプルが耐腐食性で最も優れ、細胞毒性を持たないことが分かった。

Guはさらにキトサン被膜については、分子量及び被膜数のいずれもマグネシウム・カルシウム合金の腐食速度に影響を及ぼすことを見出し、なかでもキトサン被膜が6層（分子量 2.7×10^5 ）のマグネシウム・カルシウム合金の耐腐食性が最も良いことを発見した。

2.4 新規構造を有する生体医療用マグネシウム合金の開発

多孔質マグネシウム合金材料は、生分解性生物材料として細胞に3次元の成長空間を提供できるため養分と代謝物の交換・輸送に適し、マグネシウム自体に生物活性があるため細胞の分化・成長及び血管への伸長を誘導できる。材料の分解・吸収プロセスで埋め込んだ細胞が増殖・成長し続けるため、もともとの特定機能及び形状を保った新たな組織及び器官を形成することで、創傷の修復及び再建という機能目的を達成することが期待されている。

Guは蓮状の多孔質マグネシウムのモデル体液中における耐腐食挙動及び細胞毒性について研究した結果、多孔質マグネシウムはSBF中の浸漬時間が長くなるにつれて孔が腐食産物により徐々に密閉され、15日間の浸漬後、マグネシウム塊は完全に碎化するものの、多孔質マグネシウムはなお、元の形状を維持することがわかった。細胞毒性試験の結果、細胞毒性レベルはIであった。

Zhengは粉末冶金法によりMg/Ca複合材料を調製したところ、Mg/Ca複合材料の引張強度と伸長速度はCa含有量の増加につれて低下し、Mg/1Caには比較的良好な力学的性質、耐腐食性及び細胞毒性があり、DMEM中で72h浸漬した後の表面腐食産物は主に CaCO_3 、 $\text{MgCO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ 、HA、 $\text{Mg}(\text{OH})_2$ であった。

Guはバルク状のMg-Zn-Ca非晶質合金の生分解性生物材料としての可能性を研究した結果、 $\text{Mg}_{66}\text{Zn}_{30}\text{Ca}_4$ には比較的良好な強度及び耐腐食性があり、既存のマグネシウム合金材料に比べて腐食外観がより均質になることから、均質に腐食する特性が示された。これは、亜鉛を豊富に含む腐食層が表面に形成され、良好な耐腐食作用を果たすためである。浸漬液及び直接法による細胞培養のいずれも、 $\text{Mg}_{66}\text{Zn}_{30}\text{Ca}_4$ 非晶質はL-929及びMG63に細胞毒性を持たず、細胞は表面に接着し、良好に成長することがわかった。 MgZnCa 非晶質合金の体内インプラント実験の結果、これら非晶質により水素放出速度が顕著に低減されるため、結晶体のマグネシウム合金と同程度の組織適合性を有することが明らかになった。

3. 医療用マグネシウム合金研究で将来的に検討すべきこと

全体的に見て、生分解性生物材料には十分な強度が必要であり、分解周期が組織の癒合周期と整合し、かつ良好な生体適合性を有する必要がある。この章では力学的性質、腐食性、生体適合性の3つの面から現在研究中的の生体医療用マグネシウム合金の性質を概観し、ヒトの体の組織（骨格、血管等）と比較することで、生体医療用マグネシウム合金の選択法則を模索する。

3.1 力学的性質

骨学上の固定という見地で言えば、最大強度または最高剛度の内固定物が必要なわけでは決してない。内固定では折れた骨格を永久に代替することはできず、一次的支柱となるに過ぎない。マグネシウム合金の低弾性率という特性によって、既存のチタン合金の応力遮断作用を効果的に緩和できるうえ、マグネシウム合金はセラミックスに比べてより良い伸長性があり、高分子材料に比べて高い強度があるため、力学的性質上、新型の生物材料として有利である。合金化元素や押し出し法、熱間圧延法等の調整により、いずれのマグネシウム合金も骨に近い比較的高い強度に達し、インプラントとしての条件を基本的に満たすことができる。

3.2 腐食性

材料分解速度の低減は非常に重要である。マグネシウム合金から見れば、分解とはすなわち腐食のことであり、インプラント材料の分解周期と組織の癒合周期がマッチするかという問題に関わるだけでなく、力学的性質の減退速度にも影響を及ぼす。生分解性マグネシウム合金は、主に血管足場及び骨インプラントの2つの面で潜在的応用

性がある。骨学的材料にとってみれば、骨折端における仮骨形成から新骨形成後の固着癒合まで3～4ヶ月が必要となるため、生分解性マグネシウム合金は骨学的材料としては少なくとも3ヶ月間は力学的性質を維持する必要がある、その上で初めて術後における固定物の急速過ぎる分解により二次骨折の危険性をもたらさないことが保証される。

3.3 生体適合性

生分解的に吸収される生物材料として、マグネシウム合金のすべての合金化元素は最終的にヒトの体内で分解される必要があるため、生物学的安全性の面から見れば、生体適合性は非常に重要となる。

カルシウム、亜鉛、マンガンはヒトの必須元素であり、体内に進入した後は代謝されて体外に排出されうするため、マグネシウム合金の合金化元素として最初の選択肢となるべきである。シリコンはヒトの必須元素である可能性があるため、微量のシリコンによる合金化も生体医療用マグネシウム合金の選択肢となり得る。

リチウム、アルミニウム、ジルコニウム元素はマグネシウム合金の重要な合金化元素であり、マグネシウム合金の腐食により一日に放出される元素量はいずれもmgオーダーであり、許容一日摂取量を上回ることはない。また、LAE442及びAZ91の体内インプラント実験では、いずれのマグネシウム合金も良好な生体適合性を持つことが示されている。しかし、リチウム及びアルミニウムの毒性による影響が比較的深刻であることを考えると、両者をマグネシウム合金に加えて合金化元素とする場合は、含有量が厳しく制御されなければならない。ジルコニウムはマグネシウム合金中の合金化元素として、一般に含有量は0.8wt.%を上回ることはないうえ、顕著な毒性もないため、マグネシウム合金の結晶粒度を向上させ、マグネシウム合金の力学的性質及び耐腐食性を改善するために添加してよい。

イットリウム及びレアアース元素は非常に特殊な部類であり、現時点では毒性、代謝経路とも明らかでないが、がんの治療に用いることができる。現在、臨床試験段階にあるAMS足場には10wt.%のレアアース元素が含まれるうえ、動物実験及び臨床試験のいずれも良好な結果が得られている。イットリウム及びレアアース元素もマグネシウム合金において、マグネシウム合金の力学的性質及び腐食性を改善する上で非常に重要な元素であるため、レアアース・マグネシウム合金の生体適合性についてはさらなる研究が待たれる。

4. 製品開発の状況

世界では現在すでに、多種多様なマグネシウム合金製の医療製品が存在し、これにはプレート材、棒材、管材、多孔質フォーム、複合材料、骨釘、血管足場等のさまざまな形式がある。このことは、マグネシウム合金は医療

用製品において良好な加工・成型性と応用上の潜在力があることの表れである。

5. 総括及び展望

生分解性医療用マグネシウム合金は、マグネシウム合金の持つ比較的良好な生体適合性及びヒトの体内環境中で腐食しやすいという特性を利用することで発展した生分解性（吸収性）医療用金属材料である。金属材料の持つ優れた総合的な力学的性質（強度、塑性、弾性率）及び加工・成形可能であるという性質を保っていることから、他の生分解性材料（高分子、セラミックス）に対し応用の潜在性で競争力を持つが、ヒトの体内環境の複雑さのために、これら材料の研究にはさらに長いプロセスが必要となる。マグネシウム及びマグネシウム合金の体内腐食性の本質に対する深い理解及び生体適合性に関するシステムチックな研究により初めて、近い将来、マグネシウム及びマグネシウム合金は医療用金属インプラント材料の分野でさらに発展し、成熟するものと信じる。

形状記憶複合材料及びその空間展開可能構造における応用

•Profile•



冷 勁松 Leng Jingsong ●ハルビン工業大学航天学院複合材料・構造研究所教授

1968年生まれ。1990年、ハルビン工業大学卒（工業力学専攻、学士号取得）。1996年、ハルビン工業大学博士課程卒（複合材料専攻、博士号取得）。1997-1998年、ハルビン工業大学航天学院複合材料研究所副教授。1998-2004年、シンガポール南洋理工大、イギリス国防科学研究所、イギリスASTON大学で研究員。長期にわたり、複合材料及び知的材料を構造面から研究。Progress in Materials Science、MRS Bulletin、Applied Physics Letters等のSCI収録の世界的な学術誌で論文50本以上を発表。中国語専門書1冊、英語専門書2冊を出版。国家発明特許10件以上。International Journal of Smart & Nano Materials編集長、Smart Materials & Structures 副編集長、International Journal of Aeronautical and Space Sciences副編集長。現在、アジア・太平洋地域の知的・ナノ材料委員会主席、中国複合材料学会理事・副事務局長、国際学術交流業務委員会主任、中国力学学会対外交流・協力業務委員会委員、中国航空学会国際協力業務委員会委員。2006年に教育部の新世紀優秀人材計画に入選、2007年に長江学者特別招聘教授に入選。2009年12月、国際光学会フェロー（SPIE Fellow）。2011年8月、国際複合材料執行委員に選出。

共著者：劉立武、蘭鑫、劉彦菊、杜善義

1. はじめに

知的材料・構造（Smart/Intelligent Materials and Structures）は新興の学際的な総合科学であり、既存の学問分野から進化した世界的な最先端技術の一つである。知的材料・構造技術ではセンシング、アクチュエーション、制御を一体化し、汎用材料が持つ荷重機能をだけでなく、特殊な感知機能及び応答機能をも構造に備えさせる。なかでも、センシング材料は内的・外的環境の情報感知に、アクチュエータは構造の物理的性質及び構造形状等の改变に用いられ、最終的には構造による自己診断、自己適応または自己修復等、さまざまな機能を実現する。

知的材料及び構造技術の発展においては、自発的に大変形する材料-形状記憶ポリマー（Shape Memory Polymers, SMPs）が研究の関心事の一つと徐々になっている。この材料は、一定条件下で100%もの大きな回復・変形を自発的に生じうするため、知的かつ自発的な構造変形研究の分野で応用上大きな潜在力がある。形状記憶ポリマーは励起形式によって熱刺激、電気刺激、光刺激、溶液作動型等のタイプに分類できる。そのうち、熱刺激型形状記憶ポリマーは励起形式がシンプルで、回復可能変量が大きく、応答速度が速い等の長所があるため、最も広くかつ深く研究されている。図1は熱刺激形状記憶ポリマーの熱-機械変形プロセスである。ガラス転移点（Glass Transition Temperature, T_g ）以上になると形状記憶ポリマー（開始状態）に外力が印加されて変形が生じ、外力の束縛を維持したまま T_g 以下の一定温度まで低下させた後に外力の束縛を取り払うと、付加した変形能力が長期的に維持され（変形状態）、再びガラス転移点以上まで加熱した際に形状記憶ポリマーは自発的に形状を回復させる（回復状態）。こうして、「記憶開始状態→変形固定状態→回復開始状態」という変形循環が完成される。構成関係の研究の面では、当該材料は変形が比較的大きいた

め、幾何学的非線形性及び材料非線形性を考慮する必要がある、この点が研究をますます難しくしている。現在の構成関係モデルには、接着・弾性理論に基づくTobushi線形性及び非線形性モデルと相間理論に基づく微視力学モデルがある。Tobushi非線形性モデルでは、変形循環中における形状記憶ポリマーの応力、応力変形及び温度の相互関係を検討した結果、最大応力変形量は20%以上に達したことから、当該理論モデルは実験結果を効果的に裏付けるものとなった。微視力学モデルの研究において、Liuは、形状記憶ポリマーは固定相と可逆相の組み合わせを基盤とすると仮定し、材料の単一方向における引張という非線形性変形条件での形状記憶特性を効果的に研究した。



◎図1 形状記憶ポリマー材料の熱-機械変形プロセス

知的材料・構造分野において、形状記憶ポリマーの研究は総体的に成熟している。現時点では、フランス、日本、米国等で形状記憶ポリウレタン（日本三菱重工）、形状記憶エポキシ樹脂（米国CTD社）、形状記憶スチレン（米国CRG社）、形状記憶ポリエステル、形状記憶シアネート樹脂、形状記憶スチレン-ブタジエン共重合体、形状記憶TPI（トランス-1, 4-ポリイソプレン）、ノルボルネン等の熱硬化性・熱可塑性の形状記憶ポリマー材料が相次いで開発されている。また、中国国内では、中国科学院成都分院化学研究所、中国科学院广州化学研究所、ハルビン工

業大学、中国科技大学、湘潭大学等でもさまざまな形状記憶ポリマー材料の合成に成功している。世界的には、形状記憶ポリマー及びその複合材料分野の研究機関はすでに60ヶ所を超えている。

2. 形状記憶複合材料

形状記憶ポリマーの主な特徴は、回復可能な点と応力変形が比較的大きい点にあり、一般的に200%に達する。しかし、主な欠点は、材料の弾性、強度等の力学的性質及び熱-力学的性質が劣り、変形回復の出力が小さく、運動安定性及び信頼性に劣り、深刻なクリープ現象及び弛緩現象があることであり、これら欠点が形状記憶ポリマーの応用、特に劣悪条件下で作動する宇宙探査機上での応用に悪影響を及ぼしている。このため、研究者たちは自然に、形状記憶材料を用いてその複合材料を調製することを考えるようになった。形状記憶複合材料はこれら欠点を良好に克服でき、回復可能な応力変形が大きい一方で変形回復出力も比較的大きいうえ、信頼性が高く、低密度で、剛性・強度が高く、低コストという長所がある。

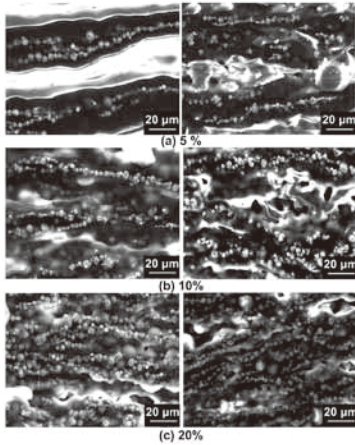
形状記憶複合材料は、強化相の種類により大きく3つに分類される。すなわち、粒子充填複合材料、短繊維強化複合材料、繊維強化複合材料である。粒子充填による形状記憶複合材料は主に機能性材料として用いられ、例えば内部に電気伝導粒子を充填すれば電気刺激型の形状記憶ポリマーを調製できる。この材料は回復可能な応力変形が大きく、回復力が比較的大きい等の長所があるが、総合的な力学的性質がやや劣るため、大型の構造材料に適さない。力学的性質の研究においては微視力学的手法が多く採用されており、例えば、球形粒子をドーブした形状記憶複合材料の変形特性はMori-Tanakaモデルによって研究されている。繊維強化による形状記憶複合材料は主に構造材料として用いられており、総合的な力学的性質が比較的良好で、回復力、構造剛性及び強度が比較的高い等の長所がある。しかし、繊維強化相の有効応力変形は比較的小さいため（一般に<2%）、一般的にはその繊維強化方向を変形の主方向とすることはできないことから、実際の応用では積層板状の繊維強化複合材料が持つ大偏差の湾曲変形を利用して刺激としての目的を満たしている。力学特性の研究においては、大偏差の湾曲変形下における構造展開動力学及び複合材料の折曲変形特性が大いに検討されている。最近、繊維強化による形状記憶複合材料の展開構造における応用研究がますます重視されている。例えば、米国CTD社、米国CRG社、ハルビン工業大学等では炭素繊維により強化されたエポキシ型の形状記憶複合材料を研究している。この複合材料はやや高い弾性係数、抗湾曲強度、抗クリープ、抗弛緩能力を有する。また、短繊維強化による形状記憶複合材料の力学的性質及び変形能力は上記の2つの材料の中間に位置することから、その研究と応用も重視され始めている。

2.1 粒子充填型の形状記憶複合材料

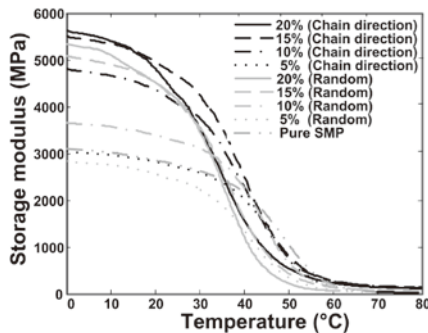
Gall Kらは、SiCナノ粒子の充填による形状記憶エポキシ複合材料の力学及び熱機械特性を研究した。この材料では0wt%及び20wt%のSiC粒子を加えたところ、最大引張応力変形は11%及び15%で、SiCナノ粒子が材料体系の弾性係数及び回復力を強化することがわかった。形状記憶複合材料は60°C (T_g -10°C) 以下で変形する際は、まず回復応力が最大値に達し、それから応力が徐々に減少する。80°C (T_g +10°C) で変形する際は、応力は温度上昇につれ緩やかに低下し、形状記憶材料の回復応力は10～100MPaオーダーとなる。また、Huang WMらはカーボンブラックを充填した形状記憶ポリウレタン複合材料について研究した。この形状記憶複合材料は良好な電気伝導性及び形状記憶性能を有するうえ、形状記憶ポリマーの水刺激効果が初めて発見された。形状記憶ポリマーは水分吸収後にガラス転移点が低下することから、形状記憶ポリマーの水刺激による変形・回復が間接的に実現する。韓国の研究者たちは、カーボンナノチューブを充填した形状記憶ポリウレタン複合材料について研究した結果、この材料はポリウレタン材料に比べて高い弾性係数を有すると同時に良好な電気伝導性を示した。また、一部の研究者はセラミックス粒子、カーボンブラック、カーボンナノチューブを充填した形状記憶ポリマー材料の赤外線照射・加熱条件下における形状記憶効果を研究している。さらに、Fe₃O₄等の磁性粒子も熱可塑性形状記憶ポリマーに加えられ、その結果、磁気応答性を持つ形状記憶複合材料が得られた。Leng らはさらに、形状記憶ポリマー/ニッケル粉複合材料を調製し、固化プロセスにある複合材料に磁場を印加した結果、ニッケル粉は鎖状の分布を呈することがわかり（図2）、かつ、鎖状に分布するニッケル粉の複合材料に対する力学、熱機械性能の影響をも研究した。走査型電子顕微鏡写真（図2左側）により、Ni粉含有量は5%から鎖状構造が徐々に形成され、Ni粉含有量の増加につれNi鎖密度も増えることがわかった。また、Ni鎖は形状記憶複合材料が50%の引張変形を5回経た後も、完全な鎖状構造（図2右側）を維持できることが分かった。このことは、この材料が大変形構造に応用される基盤となる。温度上昇に伴うNi粉連鎖サンプル（鎖方向に平行）と均一分布サンプルの貯蔵弾性率の変化を図3に示す。図から分かるように、Ni粉含有量を固定したサンプルに対し、Ni粉連鎖サンプル（鎖方向に平行）の貯蔵弾性率は均一分布サンプルの貯蔵弾性率を上回る。このことは、Ni粉の連鎖構造は形状記憶ポリマーの力学的性質に対して、より大きな強化作用があることを証明している。

鎖状構造のニッケル粉は形状記憶複合材料の電気伝導性を強化できるという結論に基づき、Lengはカーボンブラックを充填した形状記憶複合材料中に、ごく少量のニッケル粉（0.5vol%）を加えることで電気伝導性を一層強化

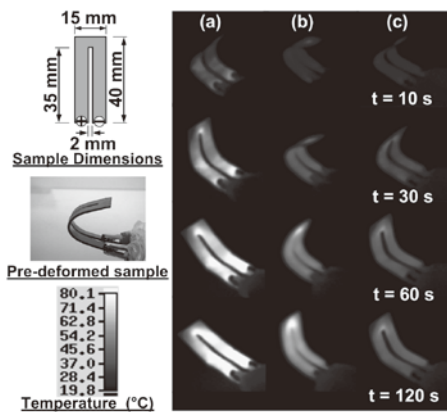
した。図4にNi粉及びカーボンブラック粒子を加えた複合材料の形状回復プロセス及びその温度場分布を示す。3種類のサンプル(a)[SMP/CB/Ni(chained)], b)[SMP/CB/Ni(random)], c)[SMP/CB]]の電気伝導カーボンブラック含有量はいずれも10%だが、Ni粉含有量及び連鎖状態はそれぞれ異なる。



◎図2 典型的なNi粉鎖状構造（左側）及び50%の引張応力変形を5回経た後の姿（右側）



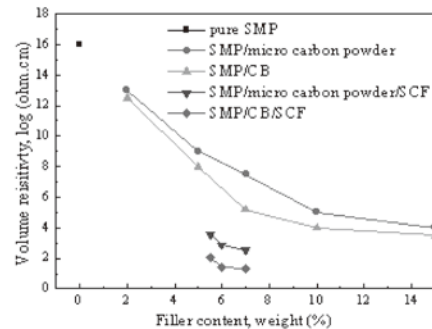
◎図3 Ni粉連鎖サンプル（鎖方向に平行）及び均一分布サンプルの貯蔵弾性率の温度に伴う変化



◎図4 30V電圧加熱条件下におけるSMP/カーボンブラック/ニッケル粉複合材料の温度分布及び電気刺激プロセス

2.2 短繊維による形状記憶複合材料の強化

Ni Q Qらは、ガラス短繊維により強化されたポリウレタン形状記憶複合材料を研究した結果、その強化相は材料の弾性係数、強度、抗クリープ・弛緩能力を明らかに向上させることがわかった。Lengは、カーボンブラックナノ粒子と炭素短繊維をポリマーに加え、粒子及び短繊維の相乗作用により電気伝導ネットワークさせる形成することで、材料内部における電気伝導ネットワークの確立を向上させた。電気抵抗と充填相含有量との関係を図5に示す。この結果、ナノスケールの電気伝導粒子による複合材料の電気伝導性はマイクロスケールの電気伝導粒子による複合材料を上回ることが示された。このほか、電気伝導粒子の添加は複合材料のガラス転移点にも比較的大きく影響し、カーボンブラックナノ粒子の添加は明らかに材料の転移温度を低減させることがわかった。

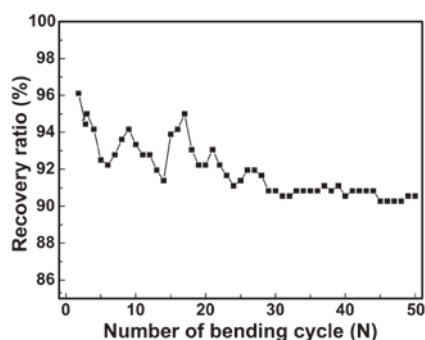


◎図5 SMP/カーボンブラック/短繊維による形状記憶複合材料の電気抵抗

2.3 繊維による形状記憶複合材料の強化

繊維強化樹脂を基にした一般的な複合材料については、主に材料の強度、弾性係数等の静的または準静的条件下における力学荷重性能が考慮され、材料の自発的な変形特性は考慮されないため、回復可能な応力変形量は一般的にわずか1%～2%である。このため、樹脂を基にした一般的な複合材料は主に構造荷重材料に用いられ、人工筋肉のように自発的に変形可能な大変形材料には使うことができない。樹脂を基にした一般的な複合材料に比べ、繊維により強化された形状記憶複合材料は一つのイノベーションと言える。例えば、炭素繊維により強化された形状記憶複合材料においては、強化相体積のパーセンテージを適切に調節することによって、材料は比較的良好な形状回復性能（図6参照）を持つことができるだけでなく、良好な電気伝導性をも備えることができる。すなわち電気加熱可能性を有するため、外的熱源による加熱を必要としない。材料の変形を精密に制御すべきいくつかの材料については、特に微小な変形の場合は、電気制御の方が外的加熱制御に比べ便利であるため、電気伝導による形状記憶複合材料には幅広い応用の余地があ

る。近年、炭素繊維により強化された形状記憶複合材料の自発的変形構造への応用に関する研究は、ますます重視されてきている。例えば、米国CTD社及び米国CRG社は、炭素繊維により強化されたエポキシ形状記憶複合材料を相次いで開発した。この材料は、エポキシ形状記憶ポリマーよりはるかに高い弾性係数と強度を有する。



◎図6 繊維により強化された形状記憶複合材料の多数回の変形プロセスを経た後の変形回復率の変化

3. 繊維により強化された形状記憶複合材料の空間展開可能構造における応用

宇宙探査機は空間的制限のため、トラス、アンテナ等の大型構造は発射前に折りたたまれている必要がある。軌道飛行に入った後に展開されて作動状態に入る必要がある。近年、形状記憶ポリマーの合成は成熟状態にあり、一部の形状記憶複合材料コンポーネントは原理的なデモンストレーション・検証をすでに終え、初步的な実用段階に入っている。米国の人工衛星Encounter spacecraftは2006年に発射された際に、形状記憶材料をアンテナ構造の展開にすでに用いていた。過去に発射された米国の知的制御可能な小型衛星(DiNO Sat)と米国RoadRunning衛星のソーラー電池板においても、形状記憶複合材料のヒンジを採用して刺激を与えている。形状記憶複合材料により展開される梁を持つFalconSat-3大気観測衛星も、米国空軍の実験室からの2011年前後の発射が予定されている。米国航空宇宙局(NASA)のジェット推進研究所(JPL)も、直径10mの空間展開可能なスマート型アンテナを研究している。この形状記憶複合材料は、太陽光または付随する電気エネルギーによる刺激下でアンテナの軌道上の展開を制御できるうえ、アンテナの展開後の形状を保持することができる。この計画は、2010年ごろの検証が計画されていた。また、NASA先端概念研究所も空間ネットワーク上のスマート型の展開可能構造的な研究に大々的な資金援助を行っており、今後数年の間に軍事及び商業上の幅広い応用が実現することが期待されている。このほか、形状記憶複合材料は、空間展開可能トラスの製造でも大量に採用されている。

形状記憶複合材料は展開可能構造の研究に応用されて

おり、力学的課題においては、構造展開の動力学及び複合材料の微視的な折曲変形が主に研究されている。構造展開の動力学の研究の面では、複合材料の力学的性質(ガラス転移点及び熱-力学的性質等)と幾何学的パラメータ(厚さ、湾曲半径、曲面円弧角等)の構造展開性能(展開剛性及び安定性等)との関係を検討する必要がある。形状記憶複合材料の回復性能は基体の形状記憶性能だけで決まるのではなく、繊維と形状記憶樹脂との間の微視的な変形メカニズムと関係する。複合材料が圧力を受けて折曲変形する条件下では、材料の非破壊最大応力変形は5%を上回り、強化繊維の変形極限を大きく上回る。Francisは単一方向の形状記憶複合材料の湾曲変形プロセスにおける繊維の局所的な後折曲変形の挙動を研究した結果、中性面(応力変形ゼロ)の移動距離と繊維折曲波長等の重要パラメータの表現式が得られた。

具体的な応用として、研究者たちは形状記憶複合材料を利用して、ヒンジ、トラス、アンテナ等の展開可能な空間構造を設計・製造した。このうち、形状記憶複合材料を使ったヒンジの展開プロセスは図7のとおりである。このヒンジは、変形前の段階では約180度湾曲し、20ボルトの電圧加熱刺激により100秒内で全プロセスを展開し、形状回復率は約100%であった。これを基礎に、研究者たちはこのヒンジを太陽電池アレイ・モデルの展開刺激(図8参照)に用いることを試みた。一般的な金属トーションばね式展開ヒンジの自らの減衰は比較的小さく、展開速度はスピーディで、展開終了時の材料体系に対する衝撃は比較的大きかった。しかし、これとは逆に、高分子複合材料自身の減衰が比較的大きかったために、展開性能、特に展開時間という重要パラメータに影響を及ぼした。これにより、形状記憶複合材料の展開構造の展開運動プロセスはやや緩慢になり、体制に大きな衝撃をもたらすことはない。

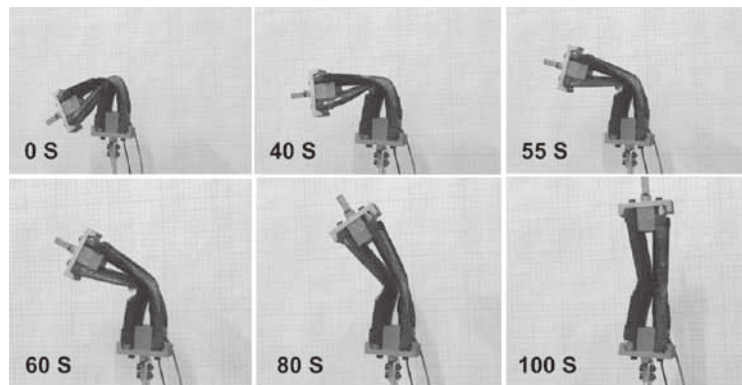
「DSX/PowerSail (Deployable Structures Experiment) 計画」では、形状記憶複合材料を展開可能トラスに応用した。この計画では、大面積、軽質かつ高性能な新世代の太陽電池パネルが開発された。この太陽電池パネルが一般的な構造と異なる点は、展開構造が非常にシンプルな点にある。この構造では、縦方向に伸長可能なコイル状の形状記憶複合材料で展開した梁を太陽電池パネルの展開への刺激に用いたところ、太陽電池パネルは両端のコイル状形状記憶複合材料によって展開された梁に沿って展開した(図9参照)。このほか、ハルビン工業大学複合材料・構造研究所も形状記憶複合材料による展開可能トラスを開発した。この構造は、3つの縦方向の半円柱状の形状記憶複合材料製の梁により構成され、2つの形状記憶複合材料製の梁の間隔は120°である。折曲状態では、3つの縦方向の半円柱状の形状記憶複合材料製の梁はS型に折り曲げられて収縮し、形状記憶複合材料製の梁に通電して加熱すると構造変形が回復し、展開が実現される。

この構造変形プロセスにおいては、力学的安定性及び刺激性能が主な検討対象であり、主な研究対象には双安定特性及び展開動力学的性能がある。

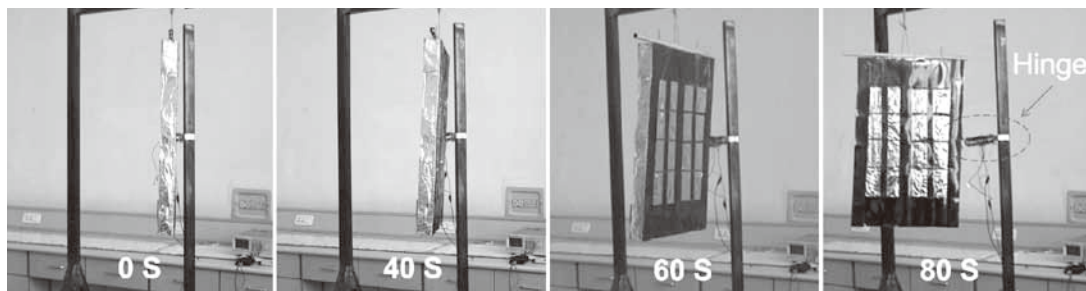
このほか、米国CTD社は棒状の形状記憶複合材料部品により支えられるアンテナ反射板を開発した。このアンテナ反射板の背面の上端、下端にはそれぞれ棒状の形状記憶複合材料でできた円周方向の強化部品が固定・連結されている。形状記憶固体の表面展開により、アンテナ反射面は傘型のひだ状構造に折曲・収縮が可能になり、給電装置と背面の支柱構造は、網状に展開可能な一般的なアンテナと同一である。

4. 結論

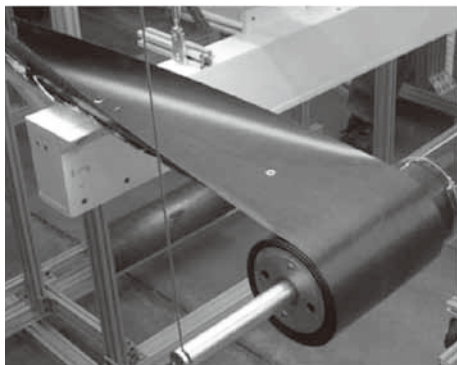
本稿では、形状記憶複合材料の研究の現状及び空間展開可能構造における応用について概観した。本稿では粒子、短繊維及び連続繊維により強化された形状記憶複合材料の発展の現状を主に紹介し、繊維により強化された形状記憶複合材料の展開可能構造における応用についても紹介した。これには、主に展開可能ヒンジ、伸縮可能梁及びアンテナ等がある。繊維により強化された形状記憶複合材料には、刺激及び荷重の二種類の機能があり、空間展開可能構造に大量に応用されることが期待される。また、形状記憶ポリマー及びその複合材料はバイオ製薬、多機能性材料及び構造等の分野でも広く応用されるであろう。



◎図7 形状記憶複合材料におけるヒンジの展開プロセス



◎図8 形状記憶複合材料で作られたヒンジによる太陽電池アレイ・モデルに対する刺激による展開プロセス



◎図9 管状の形状記憶複合材料によるコイル状の梁



中枢神経再生材料の研究の状況

●Profile●



崔 福齋 Cui Fuzhai ●清華大学材料科学工程系再生医学・生体材料研究所所長／教授

1945年11月生まれ。1984年、清華大学卒業（材料科学専攻、工学博士）。1986-1988年、オランダFOM研究所でポストドク研究。1989-1990年、清華大学材料系副教授。1990年～、清華大学材料系教授。1998年～、清華大学材料研究院生物材料研究室、主席専門家。2008年～現在、清華大学材料系再生医学材料研究所所長。Biomaterials、Tissue Engineering、JBMR等のSCI刊行物で学術論文250本以上を公表。2007-2008年、米国医学生物工学会（AIMBE）及び国際バイオマテリアル学会連合（IUS-BSE）フェロー。2008年、国家技術発明二等賞の第一受賞者。

共著者：王 頌、于 曉龍

1. はじめに

脳及び脊髄、すなわち中枢神経系の（CNS）再生の問題は、神経科学及び医学の理論研究及び臨床実践において長きにわたり困難を極め、今なお効果的な解決方法の見つからない難題である。CNS再生の問題には、神経細胞（主にニューロン）の細胞体及び樹状突起の新生だけでなく、関連する周辺環境及び神経機能の回復も含まれる。CNSは損傷後の再生能力がないため、外傷によるCNSの損傷は特に深刻で、この例としては脳皮質機能の損傷または消失、脊髄麻痺等がある。高等脊椎動物の成熟期におけるCNS損傷後の再生阻害の原因としては、次のいくつかが推測できる。すなわち、ニューロンそのものの再生能力に限りがあること、神経栄養因子の生成が足りないこと、軸索再生に対する抑制因子の存在、ならびに局部グリア細胞の損傷により堅固な瘢痕が形成され軸索の成長・貫通が阻害されることである。

CNSの再生はきわめて複雑な病理学・生理学的プロセスであり、ニューロンそのものや関連する微小環境等の面にまで影響する。神経の再生を促す方法としては、現時点では主に外的抑制因子の除去及び内的再生能力の促進という2つの大きな道筋が存在する。CNS中の髄鞘は神経の再生を抑制する主な障害であり、NogoRの発見がCNSミエリン中のさまざまな軸索の成長抑制たんぱく質に作用を及ぼす焦点となるため、Nogoと関連する遺伝子及び薬物治療がCNS損傷後の軸索の再生及び修復を促進する新たな有効手段となるだろう。神経栄養因子の応用は、CNSの再生能力を強化する重要な手段となっている。これら因子には主に神経成長因子（NGF）、脳由来神経成長因子（BDNF）、神経栄養因子3（NT-3）、神経栄養因子4／5（NT-4／5）等がある。研究によれば、生体用足場材料は神経再生の面できわめて積極的な役割を果たす。その役割とは、すなわち、神経グリア細胞における瘢痕形成の抑制、血管・軸索伸長に対するブリッジの提供、成長因子としての細胞キャリアの代替等である。大脳及び脊髄の組織構造は末梢神経（PNS）の組織構造に比べてはるかに複雑であるため、再生医療における修復研究は始まったばかりである。軸索の成長促進に適した

環境を形成するために、CNSの再生促進に関する研究ではすでにさまざまな材料が応用されている。

2. 中枢神経再生材料

2.1 脳の再生材料

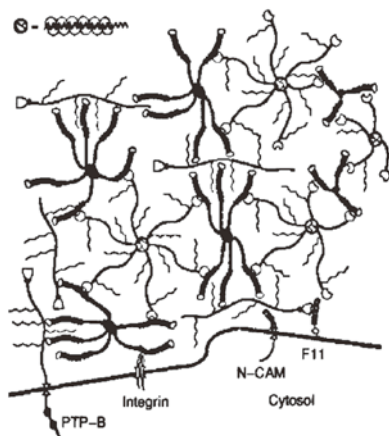
外傷により脳が損傷されると、脳組織には一連の生化学反応や分子反応、炎症反応が生じ、続発性組織損傷及び細胞死がもたらされ、最終的にはグリア瘢痕で覆われたキャビティが生じる。外傷による脳の損傷以外に、手術による損傷組織または腫瘍の除去によっても脳にはキャビティが形成され得る。CNSに再生能力が欠落しているのは、おそらく損傷部位の複雑な細胞及び分子環境によるもので、さらには再生抑制因子の存在と同時に脳実質の欠乏するキャビティ内では細胞は接着しようがなく、成長円錐も成長のすべがないためである。脳のキャビティ内に足場材料を移植すると、次の効果が得られる。すなわち、支持的マトリックスを提供し、細胞及び軸索の成長を誘導し、軸索の再生促進因子及び細胞のキャリアとなり得る等である。

ハイドロゲルは親水性ポリマーで形成される、水に溶けない高度に架橋されたシステムであり、高い水分含有量と組織の類似した力学性能を持つため、軟組織の修復に非常に適している。膨潤型ハイドロゲル内部の水分は、ゲル内のイオン及び代謝産物を外部の間質液と交換させることで組織の化学的環境のバランスを維持する。ハイドロゲルの多孔質構造により、細胞は骨格内部に接着し、伸長しうる。また、ハイドロゲルには成長を促す細胞外マトリックスを修飾し、またはポリペプチドに接着する潜在能力があるうえ、損傷部位に生物活性分子を輸送できることから、細胞の接着と組織の成長を促進することができる。このため、ハイドロゲル材料は非常に将来性のあるCNS足場材料であり、さまざまなハイドロゲル、例えば、ポリ-N-(2-ヒドロキシプロピル)メタクリレート（pHPMA）、ポリヒドロキシエチルタクリレート（pHEMA）、アガロース、メチルセルロース、ヒアルロン酸等が脳の損傷修復に用いられている。

ヒアルロン酸は、細胞外マトリックスの主なタンパク

多糖成分であり、人体に広く分布している。ヒアルロン酸は線形アニオンポリマーであり、すべての2糖単位が1分子のグルクロン酸と1分子のN-2-アセチルグルコサミンで構成され、2糖単位間はグリコシド結合で結合され、鎖状の分子構造[β -Dグルクロン酸-Nアセチルグルコサミン]_nを構成している。ヒアルロン酸は医療の応用面で多くの利点がある。ヒアルロン酸の重複する2糖単位はすべての種及び組織と一致するため、ヒアルロン酸分子そのものに免疫的排除が生じることはない。ヒアルロン酸のポリアニオン、高分子量及び直線形で枝分かれ構造を取らない等の物理化学的特性により、ヒアルロン酸溶液は高い粘弾性を持ち、人体のすべてのシステムにヒアルロン酸代謝の効率的なルートが存在する。

再生医療における足場材料の研究開発手法の一つには、天然の細胞外マトリックスの基本成分及び構造のシミュレーションがある。ヒアルロン酸は早くから脳の細胞外マトリックスの主な成分の一つとして見出され、かつ、CNSの形成及び成長プロセスにおいても非常に重要な役割を果たしてきた。Rauchは、ヒアルロン酸をベースにした脳の細胞外マトリックスモデルを提示した。このモデルでは、脳組織の細胞外マトリックスはヒアルロン酸とさまざまなネクチンとの結合により形成された三次元骨格により構成されると考える(図1のとおり)。しかし、純ヒアルロン酸材料はニューロンの接着と成長に向かないため、CNS修復の足場材料に適さない。このため、この研究グループはポリリジンをタンパクに接着してヒアルロン酸を改質し、ヒアルロン酸の神経細胞との接着性及び相溶性を強化した。そして、このヒアルロン酸基ハイドロゲルを成人ラットの損傷された大脳皮質に移植した結果、神経細胞と良好な相溶性を有し、グリア瘢痕の形成を抑制でき、かつ、神経グリア細胞の材料への遷移・移行を誘導でき、軸索再生に良好な生体内微小環境を提供し、改質後のハイドロゲルへの神経軸索の伸長を促進することが分かった。また、この材料は脳修復時の血管再生を促進する機能もあることがわかった。



◎図1 ヒアルロン酸をベースにした脳の細胞外マトリックスのモデル

2.2 脊髄再生材料

脊髄は損傷されると、損傷部位付近で細胞死が生じる。細胞死には、ニューロン、グリア細胞及び内皮細胞、ニューロン及び軸索の退化による機能的損傷及び麻痺等が含まれる。脊髄損傷後の続発性損傷には、炎症反応、ワラー(Wallerian)変性及びグリア瘢痕の形成等がある。グリア瘢痕は主に反応性グリア細胞及び侵入性脳膜の線維芽細胞により構成される。これら2種類の細胞はさまざまな再生抑制因子を表現し、これにはCSPGsが含まれる。このほか、脊髄の損傷部位には髄鞘破片に由来する再生抑制因子が存在し、これには例えばNogoや、ミエリンと関連するタンパク多糖が含まれる。グリア瘢痕には、軸索及び組織の修復を抑制する細胞及び分子学的微小環境が存在する。現時点では、脊髄損傷の効果的治療法は存在しない。全身にメチルプレドニゾロンを使用するような臨床治療方法では脊髄の損傷を軽減し、機能回復を改善できるが、免疫抑制反応や胃腸の出血、筋ジストロフィー等の副作用がある。脊髄損傷を治療する薬剤を全身に使用した場合によく見られる問題としては、血管-脊髄障壁を通過させにくいことと、タンパク分解の治療で効果が失われること等がある。損傷部位に局部的に治療薬物を使うことでこれら問題は克服できる。このほか、損傷部位に生体用足場材料を移植することで、局部的に薬物を放出できるうえ、軸索の接着及び成長を物理的にバックアップできる。

ハイドロゲルも、脊髄修復に広く応用される足場材料であり、脊髄の再生促進において理想的な特徴としては以下の点がある。すなわち、①生物相溶性。体内組織に対する刺激性が比較的低いこと。②細胞の遷移及び軸索の成長を促すこと。③生分解性または生体内吸収性。薬物放出が終わった後または組織再生後に移植物質を取り出す必要がないこと。④一部のハイドロゲルはin situでゲル化または直接注射することができ、任意の形状のキャビティを充填できること。in situにおけるゲル化は、温度変化、イオンの架橋、光による励起で実現できる。コラーゲン、メチルセルロース、アガロースはよく利用される、温度に敏感な生分解性ポリマーである。コラーゲン、メチルセルロース、アガロース、アルギン酸、ポリエチレングリコール基(PEG)ハイドロゲルは、げっ歯類の脊髄損傷の修復にすでに広く使用されており、軸索再生を促進するための骨格として利用されている。

脊髄内の軸索は一定方向に配列されているため、平行で縦方向に配列された微小管またはマイクロフィラメント構造を持つ材料も脊髄損傷の修復に関する研究で応用されており、再生された神経線維に一定方向の通路をあらかじめ設定するのに用いられる。例えば、Khanらは横断状の脊髄損傷部位に炭素フィラメントを移植した結果、軸索はその上部またはその間で再生して伸長することが見出され、炭素フィラメントの表面には良好な接着

性及び脊髄の軸索再生に対する顕著なバックアップ効果があることが証明された。

3. 生物材料による神経幹細胞の複合に関する研究

近年の研究では、成人のCNS内に存在する神経幹細胞及び特定の分化方向を持つ前駆細胞には、潜在的かつ非常に大きな修復機能があることが見出されており、成人の中枢神経系では細胞の再建は不可能であるというこれまでの観念がくつがえされた。神経幹細胞の神経系疾患の治療に新たな道筋を開拓するもので、国内外の神経科学分野における研究の関心事である。現在、神経幹細胞を体内に移植し、CNSの再生・修復を促進する研究はすでに数多くなされている。神経幹細胞には、例えばハンチントン病、多発性硬化症、パーキンソン症候群、中風及び脊髄の疾患・損傷等、脳の失調・疾患・損傷を治療する上での潜在能力がある。

とは言え、神経幹細胞は移植された後、損傷または患部の炎症及び組織の低酸素状態のために、きわめて少数の幹細胞または分化後の細胞しか生き残れない。ところが、生体用足場材料及び神経幹細胞を組み合わせることで細胞の微小環境を比較的良好に制御することから、移植後の生存率を引き上げられる可能性がある。このため、幹細胞技術の発展、特に神経幹細胞の発見及び応用に伴い、生体用足場材料と神経幹細胞をいかに効果的に結び付けるかが重要になってきている。より良いCNS修復効果を得ることが現在のCNS再生医療における関心事となっている。

関連のin vivo研究のいずれもが、生体用足場材料は神経幹細胞の移植の面で非常に重要な役割を果たすことを示している。移植された神経幹細胞は一部の面で損傷部位の回復を促進でき、体内でさまざまな数のグリア細胞及びニューロンへと分化するうえ、宿主のニューロン及びグリア細胞は足場材料中に統合され得る。細胞移植の際に生体用足場材料を使用するか否かで効果は異なり、全体的に見て細胞と足場材料を結び付けて採用した際の結果が最も良く、これら結果の改善は、材料によって創造される化学的微小環境や位相構造と関係するものと考えられる。まず、例えば中風や外傷によりCNSが損傷された後に損傷部位でキャビティが形成された場合、人工材料は被移植者の神経幹細胞に簡単な力学的バックアップを提供する。次に、材料の修飾を通じて活性成分を負荷することにより環境因子に対する制御を実現し、神経幹細胞又は他のタイプの細胞に栄養面での支援を提供する。体外の単独な可溶性因子は神経幹細胞を敏感に制御でき、そのうちの大部分をある種の細胞タイプに分化させる。生物材料上でこれら因子を複合することで、神経幹細胞に対する誘導・分化を実現できる。また、生物材料にとってみれば、適切な機械的・幾何学的性質により、損傷部位へのニューロンの接着が促進される。

脊髄内の軸索の成長は方向が定まっているため、この手法は脊髄損傷にとって非常に重要である。例えば、Prangらは成人の脊髄中の神経幹細胞を平行な繊維を有するアルギン酸ゲル内に接種して脊髄損傷部位に移植した結果、神経幹細胞は生物材料の軸方向に向かって配列された。

幹細胞周囲の基質は幹細胞の微小環境における重要な構成要素であり、基質中に含まれる非常に多くの化学・生物物理学的シグナルは細胞を制御することから、幹細胞は微小環境内の化学・物理学的シグナルに非常に敏感であることが見て取れる。この研究グループは、異なる化学基は神経幹細胞の接着、遷移及び分化を制御できることを見出し、神経幹細胞の方向制御機能のある生物材料の研究開発に理論上の参考及び根拠を提供した。われわれは、さまざまな化学的官能基を有する材料表面において脂肪幹細胞の挙動を研究した際に、材料表面の化学基は幹細胞の挙動（接着、増殖、遷移）に対して重要な影響を持つことを見出した。最近、わが研究グループはそれぞれの化学官能基が神経幹細胞に対して顕著な調節作用があるのは、細胞内部のシグナルがたんぱく質の調整作用を受けることと関係し（図3、表1を参照）、メチル基及びアミノ基による神経幹細胞の内部のタンパク質の異なるシグナルに対する影響は明らかに異なることを見出した。

微小環境の力学的性能も細胞骨格、細胞の接着及び成長に影響し、幹細胞の分化にさえ影響することが一部の研究により明らかになっている。先行研究によれば、幹細胞が感受しうる外部シグナルには可溶性要素、細胞と細胞の接触、基質材料の化学的性質及び力学的性能、外的刺激シグナルがある（図2参照）。このことから、基質材料は幹細胞に対し重要な制御作用があることが分かる。神経幹細胞について言えば、外部シグナルの制御作用への材料の使用に注目する研究がすでに多くなされているとは言え、関連する基礎的な問題は完全には解明されていない。例えば、神経幹細胞に対する材料の化学的シグナル制御に関する挙動の法則や、材料の分解性能が3次元骨格中の神経幹細胞にどのような影響を与えるか、神経幹細胞表面の特異的レセプターに作用する化学的シグナルのタイプ及び成分、ならびにシグナルが細胞内部に伝達するルート、2次元または3次元システム中の神経幹細胞に対する外的機械力(剪断力等を含む)による制御作用等がある。生物材料を用いて神経幹細胞に対する正確な制御及び一定方向の誘導を達成することは、これら基礎的な問題の探求いかににかかっている。

最近の新たな考え方には、材料骨格中に神経幹細胞を複合して再生された軸索を成長させ、病巣と機能の回復に関する神経をブリッジして連結させることで脊髄修復を実現する方法がある。最近、われわれは架橋ヒアルロン酸 (HA) ハイドロゲルにBDNF及びVEGFのPLGAマ

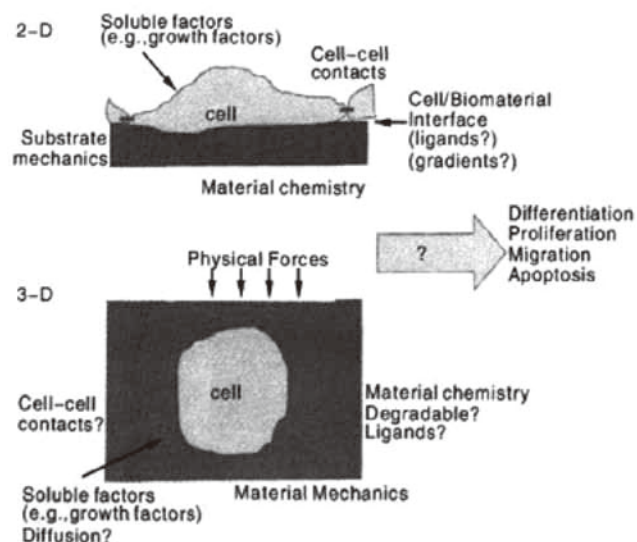
イクロスフェアを加えることで中枢神経系における神経幹細胞のシグナル伝達を良好に制御することができた。このほか、ポリ-L-リジン (PLL) 及びNogo-66レセプター抗体 (antiNgR) (HA-PLL/antiNgR) により改質されたヒアルロン酸 (HA) ハイドロゲルを薬物投与後のラットの脊髄に移植した結果、ラットの脊髄細胞は顕著に改善された。再生した神経細胞からはすでに軸索及び髄鞘が伸長している。いずれの研究結果からも、ヒアルロン酸基ハイドロゲルは脳の損傷修復に用いる再生医療用の足場材料として非常に有望であることがわかる。

4. 今後の展望

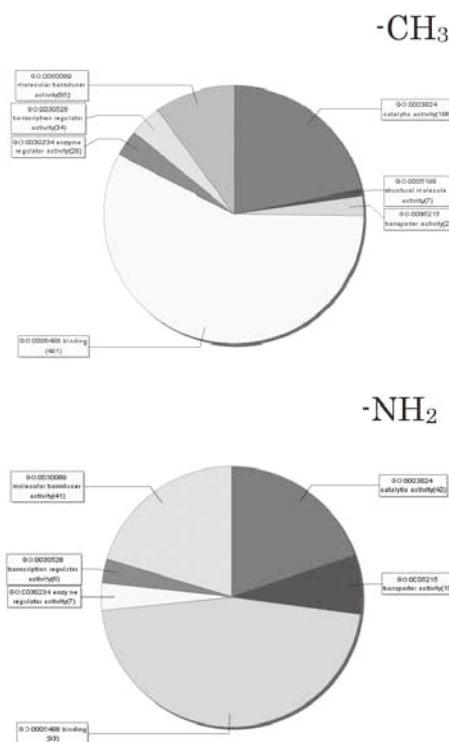
人工材料を使用して微小環境を精確に制御し、神経幹細胞移植後における再生の空間的・時間的プロセスをコントロールすることによって、細胞治療において神経幹

細胞をより効果的に体内に統合することは、非常に重要な試みである。このため、神経幹細胞の状態と運命が材料によっていかに制御されるか、ならびに将来の幹細胞治療における生物材料応用の潜在力を研究することは、現在の神経幹細胞治療及びCNS再生医療研究において非常に重要な要素となっている。

とは言え、抗原性を持たず、大規模生産が可能で、力学的に制御可能で、鍵となる細胞を制御できるシグナルを持つ材料を設計するには依然として多くの課題が存在する。これら問題が解決されれば、生物活性材料により細胞に適した微小環境を設計することができ、体外で細胞を維持できるだけでなく、体内では中枢神経系の疾病または損傷部位という劣悪な環境下で細胞を保護できることから、中枢神経の損傷及び疾病の治療効果を大いに改善することができるだろう。



◎図2 外部シグナルによる幹細胞制御のモデル図



◎図3 神経幹細胞の内部のタンパク質の異なるシグナルに対するメチル基及びアミノ基の対比

different functions	Binding	Catalytic activity	Molecular transducer	Transcription regulator activity	Enzyme regulator activity	Transporter activity	Strutural molecule activity
-CH3	491	186	85	34	28	22	7
-NH2	93	40	41	6	7	15	0

◎表1 神経幹細胞の内部のタンパク質の異なるシグナルに対するメチル基及びアミノ基

レーザー技術

材料力学特性のレーザー制御

•Profile•



陳 光南 Chen Guangnan ●中国科学院力学研究所研究員

1948年11月生まれ。1991年、北京航空航天大学航空・宇宙工学製造過程を専攻、工学博士号取得。「圧延ロールのYAGレーザーダグ加工技術及び応用」プロジェクトの主要メンバー。本プロジェクトは1997年度「中国特許発明創造金賞」を受賞（世界知的所有権機関(WIPO)及び中国特許局により共同授与）。2007年に中華人民共和国科学技術発明賞2等賞を受賞。「内壁の管状作業レーザー強化技術」プロジェクト責任者。2008年度「国防科学技術発明賞」3等賞を受賞。

1. はじめに

強度と靱性、表層と基底、そして局部と全体の性能バランスは金属加工品の使用性能及び耐用年数を決める重要な要素であり、材料加工や機械製造等の業界で普遍的な製造技術上の難題である。

レーザーはエネルギー密度が高く、方向性及び制御性が高いため、通常条件下での加工等で一連の優位性があるが、作用範囲が小さく表面処理にしか適さないという限界性がある。この限界をいかにして特徴として転化させ、強度と靱性の向上、形態と性質の改良、機能と性質の両立という側面を兼ね備えさせるか、さらには、より高い加工効率での金属加工品の力学特性の制御方法こそ、筆者及び研究グループが長年取り組んできた研究目標である。本稿では3つの典型的な実例を結び付けて、関連する研究成果及び実用化状況を紹介する。

2. レーザダグ加工方法及びその実用化

2.1 技術的背景

プレス成型レベルの高品質なダグ仕上げ金属薄板の製造には、ダグ仕上げ用の圧延ロールを採用する必要がある。しかし、わが国の関連業界は知識不足により、海外の先進的な圧延設備を導入しても、中国製品は長きにわたり海外製品に比べて品質上大きな差が存在した。

中国における圧延ロールのレーザーダグ加工技術の開発及び実用化は1990年代初期に始まった。中国科学院力学研究所は1992年、首都鋼鉄公司鋼鉄研究所、中国大恒公司、北京吉普有限公司等の企業の協力の下、中国初のYAGレーザーダグ加工設備を製造して冷間圧延ロールのレーザーダグ加工技術を開発し、同年、中国初の精密帯鋼専門メーカー、秦皇島龍騰公司での応用に成功した。その後まもなく、武漢鋼鉄公司の協力の下、華中科技大学も中国初のCO₂レーザーダグ加工設備の開発に成功した。1993年、国家科学技術委員会は圧延ロールのYAGレーザーダグ加工技術を国家重点科学技術普及事業として認定した。

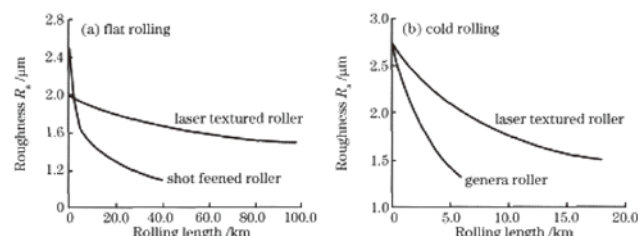
2.2 圧延ロールのレーザーダグ加工の特徴

圧延ロールのレーザーダグ加工技術の原理とは、高い繰返し周波数及び高い出力密度のパルスレーザー(CO₂レーザ

には機械で、YAGレーザーにはQスイッチでパルスを調整)を用い、一定の分布(規則的またはランダム分布)に従い圧延ロール表層材料にマイクロスケールで溶融凝固加工をすると共に高压気流を利用して設定した方向、位置、形態に溶体を移動し、堆積させるものである。このため、いわゆる圧延ロールのレーザーダグ加工とは実質上、レーザー及び気流を手段に圧延ロールの表面に一定のデザイン及び外観要求に基づいた顕微彫塑を行うプロセスである。

2.3 圧延ロールのレーザーダグ加工による寿命延長メカニズム

圧延ロールのレーザーダグ加工は平滑化プロセスのみならず冷間圧延プロセスにも応用できる。対比実験の結果(図1)が示すように、平滑化プロセスにおいては圧延対象は焼鈍した冷間圧延薄板であり、プレス率は一般に1%未満で、レーザーダグ加工圧延ロールの摩耗率はよく用いられるショット・ブラスト圧延ロールをはるかに下回り、圧延製品の長さも後者の2倍以上となる[図1(a)]。冷間圧延プロセスにおいては圧延対象は熱間圧延スラブであり、プレス率は50%を上回ることもあるため、汎用ロール(すなわち砥石ロール)に比べ、レーザーダグ加工圧延ロールの優位性は非常に顕著である[図1(b)]。



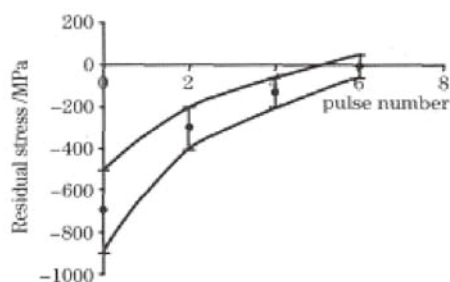
◎図1 さまざまなレーザーダグ加工方法による圧延ロールの寿命比較

2.3.1 表層の剰余圧縮応力強度の低減(圧力低減・靱性増加)

冷間圧延ロールの多くは、9Cr2Mo等の強度の高い合金鋼を用いて製造する。焼き入れは表層の硬度及び耐摩耗能力を向上させる重要な工程であるが、これにより生じる剰余圧縮応力は表層の脆性と割れリスクも増大させ

る。技術上、圧延ロールの靱性は往々にして焼き戻し温度を引き上げる方法により改善されるが、この方法では代価として表層の硬度が犠牲になる。

X線応力測定装置の測定結果(図2)に基づけば、レーザ加工したダルの間隔または直径が等しい場合は、圧延ロール表層の残余圧縮応力の強度はダ目に作用するレーザパルス数の増加に伴い低下するが、レーザパルス数が6を上回った時に初めて、残余応力は引張応力の状態を示す。すなわち、一定のパラメータの範囲内では、レーザダ加工は圧延ロール表層の残余圧縮応力の強度を顕著に引き下げ、靱性レベルを向上させることができる。



◎図2 ロール面の残余応力強度に対するレーザパルス数の影響

2.3.2 離散化による表層硬度の向上(性質改変・強度増加)

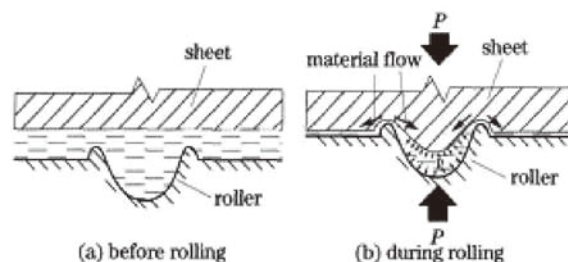
圧延ロールに対するレーザダ加工の際、レーザ出力密度は $104\sim106\text{W}/\text{cm}^2$ を超えることもある。パルスレーザのロール面に対する離散作用時間は約1sである。ダ目の溶融物の冷却および凝固は主に圧延ロール材料の良好な熱伝導率と圧延ロール自身の巨大な熱容量に依存する。このことから、冷却速度及びこれにより生じる凝固組織の洗練化及び硬度レベルは、通常の熱処理によるものに比べてはるかに高いだけでなく、連続レーザ加工によるものに比べてもはるかに高いことは想像に難くない。

2.3.3 接触条件の改善(形態改変・摩耗低減)

上述の通り、レーザダ加工により圧延ロール表面に形成されたマイクロ構造は、離散分布状の密閉微細凹部とこれに相対して平滑な凸包からなる。圧延ロールで圧延する際、これらマイクロ構造とロール鋼板との間には図3で示す接触状態が生じる。相互の咬み合わせが良好なため両者間に滑動は生じず、ロール鋼板表面に切り込みや溝は生じず、圧延ロールそのものも摩耗しにくい。また、密閉型の微細凹部であるために、凹部内の圧延により圧延ロールとロール鋼板が咬みあわせた後に高い圧力が生じることは、その潤滑作用の維持だけでなく、圧延ロールとロール鋼板とが張り付く可能性の低減にも有利である。張り付きは、薄板冷間圧延プロセスと焼鈍薄板の平滑化・圧延プロセスでよく見られる有害現象である。

レーザダ加工範囲の間隔と加工品の耐摩耗能力に関する実験によれば、レーザ強化範囲が相接する際に加工

品の摩耗重量損失が最も小さく、すなわち、この時の加工品の耐摩耗能力が最も強い。

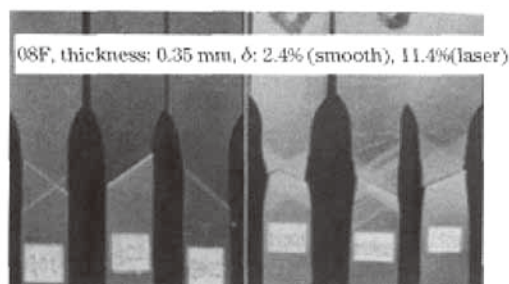


◎図3 レーザダ加工によるロール面の外観改善及びそのロール鋼板との接触条件

2.4 レーザ加工によるダル薄板の性能最適化メカニズム

関連実験の結果によれば、平滑化したか否かを問わずプレス速度が $1\text{m}/\text{s}$ を上回る時、レーザ板の摩擦係数は明らかにショット・ブラスト板を下回る。つまり、同一の成型条件下では、レーザ板の方が流動性が良く、成形能力が強い。光沢板、ショット・ブラスト板、放電板(電気スパークによりブラストした圧延ロール平滑鋼板)に比べ、レーザ板の映像明瞭性が最も優れていた。そのうえ、レーザ蒸発型(微細凹部しかないダル加工圧延ロールの平滑化)鋼板の映像明瞭性はレーザ溶融型(微細凹部だけでなく、凸包もあるダル加工圧延ロールの平滑化)鋼板を明らかに上回っていた。しかし、成形能力の面から考えると、材料の流動性は微細凹部の形態だけでなくサイズと関係する。このため、冷間圧延薄板製品の表面外観及び粗度は、主にその用途及び品質要求に基づき、統一的にデザインされる。

図4によれば、摩擦引張変形のない条件下で、08Fレーザによるダル薄板(厚さ 0.35mm)の伸長速度は光沢板(すなわち、砥石ロール・フラインダーにより製造された鋼板)の約5倍であり、光沢板サンプル上では顕著な滑動移動及び圧縮は見られなかった。一方、レーザ板サンプルの滑動移動は多様性に富み、集中性におけるバランス喪失は滑動移動帯が相当に広い範囲で十分に進展した後に出現したものである。



◎図4 08F鋼レーザ板と汎用板の引張性能の対比

走査型電子顕微鏡(SEM)による動態観察の結果によれば、レーザー板表面の事前変形・硬化部分(凸包和凹入部)は滑動線の運動に阻害効果をもたらし、すなわち、事前硬化部分にはレベリング、変形の安定化、変形集中の老化緩和作用があるため、レーザー板の塑性変形能力を向上させる機能がある。

薄板の引張変形損傷理論に基づけば、レーザーダグ薄板の表面粗度は安全閾値範囲内に制御される必要がある。冷間圧延された低炭素鋼薄板については、引張変形による表面損傷の極限スケールは、板厚の1%を上回ってはならない。

2.5 YAGレーザーダグ加工技術の進展・実用化概況

圧延ロール領域においては、板面接触条件の改善により帯鋼の焼鈍張付を防止する技術や表層の強度・靱性レベルの向上により圧延ロールの寿命を延長する技術がある。圧延機領域においては、圧延ロールと薄板間の摩擦条件の改善により圧延機の圧延速度を向上させる技術や、これらの作業による圧延ロールの粗度差を通じて汎用冷間圧延機上で非同期圧延を実現する技術がある。また、薄板製品については、輝度とプレス性能を兼ね備えた精密帯鋼及び鏡面鋼板の製造技術等がある。

現時点までに、中国が独自に開発した圧延ロールのレーザーダグ加工技術と設備はすでに冶金業界で広く認められている。レーザーダグ加工技術を応用した製品も当初の低炭素鋼板から、徐々に汎用鋼、合金鋼に拡大し、アルミニウム合金製品までも製造するようになった。レーザーダグ加工圧延ロールの応用は、冷間圧延の平滑化プロセスから冷間圧延プロセスにまで拡大し、ダグ鋼板の製造を主な目標としていたものが圧延ロールの使用性能及び耐用年数の向上を主な目標とするまでになり、形態及び性質の改善、機能及び構造、強度及び靱性の向上という多くの目標を兼ね備える総合的な応用技術にまで拡大した。

3. レーザめっき層の強化方法及び実用化

3.1 技術的背景

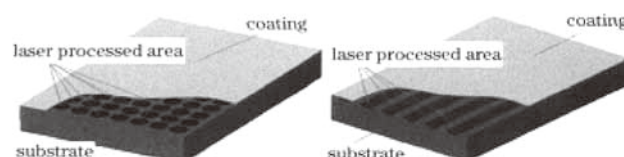
高温強度、化学的安定性、耐摩耗能力に優れていることから、クロムめっき加工品は工業に広く用いられているが、加工品の寿命に影響する主な問題はめっき層にクラック・剥落が生じやすいことにある。これまでに開発されたさまざまな改良技術には、前処理(基体材質または基体そのものに対する強化処理等)、工程処理(電気めっきプロセスやめっき液の配合改善等)、後処理(めっき層に対する応力除去・焼鈍・再溶融等)があり、めっき層の早すぎるクラック・剥落の面で改善が見られるものの、総合的な効果の上では、進歩し続ける工業技術の要求を満たしていない。

われわれが報告する技術プランは、クロムめっき工程前に、まず基体にレーザー熱離散処理をするものである。ある種の鋼を基体としたクロムめっき部品は、高温、高

圧、強い融蝕環境を何度も経なければならない。そのため、この技術的難題に対しては何度も試みがなされており、既存のさまざまな技術が応用されてきたが依然として寿命は基準を満たさず、次に述べる技術プランが採用されるまでは実用上の課題となってきた。

3.2 技術的特徴及び応用効果

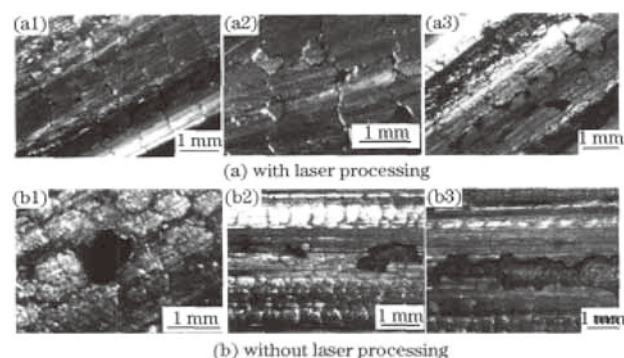
基体のレーザー前処理により形成されるクロムめっき層の構造を図5に示す。



◎図5 基体に対するさまざまな離散方式によるレーザー前処理クロムめっき複合材料の構造

ある種の鋼を基体としたクロムめっき部品に設計された総合寿命はのべ3000回転であったとしても、既存の処理方法では総合寿命はのべ2000回転にしかならない。基体に対するレーザー前処理方法を採用した後にその総合寿命はのべ3000回転を超え、さらにレーザー工程を改善したところ総合寿命は一層高まり、のべ4500回転に達した。

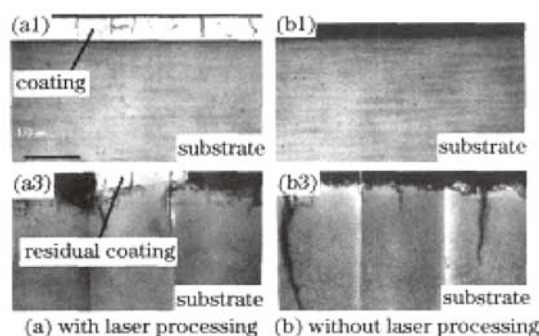
図6(a)、(b)はそれぞれレーザー前処理後、及びレーザー処理を行っていないクロムめっき部品であり、(a1)、(a2)、(a3)ならびに(b1)、(b2)、(b3)はそれぞれ出口、中ほど、燃焼室に近い部位のめっき層の寿命状態を示している。この図ではレーザー前処理方法の効果がはっきりと示されており、(a)部品のめっき層の剥落及び摩損程度はどの部位においても(b)部品を下回っている。



◎図6 レーザ離散による前処理部品及び未レーザー処理部品のめっき層の失効状況の対比(表面)

断面図(図7)を見ると両者の差が更にはっきりと見て取れる。熱・機械衝撃(熱、化学及び機械力の相乗作用)のべ3000回転以降、(a)部品の孔部めっき層はなおも基本的に

完全を保ち、燃焼室近くの部位も著しく融蝕したもののめっき層の残留を維持した。一方、(b)部品は熱・機械衝撃のべ2000回転で、対応部位のめっき層はほとんど消失し、燃焼室近くの部位の基体におけるクラック現象は深刻であった。



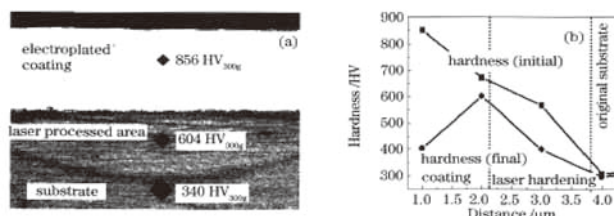
◎図7 レーザ・非レーザ処理部品の寿命時におけるめっき層失効状況の対比

2種類のめっき層に対する超音波腐食試験の結果によれば、レーザ前処理めっき層の耐腐食能力は既存技術のめっき層を明らかに上回った。

3.3 レーザによる寿命延長メカニズムの分析

3.3.1 性質改変・強化メカニズム

レーザ前処理後、基体表層材料は性質改変により硬化され、クロムめっき層と基体の原始組織との間の硬度の激しい格差もこれにより緩和される(図8参照)。加工品表層の寿命については初期硬度曲線[図8(b)]が示すように、のべ3000回の熱・機械循環後、加工品は全体的に軟化し、めっき層の硬度現象も特に著しいが、めっき層とレーザ強化部位の硬度は依然として基体の原始組織を上回る。このことは、加工品の寿命全うにおけるレーザ前処理の意義を十分に体现するものである。

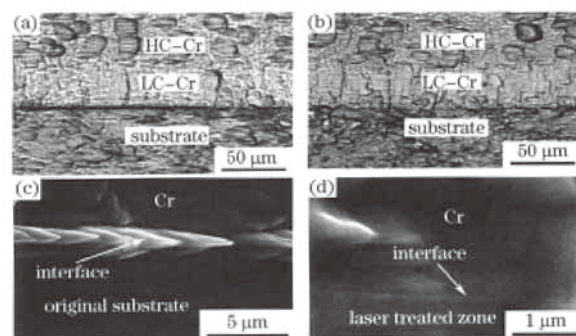


◎図8 クロムめっき層体系の硬度に対するレーザ前処理の影響

3.3.2 構造性能の遺伝メカニズム

SEMに対する観察に基づけば、レーザで前処理したクロムめっき層の界面構造[図9(b)和(d)]の精巧さ、緻密さ、クリーン度は一般の電気めっき層より明らかに優れている[図9(a)及び(c)]。透過型電子顕微鏡(TEM)による組織及び回折分析によれば、レーザで前処理しためっき層組織

のサイズは一般のめっき層より明らかに小さい。ナノ硬度実験によれば、レーザで前処理しためっき層の力学特性も一般のめっき層をはるかに上回る。めっき層の成長プロセスにはレーザによる作用はないことを鑑みれば、2種類のめっき層の組織及び性能の差はそれらの基底によるとしか考えられないため、基底はめっき層に対して強い遺伝効果があると言える。



◎図9 めっき層界面構造に対するレーザ離散熱加工の影響

3.3.3 強度・靱性の相乗メカニズム

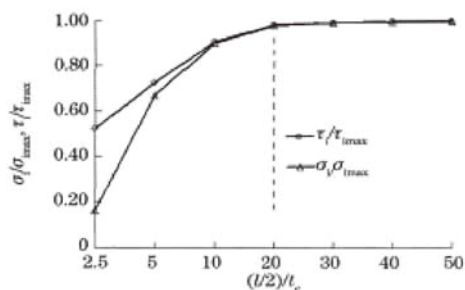
レーザによりめっき層を前処理した部品が使用される際、硬質部分が外的負荷を支え、抵抗する主力となり、靱性部分は硬質部分が外的負荷を支え、抵抗するプロセスで生じる応力と変形を緩和し、吸収しうる。このため、これらの強度・靱性構造はめっき層におけるクラックの形成を効果的に減らし、かつ、遅らせることができる。

クロムのめっきプロセスにおいては、クロム原子の沈積、結晶核生成及び成長によりめっき層内の応力が徐々に増大し、クロムめっきの断裂強度を超えるまでになる。このため、未使用のクロムめっき層であったとしても、その内部には往往にして大量の微小なクラックが存在する。使用プロセスにおいては、初期の内的応力と外的負荷の相乗作用の下で、めっき層中の一部の局部部位における微小なクラックが繋がって成長し、めっき層の厚さ全体を表面から内部まで貫通し、基体にまで達する分割性を持つクラックにまで徐々に発達する。この種のクラックは製造工程では歓迎されるものではないが、往々にして回避できない。

レーザ離散により前処理された基体は、残余応力分布を制御することでめっき層の分割性クラックの間隔を調整することができる。使用の際、これら分割性クラックはレーザスキャナの道筋と平行で、レーザ前処理離散度と平行に走るすじ状の主要クラックに成長しうる。

めっき層の基体に対する防護の面から見ると、めっき層中の主要クラック数の減少が望まれる。それは、熱環境による基体への損害を低減するのに効果的であるためである。しかし、主要クラックにより界面応力(界面破壊駆動力とも言う)を低減するという観点から見れば、主要

クラックの間隔について、それが効果的に作用を発揮できる範囲内に制御することを望むなら、図10に示す応力曲線の左側に制御する必要がある。

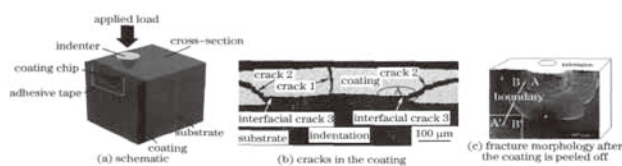


◎図10 界面の参考ノード応力とクラック間隔との関係

3.4 めっき層の界面結合性能の特徴

レーザー強化めっき層により派生する新たな問題とは、強結合めっき層の界面性能をいかに表現し、評価するかである。界面結合強度が90MPaを下回るめっき層については、製造工程では接着引張や湾曲等の既存の方法によりその界面性能を評価している。鋼基クロムめっきは強結合めっき層体系に属し、レーザー前処理を経た後にその界面強度がさらに高くなるため、相応する海綿性能の表現方法が急ぎ必要とされている。

このため、図11に示す側面圧入方法が進められた。この方法では円錐形の圧子をめっき層サンプルの基体の片側に圧入し[図11(a)]、基体材料からの膨出によりめっき層のクラック[図11(b)]及び剥落[図11(c)]が生じる。



◎図11 側面圧入方法

4. レーザ補助プレストレス力による成形方法

4.1 技術的背景

成形は機械製造領域における重要な製造方法の一つである。ここで言う成形製造とは、特に板金部品、すなわち薄壁またはコアシェル類部品を湾曲または引張曲げ等の方法により変形することで、設定したサイズや形状を実現する加工プロセスである。この種の成形・製造プロセスには、その構造が・形状が複雑なために(例えば、馬の鞍型の加工品)、あるいは網状に張られた強い鉄筋による支柱作用のために(例えば、全体壁板等)、上記の方法で成形目標を実現するのが難しい種類の板金部品がある。

現時点で、これら部品の成形上の難題を解決する主な

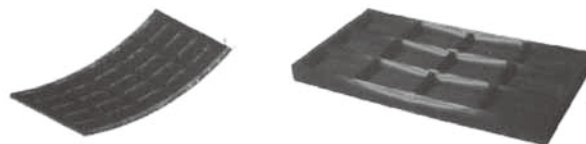
方法はショット・ブラスト及び時効法である。ショット・ブラスト法は自由ショット・ブラスト成形及びプレストレス力ショット・ブラスト成形の2種類に分けられる。時効成形はまたの名をプレストレス力高温クリープ成形という。この方法は、金型上でクランプされ、かつ、弾性湾曲負荷を与えられた部品の全体を加熱罐に入れ、高温条件下(アルミニウム合金部品に対しては一般に110℃~170℃で20h保温)でクリープ作用により成形を実現するものである。

時効成形の能力はショット・ブラストを上回るが、時効成形部品は時効強化材料を採用して制作して初めて、熱軟化効果を克服できる。ショット・ブラスト成形の際は、部品表層の変形抵抗が増大し続けるため、成形能力は総体的に小さく(金型を使用しないショット・ブラストの成形能力はさらに低い)、大スケールまたは高い骨格に支えられた薄壁部品は必ず中間焼鈍を経る必要がある。レーザー補助プレストレス力による成形方法は上記の限界性の克服に役立つ。

4.2 レーザ補助プレストレス力による成形方法の原理

レーザーによる溶接、切断、クラッディング、表面熱処理方法、レーザーによる急速原型製造とレーザー湾曲による成形方法は異なる。後者の方法による成形の主なエネルギー源は部品の弾性内部エネルギーであり、レーザーの主な作用は部品の弾性内部エネルギーが集中する部位の材料の変形抵抗を低減し、弾性エネルギーにより塑性を作り、部品の湾曲成形を実現することにある。

構造の複雑な、あるいは骨格に支えられた薄壁部品の弾性内部エネルギーは、往々にしてその幾何学的な急変または骨格のある部位に集中するため、レーザー補助プレストレス力による成形の際は、レーザーはこれら部位についてだけ干渉すれば足りる。壁板全体の部品の弾性内部エネルギー分布数値の計算結果(図12)によれば、90%の弾性内部エネルギーは表面積が10%を超えない構造強化部位(図中の発光部位)に集中する。このため、これら部品に対しては、いわゆるレーザー補助成形はこの10%の部位について実施すれば足りる。



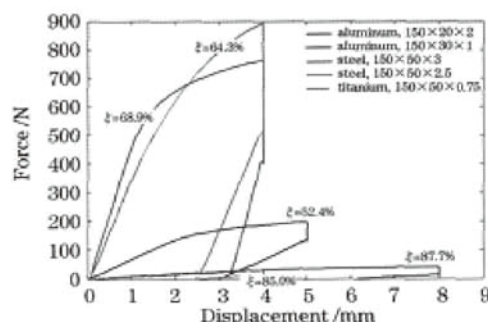
◎図12 壁板全体の湾曲の際の弾性内部エネルギーの分布

4.3 成形効果の例

4.3.1 薄板サンプル

アルミニウム合金、低炭素鋼、チタン合金等のよく用いられる成形材料薄板サンプルに対してレーザー補助成形実験を実施した。結果は図13に示すように、異なる材質

サンプルに対するレーザ補助成形による能力の上昇幅は異なるが、その効果はいずれも顕著であった。



◎図13 薄板に対するレーザ補助成形の荷重移動曲線

4.3.2 壁板全体(肋条支撑)サンプル

7075アルミニウム合金の壁板全体サンプルにレーザ補助成形及び時効成形をそれぞれ実施した結果を図14に示す。レーザ補助成形の作用時間は30minで、負荷除去後のサンプル成形の高さは12.5mmであった。時効成形の技術パラメータは170℃、22.5hで、負荷除去後の成形の高さは13.6mmであった。



◎図14 7075アルミニウム合金構造サンプルのさまざまな方法による成形効果

実験により、初期の弾性内部エネルギー(すなわちサンプルのたわみ)が一定の状況下では、サンプルの弾性内部エネルギーの転換効率はレーザスキャンの回数の増加に伴い低下し、スキャンを7回繰り返した後のエネルギー転換は飽和に向かうため、サンプルの成形量を継続的に引き上げたい場合は適時にそのたわみを引き上げる必要があることが分かった。

4.3.3 サンプルの性能に対するレーザ補助成形の影響

被覆アルミニウムとアルミニウム合金2024に対する対比実験に基づけば、レーザ補助成形の前後は、2種類のサンプルの組織構造の間には明確な差は見られなかった。レーザ補助成形サンプルの疲労寿命は、レーザ作用部位の材料に熱軟化が生じたために低下したものと考えられる。しかし、これら部位にショット・ブラスト強化処理を行いさえすれば、レーザ補助成形サンプルの疲労寿命は低下しないばかりか、初期材料を上回る可能性さえある。

5. 結論

上述した新技術及びそれらの応用効果は次の通り。

- 1) 圧延ロール表面のレーザ離散による溶融凝固処理により、デザインされた外観及び粗度での製造が可能であり、表層の靱性を向上させるとともに高性能の溶融凝固組織を得ることができ、圧延ロールの使用効果及び耐用年数をめざましく改善することができる。
- 2) 基底表面に対するレーザ離散前処理により、基底の強度を向上させられるばかりでなく、基底とめっき層の界面結合能力をめざましく向上させることができ、めっき層の組織及び性能を改善することもできる。
- 3) レーザ局部熱による軟化補助プレストレス力により、損傷を与えず性能を向上させられる前提下で、金属加工品、特に複雑な金属構造を持つ加工品の成形能力を向上させることができる。

一次元の有機マイクロ・ナノ光機能性材料の研究

●Profile●



姚 建年 Yao Jiannian ●中国科学院化学研究所研究员、中国科学院院士、国家自然科学基金委员会副主任、中国化学会理事长

1953年9月27日生まれ。長期にわたり、新型の光機能性材料の基礎及び応用研究に従事。ナノスケール効果を利用した有機分子の光物理・光化学的性質の制御、無機及び複合材料の光による変色等の分野で一連の先行的な研究成果を収め、世界に大きな影響を与えた。これまでに、Nature, J Am Chem Soc, Angew Chem Int Ed, Adv Mater, Acc Chem Res等の国際学術誌上に論文270本以上を発表、中国発明特許11件、共著3冊、共訳書1冊。2004年に「新型光機能性材料に関する若干の基礎研究及び応用の探索」で国家自然科学2等賞を受賞(筆頭受賞者)。

共著者：趙永生、崔秋紅

1. はじめに

ナノテクノロジーは1980年代末に誕生し、急速に頭角を現した新興の学問であり、物理学、化学、材料学、電子学、機械学、生物学、医学等の数多くの分野と関係がある。ナノ材料学はナノテクノロジー分野の最も主要な派生分野の一つとして、近年、新たな研究の関心事となっている。ナノ材料とは、材料そのものの三つの次元のうち少なくとも一次元がナノスケールの範囲(1~100nm, 1nm=10⁻⁹m)に含まれる物、または材料がナノスケール上の基本ユニットにより構成される物を言う。同成分のバルク材料に比べ、ナノ材料はその高い比表面積特性や量子サイズ特性、巨視的量子トンネル特性等により、特有の物理的、化学的、光学的、電気学的、機械的特性を有する。ナノ材料は次元から見て、大きく三つに分類される。すなわち、ゼロ次元ナノ材料、一次元ナノ材料、二次元ナノ材料であり、二次元及び一次元ナノ材料はナノスケールの範囲に入る。ゼロ次元及び二次元ナノ材料に比べ、一次元ナノ構造はその一次元的連続性と機械的柔軟性により、将来的には、例えば一次元のマイクロ・ナノ導波管、ナノワイヤ・レーザ、効率の高い太陽電池等の光電気部材等で、小型化や性質向上に大いに本領を発揮するものと考えられている。ナノ材料の化学成分に基づき、一次元ナノ材料はさらに一次元金属ナノ材料、一次元無機半導体ナノ材料、一次元高分子ナノ材料、一次元有機小分子ナノ材料に分類される。ここ十年ほどの研究において、有機一次元ナノ材料の調製方法及び性質の制御が研究者たちに広く関心を持たれ始めている。これは、有機小分子材料は無機化合物に比べて次のような顕著な長所があることによる。すなわち、(1)化学構造の種類が多いこと、(2)目的に従い機能分子の構造を改変でき、機能を多様に組み合わせ、集積させられること、(3)分子レベルで分子の秩序ある構成及びナノ構造の制御ができるため、材料の性質に影響を与えられることである。つまり、有機一次元マイクロ・ナノ材料は、レーザ、フォトダイオード、化学検出器等で、その特有の構造成長方式と優れた光学的性質を発揮することができる。一次元ナノ材料の構造特性及び有機小分子の光学的性質を組み

合わせることで、性質の調整可能なマイクロ・ナノ光学部材における有機小分子一次元ナノ材料、すなわち単一成分及び複合有機ナノ材料の活用が期待されている。

2. 一次元有機ナノ材料の調製

一次元有機ナノ材料の調製方法は、物理的方法と化学的方法の2種類に大きく分類される。物理的方法には、粉碎法、ボールミル法、イオン・スパッタリング法等の「トップダウン法」(top-down)のみならず、テンプレート法、溶剤熱法、物理気相成長法等の「ボトムアップ法」(bottom-up)がある。化学的方法とは一定の化学反応プロセスを経る物を言い、分子、原子レベルから出発してナノ材料を調製することから一般的にすべて「ボトムアップ法」であり、主にイオン共沈法、ゾル・ゲル反応、化学気相成長法等がこれに含まれる。一次元有機ナノ材料は主に「ボトムアップ法」により、有機小分子間の相互作用力(例えば水素結合、 π - π 結合、ファンデルワールス力)を利用して一次元ナノ構造を自己組織化する。以下によく用いられる調製方法を具体的に紹介する。

2.1 物理気相成長法

物理気相成長法の一般的なプロセスは、純粋な化合物を高温エリアに置いた後に、キャリアガスを用いて揮発した化合物を比較的低い温度区間(すなわち成長区間)に送り込み、単結晶材料を成長させるものである。この方法の有機ナノ材料における応用は無機ナノ材料ほど普及していない。これは主に有機小分子そのものの融点が低く、昇華しやすいという特徴によるもので、気相成長法等の高温条件下でナノ構造を調製する際は、飽和度の制御がやや難しい。しかし、過飽和度は材料の外観及び規則性を制御する鍵であるため、本研究グループはシリカゲル、酸化アルミニウム等の吸着剤を有機小分子の気相成長法体系に導入し、有機分子と吸着剤の間の吸着-脱着バランスにより目的化合物の蒸気の飽和度を制御し、かつ、これら気相成長法の改善により、2,4,5-トリフェニルイミダゾール(TPI)及びトリス(8-キノリノラト)アルミニウム(Alq3)の単分散に近似する有機一次元ナノ材料の調製に成功した。

2.2 再沈殿法

再沈殿法とは、良質な溶剤中に目的化合物が少量溶けている溶液を大量の目的化合物が溶けている悪質な溶液中に急速に分散させることにより、有機化合物のさまざまな溶剤中における溶解度の顕著な差を利用して有機ナノ結晶を調製する方法である。悪質な溶剤としてよく用いられるのは水である。他の有機溶剤または混合溶剤であってもよいが、必ず良質な溶剤と相互溶解性がなければならない。再沈殿法は容易なうえにナノ構造が分散体系中に自由かつ単独に存在することができるため、メゾスコピック領域における有機ナノ構造の光物理的性質の研究に役立つ。

2.3 自己組織化法

自己組織化法とは、有機溶液中で溶剤が揮発する際に、溶液中の有機小分子が凝集し、かつ、自己組織化して一定の構造を構成することを利用する方法である。この方法を使えば完全な単結晶構造を持つ巨視的な結晶が得られるとは言え、ナノスケール上ではナノ構造のサイズ、外観、規則性の制御が非常に難しい。有機単結晶プロセスでは溶剤分子は非常に混ざりやすいが、それでも広く注目され、応用されているのは溶剤法である。これは、有機単結晶マイクロ・ナノ構造を調製する上で、液相中の自己組織化がより簡単で低コストな方法であるからである。

2.4 テンプレート支援法

テンプレート支援法とは、テンプレートの制限効果を利用して一次元ナノ材料を調製し、成長させた後に何らかの方法によりテンプレートを除去する方法である。テンプレートは主に硬質テンプレートと軟質テンプレートの2種類に分けられる。テンプレートは材料の合成において金型の役割を果たし、材料の形成には依然として電気化学析出、電気化学重合、化学重合、ゾル・ゲル沈積、化学気相成長法等のよく用いられる化学反応を使用する必要がある。

「硬質テンプレート」とは、一般に孔径がナノスケールの多孔質固体材料を指し、カーボンナノチューブ、多孔質アルミニウム陽極酸化膜、ポリマー膜、分子篩、生体高分子等があり、以下のいくつかの長所がある。すなわち、(1)普遍的適用性が良好であること、(2)テンプレートそのものを一定範囲内で精密に制御できるため、得られる材料の外観、サイズがテンプレートの外観、サイズ、反応条件により制御できること、(3)ナノ構造配列の調製が容易であること、(4)また、テンプレート内の構成物質の成分ならびにナノチューブとワイヤのアスペクト比の改変によりナノ構造の性質を調整できること。例えば、ヘテロ結合ナノワイヤ、多層チューブ・ワイヤの調製等がある。本研究グループは、改良した多孔質酸化アルミニウムテンプレート法も用い、さまざまな有機小分子によるナノチューブを調製した。

「軟質テンプレート」とは、一般に液晶、逆ミセル、コロイド自己組織化体系等を指す。軟質テンプレートは主に高分子を利用し、例えば界面活性剤がその溶液中で一定の濃度に達した際に形成される一部の秩序的構造で材料を制限して成長させる。界面活性剤の補助下では、単一成分のナノワイヤ、ナノチューブを調製できだけでなく、ドーピングされたナノ構造も調製することができる。例えば、本研究グループでは化合物、1,3-ジフェニル-2-ピラゾリン(DP)及び4(ジシアノメチレン)-2-メチル-6-(4ジメチルアミノスチリル)-4H-ピラン(DCM)のエタノール混合溶液を界面活性剤、臭化セチルトリメチルアンモニウム(CTAB)の補助作用下で簡単な再沈殿法により調製したところ、3段階式2成分の一次元ナノロッドが得られた。この方法を利用した段階式の一次元ナノロッドの調製は、他の調製方法に比べて操作が簡単でコストがやや安いというに異相環境との相容性があるため、現時点では比較的理想とされる選択の一つとなっている。

3. 一次元有機ナノ機能性材料の性質に関する研究

近年、有機ナノ材料の新しい調製方法の開発、形成メカニズムの検討及び光電気特異性等の分野では、有機ナノ粒子の光学的吸収及び放出に関するサイズ依存度、ナノ粒子中の励起子有限域効果、蛍光増強、光導波路、誘導放出、電界効果トランジスタ等の数多くの興味深い現象にますます多くの注目が集まっている。有機一次元ナノ材料の光電気特性及びその機器上の応用に関する、ここ10年間の研究の進展及び成果を概観する。

3.1 多色発光及び白色発光材料

有機小分子の発光材料は、化学、物理、材料、電子学等の数多くの学問に関係する研究分野である。無機材料と比べ、有機材料の方が発光効率が高く、発光色の選択範囲が広い。近年、有機発光材料に関する研究がますます関心を集めており、一次元有機ナノ材料はその構造の優位性から、発光ダイオード、レーザや光電気検知器等の小型光子器材に有効に利用されている。

3.1.1 単一成分による多色発光

単色発光に比べ、制御可能な発光材料のほうがより広く応用される。ここ数年、研究者たちは一次元有機ナノ材料による多色発光性質の探究に力を入れている。一般的に、多色発光は蛍光染料のドーピングにより実現される。しかし、本研究グループは有機小分子、1,2,3,4,5-ペンタフェニル-1,3-シクロペンタジエン(PPCP)単結晶の一次元ナノベルト及びその段階別自己組織化により多色発光を実現した。紫外線、ブルーレイ、緑色光を利用してPPCPナノベルトを励起したところ、さまざまな色の光を得ることができた。

3.1.2 複合材料による白色発光の放出

上記の作業は、ナノ構造そのものの欠陥により発光を制御するものである。しかし、単一成分材料の発光制御

範囲は多成分の複合材料に比べてはるかに小さい。なぜなら、多成分のナノ構造中には化合物間のエネルギー移動が存在するため、発光を大きな範囲で制御できるためである。このため、研究者たちは有機化合物によるナノ材料をますます多く研究している。本研究グループは、物理気相成長法によりルブレンを1,3,5-トリフェニル-2-ピラゾリン(TPP)中にドーブし、分子間の蛍光共振エネルギーの移転(IFRET)を利用したところ、一次元ナノ白色発光放出機材の調製に成功した。

3.1.3 自己調整型によるマイクロ・ナノ白色発光の放出

ドーピングにより白色発光の放出が得られるとは言え、これまでの研究の多くは巨視的な白色発光の放出をターゲットにしており、マイクロ・ナノ材料それぞれに対する具体的な白色発光の放出は単純なドーピングではとても実現できない。何故なら、(1)これまでの研究によれば、単結晶ナノ材料にはその電子伝達性能を向上させ、光電気性質を強化させられるという長所があるが、大部分の有機・ドーピング系統は不定形であること。(2)マイクロ・ナノ構造それぞれのドーブ率は制御が難しいこと。(3)それぞれのマイクロ・ナノ構造中のドーブ率を精密に制御できたとしても、単数のマイクロ・ナノ材料は複数・巨視的なナノ材料に比べて外的環境(空気、pH等)の影響を大きく受けるため、白色発光の放出品質にも影響を及ぼすことがある。これらの問題を克服してそれぞれのマイクロ・ナノ構造からの安定的な白色発光の放出を実現するため、最近、本研究グループは金属の一種、イリジウム化合物による燐光染料(BT)2Ir(acac)を合成し、かつ、蛍光染料9,10-ジフェニルアントラセン(DPA)とドーブし(このうち、分子(BT)2Ir(acac)は橙光を放出し、分子DPAはブルーレイを放出する)、これら2種類の化合物間に存在する三重項状態・一重項状態間のエネルギー移動を利用したところ、さらに安定した自己調整型の白色発光ナノワイヤを得ることができた。

3.2 有機マイクロ・ナノ光導波管材料

光導波管現象は、媒介を伝達する屈折率が周辺環境より高いことにより、光信号が光学密度の高い媒質中で界面の全反射によって絶えず前向きに伝播することにより生じる。ここ数十年のナノテクノロジーの発展に伴い、光導波管材料のサイズは小さくなり続けている。マイクロ・ナノスケールの光導波管機器では、回折極限範囲内で光信号を操作し、制御することができる。マイクロ・ナノ材料の光導波管はマイクロ化・光学機器において機能元素として応用でき、潜在的な応用としては光通信、情報伝達、光センサ、生化学センサ、光検知器等がある。一次元ナノ材料のうち、有機単結晶材料には次のような特有の長所がある。すなわち、(1)無機材料に比べ、有機材料には優れた光学的性質があること、(2)有機小分子は共益高分子に比べ高い結晶性があるため、光子結晶の相互作用及び電荷流動性に有利であること、(3)新しい有機

分子の設計及び合成を通じて、ナノ光導波管の挙動における分子構造及び分子間の相互作用力を検討するのに便利であること、(4)有機化合物ナノ材料は調製が非常に容易なことで、制御可能かつ有意義な光電特性を得られるだけでなく、分子間の相互作用の研究にも有利であることがある。このため、一次元有機単結晶マイクロ・ナノ材料の光導波管は依然として研究の関心事となり続けるだろう。

3.2.1 低消耗有機マイクロ・ナノ光導波管

有機単結晶光導波管の研究プロセスにおいて、その進展を制約する要素の一つは比較的高い光消耗である。有機光導波管材料の光学的消耗を減らすには、周辺環境の屈折率の低減を通じ、有機単結晶と空気環境との間の全反射を充分に利用すれば問題を克服することができる。これは、光伝播プロセスにおいて、周辺環境の屈折率の大きさが光導波管の効率を決める重要な要素であるためである。空気中の $n_{\text{空気}}=1$ のとき、 $n_{\text{ガラス}}=1.53$ である。このことから、合成ナノチューブはナノワイヤを垂直方向へ成長させ、光導波管中の消耗を効果的に低減できる可能性があることがわかる。本研究グループは、再沈殿法により9,10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン(BPEA)分子のナノチューブを調製した。ナノチューブ中は空気の屈折率がやや低いため、BPEAナノチューブはナノロッドに比べ光消耗がやや低い。Huangの率いる研究グループは、1,5-ジアミノアントラキノン(DAAQ)分子を気相成長法によりナノ配列に引き延ばしたところ、垂直方向に成長させたナノワイヤの光伝達プロセスは、ガラスまたはその他の基材上に平らに敷かれる場合に比べて消耗がやや小さいことを証明した。

3.2.2 有機導波管調節器

ここまでの考察に基づけば、一次元有機単一成分ナノワイヤには優れた光導波管としての性能があることが分かる。しかし、より制御可能な導波管の性能は、単純なドーピングによって2成分系統においても実現できる。例え一定のドーブ化合物に制限を受けても、2成分のマイクロ・ナノ構造の光導波管機器は光の伝達、光の有限域、光の波長の増加の面でよりよいパフォーマンスを示す。単結晶TPIナノ構造の調製に成功したのに続き、本研究グループはペリレンをTPI結晶格子中にドーブして単結晶の2成分ナノチューブとナノロッドを調製した。TPIとペリレンとの間にはIFRETが存在するため、2成分のナノチューブ及びナノロッドは能動的な光導波管調節器として用いられ、少量のドーブも光導波管の伝達効率を向上させる有効な方法であることが証明できた。

3.2.3 燐光発光による光導波管

上述したいくつかの有機化合物はすべて蛍光発光材料である。蛍光発光は、一重項励起子の遷移により得られる。しかし、これまでの研究によれば、励起により生じた励起子のうち、一重項励起子と三重項励起子の比は

1:3であった。このため、電気による効率的な発光は、燐光染料のドーピングにより実現できる。こうして、蛍光発光、さらには燐光発光により、光の放射効率を100%まで引き上げることができる。この考え方に基づき、本研究グループは液相成長法により燐光分子Ir(ppy)³ (tris-(2-phenylpyridine)iridium)の一次元ナノ構造を調製し、かつ、その光導波管としての性質を研究した。その結果、Ir(ppy)³マイクロロッド中には強い三重項-三重項光子が隠滅しているため、光に励起されるポンプレーザの実現に向かないことがわかったが、この知見は有機金属分子または燐光染料分子による微視的なサイズ機器の調製に効果的な理論的根拠を提供した。

3.3 有機ナノワイヤ・レーザ

ここ20年間、有機材料は光電気機器において良好なパフォーマンスを示しており、レーザ及び光検出器中の応用においても急速な進展を見せている。無機半導体のナノ・光電ポンプレーザと有機高分子材料のレーザ研究に続き、有機小分子もナノ・レーザの調製に使用できることが証明された。これまでのp-6Pナノワイヤの光学性質に関する研究に基づき、Quochiらはp-6Pナノワイヤの光ポンプレーザとしての性質を考察した。本研究グループはこれまでの研究の中で、気相成長法と液相成長・自己組織化法によりTPIナノワイヤを調製している。気相成長法により調製されたTPIナノワイヤも、ナノ・光導波管及びレーザに使用可能なことが証明されている。

3.4 一次元有機ナノ材料による光電気変換

ここまでは、主に有機ナノ材料に特有の光学特性の紹介に重点を置いてきた。しかし、ナノ材料の光学特性と電気特性は密接に関係し、切り離すことができないため、電気特性は光学特性の延長と言える。このため、一次元有機ナノ材料の光学特性が進展するにつれ、光学特性・電気特性間の相互変換も研究の関心事となっていく。有機半導体化合物は材料の合成、機器の加工・性質の制御面で優れており、有機発光ダイオード(OLED)、有機太陽電池(OSC)、ガスセンサ、有機薄膜トランジスタ/電界効果トランジスタ(OTFT/OFET)のような分子光電気機器の構築において非常に重要な役割を果たす。

有機ナノ材料による電極化・発光の研究は、ナノ材料の光電気変換研究における重要な派生分野である。有機電極化・発光現象は早くも1900年代初期に見出されていたが、2002年には日本のHisaoらが(チオフェン/フェニレン)オリゴマー(BP2T)を原料に単結晶の電極化・発光機器を調製し、作動電圧(9V)の低減に成功したことによってようやく、各国の研究者から高い関心が寄せられるようになった。本研究グループは近年の研究を基礎に、電極化・発光材料の性質をナノスケールで研究した。物理気相成長法を利用してAlq₃中に吸着剤を導入することで、直径の均一なナノワイヤの調製に成功し、かつ、さまざまな直径のAlq₃ナノワイヤで電極化・発光機器を

調製したところ、直径の変化に伴い機器の性質に違いが生じた。

ナノ太陽電池の研究も、ナノ光電気化学分野における研究の一大関心事である。有機薄膜太陽電池の研究は広く行われているとはいえ、一次元有機単結晶材料は分子配列が高く、結晶粒界が少なく、電子有限域の濃度が低い等の長所があることから、単結晶材料には良好な電子伝達性質及び高い遷移率がある。このため、有機単結晶の研究は新しい有機半導体の設計と高性能の機器の調製に役立つ。単一成分のナノ材料に比べ、一次元ナノ・ヘテロ結合はその特殊な形態構造により、単一成分のものとは異なる、独特の光電気性質を持つ。ナノ材料の多成分・多構造研究において、p-nヘテロ結合は有機光電気学の研究の関心事となっている。このため、機器と電気回路の基本ユニットとして、今後の電気機器で重要な役割を果たすであろう。

4. 総括と展望

一次元有機ナノ材料は無機ナノ材料ほど研究が進んでいないが、有機材料には低コストで反応活性が高く、配列可能で良好な柔軟性を有する等の長所があるため、一次元有機ナノ材料の調製及びその性質は、研究の関心事となりつつある。ここまで、われわれは一次元有機ナノ構造に特有の光学的・電氣的性質を詳述してきたが、これら特徴及び応用は主に分子構造及び結晶の外観に由来するものであった。有機染料の分子構造は光学特性・電気特性だけでなく、分子間の相互作用にも影響する。このため、今後の研究においては、新しい系列の染料分子の設計と合成が有機ナノ光子学において非常に重要となる。有機単結晶ナノ構造の調製方法は無機及びポリマーのものほど多くないとは言え、光学活性を有する大量の有機分子及び適切なドーピングによって発光性質が調整可能な有機化合物は、将来的に光電気機器において広く応用されるだろう。以上の考察に基づけば、有機の一次元ナノ材料の将来的な発展の方向性は、次のように予想される。すなわち、(1)ナノ光導波管材料の外観、サイズによる影響の明確な把握。(2)(ドーピング、ヘテロ結合等による)2成分有機ナノ材料の分子間の相互作用とエネルギー伝達の把握。(3)一次元ナノ材料の光学的・電氣的性質は環境の誘電定数と表面上の欠陥により影響されることから、秩序的な一次元ナノ構造を調製すること非常に重要となる。すなわち、一次元有機ナノ材料は今後、低コスト、安定性、高効率という性質面での研究が重視されるであろう。

レーザー光を用いたナノ製造技術の応用

●Profile●



鐘 敏霖 Zhong Minlin ●清華大学機械工程系教授

1961年9月18日生まれ。1997年清華大学卒、工学博士号取得。米国レーザー協会フェロー (LIA Fellow)、Board Member。中国光学学会レーザー加工専門委員会常務委員、秘書長 (2000-2009)。NSFC専門家評議グループメンバー。Journal of Laser Application編集委員、「中国レーザー」常務編集委員。長年にわたり、世界及び国内のレーザー加工学術分野で活躍。2008年PICALO国際会議総主席、第6回LPC-Laser World of Photonics Chinaの中国側首席等を担当。全国レーザー加工学術会議の主催側に8回関与。主な研究分野：レーザーによるマイクロ・ナノ製造、レーザーによる新材料の調製、レーザー表面加工技術、レーザー迅速・直接加工等。自然基金、985基金、GE/GM/Boeing/RR/Mitsubishi国際協力プロジェクト等、40余りの事業の成功を主導。発明特許9件。専門書3冊を共著。論文160本以上を発表。

共著者：範 培迅

1. はじめに

ナノ材料は小スケール効果、表面効果、量子効果、巨視的量子トンネル効果ならびに特殊な光学的、磁気学的、熱学的、力学的、化学的性質を有し、電子、化学工業、冶金、宇宙工学、環境保護、医学、生物工学等の分野で幅広い応用の潜在力があることから、全世界で注目され高度な研究が行われている。ナノテクノロジーの発展によりさまざまな分野の技術革新が推進され、21世紀の新たな技術革命が導かれると人々は考えている。ナノテクノロジーに関する研究分野は非常に幅広く、一般的に次の4大分野、すなわち、ナノ材料学、ナノ電子学、ナノ生物学及びナノ製造技術があると認識されている。ナノ材料学は急速に発展を見せ、すでに多様な物理的・化学的・物理化学的ナノ材料の調整方式を確立しており、さまざまな種類のゼロ次元のナノ粒子、1次元のナノチューブ、ナノワイヤー、ナノロッド、2次元のナノフィルム、3次元のナノブロック、ナノ構造等を調製することができる。ナノ製造技術はナノテクノロジーの中核の一つと考えられており、現代のナノサイエンスの基礎であり、ナノサイエンスのさまざまな分野の研究及び開拓に有効な手段を提供し、ナノテクノロジーの応用を支える基礎であり、将来のナノ産業の支柱でもある。国家自然科学基金委員会は2010年に「ナノ製造の基礎研究」に関する重大研究計画を立案しており、その目的は、当該学問分野の最先端に照準を定め、国の重大な発展戦略の要請に立脚し、ナノ精度製造、ナノスケール製造及びトランス・スケール製造における基礎科学的な問題について、製造プロセスをマクロからミクロへと移行させる際のエネルギー・運動・物質の構造ならびに性能間の作用メカニズム、転換法則を模索することで、ナノ製造理論の基礎及び製造過程における設備の原理を構築することにある。

ナノ製造とは、製造対象の特徴として、少なくとも1つの次元でスケールが1～100nmの間にあるものを指し、ナノ粒子、ナノワイヤー、ナノチューブ等のナノ材料の調製や、表面ナノ構造の調製、3次元のナノ構造/部品の製造等がある。体積が小さく、機能が優れ、高効率で消

耗が少なく、エネルギー消費が低い部品と製品は、工業界が絶えず追求する目標であり、特に製造技術がマイクロスケールからナノスケールに進化するにつれ、100nm以下という特徴的スケールの加工製造能力に対し、より高い要求が突きつけられている。

現行のナノ製造技術において、レーザー光を用いたナノ製造技術は多くの独特な特徴と魅力を持つことから、世界的な研究の関心事の一つとなっている。レーザー光には高い輝度、方向性、単色性、可干渉性、偏光特性等があり、エネルギー、時間、空間面での選択可能範囲が広い。うえに、精密かつ協調的な制御が可能であり（波長は赤外線からX線まで、パルス幅は連続からフェムト秒（ないしアト秒）まで、瞬間出力密度は1022W/cm²に達する）。これらの特徴により、製造プロセスにおいて巨視的スケールの製造技術要求を満たすことができるだけでなく、マイクロないしナノスケールの製造要求を満たすことができ、さまざまなスケールで、選択的及び非接触的に材料の構造及び性能を改変し、製造目標を実現することができる。レーザー光による製造プロセスで用いられる物理的効果、作動メカニズムは既存の製造工程とは全く異なり、例えば非線形（多光子等）または非平衡性（電子間の非平衡性、電子と結晶格子との間の非平衡性等）の吸収及び非熱的な相転移（クーロン爆発、静電剥離等）であることから、新たな製造概念、原理、方法及び技術の誕生が促され、これまでにない極端な製造効果が得られた。超短パルス、超短波、超高強度レーザーの急速な発展、レーザー光と物質の相互作用に関する全く新しい考え方の原理が発見され続けるにつれ、それに対応するレーザー光によるナノ製造方法も絶えず生まれており、それには、例えば、簡単な紫外線光への露出から、近接場効果に基づき光学的な回折限界を突破したナノ製造技術や、マイクロレンズアレイに基づいたナノ製造技術、非線形性光吸収に基づくフェムト秒レーザー光によるマイクロ/ナノ直写技術、ダブルビームまたはマルチビームの可干渉レーザー光の空間的重なりに基づく遠方場干渉加工技術、ならびにレーザー光誘起ナノ製造技術、レーザーラッピングに基

づくナノ製造技術等がある。レーザ光によるナノ製造の効率及び限界分解能は常に更新されており、最小の製造線幅はすでに10nmを突破している。レーザ光によるナノ製造技術は、ナノ製造分野で非常に高い潜在力を持つ選択肢の一つとなっている。

現在、レーザ光によるナノ製造技術の研究は、一般に遠方場ナノ製造と近接場ナノ製造に分けられている。フェムト秒・レーザ直写、遠方場干渉によるフォトリソグラフィ法、マイクロレンズアレイ技術、レーザ誘起加工等のいずれもレーザ遠方場によるナノ製造技術の範疇に含まれる。近接場効果に基づくナノ製造技術は、主に近接場において光はエバネッセント波の形式で伝播し、光の強さは伝播距離に伴い指数オーダーで減衰するという特徴を利用しており、この伝播プロセスは光の回折問題に干渉しないため、光学的回折限界を克服できる。近接場効果に基づくナノ製造技術には、近接場光学顕微鏡 (near-field scanning optical microscope-NSOM)、光のマイクロスフェア捕捉、粒子接触レンズアレイ (Contact particle lens array-CPLA)、近接場光リソグラフィ (Near field interference lithography) のそれぞれに基づく製造技術等がある。このほか、パルスレーザにより融蝕された液体中の金属は比較的容易にナノ粒子に調製することができ、レーザ融蝕、レーザ光により補助された物理気相成長法及びレーザ光により補助された化学気相成長法によりナノワイヤー及びナノチューブを調製することができ、ダブルビームレーザにより3次元の複雑な構造等を調製することができる。

レーザ光によるナノ製造技術は世界各国で注目されて高度な研究が行われているが、それとともに応用研究も極めて重要である。製造技術の研究とは、もともと応用研究と互いに補完し合い、並行して発展するものである。レーザ光によるナノ製造技術の進歩は、新型ナノ構造/部品の開発を促すと同時に、新型ナノ構造/部品の開発はレーザ光によるナノ製造技術の進歩に重要な啓発及び指導的意義をもたらす。本稿では、レーザ光によるナノ製造技術の一部の新興分野における応用状況、すなわち主に表面ナノ構造及び3次元ナノ構造/部品の製造に注目する。具体的には、メタマテリアル、光子結晶、データストレージ、バイオメディカル、センサ、機能性表面等があり、これら分野の研究に従事する同業者の参考に供する。

2. レーザ光によるナノ製造技術の応用

2.1 メタマテリアル

メタマテリアル (metamaterials) とは、人工的に形成された2次元または3次元周期金属の図形構造を持つ材料を言い、入射する電磁波がこの種の周期金属の構造を通過する際は既存の屈折材料と反対方向に屈折するため負の屈折率を有し、屈折方向が古典的な電磁気学で説明される右方向ではなく左方向であるため、この種の人工的

メタマテリアルは「左手系材料」(left-hand materials)とも呼ばれる。左手系材料は伝統的な光線の伝播方向を変えたため非常に大きな応用価値があり、なかでも最も注目されるのは物体の「ステルス」が可能な点である。メタマテリアルという概念は初めて報告されて以来、幅広く研究され注目を集めてきた。メタマテリアルにおいて、周期図形のスケールは制御する電磁波長と関係し、可視光波長域で用いられるメタマテリアルにはサブミクロン、ひいてはナノスケールの図形構造が必要である点において、ナノ加工能力が要求される。

金属ナノ液滴を通じたレーザ誘起移動 (laser-induced transfer-LIT) 技術及び2光子重合化 (two-photon polymerization (2PP)) 技術の組み合わせにより、Arseniy I. Kuznetsovらは高質量の球形金属ナノ粒子の調製及び2次元または3次元重合体構造における制御可能な沈積を実現した。2光子の誘起に基づく金属イオンの還元技術については、Satoshi Kawataらがプラズマメタマテリアルの調製方法を進化させた。レーザビームが金属イオン溶液中に照射される際、金属イオンは2つの光子を同時に吸収し、かつ、金属原子に還元される。2光子吸収プロセスの非線形性特徴により、これらの還元反応はレーザビームの焦点でしか生じず、微小な金属粒子を生成する。レーザビームのスキャンにより、所期の3次元金属構造が得られる。このほか、金属イオン溶液中に界面活性剤を加えると金属粒子の成長を抑制できるため、調製図形の特徴的スケールを一層小さくすることができる。この方法を通じて、Yao-Yu Caoらは特徴的スケールが180nmの3次元の銀構造を得ることができ、線幅がわずか120nm的の銀模様図案を得ることができた。Z.C. Chenらはフェムト秒レーザマイクロレンズアレイ (MLA) フォトリソグラフィ技術を用い、10 mm×12 mmを上回る面積でテラヘルツ波メタマテリアルを迅速調製した。この方法で調製されたスプリットリング共振器 (split ring resonators (SRR)) の縁部粗度は20nmを下回り、平滑な透過スペクトルを生じることができた。

2.2 光子結晶

光子結晶 (photonic crystal) は、フォトニックバンドギャップ材料 (photonic band gap) とも言い、人工材料の一種である。いわゆる光子結晶とは、光伝送技術において周期的に別の屈折率に組み込まれる材料を言う。光線は異なる媒質の界面で屈折または反射を生じるため、ある種の材料中に別の屈折率を有する材料が周期的に分布している場合、光線の伝播もこの種の周期構造の屈折または反射を受け、あるエネルギー範囲の光線が通過できなくなることから、ある波長範囲の光線に対する遮断またはバンドギャップ (band gap) が生じる。1987年に、ベル研究所の研究者が初めて光子結晶の概念を報告した後、研究者たちは光子結晶について幅広く研究した。しかし、実用面から見ると、この分野における主な課題は依然として高質量のサブミクロン/ナノ3次元光子結晶構

造の調製にある。

Baohua Jiaらは、径方向に偏光した超速レーザービームを採用し、2光子重合技術により、有機-無機混成材料中で3次元の光子結晶を調製した。同一閾値条件下の直線偏光子レーザーによる調製結果と比べたところ、得られた重合体ロッドの横方向のスケールは138nmから100nmに、27.5%減少した。調製された光子結晶構造は更に広い阻止帯域を示したため、より強い抑制作用を持つ。

これと同様に、レーザー誘起に基づく重合反応によるものとして、Wojciech Haskeらは3次元の多光子リソグラフィ（3D multiphoton lithography(3D MPL)）技術を採用し、可視光波長帯域(520 nm)で非常に大きな2光子吸収断面を持つ感光開始剤を用い、ナノレベルの特徴的スケールを持つ芝状体の光子結晶構造を調製したところ、線幅はわずか $65 \pm 5 \text{ nm}$ であった。

2.3 データストレージ

より大きなストレージ容量の絶えざる追求は情報ストレージ分野の持続的発展の趨勢である。これまでの50年間で磁気ディスクのMbあたりの価格は200万倍低下した一方で、磁気ディスクのデータ記録密度は約1億倍増加した。これはすべて、機能性マイクロ/ナノ構造の低コスト製造を可能にした先進的なマイクロ・ナノ製造技術の絶えざる発展によるものである。レーザー光によるナノ製造技術は高密度データストレージの分野でも同様に、先進的な加工方法の一つとして非常に重要な役割を果たしている。

J. Brian Leenらは“C”型アイリスの近接場光学顕微鏡の採用により、Ge₂Sb₂Te₅非結晶上でサブ波長より短いデータビットによる全光型メモリを実現した。この技術、ならびに電圧パルス信号による分布帰還型レーザー($\lambda = 980 \text{ nm}$)を光源に採用して得られた物理的ビットの最小スケールは $53.5 \times 50.2 \text{ nm}^2$ に、データ記録密度は223 Gbit/in²に達した。

相転移材料(Phase-change materials)はデータストレージ分野で最も将来性のある材料の一つである。書き換え可能(E-R/W, Erasable-Rewritable)光学記録メディアですでに使用されているうえ、不変化型電子メモリの分野でも高い潜在力を示している。フェムト秒レーザー技術、マイクロレンズアレイ技術、湿式腐食技術、相転移材料の組み合わせにより、Y. Linらは相転移ナノリソグラフィ(phase-change nanolithography)技術を発展させ、2次元/3次元ナノ構造の大面积かつスピーディな調製を実現した。これらの方法により、半値全幅(full width at half maximum(FWHM))55nmという特徴的構造が得られた。この研究グループはさらに、2倍率のフェムト秒レーザー及び近接場光学顕微鏡との組み合わせにより、フォトレジスト塗布膜に特徴的線幅が $20 \pm 5 \text{ nm}$ のフォトレジストパターンを直写した。これらの技術により、超高密度なデータストレージの実現が見込まれる。

K. Miuraらは、さまざまなレーザー光条件下のサマリウ

ム(Sm)イオン原子価の改変によるデータポイントの記録、読み取り及び削除プロセスを実現した。フェムト秒レーザーの誘起による光還元反応(Sm³⁺からSm²⁺)により直径200nmのデータポイントの記録が実現し、Ar+レーザー(488 nm, 0.5 mW)光源から励起された蛍光信号によりデータポイントの読み取りが実現し、連続レーザー(Ar+レーザー(514.5 nm, 10 mW)または半導体レーザー)により誘起された光酸化反応(Sm²⁺からSm³⁺)によりデータポイントの削除が実現できる。これらの方法により、10mm×10mm×1mmのガラス片上で1Tbにも達するデータストレージが実現した。

2.4 バイオメディカル

バイオメディカル分野におけるレーザー技術の応用には、生物学的流体通路、バイオチップ(バイオ電子チップ、生物学的流体チップ等)、経皮投薬用微小針、耳小骨プロステシスや再生医学用足場等の調製がある。

生物学的流体通路の応用には、タンパク質の分離、DNAシーケンシング、ドラッグデリバリー、バイオ分子の分類及び単一分子計測等がある。2光子の重合技術に基づき、K. Venkatakrishnanらはシンプル・迅速かつ重複可能なナノ流体通路の調製方法を提起し、シングルパルスのエネルギー及び重複率を制御することで、SU-8フォトレジスト上で幅わずか110nmの流体通路を得ることができた。

Dan V. Nicolauらは、タンパク質の固定化方法を提起し、透明な重合体上に沈積した金属薄層についてレーザー微小アブレーション(laser microablation)処理を行い、重合体の表面でマイクロ/ナノ構造を調製したところ、特徴的スケールは100nmの範囲内となった。平滑で、化学的に均一な重合体の表面と比べ、これらマイクロ/ナノ構造化した表面のタンパク質吸着能力は3～10倍強化される上、表面に誘発されるタンパク質の変性を抑制することができる。この方法は、われわれがさらに高い感度のタンパク質チップを調製し、タンパク質とナノ構造との間の相互作用メカニズムをよりよく理解するために新たな機会を提供した。

Ormocer有機-無機混成材料に対する2光子重合を通じて、A. Doraiswamyらはマイクロ針や再生医学用足場等の3次元のマイクロ構造医療機器の調製を実現した。2光子の吸収確率の平方の特徴や確定された材料の重合閾値により光学的回折限界を突破することができ、重合により得られた構造では100nmを下回る解像度が可能となる。

生物学的エレメントの小型化、特に、生物学的マイクロマシンからナノマシンへの転換は、研究者が直面しなければならない課題である。超速レーザーの近接場光学顕微鏡技術はこれら課題を解決する有効な手段となるだろう。

2.5 センサ

センサは、レーザー光によるナノ製造技術のもう一つの重要な応用分野であると同時に、MEMS、バイオメディ

カル等の他の分野でも欠くことのできない役割を果たしている。

マイクロチャネルと光学的エレメントの統合を行うことは、チップのコンパクト化と携帯型センサの発展に重大な意味を持つ。透明材料中でフェムト秒レーザ直写を行うことは、この構想の実現に有効な方法である。T. Andersonらはフェムト秒レーザ直写及びそれに伴う湿式化学エッチング技術を採用し、マイクロチャネルと光導波管とのカップリングを実現し、分子計測統合センサ装置として用いることができた。このプロセスにおいては、さまざまなパラメータのフェムト秒レーザ処理を経た後、材料の改質部位に数ナノから数十ナノのさまざまな光膨張 (photo-expansion) が生じる。

T. Uedaらはパルスレーザ・アブレーション (pulsed laser ablation (PLA)) 法を採用し、Pt電極を連結したAl₂O₃基材上で直径1.2nmの単層カーボンナノチューブ (SWCNTs)を調製し、NO_xガスのセンサとした。この種のSWCNTsに基づくセンサは被測定期待 (NO和NO₂) に対して高い感度と迅速な反応特性を示す。

S. M. Huangらは、自己組織化プロセスにより、ドーピングしていない (100) Si基板表面で直径1.0 μ mのポリスチレン球配列を調製し、さらにKrFレーザ (波長248 nm, パルス幅23ns) を用いてシングルパルス照射処理を行い、近接場光学効果を利用してSi基板表面で半値全幅 (FWHM) の高さと幅がそれぞれ42nm及び260nmのナノ突起配列構造を調製した。他の相似する研究としては、X. C. WangらがSi表面の自己組織化により形成した二酸化シリコンマイクロスフェア (直径1.5 μ m) 配列についてKrFレーザ (波長248nm, パルス幅23ns) シングルパルス照射処理を行ったところ、Si表面でも同様にナノ突起配列構造を調製することができ、半値全幅 (FWHM) の高さ及び幅はそれぞれ43nm和162nmであった。これらSi表面のナノ突起配列構造は高感度センサ分野で潜在的な応用価値を持つ。

2.6 機能性表面

材料の表面性質、例えば光学的性質やバイオメディカルの性質、湿潤性、摩擦学的性質等は、その表面構造や表面の外観から強い影響を受ける。このため、研究者たちは各種材料に対する表面改質の手段や方法を提起しており、なかでもレーザ技術は特異的な長所により各国の研究者から広く注目されている。

Chunlei Guoの研究グループはフェムト秒レーザのナノ、マイクロ及びサブミリ・スケール上における表面構造化技術を利用し、高い反射率を持つ金属(Au、Ag、Pt、Ti、Cu、Al等)を全吸収型またはある特定の色の光にだけ反射するよう改質し、いわゆる「黒色金属」(中国独自の金属の分類。鉄、マンガン、クロムの総称) または「非鉄金属」を作りだした。この技術はわれわれに、紫外線からテラヘルツ波長域までの金属表面における光学的特

性について制御可能な調整を行うという構想を提供したことから、光子学、プラズマ光子学、光電子学、ステルス技術、熱放射源、放射伝熱設備、太陽光吸収材、熱光起電力電池 (TPV電池)、赤外線センサ、バイオ光学器材、ならびに飛行機搭載/衛星搭載設備等の分野のいずれにおいても、幅広い応用の可能性がある。

3. まとめと展望

本稿では、一部の新興分野におけるレーザ光によるナノ製造技術、具体的にはメタマテリアル、光子結晶、データストレージ、バイオメディカル、センサ及び機能性表面における応用の状況等を重点的に紹介した。レーザ光によるナノ製造技術は、高い将来性を有するものの、まだ成熟していない研究分野である。現在、回折限界という基本的な制約のため、100nmを下回る特徴的スケールについて、レーザを常用して制作する能力には依然として明らかな不足がある。近接場原理により、近接場光学顕微鏡 (NSOM) 及び原子間力顕微鏡 (AFM) 等の先進的工具を使用して特徴的スケールを希望するレベルまで低減することができたとしても、これら先進的工具そのものもまだ発展の初期段階にあるため、ナノ構造及びナノ部品による大きな面積や高い効率での生産要求を満たすことは特に難しい。このため、レーザ光によるナノ製造のスケール限界を絶えず突破し、加工の再現性と効率を徐々に高め、高精度のナノ構造の製造及び大スケール/トランス・スケール構造/部材を製造することは、依然としてレーザ光によるナノ製造分野における主な課題である。

ナノ材料の持つ小スケール効果、表面効果、量子効果及び特殊な光学的、磁気学的、熱学的、力学的、化学的性質により、ナノ製造技術においてマクロ製造と完全に異なる理論、メカニズム及び方法が登場した。レーザと材料のナノスケールにおける相互作用のメカニズムを深く理解することは、レーザ光によるナノ製造技術の新しい原理や方法を理解する基礎であると同時に、ナノ製造分野の直面する、さらなる研究を必要とする中核的課題である。レーザ及び材料の相互作用に対する理解が深まるにつれ、レーザ及び材料の相互作用メカニズムに関する多くの論争が徐々に解決されてコンセンサスが得られ、エネルギーの吸収、伝達、転化プロセスがおおよそ全面的に明らかになれば、製造中のエネルギープロセスの掌握・制御もより成熟に向かうであろう。この基礎の上に、レーザ光によるナノ製造の新たな原理、方法、技術及び新たな製造プロセスを研究し、さらにレーザと制御システム、運動システム、外郭保護、安全システム等の統合により完全で機能のすぐれた先進的なナノ製造システムを開発することでプラント設備のスマート化、高効率化、一体化製造を実現し、新製品の製造に使用し、さらには新たな産業を構築することは、レーザ光によるナノ製造分野の今後の主な発展の趨勢である。

多波長レーザー照射によるフォトニック集積回路技術

●Profile●



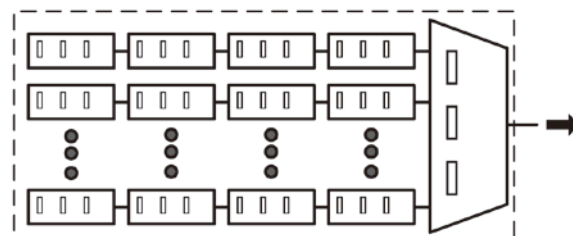
祝 寧華 Zhu Ninghua ●中国科学院半导体研究所研究員

「百人計画」入選、国家傑出青年基金獲得。1959年12月生まれ。1989年、電子科技大学で博士号取得。1994年、中山大学教授。1994年～1995年、香港城市大学電子工程系研究員。1996年～1998年、ドイツ・シーメンス社研究開発部で客員科学者（フンボルト財団助成研究者）；1998年、中国科学院半導体研究所でマイクロ波光電子部品を研究。2004年、新世紀百千万人材工程で国家級人材に選出。主に、マイクロ波光子学、フォトニック集積回路部品・システム研究に従事。光電子部品シミュレーション・試験分析・最適化設計・調製技術の新理論・新方法を發展。国際的先進レベルのマイクロ波光電子部品パッケージ及び試験分析プラットフォームを確立。APCC/OECC' 1999プログラム委員会委員、分科会座長。Photonics Asia 2007・2010の分科会座長。蘭州大学・電子科技大学で教授を兼任。合肥工業大学客員教授。Journal of Optical Communications, International Journal of Microwave Science and Technology, 「科学通報」編集委員。現在、ブロードバンド光ファイバ伝送・通信ネットワーク技術に関する教育部重点実験室（電子科技大学）及びマイクロ波国家重点実験室（香港城市大学）学術委員会委員を担当。国家自然科学基金委員会専門家評価グループメンバー。発明特許67件。中国語専門書を2冊出版。英語専門書の2章を執筆。SCI論文97本（うち、筆頭執筆著者46本）。国家基金委員会イノベーション・グループ事業、国家基金委員会重大事業、国家863専門テーマ事業等の、約30件の国家級研究事業を担当。

共著者：陳向飛、劉文、安俊明、劉宇、王欣、劉建国、徐坤、紀越峰

フォトニック集積回路（photonic integrated circuits, PIC）は将来的に大容量、低消費の光ネットワークを実現する上で必須となる技術であり、大規模フォトニック集積回路チップは今後、集積回路が担った責務と似た重責を担うことが予想される上に、平行光の多波長レーザー照射によるフォトニック集積回路チップは高速データ伝達の中核となりうるため、国内外で研究の関心事となっている。2004年から現在までに、米国、ヨーロッパ、日本でフォトニック集積回路技術に関する大型の研究プロジェクトが立ち上がっており、これには米国のIRIS、LASOR、ヨーロッパのEuroPIC、PLATON、HELIOS、アイルランドのPiFAS等がある。光伝達の領域においては、世界的なPIC技術の先駆者である米国のインフィネラ（Infinera）社がPICに基づくWDM伝達設備をいち早く発表しており、そのうえ1万台以上の商業実用を果たしている。その核心であるPICチップは50を超える分割機能部品によるモノリシック集積回路を実現している。

多波長レーザー照射によるフォトニック集積回路チップの機能構造は図1に示すとおりである。集積チップは、多波長レーザーアレイ、モジュレータアレイ、光の出力をモニタリングする光センサアレイ、出力バランス維持のための光増幅器(SOA)アレイ、WDM合波器（アレイ導波路回折格子（AWG）によく用いられる）の5つの部分に分けられる。各ユニットの部品技術はすでに成熟し商業化が実現しているとは言え、さまざまな機能構造を持つ光電子部品を単一チップ上に集積するのは依然として非常に難しい作業であり、多くの科学的・技術的問題に直面している。例えば、さまざまな機能のマイクロ・ナノ構造の調製プロセスの親和性の問題や、多波長レーザー照射とITU-T標準波長との照準及び安定化技術、チップ内部のマイクロ波と光波との相互作用により生じるレーザーモデルによるクロストークの問題等がある。



◎図1 多波長レーザー照射によるフォトニック集積回路チップの機能構造図

多波長レーザー照射によるフォトニック集積回路チップ中の光センサアレイ、光増幅器（SOA）、合波器（AWG）は相対的に成熟しているため本稿では詳述しない。しかし、多波長レーザーアレイとシングルチャネルレーザーには大きな違いがあり、解決すべき重要な問題が多数存在する。例えば、100ギガヘルツの波長間隔を実現する場合、回折格子周期の改変量はわずか0.12ナノメートルとなり、このような過酷な製造技術要求には、既存のホログラフィー露出技術を採用してもレーザー照射波長の精密な制御は実現しようがない。高精度の電子ビーム・リソグラフィー技術（E-Beam lithography）を利用すれば、0.1ナノメートル・オーダーの精度で回折格子の調製を実現しようとしても、この技術には描画周期が長く、コストが非常に高く、歩留まりが低く、再現性に劣る等の欠点があるため、実験室でよく用いられる加工方法ではあるが、大規模・低コストでの商業生産には向かない。最初に商業用PICチップを発表したInfinera社は選択領域成長法（SAG）を利用し、厚さや材料成分等、各レーザーの活性層の構造パラメータを制御することで多波長レーザーアレイの実現に成功し、さらに微小電気抵抗を利用してレーザーの温度を加熱・調節し、多波長レーザーアレイ波長の精密な照準を実現した。しかし、この方法はコストが高く、

低コスト・大量ロットのフォトニック集積回路チップの生産という将来的な需要を満たすことはできない。

このため、多波長レーザ照射によるフォトニック集積回路チップの核心技術の問題を根本的に解決するには、製造技術条件の改善に頼るだけでなく、革新的な設計プランを立てて初めて、一般の加工技術で低コストのフォトニック集積回路チップの大量生産技術を実現できる。フォトニック集積回路チップの設計及び製造で直面する重要な技術的問題について、本稿では多波長レーザアレイ技術、モノリシック集積回路技術、チップのモジュール化結合パッケージ技術の3つの領域から詳しく述べる。

1. 多波長レーザアレイ技術

半導体レーザチップの基本構造は、ゲイン領域とこれに対応する光学的な共振空洞により構成されるため、分布帰還型（DFB）半導体レーザチップは主に2つの要素により決まる。一つ目はレーザチップの材料特性であり、二つ目はレーザの回折格子構造である。多波長レーザアレイについては、多波長の発生メカニズムと単一モードの高い良品率という2つの重要な問題を解決する必要がある。いずれも回折格子構造と構造上、密切な関係がある。しかし、レーザアレイの高性能かつ低コスト・大規模生産の要求を同時に満たすには、国際的に公認されたもう一つの良い解決方法がある。このような重要な難題を解決するには、新たな考え方、つまり新しい集積製造技術または新型の機能性マイクロ構造を採用する必要がある。

再構成等価チャープ法(REC)に基づくフォトリソグラフィ技術：再構成等価チャープ法(Reconstruction-equivalent-chirp, REC)技術は、現行の成熟した集積製造技術条件下で新たな機能性マイクロ構造を実現し、多波長の発生メカニズムと単一モードの高い良品率という2つの重要な問題を解決すると同時に、低コストかつ大規模生産を実現でき、多波長レーザアレイに全く新しい解決プランを提供した。REC技術は、ファイバブラッググレーティングの新型構造を研究する中で提案されたものであり、REC技術の中核的思想は、もともとナノオーダーという小さなサイズ構造の回折格子により実現した優れた性能をマイクロオーダーという大きなサイズ構造上に「拡大」してサンプル採取を実現するものである。一般的に、マイクロ構造の機能スケールは1.5マイクロメートル以上で、既存の方法を採用した際に必要となる130ナノメートル（すなわち、レーザDFB回折格子周期の半分）以下というマイクロ・ナノ構造よりはるかに大きい。この技術を利用すれば、一般のシングルDFBレーザを製造する技術プラットフォーム上で高性能かつ低コストなDFBレーザアレイを製造することができ、その製造プロセスは一般の均一回折格子によるDFB半導体レーザと基本的に相似する。唯一の違いは、ホログラフィー露出により生じる均一回折格子を基礎に、一般の2次露出技術を利用して

サンプルパターンを形成する点にある。レーザ照射波長はサンプルの構造により決まるため、設計の異なるサンプル構造により、2次露出プロセスで異なる照射波長のレーザを実現することができる。ホログラフィー露出であるか、あるいは一般の2次フォトリソグラフィであるかを問わず、いずれも非常に成熟した生産技術であるため、一般の技術プラットフォームで多波長DFB半導体レーザアレイの大量生産が実現できる。REC技術に基づき、2009年にモノリシック集積回路による連続30波長の半導体レーザアレイに成功した。これを基礎に、REC技術に基づく複雑な構造のレーザの実験も大きな進展を見せ、衝突パルスモード同期（CPM）レーザ及びマルチフェーズシフトレーザに成功した。これらの構造はレーザのホールバーニング効果を効果的に抑制でき、高電流下でも良好なシングルモード状態を維持することができるため、レーザの制御特性向上に顕著な改善効果がある。PICチップにとって、レーザアレイの波長間隔は重要な問題であり、PICチップは高密度波長分割多重（高密度波長分割多重（DWDM））システムにおける応用が非常に重要である。一般的に、加工技術及び材料成長の均一性の問題により、波長間隔の制御には顕著な誤差があるが、高精度の電子ビーム露出技術により創出されたレーザを用いれば、チャネル間隔のランダム誤差は ± 1 ナノメートル前後に抑えられ、最大で2ナノメートル以上に達する。しかし、現行の実験によれば、RECに基づくレーザアレイにより制御される波長のレベルは電子ビームのレベルに達するため、技術レベルを引き上げ、さらに優れたデザインをテンプレートとして採用すれば、より良好な実験結果が得られるものと予想する。先行研究によれば、高精度の電子ビーム露出技術を採用したとしても、良好な製造技術と結び付ければ、波長制御の最小偏差も ± 1 ナノメートル前後となり、粗密度波長分割多重（CDWM）の要求を満たすことができるが、高密度波長分割多重（DWDM）の波長間隔要求を満たすことはできない。現在、Infinera社は局部的温度制御によりレーザ波長を調節し、高密度波長分割多重（DWDM）の波長間隔要求を満たす方法を解決法に採用している。このため、REC技術に基づき作りだしたレーザアレイの性能は既存の電子ビーム技術を採用した場合に相当することから、REC技術はPICチップの開発及び大規模・低コストのレーザアレイの開発に確固たる基礎を築いたことが証明された。

ナノインプリントリソグラフィ技術：ナノインプリントリソグラフィ（Nanoimprint Lithography, NIL）技術は全く新しいナノパターン複製技術で、解像度が高く、低コストという特徴がある。NILの原理は、目標パターンを刻んだマスク板を対応する基板（一般的に非常に薄いポリマー膜）上にインプリントしてパターン転写を実現し、その後熱または紫外線光照射による方法で転写パターンを固化することで、マイクロ・ナノ加工によるフォト

リソグラフィの手順を完了させる。ナノインプリントリソグラフィは、インプリントによりフォトリソグラフィ樹脂を変形するものであり、露出によりフォトリソグラフィ樹脂の化学構造を改変するものではないことから、解像度は光の回折や散乱、フォトリソグラフィ樹脂内部への光の干渉、基板に対する反射等の要素に制限されず、既存のフォトリソグラフィ技術の解像度限界を突破できる。また、ナノインプリントリソグラフィは複雑なレンズや露出光源を必要としないため、大量生産や再現性に優れ、ナノパターン構造を広い面積上で非常に均一に調製できる。このため、この技術には低いコストと高い生産効率という長所があり、大規模生産に非常に向いている。ナノインプリント技術を利用し、多波長レーザー照射によるフォトリソ集積回路チップを調整する際の核心は、高品質なインプリント・テンプレートの調製にある。WDM技術要求に適合するDFBレーザーの波長間隔はわずか0.8ナノメートル(100ギガヘルツ)で、Cバンドに対応する回折格子の周期は約246ナノメートルであり、2つの隣り合った波長間の回折格子の周期差はわずか0.12ナノメートルであるが、一般の電子ビームフォトリソグラフィ (EBL) では8ナノメートルの最小精度しか保証できない。われわれは、テンプレート製作段階に「ゲイン関数」を採用する方法で困難を克服し、品質を向上させた。すなわち、1つの波長の回折格子のサイズを割り当てた後に比例係数を設定し、その後の回折格子は順次、1つ前の回折格子にこの比例係数を加えて行った。このほか、われわれは二次プレート技術をも進化させた。この技術ではまずEBLを採用して10ミリメートル×10ミリメートルの小さな石英製のプレートに直写したのち、これをテンプレートにstep-flashの方法で多数回のインプリントを行い、多数のパターンを3インチのシリコン片上に転写したところ、実験結果は2インチのリン化インジウム (InP) 片全体の外延上に回折格子が非常に均一に分布し、インプリントによる欠陥はほとんどないことを示した。開発されたレーザーレイの波長範囲は1540ナノメートルから1560ナノメートルに変化し、1.6ナノメートル (200ギガヘルツ) ごとに1つのレーザーエミッタを選択してその出力スペクトルを測定する。インプリントされたレーザー波長がCバンドに分布している場合、TEC温度制御後にITU-T基準G.692の高密度波長分割多重 (DWDM) レーザに対する要求を満たすことができる。測定されたSMSRは40dBを上回り、20dBバンド幅は0.2ナノメートルを下回った。この結果、ナノインプリント技術により制作されたDFBのレーザー性能はEBLで制作された高性能レーザーに遜色せず、高密度波長分割多重 (DWDM) システムの要求を満たし、かつ、低コスト・高生産効率という長所があることが分かった。200ギガヘルツ間隔及びTEC技術を選択して波長を精密に制御することに関してはITU-T標準に基づき、100ギガヘルツ間隔の高密度波長分割多重 (DWDM) システムにつ

いては波長の制御制度は12.5ギガヘルツ以内であり、対応する回折格子の制御精度は ± 0.1 ナノメートルであることが一般に要求される。電子ビーム露出技術またはナノインプリント技術のいずれを採用しても、現時点では上記のような初期波長精度を実現する方法はなく、実現できたとしてもその意義は小さい。なぜなら、さらに広い作業温度範囲の要求が存在するからである。しかし、初期波長を ± 100 ギガヘルツ範囲に制御することも必要とされている。これは、TECの採用により波長を精密に制御できるとは言え、その調節可能範囲には限りがあるため、TECによるチップの温度加熱が高過ぎると、DFBレーザーは高温下で作業することになり、作業寿命は大幅に短くなるからである。われわれは、現在世界で販売されている同種製品の指標と設計を参考に、ナノインプリント製の要求を200ギガヘルツ間隔にひとまず設定したところ、比較的良好な結果が得られた。今後、われわれの製造技術がさらに成熟すれば、初期波長を ± 50 ギガヘルツ範囲内に制御できる可能性は間違いなく存在するだろう。

2. モノリシック集積回路の製造技術

フォトリソ集積回路 (PIC) において、再現可能で高品質なアクティブ光-パッシブ光変換は欠くことのできない技術であり、アクティブ導波管材料のバンドギャップエネルギーは光子伝達エネルギーを下回るか、あるいは近づくかする必要があり、パッシブ導波管材料のバンドギャップエネルギーは光子伝達エネルギーをはるかに上回り、パッシブ導波管の小さい吸収消耗を保証する必要がある。複雑なInPフォトリソ集積回路 (PIC) においては多くの波長や信号の発信・受信を処理しなければならない。発信モジュールは多数の波長信号を1本の光ファイバ上で多重結合させて伝達させる必要がある一方で、受信モジュールは多数の波長信号の多重化を解消した後に電気処理をする必要があるため、InP-AWG波長合成分波器はInPフォトリソ集積回路 (PIC) で欠くことのできないパッシブ部品であるとともに、以下の技術を解決する必要がある。

アクティブ-パッシブ多機能性マイクロ構造結合結合技術：バンドギャップ及び垂直・水平構造の異なる2つの材料を同一のInP基板上に集積して効率の高い結合を実現する上でよく用いられる方法はアクティブ-パッシブ結合接手 (Butt-joint) である。Butt-joint法の長所は、アクティブ及びパッシブ導波管の成分とサイズを独立的に選択することができ、結合効率が理論上、100%に近づく点にある。実験結果として報告されているButt-jointの最大結合効率は90%を超える。また、いくつかの垂直回折格子結合技術が存在するが、製造技術がシンプルで許容誤差が比較的良好な点から、Butt-jointのほうがより使用に適し、魅力がある。

多波長・低消耗合波技術 (InP-AWG)：InP-AWG導波

管と関係せず、小さな湾曲半径であることを保証するために、一般に深エッチ型のInGaAsP/InP導波管構造が採用される。調製工程ではInPバッファ層、InGaAsPコア層、InPクラディング層が順に調製されたのちに、誘導結合プラズマ(ICP)でエッチングして深エッチ型導波管が形成される。導波管の幅はInGaAsPバンドギャップ及び偏光特性により決定され、小さなバンドギャップは偏光と無関係の時の導波管幅がやや広いことを許容する。フォトリソグラフィ技術の許容誤差はやや大きく、非ドープ又は半絶縁InPクラディング層を成長させ材料の吸収損傷を減らし、深エッチ型導波管を採用して調製したInP-AWG湾曲半径はわずか250マイクロメートルで、InP-AWGのサイズの低減に有利である。世界的には、40チャネルInP-AWGとEML40個等、241コンポーネントの集積に成功している。われわれは、10チャネル、200ギガヘルツ InP-AWGにすでに成功しており、サイズはわずか4×4平方ミリメートル、中心チャネルの挿入損傷は約16dBで、クロストークは-17dBを下回った。

3. 試験分析とモジュラーパッケージ技術

光電子部品は内部に光信号と電気信号が同時に存在し、マイクロ波と光波が交互にエネルギーを交換する有機的統一体である。このため、レーザ集積チップの試験分析及び結合パッケージでは、チップ材料、電極構造、電気回路パッケージ及び結合構造を一つの統一体と見なし、総合的に考慮する必要がある。

マルチチャネル・レーザ試験分析：大規模な集積条件の下では、レーザアレイ内部にはさまざまなモデルの結合とクロストークが生じ、多波長平行信号も四光波混合等、これにより生じる非線形性の影響を受ける。このため、チップの内部特性はシステム全体の動態範囲、レスポンス、ビット誤り率等の性能パラメータにより影響を受ける。レーザのこのような動態特性パラメータを抽出し、部品内部の光波伝達、エネルギー変換の分析モデルを構築するために、マルチチャネル・レーザ試験分析の実施を基礎に、われわれは2つの抽出方法を提案する。一つ目は、調整後のレーザビームを被試験レーザに注入し、分析により固有応答を得る方法である。二つ目は、レーザと同等の電気回路モデルで寄生パラメータを差し引き、固有応答を直接得る方法である。レーザアレイと分割レーザの最大の違いはレーザ間の非常に複雑なマイクロ波、光波と相互結合にある。マルチポート試験分析方法と一体化分析モデルを利用し、時間領域反射率測定法(TDR)と結び付けて信号の完全性を分析することは、アレイ集積チップ内部のモデル結合クロストークや交差調整等の特性とその影響を明らかにする上で有効な試験手段を提供するものである。

低反射光結合：光結合システムで生じる光の反射はレーザ出力波長の安定性に影響し、かつ、マイクロ波の付加

調整を発生する。このため、光結合効率を向上させるとともに、外部光の反射を極力抑える必要がある。現時点では、レンズと光ファイバマイクロレンズの組み合わせが最も広く応用されている。前者には大きなオフセットの許容誤差があるため光学的照準がより容易であり、2つのレンズの間に光アイソレータを同時に加えれば光の反射を抑えられる。後者は光ファイバ端面に平面またはレンズを加工するもので、構造がコンパクトで製造技術が比較的シンプルで、コストが低い等の長所がある。われわれは傾斜度7度の光導波管の出力構造を選択し、被膜レンズ、アイソレータ及びテーパ型的光ファイバを組み合わせて、高効率かつ低反射な光結合技術を進化させた。

モジュラーパッケージ：集積光送信モジュールの高い周波数特性はレーザ又はモジュレータチップの固有応答だけでなく、チップ電極とモジュラーパッケージの寄生パラメータの影響も受ける。電気吸収モジュレータは一般的にP、N共面電極を採用し、良好な熱伝導性能を持つ窒化アルミニウム (AlN) 材料キャリア上でこれと対応する電極ランドを調製し、倒置溶接または金属の熱ボンディング技術により多数の金ワイヤの使用を避け、調製した信号の低損傷伝送を実現する。パッケージ寄生パラメータは主に電気連結用金ワイヤから引き込まれたインダクタンスと電極ランドにもたらされた電気容量による。われわれはこれに最適化設計を行い、チップ寄生パラメータによる補償を実現した。

4. まとめ

本稿では多波長レーザ照射によるフォトニック集積回路チップ技術について概観し、多波長レーザ照射及びアクティブ・パッシブ多機能構造モノリシック集積回路等の、中国が独自に知的所有権を持つ核心技術を簡潔に紹介した。例えば、再生等価チャープ技術及びナノインプリント二次テンプレート技術を採用し、革新的な設計によりフォトニック集積回路チップの調製プロセスにおける厳しい要求を大幅に緩和するには、ホログラフィー露出等半導体レーザの汎用調製技術を利用すれば、多波長レーザアレイチップを調製することができ、チップ製造のコストを低減し、将来の大規模産業化に力強い技術的バックアップを提供することができる。ポート衝合結合技術によりアクティブ・パッシブ導波管のモノリシック集積回路の問題は解決され、マルチポート分析モデルが確立された。多波長レーザ照射によるフォトニック集積回路チップの動態特性試験分析と実験の検証により、チップ材料の成長、部品の調製、結合パッケージの最適化設計及びシステム機能の検証が実現した。これら核心技術はなお、発展及び改善プロセスにあるとは言え、これら技術にはそれら独自の技術的優位性と応用価値があることはすでに証明されている。これら技術の相互バックアップと結合により、必ずや短期間にフルセットの高速フォ

トニック集積回路チップの大量生産技術が構築され、多波長レーザ照射チップを代表とする中国のフォトニック集積回路チップ技術の研究と応用に確固たる基盤が築かれるだろう。

共振吸収型導波路アレイの原理、特性、製作及び利用

●Profile●



周 建英 Zhou Jianying ●中山大学教授

1957年12月生まれ。1978年～1982年、華中科技大学卒業（学士。レーザ専攻）。1984年～1988年、英国インペリアル・カレッジ物理学専攻（博士、ポストドクター研究）。1988年～現在、中山大学に勤務。博士研究員（ポストドクター）、講師、副研究員、教授、国家重点実験室主任、理工学院院長等を歴任。主な研究分野：レーザ物理学、情報光子学、3D ディスプレイ技術。SCI刊行物に論文70本以上を発表、SCI収録の引用はのべ300回以上（地震による引用を含まない）。教育部科学技術進歩賞、広東省自然科学賞を各1事業で受賞。国家発明特許1件。香港第1回（1995）求是基金会の「傑出青年学者賞」を受賞。1997年、労働人事部、教育部により「全国優秀留学帰国人員」称号を授与。2005年10月、「全国優秀博士研究員」の称号を授与。

共著者：張木棟、黎永耀、劉憶琨

1. 光子操作とフォトニック結晶

20世紀に入ってから、電子理論と実験の進展により電子技術と情報技術は空前のレベルまで発達した。通信の速度、容量、品質に対するニーズの高まりに伴い、電子特有の性質による限界を受けて、電気・光ネットワークにおける光電気転換速度や処理速度の遅さは情報技術の発展を阻害するボトルネックとなっている。このため、情報の伝達と交換は全光ネットワークに向け転換しつつある。一方、光子に対する操作の実現の面では、集積可能な光子装置中での光場のスイッチ、減速、静止、キャッシュメモリならびに光子エネルギーの高速・高効率転換及び信号処理の実現こそ、全光ネットワーク実現の鍵となる。光子の有効な操作の実現は、光子学の研究テーマの一つである。

フォトニック結晶（Photonic crystals、略称PhC）は、異なる屈折率を持つ媒質が周期配列されることで成立する人工のマイクロ構造であり、光子のバンドギャップ及び欠陥モデルを通じて光子操作が実現でき、光場の正確な制御に有効な伝達媒介を提供する。フォトニック結晶の概念は、1987年のJohn及びYablonovitchがそれぞれ行った報告が起源であり、以降約30年間、マイクロナノ光子学とフォトニック結晶の研究は一連の重要な研究成果を挙げている。例えば、フォトニック結晶のバンドギャップ端に存在する強烈な線形波長分散の利用や、2次元のフォトニック結晶の導波路構造の調節を通じ、低波長分散区間10nmの範囲内で群速度0.02cの低速光を得ることができる。さらには、例えば非線形効果により生じるフォトニック結晶バンドまたは欠陥モデルの移動、あるいは双安定性、光子態密度の変化等の効果を利用することで全光スイッチを実現できる。一方、フォトニック結晶のさまざまな性質を総合的に利用して、さまざまなフォトニック結晶装置が製作・報告されており、例としては大周波数範囲のフォトニック結晶偏光子、ブロードバンド阻止帯域及び超ナローバンド周波数選択濾波器、分光能力の強いフォトニック結晶超プリズムレンズ、高効率の発光ダイオード、光スイッチ、光導波路、光メモリ及び

光子周波数インバータ等、これらフォトニック結晶装置はサイズ及び性能の面で既存の光電気装置より優れる。

2. 共振吸収型フォトニック結晶及び発展の概要

フォトニック結晶は材料特性に基づき、パッシブ型とアクティブ型に分類される。パッシブ型フォトニック結晶の中では、入射電磁波は基質・媒質と共振、分極、吸収またはゲイン等の作用を生じず、誘電率実部を通じて周期的変調を実現するのみである。このような既存のパッシブ型フォトニック結晶と異なり、例えば量子ドット、金属または染料等の構造中のドーブ・吸収（ゲイン）性媒質を通じて、屈折率の繰り返し周期的変調を有する機能性アクティブ型フォトニック結晶を得ることができる。このようなアクティブ型フォトニック結晶は、共振型の非線形フォトニック結晶である。

非線形フォトニック結晶は、光の伝達を制御する有効な方法であることがすでに証明されており、関連研究もすでに大きな成果を挙げている。ギャップソリトン（Gap soliton）とは、光の周波数により、周期構造の光子・バンドギャップ中に位置する光パルスが周期構造を突き抜けるときに生じる自局在化状態である。フォトニック結晶の非線形効果とバンドギャップの強烈な群速度と波長分散関係との相互作用により生じるギャップソリトンを利用すれば、超短レーザパルス速度の減速ないし静止を実現できる。しかし、非線形フォトニック結晶において主流となっている研究対象は、非共振的な非線形光学材料Kerr又は二次非線形に集中している。非共振・非線形光学については、非線形光学係数が比較的小さいために大きなレーザ光強度が必要であり、例えばKerr効果では、必要なピーク出力は $10^9 \sim 10^{11} \text{ W/cm}^2$ にも達する。実験では、ブラッグの光ファイバ回折格子中におけるKerr非線形作用とバンドギャップ端面の群速度の波長分散とのバランスを利用したところ、発生したブラッグ回折格子ソリトンはピコ秒光パルスを50%減速させることができた。欠陥のあるブラッグ光ファイバ回折格子の使用やラマンソリトンとギャップソリトンの衝突の利用も、理論上、

静止的超短光子ソリトンの存在を予言した。しかし、実験で必要とされた光度の高い($>10 \text{ GW/cm}^2$)のポンプ光がこの方法の利用を制限した。

しかし、線形フォトニック結晶中に共振原子を取り入れ、共振した非線形光学材料が生じた場合は、共振が励起された際にさらに大きな非線形係数が生じ、さらに有効な非線形光と物質の相互作用が導かれるため、入射光場の平均出力は $\mu\text{W}\sim\text{mW}$ オーダーとなりうる。共振吸収型フォトニック結晶のこのように強い非線形効果、迅速な応答速度、低い作業閾値等の長所と共振により、非線形プロセスに光場の局在化、光子-原子束縛状態等の一連の現象がもたらされ、光場特性により有効な操作が提供されるため、重要な研究価値がある。共振吸収型ブラッグ反射鏡構造 (Resonantly absorbing Bragg reflector, 略称RABR) 等の、よく見られる共振吸収型フォトニック結晶は、まさに共振型の非線形フォトニック結晶である。

フォトニック結晶の概念が報告される前に早くも、モード同期レーザに用いられる共振吸収 (ゲイン) 型周期構造の分布帰還型構造 (Distributed Feedback, 略称DFB) は、ある意味で言えばゲイン型のアクティブ型フォトニック結晶として存在した。1986年、MantsyzovとKuzminは1次元の離散型周期性共振媒質中の自己インダクタンスに関する透明化現象を研究したところ、この構造こそがすなわちアクティブ型の共振フォトニック結晶であり、無限に薄い2つのエネルギー準位の原子層が周期的に材料にドーピングされて形成されることがわかった。その後、特に1987年にフォトニック結晶の概念が発表されて以降は、2つのエネルギー準位の原子層をドーピングした非線形光子の研究が相次いで実施された。Mantsyzovらの研究を基礎に、Kurizkiの研究グループは共振吸収型ブラッグ反射鏡構造 (RABR) を発表した。この構造は、周期配列された非吸収媒質中に共振型の2つのエネルギー準位の原子薄膜層を周期的にドーピングして形成される (図1のとおり)。KurizkiはRABR中のソリトンの精確な解を求め、かつ、いかなる任意のブラッグに対して光パルスが放射されても、大量の静止・移動のある安定したギャップソリトンが必ず形成され、かつ、対応する解析解があることを見出した。このことは、このようなメカニズムを利用して光メモリが実現できることを意味している。均一媒質中の自己インダクタンス透明化現象と異なり、RABR中で生じるソリトンには任意のパルス面積がある。均一な二次非線形媒質中に存在する安定した明ソリトンは不安定な暗ソリトンと異なり、アクティブな原子層を持つRABR構造は安定した明、暗両ソリトンが同時に存在する初めてのモデルである。これらRABRに関する研究は、基本的にソリトンの解の存在性及びその性質の考察に限定された。

一方、超短パルスの共振周期構造中の進化の問題についても広く研究されており、理論上、超短パルスレーザの減速、ストレージ、制御及び解放が実現されている。

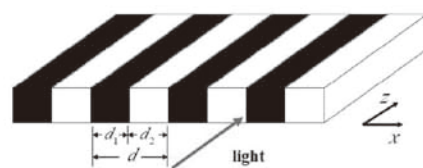
RABR構造を基礎に、共振増幅型ブラッグ反射鏡構造 (Resonantly amplifying Bragg reflector, 略称RAmBR) 及び双共振吸収型ブラッグ反射鏡 (Doubly resonant Bragg reflector, 略称DRBR) が発表され、かつ、深く研究されてきた。共振吸収型フォトニック結晶はすでに光装置中で広く採用されているが、RABR構造が共振吸収の2つのエネルギー準位の原子共振中心を必要とするだけでなく、構造周期と入射・波長の3者を互いにマッチングさせる必要があり、かつ、サンプルの製作も難しいため、利用が制限されてきた。

共振吸収型フォトニック結晶は2次元、3次元の共振吸収型フォトニック結晶にまで拡大され、バックフィル技術により、フォトニック結晶の隙間に量子ドットまたは金属材料が埋め込まれて作製される。1次元のRABR等とは構造が異なり、共振吸収型導波路アレイ構造 (Resonantly absorbing waveguide array, 略称RAWA)、反転非線形結晶格子導波路構造等の2次元の共振光子結晶格子アレイは、光の伝達方向と周期構造配列が平行な導波路アレイであり、図2で示すようにRAWA構造である。共振吸収型導波路アレイの原理、光学特性、サンプルの製作と利用について、以下に説明する。



◎図1 RABR構造イメージ図

白色：共振吸収原子層、灰色と黒色：周期配列の無吸収パッシブ型媒質



◎図2 RAWA構造

黒：共振吸収のアクティブ層、白：無吸収のパッシブ層

3. 共振吸収型導波路アレイ

光学結晶格子に基づく導波路アレイは、光ファイバ結合により形成される1次元の結合導波路アレイに由来し、このモデルはJonesにより1965年に発表されたのが最初である。1988年、Christodoulides及びJosephは非線形効果の導入により、理論上、この種の結合による導波路アレイ中の離散型ソリトン (Discrete soliton) の存在を予言し、かつ、有名な離散型非線形シュレーディンガー方程式 (Discrete nonlinear Schroedinger equation, 略称DNLSE) を導いた。その後、非線形結合アレイ導波路

中の離散型ソリトンの研究は幅広い進展を見せた。特に1998年、EisenbergとSilberbergがGaAsを利用し、作製した導波路アレイ中で離散型ソリトンを見出すと、非線形結合アレイ導波路と離散型ソリトンという研究テーマがさらに注目されるようになった。最近、ある種の光伝達方向と周期構造配列が平行な共振吸収型光子結晶格子アレイが注目されており、これにはRAWAや反転型非線形結晶格子導波路構造等がある。われわれは、この種の共振導波路アレイ構造の研究において一連の重要な理論的成果を挙げており、これにはRAWA構造の線形回折効果、非線形共振導波路アレイの電磁誘導透明化作用下の準離散型ソリトン、反転型非線形結晶格子導波路中の結晶格子ソリトンの連続的な自発的対称性の破れ等が含まれる。実験では、われわれはホログラフィックリソグラフィ技術及びバックフィル技術を利用し、回折光学デバイスを分光デバイスとして結びつけることで、高品質の2次元RAWA構造を作製した。

3.1 共振吸収型導波路アレイの原理と特性

1次元RAWA構造は図2のとおり。図中の黒い部分はアクティブ媒質層を、白い部分は無吸収のバックグラウンド材料を示す。得られた導波路アレイの周期は $d = 2.86 \mu\text{m}$ 、アクティブ層の厚さは $d_1 = 0.5d$ 、 x 方向は周期方向で、 z 方向は光場伝達方向である。Maxwell方程式で得られる光の1次元RAWA中の伝達は、次の方程式を満たすことができる(1)：

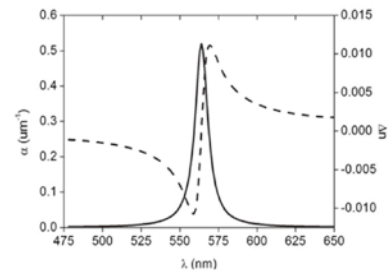
$$(1) \quad i \frac{\partial E}{\partial z} = -\frac{1}{2k} \frac{\partial^2 E}{\partial x^2} - (k_0 \Delta n + \frac{i\alpha}{2}) V(x) E$$

式中の $k = k_0 n$ 、 n はバックグラウンド媒質の屈折率で、 k_0 は電磁波の真空中の波数である。 α はアクティブ媒質の吸収係数であるうえ、吸収線形の仮定はローレンツ分布による。 Δn はKramers-Kronig (K-K)関係により算出された対応する屈折率の実部の変化である。Kramers-Kronig (K-K) 関係に基づけば、アクティブ材料の吸収によりその実部の屈折率に変化が生じるため、吸収ピーク両側付近の入射波長に対し、RAWAシステムは屈折率周期分布の導波路システムとなりうる。 $V(x)$ は周期変調関数で、黒い部分のアクティブ媒質は $V(x) = 1$ を代表し、白い部分のバックグラウンド媒質は $V(x) = 0$ を代表する。

1次元RAWA中のアクティブ媒質の吸収線型はローレンツ分布であると仮定し、かつ λ_0 は吸収中心とすると、 A/B^2 は吸収係数の最大値で、 $2B$ が線幅であり、以下の式(2)で示される。

$$(2) \quad \alpha = \frac{A}{(\lambda - \lambda_0)^2 + B^2}$$

シミュレーションにおいては、 $\lambda_0 = 564 \text{ nm}$ 、 $A = 1.3 \times 10^5 \mu\text{m}$ 、 $B = 5 \times 10^3 \mu\text{m}$ を取る。 A と Δn の対応関係は図3に示すとおりで、共振吸収中心付近では、 Δn に劇的な変化があり、RAWAは屈折率に依存した導波路システムとなり、共振吸収中心の両側の入射光波に対し、システムは相応に高い屈折率層を導波層として選択する。



◎図3 α (実線) と Δn (点線) の対応関係

シミュレーションにおいては、波長 $\lambda_1 = 554 \text{ nm}$ と $\lambda_2 = 574 \text{ nm}$ のガウスビームをそれぞれ入射した。光波 $\lambda_1 = 554 \text{ nm}$ に対しては、RAWAのアクティブ層 Δn はマイナスで、屈折率は減少し、システムはパッシブバックグラウンド層を導波層として選択した(図4(a)のとおり)。一方、光波 $\lambda_2 = 574 \text{ nm}$ に対しては、 Δn がプラスのため、RAWAのアクティブ層の屈折率は増大し、システムはアクティブ層を導波層として選択した(図4(b)のとおり)。回折理論に基づけば、回折場の分布は光場のフーリエ変換である。一次回折効率 η は一次回折強度と入射光度との比と定義する。すなわち、 $\lambda_1 = 564 \text{ nm}$ に対しては、 Δn は0であるため η は α により決定される。 $\lambda_1 = 554 \text{ nm}$ と $\lambda_2 = 574 \text{ nm}$ に対しては、 η は α と Δn の両方により決定される。図4(c)で示すとおり、RAWAの厚さの増加に伴い、共振吸収中心では回折ホールバーニングが形成され、かつ、RAWAの厚さの増加に伴い深さが増す。理論シミュレーション結果によれば、ある固定の入射波長から見れば、一次回折効率 η は厚さの増加に伴い最初に増加した後は減少を示し、図4(d)に示すとおりとなる。ピーク値の大きさと位置は α と Δn により決定される。

RAWA構造の線形回折効果に関して研究を行う基礎として、われわれはパッシブ媒質中にアクティブな共振多エネルギー原子をドーブすると仮定し、かつ、電磁誘導透明化技術(Electromagnetically induced transparency、略称EIT)及びこの技術中の増強された自己カー効果と巨大カー効果を利用して、共振多エネルギー原子システムの共振導波路アレイを作製した。研究の結果、この導波路アレイは弱い光ソリトンの伝達を支持できることがわかった。このほか、測定された光場とエネルギー間の離調周波数の調節を通じ、非線形屈折率が高く光学密度の低い媒体と非線形屈折率が低く光学密度の高い媒体の組み合わせにより、反転非線形結晶格子アレイ導波路を実現すること

ができた。その構造は図5(a)のとおり。このような結晶格子構造の特徴は、結晶格子の屈折率の変調と非線形屈折率の変調が互いに反転し、その結果として結晶格子に線形と非線形効果の競争関係が存在するようになったことである。研究の結果、光場で形成されるソリトンは反転非線形結晶格子アレイ導波路の伝達において敏感な出力依存関係にあるため、線形と非線形の競争によりソリトンには相転移及び自発的対称性の破れが多数回出現することがわかった。われわれは伝達方向上に非均一的にアクティブ原子をドーピングすると仮定し、さらに特殊な導波路構造を提案した。この導波路の特徴は構造が基盤に相似する点にある(図5(b)のとおり)。研究の結果、この構造中では一定の閾値の時にソリトンの伝達を支持できることがわかった。特に、入射中心がシステムの対称点を乖離する際、ソリトンは折れ線状に伝達することがわかった。このメカニズムは、すなわち自発的対称性の破れがソリトンに横方向の伝達運動量を生じさせることで、ソリトンが折れ線状の伝達を呈するものである。

3.2 共振吸収型導波路アレイの製作と特徴

2010年、われわれは高品質な回折光学デバイス(Diffractive optical elements, DOE)を分光デバイスとして利用し、ホログラフィックリソグラフィとバックフィル技術を結合させ、レーザ染料ローダミンBをドーピングした2次元の共振吸収型光子結晶格子アレイを簡単かつスピーディに製作した。これは別称、虚部屈折率光子結晶格子とも呼ばれる。光路中では高品質な回折光学デバイス(DOE)を分光デバイスとして利用し、多数の光束フェーズが制御可能なホログラフィックリソグラフィを実現し、SU-8フォトレジスト上で露出させてRAWAテンプレートを得て、その後テンプレート中のバックフィルレーザ染料からRAWAサンプルを作製する(図6(a))。染料の共振吸収区間においては、K-K関係の影響により、染料をドーピングした区間と染料をドーピングしていない区間の間に屈折率差が生じるため、波長がRhB染料の共振吸収区間にある光波は光子結晶格子の変調を感受するが、波長が共振吸収区間から遠く離れている光波から言えば、このサンプルはバルク材料に相当する。

近場共焦点走査型レーザ顕微鏡を利用して調整可能なレーザ光源(Opium Auto 100, Radiants Light S.L.)を結びつけ、われわれは2次元RAWAサンプル出射端における光場分布を測定した。図6(c)(d)は実験で測定した結果であり、対応する理論計算も含まれており、良好な一致効果を示した。図6(b)はこのサンプルの一次回折効率 η 、理論シミュレーション値と実験測定値であり、それぞれ点線と実線で示しており、曲線では波長に対する2次元RAWAサンプルの屈折率の依存特性を示している。理論曲線と実験で得られたデータは互いに一致するため、われわれの理論シミュレーションは信頼性が検証されたといえる。曲線から分かるように、RhB吸収材料に対して

は、K-K関係による屈折率実部の変化の最大値は吸収ピークの両側にあるため、回折スペクトルのピーク値は染料RhBの吸収ピークから乖離する。サンプルの長さが小さいとき、このような屈折率実部の差もはつきりしないため、サンプルの長さが大きい程、吸収材料の吸収スペクトルに相對した回折スペクトルの乖離も大きくなる。

3.3 共振吸収型導波路アレイの応用

導波路アレイは重要な研究価値を持つ周期性構造であり、離散回折、異常屈折、光学的ブロッホ振動、ツェナ・トンネル効果、離散または結晶格子ソリトン等の多くの目新しい物理現象がある。既存の導波路アレイはいずれもPPLM、光屈折結晶、液晶等のパッシブ材料から構成されている一方、アクティブ材料はパッシブ材料に比べ豊富な波長分散特性を持つため、光場制御上さらに多くの自由度を提供でき、かつ、強い非線形効果、スピーディな応答速度と低い作動閾値等の長所を持つ。RAWA構造は材料の吸収ピークを乖離する際に構造の均一なバルク材料と同等になる一方、特定波長域と光の強い作用下では光子結晶格子の性質を示すため、この2つの現象は高速の量子情報処理及び光子キャッシュメモリ等の領域で幅広い応用価値がある。一方、光パルスがRAWA中で伝播する際に現れる時空分離特性はバンドパスフィルタ、波長分割多重、全光スイッチ、可変光ディレイライン(Tunable optical delay line)等の光学装置中で潜在的な応用価値があるだろう。このほか、RAWA構造の時空分離特性を利用すれば、入射する白光を赤・緑・青の三原色に分ける分光器を設計することもでき、ディスプレイ領域での応用が期待される。

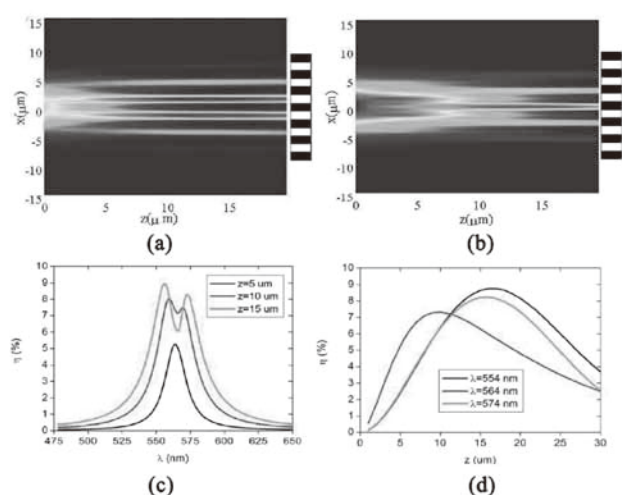
4. まとめと展望

本稿では、さまざまな種類の共振導波路アレイの光伝達特性を概観し、RAWA構造について詳細かつ全面的に紹介した。RABR構造と比べ、RAWA構造に対する研究は現在主に線形領域の回折効果及び非線形領域のソリトンに集中しており、その欠陥など、より多くの光学特性に基づくソリトンの制御等についてはさらなる模索と検討が待たれる。

光子の精密操作において解決すべき重要な問題は、有効な光子装置の設計と製作である。研究者たちは共振吸収型フォトリソグラフィ結晶サンプルの作製面で大きな努力をしており、一連の重要な研究成果が得られている。1次元の共振吸収型フォトリソグラフィ結晶に基づいた比較的成熟した方法は、分子束外延成長法に吸収原子層をドーピングする方法である。ホログラフィックリソグラフィ技術とバックフィル技術を結合させれば、2次元の共振吸収型導波路アレイが簡単かつスピーディに作製できるが、構造の厚さがやや小さすぎる。作製技術の絶えざる向上と理論研究の進展に伴い、共振吸収型フォトリソグラフィ結晶はその豊富な光学特性により、光子操作領域で重要な役割を発揮するだろう。

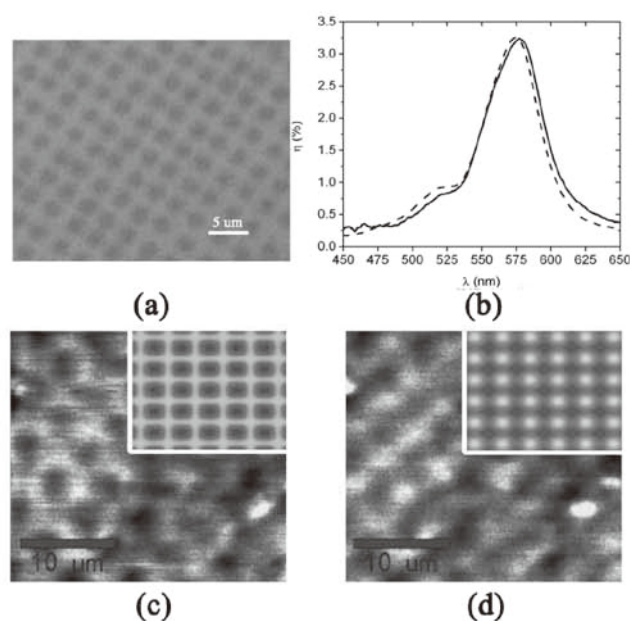
謝辞：

イスラエル・ワイツマン科学研究所のGershon. Kurizki教授、イスラエル・テルアビブ大学のBoris A. Malomed教授、英国St Andrews大学のThomas F. Krauss教授、李俊韜博士、香港科技大学のK. S. Wong教授、ならびに馮銘能、肖万能、程静ら、当該研究事業に貢献した方々に感謝申し上げます。

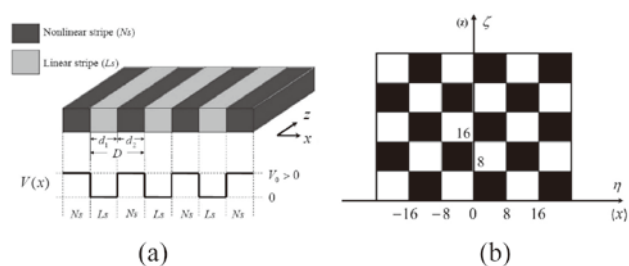


◎図4 1次元RAWA中の光波の伝達

(a)入射波長 $\lambda_1 = 554$ nm、(b) 入射波長 $\lambda_2 = 574$ nm、
(c)さまざまな厚さでの1次元RAWAの回折効率スペクトル、
(d)波長554nm、564nm、574nm時の η はRAWAの厚さに伴い変化



◎図6 (a)バックフィルを経た後に形成されたRAWA構造の顕微鏡図区間の導波路
(b)RAWA構造の回折スペクトルの理論シミュレーション（点線）と実験測定（実線）結果
(c)入射波長 $\lambda_1 = 547$ nm、(d) $\lambda_2 = 581$ nmの際の2次元RAWAサンプルの放出端の光場分布。対応する理論計算結果は挿入図のとおり



◎図5 (a)反転非線形結晶格子導波路

青：非線形所在区間の導波路、灰色：線形媒質区間の導波路
(b)基盤状の導波路構造
黒：アクティブ原子所在区間、白：パッシブ媒質所在区間

グラフェンを可飽和吸収体に用いた超高速モード同期固体レーザーの研究

•Profile•



何 京良 He Jingliang ●山東大学結晶材料国家重点実験室教授

1957年10月生まれ。1998年、中国科学院物理研究所で博士号取得（理学博士、光学専攻）。1991年～1993年、英国Coventry大学応用物理学部で訪問学者。2001年～2002年、台湾交通大学光電工程研究所で客員助教授。2002年～2004年、南京大学固体マイクロ構造物理国家重点実験室教授。現在、山東大学結晶材料研究所、結晶材料国家重点実験室教授、山東省初の「泰山学者」特別招聘教授。「強レーザーと粒子線」第6期編集委員、「レーザーと光電子学の発展」第7期編集委員、山東省レーザー学会常務理事。主な研究領域は、レーザー結晶と非線形結晶材料の特徴及び関連装置、新型全固体レーザーの研究と応用。ここ5年間、多数の国家重大研究テーマに参画、国家自然科学基金事業を多数主導。Phys Rev Lett, Appl Phys Lett, Opt Lett, Appl Phys B等の学術誌上で論文100本以上を公表。

共著者：郝 霄鵬、徐 金龍、李 先磊

1. はじめに

超高速レーザーは1990年代以降、パルス幅が極めて狭く、スペクトルが非常に広く、出力が強力で繰り返し周波数が非常に高い等の特徴により、サイエンス分野の基礎研究、超高速レーザーのスペクトル、量子コヒーレンスの制御、マイクロ加工、光通信、分子反応動力学等の領域で広く応用され、かつ、ナノスケールでの現象、超高速X線スペクトル、軟X線非線形光学、プラズマ現象や診断等、重要な数多くの応用方法が新たに開拓し続けられている。新型の超高速パルス光源の模索は、現在のサイエンステクノロジーにおける重要な研究領域となっている。

チャープパルス圧縮技術の応用と半導体過飽和吸収材料の発見により、超高速レーザーの研究はめざましく進展した。過飽和吸収体のモード同期の原理によれば、さまざまなエネルギー注入のもとでは生じる消耗も異なる。このため、モード同期パルスの特性と過飽和吸収体の特性は密切に関係しており、このことにより過飽和吸収体の選択に厳しい要求を突き付けている。1992年、U. Kellerらは半導体過飽和吸収材料と反射鏡を融合させて半導体可飽和吸収ミラー（SESAM）を製造した。SESAMの発明により、上位レベルの寿命を持つネオジム・ドープ及びイッテルビウム・ドープのレーザー結晶によって無調整のQ包絡線による安定したモード同期作動が実現できるようになり、このことによって現時点では最も広く使用されるモード同期装置となった。しかし、SESAMの制作にはMOCVD等の外延的成長技術が必要で、プロセスが複雑なうえにコストが高く、そのうえよく使用されるSESAM材料の吸収帯域幅は狭く、現時点では近赤外波長域でしか応用できない。ここ数年、カーボンナノチューブ（CNT）が過飽和吸収体として広く注目されている。カーボンナノチューブは直接バンドギャップを持つ材料で、バンドギャップの大きさはナノチューブの直径とキラリティにより決まる。さまざまな直径のカーボンナノチューブの混合により広い非線形吸収帯が実現でき、よく用い

られる1.0-1.6 μm レーザー放出によるゲイン波長域を網羅する。現時点で、すでに多くの研究グループがカーボンナノチューブの使用により光ファイバレーザー及び固体レーザー中で安定した連続波によるモード同期を実現したことを報告している。しかし、カーボンナノチューブのチューブ状の形態により非常に大きな散乱消耗が生じ、モード同期の閾値が引き上げられるため、レーザー出力と効率に制限が生じた。このため、研究者たちはSESAMの長所を持つと同時に広い吸収帯を持ち、広帯域が調整可能な優れた可飽和吸収材料を模索し続けている。

2004年、イギリスの科学者K. S. Novoselov及びA. K. Geimはセロテープでグラファイト片を繰り返し剥離する方法によりグラファイト層間のファンデルワールス力を破壊することで、単層炭素原子により構成される薄片、つまりグラフェン（graphene）を初めて発見した。これは0次元のフラーレン、1次元のカーボンナノチューブに続き発見された、単層炭素原子の緊密な堆積により形成される2次元のハニカム結晶格子構造を持つ単結晶機能材料である。発見からわずか数年しかたないが、グラフェンは特有の空間構造や顕著な量子サイズ効果により強い関心を集めている。研究者たちはグラフェン材料の電子伝達特性を研究すると同時に、特有の非線形光学による飽和吸収特性を持つことを見出した。既存の半導体材料と異なり、グラフェンの伝導帯と価電子帯はディラック点に接するため、このようなゼロバンドギャップ構造によりすべての波長域の光は無選択的に吸収性を持つ。光がグラフェンに照射される際、価電子帯電子は光子を吸収して伝導帯まで跳躍し、パウリの排他原理に基づき伝導帯上で最も低いエネルギー状態を占める。光のエネルギーが十分に強い時は、電子跳躍の速度は帯域間の緩和速度を上回り、電子の吸収する光子エネルギーは対応する励起状態以下のエネルギー準位によりすべて充填されると同時に、価電子帯上の正孔も価電子帯のピークまで充填され、吸収プロセスが飽和状態に達する。このよう

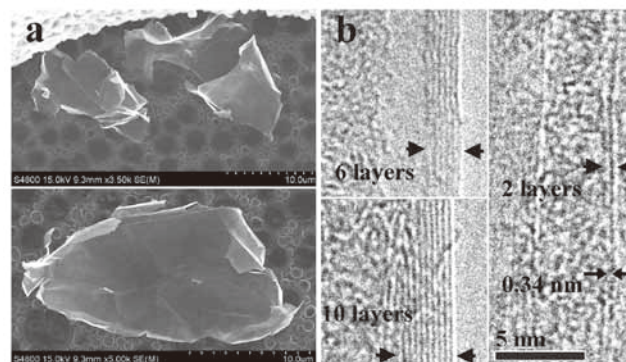
なパワリの遮断効果によりグラフェンが漂白され、パルス中でエネルギーが比較的高い部分も漂白時間内は無消耗で通過した。グラフェンの可飽和吸収プロセスに存在する2つの緩和時間とは、帯域間の跳躍緩和時間と帯域内のキャリア散乱による複合的な緩和時間である。前者は0.4-1.7psの範囲内にあってモード同期の始動作用を果たす一方、後者は約70-120fsと大幅に短く、効果的にパルス幅を圧縮し、モード同期を安定させることができる。単層グラフェンの光に対する非飽和吸収率は2.3%、単層グラフェンの変調度は66.5%にも達し、超短パルスモード同期の発生に役立つ。非飽和消耗の増加により、変調度はグラフェン層数の増加に伴い変化するため、層数の制御によって変調度を調節し、モード同期パルスの性能を最適化できる。

つまり、既存のSESAM及びSWCNT等の飽和吸収材料に比べ、グラフェンにはバンドの工学的設計や複雑な外延法による成長を必要とせず、材料のキラリティ（スケール）の選択も必要でないため制作コストが非常に低い。さらに重要な点は熱損傷閾値が比較的高く、飽和強度が低く、回復時間が短く、変調度が大きく、波長の調和範囲が広い等の長所がある点であり、高効率・長時間にわたる安定したモード同期運転の実現に役立っている。

グラフェンのモード同期に関する研究は、現在主に光ファイバレーザの応用に集中している。2007年、シンガポール南洋理工大学のD.Y.Tang研究グループはグラフェンを過飽和吸収体として使用し、エルビウム光ファイバレーザでモード同期運転を実現した。パルス幅は756fs、平均出力は2mWであった。その後、さらにグラフェン・イッテルビウム・ドープ光ファイバにおけるモード同期と調和可能なモード同期光ファイバレーザ領域で一連の研究を行った。英国ケンブリッジ大学のC. Ferrari研究グループは2009年と2010年に、出力22mWの460fsと1.2mWの174fsによるグラフェンモード同期エルビウム光ファイバパルスの出力について報告した。先行研究にあるグラフェンモード同期光ファイバレーザと比べ、それらの平均出力効率はいずれもやや低かった。2010年、D.Y.Tangの研究グループはグラフェンモード同期をNd:YAGセラミックス中で使用したところ、100mWパルス幅が4psのモード同期パルスを得た。W. B. Choらはマグネシウム・カンラン石レーザ上でパルス幅130fs、平均出力230mWのモード同期運転を実現した。しかし、勢いが盛んなグラフェンモード同期光ファイバレーザの研究に比べ、グラフェンモード同期固体レーザの特性に関する研究は依然として少なかった。最近、本研究グループは液相剥離の方法によりサイズの大きいグラフェン片を調製し、さらにグラフェン可飽和吸収ミラー（SAM）を調製したところ、100ミリワットオーダーのNd:GdVO₄レーザピコ秒パルスとYb:KGWモード同期フェムト秒パルスレーザの運転を実現することができた。

2. グラフェン可飽和吸収ミラーの調製

2004年以降、研究者たちはさまざまなグラフェン調製方法を進化させており、これには機械剥離法、SiCまたは金属の単結晶表面の外延的成長法、化学的酸化剥離法、層間挿入剥離法、化学気相成長(CVD)法等がある。われわれは酸化液相剥離法により20 μ m超のグラフェン片を分離した。具体的な方法は、90℃下で一定量の過硫酸カリウムと五酸化二リンを濃硫酸中に溶かし、さらにパーミキュラ黒鉛300mgを入れて80℃で攪拌した後に、4.5時間反応させるものである。反応が完了したら、ろ液のpHが中性に近づくまで大量の脱イオン水でパーミキュラ黒鉛を洗浄し、80℃で4時間乾燥させる。乾燥後のパーミキュラ黒鉛10mgを蓋付きガラス瓶に入れ、一定量のN-メチルピロリドンを入れ、出力の小さい超音波に2時間かけ、1日静置する。その後、上澄みサンプルを取り、スピコート法によりBK7ガラス上にスピコートし、70℃の真空乾燥機に一晩おいて乾燥させたところ、1～10層のグラフェン薄片が得られた。図1aは20 μ m超のグラフェンの走査型電子顕微鏡図である。酸化していないパーミキュラ黒鉛から得られたグラフェンに比べ、超音波で酸化したパーミキュラ黒鉛からはサイズの大きい単層グラフェンが得られたことから、酸化プロセスによりグラファイト層間のファンデルワールス力が大幅に低減できることがわかる。図1bは2層、6層、10層のグラフェン薄片の高解像度透過型電子顕微鏡図である。



◎図1a 20 μ m超のグラフェン薄片SEM、図1b.さまざまな層数のグラフェン薄片HRTEM

われわれはBK7基質上でSiO₂/TiO₂薄膜を電気めっきし、1.0 μ m波長域に対するBK7基質の反射率を95%に調節し、スピコート法でグラフェンをSiO₂/TiO₂薄膜上にめっきしてグラフェン可飽和吸収ミラー SAMを調製した。SAMの反射率を測定すればグラフェンの層数をおおまかに確定することができる。このSAM反射率は95.2%～96.1%だったため、グラフェンは約2～10層と言える。

3. グラフェンモード同期ピコ秒Nd:GdVO₄レーザーの実験及び研究

当該SAMをモード同期装置兼出力ミラーとして半導体レーザーポンプのNd:GdVO₄レーザー上に応用した。端面ポンプ源は808nm半導体レーザーで、うち平面鏡と入力鏡には808nmの高い透過性と1.0 μm の高い反射性を持つ膜を、その他のレーザー鏡には1.0 μm の反射率の高い膜をめっきした。Nd:GdVO₄結晶はa方向に沿って切断し、通光面は3 $\times$ 3mm²、長さは5mmで、水で20℃まで冷却する。

実験では、連続波、グラフェンSAM、SESAMモード同期運転下の平均出力効率と吸収ポンプ出力との変化関係を観察した。最初に、透過率5%の出力ミラーを用いてSAMの代わりとし、連続波レーザー運転特性を試験したところ、1.9Wの吸収ポンプ出力下で連続波407mWとレーザー出力1065nmが得られた。出力ミラーをSAMに換えてモード同期装置兼出力ミラーとしたところ、吸収ポンプ出力が1.9Wの時に安定した連続波モード同期レーザー運転が得られ、この時の平均出力効率は360mWで、連続波運転時に比べわずか12%低いだけだった。このことにより、グラフェンSAMの飽和消耗は確かに低いことがわかる。モード同期パルス繰り返し周波数は43MHzで出力は非常に安定しており、Qモード同期の調製に関する不安定な現象は現れなかった。モード同期による単パルスエネルギーは8.4nJ、スローブ効率は22.6%で、光-光転換効率は21.4%であった。自己相関器で測定した対応のパルス幅は16ps、中心波長は1065nmに位置し、半値全幅の近似値は0.58nmであった。実験条件が全く変化しない情况下で、われわれはさらに一部の反射式SESAMをSAMの代わりに用いて、そのモード同期性能を研究した結果、SESAMの反射率は96%、変調度は1.6%、飽和エネルギー密度は70 μJcm^{-2} であった。1.9Wの吸収ポンプ出力下では50mWの安定した連続モード同期出力が得られ、半値全幅は14psであった(双曲線正割型と仮定)。このため、SESAMに比べ、グラフェンSAMのほうが高效率な連続モード同期出力により役立ち、さらにパルス幅差も大きくないことがわかった。

4. グラフェンモード同期Yb:KGWフェムト秒レーザーの実験及び研究

一般的に、Ndレーザー媒質のゲイン帯域幅はやや狭いため、フェムト秒パルスを支持しがたい。グラフェンのフェムト秒レーザーモード同期特性をさらに研究するため、われわれはゲインの広いYb:KGW結晶をレーザー媒質として選択し、フェムト秒タイムドメインにおけるグラフェンレーザーのモード同期・超高速プロセスを研究した。

光ファイバ結合980nm半導体レーザー端面ポンプYb:KGW結晶を採用した。Yb:KGW結晶はb方向に切断され、通光面は4 $\times$ 4mm²、長さは5mmで、20℃まで冷却した。実験では一対のGires-Tournois干渉ミラー (GTI1

とGTI2)を用いて結晶とグラフェンSAMによる腔内の正波長分散を補償し、3回の反射を経て-5700fs²群の波長分散が実現できた。4.6Wの吸収ポンプ出力下では平均出力564mWの連続波による安定したモード同期出力が得られ、パルス繰り返し周波数は87MHz、スローブ効率は25.6%、光-光転換効率は12.3%であった。中心波長は1033.6nmに位置し、半値全幅は2.47nmであった。自己相関器の測定により設定されたパルスは双曲線正割型で、得られたパルス半値幅は489fsで、時間あたりの帯域幅の積は0.339に達し、フーリエの変換極限值に非常に近似した。

5. 結論

われわれは液相剥離技術を利用し、有効な大サイズを有するグラフェン飽和吸収ミラーの調製に成功し、かつ、全固体Nd:GdVO₄及びYb:KGWモード同期レーザーに応用して、それぞれにおいて比較的高く安定した出力の16psと489fsのモード同期パルスを得ることができ、非線形飽和吸収材料として、グラフェンには非常に短い回復時間、低消耗、低コスト等の優れた光電気性質があることを示した。重要な点は、グラフェン中のディラック電子には線形波長分散がある点にあり、グラフェンの飽和光吸収には紫外光からTHz波長域に至るまでの最も大きい帯域幅があるため、理想的な広帯域飽和吸収体であることを意味している。このため、グラフェンは飽和吸収を調整するエレメントとして、超高速パルスの発生、光ファイバ通信、光スイッチ等の数多くの現代の光電気装置中で応用のバックグラウンドのある多機能材料であり、去年のノーベル物理学賞がグラフェンの発明者、K. S. NovoselovとA. K. Geim教授に授与されたことも、この点を十分に説明している。

ロボット技術

社会的知能に関する科学の形成及び発展

●Profile●



戴 汝為 Dai Ruwei ●中国科学院自動化研究所・中国科学院院士

1932年12月生まれ。1955年、北京大学卒業。後に有名な科学者、銭学森に師事。中国科学院に勤務、現在に至る。1980年、米国に赴き、有名なモデル識別の大家、傅京孫（K.S.FU）教授に師事。1991年、中国科学院の院士に選出。自動化研究所学術委員会、学位委员会主任、中国自動化学会理事長、国際自動制御聯盟（IFAC）委員、中国中医科学院中医薬国際連盟委員。自動制御、システム科学、思考科学、モデル識別、人工知能の研究に従事。いくつかの先進的領域で学際的な統合研究を行い、経済、軍事、社会発展領域の重大問題における意思決定に重要な役割。清華大学等の大学教授を兼任。国家レベルの重要な賞を多数受賞。

1. 「社会的知能の科学」の時代的使命

いかに重要な学術的概念の提起又は学問の発展も、特に現代においては、必ずや科学の発展と社会の進歩によって明らかになった必要性及可能性の双方により促進された結果である。「社会的知能の科学」とは、現代のグローバル化という条件下で、人類と社会の歴史が現在の段階まで進化するために必要とされ、人類がコンピュータ技術を掌握し、世界がインターネット時代に突入した必然の結果であり、「マン・マシン系」条件下で人類の知恵が高度に拡大され、インターネットを背景に人々が相互に刺激し合い、歴史と現実を融合させ、世界各地の人類の知恵を集結し、大成させた客観的な成果である。

つまり、現代では、いかなる科学の進歩もランプの灯りの下で著述に没頭する時代は終わり、一部の天才によって「現象」から「本質」を連想するという発明の時代も終焉を告げた。世界が直面する問題は、例えば自然界の気候変動や地震による津波、度重なる災難であったり、社会制度の発展による競争、国・地域間の協力・紛争であったりするが、いずれも個人や関与する集団の知恵で解決できるレベルをはるかに超える。必要とされるのは、分野を超えて古今の経験を内包し、さまざまな知恵を統合することであり、情報をさまざまな知識を集約した「知識の大成」へと転化し、社会を受け皿として湧出する知恵へと転化させることである。このような社会的な知能の構築や、特にその湧出条件及び問題解決に必要な手段の研究は、人類社会に総合的に貢献する学問分野であり、これこそが「社会的知能の科学」である。

2. 社会的知能の形成及び発展の基盤である「思考科学」

銭学森が創出した「思考科学」は自然科学及び社会科学から構成され、エンジニアリング、科学、哲学等、異なる次元のさまざまな学問分野に立脚した学際的な交わりと融合を十分に体現している。現在の科学技術と人文科学の融合や、自然と社会の発展に対し、銭学森はシステム科学、思考科学、複雑性科学（complexity science）の交差・融合を基盤に、創造性豊かに「定性から定量ま

でのメタ合成工学」を唱え、かつ、思考科学の応用技術として「メタ合成工学のワークショップホール」を構築した。思考科学は国内外で大きな反響を呼び、20年余りに西洋の認知科学の大家、H. Simonをして、協力して一つの思想を作り上げることができるとまで思わせたほどであった。

2.1 「知恵」の源泉である「創造的思考」

銭学森によれば、「思考科学」の基礎科学は「思考学」である。研究者たちが主に意識的に思考する「法則」は、抽象(論理的)思考学、イメージ(直感的)思考学、創造的思考学の3つの要素に細分化でき、このうち創造的思考は知恵の源泉であり、抽象(論理的)思考及びイメージ(直感的)思考はいずれも実現のための手段である。創造的思考は知恵の源泉であるとともに、イノベーションを実現するための内的メカニズムと深層の原動力でもあり、そこから生まれる知恵はイノベーションのプロセスのさまざまな段階を貫く。

2.2 思考方式の発展 — 社会的思考及び集団的知性

人類の思考方式がたどってきた変化の歴史から見れば、社会科学と自然科学は当初は一つだったものが科学の発展に伴い二つに分かれた。社会が今日の状態まで発展し、思考方式に変革が生じた以上は、社会科学と自然科学にはより高い次元での「協調」と「融合」が求められる。このことから、「社会的思考」が創出された。

社会的思考とは、社会全体から見た客観的現実に対する、「人」による認識である。それは、社会全体や社会的関係を基盤に、無数の個人による思考やさまざまな集団の思考が互いに影響しあう、多元的・複合的な観念の体系である。集団的思考とは、思考する若干の個人により構成される集団が思考主体となってシステムを構成する特有の機能であり、個人では到達し得ない全体的な思考能力が生じる。銭学森によれば、「社会的思考とは、情報ネットワークの繋がりの下で多数の脳により形成される、個別の脳よりも複雑で、高次な思考体系である。イメージ的思考が平行する多数の線が交錯した思考であるとするれば、社会的思考はこの性質がさらに強い」。「社会的思考学」とはまさに、研究者たちが集団として思考

した法則、ならびにそれと集団的思考との相互関係、相互作用による科学である。

社会の中の集団がこのような思考状態にあれば、思考能力は大いに高まって過去にないレベルに達し、思考の結果によりブレイクスルーが生じ、さらに高いレベルの集団的知性が湧出することが予想されるが、このような集団的知性の実現はメタ合成科学によるものである。銭学森は社会的思考学を「定性から定量までのメタ合成工学」と融合し、「人を主体としたマン・マシン系の、定性から定量までのメタ合成工学のワークショップホール体系」にまで発展させ、「マン・マシン系」の思想を十分に体现させ、現代の科学技術とそれを主体的かつ相互に高める現代の集団的知性とを統合した。

2.3 思考主体のブレイクスルー — 「マン・マシン系」

思考科学では、既存の手段から情報化時代にふさわしい手段へと認識手段の改革を実現する必要があると考える。コンピュータを代表とする現代の科学技術の発展により、人の認識能力は大いに高まった。コンピュータは人の脳の延長であり、人の思考手段であり、新しい認識手段でもある。社会的知能の科学において、精密な数量分析を運用できると同時に実験室で研究できるようになったことは、知能科学が現代的意味での「科学」となったことを意味する。思考方式の転換が認識手段の転換を決定づけ、認識手段の転換はさらに客観的事物に対する人々のさまざまな判断と認識に影響する。情報技術、シミュレーション技術、コンピュータ及びマルチメディア・バーチャル技術等の現代科学技術の運用により、人々の認識方式に転換が生じ、社会的知能を実現する新たな認識手段となった。

3. イノベーションのプロセスにおける社会的知能の湧出

人の思考プロセスで発生する新しい意識及び長期記憶となるプロセスに関する研究によれば、人間の創造は異なる事物に対する飛躍的な連想にまずは由来する。このため、創造のひらめきが起きたとすれば、それはいわゆる「イメージ的思考」の一般化である。その後、厳密な科学実験又は数学的計算により検証を加えたいとするなら、ここでもいわゆる論理的思考を用いる必要がある。このため、「創造」とはイメージ的思考に始まり論理的思考に終わる、イメージ的思考と論理的思考の結合であり、マクロ的思考とミクロ的思考の結合であり、進化により生じた創造の成果でもある[6]。

「自主的な」イノベーション能力の向上はイノベーション型国家発展戦略の核心であり、イノベーションのプロセスは一貫して創造力の影響を受けるため、創造力に対する研究は学術界における重要なミッションである。米国の認知心理学者チクセントミハイは、想像力の問題を研究するプロセスで想像力のシステム観を提起し、想像

力とは実質上、さらに追究すれば一つのシステムと認識できることを打ち出した。このシステムは当然ながら一般のシステムとは異なり、「社会システム」の範疇に含まれる。

3.1 創造力のシステム観及び社会性

20世紀から現在に至るまで、人々は創造力及び人類社会を発展させる創造的現象に注目してきた。創造力とは実質上、多様な要素を持つモデルである。創造力は2つの参照系、つまり個人的参照系及び歴史的参照系と関わる。チクセントミハイは創造力のシステム観を提起し、創造力とは実質上、3つの要素の有機的結合により決定づけられると考えた。

創造力の研究史においては、H. Simonとチクセントミハイの2人の科学者による議論を創造力システムの論争と位置付けることができる。創造力を巡っては問題の解決なのかまたは発見であるのか、また、コンピュータによる再現の是非に関する問題について議論された。

チクセントミハイによれば、創造力は人と社会文化システムの発展における相互作用に存在し、彼の創造観は社会と文化の進化における創造観である。H. Simonの考え方には非理性的要素の分析が欠けており、現実の認知プロセスを完全に特徴づけることはできず、重要な社会性による人に対する影響を見過しているとチクセントミハイは考える。

3.2 集団的創造力

認知心理学者たちは、人の心理活動と推進効果の面から見て、創造力を2つに分類する。すなわち、個人の心理に基づくP創造力と、歴史及び社会に基づくH創造力であり、人類史全体及び所属する社会条件の中で所有される思想の成果や商品、行為を参考系とする。継承的問題の解決と学習により発見され、体现されるのがP創造力であり、発展性及び社会性問題の解決と科学により発見され、体现されるのがH創造力である。

発展の経緯から見れば、創造力の研究は当初は個人の創造力に関するものであったが、システムティックな観点からの分析により、後によりよく集団的創造力が重視されるようになった。集団的創造力は個人の創造力とは異なり、その最大の特徴は、ある個人の内的思考活動のプロセスではなく、集団メンバー間の情報交流を観察及び分析の対象とする点にある。このことは、創造学の領域全体の発展を牽引する突破口となる可能性があり、より開放的な方法で人の創造力の問題に注目する方向に創造学を導くことで、システム科学と社会における実践をより緊密に連携させ、イノベーションのプロセスと創造力の持つ主体的集団性及び客観的社会性を一層明らかにできる可能性がある。

3.3 社会的知能の湧出

1990年に銭学森らは「科学の新しい領域——オープンで複雑な巨大システム（OCGS）及び方法論」という文章

を発表した。この文章では「オープンで複雑な巨大システム」という概念、ならびにこの種のシステムを処理する「方法論」が提起された。しかし、発表されてから相当長い間、人々は「オープンで複雑な巨大システム」について全く理解できなかった。当時、海外のシステム科学研究者の一部により検討されたのも単純な巨大システムに過ぎず、「オープンで複雑な巨大システム」は認識されなかった。彼らが対象とした単純とは科学技術面の問題であり、例えば物理学や化学面でのシステムであった。「オープンで複雑な巨大システム」は多くの人にとってなじみのないものであり、研究者たちはまだ、自然科学の範疇にあるシステムと社会経済システム、人体システム、人の脳システムのような人と密接に関係する各システムを結び付けて分析することができなかった。

1992年に、「オープンで複雑な巨大システム」の処理方法、すなわち「人を主体とするマン・マシン系ならびに定性から定量までのメタ合成工学」を基礎に、いかに人間の思考能力を高めるかについて、銭学森は国際的な学術グループにおける経験、C3/I業務及び作戦シミュレーション、人工知能、バーチャルリアリティ技術、「マン・マシン系」の知能システム等における経験を総括し、さらには今後の目標として「人を主体とするマン・マシン系ならびに定性から定量までのメタ合成工学のワークショップホール」(Hall for Workshop of Metasynthetic Engineering)を構築することを打ち出した。これは、専門家たちが高性能コンピュータ及び情報データ・情報システムと共に仕事をする「ホール」である。これは、専門家たちと知識データベース情報システム、各種人工知能システム、数十億命令/秒のコンピュータを、あたかも作戦指揮センターのように組織化して巨大な「マン・マシン系」による知能システムを構築するものである。「組織」は論理、理性を代表するが、専門家たちと各種人工知能システムは実践・経験を基礎とする非論理的・非理性的知能を代表する。このため、この「ホール」は21世紀における集中業務を行う民主的なホールであり、思考弁証の体现である。こうして、人の知性、機械の知能、古今東西の各分野における知的情報を総合し、集積することにより、認知科学、思考科学と関係する「マン・マシン系」の知能研究の成果を体现すると同時に、コンピュータ、情報ネットワーク等のさまざまな分野の先進技術の利用により成熟したオペレーション・プラットフォームを構築した。このプラットフォーム上において、「マン・マシン」のダイナミズムにより新たな「インテリジェンス」が共同で創造された。これらのインテリジェンスは当時の社会背景を反映し、社会に存在する問題を解決するために国際的なインターネット上の大勢のネットユーザー及び特定分野の専門家たちといった集団的知性を集約することで、ある程度の「社会的知能の湧出」を実現させた。

4. 社会的知能の科学における方法論

方法論から見れば、近代科学から現代科学までの発展プロセスにおいて、「還元論」は重要な役割を果たし、特に科学技術分野で大きな成功を収めた。還元論においては全体を細部に向かって分解し、より詳しく研究する点が長所であるが、下から上へ戻ることはできないため、高次又は全体的な問題には答え切れないことが欠点である。「還元論」ではシステムの「全体性」の問題、特に社会システムの全体性という問題を処理しきれないため、社会と自然が共存する分野での関連問題を処理する際に、一方を立てるともう一方が経たないという問題がある。

4.1 メタ合成法の提起

1986年、銭学森はスピーチの中で、ソフトサイエンスとは「定性的手法と定量的手法が結びついたもの」であると語り、ソフトサイエンスの研究には次の3つの要素が不可欠であるとした。すなわち、1) 情報、情報データ、状況をはっきりさせること。2) 定性から定量までを結びつけるには専門家の意見が非常に重要であり、専門家の経験と判断を収集できるルートが必ず必要であること。3) 定量分析を行い、モデルを構築する場合は、データを収集した後に専門家を招いて討論し、意見を述べてもらうこと。その後、専門家の意見に基づいてモデルを構築し、電子コンピュータで計算する。計算結果については、再び専門家を呼んで審査してもらう。これを繰り返す。このプロセスこそ、理論と実践の結合、定性と定量の結合のプロセスである。この手法を「定性と定量の結合したシステム工学手法」と称する。

この方法は社会システム、人体システム、地理システムという3つの「オープンで複雑な巨大システム(OCGS)」の研究・実践の基礎として帰納され、総括され、抽象化されたものである。

4.2 メタ合成法の形成及び発展

1991年、多数回にわたる学術討論を土台に、われわれは「定性と定量が結びついたメタ合成法」を「定性から定量までのメタ合成法」に発展させた。ここでは、思考のダイナミズム、弁証の性質が重視される。この方法の核心は、複雑な情報処理プロセスにおいて、特にメタ合成の重要な役割を突出させたことにある。

ある複雑な事物を認識するプロセスは、次の形で全容が表現される。

感性の具体化→思考の抽象化→思考の具体化(感性の認識)→理性の認識

これはすなわち、1つの複雑な事物に直面すると、人は大腦を通じ、ぼんやりとした表象からある明晰かつ豊かな全体を得るが、思考の抽象化と具体化という2つの段階には、抽象化のみならずイメージ的思考におけるメタ合成のプロセスが含まれ、感性的認識から理性的認識への橋渡しを体现している。

われわれの論ずる「メタ合成」とは人と機械の結合、つまり「人を主体とするマン・マシン系」であり、人の脳における情報処理とコンピュータの情報処理の結合である。これこそ、「マン・マシン」が共同で創出した知恵と言える。

「定性から定量までを結合する手法」をいかに運用するかは、人が経験に基づき適切な枠組みを模索した後に数学でこの枠組みを構成するという、一連の流れを効果的に結びつけることにある。また、人も一人に限定せず、専門家の集団とすることこそ、「定性と定量の結びついた方法」の長所である。

このため、メタ合成法の実際は、専門家体系、データ・情報体系、コンピュータ体系の三者による有機的結合であり、それ自体がオープンで複雑なシステムである。「メタ合成法」と「ワークショップホール体系」はまた、イメーজ的思考と論理的思考を結び付けるため、「創造的思考」の良い事例と言える。

この方法論は、「還元論」と「全体論」を結びつけたものである。すなわち、還元論を超越し、全体論をも発展させた、「システム学」の新たな方法論と言える。

4.3 時代的必要性

経済のグローバル化と急速な発展を背景に、各国・各地域社会の変化は、システム性、全体性、複雑性、突発性、可変性、ランダム性等の重要な特徴を呈するようになった。社会問題の処理も各要素の影響をさらに受けるようになったため、全体性・複雑性思考を運用し、複雑な各要素を全面的に考慮し、専門家集団の力を借り、先進的な情報技術手段を運用し、人の脳にコンピュータを加えた方法で問題を解決する必要が生じてきた。

前衛的な科学者として、銭学森は早くも1970年代に次のことをはっきりと提起している。すなわち、「われわれと提唱するシステム論とは、全体論でも還元論でもなく、全体論と還元論の弁証法的統一である」。このシステム論の思想はメタ合成思想を形成した。1980年代末に銭学森は、今度は「定性から定量までのメタ合成方法」を提起した。その実際は、専門家体系、情報・知識体系及びコンピュータ体系を有機的に結びつけて高度でスマート化した「マン・マシン系」融合体系を構成し、多くの面からの定性的認識と必要とされる定量的認識を充分かつ有機的に結びつけるものである。これこそ、「人を主体とした、マン・マシン系による、定性から定量までのメタ合成方法論」である。

5. 社会的知能工学の実践

5.1 「メタ合成ワークショップホール」の構築と社会的知能のプラットフォーム

人工知能、知識工学、情報デジタル技術等のさまざまな技術的手段を「メタ合成ワークショップホール」に導入した、「人を主体としたマン・マシン系によるメタ合成」

については、現代の情報技術による構築を経て、「ホール」から情報空間への発展段階で創造的思考及び社会的知能の湧出を実現した。

5.1.1 「メタ合成ワークショップホール」

「メタ合成ワークショップホール」とは、情報ネットワーク/情報ネットワークモデル、マルチメディア技術、バーチャルリアリティ技術、データ及び知識データベース(過去及び現在の知識、研究プロセスで得られた知識、各種関連データ及び情報、専門・経験に基づく知識等ならびにデータベース管理システムを取りまとめた物)、モデルバンク(モデル、パラメータ、アルゴリズム、実例、現場モデルの構築等及びモデルバンク管理システムを取りまとめた物)、マルチチャネル「マン・マシンインタラクティブ」(手書き及び発音入力)ならびに情報家電等に基づく端末及びサーバへのアクセスを採用することである。こうすれば、広範囲に及ぶリモート・ディスカッションを持ち、多数の人が参加し、専門家グループが中心に存在するワークショップホールにより最終的に検討され意思決定される、大規模かつ分散式の、下から上へ段階的な「マン・マシン」間のダイナミックでインタラクティブな討論・意思決定体系が構築できる。

5.1.2 「ホール」から情報空間まで

「メタ合成ワークショップホール」の概念において、「ホール」とは、専門家たちがコンピュータや情報データ・情報システムを用いて仕事をする場所である。

情報及びネットワーク技術が急速に普及し、人々の仕事や生活のあらゆる場面に深く入り込むのに伴い、「Cyberspace(情報空間又はデジタル空間)」は重要な概念となった。Cyberspaceはかかわる者に時代や地域の制約を超えていつでもどこでも関心のある問題について研究し、交流・討論できるようにさせ、かつ、国内の物か遠隔地の物であるかに関係なく、インターネット上の大量のリソースをいつでもどこでも利用可能にした。情報及びネットワーク技術のこのような発展は、メタ合成ワークショップの実現に新たな可能性を提供し、既存の「ホール」の拡大と言える。このため、Cyberspaceに基づくメタ合成ワークショップ工学、すなわちCyberspace for Workshop of Metasynthetic Engineering(CWME)を構築することができた。「メタ合成ワークショップホール」からCWMEへの発展は、情報社会という条件下でのワークショップホール体系に対する具体化、拡大である。

5.1.3 メタ合成の出現する創造的思考及び社会的知能

情報ネットワークを基礎とするメタ合成ワークショップシステムには強い操作性があるとともに、進行プロセスの中で創造的思考を生じることから、この体系に資する社会システムに対して言えば、社会的知能を湧出していると言える。それは、次の面で表れる。

(1)「マン・マシン系は人を主体とする」。人は当該システムの中で一貫して指導的役割を果たし、使用

者を現実社会の人と人との意思疎通、交流に回帰させ、創造的思考を啓発する。

- (2) ネットワークへの直面。現時点で最も信頼性があり、利用が簡単な、Webに基づいた共同作業プラットフォームを提供していることから、広範な交流・意思疎通を必要とするすべての企業、団体、研究機関にふさわしい。社会の各領域からの情報を総合し、知識を知恵に昇華させる。
- (3) さまざまな形式によるリソースの共有及びコンピュータ間の相互操作は、専門家の脳に存在する知識を可視化の手法により共有するのに役立つ、創造的思考に資する。また、ソフトウェア集積の設計業務及びサーバの負担を軽減する。
- (4) プラットフォームを跨いだリアルタイムでの連携は、WindowsからMac、Unix、Linuxにまで拡大し、ワークショップホールのユビキタス性を実現した。また、情報、知識、知恵への転化の空間を大幅に拡大した。
- (5) マルチメディア・アクセス設計では、リアルタイム音声通信、手書き、漢字識別、指紋識別（身分認証に応用）、ビデオ会議等のマルチメディア手段を充分に利用する。思考の相互交流や創造的思考の活性化に役立つ。
- (6) 知識管理と結びつけ、「ワークショップ体系」は知識の生産及びサービス体系であることを体现し、社会的知能が湧出するプラットフォームへと発展させた。

CWMEの情報システムにおいて、人と情報システムの相互作用はさまざまなセンシング手段及び情報ルートによる多次元情報の方式で進められる。外界の情報に対する人間の感知は視覚、聴覚、触覚、嗅覚、味覚等による。なかでも視覚と聴覚が主な情報獲得手段である。研究の目標はこれら多数のルートによる構成される相互情報システムを確立することにある。第一には、複数ルートの物理的実現であり、聴覚、触覚、味/嗅覚、視覚に関する三次元モニタを設計する。これらがバーチャルリアリティを構成する重要な要素となる。その後、複数ルートによる相互補足情報の融合によりセンシングの確度を高める。「バーチャルリアリティ」の意義は、あたかもその場に身を置いているかのような臨場感を人に感じさせることにある。このことは人の創造的思考の向上に役立つため、科学技術または文学・芸術分野を問わず、人間の創造に重要な役割を果たす。これら創造的思考や知恵が湧出するプラットフォームこそ、個人及び集団に創造的環境を形成させ、「社会的知能」の誕生をもたらした。

長い歴史の中で、工学、技術、自然科学の各システムに由来する「コントロール」が「スマートコントロール」へと発展した。社会システムにおける「管理」は、スマート技術の応用に伴い「スマート管理」へと進展した。こ

の両者が融合して生まれた新たな概念が「スマートコントロール及び管理」である。また、メタ合成ワークショップはさまざまな意思決定を支える中で思考の昇華、社会的知能の湧出を実現し、スマートコントロール及び管理プロセスの実現において、人類の進歩を促した。

5.2 「意味スマート検索」システムの誕生

尹紅風博士は1990年代、筆者の指導下でスマート科学の研究に力を尽くし、銭学森の思考科学の思想を発展・演繹させて思考の構造モデルを構築し、イメージ的思考、論理的思考とそれに対応する保存・演算との関係を詳細に分析し、イメージ的思考の連想・記憶にかかる数学モデル及び人工ニューラルネットワークのシミュレーションを実現した。われわれはこれらの成果を「思考及びスマートシミュレーションに関する考察」と題する論文にまとめた。銭学森によれば、「ここで論じる問題は非常に重要であるため、時代を超えて規範となるような文章にまとめるべきである」。

近年、尹紅風らは思考科学の思想及び理論を新世代検索エンジンの理論的基礎に据えた。新世代検索エンジンとはスマートコンピュータであり、その目的は、人の世界的知識データベースのようなものを構築し、知識に基づく「検索」を提供することにあるため、「知識エンジン」とも言う。人と同様、すべての情報を理解し、莫大な情報を有用な知識に転換して初めて、最も良い形で情報を利用できる。このことは、情報技術から知識技術への大きな転換、すなわち、データを中心とする状態から人を中心とする方向への転換を切り開くであろう。また、彼はアルゴリズム及び工学面における多くの難題を克服し、世界初の英文インターネット「意味スマート検索」システムを開発した。このことは、社会的知能工学の新たな成果となった。彼の発明した「意味スマート検索」システムは、現在の国際的な検索分野において先駆者となったうえ、まさにこれら創造性における研究の成果であり、社会的知能分野の発展及び応用に貢献し続けている。

サイバー物理システムの発展の概要

●Profile●



林 峰 Lin Feng ●同済大学電子情報工程学院特任教授、米国・ウェイン州立大学教授。

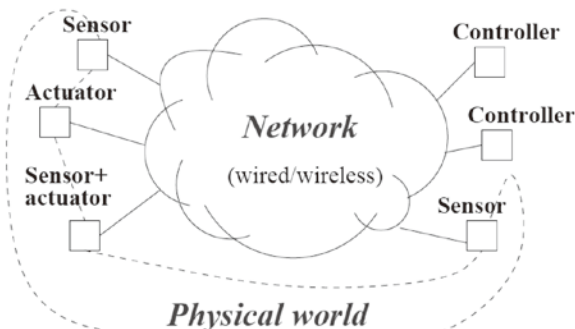
1960年3月生まれ。1988年、カナダ・トロント大学電子工学部で博士号取得。1987～88年、米国・ハーバード大学でポストドクター研究。1988年～、米国ウェイン州立大学教授。2002年～、同済大学電子情報工程学院特任教授、長江学者。米国国立科学財団のResearch Institution Award、米国電気電子学会（IEEE）のAxelby最優秀論文賞、米国イノベーションアワード、Wayne State University最優秀教育賞を受賞。IEEE Transactions on Automatic Control 編集委員会に招聘。国際会議の座長を多く担当。在米研究中に米国国立科学財団、国立衛生研究所（NIH）、航空宇宙局、国防総省及び三大自動車メーカーで科学研究プロジェクト25件を担当。国際学術誌で論文80本以上、会議議事録で論文100本以上を発表。

共著者：舒 少龍

1. サイバー物理システム誕生の背景

コンピュータの登場以来、物理システム中の組み込み計算装置及び対応するソフトウェアで統合されたシステムにより、柔軟で複雑な機能を持たせることがシステムを発展させる上での必然の趨勢となってきた。コンピュータ及び通信技術の急速な発展に伴い、コンピュータと物理的対象のシステム化に向けた統合はますますスピードアップしており、統合レベルもますます高くなってきている。ネットワーク技術の急速な発展もこの傾向を加速させている。欧州委員会の最新の研究レポートによれば、ここ数十年で工業製品中に占める電子装置の割合は急速に増加している。この研究レポートの予測では、2020年までに自動車、航空、工業オートメーション、家庭用電化製品、スマートホーム、健康・医療機器等の分野では、電子装置が製品中に占める割合は53%に達するだろう。自動車を例に見ると、1990年に自動車1台に占める電子装置の価値の割合は約16%だったところ、2003年には52%に達していることから、2010年までには56%に達することが見込まれる。

実用分野に占めるさまざまな電子装置の割合が急速に増加するにつれ、コンピュータ及び物理的対象の統合システムの構造にも相応の変化が生じている。このような構造上の変化は、以下のモデルのように一般化して図示することができる。



◎図1 サイバー物理システムの構造

上の図からわかるように、コンピュータ技術やネットワーク通信技術の発展を背景に、計算ユニットと物理的対象は、通信ネットワークと高度に連携した大型で複雑なシステムの登場により進展を見せた。従来型のコンピュータ制御システムとの明らかな違いは、これらシステムには装置の分散型配置、高度なネットワーク化に向けた統合等の特徴がある点にある。われわれは、新技術を代表するこの種の統合システムをサイバー物理システム¹（Cyber-physical Systems）と呼ぶ。サイバー物理システム（略称：CPSシステム）とは、簡潔に言えば計算ユニットと物理的対象が通信ネットワークを介して高度に統合した複雑なシステムと定義づけることができる。

かつて、コンピュータと物理的対象のシステム統合により工業オートメーションが実現し、人の手による操作等、多くの作業をコンピュータで代替できるようになった。しかし、ネットワークと通信技術の発展により、計算ユニットと物理的対象には通信ネットワークのシステム統合によりさらなる技術的利点及び潜在的利益がもたらされ、例えば、国家電網（中国の国家レベルの送電網）などの数多くの大型で複雑なシステムの運行をより安全で効率的にすることができ、これらシステムの構築及び操作にかかるコストを抑え、異なる分岐システムのネットワークを介した結合及び統合や、より複雑なシステムの構築、新機能の誕生を可能にし、さらに柔軟で強大な能力を与えることができるようになった。これに鑑み、2007年8月、米国の大統領科学技術諮問委員会（PCAST）はネットワーク情報技術に関するレポートの中で、ネットワーク情報技術を優先的に研究し、発展させるべきものとして改めて位置づけ、なかでもネットワーク情報技術研究における最重要事項はサイバー物理システムの理論研究及び技術開発とすることを表明した。

2. サイバー物理システム技術の応用

現時点では、サイバー物理システムには解決を要する多くの理論的・技術的難題が存在するが、すでに国家電網やスマート交通、環境モニタリング等の多くの分野で

応用され、プラスの経済価値を生み出しており、技術的利点を体現している。

2008年、米国国立科学財団が開催したサイバー物理システムに関するワークショップにおいて、サイバー物理システムの3つの分野における幅広い応用の可能性が特に提示された。3つの分野とはすなわち、1. 分散型エネルギーシステム、2. 新世代交通システム、3. 保健医療システムである。この他の一部の文献や会議においても、上記分野におけるサイバー物理システムの応用について提起されている。サイバー物理システム指導グループは実行レポートの中で、サイバー物理システムの応用分野及び予想される潜在的利益について、比較的全面的な形で次のように総括している。

応用分野	潜在的チャンス
交通運輸	1、宇宙探査機の飛行速度、飛行距離の向上。エネルギー消費の削減。2、飛行制御システムの設計、より効果的な空中航路資源の利用。3、自動車の機能強化、安全性向上。エネルギー消費の削減。
国防	1、より機能の高い防御システム。2、自治車両の編隊のネットワーク化。
エネルギー及び工業オートメーション	1、新たな再生可能エネルギーの開発。2、家庭、オフィス、オフィスビル、車両等の運行効率、操作性の向上。
健康及びバイオ医療	1、家庭への保健サービス。2、より機能の高いバイオ医療設備。3、新世代人工臓器。4、より高いオートメーション化レベル及び拡張機能を持つネットワーク化バイオ医療システム。
農業	1、省エネ技術の開発。2、設備のオートメーション化レベルの向上。3、バイオエンジニアリングにおける閉ループ加工。4、資源及び環境利用の最適化。5、食品の安全性向上。
国家インフラ	1、高速道路の通行量拡大、運行の安全性向上。2、国家電網の信頼性、効率の向上。

◎表1 サイバー物理システムの応用分野

つまり、サイバー物理システム技術は21世紀の工業技術の基礎として多くの分野で応用することができ、これら分野における製品開発、技術的改善に多くのチャンスをもたらす。

3. サイバー物理システムの研究の現状

コンピュータの登場により、人々は物理システムの研究過程にコンピュータを統合するようになった。最初の研究は、コンピュータを制御装置として使用し、物理的対象による制御の柔軟性を向上し、物理的対象の性能を改善するものであった。なかでも、制御科学分野の研究はコンピュータ制御システムに集中し、コンピュータ科学では一方、計算速度がより速く、保存容量がより大きい計算装置の開発に力を入れた。コンピュータ科学では計算装置の設計及び開発が研究され、制御科学ではさまざまな物理的動態システムのコンピュータ制御について

研究されたが、いずれにしても前提はシステムをあるモデルに抽象化してから分析することにある。しかし、これら両分野の研究対象及び方法の不一致により、研究結果は互換性のないものとなった。例えば、コンピュータ科学において計算を研究する際は往々にして時間という要素を無視するが、これにより計算ユニットでは、物理システムとの統合過程において、リアルタイム性の欠如により解決が難しい問題が数多く発生する。このため、コンピュータ科学は組み込み式システムの研究を重視し、計算ユニットがいかに物理システムのリアルタイム要求を満たすかを重視するようになった。また、ネットワーク応用の普及により、制御科学においてもネットワークで伝達されるデータ情報に存在するさまざまな通信上の特徴、例えばパケットロスが存在するさまざまなネットワーク遅延等について、日増しに意識するようになった。複雑な物理システムにより制御性能の要求が満たされることを望むなら、制御システムの性能に影響するこのような要素を放置しておくことはできない。このため、今世紀に入ってから、ネットワーク制御システムの研究が著しく発展している。

上記の研究はコンピュータ科学、制御科学、通信科学間の融合にある程度貢献したが、さまざまな計算装置及びそのネットワークのさらなる発展に伴い、多くのシステムが計算ユニット及び物理的対象の分散型配置、ならびにネットワークを通じた通信及び制御等のサイバー物理システムの特徴を持つようになった。上記の研究成果を採用してこれらシステムを分析すると、設計段階には超えられない困難が存在する。通信ネットワークの帯域幅、遅延、パケットロス率の大きさ、計算ユニットの能力、計算ユニットの調整方式、物理システムの枠組み及びその動態的特性等のさまざまな要素は、いずれもシステムの動態性能に影響を及ぼす可能性がある上、システム性能に与えるこれら要素による影響は相互関係的なものである。サイバー物理システムの研究はすでに多くの国から重視されている上、これら国々の政府から大々的な支援と資金援助を得ている。

米国国立科学財団は、サイバー物理システムの研究において世界でも牽引的な役割を果たしている。同財団は早くも2005年に、その年のHCMDSS (High Confidence Medical Device Software and Systems) ワークショップに資金援助を行い、会議では信頼性の高い医療設備はサイバー物理システムの典型的な特徴を持つことが指摘された。2006年、米国国立科学財団は第1回サイバー物理システムフォーラムを主宰し、サイバー物理システムの研究目的は、今後登場するコンピュータ、通信ネットワーク、物理ユニットの高度に統合されたシステムの開発のために新たな理論的基礎と実現可能な技術を模索することにあると指摘した。これにより、情報、計算、通信、制御を融合し、一体化した新世代集積システムの信頼性・

効率を高め、高い性能を持たせる。サイバー物理システムの研究は当初より、米国政府に重視された。2007年8月、米国の大統領科学技術諮問委員会（PCAST）はネットワーク情報技術に関するレポートの中で、ネットワーク情報技術の研究と発展を改めて重視する必要があることを指摘し、サイバー物理システムの理論研究及び設計技術の開発は、米国がIT業界で世界の先進的地位を維持する上で重要な措置であることを初めて公式に唱えた。政府のこの支援により、サイバー物理システムの研究は大いに刺激された。この後、サイバー物理システム指導グループでは専門家を集め、サイバー物理システムの当時の研究状況を取りまとめ、研究指導の方向性を提示した。2008年、米国国立科学財団はサイバー物理システムフォーラムを開催し、サイバー物理システムの研究に研究資金を提供して重点的な資金援助を行い、関係分野の研究者によるサイバー物理システムの理論研究及び技術開発への貢献を奨励した。

ヨーロッパでは、ARTEMIS（Advanced Research and Technology for Embedded Intelligence and Systems）プロジェクトが始動した。このプロジェクトにより、2007年から2013年までの期間に70億ユーロを投じてスマート電子システム分野における研究を行い、EUは2016年までにスマート電子システムの研究及び技術開発の分野で世界の牽引役となることが期待されている。サイバー物理システムがスマート電子システムの重要な発展の方向性として、ARTEMISプロジェクトによる支援と重視を受けたのは自然の流れであった。また、EUは欧州スマート・システムインテグレーション（Smart System Integration）技術プラットフォームを設立した。目的は、科学技術による研究開発と経済発展の推進により、ヨーロッパの産業が世界市場で優位性を得ることにある。欧州スマート・システムインテグレーション・プラットフォーム年次総会は、スマート・システムインテグレーションの発展のため、学术界及び工業界に交流のプラットフォームを提供している。2010年の年次総会は3月にイタリアで行われ、次の点が唱えられた。すなわち、スマート・システムインテグレーションは、多くのエレメントが統合されることにより得られるシステムである。システムでは、外界の物理的対象から情報を入手し、この物理的対象を電子的に操作し、物理的対象との通信により情報とデータを入手し、物理的対象にフィードバック情報を加えることができる。この種のシステムは、サイバー物理システムの特徴を持つことが明らかに見て取れる。

中国においても比較的早期にサイバー物理システムの研究が注目され、2007年に発表された制御科学とエンジニアリング分野の発展に関する研究レポートの中で、システム運行のネットワーク化、機能の多様化、システムの複雑化は国内外のオートメーション化研究と発展における主な流れであることが触れられ、サイバー物理シス

テムの制御が制御分野の注目をますます集めている事が特に指摘された。2008年7月には北京で第1回国際サイバー物理システムフォーラムが開催され、同時開催された国際分散型計算システム会議においてもサイバー物理システムの研究の現状が高い関心を集めた。2009年、ネットワーク化集積制御技術フォーラムにおいても、特別テーマとしてネットワーク化集積制御技術の研究の進展及びその工業実用について話し合われた。現在、われわれの研究グループは米国のウェイン州立大学の教授と共同でスマート送電網CPSシステムの研究を行っている。

4. サイバー物理システムの直面する課題

サイバー物理システムはコンピュータ科学、通信科学、制御科学等のさまざまな学問分野に及び、研究開発の成功にはコンピュータ科学、通信科学、制御科学等のさまざまな分野間の協調が必要である。サイバー物理システムの設計には、統一的な設計の枠組みのもとで測定上のノイズ、実行精度、環境による攪乱、計算プロセスにおけるエラー、通信プロセスにおける遅延・パケットロス等の多くの要素について考慮する必要がある。しかし、コンピュータシステム、通信ネットワークシステム、物理動態システムの処理に関する統一的な理論の枠組みは現時点ではまだ存在しない。つまり、コンピュータ技師と科学者たちは、物理システム指標を、例えば電力消費などのコンピュータ設計中の指標へといかに安定的に転化させるべきかを知らない。制御理論と信号処理理論は、エラーを起こさない計算装置へとコンピュータを抽象化するが、このようなシンプルな抽象化では計算における多くの重要な面、すなわちバッファやエネルギー管理による大きな時間変動や、計算の複雑性によるソフトウェアの高いエラー率等を見逃している。制御理論及び信号処理理論は通信の抽象に対してもシンプル過ぎる面があり、制御理論では情報のさまざまな段階における伝達におけるパケットロス・遅延はゼロと仮定するが、これは無線・低電力消費ネットワークでは実現できない。

サイバー物理システムの発展における第一の障壁は指導的な理論の欠如であるが、サイバー物理システム理論の構築は関連の学問分野において、すでに重要かつ切迫した研究テーマとなっている。また、サイバー物理システム設計の方法及び手段の開発等の問題についても解決に努める必要がある。サイバー物理システムの研究の直面する大きな課題は、具体的には次のいくつかの分野にまとめられる。

システムの合成：コンピュータシステム、ネットワークシステムと物理システムは本質的には異なるため、サイバー物理システムの開発ではヘテロジニアスなサブシステムの合成問題や、サイバー物理システム中の物理及び計算特性のシステム設計に対する影響を改めて考える必要がある。ヘテロジニアスなシステムを新たな視点か

ら研究・分析して初めて、大規模なネットワーク化に向けた統合システムを創り出すことができる。このようなヘテロジニアスなシステムの合成には理論上、研究を要する問題が数多く存在する。第一の問題は、研究過程におけるモデルの抽出である。抽出する計算モデルには物理的概念、つまり時間、エネルギーが含まれる必要がある。一方、物理動態に関するモデルの抽出では、例えばネットワーク遅延や有限バイト数、丸め誤差等のプラットフォーム実現上の不確実性が含まれる必要がある。これら抽出要素の変更により、物理特性を持つ計算と、不確実性を処理・実現できる物理の統合は問題となくなる。第二に、物理的プロセス及び計算アルゴリズムのヘテロジニアスなモデルの描写及びそのモデル言語の合成に新たな設計方法を発展させる必要がある。新たな数学的枠組みを発展させることで、方法論が数学的に正確に描写できるだけでなく、システム開発者と対応する設計手段の開発者にとっても明確で、理解しやすく、実用的である必要がある。また、新たなサイバー物理システムのオープンなフレームワークを開発する必要がある。これらフレームワークにより、われわれは国家レベルまたは世界レベルのサイバー物理システムを構築できるようになる。このフレームワークは、動的により良く操作条件の変更に適応できるようにし、信頼性のないサブシステムによる、信頼できるサイバー物理システム構築の理論及び方法である必要がある。

分散型センシング、計算、制御：在来型の制御システムから見れば、センシング、計算、制御における戦略決定及び実行はジャストインタイムで完了するが、ネットワーク化したサイバー物理システムにおいては、例えば、戦略の実行制御における遅延が大きすぎてシステムに重大な問題を生じさせる等、反応にかかる時間がシステムの制御性能に影響を与える可能性がある。そのうえ、サイバー物理システムは本質的に分散型という特徴を持つため、かつての単一閉ループ・フィードバック制御理論ではこのようなシステムの分散型制御、センシング、計算等の問題は解決できない。では、分散型環境からはどのようにして充分な情報を収集すれば良いのだろうか。また、分散型制御の対象には、どのようにして効果的な制御を加えれば良いのか。分散型計算ユニットをいかにして合理的に利用し、これら分散型計算ユニットにいかに合理的にミッションを分配すればよいのか。分散型センシング、分散型計算・制御のプロセスでは、情報の伝達はネットワーク通信を通じて実現するが、これらネットワーク資源をより良く活用するには、必要とされる通信制御アルゴリズムをいかに講じれば通信効率を最高にできるか等のいずれも、解決が待たれる重要な問題である。例えば、ある制御ミッションを成功させるには、どのような情報を、いつ収集する必要があるか。どの計算ユニットが計算のミッションを担当すべきか。情報伝達のルー

トはどのように選択すべきか。どのアクチュエーターで機能の実行を全うするか等の問題がある。分散型環境においては、われわれはシステムのロバスト性、自己適応性、自己組織性等の重要な特性を考慮する必要がある。例えば、あるセンサのユニット、計算ユニット、通信回路の故障によりシステムの性能に深刻な影響をもたらさないか等も含まれる。分散型環境においては、局所的なシステムの変化が全システムの変化に与える影響を最小に抑え、全体に対する局部による資源需要及びシステム局部がシステム全体の運行性能に与える影響を最小にするよう確保する必要がある。

ネットワーク通信の予測可能性、信頼性、安全性：通信ネットワークには有限の通信帯域幅、伝達プロセスにおけるデータのペケットロス及び時間変動・遅延が存在するため、これら欠点により、既存の制御戦略ではサイバー物理システムに応用しがたい。最高のシステム性能を得るためにサイバー物理システムに効果的に制御を加えるためには、システム制御戦略と無線ネットワーク設計を合わせて研究する必要がある、無線通信ネットワークを設計する際は情報に対する分散型センシング、計算、制御の要求を満たしているかどうかを考慮する必要がある。リアルタイム性、閉ループセンシング、制御を支援するには、サイバー物理システム中の通信ネットワーク設計を既存の無線センサネットワーク（一般的には開ループセンサを採用）とは明らかに差別化し、情報通信品質の制御可能性と予測可能性を高めることが非常に重要である。この目的を達成するには、解決しなければならない問題が数多く存在する。例えば、無線通信ネットワークではサイバー物理システムの制御戦略の設計を支援する必要があるが、動的かつ予測不能な制御戦略では情報通信への要求をリアルタイムで変更するため、情報通信構造及び情報管理のリアルタイム調整が必要であり、制御戦略に応じた情報通信品質が必要とされる。サイバー物理システムの不確定な環境特性は予測可能な情報通信のQoS設計にも大きな課題となっている。サイバー物理システム中の多くのヘテロジニアスなユニットの存在もネットワーク通信における情報の安全設計及び制御により多くの困難をもたらす。例えば、計算ユニットと物理的対象のインタラクションにより通信に関する情報が暴露される可能性があるため、物理的対象を通じたサイバー物理システムの通信ネットワークへの攻撃が可能となる。

設計・開発の手段：サイバー物理システムの新たな応用分野が登場する際は、既存の手段という基盤を直ちに利用し、それらシステムを設計する上での助けとする必要がある。しかし、コンピュータに既存の設計補助手段は、サイバー物理システム技術を採用した大規模でヘテロジニアスなシステムの構築に向かないため、サイバー物理システムの設計開発手段を研究する必要がある。サイバー物理システムの設計開発手段の研究開発は、多くの課題

に直面している。サイバー物理システムはヘテロジニアスなシステムの統合であり、多くの異なる属性の物理サブシステム、計算サブシステム、通信ネットワークサブシステムにより構成される。このようなヘテロジニアス性により設計の複雑さは増しており、オートメーション化設計手段の開発に困難をもたらしている。サイバー物理システムには多くのヘテロジニアス性サブシステムが存在するため、設計手段にはこれらシステム個々の特性を考え合わせる必要がある。このため、設計手段の専門化レベルや効率の低下、設計コストの増大を招いており、この事も設計手段の市場化開発に困難をもたらしている。

5. 結論

サイバー物理システムの研究は、21世紀の工業に革命的な発展をもたらすが、コンピュータ科学、制御科学、通信科学の研究理論及び方法上のヘテロジニアス性のため、サイバー物理システムの各構成要素間のシームレスな統合が解決を要する難題となっており、われわれに課題を突きつけていることが分かる。一方、サイバー物理システムには幅広い応用の可能性があり、生活や工業に多くの利点をもたらすことから、多くの国や企業、研究機関がサイバー物理システムの研究に次々に加わっている。社会経済の発展の上での必要性や、国家間の科学技術競争によって、サイバー物理システムは現在及び今後数年にわたり、研究の関心事となるであろう。

注釈

- 1 “Cyber” と言う言葉は、台湾で「計算機」(コンピュータ)と訳されたのが始まりであり、その後、コンピュータのネットワークをも代表するようになったが、現在ではより幅広い意味で使用されることから、「賽博」(サイバー)と音訳されるようになった。なぜなら、Cyberは物理的対象と統合されたコンピュータ及びネットワークリソースを指し、これらリソースの分散型配置及び通信については、意訳では意味を表現しきれないためである。Cyber-physical Systemsについては、「機物系統」(機械・物質システム)または「信息物理系統」(情報物理システム)という訳語も存在し、いずれもコンピュータまたは通信ネットワークの一面を体現するものの、より豊かな概念の理解には及ばない。そこで、本稿では「賽博」(サイバー)という言葉を使い、「サイバー物理システム」と訳した。

外科手術用ロボットの実用化及び研究の現状

•Profile•



張 詩雷 Zhang Shilei ●上海交通大学医学院附属第九人民医院口腔顎顔面外科副教授、副主任醫師。

1999年、上海交通大学医学院卒。修士号取得後、付属第九人民医院口腔顎顔面外科に勤務して、現在まで。2004年、上海交通大学医学院口腔医学領域で博士号を取得。2006年、ドイツ・ルートヴィヒ・マクスミリアン大学ミュンヘンでFellow研究を終了。2005年、上海交通大学副教授、副主任醫師。主な研究分野は、頭蓋顎顔面奇形の総合整復治療、デジタル化・3Dナビゲーション・ロボット支援による外科手術。現在、国家自然科学基金、教育部基金、市レベルの科学研究事業多数を主宰。主宰する研究グループが頭蓋顎顔面外科手術用ナビゲーションハードウェア・ソフトウェアシステムの開発に成功。このシステムは独自の知的財産権を有し、国家食品薬品监督管理局の検査を通過。中国で初めて光学ナビゲーション支援による頭蓋顎顔面外科手術を100例以上実施。現在、自由度を持つ外科手術支援小型スマート化ロボットのサンプル機の研究開発を多数主宰。国際的な学術会議による招待多数、コンピュータ支援による頭蓋顎顔面外科手術の成果を報告・指導、注目すべき成果を達成。中国語・英語による論文20本以上。特許5件を申請・獲得。

1959年、「ロボットの父」と称されるJoe Engelbergerが世界初の工業用ロボットを開発した。その後、ロボットは半世紀にわたる発展を遂げ、現在では工業、農業、宇宙、軍事、家庭、サービス等、さまざまな分野で広く実用化され、社会的・経済的価値は大きい。外科手術における精度不足、大きすぎる切開口や多すぎる被ばく、オペの疲労等の問題を解決するために、研究者たちはロボット技術を外科手術分野に取り入れる方法を検討し始めた。ロボットやセンサ、制御装置等の技術そのものが持つ利点に力を借り、外科医療に全く新しい使用方法及びシステムを提供することで、これらの問題を解決し、手術効果の向上を目指す。

1. 外科手術用ロボットのシステム構造の概説

大多数の外科手術用ロボットのシステムの構造は、モデリング、プランニング、実行の3原則に基づく。モデリング段階で画像収集・処理・分析を行い、プランニング段階で手術計画を決定し、実行段階では手動またはオートメーション化した機械及び設備の支援を受け、医師は手術計画を実行に移す。外科手術用ロボットのシステムはスマート機材（ロボット）と自動制御技術を統合し、現像設備及びセンサ等の機材を利用して、直接または間接的に操作することで手術による傷口を小さくできる。

1.1 プランニング・手術用ナビゲーション支援サブシステム

画像技術、コンピュータ技術等の発展に伴い、2D画像を利用して3D画像を再構築することが可能になったことから、再構築された3D画像と手術機材のトラッキング技術を結合させ、コンピュータによるプランニング・手術用ナビゲーション支援システムが構築された。このシステムは通常、術前プランニング・シミュレーション及び術中ナビゲーションに用いられる。オペに直接関与せず、安全性が非常に高いため、医師の間で受け入れられ、広く臨床に用いられている。コンピュータによるプランニング・手術用ナビゲーション支援システムは、現

在主に次の2種類がある。1つ目はロボットアームによる位置表示システムであり、典型例にカナダISG社が発表したViewing Wandがあり、CT画像とロボットアームにより手術に干渉する。このシステムでは、解剖学的特徴に基づく画像空間及び手術空間の投影方法を採用し、器械のトラッキング上で専用の「デジタル式」多関節ロボットアームを開発した。通常的应用では、このシステムの典型的な精度は2～3mmであり、ステレオタクティックバイオプシーでは精度は1mmに達した。先進国では、Viewing Wandはすでに幅広く臨床的に使用され、組織生検、手術用ナビゲーション、腫瘍の定位・切除等に重要な意味を持つ。2つ目は光学位置表示装置に基づくシステムである。現在最もよく用いられているのが赤外線によるアイトラッキングシステムであり、典型例としてStryker社のStryker-Leibingerナビゲーションシステムがある。このシステムでは、マーカーに基づく画像空間及び手術空間の投影方法を採用している。マーカーは術前に患者の体の上に置かれ、器械によるトラッキングは赤外線光学トラッキングメカニズムを採用し、トラッカーは骨または手術用器械に置かれる。もう一つの重要なコンポーネントは光学センサを持つカメラであり、トラッカーからの赤外線信号を受信した後に三角測量を経て、トラッカーの相対的な空間位置を得ることができる。

また、中国ではCT画像に基づく手術用3Dシミュレーションプラットフォームの構築について報告されており、2005年に上海交通大学と上海第二医科大学が共同で開発した3Dシミュレーションプラットフォームを用いて歯顎顔面の奇形の診断、術前予測及び模擬を行うことで、顎矯正外科手術の精度を高めることができる。2003年、第四軍医科大学の龔振宇らはヘリカルCTデータに基づき頭蓋顔面の3Dモデルを構築し、これを基礎に整形手術へのコンピュータ支援を設計し、頭蓋顎顔面の奇形・損傷・腫瘍の診断と治療に重要な根拠を提供した。

1.2 オペ支援サブシステム

現在、ナビゲーションシステムは臨床で広く使用され

ており、精度は0.3mmクラスに達しうるが、手術中の人為的及び器具操作による誤差により、実際のオペでナビゲーション効果を完全に実現するのは難しい。この種のシステムは主にこのような問題をターゲットに、操作精度が高いというロボットの特徴を利用して手術水準を向上することを目的にする。オペ支援サブシステムの代表格は関節全置換手術のロボット支援システムであり、主にプランニング支援システム、オペ支援ロボット、安全検査システムの3つの部分で構成される。オペ支援ロボットのオートメーション化レベルに基づき、外科用ロボットによるオペ支援サブシステムは次の3種類に大きく分類できる。すなわち、①自主システム：ロボットがあらかじめ設定されたプログラムによりオペを行い、またはプログラミングに基づき独立してオペを行うもの。典型例はROBODOCロボットシステムであり、入力データ及びプログラムに基づき、RoboDocオートメーション化によりプログラム実行指令が行われる。②自己操作（遠隔マニピュレータ）システム：マンマシン・インタフェースの設計により、オペシステムによる手術医へのオペ指令をロボットが支援する。典型的な代表はZEUSロボットシステムであり、マスター・スレーブアームの設計により、医師はマスターアームを操作し、かつ、制御台上のモニターで内視鏡撮影された患者の体内を観察することができる。スレーブアームはロボットアーム2つと内視鏡を操作するロボットアームにより構成される。遠隔マニピュレータシステムは手術医のオペ情報をデータ化したのちに、ネットワーク伝送を介し、ロボットの手技に対し遠隔コントロールを行う。③パッシブ型システム：オートメーション化設計されておらず、手術医の手部動作のみを伝送する。現在、一般の手術にのみ応用されている。典型例はスイスで発表されたMedvisionシステムであり、医師がこのシステムを利用して膝関節全置換手術を行う際は、術中CT等による画像的ナビゲーションを必要とせず、手術医は直視環境下でロボットアームを操作するため、柔軟性と安全性が高い。

2. 外科用ロボット技術のこれまでの発展

2.1 工業用ロボットプラットフォームに基づく外科用ロボット技術

初期の外科用ロボットシステムの大部分で、工業用ロボットプラットフォームが採用された。1985年、Kwoh YSらにより初の医療用ロボットが発表された。1989年、英国のCenter for Robotics at the Imperial Collegeは、実験室で改良した6自由度Puma型ロボットにより前立腺切除術を成功させ、従来の方法より手術時間を大幅に短縮した。CASPAR（コンピュータによる手術プランニング支援及びロボットシステム）も類似のシステムであり、Stabuli RX90工業用ロボットを採用し、腸骨または膝関節全置換手術における骨格研削及び前交叉靱帯再建術のト

ネル入口の定位が可能で、研削精度は0.10mmに達する。

中国の研究者も医療用ロボットの分野で関連研究を行っている。1995年から、北京航空航天大学と解放军海軍総医院は共同で、シミュレーションに基づくロボット支援システムを開発して神経外科分野で支援を行い、1997年にはPuma262工業用ロボットを基礎にした脳外科手術支援ロボットによる第1世代定位システムCRASを共同で開発し、臨床上の採用にも成功し、中国の医療用ロボット研究における空白を補った。現在、このシステムは第5世代まで開発されており、手術のオートメーション化レベル、精度、安全性のいずれも著しく改善されている。このシステムは2004-2005年に神経外科用ロボットシステムの臨床許可証を取得し、北京市の医療保険診療項目に入れられた。現在、このシステムは20余りの病院に導入されており、5000例以上の神経外科の定位生検術に成功し、臨床上も、社会的にも高い成果を挙げている。2002年、ハルビン工業大学はMotoman工業用ロボットに基づく骨折手術治療ロボットの試験プラットフォームの開発に成功した。この研究と実用は、中国の医療用ロボットの確立と発展を大いに促し、外科手術の治療理念と方法を発展させた。しかし、これらの研究の殆どは工業用ロボットプラットフォームに基づくもので、ロボット設計の出発点における理念と役割の違いから、臨床応用にはまだ大きな制約があった。

2.2 外科用ロボット技術

外科用ロボットは1980年代後期に登場した。1987年、米国ISS社はNeuroMateロボットシステムを発表し、ロボットアーム及び定位生検フレームにより神経外科手術中のナビゲーション定位を実現し、1999年に米国FDA認証を受けた。1988年にはUniversity of CaliforniaのDavisとMB社が共同でSCARAロボットを改良し、腸骨置換手術に利用可能なロボットを初めて開発した。1991年にはImperial College Londonで甲状腺切除に利用される初めての泌尿器科用ロボットProbotが開発され、その後、Harrisらにより改良され、甲状腺切除専用の外科用ロボットシステムが開発された。同じ年に、ISS社は世界初の骨手術ロボット、有名なROBODOCを発表した。アクティブ型のロボットシステムとして、ROBODOCは術前プランニングに使用されるコンピュータと挿入措置、掘削を行う5軸のロボットアーム、そしてロボット制御プラットフォームから構成される。Dr. Bargarは1992年7月にROBODOCを使用して米国カリフォルニア州で初の寛骨全置換手術の臨床試験を行い、腸関節置換物を設置するルートに成功した。1994年、米国カリフォルニア州のComputer Motion社は、最小侵襲手術に用いる初の医療用ロボット、内視鏡自動定位システム—イソップ(AESOP)を開発し、1997年3月にベルギー・ブリュッセルのSt Pierre医院で初の腹腔鏡による胆嚢切除術に成功した。現在、すでに商業化され、FDAの認証を受けている

外科手術ロボットシステムには、主にイソップ(AESOP)システム、ゼウス(ZEUS)システム、ダヴィンチ(DA VINCE)システムがあり、後者2つは遠隔マニピュレータ外科用ロボットシステムである。

中国では、2000年に海軍総医院で初の脳外科手術用のパッシブ型ロボットの開発に成功し、実際に患者に手術が行われた。最初にターゲティング(CTデータに基づく3D再構築による病巣ディスプレイ)を行い、次にキャリブレーション(コンピュータ上で病巣に照準を合わせ、手術プランを立て、手術空間を設定し、ロボットと模擬空間をマッチングする)を行ってから、最後に手術を行う。続く研究ではアクティブ型の脳外科用ロボットアームが次々に開発され、手術の操作性と精度の向上に効果的であった。2004年、香港中文大学において初の手術用ナビゲーション用ロボットアームのサンプルマシンが開発されて臨床で採用され、骨学手術中で最も良く行われる操作、すなわちナビゲーションのモニタリング下で穿孔してボルトをはめる操作を正確に行うことができた。このナビゲーションアームはすでに骨盤骨折の際の腸骨経皮上のボルト固定、尾てい骨のボルト固定、大腿骨頸部中空ボルト及び髄内釘遠位固定等の手術で成功を修めている。顕微鏡外科手術でさらに医師を支援するため、2006年に天津大学ではマスター・スレーブ方式による顕微鏡外科手術用ロボットシステム「妙手(MicroHand)システム」を開発した。「妙手システム」はフォースフィードバック機能を持つ商業化されたPhantom Desktopマスターアームであり、スレーブアームは顕微鏡による血管縫合外科手術のために自主開発され、設計された「妙手」スレーブアームで、顕微鏡外科手術の正確な操作を実現した。

2.3 小型モジュール化外科用ロボット技術

21世紀に入ると、最小侵襲外科の影響を受けて外科用ロボットの小型化、モジュール化、ひいては人体設置の傾向が進んだ。超小型モジュール化ロボットは、まずは手術支援に採用され、従来の内視鏡検査が改良された。1999年、Darioらは半オートメーション化された超小型ロボットを用いて通常の結腸鏡検査術の改良を行った。2001年、イスラエルのMazor社は小型で並列接続の脊柱用外科手術ロボットSpine Assistを発表し、脊柱手術中の椎弓根スクリューと椎間板ヘルニア用スクリュー設置の定位精度及び安定性を著しく向上させた。このシステムはFDA認証を受けている。2002年、ドイツ人研究者により心臓手術支援ロボット—Cargo Modelが開発され、密閉胸腔内の手術空間における手術器材、組織及び血管等の手術医の望む位置への設置を実現した。2004年にはPraxim Medivision社が膝関節全置換に用いる骨格研削小型ロボットPraxitelesを開発した。これは骨格上に直接設置することもできる。同年、東京大学は5自由度の小型チェーン式ロボットを開発し、前交叉靱帯再建術中のトンネル穿

孔に用いた。続いて、2005年にはWolf Aらが骨格上に設置可能な脊椎手術支援ロボット及び関節成形時の骨切削に用いるMBARS小型並列接続ロボットを開発した。同年、Pstronik NAらは心膜下に設置可能なロボットHeart Landerを開発した。最新の研究では、2008年にピッツバーグ大学でHeartLanderロボットにより拍動中の心臓に対する心外膜注射が実現し、心不全患者に対する最小侵襲細胞移植治療に重要な参考となった。

中国国内では2002年から、北京航天航空大学がハルビン工業大学、北京積水潭医院等の機関と共同で、国家863計画の資金援助を受けて最小侵襲骨学手術システムの研究を行った。従来方法に存在した手術精度、X線による損傷等の問題をターゲットに、小型モジュール化骨学ロボットシステムの開発に成功し、モジュール化の角度から臨床上の必要に応じ、C型アーム、画像収集、ロボット、ナビゲーションを巧みに結びつけ、並列接続構造を設計した。構造は大変緊密で、ロボットの運動も患者にいかなる傷害も与えず、臨床上的使用に非常に適している。このシステムで現在までに臨床手術が61例行われており、成功率は100%である。2003年、上海交通大学は腸腔検査に用いられる超小型内視鏡ロボットを開発し、後に改良を行い、2005年に開発したミミズ式爬行ロボットと2008年に開発した無線モジュールにより、ロボットの腔内検査及び画像伝送がよりリアルタイムで、真実に近いデータとなった。膝関節全置換手術における器具の種類が多く操作が煩雑で、大腿骨の力学性能を確定し難い等の問題を解決するために、2004年に上海交通大学と上海第二医科大学は共同で、膝関節全置換手術に適用可能な新型器具を開発した。これには、7自由度の調整可能なサポートアーム及び5自由度のサーボモータ駆動ロボットアームがあり、ボーンクランプを介して患者の患肢とロボットアームやサポートアーム等の手術器械とをしっかりと連結する。このシステムの巧みで堅牢な機械構造により、かつての支援ロボットに比べ、より柔軟で便利に手術の操作が行えるようになった。腹腔鏡の最小侵襲手術ロボットの分野では、天津大学とパリ第六大学が共同で最小侵襲手術ロボットMC2Eシステムを開発した。このシステムには4自由度であり、人体の上方に直接設置可能で、かつ、フォースフィードバック装置があり、すでに動物(ブタ)の心臓で実験が行われている。2007年から2009年にかけて、清華大学、華中科技大学、東南大学等は最小侵襲血管足場材のデジタル化設計及び製造を行い、心血管インターベンション用超小型器材、軟組織穿刺等の分野でも関連の研究を実施している。

2.4 バーチャル外科手術におけるロボット技術

バーチャル外科手術は、ロボット遠隔マニピュレータ技術を基礎に発展したものであり、バーチャル外科手術におけるロボット技術とは、ロボット支援外科手術システムとバーチャルリアリティ技術とが結びついた外科支

援技術である。手術は、手術医が別のところで遠隔マニピュレータシステムによって手術現場のロボットを制御して行う。1993年、イタリア・ミラノのロボット実験室で世界初の遠隔手術試験が行われた。イタリア人医師が米国JPL実験室でIBM SCARA 7565ロボット遠隔手術システムにより、イタリア・ミラノにあるブタの組織・器官に対して遠隔組織切片検査手術を行った。1996年には世界初の遠隔手術ワークステーションが誕生し、医師はマイクロ波通信によって、遠隔地から移動病院での手術を行えるようになった。現在、最も典型的なバーチャル外科手術ロボットシステムとはZEUSシステム及びDA VINCIシステムである。1997年にIntuitive Surgical社の統合手術システム(現在の直視手術)はSRI Green遠隔手術システムとしての認可を受けた。このシステムは幅広い再設計によりダヴィンチ手術システムと称されるようになり、2000年にはFDAの認証を獲得している。1998年、米国ボルチモア市の外科医師は、「腎臓経皮穿刺(PAKY)」システムを用い、イタリアの患者に対する腎集合システム経皮穿刺手術に成功した。2007年、米国で遠隔最小侵襲外科手術ロボットシステムの研究が始まり、DA VINCIシステムを採用して米国のWalter Reed Army Medical CenterとJohns Hopkins Hospitalの間で遠隔手術研究が行われた。遠隔手術技術の発展に伴い、数千キロ離れた土地でも手術を行うことができ、また、インターネットや衛星通信技術の発展により、一部の危険な地域、あるいは通常の手術を行うのが難しいか、全く不可能な地域でも遠隔手術を行うことが徐々に可能になってきている。

今世紀初め、中国でもロボット遠隔外科技術が研究された。2001年、解放軍海軍総医院と北京航空航天大学の協力により、ローカルエリアネットワーク下での遠隔外科手術の予備研究が行われた。2003年には「黎元BH-600」アクティブ型ロボットを利用し、北京・瀋陽間で中国初の脳外科定位生検遠隔マニピュレータ手術が行われ、ビジュアル標定、ADSLマルチ映像ネットワークにおける同時伝送、プレビュー、予測に基づく拡張現実等の技術でブレイクスルー的進展を得た。2005年5月～2006年3月、北京積水潭医院は独自に開発した、ASDL/ISDNネットワーク・プラットフォームに基づくマスター・スレーブ方式の遠隔外科用支援ロボットによる脛骨髄内のインターロッキングネイル固定手術システムによって遠隔手術操作を行い、厳格な訓練と完成されたモデル骨、死体模擬実験に基づき、脛・腓骨骨折患者7例に対し、北京・石家荘、北京・延安間の遠隔脛骨骨折閉合・整復、インターロッキングネイル固定手術を行った。その結果、独自に開発した遠隔骨学ロボット手術システムは安全かつ効果的で、全工程を間断なく行うリアルタイム手術映像伝送による遠隔操作とは異なり、ネットワーク遅延やブロードバンドによる制約が回避できることがわかり、創傷骨学における遠隔外科用ロボットの応用に向け、実用的かつ

安全な技術プラットフォームを構築することができた。遠隔手術における重要技術には外科手術仮想訓練システム技術、力センシング及びフィードバック技術、遠隔マニピュレータ技術、ネットワーク応用技術があり、バーチャルリアリティ技術と緊密に結びつける必要がある。現在、盛り上がりを見せる先端医療技術として、遠隔手術システムの登場は現代の医療エンジニアリングの発展に大きく影響するであろう。また、学際的な総合技術でもあるため、この分野の発展は関連分野に対しても牽引役となるであろう。

3. まとめ及び展望

外科手術の世界的な発展傾向は最小侵襲化の方向にあるが、外科における最小侵襲化とは、いくつかの具体的な最小侵襲手術技術だけを指すのではなく、臨床技術全体を貫く理念であり、将来の外科治療手術における指導的理念である。外科用ロボットとコンピュータ支援手術の開発は、外科手術モデルに革新的な変化をもたらした。これは現代医学、情報技術及びスマート化エンジニアリング等、多くの分野の結晶である。現在、海外におけるコンピュータ支援技術及びロボット技術の融合は、臨床で多くの領域で応用されている上、優良な効果を示している。しかし、中国では臨床応用の成功例はまだ少なく、関連研究も始まったばかりである。このため、科学技術の発展に伴い、次の領域でのさらなる研究が待たれる。

- (1) バーチャルリアリティ技術の応用：医師がさらなる臨場感を感じることができ、かつ、外科医師の技術訓練に応用され得る技術。
- (2) 高精度な定位システムの研究：現在、ロボットアーム定位システム、または光学ナビゲーションに基づく定位システムのいずれも精度が足りず、装置の体積・重量とも過度に大きく、高価過ぎる等の問題があるため、高精度な定位システムの開発は手術レベルの向上、外科用ロボットの改良に大きな意味を持つ。
- (3) 外科用遠隔操作ロボットの開発：中国は国土が広大で人口が多く、都市から離れた不便な地域に住む多くの患者は適時に治療を受けるのが難しいため、遠隔マニピュレータ外科用ロボットの開発と実用化は現実の医療問題の解決に材料を提供する。

このほか、新型の外科用ロボットシステムや新型の手術器具、スマート・センサ等の関連技術の開発も、依然として将来の外科用ロボット研究の関心事と重要な点である。科学技術の絶えざる発展に伴い、外科用ロボットは外科手術のモデルに革命をもたらすものと信じる。

レーザ再製ロボットのマシンビジョン技術の現状

•Profile•



楊 洗陳 Yang Xichen ●天津工業大学教授、レーザ研究所長。

1941年11月生まれ。南開大学物理系、理学修士。国務院の政府特別補助金専門家。国家973計画、国家863計画専門家。南開大学と天津大学の教授を兼任。米国レーザ学会（LIA）会員、国際光工学会（SPIE）会員、中国光学会（COS）レーザ加工委員会常務委員、天津レーザ学会常務副理事長。レーザ製造、ロボット、マシンビジョン等の研究に長期にわたり従事。国・省レベルの多くの科学研究を主宰。国家発明賞、科学技術進歩賞、自然科学賞等を受賞。

共著者：張海明、王非、劉正、張耀武

1. はじめに

21世紀に入り、レーザ加工ロボット技術は急速な発展を遂げ、世界ではレーザ切断ロボット及びレーザ溶接ロボットのシリーズ製品が誕生しており、自動車、航空、宇宙、軍事等の産業で実用に成功している。近年では環境にやさしい生産や低炭素生活、循環型経済の発展に伴い、また、航空・宇宙、冶金、自動車等業界の再製市場からの幅広い需要により、海外ではすでにレーザクラディングロボットが発表されている。中国でも天津工業大学でレーザ再製ロボットが研究されている。

レーザ再製プロセスにおいては、音場、光場、電場、磁場、熱場、力場等の非常に複雑な物理的場が存在し、レーザ再製部品の外部形状及び内的品質に非常に大きく影響し、作業条件も絶えず変化するため、これら変化も製造工程の安全性に影響を及ぼす。例えば、高温のレーザ溶融池内には熱伝導、物質移動、対流等の物理的伝達プロセスが存在し、高温の溶融池外にもレーザプラズマが存在するため、レーザ溶融池の温度場及びプラズマ場の測定を行う必要がある。また、レーザクラディング層の品質を制御するには同軸粉体供給装置における金属粉体流の濃度場及び速度場の測定を、レーザ再製作業により損傷部分を修復するには部品及び損傷部分の3D-CAD測定を行い、リバース・エンジニアリングによって逆向きに再構築することで3D-CADソフトウェアを構築し、さらにはD-CAMプログラムを構築してロボットによるレーザクラディングを誘導し、損傷部分の3D修復を実現する必要がある。このため、マシンビジョン技術の研究することでレーザ再製造ロボットの一定のスマート化を実現し、レーザ再製プロセスに対してオンラインのリアルタイム監視を行う必要がある。しかし、レーザ再製ロボットのマシンビジョン技術は技術的に非常に難しく、レーザ材料の相互作用、マシンビジョン測定、コンピューター・シミュレーション、情報処理、リバース・エンジニアリング、ソフトウェア開発、ロボットのオフライン・プログラミング及び制御等、さまざまな分野の知識を融合させる必要がある。レーザ再製ロボットのマシンビジョン技術研究には、重要な実用価値があるだけでなく、理論

的意義が大きい。

近年、CCD/CMOSを代表とするマシンビジョン技術は日増しに成熟し、当該技術には視覚的直観性があり、非接触測定及びリアルタイム測定が可能で、体積が小さく、コストが低く、ロボットと結合しやすい等の特徴がある。CCD/CMOSオプトエレクトロニクス装置は、レーザ加工ロボットのマシンビジョン技術として国内外ですでに研究の最先端にあり、注目されるテーマとなっている。本稿では、レーザ再製ロボットのなかでも、加工部品の3D-CAD再構築、レーザ溶融池の温度場、同軸粉体供給装置における金属粉体流の濃度場等、マシンビジョン技術の研究の現状について総合的に報告する。

2. レーザ再製ロボットのマシンビジョンシステムの構造

本研究事業で開発したマシンビジョン機能を持つレーザ再製ロボットのシステムは、主に図1で示した8つの部分、すなわち、1) 光ファイバにより伝送可能な高効率レーザシステムユニット、2) 高効率レーザにおける光ファイバ結合及び伝送ユニット、3) 6Rロボット本体ユニット、4) ロボットデジタル制御システムユニット、5) マシンビジョン測定システムユニット、6) コンピュータのオフライン・プログラミングシステムユニット、7) クラディング材料のリモート同軸輸送供給システムユニット、8) レーザ再製加工ヘッドユニットから構成される。このうち、マシンビジョン測定システムは、主に部品表面の3D-CADスキャナユニット、レーザ溶融池における温度場測定ユニット、レーザ同軸粉体供給装置の粉体流場測定ユニットから構成される。これら3種類のマシンビジョン測定システムはいずれもCCD/CMOSカメラモジュールを採用し、フレームによりレーザ再製加工ヘッド上に取り付けられる。当該システムユニットでは関連データ及び画像情報を収集する。ロボットシステムでは高性能なコンピュータソフトウェアとハードウェアの標準化特性を頼りに、装置のマシンビジョン、リバース・エンジニアリング、画像処理、オフライン・プログラミング、アナログ・シミュレーション、状態監視、合理化制御、人工知能、ネットワー

ク通信等の分野の知見を融合し、ロボット制御システムとして統合・実用化し、一連のスマート化レーザ修復再製ロボットシステムを構成する。



◎図1 マシンビジョン機能を持つレーザ再製ロボットシステム

3. レーザ再製による部品の3D-CADの再構築におけるマシンビジョン技術

レーザ再製ロボットによる部品の現場修復作業においては、修復現場では往々にして部品の元の設計図面が存在しないため、摩耗エリアの加工ルート再現のために3Dモデルを再構築し、かつ、加工軌跡及び法線パラメータによりロボット末端の姿勢を制御する必要がある。市場では現在、部品に非接触測定が可能な3Dスキャナが存在し、その例に米国Perceptron社のScanworksV3 3Dレーザ・スキャナシステム、カナダCreaform社のHandyScan3DEXA/REVscan手持式3Dデジタルスキャナシステムがあるが、これには次の問題がある。すなわち、体積が大きく、構造が複雑で、ロボットとの結合に向かない。スキャナは生成された曇点または三角形グリッド図面しか提供できず、スキャナ機能と再構築機能が分離しているため、3Dモデルの再構築は他の分離したリバーサ・ソフトウェアにインポートして行わなければならない。ロボットが直接使用できず、摩耗エリアの特徴を識別する機能も存在せず、コストも高く普及に向かない。本稿では、CMOS双眼カメラ立体視測定の原理に基づき、レーザ再製ロボットの部品に用いる3D-CAD測定システムを開発した。

3.1 システム構成

ロボット部品の3D-CAD測定システムは、主に双眼立体視測定装置及びロボット結合装置により構成される。図2は、双眼立体視測定装置の図であり、2台のビデオカメラ、立体照明、専用の画像処理ソフトウェア、コンピュータから構成される。

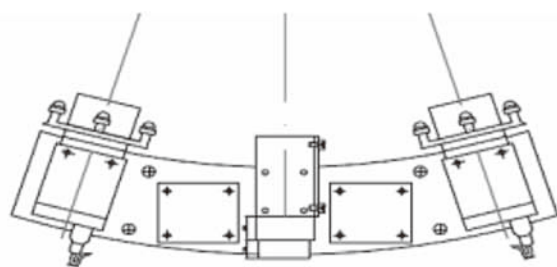
ビデオカメラ：工業型CMOSカメラ。130万画素、限界解像度1280pixel×1024pixel、Bayerカラー出力、解像度640pixel×1024pixel時のフレーム周波数率は45frame/s、プログラミングにより制御可能。開発環境はWin2000、XP、Vista。

立体照明：ライン照度計付き半導体レーザ。出力波長

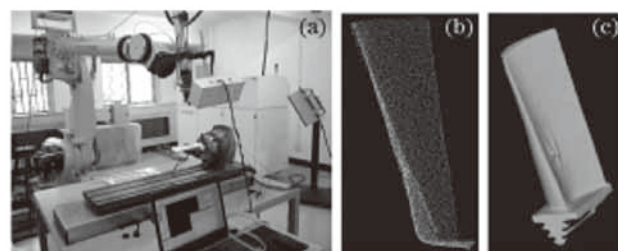
532nm、出力効率100mW。ライン照度モデル：TEM00。CMOSビデオカメラ2台と半導体レーザは同一底板上に固定され、カメラ2台の光軸の夾角は30°を選択する。半導体レーザから被測定物体に立体照明を投射し、測定物体の特徴把握とマッチングに用いる。

コンピュータ：システム共用のモバイルワークステーションはHP8530。CPUのクロック周波数は2530MHz、メモリは8Gb、ハードディスクは250Gb、モニターは37.3cmWSGA+ (1680pixel×1050pixel)、グラフィックメモリは512Mb、インテルギガビット接続 (10/100/1000ネットワークカード)。

図3 (a) はレーザ再製ロボットによる部品の3D-CAD再構築マシンビジョンシステムである。レーザ加工ヘッドは専用のジグを介し、ロボット末端アクチュエータと135°の確度で連結する。CMOS双眼立体視測定装置はレーザ加工ヘッド上に固定し、レーザ加工ヘッドの焦点との距離は300～400mmが適するため、ここでは350mmを選択した。図3 (b)、(c) はそれぞれ、双眼立体視測定装置スキャナブレードにより形成された曇点図及び3D-CADモデルである。



◎図2 双眼立体視測定装置

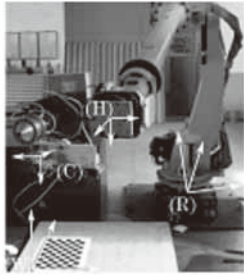


◎図3 部品の3D-CAD再構築のためのマシンビジョンシステム

3.2 システム標定及び座標の変換

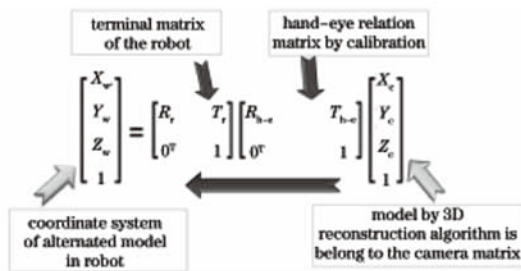
図4に示すように、ロボットによる部品の3D-CAD測定には4つの座標系、すなわち、部品表面座標系(W)、CMOS双眼カメラユニット座標系(E)、ロボット末端アクチュエータ座標系(H)、ロボット座標系(R)が存在する。3Dスキャナで測定されたデータはCMOSカメラ座標系にある。座標の変換を経ると、カメラ座標系(eye)はロボット末端座標系(hand)に変換される。ロボット末端(hand)及び

加工ヘッド末端(tool)は専門に設計されたジグにより連結するため、ジグの幾何学的寸法により測定されたモデルデータに基づき、ロボット末端座標系(hand)を加工ヘッド座標系(tool)に変換することで全体の座標系を統一し、その上で焦点距離やオーバーラップ率等のさまざまな技術パラメータとの調整を行い、加工プロセスの誘導を行う必要がある。



◎図4 ロボットによる部品の3D-CAD測定座標系

ロボットによる部品の3D-CAD測定の一連のシステムに標定試験を行った。試験には、単眼ビデオカメラによる標定（ビデオカメラ内外のパラメータ・マトリックスM1, M2により算出）、双眼ビデオカメラの相対位置標定（変換マトリックスM1-r = [R1-r, T1-r]により算出）、双眼ビデオカメラとロボット末端（アーム・レンズ）との関係の標定（変換マトリックスMh-e = [Rh-e, Th-e]により算出）がある。立体視システム全体の標定変換関係は図5のとおり。座標の変換を経ると、さまざまな角度からスキャンして再構築したモデルをロボット座標系に置くことができ、さまざまな角度からのデータをつなぎ合わせれば、ロボットの加工にも非常に便利となる。



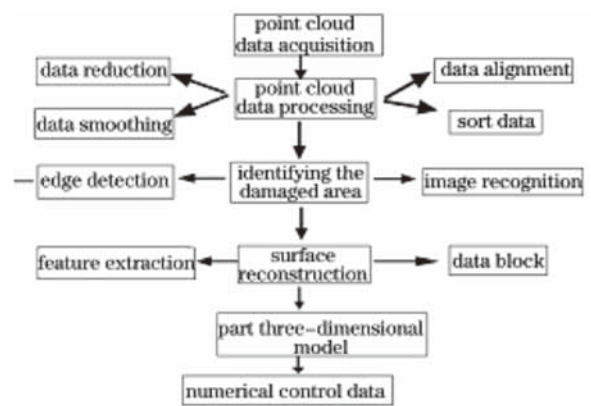
◎図5 ロボットによる部品の3D-CAD測定に関するシステム全体の標定変換関係図

3.3 部品の3Dモデル再構築ソフトウェアの設計

3Dモデルの再構築には、一般にリバース・エンジニアリング用のソフトウェアを使用する。現在、世界ではさまざまなリバース・エンジニアリング専用ソフトウェアが開発されており、例としてはImage ware、Geomagic Studio、Copy CAD、Rapid Form等がある。曲面のリファクタリングはリバース・エンジニアリングにおける最も

重要で複雑なプロセスであり、コンピュータ図学、数字的画像処理・計算方法等、さまざまな知識の総合的な応用が必要である。一般的なりバース・エンジニアリングにおいては、モデルの再構築では最初に曲面を構築し、それから必要に応じて実体モデルへと移行していく。

しかし、レーザ再製においては、さまざまなソフトウェア間でのデータの伝送が必要な上に、ソフトウェアシステムによって精度が異なるため、転換不能なエリアまたは転換の失敗が往々にして発生し、実体に転換できず再構築が実現できない現象が発生する可能性がある。近年、グリッド化モデルによる実体モデルの代替が曲面モデルの3D造型に役立つようになってきているが、現時点では三角形部分のアルゴリズムの多くは平面上の三角形部分をターゲットとしているため、空間上の曇点の三角形化が一貫して課題となっている。本研究ではこれらの問題に対し、実体のアルゴリズムを基礎に法線ベクトルフィルタリング及びエッジ検出法を提案する。これらの方法により、形成された三角グリッドのトポロジーと原型のトポロジー構造の一致が保証され、三角グリッド化の精度が向上することから、実用性が非常に高いことが実験で証明された。図6は部品の3Dモデル再構築ソフトウェア設計フローであり、流れは次のとおりである。すなわち、部品の3D-CADスキャナにより採集された曇点データ→コンピュータによる曇点データ処理→破損エリアの識別→曲面の再構築→部品のCADモデル形成→NC加工データの形成となる。



◎図6 部品の3Dモデル再構築ソフトウェアのフロー

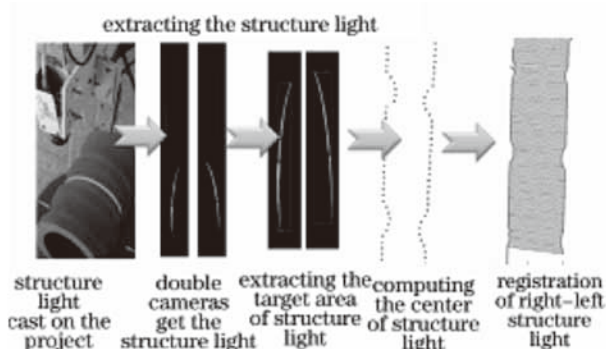
3.4 部品表面のレーザスキャン

FANUCR2000iB工業ロボットにおいては、システムにより部品表面が3Dスキャンされ、2種類のスキャンングモデル、すなわち低速高精度スキャン（小于5mm/s）と高速汎用スキャンモデル（小于100m/s）がある。本試験では、高精度スキャンモデルを採用し、ロボットの被測定加工部品に対するさまざまな角度からのスキャンングをデモンストレーションし、制御するのに用いた。

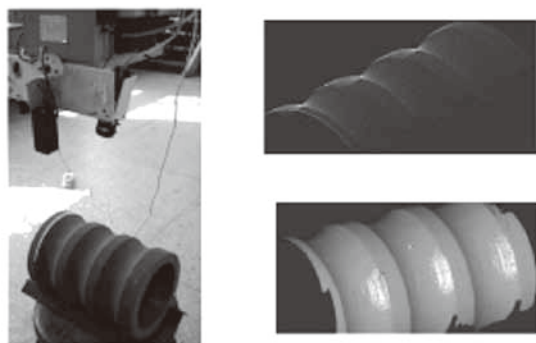
3.5 部品の3Dモデルの再構築

まず、立体照明を検出する。検出フローは図7のとおりである。すなわち、立体照明による部品のスキャン→CMOS双眼カメラによる立体照明の採取→立体照明のターゲット区域の検出→立体照明中心の計算→双眼立体照明の表示となる。

図8は部品の3Dモデル再構築画像である。試験結果によれば、このシステムでは被加工部品の精密な再構築が効果的に実現できる。また、再構築した部品はロボット座標系上に存在するため、修正の必要がなく、データを加工に直接使える。

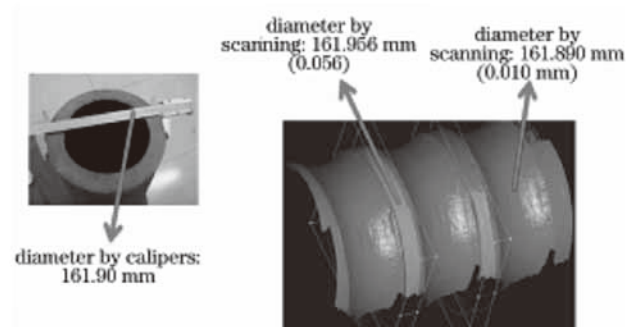


◎図7 立体照明ターゲットエリアの検出



◎図8 部品の3D-CADの再構築

図9では、再構築モデルと実体部品のサイズの誤差を比較した。図中の黄色部分は何測定エリアである。造型ソフトウェアでフィッティング法を採用して当該エリアの曲率半径を求めた結果はそれぞれ161.956mm、161.890mmであり、ノギスを用いて当該部分を測定した結果は161.90mmで、誤差はそれぞれ0.056mm、0.010mmであった。測定結果から見れば、高精度スキャンモデル下の誤差は±0.1mm間であった。このシステムの誤差には主に標定誤差、ロボット定位誤差、プログラム遅延によるデータの非同期誤差が含まれるが、標定及び最適化プログラムを多数回経ることによりこれら2つの誤差を減らし、より良い精度を得ることができた。



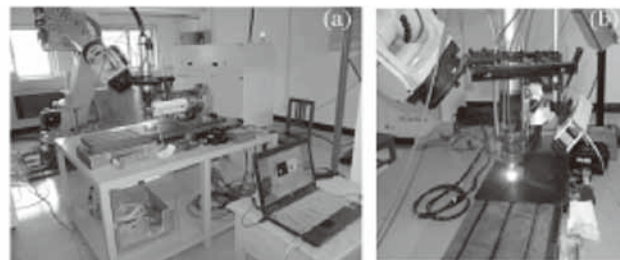
◎図9 再構築モデルと実体部品サイズの誤差の比較

4. レーザ溶融池の温度場のマシンビジョン測定技術

赤外線CCDカメラによる温度場測定への実用化は成功しているとは言え、赤外線CCDカメラは非常に高価なことが普及を妨げている。コストが低く、シンプルかつ迅速で、現場の応用に便利なレーザ溶融池の温度場の測定技術の開発は、現在、当該分野の重点となっている。近年、可視光波長域に位置するCCDカラーカメラの技術が日増しに成熟しており、価格が安く、画像性能も優れている。CCDカラーカメラによる温度場の測定技術の研究が国内外で多く行われており、主に比色法及びグレースケールに基づく2つの温度場測定法がある。これを用いたレーザ溶融池の温度場測定には次の長所がある。すなわち、非接触的な温度場測定であり、温度場の2D分布画像を迅速に導くことができる。また、温度場分布の定量的情報を導くことができ、体積が小さく軽量である。しかし、材料表面の反射率及び波長域の感受性測定にやや劣ることから、CCDカラーカメラは温度測定の精度があまり高くない。

4.1 レーザロボットによるCCD温度測定ビジョンシステム

このシステムは、主にCCD温度測定装置、コンピュータ、専用の温度測定ソフトウェア等から構成される。CCD温度測定装置はロボットアームの末端に設置され、かつ、コンピュータと接続している。図10(a)はレーザロボットCCD温度測定ビジョンシステムの試験現場であり、図10(b)はCCD温度測定装置である。



◎図10 レーザロボットのCCD温度測定ビジョンシステム

CCDカメラ：高解像度デジタル工業用ビデオカメラ、90万画素、1280pixel×1024 pixel、Bayerカラー出力、解像度640 pixel×480 pixel時のフレーム周波数率は45frame/s、プログラミングにより制御可能。開発環境はWin2000、XP、Vista。電子式シャッター：1/50(OFF)、1/120、1/250、1/500、1/1000、1/2000、1/4000、1/10000が選択可能。動画出力。光学システム：CCTV LENSレンズ、1/3"、6.0～60mmF1.4。CSポート：焦点距離6～60mm。減光フィルター：透過率は1.6%。

コンピュータ：3Dモデルの再構築システムと共用のモバイルワークステーションはHP8530。

4.2 CCDカメラによる温度標定

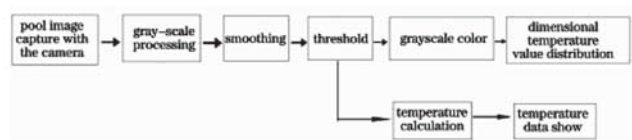
中国計量科学研究院の黒体放射源を採用してCCDカメラによる温度測定標定を実施する。レーザ溶融池の温度場の温度分布特性に基づき、標定温度範囲を600℃～1400℃と定める。温度の上昇につれて画像も徐々に明るくなることから、温度が上昇する際は熱放射も増加することが分かる。

試験結果に基づき、熱放射による画像比色法の値と温度Tとの関係曲線を構築し、最小二乗法を採用して実験データにフィッティングを行ったところ、得られたフィッティング方程式は次のとおりである。

$$(12) \quad T = \frac{3.7193 \times 10^3}{0.6409R_{12}^2 - 4.7888R_{12} + 12.4191 - \ln R_{12}}$$

4.3 CCD温度測定画像処理専用ソフトウェア

LabVIEWを開発環境に、ワークステーションコンピュータを応用プラットフォームとして、CCDによる温度場のリアルタイム測定専用ソフトウェアを開発した。当該ソフトウェアには4つの機能モジュール、すなわち画像処理、温度計算、温度場2D分布、温度場データディスプレイからなる。処理フローは図11のとおり。



◎図11 CCD・温度場のリアルタイム測定専用ソフトウェアの処理フロー

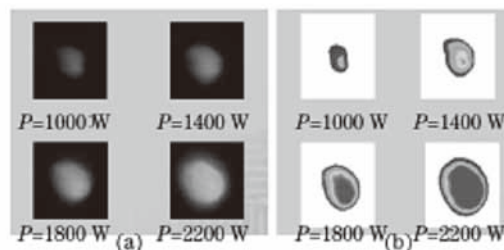
4.4 温度場測定コンピュータのビジュアルモニター

図12はレーザ溶融池温度場のCCD温度測定システムによる処理結果であり、図12(a)はCCDにより採集されたレーザ溶融池温度場の熱放射画像で、図12(b)は専用ソフトウェア処理後の温度場の疑似カラー分布画像である。

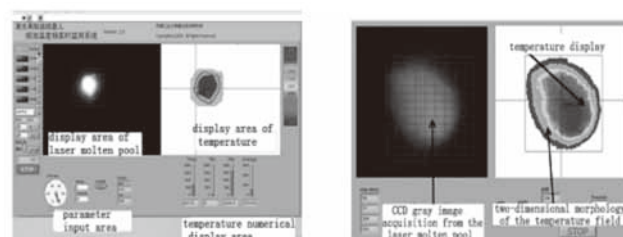
CCDカメラで温度を測定する際、ワークステーション

コンピュータのスクリーン上に、CCDにより採集されたレーザ溶融池温度場の熱放射画像2D分布及び専用ソフトウェア処理後の温度場内の各点データをリアルタイムに示すことができる。図13はコンピュータのディスプレイである。

試験の結果、CCDの温度測定範囲は700℃～1400℃で2500℃まで外延される可能性があり、温度分解能は50℃であることがわかった。



◎図12 レーザ溶融池の温度場のCCD温度測定システムによる処理結果



◎図13 CCD温度測定コンピュータのリアルタイム・ディスプレイ

5. レーザロボット粉体流濃度場マシンビジョン技術

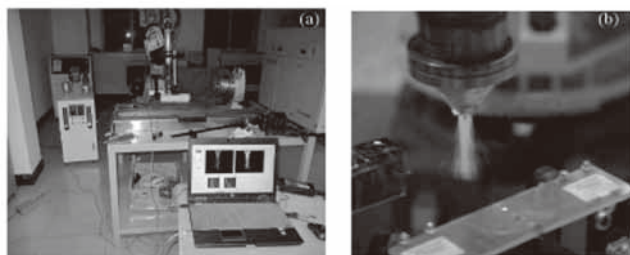
レーザ同軸粉体供給装置における金属粉体流の出力プロセスは非常に複雑であり、濃度場の分布は同軸レーザクラディングの品質に直接影響するため、かつては国内外でさまざまな方法が測定に用いられていた。しかし、いずれも次のような欠点があった。すなわち、空間の単一ポイントまたは複数ポイントの情報しか得られず、粒子画像に含まれる情報が粉体流濃度場の観測にしか利用できず、粉体流濃度場及び速度場の計算の再構築が実現できない。これまでに、Nd⁺:YAGのダブルパルスレーザを照明光源にデータ粒子画像の迅速測定技術（DPIV）による測定システムが開発されたことがあり、粉体流濃度場及び速度場の再構築を実現することができた。しかし、このシステムは体積が大きく、コストも高く、ロボットと結合できなかった。近年、小型化レーザ同軸粉体供給装置における粉体流濃度場マシンビジョンシステムが開発された。このシステムは体積が小さく、軽量でロボットとの結合にも便利で、測定が迅速で非接触状態で測定でき、粉体流の焦点調節パラメータ及び3D空間分布をリアルタイムで導くことができる。

5.1 システムの構成

レーザロボットによる粉体流濃度場のマシンビジョンシステムは図14(a)のとおりであり、2Dフィルター光源を持つ高輝度半導体レーザ、高速CMOSカメラ、レーザ同軸粉体供給装置、高性能コンピュータ、濃度場マシンビジョン専用ソフトウェアから構成される。

半導体レーザ：波長532nm、出力効率100mW、白斑モデルTEM00、連続作業モデル、フィルター光厚は約1mm。CMOSカメラ：工業用、100万画素、解像度1024pixel×1024pixel、解像度1024pixel×1024pixel時のフレーム周波数は35frame/s、プログラミングにより制御可能。開発環境はWin2000、XP、Vista。コンピュータ：3Dモデルの再構築システムと共用のモバイルワークステーションはHP8530。

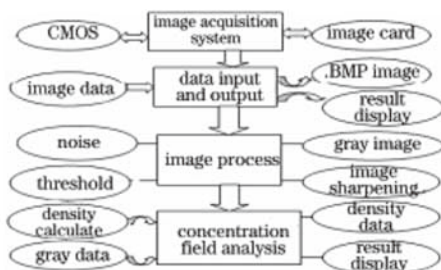
レーザ同軸粉体供給装置の加工ヘッドはロボット末端に設置され、半導体レーザ及びCMOSカメラはレーザ同軸粉体供給装置の加工ヘッド下方に設置される。図14(b)は測定装置の局部拡大図であり、粉体流の画像がはっきりと見て取れる。



◎図14 レーザロボットによる粉体流濃度場マシンビジョンシステム

5.2 濃度場マシンビジョン専用ソフトウェアの開発

ソフトウェアの機能構造は図15のとおりである。画像処理システムは、画像収集、データ処理、画像処理、濃度場ディスプレイ等の部分から構成される。



◎図15 ソフトウェアの機能構造

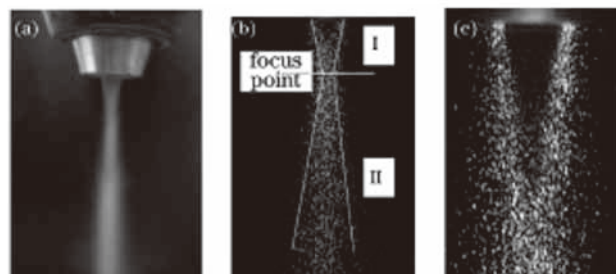
5.3 濃度場測定コンピュータのディスプレイモニター

当該ソフトウェアは、レーザロボットの加工による濃度測定専用ソフトウェアであり、インターフェイスは操

作をシンプルに設計する必要がある。このインターフェイスにはすべての画像及び処理結果が含まれる。インターフェイスは画像収集エリア、パラメータ選択エリア、ノイズ除去演算子エリア、閾値分割エリア、画像予備処理エリア、結果ディスプレイエリアの6つのエリアから構成される。

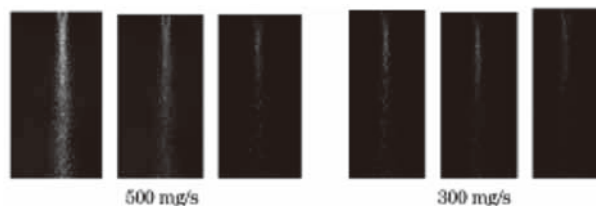
5.4 濃度場測定試験

図16は粉体流濃度場のマシンビジョン測定結果の対比である。図16(a)はCMOSカメラにより直接撮影した粉体流の画像であるが、粉体流の外観をぼんやりと示すだけで粉体粒子は識別できない。図16(b)、(c)は、この濃度場測定コンピュータを採用し、マシンビジョン撮影処理した後の粉体流の画像であり、粉体粒子がはっきりと識別できるだけでなく、粉体流の濃度分布外観をはっきりと見てとることができ、3つの粉体エリア、すなわち、環状エリア、フォーカスカラムエリア、錐状発散エリアの区別がはっきりと示されている。粉体流濃度は粉体流供給口から焦点まで、ゼロから始まって徐々に増大し、粉体流フォーカスカラムエリアに至ると金属粉末濃度は最大に達し、その後は粉体流の発散に従い、金属粉末濃度も徐々に低下する。得られた粉体流幾何学パラメータは、上部発散角5°，下部発散角15°，上部フォーカス9.11mm，下部フォーカス12.38mmである。



◎図16 粉体流濃度場のマシンビジョン測定結果

図17は、さまざまな粉体供給パラメータ（送粉量、気流速度）下のレーザロボットによる粉体流濃度場マシンビジョン測定結果である。送粉量、気体流速等のパラメータの影響がはっきりと見てとれる。



◎図16 粉体流濃度場のマシンビジョン測定結果

6. 結論

- 1) CCD/CMOSマシンビジョン技術に基づくレーザ再製ロボットのマシンビジョンシステム3種類を開発した。性能指標はそれぞれ次のとおりである。3D-CADマシンビジョンシステム：加工部品の3D-CADを再構築可能。シングル・スキャンの最大スキャン幅は200mm、汎用スキャン速度は10～50mm/s、最大誤差は1mm未満。高精度スキャン速度は1mm/s、最大誤差は0.1mm未満。温度場マシンビジョンシステム：溶融池の温度場分布を表示可能。温度測定範囲は700℃～2400℃、精度は50℃。粉体流場マシンビジョンシステム：粉体流の外観、パラメータを測定可能。粉体流量の測定範囲は1～100 g/min。
- 2) 3種類のシステムはいずれも明晰な可視化画像を描くことができ、かつ、データ標定が可能である。
- 3) 3種類のシステムはいずれもオンラインでのリアルタイム測定が可能であり、得られる温度、粉体流量、3Dモデルはロボット座標系に位置する。
- 4) 3種類のシステムはいずれも体積が小さく、いずれもロボット上の設置、連結に便利である。
- 5) コストが低く、普及に適している。

レーザ加工ロボットマシンビジョン技術の研究は国内外を問わず始まったばかりで、測定原理、測定機材、画像処理ソフトウェア技術のいずれも発展途上である。本研究にも多くの至らない点があるため、絶えず改善し、製品化を実現する必要がある。

物連網の技術的思想及び応用戦略に関する研究

•Profile•



朱 洪波 ZHU Hongbo ●南京郵電大学副校長。教授

1956年2月生まれ。1996年、北京郵電大学電磁場・マイクロ波技術専攻、工学博士。1997年～1999年、南京郵電学院電子工程系教授。1999年～2005年、南京郵電大学研究生部主任、教授。2005年～2009年、南京郵電大学通信・情報工程学院院長、江蘇省無線通信重点実験室主任、教授。2008年～現在、南京郵電大学副校長、江蘇省無線通信重点実験室主任、教授。主な研究分野は無線通信、物連網技術分野の科学研究。学術論文200本以上。

1. はじめに

物連網（ウーレンワン）（IOT, internet of things）とは、ネットワークを介してすべての事物を結びつける仕組みを言う。現在、比較的賛同を得ている定義によれば、物連網とは「電波による個体識別」（RFID）、赤外線センサ、全地球測位システム（GPS）、レーザスキャナ等の情報センシング設備を介し、定められたプロトコルに従いモノをネットワークに接続させて情報の交換及び通信を行うことにより、スマート識別、ポジショニング、フォローアップ、モニタリング及び管理を実現するネットワークを指す。

物連網のもう一つの定義とは、モノとモノ（T2T, thing to thing）、人とモノ（H2T, human to thing）、人と人（H2H, human to human）の相互ネットワークを実現し、現在、インターネットにより実現されている人と人の間の相互ネットワークを、センシング技術を介してモノとの相互ネットワークにまで拡大することで、すべての事物間の主動的な情報交換及び通信が実現できるという考え方である。モノの情報がインターネットを介して情報処理センターに伝達された後に、さまざまな情報サービス及び応用を実現できる。

物連網は、ユビキタスネットワークの応用として理解できると本稿では考える。ユビキタスネットワークとはどこにでも存在するネットワークであり、個人や社会のニーズに基づき、既存及び新規のネットワークを利用して、人と人、人とモノ、モノとモノの間の情報の取得、伝達、保存、認知、意思決定、使用等の総合サービスを行うネットワークシステムである。ユビキタスネットワークには環境センシング、コンテンツ・センシング、スマート性があり、個人及び社会に対し、「どこにでも存在し、すべてを含む」情報サービスと応用を提供する。ユビキタスネットワークは、物連網より広い意味をもつ。

センサネットワークとは、物連網の末端ネットワーク及びセンシングのためのエクステンション・ネットワークである。センサネットワークとは、多数のセンサ、データ処理ユニット、通信ユニットにより構成されるノードにより、アドホック・モードを介して構築された、範囲

が制限された無線ネットワークを言う。センサネットワークは、物連網における事物の連携及び情報センシングを提供する。

2. 物連網の重要技術の分析及び研究

中国通信標準化協会（CCSA）のユビキタスネットワーク工作委员会（TC10）は、物連網の三つの層を打ちだした。第一の層は、センシングのためのエクステンション・ネットワークであり、センサを介して事物と結びつき、情報のセンシングを行う。第二の層は、異種混合によるユビキタス通信ネットワークであり、情報の伝達及び処理を実現する。第三の層はアプリケーション及びサービスであり、さまざまな端末設備にセンシング情報及びアプリケーションサービスを提供する。

2.1 物連網の構造体系

1) センシング・エクステンション層

物連網ではモノとモノ、人とモノとの通信を実現するため、センシング・エクステンションは必須である。センシング・エクステンション層ではモノの情報の収集、獲得、識別を実現する。センシング・エクステンション層の重要技術はセンサ、RFID、GPS、アドホックネットワーク、センサネットワーク、短距離無線通信等である。センシング・エクステンション層は消費電力の削減、低コスト化、小型化の問題を解決するとともに、感度がより高く、より全面的なセンシング能力を目標に発展する必要がある。

2) ネットワーク層

物連網のネットワーク層では主に情報の伝達を行うため、ネットワーク層は物連網における情報のキャリアネットワークであると言える。ネットワーク層は、アクセスネットワークとコアネットワークで構成される。アクセスネットワークは物連網の端末にアクセス機能及びモバイル管理を提供するもので、これにはさまざまな有線アクセス及び無線アクセス等がある。コアネットワークはIPに基づく統一的で拡張可能な高性能のネットワークであり、異種アクセス及び端末のモバイル性を支持する。コアネットワークは既存の通信ネットワーク及びイン

ターネットに相当程度依存する。

3) ビジネス層及びアプリケーション層

ビジネス層及びアプリケーション層は情報の保存、データの発掘、アプリケーションの意思決定等を実現し、最終的に情報ビジネス及びアプリケーションを提供する。ビジネス層及びアプリケーション層は大量の情報に関するスマート処理、分散コンピューティング、ミドルウェア、情報ファインダー等のさまざまな技術と関係する。ビジネス層及びアプリケーション層はデータの保存及びスマート分析を行い、ユーザーのニーズに合わせて成果を発揮する。スマート分析層においては、クラウド・コンピューティングがコアとなる。

現在の物連網のアプリケーションはいずれも各業界で独自にシステムが構築されているため、システムと端末の具体的なアプリケーションの関係性は多様なビジネスの展開に不便で、ビジネスの変更にも不便であり、専用の業界サーバを必要とする。業界間の格差により、現時点では、物連網は規模の効果を発揮することができない。

2.2 物連網の異種混合ネットワークのプラットフォーム層

いかなる端末ノードも、物連網ではユビキタスな相互接続が実現できるはずであり、その重要技術はネットワークリソースの共有を実現する異種ネットワーク連携プラットフォームにある。物連網は、コア層でNGN/IMSとの連携を考慮することができ、アクセス層でさまざまな異種ネットワークの連携及び相乗効果を考慮する必要がある。

ネットワークの異種性は主に次の面に表れる。すなわち、1) さまざまな無線周波数帯特性によるスペクトルリソース使用の異種性。2) さまざまなネットワークアクセス技術で用いられるエア・インタフェース及び関連プロトコルの異種性及び非互換性。3) ビジネスの多様化。4) 端末の多様化。5) 各キャリアによる異なる運用管理戦略。これらいくつかの面が交錯して関係し合い、相互に影響し合うことで端末アクセスネットワークの異種性が構成される。

ネットワーク連携の主要ポリシーとは、基礎的なネットワーク上に構築された公共通信プラットフォーム上に、各種異種ネットワークにより共有の連携と個性の協調が実現されているものと理解できる。連携とは、それぞれのネットワーク間の共通性の統合であり、具体的には各種異種ネットワークと公共通信プラットフォームとしてのモバイル通信ネットワークと基幹ネットワーク、または次世代ネットワークとの連携を指す。協調とは、それぞれのネットワーク間の個性の統合を指し、具体的には大規模ネットワーク中の各アクセス・サブネットワークが相互間の協調により共存、競争、連携を実現し、ビジネス及びアプリケーションのニーズを満たすことを言う。異なる通信ネットワークの連携は、異種通信ネット

ワークの協調に資するためにある。協調技術は、マルチネットワーク連携及び無線サービスにおけるユビキタス化、高速化及び敏捷化を実現するための必然の選択であり、将来の物連網におけるスペクトルリソースの共有において解決の待たれる問題である。

2.3 センサノード及び端末

センサノードはモノそのものの情報を収集できるのみならず、モノに関連するさまざまな情報を検出、保存、処理、連携することができ、これによって物連網に対して事物の連結性及び各種関連情報を提供している。

マイクロエレクトロニクス、組み込み技術、短距離通信技術、センサ技術、RFIDタグ技術等の発展と成熟により、センサノードはスマート技術によりモノと環境をセンシングし、かつそれらに対する通信を行い、処理・コントロールができるようになった。センサノードの重要技術には、センシングされた内容のマルチメディア化におけるセンサノード技術、センサノード組み込み化に関する重要技術、センサノードの設計及び低コスト生産、ネットワーク及び協調面におけるセンサノードのソフトウェア・ハードウェア機構等がある。RFIDは物連網における重要なセンサノードであり、商品バーコード、物流、自動配送等の分野での実用に重要である。電子製品コードEPC (electronic product code) は、物連網におけるモノの識別コードになる可能性がある。EPC及びRFID技術は物連網の発展と実用を推進した。物連網には小型化かつスマート化され、低コストなセンシング端末が必要である。物連網ではモノ及び端末に唯一の識別アドレスが必要とされ、端末アドレスにはIPv6、モノのアドレスにはEPCが採用されるだろう。

2.4 ユビキタスセンサネットワーク

ユビキタスセンサネットワークは、物連網の末端で採用される重要技術の一つである。ユビキタスセンサネットワークは多数のセンシングノードにより構成される分散式無線アドホックネットワークであり、モノの周囲環境の物理的パラメータに生じた変化に関する情報を感知するのに用いられ、一般にローカルエリアまたは狭い範囲内でのモノとモノの間の情報交換を提供する。センサノードにより構成された末端ネットワークは、物連網の異種混合ネットワークに接続されることでユビキタスに相互接続しうるネットワークを構成する。

2.5 物連網のビジネスサポート及びスマート処理技術

物連網ではモノとモノ、人とモノ、人と人との通信を検討し、産業、家庭、個人レベルでの応用・アクセス方式等を検討する必要がある。ビジネスシーンやニーズに対する研究に基づきビジネスの機能及び特徴の分析を行い、汎用性のあるビジネス機能を定義した後に物連網のネットワークリソースを抽象化することで、各種ビジネス及び複合合成ビジネスにビジネス機構を提供し、ビジネス分配プラットフォーム及び第三者オープンビジネス

の接続プラットフォームを研究・開発し、低層の異種ネットワークと関係しないビジネス分散メカニズムを実現する。産業向け情報化サービスを主に、個人向け公共サービスを副に公共の技術及びビジネスプラットフォームを構築する。

物連網のビジネスサポートシステムにはP2P、クラウド・コンピューティング等の分散コンピューティング技術を結合させ、データをスマート分析・処理する必要がある。オープン式の物連網環境にはクラウド・コンピューティングの採用が必須である。その理由は、第一に物連網はビジネスタイプが多様に関連産業が広範にわたり、ビジネスデータ量が膨大であるという特性があり、既存のハードウェア環境ではサポートが困難であること、第二にはキャリアは休眠中の計算能力及び保存能力を大量に蓄積していること、第三にはビジネス開発者やアプリケーション配置数の増加に伴い、物連網の計算能力に対する要求は高まる傾向にあるため、柔軟性のある計算能力を導入する必要があることである。クラウド・コンピューティングはこれら能力を有する。

2.6 物連網の総合サービス・プラットフォーム技術

物連網は情報を総合的に分析し、よりスマートな総合サービスを提供する。物連網のアプリケーション・プラットフォームのサブセット及び共通サポートプラットフォームとの間の関係、共通サービス・プラットフォームのオープン性及び規範性は、物連網のアプリケーション配置の上で研究が必要とされる重要な問題である。

クラウド・コンピューティングは、物連網の総合サービス・プラットフォームを構築する上で重要な技術である。「クラウド」とはリソースを提供するプラットフォームであり、クラウド・コンピューティングとはビジネス計算モデルである。ここでは、計算のミッションを大量のコンピュータによって構成されるリソースプール（プラットフォーム）上に分散し、さまざまな応用システムに必要な応じて計算能力、保存空間を獲得させる情報サービスである。クラウド・コンピューティングの応用には、エネルギーを統合し、それぞれのメンバーの共有に資すると言う思想が包含される。

物連網のサービス・プラットフォーム技術は、上層部のアプリケーションにおいてはオープンなインタフェースを提供する一方で、下層部に対してはさまざまなアクセス方式による格差を遮断して汎用性のあるタグ、ルータ、アドレス、マネジメント、ビジネス提供、ビジネス制御及びトリガー、QoSコントロール、安全性、経費計算等の機能を提供し、これら機能はミドルウェア（middleware）技術、オブジェクト名解析サービス技術（ONS, object name service）、PML（PML, physical markup language）等の重要技術により実現される。

2.7 物連網の安全技術

物連網の端末設備数は膨大であるため、物連網には既

存のネットワークの安全問題のほかに、特有の安全問題がある。物連網の各層すべてに研究を要する特有の安全問題が存在する。

センサノードの多くは無人制御の場面に存在するため、攻撃者はたやすく破壊できる。センサネットワーク、アドホックネットワーク等の端末ネットワークノードの能力には限りがあるため、複雑な安全対策は採用できない。セルラー式のモバイルネットワークは物連網の主なアクセスネットワークであり、そのものに安全問題が存在する。コアネットワークには相対的に整った安全保護能力があるが、物連網のノード数は膨大で、かつ、クラスターとして存在することから、ネットワークの渋滞を引き起こす可能性もあり、安全機構により物連網の設備間のロジック関係が切り離される恐れもある。多様化された大量の物連網アプリケーション・プラットフォームには、強大かつ統一的な安全管理プラットフォームが必要である。このため、物連網のためにシステムティックに安全保護メカニズムを開発する必要がある。

2.8 物連網の技術及び応用標準

各業界及び地域の物連網にはそれぞれの標準があるため、それぞれの物連網アプリケーション事業間では互換が難しく、個々の情報の「孤島」と化している。国際標準化の分野では、ユビキタスネットワーク及びセンサネットワークの研究に関係する標準化組織には、主に欧州電気通信標準化機構M2M技術委員会(ETSIMTC)、3GPPのM2M標準、ITU-T SG16 AMSがある。しかし、統一的な標準はないため、物連網は広域的かつ全ネットワークを網羅したトータルなアプリケーションの実現が困難になっている。

3. マルチドメイン連携・共有の理念とユビキタス総合サービスの思想

本稿で提起する、物連網の発展に関するコア技術概念は、マルチドメイン連携・共有及びユビキタス総合サービスである。

3.1 マルチドメイン連携・共有という先進的理念

マルチドメイン連携・共有の目標とはマルチドメイン間のリソースの連携及びサービスの共有を実現することであり、その理念の本質は将来的にすべてのネットワークを協調・連携させ、制限を受けずにさまざまな情報化ビジネスを許容し、さらに多様な連携ビジネスを創出することであり、多数のドメインにより一つのドメインを構成することではない。マルチドメイン連携は、現代の情報技術分野が連携し発展する上での必然の趨勢であり、マルチドメイン間のリソース及びサービスの共有を実現し、低水準での建設の重複を避け、適応性が広く、保護が容易で、コストが低い高速ブロードバンドによるマルチメディアの基盤プラットフォームを構築することである。

異種ネットワークは、ポストインターネット時代に向けての発展及び進化の過程において、各ネットワークの機能やビジネス範囲は一致の傾向にあり、ユーザーはいずれを用いても電話をしたり、インターネットに接続したり、テレビを見る等のさまざまなサービスを受けることができる。

物連網の発展において最も重要な技術の一つが連携である。物連網は設備の連携、ネットワークの連携、プラットフォームの連携を通じてサービスの連携、ビジネスの連携、市場の連携を実現する。設備の連携とは、統合化したセンシング端末の開発を指す。ネットワークの連携とは、ユーザーがどの任意の端末からでも番号も決済方式も変えずに、特定の方式によりアクセスネットワークに接続できることを指す。プラットフォームの連携は、ユーザーデータの集中管理、公共のビジネスプラットフォーム、分類された管理プラットフォーム及びアプリケーション・プラットフォームを指し、ユーザーによるビジネスシステムを超えた相互操作をサポートし、統一的な認証システムを構築することで、1つの口座番号及びパスワードによる集中認証を実現する。サービスの連携とはサービス層で連携を実現させること、ビジネス連携とは、物連網が言語、データ、映像等の多様なビジネスを同時に提供できることにある。市場連携とは、市場メカニズムを牽引役に、各種通信・情報商品とサービスをパッケージで販売することにある。

3.2 ユビキタス総合サービスの技術的思想

物連網の技術的思想は、「ユビキタスネットワーク」の利用による「ユビキタスサービス」の実現と定義することができる。物連網とは広範かつ深遠な未来型ネットワークの応用形態であり、本来の意図はネットワークの形式を利用して世界中のモノをすべて結びつけ、世界のあらゆるモノが自動的にネットワークに接続できるようにすることである。基本的な方法はRFID、センシング設備、全地球測位システム（GPS）又はその他の情報取得方式等の多種の革新的なセンシング技術を世界のさまざまなモノ、施設、環境に組み込み、インターネットを介して情報処理能力とスマート技術を世界の全てのモノの中に取り入れ、物質世界を最大レベルにデータ化し、生命を与えるものである。物連網は、世界のあらゆるモノを擬人化してネットワークに接続し、モノが「語り」、「考え」、「行動」できるようにすることを目標としている。

物連網の本質とは、ネットワークのスマート化により、情報化という手段で、ネットワークを介してさまざまな事物を表現することにある。モノはRFID等のセンシング技術を利用して、人の干渉を要せずに相互にスマート的に「交流」でき、インターネットを通じてモノの自動識別と情報の互換及び共有を実現できる。物連網の特徴は、人の干渉を要せずにモノとモノが相互に繋がることで、効率を最大限高めると共に人の手による不安定性を減ら

すことにある。

一つのネットワークの物理的なプラットフォーム上でさまざまなビジネスを提供することこそ、マルチドメイン・リソース及びサービスの連携における真の意味である。真のマルチドメイン連携が実現した暁には統一的なネットワークのプラットフォームが提供でき、あらゆるビジネスをこのネットワーク・プラットフォーム上で実現できる。当然、アクセス方法は多種多様であるが、ネットワークは統一的で連携したネットワークである。連携後のネットワークは、ユーザーに大きな利便性をもたらす。

4. スマート化総合サービスの技術体系及びアプリケーションシステムの研究

本稿ではスマート化総合サービス・プラットフォームの技術体系構造を検討し、かつ対応する実験理論を構築した。モデルにおいては、物連網の総合サービス・プラットフォームを技術体系上、7層に分けた。すなわち、第1層はモノ、第2層はモノとの接続及び情報センシング、第3層はネットワークの連携及びリソースの共有、第4層はデータの連携及びスマート処理、第5層はビジネスの連携及びスマート化サービス、第6層は統一ドメイン及び身分認証、第7層はユーザーである。

スマート化総合サービス・プラットフォームの実験理論モデルを基礎に、将来の物連網の市場における応用、サービスのニーズ、ビジネスモデル及び産業構造に基づき、物連網ユビキタス総合サービスを実現するビジネス・アプリケーションモデルを研究し、構築した。このモデルのコア思想は、共通の連携プラットフォームを構築し、すべてのユーザーの求めるさまざまな業務に対して公共経営を行い、スマート化サービスを提供することにあるため、「スマートサービス商店」、略称「3S商店」(smart service store)と呼ばれる。

3S商店のビジネス応用モデルにおいては、サービス経営の機能的要求に基づき4つのバーチャル連携プラットフォーム、すなわちリソース連携プラットフォーム、情報連携プラットフォーム、ビジネス連携プラットフォーム、端末連携プラットフォームを構築した。いかなる端末のユーザーも統一的な身分認証を用いて統一したポータルサイト商店を通じ、商店の所有するリソースを利用し、商店の所有するサービスを享受することができ、これによりリソースの連携とサービスの共有が実現される。

これら、構築された物連網総合サービスの実現理論モデル及びビジネス応用モデルに基づき、南京郵電大学のキャンパスで実用的な「スマートキャンパス」実験システムが開発され、開発と同時に全校生徒・教員を実際のユーザーとして試験運用を開始している。スマートキャンパスというプラットフォームを基礎に、実験的な「物連網ハイテクパーク・スマートサービス商店」が開設され、オープンに経営されている。現在、すでに全国の企

業数十社との共同研究がスタートしており、100種以上のさまざまなサービスがこの商店のプラットフォーム上で連携し、集中的にセンシングされ、展開されている。

5. 終わりに

元来、ポストインターネット時代はインターネットの発展による新たな歴史段階で、物連網の応用はこの段階の重要なメルクマールであり、この時代の特徴はインターネットに基づく産業的実用とスマートサービスにあると理解された。ポストインターネット時代には、情報産業には再編が必要であり、新興の情報サービス業が牽引役で、ネットワークキャリアが下支えし、ネットワーク設備製造業が補佐を担うインターネット産業構造が構成されるだろう。

ポストインターネット時代の今後の発展の重点は、ネットワークの端末効果及びその周辺価値にあり、物連網の発展の重要性はネットワークの形式による、世界のあらゆるモノとの接続性と応用性の利用にある。物連網のコアはサービスとアプリケーションにあり、物連網の発展もアプリケーションに向けた開発でなければならない。

ビジネスモデルの革新及び変革こそ物連網の応用・発展の焦点であり、物連網が応用されるビジネスモデルの一つでは、ネットワークの経営とサービスの経営を分離させ、全く新しい物連網のサービス商店を模索し、独立したサービス・キャリアの概念を構築する必要がある。物連網の分野では、新しい経済・ビジネスモデルの構築のために、さらなる開放及び協力が必要となる。

ポストインターネット時代の国の産業発展戦略は、センシング技術産業の発展のスピードアップとともに、社会発展による応用ニーズを方向性とし、総合サービス業を牽引役として、ネットワークに基づく新興のスマートサービス産業を優先的に発展させることにある。

大量の孤立した異種ネットワークでは相互接続・連携の使用がなく、大規模経済を構築できず、統一的なビジネスモデルを確立することができず、経済サービスのコストを圧縮することもできない。このため、中国全国における技術標準の統一を加速し、1つの管理メカニズムを構築することこそ、物連網の将来的な応用で直面する問題である。政府の専門部門による管理及び協調、対応する政策や法規なくしては、標準の統一及び協調はありえない。

中国・日本科学最前線 — 研究の現場から — 2012 年版

2012 年 3 月発行

編 集 独立行政法人 科学技術振興機構中国総合研究センター
企画・統括 角南 篤 中国総合研究センター 副センター長
塚本 勝 中国総合研究センター 参事役
米山春子 中国総合研究センター フェロー

〒 102-0076

東京都千代田区五番町7 K's五番町JST東京本部別館

Tel. 03-5214-7556 Fax. 03-5214-7558

URL: <http://www.spc.jst.go.jp>

I S B N 9 7 8 - 4 - 8 8 8 9 0 - 3 1 4 - 1

2012 Printed in Japan
