

国立大学法人 宇都宮大学
地域共生研究開発センター 大学院VBL部門
ベンチャー・ビジネス
ラボラトリー
*Venture Business
Laboratory*

平成25年度活動成果報告書



宇都宮大学
UTSUNOMIYA UNIVERSITY

宇都宮大学

地域共生研究開発センター 大学院VBL部門

ベンチャー・ビジネス

ラボラトリー

Venture Business

Laboratory

平成25年度活動成果報告書

巻頭言

ベンチャーからイノベーションへ

理事（研究・産学連携担当）・副学長 井本 英夫



大学院 VBL 部門は 1998（H10）年 10 月にサテライト・ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー（SVBL）として発足して以来、5 年ごとにプロジェクトを更新し、2013 年度で第 3 期の 5 年間が完了いたしました。合計 15 年の年月が経過したことになります。関係者の皆さまに深く感謝いたします。

この第 3 期においても、多くの研究者が様々なテーマに取り組み、本報告書にあります通り、多くの成果があがりました。設置以来の 15 年間の成果を見ても、大学院 VBL 部門は本学の研究開発に重要な役割を果たしたと考えられます。しかし、15 年間にわたって、少しずつプロジェクトメンバーが増える一方で、予算は減少し、総花的な研究支援を行う組織という傾向が強まってきました。また、ベンチャー・ビジネス・ラボラトリーという名称に文字通り当てはまる成果はごくわずかにとどまっています。このような状況を一新するため、2014 年度より大学院 VBL 部門をイノベーション創成部門に衣替えし、また、URA 室を設置することとなりました。

「ベンチャー」から「イノベーション」へという名称の変化は、社会の要請の変化が背景にあります。15 年前に SVBL が設置された頃にはベンチャーという言葉がもてはやされ、様々なベンチャー企業が次々と作られました。それから 15 年の間に日本の産業競争力は次第に低下してきています。このため、産業におけるもっと大きな展開、社会の大きな範囲に影響を与えるような展開としてイノベーションが欲しいというのが社会の要請となってきたと思います。

「ベンチャー」から「イノベーション」への変化は、社会がより総合的な視点を持った研究開発を求めていることを示しています。人びとが何を求めているか、それにどのように対応するかが問われています。このためには、新しいイノベーション創成部門が、いろいろな分野からの、いろいろな視点に立った考え方がぶつかり合い、新たな展開を遂げる場となれるかが鍵となります。VBL 棟がいろいろな議論が沸騰する場となることを心から期待します。

目次

巻頭言

活動成果報告書発刊に際して.....	1
--------------------	---

1. 宇都宮大学 VBL 組織 17 年間の歴史と成果

1.1 宇都宮大学 VBL 組織の歩み.....	3
1.2 全 3 期プロジェクト研究リスト.....	6
1.3 VBL 施設と大型研究設備.....	6
1.4 全 3 期プロジェクト研究成果資料.....	7
1.4-1 VBL 発ベンチャー企業	
1.4-2 特許件数の集計結果	
1.4-3 学術成果の集計結果	
1.4-4 外部獲得資金件数の集計結果	

2. 第 3 期プロジェクト成果（平成 21—25 年）

2.1 第 3 期 VBL プロジェクト研究一覧表.....	19
2.2 各プロジェクト研究成果報告.....	20

3. 平成 25 年度 VBL 活動成果報告

3.1 組織図及び年間行事一覧.....	301
3.2 研究助成制度	
3.2-1 平成 25 年度中核的研究機関研究員・招聘外国人研究者・海外派遣動向調査若手研究者・ ヤングスカラーリスト.....	302
3.2-2 中核的研究機関研究員（VBL ポスドク）紹介.....	305
3.2-3 VBL 部門ポスドク研究成果報告書.....	306
3.2-4 ヤングスカラーシップ研究成果報告書.....	318
3.2-5 ヤングスカラーシップ国際会議報告書.....	391

3.2-5	招聘外国人研究者報告書	391
3.2-6	海外派遣動向調査若手研究者報告書	397
3.3	大学院教育とVBL活動	
3.3-1	大学院教育プログラム（先端科学・技術特論）	405
3.3-2	2013オープンキャンパス公開報告	408
3.3-3	2013全国VBLフォーラム参加報告	409
3.3-4	VBL講演会	411
3.3-5	非常勤研究員・ヤングスカラー研究成果報告会	412
3.3-6	VBL活動の様子	414
4.	編集後記	416
5.	連絡先	417

活動成果報告書発刊に際して

地域共生研究開発センター長 鈴木 昇



日頃より宇都宮大学地域共生研究開発センター（以下、地共センター）へのご支援を賜り、厚く御礼申し上げます。当地共センター大学院 VBL 部門の平成 25 年度活動成果報告書をお届けします。

平成 10 年にサテライトベンチャービジネスラボラトリー（SVBL）が発足し、平成 17 年には地域共同研究センター（平成 2 年設置）および機器分析センター（平成 10 年設置）とともに統合し、現在の地共センターの一部門として活動して来ました。発足当初から多くのプロジェクトが走り始め、かつそれぞれのプロジェクトに対しての設備導入とともに、研究・技術開発が活発に行われ、多くの実績を挙げてきました。また、5 年ごとにプロジェクトの見直しが実施され、平成 25 年度が 3 期目の最終年となりました。大学院学生に対しては、企業見学会、講義（先端科学技術特論）、講演会、ヤングスカラーシップ等でベンチャーマインド啓発に努力しました。学生あるいは卒業生によるベンチャー企業の創設といった成果はありませんでしたが、個々の学生が将来に向けてベンチャーマインドを持って活躍してもらえることを期待しています。

当大学院 VBL 部門は、上記のように 3 期目を終了するとともに新しく「イノベーション創成部門」へと移行します。他の多くの大学でも種々の改革がなされ、それぞれが特色ある機関へと移行しておりますが、新部門が宇都宮大学の新たな特色ある機関として認められるべく、今後努力していきたいと考えております。さらに、地域共生研究開発センター内に「URA（University Research Administrator）室」を新たに設置することとなり、別称「外部資金申請書作成室」として、宇都宮大学における研究・技術開発の発展に貢献できればと考えています。

VBL 部門活動への御協力に改めて感謝申し上げますとともに、イノベーション創成部門の飛躍に向けての御意見、御支援を賜りますようお願い申し上げます。

1. 宇都宮大学 VBL 組織 17 年間の 歴史と成果

- 1.1 宇都宮大学 VBL 組織の歩み
- 1.2 全 3 期プロジェクト研究リスト
- 1.3 VBL 施設と大型研究設備
- 1.4 全 3 期プロジェクト研究成果資料
 - 1.4-1 VBL 発ベンチャー企業
 - 1.4-2 特許件数の集計結果
 - 1.4-3 学術成果の集計結果
 - 1.4-4 外部獲得資金件数の集計結果

1. 宇都宮大学 VBL 組織 17 年間の歴史と成果

1. 1 宇都宮大学 VBL 組織の歩み

ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー (VBL) は、平成 7 年 (1995 年) の補正予算で 10 の大規模国立大学に設置が認められスタートした。その後、理工系の研究科に博士後期課程を有する大学に設置が継続され、平成 16 年 (2004 年) には合計 45 大学に VBL または SVBL が設置された。平成 7 年に VBL がスタートしたときの文部省 (当時) からの通達によれば、VBL の任務は、「大学院専門の教育施設として、研究科や専攻の枠を越えて大学院生や若手教官が同一のテーマで教育・研究を行う場として設置されたものであり、ベンチャー・ビジネスの萌芽ともなるべき独創的な研究開発を行うことにより、創造性豊かな人材や高度な専門的職業能力を持つ人材の育成」にある。したがって、VBL 設立の趣旨は、

- ① 将来の産業を支える基盤技術である先端研究の推進
- ② ベンチャー精神に富んだ大学院生・若手研究者の育成
- ③ 専用の研究教育設備の整備による新技術の創出

ということとなる。このように、VBL は基本的には大学院生の教育施設であり、高度な専門職業能力をもった大学院生の教育と、大学院生やポスドク、若い教員の柔軟な頭脳による新しい発想をベンチャー・ビジネスの萌芽となるべき研究成果につなげることが重要な使命となる。宇都宮大学 SVBL (サテライト・ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー) は、平成 9 年の補正予算で設立が認められ、平成 10 年 4 月にスタートした。その後、平成 25 年までに 3 期 (各期 5 年間) のプロジェクトを実施した。表 1 に VBL の変遷をまとめた略年表を示した。宇都宮大学 SVBL の準備期間を含めた 17 年間での準備期間および各期のプロジェクトでの主な取り組みについて以下に述べる。

(1) SVBL 設立準備期間 (1997 年-1999 年)

SVBL 設立のため、平成 9 年 5 月に工学研究科各専攻から 1 名のメンバーを選出し、計 6 名の SVBL 設置計画 WG (ワーキンググループ) を設置した。他大学 VBL の情報・関係資料の収集、および各専攻の意見等を考慮して SVBL 研究開発主テーマ案および 3 つのサブテーマ案が決定された。同年 6 月には、工学部全教官に SVBL 参画の希望と研究テーマを公募し、その結果、参画希望教官 27 名、16 テーマが申請された。WG において「宇都宮大学 SVBL 構想 (案)」を作成し、同年 8 月には工学部・学科長幹事会議で了承を得た「宇都宮大学 SVBL 構想」を文部省に提出した。平成 10 年 4 月、文部省より、平成 10 年度第 1 次補正予算により「宇都宮大学 SVBL 設立」について打診があり、大型研究設備費 3 億円の購入計画、SVBL 施設 (建物図面) 等に関する必要書類を準備することとなった。そこで、SVBL 設立 WG を解散し、SVBL 参加教官の中で各専攻 1 名 (計 6 名) をメンバーとして新たに SVBL 設立準備

備WGを設置した。同年5月にSVBL参画教官会議を開催し、SVBL設立の経過説明および大型研究設備・施設等に関わる文部省への提出書類の作成を依頼した。同年11月にSVBL規定・運営委員会規定・利用内規を制定し、平成11年4月に第1期16プロジェクトが発足した。平成10年11月に着工したSVBL施設（研究棟）は平成11年7月末に竣工した。SVBL発足時の組織体制を図1に示す。平成11年11月の竣工記念式典・記念講演会・祝賀会を挙行了した。

(2) 第1期プロジェクト（1999年-2003年）

第1期プロジェクトは、統一テーマ「超高機能材料の創成と評価システム技術」のもと、3つのサブプロジェクトに合計16の個別プロジェクトが参加してのスタートであった。平成11年（1999年）8月に、建物の建設と先端的な機器の導入がなされ、実質的な研究はこのときから始まった。平成12年（2000年）に新しいプロジェクトが公募され、3つの個別プロジェクトが新たに加わって、個別プロジェクトの総数は19（工学系16、農学系3）になった。外部評価を受けた第1期プロジェクト全体の成果は、ベンチャー企業の企業中1件、研究成果の企業化6件、外国特許成立ないし出願12件、国内特許成立ないし出願49件、主任指導した博士後期課程学生52人、主任指導した博士前期課程学生331人、学会賞受賞8件、国際会議招待講演17件、外国著書著作10件、国内学会招待講演13件、国外学術雑誌原著論文159編、著書著述22件、論文賞等受賞16件、総説13編、国内学術雑誌原著論文215編、産官学コンソーシアム活動19件、会社との共同研究112件、科研費等外部資金導入68件、国際会議発表265件、奨励寄付金105件、成果の新聞等発表52件等が挙げられる。SVBLに参加してきた19の研究グループが総体として非常に活発であり、多くの教育・研究成果を挙げることができた。

(3) 第2期プロジェクト（2004年-2008年）

第2期プロジェクトでは、平成15年（2003年）に第1期プロジェクトに対しての外部評価を実施して約半数のプロジェクトのみを残し、翌16年度に新たに新規プロジェクトの募集・選考が行われ、19のプロジェクト（工学系16、農学系3）で進められた。また、平成16年4月からの国立大学法人化をむかえ、宇都宮大学が国立大学法人宇都宮大学になるにあたり、SVBLのS（サテライト）をとって、VBL（ベンチャービジネス・ラボラトリー）と名称を変更した。さらに、平成17年（2005）4月に組織改革が行われ、宇都宮大学地域共同研究センター、宇都宮大学機器分析センター、および宇都宮大学ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー（VBL）の3つの施設の合併・融合し、宇都宮大学地域共生研究開発センターとしてスタートした（図2）。VBLはセンターの大学院VBL部門となり、大学院生の教育を第一とし、地域貢献および先端的研究開発を担当することとなった。さらにVBL部門内に基礎研究領域室、連携研究領域室、先端計測分析室を設け、従来のVBLの任務を維持しつつ、センターの他の部門、コーディネーション・リエゾン部門および客員部門と協力して、地域産業との共生を目指した研究の展開を進めることとなった。外部評価を受けた第

2期プロジェクトの4年間の実績（2004年-2007年）は、若手育成に関しては、約600編の原著論文のうち300編近くが、また国際会議発表約300件のうち200件以上（国内発表では約1,100件のうち9割近く）が学生との共著になっている。VBLプロジェクトメンバーの主任指導を受ける博士後期課程学生数は77名に及んでおり、大学院教育で設置目的にかなう実績をあげた。研究開発ではベンチャー1社、特許出願85件、学会賞81件、総説・解説93編、新聞・雑誌での研究紹介90件を数えるに至った。特に、外部資金は300件を越え、総額約10億円を獲得しており、本学のポテンシャル向上に貢献できた。

(4) 第3期プロジェクト（2009-2013年）

第3期プロジェクトでは、研究分野に制限を設けずに公募形式により27のプロジェクトを選定し、スタートした。また、VBLの10年目の年を大きな区切りと考え、第1期および第2期の外部評価の結果および全国的なVBLの動きを踏まえたVBLのあり方について見直しをおこなった。具体的には、今までの2つの旗印『萌芽ともなる独創的な研究開発推進』『高度な専門職業能力を持つ有為な人材の育成』に、新たな旗印『インキュベーション推進』を加えた。そのため、平成21年度（2009年度）を移行期間として、大学院VBL部門にインキュベーション推進室を設置し、インキュベーションを推進するコーディネーターを配置した（図3）。また、期間中、プロジェクトリーダーの退官等の理由により27プロジェクトから25プロジェクトと変更になった。第3期プロジェクト全体の成果として、ベンチャー企業の企業中1件、特許成立ないし出願101件、受賞90件、国内外学術雑誌原著論文482編、著書著述46件、総説・解説56編、外部資金導入342件、国際会議発表439件等となっている。

一方で、2013年には、多くの大学がVBLの廃止や、発展的に改組して新たな組織を創り上げる等の方向に進んでいる。具体的には、インキュベーション機能を拡張してのベンチャー企業等への施設や部屋の提供、研究者の研究活動の推進や研究マネジメント強化、さらにはファンド申請などの専門人材であるユニバーシティ・リサーチ・アドミニストレーター（URA）組織の設置など、時代の流れを的確に把握した組織への改編が進んでいる。本学VBL部門においては、2013年度をもってVBL部門を廃止し、その後継として新たにイノベーション創成部門（CDI）を立ち上げることが決定し、VBLの使命と機能はCDI部門に引き継がれることとなった。

1. 2 全3期プロジェクト研究リスト

全3期プロジェクトの研究リスト及び担当の研究者を表2～4に示した。第1期プロジェクト研究は「超高機能性材料の創成と評価システム技術に関する研究開発」のもとにサブプロジェクトとして「超高機能性材料の創成基盤技術」「超高機能性材料の創成システム技術」「超高機能性材料の評価システム技術」を掲げ、総計19の個別プロジェクトで推進した(表2)。なお、第1期プロジェクトでは、平成11年4月より16の個別プロジェクトがスタートし、さらに平成12年には3つの個別プロジェクトを追加することで、計19の個別プロジェクトとして第1期プロジェクトが進められた。第2期プロジェクトでは、第1期の個別プロジェクトの半数を入れ替え、同じく19の個別プロジェクトで研究を推進した(表3)第3期プロジェクトでは、研究分野に制限を設けずに公募形式により27の個別プロジェクトを選定し、スタートした(表4)。教官の退官等により、プロジェクトの最終年度では25の個別プロジェクトとなっている。

1. 3 VBL 施設と大型研究設備

平成10年11月に着工したSVBL施設(研究棟)は、平成11年7月末に竣工した。本研究棟は、工学部敷地内、既設の地域共同研究センターに隣接し、建物延べ面積1500m²、3階建て、クリーンルームをはじめとして、7つの実験室とセミナー室、製品化相談室に加え、院生・若手研究者が自由に交流・討論できるプレイン・コミュニケーション・ルームを備えている(図4)。以下に、主な大型研究設備リストを記す。大型研究設備の写真を図5に示した。

1. 超薄膜構造解析システム
2. 超短-超高出力レーザーシステム
3. 温度可変型走査型トンネル顕微鏡システム
4. 高性能走査イオン顕微鏡
5. ダイヤモンドCVD装置
6. 結晶粒方位解析システム
7. 熱分析-デジタル旋光システム
8. 高精度形状-機械特性測定評価システム
9. 三次元レーザ計測-画像情報解析システム
10. 高並列ケイ酸エンジンシステム

1. 4 全3期プロジェクト研究成果資料

本節では、全3期プロジェクトの研究成果について比較したデータを資料としてここに掲載した。なお、第1期および第2期のプロジェクト成果は、平成15年および平成20年にまとめた外部評価報告書からデータを収集した。また、第3期のプロジェクト成果は、本書の後半に掲載した各個別プロジェクトの研究成果を集計した。各期の集計規模や期間が若干異なっているものの、VBL活動によって得られた研究成果を比較する上では有益であると思われる。

1. 4. 1 VBL 発ベンチャー企業

VBL 発ベンチャー企業および製品化の主な成果を表5にまとめた。また図6には代表的なVBL 発ベンチャー企業の概要を示した。第1期から第3期までの研究成果をもとに起業や製品化が表に示したように達成された。この中の幾つかは現在も企業活動を継続している。

1. 4. 2 特許件数の集計結果

第1期、第2期および第3期でのベンチャー起業、企業化、および特許における件数の推移を図7に示す。ベンチャー起業数は各期とも1ないし2件を達成した。一方、企業化に関しては第1期では件数が多かったものの、第2期および第3期ではほとんど達成されなかった。また、起業および企業化に必要な知的財産を示す特許の件数は、第3期が最も多かった。

1. 4. 3 学術成果の集計結果

図8に各期における「学会賞与」「著書」「原著論文」「国際会議発表」「国内学会発表」「総説・解説等」の各成果の件数を棒グラフとしてまとめた。国際会議および国内学内発表は、徐々に増えている。一方、その他の項目は各期であまり変わらず、一定の成果を維持したことが示された。

1. 4. 4 外部獲得資金件数および総額の集計結果

図9に各期における「外部資金件数」および「総額」を棒グラフで示した。第1期よりも第2、3期の方が外部資金の獲得件数および総額は多くなっている。一方、第2期および第3期を比較すると、ほぼ変わらずに一定の件数と総額を維持する結果となった。

表1 VBL組織の略年表

	西暦	年号	事項
設立準備期間	1997年	平成9年	宇都宮大学SVBL設立計画WGを設置(5月) 工学部全教官にSVBL参画の希望と研究テーマを公募(6月) 宇都宮大学SVBL構想を文部省に提出(8月)
	1998年	平成10年	SVBL設立計画WGの解散(5月) SVBL設立準備WGの設置(5月) 宇都宮大学SVBL規定・運営委員会規定・利用内規の制定(11月)
第1期	1999年	平成11年	第1期16プロジェクトのスタート(4月) SVBL施設竣工(7月) SVBL大型研究設備の導入と設置(8~9月) SVBL施設竣工記念式典・記念講演会・祝賀会を挙(10月)
	2000年	平成12年	公募によって3プロジェクトを追加(計19プロジェクト)
	2002年	平成14年	外部評価の実施
第2期	2003年	平成15年	SVBLをVBLと名称を変更 新規プロジェクトの公募
	2004年	平成16年	第2期19プロジェクトのスタート(4月)
	2005年	平成17年	宇都宮SVBLから地域共生研究開発センター 大学院VBLに改組 VBL部門内に、基礎研究領域室、連携研究領域室、先端計測分析室を設置
	2007年	平成19年	外部評価の実施
第3期	2008年	平成20年	新規プロジェクトの公募
	2009年	平成21年	第3期27プロジェクトのスタート(4月)
	2010年	平成22年	インキュベーション推進室の設置 コーディネーターの配置
	2013年	平成25年	地域共生研究開発センター大学院VBLから同イノベーション創成部門に改組

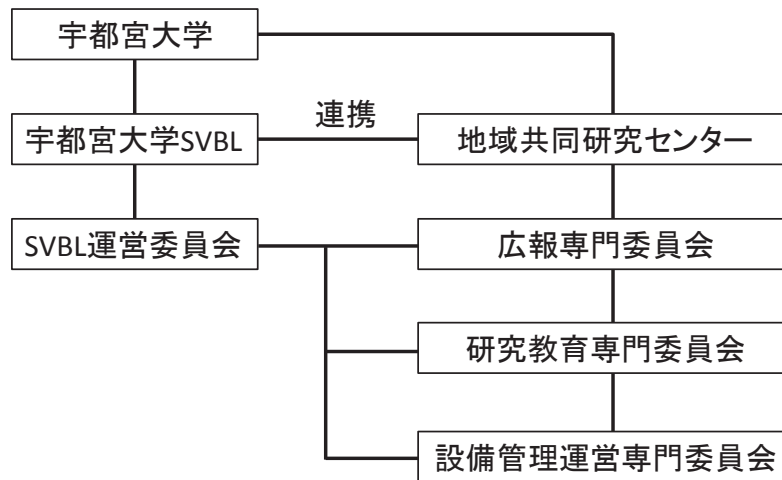


図1 設立当初のSVBL組織

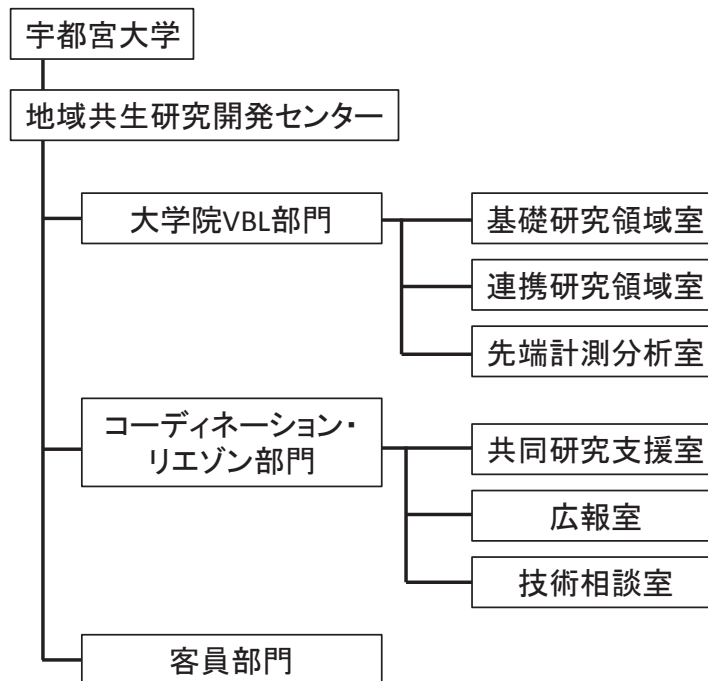


図2 平成17年度-平成20年度までのVBL組織図

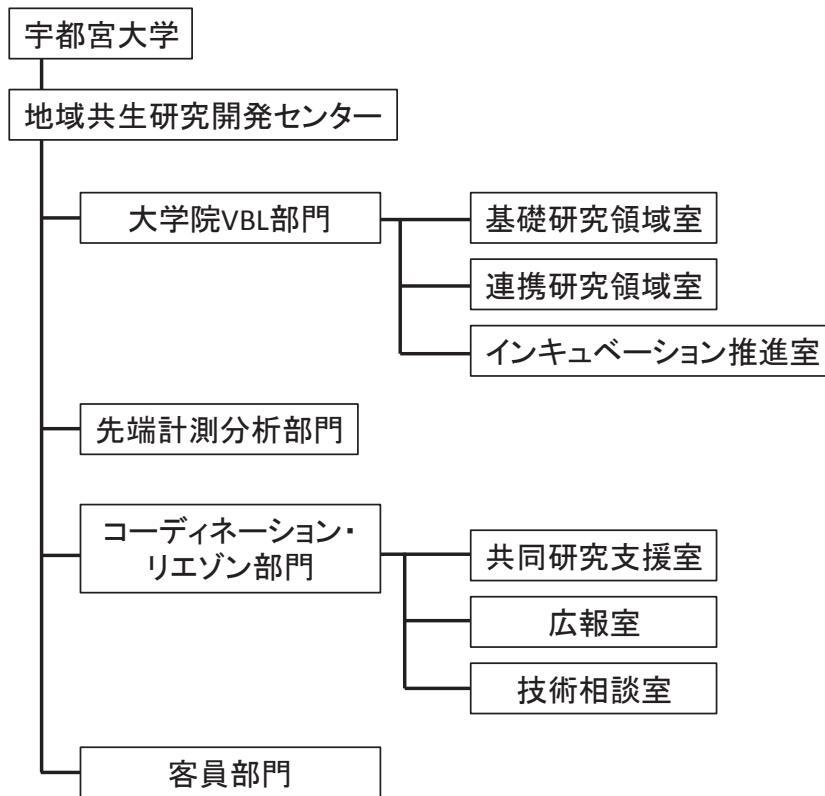


図3 平成21年度-平成25年度までのVBL組織図

表2 第1期プロジェクト・リスト

番号	ジャンプエクトロ	「超高機能材料の創成と評価システム技術」プロジェクト	プロジェクトメンバー
1	超高機能性材料の創製基盤技術	先端機能性有機超薄膜技術の開発研究	加藤貞二、鈴木 昇、飯村兼一、上原伸夫
2		極限電磁場下における超高機能性物質の創成と物性工学に関する研究	西田 靖、湯上 登、伊藤弘昭
3		量子効果超伝導デバイスの開発研究	大矢銀一郎、入江晃亘、鈴木光政
4		高次機能量子薄膜の原子構造制御とその材料開発	(井野正三)、江川千佳司、南 伸晶、岩井秀和、中井俊一、柏倉隆之
5		クラスター堆積によるナノ構造磁性体の創成と応用	石井 清
6		新機能性カーボン材料の創製とその電気化学的応用	白樫高史、吉原佐知雄
7	超高機能性材料の創成システム技術	結晶粒界—結晶方位制御による高性能金属系材料の研究	加藤 一、高山善匡
8		高度刺激応答性高分子ゲルの機能性研究とそのシステム開発	酒井保藏、加藤紀弘、(高橋不二雄)
9		光学活性機能性物質創成技術の研究開発	平谷和久、(上原忠夫)、関桂、刈込道德
10		高性能・高機能性コンクリートの開発と応用	樹田吉弘、中村成春
11		複雑多機能マイクロ部品の磁気援用超精密加工技術の開発	進村武男、山口ひとみ
12		秩序ペロフスカイト型Cd ₃ TeO ₆ への電子ドーピング	井本英夫、単躍進(吉村千里)、手塚慶太郎
13		超臨界二酸化炭素を用いた高機能性材料製造システムの開発	葭田真昭
14	超高機能性材料の評価システム技術	温度速度同時計測能を有したレーザー粒子の試作及び評価	(秋山光庸)、杉山 均、二宮 尚
15		原子間力顕微鏡を用いたナノマシニングに関する研究	市田良夫、森本喜隆、佐藤隆之介
16		人間感覚に基づく評価システム技術の開発	山本純雄、小川(横田)和隆、尾崎功一
17		高機能電子デバイス製造及び評価用高精度位置決め制御に関する研究	(神山雄三)、船渡寛人
18		並列・分散ネットワークコンピューティングシステムの研究開発	馬場敬信、横田隆史、大津金光、(山口 亨)、(吉永努)
19		超高周波数領域における機能性材料の電磁特性の精密評価	白石和男、松村和仁、苫米地義郎、古神義則、依田秀彦

表3 第2期プロジェクト・リスト

番号	サブプロ	「超高機能材料の創成と評価システム技術」プロジェクト	プロジェクトメンバー (○印:プロジェクトリーダー)
1	超高機能材料の創成基盤技術	先端機能性有機超薄膜技術の開発研究	○飯村兼一、上原伸夫
2		極限電磁場下における超高機能性物質の創成と物性工学に関する研究	○湯上 登、東口武史
3		新機能性カーボン材料の創製とその電気化学的応用	○吉原佐知雄
4		磁気、温度等への感受性を特徴とする機能性材料の創製とシステム開発	○酒井保臈
5		機能化表面・膜材料のナノ解析評価と次世代プロセスへの応用	○鈴木昇、伊藤直次、佐藤正秀、古澤 毅、佐藤剛史
6		生物時計機構の分子細胞遺伝的解析による新技術・新規光受容素子の開発	○飯郷雅之、羽生直人、二瓶賢一
7	超高機能性材料の創成システム技術	高性能・高機能性コンクリートの開発と応用	○榎田佳寛、中村成春
8		複雑多機能マイクロ部品の磁気援用超精密加工技術の開発	○進村武男、山口ひとみ
9		超臨界二酸化炭素を用いた高機能性材料製造システムの開発	○葭田真昭
10		有機化学的、生物化学的アプローチによる高性能化学応答材料の創成に関する研究	○平谷和久、伊藤智志、池田 宰、加藤紀弘、諸星知広
11		金属複合酸化物を用いた新機能材料開発	○井本英夫、江川千佳司、単躍進、南 伸昌、岩井秀和、手塚慶太郎
12		人間の健康・環境に資する高機能・高付加価値生物系素材の開発と応用	○関本 均、東 徳洋、上田俊策
13		高水分生物系廃棄物の気相環境制御型コンポスト化システムの開発	○志賀 徹、後藤 章、岩淵和則、柏寄 勝
14	超高機能性材料の評価システム技術	温度速度同時計測能を有したトレーサー粒子の試作及び評価	○二宮 尚
15		視覚情報による計測・評価システムの開発	○尾崎功一、渡辺信一、横田和隆
16		並列・分散ネットワークコンピューティングシステムの研究開発	○馬場敬信、横田隆史、大津金光
17		超高周波数領域における機能性材料の電磁特性の精密評価	○白石和男、苫米地義郎、古神義則、依田秀彦
18		環境調和型パワーエレクトロニクスシステムの開発	○船渡寛人
19		ナノスケール表面創成と超精密・微細加工に関する研究	○市田良夫、森本喜隆、佐藤隆之介

表4 第3期プロジェクト・リスト

番号	プロジェクト研究題目	代表者名	研究分担者
1	木質・リグノセルロース廃棄物を原料としたオゾン酸化・酵素糖化法によるバイオアルコール生産技術の開発	吉澤伸夫	飯塚和也, 横田信三, 石栗太
2	産業有用魚種における革新的な性別制御法の開発	松田勝	
3	発生工学技術を活用した新しい優良盲導犬の繁殖・育成システムの開発	長尾慶和	
4	昆虫の発育を制御する遺伝子調節領域の解析	川崎秀樹	岩永将司
5	体内時計に支配される日周リズム・季節リズムの制御機構解明とその応用	飯郷雅之	羽生直人, 青山真人
6	タケ類の花成促進遺伝子FTホモログをマーカーとしたタケモザイクウイルスBaMVベクターの開発と実用化	小林幹夫	
7	人体の弾性計測と三次元シミュレーションモデル	酒井直隆	嶋脇聡
8	磁気を利用した超精密加工技術の実用化・企業化推進研究	鄒艶華	
9	機械創成プロジェクト	尾崎功一	渡邊信一, (SAM ANN RAHOK)
10	超高純度アルミニウムの室温における動的・静的復旧過程	高山善匡	
11	紫外および可視光領域光触媒活性度測定に必要な標準サンプル薄膜の開発	石井清	佐久間洋志, 柏倉隆之, 荘司弘樹
12	超伝導スピントロニクスの創製とデバイス開発	入江晃亘	大矢銀一郎, 北村通英, 八巻 和宏
13	レーザー生成プラズマを用いた高効率超小型紫外・テラヘルツ光源の開発	湯上登	東口武史
14	環境調和型システムデザイン	船渡寛人	平田光男
15	ベンチャーマインド育成のための膜・機能物質材料開発および超臨界反応解析研究の推進	伊藤直次	佐藤剛史, 伊藤智志
16	超薄分子膜を利用した界面制御技術の開発と先端機能材料の創製	飯村兼一	
17	高度ヘルスケアを実現する機能性ソフトマテリアルの開発	加藤紀弘	
18	ポロンドーブダイヤモンドの電子物性の解析及びそれを用いた環境センシング・対処技術の開発	吉原佐知雄	鈴木光政,
19	モレキュラーデザインによる環境微生物制御系の創出	池田幸	前田勇, 二瓶賢一, 諸星知広
20	マイクロ波反応プロセスによる新規機能性材料の創製と応用	鈴木昇	佐藤正秀, 古澤毅 (NewazMohammed Bahadur)
21	無機フロンティアマテリアルの創製	単躍進	井本英夫, 江川千佳司, 岩井秀和, 手塚慶太郎, (崔協力)
22	次世代水再生プロセスとしての磁化活性汚泥法の実用化研究	酒井保藏	
23	超臨界二酸化炭素を用いた環境調和型有用化合物製造の実用化研究	葭田真昭	
24	高性能・高機能コンクリートの開発と応用	柘田吉弘	杉山 央, 李 榮蘭
25	地圏環境負荷の低減・評価技術開発に関する研究	今泉繁良	清木隆文
26	超自律型並列分散ネットワークコンピューティングシステムの研究開発	横田隆史	大津金光, 大川猛
27	マルチメディアコンテンツ作成支援システムの開発	東海林健二	宮道壽一, 外山史



(1)エントランス、(2)エントランスホール、(3)ブレイン・コミュニケーション・ルーム、(4)セミナー室

図4 VBL施設の概要



超薄膜構造解析システム



結晶粒方位解析システム



ダイヤモンドCVD装置



高精度形状
機械特性測定評価システム



クリーンルーム

図5 大型研究設備

表5 起業および製品化の主要リスト

会社名	起業年または製品化年	プロジェクト成果番号	概要
井野真空研究所	2003年	第1期プロジェクト4	井野正三氏が宇都宮大学を退官後に起業し、VBLプロジェクトで開発した「高性能汎用型電子銃」に改良を加えた製品の販売を実施した。
有限会社マロニエ技術研究所	2004年	第2期プロジェクト4 第3期プロジェクト10	宇都宮大学発のベンチャー起業第2号として、工学部内に資本金300万円にて設立
合弁会社ロモビリティ陽東	2006年	第2期プロジェクト15 第3期プロジェクト8	イチゴ摘みロボットの実用化等の農業用ロボットの設計・開発・制作、移動用機材・検査機器等の設計・開発・制作、研究開発コンサルティング、連携コーディネート。
時期制御技術研究会	2007年	第2期プロジェクト4	未来開拓学術研究推進事業「磁気分離プロジェクト」の成果をもとに、大阪大学・助手・武田真一氏が退職して起業した。第2期プロジェクトの研究テーマである磁化活性汚泥法は磁気分離プロジェクトにおける主要な成果の一つである。

光触媒活性テスター

- ・宇都宮大学ベンチャー企業 第2号
有限会社 マロニエ技術研究所
- ・VBL研究プロジェクト(2009-2012年度)

紫外および可視光領域光触媒活性度
測定に必要な標準サンプル薄膜の開発

工学研究科 教授 石井 清



携帯型光触媒テスター

ロボットの實用化

- ・宇都宮大学ベンチャー企業 第3号
合同会社 ロモビリティ陽東
- ・VBL研究プロジェクト(2009-2011年度)

機械創成プロジェクト
～實用化に向けたロボットの研究開発～

工学研究科 教授 尾崎 功一



つくばチャレンジを完走した自立型ロボット「ERIE」

図6 代表的なベンチャー企業の概要

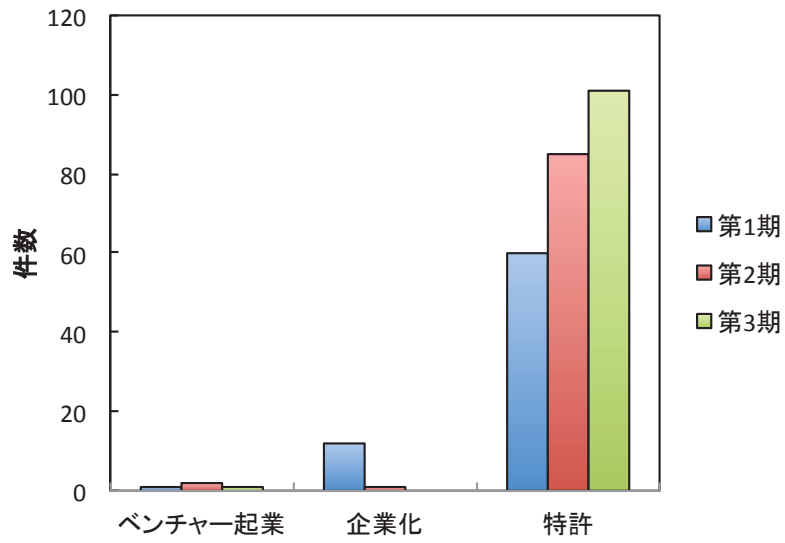


図7 ベンチャー起業件数、企業化件数および特許件数の推移

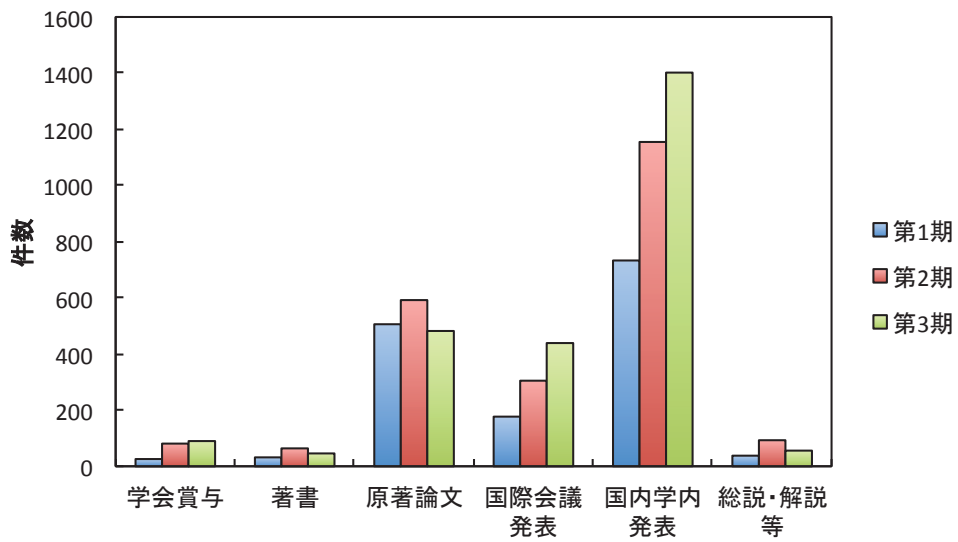


図8 学術成果の推移

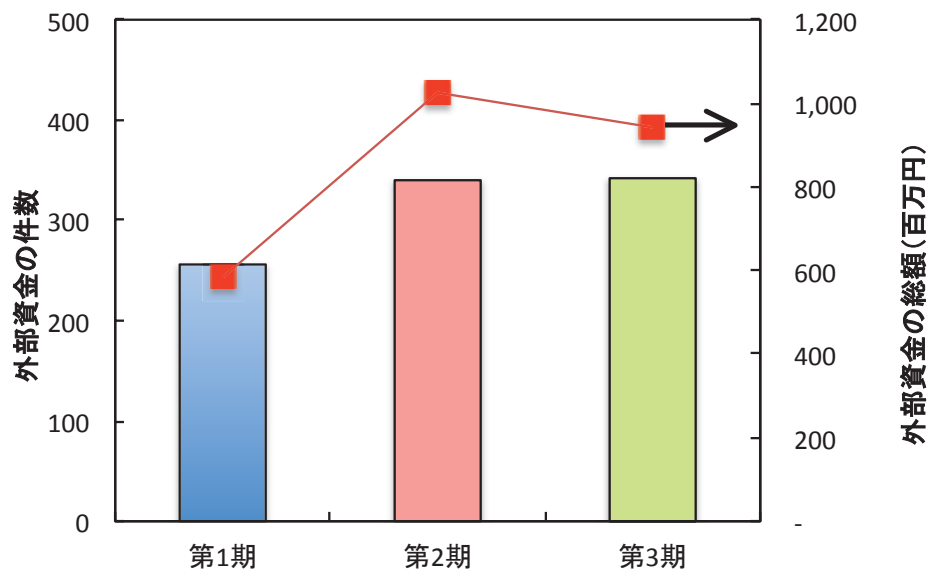


図9 外部資金の件数および総額の推移

2. 第3期プロジェクト成果

(平成21－25年)

2.1 第3期VBLプロジェクト研究一覧表

2.2 各プロジェクト研究成果報告

2.1

第3期 VBL プロジェクト研究一覧

番号	プロジェクト研究題目	期間 (年)	代表者名	部局等・職	研究分担者
1	木質・リグノセルロース廃棄物を原料としたオゾン酸化・酵素糖化法によるバイオアルコール生産技術の開発	3	吉澤伸夫	農学部・教授	飯塚和也, 横田信三, 石栗太
2	産業有用魚種における革新的な性別制御法の開発	5	松田勝	バイオサイエンス教育研究センター・准教授	
3	発生工学技術を活用した新しい優良盲導犬の繁殖・育成システムの開発	5	長尾慶和	農学部附属農場・教授	
4	昆虫の発育を制御する遺伝子調節領域の解析	4	川崎秀樹	農学部・教授	岩永将司
5	体内時計に支配される日周リズム・季節リズムの制御機構解明とその応用	5	飯郷雅之	農学部・准教授	羽生直人, 青山真人
6	タケ類の花成促進遺伝子FTホモログをマーカーとしたタケモザイクウイルスBaMVベクターの開発と実用化	3	小林幹夫	農学部・教授	
7	人体の弾性計測と三次元シミュレーションモデル	5	酒井直隆	工学研究科・教授	嶋脇聡
8	磁気を利用した超精密加工技術の実用化・企業化推進研究	5	鄒艶華	工学研究科・准教授	
9	機械創成プロジェクト	3	尾崎功一	工学研究科・教授	渡邊信一, (SAM ANN RAHOK)
10	超高純度アルミニウムの室温における動的・静的復旧過程	5	高山善匡	工学研究科・教授	
11	紫外および可視光領域光触媒活性度測定に必要な標準サンプル薄膜の開発	3	石井清	工学研究科・教授	佐久間洋志, 柏倉隆之, 荘司弘樹
12	超伝導スピントロニクスへの創製とデバイス開発	5	入江晃亘	工学研究科・教授	大矢銀一郎, 北村通英 八巻 和宏
13	レーザー生成プラズマを用いた高効率超小型紫外・テラヘルツ光源の開発	5	湯上登	工学研究科・教授	東口武史
14	環境調和型システムデザイン	5	船渡寛人	工学研究科・准教授	平田光男
15	ベンチャーマインド育成のための膜・機能物質材料開発および超臨界反応解析研究の推進	3	伊藤直次	工学研究科・教授	佐藤剛史, 伊藤智志
16	超薄分子膜を利用した界面制御技術の開発と先端機能材料の創製	5	飯村兼一	工学研究科・准教授	
17	高度ヘルスケアを実現する機能性ソフトマテリアルの開発	5	加藤紀弘	工学研究科・教授	
18	ボロンドープダイヤモンドの電子物性の解析及びそれを用いた環境センシング・対処技術の開発	5	吉原佐知雄	工学研究科・准教授	鈴木光政,
19	モレキュラーデザインによる環境微生物制御系の創出	5	池田宰	工学研究科・教授	前田勇, 二瓶賢一, 諸星知広
20	マイクロ波反応プロセスによる新規機能性材料の創製と応用	5	鈴木昇	工学研究科・教授	佐藤正秀, 古澤毅 (NewazMohammed Bahadur)
21	無機フロンティアマテリアルの創製	5	単躍進	工学研究科・准教授	井本英夫, 江川千佳司, 岩井秀和, 手塚慶太郎 (崔 協力)
22	次世代水再生プロセスとしての磁化活性汚泥法の実用化研究	5	酒井保藏	工学研究科・准教授	
23	超臨界二酸化炭素を用いた環境調和型有用化合物製造の実用化研究	5	葭田真昭	工学研究科・准教授	
24	高性能・高機能コンクリートの開発と応用	5	榊田吉弘	工学研究科・教授	杉山 央, 李 榮蘭
25	地圏環境負荷の低減・評価技術開発に関する研究	4	今泉繁良	工学研究科・教授	清木隆文
26	超自律型並列分散ネットワークコンピューティングシステムの研究開発	5	横田隆史	工学研究科・教授	大津金光, 大川猛
27	マルチメディアコンテンツ作成支援システムの開発	5	東海林健二	工学研究科・教授	宮道壽一, 外山史

※プロジェクト6は平成21-23年、プロジェクト25は平成21-24年の期間で実施

木質・リグノセルロース廃棄物を原料としたオゾン酸化・酵素糖化法によるバイオアルコール生産技術の開発

横田信三(教授)^{*1}, 故吉澤伸夫(教授)^{*1},
飯塚和也(准教授)^{*2}, 石栗 太(准教授)^{*1}, 高島有哉(VBL 中核的機関研究員)^{*1}

*1 農学部森林科学科 yokotas@cc.utsunomiya-u.ac.jp

*2 農学部附属演習林 kiizuka@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1. アラゲキクラゲ栽培後廃菌床のオゾン処理、酵素糖化、及びエタノール発酵

緒言

アラゲキクラゲは、日本やインドネシアなどの熱帯地域を含む、多くの国々で栽培されている食用きのこの一種である。インドネシアにおいては、農家が栽培した後に多量の廃菌床が排出され、その有効利用が求められている。アラゲキクラゲは、担子菌類に属する白色腐朽菌であり、栽培中に菌床木粉のリグニンをおある程度分解・変成する。従って、排出される廃菌床は、バイオエタノール生産原料として適していると考えられる。実際に我々は、異なる日本産5樹種の木粉を基材とした菌床を用いてアラゲキクラゲを栽培し、得られた廃菌床を酵素糖化した結果、高収率でエタノール発酵可能な単糖類を得ることが出来た¹⁾。しかしながら、廃菌床中にはまだかなりのリグニンが残存していた。従って、この残存リグニン量を減少させる前処理を施すことにより、発酵可能な単糖類の収量を更に向上させることが可能となる。その様な前処理法の一つとして、オゾン酸化が挙げられる。オゾンは、強力な酸化剤として知られており、リグノセルロース中のリグニンを選択的に分解し、ヘミセルロースを若干分解するものの、セルロースには殆ど影響を及ぼさない²⁾。本研究の目的は、インドネシア産樹種の木粉で作製した菌床を用いてアラゲキクラゲを栽培し、得られた廃菌床をオゾン酸化処理した後、酵素糖化及びそれに続くエタノール発酵を行うことにより、オゾン酸化前処理の有効性を調べることである。

実験

インドネシア産樹種(*Falcataria moluccana*, *Shorea* sp., *Tectona grandis*)の木粉(9-80メッシュ)を培地基材として用いた。アラゲキクラゲ(*Auricularia polytricha*)の菌株として、森産業の89号を使用した。木粉に米糠及びCaCO₃を添加し、蒸留水を加えて含水率を70%に

調整後、150g の培地混合物をポリプロピレン製栽培袋に詰めた。菌床をオートクレーブ後、菌を接種し、130 日間培養した。得られた子実体の収量を Table 1 に示す。廃菌床の絶乾サンプル 1g を 100mL 容ナスフラスコに入れ、これに蒸留水を加えて含水率を 40% に調整後、オゾン濃度 6% で 1 時間処理し、廃菌床のオゾン酸化を行った。廃菌床のホロセルロース、 α -セルロース、クラースンリグニン、及び酸可溶性リグニンの定量は、常法に従って行った。廃菌床の酵素糖化には、市販の酵素、メイセラゼ (明治製菓) を使用した。乾燥機で乾燥後のサンプル 200mg を L 字管に入れ、これに 50mg の酵素を含む緩衝液を加え、40°C で 48 時間反応させた。酵素加水分解率及び単糖類の定量は、既報¹⁾に従って行った。還元糖の定量は、ジニトロサリチル酸法³⁾により行った。酵素糖化物のエタノール発酵には、酵母 *Saccharomyces cerevisiae* NBRC 0216 を用いた。凍結乾燥した糖化物を 1.5mL 容マイクロチューブに入れ、これに培養液 (1% ポリペプトン、0.5% 酵母抽出物、0.5% KH_2PO_4 、0.2% MgSO_4 、pH6.0) を加えた。オートクレーブ後、酵母を接種し、30°C で 48 時間静置して培養した。培養後、培養物を遠心分離し、上澄みをガスクロマトグラフィーにより分析してエタノールを定量した。

結果及び考察

アラゲキクラゲ栽培後の絶乾重量減少率は、20.7-42.8% の範囲で変動した。*F. moluccana* の菌床において、栽培後の子実体収量及び菌床の重量減少率が最大値を示し (Tables 1, 2)、この樹種がアラゲキクラゲの栽培に適していることが判明した。菌床中のホロセルロース、 α -セルロース、クラースンリグニン、酸可溶性リグニンの定量結果を Table 2 に示す。栽培後の廃菌床におけるクラースンリグニンの減少率は、*F. moluccana* で最大値を示し、一方、 α -セルロースの減少率は、*F. moluccana* 及び *Shorea* sp. で最大となった。オゾン処理後のクラースンリグニン減少率は、*F. moluccana*, *Shorea* sp. 及び *T. grandis* でそれぞれ 76.4, 77.8, 及び 60.3% であった。これに対して、 α -セルロースの減少率は、それぞれ 7.1, -3.9, 及び 13.4% を示した。これらの結果は、オゾン処理はリグニンに対して効果的であり、セルロースに対する影響が小さいことを示している。酸可溶性リグニン量は、栽培後の廃菌床よりもオゾン処理した廃菌床において減少していた。これは、この画分がオゾンにより分解され、有機溶媒抽出物として溶出したためと考えられる。事実、オゾン処理した廃菌床における有機溶媒抽出物量は、3 樹種ともかなり増加していた (Table 2)。Table 3 に酵素糖化後の重量減少率、還元糖量及び単糖類の収量を示す。各項目とも、栽培後の廃菌床の方が栽培前の菌床よりも大きい値を示した。従って、アラゲキクラゲの栽培中、セルロースの周りを固

Table 1 Mean yield of fruiting body in each wood species

Wood species	Fresh weight (g)	Dry weight (g)
<i>F. moluccana</i>	65.4 ± 4.5 c	7.6 ± 0.8 c
<i>Shorea</i> sp.	52.6 ± 15.0 b	5.2 ± 1.0 b
<i>T. grandis</i>	32.0 ± 11.3 a	2.6 ± 1.3 a

The same alphabet letter followed by mean and standard deviation shows no significant differences between wood species by Tukey-Kramer test at the 5 % level

めていたリグニンが菌によって分解され、その結果、セルラーゼが容易にセルロースを分解したと考えられる。実際に、リグニン含有量とグルコース収量との間には、負の有意な相関が見られた (Fig. 1)。Shorea sp. のオゾン処理した廃菌床において、重量減少率、還元糖量及びグルコース収量とも最大値を示した (Table 3)。Shorea sp. では、廃菌床をオゾン処理した場合、クラーソンリグニンの減少率が最大となり、一方、 α -セルロースは、まだかなり高い値を示した (Table 2)。従って、Shorea sp. のオゾン処理した廃菌床では、かなり多量に残存していたセルロースがセルラーゼによって容易に加水分解され、その結果、高い重量減少率、還元糖量、及びグルコース収量が得られたと考えられる。グルコースが、酵素糖化後に得られた単糖類の内、最大量を示した (Table 3)。グルコースとガラクトース収量が、栽培前の菌床と比べて廃菌床において高い値を示した。また、オゾン処理によってグルコース及びキシロース収量は増加したが、ガラクトース収量は減少した。Table 4 に、廃菌床及びオゾン処理した廃菌床から得られた糖化物の発酵によって生成したエタノール収量を示す。本研究で得られた結果は、Acacia mangium と F. moluccana を用いて得た、Kaida ら⁴⁾の結果と同様であった。本研究で用いた3樹種の内、Shorea sp. が最高エタノール収量を示した。また、廃菌床と比較して、オゾン処理した廃菌床の方が高いエタノール収量を示した。従って、オゾン処理は、アラゲキクラゲ廃菌床からエタノールを生産するための適した前処理法であると考えられる。

Table 2 Dry weight and chemical components of fresh medium (FM), spent medium (SM), and ozone-treated spent medium (SMO)

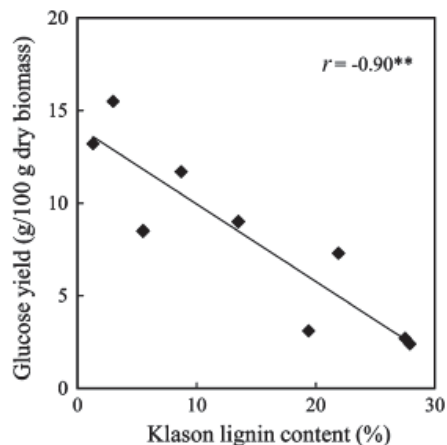
	WM	FM	SM	SMO	Decrease ratio (%)	
	Mean \pm SD	Mean \pm SD	Mean \pm SD	Mean \pm SD	FM to SM	SM to SMO
<i>F. moluccana</i>						
Dry weight in a bag (g)	37.2*	48.4 \pm 0.5	27.7 \pm 3.8	23.3*	42.8	15.9
Klason lignin (%)	23.3 \pm 0.3	19.4 \pm 0.5	5.5 \pm 0.1	1.3 \pm 0.4	71.6	76.4
Acid-soluble lignin (%)	2.8 \pm 0.1	2.8 \pm 0.1	2.5 \pm 0.0	1.4 \pm 0.0	10.7	44.0
Holocellulose (%)	80.8 \pm 0.6	73.4 \pm 2.5	41.0 \pm 4.2	33.1 \pm 0.8	44.1	19.3
α -Cellulose (%)	45.3 \pm 1.1	40.0 \pm 0.2	16.9 \pm 0.8	15.7 \pm 0.5	57.8	7.1
Ethanol-toluene extracts (%)	2.9 \pm 0.4	5.2 \pm 0.2	2.6 \pm 0.0	6.3 \pm 0.4	50.0	-142.3
<i>Shorea sp.</i>						
Dry weight in a bag (g)	37.2*	50.3 \pm 0.3	34.5 \pm 3.5	28.8*	31.4	16.5
Klason lignin (%)	30.9 \pm 0.4	27.9 \pm 0.3	13.5 \pm 1.6	3.0 \pm 0.8	51.6	77.8
Acid-soluble lignin (%)	1.5 \pm 0.1	1.5 \pm 0.1	2.4 \pm 0.2	1.7 \pm 0.0	-60.0	29.2
Holocellulose (%)	75.7 \pm 1.2	78.7 \pm 0.3	48.3 \pm 0.7	41.8 \pm 1.2	38.6	13.5
α -Cellulose (%)	49.2 \pm 2.4	54.8 \pm 0.8	23.1 \pm 1.4	24.0 \pm 1.3	57.8	-3.9
Ethanol-toluene extracts (%)	2.9 \pm 0.2	3.1 \pm 0.1	2.1 \pm 0.1	8.3 \pm 0.6	32.3	-295.2
<i>T. grandis</i>						
Dry weight in a bag (g)	37.1*	51.2 \pm 0.4	40.6 \pm 2.4	34.4*	20.7	15.3
Klason lignin (%)	29.9 \pm 0.6	27.5 \pm 1.1	21.9 \pm 1.9	8.7 \pm 0.3	20.4	60.3
Acid-soluble lignin (%)	1.4 \pm 0.1	1.3 \pm 0.0	2.7 \pm 0.3	2.0 \pm 0.1	-107.7	25.9
Holocellulose (%)	76.0 \pm 2.5	73.3 \pm 1.0	62.0 \pm 1.3	50.5 \pm 0.2	15.4	18.5
α -Cellulose (%)	45.7 \pm 2.1	45.0 \pm 0.9	30.7 \pm 0.4	26.6 \pm 1.0	31.8	13.4
Ethanol-toluene extracts (%)	6.1 \pm 0.3	7.2 \pm 0.4	4.7 \pm 0.5	12.6 \pm 0.6	34.7	-168.1

Values of chemical components in SM and SMO were adjusted to the values based on FM using weight decrease ratio in a bag from FM to SM and FM to SMO, respectively. Decrease ratio from FM to SM and SM to SMO was calculated by dividing dry weight in a bag or chemical components of SM or SMO by these values of FM or SM, respectively. $n = 3$, *, $n = 1$

WM wood meal, FM fresh medium, SM spent medium, SMO ozone-treated spent medium, SD standard deviation

Table 3 Hydrolysis weight decrease, reducing sugar yield, and monosaccharide yield of fresh medium (FM), spent medium (SM), and ozone-treated spent medium (SMO)

	FM Mean ± SD	SM Mean ± SD	SMO Mean ± SD
<i>F. moluccana</i>			
Hydrolysis weight decrease (%)	10.1 ± 0.5	20.6 ± 2.2	53.1 ± 0.5
Reducing sugar (g)	6.0 ± 0.2	15.8 ± 1.1	24.2 ± 1.0
Glucose (g)	3.1 ± 0.0	8.5 ± 0.3	13.2 ± 1.6
Galactose (g)	0.3 ± 0.0	1.7 ± 0.2	0.3 ± 0.0
Xylose (g)	1.7 ± 0.0	0.7 ± 0.4	3.0 ± 0.3
<i>Shorea sp.</i>			
Hydrolysis weight decrease (%)	8.6 ± 1.8	15.4 ± 2.0	59.1 ± 2.4
Reducing sugar (g)	6.1 ± 0.4	13.9 ± 1.2	27.7 ± 1.3
Glucose (g)	2.4 ± 0.3	9.0 ± 0.7	15.5 ± 0.7
Galactose (g)	0.3 ± 0.0	3.0 ± 0.1	0.3 ± 0.0
Xylose (g)	1.2 ± 0.3	0.9 ± 0.1	1.7 ± 0.1
<i>T. grandis</i>			
Hydrolysis weight decrease (%)	13.6 ± 1.0	10.9 ± 3.0	49.9 ± 3.0
Reducing sugar (g)	6.8 ± 0.1	11.8 ± 1.8	22.5 ± 1.1
Glucose (g)	2.7 ± 0.1	7.3 ± 1.8	11.7 ± 0.7
Galactose (g)	0.3 ± 0.0	3.0 ± 0.3	0.3 ± 0.0
Xylose (g)	1.4 ± 0.1	0.7 ± 0.1	2.2 ± 0.4



Reducing sugar or monosaccharide yield was defined as reducing sugar or monosaccharide weight (g) after enzymatic saccharification process from 100 g oven-dried FM, SM, or SMO samples. SD, standard deviation; n = 3.

Fig. 1 Correlations between Klason lignin content and glucose yield in the fresh medium, spent medium, and ozone-treated spent medium. ** Significance at the 1% level, n = 9.

Table 4 Ethanol yield from spent medium (SM) and ozone-treated spent medium (SMO)

Sample	Ethanol (g/100 g dry biomass)		Increase ratio from SM to SMO (%)
	SM Mean ± SD	SMO Mean ± SD	
<i>F. moluccana</i>	5.5 ± 0.5 b	7.7 ± 0.6 a	40.0
<i>Shorea sp.</i>	6.8 ± 0.5 c	13.2 ± 1.7 c	94.1
<i>T. grandis</i>	4.2 ± 0.6 a	9.3 ± 0.1 b	121.4

The same alphabet letter followed by mean and standard deviation shows no significant differences between wood species by Tukey-Kramer test at the 5% level. n = 3. Ethanol yield was defined as obtained ethanol weight (g) after enzymatic saccharification and fermentation processes from 100 g oven-dried SM or SMO samples. SD standard deviation

2. シイタケ廃菌床を培地基材に用いたシイタケ栽培後廃菌床のエタノール及びブタノール発酵 緒言

菌床栽培によるきのこ生産では、栽培後に排出される廃菌床の量が、きのこ生産量の約 2 倍になると言われている。この廃菌床の有効利用法として、家畜の飼料、ボイラー用燃料、堆肥、酵素生産、及び菌床栽培培地への再利用などが検討されている。本研究では、シイタケ栽培培地にシイタケ廃菌床を再利用して菌床栽培を行い、得られた廃菌床を用いて、エタノール及びアセトン・ブタノール・エタノール (ABE) 発酵を行った。

実験

菌株として、シイタケ (*Lentinula edodes* (Berk.) Pegler) 北研 607 号を使用した。実験に使用

した菌床培地組成を Table 5 に示す。菌床の化学成分分析として、クラーソンリグニン、酸可溶性リグニン、ホロセルロース、及び α -セルロースを、常法に従って定量した。廃菌床の酵素糖化及びエタノール発酵は、1. と同様にして行った。ABE 発酵は、供試細菌として *Clostridium acetobutylicum* NBRC 13948 を用いて行った。発酵によって得られたエタノール、アセトン及びブタノールは、ガスクロマトグラフィーにより定量した。

結果及び考察

子実体生重量は、C で最高値を示し、R1_{50a} で最低となった。統計的検定を行った結果、廃菌床 25% 添加培地は、C と有意差は認められず、一方、50% 添加培地は、C と比較して有意に低い値を示した。ホロセルロース及び α -セルロースについては、C において最高値を示し、逆に R1_{50a} で最低値を示した。また、廃菌床のホロセルロース及び α -セルロースは、コナラ木粉と比較して、何れも 5% 水準で有意に低い値を示した。一方、クラーソンリグニンは、コナラ木粉と比較して、全ての廃菌床において 5% 水準で有意に低い値を示したが、廃菌床間では有意差は認められなかった。酸可溶性リグニンは、コナラ木粉と比較して、全ての廃菌床で有意に高い値を示した。エタノール濃度では、R1_{50a} を除く全ての培地で有意差が認められなかった。また、最高エタノール濃度と、培地中に含まれる初発時の六炭糖量から計算したエタノールの対糖収率は、89.7~113.7% であった。以上の結果から、シイタケ廃菌床を菌床培地に添加し、シイタケ栽培を行った後の廃菌床であっても、エタノール生産原料として十分利用可能であると考えられる。ABE 発酵における ABE の対糖収率は、R1_{50a} を除く全ての培地で有意差は認められなかった。全ての培地において、発酵開始時から 24 時間までに、pH が約 5.8 から約 4.8 に低下していた。このことから、本研究で使用した細菌では、発酵開始から 24 時間までは酸生成期であり、24 時間以降に溶剤生成期に移行したと考えられる。以上の結果から、シイタケ廃菌床を菌床培地に添加し、シイタケ栽培を行った後の廃菌床も、ABE 生産原料として十分利用可能であると考えられる。

Table 5 実験に使用した培地の組成

処理区	記号	廃菌床 添加率 (%)	フスマ添加率 (% : W/W)	炭酸カルシウム 添加率 (% : W/W)
コントロール	C	0	10.0	1.0
再利用培地	R1 _{25a}	25	8.0	1.5
	R1 _{25b}		10.0	1.0
	R1 _{50a}	50	8.0	1.5
	R1 _{50b}		10.0	1.0
再々利用培地	R2 _{25c}	25	8.0	1.0

注) C : 市販のナラチップ、ナラオガコ、フスマおよび炭酸カルシウムを混合したもの

R1 : C の培地を用いて栽培を行い、得られた廃菌床を培地に再利用したもの

R2 : R1_{25a} を培地に再利用したもの

25 もしくは 50 : 栽培開始時の培地への廃菌床の添加率

a, b もしくは c : フスマおよび炭酸カルシウムの添加量で、a=8.0%および1.5%、b=10.0%および1.0%およびc=8.0%および1.0%

参考文献

- 1) Irawati et al., J. Wood Sci., 58, 180-183 (2012);
- 2) Sun & Cheng, Biores. Technol., 83, 1-11 (2002);
- 3) Miller, Anal. Chem., 31, 426-428 (1959);
- 4) Kaida et al., J. Wood Sci., 55, 381-386 (2009)

プロジェクト1 木質・リグノセルロース廃棄物を原料としたオゾン酸化・酵素糖化法
によるバイオアルコール生産技術の開発

(担当者) 横田信三, 敬吉澤伸夫, 飯塚和也, 石栗 太, 高島有哉

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) D. Irawati, S. Yokota, T. Niwa, Y. Takashima, C. Ueda, F. Ishiguri, K. Iizuka, N. Yoshizawa (Enzymatic saccharification of spent wood-meal media made of 5 different tree species after cultivation of edible mushroom *Auricularia polytricha*. *J. Wood Sci.*, 58, 180-183 (2012))
- 2) D. Irawati, C. Hayashi, Y. Takashima, S. Wedatama, F. Ishiguri, K. Iizuka, N. Yoshizawa, S. Yokota (Cultivation of the edible mushroom *Auricularia polytricha* using sawdust-based medium made of three Indonesian commercial plantation species, *Falcataria moluccana*, *Shorea* sp., and *Tectona grandis*. *Micologia Aplicada Int.*, 24, 33-41 (2012))
- 3) D. Irawati, Y. Takashima, C. Ueda, J.P.G. Sutapa, S.N. Marsoem, F. Ishiguri, K. Iizuka, N. Yoshizawa, S. Yokota (Ozone treatment of spent medium from *Auricularia polytricha* cultivation for enzymatic saccharification and subsequent ethanol production. *J. Wood Sci.*, 59, 522-527 (2013))

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *OP* N. Seki, Y. Sato, Y. Takashima, F. Ishiguri, Kazuya Iizuka, N. Yoshizawa, S. Yokota, "Extracellular cellulose production from a white-rot fungus *Porodaedalea pini*", *7th Int. Conf. Mushroom Bio. & Mushroom Prod.*, Arcachon, France (2011)
- 2) *OP* D. Irawati, C. Hayashi, Y. Takashima, C. Ueda, F. Ishiguri, Kazuya Iizuka, S. Yokota, N. Yoshizawa, "Wood meal-based cultivation of *Auricularia polytricha* using 3 tropical wood species and their cultural waste utilization as lignocellulosic biomass", *7th Int. Conf. Mushroom Bio. & Mushroom Prod.*, Arcachon, France (2011)
- 3) *OP* C. Ueda, Y. Takashima, Y. Ohashi, F. Ishiguri, Kazuya Iizuka, S. Yokota, N. Yoshizawa, "Enzymatic saccharification of edible mushroom cultural wastes using ozone oxidation pretreatment", *7th Int. Conf. Mushroom Bio. & Mushroom Prod.*, Arcachon, France (2011)
- 4) *IS* D. Irawati, J.P.G. Sutapa, N. Marsoem, F. Ishiguri, K. Iizuka, S. Yokota, N. Yoshizawa, "Introduction of Indonesia/Japan cooperative research activities and future potential", *9th Biomass-Asia Workshop*, Tokyo (2012)

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「ポ」 T. Niwa, D. Irawati, F. Ishiguri, K. Iizuka, S. Yokota, N. Yoshizawa, “Wood meal-based cultivation of *Auricularia polytricha* and *Pleurotus abalonus*, and biomass utilization of their cultural wastes” , 日本木材学会、宮崎 (2010)
- 2) 「ポ」 上田智聡、高島有哉、石栗 太、飯塚和也、横田信三、吉澤伸夫、沼田多佳子、山内隆弘、枝 克昌 “前処理にオゾン酸化を用いたシイタケ廃菌床の酵素糖化”、日本木材学会、宮崎 (2010)
- 3) 「一般」 上田智聡、高島有哉、石栗 太、飯塚和也、横田信三、吉澤伸夫、大橋洋二 “前処理にオゾン酸化を用いたきこ廃菌床の酵素糖化”、日本木材学会、京都 (2011)
- 4) 「一般」 D. Irawati, Y. Takashima, C. Hayashi, C. Ueda, F. Ishiguri, K. Iizuka, S. Yokota, N. Yoshizawa, “Utilization of spent media after cultivation of *Auricularia polytricha* as substrates for ethanol production” , 日本木材学会、京都 (2011)
- 5) 「ポ」 上田智聡、日下田覚、高島有哉、石栗 太、飯塚和也、横田信三、吉澤伸夫、大橋洋二 “オゾン酸化処理した 10 種の食用きのこ廃菌床の酵素糖化”、日本木材学会、札幌 (2012)
- 6) 「一般」 日下田覚、上田智聡、大橋洋二、石栗 太、飯塚和也、横田信三、吉澤伸夫 “10 種の食用きのこ廃菌床の酵素糖化”、日本木材学会、札幌 (2012)
- 7) 「一般」 D. Irawati, C. Ueda, S. Wedatama, F. Ishiguri, K. Iizuka, S. Yokota, N. Yoshizawa, “Ozone treatment of spent media made of three Indonesia plantation species in *Auricularia polytricha* cultivation as a pretreatment for enzymatic saccharification” , 日本木材学会、札幌 (2012)
- 8) 「ポ」 上田智聡、高島有哉、石原雅樹、大橋洋二、石栗 太、飯塚和也、横田信三、吉澤伸夫 “シイタケ 3 菌株の菌床における菌体外酵素活性の経時変化”、日本木材学会、盛岡 (2013)
- 9) 「ポ」 関菜穂子、浅沼義行、石栗 太、飯塚和也、吉澤伸夫、横田信三 “木材白色腐朽菌マツノカタワタケが生産する菌体外 β -グルコシダーゼの部分精製”、日本木材学会、盛岡 (2013)
- 10) 「ポ」 日下田覚、川合未希子、上田智聡、高島有哉、大橋洋二、石栗 太、飯塚和也、横田信三、吉澤伸夫 “食用きのこ廃菌床を用いたエタノールおよびブタノール発酵”、日本木材学会、盛岡 (2013)

他 2 件

●外部資金（科学研究費：科研、奨学寄付金：奨学，受託研究：受託，共同研究：共同）

- 1) 「共同」 横田信三，210 千円「シイタケ培養菌床からの木質系バイオマス変換用酵素製剤の生産」北研(株)（平成 24~25 年）

産業有用魚種における革新的な性別制御法の開発

松田 勝(准教授)

バイオサイエンス教育研究センター matsuda@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1. 研究の背景

サケ科魚類のイクラや子持ちアユなど、性別によって商品価値の異なる水産有用魚種は多々ある。当然水産業者は片方の性別のみの種苗生産や養殖を目差すが、魚類では一般的に性成熟以前に外見から雌雄を判別することはできないため、雌雄を予め選別して飼育する事は不可能である。一方、魚類においては幼魚期の性ホルモン処理により性転換魚を得られる場合もあり、これが可能な種では、性ホルモン処理により偽雄(XX-XY型の性決定様式の主ではXX雄)や超雄(YY雄)の作出が可能であるので、正常雌との交配により、全雄や全雌の生産が可能となる。しかし、近年「食の安心・安全」の観点から性ホルモンの使用は忌諱される傾向にある。現在までのところ、性ホルモンを使わない性別制御の方法はなく、雌雄両方を飼育するしかない状況となっている。

一方、ほとんどの魚類の性別は遺伝的に決められており、性別を決定する性決定遺伝子が存在するので、性決定遺伝子を制御することができれば、産業有用魚の性別制御は簡単である。しかし、これまでのところ魚類の性決定遺伝子は研究代表者の見つけたメダカを含めて6種からしか同定されておらず、魚類において性決定遺伝子を同定するためには膨大な時間、労力、費用を要する。

そこで、本研究計画では、最終的に栃木県の産業有用魚種であるサケ科魚類（ヒメマス、ヤマメ、ニジマス等）やアユなどの性別制御を目差して、魚類の中で最も性分化研究のモデルとして優れているメダカの性別を制御できる遺伝子を探索し、性決定遺伝子以外の遺伝子の変異により、性別を制御できるか検討した。

2. *Dmrt1* 遺伝子突然変異体の解析

ヒトの男性不妊の原因遺伝子として同定された *DMRT1* 遺伝子は、その相同遺伝子が様々な脊椎動物種より同定されおり、これら全ての場合で精巣分化に関連した発現パターンを示

していることから、脊椎動物の精巣の分化に重要であると考えられている。そこで我々は、この遺伝子の精巣分化における機能を調べるために、メダカの誘発突然変異ライブラリーを探索し、この *Dmrt1* の突然変異体の表現型を解析した。

この *Dmrt1* 突然変異は、遺伝子の1塩基が置換したことにより1アミノ酸置換が起きていた、すなわち、タンパク質合成開始アミノ酸メチオニンから数えて53番目のアミノ酸がシステインからアルギニンに置換していた。この変異をヘテロにもつ XY 個体 (*Dmrt1*^{+/C53R}) の生殖腺は、野生型 XY (正常雄) と遜色なく精巣へと分化し、正常な雄へと成長した。一方、変異をホモに持つ XY 個体 (*Dmrt1*^{C53R/C53R}) の生殖腺は、ふ化後5日までは正常 XY と遜色なく精巣へと分化している様子であったが、ふ化後10日には、減数分裂に入った卵母細胞が多数観察され、卵巣へと分化していると判断できた。これらの個体は、親にまで成長し、受精能をもつ卵を産むことが明らかとなった。すなわち、*Dmrt1* 変異体の生殖腺は、ふ化後5日までは精巣方向へと分化するが、その後ふ化後10日には卵巣方向へと性転換し、正常な XX 雌と遜色ない卵を産出することが明らかとなった (図1)。*Dmrt1* 遺伝子座について、この変異と野生型とをヘテロにもつ XY 個体は正常な雄へと分化する。一方、変異をホモにもつ XY 個体は正常な雌へと分化する。すなわち、これらの XY 個体は、本来雄に分化するはずであるが、*Dmrt1* の遺伝子型がホモかヘテロかによって、性別が決められるということである。

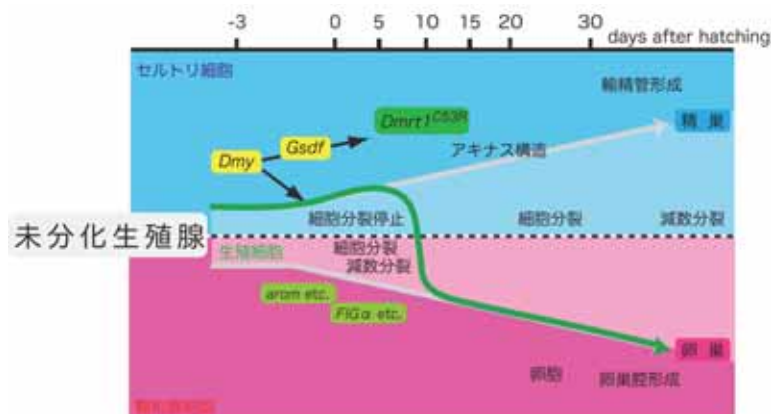


図1 メダカ生殖腺分化のフローチャート
Dmrt1^{C53R/C53R}XY 個体の生殖腺は、ふ化後10日には既に卵巣方向へ分化していた。

3. 今後の展望

本研究で明らかになったように性分化に重要な遺伝子を制御することで、魚類の性別を人為的に制御できることがわかった。今回の場合、精巣分化に重要な *Dmrt1* 遺伝子の変異体を用いることで、本来精巣に分化するはずの未分化生殖腺は、卵巣へと分化し、その個体は正常な雌へと分化した。このことから、ホルモン処理をつかわない新規な全雄生産の方法論が確立したといえる。産業有用魚種においても *Dmrt1* を標的に変異体を得ることで、遺伝的雄を雌へと分化させることで、性別を制御可能であると考えられる。

一方、全雌生産のためには、卵巣の分化に重要な遺伝子の変異体を作成し、卵巣分化するはずの未分化生殖腺を精巣方向へと分化させる必要がある。今後そのような遺伝子の変異体を作成してその表現型を調べることで、未分化生殖腺を精巣分化に誘導可能な遺伝子を探索していきたい。

プロジェクト2 産業有用魚種における革新的な性別制御法の開発

(担当者) 松田 勝

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) Chang, C.-H., Lin, W.-W., Shao, Y.T., Arai, R., Ishinabe, T., Ueda, T., Matsuda, M., Kubota, H., Wang, F.Y., Jang-Liaw, N.-H., and Kao H.-W. Molecular phylogeny and genetic differentiation of *Tanakia himantegus* complex (Teleostei: Cyprinidae) in Taiwan and mainland China. *Zoological Studies* 48, 839-850 (2009)
- 2) Nakamoto, M., Muramatsu, S., Yoshida, S., Matsuda, M., Nagahama, Y., and Shibata, N. Gonadal sex differentiation and expression of *Sox9a2*, *Dmrt1*, and *Foxl2* in *Oryzias luzonensis*. *genesis* 47, 289-299 (2009)
- 3) Nakamoto, M., Fukasawa, M., Orii, S., Shimamori, K., Maeda, T., Suzuki, A., Matsuda, M., Kobayashi, T., Nagahama, Y., and Shibata, N. Cloning and expression of medaka cholesterol side chain cleavage cytochrome P450 during gonadal development. *Develop. Growth Differ.* 52, 385-395 (2010)
- 4) Otake, H., Masuyama, H., Mashima, Y., Shinomiya, A., Myosho, T., Nagahama, Y., Matsuda, M., Hamaguchi, S., and Sakaizumi, M. Heritable artificial sex chromosomes in the medaka, *Oryzias latipes*. *Heredity* 105, 247-256 (2010)
- 5) Shibata, Y., Paul-Prasanth, B., Suzuki, A., Usami, T., Nakamoto, M., Matsuda, M., and Nagahama, Y. Expression of gonadal soma derived factor (GSDF) is spatially and temporally correlated with early testicular differentiation in medaka. *Gene Expr Patterns* 10, 283-289 (2010)
- 6) Wang, D.S., Zhou, L.Y., Kobayashi, T., Matsuda, M., Shibata, Y., Sakai, F., and Nagahama, Y. Doublesex- and Mab-3-related transcription factor-1 repression of aromatase transcription, a possible mechanism favoring the male pathway in tilapia. *Endocrinology* 151, 1331-1340 (2010)
- 7) Fernandino, J.I., Popesku, J.T., Paul-Prasanth, B., Xiong, H., Hattori, R.S., Oura, M., Strüssmann, C.A., Somoza, G.M., Matsuda, M., Nagahama, Y., and Trudeau, V.L. Analysis of sexually dimorphic expression of genes at early gonadogenesis of pejerrey *Odontesthes bonariensis* using a heterologous microarray. *Sex Dev* 5, 89-101 (2011)
- 8) Myosho, T., Otake, H., Masuyama, H., Matsuda, M., Kuroki, Y., Fujiyama, A., Naruse, K., Hamaguchi, S., and Sakaizumi, M. Tracing the emergence of a novel sex-determining gene in medaka, *Oryzias luzonensis*. *Genetics* 191, 163-170 (2012)
- 9) Nakamoto, M., Fukasawa, M., Tanaka, S., Shimamori, K., Suzuki, A., Matsuda, M., Kobayashi, T., Nagahama, Y., and Shibata, N. Expression of 3beta-hydroxysteroid

dehydrogenase (hsd3b), star and ad4bp/sf-1 during gonadal development in medaka (*Oryzias latipes*). *Gen Comp Endocrinol* 176, 222-230 (2012)

- 10) Zhao, H., Guan, G., Duan, J., Cheng, N., Wang, J., Matsuda, M., Paul-Prasanth, B., and Nagahama, Y. OI4E-T, a eukaryotic translation initiation factor 4E-binding protein of medaka fish (*Oryzias latipes*), can interact with nanos3 and vasa in vitro. *J Exp Zool B Mol Dev Evol* 320, 10-21 (2013)

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *OP* Matsuda, M. "DMRT1 is required for testicular development in the medaka, *Oryzias latipes*", *5th International Symposium on Vertebrate Sex Determination*, Kona, Hawaii, USA (2009)
- 2) *OP* Otake, H., Matsuda, M., Hamaguchi, S., and Sakaizumi, M. "Quick-change of sex chromosomes in the medaka", *5th International Symposium on Vertebrate Sex Determination*, Kona, Hawaii, USA (2009)
- 3) *PP* Masuyama, H., Nagahama, Y., and Matsuda, M. "Establishment of a transgenic line with the sex-determining gene, *DMY*, in the teleost fish medaka, *Oryzias latipes*", *5th International Symposium on Vertebrate Sex Determination*, Kona, Hawaii, USA (2009)
- 4) *PP* Otake, H., Matsuda, M., Sakaizumi, M., and Hamaguchi, S. "Conservation of regulatory mechanisms of *DMY*, the sex-determining gene in the medaka", *42nd Annual Meeting for the Japanese Society of Developmental Biologists*, Niigata (2009)
- 5) *OP* Masuyama, H., Yamada, M., Kamei, Y., Ishikawa, T., Todo, T., Nagahama, Y., and Matsuda, M. "A mutation in *DMRT1* causes male to female sex reversal in medaka", *42nd Annual Meeting for the Japanese Society of Developmental Biologists*, Niigata (2009)
- 6) *PP* Amo, R., Agetsuma, M., Kinoshita, M., Shiraki, T., Higashijima, S., Matsuda, M., Suster, M.L., Kawakami, K., Ohshima, T., Aizawa, and H., Okamoto, H. "Functional analysis of the habenulo-raphe pathway using genetic manipulation", *17th Japanese Medaka and Zebrafish Meeting*, Mishima (2011)
- 7) *OP* Masuyama, H., Yamada, M., Kamei, Y., Ishikawa, T., Todo, T., Nagahama, Y., and Matsuda, M. (2011) "A single basepair difference is sufficient to distinguish males from females in medaka fish", *17th Japanese Medaka and Zebrafish Meeting*, Mishima (2011)
- 8) *OP* Matsuda, M. "Sex Determination by an Autosomal Gene Mutation", *The 1st Strategic Meeting for Medaka Research*, Okazaki (2011)

- 9) *PP* Imai T., Masuyama, H., and Matsuda, M. "Establishment of FLAG-tagged Dmy Transgenic Medaka", *The 1st Strategic Meeting for Medaka Research*, Okazaki (2011)
- 10) *PP* Matsuda, M. "Dmrt1 mutation causes a male-to-female sex reversal after the sex determination by Dmy in the medaka", *6th International Symposium on Vertebrate Sex Determination*, Kona, Hawaii, USA.(2011)
- 11) *OP* Amo, R., Agetsuma, M., Kinoshita, M., Shiraki, T., Aoki, T., Yamazaki, M., Higashijima, S., Matsuda, M., Suster, M.L., Kawakami, K., Ohshima, T., Aizawa, H., and Okamoto, H. "The lateral habenula homolog regulates learning of active instrumental behavior in zebrafish", *18th Japanese Medaka and Zebrafish Meeting*, Kyoto (2012)
- 12) *PP* Imai, T., Saino, K. and Matsuda, M. "Gsdf mutation causes a male-to-female sex reversal in the medaka, *Oryzias latipes*", *19th Japanese Medaka and Zebrafish Meeting*, Sendai, (2013)
- 13) *OP* Gladys, F.M., Lim, Y., Matsuda, M. and Cense, B. "Non-invasive in vivo 3D imaging of medaka using ultra high resolution spectral domain optical coherence tomography", *19th Japanese Medaka and Zebrafish Meeting*, Sendai, (2013)
- 14) *OP* Amo, R., Agetsuma, M., Kinoshita, M., Fredes, F., Shiraki, T., Aoki, T., Yamazaki, M., Higashijima, S., Matsuda, M., Suster, M.L., Kawakami, K., Ohshima, T., Aizawa, H. and Okamoto, H. "Serotonin regulation by the habenula is essential for adaptive problem solving in zebrafish", *19th Japanese Medaka and Zebrafish Meeting*, Sendai, (2013)

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「依頼」松田 勝，“メダカの性決定”，水産育種研究会，藤沢（2010）
- 2) 「一般」増山治男，松田 勝 “DMRT1 遺伝子突然変異メダカの解析”，日本動物学会第81回大会，東京（2010）
- 3) 「一般」松田 勝 “メダカの性決定から見えてきたこと” 第5回「認識と形成」研究会，南阿蘇（2001）
- 4) 「一般」松田 勝 “Dmrt1 突然変異 XY メダカは正常な雌に分化する”，新学術領域研究「性差構築の分子基盤」第2回領域会議・公開研究会，葉山（2010）
- 5) 「一般」米沢純爾，松田 勝，上田高嘉，山口佐知子，吉田礼奈，木村清志，橋本 浩 “ハマトビウオ属 7 種の相対成長と mtDNA16srRNA 領域の塩基配列比較”，平成 23 年度日本水産学会春季大会，東京（2010）
- 6) 「ポ」今井拓人，増山治男，松田 勝 “FLAG タグ融合 Dmy 遺伝子導入メダカの樹立”，

日本動物学会第 82 回大会, 旭川 (2011)

- 7) 「依頼」松田 勝 “メダカの性決定から見えてきた魚類の性決定”, 愛媛大学南予水産センターセミナー, 愛媛 (2012)
 - 8) 「一般」竹花佑介, 成瀬 清, 松田 勝, 濱口 哲, 酒泉 満 “インドメダカ性決定遺伝子の同定”, 日本動物学会第 83 回大会, 大阪, (2012)
 - 9) 「一般」齊野兼太郎, 今井拓人, 増山治男, 松田 勝 “GsdF 遺伝子破壊メダカの作出”, 日本動物学会第 65 回関東支部大会, 東京工業大学 (2013)
- 他 2 件

●著書, 総説, 解説等

- 1) 「著書」Matsuda, M., and Sakaizumi, M. (2009). Sex Determination. In Reproductive Biology and Phylogeny of Fishes (Agnathans and Bony Fishes), Volume 8, B.G.M. Jamieson, ed. (Enfield, NH, USA: Science Publishers), pp. 331-350.
- 2) 「総説」松田勝 (2010). メダカの性決定. 水産育種 40, 3-9.
- 3) 「著書」Matsuda, M. (2011). The sex-determining gene in medaka. In Medaka A Model for Organogenesis, Human Disease, and Evolution, K. Naruse, M. Tanaka and H. Takeda, eds. (Tokyo: Springer), pp. 255-267.

●外部資金 (科学研究費 : 科研, 奨学寄付金 : 奨学, 受託研究 : 受託, 共同研究 : 共同)

- 1) 「科研」松田 勝, 2,000 千円「*DMR T 1* 突然変異メダカを用いた生殖腺の性的可塑性の解析」基盤 C, JSPS (平成 21 年度-23 年度)
- 2) 「受託」松田 勝, 1,800 千円「遺伝子導入系統樹立を効率化するためのトレーサー遺伝子カセット開発」シーズ発掘試験, JST (平成 21 年度)
- 3) 「受託」松田 勝, 1,500 千円「遺伝子導入魚作出手法の改良ならびに遺伝子破壊魚開発手法の開発」理化学研究所 (平成 21 年度)
- 4) 「科研」松田 勝, 900 千円「*DMR T 1* 突然変異メダカを用いた生殖腺の性的可塑性の解析」基盤 C, JSPS (平成 21 年度-23 年度)
- 5) 「受託」松田 勝, 1,500 千円「遺伝子導入魚作出手法の改良ならびに遺伝子破壊魚開発手法の開発」理化学研究所 (平成 22 年度)
- 6) 「科研」松田 勝, 300 千円「発生物学への応用を目的とした光コヒーレンストモグラフィ装置の開発 (代表 谷田貝 豊彦)」基盤 B, JSPS 平成 23 年度-27 年度
- 7) 「科研」松田 勝, 2300 千円「生殖細胞が消失する突然変異メダカの組織学的解析とその原因遺伝子同定」基盤 C, JSPS (平成 24 年度-26 年度)

●VBLプロジェクト関連の成果についての特記事項

イ) 報道 3件

- ・読売新聞 松田 勝, 「メダカの遺伝子の研究紹介」(2009年10月11日)
- ・読売新聞 松田 勝, 「性分化解明 応用への期待」(2009年10月17日)
- ・NHK Eテレ 松田 勝, 「高校生物」(2011年9月16日)

ロ) 展示 3件

- ・第8回産官学連携推進会議「遺伝子導入魚作成効率化のためのトレーサー遺伝子カセット開発」(2009年6月20-21日)
- ・第3回宇都宮大学企業交流会「産業有用魚種における革新的な性別制御法の開発」(2009年9月4日)
- ・第7回宇都宮大学企業交流会「遺伝子変異メダカを用いた産業有用魚種の性別制御法開発に向けた基礎研究」(2013年9月9日)

発生工学技術を活用した新しい優良盲導犬

繁殖・育成システムの開発

長尾慶和 (教授)*1,3,4	ynagao@cc.utsunomiya-u.ac.jp
萨仁同拉嘎 (非常勤研究員)* 1,2	saren1979@yahoo.co.jp
緒方和子 (D2)*1,3	50012951007@st.tuat.ac.jp
佐藤あかね (M1)*1,4	sugar_madder_gon@yahoo.co.jp

- *1 宇都宮大学農学部附属農場
- *2 宇都宮大学地域共生研究開発センター大学院 VBL 部門
- *3 東京農工大学大学院連合農学研究科博士課程生物生産科学専攻
- *4 宇都宮大学大学院農学研究科修士課程生物生産科学専攻

1. 諸言

日本は、先進各国の中で盲導犬の普及が最も遅れている国のひとつである。現在、日本国内では約 1060 頭の盲導犬が実働しているが、盲導犬利用希望者数は約 4800 人ともいわれ、その需要を満たせていない現状にある。従って、優秀な盲導犬の育成および供給体制が強く求められている。しかしながら、新たに提供される盲導犬頭数は毎年約 130 頭程度と横ばいであり、慢性的な盲導犬不足が続いている。その原因のひとつに、盲導犬に特徴的な繁殖および育成システムが挙げられる。すなわち、盲導犬候補犬は訓練の過程で雌雄ともに卵巣や精巣を摘出してしまうため、盲導犬として優秀なことが判明しても子孫を残すことが不可能となっている。これに対し人工繁殖技術の盲導犬繁殖システムへの導入による繁殖効率の改善が期待されている。例えば、ウシ等の家畜において確立し普及している凍結精液を用いた人工授精や、体外培養胚の作成、性周期調整および受精卵移植等の技術を応用することで、優秀な個体の遺伝資源の効率的な有効活用が可能となる。しかしながら、雌イヌに特徴的な繁殖生理により、イヌ卵子の体外培養技術は未確立である。また、イヌ精子では凍結融解後に著しい質の低下がみられるため、凍結精液を用いた人工授精による産仔率は未だ安定していない。そこで本研究では、雌イヌの繁殖生理における基礎的研究としての卵子体外成熟培養法の検討、ならびに雄側の遺伝資源の有効活用に向けた精液凍結保存および人工授精法の検討を確立し、優秀な盲導犬の効率的な繁殖システムを確立することを目的としている。

2. イヌ卵子体外成熟培養法の検討

背景：イヌでは、卵子の体外培養系の最も初期段階である体外成熟培養技術が確立されていない。その要因として、イヌ卵子の成熟機序の特異性が考えられる。体外成熟が可能となれば、体外受精や顕微授精といった発生工学技術による胚の作出が可能となる。そこで、ウシにおける体外成熟培養法をもとにして、卵子培養液中の性ホルモンおよび成長因子がイヌ卵子の体外成熟へ及ぼす影響について検討した(実験 1 および 2)。

材料および方法：イヌ卵巣から細切法により卵丘細胞卵子複合体(COC_s)を採取し実験に用いた。実験 1 では、成熟培養液に m199 を用い、ウシ卵子の成熟培養における濃度を参考に卵

胞刺激ホルモン(FSH)10 μ g/ml とエストラジオール 17 β (E₂)1.4 μ g/ml を添加した区を1倍区、それぞれ5倍濃度を添加した区を5倍区、無添加区を対照区とし、性ホルモン添加による影響を検討した。実験2では、インシュリン様成長因子I(IGF-I)を0, 0.5, 5および50 μ g/ml あるいは、トランスフォーミング成長因子 α (TGF- α)を0, 1, 10および100 ng/ml を添加して検討を行った。体外成熟培養48h後に、ヘキスト染色した固定標本作製し、核相を共焦点レーザー顕微鏡により判別することで成熟率を評価した(図1)。統計解析は、多重比較検定により行った。

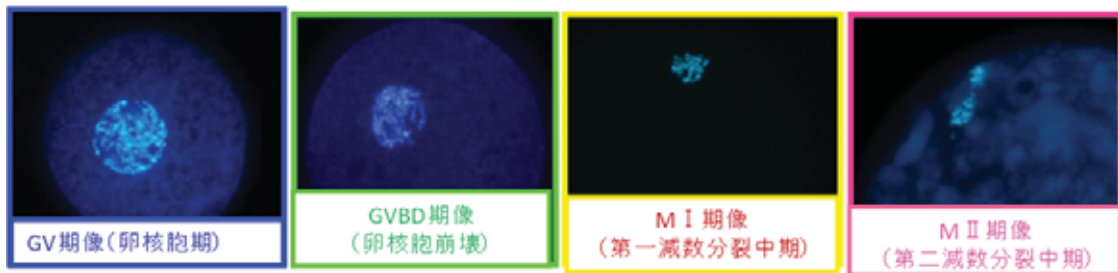


図1. イヌ卵子における成熟ステージの判定

GVBD期からMII期までを合わせて減数分裂再開とし、各ステージの割合を求めた。

結果および考察：実験1において、性ホルモン無添加区に比較して、1倍区と5倍区において、MII期率が向上する傾向が見られた(図2)。また、減数分裂再開率についても1倍区および5倍区で有意に高い値が示された(図3)。実験2において、培養液中へのTGF- α 10 ng/ml添加区で他の区よりMII期率が高い傾向が見られた(図4)。IGF-Iにおいては、MII期率について5および50 μ g/ml添加区で無添加区に比べて有意に高い値が示された(図5)。以上より、培養液中への性ホルモン(E₂とFSH)、TGF- α およびIGF-Iの添加は、イヌ未成熟卵子のMII期への進行を促進することが示唆された。

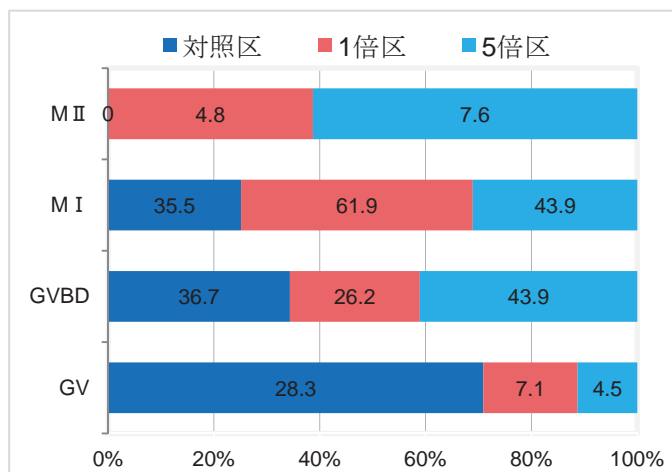


図2. 性ホルモンがイヌ未成熟卵子の体外成熟に及ぼす影響
 実験回数：6回

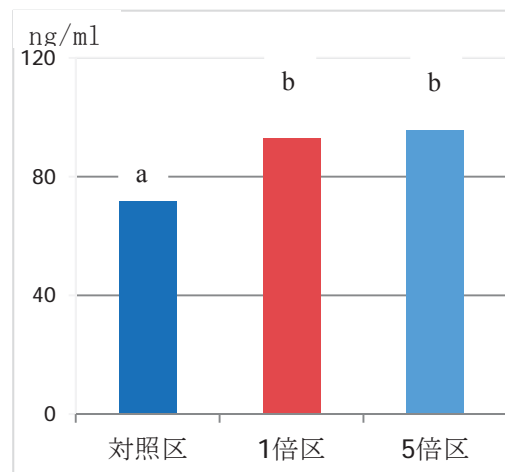


図3. 性ホルモンが減数分裂再開率に及ぼす影響
 実験回数：6回
 a-b：有意差あり(P<0.01)

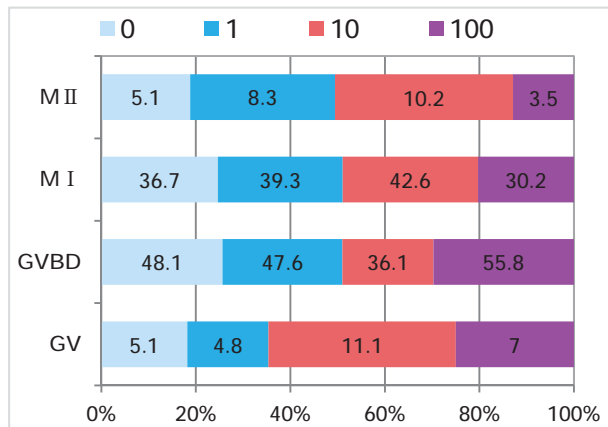


図4. TGF- α がイヌ未成熟卵子の体外成熟に及ぼす影響
実験回数：6回

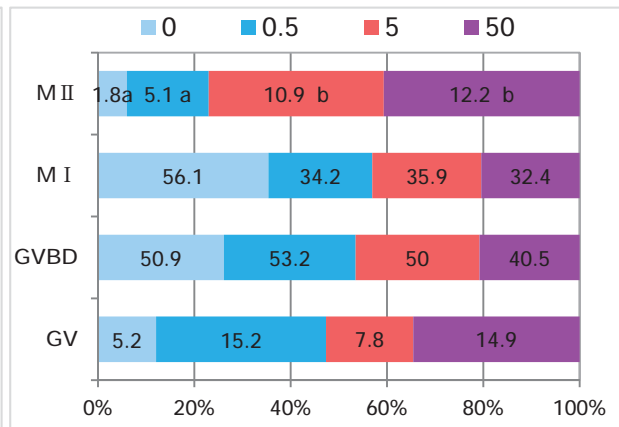


図5. IGF-I がイヌ未成熟卵子の体外成熟に及ぼす影響
実験回数：6回
a-b：有意差あり (P<0.01)

3. イヌ精子凍結保存法の検討

背景：現在のイヌ精子凍結プロトコルはウシにおける手法を応用したものである。そのため、ウシと比較し耐凍性の低いイヌ精子においては、凍結希釈液組成の改良や凍結速度の制御等により凍結融解に伴うダメージを軽減することが必要である。凍結ならびに融解時に細胞内外に存在する活性酸素種 (ROS) は精子へ悪影響を与える。そこで、実験1として凍結希釈液への抗酸化剤添加がイヌ凍結融解精子へ及ぼす影響について検討した。また、イヌでは体外受精技術が未確立であるため、凍結融解精子の受精能を直接的に評価することは困難である。そこで、実験2として人工授精による抗酸化剤添加凍結精液の受胎性評価を行った。

材料および方法：イヌ精液は、卵黄、トリス、クエン酸および糖類から成る一次希釈液および、グリセロールを加えた二次希釈液による二段階希釈の後、ストローへ充填し、液体窒素中での凍結保存を行った。実験1では、凍結希釈液へそれぞれ0、2.5、5、7.5および10mMの還元型グルタチオン (GSH) を添加し、その効果および至適濃度を検討した。凍結融解精子について、運動活性、生存性、先体保有率、および細胞膜の脂質過酸化を評価した。統計解析は分散分析およびポストホックテストとしてFisher's PLSD法により行った。実験2では、交配適期の雌イヌに対し、GSH添加凍結精液を用いた経子宮経管的人工授精 (TCI) および異なる雄イヌを用いた自然交配を行った。雌イヌの性周期の判定は、膣スメア標本の観察および血漿プロゲステロン値の測定により行った。得られた産仔について、DNA多型解析による親子鑑定を行い、GSH添加凍結精液由来の仔犬を確認した。

結果および考察：実験1において、凍結希釈液への5mM GSHの添加により凍結融解後0-1hおよび3-24hのイヌ精子の生存性が有意に向上した (図6)。また、先体保有率 (図7) および脂質過酸化の指標であるMDA濃度 (図8) についてGSH添加区で有意に高まる結果が得られた。さらに、実験2においては、6頭中2頭の雌イヌにおいて、GSH添加凍結精液由来の産仔の獲得が確認された。GSHは水溶性の物質であるが、精子細胞内へ取り込まれない。したがって、凍結希釈液へ添加したGSHは、凍結希釈液中のROSに対する抗酸化作用ならびに精子細胞膜に存在する抗酸化酵素の基質として働き、精子への酸化ストレスを軽減したと考えられる。

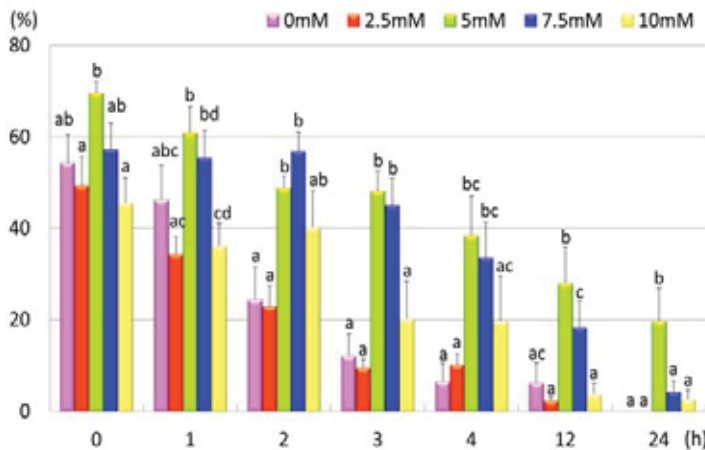


図 6. 凍結希釈液への抗酸化剤添加がイヌ凍結融解精子の生存性に及ぼす影響
 実験回数：4-7 回、a-c：異符号間に有意差あり (p<0.05)

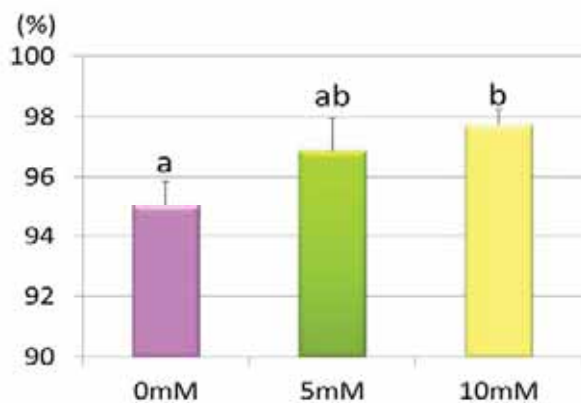


図 7. GSH 添加が融解 4 時間後におけるイヌ凍結融解の先体保有率に及ぼす影響
 実験回数：5 回
 a-c：異符号間に有意差あり (P<0.05)

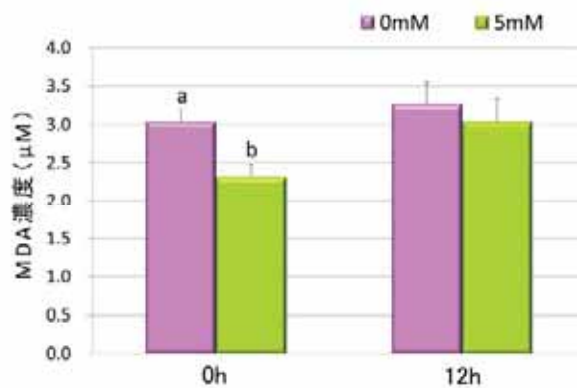


図 8. GSH 添加が融解 0 及び 12 時間後におけるイヌ凍結融解精子の膜の脂質過酸化に及ぼす影響
 実験回数：5 回
 a-c：異符号間に有意差あり (P<0.05)

4. 結言

本プロジェクトにより、イヌ卵子成熟培養法について、体外成熟培地への性ホルモンおよび成長因子の添加はイヌ卵子の減数分裂の進行を促進することが示唆された。また、イヌ精子凍結保存法について、凍結希釈液への GSH 添加は凍結融解後のイヌ精子の生存性の向上に有効であることが明らかとなった。さらに、人工授精による凍結精液由来産仔が誕生し、GSH 添加凍結精液の受精能および受胎能が示された。今後は、依然としてブラックボックスとなっているイヌ卵子の減数分裂制御機構の解明に取組み、体外培養によるイヌ卵子成熟技術を確立する。また、体外における温度変化や酸化ストレスに非常にデリケートなイヌ精子の細胞特性の解明に取組み、より効果的なイヌ精子凍結保存法を確立する。そして、これらの成果を基盤技術として、体外受精あるいは顕微授精によるイヌ産子作出系を開発し、優秀な盲導犬の効果的な作出に貢献したいと考えている。

プロジェクト3 発生工学技術を活用した新しい優良盲導犬の繁殖・育成システムの開発
(担当者) 長尾慶和

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) Nagao Y., Abe T., Hasegawa H., Tanaka Y., Sasaki K., Kitano Y., Hayashi S. and Hanazono Y. Improved Efficacy And Safety of In Utero Cell Transplantation in Sheep Using An Ultrasound-Guided Method. *Cloning and Stem Cells* 11: 281-285 (2009).
- 2) Kato Y. and Nagao Y. Effect of PVP on sperm capacitation status and embryonic development in bovine. *Theriogenology* 72: 624-635 (2009).
- 3) 長尾慶和、前田憲政、坪 一博、市瀬瑞樹. 繋ぎ牛舎におけるトンネル換気システムが夏季暑熱時の牛舎環境および牛体に及ぼす影響. *日本畜産学会報* 80: 349-357 (2009).
- 4) 長尾慶和、関 奈緒美、市瀬瑞樹. 繋ぎ牛舎におけるトンネル換気方式が夏季暑熱時の乳牛の生産性に及ぼす影響. *Animal Behaviour and Management* 45: 153-160 (2009).
- 5) 市瀬瑞樹、杉田昭栄、長尾慶和. EDTA 静脈内投与により低カルシウム状態に誘導したヒツジにおけるカルシウムおよび骨代謝マーカーの動態. *Animal Behaviour and Management* 45: 1-8 (2009).
- 6) Nagao Y., Harada Y., Yamaguchi M., Igarashi A., Ooshima Y. and Kato Y. Antioxidant treatment during preservation of bovine ovaries increased the development potential of embryos. *Zygote* 18: 315-321 (2010).
- 7) Nagao Y., Ohta Y., Murakami H. and Kato Y. The effects of methyl-b-cyclodextrin on in vitro fertilization and the subsequent development of bovine oocytes. *Zygote* 18:323-330 (2010).
- 8) Tanaka Y, Masuda S, Abe T, Hayashi S, Kitano Y, Nagao Y, Hanazono Y. Intravascular route is not superior to an intraperitoneal route for in utero transplantation of human hematopoietic stem cells and engraftment in sheep. *Transplantation*. 90:462-463 (2010).
- 9) Abe T, Masuda S, Ban H, Hayashi S, Ueda Y, Inoue M, Hasegawa M, Nagao Y, Hanazono Y. Ex vivo expansion of human HSCs with Sendai virus vector expressing HoxB4 assessed by sheep in utero transplantation. *Exp Hematol*. 39:47-54 (2011).
- 10) Kato Y, Shoei S, Nagao Y. Capacitation status of activated bovine sperm cultured in media containing methyl-beta-cyclodextrin affects the acrosome reaction and fertility. *Zygote* 19: 21-30 (2011).
- 11) Masuda S, Hayashi S, Ageyama N, Shibata H, Abe T, Nagao Y, Hanazono Y. Migration of Cells From the Yolk Sac to Hematopoietic Tissues After In Utero Transplantation of Early and Mid Gestation Canine Fetuses. *Transplantation* 92: e5-e6 (2011).
- 12) 福井えみ子、星一美、川野辺章夫、新楽和孝、稲葉浩子、長尾慶和、松本浩道、吉澤緑. 栃木県で飼養されているホルスタイン種および黒毛和種ウシにおける FEZL 遺伝子の多型解析. *関東畜産学会報* 62: 7-11 (2011).
- 13) Abe T, Masuda S, Tanaka Y, Nitta S, Kitano Y, Hayashi S, Hanazono Y, Nagao Y. Maternal administration of busulfan before in utero transplantation of human hematopoietic stem cells enhances engraftments in sheep. *Exp Hematol* 40:436-444 (2012).

- 14) Yoku Kato, Yoshikazu Nagao. Effects of polyvinylpyrrolidone on sperm function and early embryonic development following intracytoplasmic sperm injection in human assisted reproduction. *Reproductive Medicine and Biology* 11:165-175 (2012).
- 15) Borjigin Sarentonglaga, Kazuko Ogata, Yoriko, Taguchi, Yoku Kato, Yoshikazu Nagao. The Developmental Potential of Oocytes is Impaired in Cattle with Liver Abnormalities. *Journal of Reproduction and Development* 59:168-173 (2013).

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *PP* Kato Y and Nagao Y. Bovine activated spermatozoa affects chromosomal integrity at blastocyst following intracytoplasmic sperm injection. The 42nd Annual Meeting of the Society for the Study of Reproduction. *Biology of Reproduction* 2009: Supplement, p189. (Pittsburgh, U.S.A., 18-22 July, 2009)
- 2) *PP* Yuzawa T, Fukui E, Matsumoto H, Kawada T, Kawanobe A, Niira Kazutaka, Takahashi T, Tateno A, Katsukusa H, Takahashi K, Nagao Y, Ochi M, Yoshizawa M. Relationship between genotypes of some economically important traits and in vitro production rate of bovine embryos from oocytes obtained by an ovum pick-up (OPU) technique. Asian symposium on animal biotechnology (Chungbuk, Cheonju, Korea):, 2009.
- 3) *PP* Masuda, S., Abe, T., Inoue, M., Hasegawa, M., Hayashi, S., Nagao, Y., Hanazono, Y.: Safe and efficient expansion of human HSC with Sendai virus vector expressing HoxB4 in fetal sheep. The 51st Annual Meeting of American Society of Hematology, New Orleans, Dec. 5–8, 2009. (*Blood*. 114: 693a, 2009.)
- 4) *PP* Kato Y, Miyamoto R, Bailey JL and Nagao Y. Suppression of mitochondrial activity in activated bovine sperm advances capacitation status and induces normal embryogenesis. The 43rd Annual Meeting of the Society for the Study of Reproduction. *Biology of Reproduction* 2010: Supplement p111. (Milwaukee, U.S.A., 30 July- 3 August, 2010)
- 5) *PP* Miyamoto R, Kato Y and Nagao Y. Reactive oxygen species derived from sperm and culture condition affects the developmental ability of bovine embryo following intracytoplasmic sperm injection. 11th International symposium on spermatology, Program and Abstracts: 101 (2010. 6.24-29, Okinawa).
- 6) *PP* Shigeo Masuda, Tomoyuki Abe, Satoshi Hayashi, Yujiro Tanaka, Hiroshi Ban, Makoto Inoue, Mamoru Hasegawa, Yoshikazu Nagao, Yutaka Hanazono : Busulfan Conditioning in Sheep *In Utero* Transplantation Confers Engraftment Potential on Human Hematopoietic Stem Cells as Efficiently as *HoxB4* Transduction: The 52st Annual Meeting of American Society of Hematology, Orlando, USA, Dec. 4-7, 2010. (*Blood*. 116: 3716a, 2010.)
- 7) *PP* Tomoyuki Abe, Shigeo Masuda, Satoshi Hayashi, Yujiro Tanaka, Hiroshi Ban, Makoto Inoue, Mamoru Hasegawa, Yoshikazu Nagao, Yutaka Hanazono : *In Utero* Transplantation to Busulfan-conditioned Sheep Fetuses Enhances Engraftment of Human Hematopoietic Stem Cells (Poster): Keystone symposia (Stem Cells in Development, Tissue Homeostasis and Disease (B3)), Santa Fe, Jan 30-Feb 4, 2011. (abstracts P68)

- 8) *PP* Tomoyuki Abe, Shigeo Masuda, Nitta Suguru, Satoshi Hayashi, Yujiro Tanaka, Hiroshi Ban, Makoto Inoue, Mamoru Hasegawa, Yoshikazu Nagao, Yutaka Hanazono : Conditioning With Busulfan Confers Engraftment Potential on Human Hematopoietic Stem Cell Comparable to *HoxB4* Transduction in Sheep *In Utero* Transplantation (Poster) : The 9th Annual Meeting of International Society for Stem Cells Research, Toronto, Ontario Canada, June 15-18, 2011. (Thursday Poster Abstracts P105)
- 9) *OP* Yoshikazu Nagao, Tomoyuki Abe, Yujiro Tanaka, Kyoko Sasaki, Shigeo Masuda, Suguru Nitta, Borjigin Sarentonglaga, Satoshi Hayashi, Yoshihiro Kitano, Yutaka Hanazono. Possible factors for engraftment of monkey embryonic stem cells after in utero transplantation into sheep fetuses. The 17th International Congress on Animal Reproduction, Reproduction in Domestic Animals, Vol.47, s4, P589, (29 June-2 August, 2012, Vancouver, Canada) .
- 10) *OP* Borjigin Sarentonglaga, Kazuko Ogata, Yoriko, Taguchi, Yoku Kato, Yoshikazu Nagao. The developmental ability of cattle oocytes is impaired in animals with liver disorder. The 17th International Congress on Animal Reproduction, Reproduction in Domestic Animals, Vol.47, s4, P465, (29 July-2 August , 2012, Vancouver, Canada) .
- 11) *OP* Yutaka Hanazono, Tomoyuki Abe, Suguru Nitta, Shigeo Masuda, Satoshi Hayashi, Yoshikazu Nagao; Long-term Follow-up on the Engraftment of Human HSCs in Sheep after in Utero Transplantation; Society for Hematology and stem cells, 41st Annual Scientific Meeting (Amsterdam, Netherland, 23-26 August, 2012).
- 12) *PP* Tomoyuki Abe, Suguru Nitta, Shigeo Masuda, Satoshi Hayashi, Yoshikazu Nagao and Yutaka Hanazono; Long-Term Comparative Study on the Engraftment of Human Hematopoietic Stem Cells in Sheep; The 10th Annual Meeting of International Society for Stem Cells Research, Wednesday-Thursday Poster Abstracts p. 95 (Yokohama, Japan, June 13-16, 2012).
- 13) *OP* Yoshikazu Nagao, Tomoyuki Abe, Yujiro Tanaka, Kyoko Sasaki, Shigeo Masuda, Borjigin Sarentonglaga, Kazuko Ogata, Mio Yamaguchi, Satoshi Hayashi, Yoshihiro Kitano and Yutaka Hanazono. Factors influencing engraftment of monkey embryonic stem cells in sheep after xenogeneic in utero transplantation. The 12th Congress of the International Xenotransplantation Association. Abstract: Xenotransplantation, .20 (5), P.372, 2013. (Osaka International Convention Center, Osaka, Japan, November 10-13, 2013).
- 14) *OP* Tomoyuki Abe, Shigeo Masuda, Borjigin Sarentonglaga, Kazuko Ogata, Mio Yamaguchi, Satoshi Hayashi, Yoshikazu Nagao and Yutaka Hanazono. Long-term comparative study on the engraftment of human hematopoietic stem cells in sheep after xenogeneic in utero transplantation. The 12th Congress of the International Xenotransplantation Association. Abstract: Xenotransplantation, .20 (5), P.342. (Osaka International Convention Center, Osaka, Japan, November 10-13, 2013).
- 15) *PP* Yoshikazu Nagao, Haruka Yamamoto, Borjigin Sarentonglaga, Kazuko Ogata, Mio Yamaguchi, Yoku Kato. Effects of mitochondrial activity of injected sperm on early development in bovine intracytoplasmic sperm injection-derived embryos. The

- 40th Annual Conference of the International Embryo Transfer Society. *Reproduction, Fertility and Development*, Vol.26, P205 (Reno, Nevada, USA, January 11–14, 2014.).
- 16) *PP* Kazuko Ogata, Borjigin Sarentonglaga, Mio Yamaguchi, Aiko Sasaki, Yoku Kato, Mikio Wakabayashi, Kenji Nishihara, Yoshinori Yanagisawa, Ryota Fukui, Hiroshi Takano, Yoshikazu Nagao. Effects of varying glutathione concentrations in semen extender on the quality of frozen-thawed canine sperm. The 40th Annual Conference of the International Embryo Transfer Society. *Reproduction, Fertility and Development*, Vol.26, P145, (Reno, Nevada, USA, January 11–14, 2014.).

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 一般：太田有紀、長尾 慶和、金子由美子、矢野浩子、林真美、塚本智史、南直治郎、鬼頭靖司. 高 Ca^{2+} 濃度下マウス体外受精時の第二極体放出抑制現象の系統および亜系統特異性. 日本実験動物学会（2009.9.14-16, さいたま市）.
- 2) 一般：阿部朋行、田中裕次郎、中村紳一郎、林聡、増田茂夫、花園豊、長尾慶和：ヒツジ胎子への子宮内移植によるヒツジ／サルキメラの形成とその免疫学的機構の解明. 第 102 回日本繁殖生物学会講演要旨集：j23（2009年9月10–12日、奈良市）
- 3) 一般：高崎裕一、福井良太、西原健司、長尾慶和. イヌ卵子の体外成熟における卵丘細胞および培養気相中の酸素濃度の影響. 第 103 回日本繁殖生物学会講演要旨集：j71（2010.9.2-4, 十和田市）.
- 4) 一般：緒方和子、佐々木愛子、福井良太、西原健司、柳澤嘉紀、高野博、長尾慶和. イヌ凍結融解精子の質に及ぼすストロー融解法、凍結希釈液組成および季節変動の影響の検討. 第 103 回日本繁殖生物学会講演要旨集：j140（2010.9.2-4, 十和田市）.
- 5) 一般：加藤翼、長尾慶和. ウシ ICSI 時に精子が産生する活性酸素が初期発生に及ぼす影響. 第 52 回日本哺乳動物卵子学会（大田原市、2011年5月21-22日）.
- 6) 一般：Baorejigin Sarentonglaga、田口依子、加藤翼、長尾慶和. ウシ卵子の初期発生能に及ぼす肝疾病に影響. 第 104 回日本繁殖生物学会大会、*Journal of Reproduction and Development* vol.57, Suppl：P j114（盛岡、2011年9月15-17日）.
- 7) 一般：新田卓、阿部朋行、田中裕次郎、佐々木京子、増田茂夫、ボラジギン・サラントラガ、林聡、北野良博、花園豊、長尾慶和. ヒツジ胎子内におけるサル ES 細胞の生着、造血系分化およびテラトーマ形成に及ぼす要因, 第 105 回日本繁殖生物学会、*Journal of Reproduction and Development*. Vol.58. Suppl; j92:2012.（優秀発表賞、つくば市、2012年9月5-7日）.
- 8) 一般：Tomoyuki Abe, Suguru Nitta, Shigeo Masuda, Satoshi Hayashi, Yoshikazu Nagao and Yutaka Hanazono; HoxB4-Transduction of Human HSC Results in Longer-Term Engraftment Compared to Busulfan-Conditioning in Sheep after in Utero Transplantation; 第 10 回 幹細胞シンポジウム 抄録集 p.35（兵庫・淡路夢舞台国際会議場、2012年5月31日～6月2日）.
- 9) 一般：山本はるか、加藤翼、ボラジギン・サラントラガ、緒方和子、長尾慶和. ウシ ICSI 胚における注入直後の精子ミトコンドリア活性が初期発生に及ぼす影響. 第 54 回日本卵子学会（東京、平成 25 年 5 月 25-26 日）
- 10) 一般：緒方和子、サラントラガ、山口美緒、佐藤あかね、佐々木愛子、菅根尚子、若林幹夫、西原健司、福井良太、高野博、長尾慶和. イヌ精子の耐凍性に及ぼす凍結希釈液中の抗酸化剤の効果. 第 20 回日本胚移植研究会、第 29 回東日本家畜受精卵移植技術

研究会、第 32 回北海道牛受精卵移植研究会、合同研究発表大会、講演要旨集 P60
(札幌市、平成 25 年 8 月 12-13 日)

他 38 件

●受賞

- 1) 優秀発表賞：新田卓，阿部朋行，田中裕次郎，佐々木京子，増田茂夫，ボラジギン・サラントラガ，林聡，北野良博，花園豊，長尾慶和．ヒツジ胎子内におけるサル ES 細胞の生着、造血系分化およびテラトーマ形成に及ぼす要因，第 105 回日本繁殖生物学会、Journal of Reproduction and Development. Vol.58. Suppl; j92:2012. (つくば市、2012 年 9 月 5-7 日).
- 2) 若手優秀発表賞：阿部朋行、新田卓、増田茂夫、林聡、長尾慶和、花園豊．ヒツジにおけるヒト造血細胞長期生着の条件検討 第 59 回 日本実験動物学会総会 抄録集 p.166 (別府市、2012 年 5 月 24-26 日)
- 3) ベストオーラルプレゼンテーション賞：長尾慶和、阿部朋行、柳瀬公秀、サラントラガ、緒方和子、山口美緒、林聡、花園豊 ヒツジ子宮内異種移植(I)：生着条件の検討. 第 16 回日本異種移植研究会、抄録集 p.41 (大阪、2013 年 11 月 10 日)

●外部資金 (科学研究費：科研、奨学寄付金：奨学，受託研究：受託，共同研究：共同)

- 1) 「奨学」長尾慶和，450 千円「黒毛和種育成牛の市場動向に関する調査研究」
JA全農とちぎ，H21 年
- 2) 「奨学」長尾慶和，400 千円「哺乳動物の生殖工学に関する調査研究」
フェニックスバイオ (株)，H21 年
- 3) 「奨学」長尾慶和，225 千円「乳牛の飼料添加剤に関する調査研究」
日産合成(株)，H22 年
- 4) 「奨学」長尾慶和，225 千円「乳牛の飼料添加剤に関する調査研究」
白石カルシウム(株)，H22 年
- 5) 「奨学」長尾慶和，225 千円「乳牛におけるリュウキュウヤナギ葉粉末乾草の給与効果に関する研究」日本配合飼料(株)，H22 年
- 6) 「奨学」長尾慶和，450 千円「黒毛和種育成牛の市場動向に関する調査研究」
JA全農とちぎ，H22 年
- 7) 「奨学」長尾慶和，400 千円「哺乳動物の生殖工学に関する調査研究」
フェニックスバイオ (株)，H22 年
- 8) 「共同」長尾慶和、250 千円「舞茸菌床発酵飼料の反芻動物における飼料価値に関する研究」那須バイオファーム，H22 年
- 9) 「科研」長尾慶和「ヒトiPS細胞のヒツジ胎子微小環境内における造血系分化誘導システムの確立」1690千円，H23年
- 10) 「奨学」哺乳動物の生殖工学に関する調査研究のための助成金、
フェニックスバイオ (株)、500 千円，H23 年
- 11) 「奨学」黒毛和種育成牛の市場動向に関する調査研究のための助成金、
JA全農とちぎ，450 千円，H23 年
- 12) 「科研」代表、ヒトiPS細胞のヒツジ胎子微小環境内における造血系分化誘導システムの確立、1423千円，H24年
- 13) 「奨学」哺乳動物の生殖工学に関する調査研究のための助成金、

- フェニックスバイオ (株)、500 千円、H24 年
- 14) 「奨学」黒毛和種育成牛の市場動向に関する調査研究のための助成金、
JA全農とちぎ、450 千円、H24 年
 - 15) 「科研」代表、ヒトiPS細胞のヒツジ胎子微少環境内における造血系分化誘導システムの確立、1480千円、H25年
 - 16) 「奨学」哺乳動物の生殖工学に関する調査研究のための助成金、
フェニックスバイオ (株)、500 千円、H25 年
 - 17) 「奨学」黒毛和種育成牛の市場動向に関する調査研究のための助成金、
JA全農とちぎ、450 千円、H25 年.
 - 18) 「受託」放牧の多面的効果を活かしたビタミンD強化牛乳の生産. Jミルク、148万円、
H25年.
 - 19) 「奨学」周産期乳牛の乳熱予防に関する研究のための助成 日本全薬、45万円、H25年.
 - 20) 「奨学」畜産長靴試験履きのための助成金. 弘進ゴム、1.5万円、H25年.

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

ロ) 報道 2 件

- ・下野新聞 長尾慶和：イヌの人工授精
- ・下野新聞 長尾慶和：ヒト iPS 細胞

ニ) 技術指導 90 件

長尾慶和, イヌの人工授精、東日本盲導犬協会 (2009 年 4 月～2014 年 3 月)

昆虫の発育を制御する遺伝子調節領域の解析

(担当者) 川崎秀樹 (教授) *1、岩永将司 (准教授) *1

*1 宇都宮大学 農学部、生物資源科学科、農学研究科生物生産科学専攻
kawasaki@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1. 研究の背景

昆虫は脱皮をもたらす脱皮ホルモン（以後エクダイソン）と幼虫形質を維持する幼若ホルモン（以後 JH）によって脱皮、変態が調節されている。最終齢幼虫になり成虫になるためのエネルギーと栄養が蓄積されると昆虫は変態へと向かう。最終齢になり JH 濃度が低下するとプログラムの切り替えが行われ、脱皮ホルモンの分泌により蛹化に必要な遺伝子の発現が行われる。このような昆虫の発育制御を、大型で扱いやすく、ホルモン、遺伝情報が蓄積され、近年ゲノム情報が明らかになったカイコを用いて解析を行うことが可能になってきている。昆虫の遺伝子発現制御研究は、科学技術の進歩に伴い飛躍的に発展してきている。DNA の塩基配列決定法、遺伝子クローニングの方法などは大きな変革を遂げてきている。カイコの遺伝情報についてはカイコの EST のデータベース構築により多くの遺伝子の解析が可能になり、カイコのゲノム配列が明らかになり、遺伝子の調節領域を含む配列のクローニングも容易になってきている。昆虫の変態に必要でエクダイソンに発現誘導されることが明らかとなっているクチクラタンパク質遺伝子はいくつかの種でゲノム構造が調べられており、遺伝子の重複が認められている。

2. 研究の目的

クチクラタンパク質遺伝子は mRNA の発現量が多く、ホルモン応答性が顕著で、ホルモンによる発現調節機構を調べるには非常に優れた材料であると考えられる。エクダイソン応答性の異なるクチクラタンパク質遺伝子のうちエクダイソンパルスで誘導される遺伝子の上流域をクローニングし、翅原基の培養系を用いてプロモーターアッセイの系を確立し、エクダイソンパルスに応答する配列を確認する。翅原基の培養系を用いて、3種のエクダイソン応答配列について明らかにする。並行して、発現時期を決定するシスエレメント、トランス因子を追跡する。プロモーターアッセイは培養細胞を用いて行われているが、器官レベルになると、適用する系の確立が難しく、現在までにそれほど行われていない。本研究ではプロモーターアッセイの系を確立し、今後様々な遺伝子の調節領域への応用を目指す。クチクラタンパク質遺伝子でシステム化されれば昆虫の発育に関わる転写因子の発現解析も試みる。

3. 研究の方法

発現時期の異なるクチクラタンパク質遺伝子の発現調節解析を遺伝子銃を用いたレポーターアッセイにより行う。クチクラタンパク質遺伝子とその発現に関与する転写因子の関係を明

らかにするために、多くのクチクラタンパク質遺伝子及び数種の転写因子の発現をリアルタイムPCR法で解析を行う。

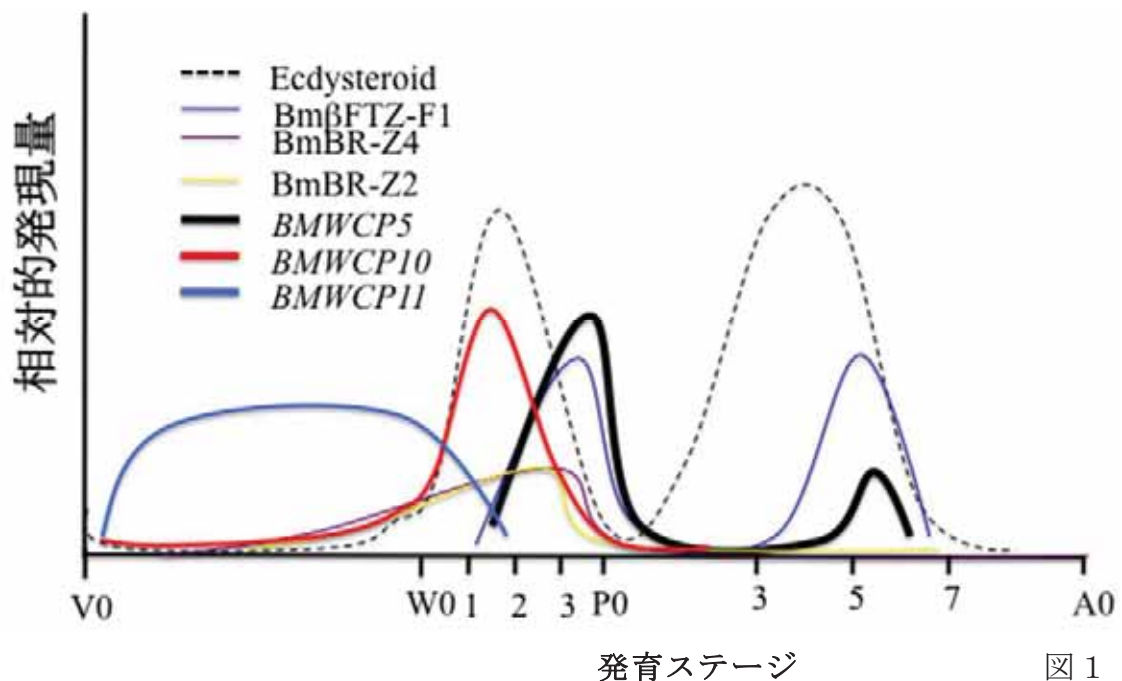
遺伝子銃によるカイコの翅原基、翅組織への遺伝子の導入法を、器官の時期、培養条件について検討し、様々な条件で可能になるように行った。5齢4日目と吐糸後2日目の器官を取り出して遺伝子銃で金粒子の付着した目的の配列を含んだプラスミドDNAの器官への導入を行った。異なる発現様式を見せるクチクラタンパク質遺伝子の上流配列を調べ、エクダイソン応答性転写因子の結合部位と結合因子の追跡を行った。

4. 研究成果

(1) 遺伝子銃によるカイコの翅原基、翅組織への遺伝子の導入法を確立し、レポータープラスミドの上流にプロモーター解析を行う遺伝子の上流の遺伝子調節領域を挿入し、レポーターアッセイにより、プロモーター活性を検定するシステムを構築した。このシステムと、ゲルシフトアッセイを組み合わせ、遺伝子のプロモーターの解析を行った。

(2) カイコの翅原基で発現するクチクラタンパク質遺伝子には5齢初期のエクジステロイド濃度の低い時期に発現するタイプ(*BMWCP11*)や吐糸開始後エクジステロイドの上昇に伴って上昇するタイプ(*BMWCP10*)、蛹化前にエクジステロイドが下降する時期に発現誘導を受けるタイプ(*BMWCP5*)など、発現時期あるいはホルモン感受性の異なるものが見いだされた(図1)。in vitro でこれらは以下の様にエクダイソンに反応する。*BMWCP11* はエクダイソンの存在下で発現が抑制されホルモンを除くと発現が誘導される。*BMWCP10* はエクダイソンに直接誘導される。*BMWCP5* はエクダイソンに6時間以上接触した後ホルモンを除くことで発現が誘導される。翅原基でこれらの発現パターンやホルモン感受性がどのように制御されているかを明らかにするために、ゲノム情報を利用してこれらクチクラタンパク質遺伝子上流域の発現調節領域の解析を行った。

これら翅原基でクローニングされたクチクラタンパク質遺伝子のうち、発現パターンやホルモン誘導性から考えて、*BMWCP5* は転写因子 FTZ-F1 の影響下でエクダイソンパルスによって誘導され、*BMWCP10* はエクダイソンに直接誘導され EcR が上流の調節領域に結合することが考えられた。これらの事を確かめるために、それぞれの遺伝子を KAIKObase で BLAST サーチを行い、遺伝子上流域のシークエンスを獲得し、転写因子の結合配列予測サイト (<http://www.genomatix>) にアクセスして調べた結果、*BMWCP5* の上流域には BR-C 及び FTZ-F1 の結合配列が(図2)、*BMWCP10* の上流域には BR-C 及び EcR の結合配列が認められた。これらの配列や転写因子が実際に働いているかどうかを確かめるために、遺伝子銃を用いたプラスミド導入系を開発し、ルシフェラーゼ遺伝子を有するレポータープラスミドに *BMWCP5* 及び *BMWCP10* の上流域を挿入してプロモーターの活性を調べた。その結果、*BMWCP5* では BR-C Z4 及び FTZ-F1 がプロモーター活性に影響し、それぞれの結合部位の配列を変異させるとプロモーターの活性が低下した。この結果は *BMWCP5* の体内での発現の様子を反映している。すなわち、*BMWCP5* は FTZ-F1 によりエクジステロイドのピークから下降期に発現し、5齢期には吐糸後3日目に蛹化後には5日目に小さなピークを示す。BR-C Z4 は蛹化後には発現しないので *BMWCP5* の発現量は少なくなるものと考えられた。



BMWCP10 は *in vitro* でエクダイソンに誘導されるが、シクロヘキシミドを添加することにより発現量は減少する。この発現量はシクロヘキシミドの添加で完全に抑制されないことから、エクダイソンによる誘導には、直接のものと、転写因子などのタンパク質を介してのものとが考えられた。本システムを用いて、*BMWCP10* では BR-C Z2 及び EcR がプロモーター活性に影響することを確かめることが出来た。さらに、EMSA 法によりそれぞれの転写因子やレセプターが結合部位に結合することを確認できた。これらの結果から、それぞれの因子が結合部位に結合することにより、転写の活性化がおこり、時期特異的発現やホルモン応答を行っていることを明らかにできた。

(3) 低濃度のエクダイソンに応答する転写因子遺伝子 *E74B* の上流 6 kb の解析を行い、7箇所エクダイソンレスポンスエレメントを見だし、エクダイソンレセプターの結合を EMSA 法により解析した結果、5カ所の EcRE にレセプターの結合が認められた。それぞれの EcRE 配列の塩基置換を行いプロモーター解析を行った結果、これらの EcRE は単独に働くのではなく、互いに協調しあって働くことで低濃度のエクダイソンに応答することが可能となるということを確認できた。

(4) カイコの翅原基は培養下でエクダイソンにより細胞分裂が誘導されるが、このとき細胞周期に関連する遺伝子の発現をリアルタイム PCR で調べたところ、各種サイクリン遺伝子に先立ち、Myc 遺伝子が誘導されることを見いだした。そこで、前述した方法で Myc 遺伝子上流 3 kb をレポータープラスミドにクローニングしプロモーターアッセイを行ったところ、Myc 遺伝子上流 3 k および 2 k の範囲には活性が認められたが、上流 1 k までのところではエクダイソン存在下での活性が認められなかった。このことから、Myc 遺伝子上流 1 ~

2 k の間にエクダイソン応答配列の存在する可能性が考えられた。現在推定される EcRE 配列の塩基置換を行って検討中である。

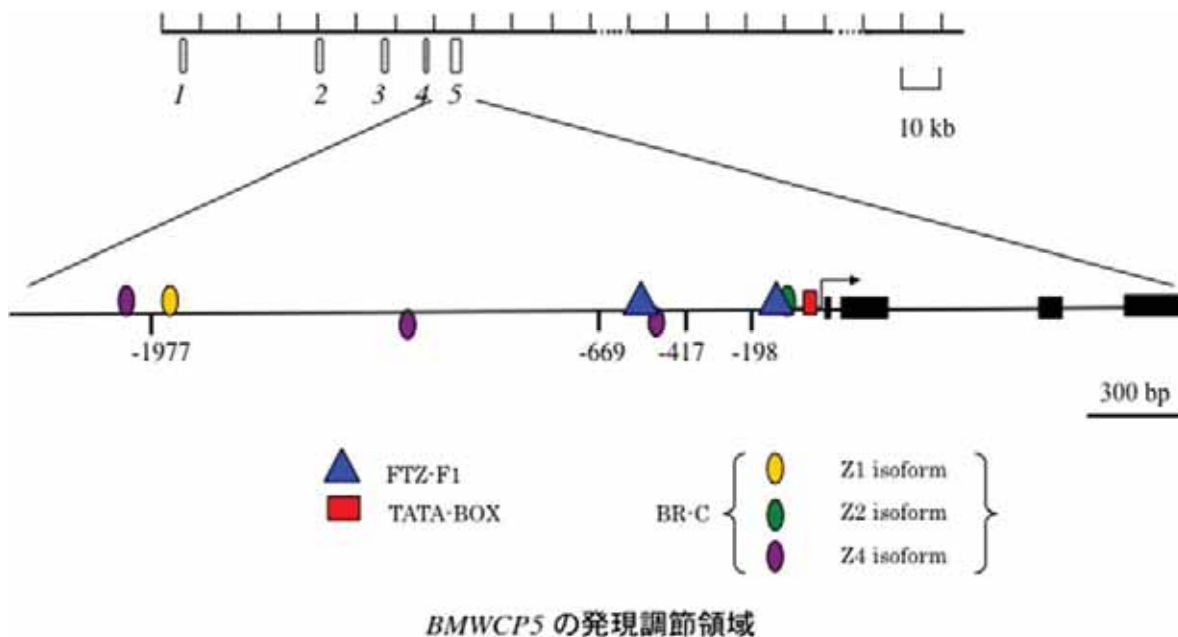


図 2

以上のように、カイコが大型の昆虫で、器官レベルでの研究が可能で、器官培養、器官を用いたレポーターアッセイが行えることを活かして、カイコのゲノム情報を利用して、昆虫の発育に関わるいくつかの遺伝子の発現調節領域の解析を行い、転写因子、クチクラタンパク質遺伝子の発現に関わるシスエレメント、トランス因子を明らかに出来た。これにより、ゲノム配列がどのようにして遺伝子発現につながるかを明らかに出来、昆虫の発達の調節をゲノムレベルから理解する一端を開くことが出来た。

プロジェクト4 昆虫の発育を制御する遺伝子調節領域の解析

(担当者) 川崎秀樹 (教授)^{*1}, 岩永将司 (准教授)^{*1}

^{*1} 宇都宮大学農学部, 生物資源科学科, 農学研究科生物生産科学専攻

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) Analysis of ecdysone-pulse responsive region of BMWCP2 in wing disc of *Bombyx mori*. *Comp. Biochem. Physiol.* 153, 101-108. (2009). Nita, Wang, Zhong, Mita, Iwanaga, Kawasaki.
- 2) Identification and functional characterization of the Rad23 gene of the silkworm, *Bombyx mori*. *Bioscience report.*30, 19-26. (2009). Xu, Xu, Wang, Kawasaki.
- 3) Activation of BMWCP10 promoter and regulation by BR-C Z2 in wing disc of *Bombyx mori*. *Insect Biochem. Mol. Biol.* (2009). 39, 615-623. Wang, Iwanaga, Kawasaki.
- 4) β FTZ-F1 and Broad-Complex positively regulate the transcription of the wing cuticle protein gene, *BMWCP5*, in wing discs of *Bombyx mori*. *Insect Biochem. Mol. Biol.* (2009). 39,624-633. Wang, Iwanaga, Kawasaki.
- 5) Purification and expression analysis of imaginal disc growth factor in the silkworm, *Bombyx mori*. *J.Insect Physiol.* (2009). 55,1065-1071. Wang, Sakudoh, Kawasaki, Iwanaga, Araki, Fujimoto, Takada, Iwano, Tsuchida.
- 6) Establishment and characterization of the *Bombyx mandarina* cell line. *J. Invert. Pathol.* (2009). 101, 124-129. Iwanaga, Arai, Shibano, Kawasaki, Imanishi.
- 7) Ecdysone directly and indirectly regulates a cuticle protein gene, *BMWCP10*, in the wing disc of *Bombyx mori*. *Insect Biochem. Mol. Biol.* (2010). 40, 453-459. Wang, Moriyama, Iwanaga, Kawasaki.
- 8) 20-hydroxyecdysone and juvenile hormone analog prevent precocious metamorphosis in recessive trimolter mutants of *Bombyx mori*. *Insect Biochem. Mol. Biol.* (2011). 42, 102-108. Wang, Ali, Moriyama, Iwanaga, Kawasaki.
- 9) Ecdysone-responsive transcription factors determine the expression region of target cuticular protein genes in the epidermis of *Bombyx mori*. *Development Genes Evolution*, (2012). 222, 89-97. Ali, Iwanaga, Kawasaki.
- 10) Expression of cuticular protein genes, *BmorCPG11* and *BMWCP5* is differently regulated at the pre-pupal stage in wing discs of *Bombyx mori*. *Com. Biochem. Physiol. B.* (2012). 162, 44-50. Ali, Wang, Iwanaga, Kawasaki.
- 11) Infection study of *Bombyx mori* macula-like virus (BmMLV) using a BmMLV-negative cell line and an infectious cDNA clone. Iwanaga, Hitotsuyama, Katsum, Ishihara, Daimon, Shimada, Imanishi, Kawasaki. *J. Virolog. Meth.* (2012). 179, 316-324.

12) Ecdysone-responsive transcriptional regulation determines the temporal expression of cuticular protein genes in wing discs of *Bombyx mori*. *Gene*, (2013). 512, 337-347. Ali, Iwamaga, Kawasaki.

13) Involvement of HSC70-4 and other inducible HSPs in *Bombyx mori* nucleopolyhedrovirus infection. *Virus research*. (2014). 179, 113-118. Iwanaga, Shibano, Ohsawa, Fujita, Katsuma, Kawasaki.

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

1) *PP* Analysis of regulation of the expression of cuticle protein genes expressed in wing discs of *Bombyx mori*. Wang, Nita, Moriyama, Iwanaga, Kawasaki. Ecdysone Workshop 2010, 19-23 July, Ceske Budejovice, Czech Republic.

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

1) 「招待」 川崎秀樹 “カイコゲノム情報から導かれる遺伝子発現制御研究の始まり”，日本蚕糸学会 関東支部会，シンポジウム「カイコゲノム情報の今後の展開」2009.11.7. 宇都宮.

2) 「招待」 川崎秀樹 翅原基を用いたカイコ変態の遺伝子発現機構の解析に関する研究. 平成23年度日本蚕糸学会賞記念講演. 2011.11.4 盛岡.

3) 「招待」 岩永将司「昆虫培養細胞で増殖する植物ウイルス様ウイルスの研究」第10回昆虫病理研究会シンポジウム 第17回BT研究会合同大会. 2012.9.22 帯広

4) 「招待」 岩永将司「カイコ核多角体病ウイルス感染における宿主分子シャペロンの役割」第9回昆虫病理研究会シンポジウム 第16回BT研究会合同大会. 2010.9.23 富士吉田

5) 「一般」カイコにおける成虫原基成長因子の発現解析. 王・岩永・川崎. 日本蚕糸学会, 東京 (2009.3)

6) 「一般」 BmNPV 感染におけるカイコ HSP90 の解析. 綱川・勝間・芝野・川崎・岩永. 日本蚕糸学会第80回学術講演会 上田 (2010.3)

7) 「一般」カイコ核多角体病ウイルス感染細胞における宿主 HSC70 の役割. 芝野・川崎・岩永. 日本蚕糸学会, 上田 (2010.3)

8) 「一般」カイコ翅原基でエクダイソンに誘導されるクチクラ蛋白質遺伝子 *BMWCP10* のプロモーター解析. 王・岩永・川崎 日本蚕糸学会, 上田 (2010.3)

9) 「一般」低濃度のエクダイソンに反応する初期応答遺伝子 E74B の解析. 王, 森山, 岩永, 川崎. 日本蚕糸学会, 東京 (2011.3).

10) 「一般」カイコ終齢幼虫期の翅原基における細胞周期の内分泌制御機構の解明. 森山, 大吉, 長内, 王, 岩永, 川崎. 日本蚕糸学会, 東京 (2011.3).

11) 「一般」 20-hydroxyecdysone and juvenile hormone analogue prevent precocious

- metamorphosis in recessive trimolter mutants of *Bombyx mori* via Krüppel-homolog 1 and Broad. Wang, Moriyama, Iwanaga, Kawasaki. 日本蚕糸学会, 東京 (2011.3).
- 12) 「一般」酵母2-ハイブリッド法を用いた *BmMLV* の相互作用解析. 印南・石井原・勝間・松田・嶋田・今西・姜・川崎・岩永. 日本蚕糸学会, 東京 (2011.3).
- 13) 「一般」バキュロウイルス発現系における *BmVF* 細胞の利用. 津久井・内山・勝間・今西・川崎・岩永. 日本蚕糸学会, 福岡 (2012)
- 14) 「一般」 蛹化前に発現するクチクラタンパク質遺伝子は6つのグループに分けられ、異なる転写因子に制御されている. Ali・岩永・川崎. 日本蚕糸学会, 筑波 (2013.3).
「一般」他61件
- 15) 「ポ」 Activation of *BMWCP10* promoter and regulation by Ecdysone receptor and BR-C Z2 in wing disc of *Bombyx mori* Wang, Iwanaga, Kawasaki. 日本分子生物学会、横浜 (2009)
- 16) 「ポ」 A role of molecular chaperones in *Bombyx mori* nucleopolyhedrovirus-infected cells. Shibano, Tsunakawa, Katsuma, Kang, Kawasaki, Iwanaga. 日本分子生物学会、横浜 (2009)
- 17) 「ポ」 Detection of *Bombyx mori* macula-like virus by RT-PCR and analysis of virus-host interaction by yeast two-hybrid screening. Ishihara, Innami, Katsuma, Imai, Shimada, Imanishi, Kang, Kawasaki, Iwanaga. 日本分子生物学会、横浜 (2009)
- 18) 「ポ」 リバースジェネティクスを用いた *Bombyx mori* macula-like virus の複製機構の解析 石原・勝間・嶋田・今西・川崎・岩永. 第9回昆虫病理研究会シンポジウム 第16回BT研究会合同大会 富士吉田 (2010)
- 19) 「ポ」 低濃度のエクダイソンに反応する初期応答遺伝子 王・森山・岩永・川崎. 日本分子生物学会、2010.12.7-10 神戸.
- 20) 「ポ」 カイコ終齢幼虫における翅原基の細胞周期を制御する機構の解析. 森山・大吉・長内・王・岩永・川崎. 日本分子生物学会、2010.12.7-10 神戸.
- 21) 「ポ」 Ecdysone-responsive transcription factors determined the expression space of target cuticular protein genes in the epidermis of *Bombyx mori*. Ali, Iwanaga, Kawasaki. 日本分子生物学会。2011.12.13-16. 横浜。
- 22) 「ポ」 カイコ CHIP の全長 cDNA クローニングと機能解析 大沢・綱川・川崎・岩永. 第34回日本分子生物学会年会、神奈川県・横浜 (2011)
- 23) 「ポ」 Ecdysone-responsive transcription regulation determines the temporal expression of cuticular protein genes in wing discs of *Bombyx mori*. Ali, Iwanaga, Kawasaki 第35回日本分子生物学会年会、福岡県・福岡、2012年12月
- 24) 「ポ」 カイコのアンジオテンシン転換酵素ファミリーの解析 川崎・Yan・三田・Zhao・田中・森山・大吉・王・岩永. 第36回日本分子生物学会年会、神戸 (2013)

「ポ」他3件

●著書，総説，解説等

- 1) 「総説」カイコゲノム情報から導かれる遺伝子発現制御研究の始まり 川崎秀樹 蚕糸・昆虫バイオテック 78, 121-124 (2009)
- 2) 「総説」カイコ培養細胞へ持続感染する *Bombyx mori macula-like virus* (BmMLV) 岩永将司 蚕糸・昆虫バイオテック 81, 139-148 (2012)

●特許 (外国, 国内, 公開, 出願)

- 1) 「国内」岩永将司「カイコ由来培養細胞株」2012年10月 (特願 2012-232267)

●受賞

- 1) 川崎秀樹 日本蚕糸学会賞受賞、「翅原基を用いたカイコ変態の遺伝子発現機構の解析に関する研究」平成23年3月

●外部資金 (科学研究費：科研、奨学寄付金：奨学、受託研究：受託、共同研究：共同)

1) 「科研」

- (1) 基盤 (B) 昆虫のホルモン応答及び変態に関するシスエレメント，トランス因子の解析」川崎秀樹 平成19年～平成22年 19,890,000円
 - (2) 若手研究 (B) 岩永将司 平成22年4月-平成24年3月「BmMLVの由来の特定と持続感染メカニズムの解明」(平成22-23年度 3100千円)
 - (3) 基盤研究 (C) 岩永将司 平成25年4月-平成28年3月「BmMLVの安定的遺伝子発現機構の解明と遺伝子発現ベクターの開発」(平成25-27年度5070千円)
- 2) 貞明皇后蚕糸記念科学研究助成金 川崎秀樹 「広食蚕を利用した殺虫剤等の残留性検定系の開発」平成21年～平成22年 4,000,000円
 - 3) 「受託研究」岩永将司 科学技術振興機構、復興促進プログラム(A-step)探索タイプ 「無血清培地に順化した昆虫培養細胞と混入RNAウイルスの除去法の開発」855千円

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

ハ) 展示 3件

- ・第4回宇都宮大学企業交流会「昆虫の器官・細胞培養系における遺伝子導入技術 展開と応用」(2010年9月6日)
- ・第5回宇都宮大学企業交流会「昆虫ゲノムと昆虫ウイルスゲノムの応用」(2011年9月6日)
- ・第6回宇都宮大学企業交流会「カイコとカイコの培養細胞を用いたバイオベンチャー企業人育成プログラム」(2012年9月10日)

体内時計に支配される日周リズム・季節リズムの 制御機構解明とその応用

飯郷雅之(教授)*¹, 羽生直人(教授)*², 青山真人(准教授)*³

*1 農学部応用生命化学科, バイオサイエンス教育研究センター, オプティクス教育研究センター iigo@cc.utsunomiya-u.ac.jp

*2 農学部応用生命化学科 habu@cc.utsunomiya-u.ac.jp

*3 農学部生物資源科学科 aoyamam@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1. はじめに

地球は23時間56分4秒の周期で自転する。太陽の周りを365.26日の周期で公転する。地軸が23.4度傾いているために、地球上には春夏秋冬の季節の移ろいが生まれた。地球上の生物は昼夜と四季の変化を利用してさまざまな生理現象を同期させ、さまざまな日周リズムと年周リズムを奏でている。そのレパートリーは行動、摂食、生殖活動、渡り・回遊、換毛・換羽などさまざまである。

1997年に脊椎動物で時計遺伝子が発見されて以来、時計遺伝子群による体内時計制御の分子機構については飛躍的に研究が進展した。しかしながら、季節繁殖を制御する光周性の分子機構については不明な点が多かった。2003年から2008年にかけて私たちは鳥類の季節繁殖の光周性に関与する鍵分子として甲状腺刺激ホルモン(TSH)と2型脱ヨード酵素(DIO2)を名古屋大学の吉村教授らとの共同研究により発見した。哺乳類、鳥類においては、脳の下部に位置する下垂体の「隆起葉」が、日長の変化を脳に伝える中枢として働いているが、魚類には下垂体隆起葉が存在しないため、魚類の光周性を制御する分子機構は不明であった。魚類は日本人にとって最も重要なタンパク源のひとつであり、魚類の繁殖を制御する光周性の分子機構解明は、魚類の増養殖技術の高度化に資すると考えられる。そこで、本研究においては、短日繁殖型のサケ科魚類であるサクラマス *Oncorhynchus masou masou* を対象に研究を進めた。

2. 材料と方法

オプシン遺伝子群、甲状腺刺激ホルモンβ-サブユニット(TSHB)、2型脱ヨード酵素(DIO2)、時計遺伝子群など、季節繁殖関連遺伝子群の網羅的cDNAクローニングを行い、これらの遺伝子

の発現部位を、長日および短日条件下で飼育下サクラマスを対象に *in situ* ハイブリダイゼーションにより調べた。また、免疫組織化学、免疫電顕によりオプシン遺伝子群、甲状腺刺激ホルモンβ-サブユニット (TSHB)、2型脱ヨード酵素 (DIO2) を発現する細胞を同定した。続いて、長日または短日条件下で血管嚢を7日間培養し、明期開始後4または16時間後に採取し、TSHB、DIO2の mRNA 量をリアルタイム PCR で、タンパク質量をウエスタンブロットで調べた。さらに、サクラマスから血管嚢を外科的に除去 (SVX) して長日または短日条件下で5週間飼育し、生殖腺体重比 (GSI) および血中テストステロン濃度を指標に生殖腺発達の光周性におよぼす影響を検討した。

3. 結果

TSHB と DIO2 が脳の底部に発現し、長日条件下で短日条件下よりも高い発現量を示すことがわかった。この部位は Samuel Collins が 1685 年に解剖学的に記載したが、機能がこれまで不明だった血管嚢であった。オプシン遺伝子群、時計遺伝子群についても網羅的に発現解析を行ったところ、少なくとも4種類のオプシン遺伝子と CLOCK, BMAL1, PER1 が血管嚢において発現していることが判明した。免疫組織化学、免疫電顕による観察においては、数種のオプシン、TSHB、DIO2 はサクラマス血管嚢の王冠細胞に発現することがわかった。培養血管嚢における TSHB、DIO2 mRNA 量は長日条件と短日条件で有意な差がなかったが、タンパク質量は長日条件で短日条件よりも有意に増加し、光周性の *in vitro* での再現に初めて成功した。また、SVX を行った個体は短日条件においても生殖腺の発達が見られず、GSI および血中テストステロン濃度は、短日条件下で飼育した正常魚群、偽手術群よりも有意に低かった。

4. 結論と今後の展望

血管嚢には、光周性制御に関わる光入力系、光周時計、出力系のすべてが備わっていた。培養血管嚢においても日長変化に応答すること、SVX により短日条件による生殖腺発達が阻害されることも鑑み、血管嚢はサクラマスの光周性を制御する季節センサーであると結論された。

本研究の成果を発展させて季節繁殖を人為的に制御できれば、季節を問わず魚類の種苗生産を行なうことが可能となり、魚類の増養殖に貢献することが可能になると期待される。

5. 謝辞

本研究の遂行にあたり、お世話になった名古屋大学の吉村崇教授他、多くの共同研究者各位に深く感謝申し上げます。

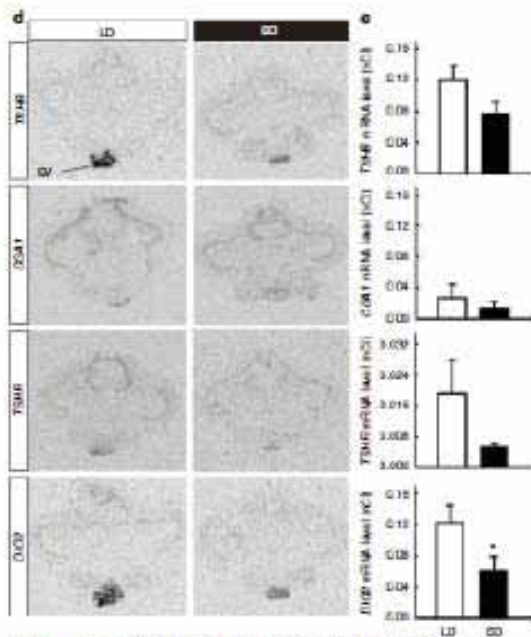


図1. 長日(LD), 短日(SD)の変化に応答して季節繁殖関連遺伝子群の発現が変化する部位をサクラマス脳の下部に発見した。

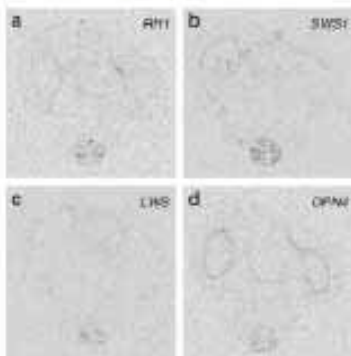


図4. 光受容体遺伝子群も血管嚢に発現する。

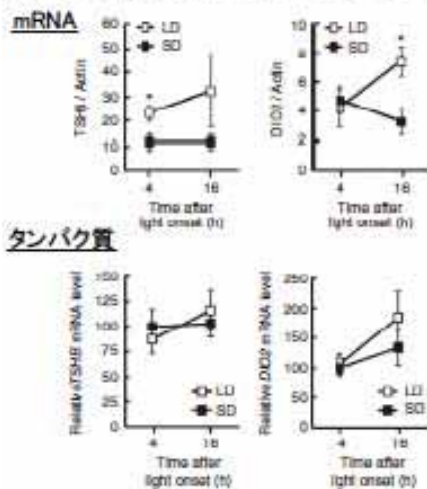


図7. 培養条件下でも血管嚢は日長の変化に応答する。

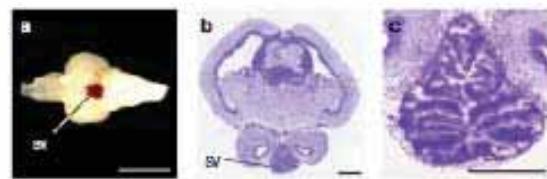


図2. サクラマスの季節繁殖関連遺伝子群の発現部位は血管嚢(SV)だった。



図3. Samuel Collinsにより『A Systeme of Anatomy』(1685)に記載された血管嚢。

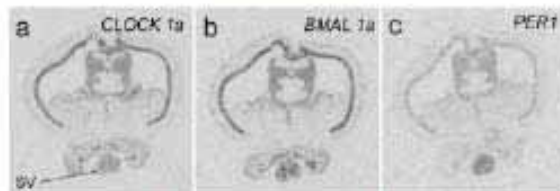


図5. 時計遺伝子群も血管嚢に発現する。

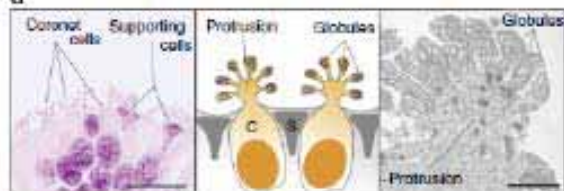


図6. 季節繁殖関連遺伝子群と光受容体遺伝子群の発現部位は血管嚢の王冠細胞だった。

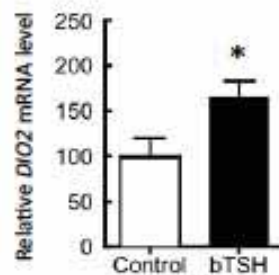


図8. 培養条件下でも血管嚢は甲状腺刺激ホルモン(TSH)に応答する。

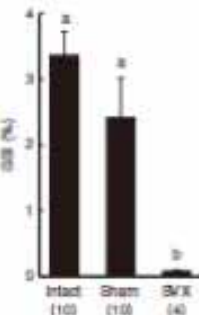


図9. 血管嚢を外科的に除去すると短日条件で誘導される生殖腺発達が抑制される。

プロジェクト5 体内時計に支配される日周リズム・季節リズムの制御機構解明とその応用
(担当者) 飯郷雅之, 羽生直人, 青山真人

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) Ikegami K, Iigo M, Yoshimura T, Circadian clock gene *per2* is not necessary for the photoperiodic response in mice. *PLoS One* 8: e58482 (2013)
- 2) Goto M, Matsuo H, Iigo M, Furuse M, Korf HW, Yasuo S, Melatonin-induced changes in the expression of thyroid hormone-converting enzymes in hypothalamus depend on the timing of melatonin injections and genetic background in mice. *General and Comparative Endocrinology* 186: 33-40 (2013)
- 3) Tsujino K, Narumi R, Masumoto K, Susaki EA, Shinohara Y, Abe T, Iigo M, Wada A, Nagano M, Shigeyoshi Y, and Ueda HR, Establishment of TSHb real-time monitoring system in mammalian photoperiodism. *Genes to Cells* 18: 575-588 (2013)
- 4) Nakane Y, Ikegami K, Iigo M, Ono H, Takeda K, Takahashi D, Uesaka M, Kimijima M, Hashimoto R, Arai N, Suga T, Kosuge K, Abe T, Maeda R, Senga T, Amiya N, Azuma T, Amano M, Abe H, Yamamoto N, Yoshimura T, The saccus vasculosus of fish is a sensor of seasonal changes in day length. *Nature Communications* 4: 2108 (2013)
- 5) Osugi T, Ohtaki N, Sunakawa Y, Son YL, Ohkubo M, Iigo M, Amano M, Tsutsui K, Molecular evolution of *Kiss2* genes and peptides in vertebrates. *Endocrinology* 154: 4270-4280 (2013)
- 6) Watanabe S, Akiyama S, Hanita T, Li H, Nakagawa M, Kaneshi Y, Ohta H, Japan RED filter study group, Designing artificial environments for preterm infants based on circadian studies on pregnant uterus. *Frontiers in Endocrinology* 4: 113 (2013)
- 7) Watanabe E, Tamura N, Fujisawa S, Saito T, Habu N, Isogai A, Stability of (1→3)- β -polyglucuronic acid under various pH and temperature conditions. *Carbohydrate Polymers* 97: 413-420 (2013)
- 8) Watanabe E, Habu N, Isogai A, Biodegradation of (1→3)- β -polyglucuronate prepared by TEMPO-mediated oxidation. *Carbohydrate Polymers* 96: 314-319 (2013)
- 9) Watanabe E, Tamura N, Saito T, Habu N, Isogai A, Preparation of completely C6-carboxylated curdlan by catalytic oxidation with 4-acetamido-TEMPO. *Carbohydrate Polymers* 100: 74-79 (2014)
- 10) Yasuo S, Unfried C, Bojunga C, Iigo M, Korf, HW, 2-Arachidonoyl glycerol

sensitizes the pars distalis and enhances forskolin-stimulated prolactin secretion in Syrian hamsters. *Chronobiology International* (in press)

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *OP* M. Iigo, "The mystery of saccus vasculosus: a sensor of seasonal changes in day length in salmon (Identification of the 4th eye; the 3rd pineal)", *Gordon Research Conference on Pineal Cell Biology 2014*, Galveston (2014)

●国内研究発表(基調講演,招待講演,依頼講演,一般発表,ポスター発表)

- 1) 「招待」武田維倫,飯郷雅之"魚類に「性格」はあるのか?ーアユの攻撃行動の分子遺伝学ー",人間主義心理学会第35回研究集会大会,宇都宮(2013)
- 2) 「ポ」飯郷雅之"宇都宮大学に次世代シーケンサーがやってきた!",NGS現場の会第三回研究会,神戸(2013)
- 3) 「招待」飯郷雅之"体内時計、魚の性格・・・分子生物学が切り拓く本能的脳機能研究の最前線",サイエンスらいおんカフェ第5回,宇都宮(2013)
- 4) 「ポ」飯郷雅之,中根右介,池上啓介,小野ひろ子,武田維倫,高橋大輔,上坂真衣子,君嶋明太,橋本蘭夢,新井菜津美,菅琢哉,小菅克弥,阿部朋孝,阿見彌典子,東照雄,天野勝文,山本直之,吉村崇"サクラマス血管囊における季節繁殖関連遺伝子群の発現",第20回日本時間生物学会学術大会,大阪(2013)
- 5) 「ポ」池上啓介,飯郷雅之,中根右介,前田遼介,千賀琢己,阿部秀樹,山本直之,吉村崇"サクラマスの血管囊は季節繁殖を制御する季節センサーである",第20回日本時間生物学会学術大会,大阪(2013)
- 6) 「招待」飯郷雅之"光が切り拓く生命科学研究の最前線",第3回宇都宮大学オプトバイオシンポジウム,宇都宮(2013)
- 7) 「一般」古川直大,水野伸也,平間美信,新居久也,飯郷雅之,上田宏"シロサケ稚魚の降河回遊に伴う脳-下垂体-甲状腺系ホルモンの変化",平成25年度日本水産学会北海道支部大会,札幌(2013)
- 8) 「一般」飯郷雅之,中根右介,池上啓介,小野ひろ子,武田維倫,高橋大輔,上坂真衣子,君嶋明太,橋本蘭夢,新井菜津美,菅琢哉,小菅克弥,阿部朋孝,阿見彌典子,天野勝文,東照雄,山本直之,吉村崇"魚類の季節繁殖を制御する分子機構-1 季節繁殖関連遺伝子群のサクラマス血管囊における発現",平成26年度日本水産学会春季大会,函館(2014)
- 9) 「一般」飯郷雅之,小菅克弥,武田維倫,中根右介,池上啓介,前田遼介,千賀琢己,阿見彌典子,天野勝文,山本直之,阿部秀樹,吉村崇"魚類の季節繁殖を制御する分子機構-2 血管囊はサクラマスの季節センサーである",平成26年度日本水産学会春季大会,函館(2014)

- 10) 「一般」古川直大, 水野伸也, 平間美信, 新居久也, 飯郷雅之, 上田宏「シロザケ稚魚の降河回遊に伴う脳-下垂体-甲状腺系ホルモンおよび NMDA 受容体の変化”, 平成 26 年度日本水産学会春季大会, 函館 (2014)

他 8 件

●受賞

- 1) 小菅克弥, 大学コンソーシアムとちぎ第 10 回「学生&企業研究発表会」関東経済産業局長賞「300 年の謎を解く ～魚類の脳に存在する季節センサー～」(2013 年 12 月)
- 2) 菊池雅子, 石原島由依, 村上幸恵, 鈴木研太, 武田維倫, 飯郷雅之, 第 3 回宇都宮大学オプトバイオシンポジウムポスター賞「アユのトランスポーター遺伝子群 *SLC6A4* および *SLC18A2* の遺伝子構造と発現解析」(2013 年 12 月)

●外部資金 (科学研究費: 科研、奨学寄付金: 奨学、受託研究: 受託、共同研究: 共同)

- 1) 「科研」基盤研究 (B), (分担) 飯郷雅之, (研究代表者: 上田宏 [北海道大学]), 150 千円「サケの母川水ニオイに対する嗅覚記憶脳内分子に関する研究」(平成 25 年度)
- 2) 「共同」飯郷雅之, 500 千円, 「養殖魚飼料組成に関する研究」(平成 25 年度)
- 3) 「共同」飯郷雅之, 180 千円, 「性格関連遺伝子の多型に着目した温泉トラフグ種苗生産技術の高度化に関する研究」(平成 25 年度)

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

イ) 報道 4 件

- 1) Nature Communications プレスリリース「魚類の血管嚢は日照時間の季節変化を感知するセンサーである」<http://www.natureasia.com/ja-jp/ncomms/abstracts/46873> (2013 年 7 月 2 日)
- 2) ラジオ (文化放送) 飯郷雅之, 「福井謙二 グッモニ」(2013 年 8 月 7 日)
- 3) 毎日新聞 飯郷雅之, 「魚の脳に季節センサー」(2013 年 8 月 23 日)
- 4) 下野新聞 飯郷雅之, 「魚に「季節センサー」宇大・飯郷教授ら発見」(2013 年 9 月 23 日)

ロ) 展示 4 件

- 1) 第 7 回宇都宮大学企業交流会 小菅克弥, 飯郷雅之, 「魚類の季節繁殖を制御する新規脳内分子機構の解析」(2013 年 9 月 9 日)
- 2) 第 7 回宇都宮大学企業交流会 飯郷雅之, 杉田昭栄, 蕪山由己人, 前田勇, 青山真人, 松田勝, 外山史, 「ハシブトガラスゲノムプロジェクト」(2013 年 9 月 9 日)
- 3) 第 7 回宇都宮大学企業交流会 牛山明彦, 武田維倫, 飯郷雅之, 「アユゲノムプロジェクト」(2013 年 9 月 9 日)
- 4) 第 7 回宇都宮大学企業交流会 堀清彦, 飯郷雅之, 「里山地域活性化を目指した多面

的研究の推進と環境教育プログラムの開発・実践」(2013年9月9日)

人体の弾性計測と三次元シミュレーションモデル

酒井直隆(教授)*¹, 嶋脇聡(准教授)*¹,

*1 大学院工研究科機械知能工学専攻

1. 人体の三次元シミュレーション (酒井直隆)

指外傷は日常生活, スポーツにおいて比較的頻度が高い外傷で, 皮膚・爪・指骨などの指を構成する要素が単独または複合的に損傷を受ける. また指は最も末梢部にありながら, その機能が外傷により制限されると, 日常生活に大きな影響を与えてしまう.

これまでの研究では, 屍体や模擬した模型を用いた実験などが行われてきた. しかし, そのような実験から, 内部に働く応力分布や変形を調べるのは困難である. そこでそれらを詳細に調べる場合の手段として, 数値解析シミュレーションが有用であるといえる.

そこで, 指外傷についての影響を調べる場合の手段としても数値解析シミュレーションが有用であると考えられる. 本研究では有限要素法を用いて, 突き指のシミュレーションを行い, 突き指によって生じる外傷の発生メカニズムを解明することを目的としている.

1-1. デジタル・ヒューマンボディ (DHB) による弾性モデルの構築

CT・MRI 画像から指節骨モデル, 腱モデル, 腱鞘モデル, 靭帯モデル, 皮膚, 爪モデルを構築して統合, 三次元指モデルを構築した (図 1). 指節骨モデルと軟組織モデル (腱, 腱鞘, 靭帯) の接合部では節点を共有させて, 剥離を生じない完全接合とした. 各部・組織の物性値は, 医学文献をもとに設定した. 各モデル間の動摩擦係数を 0.005, 腱・腱鞘モデル間の動摩擦係数を 0.04 とした. 骨モデルと腱モデル, 骨モデルと靭帯モデル間の摩擦は無視した.

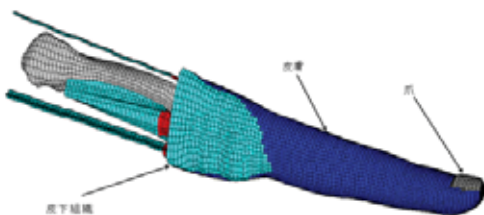


Fig. 1 Analysis model of index finger

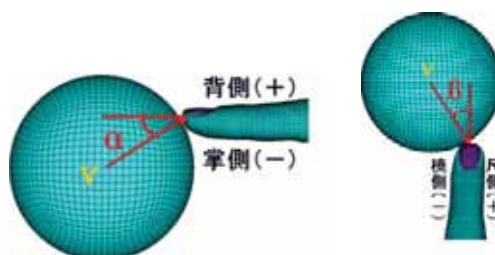


Fig.2 Definition of impact angle to fingertip



Fig.3 Definition of measurement point

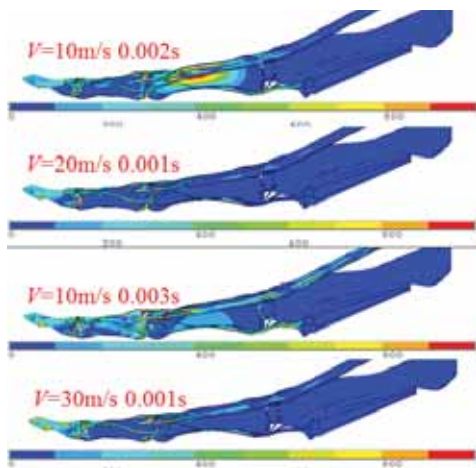


Fig.4 Behavior of finger deformation in impact

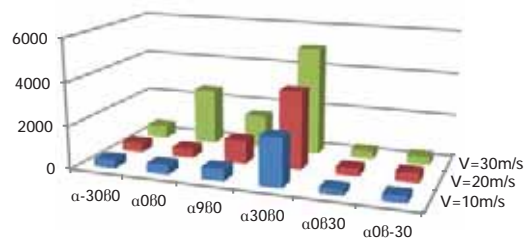


Fig.5 Maximum stress of measurement point 2

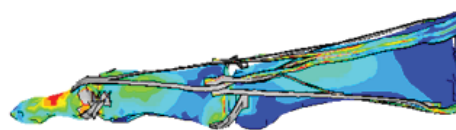


Fig.6 Behavior of finger deformation ($\alpha=30^\circ, \beta=0^\circ, V=30\text{m/s}, 0.003\text{s}$)

1-2. 突き指シミュレーションにおける硬球の衝突角度と速度の定義

突き指シミュレーションにおける硬球の衝突角度を図2のように定義した。 α は掌側と背側の面の角度、 β は橈側と尺側の面の角度である。硬球の衝突速度は10m/s, 20m/s, 30m/sの3通りで行った。計測点は全5点、図3のように腱の付着点とした。

1-3. 解析結果および考察

1-3-1. 衝突速度による指尖部変形の変位が一定時の応力分布の変化

図4に衝突角度が $\alpha=0^\circ, \beta=0^\circ$ における衝突に対する変位が一定のときの応力分布である。応力分布図をみると、骨の応力だけではなく、伸筋腱、骨間筋、側副靭帯の応力は衝突速度が大きいほど、相当応力は指尖部に集中している。これは速度が速い場合、指尖部の急速変形が起こり、遠位の部分まで応力が伝達しないためだと考えられた。

1-3-2. 衝突角度と速度による最大応力の変化

衝突角度と衝突速度による節点2に発生する最大応力の変化を図5に示す。各衝突条件を比較すると $\alpha=30^\circ$ である背側からの衝突が最も大きな応力が発生する。このときの変形と応力分布を図6に示す。このように背側からの衝突では、伸筋腱と末節骨の付着部の応力は高くなり、DIPにおける伸筋腱剥離または腱性マレットフィンガの発生を促す原因と考えられる。

1-4. 結言

本研究ではCT・MRI画像より三次元ヒト指モデルを作成し、指骨軸に対して様々な角度から3速度で硬球を衝突させ、突き指の際に生じる腱や靭帯の変形及び応力分布を有限要素法により解析した。その結果以下の結論を得た。

- i. 衝突で同等の変位が生じる時、速度が大きい条件の方が指尖部に応力集中が見られる。
- ii. 背側からの衝突では、伸筋腱と末節骨の付着部の応力は高くなり、腱性マレットフィンガーが起りやすいことが示唆された。

2. 近赤外光を用いたヒト手指透過血管像変化と脈波伝播速度との関係 (嶋脇聡)

目的 年齢の異なる被験者に対して、前報で示した上腕圧迫に伴う近赤外光透過血管画像の輝度変化(半収束時間)とbaPWV値を計測し、両者の相関を求めることである。この相関が示されれば、半収束時間(静脈コンプライアンスの指標)の計測より、動脈コンプライアンスを推量することができる。前報にて示した方法は、上腕を圧迫する圧迫部とヒト手指における透過血管画像を撮影する画像撮影部から構成されていたが、画像撮影部を複数個の近赤外受光素子で代用し、さらに電子血圧計と組み合わせることで安価な家庭用複合健康機器として期待される。

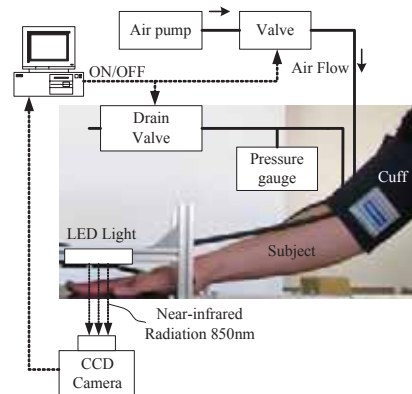


図1 実験装置。

方法 本実験の被験者として、21歳から66歳までの男性52名に協力してもらった。本研究は、宇都宮大学ヒトを対象とした倫理審査委員会の許可を得た。撮影に先立ち、被験者に本研究の目的および内容を十分説明し、被験者から同意を得た。

図1にヒト手指血管画像計測のための実験装置概略を示す。被験者には、座位にて実験装置の測定台に指伸展で右手掌部が下向きとなるように置き、かつ肘屈曲角度が約90度となるように指示した。示指近位指節間関節がスリット上になるように調節した。中心波長850nmの近赤外LEDライトより近赤外光が被験者の手背面へ照射された。示指を透過した近赤外光は、近赤外光の波長領域(～1100nm)も撮影可能なCCD白黒カメラにスリット領域の透過血管画像として記録された。画像サイズは約16mm×約9mm(600pixel×320pixel)で、総画素数は19.2万pixelであった。

被験者にはベッドに背臥位でリラックスするように指示した。右上腕および右足関節にカフを装着させた。右上腕のカフには成人用腕帯を、右足関節のカフには小児用腕帯を使用した。カフ装着後、空気用ポンプよりカフへ空気を流入させ、カフ内圧を増加させた。カフ内圧は圧力センサにて計測され、コンパクトレコーダを用いてサンプリング周波数500Hzでコンピュータに記録された。カフの設定圧力を60mmHgとし、カフ圧迫時間を30秒間とした。

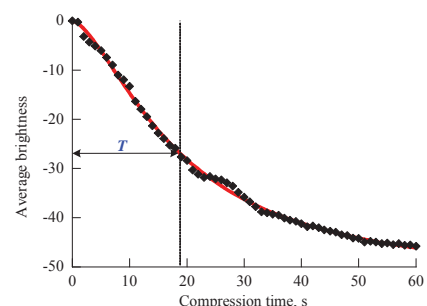


図2 近赤外透過輝度変化

全ての実験は被験者の食後2～3時間後に実施された。実験前に喫煙および激しい運動を控えさせた。実験室内は室温(20～28℃)に設定し、被験者を実験開始10分以上前に入室させた。このあとに、身体的特徴を計測して、さらに座位にて10分以上、安静にさせた。その後、ヒト手指血管画像の計測および脈波伝播速度の計測を実施した。両計測の間には10分間

以上、座位にて安静にさせた。両計測を実施する順番は、全ての被験者で一致していない。

結果 撮影されたヒト手指血管画像より、画像内における全ピクセルのグレースケール値を総和平均することで、平均輝度を算出した。図2に、代表例として23歳男性（収縮期血圧：100mmHg，拡張期血圧：61mmHg）において、上腕圧迫開始時の平均輝度を基準として、上腕圧迫開始時からの平均輝度の時間変化を示す。これを Hill 関数にて近似した。Hill 関数は式(1)として表現され、関数に含まれる定数 T を半収束時間として算出した。

$$y = V_{max} \frac{t^n}{T^n + t^n} \quad (1)$$

図3に、代表例として23歳男性（収縮期血圧：100mmHg，拡張期血圧：61mmHg）において、右上腕および右足関節に設置したカフ内圧の時間変化を示す。各カフ内圧には、各部位における脈圧が重畳している。図より、両脈圧において極小値から圧力が増加する際の時間間隔を脈波伝播時間差とした。

脈圧10拍分の脈波伝播時間差より平均値を ΔT として算出した。被験者の身長 h (cm) から大動脈弁口から足関節までの距離を La (cm)，大動脈弁口から上腕までの距離を Lb (cm) として算出し、これらから $baPWV$ (cm/s) を算出した。

図4に半収束時間 T と $baPWV$ の関係を示す。図より半収束時間が増加するに伴い、 $baPWV$ は減少した。両者の関係は、線形相関にて

$$baPWV = 1300 - 10 \times T \quad (4)$$

と表現され、そのピアソン相関係数 $r = -0.688$ ($p < 0.001$, SPSS ver.11.5) であった。よって、半収束時間 T と $baPWV$ との間には負の相関があると言える。

考察 図4に示したように、本研究による半収束時間 T と脈波伝播速度 $baPWV$ との間には良い負相関が見られた。 $baPWV$ は動脈コンプライアンスを示す指標であり、本研究の半収束時間は静脈コンプライアンスを示す指標と考えられる。動脈および静脈の血管壁はともにエラスチンとコラーゲンなどから構成されており、これらの構成成分は加齢などにより変化することが知られている。よって、加齢などが動脈および静脈のコンプライアンスに影響を与え、半収束時間と $baPWV$ に同程度の影響を与えたと推測される。

高血圧，糖尿病，その他の障害により $baPWV$ が 1700cm/s 以上になることが知られている。本研究の被験者はこのような症状を有していなかったため， $baPWV$ がこのような高い数値を取ることはなかった。このような高い数値を取る要因として，動脈内のプラーク（動脈硬化）が考えられている。つまり，加齢に伴う $baPWV$ の上昇は血管壁の変性に伴うものであるが，それ以上の増加は動脈の異常な症状であると考えられる。この区別（加齢などによる許容範囲と異常な症状）は困難であるが， $baPWV$ と半収束時間の両方を計測して，図4に相当するさらに詳細なデータと対比することにより，この区別が可能となるだろうと推測される。

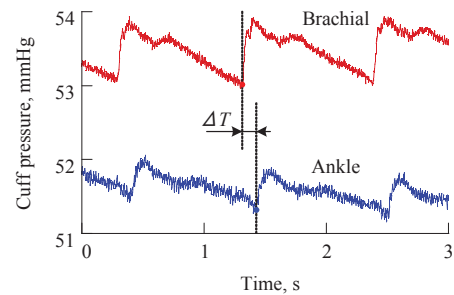


図3 上腕と足首カフ圧変動

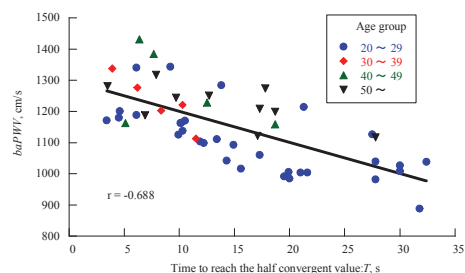


図4 半収束時間と $baPWV$ との関係

プロジェクト6 人体の弾性計測と三次元シミュレーションモデル

(担当者) 酒井直隆, 嶋脇聡

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) 嶋脇聡, 酒井直隆, 田村広行 (上腕圧迫による近赤外光を用いたヒト手指透過血管像変化 (上腕圧迫力と被験者加齢の影響), 日本機械学会論文集(C編), **75**, 2280-2285(2009))
- 2) 松本悟志, 嶋脇聡, 酒井直隆 (コイル形状記憶合金を用いた触覚ディスプレイの評価, 人間工学, **45**, 135-140(2009))
- 3) N. Sakai, S. Shimawaki (Measurement of a Number of Indexes of Hand and Movement Angles in Pianists with Overuse disorders, Journal of Hand Surgery (European Volume), **35E**, 494-498(2010))
- 4) N. Sakai, S. Shimawaki (Motion analysis of thumb in cellular phone use, Applied Bionics and Biomechanics, **7**, 119-122 (2010))
- 5) S. Shimawaki, N. Sakai (Change in Blood Vessel Images of the Human Finger using Near-Infrared Radiation while Compressing the Upper Arm, WCB 2010, IFMBE Proceedings, **31**, 1262-1265 (2010))
- 6) 嶋脇聡, 酒井直隆 (把持動作の手指プリシェイピングに及ぼす視覚情報の影響, 人間工学, **47**, 31-35 (2011))
- 7) 松本悟志, 嶋脇聡, 酒井直隆 (多指を用いた視覚障害者支援用触覚ディスプレイ開発のための基礎研究, 人間工学, **47**, 261-267(2011))
- 8) S. Shimawaki, N. Sakai (Effect of Viewing Conditions on Preshaping movement in Hand Grasping Motion. The Japanese Journal of Ergonomics (The 13th Japan-Korea Joint Symposium on Ergonomics), **47** Supplement, 332-335 (2011))
- 9) 嶋脇聡, 酒井直隆 (手指のボタンホール変形とスワンネック変形に関する三次元有限要素解析, 日本機械学会論文集(C編), **78**, 883-891 (2012))
- 10) 嶋脇聡, 酒井直隆 (三次元腕モデルを用いた肘屈曲シミュレーション, 日本機械学会論文集(C編), **78**, 1180-1191 (2012))
- 11) 嶋脇聡, 酒井直隆 (回転型ドアノブの把持・回旋動作における手関節および前腕関節角度変化, 人間工学, **48**, 226-233(2012))
- 12) 嶋脇聡, 酒井直隆, 中林正隆 (上腕圧迫による近赤外光を用いたヒト手指透過血管像変化と脈波伝播速度との関係, 日本機械学会論文集(C編), **78**, 3741-3748(2012))
- 13) 嶋脇聡, 酒井直隆, 中林正隆 (磁気共鳴画像(MRI)を用いた指尖部および pulp の力学的変形解析, 日本機械学会論文集(C編), **79**, 1709-1717 (2013))
- 14) S. Shimawaki, H. Ebe, M. Nakabayashi, N. Sakai (Simulation of the stabilizing mechanism of distal radioulnar joint during pronation and supination, Journal of

Biomechanical Science and Engineering, 8, 278-292 (2013))

- 国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)
 - 1) *PP* S. Shimawaki, N. Sakai, "Change in Blood Vessel Images of the Human Finger using Near-Infrared Radiation while Compressing the Upper Arm", *6th World Congress of Biomechanics*, Singapore (2010)
 - 2) *PP* S. Shimawaki, N. Sakai, "Comparison of MRI Images with FEM Simulations of Fingertip Deformation Including Subcutaneous Fatty Tissue", *6th World Congress of Biomechanics*, Singapore (2010)
 - 3) *OP* S. Shimawaki, N. Sakai, "Effect of Viewing Conditions on Preshaping movement in Hand Grasping Motion", *The 13th Japan-Korea Joint Symposium on Ergonomics*, Tokyo (2011)

 - 国内研究発表(基調講演, 招待講演, 依頼講演, 一般発表, ポスター発表)
 - 1) 「一般」江部素弘、酒井直隆、嶋脇聡 “前腕骨間膜断裂による回内動作不安定性の三次元シミュレーション”, 第22回バイオフィロンティア講演会, 津(2011)
 - 2) 「一般」男庭正規、嶋脇聡、酒井直隆、中林正隆 “肘屈曲時の靭帯に生じる応力の有限要素解析”, 第20回日本機械学会関東支部茨城講演会, 日立(2012)
 - 3) 「一般」田村昂紀、酒井直隆、嶋脇聡、中林正隆 “指リハビリ運動の三次元動作解析”, 第20回日本機械学会関東支部茨城講演会, 日立(2012)
 - 4) 「一般」田村昂紀、酒井直隆、嶋脇聡、中林正隆 “指リハビリ運動訓練装置の開発—固定器具形状の検討—”, 日本人間工学会関東支部42回大会, 越谷(2012)
 - 5) 「一般」嶋脇聡、酒井直隆、中林正隆 “MRIによる指腹部 pulp の変形解析”, 第25回バイオエンジニアリング講演会, つくば(2013)
 - 6) 「一般」石塚正太、酒井直隆、嶋脇聡、中林正隆 “ダイアフラム型ひずみゲージを用いた触覚センサの開発”, 第21回日本機械学会関東支部茨城講演会, 日立(2013)
 - 7) 「一般」高野貴之、酒井直隆、中林正隆、嶋脇聡 “上腕の表面筋電位における速度および力制御に関する研究”, 第21回日本機械学会関東支部茨城講演会, 日立(2013)
 - 8) 「一般」嶋脇聡、市川貴規、中林正隆、酒井直隆 “電動義手のための指腹部 pulp 素材の研究”, 第21回日本機械学会関東支部茨城講演会, 日立(2013)
 - 9) 「一般」中山敦、嶋脇聡、酒井直隆、中林正隆 “弦圧迫・弾弦時における爪変形ひずみの計測”, 第21回日本機械学会関東支部茨城講演会, 日立(2013)
 - 10) 「一般」戸田麻衣、嶋脇聡、中林正隆、酒井直隆 “上腕一足首間脈波伝播速度 (baPWV) に及ぼす計測姿勢の影響”, 第24回バイオフィロンティア講演会, 京都(2011)
- 他 27 件

●著書，総説，解説等

- 1) 「解説」 嶋脇聡、近赤外光を用いた非侵襲生体情報取得装置の開発、計測技術，38, 62-63(2010)
- 2) 「解説」 嶋脇聡、近赤外光を用いた非侵襲の血管硬度測定技術／血中コレステロール値測定技術，2011年版生体計測機器・技術によるホームヘルスケア市場の将来展望．(株)シード・プランニング，49-54(2011)
- 3) 「解説」 嶋脇聡、宇都宮大学機械システム工学科バイオメカニクス研究室、バイオメカニズム学会誌，35, 202-204 (2011)
- 4) 「解説」 嶋脇聡、近赤外光を使って非侵襲で血管の硬度を計測する血管硬度計測装置、中小企業のための技術宝箱 大学・高等専門学校の特許 30 選 解説集，経済産業省関東経済産業局，6-11(2013)

●特許（外国，国内，公開，出願）

- 1) 「国内」登録，嶋脇聡「血管硬度測定装置」（平成 23 年 4 月）
- 2) 「国内」公開、嶋脇聡「血中コレステロールの検査方法および検査装置」（平成 22 年 11 月）
- 3) 「国内」登録、嶋脇聡「血圧特定情報生成装置」（平成 24 年 11 月）
- 4) 「国内」公開、嶋脇聡、酒井直隆，八木仁，福田晴行「電動義手」（平成 23 年 2 月）
- 5) 「国内」公開、嶋脇聡「入力装置」（平成 24 年 7 月）
- 6) 「国内」公開、嶋脇聡、八木仁「擬似血管ユニット」（平成 25 年 4 月）

●外部資金（科学研究費：科研、奨学寄付金：奨学，受託研究：受託，共同研究：共同）

- 1) 「科研」酒井直隆，12,900 千円「電動義手の末梢神経インターフェースにおける神経束機能の研究」基盤 B（2008～2010 年）
- 2) 「科研」酒井直隆，2,800 千円「スポーツ動作のための動作解析・筋収縮感知ウェアの開発」挑戦的萌芽研究（2013～2014 年）
- 3) 「科研」嶋脇聡，4,100 千円「スポーツ動作のための動作解析・筋収縮感知ウェアの開発」基盤 C（2011～2013 年）
- 4) 「受託」嶋脇聡，2,000 千円「生体末梢血管抵抗の近赤外光血管可視化による非侵襲計測」科学技術振興機構（J S T）重点地域研究開発推進プログラム（シーズ発掘試験）（2009 年）
- 5) 「受託」嶋脇聡，1,700 千円「座位による baPWV 計測法の確立ーヘルスケア・ウェアの開発を目指してー」科学技術振興機構（J S T）第 2 回「研究成果最適展開支援プログラム（A-STEP）探索タイプ」（2012～2013 年）
- 6) 「共同」酒井直隆，138 千円「筋電センサーによるヒューマノイド電動義手の制御機構の改良検討」(株)三和電機（2009 年）

- 7) 「共同」酒井直隆, 138 千円「ヒューマノイド電動義手の骨格素材および関節駆動に関する研究」(株シンデン (2009 年))
- 8) 「共同」酒井直隆, 276 千円「筋電ヒューマノイド電動義手における筋電センサ貼付位置の検討」(株三和電機 (2010 年))
- 9) 「共同」酒井直隆, 276 千円「ヒューマノイド電動義手の軽量化に関する研究」(株シンデン (2010 年))
- 10) 「共同」酒井直隆, 138 千円「筋電電動義手の制御機構の検討および試作」(株三和電機 (2011 年))
- 11) 「共同」嶋脇聡, 138 千円「電動義手の軽量化および把持機構改良に関する研究」(株シンデン (2011 年))
- 12) 「共同」酒井直隆, 230 千円「ロボットハンドを利用した手指スプリントの開発」(株三和電機 (2012 年))
- 13) 「共同」嶋脇聡, 276 千円「シートブロー成形による注射シミュレータの開発と評価」(株シンデン (2012 年))
- 14) 「共同」嶋脇聡, 825 千円「非侵襲血清総コレステロール状態検査装置の開発」アドバンスヘルスケア(株) (2012 年)
- 15) 「共同」嶋脇聡, 210 千円「手背および前腕静脈注射シミュレータの改良及び評価」(株シンデン (2013 年))
- 16) 「奨学」嶋脇聡, 157 千円「Change in Blood Vessel Images of the Human Finger using Near-Infrared Radiation while Compressing the Upper Arm」財団法人日本科学協会 平成 22 年度海外発表促進助成 (2010 年)

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

ロ)報道 1 件

- ・日経産業新聞 嶋脇聡, 「近赤外光を用いた血中コレステロールの非侵襲計測器」(2010 年 7 月 16 日)

磁気を利用した超精密加工技術の実用化・企業化推進研究

鄒艶華(准教授)*¹

*1 大学院工学研究科機械知能工学専攻 yanhua@cc.utsunomiya-u.ac.jp

近年、様々な分野で高度クリーン化技術が求められており、クリーンパイプ内面に汚染物の付着や滞留を防止するために超精密表面が要求される。手加工に頼るしかない精密部品の仕上げ加工、円管の内面研磨、内面のバリ取りを実現できる新しい「磁気加工（磁気研磨）」技術の開発を進めています。磁気加工技術とは、従来の「機械加工」に「磁気」を組み合わせた新しい加工技術であり、工具が届かない狭い箇所に対しても精密加工を実現できる。

1. 溶接管内面の溶接ビード除去及び内面の精密仕上げ

肉厚が厚いパイプ（厚さ 5mm 以上）内面の精密仕上げ及び内面に溶接ビードがある溶接管内面の精密加工は、従来の磁性粒子を用いた磁気援用加工法¹⁾では、磁力（加工力）が極めて弱くなるため加工不能に陥り、形状精度の改善も困難になる。厚肉円管内面仕上げに対する新しい高能率・高精度加工法の開発が求められている。筆者らは、このニーズに応えるため「磁性加工ジグを用いた磁気援用加工法」を提案した。さらに、磁性加工ジグ（磁石工具）を利用して、溶接ビードを持つ SUS304 鋼円管の内面加工及び溶接ビード除去に着目し、磁性加工ジグの磁石先端に磁性粒子を吸着した方法を利用して研磨実験を行い、溶接ビードの除去状況、面精度及び形状精度改善効果について検討した。

1.1 磁性加工ジグを用いた内面磁気研磨法の加工原理

図 1 に、加工原理の模式図を示す。工作物の外側に設置した磁極により磁性加工ジグに高い吸引磁力（加工力）と相対運動力を発生させる。磁性加工ジグが磁極の回転運動によって磁極に追従回転し、磁性粒子を介して円管内面との間に相対運動を発生する。円管内部に研磨材スラリーを供給し、磁性粒子から間接的に砥粒に加工挙動を与えて、円管内面の精密仕上げを実現する。磁極回転ユニットを円管軸方向に移動すれば、円管内面を全面にわたり精密仕上げすることが実現できる。

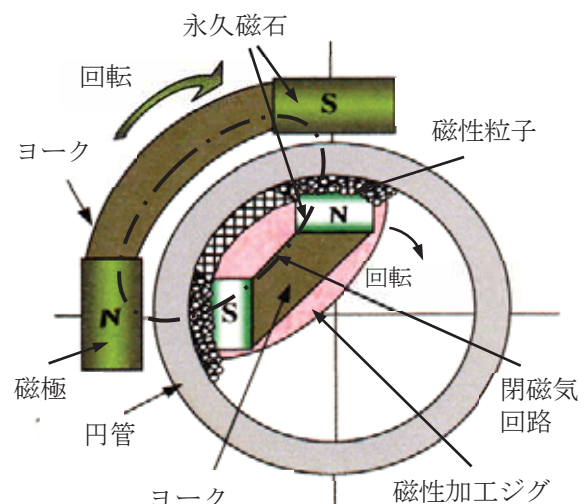
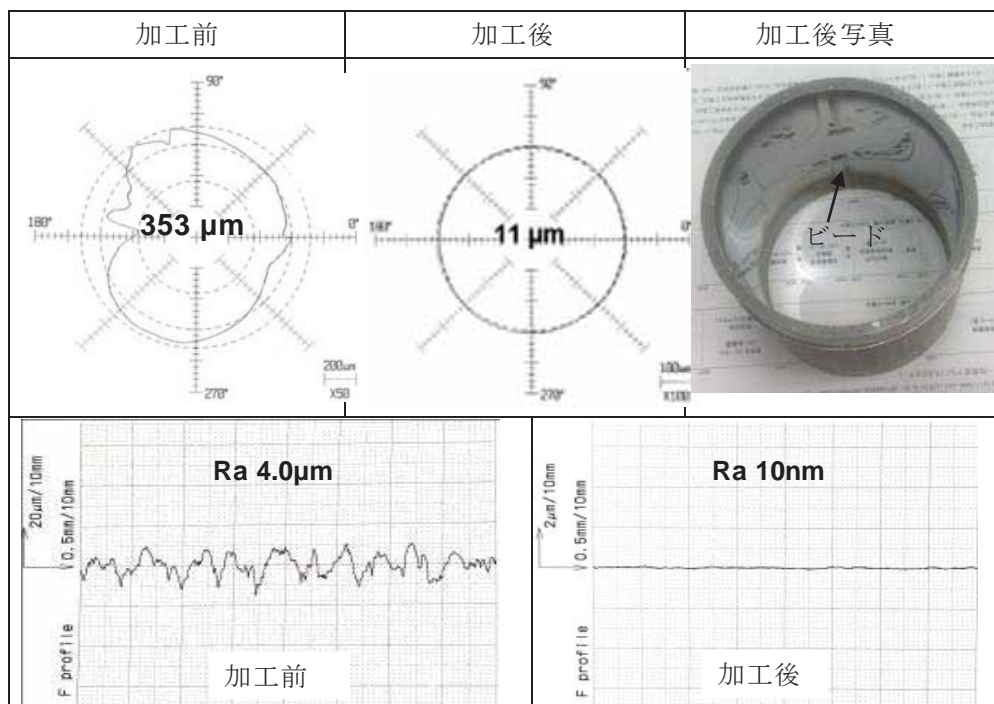


図1 加工原理の模式図

1.2 実験の結果

表1に、加工前後の真円度と表面粗さの変化及び加工後円管の外観写真を示す。加工段階ごとに真円度と表面粗さを測定し、観察した。実験結果によって、150分の時、溶接ビードが完全に除去されることが確認できた。さらに、精密研磨を行い、210分間加工を行った結果、円管内面の表面粗さは $4.2\mu\text{m Ra}$ から 10nm Ra に減少でき、円管内面の真円度は $209\mu\text{m}$ から $11\mu\text{m}$ に向上できた。加工後円管写真に示めすように、加工した部分は溶接ビードが完全に除去でき、鏡面になったことを明らかにした。

表1 実験結果



2. 人体用注射針の内面磁気バリ取り

2.1 内面磁気バリ取りの加工原理

人体用注射針の先端およびアゴの部分に生じた微小なバリを除去するため、磁気ブラシと注射針の高周波振動を利用した新しい磁気バリ取り法を提案しており、新しい品質の注射針の提供が可能になることが期待される。

図2に加工原理の模式図を示す。磁極間に電解鉄粉と KMX と呼ばれる磁性砥粒を混合させた混合磁性砥粒を供給すると、混合磁性砥粒は磁力線に沿って粒子ブラシを形成する。粒子ブラ

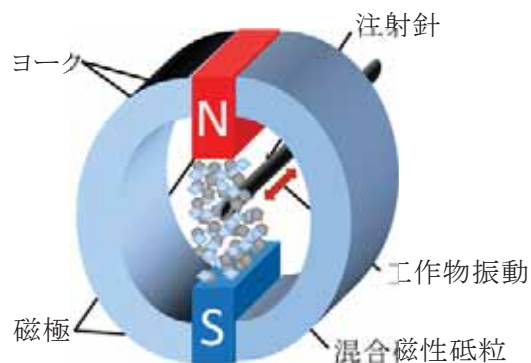
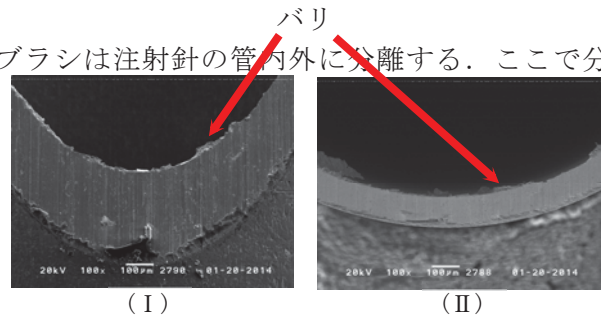


図2 磁気バリ取りの加工原理の模式図

図2 磁気バリ取りの加工原理の模式図

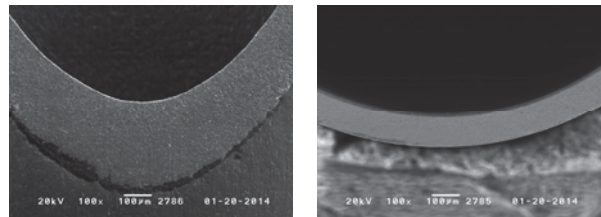
シに工作物である注射針を挿入すると、粒子ブラシは注射針の管内外に分離する。ここで分離した個々の粒子鉄成分は磁界の作用によって磁化されているため、工作物を押し付ける磁気力が作用する。この状態で工作物に一方方向の振動運動を与えると、工作物振動と磁力保持によって工作物と磁性砥粒との間に相対運動が発生し、バリ取りが行われる。



(I) (II)
 (a) 加工前の SEM 画像

2.2 バリ取り実験の実験結果

図 3 に加工前後の SEM 画像を示す。図 3(a)の示すように、注射針先端のアゴ部分にバリが存在することがわかった。図 3(b)の示すように、工作物振動数 100 Hz による加工において、60 秒間の加工結果であり、十分にバリ取りが行われていることが確認できた。その



(I) (II)
 (b) 加工後の SEM 画像

図 3 加工前後の SEM 画像

結果によって、注射針のアゴ部分の外側、内側のバリ取り及び断面の加工痕の除去がしっかりと行われており非常に良好な結果が得られることを明らかにした。

3. 電解複合した平面磁気研磨法の開発

図 4 に電解複合した平面磁気研磨法の加工原理と加工工具の模式図を示す。図示するように、工作物平板を陽極として電解液に浸入させ、工作物平板の上部に磁極・電極複合工具を設置する。複合工具の磁極の先端には混合磁性砥粒の磁気ブラシを形成し、工作物に押し付けると電極の陰極と工作物陽極の間に隙間が設けられる。電極に電流を流すと、工具の陰極と工作物陽極の間に電解作用により工作物表面に一層酸化皮膜が生成する。同時に、磁気ブラシの磁性砥粒は工作物表面との摩擦作用により、その酸化皮膜が除去でき、工作物表面の精密加工が実現できる。さらに、工作物を XY ステージに載せ、X・Y 方向に自由に送り運動を与えることによって、高範囲の表面加工が実現できる。

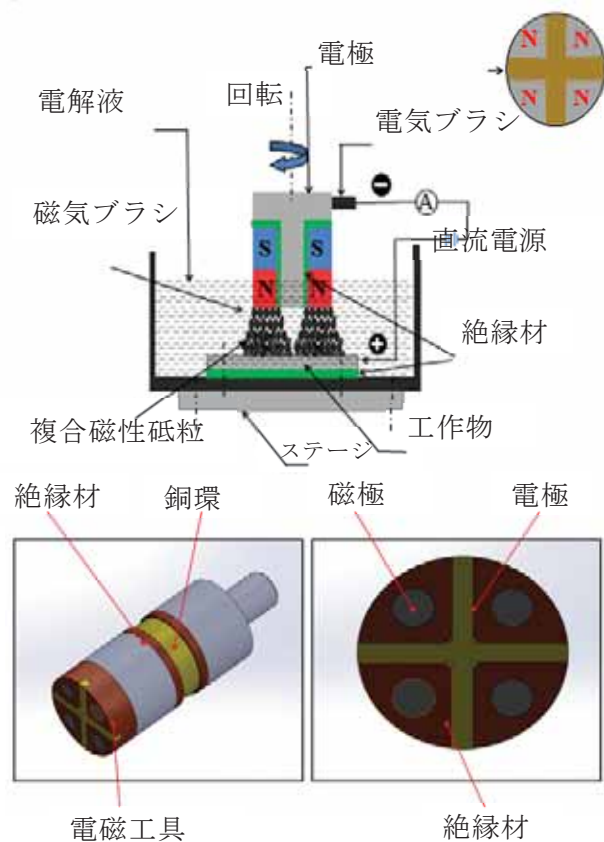


図 4 電解複合した平面磁気研磨法の加工原理と加工工具の模式図

4. 磁気を利用した樹脂パイプ内面の精密仕上げ

樹脂製品が工業，医療，また各種の日用品など，様々な分野で広く用いられている今日では，樹脂パイプの内面研磨に対しての企業ニーズが高まっている．しかし，樹脂製品は温度変化や接触だけでもミクロン単位でサイズが変化してしまうので，精密な研磨が金属材料より難しく，特にパイプや複雑な形状の樹脂の研磨は手作業での研磨が行われており，自動化に至っていない．

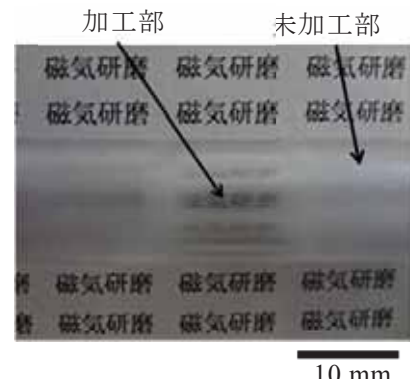


図5 加工後の工作物外観写真

筆者らは，内面磁気研磨法を樹脂パイプの内面加工に適用し，樹脂パイプの内面加工の加工特性及び最適な加工条件を明確することを目的とし，樹脂パイプの内面超精密仕上げ実験を行った．その結果，本研究では樹脂パイプ内面の精密仕上げ実験を行った．GC 砥粒を用いて実験を行った結果，表面粗さは $9.8 \mu\text{mRz}$ から 43 nmRz までに改善でき，算術平均粗さについては 7 nmRa までに達したことが分かった．

5. 磁気機能性流体を利用した超精密平面磁気研磨法の開発

現在ステンレス鋼の鏡面仕上げには，一般的にバフ研磨法が多く利用されている．この研磨法は，主に平滑面や鏡面光沢を得るために利用されるが，ステンレス鋼を加工対象とする場合には問題がある．それはステンレス鋼が難削材であるために，バフが加工寿命によって劣化し，工作物表面に微細な引っ掻き傷を残してしまう，即ち要求に応じる仕上げ面精度には至らないという点である．このため，工作物表面に微細な傷を残さない高精度なナノレベル表面創成を実現する加工技術の研究及び開発が望まれている．筆者らは，磁性加工ジグを用いた磁気援用加工法による SUS304 ステンレス鋼平板の超精密表面創成を目的とし，研磨実験を行った．

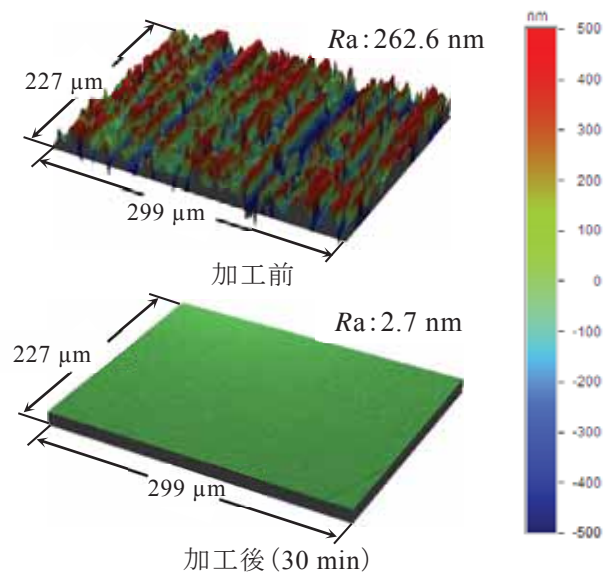


図6 加工前後の工作物 3次元表面形状

図6に加工前後の工作物表面の可視化画像を示す．それらを比較すると，加工前に観察される傷が除去され，平滑に研磨されていることが分かる．表面粗さは， 262.6 nmRa から 2.7 nmRa までに改善された．

磁気援用加工法が一つの新しい精密加工技術として，さらに超精密表面創成磁気研磨技術や従来技術と磁気加工技術の融合などの研究に取り組んでいくと考えている．

プロジェクト7 磁気を利用した超精密加工技術の実用化・企業化推進研究
(担当者) 鄒 艶華

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) 鄒艶華, 進村武男 (定圧磁気ブラシを利用した新しい平面磁気研磨法に関する研究, 砥粒加工学会誌, 53, 1, 31-34, (2009)).
- 2) 鄒艶華, 進村武男, 中橋浩 (小型磁性加工ジグを利用した磁気援用加工法, 砥粒加工学会誌, 53, 1, 49-52, (2009)).
- 3) Y.ZOU, T.SHINMURA (A New Internal Magnetic Field Assisted Machining Process Using a Magnetic Machining Jig - Machining Characteristics of Inside Finishing of a SUS304 Stainless Steel Tube -, Advanced Materials Research, 69-70, 143-147, (2009))
- 4) Y.ZOU, T.SHINMURA and F.Wang (Study on a Magnetic Deburring Method by the Application of the Plane Magnetic Abrasive Machining Process, Advanced Materials Research, 76-78, 276-281, (2009)).
- 5) 進村武男, 鄒艶華, (交流磁場と磁気異方性工具を利用した内面の磁気援用加工法に関する研究－磁性ピン工具の磁気特性がピン工具の加工挙動に及ぼす影響－, 砥粒加工学会誌, 53, 7, 440-445, (2009)).
- 6) 鄒艶華, 阿久津聡, 進村武男, (新しい超精密磁気研磨法の開発, 砥粒加工学会誌, 54, 2, 97-100, (2010)).
- 7) Y.ZOU, A.JIAO and T.AIZAWA, (Study on Plane Magnetic Abrasive Finishing Process - Experimental and Theoretical Analysis on Polishing Trajectory -, Advanced Materials Research, 126-128, 1023-1028, (2010)).
- 8) 鄒艶華, 進村武男, (内面磁気バリ取り法に関する研究－円管内面に生じたバリのみを除去する内面磁気バリ取り法の開発, 砥粒加工学会誌, 54, 10, 619-621, (2010)).
- 9) Y.ZOU, Jiangnan LIU and T.SHINMURA, (Study on Internal magnetic Field Assisted Finishing Process Using a Magnetic Machining Jig for Thick Non-ferromagnetic Tube, Advanced Materials Research, 325, 530-535, (2011)).
- 10) JIAO Anyuan, Y.ZOU, (Study and analysis on plane magnetic abrasive trajectory, MANUFACTURING TECHNOLOGY & MACHINE TOOL, 10, 90-93, (2011)).
- 11) 鄒艶華, (磁気研磨法による微細管内面の精密研磨, 砥粒加工学会誌, 56, 2, 86-89, (2012)).
- 12) Y.ZOU, T.SHINMURA, (Development of a New Ultra-Precision Magnetic Abrasive Finishing Process, Key Engineering Material, 523-524, 256-261, (2012)).

- 13) Jinzhong WU, Y.ZOU, (Study on an ultra-precision plane magnetic abrasive finishing process by use of alternating magnetic field, Applied Mechanics and Materials,395-396, 985-989, (2013)).
- 14) Muhamad Mohd Ridha1, Yanhua Zou, (Magnetic Abrasive Finishing of Internal Surface of Aluminum Pipe using Magnetic Machining Jig, Advanced Materials Research , 894 , 222-226, (2014)).

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1)「招待」鄒艶華“超精密磁気研磨法の開発研究”，電気学会マグネティックス研究会，宇都宮（2009）.
 - 2)「依頼」鄒艶華“磁気バリ取り技術の実用化試験研究”，J S T地域発技術シーズ発表会 in お台場（2009）.
 - 3)「依頼」鄒艶華“ナノレベル超精密表面の創成”，第6回首都圏北部4大学新技術説明会，小山（2009）.
 - 4)「依頼」鄒艶華“磁気ので鏡面を創る新技術～科学は地域が育む～”，宇都宮大学・読売新聞共催公開講座，宇都宮（2009）.
 - 5)「依頼」鄒艶華“新しい超精密磁気研磨法の開発”，（社）砥粒加工学会，次世代固定砥粒加工プロセス専門委員会，『第32回研究会，複合砥粒工具の開発動向—新たな可能性を探る—』，東京（2010）.
 - 6)「依頼」鄒艶華“最近の磁気研磨技術”，（社）砥粒加工学会，効果的除去加工技術の開発に関する研究分科会，宇都宮（2010）.
 - 7)「招待」鄒艶華“磁気を利用した精密加工技術”，（社）砥粒加工学会，バリ取り加工・研磨布紙加工技術専門委員会，モノづくり基盤技術 in MOBIO，大阪（2010）.
 - 8)「依頼」鄒艶華“近年の磁気研磨加工技術の開発と発展”，技能継承支援機構・テクニスト技術研究会，東京（2010）.
 - 9)「依頼」鄒艶華“磁気援用による精密研磨技術”，宇都宮大学セミナーin 県南地場産センター，浜松（2012）.
 - 10)「依頼」鄒艶華“磁気加工技術とその応用”，首都圏北部4大学連合（4U）第18回新技術説明会キャラバン隊）—これからの表面処理技術—，茨城（2013）.
- 他 35 件.

●著書，総説，解説等

- 1)「総説」鄒艶華，進村 武男，定圧磁気ブラシを利用した強力・高精度平面磁気研磨法とその応用，機械と工具，53，7，59-63（2009）.
- 2)「総説」鄒艶華，超精度平面磁気研磨法に関する研究，型技術，25，12，70-71（2010）.
- 3)「著書」進村 武男，鄒艶華，最新研磨技術（第5章，第5節，磁気援用研磨，分担

執筆) , シーエムシー出版, pp.170-185, (2012).

- 4) 「総説」 鄒 艶華, 進村 武男, 円管内面に生じたバリのみを除去する内面磁気バリ取り法, **Best-Japan** バリ取り研究会 会報 32, 31 - 33 (2012).
- 5) 「総説」 鄒 艶華, 磁気援用加工法による溶接管内面の溶接ビード除去及び内面の精密仕上げ, **Best-Japan** バリ取り研究会 会報 33, 24 - 27(2013).

●特許 (外国, 国内, 公開, 出願)

- 1) 「国内」出願, 鄒 艶華, 伸光製作所 (株) 角田正典, 齊藤 修「磁気研磨方法及び研磨スラリー」 (平成 25 年 3 月) .
- 2) 「国内」出願, 鄒 艶華, 東芝機械 (株) 田中克敏, 共益金属製作所(株) 平沼孝一, 研磨装置および研磨方法 (平成 24 年) .
- 3) 「国内」公開, 鄒 艶華, 進村 武男, 超精密磁気研磨法及び超精密磁気研磨用研磨スラリー, 特許公開 2010-52123.
- 4) 「国内」特許, 進村 武男, 鄒 艶華, 振動磁気研磨方法及び装置並びに工具, 特許第 4423425 号 (平成 21 年 12 月).
- 5) 「国内」特許, 鄒 艶華, 進村 武男, 電気・磁気複合加工法, 特許第 4843780 号 (平成 23 年 10 月).

●外部資金 (科学研究費 : 科研, 奨学寄付金 : 奨学, 受託研究 : 受託, 共同研究 : 共同)

- 1) 「奨学」 鄒 艶華, 200 千円「国際交流助成金」, 財団法人大澤科学技術振興財団 (平成 21 年).
- 2) 「奨学」 鄒 艶華, 500 千円「研究助成金」, 財団法人先端加工機械技術振興協会 (平成 21 年).
- 3) 「共同」 鄒 艶華, 300 千円「研究助成金」, 宇都宮大学地域共生研究開発センター産学交流振興会共同研究助成金 (平成 22 年).
- 4) 「奨学」 鄒 艶華, 150 千円「国際交流助成金」, 財団法人大澤科学技術振興財団 (平成 22 年).
- 5) 「受託」 鄒 艶華, 300 千円「受託研究助成金」, 金子メディックス株式会社 (平成 23 年).
- 6) 「奨学」 鄒 艶華, 300 千円「研究助成金」, 共栄電工株式会社 (平成 23 年).
- 7) 「共同」 鄒 艶華, 300 千円「研究助成金」, 宇都宮大学地域共生研究開発センター産学交流振興会共同研究助成金 (平成 24 年).
- 8) 「奨学」 鄒 艶華, 300 千円「研究助成金」, 伸光製作所株式会社 (平成 24 年).
- 9) 「奨学」 鄒 艶華, 200 千円「研究助成金」, 砥粒加工学会未来志向形精密加工工具の開発に関する専門委員会 (平成 24 年).
- 10) 「奨学」 鄒 艶華, 200 千円「研究助成金」, 株式会社タスク (平成 24 年).

- 11) 「奨学」 鄒 艶華, 300 千円「研究助成金」, 株式会社共益金属製作所 (平成 24 年).
- 12) 「奨学」 鄒 艶華, 500 千円「研究助成金」, 神和アルミ工業株式会社 (平成 24 年).
- 13) 「奨学」 鄒 艶華, 100 千円「研究助成金」, 林栄精器株式会社 (平成 24 年).
- 14) 「共同」 鄒 艶華, 230 千円「共同研究助成金」, 宇都宮大学地域共生研究開発センター産学交流振興会共同研究助成金 (平成 25 年).
- 15) 「奨学」 鄒 艶華, 500 千円「研究助成金」, 伸光製作所株式会社 (平成 25 年).

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

ロ) 報道 3 件

- ①読売新聞, 鄒 艶華, 「最先端の磁気研磨紹介」 (2009 年 12 月 13 日).
- ②読売新聞, 鄒 艶華, 「超精密研磨可能に」 (2009 年 12 月 19 日).
- ③日刊工業新聞, 鄒 艶華, 「バリ取り・エッジ仕上げ-磁気援用加工法による細管内面の精密バリ取り技術の研究開発」 (2010 年 8 月 3 日).

機械創成プロジェクト

尾崎功一(教授)^{*1}, 渡邊信一(准教授)^{*2},
鹿内佳人 (元中核的研究機関研究員)^{*4}, Sam Ann Rahok (元中核的研究機関研究員)^{*4},
大澤茂治(中核的研究機関研究員)^{*3}

- *1 工学部機械システム工学科, 工学研究科機械知能工学専攻 ozaki@cc.utsunomiya-u.ac.jp
- *2 工学部 ものづくり創成工学センター swtnb@cc.utsunomiya-u.ac.jp
- *3 VBL, 計測・ロボット工学研究室 (尾崎研究室) osawas@cc.utsunomiya-u.ac.jp
- *4 元 VBL, 計測・ロボット工学研究室 (尾崎研究室)

1. 諸言

本プロジェクトは, ロボット技術, 特にロボットビジョンを主とし, 基礎的研究から実用的研究まで広く推進している. 本稿では主な研究である, (1) 移動ロボットのナビゲーション法, (2) イチゴ収穫ロボットの開発, (3) マイクロマニピュレーションの自動化, の三点の研究成果について報告する.

2. 移動ロボットのナビゲーション法

2.1 背景

自律移動ロボットが人間の生活する環境内で作業するためには, 自己位置推定などの自律ナビゲーション技術が必要不可欠である. 特に屋外環境は, 動的障害物の存在, 景観や天候の変化など多様であり, 自律ナビゲーションは困難となる. そこで, 屋外環境でもロバストに自律移動を行う研究・技術推進のため, 屋外用自律移動ロボットの技術チャレンジとしてつくばチャレンジが行われてきた. 2013年度は, 自律移動の他に人探索という課題も追加された. 本章では, 自己位置推定法と画像処理による人探索について報告する.

2.2 自己位置推定

本提案手法は, 磁気センサにより計測される磁気ランドマークと, ロボットの前方に搭載した LIDAR により計測される幾何ランドマークを併用して自己位置推定を行う [1]. 本手法の概要は, LIDAR を用いた Monte Carlo Localization 上に, 磁気ナビゲーション法 [2] における自己位置推定の枠組みを導入したものであり, 非常にロバストな自己位置推定を実現で

きる。図1に本自己位置推定の概要を示す。

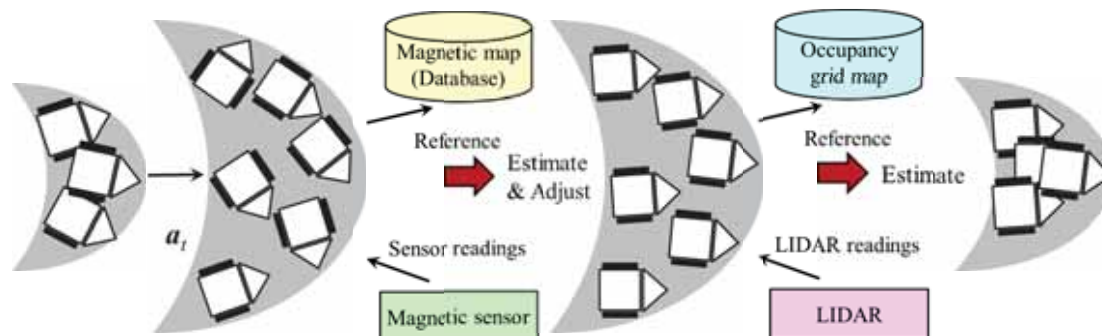


図1. 本手法の概要

2.3 人探索

画像処理領域を限定し、探索対象が着用している服装の色を画像処理により抽出し、その色配置を評価することで対象の発見を行う。これには、ロボット前方に搭載したカメラと、前方の LIDAR を利用して探索対象を検出することとした。画像処理の結果を図2に示す。抽出する色の設定には xy 色度図を用いた。xy 色度図は明暗の評価をしないため、屋外環境の照度変化に機敏に反応せず安定した色抽出ができる。その後、色配置が探索対象と同じであれば探索対象候補とし、最後に帽子の下の位置から肌色が検出されれば探索対象とした。

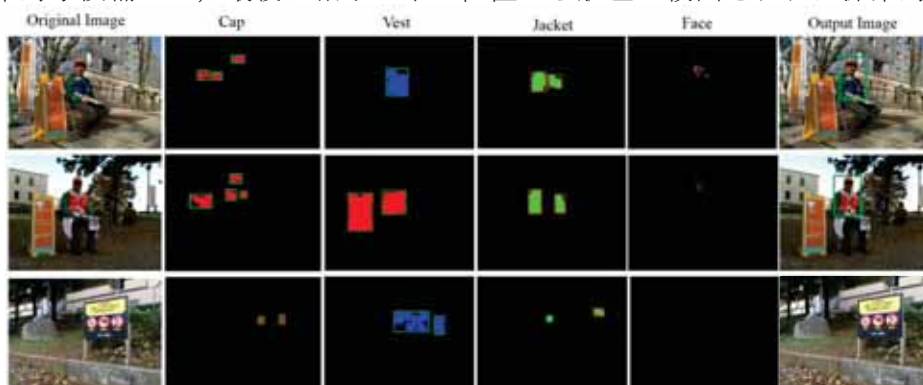


図2. 色抽出と色配置による人探索

2.4 つくばチャレンジ 2013 における結果

2.47km の長距離の自律走行を達成したことから本自己位置推定法がロバストであることを示した。また、誤認識することなく全探索対象を発見できた。なお、指定されたコースを完走し、全探索対象を発見できたロボットは、42 台中、本ロボットを含め 3 台のみであった。

3. イチゴ収穫ロボットの開発

3.1 背景

本イチゴ収穫ロボットは、農業従事者の人手不足を補うこと、そしてイチゴの果実に触れず収穫し、付加価値を与えることを目的としている。近年、イチゴ農場は、高設ベンチを用いた水耕栽培が普及してきており、ロボットを導入しやすい状況といえる。しかし、ロボットが自律移動し、果実を安定に認識し、さらに触れずに収穫することは難しい。

3.2 イチゴ収穫ロボット

図3に開発したイチゴ収穫ロボットを示す。全体寸法は、幅700、長さ1263、高さ(最大)1500[mm]である。果実に触れないようにイチゴを把持する機構を備えている。これにより、果実に触れていない高品質イチゴとして出荷が可能である。また、レーザ側域センサを搭載しており、高設ベンチを認識することにより自律移動を可能としている。

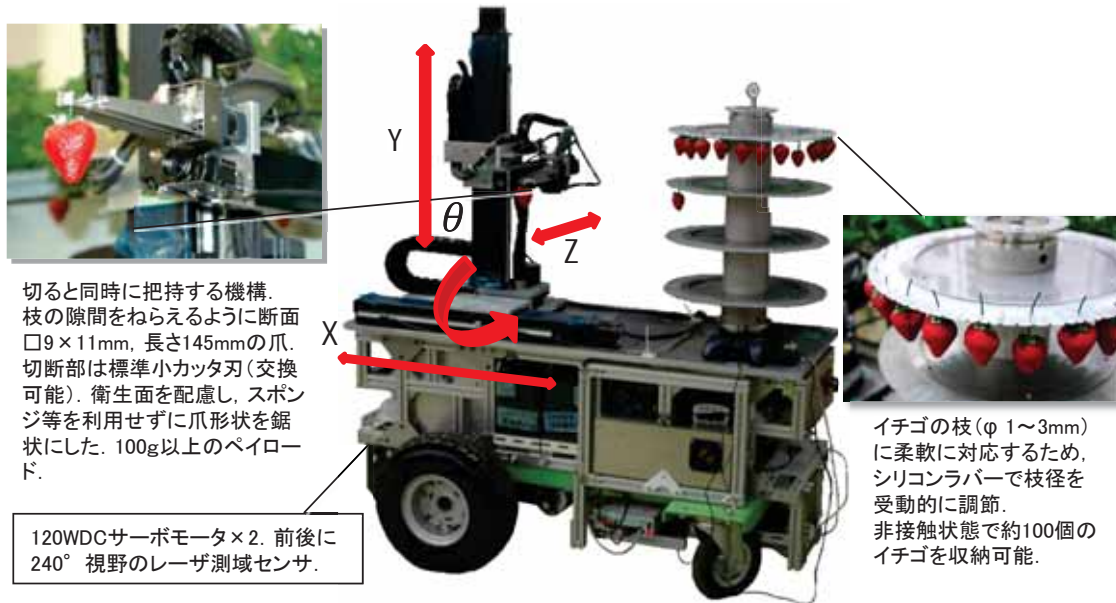


図3. イチゴ収穫ロボット

3.3 イチゴの認識

xy色度図を使用することにより、10から数千[lx]までの明度領域で色を比較的安定に抽出することができる。赤領域と緑領域を抽出し、この領域の組み合わせでイチゴを認識しさらに摘み取る位置を計測する。

現在、実際のイチゴ農場において導入試験を実施している。色認識によりイチゴの熟度を評価し、収穫、容器への収納を安定に成功させている。また、幅900[mm]の狭い通路での自律走行も実現した。

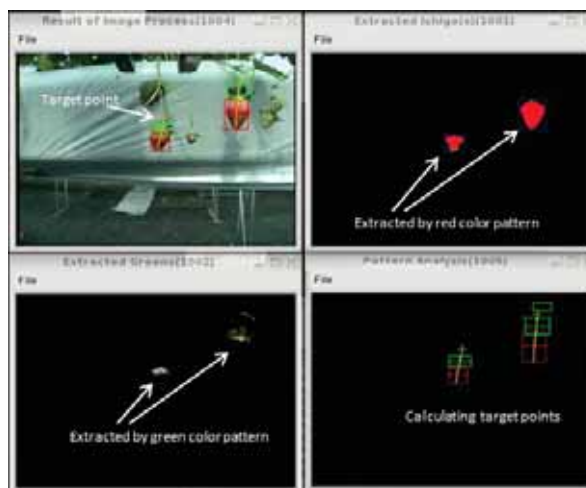


図4. イチゴの認識

4. マイクロマニピュレーションの自動化

4.1 背景

近年のマイクロ・ナノスケールを扱う研究は、医療、農業、工業と幅広く行われている。このため、微細作業の自動化が切望されている。本研究は、光学顕微鏡とマイクロマニピュレータを組み合わせたシステムにより、微細作業の最も基本的な動作である微粒子の把持と解放の自動化を実現する。

4.2 奥行き方向の距離推定

微粒子を把持するためには、微粒子とマイクロマニピュレータ先端との距離を計測しなければならない。画像の横方向、縦方向は、簡単な画像処理により計測することが可能だが、奥行き方向の距離計測は困難である。そこで、本研究では物体に生じるボケ幅を利用し、奥行き方向の距離を推定する方法を提案する。提案する推定式は、式(1)、(2)で表される。 Δz は奥行き距離、 c_n は定数、 b_e はマニピュレータのボケ幅、 b_o は微粒子のボケ幅、 b_{max} は計測したボケ幅の最大値である。この推定式は、光学モデルに基づき導出した。また、図5に用いたボケ幅の抽出方法を示す。

$$\Delta z(r) = \sum_{n=1}^{\infty} c_n r^n \quad \dots \dots (1)$$

$$r = \frac{b_e - b_o}{b_{max}} \quad \dots \dots (2)$$

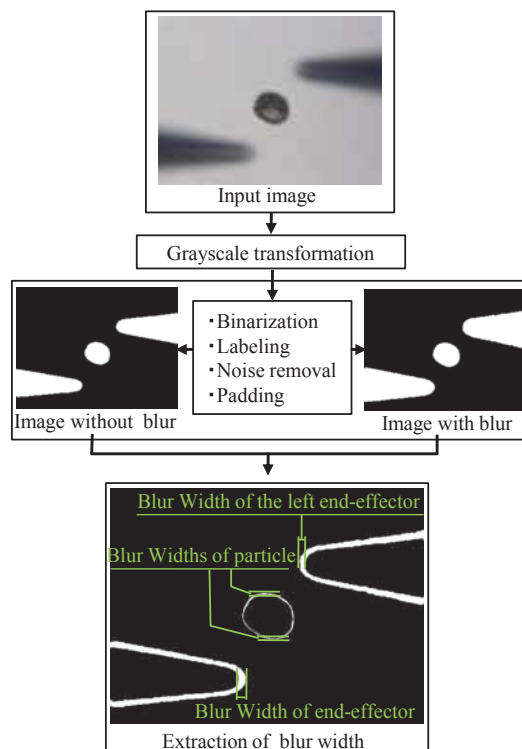


図5 ボケ幅の抽出

4.3 自動把持及び解放の実現

奥行き方向の距離推定により、自動把持と解放を行った。把持は二台のマニピュレータを用い、救い上げるように行う。解放は振動を利用し付着した微粒子を落とすように行う。微粒子として、50個の花粉を用い、成功確率を確認した結果、把持は88%、解放は100%であった。これにより高い成功率で自動把持および解放が行えていることを示した。

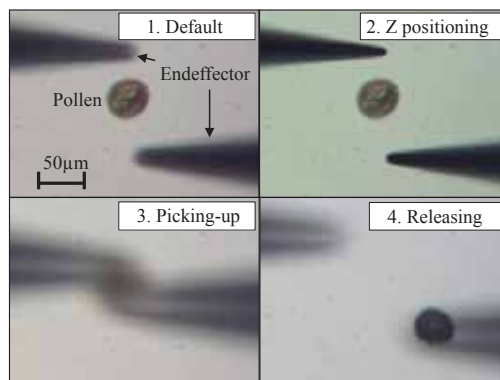


図6 自動把持解放の様子

5. 結言

本稿では、ロボットビジョンを主とし、これの基礎的研究および実用的研究として、移動ロボットのナビゲーション法、イチゴ収穫ロボットの開発、マイクロマニピュレーションの自動化について述べた。

参考文献

[1] N. Akai, S. Hoshino, K. Inoue and K. Ozaki, "Monte Carlo Localization using Magnetic Sensor and LIDAR for Real World Navigation", 2013 IEEE/SICE International Symposium on System Integration, (2013)
 [2] S. A. Rahok, Y. Shikanai, K. Ozaki, "Navigation Using Environmental Magnetic Field for Outdoor Autonomous Mobile Robots", Advanced Robotics, Vol.25, No.13, pp.1751-1771 (2011)

プロジェクト8 機械創成プロジェクト

(担当者) 尾崎功一, 渡邊信一, 鹿内佳人 (元中核的研究機関研究員),

Sam Ann Rahok (元中核的研究機関研究員), 大澤茂治 (中核的研究機関研究員)

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) 横塚将志, 尾暮拓也, 山田陽滋, 尾崎功一, “パワーアシスト装置のためのオンライン個人識別”, 精密工学会誌, Vol.75, No.9, 1139-1144(2009)
- 2) 関 淳也, 青山 元, 石川和良, 石村佐緒里, 和田迫鉄矢, 足立 佳儀, 薩見雄一, 横田和隆, 尾崎功一, 山本純雄, “視覚によるライン・トレースと磁気タグの併用による走行制御を用いた搬送ロボットの開発”, 日本ロボット学会誌, Vol.27, No.8, 833-841(2009)
- 3) 江田哲也, 尾崎功一, 阿山みよし, “黒みと色相・彩度の関係—物体色モードと光源色モードにおける黒み表現—”, 日本色彩学会誌, Vol.34, No.1, 2-12(2010)
- 4) 横塚将志, 尾崎功一, “明度変化にロバストな床面特徴点追跡に基づくビジュアル・オドメトリ法の開発”, 日本機械学会論文集 (C 編), Vol.76, No.762, 371-379(2010)
- 5) 井上一道, 尾崎功一 “公共空間における親和性を考慮した自律移動ロボットデザインの提案”, 日本感性工学会論文誌, Vol.9, No.2, 197-204(2010)
- 6) 渡邊信一, 大根田浩久, 斎藤栄之, 尾崎功一, “粒子群に対する触感覚の評価とある特微量の推定”, 日本感性工学会論文誌, Vol.9, No.2, 369-376(2010)
- 7) 渡邊信一, 大根田浩久, 斎藤栄之, 尾崎功一, “粒子群に対する触感覚の評価とある特微量の推定”, 日本感性工学会論文誌, 9(2), 369-375 (2010)
- 8) 田崎隆男, 渡邊信一, 鹿内佳人, 尾崎功一, “体感に基づくメカトロ教材のための制御教材の開発”, 工学教育, 58(4), 98-102 (2010)
- 9) 長谷川光司, 渡邊信一, 高木淳二, 横田和隆, 入江晃亘, 杉山均, “宇都宮大学工学部における学科横断的必修科目「創成工学実践」の実施について”, 工学教育, 58(4), 21-27 (2010)
- 10) 大澤茂治, 風間晋吾, 嘉藤俊介, 渡邊信一, 尾崎功一, 石川洋平, 田中稔, 並木俊郎, 諏訪芳久, 廣瀬晃, “画像処理による円筒形状製品の傷検査装置の開発”, 精密工学会誌, 76(8), 955-959 (2010)
- 11) 大根田浩久, 斎藤栄之, 渡邊信一, 尾崎功一, “触感覚による振動刺激の認識と言語評価”, 精密工学会誌, 76(9), 1070-1075 (2010)
- 12) Sam Ann Rahok, Koichi Ozaki, “Application of Localization Based on DC Magnetic Field that Occurs in the Environment on Wheel Type Mobile Agricultural Robots”, *Adv. Robotics*, 25(5-6), 923-939 (2011)
- 13) Sam Ann Rahok, 鹿内佳人, 尾崎功一, “環境磁場に基づく移動ロボットの自律走行”, 計測自動制御学会論文集, 47(3), 166-171 (2011)

- 14) 足立佳儀, 青山元, 石川和良, 石村左緒里, 薩見雄一, 横田和隆, 尾崎功一, “農業用薬液注入口ボットの開発”, 日本ロボット学会誌, 28(7), 821-828 (2010)
- 15) Tetsuya EDA, Yoshiki KOIKE, Sakurako MATSUSHIMA, Tomoharu ISHIKAWA, Koichi OZAKI, “Influence of Blackness on Visual Impression of Color Images”, *Kansei Engineering International Journal*, 10(1), 49-58 (2010)
- 16) Sam Ann Rahok, Yoshihito Shikanai, Koichi Ozaki, “Trajectory Tracking Using Environmental Magnetic Field for Outdoor Autonomous Mobile Robot”, *IEEE/RSJ Int. Conf. on Intelligent Robots and Systems*, 1402-1407 (2011)
- 17) Sam Ann Rahok, Koichi Ozaki, “2D Simulator of Obstacle Avoidance Using LRF for Mobile Robots Participated in Tsukuba Challenge” ,*2rd Int. Conf. on Intelligent Systems, Modeling and Simulation*, 166-171 (2011)
- 18) Shigeji Osawa, Koichi Ozaki, “Automatic Pickup and Release of Particle by Depth Estimation Method with Micromanipulators for Particle Sorting System”, 2011 IEEE/SICE International Symposium on System Integration, pp.857-862 (2011)
- 19) Sam Ann Rahok, Yoshihito Shikanai, Koichi Ozaki, “Navigation Using Environmental Magnetic Field for Outdoor Autonomous Mobile Robots” , *Advanced Robotics*, Vol.25, No.13, pp.1751-1771 (2011)
- 21) Takao Tasaki, Shinichi Watanabe, Yoshihito Shikanai, “Development of Hands-on Educational Tool for Control Based on ARCS Model and Emotions”, *Journal of Robotics and Mechatronics*, Vol.23, No.5, pp.676-683 (2011)
- 22) 大澤茂治, 石濱貴徳, 尾崎功一, “マイクロ視野におけるボケ幅の差を用いた奥行き方向の距離推定”, *精密工学会誌*, Vol.77, No.5, pp.483-489 (2011)
- 23) Sam Ann Rahok, Koichi OZAKI, “Application of localization based on DC magnetic field occurred in the environment on wheel type mobile agricultural robots”, *Advanced Robotics*, Vol.25, No.5, pp.923-939 (2011)
- 24) SAM ANN RAHOK, 鹿内佳人, 尾崎功一, “環境磁場に基づいた移動ロボットの自律走行”, *計測自動制御学会論文集*, Vol.47, No.3, pp.166-172 (2011)
- 25) 渡邊信一, 高木淳二, 長谷川光司, 入江晃亘, 杉山均, 横田和隆, “学科横断 PBL 形式科目「創成工学実践」における授業評価”, *工学教育*, Vol.59, No.2, pp.47-51 (2011).
- 26) 渡邊信一, 高木淳二, 長谷川光司, 入江晃亘, 横田和隆, 杉山均, “「螺旋型工学教育プログラムの開発整備」事業の総括”, *工学教育*, Vol.59, No.5, pp.23-29 (2011)
- 27) Sam Ann Rahok, Kazumichi Inoue, Koichi Ozaki, “Development of a Mobile Robot to Run in Tsukuba Challenge 2010”, *Advanced Robotics*, Vol.26, No.14, pp. 1555-1575 (2012)
- 28) 赤井直紀, Sam Ann Rahok, 井上一道, 尾崎功一, “磁気情報を用いた自己位置推定と横方向位置補正を組み合わせた低コスト構成の長距離ナビゲーション法の実装” ,

日本機械学会論文集 (C 編) , Vol.79, No.799, pp. 681-690 (2012)

- 29) Sam Ann Rahok, Shigeji OSAWA, Hirohisa ONEDA, Takuya MATSUDA, Koichi OZAKI, "Development of a Motivational Material Using Visual Feedback to Bring Technical College Students Closer to Control", The 1st Asian Conf. on Information Systems 2012, Proceedings of Asian Conference on In Systems 2012, pp. 857-860 (2012)
- 30) 井上一道, Sam Ann Rahok, 尾崎功一, "つくばチャレンジにおける移動ロボットの設計方針の提案と考察", 日本ロボット学会誌, Vol.30, No.3, pp. 234-244 (2012)
- 31) 江口純司, 尾崎功一, "DGPS を用いて設計したウェイポイント経路追従による実環境自律移動法の開発 -つくばチャレンジ 2010 における完走およびリタイヤに関する考察-", 日本ロボット学会誌, Vol.30, No.3, pp. 314-323 (2012)
- 32) 赤井直紀, Sam Ann Rahok, 井上一道, 尾崎功一, "磁気情報を用いた自己位置推定と横方向位置補正を組み合わせた低コスト構成の長距離ナビゲーション法の実装", 日本機械学会論文集 (C 編) , Vol.79, No.799, pp. 681-690 (2013)
- 33) 川上勝, 野澤 翔馬, 尾崎 功一, "夜勤介護職員の訪室実態把握 転倒・転落事故の防止をねらって", 医療の質・安全学会誌, Vol8, No. Supplement, pp.205, (2013)
- 34) N. Akai, S. Hoshino, K. Inoue and K. Ozaki, "Monte Carlo Localization using Magnetic Sensor and LIDAR for Real World Navigation", 2013 IEEE/SICE International Symposium on System Integration, (2013)
- 35) Sam Ann Rahok, TANAKA, Akio and Koichi Ozaki, "Trajectory Tracking Method Using Low Cost Magnetic Sensors", 2013 IEEE/SICE International Symposium on System Integration, (2013)
- 36) 韓青松, 大澤茂治, 尾崎功一, "座面傾斜による身体動作インタフェースを用いた電動車椅子の評価", 日本感性工学会論文誌 掲載予定, (2014)
- 37) 赤井直紀, Sam Ann Rahok, 片寄浩平, 島田遼, 井上一道, 尾崎功一, "磁場の実験的解析に基づく磁気ナビゲーション法の実装", 日本ロボット学会誌掲載予定, (2014)
- 38) Kenji Yamauchi, Naoki Akai, Ryutaro Unai, Kazumichi Inoue, Koichi Ozaki, "Person Detection Method Based on Color Layout in Real World Robot Challenge 2013", Journal of Robotics and Mechatronics, Vol.26, No.2, 掲載予定, (2014)

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *PP* Sam Ann Rahok, Yoshihito Shikanai, Koichi Ozaki, "Trajectory Tracking Using Environmental Magnetic Field for Outdoor Autonomous Mobile Robot", *IEEE/RSJ Int. Conf. on Intelligent Robots and Systems*, 1402-1407 (2011)
- 2) *OP* Sam Ann Rahok, Koichi Ozaki, "2D Simulator of Obstacle Avoidance Using

- LRF for Mobile Robots Participated in Tsukuba Challenge" ,2rd Int. Conf. on Intelligent Systems, Modeling and Simulation, 166-171 (2011)
- 3) *OP* Shigeji Osawa, Koichi Ozaki, "Automatic Pickup and Release of Particle by Depth Estimation Method with Micromanipulators for Particle Sorting System", 2011 IEEE/SICE International Symposium on System Integration, pp.857-862 (2011)
 - 4) *OP* Sam Ann Rahok, Shigeji OSAWA, Hirohisa ONEDA, Takuya MATSUDA, Koichi OZAKI, "Development of a Motivational Material Using Visual Feedback to Bring Technical College Students Closer to Control", The 1st Asian Conf. on Information Systems 2012, Proceedings of Asian Conference on In Systems 2012, pp. 857-860 (2012)
 - 5) *OP* N. Akai, S. Hoshino, K. Inoue and K. Ozaki, "Monte Carlo Localization using Magnetic Sensor and LIDAR for Real World Navigation", 2013 IEEE/SICE International Symposium on System Integration, (2013)
 - 6) *OP* Sam Ann Rahok, TANAKA, Akio and Koichi Ozaki, "Trajectory Tracking Method Using Low Cost Magnetic Sensors", 2013 IEEE/SICE International Symposium on System Integration, (2013)

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「ポ」赤井直紀，尾崎功一，“複数移動手法の協調的動作生成を用いた磁気ナビゲーション法の拡張 -ROBOMEC2013 における道案内デモンストレーションによる実証実験-”，日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会 2013，筑波(2013)
- 2) 「ポ」松田卓也，井上一道，赤井直紀，中田未央，尾崎功一，“パーソナルモビリティの設計構想とロボット特区での開発チャレンジ”，日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会 2013，筑波(2013)
- 3) 「ポ」上地優，赤井直紀，尾崎功一，伊藤主税，日野竜太郎，“撮影画像における特徴点マッチングと三次元形状認識を用いた原子炉内状況調査への適用”，日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会 2013，筑波(2013)
- 4) 「ポ」江口純司，尾崎功一，“屋外環境におけるスキャンマッチングの精度評価手法の検討”，日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会 2013，筑波(2013)
- 5) 「ポ」田崎隆男，尾崎功一，“搭乗型移動ロボット製作によるメカトロニクス教育”，日本機械学会ロボティクス・メカトロニクス講演会 2013，筑波(2013)
- 6) 「一般」上地優，赤井直紀，尾崎功一，伊藤主税，日野竜太郎，“撮影画像による三次元形状認識を用いた原子炉内調査への適用性検討”，日本原子力学会 2013 年秋の大会，八戸(2013)
- 7) 「一般」赤井直紀，尾崎功一，“磁気および幾何情報を用いたマルチナビゲータによる自律移動ロボットのナビゲーション法の実装”，第 31 回日本ロボット学会学術講演会，

東京(2013)

- 8) 「一般」韓青松, 大澤茂治, 尾崎功一, “座面傾斜による身体動作インタフェースを用いた電動車椅子の評価”, 第 15 回日本感性工学会大会, 東京(2013)
 - 9) 「一般」山内健司, 赤井直紀, 宇内隆太郎, 山本条太郎, 尾崎功一, “屋外環境における色配置に基づいた人検出法の検証”, 第 14 回(社)計測自動制御学会システムインテグレーション部門講演会, 神戸(2013)
 - 10) 「一般」赤井直紀, 山内健司, 宇内隆太郎, 山本条太郎, 松田卓也, 島田遼, 井上一道, 尾崎功一, “つくばチャレンジ 2013 における宇都宮大学チーム A の取り組み”, 第 14 回(社)計測自動制御学会システムインテグレーション部門講演会, 神戸(2013)
- 他 51 件

●著書, 総説, 解説等

- 1) 「解説」尾崎功一, 移動ロボット ERIE の製作と磁気ナビゲーション法の提案, 計測自動制御学会 (2010)
- 2) 「解説」尾崎功一, “つくばチャレンジにおける自律移動技術と磁気ナビゲーション法”, 自動車技術, Vol.65, No.10, pp.91-96 (2011)
- 3) 「解説」尾崎功一, “農業におけるロボット技術 ~イチゴ摘みロボットの開発~”, 日本農作業学会, 農作業研究 平成 23 年度秋季大会号, Vol.46, No.2, pp.4-11 (2011)
- 4) 「解説」渡邊信一, 創造的技術者養成のための工学教育プログラム—宇都宮大学工学部附属ものづくり創成工学センターの活動—, 素形材, Vol.52, No.2, pp.53-55 (2011).
- 5) 「解説」横田和隆, 渡邊信一, 高木淳二, 丸岡正知, 長谷川光司, 入江晃亘, 杉山均, 宇都宮大学大学院 PBL 必修科目「創成工学プロジェクト」, 工学教育, Vol.59, No.5, pp.109-114 (2011)

●特許(外国, 国内, 公開, 出願)

- 1) 「国内」尾崎功一, サム・アン・ラホック, 鹿内佳人, “自律移動方法及び自律移動体”, 特願 2010-134737, 特開 2012-003298
- 2) 「国内」尾崎功一, サム・アン・ラホック, 鹿内佳人, “自律移動方法及び自律移動体”, 特願 2009-289824, 特許第 5334198 号
- 3) 「国内」尾崎功一, サム・アン・ラホック, “自律移動方法及び自律移動体”, 特願 2009-289431, 特開 2011-129049
- 4) 「国内」尾崎功一, サム・アン・ラホック, 鹿内佳人, “自律移動方法及び自律移動体”, 特願 2009-261503, 特許第 4910219 号
- 5) 「国内」尾崎功一, 石濱貴徳, 大澤茂治, “ボケの抽出方法, 位置決め方法及びマイクロマニピュレーションシステム”, 特願 2009-213358, 特許第 5273734 号

- 6) 「国内」尾崎功一，原 紳，“植物の保持部材”，特願 2008-215978，特許第 5279009 号
- 7) 「国内」尾崎功一，田崎隆男，“倒立振子型移動体及び教育教材”，特願 2008-142793，特許第 4982655 号
- 8) 「国内」尾崎功一，サム・アン・ラホック，“自己位置認識方法及び自己位置認識装置”，特願 2008-142792，特許第 5130419 号
- 9) 「国内」尾崎功一，“植物の対象部分の位置特定方法とその方法による対象部分の位置特定装置及びその装置を用いた作業用ロボット”，特願 2006-352905，特許第 4961555 号
- 10) 「国内」尾崎功一，“外観検査装置、外観検査方法、外観検査プログラム及びそれを記録した情報記録媒体”，特願 2006-073755，特許第 4810659 号

●受賞

- 1) 田崎隆男，渡邊信一，尾崎功一，日本工学教育協会 研究講演会発表賞(2009年8月)
- 2) 尾崎功一，サム・アン・ラホック，鹿内佳人（尾崎研 B），つくば市長賞「つくばチャレンジ 2009 課題達成」(2009年11月)
- 3) 鹿内佳人，Samann Rahok，尾崎功一，計測自動制御学会 優秀発表賞(2009年12月)
- 4) 鹿内佳人，Sam Ann Rahok，尾崎功一，計測自動制御学会システムインテグレーション部門優秀発表賞「環境磁場に基づいた移動ロボットの自立走行」(2010年4月)
- 5) 渡邊信一，高木淳二，長谷川光司，入江晃亘，横田和隆，杉山均，JSEE 研究講演会発表賞「1年生必修科目「創成工学実践」の授業評価について」(2010年8月)
- 6) 尾崎研 A，つくば市長賞「つくばチャレンジ 2011 課題達成」，つくば市，つくばチャレンジ実行委員会，(2011年11月)
- 7) 鹿内佳人，Sam Ann Rahok，尾崎功一，計測自動制御学会システムインテグレーション部門優秀発表賞，「計測自動制御学会システムインテグレーション部門優秀発表賞」，社団法人計測自動制御学会，(2011年4月)
- 8) ものづくり創成工学センター，関東工学教育協会賞業績賞 (2011)
- 9) 篠原正俊，井上一道，Sam Ann Rahok，尾崎功一，計測自動制御学会システムインテグレーション部門優秀発表賞「環境磁場とマップマッチングを用いたナビゲーション手法の開発」(2012年4月)
- 10) 尾崎研 A，つくば市長賞「つくばチャレンジ 2012 課題達成」(2012年11月)
- 11) 尾崎研 B，つくば市長賞「つくばチャレンジ 2012 課題達成」(2012年11月)
- 12) 赤井直紀，井上一道，第 9 回学生&企業共同研究発表会銀賞「特許技術磁気ナビゲーション法を実装した移動ロボットの開発」(2012年12月)
- 13) 尾崎研 A，つくば市長賞「つくばチャレンジ 2013 課題達成」(2013年11月)
- 14) 上地泰樹，松田卓也，内藤唱弥，第 10 回学生&企業共同研究発表会地域経済貢献賞

「高品質イチゴの個別包装容器の開発」(2013年12月)

- 15) 金田美仁, 松田卓也, 室井聡, 第10回学生&企業共同研究発表会宇都宮機器賞
「鳥の風切羽を模倣した羽ばたきロボットのための翼の開発」(2013年12月)
- 16) 野澤翔馬, 阿部有貴, 川上勝, 第10回学生&企業共同研究発表会獨協医科大学学長賞
「看護支援のための臥床時体動検知システムの開発」(2013年12月)
- 17) N. Akai, S. Hoshino, K. Inoue and K. Ozaki, IEEE/SICE International Symposium on System Integration Best Student Paper Award, 「Monte Carlo Localization using Magnetic Sensor and LIDAR for Real World Navigation」(2013年12月)

●外部資金(科学研究費:科研、奨学寄付金:奨学、受託研究:受託、共同研究:共同)

- 1) 「共同」 尾崎功一, 138千円「高精密プレス部品の外観, 形状自動検査技術の開発」
光工業株式会社(平成21年)
- 2) 「競争」 尾崎功一, 1000千円「環境中の磁場分布を地図とした自律移動体の走行ナビゲーションシステムの開発」, JST A-STEP(平成22年)
- 3) 「受託」 尾崎功一, 750千円「施設園芸作物の観察を目的とした自律移動台車の開発」,
政府機関(平成22年)
- 4) 「共同」 尾崎功一, 138千円「高精密プレス部品の外観, 形状自動検査技術」, 光工業株式会社(平成22年)
- 5) 「共同」 尾崎功一, 1000千円「農作業用移動ロボット誘導制御システムの研究開発」,
合同会社ロモビリティ陽東(平成22年)
- 6) 「競争」 尾崎功一, 2850千円「新たな農林水産政策を推進する実用技術開発事業」, 農林水産省(平成22年)
- 7) 「共同」 尾崎功一, 渡邊信一, 大澤茂治, 138千円「高精密プレス部品の外観, 形状自動検査技術」光工業株式会社(平成23年)
- 8) 「競争」 尾崎功一, 2800千円「新たな農林水産政策を推進する実用技術開発事業」農林水産省(平成23年)
- 9) 「共同」 尾崎功一, 大澤茂治, 1,000千円「ベアリングレース部の傷の自動検出アルゴリズムの開発」宇都宮機器株式会社(平成24年)
- 10) 「競争」 尾崎功一, 2,571千円「平成24年度新たな農林水産政策を推進する実用技術開発事業」農林水産省(平成24年)
- 11) 「共同」 尾崎功一, 大澤茂治, 3,000千円「ベアリングレース外観検査自動化システムの研究開発」宇都宮機器株式会社(平成25年)

●VBLプロジェクト関連の成果についての特記事項

イ)ベンチャー起業 1件

(1) 出井聡明, 尾崎功一, 「合同会社 ロモビリティ陽東」

ロ) 報道 33 件

- (1) インプレス Robot Watch, 尾崎功一, 「つくばチャレンジ 2009 試走会レポート
(2009 年 11 月 13 日)
- (2) 筑波大学, 尾崎功一, 「つくばチャレンジ 2009 実況中継」(2009 年 11 月 20 日)
- (3) 筑波大学, 尾崎功一, 「つくばチャレンジ 2009 実況中継」(2009 年 11 月 21 日)
- (4) 朝日新聞, 尾崎功一, 「子どもが遊ぶ中央公園でロボット走行競技イベント「つくばチャレンジ」」(2009 年 11 月 23 日)
- (5) つくば経済新聞, 尾崎功一, 「自走ロボ快調 5 チーム完走 難コース技術向上示す」
(2009 年 11 月 23 日)
- (6) インプレス Robot Watch, 尾崎功一, 「iREX2009 大学や研究機関の各種ロボットが出展された「RT 交流プラザ」」(2009 年 12 月 1 日)
- (7) インプレス Robot Watch, 尾崎功一, 「つくばチャレンジ 2009 トライアル走行」
(2009 年 12 月 11 日)
- (8) インプレス Robot Watch, 尾崎功一, 「つくばチャレンジ 2009 本走行レポート」
(2009 年 12 月 15 日)
- (9) BS ジャパン, 鹿内佳人, 「世の中進歩堂」(2010 年 1 月 3 日)
- (10) オーム社 ロボコンマガジン 68 号, 尾崎功一, 「つくばチャレンジ 2009—人とロボットとが共存する社会を目指して—」(2010 年 2 月 15 日)
- (11) 日刊工業新聞, 尾崎功一, 「光工業「内面検査装置を開発」インジェクターカップ 1 個当たり 1.7 秒」(2010 年 3 月 16 日)
- (12) 福島民報, 尾崎功一, 「科学への関心高めるロボット作りに挑戦」
(2010 年 6 月 16 日)
- (13) CollColl キャンパスナビ, 尾崎功一, 「チャレンジ精神旺盛の研究室から生まれたユニークなイチゴ摘みロボット」(2010 年 8 月 1 日)
- (14) 下野新聞, 尾崎功一, 「ロボットに触れ未来に夢を」(2010 年 8 月 25 日)
- (15) 栃木テレビ, 渡邊信一, 「アイデアカーフェスタ紹介」(2010 年 9 月 6 日)
- (16) UUnow, 尾崎功一, 「研究室&ゼミ「計測・ロボット工学研究室」」
(2010 年 11 月 20 日)
- (17) NHK, 尾崎功一, 「NHK ニュースおはよう日本 土曜すてき旅」
(2010 年 12 月 11 日)
- (18) NHK, 尾崎功一, 「ゆうどきネットワーク 列島津々うらうら」
(2010 年 12 月 16 日)
- (19) NHK, 尾崎功一, 「こんにちはいっと 6 けん」(2010 年 12 月 22 日)
- (20) グローブ TV (ブラジルの TV 局), 尾崎功一, 「日本の農業ロボット」
(2011 年 2 月)
- (21) TBS, 尾崎功一, 「N スタ 旬のイチゴ」(2011 年 2 月 21 日)

- (22) 日刊工業新聞, 尾崎功一, 「自律型移動ロボ試乗デモを実施」
(2011年10月28日)
 - (23) TOKYOTEK, 尾崎功一, 「Robot that uses only magnetic field to navigate」
(2011年8月11日)
 - (24) 日本テレビ, 尾崎功一, 「シューイチ(イチゴ摘みロボットの紹介)」
(2011年8月7日)
 - (25) NVS: NECOVIDEO VISUAL SOLUTIONS, 尾崎功一, 「つくばチャレンジ2012
(実験の様子の中継)」(2012年11月10日)
 - (26) NVS: NECOVIDEO VISUAL SOLUTIONS, 尾崎功一, 「つくばチャレンジ2012
(完走の様子の中継)」(2012年11月11日)
 - (27) ニコニコ動画, 尾崎功一, 「つくばチャレンジ2012 (完走の様子の中継)」
(2012年11月11日)
 - (28) 毎日新聞, 尾崎功一, 「経路覚えて自走」(2012年11月11日)
 - (29) ラジオつくば, 尾崎功一, 「学生インタビュー つくばチャレンジの完走」
(2012年11月13日)
 - (30) 読売新聞, 尾崎功一, 「街をロボット走行」(2012年11月14日)
 - (31) 毎日新聞, 尾崎功一, 「ロボット自走実験5チームが完走」(2012年11月14日)
 - (32) 下野新聞, 尾崎功一, 「イチゴ流通「本県の新技术, 成果紹介」」
(2012年11月15日)
 - (33) 読売新聞, 尾崎功一, 「宇大だより「自律走行ロボ」完走」(2012年11月23日)
- ハ) 展示 20件
- (1) 2009 国際ロボット展, 尾崎功一, 「ロボットの展示・デモンストレーション」,
社団法人ロボット工業会, 東京ビックサイト, (2009年11月25~28日)
 - (2) 宇都宮大学さくらフェスタ, 尾崎功一「ロボットの展示・デモンストレーション」,
宇都宮大学陽東キャンパス, (2010年4月3-4日)
 - (3) U-ROBOT エ-Robot, 尾崎功一, 「ロボットの展示, デモンストレーション」,
LEGO ロボット講座」, 宇都宮市立図書館, (2010年8月24日)
 - (4) アグリビジネス創出フェア, 尾崎功一, 「イチゴ摘みロボットの展示・デモンスト
レーション」農林水産省, 幕張メッセ, (2010年11月22-24日)
 - (5) 宇都宮大学さくらフェスタ, 尾崎功一, 「ロボットの展示・デモンストレーション」,
宇都宮大学陽東キャンパス, (2011年4月9-10日)
 - (6) ROBOTECH 次世代ロボット製造技術展, 尾崎功一, 「ロボットの展示・デモン
ストレーション」, マイクロマシンセンター, 東京ビックサイト, (2011年7月13
~15日)
 - (7) 宇都宮大学企業交流会, 尾崎功一, 「施設園芸のための自律移動台車の開発」,
マロニエアプラザ大展示場, (2011年9月9日)

- (8) 宇都宮大学企業交流会, 尾崎功一, 「高精度プレス部品の外観、形状自動検査技術の開発 (その3)」, マロニエアプラザ大展示場, (2011年9月9日)
- (9) 2011 国際ロボット展, 尾崎功一, 「ロボットの展示・デモンストレーション」, 社団法人ロボット工業会, 東京ビックサイト, (2011年11月9~11日)
- (10) アグリビジネス創出フェア, 尾崎功一, 「イチゴ摘みロボットの展示・デモンストレーション」, 農林水産省, 幕張メッセ 展示ホール 6, (2011年11月30~12月2日)
- (11) 宇都宮大学さくらフェスタ, 尾崎功一, 「ロボットの展示・デモンストレーション」, 宇都宮大学陽東キャンパス, (2012年4月7~8日)
- (12) 栃木県, 尾崎功一, 「ロボットのデモンストレーション」, 栃木県総合教育センター (2012年7月14日)
- (13) 宇都宮市, 尾崎功一, 「ロボットの展示, デモンストレーション, LEGO ロボット講座」, 宇都宮東図書館 (2012年8月23日)
- (14) アグリビジネス創出フェア, 尾崎功一, 「イチゴ摘みロボットの展示・デモンストレーション」, 農林水産省, 東京ビックサイト, (2012年11月14~16日)
- (15) 宇都宮大学さくらフェスタ, 尾崎功一, 「ロボットの展示・デモンストレーション」, 宇都宮大学陽東キャンパス, (2013年4月6~7日)
- (16) ロボティクス・メカトロニクス講演会 2013 in Tsukuba, 尾崎功一, 「ロボットによる会場への案内サービス」, つくばセンター広場-つくば国際会議場間の遊歩道, (2013年5月23~24日)
- (17) 宇都宮市, 尾崎功一, 「ロボットの展示, デモンストレーション, LEGO ロボット講座」, 宇都宮東図書館, (2013年8月8日)
- (18) 子ども総合科学館「ロボット展」 ~めざせ未来のロボット博士!~, 尾崎功一, 「ロボットの展示, デモンストレーション」, 子ども総合科学館, (2013年7月20日~9月1日)
- (19) アグリビジネス創出フェア, 尾崎功一, 「イチゴ摘みロボットの展示・デモンストレーション」, 農林水産省, 東京ビックサイト, (2013年10月23~25日)
- (20) 2013 国際ロボット展, 尾崎功一, 「ロボットの展示・デモンストレーション」, 社団法人ロボット工業会, 東京ビックサイト, (2013年11月6~9日)

ニ) 技術指導, 講義, 講演 18 件

- (1) 尾崎功一, 「酪農モニタリングシステムの技術相談, 技術指導」国・地方団体等, 栃木県農業試験場 (2009年3月~2010年6月)
- (2) 尾崎功一, 「講演: 生活に密着したロボット」, 静岡理科大学, (2011年6月25日)
- (3) 尾崎功一, 「講演, イチゴ摘みロボットのデモンストレーション: 産業分野におけるロボット技術の応用」, 栃木産業振興協議会, 第1回計測技術分科会, 宇都宮大

学オプティクス教育研究センター，(2011年7月27日)

- (4) 尾崎功一，「集中講義：工業系高校生のための工学講座」，宇都宮大学工学部，
(2011年8月23日)
- (5) 尾崎功一，「集中講義：教員免許状更新講習」，宇都宮大学工学部，
(2011年8月24日)
- (6) 尾崎功一，「講演：ロボット工学入門」，福島県立須賀川桐陽高校，
(2011年11月4日)
- (7) 尾崎功一，「講演，イチゴ摘みロボットの展示・デモンストレーション」，
農作業シンポジウム，宇都宮大学工学部，(2011年11月25日)
- (8) 尾崎功一，「集中講義：知能ロボット入門」，放送大学，(2011年12月17～18日)
- (9) 尾崎功一，「講演題目：ロボット工学入門」，栃木県立鹿沼東高校
(2012年3月14日)
- (10) 尾崎功一，「講演題目：自律移動体～車輪型移動ロボットのナビゲーション～」，
栃木県立南高校，(2012年6月)
- (11) 尾崎功一，「講演題目：ロボティクス入門」，栃木県立佐野女子・佐野東高校，
(2012年6月)
- (12) 尾崎功一，「講演題目：自律移動体～車輪型移動ロボットのナビゲーション～
(栃木県立烏山高校)」，峰・UUプラザ (2012年7月)
- (13) 尾崎功一，「実用ロボットの施設見学」，郡山市立喜久田小学校 (SPP活動)，
(2012年7月23日)
- (14) 尾崎功一，「工業系高校生のための工学講座」，宇都宮大学工学部，
(2012年8月27日)
- (15) 尾崎功一，「講演題目：自律移動体～車輪型移動ロボットのナビゲーション～
(栃木県立小山高校)」，峰・UUプラザ，(2012年10月)
- (16) 尾崎功一，「講演題目：自律移動体～車輪型移動ロボットのナビゲーション～」，
栃木県立矢板東高校 (2012年10月)
- (17) 尾崎功一，「講演題目：自律移動体～車輪型移動ロボットのナビゲーション～」，
茨城県立下館第二高校 (2012年10月)
- (18) 尾崎功一，「講演題目：自律移動体～車輪型移動ロボットのナビゲーション～」，
栃木県立東高校 (2012年10月)

ホ) 見学会 13件

- (1) 栃木県上三川高校，「研究室紹介，ロボットの展示，デモンストレーション」，
(2011年5月20日)
- (2) 群馬県立富岡高校，「研究室紹介，ロボットの展示，デモンストレーション」，
(2011年6月21日)
- (3) 埼玉県東京成徳大学深谷高等学校，「研究室紹介，ロボットの展示，デモンストレ

- ーション」, (2011年6月23日)
- (4) 茨城県立下妻第二高等学校, 「研究室紹介, ロボットの展示, デモンストレーション」, (2011年7月14日)
 - (5) 茨城県岩瀬日本大学高等学校, 「研究室紹介, ロボットの展示, デモンストレーション」, (2011年9月16日)
 - (6) 茨城県立境高等学校, 尾崎功一, 「研究室紹介, ロボットの展示, デモンストレーション」, (2011年9月22日)
 - (7) 茨城県立取手第一高等学校, 尾崎功一, 「研究室紹介, ロボットの展示, デモンストレーション」, (2011年10月26日)
 - (8) 茨城県並木高等学校, 尾崎功一, 「研究室紹介, ロボットの展示, デモンストレーション」, (2012年3月19日)
 - (9) 群馬県立富岡高校, 尾崎功一, 「研究室紹介, ロボットの展示, デモンストレーション」, (2012年6月19日)
 - (10) 那須清峰高校島田校長・PTA, 尾崎功一, 「研究室紹介, ロボットのデモンストレーション」, (2012年6月29日)
 - (11) 福島県立磐城桜が丘高校, 尾崎功一, 「研究室紹介, ロボットのデモンストレーション」, (2012年10月5日)
 - (12) 日本コークス工業株式会社, 尾崎功一, 研究室紹介, ロボットのデモンストレーション」, (2013年6月26日)
 - (13) 日本電産株式会社, 尾崎功一, 「研究室紹介, ロボットのデモンストレーション」, (2013年7月11日)

以上

超高純度アルミニウムの室温における動的・静的復旧過程

高山善匡(教授)*¹, 山本篤史郎(准教授)*²

Yoshimasa TAKAYAMA*¹, Tokujiro YAMAMOTO*²

*¹ 大学院工学研究科機械知能工学専攻 takayama@cc.utsunomiya-u.ac.jp

*² 大学院工学研究科機械知能工学専攻 toku@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1. はじめに

本プロジェクトでは、「超高純度アルミニウムの室温における動的・静的復旧過程」をメインテーマとしているが、これに関連するマテリアル工学における組織制御など周辺分野の研究成果を含めて報告する。

2. 超高純度アルミニウムの室温における動的・静的復旧過程

金属の復旧過程は、古くは回復とそれに続く再結晶と理解され、多くの研究が現象の解明、組織制御への応用の観点から、進められてきた。しかしながら、現在では、回復と再結晶は競合する復旧過程であり、同時に起こり得ると理解されている。復旧過程が生じる温度、再結晶温度に関しては、従来、絶対値で表した融点 T_m の $1/2$ 程度の温度と言われてきたが、純度の高い金属では、さらに低い温度でも再結晶が生じることが報告され、材料科学の教科書において $(1/3)$ から $(1/2)T_m$ と記述されている。さらに、Schmidt と Haessner は、77K で変形された超高純度アルミニウムが、室温以下で回復し、再結晶することを示しており、変形温度が復旧過程が生じる温度に重要な影響を与えることが明らかにされている。さらに、最近数多くの精力的な研究がなされている強ひずみ加工においては、加工直後に 100nm 前後の微細結晶粒が形成され、動的あるいは静的な区別さえ困難な再結晶組織が観察されている。このことは、従来復旧過程を支配する外的因子を再度詳細に検討すべきであることを示唆している。

本研究では、変形機構領域図における動的再結晶領域の存在と不連続/連続再結晶の発現条件を明らかにすることを目的として、最も基本的な復旧過程である「変形（加工）温度と同じ温度での復旧過程」を連続的に観察し得る室温において、超高純度アルミニウムの動的・静的復旧過程を SEM/EBSD 法により解析した。さらに、初期組織の異なる 2 種類の超高純度アルミニウムの結果を比較し、どのような復旧過程が発現するか検討した。

室温における動的および静的復旧過程を調べるため、5N板-0%材を室温で圧縮し、その後の室温保持において各経過時間でEBSD解析を行った。図1は、5N板-0%材を室温で圧縮し、その後の室温保持における各経過時間での組織のIPF Mapを示している。まず圧縮後2時間後のIPF Map(図1左)を見ると、楕円で囲った箇所Aにおいて圧縮前にはみられなかった、小さな結晶粒が連なって発生しており、またそれらには粒内にひずみ(結晶方位を示す色のグラデーション)が導入されている。これは圧縮中にひずみが導入され再結晶粒が生じ、さらにひずみのない再結晶粒に圧縮変形によるひずみが導入された結果であると推察される。したがって、これは不連続動的再結晶の発生を明示しているといえる。その後の時間経過による組織変化に着目すると、図1右のように10時間後の解析においてひずみのない新たな結晶粒が数個発生していることが分かる。そして100時間後、1000時間後と時間が経過するにつれてひずみのない結晶粒は成長していくことが分かった。これより室温保持において(不連続)静的再結晶が生じていることが確認された。

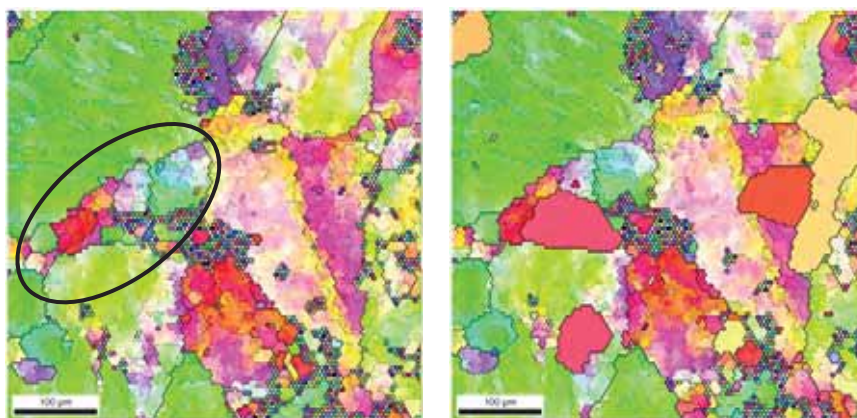


図1 5N板-0%材を室温で圧縮し、その後2時間(左)および10時間(右)室温保持での組織のEBSD IPF Map

3. 摩擦ロール表面処理による組織制御

摩擦ロール表面処理(Friction Roll Surface Processing; FRSP)は表面層組織の結晶粒微細化および結晶方位分布制御を目的として、図2のように、回転するロールにより材料表面層に極めて大きなせん断ひずみを与える方法である。ロールは、回転した状態で、試料表面に所定の深さまで押し込まれた位置に固定され、試料を送り方向に移動させることにより、前方端部から後方端部まで加工される。ロールは工具鋼SK3製で直径70mm、幅10mmあるいは5mmであり、回転方向は図のように切削のアップカットに対応する方向である。標準的な処理条件は、回転速度48rpm、ロール押し込み量0.20mm、送り速度0.30mm/sである。

板材にせん断ひずみを与える方法としては、異周速圧延(Asymmetric rolling; ASR)が知られている。これは板材厚さ方向全体にせん断ひずみを与える方法であり、ひずみの大きさに対応する上下のロールの接線方向の速度差は板材の移動速度以下に限定される。これに対し、FRSPでは原理的にロールの回転数を上げることによってより大きなせん断ひずみを表面層

に集中的に付加することが可能である。

FRSP は、処理面と処理方向により表面層の加工方向が決定される。対象板材の圧延方向を RD、板幅方向を TD、圧延面法線方向を ND とすれば、図 2 に示すように ND 表面を RD に FRSP したものを ND/RD FRSP と呼ぶ。

Table 1 は、各 FRSP と焼きなましによるせん断符号組織の主要方位成分である $\{111\}\langle 110\rangle$ E 方位の割合を示している。FRSP と焼きなましにより、加工表面から内部へ細粒領域と粗大粒領域が形成される。表では、各領域での E 方位割合を示している。RD/TD FRSP で焼きなまし温度 573K と TD/ND FRSP で焼きなまし温度 623K と 673K 以外、全ての細粒領域で受入材と比較し $\{111\}\langle 110\rangle$ E 方位の占める割合が増加している。特に RD 方向に FRSP 処理を行ったものでより顕著な $\{111\}\langle 110\rangle$ E 方位の増加の傾向がみられる。

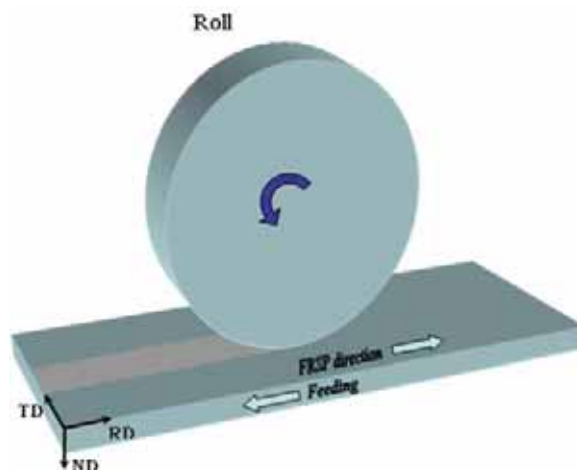


図 2 摩擦ロール表面処理の概略図

これは圧延による初期方位の影響によるものと考えられる。また受入材で $\{111\}\langle 110\rangle$ E 方位が存在しない状態から FRSP/焼きなまし後に存在するため、FRSP/焼きなましにより形成されていることがわかる。粗大粒領域では ND/TD FRSP と TD/RD FRSP では存在しないという特徴的な結果が得られた。

E 方位は、FCC 金属のすべり面 $\{111\}$ と FRSP 面が平行ですべり方向 $\langle 110\rangle$ と FRSP 方向が平行となる、に直接的な対応関係を持つに起因するせん断集合組織成分である。よって、E 方位の増加からは FRSP/焼きなまし処理により結晶粒方位がすべり面 $\{111\}$ とすべり方向 $\langle 110\rangle$ に配向した核の形成とその成長を示すとすることが言える。またより高いせん断を受けた細粒領域で粗大粒領域よりも安定して形成されることが確認できる。

Table 1 各 FRSP と焼きなまし温度における $\{111\}\langle 110\rangle$ E 方位の割合 [%]

	As received	FRSP/Annealing at 573K		FRSP/Annealing at 623K		FRSP/Annealing at 673K	
		Fine grains	Coarse grains	Fine grains	Coarse grains	Fine grains	Coarse grains
ND/RD	0.0	10.1	8.1	1.9	13.0	1.3	21.4
ND/TD	0.0	3.7	0.0	3.7	0.0	4.8	0.0
RD/TD	3.3	3.2	13.7	3.5	0.0	8.5	26.7
TD/RD	0.0	5.4	0.0	6.6	0.0	3.2	0.0
RD/ND	0.5	2.1	12.4	1.1	29.4	2.3	0.0
TD/ND	2.4	4.0	23.7	2.3	33.2	2.3	14.4

4. 混合エンタルピーを利用した塑性加工による局所溶解現象

本研究ではこれまで、塑性加工のみによってアルミニウム (Al) の組織制御を行ってきた。そこで、塑性加工に加えて反応熱を利用することで新たな組織を有する Al 材料を創製する試みを行った。

まず、純 Al 中に TiNi 粉末を分散させたインゴットを作製する。Al-Ti, Al-Ni は反応すると大きな混合エンタルピー（混合熱）を発生することが知られている元素の組み合わせである。このインゴットを室温で鍛造・圧延（冷間加工）した後の試料断面組織を観察した結果が図3である。試料中で明るいコントラストを示す相は Al_9FeNi 相であることが透過電子顕微鏡を用いた組成分析と電子回折実験から明らかになった。塑性加工の短い時間の間に、

- (1) Al, TiNi 粉末中に不純物として含まれていた Fe が濃縮されたこと、
 - (2) TiNi 粉末中で 50% を占めていた Ti の濃度が組成分析の検出限界以下に希釈されたこと、
 - (3) Al と Al_9FeNi が共晶反応でしばしば観察されるラメラ組織を形成していること、
- から、
- (a) 塑性加工によって純 Al 中に分散させた TiNi 粉末が反応を開始したこと、
 - (b) 反応開始と同時に大きな混合熱が発生し TiNi 粉末近傍で局所的に溶解したこと、
 - (c) 局所溶解後直ちに周囲の Al 母相により冷却されて凝固したこと、
- を推察した。

Al_9FeNi 相は金属間化合物であることから、一般に高い強度を示す。従って、本研究で作製した Al と Al_9FeNi の複合材料は Al よりも高強度を示すと考えられる。しかし、本研究で作製した複合材料では Al_9FeNi 相の分布が均一でないため、明瞭な機械的特性向上が見られなかった。そこで、純 Al 板に FeNi 電解めっきを施し、高周波誘導加熱により表層のみ加熱することにより数 $100\mu\text{m}$ 級サイズの Al_9FeNi 相を生成させ、そのビッカース硬度を測定した。その結果、Al 相単相試料と比較して、本実験で作製した Al- Al_9FeNi 複合材料は硬度が約 20% 上昇した。

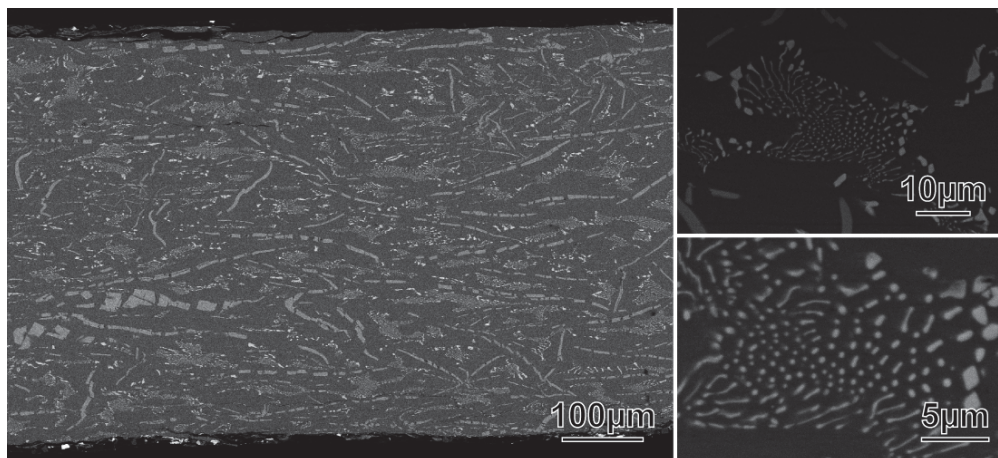


図3 TiNi 粉末を分散させた純 Al を室温で塑性加工した試料の断面組織。

プロジェクト9 超高純度アルミニウムの室温における動的・静的復旧過程

(担当者) 高山善匡, 山本篤史郎

●原著論文(外国, 国内)

- 1) Yoshimasa Takayama, Itsuki Takeda, Toshiya Shibayanagi, Hajime Kato and Kunio Funami, "Superplasticity in Friction Stir Processed AZ80 Magnesium Alloy", *Key Engineering Materials*, 433(2010), pp.241-246.
- 2) 萩野源次郎, 江口逸夫, 新井真人, 蔵本 繁, 高山善匡, 加藤 一
高 Ni+Si 銅合金の機械的性質に与える熱処理条件及び前冷間加工の影響
銅および銅合金, 48(2009), 249-253.
- 3) H. Hino, Y. Takayama, H. Kato, H. Watanabe: Deformation Behavior in Three-point Bending of Aluminum Alloy Honeycomb Structures, *Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 625-630.*
- 4) Y. Takayama, K. Nohara, H. Kato: Influence of Crystallographic Orientation on Corrosion Behavior of 5N Purity Aluminum, *Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 1469-1474.*
- 5) E. Sato, Y. Takayama, T. Shibayanagi, K. Kitazono: Re-examination of Deformation Mechanism Map of Pure Aluminum, *Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 1559-1566.*
- 6) Y. Takayama, Y. Akutsu, N. Choshiro, H. Kato, H. Watanabe: Temperature Measurement during Friction Stir Welding of Dissimilar Aluminum Alloys, *Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 1829-1834.*
- 7) Y. Takayama, D. Furuguchi, S. Suzuki, H. Kato: Microstructure Evolution at Ambient Temperature of 5N Purity Aluminum after Compression at Ambient and Liquid Nitrogen Temperatures, *Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 2192-2196.*
- 8) Y. Takayama, Y. Kitanosono, E. Watanabe, H. Watanabe, H. Kato: Influence of Cell Size on Die Bending of Aluminum Alloy Honeycomb Structure, *Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 2219-2224.*
- 9) Y. Takayama, Y. Kido, H. Kato and H. Watanabe: Microstructure and Corrosion Behavior in Al-Mg Based Alloys Subjected to Continuous Cyclic Bending and Annealing, *Materials Science Forum, Trans Tech Publications, Switzerland, Vols. 654-656(2010), pp.1002-1005,*
- 10) G. Hagino, H. Eguchi, Y. Takayama and H. Kato: Effects of Aging Parameters on the Mechanical Properties in Corson alloy system with high contents of Ni and Si, *Materials Science Forum, Trans Tech Publications, Switzerland, Vols. 654-656(2010), pp.2568-2571,*
- 11) 萩野源次郎, 江口逸夫, 新井真人, 蔵本 繁, 高山善匡, 加藤 一: 高 Ni+Si 銅合金の溶体化処理後の固容量に及ぼす溶体化処理条件の影響, 銅および銅合金, 49(2010), 15-20.
- 12) Y. Takayama, M. Shi, Y. Ougiya, K. Nonaka and H. Watanabe: Texture Evolution in Titanium and Aluminum Sheets Subjected to Friction Roll Surface Processing and Subsequent Annealing, *Materials Science Forum, Trans Tech Publications, Switzerland, Vols. 702-703 (2011), pp.457-460.*

- 13) 萩野源次郎, 高山善匡 : Cu-Ni-Si三元系合金におけるNi+Si含有量の機械的性質に及ぼす影響, 銅および銅合金, 50(2011),221-225.
- 14) M. Shi, Y. Takayama, T. Umetsu, H. Kato and H. Watanabe: Microstructure and texture evolution in titanium subjected to friction roll surface processing and subsequent annealing, Trans. Nonferrous Met. Soc. China, 22(2012), 2616-2627.
- 15) Sharifah Norhafizah, 高山善匡, 渡部英男 : 無酸素銅連続繰返し曲げ加工材の再結晶のEBSD解析, 銅および銅合金, 51(2012),37-41. 査読有
- 16) 江口逸夫, 新井真人, 藤井慎太郎, 柿山範夫, 高山善匡 : Cu-Cr-Zr-Ag合金の機械的性質に及ぼす焼なまし条件の影響, 銅および銅合金, 51(2012),148-152.
- 17) 高山善匡, 小杉洋介, 加藤 一, 渡部英男 : アルミニウム合金箔材の摩擦攪拌接合, 軽金属溶接, 50(2012), 177-182.
- 18) Y. Takayama, M. Shi, Y. Ougiya, K. Nonaka and H. Watanabe: Texture Evolution in Titanium and Aluminum Sheets Subjected to Friction Roll Surface Processing and Subsequent Annealing, Materials Science Forum, Trans Tech Publications, Vols. 702-703(2012), pp.457-460.
- 19) H. Tada, T. Yamamoto, X. Wang, and H. Kato, Effect of Al addition on superelastic properties of aged Ti-Nb-Zr-Al quaternary alloys, Materials Transactions, 53 (2012) 1981-1985.
- 20) T. Yamamoto, K. Hayashi, I. Seki, K. Suzuki and M. Ito, Pd-based metallic glass with a low glass transition temperature, Journal of Non-Crystalline Solids, 359 (2013) 46-50.
- 21) Y. Takayama, Y. Hoshina, R. Hamano and T. Yamamoto: Textural Stability During Annealing in Aluminum Subjected to Shear Deformation, Proc. PRICM8, WILEY/TMS, (2013) on CD.
- 22) H. Eguchi, M. Arai, S. Fujii, M. Fujita, Y. Takayama: Effect of Ag Content on Grain Growth During Reversion in Precipitation Hardened Cu-Cr-Zr-Ag Alloys, Proc. PRICM8, WILEY/TMS, (2013) on CD.
- 23) Sharifah Norhafizah, 高山善匡, 渡部英男 : 無酸素銅の応力緩和特性に及ぼす連続繰返し曲げ加工の影響, 銅および銅合金, 52(2013), 103-108.
- 24) 江口逸夫, 新井真人, 藤井慎太郎, 高山善匡 : Cu-Cr-Zr-Ag合金の焼きなまし後の機械的性質及び粒成長に及ぼすAg含有量の影響, 銅および銅合金, 52(2013),97-102.
- 25) T. Yamamoto, K. Hayashi, K. Suzuki and M. Ito: Detection of structural change of Pd-Cu-Ge metallic glass thin films upon heat treatment by using X-ray reflectivity, Japanese Journal of Applied Physics, in press.
- 26) T. Yamamoto, S. Hosokawa, J-F Bélar, N Boudet, W-C Pilgrim, K. Hayashi, H. Kato: Existence of covalent-like bonding in Pd40Cu20Ge40 metallic glasses observed by anomalous x-ray scattering, Journal of Physics: Conference Series, (2014), in press.

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *OP* Yoshimasa Takayama, Itsuki Takeda, Toshiya Shibayanagi, Hajime Kato and Kunio Funami, "Superplasticity in Friction Stir Processed AZ80 Magnesium Alloy", Key Engineering Materials, 433(2010),pp.241-246. ICSAM2009, Seattle, USA.
- 2) *OP*H. Hino, Y. Takayama, H. Kato, H. Watanabe: Deformation Behavior in Three-point Bending of Aluminum Alloy Honeycomb Structures, Proceedin

- gs of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 625-630.
- 3) *OP*Y. Takayama, K. Nohara, H. Kato: Influence of Crystallographic Orientation on Corrosion Behavior of 5N Purity Aluminum, Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 1469-1474.
 - 4) *IS*E. Sato, Y. Takayama, T. Shibayanagi, K. Kitazono: Re-examination of Deformation Mechanism Map of Pure Aluminum, Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 1559-1566.
 - 5) *PP*Y. Takayama, Y. Akutsu, N. Choshiro, H. Kato, H. Watanabe: Temperature Measurement during Friction Stir Welding of Dissimilar Aluminum Alloys, Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 1829-1834.
 - 6) *PP*Y. Takayama, D. Furuguchi, S. Suzuki, H. Kato: Microstructure Evolution at Ambient Temperature of 5N Purity Aluminum after Compression at Ambient and Liquid Nitrogen Temperatures, Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 2192-2196.
 - 7) *PP*Y. Takayama, Y. Kitanosono, E. Watanabe, H. Watanabe, H. Kato: Influence of Cell Size on Die Bending of Aluminum Alloy Honeycomb Structure, Proceedings of ICAA12, JILM, Yokohama, Japan, (2010), pp. 2219-2224.
 - 8) *OP*Y. Takayama, Y. Kido, H. Kato and H. Watanabe: Microstructure and Corrosion Behavior in Al-Mg Based Alloys Subjected to Continuous Cyclic Bending and Annealing, Materials Science Forum, Trans Tech Publications, Switzerland, Vols. 654-656(2010), pp.1002-1005. PRICM7, Cairns, Australia.
 - 9) *OP*G. Hagino, H. Eguchi, Y. Takayama and H. Kato: Effects of Aging Parameters on the Mechanical Properties in Corson alloy system with high contents of Ni and Si, Materials Science Forum, Trans Tech Publications, Switzerland, Vols. 654-656(2010), pp.2568-2571. PRICM7, Cairns, Australia.
 - 10) *OP* Y. Takayama, M. Shi, Y. Ougiya, K. Nonaka and H. Watanabe: Texture Evolution in Titanium and Aluminum Sheets Subjected to Friction Roll Surface Processing and Subsequent Annealing, Materials Science Forum, Trans Tech Publications, Switzerland, Vols. 702-703 (2011), pp.457-460. ICOTOM16, Mumbai, India.
 - 11) *OP* Genjiro Hagino, Hayao Eguchi, Yoshimasa Takayama and Hajime Kato: Effects of Aging Parameters on the Mechanical Properties in Corson alloy system with high contents of Ni and Si, IWCC Technical Seminar, Seoul, Korea, March 4-5, 2012.
 - 12) *OP* Y. Takayama, M. Sato and H. Watanabe: Crystallographic Orientation Dependence of Corrosion Behavior of 5N Purity Aluminum in Different Concentrations of HCl Aqueous Solutions, Proc. ICAA13, Pittsburgh, USA, TMS, (2012) on CD.
 - 13) *OP* M. Edo, M. Enomoto and Y. Takayama, Fatigue and Creep Properties of Al-Si Brazing Filler Metals, Proc. ICAA13, Pittsburgh, USA, TMS, (2012) on CD.
 - 14) *OP* Y. Takayama, Y. Hoshina, R. Hamano and T. Yamamoto: Textural Stability During Annealing in Aluminum Subjected to Shear Deformation, Proc. PRICM8, WILEY/TMS, (2013) on CD. PRICM8, Hawaii, USA.
 - 15) *OP* H. Eguchi, M. Arai, S. Fujii, M. Fujita, Y. Takayama: Effect of Ag Content on Grain Growth During Reversion in Precipitation Hardened Cu-Cr-Zr-Ag Alloys,

Proc. PRICM8, WILEY/TMS, (2013) on CD. PRICM8, Hawaii, USA.

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「基調」高山善匡，加藤 一，渡部英男 “強ひずみ加工プロセスによる集合組織形成”軽金属学会第 116 回春期大会講演概要，登別，(2009.5)，131-132.
- 2) 「一般」大内敏矢，高山善匡，加藤 一，渡部英男 “連続繰り返し曲げ加工材の再結晶のその場 EBSD 解析”軽金属学会第 117 回秋期大会講演概要，東京，(2009.11)，1-2.
- 3) 「一般」高山善匡，長代尚之，加藤 一，渡部英男，小久保正史 “異種アルミニウム合金の摩擦攪拌接合における接合条件と温度の関係”軽金属学会第 118 回春期大会講演概要，吹田，(2010.5)，105-106.
- 4) 「ポ」佐藤政行，野原健太郎，高山善匡，加藤 一，渡部英男 “超高純度アルミニウムの結晶方位と腐食挙動の関係”軽金属学会第 118 回春期大会講演概要，吹田，(2010.5)，339-340.
- 5) 「一般」江口逸夫，新井真人，藤井慎太郎，柿山範夫，高山善匡：“Cu-Cr-Zr-Ag 合金の機械的性質に及ぼす焼きなまし条件の影響”日本銅学会第 51 回講演大会概要，京都，(2011.11)，77-78.
- 6) 「招待」高山善匡 中真昇平 扇谷佳大 渡部英男 “チタンの摩擦ロール表面処理による表面層組織制御”日本金属学会機能性チタン合金研究会講演会「最新のチタン材料の表面改質の研究開発」概要，東京，(2012.12)，1-10.
- 7) 「一般」山本篤史郎，“マイクロ SHS による Al 合金複合材料の組織形成”，軽金属学会，習志野(2012.11)
- 8) 「一般」山本篤史郎，林好一，鈴木宏輔，伊藤正久，“Pd-Cu-Ge 金属ガラス薄膜の結晶化過程における X 線反射率測定”，日本金属学会，東京(2013.3)
- 9) 「ポ」荒川卓弥，高山善匡，渡部英男，山本篤史郎，濱野龍一，“摩擦ロール表面処理後温度勾配焼きなましされた 1050 アルミニウム板材表面層の集合組織解析”軽金属学会第 124 回春期大会講演概要，富山，(2013.5)，387-388.
- 10) 「一般」細川 光，高山善匡，山本篤史郎，渡部英男，軽金属学会第 125 回秋期大会講演概要，横浜，(2013.11)，95-96.

他 4 6 件

●著書，総説，解説等

- 1) 「便覧」監修・編集代表：足立吟也，執筆者：高山善匡 他 251 名，レアメタル便覧，丸善 (2011) ISBN 978-4-621-08276-8
- 2) 高山善匡：チタンの摩擦ロール表面処理による表面層組織制御，チタン，60(2012)，312-315.

- 3) 高山善匡, 施梅勤: 強ひずみ加工による金属表面層組織制御と材料特性, 軽金属, 63-11(2013), 392-399.

●受賞

- 1) 大内敏矢 (機械知能工学専攻・研究室所属大学院生), 平成21年度軽金属希望の星賞, (社) 軽金属学会, (2010年3月)
- 2) 伏木幸司 (機械知能工学専攻・研究室所属大学院生), 平成22年度軽金属希望の星賞, (社) 軽金属学会, (2011年3月)
- 3) 高橋政樹 (機械知能工学専攻・研究室所属大学院生), 平成23年度軽金属希望の星賞, (社) 軽金属学会, (2012年3月)
- 4) 高山善匡, 第11回軽金属功績賞, (一社) 軽金属学会, (2013年5月)
- 5) 荒川卓弥 (機械知能工学専攻・研究室所属大学院生), 軽金属学会第124回春期大会優秀ポスター発表賞, (一社) 軽金属学会, (2013年5月)
- 6) 細川 光 (機械知能工学専攻・研究室所属大学院生), 平成25年度軽金属希望の星賞, (一社) 軽金属学会, (2014年1月)

●外部資金 (科学研究費: 科研、奨学寄付金: 奨学, 受託研究: 受託, 共同研究: 共同)

- 1) 「奨学」研究奨励金, 代表 高山善匡, アルミニウム合金の粒界および結晶方位分布制御, 3,000千円, 有限責任中間法人アルミニウム研究奨励基金 (平成21年)
- 2) 「奨学」研究助成金, 銅及び銅合金組織制御と力学的特性, 4,800千円, 日本伸銅協会 (平成21-24年)
- 3) 「奨学」研究奨励金, アルミニウム合金の粒界および結晶方位分布制御, 4,000千円, 一般社団法人アルミニウム研究奨励基金 (平成22-25年)
- 4) 「奨学」研究補助金, 超高純度アルミニウムの室温静的・動的再結晶, 300千円, 軽金属奨学会 (平成22-23年)
- 5) 「奨学」研究助成金, 銅および銅合金の応力緩和特性に及ぼす連続繰返し曲げ加工の影響, 800千円, 日本伸銅協会 (平成23-24年)
- 6) 「科研」山本篤史郎, 直接経費 3,100千円 (間接経費 930千円), 「マイクロSHSによるレアメタルフリー耐熱高強度マグネシウム合金の創製」 (平成24年)
- 7) 「奨学」教育研究資金, アルミニウム合金の摩擦攪拌における温度と材料変形の関係, 500千円, 軽金属奨学会 (平成24-25年)
- 8) 「共同」注射針の硬度アップ研究, 120千円, 企業 (平成24年)
- 9) 「共同」プレス絞り加工における亀裂発生に関する研究, 330千円, 企業 (平成24年)
- 10) 「奨学」研究助成金, 銅及び銅合金組織制御と力学的特性, 1,000千円, 日本伸銅協会 (平成25年)

●VBLプロジェクト関連の成果についての特記事項

- イ) 軽金属奨学会平成 19・20 年度統合的先端研究「単相アルミニウム合金の変形機構・組織領域図の再検討」研究分担者，成果報告（2009.11）
- ロ) 第 12 回アルミニウム国際会議（2010.9, Yokohama），実行委員会副委員長.
- ハ) ポスター発表 宇都宮大学企業交流会，「環境負荷低減を目指した材料組織制御・接合技術」，大学院生 5 名参加（2011 年 9 月 9 日）
- ニ) ポスター発表 宇都宮大学企業交流会，「環境負荷低減を目指した材料組織制御・接合技術」，大学院生 4 名参加（2012 年 9 月 10 日）
- ホ) ポスター発表 宇都宮大学企業交流会，「環境負荷低減を目指した材料組織制御・接合技術」，高山，大学院生 5 名参加（2013 年 9 月 10 日）

紫外および可視光領域光触媒活性度測定 に必要な標準サンプル薄膜の開発

石井清(教授)^{*1}，佐久間洋志(准教授)^{*1}，柏倉隆之(准教授)^{*1}

*1 大学院工学研究科電気電子システム工学専攻 ishiik@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1. はじめに

本研究は、(有)マロニエ技術研究所との共同研究によるものが主体となっており、当社の開発した「光触媒活性テスター」の製品化に関する成果が多いことから、本報告書ではその成果を中心に述べる。

光触媒物質とは光を吸収して励起状態となり、その表面上の有害物質を分解するなどの光触媒反応を示す。光触媒反応を示す物質には、半導体、錯体、色素があるが、代表的なのが酸化物半導体である酸化チタン TiO_2 である。光触媒の応用は「空気浄化」、「水浄化」、「抗菌・殺菌」、および「防汚・防曇（セルフクリーニング）」などがあり、最近では、「サイドミラーの曇り止めフィルム」、「自動車のボディコーティング」、「抗菌タイル」、「空気清浄機」といったさまざまな商品に利用されている。その他にも、道路関連、農業関連、水処理・土壌汚染関連、医療関連などの産業分野でも光触媒を応用した製品開発が進められている。

このような光触媒の性能を客観的に表すため、日本工業規格 (JIS 規格)により標準試験方法が定められ、その評価値を「光触媒活性度」として規格化されている。さらには国際標準化に対する取り組みも進められている。しかしながら、JIS 規格で標準化された試験方法では、高価な計測器を必要とすること、測定時間として数時間以上が必要であること、実験室において測定する必要があること、など、利用しづらい点が多いことが問題となっている。特に、光触媒およびその応用製品の製造現場における品質管理や施工現場に性能の確認作業などにおいて、その試験法は利用困難である。

そのような状況を踏まえて、宇都宮大学発のベンチャー企業として設立された有限会社マロニエ技術研究所では、いつでもどこでも光触媒活性を数分で計測可能な「光触媒活性テスター」を考案して、その商品化が進められてきた。今までに、試行的にいくつかの企業等で使用され、その有用性が評価されている。しかしながら、当テスターにおいては次の二つの点が明確らかにならなかつた。

1. 当テスターによる測定値が光触媒活性度を忠実に示しているか。
2. 当テスターによる測定値と JIS 規格の「光触媒活性度」が対応するか。

そこで、本研究では上記の二点について明確にし、実用的な光触媒テスターとして完成させることを目指した。具体的には、当光触媒活性テスターの測定機構をモデル化し、実験結果と比較検討することによって、上記の1の問題について調べた。その結果、光触媒は通常表面にコーティングして用いるが、様々な状態におけるコーティング層であってもその光触

媒層の還元反応能力を測定できることを示すことができた。また、JIS規格との対応について検討した結果、標準試料を用いることによりかなりな程度において対応することを示した。なお、当テスターの測定原理は、光触媒効果の基本である光触媒物質表面での酸化・還元反応のうち還元反応に着目して還元の様子を光学的に測定するものであり、メチレンブルー(MB)試薬溶液の還元速度を測定する「JIS規格湿式分解性能試験方法」に良く対応したものである。

以上の結果より、この光触媒テスターの正式な市販が開始され、大手企業における利用も始まった。

2. 光触媒テスターのモデル化

光触媒活性テスターの全景と測定原理をそれぞれ図1と図2に示す。測定原理は、メチレンブルー(MB)試薬溶液の還元速度を測定する「JIS規格湿式分解性能試験方法」に対応している。図2のように、光触媒物質表面に付着させたMB(溶媒にとかしたものの)青色部分にセンサー光として赤色LED光を照射し、同時にUV(紫外光)LED光を照射して光触媒反応を起こさせ、光触媒の還元反応が進行すると、MBの青色の脱色が進行するので赤色光の吸収が減り、赤色光の反射光強度が増加する。この反射光強度の時間変化は光触媒反応速度に対応していることを利用したものであり、反射強度が速く増加する場合に活性度は高いと評価できる。JIS規格では、光触媒試料をMB溶液に埋めて、UV光を照射して溶液中のMB濃度の減少速度を測定するものである。いずれもMBの還元される速度を測定していることであり、良く対応しているといえる。大きな違いは、JIS規格においては大量のMB溶液を用い、測定当初の還元速度(MBの脱色の速さ)が線形に近似できる領域で測定するが、当テスターにおいてはMBが表面に薄く塗られた状態にあり、MBの還元は時間に対して線形に減少するわけではない。また、表面および界面での検出光(赤色LED光)の反射率、またMB層の厚さ方向の効果を加味しなければならない。



図1 光触媒活性テスター

【(有)マロニエ技術研究所製】

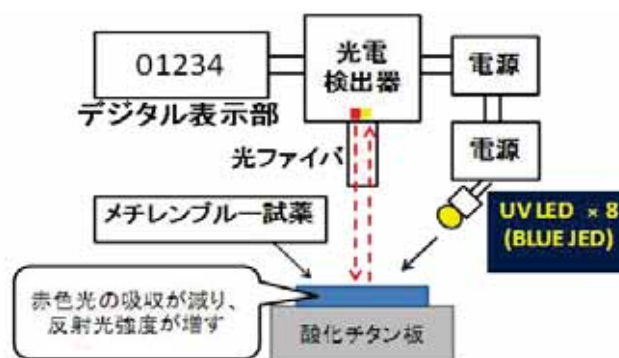


図2 光触媒活性テスター測定原理

上記の二つの問題について次のような仮定の下にモデル化を行った。

まず、表面と界面の反射率を仮定して反射光強度を図3として導出する。また、図4に示すように、MB中の吸収係数は膜厚方向で値が異なり、それらが時間変化すると考えられる単なる減少関数で近似した。まず、吸収係数は減少関数であるはずなので、(1)式の有利関数展

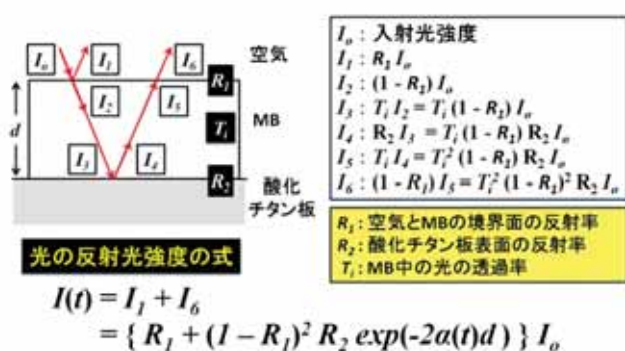


図3 反射光強度の計算式

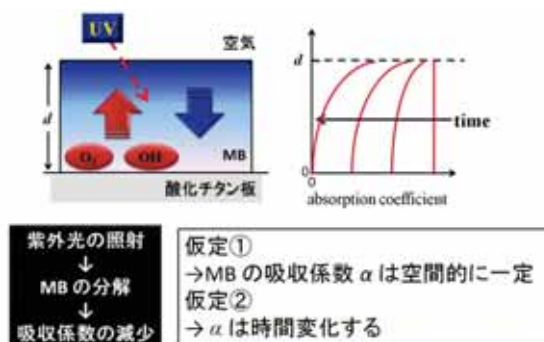


図4 MB中の吸収係数の時間変化

開式で表し、その一次の項により(2)式のように近似した。

$$f(t) = \frac{b_0 + b_1 t + \dots + b_{n-2} t^{n-2} + b_{n-1} t^{n-1}}{1 + a_1 t + \dots + a_{n-2} t^{n-2} + a_{n-1} t^{n-1} + a_n t^n} \quad (1)$$

$$\alpha(t) = \frac{A}{\alpha_0 t + 1} \quad (2)$$

ここに、 A : 吸収係数の初期値
 α_0 : 定数

その結果を用いると、反射光強度（検出強度）は(3)式で表せる。

$$I(t) = \left\{ R_1 + (1 - R_1)^2 R_2 e^{\left(\frac{-2dA}{\alpha_0 t + 1}\right)} \right\} I_0 \quad (3)$$

(2)式において、 α_0 は時間tに係る係数であり、これが大きいことがMBの分解が速いことを示しており、光触媒の活性度の対応していることになる。

実際の測定においては、 $t=0$ と $t=t$ の $I(t)$ の変化を測定しているのでテストの検出値は次の式で表せる。

$$\Delta I(t) = I(t) - I(0) = \left[(1 - R_1)^2 R_2 \left\{ e^{\left(\frac{-2dA}{\alpha_0 t + 1}\right)} - e^{(-2dA)} \right\} \right] I_0 \quad (4)$$

この式に、反射係数などのパラメータを入れて計算すると図5のようになる。一方、一般的な測定例を図6に示す。両者が非常に良い対応をしていることが分かる。

以上のとおり、測定値は飽和現象（MBの完全脱色）を示し、また、この測定値には表面の反射係数、MBの濃度や厚さがパラメータとして含まれている。これらのパラメータの中で表面と界面の反射率は試料によって大きく異なる。そこで、そのパラメータを除くため、飽和値で規格化し、しかもその曲線の初期の傾きを取ることにした。すると、次式が得られる。

$$\frac{\Delta I'(0)}{\Delta I(\infty)} = \frac{2dA\alpha_0 e^{(-2dA)}}{1 - e^{(-2dA)}} \quad (5)$$

この式から、MBの濃度に対応したAおよびその塗布厚さdを一定にすれば、活性度 α_0 のみに依存することが分かる。すなわち、活性度を測定できることが示された。

図7に一つの酸化チタン膜試料について時間を変えて4回測定した結果を示す。同図のように大きければつきが見られる。その原因は、主に表面状態にあることが推察された。すなわち、この時点では塗布するMBの表面状態を一定にすることが難しい方法であったことによる。

しかしながら、それらを飽和にて規格化すると、図8に示すように各曲線は重なり合うことが確認された。

この測定曲線の初期の傾きが活性度を表していると結論できる。

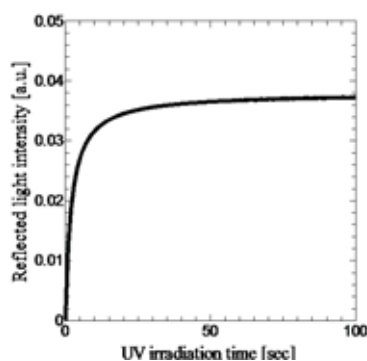


図5 モデルによる検出曲線

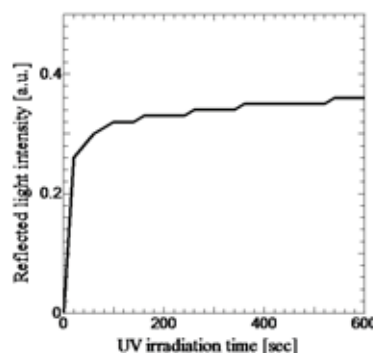


図6 実際の測定例

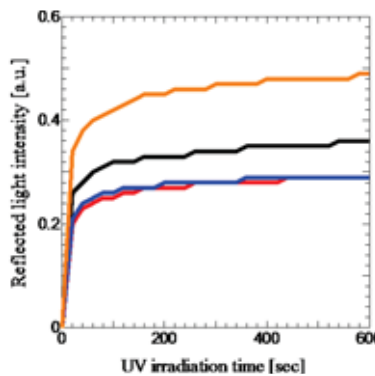


図7 一つの酸化チタン膜の4回の測定結果

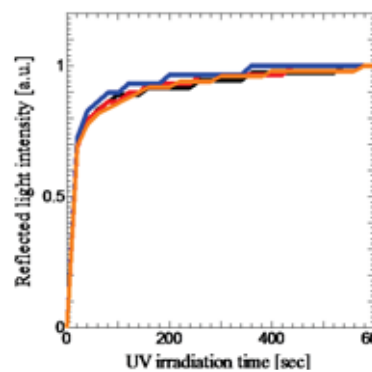


図8 図7について飽和値で規格化した場

3. 標準試料の作製

ガスフロースパッタ法により光触媒活性度が大きく異なる酸化チタン膜が作製できた。具体的には、基板加熱なしの状態で作成した酸化チタン膜を、その後大気中で熱処理を行うことにより可能となった。図9にその結果を示す。一般のスパッタ法などではこのような大きな活性度は得られず、ガスフロースパッタ法の特長が現れているものである。

4. まとめ

以上のように、(有)マロニエ技術研究所製「光触媒活性度テスター」において、MBを濃度Aおよび厚さdを一定になるように塗布することにより、JIS規格における光触媒活性度に対応した活性度が測定できることが示された。

昨年度より大手企業の製造現場において使用されるなど、正式な販売が開始されている。

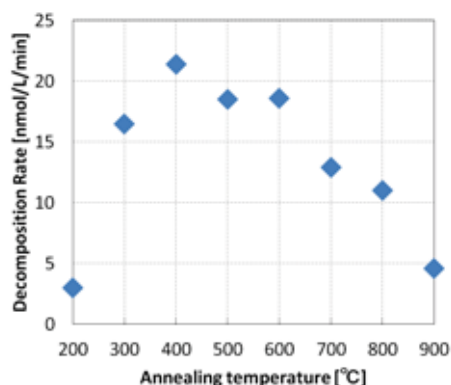


図9 ガスフロースパッタ法により作製した酸化チタン膜の光触媒活性度 (JIS 規格) のアニール温度依存性

プロジェクト 10 紫外および可視光領域光触媒活性度測定に必要な標準サンプル薄膜
の開発

(担当者) 石井清、佐久間洋志、柏倉隆之

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) H. Sakuma, K. Nishiguchi, S. Mifuji, and K. Ishii, Magnetic Properties of Co-Pt Nanopillars as Function of Lattice Parameter and Morphology of Pt Underlayer, Transactions of the Materials Research Society of Japan, Vol.34, No.1, 133-136 (2009).
- 2) H. Sakuma and K. Ishii, Gas flow sputtering: versatile process for the growth of nanopillars, nanoparticles, and epitaxial thin films, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol.321, No.7, 872-875 (2009).
- 3) H. Aoshima, H. Suzuki, H. Sakuma, and K. Ishii, Fabrication of Fe nanoparticles with sizes ranging from 30 to 170 nm by gas flow sputtering, Journal of Applied Physics, Vol.105, No.7, 07B519-1 to 07B519-3, (2009).
- 4) H. Sakuma, H. Kawano, K. Ishii, and T. Taniyama, Low-temperature Ordering in FePt Films Deposited by Gas Flow Sputtering, Journal of the Magnetism Society of Japan, Vol.33, No.3, 167-170 (2009).
- 5) S. Iwatsubo, K. Ishii, and Y. Doi, Mn-Zn-Cu ferrite films deposited by reactive gas flow sputtering using composite target dispersed oxide particles, The Tenth International Symposium on Sputtering & Plasma Processes, pp.130-133, Kanazawa Kokusai Hotel, Kanazawa (2009).
- 6) H. Sakuma, Y. Watanabe, K. Aramaki, K.S. Yun, K. Ishii, Y. Ikeda, and H. Kondo, Microstructure and magnetic properties of Co-doped ZnO films deposited by gas flow sputtering, Materials Science & Engineering B, Vol.173, No.1-3, 7-10 (2010).
- 7) H. Sakuma, T. Nagamatsu, T. Kashiwakura, and K. Ishii, Magnetic and magneto-optical properties of Co/Nb-codoped TiO₂ films deposited by gas flow sputtering, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol.322, No.7, 786-789 (2010).
- 8) A. Irie, N. Arakawa, M. Kitamura, H. Sakuma, and G.-I. Oya, Control of Critical Current of Intrinsic Josephson Junctions Due to Spin Injection, IEEE Transactions on Applied Superconductivity, Vol.21, No.3, 741-744 (2011).
- 9) H. Sakuma, R. Odashima, S. Shidara, and K. Ishii, Formation of closely packed grains with L10 ordering in gas-flow-sputtered FePt thin films, Transactions of the Materials Research Society of Japan, Vol.36, No.4, 599-602 (2011).
- 10) H. Sakuma, T. Taniyama, K. Ishii, Anomalous relaxation in magnetoresistance of

Fe/Fe-O granular system, 電気学会論文誌A, Vol.132, No.10, 920-923 (2012).

- 11) H. Sakuma, S. Sakamoto, A. Naoi, Y. Saito, and K. Ishii, Growth of Fe cubical particles on substrates during gas flow sputtering, *Journal of Vacuum Science and Technology A*, Vol.30, No.6, 061604/1-6 (2012).

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *PP* H. Sakuma, Y. Watanabe, K. Aramaki, K. S. Yun, K. Ishii, Y. Ikeda, and H. Kondo, "Microstructure and Magnetic Properties of Co-doped ZnO Films Deposited by Gas Flow Sputtering," *3rd International Conference on Science and Technology for Advanced Ceramics*, Mielparque-Yokohama, Yokohama (2009).
- 2) *PP* H. Sakuma and K. Ishii, "Anomalous relaxation in magnetoresistance of Fe nanoparticles coated with native oxide," *7th International Conference on Fine Particle Magnetism*, Uppsala (2010).
- 3) *PP* H. Sakuma, Y. Sato, and K. Ishii, "FMR study of Fe nanoparticle chains", *7th International Conference on Fine Particle Magnetism*, Uppsala (2010).
- 4) *OP* A. Irie, N. Arakawa, H. Sakuma, M. Kitamura, G. Oya, "Magnetization-dependent critical current of intrinsic Josephson junctions in Co/Au/Bi₂Sr₂CaCu₂O_y mesa structures," *9th European Conf. Appl. Superconductivity* (2010).
- 5) *PP* H. Sakuma, R. Odashima, S. Shidara, and K. Ishii, "Fabrication of Close-Grained and L10 Ordered FePt Thin Films by Gas Flow Sputtering," *The 2nd International Symposium on Advanced Magnetic Materials and Applications*, Sendai (2010).
- 6) *OP* H. Sakuma, Y. Sato, and K. Ishii, "Structural and Magnetic Analyses of FePt₃/FePt Composite Films", *The 2nd International Conference of the Asia Union of Magnetism Societies*, Abstract p.96, Nara, Japan (2012).
- 7) *OP* K. Nagamoto, T. Hara, T. Kondo, and K. Ishii, "Structural, Electrical and Optical properties of Ga-Doped Zinc Oxide Films Deposited on Plastic Substrates by Magnetron Sputtering," *International Conference on Coatings on Glass and Plastics ICCG9*, Proc. pp. 217, Breda, Netherland (2012).
- 8) *OP* K. Nagamoto, T. Hara, T. Kondo, and K. Ishii, "Structural and Electrical Properties of Highly Transparent Conductive Ga-doped ZnO Films by Magnetron Sputtering," *Society of Vacuum Coaters Annual Conference*, Santa Clara, USA (2012).
- 9) *PP* H. Sakuma, Y. Sato, and K. Ishii, "Evaluation of Degrees of Crystal Orientation

and Atomic Ordering in Epitaxial L10 Type Ordered Alloy Thin Films," *The 11th International Conference on Ferrites (ICF11)*, presentation number 16pP-43, Okinawa, Japan (2013).

10) *OP* H. Sakuma, Y. Shidara, Y. Kagi, R. Suzuki, and K. Ishii, "Effects of Oxidized Layer of GaAs on Epitaxial Growth of Magnetite," *The 11th International Conference on Ferrites (ICF 11)*, presentation number 18aB1-II-1, Okinawa, Japan (2013).

11) *IS* H. Sakuma, K. Matsumoto, A. Naoi, S. Sakamoto, Y. Saito, K. Ishii, "Growth of Faceted Fine Particles by Gas Flow Sputtering," *Collaborative Conference on 3D & Materials Research (CC3DMR) 2013*, Ramada Jeju, Korea (2013).

12) *IS* K. Nagamoto, T. Hara, S. Naganawa, T. Kondo, H. Sakuma, K. Ishii, "Properties of Transparent Conductive Ga-doped Zinc Oxide Films Deposited on Ultra High Gas Barrier Plastic Substrate for Flexible Devices," *8th asia-Pacific International Symposium on the Basics and Applications of Plasma Technology (apspt8)*, Hsinchu, Taiwan (2013).

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「依頼」石井清，佐久間洋志，"ガスフロースパッタ法による低ダメージ薄膜堆積とナノ粒子作製"，日本真空協会スパッタリングおよびプラズマプロセス技術部会第114回定例会，東京（2009）。
- 2) 「一般」大平猛，安田是和，佐久間洋志，石井清，"ガスフロースパッタ法により作成した鋸歯状ナノ磁性体による腫瘍細胞リソゾームターゲット療法"，第109回日本外科学会定期学術集会，福岡（2009）。
- 3) 「一般」須藤隆吉，渡辺裕也，佐久間洋志，石井清，荒巻慶輔，Kyung Sung Yun，池田義人，近藤洋文，"ガスフロースパッタ法による ZnO 薄膜の作製"，電子情報通信学会2009年ソサイエティ大会，新潟（2009）
- 4) 「ポ」小野高伸，岩谷努，佐久間洋志，石井清，荘司弘樹，中井俊一，"光触媒活性度定量測定のための活性度の制御された TiO₂ 薄膜の作製"，第19回日本 MRS 学術シンポジウム，横浜（2009）
- 5) 「ポ」須藤隆吉，佐久間洋志，石井清，荒巻慶輔，尹昶成，池田義人，近藤洋文，"ガスフロースパッタ法による Al ドープ ZnO 薄膜の作製"，第19回日本 MRS 学術シンポジウム，横浜（2009）
- 6) 「一般」須藤隆吉，近藤祐邦，佐久間洋志，石井清，荒巻慶輔，尹 昶成，近藤洋文 "ガスフロースパッタ法により低温で作製した Al ドープ ZnO 薄膜の電氣的・光学的性質の酸素流量依存性"，電子情報通信学会材料デバイスサマーミーティング，東京（2010）
- 7) 「一般」シアーピエン，鈴木浩士，横井内誠，石井清，佐久間洋志，中井俊一，"可視

光活性を有する光触媒酸化チタン薄膜の作製” 第19回日本MRS 学術シンポジウム，横浜 (2010)

- 8) 「一般」中井俊一，高橋邦彦，石井清，“光触媒テスター (PAM-NT2)”，光機能材料研究会，第17回シンポジウム，神奈川 (2010)
- 9) 「一般」宮本孝祐，石井清，中井俊一，高橋邦彦，“光触媒テスターの実証試験”，光機能材料研究会第18回シンポジウム，東京 (2011).
- 10) 「招待」石井清，“ナノグラニューラー磁性体の合成とその磁性モデルとの対応”，電気学会マグネティクス研究会，長野市 (2013).

他 23 件

●著書，総説，解説等

- 1) 「著書」石井清，佐久間洋志，スパッタQ&A，金原，他監修，第10部分担執筆，技術情報協会 (2009)
- 2) 「トピックス記事」石井清，佐久間洋志，“ガスフロースパッタ法による低ダメージ成膜とナノ粒子の作製”，日本MRS ニュース, Vol.21, No.4 (2009)
- 3) 「解説」石井清，“薄膜作製のイロハ；真空蒸着法とスパッタリング法”，応用物理, Vol.80, pp.626-670 (2011).

●特許 (外国，国内，公開，出願)

- 1) 「国内」佐久間洋志，石井清，青島光，大平猛，“磁性微粒子，その製造方法及びその製造装置並びに腫瘍細胞破壊用磁性微粒子，細胞破壊方法，細胞破壊装置及び治療装置”(宇都宮大学，自治医科大学)，特願 2009-54831 (2009).
- 2) 「国内」室幸市，石井清，荘司弘樹，“反射防止膜及びその形成方法”(宇都宮大学)，特願 2012-044883 (2012).
- 3) 「国内」中井俊一，石井清，“浄化体”(宇都宮大学)，特願 2012-104346 (2012).

●外部資金 (科学研究費：科研，奨学寄付金：奨学，受託研究：受託，共同研究：共同)

- 1) 「科研」石井清，2,470 千円「次世代ナノパーティクル FePt 磁気記録媒体の新規作製」(平成 21 年)
- 2) 「受託」石井清，1,650 千円「紫外光および可視光に対する光触媒効果が制御された酸化チタン薄膜の開発」，独立行政法人科学技術振興機構(JST) 重点地域研究開発推進プログラム (地域ニーズ即応型)，(平成 21 年)
- 3) 「共同」石井清，200 千円「可視光光触媒活性を有する酸化チタン膜の実用研究」(有) マロニエ技術研究所，(平成 21 年)
- 4) 「共同」石井清，1,000 千円「薄膜材料の研究」民間企業 (平成 21 年)

- 5) 「科研」石井清, 1,000 千円「次世代ナノパーティクル FePt 磁気記録媒体の新規作製」(平成 22 年)
- 6) 「共同」石井清, 200 千円「可視光光触媒活性を有する酸化チタン膜の実用研究」(有) マロニエ技術研究所, (平成 22 年)
- 7) 「共同」石井清, 1,000 千円「薄膜材料の研究」民間企業 (平成 22 年)
- 8) 「科研」石井清, 400 千円「次世代ナノパーティクル FePt 磁気記録媒体の新規作製」(平成 23 年)
- 9) 「共同」石井清, 200 千円「可視光光触媒活性を有する酸化チタン膜の実用研究」(有) マロニエ技術研究所, (平成 23 年)
- 10) 「共同」石井清, 300 千円「紫外・可視光光触媒活性を有する酸化チタン膜の実用化研究」(有) マロニエ技術研究所, (平成 23 年)
- 11) 「共同」石井清, 500 千円「多元スパッタ装置の応用とプロセス開発研究」民間企業 (平成 23 年)
- 12) 「奨学」石井清, 500 千円「スパッタ技術の改良に関する助成金」民間企業 (平成 23 年)
- 13) 「科研」石井清, 4,200 千円「高機能な応用を目指した新奇形状な純鉄微粒子の作製と評価」(平成 24~26 年)
- 14) 「共同」石井清, 300 千円「可視光光触媒活性を有する酸化チタン膜の実用研究」(有) マロニエ技術研究所, (平成 24 年)
- 15) 「共同」石井清, 150 千円「紫外・可視光光触媒活性を有する酸化チタン膜の実用化研究」(有) マロニエ技術研究所, (平成 24 年)
- 16) 「共同」石井清, 500 千円「多元スパッタ装置の応用とプロセス開発研究」民間企業, (平成 24 年)
- 17) 「奨学」石井清, 430 千円「スパッタ技術の改良に関する助成金」民間企業, (平成 24 年)
- 18) 「奨学」石井清, 2,500 千円「薄膜成膜方法と薄膜解析に関する研究」民間企業, (平成 24 年)
- 19) 「受託」宇都宮大学 (石井清), (株) タナカ技研 (田中俊次), 総額 96,710 千円, 平成 24 年度経産省戦略的基盤技術高度化支援事業「世界初の中間酸化膜による新型 ND フィルター及び一体型 NDIR カットフィルターの開発」関東経済産業局 (平成 24~26 年)

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

イ) 展示 4 件

- ・第 8 回産学官連携推進会議, 宇都宮大学石井研究室, 「ガスフロースパッタ法による高活性光触媒酸化チタン膜の作製」(2009 年 6 月 20 日)

- ・第8回産学官連携推進会議，宇都宮大学石井研究室「ガスフロースパッタ法による高活性光触媒酸化チタン膜の作製」京都（2009年6月20日）
- ・宇都宮大学企業交流会「光触媒活性を迅速評価するゲルパッチ型テストターの開発」（2011年9月9日）
- ・宇都宮大学企業交流会「酸化チタン光触媒を用いた加湿空気清浄機，光触媒活性テストター」（2012年9月10日）

ロ) 製品紹介 3件

- ・光機能材料研究会第16回シンポジウム，「光触媒活性テストターPAN-NT1を紹介」神奈川KSPホール（2009年12月2日）
- ・光機能材料研究会第16回シンポジウム，「光触媒活性テストターPAN-NT2を紹介」神奈川KSPホール（2010年12月2日）
- ・光機能材料研究会第18回シンポジウム，「光触媒活性テストターPAN-NT2を紹介」東京大学生産技術研究所コンベンションホール（2011年12月12日）

ハ) 研究支援 1件

- ・独立行政法人科学技術振興機構(JST) 重点地域研究開発推進プログラム（地域ニーズ即応型），紫外光および可視光に対する光触媒効果が制御された酸化チタン薄膜の開発（平成20-21年）

ニ) 製品化 1件

- ・共同研究先（(有)マロニエ技術研究所（宇都宮大学ベンチャー企業））において「光触媒テストター」の正規販売が開始された。

以上

超伝導スピントロニクスの新製とデバイス開発

入江晃亘(教授)*1, 八巻和宏(助教)*2, 北村通英(教授)*1

*1 工学部電気電子工学科, 大学院工学研究科電気電子システム工学専攻

*2 工学部電気電子工学科, 大学院工学研究科学際先端システム学専攻

1. 緒言

近年, 電子の電荷だけではなくスピンの自由度も利用するスピントロニクスの分野が急速に発展を遂げ, スピン自由度を基盤とする新しい原理や機能を基礎とした次世代デバイスの研究開発が世界的規模で展開されている。スピンに関連した量子現象の代表的なものとしてスピン偏極した電子に起因する強磁性とスピンの逆向きの2つの電子が対(クーパー対)を形成することにより発現する超伝導がある。これらは, 従来相反する量子現象であると理解されてきたが, 特定の条件下では共存・競合が可能であり, 超伝導の量子コヒーレンスと磁性のスピンの磁気秩序状態を融合できれば, 双方の特徴を併せもつ新しい量子状態の実現が期待できる。

ところで, 酸化物高温超伝導体の特徴は, 超伝導性 CuO_2 層と非超伝導性ブロック層が交互に自然積層したナノ超構造を自己形成することであり, このナノ超構造自体がジョセフソン接合(固有ジョセフソン接合)として機能する(図1)(G. Oya et al., "Observation of Josephson junctionlike behavior in single crystal $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ ", Jpn. J. Appl. Phys., 31, pp. L829-L831 (1992)). ジョセフソン接合の臨界電流は, クーパー対の巨視的量子位相により決定されるため, 超伝導層の厚さが0.3nmと極めて薄い固有ジョセフソン接合系へスピンを注入した場合, スピン偏極電子とクーパー対との相互作用により量子位相が変化し, 超伝導特性の大きな変化が期待できる。

2. 研究目的

本研究は, 新しい動作原理に基づく超高性能の新基盤デバイスを実現するため, 超高速動作・低消費電

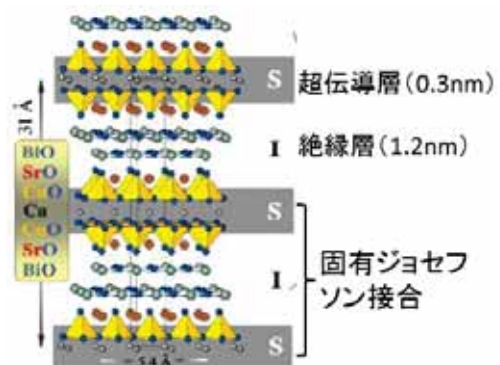


図1 ビスマス系高温超伝導体の結晶構造と固有ジョセフソン接合

力の特徴をもつ超伝導エレクトロニクスと電子のもつ電荷とスピンを制御するスピントロニクスを融合した超伝導スピントロニクスの創製を目指すものであり、銅酸化物高温超伝導体に内在する固有ジョセフソン接合と強磁性体からなるハイブリッド構造を作製することにより、超伝導現象とスピン依存伝導現象の相関関係やスピンに依存した量子輸送の制御因子を明らかにするとともに、それを利用した新機能デバイス開発を目的とした。

3. 研究成果

3.1 磁性体／固有ジョセフソン接合超格子ハイブリッド構造作製技術の確立

臨界温度が 85~90K のビスマス系高温超伝導体単結晶をフラックス法により作製した。得られた単結晶から切り出した厚さ 0.5mm 程度の薄片をガラス基板に接着・へき開し、真空蒸着、スパッタリングにより Co/Au/BSCCO 三層構造を形成後、電子線リソグラフィ及びアルゴンイオンミリングにより Co/固有ジョセフソン接合超格子からなる一辺 5 μm の正方形並びに 2 μm ×(13~25) μm の長方形メサ構造を作製した。作製した試料の概略図を図 2 に示す。また、作製した試料の 77K における典型的な電流-電圧特性を図 3 に示す。メサの面積は 5 μm ×5 μm である。これよりハイブリッドメサ構造における固有ジョセフソン接合の電流-電圧特性は、通常の固有ジョセフソン接合のそれと同様にヒステリシスを伴う臨界電流の揃ったブランチ構造を確認することができる。他の試料においても同様の特性が観測されており、再現性良く試料を作製することに成功した。また、得られた結果から磁場を印加していない場合の同ハイブリット構造における固有ジョセフソン接合特性は、通常の固有接合のそれと差異がないことがわかった。

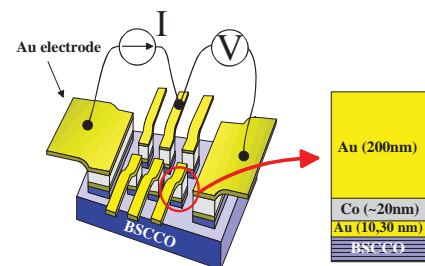


図 2 試料構造の模式図

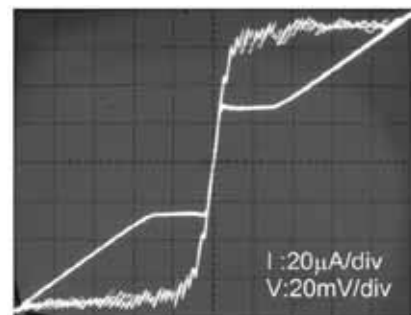


図 3 磁性体／固有ジョセフソン接合超格子ハイブリッド構造の典型的な電流-電圧特性 (77K)

3.2 ハイブリッド構造における固有ジョセフソン接合の臨界電流の磁場依存性

通常、正方形メサ構造(磁性体なし)における固有ジョセフソン接合の臨界電流はジョセフソン効果により印加磁場の増加とともに減少する。しかしながら、磁性体／固有ジョセフソン接合の場合、臨界電流の磁場依存性は磁場印加方向に依存してヒステリシスを示す。また、試料の磁化特性と比較したところ、臨界電流が最大となる磁場は、磁性層の磁化が 0 になる磁場と一致しており、磁区構造と臨界電流に相関があることが確認された。これは磁性体が固有ジョセフソン接合特性に影響を及ぼしていることを示唆している。そこで、磁性体の磁区構造が制限された長方形メサ構造において臨界電流 I_c の磁場(B)依存性を評価した。図 4 は、接合面積が 2×13 μm^2 の強磁性体／固有ジョセフソン接合 (積層接合数 40) 構造において観

測された臨界電流の磁場依存性(測定温度:77K)である。(a)は長辺に平行に磁場を印加した場合であり、(b)は長辺に垂直に磁場を印加した場合の結果であり、長辺に垂直に磁場を印加した場合、明瞭なヒステリシスを確認することができる。これは、後述するように印加磁場を変化することにより生じる磁壁移動に依存してスピン偏極電子とクーパー対との相互作用が空間的に変化することに起因している。これは、77K という比較的高い温度においてもスピン偏極電子が効率よく多数のジョセフソン接合へ注入されていることを意味する。接合面積の異なる同ハイブリッド構造に対して I_c - B 特性の接合数依存性を調べた結果、低印加磁場領域において、接合数が 70~80 以下の場合はスピン注入効果の寄与がそれ以上の接合数の場合はジョセフソン効果が支配的となることを明らかになった。

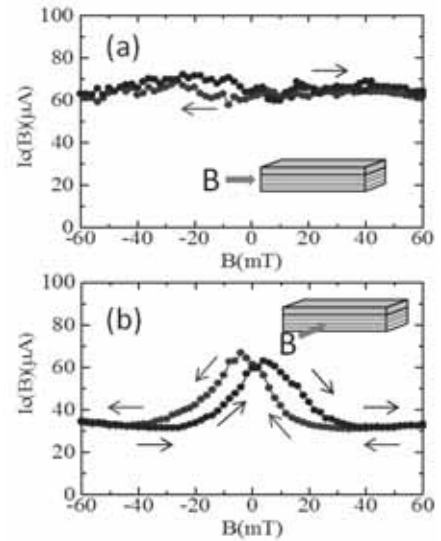


図4 臨界電流の磁場依存性(77K)
 (a)長辺に平行に磁場を印加, (b)長辺に垂直に磁場を印加.

3.3 マイクロマグネティックス解析

固有ジョセフソン接合におけるスピン注入効果を解明するために磁性体の磁区構造をマイクロマグネティックス解析した。図4は、作製した試料と同寸法のコバルト薄膜の磁区構造を解析した結果である。上図は長辺方向に平行に磁場を印加した場合、下図は長辺方向に垂直に印加した場合の磁区構造並びに磁区構造を示している。これより、長辺に平行に磁場を印加した場合は、磁区が一斉に回転する回転磁化過程であり、長辺に平行に磁場を印加した場合は、磁壁が移動して磁化反転する磁壁移動過程に対応することがわかった。

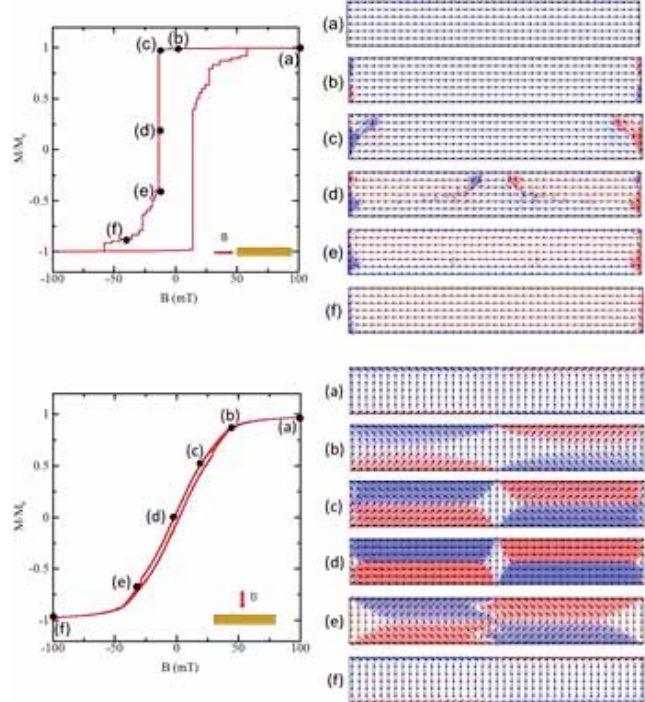


図4 磁化反転過程 上：長辺方向に平行に磁場を印加, 下：は長辺方向に垂直に印加.

3.4 固有ジョセフソン接合におけるスピン注入効果のモデル化

実験により観測された磁性体/固有ジョセフソン接合超格子ハイブリッド構造における固有接合の臨界電流の磁場依存性を詳細に検討するために、スピン注入効果を考慮した多積層ジョセフソン接合モデルを提案し、臨界電流の磁場依存性を数値解析した結果、実験結果を説明することができた。

プロジェクト 11 超伝導スピントロニクスの新製とデバイス開発

(担当者) 入江晃亘, 八巻和宏, 北村通英

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) H. Kaneoya, A. Irie, G. Oya, "The behavior of subgap structures of intrinsic Josephson junctions in $(\text{Bi,Pb})_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ under magnetic field and microwave irradiation", IEEE Trans. Appl. Supercond. 19, pp.195-198 (2009)
- 2) A. Irie, G. Oya, "Simulation of the Effect of Temperature on Flux-Flow Behavior in Stacked Intrinsic Josephson Junctions", IEEE Trans. Appl. Supercond., 19, pp.730 - 733 (2009)
- 3) H.Sugiyama,S.Watanabe,J.Takaki,A.Irie,H.Hasegawa, "Engineering Education Instructed by Innovation Center for Research and Engineering Education in Utsunomiya University", Proceedings of ACEE 2009, pp.126-133 (2009)
- 4) A. Irie, N. Arakawa, H. Sakuma, M. Kitamura, G. Oya, "Magnetization-Dependent Critical Current of intrinsic Josephson junction in $\text{Co/Au/Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ mesa structures", J. Phys. Conf. Ser. 234, pp.042015-1–042015-6 (2010)
- 5) 長谷川光司, 渡邊信一, 高木淳二, 横田和隆, 入江晃亘, "宇都宮大学工学部における学科横断的必修科目「創成工学実践」の実施について", 工学教育, vol. 58, no. 4, pp. 21-27 (2010)
- 6) N.B. Othman, G. Oya, M. Kitamura, A. Irie, "Shapiro step response of intrinsic Josephson junctions with high critical currents of $(\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x)_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ ", IEEE Trans. Appl. Supercond. 21, pp.176-179 (2011)
- 7) A. Irie, N. Arakawa, M. Kitamura, H. Sakuma, G. Oya "Control of critical current of intrinsic Josephson junctions due to spin injection", IEEE Trans. Appl. Supercond. 21, pp.741-744 (2011)
- 8) H.Sugiyama,S.Watanabe,J.Takaki,A.Irie,H.Hasegawa, "Engineering Education Instructed by Innovation Center for Research and Engineering Education in Utsunomiya University", Proceedings of ACEE 2009, October, 30, 2009, pp.126-133
- 9) 渡邊信一, 高木淳二, 長谷川光司, 入江晃亘, 杉山 均, 横田和隆, 「学科横断的 PBL 形式科目「創成工学実践」における授業評価」, 日本工学教育協会, Vol.59, No.2, pp.47-51 (2011)
- 10) K. Yamaki, M. Tsujimoto, T. Yamamoto, A. Furukawa, T. Kashiwagi, H. Minami, K. Kadowaki, "High-power terahertz electromagnetic wave emission from high-Tc superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ mesa structures", Optics Express, 19, pp. 3193-3201 (2011)
- 11) T. Kashiwagi, K. Yamaki, M. Tsujimoto, K. Deguchi, N. Orita, T. Koike, R.

- Nakayama, H. Minami, T. Yamamoto, R. A. Klemm, M. Tachiki, and K. Kadowaki, "Geometrical full-wavelength resonance mode generating terahertz waves from a single-crystalline $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ rectangular mesa", *J. Phys. Soc. Jpn*, 80, pp. 094709-1-8 (2011)
- 12) K. Yamaki, T. Tai, J. Kinoshita, S. Sekino, S. Nakamura, T. Yoshitake, A. Furukawa, "Thickness dependences of resistivity and temperature coefficient of resistance for Ge thin films sandwiched between Si layers for uncooled infrared imaging sensor", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 50, pp. 125801-1-4 (2011)
- 13) A. Irie, D. Oikawa, G. Oya, "Generation and Detection of THz Radiation Using Intrinsic Josephson Junctions", *Physics Procedia*, 36, pp. 199-204 (2012)
- 14) G. Oya, T. Miyasaka, M. Kitamura, A. Irie, "Shapiro Step Response of Intrinsic Josephson Junctions of $(\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x)_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ at Elevated Temperatures", *Physics Procedia*, 36, pp. 343-348 (2012)
- 15) D. Oikawa, A. Irie, K. Yamaki, G. Oya, "Terahertz electromagnetic radiation from $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ intrinsic Josephson junction stack", *Physics Procedia*, 27, pp. 312-315 (2012)
- 16) K. Yamaki, M. Tsujimoto, T. Yamamoto, T. Kashiwagi, H. Minami, A. Irie, K. Kadowaki, "Magnetic field effects and dynamic control of terahertz electromagnetic wave emission from high-Tc superconducting $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ mesa structures", *J. Phys.: Conf. Ser.*, 400, pp. 022137-1-4 (2012)
- 17) T. Kashiwagi, M. Tsujimoto, T. Yamamoto, H. Minami, K. Yamaki, K. Delfanazari, K. Deguchi, N. Orita, T. Koike, R. Nakayama, T. Kitamura, M. Sawamura, S. Hagino, K. Ishida, K. Ivanovic, H. Asai, M. Tachiki, R. A. Klemm, and K. Kadowaki, "High temperature superconductor terahertz emitters: fundamental physics and its applications", *Jpn. J. Appl. Phys.*, 51, pp. 010113-1-14 (2012)
- 18) K. Yamaki, R. Fusegi, D. Oikawa, A. Irie, "Synthesis of BSCCO single crystal whiskers for terahertz EM wave oscillators", *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 23, pp. 7200504-1-4 (2013)
- 19) D. Oikawa, A. Irie, K. Yamaki, "Size dependence of terahertz electromagnetic wave radiation from intrinsic Josephson junctions", *IEEE Trans. Appl. Supercond.*, 23, pp. 1500604-1-4 (2013)
- 20) Yu. M. Shukrinov, S. Yu. Medvedeva, A. E. Botha, M. R. Kolahchi, A. Irie, "Devil's staircases and continued fractions in Josephson junctions", *Phys. Rev. B* 88, pp. 214515-1-6 (2013)
- 21) 渡邊信一,高木淳二,丸岡正知,原 紳,長谷川光司,入江晃亘,杉山 均,横田和隆,「大学院専攻横断 PBL 必修科目「創成工学プロジェクト」の実施とその評価,日本工学教

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *PP* A. Irie, N. Arakawa, M. Kitamura, H. Sakuma, G. Oya, "Magnetization-Dependent Critical Current of Intrinsic Josephson Junctions in Co/Au/Bi₂Sr₂CaCu₂O_y mesa structures", The 9th European Conference on Applied Superconductivity (EUCAS 2009), Dresden, Germany, September 13–17 2009.
- 2) *OP* A. Irie, N. Arakawa, M. Kitamura, G. Oya, "Spin-polarized quasiparticle injection effects in intrinsic Josephson Junctions", 2009 East Asia Symposium on Superconductor Electronics (EASSE2009), Nanjing, China, October 12-14 2009.
- 3) *OP* T. Edo, Y. Koda, S. Matsuda, "THz radiation and detection using intrinsic Josephson junctions", *7th Int. Sympo. Intrinsic Josephson Effects and Plasma Oscillations in High-Tc Superconductors (PLASMA 2010)*, Hirosaki, April 25-28, 2010
- 4) *IS* A. Irie, Y. Saito, M. Sakashita, K. Yamada and G. Oya, "Detection of THz radiation from intrinsic Josephson junctions", *Int. Con. "Dubna-Nano2010"*, Dubuna (Russia), July 5-10, 2010
- 5) *PP* A. Irie, N. Arakawa, M. Kitamura, H. Sakuma, G. Oya, "Control of critical current of intrinsic Josephson junctions due to spin injection", *2010 Applied Superconductivity Conference*, Washington DC, August 1-6, 2010
- 6) *PP* N. Othman, G. Oya, M. Kitamura, A. Irie, "Shapiro step response of intrinsic Josephson Junction with high critical currents of (Bi_{1-x}Pb_x)₂Sr₂CaCu₂O_y", *2010 Applied Superconductivity Conference*, Washington DC, August 1-6, 2010
- 7) *PP* K. Yamaki, R. Fusegi, M. Nakamura, D. Oikawa, A. Irie "Synthesize of BSCCO single crystal whiskers for S/F hybrid spin transistor", *11th Int. Sympo. High Temp. Supercond. in High Freq. Field*, Matsushima, May 29-June 1, 2012
- 8) *OP* A. Irie, "THz emission and response of intrinsic Josephson junctions", *8th Int. Sympo. on Intrinsic Josephson Effects and Plasma Oscillations in High-Tc Superconductors (PLASMA 2012)*, Izmir Turkey, June 10-13, 2012
- 9) *PP* D. Oikawa, A. Irie, K. Yamaki, "Size dependence of terahertz electromagnetic radiation from intrinsic Josephson junctions", *Applied Superconductivity Conference 2012*, Portland, Oct. 7-12, 2012
- 10) *PP* K. Yamaki, R. Fusegi, D. Oikawa, A. Irie, "Synthesize of BSCCO single crystal whiskers for terahertz EM wave oscillators", *Applied Superconductivity Conference 2012*, Portland, Oct. 7-12, 2012
- 11) *IS* K. Yamaki, "Response of electromagnetic waves in intrinsic Josephson

junctions/Synthesis of BSCCO single crystal whisker for electromagnetic oscillator", Satellite of 6th GCOE International Symposium on Photonics and Electronics Science and Engineering, Workshop on THz emission from intrinsic Josephson junctions, March 10, Katsura Campus, Kyoto Univ. (2013)

- 12) *OP* K. Yamaki, K. Tamura, A. Irie, "Radiation characteristics in serially connected BSCCO oscillators at liquid He temperature", The 2nd Workshop on THz radiation from Intrinsic Josephson Junctions, August 30, University of Tsukuba, Tsukuba (2013)

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「招待」入江晃亘，荒川直大，大矢銀一郎，" 酸化物高温超伝導体ナノ構造へのスピン注入"，電気学会マグネティックス研究会，宇都宮（2009）
 - 2) 「一般」荒川直大，入江晃亘，大矢銀一郎，"固有ジョセフソン接合へのスピン注入(III)"，第 57 回応用物理学関係連合講演会，神奈川（2010）
 - 3) 「一般」齊藤 優，入江晃亘，大矢銀一郎，"固有ジョセフソン接合を用いた電磁波の発振と検出（II）"，第 57 回応用物理学関係連合講演会，神奈川（2010）
 - 3) 「一般」及川 大，山田清孝，入江晃亘，大矢銀一郎，固有ジョセフソン接合を用いた THz 電磁波発振のサイズ依存性，応用物理学会，神奈川（2011）
 - 4) 「一般」荒川直大，○青木康太，入江晃亘，大矢銀一郎，Co/Au/Bi2Sr2CaCu2Oy メサ構造におけるスピン依存伝導，応用物理学会，神奈川（2011）
 - 5) 「一般」及川 大，入江晃亘，八巻和宏，BSCCO 単結晶固有ジョセフソン接合からの THz 電磁波放射特性，第 73 回応用物理学会学術講演会，愛媛（2012）
 - 6) 「一般」大塚雅哉，入江晃亘，八巻和宏，強磁性体／固有ジョセフソン接合ハイブリッド構造における輸送特性，第 73 回応用物理学会学術講演会，愛媛（2012）
 - 7) 「一般」八巻和宏，伏木亮介，及川 大，入江晃亘，BSCCO 系単結晶ウィスカーの構造解析と輸送特性，第 60 回応用物理学会春季学術講演会，神奈川（2013）
 - 8) 「一般」大塚雅哉，入江晃亘，八巻和宏，Co/Au/BSCCO 接合のゼロバイアス微分抵抗，第 60 回応用物理学会春季学術講演会，神奈川（2013）
 - 9) 「依頼」入江晃亘，固有ジョセフソン接合のエレクトロニクス応用，日本学術振興会 146 委員会，東京（2013）
 - 10) 「招待」入江晃亘，固有ジョセフソン接合におけるスピン注入効果，電気学会「位相エンジニアリングに基づく低温エレクトロニクス」調査専門委員会，東京（2013）
- 他 57 件

●受賞

- 1) 渡邊 信一，高木 淳二，長谷川 光司，入江 晃亘，横田 和隆，杉山 均，JSEE 研究

講演会発表賞「1年次必修科目「創成工学実践」の授業評価について」(2010年8月)

- 2) N. Othman, G. Oya, M. Kitamura, A. Irie, "Shapiro step response of intrinsic Josephson Junction with high critical currents of $(\text{Bi}_{1-x}\text{Pb}_x)_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_y$ ", European Superconductivity News Forumにて優秀論文に選定

●外部資金(科学研究費:科研、奨学寄付金:奨学、受託研究:受託、共同研究:共同)

- 1)「科研」入江晃亘, 18,200千円「固有ジョセフソン接合超格子を利用したナノ超伝導スピントロニクスデバイス」の創製(基盤研究(B))(2009年度~2011年度)
- 2)「科研」入江晃亘, 3,000千円「アップコンバージョン効果によるジョセフソン接合アレーからのテラヘルツ光の発生」(挑戦的萌芽研究)(2009年度~2010年度)
- 3)「科研」入江晃亘, 3,900千円「二次元超伝導層を用いたスピン機能デバイスの開拓」(挑戦的萌芽研究)(2011年度~2012年度)
- 4)「受託」入江晃亘, 1,300千円「超伝導テラヘルツ波検出器の開発のそのイメージング応用」(A-STEP)(2011年度~2012年度)
- 5)「受託」八巻和宏, 1,300千円「高温超伝導体ウィスカーを用いた世界一の高出力小型テラヘルツ発振器の開発」(世界一を目指す研究開発助成事業(財団法人栃木県産業振興センター))(2011年度~2012年年度)
- 6)「受託」八巻和宏, 1,700千円「基板貼り合わせ法による清浄界面を利用した高温超伝導高周波発振素子の開発」(A-STEP)探索タイプ(2012年度~2013年年度)
- 7)「奨学」八巻和宏, 2,000千円「直接冷却による銅酸化物超伝導体 BSCCO 固有ジョセフソン接合系からのテラヘルツ帯高次高調波の発生と YBCO 検出素子を用いた発振機構の解明」公益財団法人日揮・実吉奨学会(2013年度~2014年年度)

●VBLプロジェクト関連の成果についての特記事項

イ)報道 1件

下野新聞 入江晃亘,「臨界温度で電気抵抗ゼロ-超伝導体」(2013年9月15日)

ロ)展示 5件 宇都宮大学企業交流会

2009年9月4日, 2010年9月6日, 2011年9月9日, 2012年9月10日,
2013年9月10日

レーザー生成プラズマを用いた高効率超小型紫外・テラヘルツ光源の開発

湯上 登(教授)*¹, 東口武史(准教授)*²

*1 大学院工学研究科電気システム工学専攻 yugami@cc.utsunomiya-u.ac.jp

*2 大学院工学研究科学際先端システム学専攻 higashgi@cc.utsunomiya-u.ac.jp

現在、半導体リソグラフィーの露光光源には ArF エキシマレーザー光 (193 nm) が用いられている。しかしながら、要求される最小加工寸法は ArF エキシマレーザー光の波長と比べると非常に小さい。解像度を向上させるために位相シフト法や変形照明法などの解像度向上技術、液浸法やダブルパーターニングなどの複雑な技術が用いられている。この露光光源波長と最小加工寸法の問題を解消するために、Mo/Si 多層膜鏡と波長 13.5 nm を用いる極端紫外 (Extreme ultraviolet: EUV) 光リソグラフィー技術が研究されてきた。光源方式にはレーザー生成プラズマとレーザーアシスト放電生成プラズマが有力視されている。光源のプラズマ媒質には、リチウム (Li) やキセノン (Xe) などが研究されてきたが、技術的な問題や変換効率の理論限界などの理由から、現在ではいずれも錫 (Sn) をターゲットに用いている

波長 13.5 nm における EUV 光源開発と同様に、高出力かつ高効率 EUV 光源を実現するためには、最適なプラズマの状態を明らかにする必要がある。ASML 社による短波長化の可能性が報告されてから、光源、理論計算、多層膜鏡などの成果が報告されている。本研究室においても、Gd や Tb プラズマからの EUV 光放射特性が Sn プラズマのそれと同様であることを明らかにしてきたが、低価数イオンによる発光の自己吸収や、最大変換効率、レーザー強度が大きくなる事により発生する高速イオンが実際の光学系に及ぼす影響など明らかになっていない部分が多い。ここでは、Gd や Tb プラズマからの EUV 発光スペクトルを示し、発光スペクトルの観測角度依存性について述べる。

1. 実験結果および検討

図 1 は実験装置の概念図である。真空容器内に設置した厚さ 1 mm の平板ターゲットに Q スイッチ Nd:YAG レーザーをターゲット法線方向から集光照射した。ターゲットは純 Gd 及び純 Tb である。用いられた Nd:YAG レーザーの波長は 1064 nm, パルス幅は 10 ns 及び 150 ps (半値幅, full width at half-maximum: FWHM) であり、最大入射エネルギーはそれぞれ 400 mJ 及び 250 mJ である。レーザー光は焦点距離 10 cm のレンズによって集光径 30 \cdot m (FWHM) に集光され、集光強度の範囲は前

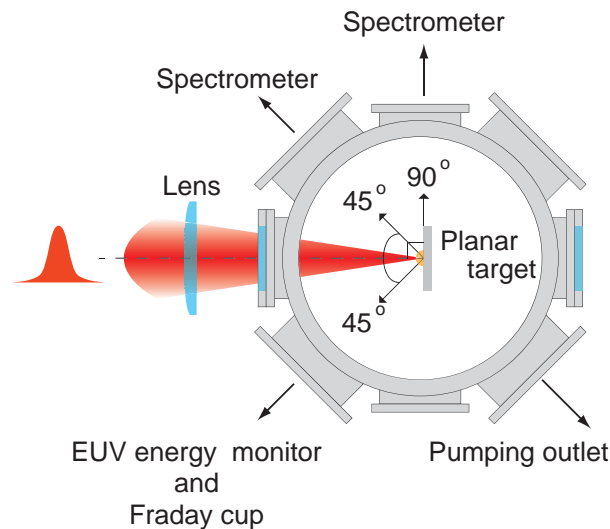


Fig. 1. Experimental

者において $4 \times 10^{11} - 6 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 、後者においては $1 \times 10^{13} - 2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ である。レーザーパルスのエネルギーを変化させることによって、レーザー強度を変化させ、その間レーザーの集光径は一定に保った。レーザー光の集光径は、ナイフエッジ法により評価された。

放射された EUV 光は、レーザーの光軸（ターゲットの法線方向）から 45 度方向及び 90 度方向に配置された斜入射分光器によって観測された。斜入射分光器内には不等間隔回折格子が配置されており、2400 grooves/mm である。EUV 光は冷却された背面照射型 X 線 CCD カメラにより検出された。

EUV 光のエネルギー計測はレーザーの光軸から 45 度方向に配置された EUV エネルギーモニターによって測定された。エネルギーモニター内には X 線ダイオードが配置されており、Mo/B₄C 多層膜鏡（反射率 23%）とジルコニウム (Zr) フィルターによって帯域を 6.7 nm に制限した後、X 線ダイオードにより、電気信号に変換される。変換効率は、入射するレーザーエネルギーと放射される帯域内 EUV 光エネルギーの比として定義した。帯域内 EUV 光エネルギーは、中心波長 6.7 nm、帯域幅 0.6%、放射立体角 $2 \cdot \text{sr}$ として評価した。放射角度分布はここでは測定しなかったが、プラズマ光源を点光源として近似し、放射は一樣であると仮定した。

高速イオンの飛行時間信号はレーザーの光軸から 45 度方向に光源から 10 cm 離れたファラデーカップによって観測された。電極が帯電しないように、あらかじめ -17 V 印加した。

図 2 は斜入射分光器を 45 度方向に配置して観測された Gd (図 2(a)) 及び Tb (図 2(b)) プラズマからの典型的な時間積分 EUV 光スペクトルである。パルス幅が 10 ns のレーザーパルス照射時における集光強度は $5.0 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ 、パルス幅が 150 ps のレーザーパルス照射時における集光強度は $1.0 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ である。Gd プラズマからは約 6.7 nm、Tb プラズマからは約 6.5 nm にピークをもつ UTA 放射が観測された。これらの放射には Gd¹⁶⁺-Gd²⁵⁺ 及び Tb¹⁷⁺-Tb²⁶⁺ イオンの $n = 4 - n = 4$ ($\cdot n = 0$) 遷移間放射が寄与している。

図 2 の点線に示されているように、10 ns レーザー照射時には UTA 放射に加え、長波長側への広帯域なサテライト線も観測された。高効率光源を実現するためには、入力エネルギーを効率よく所望の波長の UTA 放射に変換することが必要であり、サテライト線に変換されるエネルギーを抑制して、スペクトル効率を向上させることが必要である。多価イオンからの発光は、価数が高くなるにつれて短波長側から UTA スペクトルのピークに近づき、適切な価数以上の高価数では

再び長波長側になる特徴をもっている。従って、高出力かつ高効率 EUV 光源を実現するためには、最適な電子温度状態を作り出し、スペクトル効率を向上させる必要がある。

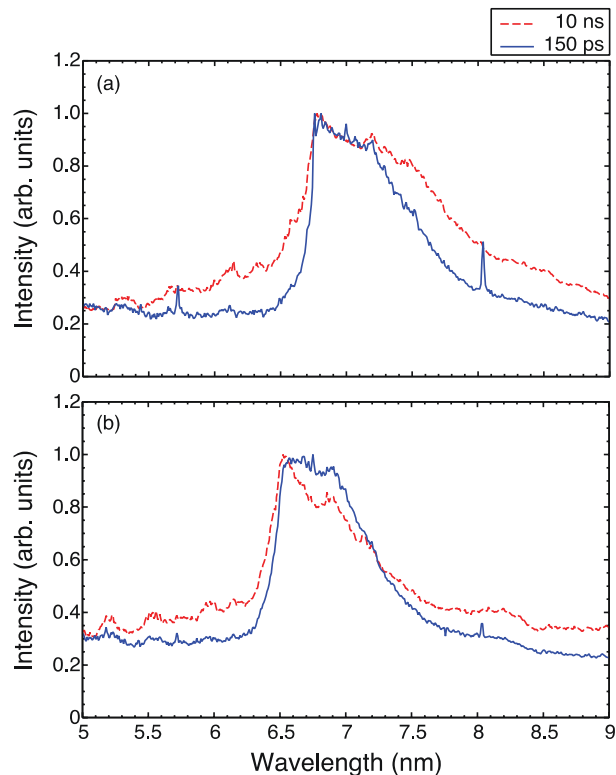


Fig. 2. Time-integrated EUV spectra of Gd (a) and Tb (b).

2. まとめ

希土類元素による波長 6.5 – 6.7 nm のレーザー生成 Gd 及び Tb プラズマ EUV 光源の放射特性について述べた。パルス幅の異なるレーザーパルスを用いて、異なる角度からスペクトルを観測することによって、希土類元素プラズマは光学的に厚く、プラズマによる自己吸収効果が大きいことを明らかにした。

今後、変換効率を更に向上させて行くためには、プラズマの加熱効率を向上させつつ、光学的に薄いプラズマをいかにして生成するかが重要である。そのため、CO₂ レーザー生成プラズマや放電生成プラズマを用いて、光学的に薄いプラズマを積極的に生成し、希土類プラズマ光源の実験データベースを構築していくことが必要である。更に、原子モデルの構築やコンピューターシミュレーションによる放射流体数値解析も進めていく必要がある。

プロジェクト 12 レーザー生成プラズマを用いた高効率超小型紫外・テラヘルツ光源
の開発

(担当者) 湯上 登, 東口武史

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) Takeshi Higashiguchi, Hiromitsu Terauchi, Takamitsu Otsuka, Mami Yamaguchi, Keisuke Kikuchi, Noboru Yugami, Toyohiko Yatagai, Wataru Sasaki, Rebekah D'Arcy, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan (Microdischarge extreme ultraviolet source with alkali metal vapor for surface morphology application, *Journal of Applied Physics*, **109**, 013301-1-013301-6 (2011).
- 2) Takeshi Higashiguchi, Mami Yamaguchi, Takamitsu Otsuka, Hiromitsu Terauchi, Noboru Yugami, Toyohiko Yatagai, Rebekah D'Arcy, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan (Spectral and temporal behavior of an alkali metal plasma extreme ultraviolet source for surface morphology applications", *Journal of Applied Physics*, **98**, 091503-1-091503-3 (2011).
- 3) Hiromitsu Terauchi, Nadezhda Bobrova, Pavel Sasorov, Takashi Kikuchi, Toru Sasaki, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, and Ryosuke Kodama (Observation and numerical analysis of plasma parameters in a capillary discharge-produced plasma channel waveguide, *Journal of Applied Physics*, **109**, 053304-1-053304-7 (2011).
- 4) Akinori Nishida, Masahiro Nakata, Takafumi Oba, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku, and Ryosuke Kodama (THz wave up-frequency turning by rapidly plasma creation , *Proceedings of SPIE* , **8119** , 81190L-1-81190L-9 (2011).
- 5) Fuminori Suzuki, Hiroaki Anno-Kashiwazaki, Jun Miyazawa, Shohei Ono, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku, Ryosuke Kodama, and Patric Muggli (Tunable terahertz radiation from an ultrashort-laser-pulse-induced discharge in biased air, *Proceedings of SPIE*, **8119**, 81190M-1-81190M-9 (2011).
- 6) Bowen Li, Akira Endo, Takamitsu Otsuka, Colm O'Gorman, Thomas Cummins, Tony Donnelly, Deirdre Kilbane, Weihua Jiang, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan (Scaling of laser produced plasma UTA emission down to 3 nm for next generation lithography and short wavelength imaging, *Proceedings of SPIE*, **8139**, 81390P-1-81390P-8 (2011).
- 7) Takamitsu Otsuka, Deirdre Kilbane, Thomas Cummins, Colm O'Gorman, Pdraig Dunne, Gerry O'Sullivan, Weihua Jiang, Akira Endo, Takeshi Higashiguchi, and

- Noboru Yugami (Shorter wavelength EUV source around 6.X nm by rare-earth plasma, *Proceedings of SPIE*, **8139**, 81390T-1-81390T-10 (2011).
- 8) Hiromitsu Terauchi, Mami Yamaguchi, Takamitsu Otsuka, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Toyohiko Yatagai, Rebekah M. D'Arcy, Padraig Dunne, and Gerard O'Sullivan (Characterization of broadband emission around 40 nm from potassium plasma, *Proceedings of SPIE*, **8139**, 81390U-1-81390U-10 (2011).
 - 9) Shohei Sakai, Jun Miyazawa, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Nadezhda Bobrova, and Pavel Sasorov (Dynamics of the ultrashort laser pulse in a capillary discharge-preformed argon plasma channel, *Proceedings of SPIE*, **8140**, 814012-1-814012-10 (2011).
 - 10) Shohei Sakai, Takeshi Higashiguchi, Nadezhda Bobrova, Pavel Sasorov, Jun Miyazawa, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku, and Ryosuke Kodama (Properties of a capillary discharge-produced argon plasma waveguide for shorter wavelength source application, *Review of Scientific Instruments*, **82**, 103509-1-103509-4 (2011).
 - 11) Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, Bowen Li, Deirdre Kilbane, Padraig Dunne, and Gerry O'Sullivan (Extreme ultraviolet source at 6.7 nm based on a low-density plasma, *Applied Physics Letters*, **99**, 191502-1-191502-3 (2011).
 - 12) Bowen Li, Padraig Dunne, Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, and Gerry O'Sullivan (Gd plasma source modeling at 6.7 nm for future lithograph, *Applied Physics Letters*, **99**, 231502-1-231502-3 (2011).
 - 13) Md. Kamal-Al-Hassan, Mikhail Strarodubtsev, Hitendra K. Malik, Noboru Yugami, and Yasushi Nishida, Ion Acoustic Wave Steamers Excited by a Resonantly Signal Biased Mesh Antenna in an Inhomogeneous Plasma, *IEEE trans. Plasma Sci.* **39**, 1927 (2011).
 - 14) Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, Bowen Li, Padraig Dunne, and Gerry O'Sullivan (Feasibility study of broadband efficient "water window" source, *Applied Physics Letters*, **100**, 014103-1-014103-4 (2012)
 - 15) Thomas Cummins, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, Bowen Li, Colm O'Gorman, Padraig Dunne, Emma Sokell, Gerry O'Sullivan, and Takeshi Higashiguchi (Optimizing conversion efficiency and reducing ion energy in a laser-produced Gd plasma, *Applied Physics Letters*, **100**, 061118-1-061118-4 (2012)

- 16) Takamitsu Otsuka, Bowen Li, Colm O'Gorman, Thomas Cummins, Hao Tan, Deirdre Kilbane, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, Padraig Dunne, and Gerard D. O'Sullivan (A 6.x nm beyond EUV source as a future lithography source, Proceedings of SPIE, 8322 (accepted for publication).
- 17) Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, Bowen Li, Colm O'Gorman, Thomas Cummins, Deirdre Kilbane, Padraig Dunne, and Gerard D. O'Sullivan (Laser-produced plasma UTA emission in 3-7 nm spectral region, Proceedings of SPIE, 8322 (accepted for publication).
- 18) A.Nishida, H.Kashiwazaki, S.Yoshida, T.Higashiguchi, N.Yugami, and R.Kodama, A tapered parallel plate waveguide for frequency up-conversion of terahertz radiation, Rev. Sci. Instrum. **83**, 045104 (2012).
- 19) Takeshi Higashiguchi, Nadezhda Bobrova, Pavel Sasorov, Shohei Sakai, Yasuhiko Sentoku, Ryosuke Kodama, and Noboru Yugami, Characteristics of argon plasma waveguide produced by alumina capillary discharge for short wavelength laser application, J. of Applied Phys. **111**, 093302 (2012).
- 20) Colm O'Gorman, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, Bowen Li, Thomas Cummins, Padraig Dunne, Emma Sokell, Gerry O'Sullivan, and Takeshi Higashiguchi, The effect of viewing angle on the spectral behavior of a Gd plasma source near 6.7 nm, Applied Phys. Lett. **100**, 141108 (2012).
- 21) A. Nishida, N. Yugami, T. Higashiguchi, T. Otsuka, F. Suzuki, M. Nakata, Y. Sentoku and R. Kodama Experimental observation of frequency up-conversion by flash ionization, Applied Phys. Lett. **101**, 161118 (2012).

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *IS* Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Bowen Li, Deirdre Kilbane, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, Padraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "Recent progress in source development for lithography at 6.x nm", *European COST Action MP0601 meeting*, Dublin (2011)
- 2) *PP* Takeshi Higashiguchi, Mami Yamaguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Rebekah D'Arcy, Padraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "A capillary discharge EUV source for surface morphology applications", *European COST Action MP0601 meeting*, Dublin (2011)
- 3) *IS* Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Deirdre Kilbane, Thomas Cummins, Colm O'Gorman, Tony Donnelly, Padraig Dunne, Gerry O'Sullivan, Weihua Jiang, and Akira Endo, "Rare-Earth Plasma EUV Source at 6.7 nm for Future Lithography", *2011 International Workshop on EUV*

Lithography, Hawaii (2011)

- 4) *PP* Colm O'Gorman, Takamitsu Otsuka, Takeshi Higashiguchi, Akira Endo, Tony Donnelly, Bowen Li, Thomas Cummins, Deirdre Kilbane, Emma Sokell, Padraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "EUV Spectra of Gadolinium Laser Produced Plasmas", *2011 International Workshop on EUV Lithography, Hawaii (2011)*
- 5) *OP* Masahiro Nakata, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku, and Ryosuke Kodama, "THz wave up-frequency turning by rapidly plasma creation", *SPIE Optics and Photonics, San Diego (2011)*
- 6) *OP* Fuminori Suzuki, Takeshi Higashiguchi, Hiroaki Anno-Kashiwazaki, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku, Ryosuke Kodama, and Patric Muggli, "Tunable terahertz radiation from an ultrashort-laser-pulse-induced discharge in biased air", *SPIE Optics and Photonics, San Diego (2011)*
- 7) *PP* Akira Endo, Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Padraig Dunne, Bowen Li, Thomas Cummins, Colm O'Gorman, Tony Donnelly, and Gerry O'Sullivan, "Scaling of laser produced plasma UTA emission down to 3nm for next generation lithography and short wavelength imaging", *SPIE Optics and Photonics, San Diego (2011)*
- 8) *PP* Takamitsu Otsuka, Deirdre Kilbane, Thomas Cummins, Colm O'Gorman, Tony Donnelly, Padraig Dunne, Gerry O'Sullivan, Weihua Jiang, Akira Endo, Takeshi Higashiguchi, and Noboru Yugami", *SPIE Optics and Photonics, San Diego (2011)*
- 9) *PP* Hiromitsu Terauchi, Mami Yamaguchi, Takamitsu Otsuka, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Toyohiko Yatagai, Rebekah D'Arcy, Padraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "Characterization of broadband emission around 40 nm from potassium plasma", *SPIE Optics and Photonics, San Diego (2011)*
- 10) *PP* Akinori Nishida, Masahiro Nakata, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku, and Ryosuke Kodama, "Frequency upshift via flash ionization phenomena using semiconductor plasma", *SPIE Optics and Photonics, San Diego (2011)*
- 11) *PP* Shohei Sakai, Jun Miyazawa, Takeshi Higashiguchi, and Noboru Yugami, "Frequency upshift via flash ionization phenomena using semiconductor plasma", *The Seventh International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications (IFSA2011), Bordeaux-Lac (2011) (submitted to European Journal of Physics)(IF= 0.644)*
- 12) *PP* Noboru Yugami, Fuminori Suzuki, Takeshi Higashiguchi, Yasuhiko Sentoku, Akinori Nishida, and Ryosuke Kodama, "THz radiation from an

- ultrashort-laser-induced fast sparse dense plasma", *The Seventh International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications (IFSA2011)*, Bordeaux-Lac (2011) (submitted to European Journal of Physics) (IF= 0.644)
- 12-1) A. Nishida, M. Nakata, H. Oba, T. Higashiguchi, N. Yugami, Y. Sentoku and R. Kodama. "Frequency upshift via flash ionization phenomena using semiconductor plasma," Seventh Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications (*IFSA2011*), Bordeaux-Lac, France, September. 2011 (submitted to European Journal of Physics)(IF= 0.644)
- 13) *PP* Shohei Sakai, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku, and Ryosuke Kodama, "Dynamics of the spectral behavior of the ultrashort laser pulse in an argon-gas-filled capillary discharge-preformed plasma channel", *The Seventh International Conference on Inertial Fusion Sciences and Applications (IFSA2011)*, Bordeaux-Lac (2011) (submitted to European Journal of Physics)(IF= 0.644)
- 14) *PP* Fuminori Suzuki, Shohei Ono, Hiroaki Anno-Kashiwazaki, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku, Ryosuke Kodama, Weihua Jiang, and Hiromitsu Terauchi, "Generation of THz radiation from a periodic electrostatic field via a relativistic ionization front", *The 36th International Conference on Infrared, Millimeter and THz Waves (IRMMW-THz 2011)*, Oct. 2-7, Houston (2011)
- 15) *PP* Masahiro Nakata, Takamitsu Otsuka, Takafumi Oba, Fuminori Suzuki, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku, Ryosuke Kodama, and Akinori Nishida, "THz wave up-frequency turning by rapidly plasma creation", *The 36th International Conference on Infrared, Millimeter and THz Waves (IRMMW-THz 2011)*, Oct. 2-7, Houston (2011)
- 16) *IS* Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Bowen Li, Deirdre Kilbane, Thomas Cummins, Colm O'Gorman, Padraig Dunne, Gerry O'Sullivan, Weihua Jiang, and Akira Endo, "Recent Progress of Beyond EUV (BEUV) Sources", *2011 International Workshop on EUV and Soft X-Ray Sources*, Dublin (2011)
- 17) *OP* Gerry O'Sullivan, Bowen Li, Padraig Dunne, Deirdre Kilbane, Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Weihua Jiang, and Akira Endo, "Plasma Source Modeling for Future Lithography at 6.7 nm and Other Applications", *2011 International Workshop on EUV and Soft X-Ray Sources*, Dublin (2011)
- 18) *PP* Takamitsu Otsuka, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Colm O'Gorman,

- Bowen Li, Thomas Cummins, Deirdre Kilbane, Pdraig Dunne, Gerry O'Sullivan, Weihua Jiang, and Akira Endo, "Extreme ultraviolet Source at 6.7 nm Based on a Low-density Plasma", *2011 International Workshop on EUV and Soft X-Ray Sources*, Dublin (2011)
- 19) *PP* TThomas Cummins, Takamitsu Otsuka, Colm O'Gorman, Pdraig Dunne, Gerry O'Sullivan, Noboru Yugami, and Takeshi Higashiguchi, "Investigating the effects of laser power density and pulse duration on the 6.7-nm BEUV emission", *2011 International Workshop on EUV and Soft X-Ray Sources*, Dublin (2011)
- 20) *PP* Colm O'Gorman, Takamitsu Otsuka, Bowen Li, Deirdre Kilbane, Thomas Cummins, Pdraig Dunne, Emma Sokell, Gerry O'Sullivan, Akira Endo, Noboru Yugami, and Takeshi Higashiguchi, "The Effect of Viewing Angle on EUV Spectra of Laser Produced Gadolinium Plasma", *2011 International Workshop on EUV and Soft X-Ray Sources*, Dublin (2011)
- 21) *IS* Takeshi Higashiguchi, Hiromitsu Terauchi, Mami Yamaguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Rebekah D'Arcy, Pdraig Dunne, and Gerry O'Sullivan, "Extreme ultraviolet alkali metal source at 40 nm", *European COST Action MP0601 meeting*, Paris (2011)
- 22) *OP* Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Bowen Li, Colm O'Gorman, Thomas Cummins, Deirdre Kilbane, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, Pdraig Dunne, and Gerard D. O'Sullivan, "A 6.xnm beyond EUV source as a future lithography source", *SPIE Advanced Lithography 2012*, San Jose (2012)
- 23) *PP* Takeshi Higashiguchi, Takamitsu Otsuka, Noboru Yugami, Weihua Jiang, Akira Endo, Bowen Li, Colm O'Gorman, Thomas Cummins, Deirdre Kilbane, Pdraig Dunne, and Gerard O'Sulliva, "Laser-produced plasma UTA emission in 3-7 nm spectral region", *SPIE Advanced Lithography 2012*, San Jose (2012)
- 24) *PP* Akinori Nishida, Masahiro Nakata, Takeshi Higashiguchi, Noboru Yugami, Yasuhiko Sentoku and Ryosuke Kodama, "Study on frequency up-conversion by plasma - Terahertz wave interaction", HEDS2012, HDE-P-10, Yokohama, Apr.26 2012.
- 25) *PP* Noboru Yugami and Takeshi Higashiguchi, "Experimental Observation of Frequency Up-Conversion via Flash Ionization Phenomena", HEDS2012, HDE-P-11, Yokohama, Apr.26 2012.
- 26) *PP* N.Yugami, T.Higashiguchi, T.Otsuka, Y.Sentoku, A.Nishida and R.Kodama, "THz wave frequency upconversion by rapid plasma creation", The 2nd International Symposium on Laser Interaction with Matter, Sept.9-12, 2012, Xi'an, China.

- 27) *PP*N. Yugami, T. Otsuka, Y. Sentoku, A. Nishida and R. Kodama, "THz wave frequency upshift by rapidly plasma creation in semiconductor", HEDS2013, Yokohama, Apr.24 2013
- 28) *PP* N. Yugami, T. Otsuka, Y. Sentoku, A. Nishida and R. Kodama "Terahertz Wave Frequency Upconversion by Rapid Plasma Creation" IEEE Pulsed Power & Plasma Science 2013, San Francisco, June 16-21 2013.
- 29) *PP* T. Otsuka, P. Dunne, G. O'Sullivan, T. Higashiguchi and N. Yugami "Investigation of Laser Produced High-Z Plasma Soft X-Ray Sources" IEEE Pulsed Power & Plasma Science 2013, San Francisco, June 16-21 2013.
- 30) *PP* N. Yugami, T. Otsuka, Y. Sentoku, A. Nishida, R. Kodama "Experimental observation of frequency up-conversion by flash ionization phenomena", 55th Annual Meeting of the American Physical Society Division of Plasma Physics, PP8.00011, Nov. 11-15 2013; Denver Colorado.
- 31) *PP* T. Otsuka, P. Hayden, F. O'Reilly, E. Sokell, P. Dunne, G. O'Sullivan, N. Yugami "Investigation of a laser-produced bismuth plasma soft X-ray source", 55th Annual Meeting of the American Physical Society Division of Plasma Physics, NP8.00071, Nov. 11-15 2013; Denver Colorado.

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「一般」東口 武史，鈴木 史典，柏崎 宏明，湯上 登，兒玉 了祐，江 偉華 "超短パルスレーザー誘起放電プラズマからの THz 放射特性"，電気学会 パルスパワー/放電合同研究会，盛岡 (2011)
- 2) 「一般」東口 武史，山口 麻美，大塚 崇光，寺内 宏満，湯上 登，谷田貝 豊彦，DUNNE Padraig, O'SULLIVAN Gerry "アルカリ金属プラズマからの波長 40 nm 極端紫外放射特性"，2011 年秋季 第 72 回応用物理学会学術講演会，山形 (2011)
- 3) 「一般」大塚 崇光，東口 武史，湯上 登，谷田貝 豊彦，江 偉華，遠藤 彰，DUNNE Padraig, O'SULLIVAN Gerry "6.x nm 領域における希土類プラズマ極端紫外光源"，2011 年秋季 第 72 回応用物理学会学術講演会，山形 (2011)
- 4) 「招待」東口 武史 "超短パルスレーザー誘起スパークプラズマからの THz 放射"，レーザー学会学術講演会第 32 回年次大会，仙台 (2012)
- 5) 「一般」東口 武史，大塚 崇光，湯上 登，江 偉華，遠藤 彰，LI Bowen, DUNNE Padraig, O'SULLIVAN Gerry "レーザー生成プラズマ短波長光源の放射特性"，レーザー学会学術講演会第 32 回年次大会，仙台 (2012)
- 6) 「一般」大塚 崇光，O'GORMAN Colm, CUMMINS Thomas, Li Bowen, 江 偉華，遠藤 彰，DUNNE Padraig, O'SULLIVAN Gerry, 湯上 登，東口 武史 "高い原子番号物質プラズマからの短波長光放射"，レーザー学会学術講演会第 32 回年次大会，

仙台 (2012)

- 7) 「一般」東口 武史, 大塚 崇光, 湯上 登, 江 偉華, 遠藤 彰, DUNNE Padraig, O'SULLIVAN Gerry “希土類プラズマによる極端紫外光源の放射特性”, 第 59 回応用物理学関係連合講演, 東京 (2012)
- 8) 「一般」東口 武史, 大塚 崇光, 湯上 登, 江 偉華, 遠藤 彰, LI Bowen, DUNNE Padraig, O'SULLIVAN Gerry “高原子番号プラズマによる高効率水の窓軟 X 線光源の可能性研究”, 第 59 回応用物理学関係連合講演, 東京 (2012)
- 9) 「一般」西田 明憲, 仲田 真大, 大場 貴文, 大塚 崇光, 鈴木 史典, 小野 勝平, 東口 武史, 湯上 登, 千徳 靖彦, 兒玉 了祐 “高速なプラズマ生成による THz 波の周波数上昇に関する研究”, 日本物理学会第 67 回年次大会, 関西学院大学 (2012)
- 10) 「一般」大塚 崇光, 東口 武史, 江 偉華, 遠藤 彰, DUNNE Padraig, O'SULLIVAN Gerry, 湯上 登 “多価イオンプラズマからの極端紫外放射特性”, 日本物理学会第 67 回年次大会, 関西学院大学 (2012)

他 19 件

●外部資金 (科学研究費 : 科研, 奨学寄付金 : 奨学, 受託研究 : 受託, 共同研究 : 共同)

- 1) 「科研」基盤 B, 湯上 登, 13,700 千円「位相制御された大出力テラヘルツ光源の開発」(2008-2010)
- 2) 「科研」基盤 C, 湯上 登, 4,000 千円「プラズマアンテナからのテラヘルツ電磁波エネルギー計測」(2011-2013)
- 3) 「CREST」分担代表, 47,450 千円「テラヘルツ波増幅プラズマデバイスの研究」(2008-2011)
- 4) JST 重点地域研究開発推進プログラム, 湯上 登, 1,800 千円「高出力テラヘルツ光源の開発」(2009)

環境調和型システムデザイン

船渡寛人(教授)*1, 平田光男(教授)*1,

*1 大学院工学研究科電気電子システム工学専攻 funato@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1. プロジェクトの概要

本プロジェクトの環境調和とは大きく分けて、地球環境、作業環境を含めたあらゆる環境と調和する電気エネルギーシステムおよび制御システムのデザインを目指してプロジェクトを進めてきた。本報告では、主たる成果として地球環境にやさしい非接触給電システムと過酷な作業環境での有人作業を軽減する無人作業システムについて報告する。

2. 電界結合非接触給電

電気自動車やノートパソコンに代表されるモバイル機器への給電に、電気的接触の無い非接触給電の実用化が進められている。図1に非接触給電の原理図を示す。非接触給電の代表格は、図1(a)に示す磁界を媒体として電力を伝送するに示す磁界結合型である。本方式は実用化が進んでいるが、接合部に鉄と銅を大量に使用するため大きくて重くなるという欠点がある。更に、接合部の位置ずれに弱く、給電電力が急激に下がってしまう。

一方、電界を媒体とする非接触給電も提案されており、その原理図を図1(b)に示す。電界結合非接触給電は、接合部が軽量、平面方向の位置合わせの柔軟性が高い、などの利点がある。つまり、位置合わせの自由度が高く素材の柔軟性が高いという人間環境や資源環境と調和した給電方式だと言える。しかし、給電電力密度が小さいという欠点があり、研究例が少なく実用化が遅れている。図2の回路では、接合部キャパシタンスが小さいため、電源電

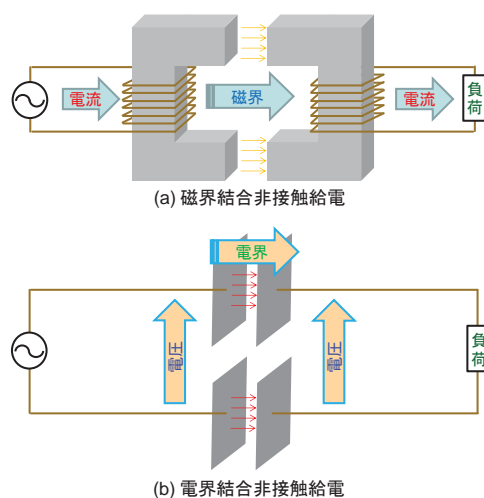


図1 非接触給電の原理

流 i_s の流れる期間が短く、結果的に給電電力が小さい。この問題を解決するために用いられてきた方法が LC 共振を利用する方法である。LC 共振を利用すれば、小さな接合部のキャパシタンスに起因する大きなインピーダンスを小さくすることが可能である。しかし、共振点からはずれると急速に給電電力が減少するため、パラメータ変動に弱いという欠点があった。そこで、本プロジェクトでは図3に示す「ワンパルスアクティブキャパシタ (One-Pulse Switching Active Capacitor 以下、OPSAC と呼ぶ)」という新しい回路を考案して、以下の特徴を有する電界結合非接触給電システムを実現した。

- (1) 単相インバータベースなので回路が簡単である。
- (2) 制御が簡単である。
- (3) 直流部のキャパシタンス電圧も含めて、センサー類が全く不要である。
- (4) フィードバック制御部分を持たないため、パラメータ変動に対して安定である。
- (5) 多段化が容易である。

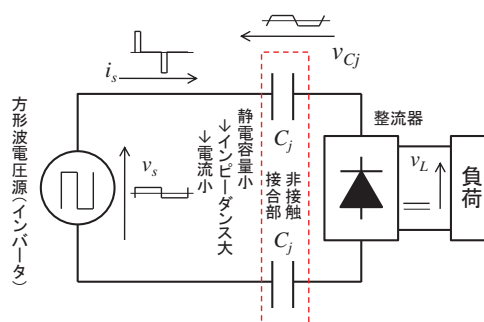


図2：電界結合非接触給電システム

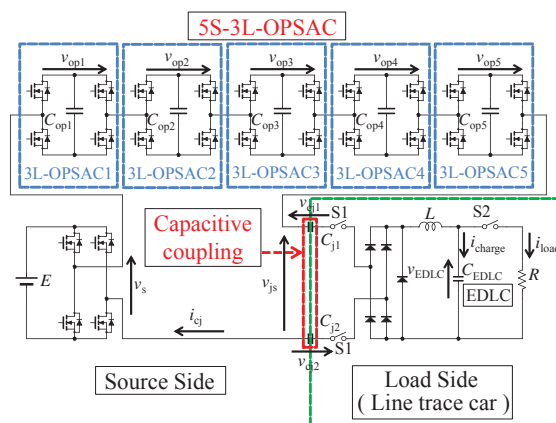


図3：五段 OPSAC を用いた非接触給電システム

3. 高温あるいは低温環境、有毒ガスや高放射線環境など、過酷な作業環境における自律ロボットのニーズは高い。これまで、地上を自律的に移動する地上ロボットに関する研究は盛んに行われて来たが、災害や事故が発生した環境では、瓦礫等の存在によって、地上ロボットの移動範囲が制限されてしまい、ミッションの達成が困難となる。一方、小型ヘリコプタやマルチロータヘリコプタなどの飛行体は、3次元空間の移動が容易であることから、地上ロボットの欠点を解決できるとして、近年注目されている。飛行体の場合、瓦礫などさまざまな障害物を避けながら、目的の場所に到達してミッションを実行することができる。本 VBL プロジェクトでは、室内での自律飛行を目的として、機体に搭載した小型カメラによって得られる画像情報だけを使って自律飛行制御を実現する手法について研究を行った。以下、詳細を説明する。

自律飛行制御を成功させるには、自己位置を正しく計測する必要がある。実験室環境であれば、赤外線位置計測装置などのを飛行環境に設置することで、高性能な自律飛行制御が実現できる。しかし、人の立ち入りが極めて困難、あるいは、立ち入りが制約される環境には、飛行体の位置を計測するシステムをあとから設置することは難しい。し

たがって、機体に搭載されたセンサを使って自己位置を計測する必要がある。屋外であれば、GPS や地磁気センサが使用できるが、屋内ではそれらのセンサが使用できない。人の立ち入りが難しい空間の多くは屋内であることから、屋内における自己位置の計測法とそれに基づいた飛行制御手法の開発が求められる。そこで、本研究では、AR (Augmented Reality) の分野で提案された、位置検出マーカを使わない、マーカーレス AR 手法を制御の分野に応用することを考えた。マーカーレス AR では、カメラで計測した実画像に、仮想物体をはめ込むために、カメラの自己位置をリアルタイムに推定しており、そのアルゴリズムが飛翔体の自己位置計測に利用できる。本研究では、マーカーレス AR アルゴリズムの1つである PTAM (Parallel Tracking and Mapping) を使用した。機体の下部に取り付けた小型カメラからの映像を PTAM によって解析し、機体の自己位置をリアルタイムで得た上で、フィードバック制御により安定化する制御系を構築した。制御系設計では、機体の揺れに伴ってカメラ画像が上下左右に揺れてしまうという問題を、制御系設計の中で解決する手法を提案した。そして、実機実験環境を構築し、ホバリング制御実験だけでなく、軌道追従制御実験も行い、十分な制御性能が得られることを確認した。

プロジェクト 13 環境調和型システムデザイン

(担当者) 船渡寛人, 平田光男

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using a Sampled-Data Polynomial for Hard Disk Drives Proc. of MIPE2009, pp.65-66, (2009)
- 2) Mitsuo Hirata, Tomohiro Harayama, Kouji Yoshida, and Youzou Fukagawa: Vibration Minimized Design of Trapezoidal Acceleration Input for Semiconductor Manufacturing Systems, Proc. of ICROS-SICE International Joint Conference 2009, pp. 19-22, (2009)
- 3) 平田光男, 城所隆弘, 上田伸治: 終端状態制御によるガルバノスキャナのナノスケールサーボ制御, 電気学会論文誌 D, Vol. 129, No.9, pp.938-944, (2009)
- 4) Satoshi Ogasawara, Tomohiko Igarashi, Hirohito Funato and Mitsuo Hara: Optimization of Switching Transient Waveform to Reduce EMI Noise in a Selective Frequency Band, 1st IEEE Energy Conversion Congress and Expo (ECCE2009), pp.1679-1684, in San Jose, USA, (2009)
- 5) Mitsuo Hirata, and Takahiro Kidokoro: Servo Performance Enhancement of Motion System via a Quantization Error Estimation Method ---Introduction to Nanoscale Servo Control---, IEEE Trans. on Industrial Electronics, Vol.56, No.10, pp.3817-3824, (2009)
- 6) Yutaka Kaneko, Kazutaka Adachi, Fumiyo Iino, and Mitsuo Hirata: Development of a Slip Speed Control System for a Lockup Clutch (Part III) , SAE International Journal of Engines, Vol.2, No.1, pp.935-940, (2009)
- 7) T. Igarashi, H. Funato, S. Ogasawara, M. Hara and Y. Hirota: Experimental Investigation for Modification of Switching Transient Waveform of Power Converter for Noise Reduction, The 2009 International Conference on Electrical Machines and Systems (ICEMS2009), On CD-ROM, Paper No. LS4B-5, 6 pages, in Tokyo, JAPAN, (2009)
- 8) T. Sakurai, H. Funato and S. Ogasawara: Basic Consideration on a High Efficiency Micro Hydroelectric Power Generation System, The 2009 International Conference on Electrical Machines and Systems (ICEMS2009), On CD-ROM, Paper No. LS6F-4, 6 pages, in Tokyo, JAPAN, (2009)
- 9) 平田光男, 城所隆弘: 長距離移動のための終端状態制御, 計測自動制御学会論文集, Vol.45, No.12, pp.696-702, (2009)
- 10) 平田光男, 飯野郁与, 安達和孝, 金子 豊: 安定余裕を考慮したゲインスケジュールド H_∞ 制御によるロックアップクラッチのスリップ回転速度制御, 計測自動制御学会産

業論文集. Vol.9, No.2, pp.2-10, (2010)

- 11) Mitsuo Hirata, Yohei Hashimoto, Sakae Noguchi, Shuichi Adachi: A Hybrid Modeling Method for Mechanical Systems, *Mechatronics*, Vol.20, pp.59-66, (2010)
- 12) 平田光男, 上野藤丸: 多項式入力型 FSC によるハードディスク装置のシーク制御, *電気学会論文誌 D*, Vol. 130, No. 3, pp.277-282, (2010)
- 13) Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using a Time Symmetrical Polynomial Input, *Proc. of AMC2010*, pp.536-541, (2010)
- 14) 船渡 寛人, 櫻井 知之, 小笠原 悟司: マイクロ水力発電システム試験装置の開発, *電気学会論文誌 D*, Vol.130, No.12, pp.1283-1289 (2010)
- 15) 平田 光男, 江田 明浩, 古屋 賢一, 児島 晃, 増田 士朗, 浅野 一哉: コイラー巻き取り装置のモデリングと制御, *鉄と鋼*, Vol.96, No.7, pp.451-458 (2010)
- 16) J. Hamar, I. Nagy, H. Funato, Y. Nishida, H. Ohsaki and E. Masada,: Discrete-time Modeling Tools for DC-DC Converters, *The 2010 International Power Electronics Conference (IPEC-Sapporo)*, pp.1088-1093, Paper No. 23F1-1, (2010)
- 17) T. Igarashi, H. Funato, S. Ogasawara, M. Hara and Y. Hirota: Performance of Power Converter Applied Switching Transient Waveform Modification, *The 2010 International Power Electronics Conference (IPEC-Sapporo)*, pp.1882-1887, Paper No. 23B3-2 (2010)
- 18) H Funato, C. Sasaki, Y. Chiku and S. Ogasawara: Analysis of Loss of Receiving Transformer Caused by Harmonic Current and Voltage for Loss Reduction, *EPE 14th International Power Electronics and Motion Control Conference (EPE-PEMC 2010)*, pp.S13-9~S13-14, (on CD-ROM) (2010)
- 19) H Funato, Y. Chiku and K. Harakawa: Wireless Power Distribution with Capacitive Coupling Excited by Switched Mode Active Negative Capacitor, *The 2010 International Conference on Electrical Machines and Systems (ICEMS2010)*, pp.117-122 , (on CD-ROM) (2010)
- 20) Mitsuo Hirata: Final-State Control Satisfying Jerk Continuity, *Proc of SICE Annual Conference*, pp.18—21 (2010)
- 21) Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: A Vibration Minimized Input Design Based on a Polynomial Input, *Proc of IEEE International Conference on Control Applications*, pp.973-978 (2010)
- 22) Mitsuo Hirata: Performance Enhancement of Track-Following Control of HDD by Using Inter-Sampling Information, *Preprints of the 2010 IFAC Symposium on Mechatronic Systems*, pp.50-54 (2010)
- 23) 平田 光男, 飯野 郁与, 金子 豊, 安達 和孝: ゲインスケジュールド H^∞ 制御適用によるロックアップクラッチのスリップ回転速度制御系の性能向上, *電気学会論文誌 D*,

- Vol.130, No.10, pp.1139-1146 (2010)
- 24) Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using a Polynomial and Time-Series Data, Digest of APMRC2010, CB-2 (2010)
 - 25) Mitsuo Hirata and Yumi Hasegawa: High-bandwidth design of hard disk control system using H^∞ control with feedback-type uncertainty, Electrical Engineering in Japan, Vol. 173, No.4, pp.54-62 (2010)
 - 26) 平田 光男, 坂田 祐寿, 井出 勇治: 機台振動抑圧を考慮した XY ステージの軌道追従制御, 電気学会論文誌 D, Vol.131, No.3, pp. 237-243 (2011)
 - 27) 平田 光男, 江田 明浩: 終端状態制御によるコイラー巻き取り装置の張力変動抑制制御, 電気学会論文誌 D, Vol.131, No.3, pp. 252-258 (2011)
 - 28) Kensuke Osamura, Sinya Kobayashi, Masaharu Nagano, Mitsuo Hirata and Shuichi Adachi: Two-degree-of-freedom model matching control of shift-by-wire system with emergency mechanical link, Electrical Engineering in Japan, Vol. 174, No. 3, pp.45-52 (2011)
 - 29) 船渡寛人, 知久勇輝: 電界結合非接触給電に適したワンパルススイッチアクティブキャパシタを用いた電力変換回路の提案, 電気学会論文誌 D 部門, Vol.131, No.6, pp.858-859 (2011)
 - 30) Mitsuo Hirata, Sakae Noguchi, and Shuichi Adachi: Identification of a Mechanical Hybrid System Switched by the Absolute Value of Velocity or Displacement, Electronics and Communications in Japan, Vol.94, No.8, pp.65-72 (2011)
 - 31) Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using Polynomial and Time-Series Data, IEEE Trans. Magnetics, Vol.47, No.7, pp.1944-1950 (2011)
 - 32) Takao Mori, Tomohiko Igarashi, Hirohito Funato, Satoshi Ogasawara, Mitsuo Hara and Yukitsugu Hirota: Operational Characteristics of a Step-Down Converter Applied Proposed Switching Transient Waveform Modification, International Conference on Power Electronics (ICPE'11), pp.1527-1532, (Organized session), in Jeju, Korea (2011)
 - 33) Ryota Ichikawa, Kenji Nemoto and Hirohito Funato, An Experimental Verification of Single Phase Utility Interface Inverter Based on Digital Hysteresis Current Controller, The 2011 International Conference on Electrical Machines and Systems (ICEMS2011), On CD-ROM, Paper No. PE-12, 6pages, in Beijing, China (2011)
 - 34) Yuki Chiku, Hirohito Funato, Ken-ichi Harakawa and Kazuyuki Miura, A Novel Power Converter Suitable for Contactless Power Distribution with Capacitive Coupling Using Series-Connected Switched-Mode Active Negative Capacitor, 14th European Conf. on Power Electronics and Applications (EPE'11), On CD-ROM, 8 pages, in Birmingham U.K. (2011)

- 35) Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Polynomial-input-type final-state control taking account of input saturation, *Preprints of the 18th IFAC World Congress*, pp.4061-4066 (2011)
- 36) Yoshitaka Minagawa, and Mitsuo Hirata: High Performance Prop-Hanging Flight Control, *ICIUS2011 in Chiba* (2011)
- 37) 船渡寛人, 知久勇輝, 原川健一: ワンパルススイッチアクティブキャパシタを用いた電界結合非接触給電システムの提案, *電気学会論文誌 D 部門*, Vol.132, No.1, pp.27-34 (2012)
- 38) Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using a Time-Symmetric Polynomial Input, *IEEE Trans. Control Systems Technology*, Vol.20, No.2, pp.395-401 (2012)
- 39) Hiroya Kobayashi, Hirohito Funato and Yuki Chiku: Enhancement of Transfer Power of Capacitive Power Transfer System using Cascaded One Pulse Switching Active Capacitor(C-OPSAC) with Three-Level Operation, *Proc. of IPEMC2012*, pp.884-888, (2012)
- 40) Ryota Ichikawa and Hirohito Funato: Single Phase Utility Interface Inverter Based on Digital Hysteresis Current Controller - Operational Characteristics Both Grid-Connected Mode and Islanding Mode, *Proc. of EPE-PEMC 2012*, pp.LS8b.3-1 – LS8b.3-8, (2012)
- 41) Jun Araki, Kento Inada and Hirohito Funato: Proposal of SMR Converter Using Indirect-Matrix Converter, *Proc. of ICEMS2012*, Paper No. LS1D-3, 6pages on CD-ROM, (2012)
- 42) Shinji Ueda, Yukie Kuroki, and Mitsuo Hirata: Trajectory Design Method for Voltage Saturation of a Current Amplifier, *Proc. of MOVIC2012, DSCC2012-MOVIC2012-8549*, (2012)
- 43) Takao Mori, Hirohito Funato, Satoshi Ogasawara, Fumihito Okazaki and Yukitsugu Hirota, H-bridge Step-down Converter Applied Proposed Switching Transient Waveform Modification to Reduce Specific Harmonics, *Proc. of ICRERA2012*, 6 pages, (2012)
- 44) 皆川佳孝, 平田光男: クオータニオンを用いた小型固定翼機の高性能 Prop-Hanging 飛行制御, *計測自動制御学会論文誌*, Vol.49, No.2, pp.275-283, (2013)
- 45) 上田伸治, 黒木幸恵, 平田光男: 電流アンプでの電圧飽和を考慮したガルバノスキャナの軌道設計法, *電気学会論文誌 D*, Vol.133, No.1, pp.10-19, (2013)
- 46) Hirohito Funato, Hiroya Kobayashi and Tatsuaki Kitabayashi, "Analysis of Transfer Power of Capacitive Power Transfer System", *The 10th IEEE International Conference on Power Electronics and Drive Systems (PEDS2013)*, pp.1015-1020, in

Kitakyushu, Japan (invited) (2013)

- 47) Hirohito Funato, Takao Mori, Tomohiko Igarashi, Satoshi Ogasawara, Fumihiro Okazaki and Yukitsugu Hirota, Optimization of Switching Transient Waveform to Reduce Harmonics in Selective Frequency Bands, IEEJ Journal of Industry Applications, Vol.2, No.3, pp.161-169 (2013)
- 48) 大角洗平, 大塚敏之, 平田光男, 塩谷政典: 粒子モデル予測制御による鋼板温度のばらつき制御, 鉄と鋼, Vol.99, No.4, pp.275-282 (2013)

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *OP* Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using a Sampled-Data Polynomial for Hard Disk Drives Proc. of MIPE2009, pp.65-66, (2009)
- 2) *OP* Mitsuo Hirata, Tomohiro Harayama, Kouji Yoshida, and Youzou Fukagawa: Vibration Minimized Design of Trapezoidal Acceleration Input for Semiconductor Manufacturing Systems, Proc. of ICROS-SICE International Joint Conference 2009, pp. 19-22, (2009)
- 3) *OP* Satoshi Ogasawara, Tomohiko Igarashi, Hirohito Funato and Mitsuo Hara: Optimization of Switching Transient Waveform to Reduce EMI Noise in a Selective Frequency Band, 1st IEEE Energy Conversion Congress and Expo (ECCE2009), pp.1679-1684, in San Jose, USA, (2009)
- 4) *OP* Igarashi, H. Funato, S. Ogasawara, M. Hara and Y. Hirota: Experimental Investigation for Modification of Switching Transient Waveform of Power Converter for Noise Reduction, The 2009 International Conference on Electrical Machines and Systems (ICEMS2009), On CD-ROM, Paper No. LS4B-5, 6 pages, in Tokyo, JAPAN, (2009)
- 5) *OP* T. Sakurai, H. Funato and S. Ogasawara: Basic Consideration on a High Efficiency Micro Hydroelectric Power Generation System, The 2009 International Conference on Electrical Machines and Systems (ICEMS2009), On CD-ROM, Paper No. LS6F-4, 6 pages, in Tokyo, JAPAN, (2009)
- 6) *OP* Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using a Time Symmetrical Polynomial Input, Proc. of AMC2010, pp.536-541, (2010)
- 7) *OP* J. Hamar, I. Nagy, H. Funato, Y. Nishida, H. Ohsaki and E. Masada: Discrete-time Modeling Tools for DC-DC Converters, The 2010 International Power Electronics Conference (IPEC-Sapporo), in Sapporo, JAPAN (2010)
- 8) *OP* T. Igarashi, H. Funato, S. Ogasawara, M. Hara and Y. Hirota: Performance of Power Converter Applied Switching Transient Waveform Modification, The 2010

- International Power Electronics Conference (IPEC-Sapporo), in Sapporo, JAPAN (2010)
- 9) *OP* H Funato, C. Sasaki, Y. Chiku and S. Ogasawara, Analysis of Loss of Receiving Transformer Caused by Harmonic Current and Voltage for Loss Reduction, EPE 14th International Power Electronics and Motion Control Conference (EPE-PEMC 2010), in Ohrid, Macedonia, (2010)
 - 10) *PP* Kenji Nemoto, Hirohito Funato, Ryota Ichikawa: Characteristics of Current Control using Digital Hysteresis Control with LCL Filter Suitable for Single Phase Utility Interface, 2010 Korea-Japan Joint Technical Workshop on Semiconductor Power Converter, P2.10, pp.154-157 (2010)
 - 11) *OP* Mitsuo Hirata: Final-State Control Satisfying Jerk Continuity, SICE Annual Conference, Taipei (2010)
 - 12) *OP* Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: A Vibration Minimized Input Design Based on a Polynomial Input, IEEE International Conference on Control Applications, Yokohama (2010)
 - 13) *OP* Mitsuo Hirata: Performance Enhancement of Track-Following Control of HDD by Using Inter-Sampling Information, 2010 IFAC Symposium on Mechatronic Systems, Boston (2010)
 - 14) *IS* Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using a Polynomial and Time-Series Data, APMRC2010, Singapore (2010)
 - 15) *OP* Takao Mori, Tomohiko Igarashi, Hirohito Funato, Satoshi Ogasawara, Mitsuo Hara and Yukitsugu Hirota: Operational Characteristics of a Step-Down Converter Applied Proposed Switching Transient Waveform Modification, International Conference on Power Electronics (ICPE'11), pp.1527-1532, (Organized session), in Jeju, Korea (2011)
 - 16) *OP* Ryota Ichikawa, Kenji Nemoto and Hirohito Funato, An Experimental Verification of Single Phase Utility Interface Inverter Based on Digital Hysteresis Current Controller, The 2011 International Conference on Electrical Machines and Systems (ICEMS2011), On CD-ROM, Paper No. PE-12, 6pages, in Beijing, China (2011)
 - 17) *OP* Yuki Chiku, Hirohito Funato, Ken-ichi Harakawa and Kazuyuki Miura, A Novel Power Converter Suitable for Contactless Power Distribution with Capacitive Coupling Using Series-Connected Switched-Mode Active Negative Capacitor, 14th European Conf. on Power Electronics and Applications (EPE'11), On CD-ROM, 8 pages, in Birmingham U.K. (2011)
 - 18) *PP* Yuki Chiku, Hirohito Funato and Hiroya Kobayashi, A new power converter

using one-pulse switching active capacitor (OPSAC) and its applications, 2011 Korea-Japan Joint Technical Workshop on Semiconductor Power Converter, in Fukuoka Japan (2011)

- 19) *IS* Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Polynomial-input-type final-state control taking account of input saturation, Preprints of the 18th IFAC World Congress, pp.4061-4066 (2011)
- 20) *OP* Yoshitaka Minagawa, and Mitsuo Hirata: High Performance Prop-Hanging Flight Control, ICIUS2011 in Chiba (2011)
- 21) *OP* Akira Yokozuka, and Mitsuo Hirata: "Determination of the End of Track Seeking of Hard Disk Drives Using Support Vector Machine", MIPE2012, pp.358-360, (2012)
- 22) *OP* Hiroya Kobayashi, Hirohito Funato and Yuki Chiku: Enhancement of Transfer Power of Capacitive Power Transfer System using Cascaded One Pulse Switching Active Capacitor(C-OPSAC) with Three-Level Operation, Proc. of IPEMC2012, pp.884-888, (2012)
- 23) *OP* Ryota Ichikawa and Hirohito Funato: Single Phase Utility Interface Inverter Based on Digital Hysteresis Current Controller - Operational Characteristics Both Grid-Connected Mode and Islanding Mode, Proc. of EPE-PEMC 2012, pp.LS8b.3-1 – LS8b.3-8, (2012)
- 24) *OP* Jun Araki, Kento Inada and Hirohito Funato: Proposal of SMR Converter Using Indirect-Matrix Converter, Proc. of ICEMS2012, Paper No. LS1D-3, 6pages on CD-ROM, (2012)
- 25) *OP* Shinji Ueda, Yukie Kuroki, and Mitsuo Hirata: Trajectory Design Method for Voltage Saturation of a Current Amplifier, Proc. of MOVIC2012, DSCC2012-MOVIC2012-8549, (2012)
- 26) *OP* Kohei Ohsumi, Toshiyuki Ohtsuka, Mitsuo Hirata, and Masanori Shioya: "Particle Model Predictive Control of Temperature Dispersion in Steel Plate Cooling", Preprints of IFAC Workshop on Automation in the Mining, Mineral and Metal Industries, pp.272-273, (2012)
- 27) *OP* Tanabe Hiroki, Mitsuo Hirata, Masanori Shioya, and Toshiyuki Ohtsuka: "Vibration Control of a Coil Car by Using Final-State Control", Preprints of IFAC Workshop on Automation in the Mining, Mineral and Metal Industries, pp.276-277, (2012)
- 28) *PP* Tatsuaki Kitabayashi, Hiroya Kobayashi, Hirohito Funato and Takao Mori: Small-sized Vehicle Applied Non-resonance Type Capacitive Power Transfer System, 2012 Korea-Japan Joint Technical Workshop on Semiconductor Power

Converter, pp.115-116, (2012)

- 29) *OP* Takao Mori, Hirohito Funato, Satoshi Ogasawara, Fumihito Okazaki and Yukitsugu Hirota, H-bridge Step-down Converter Applied Proposed Switching Transient Waveform Modification to Reduce Specific Harmonics, Proc. of ICRERA2012, 6 pages, Nagasaki (2012)
- 30) *IS* Hirohito Funato, Hiroya Kobayashi and Tatsuaki Kitabayashi, "Analysis of Transfer Power of Capacitive Power Transfer System", The 10th IEEE International Conference on Power Electronics and Drive Systems (PEDS2013), pp.1015-1020, in Kitakyushu, Japan (invited) (2013)

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「一般」五十嵐智彦，船渡寛人，小笠原悟司，原光雄，廣田幸嗣，「ノイズ低減を目的とした電力変換器の波形成形に関する実験的検討」，電気学会半導体電力変換研究会 SPC-09-114, pp.31-36, (2009)
- 2) 「一般」坂田祐寿，平田光男，井出勇治：XY ステージの振動抑制制御，電気学会 産業計測制御研究会，IIC-10-37, pp.37-42, (2010)
- 3) 「一般」根本健司，船渡寛人：デジタルヒステリシス制御をベースとした単相系統連系インバータに適した電流制御—デジタルヒステリシスコンパレータの動作検証—，電気学会半導体電力変換研究会 SPC-10-113, pp.81-86 (2010)
- 4) 「一般」上野藤丸，平田光男：入力の飽和を考慮した多項式入力型終端状態制御，電気学会 産業計測制御研究会，IIC-10-164, pp.25--30 (2010)
- 5) 「一般」市川亮太，根本健司，船渡寛人：デジタルヒステリシス制御を用いた LCL フィルタ付単相系統連系インバータの動作特性，電気学会半導体電力変換研究会，SPC-11-109, pp.19-24 (2011)
- 6) 「一般」北条祥雄，平田光男，安達和孝，金子豊：ロックアップクラッチのアンチワインドアップ制御，日本機械学会 第 12 回「運動と振動の制御」シンポジウム MoViC2011, pp.153-156 (2011)
- 7) 「一般」森雄生，船渡寛人，小笠原悟司，岡崎文洋，廣田幸嗣：“特定高調波を低減するスイッチング波形成形に用いるゲート駆動回路と損失の検討”，電気学会半導体電力変換研究会，SPC-12-079, pp.1-6, (2012)
- 8) 「一般」横塚 晃，平田 光男：“サポートベクタマシンによる時系列データを用いたハードディスク装置のシーク終了判定”，電気学会 産業計測制御研究会，IIC-12-171, pp.1-6, (2012)
- 9) 「一般」田中崇裕，平田光男：最大出力許容集合を用いたハードディスク装置のシーク終了判定法，電気学会 メカトロニクス制御研究会，MEC-13-163, pp.25-30 (2013)
- 10) 「一般」蓼沼 直人，井出 勇治，平田 光男：モデル規範型スライディングモード制御

による PWM 電流制御系のデッドタイム補償, 第 56 回自動制御連合講演会, pp.85-90,
(2013)

他 51 件

●著書, 総説, 解説等

- 1) 「解説 (シンポジウム)」 船渡寛人, 藤田英明, 佐藤之彦, 「集積化を志向した交流電源インターフェイスの新しい回路技術動向」, 平成 21 年電気学会産業応用部門大会シンポジウム, 1-S12-6, 津市, (2009)
- 2) 「著書」 パワーエレクトロニクスハンドブック編集委員会編: パワーエレクトロニクスハンドブック, オーム社刊, ISBN: 978-4274207907 (2010)
船渡寛人が全 8 編 57 章中 3 章, 本文 706 ページ中 25 ページを執筆
- 3) 「著書」 廣田幸嗣、小笠原悟司編著, 船渡寛人, 三原輝儀, 出口欣高, 初田匡之著: 電気自動車工学, 森北出版刊, ISBN: 978-4627743113 (2010)
- 4) 「著書」 Takashi Yamaguchi, Mitsuo Hirata, and Chee Khiang Pang: High-Speed Precision Motion Control, CRC Press (2011)
- 5) 「著書」 平田光男, Arduino と MATLAB で制御系設計をはじめよう!, TechShare, (2012)

●特許 (外国, 国内, 公開, 出願)

- 1) 「国内」出願, 船渡寛人, 小笠原悟司, 原光雄, 小笠原翔一, 「スイッチング回路およびスイッチング回路の制御法」 (平成 21 年 8 月)
- 2) 「国内」出願, 小笠原悟司, 船渡寛人, 原光雄, 小笠原翔一, 「スイッチング回路」 (平成 21 年 8 月)
- 3) 「国内」出願, 船渡寛人, 原川健一, 「電力供給システム」 (平成 21 年 10 月)
- 4) 「国内」出願, 井出勇治, 平田光男, 坂田祐寿 「モータ制御装置」 (平成 22 年 2 月)
- 5) 「国内」出願, 船渡寛人, 原川健一 「電界結合非接触給電システム」 (平成 22 年)
- 6) 「国内」出願, 上田伸治, 平田光男 「モータ制御装置」 (平成 22 年)
- 7) 「国内」出願, 船渡 寛人, 稲田 憲人 「交流直流電力変換器」 (平成 24 年 1 月)
- 8) 「国内」出願, 長村 謙介, 大根田 洋介, 平田 光男, 鈴木 隼人 「電動モータの制御装置」 (平成 24 年 2 月)
- 9) 「国内」出願, 長村謙介, 大根田洋介, 平田光男, 田代尚也 「電動コンプレッサの制御装置」 (平成 24 年 11 月)
- 10) 「国内」登録、菊池義行, 小笠原悟司, 船渡寛人 「スイッチング回路及び波形最適化方法」 (平成 24 年 12 月登録)

●受賞

- 1) 平田光男, 計測自動制御学会 著述賞「ナノスケールサーボ制御」(2010年8月)
- 2) 平田光男, 計測自動制御学会 制御部門 パイオニア技術賞「高速高精度なモーションコントロールに関する研究」(2011年3月)
- 3) 平田光男, 計測自動制御学会 論文賞「安定余裕を考慮したゲインスケジュールドH_∞制御によるロックアップクラッチのスリップ回転速度制御」(2011年3月)
- 4) 横塚 晃 (指導教員 平田光男), 電気学会 産業計測制御技術委員会 優秀論文発表賞 (2012年1月)
- 5) 知久勇輝 (指導教員 船渡寛人), 電気学会 産業応用部門優秀論文発表賞 (2012年3月)
- 6) 鈴木隼人 (指導教員 平田光男), (社)自動車技術会 大学院研究奨励賞 (2012年3月)
- 7) 北林達明 (指導教員 船渡寛人) 平成 24 年電気学会産業応用部門大会 ヤングエンジニアポスターコンペティション優秀発表賞 (2012年8月)
- 8) 増渕展大 (指導教員 船渡寛人) 平成 25 年電気学会産業応用部門大会 ヤングエンジニアポスターコンペティション優秀発表賞 (2013年8月)
- 9) 増渕展大 (指導教員 船渡寛人) IEEE Industry Applications Society Japan Chapter 2013 Young Engineer Competition Award (2013年8月)
- 10) 小林紘也 (指導教員 船渡寛人) 電気学会 優秀論文発表賞 (本部表彰) (2014年3月)

●外部資金 (科学研究費 : 科研、奨学寄付金 : 奨学, 受託研究 : 受託, 共同研究 : 共同)

- 1) 「受託」船渡寛人, 1800 千円「小型新エネルギー用系統連係電力変換器の開発」科学技術振興機構 (シーズ発掘試験 (発掘型)) (平成 21 年)
- 2) 「受託」船渡寛人, 101 千円 (21 年度受入額)「アクティブキャパシタンスを用いた電界結合型非接触電力供給技術の研究」科学技術振興機構 (研究成果最適展開支援事業 可能性発掘タイプ(シーズ顕在化)) (平成 21 年度~22 年度)
- 3) 「共同」船渡寛人, 600 千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ (株) (平成 21 年)
- 4) 「共同」平田光男, 150 千円「ユニバーサルデザインを取入れたいす式階段昇降機の研究開発その3」シンテックス (株) (平成 21 年)
- 5) 「共同」平田光男, 980 千円「入力飽和および機械共振モードを考慮した高速高精度位置決め制御」キヤノン (株) (平成 21 年)
- 6) 「共同」平田光男, 600 千円「周期的負荷変動に対するモータ回転変動抑制制御の研究」カルソニックカンセイ (株) (平成 21 年)
- 7) 「共同」平田光男, 1500 千円「車両用制御システムに対するアドバンスト制御技術開

発」日産自動車（株）（平成 21 年）

- 8) 「奨学」船渡寛人，500 千円「電力系統の電圧安定化および急速充電器の入力電流のピーク抑制に関する研究」高岳製作所（株）（平成 21 年）
- 9) 「奨学」船渡寛人，100 千円「パワーエレクトロニクス研究に関する助成金」関東特機（株）（平成 21 年）
- 10) 「奨学」平田光男，500 千円「ばらつきのない製造を実現する大量データ活用型モデルベース制御技術」日本鉄鋼協会（平成 21 年）
- 11) 「奨学」平田光男，1800 千円「超精密サーボのための位置検出技術の開発」情報ストレージ研究推進機構（平成 21 年）
- 12) 「科研」平田光男（代表），900 千円「ナノスケールサーボ制御のためのオンライン制御軌道生成」基盤研究（C）（平成 22 年度）
- 13) 「受託」船渡寛人（研究代表者），3399 千円「アクティブキャパシタンスを用いた電界結合型非接触電力供給技術の研究」，科学技術振興機構（研究成果最適展開支援事業可能性発掘タイプ(シーズ顕在化)），竹中工務店と共同受託（平成 22 年度）
- 14) 「共同」船渡寛人，600 千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ（株）（平成 22 年度）
- 15) 「共同」平田光男，150 千円「ユニバーサルデザインを取入れたいす式階段昇降機の研究開発 5」シンテックス（株）（平成 22 年度）
- 16) 「共同」平田光男，1000 千円「機械共振モードを考慮した高速高精度な軌跡追従制御」キャノン（株）（平成 22 年度）
- 17) 「共同」平田光男，600 千円「コンプレッサーの周期的負荷変動に対する回転変動抑制制御の研究」カルソニックカンセイ（株）（平成 22 年度）
- 18) 「共同」平田光男，1500 千円「車両用制御システムに適用するアドバンスト制御技術開発」日産自動車（株）（平成 22 年度）
- 19) 「奨学」船渡寛人，500 千円「急速充電器用直流電源装置の開発」高岳製作所（株）（平成 22 年度）
- 20) 「奨学」平田光男，500 千円「ばらつきのない製造を実現する大量データ活用型モデルベース制御技術」日本鉄鋼協会（平成 22 年度）
- 21) 「奨学」平田光男，1300 千円「サンプル点間振動の予測（把握）とデータ保護と振動抑制の研究」情報ストレージ研究推進機構（平成 22 年度）
- 22) 「科研」船渡寛人（代表），2300 千円「連系・自立どちらの運転状態でも高性能を発揮する新しい構造切り替え型電力変換装置」基盤研究（C）（平成 23 年度）
- 23) 「科研」平田光男（代表），1900 千円「ナノスケールサーボ制御のためのオンライン制御軌道生成」基盤研究（C）（平成 23 年度）
- 24) 「共同」船渡寛人，600 千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ（株）（平成 23 年度）

- 25) 「共同」平田光男, 600 千円「コンプレッサーの周期的負荷変動に対する回転変動抑制制御の研究」カルソニックカンセイ (株) (平成 23 年度)
- 26) 「共同」平田光男, 1000 千円「入力飽和を考慮した高速高精度な軌跡追従制御」, キヤノン (株) (平成 23 年度)
- 27) 「共同」平田光男, 1500 千円「車両用制御システムにおけるアドバンスト制御技術開発」日産自動車 (株) (平成 23 年度)
- 28) 「共同」平田光男, 2000 千円「モータ制御装置の高速高精度化技術に関する研究」山洋電気 (株) (平成 23 年度)
- 29) 「受託」船渡寛人, 377 千円「スマートビレッジモデル研究事業」栃木県農政部 (平成 23 年度)
- 30) 「受託」船渡寛人, 1423 千円「ワンパルスアクティブリアクタンスによる新機能絶縁型電力変換回路」科学技術振興機構 (研究成果最適展開支援プログラム(A-STEP)フィージビリティスタディ【FS】ステージ 探索タイプ) (平成 23 年度)
- 31) 「奨学」船渡寛人, 1000 千円「マトリックスコンバータを用いた急速充電器」高岳製作所 (株) (平成 23 年度)
- 32) 「奨学」船渡寛人, 500 千円 古河電池 (株) (平成 23 年度)
- 33) 「奨学」平田光男, 550 千円「ばらつきのない製造を実現する大量データ活用型モデルベース制御技術」日本鉄鋼協会 (平成 23 年度)
- 34) 「奨学」平田光男, 1300 千円「サンプル点間振動の予測 (把握) とデータ保護と振動抑制の研究」情報ストレージ研究推進機構 (平成 23 年度)
- 35) 「科研」船渡寛人 (代表), 900 千円「連系・自立どちらの運転状態でも高性能を発揮する新しい構造切り替え型電力変換装置」基盤研究 (C) (平成 24 年度)
- 36) 「科研」平田光男 (代表), 600 千円「ナノスケールサーボ制御のためのオンライン制御軌道生成」基盤研究 (C) (平成 24 年度)
- 37) 「受託」船渡寛人 (代表者), 277 千円「ワンパルスアクティブリアクタンスによる新機能絶縁型電力変換回路」科学技術振興機構 A-STEP フィージビリティスタディ (平成 24 年度)
- 38) 「共同」船渡寛人, 600 千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ (株) (平成 24 年度)
- 39) 「共同」平田光男, 600 千円「コンプレッサーの周期的負荷変動に対する回転変動抑制制御の研究」カルソニックカンセイ (株) (平成 24 年度)
- 40) 「共同」平田光男, 1000 千円「入力飽和を考慮した高速高精度な位置制御」, キヤノン (株) (平成 24 年度)
- 41) 「共同」平田光男, 1500 千円「車両用制御システムにおけるアドバンスト制御技術の適用」日産自動車 (株) (平成 24 年度)
- 42) 「奨学」船渡寛人, 1000 千円「ワンパルスアクティブキャパシタを用いた電界結合非

接触給電による移動体への給電」(財)高橋産業経済研究財団(平成24年度)

- 43) 「奨学」船渡寛人, 500千円「奨学寄付金」古河電池(平成24年度)
- 44) 「奨学」船渡寛人, 1000千円「マトリックスコンバータを用いた急速充電器」高岳製作所(株)(平成24年度)
- 45) 「奨学」平田光男, 50千円「ばらつきのない製造を実現する大量データ活用型モデルベース制御技術」日本鉄鋼協会(平成24年度)
- 46) 「奨学」平田光男, 1110千円「サンプル点間振動の予測(把握)とデータ保護と振動抑制の研究」情報ストレージ研究推進機構(平成24年度)
- 47) 「科研」船渡寛人(代表), 1061千円「連系・自立どちらの運転状態でも高性能を発揮する新しい構造切り替え型電力変換装置」基盤研究(C)(平成25年度)
- 48) 「共同」船渡寛人, 600千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ(株)(平成25年度)
- 49) 「奨学」船渡寛人, 1000千円「マトリックスコンバータを用いた急速充電器」高岳製作所(株)(平成25年度)
- 50) 「科研」平田光男, 1000千円「高速高精度メカトロ制御のための位置決め終了判定法の確立」基盤研究(C)(平成25年)
- 51) 「共同」平田光男, 1420千円「特性変動を考慮した高速高精度な位置制御」, キヤノン(株)(平成25年)
- 52) 「共同」平田光男, 1500千円「車両用制御システムに対する先端制御技術開発」, 日産自動車(株)(平成25年)
- 53) 「共同」平田光男, 600千円「コンプレッサの周期的負荷変動に対する回転変動抑制制御の研究」, カルソニックカンセイ(株)(平成25年)

●学生教育(主任指導)

平成20年度

博士後期課程 D3: 1名、D2: 0名、D1: 0名

博士前期課程 M2: 6名、M1: 7名

平成21年度

博士後期課程 D3: 1名、D2: 0名、D1: 0名

博士前期課程 M2: 7名、M1: 5名

平成22年度

博士後期課程 D3: 0名、D2: 0名、D1: 0名

博士前期課程 M2: 6名、M1: 7名

平成 23 年度

博士後期課程 D3 : 0 名、D2 : 0 名、D1 : 1 名

博士前期課程 M2 : 8 名、M1 : 5 名

平成 24 年度

博士後期課程 D3 : 0 名、D2 : 1 名、D1 : 0 名

博士前期課程 M2 : 5 名、M1 : 6 名

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

イ) 学術論文 (査読付き学会誌論文) 21 件

平田光男, 城所隆弘, 上田伸治: 終端状態制御によるガルバノスキャナのナノスケールサーボ制御, 電気学会論文誌 D, Vol. 129, No.9, pp.938-944, (2009)

Mitsuo Hirata, and Takahiro Kidokoro: Servo Performance Enhancement of Motion System via a Quantization Error Estimation Method ---Introduction to Nanoscale Servo Control---, IEEE Trans. on Industrial Electronics, Vol.56, No.10, pp.3817-3824, (2009)

Yutaka Kaneko, Kazutaka Adachi, Fumiyo Iino, and Mitsuo Hirata: Development of a Slip Speed Control System for a Lockup Clutch (Part III) , SAE International Journal of Engines, Vol.2, No.1, pp.935-940, (2009)

平田光男, 城所隆弘: 長距離移動のための終端状態制御, 計測自動制御学会論文集, Vol.45, No.12, pp.696-702, (2009)

平田光男, 飯野郁与, 安達和孝, 金子 豊: 安定余裕を考慮したゲインスケジュールド H^∞ 制御によるロックアップクラッチのスリップ回転速度制御, 計測自動制御学会産業論文集. Vol.9, No.2, pp.2-10, (2010)

Mitsuo Hirata, Yohei Hashimoto, Sakae Noguchi, Shuichi Adachi: A Hybrid Modeling Method for Mechanical Systems, Mechatronics, Vol.20, pp.59-66, (2010)

平田光男, 上野藤丸: 多項式入力型 FSC によるハードディスク装置のシーク制御, 電気学会論文誌 D, Vol. 130, No. 3, pp.277-282, (2010)

船渡寛人, 櫻井知之, 小笠原悟司「マイクロ水力発電システム試験装置の開発」, 電気学会論文誌 D, Vol.130, No.12, pp.1283-1289 (2010)

平田 光男, 江田 明浩, 古屋 賢一, 児島 晃, 増田 士朗, 浅野 一哉: コイラー巻き取り装置のモデリングと制御, 鉄と鋼, Vol.96, No.7, pp.451-458 (2010)

平田 光男, 飯野 郁与, 金子 豊, 安達 和孝: ゲインスケジュールド H^∞ 制御適用によるロックアップクラッチのスリップ回転速度制御系の性能向上, 電気学会論文誌 D, Vol.130, No.10, pp.1139-1146 (2010)

Mitsuo Hirata and Yumi Hasegawa: High-bandwidth design of hard disk control

system using H^∞ control with feedback-type uncertainty, *Electrical Engineering in Japan*, Vol. 173, No.4, pp.54-62 (2010)

平田 光男, 坂田 祐寿, 井出 勇治: 機台振動抑圧を考慮した XY ステージの軌道追従制御, *電気学会論文誌 D*, Vol.131, No.3, pp. 237-243 (2011)

平田 光男, 江田 明浩: 終端状態制御によるコイラー巻き取り装置の張力変動抑制制御, *電気学会論文誌 D*, Vol.131, No.3, pp. 252-258 (2011)

Kensuke Osamura, Sinya Kobayashi, Masaharu Nagano, Mitsuo Hirata and Shuichi Adachi: Two-degree-of-freedom model matching control of shift-by-wire system with emergency mechanical link, *Electrical Engineering in Japan*, Vol. 174, No. 3, pp.45-52 (2011) 船渡寛人, 知久勇輝: 電界結合非接触給電に適したワンパルススイッチアクティブキャパシタを用いた電力変換回路の提案, *電気学会論文誌 D 部門*, Vol.131, No.6, pp.858-859 (2011)

Mitsuo Hirata, Sakae Noguchi, and Shuichi Adachi: Identification of a Mechanical Hybrid System Switched by the Absolute Value of Velocity or Displacement, *Electronics and Communications in Japan*, Vol.94, No.8, pp.65-72 (2011)

Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using Polynomial and Time-Series Data, *IEEE Trans. Magnetics*, Vol.47, No.7, pp.1944-1950 (2011)

船渡寛人, 知久勇輝, 原川健一: ワンパルススイッチアクティブキャパシタを用いた電界結合非接触給電システムの提案, *電気学会論文誌 D 部門*, Vol.132, No.1, pp.27-34 (2012)

Mitsuo Hirata, and Fujimaru Ueno: Final-State Control Using a Time-Symmetric Polynomial Input, *IEEE Trans. Control Systems Technology*, Vol.20, No.2, pp.395-401 (2012)

皆川佳孝, 平田光男: クォータニオンを用いた小型固定翼機の高性能 Prop-Hanging 飛行制御, *計測自動制御学会論文誌*, Vol.49, No.2, pp.275-283, (2013)

上田伸治, 黒木幸恵, 平田光男: 電流アンプでの電圧飽和を考慮したガルバノスキャナの軌道設計法, *電気学会論文誌 D*, Vol.133, No.1, pp.10-19, (2013)

Hirohito Funato, Takao Mori, Tomohiko Igarashi, Satoshi Ogasawara, Fumihiko Okazaki and Yukitsugu Hirota, Optimization of Switching Transient Waveform to Reduce Harmonics in Selective Frequency Bands, *IEEJ Journal of Industry Applications*, Vol.2, No.3, pp.161-169 (2013)

大角洸平, 大塚敏之, 平田光男, 塩谷政典: 粒子モデル予測制御による鋼板温度のばらつき制御, *鉄と鋼*, Vol.99, No.4, pp.275-282 (2013)

ロ) 特許 8 件

- ・「国内」出願，船渡寛人，小笠原悟司，原光雄，小笠原翔一，「スイッチング回路およびスイッチング回路の制御法」（2009年8月）
- ・「国内」出願，小笠原悟司，船渡寛人，原光雄，小笠原翔一，「スイッチング回路」（2009年8月）
- ・「国内」出願，船渡寛人，原川健一，「電力供給システム」（2009年10月）
- ・「国内」出願，井出勇治，平田光男，坂田祐寿「モータ制御装置」（2010年2月）
- ・「国内」出願，船渡寛人，原川健一「電界結合非接触給電システム」（2010年）
- ・「国内」出願，上田伸治，平田光男「モータ制御装置」（2010年）
- ・「国内」出願，船渡 寛人，稲田 憲人「交流直流電力変換器」（平成24年1月）
- ・「国内」出願，長村 謙介，大根田 洋介，平田 光男，鈴木 隼人「電動モータの制御装置」（平成24年2月）

ハ) JST 公募型受託研究 1 件

- ・「受託」船渡寛人，1423 千円「ワンパルスアクティブリアクタンスによる新機能絶縁型電力変換回路」科学技術振興機構（研究成果最適展開支援プログラム(A-STEP)フィージビリティスタディ【FS】ステージ 探索タイプ）（平成23年）

ニ) 企業と共同による国からの共同受託 1 件

- ・船渡寛人（研究代表者），3500 千円「アクティブキャパシタンスを用いた電界結合型非接触電力供給技術の研究」，科学技術振興機構（研究成果最適展開支援事業、可能性発掘タイプ(シーズ顕在化)），竹中工務店と共同受託（平成21～22年）

ホ) 共同研究 23 件

- ・船渡寛人，600 千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ（株）（平成21年）
- ・平田光男，150 千円「ユニバーサルデザインを取入れたいす式階段昇降機の研究開発その3」シンテックス（株）（平成21年）
- ・平田光男，980 千円「入力飽和および機械共振モードを考慮した高速高精度位置決め制御」キヤノン（株）（平成21年）
- ・平田光男，600 千円「周期的負荷変動に対するモータ回転変動抑制制御の研究」カルソニックカンセイ（株）（平成21年）
- ・平田光男，1500 千円「車両用制御システムに対するアドバンス制御技術開発」日産自動車（株）（平成21年）
- ・船渡寛人，600 千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ（株）（平成22年）
- ・平田光男，150 千円「ユニバーサルデザインを取入れたいす式階段昇降機の研究開発5」シンテックス（株）（平成22年）
- ・平田光男，1000 千円「機械共振モードを考慮した高速高精度な軌跡追従制御」キヤノン（株）（平成22年）

- ・平田光男, 600 千円「コンプレッサの周期的負荷変動に対する回転変動抑制制御の研究」カルソニックカンセイ (株) (平成 22 年)
- ・平田光男, 1500 千円「車両用制御システムに適用するアドバンスト制御技術開発」日産自動車 (株) (平成 22 年)
- ・船渡寛人, 600 千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ (株) (平成 23 年)
- ・平田光男, 600 千円「コンプレッサの周期的負荷変動に対する回転変動抑制制御の研究」カルソニックカンセイ (株) (平成 23 年)
- ・平田光男, 1000 千円「入力飽和を考慮した高速高精度な軌跡追従制御」, キヤノン (株) (平成 23 年)
- ・平田光男, 1500 千円「車両用制御システムにおけるアドバンスト制御技術開発」日産自動車 (株) (平成 23 年)
- ・平田光男, 2000 千円「モータ制御装置の高速高精度化技術に関する研究」山洋電気 (株) (平成 23 年)
- ・船渡寛人, 600 千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ (株) (平成 24 年度)
- ・平田光男, 600 千円「コンプレッサの周期的負荷変動に対する回転変動抑制制御の研究」カルソニックカンセイ (株) (平成 24 年度)
- ・平田光男, 1000 千円「入力飽和を考慮した高速高精度な位置制御」, キヤノン (株) (平成 24 年度)
- ・平田光男, 1500 千円「車両用制御システムにおけるアドバンスト制御技術の適用」日産自動車 (株) (平成 24 年度)
- ・船渡寛人, 600 千円「パワーエレクトロニクス用スイッチング技術」カルソニックカンセイ (株) (平成 25 年度)
- ・平田光男, 1420 千円「特性変動を考慮した高速高精度な位置制御」, キヤノン (株) (平成 25 年)
- ・平田光男, 1500 千円「車両用制御システムに対する先端制御技術開発」, 日産自動車 (株) (平成 25 年)
- ・平田光男, 600 千円「コンプレッサの周期的負荷変動に対する回転変動抑制制御の研究」, カルソニックカンセイ (株) (平成 25 年)

ベンチャーマインド育成のための膜・機能物質材料開発および 超臨界反応解析研究の推進

伊藤直次(教授)*¹, 佐藤剛史(准教授)*¹, 伊藤智志(助教)*¹

*¹ 大学院工学研究科物質環境化学専攻

1. 諸言

VBL の位置づけは教員や大学院学生の VB マインドを喚起するのを制度的に認めバックアップすることが中心的な狙いである。しかし、教育の現場からは遊離しがちであり、ややもすると個人的活動に留まり、とりわけ学生については VBL の存在意義すら知らないまま卒業することもあり得る。それが故に VB の機運の盛り上がり、広がりが進んでいないように思われる。

本プロジェクトでは、VB マインドを教員と被指導者である大学院学生とが共有し、製品開発あるいは受託処理解析研究を進めるための基盤技術の構築やシステム整備等を行うことを目的としてきた。具体的な研究テーマとして、膜反応器による選択的反応、高温高压水(超臨界水)処理によるクリーンプロセス、新規有機半導体材料の開発を取り上げ、それらの技術開発を進めると共に、HP 作成も行った。

2. 実施内容

2.1 膜反応器による選択的反応

膜反応器としてゼオライトの一種である ZSM-5 触媒膜に注目した。ZSM-5 触媒は、分子サイズの細孔を有しており、トルエンの不均化反応において、近年ポリエステル繊維や PET 樹脂の原料としての需要が高い *p*-キシレンを選択的に生成させる形状選択性を有する。これを膜化することで触媒外表面の不要な反応活性点の面積を減少させることで反応選択性が向上する。それに加え膜表面の反応活性点をイオン交換によって除去することにより、トルエン不均化反応でのさらなる *p*-キシレン選択率向上が期待できる。

多孔質ステンレス支持体上に、水熱合成法にて ZSM-5 膜を作成した。SEM 観察により支持体上にゼオライト結晶が密に成長し膜を形成していることが、膜の表面と断面画像(図1)より確認できた。この膜に対して Na⁺型から H⁺型へのイオン交換を行い、さらに部分 Na⁺交換により膜外表面の余分な反応活性点を抑制することで、*p*-キシレン選択率が 90%以上まで向上することを明らかとした。

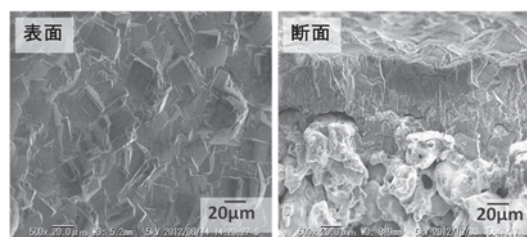


図1 膜表面および断面の SEM 画像

2.2 高温高压水処理によるクリーンプロセス

現在注目されている機能性物質であり、有機薄膜太陽電池等への応用が進められているポルフィリン金属錯体の合成を行った。通常ポルフィリン金属錯体の合成は、有機金属塩とポルフィリンを極性有機溶媒中で反応させることで行う。一方、高温高压水は、極性有機溶媒同様に有機物と安価な無機金属塩の双方が溶解するため、有機溶媒に代替したクリーンな合成プロセス構築の可能性が大きい。

高温高压用可視化セルによる観察にて、高温高压水中に固体のテトラフェニルポルフィリン 5,10,15,20-Tetraphenyl-21H,23H-porphyrin (TPP) が溶解することを確認した(図 2)。高温高压水中に、各種ポルフィリンと無機金属塩を導入した結果、Cu, Ni, Co, Zn の金属ポルフィリン錯体が合成されることが明らかとなった。特に、TPP 金属錯体収率は温度上昇により増大し、400 °Cで最大90%以上となることを見出した。

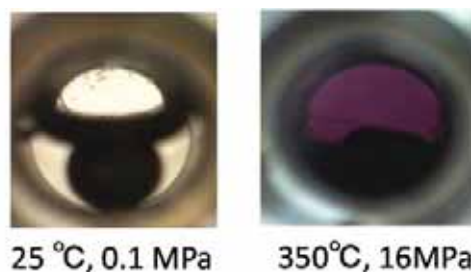
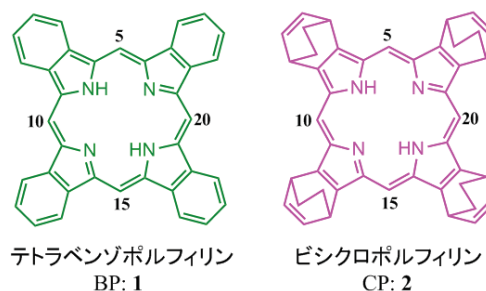


図2 高温高压水中への TPP 溶解の様子(左の円型は攪拌子、TPP は液面に存在)

2.3 新規有機半導体材料の開発

テトラベンゾポルフィリン (BP: **1**) は優れた半導体特性を有することから、IC タグや曲がるディスプレイ、有機薄膜太陽電池などへの応用が期待されている。特に、近赤外領域に強い吸収を持ち、優れた半導体特性を有することから、有機薄膜太陽電池の p 層への利用が試みられている。しかし、①「 π 共役が高度に拡張した構造を持つ BP はあらゆる溶媒に難溶である」こと、②「その可溶前駆体であるビスクロポルフィリン(CP: **2**)は加熱条件では徐々に分解してしまうため比較的取り扱いが難しい」等の問題点があり、その機能性の向上を目指した新規誘導体の合成はほとんど行われていない。有機薄膜太陽電池の発電効率の向上には、p 型半導体の HOMO 順位と対となる n 型半導体(代表例としてフラーレン誘導体)の LUMO 順位とのマッチングが鍵を握っている。一方で、BP の電子状態だけでなく分子の配向性をコントロールすることも重要となる。そこで本研究では、電子状態のコントロールを目的としたメソ位(5,10,15,20 位)フルオロ BP の合成と、有機溶媒に対する溶解性の向上と分子の配向性のコントロールを意図した直鎖アルキル修飾 BP の合成を行った。今回合成したモノフルオロ体を p 層として用いて有機薄膜太陽電池を作成したところ、0.3%と非常に低い効率ながら発電することが分かった(n 層はフラーレン誘導体)。また、直鎖アルキル修飾 BP のいくつかは、無置換 BP を凌ぐ優れた半導体特性を示すことを見出した。



2.4 VB マインド涵養のための作業

研究室 HP 上に、本プロジェクトの対外窓口となる E-Labo を開設することで、今後の取り組みに向けた足がかりとした。

プロジェクト 14 ベンチャーマインド育成のための膜・機能物質材料開発および超臨
界反応解析研究の推進

(担当者) 伊藤直次, 佐藤剛史, 伊藤智志

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) Takafumi Sato, Satoshi Ito, Yumiko Yajima, Naotsugu Itoh, "The selective thermal cis-trans isomerization of 1,2-diphenylsulfonyl ethylene in the presence of carbon dioxide," *J. Supercrit. Fluids*, 51, 217-220 (2009).
- 2) Takafumi Sato, Takeyuki Suzuki, Mitsuhiro Aketa, Yasuyoshi Ishiyama, Kenichi Mimura, Naotsugu Itoh, "Steam reforming of biogas mixtures with a palladium membrane reactor system," *Chem. Eng. Sci.*, 65, 451-457 (2010).
- 3) Takafumi Sato, Ayumi Kumagai, Naotsugu Itoh, "A Catalytic ZSM-5 membrane sandwiched with silicalite-1 layers for highly selective toluene disproportionation," *Separation and Purification Technology*, 73, 32-37 (2010).
- 4) Takafumi Sato, Shota Mori, Naotsugu Itoh, "Upgrading of Heavy Oil with Formic Acid in Supercritical Water," 8th World Congress of Chemical Engineering, Palais des congres de Montreal, Montreal, Canada (2009).
- 5) T. Tsuji, T. Nakazato, T. Hiaki, N. Itoh, "Adsorption of cycliv aliphatic and aromatic hydrocarbon on activated carbon in hydrogen flow and its application for hydrogen storage medium in fuel cell," 8th World Congress of Chemical Engineering, Palais des congres de Montreal, Montreal, Canada (2009).
- 6) Takafumi Sato, Satoshi Ito, Yumiko Yajima, Masayuki Akaki and Naotsugu Itoh, "The selective cis-trans isomerization of 1,2-diphenylsulfonyl ethylene in supercritical carbon dioxide," *Supergreen 2009*, Tohoku University, Sendai (2009).
- 7) Satoshi Ito, Le Thanh Phong, Takuya Komatsu, Nagisa Igarashi, Saika Otsubo, Yoshimasa Sakai, Akira Ohno, Shinji Aramaki, Yousuke Tanaka, Hidemitsu Uno, Toru Oba, and Kazuhisa Hiratani. "First Synthesis of meso-Chlorinated Tetrabenzoporphyrins" , *Eur. J. Org. Chem.* 5373-5382 (2009)
- 8) X. Xie, K. Yoneyama, Y. Harada, N. Fusegi, Y. Yamada, S. Ito, T. Yokota, Y. Takeuchi, K. Yoneyama. "Fabacyl acetate, a germination stimulant for root parasitic plants from *pisum sativum*", *Phytochemistry*, 70, 2011-2015 (2009).
- 9) Takafumi Sato, Kentaro Inda, Naotsugu Itoh, "Gasification of bean curd refuse with carbon supported noble metal catalysts in supercritical water," *Biomass and Bioenergy*, 35, 1245-1251 (2011).
- 10) Takafumi Sato, Shota Mori, Masaru Watanabe, Mitsuru Sasaki, Naotsugu Itoh, "Upgrading of bitumen with formic acid in supercritical water," *J. Supercrit. Fluids*,

- 55, 232-240 (2010).
- 11) Kenichi Mimura, Daisuke Oka, Takafumi Sato, Naotsugu Itoh, "CFD analysis of a single palladium membrane tube reactor for the dehydrogenation of cyclohexane as a chemical hydrogen carrier," *J. Chem. Eng. Japan*, 43, 757-766 (2010).
 - 12) 味村健一, 吉田直樹, 佐藤剛史, 伊藤直次, "シクロヘキサン脱水素用多管式メンブレリアクターの CFD 解析と設計" *Journal of the Japan Petroleum Institute*, 53, 283-291, (2010).
 - 13) Takafumi Sato, Katsutoshi Ebisawa, Satoshi Ito, Kiwamu Sue, Naotsugu Itoh, "Novel synthetic method of metalloporphyrins with inorganic metal salts in high temperature water," *Chem. Lett.*, 40, 1414-1416 (2011).
 - 14) Kiwamu Sue, Mitsuko Aoki, Takafumi Sato, Daisuke Nishio-Hamane, Shin-ichiro Kawasaki, Yukiya Hakuta, Yoshihiro Takebayashi, Satoshi Yoda, Takeshi Furuya, Toshiyuki Sato, Toshihiko Hiaki, "Continuous hydrothermal synthesis of nickel ferrite nanoparticles using a central collision-type micromixer: Effects of temperature, residence time, metal salt molality, and NaOH addition on conversion, particle size, and crystal phase," *Ind. Eng. Chem. Res.*, 50, 9625-9631 (2011).
 - 15) Takafumi Sato, Phan Hieu Trung, Tomoyuki Tomita, Naotsugu Itoh, "Effect of water density and air pressure on partial oxidation of bitumen in supercritical water," *Fuel*, 95, 347-351 (2012).
 - 16) Naotsugu Itoh, "Analysis of equilibrium-limited dehydrogenation and steam reforming in palladium membrane reactors", *J. Jap. Pet. Inst.*, 55, 160-170 (2012).
 - 17) Naotsugu Itoh, Mitsuhiro Aketa, Takafumi Sato, Hideto Kamimura, Fumiaki Takagi, "Regeneration of anti-oxidant in lubrication oil on bifunctional palladium membrane electrode," *J. Jap. Pet. Inst.*, 55, 215-218 (2012).
 - 18) Takanori Fukusumi, Kohei Matsuda, Tadashi Mizoguchi, Tomohiro Miyake, Satoshi Ito, Tsukasa Ikeda, Hitoshi Tamiaki, "Non-enzymatic conversion of chlorophyll-*a* into chlorophyll-*d* in vitro: A model oxidation pathway for chlorophyll-*d* biosynthesis", *FEBS Letters*, 586, 2338-2341 (2012).
 - 19) Takafumi Sato, Tomoyuki Tomita, Phan Hieu Trung, Naotsugu Itoh, Shinya Sato, Toshimasa Takanohashi, "Upgrading of bitumen in the presence of hydrogen and carbon dioxide in supercritical water," *Energy Fuels*, 27, 646-653 (2013).
 - 20) Tomohiro Morohoshi, Kazuho Tokita, Satoshi Ito, Yuki Saito, Saki Maeda, Norihiro Kato, Tsukasa Ikeda, "Inhibition of quorum sensing in Gram-negative bacteria by alkylamine-modified Cyclodextrins" *Journal of Bioscience and Bioengineering*, *J. Biosci. Bioeng.*, 116, 175-179 (2013).
 - 21) Satoshi Ito, Noriaki Terada, Koumei Seino, Daishi Makihata, Akira. Sasaki, Toru

- Oba, "Synthesis of meso-fluorotetrabenzoporphyrins" *Tetrahedron Lett.*, 5916-5919 (2013).
- 22) Tomohiro Morohoshi, Wen-Zhao Wang, Tomonori Suto, Yuki Saito, Satoshi Ito, Nobutaka Someya, Tukasa Ikeda, "Phenazine antibiotic production and antifungal activity are regulated by multiple quorum-sensing systems in *Pseudomonas chlororaphis* subsp. *aurantiaca* StFRB508" *Journal of Bioscience and Bioengineering*, 116, 580-584 (2013).
- 23) Naotsugu Itoh, Eita Suga, Takafumi Sato, "Composite palladium membrane prepared by introducing metallic glue and its high durability below the critical temperature" *Separation and Purification Technology*, 121, 46-53 (2014).
- 24) Takafumi Sato, "Upgrading of heavy oil through partial oxidation and water-gas shift reaction in supercritical water" *J. Jap. Pet. Inst.*, 57, 1-10 (2014).
- 25) Kiwamu Sue Takeshi Onob, Yukiya Hakuta, Hiroshi Takashima, Daisuke Nishio-Hamane, Takafumi Sato, Motohiro Ohara, Mitsuko Aoki, Yoshihiro Takebayashi, Satoshi Yoda, Toshihiko Hiaki, Takeshi Furuya, "Ultrafast hydrothermal synthesis of Pr-doped Ca_{0.6}Sr_{0.4}TiO₃ red phosphor nanoparticles using corrosion resistant microfluidic devices with Ti-lined structure under high-temperature and high-pressure condition" *Chem. Eng. J.*, 239, 360-363 (2014).
- 26) Takafumi Sato, Toyokazu Sumita, Naotsugu Itoh, "Decomposition kinetics of bean curd refuse in hot compressed water at saturated steam pressure" *J. Chem. Eng. J.*, in press.
- 27) Toru Oba, Yubi Tateno, Misaki Ihara, Takanori Fukusumi, Natsuki Takei, Satoshi Ito, "Radical reaction of chlorophyll derivatives triggered by AIBN" *Tetrahedron Letters*, 55, 725-727 (2014)

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *PP* Masayuki Ishii, Takafumi Sato, Naotsugu Itoh, "Comparison of reactor configurations in the catalytic palladium membrane system for direct phenol synthesis", The fifth conference of Aseanian Membrane Society, Kobe Portopia Hotel, Kobe (2009)
- 2) *PP* T. Sato, S. Mori, T. Tomita, N. Itoh "Effect of temperature, water, and air pressure on carbon monoxide formation in partial oxidation of bitumen in supercritical water," *Pacificchem 2010*, Honolulu, U.S.A. (2010).
- 3) *PP* N. Itoh, N. Yoshida, K. Mimura, T. Sato "Multitubular membrane reactor for dehydrogenation of cyclohexane as a chemical hydrogen carrier," *Pacificchem 2010*, Honolulu, U.S.A. (2010).

- 4) *PP* Naotsugu Itoh, Hikaru Nomura, Masatoshi Sato, Takafumi Sato, "Efficient hydrogen production process from biogas using a palladium membrane reactor," 242nd ACS National Meeting & Exposition, Denver, U.S.A. (2011)
- 5) *PP* Naotsugu Itoh, Kensuke Osawa, Tamami Tokunaga, Takashi Sato, Takafumi Sato, "Synthesis of zeolite composite membranes and its alcohol/water separation performance," 242nd ACS National Meeting & Exposition, Denver, U.S.A. (2011)
- 6) *OP* Takafumi Sato, Tomoyuki Tomita, Naotsugu Itoh, Shinya Sato, Toshimasa Takanohashi, "Hydrogenation of bitumen with formic acid in supercritical water," 242nd ACS National Meeting & Exposition, Denver, U.S.A. (2011).
- 7) *OP* Takafumi Sato, Kentaro Inada, Naotsugu Itoh, "Catalytic Gasification of Bean Curd Refuse in Supercritical Water," CIGR International Symposium on "Sustainable Bioproduction - Water, Energy, and Food", Tokyo, JAPAN. (2011)
- 8) *IS* Naotsugu Itoh, "Commodity chemical hydrides for a hydrogen supply chain," 243rd ACS National Meeting & Exposition, San Diego, U.S.A. (2012)
- 9) *PP* Naotsugu Itoh, Kensuke Osawa, Tamami Tokunaga, Takashi Sato, Takafumi Sato., "Dehydration of isopropyl alcohol-water mixtures with zeolite composite membranes for introducing an energy conservation process," 243rd ACS National Meeting & Exposition, San Diego, U.S.A. (2012)
- 10) *PL* Naotsugu Itoh, , "Highly durable composite palladium membrane prepared by introducing a metallic glue," 12th International Conference on Inorganic Membranes, Enschede, The Netherlands (2012)
- 11) *PP* E. Suga, T. Sato, N. Itoh, "Palladium membrane reactor for ammonia decomposition as a hydrogen carrier," 12th International Conference on Inorganic Membranes, Enschede, The Netherlands (2012)
- 12) *PP* K. Osawa, J. Ishida, T. Sato, N. Itoh, Y. Hasegawa, Y Kiyozum , "Post-treated FAU zeolite composite membranes for dehydration of isopropyl alcohol-water mixture," 12th International Conference on Inorganic Membranes, Enschede, The Netherlands (2012)
- 13) *PP* Atushi Oshima, "Kinetic enhancement of ammonia decomposition as a hydrogen carrier in a composite palladium membrane reactor." 11th International conference on catalysis in membrane reactors, Porto, Portugal (2013)
- 14) *PP* Jun Ishida, "Catalytic HY zeolite membrane for esterification of acetic acid with ethanol" 11th International conference on catalysis in membrane reactors, Porto, Portugal (2013)
- 15) *PP* Naotsugu Itoh, "Enhancement of Propylene Synthesis from Methane and Ethylene using Palladium Membrane Reactor" International membrane Science &

Technology Conference 2013, Melbourne, Australia (2013)

- 16) *PP* Satoshi Sagawa, Naotsugu Itoh, Takafumi Sato, "Development of Pore-through-type Catalytic Membrane Reactor using Asymmetric Porous Tube" International membrane Science & Technology Conference 2013, Melbourne, Australia (2013)
- 17) *PP* Jun Ishida, Naotsugu Itoh, Takafumi Sato, "Continuous Recycled Vapor Permeation using Y type Zeolite Membrane for Dehydration of IPA-water Mixture" International membrane Science & Technology Conference 2013, Melbourne, Australia (2013)
- 18) *PP* Yusuke Takabayashi, Naotsugu Itoh, Takafumi Sato, "Effect of Ion Exchange on CO /CH (N) Separation Performance of Composite FAU-type Zeolite Membrane" International membrane Science & Technology Conference 2013, Melbourne, Australia (2013)

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「依頼」伊藤直次，“水素が関与する触媒プロセスと反応分離膜”，第 104 回触媒討論会，宮崎大学（2009）
- 2) 「一般」佐藤剛史，森章太，伊藤直次 “超臨界水中での重質油改質におけるギ酸添加効果”，化学工学会第 41 回秋季大会，広島大学（2009）
- 3) 「依頼」伊藤智志 “置換基としてのハロゲンの面白さ～メソハロゲン化ポルフィリンを例として” 2010 臭素化学懇話会年会，山口大学（2010）
- 4) 「一般」伊藤智志，赤木雅幸，岩部勇希，矢島裕美子，佐藤剛史，伊藤直次，大庭亨，平谷和久 “超臨界二酸化炭素を利用したイソインドール類の新規合成法” 第 21 回基礎有機化学討論会，名古屋大学（2010）
- 5) 「一般」伊藤直次，二神遼太郎，佐藤剛史 “金属中間層を利用した高耐久性パラジウム薄膜の作製” 化学工学会第 76 年会，東京農工大学（2011）
- 6) 「一般」佐藤 剛史，海老澤 克敏，伊藤 智志，趙 俊傑，斎藤 武尊，伊藤 直次，陶 究 “テトラフェニルポルフィリン金属錯体の水熱合成”，化学工学会第 43 回秋季大会，名古屋工業大学（2011）
- 7) 「一般」佐藤 隆，大沢 謙介，佐藤 剛史，伊藤 直次 “ZSM-5 ゼオライト膜の合成と IPA 水溶液の脱水性能”，第 14 回化学工学会学生発表会，東京工業高等専門学校（2012）
- 8) 「一般」岩部 勇希，大庭 亨，佐藤 剛史，伊藤 直次，伊藤 智志 “超臨界二酸化炭素を用いたイソインドール誘導体合成における反応条件の最適化”，日本化学会第 92 春季年会，慶応大学日吉キャンパス（2012）
- 9) 「一般」伊藤直次，味村健一，吉田直樹，佐藤剛史 “多管式メンブレンリアクターによ

るシクロヘキサン脱水素と CFD 解析”, 石油学会第 55 回年会, タワーホール船堀 (2012)

- 10) 「一般」巻幡大志, 大庭亨, 伊藤智志 “ π 共役拡張ポルフィリンチタニル錯体およびバナジル錯体の合成と物性”, 第 6 回臭素化学懇話会年会, 愛媛大学 (2013)

他 91 件

●著書, 総説, 解説等

- 1) 「総説」Tadafumi Adschiri, Masaru Watanabe, Takafumi Sato, “Role of water in reactions under supercritical conditions - Hydrocarbons.” Hydrocarbon World, 4, 35-37 (2009)
- 2) 「総説」伊藤智志, 諸星知広, 加藤紀弘, 池田宰「微生物の病原性抑制効果を有する新規シクロデキストリン誘導体」、ケミカルエンジニアリング、54, 739-743 (2009)
- 3) 「解説」佐藤剛史, 超臨界反応場の可視化に関する最近の動向, 化学工学, 74, 47 (2010)
- 4) 「解説」佐藤剛史 “化学工学年鑑 2011 6.4 反応分離” 化学工学, 75, 648-649 (2011)
- 5) 「解説」伊藤智志 “アメリカの大学における研究室運営と学科運営について” PETROTECH, 第 35 巻, 284-288 (2012)
- 6) 「総説」松島さくら子, 北川美穂, 伊藤智志 “ブータン漆工芸の現状” 宇都宮大学教育学部紀要” 第 62 号, 161-174 (2012)
- 7) 「総説」佐藤剛史, 化学工学年鑑 2012 9.1 超臨界流体, 化学工学, 76, 614 (2012)
- 8) 「総説」佐藤剛史, 伊藤智志, 陶究, 伊藤直次, 有機溶剤を用いないポルフィリン金属錯体の製造法, ケミカルエンジニアリング, 57, 835-841 (2012)
- 9) 「紀要」松島さくら子, 北川美穂, 伊藤智志, ブータン漆工芸の現状, 宇都宮大学教育学部紀要, 第 62 号, 161-174 (2012)
- 10) 「解説」伊藤智志, アメリカの大学における研究室運営と学科運営について, PETROTECH, 第 35 巻, 284-288 (2012)
- 11) 「解説」伊藤直次, メタンを含むバイオガスの低温水蒸気改質による水素製造, ファインケミカル、Vol. 41, 20-27 (2012)
- 12) 「解説」伊藤直次, 混合系有機ハイドライドによる水素貯蔵輸送, アロマティクス、第 64 巻, 206-220 (2012)
- 13) 「著書」佐藤剛史, 超臨界水中でのフェノールの有機合成, 新しい溶媒を用いた有機合成, 第 4 章第 3 節 S&T 出版 (2013)
- 14) 「著書」池田宰, 加藤紀弘, 諸星知広, 伊藤智志, 奈須野恵理, 微生物コミュニケーション(Quorum Sensing)制御への応用, シクロデキストリンの科学と技術, シーエムシー出版 (2013)
- 15) 「著書」伊藤智志, 有機スペクトル解析—MS・IR・NMR データを読む (臼杵克之助, 宇野英満, 築部浩 編), 第 2 部担当, 丸善出版 (2014)

●特許（外国，国内，公開，出願）

- 1) 「国内」公開（特開 2009-211013），伊藤智志、大坪才華、荒牧晋司、秋山誠治「半導体材料、電子デバイス、充電変換素子、テトラビシクロポルフィリン及び半導体材料の製造法」（平成 21 年 9 月出願）
- 2) 「国内」出願（特願 2011-19291），佐藤剛史、伊藤智志、伊藤直次「ポルフィリン金属錯体の製造方法」（平成 23 年 1 月出願）
- 3) 「国内」公開（特開 2012-180294），伊藤智志、伊藤貴洋、武井出、大坪才華「テトラビシクロポルフィリンバナジル錯体の製造法、半導体層形成用組成物、電子デバイスの製造法、太陽電池及び太陽電池モジュール」（平成 23 年 2 月出願）
- 4) 「国内」公開（特開 2013-163649）伊藤智志，大坪才華，秋山誠治「環状化合物錯体の製造方法、半導体層形成用組成物、電子デバイスの製造方法、太陽電池、及び太陽電池モジュール」（平成 23 年 9 月出願）
- 5) 「国内」特許（第 4812042 号）伊藤智志，伊藤直次，佐藤剛史「イソインドール類の製造方法、及びイソインドール類の製造方法によって製造されるイソインドール類」（平成 23 年 9 月 2 日登録）
- 6) 「国内」特許（第 4905724 号）伊藤智志，諸星知広，池田幸，加藤紀弘「シクロデキストリン誘導体、シクロデキストリン誘導体の製造方法、及びクオラムセンシングの阻害方法」（平成 24 年 1 月 20 日登録）
- 7) 「国内」特許（第 5044788 号）佐藤剛史，伊藤直次，伊藤智志「トランス体のエチレン誘導体の製造方法」（平成 24 年 7 月 27 日登録）
- 8) 「国内」出願（特願 2013-012401）伊藤智志，大坪才華，秋山誠治，佐藤佳晴，荒牧晋司「電子デバイス，太陽電池，太陽電池モジュール及び半導体層形成用組成物」（平成 25 年 1 月出願）
- 9) 「国内」特許（第 5274805 号）伊藤智志，小野昇，荒牧晋司「フッ素化芳香族化合物の製造法並びにフッ素化ビシクロポルフィリン及びフッ素化テトラベンゾポルフィリン」（平成 25 年 5 月 24 日登録）
- 10) 「外国（アメリカ）」 US 8,481,753,B2, Satoshi Ito, Naotsugu Itoh, Takafumi Sato 「METHOD FOR PRODUCING ISOINDOLE」（2013/7/9 登録）
- 11) 「外国（ヨーロッパ）」 EP 2 248 802 B1 「METHOD FOR PRODUCING ISOINDOLE AND ISOINDOLE PRODUCED BY THE METHOD FOR PRODUCING ISOINDOLE」 Satoshi Ito, Naotsugu Itoh, Takafumi Sato (2013/7/31 登録)
- 12) 「外国（中国）」 CN 101983189 B 伊藤智志，伊藤直次，佐藤剛史「漢字表記が不可能なためタイトル省略」（2013/8/7 登録）
- 13) 「国内」出願（特願 2013-263006）伊藤智志，大坪才華，秋山誠治，佐藤佳晴，荒牧晋司「電子デバイス，太陽電池，太陽電池モジュール及び半導体層形成用組成物」（平成 25 年 12 月出願）

●受賞

- 1) 化学工学会宇都宮大会学生賞（特別賞）渋谷 有衣，大澤 謙介，佐藤 剛史，伊藤 直次，アルコール類の脱水用ゼオライト膜の合成と評価，（2010年8月）。
- 2) 石油学会論文賞 味村健一，吉田直樹，佐藤剛史，伊藤直次，シクロヘキサン脱水素用多管式メンブレンリアクターのCFD解析と設計，（2012年5月）。
- 3) 化学工学会 第44回秋季大会 反応工学優秀発表賞 須賀英太、アンモニア分解における反応速度モデルと水素分離効果（2012年9月）
- 4) 化学工学会 第44回秋季大会 分離プロセス部会賞、石田潤、Y型ゼオライト膜によるIPA-H₂O蒸気の連続回分脱水（2012年9月）
- 5) 石油学会 第18回JPIJSポスターセッション 最優秀賞、佐川聡、隔壁型触媒によるメタノールの酸化改質反応（2013年5月）
- 6) 化学工学会 第45回秋季大会 分離プロセス部会賞、佐藤柗平、パラジウム-銀水素透過膜を電極とする水電解装置の作製（2013年9月）

●外部資金（科学研究費：科研、奨学寄付金：奨学，受託研究：受託，共同研究：共同）

- 1) 「受託」伊藤直次，6,790千円「グリーン・サステイナブルケミカルプロセス基盤技術開発研究開発項目③-2 規則性ナノ多孔体精密分離膜部材基盤技術の開発」NEDO（平成21年）
- 2) 「受託」伊藤直次，2,399千円「平成21年度地球温暖化対策技術開発事業（バイオマス水素によるMgH₂の実用化技術とバイオマス種の利用拡大）」環境省（平成21年）
- 3) 「受託」佐藤剛史，2,000千円「高含水廃棄バイオマスの高温高压水ガス化による無害化処理とエネルギー製造」JST シーズ発掘試験（平成21年）
- 4) 「共同」佐藤剛史，6,000千円「超臨界水を利用した超重質油分解における部分酸化・水素化反応の探索」（財）石油産業活性化センター（平成21年）
- 5) 「受託」伊藤直次，2,638千円「グリーン・サステイナブルケミカルプロセス基盤技術開発研究開発項目③-2 規則性ナノ多孔体精密分離膜部材基盤技術の開発」NEDO（平成22年）
- 6) 「受託」伊藤直次，6,189千円「平成22年度地球温暖化対策技術開発事業（バイオマス水素によるMgH₂の実用化技術とバイオマス種の利用拡大）」環境省（平成22年）
- 7) 「共同」佐藤剛史，5,000千円「超臨界水を利用した超重質油分解における部分酸化・水素化反応の探索」（財）石油産業活性化センター（平成22年）
- 8) 「共同」伊藤智志，3,620千円「共役拡張分子の物性制御と光・電子材料への応用」（株）三菱化学（平成20-23年）
- 9) 「科研」佐藤剛史，1,300千円「高温高压水中への連続的水素供給のための水素透過型水電解セルの開発」，文部科学省（平成23年）
- 10) 「受託」伊藤直次，5,446千円「グリーン・サステイナブルケミカルプロセス基盤技術

開発研究開発項目③-2 規則性ナノ多孔体精密分離膜部材基盤技術の開発」 NEDO
(平成 23 年)

- 11) 「共同」 佐藤剛史, 4,500 千円「超臨界水を利用した超重質油分解における部分酸化・水素化反応の探索」(財)石油産業活性化センター(平成 23 年)
- 12) 「奨学」 伊藤智志, 100 千円「臭素化学に関する研究」, 臭素化学懇話会(平成 23 年)
- 13) 「受託」 伊藤智志, 1,700 千円「新規有機薄膜太陽電池用半導体材料の開発」, JST 究成果展開事業 研究成果最適展開支援プログラム, フィージビリティスタディ【FS】ステージ(平成 23 年)
- 14) 「科研」 佐藤剛史, 1,400 千円「高温高压水中への連続的水素供給のための水素透過型水電解セルの開発」, 文部科学省(平成 24 年)
- 15) 「受託」 伊藤直次, 2,400 千円「グリーン・サステイナブルケミカルプロセス基盤技術開発研究開発項目③-2 規則性ナノ多孔体精密分離膜部材基盤技術の開発」 NEDO(平成 24 年)
- 16) 「奨学」 佐藤剛史, 1,925 千円「高温高压水へのバイオマス溶解と部分酸化反応を利用した低温水素製造プロセス」岩谷科学技術研究助成(平成 24 年)
- 17) 「共同」 伊藤智志, 1,000 千円「共役拡張分子の物性制御と光・電子材料」, (株)三菱化学科学技術研究センター(平成 24 年)
- 18) 「受託」 伊藤智志, 300 千円「新規開発医療用ポリエステル製綿球の分析」, (株)佐藤化成工業所(平成 24 年)
- 19) 「共同」 伊藤智志, 150 千円「新たな機能発現を目指した機能性ナノ材料の開発に関する研究」, 物質・デバイス領域共同研究拠点(一般研究課題, 東工大資源研)(平成 24 年)
- 20) 「科研」 伊藤直次, 7,800 千円「サブミクロン細孔を有する非対称多孔質膜基材によるポアスルー触媒膜反応」, 文部科学省(平成 24 年)
- 21) 「科研」 佐藤剛史, 500 千円「高温高压水中への連続的水素供給のための水素透過型水電解セルの開発」, 文部科学省(平成 25 年)
- 22) 「受託」 伊藤直次, 2,609 千円「グリーン・サステイナブルケミカルプロセス基盤技術開発研究開発項目③-2 規則性ナノ多孔体精密分離膜部材基盤技術の開発」 NEDO(平成 25 年)
- 23) 「受託」 佐藤剛史, 10,000 千円「水素分離膜・精製技術の研究開発:アンモニア分解用メンブレンリアクターの研究開発とプロセス検討」 JST-ALCA(平成 25 年)
- 24) 「奨学」 佐藤剛史, 650 千円「高温高压水によるコーク前駆体の分散・抽出効果と水性ガスシフト反応による水素供与を利用した重質油のコークレス改質プロセスの開発」石油学会若手研究者への助成(平成 25 年)
- 25) 「共同」 伊藤智志, 300 千円「ベンゾポルフィリン骨格を有する有機半導体材料の高機

能化」物質・デバイス領域共同研究拠点 特定研究（平成 25 年）

- 26) 「受託」伊藤智志, 1,000 千円「テトラベンゾポルフィリン類の機能化に関する基礎研究」高橋産業経済研究財団（平成 25 年）

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

- 1) 「キャンパスベンチャーグランプリ」への応募 1 件
須賀英太「半導体産業向け高純度水素供給器」最終選考進出（平成 23 年）
- 2) 「キャンパスベンチャーグランプリ」への応募 1 件
須賀英太 157 件の応募中、1 次、2 次選考を経て最終選考会候補者 10 件に選出（平成 24 年）

超薄分子膜を利用した界面制御技術の開発と 先端機能材料の創製

飯村 兼一* (准教授)

* 工学部応用化学科，大学院工学研究科学際先端システム学専攻
emlak@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1. はじめに

我々の周りにある全ての物質は必ず界面で他と接しており、材料表面の濡れ性や接着性、吸着性、摩擦・潤滑特性、コロイドの分散性、水／油系の可溶化（乳化）、洗浄など、界面の構造や性質を制御することによって、多様な機能が発現されている。一方、生体に目を向けると、例えば、細胞を包んでいる細胞膜は、脂質と呼ばれる両親媒性分子の二分子膜により形成されており、この自発的に構造制御された分子膜を介して物質や情報の授受が起こり、生命活動が支えられている。

界面の制御は、日用品から最先端ナノテクノロジーに至るまでの広範囲にわたる製品群における基盤技術、そして生体における高度な機能発現の根幹をなすものである。本プロジェクトでは、界面に両親媒性分子によって形成される超薄分子膜に着目し、分子膜における自己組織化現象を利用した界面構造・性質の制御法の開発と先端機能材料の構築を目的とした。

2. 界面構造の精密解析

界面分子膜は、数ナノメートルの厚さしか持たないために、その構造の分子レベルでのキャラクターゼーションのためには、高度な測定法の利用が必須である。これまでに、当研究グループでは、水面上の単分子膜に対して、シンクロトロン放射光を用いた X 線反射率 (XR) 法や微小角入射 X 線回折 (GIXD) 法を適用し、膜構造の精密解析を進めてきた。XR 法は、層状構造体の各層の厚さや電子密度、界面ラフネスなどの膜面外構造を、GIXD 法は分子配列・配向などの膜面内構造を、サブオングストロームの分解能で解析するための優れた手法である。一方、界面活性剤やタンパク質などの両親媒性分子を含む水溶液中に固体基板を浸漬すると、固／水界面に形成される吸着膜に対しては、その形成場が水に埋もれた界面であることから容易ではなく、精密構造解析法の開発が切望されていた。

そこで本プロジェクトでは、固／水界面に対する XR・GIXD 測定システムを開発し、それを用いて界面活性剤吸着膜の構造をその場評価することを試みた。SPring-8 のビームライン BL46XU の多軸回折計に自作試料セルを設置し、そのセル内部に、界面活性剤水溶液を満た

し、シリコンウエハ（疎水鎖末端に極性官能基を持つ有機シラン化合物で表面処理されている）をセットし、シリコンウエハと水の界面に形成される界面活性剤の吸着膜構造に対して測定を行った。XR 測定データのカーブフィッティング解析により求めた電子密度プロファイル (Fig. 1) から、界面では二次元的に均一に成長した二分子膜が基板近傍に形成され、その外側(水側)に島状二分子膜が分散して存在していることが示唆された。また、水溶性ポリマーを含む系では、二分子膜の間および二分子膜と固体基板の間にポリマー層の存在が示唆された。GIXD 測定結果も考慮すると、吸着二分子膜中では炭化水素鎖は指組構造で密にパッキングされ、表面から傾いて配向しているものと考えられる。

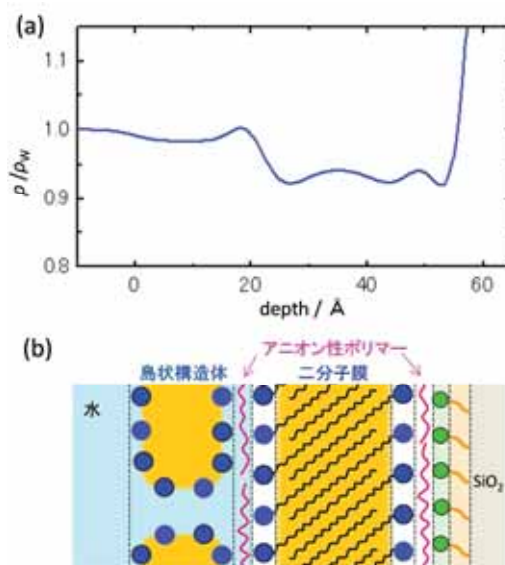


Fig. 1 (a) 電子密度プロファイルと(b)吸着構造の模式図。

3. 界面構造制御と機能化

3.1 二次元の自己組織化規則構造を鋳型とした三次元構造体の形成

界面に吸着した両親媒性分子は、様々な相互作用のバランスによって自己組織化する。その現象を利用した二次元規則構造の作製法は、リソグラフィ法に比べると構造の任意性や精度などの点では劣るものの、高価な装置を必要とせず、簡便な操作で大面積に渡る構造形成が可能であるという利点がある。これまで我々は、混合展開単分子膜における自発的なマイクロ相分離現象を利用して形成させた二次元構造に対して、分子構造や成膜条件による構造制御を達成してきた。本プロジェクトでは、次のステップとして、その二次元構造を鋳型とした三次元構造体の作製法の開発に取り組んだ。

ここでは、孤立した親水性空間をゾルゲル反応場として利用した。疎水性連続相の中に親水性のドメイン領域が分散しているマイクロ相分離構造を持つ基板を、疎水性有機化合物を溶媒とした有機シラン溶液中に浸漬すると、親水性ドメイン領域は、二次元的には疎水性連続相によって、三次元的には溶媒によって閉じ込められることになる。その異性質領域において、分子の配向を伴って優先的にゾルゲル反応が進行することにより、親水性ドメイン領域からのみ基板から垂直方向にゾルゲル構造体が成長することを見出した (Fig. 2)。

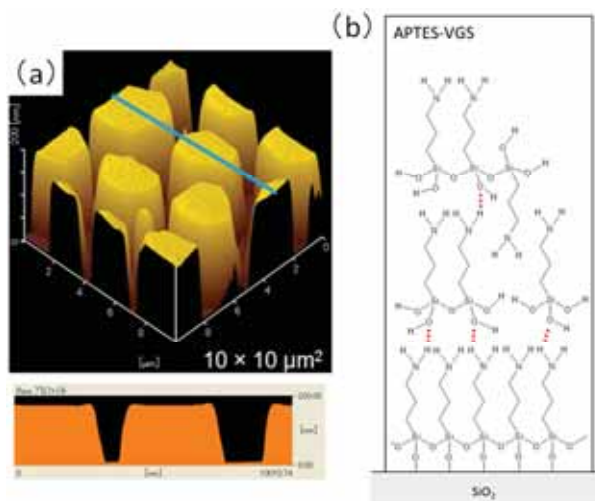


Fig. 2 (a) VGS 表面の原子間力顕微鏡イメージ (10 $\mu\text{m} \times 10 \mu\text{m} \times 200 \text{ nm}$) と 断面図, (b) VGS の分子充填構造の模式図。

3.2 バイオインターフェースモデル

生体には様々な界面（バイオインターフェース）が存在し、それらの界面における分子の吸着や化学反応、物質の授受などが高度な生体機能の発現に重要な役割を担っている。それらの生体界面では、多様な化学物質が時空間的に精緻に組み合わせられて機能しており、それら全てを完全に再現するという訳にはいかないが、単純化されたモデル界面を用いた研究からは、生体機能を担う分子論的基盤を理解するための有用な情報が得られる。

本プロジェクトでは、生体脂質膜や毛髪表面などを模倣したモデル界面を用い、界面活性剤やタンパク質などの吸着能評価や分子間相互作用について検討した。脂質単分子膜に対する界面活性剤の吸着実験 (Fig. 3) では、それらの分子間相互作用の指標となり得る特性値を系統的にまとめる研究が進められた。毛髪表面モデル膜に対しては、前述の固/水界面 X 線反射・回折法による吸着膜構造の精密評価、および表面官能基に対する界面活性剤の選択的吸着能について評価した。

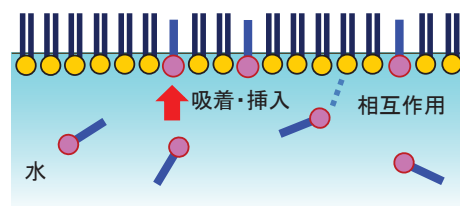


Fig. 3 脂質単分子膜に対する界面活性剤の吸着実験の模式図。

3.3 光機能性薄膜

光合成細菌の光合成膜では、タンパク質-色素複合体が組織的に配置され、高効率な光捕集と光エネルギー移動、電荷分離が実現されている。これらのタンパク質ユニットを用いて人工的な組織化構造を再構築する手法は、光合成メカニズムの理解やナノバイオデバイス創出のための要素技術として重要である。そこで、光合成細菌から単離したタンパク質複合体を用いて、固体基板上へ吸着膜を作製し、その吸着膜構造と光電流特性を評価した。吸着膜に対する原子間力顕微鏡観察の結果から、アンテナタンパク質-反応中心タンパク質複合体は、パッチ状のドメインを形成して単分子層吸着していることが示唆された。また、湿式光電流測定法からは、光の照射に応答した電流の発生が確認された。更に、基板表面から垂直配向させた酸化半導体である酸化亜鉛のナノロッドを利用したタンパク質吸着量の増加、および高波長範囲光の照射によって、大幅に光応答電流を増加させることが可能であった。

また、両親媒性有機半導体化合物による光伝導性分子膜の構築も試みた。グラフェン骨格を持つ化合物の単分子膜では、スリップスタック充填と分子配向に基づくと考えられる約 20 nm 幅の光伝導性ナノワイヤー構造の形成を見出した。また、電子ドナー/アクセプター型両親媒性分子の共存による光電変換能の向上を明らかにした。

4. おわりに

上述以外にも、分子潤滑や Ag 固定化による抗菌性表面構築、金属表面のぬれ性向上、有機溶媒に分散した金ナノ粒子の開発に関わる研究を推進した。いずれのテーマでも、用いた物質系は異なるものの、基本的には、界面における自己組織化構造の詳細なキャラクターゼーションと構造制御に基づき、新規界面構造の創出や界面そのものの機能化、界面現象に関わる物質（例えば界面活性剤）の機能性向上が達成された。本プロジェクトにより得られた知見は、直接的あるいは間接的に、表面・界面に関わる機能性材料の開発に寄与する。

プロジェクト 15 超薄分子膜を利用した界面制御技術の開発と先端機能材料の創製
(担当者) 飯村 兼一

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) T. Nakakawaji, M. Amo, H. Matsumoto, T. Kato, K. Iimura, “Mechanism of Perfluoropolyether Chains Bonding on Overcoat Surface by Ultraviolet Irradiation, *Tribology Online*, **4**, 88-91 (2009).
- 2) M. Sato, T. Suzuki, R. Di Paola, Y. Urita, A. Cecere, R. Savino, Y. Abe, K. Iimura, Y. Shinmoto, H. Ohta, M. Fukagawa, T. Furusawa, N. Suzuki, “Anomalous Temperature Dependence of the Surface Tension in Polyol Process-Synthesized Silver Nanofluids with Higher Alcohols, *Proc. 17th Symposium on Thermophysical Properties*, 5 pages (CD-ROM) (2009).
- 3) Y. Abe, M. Fukagaya, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, “Advanced Integrated Cooling Systems for Thermal Management in Data Centers, *Proc. Inter PACK 2009, IPACK2009-89009*, 619-624 (2009).
- 4) N. Kato, Y. Katayama, H. Semba, K. Iimura, “Aqueous Dispersion of J-Aggregates Prepared by Polyion Complexation and its Two-Photon Excited Fluorescence Property, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **49**, 031601-1-6 (2010).
- 5) M. M. Hossain, K. Iimura, M. Yoshida, T. Sakai, T. Kato, “Effect of Head Groups on the Phase Transitions in Gibbs Adsorption Layers at the Air-Water Interface, *J. Colloid Interface Sci.*, **348**, 146-151 (2010).
- 6) M. M. Hossain, K. Iimura, T. Kato, “Comparison of phase behavior between water soluble and insoluble surfactants at the air-water interface, *Applied Surface Science*, **257**, 1129-1133 (2010).
- 7) Y. Abe, Y. Urita, M. Sato, K. Iimura, T. Hayashi, M. Yokura, “Heat Pipes with Self-wetting Fluids and Nano Self-wetting Fluids, *Proc. 15th International Heat Pipe Conference (15th IHPC)*, 9 pages (CD-ROM) (2010).
- 8) Y. Abe, M. Fukagaya, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, “Development of Advanced Cooling Network Systems for Data Centers, *Proc. the 14th International Heat Transfer Conference (IHTC14)*, IHTC14-22045-1-6 (2010).
- 9) M. M. Hossain, K. Iimura, M. Yoshida, T. Kato, “Temperature Dependent Dendritic Domain Shapes in Langmuir Monolayers of Tetradecanoyl N-ethanolamide at the Air-water Interface *J. Colloid Interface Sci.*, **348**, 220-224 (2011).
- 10) C. Akabane, N. Kato, K. Iimura, “Monolayer Characterization of Amphiphilic Hexa-peri-hexabenzocoronene Derivatives, *IOP Conference Series, “ Materials Science and Engineering*, **24**, 012023-1-4 (2011).

- 11) M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, T. Kitagawa, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, "New Thermal Management Systems for Data Centers, *Proc. ASME/JSME 2011 8th Thermal Engineering Joint Conference, AJTEC 2011-44399-1-6* (2011).
- 12) Y. Shinmoto, Y. Asada, H. Kobayashi, S. Kanazawa, H. Ohta, M. Fukagaya, Y. Abe, M. Ouchi, M. Sato, K. Iimura, "Development of High Heat Flux Cooling Jacket for Electronics Devices by using Flow Boiling, *Proceedings of the International Conference on Electronics Packaging (ICEP-2011)*, 148-153 (2011).
- 13) M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, "Liquid Cooling Network System for Energy Conversion in Data Centers, *Proceedings of the International Conference on Electronics Packaging (ICEP-2011)*, 359-364 (2011).
- 14) M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, "Liquid Cooling Network Systems for Energy Conservation in Data Centers, *Proceedings of the ASME 2011 InterPACK (IPACK2011)*, IPACK2011-52066, 7 pages (2011).
- 15) C. Suchomski, C. Reitz, K. Brezesinski, C. Tavares de Sousa, M. Rohnke, K. Iimura, J. P. Esteves de Araujo, T. Brezesinski, "Structural, Optical, and Magnetic Properties of Highly Ordered Mesoporous MCr_2O_4 and $\text{MCr}_{2-x}\text{Fe}_x\text{O}_4$ (M = Co, Zn) Spinel Thin Films with Uniform 15 nm Diameter Pores and Tunable Nanocrystalline Domain Sizes, *Chem. Mater.*, **24**, 155-165 (2012).
- 16) C. Okano, M. Arai, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, " β -Cyclodextrin Interaction with *N*-hexanoyl homoserine lactone as Quorum Sensing Signal Produced in Gram-Negative Bacteria, *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.*, **37**, 315-318 (2012).
- 17) E. Nasuno, T. Umemura, T. Ogi, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Inhibitory Effects of Quorum Sensing in *Serratia Marcescens* AS-1 by ElectronPolyvinyl Alcohol Fibers Immobilized with Cyclodextrin, *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.*, **37**, 593-596 (2012).
- 18) M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, T. Kitagawa, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, "New Thermal management Systems for Data Centers, *J. Thermal Science and Engineering Applications*, **4**, 031005-1-10 (2012).
- 19) M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, "Thermal Management Systems for Data Centers with Liquid Cooling Technique of CPU, *Proc. 13th IEEE Intersociety Conference on Thermal and Thermomechanical Phenomena in Electronic Systems (ITherm 2012)*, 790-798 (2012).
- 20) M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, T. Kitagawa, H. Ohta, S. Yasuhisa, M. Sato, K. Iimura, "New Thermal Management Systems for Data Centers, *Journal of Thermal Science and Engineering Applications*, **4** (3), 031005 (10 pages) (2012).

- 21) H. Matsubara, T. Takaichi, T. Takiue, M. Aratono, A. Toyoda, K. Iimura, P. A. Ash, C. D. Bain, "Morphological Transformations in Solid Domains of Alkanes on Surfactant Solutions, *J. Phys. Chem. Lett.*, **4**, 844-848 (2013).
- 22) H. Ohta, Y. Fukuyama, A. Kawakubo, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, M. Fukagaya, Y. Abe, Development of Cooling System for Data Servers using Flow Boiling of Nanofluid, *The 24th International Symposium on Transport Phenomena (ISTP-24)*, 6 pages (2013).
- 23) 赤羽千佳, 宇留賀朋哉, 谷田肇, 豊川秀訓, 寺田 靖子, 飯村兼一, 尾形葵, 三浦隆博, 豊田彩, "両親媒性有機半導体化合物の単成分および混合単分子膜における分子配列構造の X 線反射率解析, *SPring-8/SACLA 利用研究成果集*, **1**, 89-93 (2013).
- 24) M. Kageyama, Y. Yahiro, S. Karube, T. Shiraku, Teiji Kato, Norihiro Kato, Toshiyuki Kashiwai, Masako Nomura, Yuichi Nishida, Narumi, Tagaki, Ken-ichi Iimura, "Adsorption of Dimethyl Silicone onto Hair-surface Models Prepared with Micro-phase Separated Monolayers, *J. Oleo Sci.*, in press.
- 25) M. Kageyama, Y. Nishida, N. Tagaki, N. Suzuki, T. Kato, N. Kato, K. Iimura, "Surface Modification of Self-assembled Monolayers of Thiol- and Disulfide- terminated Organosilanes by UV/ozone Treatment toward Fabrication of Damaged-Hair Surface Models, *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.* in press.
- 26) H. Kondo, K. Iimura, "Effect of Partially Fluorinated Alkyl Chain on Friction and Surface Energy, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, accepted.
- 27) E. Nasuno, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Quick detection of cell-to-cell communication in gram-negative bacteria by color change of polymer matrix entrapping reporter bacteria", *Mater. Res. Innovat.*, (accepted).

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *OP* K. Iimura, T. Yuzawa, T. Ito, "Selective surface modification with two-dimensional micro-templates formed in mixed Langmuir monolayers", 13th IACIS International Conference on Surface & Colloid Science / 83rd ACS Colloid & Surface Science Symposium, New York, USA (2009).
- 2) *PP* A. Kawagishi, K. Iimura, "Adsorption of amyloid A β peptide on raft-lipid monolayers at the air/water interface", 4th International Workshop on Vibrational Spectroscopy of Thin Films, Potsdam, Germany (2009).
- 3) *PP* C. Akabane, M. Suzuki, K. Iimura, "Molecular Arrangement and Photocurrent Generation in Monolayers of HBC Derivatives", 13th IACIS International Conference on Surface & Colloid Science / 83rd ACS Colloid & Surface Science Symposium, New York, USA (2009).
- 4) *OP* M. Sato, T. Suzuki, R. Di Paola, Y. Urita, A. Cecere, R. Savino, Y. Abe, K. Iimura, Y.

- Shinmoto, H. Ohta, M. Fukagawa, T. Furusawa, N. Suzuki, “Anomalous Temperature Dependence of the Surface Tension in Polyol Process-Synthesized Silver Nanofluids with Higher Alcohols”, *17th Symposium on Thermophysical Properties*, Boulder, USA (2009).
- 5) *PP* Y. Abe, M. Fukagaya, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, “Development of Advanced Cooling Network Systems for Data Centers”, *14th International Heat Transfer Conference (IHTC14)*, IHTC14, Washington D.C., USA (2010).
 - 6) *PP* K. Iimura, T. Miura, T. Ito, N. Kato, “Vertically grown structures of silica precursors on monolayer template surfaces”, International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science 2010, Makuhari Messe, Japan (2010).
 - 7) *PP* C. Akabane, K. Iimura, N. Kato, T. Fukushima, Y. Yamamoto, T. Aida, “Monolayer Characterization and Photocurrent Property of Organic Semiconductor Molecules with Partial Graphene Skeleton”, International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science 2010, Makuhari Messe, Japan (2010).
 - 8) *PP* T. Matsuzaki, K. Iimura, H. Ikegai, “Self-assembly of *Vibrio cholerae* hemolysin adsorbed to lipid monolayers at air/water interface”, International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science 2010, Makuhari Messe, Japan (2010).
 - 9) *PP* A. Yamamoto, K. Iimura, N. Kato, H. Semba, “Synthesis of metal nanoparticle - organic dye aggregate complex for enhancement of two-photon-excited fluorescence generation”, International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science 2010, Makuhari Messe, Japan (2010).
 - 10) *PP* Y. Wachi, F. Kurayama, T. Oba, N. Kato, N. Suzuki, K. Iimura, “Structures and photocurrent properties of monolayers of photosynthetic pigments”, International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science 2010, Makuhari Messe, Japan (2010).
 - 11) *PP* S. Higashi, K. Iimura, M. Sato, Y. Abe, M. Ouchi, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Fukagaya, “Mechanisms of temperature dependency of surface tension of gold nanoparticle-dispersed alcohol aqueous solution”, International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science 2010, Makuhari Messe, Japan (2010).
 - 12) *PP* C. Ueno, T. Nakada, K. Iimura, N. Kato, “Fast response of organic-inorganic hybrid hydrogel prepared by freezing”, IUMRS 11th International Conference in Asia (IUMRS-ICA2010), (Sept. 25-28 2010, Qingdao, China).
 - 13) *OP* K. Iimura, T. Ito, T. Miura, N. Kato, “Formation and structure control of vertically grown silica precursors on template monolayer surfaces”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010).
 - 14) *PP* C. Akabane, K. Iimura, N. Kato, T. Fukushima, Y. Yamamoto, T. Aida, “Monolayer characterization and photocurrent generation of organic semiconductor molecules with partial structure of graphene skeleton”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin

Societies, Honolulu, USA (2010).

- 15) *PP* T. Matsuzaki, K. Iimura, H. Ikegai, “Adsorption and aggregation of *Vibrio Cholerae* hemolysin on lipid monolayers as biomembrane model”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010).
- 16) *PP* S. Higashi, K. Iimura, M. Sato, Y. Abe, M. Ouchi, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Fukagaya, “Temperature dependency of surface tension of gold nanoparticles-dispersed alcohol aqueous solutions”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010).
- 17) *PP* A. Yamamoto, K. Iimura, N. Kato, H. Semba, “Fabrication of dye aggregate / metal nanoparticle complexes toward enhancement of two-photon-excited fluorescence generation”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010).
- 18) *PP* Y. Wachi, F. Kurayama, T. Oba, N. Kato, K. Iimura, “Properties and structures of spread monolayers of chlorophyll derivatives”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010).
- 19) *PP* C. Murayama, T. Nakada, K. Iimura, N. Kato, “Rapid swelling and shrinking of organic-inorganic hybrid hydrogel prepared by ice templating”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010).
- 20) *PP* H. Wagatsuma, K. Suguro, K. Iimura, N. Kato, “Microporous organic-inorganic hybrid hydrogel prepared by temperature-induced phase separation”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010).
- 21) *PP* C. Oka, T. Matsushima, K. Iimura, N. Kato, “Enhancement of convective flow through the porous hydroxyethyl cellulose-graft- poly(N-isopropylacrylamide) networks prepared by ice-templating”, 2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, Honolulu, USA (2010).
- 22) *OP* K. Iimura, “Form 2D to 3D structuring by self-assembly, “vertically grown columnar structures on monolayer-template surfaces”, Trends in Colloid and Interface Science, Potsdam, Germany (2011).
- 23) *OP* M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, T. Kitagawa, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, “New Thermal Management Systems for Data Centers”, *ASME/JSME 2011 8th Thermal Engineering Joint Conference*, Honolulu, USA (2011).
- 24) *OP* M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, “Liquid Cooling Network System for Energy Conversion in Data Centers”, *International Conference on Electronics Packaging (ICEP-2011)*, Nara, Japan (2011).
- 25) *OP* M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, “Liquid Cooling Network Systems for Energy Conservation in Data Centers”, *Proceedings of the ASME 2011 InterPACK (IPACK2011)*, IPACK2011, Portland, Oregon, USA (2011).

- 26) *OP* N. Kato, M. Usami, H. Semba, T. Naito, K. Iimura, “J-Aggregate-Adsorbed Nanoparticles for RGB Fluorescent Imaging Using Confocal and Two-Photon Microscopy”, O28, 12th European Conference on Organized Films, Sheffield, UK (2011).
- 27) *PP* C. Akabane, N. Kato, K. Iimura, T. Fukushima, Y. Yamamoto, T. Aida, “Photoconducting Properties and Structures of Monolayers of Amphiphilic Organic Semiconductor Molecules with Graphene Fragment”, International Symposium on Surface Science, Tokyo, Japan (2011).
- 28) *PP* K. Iimura, A. Yamamoto, T. Furusawa, H. Semba, N. Kato, “Preparation of Organic Dye/Gold Nanoparticle Complexes toward Enhancement of Two-Photon Excited Fluorescence”, International Symposium on Surface Science International Symposium on Surface Science, Tokyo, Japan (2011).
- 29) *PP* H. Usami, T. Naitoh, N. Kato, K. Iimura, “Fabrication of J-aggregate-adsorbed microparticles, Toward two-photon fluorescent staining or labeling of biological samples”, International Symposium on Surface Science, International Symposium on Surface Science, Tokyo, Japan (2011).
- 30) *OP* C. Akabane, N. Kato, K. Iimura, T. Fukushima, Y. Yamamoto, T. Aida, “Studies on Structures and Photoconducting Properties of Monolayer of Amphiphilic Organic Semiconductor Molecules with a Graphene Fragment”, International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference (IACIS 2012), Sendai, Japan (2012).
- 31) *PP* A. Ogata, K. Iimura, I. Hirosawa, I. Oishi, M. Hosokawa, “Structures of Surfactant Adsorbed Films at the Solid/Water Interface Studied by X-ray Reflectometry”, International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference (IACIS 2012), Sendai, Japan (2012).
- 32) *PP* A. Ohyoshi, K. Iimura, H. Kanematsu, H. Ikegai, D. Kuroda, “Evaluation of corrosion process for metal surface using EPS model films with patterned surface asperity”, International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference (IACIS 2012), Sendai, Japan (2012).
- 33) *PP* A. Toyoda, K. Iimura, S. Kabashima, M. Kageyama, I. Yoshikawa, K. Araki, G. Brezesinski, “Structures and Properties of Langmuir Monolayers of Amphiphilic Sulfamide Derivatives”, International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference (IACIS 2012), Sendai, Japan (2012).
- 34) *PP* T. Miura, N. Kato, K. Iimura, “A formation mechanism of vertically grown structures of pendant-tail organosilanes on micro-phase separated monolayers”, International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference (IACIS 2012), Sendai, Japan (2012).
- 35) *OP* M. Ouchi, Y. Abe, M. Fukagaya, H. Ohta, Y. Shinmoto, M. Sato, K. Iimura, “Thermal Management Systems for Data Centers with Liquid Cooling Technique of CPU”, 13th IEEE Intersociety Conference on Thermal and Thermomechanical Phenomena in Electronic Sys-

- tems (ITherm 2012), San Diego, USA (2012).
- 36) *OP* K. Iimura, T. Miura, N. Kato, “Vertically grown structures on LB monolayer template surfaces, 14th International Conference on Organized Molecular Films”, Paris, France (2012).
 - 37) *PP* N. Kato, M. Usami, T. Naito, K. Iimura, “Two-photon excited fluorescence properties of J-aggregate-adsorbed nanoparticles”, 14th International Conference on Organized Molecular Films, Paris, France (2012).
 - 38) *OP* S. Kanazawa, H. Kobayashi, Y. Fukuyama, Y. Shinmoto, M. Fukagaya, Y. Abe, M. Ouchi, M. Sato, K. Iimura, H. Ohta , “Development of Cooling System for Data Center Using Two-Phase Flow”, Seventh International Symposium on Two-Phase Systems for Ground and Space Applications, Beijing, China (2012).
 - 39) *PP* N. Kato, C. Okano, M. Arai, K. Iimura, S. Ito, T. Morohoshi, T. Ikeda, “A QCM analysis of the interaction between cyclodextrins and quorum sensing signals produced by Gram-negative bacteria”, *The 16th International Cyclodextrin Symposium (ICS16)*, Tianjin P.R.China (2012).
 - 40) *PP* T. Ogi, T. Umemura, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, “Inhibition of Quorum Sensing in Gram-Negative Bacteria Using Electrospun non-woven fiber mats immobilized with cyclodextrins” , *The 16th International Cyclodextrin Symposium (ICS16)*, Tianjin P.R.China (2012).
 - 41) *PP* C. Okano, M. Arai, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, “Inhibition of quorum sensing in *Serratia marcescens* by forming cyclodextrin- autoinducer complex”, *International Conference of Young Researchers on Advanced Materials (ICYRAM2012)*, Singapore (2012).
 - 42) *PP* Y. Takahashi, H. Wagatsuma, K. Suguro, K. Iimura, N. Kato, “Thermochromic properties of polydiacetylene-based dispersed in aqueous solutions”, *IUMRS 13th International Conference in Asia (IUMRS-ICA2012)*, Busan, Korea (2012).
 - 43) *OP* C. Okano, M. Arai, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, “Suppression of the bacterial communication system in opportunistic pathogens using cyclodextrin composites”, *IUMRS 13th International Conference in Asia (IUMRS-ICA2012)*, Busan, Korea (2012).
 - 44) *IS* N. Kato, E. Nasuno, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, “Development of autoinducer recognition polymers for inhibition of bacterial cell-cell communication and virulence”, *The 4th Japan-Korea International Symposium on Microbial Ecology* , Toyohashi (2012).
 - 45) *PP* C. Okano, T. Tanaka, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, “Prevention of bacterial infectious diseases due to autoinducer recognition in polymer microspheres”, *GelSympo2012*, Tsukuba, Japan (2012).
 - 46) *PP* E. Nasuno, T. Umemura, T. Ogi, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, “Electrospun non-woven fiber mats for inhibition of bacterial quorum sensing involved in

- extracellular matrix production”, *GelSympo2012*, Tsukuba, Japan (2012).
- 47) *OP* N. Kato, C. Okano, Y. Takayama, E. Nasuno, K. Iimura, “Autoinducer recognition polymers as preventive materials for bacterial infection”, *GelSympo2012*, Tsukuba, Japan (2012).
 - 48) *PP* T. Umemura, T. Nakada, N. Takahashi, E. Nasuno, K. Iimura, N. Kato, “Rapid deswelling of thermo-responsive collagen hydrogel containing microfibrils”, *GelSympo2012*, Tsukuba, Japan (2012).
 - 49) *PP* N. Takahashi, T. Umemura, T. Nakada, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, “Properties of thermo-responsive hydrogel prepared by microfibrillar collagen”, *9th SPSJ International Conference (IPC2012)*, Kobe, Japan (2012).
 - 50) *OP* E. Nasuno, C. Okano, T. Umemura, T. Ogi, K. Iimura, N. Kato, “Electrospun polymer fibers immobilized with cyclodextrins that trap diffusible signals for bacterial cell-to-cell communication”, *9th SPSJ International Conference (IPC2012)*, Kobe, Japan (2012).
 - 51) *PP* Y. Takayama, E. Nasuno, T. Umemura, C. Okano, K. Iimura, N. Kato, “Biomimetic surfaces for blocking cell-cell communication”, *7th International Conference on Materials for Advanced Technologies (ICMAT2013)*, (30 June-5 July, Singapore).
 - 52) *OP* N. Kato, E. Nasuno, K. Iimura, C. Okano, “Inhibition of bacterial cell-cell communication in pathogens using cyclodextrin immobilized hydrogel membranes”, *12th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013)*, (Qingdao, China, 22-28 Sept. 2013).
 - 53) *OP* E. Nasuno, T. Ogi, T. Umemura, K. Iimura, N. Kato, “Cyclodextrin-immobilized, electrospun fibers for trapping bacterial communication signals”, *12th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013)*, (Qingdao, China, 22-28 Sept. 2013).
 - 54) *OP* C. Okano, E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, “Regulation of gene expression in opportunistic human pathogens using core/shell polymeric microspheres”, *12th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013)*, (Qingdao, China, 22-28 Sept. 2013).
 - 55) *PP* C. Okano, E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, “Designing the polymer gel sheets for suppression of bacterial communication systems and investigation of mechanisms”, *12th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013)*, (Qingdao, China, 22-28 Sept. 2013).
 - 56) *PP* E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, “Biosensors for bacterial cell-to-cell communication due to color changes of polymer matrix immobilized with reporter bacteria”, *12th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013)*, (Qingdao, China, 22-28 Sept. 2013).

- 57) *IS* N. Kato, C. Okano, Y. Takayama, K. Iimura, E. Nasuno, “Blocking cell-cell communication using cyclodextrins embedded in polymer gel membranes”, The 7th Asian Cyclodextrin Symposium (ACC2013), (Bangkok, Thailand, 27-29 Nov. 2013).
- 58) *PP* N. Takahashi, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, “Suppression of bacterial cell-cell communication using cyclodextrin-immobilized microgel particles prepared by microfluidic device”, The 7th Asian Cyclodextrin Symposium (ACC2013), (Bangkok, Thailand, 27-29 Nov. 2013).
- 59) *OP* Y. Fukuyama, A. Kawakubo, Y. Shinmoto, H. Ohta, M. Sato, K. Iimura, M. Fukagaya, Y. Abe, “Development of Cooling System for Data Servers Using Flow Boiling of Nanofluid”, The 24th International Symposium on Transport Phenomena, Yamaguchi, Japan (2013).
- 60) *OP* M. Sato, T. Ouchi, S. Yamamura, K. Iimura, M. Fukagaya, Y. Shinmoto, H. Ohta, Y. Abe, T. Furusawa, N. Suzuki, “Synthesis of Fluorocarbon-base Nanofluids and Their Applications for Thermal Management”, *Eighth International Topical Team Workshop on Two-Phase Systems for Ground and Space Applications*, Bremen, Germany (2013).
- 61) *PP* A. Toyoda, E. Nasuno, N. Kato, Z.-Y. Wang-Otomo, K. Iimura, “Structure characterization and photocurrent response of adsorbed films of photosynthetic proteins from thermophilic purple sulfur bacterium *Tch. tepidum*”, 27th ECIS Conference, Sofia, Bulgaria (2013).
- 62) *PP* I. Oishi, M. Aono, K. Iimura, A. Ogata, I. Hirose, “Adsorbed Films of Conditioner Components on Damaged Hair-Surface Model”, 27th ECIS Conference, Sofia, Bulgaria (2013).
- 63) *PP* H. Matsubara, T. Takaichi, T. Takiue, A. Toyoda, K. Iimura, P. A. Ash, C. D. Bain, M. Aratono, “Morphological Transformations in Solid Domains of Alkanes on Surfactant Solutions”, 27th ECIS Conference, Sofia, Bulgaria (2013).
- 64) *PP* K. Fujimoto, A. Toyoda, K. Iimura, S. Kabashima, I. Yoshikawa, K. Araki, T. Uruga, H. Tanida, Y. Terada, G. Brezesinski, “Structural Analysis of Supramolecular Hydrogen-Bonded Monolayers of Amphiphilic Sulfamide Derivatives”, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Kyoto, Japan (2013).
- 65) *PP* A. Yanagisawa, A. Ogata, K. Iimura, I. Oishi, M. Hosokawa, I. Hirose, “Adsorbed Surfactant Films at the Solid/Water Interface Studied by X-ray Reflectivity”, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Kyoto, Japan (2013).
- 66) *IS* K. Iimura, “Self-Assembled Structures of Amphiphiles at Interfaces Characterized by X-ray Reflectometry and Grazing Incidence X-ray Diffractometry”, 2013 JSAP-MRS Joint Symposia, Kyoto, Japan (2013).

●国内研究発表

- 1) 「依頼」飯村兼一, “ラフト脂質展開単分子膜の構造と機能”, 第 62 回コロイドおよ

び界面化学討論会，岡山理科大学 (2009).

- 2) 「依頼」飯村兼一，“有機分子膜における自己組織化構造”，2010年春季 第57回応用物理学関連連合講演会，東海大学湘南キャンパス (2010).
- 3) 「依頼」飯村兼一，“放射光による気液界面の単分子膜の構造評価”，第9回 Spring-8ヘルスケア研究会，メルパルク京都 (2010).
- 4) 「依頼」飯村兼一，“単分子膜の科学”，日本化粧品技術者会 第255回学術講演会，学士会館 (2010).
- 5) 「一般」飯村兼一，伊藤隆行，加藤紀弘，“表面二次元構造を鋳型とした垂直成長構造体の形成と制御”，日本化学会第90春季年会，近畿大学本部キャンパス (2010).
- 6) 「依頼」飯村兼一，“イントロダクトリートーク，“X線を利用したソフト界面科学研究の最前線，2011年春季 第58回応用物理学関連連合講演会，神奈川工科大学 (2011).
- 7) 「依頼」飯村兼一，“表面二次元構造を鋳型とした垂直成長構造体の形成と制御”，第2回界面化学懇話会，埼玉大学工学部 (2012).
- 8) 「依頼」飯村兼一，“バイオインターフェースモデルとしての組織化分子膜のX線構造解析”，「薄膜・多層膜の埋もれた界面の解析 -高度な量子ビーム源による新しい研究の方向性」研究会，つくば (2012).
- 9) 「依頼」飯村兼一，“放射光と界面”，第31回関西界面科学セミナー -光が拓く表面・界面主役の世界-，SPRING-8放射光普及棟 (2013).
- 10) 「招待」飯村兼一，“二次元界面における両親媒性分子の自己組織化と水”，東京理科大学総合研究機構 界面科学研究部門 平成25年度界面科学研究部門シンポジウム，東京理科大学森戸記念館 (2014).

他 72 件

●著書，総説，解説等

- 1) 「総説」景山元裕，飯村兼一，“毛髪の特異なトリボロジー，トリボロジスト（日本トリボロジー学会月刊誌） **54**, 377-382 (2009).
- 2) 「著書」飯村兼一，“3章 抗菌性とその評価法，表面分析法，安心・安全・信頼のための抗菌材料，pp. 31-37，米田出版 (2009).
- 3) 「解説」飯村兼一，“相分離単分子膜構造を鋳型とした三次元構造体の形成，*Colloid and Interface Communication* , **35**, 11-13 (2010).
- 4) 「解説」飯村兼一，“注目の論文 異なる粒子を巧みに集積する 空気/液体界面での2成分ナノ結晶超格子膜の構築，2011年の化学，*化学* , **66**, 65-66，化学同人(2011).
- 5) 「解説」飯村兼一，中西尚志，“4章 ようこそ！研究室へ，“マックスプランク/コロイド・界面科学研究所，日本化学会編 *CSJ Current View 04 新しい局面を迎えた界面の分子科学-界面デザインと界面計測の展開*，pp.23-27，化学同人 (2011).

- 6) 「解説」 飯村兼一, “5章 論文にみる最重要概念と革新実験データ その3, 日本化学会編 *CSJ Current View 04 新しい局面を迎えた界面の分子科学—界面デザインと界面計測の展開*, pp.36-39, 化学同人 (2011).
- 7) 「総説」 飯村兼一, 三浦隆博, 伊藤隆行, “有機単分子膜における二次元構造を鋳型としたシリカ前駆体の三次元成長, *表面* (広信社), 49, 11-20 (2011).
- 8) 「総説」 飯村兼一, “ソフト界面の分子膜における微視的構造形成, *オレオサイエンス* (日本油化学会), 12, 3-9 (2012).
- 9) 「著書」 K. Iimura, T. Kato, “Chapter 3 Langmuir-Blodgett (LB) Film, K. Ariga Ed., *Organized Organic Ultrathin Films, “ Fundamentals and Applications*, pp.43-105, Wiley-VCH (2012).
- 10) 「総説」 飯村兼一, “固／水界面における界面活性剤吸着膜の X 線反射率・回折法による構造解析, *接着学会誌*, 49, 415-420 (2013).

●特許 (外国, 国内, 公開, 出願)

- 1) 「国内」 公開, 佐藤正秀, 飯村兼一, 瓜田侑己, 鈴木智裕, 阿部宜之, 深萱正人, 大田治彦, 新本康久, サヴィーノ ラファエル「液輸送システム用作動流体及びその製造方法」(平成 21 年 5 月)
- 2) 「国内」 公開, 佐藤正秀, 飯村兼一, 三橋国直, 阿部宜之「熱伝導率測定用プローブ及びその製造方法」(平成 22 年 11 月)

●受賞

- 1) T. Nakakawaji, M. Amo, K. Iimura, T. Kato, N. Torita, AI Sonntag Award, Society of Tribologists and Lubrication Engineers, USA, “Reversed Micelle Structures in the PFPE Lubricant Thin Films on Magnetic Disk Surface Observed by Non-Contact AFM” (2010 年 5 月).
- 2) T. Matsuzaki, K. Iimura, H. Ikegai, Best Poster Award, International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science 2010, “Self-assembly of *Vibrio cholerae* hemolysin adsorbed to lipid monolayers at air/water interface” (2010 年 9 月).
- 3) 赤羽千佳, 加藤紀弘, 飯村兼一, 福島孝典, 山本洋平, 相田卓三, 日本化学会第 92 春季年会(2012)学生講演賞, “グラフェン骨格を有する両親媒性有機半導体による単分子膜の構造解析と光電流特性” (2012 年 4 月).
- 4) A. Toyoda, K. Iimura, S. Kabashima, M. Kageyama, I. Yoshikawa, K. Araki, G. Brezesinski, Poster Award, International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference (IACIS 2012), “Structures and Properties of Langmuir Monolayers of Amphiphilic Sulfamide Derivatives” (2012 年 5 月).
- 5) E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, Excellent Paper Award of Symposium

D6, 12th IUMRS International Conference on Advanced Materials, “Biosensors for bacterial cell-to-cell communication due to color changes of polymer matrix immobilized with reporter bacteria” (2013 年 9 月).

- 6) C. Okano, E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, Excellent Poster Award, 12th IUMRS International Conference on Advanced Materials, Designing the polymer gel sheets for suppression of bacterial communication systems and investigation of mechanisms” (2013 年 9 月).

●外部資金

- 1) 「共同」 飯村兼一, 「潤滑膜の界面挙動に関する研究」(株)日立製作所 (平成 21-23 年度).
- 2) 「科研」 飯村兼一 (分担), 「海洋菌バイオフィーム形成抑制を目的とした金属材料表面改質と抑制メカニズムの解明」(平成 21-23 年度).
- 3) 「受託」 飯村兼一 (分担), 「冷却ネットワークとナノ流体伝熱による集中管理型先進冷却システムの開発」(財)新エネルギー・産業技術総合開発機構 (平成 21-22 年度).
- 4) 「奨学」 飯村兼一, 「毛髪コンディショニング成分の吸着状態解析に関する研究」ライオン(株) (平成 22-23 年度).
- 5) 「共同」 飯村兼一, 「界面活性剤の吸着現象に関する研究」花王(株) (平成 23-24 年度).
- 6) 「奨学」 飯村兼一, 「界面活性剤が形成する会合体構造に関する研究」ライオン(株) (平成 24 年度).
- 7) 「共同」 飯村兼一, 「単粒子膜作製に関する研究」キヤノン(株) (平成 24 年度).

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

ニ) 技術指導 5 件

- ・飯村兼一, 「シンクロトロン放射光を用いた分子膜の X 線反射率測定法」日本メナード化粧品(株), P&G イノベーション合同会社, ライオン(株) (2009 年 11 月, 2010 年 10 月, 2012 年 12 月).
- ・飯村兼一, 「表面処理・分散技術」京葉サンビーム(株) (2010 年 8 月).
- ・飯村兼一, 「表面処理技術」マニー(株) (2011 年 3 月).

高度ヘルスケアを実現する機能性ソフトマテリアルの開発

加藤紀弘(教授)*1

*1 工学部応用化学科，大学院工学研究科学際先端システム学専攻

1. はじめに

1.1. ヒドロゲル素材の新規材料設計にむけて

多くの水を保持するしなやかな弾性体、ソフトマテリアル「ヒドロゲル」のニーズが高まっている。ゲルは生体組織、医療材料、薬剤輸送、化成品、食品など多くの産業分野での新規利用が見込まれており、本プロジェクトでは機能性高分子化学を基盤とした新規材料開発にターゲットを絞り、ヒトの健康を支える医療・薬学分野や、豊かな生活を支える新規材料の創成を目指した (Fig. 1)。

ヒドロゲルの機能化には、溶媒で膨潤したマイクロな三次元高分子ネットワークの構造制御に加え、目的に即した高機能化が鍵となる。2009年度からの5年間で新しいアイデアを元に複数分野における新規素材の開発を検討し、例えば自治医科大学の研究グループと特許共同出願した「長期徐放型薬剤硬膜外腔留置システム」に関わる薬学分野におけるドラッグデリバリーシステム担体の開発や、科学技術振興機構、戦略的創造研究推進事業として展開した「ナノテクノロジーとバイオテクノロジーの融合による革新的な水処理微生物制御技術の開発」に関わる排水処理技術に応用可能な、微生物機能を人為的に制御する高分子ナノ素材の開発などを踏まえ、本プロジェクトでは細菌感染症を予防する新規ヒドロゲル素材の開発を目標に、高度ヘルスケアを実現するための機能性ソフトマテリアルの素材開発を目指した。



Fig. 1 ヒドロゲル素材の応用.

1.2 バクテリアの細胞間情報伝達機構を制御する

単細胞生物であるバクテリアが化学物質（シグナル分子）を互いにやりとりすることで情報伝達し、集団として遺伝子発現を制御するメカニズムを有する例が多く報告されている (Fig. 2)。細胞内で生産されたシグナル分子は外部へと拡散し、増殖と共にシグナル分子の濃度は上昇する。閾値濃度を超えると細胞内でレセプタータンパク質と複合体を形成し、これがターゲット遺伝子の転写活性を制御する。この細胞密度依存性の遺伝子発現機構“Quorum Sensing”は、バクテリアが集合し多糖類などと共に形成するバイオフィルムの構築過程や、日和見感染菌の病原性因子の発現など多くの細胞機能に関与することが知られる。グラム陰性細菌のシグナル分子としては *N*-acylhomoserine lactone (AHL) が菌種に依らず共通に生産されることも多く、AHL に高い親和性を有する素材開発は汎用性が高い。

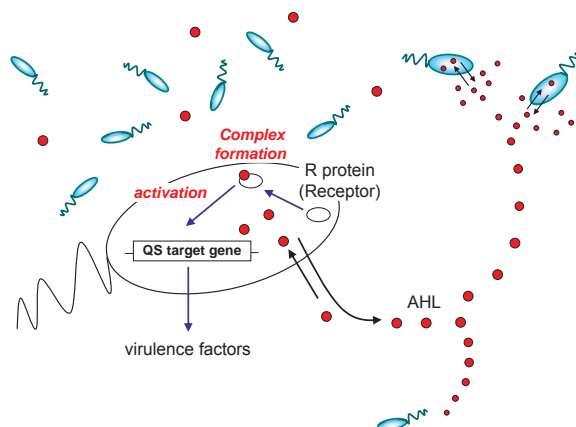


Fig. 2 細胞密度依存性の細胞間情報伝達機構

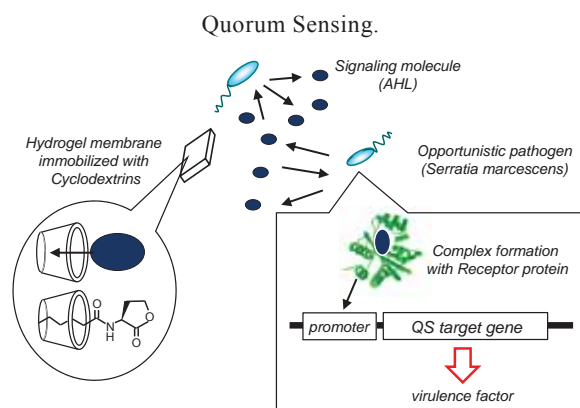


Fig. 3 シクロデキストリンを人工レセプターとする細菌感染症予防材料の設計。

1.3 人工レセプター：シクロデキストリン

天然物である環状オリゴ糖、シクロデキストリン(cyclodextrin)は水溶液中で AHL と包接複合体を形成可能である。そこで本研究では、CD 固定化ヒドロゲルを合成し AHL 濃度依存性の Quorum Sensing 機構を有するバクテリアの培養液にヒドロゲルを浸漬する AHL トラップ法を着想した(Fig. 3)。AHL と CD の相互作用は、水晶発振子マイクロバランス法アドミッタンス解析により追跡し、その相互作用を確認した。更に、電界紡糸法（エレクトロスピンニング法）を用いて CD 固定化高分子不織布の合成に成功し、Quorum Sensing 機構抑制効果を試験した。バイオアッセイには、*N*-hexanoylhomoserine lactone (C6HSL) をシグナル分子として生産し、抗菌物質 prodigiosin の生産を制御する土壌由来のモデル日和見感染菌 *Serratia marcescens* AS-1 を用いた。

2. 実験と結果

2-1. CD 固定化ヒドロゲルを利用する AHL トラップ技術

カルボキシル基を導入したアニオン性ヒドロゲルシート(厚み: 1.5mm)を合成し、更にキャビティサイズが 0.60 nm の β -CD を固定した (Fig. 4)。このヒドロゲルシートを *S. marcescens*

AS-1 の培養液に浸漬しながら培養すると、Quorum Sensing 機構活性化の指標である prodigiosin 生産量は約 20%まで低下している。所定時間振盪培養した培養液からゲルシートを分離し、遠心分離により集菌し上清を除いた。塩酸エタノールを添加し菌体破碎し赤色を呈する prodigiosin を抽出し、遠心分離した上清の 534 nm における可視吸収から prodigiosin 量を見積もり、QS 活性化の指標とした。CD 未固定の control の結果もふまえ、固定化 CD は効果的に C6HSL をトラップし細胞増殖後であっても Quorum Sensing 機構の不活性化状態で維持可能であると推察した。

そこで水晶発振子マイクロバランス法 (Quartz Crystal Microbalance: QCM) アドミッタンス解析を用いて固定化 β -CD と C6HSL の相互作用解析を行った。両面に金電極を配置した水晶振動子に交流電圧を印加し、ネットワークアナライザーによりコンダクタンスの周波数依存性を測定した。金電極上に自己組織化膜 (SAM Layer) を形成させ β -CD を固定化した修飾電極を作製した。バッファー中で安定に発振させた後に、C6HSL を添加すると共振周波数(F_s)の減少が観測される(Fig. 5)。

これは電極表面に溶質が吸着したことを示唆しており、CD と包接複合体を形成したことに対応する。本実験では、1Hz の周波数減少が 30 pg の溶質の吸着に相当する基本周波数 27 MHz のセンサーを用いた。アドミッタンス解析により ΔF_s は電極表面の質量増大を反映する周波数変化 ΔF_2 と電極近傍の溶液の粘性変化に起因する ΔF_w の 2 項に分離可能である。C6HSL 添加に伴う ΔF_w が無視できないことから、吸着量は ΔF_2 から評価した。

2-2. エレクトロスピンニング法による CD 固定化高分子不織布の調製と Quorum Sensing 抑制

結晶性の高い高分子溶液をシリンジに充填しそのシリンジニードルとコレクター電極間に高電圧を印加する電解紡糸法 (エレクトロスピンニング法) による CD 固定化不織布の調製を試験した。ニードル電極先端の高分子液滴の表面張力に静電的引力が勝ると、ニードル先端にはテーラーコーンが形成され溶液ジェットが射出される。溶液ジェットは飛行中に溶媒が蒸発しながら細く伸長し高分子ファイバーがコレクター電極上に積層していく。本研究では、

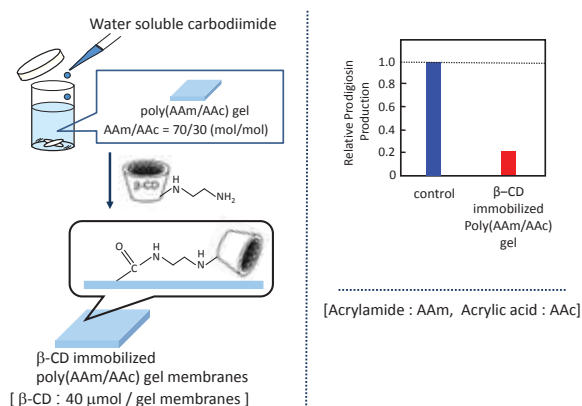


Fig. 4 β -CD 固定化ヒドロゲルシートを用いる Quorum sensing 抑制効果.

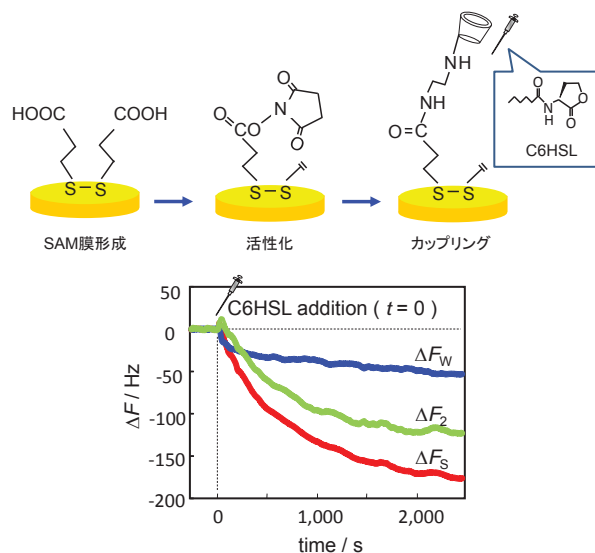


Fig. 5 QCM 法を用いる CD-C6HSL 相互作用解析.

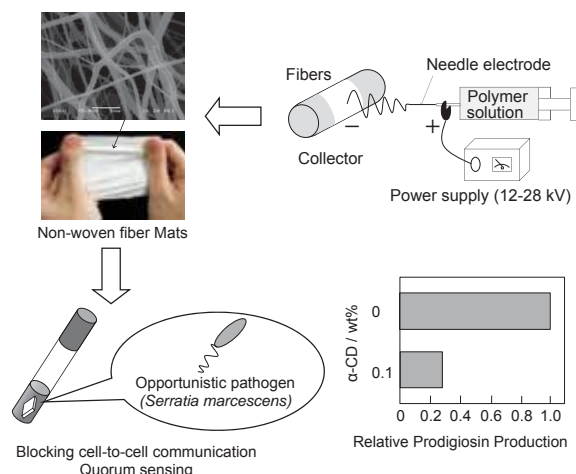


Fig. 6 エレクトロスピンニングによる CD 固定化高分子不織布の調製と Quorum sensing 抑制効果。

ヒドロゲルシートならびに不織布どちらの場合でも α -CD、 β -CD どちらも高い Quorum Sensing 抑制効果を発現することを実証した。

3. まとめ

固定化 CD は効果的にグラム陰性細菌の Quorum Sensing シグナル分子 *N*-acylhomoserine lactone と包接体を形成し、培養液中のシグナル分子を低濃度に維持することで関連遺伝子の転写を不活性なまま持続可能である。水溶性のシグナル分子が高分子担体内部まで自由に浸透可能となるように、本研究では親水性高分子を利用し水で膨潤した高分子ヒドロゲル、高分子ファイバー不織布を調製し Quorum Sensing シグナル分子の人工レセプターとして CD を固定化した。CD と AHL シグナルとの相互作用は前述した QCM 法に加え、NMR 測定、AHL 合成遺伝子破壊株を利用するバイオアッセイ法でも確認できる。

病原性因子の生産に AHL 濃度依存性の Quorum Sensing が関与するのは、C6HSL 及び *N*-(3-oxo-hexanoyl)-homoserine lactone (3oxo-C6HSL) がシグナル分子である *Serratia marcescens* の他にも、*N*-(3-oxododecanoyl)-homoserine lactone (3oxo-C12HSL) 及び *N*-butanoyl-homoserine lactone (C4HSL) がシグナル分子となる *Pseudomonas aeruginosa* などヒトに対する日和見感染菌が挙げられる。CD は薬物輸送担体や食品添加物などにも利用実績があり、その生体安全性から日本、アジア、欧米諸国でその利用が認可されている。抗生物質で感染菌を死滅させる従来法は即効性が高い反面、薬剤耐性菌の出現の可能性は残る。本研究は、地球上に感染菌を死に至らせる薬剤を散布する従来法とは逆の発想に基づき、地球上から感染菌が生産している特定分子のみを取り去ることで病原性を封じ込め可能とする。

CD 固定化高分子ヒドロゲル、高分子ファイバーは、安全な素材で薬剤耐性菌出現のリスクを排除した新しい細菌感染症予防材料である。これらの基礎検討から得られた知見は多くの学会で公表し、高分子学会のゲルに関する国際シンポジウム(Gel symposium)、IUMRS-ICA、IUMRS-ICAM などの材料系国際会議、国際シクロデキストリン学会等で受賞している。

プロジェクト 16 高度ヘルスケアを実現する機能性ソフトマテリアルの開発

(担当者) 加藤紀弘

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) N. Kato, A. Kobayashi, H. Motohahsi, Y. Ozonoe, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Development of a novel hydrogel to prevent bacterial infectious diseases", *Progress in Colloid and Polymer Science*, **136**, 155–162 (2009).
- 2) T. Morohoshi, Y. Yokoyama, M. Ouchi, N. Kato, T. Ikeda, "Motility and the expression of the flagellin protein FliC are negatively regulated by quorum sensing in *Edwardsiella tarda*", *Journal of Bioscience and Bioengineering*, **108**, 314–318 (2009).
- 3) D. Rong, K. Usui, T. Morohoshi, N. Kato, M. H. Zhou, T. Ikeda, "Symbiotic degradation of polyvinyl alcohol by *Novosphingobium* sp. and *Xanthobacter flavus*", *Journal of Environmental Biotechnology*, **9**, 131–134 (2009).
- 4) T. Morohoshi, K. Fukamachi, M. Kato, N. Kato, T. Ikeda. "Regulation of the violacein biosynthetic gene cluster by acylhomoserine lactone-mediated quorum sensing in *Chromobacterium violaceum* ATCC 12472", *Bioscience, Biotechnology, and Biochemistry*, **74**, 2116-2119 (2010).
- 5) T. Morohoshi, M. Oikawa, S. Sato, N. Kikuchi, N. Kato, T. Ikeda, "Isolation and characterization of novel lipases from a metagenomic library of the microbial community in the pitcher fluid of the carnivorous plant *Nepenthes hybrida*", *Journal of Bioscience and Bioengineering*, **112**, 315-320 (2011).
- 6) C. Okano, M. Arai, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "β-Cyclodextrin interaction with *N*-hexanoyl homoserine lactone as quorum sensing signal produced in gram-negative bacteria", *Transactions of the Material Research Society of Japan*, **37**, 315-318 (2012).
- 7) E. Nasuno, T. Umemura, T. Ogi, C. Okano, T. Kawanago, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Inhibitory effects of quorum sensing in *Serratia marcescens* AS-1 by electrospun polyvinyl alcohol fibers immobilized with cyclodextrin", *Transactions of the Material Research Society of Japan*, **37**, 593-596 (2012).
- 8) T. Morohoshi, K. Tokita, S. Ito, Y. Saito, S. Maeda, N. Kato, T. Ikeda, "Inhibition of quorum sensing in Gram-negative bacteria by alkylamine-modified cyclodextrins", *Journal of Bioscience and Bioengineering*, **116**, 175-179 (2013).
- 9) M. Kageyama, Y. Yashiro, S. Karube, T. Shiraku, T. Kato, N. Kato, T. Kashiwai, M. Nomura, Y. Nishida, N. Tagaki, K. Iimura, "Adsorption of dimethyl silicone onto hair-surface models prepared with microphase separated monolayers", *Journal of*

Oleo Science, (accepted).

- 10) M. Kageyama, Y. Nishida, N. Tagaki, N. Suzuki, T. Kato, N. Kato, K. Iimura, "Surface modification of self-assembled monolayers of thiol- and diffusible-terminated organosilanes by UV/ozone treatment toward fabrication of damaged-hair surface models", *Transactions of the Material Research Society of Japan*, (accepted).
- 11) E. Nasuno, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Quick detection of cell-to-cell communication in gram-negative bacteria by color change of polymer matrix entrapping reporter bacteria", *Materials Research Innovations*, (accepted).

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *PP* A. Kobayashi, H. Motohashi, Y. Ozonoe, T. Murai, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Development of cyclodextrin-immobilized hydrogels to prevent bacterial infectious diseases", *The 5th Asian Cyclodextrin Conference 2009 (ACC09)*, Republic of Korea (2009).
- 2) *PP* T. Sato, M. Tominaga, S. Maeda, S. Ito, N. Kato, T. Motohashi, T. Ikeda, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria using modified cyclodextrin", *The 5th Asian Cyclodextrin Conference 2009 (ACC09)*, Republic of Korea (2009).
- 3) *PP* K. Suguro, Y. Watanabe, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Interception of bacterial cell-to-cell communication systems using cyclodextrin-immobilized membranes", *The 1st FAPS Polymer Congress (Federation of Asian Polymer Societies)*, Nagoya, Japan (2009).
- 4) *PP* A. Kobayashi, H. Motohashi, T. Murai, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Phase-separated polymer networks that suit for inhibitory control of bacterial cell-to-cell communication", *Asia Pacific Biochemical Engineering Conference (APBioChEC'09)*, Kobe, Japan (2009).
- 5) *PP* T. Murai, T. Morohoshi, H. Motohashi, A. Kobayashi, T. Ikeda, N. Kato, "Inhibitory control of quorum sensing using *N*-acylhomoserine lactone lactonase", *Asia Pacific Biochemical Engineering Conference (APBioChEC'09)*, Kobe, Japan (2009).
- 6) *PP* T. Ikeda, W. Z. Wang, T. Sato, S. Ito, N. Kato, T. Morohoshi, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria using AHL analogues and modified cyclodextrins", *Asia Pacific Biochemical Engineering Conference (APBioChEC'09)*, Kobe, Japan (2009).
- 7) *PP* A. Kobayashi, H. Motohashi, Y. Ozonoe, T. Murai, T. Morohoshi, T. Ikeda, N.

- Kato, "Development of autoinducer recognition gel for prevention of bacterial infection", *GelSympo2009 Polymer gels: Science and Technology as Advanced Soft Materials*, Osaka, Japan (2009).
- 8) *PP* N. Kato, A. Kobayashi, H. Motohashi, T. Murai, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Suppressive effects on virulence factor expression with structural control of cyclodextrin-immobilized gel", *15th Int. Cyclodextrin Symp.*, Viena, Austria (2010).
 - 9) *PP* T. Ikeda, T. Sato, T. Imai, T. Kamiyama, S. Ito, T. Morohoshi, N. Kato, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria using modified cyclodextrins", *15th Int. Cyclodextrin Symp.*, Viena, Austria (2010).
 - 10) *OP* T. Ikeda, S. Ito, T. Morohoshi, N. Kato, "Control methods of quorum sensing in gram-negative bacteria using cyclodextrins", *2010 Int. Symp. Adv. Biolo. Eng.*, Beijing, China (2010).
 - 11) *PP* K. Iimura, T. Miura, T. Ito, N. Kato, "Vertically grown structures of silica precursors on monolayer template surfaces", *Int. Conf. on Nanoscopic Colloid and Surf. Sci. 2010*, Chiba, Japan (2010).
 - 12) *PP* C. Akabane, K. Iimura, N. Kato, T. Fukushima, Y. Yamamoto, T. Aida, "Monolayer characterization and photocurrent property of organic semiconductor molecules with partial graphene skeleton", *Int. Conf. Nanoscopic Colloid and Surf. Sci. 2010*, Chiba, Japan (2010).
 - 13) *PP* Y. Wachi, F. Kurayama, T. Oba, N. Kato, N. Suzuki, K. Iimura, "Structures and photocurrent properties of monolayers of photosynthetic pigments", *Int. Conf. Nanoscopic Colloid and Surf. Sci. 2010*, Chiba, Japan (2010).
 - 14) *OP* N. Kato, A. Kobayashi, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Development of the autoinducer trapping gel that regulates target gene expression", *IUMRS 11th Int. Conf. in Asia (IUMRS-ICA2010)*, Qingdao, China (2010).
 - 15) *OP* M. Arai, A. Kobayashi, Y. Ozono, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Interaction between cyclodextrin-immobilized hydrogel and bacterial communication signal", *IUMRS 11th Int. Conf. in Asia (IUMRS-ICA2010)*, Qingdao, China (2010).
 - 16) *PP* C. Ueno, T. Nakada, K. Iimura, N. Kato, "Fast response of organic-inorganic hybrid hydrogel prepared by freezing", *IUMRS 11th Int. Conf. in Asia (IUMRS-ICA2010)*, Qingdao, China (2010).
 - 17) *PP* A. Kobayashi, H. Motohashi, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Inhibitory control of virulence gene expression in opportunistic pathogens using cyclodextrin-conjugated polymer network", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).

- 18) *PP* M. Arai, A. Kobayashi, Y. Ozonoe, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Inclusion complex formation between immobilized cyclodextrin and *N*-acylhomoserine lactone as quorum sensing signal", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 19) *PP* H. Wagatsuma, K. Suguro, K. Iimura, N. Kato, "Microporous organic-inorganic hybrid hydrogel prepared by temperature-induced phase separation", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 20) *PP* C. Murayama, T. Nakada, K. Iimura, N. Kato, "Rapid swelling and shrinking of organic-inorganic hybrid hydrogel prepared by ice templating", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 21) *PP* C. Oka, T. Matsushima, K. Iimura, N. Kato, "Enhancement of convective flow through the porous hydroxyethyl cellulose-graft-poly(*N*-isopropyl acrylamide) networks prepared by ice-templating", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 22) *PP* T. Murai, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Enzymatic disruption of bacterial cell-to-cell communication using recombinant *N*-acylhomoserine lactone lactonase", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 23) *PP* Y. Hattori, A. Kobayashi, H. Motohashi, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Interruption of bacterial cell-to-cell communication using cyclodextrin-immobilized hydrogel as an artificial receptor", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 24) *PP* T. Morohoshi, T. Shiono, K. Takidouchi, N. Kato, T. Ikeda, "Inhibition of the pathogenicity of *Serratia marcescens* by the synthetic analogs of quorum sensing signal molecule", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 25) *PP* W.Z. Wang, T. Sato, S. Ito, N. Kato, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Quorum quenching using two kinds of novel inhibitors, AHL analogues and modified cyclodextrins in gram-negative bacteria", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 26) *PP* T. Imai, S. Ito, T. Morohoshi, N. Kato, T. Ikeda, "Quorum sensing quenching in gram-negative bacteria using modified cyclodextrins", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 27) *PP* T. Ikeda, T. Sato, T. Imai, T. Kamiyama, M. U. Mamenzigou, S. Ito, T. Morohoshi, N. Kato, "Inhibition of quorum sensing using cyclodextrins", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 28) *PP* C. Akabane, K. Iimura, N. Kato, T. Fukushima, Y. Yamamoto, T. Aida, "Monolayer characterization and photocurrent generation of organic semiconductor

- molecules with partial structure of graphene skeleton", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 29) *PP* Y. Wachi, F. Kurayama, T. Oba, N. Kato, K. Iimura, "Properties and structures of spread monolayers of chlorophyll derivatives", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 30) *PP* A. Yamamoto, K. Iimura, N. Kato, H. Semba, "Fabrication of dye aggregate/metal nanoparticle complexes toward enhancement of two-photon-excited fluorescence generation", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 31) *OP* K. Iimura, T. Ito, T. Miura, N. Kato, "Formation and structure control of vertically grown silica precursors on template monolayer surfaces", *Int. Chem. Cong. Pacific Basin Soc.*, Honolulu, USA (2010).
- 32) *PP* C. Akabane, N. Kato, K. Iimura, T. Fukushima, Y. Yamamoto, T. Aida, "Photoconducting Properties and Structures of Monolayers of Amphiphilic Organic Semiconductor Molecules with Graphene Fragment", International Symposium on Surface Science, Tokyo, Japan (2011).
- 33) *IS* T. Ikeda, T. Morohoshi, S. Ito, K. Iimura, N. Kato, "Inhibition of bacterial communication using cyclodextrins", *The 6th Asian Cyclodextrin Conference (ACC2011)*, Canberra, Australia (2011).
- 34) *PP* M. U. Mamenzigou, T. Morohoshi, S. Ito, N. Kato, T. Ikeda, "Cyclodextrin complexation of bacterial communication signal compounds", *The 6th Asian Cyclodextrin Conference (ACC2011)*, Canberra, Australia (2011).
- 35) *OP* T. Imai, T. Morohoshi, N. Kato, T. Ikeda, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria by amino acid-modified cyclodextrins", *The 6th Asian Cyclodextrin Conference (ACC2011)*, Canberra, Australia (2011).
- 36) *PP* M. Ebina, T. Morohoshi, N. Kato, T. Ikeda, "Synthesis of amino modified cyclodextrin for quorum sensing inhibition", *The 6th Asian Cyclodextrin Conference (ACC2011)*, Canberra, Australia (2011).
- 37) *OP* N. Kato, M. Arai, T. Umemura, C. Okano, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Interaction of bacterial communication signals with immobilized receptors on polymer matrices", *IUMRS 12th Int. Conf. in Asia (IUMRS-ICA2011)*, Taipei, Republic of China (2011).
- 38) *PP* C. Okano, A. Kobayashi, M. Arai, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Blocking quorum sensing in gram-negative bacteria using cyclodextrin-conjugated hydrogel sheets", *IUMRS 12th Int. Conf. in Asia (IUMRS-ICA2011)*, Taipei, Republic of China (2011).
- 39) *PP* T. Umemura, T. Nakada, N. Kato, "Reversible volume change of

- thermosensitive collagen hydrogel", *IUMRS 12th Int. Conf. in Asia (IUMRS-ICA2011)*, Taipei, Republic of China (2011).
- 40) *PP* C. Ueno, T. Umemura, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Mass transfer rate of bacterial cell-to-cell communication signals through the hydrogel membrane immobilized with cyclodextrin", *IUMRS 12th Int. Conf. in Asia (IUMRS-ICA2011)*, Taipei, Republic of China (2011).
- 41) *PP* T. Ikeda, M. Toyofuku, T. Morohoshi, S. Ito, K. Iimura, N. Nomura, H. Uchiyama, N. Kato, "Development of innovative regulatory techniques of bacteria for wastewater treatment by control of bacterial communication system", *The 4th IWA-ASPIRE Conference and Exhibition*, Tokyo, Japan (2011).
- 42) *PP* T. Imai, T. Morohoshi, S. Ito, N. Kato, T. Ikeda, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria by modified cyclodextrin derivatives", *4th ASM Conference on Cell-Cell Communication in Bacteria*, Miami, USA (2011).
- 43) *PP* N. Kato, C. Okano, M. Arai, K. Iimura, S. Ito, T. Morohoshi, T. Ikeda, "A QCM analysis of the interaction between cyclodextrins and quorum sensing signals produced by Gram-negative bacteria", *The 16th International Cyclodextrin Symposium (ICS16)*, Tianjin, P. R. China (2012).
- 44) *PP* T. Ogi, T. Umemura, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Inhibition of Quorum Sensing in Gram-Negative Bacteria Using Electrospun non-woven fiber mats immobilized with cyclodextrins", *The 16th International Cyclodextrin Symposium (ICS16)*, Tianjin, P. R. China (2012).
- 45) *OP* C. Akabane, N. Kato, K. Iimura, T. Fukushima, Y. Yamamoto, T. Aida, "Studies on structures and photoconducting properties of monolayer of amphiphilic organic semiconductor molecules with a graphene fragment", *International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference (IACIS 2012)*, Sendai, Japan (2012).
- 46) *PP* T. Miura, N. Kato, K. Iimura, "A formation mechanism of vertically grown structures of pendant-tail organosilanes on micro-phase separated monolayers", *International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference (IACIS 2012)*, Sendai, Japan (2012).
- 47) *PP* C. Okano, M. Arai, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Inhibition of quorum sensing in *Serratia marcescens* by forming cyclodextrin-autoinducer complex", *Int. Conf. of Young Researchers on Advanced Materials (ICYRAM2012)*, Singapore, Republic of Singapore (2012).
- 48) *OP* K. Iimura, T. Miura, N. Kato, "Vertically grown structures on LB monolayer template surfaces", *14th Int. Conf. on Organized Molecular Films*, Paris, France

- (2012).
- 49) *PP* Y. Takahashi, H. Wagatsuma, K. Suguro, K. Iimura, N. Kato, "Thermochromic properties of polydiacetylene-based dispersed in aqueous solutions", *IUMRS 13th Int. Conf. in Asia (IUMRS-ICA2012)*, Busan, Korea (2012).
 - 50) *OP* C. Okano, M. Arai, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Suppression of the bacterial communication system in opportunistic pathogens using cyclodextrin composites", *IUMRS 13th Int. Conf. in Asia (IUMRS-ICA2012)*, Busan, Korea (2012).
 - 51) *IS* N. Kato, E. Nasuno, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Development of autoinducer recognition polymers for inhibition of bacterial cell-cell communication and virulence", *The 4th Japan-Korea International Symposium on Microbial Ecology*, Toyohashi, Japan (2012).
 - 52) *PP* C. Okano, T. Tanaka, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Prevention of bacterial infectious diseases due to autoinducer recognition in polymer microspheres", *GelSympo2012*, Tsukuba, Japan (2012).
 - 53) *PP* E. Nasuno, T. Umemura, T. Ogi, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Electrospun non-woven fiber mats for inhibition of bacterial quorum sensing involved in extracellular matrix production", *GelSympo2012*, Tsukuba, Japan (2012).
 - 54) *PP* T. Umemura, T. Nakada, N. Takahashi, E. Nasuno, K. Iimura, N. Kato, "Rapid deswelling of thermo-responsive collagen hydrogel containing microfibrils", *GelSympo2012*, Tsukuba, Japan (2012).
 - 55) *OP* N. Kato, C. Okano, Y. Takayama, E. Nasuno, K. Iimura, "Autoinducer recognition polymers as preventive materials for bacterial infection", *GelSympo2012*, Tsukuba, Japan (2012).
 - 56) *PP* N. Takahashi, T. Umemura, T. Nakada, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Properties of thermo-responsive hydrogel prepared by microfibrillar collagen", *9th SPSJ International Conference (IPC2012)*, Kobe, Japan (2012).
 - 57) *OP* E. Nasuno, C. Okano, T. Umemura, T. Ogi, K. Iimura, N. Kato, "Electrospun polymer fibers immobilized with cyclodextrins that trap diffusible signals for bacterial cell-to-cell communication", *9th SPSJ International Conference (IPC2012)*, Kobe (2012).
 - 58) *PP* Y. Takayama, E. Nasuno, T. Umemura, C. Okano, K. Iimura, N. Kato, "Biomimetic surfaces for blocking cell-cell communication", *7th Int. Conf. on Materials for Advanced Technologies (ICMAT2013)*, Singapore, Republic of

- Singapore (2013).
- 59) *PP* C. Okano, E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Suppression of Gene Expression by Artificial Receptor That Interacts with a Signal for Bacterial Cell-Cell Communication", *Tsukuba International Conference on Materials Science-Summer School on Biomaterials Science*, Tsukuba, Japan (2013)
- 60) *PP* C. Okano, E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Designing the polymer gel sheets for suppression of bacterial communication systems and investigation of mechanisms", *12th IUMRS Int. Conf. Adv. Mater. (IUMRS-ICAM2013)*, Qingdao, China (2013).
- 61) *PP* E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Biosensors for bacterial cell-to-cell communication due to color changes of polymer matrix immobilized with reporter bacteria", *12th IUMRS Int. Conf. Adv. Mater. (IUMRS-ICAM2013)*, Qingdao, China (2013).
- 62) *OP* C. Okano, E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Regulation of gene expression in opportunistic human pathogens using core/shell polymeric microspheres", *12th IUMRS Int. Conf. Adv. Mater. (IUMRS-ICAM2013)*, Qingdao, China (2013).
- 63) *OP* E. Nasuno, T. Ogi, T. Umemura, K. Iimura, N. Kato, "Cyclodextrin-immobilized, electrospun fibers for trapping bacterial communication signals", *12th IUMRS Int. Conf. Adv. Mater. (IUMRS-ICAM2013)*, Qingdao, China (2013).
- 64) *PP* A. Toyoda, E. Nasuno, N. Kato, Z.-Y. Wang-Otomo, K. Iimura, "Structure characterization and photocurrent response of adsorbed films of photosynthetic proteins from thermophilic purple sulfur bacterium *Tch. tepidum*", *27th ECIS Conference*, Sofia, Bulgaria (2013).
- 65) *OP* N. Kato, E. Nasuno, K. Iimura, C. Okano, "Inhibition of bacterial cell-cell communication in pathogens using cyclodextrin immobilized hydrogel membranes", *12th IUMRS Int. Conf. Adv. Mater. (IUMRS-ICAM2013)*, Qingdao, China (2013).
- 66) *IS* N. Kato, C. Okano, Y. Takayama, K. Iimura, E. Nasuno, "Blocking cell-cell communication using cyclodextrins embedded in polymer gel membranes", *The 7th Asian Cyclodextrin Symposium (ACC2013)*, Bangkok, Thailand (2013).
- 67) *PP* N. Takahashi, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Suppression of bacterial cell-cell communication using cyclodextrin-immobilized microgel particles prepared by microfluidic device", *The 7th Asian Cyclodextrin Symposium (ACC2013)*, Bangkok, Thailand (2013).

68) *OP* E. Nasuno, "Toward high throughput screening of bacterial quorum sensing by rapid, colorimetric analysis of polymer matrices co-culturing with the reporter strain", *ASRLD Unit and Department of Bacteriology Joint Seminar Sociomicrobiology Meeting*, Gunma, Japan (2014).

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「依頼」加藤紀弘，池田宰，諸星知広，小園江ゆう，本橋拓志，小林愛雲，"ヒドロゲルを用いるオートインデューサートラップ法によるクオラムセンシング抑制効果"，第 58 回高分子討論会，熊本 (2009).
- 2) 「依頼」加藤紀弘 "バイオフィルムーバクテリアの細胞間情報伝達機構の制御によるバイオフィルム抑制技術をめざしてー"，第 21 回食品ハイドロコロイドシンポジウム，東京 (2010).
- 3) 「依頼」加藤紀弘，飯村兼一，中田貴久，"化学架橋コラーゲンヒドロゲルの熱応答特性"，第 59 回高分子討論会，札幌 (2010).
- 4) 「依頼」新井麻梨奈，諸星知広，飯村兼一，池田宰，加藤紀弘，"バクテリアの細胞間情報伝達機構を遮断するヒドロゲルの開発"，日本機械学会東北支部第 47 秋季講演会，山形 (2011).
- 5) 「一般」服部由実子，新井麻梨奈，岡野千草，飯村兼一，諸星知広，池田 宰，加藤紀弘，"シクロデキストリン固定化ヒドロゲルを用いた AHL 濃度依存性 Quorum Sensing の抑制"，第 21 回日本 MRS 学術シンポジウム，横浜 (2011).
- 6) 「一般」奈須野恵理，岡野千草，梅村拓登，大木偉裕，飯村兼一，加藤紀弘，"オートインデューサートラップ法を用いた細菌感染症予防材料の開発"，第 22 回インテリジェント材料/システムシンポジウム(第 7 回バイオ・ナノテクフォーラムシンポジウム)，東京 (2013).
- 7) 「一般」高橋悠太，加藤紀弘，松永行子，"マイクロ流路デバイスを用いたゲルの三次元構造制御"，第 62 回高分子学会年次大会，京都 (2013).
- 8) 「一般」大木偉裕，梅村拓登，奈須野恵理，飯村兼一，加藤紀弘，"グラム陰性細菌の細胞間情報伝達機構を制御するオートインデューサートラップ材料"，第 62 回高分子学会年次大会，京都 (2013).
- 9) 「一般」高橋悠太，加藤紀弘，松永行子，"流れ場でのゲル化が生み出す「束状ゲル」"，第 35 回日本バイオマテリアル学会大会，東京 (2013).
- 10) 「一般」奈須野恵理，高山友理子，梅村拓斗，飯村兼一，諸星知広，池田 宰，加藤紀弘，"水晶発振子マイクロバランス法を用いたクオラムセンシングレセプターの結合配列，シグナル分子のバイオアフィニティ解析"，第 23 回日本 MRS 年次大会，横浜 (2013).

他 107 件

●著書，総説，解説等

- 1) 「解説」伊藤智志，諸星知広，加藤紀弘，池田宰，"微生物の病原性抑制効果を有する新規シクロデキストリン誘導体"，ケミカルエンジニアリング，**54**, 739-743 (2009).
- 2) 「解説」加藤紀弘，感染症を予防する高分子ゲル，ナノファイバー，バイオマテリアル・生体材料，**29**, 287-191 (2011).
- 3) 「著書」池田宰，加藤紀弘，諸星知広，伊藤智志，奈須野恵理，微生物コミュニケーション (Quorum Sensing) 制御への応用，シクロデキストリンの科学と技術，シーエムシー出版，pp.98-105 (2013).

●特許（外国，国内，公開，出願）

- 1) 「国内」出願，鈴木英雄，五十嵐孝，加藤紀弘「長期徐放型薬剤硬膜外腔留置システム」(平成 22 年 12 月).
- 2) 「国内」特許，伊藤智志，諸星知広，池田宰，加藤紀弘「シクロデキストリン誘導体」，第 4905724 号 (平成 24 年).
- 3) 「国内」出願，松永行子，高橋悠太，加藤紀弘「束状構造を有するゲルファイバー集合体の製造方法」(平成 25 年 2 月).
- 4) 「国内」出願，加藤紀弘，岡野千草「微生物製剤，微生物フロック及びその製造方法」(平成 26 年 3 月).

●受賞

- 1) A. Kobayashi, H. Motohashi, Y. Ozonoe, T. Murai, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, Poster Award of the 8th International Gel Symposium (GelSympo2009), "Development of autoinducer recognition gel for prevention of bacterial infection" (2009 年 12 月).
- 2) 小林愛雲，本橋拓志，諸星知広，池田宰，加藤紀弘，第 3 回日本化学会関東支部大会優秀ポスター賞「熱誘導相分離法で合成した多孔性ヒドロゲルを用いるクオラムセンシング制御」(2009 年 9 月).
- 3) 中田貴久，Matejka Libor，飯村兼一，加藤紀弘，第 3 回日本化学会関東支部大会優秀ポスター賞「氷を鋳型とする多孔性有機無機ハイブリッドヒドロゲルの高速熱応答」(2009. 9).
- 4) T. Imai, T. Morohoshi, N. Kato, T. Ikeda, The 6th Asian Cyclodextrin Conference (ACC2011) Early Career Researcher Award for Best Oral Presentation Silver Award, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria by amino acid-modified cyclodextrins" (2011.8)
- 5) C. Ueno, T. Umemura, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, IUMRS-ICA

2011 Excellent Poster Award, "Mass transfer rate of bacterial cell-to-cell communication signals through the hydrogel membrane immobilized with cyclodextrin" (2011. 9).

- 6) 赤羽千佳, 加藤紀弘, 飯村兼一, 福島孝典, 山本洋平, 相田卓三, 日本化学会第 92 春季年会学生講演賞, グラフェン骨格を有する両親媒性有機半導体による単分子膜の構造解析と光電流特性 (2012. 4).
- 7) 梅村拓登, 大木偉裕, 奈須野恵理, 飯村兼一, 諸星知広, 池田幸, 加藤紀弘, 第 22 回日本 MRS 学術シンポジウム奨励賞, 「エレクトロスピンニング法を用いて調製した高分子ファイバーによるバクテリアの細胞間情報伝達機構の抑制」(2012 年 9 月).
- 8) T. Morohoshi, M. Oikawa, S. Sato, N. Kikuchi, N. Kato, T. Ikeda, 日本生物工学会第 20 回生物工学論文賞, "Isolation and characterization of novel lipases from a metagenomic library of the microbial community in pitcher fluid of the carnivorous plant *Nepenthes hybrid*" (2012. 10).
- 9) E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, Excellent Paper Award of Symposium D6, 12th IUMRS International Conference on Advanced Materials, Biosensors for bacterial cell-to-cell communication due to color changes of polymer matrix immobilized with reporter bacteria, (2013. 9).
- 10) C. Okano, E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, Excellent Poster Award, 12th IUMRS International Conference on Advanced Materials, Designing the polymer gel sheets for suppression of bacterial communication systems and investigation of mechanisms, (2013. 9).
- 11) 高橋尚之, 奈須野恵理, 松永行子, 加藤紀弘, 第 23 回日本 MRS 年次大会奨励賞, 「マイクロ流路デバイスを用いて調製したマイクロカプセル内部におけるクオラムセンシングシグナルの不活化」(2013 年 12 月).

●外部資金 (科学研究費 : 科研、奨学寄付金 : 奨学, 受託研究 : 受託, 共同研究 : 共同)

- 1) 「科研」加藤紀弘, 2,500 千円, 「マイクロ流体デバイスを用いたバイオフィルムモデルの作成とバイオレメディエーション」基盤研究 C (平成 24 年).
- 2) 「科研」加藤紀弘, 500 千円, 「マイクロ流体デバイスを用いたバイオフィルムモデルの作成とバイオレメディエーション」基盤研究 C (平成 25 年).
- 3) 「共同」200 千円「光触媒活性測定に用いるヒドロゲルセンサーの開発」マロニエ技術研究所 (平成 21 年).
- 4) 「受託」200 千円「光触媒活性測定に用いるヒドロゲルセンサーの開発」マロニエ技術研究所 (平成 22 年).
- 5) 「受託」加藤紀弘, 9,050 千円「ナノテクノロジーとバイオテクノロジーの融合による革新的な水処理微生物制御技術の開発」戦略的創造研究推進事業・JST CREST (平成

- 22年).
- 6) 「受託」加藤紀弘, 13,600 千円「ナノテクノロジーとバイオテクノロジーの融合による革新的な水処理微生物制御技術の開発」戦略的創造研究推進事業・JST CREST (平成 23 年).
 - 7) 「受託」加藤紀弘, 13,100 千円, 「ナノテクノロジーとバイオテクノロジーの融合による革新的な水処理微生物制御技術の開発」戦略的創造研究推進事業・JST CREST (平成 24 年).
 - 8) 「受託」加藤紀弘, 13,822 千円, 「ナノテクノロジーとバイオテクノロジーの融合による革新的な水処理微生物制御技術の開発」戦略的創造研究推進事業・JST CREST (平成 25 年).
 - 9) 「奨学」2,500 千円「バクテリアの細胞間コミュニケーションに学ぶ感染症予防材料の開発」積水化学自然に学ぶものづくり研究助成 (平成 21 年).
 - 10) 「奨学」加藤紀弘 (分担), 1,000 千円「微生物間シグナル伝達機構を標的とした抗生物質に代わる新しい病原性抑制技術の開発」財団法人発酵研究所研究助成 (平成 21 年).
 - 11) 「奨学」加藤紀弘 (分担), 1,000 千円「微生物間シグナル伝達機構を標的とした抗生物質に代わる新しい病原性抑制技術の開発」財団法人発酵研究所研究助成 (平成 22 年).
 - 12) 「奨学」加藤紀弘 (分担), 1,000 千円「微生物間シグナル伝達機構を標的とした抗生物質に代わる新しい病原性抑制技術の開発」財団法人発酵研究所研究助成 (平成 23 年).
 - 13) 「奨学」加藤紀弘, 1,300 千円「電気絶縁電線用塗料の開発研究に関する奨学寄附金」東特塗料株式会社 (平成 21 年).
 - 14) 「奨学」加藤紀弘, 1,300 千円「電気絶縁電線用塗料の開発研究に関する奨学寄附金」東特塗料株式会社 (平成 22 年).
 - 15) 「奨学」加藤紀弘, 1,300 千円「電気絶縁電線用塗料の開発研究に関する奨学寄附金」東特塗料株式会社 (平成 23 年).

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

イ) ベンチャー起業 0 件

ロ) 報道 2 件

- ・下野新聞 池田幸, 加藤紀弘, 内山裕夫「ナノテクノロジーとバイオテクノロジーの融合による革新的な水処理微生物制御技術の開発」(2010 年 11 月 20 日).
- ・とちぎテレビ 池田幸, 加藤紀弘, 内山裕夫「ナノテクノロジーとバイオテクノロジーの融合による革新的な水処理微生物制御技術の開発」(2010 年 11 月 23 日).

ハ) 展示 1 件

イノベーションジャパン 2009—大学見本市 「微生物の Quorum Sensing 制御技術の開発」, 東京 (2009 年 9 月 16—18 日).

ニ) 技術指導 0 件

プロジェクト 17 ボロンドープダイヤモンドの電子物性の解析 及びそれを用いた環境センシング・対処技術の開発

吉原佐知雄(准教授)*, 鈴木光政 (教授・平成 24 年度まで)*,

*1 大学院工学研究科学際先端システム学専攻 sachioy@cc.utsunomiya-u.ac.jp

1. 諸言

人工ダイヤモンドの作製段階でドーパントと呼ばれる不純物の添加を行うことにより、導電性をもつダイヤモンドを作製することができる。本研究では導電性・半導体性ダイヤモンドに関してさらなる電気化学的知見を得ることを目的として、ボロンドープダイヤモンド(BDD)薄膜を作製し、その磁場作用下及び磁場・光作用下の電気化学的特性の解析を行った。

2. 実験方法

2.1 磁場作用下の電気化学的特性解析

Si(1 1 1)の基板上にマイクロ波プラズマ CVD 法で導電性 BDD(原料比 B/C=10000 ppm, 成膜時間 24 時間)を作製し、導電性 BDD 電極とした。作製条件を以下の Table 1 に示す。得られた導電性 BDD 電極を作用極、対極として白金メッシュ電極、参照電極として飽和カロメル電極(SCE)を用い、電気化学測定システム(北斗電工製・HZ-5000)による CV 測定を行った。また、BDD 電極の比較対象として、一般的な電極材料として用いられているグラッシーカーボン(GC)電極、白金(Pt)電極を作用極に用いて同様の CV 測定を行った。

さらに、磁場作用下での各電極の電気化学特性を確認するために、自作の磁場作用ユニットを使用して同様の CV 測定を行った。磁場作用ユニットは 10 φ×5 t のネオジウム磁石((株)マグナ製)を使用し、電極付近の磁束密度が約 60 mT になるように設置した。磁場を作用させる方向は、電極に対して垂直手前方向、垂直奥方向、平行右方向、平行左方向の計 4 パターン行った。

2.2 磁場・光作用下の電気化学的特性解析

2.1 と同様の基板、CVD 装置を用いて半導体性 BDD(原料比 B/C=10 ppm, 成膜時間 50 時間)を作製し、半導体性 BDD 電極とした。作製条件を同じく Table 1 に示す。得られた半導体性 BDD 電極を作用極、対極として白金線(0.5 mm ×20 mm)、参照極には飽和カロメル電極(SCE)、光源には重水素ランプ(C3150、浜松ホトニクス株式会社)を用い、石英凸レンズ(直径 50mm、焦点距離 150mm)を用いて集光した状態で、電気化学測定システム(北斗電工製・HZ-5000)による光作用下 LSV 測定を行った。さらに、2.1 で使用した磁場作用ユニットを併用し、磁場・光作用下での半導体性 BDD 電極の電気化学特性を確認するために、同様の LSV 測定を行った。

Table 1 Preparation condition for BDD.

Substrate	Si(1 1 1)
Raw materials	acetone/methanol/B ₂ O ₃
Raw-material ratio B/C	10000 ppm or 10 ppm
Chamber pressure	70 Torr
Substrate temperature	540 °C
Microwave output	1500 W
Deposition time	24 hr or 50hr

3. 結果及び考察

以下の Fig. 1 は作製した導電性 BDD 電極の無磁場での CV 測定結果と磁場作用下(垂直手前方向)で

の CV 測定結果を比較したものである。また、CV 測定結果をもとに算出(Fig. 2)した各電極のカソード側バックグラウンド電流の値を以下の Table 2 に示す。

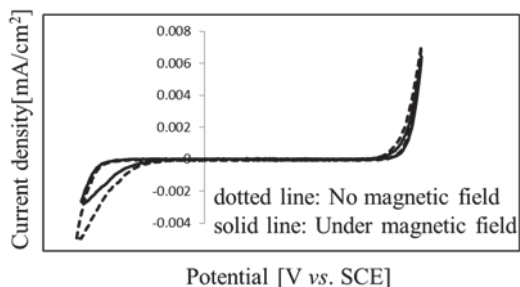


Fig. 1 Cyclic voltammograms of BDD electrode.

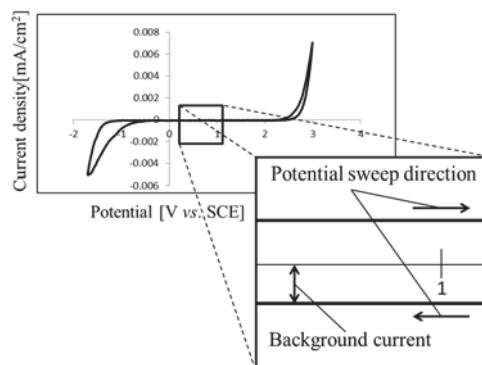


Fig. 2 Background current.

Table 2 Lists of background current under each experimental condition.

	BDD electrode	GC electrode	Pt electrode
No magnetic field	2.47×10^{-5} mA/cm ²	1.91×10^{-3} mA/cm ²	2.91×10^{-4} mA/cm ²
Parallel left direction	1.35×10^{-5} mA/cm ²	1.83×10^{-3} mA/cm ²	4.23×10^{-4} mA/cm ²
Parallel right direction	1.66×10^{-5} mA/cm ²	1.81×10^{-3} mA/cm ²	3.61×10^{-4} mA/cm ²
Vertical front direction	2.51×10^{-5} mA/cm ²	1.88×10^{-3} mA/cm ²	3.42×10^{-4} mA/cm ²
Vertical back direction	2.78×10^{-5} mA/cm ²	1.89×10^{-3} mA/cm ²	2.99×10^{-4} mA/cm ²

この CV 測定結果より、導電性 BDD 電極では磁場を作用させると、水素発生に基づく還元電流が大きく減少することが確認できた。これは、マイクロ MHD 効果により発生した対流によって、電極表面への水素の吸着が抑制され、水素発生反応の初期過程である Volmer 反応が抑制されたことが原因であると考えられる。さらに、Table 2 に示したように BDD 電極にはバックグラウンド電流が極めて小さいという特有の性質があり、磁場作用下でも安定して小さな値をとっていたことから、磁場を作用させるにより発現したマイクロ MHD 効果が厚い電気二重層内部にも働き、還元反応が抑制されたと考えられる。

次に、以下の Fig. 3, 4 に半導体性 BDD の LSV 測定結果を示す。

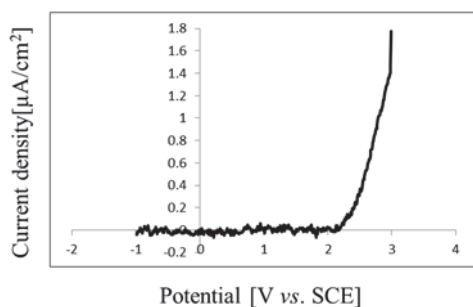


Fig. 3 Linear sweep voltammogram of BDD.
【No magnetic field, Under light irradiation】

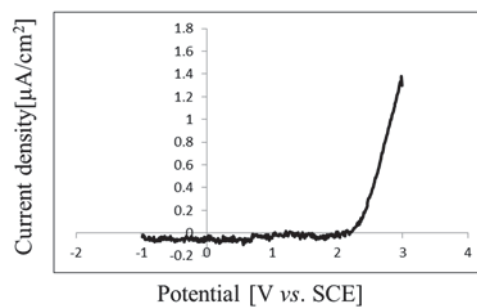


Fig. 4 Linear sweep voltammogram of BDD.
【Under magnetic field, Under light irradiation】

この LSV 測定結果より、半導体性 BDD 電極では磁場・光同時作用下でのみ、フラットバンド電位の 1 V vs. SCE 付近で光カソード電流が観測された。磁場・光作用下でのみ光カソード電流が観測された原因として、磁場を作用させたことにより発生したホール効果の影響を受け、光励起により生じた電子の移動が促進され、還元反応が促進されたことが考えられる。

プロジェクト 17 ボロンドープダイヤモンドの電子物性の解析及びそれを用いた環境
センシング・対処技術の開発

(担当者) 吉原佐知雄, 鈴木光政 (平成 24 年度まで)

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) 鈴木大介, 吉原佐知雄#, 筑後悠佳, 工藤南海夫、電析 Ni-P 合金電極の水電解用アノードとしての in situ 耐食性評価、表面技術、60(2), 129-133(2009)
- 2) Sachio Yoshihara, Photocatalytic Film Prepared by Electrophoretic Sol-Gel Deposition - Challenges for the Visible Light Activity, ECS Transactions - Honolulu, HI, Volume 16-Green Electrodeposition 2, (2009)
- 3) S.Yoshihara, M.Muruganathan, Decomposition of Various Endocrine Disrupting chemicals at Boron Doped Diamond electrode, Electrochimica Acta, 54, 2031-2038 (2009)
- 4) 佐々木修一、吉原佐知雄#, Cu (II) ピコリン酸錯体を利用したスーパーキャパシタに関する研究 (第 2 報) , Electrochemistry, 77(4), 315-318 (2009)
- 5) 松田光由、高橋拓也、吉原佐知雄#, 土橋 誠、電気銅めっき皮膜の物性におよぼす浴中添加剤の効果、表面技術、60(6), 413-415 (2009)
- 6) 筑後悠佳、吉原佐知雄#, 磁気研磨法のはんだ印刷用マスク加工技術への応用、表面技術、60(7), 523 (2009)
- 7) Mitsuyoshi Matsuda, Takuya TAKAHASHI, Sachio YOSHIHARA# and Makoto DOBASHI, Effect of the Additives in the Electrolyte on the Physical Property of the Electrodeposited Copper, Transactions of The Japan Institute of Electronics Packaging, 2, 55-61 (2009)
- 8) 吉原佐知雄、ヒドロキノン／繊維状活性炭電極の電気二重層・疑似容量複合キャパシタへの応用、表面技術、61(3), 263-266 (2010)
- 9) 高橋拓也、松田光由、吉原佐知雄#, 銅電析における浴中添加剤の影響に関する EQCM 法による解析、表面技術、61(4), 334-336 (2010)
- 10) M.Muruganathan, S.S.Lathaa, G.Bhaskar Rajua, S.Yoshihara#, Anodic oxidation of ketoprofen- an anti inflammatory drug using borondoped diamond and platinum electrodes, Journal of Hazardous Materials, 180, 753-758 (2010)
- 11) 久保田賢治, 藤崎 済, 小綿 明, 相田正之, 古内哲哉, 櫻井 健, 吉原佐知雄#, 2 層 FCCL の Ni-Cr-Mo シード層のエッチング性および耐食性, エレクトロニクス実装学会誌, 14(2), 136-139 (2011)
- 12) M.Muruganathan, S.S.Lathaa, G.Bhaskar Rajua, S.Yoshihara#, Role of electrolyte on anodic mineralization of atenolol at boron doped diamond and Pt electrodes,

- Separation and Purification Technology, 79, 56–62 (2011).
- 13) Sachio Yoshihara, QCM Analysis of the Deposition Process in the Presence of the Additives for Copper Foil, ECS Transactions - Boston, MA" Volume 41, "Fundamentals of Electrochemical Growth: From UPD to Microstructures 2", (2012)
 - 14) 久保田 賢治, 新山 貴士, 松本 克才, 吉原 佐知雄, ペルオキシ二硫酸アンモニウム溶液を用いた銅のエッチングレートに結晶構造が及ぼす影響, エレクトロニクス実装学会誌, 15(3), 197-204 (2012)
 - 15) Yanrong Zhang , Ying Zhang, Nan Yang, Wenjuan Liao, Sachio Yoshihara, Electrochemical degradation and mechanistic analysis of microcystin-LR, Journal of Chemical Technology & Biotechnology, accepted for publication
 - 16) 柳岡俊宏, 吉原佐知雄, ボロンドープダイヤモンドの磁場作用下の電気化学反応に関する研究, Electrochemistry, 81 (2), 70 -73 (2013)
 - 17) Yanrong Zhang, Nan Yang, M. Murugananthan, Sachio Yoshihara, Electrochemical degradation of PNP at boron-doped diamond and platinum electrodes, Journal of Hazardous Materials, 244–245, 295–302(2013)
 - 18) 久保田 賢治, 松本 克才, 吉原 佐知雄, 過酸化水素-硫酸エッチング液による銅のエッチングレートに結晶組織が及ぼす影響, エレクトロニクス実装学会誌, 16(2), 119-126 (2013)
 - 19) 久保田賢治、松本克才、吉原佐知雄、パルス電解条件が銅めつき皮膜の結晶配向性とエッチングレートに与える影響、表面技術、64(6), 358-370 (2013)
 - 20) Wenjuan Liao, Yanrong Zhang, Mi Zhang, Muthu Murugananthan, Sachio Yoshihara, Effective Photoelectrocatalysis Degradation of Microcystin-LR on Ag/AgCl/TiO₂ Nanotube Arrays Electrode under Visible Light Irradiation, Chemical Engineering Journal, 231, 455–463(2013)
 - 21) Sachio Yoshihara, Daisuke Suzuki, Kouji Someya, Takanori Kikuchi, Yoshifusa Ishikawa, Electrode Performance of Newly Developed Ni-W-S Deposited Alloy for Alkaline Water Electrolysis, ECS Transactions, Volume 53, accepted for publication (Sept. 2013)
- 国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)
- 1) *OP* Sachio Yoshihara, Shuuichi Sasaki, The Performance of Active Carbon Adsorbed with Cu(II)-picolinic Acid Complex or Hydroquinone as Electric Double Layer Capacitor, 60th Annual Meeting of the International Society of Electrochemistry, Beijing, China (2009.8.16-21)
 - 2) *OP* Sachio Yoshihara, Vembu Suryanarayanan, Muthu.Murugananthan, Yanrong Zhang, Recent Trends in Diamond Electrochemistry, The 61st Annual Meeting of

the International Society of Electrochemistry, Nice, France (2010. 9.26-10.1)

- 3) *OP* Daisuke Suzuki, Ryu Miyamoto, Yoshifusa Ishikawa, Sachio Yoshihara, The cathodic performance of nickel-tungsten-sulfur alloy for alkaline water electrolysis, The 62nd Annual Meeting of the International Society of Electrochemistry, Niigata, Japan(2011. 9.11-16)
- 4) *OP* Sachio Yoshihara, QCM Analysis of the Deposition Process in the Presence of the Additives for Copper Foil, ECS Transactions - Boston, MA" Volume 41, "Fundamentals of Electrochemical Growth: From UPD to Microstructures 2", (2012)
- 5) *OP* Sachio YOSHIHARA, Ryu Miyamoto, Daisuke Suzuki, Tomoya Suzuki and Yoshifusa Ishikawa Newly Developed Electroplated Ni-W-S Alloy Cathode for Alkaline Water Electrolysis, The 63rd Annual Meeting of the International Society of Electrochemistry, Prague, Czech Republic (August, 2012)
- 6) *OP* Daisuke Suzuki, Tomoya Suzuki, Koji Someya, Ryu Miyamoto, Yoshifusa Ishikawa, Sachio Yoshihara, Electroplated Ni-W-S alloy cathode for alkaline water electrolysis, Prime 2012, Honolulu, HI (October, 2012)
- 7) *OP* Sachio Yoshihara, Co-Ni Electroless Composite Plating of 20 nm Diamond particles on 10 micrometer Plastic Balls and the Application of thus prepared devices to Post CMP Processes, Prime 2012, Honolulu, HI (October, 2012)Sachio Yoshihara, ISE, Prague
- 8) *OP* Sachio Yoshihara, Daisuke Suzuki, Koji Someya Koji, Takanori Kikuchi, Yoshifusa Ishikawa, Electrode Performance of Newly Developed Ni-W-S Deposited Alloy for Alkaline Water Electrolysis, 223rd ECS Meeting, Toronto, ON, Canada I May 12-16, 2013

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「招待」、吉原佐知雄、“めっき”で作る世界最高レベルのアルカリ水電解用電極表面—Ni-W-S, Ni-P “、(一社)表面技術協会・将来めっき技術検討部会第8回例会、(独)産業技術総合研究所 臨海副都心センター (2012 5)
- 2) 「招待」、吉原佐知雄、“ダイヤモンド電極の基礎と応用”、ニューダイヤモンドフォーラム平成24年度第3回研究会、東京大学駒場リサーチキャンパス(2013 1、)
- 3) 「一般」、久保田賢治、松本克才、吉原佐知雄、硫酸-過酸化水素溶液による銅のエッチングレートに結晶構造の及ぼす影響、21回マイクロエレクトロニクスシンポジウム (2012)
- 4) 「一般」、秋葉拓也、吉原佐知雄、石川祥久、及川 渉、“アルミニウム基板上への先進型鉄系めっき技術に関する検討 (第二報)”、表面技術協会第126回講演大会、室蘭工業

大学 (2012)

- 5) 「ポ」、池田篤史、吉原佐知雄、“半導体電極及びボロンドープダイヤモンドのハイブリッドシステムによる環境浄化技術の検討”、第 19 回シンポジウム「光触媒反応の最近の展開」、東京大学生産技術研究所コンベンションホール (2012)
- 6) 「ポ」、奈良 英、吉原佐知雄、“ゾルゲル電気泳動析出法を用いた可視光活性光触媒薄膜の作製に関する研究”、第 19 回シンポジウム「光触媒反応の最近の展開」、東京大学生産技術研究所コンベンションホール (2012)
- 7) 「一般」、伊達和宏、吉原佐知雄、野澤純一、野尻尚克、“金めっき浴中における銅不純物の電解除去による管理技術に関する速度論的解析”、第 27 回 エレクトロニクス実装学会春季講演大会講演要旨集、第 27 回 エレクトロニクス実装学会春季講演大会 エレクトロニクス実装学会、東北大学川内北キャンパス (2013)
- 8) 「一般」松原寿恵、吉原佐知雄、石堂慎士、野尻尚克、“銅めっきハーフエッチング時に発生する孔食に関する研究”、表面技術協会第 127 回講演大会、日本工業大学 (2013)
- 9) 「一般」、石川祥久、吉原佐知雄、秋葉拓也、及川 渉、“アルミニウム基板上への先進型鉄系めっき技術に関する検討 (第 3 報)”、表面技術協会第 127 回講演大会 表面技術協会、日本工業大学 (2013)
- 10) 「一般」、奈良 英、吉原佐知雄、“銅 (II) ピコリン酸錯体を担持したゾルゲル電気泳動析出法を用いて作製した酸化チタン光触媒皮膜の可視光活性の評価”、電気化学会第 80 回大会、東北大学川内キャンパス(2013)

他 40 件

●著書，総説，解説等

- 1) 「著書」 M.Muruganathan, S.Yoshihara. “Anodic decomposition of endocrine disrupting chemicals using boron doped diamond (Si/BDD) thin film electrode” in Photo/Electrochemistry & Photobiology in the Environment, Energy and Fuel; Editor-in-chief: Prof.Satoshi Kaneco; Publisher: Research signpost, India.(2009)
- 2) 「著書」 M.Muruganathan, G.Bhaskar Raju, S.Yoshihara, “Treatment of pharmaceutically active compounds by electrooxidation using Boron Doped Diamond and platinum anodes”,in Hazardous Materials - Types, Risks and Control; Publisher: Nova Science Publishers, Inc., USA(2011)
- 3) 「著書」吉原佐知雄、正しい測定値をだし、測定誤差をなくすために！インピーダンス測定における測定条件の設定・データの解釈と誤差補正の進め方、技術情報協会 (2013)
- 4) 「著書」吉原佐知雄、オプト・エレクトロニクス・エネルギー分野における精密加工・微細構造形成のトラブル対策、応用事例集、技術情報協会 (2013)
- 5) 「著書」吉原佐知雄、光音響分光法(PAS)、電気化学便覧第 3 版、丸善 (2013)

●特許（外国，国内，公開，出願）

- 1) 「国内」取得、特許第 5099635 号、(出願人) 国立大学法人宇都宮大学、(発明者) 吉原佐知雄、横山直樹、プリント配線板の耐マイグレーション性予測法および予測装置、特願 2008-14758 (特開 2009-080094)、(出願日 2008.1.25、公開日 平成 21 年 4 月 16 日) 取得日：平成 24 年 10 月 5 日
- 2) 「国内」取得、特許第 3953921 号、(出願人) 吉原佐知雄、日本プレーテック(株) (発明者) 吉原佐知雄、朝比奈俊輔、張 延栄、白樫高史、ダイヤモンド QCM の作製方法及びそのダイヤモンド QCM (特許取得平成 18 年・平成 21 年度～3 年間特許継続)
- 3) 「国内」取得、特許 4300132 号、(出願人) 吉原佐知雄、日本プレーテック(株)、(発明者) 吉原佐知雄、久保田賢治、及川 渉、組成傾斜構造を持つ合金めっき皮膜及びその作製方法、特願 2004—039318 (出願日：平成 16 年 2 月 17 日) 取得日；平成 21 年 4 月 24 日
- 4) 「国内」取得、特許 4324672 号、(出願人) 国立大学法人宇都宮大学、(発明者) 吉原佐知雄、張 延栄、ダイヤモンド電極及びこれを用いた無電解ニッケルめっき浴の管理方法並びに測定装置、特願 2004-276533 (出願日 2004.9.24) 取得日：平成 21 年 6 月 19 日
- 5) 「国内」出願、鈴木大介、鈴木友也、吉原佐知雄、石川祥久、アルカリ水電解用電極、その製造方法及び水素発生装置、特願 2011-015820 (出願日：平成 23 年 1 月 27 日)
- 6) 「国内」出願、鈴木大介、鈴木友也、吉原佐知雄、石川祥久、アルカリ水電解用電極の製造方法、特願 2011-189670 田尾幸一、峰 一朗「自己認識装置」(平成 21 年 5 月)

●外部資金（科学研究費：科研、奨学寄付金：奨学、受託研究：受託、共同研究：共同）

平成 25 年度

- 1) 奨学寄付金 代表者・吉原佐知雄、明電舎 「電気化学的手法による材料劣化診断の研究推進」 300 千円
- 2) 奨学寄付金 代表者・吉原佐知雄、株式会社 JCU 吉原佐知雄准教授への研究に対する寄附 吉原 佐知雄 500 千円
- 3) 共同研究経費 代表者；吉原佐知雄、(株)大昌電子、「エレクトロニクス実装技術に係るめっき技術」1,200 千円

平成 24 年度

- 1) 共同研究経費 代表者；吉原佐知雄、(株)大昌電子「エレクトロニクス実装技術に係るめっき技術」・1200 千円
- 2) 共同研究経費 代表者；吉原佐知雄、明電舎「鉛フリーはんだ信頼性 新評価方法の探索」・800 千円

- 3) 奨学寄付金 代表者・吉原佐知雄、川田工業(株)「防錆アクリルコーティングの性能確認試験」・800 千円
- 4) 奨学寄付金 代表者・吉原佐知雄、株式会社ギャラキシー「新型レドックスフロー電池に関する研究」・200 千円

平成 23 年度

- 1) 戦略的基盤技術高度化支援事業（経済産業省）・アモルファス合金めっきによる燃料電池供給用水電解装置の開発・副統括・2,000 千円
- 2) 「知財活用促進ハイウェイ」大学特許価値向上支援試験研究費／技術移転調査費（JST）・電気化学的手法を用いて作製した新規磁性砥粒を用いた LSI 用ポスト CMP 技術の創成・代表者・2,990 千円・
- 3) 奨学寄付金 代表者・財団法人新生資源協会研究助成・「エレクトロニクス実装分野にかかわる信頼性解析」・800 千円
- 4) 奨学寄付金 代表者・川田工業(株)「防錆アクリルコーティングの性能確認試験」・500 千円
- 5) 共同研究経費 代表者；吉原佐知雄、(株)大昌電子、「金めっき液中の不純物が及ぼすワイヤーボンディング特性への影響」・1,200 千円
- 6) 共同研究経費 代表者；吉原佐知雄、バンテック(株)、「アルカリ水電解用電極の加速試験条件の選定」・250 千円

平成 22 年度

- 1) 受託研究費 戦略的基盤技術高度化支援事業（経済産業省）・アモルファス合金めっきによる燃料電池供給用水電解装置の開発・副統括・2,000 千円
- 2) 奨学寄付金 代表者・財団法人新生資源協会研究助成・「エレクトロニクス実装分野にかかわる信頼性解析」・800 千円
- 3) 共同研究経費 代表者；吉原佐知雄、(株)大昌電子、金めっき液中の不純物が及ぼすワイヤーボンディング特性への影響・1,200 千円

平成 21 年度

- 1) 共同研究経費 代表者；吉原佐知雄、(株)大昌電子、「電気めっき液中不純物のめっき膜特性への影響およびめっき液中不純物の電気化学的評価技術に関する研究」・800 千円

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

イ)展示 2 件

- ・宇大企業交流会「第 6 回宇都宮大学企業交流会」アモルファス合金電極を利用した水電解装置の開発、株式会社バンテック 吉原佐知雄

・ JPCA Show 2012、研究室紹介"JPCA Show 東京ビックサイト
宇都宮大学吉原研究室"

ロ) 技術指導 2件

・ 韓国企業 LS Mtron 社での講演、先端エレクトロニクス実装材料としての銅箔製造技術に関する研究～電気銅めっき皮膜の物性におよぼす浴中添加剤の効果～(2012年9月)

・ JCU 株式会社で講演、宇都宮大学における四半世紀の表面技術に関する研究を振り返って～磁気研磨とQCMを中心に～、技術講演会、株式会社 JCU 本社、東京都台東区東上野4丁目8-1 (2012年2月28日)

ハ) その他教育活動 2件

・ 高校生への模擬授業・授業科目名「Diamonds are Forever-ダイヤモンドは永遠に-」・群馬県立富岡高等学校2年生理系14名、引率教諭2名・平成24年6月19日(火)12:55～13:45、総合研究棟2号棟222教室(宇都宮大学工学部キャンパス)

・ 学理に基づく材料表面加工技術の高度技術者養成講座“めっき処理技術に関する基礎と応用”講師(2012,10,5)

モレキュラーデザインによる環境微生物制御系の創出

池田幸(教授)^{*1}, 前田勇(准教授)^{*2}, 二瓶賢一(准教授)^{*2}, 諸星知広(准教授)^{*1}

*1 大学院工学研究科物質環境化学専攻

*2 農学部応用生命化学科

1. 本プロジェクトの目的

地球最古のそして地球環境の整備と維持にもっとも貢献している生物は微生物である。微生物は、単純で弱い生物ではあるが、過酷な自然環境に適応するため、変異や分裂を容易に繰り返し、様々な機能を発現しながら種の保存を図っている。現在、人類が引き起こした深刻な様々な環境問題に対する技術開発が必須となっているが、このような微生物の持つ生存戦略を分子レベルで解明することによって、種々の問題を打開する解決策が生まれる可能性は高い。しかし、微生物は、人間にとって、発酵や有用物質生産に寄与する「正」の機能と、病原性や毒性の発現という「負」の機能の両面を有している。すなわち、環境微生物を新たな資源・利器として用いるためには、その微生物機能の利用、亢進を図る系を構築する一方で、医療や保健衛生学などの観点から、毒性や病原性を低減化する技術開発が必須となる。そこで、本プロジェクトでは、低分子から高分子までの幅広い分子を対象としたモレキュラーデザインを行い、環境微生物の有用化を促進する制御技術系の創出を目的とし、実施された。以下、本プロジェクトの成果を報告する

2. バクテリアのコミュニケーション機構の解析とその制御技術の開発

2.1 植物共生細菌のコミュニケーション機構を利用した病原性阻害技術の開発

微生物の中でも細菌(バクテリア)の多くはオートインデューサーと呼ばれるシグナル分子を生産し、オートインデューサーを介した細胞間コミュニケーションにより、周囲の細胞密度を感知し、応答する機構を有している。この機構を **Quorum Sensing (QS)** と呼ぶ。オートインデューサーの構造は、細菌種によって様々であるが、本研究で対象としたグラム陰性細菌の場合、アシル化ホモセリンラクトン(AHL)が主に用いられていることが明らかとなっている。QSが注目されている理由として、多くの病原性細菌が自身の病原性因子の発現を

QSにより制御する点が挙げられる。その一方で、AHLを介したQSにより他の病原菌に対して増殖阻害効果を示す抗菌物質の生産を制御する細菌の存在も明らかになってきた。そこで本研究では、ターゲットを植物病原性細菌及び植物共生細菌に絞り、(1) AHLを介したQSのポジティブな制御による植物病原性真菌の増殖阻害技術の開発、(2) AHL分解細菌を用いたQSのネガティブな制御による植物病原性細菌の病原性抑制技術の開発の2種類の手法で植物病抑制技術の開発を行った。

2.1.1 AHLを介したQSのポジティブな制御による植物病原性真菌の増殖阻害技術の開発

本課題では、*Pseudomonas chlororaphis* subsp. *aurantiaca* StFRB508株を解析対象として用いた。StFRB508株は抗菌物質であるフェナジン-1-カルボン酸 (PCA) を生産し、病原性真菌の増殖を阻害することが可能である。*P. chlororaphis* subsp. *aurantiaca* の近縁種ではPCAの生産がAHLを介したQSにより制御される例が報告されていることから、まずStFRB508株のQS関連遺伝子のクローニング及び機能解析を行うため、StFRB508株の全ゲノム配列を決定したところ、AHL合成遺伝子 *phzI* と AHLレセプター遺伝子 *phzR* からなるクラスターと、AHL合成遺伝子 *aurI* と AHLレセプター遺伝子 *aurR* からなるクラスターの存在が明らかとなった。これらのAHL合成遺伝子及びAHLレセプター遺伝子の破壊株を作成し、PCA生産を検証した結果、PCA生合成遺伝子クラスターはAHLレセプター遺伝子である *phzR* により制御されており、*phzI* により生産されるAHLに強く応答し、*aurI* により生産されるAHLにはわずかに応答してPCAの生産が活性化することが明らかとなった (図1)。

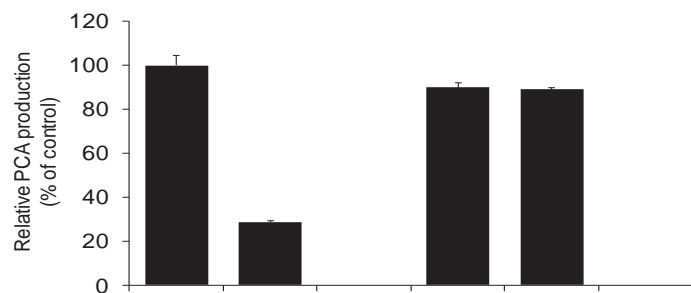


図1. StFRB508株及び *phzI* 破壊株 (508PI), *phzR* 破壊株 (508PR), *aurI* 破壊株 (508AI), *aurR* 破壊株 (508AR), *phzIaurI* 二重破壊株 (508PAI) によるPCA生産量の比較

次に、作成した変異株についてキャベツ萎黄病菌に対する増殖阻害効果を検証したところ、PCAを生産できない *phzIaurI* 二重破壊株は増殖阻害効果を完全に消失することが明らかとなった。以上より、StFRB508株のQuorum Sensingは病原性真菌に対する抗菌活性を正に制御することが明らかとなった。(図2)

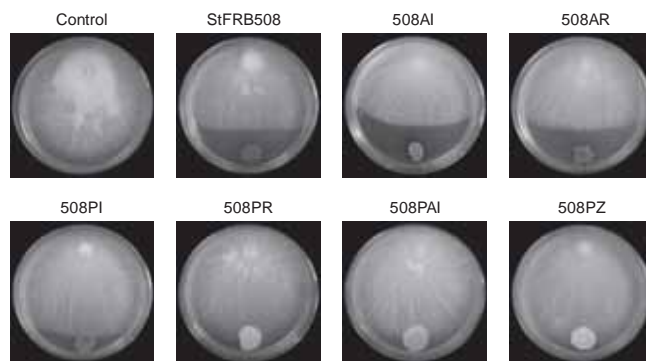


図2. StFRB508株及び *phzI* 破壊株 (508PI), *phzR* 破壊株 (508PR), *aurI* 破壊株 (508AI), *aurR* 破壊株 (508AR), *phzIaurI* 二重破壊株 (508PAI), PCA合成遺伝子破壊株 (508PZ) によるキャベツ萎黄病菌の増殖阻害

2.1.2 AHL 分解細菌を用いた QS のネガティブな制御による植物病原性細菌の病原性抑制技術の開発

本課題では、AHL 分解細菌を用いたジャガイモ軟腐病菌の病原性発現阻害技術の開発を行った。ジャガイモ軟腐病菌の主要な病原性因子である腐敗酵素ペクチナーゼの発現は AHL を介した QS により制御されており、QS シグナルである AHL を分解することで病原性因子の発現を大幅に抑制可能である。本研究では、ジャガイモ葉及び根に共生する細菌群の中から AHL 分解細菌をスクリーニングし、それぞれの部位で主要な構成細菌を明らかにした。その結果、ジャガイモ葉には *Microbacterium* 属細菌と *Solibacillus* 属細菌が、ジャガイモ根には *Chryseobacterium* 属細菌がそれぞれ主要な AHL 分解細菌として存在していることが明らかとなった。次に、単離した AHL 分解細菌から研究目標に掲げた AHL 分解遺伝子のクローニングを行った。遺伝子解析を行うに当たり、次世代シーケンサーを用いて主要な AHL 分解細菌の全ゲノムを決定した。*Microbacterium* 属細菌からは、新規 AHL 分解遺伝子 (*aiiM*) をクローニングすることに成功した。さらに、ジャガイモ葉から単離した 9 株全ての *Microbacterium* 属細菌から AHL 分解遺伝子である *aiiM* をクローニングすることに成功し、*aiiM* の塩基配列、アミノ酸配列、周辺配列が 16S rRNA 系統解析結果と類似していることを明らかにした。*Solibacillus* 属細菌からは、*S. silvestris* StLB046 株の全ゲノムを決定し、AHL ラクトナーゼ遺伝子である *ahlS* 遺伝子のクローニングに成功した。ジャガイモ軟腐病菌に *ahlS* 遺伝子を導入すると AHL の自己分解を引き起こしてジャガイモに対する腐敗症状が消失することが明らかとなった (図 3)。

Chryseobacterium 属細菌からは *Chryseobacterium* sp. StRB126 株の全ゲノムを決定し、ショットガンクローニング法と組み合わせることで新規 AHL ラクトナーゼ遺伝子 *aidC* のクローニングに成功した。*AidC* も *AhlS* と同様に AHL ラクトナーゼとして機能することが明らかとなった。今後は、これらの AHL 分解細菌を植物上で優占化させる技術開発を行うことで、微生物農薬等への応用の可能性が考えられる。

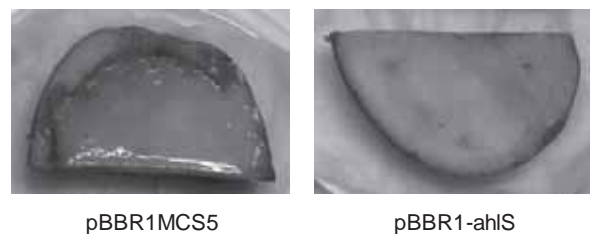


図 3. pBBR1MCS5 ベクターまたは *ahlS* 遺伝子 (pBBR1-*ahlS*) を導入したジャガイモ軟腐病菌によるジャガイモスライス腐敗試験

2.2 AHL 構造類似体を用いたバクテリアのコミュニケーション制御

QS の制御技術は多数報告されているが、その 1 つにシグナル物質である AHL の構造類似体を用いる手法がある。AHL は菌体内でそのレセプタータンパク質と結合することにより、遺伝子の転写活性を制御していることから、AHL の構造類似体が AHL のレセプタータンパク質への結合を阻害することで QS の制御が可能となる。我々は、簡便に合成可能な AHL 構造類似体として、*N*-アシルシクロペンチルアミド (Cn-CPA : 図 4) を合成した。セラチア菌

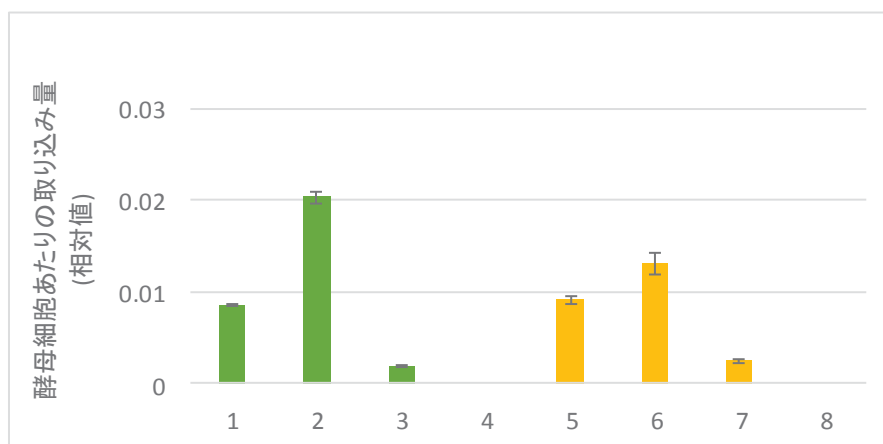


図6. 脂肪酸順化酵母による食用油の酵母細胞内への取り込み量の向上
 1-4, オリーブ油; 5-8, サラダ油; 1と5, オレイン酸順化酵母;
 2と6, リノレン酸順化酵母; 3と7, 脂肪酸順化を行わない酵母;
 4と8, 酵母の添加なし

4. 真菌細胞に形態異常を誘導するシクロデブシペプチドの化学合成

W493 A は, *Fusarium* sp. から単離された長鎖脂肪酸骨格を含む抗真菌性シクロデブシペプチドである (図7)。この化合物はイネごま葉枯病菌 (*Cochiobolus miyabeanus*) の菌糸に球状の形態異常を誘導する。従って, このような形態異常は真菌の細胞壁や細胞膜の形成不全によって引き起こされるため, W493 A は細胞種間での選択性に富む新規生理活性物質の開発のリード分子と位置づけられる。ところがその構造中には, 全合成および構造-活性相関解析を妨げている特殊ユニットの 3-hydroxy-4-methyltetradecanoic acid (HMTA) および D-allo-Thr が含まれている。そこで本研究では, キラルな HMTA と D-allo-Thr の効率的な合成経路の開拓を行った。

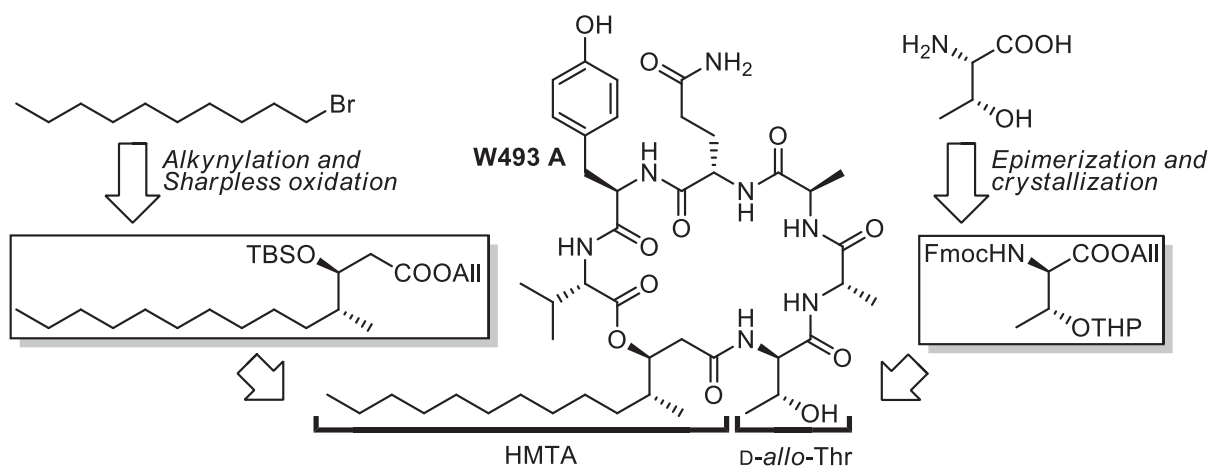


図7. W493A の構造と化学合成戦略

アルキニル化およびシャープレス酸化を鍵反応に用いて、HMTA ユニットを 1-bromodecane から 12 段階、総収率 12% で合成した。特にシャープレス酸化における光学異性体過剰率は 96% と非常に高い値を示した。一方、D-*allo*-Thr ユニットは安価な L-Thr をエピ化した後、結晶化することで得られた D-*allo*-Thr に、保護基を導入することで 4 段階、総収率 7% で得られた。このように本合成経路の開拓により、W493 A 構造中の特殊ユニットの供給が可能となった。また、構造-活性相関解析で必要となるキラルな HMTA ユニットの作り分けに成功した。今後、容易に入手可能な他のユニットとの連結を行い、W493 A 全合成の達成を目指す。

5. 総括

以上のとおり、本プロジェクトでは、プロジェクトメンバー各人が得意とする最先端の科学技術を積極的に相互活用し、生物有機化学、微生物工学、天然物化学および遺伝子工学の境界領域研究を推進することによって、環境微生物の制御系の創出を目指した。成果として、微生物間コミュニケーション機構の解析と制御技術の開発、新規センサー素子の開発と機能性ヨーグルトなどのデザイン、真菌細胞の形態異常の誘導に関する研究などに関する技術開発が進められ、別紙のとおり業績をあげることができた。このような工農連携研究、異分野融合研究は、本学において、今後益々必要な研究展開と思われる。企業との連携も含め、今後の展開を目指している。

最後に、本プロジェクトの推進にあたり、御援助いただいた本学地域共生開発センター、VBL 部門に謝意を表す。

プロジェクト 18 モレキュラーデザインによる環境微生物制御系の創出

(担当者) 池田宰, 前田勇, 二瓶賢一, 諸星知広

●原著論文 (外国, 国内)

- 1) T. Morohoshi, N. Someya, T. Ikeda (Novel *N*-acylhomoserine lactone-degrading bacteria isolated from the leaf surface of *Solanum tuberosum* and their quorum-quenching properties, Biosci. Biotech. Biochem., 73, 2124-2127 (2009))
- 2) T. Morohoshi, Y. Yokoyama, M. Ouchi, N. Kato, T. Ikeda (Motility and the expression of the flagellin protein FliC are negatively regulated by quorum sensing in *Edwardsiella tarda*, J. Biosci. Bioeng., 108, 314-318 (2009))
- 3) N. Someya, T. Morohoshi, N. Okano, E. Otsu, K. Usuki, M. Sayama, H. Sekiguchi, T. Ikeda, S. Ishida (Distribution of *N*-acylhomoserine lactone-producing fluorescent Pseudomonads on the phylloplane and in the rhizosphere of potato (*Solanum tuberosum* L.), Microb. Environ., 24, 305-314 (2009))
- 4) N. Kato, A. Kobayashi, H. Motohahsi, Y. Ozonoe, T. Morohoshi, T. Ikeda (Development of a novel hydrogel to prevent bacterial infectious diseases, Prog. Colloid. Polym. Sci., 136, 155-162 (2009))
- 5) D. Rong, K. Usui, T. Morohoshi, N. Kato, M. H. Zhou, T. Ikeda (Symbiotic degradation of polyvinyl alcohol by *Novosphingobium* sp. and *Xanthobacter flavus*, J. Environ. Biotech., 9, 131-134 (2009))
- 6) 染谷信孝, 諸星知広, 池田宰, 阿久津克己, 土屋健一 (生物防除の成否を左右する微生物間相互作用について - 植物-病原体相互作用の理解に基づく病害制御の新視点, 植物感染生理談話会論文集, 45, 1-10 (2009))
- 7) K. Yoshida, S. Ueda, I. Maeda. (Carotenoid production in *Bacillus subtilis* achieved by metabolic engineering. Biotechnol. Lett., 31, 1789-1793 (2009))
- 8) C. Tani, K. Inoue, Y. Tani, M. Harun-ur-Rashid, N. Azuma, S. Ueda, K. Yoshida, I. Maeda. (A sensitive fluorescent microplate bioassay using recombinant *Escherichia coli* with multiple promoter-reporter units in tandem for detection of arsenic. J. Biosci. Bioeng., 108, 414-420 (2009))
- 9) T. Murakami, T. Tsushima, N. Takada, K. Tanaka, K. Nihei, T. Miura, M. Hashimoto (Four analogues of spiroleptosphol isolated from *Leptosphaeria doliolum*. Bioorg. Med. Chem., 17, 492-495 (2009))
- 10) M. Ochi, K. Moriyama, K. Ohmae, Y. Fukuyama, K. Nihei, I. Kubo (Sweet and bitter constituents of *Wilbrandia* species. Food Chem., 115, 61-65 (2009))
- 11) C. Liu, K. Sugita, K. Nihei, K. Yoneyama, H. Tanaka (Absorption of hydroxyproline-containing peptides in vascularly perfused rat small intestine *in*

- situ*. Biosci. Biotechnol. Biochem., 73, 1741-1747 (2009))
- 12) W. Z. Wang, T. Morohoshi, M. Ikenoya, N. Someya, T. Ikeda, (AiiM, a novel class of *N*-acylhomoserine lactonase from the leaf-associated bacterium *Microbacterium testaceum*", Appl. Environ. Microbiol., 76, 2524-2530 (2010))
 - 13) T. Morohoshi, K. Fukamachi, M. Kato, N. Kato, T. Ikeda, (Regulation of the violacein biosynthetic gene cluster by acylhomoserine lactone-mediated quorum sensing in *Chromobacterium violaceum* ATCC 12472" Biosci. Biotech. Biochem., 74, 2116-2119 (2010))
 - 14) J. Imura, K. Kashima, M. Kusano, T. Ikeda, T. Morohoshi, (Piecewise affine systems approach to control of biological networks", Phil. Trans. R. Soc. A, 368, 4977-4993 (2010))
 - 15) I. Kubo, N. Masuoka, T. J. Ha, K. Shimizu, K. Nihei (Multifunctional antioxidant activities of alkyl gallates. The Open Bioactive Compounds Journal, 3, 1-11 (2010))
 - 16) Y. Kawakami, M. S. R. Siddiki, K. Inoue, H. Otabayashi, K. Yoshida, S. Ueda, H. Miyasaka, I. Maeda, (Application of fluorescent protein-tagged *trans* factors and immobilized *cis* elements to monitoring of toxic metals based on *in vitro* protein-DNA interactions. Biosens. Bioelectron., 26, 1466-1473 (2010))
 - 17) Y. Seto, J. Kang, L. Ming, N. Habu, K. Nihei, S. Ueda, I. Maeda, (Genetic replacement of *tesB* with *PTE1* affects chain-length proportions of 3-hydroxyalkanoic acids produced through β -oxidation of oleic acid in *Escherichia coli*. J. Biosci. Bioeng., 110, 392-396 (2010))
 - 18) M. L. Rahman, K. Yoshida, I. Maeda, H. Tanaka, S. Sugita, (Distribution of retinal cone photoreceptor oil droplets, and identification of associated carotenoids in crow (*Corvus macrorhynchos*). Zoolog. Sci., 27, 514-521 (2010))
 - 19) T. Morohoshi, T., Y. Ogata, and T. Ikeda (Cell aggregation is negatively regulated by *N*-acylhomoserine lactone-mediated quorum sensing in *Pantoea ananatis* SK-1. J. Biosci. Bioeng., 112, 566-569 (2011))
 - 20) T. Morohoshi, M. Oikawa, S. Sato, N. Kikuchi, N. Kato, and T. Ikeda (Isolation and characterization of novel lipases from a metagenomic library of the microbial community in pitcher fluid of the carnivorous plant *Nepenthes hybrida*. J. Biosci. Bioeng., 112, 315-320 (2011))
 - 21) T. Morohoshi, K. Oseki, and T. Ikeda (Exopolysaccharide production is influenced by sugars, *N*-acylhomoserine lactone and transcriptional regulators RcsA and RcsB, but does not affect pathogenicity in the plant pathogen *Pantoea ananatis*. Biosci. Biotech. Biochem., 75, 997-999 (2011))

- 22) T. Morohoshi, W. Z. Wang, N. Someya, and T. Ikeda (Genome sequence of *Microbacterium testaceum* StLB037, an *N*-acylhomoserine lactone-degrading bacterium isolated from the potato leaves. *J. Bacteriol.*, 193, 2072-2073 (2011))
- 23) R. Rashid, T. Morohoshi, N. Someya, and T. Ikeda (Degradation of *N*-acylhomoserine lactone quorum sensing signal molecules by potato root surface-associated *Chryseobacterium* strains. *Microb. Environ.*, 26, 144-148 (2011))
- 24) N. Someya, S. Ikeda, T. Morohoshi, M. Noguchi-Tsujimoto, T. Yoshida, H. Sawada, T. Ikeda, and K. Tsuchiya (Diversity of culturable chitinolytic bacteria from rhizospheres of agronomic plants in Japan. *Microb. Environ.*, 26, 7-14 (2011))
- 25) G. Nakagami, T. Minematsu, M. Asada, T. Nagase, T. Akase, L. Huang, T. Morohoshi, T. Ikeda, Y. Ohta, and H. Sanada (The *Pseudomonas aeruginosa* quorum sensing signal *N*-(3-oxododecanoyl) homoserine lactone can accelerate cutaneous wound healing through myofibroblast differentiation in rats. *FEMS Immunol. Med. Microbiol.*, 62, 157-163 (2011))
- 26) G. Nakagami, T. Morohoshi, T. Ikeda, Y. Ohta, H. Sagara, L. Huang, T. Nagase, J. Sugama, H. Sanada (Contribution of quorum sensing to the virulence of *Pseudomonas aeruginosa* in pressure ulcer infection in rats. *Wound Repair Regen.*, 19, 214-222 (2011))
- 27) I. Maeda, H. Sakurai, K. Yoshida, M. S. R. Siddiki, T. Shimizu, M. Fukami, S. Ueda (Monitoring of environmental arsenic by cultures of the photosynthetic bacterial sensor illuminated with a near-infrared light emitting diode array. *J. Microbiol. Biotechnol.*, 21, 1306-1311 (2011))
- 28) M. S. R. Siddiki, Y. Kawakami, S. Ueda, I. Maeda (Solid phase biosensors for arsenic or cadmium composed of a *trans* factor and *cis* element complex. *Sensors (Basel)*, 11, 10063-10073 (2011))
- 29) K. Nara, K. Nihei, Y. Ogasawara, H. Koga, Y. Kato (Novel isoflavone diglycoside in groundnut (*Apios americana* Medik). *Food Chem.*, 124, 703-710 (2011))
- 30) R. Tajima, H. Oozeki, S. Muraoka, S. Tanaka, Y. Motegi, H. Nihei, Y. Yamada, N. Masuoka, K. Nihei (Synthesis and evaluation of bibenzyl glycosides as potent tyrosinase inhibitors. *Eur. J. Med. Chem.*, 46, 1374-1381 (2011))
- 31) N. Tsukahara, Y. Tani, K. Nihei, Y. Kabuyama, S. Sugita (High levels of apolipoproteins found in the soluble fraction of avian cornea. *Exp. Eye. Res.*, 92, 432-435 (2011))
- 32) M. Rangel, M. P. Cabrera, K. Kazuma, K. Ando, X. Wang, M. Kato, K. Nihei, I. Y. Hirata, T. J. Cross, A. N. Garcia, E. L. Faquim-Mauro, M. R. Franzolin, H.

- Fuchino, K. Mori-Yasumoto, S. Sekita, M. Kadowaki, M. Satake, K. Konno (Chemical and biological characterization of four new linear Cationic α -helical cytolytic peptides from the venoms of two solitary eumenine wasps. *Toxicon*, 47, 1081-1092 (2011))
- 33) W. Z. Wang, T. Morohoshi, N. Someya, T. Ikeda (AidC, a novel *N*-acylhomoserine lactonase from the potato root-associated *Cytophaga- Flavobacteria-Bacteroides* (CFB) group bacterium, *Chryseobacterium* sp. strain StRB126. *Appl. Environ. Microbiol.*, 78, 7985-7992 (2012))
- 34) W. Z. Wang, T. Morohoshi, N. Someya, T. Ikeda (Diversity and distribution of *N*-acylhomoserine lactone (AHL)-degrading activity and AHL-lactonase (AiiM) in genus *Microbacterium*. *Microb. Environ.*, 27, 330-333 (2012))
- 35) T. Morohoshi, Y. Tominaga, N. Someya, T. Ikeda (Complete genome sequence and characterization of the *N*-acylhomoserine lactone-degrading gene of the potato leaf-associated *Solibacillus silvestris*. *J. Biosci. Bioeng.*, 113, 20-25 (2012))
- 36) N. Someya, T. Morohoshi, T. Ikeda, K. Tsuchiya, S. Ikeda (Genetic diversity and ecological evaluation of fluorescent Pseudomonads isolated from the leaves and roots of potato plants. *Microb. Environ.*, 27, 122-126 (2012))
- 37) E. Nasuno, T. Umemura, T. Ogi, C. Okano, T. Kawanago, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato (Inhibitory effects of quorum sensing in *Serratia marcescens* AS-1 by electrospun polyvinyl alcohol fibers immobilized with cyclodextrin. *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.*, 37, 593-596 (2012))
- 38) C. Okano, M. Arai, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato (β -Cyclodextrin interaction with *N*-hexanoyl homoserine lactone as quorum sensing signal produced in gram-negative bacteria. *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.*, 37, 315-318 (2012))
- 39) K. Harada, T. Morohoshi, T. Ikeda, S. Shimada (A patient with pseudoachromhidrosis presenting with pink nails. *J. Am. Acad. Dermatol.*, 67, e74-e75 (2012))
- 40) M. S. R. Siddiki, S. Ueda, I. Maeda (Fluorescent bioassays for toxic metals in milk and yoghurt. *BMC Biotechnol.*, 12, 76, (2012))
- 41) M. S. R. Siddiki, S. Shimoaoki, S. Ueda, I. Maeda (Thermoresponsive magnetic nano-biosensors for rapid measurements of inorganic arsenic and cadmium. *Sensors (Basel)*, 12, 14041-14052 (2012))
- 42) S. Kanamaru, M. Honma, T. Murakami, T. Tsushima, S. Kudo, K. Tanaka, K. Nihei, T. Nehira, M. Hashimoto (Absolute stereochemistry of altersolanol A and alterporriols. *Chirality*, 24, 137-146 (2012))

- 43) 谷優里, 塚原直樹, 燕山由己人, 二瓶賢一, 杉田昭栄 (ニワトリ角膜におけるコレステロールエステルとアポリポタンパク質 A-I, 日本家禽学会誌, 49, J1-J6 (2012))
- 44) N. Masuoka, K. Nihei, T. Masuoka, K. Kuroda, K. Sasaki, I. Kubo (The inhibition of uric acid formation catalyzed by xanthine oxidase properties of the alkyl caffeates and cardol. Journal of Food Research, 1, 257-262 (2012))
- 45) U. M. Mamenzigou, T. Ikeda, T. Morohoshi, M. Nakayama, K. Yui (The inclusion complex formation of epigallocatechin gallate in γ -cyclodextrin and Its effect on the antioxidant activity, Trans. Mater. Res. Soc. Jpn., 38, 681-685 (2013))
- 46) S. Ochiai, T. Morohoshi, A. Kurabeishi, M. Shinozaki, H. Fujita, I. Sawada, T. Ikeda (Production and degradation of *N*-acylhomoserine lactone quorum sensing signal molecules in bacteria isolated from activated sludge, Biosci. Biotech. Biochem., 77, 2436-2440 (2013))
- 47) T. Morohoshi, W. Z., Wang, T. Suto, Y. Saito, S. Ito, N. Someya, T. Ikeda (Phenazine antibiotic production and antifungal activity are regulated by multiple quorum-sensing systems in *Pseudomonas chlororaphis* subsp. *aurantiaca* StFRB508, J. Biosci. Bioeng., 116, 580-584 (2013))
- 48) T. Morohoshi, K. Tokita, S. Ito, Y. Saito, S. Maeda, N. Kato, T. Ikeda (Inhibition of quorum sensing in Gram-negative bacteria by alkylamine-modified cyclodextrins, J. Biosci. Bioeng., 116, 175-179 (2013))
- 49) T. Kato, T. Morohoshi, S. Tsushima, T. Ikeda (Phenotypic characterization of colony morphological mutants of *Burkholderia glumae* emerged during subculture, J. Gen. Plant Pathol., 79, 249-259 (2013))
- 50) E. Nasuno, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato (Quick detection of cell-to-cell communication in gram-negative bacteria by color change of polymer matrix entrapping reporter bacteria, Mater. Res. Innovat, accepted)
- 51) Y. Migiyama, Y. Kaneko, K. Yanagihara, T. Morohoshi, Y. Morinaga, S. Nakamura, T. Miyazaki, H. Hasegawa, K. Izumikawa, H. Kakeya, H. Kohrogi, S. Kohno (Efficacy of AiiM, an *N*-acylhomoserine lactonase, against *Pseudomonas aeruginosa* in a mouse model of acute pneumonia, Antimicrob. Agents Chemother., 57, 3653-3658 (2013))
- 52) M. Tsuboyama, I. Maeda (Combinatorial parallel display of polypeptides using bacteriophage T7 for development of fluorescent nano-bioprobes, J. Biosci. Bioeng., 116, 28-33 (2013))
- 53) I. Maeda, M. S. R. Siddiki, T. Nozawa-Takeda, N. Tsukahara, Y. Tani, T. Naito, S. Sugita (Population abundance of potentially pathogenic organisms in intestinal microbiome of Jungle Crow (*Corvus macrorhynchos*) shown with 16S rRNA

gene-based microbial community analysis, *BioMed Res. Int.*, 2013, Article ID 438956, 5 pages, (2013))

- 54) I. Maeda, A. Inaba, H. Koike, K. Yoneyama, S. Ueda, K. Yoshida (Acyclic carotenoid and cyclic apocarotenoid cleavage by an ortholog of lignostilbene- α,β -dioxygenase in *Rhodopseudomonas palustris*. *J. Biochem.*, 154, 449-454 (2013))
- 55) Z. Chen, K. Nihei, H. Tanaka, Y. Uda, Y. Kabuyama (Identification of nitric oxide generation-stimulative principle in *Scutellariae radix*. *Biosci. Biotechnol. Biochem.* 77, 657-659 (2013))
- 56) T. Iwadate, Y. Kashiwakura, N. Masuoka, Y. Yamada, K. Nihei (Chemical synthesis and tyrosinase inhibitory activity of rhododendrol glycoside. *Bioorg. Med. Chem. Lett.* 24, 122-125 (2014))

●国際会議発表(plenary lecture:PL,invited speaker:IS,oral presentation:OP,poster presentation:PP)

- 1) *PP* T. Ikeda, W. Z. Wang, T. Sato, S. Ito, N. Kato, T. Morohoshi, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria using AHL analogues and modified cyclodextrins", *Asia Pacific Biochemical Engineering Conference 2009*, Kobe (2009)
- 2) *PP* T. Sato, M. Tominaga, S. Maeda, S. Ito, N. Kato, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria using modified cyclodextrins", *The 5th Asian Cyclodextrin Conference 2009*, Pusan (2009)
- 3) *PP* A. Kobayashi, H. Motohashi, Y. Ozonoe, T. Murai, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Development of cyclodextrin-immobilized hydrogels to prevent bacterial infectious diseases", *The 5th Asian Cyclodextrin Conference 2009*, Pusan (2009)
- 4) *OP* I. Maeda, K. Yoshida, M. Harun-ur-Rashid, "Recombinant purple bacterium, *Rhodopseudomonas palustris*, harboring the *crtI* reporter gene to monitor environmental toxic metals", *13th International Symposium on Phototrophic Prokaryotes*, Montreal, Canada (2009)
- 5) *PP* I. Maeda, A. Inaba, K. Yoshida, "Characterization of carotenoid cleavage dioxygenase in anoxygenic phototrophic bacterium, *Rhodopseudomonas palustris*", *13th International Symposium on Phototrophic Prokaryotes*, Montreal, Canada (2009)
- 6) *PP* T. Ikeda, T. Sato, T. Imai, T. Kamiyama, M. Mamenzigou, S. Ito, T. Morohoshi, N. Kato, "Inhibition of quorum sensing using cyclodextrins", *2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010)*, Honolulu, USA, (2010)

- 7) *PP* T. Morohoshi, T. Shiono, K. Takidouchi, N. Kato, T. Ikeda, "Inhibition of the pathogenicity of *Serratia marcescens* by the synthetic analog of quorum-sensing signal molecule", *2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010)*, Honolulu, USA, (2010)
- 8) *PP* W. Z. Wang, T. Sato, S. Ito, N. Kato, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Quorum quenching using two kinds of novel inhibitors, AHL analogues and modified cyclodextrins, in gram-negative bacteria", *2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010)*, Honolulu, USA, (2010)
- 9) *PP* Y. Yoshizuka, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Construction of a biosensor based on the purple pigment production of *Chromobacterium violaceum* for the detection of the quorum-sensing signal molecules", *2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010)*, Honolulu, USA, (2010)
- 10) *PP* N. Kamioka, T. Morohoshi, T. Ikeda, "The production of carotenoid pigments is regulated by acylhomoserine lactone-mediated quorum sensing in *Pantoea ananatis*", *2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010)*, Honolulu, USA, (2010)
- 11) *PP* T. Imai, S. Ito, T. Morohoshi, N. Kato, T. Ikeda, "Quorum sensing quenching in gram-negative bacteria using modified cyclodextrins", *2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010)*, Honolulu, USA, (2010)
- 12) *PP* A. Kobayashi, H. Motohashi, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Inhibitory control of virulence gene expression in opportunistic pathogens using cyclodextrin-conjugated polymer network", *2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010)*, Honolulu, USA, (2010)
- 13) *PP* M. Arai, A. Kobayashi, Y. Ozonoe, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Inclusion complex formation between immobilized cyclodextrin and *N*-acylhomoserine lactone as quorum sensing signal", *2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010)*, Honolulu, USA, (2010)
- 14) *PP* T. Murai, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Enzymatic disruption of bacterial cell-to-cell communication using recombinant *N*-acylhomoserine lactone lactonase", *2010 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010)*, Honolulu, USA, (2010)
- 15) *PP* Y. Hattori, A. Kobayashi, H. Motohashi, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Interruption of bacterial cell-to-cell communication using cyclodextrin-immobilized hydrogel as an artificial receptor", *2010 International*

Chemical Congress of Pacific Basin Societies (Pacifichem 2010), Honolulu, USA, (2010)

- 16) *OP* T. Ikeda, S. Ito, T. Morohoshi, N. Kato, "Control methods of quorum sensing in gram-negative bacteria using cyclodextrins", *2010 International Symposium on Advanced Biological Engineering*, Beijing, China, (2010)
- 17) *PP* W. Z. Wang, M. Ikenoya, T. Morohoshi, N. Someya, T. Ikeda, "Identification of *N*-acylhomoserine lactonase from *Microbacterium testaceum* and its application for quorum quenching", *2010 International Symposium on Advanced Biological Engineering*, Beijing, China, (2010)
- 18) *PP* Y. Xu, M. Masukawa, T. Morohoshi, T. Ikeda, Y. Li, "Identification and characterization of the transposon mutants, which produce excessive extracellular polysaccharide in *Pantoea ananatis*", *2010 International Symposium on Advanced Biological Engineering*, Beijing, China, (2010)
- 19) *PP* T. Ikeda, T. Sato, M. Mamenzigou, T. Imai, T. Kamiyama, S. Ito, T. Morohoshi, N. Kato, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria using modified cyclodextrins", *15th International Cyclodextrin Symposium*, Vienna, Austria (2010)
- 20) *PP* N. Kato, A. Kobayashi, H. Motohashi, T. Murai, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Suppressive effects on virulence factor expression with structural control of cyclodextrin-immobilized gel", *15th International Cyclodextrin Symposium*, Vienna, Austria (2010)
- 21) *IS* K. Nihei, S. Hiroki, K. Shimizu, I. Kubo, "Molecular design of tyrosinase inhibitors based on the diphenolic scaffold", *BIT's 1st Inaugural Symposium on Enzyme & Biocatalysis.*, Shanghai (2010)
- 22) *PP* Y. Kawakami, K. Inoue, M. S. R. Shiddiki, H. Otabayashi, H. Miyasaka, I. Maeda, "Application of fluorescent protein-tagged *trans*-factors to monitoring toxic metals based on their interactions to the analytes and *cis*-elements", *Biosensors 2010*, Glasgow, UK (2010)
- 23) *PP* T. Ikeda, T. Morohoshi, "Inhibition of biofilm formation and virulence factor expression via control of quorum sensing in pathogenic bacteria", *The XVIIth International Symposium on Gnotobiology*, Yokohama, Japan (2011)
- 24) *PP* I. Maeda, A. Inaba, H. Koike, K. Yoshida, "Identification of cleavage sites in carotenoid cleavage dioxygenase from anoxygenic phototrophic bacterium, *Rhodospseudomonas palustris*", *FEMS 2011*, Geneva, Switzerland (2011)
- 25) *PP* T. Morohoshi, Y. Tominaga, N. Someya, T. Ikeda, "Complete genome sequence and characterization of the *N*-acylhomoserine lactone-degrading gene of

- the potato leaf-associated *Solibacillus silvestris*", *4th ASM Conference on Cell-Cell Communication in Bacteria*, Miami, USA (2011)
- 26) *PP* W. Z. Wang, T. Morohoshi, Y. Tominaga, N. Someya, T. Ikeda, "Diversity and distribution of *N*-acylhomoserine lactone (AHL)-degrading activity and AHL-degrading gene (*aiiM*) in genus *Microbacterium*", *4th ASM Conference on Cell-Cell Communication in Bacteria*, Miami, USA (2011)
- 27) *PP* T. Imai, T. Morohoshi, S. Ito, N. Kato, T. Ikeda, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria by modified cyclodextrin derivatives", *4th ASM Conference on Cell-Cell Communication in Bacteria*, Miami, USA (2011)
- 28) *PP* T. Ikeda, M. Toyofuku, T. Morohoshi, S. Ito, K. Iimura, N. Nomura, H. Uchiyama, N. Kato, "Development of innovative regulatory techniques of bacteria for wastewater treatment by control of bacterial communication system", *The 4th IWA-ASPIRE Conference and Exhibition*, Tokyo, Japan (2011)
- 29) *OP* N. Kato, M. Arai, T. Umemura, C. Okano, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Interaction of bacterial communication signals with immobilized receptors on polymer matrices", *IUMRS-ICA 2011*, Taipei, Taiwan, ROC (2011)
- 30) *PP* C. Okano, A. Kobayashi, M. Arai, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Blocking quorum sensing in gram-negative bacteria using cyclodextrin-conjugated hydrogel sheets", *IUMRS-ICA 2011*, Taipei, Taiwan, ROC (2011)
- 31) *PP* C. Ueno, T. Umemura, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Mass transfer rate of bacterial cell-to-cell communication signals through the hydrogel membrane immobilized with cyclodextrin", *IUMRS-ICA 2011*, Taipei, Taiwan, ROC (2011)
- 32) *OP* T. Ikeda, T. Morohoshi, S. Ito, K. Iimura, N. Kato, "Inhibition of bacterial communication using cyclodextrins", *The 6th Asian Cyclodextrin Conference (ACC2011)*, Canberra, Australia (2011)
- 33) *PP* U. M. Mamenzigou, T. Morohoshi, S. Ito, N. Kato, T. Ikeda, "Cyclodextrin complexation of bacterial communication signal compounds", *The 6th Asian Cyclodextrin Conference (ACC2011)*, Canberra, Australia (2011)
- 34) *PP* T. Imai, T. Morohoshi, N. Kato, T. Ikeda, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria by amino acid-modified cyclodextrins", *The 6th Asian Cyclodextrin Conference (ACC2011)*, Canberra, Australia (2011)
- 35) *PP* M. Ebina, T. Morohoshi, N. Kato, T. Ikeda, "Synthesis of amino modified cyclodextrin for quorum sensing inhibition", *The 6th Asian Cyclodextrin Conference (ACC2011)*, Canberra, Australia (2011)
- 36) *OP* Wang, W. Z., M. Ikenoya, T. Morohoshi, N. Someya, T. Ikeda, Identification

and characterization of a novel class of N-acylhomoserine lactonase from leaf-associated *Microbacterium testaceum* and the application for quorum quenching, *Asian Congress on Biotechnology 2011 (ACB-2011)*, Shanghai, China (2011)

- 37) *PP* T. Morohoshi, Y. Ogata, T. Ikeda, "Cell aggregation is regulated by N-acylhomoserine lactone-mediated quorum sensing in the plant pathogen *Pantoea ananatis*", *Asian Congress on Biotechnology 2011 (ACB-2011)*, Shanghai, China (2011)
- 38) *PP* W. Z. Wang, T. Morohoshi, S. Onuki, N. Someya, T. Ikeda, "Enhanced biofilm formation by the bacteria consortium of *Microbacterium testaceum* and *Pantoea agglomerans*", *6th ASM Conference on Biofilms*, Miami, USA (2012)
- 39) *PP* T. Morohoshi, W. Z. Wang, , T. Sutou, N. Someya, T. Ikeda, "Phenazine antibiotic production regulated by two quorum sensing systems in *Pseudomonas chlororaphis* subsp. *aurantiaca* StFRB508 and its antifungal activity against *Phytophthora infestans*", *The 14th International Symposium on Microbial Ecology (ISME14)*, Copenhagen, Denmark (2012)
- 40) *PP* W. Z. Wang, T. Morohoshi, N. Someya, T. Ikeda, "AidC, a novel N-acylhomoserine lactonase from the potato root-associated *Chryseobacterium* sp. StRB126, a member of *Cytophaga-Flavobacteria-Bacteroides* (CFB) group", *The 14th International Symposium on Microbial Ecology (ISME14)*, Copenhagen, Denmark (2012)
- 41) *PP* C. Okano, T. Tanaka, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Prevention of bacterial infectious diseases due to autoinducer recognition in polymer microspheres", *GeISympo2012*, Tsukuba, Japan (2012)
- 42) *PP* E. Nasuno, T. Umemura, T. Ogi, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Electrospun non-woven fiber mats for inhibition of bacterial quorum sensing involved in extracellular matrix production", *GeISympo2012*, Tsukuba, Japan (2012)
- 43) *PP* N. Kato, C. Okano, M. Arai, K. Iimura, S. Ito, T. Morohoshi, T. Ikeda, "A QCM analysis of the interaction between cyclodextrins and quorum sensing signals produced by gram-negative bacteria", *The 16th International Cyclodextrin Symposium (ICS16)*, Tianjin, China (2012)
- 44) *PP* T. Ogi, T. Umemura, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Inhibition of quorum sensing in gram-negative bacteria using electrospun non-woven fiber mats immobilized with cyclodextrins", *The 16th International Cyclodextrin Symposium (ICS16)*, Tianjin, China (2012)

- 45) *PP* U. M. Mamenzigou, T. Ikeda, M. Nakayama, J. Hitomi, "Studies of cyclodextrin inclusions complexes with catechins", *The 16th International Cyclodextrin Symposium (ICS16)*, Tianjin, China (2012)
- 46) *PP* C. Okano, M. Arai, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Inhibition of quorum sensing in *Serratia marcescens* by forming cyclodextrin-autoinducer complex", *International Conference of Young Researchers on Advanced Materials (ICYRAM 2012)*, Singapore (2012)
- 47) *OP* N. Kato, E. Nasuno, C. Okano, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, "Development of autoinducer recognition polymers for inhibition of bacterial cell-cell communication and virulence", *The 4th Japan-Korea International Symposium on Microbial Ecology*, Toyohashi, Japan (2012)
- 48) *PP* I. Maeda, M. S. R. Siddiki, "Rapid measurement of toxic metals using sensor protein-promoter DNA complexes reconstructed on thermoresponsive magnetic nanoparticles", *Biosensors 2012*, Cancún, Mexico (2012)
- 49) *PP* M. S. R. Siddiki, S. Ueda, I. Maeda, "Quantitative analysis of interactions between cis element and trans factors in response to available zinc in milk and yoghurt", *Biosensors 2012*, Cancún, Mexico (2012)
- 50) *OP* C. Okano, E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Regulation of gene expression in opportunistic human pathogens using core/shell polymeric microspheres", *12th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013)*, Qingdao, China, (2013)
- 51) *PP* C. Okano, E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Designing the polymer gel sheets for suppression of bacterial communication systems and investigation of mechanisms", *12th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013)*, Qingdao, China, (2013)
- 52) *PP* E. Nasuno, T. Morohoshi, K. Iimura, T. Ikeda, N. Kato, "Biosensors for bacterial cell-to-cell communication due to color changes of polymer matrix immobilized with reporter bacteria", *12th IUMRS International Conference on Advanced Materials (IUMRS-ICAM2013)*, Qingdao, China, (2013)
- 53) *PP* N. Takahashi, E. Nasuno, K. Iimura, T. Morohoshi, T. Ikeda, N. Kato, "Suppression of bacterial cell-cell communication using cyclodextrin-immobilized microgel particles prepared by microfluidic device", *The 7th Asian Cyclodextrin Symposium (ACC2013)*, Bangkok, Thailand (2013)
- 54) *PP* I. Maeda, T. Naito, Sachuronggui, "Bioconcentration of molybdenum and hydrogen production by photosynthetic bacteria", *AsiaSense 2013 The 6th International Conference on Sensors*, Malacca, Malaysia (2013)

55) *OP* T. Ikeda, M. Toyofuku, T. Morohoshi, S. Ito, E. Nasuno, K. Iimura, N. Nomura, N. Kato, "Development of quorum sensing control techniques in gram-negative bacteria for wastewater treatment", *Joint International Workshop "MBR for the Next Generation and Waste-to-Energy Conversion"*, Gunsan, Korea (2014)

●国内研究発表（基調講演，招待講演，依頼講演，一般発表，ポスター発表）

- 1) 「依頼」前田勇，吉田一之，"光合成細菌のカロテノイド代謝酵素遺伝子をレポーターとした有害金属応答型微生物センサーの開発"，第 61 回日本生物工学会大会シンポジウム，名古屋 (2009)
- 2) 「依頼」T. Ikeda, T. Morohoshi, S. Ito, N. Kato, "Quorum sensing quenching in gram-negative bacteria using synthetic AHL analogues and cyclodextrins", 日本農芸化学会 2010 年度大会，東京 (2010)
- 3) 「依頼」池田宰，諸星知広，"魚病細菌および植物感染菌のバイオフィーム形成と Quorum Sensing"，第 83 回日本細菌学会総会，横浜 (2010)
- 4) 「招待」池田宰，諸星知広，伊藤智志，澤田勇生，加藤紀弘，飯村兼一，奈須野恵理，内山裕夫，野村暢彦，豊福雅典，"Quorum Sensing 制御による水処理微生物の革新的制御手法の開発"，第 28 回日本微生物生態学会大会，豊橋 (2012)
- 5) 「招待」池田宰，諸星知広，"Quorum Sensing 制御に基づくバイオフィーム形成制御"，第 61 回日本感染症学会東日本地方会・第 59 回日本化学療法学会東日本支部会，東京 (2012)
- 6) 「依頼」池田宰，諸星知広，"Quorum Sensing 制御とバイオフィーム形成制御"，第 64 回日本生物工学会大会，神戸 (2012)
- 7) 「依頼」諸星知広，"植物（ウツボカズラ・ジャガイモ）共生細菌の解析と応用"，(一財)バイオインダストリー協会“未来へのバイオ技術”勉強会「バイオリソースの新しい風」，東京 (2013)
- 8) 「依頼」諸星知広，"植物共生細菌における Quorum Sensing シグナリングの解析と病原性抑制技術への応用"，日本細菌学会 第 7 回若手研究者育成のためのワークショップ「若手研究者によるバイオフィーム研究ワークショップ」，東京 (2013)
- 9) 「招待」池田宰，"廃水処理技術への Quorum Sensing 制御手法の応用"，化学工学会 第 45 回秋季大会，岡山大学 (2013)
- 10) 「依頼」池田宰，"バクテリアのコミュニケーション機構制御によるバイオフィーム・バイオフィアウリング対策技術の開発"，化学工学会第 45 回秋季大会，化学工学会第 45 回秋季大会，岡山大学 (2013)

他 97 件

●著書, 総説, 解説等

- 1) 「総説」池田宰, 諸星知広, 特集「バイオフィルム感染症」基礎編・御病細菌および植物病菌のバイオフィルム形成能, 臨床と微生物, 36, 29-33 (2009)
- 2) 「総説」池田宰, 諸星知広, 植物および魚類におけるバイオフィルム感染症と Quorum Sensing, J. Germfree Life and Gnotobiology, 39, 25-28 (2009)
- 3) 「著書」I. Maeda, K. Yoshida, Development of Whole-Cell Biosensors Harboring the Carotenoid-Converting Reporter Genes. In: *Biosensors: Properties, Materials and Applications*, Editors: Comeaux, R., Novotny, P., Nova Science Publishers, pp. 347-362 (2009)
- 4) 「著書」小宮山真, 池田宰, 自己組織化ハンドブック, 第1編第1節5. 分子認識系(非生体系, ホスト・ゲスト化学), (株)エヌ・ティー・エス (2009)
- 5) 「総説」前田勇, 緑色蛍光タンパク質を用いた有害金属による土壌汚染の計測, O plus E, 33, 584-588 (2011)
- 6) 「総説」前田勇, 吉田一之, 光合成細菌のカロテノイド代謝酵素遺伝子をレポーターとした有害金属応答型微生物センサーの開発, 生物工学, 89, 117-120 (2011)
- 7) 「著書」I. Maeda, Genetic modification in *Bacillus subtilis* for production of C30 carotenoids. In: *Methods in Molecular Biology series Microbial Carotenoids from Bacteria and Microalgae*, Editor: J.-L. Barredo Fuente, Humana Press, 197-205 (2012)
- 8) 「著書」I. Kubo, Shimizu, K. Nihei, Maniçoba, a quercetin rich Amazonian Dish: antioxidative prospects. In *Quercetin: Dietary Sources, Functions and Health Benefits* (Taiki Chikamatsu and Yuudai Hida, eds), Nova Science Publishers, 129-154 (2012)
- 9) 「著書」池田宰, 加藤紀弘, 諸星知広, 伊藤智志, 奈須野恵理, シクロデキストリンの科学と技術, 第3編第10章「微生物間コミュニケーション (Quorum Sensing) 制御への応用」, シーエムシー出版 (2013)
- 10) 「著書」池田宰 (分担) 排水汚水 処理技術集成 vol. 2, 第2編第1章第1節「微生物細胞間情報伝達機構制御を利用した水処理技術」, (株)エヌ・ティー・エス (2013)

●特許 (外国, 国内, 公開, 出願)

- 1) 「国内」公開, 伊藤智志, 諸星知広, 池田宰, 加藤紀弘「シクロデキストリン誘導体、シクロデキストリン誘導体の製造法、及びクオラムセンシングの阻害方法」(平成 21 年 12 月)
- 2) 「外国」出願, 前田勇, 井上浩一, 川上泰生, 宮坂均「DNA を素子としたバイオセンサー」(平成 21 年 7 月)
- 3) 「国内」出願, 前田勇, 井上浩一, 川上泰生, 宮坂均「DNA を素子としたバイオセン

サー」(平成 21 年 7 月)

- 4) 「国内」出願, 前田勇, 吉田一之「C₃₀ カロテノイド組成物の製造方法」(平成 22 年 1 月)
- 5) 「国内」出願, 二瓶賢一「レゾルシノール誘導体」(平成 23 年 3 月)
- 6) 「外国」出願, 前田勇, 他 3 名「DNA を素子としたバイオセンサー」中国, インド, ベトナム (平成 23 年 1-3 月)
- 7) 「国内」出願, 二瓶賢一「ロドデンドロール誘導体」(平成 24 年 3 月)

●受賞

- 1) 今井拓也, 諸星知広, 加藤紀弘, 池田幸, 第27回シクロデキストリンシンポジウムポスター賞 (2010年9月)
- 2) Imai, T., T. Morohoshi, N. Kato, T. Ikeda, Early Career Researcher Award for Best Oral Presentation Silver Award, The 6th Asian Cyclodextrin Conference (September, 2011)
- 3) 坪山実絵, 大学コンソーシアムとちぎ「学生&企業研究発表会」金賞「蛍光ファージディスプレイ法を用いたモノクローナル抗体の作製と抗体を用いたヒトsmall dense 低比重リポタンパク質の分離・精製技術の開発」(2011年12月)
- 4) 坪山実絵, 大学コンソーシアムとちぎ「学生&企業研究発表会」最優秀賞 (知事賞) 「T7バクテリオファージを用いた蛍光ナノバイオプローブの開発」(2012年12月)
- 5) 坪山実絵, 前田勇, 日本農芸化学会関東支部若手奨励賞「T7 バクテリオファージを用いた蛍光ナノバイオプローブの開発」(2012年10月)
- 6) 諸星知広, 及川学, 佐藤祥子, 菊地典子, 加藤紀弘, 池田幸, 日本生物工学会第20回生物工学論文賞「Isolation and characterization of novel lipases from a metagenomic library of the microbial community in pitcher fluid of the carnivorous plant *Nepenthes hybrida*」(2012年10月)
- 7) 星野智裕, 大学コンソーシアムとちぎ「学生&企業研究発表会」アグリ先進賞「より納豆らしい納豆の開発」(2013年12月)

●外部資金 (科学研究費: 科研、奨学寄付金: 奨学, 受託研究: 受託, 共同研究: 共同)

- 1) 「科研」池田幸, 500 千円「細胞間情報伝達機構制御に基づくバイオフィーム形成制御技術の開発」基盤研究(C) (平成 21 年度)
- 2) 「科研」池田幸, 2000 千円「遺伝子発現ネットワークのためのモデリング・解析・制御」基盤研究(B) (分担) (平成 21-22 年度)
- 3) 「受託」池田幸, 1,840 千円「サイクロデキストリンとカテキン成分の相互作用に関する研究」, 花王株式会社 (平成 21-23 年度)
- 4) 「奨学」池田幸, 加藤紀弘, 2,000 千円「電気絶縁電線用塗料の開発研究に対する奨学

寄附金」，東特塗料株式会社（平成 21-22 年度）

- 5) 「科研」池田幸, 3,400 千円「バイオフィーム形成阻害を目指したバクテリアのシグナル物質分解」基盤研究(C)（平成 22-24 年度）
- 6) 「受託」池田幸, 諸星知広, 伊藤智, 74,925 千円「ナノテクノロジーとバイオテクノロジーの融合による革新的な水処理微生物制御技術の開発」，JST, CREST（平成 22-25 年度）
- 7) 「奨学」池田幸, 920 千円「シクロデキストリンとカテキンの包接状態に関する研究」，花王株式会社（平成 23 年度）
- 8) 「受託」池田幸, 368 千円「サイクロデキストリンとカテキンの相互作用に関する研究」，花王株式会社（平成 25 年度）
- 9) 「奨学」諸星知広, 15,000 千円「微生物間シグナル伝達機構を標的とした抗生物質に代わる新しい病原性抑制技術の開発」，財団法人発酵研究所（平成 21-23 年度）
- 10) 「受託」諸星知広, 26,295 千円「ジャガイモ表生微生物間相互作用の解明及びその生物防除利用」，（独）農研機構・生研センター, イノベーション創出基礎的研究推進事業（平成 22-24 年度）
- 11) 「科研」諸星知広, 3,500 千円「植物病原菌のクオラムセンシングによる病原性発現機構の解析と防除技術への応用」若手研究(B)（代表）（平成 21-23 年度）
- 12) 「科研」諸星知広, 2,400 千円「病原性阻害技術への応用を目指した高機能アシル化ホモセリンラクトン分解酵素の探索」若手研究(B)（代表）（平成 24-25 年度）
- 13) 「科研」諸星知広, 200 千円「クオラムセンシング阻害に対する耐性菌株の出現可能性および環境適応メカニズムの追究」若手研究(B)（分担）（平成 25 年度）
- 14) 「受託」諸星知広, 920 千円「クオラムセンシング制御に関する奨学寄附金」，小林製薬株式会社（平成 25 年度）
- 15) 「共同」諸星知広, 920 千円「微生物コミュニケーション制御によるバイオフィーム形成の抑制」，東芝株式会社（平成 25 年度）
- 16) 「科研」前田 勇, 520 千円「ポリヒドロキシアルカン酸合成酵素遺伝子の導入による多価不飽和脂肪酸分解過程の解明」基盤研究(C)（代表）（平成 21 年度）
- 17) 「科研」前田 勇, 1,200 千円「磁化活性汚泥法を軸とするサステナブルな水処理法の先端的研究」基盤研究(A)（分担）（平成 21-23 年度）
- 18) 「受託」前田 勇, 2,000 千円「食品中有害金属のバイオセンシング技術開発」，JST シーズ発掘試験（平成 21 年度）
- 19) 「共同」前田 勇, 1,050 千円「色調変化等のバイオセンサー開発研究」，関西電力株式会社（平成 21 年度）
- 20) 「共同」前田勇, 50 千円「排水処理に関する研究」日本アルシー（株）（平成 22 年度）
- 21) 「共同」前田勇, 1,500 千円「発酵食品の新規開発」あづま食品(株)（平成 23-25 年度）
- 22) 「科研」前田勇, 11,440 千円「光駆動性の生物学的レアメタル濃縮系の開発とメタロ

ミクスによる金属動態の理解」基盤研究(B) (代表) (平成 23-25 年度)

- 23) 「科研」前田勇, 1,600 千円「カラスの感染伝播と飛翔軌跡の解析」基盤研究(A) (分担) (平成 23-25 年度)
- 24) 「科研」前田勇, 600 千円「磁化活性汚泥法を軸とするサステイナブルな水処理法の先端的研究」基盤研究(A) (分担) (平成 24-25 年度)
- 25) 「共同」二瓶賢一, 500 千円「メグスリノキの成分分析および含有量の測定」, 富士鋼業株式会社 (平成 21 年度)
- 26) 「受託」二瓶賢一, 3,850 千円「レゾルシノール配糖体型チロシナーゼ阻害剤の開発」JST 科学技術コモンズ (平成 22 年度)
- 27) 「科研」二瓶賢一, 3,770 千円「食品成分のインバース分析法を核とする生理活性物質創製スキームの構築」基礎研究(C) (平成 23-25 年度)
- 28) 「受託」二瓶賢一, 1,700 千円「化学的進化による過剰紫外線障害対策分子の開発」JST A-STEP 探索タイプ (平成 23 年度)
- 29) 「奨学」二瓶賢一, 300 千円「化粧品原料開発に関する助成金」和光純薬工業株式会社 (平成 24 年度)
- 30) 「受託」二瓶賢一, 1,700 千円「メグスリノキから生まれた立体認識性チロシナーゼ阻害剤の構造最適化」JST A-STEP 探索タイプ (平成 24-25 年度)
- 31) 「共同」二瓶賢一, 1,000 千円「美白作用を有するレスベラトロール誘導体の開発」株式会社コスモステクニカルセンター (平成 24-25 年度)
- 32) 「共同」二瓶賢一, 555 千円「生姜根茎の有効活用に関する研究」遠藤食品株式会社 (平成 25 年度)

●VBL プロジェクト関連の成果についての特記事項

- イ) 講演, アグリ技術シーズセミナー, 二瓶賢一, 「水溶性のチロシナーゼ阻害剤をつくる」(2011 年 3 月 9 日)
- ロ) 報道, JST・CREST 研究採択 (2010 年 11 月)