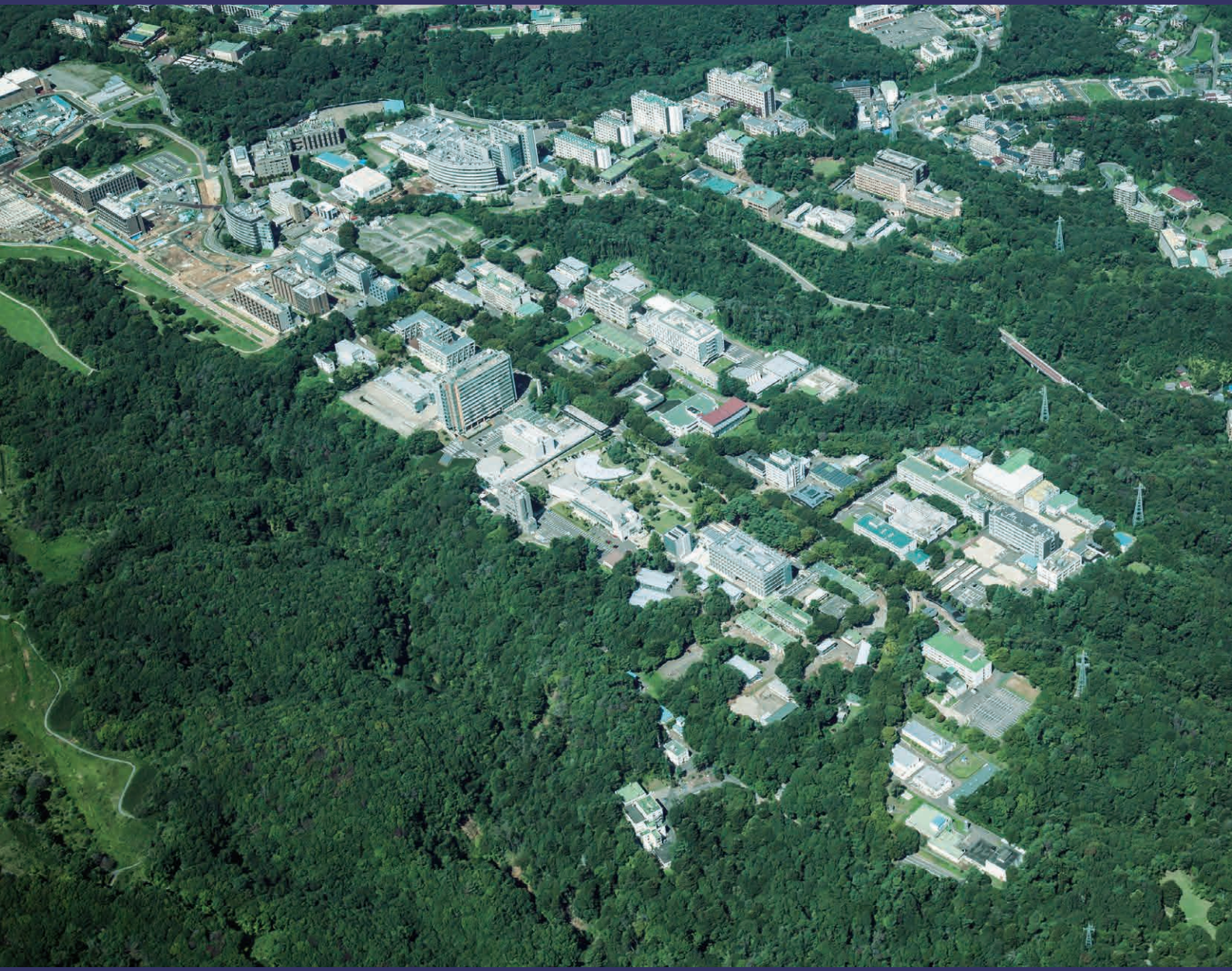
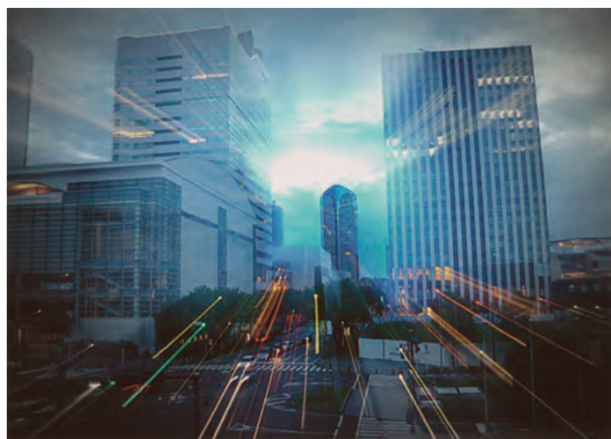


# 翠 巒





「未来へ」  
 青葉工業会・公明会共催「第33回写真コンテスト入選作品」  
 康 世致(東北大学大学院医工学研究科医工学専攻博士1年)

## も く じ

### 巻頭言

未来への投資 .....	東北大学大学院工学研究科長・工学部長 滝澤 博胤	1
平成28年度「青葉工学振興会賞」「青葉工学研究奨励賞」授賞報告 .....		2
<b>第10回青葉工学振興会賞</b>		
グラフェンナノリボンの革新的集積化合成法の開発 .....	東北大学大学院工学研究科 准教授 加藤 俊顕	3
相変態制御による形状記憶・情報記録材料の高性能化に関する研究 .....	東北大学大学院工学研究科 准教授 須藤 祐司	
<b>第22回青葉工学研究奨励賞</b>		
四脚動物の多様な運動パターン生成を司る脚間協調機序の解明 .....	東北大学電気通信研究所 助教 大脇 大	5
マイクロチャネル内相変化伝熱現象を利用した医療用小型冷凍デバイスに関する研究 .....	東北大学流体科学研究所 助教 岡島 淳之介	6
ナノ不均質性を制御した新しい生体用Co-Cr合金の創製と医療用デバイスへの応用 .....	東北大学金属材料研究所 助教 山中 謙太	7
<b>研究プロフィール</b>		
生物流れの予測を目指して 細胞懸濁液力学の創成 .....	東北大学大学院工学研究科 教授 石川 拓司	8
高エネルギー材料工学、原子力エネルギーシステム における材料開発に係わる研究 .....	東北大学大学院工学研究科 教授 長谷川 晃	12
新しい機能性材料の創生 - 形・性質・向きを変えて新奇なヘテロ成長に挑戦 - .....	東北大学大学院工学研究科 教授 鷲尾 勝由	16
1細胞分析法が拓く受精卵および幹細胞の新規品質評価システムの開発 .....	東北大学大学院工学研究科 教授 珠玖 仁	20
非線形超音波探傷の実用に向けて .....	東北大学大学院工学研究科 教授 三原 毅	23
持続可能な社会の実現に貢献する環境保全技術の研究 .....	東北大学大学院工学研究科 教授 李 玉友	27
計算困難な問題の解決に貢献する基礎研究 ～ 理論的な観点から実社会への応用 ～ .....	東北大学大学院情報科学研究科 教授 周 曉	33
医療への展開を志向した多機能性金属錯体の創製 .....	東北大学大学院環境科学研究科 教授 壺岐 伸彦	37
音と光のコラボレーション、医と工のコラボレーション 光音響イメージングによる微小血管の可視化 .....	東北大学大学院医工学研究科 教授 西條 芳文	41

IoT/AIを支える半導体技術の開発へ向けて ..... 東北大学未来科学技術共同研究センター 教授 小柳 光正	45
平成27年度 一般財団法人青葉工学振興会 事業報告 .....	50
編集後記	

---

題字の翠巒(すいらん)とは「みどりの山」又は「みどりの連山」のことであるが  
代わって青葉山の意に用いたものである。なお、揮毫は武山斌郎元青葉工学振興会理事長によります。



巻頭言

## 「未来への投資」

東北大学 大学院工学研究科長  
工学部長 滝澤博胤

もとより承知していたことではありませんが、最近発表になった国勢調査の結果から、日本が人口減少社会に転じたことが数値で示されました。特に東北地方では減少幅が大きく、少子高齢化が加速化している様子がはっきりと現れています。収縮する日本社会にあつて、どのような次の一手を考えていかなければならないでしょうか。

政府はこのたび、日本経済再生本部の下に未来投資会議を発足させました。閉塞状況にあるわが国にあつて、将来の成長に資する「未来への投資」拡大に向けた成長戦略と、構造改革の加速化を図るための旗振り役としての使命があるようです。近年になつて、第四次産業革命という言葉がでてきました。産官学を挙げてイノベーションを創出すべく、新たな投資の必要性が声高に叫ばれています。

時を同じくして、国立大学法人理化学部長会議が声明文を発しました。相次ぐわが国のノーベル賞受賞を受けて、「知の地平を広げる」基礎科学研究への支援を訴えています。国立大学の運営費交付金削減が続く中、大学人なら誰もが切望していることでしょう。ただ、一つだけ気になったことがあります。この声明文の主題が「未来への投資」となっていたことです。

私は経済の専門家ではありませんので、正しい解釈かは自信がありません

んが、投資とは、未来の成長・発展を見込んでの資本の投下を意味するのだと思います。未来像実現への勝算があるからこそ、資本家の投資が集まってくるのでしょうか。そうだとすると、未来への投資を訴えるからには、今山積する様々なグローバル・イシューの解決の道筋を示し、豊かな未来社会像をステークホルダーたる国民・社会に示していく責任があります。収縮する日本社会と拡大・膨張する世界にあつて、工学がどのような未来像を提示していくのか、私達は常にこのような視点をもって教育・研究活動に取り組みなければなりません。

今年度も青葉工学振興会賞・青葉工学研究奨励賞の授賞報告の時期となりました。今回は振興会賞が二名、研究奨励賞が三名の若手研究者に授与されました。いずれも未来社会を先導する工学の分野において、優れた業績をあげた若き俊英です。本号では、受賞者の皆さんの研究業績に加え、第一線で活躍されている本学工学系教員の多彩な研究プロフィールが掲載されています。本学で展開される多彩な研究のいずれもが、国民・社会の期待に応え、真に投資に価する研究だと信じております。引き続き皆様方のご理解とご支援をよろしくお願い申し上げます。

# 平成28年度「青葉工学振興会賞」 「青葉工学研究奨励賞」授賞報告

本財団では、その設立目的である工学の振興に必要な研究教育助成を通じて、地域社会及び産業の向上発展に寄与するため、宮城県内の工学系を有する大学等に所属する研究者等で、工学又は工業技術の分野において優れた研究業績をあげた者を顕彰しています。

平成28年度は、宮城県内各大学から「第10回青葉工学振興会賞」に11件、「第22回青葉工学研究奨励賞」には15件の応募があり、審査委員会による第1次及び第2次の慎重なる審査により、第10回青葉工学振興会賞の受賞候補者2

名、第22回青葉工学研究奨励賞の受賞候補者3名を選出致しました。そして、11月17日(木)開催の青葉工学振興会評議員会において、審査委員会の原案の通り受賞者を決定致しました。

授賞式は、平成28年12月2日(金)ホテルモンテレ仙台において、受賞者のほか役員、審査委員、推薦教授の臨席のもとに執り行われました。

なお、受賞者の研究業績は次に掲載しました。

## 平成28年度「青葉工学振興会賞」等受賞者

### 第10回 青葉工学振興会賞

受賞者名	所 属	研究業績名
加藤 俊顕	東北大学 工学研究科 電子工学専攻 准教授	グラフェンナノリボンの革新的集積化合成法の開発
須藤 祐司	東北大学 工学研究科 知能デバイス材料学専攻 准教授	相変態制御による形状記憶・情報記録材料の高性能化に関する研究

### 第22回 青葉工学研究奨励賞

受賞者名	所 属	研究業績名
大脇 大	東北大学 電気通信研究所 助教	四脚動物の多様な運動パターン生成を司る脚間協調機序の解明
岡島淳之介	東北大学 流体科学研究所 助教	マイクロチャネル内相変化伝熱現象を利用した医療用小型冷凍デバイスに関する研究
山中 謙太	東北大学 金属材料研究所 助教	ナノ不均質性を制御した新しい生体用Co-Cr合金の創製と医療用デバイスへの応用



## 第10回青葉工学振興会賞



## グラフェンナノリボンの 革新的集積化合成法の開発

東北大学大学院工学研究科  
電子工学専攻  
准教授 加藤 俊 顕

炭素原子1層から成るグラフェンは、究極の2次元シートとして、主にエレクトロニクス分野で大きな注目を集めています。しかしながら、グラフェンにはバンドギャップが存在しないため、エレクトロニクスの中でも特に重要な半導体素子としての利用には大きな問題が残されておりました。これに対し、近年グラフェンを1次元短冊状（幅数nm、長さ数 $\mu\text{m}$ ）にしたグラフェンナノリボン（GNR）においてバンドギャップが発現することが理論・実験の両方で実証され大きな注目を集めております。その一方で、GNRの構造を制御して合成、及び集積する技術は全く開発されていませんでした。そこで、我々はこれまで同様のナノカーボン物質であるカーボンナノチューブの合成で培った先進マイルドプラズマプロセス[1]を積極的に活用し、GNRの構造制御、及び集積化合成に取り組みました。

触媒金属を高温（900～1000 $^{\circ}\text{C}$ ）に加熱し炭化水素ガスを供給することで金属表面にグラフェンが合成されることは広く知られております。そこで我々は触媒自体をナノスケール（ナノバー）化し、その表面にグラフェンを合成するという独自のアイデアのもと、GNR合成を試みました。グラフェン合成に広く用いられている熱CVD法では、合成適正温度に到達する前にナノバー構造が崩壊しグラフェンが合成されないのに対し、我々が開発した先進マイルドプラズマプロセスを用いることで、ナノバーの高温安定性が向上し、ナノバーからグラフェンが合成されることを見出しました。ナノバーから合成されたグラフェンは、必然的にナノバー以下の幅をもつ1次元構造となり、つまりGNRとなることが明らかとなりました。本手法では、あらかじめナノバー構造をデザインすることで基板上的どの位置にでも自在にGNRを合成できる利点があります。ナノバー構造のデザインは既存の半導体微細加工プロセスで容易に行えるため、本手法を用いることで、ナノスケール炭素1次元物質であるGNRを集積化可能であることが実証できたこととなります[2]。

合成機構解明にも取り組み、ナノバーがGNR合成中に液体状態をとり、プラズマからの高濃度炭化水素供給によりナノバー液体の濡れ性が変化し安定化すること、及びGNR析出後プラトーレイリー不安定性によりナノバー液体が分裂し、基板上を拡散することで最終的に架橋

構造のGNRが合成されることを明らかとしました。この知見をもとに合成条件を最適化した結果、100万本以上の架橋GNRを大規模集積化合成することに世界で初めて成功しました（図1）[3]。本成果は、これまで基礎研究に限定されていたGNRに関する研究を、実用化を視野に入れた研究開発フェーズに押し上げる観点で大きな貢献が期待されています。今後GNRを利用した革新的なデバイス開発を進めて行く予定です。

- [1] T. Kato and R. Hatakeyama, *J. Am. Chem. Soc.* **130** (2008) 8101; *ACS Nano* **4** (2010) 7395; *ACS Nano* **6** (2012) 8508.
- [2] T. Kato and R. Hatakeyama, *Nat. Nanotechnol.* **7** (2012) 651.
- [3] H. Suzuki, T. Kaneko, Y. Shibuta, M. Ohno, Y. Maekawa, and T. Kato, *Nat. Commun.* **7** (2016) 11797.

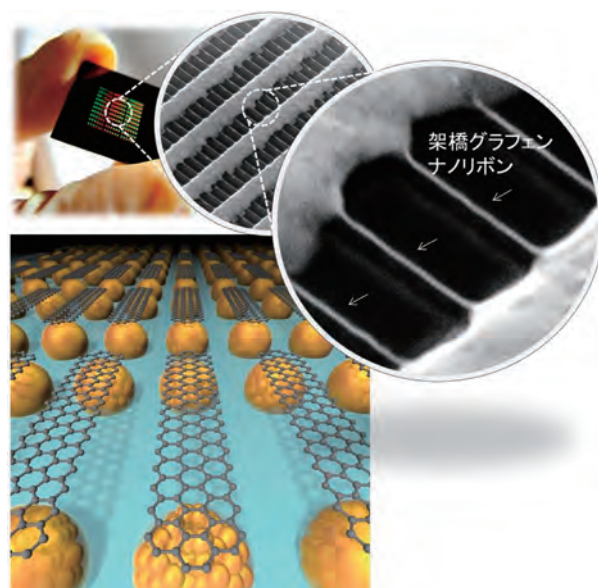


図1. 本手法で合成した大規模集積化GNRの様子とモデル図。

## 第10回青葉工学振興会賞



## 相変態制御による形状記憶・情報記録材料の高性能化に関する研究

東北大学大学院工学研究科  
 知能デバイス材料学専攻  
 准教授 須藤 祐司

材料は、様々な相変態に付随して特異な機能を発現する。我々は、特に、形を記憶する形状記憶合金や情報を記録する相変化メモリ材料について、新規材料開発やその相変態メカニズムについて研究を行ってきた。本稿では、最近、我々が見出した形状記憶マグネシウム合金、並びに、次世代の不揮発性半導体メモリ用相変化材料について紹介する。

形状記憶特性は、1930年代にAu-Cd合金において発見されて以来、Ti-Ni系、Cu系、Fe系、Ni系、Co系、Ti系など、様々な合金系において見出されてきた。形状記憶特性には大きく分けて、加熱により形が元に戻る「形状記憶効果」とゴムの様に力の負荷除荷で形が元に戻る「超弾性効果」の二つがある。それら形状記憶合金は、家電・住宅分野（混合水栓やエアコン風向きセンサなど（特に形状記憶効果）、電子機器分野（携帯電話用アンテナ、小型アクチュエータなど（特に超弾性効果）、装身具分野（眼鏡フレーム、プレスレットなど（特に超弾性効果））に利用されており、現在では、医療機器分野（ガイドワイヤー、ステント、歯列矯正ワイヤなど（特に超弾性効果））で大活躍している。上述のように、これまで様々な合金系において形状記憶特性は見出されてきたが、Mg合金やAl合金といった軽量合金では、この特異な機能性は見出されていなかった。我々は、これまで、Mg合金の延性を改善すべく、体心立方構造（bcc）型Mg合金の研究開発を行ってきた。Mg合金の低延性の主原因は、その結晶構造（最密六方構造：hcp）に由来する。それ故、Mgリッチ組成側にbcc相を有するMg-Sc二元系に着目し研究を行ってきたところ、 $-150^{\circ}\text{C}$ という低温であるが、本合金が超弾性効果を示す事を見出した（図1(a)）[1]。X線回折や透過電子顕微鏡観察から、この合金においても、従来の形状記憶合金と同様に、マルテンサイト変態に付随して超弾性効果が得られる事が分かった。また、超弾性効果と共に形状記憶効果も確認している。本形状記憶Mg合金の密度は約 $2\text{g}/\text{cm}^3$ と、従来の形状記憶合金に比して $1/3$ 程度と軽い。それ故、航空宇宙産業などの自己拡張フレームや制振フレームなどへの応用が期待できる。更に、Mgがもつ生体分解性を利用した生体分解性超弾性ステントの可能性も広がっており、現在、医療分野への研究展開を進めている。

続いて、相変化メモリ材料について述べる。近年、電子機器の更なる高性能化の要求に伴い、不揮発性メモリの高速度化、大容量化が強く期待されており、フラッシュメモリに代わる次世代不揮発性メモリの研究開発が世界中で行われている。中でも、アモルファス/結晶間の電気抵抗差を利用した相変化メモリ（PCRAM）が注目されている。

PCRAMは相変化材料にパルス電流を与え、ジュール加熱によりアモルファス化（高抵抗）してリセット、結晶化（低抵抗）によりセットとして情報を記録する。それ故、PCRAMは、他の不揮発性メモリに比して製造コスト・集積度の面で有利であり、既に一部実用されている。現在、相変化材料として光ディスクで実績のあるGe-Sb-Te系化合物（GST）が使われている。GSTは相変化速度が速く、高速動作性に優れるが、その融点は約 $630^{\circ}\text{C}$ と高く、一方、結晶化温度は約 $160^{\circ}\text{C}$ と相対的に低い。それ故、リセット化に大きな消費電力を必要とするばかりでなく、アモルファス相の熱的安定性が低く、将来の微細メモリにおいて、隣接メモリへの熱擾乱を無視できない。それ故、新しい相変化材料の開発が急務となっている。そのような背景の下、我々は、アモルファス/結晶相間の熱力学的相安定性の観点から様々な新規材料を検討し、特に $\text{GeCu}_2\text{Te}_3$ （GCT）を提案している。GCTは、ジュール加熱により四配位アモルファスから四配位カルコパイライト型構造へと結晶化し（図1(b)）、数十nsオーダーの可逆的高速相変化を示す一方で、そのアモルファス $\Rightarrow$ 結晶化に伴う反射率変化や密度変化は既存材料と全く逆である事が分かった。従来、四配位結晶はその高い構造安定性よりアモルファス/結晶間の可逆相変化が困難であるとされてきたが、GCTはこれまでの常識を覆す材料であり、この特異な挙動は、遷移金属Cuの3d電子の振る舞いに起因していると考えられる。最近では、アモルファス相よりも結晶相の方が電気抵抗が高い、新しいタイプの遷移金属含有カルコゲナイドを見出しており、メモリ回路・構造の専門家と共同で、それら新規材料のPCRAM動作性能について研究を進めている。

[1] Y. Ogawa et al., Science, 353 (2016) 368.

[2] Y. Sutou et al., Acta Mater., 60 (2012) 872.

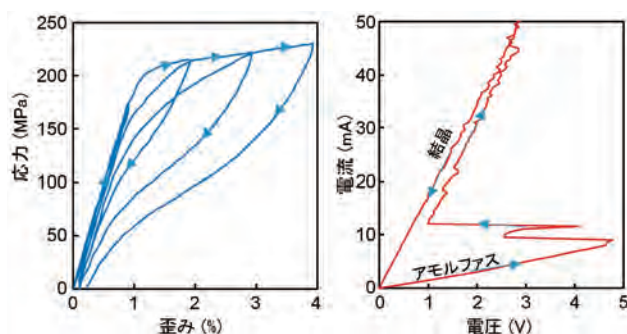


図1 (a) Mg-Sc合金の超弾性効果（試験温度： $-150^{\circ}\text{C}$ ）。(b) GCT相変化材料を用いたメモリデバイスのI-V特性。

## 第22回青葉工学研究奨励賞



## 四脚動物の多様な運動パターン生成を司る 脚間協調機序の解明

東北大学  
電気通信研究所  
助教 大 脇 大

脚式ロコモーション（移動運動）を行う動物は、地球上に数多く存在し、両生類から哺乳類、さらには昆虫など節足動物にもおよぶ。これらの動物の祖先は、水中から陸上へとという劇的な環境変化をともなう進化の過程において、脚という運動器（効果器）を獲得した。これにより重力に抗し身体を支持するのみならず、脚間の運動を巧みに協調させること（脚間協調）によって移動のための推進力を生成し、地上での高効率かつ柔軟なロコモーションを可能としてきた。本研究の主たる対象である四脚動物は、地上において脚式ロコモーションを行った最初の哺乳類である。現在までの地球上における四脚動物の大繁栄は、長い進化の過程で獲得された、この適応的な移動能力に裏付けられているといっても過言ではない。実際、四脚動物は、移動速度に応じてエネルギー的に最適な歩容（足の接地順序によって分類される歩行パターン）を発現するのみならず、自身のおかれた環境、さらには動物種に応じてさまざまな歩容を発現することが知られている。このような状況依存的な歩容生成メカニズムを解明することができれば、生物学に資するだけでなく、環境適応性や耐故障性など、四脚動物に比肩する能力を秘めたロボットの工学的実現への基盤技術を創出することが期待できる。

このような四脚動物の脚間協調を司る神経メカニズムを示唆する知見として、除脳ネコを用いた神経生理学的実験が有名である。除脳ネコとは、間脳の部分を切断し大脳皮質と皮質下の連絡を断ったネコである。このネコの中脳の特定の場所を電気刺激するとトレッドミル上を歩行し、さらには、トレッドミルの速度と電気刺激の強度に応じて歩容を変化させる。この知見から、四脚動物の歩容は、脳などの上位の神経系による中央集権的な制御メカニズムによって生成されているのではなく、脊髄以下の比較的下位の神経系によって、自律分散的かつ自己組織的に生成されていることが示唆されている。このような知見に基づき、脊髄に内在しているといわれる神経回路網（CPG: Central Pattern Generator）を数学的にモデル化し、シミュレーションやロボットを用いた実機実験により四脚動物の歩容を再現する試みが多くなされてきた。これら既存のアプローチにおいては、あらかじめプログラムの定義された神経結合ネットワークによって各脚の運動位相の関係を明示的に設計する手法がほとんどであった。しかしながら、このアプローチでは歩容の再現性は保証されるものの、移動速度の変化、環境の変化、さらには自身の身体特性の変化に応じて自己組織的に歩容を変化させることは不可能であり、適応性は不十分であった。

本研究では、このような現状を打破し、四脚動物が示す

多彩な歩容の発現メカニズムを明らかにするため、比較的抽象度の高いモデルを用いて最低限の設定から脚間協調の本質を探る「ミニマリストアプローチ」を採用した。そして、各脚の局所的な力覚フィードバックのみを有する4つの非結合振動子から構成されるシンプルな自律分散制御則（図1 B）を提案した[1]。同制御則を実装したロボットによる実験の結果、身体の重量分布や移動速度に応じて高い適応性を示した[1, 2]。また、Roll方向への振動を励起する物理的振子を実装したところ、中速領域において、trot（対角の脚が同期して接地する歩容）とpace（同側の脚が同期して接地する歩容）が振子の有無で排他的に発現することを示した[3]。さらに、最新の結果（査読中）では、脚の振動子の固有角周波数 $\omega$ のみを変化させるだけで、低速歩容walkから中速歩容trotのみならず、高速歩容gallop（前、後同士の接地がほぼ同期）まで再現することに成功した（図1 A, C）。あらかじめプログラムした歩容を用いることなく、低速から高速領域までの歩容遷移をロボットを用いて再現した結果は世界初である。さらに、得られたさまざまな結果は実際の四脚動物の知見とよく一致するため、提案した制御則が脚間協調メカニズムの本質を据えていることを示唆している。現在は、同制御則を基盤として、二脚歩行、六脚歩行、さらには、超多脚歩行（ムカデ、ヤスデ）における脚間協調制御へと発展させ、脚数の異なるロコモーション様式の再現にも成功している。

- [1] D. Owaki et al., *J. R. Soc. Interface* **10** (2012) 20120669.  
 [2] D. Owaki et al., in *Proc. of IROS2012* (2012) pp. 1950-1955  
 [3] D. Owaki et al., in *Proc of Dynamic Walking 2013* (2013)

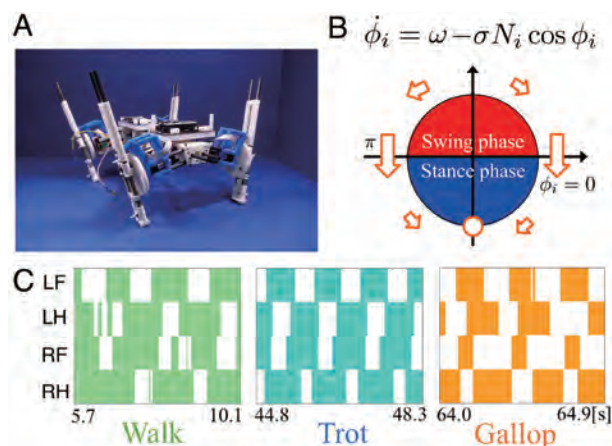


図1：(A) 開発した四脚ロボット。(B) 提案した脚間協調制御則。(C) 再現された歩容遷移。

## 第22回青葉工学研究奨励賞



### マイクロチャンネル内相変化伝熱現象を利用した医療用小型冷凍デバイスに関する研究

東北大学  
流体科学研究所  
助教 岡島 淳之介

人体を加熱・冷却することによる治療は古くから数多くあり、例えば東洋医学の鍼灸などの温熱療法、ガンを局所的に加熱し壊死させるハイパーサーミア、ガン等を凍結により切除する凍結手術などがある。これらの医療技術の有効性は、施術者の技量による部分が多く、その治療効果の定量的評価や医療機器の高精度制御が必要である。その中でも、凍結手術において、皮膚のシミ切除や微小な初期乳がんの低侵襲切除のために、凍結手術用冷凍デバイスであるクライオプローブの小型化が必要とされている。

本研究では、皮下注射用の24ゲージの注射針と同程度の大きさの外径550 $\mu\text{m}$ の極細クライオプローブを開発した。クライオプローブの直径が小さくなると、内部を流れる冷媒の流量が減り、同時に体積に対する表面積割合が増加するため、既存の冷却手法では生体組織を凍結壊死できない場合がある[1]。これまでもクライオプローブの小型化が検討されたが冷却能力は十分ではなかった[2]。小型化に伴い高熱流束冷却の必要性があるため、本研究ではマイクロチャンネル内相変化伝熱を利用した冷却機構を用いた。

図1(a)に極細クライオプローブの外観を、図1(b)に内部の冷媒の流れの概念図を示す[1]。極細クライオプローブはステンレス製の内管および外管により構成された二重管構造を有しており、内管は内径0.07mm、外径0.15mm、外管は内径0.30mm、外径0.55mmである。冷媒には代替フロンHFC-23(大気圧下の沸点 $-82.1^{\circ}\text{C}$ )を用いた。高圧・常温・液体状態の冷媒が内管へ流入し、摩擦損失により減圧される。内管出口において、膨張し低温の二相流へ変化する。冷却性能を評価する通電加熱実験を行い、伝熱性能を実験的に求めることで、内部の流れが沸騰伝熱を伴っていることを明らかにした[3]。

図1(c)に37 $^{\circ}\text{C}$ の寒天内での冷却実験における各種温度および流量の時間変化、図1(d)に凍結領域の写真を示す。クライオプローブ表面温度は二つの熱電対により計測した。寒天内においては表面温度が $-30^{\circ}\text{C}$ ～ $-35^{\circ}\text{C}$ となっており、外部では $-50^{\circ}\text{C}$ となっている。寒天外部は空気中にさらされており、内部を流れる冷媒の温度とみなすことができる。凍結領域は冷却開始120秒後で直径約5mmであった。また、凍結実験を再現する数値解析により、冷却時のクライオプローブ表面での熱流束は $150\sim 200\text{kW}/\text{m}^2$ と推定され、凍結手術に十分な冷却能力を持つことを明らかにした[4]。

高い冷却能力を有する小型の冷凍デバイスを医療用途だけでなく他分野へも波及させるため、現在はマイクロ

チャンネル内の相変化伝熱現象の解明を進め、高発熱密度を持つ電子機器の冷却システムの研究に着手している[5]。沸騰伝熱は潜在的に冷却能力の限界があり、その限界は限界熱流束と呼ばれる。限界熱流束を超える高熱流束冷却機構[5]が実現できれば、電子機器の高性能化を後押しすることができる。

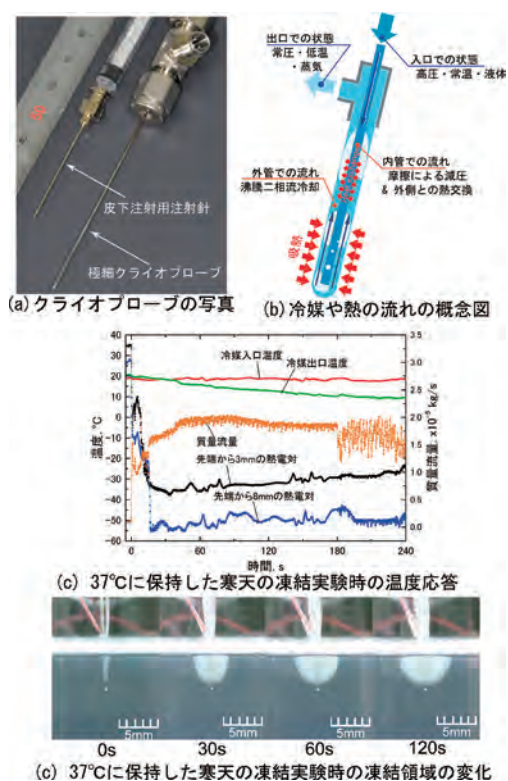


図1 (a) 極細クライオプローブの写真、(b) 極細クライオプローブ内の冷媒の流れの概念図[1]、(c) 37 $^{\circ}\text{C}$ の寒天内での冷却実験における各種温度および流量の時間変化[1]、(d) 凍結領域の写真[1]

[1] J. Okajima et al., *Cryobiology*, 69 (2014), 411.  
 [2] M. Bénita et al., *Brain Res.* 36 (1972), 133.  
 [3] J. Okajima et al., *J. Flow Contr. Meas. Visual.*, 2 (2014), 55.  
 [4] J. Okajima et al., *J. Nanotechnol. Eng. Med.* 4 (2014), 041009-1.  
 [5] J. Okajima et al., *J. Therm. Sci. Tech.* 7 (2012),

## 第22回青葉工学研究奨励賞



## ナノ不均質性を制御した新しい生体用 Co-Cr合金の創製と医療用デバイスへの応用

東北大学  
金属材料研究所  
助教 山中 謙太

超高齢化社会の到来に伴い、骨折や加齢により低下した生体機能を補うために行われる整形外科手術の重要性はますます増している。また、近年では活動量の多い若年層に対する人工関節置換術等の手術適応も増加傾向にある。これらの治療に用いる医療用デバイス・インプラントには、QOL（生活の質）の観点から再手術を必要とせず、長期間使用可能であることが求められる。しかしながら、高分子材料やセラミックスといった他の生体材料に比べて強度や靱性に優れる金属系生体材料であっても過酷な生体内環境に対して必ずしも十分ではなく、手術後に破損する症例も数多く報告されている[1]。

本研究で取り上げた生体用Co-Cr合金は耐摩耗性や耐食性に優れることから人工関節や歯科材料として豊富な使用実績を有しているものの、さらなる高強度化・疲労強度の改善は重要な研究課題である。また、加工性が必要となるステント等の用途にはNiを添加した合金が用いられているが、近年は金属アレルギーの問題からNi添加量を極限まで低減したNiフリー合金に期待が集まっており、Ni添加に代わる高延性・高加工性を得るための材料設計の確立が強く求められている。

我々はこれまでの研究において、生体用Co-Cr合金に窒素(N)を微量に添加することにより、高強度化と同時にマルテンサイト変態による $\epsilon$  (hcp) 相の形成が抑制され、 $\gamma$  (fcc) 相が安定化することで高延性化・塑性加工性の改善が可能であることを明らかにしてきた。本研究では、未解明であった $\gamma$ 相の安定化メカニズムについて、当該合金がN原子と化学的親和性の高いCrを多く含むことに着目して、原子間相互作用の観点から検討した。図1は透過電子顕微鏡を用いてN添加したCo-Cr-Mo合金の組織を観察した結果である。従来研究ではN原子が $\gamma$ 相中に固溶し、均一に分布していると考えられていたが、実際にはナノサイズの析出物が形成しており、一見均質に見える $\gamma$ 相組織にナノスケールの不均質性が存在することが明らかになった[2]。これらのナノ析出物は主に $Cr_2N$ 相であり、熱力学的な相安定性を反映した相分解を示唆している。一方、 $\epsilon$ マルテンサイトは $\gamma$ 相内の完全転位がShockley部分転位に分解する際に形成する積層欠陥が規則的に積み重なることにより形成する。そこで、N添加合金の $\gamma$ 相における転位運動に及ぼすナノ窒化物の影響を熱活性化過程に注目して解析したところ、ナノ窒化物が $\gamma \rightarrow \epsilon$ マルテンサイト変態の素過程である転位運動の障害物となることを見出し、 $\gamma$ 相の安定化メカニズムを明らかにした[2]。

以上は、炭化物や結晶粒微細化による従来の組織制御に対し、微量元素の添加とその制御による「ナノスケールにおける組織制御」の初めての例と言える。本研究ではナノ窒化物を用いたナノ窒化物の形成に伴う力学特性の変化を系統的に調べ、最適なN添加量を特定するとともに[3]、実際に上記の知見を基にN添加を利用した新材料開発にも

取り組んだ。図2はN添加とC添加を組み合わせた合金設計の例であり、鍛造材並の高強度と十分な延性・耐食性を兼ね備えた歯科用鑄造合金の開発に成功している[4]。また、ナノ窒化物が $\gamma$ 相とともにその内部に形成された加工組織も安定化することを明らかにし[5]、超微細結晶粒組織を有するN添加合金を熱間鍛造により作製し、これまで報告されている生体用Co-Cr-Mo合金の中で最も優れた強度・延性バランスを実現した[6]。

本研究の成果は、地域企業や大手医療機器メーカーとの共同研究を通して、2012年に我が国において初めて実用化に成功した人工関節用素材を始め、脊椎矯正用ロッド、歯科用合金等の実際の製品に幅広く応用されている。現在は、ナノ析出物に加え、転位や界面といった格子欠陥も対象として、「ナノ不均質性」に基づく相安定性・組織制御について研究を行っている。これらの研究を通し、新たな学理の構築と広く実社会に役立つ材料開発に引き続き取り組んでいきたい。

- [1] K. Yamanaka et al., Spine, 40 (2015) E767-E773.
- [2] K. Yamanaka et al., Acta Biomater., 9 (2013) 6259-6267.
- [3] K. Yamanaka et al., J. Mech. Behav. Biomed. Mater., 29 (2014) 417-426.
- [4] K. Yamanaka et al., Acta Biomater., 31 (2016) 435-447.
- [5] K. Yamanaka et al., Mater. Des., 57 (2014) 421-425.
- [6] K. Yamanaka et al., Metall. Mater. Trans. A, 43A (2012) 5243-5257.

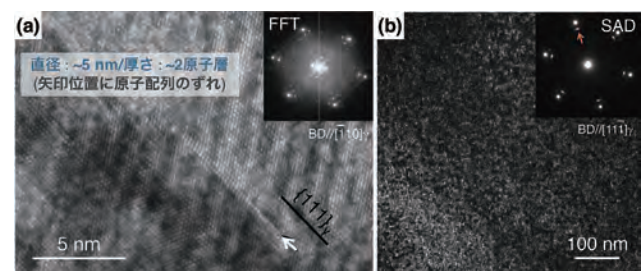


図1 Co-29Cr-6Mo-0.2N (mass%) 合金の透過電子顕微鏡観察結果: (a)高分解能像及び(b)  $\gamma$ 相内に析出した $Cr_2N$ 相の暗視野像。

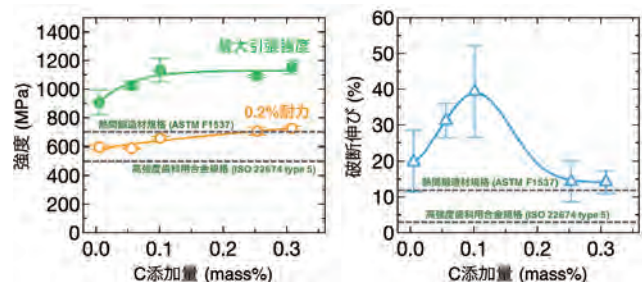


図2 本研究の知見を基に開発したCo-33Cr-9W-0.35N-C (mass%) 鑄造合金の室温引張特性[4]

# 研究プロフィール



## 生物流れの予測を目指して 細胞懸濁液力学の創成

東北大学大学院工学研究科  
ファインメカニクス専攻  
教授 石川 拓 司

### 1. はじめに

「流体力学」と聞くと、人は古典的で完成された学問を想像するかもしれない。しかし、それは大きな間違いである。流体力学は古くから研究されているが、未だに進化しており、完成からは程遠い状況である、と私は考えている。昔の理科の授業において、物質を気体と液体、固体の3つの相に分類した経験を皆さんお持ちであろう。流体力学が取り扱う物質は、主に気体と液体であり、大げさに言えば、実に世界の3分の2の物質を取り扱える学問なのである。気体と液体の中には、まだまだ訳の分からないものが数多く存在し、工学の研究者はその振る舞いを理解し、予測し、制御しようと日々精進している。

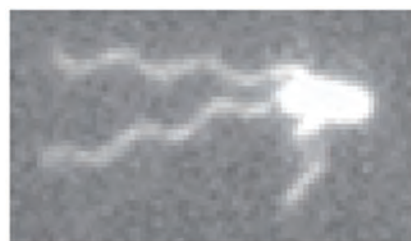
私の主戦場である生物流れの分野においては、ここ10年の間に細胞懸濁液の理解が飛躍的に進んだ。細胞懸濁液とは細胞が浮遊している液体のことであり、例えば赤血球が懸濁している血液や、プランクトンが異常増殖した海洋の赤潮などがこれにあたる。最近の研究において、こうした細胞懸濁液がどのように流れ、液中の細胞が自己組織化するのか、また、液中の細胞や化学物質が攪拌される過程などが、次々と明らかになってきた。こうした知見は、細胞の分布や増殖を予測し、制御する技術に必須である。本稿では、私の研究を中心に、細胞懸濁液内の輸送現象に関する最近の進展を紹介する。

### 2. 個々の細胞運動

細菌や精子、ゾウリムシなどの細胞は高い遊泳能を有している。一方、赤血球やアメーバなどの細胞は高い変形能を有している。こうした粒子の特徴は、工業的な懸濁液では顕著に現れないため、無視されることも多いが、細胞懸濁液の場合には重要となる。

細菌の一種である大腸菌を例にとり、その遊泳能を考えてみよう。大腸菌は、生物研究におけるモデル生物として広く認知されており、形態や運動能、代謝、ゲノム情報など、あらゆる角度から丸裸にされている。大腸菌の体長は約 $2\mu\text{m}$ であり、菌体から長さ $8\mu\text{m}$ 程度の鞭毛が数本生えている (Fig.1 (a) 参照)。鞭毛を駆動しているのは

直径 $45\text{nm}$ ほどの分子モーターであり、イオンの流れを利用して高効率で回転運動を生み出している。大腸菌は、runと呼ばれる直線遊泳と、tumbleと呼ばれるその場回転運動を繰り返しながら誘引物質に向かって泳ぐことが知られており、runモードでは複数の鞭毛が瞬時に束となり、太い一本の鞭毛のように振る舞う。機械工学的には、粘性が支配的な環境下において長い複数の鞭毛を一本に束ねる作業は、鞭毛の根元に強いトルクを必要とするため、困難極まりなく思える。実際、鞭毛の根元にはフックと呼ばれる柔らかいユニバーサルジョイントのようなユニットがあり、強いトルクなどとても発生させられない。では、どのような機構で鞭毛を束にしているのだろうか？ 実は、各鞭毛が作り出す「流れ」によってお互いが引き合い、流体力学的な相互干渉によって鞭毛の束が形成されることが近年明らかにされた。束になった鞭毛は、始めの位相がずれていても、Fig.1 (b) に示すように次第に同期することも分かっている [1]。



(a)



(b)

Fig.1 Flagella bundling of a swimming *E. coli*. (a) Stained image of a single cell with multiple flagella; (b) Time course of flagella bundling while swimming [1]. Time proceeds from top left to bottom right.

壁面近傍のバクテリアの遊泳挙動も、バイオフィルムの形成を考える上で重要である。大腸菌の懸濁液を観察すると、菌体の数密度が壁面近傍で高いことに気付くであろう。大腸菌のように、推力を発生する鞭毛が細胞の後方にある場合には、壁から離れたところにいる細胞は基本的に壁に向かって泳ぐことが流体力学的に示されている [2]。(推力を発生する鞭毛が細胞の前方にある場合には、逆に壁から離れる方向に泳ぐ) 壁面のごく近傍では、大腸菌は円形の安定した遊泳軌跡を描く。このメカニズムは、Fig.2に赤矢印で示すように、菌体と鞭毛の回転が逆方向であることに由来する。大腸菌といえども、ニュートン力学の拘束からは逃れられない。外トルクが作用していない場合には、菌体と鞭毛が受けるトルクの合計がゼロになる必要があり、菌体と鞭毛は逆方向に回らなくてはならない。逆方向に回転すると、壁面から受ける抵抗も逆方向となり、結果的に図中青矢印のような速度が誘起され、大腸菌は体の軸に対して傾いて遊泳することになるのである [3]。

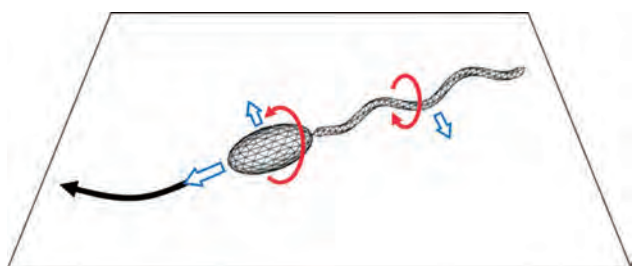


Fig. 2 Schematics of *E. coli* swimming near a wall. The red arrows indicate the direction of rotation, and the blue arrows indicate the induced velocities. The black arrow indicates the resultant trajectory.

この他の細胞においても、さまざまな興味深い現象が報告されている。例えば、人間の精子は卵子から放出される誘引物質を辿って卵管内を遡上すると考えられてきたが、最近の研究において、人間の精子にはそもそも流れに逆らって泳ぐ性質が備わっていることが明らかとなった。こうした精子の走流性も、流体力学を用いて実に見事に説明できるのである [4]。

### 3. 細胞の2体干渉

次に、細胞の2体干渉を考えてみる。細胞の数を1つから2つに増やしたところで、さしたる進歩もないと思うかもしれない。しかし、実際には、2つに増やすことで多くの現象を議論できるようになる。

赤血球の2体干渉を例にとって解説しよう。Fig.3は、2つの赤血球が単純せん断流れ中ですれ違う様子を示している [5]。2つの粒子がせん断流れ中で近付く際には、粒子間に高い圧力が生じる。この圧力によって赤血球はFig.3のような形状に変形する。流れに垂直な投影面を考えると、すれ違った後の赤血球の位置は元の位置からずれる。この位置の変化は相手の赤血球の位置によって上下左右に変化するため、何度も衝突を繰り返すとまるでランダ

ムウォークのような挙動を示す。十分に長い時間スケールでは、こうした特性は拡散テンソルとして記述することができる。2体干渉をベースとした議論では3体目以上の影響を無視しているため、準希薄懸濁液までしか適用できないが、それでも2体干渉から準希薄懸濁液中の拡散というマクロな特性を議論できるのである。

Fig.3の色は、赤血球膜に働く張力を示している。膜に働く張力は、懸濁液中の応力場を変化させるため、粘度などのレオロジー特性に影響を及ぼす。2体干渉によって膜張力がどのように変化するかを調べることで、準希薄懸濁液のマクロなレオロジー特性も分かるのである。

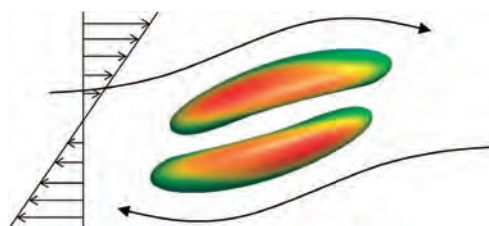


Fig. 3 Interaction of two red blood cells in a simple shear flow [5]. The color indicates the tension on the membrane. Black curved arrows schematically indicate the trajectories of cells.

遊泳する細胞の場合にも、基本的には赤血球と同様の議論が可能である。Fig.4は2体のゾウリムシが流体力学的に干渉する様子を示している [6]。ゾウリムシは体長250  $\mu\text{m}$ ほどの繊毛虫であり、1秒間に体長の10倍程度の速度で遊泳する。2体の遊泳ゾウリムシの頭部と頭部が激しくぶつかると、一時的に逆走する回避反応を示す。一方、1体の尾部にもう1体の頭部が衝突すると、尾部を刺激されたゾウリムシは速度を上げる逃走反応を示す。こうした生物学的干渉の他に、ゾウリムシは流体力学的に干渉する。実際の懸濁液中においては、逃走反応や回避反応などの生物学的干渉はそれほど多くなく、流体力学的干渉が大半である [6]。遊泳細胞同士の衝突によって遊泳方向がどのように変化するかを調べることによって、準希薄懸濁液中の細胞の拡散特性を評価することができる。

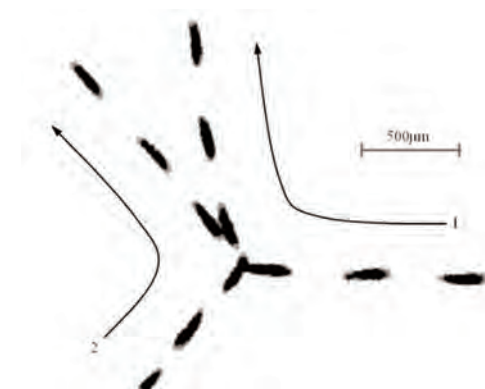


Fig. 4 Sequence images of hydrodynamically interacting two swimming *Paramecia* that experience a near contact in a fluid layer between flat plates [6]. Long arrows are added to schematically illustrate cell motion.

#### 4. メゾスケールの流動構造

細胞数がさらに増えると、さまざまなメゾスケール流動構造が現れる。Fig.5は、大腸菌の濃厚懸濁液中に生じる、乱流のような渦構造を示している。本当の乱流は慣性の影響の大きい流れ（レイノルズ数の高い流れ）で現れるが、この渦構造は粘性の影響の大きい流れ（レイノルズ数の低い流れ）で生じており、乱れの発生メカニズムは乱流と全く異なると考えられる。流れを駆動しているのは大腸菌の鞭毛の回転運動であり、 $\mu\text{m}$ のスケールであるが、形成される渦スケールは $100\mu\text{m}$ 程度と100倍程度大きい。こうした渦の自己組織化がどのように引き起こされるかは、興味深い問題である。

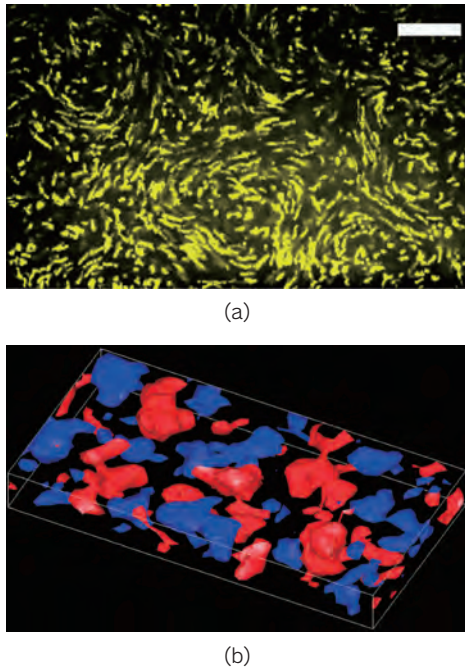


Fig.5 Slow turbulent structure in a dense suspension of *E. coli* [7]. (a) Trajectories of fluorescent tracer particles. The scale bar indicates  $50\mu\text{m}$ ; (b) Vortex structure in the suspension. The color indicates the direction of the rotation.

大腸菌遊泳の自己組織化のメカニズム解明には、数理モデルによる解析や、数値シミュレーションが有効である。粘性が支配的なミクロスケールの流れ場では、流体力学的干渉が遠距離まで及ぶため、遠距離の効果が支配的であるとの理論がこれまでいくつも提唱されてきた。一方、我々の提唱するモデル [8] では、近距離作用が支配的であることが明らかとなった。遠距離の相互作用を無視した場合にも、Fig.6に示すような集団遊泳構造が現れ、自己組織化することがその証拠である。

こうしたメゾスケール流動構造が現れると、懸濁液内の輸送現象は大きく変化する。例えば、物質の拡散においては、ブラウン運動が必ずしも支配的ではなくなり、渦構造による移流の効果が強く現れるようになる。分子量の大きな分子の場合には、見かけの拡散係数はブラウン運動の場合の1万倍にも達することが分かっている。見かけの拡散

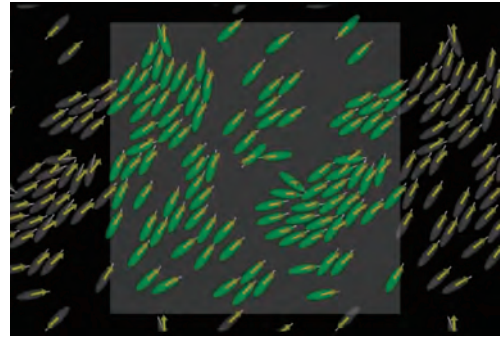


Fig.6 Collective swimming motion of model cells [8]. The motion was generated mainly by the near-field hydrodynamic interactions.

係数の劇的な増大は、酸素や栄養素などの物質を遠方まで高濃度で輸送することを可能とし、大腸菌の生存可能領域を広げていると考えられる。

#### 5. マクロスケールの流れ

遊泳する細胞の懸濁液にマクロな流れを印加すると、細胞の分布はしばしば不均一となり、さまざまな模様が現れる。例えば、体長 $10\mu\text{m}$ ほどで2本の鞭毛を持つ微細藻類であるクラミドモナスを培養する際には、酸素や二酸化炭素の供給や液体を攪拌する目的のために、容器底面から気泡を注入する。気泡の上昇によって容器内には対流構造が形成されるが、細胞が遊泳能を持たない場合には、細胞はFig.7(a)の様にはほぼ均一に分布する。一方、細胞が遊泳能を持つと、Fig.7(b)の様には不均一に分布する。不均一な分布は細胞遊泳と気泡流の干渉で生じており、細胞の増殖速度にも影響を及ぼすと考えられる。

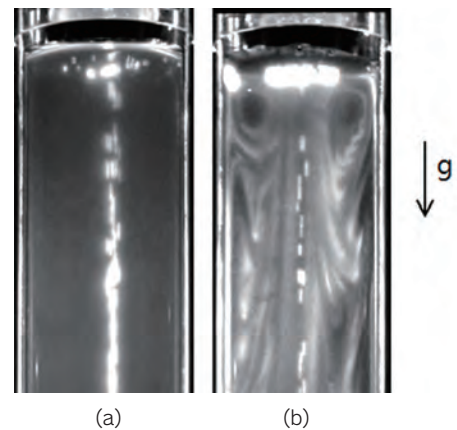


Fig.7 Distribution of *Chlamydomonas* in a cylindrical container with the diameter of 4cm. Cells are seen in white, and air bubbles are also seen bright white at the center of the cylinder. Gravitational direction is shown in the black arrow; (a) a suspension of non-motile cells, and (b) a suspension of motile cells.

この流れとはスケールが大きく異なるが、Durhamら [10] は、細胞遊泳と海流の干渉によって赤潮が生じることを発見した。細胞の遊泳速度は非常に遅いため、赤潮のようなkmスケールの巨大な流動構造とは無縁と考えるかもしれない

ない。しかしながら、赤潮は水平方向にはkmのスケールで広がっている、水深方向にはmスケールのごく狭い幅に集中している。微細藻類といえども、数時間あればmスケールの移動が可能であり、数時間で赤潮を引き起こすこともあるのである。

我々は、こうした赤潮のようなマクロスケールの流動構造を予測する数理モデルを開発している。簡単には、細胞の数密度 $c$ は、次のような移流拡散方程式で記述できるであろう（細胞の増殖率は割愛）[11]。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\nabla \cdot [(\mathbf{V} + \mathbf{U}_d)c] + \nabla \cdot [\mathbf{D} \cdot \nabla c] \quad (1)$$

ここで $\mathbf{V}$ は背景流れの速度ベクトルであり、 $\mathbf{U}_d$ は細胞のドリフト速度、 $\mathbf{D}$ は拡散テンソルである。 $\mathbf{V}$ は流体力学の基礎式から求めることができ、細胞遊泳の効果は流体の運動量保存則の粘性項に取り込むことができる。 $\mathbf{U}_d$ と $\mathbf{D}$ は、さまざまな線形流れ場において事前に求めておくことで、そのデータベースを参照しながら式(1)を解くことができる。我々はこの式を用いることで、赤潮の発生メカニズムを定量的に解明することに成功した[11]。こうした数理モデルは、細胞懸濁液のマクロスケールの流れを予測する際に強力な武器になると考えている。

## 6. おわりに

工学的に重要となる生物流れは、細胞スケールより十分に大きなマクロスケールであることが多い。こうしたマクロスケールの現象を直接観察してしまうと、細胞の分布や増殖率の空間分布・時間発展を理解することは困難である。本稿で紹介した、細胞スケールからメゾスケール、マクロスケールとスケールアップしていく手法を取ると、現象のメカニズムがより明確となるため、我々の理解も飛躍的に促進される。こうした知見は、バイオリアクターや海洋などの様々な環境下における、細胞分布の予測や制御に役立つと期待される。

次の研究対象としては、近年注目されている腸内フローラの解明にチャレンジしたいと考えている。腸内フローラの分布や増殖は、蠕動運動による腸内の流れと、酸素や栄養素などの物質輸送、細胞の移動と増殖など、細胞懸濁液の輸送現象で支配されており、興味深い研究対象である。この手の研究は、分子生物学的手法が主流であるが、ぜひ機械工学の威力も認知していただくよう啓蒙していきたい。

遠くない将来において、さまざまな細胞懸濁液の輸送現象を統一的に取り扱うことのできる学問「細胞懸濁液力学」を創成できるよう、今後も努力していく所存である。

## 謝辞

本稿で紹介した研究成果は、これまで一緒に研究してくれた同僚や学生の努力なくしては得られなかった。ここに感謝の意を表します。

## 【参考文献】

- [1] Kanehl, P. and Ishikawa, T., *Phys. Rev. E*, 89: 042704 (2014)
- [2] Lauga, E. and Powers, T. R., *Rep. Prog. Phys.*, 72: 096601 (2009)
- [3] Giacche, D. et al., *Phys. Rev. E*, 82: 056309 (2010)
- [4] Omori, T. and Ishikawa, T., *Phys. Rev. E*, 93: 032402 (2016)
- [5] Omori, T. et al. *J. Biomech.*, 46: 548-553 (2013)
- [6] Ishikawa, T. and Hota, M., *J. Exp. Biol.*, 209: 4452-4463 (2006)
- [7] Ishikawa, T. et al., *Phys. Rev. Lett.*, 107, 028102 (2011)
- [8] Kyoya, K. et al., *Phys. Rev. E*, 92, 063027 (2015)
- [9] Nonaka, Y. et al., *Biology Open*, 5: 154-160 (2016)
- [10] Durham, W. M. et al., *Science*, 323: 1067-1070 (2009)
- [11] Ishikawa, T., *J. Fluid Mech.*, 705: 98-119 (2012)

## 【著者略歴】

いしかわ たくじ  
石川 拓司

1971年11月生まれ

1994年 東京工業大学工学部機械工学科 卒業

1999年 東京工業大学大学院理工学研究科機械工学専攻 修了

1999年 福井大学工学部機械工学科 助手

2002年 同 助教授

2003年 日本学術振興会海外特別研究員(ケンブリッジ大学)

2006年 東北大学大学院工学研究科バイオロボティクス専攻 助教授

2013年 同 教授



## 高エネルギー材料工学、原子力エネルギーシステムにおける材料開発に係わる研究

東北大学大学院工学研究科  
量子エネルギー工学専攻  
教授 長谷川 晃

### 1. はじめに

私は原子炉や核融合炉という原子力のエネルギーで発電するエネルギーシステムの材料の研究をしています。原子力のエネルギー ( $E$ ) の源には、原子炉の中でのウランの核分裂反応や、核融合炉や宇宙の恒星中心部で起こっている核融合反応があります。その大本はこれら原子核反応の前後の物質の質量の減少分、すなわち質量欠損 ( $\Delta m$ ) がエネルギーに変わったものです。アインシュタインの特殊相対性理論で導かれる質量とエネルギーの等価則で知られる  $E = \Delta m \cdot c^2$  です。ここで  $c$  は光速で  $3.0 \times 10^{10}$  m/s です。このエネルギーはどんな形態をもっているのかというと、核反応の後の生成粒子の運動エネルギー ( $E = (1/2)mv^2$ : ここで  $m$  は粒子の質量、 $v$  は粒子の速度) です。このエネルギーがどのようにエネルギー発生装置の材料に関わり、材料の劣化を引き起こすのかを研究し、劣化しにくい材料を開発するのが私の研究です。

図1はこの核融合や核分裂の反応の前後の様子の模式図です。原子力エネルギーはこの核反応の結果生じた生成粒子の運動エネルギーとしてまず得られます。このとき発生するエネルギーは1つの反応あたり、核融合で約17MeV (メガ・電子ボルト)、核分裂で約200MeVです。Mは百万 (ミリオン) という意味なので、17MeVとは1700万電子ボルトになります。1eVというのは電位差1Vの電極の間を電子が横切って加速されたときに得る運動エネルギーです。1eVは  $1.6 \times 10^{-19}$  J に相当します。化学反応等では1モルあたりの反応を扱うのでエネルギーの単位としてJ (ジュール) を使いますが、核反応は原子一個ずつの反応での取り扱いになるので電子ボルトを通常使います。1eVの大きさを通常の気体中のガス原子のエネルギーと比較してみると、ある温度  $T$  (絶対温度 単位はK: ケルビン) の気体の分子のもつ熱エネルギーの大きさの平均値は、気体の分子運動論から  $(3/2)kT$  ( $k$ : ボルツマン定数

$(8.6 \times 10^{-5} \text{ eV/K})$  で表されます。これから1eVはおおよそ1万度の温度の気体分子の平均エネルギーに相当することが分かります。核融合反応を起こすのに必要な条件の一つとして燃料のトリチウムや重水素を1億度にすると言われてはいますが、これは燃料となる原子に約10000電子ボルト (10keV) の運動エネルギーを与えなければならないという意味です。

### 2. 粒子の運動エネルギーと材料

1eV、すなわち1万度というと相当熱そうですが、1eVの運動エネルギーをもつ原子1個では固体の材料には何も変化が起こりません。運動エネルギーの伝播は粒子同士の衝突によって起こります。固体の物質を構成する原子の配列に影響を与えるようになるには物質に入射する粒子 (中性原子やイオン) に100eV以上の運動エネルギーが必要です。材料に入射する粒子が1000eVの陽子や金属原子のイオンだと固体中の結晶格子中の原子との最初の衝突で、原子をその格子配置の位置からはじき出して、その原子近くの格子原子をまたはじき出して、さらにそれが次の原子をはじき出すという衝突の連鎖が起こり、図2のような原子の規則的な配列の構造が乱れた領域を作ります。この領域を「衝突カスケード領域」と呼びます。イメージとしてはビリヤードの9ボールのゲームで最初の一個の球が当たることでその運動エネルギーをもらった多くの球があちこちにはじき出される、という感じです。

この衝突カスケード大きさはnm (原子数百個) 程度、大きくても数十nmくらいです。この極めて狭い領域で原子が結晶構造を失い、いわば液体状態のようになって局所的に攪拌されたようになるのが特徴です。ただし、この攪拌

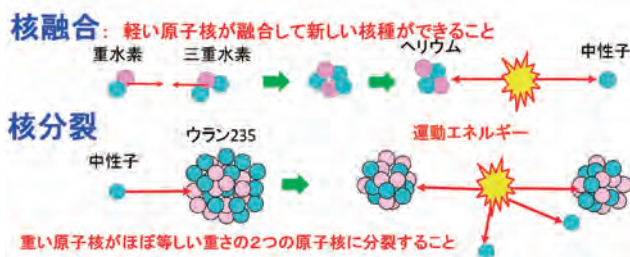


図1 核分裂と核融合反応

1000eV以上の粒子が材料に照射されたときの粒子の衝突によるエネルギーの伝達により、材料中での原子配列の乱れ(損傷)が起こる

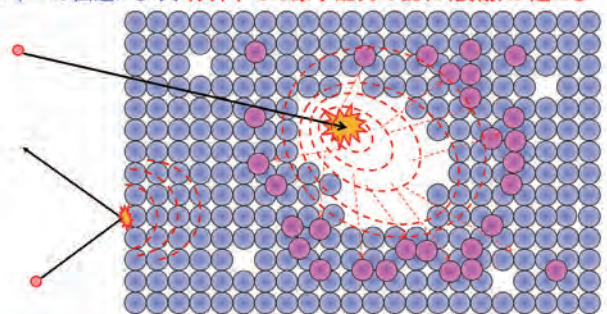


図2 結晶性材料の中のできる衝突カスケード

状態は $10^{-12}$ 秒 (ps, ピコ秒) 程度という極めて短い時間内に終わってしまいます。図2の衝突カスケードの中で作られるのが材料の結晶格子位置の原子がはじき出されて格子位置から原子が無くなってしまった「空格子点(原子空孔)」と、はじき出された原子が材料中の結晶格子の間に入り込んだ「格子間原子」です(図中のピンクの原子)。このような空格子点や格子間原子を点欠陥と呼びます。この衝突カスケードの大きさ(広がり)や、生成される点欠陥の数は最初の粒子のエネルギーと種類によって決まります。

核反応で生成する MeV 以上のエネルギーを持った粒子(原子や中性子)の場合、この1個の粒子の運動エネルギーが、数百から数万個という結晶格子からはじき出された原子に分配されますが、最終的には結晶格子の原子の振動になって、材料の熱エネルギーに変わります。この熱エネルギーで材料に隣接する冷却水を温めて発電に使うのが原子力発電所です。ですから、原子力エネルギーの発生源(原子炉の核燃料)や、核反応で発生した粒子が届く範囲の固体の材料(原子炉の燃料を入れる燃料被覆管や炉心の構造材料、さらには原子炉の入れ物である压力容器、核融合炉の構造材料など)中には、熱の発生とともに図2のようなはじき出しカスケードの領域(結晶構造の傷)が必ず発生します。

このはじき出しの大きさを表すパラメータが dpa (displacement per atom: 原子1個あたりのはじき出し数)です。これは入射粒子の種類とエネルギーと物質の種類から、物質が吸収するエネルギー量を求めて計算することができます。それに入射する粒子の総量を乗ずると単位体積あたりのはじき出しの数が求まり、これをその体積中の原子の総数で割って求めます。1 dpa というのは、その物質中の原子がすべて1回その格子原子の位置からはじき出されることに相当します。沸騰水型原子炉(BWR)の炉心の構造材料で、原子炉内の中性子によって年間1 dpa程度のはじき出しが起こります。核融合炉ではその10倍以上のはじき出しが起こると考えられています。

こんな損傷を受けたら材料は結晶構造がなくなって、液体のように溶けてしまうかというそんなことはありません。金属の場合、合金であっても構成原子はランダムに格子位置に並んでいるので、はじき出して生じた点欠陥の99%以上は、 $10^{-11}$ ~ $10^{-10}$ 秒くらいまであいだにカスケード内のどこかの格子の位置に納まることで、ほとんどが消失(回復)、すなわち元の状態に戻ります。戻り損ねた何個かの原子空孔や格子間原子が残るだけです。一方セラミックスや化合物のように異なる原子が規則的に配列あるいは結合したものや、ダイヤモンドや半導体のように共有結合性が強く、原子間の結合のエネルギーが高いような物質の場合では、衝突カスケード中の点欠陥が完全に元の規則的な結晶構造には戻らず、周囲とは異なった非晶質のような構造を持つ塊になって、材料中に残ることがあります。このような原子サイズの点欠陥や、結晶格子の傷が材料中に残るのが原子力エネルギーに関わる材料の特徴です。また同じ dpa でも材料によって照射の影響は変わってくるということになります。(照射効果の一般的な参考文献[1])

図1で示したように核反応で生ずる反応生成物である粒

子には2種類あります。一つはヘリウムや核分裂生成元素などの原子と、もう一つは中性子です。原子は物質中で高速で運動すると、軌道電子がはぎ取られてプラスに帯電したイオン(荷電粒子)になります。一方、中性子は原子核を陽子とともに構成する粒子ですが、正の電荷を持つ陽子とは異なり電荷を持たない電気的には中性の粒子です。荷電粒子(陽子を含む原子核)または中性子と、物質中の原子との衝突の違いは、荷電粒子の場合はその電荷と原子の中の原子核が持つ正の電荷が反発し合います。このとき働くのが静電力(クーロン力)です。ある一定のエネルギーよりも高いエネルギーをもった荷電粒子は物質中の原子の軌道電子の内側まで入り込みますが、荷電粒子の原子核と物質中の原子の原子核との間のクーロン力により、お互いが直接ぶつかるよりも離れた距離で反発し、散乱します。この散乱で向きと速さが変わるとき入射した粒子から材料中の原子に運動エネルギーが伝わります。一方、中性子の場合は電荷を持たないので、軌道電子や原子核の静電力に邪魔されることなく原子の中に入り込み、原子核と直接ぶつかることで散乱、つまり物質へのエネルギーの伝達が起こります。

これらの散乱(あるいは衝突)の起こりやすさは、その的(まと)の大きさで考えると分かりやすいです。普通の中性の原子の大きさ(最外殻電子の広がり)はおおよそ $10^{-10}$ mくらいです。裸の原子核の大きさは、 $10^{-14}$ mくらいです。だいたい原子の大きさの1万分の1程度、つまり元の原子の大きさを直径100mとすると、直径10mm程度になります。野球のグラウンドとそのセカンドベース上の10円玉くらいの大きさの違いがあります。的の大きさは面積で表わしますから、寸法で $10^4$ 違うというのは、ぶつかりやすさが $10^8$ (一億倍)違うというのに相当します。荷電粒子は物質中で、だいたいnm~100nmごとに衝突を繰り返して止まってしまいますが、中性子は固体中でだいたい数cm程度衝突なしに飛んでから原子核と衝突しエネルギーを失い、方向を変えてまた数cm飛ぶ、という衝突を繰り返して、エネルギーを徐々に失ってやがて止まります。中性子がぶつかって結晶格子の位置からはじき出された原子は次は荷電粒子として衝突をおこしエネルギーをその周辺の数十nmくらいの領域にまき散らして止まります。図3にそのはじき出しの分布の違いを模式的に示します。こ

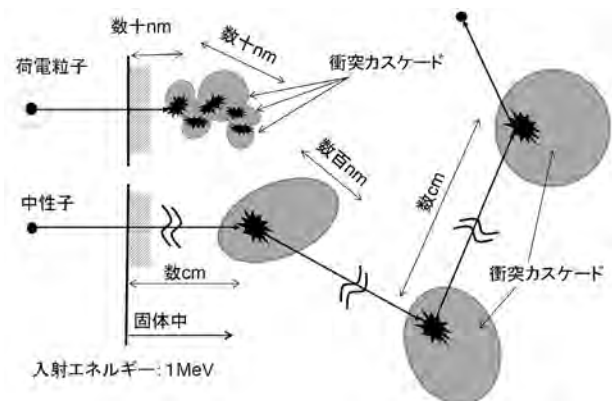


図3 荷電粒子と中性子の損傷分布領域の違い

のような欠陥の分布を作り出すのが高いエネルギーをもった粒子の特徴です。

### 3. 原子カシステムにおける中性子の特徴

中性子は原子核と衝突すると、格子位置からはじき出しの1/1000とか1/10000とかの確率で、別の元素や核種に変わる場合があります。これを「核変換」といいます。原子核の中の陽子と中性子の数は同じではなく、重い元素ほど中性子の割合が多くなる傾向があります。自然界の元素はそのほとんどが壊れたり変化したりしない安定ないくつかの核種（同位体：陽子の数が同じで、中性子の数が違う元素）からなっています。安定な核種となる陽子と中性子の数の組み合わせを決める一般的な法則は分かっていません。それぞれの元素で異なります。このような粒子衝突や核分裂反応および核融合反応で新しい元素（核種）ができたときは、その陽子と中性子の数が安定な組み合わせの数でないときは、核内で中性子が陽子に変わったり、陽子が中性子に変わったりして、電子や陽電子、 $\gamma$ 線などを放出して別の元素や同位体が変わることがよくあります。これを「放射性壊変」といいます。

中性子が飛び交う原子炉や核融合炉に材料を入れると、中性子を吸収したことによる核反応で普通の材料が、放射線をだす放射性物質に変わってしまいます。これを「放射化」といいます。歴史的には放射性同位元素が見つかるまで、「元素は不変」と考えられていましたが、この中性子を使って原子核の中味を変えることで別の元素ができることが分かりました。また荷電粒子でも十分なエネルギーを与えれば原子核に直接ぶつかって、核融合反応で別な元素を作ることでもできるようになりました。いわゆる「錬金術」が、中性子や高エネルギーの粒子を使って原子核の中の陽子と中性子の数を変えることで可能になったわけです。最近話題になった重い元素の原子核同士を加速器でぶっつけて113番目のニホニウムなどを作ったのも同じような原理です。

このように中性子を物質に照射すると、格子原子のはじき出しによる格子欠陥をつくるとともに、異なった元素つまりは不純物元素を生成し、しかも放射性物質になってしまうということが起こります。原子炉や核融合炉では毎秒 $10^{15} \sim 10^{17}/\text{m}^2$ の中性子が物質中を通り抜けるので、物質中の元素の種類によっては、原子炉に入れる前と後で化学組成が%のオーダーで変わってしまう場合が出てきます。一般の工業材料でも使っている間に経年変化などで構造が変わるものはありますが、使用期間中に元素の組成そのものが変わるものはほとんどありません。これも原子力機器材料における特徴の一つです。

自然界には中性子を当てても放射性同位元素のできにくい元素もいくつかあります。私達の研究室では、特に中性子の発生量が多く、放射化の影響が大きくなる核融合炉の材料で、使用後も放射性物質の発生量が少ないものや、できてもすぐに壊変して放射線を出さない核種に変わる元素を使った「低放射化材料」の開発と評価を進めています[2]。また逆にごく微量でも放射化しやすい元素もあり、それらを不純物として含まないような材料を作ること

で、原子力発電所での使用後も放射性廃棄物とならないような、低放射化コンクリート材料の開発などを行ってきました[3]。

### 4. 高エネルギー粒子の照射による材料の変化

中性子や荷電粒子を照射した材料におけるはじき出し(dpa)の多い少ないは、その物質の構造の安定性(結合エネルギー)や物質を構成する元素の質量などでだいたい決まります。核反応については、起こりやすさは元素や同位体で異なりますが、反応の起こりやすさ(断面積)はほぼ全ての元素の同位体で明らかになっているのでだいたい予測は付きます。それでは材料としての変化も全て予測がつくか、というと残念ながら現状では「実際に中性子や荷電粒子を照射してみないと分からない」のです。その主な理由は、はじき出しで衝突カスケードができて、それが回復した後に残るわずかな空格子点や格子間原子の挙動を定量的に予測する手段がまだ無いことにあります。

固体材料の経年変化を左右する主なパラメータは温度とその保持時間です。通常はある条件内に材料をおいたとき、材料中の原子が動いて移動(拡散)することによって、その温度で安定な熱平衡状態の構造になろうとしたり、濃度勾配に従って移動します。この原子の移動のしやすさは、温度に大きく依存し、低温では起こりにくく、高温では幾何級数的に何桁も起こりやすくなります。しかし格子原子のはじき出しがあると、温度に関係なく図2のような局所的な原子の攪拌が起こったり、残った空孔や格子原子が通常環境とは桁外れに多いことから物質中の原子が低温でも勝手に動いたりするようになります。このとき濃度勾配に逆らって移動したり通常環境とは逆の方向に原子が動いたり、熱平衡状態では存在しない非平衡相ができたりします。また空孔の集まった直径が数nm程度の小さな気泡(ポイド:真空または核変換元素の内の気体元素のヘリウムや水素を内部に含む)や、通常は存在しない格子間原子の板状の集まり(転位ループ)ができたりします。これらは粒子線と呼ばれる高エネルギー粒子が大量に照射された場合にのみ形成されます。

図4はその例で金属材料のモリブデンを原子炉で照射した際に形成された照射欠陥の集合体を透過型電子顕微鏡観察した例です。写真下部のスケールは100nmです。写真aの上の矢印の黒い縁取りの輪は10nm以下の大きさで、輪の内部に格子間原子が集まって1枚の板のようになった転位ループの輪郭です。写真bの矢印で示した白い丸い模様は大きさが10nm程度のポイドです。同様のずっと小さな気泡が写真aの下側の矢印にも見られます。これらは図2の衝突カスケードが回復してほとんど消えた後にわずかに生き残った点欠陥が、時間をかけて集まったものです。衝突カスケードから直接できたものではありません。このようなポイドは材料の体積の増加(ポイドスワリング)をもたらす、転位ループとポイドはそれぞれ材料の強度を上げて材料を硬化させます。

この体積増加と材料の硬化は金属材料の照射による典型的な影響です。ポイドによるスワリングは条件によっては10~20%程度になることもあります。%オーダーの体積

増加は機器内部のひずみの発生や、冷却管路の閉塞を起こしたりするので、できるだけ小さくする必要があります。一方、材料が硬くなるのは良い方向のように思えますが、このような欠陥集合体による必要以上の硬化は、材料を脆くし破壊的な損壊（照射脆化）をもたらすので、照射による硬化は小さくする必要があります。図4のような欠陥集合体の形成は、合金元素を添加したり、圧延加工など材料の組織改変で抑制したり、促進させたりすることができます。どのような材料改質がそれに適するかについては、これまでの実験データの蓄積でだいぶ予測できるようになってきましたが、その予測精度は十分ではなく、実際に原子炉や加速器などで粒子線を照射して確認することで、このような環境に耐えられる材料の開発が進められています。

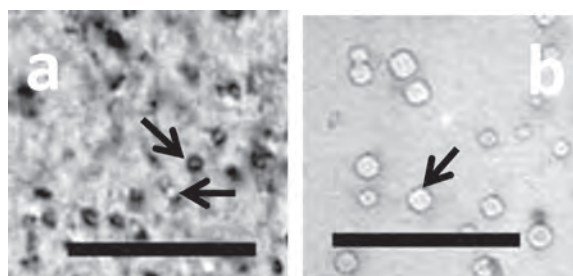


図4 照射欠陥集合体の電子顕微鏡観察の例。下部のスケールは100nm。

我々の研究室では核融合炉において炉を定常的に運転し続けるために不可欠のプラズマの不純物排気装置（ダイバータ）の材料を主な対象として現在研究を続けています。図5は現在フランスで日・EU・米・露・中・印・韓の国際協力で建設が進められている核融合実験炉（ITER）の全体像とダイバータの概観です[4]。ダイバータは不純物の排出のためにプラズマが直接当たるので非常に高温になります。そのため高融点で溶融しにくく、熱伝導性もよく、燃料の水素を吸収しにくいタングステンが有力な候補材料となっています。このタングステンにおいて、核融合反応による中性子照射が引き起こす影響を原子炉や加速器を使って調べ、劣化の起こり方や、劣化の起こりにくい材料の開発を進めています（図5）。特にダイバータはプラズマからの非常に高い熱負荷（約10MW/m<sup>2</sup>、ロケットエンジンノズル並み）に対して年のオーダーで耐えなければなりません。しかも、中性子の照射もあるので、熱的な変性に加え、はじき出しや核変換による物性の変化も起こります。タングstenは他の金属材料にくらべて硬く変形しにくいことから、照射によってさらに硬く脆くなったり、また再結晶をおこして割れやすくなります。我々は核融合炉のこのような環境下でも劣化しにくいタングsten材料の開発とその評価を進めています。中性子を発生する核融合炉はまだ存在していないので、開発した材料の中性子照射による劣化への抵抗性の確認には原子炉を使います。この原子炉による材料の評価には少なくとも3～5年程度かかるので、息の長い研究になります。また試料も放射化するので放射性物質を取り扱う施設でないとい評価もできません。現在は日本の研究用原子炉が止まっているので、米国やEUの原子炉を使って研究を続けています。日本のメー

カーの作るタングstenはクオリティが高く、ITERのダイバータ機器を始め、将来の発電用核融合炉の機器への使用が期待されています。私達は合金化や微細組織の制御で中性子の影響が出にくい材料の開発を目指して国内のメーカーとともに材料開発をしつつ、国内はもとよりアメリカやヨーロッパの研究者との照射影響評価についての共同研究を進めています[5]。

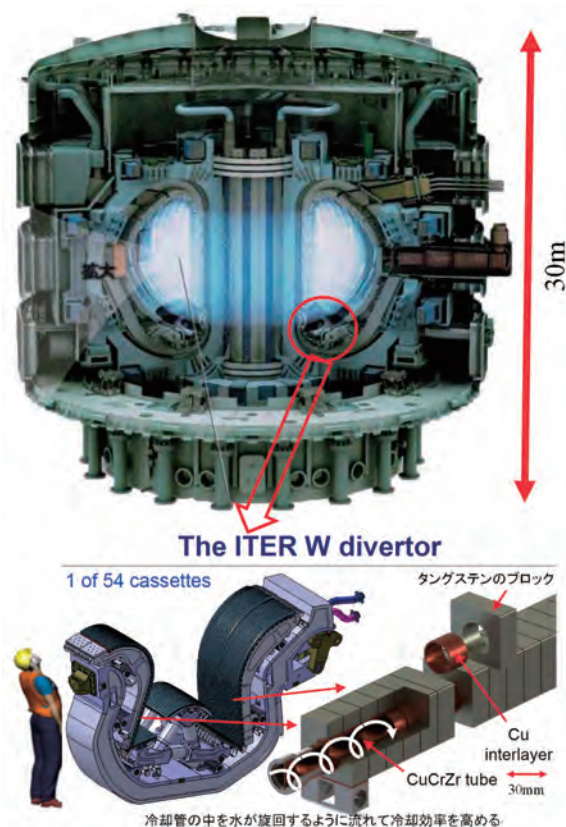


図5 核融合実験炉（ITER）とダイバータの概観

#### 参考文献

- [1] 諸住正太郎 編、原子力材料、日本金属学会（1989）
- [2] 長谷川晃 他、日本原子力学会誌 47巻No.8 pp.536-544（2005）
- [3] 長谷川晃 他、原子力eye 53巻6号pp.60-63（2007）
- [4] <http://www.iter.org/mach/divertor>
- [5] 長谷川晃 J. Plasma Fusion Res. Vol.92 No.12 pp.891-896（2016）

#### 著者経歴

はせがわ あり  
長谷川 晃

- 1956年 9月生まれ  
1979年 東北大学工学部原子核工学科卒業  
1984年 〃 工学研究科原子核工学専攻  
博士課程後期修了 工学博士  
1984～1992年 科学技術庁金属材料技術研究所  
1992年 東北大学工学部 助教授  
2007年 〃 工学研究科 教授



## 新しい機能性材料の創生

— 形・性質・向きを変えて新奇なヘテロ成長に挑戦 —

東北大学大学院工学研究科  
電子工学専攻  
教授 鷺尾 勝由

### 1. はじめに

100を超える元素の中で、シリコン (Si) が現在の情報化社会を支えているという意見に、異を唱える人はほとんど居ない。1965年に提唱された単なる経験則に過ぎないムーアの法則 (Moore's law) に従って、18ヶ月 (現実的には24ヶ月) で集積度を2倍にするという技術開発が50年以上に渡り継続している。2度目の東京オリンピックが開催される2020年には、脳全体の脳細胞数に近い1,000億個のトランジスタが集積化されるというトレンドが示されている。しかしながら、加工寸法が1億分の1メートル (10nm) 以下となり、原子の大きさ (約0.1nm) の影響が無視できなくなるなど、種々の開発課題を克服することが困難になり、ついに限界を迎えようとしている。

さて、上記のような驚異的な開発トレンドを維持したSi半導体の開発過程において、1世代前 (半導体の世界では2~3年前) にタブーと考えられていた決まり事を破り続けてきたことは、実に興味深い。そのひとつに、使用する元素の多様化がある。多種の元素を使うということは、ある意味で「高純度」を優先とした技術開発の前提を崩すことであり、大きなリスクを背負うことに繋がりがなかった。しかしながら、トランジスタの発明当初では高々十数種類に限定されていた元素が、今では60種近くにまで増加している。これは、「新しい材料」の適用が非常に大きなプレイクスルーを生み出すということを示唆している。様々なプロセス技術やデバイスには数多くの研究開発者の英知が結集されているが、物の性質、すなわち「物性」が異なる材料を用いることで、それまでには越えることが出来なかった壁を打ち破れるのである。

そこで、私の研究室では、新しい機能性材料を創ることを目的として、量子効果を生じる結晶、多くの機能を併せ持つ薄膜、さらには結晶構造が異なる系に至る新奇なヘテロ成長技術の研究を行っている。図1は小生の愚作にて、研究内容を表すつもりで作成した研究室発足時のロゴである。本稿で述べるヘテロ結晶成長や構成元素を表現してみたつもりである。以下の本稿では、現在推進中のヘテロ成長研究の一部について述べる。



図1 研究室のロゴマーク

### 2. 形を変えて

所謂、格子定数が異なる薄膜結晶を形成するヘテロエピタキシャル成長技術の類いであるが、Si基板上に量子効果が得られる量子ドットの形成 (すなわち、薄膜から形を変えて) を検討している。量子ドット (QD) を構成する元素はゲルマニウム (Ge) である。Geは間接遷移型の半導体であるため光学特性が良くないことが知られているが、量子化によるキャリアの独立閉じ込めによって発光素子を作製できる。Siと同じIV族元素であるGeは、トランジスタ発明時の材料であったことから、Si半導体と最も相性の良い元素と言え、発光が困難であるSi LSIにGe発光素子を混載できれば、大幅な機能向上が期待できる。

そこで、同じくIV族であるカーボン (C) を利用することで、1) Si基板表面の構造を変える、もしくは2) Ge固相成長の際の歪みを調整することで、QD形成を試みている [1, 2]。清浄化したSi基板の表面は、隣接するSiの未結合手が結合し  $2 \times 1$  と呼ばれる構成面となる。ところが、適量のCを表面で反応させると  $c(4 \times 4)$  と呼ばれるSi再構成面となる。この表面に結晶成長する条件でGeを堆積すると、図2に示すような小さな島状のQDを形成できる。また、Geが固相成長する際にCがGeと結合する (C-Ge結合により格子間距離が短くなる) ことで、SiとGeの格子不整合を緩和調整しつつGe QDを形成する手法も検討し、同じような結果を得ている。

なお、Si半導体において、Cは汚染物として嫌われ者扱いされていた元素である。それは、C-C結合が強いためにCの集合体が形成されやすく、またCのイオン半径がSiの0.7倍と小さいために大きな歪みを生み、さらに熱処理による拡散が速いなどの理由による。しかしながら、1原子

層以下程度のCを利用し、余剰のCを残さない手法を用いれば、Cの媒介によって形を変えることで従来の手法では成し得なかった新しい機能を創ることができるのである。

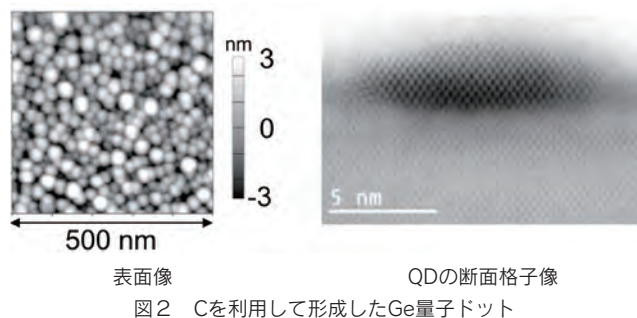


図2 Cを利用して形成したGe量子ドット

近年になってグラフェンのようなSiやGeの2次元のハニカム構造シートが見出され、それぞれシリセン (silicene)、ゲルマネン (germanene) と呼ばれている [3, 4]。グラフェンは半金属でバンドギャップが存在しない。一方でシリセンやゲルマネンにはバンドギャップを導入でき、トランジスタ動作も確認されている。しかしながら、現状ではプロセスの煩雑さやシートの不安定性のために、基礎的な研究に留まっている。現時点で詳細を述べることはできないが、私の研究室では、この「形を変えて」の発想を発展させ、実用化に供する新材料形成技術の進展に取り組みたいと考えている。

### 3. 性質（物性）を変えて

添加物を加えることで、物質の性質（物性）を変えることの代表例は、Siにボロン、またはリンや砒素を添加して、導電性をそれぞれp型やn型にすることであろう。これによって構成するpn接合の整流特性は、全ての半導体デバイスの根幹となっている。その他にも、SiとGeの混晶によりバンドギャップを制御してヘテロ接合を形成することなど、数多くの例がある。

私の研究室では、酸化亜鉛 (ZnO) に遷移金属や窒素 (N) を添加することで、ZnO薄膜の堆積形態を制御し、ZnO薄膜の結晶性、可視光透過特性、導電性、圧電性、磁性などを自在に調整して、新しい機能的な酸化膜の形成を試みている。遷移金属として用いているのは、バナジウム (V) である。研究開始当初の予定では、Vのみならず、クロム (Cr) やマンガン (Mn) から、強磁性の鉄 (Fe)、コバルト (Co)、ニッケル (Ni) なども添加物として検討予定であったが、V添加のZnO薄膜 (以下、VZOと略す) の成長メカニズムや物性を十二分に把握できておらず、展開が遅れている、というのが正直なところである。

さて、VZO薄膜に期する物性を列挙すると、次の通りである。1) ZnOの格子位置にあるZnと置換する場合、すなわちVがZnと同じIV配位になる時に、Vの価数は5である。Znの価数が2であるから、1つの元素置換で3つの電子を生成する、という高効率のキャリアソースとし

て作用する。2) IV配位のVのイオン半径が、Znの約0.6倍と短いことを利用して、六方晶ウルツ鉱構造を部分的に崩すことで、ZnOが本来有する圧電性を増大できる。3) ZnOを低抵抗の透明n型導電膜とするために添加しているガリウム (Ga) やアルミニウム (Al) に比べて、前述の1)の効果により少量のV添加で同等の抵抗率が得られ、可視光透過性への悪影響をほとんど考慮する必要がなく、薄膜の堆積も比較的低温で行える。4) 遷移金属の添加によって強磁性的秩序がZnO中に発現する可能性がある、等々。

上記の皮算用的な目論見は現時点で十分に実現できていない。しかしながら、ヘテロ結晶成長の観点からは、極めて興味深く、大きく物性を変える可能性のある挙動などが成果として得られている [5~7]。ここでは紙面の制限のため、その一端だけ紹介する。その1つ目は、V添加による面内回転対称性の向上である。高品質のZnO薄膜を形成する際に用いるサファイア基板と、ZnOの格子不整合は、最も小さい場合でも約18%と非常に大きい。また六方晶系結晶で生じやすい30°回転では、さらに不整合度が増し約32%にもなる (図3)。

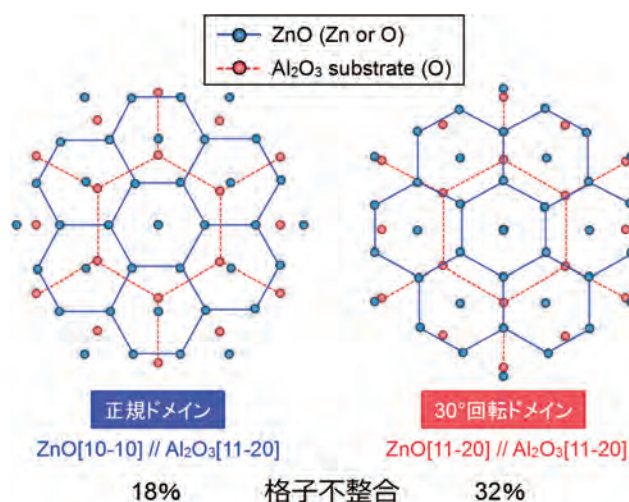


図3 サファイア基板上へのZnO薄膜成長

これらのために、単結晶ZnOのヘテロ成長は極めて困難で、c軸に配向した多結晶薄膜となり、その配向がどの程度揃っているか、が重要な評価項目となる。また、低温でZnO薄膜を堆積した場合に、低格子不整合のドメイン (以降、正規ドメインと呼ぶ) に加えて、高格子不整合のドメイン (以降、30°回転ドメインと呼ぶ) が形成される。このような回転角が異なる結晶粒の混在は、配向性の劣化を招くことを意味しており、単一ドメイン化が必須である。格子不整合が大きい30°回転ドメインが形成する理由は必ずしも明確になっていないが、六方晶のc面である正六角形は6つの小さな正三角形で構成されており、低温成長などでは局所的な格子整合が優先されるためと考えられている。以上のような一般的なZnO薄膜の成長様式に対して、V添加は正規ドメインのみを形成するドメイン単一化に効果的であることを実証した。この機構については未だに完

全に明確化できていないが、多面的な分析や解析によりV原子がZnの不安定サイトへの吸着を抑制する効果によるものと考えている。

V添加の2つ目の効果は、ZnO薄膜のアモルファス（無配向）化である。同じ元素が層状に並び柱状成長的に堆積するZnO膜は、その強いc軸配向性からアモルファス化しにくいことが知られている。格子不整合が大きいヘテロ接合の系では、アモルファスからの固相成長（SPE）により高い結晶性を得る手法が用いられるが、ZnOの場合には前述の理由によりSPEが使えないと考えられていた。しかしながら、V添加すれば（初期成長界面ではc軸配向するという意味で）擬似的にはあるが、アモルファス化できることを見出した（図4）。この例では膜厚が約30nmのVZO膜を堆積すれば、最表面がほぼ無配向になり、その表面上に連続してZnO薄膜を堆積しても、ある程度の膜厚までアモルファス化できることを確認している。さらに、この疑似アモルファスVZO薄膜を用いて、アモルファスZnO膜のSPEにより従来よりも高配向化できることが分かっている。

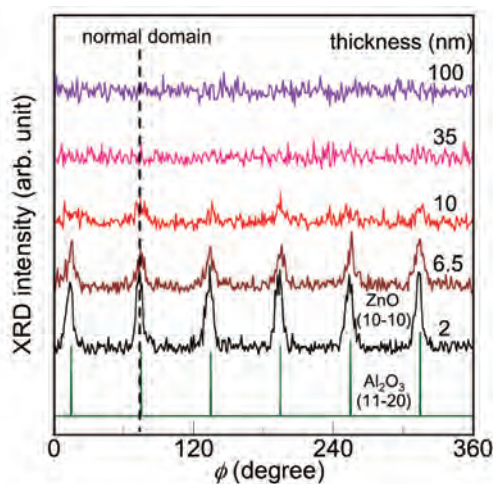


図4 V添加による疑似アモルファス化

3つ目の興味深い挙動は、VZO薄膜に窒素(N)を共添加した場合に得られている。スパッタリング法で形成するZnO膜では、ZnとOの比率が1:1のターゲットを用いてもZn組成比が大きいことが知られている。これは不純物を添加しなくてもキャリア（電子）生成されることと関係しており、格子間のZn原子がキャリア源となっている。それと同時に、O不足の状態のために結晶格子には多くのO欠損を生じている。結晶性を向上するためには、これらの格子間原子や欠損を排除することが望ましい。そこで、欠損の低減に用いられる手段として、スパッタ・ガスにO<sub>2</sub>を加えたり、欠損をNで埋めることが検討されている。ここで、Nのイオン半径はOより大きく価数も異なるために、ZnO膜中にNが組み込まれにくく熱処理で脱離しやすいことが分かっている。しかしながら、VZO膜においては遷移金属であるVがNとの結合を形成することによって、

N添加できることを見出し、最適なV/N共添加条件を選べば高配向化することを確認している（図5）。

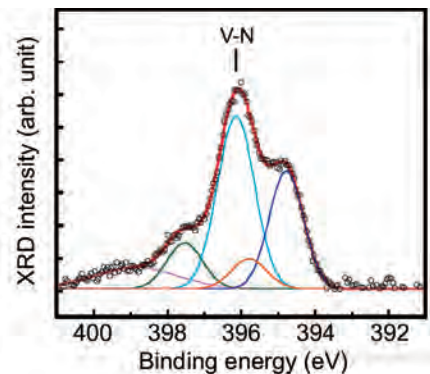


図5 V/N共添加ZnO膜内のV-N結合

その他にも、単結晶ZnO堆積のための極薄膜バッファ層や、ZnOでは形成が困難なp型導電膜としてデラフォサイト型酸化物であるCuCrO<sub>2</sub>薄膜の堆積などに取り組んでおり、有害な紫外線を吸収して発電する透明太陽電池フィルムなどへの応用を検討している。

#### 4. 向きを変えて

結晶の構造を大別すると、立方晶系と六方晶系である。立方晶系の代表的な結晶はダイヤモンド構造のSiやGeなどで、六方晶系ではウルツ鉱構造のGaNやZnOなどである。2014年のノーベル物理学賞受賞で著名になったGaNは、青色LEDの材料としての地位を確保しており、またパワーデバイスへの適用も進んでいる。しかし、GaNデバイスの形成においては、Siプロセスほどに高集積化への対応が進んでいないため、高い演算能力のオンチップ化を期待しにくい。一方、SiやGeなどのナローギャップ材料では、青色発光や高耐圧は実現できないが、高集積のロジックやメモリ回路を用いた高速高機能の演算処理能力は疑うまでもない。ここで、GaN結晶成長の基板は、GaNと同じ六方晶系（正確にはコランダム構造）のサファイアである。

そこで、GaNデバイスとIV族系高機能演算処理回路の混載を目的として、六方晶系のサファイア基板上への立方晶系のGe薄膜成長を試みている。言うなれば、六角形の上に四角形を置くことを意味する。そもそもエピタキシャル成長とは「基板の結晶面に揃えて配列する」ことであるから、一考するまでもなく無茶な話になる。しかしながら、結晶構造の見方、すなわち結晶を置く際に向きを変えて考えると、四角であった立方晶が三角に見える。三角なら、六角形と相性が良いと考えが及ぶわけである。ダイヤモンド構造に精通する研究者は(111)面が正三角形であることを熟知しており、この程度の発想の転換は容易であると思うが、意外に研究例が少ない。これは、Si半導体の進化が(100)基板の採用にあったことから、(111)面を積極的に用いる意識があまりなかったため、思考が停滞したのかも知れない。

さて、c面サファイア基板にGeを菱面体的に配置(すなわち(111)面をc面に平行に配置)すると、その格子定数が意外に近いことが分かる(図6)。実験の結果、通常のGeエピタキシャル成長に比べて高温での成膜が必要であるが、菱面体的に配置できることを実証した[8]。結晶性に関しては改善の余地が多く、単結晶に至るまでの課題も多いが、サファイア基板のコランダム構造起因の配向性分離や、基板の原子層ステップ化の効果、さらには2段階成長による高配向化なども検証しており、異なる構造の結晶をヘテロエピタキシャル成長するという新奇な研究分野の進展に向けて、検討を一層深化したいと考えている。

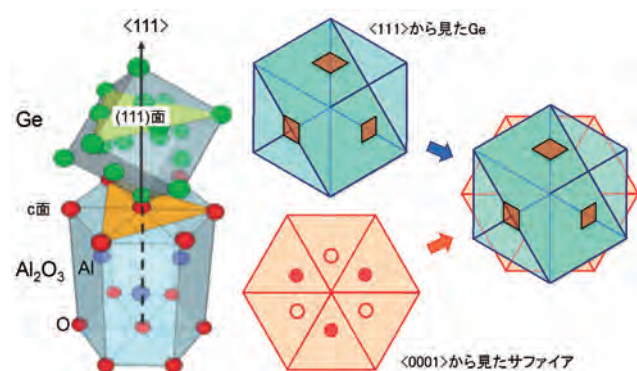


図6 Geの菱面体配置によるサファイア基板上成長

## 5. まとめ

新しい機能性材料の開発・実用化は、成長が鈍化したと認識されている半導体産業において、新たなブレークスルーを提供するものと考えている。Geを主材料とする量子ドットやハニカム構造シート、ZnO系を主とする酸化物薄膜の透明導電膜や太陽電池などへの多様な応用など、一見すると発散的な薄膜材料研究と受け取られるかもしれないが、異なる結晶構造を扱っているからこそ生まれるシナジー効果を十二分に発揮できるよう、進めていくつもりである。

## 【参考文献】

1. Y. Satoh, Y. Itoh, T. Kawashima, and K. Washio, *J. Cryst. Growth* **438** (2016) 1.
2. S. Hatakeyama, Y. Itoh, T. Kawashima, and K. Washio, *Microelec. Eng.* **125** (2014) 28.
3. P. Vogt, P. Padova, C. Quaresima, J. Avila, E. Frantzeskakis, M. C. Asensio, A. Resta, B. Ealet, and G. Le Lay, *Phys. Rev. Lett.* **108** (2012) 155501.
4. M. E. Dávila, L. Xian, S. Cahangirov, A. Rubio, and G. Le Lay, *New. J. Phys.* **16** (2014) 095002.
5. H. Chiba, T. Mori, T. Kawashima, and K. Washio, *J. Electron. Mater.* **44** (2015) 1351.
6. A. Watanabe, H. Chiba, T. Kawashima, and K. Washio, *J. Electron. Mater.* **45** (2016) 2008.
7. T. Suzuki, H. Chiba, A. Watanabe, T. Kawashima, and K. Washio, *Mat. Sci. Semicond. Proc.* in press (2016).
8. 河口 大和, 伊藤 友樹, 川島 知之, 鷺尾 勝由, 第76回 応用物理学会秋季学術講演会, Nagoya, Japan, Sep 13-16, 2015, 13p-2W-3.

## 【著者略歴】

鷺尾 勝由  
わしお かつよし

- 1981年 神戸大学大学院工学研究科電子工学専攻修了  
1981年 (株)日立製作所中央研究所  
1991年 早稲田大学 工学博士  
1992年 ドイツ Siemens AG 中央研究所  
2011年 東北大学大学院工学研究科教授



## 1 細胞分析法が拓く受精卵および幹細胞の 新規品質評価システムの開発

東北大学大学院工学研究科  
応用化学専攻  
教授 珠 玖 仁

### 1. はじめに

受精卵の発生段階や神経系・免疫系など多様な細胞が共存する組織内での情報処理、細胞の悪性腫瘍化の過程では、個々の細胞の性質が刻々と変化し、種類の異なる細胞が共存する状態が生まれます。従来分子生物学的手法や生化学的手法では、大量の細胞試料を回収してきて核酸やタンパク質の分析により遺伝子発現を評価することが主流でした。しかし、数的に少数派の幹細胞やがん細胞が重要な役割を果たすような場合には、その極めて小さい応答を検出することが困難でした。分析ツールの進歩により、生体内で起こるこれらの現象を1細胞レベルで解析することが可能となりました。1細胞に含まれる核酸・タンパク質・代謝産物を含む多岐にわたる生体分子の検出方法と、細胞操作・回収から膨大な量のデータを解析する方法に至るまでのすべての工程を刷新するための研究領域として1細胞分析の分野が注目されています。

1細胞分析装置の代表格であるフローサイトメトリー (Fluorescence activated cell sorting, FACS) は、1秒間に $10^4$ 個を超える処理速度(スループット)で細胞を分取できます。表面抗原など細胞特異的マーカーの蛍光標識により、様々な種類の細胞を仕分け、個々の存在比率を算出します。細胞表面の抗原タンパク質に加えて、細胞内pHやカルシウムイオン濃度、活性酸素産生量に基づく細胞の検出も行われています。

これに加え近年では、微細加工技術やマイクロ流体システムなどの細胞チップ・テクノロジーが高額なFACSに替わる1細胞分析ツールとして登場しました。1細胞アレイデバイスでは、同一チップ上に細胞サイズのウェルを大量に並べて $10^5$ 個以上の1細胞をアレイ化することができます。細胞チップを用いて造血幹細胞や目的抗体を産生するB細胞、マラリア感染血球細胞、血中循環腫瘍細胞など、存在確率の極めて低い細胞を取り出すことが可能となり新しい細胞診断の手法として注目されています。蛍光イメージングシステムとマニピュレーションシステムを組み合わせることにより、FACSと同等あるいはより優れたスループットを達成することができます。イメージングシステムでは、細胞の座標が特定される為、薬剤刺激応答などの経時変化を1細胞ごとに並列に追跡することもFACSにはない利点であると言えます。マイクロ流路を集積化した細胞チップでは、細胞破碎・逆転写反応、PCR (polymerase

chain reaction)などの工程をチップ上に搭載する試みも成功しています。

しかしFACSや1細胞アレイデバイスを用いた方法では、組織試料から1細胞分析を行う際に組織から細胞分散液を調整する工程が必要である為、組織試料の中での細胞個々の位置情報が失われてしまう点が問題です。これを踏まえ我々は、1細胞操作・1細胞計測のプラットフォームとして走査型プローブ顕微鏡システムに注目しています。探針として様々な多機能プローブ(ガラス電極、リング電極、マイクロ流体型プローブおよびそれらを複合化した探針)の微小化・高機能化を研究しています。それに先立つ研究として微小電極を探針とする受精卵呼吸測定装置の開発も行いました。以下では、我々の開発した分析ツールをいくつか紹介します。

### 2. 多機能ナノピペットによる細胞機能探索

走査型プローブ顕微鏡は3軸のピエゾ圧電素子と鋭い探針を組み合わせた表面分析機器であり、探針-試料間距離を正確に制御しながら表面の走査画像を取得します。探針として様々な機能プローブを選択できることが魅力であり、トンネル顕微鏡 (STM) や原子間力顕微鏡 (AFM) だけでなく、電流・光など複合的な情報を得ることができます。その中でも我々は、化学的情報のマッピングに興味を持ち、酸化還元電流やイオン電流を観測する為の電極を探針とし、測定システムを開発しました(特許第5467473号)。走査型イオン-コンダクタンス顕微鏡 (Scanning ion-conductance microscope, SICM) は電解質を充填したナノピペット探針(ガラス電極)によりイオン電流を観測し、探針-試料間距離を一定に保ちながら光の回折限界を超える高解像度イメージングを実現できます。

我々は、SICM探針と有機電解質充填探針を集積化し、水相-有機相2チャンネル多機能ナノピペット探針を開発しました[1]。有機相チャンネルは超小型注射器の役割を担います。水相-有機相界面に電圧を印加することにより、界面が移動し $1\text{ pL}$  ( $=10^{-12}\text{ L}$ )以下の極微量サンプルを回収できることが分かりました。もう片方の水相チャンネルでは、イオン電流に基づき高解像度の細胞画像を取得しました(図1)。これにより、細胞の位置情報と遺伝子発現情報をリンクさせることが可能であることを示しました。今後は、 $10^6$ 個を超える細胞数で構成される組織モデルとして、

マウス胚性幹細胞（ES細胞）から分化誘導により得られた心筋、血管、神経-分化モデル系に注目し、高分解能 SICM画像と網羅的遺伝子発現解析の結果を照合することを考えています。

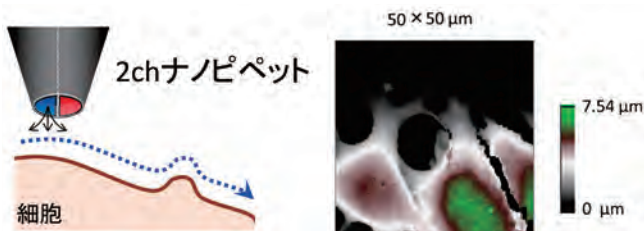


図1 多機能ナノピペットによる細胞画像の取得と細胞質の局所回収

### 3. 微小電極法に基づく哺乳動物初期胚機能探索の研究

1978年に世界最初の体外受精児が誕生して以来、不妊治療を目的とした生殖補助医療技術が急速に進歩を遂げています。わが国においても少子化・高齢化の問題が大きく取り上げられており、不妊治療はより身近な存在と認識されつつあります。体外培養技術の進歩によりクオリティの高い受精卵の作出が可能となっていますが、その後の子宮への胚移植、受胎率、産仔の成功率は依然として低い水準にあります。これまで、受精卵の品質評価は形態観察に基づき行われてきました。

我々は、微小電極法に基づき受精卵近傍の酸素濃度計測に成功し、単一受精卵ごとの呼吸活性を指標とした客観的な受精卵の品質評価法を開発しました[2]。白金微小電極を微小酸素センサとして走査すると、受精卵近傍の酸素濃度プロファイルが球面状に広がる様子を直接計測できことがわかりました。当初、マイクロマニピュレータとマイクロピペットで受精卵を固定し、その近傍の酸素濃度プロファイルを微小電極により観測しました。次に、逆円錐型ウェルに受精卵を1個落とし込みサンプルの周辺に形成される酸素濃度プロファイルから呼吸活性を定量する方法を考案しました(図2)。我々の特許(第3693907号)をもとに受精卵呼吸測定装置が装置化・実用化され、受精卵呼吸測定装置により、ウシ・ブタ・マウス・ヒト胚における発生ステージごとの呼吸量が計測されています。受精卵

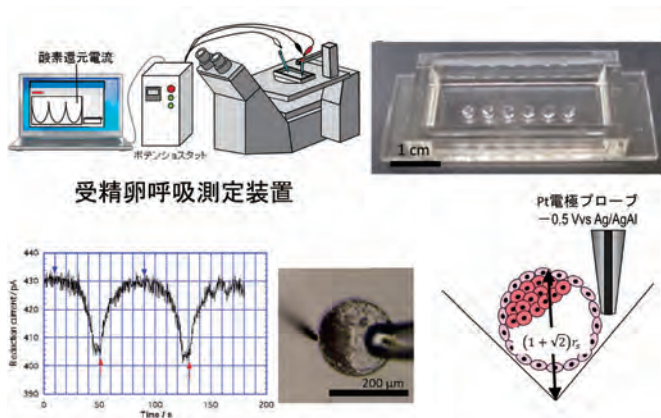


図2 受精卵呼吸測定装置

呼吸測定装置は、蛍光試薬など一切添加する必要がなく、試料に対し無侵襲的に実施することができます。本研究が端緒となり、測定した受精卵を子宮に移植し産仔を得ることが可能であることも示されています。

電極走査工程の代わりに複数の電極を配置した細胞チップの試作にも取り組みました。半導体微細加工技術に基づく微小電極アレイデバイスを作製し、受精卵試料からの異なる距離における局所の酸素濃度を並列に記録し、受精卵の中心から同心円上に広がる酸素濃度勾配から個々の受精卵の呼吸活性を算出しました。当初は比較的尺寸が大きく呼吸測定も容易なウシ受精卵の呼吸計測に成功しました。このデバイスには受精卵試料の導入、導出をおこなうマイクロ流路を集積化しました[3]。さらに、サイズが小さいマウス受精卵の呼吸計測デバイスを試作し、発生ステージの進行に伴う呼吸量の増加を数値化することにも成功しました(図3)[4]。

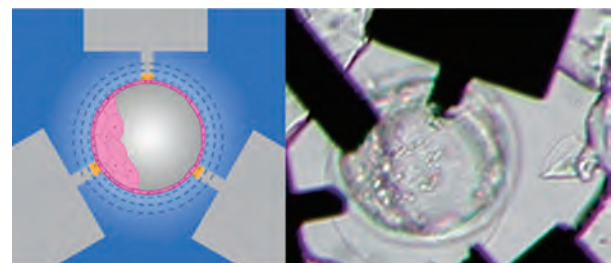


図3 受精卵呼吸測定デバイス

### 4. ES細胞の機能評価

ES細胞の樹立は1981年にマウス、1998年にはヒトで報告されています。マウスES細胞を樹立したEvansは、ノックアウトマウス作製の要素技術を開発したという位置づけで既にノーベル賞を受賞していますが、近年ではES細胞の再生医療への応用も期待されています。ES細胞を分化誘導して成熟した筋肉や神経の組織モデルを構築する培養法が確立されつつありますが、これらの移植用組織に未分化なままのES細胞が混入すると、がん化の原因となることが懸念されています。

我々は、未分化マーカーであるアルカリホスファターゼ活性に基づき、マウスES細胞1個レベルでの酸化還元電流応答を計測することに成功しています[5]。ES細胞の凝集体である胚様体に対しても、アルカリホスファターゼ活性を電気化学的に評価し(図4)、それに基づき心筋分化能を評価可能であることを示しました[6]。また、胚様体個々の呼吸量と網羅的遺伝子発現解の結果を照合したところ、特定のサイズ・培養日数の条件下では呼吸と未分化・分化マーカー遺伝子の発現量に相関があることが示されました[7]。将来移植医療の現場で、組織試料中に混入する未分化細胞を検知・除去する際にこれらの技術が有用であると期待できます。

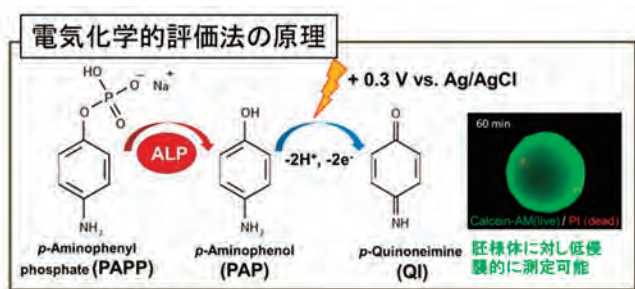


図4 マウス胚様体の電気化学的アルカリホスファターゼ (ALP) 活性評価法

## 5. おわりに

受精卵呼吸測定装置は、臍島移植用細胞塊やマウス胚様体の品質評価にも応用されており、走査型プローブ顕微鏡をプラットフォームとする1細胞分析ツールをいっそう高性能化することにより、細胞移植医療や再生医療へ貢献したいと考えています。

## 【参考文献】

- 1) Y. Nashimoto et al. ACS Nano, 10 (2016) 6915.
- 2) H. Shiku et al. Anal. Chem., 73 (2001) 3751.

- 3) C.-C. Wu et al. Sens. Actuat. B, 125 (2007) 680-687.
- 4) Y. Date et al. Biosens. Bioelectron., 30 (2011) 100.
- 5) Y. Matsumae et al. Chem. Commun., 49 (2013) 6498.
- 6) T. Arai et al. Anal. Chem., 85 (2013) 9647.
- 7) H. Shiku et al. Mol. BioSyst., 9 (2013) 2701.

## 【著者略歴】

し しく ひとし  
珠 玖 仁

昭和45年2月生まれ

- 1992年 東北大学工学部分子化学工学科卒業
- 1994年 東北大学大学院工学研究科応用化学専攻博士課程前期修了
- 1997年 東北大学大学院工学研究科応用化学専攻博士課程後期修了
- 1996年 日本学術振興会特別研究員
- 1998年 カンザス大学博士研究員
- 1999年 (勸)山形県企業振興公社 主任研究員
- 2003年 東北大学大学院環境科学研究科 助教授
- 2007年 東北大学大学院環境科学研究科 准教授
- 2016年 東北大学大学院工学研究科応用化学専攻 教授



## 非線形超音波探傷の実用に向けて

東北大学大学院工学研究科  
材料システム工学専攻  
教授 三原 毅

### 1. はじめに

“非線形現象”はいろいろな分野で利用されており、その響きは概してちょっと魅力的で、特異な現象、未知の技術、を連想させるが、同時にあまり実用的ではないイメージもついて回る。超音波計測の分野も例外ではないが、唯一医療超音波において非線形計測は精密映像法の中核技術の一つであり、広範に利用され、今もし烈な競争の中にある。この計測分野の“非線形”とは、「入射した超音波の周波数とは異なる周波数を利用する技術」と定義できる。まず医療超音波では人間の体を水と考え、水中同様縦波のみが伝搬すると単純化し、映像化に特化したシステムを構築することで実用が一気に進んだ。我々が相手にする工業材料は基本的に固体なので、音速の早い縦波（地震伝搬波ではP波）と横波（同S波）が界面での反射の度にモード変換で生じて複雑になり、縦波のみで計測できる医療計測に比べ格段厄介になる。また固体の音速は水に比べ速い（例えば鉄やアルミの音速は水の約4倍）ので、同じ周波数で波長が数倍長いと、波長が律速する分解能は医用計測に比べ数倍劣ることになる。

さらに“非線形性”の観点から、超音波は液体・気体の伝搬下で大きな非線形性を示すことが知られ、医療応用では例えば1 MHzの超音波伝搬時には大きな高調波成分（2 MHz、3 MHz、4 MHz…）が発生する。高調波は周波数が高く波長が短いので、より高い分解能が期待できるため、医療超音波では超音波の非線形特性が高精度映像装置として広く実用化されている。

これに対し、固体中を伝搬する超音波の非線形成分は、1960年台に転位等に起因する高調波が学術的に注目されたが、発生する非線形性は水中伝搬に比べて桁外れに小さく、特殊な装置による用途を限定した研究が続けられている。一方1970年台に、固体中のき裂における超音波の非線形挙動が、CAN (Contact Acoustic Nonlinear) として、前述した転位による非線形性に比べ100倍程度の成分が発生することが発見された [1]。開口するき裂に引張り・圧縮成分を持つ超音波が入射した場合、圧縮波はき裂を閉じ、引張波はき裂を開く作用により、き裂透過波形が僅かに歪むことで高調波成分が発生する。水中での非線形挙動に比べれば、なお極めて微弱ながら、き裂を介する非線形現象は固体のみの場合に比べ極めて大きいため、特に超音波探傷分野等への応用が期待された。しかし実機部材の超

音波探傷では、計測時の接触媒質として水や油等の液体が不可欠で、さらに実用時に溶接部を避ける等の目的で、樹脂くさび等を用いた斜角探傷も多用される。これら接触媒質、樹脂くさびでは、医療超音波同様、超音波伝搬時に大きな振幅の高調波が発生する。前述した通り、き裂部でも固体中で生じる高調波成分は微弱なのに対し、液体の接触媒質や樹脂くさび中で生じる高調波成分は極めて大きいので、き裂に依存する微弱な高調波が発生しても、例えば探触子（センサー）の接触状態を僅かに変えるだけで、接触媒質の変化に伴って高調波は大きく変化するので、き裂のみに依存する高調波の変化を分離して評価するのは実用上容易ではない。このためき裂の高調波発生挙動は、学術的基礎研究が今なお進められているものの、固体の探傷応用への盛り上がりは冷め、現在に至っている。

### 2. サブハーモニック波の発生と基礎研究

1993年から2000年過ぎにかけて、固体内き裂における高調波の研究の過程で、入射波周波数より低い成分であるサブハーモニック（分調）波もき裂部で発生する場合があること [2]、発生したサブハーモニック波は高調波と比べ振幅が桁外れに大きいこと、さらにサブハーモニック波はき裂以外の接触媒質や樹脂くさび中の伝搬では発生しないことが、次々と明らかになり、非線形超音波の固体計測特に超音波探傷への応用期待が再び大きく膨らんだ。き裂で発生する典型的サブハーモニック波は、き裂での高調波が伝搬波形の歪みとして観察されるのに対し、パースト波振幅が交互に増減を繰り返す特徴的な波形として観察される。図1に、疲労き裂に大変位超音波を入射し、僅かに負荷しながら透過波形のサブハーモニック成分の発生を観察した結果を示す。高調波と比べ、スペクトラムを検証するまでもなく、時間波形だけでもサブハーモニック波の発生が明確に判断できる。

き裂でのサブハーモニック波は、定性的には大振幅超音波がき裂に入射し、その変位がき裂開口より大きい場合にき裂面が叩き合い、さらにこの過程で何らかの不規則な叩き合いが生じる場合に生じると考えられる。我々の研究グループは、図2に示すように、き裂をnmオーダーの隙間を持つ2つの平面と考え、入射波が片方のき裂面を揺らし、その変位がき裂開口より大きいと、他のき裂面にぶつかって超音波が透過するモデルを提案した [3]。ここでき裂面

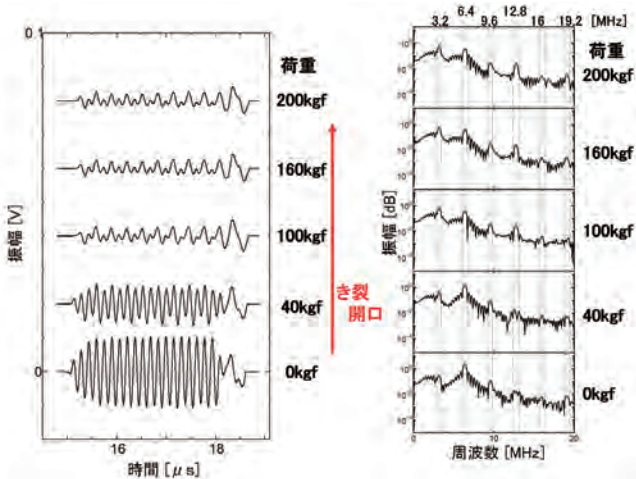


図1 閉口き裂負荷によるサブハーモニック発生 (Al合金)

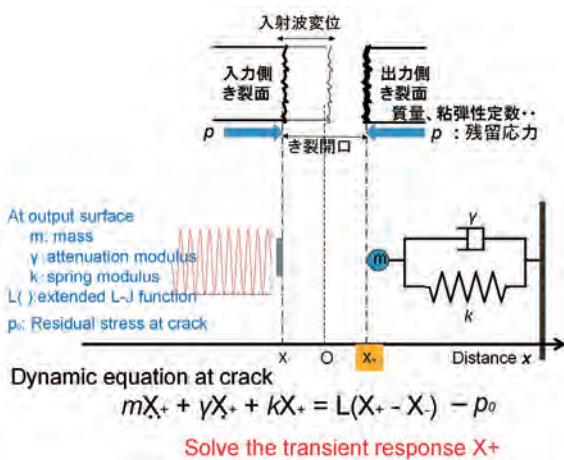


図2 き裂粘弾性モデルとサブハーモニック発生モデル

衝突時に、原子間力顕微鏡 (AFM) 探針の nm オーダーのタッピングから、ダッシュポットモデルで考察できる粘性衝突が生じると考えて運動方程式を解くと、き裂部でのサブハーモニック波発生が定性的に再現することを示した。その後内外で、実験的にき裂でのサブハーモニック波の発生挙動や、発生機構の考察が図2のモデルに沿う形で行われてきた。これらの研究の過程で、図2のモデルで定義するき裂の粘弾性定数は物理的定義が困難なこと、またそもそもき裂面の接触を粘弾性が支配するのか等を含め、き裂でのサブハーモニック波の定量的発生機構解明の試みが内外で行われてきた。これまでのサブハーモニック波発生機構についての考察の多くは、FEM解析等のシミュレーションが中核であり、nmレベルの閉口き裂をモデルに、き裂開口より大きな変位の超音波をき裂に入射した際に、実験で得られるようなサブハーモニック波がき裂で発生するかどうか議論されてきた。しかし全ての報告で、単純なき裂衝突モデルの解析では、高調波は観察されるもののサブハーモニック波は出現できていない。このため図2に示した定性解析モデルに倣って、前述の通りき裂毎に粘性定数やばね定数を独自に定義すれば、サブハーモニック波出現が報告されているのが現状である。一般に、弾性波動解析

用のFEMは通常、材料の弾性定数、密度を定義するだけで超音波伝搬が解析できるので、き裂面の衝突の考察でも、これらの単純な解析条件でサブハーモニック波を記述できる新しいモデルの提案が模索されている。

さらにこれまで、欧州を中心とするサブハーモニック波の学術研究の多くは、小さな試験体全体を超音波溶接機等に依る大振幅超音波で連続波で振動させ、試験体に内在するき裂の共振振動や、その高調波・サブハーモニック波挙動についての理学的基礎研究が精力的に行われてきた [4]。

### 3. 計測の展開に向けた本研究室の取り組み

我々の研究室では、当初から工学的探傷応用を想定し、固体内局所への大変位超音波の入射にこだわり、実機構造物で超音波探傷に工学応用できる形の計測システムの研究・開発を行っており、この場合のサブハーモニック波の挙動は、共振によるものと比べ、同じ点と異なる点がある [5-8]。

我々は、まずき裂におけるサブハーモニック波発生の基本実験の過程で、サブハーモニック波発生の有無がその場で判断できる計測システムが不可欠と考え、実機探傷のトレンドである映像化をサブハーモニック波計測でも実現するため、図3に示す基本構成の映像化システムSPACE (Subharmonic Phased Array for Crack Evaluation) を2007年に開発した [6]。このシステムは、サブハーモニック波の発生に不可欠の大変位超音波をき裂に入射するため、送受信を分けた2探触子法とし、送信部は大電圧励振にも耐える送信探触子を自作し、受信部は市販のフェーズドアレイシステムの開口合成法機能のみを使って探傷結果を映像化する。さらにバンドパスフィルターを付加して、入射超音波周波数成分と、基本波の半分のサブハーモニック波成分をそれぞれ分離することで、基本波画像とサブハーモニック波画像の両方を切り替えて計測することができる。図4

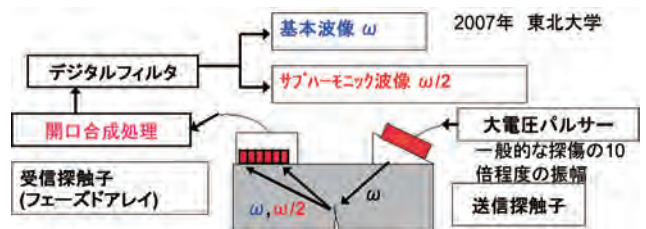


図3 開発したSPACEシステムの模式図

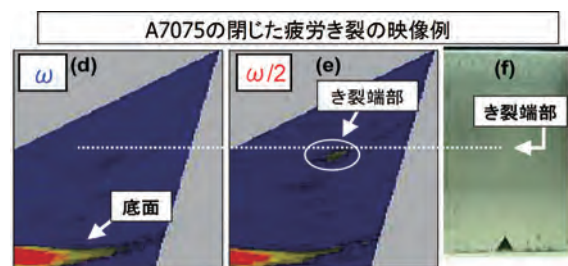


図4 閉口疲労き裂のSPACEを用いた計測例 (Al合金)

はSPACEを用い、アルミ合金中に導入した開口の小さい疲労き裂を計測した、基本画像とサブハーモニック画像を比較した結果を示す [6]。き裂開口が小さいので、基本画像（既存の線形計測）では超音波が透過し、き裂端部エコーのSN比が悪くき裂端部の検出は難しい。これに対し、サブハーモニック画像ではき裂端部で発生したサブハーモニック波により、き裂端部が高いSN比で検出できる。この成果を受けて我々は、原子力発電機器の応力腐食割れを含む、複数の実機模擬き裂や一部実機き裂にSPACEを適用し、その有効性を検証した。その結果、既存の探傷で計測の難しい閉口気味き裂の一部で有効性が確認できたものの、多くのき裂では既存の線形計測でき裂端部が検出できるのに、サブハーモニック波は発生せず、本計測システムの利用範囲は狭かった。

サブハーモニック波の発生は、前述した通りまずき裂開口以上の入射超音波で、き裂で叩きあいが発生することが前提であり、ここに何らかのイレギュラーなたたき合いが加味されて始めてサブハーモニック波が発生すると考えられる。これまで多くの実機き裂の多くでサブハーモニック波が観察できないことから、我々は既存のSPACEによるき裂における入射変位（5MHz、Peak to Peak 最大20nm程度）がサブハーモニック波発生にはなお不足と考え、大変位超音波入射技術の開発を進めてきた [9-11]。本計測は前述の通り、工業的探傷応用を大きな柱と想定しており、計測の分解能確保もまた不可欠である。従って、比較的短いパルスを維持したまま、波形をコントロールしながら、振幅を上げる技術開発が必要になる。従って大変位超音波は欲しいものの、超音波のエネルギーに利用される、ホーンやランジュバン探触子等は利用できない。現在の中核技術の一つは、我々が開発した積層探触子とマルチ遅延パルサーを用いたシステム [11] である。積層探触子はアクチュエーターや医療超音波では既に多用されている。積層探触子は電気インピーダンスが低く、超音波探傷器で励振すると励振電圧が低下し、また積層分板厚が増えて低周波数化するので、探傷に多用されるMHz域の超音波送信への利用は容易ではない。そこで積層探触子のそれぞれにパルサーをつなぎそれぞれの素子を励振すれば、電気インピーダン

スの低下無く、MHz域の超音波が送信できる。

本システムでは、多層の圧電素子を積層するために、2枚の素子でペアを組めば、上下電極が接地になるので、素子間に絶縁体を挟むことなく多層積層が容易になる [11]。図5に4素子2チャンネルの計測システムの基本モデルを示す [9]。上下のチャンネルを同時励振すると、素子厚分伝搬超音波の位相が上下で半波ずれて打ち消しあうので、振幅は逆に低下する。そこでまず上部圧電素子を励振し、発生した超音波が下部に伝搬したタイミングで下部圧電素子を重ねて励振すると、図中に示す様に大きな振幅の超音波が得られ、励振パルス波形には大きなゆがみも発生しない。

同じ原理で、PZT-M6素子を16素子積層し8チャンネルパルサーで遅延励振した結果を図6に示す [9-11]。1枚

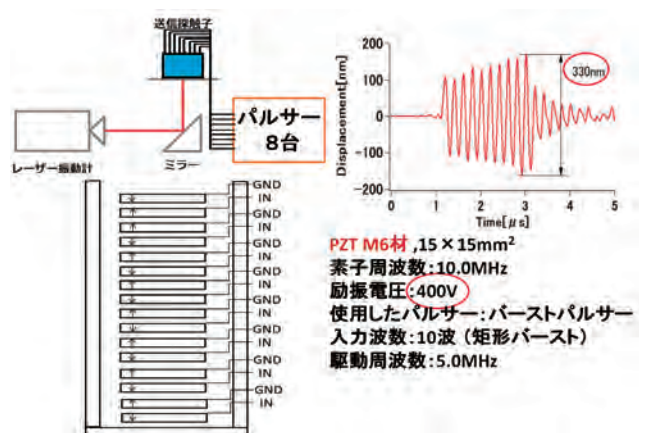


図6 16素子積層素子と8チャンネルパルサーシステム

の圧電素子で50nm程度の探触子表面変位（peak to peak 変位）に対し、8チャンネルで約7倍の変位が得られた。現在これらの技術により、表面下20～30mmの深さのき裂部に、100nm程度の変位の超音波を安定して送信できる技術を確認している。前述の既存のSPACEでサブハーモニック波が発生しなかったき裂に対する大変位超音波を用いた探傷事例を、図7に示す。

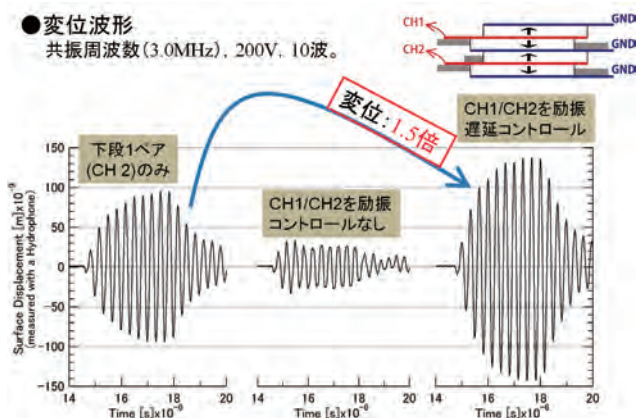


図5 積層探触子遅延励振の例（4素子2チャンネル）

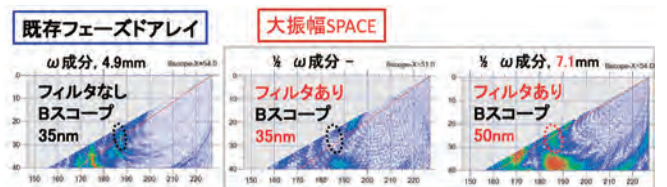


図7 既存の探傷と大振幅SPACEの探傷性能比較

このき裂は、SUS316 オーステナイト系ステンレス溶接試験体に導入した疑似SCCであり、右図に示す既存のフェーズドアレイシステムによる計測では、点線で囲んだき裂端部エコーは確認できるが、周辺には溶接部に起因するノイズもあり、き裂端部の検出信頼性に課題がある。中央に示した既存のSPACEでき裂部での最大入射超音波変位が35nmでは、き裂端部ではサブハーモニック波は発生

せず、SPACEでの計測は困難だった。これに対し、大変位超音波送信技術で入射超音波変位を50nmに増加すると、き裂端部に赤点線で示す端部エコーが出現した。以上により、入射波の大変位化でき裂端部にサブハーモニック波が発生するにはき裂の存在が不可欠なため、赤の点線で囲んだ部位は間違いなくき裂エコーであると判断できる。このように既存の超音波探傷ではSN比が悪く、き裂計測の信頼性が劣るき裂において、大変位SPACE計測は超音波探傷の信頼性を大きく改善できる見通しを得た [11]。

#### 4. 今後の期待

ここで述べたサブハーモニック波映像探傷装置を中核に、新しい大変位超音波送信技術を組み合わせれば、広範な実機き裂でもサブハーモニック波を用いた探傷が可能になってきた。これまでサブハーモニック波の発生が限定的だった各種き裂でも、サブハーモニック波の発生が期待できることから、サブハーモニック波の発生基礎特性データが集まると考えている。

さらに本法を、経年損傷が進む老朽化構造部材の超音波探傷に実用することで、計測のSN比が低い老朽化構造物のき裂サイジング精度が改善できるため、これらを用いた構造物の非破壊強度保証について信頼性を改善できる。今後は、実機経年損傷構造部材の探傷へ展開しながらさらに研究を進めていきたい。

#### 5. まとめ

本稿では本研究室で取り組んでいる、非線形超音波に関する研究について述べた。ここで述べた内容は、鋼構造物を中心にこれまで広く行われてきた、MHz域の周波数を用いた超音波探傷領域で、き裂サイジングの精度や信頼性を大幅に改善できる全く新しい計測システムの提案である。き裂でのサブハーモニック波は学術的にも、1993年に初めて報告され、本格的な研究は2000年以降に始まった、比較的新しい研究分野であり、き裂でのサブハーモニック波の発生メカニズムは、いまだ定量的には明確にできていない。

き裂を前提とした現象のため、我々は探傷応用を想定しながら技術開発を行っており、ここで紹介した大変位超音波送信技術で、広範なき裂でサブハーモニック波が発生できるため、探傷技術としての利用と共に、この分野の学術的研究にも貢献できると考えている。

また我々は、き裂と剥離界面の類似性から、このサブハーモニック波計測技術は、現在水浸高周波を用いる超音波映像装置にも付加できると考え、新しいシステム開発に取り組んでいる。

さらに開発した大変位超音波送信技術は、非線形超音波計測に留まらず、医療応用や原子力機器の計測に実用されているフェーズドアレイ計測装置の限界の打破や、より低周波超音波を使うコンクリート構造物の内部き裂計測法の開発にもつながる可能性を持つと考えている。

#### 6. 謝辞

本研究の一部は平成24年度から27年度に実施された、文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業（代表三原毅）に依ったことを期し感謝申し上げる。

#### 7. 参考文献

1. O.Buck, W.L.Morris and J.M.Richardson, Appl.Phys. Lett. (1978).
2. Solodov I Y, Vu C A., Acoust Phys 1993; 39 (5) : 476-479.
3. Yamanaka K, Mihara T, Tsuji T., Jpn J Appl Phys 2004; 43 (5B) : 3082-3087.
4. Solodov I, Wackerl J, Pfliederer K, Busse G., Appl Phys Lett 2004; 84 (26) : 5386-5388.
5. Ohara Y, Mihara T, Yamanaka K., Ultrasonics 2006; 44: 194-199.
6. Ohara Y, Mihara T, Sasaki R, Ogata T, Yamamoto S, Kishi moto Y, Yamanaka K., Appl Phys Lett 2007; 90: 011902-1-3.
7. Ohara Y, Yamamoto S, Mihara, Yamanaka K. Jpn J Appl Phys, 2008; 47 (5) : 3908-3915.
8. Ohara Y, Endo H, Mihara T, Yamanaka K., Jpn J Appl Phys 2009; 48: 07GD01-1-6.
9. Mihara T, Konishi G, Miura Y, Ishida H., AIP Conf Proc 2014; 1581: 727-732.
10. 三原毅、文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業原子力システム研究開発事業、事業報告書、2012-2016
11. 三原毅「超音波発受信器および超音波計測装置」特願 2015-14480

#### 【著者経歴】

みはら つよし  
三原 毅

1956年12月生まれ

1980年 東北大学工学部金属加工学科 卒業

1982年 東北大学大学院工学研究科前期課程 修了

1984年 東北大学工学部 助手

1995年 東北大学大学院工学研究科 助教授（准教授）

2007年 富山大学大学院理工学研究部 教授

2015年 東北大学大学院工学研究科（材料システム工学専攻）教授



## 持続可能な社会の実現に貢献する 環境保全技術の研究

東北大学大学院工学研究科  
土木工学専攻  
教授 李 玉 友

### 1. はじめに

環境保全と社会開発の両立を目指す取り組みのキーワードとして「持続可能な開発」があります。持続可能な開発とは「将来の世帯のニーズを満たす能力を損なうことなく、今日の世代のニーズを満たすような開発」を指します。これは「環境と開発に関する世界委員会」（委員長：ブルントラント・ノルウェー首相（当時）が1987年に公表した報告書「Our Common Future」の中心的な考え方として取り上げられた概念で、環境と開発をお互いに反するものではなく共存し得るものとして捉え、環境保全を考慮した節度ある開発が重要であるという考えに立つものです。

深刻化する地球環境問題に対応するために1992年にブラジルのリオデジャネイロで開催された国連環境開発会議（地球サミット）では、「環境と開発に関するリオ宣言」や環境分野での国際的な取り組みに関する行動計画である「アジェンダ21」が採択され、今日の地球環境問題に関する世界的な取り組みに大きな影響を与えました。また、2002年には南アフリカで持続可能な開発に関する世界首脳会議（WSSD, 「ヨハネスブルク・サミット」）が開催され、その成果として、持続可能でない生産消費形態の変更、天然資源の保護と管理、持続可能な開発を実現するための実施手段、制度的枠組みといった「ヨハネスブルク実施計画」が採択され、持続可能な開発を進めるための各国の指針となっています。その持続可能な開発のフォローアップとして、水（Water）、エネルギー（Energy）、保健（Health）・衛生（Sanitation）、農業（Agriculture）、生物多様性（Biodiversity）などの世界的重点テーマが取り上げられています。

筆者が担当する環境保全工学分野では、都市・産業・地域社会を支える排水システム、廃棄物マネジメントシステムおよび再生可能エネルギーシステムに関する研究を展開しており、特に排水・廃棄物（Waste, Wastewater=W）やエネルギー（Energy=E）の取り組みから環境保全（Environmental protection=E）への貢献を目指しています。即ち、われわれの研究のキーワードは以上に述べたW・E・Eとその融合的取り組みです。以下、近年取り組んでいる代表的な研究テーマを簡単にご紹介いたします。

### 2. メタン発酵による廃棄物系バイオマスのエネルギー資源化

メタン発酵は図1のように嫌気性微生物の代謝作用により様々な有機物質からメタンを生成する生物化学的反応で

す。この反応に関わるメタン生成古細菌は河川や湖沼の底泥、水田およびルーメン（牛などの第一胃）などの自然界に広く分布しており、自然界の物質循環に関わっています<sup>1)</sup>。環境工学の分野では、古くからこの反応を利用して排水や汚泥の処理に活用し、「嫌気性消化」と呼んでいます。この微生物反応を利用すれば、下水汚泥、生ごみ、畜産排泄物、有機性排水からバイオガスを生成できるので、浄化するとともに、燃料となるバイオガスが得られるので、「一石二鳥」の環境保全効果が期待され、持続可能な環境保全技術と評価されています。本研究室では、恩師松本順一郎教授、野池達也教授がご在任の時代から、長年にわたり嫌気性消化による排水・廃棄物処理の研究を展開し、国内外で注目される研究成果を挙げてきました。われわれは、先輩達のご提示されたアプローチを発展させて再生可能エネルギーとも関連しつつ、新たな応用研究に注力しています。以下、私に関わった4つの研究についてご説明いたします。



図1 メタン発酵（嫌気性消化）の原理

#### 2.1 前熱処理による下水汚泥処理の効率化

私は1985年から野池先生のご指導の下に、東北大学で下水汚泥の嫌気性消化の効率化に関する研究を始めました。当時、世界的に二相消化が注目されていました。その着眼点は、図1のような嫌気性消化過程は大まかに加水分解・酸生成相とメタン生成相という二つの相に分けられ、関与する微生物は酸生成菌とメタン生成菌に分けられ、それぞれの最適増殖条件が異なるので、効率化を図るためには、酸生成とメタン生成の2段に分けてそれぞれ最適化を図る必要があるという考えでした。しかし、私を取り扱った原料は下水処理で大量に発生する余剰汚泥であり、その中身はほとんど微生物細胞であったため、酸生成・メタン生成よりも微生物細胞の可溶化が反応の律速段階であり、従来の二相消化では効率化を実現できないことを実験で把握しました。そこで発想を転換して、活性汚泥の可溶化促進に焦点を絞り、前熱処理という物理化学的手段を導入して両

者融合の最適化を検討した結果、「170℃、30分の前熱処理により、嫌気性消化の分解率は倍増しただけでなく、嫌気性消化の時間も従来の30日から10日に短縮できる」という新しい二相反応システムを発明しました。その成果を1991年アメリカのワシントンDCで開催の国際会議で発表した後、Water Science & Technology (1992)<sup>2)</sup>に論文として掲載されました。後にノルウェーの会社Cambi社がそのプロセスの実用化を図り、世界で普及しました。現在、欧米、オーストラリア、中国などの下水処理場で少なくとも計57基建設され、下水汚泥の減量化・安定化とバイオメタンの生成に活用されています。図2には野池教授と私がオーストラリアでCambi社の技術者と交流した記念写真(a)および私が同システムを採用している北京の下水処理場を見学した写真(b)を示します。



(a) 野池教授とともにCambi社と技術交流 (b) 北京の下水処理場に建設したプラントの見学写真

図2 熱処理による下水汚泥の嫌気性消化の促進に関する研究の取り組み

### 2.2 二相循環による生ごみの無希釈メタン発酵の実現

1990年代から世界的に生ごみのメタン発酵が注目されるようになり、ヨーロッパでは湿式発酵と乾式発酵の2タイプの高濃度発酵プロセスが報告されました。日本でも図3のようなシステムを構築するため、両方の技術に関する実証試験が行われていました。当時、湿式発酵は生ごみと水をおよそ1対1で希釈してTS濃度約10%の原料で中温発酵(35℃)または高温発酵(55℃)を行うのに対して、乾式発酵は無希釈で高温発酵(55℃)を行うのがヨーロッパの設計基準でした。しかし、実験をしてみると、日本の生ごみはヨーロッパのそれと組成がかなり異なってタンパク質が多く含まれるため、湿式発酵はうまく行くものの、生ごみのままで高温乾式発酵を行うと、アンモニアが3000mg/L以上と高濃度となり、メタン生成微生物が阻害されるため、うまく行きません。一方、中温発酵ではアン

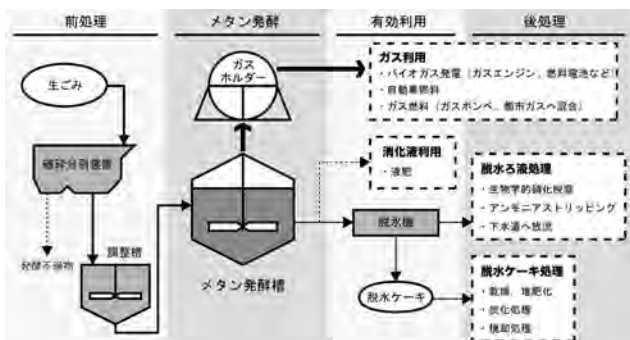


図3 生ごみのメタン発酵システム

モニア阻害の問題が発生しないのです。そこで中温発酵と高温発酵、湿式発酵と乾式発酵のそれぞれの利点を生かして、「高温可溶化+中温メタン発酵+消化液循環」を組合せた2相循環プロセスによる生ごみの無希釈2段発酵システムを提案し、特許を取得したとともに、実証試験によりその有用性を明らかにしました。現在、秋田市で同システムを応用する日処理場50トンのプラントが建設中であり、来年の4月から稼働する予定です。同システムを用いると1トンの生ごみから約150m<sup>3</sup>のバイオガスが生成され、ガスエンジンで発電すると、約250kwhの電力を作り出すことができます。

### 2.3 混合メタン発酵の研究

東日本大震災の後2011年8月に成立した再生可能エネルギー特別措置法(FIT=Feed-In Tariff法)により、メタン発酵によるバイオガス発電は39円と高く買い取りされるので、「廃棄物系バイオマスのメタン発酵+バイオガス発電」は一層注目されるようになりました。

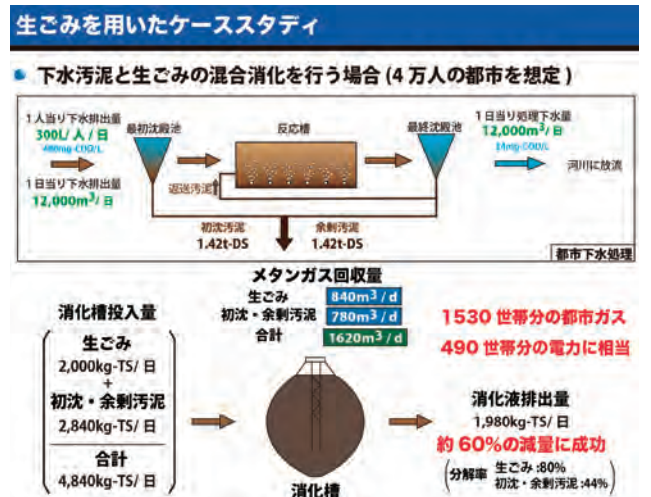


図4 生ごみと下水汚泥の混合メタン発酵の試算

有機性廃棄物の処理、食品リサイクル法及びバイオマス利活用基本計画の推進においてメタン発酵技術の応用が期待されています。これまでの研究結果に基づき図4のように試算できます。人口4万人の都市の1日の1人当たりの生ごみ排出量を250kgとして計算しますと、840m<sup>3</sup>/日のメタンガスが発生することがわかります。電力換算しますと、2.51MWh/日(一般家庭約250世帯分の電力)、都市ガス換算では743m<sup>3</sup>/日(一般家庭約800世帯分のガス)として利用できます。また、下水処理と生ごみの混合消化を4万人の都市を想定してメタン発酵を実施する場合、メタンガスの回収量はほぼ1対1の割合で回収できるから、1,620m<sup>3</sup>/日(1,530世帯分の都市ガス、490世帯分の電力)のエネルギー回収ポテンシャルがあることがわかります。現在仙台市の泉区で食品廃棄物と汚泥の混合発酵・バイオガス発電の大型プラントが稼働しており、事業者と共同研究を行っています。

## 2.4 水素とメタンの混合ガスであるハイタンの生成

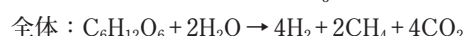
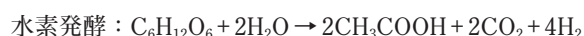
図1に示すように、嫌気性消化の中間代謝産物として水素も生成されます。メタンになる前に水素を回収すれば、バイオ水素を生成することもできます。また、次の式に示したように、単独のメタン発酵より水素・メタン二相発酵の方はエネルギー生成効率が高いです。

- ・ 単独のメタン発酵反応



(生成物の高位発熱量 = 2,673kJ)

- ・ 水素・メタン発酵二相発酵



(生成物の高位発熱量 = 2,926 kJ)

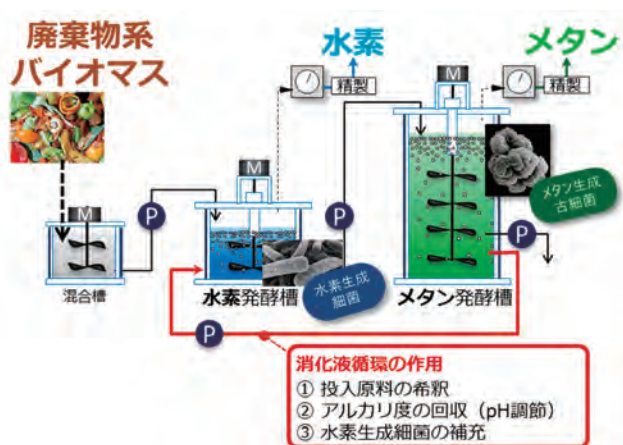


図5 二相循環式水素・メタン発酵システムのご概念図

近年、メタンに10%～30%の水素を混合したガスはハイタン (Hythane) と呼ばれ、ガスエンジンにおける燃焼効率がよく、純メタンに比べて温室効果ガスと大気汚染物質を大幅に削減できるなどの利点を持つため注目を集めています。本研究室は長年にわたるメタン発酵と水素発酵のシステム開発に関する研究実績を踏まえ、世界で始めて水素・メタン二相発酵システムへ消化液循環の導入を提唱しました。この新規システムは、二相循環式水素・メタン発酵システムといいます<sup>3)</sup>。図5のように、メタン発酵槽の消化液を原料混合槽に循環することで、投入原料の希釈、アルカリ度の回収および水素生成細菌の補充という一石三鳥の効果が得られ、薬品投入によるpH調整をしなくても水素とメタンの安定的生産が実現できます<sup>4,5)</sup>。本研究室で、ジャガイモかす<sup>3)</sup>、キャッサバ残さ、都市生ごみ等の廃棄物系バイオマスを原料として、ラボスケールの反応装置による長期連続実験を行いその効果を実証してきました。図6に示したように、キャッサバ残さに関する連続実験によれば、約72%の有機物 (VS) 分解率が得られ、119m<sup>3</sup>/トン (乾重) のバイオ水素および309m<sup>3</sup>/トン (乾重) のバイオメタンを回収できました。換算しますと、水素含有率が27.8%のバイオハイタンが426m<sup>3</sup>/トン (乾重) を生産でき

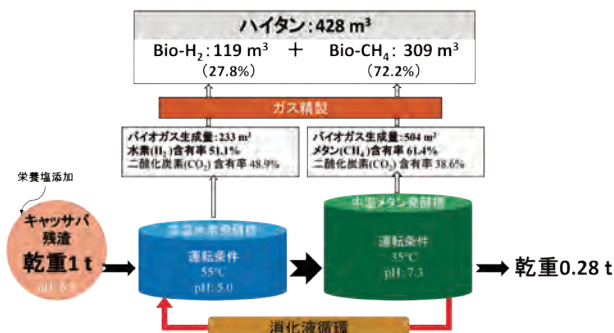


図6 二相循環式水素・メタン発酵によるキャッサバ残さの処理結果

るといことになります。これらの実績を基に、現在国際共同研究も進めているところです。

## 3. 嫌気性微生物による排水の省エネルギー・創エネルギー的処理

排水の嫌気性処理はヨーロッパで発明された Septic Tank から始まり、UASB 法 (1980) などのプロセス開発により産業廃水処理の省エネルギー的処理技術として普及してきました。現在、UASB 法が応用拡大しているとともに、嫌気性膜分離法 (AnMBR) も注目されはじめました。

### 3.1 UASB法の応用拡大に関する研究

UASB 法は、嫌気性微生物群の自己造粒化機能を利用してグラニューール汚泥の形成と高濃度保持により、高負荷条件下で排水中の有機物をメタンと二酸化炭素にまで分解できる優れた排水処理技術です。これまでに醸造、飲料、食品浸出液、パルプ、乳製品、繊維、製紙などの多くの産業廃水処理に広く適用されてきた。国内のビール工場33カ所はすべてUASB法で排水処理を行っています。また、2012年にUASB法は全ての高効率嫌気性処理法の約80%を占めていると推定されていました<sup>6)</sup>。本研究室では、UASB法の応用範囲を拡大するために従来適用が困難と考えられた産業排水への適用も開拓しています。

嫌気性処理法UASBを硫酸塩廃水処理に導入する場合、硫酸塩還元菌 (SRB) とメタン生成古細菌 (MPA) は基質をめぐる競争するため、バイオガス生成量の減少や、生成した硫化物による阻害影響が懸念されます。本研究室ではまず高濃度硫酸塩 (3000 mg・L<sup>-1</sup>) を含有するエタノール系化学工場廃水のUASB処理に成功し、その廃水のCOD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比が0.5から20まで変動してもUASB処理が可能であることを明らかにしました<sup>7)</sup>。その成果をD社の工場排水処理に応用されているところです。この事例から、硫酸塩還元菌とメタン生成古細菌は基質をめぐる基質競争は排水の組成に影響されることに気づき、様々な排水に関する基礎的検討を行いました。代表的な研究例を図8に示します。

まず製紙産業と化学産業から多く排出されるメタノール系廃水を取り上げ、メタノール基質をめぐるMPAとSRB競争関係 (電子流) が図7 (a) のようになることを明らかにした。則ち、COD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比が20の場合、MPAとSRBに

利用された電子はそれぞれ $98.5 \pm 0.5\%$ と $1.52 \pm 0.5\%$ であった。COD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比が0.5まで低下すると、MPAに利用された電子は $80.0 \pm 2.4\%$ まで減少したものの、メタン生成が依然として主反応でした。図7(b)のように、デンプン基質の場合、COD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比が2以上ではメタン生成が主反応であったのに対して、COD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比が1.5以下では硫酸塩還元が主反応になりました。これらの研究によりSRBとMPAの競争はCOD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比だけでなく、基質の種類にも大きく左右されることが分かりました<sup>7-9)</sup>。

またグラニュールの構造解析と微生物群集構造の解析から、メタノールのようなグラニュールを形成しにくい排水の場合、COD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比の低下に伴う硫酸塩還元の前進行により微生物群集の多様化が進み、グラニュールの形成が促進されるという面白い現象が見られました。そのメカニズムは図8にまとめた通りです。

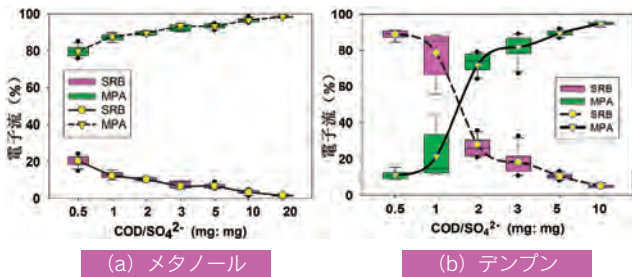


図7 異なる基質条件でのCOD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比による電子流れの影響<sup>8-9)</sup>

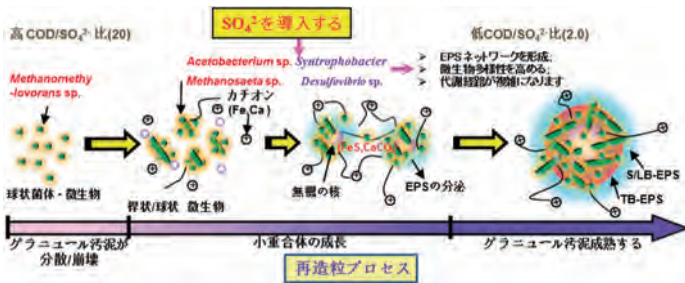


図8 硫酸塩還元細菌との共生によるグラニュール形成の促進<sup>9)</sup>

3.2 嫌気性膜分離法 (AnMBR) の研究<sup>7,10,11)</sup>

UASB法は広く応用されているものの、適用し得る排水種やCOD濃度の範囲が制限されています。これらの欠点を克服し、適用可能な排水種の範囲を大きく広げる可能性を持つ技術として汚泥発生量が少なく良好な水質が得られる膜分離技術と省エネルギー・創エネルギーの効果が期待できる嫌気性処理を組み合わせた嫌気性膜分離 (AnMBR) 法の開発が注目を集めています。筆者は2000年からAnMBRプロセスに関する研究を始めており、近年下水処理場への応用を研究しています。図9に示すように、従来の下水処理システムは最初沈殿池、反応タンク、最終沈殿の水処理ラインのほかに、汚泥処理には濃縮・消化・焼却があります。このシステムでは、活性汚泥の反応タンクには曝気を行うのにエネルギーを多く消費しています。そこでエネルギーを回収するために、汚泥の嫌気性消化に

伴って発生する消化ガスを積極的に利用するという考え方があります。

既存の下水処理システムで1日1万m<sup>3</sup>の下水を処理する場合には、ケーススタディAの結果があります。一方、嫌気性膜分離法について実験を行ったところ、従来の水処理と同等の水質が得られました(図9下水処理のケーススタディB参照)。試算してみますと、1万トンの下水を処理する場合、AnMBR技術を使いますと、処理水質は29mgCOD/lが得られ、残渣も多く削減できます。バイオガス発生量は1,510m<sup>3</sup>(既存の技術1,085m<sup>3</sup>)となり、これをベースに電力換算しますと、370世帯の電力を確保でき、都市ガス換算では1,360世帯分の分を確保できます。一方、下水処理の場合は水量が多く、大きなフラックス条件でろ過しなければならぬので、膜汚染の制御が重要なポイントとなります。現在、その技術開発を進めています。

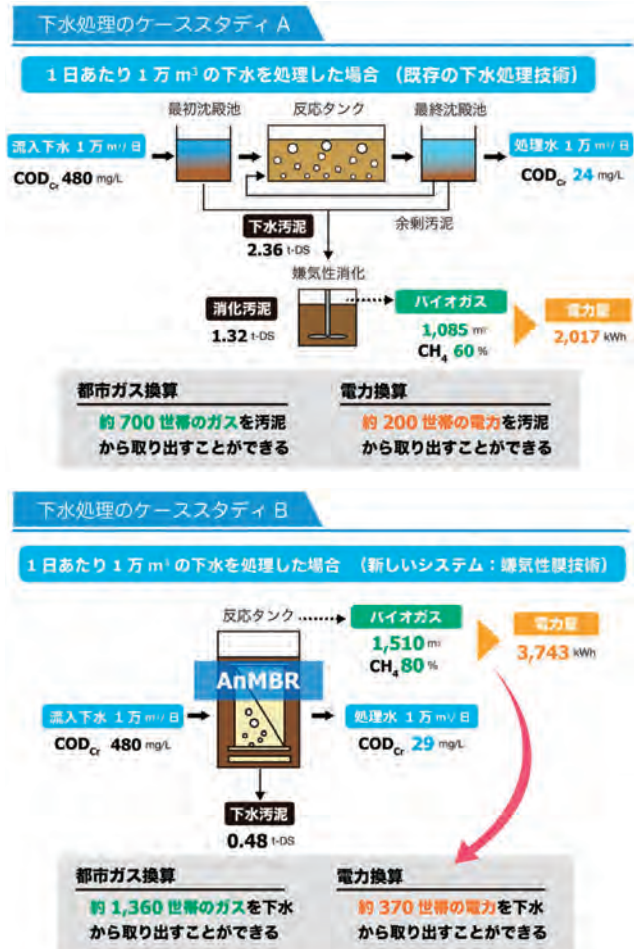


図9 下水処理におけるメタン発酵の応用方法とAnMBRの可能性

4. アナモックス反応を用いた新しい窒素除去プロセスの研究

近年、新規の窒素代謝経路である嫌気性アンモニア酸化 (Anammox=アナモックス) による窒素除去技術が注目を集めています。アナモックスを核とした窒素除去プロセスは、排水中のNH<sub>4</sub><sup>+</sup>-Nの約60%をNO<sub>2</sub><sup>-</sup>-Nに酸化する反応(1): 部分的亜硝酸化反応と(1)により生成したNO<sub>2</sub><sup>-</sup>-Nと残りのNH<sub>4</sub><sup>+</sup>-NをN<sub>2</sub>に変換する反応(2): Anammox反応によって構

成されます。この二つの反応を同一反応槽で同時に行う手法と二つの反応槽で別々に行う手法があります。本研究室では二つの手法に対してそれぞれ独創的な研究成果を挙げてきています。

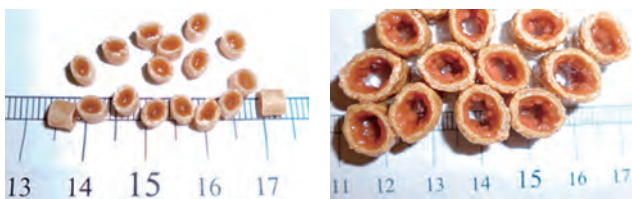


図10 Anammox菌体が付着した担体の様子

#### 4.1 担体添加型一槽式プロセスの研究

Anammox 細菌の増殖速度（倍加時間は11日）極めて遅いことや Anammox 汚泥の収率が非常に低いため、Anammox 細菌を反応槽内に効率的に保持する手法の開発が重要です。本研究では完全混合型反応槽に機能性担体を投入することにより、好気性亜硝酸酸化細菌（NOB）の活性を抑制した上で、担体に好気性アンモニア酸化細菌（AOB）と嫌気性 Anammox 細菌を共存し馴致させることで一槽式 Anammox 反応槽における効率的な立上げと窒素除去を行うことを目指しています。曝気量を適切に制御してアンモニア酸化細菌（AOB）と Anammox 細菌を共存させることで、80日程度で装置のスタートアップができました。25℃、容積負荷0.5 kg-N/m<sup>3</sup>/dの条件下において最大81.1%の窒素除去率が得られました。活性実験の結果、リアクター内におけるAOBと Anammox 細菌の棲み分け状況を確認でき、亜硝酸酸化反応は浮遊汚泥と担体汚泥の両方により、Anammox 反応は主に担体に付着した微生物により行われていることが示されました。また機能性担体には Anammox 細菌の増殖空間を提供する役割があり、AOBと Anammox 細菌が共存していることが明らかとなりました。回分実験による解析結果から本研究の担体添加型一槽式 Anammox プロセスの脱窒ポテンシャルは2.56 kg-NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N/m<sup>3</sup>/dであることが推定されました<sup>12)</sup>。

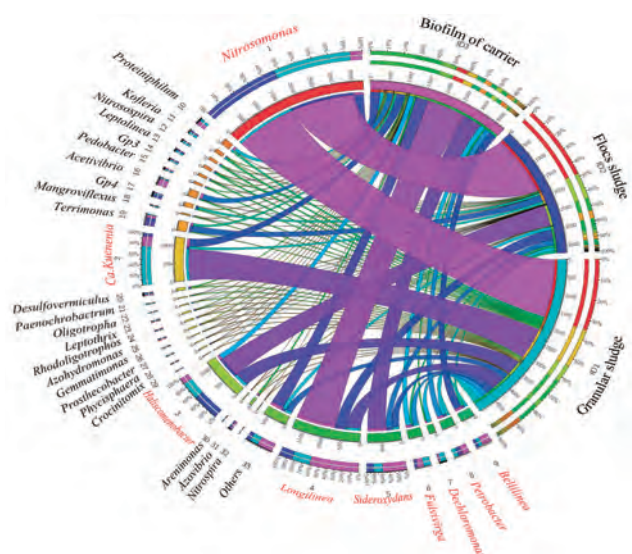


図11 一槽式Anammox反応槽における微生物共生系の優占構造

#### 4.2 アナツモクス微生物共生系の解析

一槽式Anammox 反応槽で培養したグラニュール汚泥 (granular sludge)、フロック汚泥 (Flocs sludge) および生物膜 (Biofilm) について次世代シクンサーで遺伝子解析を行ったところ、33属の主要微生物が検出されました。図11に示すように、フロック汚泥は主に硝化細菌の*Nitrosomonas* によって構成されるのに対して、グラニュール汚泥には硝化細菌*Nitrosomonas* とアナツモクス細菌 *Ca. Kuenenia* が優占細菌となっています。担体に付着した生物膜には、アナツモクス細菌 *Ca. Kuenenia* の他に、*longilinea* および *Sideroxydans* も多く見られました。反応槽において硝化細菌 *Nitrosomonas* とアナツモクス細菌 *Ca. Kuenenia* の安定した共生系が形成されたと言えます。

#### 4.3 流動床型アナツモクスプロセスの研究

微生物の保持能力と環境ストレスに対する抵抗力は Anammox プロセスの安定運転を維持するために重要なポイントです。本研究室では高いバイオマス保持能力、高い環境ストレス抵抗能力を許容できる新しいAnammox 付着膜膨張床 (Anammox attached film Expanded bed, AAFEB) を開発しました (図12)<sup>13)</sup>。AAFEB 反応槽において生物膜型システムとグラニュール型システムが結合され、新しいグラニュールはよりよい沈降性能を有します。また、流出水の返送による希釈機能は高濃度基質による阻害を防ぐことができます。実験した結果、50 gN/L/dの超高負荷条件においても、TN (Total Nitrogen) 除去率は理論最大値に近い値でした。また、最大比 Anammox 活性 (MSAA) は0.85 ± 0.05 gN/gVSS/dに達しました。形成された Anammox グラニュールは図12のように2層構造を有します：外層は Anammox バイオフィームで、中心は無機顆粒です。反応槽内で形成した Anammox グラニュールは良好な沈降性能を持ち、従来研究に報告された Anammox グラニュールの沈降速度より遥かに上回る高い沈降速度を維持できました。この担体流動床 Anammox システムは高窒素負荷に適する Anammox プロセスになると考えられています。

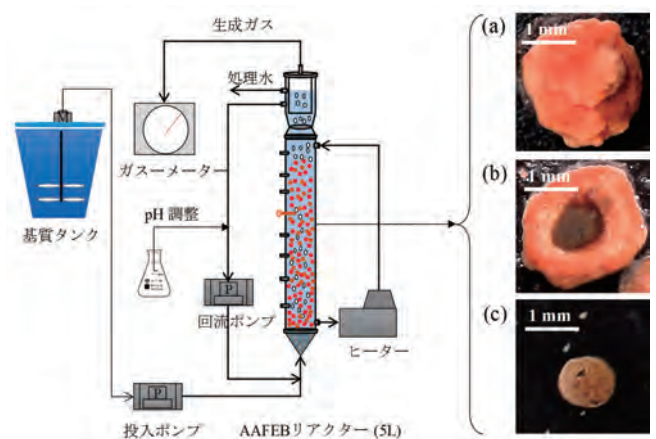


図12 本研究室で開発したAnammox 付着膜流動床リアクター<sup>13)</sup>

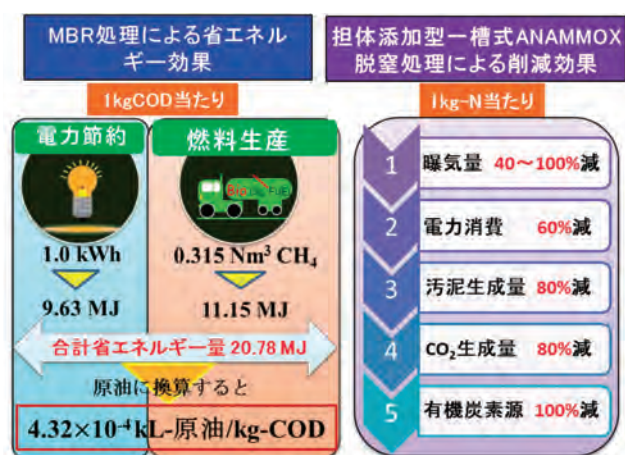


図13 新世代型有機性排水処理システムの目標

### 5. 今後の展望

地球環境問題の解決が叫ばれる現在、低炭素・循環型社会の実現に貢献できる排水処理システムの確立と「進化」が求められています。本研究室のテーマの一つである都市下水道は「循環のみち」となるべく、その『持続性』と「進化」が問われています。「循環のみち下水道」の「進化」の方向性として、水・資源・エネルギーの集約・自立・供給拠点化が取りあげられています。新しい下水処理場のコンセプトとして、流入水中有機物のエネルギー利用によるエネルギー的自立と栄養塩類などの資源回収が世界的に注目されています。本研究室で蓄積してきた技術シーズを生かして、図13のような理想的な有機性排水（下水など）システムの目標を達成するために、学生諸君と一緒に新しい夢を見ながら研究を展開していきたいです。

### 【参考文献】

- 1) 野池達也編著, メタン発酵, 技法堂出版, 2009
- 2) Y. Y. Li and T. Noike, Upgrading of anaerobic digestion of waste activated sludge by thermal pretreatment, *Water Science and Technology*, 26 (No.3/4), 857-866 (1992)
- 3) 大羽美香, 李玉友, 野池達也, 二相循環プロセスによるジャガイモ加工廃棄物の無希釈水素・メタン発酵の特性, *水環境学会誌*, 28 (10), 629-636 (2005)
- 4) C. F. Chu, Y. Y. Li, K. Q. Xu, Y. Ebie, Y. Inamori, and H. N. Kong, A pH- and temperature-phased two stage process for hydrogen and methane production from food waste, *International Journal of Hydrogen Energy*, 33, 4739-4746 (2008)
- 5) Dong-Yeol Lee, Yoshitaka Ebie, Kai-Qin Xu, Yu-You Li, Yuhei Inamori, Continuous H<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> Production from High-Solid Food Waste in the Two-Stage Thermophilic Fermentation Process with the Recirculation of Digester sludge, *Bioresource Technology*, 101, S42-S47 (2010)
- 6) 李玉友, 小林拓朗, 世界の嫌気性消消化とバイオメタ

ンの新技術の研究開発と実用化, *水環境学会誌*, 38 (A), 273-278 (2015)

- 7) 胡勇, 荆肇乾, 須藤裕太, 北條俊昌, 李玉友, 有機合成化学工場廃水のUASB処理に及ぼすCOD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>比の影響, *水環境学会誌*, 36 (6), 165-173 (2013)
- 8) Xueqin Lu, Guangyin Zhen, Jialing Ni, Toshimasa Hojo, Kengo Kubota, Yu-You Li, Effect of influent COD/SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> ratios on biodegradation behaviors of starch wastewater in an upflow anaerobic sludge blanket (UASB) reactor, *Bioresource Technology*, 214, 175-183 (2016) .
- 9) Xueqin Lu, Guanyin Zhen, Jialing Ni, Kengo Kubota, Yu-You Li, Sulfidogenesis process to strengthen re-granulation for biodegradation of methanolic wastewater and microorganisms evolution in an UASB reactor, *Water Research*, 108, 137-150 (2017)
- 10) 渡邊亮哉, 高橋慎太郎, 砂庭崇之, 若原慎一郎, 李玉友, 膜分離メタン発酵法を用いた人工下水の処理特性と微生物群集構造解析, *下水道協会誌*, 51 (No.617), 105-116 (2014)
- 11) Ryoya Watanabe, Yulun Nie, Shintaro Takahashi, Shintaro Wakahara, Yu-You Li. Efficient performance and the microbial community changes of submerged anaerobic membrane bioreactor in treatment of sewage containing cellulose suspended solid at 25 °C, *Bioresource Technology*, 216, 128-134 (2016) .
- 12) 北條 俊昌, 劉 媛, 王 少坡, 牛 啓桂, 紀 佳淵, 李玉友, 担体添加型一槽式 Anammox 反応槽における窒素除去特性の検討, *土木学会論文集 G (環境)*, 72 (7), III\_19-III\_27 (2016)
- 13) Yanlong Zhang, Qigui Niu, Haiyuan Ma, Shilong He; Kengo Kubota, Yu-You Li, Long-term operation performance and variation of substrate tolerance ability in an anammox attached film expanded bed (AAFEB) reactor, *Bioresource Technology*, 211, 31-40 (2016) .

### 【著者略歴】

李 玉友 (Yu-You Li)  
 1961年6月中国山東省生まれ  
 1982年 西安建築科技大学卒業  
 1985年 天津大学大学院修了  
 1987年 東北大学工学部助手  
 1992年 香港大学工学部助手  
 1993年 東北大学大学院工学研究科助教授  
 1996年～2012 アタカ工業(株)技術研究所主任研究員  
 2003年 東北大学大学院工学研究科助教授  
 2013年 同教授



## 計算困難な問題の解決に貢献する基礎研究 ～ 理論的な観点から実社会への応用 ～

東北大学大学院情報科学研究科  
システム情報科学専攻  
教授 周 暁

### 1. はじめに

計算機科学分野の最も基礎的で重要なテーマであるグラフ理論、グラフアルゴリズム、応用離散アルゴリズムなどの研究に従事してきている。情報科学の分野には、産業界や経済界からも解決が望まれている問題が多くある。しかし、それらの多くは計算困難な組合せ最適化問題であり、線形計画のように高速に最適解が求まることはまず存在していない。そこで、最適解の代わりに近似解を高速に求める手法、すなわち、近似アルゴリズムを研究開発することが重要となる。我々の研究グループは、今までに木や直並列グラフや部分 $k$ 木など、実用上よく現れる構造を持つグラフに係る組合せ最適化問題に対し、グラフの分割と巧みな動的計画法のテクニックを用いることで、完全近似スキームと呼ばれる近似アルゴリズムを与えてきた [1, 2, 4, 5]。これらの近似アルゴリズムにより、任意の精度の近似解を高速に得ることが可能となっている。これからも、今までの研究成果を生かし、数多くの未解決組合せ最適化問題に対して効率のよいアルゴリズムを研究開発し、計算機科学分野やその応用先の分野に貢献していきたいと考えている。

具体的なテーマは多岐に渡っているが、本稿では、実用化を目指して行っている研究内容について、簡単に紹介する。

### 2. グラフ分割に関する研究

本研究では、需要点と供給点があるグラフの分割問題を扱う。グラフ $G$ の各点は供給点または需要点であるとする。各供給点には供給量と呼ばれる正の実数が割当てられており、各需要点には需要量と呼ばれる正の実数が割当てられ

ている。各需要点は高々1個の供給点からしか供給を受けることができないとする。したがって、 $G$ から何本かの辺を取り除いて $G$ をいくつかの連結成分に分割し、各連結成分には供給点がちょうど1個だけあるようにしたい。むろん、その供給量はその連結成分にある需要点の需要量の合計以上でなければならない。図1は、与えられたグラフに対する分割問題の解の一例を示している。ここで、各供給点は四角で描かれ、各需要点は丸で描かれ、供給量と需要量はそれぞれ点の中に書かれ、辺は直線で描かれ、削除された辺は点線で描かれている。また、各連結成分は線で囲まれている。

例えば、四角の点が電力を供給する発電所とし、丸の点が電力を消費する学校や病院、住宅などの負荷区間とする。グラフの辺は送電線を表し、全ての送電線には開閉器、スイッチが付いている。四角い点内の数字はその発電所が供給できる最大電力量を表す。丸の点にある数字はその負荷区間が必要とする電力量である。どの負荷区間も1つの発電所からしか電力の供給を受けることができない。即ち、2つ以上の発電所からは電力の供給を受けることができない。そこで、送電線のスイッチを閉じたり、開いたりして、このグラフをいくつかの連結成分に分割する。無論、各連結成分には、電力を供給する点がちょうど1つあり、その供給電力は、その成分にある丸い点、即ち需要点の電力量の合計以上でないといけない。図1の例では、黄色の連結成分に四角い供給点は1つであり、その供給電力量25は、その連結成分にある需要量の合計 $4 + 5 + 6 + 8 = 23$ 以上である。青色や緑色や茶色の連結成分でも同じである。このように、グラフを分割する、即ち電力網の配電計画を求めるアルゴリズムを与える。

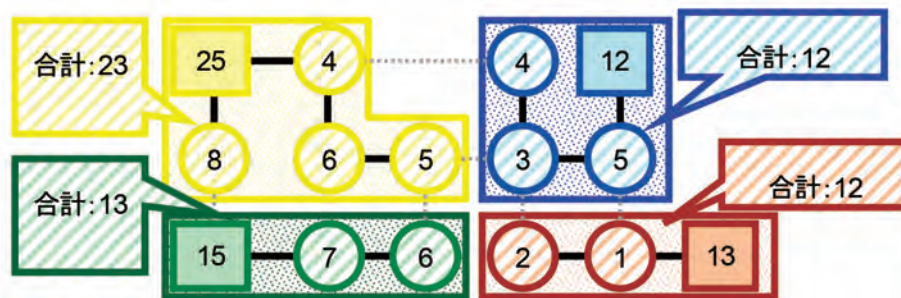


図1. 分割問題の解の一例

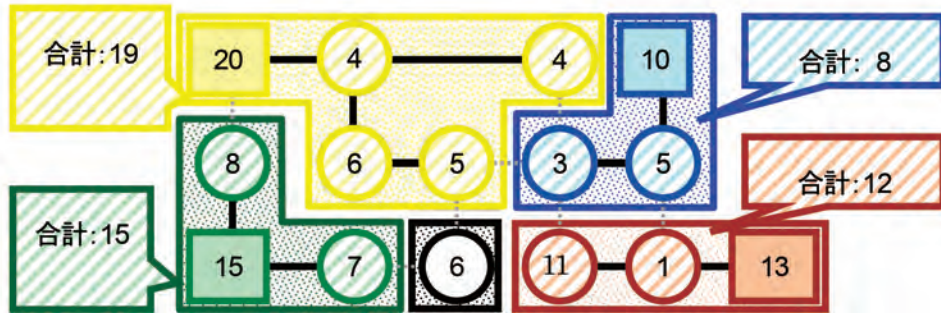


図2. 最大分割問題の解の一例

しかし、全てのグラフがこのような分割を持つわけではない。もしグラフ  $G$  に全ての需要点に供給できる分割が存在しない場合は、 $G$  から何本か辺を取り除いて  $G$  をいくつかの連結成分に分割し、各連結成分には供給点がないか、あるいはちょうど1個だけあるようにしたい。ただし、供給点のある各連結成分に対してはその供給量はその連結成分にある需要点の需要量の合計以上であるようにし、しかも供給点のある全ての連結成分に含まれる需要点の需要量の合計を最大にしたい。このような最大化問題を最大分割問題と呼ぶ。即ち、最大分割問題では供給を受けることができる需要点の需要量の合計を最大化する分割を見つきたい。図2は、与えられたグラフに対する最大分割問題の解の一例を示している。この分割において、供給を受けている需要点の需要量の合計は  $(4 + 4 + 5 + 6) + (7 + 8) + (3 + 5) + (1 + 11) = 54$  であり、これがこのグラフに対しては最大である。

最大分割問題は、木に対してさえNP困難であり、したがって木に対してすら多項式時間で解けそうにない。また、最大分割問題は一般のグラフに対しては強NP困難であり、擬多項式時間でさえ解けそうにない。しかし、現在までに、木に対しては任意の精度の近似解を多項式時間で求める完全近似スキーム (FPTAS) が知られている。

本研究では、最大分割問題の近似可能性について明らかにした [8, 10, 12, 15]。まず、一般のグラフに対する最大分割問題はMAXSNP困難であることを示した。したがって、一般のグラフに対しては近似スキーム (PTAS) が存在しそうにない。次に、供給点が1個しかない直並列グラフに対し、完全近似スキームを与えた。この完全近似スキームは、部分  $k$  木に拡張することができる。

木や供給点が1個しかない直並列グラフの最大分割について近似アルゴリズムを与えたが、供給点が2個以上ある直並列グラフや平面グラフや部分  $k$  木に対し、FPTASが存在するのか、あるいは近似困難なのかが未解決である。また、最小分割問題、つまり、停電量を最小にする問題の近似アルゴリズムについて、木に対してすら未解決である。これらの未解決問題を解明するのは今後の研究課題である。

また、電力系統のように、24時間365日途切れることがな

くサービスを提供することが求められるシステムに、現在の送電法からアルゴリズムが求めたよりよい送電法に、停電を起こすことなく遷移 (スウィッチング) が求められている。伊藤准教授を中心とした研究グループでは、この遷移に関する部分を計算機科学の観点から定式化し、理論的に解明することを目指す研究を行っている [3]。具体的に次のように定義される。通常の判定問題では、条件を満たす解 (実行可能解) が1つでも存在するか判定したい。それに対し遷移問題では、基となる問題の実行可能解が予め2つ与えられ、その間を段階的に遷移させることができるか判定したい。ここで、段階的な遷移とは、実行可能解の間に定義された「隣接関係」に依存し、その遷移は基となる問題の実行可能解のみを経由しなければならない。この種の問題は2005年より数件個別に発表されていたが、2008年に伊藤らが国際会議で発表した論文は、独立点集合、クリーク、集合被覆、マッチングなど、計算機科学の最も基礎的で重要な問題を統合的に扱い、遷移問題を新しい研究分野として体系化した。

### 3. 直交描画に関する研究

図3 (a) の平面グラフの直交描画の一例を図3 (b) に示す。このように平面グラフの直交描画においては、全ての辺は交差しないう水平線分と垂直線分の折れ線で描かれる。点以外のところでの水平線分と垂直線分の交点は折れ曲がり (bend) という。図3 (b) に示したグラフの直交描画の一例で、折れ曲がり個数が4個である。直交描画はよくVLSI二層配線に応用される。例えば、水平線分を1層目に、垂直線分を二層目に配置する。グラフの直交描画の折れ曲がりにはスルーホールやビアになる。スルーホールやビアはコストがかかるので、スルーホールの個数を最小にしたい訳である。図3 (b) の描画では、4つのスルーホールがあり、図3 (c) の描画では、スルーホールがない。本研究では、図3 (c) のような最小折れ曲がりの直交描画を見つけるアルゴリズムを研究開発している [9, 11, 14]。研究成果としては、最大次数が3以下の直並列グラフ  $G$  が与えられたときに、 $G$  の直交描画で折れ曲がりの個数が最小なものを線形時間で見つけるアルゴリズムを与えた。

しかし、最大次数が4の直並列グラフに対し、線形時間

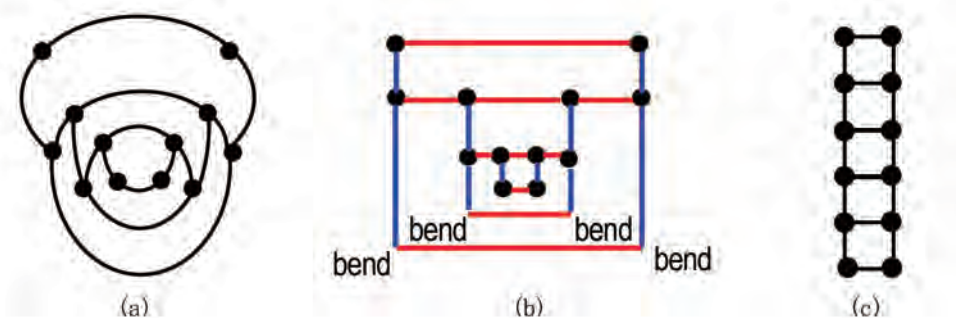


図3. グラフと直交描画

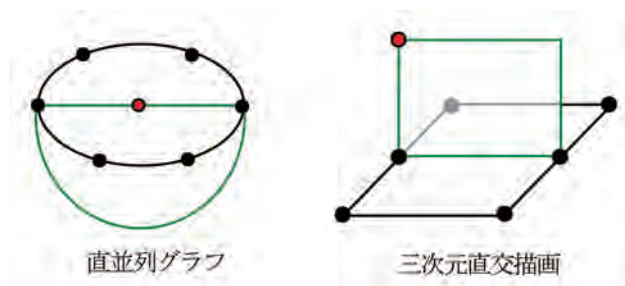


図4. グラフとその三次元直交描画

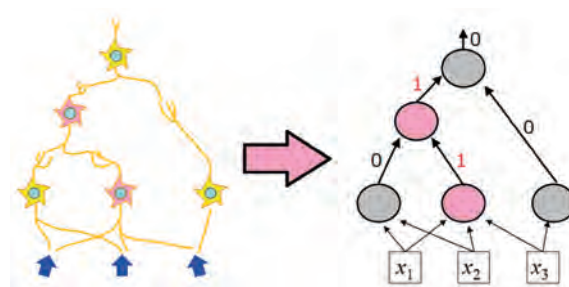


図5. 神経回路網のモデル化

で折れ曲がり最小の直交描画を見つけることができるかどうか未解決である。この未解決問題を解明するのは今後の研究課題である。また、図4のような3次元の描画もこれからの研究課題である。

#### 4. しきい値回路の計算困難性に関する研究

鈴木助教を中心とした研究グループでは、脳神経回路網の理論モデル(図5)である「しきい値回路」を用いて、神経回路網が実際に採用している回路構成や、アルゴリズムを明らかにすることを旨とする研究を行っている[6, 7]。具体的には、しきい値回路を実際の脳のエネルギー消費システムに即した視点で捉え直した新たな計算モデルを提案し、エネルギー消費量が回路網の計算能力に与える影響について解析した。その結果、既存のしきい値回路とは全く異なる回路構成がエネルギー消費量を減らすために有効に働くことや、エネルギー消費量が回路設計能力に大きな影響を与えることを、理論的に厳密に示すことに成功した。

さらに脳神経回路網の理論モデルである「しきい値回路」に関する研究については、計算機科学の回路計算量理論と生物学の神経科学との両方にまたがる学際的研究である。この成果は、計算機科学だけでなく、生物学の研究分野からも引用されている。また、2013年7月には、スイス・チューリッヒ大学のE. Neftciらによって、脳の神経回路網と似た動作を行う電子素子が開発された。しかしながら、実際の脳内で神経回路網がどのように接続され、どのような情報をやり取りすることで計算を行っているかについては明らかになっていない。すなわち、その素子をどのように接続し回路を構成すれば、脳のように高速、コンパクト、低消費エネルギーを実現できるのかはわかっていない。

我々の研究グループで得られた研究成果によって与えた計算限界は、将来脳に倣った電子回路を実装しようとした際に、一つの指標として役立つことが期待できる。

#### 5. おわりに

本稿では、我々の研究グループで取り込んでいる研究の中から、実用化を目指しているものの一部を紹介した。研究内容について研究主眼を理論側に据えることで、汎用性のあるアルゴリズム開発や、計算能力の適切な評価を与えることに成功している。その一方で、開発した手法を実社会の問題に実際に適用するべく、理論の観点から応用へのアプローチを積極的に行っていくことが、今後も目指していきたいと考えている。

#### 6. 参考文献

1. Yusuke Aoki, Bjarni V. Halldorsson, Magnus M. Halldorsson, Takehiro Ito, Christian Konrad and Xiao Zhou, The minimum vulnerability problem on specific graph classes, *Journal of Combinatorial Optimization (JCO)*, Vol. 32, No. 4, pp. 1288-1304, November 2016.
2. Kei Uchizawa, Takanori Aoki, Takehiro Ito and Xiao Zhou, Generalized rainbow connectivity of graphs, *Theoretical Computer Science (TCS)*, 555, pp. 35-42, October 2014.
3. Takehiro Ito, Kazuto Kawamura, Hitotaka Ono and Xiao Zhou, Reconfigure on list  $L(2,1)$ -labelings in a graph, *Theoretical Computer Science (TCS)*, 544, pp. 84-97, August 2014.
4. Kazuhide Nishikawa, Takao Nishizeki and Xiao Zhou,

- Bandwidth consecutive multicolorings of graphs, Theoretical Computer Science (TCS), 532, pp. 64-72, May 2014.
5. Kei Uchizawa, Takanori Aoki, Takehiro Ito, Akira Suzuki and Xiao Zhou, On the rainbow connectivity of graphs: complexity and FPT algorithms, Algorithmica, 67, Issue 2, pp. 161-179, October 2013.
  6. Akira Suzuki, Kei Uchizawa and Xiao Zhou, Energy and fan-in of logic circuits computing symmetric Boolean functions, Theoretical Computer Science (TCS), 505, pp. 74-80, September 2013.
  7. Akira Suzuki, Kei Uchizawa and Xiao Zhou, Energy-efficient threshold circuits computing MOD functions, International Journal of Foundations of Computer Science (IJFCS), 24, pp. 15-29, January 2013.
  8. Takehiro Ito, Takuya Hara, Xiao Zhou and Takao Nishizeki, Minimum cost partitions of trees with supply and demand, Algorithmica, 64, pp. 400-415, November 2012.
  9. Xiao Zhou, Takashi Hikino and Takao Nishizeki, Small grid drawings of planar graphs with balanced partition, Journal of Combinatorial Optimization, 24, pp. 99-115, August 2012.
  10. Takehiro Ito, Takao Nishizeki, Michael Schroder, Takeaki Uno and Xiao Zhou, Partitioning a weighted tree into subtrees with weights in a given range, Algorithmica, Vol. 62, Numbers 3-4, pp. 823-841, April 2012.
  11. Xiao Zhou and Takao Nishizeki, Convex drawings of internally triconnected plane graphs on  $O(n^2)$  grids, Discrete Mathematics, Algorithms and Applications, Vol. 2, pp. 347-362, September 2010.
  12. Takehiro Ito, Xiao Zhou and Takao Nishizeki, Partitioning graphs with supply and demand, Discrete Applied Math., Vol. 157, pp. 2620-2633, June 2009.
  13. Zhengbing Bian, Qianping Gu and Xiao Zhou, Efficient algorithms for wavelength assignment on trees of rings, Discrete Applied Mathematics, Vol. 157, pp. 875-889, March 2009.
  14. Xiao Zhou and Takao Nishizeki, Orthogonal drawings of series-parallel graphs with minimum bends, SIAM J. Discrete Math., Vol. 22, pp. 1570-1604, October 2008.
  15. Takehiro Ito, Erik D. Demaine, Xiao Zhou and Takao Nishizeki, Approximability of partitioning graphs with supply and demand, Journal of Discrete Algorithms, Vol. 6, pp. 627-650, December 2008.

## 【著者略歴】

しゅう ぎょう  
周 暁

- 1992年 東北大学大学院工学研究科  
電気及び通信工学専攻  
博士課程前期2年課程修了
- 1995年 東北大学大学院情報科学研究科  
システム情報科学専攻  
博士課程後期3年課程修了
- 1995年 東北大学情報処理教育センター 助手
- 1998年 東北大学大学院情報科学研究科 講師
- 2001年 東北大学大学院情報科学研究科 助教授
- 2003年6月～2004年3月  
Simon Fraser大学にて文科省在外研究員
- 2007年 東北大学大学院情報科学研究科 准教授
- 2010年 東北大学大学院情報科学研究科 教授



## 医療への展開を志向した 多機能性金属錯体の創製

東北大学大学院環境科学研究科  
先端環境創成学専攻  
教授 壹岐伸彦

### 1. はじめに

物質を創製し、それを意のままに機能させることは化学者の夢である。工学領域の化学者として、我々は人類の福祉に貢献する機能の創成を目指している。鍵となる物質は金属錯体で、これは金属イオンと配位子から構成される。金属の種類は100種類もある。一方の配位子は化学者が自由に設計・合成するので、それらの組み合わせである金属錯体は無限である。金属錯体はしばしば構成要素の機能を越える機能を生み出す。例えばランタニド(Ln)のひとつユウロピウム(Eu)はそのままで発光しない。しかしこれに光を吸収し、そのエネルギーを効率よくEuに移動させる配位子が結合すると、Euは強く発光するようになる。こうして得られたEu錯体はユーロ紙幣の発光性インクとして使用されている。このように金属錯体は優れた機能を発揮させる可能性を有しているが、そのために配位子の設計や錯体の機能しやすい場の設計が必要となる。ここが化学者の腕の見せ所である。

我々は分析化学という学問領域の中で、生体や環境に存在する超微量金属を化学的に定量する手法の開発に携わってきた。基本的な手法は分析試薬と呼ばれる配位子を用い、金属イオンを光吸収・放出などの信号(シグナル)機能を有する錯体に変換するものである。できるだけ高い感度で金属イオンを計測するには、シグナル機能を高性能化しなければならない。分析試薬のモチーフ(基本構造)としてアゾ色素やシッフ塩基を起点に種々検討した結果、多核Ln錯体系やd<sup>8</sup>金属-ジラジカル錯体系にたどり着いた。これらの錯体は下記に示す多くの優れた機能(多機能性)を発現した。すなわち速度論的安定性、長寿命発光、生体透過性の高い近赤外(NIR)領域での発光、強いNIR吸収、環境応答性等である。これら錯体の多機能性を駆使すれば金属イオンの定量に限らず、診断や治療、両者を一体化したセラノスティクスといった医療の世界に展開できる可能性が見えてくる。本稿では医療への展開を見据えたこれらの研究事例を紹介する。

### 2. 多核ランタニド錯体

カリックスアレーン(CA)は図1に示す様に4個のベンゼン環が架橋基(X)で手をつないで大きな環を形成している。CAは「無限の可能性を秘めた大環状化合物」と形容されるように<sup>[1]</sup>、分子を認識するホスト分子、分子やイ

オンのセンサー、金属イオンの抽出試薬、分子触媒など多岐にわたって応用されてきた<sup>[2]</sup>。中でも金属錯体の配位子としての応用が多いが、ほとんどの場合そのフェノール酸素(O)あるいはそのパラ位(R)に金属イオンに配位可能な官能基を導入し、金属イオン結合能を付与している。つまりCA自体は金属イオンに結合せず、配位性官能基を固定する土台として用いられているにすぎない。一方我々は、Xとして-CH<sub>2</sub>-ではなく硫黄(S)を持つ*p-tert*-ブチルチアカリックス[4]アレーン(TCA)の一段階合成法を世界に先駆けて見いだした<sup>[3]</sup>。TCAの特徴は、Sが配位性なのでTCA自体が金属イオンに配位すること、その金属イオン選択性を架橋硫黄の酸化状態(S, SO, SO<sub>2</sub>)で制御できることにある<sup>[4]</sup>。

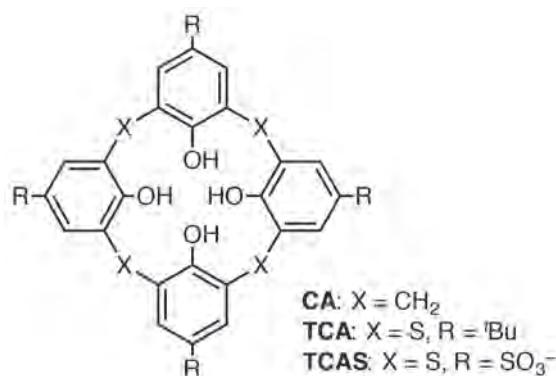


図1 カリックスアレーン類の構造

さてLnとは周期表の本体と区別し、下部に2行にわたって配置されている元素群のうちの一列目である。その特別な理由は電子構造にある。つまり4f軌道と呼ばれる原子軌道に電子が順番に充填されていくのである。4f軌道に在る電子は発光や磁気的な機能・性質の担い手で、Lnに豊かな機能を与える。Lnを取り込んだ無機材料の合成が盛んになされているのはこのためである。Lnは3価の陽イオンLn<sup>III</sup>となり水によく溶ける。一方TCAは水に溶けない。水溶液系でLn<sup>III</sup>とチアカリックスアレーンとを錯形成させるために、パラ位にスルホ基を導入したチアカリックス[4]アレーン-*p*-テトラスルホン酸(TCAS)を合成した。これはLn<sup>III</sup>と錯形成し、なかでもテルビウム(Tb<sup>III</sup>)錯体は強い発光を示す<sup>[5]</sup>。これは先述したEu錯体の例と同じく、TCASが吸収した光エネルギーがTb<sup>III</sup>に移動

し、 $Tb^{III}$ が発光するためである。これを利用し sub-ppb レベルの  $Tb^{III}$  が発光検出できる<sup>[6]</sup>。

さて予期せぬ発見もあった。Tb-TCAS 二元系に銀 ( $Ag^I$ ) を共存させるとより強い発光が得られることを偶然見いだした。これは pH6 で三元錯体  $Ag_2Tb_2TCAS_2$  が、pH10 で  $Ag_2Tb_1TCAS_2$  が生成することによる (図2)<sup>[7]</sup>。 $Ag_2Tb_2TCAS_2$  形成を利用し、ppb レベルの  $Ag^I$  を検出することができる (検出限界: 0.2ppb)<sup>[8]</sup>。カドミウム ( $Cd^{II}$ ) も同型の発光性錯体  $Cd_2Tb_2TCAS_2$  を形成するので、それを利用して米中のサブ ppm レベルの  $Cd^{II}$  を定量することに成功した (検出限界: 米中12.2ppb)<sup>[9]</sup>。一方高 pH 側では  $Ag_2Tb_1TCAS_2$  の他、 $Ag_2Yb_1TCAS_2$  や  $Ag_4Nd_1TCAS_2$  が生成する。これらは水中にもかかわらず超長寿命発光 ( $Tb$ :  $\tau = 4.6\text{ms}$ ,  $\Phi = 0.11$ )<sup>[7]</sup> や高効率 NIR 発光 ( $Yb$ :  $\Phi = 3.3 \times 10^{-3}$ ,  $\tau = 4.35\ \mu\text{s}$ ,  $Nd$ 系:  $\Phi = 4.9 \times 10^{-4}$ ,  $\tau = 0.48\ \mu\text{s}$ )<sup>[10]</sup> を示す (ここで  $\Phi$  は量子収率であり発光効率を表す指標である)。また  $\tau$  は発光寿命であり発光が減衰するときの時定数である)。寿命が長く、発光効率が高いのは TCAS の配位原子 O が Ln を囲い込み、失活の原因となる水分子 (エネルギーの高い O-H 伸縮振動をもつ。振動はフォノンと呼ばれる) を排除するからである。

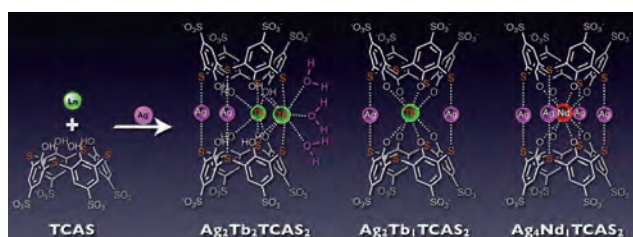


図2 Ln-Ag-TCAS 三元錯体の生成

最近 Ln-TCAS 二元系に立ちもどって錯形成反応を数日にわたって観測したところ、より複雑な組成の錯体  $Ln_3TCAS_2$  が生成することを見いだした (図3)<sup>[11]</sup>。つまり一旦生成した  $Ln_1TCAS_1$  が組み合わせさり、未反応の  $Ln^{III}$  がそこに加わることによって  $Ln_3TCAS_2$  が生成する。 $Ln_3TCAS_2$  はいくつかの際だった特長を有している (図4)。一つはその高い速度論的な安定性で、一旦生成した  $Ln_3TCAS_2$  は容易に壊れない。例えば  $Yb_3TCAS_2$  の場合、pH1.16 という過酷な条件でも解離が遅く、半減期は1.53h (25°C) であった。錯体の安定性はそれを生体用のプローブとして適用する場合に必要な要件である。さもなくば生体内で容易に解離し、シグナル機能を失うばかりか、遊離の  $Ln^{III}$  は毒性を示すことになる。もう一つの特長はそのシグナル機能で、磁気共鳴イメージング (MRI) 用造影剤としての緩和能や発光機能である。

MRI 造影剤として Ln のひとつであるガドリニウム (Gd) の錯体が頻用される。例えば Gd-DTPA や Gd-DOTA 錯体が実用されている。これらは  $Gd^{III}$  を解離させないようにそれを囲い込む分子構造を取っていると同時に、 $Gd^{III}$  は1個の配位水分子を持っている。これが生体組織に存在する

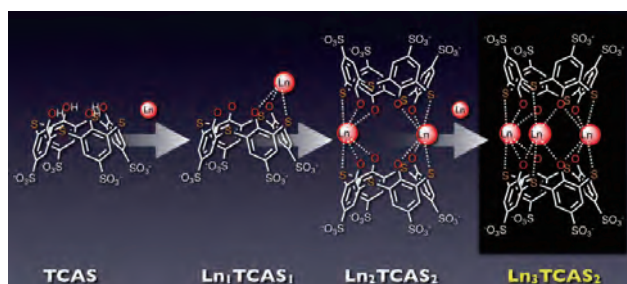


図3  $Ln_3TCAS_2$  の生成 (自己組織化)

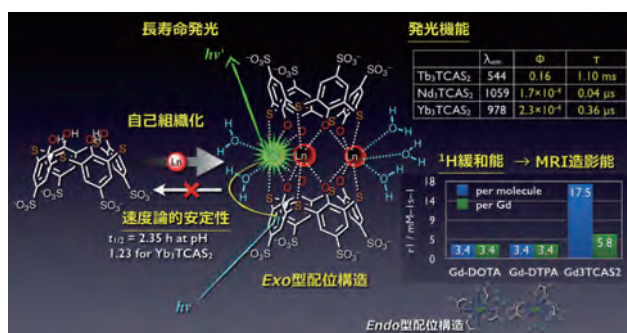


図4  $Ln_3TCAS_2$  の特長とシグナル機能

水と交換し、そのプロトンの緩和時間を短縮することで MRI 像にコントラストが生じる。 $Ln_3TCAS_2$  の Ln は 2~3 個の配位水を有しており、 $Gd_3TCAS_2$  は高い緩和能を持つことが期待できる。実際 Gd-DTPA や Gd-DOTA より Gd あたり 7 割も高い緩和能を有することを明らかにしている (図4)<sup>[12]</sup>。

発光機能に関しては  $Tb_3TCAS_2$  は可視領域に、 $Nd_3TCAS_2$  や  $Yb_3TCAS_2$  は生体透過性の高い NIR 領域に発光を示す。さてここで  $Ln_3TCAS_2$  の 3 つの Ln は同じものである必要はない。そこで最近異なる二種の Ln を含む異核複核錯体  $Ln_{3-x}Ln'_xTCAS_2$  を生成させた ( $x=1, 2$ , 図5)<sup>[13]</sup>。すると Ln-Ln' 間でエネルギー移動、すなわち f-f communication が生じた。たとえば Tb-Yb-TCAS 系は  $Tb_{3-x}Yb'_xTCAS_2$  ( $x=0-4$ ) の混合物を生じ、Yb の増感発光を与えた。無機材料の研究領域では複数の種類の Ln を含む系からアップコンバージョンと呼ばれる NIR 光励起-可視光発光、ダウンコンバージョンといわれる可視光励起-二光子 NIR 発光など多様な発光系が得られることが報告されている。錯体系では高フォノン緩和のためこのような発光系の実現は難しいとされているが、 $Ln_{3-x}Ln'_xTCAS_2$  の配位水を置換するなどして実現したいと考えている。さらにアップコンバージョンやダウンコンバージョンを組み合わせれば、生体透過性の高い NIR 光で生体深部をイメージングできるかもしれない。これら光プローブ機能の開拓と並行し、Ln 中心の発光を磁気緩和機能と組み合わせた発光-MRI マルチモーダルイメージング、Gd の中性子捕捉- $\gamma$ 線放出に基づく中性子捕捉療法やその他 Ln 核種の  $\beta$ 線放出に基づく治療法を組み合わせた診断-治療の一体化「セラノスティクス」を実現するプローブへの展開を模索している。

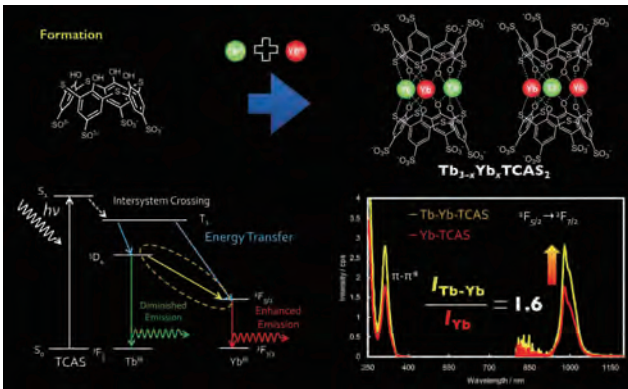


図5 異核複核錯体  $\text{Ln}_{3-x}\text{Ln}'_x\text{TCAS}_2$  の生成と Ln-Ln' エネルギー移動

なお医療への展開と趣を異にするが、 $\text{Ln}_3\text{TCAS}_2$  の発光を活用した発光材料を創製できればなお良い。しかし  $\text{Ln}_3\text{TCAS}_2$  は水によく溶け固体化に難がある。そこでスルホ基 ( $-\text{SO}_3^-$ ) の電荷を中和するためにホスホニウムイオンを導入して水溶性をなくすと同時に有機溶媒に溶けやすくし、それを高分子 PMMA に取り込ませ、薄膜化することに成功した (図 6) [14]。すると面白いことに発光量子収率  $\phi$  が水溶液系に比べ増大した (例えば Tb について水溶液中で  $\phi = 0.16$ , PMMA 中で  $\phi = 0.68$ )。これは  $\text{Ln}_3\text{TCAS}_2$  のもつ配位水分子を有機溶媒が置換し、Ln が失活しにくくなったためと考えている。

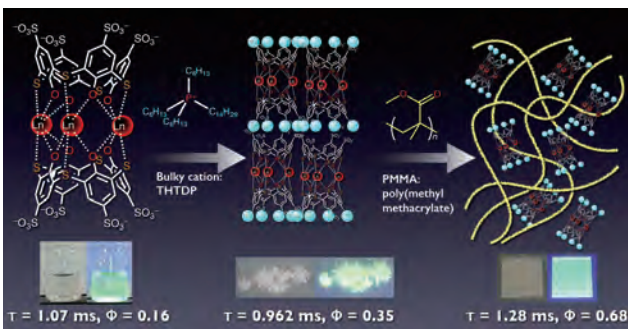


図6 溶液プロセスによる高効率発光材料の創製

### 3. ジラジカル $d^8$ 遷移金属錯体

*o*-フェニレンジアミン (PDA, 図 7) は遷移金属イオンに二つの窒素 (N) で配位する。中心金属イオンの原子価の帰属は長年の問題であったが、最近 Wiegardt らは  $\text{Ni}^{\text{II}}$ ,  $\text{Pd}^{\text{II}}$ ,  $\text{Pt}^{\text{II}}$  など  $d^8$  遷移金属錯体の結晶構造解析、電子スピン共鳴法、磁化率測定、および量子化学計算に基づき、金属は II 価を維持し配位子は一電子酸化された *o*-ジイミノ



図7 PDA と  $\text{Pt}^{\text{II}}$ -ジラジカル錯体の構造

セミキノネートラジカルとなっていることを示した [15]。ラジカルは電子のスピンを持つが、この錯体では 2 つのスピンが結合して打ち消しあい (一重項)、配位子間の電荷遷移 (LLCT) に基づいて NIR 光を高効率に吸収する。

この錯体は生体透過性の高い 700-900 nm の NIR 領域に極めて大きなモル吸光係数 ( $10^5 \text{ M}^{-1}\text{cm}^{-1}$ ) を有する。これはプローブ設計の上で大きな利点になると考え、プローブ機能開拓に着手した。最近、水溶性 PDA ( $\text{X} = \text{SO}_3^-, \text{CO}_2^-$ ) のジラジカル錯体も水溶液中で NIR 吸収を発現することを見だし、pH [16] やアニオン [17]、疎水空孔サイズ [18] に応答するプローブとなり得ることを見いだした。錯体としてはそれほど複雑ではないが実に多くの機能を有している。これらの応答機能は配位子中心の酸化還元に由来する。すなわちジラジカル錯体は酸化された環境では配位子部位が酸化され、錯体が二量化して NIR 吸収を消失させる (図 8)。ジラジカル錯体の有する高い NIR 光吸収能と環境応答性を組み合わせれば、コントラストの高い生体イメージングを実現するプローブとなりえる。そこでがんの画像診断さらにその光熱治療を同時に実現するセラノスティクスへの展開を開始した (図 9) [19]。

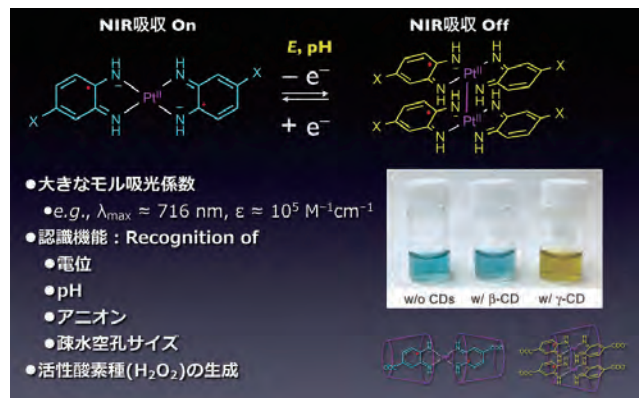


図8 ジラジカル錯体の多機能性

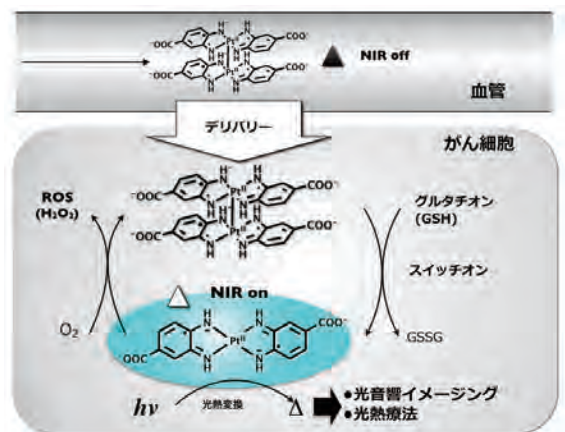


図9 ジラジカル錯体を用いるセラノスティクス

まずプローブを選択的にがん細胞に送達できるとしよう。プローブは予め NIR 光を吸収しない酸化二量体としておく。がん細胞の中には還元剤であるグルタチオンが多量

に存在する。そこでプローブは還元されNIR吸収onにスイッチする。そこでNIR吸収イメージングを行えばがん細胞の周辺にいるプローブのNIR吸収はないので、コントラストが高くなる。イメージングは光音響イメージングで行う。錯体の吸収した光エネルギーは熱に変換されることから、パルス光照射によって錯体は断続的に熱を発生し、周囲の媒体から疎密波すなわち超音波を発生する。これを画像化に利用するのが光音響イメージングである。一方の治療効果では、がんが熱に弱いことに注目した。すなわち定常的なNIR光を用いたときにプローブから発生する熱でがんを治療する(光熱療法)。イメージングと治療を逐次的に行うのが構想である。がん細胞が死滅しグルタチオンを産生しなくなればNIR吸収は消失し、治療の効果も確認できる。すでにごん細胞でのNIR吸収スイッチon、光音響シグナルの取得まで成功しており、現在、ジラジカル錯体のがん細胞へ高効率な送達、イメージングを検討している。

#### 4. おわりに

以上チアカリックスアレーンの多核Ln錯体やジラジカル-d<sup>8</sup>金属錯体の多機能性と、診断や治療など医療への展開の可能性を述べてきた。機能も可能性も多彩であり「金属錯体はマルチタレント」といえよう。しかしそれらははじめから予見されたものではなく、より高い感度と選択性を持つ分析試薬を設計しようとする分析化学の研究からスタートして生まれた。これまでの道のりはそれらの分子モチーフに働きかけ、レスポンスを見ることの繰り返し、つまり対話である。そうして発見された金属錯体の機能がいま、分析化学を越えた世界で活躍しようとしている。

謝辞 東北大学名誉教授・宮野壮太郎先生にはチアカリックスアレーン研究の機会とご指導を賜りました。東北大学名誉教授・星野仁先生にはジラジカル錯体研究の契機を賜りました。また細胞実験については東北大学・末永智一先生、ポリマーミセルによる細胞送達については筑波大学・長崎幸夫先生、光音響イメージングについては東北大学・西條芳文先生のご指導を頂きました。これらの先生方に心から御礼申し上げます。またこれらの錯体についての共同研究者である鈴木(升谷)敦子助教と唐島田龍之介助教にも謝意を表します。

#### 【文献】

- [1] V. Böhmer, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1995**, *34*, 713-745.
- [2] P. Neri, J. L. Sessler, M.-X. Wang, *Calixarenes and Beyond*, Springer, **2016**.
- [3] a) N. Iki, in *Calixarenes and Beyond* (Eds.: P. Neri, L. J. Sessler, M.-X. Wang), Springer International Publishing, **2016**, pp. 335-362; b) N. Morohashi, F. Narumi, N. Iki, T. Hattori, S. Miyano, *Chem. Rev.* **2006**, *106*, 5291-5316.

- [4] N. Morohashi, N. Iki, A. Sugawara, S. Miyano, *Tetrahedron* **2001**, *57*, 5557-5563.
- [5] N. Iki, T. Horiuchi, H. Oka, K. Koyama, N. Morohashi, C. Kabuto, S. Miyano, *J. Chem. Soc. Perkin Trans. 2* **2001**, 2219-2225.
- [6] T. Horiuchi, N. Iki, H. Oka, S. Miyano, *Bull. Chem. Soc. Jpn.* **2002**, *75*, 2615-2619.
- [7] N. Iki, M. Ohta, T. Horiuchi, H. Hoshino, *Chem-Asian J.* **2008**, *3*, 849-853.
- [8] N. Iki, M. Ohta, T. Tanaka, T. Horiuchi, H. Hoshino, *New J. Chem.* **2009**, *33*, 23-25.
- [9] 阿部教恩, 星野仁, 壹岐伸彦, *分析化学* **2015**, *64*, 493-499.
- [10] N. Iki, S. Hiro-oka, T. Tanaka, C. Kabuto, H. Hoshino, *Inorg. Chem.* **2012**, *51*, 1648-1656.
- [11] a) N. Iki, S. Hiro-oka, M. Nakamura, T. Tanaka, H. Hoshino, *Eur. J. Inorg. Chem.* **2012**, *2012*, 3541-3545; b) N. Iki, T. Tanaka, S. Hiro-oka, K. Shinoda, *Eur. J. Inorg. Chem.* **2016**, *2016*, 5020-5027.
- [12] N. Iki, E. Boros, M. Nakamura, R. Baba, P. Caravan, *Inorg. Chem.* **2016**, *55*, 4000-4005.
- [13] R. Karashimada, N. Iki, *Chem. Commun.* **2016**, *52*, 3139-3142.
- [14] N. Iki, *Rare Earths 2016 in Sapporo*, **2016**, pp. I05-02.
- [15] P. Chaudhuri, C. N. Verani, E. Bill, E. Bothe, T. Weyhermüller, K. Wieghardt, *J. Am. Chem. Soc.* **2001**, *123*, 2213-2223.
- [16] a) A. Masuya, N. Iki, C. Kabuto, Y. Ohba, S. Yamauchi, H. Hoshino, *Eur. J. Inorg. Chem.* **2010**, 3458-3465; b) K. Tamura, A. Masuya, N. Iki, Y. Ohba, S. Yamauchi, H. Hoshino, *Inorg. Chim. Acta* **2011**, *378*, 81-86.
- [17] 升谷敦子, *化学と工業* **2014**, *67*, 242-243.
- [18] K. Tamura, A. Masuya, H. Hoshino, N. Iki, *Chem. Commun.* **2013**, *49*, 4812-4814.
- [19] 田村昂作, 升谷敦子, 星野仁, 壹岐伸彦, 第74回分析化学討論会, **2014**, C2003.

#### 【著者略歴】

い き のぶひこ  
壹岐 伸彦

1966年2月生まれ

1988年 東北大学工学部応用化学科卒業

1994年 東北大学大学院工学研究科博士課程後期修了

1994年 日本学術振興会特別研究員 (PD)

1994年 アイオワ州立大学エイムズ研究所博士研究員

1996年 東北大学工学部生物化学工学科 助手

2003年 東北大学大学院環境科学研究科 助教授

2014年 東北大学大学院環境科学研究科 教授



## 音と光のコラボレーション、医と工のコラボレーション 光音響イメージングによる微小血管の可視化

東北大学大学院医工学研究科  
医工学専攻  
教授 西 條 芳 文

### 1. はじめに

光音響イメージングとは、1880年に Alexander Graham Bell によって発見された光音響効果を基にしたイメージング手法である。ナノ秒レベルの短パルスかつ高エネルギーのレーザ（最近ではLED光でも実現）を対象に照射すると、対象に光エネルギーの一部が吸収される。吸収されたエネルギーは、ルミネッセンス（発光）などに消費される以外は熱に変換され、対象の表面及び内部で生じた温度変化は熱ひずみを引き起こす。その結果、圧力が変化して超音波（疎密波）すなわち光音響信号が発生する。この現象を光音響効果という。

生体組織を高解像度でイメージングする手法として、可視光や近赤外光に代表される光を用いた手法と高周波数超音波を用いる手法が知られている。細胞のイメージングに広く用いられている共焦点顕微鏡は最近では皮膚の評価にも応用されており、空間分解能  $1\ \mu\text{m}$  を実現している。一方、軟組織における光の減衰、散乱により観察深度は  $200\ \mu\text{m}$  程度にとどまり、真皮の最も表層の観察のみにとどまる。眼科および循環器科領域で臨床的にも用いられている光干渉断層法 (Optical coherence tomography: OCT) の分解能は  $5\ \mu\text{m}$ 、観察深度は  $1\ \text{mm}$  程度であるが、メラニンを多く含む有色人種の皮膚評価は困難とされている。

超音波イメージングの空間分解能は周波数と反比例し、 $100\ \text{MHz}$  では  $15\ \mu\text{m}$  程度、 $1.2\ \text{GHz}$  では約  $1\ \mu\text{m}$  と細胞1個を可視化するのに十分な空間分解能を持つ。生体組織における超音波信号の散乱・減衰はヒト皮膚では  $0.7\sim 3\ \text{dB/cm/MHz}$ 、軟組織では  $\sim 0.6\ \text{dB/cm/MHz}$  であり、光学的手法に比較して生体組織深部のイメージングが可能である。

光音響イメージングはレーザで励起された超音波信号を計測するので、従来の光学イメージングに比べて光路長が半分になり、光の散乱・減衰の影響を軽減できるため、観察深度が深いという特徴を有する。また、光音響信号は光の波長に対する吸収率に比例するので、300年の歴史を持つ光学顕微鏡の世界で培われた光学的なコントラストを臨床的に検出できるという特徴を有する。

筆者は1988年に東北大学医学部を卒業以来、2008年、東北大学に日本で初めて設置された大学院医工学研究科の教授に就任するまで、循環器内科の診療に従事するとともに、高周波数超音波を用いたイメージング、特に超音波顕微鏡による生体組織評価について研究してきた。2008年に

取材を受けた「東北大学機械系 瀬名秀明がゆく！」<http://www.mech.tohoku.ac.jp/sena/series25/vol3/vol3-1.html> において「今後は超音波と光を融合した装置をつくりたいと思っています。まだ医工連携とはいっても一部の工学研究者としかやっていないので、今後はさらに仲間を増やして、オリジナルなものをつくっていききたい。」といわば決意表明しているが、それまで過ぎてきた星陵キャンパスの加齢医学研究所から青葉山キャンパスに上がってきて初めての新たなコラボレーションが、医工学研究科・医工学専攻・松浦祐司教授のレーザおよび光ファイバ技術を高周波数超音波イメージングに組み込んだ光音響イメージングの研究である。光音響イメージングに関しては、その後も多くの先生方のご協力を得ながら研究を進めている。20年以上にわたり超音波イメージングの領域で共同研究を進めてきた工学研究科・電子工学専攻・金井浩教授および長谷川英之准教授（現・富山大学・大学院理工学教育部・教授）との共同研究を継続するとともに、電気通信研究所の中沢正隆教授にはレーザ光源の開発者をご紹介いただいた。工学研究科・電子工学専攻・鷲尾勝由教授との半導体技術を応用した光音響信号用圧電素子の開発、環境科学研究科・先端環境創成学専攻・壹岐伸彦教授とのジラジカル錯体を応用した近赤外用プローブの開発、工学研究科・機械システムデザイン工学専攻・小野崇人教授とのMEMS技術を応用した光音響センサの開発、本稿でも後述するが、医工学研究科・医工学専攻・梅村晋一郎教授および工学研究科・通信工学専攻・吉澤晋准教授とのパラボリックアレイを用いた光音響イメージングの開発など列挙にいとまがない。

光音響現象は100年以上の歴史を持つが、光音響イメージングは21世紀に入り急速に発展した分野であり、超音波工学の国際会議である IEEE International Ultrasonics Symposium においても医用光学の国際会議である SPIE BiOS においても演題数はここ数年右肩上がりに伸びている。したがって、本稿の題目にも掲げたように、光音響イメージングは科学技術的に音と光とのコラボレーションでもあることは言うまでもないが、筆者にとっては医と工のコラボレーションの成果であるといつて過言ではない。

### 2. 光音響イメージングの種類

光音響イメージングには、PACT (Photoacoustic Computed Tomography) という、光の照射と超音波の受信が直交する

やや大掛かりな計測により、主に小動物の体内を可視化する手法も存在するが、ここでは、高解像度で生体計測を実現する光音響顕微鏡の原理と応用例について述べる。図1に示す通り、光音響顕微鏡には主に2種類の計測モードがある。1つは音響分解能光音響顕微鏡 (Acoustical Resolution Photoacoustic Microscopy: AR-PAM)、もう1つは光学分解能光音響顕微鏡 (Optical Resolution Photoacoustic Microscopy: OR-PAM) である。AR-PAMでは比較的広い領域に拡散光を照射するので、深達度は5 mm程度である。光の照射域で発生した光音響信号のうち超音波センサの焦点範囲の光音響信号を受信し可視化するので、分解能は超音波の周波数に依存し、10 MHzのセンサを用いた場合には100 μm程度、50 MHzのセンサを用いた場合には20 μm程度である。OR-PAMでは、光を焦点域に絞って照射するので、深達度は1 mm程度であるが、光音響信号が焦点のみから発生するという仮定で可視化するので、分解能は光の焦点の大きさに依存する。レーザーや光学系の品質にも因るが分解能は1~20 μm程度を実現している。

血液によく吸収される波長532 nmのレーザーを用いると、理想的には赤血球1個を点音源とする光音響信号が発生するはずであるが、現実的には光の照射方向に平行な血管からの光音響信号はほとんど検出できず、光に直交する血管における照射面と底面からの光音響信号が強い。したがって、光音響信号は現実的にはbipolarな挙動を示すことになるので、図1には模式的にしか示していないが、光の照射と光音響信号受信が同軸であることが望ましく、様々な工夫がなされている。

図2に示す通り、2つのプリズムの間にシリコンオイル

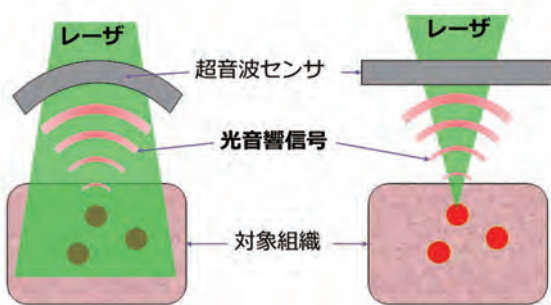


図1

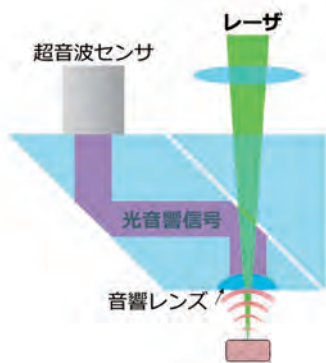


図2

を塗布し、光学的には透明でレーザー光を直進させるが音響的には大きな反射体がある構造の光音響センサを用いた光音響顕微鏡がすでに市販されている。われわれのグループでは筆者自身が光学に疎かったこともあり、各種光学レンズの組み合わせではなく、図3に示すように超音波プローブの中心に穴を開け、松浦教授の開発した中空型光ファイバを中央に通すことで、強力レーザー光の照射と発生した光音響信号の受信を同軸で行う機構を実現した。

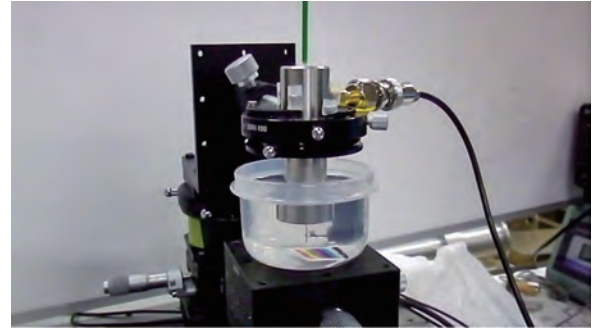
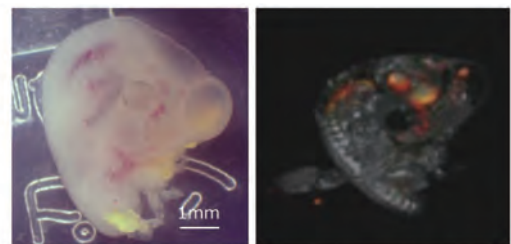


図3

### 3. 光音響イメージングの実例

図3に示したような光音響センサを組織上で機械走査することで三次元光音響イメージングを得ることができる。図4はニワトリ胚の肉眼像(左)と超音波+光音響イメージング(右、超音波:グレースケール、光音響:パワースケール)である。超音波の中心周波数は50 MHz、レーザー光の波長は532 nmである。一般に超音波イメージングでは血液をはじめとした液体は黒く示されるが、光音響イメージングでは血液からの信号が強いため、心臓や血管の部分がはっきりと示されている。図5は指の爪床部分の超音波(左)および光音響(右)イメージングである。皮下の微細血流が明瞭に示されている。これらの例で示すように、光音響イメージングでは、従来の超音波ドブラ法ではとらえることのできない遅い血流やごく細い血管内の血流を描出することができる。

一般的に光音響信号は超音波信号よりも音圧が弱いいため、そのイメージングプロセッシングにも独自の工夫が必要である。図6は光音響信号を通常の超音波イメージングにより画像化した例(左)と3次元wavelet filteringと管構造の特徴を強調することにより血管を強調した画像(右)の比較例である。



光学像

超音波+光音響画像

図4

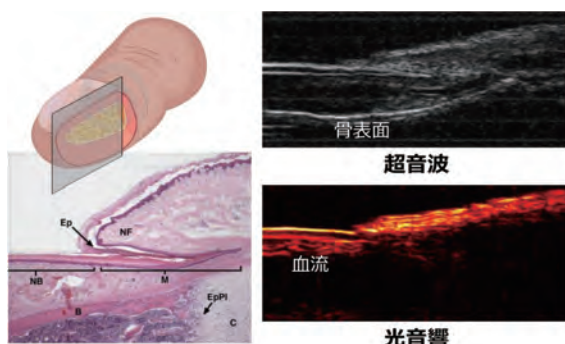


図5

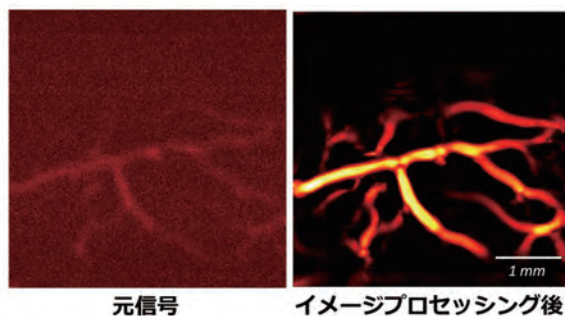


図6

#### 4. パラボリックアレイ型光音響センサの開発とリアルタイムイメージング

前述したように、理論的には光音響信号は点音源から発生するが、現実的には対象のマクロな構造や光の照射方向に依存しセンサに近い面から強い信号が発生することを経験している。たとえば、血管では内部に存在する赤血球1個1個が点音源になり血管全体から信号が生じるはずだが、実際には血管の外形のうちセンサに近い方の面からの光音響信号が強い。したがって、対象の構造をより詳細に可視化するためには、多方向から光を照射するか、多方向から超音波を取得するかの戦略が必要になる。ここに、発生した光音響信号を多方向から検出するために、チリのALMA望遠鏡のような形状のパラボリックアレイセンサを導入する発想に至った。

図7に示すように、直径約4 cm、開口角度45度、中心に約1 cmのレーザー照射用の穴が開いた形状で、1 chの大きさが約3 mm四方の256chパラボリックアレイ型センサを作製した。この設計には集束超音波治療における梅村教授



図7

と吉澤准教授のアレイ型超音波送信機に関する積年のアイデアが生かされている。このセンサを256ch独立送受信可能なプログラマブル超音波送受信機に接続し光音響信号を受信した。使用したレーザーは波長532 nm、パルス幅7 ns、繰り返し周波数20 Hzで、光ファイバを通して上部からレーザー光を照射した。レーザー光の安全性を十分確認し、画像化アルゴリズムを十分検証したうえで生体の手掌皮下の微小血管の可視化を行った。図8は手掌皮下の血管網で、直径80 μm程度の血管が三次元画像として十分に視認できる。また、レーザーの繰り返し周波数が20 Hzなので、20 fps相当のデータが取得できることは当然として、ディスプレイ上には10 fpsで動画像を表示することが可能になっている。

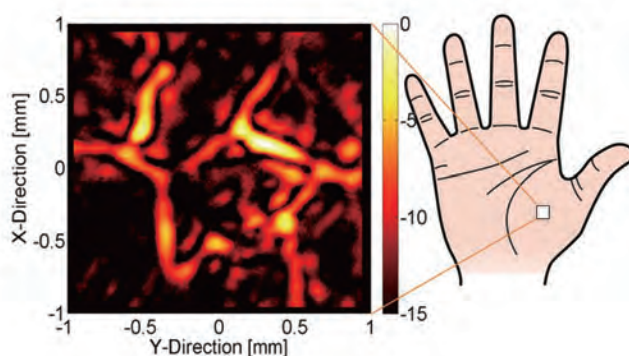


図8

#### 5. 最後に

光音響イメージングは新たなイメージングモダリティで、医と工、光と音のコラボレーションで発展してきた。現在は産学官金の連携で事業化を目指すフェーズに入っており、日本産業の未来を担う医療機器開発の国際展開を図っている。

医療機器開発については、これまで述べたような研究のみならず、学生の教育にも力を入れている。主に医工学研究科修士学生を対象とした「医療機器学」という講義では、当初は筆者が医療機器総論、医療機器各論を教える座学の講義であったが、現在では外部講師を招へいし、医薬品医療機器機構 (PMDA) からは医療機器のレギュラトリーサイエンス、医療機器メーカーからは医療機器産業の実際、ベンチャーキャピタルからはビジネスモデル構築というように、スペシャリストによる特別講義も行っている。さらに、図9に示すように、学生を4~5名のグループに分け、病院で医療ニーズを探索し、その課題を解決するための医療機器アイデアを創出、一部のグループは実際にプロトタイプを作るという問題発掘および体験型学習も行っている。これらの成果をもとに、2015年にはオランダのデルフト工科大学とエラスムスメディカルセンターで、2016年には台湾の国立台湾大学でプロトタイプを用いたプレゼンテーションを行った。このように、医療機器を国際展開するアントレプレナー育成にも力を注いでいる。

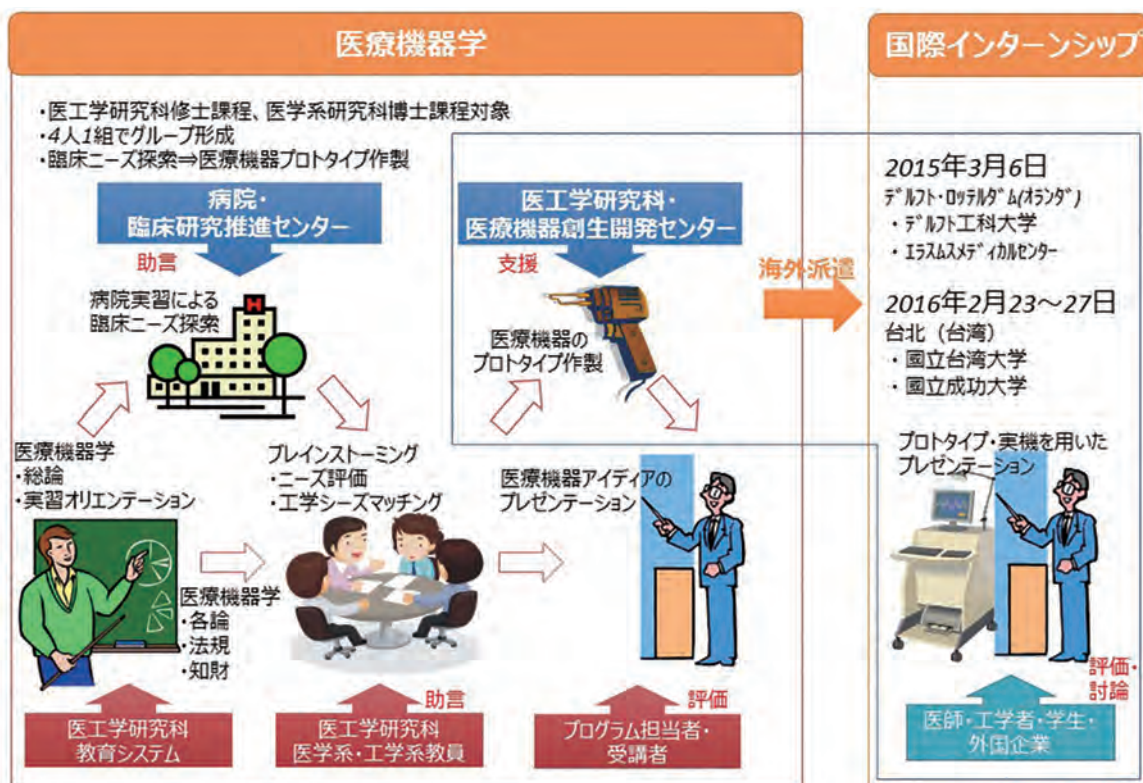


図9

**【著者略歴】**

さいじょう よしふみ  
西條 芳文

**【学歴・職歴】**

- 1988年 東北大学医学部医学科 卒業  
仙台厚生病院、東北厚生年金病院循環器科 等で  
研修
- 1993年 東北大学大学院医学研究科内科学専攻 修了  
博士(医学)
- 1993年 仙台厚生病院 循環器科 医師
- 1995年 公立深谷病院 循環器科 科長
- 1997年 東北大学加齢医学研究所 助手
- 1999年 デンマーク・オーフス大学 客員教授
- 2004年 東北大学加齢医学研究所 助教授
- 2008年 東北大学大学院医工学研究科 医用イメージング  
研究分野 教授  
東北大学大学院医学系研究科 兼任
- 2012年 東北大学病院 生理検査センターアドバイザー
- 2014年 東北大学 教育研究評議員  
東北大学医工学研究科医療機器創生開発センター  
センター長

**【専門】**

医用イメージング、特に超音波医学、光音響イメージング、  
医療機器学



## IoT/AIを支える半導体技術の 開発へ向けて

東北大学  
未来科学技術共同研究センター  
教授 小柳 光 正

### 1. はじめに

IoT技術とAIの急激な進歩で、世の中が大きく変わろうとしている。このような変革をもたらすきっかけとなったのが、半導体技術、ネットワーク技術の進歩によってビッグデータと呼ばれる膨大なデータを扱えるようになったことである。ビッグデータを取り扱えることになったことにより、これまで実用化が難しかった人工知能（AI）や深層学習（Deep Learning）という新しい情報処理手法が現実化し、自動運転車や知能ロボットの発展を促すなど、第4次産業革命といわれる新しいうねりを人類の歴史にもたらそうとしている。今後、半導体素子やセンサは、IT機器だけでなく、人、物、環境、それによって構成される社会のあらゆる部分に導入され、これらがインターネットで接続されることによって環境そのものが知能化（Ambient Intelligence）された知能環境社会が形成されると考えられ

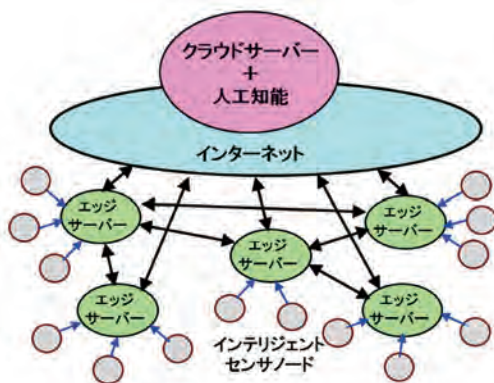


図1. トリリオンセンサ/IoT時代の情報処理と情報ネットワーク

る。このような社会では、膨大な数のセンサがインターネットに接続されるトリリオンセンサ時代が到来すると言われているが、これらのセンサからのデータを中央のクラウドサーバーで処理しようとするとクラウドサーバーに膨大な負荷がかかるとともに、インターネットの使用効率が大幅に低下する恐れがある。そのため、トリリオンセンサ時代のセンサは、図1、図2に示すように、センサ自身である程度の情報処理（エッジ・コンピューティング）を行って高付加価値の圧縮されたデータを出力できるようになることが求められる。このようなセンサのスマート化とともにセンサモジュール全体の低消費電力化も重要となってくる。これまで、半導体集積回路は素子の微細化によって高速化、高性能化を行ってある程度のインテリジェント化を実現してきたが、結果として消費電力が急増し、電力危機と言われるようになってきている。したがって、今後は、素子の微細化による高速化や高性能化にだけ頼るのではなく、集積回路も含めてセンサモジュール全体の消費電力を飛躍的に削減できる新しい手法の確立とそれを実現するためのシステム集積化技術の確立が急務である。そこで、我々は、新しい知能環境社会やトリリオンセンサ時代に対処するための新しい半導体技術およびシステム集積化技術の確立を目指して研究開発を行ってきた。

### 2. IoTのための三次元ヘテロインテグレーション

IoT用のデバイス、システムには低電力と多機能性が強く求められる。このようなデバイス、システム実現のためには3次元ヘテロインテグレーションのような新しい集積化技術が必須となる。3次元ヘテロインテグレーションでは、これまでの半導体集積回路技術と違って、ウェハや基板上に異なった種類のチップやデバイスを集積できるという大きな特徴がある<sup>1), 2)</sup>。チップを積層することによって、チップサイズを小さくでき、長距離配線を減らすことができるのも大きな利点である。我々は、図3に示すように、マイクロプロセッサやメモリ、アナログLSI、RF-IC、パワーIC、センサーチップ、MEMSチップなどの異種チップを多層に積層し、層間を多数の微細貫通配線（TSV：Through Silicon Via）で接続する3次元ヘテロインテグレーション技術の確立を目指している<sup>3)</sup>。しかし、このような異なったチップやデバイスの3次元ヘテロ集積をチップ一個ずつ行っていたのでは積層チップの作製に多大の時

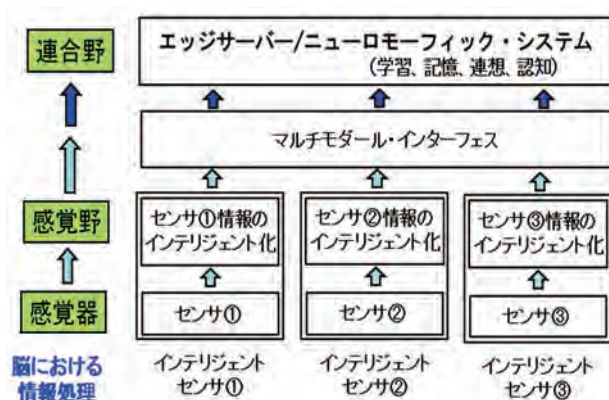


図2. センサのインテリジェント化による階層的情報処理

間を要し、コストが高くなって実用的ではない。したがって、コスト低減のためにはウェハレベルでの積層が必須となる。しかし、ウェハレベルでの積層はウェハの歩留まり(良品チップ率)が90%以上と高くなければ、積層数が増すにつれて積層チップの歩留まりは急激に低下する。また、ウェハサイズが異なるとウェハレベルの積層は事実上不可能である。そこで、我々は、図4に示すように、良品チップ(KGD: Known Good Die)のみから成る再構成ウェハ(Reconfigured wafer)を積層するという新しいウェハレベル積層技術を開発している。しかし、この方法でも、再構成ウェハをチップ一つずつ位置合わせして接合していたのでは、再構成ウェハの作製に膨大な時間を有し、実用化は期待できない。そこで、図5に示すように、液体の表面張力を利用して多数のチップをSiウェハに高精度で位置合わせした後、静電接着するセルフアセンブリー技術を開発した<sup>4)-10)</sup>。チップの位置合わせ、静電接着は全チップ一括

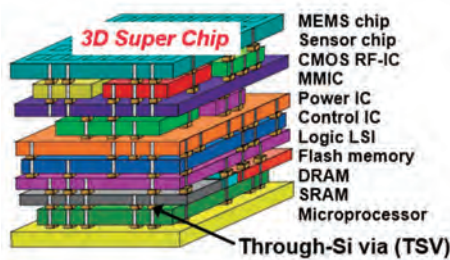


図3. 3次元ヘテロインテグレーション

で行う。このセルフアセンブリー技術を用いて、8インチウェハに500個のチップを1秒以下の位置合わせ時間で同時一括張り合わせできることを確認している。チップの位置合わせ精度は0.5~1 μmである。以上のようなセルフアセンブリー技術を用いて、MEMS圧力センサーチップとCMOSチップを張り合わせたヘテロ集積チップ、光電子デバイスを集積したヘテロ集積チップ、スピンメモリとCMOSチップを張り合わせたヘテロ集積チップ、生体埋め込み用ヘテロ集積チップなどの試作に成功している<sup>11)-14)</sup>。図6はCMOSチップ上にセルフアセンブリーによりMEMS圧力センサーチップを積層したヘテロ集積チップの写真である。3次元ヘテロインテグレーション技術を用いて、高性能、低電力の3次元LSIの試作も行っている。TSVを用いた3次元-LSIでは膨大な数の微細TSVを形成することが可能なので(チップあたり100万本以上)、これらのTSVを用いて同時に転送するデータの量を増やせば、LSIの性能を飛躍的に高めることができる。また、TSVを使って効率よく並列処理を導入できれば、LSIの性能を向上させながら低電力化が可能となる。このような3次元LSIの例として、3次元積層型イメージセンサと3次元積層型マイクロプロセッサを設計、試作した。3次元積層型イメージセンサでは、イメージセンサ回路とアナログ処理回路、並列AD変換回路が積層されており、高速の並列画像処理が可能である<sup>15)</sup>。3次元積層型マイクロプロセッサでは、マルチコアプロセッサ層とメモリ層を多層に積層してプロセッサ層とメモリ層間のデータバンド

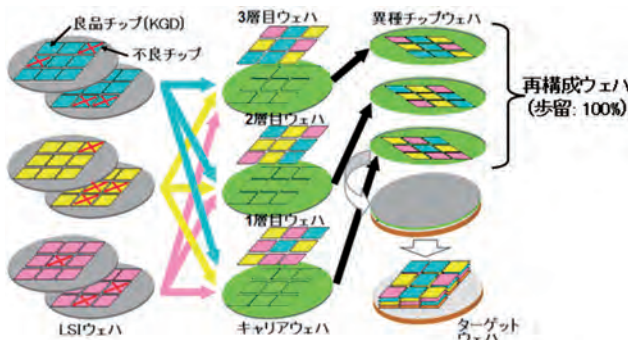


図4. 再構成ウェハを用いたウェハレベル3次元集積化技術

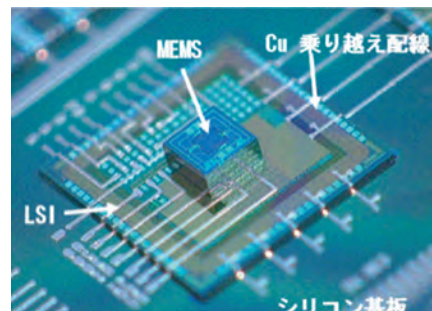


図6. セルフアセンブリー技術を用いたLSIチップ上へのMEMSチップの積層

チップ・セルフアセンブリー

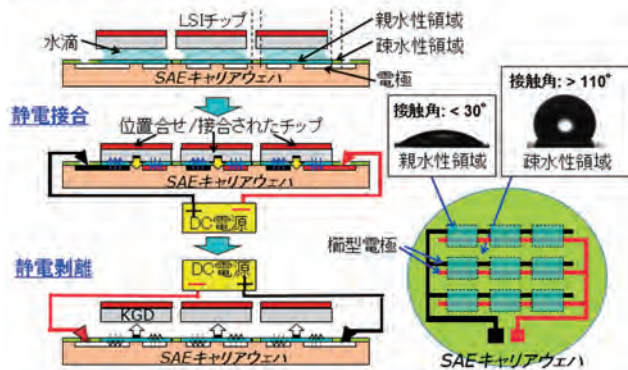


図5. セルフアセンブリーと静電接合を用いたマルチチップ一括接合による再構成ウェハの作製

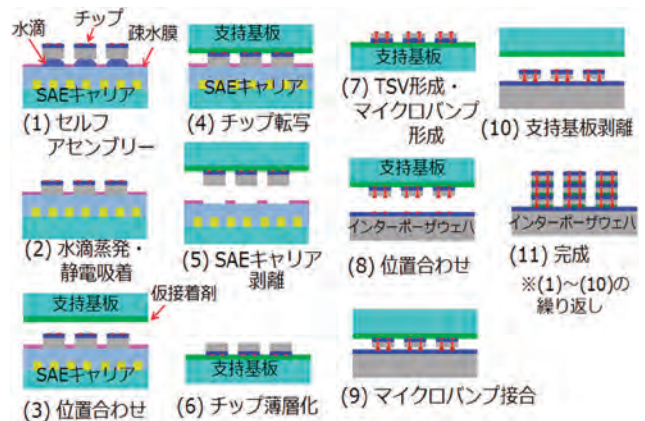


図7. セルフアセンブリーを用いた3次元LSI作製工程

幅を増大させることによって性能および消費電力の飛躍的な改善を目指している。メモリ層とマルチコア・プロセッサ層の間に、ネットワーク層、自己診断・修復層とそれを制御するためのスーパーバイザープロセッサ (SVP) を搭載することによって、LSI全体のディペンダビリティの向上も目指している<sup>16)</sup>。このような3次元LSIの作製工程を図7に示す。図8は3次元LSI作製工程の主要工程が終了した時点でのチップのSEM断面観察写真である。プロセス条件の最適化を行った結果として、それぞれの工程で不良が発生することもなく、良好な加工形状が得られていることがわかる。このようにして試作した3次元積層型イメージセンサのX線CTスキャン像とTSVのSEM断面観察写真を図9に示す。チップ4層から成る積層構造が明確に観察されている。また、各層間は多数のTSV (各層当たり約2000本) により接続されている様子もわかる。TSVには、Back Via方式で形成した直径5 $\mu$ mのCu-TSVを採用しており、各層のチップ厚さは50 $\mu$ mである。試作した3次元積層型イメージセンサ、3次元積層型マイクロプロセッサともに良好な動作が確認されている。以上のように、IoT用のデバイス、システム実現の鍵となる新しい3次元ヘテロインテグレーション技術の開発に成功している。

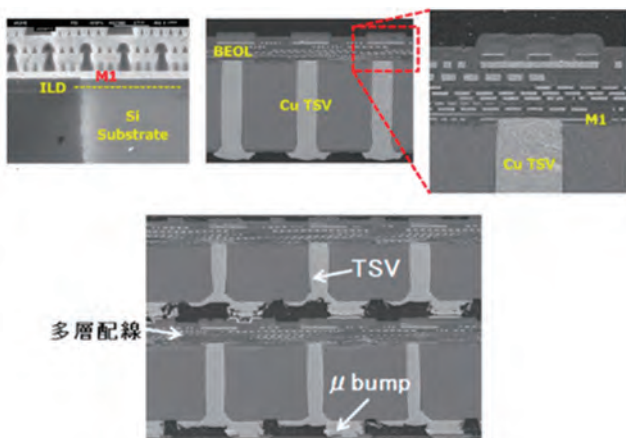


図8. Back Via方式により作製した3次元LSIの断面形状

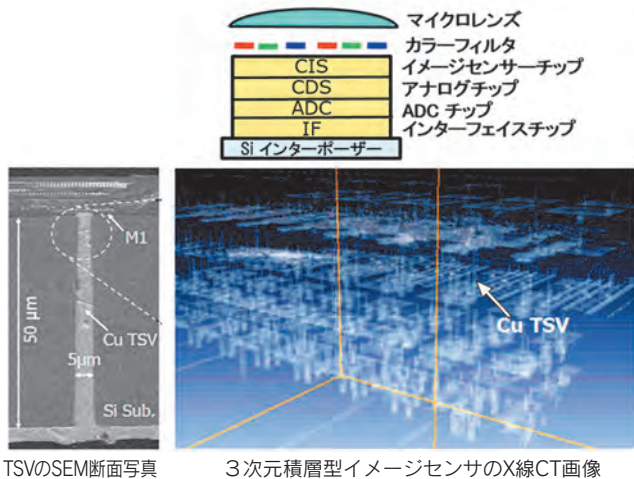


図9. 試作した3次元積層型イメージセンサのSEM断面観察写真とX線CT画像

### 3. 三次元ニューロLSIとニューロシステム

超低電力で高性能、高機能の信号処理が可能な情報処理システムの代表は我々の脳である。脳は、視覚や聴覚、触覚、味覚、臭覚などの異なった感覚情報をまとめて並列処理することによって低電力化と高性能化、高機能化を実現している。それぞれの感覚情報は感覚器と呼ばれる五感センサで受容され、感覚野と呼ばれる処理部で情報の圧縮と高付加価値化が実施される。情報の圧縮と高付加価値化が行われた後は、各感覚野からの出力情報は同一の形式を共有している。これらの圧縮された高付加価値情報が連合野と呼ばれる処理部へ送られて学習や連想、認知などの高次の情報処理が実行される。連合野では感覚野に関係なく同一の信号処理アルゴリズムにより、いくつかの感覚器官からの情報をまとめて処理する (One Learning Theory)。このように、脳では、処理装置 (CPU) と主記憶を用いた高速の演算処理を行わないため、超低電力で高性能、高機能の信号処理が可能となっている。したがって、センサ・モジュールやセンサ・システム的大幅な低電力化と高性能化、高機能化を達成するためにはこのような脳の情報処理機能を模倣した新しい情報処理の手法とそれを具現化するための新しい集積回路技術を確認する必要がある。そこで、我々は、脳における視覚情報処理にまず着目し、その情報処理手法を取り入れた新しい三次元ニューロLSIとニューロシステムを3次元ヘテロインテグレーション技術を用いて実現すべく研究開発を行っている。脳における階層的な視覚情報処理の流れを図10に示す。図には、このような視覚情報処理機能を模倣するための多層ニューラルネットワークの構成も示されている。視覚情報処理や画像情報処理に関しては、図10に示したような畳込みニューラルネットワーク (CNN: Convolutional Neural Network) を基盤とした深層学習 (Deep Learning) を導入することによって高い画像認識率を達成できることが示されたことで、深層学習が一躍注目を浴びるようになった。このような深層学習に基づくニューラルネットワークを3次元ヘテロインテグレーション技術により実現しよとすると、二通りの方法が

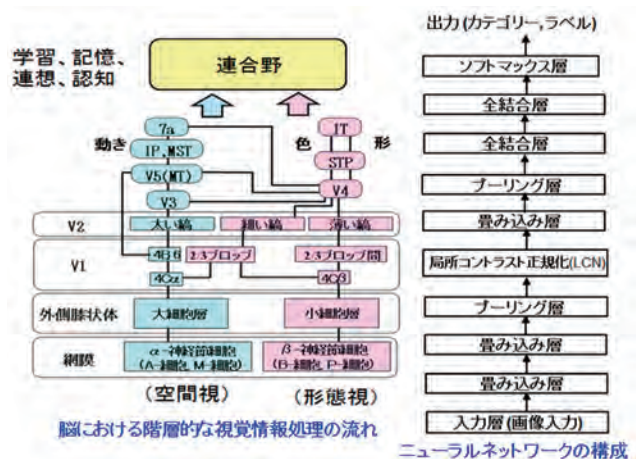


図10. 脳における階層的な視覚情報処理の流れと階層的ニューラルネットワークの構成

考えられる。一つは、積和演算を中心とした膨大なニューロ計算を高速、低出力で行うための専用ニューロプロセッサを開発し、このニューロプロセッサと連想メモリを図11に示すようにシリコンインターポーザーに搭載してニューロシステムモジュールを構成するやり方である。連想メモリには学習後のニューロン間の膨大な重みデータが格納されるため、膨大なメモリ容量と広いデータバンド幅を有するインターフェイスが必要となる。そのため、3次元構造は必須となる。しかし、このようなニューロシステムモジュールは、ニューロプロセッサの消費電力がそれほど下げられないことから、その応用分野はハイエンドのニューロシステムやAIシステムに限られると考えられる。ニューロLSIをロウエンドの応用にまで広げようとする、ニューロ計算をデジタルデータを用いた論理演算にだけ頼るのではなく、アナログ/デジタルデータ混在のニューロモーフック回路やメモリ素子を駆使して低電力のニューラルネットワークを構成する必要がある。しかし、この方法では、ニューロン間を接続する膨大な数の配線をどのように実現するかが大きな課題となる。上下のすべてのニューロンが直接接続される全結合 (Full Connection) 型のニューラルネットワークを構築しようとする、図12に示すように、下層のニューロンと上層のニューロンをチップ周辺に直行するように配置して、その間にX方向の配線とY方向の配線をメッシュ状に配置し、X信号線とY信号線の交点にシナプスの役割をさせるためのメモリ素子を配置するという構成になる。この構成では、膨大な配線面積が必要となるため、限られたニューロン数のニューロチップしか実現できない。このような構成を用いて数百万画素以上の画素数をもつイメージセンサチップの出力を処理するニューロLSIを構築しようとする、図

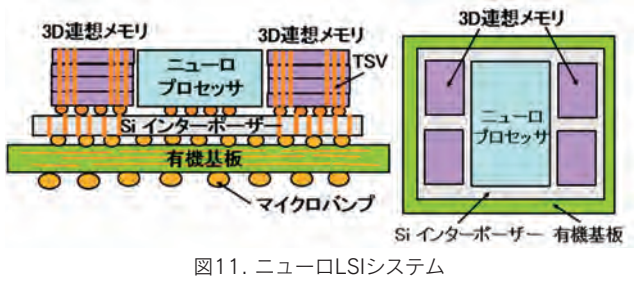


図11. ニューロLSIシステム

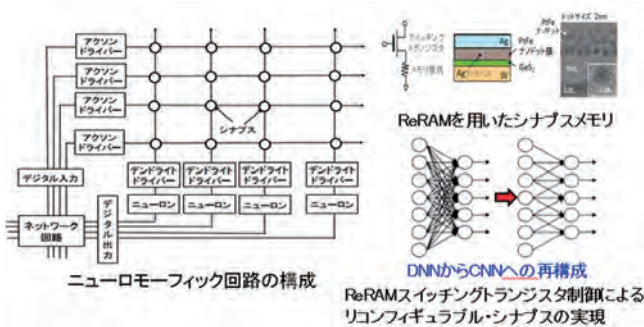


図12. リンコンフィギュラブル・ニューラルネットワーク回路の構成とシナプスメモリ

13に示すように、イメージセンサの各画素からの出力をニューロLSIの入力層の各ニューロンに接続する必要があるため、入力ニューロン層と次段のニューロン層 (図では1層目ニューロンと表示) の間で膨大な結線を構築しなければならないことから、最新のLSI多層配線技術や3次元集積化技術をもってしても、このようなニューロLSIの実現は不可能である。そのため、小さな面積で上下のニューロン間の全結合を実現するための新しい手法の開発が求められる。我々は、3次元ヘテロインテグレーション技術を基盤として、このような手法について研究を行っている。このような手法が開発されれば、図14に示すように、視覚情報だけでなく、いろいろなセンサからの出力を低電力で処理して情報の高度化、情報圧縮を行うインタリジェントセンサモジュールも実現可能となる。

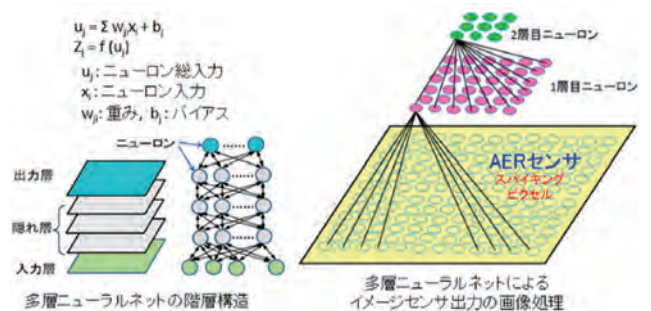


図13. 多層ニューラルネットによるイメージセンサ出力の画像処理



図14. インテリジェント・センサモジュールの構成

4. まとめ

IoTやAIを基盤とした新しい知能環境社会やトリリオンセンサ時代の到来に向けて、IoTやAIを支える基幹ハードウェア技術である3次元ヘテロインテグレーション技術について研究を行ってきた。これまで、液体の表面張力を利用したセルフアセンブリーと静電接着技術を用いることで、種類の異なるLSIチップやセンサをウェハ上に一括集積することに成功している。また、この技術を用いて、MEMS圧力センサーチップとCMOSチップを張り合わせたヘテロ集積チップ、光電子デバイスを集積したヘテロ集積チップ、スピンメモリとCMOSチップを張り合わせたヘテロ集積チップ、生体埋め込み用ヘテロ集積チップ、3次元積層型イメージセンサ、3次元積層型マイクロプロセッサなどの試作に成功している。更に、この技術を基盤として、イメージセンサからの画像データを処理するための新しいニューロLSIについても研究開発を行っている。

## 【参考文献】

- 1) M. Koyanagi et al., IEEE Trans. on Electron Devices, Vol.53, No.11, pp. 2799-2808, 2006.
- 2) M. Koyanagi et al., Proc. of THE IEEE, Vol.97. No.1, pp.49-59, 2009.
- 3) M. Koyanagi, IEEE IEDM, pp.8-15, 2013.
- 4) T. Fukushima, M. Koyanagi et al., IEEE IEDM Tech. Dig., pp.359-362, 2005.
- 5) T. Fukushima, M. Koyanagi et al., IEEE IEDM Tech. Dig., pp.985-988, 2007.
- 6) T. Fukushima, M. Koyanagi et al., IEEE IEDM Tech. Dig., pp.499-502, 2008/ IEEE ISSCC Dig. Tech. Paper, p.515, 2009.
- 7) T. Fukushima, M. Koyanagi et al., IEEE IEDM Tech. Dig., pp.349-352, 2009.
- 8) T. Fukushima, M. Koyanagi et al., IEEE Trans. on Components, Packaging and Manufacturing Technology, Vol. 1, No. 12, pp.1873-1884, 2011.
- 9) T. Fukushima, M. Koyanagi et al., IEEE Trans. on Electron Devices, Vol.59, No.11, pp.2956-2963, 2012.
- 10) T. Fukushima, M. Koyanagi et al., IEEE IEDM Tech. Dig., pp.789-792, 2012.
- 11) K-W Lee, M. Koyanagi et al., IEEE Trans. On Electron Devices, Vol.58, No.3, pp.748-757, 2011.
- 12) K-W Lee, M. Koyanagi et al., IEEE IEDM Tech. Dig., pp.531-534, 2009.
- 13) T. Tanaka, M. Koyanagi et al., Dig. Tech. Papers of Symp. on VLSI Tech. and Circuits (VLSI2012), pp.169-170, 2012.
- 14) T. Tanaka, M. Koyanagi et al., IEEE IEDM Tech. Dig. Pp.1015-1018, 2007.
- 15) K-W Lee, M. Koyanagi et al., IEEE IEDM Tech. Dig., pp.785-788, 2012.
- 16) H. Hashimoto, M. Koyanagi et al., IEEE 3 DIC, Oct., 2013.

## 【著者略歴】

こやなぎ みつまさ  
小柳 光正

1947年2月生まれ

1974年 東北大学大学院工学研究科博士課程修了

1974年 (株)日立製作所中央研究所入社

1985年 (株)日立製作所退職

1985年 米国ゼロックス社パロアルトリサーチセンター入社

1987年 ゼロックス社退職

1988年 広島大学集積化システム研究センター 教授

1994年 東北大学工学部機械知能工学科 教授

1995年 東北大学大学院工学研究科機械知能工学専攻教授

2003年 東北大学大学院工学研究科バイオロボティクス専攻 教授

2010年 東北大学未来科学技術共同センター 教授

# 平成27年度 事業報告

宮城県における工業技術に関する研究振興を図り、もって地域社会の科学技術・産業の向上発展等に寄与するため、次に掲げる事業を行った。

## 1. 学術及び科学技術の振興

(1) 若手研究者育成のため「青葉工学振興会賞」及び「青葉工学研究奨励賞」の授与

① 第9回「青葉工学振興会賞」の授与 「応募件数：9件」

研究者	研究業績名
東北大学工学研究科バイオロボティクス専攻 特任准教授 今井 陽介	複雑な生体流れ問題に対する計算バイオメカニクスの開発

② 第21回「青葉工学研究奨励賞」の授与 「応募件数：19件」

研究者	研究業績名
東北大学電気通信研究所 助教 金井 駿	強磁性金属における磁化の電氣的制御に関する研究
東北大学工学研究科応用化学専攻 助教 田村 正純	酸化セリウム触媒の酸化・還元及び酸・塩基特性を活かした有機合成反応
東北大学工学研究科材料システム工学専攻 助教 藤井 啓道	金属材料の超音波接合における接合機構の解明

(2) 国際会議、研究会等各種学術研究集会への助成

① 国際学術会議

東アジアにおけるレジリエントでサステナブルな都市・建築環境の実現に関する国際セミナー 外	5件
--	----

② 学術研究集会

資源・素材学会東北支部平成27年度春季大会 外	5件
-------------------------	----

(3) 大学院学生、学部学生等の視野を広めるための国際交流への助成

本学と韓国浦項工科大学との国際交流 外	3件
---------------------	----

(4) 東北大学工学研究科等における優秀な外国人留学生及び博士後期課程進学者への奨学金の給付

平成27年度外国人留学生奨学金（10月入学者2名）	7名
平成27年度博士後期課程進学者奨学金（2-1）	17名
平成26年度博士後期課程進学者奨学金（2-2）	13名

(5) 東北大学工学研究科等における研究成果や工学情報を県内企業等に提供する機関誌「翠巒」を発行

「翠巒」第30号発行（28年3月）	1,200部
-------------------	--------

(6) 東北大学祭への助成

開催期間	平成27年10月30日(金)～11月1日(日)
場 所	川内キャンパス

## 2. 研究教育活動助成

### (1) オープンキャンパスへの助成

#### ① 工学研究科、情報科学研究科、環境科学研究科及び医工学研究科のオープンキャンパスへの助成

開催期間	平成27年7月29日(水)～30日(木)
場 所	青葉山キャンパス

#### ② 子供科学キャンパスへの助成

開催期間	平成27年7月29日(水)～30日(木)、10月13日(火)～14日(水)
場 所	青葉山キャンパス工学研究科創造工学センター

### (2) 教育研究活動への助成

東北大学工学部・工学研究科等の教育研究活動や情報発信等の事業活動に対し助成した。

## 3. 工学に関する研究開発

### (1) 科学技術に関する試験研究

地域における科学技術の振興を推進するために、研究員を委嘱（非常勤研究員）し、施設・設備等については、東北大学工学研究科等と包括協定を締結し、試験研究を行った。

民間企業・団体、地方公共団体等からの委託研究	96件
------------------------	-----

### (2) 学術研究を行なうための指定研究助成金の交付

指定研究助成金として教育・研究の奨励を目的とする奨学寄附金	64件
-------------------------------	-----

## 4. 産学官交流推進事業等の助成

### (1) 産学官交流大会への参画

産業界、大学等の学術研究機関および、国、県等の産学官の相互連携・交流促進を図るための交流大会に共催団体として参画した。

区 分	開催日	場 所
第54回新春産学官交流大会	平成28年1月22日(金)	仙台国際センター

### (2) みやぎ優れMONO 発信事業への参画

宮城県内の良いモノを「みやぎ優れMONO」として認定し、県内外に発信するための認定制度と、認定企業並びに認定を目指す企業への技術、経営、販売等について様々な支援を構築し、宮城から数多くのものづくりヒット商品を生み出すことを目的とした支援事業に共催団体として参画した。

区 分	認定式	場 所
第8回みやぎ優れMONO事業	平成28年1月22日(金)	仙台国際センター

## 5. 附属明細書

記載事項はありません。

## 編 集 後 記

一般財団法人青葉工学振興会の発行する機関誌「翠巒」第三十一号をお届けします。

青葉工学振興会は昭和六十年三月発足以来、「学術研究及び科学技術の振興並びに地域産業の振興に寄与することを目的」として「工学に関する研究開発及び研究・教育助成並びに工学に関する普及・啓発などに関する事業」を行っております。「翠巒」も「工学振興に関する情報提供等の活動」の一環として、東北大学工学研究科等の研究成果及び工学情報を広く産業界等に提供するため、みやぎ工業会会員を始めとした県内の産学官の機関に対して、東北大学工学研究科等の先生方が最先端の研究テーマを話題にして、わかり易く解説した記事を中心に年一回発行しております。

本号では、滝澤工学研究科長が巻頭言にて東北大学で展開される多彩な研究はいつでも日本の未来に向けて真に投資に値するものであるとの確信が述べられました。さらに平成二十八年度青葉工学振興会賞ならびに青葉工学研究奨励賞の授賞報告および受賞者の業績内容と概要を掲載致しました。これらの賞には年々優れた業績内容の応募が集まり、高レベルでの厳正な選考が行われており、歴代の受賞者が工学および工業技術分野の将来を担う人材として着実に育っておりますことから、若手の登竜門とみなされる評価の高い賞として定着して参りました。今後ともさらに多くの積極的な応募が寄せられますことを大いに期待しております。また、「研究プロフィール」では工学研

究科、情報科学研究科、環境科学研究科、医工学研究科ならびに未来科学技術共同研究センターで進行中の基礎的・先導的研究のいくつかをご紹介します。ご多忙の中、原稿をお寄せ頂きました執筆者の皆様方に厚くお礼申し上げます。

本財団では「工学に関する研究・教育への助成」の一環として、外国人留学生と工学研究科等の博士後期課程への進学者を対象に、推薦・選出された優秀な学生に対して奨学金の給付を行っております。昨今の対象学生と入学進学時期の多様化ならびに本財団以外の奨学支援制度の変化に対応するべく、奨学生資格、受給者数、給付時期を柔軟に運用することで、さらに多くの優秀な学生に効果的な奨学金支援ができるよう努めております。これら本財団の奨学生に今後とも多くの応募が寄せられますようよろしくお願い申し上げます。

東日本大震災から六年を経て工学部キャンパスもすっかり新しくなり、平成二十七年十二月には仙台市営地下鉄東西線が開通して青葉山駅からの通勤通学も通常風景となり、工学部は未来に向けて日々変化発展を続けております。

最後になりましたが皆様におかれましては本財団のより一層の発展のためご協力ご支援をどうぞよろしくお願い申し上げます。

(常務理事 東北大学大学院工学研究科教授 粉川博之 記)

翠巒

一般財団法人青葉工学振興会

〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉6-6-04

東北大学大学院工学研究科内

電話 022-795-7991

<http://www.aoba-found.or.jp/>