

JOURNAL OF TECHNOLOGICAL RESEARCHES

Society of Science and Engineering/Architecture and Environmental Design, Kanto Gakuin University

Vol. 63
March 2020

研 究 報 告

第 63 卷

研 究 報 告

第 63 卷

(通巻110号)

目 次

CONTENTS

—研究論文—

川原 一芳, 野口 翔, 尾之上 さくら: *Lactobacillus fermentum* のペプチドグリカンの調製と GC-MS による含有アミノ酸分析…………… 1

清水 由巳, 菅原 友好: Heparinase 遺伝子ホモログは *Cryptococcus neoformans* の DBB 染色反応に必須である…………… 5

高橋 希恵, 飯田 博一: anti-Bredt 化合物の合成と 2次元 NMR による構造解析…………… 13

村山 優奈, 赤瀬 麻衣, 城戸 隆宏, 松井 和則: 大気焼成中における $\text{SrAl}_2\text{O}_4: \text{Eu}^{2+}$ 蛍光体の作製とその発光特性…………… 19

堀田 智哉, 佐藤 純: 大学のオープンキャンパスにおける VR 技術の活用とその効果 (機械学系の場合)…………… 23

山泉 凌, 武田 克彦, 伊東 和彦: オールド・ダットサンから見る自動車技術の変遷 (第二報)…………… 31

岸田 晃直, 三和 怜央, 宮永 宜典: ディンプルを有する平行平板軸受の流体潤滑特性の実験的検討…………… 39

二瓶 美摘, 三和 怜央, 宮永 宜典: 転がり軸受のトルクに及ぼすグリースレオロジーの影響…………… 45

小堤 望史, 小松 隼人, 鈴木 拓弥, 内山 光夫: リン酸水溶液を用いた電解加工と陽極酸化の併用加工…………… 51

石坂 雄平: ブロックチェーンに基づく学術論文アーカイブシステムの初期的検討…………… 59

—Research Paper—

Kazuyoshi KAWAHARA, Sho NOGUCHI, Sakura ONOUE: Preparation of peptidoglycan from *Lactobacillus fermentum* and analysis of amino acids contained in it using GC-MS…………… 1

Yumi SHIMIZU, Yuko SUGAWARA: Heparinase gene homolog is essential for the DBB staining reaction in *Cryptococcus neoformans*…………… 5

Kie TAKAHASHI, Hirokazu IIDA: Synthesis of anti-Bredt compounds and structural analysis by 2D NMR…………… 13

Yuna MURAYAMA, Mai AKASE, Takahiro KIDO, Kazunori MATSUI: Preparation and Photoluminescence Properties of $\text{SrAl}_2\text{O}_4: \text{Eu}^{2+}$ Phosphors Sintered in Air Atmosphere…………… 19

Tomoya HOTTA, Jun SATO: Practical and Effect of Using VR Contents on University's Open Day (In Case of Course in Mechanical Engineering)…………… 23

Ryo YAMAIZUMI, Katsuhiko TAKEDA, Kazuhiko ITO: Historical Transition of Automotive Technology Review through the Type 17 Datsun Second Report…………… 31

Terunao KISHIDA, Reo MIWA, Norifumi MIYANAGA: Experimental investigation of hydrodynamic lubrication characteristics of dimpled parallel plate bearings…………… 39

Mitsumi NIHEI, Reo MIWA, Norifumi MIYANAGA: Influence of Grease Rheology on Frictional Torque of Rolling Bearings…………… 45

Nozomi KODUTUMI, Hayato KOMATSU, Takumi SUZUKI, Mitsuo UCHIYAMA: Combined Processing of Electrochemical Machining and Anodic Oxidation Machining using Phosphoric Acid Aqueous Solution…………… 51

Yuhei ISHIZAKA: An initial consideration of an academic paper archiving system based on blockchain…………… 59

岡本 教佳, 高橋 大介, 岩佐 友希, 中屋敷 かほる : 可 視光画像による虹彩認証のための画像処理.....	65	Noriyoshi OKAMOTO, Daisuke TAKAHASHI, Yuuki IWASA, Kahoru NAKAYASHIKI: The Imaging Method for Iris Certification Using Visible Image	65
神戸 渡, 齋藤 智之 : 損傷を受けた筋かい耐力壁の接合部 の補修方法に関する実験的研究—エポキシ系接着剤を用い た場合—.....	73	Wataru KAMBE, Tomoyuki SAITO: A REPAIRING METHOD FOR JOINTS IN DAMAGED BRACE SHEAR WALLS -EXAMINATION USING EPOXY ADHESIVE-	73
—研究ノート—		—Research Note—	
野口 優志, 山平 多恵子 : 神奈川県内における化学に対す る高校生への意識調査と考察.....	81	Yushi NOGUCHI, Taeko YAMAHIRA: A study of consciousness investigation of chemistry among high school students in Kanagawa prefecture	81
		Minato KAWAGUCHI, Hiroshi SATO, Iku MATSUMOTO, Susumu TAKEMURA, Kentaro TAKAHASHI: Characteristics of Heartbeat Activity of College-Age Shooters in Standing Rifle Shooting	89
理工 / 建築・環境学会「研究報告」投稿規程.....			95

Lactobacillus fermentum のペプチドグリカンの調製と GC-MS による含有アミノ酸分析

川原 一 芳*
野口 翔*
尾之上 さくら*

Preparation of peptidoglycan from *Lactobacillus fermentum* and analysis of amino acids contained in it using GC-MS

by

Kazuyoshi KAWAHARA
Sho NOGUCHI
Sakura ONOUE

要 旨

Lactobacillus fermentum は、他の *Lactobacillus* 菌種のペプチドグリカン (PG) がジアミノ酸としてリシン (Lys) やジアミノピメリン酸 (DAP) を含んでいるのに対して、PG 中のジアミノ酸としてオルニチン (Orn) を含んでいるという特有の性質を有している。*L. fermentum* の PG が示す免疫刺激活性を他の *Lactobacillus* 菌種の PG と比較するために、*L. fermentum* の PG を調製し、リゾチーム処理で可溶化し、その純度をアミノ酸分析を用いて調べた。アミノ酸分析はブチルエステル、*N*-トリフルオロアセチル誘導体にしてガスクロマトグラフィー/マススペクトロメトリー (GC-MS) で分析した。可溶化した *L. fermentum* の PG は同様に調製した *L. plantarum* PG と比較して、PG を構成するアミノ酸だけではなく、他のアミノ酸もいくつか含んでいたため、免疫活性をもつ何らかのタンパク質が混入していると考えられた。この研究の結果、*Lactobacillus* 菌種の PG の免疫活性を比較するためには、PG の調製法を検討する必要があることが示された。なお、GC-MS 分析において *L. fermentum* PG に含まれる Orn の誘導体はアスパラギン酸 (Asp) の誘導体と分離ができないことがわかったため、Orn を Asp と分離して検出するために、メチルエステル、*N*-トリフルオロアセチル誘導体を使用した。

Abstract

Among *Lactobacillus* species, *Lactobacillus fermentum* has a unique position because it contains ornithine (Orn) in peptidoglycan (PG) as diamino acid instead of lysine (Lys) or diaminopimelic acid (DAP), which are the constituents of that of other *Lactobacillus* species. In order to compare the immunostimulating activity of PG from *L. fermentum* with those of other *Lactobacillus* species, PG of *L. fermentum* was prepared, solubilized by lysozyme treatment, and its purity was determined by the amino acid analysis. The amino acids were analyzed by gas-liquid chromatography/mass spectrometry (GC-MS) in the form of butyl ester, *N*-trifluoroacetyl derivatives. Compared with *L. plantarum* PG prepared by the same procedure, the solubilized PG of *L. fermentum* still contained several amino acids in addition to those of PG constituents, indicating that it is contaminated with some proteins that may have the immunostimulating activity. The present study suggested that the preparation procedure of PG should be improved for the comparative immunoactivity study of *Lactobacillus* PG. In GC-MS analysis, the butyl ester, *N*-trifluoroacetyl derivative of Orn from *L. fermentum* PG could not be separated from that of aspartic acid (Asp) present in the same PG. To solve this problem, methyl ester, *N*-trifluoroacetyl derivative was used to detect Orn separately from Asp.

Key Words: peptidoglycan, amino acids, GC-MS, *Lactobacillus fermentum*

1. 緒言

細菌の細胞表層には、グルコサミンの誘導体 (*N*-アセチルグルコサミンと *N*-アセチルムラミン酸) が連なった糖鎖とそれに結合したオリゴペプチド鎖から成るペプチドグリカン (PG) が存在しており、細胞構造を形作り、内部を保護する役割を担っている。特に、グラム陽性細菌では PG の層が厚くペプチド同士が複雑な架橋構造を作っていることが知られている¹⁾。PG は免疫学分野では抗腫瘍活性やアジュバント活性などの多様な免疫活性を示す微生物由来成分として古くから研究されていたが²⁾、近年になって免疫担当細胞内のレセプターである Nod1 および Nod2 により認識されて、炎症性サイトカイン産生を経て、免疫反応を活性化することが知られるようになった³⁾。Nod2 に認識される最少単位は *N*-アセチルムラミン酸 (3 位に乳酸が結合した *N*-アセチルグルコサミン) の乳酸部分に結合した L-アラニンと D-イソグルタミン (ムラミルジペプチド, MDP) であることがわかっている。一方、Nod1 は D-イソグルタミンとジアミノピメリン酸 (DAP) が結合したジペプチド (iE-DAP) を認識して、炎症性サイトカイン産生へと導くことが明らかになっている。ところが、全ての細菌菌種が DAP を有している訳ではないため、PG の種類によって、PG あるいはその部分構造が示す免疫活性に違いがあるのではないかと考えられる。

我々はグラム陽性細菌のうち典型的な乳酸菌である *Lactobacillus* 属の細菌を用いて PG の構造と免疫活性に関する研究を行っているが、*Lactobacillus* 属細菌では PG に DAP を有しているのは少数派であり、大部分は DAP の代わりにジアミノ酸として L-リシン (Lys) を有している。さらに *L. fermentum* では、ジアミノ酸としては L-オルニチン (Orn) を有していることが報告されている⁴⁾。そこで我々は、*Lactobacillus* PG に含まれるジアミノ酸の種類とサイトカイン産生誘導能の強さの関連性に興味を持ち、それぞれの PG が示す活性の比較を行ってきた。

PG の免疫活性を調べる上で問題となるのは、PG が水に不溶性であり扱いが難しいこと、および PG 抽出の過程で PG と同様のサイトカイン産生誘導活性を示すリポペプチド⁵⁾ が混入する可能性が高いことである。この問題を解決するために我々はこれまでの研究で、PG をリゾチームで処理し、糖鎖部分を切断することで可溶化することに成功した。このような操作で得られる可溶化 PG はタンパク質をほとんど含まないことが多く、PG の活性を比較する試料として適していることがわかっている。そこで *Lactobacillus* の 3 菌種 (*L. brevis*, *L. plantarum*, *L. fermentum*) から得られた可溶化 PG の IL-8 産生誘導活性を測定し比較したところ、*L. fermentum* 由来の PG のみが他の 2 菌種由来 PG と比べて高い値を示すという意外な結果が得られた⁶⁾。この原因は、*L. fermentum* の PG に含まれる Orn が活性に寄与しているか、あるいは用いた試料が他の PG に比べてリポペプチドのような活性を有するタンパク質を多く含むかであると考えられた。そこ

で本研究では、ガスクロマトグラフィー (GLC) およびガスクロマトグラフィー/マススペクトロメトリー (GC-MS) を用いたアミノ酸分析により PG 試料中のアミノ酸を定量し、試料の純度を調べることにした。

2. 材料と方法

2-1 使用菌株と培養方法

PG の調製には *L. plantarum* NBRC 3070 株 および *L. fermentum* NBRC 15885 株 を用いた。これらの菌株を *Lactobacilli* MRS Broth (Becton, Dickinson and Company, Sparks, MD, USA) を用いて 30°C で 24 hr, 振とう培養した。

2-2 粗 PG の調製

PG の調製は既報⁷⁾ を改良した方法で行った。培養菌体を遠心分離により集め、蒸留水で一回洗浄した後に、約 100 ml 培養液に相当する湿菌体を 10 ml の蒸留水に懸濁し 2 g のガラスビーズ (Sigma-Aldrich Co, St. Louis, MO, USA) を加えて、超音波ホモジェナイザー (超音波分散機 UH-300, エスエムテ) で破碎した。破碎液を遠心分離 (1500×G, 5 min) して得られる上清を高速遠心分離 (40,000×G, 20 min) し、この沈渣を凍結乾燥し、細胞壁画分とした。この画分を 4% SDS に懸濁して 100°C, 1 hr 加熱し、その後上記の条件で高速遠心分離し、得られる沈渣を蒸留水で 3 回洗浄し、凍結乾燥した。次にこの試料を 5% トリクロロ酢酸に懸濁し 100°C, 1 hr 加熱した後、等量のクロロホルムを加えてトリクロロ酢酸を抽出除去し、残った上清部分を高速遠心分離 (40,000×G, 20 min) することにより得られる沈渣を蒸留水で 3 回洗浄した。この沈渣をエタノールとジエチルエーテルで順次洗浄し、風乾して、粗 PG とした。

2-3 リゾチームによる可溶化とフェノール抽出による除タンパク質

粗 PG (約 10 mg) をリゾチーム (卵白製, 生化学用, 富士フィルム和光純薬) 溶液 (1 mg/ml, 50 mM Tris-HCl buffer, pH7.2) 2 ml に懸濁し、37°C, 2 hr 処理し、不溶物を除いた後、同じ緩衝液で 3 ml に増量し、TE 飽和フェノール (富士フィルム和光純薬) 1.5 ml, クロロホルム/イソアミルアルコール (25:1) 溶液 1.5 ml を加えて振とうした後遠心分離して上清を採取した。これを透析し、フェノールを除いた後、凍結乾燥して可溶化 PG とした。

2-4 アミノ酸の誘導体化

PG に含まれるアミノ酸の誘導体化は既報⁸⁾ を参考に、以下の方法で行った。粗 PG あるいは可溶化 PG 0.5 mg を 6 M 塩酸中で加水分解 (100°C, 18 hr) して、得られた分解物の 1/10 をキャップ付き試験管にとり、ロータリーエバポレーターを用いて減圧乾固させた後、1.2 M HCl-butanol (ジエチルサイエンス) 140 μ l を加え、100°C, 2 hr 加熱し、カルボキシル基をブチルエステル化した。反応後、減圧乾固し

て試薬を除き、次にジクロロメタン400 μ l, 無水トリフルオロ酢酸 (ジーエルサイエンス) 100 μ l を加えて, 150°C, 10 min 加熱することによりアミノ基をトリフルオロアセチル化した. 反応後, ロータリーエバポレーターを用いて0°C で約4 min 減圧濃縮することにより未反応の無水トリフルオロ酢酸を除き, 反応生成物を適量のジクロロメタンに溶解して分析用試料とした.

2-5 アミノ酸誘導体の分析

アミノ酸誘導体は GLC (装置: GC-2014S, 島津製作所) および GC-MS (装置: GC-MS QP2010Plus, 島津製作所) で分析した. 分析には CBP1 キャピラリーカラム (25 m, 島津製作所) を用い, 80°C から 230°C までは 5°C /min, 230°C から 300°C までは 10°C /min の昇温条件で分析した.

3. 結果

3-1 PG に含まれるアミノ酸の分析

L. plantarum と *L. fermentum* から得られた粗 PG と可溶性 PG を加水分解し, 含まれるアミノ酸を誘導体化して GLC および GC-MS で分析したところ, 粗 PG 画分にはどちらの菌の PG もグリシン (Gly), トレオニン (Thr), セリン (Ser), バリン (Val), イソロイシン (Ile) などのピークが検出され (図は省略), これらの PG に何らかのタンパク質が含まれていることが示唆された. 一方, *L. plantarum* の可溶性 PG については, Fig.1 のマス chromatogram に示したとおり, アミノ酸誘導体としてはアラニン (Ala), グルタミン酸 (Glu) および DAP のみが検出された. なお Fig.1 に見られるアミノ酸誘導体以外のピークについては, マススペクトルのデータからアミノ酸とは異なる物質であることがわかり, 試料あるいは試薬に含まれるタンパク質以外の不純物から生じたものであると推定された. これに対して, *L. fermentum* の可溶性 PG は粗 PG と同様に, ペプチドグリカンの成分であるアミノ酸以外の Gly, Thr, Ser, Val, Ile などのアミノ酸を含んでいた (Fig.2). 従って, 可溶化によって混入タンパク質は減少したものの, 依然として混入タンパク質が含まれており, 精製度が不十分であることが明らかになった.

3-2 Orn 誘導体の検出

L. fermentum の PG は Orn を含む⁴⁾ ことが特徴であるが, Fig.2 に示されたとおり, 他の PG 由来のマス chromatogram と比較して Orn と考えられるピークを見つけることができなかった. このため, Orn の標準物質 (富士フィルム和光純薬) について同様の誘導体を調製し分析したところ, マス chromatogram における保持時間は 19.6 min でありアスパラギン酸 (Asp) 誘導体と同一であることがわかった. そこで, Fig.2 でこの保持時間を示すピークのマススペクトルを再度詳細に検討した. その結果, Fig.3 に示したように, この 19.6 min のピークが示すマススペクトルは Orn 誘導体 (Fig.4) と Asp 誘導体 (Fig.5) のスペクトルが重なったも

のであることが判明した.

次に, Orn を Asp から分離して単独で検出するために, アミノ酸の誘導体として, カルボキシル基のブチルエステル化ではなく, メチルエステル化を行うことを検討した. HCl-butanol の代わりに 5% HCl-methanol (国産化学) を使用してメチルエステル化し, アミノ基はこれまでどおりトリフルオロアセチル化したところ, Fig.6 に示したような誘

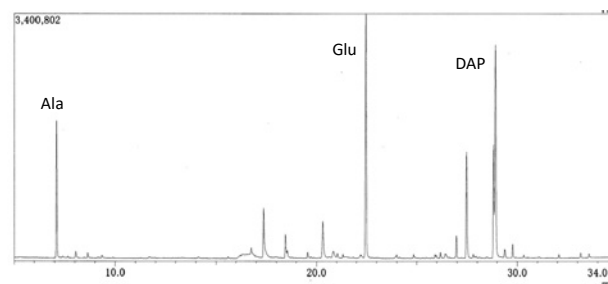


Fig.1 Mass chromatogram of amino acid derivatives prepared from *L. plantarum* PG. Ala, alanine; Glu, glutamic acid; DAP, diaminopimelic acid.

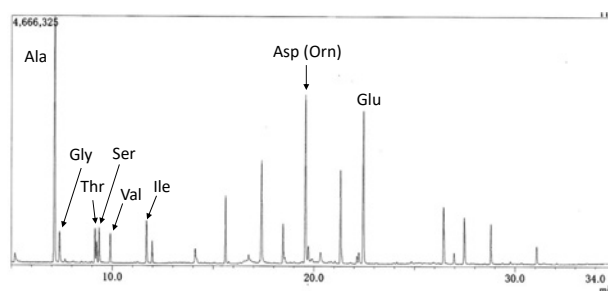


Fig.2 Mass chromatogram of amino acid derivatives prepared from *L. fermentum* PG. Ala, alanine; Gly, glycine; Thr, threonine; Ser, serine; Val, valine; Ile, isoleucine; Asp, aspartic acid; Orn, ornithine; Glu, glutamic acid.

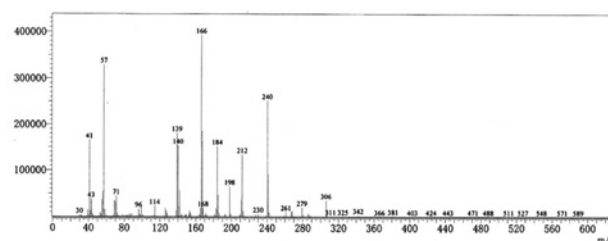


Fig.3 Mass spectrum of the peak at 19.6 min in the chromatogram of amino acid derivatives prepared from *L. fermentum* PG.

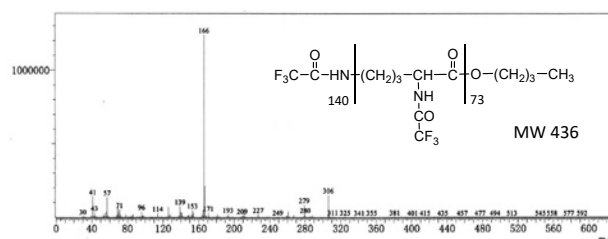


Fig.4 Mass spectrum of butyl ester, *N*-trifluoroacetyl derivative of authentic ornithine.

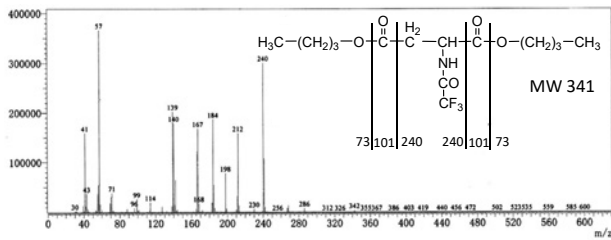


Fig.5 Mass spectrum of butyl ester, *N*-trifluoroacetyl derivative of authentic aspartic acid.

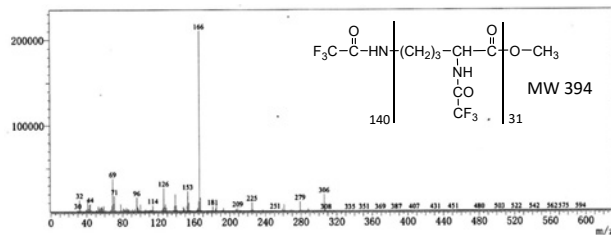


Fig.6 Mass spectrum of methyl ester, *N*-trifluoroacetyl derivative of ornithine from *L. fermentum* PG.

導体のマススペクトルが得られた。メチルエステル誘導体はブチルエステル誘導体よりも低沸点の誘導体となるため、濃縮等の操作の途中で失われ易く定量的な誘導体化は難しいと思われるが、上記の結果により、*L. fermentum* PGにおけるOrnの存在を確認することができた。

4. 考察

Lactobacillus 属菌種のPGが示すIL-8産生誘導活性の比較により、*L. fermentum* の可溶性PGが高い免疫活性を示した⁶⁾ため、このPGに興味を持たれたが、本研究の結果、この可溶性PGにはまだ何らかのタンパク質が混入していることが明らかになった。調製操作の途中でフェノール抽出を行っているため、可溶性に使用したリゾチームや通常のタンパク質は除去できるはずである。従って、他の*Lactobacillus* 菌種と比べ、*L. fermentum* PGにはPGと強く会合するタンパク質が多いのではないかと推定される。今後IL-8産生活性に対するOrnの影響を調べるためには精製法の検討と改良が必要とされるので、プロテアーゼの使用等による精製法を検討していく予定である。なお、本研究によりGC-MSを使用したPGのペプチド分析はPGの純度を評価する方法として有効であることが示された。他の菌体成分の免疫活性を検討する際にも、本研究で確立されたアミノ酸分析の方法は純度検定法として有効であると考えられる。

Orn誘導体は標準物質のマススペクトルとの比較により同定した。Ornのブチルエステル、*N*-トリフルオロアセチル誘導体は、Fig.4に示したように主要ピークがm/z 166であり、これに加えて小さなm/z 306のフラグメントが見られるだけの単純なスペクトルであった。この両者の質量差は140マスユニットであるため、m/z 306からトリフルオロアセチル化されたアミノ基の脱離によりm/z 166が生じていると考

えられる。この2つのフラグメントはメチルエステル誘導体のマススペクトル (Fig.6) にも全く同様に、同じ強度で見られるため、m/z 306はブチルエステル化あるいはメチルエステル化されたカルボキシル基の脱離とフッ素の脱離で生じるのではないかと推定された。このようにOrn誘導体は極めて特徴的なマススペクトルを与えるため、今後の研究においても*L. fermentum* PGの指標として使用できると考えられる。

謝辞

以前の研究において大学院博士前期課程の学生としてPGのアミノ酸分析法の確立に関わった宮本真理さんをはじめ、これまでにPGの調製と免疫活性測定の研究にたずさわった多くの学生の皆さんの協力に感謝致します。

なお、本研究の一部は理工/建築・環境学会の2017年度研究補助金を用いて実施されました。この場を借りて深く感謝致します。

参考文献

- 1) Ratledge, C. and Wilkinson, S. C.: An overview of microbial lipids, In: Microbial lipids Vol. 1. (Eds Ratledge, C. and Wilkins, S. G.), pp1-22, Academic Press, London, (1988).
- 2) 小谷尚三, 高田春比古: 細菌細胞壁ならびに関連する合成標品 (ムラミルペプチド) の免疫薬理作用, 薬学雑誌, 103, 1, pp1-27, (1983).
- 3) Inohara, N., Chamailard, M., McDonald, C., Munez, G. : NOD-LRR proteins: role in host-microbial interactions and inflammatory disease, Ann. Rev. Biochem., 74, pp355-383 (2005).
- 4) Schleifer, K. H. and Kandler, O., Peptidoglycan types of bacterial cell walls and their taxonomic implications. Bacteriol. Rev., 36, 4, pp407-477 (1972).
- 5) 柴田健一郎: 微生物由来リポタンパク質・リポペプチドの免疫生物学的活性と自然免疫系による認識, 日本細菌学雑誌, 62, 3, pp363-374 (2007).
- 6) 野口翔, 柴田夕夏, 玉置悦朗, 長澤将太, 有路沙織, 川原一芳, 尾之上さくら: 乳酸菌ペプチドグリカンのペプチド組成と免疫活性の関連性, 2019年度関東学院大学理工/建築・環境学会研究発表講演論文集, pp4-5, (2019).
- 7) 横田明, 高島昌子: 細胞壁およびペプチドグリカンの調製, 「微生物の分類・同定実験法」(鈴木健一郎, 平石明, 横田明 編), pp100-117, シュプリンガー・フェアラーク東京, 東京, (2001).
- 8) 吉田雅彦, 米田勤, 石原義雄: タンパク質構成アミノ酸のガスクロマトグラフィー, 北大水産彙報, 28, 3, pp165-173 (1977).

Heparinase 遺伝子ホモログは *Cryptococcus neoformans* の DBB 染色反応に必須である清水 由巳*
菅原 友好*Heparinase gene homolog is essential for the DBB staining reaction in *Cryptococcus neoformans*

by

Yumi SHIMIZU
Yuko SUGAWARA

要 旨

ビス *o*-ジアニシジン (ジアゾ化) 亜鉛複塩 (以下 DBB とする) による担子菌酵母の DBB 染色は、酵母分類学的手法の 1 つとして知られているが、この染色により担子菌酵母の何が染色されているか解明されていない。メカニズムを解明するために、分子生物学的手法が利用可能な担子菌酵母 *Cryptococcus neoformans* を用いた。 *Agrobacterium* 形質転換により *C. neoformans* 野生株を用い遺伝子変異株ライブラリーを作製した。およそ 10,000 個の変異株のコロニーについて DBB 染色したところ、2 コロニーが DBB 非染色株として得られた。得られた 2 コロニーのうち DBB 染色がより薄かった 1 コロニーについて遺伝子変異部位を特定したところ、heparinase をコードする遺伝子と相同性が高い配列が破壊されていた。この遺伝子を heparinase 遺伝子ホモログとし、*C. neoformans* の野生株から heparinase 遺伝子ホモログの遺伝子欠失株を作製した。作製した heparinase 遺伝子ホモログ欠失株の表現型を解析したところ、DBB 非染色であり、さらに *C. neoformans* の特徴である莢膜の厚さが野生株と比較し薄くなることが判明した。このことから、heparinase 遺伝子ホモログは DBB 染色に関与する遺伝子であり、莢膜形成にも関与することが明らかとなった。

キーワード : *Cryptococcus neoformans*, DBB 染色, heparinase

Abstract

3,3'-dimethoxy-[1,1'-biphenyl]-4,4'-bis (diazonium) tetrachlorozincate (DBB) can be used to distinguish basidiomycetous yeasts from ascomycetes, otherwise the molecular targets of the DBB staining has yet been unknown. We used *Agrobacterium tumefaciens*-mediated insertional mutagenesis to *Cryptococcus neoformans*, a model basidiomycetous yeast for molecular biological study to clarify DBB staining mechanisms. We isolated two negative DBB staining mutants from about 10,000 mutants. One of them, which showed the clearer DBB staining negative phenotype than the other, was further analyzed. We found that a gene putatively encoding a heparinase was interrupted by the T-DNA insertion. A complete gene knockout of the heparinase homologous gene revealed that the gene was responsible for DBB staining in *C. neoformans*. We also found that the gene played a role in controlling the capsule formation.

1. はじめに

酵母分類学的手法の一つである、*o*-ジアニシジンビス亜鉛複塩 (以下 DBB とする) によるコロニー染色は、子囊菌・担子菌の識別法として経験的に利用されてきた。DBB 染色により子囊菌酵母は染色されないが、担子菌酵母はいずれも赤色を呈す。ところが、この担子菌酵母の DBB 染色メカニズムの詳細は明らかになっていない。そこで、DBB 染色メカニズムを解明することにより子囊菌類と担子菌類の生物学的相違点を見いだすことを目的としている。

担子菌酵母 *Cryptococcus neoformans* は動物、植物と同じ真核生物の一つであり、真菌類の担子菌門に分類される出芽酵母である。細胞の形態が円形または卵形 (直径 4–8 μm) の単細胞性の生物であり、出芽により無性的に増殖する。これに加え、担子胞子形成を伴う有性世代を持つ。*C. neoformans* は、人獣共通感染症の一つ、クリプトコッカス症の起原菌としても知られており、特に欧米では発生率の上昇が著しく、クリプトコッカス症が重要な問題となっている¹⁾。本菌は細胞の周りに厚い莢膜を持つことが特徴である¹⁾。莢膜を欠く変異株をマウスに接種すると、その病症が著しく現れにくくなることから、この莢膜は病原性に関係しているとされている²⁾。莢膜の主要構成成分は、中性または酸性ヘテロ多糖であるグルクロノキシロマンナン (glucronoxylomannan:GXM) であり、細胞内で合成された後、細胞外に分泌され、糖鎖伸長により莢膜を厚くする。この厚い莢膜を持つことで宿主の免疫防御を回避すると考えられている³⁾。このように、*C. neoformans* の病原性について分子生物学的手法を用いた研究がなされているが、莢膜合成メカニズムや病原性について不明な点が多い。

Heparinase は、ヘパリン、ヘパラン、ヘパリン硫酸を分解する多糖リアーゼである^{4)–6)}。ヘパリン、ヘパラン、ヘパリン硫酸は、ヘキサミンとウロン酸よりなる酸性多糖であり、ヒトでは、細胞表面に存在し、細胞の接着、増殖、分化に関与するだけでなく、ウイルスの宿主細胞への接着の際、宿主細胞表面のヘパランがウイルスのレセプターとなることが明らかになっている^{4)–8)}。これら、ヘパリン、ヘパラン、ヘパリン硫酸を分解する heparinase は、*Flavobacterium heparinum* から発見されて以来、多くの研究がなされている^{9)–11)}。真菌では、病原菌 *Trichosporon asahii*、*C. neoformans* から、プラスミンの前駆体であるプラスミノゲンと結合するタンパク質として、heparinase が同定されている^{12), 13)}。

本研究では、分子生物学的手法を用いることができる担子菌酵母 *C. neoformans* の遺伝子変異株から DBB 非染色株をスクリーニングし、DBB 染色に関与する遺伝子として heparinase 遺伝子ホモログが得られたことを報告する。

2. 実験方法

2.1 使用菌株と培地

本研究で用いた菌株は Table1 にまとめた。

C. neoformans の菌の継代には Potato Dextrose Agar (PDA)

Table 1 Strains used in this study

Species	Strain numbers and genotype	Origin
<i>Agrobacterium tumefaciens</i>	EHA105, pPZP-NEO1	Walton et al., 2005 ¹⁶⁾
<i>Cryptococcus neoformans</i>	B4500, wild type, serotype D, mating type α	Kwon-Chung et al., 1992 ¹⁷⁾
	KN3501a, wild type, serotype D, mating type α	Nielsen et al., 2005 ¹⁸⁾
	KN3501 α , wild type, serotype D, mating type α	Nielsen et al., 2005 ¹⁸⁾
	DBB16-6, $\Delta\text{hep}::\text{T-DNA}$, mating type α	This study
	Ts1, $\Delta\text{hep}::\text{NEO}$, mating type α	This study
	Ts2, $\Delta\text{hep}::\text{NEO}$, mating type α	This study

[24 gL^{-1} potato dextrose broth (Difco), 15 gL^{-1} agar] 培地を用いた。

C. neoformans の形質転換体の獲得には、YPD 平板培地 [10 gL^{-1} Bacto yeast extract (Difco), 10 gL^{-1} polypeptone, 10 gL^{-1} glucose, 20 gL^{-1} agar] 用いた。必要に応じて 0.2 mgL^{-1} となるよう Geneticine selective antifiotic G418 sulfate (ThurmoFisher) を加えた。

有性生殖誘導培地には干し草煎汁寒天培地を用いた。干し草ブロック 50 g を 800 mL の蒸留水で 30 分間煮沸した後、ろ過して得られた煎汁に 2 g の K_2HPO_3 を加え pH 6.2 に調整後、蒸留水で 1000 mL とした。できた干し草煎汁に寒天を 20 g 加えオートクレーブ後、シャーレに分注し平板培地とした。

莢膜誘導培地には、サブロー液体培地 (Nippon Becton, Dickinson Company, Ltd) を 10 倍に希釈し用いた。

A. tumefaciens, *E. coli* の継代には、LB 培地 [5 gL^{-1} Bacto yeast extract (Difco), 10 gL^{-1} Tryptone, 5 gL^{-1} NaCl] を用い、平板培地の作製にはさらに 20 gL^{-1} agar を加えた。必要に応じて Kanamycin を 25 $\mu\text{g mL}^{-1}$ となるよう添加した。

2.2 *Agrobacterium* 法による *C. neoformans* の形質転換

Agrobacterium 法による *C. neoformans* の形質転換は Shimizu らの方法¹⁴⁾ により行った。*A. tumefaciens* EHA105 (pPZP-NEO1) は 25 $\mu\text{g mL}^{-1}$ Kanamycin 添加 LB 培地を用いて 24°C で一晩培養した。遠心分離により菌体を回収し滅菌蒸留水で洗浄後、液体 IM 培地に懸濁し OD ($\lambda = 660\text{nm}$) = 0.15 となるように調整した。さらに 24°C で OD ($\lambda = 660\text{nm}$) = 0.6 となるよう約 6 時間培養した。

C. neoformans B4500 株は YPD 液体培地を用いて 30°C で一晩培養後、菌体を遠心分離により回収した。上清を捨て、細胞を滅菌蒸留水で洗浄後、液体 IM 培地に懸濁し $1 \times 10^6 - 1 \times 10^8 \text{ cells mL}^{-1}$ になるよう調整した。調整した *A. tumefaciens* と *C. neoformans* を等量ずつ混和し、1% から 6% の寒天を含む IM 培地に 1 枚あたり 6 ヶ所に 100 μL ずつ植

菌した。24°Cで9日間共培養後、培地上に出現したコロニーを掻き取り PBS Buffer (0.14 molL⁻¹ NaCl, 30 mmolL⁻¹ KH₂PO₄, 70 mmolL⁻¹ Na₂HPO₄, pH 7.2) に懸濁した。13,200 rpm, 5分間の遠心分離により *C. neoformans* を沈殿させ、*A. tumefaciens* を除いた。PBS Buffer に再懸濁したのち、G418 添加 YPD 寒天培地に移植し、30°Cで3日間培養した。

2.3 TAIL PCR 法による T-DNA 挿入部位の同定

TAIL PCR 法は Liu らの方法¹⁵⁾ に従って行った。DBB16-6株のゲノム DNA を鋳型として用い、任意の配列を有するプライマー oligoAD3, および T-DNA 内の配列から構築したプライマー oligoTAILKS3により PCR 反応を行った (第一 PCR 反応)。第一 PCR 反応によって得られた反応液を40倍希釈し、そのうち1 μL を鋳型 DNA として用いた。プライマーは oligoAD3および oligoTAILKS4を用い PCR 反応を行った (第二 PCR 反応)。さらに第二 PCR 反応により得られた反応液を40倍希釈し、そのうち1 μL を鋳型 DNA として用い、oligoAD3および oligoTAILKS5により PCR 反応を行った (第三 PCR)。第三 PCR 反応終了後の反応液をアガロースゲル電気泳動により DNA 断片の増幅を確認し、増幅が認められたものについては BigDye ver3シーケンスキット (アプライドバイオシステムズ) を用いて塩基配列解析を行った。得られた塩基配列データを用いて BLAST 解析を行い、*C. neoformans* ゲノム塩基配列データと比較することにより T-DNA 挿入部位を特定した。PCR 反応条件は、Shimizu らの方法¹⁴⁾ に従った。用いたプライマーの配列は Table2に示す。

Table 2 Primers used in this study.

Primers	Sequences
oligoAD3	WGTGNAGWANCANAGA
oligoTAILKS3	CCTGTGTGAAATTGTTATCCGCTCA
oligoTAILKS4	TCACATTAATTGCGTTGCGCTCACT
oligoTAILKS5	AGAGGCGGTTTGCCTATTGGCTAGA
5'- heparinase	ACGGTATCGATAAGCCGGTACTGGA CATGCTGACA
5'- hepa(d)-Neo	TTTCTACATCTCTTCGGCGGACAGC AACGCAAGAG
Neo-3'hepa-(u)	TCCAGCTCACATCCTAGCGGCAGAA TGAAAGGCAG
3'heparinase	GGTGGCGGCCGCTCTGCTATCAAAC ATGATTGTTA
NATNEOHYG. LP	AGGATGTGAGCTGGAGAGCG
NATNEOHYG. UP	GAAGAGATGTAGAACTAGC
hepa_check_F	TATATACTGACATACTGCGTAGTGCA
hepa_check_R	TATCTTAAAGGAATCAGACCAGCTT

2.4 *C. neoformans* の菌体からの DNA 抽出

菌を PDA 培地に植菌し3日間25°Cで培養後、1白金耳を500 μL の Extraction Buffer (0.1 M Tris-HCl, 40 mM EDTA, pH 9.0) に懸濁した。100 μL の10% SDS, 300 μL の塩化ベンジルを加え、ボルテックスで懸濁した。懸濁液を65°C 25分間処理後、4°Cで10分間、12,000 rpm で遠心分離を行い、700 μL の上清を回収した。上清に70 μL の3M 酢酸ナトリウムを加え、770 μL のイソプロパノールを加えてボルテックスした。12,000 rpm で4°C, 10分間遠心分離し上清を除去後、沈殿に70% エタノールを加え攪拌した。12,000 rpm, 4°C, 10分間遠心分離後、上清を捨て50 μL の TE (pH 8.0) に溶解した。

2.5 遺伝子破壊カセットの作製

Heparinase 遺伝子欠失株作製のための遺伝子破壊カセットを作製した。*C. neoformans* のゲノム DNA を鋳型に、heparinase 遺伝子ホモログの遺伝子座から上流およそ1 kbp と下流1 kbp を PCR 増幅した。使用プライマーは *NEO* 遺伝子の配列を一部含むように設計したプライマー5'hepa-(d)-Neo プライマーと5'heparinase プライマー、及び *NEO* 遺伝子の配列を一部含むように設計した Neo-3'hepa-(u) プライマーと3'heparinase プライマーを使用した。*NEO* 遺伝子の増幅は、pKIS611のプラスミド DNA を鋳型とし、NATNEOHYG. LP プライマーと NATNEOHYG. UP プライマーを使用した。KAPA Tag (日本ジェネティクス社) を使用し、PCR 反応は95°C 3分の DNA 変性処理後、95°C 15秒、60°C 1分、72°C 3分の反応を1サイクルとして、30サイクル行い、その後72°C 10分の反応を行った。PCR 産物は EZ-10 Spin Column PCR Products Purification Kit (Bio basic Inc) を使用し、その取扱説明書に従い精製した。精製した3種類の DNA 断片の混合液を鋳型とし、5'heparinase プライマーと3'heparinase プライマーにより KOD FX Neo (Toyobo) を用いて PCR 増幅することにより3種類の DNA 断片を連結した。PCR 反応は95°C 2分の DNA 変性処理の後、95°C 1分、55°C 1分、68°C 3分の反応を1サイクルとして、30サイクル行い、その後68°C 10分の反応を行った。得られた PCR 産物はアガロースゲル電気泳動法により産物の有無とサイズを確認した。PCR 産物は、EZ-10 Spin Column PCR Products Purification Kit で精製後、遺伝子破壊カセットとして用いた。用いたプライマーの配列は Table2に示す。

2.6 遺伝子破壊カセットの導入

C. neoformans 野生株 (交配型 α) にパーティクルガン法を用いて破壊カセットの導入を行った。遺伝子導入には、Biolistic PDS-1000/He Particle Delivery System (Bio Rad) を用い、その取扱説明書に従った。*C. neoformans* の細胞に DNA 破壊カセットが附着している金粒子を打ち込むことにより遺伝子導入後、菌体を G418添加 YPD 寒天培地で

25℃, 48時間培養を行い, 形質転換体を得た. ゲノム DNA 上の予定遺伝子導入位置の外側にプライマー hepa_check_F および hepa_check_R を設計し, 遺伝子破壊カセットの有無を確認した. PCR 反応は KAPA Taq を用い, 95℃ 2分の DNA 変性処理の後, 95℃ 2分, 55℃ 1分, 72℃ 2分30秒の反応を1サイクルとして, 35サイクル行い, その後72℃ 10分の反応を行った. 用いたプライマーの配列は Table2に示す.

2.7 DBB 染色

YPD 液体培地, 1 mL で菌を72時間25℃, 125 rpm で振とう培養後, 滅菌した1.5 mL チューブに培養物全てを移し, 遠心分離により集菌した. 上清を除き, 沈殿に1 mL の 0.25 molL⁻¹ Tris-HCl (pH 7.5) を加え, 懸濁した懸濁液を 14,000 rpm で5分遠心分離を行った. 上清を除き, 1 mL の DBB 染色液 [0.25molL⁻¹ Tris-HCl (pH 7.5), 1 gL⁻¹ *o*-ジアニジジニビス亜鉛複塩] を加え懸濁後, 14,000 rpm, で5分間遠心分離し集菌した. 上清を除き, 1 mL の0.25 molL⁻¹ Tris-HCl を加え, 14,000 rpm で5分遠心分離し上清を除去後, 菌体の色を観察した.

2.8 交配試験

干し草寒天培地上で, heparinase ホモログ遺伝子破壊候補株と *C. neoformans* KN3501 (交配型 a) の細胞を混合し, 25℃で1週間培養した. 形成された担子胞子を, G418添加 YPD 寒天培地に植菌し25℃で48時間培養した. 培養後, コロニーを DBB 染色し, 写真撮影した.

2.9 莢膜の顕微鏡観察

菌を10 mL の YPD 液体培地を用い, 30℃で24時間, 120 rpm で振盪培養した. 培養液を遠心分離により, 上清を除去し回収した菌体を10倍に希釈したサブロー液体培地で洗浄後, 10倍に希釈したサブロー液体培地で細胞を懸濁し, O.D.600 nm で1.4に懸濁を調整した細胞懸濁液をプラスチックシャーレに20 mL ずつ分注し30℃で24時間培養した. 培養後, 培養液と墨汁を等量混和し, 顕微鏡下で観察した.

2.10 ウレアーゼ活性測定

ウレアーゼ活性はクリステンゼン尿素培地 (栄研化学) を用い, その取扱説明書に従い検出した.

3. 実験結果

3.1 DBB 非染色株の取得と TAIL PCR 法による T-DNA 挿入部位の同定

Agrobacterium 形質転換により *C. neoformans* B4500株を用い遺伝子変異株ライブラリーを作製した. およそ10,000個の変異株のコロニーについてDBB染色したところ, 2コロニーがDBB非染色株として得られた. これら2コロニーのうち, よりDBB染色されなかったDBB16-6についてさらに解析を

進めた. DBB16-6株のゲノム DNA を抽出し, TAIL-PCR 法により T-DNA 領域の挿入部位の周辺部位を増幅した. この PCR 産物についてシーケンス解析を行い, ゲノム上の変異領域を同定した. 得られた塩基配列データをクリプトコックスゲノムデータベースと比較した結果, T-DNA 領域は, 第3番染色体の CNN03380とタグが付された遺伝子領域に挿入されたことがわかった. CNN03380の塩基配列を用い, BLAST 検索を行った結果, CNN03380は他の生物で同定されている heparinase 遺伝子と相同性を持つことがわかった. 今回同定した遺伝子を heparinase 遺伝子ホモログとし, さらに解析を続けた.

3.2 遺伝子破壊カセットの作製

C. neoformans B4500株の染色体上にある heparinase 遺伝子の遺伝子座から上流およそ1 kbp と下流1 kbp の DNA 断片で G418耐性遺伝子 (*NEO*) を中央に挟み込むように繋げた heparinase 遺伝子ホモログ遺伝子破壊カセットの作製を行った (Fig.1).

C. neoformans B4500株の heparinase 遺伝子ホモログの遺伝子座から上流およそ1 kbp と下流1 kbp を PCR 増幅した. *NEO* 遺伝子は pKIS611プラスミド DNA を鋳型にし PCR 増幅した. それぞれの PCR 産物をアガロースゲル電気泳動法により確認した結果, *NEO* 遺伝子である1.8 kbp, heparinase 遺伝子ホモログの遺伝子座から上流およそ1 kbp と下流1 kb の DNA 断片が増幅されたことを確認した. これら3種類の DNA 断片を PCR により連結後, PCR 産物をアガロースゲル電気泳動により確認したところ目的の産物が得られた. これを遺伝子破壊カセットとし, *C. neoformans* 形質転換実験に用いた.

3.3 遺伝子欠失株の獲得

C. neoformans B4500に heparinase 遺伝子ホモログ破壊カセットを導入し, G418含有培地にてスクリーニングしたところ, 18個のコロニーを獲得した. すべてのコロニーを G418含有培地に再度植菌後, DBB 染色を行った. その結果, DBB 染色で赤色を呈さない遺伝子欠失候補株2株を獲得した (Fig.2). それらのゲノム DNA を鋳型として hepa_check_F および hepa_check_R を用いて PCR を行った結果, heparinase 遺伝子ホモログがマーカー遺伝子 (*NEO*) に置換されたと考えられるサイズの PCR 産物を与えた. すなわち, 野生株の PCR 産物5.8 kbp が確認されたのに対し, 2つの遺伝子欠失候補株では, heparinase 遺伝子ホモログ欠失株では3.8 kbp であった (Fig.3). この株を TS1, TS2とし, 以下の実験に使用した. TS1株の細胞, あるいは TS2株の細胞と野生株の細胞を混合し交配させ, 担子胞子を形成させた. 得られた担子胞子を用いて四分子解析を行った. 四分子解析により, heparinase 遺伝子ホモログ破壊カセットが野生株のゲノム DNA 上に1か所にのみ挿入されていれば, G418添加培地で生育できる担子胞子は, すべてDBB染色されないは

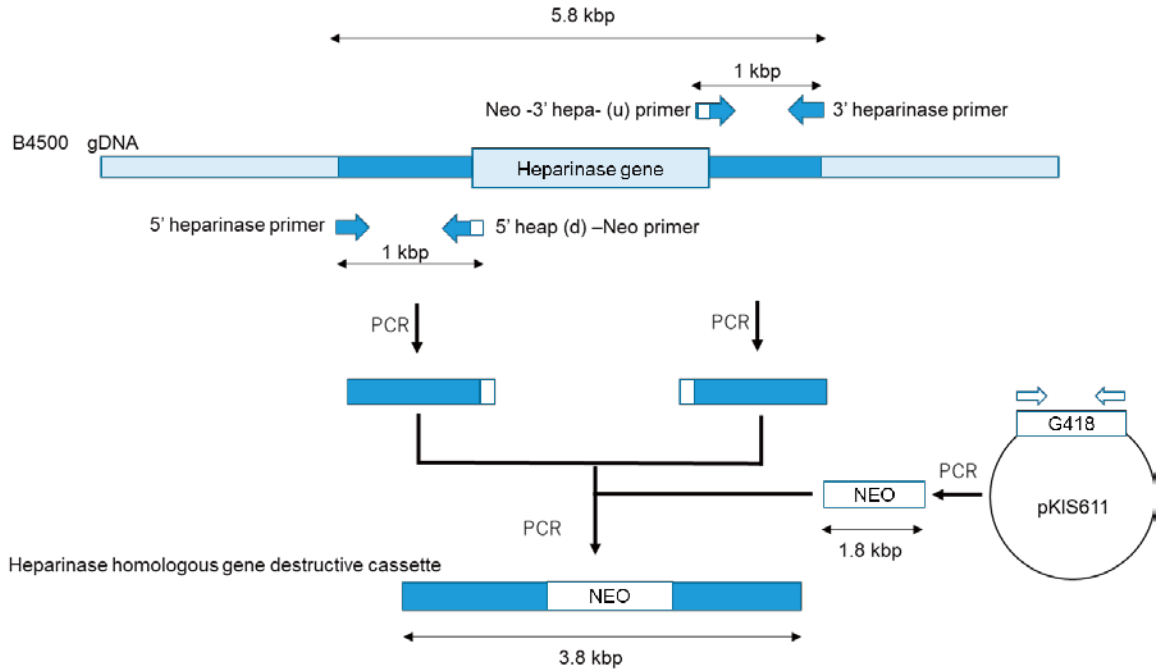


Fig.1 Construction of Heparinase homologous gene destructive cassette.

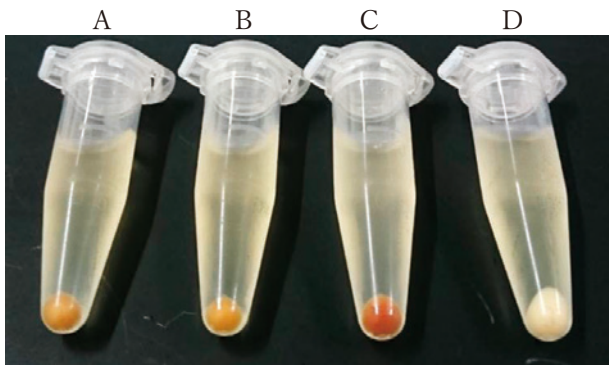


Fig.2 Gene disruption of heparinase homologous gene in *Cryptococcus neoformans*. The heparinase homologous gene of wild-type was replaced by a G418 resistant gene cassette (NEO) in the deletion strain. Those transformants were not stained with DBB (A and B). Wild-type was stained with DBB (C), and *Saccharomyces cerevisiae* strain was not stained with DBB because this strain is an ascomycetous yeast (D).

ずである。TS1と野生株との交配からは30個、TS2と野生株の交配からは38個の G418添加培地で生育できた担子胞子を獲得し、それぞれ DBB 染色を行った。その結果、赤色を呈したコロニーがTS1からは2コロニーであったが、TS2からは8コロニーであった (Fig.4)。よって、TS1を heparinase 遺伝子ホモログ欠失株として用いることとした。

3.4 heparinase 遺伝子ホモログ欠失株の表現型解析

C. neoformans の特徴として、莢膜形成、ウレアーゼ活性を有することなどが知られている。そこで heparinase 遺伝子ホモログ欠失株を用い、莢膜の顕微鏡観察、ウレアーゼ活性試験を行った。

10倍に希釈したサブロー液体培地で野生株と TS1をそれ

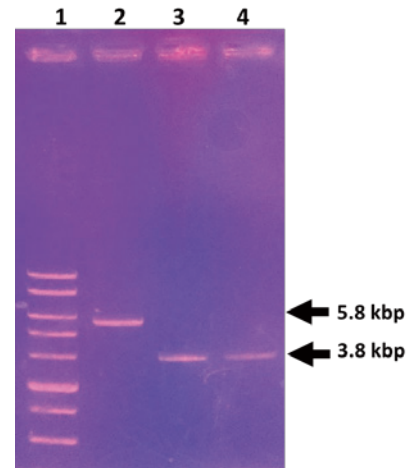


Fig.3 Gene disruption of heparinase homologous gene in *Cryptococcus neoformans*. Gene knockout was confirmed by PCR with primers outside the deletion construct for 2 transformants. Positions of the respective wild-type (5.8 kbp) and knockout (3.8 kbp) alleles are indicated at right. Those transformants were having 3.8 kbp PCR fragments (lanes 3 and 4). Lane 1 shows size marker and lane 2 shows PCR product for wild-type strain.

ぞれ培養し、墨汁染色後、莢膜を顕微鏡で観察した結果、野生株と比較して TS1では莢膜の厚さの減少が確認された (Fig.5)。ウレアーゼ産生菌は尿素を加水分解し、アンモニアを産出するため、クリステンゼン培地はピンク色に変色するが、野生型株、TS1共にピンク色を呈し、ウレアーゼ活性が認められた (Fig.6)。このことから、heparinase 遺伝子ホモログは、ウレアーゼ活性には関与しないが、莢膜形成に関与することが判明した。

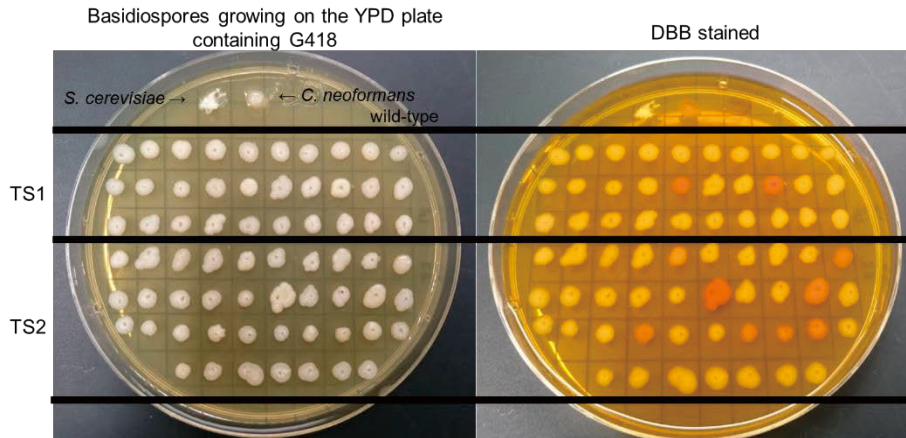


Fig.4 Basidiospores were formed by mating wild type haploid strain and TS1 or TS2 strains. Isolated basidiospores were grown on the YPD agar medium containing G418 at 25°C for 2d (Left picture), and then were stained with DBB (Right picture). The wild type strain of *S. cerevisiae* or *C. neoformans* was used as negative control or positive control, respectively.

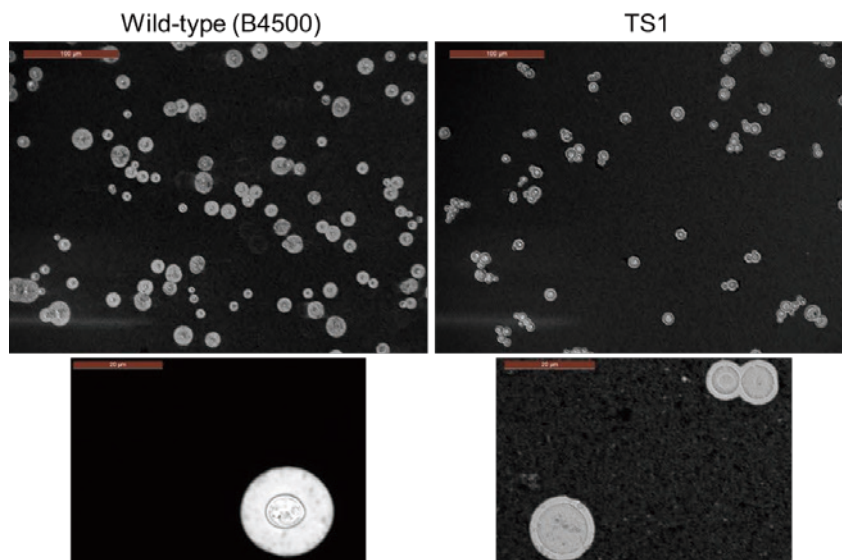


Fig.5 Visualization of capsule by India ink staining. Left side shows cells of wild type strain, and right side shows cells of TS1.

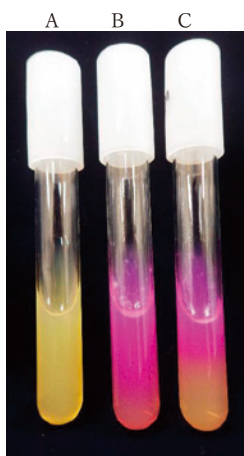


Fig.6 Effect of gene disruption of heparinase homologous gene on urease activity. Wild type strain (A) and TS1 strain (B) have urease activities. The media on which no cell was cultured did not turn the color to pink (A).

4. 考 察

C. neoformans 遺伝子変異株ライブラリーから選別した DBB 非染色株, DBB16-6の遺伝子変異部位を特定したところ, T-DNA は *C. neoformans* 第3番染色体の CNN03380 とタグが付された遺伝子領域に挿入されたことがわかった. CNN03380の塩基配列を用いた BLAST 検索で, 他の生物の heparinase 遺伝子が相同性のあるものとして検索されてきた. しかしながら, CNN03380からのアミノ酸配列と, *Flavobacterium heparinum* の heparinase のアミノ酸配列とは 16%の類似性しかなかった. また, *T. asahii* の heparinase のアミノ酸配列とは26%の相同性があった. *T. asahii* や *C. neoformans* の heparinase は, プラスミノゲンに結合するタンパク質として分離されたが, これらの酵素をコードする遺伝子の欠失株を用いた heparinase の機能解析はなされていない^{12), 13)}. このことから, 今後は, 本研究で得

た heparinase ホモログ遺伝子欠損株を用い、この遺伝子が heparinase をコードする遺伝子なのか、また、heparinase をコードするのであれば、プラスミノーゲンの分解、莢膜形成、DBB 染色との関係について解明する予定である。

heparinase は、ヘキソサミンとウロン酸よりなるヘパリン、ヘパラン、ヘパリン硫酸を分解する多糖リアーゼである^{4)~6)}。他方、莢膜の主要構成成分は、中性または酸性ヘテロ多糖のグルクロノキシロマンナンであり、細胞内で合成された後、細胞外へ放出され、糖鎖の伸長が行われ莢膜が厚くなる³⁾。本研究で、heparinase ホモログ遺伝子欠失株 TS1 の莢膜の厚さが、野生株と比較し薄くなる傾向が見られた。このことから、heparinase ホモログ遺伝子産物が heparinase の機能を有するとすれば、細胞外に heparinase が分泌され、莢膜の糖鎖の伸長や分解への関与が期待される。また、我々の研究室で、これまでに DBB 染色の基質となる物質について、キチンやマンナン等を用いた DBB 染色を行ったところ、フェノールと DBB 染色液を混合した場合に赤色を示すことが分かっている(未発表)。heparinase ホモログ遺伝子産物により、莢膜成分や細胞壁成分が分解され、フェノールに類似した物質が細胞表面上に露出し、この部分と DBB が結合し赤色を呈するのではないかと予想される。

C. neoformans 野生株と heparinase ホモログ遺伝子破壊候補株との交配の結果、TS1 株を用いた場合でも DBB 染色陽性であった担子胞子が、30 個のうち 2 個あった (Fig.4)。これら DBB 染色された 2 個は、担子胞子獲得の際、2 個倍体細胞を選別してしまった可能性がある。よって、TS1 株のゲノム DNA 上では、heparinase ホモログ遺伝子のみが *NEO* 遺伝子と組み換えを起しているかと判断した。

5. 結 言

Agrobacterium 形質転換により *C. neoformans* 野生株を用い遺伝子変異株ライブラリーを作製し、DBB 染色されない 1 コロニーについて遺伝子変異部位を特定した。その結果、heparinase をコードする遺伝子と相同性が高い配列が破壊されていた。*C. neoformans* の野生株から heparinase 遺伝子ホモログの遺伝子欠失株を作製し、表現型を解析したところ、DBB 非染色であり、さらに *C. neoformans* の特徴である莢膜の厚さが野生株と比較し薄くなることが判明した。このことから、heparinase 遺伝子ホモログは DBB 染色に関与する遺伝子であり、莢膜形成にも関わるということが明らかとなった。

謝 辞

C. neoformans を用いた遺伝子導入実験等で、東京理科大学清水公徳准教授にご協力いただいた。

本研究は、2014 年度関東学院大学理工／建築・環境学会の研究補助費を受け実施された。

この場にて、御礼申し上げる。

参考文献

- 1) Perfect, J. R. and Casadevall, A.: Cryptococcosis. Infect. Dis. Clin. North. Am., 16, pp837-874 (2002).
- 2) Chang, Y. C., Penoyer, L. A. and Kwon-Chung, K. J.: The second capsule gene of *Cryptococcus neoformans*, *CAP64*, is essential for virulence. Infect. Immun., 64, pp1977-1983 (1996).
- 3) Perfect, J. R., Wong, B., Chang, Y. C., Kwon-Chung, K. J. and Williamson, P. R.: *Cryptococcus neoformans*: virulence and host defences. Med. Mycol., 36, Suppl 1, pp79-86 (1998).
- 4) Björk, I. and Lindahl, U.: Mechanism of the anticoagulant action of heparin. Mol. Cell. Biochem., 29, 48, pp161-182 (1982).
- 5) Lindahl, U.: 'Heparin'-from anticoagulant drug into the new biology. Glycoconj. J., 17, 7, pp597-605 (2000).
- 6) Linker, A. and Hovingh, P.: Heparinase and heparitinase from flabobacteria. Methods in Enzymology., 28, pp902-911 (1972).
- 7) Michelsen, L. G., Kikura, M., Levy, J. H., Lee, M. K., Lee, K. C., Zimmermann, J. J. and Szlam, F.: Heparinase I (neutralase) reversal of systemic anticoagulation. Anesthesiology., 85, 2, pp339-46 (1996).
- 8) Sasisekharan, R., Bulmer, M., Moremen, K. W., Cooney, C. L. and Langer R.: Cloning and expression of heparinase I gene from *Flavobacterium heparinum*. Proc. Natl. Acad. Sci. U S A., 90, 8, pp3660-3664 (1993).
- 9) Hyun, Y. J., Lee, J. H. and Kim, D. H.: Cloning, overexpression, and characterization of recombinant heparinase III from *Bacteroides stercoris* HJ-15. Appl. Microbiol. Biotechnol., 86, pp879-890 (2010).
- 10) Sasisekharan, R., Moses, M. A., Nugent, M. A., Cooney, C. L. and Langer, R.: Heparinase inhibits neovascularization. Proc. Natl. Acad. Sci. U S A., 91, 4, pp1524-1528 (1994).
- 11) Yang, V. C., Linhardt, R. J., Bernstein, H., Cooney, C. L. and Langer, R.: Purification and characterization of heparinase from *Flavobacterium heparinum*. J. Biol. Chem., 260, 3, pp1849-1857 (1985).
- 12) Ikeda, R., Ichikawa, T., Miyazaki, Y., Shimizu, N., Ryoke, T., Haru, K., Sugita, T., Takashima, M.: Detection and characterization of plasminogen receptors on clinical isolates of *Trichosporon asahii*. FEMS Yeast Res., 14, 8, pp1186-1195 (2014).
- 13) Ikeda, R. and Ichikawa, T.: Interaction of surface molecules on *Cryptococcus neoformans* with plasminogen. FEMS Yeast Res., 14, 3, pp445-450 (2014).
- 14) Shimizu, K., Imanishi, Y., Tho-e, A., Uno, J., Chibana, H., Hull, C. M. and Kawamoto, S.: Functional

- characterization of PMT2, encoding a protein-O-mannosyltransferase, in the human pathogen *Cryptococcus neoformans*. Fungal. Genet. Biol. 69, pp13-22 (2014).
- 15) Liu, Y. G., Mitsukawa, N., Oosumi, T., Whittier, R. F.: Efficient isolation and mapping of *Arabidopsis thaliana* T-DNA insert junctions by thermal asymmetric interlaced PCR. The Plant Journal. 8, pp457-463 (1995).
- 16) Walton, F. J., Idnurm, A., Heitman, J.: Novel gene functions required for melanization of the human pathogen *Cryptococcus neoformans*. Mol. Microbil., 57, pp1381-1396 (2005).
- 17) Kwon-Chung, K.J., Edman, J. C., Wickes, B. L.: Genetic association of mating types and virulence in *Cryptococcus neoformans*. Infect. Immun., 60, pp602-605 (1992).
- 18) Nielsen, K., Cox, G. M., Litvintseva, A. P., Mylonakis, E., Malliaris, S. D., Benjamin, D. K. Jr., Giles, S. S., Mitchell, T.G., Casadevall, A., Perfect, J. R., Heitman, J.: *Cryptococcus neoformans* {alpha} strains preferentially disseminate to the central nervous system during coinfection. Infect Immun., 73, 8, pp4922-4933 (2005).

anti-Bredt 化合物の合成と 2 次元 NMR による構造解析

高橋 希 恵*
飯田 博 一*

Synthesis of anti-Bredt compounds and structural analysis by 2D NMR

by

Kie TAKAHASHI
Hirokazu IIDA

要 旨

橋頭位に 2 重結合を有する化合物は anti-Bredt 化合物と呼ばれている。anti-Bredt 化合物は複雑な構造を持ち、尚且つ生理活性を有するため、研究者にとって挑戦的な合成標的の一つとされる。近年ではインデノン誘導体から分子内 [5+2] 付加環化反応を行い、橋頭位に 2 重結合を持つビシクロ [4.4.1] 骨格を有するシクロシトリノールの不斉全合成が達成された。これらの複雑な構造の構造決定は極めて重要なことである。さらに 1 次元 NMR のみでの構造決定は困難であり、2 次元 NMR や X 線結晶構造解析での構造の確認が必要である。本研究では、ピラゾールを出発原料とし、anti-Bredt 化合物を合成し、2 次元 NMR による橋頭位のオレフィン炭素の¹³C NMR の帰属を試みたので報告する。

キーワード：Bredt則, 2次元NMR, ピラゾール

Abstract

The compounds possessing strained bridgehead double bond contradict Bredt's rule, thus these compounds were called as "anti-Bredt" compounds. These compounds possess complicated structure and physiological activity. Therefore, these are considered one of the most challenging targets for synthetic organic chemists. Recently, it was reported that asymmetric total synthesis of cyclocitrinol having bicyclo [4.4.1] skeleton with double bond at the bridgehead position *via* [5+2] cycloaddition reaction had been achieved. The determination of these complex structure is extremely important. Furthermore, the structural analysis is difficult when it performed using only 1D NMR. So it is necessary to confirm the structure using 2D NMR or X-ray crystal structure analysis. In this research, we performed the synthesis of anti-Bredt compounds using pyrazole as a starting material. Furthermore we exhibited structural analysis of synthesized anti-Bredt compounds by 2D NMR.

Key Words: Bredt's rule, 2D NMR, pyrazole

1. 緒言

有機化合物は単純な構造を持つ化合物のみならず、複雑な構造を持つ化合物も数多く存在している。天然物から単離することによりその構造を知ることができ、活性を解析することで有用であることが明らかとなる場合もある。時には研究者が自ら複雑な構造をもつ化合物をデザインして合成し、活性の検討をすることもあり、数多くの報告がなされてきている。その中でも架橋構造を持つ多環式化合物において、橋頭位に2重結合を持つ化合物は存在できないとされる経験則があり、この経験則に外れる化合物を anti-Bredt 化合物と呼ぶ¹⁾。このような化合物は複雑で興味深い構造と生理活性を有することから数多くの有機合成化学研究者が研究を行ってきている。例えば、2003年に Crews らによって海綿由来のペニシリウムシトリニウムから単離されたイソシクロシトリノールは anti-Bredt 化合物であり、2018年には市販されているインデノン誘導体からシクロシトリノールの不斉全合成が達成された^{2, 3)}。また、抗がん剤治療に用いるパクリタキセル (タキソール) は特徴的な炭素骨格上に多くの不斉中心を有し、架橋構造の橋頭位にオレフィンを持つ anti-Bredt 化合物であるため、これまでに数多くの合成研究者が競い合って合成を行っている (図1)^{4) ~6)}。このような複雑な化合物の構造決定は極めて重要である。化合物の構造決定の際に用いられる分析機器としては、主に NMR (Nuclear Magnetic Resonance), X 線結晶構造解析, IR (Infrared Spectroscopy), MS (Mass Spectrometry) などが使われる。これらの分析機器によって化合物の水素、炭素の数や位置、官能基、立体的構造、分子量などの決定がなされる。

1-ベンゾイル-2-フェニルピラゾロ[1,2-a]ピラゾールとジメチルアセチレンジカルボキシレート (DMAD) との反応により1:1付加体であるシクロ[2.2.2]アジンが合成され

る。この反応の際に、2等量の DMAD が反応して得られる1:2付加体は X 線結晶構造解析により anti-Bredt 化合物であることが報告されている (図2)⁷⁾。しかし、NMR による構造の正確な帰属はなされていない。そこで今回、1:2付加体である anti-Bredt 化合物を合成し、2次元 NMR を駆使し正確な帰属を行うことを目的として、以下の研究を行ったので報告する。

2. 測定化合物の合成

2.1 1-ベンゾイル-2-フェニルピラゾロ[1,2-a]ピラゾール誘導体合成

我々は anti-Bredt 化合物を合成するため、市販されているピラゾールを出発原料とし、フェナシルプロミド誘導体と反応させることにより1-ベンゾイル-2-フェニルピラゾロ[1,2-a]ピラゾール誘導体の合成をすることとした (図3)。誘導体合成は J. Calderazzo らの手法に従って行った^{8), 9)}。即ち、1,2-ジメトキシエタン中ピラゾールとフェナシルプロミドとを反応させ、1-フェナシルピラゾール (1) を得た。次に1-フェナシルピラゾール 1 を無水アセトン中、フェナシルプロミドと反応させ1,2-ジフェナシルピラゾリウムプロミド (2) を得た。化合物 2 を10%炭酸水素ナトリウム水溶液中60°Cで加熱攪拌することにより1-ベンゾイル-2-フェニルピラゾロ[1,2-a]ピラゾール (3) を得た。同様の方法によりベンゼン環の *p*-位にクロロ基、プロモ基のついた前駆体1-(*p*-クロロベンゾイル)-2-(*p*-クロロフェニル)ピラゾロ[1,2-a]ピラゾール (4)、1-(*p*-プロモベンゾイル)-2-(*p*-プロモフェニル)ピラゾロ[1,2-a]ピラゾール (5) の合成をそれぞれ行った。

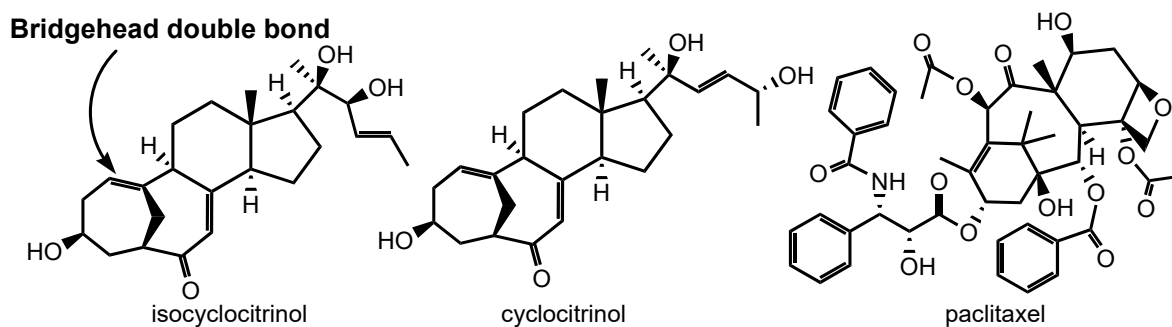


Fig.1 主なanti-Bredt化合物の構造

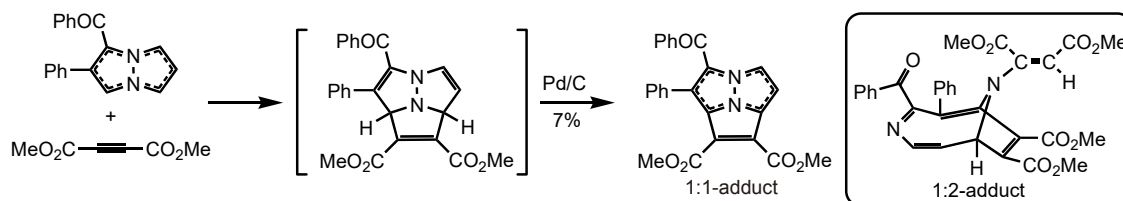


Fig.2 1-ベンゾイル-2-フェニルピラゾロ[1,2-a]ピラゾールとDMADとの反応

2.2 anti-Bredt 化合物の合成

合成したピラゾール前駆体 **3**, **4**, **5** を用いて anti-Bredt 化合物の合成を行った (図 4)。即ち, 1-ベンゾイル-2-フェニルピラゾロ[1,2-*a*]ピラゾール **3** をベンゼン中, DMAD と反応させることにより 3-ベンゾイル-2-フェニル-8,9,10(1',2')-テトラメトキシカルボニル-10-エテニル-4,10-ジアザビシクロ[5.2.1]デカ-1,3,5,8-テトラエン (**6**) を得た。同様の方法によりベンゼン環の *p*-位にクロロ基, ブロモ基のついた 3-(4-クロロベンゾイル)-2-(4-クロロフェニル)-8,9,10(1',2')-テトラメトキシカルボニル-10-エテニル-4,10-ジアザビシクロ[5.2.1]デカ-1,3,5,8-テトラエン (**7**), 3-(4-ブロモベンゾイル)-2-(4-ブロモフェニル)-8,9,10(1',2')-テトラメトキシカルボニル-10-エテニル-4,10-ジアザビシクロ[5.2.1]デカ-1,3,5,8-テトラエン (**8**) の合成をそれぞれ行った。

3. 実験方法

本実験で合成した anti-Bredt 化合物の核磁気共鳴スペクトル測定は JEOL JNM-ECX500II を使用し, 内部標準物質としてテトラメチルシラン (TMS) を用いた。¹H NMR と ¹³C NMR の化学シフトは内部標準物質として使用した TMS から低磁場を δ 値 (ppm) で表し, 結合定数 (J) を Hz で表した。ここでは略号は以下の通りである。*s*: 一重線 singlet, *d*: 二重線 doublet, *t*: 三重線 triplet, *q*: 四重線 quartet, *m*: 多重線 multiplet, *dd*: 二重に分裂した二重線 double doublet, など。また, 以下の略語を用いた。COSY: Correlation

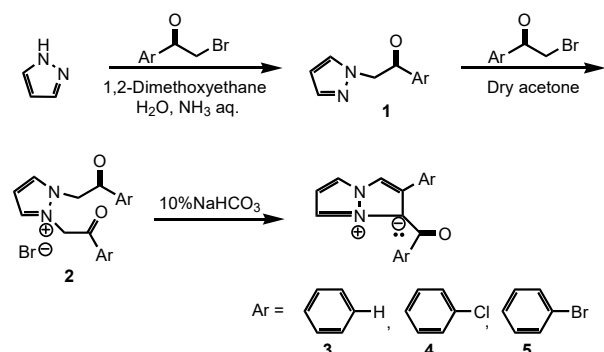


Fig.3 1-ベンゾイル-2-フェニルピラゾロ[1,2-*a*]ピラゾール誘導体合成

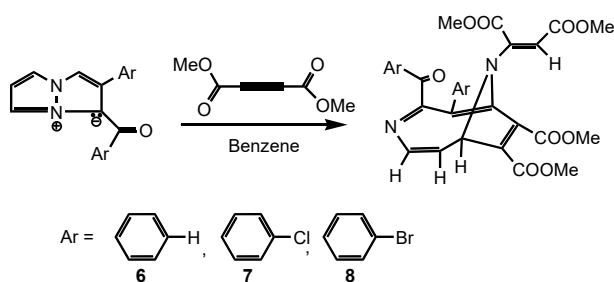


Fig.4 anti-Bredt 化合物の合成

Spectroscopy, DEPT: Distortionless Enhancement by Polarization Transfer, HMQC: Heteronuclear Multiple Quantum Correlation, HMBC: Heteronuclear Multiple Bound Correlation Spectroscopy.

NMR 測定方法: 合成化合物 (80~120 mg) を 0.6 mL の重クロロホルム (CDCl_3) に溶解し, 測定を行った。今回は測定温度を 40°C に昇温し測定を行った。

3-Benzoyl-2-phenyl-8,9,10(1',2')-tetramethoxycarbonyl-10-ethenyl-4,10-diazabicyclo[5.2.1]deca-1,3,5,8-tetraene (**6**)

1-ベンゾイル-2-フェニルピラゾロ[1,2-*a*]ピラゾール **3** (0.23 g, 0.8 mmol) のベンゼン (20 mL) 溶液に, DMAD (0.30 mL, 2.4 mmol) を加え, 室温下で 30 分攪拌した。溶媒を減圧下留去し, アルミナカラムクロマトグラフィー (ヘキサン/酢酸エチル=3:1) に付し, 再結晶を行い, 化合物 **6** (0.13 g, 29%) を得た。

⁶: ¹H NMR (500 MHz, CDCl_3) δ = 3.38 (3H, s), 3.61 (3H, s), 3.71 (3H, s), 3.75 (3H, s), 4.76 (1H, d, J = 2.5 Hz), 5.35 (1H, s), 5.78 (1H, dd, J = 10.0, 2.5 Hz), 7.06 (1H, d, J = 10.0 Hz), 7.09 (2H, d, J = 7.0 Hz, ph), 7.32–7.34 (3H, m, ph), 7.37 (2H, t, J = 7.5 Hz, ph), 7.50 (1H, t, J = 7.5 Hz, ph), 7.99 (2H, d, J = 7.5 Hz, ph); ¹³C NMR (125 MHz, CDCl_3) δ = 51.3 (CH_3), 52.5 (CH_3), 52.6 (CH_3), 52.8 (CH_3), 61.7 (CH), 94.9 (CH), 117.9 (CH), 127.6 (CH), 127.8 (CH), 128.6 (CH), 129.2 (CH), 130.8 (CH), 132.5 (CH), 133.9 (C), 136.0 (C), 136.3 (CH), 138.7 (C), 140.4 (C), 143.7 (C), 146.3 (C), 146.4 (C), 161.4 (C), 161.6 (C), 163.2 (C), 163.4 (C), 166.6 (C), 189.3 (C=O).

3-(4-Chlorobenzoyl)-2-(4-chlorophenyl)-8,9,10(1',2')-tetramethoxycarbonyl-10-ethenyl-4,10-diazabicyclo[5.2.1]deca-1,3,5,8-tetraene (**7**)

クロロ前駆体 **4** (0.28 g, 0.8 mmol) のベンゼン (20 mL) 溶液に, DMAD (0.30 mL, 2.4 mmol) を加え, 室温下で 30 分攪拌した。溶媒を減圧下留去し, アルミナカラムクロマトグラフィー (ヘキサン/酢酸エチル=3:1) に付し, 再結晶を行い, 化合物 **7** (0.12 g, 23%) を得た。

⁷: ¹H NMR (500 MHz, CDCl_3) δ = 3.42 (3H, s), 3.62 (3H, s), 3.68 (3H, s), 3.76 (3H, s), 4.75 (1H, d, J = 3.0 Hz), 5.31 (1H, s), 5.80 (1H, dd, J = 11.0, 3.0 Hz), 6.99 (2H, d, J = 8.0 Hz, ph), 7.03 (1H, d, J = 11.0 Hz), 7.29 (2H, d, J = 8.0 Hz, ph), 7.33 (2H, d, J = 8.5 Hz, ph), 7.96 (2H, d, J = 8.5 Hz, ph); ¹³C NMR (125 MHz, CDCl_3) δ = 51.6 (CH_3), 52.8 (CH_3), 52.8 (CH_3), 53.0 (CH_3), 61.8 (CH), 95.7 (CH), 118.4 (CH), 128.3 (ph), 128.9 (ph), 129.0 (ph), 132.4 (ph), 132.6 (C), 134.1 (C), 135.5 (C), 136.2 (CH), 136.5 (C), 139.4 (C), 140.2 (C), 144.3 (C), 146.1 (C), 147.3 (C), 161.3 (C), 161.4 (C), 163.2 (C), 163.3 (C), 166.5 (C), 188.1 (C=O).

3-(4-Bromobenzoyl)-2-(4-bromophenyl)-8,9,10(1',2')-tetramethoxycarbonyl-10-ethenyl-4,10-diazabicyclo[5.2.1]deca-1,3,5,8-tetraene (**8**)

プロモ前駆体 **5** (0.36 g, 0.8 mmol) のベンゼン (20 mL) 溶液に, DMAD (0.39 mL, 3.2 mmol) を加え, 室温で1時間攪拌した. 減圧下溶媒を留去し, アルミナカラムクロマトグラフィー (ヘキサン/酢酸エチル=2:1) に付し, 再結晶を行い, 化合物 **8** (0.18 g, 32%) を得た.

8: ^1H NMR (500 MHz, CDCl_3) δ = 3.41 (3H, s), 3.62 (3H, s), 3.67 (3H, s), 3.76 (3H, s), 4.75 (1H, d, J = 3.0 Hz), 5.32 (1H, s), 5.81 (1H, dd, J = 10.5, 3.0 Hz), 6.92 (2H, d, J = 8.0 Hz, ph), 7.03 (1H d, J = 10.5 Hz), 7.44 (2H, d, J = 8.0 Hz, ph), 7.50 (2H, d, J = 8.5 Hz, ph), 7.87 (2H, d, J = 8.5 Hz, ph); ^{13}C NMR (125 MHz, CDCl_3) δ = 51.5 (CH_3), 52.7 (CH_3), 52.8 (CH_3), 52.9 (CH_3), 61.7 (CH), 95.8 (CH), 118.4 (CH), 123.6 (C), 128.1 (C), 129.2 (ph), 131.2 (ph), 131.8 (ph), 132.4 (ph), 133.1 (C), 134.5 (C), 136.1 (CH), 136.3 (C), 140.2 (C), 144.2 (C), 146.0 (C), 147.3 (C), 161.1 (C), 161.3 (C), 163.1 (C), 163.2 (C), 166.4 (C), 188.3 (C = O).

4. 結果及び考察

まず, ベンゼン環の *p*-位にプロモ基のついた anti-Bredt 化合物 **8** の ^1H NMR の帰属を行った. エステル部分の酸素に結合したメチル基の水素の化学シフトは3-4 ppm あたりと知られており, それに対応するピークは図5より3.41, 3.62, 3.67, 3.76 ppm (singlet) の4本である. オレフィンのシスの水素同士のスピン結合定数はおよそ7~12 Hz であることから, 5.81 ppm の double doublet および7.03 ppm の doublet が何れも10.5 Hz であるため, この二つのピークが隣り合うシスの水素である. また, 4.75 ppm (doublet) は5.81 ppm とカップリング (結合定数: 3.0 Hz) しており, これより N 原子架橋の付け根の水素由来であると推定する. さらに, ベンゼン環のピークは7.0-8.0 ppm 付近に検出されることから6.92, 7.44, 7.50, 7.87 ppm がベンゼン環のピークである. 残りの5.32 ppm は二重結合の水素由来のピークであると確定できた. 合成した anti-Bredt 化合物はベンゼン環を2つ有するため, COSY により隣接する水素同士の相関ピークを確認した. 6.92と7.44および7.50と7.87 ppm が隣接していることが確認され, これらの相関から ^1H NMR のおよその帰属が出来た.

次に, ^{13}C NMR と DEPT90°, 135° による測定を行った. ^{13}C NMR では, 炭素の数が合っているかと特徴的な官能基であるカルボニル炭素があることを確認した. DEPT90° 測定では3級炭素 (CH) のみが検出されるため, ベンゼン環およびその他のメチンが ^{13}C NMR においてどのピークにあたるかを確認し, 同様に DEPT135° 測定ではメチル基の1級炭素 (CH_3) 由来が ^{13}C NMR においてどのピークにあたるかを確認した. なお, 合成した3つの anti-Bredt 化合物は

通常温度ではすべての炭素数が確認できなかった. そのため, サンプル量を80 mg以上に増やし40°Cに昇温して測定を行うことで極めて小さいピークを検出することが可能となり, 炭素数を一致させることができた (図6). 続いて, 合成化合物のビシクロ環骨格は4級炭素を多く有する構造のため2次元 NMR による測定を行い, より正確な帰属を行った. ^1H - ^{13}C の2次元 NMR である HMQC 測定により水素と直接結合している炭素との相関を確定した (表1). さらに, ^1H - ^{13}C の2次元 NMR の1つでロングレンジカップリングが確認できる HMBC 測定を行った (図7). その結果, ベンゼ

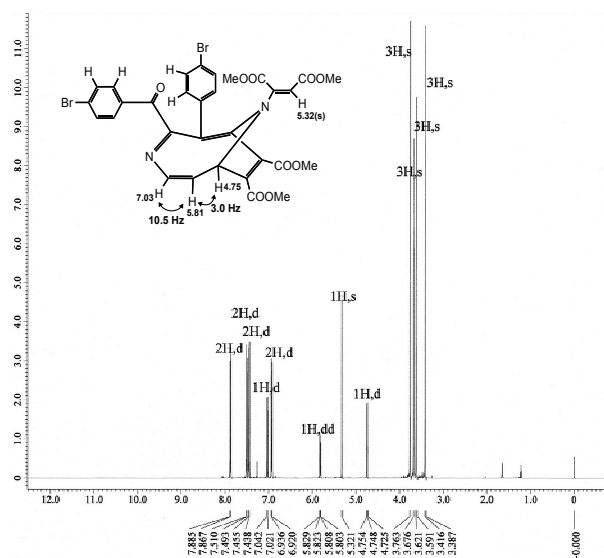


Fig.5 化合物8の ^1H NMRスペクトルによる帰属予測

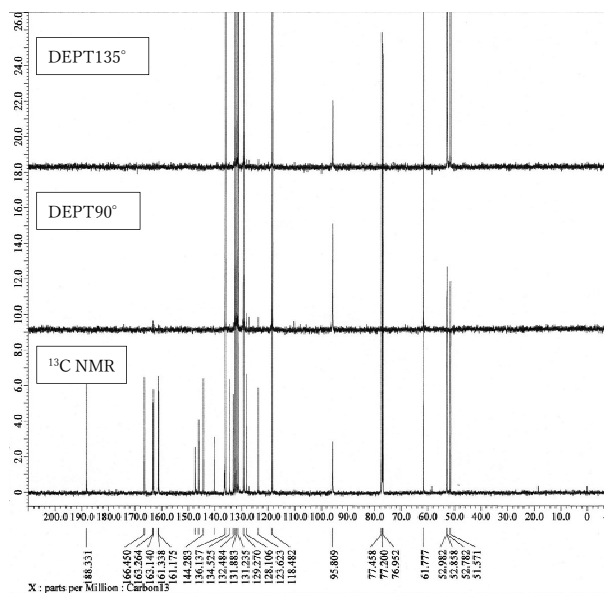


Fig.6 化合物8の ^{13}C NMRスペクトルおよびDEPTスペクトルによる帰属予測

Table 1 化合物8のHMQCによる ^1H と ^{13}C の相関

^1H (ppm)	4.75	5.32	5.81	6.92	7.03	7.44	7.50	7.87
^{13}C (ppm)	61.7	95.8	118.4	129.2	136.1	131.8	131.2	132.4

ン環の水素 (7.87 ppm) とカルボニル炭素 (188.3 ppm), オレフィン水素 (7.03 ppm) と C=N の炭素 (161.1 ppm), N 原子架橋付け根の水素 (4.75 ppm) と架橋付け根の反対側の炭素 (147.3 ppm) およびベンゼン環の水素 (6.92 ppm) とその付け根の炭素 (136.3 ppm) とそれぞれのカップリングが確認された。これらの結果により、極めて小さいピークはベンゼン環の付け根の炭素由来であることが決定づけられた (図8)。

同様の方法でベンゼン環の *p*-位にクロロ基のついた anti-Bredt 化合物7の帰属を行った。即ち, ^1H NMR 測定より, 3.42–3.76 ppm にある4本の singlet のピークはメチル基を示し, 4.75 ppm に示された水素は架橋の付け根のメチンに由来し, 5.80 ppm と7.03 ppm はオレフィンのシスの水素を示した。また, 6.99–7.96 ppm にある4本の doublet のピークはベンゼン環の水素由来であると考えた。さらに, HMQC 測定により3級炭素 (CH) と水素の相関は, シスオレフィンの炭素と水素が118.4(C)–5.80(H) ppm, 136.2(C)–7.03(H) ppm であり, 架橋の窒素原子に結合した2重結合炭素と水素は95.7(C)–5.31(H) ppm であった。HMBC 測定では, ^1H NMR 測定で観測されシスオレフィンの水素 (7.03 ppm) と ^{13}C NMR の測定による161.3 ppm のピークおよび架橋の付け根の水素 (4.75 ppm) と反対側の付け根の炭素 (147.3 ppm) とのロングレンジカップリングを確認し ^{13}C NMR の帰属を決定した。

最後にベンゼン環に置換基がない anti-Bredt 化合物6の帰属を行った。 ^1H NMR 測定により, 架橋付け根の水素, オレフィンの水素はそれぞれ5.78, 7.06 ppm となった。COSY 測定によるカルボニル基に結合しているベンゼン環の水素同士の相関は7.37と7.50 ppm, 7.37と7.99 ppm が隣り合っていることが明らかとなった。続いて, HMQC 測定によりベンゼン環以外の4つの CH の相関はそれぞれ4.76(H)

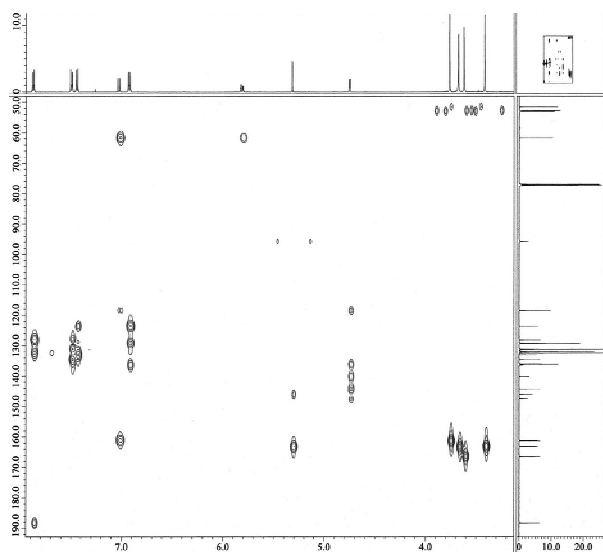


Fig.7 化合物8のHMBC スペクトル

–61.7(C) ppm, 5.35(H)–94.9(C) ppm, 5.78(H)–117.9(C) ppm, 7.06(H)–136.3(C) ppm となった。さらに, HMBC 測定によるロングレンジカップリングの相関では, オレフィンの水素 (7.06 ppm) と C=N 由来の161.6 ppm のピークおよび架橋の付け根の水素 (4.76 ppm) と架橋付け根 C-N 由来の146.4 ppm のピーク, ベンゼン環の水素 (7.09 ppm) とその付け根の炭素由来の138.7 ppm が確認された (図9)。

以上により, 3つの anti-Bredt 化合物を合成し, ベンゼン環の *p* 位に置換基がついている化合物8, 7から順次に解析することで化合物の特徴的な架橋炭素ピークを明らかにした。

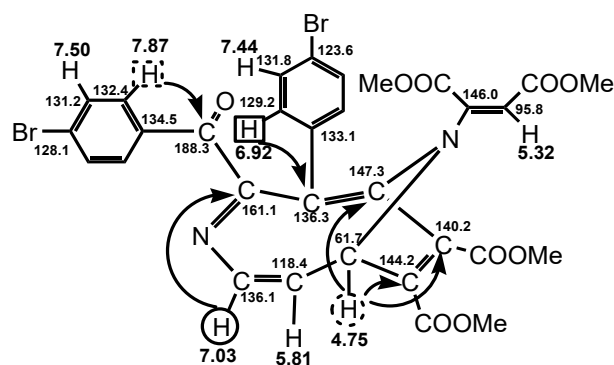


Fig.8 化合物8の2次元NMRによる帰属予測

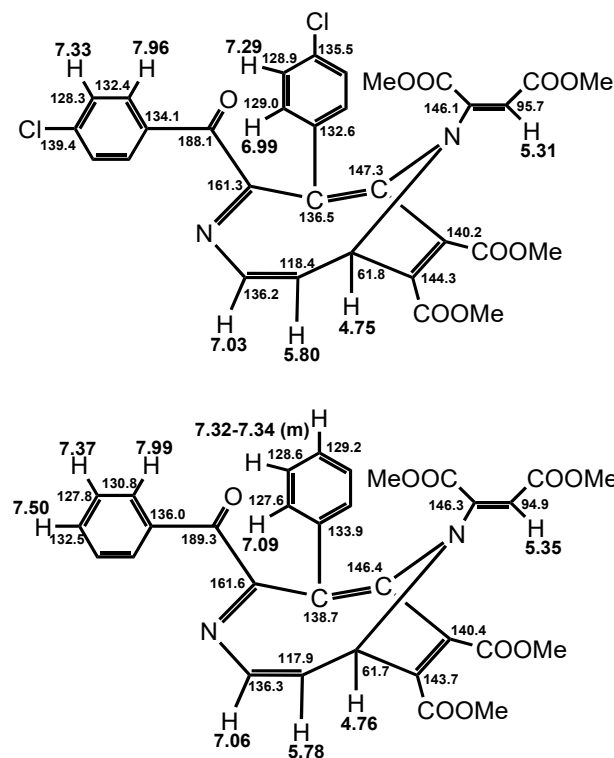


Fig.9 2次元NMRによる帰属予測

5. 結 論

2次元NMRを用いることで水素数の少ない化合物のおおよその構造決定と帰属が可能であった。しかし、正確な構造の決定を行うには、X線結晶構造解析による解析を行うことが望ましい。NMRのみによる構造解析を行うならば、2次元NMRのINADEQUATE (Incredible natural abundance double quantum transfer experiment) による測定及び解析をすることでより正確な帰属が可能であると推察する。また、合成した化合物の特徴的な橋頭位の2重結合炭素¹³C NMRの化学シフトは146-147 ppmであり、ベンゼン環付け根の2重結合炭素のピークは測定試料を増やし昇温しなければ検出が困難であることが明らかとなった。

6. 謝 辞

本研究は2018年度関東学院大学理工／建築・環境学会研究補助費を受けて行われました。この場を借りて感謝申し上げます。また、合成した化合物の構造決定は、平成24年度私立学校施設整備補助金により整備された超分子構造解析装置JEOL JNM-ECX500IIを用いて行いました。ここに感謝いたします。

参考文献

- 1) J. Brecht, *Justus Liebigs Ann. Chem.* **1924**, 437, 1.
- 2) T. Amagata, A. Amagata, K. Tenney, F. A. Valeriote, E.

- Lobkovsky, J. Clarady and P. Crews, *Org. Lett.* **2003**, 5, 4393.
- 3) L. Junyang, W. Jianlei, F. Jian-Hong, Y. Xin, M. Guangjian, and L. Chuang-Chuang, *J. Am. Chem. Soc.* **2018**, 140, 5365.
- 4) R. A. Holton, H. B. Kim, C. Somoza, F. Liang, R. J. Biediger, P. D. Boatman, M. Shindo, C. C. Smith, S. Kim, H. Nadizadeh, Y. Suzuki, C. T. Phong, V. S. Tang, P. Zhang, K. K. Murthi, L. N. Gentile and J. H. Liu, *J. Am. Chem. Soc.* **1994**, 116, 1599.
- 5) K. C. Nicolaou, Z. Yang, J. J. Liu, H. Ueno, P. G. Nantermet, R. K. Guy, C. F. Claiborne, J. Renaud, E. A. Couladouros, K. Paulvannan and E. J. Sorensen, *Nature*. **1994**, 367, 630.
- 6) K. C. Nicolaou, W. M. Dai and R. K. Guy, *Angew. Chem. Int. Ed. Engl.* **1994**, 33, 15.
- 7) K. Matsumoto, H. Iida, H. Katsura, T. Machiguchi, H. Uekusa and Y. Ohashi, *J. Chem. Soc., Perkin Trans. 1*, **1996**, 2333.
- 8) A. Galbraith, T. Small, R. A. Barnes, and V. Boekelheide, *J. Am. Chem. Soc.*, **1961**, 83, 453.
- 9) V. Boekelheide and N. A. Fedoruk, *Proc. Nat. Acad. Sci.*, **1966**, 55, 1385.

大気焼成中における $\text{SrAl}_2\text{O}_4 : \text{Eu}^{2+}$ 蛍光体の作製とその発光特性

村山優奈*
赤瀬麻衣**
城戸隆宏*
松井和則**

**Preparation and Photoluminescence Properties of $\text{SrAl}_2\text{O}_4 : \text{Eu}^{2+}$ Phosphors
Sintered in Air Atmosphere**

by

**Yuna MURAYAMA
Mai AKASE
Takahiro KIDO
Kazunori MATSUI**

要旨

高温の固相反応で作製した $\text{SrAl}_2\text{O}_4 : \text{Eu}$ 蛍光体で、大気焼成下における Eu^{3+} から Eu^{2+} への還元を研究した。ホトルミネッセンススペクトルは、赤色の Eu^{3+} のピークの他に、異なった Sr サイトに置換した青色と緑色の発光ピークを有しており、大気中でも Eu^{3+} から Eu^{2+} への還元が部分的に起きることを示している。緑色発光のピークは、焼成温度と Sr 欠損の増加とともに増加した。青色発光・緑色発光は、ともに残光を示した。それらの結果は、Sr 欠損にともなう、 O^{2-} 空孔の生成で説明される。

キーワード：残光，アルミン酸ストロンチウム，Eu(III)還元，酸素欠陥，ストロンチウム欠陥

Abstract

The reduction of Eu^{3+} to Eu^{2+} in air atmosphere was studied in $\text{SrAl}_2\text{O}_4 : \text{Eu}$ phosphors prepared by a solid-state reaction sintered at high temperature. Photoluminescence spectra had blue and green emission peaks of Eu^{2+} due to different Sr sites as well as red peaks of Eu^{3+} , indicating that Eu^{3+} is partially reduced to Eu^{2+} under air. The green emission peak increased with an increase in sintering temperature and Sr deficiencies. Both the blue and green emission exhibited afterglow characteristics. These results are explained by the formation of O^{2-} vacancies induced by Sr deficiencies.

Key Words: Afterglow, Strontium aluminate, Eu (III) reduction, Oxygen vacancy, Strontium vacancy

1. 緒言

長残光蛍光体は、紫外線や放射線によって励起されたエネルギーを蓄え、励起源を遮断した後そのエネルギーを光として徐々に放出し長時間発光する物質である¹⁾。災害時の避難誘導標識、ガードレール衝突防止警告板、時計の文字盤、照明機器、アクセサリなど幅広く利用されている。

中でも緑色の残光 (~515 nm) を示す $\text{SrAl}_2\text{O}_4 : \text{Eu}^{2+}$, Dy^{3+} は、長残光蛍光体の代表例としてよく知られている²⁾。これは発光中心の賦活剤 Eu^{2+} 、残光寿命を長くする共賦活剤 Dy^{3+} を SrAl_2O_4 結晶にドーブした組成である。 Eu^{2+} の発光中心は、還元雰囲気中で Eu^{3+} を焼成することで還元されて生成する。また低温での測定あるいは低濃度の Eu^{2+} の試料においては、緑色発光の他に青色の発光 (~460 nm) が観測され^{3), 4)}、緑色は SrAl_2O_4 結晶中に存在する Sr^{2+} サイト 1, 青色は Sr^{2+} のサイト 2 に置換した Eu^{2+} からの発光に帰属されていた。しかしながら、近年この帰属は緑色は Sr^{2+} のサイト 2, 青色は Sr^{2+} のサイト 1 とする説も提起され^{5), 6)}、その帰属については議論があるところである。さらに $\text{SrAl}_2\text{O}_4 : \text{Eu}^{2+}$ も短いながら残光特性を有しており、それが Dy^{3+} の添加により飛躍的に長寿命化する現象については諸説があり、未だ十分には解明されていない^{7) ~9)}。

本研究では、それらの現象の基本的な理解を深めるため、 SrAl_2O_4 結晶に Eu^{3+} をドーブし、焼成条件や SrAl_2O_4 結晶の化学量論比による Eu^{2+} の発光特性について研究を進めている^{10), 11)}。本研究では、Sr の組成比を変えた SrAl_2O_4 結晶に Eu^{3+} をドーブし、大気中で焼成した蛍光体を作製し、大気焼成でも、 Eu^{2+} に由来する緑色と青色の発光中心が生成すること、およびそれらに残光特性があることを見いだした。

2. 実験方法

2.1 材料

母結晶の原料として SrCO_3 (和光純薬工業製, 95%), $\text{Al}(\text{OH})_3$ (和光純薬工業製, 95%), 賦活剤に Eu_2O_3 (和光純薬工業製, 99.9%), 共賦活剤に Dy_2O_3 (和光純薬工業製, 99.9%) を用いた。

2.2 蛍光体の作製

各原料を様々な仕込み量で秤量し、原料粉末を遊星型ボールミル (Fritsch P-7) で粉碎・混合した。混合した粉末を大気雰囲気中で焼成して試料を得た。

2.3 測定

作製した蛍光体の同定には X 線回折装置 RINT2200 (Rigaku) を用いた。励起スペクトル、発光スペクトル、残光強度の減衰、残光スペクトルおよび残光励起スペクトルは蛍光分光光度計 FP-8500 (日本分光) で測定した。 Eu^{3+} , Eu^{2+} を選択的に励起するため、それぞれ ~270 nm および ~370 nm での発光の励起波長を用いた。残光特性は、励起光を10分間照射した後、励起光遮断後の残光強度変化を測

定して評価した。

3. 結果および考察

3.1 XRD による蛍光体構造の同定

Fig.1に $\text{Sr}_{0.99}\text{Al}_2\text{O}_4 : \text{Eu}_{0.01}$ の組成の粉末を、各温度で大気雰囲気中で2時間焼成したときの XRD パターンを示す。これらは PDF#01-076-7489のパターンと一致しておりいずれの温度においてもモノクリニック型の SrAl_2O_4 結晶の生成が確認できた。また各組成で作製した試料でも同様の XRD パターンが得られていることから、今回の実験条件ではいずれも SrAl_2O_4 結晶が生成できた。

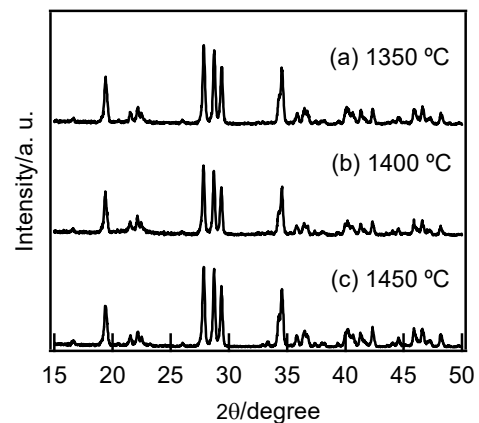


Fig.1 XRD patterns of $\text{Sr}_{0.99}\text{Al}_2\text{O}_4 : \text{Eu}_{0.01}$ phosphors sintered at various temperatures in air atmosphere for 2 h.

3.2 蛍光体の発光・励起スペクトル

Fig.2に上記の蛍光体を388 nmで励起したときの発光スペクトルを示す。焼成温度1350°Cでは460 nmにピークを示し、1400°Cになると505 nmにショルダーピークが現れ、1450°Cになると460 nmと510 nmはほぼ同程度の発光強度のピークになった。これらは、 Eu^{2+} の青色発光および緑色発光とほぼ一致している。今回の試料で青色発光が観測されたのは、大気焼成では効率的にエネルギー移動が起こるほど Eu^{2+} が生成していないためと推察される⁴⁾。これは次に述べるように還元されていない Eu^{3+} の発光が観測されていることとも合致している。

この蛍光体を $\text{Eu}^{3+}-\text{O}^{2-}$ の電荷移動遷移に相当する270 nmで励起した (Fig.3)。Fig.2のスペクトルと同様に青色と緑色発光が観測されるが、この励起条件では Eu^{3+} が強く励起されるため613 nm近辺に Eu^{3+} の ${}^5\text{D}_0 \rightarrow {}^7\text{F}_2$ 遷移に由来するピークが観測される。通常の還元雰囲気での焼成においては、 Eu^{3+} のピークは観測できないので、大気中の焼成では還元されていない Eu^{3+} の成分が残存していることを意味している。

Fig.4に緑色発光 (~500 nm) および青色発光 (~470 nm) の励起スペクトルを示す。いずれも270 nmおよび370~400 nmにブロードなピークを有しており、 Eu^{2+} の励起スペクトルとほぼ対応している。また (a) から (c) と焼成温度が高くなるにつれて370 nmのピークが明確に成長している。他

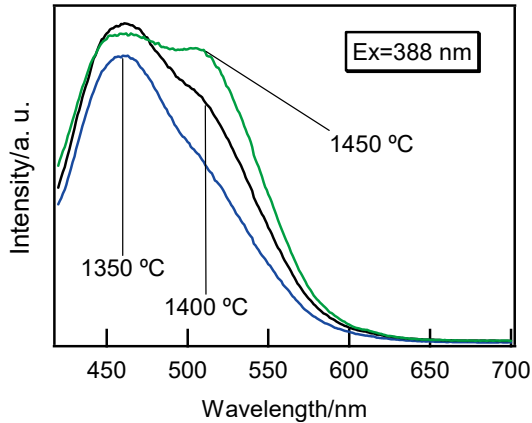


Fig.2 Photoluminescence spectra of Sr_{0.99}Al₂O₄:Eu_{0.01} phosphors sintered at various temperatures in air atmosphere for 2 h excited at 388 nm.

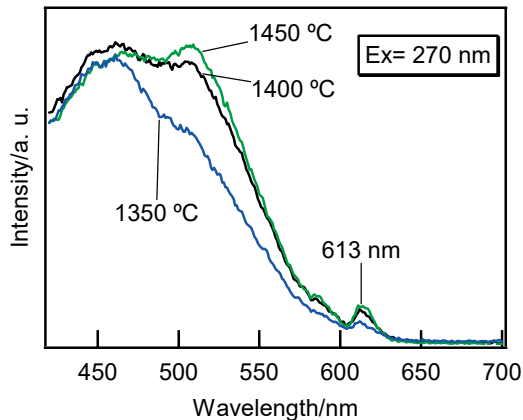


Fig.3 Photoluminescence spectra of Sr_{0.99}Al₂O₄:Eu_{0.01} phosphors sintered at various temperatures in air atmosphere for 2 h excited at 270 nm.

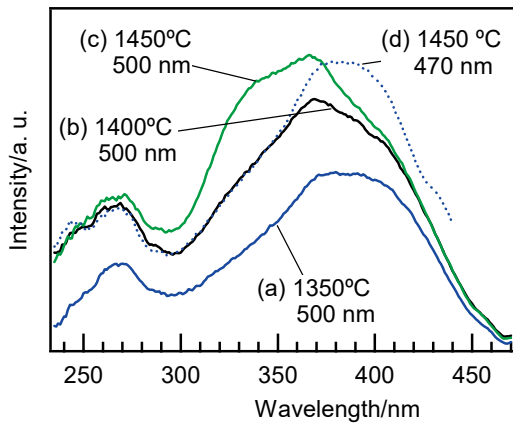


Fig.4 Excitation spectra of Sr_{0.99}Al₂O₄:Eu_{0.01} phosphors sintered at various temperatures in air atmosphere for 2 h monitored at 500 nm (a, b, and c), and 470 nm (d).

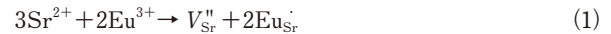
方、青色発光の励起スペクトル (d) は、ほとんど焼成温度による変化がみられなかった。1350℃焼成の弱い緑色発光の励起スペクトル (a) と1450℃焼成の青色発光の励起スペクトル (d) が類似していることから、青色発光の Eu²⁺ は比

較的低温の焼成温度で生成するがそれ以上の温度でもほとんど変化せず、高温になると緑色発光の Eu²⁺ の生成量が増加していると推察される。これは発光スペクトルの温度変化 (Figs.2および3) とよく対応している。

3.3 蛍光体組成が発光特性に与える影響とその機構

Fig.5に Sr_xAl₂O₄:Eu_{0.01} (x = 1.05~0.80) の仕込み量で大気雰囲気中1450℃で2時間焼成し作製した試料の蛍光スペクトルを示す。Srの過剰な (a)x = 1.05からSrを減少していくと、515 nm 付近の発光ピーク強度が増加し、(d)x = 0.85で最大強度を示すが、Srがさらに減少するとピーク強度も減少した。これらのスペクトル変化から、緑色発光のサイトでは、適量のSr欠損と温度によりEu³⁺の還元が進んで、緑色発光のEu²⁺が強くなること分かる。他方、青色発光を示すサイトでは、Eu³⁺の還元は焼成温度や組成による影響が少なく一定量以上は進行しないと推察できる。大気焼成により緑色発光サイトと青色発光サイトで異なった発光強度変化を示す理由については不明であるが、非等価である二つのSrサイトにおいて、Eu³⁺とEu²⁺の安定性が異なっているためと推測している。これらについては、さらに研究を進めている。

大気中におけるEu³⁺の還元は、Sr₄Al₁₄O₂₅:Euの系で観測されており、次のように説明されている¹²⁾。



ここで上記のクレーガー・ピンクの表記は、次の欠陥を意味している。

V_{Sr}'': マイナス2価の有効電荷を持つSrの格子空孔

Eu_{Sr}[×]: Srに置換したプラス1価の有効電荷を持つEu (Sr²⁺サイトのEu³⁺)

V_{Sr}[×]: 電氣的に中性なSrの格子空孔

Eu_{Sr}[×]: Srに置換した電氣的に中性なEu (Sr²⁺サイトのEu²⁺)

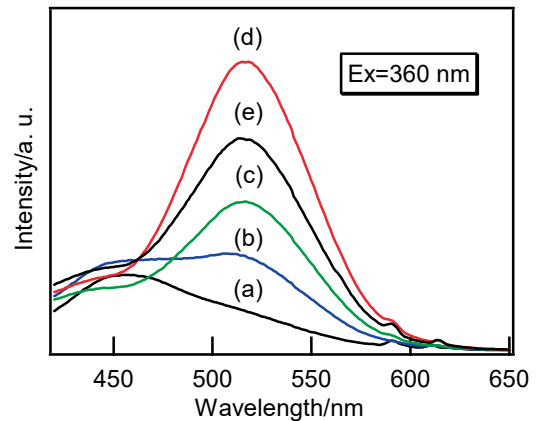


Fig.5 Photoluminescence spectra of Sr_xAl₂O₄:Eu_{0.01} phosphors sintered at 1450 °C in air atmosphere for 2 h: x= (a) 1.05, (b) 0.95, (c) 0.90, (d) 0.85, and (e) 0.80 excited at 360 nm.

Eu^{3+} を SrAl_2O_4 結晶にドーピングするとき、 Eu^{3+} イオンはイオン半径の類似した Sr^{2+} イオンに置換される。価数の異なるイオン同士の同形置換では電荷補償のため、2個の Eu^{3+} イオンが3個の Sr^{2+} イオンと置換する必要がある。その結果マイナス2価の有効電荷を持つSrの空孔(V_{Sr}'')とSrに置換したプラス1価の有効電荷を持つ Eu_{Sr} 欠陥(即ち Sr^{2+} サイトの Eu^{3+})が生成する(Eq.1)。加熱により、Sr空孔 V_{Sr}'' から電子が放出され(Eq.2)、 Eu_{Sr} と反応して Eu^{3+} は Eu^{2+} に還元される(Eq.3)。これらがこれまでの大気焼成での還元機構で、今回の大気中における $\text{SrAl}_2\text{O}_4:\text{Eu}^{2+}$ の発光についても概ねこれらの還元機構で説明できる。

他方、Srの不足した蛍光体では、 Sr^{2+} の空孔 V_{Sr}'' が生成するが、同時に電気的中性条件により O^{2-} 空孔(プラス2価の酸素空孔 $V_{\text{O}}^{\bullet\bullet}$)も生成する。生成エネルギーの理論計算によると、酸素の多い雰囲気下では、 $V_{\text{O}}^{\bullet\bullet}$ の生成エネルギーは V_{Sr}'' のそれより約1.9eV大きい¹³⁾。この結果に基づくと、同じ焼成温度では $V_{\text{O}}^{\bullet\bullet}$ による正孔の放出よりも、Srの空孔 V_{Sr}'' から電子が放出され易いと説明できる。

3.4 蛍光体の残光特性

Fig.6に上記の蛍光体のSr組成(x)が0.85および0.99の蛍光体における、緑色発光と青色発光の残光減衰曲線を示す。これらは微弱ながらも目視可能な数秒の残光特性を有し、Sr欠陥の多い試料の方が残光強度は強く、その中でも緑色発光の方が青色発光より強いことがわかる。残光の機構として、励起された Eu^{2+} の電子が伝導帯を介して電子トラップ(プラス2価の酸素空孔 $V_{\text{O}}^{\bullet\bullet}$)に捕捉され、徐々に放出されて再結合発光するという説が有力である^{7), 9)}。今回得られた残光減衰曲線がほぼ同一の傾きを示していることから、同一の電子トラップ($V_{\text{O}}^{\bullet\bullet}$)に捕捉された電子が関与していると推測される。先ほど述べたようにSrの不足した蛍光体は、 $V_{\text{O}}^{\bullet\bullet}$ がより多く生成するため、電子トラップの濃度が高くなって残光強度が増加したものと考えられる。

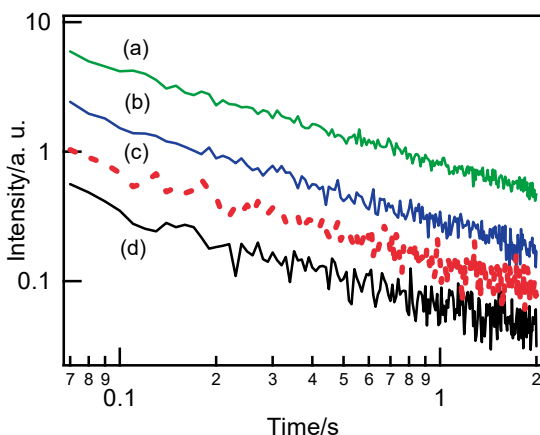


Fig.6 Afterglow characteristics of $\text{Sr}_x\text{Al}_2\text{O}_4:\text{Eu}_{0.01}$ phosphors sintered at 1450°C in air atmosphere for 2 h: $x=0.85$, (a) $\text{Em}=515\text{ nm}$ and (b) 460 nm ; $x=0.99$, (c) $\text{Em}=515$ and (d) $\text{Em}=460\text{ nm}$. $\text{Ex}=370\text{ nm}$.

4. 結論

$\text{SrAl}_2\text{O}_4:\text{Eu}$ の結晶大気焼成において、 Eu^{3+} の他に Eu^{2+} の青色発光と緑色発光の二種類の発光が観測された。緑色発光は焼成温度が高いほど、Sr欠陥が多いほど強いことをみいだした。またこれらは弱いながらも残光特性を示し、 O^{2-} の生成による電子トラップの濃度が高くなるためと考えられる。さらに還元条件の影響、 Dy^{3+} の効果、残光スペクトルの測定、構造の精密解析など、欠陥構造と残光特性の関係について研究を進めていく予定である。

謝辞

本研究は、2019年度理工/建築・環境学会研究補助費を受けたものである。

参考文献

- 1) P. F. Smet, K. Van den Eeckhout, O. Q. De Clercq, and D. Poelman: Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths, J.-C. Bünzli, and V. K. Pecharsky, eds. pp. 1-108, Elsevier (2015).
- 2) T. Matsuzawa, Y. Aoki, N. Takeuchi, and Y. Murayama: J. Electrochem. Soc. 143, 8, pp. 2670-2673 (1996).
- 3) J. Botterman, J. J. Joos, and P. F. Smet: Phys. Rev. B 90, 8, pp. 085147 (2014).
- 4) J. Bierwagen, S. Yoon, N. Gartmann, B. Walfort, and H. Hagemann: Opt. Mater. Express 6, 3, pp. 793-803 (2016).
- 5) R. Shi, M. Qi, L. Ning, F. Pan, L. Zhou, W. Zhou, Y. Huang, and H. Liang: J. Phys. Chem. C 119, pp. 19326-19332 (2015).
- 6) L. Ning, X. Huang, Y. Huang, and P. A. Tanner: J. Mater. Chem. C 6, pp. 6637-6640 (2018).
- 7) F. Clabau, X. Rocquefelte, S. Jobic, P. Deniard, M.-H. Whangbo, A. Garcia, and T. Le Mercier: Chem. Mater. 17, 15, pp. 3904-3912 (2005).
- 8) P. Dorenbos: J. Electrochem. Soc. 152, 7, pp. H107-H110 (2005).
- 9) H. F. Brito, J. Hölsä, T. Laamanen, M. Lastusaari, M. Malkamäki, and L. C. V. Rodrigues: Opt. Mater. 2, 4, pp. 371-381 (2012).
- 10) 松井和則, 赤瀬麻衣, 城戸隆宏, 希土類 No. 70, pp. 26-27 (2017).
- 11) 村山優奈, 城戸隆宏, 松井和則, 希土類 No. 72, pp.100-101 (2018).
- 12) M. Peng, Z. Pei, G. Hong, and Q. Su, Chem. Phys. Lett., pp.1-6 (2003).
- 13) E. Finley, A. M. Tehrani, and J. Brgochi: J. Phys. Chem. C 122, pp. 16309-16314 (2018).

大学のオープンキャンパスにおける VR 技術の活用とその効果 (機械学系の場合)

堀 田 智 哉*

佐 藤 純*

Practical and Effect of Using VR Contents on University's Open Day (In Case of Course in Mechanical Engineering)

by

Tomoya HOTTA

Jun SATO

要 旨

VR (仮想現実) 技術は、近年、様々な分野に注目されている技術である。本研究は、この VR 技術を用いた、機械学系の紹介コンテンツを制作し、その効果について検証をおこなうものである。本稿においては、制作したコンテンツをオープンキャンパスおよび大学祭の来場者41人によって体験および評価をおこなった。その結果、体験者からの関心を得ることができることが明らかとなった。

Abstract

In recent years, VR (Virtual Reality) technology has attracted attention in various fields. The purpose of this research is to create the introduction contents of course in the mechanical engineering using the VR technology, and to verify the effect. and the effect is verified. In this paper, the contents produced were evaluated by 41 visitors to the university's open day and the university festival. As a result, it became clear that it was possible to gain interest from the visitors.

1. はじめに

近年、少子化による影響から、受験生をいかに確保するかが重要な課題となっている。受験者数確保のためには、まずは受験者およびその保護者に興味を持ってもらう必要がある。そのために、オープンキャンパスなどにおいて、コース毎に模擬授業、パネル展示および研究室見学ツアーなどの企画を実施している（図1）。しかし、これらの企画は、実施場所、時間および説明員（模擬授業においては教員）の確保が必要であり、また、実施できる内容も限られる。たとえば、模擬授業では、教室における座学の授業が中心となり、研究室見学ツアーでは、研究室配属以降の研究内容の展示となる。

理工系の学科・コースにおいては、実習や実験などのカリキュラムに特徴を持たせていることが多く、現状実施している企画のみでは、各コースの魅力を十分にアピールすることは難しい。また、実習や実験などを実際に体験する企画を実施することは、実施場所、時間および人員確保の観点から、困難である。これらの問題を解決するために、VR技術によ

る仮想体験が活用できると考えられる。しかし、大学の広報活動におけるVR技術の活用は、遠隔地から、大学のキャンパス内部を見学できるサービス^{2), 3)}が主体であり、オープンキャンパスなどにおける大学の授業、実習および研究などの体験を目的としたVRコンテンツの活用事例はみられない。したがって、VRコンテンツ導入による具体的な効果、導入のための準備および必要なコストなど、不明点が多く、導入へのハードルは高い。

そこで、本研究では、コースの実習、実験および授業を疑似的に体験可能なVRコンテンツを制作し、受験生やその保護者などに体験および評価をおこなった。本稿は、制作したコンテンツ、機器についての導入のためのコストおよびその効果について報告するものである。

2. VRとは

AR (Augmented Reality, 拡張現実) とは、コンピュータを使って、現実の世界に仮想的なものを追加することができる技術である。対して、VR (Virtual Reality, 仮想現実) とは、コンピュータの中に作られた世界を現実のように見せる技術である。どちらも、VE (Virtual Environment, 仮想環境) 一種であるが、これらの技術は、近年急激に進歩しており、多くの分野で普及しつつある。

VRは本来、3次元コンピュータグラフィックスなどによって人工的作られた空間を用いるものと、現実の光景や音声などをコンピュータに取り込んで利用するものが存在する。現実の光景をコンピュータに取り込む際には、デジタルカメラによって実際の光景を撮影することが一般的であり、この手法には、全天球撮影と、180度ステレオ撮影の2種類が存在する。

全天球撮影は、2個もしくはそれ以上のカメラを組み合わせた全天球カメラを用いて撮影をおこなう。たとえば、図2(a)のように、カメラを中心とした上下左右180°の超広角撮影が可能な半球カメラを2個背面合わせ（図2(b)）で撮影をおこなえば、カメラ群を中心とした全方位の撮影が可能となる。これに対し、180度ステレオ撮影は、2個の半球カメラを並列に並べ（図2(c)）、撮影をおこなうことで、カメラ全面のステレオ画像を撮影するものである。ステレオ撮影は、対象物を複数の異なる方向から同時に撮影することによって、画像の奥行き情報の記録が可能である。この撮影方法は、医療や航空写真などの分野においては古くから利用されており、近年では、前面180度のステレオ撮影が可能なカメラが安価に入手可能となった。

VR技術は、さまざまな分野での活用が期待されており、各分野において活用の試みがされている。とくに、防災分野や安全教育の分野においては、実際に体験が困難な事象を仮想的に体験（図3）できることから、積極的に取り入れている^{4), 5), 6)}。



(a) Trial lecture

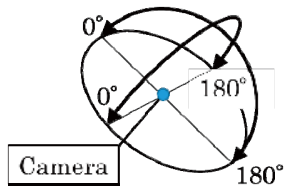


(b) Panel display

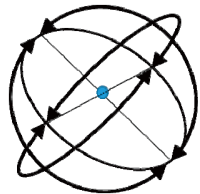


(c) Campus tour

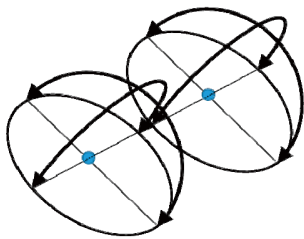
Fig.1 Event on University's Open Day¹⁾



(a) Hemispheric camera



(b) Omnidirectional photography



(c) Stereo camera (Hemispheric)

Fig.2 VR camera system**Fig.4** VR camera⁷⁾**Fig.5** VR goggles⁷⁾**Fig.3** Accident experience during roller cleaning⁶⁾

3. 使用機器と VR コンテンツの制作

3.1 使用機器と接続

本研究では主要機器として、180 度ステレオ撮影が可能な Lenovo 製 VR カメラ「Lenovo Mirage Camera with Daydream (ZA3A0011JP)[®]」(図 4) および Lenovo 製スタンドアロン型 VR ゴーグル「Lenovo Mirage Solo with Daydream (ZA3C0011JP)[®]」(図 5) を使用した。また、副機器として Buffalo 製無線 Wi-Fi ルーター「AirStation WMR-433W2-BK[®]」、Google 製ワイヤレスディスプレイアダプタ「Chromecast GA00439-JP[®]」、PC モニタ (HDMI 入力有) および VR ゴーグル用フェイスマスクを使用した。それぞれの価格 (2018年12月時点) は表 1 に示すとおり。1 セット

Table 1 Initial cost as of December 2018

Equipment	Tax included price (Japanese yen)
Lenovo Mirage Camera with Daydream (ZA3A0011JP) [®]	35,640
Lenovo Mirage Solo with Daydream (ZA3C0011JP) [®]	49,896
AirStation WMR-433W2-BK [®]	3,132
Chromecast GA00439-JP [®]	5,508
PC monitor (27 inches)	24,494
Face mask for VR goggles	1,944
Total amounts	120,612

の必要数量はそれぞれ 1 個であり、したがって、総額12万円程度で 1 セットの導入が可能である。

コンテンツの制作は、VR カメラにより静止画および動画の撮影をおこない、これらのデータを保存した micro SD カードを VR ゴーグルに差し込む。なお、撮影した画像は図 6 のような二つの半球映像となる。本研究で使用した VR ゴーグルはスタンドアロン型と呼ばれる方式のものであるため、この状態でも、VR コンテンツを体験することが可能である。しかし、この状態では、外部から体験者がどの画像を見ているかがわからず、説明者が説明をおこなうことができない。そこで、各機器の接続は図 7 のように接続することで、外部からゴーグルに映し出された映像を確認ことができ、また、説明員が VR ゴーグルのコントローラを操作しながら、説明をおこなうことが可能となる。

3.2 VRコンテンツの撮影および制作

VRコンテンツは、図8に示すように、VRカメラは三脚を用いて水平に設置して撮影をおこなった。また、体験者の違和感を軽減するために、カメラの位置をおおよそ人間の視線と同じ位置になるように設定した。撮影したデータ類をmicro SDカード内に制作した1個のフォルダにまとめて保存したのみである。

収録した映像データの内容は、チャペルや研究室内などの大学構内を撮影した静止画5枚、実習系科目の「工作実習」、「機械実験Ⅰ」および「総合機械・自動車・ロボティクスプロジェクト」を撮影した静止画8枚、動画2本と、座学系科目の「材料力学Ⅱ」および「機械数理」を撮影した動画2本、そして、卒業研究発表会のようなものを撮影した静止画2枚である。体験時にはこれらの映像データを随伴する説明員が順次送りながら、6分程度で説明をおこなえるものとした。なお、この説明時間が長い場合は、体験者がVE酔いと呼ばれる、顔面蒼白、冷や汗、頭痛、唾液分泌の増加、悪心、吐き気および嘔吐などのように、乗り物酔いに似た症状となる⁸⁾可能性があるため注意が必要である。

3.3 VRコンテンツ体験状況

本研究においては、実際にオープンキャンパスおよび平潟

祭(大学祭)の機械学系ブースへの来場者を対象に、制作したVRコンテンツを体験および評価をおこなった。

体験時には、体験者を着座させ、VRゴーグル用マスクの上からVRゴーグルを着用した状態で、説明員がVRゴーグルに映し出されている映像をPCモニタ上で確認をしながら説明をおこなった(図9(a))。

4. 評価方法およびアンケートの結果

4.1 評価アンケート

VRコンテンツの評価は、体験者がVRコンテンツを体験したのちに、以下の設問について、選択方式でアンケートを取り(図9(b))、評価をおこなった。設問3のQ1から設問5のQ3については、各選択項目の満足度が高い順に5ポイント[5pt]から1ポイント[1pt]までを割り振り、体験者による評価をおこない、各設問における平均値を算出することによって、定量的な評価をおこなう。

設問1：年齢

選択肢(小学生、中学生、高校1年生、高校2年生、高校3年生、高校既卒、大学・専門学校生、20歳代、30歳代、40歳代、50歳以上)



Fig.6 Captured image

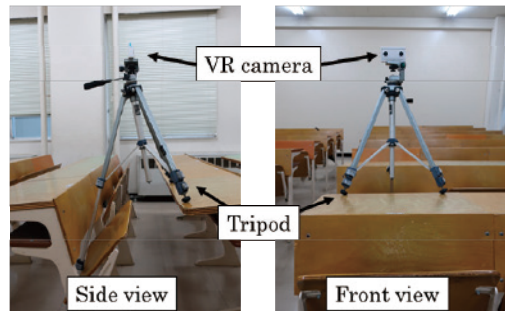


Fig.8 Camera installation at lecture room

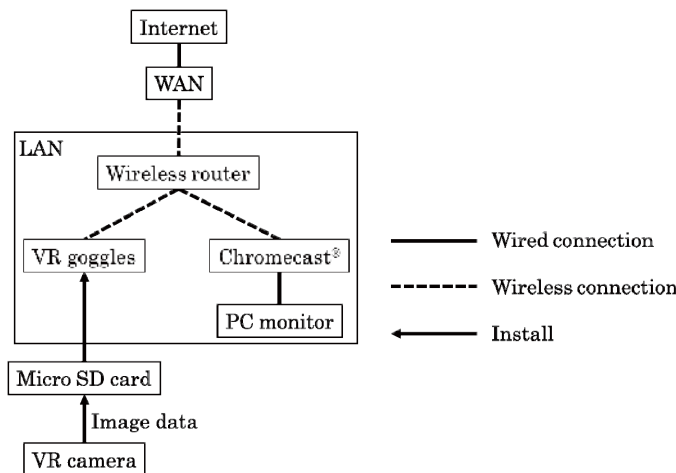
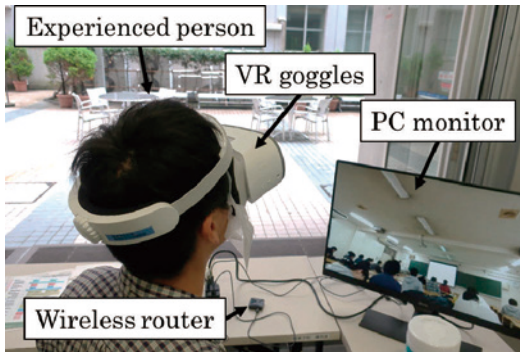


Fig.7 Connection of each equipment



(a) Experience



(b) Evaluation

Fig.9 Experience and evaluation on University's Open Day

設問 2 : 性別

選択肢 (男, 女)

設問 3 : Q 1. VR を使った大学紹介する企画についての印象を教えてください。

選択肢 (とてもよい [5 pt], よい [4 pt], ふつう [3 pt], よくない [2 pt], とてもよくない [1 pt])

設問 4 : Q 2. VR による大学生活や講義を体験した印象を教えてください。

選択肢 (とてもよい [5 pt], よい [4 pt], ふつう [3 pt], よくない [2 pt], とてもよくない [1 pt])

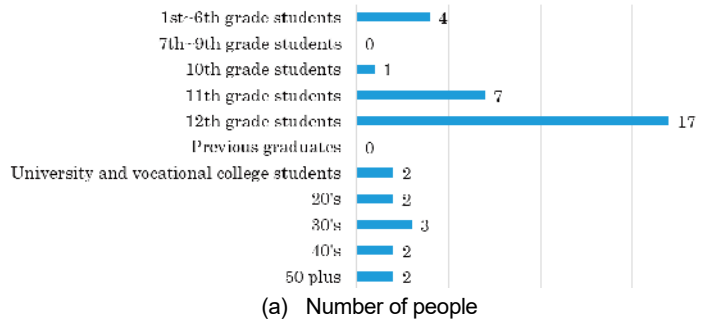
設問 5 : Q 3. VR による大学紹介を体験したことによる, 大学に対する関心の変化について教えてください。

選択肢 (とても高くなった [5 pt], 高くなった [4 pt], 変わらない [3 pt], 低くなった [2 pt], とても低くなった [1 pt])

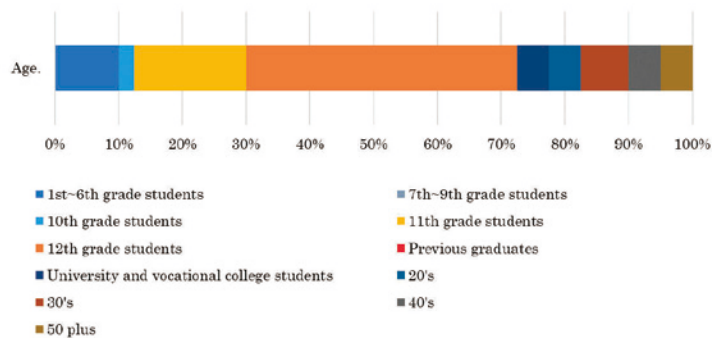
設問 6 : そのほか感想や要望に関する自由記述

4.2 アンケートの結果定

オープンキャンパス (2 回計 3 日間) の来場者 26 名および平潟祭 (大学祭) (2 日間) の来場者 15 名の合計 41 人を体験者として, アンケートによる評価をおこなった。なお, 41 人の年齢層および性別の比率は, 図 10 および 図 11 に示すとおりであった。



(a) Number of people



(b) Percentage

Fig.10 The distribution of the age groups

全体験者のアンケートによる Q 1 から Q 3 までの評価結果を 図12 に示す。すべての項目において、平均値が 4 pt を超え、満足度の高いものであることが、この結果から確認できる。

また、高校 1 年生から高校 3 年生までの計 25 人（男女比は 図13 に示す）の結果を抽出したものを 図14 に示す。高校生からの評価のみを抽出した場合においても、平均値がすべて 4 pt を超えており、高校生からの満足度が高く、関心を集め、かつ効果的なコンテンツであることがうかがえる。

4.3 自由記述の内容に関して

参考として、設問 6 の自由記述欄に記載された内容を一部、以下に示す。内容は、「よかった」などの意見が多く、また、30 歳以上の意見の中には「大学の雰囲気がよくわかる」などの意見があり、保護者層にも一定の効果が見込めることがわかる。

設問 6 の回答（一部抜粋）

- ・ VR で授業風景を見れることは「自分が入ったら…」というイメージが付きやすくなったのでとても良かったです。（高校 3 年生、男性）
- ・ 他の学科もほしい。（高校 3 年生、男性）

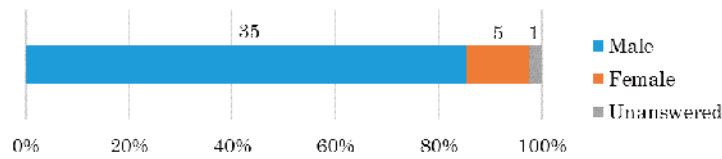


Fig.11 Gender ratio among experienced people

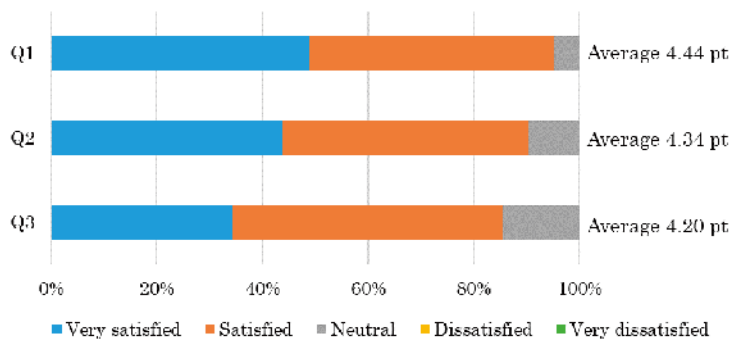


Fig.12 Evaluation of all experience

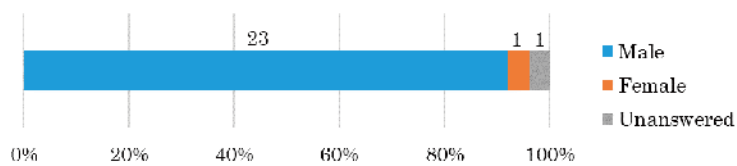


Fig.13 Gender ratio among experienced people (high school student)

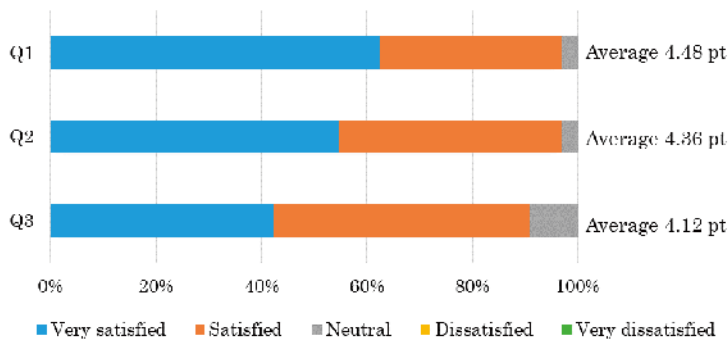


Fig.14 Evaluation of experienced person (high school student)

- ・ すこし酔ったけど、VRを体験できて良かった。（高校1年生，男性）
- ・ 自分の目で見ることができて、わかりやすい。（高校2年生，男性）
- ・ 昔，講義を聞いていたころを思い出しました。TVを見るより理解できるかなと思います。（30歳代，女性）
- ・ とてもわかりやすく，普段の雰囲気が変わりました。（40歳代，女性）

5. おわりに

5.1 まとめ

本稿では，市販のVR機器を用いて，オープンキャンパスのための大学体験VRコンテンツを制作し，一般の来場者を対象に，その効果について評価をおこなった。その結果，来場者から満足度の高い評価を得られることが明らかとなった。また，来場した高校生に対しても，効果的に学系をPRできる企画となることが証明された。

5.2 今後の課題

本研究で構成したVRシステムでは，個々の映像データを操作，説明するために，体験者1名に対し，説明員が1人随伴しなければならない。そこで，今後は，映像データと説明を1ファイルにまとめた動画データの制作を試みなければならない。この動画をループ再生すれば，体験者がVRゴーグルを装着するだけで映像を見ることができる。これによって，各機器に1人の説明員を随伴させなくても良くなり，複数台を1人の管理者が監視するのみで，コンテンツを展示することが可能となるはずである。

謝辞

本研究の遂行にあたって，オープンキャンパスおよび平潟

祭での展示を手伝っていただいた，関東学院大学理工学部機械学系学生会の皆様へ深く感謝いたします。また，アンケートにご協力いただいた，オープンキャンパスおよび平潟祭の参加者41人の皆様へ深く感謝いたします。本稿がVRコンテンツの制作，活用の一助となれば幸いです。

参考文献

- 1) 関東学院大学／2019 イベント情報： <http://ao.kanto-gakuin.ac.jp/event/>（参照日：2019年11月28日）
- 2) 県立広島大学をVRで体験しよう！： <https://www.puhiroshima.ac.jp/soshiki/32/vr.html>（参照日：2019年11月28日）
- 3) 成蹊大学VR動画制作記： <https://www.seikei.ac.jp/university/special/movie/vr.html>（参照日：2019年11月28日）
- 4) 植野雄貴，金澤功樹，陳詩凌，近真弥，大川博史，檜山和男：防災教育のためのVR技術を用いた津波とその避難の疑似体験システムの構築，第46回土木学会関東支部技術研究発表講演概要集，I-76，2019.
- 5) 増村佳大，伊藤誠：VR（ヴァーチャルリアリティー）技術を活用した現場への体験型安全衛生教育の取り組みについて，建設マネジメント技術，9（2018），pp.32-35.
- 6) 凸版印刷，さまざまな労働災害をVRで体感： https://www.toppan.co.jp/news/2019/11/newsrelease191114_2.html（参照日：2019年11月28日）.
- 7) Lenovo Mirage Solo with Daydream & Lenovo Mirage Camera with Daydream： <https://www.lenovo.com/jp/ja/arvr#mirage>（参照日：2019年11月28日）.
- 8) 中川千鶴，大須賀美恵子：VE酔い研究および関連分野における研究の現状，日本バーチャルリアリティ学会論文誌，3（1998），pp.31-39.

オールド・ダットサンから見る自動車技術の変遷（第二報）

山 泉 凌*
武 田 克 彦**
伊 東 和 彦***

Historical Transition of Automotive Technology Review through the Type 17 Datsun Second Report

by

Ryo YAMAIZUMI
Katsuhiko TAKEDA,
Kazuhiko ITO

要 旨

工業製品には、それらが造られた時代の工業水準や人々の考え、社会情勢が刻み込まれている。そのため、人々の生活環境に大きな影響を与えた工業製品を遺産として保存し、展示するなどして後世に残す動態保存という考えが欧州を始め多くの国で広まっている。本研究では、こうした思考があることを考慮し、自動車を研究対象として選び、使用されている工業製品の進化を知り、技術者の視点から動態保存の方法を考えることを研究課題とした。本研究で特に着目したのは、日産自動車株式会社によるダットサン開発の背景である。日産には小型大衆車の量産経験がなかったにもかかわらず、ダットサンの機構を詳細に調査すると、信頼性を重視して、安全率を高く取った設計がおこなわれていることがわかった。その技術の源流を探ることを、本研究の目的とした。第一報¹⁾では、その技術がどのように導入されたのか。また、なにか参考にした海外モデルが存在したのかを調査した^{2), 3)}。1937年製ダットサン17型ロードスターのエンジンの分解をおこない、分解したエンジンと現代のエンジンの比較をおこなった。その結果、ダットサンのエンジンには、コネクティングロッドの材料にジュラルミンが用いられていることやクランクシャフトの形状に違いがあることがわかった。また、同時代のオースチン・セブンのエンジンとの比較もおこなった。両者のエンジンは、各部の寸法が近似しておりダットサンのエンジンは、オースチン・セブンの影響を受け設計されていたことがわかった。これらを考慮して本研究では、ダットサン17型のエンジンに焦点を当て、燃焼室の形状、その他関連部品の分解、寸法の測定をおこない、オースチン・セブン、現代のエンジンとの比較をおこなった。また、この研究を進めるにあたり、研究車両である1937年製ダットサン17型ロードスターは田中紀久子氏から譲り受けたものである。

Abstract

Industrial products have been engraved the industrial standard, people's thought, and social conditions at that time. Therefore, the thought called dynamic preservation that preserves and exhibits industrial products which had a great influence on people's living, as heritage, are spreaded worldwide especially in Europe for the posterity. In this study, we have considered that there are these thoughts and picked up the automobile as a subject of research due to investigate the evolution of industrial products that are used so that we have decided to consider a method of dynamic preservation from viewpoint of an engineer. Particular attention was focused on the historical background of the Nissan Motor Co., Ltd., which developed Datsun in this paper because the Nissan Motor had no experience of mass production in early 1930. However, from the investigation of the mechanism of Datsun, it is understood that design with high safety factor is being carried out with an emphasis on reliability. Therefore, the purpose of this study was to explore the origin of this design method. From the first report¹⁾, it was investigated how that design method was introduced or was there any referred model. At first, the engine of Datsun 17 type which was made in 1937 has been dismantled and compared with Austin seven in the same era. As a result in the engine of Datsun, the connecting rod was made from duralumin and the shape of the crankshaft was different from the present day's one. Also, there are many similarities with Austin seven so that the design of Datsun 17 type was influenced by Austin seven. Therefore, we focus on inside the engine and investigate the shape of the combustion chamber or other auxiliary equipment. In the course of study, we acquired a Datsun type 17 roadster made in 1937, which was donated by Ms. Kikuko TANAKA, and also obtained an engine that was formally installed in the Austin Seven of the same era.

Key Words: Early Datsun, Austin Seven, Automotive Technology, NISSAN, Transition

* 工総研研究員 ** 機械学系 *** 機械学系非常勤講師

1. はじめに

自動車は、機械工学の進化を広い視野から学ぶことができる好例になると考えられる。なぜなら、自動車には生産された当時の社会情勢や人々の要求、すなわち前者には経済の様子、工業の水準や道路インフラなど社会の状況、後者には安全や環境問題などの問題解決に多くの技術が盛り込まれているからである。

歴史的自動車(ヒストリックカー)を動態保存することは、産業界では自社の広報活動の重要な案件として考えられている。また、自動車会社だけでなく、国立の組織として、過去に生産された自動車本体や資料などを後世に遺すため、保存と展示をする動きが活発化している。後者では、イギリス国立自動車博物館(1972年開館)、フランス国立自動車博物館(2006年リニューアルし開館)が設けられ、アメリカのヘンリー・フォード・ミュージアムでは、アメリカ開拓史を馬車時代から自動車につながる交通体系全般を扱うことで明らかにしている。また、欧米の自動車製造会社は競うように自社の製品を展示保存した博物館を充実させている。特にドイツのメーカ各社、ダイムラー、BMW、VWグループ、ポルシェなどは博物館の設備、展示、資料収集に多くの資金を費やしている。

こうした状況を背景に、1930年代、我々にとって未知の時代であり、欧米各社に追いつこうと日本の自動車会社や技術者が開発に取り組み、製作された1937年式日産自動車製ダットサン乗用車(オールド・ダットサン)を研究対象として選び、研究を進めることにした。オールド・ダットサンとは、第二次世界大戦以前の1930年代に生産された、ダットサンを指す俗称である。ここでは、工業製品の進化と、技術者の視点から動態保存の方法を比較検討した結果について報告する。

2. 研究車両について

2.1 オールド・ダットサン

日産自動車は1933年12月に、実業家の鮎川義介によって創設されている。その源流は、1933年3月に鮎川が自身が経営していた戸畑鋳物株式会社に自動車部を作り、ダット自動車製造株式会社より買収した大阪工場にて、小型車のダットサンと、米国製車両のフォードとシボレー用の部品を生産する計画にあった。鮎川は大阪工場は量産に適していないと考え、1934年には横浜に土地を取得し、横浜工場が完成した。この工場では、エンジン、シャシーからボディまでの一貫生産が可能となり、日本で初となる、国産小型乗用車と商用車の大量生産がはじまった。これ以前にも台数が少ないものの量産例があり、白楊社が小型乗用車のオートモ号を約300台生産していた⁴⁾。しかしながら、オートモ号はダットサンと比較して1%にも満たないことから、横浜工場でのダットサン生産を、日本における最初の本格的な量産とすることが妥当である。ダットサンは、横浜工場で一貫生産が可能となった結果、1932年に、150台だったものが、1935年には3800台、

ピークの1937年には8353台に増加し、第二次大戦開戦までに33,872台に達した(日産自動車広報部資料「ダットサン・データベース」による)。量産により、価格も次第に引き上げられ、1935年にはセダンが1900円になり⁵⁾、小型輸入車として成功していた標準的なイギリス製のオースチン・セブんと、日本の市場内で競合できるようになった⁶⁾。

2.2 ダットサン17型

以下の理由から、ダットサン17型を研究対象に選んだ。

- (a) 神奈川県横浜市の工場で造られた純国産の自動車であること。
- (b) 日本で初めて量産に成功したこと。
- (c) 横浜市の大学として、横浜市に本社を置く日産自動車との情報交換が望めること。
- (d) 生産台数が多いため、現存している車両が多く、入手の方法があること。
- (e) 愛好家が多く、情報交換が望めること。

が挙げられる。

本研究への賛同を受けた横浜市在住のオールド・ダットサン所有者、田中紀久子氏から、40年近く車庫中で置かれていた、保存状態が良好(日産ヘリテージ学芸員清水栄一氏による)といわれるダットサン17型を譲り受けることができた。修理途中であるため、オーナーによればエンジンは不動でオーバーホールが必要とのことだった(日本クラシックカークラブ会員ダットサン研究家大村正敏氏)が、車体の状態は極めて良好であった。また、静岡県愛知県(前出の大村正敏氏)から、ほぼ一基分のエンジン・スベアパーツとカタログのコピーを、徳島県の日本クラシックカークラブ会員ダットサン研究家、木村具幸氏からは、取扱説明書やコネクティングロッドおよびピストンなどのエンジン部品の寄贈を受けた。

3. 研究車両の検証

3.1 オースチン・セブんと比較

研究を進めるにあたって、当時、小型大衆車の世界的なベンチマークといわれていたオースチン・セブんと比較をおこなった。

同車は、イギリスのオースチン社が1922年に生産を開始し、ダットサンとほぼ同時期に生産された小型乗用車であり、1939年までに累計29万台を生産した。まず、英国の研究家が指摘するように^{2), 3)}、ダットサンがオースチンの影響を受けていたのか、エンジンについて比較した。比較結果をTable.1に示す。なお、表のオースチン・セブンのホイールベースは、1931年に延長されたため延長後の長さも記載する。表より、ダットサン17型のエンジンとオースチン・セブンでは、ボア径が若干異なるが、ダットサン13型とオースチンセブンのエンジンのボア径およびストローク径が同一であり、シリンダピッチも同じであることがわかった。

Table 1 Specifications of Austin · Seven and Datsun

	オースチン・セブン	ダットサン 15型以降	ダットサン 13型 (1934-35)
気筒数	4	4	4
バルブ方式	サイドバルブ	サイドバルブ	サイドバルブ
ボア [mm]	56	55	56
ストローク [mm]	76	76	76
総排気量 [cc]	747.5	722.34	747.5
圧縮比	5.1	5.4	不明
最高出力 [BHP (kW) /rpm]	10.5 (7.83) / 2400	16 (11.9) / 3600	12 (9.36) / 3000
ホイールベース [mm]	1905 (2057)	2005	1980

3.2 当時の資料, 文献の調査

我々は車両への知識を深めるため, 当時の取扱書やカタログの文献調査をおこなうことにした。しかし, 1937年前後に発行されたそれらは, 日本語が旧かな使用であるばかりか, エンジンや自動車の用語についても, 現代に使われているものとは異なり, 完全には理解できなかつた。そこで, 全ての自動車用語を現代に使われているものに置き換えることにした。Fig.1に当時の資料を示す。

3.3 部品寸法の計測および材質調査

部品寸法の計測や材質調査, 形状の把握と状態の確認から開始した。車載エンジンに手を付ける前にスペアパーツで進めることにしたが, 正確な数値を得るために, 各部品の洗浄をおこなった。

当時の仕様書に, コネクティングロッドは「H型断面墜鍛ジュラルミン製」と記されていた。現代の車ではジュラルミンを用いるとこはないため記載が正しいか調査した。

比重測定結果より, コネクティングロッドの比重は2.846となり, ジュラルミンの文献値である, 2.80⁸⁾と合致した。また, 通常, コネクティングロッドの大端部には, ベアリングを用いた別体のシェル・ベアリングなどを備える。ところが, ダットサンでは, 別体のベアリングを備えず, ジュラルミン製のコネクティングロッドが直接クランクピンに接していた。

4. 分解・修復作業

4.1 車載エンジンの修復

第一報により, 車載エンジンのシリンダには激しい損傷が見受けられたため, 車載エンジンの取り外しをおこなうことにした。車載エンジンの取り外しのため, まず, エンジンと車体, ギアを繋いでいるボルトを緩め, 仮止めの状態にした。実験室天井にあるクレーンにロープをつけ, そのロープをエンジンに巻きつけ, 仮止めのボルトを外し, エンジンを降ろ

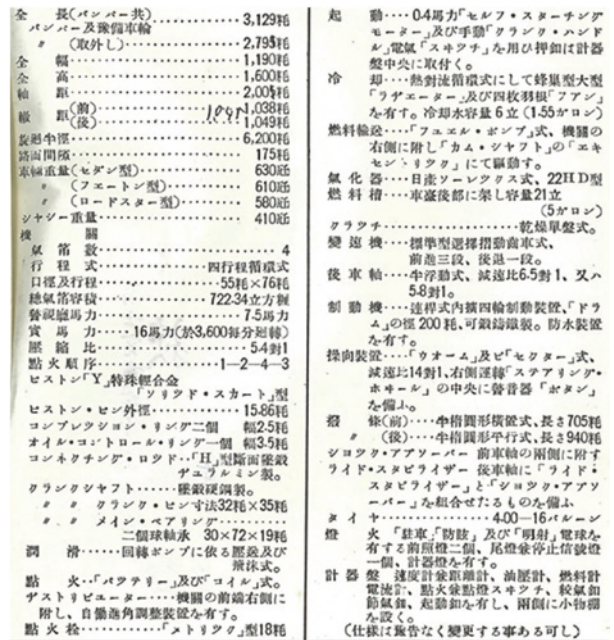


Fig.1 Specifications from original manual⁹⁾

した。エンジンを降ろした後, エンジンについてのディストリビュータとオルタネータなどの補機類を取り外した。Fig.2にディストリビュータ, Fig.3にオルタネータを示す。

次にエンジン下部についているオイルパンとオイルフィルターを取り外した。外したところ, エンジン内部からオイルと一緒にヘッドロのようなものが出てきた。おそらく冷却水(クーラント)とオイルが混ざったものであり, 強い刺激臭がした。これは, 長年, 放置されたことにより変質してしまったことが原因と考えられる。

取り外したエンジンの分解をおこなった。ピストンが燃焼室内にある錆によって固着しており, クランクシャフトも回すことができなかった。しかし, オイルを注入するなどにより, 無事, 分解することができた。Fig.4に外したピストンとコネクティングロッドを示す。

最後に, フライホイールの取り外しを試みたが, ナットが潰れており, 研究室にある工具では外すことができなかったため, 本学講師の平石先生のご協力のもと, 取り外しをおこなった。この際, タガネでクランクシャフトを傷つけないように注意して作業を進めた。Fig.5に分解したフライホイールを示す。

車載エンジンの分解を終え, 再度使用できるかどうか検討をしたところ, シリンダ内の錆が酷くボーリング作業をおこなう必要があったため, 今回は車載エンジンのシリンダブロックを使うことを諦め, 比較的状态が良いスペアエンジンのシリンダブロックを使用し, 足りないパーツを車載エンジンから取り, 実働可能なエンジンを作製することにした。部品は, 新品はもちろん, 中古部品でも入手が困難な歴史的工業製品では, 今回のように手持ち部品を有効に活用して, 完全な一個を組み立てることが動態保存のひとつになる。



Fig.2 Dismantle d distributor



Fig.3 Dismantle d Dynamo



Fig.4 Dismantle d piston and connecting rod



Fig.5 Dismantle d Flywheel

4.2 寸法測定

車載エンジンとスペアエンジンを組み合わせるにあたり、シリンダブロックやその他パーツの寸法を測定した。また、測定した部品の図面を2D-CADを用いて作成し、今後、動態保存をおこなうため修理や新しいパーツの作製をする際に使用できるようにした。その結果、スペアエンジンのシリンダ径の寸法は、車載エンジンのシリンダ径より1 mm程度大きいことがわかった。これは、スペアエンジンがボーリングによってボアアップされ、オーバーサイズピストンが組み込まれていたことになる。用いられていたピストンの頭頂部には、+0.4との刻印が確認できた。しかしながらスペアエンジンと車載エンジン、提供を受けたピストンの全数を計測したところ、最適なサイズと判断した+0.4オーバーサイズで仕様可能なものは2気筒分しか存在していないことが判明した。現在のところ、+0.4を2気筒分入手できるか、製作することが可能か検討しており、今後の課題となった。この例のように、部品の調達については、産業遺産としての自動車の動態保存のひとつの問題点である。

車載エンジンとスペアエンジンについて、各部の寸法や形状に違いがないか調べたが、特に違いは見当たらなかったため、パーツは流用可能であると判断した。Fig.6にシリンダブロックの図面を示す。

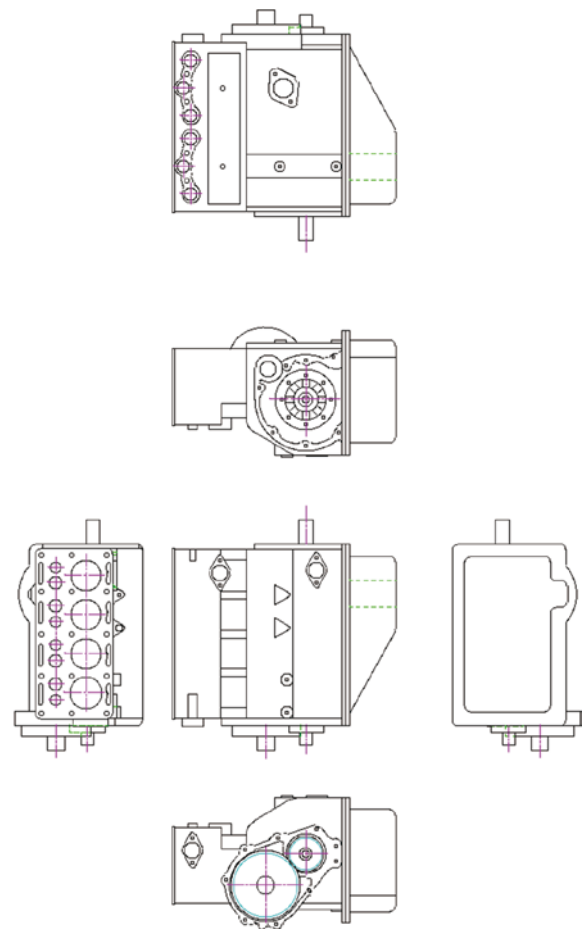


Fig.6 Drawing of cylinder block

4.3 コネクティングロッドの清掃

本研究ではエンジン始動に向けて、コネクティングロッドの清掃をした。その際、汚れが落ち、部品を傷めずに清掃をおこなうため、エンジンコンディショナ、重曹、灯油の3種類を洗浄剤として選んだ。各洗浄剤は各部に付着した煤などを落とし、部品を傷めないと考え使用した。エンジンコンディショナとは、エンジン内のスロットルバルブなどに堆積するカーボンやスラッジの分解、除去が可能なケミカルスプレーである。灯油は、大型機器の部品などを洗浄する際に用いられている。また、重曹は、銀など食器類の汚れや錆を落とす際に使用するため、材料に悪影響を与えずに汚れが落ちるのではないかと考えた。Fig.7に清掃前のコンロッドを示す。清掃前はカーボンやオイルによるスラッジなど汚れが多いことがわかる。Fig.8にエンジンコンディショナ、灯油、重曹で洗浄した後の様子を示す。洗浄力がもっとも高かったものは、エンジンコンディショナであったため、既存するすべてのコネクティングロッドをエンジンコンディショナで清掃することにした。

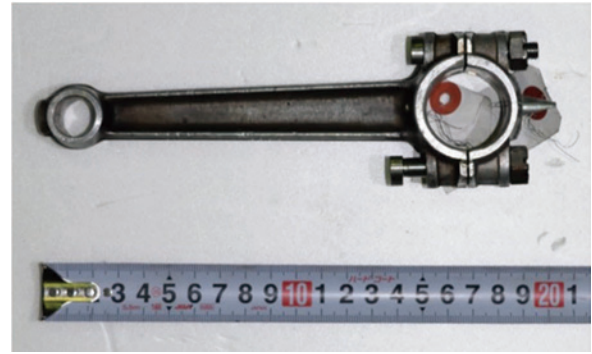


Fig.7 Connecting rod before cleaning up



Fig.8 Connecting rod after cleaning up

4.4 コネクティングロッドボルトの調達

コネクティングロッドの組み立ての際、コネクティングロッドボルトの本数が足りないことがわかった。また、ベテランメカニックから、コネクティングロッドボルトには大きな負荷がかかるため、分解修理時には部品交換をした方が良くアドバイスを得た。したがって、既存のボルトを測定し、図面を作成した。Fig.9にコネクティングロッドボルトの寸法を示す。

寸法を測ると、M8細目ネジであった。そこで、最も近いボルトを使い組み立てをしたが、ネジが切られている部分のみしか入らず取り付けができなかった。そこで、再度寸法の測定をした結果、純正品より0.2mmほど大きいことがわかった。純正品に近づけるよう加工をしたが、当研究室では作ることが出来なかったため、既存のボルトと図面を業者に送り、製作を依頼した。

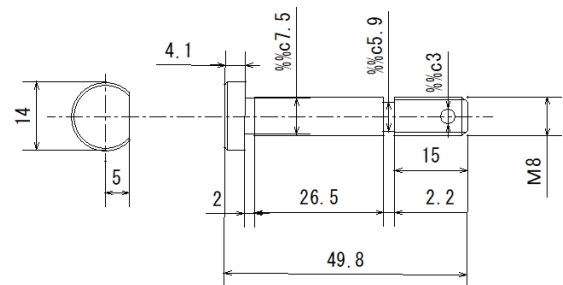


Fig.9 Dimension of connecting rod bolt

4.5 クランクシャフトおよびコネクティングロッドの加工

既存のコネクティングロッドボルトを用いて、研究室が所有するコネクティングロッドの中から良品であり、形状が同一のものを選び、エンジンに組み込まれているクランクシャフトに装着した。装着後、クランクシャフトを回転させようと試みたが、回すことができなかった。そこで、クランクピン部4か所の直径とコネクティングロッドの大端部内径の測定をおこなったところ、クランクピン部の直径が大きく、大端部内径が小さかったため、クリアランスが不足しており回すことができないとわかった。別体のベアリングを持つ場合には、ベアリングの寸法を合わせるか、これを持たないダットサンの場合ではコネクティングロッドの大端部内径をホーニング加工により大きくする必要がある。しかし、この加工には高い精度が要求されるため、部品保護の観点から、専門

業者に加工を依頼した。その結果、クランクシャフトが回り、ピストンが正常に動いた。

また、専門業者に、加工した際に大端部およびクランクピン部をどれだけ研磨したかを尋ねたところ、指や爪などで触ったときに感じる金属の僅かな粗さなどを加味して、五感頼りで削っていたとのことだった。これにより、すべての部品で異なる値であることがわかった。そこで、加工前と加工後のクランクピン部4か所を測定した。すべて約0.4から0.6mmほど研磨されていた。加工後のクランクピン部に合わせて大端部も加工されているため、内径もすべて異なる数値となった。さらに、専門業者の方から、組付けの際には、コネクティングロッドボルトを締め付けする際、規定トルク

19.6N・mで締めるようにとアドバイスがあった。これは、締め付けトルクは、回転部分の場合には特に重要であり、締め付けすぎると焼き付きやボルトの損傷に繋がるからである。

5. 技術の変遷

5.1 コネクティングロッドの変遷

ダットサン17型のエンジンには、クランクシャフトとコネクティングロッドの間にメタルが用いられないため、調査することにした。現在のエンジンには、薄肉ベアリング(シェル・ベアリング)が一般的に用いられているが、発明される以前は盛りメタルと呼ばれるものが一般的であった。盛りメタルとは、溶融したベアリング材(バビットメタル)をコンロッド大端部に流し込み、硬化後に規定寸法まで切削する技法である。しかし、このような盛りメタルもダットサン17型のエンジンには用いられていなかった。これは、盛りメタルの製造には、熟練した技術が必要であり、量産を開始したばかりの日産自動車には、これらの部品を量産するための技術的な蓄積が少なかったことが推察される。これ以外の理由として考えられるのは、ダットサンの設計に当って、フランス製のベンジャミン車を参考にしたとの元技術者の証言がある⁴⁾。ベンジャミン車がジュラルミン製のコネクティングロッドを用いていたと考えられる⁴⁾。ただし、ベンジャミン車に関する資料は少なく、まだ確証はとれていない。しかし、クランクシャフトとコネクティングロッドの間にメタルが用いられず、両部品の硬さに差がないと、クランクピンの磨耗につながり、焼きつきの原因となってしまう⁹⁾。この防止策として、ダットサン17型のコネクティングロッドにはベアリング程度の柔らかい金属が用いられていると予想を立て、硬さ試験をおこなった。硬さ試験をおこなうにあたり、本学講師の塚原先生のご協力のもと、作業をおこなった。

硬さ試験とは、角錐や球などの圧子押し付けたり、ぶつけたり、引っかいたりして資料に変形を与え、その変形が小さいほど硬いと判定する試験である。今回の硬さ試験にはピッカース硬さ試験を用いた。ピッカース硬さは四角錐ピラミッド圧子と呼ばれるダイヤモンドの対角面が136°の形状をしたものを、試料面に押し込んだ荷重と生じた圧痕表面積から硬さを求めるものである。

今回、ダットサン17型のジュラルミン製コンロッドがメタルに等しい硬さを持っていたかを判断できないため、比較対象として本田技研工業株式会社製 S2000 (2003年式)のメタルも一緒に硬さ試験をおこなった。Table.2に試験結果を、Fig.10にピッカース硬さ試験でつけた圧痕を示す。この結果からダットサン17型のコネクティングロッドは S2000

のメタルよりも軟らかいため、充分メタルとしての機能は果たしているといえる。

5.2 燃焼室の変遷

燃焼室とは、シリンダヘッドと上死点時のピストンとで形成される空間のことである。バルブ配置や数、点火プラグの位置、ピストン上面の形など多くの要素により、その形状は異なる。ガソリンエンジンの燃焼室には、ウェッジ型(楔形)、バスタブ型(湯舟形)、半球形、多球形、ペントルーフ形(屋根型)、ヘロン形などがある¹⁰⁾。

内燃機関は、燃料を燃やした際に生じる熱エネルギーを仕事に変換させる熱機関のひとつである。したがって、燃料と空気の混合気を吸い込み、圧縮し燃焼させ、排出するサイクルをおこなう部分の設計が、エネルギーの変換効率を決定する重要な鍵となる。そのため、燃焼室の形状は、出力特性や燃費だけでなく、燃焼騒音や排気ガス特性にまで影響をおよぼす。

燃焼室と吸排気ポートの形状を決定するときのポイントはいくつかあり、高速域については、混合気と燃焼後のガスを、速やかに大量に流すことのできるポート形状が要求される。また、圧縮された混合気が着火した際、火炎が速やかに燃焼室の端まで到達できるよう高い燃焼速度が望まれる。言い換えれば、火炎伝播距離が短いことが重要となる。同時に断熱圧縮で高温になった混合気が、排気バルブなどのホットスポットによって自己着火してしまわない、つまり耐ノック性が高いことも重要となる。また、同じ容積の燃焼室ならば表面積が小さいほうが、熱の放散が少なく効率よくなる。

低速・低負荷領域では、高速域とは違い、吸入される混合気の流速が遅く、シリンダの中での運動量が小さく、効率的に燃焼をおこなうため、シリンダ内に動きを与える必要がある。そこで、吸入された混合気に渦を巻く(スワール)様な動きを与えたり、ヘッドとピストンの隙間を小さくして、そ

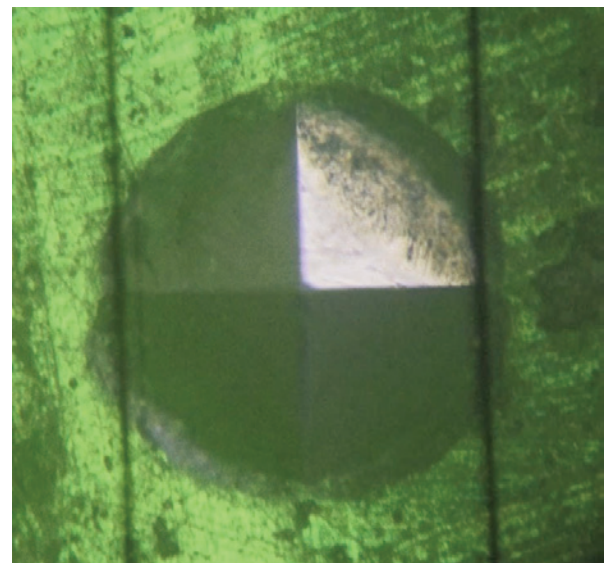


Fig.10 mark of Vickers hardness

Table2 result of Vickers hardness

ダットサン17型のコネクティングロッド	S2000のメタル
HV107	HV136

こに入り込んだ混合気をジェット状に押し出す「スキッシュエリア」を設けたりする必要がある。しかし、ポート面積を絞れば、吸入空気量が少なくても流速は上がり、吸気ポートにひねりを加えるスワール流を生成することができる。ところが、こうした手法では、大量の混合気が高速で流れる場合は、吸入抵抗を増大させてしまう¹¹⁾。

以上のことを踏まえて、ダットサン17型のエンジンの形状を確認すると、シリンダブロック内に吸排気バルブ、吸排気ポートとカムシャフトを備え、バルブがシリンダの外側に配置されていることがわかる。この構造は、設計が簡単であるものの吸排気の流れが複雑で抵抗が大きく、燃烧室のコンパクト化は難しい⁸⁾。また、燃烧室が広く長い扁平な形状となり、燃烧室の表面積が大きくなり、熱損失が大きくなる。加えて、点火プラグから燃烧室末端までの距離が長いので、火炎伝播にかかる時間が長く、異常燃焼が起きやすく、高圧縮比、高出力化には不向きであることがわかる¹²⁾。また、比較したオースチン・セブンの燃烧室形状は同じサイドバルブありながら、ダットサン17型とは異なっていた。Fig.11, 12にダットサン17型とオースチン・セブンの燃烧室を示す。しかし、第一報でも述べたように、1930年代の道路状況では、高速運転の機会はなく、大きな出力が必要とされなかった。また、日産は、当時量産を始めたばかりのメーカーであり、ダットサンのエンジンは構造が単純であるため故障も少なく、車を購入する人にとっても、初めての車であった。そこで、世界的に実証された堅実な機構を用いて、信頼できるものにしたと推察される。

5.3 弁ばねの変遷

ダットサン、オースチン・セブンおよびS2000の弁ばねの張力を比較した。測定方法は、ばねを置き、その上に平行な鉄板を乗せ、両端にダイヤルゲージを配置し、鉄板の上から10kgの重りを乗せ測定した。Table.3にばねの張力、Fig.11に実際のダットサン、オースチン、S2000の弁ばねを示す。

表よりダットサンとオースチンのばねは、大きさや強度に数値の差が見られなかった。しかし、S2000は高出力なエンジンであるため、リフト量が最大時にバルブに対する慣性力がとても大きい。したがって慣性力をうち消すためにバルブスプリングの線径を大きくするなど耐荷重化を図っているのではないかと推測できる。

また、材質の調査をおこなったが、本大学に材質を調べる機器がなかったため、調査できなかった。そこで、本学講師の原健次郎先生に聞いたところ、SWOSC-Vという素材ではないかとの回答であり、これについて調査した。その結果、弁ばねの歴史がわかった。1940年以前はスウェーデン製のピアノ線が用いられていた。1940年以降はピアノ線の国産化がはかられ、航空機用弁ばね用鋼線として国産ピアノ線が実用化された。その後、自動車用弁ばね材料として使用されるようになった。戦後、欧米よりオイルテンパ線の製造技術が紹介されると、徐々に自動車用弁ばねとして採用されるよ

うになった¹³⁾。

このようにダットサン、オースチンの年代では、弁ばねにピアノ線が用いられており、現代ではオイルテンパ線に変えることがわかった。ホンダS2000のばね定数は、ダットサンおよびオースチンのばね定数と大きく差があった。それはVTEC（可変バルブ機構）にある。VTECは、カムシャフトに高回転および低回転用のカムを設け、そこに接するロッカーアームを一定の回転数に達した際に切り替え、バルブタイミング・リフト量を変化させる機構である。よって、高回転時に、弁ばねに対する慣性力が大きくなるため、ばね定数が大きいと考えた。



Fig.11 Combustion chamber of Datsun type 17 and Austin seven



DATSUN AUSTIN S2000

Fig.12 valve spring

Table3 Valve spring

	元の長さ [mm]	縮んだ長さ [mm]	ばね定数 [N/mm]
ダットサン IN	45.5	38.0	13.1
ダットサン EX	45.5	37.0	11.5
オースチン IN	41.6	33.3	11.8
オースチン EX	40.2	32.8	13.3
S2000 IN	48.8	47.0	54.5
S2000 EX	49.7	47.5	44.6

また VTEC は1989年にインテグラに初めて搭載された。

1980年代後半から1990年代にかけて、可変バルブ機構の技術を自動車メーカ各社が競い合い、それぞれのメーカで可変バルブ機構を採用している。これは、排ガス浄化と省エネルギー、高出力を両立させるためであった。日産自動車は数ある可変機構でも最も基本的な作動ある位相変化型の NVCS を1986年にレパードに搭載し、三菱自動車は MIVEC を1992年にミラージュに搭載した。またトヨタ自動車は1995年に5代目クラウンに VVT-I を初めて搭載した。

したがって、各メーカはより高い充填効率を求め、独自で可変機構を開発していた。

6. おわりに

本研究では、工業製品の進化を知ること、技術者の視点から動態保存の方法を考えることの2点を研究課題とした。この研究対象に自動車を選び、生産された時代の社会状況や要求、工業の水準、安全、環境問題などを広い視野から学んだ。そして、以下の結論が得られた。

- (1) ダットサンとオースチン・セブンのエンジンの各部の寸法は近似しており、オースチン・セブンの影響を受けて設計されたものと推察できる。
- (2) ダットサン17型にはメタルがみられなかった。当時一般的であったのは盛りメタルだが、盛りメタルの製作作業には熟練工の存在が必要であり、量産を開始したばかりの日産には量産を可能にする技術的な蓄積が少なかったからメタルを必要としないジュラルミン製にしたのではないかと推察される。
- (3) 日産は、当時量産を始めたばかりのメーカであり、車を購入する人にとっても、初めての車であった。そこで世界的に実証された堅実な機構を用いて、信頼できるものにしたと推察される。
- (4) ダットサン、オースチン・セブンおよび S2000 における弁ばねの張力を比較した。ダットサンとオースチンの弁ばねは、大きさや強度に数値の差が見られなかった。しかし S2000 のような高出力なエンジンは、バルブに対する慣性力がとても大きいため、バルブスプリングの線径を大きくするなど耐荷重化を図っているのではないかと考える。
- (5) ダットサンの時代では、現代の社会的要望がなく、エンジンの簡易的な仕組みだった。また、ダットサンのエンジン内部の部品はオースチンの寸法と類似していたが、明らかに設計の意図が違うことがわかった。またダット

サンはオースチンにはなかった進歩的な工夫が見られた。

最後に、本研究は2016年度理工／建築・環境学会研究補助費を受けたものである。ここに感謝の意を表す。また、田中紀久子氏（車両提供）、大村正敏氏（スペアエンジンおよび資料寄贈）、木村具幸氏（部品および資料寄贈）、木村治夫氏（資料寄贈）、日産自動車株式会社座間記念車庫の関係各位に深謝したい。そして、各部の測定や執筆には、卒業生である神長俊基氏、西口恒平氏、織部恭輔氏、島田航平氏、中村大起氏、奥田陽歌里氏にも協力いただいたことを記して本稿を閉じたい。

参考文献

- 1) 神長俊基、武田克彦、伊東和彦：オールド・ダットサンから見る自動車技術の変遷（第一報）、関東学院大学工学総合研究所報、40、2016、pp19-26.
- 2) Chris Harvey : Austin Sevens, p.50, Haynes Publications Inc, (1988).
- 3) Bryan Purves : THE Austin Seven SOURCE BOOK, p.414, Haynes Publishing Group, (1989).
- 4) 鈴木一義:20世紀の国産車, pp82-83, 三樹書房, (2000).
- 5) 小林彰太郎：写真で見る昭和のダットサン, p.21, 株式会社二玄社, (1995).
- 6) 小林彰太郎：ダットサンの50年, p.2, 株式会社二玄社, (1983).
- 7) 日産自動車株式会社：ダットサン乗用車取扱法, pp.2-3, (1937).
- 8) 坂上茂樹：戦前戦時～復興期のダットサン、ニッサン用日立気化器、大阪市立大学学術機関リポジトリ、109、09、2017.
- 9) 日本自動車技術会：自動車技術を築いたリーディングエンジニア、<http://jsae.or.jp/interview/>（2019年12月10日参照）.
- 10) 鈴木脩己：大車輪、三栄書房、(2003)、p.126、156、166、200、206、219.
- 11) 両角岳彦：図解自動車のテクノロジー基礎編、三栄書房、(1991)、pp.60-61.
- 12) 廣安博之：わかる内燃機関、日新出版、(1973)、p.138.
- 13) 弁ばね用線材の発展 神戸製鋼技報、50、3、2000、pp27-30.

ディンプルを有する平行平板軸受の流体潤滑特性の実験的検討

岸 田 晃 直*
三 和 伶 央*
宮 永 宜 典**

Experimental investigation of hydrodynamic lubrication characteristics of dimpled parallel plate bearings

by

Terunao KISHIDA
Reo MIWA
Norifumi MIYANAGA

要 旨

潤滑面にディンプルおよび／または溝を加工することは、平行平板軸受の流体潤滑特性を改善するための有効な手段として知られている。ディンプルを有するしゅう動面の流体潤滑特性は、ディンプル深さ、ディンプル密度、ディンプル形状、潤滑特性など多くのパラメータによって影響されている。しかし、これらのパラメータの効果は定量的には明らかではない。この研究では、油膜力の発生と摩擦トルクの低減に対するディンプル形状の影響を明らかにするために実験をおこなった。油膜力と摩擦トルクは、一定の膜厚さで円形と2つの扇形ディンプルを用いて測定された。また各ディンプルで発生する流体力学的性能と、キャビテーションの関係を明確にするため摺動面の観察をおこなった。円形ディンプルは最大の油膜力を示し、最小の摩擦トルクを示した。円形ディンプルのキャビテーション領域は、回転数の増加によってわずかに増加した。一方、扇形ディンプルのキャビテーション領域は直線的に増加した。この結果はキャビテーションの発生とディンプル内での成長が、ディンプルを有する平行平板軸受の流体力学的性能と関連していることが示唆された。

キーワード：流体潤滑，平行平板軸受，ディンプル

Abstract

Creating of dimples and/or grooves on lubricating surfaces is a recognized effective method for improving the lubrication performance of parallel plate bearings. It is known that hydrodynamic lubrication characteristics of dimpled surfaces are affected by many parameters such as dimple depth, dimple area density, dimple shape, and lubricant properties. However, the effects of these parameters are not made clear quantitatively. This study performed bearing tests for revealing the effect of dimple shape on generating fluid film forces and reducing frictional torque. The fluid film force and frictional torque were measured in circular and two fan-shaped dimples under constant film thicknesses. The lubricating surface was also observed for clarifying the relationship between the hydrodynamic performance and cavitation occurred in each dimple. As the results, the circular dimple indicated the largest fluid film force, whereas the lowest frictional torque. The cavitation area within the circular dimple slightly increased with the rotational speed, on the other hand, those of the fan-shaped dimples linearly increased. The results suggested that the emergence of cavitation bubbles and their growth within the dimples were related with the hydrodynamic performance of the dimpled plate bearings.

Key Words: hydrodynamic lubrication, parallel plate bearings, dimples

1. 緒言

軸受のしゅう動面にディンプルおよび／または溝などを加工することは、潤滑特性を改善するための有効な手段として知られている¹⁾。ディンプルまたは溝による一つの凹部に注目すると、くさび部で正圧が、逆くさび部で負圧が発生する。潤滑油が負圧に耐えられないところでは油膜が破断し、圧力がキャビテーション圧力にまで回復するため、荷重に対抗する油膜力を得ることができない。平行平板軸受を用いた場合、荷重に対抗する油膜力を得ることができず、二面が接触してしまう。そのため、多くの研究者によって、ジャーナル軸受²⁾、メカニカルシール^{3),4)}、スラスト軸受^{5)~7)} その他機械部品等⁸⁾ にディンプルが加工され、それらの潤滑特性および適切な設計法についての研究がおこなわれている。

Etsion ら³⁾ は、二次元レイノルズ方程式とハーフゾーンマーフルト境界条件を使用した解析モデルを用いて、半球形状のディンプルが加工されたメカニカルシールの解析をおこなっている。その結果、ディンプルの直径だけでなく、しゅう動面に対するディンプルを配置する面積の割合を適切に設計することが重要であると結論付けた。Qiu ら⁵⁾ は、円形と楕円形のディンプルが施されたスラスト軸受について実験的な検討をおこなった。この研究では、ディンプルの深さ、直径、ならびに面積比などのパラメータが摩擦特性に影響していることを明らかにしている。また、しゅう動面を可視化し、キャビテーションの大きさがしゅう動速度に依存して変化することを示した。Cross ら⁶⁾ は、円形ディンプルが加工されたスラスト軸受において、摩擦トルクの測定およびしゅう動面の観察をおこなった。摩擦係数は、ディンプル直径が大きくなるほど、またディンプル深さが浅くなる程小さくなることを示した。また、キャビテーションは、回転数が大きくなるほど、粘度が増加するほど大きくなることを示した。Shen ら⁷⁾ は、ディンプルの断面形状の影響について検討したこの研究では、長方形断面と三角形断面について実験がおこなわれ、長方形断面の方がより大きな油膜力を示すことを明らかにした。

本研究では、円形ディンプルと二種類の扇形ディンプルが加工された試験片を用いて、油膜力および摩擦トルクの測定をおこなった。また、しゅう動面を可視化し、キャビテーションが油膜力および摩擦トルクに及ぼす影響を明らかにしたので、ここに報告する。

2. 実験装置および実験方法

実験装置概略図を Fig.1 に示す。実験装置は、コントローラ部、軸受試験部および温度調整部によって構成されている。コントローラ部には、モータ、エアベアリング、ノーマルフォースセンサ、トルクセンサ、ならびにギャップセンサが内蔵されている。試験軸受部は、ガラスディスクと試験片から構成されている。ガラスディスクはシャフトを介してエアベアリングによって支持されている。ディンプルを有する

試験片はオイルカップ内に固定されている。本装置はガラスディスクと試験片との隙間（膜厚さ）を $1\mu\text{m}$ の精度で一定に保つことができる。また、温度調整部によって、軸受試験部と潤滑油の温度を一定に保つことができる。

本実験では、Fig.2 に示す 4 つの試験片を用いた。すなわち、ディンプルが加工されていないプレーン試験片、円形、扇型縦（しゅう動方向に対し縦長）および扇型横（しゅう動方向に対し横長）のディンプルが加工された試験片である。試験片の材質は黄銅製であり、外径 42mm 、内径 24mm である。Fig.3 に三種類のディンプルの概略図を示す。ディンプルはエッチングによって、 36 度毎に計 10 個が施されている。ディンプルの深さは $30\mu\text{m}$ である。また、ディンプルの面積の総和は、しゅう動面の面積に対し 30% になっている。

実験条件を Table 1 に示す。Fig.4 は一回の実験での回転数の制御パターンである。各回転数での実験時間を 200 秒間とし、後半 100 秒間のデータを平均した。また、回転数を上昇する前に 100 秒間の停止時間を取り、しゅう動面間のキャビテーションの除去および冷却をおこなった。潤滑油には SAE30 を用いた。ここで、 298K 時の SAE30 の粘度は $0.21\text{Pa}\cdot\text{s}$ である。

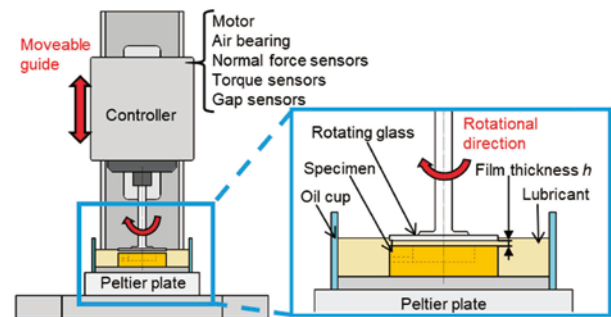


Fig.1 Experimental apparatus

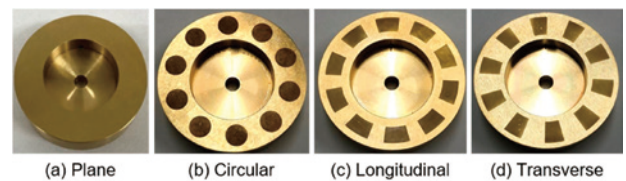


Fig.2 Photos of specimens

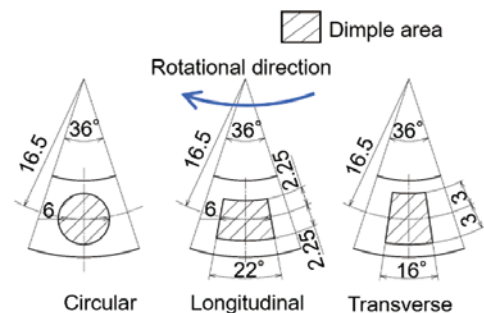
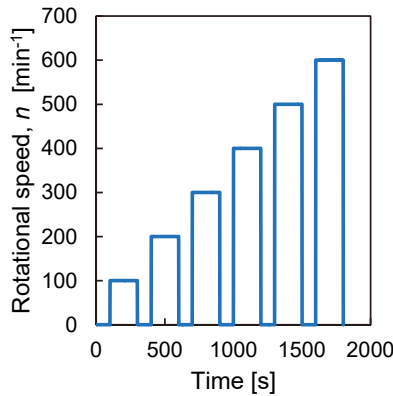


Fig.3 Schematic of each dimple shape

Table 1 Experimental conditions

Rotational speed n [min^{-1}]	0-600
Film thickness h [μm]	20-50
Lubricant	SAE30
Temperature T [K]	298
Viscosity η [$\text{Pa}\cdot\text{s}$] at 298K	0.21

**Fig.4** Experimental method

3. 実験結果および考察

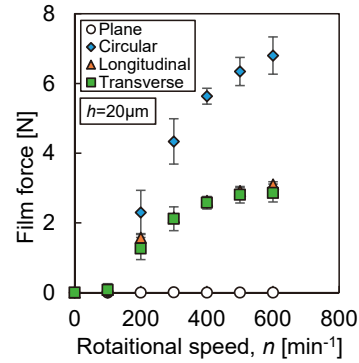
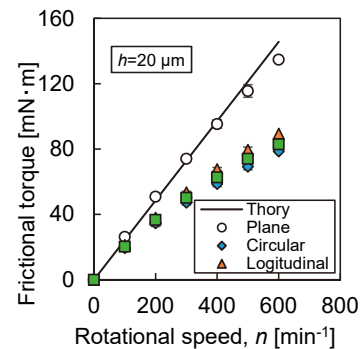
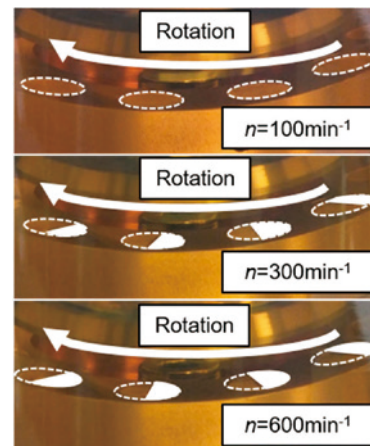
各試験片における回転数と油膜力の関係を Fig.5 に示す。Fig.5 より、Plane 試験片の油膜力は、いずれの回転数でも零となった。各ディンプルでの油膜力の測定結果を比較すると、回転数が 100min^{-1} 時には、どのディンプルでも油膜力がほぼ発生していないことがわかる。回転数が増加すると油膜力が発生しており、本研究で用いた三種類のディンプルでは、円形ディンプルが最も油膜力を発生した。また、円形ディンプルは回転数の上昇に伴って油膜力が上昇しているのに対して、二つの扇型ディンプルでは 400min^{-1} 以上の領域で油膜力がほとんど上昇していない。

各試験片における回転数と摩擦トルクを Fig.6 に示す。Fig.6 に示した摩擦トルクの理論線は、Eq. (1) を用いて求めた。

$$T = \frac{\pi \eta \omega (r_o^4 - r_i^4)}{2h} \quad (1)$$

ここで、 T : 摩擦トルク [$\text{N}\cdot\text{m}$]、 η : 粘度 [$\text{Pa}\cdot\text{s}$]、 ω : 回転速度 [rad/s]、 h : 膜厚さ [m]、 r_o : しゅう動面外半径 [m]、 r_i : しゅう動面内半径 [m] である。Fig.6 より、Eq. (1) で求めた理論線と実験値はよく一致した。ただし、回転数が 500min^{-1} 以上では、理論値より実験値の方がわずかに低くなっている。これは、回転数が増加することにより、摩擦熱に伴う粘度変化が生じたためと考えられる。ディンプルのある試験片は、プレーンの試験片と比較して、摩擦トルクが低くなった。また、三種類のディンプル形状でを比較すると、円形ディンプルが最も摩擦低減に効果があった。

しゅう動面を可視化した結果を Fig.7 から Fig.9 に示す。破

**Fig.5** Effect of the rotational speed on the film force**Fig.6** Effect of the rotational speed on the frictional torque**Fig.7** Observation results of sliding surface: circular dimple, $h=20\mu\text{m}$, $n=100, 300$ and 600min^{-1}

線で囲われた部分がディンプル部を示し、白く塗られている部分がキャビテーションを示す。いずれのディンプルでも、回転数が 100min^{-1} の時には、キャビテーションが発生していない。そのため、ディンプル周辺では反対称な圧力分布が生じ、Fig.5 のように油膜力は零となったと考えられる。回転数が増加すると、ディンプルの入口側にキャビテーションが発生した。これは、負圧がキャビテーション圧力に回復したことを意味し、圧力分布が非対称となって油膜力が生じたものと考えられる。ディンプルに発生したキャビテーションは、回転数の上昇にもなって、徐々に拡大していることも確認された。

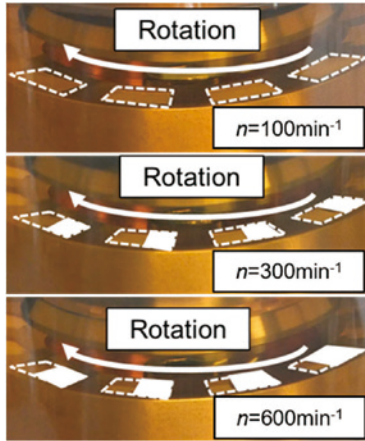


Fig.8 Observation results of sliding surface: longitudinal dimple, $h=20\mu\text{m}$, $n=100, 300$ and 600min^{-1}

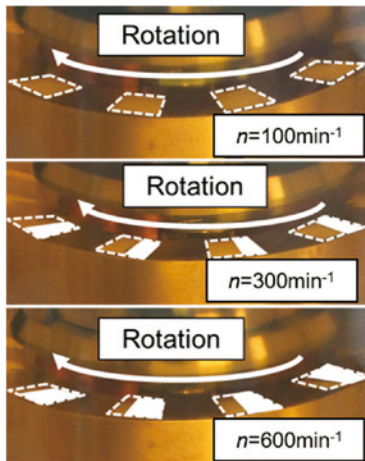


Fig.9 Observation results of sliding surface: transverse dimple, $h=20\mu\text{m}$, $n=100, 300$ and 600min^{-1}

ディンプル内でのキャビテーションの面積割合を Fig.10 に示す。円形ディンプルの場合、キャビテーションの面積割合は、 $200\text{min}^{-1}\sim 600\text{min}^{-1}$ の範囲でほとんど変化していない。円形ディンプルは、ディンプル幅がしゅう動方向に対して狭くなっていくため、それが一種のくさび作用を引き起こし、キャビテーション領域の増加を妨げたからであると考えられる。Fig.5からも、油膜力は回転数の増加に伴って増加している。一方、二つの扇型ディンプルの場合、キャビテーションの面積割合は、回転数の上昇とともに増加している。これは、扇形ディンプルは、ディンプル幅がしゅう動方法に対して一定であるため、キャビテーションが下流に広がりやすかったためであると考えられる。Fig.5からも、油膜力はほとんど増加しなかった。

膜厚さを変化させた場合の油膜力の結果を Fig.11 に、摩擦トルクの結果を Fig.12 にそれぞれ示す。図より、膜厚さが大きい場合でも、円形ディンプルにおいて油膜力が最も大きくなっている。また、二つの扇型ディンプルで生じる油膜力を比較すると、いずれの膜厚さにおいても、大きな差は見られない。摩擦トルクは、いずれの膜厚さにおいても、ディンプルの効果が見られる。この傾向は、膜厚さが広がるほど顕著であった。

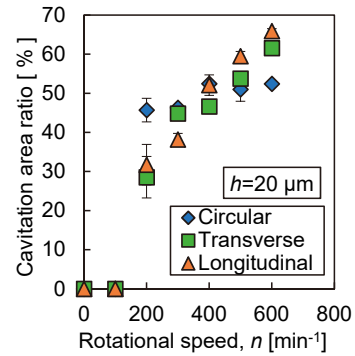


Fig.10 Relationship between cavitation area ratio and rotational speed

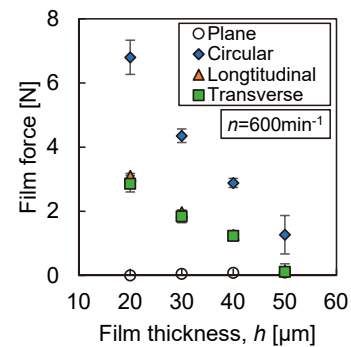


Fig.11 Effect of the film thickness on the film force

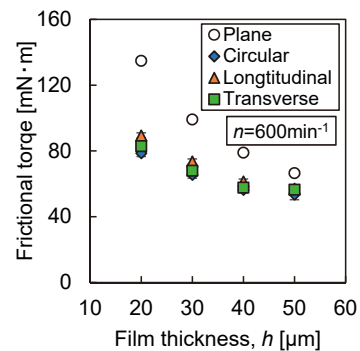


Fig.12 Effect of the film thickness on the frictional torque

また、わずかではあるが、円形ディンプルで最も摩擦トルクが低下している。

4. 結言

本研究では、形状の異なる三種類のディンプルについて、油膜力および摩擦トルクに及ぼす影響を検討した。また、しゅう動面の可視化をおこない、キャビテーションとこれらの諸特性との関連についても検討した。得られた結果を以下にまとめる。

- (1) 円形ディンプルの油膜力は $200\sim 600\text{min}^{-1}$ の回転数で増加したが、扇型ディンプルの油膜力は 400min^{-1} 以上ではほとんど増加しなかった。また、今回実験した三種類のディ

ンプルの中では、円形ディンプルが最も大きな油膜力を発生した。

- (2) 本実験で用いたディンプルは、ディンプルがない場合と比較して、摩擦トルクを低下させる効果があった。三種類の中では、円形ディンプル最も効果的であった。
- (3) キャビテーションはディンプルの入口で発生した。円形ディンプルの場合、回転数が増加してもキャビテーションの割合はほとんど増加しなかった。一方、扇形ディンプルの場合、回転数の上昇に伴ってキャビテーションの割合は増加した。
- (4) 検討をおこなったいずれの膜厚さにおいても、円形ディンプルで最も大きな油膜力が発生した。一方、二つの扇形ディンプルには顕著な差は見られなかった。ディンプルによる摩擦トルクの低減効果は、膜厚さが薄い時により顕著であった。

参考文献

- 1) 佐々木信也：表面テクスチャリングによるトライボロジー特性の向上, 表面技術, 65, 12, pp. 568-572 (2014).
- 2) Lu, Xiaobin. and Khonsari, M. M.: An experimental investigation of dimple effect on the stribeck curve of journal bearings, Tribology Letters, 27, 2, pp. 169-176 (2007).
- 3) Etsion, I. and Burstein, L.: A model for mechanical seals with regular microsurface structure, Tribology Transactions, 39, 3, pp. 677-683 (1996).
- 4) Fesanghary, M. and Khonsari, M. M.: On the optimum groove shapes for load-carrying capacity enhancement in parallel flat surface bearings: Theory and experiment, Tribology International, 67pp. 254-262 (2013).
- 5) Qiu, Y. and Khonsari, M. M.: Experimental investigation of tribological performance of laser textured stainless steel rings, Tribology International, 44, 5, pp. 635-644 (2011).
- 6) Cross, Andrew T. and Sadeghi, Farshid, Cao, Lijun, Rateick, Richard G., Rowan, Scott: Flow Visualization in a Pocketed Thrust Washer, Tribology Transactions, 55, 5, pp. 571-581 (2012).
- 7) Shen, Cong. and Khonsari, M. M.: Effect of dimple's internal structure on hydrodynamic lubrication, Tribology Letters, 52, 3, pp. 415-430 (2013).
- 8) Mezghani, S. and Demirci, I., Zahouani, H., El Mansori, M.: The effect of groove texture patterns on piston-ring pack friction, Precision Engineering, 36, 2, pp. 210-217 (2012).

転がり軸受のトルクに及ぼすグリースレオロジーの影響

二 瓶 美 摘*
三 和 伶 央*
宮 永 宜 典**

Influence of Grease Rheology on Frictional Torque of Rolling Bearings

by

Mitsumi NIHEI
Reo MIWA
Norifumi MIYANAGA

要 旨

本論文では、リチウム石けんグリースの流動特性が小型転がり軸受のトルクに及ぼす影響について検討した。まず、コーンプレート型レオメータを使用して、3種類のグリースの流動特性の測定を行い、その結果を Herschel-Bulkley 方程式にフィッティングさせ、機械的特性を明らかにした。さらに、グリースの粘弾性特性を測定し、 $G' = G''$ となるせん断応力である粘性移行応力を温度に対してプロットした。次に、PIV 法を用いて、グリースが軸受玉にかき分けられた後の流れ解析を行った。最後に、これらのグリースを用いた時の転がり軸受の回転トルクを測定した。その結果、粘性移行応力が大きいグリースは流動性が低く、低い軸受トルクを示した。一方、粘性移行応力の小さいグリースは流動性が高く、比較的高い軸受トルクを示した。

キーワード：リチウムセッケングリース、転がり軸受、レオロジー、PIV解析

Abstract

In this paper, effects of flow properties of lithium soap greases on torque of rolling bearings are discussed. Firstly, in this study, flow properties of three types of greases were measured by a cone plate type rheometer. The results were fitted with the Herschel-Bulkley equation and mechanical properties were revealed. In addition, viscoelastic properties of the greases were measured. The crossover stress which is the shear stress at $G'=G''$ was plotted against temperature. Secondly, grease flows after a bearing ball passed were analyzed by the PIV method. Finally, bearing torque characteristics when these greases were used were measured. As the results, the greases with the higher crossover stress showed lower fluidity and relatively lower bearing torque. On the other hand, the greases with the lower crossover stress showed higher fluidity and the relatively higher bearing torque.

Key Words: Lithium soap greases, Ball bearings, Rheology, PIV analysis

1. 緒言

転がり軸受は、産業機械の回転運動を支える機械要素として、多岐に使用されている。近年、機械の小型化・高効率化に伴い、転がり軸受には、さらなる低トルク化が求められている。転がり軸受のトルク発生要因として、転がり接触部での微小すべり摩擦抵抗、玉と保持器のすべり摩擦抵抗、潤滑剤のかく拌抵抗、潤滑剤の粘性抵抗などがあげられる¹⁾。

転がり軸受は、その80%以上がグリースで潤滑されており、これまでもグリースの諸特性が軸受トルクに及ぼす影響についての研究がなされている²⁾。グリースで潤滑された転がり軸受のトルク低減には、グリースを低粘度化することで対応することが多いが、低粘度グリースが必ずしも転がり軸受を低トルク化できるとは限らない¹⁾。その主な理由は、転がり軸受のトルクが、軸受内部でのグリースの挙動に大きく依存するためである。軸受内部でのグリースの挙動は、チャネリングとチャーニングに分けられる。チャネリングでは、グリースが転動体よってかき分けられたままの状態を保持し、少量のグリースや分離した基油によって潤滑されている。一方、チャーニングでは、転動体よってかき分けられたグリースが軌道面に再度流入し、転動体よってグリースがかき分けられ続ける。そのため、チャネリング状態に比べて、軸受トルクが高くなると考えられている^{2), 3)}。

阿久津ら⁴⁾は、グリースの非ニュートン性やチキソトロピー性などの特異な流動特性について検討した。新田ら¹⁾は、増ちょう剤由来のかく拌抵抗とグリースの粘性移行応力に及ぼす影響を調査し、増ちょう剤のアルキル鎖長が流動性に関係することを明らかにした。転がり軸受が回転している状態でのグリースの挙動を直接観察することは、極めて困難である。これに対して野田ら⁵⁾は、X線CTを用いて、チャーニングおよびチャネリング状態での軸受内でのグリースの分布を検討している。その他に、PIV (Particle Image Velocimetry) 解析⁶⁾やCFD (Computational Fluid Dynamics) 解析⁷⁾などの流体解析手法も注目されている。

本研究では、コーンプレート型レオメータを用いたレオロジー測定により、リチウム石けんグリースの流動特性を評価した。また、PIV法を用いてグリースの流れ解析を行い、レオロジー測定の結果との関連を検討した。さらに、これらのグリースで潤滑された転がり軸受のトルク測定を行い、グリースの流動特性と軸受トルクの関係を検討した。

2. グリースのレオロジー特性の検討

2.1 実験装置および方法

本研究では、コーンプレート型レオメータを用いて、3種類のリチウムセッケングリースの流動特性を測定した。Fig.1にレオメータの概略図を示す。本研究では、直径25mm、コーン角度2°のコーンプレートを使用した。測定中のグリースの温度は、ペルチェ素子によって一定に保った。Table 1に使用したグリースの諸元を示す。定常粘度測定の測定条件をTable 2に示す。

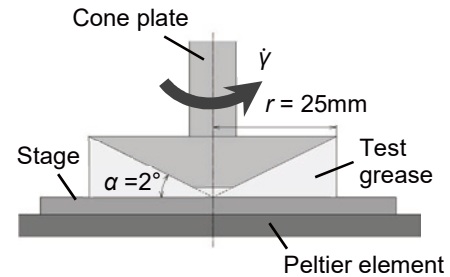


Fig.1 Constant flow measurement

Table 1 Test greases used in this study

	Thickener	Base oil	worked penetration (298K)	Apparent viscosity [Pa·s] (Temperature : 263K, Shear speed : 10s ⁻¹)
L0	Lithium soap	Mineral oil	365	90
L1			320	149
L2			271	313

Table 2 Test conditions of constant flow measurement

Shear rate $\dot{\gamma}$ [1/s]	0.01~1000
Temperature T [K]	313

Table 3 Test conditions of oscillatory flow measurement

Frequency f [Hz]	9
Amplitude of shear rate γ_0 [-]	0.01~100
Temperature T [K]	293~333

本研究では、Eq. (1) に示す Herschel-Bulkley 方程式⁴⁾によって、グリースの流動特性を近似した。

$$\tau = \tau_y + b \dot{\gamma}^\alpha \quad (1)$$

ここで、 τ [Pa] はせん断応力、 τ_y [Pa] は降伏応力、 b [Pa·s] は塑性粘度、 $\dot{\gamma}$ [1/s] はせん断速度、 α [-] は構造粘度係数である。Eq. (1) において、構造粘度係数 $\alpha=1$ の場合はビンガム流体であることを示し、 $\alpha \neq 1$ の場合は非ビンガム流体であることを示す。

次に、Eq. (2) のような微小振動のもとでグリースの動的粘弾性測定を行った。粘弾性測定装置の概略図を Fig.2 に示す。

$$\gamma_{(t)} = \gamma_0 e^{i(2\pi ft)} \quad (2)$$

ここで、 γ_0 [-] はひずみ振幅、 f [Hz] はひずみ振動の周波数を表す。貯蔵弾性率 G' [Pa]、損失弾性率 G'' [Pa] は、Eq. (3) および Eq. (4) でそれぞれ求めた。

$$G' = (\sigma_0 / \gamma_0) \cos \theta \quad (3)$$

$$G'' = (\sigma_0 / \gamma_0) \sin \theta \quad (4)$$

ここで、 σ_0 [Pa] は応答応力を表す。Table 3 に実験条件を示す。微小振動の周波数は、本研究で用いる転がり軸受の固

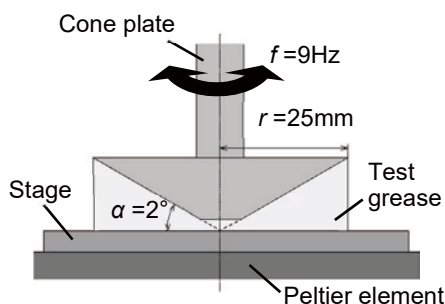


Fig.2 Experimental apparatus of the oscillatory measurements

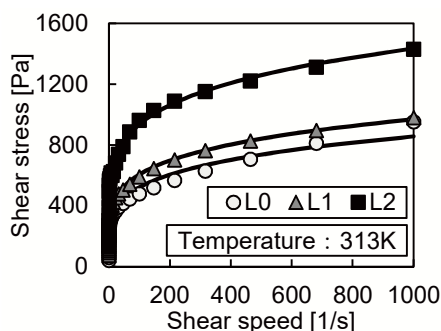


Fig.3 Flow curves for three types of greases

有振動数から設定した⁸⁾。

2.2 測定結果および考察

各グリースの定常粘度測定の結果を Fig.3に示す。図中において、プロットは実験値、実線は近似線である。降伏応力、構造粘度係数、および塑性粘度を比較した結果を Table 4に示す。降伏応力と塑性粘度は、グリース L0が最も低い値を示し、次いで L1, L2の順に値が大きくなった。また、構造粘度係数はいずれのグリースでも $\alpha \neq 1$ となり、本研究で使用した3種類のグリースは、いずれも非ビンガム流体であった。

Fig.4に、313Kにおけるグリース L0の動的粘弾性の測定結果を示す。粘性移行応力は $G'/G''=1$ となるときのせん断応力であるが、これより低い応力が与えられた場合には、グリースは弾性的なふるまいをし、高い応力が与えられた場合には、グリースは粘性的なふるまいをする¹⁾。Fig.5に、横軸を温度、縦軸に各グリースの粘性移行応力としたグラフを示す。グリース L0が最も低い粘性移行応力を示し、次いで L1, L2の順になった。いずれのグリースでも、温度が高くなると粘性移行応力は小さくなった。また、グリース L0は L1, L2と比べて、温度依存性が小さくなった。

3. PIV 法によるグリースの流れ解析

3.1 実験装置および方法

運転時の転がり軸受内部のグリースの挙動を直接観察することは困難である。そこで、PIV 法により流動を可視化することで、軸受内部のグリース挙動を検討した。PIV 法は、試験流体内に混入させたトレーサ粒子を追跡することで流れ

Table4 Yield stress, shear thinning index, and consistency factor for each grease

Greases	L0	L1	L2
Yield stress τ_y [Pa]	44.64	65.76	120.00
Shear thinning index a [-]	0.33	0.20	0.19
Consistency factor b [Pa·s]	73.24	192.09	295.74

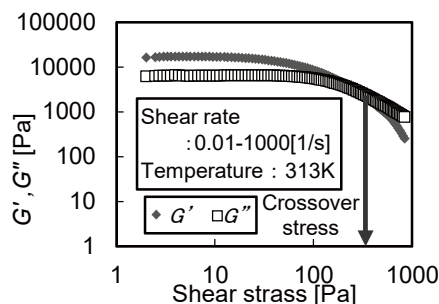


Fig.4 G' and G'' vs shear stress

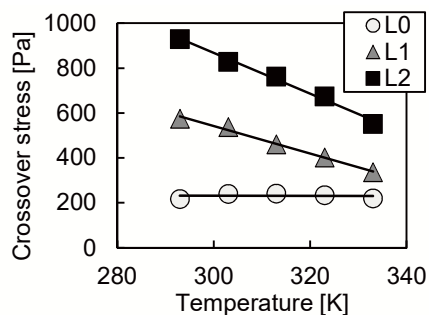


Fig.5 Crossover stress of the greases

を可視化する手法である^{5), 6)}。

Fig.7に解析装置の概略図を示す。ガラスプレートの上にグリースを0.5mmの厚みで均一に塗布し、直径10mmの玉を130mm/sで通過させた後のグリースの流れを、下部からハイスピードカメラで撮影した。グリースには、平均粒径50 μ mの塩化ビニル製トレーサ粒子を3wt%混入させている。光源にはグリーンレーザを用いた。カメラのフレーム数は1000fps、解析時間は転動体通過直後から0.1秒間とし、実験は室温でおこなった。なお本実験では、玉はグリースをかき分けるだけとし、すべり率を100%とした。Fig.7 (a)に示す解析領域の X 方向の流れ解析を行った。

3.2 各グリースの PIV 解析結果

Fig.8に PIV 解析結果を示す。解析の結果、グリース L0が最も流動速度が速く、次いで L1, L2の順になった。各グリースの粘性移行応力 (Fig.5) と PIV 解析結果とを比較すると、粘性移行応力が小さい L0は最も流速が大きくなり、粘性移行応力が大きくなるに従い、軌道面に戻るグリースの流速が小さくなることがわかった。よって、粘性移行応力が大きい方が、転動体にかき分けられた後に軌道面に再度流入するグリースの量が少なくなる傾向にあると考えられる。

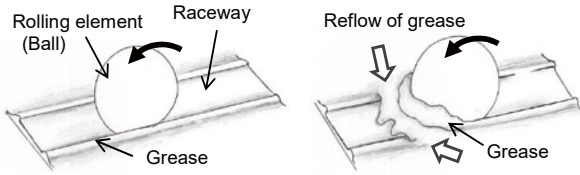
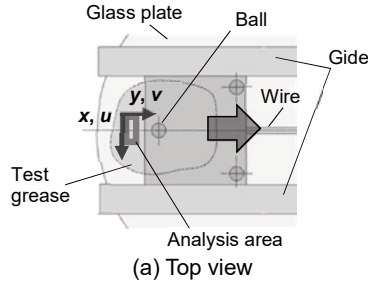
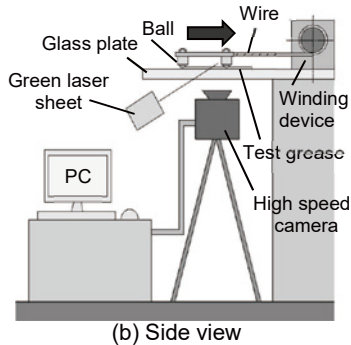


Fig.6 Channeling state and churning state



(a) Top view



(b) Side view

Fig.7 Experimental device for PIV analysis

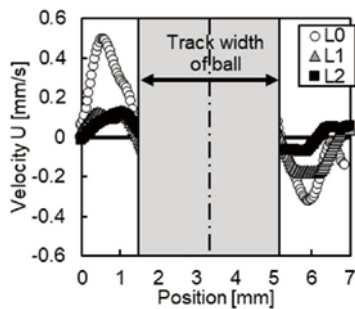


Fig.8 Results of PIV analysis

4. 転がり軸受のトルク測定

4.1 トルク測定装置および測定方法

Fig.9にトルク測定装置の概略を示す。試験軸受(6201VV)の内輪にモータにより回転を与え、外輪の連れ回り力をロードセルにより測定した。上部のばねによって、スラスト荷重を与えた。外輪治具と荷重調節部の間を玉によって点接触させており、荷重をかけた場合の摩擦等による軸受トルクへの影響は限りなく小さくなるようにした。また、トルク測定装置は、加振台⁹⁾の上に設置されている。

Table 5にトルク測定条件を示す。振動条件は軸受から発生する振動周波数と共振する設定とした。また、転がり軸受の固有振動数は転動体の公転数⁸⁾から定義した。

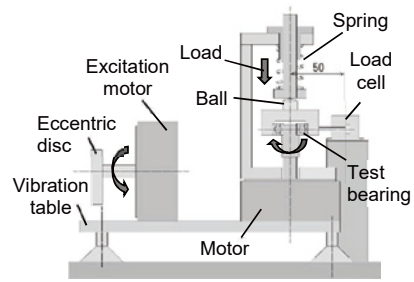


Fig.9 A systematic of torque measuring device

Table5 Test condition of torque measurement

Test bearing	6201VV
Mass of grease [g]	0.60
Applied load [N]	50
Rotational speed [min ⁻¹]	2000
Measurement time [min]	60
Applied vibration frequency [Hz]	0.9

4.2 測定結果

各グリースを封入したときのトルク測定結果を Fig.10および Fig.11に示す。Fig.10は軸受に振動を与えない場合、Fig.11は軸受に振動を与えた場合のトルク測定結果である。

振動を与えない場合、グリース L2でトルクが最も低くなり、次いでL1, L0の順になった。グリース L2は粘性移行応力が最も高く、PIV 解析からも流動を起しにくいグリースであることから、転がり軸受の内部でチャネリングのふるまいをしたと考えられる。一方、グリース L0は、粘性移行応力が最も低く、流動を起しやすいため、チャーニングのふるまいになりやすく、高いトルクを維持したと考えられる。

Fig.10と Fig.11を比較すると、振動を与えることで、すべてのグリースで転がり軸受のトルクが上昇した。また、振動を与えた場合、グリース L0よりL1の方が高いトルクを示した。振動を与えることによって、軸受内部のグリースの挙動が変わった可能性が考えられる。グリース L1は、振動を与えることにより、チャネリングのふるまいからチャーニングのふるまいに変化し、高いトルクを示したと考えられる。また、同じチャーニング同士では、見かけ粘度の大きなグリース L1の方が粘性抵抗が大きくなり、トルクも大きくなったと考えられる。

5. 結言

本研究では、3種類のリチウムセッケングリースの流動特性が転がり軸受のトルクに及ぼす影響を検討し、以下の結論を得た。

- (1) 定常粘度測定の結果を Herschel-Bulkley 方程式とフィッティングした結果、グリースは非ビンガム流体であることが示された。
- (2) PIV 解析により、玉によってかき分けられた後のグリースの流れを解析した。その結果、粘性移行応力が大きくなるに従い、軌道面に戻るグリースの流速が小さくなる

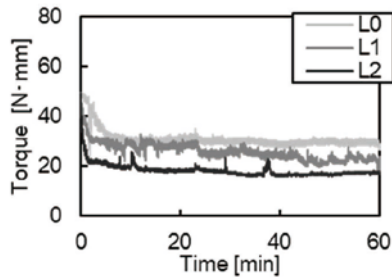


Fig.10 Time history of torque measurements without vibration

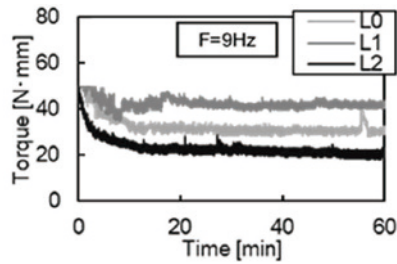


Fig.11 Time history of torque measurements with vibration

ことがわかった。

- (3) 転がり軸受のトルク測定を行った結果、粘性移行応力が大きいグリースは低い軸受トルクを示し、粘性移行応力の小さいグリースは比較的高い軸受トルクを示した。

参考文献

1) 新田真理子, 津田武志, 新井大和, 坂本清美, 酒井一泉: 転がり軸受のトルクにおけるジウレアグリースの粘性移

行応力と増ちょう剤分子構造の影響, トライボロジスト, 61巻, 10号, (2016), pp.699-708.

2) 日本トライボロジー学会: 潤滑グリースの基礎と応用, 養賢堂, (2007), pp.123-124.

3) 星野道男: グリースの流動特性と転がり軸受におけるトルク (第1報), 潤滑, 25巻, 8号, (1980), pp.547-554.

4) 阿久津智宗: 潤滑グリースのレオロジー特性評価による網目構造変化の解析, 東京工業大学大学院平成18年度学位論文, (2008), pp.30-34.

5) 野田隆史, 柴崎健一, 宮田慎司, 谷口雅人: 玉軸受におけるグリース挙動の X 線観察及び多相流解析の妥当性確認, トライボロジスト, 61巻, 4号, (2016), pp.275-284.

6) 春山朋彦, 澤田直規: 蛍光粒子を利用したグリース流動可視化の研究 (第2報: グリース特性の影響), トライボロジー会議2017春予稿集, pp.361-364.

7) Rufe Yu, Pei Li and Wei Chen: Study of grease lubricated journal bearing with partial surface texture, Industrial Lubrication and Tribology, 68, 2, (2016), pp.149-157.

8) 日本精工株式会社: テクニカルレポート, (2013), pp.248-249.

9) 野口昭治, 金田徹, 宮永宜典, 堀田智哉, 淺田誠司: 小型玉軸受の損傷に及ぼすラジアル方向外部振動の影響 (第1報, 10m/s²までのラジアル振動を与えた場合), 日本設計工学会, 52, 4, (2017), pp.229-240.

リン酸水溶液を用いた電解加工と陽極酸化の併用加工

小 堤 望 史*
小 松 隼 人*
鈴 木 拓 弥*
内 山 光 夫*

Combined Processing of Electrochemical Machining and Anodic Oxidation Machining using Phosphoric Acid Aqueous Solution

by

Nozomi KODUTUMI
Hayato KOMATSU
Takumi SUZUKI
Mitsuo UCHIYAMA

要 旨

本研究では、電気化学的加工法である電解加工と陽極酸化加工の両立性の実現を目的とし実験をおこなった。両加工は、加工液種の違いから一般的に別々の加工機で加工がおこなわれている。これを同一の加工液を用いて、加工条件のみを変化させることにより、両加工の実現可能性を検討した。実験では、加工液にリン酸水溶液を用いて加工電圧、加工液温度、極間距離を変化させて両加工をおこない、加工量および加工面を観察した。

キーワード：電解加工，陽極酸化加工，ナノホール，酸化膜，リン酸

Abstract

In this study, experiments were performed with the purpose of realizing compatibility between ECM and anodic oxidation. Both machining are generally performed by different machining devices and type of the electrolyte. We confirmed that both machining could be realized by changing the machining conditions using the same electrolyte. In the experiment, both machining was performed using phosphoric acid aqueous solutions as the electrolyte by varying the machining voltage, electrolyte temperature, anode-cathode distance, the machining volume, and were observed machined surface.

Key Words: Electrochemical Machining, Anodic Oxidation, Nano Hole, Oxide Film, Phosphoric acid

1. 緒言

電解加工は電解研磨や形状加工、陽極酸化加工は耐食性や耐摩耗性の付与、塗装などさまざまな用途で用いられる表面加工である。航空機のエンジンに用いられているブリスクリ¹⁾は主に電解加工を用いて製造されているが、航空機に用いるには耐食性が必要とされる。そのほかに、アルミニウム製の真空容器や反射鏡などの高い平滑性および光沢を必要とする部品には電解研磨が利用される。また、アルミニウム合金などで製造された製品には、機械的特性付与を目的とした陽極酸化加工が施されている。これは、アルミニウムの持つ活性空气中での不働態皮膜の形成という特性を応用した技術であり、空气中での不働態皮膜のみでは皮膜が薄く弱いため、十分な耐食性の確保が困難となる。そこで陽極酸化加工により、強固な皮膜を生成することにより十分な耐食性などを得ることが可能となった。また、陽極酸化加工をおこなうことで、加工表面に細孔が発生するが、その細孔を利用した技術の一例としてカラーアルマイトが挙げられる。カラーアルマイトは、陽極酸化加工後に染色液にアルミニウムを浸漬させ、封孔処理を施すことによりアルミニウムの表面を着色することが可能な技術である。従来から、電解加工と陽極酸化加工は別々の装置で加工をおこなっているが、電解加工と陽極酸化加工はともに電気化学的加工であり、電解液中で陽極に加工物、陰極に電極を設置し、通電するという形態は類似している。したがって、本研究では、電解加工と陽極酸化加工を同一加工機で実験条件のみを変化させ、両加工を実現することが可能であるか検討をおこなった。

電解加工は電気化学的加工法であり、材料の硬度に関係なく加工をおこなうことが可能で、電極工具も短絡などが発生しない限り消耗しない加工法として、1980年代にかけて日本でも注目された。しかし、加工精度の低さや電解液ミストが周囲の機械を腐食するなどの問題があり、多くの日本の工作機械メーカーは電解加工から撤退をした。この技術は、主に耐熱合金の加工が必要な一部の航空機部品メーカーで残り、Fig.1に示すジェットエンジンのブリスクリなどに用いられている¹⁾。近年電解加工では、電解研削や電解切削、金型に対する曲がり穴加工でも用いられている²⁾。電解加工と同様に電気化学的加工法である陽極酸化加工を施すことで、先述したように機械的特性の向上および着色性能を付与することが可能である。また、陽極酸化加工では、酸性溶液中で加工をおこなう場合とアルカリ性の溶液中で加工をおこなう場合とでは、得られる皮膜構造が異なり、得られる機械的特性も異なるため、求める機械的特性に適した加工条件を設定することが重要である。Fig.2にアルミナ多孔体の構造を示す³⁾。そこで、ブリスクリのように電解加工と陽極酸化加工の2つの加工を用いた製品には、同一加工液中での加工に対するニーズがあると考えられる。また、佐々木らは1次加工ではリン酸水溶液中で電解加工、2次加工では硫酸水溶液中で陽極酸化加工をおこなうことにより、電解研磨時に生成される酸化膜厚さより陽極酸化加工で生成されるバリヤ層厚さが厚い場合



Fig.1 Blisk¹⁾

は、不均一模様が生ずる表面に発生せず、陽極酸化被膜が均一に成長することを確認している⁴⁾。よって、同様の溶液で電解加工および陽極酸化加工をおこなうことが確認できた場合には、生産コストの減少、リードタイムの減少を図ることができると考え、本研究では、溶液にリン酸水溶液を用いて同一加工液中での電解加工および陽極酸化加工の実験をおこなった。

2 リン酸を用いた電解加工

電気化学的加工を用いた除去加工には、電解加工、電解切削、電解研削などがある。本研究では、電解研磨においても多少加工物を削ることができるため、電解加工、電解切削、電解研削、電解研磨の4種類とも同様な加工法であると考えられる。

アルミニウムは電解または化学研磨に特に適している。純アルミ、Al-Mg合金は研磨ができるが、銅、マンガン、シリコンなどを多量に含む合金は研磨面に灰色の粉が残るため、完全な光沢を得ることが困難である。リン酸を主成分とし、硫酸、クロム酸を混合させたリン酸系浴は工業的に広く用いられ、リン酸の濃度が濃いほど研磨効果は著しいが、リン酸はほかの酸と比較すると高価なため、薄めて用いられている。Table 1に硝酸ナトリウム水溶液、塩化ナトリウム水溶液、リン酸水溶液の価格の比較を示す。また、リン酸電解加工法は、加工液温は70~80℃で加工をおこなう⁵⁾。濃リン酸水溶液、濃硫酸水溶液の粘性、クロム酸、リン酸による鉄鋼表面への個体皮膜の生成などが研磨効果を高めるものと考えられ、アルミニウムの方が鉄より効果が見られると考えられる⁶⁾。また、電解加工を酸性溶液中でおこなうことにより、電解生成物は液中に溶けた状態となるため、加工間隙における沈殿物の形成が無く、沈殿物によって加工間隙を小さくすることが妨害されないため、中性塩溶液よりも加工間隙を小さくできるため、加工精度を向上することができる⁷⁾。

上記より、リン酸液は高価であるが、鉄鋼における効果が見られたと考えられているため、鉄鋼よりイオン化傾向の高いアルミニウムにおいてリン酸での電解加工の可能性が考えられる。

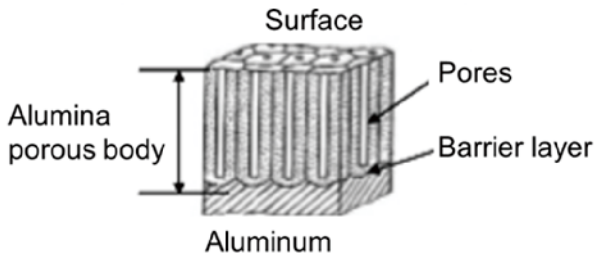


Fig.2 Structure of alumina porous body³⁾

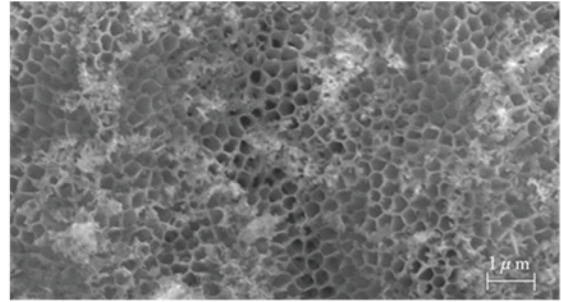


Fig.3 SEM image of anodized film using phosphoric acid⁸⁾

Table 1 Price comparison of aqueous solution

	Raw material (power, liquid)	Aqueous solution (10%)
NaNO ₃	2580 yen/kg	114 yen/l
NaCl	1736 yen/kg	80 yen/l
H ₃ PO ₄	3498 yen/l	350 yen/l

3 リン酸を用いた陽極酸化加工

アルミニウムの陽極酸化加工は、リン酸、シュウ酸、硫酸などのさまざまな電解液でおこなうことができる。陽極酸化加工を施すことにより、加工物表面にアルマイト皮膜を生成することができ、そのアルマイト皮膜には溶液によって加工物表面に細孔が開いたポーラス型皮膜と加工物表面に細孔が開かないバリヤ型皮膜の2種類の皮膜が得られることが確認されている。アルマイト皮膜は、従来になかった機能を持たせることができる。そのために、多孔質構造の酸化皮膜が壊れている場合などは、陽極酸化加工で得られる機械的特性の効果が十分に得られないため妨害作用がないことが必要である。リン酸および硫酸は妨害作用がないため最も適していると考えられる⁵⁾。Fig.3にリン酸陽極酸化で得られるポーラス皮膜を示す⁸⁾。

4 実験方法

4.1 実験装置

Fig.4に電解加工と陽極酸化加工をおこなうために用いた実験装置を示す。本実験では、電極間距離を固定するため、ベークライトで製作した電極保持具を用いた。また、加工中に発生する気泡が陽極付近に停滞することを防止するため、マグネチックスターラ (RSH-1DN) で加工液の攪拌をおこなった。電源には、高砂製作所製の直流電源 (HX0300-25) を用いて陽極および陰極に電圧を印加した。加工中の温度上昇の抑制および加工液を冷却するために、冷却水循環装置 (LTC-1200) で冷却した冷却液をステンレス蛇管 (外径: 8 mm, 内径: 6 mm) を介して加工液槽内を循環させた。

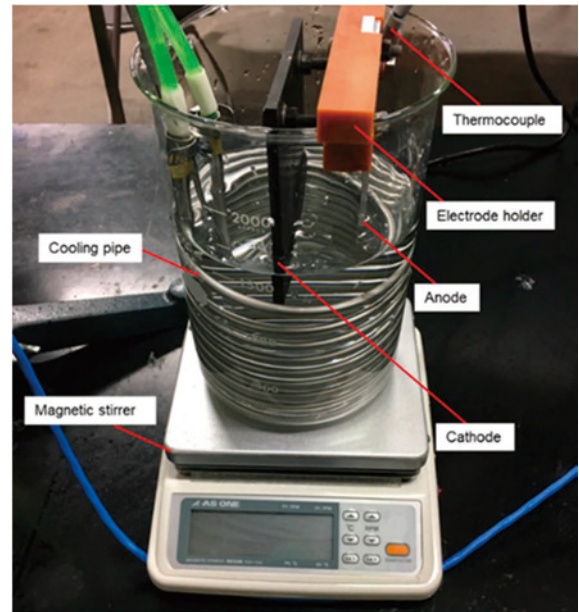


Fig.4 Experimental setup

Table 2 Experimental conditions

Workpiece	A1100
Electrolyte	H ₂ PO ₄ aqueous solution
Concentration [wt%]	10
Temperature [°C]	-10, 0, 10
Distance between electrodes [mm]	1, 17, 35
Voltage [V]	75, 100, 125
Machining time [min]	10

4.2 実験条件

Table 2に実験条件を示す。本実験では、陽極に純アルミニウム (A1050, 15×100×3)、陰極に炭素板 (100×100×5, 東京炭素工業) を用いて加工をおこなった。実験には、濃度10%のリン酸水溶液を用い、加工電圧は75V, 100V, 125Vの3種類、加工時間は10分とした。液温・極間距離は、陽極酸化加工と電解加工の棲み分けをおこなう上で重要なパラメータである。したがって、本実験では、液温を-10°C, 0°C, 10°Cの3種類、極間距離を1 mm, 17mm, 35mmの3種類に設定し実験をおこなった。除去量は、電子天びんで加工前と加工後の質量を計測し、体積を求め、その差から除去量を求めた。

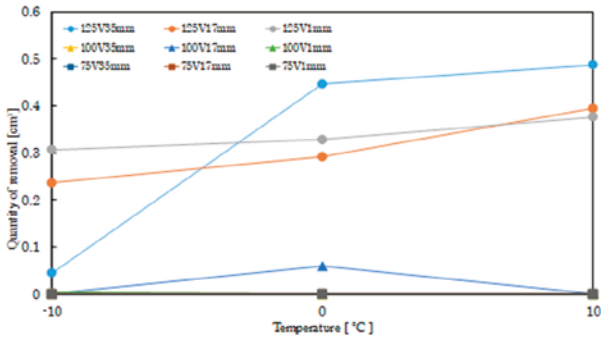


Fig.5 Relationship between temperature and quantity of removal

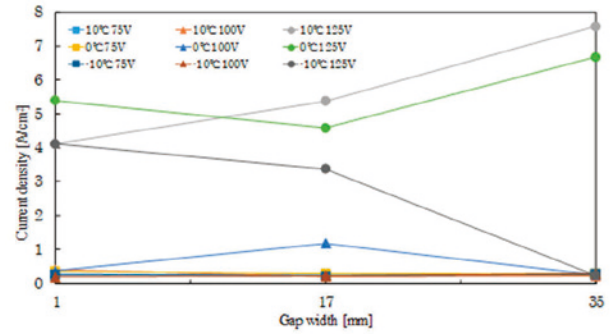


Fig.6 Relationship between gap width and current density

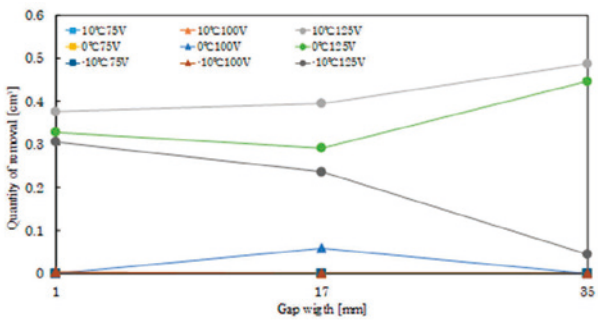


Fig.7 Relationship between gap width and quantity of removal

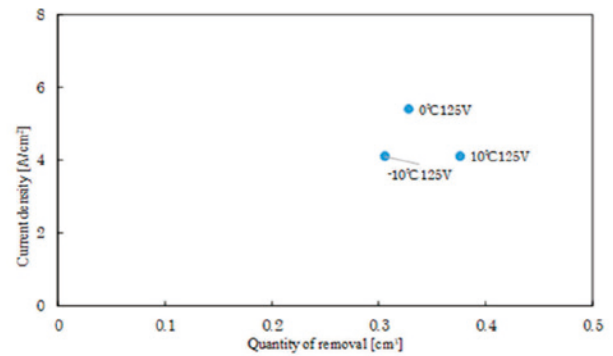


Fig.8 Relationship between quantity of removal and current density (voltage:125V, distance:1mm)

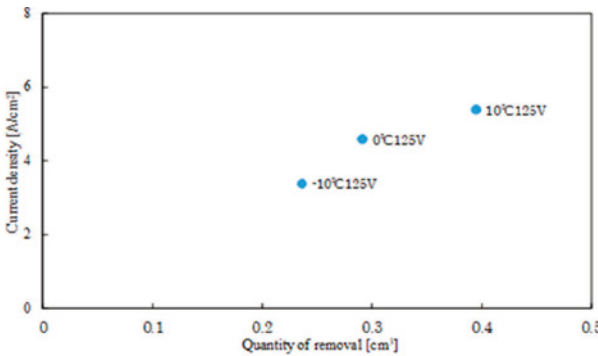


Fig.9 Relationship between quantity of removal and current density (voltage:125V, distance:17mm)

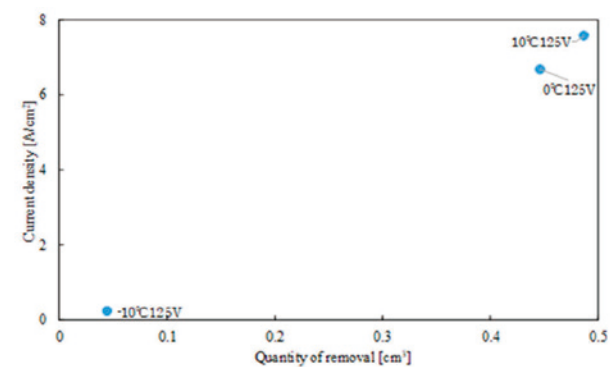


Fig.10 Relationship between quantity of removal and current density (voltage:125V, distance:35mm)

5 実験結果および考察

5.1 実験結果

Fig.5に加工液温度と除去量の関係, Fig.6に電極間距離と電流密度の関係, Fig.7に電極間距離と除去量の関係, Fig.8, Fig.9, Fig.10に電圧125Vの際の各電極間距離における除去量と電流密度の関係を示す。

Fig.8, Fig.9, Fig.10より, 電極間距離 1mm, 17mm, 35mmを比べると, 電極間距離35mmが最も除去量が増加することが確認できた。また, Fig.5より電圧125Vでは, 温度が低い場合は除去量が少なく, 温度が高くなるにつれて除去量は増加している傾向がみられる。したがって, 印加電圧と加工液温, 電極間距離のパラメータを適切に制御することで電解加工と陽極酸化加工の使い分けがおこなえと考えられる。一般的に電解加工は加工時に流れる電流値が大きく, 加

工面が滑らかな形状になる。陽極酸化加工では, 電流値が小さく, 加工面に酸化被膜を形成するため, 加工面はさまざまな色に変化する。加工面の様子から電解加工がおこなわれたと考えられる試験片と, 陽極酸化加工がおこなわれたと考えられる試験片を, Fig.11と Fig.12に分類した。また, Fig.13, Fig.14に電圧125V, 電極間距離 1mm, 液温-10°Cの試験片と電圧125V, 電極間距離35mm, 液温-10°Cの試験片のSEM画像を示す。Table 3および Table 4に Fig.11, Fig.12の各試験片の実験条件を示す。

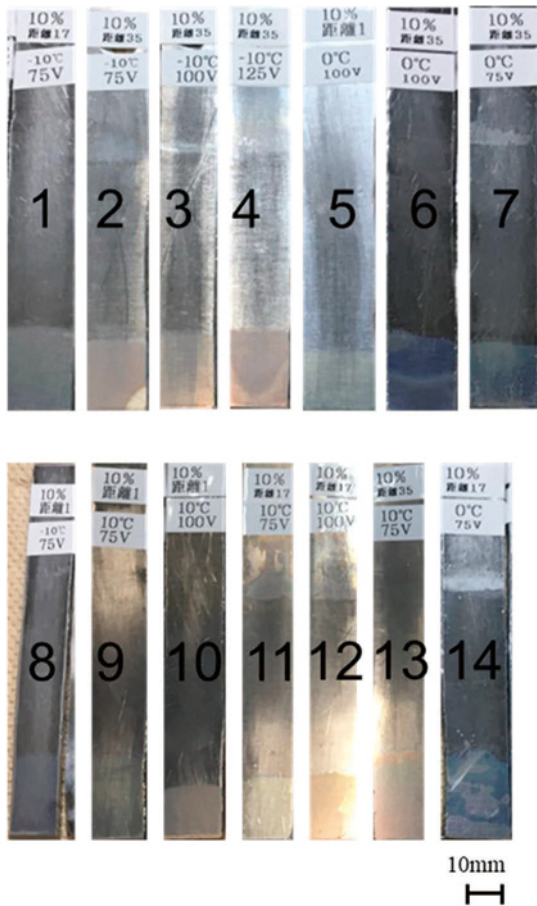


Fig.11 Test piece of after processing (Anodic oxidation)

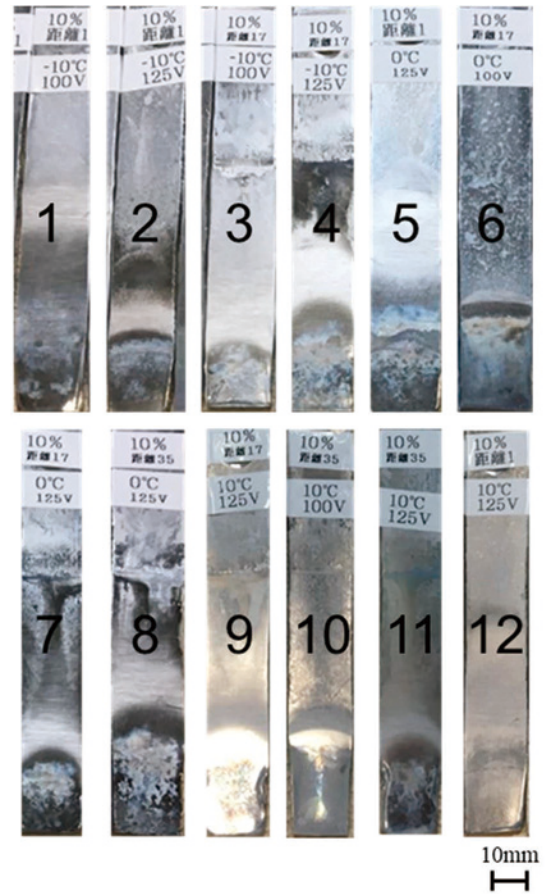


Fig.12 Test piece of after processing (ECM)

Table3 Experiments conditions of Test piece (Anodic oxidation)

Experimental conditions		Experimental conditions	
1	Gap width: 17mm Temperature of dielectric working fluid: -10°C Voltage: 75V	8	Gap width: 1mm Temperature of dielectric working fluid: -10°C Voltage: 75V
2	Gap width: 35mm Temperature of dielectric working fluid: -10°C Voltage: 75V	9	Gap width: 1mm Temperature of dielectric working fluid: 10°C Voltage: 75V
3	Gap width: 35mm Temperature of dielectric working fluid: -10°C Voltage: 100V	10	Gap width: 1mm Temperature of dielectric working fluid: 10°C Voltage: 100V
4	Gap width: 35mm Temperature of dielectric working fluid: -10°C Voltage: 125V	11	Gap width: 17mm Temperature of dielectric working fluid: 10°C Voltage: 75V
5	Gap width: 1mm Temperature of dielectric working fluid: 0°C Voltage: 100V	12	Gap width: 17mm Temperature of dielectric working fluid: 10°C Voltage: 100V
6	Gap width: 35mm Temperature of dielectric working fluid: 0°C Voltage: 100V	13	Gap width: 35mm Temperature of dielectric working fluid: 10°C Voltage: 75V
7	Gap width: 35mm Temperature of dielectric working fluid: 0°C Voltage: 75V	14	Gap width: 17mm Temperature of dielectric working fluid: 0°C Voltage: 75V

Table4 Experiments conditions of Test piece (ECM)

Experimental conditions		Experimental conditions	
1	Gap width: 1mm Temperature of dielectric working fluid: -10°C Voltage: 100V	7	Gap width: 17mm Temperature of dielectric working fluid: 0°C Voltage: 125V
2	Gap width: 1mm Temperature of dielectric working fluid: -10°C Voltage: 125V	8	Gap width: 35mm Temperature of dielectric working fluid: 0°C Voltage: 125V
3	Gap width: 17mm Temperature of dielectric working fluid: -10°C Voltage: 100V	9	Gap width: 17mm Temperature of dielectric working fluid: 10°C Voltage: 125V
4	Gap width: 17mm Temperature of dielectric working fluid: -10°C Voltage: 125V	10	Gap width: 35mm Temperature of dielectric working fluid: 10°C Voltage: 100V
5	Gap width: 1mm Temperature of dielectric working fluid: 0°C Voltage: 125V	11	Gap width: 35mm Temperature of dielectric working fluid: 10°C Voltage: 125V
6	Gap width: 17mm Temperature of dielectric working fluid: 0°C Voltage: 100V	12	Gap width: 1mm Temperature of dielectric working fluid: 10°C Voltage: 125V

5.2 考察

Fig.5より、除去量は電圧が最も高い125V、電極間距離35mmの場合の除去量が最大となった。その理由として、電極間距離が狭い場合は、加工中に発生する電解生成物や気泡の影響が考えられる⁷⁾。それらは加工の際に加工表面付近に停滞するため、加工に影響を及ぼす。本実験では、加工液を循環させながら、実験をおこなっていることや加工液にリン

酸水溶液を用いているため、電解生成物の影響は限りなく小さいため、気泡の及ぼす影響が極めて大きいと考えられる⁷⁾。よって、電極間距離を多くとることにより気泡が停滞せず、安定した加工がおこなわれたため電極間距離35mmの場合の除去量が最大となったと考えた。

Fig.6では、電圧125V、加工液温度0°C、10°C、電極間距離が1mmの場合の電流密度より35mmでの電流密度が上昇した理由として、先述したように極間に発生する気泡が影響し電流密度が低下したと考えられる。電圧125V、加工液温度

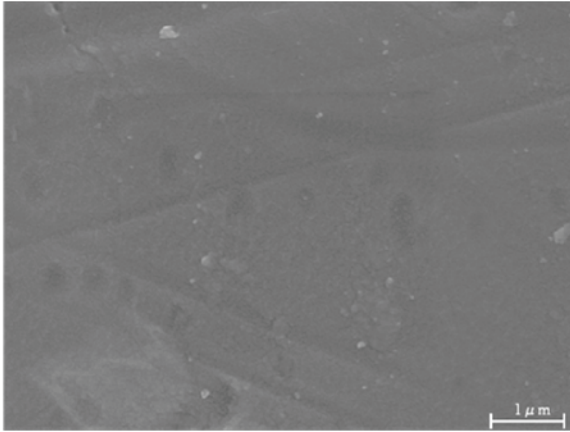


Fig.13 SEM image of electrochemically processed surface using phosphoric acid (125V, 1mm, -10°C)

-10°C, 電極間距離35mmの場合, 17mmの電流密度は低下した。この理由として, 電解加工と陽極酸化加工の加工電流の変化が考えられる。電解加工は, 極間に停滞する気泡や電解生成物の影響により電流の流れを阻害するが, 電極間距離を広く設定した加工でも性質上, 電流は流れる^{7), 9)}。陽極酸化加工は, 加工に伴い陽極酸化被膜が生成されるため, 加工が進行すると共に電流密度が低下する¹⁰⁾。したがって, 陽極酸化加工がおこなわれたため電極間距離35mmの電流密度が電極間距離17mmの電流密度に比べ低下したと考えられる。また, 元素分析により, 加工表面に酸化膜が生成されているかを今後確認する必要がある。

Fig.7の除去量はFig.6の電流密度と同様の傾向となっている。極間距離が1mmの除去量より35mmの除去量が増加した理由は, 先述した極間に停滞する気泡が原因と考えられる⁷⁾。

Fig.8, Fig.9, Fig.10では, 電圧125V, 加工液温10°C, 電極間距離35mmの場合の除去量が最大となった。液温0°Cの場合も除去量が増加しているため, 極間距離を広くとることにより加工速度の向上を図ることが可能と考えられる。しかし, 電極間距離を広くとることにより加工精度に影響を及ぼすため, 加工進行に伴い変化する電極間距離を一定に保ち実験をおこなう必要がある¹¹⁾。

Fig.8, Fig.9, Fig.10およびFig.11, Fig.12より電流密度が上昇しているものは除去量が増加し, 除去量が増加しているものはFig.12の電解加工がおこなわれていると考えられる試験片の中に全て含まれていることが確認できた。電流密度が低下し, 除去量が減少しているものはFig.11の陽極酸化加工がおこなわれていると考えられる試験片の中に含まれていることが確認できた。この結果を基に先述した元素分析をおこない, 電解加工と陽極酸化加工どちらの加工がおこなわれているのか確認する必要があると考えている。

Fig.13およびFig.14より, 極間距離が狭いFig.13には細孔が見られなかったが, 極間距離が広いFig.14では, 細孔が見られる。したがって, SEM画像, 除去量および電流密度

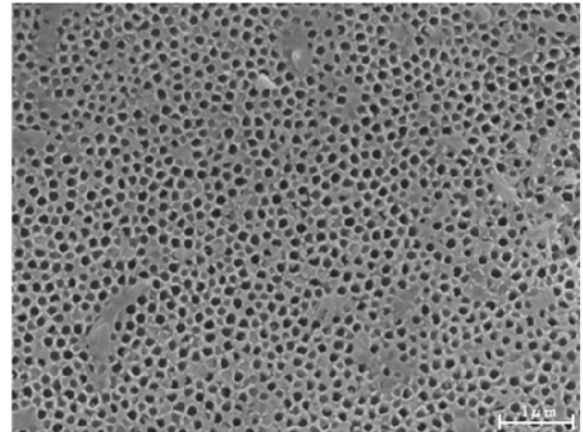


Fig.14 SEM image of anodized film using phosphoric acid (125V, 35mm, -10°C)

よりFig.13は電解加工がおこなわれ, Fig.14では陽極酸化加工がおこなわれたと考えられる。二つの実験値の違いは極間距離のみであるため, 電解加工と陽極酸化加工の使い分けをする際に極間距離は重要なパラメータになると考えられる。

6 結 言

同一溶液中での電解加工と陽極酸化加工の併用加工をねらいとし, 実験をおこなった結果, 以下のことがわかった。

- (1) 極間の気泡を除去することができれば, 幅広い電圧帯での電解加工が可能である。
- (2) 適切な極間距離, 温度を確認するためには, 幅広く条件を設定し, 実験をおこなう必要がある。
- (3) 加工液の劣化が電流値などに影響を及ぼすと考えられるため, 加工液の寿命の計測をする必要がある。
- (4) 極間距離が電解加工と陽極酸化加工の使い分けに重要なパラメータだと考えられる。
- (5) 元素分析をおこない, 電解加工と陽極酸化加工どちらの加工がおこなわれているか確認する必要がある。

参考文献

- 1) 夏恒: 電解加工の基礎理論と実際, 精密工学会誌, 81巻, 4号, (2015), pp.317-322.
- 2) 内山光夫, 中山綾太郎, 山下真央: 電解加工による小径曲がり穴加工, 精密工学会春季大会学術講演会講演論文集, (2016), pp.945-946.
- 3) 黒木泰至, 福島洋一: リン酸水溶液を電解液とした陽極酸化アルミナ多孔膜生成条件の検討, 宮崎県工業技術センター・宮崎県食品開発センター研究報告, (2011), 56, pp.41-45.
- 4) 佐々木智恵, 薙正勝: アルミニウム電解研磨後の陽極酸化で発生する不均一模様について, 東京都立産業技術研究所研究報告, 8号, (2005), pp.23-26.
- 5) 馬場宣良: アルミニウム合金の表面処理, 軽金属実験技

- 術講座, 軽金属学会, 34巻, 3号, (1984), pp.205-211.
- 6) 小川誠一郎: 特殊加工および処理, 株式会社誠文堂新光,
(1970年7月15日), pp.32-43.
 - 7) 佐藤敏一: 電解加工と化学加工, 朝倉書店, (1970年),
pp.19-64.
 - 8) 小堤望史, 吉森健人: 陽極酸化ナノホールによる熱伝達
向上の研究, 関東学院大学理工学部理工学科機械学系卒
業研究概要集, (2018), pp.78-79.
 - 9) 寺田篤, 國見喬嗣, 夏恒: マイクロ電解加工機の極間距
離の制御に関する研究, 精密工学会春季大会学術講演会
講演論文集, (2009), pp.865-866.
 - 10) 星野重夫, 今村武夫, 松本誠臣: シュウ酸浴によるアル
ミニウムの高速陽極酸化, 金属表面技術, (1984), 34巻,
6号, pp.19-24
 - 11) 前田祐雄, 斎藤長男, 荒井伸治: 電解加工の研究 (第1報),
精密機械, (1965), 31巻, 370号, pp.960-969.

ブロックチェーンに基づく学術論文アーカイブシステムの初期的検討

石坂雄平*

An initial consideration of an academic paper archiving system based on blockchain

by

Yuhei ISHIZAKA**要旨**

電子ジャーナル購読費用の高騰やオープンアクセス化が進展しない現状に対して、研究者や研究機関が不満を抱くことが多く、公共性を有する研究成果が研究資金の潤沢な国や機関に所属する人々しか享受できないのは深刻な問題である。この問題を解決するために、本研究では、研究者は当然のことながら世界中の誰もが学術論文の無料閲覧を可能とする、ブロックチェーンを基盤としたコンソーシアム型学術論文アーカイブシステムを提案し、初期的検討を行う。具体的には、アーカイブサーバにおけるデータ蓄積量および研究力スコアに準拠したコンセンサスアルゴリズムの概念を新たに提案する。また、メトカーフの法則を参照しながらビットコイン時価総額とアクティブユーザ数の間には正の相関があることを示し、提案システムのアクティブユーザ数を増やす仕掛けとして査読者にインセンティブとなる暗号通貨を与える方法を提示する。

キーワード：ブロックチェーン, 暗号通貨, ビットコイン, 学術論文, アーカイブシステム

Abstract

Researchers and research institutions are frequently dissatisfied with the rise in e-journal subscription costs and the lack of open access. It is a serious problem that people who belong to countries or institutions without abundant research funds cannot have public research results. In order to solve this problem, in this study, an initial study of a consortium-type academic paper archiving system based on blockchain is performed. The system allows anyone in the world to browse academic papers for free. Specifically, we propose a new concept of consensus algorithm based on the amount of data stored in the archive server and the research ability score. In addition, referring to Metcalfe's law, we show that there is a positive correlation between the market capitalization of bitcoin and the number of active users, and present a method to provide reviewers with a cryptocurrency as an incentive for increasing the number of active users in the proposed system.

Key Words: Blockchain, Cryptocurrency, Bitcoin, Academic Paper, Archiving System

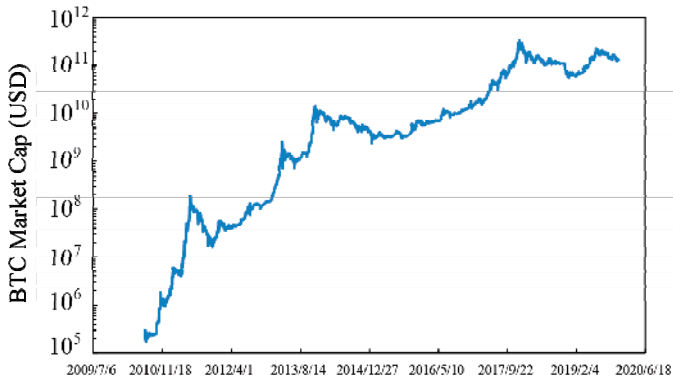


Fig. 1 Bitcoin market capitalization as a function of time.

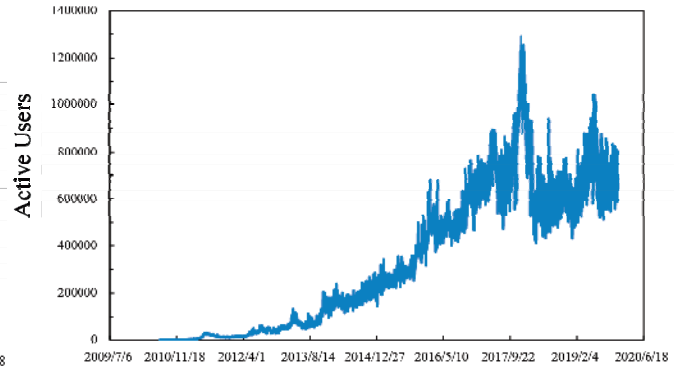


Fig. 2 Active users as a function of time.

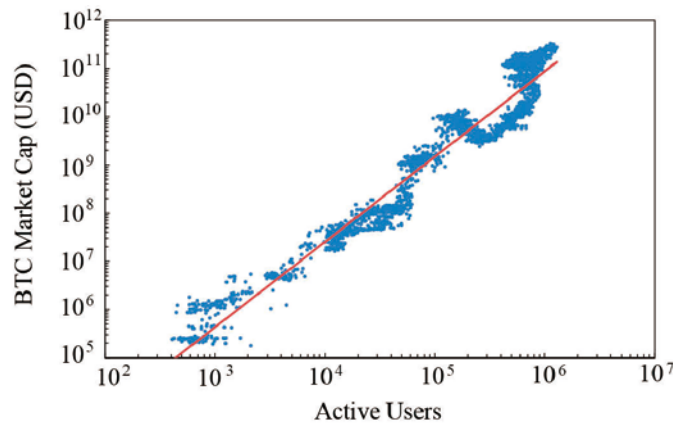


Fig. 3 Scatterplot of the bitcoin market capitalization versus the number of active users, with logarithmic scales.

1. まえがき

学術誌の購読料は過去数十年の間、年率7～8%の割合で上昇し続けており、資金の潤沢な大学でさえ必要な学術誌を全て買えないという状況である [1]。そのような中、最近では欧州を中心に、出版社との科学誌購読契約の見直し交渉が増加している。例えば、フランスの学術機関はシュプリンガー・ネイチャー社との契約を打ち切り、スウェーデンのコンソーシアムはエルゼビア社との契約を打ち切っている。また、研究者自身も購読料の高騰に不満を抱いていることが少なくない。オープンアクセス化の進展が遅いことに不安を募らせている一方で、プレプリントサーバである「arXiv」や、海賊版サイトである「Sci-Hub」の利用が拡大しつつある。これらの状況を踏まえて、機関リポジトリの連携が進んでいるが、研究者にとって利便性が高いとはいえない。そこで本研究では、所属機関の資金力に起因する研究格差をなくすべく、学術論文の無料閲覧を可能とするブロックチェーンに基づくアーカイブシステムの初期的検討を行う。具体的には、メトカーフの法則を参照しながらビットコイン時価総額とアクティブユーザ数の関係を考察した後、アーカイブサーバにおけるデータ蓄積量および研究力スコアに応じたコンセンサスアルゴリズムおよび査読者にインセンティブとして暗号通貨を与える仕組みを提示する。

2. 暗号通貨

本節では、ブロックチェーンに基づく学術論文アーカイブシステムにおける暗号通貨の価値を高める指針を得るために、ビットコインの価値について考察する。

2008年、暗号化およびP2Pネットワーク技術を基盤としたビットコインの提案がサトシ・ナカモトによりなされた [2]。ビットコインは取引の改ざんを防ぐために、Proof of Workというコンセンサスアルゴリズムが規定されている。Proof of Workとは膨大な計算資源を用いてナンズと呼ばれる数字列を探し当てることであり、それを最初に見つけた挑戦者に報酬を与える取り決めとなっている。その後、Proof of Workは電力がかかり過ぎることから、コイン保有量・期間に応じたProof of Stakeや、ネットワークにおける重要性に応じたProof of Importanceと呼ばれる新しいコンセンサスアルゴリズムが誕生した [3]。

次に、ビットコイン (BTC: Bitcoin) の価値についてメトカーフの法則 [4] に基づき議論を行う。メトカーフの法則は通信ネットワークや企業価値の分野 [5] で有効性が認められており、次式で示すようにネットワークの価値 V はユーザ数 n の2乗に比例するというものである。

$$V \propto n^2 \tag{1}$$

ここで、ビットコインの時価総額を p 、アクティブユーザ数を u としてメトカーフの法則の一般化を行うと次式となる [6].

$$p = \alpha u^\beta \tag{2}$$

なお、対数で表すと次のように式変形できる.

$$\log_{10} p = \beta \log_{10} u + \log_{10} \alpha \tag{3}$$

本研究では COINMETRICS のデータ [7] を用いて、ビットコイン時価総額とアクティブユーザ数の関係を調査した. このとき、2010年7月18日から2019年12月9日までのデータを用いた. Fig. 1に、ビットコイン時価総額の推移を示す. 図より、最大の時価総額は2017年12月16日に記録した3290億ドルである. また、Fig. 2に示すように、最大のアクティブユーザ数は2017年12月14日の1290363である. ここで、アクティブユーザ数は、取引のあったアドレスをカウントしたものである. Fig. 3にビットコイン時価総額とアクティブユーザ数の関係を示す. 図中の赤線は回帰直線を表しており、 $\alpha = 2.101$, $\beta = 1.7693$ と算出され、決定係数は $R = 0.9348$ であった. 以上より、ビットコイン時価総額とアクティブユーザ数の間には正の相関があることがわかる.

3. アーカイブシステムの設計指針

Fig. 4(a) に、従来の中央集権的なジャーナルシステムを示す. これに対して本研究では、購読料の高騰に起因する研究格差を是正するために、Fig. 4(b) に示すようなブロックチェーンを基盤としたコンソーシアム型学術論文アーカイブシステムを提案する. Fig. 5に、本研究で開発する学術論文アーカイブシステムの概要を示す. ブロックチェーンネットワークの信頼性を担保するために、バリデータノードとなるアーカイブサーバは大学等の研究機関が運営することを前提

とする. まず、アーカイブサーバは研究者から投稿された一定量の論文をプールする (時刻 $t-1$). 次に、プールされた論文にマルウェア等の悪質なコードが混在していないかを検証し、問題がなければランダムに選ばれたアーカイブサーバのリーダーがブロックの生成を行う. その他のサーバは、生成されたブロックが正しいことを点検し、問題がなければ、インセンティブとして暗号通貨が付与される (時刻 t). サーバ運営機関はブロック生成報酬として受け取った暗号通貨を取引所経由で投資家等へ売却することにより、サーバ運営費用を獲得することができる. このように、運営資金を獲得することで学術論文の無料提供を可能とする (時刻 $t+1$). 以上のように、本研究では、学術論文を資産とみなし、その価値を暗号通貨という決済手段で伝搬させるという独自のエコシステムを形成することで、無料閲覧可能なアーカイブシステムの実現を目指す. 加えて、高いスループットを達成するためには、最新のシャーディング技術 [8] を導入する必要があると考えられる.

ブロックチェーンでは、Fig. 6に示すように、トランザクションと呼ばれる取引履歴や契約内容をブロックに格納し繋げていく. 新しいブロックをつくる際には、悪意のあるトランザクションがないことを検証する必要がある. この検証方法をコンセンサスアルゴリズムと呼んでいる. 従来のコンセンサスアルゴリズムが抱える消費電力問題と富の格差問題を回避するために、本研究ではアーカイブサーバのデータ蓄積量とサーバを設置する研究機関の研究力の裏付けとなる総被引用に依存する新しいコンセンサスアルゴリズムを提案する. また、前節では、ビットコインの時価総額とアクティブユーザ数の間には正の相関があることを示した. この結果から、本研究で発行する暗号通貨の価値を高めるには、ユーザ数を増やすことを目的として査読者に暗号通貨を与えるというインセンティブを導入することが有効であると考えられる.

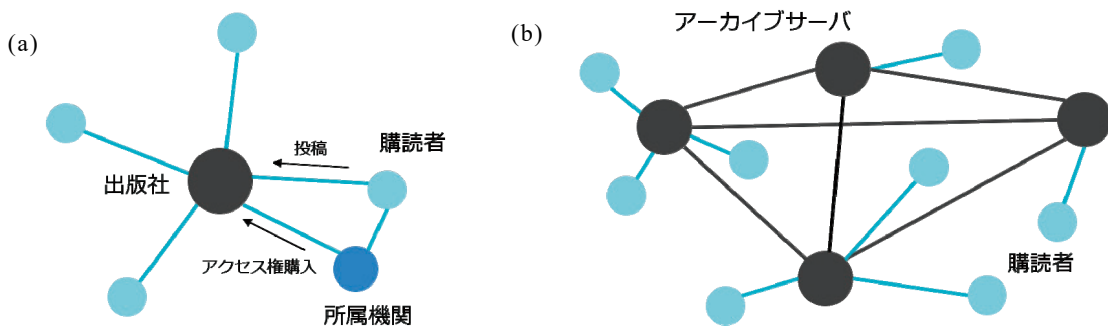


Fig. 4 Schematics of (a) a traditional centralized journal system and (b) a consortium-type archiving system based on the blockchain.

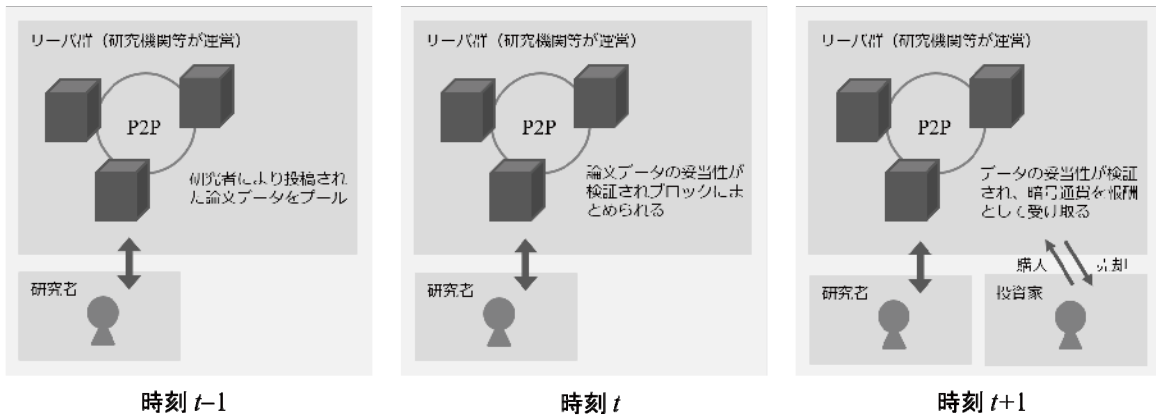


Fig. 5 A concept of an academic paper archiving system.

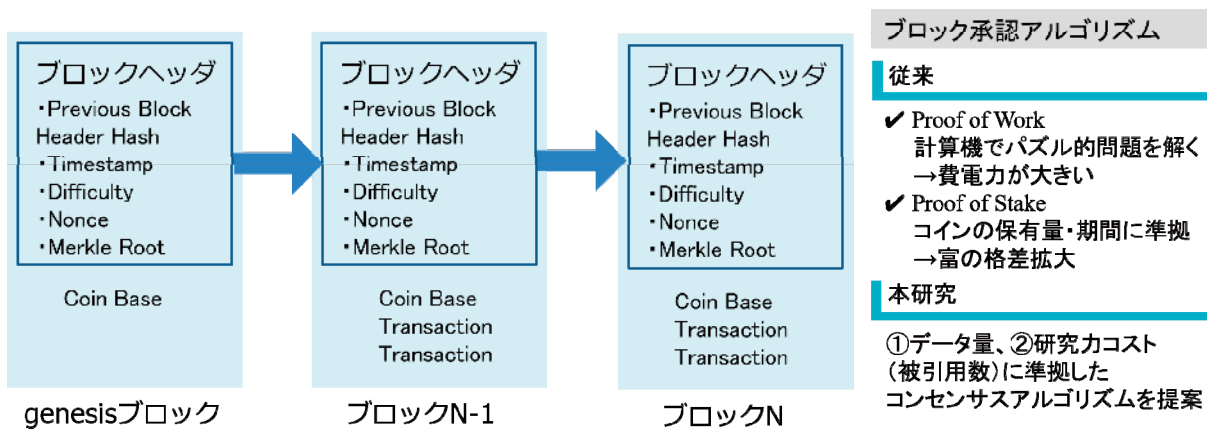


Fig. 6 Features of a consensus algorithm proposed in this study.

3. むすび

本稿では、世界中の誰もが学术论文の無料閲覧を可能とする、ブロックチェーンに基づくコンソーシアム型学术论文アーカイブシステムを提案し、その初期的検討を行った。本システムでは、サーバ運営機関はブロック生成報酬として受け取った暗号通貨を取引所経由で投資家等へ売却することにより、サーバ運営費用を獲得することができるため、学术论文の無料提供を可能とする。また、アーカイブサーバにおけるデータ蓄積量および研究力スコアに準拠したコンセンサスアルゴリズムの概念を新たに提案した。加えて、メトカーフの法則を参照しながらビットコイン時価総額とアクティブユーザー数の間には正の相関があることを示し、提案システムのアクティブユーザー数を増やす仕掛けとして査読者に暗号通貨インセンティブを与える方法を提示した。本システムの実装ならびに実証実験によるシステムの有効性の検証は今後の課題である。

謝 辞

本研究の一部は、2017年度理工/建築・環境学会研究補助費を受けたものである。

参考文献

- 1) 船守美穂. オープンアクセスへの道 これからの学術情報流通システムを考える. NII Today 第82号, 2018.
- 2) Satoshi Nakamoto. Bitcoin: A peer-to-peer electronic cash system. 2008. Available at <https://bitcoin.org/bitcoin.pdf>.
- 3) Sunny king and Scott Nadal. Ppcoin: Peer-to-peer crypto-currency with Proof-of-Stake. 2012. Available at decred.org/research/king2012.pdf.
- 4) Bob Metcalfe. Metcalfe's Law after 40 years of Ethernet. IEEE computer 46 (12), 2013.
- 5) Xing-Zhou Zhang, Jing-Jie Liu, and Zhi-Wei Xu. Tencent and Facebook data validate Metcalfe's law. Journal of computer science and technology 30 (2), 246-251, 2015.
- 6) Spencer Wheatley, Didier Sornette, Tobias Huber, Max Reppen, and Robert N. Gantner. Are Bitcoin bubbles predictable? Combining a generalized Metcalfe's law and the LPPLS model. arXiv:1803.05663v1, 2018.
- 7) <https://coinmetrics.io/>
- 8) Eleftherios Kokoris-Kogias, Philipp Jovanovic, Linus Gasser, Nicolas Gailly, Ewa Syta, and Bryan Ford.

Omniledger: A secure, scale-out, decentralized ledger via sharding. IEEE Symposium on Security and Privacy (SP), 2018.

可視光画像による虹彩認証のための画像処理

岡 本 教 佳 *
高 橋 大 介 *
岩 佐 友 希 **
中屋敷 かほる ***

The Imaging Method for Iris Certification Using Visible Image

by

Noriyoshi OKAMOTO
Daisuke TAKAHASHI
Yuuki IWASA
Kahoru NAKAYASHIKI

要 旨

本論文では、可視光画像による虹彩認証システムで必要となる特徴抽出法の自動化について述べる。可視光の場合、虹彩画像入力の際に照明の条件として明度変化への対応が問題となるが、補助光を用いることで安定した入力を得ることが可能となる。また、入力された画像から得られる虹彩認証に用いる特徴として、瞳孔中心を基準として極座標変換を用い、回転不変な特徴を利用することとし、これらの特徴を正確に自動抽出する方法を提案する。最後に実験の結果を示し、赤外線カメラでなくても虹彩認証が可能となることを明らかにする。

キーワード：虹彩認証, 可視光画像, 極座標変換

Abstract

This research paper states the automation of feature extraction method which is needed for iris recognition system by using visible image. The visible light is occurred a problem about the response to the brightness change as the condition for lightning when the iris image is inputted. However, this can be obtained the steady input using fill light. Additionally, the features by using iris recognition from input images are that this operated polar conversion based on the center of pupil and is utilized the advantages of rotation invariance features. Thus, the method of accurate automatic extraction for these features is suggested. Finally, referring to the result, this investigation reveals that the iris can be recognized without the infrared camera.

Key Words: iris recognition, visible image, polar coordinates transformation

1. 諸言

個人認証技術は銀行のATMやPCおよびスマートフォンのログオンの際などに実用化され利用できる時代になっている。これらは顔、指紋、掌紋、虹彩などの生体的特徴や、音声、筆跡、キーストロークなどの行動的特徴を予め登録したデータと照合し、認証を行う手法であり、バイオメトリック認証またはバイオメトリクスと呼ばれている^{2)~13)}。

筆者等は個人認証の手段として虹彩に注目し、すでにその成果を報告してきた^{14)~20)}。虹彩認証の従来の研究の殆どは赤外線機器などの特殊な機器を用いており高価になってしまう傾向がある。携帯機器に虹彩認証を搭載することを目的とした最近の研究もあるが、これらも全て赤外線機器を用いている^{3), 4)}。本論文では、赤外線機器などを用いずに安価な可視光カメラを用いた虹彩認証システムの開発を目的とする。これまでの成果の妥当性を再確認するとともに、これまで自動的にできなかった瞳孔および虹彩特徴の自動抽出法を提案する。一方、携帯電話などで利用することを想定した場合、虹彩認証は撮影の際に傾きの影響を受けやすいという課題があり⁵⁾、その影響にも考慮した手法も提案する。

2. 本虹彩認証システムの概要

本研究の虹彩認証システムの流れを図1に示す。本論文で提案する手法は可視光カメラによる虹彩特徴の撮影方法から、認証のために有効な個人特徴の抽出手法までである。

まず可視光カメラにて虹彩認証が可能な目領域の画像を撮影する。次に前処理として目領域から円形 Hough 変換¹⁾を用いて瞳孔中心点を求め、虹彩領域を抽出する(図2)。抽出した虹彩領域画像に極座標変換処理を行う。極座標変換画像から虹彩の中でも瞳孔周辺の筋線維部分を抽出し、特徴画像の生成を行う。

生成した特徴画像から個人の判別すなわち個人認証を行うが、個人認証アルゴリズムは現在開発中であり、今後報告する予定である。

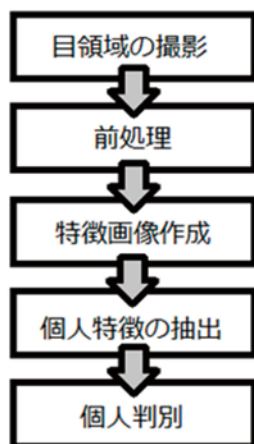


Fig.1 本システムの流れ

3. 虹彩画像処理手法

本研究のように安価な可視光カメラを用いた場合、角膜による鏡面反射が生じ認証に影響を与える恐れがあるため、鏡面反射が生じ難い撮影を行う必要がある。その問題を解決するためには、まず角膜からの鏡面反射を考慮した撮影方法を提案する。

3.1 撮影方法

撮影方法は、日常利用を目的としているため、撮影時の条件として室内外、特に場所や時間帯の指定は無いものとする。撮影する人物とカメラの距離は約10 [cm] 程度とし、椅子などに座った状態で撮影を行った。安価な補助光を用い、カメラに対し正面を向いて撮影を行った。撮影における制約として厳密な正面というわけではなく、ある程度カメラの方向に顔を向け、視線をレンズに向けてもらう形とした。また、図3のようなカメラと照明の位置を設定し、鏡面反射をより軽減する撮影方法を用いている。撮影方法を説明し扱いに慣れらうことで被験者自身が虹彩の撮影を行うことも十分に可能である。以上の方法で撮影した虹彩画像を図4 (a)に示す。

次に、入力画像の色ヒストグラムより、瞳孔領域の抽出に用いる閾値を自動で設定し、瞳孔領域を取得している。これにより虹彩領域を明瞭な状態で撮影することができる。

3.2 前処理

虹彩領域のみを抽出するため、瞼や白目の領域は除去する必要がある。まず虹彩領域を含んだ目領域画像を生成する。虹彩領域抽出の手法は様々あるが^{9)~12)}、本研究では円形を抽出する円形 Hough 変換に基づく方法¹⁾で抽出を行う。

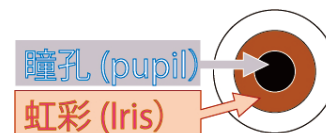


Fig.2 瞳孔と虹彩位置

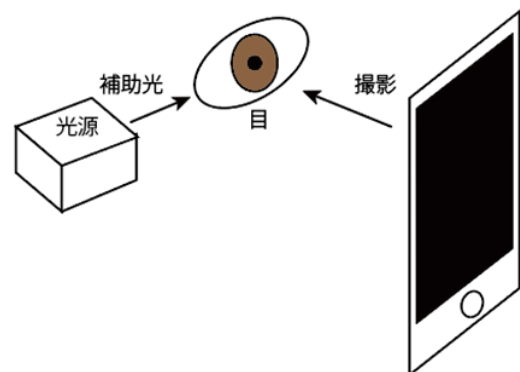


Fig.3 提案する撮影方法

RGB 表色系の色成分のうち瞳孔の色情報が強く残る R 成分を用いて、円形 Hough 変換にて瞳孔中心点の抽出を行う。次いで、抽出した瞳孔中心点を用いて虹彩画像を抽出する。以下、前処理の詳細について述べる。

取得した目領域画像から瞳孔抽出を行う。目領域画像より R (Red) 成分, G (Green) 成分, B (Blue) 成分のそれぞれを分離させ R 成分のみ抜き出す。この処理によって瞳孔以外の瞳や虹彩の明度が上がり2値化の処理で瞳孔のみ、全体像が抽出できるようになる。目領域画像 (撮影画像), R 成分画像を, 図4 (a), (b) にそれぞれ示す。R 成分画像を2値化した画像を図5に示す。この処理に関しては手動にて切り出しを行っているが、自動化については次節で述べる。

3.3 前処理の自動化

撮影方法や撮影環境などによる画像の明るさなどのバラツキに対応するため瞳孔を検出する際の2値化の閾値を自動で決定する方法を検討した。目領域画像の R 成分のヒストグラムの調査により, R 成分のピーク値は瞳孔の色の R 成分の値に近いことが予備実験により確認され, ピーク値の半分の値が良好な閾値になることが分かった。実験に用いた入力画像に対し, この閾値を用いて2値化した場合, 良好に瞳孔が検出できることを示すことができた。入力画像の色ヒストグラムより, 瞳孔領域の抽出に用いる閾値を自動で設定し, 瞳孔領域を取得することが可能となる。これにより虹彩領域を明瞭な状態で抽出することができる。以上の詳細な実験結果は5.2に後述する。次に2値化画像から円形 Hough 変換により瞳孔を求める。

3.4 瞳孔抽出

瞳孔の抽出には円形 Hough 変換 (一般化 Hough 変換) を用いる。円形 Hough 変換とは P.V.C.Hough によって考案された画像から直線や円型を検出する技法である¹⁾。円形 Hough 変換の式を式 (1) に示す。図5を見ると瞳孔のほぼ全体像は取得できているが, 若干のノイズによって瞳孔に欠損が見られる。そのため円形を判別する円形 Hough 変換において抽出精度がかなり落ちてしまう。瞳孔をできる限り円形に近づけるため, 2値化画像に収縮膨張処理を施す。収縮膨張処理を行い2値化の際にできてしまった隙間を埋め, 瞳孔をできる限り円形として残す。これによって円形 Hough 変換での瞳孔抽出精度が向上する。

円形 Hough 変換によって抽出した瞳孔中心点からさらに虹彩領域を抽出する。収縮膨張処理を行った画像を図6 (a), (b), 虹彩領域抽出の例を図7にそれぞれ示す。

$$r^2 = (X_i - CX)^2 + (Y_i - CY)^2 \quad (1)$$

次節では虹彩領域画像に極座標変換を行う。

3.5 特徴抽出画像の生成

虹彩の領域内には多数の個人特徴が含まれている。従来手法は赤外線カメラを用いているため血管の反射などを個人特徴として, 個人認識を行っている。可視光カメラにおいては血管の反射の特徴については取得できないため, 筋線維や虹彩の凹凸が主な個人特徴となる。そのため凹凸に注目した新たな処理手順の開発が必要であると言える。虹彩領域画像の

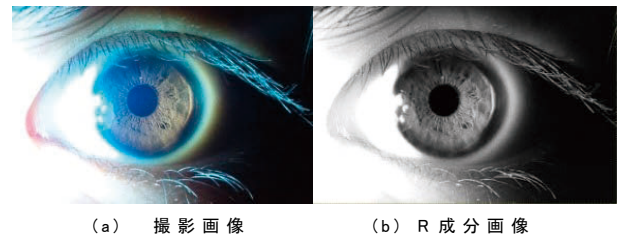


Fig.4 撮影画像

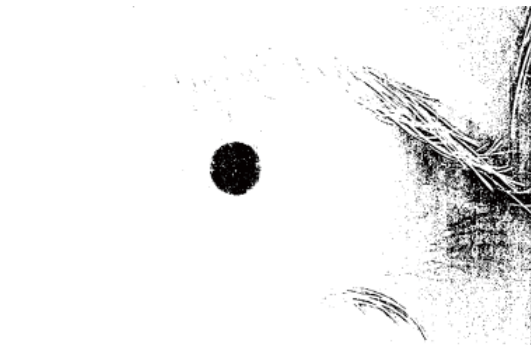


Fig.5 R成分の2値化画像

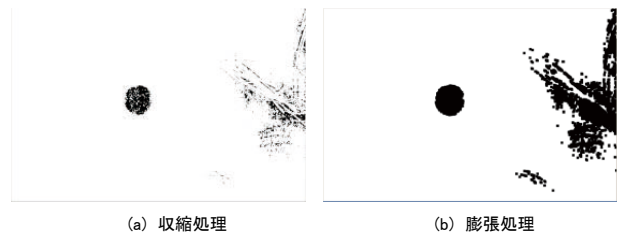


Fig.6 収縮膨張処理



Fig.7 虹彩領域画像

中に含まれる注目すべき特徴として、瞳孔周辺の筋線維とそれより外周の凹凸に個人特徴がある。なお本研究ではその二つのうち瞳孔周辺の筋線維に注目している。

まず抽出した虹彩画像から特徴画像の生成を行う。まず虹彩画像に極座標変換の処理を行う。特徴画像を平面画像（2次元画像）から極座標系に変換する理由は、顔の回転の影響に対応するためである。入力の際に大きく顔が傾くことは、殆ど無いが、若干の傾きが生じても極座標に変換しておくと同回転方向にずれても若干の平行移動で筋繊維形状の位置関係を安定した順序の特徴列として求めることが可能であるからである。すなわち、極座標変換後の画像は簡易な撮影により生じた傾きを左右にずらす補正だけで可能となる。また、この処理により左右の補正も必要無く、虹彩の筋線維の特徴を、水平方向フィルタを施すだけで抽出することができ、特徴画像を生成することができる。

以上の処理の過程と生成した特徴の得られている画像を図8に示す。この特徴画像に対し、エッジの強調後2値画像を得る（図9）。この2値画像から認証に用いる特徴量を計算する予定である。

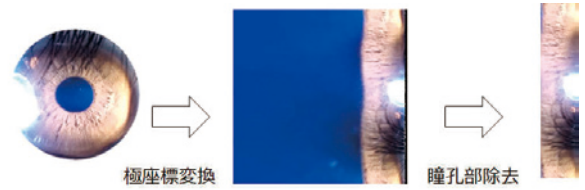
4. 前処理方法の改善

当初提案した手法において様々な入力画像に対する実験を重ねた結果、良好な画像が取得できないケースがあったため以下のように前処理方法を一部改善した。

極座標変換後の瞳孔周辺部の個人認証に用いる特徴の部分は筋線維形状の影となる黒い線や点の部分である。この影の部分を、形状を崩すことなくそのまま抽出することができれば、個人の特徴部位をより正確に抽出でき、高精度な個人認証ができるものとする。しかし、眼の撮影では補助光を用いて撮影を行っているが虹彩全体を一定の明るさで照らすことができず、図9（左）の極座標画像に示すように虹彩領域内の明るさにむらができてしまっている。そのため2値化等の単純な方法では、特徴抽出を行うことができず、画像内の明るさの変化に対応できる抽出方法をとらなければならない。そこで、水平方向の輝度値差を利用し、数ピクセル以内の画素に特徴が含まれているか探索する手法を提案する。

この改良した手法では4ピクセル以内での輝度値の差に着目し、輝度値の最も高いところと最も低いところの比較を行い、輝度値の差が30以上あれば低いほう、すなわち、色の黒いほうを特徴点として抽出する。さらに、4ピクセル以内で輝度値の差が30以上あった場合には輝度値が最も低い場所との差が10以内の部分に関しても特徴点として抽出する。この処理を施すことで特徴を線としてではなく領域で抽出することができる。特徴を抽出した画像例を図10に示す。

一方、図10は同一人物から複数回取得した虹彩の特徴画像（A-1、A-2）と別人物のもの（B-1）である。筋繊維の形状が同一人物の場合非常に似ていて、別人の場合は全く異なることがわかる。



(a) 瞳孔部抽出処理



(b) 虹彩の特徴位置

Fig.8 虹彩の特徴抽出

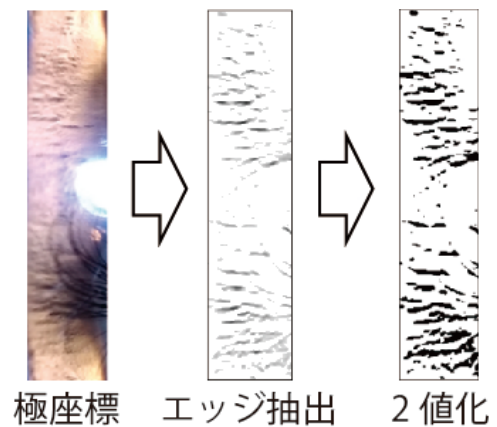


Fig.9 瞳孔からの特徴抽出処理

5. 実験結果

5.1 撮影方法の改善

可視光カメラで鏡面反射を考慮せず目領域を撮影した画像の拡大画像を図11 (a) に、提案手法による撮影画像の拡大画像を図11 (b) に示す。図11 (a) は筋線維の形状を視認するのが困難だが、図11 (b) は目で見て、認証に用いる虹彩の筋線維の形状の取得が可能であることがわかる。

5.2 瞳孔領域の自動抽出

瞳孔抽出の実験では、図12に示すような明るさなどの異なる3枚の目領域画像を用いた。この画像のR成分のヒストグラムを図13に示す。3枚の画像が円形 Hough 変換を用いて正しく瞳孔が検出できるR成分の2値化の閾値、瞳孔の色を手動で抽出した際のR成分の値、R成分のヒストグ

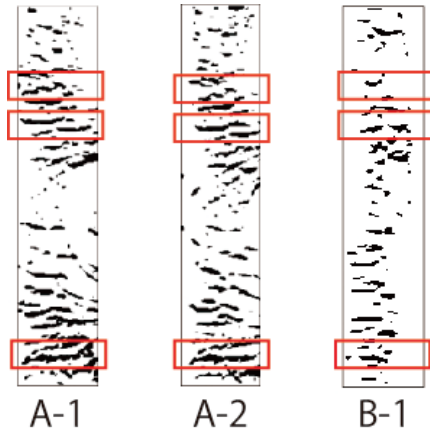


Fig.10 同一人物と他人との特徴比較

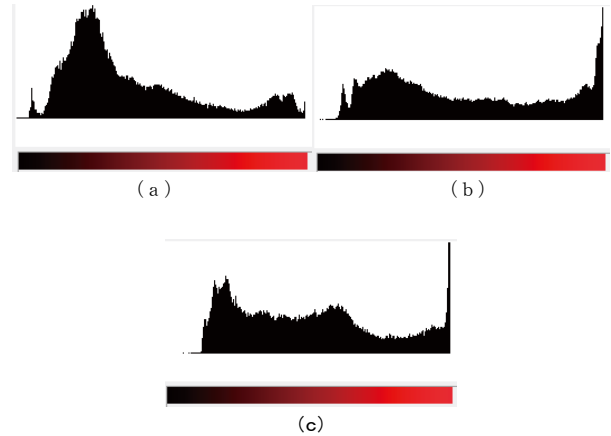
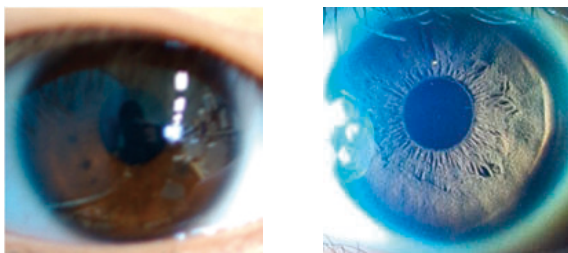


Fig.13 R成分のヒストグラム (Irfan View による出力)



(a)通常の撮影 (b)提案手法

Fig.11 撮影方法の比較

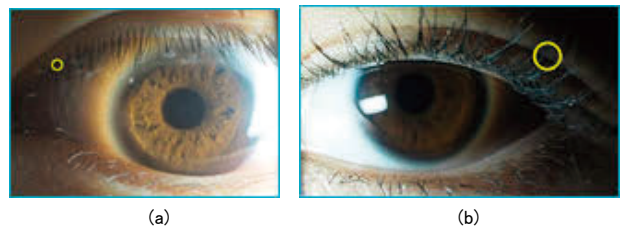


Fig.14 固定閾値による瞳孔抽出 (抽出失敗例)



(a) (b)

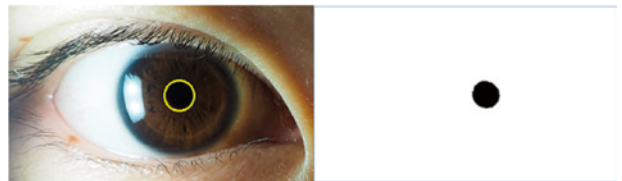


(c)

Fig.12 3枚の目領域画像

Table1 瞳孔部のR成分値と理想閾値

	(a)	(b)	(c)
閾値	4~10	9~17	21~26
瞳孔の色	13	25	58
ピーク値	14	25	61



瞳孔検出結果 R成分のみで2値化

Fig.15 瞳孔抽出成功例

ラムの黒側から見て最初のピーク値を表1に示す. この結果から, ヒストグラムの最初のピーク値は手動で抽出した瞳孔部分の色のR成分の値に近いことがわかる. また, 良好に検出できる閾値は, ピークの終わりの値に近い値であることから, ピークの終わりの値を閾値設定の判別値として用いることで, 自動化が可能と考える. 3人分の目領域画像42枚に対し, ピークの終わりの値を2値化の閾値として瞳孔検出を行った結果, 32枚で正しく瞳孔が検出された. 図14は従来の固定閾値により, 失敗した例を示す. 提案手法による成功例の瞳孔検出結果画像とピークの終わりの値を閾値とした

R成分の2値化画像を図15に示す. 図15から綺麗に瞳孔部分だけを残して2値化できていることが分かる.

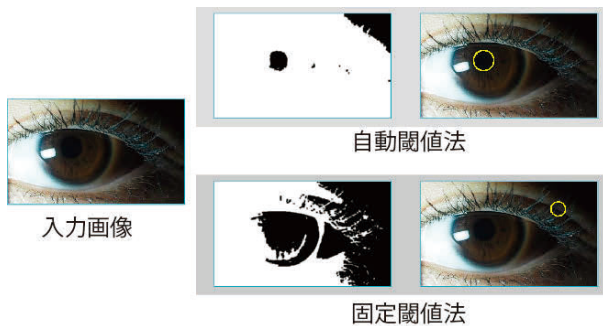
5.3 特徴抽出結果

提案手法の有効性を調査するため, 10人分のデータを用いて瞳孔, 虹彩, 特徴部位の抽出実験を行い, 我々の従来手法と比較した. 結果を表2に示す. 瞳孔抽出では, 提案した自動閾値法を用いることで, 従来手法では抽出できなかった8人中7人に対して抽出可能となることが分かった.

固定閾値で失敗していた例と自動閾値で成功した例を図

Table2 虹彩抽出と特徴抽出結果

No.	瞳孔抽出		虹彩抽出	特徴抽出
	従来手法	提案手法		
1	○	○	○	○
2	×	○	○	○
3	×	○	×	×
4	×	○	×	×
5	×	○	○	○
6	×	○	○	○
7	×	×	×	×
8	×	○	○	○
9	×	○	○	○
10	○	○	○	○

**Fig.16** 自動閾値 (提案手法) と固定閾値法の比較

16に示す。また、虹彩領域を抽出する実験を瞳孔の抽出に成功した画像に行ったところ、10人中7人で成功した。また、特徴領域抽出も同様となり、提案手法が従来手法よりも良好に抽出可能となる手法であることがわかった。

6. 結言

本論文では、可視光撮影による虹彩認証システムを目的とした撮影方法から特徴抽出アルゴリズムを提案し、実験により検証した。可視光カメラを用いた場合の撮影方法や撮影環境などによる虹彩領域の明るさのむらに対応でき、筋線維形状の影の部分の形状をそのままに抽出する方法を示した。

今後は抽出した特徴を用いて個人認証を行うために最適な認証方法の検討を行うとともに、認証精度向上に向けたより良い特徴の抽出方法の検討を継続して行う予定である。

一方、現代社会の多くの場面で個人認証の実用化が期待されてくるものとする。様々なバイOMETリック認証技術に対して、最近のディープラーニングによる手法との融合などによる新しいシステムを実現することにより、個人認証の高精度化、高速化の要求はますます高まるものとする。

謝辞

本研究を遂行する際に、日頃より熱心に議論した岡本研究室の修了生および卒業生諸君に感謝する。特に、本研究で提案された手法やアルゴリズムの実験的検証を行った卒業生毛利隆志君、野口美里君に感謝する。

本研究の一部は2010年度工学会研究補助費を受けて行わ

れた。ここに関係各位に深く感謝を表す。

参考文献

- 1) P.V.C.Hough: "Method and means for recognizing complex patterns", U.S.Patent, Vol.3, No.069, pp.654, (1962).
- 2) 独立行政法人情報処理推進機構: "電子政府行政情報化事業～各国バイOMETリックセキュリティ動向の調査～", (2004).
- 3) 青木芳人: "虹彩のバイOMETリックセキュリティ (<小特集>バイOMETリックセキュリティ)", 電子情報通信学会誌, Vol.89, No.1, pp.46-51, (2006).
- 4) 川寄 剛, 高野博史, 中村清美: "虹彩模様の回転変化が及ぼす個人認証への影響", 電子情報通信学会技術研究報告, NC,107 (542), pp.433-438, (2008).
- 5) 国宗高志, 高野博史, 中村清美: "携帯情報端末のための回転拡散ネットによる虹彩認証", 情報科学技術フォーラム講演論文集, Vol.8, No.3, pp.163-164, (2009).
- 6) 日本自動認識システム協会編: "よくわかるバイOMETリックの基礎" オーム社, (2005).
- 7) 瀬戸洋一: "バイOMETリックセキュリティ入門", SRC, (2004).
- 8) 半谷精一郎: "バイOMETリック教科書", コロナ社, (2012).
- 9) 辻徳生: "視線計測のためのLMedSを用いた虹彩検出法", MIRU2004, pp.684, (2004).
- 10) K.Artem, L. Jong Soo: "Face and Iris Detection Algorithm Based on SRF and circular Hough Transform", J Inst Electron Eng Korea SP, vol.47, No.5, pp.664-671, (2010).
- 11) 山添丈夫, 内海章, 米沢朋子, 阿部伸治: "単眼カメラによる新鮮検出のための眼球モデルパラメータの推定", 電子情報通信学会技術研究報告, IE, Vol.107, No.40, pp.1-6, (2007).
- 12) 坂下祐輔, 藤吉弘巨, 平田豊, 高丸尚教, 深谷直樹: "高速楕円検出に基づく眼球回遊運動の計測", 電気学会電子・情報システム部門誌, Vol.127, No.4, pp.591-598, (2007).
- 13) D.G.Lowe: "Distinctive Image Features from Scale-Invariant Keypoints", Journal of Computer Vision, Vol.60, No.2, pp.91-110, (2004).
- 14) 岩佐友希, 高橋大介, 岡本教佳: "虹彩を用いた個人識別のための前処理について", 電気学会電子・情報・システム部門大会講演論文集, pp.596-597, (2011).
- 15) 岩佐友希, 高橋大介, 岡本教佳: "虹彩認証のための特徴量について", 電気学会電子・情報・システム部門大会講演論文集, pp.837-840, (2012).
- 16) 岩佐友希, 高橋大介, 岡本教佳: "可視光カメラを用いた虹彩認証のための特徴抽出", 電気学会電子・情報・システム部門大会講演論文集, pp.891-892, (2013).

- 17) 岩佐友希, 高橋大介, 岡本教佳, “可視光カメラを用いた虹彩による個人識別—特徴抽出の検討—”, 映像情報メディア学会技術報告メディア工学研究会, ME2013-105, pp.77-78, (2013).
- 18) 毛利隆志, 伊藤翔, 高橋大介, 中屋敷かほる, 岡本教佳: “スマートフォンカメラによる虹彩認証のための特徴抽出の検討”, 電気学会電子・情報・システム部門大会講演論文集, pp.1029-1030, (2017).
- 19) 野口美里, 毛利隆志, 伊藤翔, 中屋敷かほる, 高橋大介, 岡本教佳: “鏡面反射を考慮した可視光画像による虹彩認証の検討”, 電気学会電子・情報・システム部門大会講演論文集, pp.713-714, (2018).
- 20) 高橋大介, 野口美里, 毛利隆志, 中屋敷かほる, 岡本教佳: “可視光画像による虹彩認証のための特徴抽出法”, 電気学会電子・情報・システム部門大会講演論文集, pp.709-710, (2019).

損傷を受けた筋かい耐力壁の接合部の補修方法に関する実験的研究
—エポキシ系接着剤を用いた場合—

神戸 渡*
齋藤 智之**

**A REPAIRING METHOD FOR JOINTS IN DAMAGED BRACE SHEAR WALLS
-EXAMINATION USING EPOXY ADHESIVE-**

by

**Wataru KAMBE
Tomoyuki SAITO**

Abstract

For wooden houses in Japan, shear walls with brace are frequent seismic element and its joint had critical damage in past disasters such as earthquakes. After those earthquakes, those houses need to be repaired or rebuilt. In such a case, it is considered that an easy and performance repair methods is required.

In this study, we propose a method to repair the joint in damaged shear walls. That proposed repairing method is to fill the foundation around the joint with epoxy adhesive and attach new joint hardware to it. This repairing method is applied to joint specimens and shear wall specimens. We conducted loading test with those specimens and compared with the structural performance and confirmed a usefulness of that repairing method.

Key Words: *Timber engineering, Joint, Repairing, Epoxy adhesive*

* 関東学院大学 建築・環境学部建築・環境学科 准教授・博士（工学） ** (株) エヌ・シー・エヌ 修士（工学） 2019年12月13日受理

1. はじめに

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震、2016年4月15日に発生した熊本地震など、日本では大地震が発生することがある。地震が発生した際に住民は避難し、自治体等は建物の調査を行う。調査により使用することが難しいと判断された場合は、仮設住宅で生活を余儀なくされることがある。そのような仮設住宅での生活は住人に対して精神的・体力的な負荷になる。そのため仮設住宅より、それまで住んでいた住宅での生活を希望することを耳にすることがある。また地震被害を受けた住宅に対して、補修工事を施すことで再び使用することが可能になることもあれば、建て替えが必要なこともある。補修工事の場合、新築と同様に必要な耐震性能を持たせる必要がある。様々な状況が考えられ、それらはどれも、住人にとって負担となることには変わりはないと考えられる。建て替えよりも補修の方の経済的負担が小さかったとしても、補修により性能が十分に回復する必要があると考えられる。よって迅速性・施工の簡易性・経済性が優れていたり、保有する構造性能が高い技術が望ましく、そのような手法の社会的需要は高いものと考えられる。上記のように地震被害を受けた住宅に対して、補修方法・補強方法が様々提案されている¹⁾。施工条件に制約がある場合もあり、必ずしも汎用性が高いとは言えないと感じている。資料²⁾によると日本の住宅の多くは軸組構法住宅であるため、筋かいを用いた木造住宅に対する補修方法は最も必要性が高いと考える。

補修方法として、西野ら³⁾は筋かい部に特殊な金物を取り付けた補修方法の検討を行っている。また既往の研究⁴⁾において、筋かい耐力壁の筋かいが圧縮破壊した場合、筋かいを交換するという補修方法の検討を行った。ここでは引張力を受ける場合の検討を行っていない。そこで本研究では筋かいが引張力を受ける場合に対する補修方法に関する検討を行うこととする。

筋かい耐力壁が地震力等の水平力を受けて、筋かいに引張軸力が作用する場合、端部の接合部において、損傷が生じることが多い。柱や土台からのビスの引抜け、筋かいに打ち付けたビスのせん断破壊、土台の割裂、接合金物の損傷などが発生しうる破壊として挙げられる。これらの破壊箇所を補修することで耐力壁の構造性能が回復するものと考えられる。そこで本研究では片筋かい耐力壁を対象とし、筋かい接合部と耐力壁の水平加力試験を行う。接合部試験および耐力壁試験における、補修前後の構造性能を比較することで、補修方法の有用性を確認する。それらにより、補修方法の一提案をすることが本研究の目的である。

2. 補修方法の流れ

既往の研究⁴⁾では1種の筋かい金物を用いて耐力壁の構造性能に関する検討を行った。そこでの主な破壊性状は土台からのビスの引き抜けであった。そこで、補修によりビスを適切に打ち直すことが可能となれば、接合部を補修できるので

はないかと考えた。

Photo1に本研究における補修方法の流れを示す。最初は初期状態の筋かい接合部である。加力試験をすると (b) のようにビスが引き抜ける。試験終了後にビスを取り外した状態が (c) の写真となる。このビス孔をドリルで若干大きくし (d)、ここにエポキシ系接着剤を充填し、接着剤が硬化した後、ビスを打ち直し、金物を留め付ける。これが本研究における補修方法である。

また Fig.1の本研究で実施する試験の流れを示す。

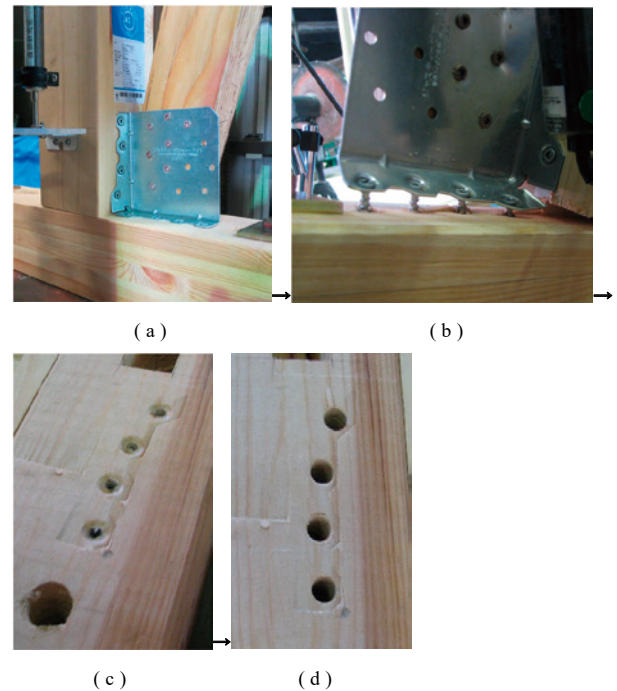


Photo 1 A flow for repairing method in this study

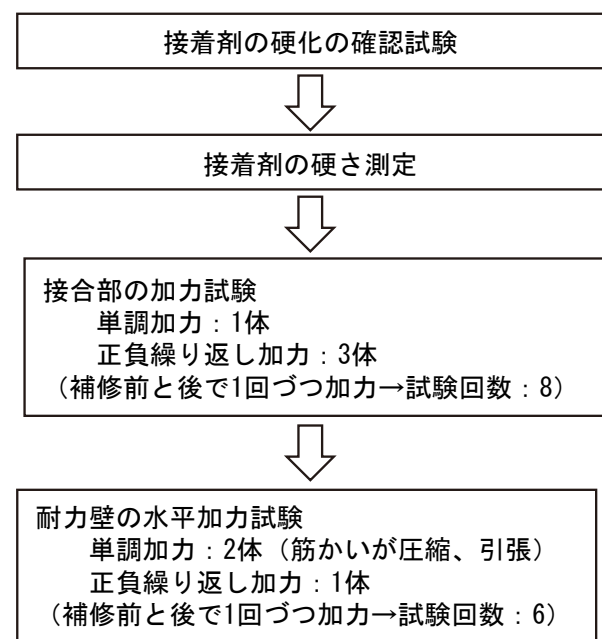


Fig.1 Flow in this study

3. 接着剤の要素試験

本研究では、2液性のエポキシ系接着剤（アサヒボンド工業（株）製、505）を充填剤として用いた。

まず、接着剤の硬化の確認試験を行う。この接着剤の可使時間は50分である。ただし、この時間は面と面を接着した場合の可使時間であり、本研究で対象とするような充填剤として用いた場合のものであるかは不明である。そこで本研究で使用する状況に近い状態の硬化の確認試験を行う。そこで、接着剤を25×25×25mmの立方体の型枠に流し込み、試験片を製作し、その試験片の内部の硬化状態を確認することとした。主剤と硬化剤を2:1の割合で調合した溶液を1辺30mmの立方体の容器に流し込み、室内温度24℃の環境で養生した。養生時間は24時間、36時間、48時間の3種類とし、各時間に対して3体の試験片を作製した。

所定の時間が終了した後、型枠より外し、試験片を切断し、その内部を確認したところ、すべての試験体において硬化していることを確認した。そこで、本研究では使用する充填剤の養生時間を24時間とした。

次に硬さ測定を行う。硬さの測定には置針型のデュロメータ（株）テックロック 製 GS-750G TypeB）を用いる。使用したデュロメータを Photo2に示す。この測定器は、スプリング荷重値で硬さを表すものであり、測定器のメモリが0度～100度となり、この範囲で550～8050mNを示すものである。測定物の表面に突起部を押し付け、硬さを測定する。接着剤の試験片では、硬化した後25mm角の立方体に切り出し、その硬さ測定を行った。作製した状態の試験片では、その表面が平滑でなかったため、硬さ測定が難しく、その問題を解消するためである。試験片の表面を上記の接着剤と木材に対して硬さ測定を実施する。樹種には、スギ・ヒノキ・ベイマツを用いた。これらの樹種は、木質構造設計規準⁵⁾におけるJ1, J2, J3に属するものであり、構造用木材の全体的な分布を把握するために、これらの樹種を選定した。断面寸法50×50mm、長さ1mの材から長さ300mmの試験片を3つ切り出し、それぞれを Cedar_1～3, Cypress_1～3, Pine_1～3と名付けた。それらの試験片の板目・柾目を問わず、無作為の箇所の硬さを測定することとした。



Photo2 Hardness meter

Table1に木材試験片における硬さ測定の結果、Table2に接着剤の試験片の硬さ測定の結果を示す。同表に示すように、本研究で用いた接着剤の硬さは木質材料と同じ程度であることがわかり、それらの中でもベイマツとほぼ同値となることがわかる。接着剤の硬さがこれらの硬さと同程度であるため、金物用のビスを打ち込むことに支障はないと考える。よって本接着剤を充填剤として用いることとする。

Table1 Hardness test of wood members

Specimen	Density [g/cm ³]	Average moisture content [%]	Hardness [Degree]	
				Average
Cedar_1	0.39	9.0	65	73.7
Cedar_2	0.39	8.8	85	
Cedar_3	0.39	9.0	71	
Cypress_1	0.49	9.5	78	78.7
Cypress_2	0.47	9.8	80	
Cypress_3	0.48	9.5	78	
Pine_1	0.60	9.0	94	92.3
Pine_2	0.59	9.0	92	
Pine_3	0.59	9.5	91	

Table2 Hardness test with epoxy glue

	Hardness on each surface					
	1 st	2 nd	3 rd	4 th	5 th	6 th
E_1 Density= 1.728[g/cm ³]	97	97	97	98	97	95.5
	Average=96.9					
E_2 Density= 1.728[g/cm ³]	97	98	97.5	96.5	97.5	97
	Average=97.3					
E_3 Density= 1.728[g/cm ³]	97.5	98	97.5	97.5	98	98
	Average=97.8					
E_4 Density= 1.728[g/cm ³]	98	98	97	97	97	97.5
	Average=97.4					

4. 接合部の加力試験

4.1 試験体・試験方法

接合部の形状を Fig.2、試験の様子を Photo3に示す。筋かいにカラマツの単板積層材（全層のベニヤの繊維の方向が平行な A 種単板積層材。以下、LVL と呼ぶ）を用いた。断面寸法は45×90mm、日本農林規格⁶⁾における等級は100E-1級である。土台と柱にはオウシュウアカマツの同一等級構成集成材を用いた。土台と柱の断面寸法は105×105mm、日本農林規格⁷⁾における等級は E95-F315である。ボックス金物に

は、ジャスティガセットライト (BX カネシン (株) 製) を用いた。

試験方法は、試験体の土台をアンカーボルトで鋼基礎に固定し、オイルジャッキを用いて筋かいの軸方向に加力するものである。変位計は筋かいの表裏に取り付け、その平均値を用いて検討する。正負繰り返し载荷の加力サイクルは既往の研究⁷⁾を参考にし、単調引張試験で得られた最大荷重 P_{max} を P として、 $1/8 P$ ずつ増やすものとした。圧縮側で P 経過後、引張側で破壊するまで加力を行った。加力履歴を Fig.3、試験体名を Table3 に示す。1 つの試験体に対して補修前後のものを加力しており、試験体数は 4、試験回数は 8 である。

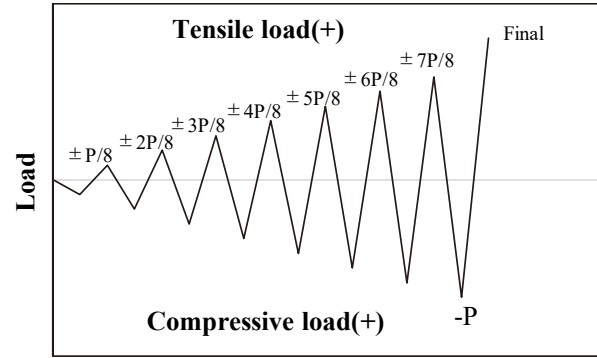


Fig.3 Loading rule

4.2 試験結果

破壊性状を Photo4~11、補修前後の荷重—変位関係の比較を Fig.4~7 に示す。最大荷重と剛性に関して、補修前後の結果を Table4 に示す。ここで用いた剛性は、最大荷重の 0.1 倍と 0.4 倍の点を結んだ直線の勾配である。

補修した試験体の主な破壊性状は、土台の割れや、それに伴うビスの引き抜けであった。繰り返し加力を受けた試験体の中では、補修した個所ではない部分に割れが生じるものがあった。その試験体 (J-cy-2_re) では、荷重があまり上昇せず、荷重を維持したまま変形が大きくなる結果であった。土台に

Table3 Joint specimen

Specimen	Monotonic loading	Cyclic loading		
		J-cy-1	J-cy-2	J-cy-3
Initial	J-m-1	J-cy-1	J-cy-2	J-cy-3
Repaired	J-m-1_re	J-cy-1_re	J-cy-2_re	J-cy-3_re

割れは生じたが、内部までは破壊していなかったものと推察できる。

荷重—変形関係を比較すると、J-cy-1 と J-cy-3 では補修前後で、その履歴が重なっていることがわかる。これらの試験体における最大荷重の比率は 89% 以上、初期剛性の比率は 74% 以上であった。一方で、J-m-1 と J-cy-2 では最大荷重の比率は 59~72%、初期剛性の比率は 74~83% であった。最初の加力状態で内部に割れが発生し、それが影響した可能性と、接着剤の硬化が十分でなかったことが比率の低さの要因と予測されるが、ここでの明言は難しい。しかしながら、接着剤を用いて補修することで、最大荷重・剛性共に回復させることが可能であることがわかった。よって、本補修方法は有用であることが示唆された。ただし、接着剤の充填方法などの管理方法に関する検討を今後実施する必要があると考えられる。

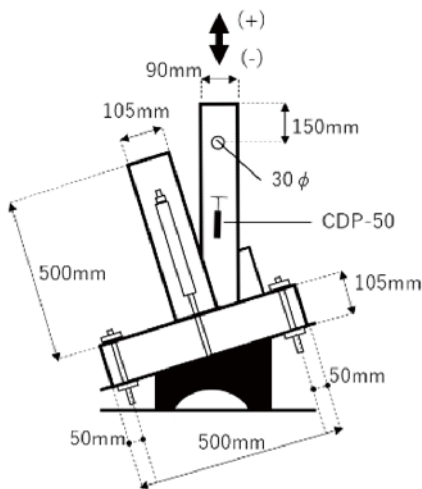


Fig.2 Geometry of Joint specimen (Unit: mm)

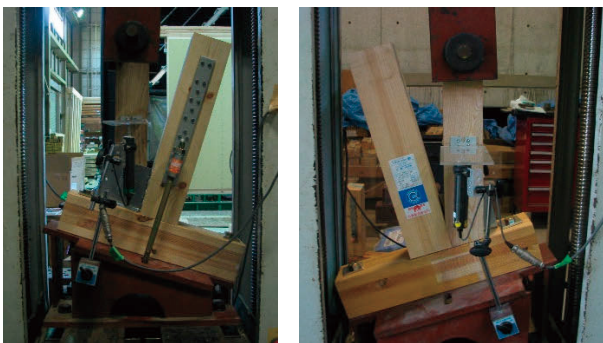


Photo3 Test conditions of joint specimens



Photo4 Failure condition of J-m-1

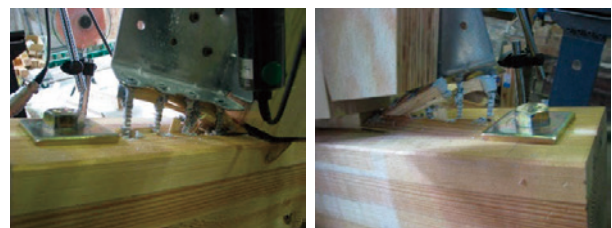


Photo5 Failure condition of J-m-1_re



Photo6 Failure condition of J-cy-1



Photo7 Failure condition of J-cy-1_re



Photo8 Failure condition of J-cy-2

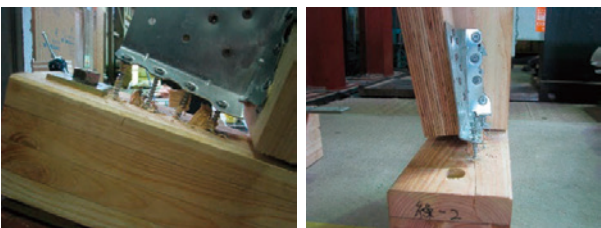


Photo9 Failure condition of J-cy-2_re

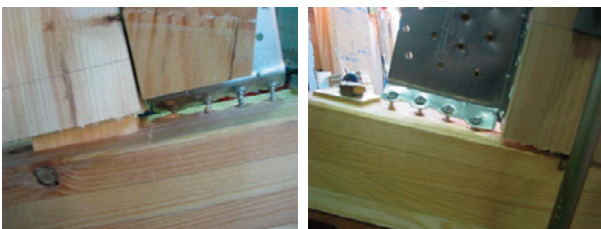


Photo10 Failure condition of J-cy-3

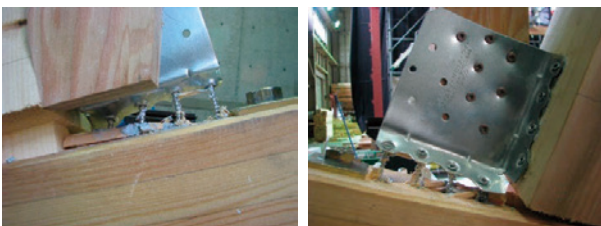


Photo11 Failure condition of J-cy-3_re

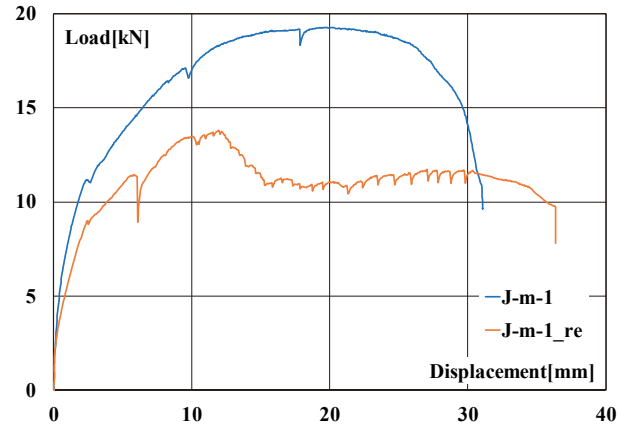


Fig.4 Comparison with initial and repaired joint (J-m-1)

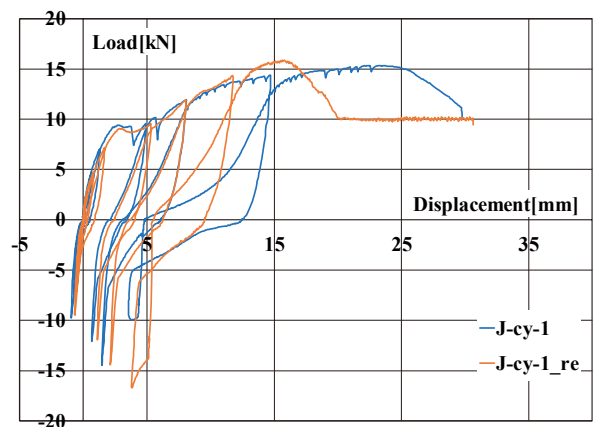


Fig.5 Comparison with initial and repaired joint (J-cy-1)

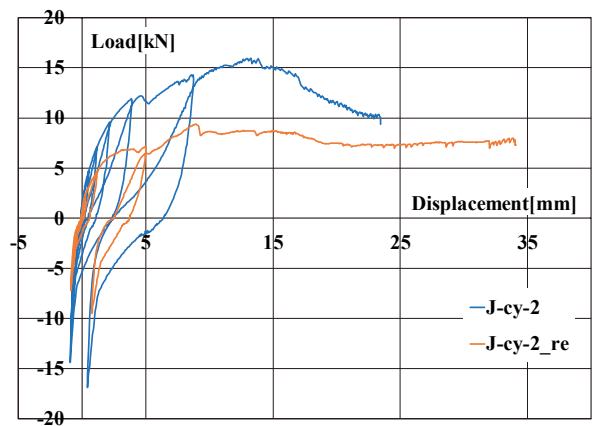


Fig.6 Comparison with initial and repaired joint (J-cy-2)

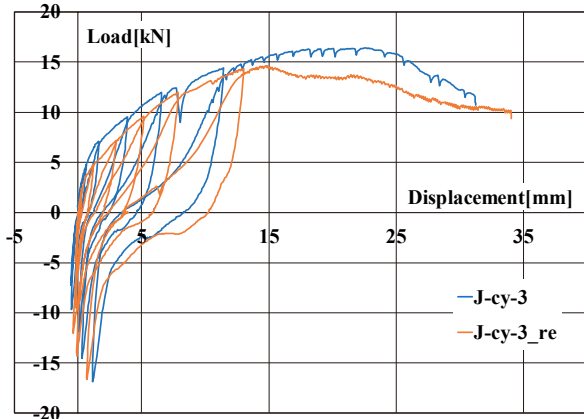


Fig.7 Comparison with initial and repaired joint (J-cy-3)

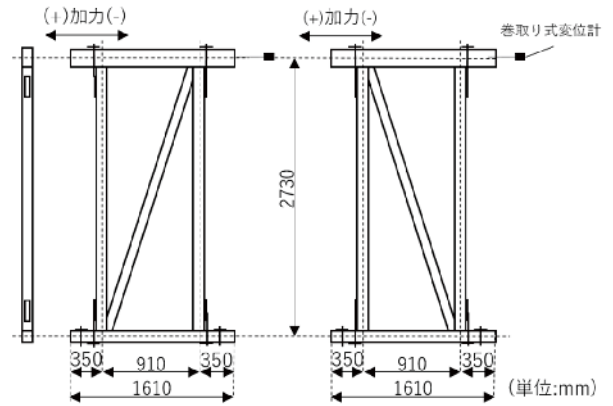


Fig.7 Shear wall specimens

Table4 Repairing results in joint specimens

Specimen	P_{max} [kN]		Stiffness [kN/mm]	
	Result	Ratio	Result	Ratio
J-m-1	19.27	72%	5.50	74%
J-m-1_re	13.81		4.09	
J-cy-1	15.34	104%	4.28	86%
J-cy-1_re	15.90		3.68	
J-cy-2	15.98	59%	4.14	83%
J-cy-2_re	9.38		3.42	
J-cy-3	16.40	89%	2.99	74%
J-cy-3_re	14.63		2.20	

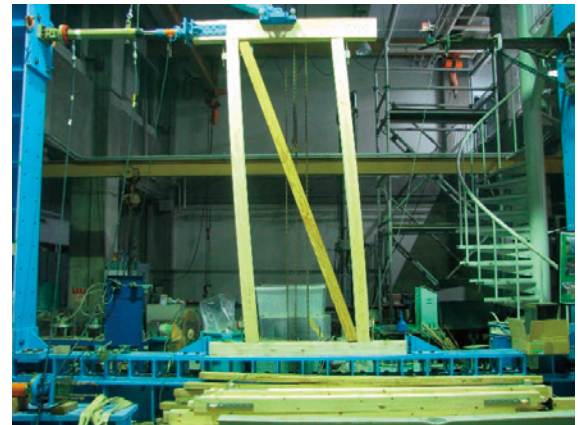


Photo12 test situation of shear wall

5. 耐力壁の水平加力試験

5.1 試験体・試験方法

前章で検討した接合部の補修方法を筋かい耐力壁にも適用し、その構造性能の回復程度を検討する。本研究では片筋かいの耐力壁を用いる。試験体の形状を Fig.8、試験状況を Photo12 に示す。部材に関して、筋かい・土台・柱・筋かい金物は接合部試験と同様である。梁にはオウシュウアカマツの同一等級構成集成材(断面:105×180mm)を用いた。その等級は E95-F315 である。

加力方法は、単調加力と正負繰り返し加力の2種類とした。単調加力は筋かいが圧縮力を受ける場合と引張力を受ける場合の2種類とした。繰り返し加力は最終的に、筋かいが圧縮加力を受けるものとした。試験体名をそれぞれ、1P-1c、1P-1t、1P-1cy とし、補修後はそれらの“re”を加えたものとする。試験体数は3、試験回数は6である。繰り返し加力の試験方法には、(公財)日本住宅・木材技術センターの試験方法⁹⁾を参考に実施した。試験体は土台をアンカーボルトで基礎鋼梁に留めつけ、その頂部にオイルジャッキを用いて水平力を加えることとした。ロードセルにより荷重、高感度変位計により土台の水平変位、巻取り式変位計により梁の水平変位を測定した。正負繰り返し荷重は変位制御とし、加力サイクルは±1/450、1/300、1/200、1/150、1/100、1/75、1/50rad で1回ずつ行い、-1/50rad 後に圧縮側に引き切り試

験終了とした。

5.2 試験結果

破壊性状を Photo13、14、15 に示す。1P-1c 試験体では、加力が進むにつれて筋かいが面外に座屈し、材の中央で曲げ破断が生じた。筋かいが土台にめり込むなど接合部分での損傷を見られたが、軽微なものであった。補修部分における損傷は確認されなかった。1P-1t 試験体では、補修前後ともに柱頭の筋かい側のビスの抜けによって荷重低下を生じた。補修部分において、ビスの抜けや土台の割裂は確認されなかった。1P-1cy_re は柱脚部分に若干のひび割れが確認されたが、破壊に直接影響はしていないと考えられる。

試験における荷重-変位関係を Fig.9、10、11、試験結果を Table5 に示す。表中の比率は、補修後の試験の結果を補修前の試験の結果で除した比率である。試験における構造性能の評価には Pick Point¹⁰⁾を用いた。

単調圧縮の試験体では、最大荷重では95%、剛性では111%であった。変位において補修前後の試験体で大きな差が生じた。補修部分に起因したものであるかは明らかではない。単調引張の試験体では、最大荷重では85%、剛性では91%であった。繰り返し荷重の試験体では、最大荷重では95%、剛性では93%であった。以上のように、80%を超え



Photo 13 1P-1c_re

Photo 14 1P-1t_re



Photo 15 1P-1cy_re

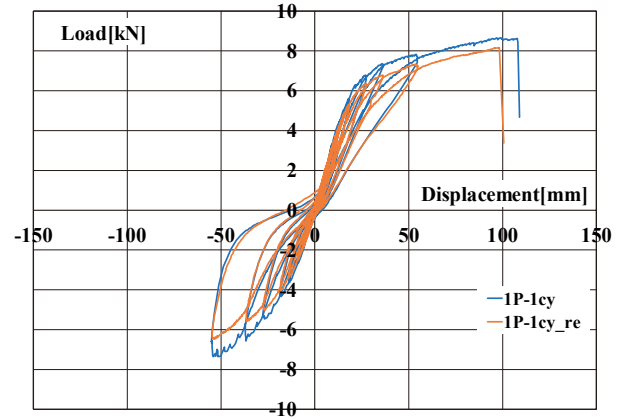


Fig. 10 Comparison with initial and repaired shear walls (1P-1cy)

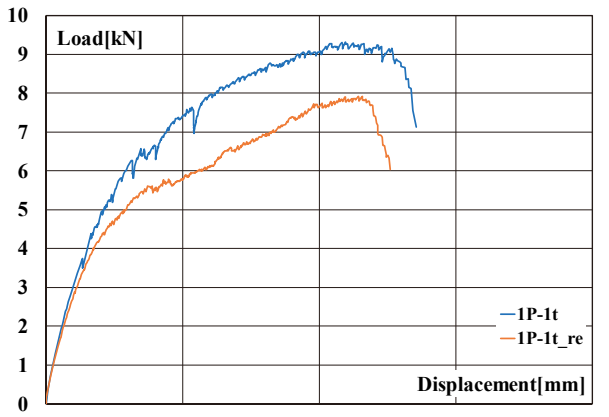


Fig. 8 Comparison with initial and repaired shear walls (1P-1t)

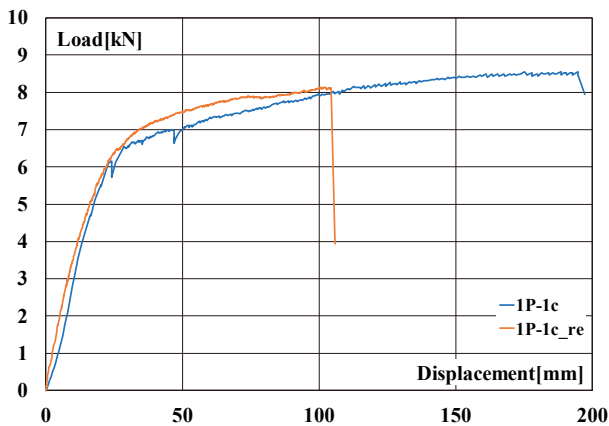


Fig. 9 Comparison with initial and repaired shear walls (1P-1c)

る値を示しており、構造性能が元に状態に近い状態まで回復していることが分かる。

次に壁倍率の算出結果を Table 6 に示す。各試験体の壁倍率は、終局耐力 P_u と構造特性係数 D_s が関わる荷重で決定していた。単調圧縮の試験体では 76%、単調引張の試験体

Table 5 Test results of shear wall test (1)

Specimen	P_{max} [kN]		Stiffness [kN/mm]	
	Result	Ratio	Result	Ratio
1P-1c	8.56	95%	0.27	111%
1P-1c_re	8.13		0.30	
1P-1t	9.33	85%	0.22	91%
1P-1t_re	7.92		0.20	
1P-1cy	8.61	95%	0.30	93%
1P-1cy_re	8.17		0.27	

Table 6 Test results of shear wall test (2)

Specimen	P_y [kN]	(2/3)* P_{max} [kN]	$P_{1/120}$ [kN]	P_u^* (0.25/ D_s) [kN]	Wall strength ratio	Ratio
1P-1c	5.97	5.71	6.10	5.43	3.05	76%
1P-1c_re	5.18	5.42	6.16	4.12	2.31	
1P-1t	5.32	6.22	5.25	4.14	2.32	83%
1P-1t_re	4.58	5.28	4.56	3.43	1.92	
1P-1cy	5.68	5.74	6.28	4.29	2.41	89%
1P-1cy_re	5.52	5.45	6.03	3.81	2.14	

では 83%、繰り返し載荷の試験体では 89% であった。単調圧縮の試験体において、他の試験体に比べ、比率は小さかった。同表に示すように、補修前後では D_s を算出する塑性率に大きな差があった。その要因として、補修部分によるもの、接合部分以外も損傷を受けていること、材料の個体差によるものなどが挙げられる。どの要因によるものかは明らかではない。

補修前後の比率は 76-89% (平均値: 83%) となっており、壁倍率も大きく回復していることが分かる。ただし、この比率は接合部の高い比率のものと比べると若干小さかった。しかしながら、壁試験体においても補修効果があることが見て取れた。壁倍率での補修前後の比率と、接合部の加力試験で

の比率は近いものであるため、破壊モードも同様であることが予想できるが、本研究の範囲では必ずしも一致していなかった。これに関しては、試験体数を増やした検討が必要であると考えている。

上で述べたように補修前後の比率に関して、壁倍率では下限値で76%、平均値83%であった。ここで、補修効果の必要量に検討する。「住宅の品質確保の促進等に関する法律」では、「耐震等級」が定められており、1.25倍の力に対して建築基準法の求める性能を有するものを等級2と呼び、1.5倍の力に対して同様の性能を有するものを等級3と呼ぶ。

本研究において、構造性能が十分に回復すると判断できる程度として、建築基準法のレベルまで回復するものと定義する。そこで、仮に等級2に相当する住宅が建築基準法の求める性能まで回復するための比率を計算すると $1/1.25=0.80$ 、等級3の場合、 $1/1.5=0.67$ となる。このことから、上の比率として67%以上あれば、補修方法として有用となりうると判断できる。本研究で対象とした方法は76%以上であるため、1つの有用な補修方法であると考えられる。しかし、試験体数が限られているため、様々な条件における検討が必要であると考えている。

7. まとめ

本研究では、1Pの筋かい耐力壁を対象として、補修方法に関する検討を行った。補修には、エポキシ系接着剤を用いた。補修方法を接合部試験体と耐力壁試験体に施し、その構造性能の回復程度を検証した。本研究で得られた知見は以下の通りである。

- 1) 接合部試験において、補修性能が発揮したと判断できる場合は、最大荷重では89%以上回復し、剛性は74%以上回復した。
- 2) 耐力壁試験において、補修性能が発揮したと判断できる場合は、最大荷重が85%以上回復し、剛性が91%以上回復し、壁倍率は76%以上回復した。
- 3) 本研究では、補修効果を判断する場合、補修前後の比率として67%以上を考えた。本補修方法を施した試験体の比率は76%以上であることから、補修効果があるものと判断した。よって、補修方法として有用なものであると考えることができる。よって、一補修方法として提案するものである。
- 4) 剛性に関して、接合部の加力試験、耐力壁の水平加力試

験では補修効果はあまり見られなかった。

補修効果が得られなかった要因として、接着剤の充填程度など、施工管理の方法に関する検討が必要であると考えられるため、今後は試験体数を増やすなど、さらなる検討が必要であると考えている。

謝辞

本研究を進めるにあたり、接着剤の選定に対して、大分大学 田中圭准教授に適切なご助言をいただきました。また試験の実施にあたり、(株)ボラス暮し科学研究所 照井清貴様、杉本泰輝様にご協力いただきました。この場にて御礼申し上げます。

参考文献

- 1) 木造 [耐震工法] パーフェクトガイドブック, エクスナレッジ, 2012.
- 2) 杉山英男 編著: 木質構造 第4版, 共立出版, pp. 1-6, 2008. 4.
- 3) 西野晃充, 里村憲光, 田口朝康, 大橋好光: 既存木造の同一面たすき筋かいによる耐震補強に関する研究, 日本建築学会大会学術講演梗概集, III, pp. 433-434, 2018. 9.
- 4) 神戸渡, 大上溪介, 斎藤智之: 損傷後に筋かいを交換することによる木質構造の筋かい耐力壁の耐震補強 関東学院大学工学総合研究所報, 第45号, pp. 25-30, 2017. 3.
- 5) 日本建築学会: 木質構造設計規準・同解説, 丸善, 2006.
- 6) 単板積層材の日本農林規格, 農林水産省告示第2773号, 平成25年.
- 7) 集成材の日本農林規格, 農林水産省告示第1587号, 平成24年(一部改正).
- 8) 白須万寛, 笹川明, 五十田博, 塩野入克征: 筋かい壁の履歴特性把握のための静的繰り返し実験 その2 接合部の実験, 日本建築学会学術講演梗概集, 構造III, pp. 43-44, 1997.
- 9) (公財) 日本住宅・木材技術センター: 木造軸組工法住宅の許容応力度設計, 2008.
- 10) 軽部正彦, 原田真樹, 林知行: 荷重変形曲線のモデル化とその問題点共有のための提案特徴点抽出の自動化ツールについて, 日本建築学会学術講演梗概集, 構造III, pp. 215-216, 2001.

神奈川県内における化学に対する高校生への意識調査と考察

野口 優志*

山平 多恵子*

**A study of consciousness investigation of chemistry among high school students in
Kanagawa prefecture**

by

**Yushi NOGUCHI
Taeko YAMAHIRA****要 旨**

子どもの理科嫌い・理科離れが長年、我が国において問題視されてきた。そこで本研究では、神奈川県内において、高校生に対して化学と教育に関する意識調査を行った。化学の好き嫌い、およびその理由などを調査し、よい印象を持った授業や悪い印象を持った授業などに関して意見を求めた。得られた結果を報告する。

キーワード：化学教育，高校生，意識調査

Abstract

Science phobia among the youth has been discussed as a serious problem in Japan for a long time. In this study, a consciousness investigation of chemistry among high school students was performed in Kanagawa Prefecture. Responses to questions such as what the students like and/or dislike about chemistry and their reasoning and their opinions on the classes that left a good or bad impression on them are reported.

Key Words: chemical education, high school students, consciousness investigation

1. はじめに

平成30年4月に国立教育研究所にて行われた小学生及び中学生対象の全国学力・学習状況調査の結果では、理科に肯定的な印象を持っている児童・生徒の割合は小学校段階から中学生段階にかけて減少していることがわかる¹⁾。「理科の勉強は好きですか。」という問いに対し、興味を示す回答である「当てはまる」「どちらかといえば、当てはまる」と答えた児童・生徒は小学校で83.5%、中学校で62.9%と、徐々に興味関心が薄れていることがわかる。中学校では化学式や計算問題など、小学校と比べ内容が複雑になり理解ができない生徒が多くなっているのではないかと考えられる。そこで本研究では、神奈川県内においてアンケート方式で高校生生の声を聞き、理科（化学）に対する意識の実態を知るとともに、興味関心を持たせる授業の在り方・方法について考察を行なった。

2. 実験方法

「化学と教育」をテーマとし、インターネット上で回答するアンケートを作成した。アンケートの質問内容①～⑩と、回答の選択肢あるいは回答方法を以下に示す。

①あなたの性別を教えてください。

→男性 女性

②あなたの学年を教えてください。

→高1 高2 高3

③あなたは現在文系、理系どちらを専攻していますか。

→文系 理系 まだ決めていない

④あなたの好きな科目は何ですか。（複数選択可能）

→国語 英語 社会 数学 理科 その他

⑤化学は好きですか。

→好き 嫌い

⑥⑤で好きと答えた方にお尋ねします。好きな理由があれば教えてください。

また、好きな範囲や実験があれば教えてください。

→記述式

⑦⑤で嫌い どちらでもない を選択された方にお尋ねします。嫌いな理由や興味を持てなかった理由を教えてください。また、嫌いな範囲があれば教えてください。

→記述式

⑧あなたの中学、高校での化学（理科）の授業で良い印象を持った授業はありますか。ある方は具体的に教えてください。

→記述式

⑨あなたの中学、高校での化学（理科）の授業で悪い印象を持った授業はありますか。ある方は具体的に教えてください。

→記述式

⑩あなたが化学（理科）の授業対して、こうすれば印象に残る、興味が持てる。何か考えがあれば教えてください。

→記述式

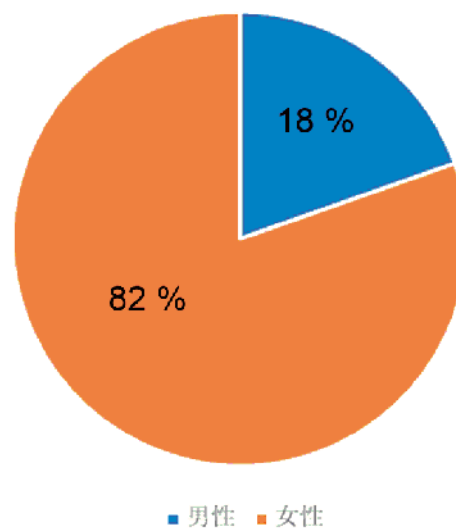
以上の項目でアンケートを作成した。神奈川県内において、高校生複数名に対してアンケートへの協力を求めた。回答期限は2018年12月前半の1週間程度を設定した。アンケートへの協力を求める際の説明として「現在大学で「化学と教育」をテーマに卒業論文を書いています。現在、理科に対する興味関心が薄れているということが、全国学力テストなどの結果などから明らかになっています。そこで私は、理科の化学分野に関してアンケートを作成しました。このアンケートを通して、化学（理科）に関して苦手意識を持っている人が、どのように克服するかを考えていきたいと思っています。ぜひ、ご協力の方お願い致します。」と伝えた。得られた各項目のアンケート結果をまとめた。

3. 研究結果と考察

2018年12月中の1週間程度、神奈川県内において、化学教育に関して高校生に対するアンケートを行った。その結果、51名から回答が得られた。各項目の問い①～⑩および集計結果を以下に示す。

①あなたの性別を教えてください。

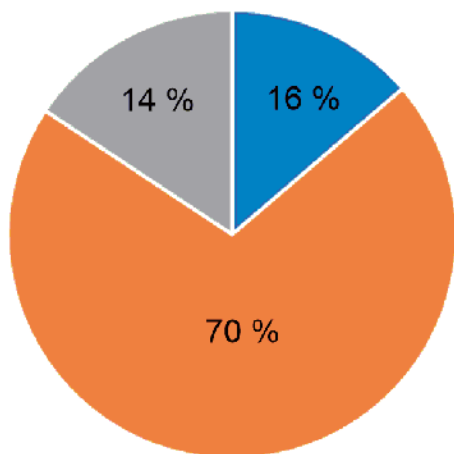
この問いに対し、男性9名、女性42名という結果が得られ、8割近い回答者が女性となった（Fig.1）。女性の割合が多かった理由として、今回の調査方法がインターネット上で行われたことが原因の1つであると考えられる。性別にみたSNS利用時の行動として、女性のほうが男性よりも積極的利用が高かったというデータが報告されている²⁾。すなわち、本アンケートへの協力依頼に関する情報伝達のツールとして、SNSが寄与した可能性が考えられる。



■ 男性 ■ 女性
Fig.1 Ratio of male to female.

② あなたの学年を教えてください。

この問いに対して、高校1年生8人、高校2年生36人、高校3年生7人という結果が得られた (Fig.2)。

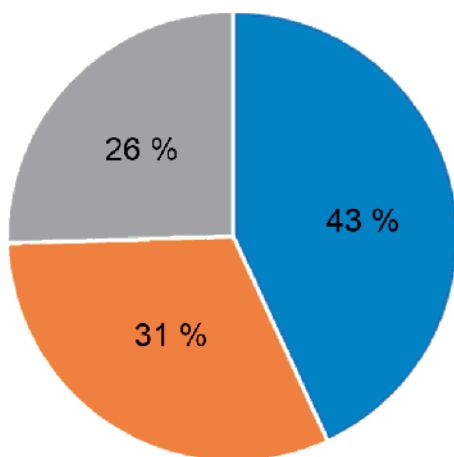


■ 高校1年 ■ 高校2年 ■ 高校3年

Fig.2 Ratio of each grade.

③ あなたは現在文系、理系どちらを専攻していますか。

この問いに対し、文系22人、理系16人、未定13人という結果が得られた (Fig.3)。アンケート対象者が高校1年～2年生が大きな割合を占めていたため、未定が13名と多い結果になったと考えられる。



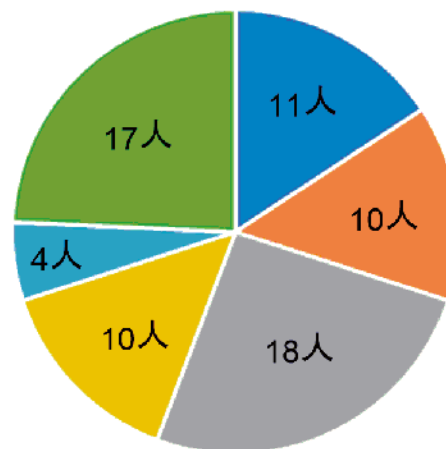
■ 文系 ■ 理系 ■ 未定

Fig.3 Major field of study.

④ あなたの好きな科目は何ですか (複数選択可能)。

この問いに対し、国語11人、英語10人、社会18人、数学10人、理科4人、その他17人という結果が得られた (Fig.4)。主要5科目の中でも社会>国語>英語・数学>理科と理数系科目

離れが目立つ結果となった。理科に関しては4人と最も低い数値であった。

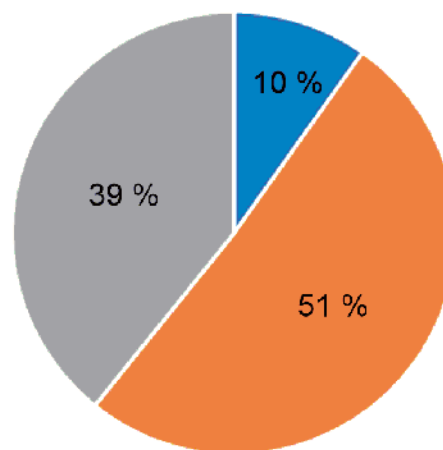


■ 国語 ■ 英語 ■ 社会 ■ 数学 ■ 理科 ■ その他

Fig.4 Favorite subject(s) (multiple answers allowed).

⑤ 化学は好きですか。

この問いに対し、好き5名、嫌い26名、どちらでもない20名という回答結果が得られた (Fig.5)。すなわち、化学(理科)が嫌いであると回答した生徒が全体の51%であった。



■ 好き ■ 嫌い ■ どちらでもない

Fig.5 Like and dislike about chemistry.

⑥ ⑤で好きと答えた方にお尋ねします。好きな理由があれば教えてください。また、好きな範囲や実験があれば教えてください。

この問いに対しては、アンケート対象者に記述式の回答を依頼した (Table 1)。対象者は⑤の問いで化学が好きと回答した5名である。化学が好きな生徒は、「実験をするのが楽しい」「反応式など解けた時嬉しい」など、化学に関し肯定

的に考えていることが推測できる。これらの回答は、自己効力感が高いことを示唆している。実験を行ったり、問題が解けたときの喜びを与えることも教師の1つの役割であると言える。すなわち、化学が好きと回答した生徒の割合が低い理由として、教師が喜びを与えられていないことも原因の1つであると考えられる。この点において、授業改善を行っていかねばならないと言える。

Table1 Reason for answering.

⑥ ⑤で好きと答えた方にお尋ねします。好きな理由があれば教えてください。また、好きな範囲や実験があれば教えてください。
様々なことの根本を知ったり、実験をするのが楽しい
わかりやすいから
化学岩？石灰岩を使った実験です。
化学が嫌いなものは死を意味する
反応式など解けた時嬉しい

⑦ ⑤で嫌いどちらでもないを選択された方にお尋ねします。嫌いな理由や興味を持てなかった理由を教えてください。また、嫌いな範囲があれば教えてください。

対象者は、⑤の問いで、嫌い、どちらでもない、を選択した46人である。化学に対し、難しい、わからないと感じている生徒が多いことが分かった(Table 2)。すなわち、難しい、分からない、と感じることによって興味関心が薄れているのではないかと考えられる。また、アンケートの結果からも推測されるように、「覚えるのが大変」「暗記部分が苦痛」など、詰め込み型の授業展開がなされていることが示唆される。その結果、化学式や物質量の計算などの基礎的な部分が身につかず、生徒が化学に対して嫌悪感を持ってしまったのではないかと考えられる。

Table2 Reason for answering the question.

⑦ ⑤で嫌いどちらでもないを選択された方にお尋ねします。嫌いな理由や興味を持てなかった理由を教えてください。また、嫌いな範囲があれば教えてください。
難しい
覚えるのが大変でテストの時に忘れてしまう。計算が苦手
難しく何をしたらいいのかわからなかった
何がなんだかわからない
あまり自分に向いていないから
理解しづらい。難しい。元素記号のところが苦手
めんどくさいから
化学式が苦手なため
よくわからない文字とか、記号とかいっぱいあるので嫌です。
自分で勉強するのは好きだけど科目自体にあまり興味がない
難しいから
計算が苦手だからです

化学式とか反応式とかわからないし、興味がわかない、つまらないから
自分の中で苦手意識があるのもそうだし、複雑なものが多いから自らしっかりと理解しようという気になれない。
mol 計算
計算嫌い
難しい
理解ができない、なぜ化学があるのかわからないから、また化学で証明出来るものと出来ないものがあるから
計算系が苦手
化学式が意味わかんないから
難しいから
難しいから
ただただ無関心のため暗記部分が苦痛、解き方が難しい
化学反応式や電気分解が苦手です。テストでもそんなにいい点数が取れないからです。
授業が退屈。覚えること多いし、全範囲。
計算
化学記号が多すぎて覚えられないしよくわからないから
つまらないから
難しい
元素記号が覚えられない
わからないから
記号とかアルファベットばかりで理解しにくいから
モルがわか(ら)りません。
全体的によくわからない
イオン式や化学式、化学反応式、沢山の公式を覚えるのが苦手だからです。
化学式や元素記号を覚えるのが難しかった
実験はおもしろかったけど内容がよくわからなかった
どこかはわからないが急についていけなくなったから。
化学の実験とかは好きですけど、化学式の計算だったり、実験結果から考察したりするのが嫌いです。

⑧ あなたの中学、高校での化学(理科)の授業で良い印象を持った授業はありますか。ある方は具体的に教えてください。

この問いに対し、実験に関する回答が多く、実験内容まで記載しているものも多く見られた(Table 3)。すなわち、実験が生徒の記憶に残りやすいことが明らかになった。

Table3 Class of giving a good impression.

あなたの中学、高校での化学(理科)の授業で良い印象を持った授業はありますか。ある方は具体的に教えてください。
実験
中学の時は実験をしながら授業を行っていたのでわかりやすかった。高校の方では、少人数で授業だったので先生が見回りに来てわからない所を教えてくださいましたのでよかったです。

反応による変化が大きい実験
実験を多くやる学校で、実験が楽しいから
実験が楽しかった
実験があって楽しい
いきなり実験を始めて説明してもらいやり方が私は好き
火の色が変わるやつ
金属の燃焼実験
火の実験
ないです。(具体的な動画サイト名)で化学関係の動画を見た方がためになります。
レポート作り 科学に関することを自分で調べてレポートにまとめるのが楽しかった
薬品実験
ガスバーナーとかアルコールランプとか火を使った実験
ただ話を聞くだけでなく実験を行うことで、変化する様子などを実際に見て触れることができることに関しては良い印象がある
実験
液体窒素のマシュマロ
実験
液体窒素にバラなどを入れる実験
実験
液体窒素を使った実験
中学校の理科の授業は化学、物理、地学と幅広く実験も多かったのが楽しかったです。
記号とか歌にして覚えるのが印象的
天体
(具体的な教員名)先生の授業は楽しかった
火の色が変化する実験
中学の頃、水の電気分解の実験をした時の出来た気体に火を近づけた時の反応が、水素と酸素で違うと知った時面白いと思った。
実験の授業
実験が楽しかったです。
電気
顕微鏡を使った実験で、顕微鏡の使い方と観察結果よく分かりました。
天気、月、星などの天体はおもしろく実験も楽しかった。天気は季節ごとの前線や低気圧高気圧などは理解できたしどのように動くのかとか、目に見えるのがおもしろく分かりやすかった
炎色反応の実験
水の電気分解

⑨ あなたの中学、高校での化学(理科)の授業で悪い印象を持った授業はありますか。ある方は具体的に教えてください。

この問いに対し「ずっと黒板に書かれたものを淡々と書いていく授業」「ただ聞いているだけの授業」など、教師中心の授業展開を示唆する回答が見られた (Table 4)。すなわち

学校教育において、教師が何を教えるのか、何を行うのか、という教師中心の教育に対する印象が悪いことが伺える。これらの結果から、生徒が何を学ぶのか、何を得るのかという、生徒中心の教育へのシフトが化学教育の授業展開として望まれる^{3)~5)}。

Table 4 Class of giving a bad impression.

あなたの中学、高校での化学(理科)の授業で悪い印象を持った授業はありますか。ある方は具体的に教えてください。
話ばっかする
中学の時はクラス全体で授業を行ったのでわからないところが聞けない時があって、先生に聞けないことが多くあり実験の際男子がふざけてうるさかったことです。高校の時は少人数でも1部の人に分かって先に授業をしてしまうので結局わからない人のことを考えないで授業を進めるのが悪いと思いました。
定期試験に間に合わず、ザックリしか教えないとき
難しい名前とか覚えるのが多かった
内容に興味を持たない
ダラダラとひたすら話す先生
カルメラを作らせてくれなかったとき
ひたすら計算してた
計算をたくさんする。文字で置き換えたやつでいっぱい、化学式
化学式ばっか書いてその本質が見えないところ
ずっと黒板に書かれたものを淡々と書いていく授業
疑似用語が多くて覚えにくい
ほぼ全部。化学反応の実験とか見ても分からなかった
化学式
実験の班
前の日の実験内容を忘れてしまって何をしているのかわからないところ
酸化ナトリウムとか複雑になったとき覚えるのが難しい。化学式に2とか3とか分からない。
先生が適当すぎた
分かりにくすぎるからやる気にならない
難しい
計算だらけの授業
先生の話し方がゆっくりで間が空きすぎて眠くなる
ただ聞いているだけの授業
置いていかれてしまったことです。
電流、電圧、抵抗がよく分からない、一問わからないとそのあと分からないので授業で、問題を何回も解いたり、詳しく解説して欲しかったです。
電流、化学反応式、係数を合わせるのが難しかった。計算が難しい。実験の準備片付けが大変。考察を書くのが大変。イオン式の仕組みがよくわからない
モルが出てくる授業

⑩ あなたが化学（理科）の授業対して、こうすれば印象に残る、興味が持てる。何か考えがあれば教えてください。

この問いに対し、実験などの参加型の授業展開を望む意見が複数見られた（Table 5）。実験以外にも、画像や動きなどの視覚を使った手法の導入に関する意見が挙がった。実験を中心に授業を行う場合、準備や片付け時間などの負担が大きくなるなどの問題が挙げられる。しかし、動画などを使用する ICT 機器の導入により、準備時間の削減ができることととも生徒の理解度も上がる可能性が考えられる。

Table5 Ideal teaching styles for students.

あなたが化学（理科）の授業対して、こうすれば印象に残る、興味が持てる。何か考えがあれば教えてください
面白い授業
実験は普通の授業よりインパクトがあって覚えられる。眠くならないし。
もっと身近に関係あることにしてほしいです
覚えて楽しい感じにする。画像などで説明して覚える。先生もう1人つける
実験を中心に学ぶ、自分たちの生活と関連させる
覚えやすく、具体的に説明して欲しかった。
図とかでわかりやすくしてほしい。
実験して調べることが増えると興味を持てる気がする
もっと簡単に計算が出来れば嬉しい
目でみてすぐわかる実験
実験をもっと意欲的に自主的に取り組む。
化学を身近に感じられるような教材が増えれば良いと考えます。
ただ先生の説明を聞いて黒板を写すだけじゃなくて自分たちで考える時間とかあればいいと思う
眠くならない様な授業
もっと身近にあるような例の実験だと楽しいかもしれないです。あともっとやる事を理解してから実験に移った方がいいかもしれないです。
実際に触れられる機会をなるべく多く設けること。
日常生活での場面を交えて教えて欲しい
なんか覚えやすいワードとかこの文字が出たらこの計算だよなどの工夫がもっと欲しいです。
まず、興味をもたせる内容、わかりやすくすることですかね？
実験をすると印象に残ると思う
教科書を読んで暗記してから実験に取り組むところ
実験をすることで印象に残ると思う
化学がいかに必要かを生徒に知ってもらう
実験を取り入れたり、簡単なミニテストなどを行うと印象に残ると思います。
頭に残るようなのがいいと思います。歌とか協調性
一つ一つ教えてほしい
分かりやすく面白い授業

先生がおもしろいこと
実験をたくさんする
もう少し実験を増やして欲しい
体験型授業
ありません。
実験がある
実験の回数が多いと、実際に目で見て、考えることが出来るので印象に残ると思います。
問題練習の量を増やしてほしい。文字だけじゃなくて、動きや形か、あるもののほうが覚えやすいと感じた。教科書の答えで計算なら途中式を書いてほしいし、解説が難しすぎる解説の解説が欲しくなる。
実験をするときは実験の内容についてもっと具体的に教えてほしい
楽しいを重視する実験をする。

4. まとめ

アンケートの結果、生徒の多くは参加型の講義を求めていることが分かった。一般に、講義を受けるだけの受け身型の授業展開では学習定着率は低いことが示唆されている。一方、実験など行動する参加型の授業展開では、学習定着率も高いという傾向が報告されているため、アクティブ・ラーニングの導入の取り組みに関する報告は多く見られる^{3)~5)}。しかし、実験は生徒が理科に親しみやすい一方で、事前の準備にかかる時間が多く教員の負担は大きい。教師の時間外労働はメディアでも取り上げられている通り、長い時間となっている^{6), 7)}。解決策として、部活動をインストラクターなどに委託し、少しでも授業づくりの時間を増やすなどの対応が望まれる。また、必要な薬品や器具にかかる費用に充てられる予算は限られており、実験を行いたくても行えないという状況も想定される。ICT 機器の活用や、国が理科教育に充てられる費用を増やすことも大切ではないかと言える。また、参加型授業実現するためには、教師の理科に関する知識・技術の質を高めることも重要な課題であると言える。子どもの理科離れ・理科嫌いの背景には、教育内容の削減や授業時数減少の問題と共に、教師の科学的教養の低下の問題が指摘されている⁸⁾。特に、実験や研究の面白さを十分に伝える実践力向上の観点では、修士レベルの教員養成・体制の充実と改善が望まれる⁹⁾。日本学術会議においても、高度で複合的な科学的教養を生徒に獲得させることを目的とし、大学院修了者の積極的な採用を案として挙げている⁸⁾。今後、教員の科学的教養の向上、教員の働き方改革、ICT 機器の利用、予算面の見直しなどの面において、理科教育を多方面から考える必要があると言える。

謝辞

本報をまとめるにあたり、協力をいただいた神奈川県内の高校生の皆様に感謝申し上げます。本研究は、2018年度理工／建築・環境学会研究補助費を受けたものであり、関係各

位に感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 国立教育研究所：平成30年度全国学力・学習状況調査の結果，(2018)，www.nier.go.jp/18chousakekkahoukoku/18summary.pdf (2019年11月19日参照)。
- 2) 高橋尚也，伊藤綾花：「SNS 利用における青年の対人関係特性—Twitter と LINE 利用時の行動に注目した検討—」立正大学心理学研究所紀要，14，pp.39-50 (2016)。
- 3) 文部科学省：初等中等教育における教育課程の基準等の在り方について（諮問），(2014)，http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chukyo/chukyo0/toushin/1353440.htm (2019年11月28日参照)。
- 4) 大西俊弘：「アクティブ・ラーニング」と日本の学校教育，龍谷教職ジャーナル，3，pp73-82 (2015)。
- 5) 山内祐平：教育工学とアクティブラーニング，日本教育工学会論文誌，42 (3)，pp191-200 (2018)。
- 6) 文部科学省：教員勤務実態調査（平成28年度）の分析結果及び確定値の公表について（概要），(2018)，http://www.mext.go.jp/b_menu/houdou/30/09/1409224.htm (2019年11月28日参照)。
- 7) 文部科学省：学校における働き方改革に係る緊急提言，(2017)，http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chukyo/chukyo3/079/sonota/1395249.htm (2019年11月28日参照)。
- 8) 日本学術会議：これからの教師の科学的教養と教員養成の在り方について，(2007)，www.sej.go.jp/ja/info/kohyo/pdf/kohyo-20-y1.pdf (2020年1月7日参照)。
- 9) 文部科学省：教職生活の全体を通じた教員の資質能力の総合的な向上方策について～平成24年8月28日 中央教育審議会答申～（説明用資料），(2012)，https://www.mext.go.jp/a_menu/shotou/miryoku/1326877.htm (2020年1月7日参照)。

Characteristics of Heartbeat Activity of College-Age Shooters in Standing Rifle Shooting

by

Minato KAWAGUCHI*

Hiroshi SATO*

Iku MATSUMOTO**

Susumu TAKEMURA*

Kentaro TAKAHASHI*

Abstract

We aimed to analyze whether the heartbeat characteristics derived from electrocardiogram (ECG) can be used to assess college students' rifle shooting performance. Four students participated in this study, and each of them demonstrated three tasks: rest, sighting shot, and competitive shot. During the shot tasks, each participant demonstrated the ISSF 10m beam rifle. The ECG was recorded with a sampling frequency of 200 Hz. The timing of the trigger pull was also detected using the pseudo-landing sound recorded simultaneously. The ECG demonstrated shooting accuracy as it calculated the shortest lag between trigger pull timing and the heartbeat (R-wave) occurring time point. It was also used to analyze changes in heartbeat intervals (RR intervals) during the aiming period. Our results could not show clearly that the high score was induced by avoiding the R-wave occurring time point as observed in previous studies. However, the RR intervals during the aiming periods were significantly increased when shooters gained a higher score. The results of this study could be applied to coaching. In future studies, we would increase the sample size in order to confirm reliability.

Key Words: Rifle shooting, Heartbeat, Electrocardiogram, R-wave, RR intervals

要 旨

本研究では心電図から得られる心拍活動の特徴が、射撃競技における学生選手の競技力を反映しているか否かを調査した。4名の学生が実験協力者となり、対象競技を国際射撃連盟準拠10m立射として、それぞれ試射、本射ならびに安静をとった。心電図はサンプリング周波数を200Hzとして記録するとともに、撃発時刻を検出するために標的が発する擬似着弾音を同時に録音した。撃発時刻と隣接する心拍拍動（心電図から検出されるR波の生起）時刻の差を収集した。さらに、照準時の心拍間隔（RR間隔）の変化を観測した。その結果として、まず拍動と撃発との時間差については、先行研究で示されているように、高得点を獲得した時の撃発が拍動を避けてなされていることを明確に観測するには至らなかった。一方、照準中の心拍間隔の変化について、高得点の獲得時に心拍間隔が増大することが示された。本結果を通して射撃における学生選手の技術力の向上への貢献をもたらすことが期待される。今後は標本サイズを増やすなど、結果の信頼性に対する検討を進める。

*College of Science and Engineering, Kanto Gakuin University **College of Human Environmental Studies, Kanto Gakuin University

2019年12月13日受理

1 Introduction

In the modern Olympic games, various sports incorporate the target. It is crucial to analyze and evaluate the characteristics of physiological signals in these sports for coaching purposes. In rifle shooting, there are several kinds of distance and postures: 300, 50, and 10m and prone, kneeling, and standing. In particular, the 10 m rifle is used to shoot at a 45.5 mm target. The minimum required diameter is only 0.5 mm. Thus, the shooters are required to control posture and mental state. It is known that the heartbeat causes muzzle fluctuation¹⁾. Because shooters are required to wear a thick coat, coaches must teach shooters how to control their heartbeat during the competitive shot. There are studies that analyze heartbeat using electrocardiogram (ECG) in the context of archery²⁻⁵⁾, pistol shooting⁶⁻⁷⁾, the biathlon⁸⁾, and rifle shooting^{1,9)}. However, these studies have reported a disjointed collection and performance. It remains unclear whether college-age shooters have these characteristics.

In this study, we focused on college students using standing rifles. Our objective is to quantify whether the characteristics related to the variable skill level of college-age shooters are correlated with heartbeat activity.

2 Materials and Methods

2.1 Participants

Four members of the college shooting club participated, of whom three were men and one was a woman (n=4). The experimental protocol was approved by the institutional review board. All participants provided written informed consent before participation (2019-2-5). The participants' years of shooting experience is shown in **Table 1**.

2.2 Materials

The beam rifle (MBR-201) and the target (MT-201) used in this study were authenticated by the National Rifle Association of Japan. The beam rifle does not use actual bullets; rather when a shooter triggers the beam rifle, the muzzle exposes xenon light. The score is then estimated by the target from the position using received light. The score was represented as an integer ($0 \leq \text{score} \leq 10$). Since the target generates the pseudo-landing sound, the sound was recorded concurrently with the following

signals. The electrocardiogram (ECG) and the respiration were simultaneously recorded by Polymate-II, a multi-channel signal recorder. The ECG was represented as the potential difference (in volts) between the left wrist, and the Manubrium Sterni passed through the differential amplifier with the earth electrode located on the right wrist. The disposable electrodes were applied for the ECG measurement. The respiration sensor was wrapped around the abdomen using a stretchable belt. The respiration signal indicated minus values in exhausting. The sampling frequency was set at 200 Hz in the ECG and 20 Hz in the respiration, respectively. After these sensors were attached to the participant, they wore their own regulation coats.

2.3 Experimental Procedures

The experiment was conducted at the Health and Sports Technology Laboratory at Kanto Gakuin University. The distance between the shooter and the target was set at 10 m. After donning the coat, each participant demonstrated 10 minutes of sighting shots and 20 trials of competitive shot and then sat in a resting state for three minutes. The participants remained in standing posture for all shots (**Figure 1**).



Figure 1: Typical standing posture of participants in the present experiment.

Table 1: Participants' years of experience

Participant ID	Years of experience
A	7
B	3
C	3
D	1

2.4 Data Analysis

The landing time was detected from the sound data (Figure 2), in particular, the first local maximum value of enveloped waveform. According to the principle of a beam rifle, the landing time was equal to triggering time. The i^{th} landing time is represented as $t_{\text{shot}}^{(i)}$ ($i = 1, 2, \dots, 20$). Based on the time series of the ECG, the occurring time point of the R-wave, t_{R} , which corresponds to the heartbeat, was detected by determining the maximum local value. The RR interval (RRI), or the so-called heartbeat interval, was defined as the difference between neighboring t_{R} , (i.e., $\text{RRI}_{(j)} = t_{\text{R}(j)} - t_{\text{R}(j-1)}$ where $t_{\text{R}(j)}$ stands for j^{th} occurring time point of the R-wave) and the R-wave occurring time point. The RRI trend was further obtained with a sampling frequency of 20 Hz. These signals were collated with landing time points to determine the relationship between triggering behavior and heartbeat following two approaches.

First, the shooting accuracy was quantified as the temporal difference between the landing time and the last R-wave occurring time (R-shot_s interval [s]). Its relative phase was also calculated (R-shot_% interval [%])⁽⁸⁾. This analysis is illustrated in Figure 2. Sampled values among participants were compared statistically using Bartlett's uniformity of dispersion test. A one-way ANOVA was further applied if uniformity among participants was considered, that is, if p-value of the Bartlett's test was ≥ 0.05 . To observe how these variables are related to the score, a scatter plot was drawn, and the regression curve ($y = ax^2 + bx + c$) was obtained using the least mean squares (LMS) method to test the hypothesis that the highest score is given when the triggering action occurred far away from heartbeats. The validity of the regression curve was checked by comparing a formula that assumes that the score is independent ($y = c$) using Akaike information criteria (AIC).

Second, changes to the RRIs during the aiming period were observed^(3,4,9). We determined the RRI trends on the basis of the range between the triggering time point ($t_{\text{shot}}^{(i)}$) and T

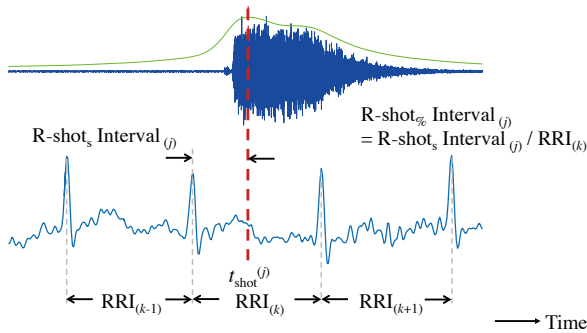


Figure 2: Data analysis

seconds before ($t_{\text{shot}}^{(i)} - T$). It should be noted that the duration T was chosen as less than the former triggering time ($T < t_{\text{shot}}^{(i)} - t_{\text{shot}}^{(i-1)}$) in all participants. Then, the increasing rate ($IR^{(i)}$ (t_{win})) was defined as the quotient of the average of RRIs just before triggering ranged in $[t_{\text{shot}}^{(i)} + t_{\text{win}}, t_{\text{shot}}^{(i)}]$ by that in prior period ranged in $[t_{\text{shot}}^{(i)} + 2t_{\text{win}}, t_{\text{shot}}^{(i)} + t_{\text{win}}]$ with the variable, t_{win} ($-T/2 \leq t_{\text{win}} < 0$). An $IR > 0$ in particular indicates that RRI increased toward shot the triggering. The correlation of the score and the IR was further obtained using t_{win} . The appropriate value of t_{win} was determined when the highest absolute value of the correlation coefficient was obtained.

3 Results

3.1 Scores and Averaged RRIs

The score and RRI (mean \pm SD) are shown in Table 2. Participant A had the highest score, whereas Participant D had the lowest score. RR intervals significantly decreased during all participant's competitive shots. In particular, the RRI of Participant D was close to that of Participant A during the competitive shot, and those two were more extended more than those of participants B and C. The minimum triggering interval was $T = 11.7$ s.

3.2 Shooting Accuracy

Figure 3 shows the temporal difference between triggering and R-wave (R-shot_s interval) in (a), and the relative phase (R-shot_% interval) in (b). The bar length indicates the mean value, and the error bar stands for the standard deviation of the respective participant. From the Bartlett's test, variance of R-shot_s interval for each participant could not be uniformly distributed ($p = 4.51 \times 10^{-5}$), whereas that of R-shot_% interval could be uniformly distributed ($p = 0.53$). As shown in Figure 3(a), the variance of Participant A is the smallest, implying routine behavior. The mean value of R-shot_% interval was then compared using a one-way ANOVA, resulting in a significant difference ($p = 0.035$). The mean value of R-shot_% interval in Participant A was the highest, followed by that of Participant D (Figure 3(b)). These two participants might have been unconsciously using strategies to control their heartbeats. The relationship between the score and R-shot_s interval (Figure 3(c)) or R-shot_% interval (Figure 3(d)) was observed. In each distribution, the regression curve of the quadratic equation was estimated. In both cases, a convex upward curve is drawn. According to the respective regression curve, the value R-shot_s interval required to reach the highest score reached 0.65 s, and the R-shot_% interval required to reach the highest score was 90.9 %. The AIC was estimated to be 309 in the case of the R-shot_s interval and 1,686 in that of

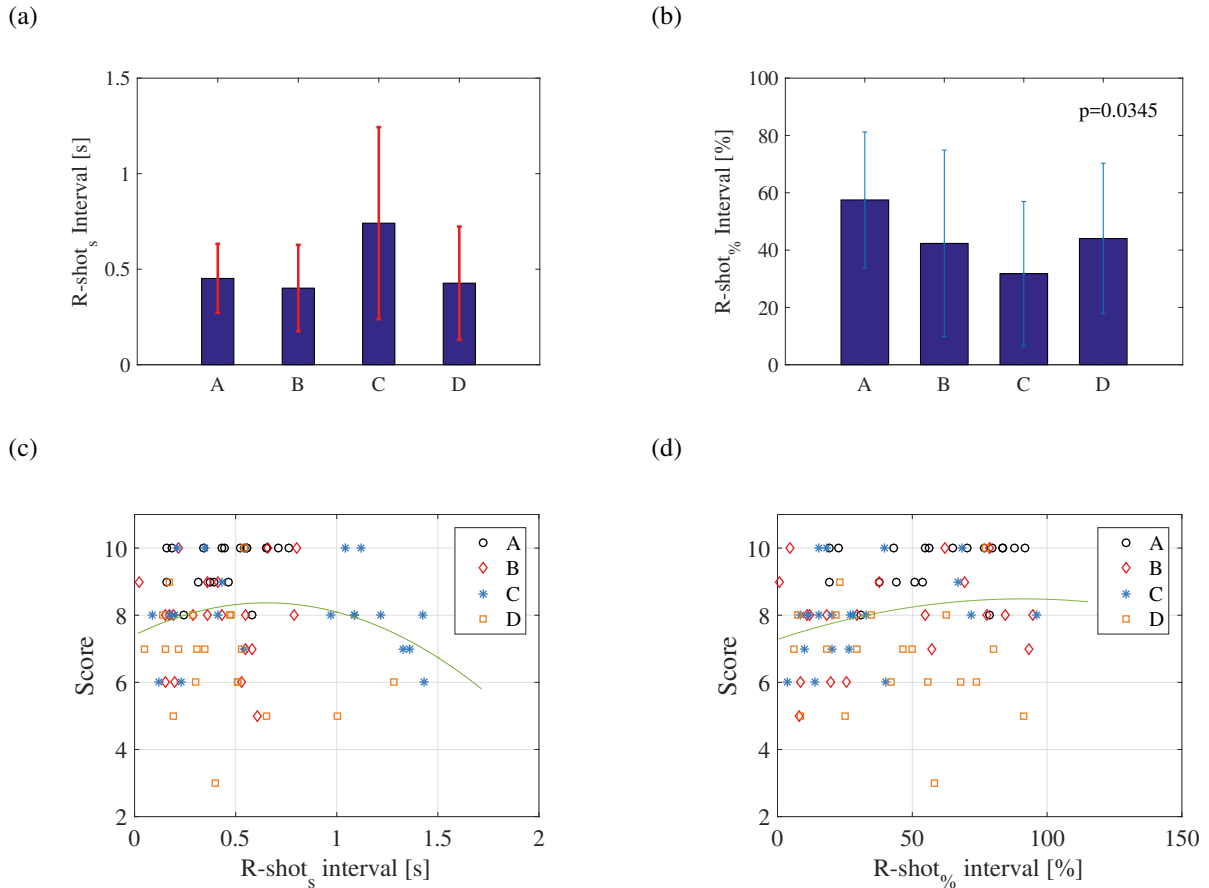


Figure 3: Shooting accuracy. The bar length indicates the average, and the error bar indicates SD. (a) R-shot_s Interval [s], (b) R-shot_% Interval. (c) Correlation between R-shot_s interval [s] and score. (d) Correlation between R-shot_% interval [%] and score.

the R-shot_% interval. Each value exceeded the case assuming that the score did not depend on said value ($y = c$). According to the results, shooters did not control their heartbeats (R-wave) during triggering.

3.3 RR Intervals in the Aiming Period

Figure 4 shows averaged RR interval trends 13 s prior to the landing time. The Trends of participant B and C represented flat, whereas those of the other two participants increased. The correlation between the score and the RRI interval increasing rate ($IR(t_{win})$) was analyzed. The absolute value of the correlation coefficient reached a maximum value when the time window was set at $t_{win} = -5.45$ s (Figure 5). The p-value shown in the figure indicates the result of the correlation test. It is implied that an increased RRI (i.e., decreased heart rate) during the aiming period might result in a higher score.

4 Discussion

The heartbeat activity during the standing rifle shooting was observed in young shooters. Since heartbeats disturb precise coordination during the aiming period¹⁾, they were

analyzed using methods proposed in previous literatures.

Initially, the distance between the triggering (landing) time point and the R-wave occurring time was observed as R-shot_s interval and R-shot_% interval^{3,8)}. Our results showed that the variance of R-shot_s interval in Participant A was relatively short, and the average of R-shot_% interval of Participant A was the highest. The results were complicated as changing order when comparing averages of R-shots intervals (Figure 3(c)) and R-shot_% intervals (Figure 3(d)) between participants. This could be due to dynamic changes during the aiming period (Figure 4). Although the fitting convex upward curve could be obtained, we could not demonstrate that the high score was obtained as a result of triggering times located avoiding heartbeats as was observed in previous studies^{3,8)}. This might be due to the difference in events (archery and biathlon). A lack of awareness could also be a reason since the shooters who participated in this study said they did not clearly realize that heartbeat timings were analyzed in studies in archery³⁾. Therefore, using technology such as biofeedback to study heartbeat could potentially pertain to rifle shooting.

Next, we analyzed RRIs changes during the aiming

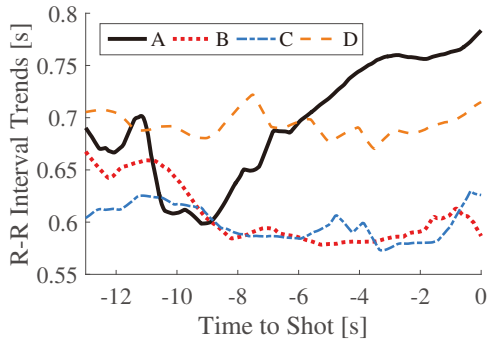


Figure 4: RRI trends during the aiming period

period^{6,9}). The results showed that the RRIs of Participants A and D increased just before triggering, whereas those of Participants B and C did not. This cause is commonly observed in observed in the literature (Table 2). It is shown that the IR proposed in this study is significantly correlated with participants’ scores (Figure 5). Increasing RRI is thought to be induced by exhaling in the respiration. Participant A demonstrated exhaling more precisely than D, whereas B and D tried to pause. These results are agreement with those of some studies^{2,4}) but are disagreement with those of other studies^{7,9}). One possible reason for this discrepancy could be shooters’ different skill levels. The shooters who participated in the present study were young, and Participant A had competed in national rifle competition. Thus, a respiration strategy to increase RRI might be useful for shooters with middle to low skill level. However, few studies have directly analyzed respiration¹⁰), and therefore, respiration needs to be quantified in the future. It is also worth noting that the optimized time window t_{win} should be modified in any continuations of this study.

5 Summary and Future Research

During standing rifle shooting, we clearly showed that, in college-age shooters, changes in RRI during the aiming period were significantly correlated to score. Based on the RRI results, a similar evaluation method was used to directly record respiration. Further analysis is required to quantify respiration strategy. Our study could be expected to be used to understand how to coach rifle shooting as well as the mechanism of precise posture coordination. The effect of these results remains to be seen.

6 Acknowledgements

The Shooting Club in Kanto Gakuin University supported this work.

This work was financially supported by Society of Science and Engineering/Architecture and Environmental Design, Kanto Gakuin University in 2019.

Table2: Score and heartbeat intervals during the rest and the competitive shot (mean ± SD)

Participant ID	Score	RR Intervals [s]	
		Rest	Competitive Shot
A	9.6 ± 0.7	0.72 ± 0.07	0.69 ± 0.14
B	7.9 ± 1.4	0.64 ± 0.03	0.59 ± 0.09
C	8.0 ± 1.3	0.63 ± 0.05	0.61 ± 0.12
D	6.8 ± 1.5	0.85 ± 0.04	0.68 ± 0.08

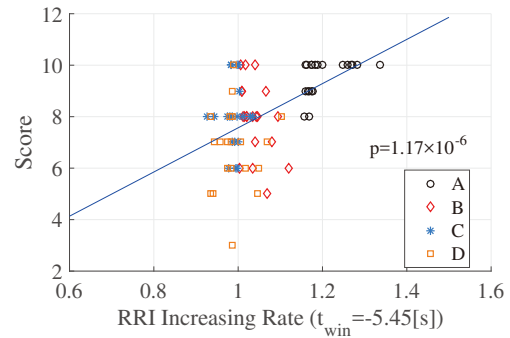


Figure 5: Correlation between RRI increasing rate and the score when the time window $t_{win}=-5.45$ [s].

References

- 1) Gaby Buhlmann, Heinz Reinkemeier, Maik Eckhardt, and Bill Murray, Ways of the rifle, Dortmund, MFC, 2002.
- 2) Yasukazu Hashiguchi and Yasutake Hashiguchi, The physiological and psychological factor analysis related to the results (scores) of archery athletes: The relation of the scores of a sham match with the dynamics of cardiovascular system/psychological state before and after the match, Journal of Biomedical Fuzzy Systems Association, 12(1), 29-36, 2010.
- 3) Kihachi Ishii, Hideyuki Kimura, Masato Sonobe, and Noriyuki Yamamoto, Adjustment of respiration and heartbeat to a moment of releasing in archery, Bulletin of Nippon Sport Science University, 26(1): 1-8, 1996.
- 4) Filipe M. Clemente, Micael S. Couceiro, Ruben Rocha, and Rui Mendes, Study of the heart rate and accuracy performance of archers, Journal of Physical Education and Sport, 11(4): 434-437, 2011.
- 5) Caner Açıkada, Tahir Hazır, Alper Asçı, Sinem Hazır Aytar, and Cevdet Tınazcı, Effect of heart rate on shooting performance in elite archers, Heliyon, 5: e01428, 2019.
- 6) Melissa J. Brown, Richard D. Tandy, Gabriele Wulf, and John C. Young, The Effect of Acute Exercise on Pistol Shooting Performance of Police Officers, Motor Control, 17: 273-282, 2013.
- 7) Maurizio Bertollo, Claudio Robazza, Walter Nicola Falasca, Massimiliano Stocchi, Claudio Babiloni, Claudio

- Del Percio, Nicola Marzano, Marco Iacoboni, Francesco Infarinato, Fabrizio Vecchio, Cristina Limatola, and Silvia Comani, Temporal pattern of pre-shooting psychophysiological states in elite athletes: a probabilistic approach, *Psychology of Sport and Exercise*, 13: 91-98, 2012.
- 8) Germano Gallicchio, Thomas Finkenzeller, Gerold Sattlecker, Stefan Lindinger, and Kerstin Hoedlmoser, The influence of physical exercise on the relation between the phase of cardiac cycle and shooting accuracy in biathlon, *European Journal of Sport Science*, 19(5): 567-575, 2019.
- 9) Niilo Konttinen, Heikki Lyytinen, and Jukka Viitasalo, Preparatory heart rate patterns in competitive rifle shooting, *J. Sports Science*, 16: 235-242, 1998.
- 10) Reijiro Simo, Shgeki kyoudgi ni okeru imeji toreiningu no riron to jissai, (Theory and practice of mental imagery training in rifle shootings), *Journal of the Society of Biomechanisms*, 16(2): 138-143, 1992.

理工 / 建築・環境学会「研究報告」投稿規程

1. 投稿資格

投稿原稿の著者（連名の場合は、その中の1名以上）は、本学理工 / 建築・環境学会会員でなければならない。

2. 著作権

理工 / 建築・環境学会研究報告に掲載された論文などについての著作権は、理工 / 建築・環境学会に帰属する。

また、外部から転載・引用の申請があった場合は、本会において検討の上、許可することがある。詳しくは、理工 / 建築・環境学会著作権規程による。

3. 論文などの図書館ウェブサイト上での公開

掲載された論文などは、関東学院大学図書館ウェブサイト上に公開する。ただし、データの公開範囲は要旨のみとする。

4. 原稿の種類

原稿は、「研究論文 (Research Paper)」、「技術論文 (Technical Paper)」、「研究ノート (Research Note)」および「寄書 (Short Article)」とし、理工学または建築・環境学に関連する領域の和文あるいは英文で書かれたものとする。

4.1 研究論文

- (1) 独創的な研究で、価値ある結論あるいは事実を示唆するものであること。
- (2) 原稿の長さは、図・表・要旨を含め、原則として刷り上がり12ページ以内とする。
- (3) 要旨は、内容をよく表現している英文300語以内で、本文冒頭に添付する。

4.2 技術論文

- (1) 理工学および建築・環境学に寄与する技術、設計、実験、試作などに関する事実あるいは結論を示唆するものであること。
- (2) 原稿の長さは、研究論文に準じる。
- (3) 要旨は、研究論文に準じる。

4.3 研究ノート

- (1) 速報性を有するか、また論文より内容が少ないものであること。
- (2) 原稿の長さは、図・表・要旨を含め、原則として刷り上がり4ページ以内とする。
- (3) 要旨は、内容をよく表現している英文200語以内で、本文冒頭に添付する。

4.4 寄書

- (1) 本誌に掲載された記事についての討論、または本誌の関係領域に対する評論であること。
- (2) 原稿の長さは、図・表を含め、原則として刷り上がり4ページ以内とする。

5. 投稿原稿の取扱い

- 5.1 原稿は、正・副各1部および別途定める指定方法で、理工 / 建築・環境学会編集委員会（学部庶務課内）に提出する。
- 5.2 原稿は、本投稿規程および投稿の手引き（別紙）に従って書くものとする。
- 5.3 投稿原稿の受理年月日は、編集委員会に提出された時点とする。ただし、原稿の書き方が「投稿の手引き」に従っていない場合には、受理しない。
- 5.4 原稿の採否は、編集委員会が決定する。なお、編集委員会は、原稿の内容について訂正を求めることがある。
- 5.5 理工 / 建築・環境学会研究補助費による報告は、「研究論文」あるいは「技術論文」として投稿し、本文の末尾に、「本研究は、（西暦）年度理工 / 建築・環境学会研究補助費を受けたものである。」（あるいは英文の場合は、“This work was financially supported by the Society of Science and Engineering/Architecture and Environmental Design, Kanto Gakuin University in XXXX.”と明記しなければならない。

6. 著者校正

著者校正は、原則として1回とする。なお、この時点で、印刷上の誤り以外の字句訂正は、原則として認めない。

7. 別刷

別刷は、50部を進呈する。50部以上の希望者は、原稿提出の際に、原稿表紙の該当欄に記入して申し込む。その経費は、実費を徴収する。

8. 掲載後の訂正

- 8.1 印刷上の誤りについては、著者の申し出があった場合に限り、掲載する。
- 8.2 印刷上の誤り以外の訂正、追加などは、原則として取り扱わない。ただし、著者の申し出があり、編集委員会がそれを適当と認めた場合に限り、掲載することがある。

9. 規程の改廃

この規程の改廃は、理工 / 建築・環境学会で行う。その後、工学部教授会に報告する。

付 則

この規程は、1998年4月1日から施行する。

付 則

この規程は、2004年4月1日から改正施行する。

付 則

1 この規程は、2013年10月2日から改正施行する。

2 前項の改正に係らず、2012年度までの工学会研究補助費については、なお従前の例による。

理工 / 建築・環境学会「研究報告」投稿の手引き

1. 投稿の準備

- 1.1 表紙は、本会所定のものを使用する。
- 1.2 本文の作成は、下記の用紙を使用する。
 - (1)ワープロ使用の場合、市販の A4白紙。
 - (2)手書きの場合、本会所定の原稿用紙。

2. 原稿の書き方

- 2.1 最近の理工 / 建築・環境学会「研究報告」の体裁を参考にして書く。
- 2.2 文章は簡潔に、原則として当用漢字、現代かな使いで書く。
- 2.3 学術用語は、文部科学省学術用語、または JIS 用語で書く。
- 2.4 単位は、原則として SI 単位を使用する。
- 2.5 ワープロの場合の A4用紙は、縦長・横書きとする。和文の場合は、1 ページあたり全角23字×27行（3 ページが刷り上がり1 ページとなる）、字間はベタ（英文字、数字は半角とする）でよいが、用紙左右の余白として50mm 以上を設けること。また、英文（ワープロ）原稿の場合は、A4用紙に適当なフォントで書くものとするが、1 ページあたり27行を目安とすること。

3. 原稿の構成および長さ

原稿は、「原稿表紙」、「要旨」および「本文」（場合によっては「付録」も含む）からなるものとする。原則として、刷り上がり時の全体の長さは、論文は12ページ以内、研究ノート・寄書は4 ページ以内とする。ちなみに、和文では、手書き原稿用紙8枚、ワープロ原稿用紙3枚、英文では A4用紙2枚が、それぞれ刷り上がり1 ページに相当するので、図表等の刷り上がり寸法を考慮して、ページ数を見積ること。

4. 原稿表紙

- 4.1 原稿種別：原稿の種類（研究論文・技術論文・研究ノート・寄書）を書く。
- 4.2 和文題名：原稿の内容を的確かつ簡潔に表現する題名であること。例えば、「～に関する研究」などの表現はなるべく避ける。副題がある場合は、（ ）で括る。また続報の場合は、括弧で括り、（第 n 報、～）と表現する。
- 4.3 英文題名：和文題目に準じる。“Studies on ～”などの表現はなるべく避ける。題目中の第1文字および名詞、形容詞、動詞の第1文字は大文字で書く。
- 4.4 著者氏名：漢字およびローマ字で書き、学外者の場合は「所属学科」の欄に所属機関名を書く。
- 4.5 連絡先：原稿に関する連絡に当たるため、なるべく学内者とする。
- 4.6 別刷希望部数：進呈される50部以外に希望する部数を50部単位で記入する。

5. 要旨

- 5.1 要旨は、本文の内容が理解できるように英文と和文で書く。
- 5.2 要旨は、目的、方法および成果を簡潔に示すものであること。
- 5.3 英文要旨の長さは、研究論文・技術論文で300語以内、研究ノートで200語以内とする。和文要旨は、英文要旨の和訳である。
- 5.4 英文要旨は、A4白紙に次の順序にしたがい、適当なフォントで1 ページあたり50字×27行を目安に、ワープロで作成すること。和文要旨も、これに準じる。
 - (1)論文題名
 - (2)著者名
 - (3)所属
 - (4)要旨内容
 - (5)キーワード（5語以内）

6. 本文

- 6.1 本文の形式は、特に限定しないが、緒言（緒論）および結言（結論）を明確にし、例えば、「1. 緒言」、「2. 理論」、「3. 実験方法」、「4. 結果および考察」、「5. 結言」、次に「文献」、「付録」などの順にする。研究ノート、寄書についても、これに準じる。
- 6.2 文中の区分は、ポイントシステムにより明確にし、次の例による。

章	1.	2.
節	1.1	1.2
項	1.1.1	1.1.2

 なお、それ以下の区分は(1), (2), (a), (b), ……などとする。

6.3 脚注はなるべく避けること。

6.4 文献について

本文中の記載方法について、参考文献、引用文献は、通し番号を付け、本文の該当箇所に上付き添字¹⁾または^{2), 3)}あるいは^{4) ~8)}のように示し、本文の末尾にまとめて記載する。

図表の転載は、原則として原図のまま使用し、図表名の直後に「文献*」より転載]等と記述すること(*は文献番号)。ただし、図表の場合、翻訳による引用は認められる。

6.5 句読点、括弧、ハイフンなどは、原稿用紙の1コマに書く。新しい行(文節)の初めは、1コマ空ける。

6.5.1 文字および用語

(1)文字は黒色とし、手書きの場合には楷書で鮮明に表記する。

(2)文章の区切りには、読点(,)や句点(.)を用い、それぞれ1字分とする。また、同格の単語を並べる場合は、中点(・)を使用する。

6.5.2 文字の大きさ

文字の大きさは、本文、図表名および図表内の文字・数字・記号とも10ポイント(14級)前後とする。

6.5.3 見誤りやすい文字や記号

印刷や校正時のミスを防止し便宜を図るために、文中および図表の余白部に朱書で以下のように指示する。

(1)ギリシャ文字を使用する場合はその箇所に「ギ」を、立体活字の場合は「立」を、イタリック活字の場合は「イタ」と指示する。なお、ゴシック活字は量記号の場合のみとし、「ゴ」と指定する。

(2)まぎらわしい文字や記号は、カタカナ書きの発音を指示する。

[例]ローマ字、ギリシャ文字、数字の区別:O(オー)と0(ゼロ)、r(アール)とγ(ガンマ)、l(エル)と1(イチ)、上ツキ・下ツキの指示、大文字・小文字の指示など。

6.6 本文中で図・表を引用する場合は、Fig.1, Fig.2, ……、Table 1, Table 2, ……と表現する。

6.7 数字および数式

6.7.1 数字

(1)数量や序数を表す数字はアラビア数字を使用し、漢字と結合して名称や概数を表す場合は漢数字を使用する。

例:10m, 第4章

三角形, 数百例, 一条ねじ

一つの, 二, 三の例, 一例をあげると

(2)小数点および桁区切り

小数点は、0.123のように書き、.123のように書かない。桁区切りについては、456789のように書き、456,789のように書かない。

6.7.2 数式

(1)数式を文中に書く場合には、下記の形式Aに示すように、1行におさまる表記法を用いる。行を改めて数式だけを書く場合には、できるだけ形式Bを使用する。また、必要に応じて式番号を括弧内に付ける。代数記号は、イタリック体とする。

形式A	形式B
$(a + b)/(c + d)$	$\frac{a + b}{c + d}$

(2)文中に式番号を記載するときは、Eq.(1), Eq.(2)……のように書く。

6.8 単位・量・数学・化学記号

6.8.1 単位・量記号

単位および量記号は、原則としてSIによる。ロマン体(立体)とする。

6.8.2 数学記号

数学記号は、「JIS Z 8201」(数学記号)による。ロマン体(立体)とする。

6.8.3 化学記号

化学記号は万国化学記号による。ロマン体(立体)とする。

6.9 使用機器、サンプル、試薬等の製造会社名、形式、提供者名などは、謝辞に記載する。

7. 図（写真を含む）および表

7.1 図表の選択

図（写真を含む）および表は、類似のものが重複しないように十分検討し、本文を理解するために必要な代表的なものに限定するとともに、その内容を本文中で詳細に言及し、読者が十分に理解できるようにしなければならない。指定の図表用紙に記載すること。

図の描き方は、原則として「JIS B 0001」および「JIS Z 8310」による。

7.2 図表の内容、図番、図名、表番および表名

- (1)図表は、原則としてA4白紙に書き、1枚1図あるいは1表とする。提出されたものが、版下となるので、鮮明な図表を用意すること。なお、図表のトレースを希望する場合は、編集委員会までその旨連絡すること。この場合の料金は実費を徴収する。
- (2)図番または表番は英語で記述する。また、図番および表番は、それぞれ Fig.1, …, および Table 1, …のように通し番号とする。
- (3)図表の内容はすべて英語とする。図表中の文字もそのまま縮小されて写真製版されるので、縮小されても最低2mmの高さになるように、図表中にレイアウト（切り貼りなど）すること。線の太さ、文字の大きさなどに注意して黒インクで描く。図中の文字・数字・記号などはレタリングガイドを使用するか、ワープロで印字したものを貼り込む。
- (4)図表の刷り上がり寸法は、原則として横6cm、13cmのいずれか2種類とする。希望の刷り上がり横寸法（6cmあるいは13cm）を余白に朱書しておくこと。
- (5)図番および図名は図の下部に、表番および表名は表の上部に書く。
- (6)図表の挿入位置は、本文原稿の右余白に明記する。
- (7)写真は図と同様に扱い、コントラストの明瞭なものをA4白紙に貼付する。カラー写真は刷り上がりは白黒となるが、特にカラーでの掲載を希望する場合は、その旨編集委員会まで連絡のこと。この場合の料金は実費を徴収する。
- (8)不鮮明な図表に対しては、編集委員会から再提出を指示することがある。また、編集委員会の判断で図表のトレースを印刷所に依頼することがある。この経費は、実費を徴収する。

8. 文献（引用文献・参考文献）

8.1 文献の選択

文献は、特に必要とするものにとどめ、一般に公表されていない文献、例えば配布を限定された委員会報告や社内報告などは、やむを得ない場合を除き文献としない。

8.2 著作者の許諾を得ずに引用できる範囲

執筆しようとする記事のなかで、他の著作物（文献）を引用する際は、以下の二つの条件を同時に満足する場合を除き、原則として事前に当該文献の著作者の許諾を得なければならない。

- (1)自分の著述が〈主〉で、引用部分が〈従〉である場合。
- (2)引用の目的が公正な範囲を逸脱していない場合。すなわち、自分の意見を補強したり、他人の意見を批評する等の目的で引用する場合。

8.3 文献を引用・参考にする際の履行義務

他の著作物を引用・参考するにあたっては、許諾の必要性の有無に拘らず、以下の事項を順守すること。

- (1)出所（書誌事項）を明示すること。この際、連名の著作者を一人で代表させたり、題目を省略したりすることは、著作者人格権の立場から好ましくない。
- (2)引用箇所を明確にすること。ただし、要約、翻訳による引用は認められる。
- (3)図表の転載は原則として原図のまま使用し、図表名の直後に「文献*」より転載]等と記述すること（*は文献番号）。ただし、図表の場合、翻訳による引用は認められる。

8.4 文献の記載方法

(1)雑誌の場合

著者名：題目、雑誌名（省略不可）、巻、号、ページ（例えば ppX-Y）（西暦発行年）の順に記載し、著者名は連名者も含めて全員の姓名（フルネーム）を記載する。

[例]

- 1) 設計太郎：CAD 設計論，設計工学，23，12，pp11-18 (1994).
- 2) Boyd, J., Jones, P. and Raimondi, A. A. : Bearing Theory in Analysis and Design of Journal Bearings, J. Appl. Mech., 73, 2, pp298-315 (1951).

(2)書籍の場合

著者名：書籍名，ページ（例えば ppX-Y），発行所，（西暦発行年）の順に記載する。

[例]

1) 製図花子：機械設計製図の実際と理論，pp132-145，川三書房，(1978).

2) Douglas, R. A. : Introduction to Solid Mechanics, pp53-60, Wandsworth Pub. Co., (1963).

9. 付録

本文中に入れると論旨が中断したり，煩雑になる事柄は，付録として「文献」の後に入れる。付録をつける場合は，本文中に付録に記載したことを述べる。

付録に出てくる図表および本文とは関係のない数式は，本文とは独立した図・表・式番号をつける。例えば，Eq. (A-1)，Fig. A-1，Table A-1のようにする。

10. 原稿の提出

表紙や内容を確認した上で，正・副各1部（表紙，本文，図，表，英文要旨，和文要旨）を提出し，かつ，指定のメールアドレスへ Word データをもって提出する。

付則

この手引きは，1998年4月1日から施行する。

付則

この手引きは，2004年4月1日から改正施行する。

付則

この手引きは，2013年10月2日から改正施行する。

研究報告 Vol. 63 (通巻110号)

2020年3月1日 印刷・発行 ©

編集・発行 関東学院大学理工／建築・環境学会

〒236-8501 横浜市金沢区六浦東1丁目50-1 ☎045-786-7096

印刷・製本 株式会社ポトサイ下印刷

JOURNAL OF TECHNOLOGICAL RESEARCHES

Society of Science and Engineering/Architecture and Environmental Design, Kanto Gakuin University

Vol. 63
March 2020

CONTENTS

Kazuyoshi KAWAHARA, Sho NOGUCHI, Sakura ONOUE: Preparation of peptidoglycan from <i>Lactobacillus fermentum</i> and analysis of amino acids contained in it using GC-MS.....	1
Yumi SHIMIZU, Yuko SUGAWARA: Heparinase gene homolog is essential for the DBB staining reaction in <i>Cryptococcus neoformans</i>	5
Kie TAKAHASHI, Hirokazu IIDA: Synthesis of anti-Bredt compounds and structural analysis by 2D NMR.....	13
Yuna MURAYAMA, Mai AKASE, Takahiro KIDO, Kazunori MATSUI: Preparation and Photoluminescence Properties of SrAl ₂ O ₄ : Eu ²⁺ Phosphors Sintered in Air Atmosphere	19
Tomoya HOTTA, Jun SATO: Practical and Effect of Using VR Contents on University's Open Day (In Case of Course in Mechanical Engineering)	23
Ryo YAMAIZUMI, Katsuhiko TAKEDA, Kazuhiko ITO: Historical Transition of Automotive Technology Review through the Type 17 Datsun Second Report	31
Terunao KISHIDA, Reo MIWA, Norifumi MIYANAGA: Experimental investigation of hydrodynamic lubrication characteristics of dimpled parallel plate bearings	39
Mitsumi NIHEI, Reo MIWA, Norifumi MIYANAGA: Influence of Grease Rheology on Frictional Torque of Rolling Bearings	45
Nozomi KODUTUMI, Hayato KOMATSU, Takumi SUZUKI, Mitsuo UCHIYAMA: Combined Processing of Electrochemical Machining and Anodic Oxidation Machining using Phosphoric Acid Aqueous Solution.....	51
Yuhei ISHIZAKA: An initial consideration of an academic paper archiving system based on blockchain	59
Noriyoshi OKAMOTO, Daisuke TAKAHASHI, Yuuki IWASA, Kahoru NAKAYASHIKI: The Imaging Method for Iris Certification Using Visible Image	65
Wataru KAMBE, Tomoyuki SAITO: A REPAIRING METHOD FOR JOINTS IN DAMAGED BRACE SHEAR WALLS -EXAMINATION USIG EPOXY ADHESIVE-	73
Yushi NOGUCHI, Taeko YAMAHIRA: A study of consciousness investigation of chemistry among high school students in Kanagawa prefecture	81
Minato KAWAGUCHI, Hiroshi SATO, Iku MATSUMOTO, Susumu TAKEMURA, Kentaro TAKAHASHI: Characteristics of Heartbeat Activity of College-Age Shooters in Standing Rifle Shooting	89