

Simulation Study Aiming at Fusion Reactor Development

Motoi Wada*

(Received September 10, 2021)

Summary: More than 99.9% of the matter in the universe is believed to exist as plasma: the fourth state of matter. Brilliance of stars originates from nuclear fusion reaction converting light nuclei to heavier nuclei in gravity confined stellar plasma. As early as 1950s, humankind has started the study on nuclear fusion reaction to utilize it as the energy source for generating electricity. We named the original device "stellarator": an apparatus replicating the mechanism of stars for harvesting energy. However, the high-temperature plasma in the machine disappeared as it touched the wall and sophisticated confinement and/or compression by magnetic fields and lasers were necessary. Numerical simulations were attempted to find a possible way to achieve fusion condition from early days, but computers up to recent generation have neither enough capability to store all necessary data nor speed to calculate plasma behavior for required duration of time. Researchers working on numerical simulation study on high temperature plasma, plasma material interaction and fusion confinement system initiated a project for setting up a virtual plasma machine in a computer. The status of the project to realize numerical simulation nuclear fusion reactor is described together with the prospect of experimental research advancement for obtaining fusion conditions.

Key words : thermonuclear fusion, computer simulation, nuclear fusion reactor

キーワード : 熱核融合, 計算機シミュレーション, 核融合炉

核融合炉開発を目指したシミュレーション研究

和田 元

1. はじめに

放射線は怖い, 原子力は危ないと言う話をよく聞くが, 残念ながら歯医者でも健康診断でも X 線を浴びているのみならず, 誰にも平等に自然放射能が降り注いでいる. 太陽は巨大な核融合反応炉なのである. 意外と認識している人が少ないのかも知れないが, 太陽に限らず, 星がエネルギーを発するのは核融合反応によってであって, 太陽での原子核反応エネルギーをもとに太陽光発電や風力発電が可能となっている. この太陽がエネルギーを発生するメカニズムを利用してエネルギーを得

ようとは誰でも考えることで, 1950 年代からステラレーター(stellarator : 星の燃えるエネルギーを利用しようと star, solar に因んで)と命名された装置を用いた研究が開始された. その当時から, 太陽の中心温度, 1600 万度よりも 1 桁高い温度が必要となりそうなことは分かっていたが, 全く温度は上がらない. これは考えて見れば当たり前の話で地上の温度は絶対温度で 300 度程度, 核反応に必要な 1 億度の物体はあつという間に冷えてしまって, 長時間保持できないのである. もともとステラレーターは磁場を用いて, 電流が流れるプラズマを

*Harris Science Research Institute, Doshisha University, Kyoto
Telephone: +81-774-65-6351, FAX: +81-774-65-6801. E-mail: mwada@mail.doshisha.ac.jp

固体壁から離しておこうとする考え方で、これとは別にレーザーで冷える前に温度を上げ切ってしまうという方法もある。実はこの方式も古くから続けられてきた。米国の National Ignition Facility は 1.35 MJ の核融合反応熱をレーザー核融合で実現したとの報告を、2021 年 8 月 17 日に Science Web 版に掲載している¹⁾。磁場核融合、レーザー核融合のどちらも、実現のためには多大なる基礎研究と技術革新が不可欠な状況にある。

現代は設計や動作確認に、計算機シミュレーションが多用される時代となっている。そもそも、核融合を実現するには高温状態の創出が必要で、高温になると物質は全てプラズマ状態となる。「電磁流体」とよばれる、もともと難解な流体力学に、さらに電磁場との相互作用を組み入れる必要があり、複雑な問題を好む数値シミュレーション研究者にとって興味深い学問領域である。現在の計算機能力からみて、近い将来に実現可能であるかは疑問ではあるが、今まで研究してきたプラズマの数値計算シミュレーションを繋ぎ合わせ、何とか計算機の中に「核融合プラズマ」を作ってみようとするプロジェクトが自然科学機構核融合科学研究所で開始されることになった。プロジェクト自体の活動とその成果の内容については文献^{2,3)}に譲るとして、本稿では核融合炉を実現する上で必要と予想されるシミュレーション研究全体についての将来予想を試みる。

2. 数値実験炉の構成要素

核融合炉を計算機の中にモデル化して実験しようとなると、どれだけのことが必要になるかを模式的に描いたのが図 1 である。核融合研究ではレーザーや粒子ビームを用いた慣性閉じ込め型の方式も推進されているが、ここでは磁場閉じ込め型核融合方式について概説する。まず、高温プラズマは超伝導コイルにより形成された強磁場中に閉じ込められる。磁場強度は、現在実験炉として建設が進められている ITER⁴⁾で 11.8 T が形成される予定であり、ドーナツ型のプラズマ容器中心部のプラズマ温度は 1 億 5 千万度に到達するものと期待され

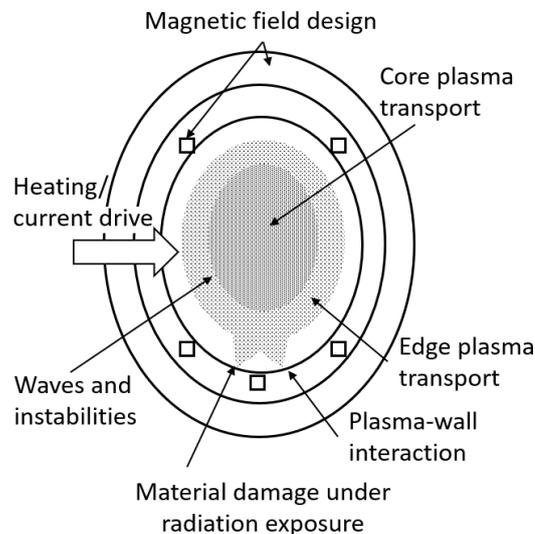


Fig. 1. Schematic illustration showing the components of numerical simulation fusion reactor.

ている。この高温プラズマを生成するには、中性粒子加熱装置と高周波電磁場加熱装置が用いられ、これらの加熱機構を用いてプラズマ中に流れる電流分布を制御し、プラズマを安定に維持する計画である。高温プラズマは強い磁場で閉じ込められると言っても、構成粒子は互いに衝突して拡散する。高速粒子は拡散によって中心部から周辺部に移動して、周辺領域にも境界プラズマやエッジプラズマと呼ばれる温度の低いプラズマを形成し、最終的にはダイバーター(divertor)と呼ばれる機構によって排気される。ダイバーター表面では実際にプラズマが固体壁に触れる。高温プラズマを通常物質にそのまま触れさせるわけにはいかないので、ダイバーター部分ではガスを注入してプラズマの冷却⁵⁾が行われるが、それでも装置の壁はプラズマからの高エネルギー粒子や光子によって損傷を受ける。

以上のプラズマ閉じ込め装置内部で生じている物理過程全てを数値計算モデル化し、統合化しないと「数値実験炉」は実現しない。プラズマのシミュレーションでは個別粒子を追跡してプラズマ全体の振る舞いを導き出す PIC(Particle in Cell)法があるが、閉じ込め装置の大きさが数 10 m に及ぶ核融合実験プラズマに適用するのは現実的ではない。当

然、簡略化のために物理模型を立てて対象領域内で計算を行い、最終的にこれら要素部分の計算結果を境界で接続するプロセスを取ることになる。するとこの境界部分をさらにモデル化することになり、この結果が接続された两部分の境界条件を変化させることになる。図1には書かれていないが、プラズマ反応過程全体を統合化するプログラムが必要になるのである。書いてしまえば簡単そうに聞こえるが、この統合化作業は、全ての要素プログラムを熟知している研究者が、個別プログラムの専門研究者と協力して、動作確認を行いながら進めていく必要があり、時間とコストのかかるものとなっている。

3. 工学的課題の取込み

現状の「数値実験炉」は、未だに物理モデル研究段階にある。個別の計算モデルで予想できるのは物理にもとづいたプラズマの振る舞いや、プラズマ壁面相互作用の特性であり、実験炉は設計上のハードウェアが設計機能を果たした時にプラズマ中の空間分布や時間発展から、出力が得られるところまでを計算できる。ここまでの機能実現でも多大な努力が要求されるが、さらに将来、一段進めてコンピューター上に仮想的な核融合炉を実現し、装置寿命まで含めた性能確認が行われるようになるまでには信頼性の高い工学的要素データが必要になる。

現在ハリス理化学研究所部門研究，“シミュレーション科学による未来エネルギーと地球資源活用”のサブテーマの一つとして、未来の核融合発電のサステナビリティについて研究を進めており、本部門研究で取り組んでいる内容が、将来的にどのように数値実験炉に利用されていく可能性があるか、占ってみたい。図2に対象としている磁場閉じ込め型核融合装置の構成要素の一つである中性粒子入射装置の概要を示す。図1では矢印で象徴されていた加熱機構であるが、閉じ込め装置本体と同じくらい高度な技術を必要とする装置である。水素イオンを生成して静電的に加速し、運動エネルギーを与えておいて中性化し、閉じ込め磁場領

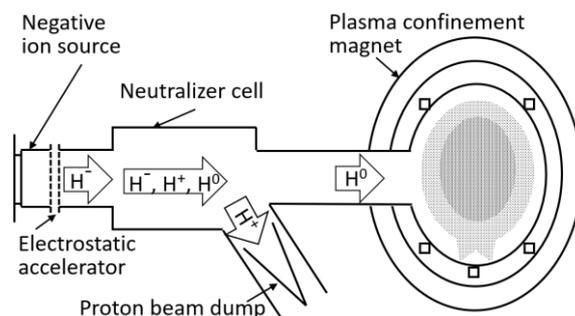


Fig. 2. Negative ion based neutral beam heating system for magnetic confinement fusion reactor. In the figure, H^- , H^+ and H^0 mean negative hydrogen ion, proton and neutral hydrogen atom, respectively.

域を通過させてプラズマ中で再電離させ、強磁場中に補足し、プラズマ中の燃料粒子とクーロン相互作用させて加熱する。また、プラズマ中での電離により電流を作り出すことができるので、電磁流体として不安定化する可能性のある核融合プラズマの電流密度分布を適切に制御することにより、安定化させる機能を果たす予定で研究が進められている。

核融合プラズマの実現に、現状は不可欠と考えられている中性粒子入射装置であるが、工学的課題を多く抱えている。まず図2中にあるように、水素（あるいは重水素）負イオン H^- (D^-) を 1 MeV の電圧で静電加速する。負イオンとともに、電子も加速されてしまうこと、中性化し易い H であっても中性化効率は 100% ではないことにより、効率が悪いことから、さまざまな箇所が高エネルギービーム照射を受ける。特に負イオンをイオン源下流に向けて加速するので、下流側で発生した陽子などの正イオンはイオン源に逆流する。これを模式的に示したのが図3である。実際に負イオン源の後部端板（引き出し電極に対向する面）に、下流側から加速器を逆流して到達している高エネルギー粒子が存在することを Ikeda らが報告している。このような高エネルギー正イオンは逆流イオン (Backstreaming ions) と呼ばれ、イオン源端板には大きなスパッタリング (表面損耗) 耐性を持つ Mo 製の防護壁 (Armor tile) が取り付けられる予定である。

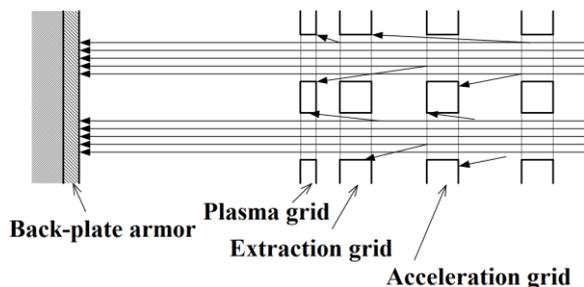


Fig. 3. Expected trajectories of back-streaming ions in the electrostatic accelerator of negative ion source.

後部端板の損傷を抑えるために配置される Mo 板であるが、加熱システムがうまく機能したなら、スパッタリングは問題にならないだろうと予想されている。これは重水素のエネルギーが 1 MeV であり、スパッタリングのエネルギー領域と言うよりは、イオンインプランテーションの領域に入るからである。高速の重水素は表面付近ではあまり Mo 原子核と相互作用せず、ある程度減速された内部で運動量を Mo に与えるので、Mo は表面まで到達できない。そこで 1 MeV の重水素が Mo 中にどこまで進入するかを計算して見た。意外なことに古いデータしか見当たらず、今回は文献 7 に報告されているテーブルデータを関数フィットして (図 4) 利用した。結果を図 5 に示す。

図 5 より分かるように 1 MeV の重水素は Mo 中に 6 μm の深さまで進入する。重水素の Mo 中での拡散係数は Tanabe ら⁸⁾が調べており、水素に比べ

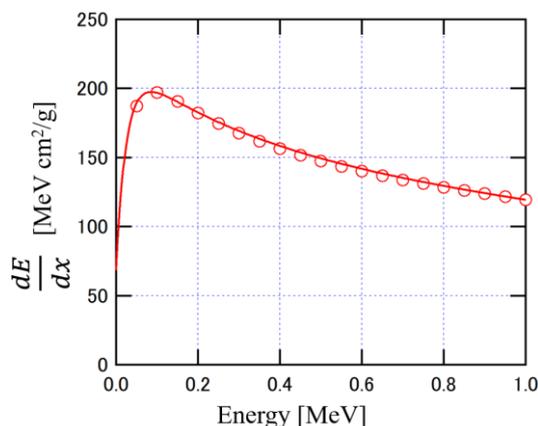


Fig. 4. Stopping power data plotted as a function of deuteron energy. After ref [7].

れば一桁以上小さい。従ってボイドや内部応力の発生が心配される。あるいは注入層を境にして剥離が生じる可能性もあるが、蓄積による経時劣化について何らかの結論を導くには、今回の計算結果をもとにしたシミュレーションが必要となる。

4. 統合化に向けて

逆流イオンによる中性粒子入射システムの経時劣化は、工学レベルでの数値実験炉構築に必要な要素開発の一例である。一つの要素は関連して生じる全ての現象を加味しておかなければならない。その上で他の要素との相互干渉を考慮して統合化される必要がある。中性粒子入射システムの場合について見れば、逆流イオンは劣化メカニズムの一要素でしかなく、例えば他にも静電加速器であるため、高電圧放電が生じる可能性がある。また、水素や重水素の負イオンを、電子電流が少ない状態で引き出す必要があるため、引き出し電極の仕事関数を下げることが必要とされている。このことから金属 Cs が用いられ、イオン源内に Cs が蓄積され、経時劣化の原因になると危惧されている。

中性粒子入射装置の現在の設計では、核融合プラズマを直接覗く構造となっている。核融合プラズマからは中性子や X 線が放射され、イオン源は高エネルギー粒子線の照射を受けた状態で運転さ

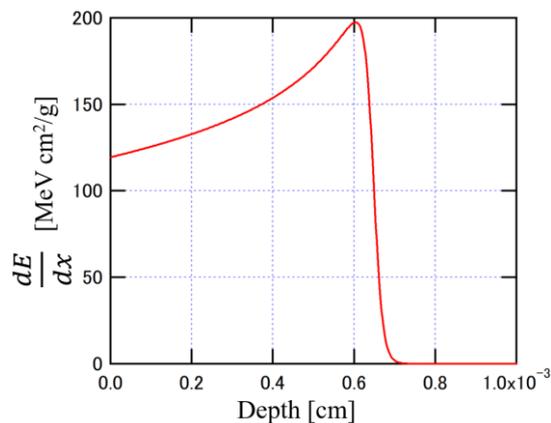


Fig. 5. Nuclear stopping for 1 MeV initial energy D in solid Mo plotted as a function of distance. The Bragg curve shows the peak at 6 μm.

れる。中性粒子入射系が高電圧放電を起こす可能性を抱えているのと同様に、閉じ込め装置中のプラズマもディスラプションを起こして、機器に深刻な損傷を与える原因になる。現在の数値実験炉では残念ながら、これらの非線形現象が取り込まれておらず、工学設計を行うには時期早尚と言わざるを得ない。今回検討した逆流重水素イオンの損傷評価についても古いデータしか参考にできなかった。実験によりデータを蓄積するためには、コストはかかっても ITER のような巨大で複雑な実験装置を建設し、実際に動かして検証するしか無いようである。

核融合科学研究所のプロジェクトも、研究所が有するヘリカル型閉じ込め装置、LHD (Large Helical Device) と量子科学研究機構が有する JT-60U などのトカマク型装置で得られたデータと比較検討を行い、要素部分の信頼性向上に努めている。個別要素を統合化して実験データが再現されるようになれば、始めてその時に統合化作業の工学的検証フェーズに着手できるように思われる。

実験炉プロジェクトへの期待

部門研究タイトルで掲げている通り、未来エネルギーは地球資源の利用の観点から見て、持続可能なものでなければならないと考えている。核融合のメインの燃料である重水素は、地球が海水を多量に保持しているため、これを使い切る心配はないだろう。しかし、現在の計画では中性子を使って三重水素を Li から作り、これを燃料として用いる計画となっている。核反応としては、



などが挙げられる。中性子で三重水素が得られるので、Be や Pb など、中性子を増殖する元素などを炉のプラズマに近い側に置く構造が提案されている。特に Be は核融合プラズマと向き合う壁の材料としても用いられる予定であり、これら材料の資

源リサイクルを考慮しておく必要がある。Li についてはバッテリーでのリサイクル技術開発が進むものと予想されるが、核融合発電の場合、運転中は中性子が発生するので随時交換可能な状態にはならない。安全で環境負荷の低い運転を、地球資源の有効利用を担保しつつ実現するためには、予め資源消費が予測できるレベルにまで、データを蓄積しておく必要がある。

これを全て数値実験炉がシミュレーション計算する必要は無い。恐らく、そこまでのコード統合化は不可能だと考えられるし、中性粒子加熱システムの放電やディスラプションについては、実験データをもとに確率的に頻度を予測し、寿命予測に繋げていくことが現実的と思われる。むしろ実験炉の研究開発については、現在行っている数値実験炉と既存実験装置データとの検証を進め、ITER プラズマの予測、DEMO 炉の予測を行い¹⁴⁾、個別シミュレーションプログラムで核融合炉構成要素の性能評価と寿命予測、運転シナリオの検討を行うことが現実的と考えられる。

計算機科学による核融合炉の実用化

コロナ蔓延が始まる 2019 年 12 月に ITER で行われる核燃焼プラズマ実験の解説記事¹⁰⁾が発表された。その一年後には核融合発電の経済性を疑問視する記事¹¹⁾が発表され、本稿の冒頭で触れたレーザー核融合の成功についても詳細な情報は明らかにされていない。賛否両論があるものの、この 70 年で核融合研究は着実に進歩した。この進歩に大きく貢献したのが計算機科学であり、半導体の微細化技術に限界が見えてこようとも計算機性能は改善されると予想されている¹²⁾。計算機技術の進歩とともに、「計算機の中に発電所を建設して性能評価を行う」時代が到来すると信じたい。金食い虫の大型装置の建設は、ITER でなんとかお終いにしえて欲しいものである。

中性粒子入射加熱システムを駆動する負イオン源に使用する Cs 量を評価・抑制する研究¹³⁾を継続中であり、現状においては ITER の要求が満足できない状況が危惧される。しかしながら、各要素の研

究開発がさらに進み、うまく要素を組み合わせることで全体としての性能を最適化できるようになれば新たな可能性：小型核融合発電炉等の検討にも役立て得るものと思われる。これまでのプラズマシミュレーションは適度に難しく興味を持つ研究者によるボランティア的貢献が大きく、発展してきたように感じている。人類の楽しみをAIに奪い去られたくないものである。これからも地球環境に優しい未来機器設計のため、シミュレーション科学が発展していくことを期待する。

本研究の一部はハリス理化学研究所の部門研究の一環として行われた。

参考文献

- 1) D. Clery, “With explosive new result, laser- powered fusion effort nears ‘ignition’”, *Science*. Aug. 17, (2021). (<https://www.sciencemag.org/news/2021/08/explosive-new-result-laser-powered-fusion-effort-nears-ignition>)
- 2) 堀内利得, 市口勝治, Nicolas Timothee, 佐藤雅彦, 石澤明宏, 石崎龍一, 菅野龍太郎, 佐竹真介, 沼波政倫, 仲田資季, 登田慎一郎, 山岸統, 洲鎌英雄, 渡邊智彦, 石澤明, 藤堂泰, Wang Hao, 西村征也, 横山雅之, 鈴木康浩, 河村学思, 中村浩章, 齋藤誠紀, 伊藤篤史, 高山有道, 石黒静児, 伊藤淳, 宇佐見俊介, 大谷寛明, 坂上仁志, 樋田美栄子, 長谷川裕記, 三浦英昭, “プロジェクトレビュー：核融合科学研究所における数値実験炉研究プロジェクト”, *プラズマ・核融合学会誌*, **92**, 785-831 (2016).
- 3) 洲鎌英雄, 市口勝治, 鈴木康浩, 佐藤雅彦, 三浦英昭, 石崎龍一, 古川勝, 登田慎一郎, 仲田資季, 沼波政倫, 松岡清吉, 佐竹真介, 菅野龍太郎, 藤堂泰, 樋田美栄子, 山口裕之, Wang Hao, 關良輔, 河村学思, 中村浩章, 伊藤篤史, 高山有道, 藤原進, 横山雅之, 奴賀秀男, 鈴木千尋, 村上定義, 森下侑哉, 石黒静児, 伊藤淳, 宇佐見俊介, 大谷寛明, 坂上仁志, 長谷川裕記, 森高外征雄, 堀内利得, 三浦英昭, 宮澤順一, 大野暢亮, 陰山聡, 田村祐一, 北澤修太, 片桐孝洋, 大島聡史, 永井亨, 名倉成輝, 川原慎太郎, 胡昆祁, 小山田耕二, 後藤拓也, 嘉無木昇, 高丸尚教, Petrosky Tomio, 田中智, “プロジェクトレビュー：核融合科学研究所における数値実験炉研究プロジェクト”, *プラズマ・核融合学会誌*, **96**, 576-635 (2016).
- 4) A. Foussat, N. Mitchell, R. Gallix, M. Gandel, K. Hamada, S. Koczorowski, K. Seo, C. Boyer, M. Le Rest, B. Martin, C. Jong, A. Devred, J. Y. Journeaux, A. Alekseev, C. Gung, P. Petit, J. Reich, A. Bonito Oliva, A. Bellesia, E. Boter, Rebollo, R. Harrison, N. Koizumi, T. Hemmi, K. Matsui, M. Nakahira, “Overview of the ITER Toroidal Field Magnet System Integration”, *IEEE Trans. Appl. Superconductivity*, **26**, 7422681/1-5 (2016).
- 5) C.S. Pitcher, P.C. Stangeby, “Experimental divertor physics”, *Plasma Phys. Controlled Fusion*, **39**, 779-930 (1997).
- 6) K. Ikeda, M. Kasaki, H. Nakano, K. Nagaoka, M. Osakabe, S. Kamio, K. Tsumori, S. Geng, Y. Takeiri, *AIP Conference Proceedings*, **1869**, 50004/1-8 (2017).
- 7) C.F. Williamson, J-P. Boujot, J. Picard, “Tables of range and stopping power of chemical elements for charged particles of energy 0.05 to 500 MeV”, *Report CEA-R3042*, Centre D’Etudes Nucleaires Saclay, 1-296 (1966).
- 8) T. Tanabe, Y. Furuyama, N. Saitoh, S. Imoto, “Determination of Deuterium Diffusion Coefficient in Metals by Ion Driven Permeation Technique”, *Trans. Jpn. Inst. Metals*, **28**, 706-714 (1987).
- 9) M. Rubel, “Fusion Neutrons: Tritium Breeding and Impact on Wall Materials and Components of Diagnostic Systems”, *J. Fusion Energy*, **38**, 315-329 (2019).
- 10) R.H. Hawryluk, H. Zhom, “The challenge and promise of studying burning plasma”, *Phys. Today*, **72**, 12, 34-40 (2019).
- 11) W. Manheimer, “ITER and the prospects for commercial fusion”, *Phys. Today*, **73**, 7, 10 (2020).
- 12) C.E. Leiserson, N.C. Thompson, J.S. Emer, B.C. Kuzmaul, B.W. Lampson, D. Sanchez, T.B. Schardl, “There’s plenty of room at the top: What will drive computer performance after Moore’s law?”, *Science*, **368**, 9744 (2020).
- 13) M. Wada, “Plasma-surface interaction in negative hydrogen ion sources”, *Rev. Sci. Instrum.* **89**, 052103/1-7 (2018).
- 14) F. Romanelli, “Fusion Electricity: A Roadmap to the Realization of Fusion Energy”, *European Fusion Development Agreement* (2013). <https://www.euro-fusion.org/wp-content/uploads/2013/01/JG12.356-web.pdf>

Synthesis of Ionic Plastic Crystals and Their Evaluation as Media for Proton Transfer

Yoshifumi KIMURA*

(Received September 17, 2021)

Proton transfer reactions of photoacids doped in 1-methylimidazolium triflate ([HMIM][TfO]) have been studied by fluorescence spectroscopy. At room temperature, [HMIM][TfO] exists as solid, and at 86°C [HMIM][TfO] shows a phase transition into a plastic crystal (PC) phase. The fluorescence spectra of 2-aminopyridine revealed high acidity of [HMIM][TfO] in solid and PC phases. The fluorescence spectra of 6-hydroxyquinoline (6HQ) revealed that the proton transfer reaction occurs from 1-methylimidazolium to 6HQ in the electronic ground state even in a solid phase. The fluorescence spectrum of 8-hydroxypyrene-1,3,6-trisulfonic acid trisodium salt (HPTS) showed unique dependence on the water concentration contaminated in [HMIM][TfO]. In dried [HMIM][TfO] no proton transfer was detected for HPTS. However, in existence of a small amount of water less than 2 wt%, the excited state proton transfer from HPTS to water occurred and the intense fluorescence from anionic form of HPTS was observed. In a PC phase, the intensity of the fluorescence from the anionic form decreased. Slight increase of water in [HMIM][TfO] (2 wt%) resulted in a decrease of the yield of proton transfer. These results were interpreted by the complexation of water and HPTS and the rotational freedom of [HMIM][TfO].

Key words : proton transfer, ionic plastic crystal, fluorescence spectroscopy

キーワード : プロトン移動, イオン性柔粘性結晶, 蛍光分光

プロトン移動媒体としてのイオン性柔粘性結晶の合成と評価

木村 佳文

1. はじめに

活性プロトンのカチオンにもつプロトン性イオン液体は、他のイオン液体にない反応媒体としての特徴をもつ^{1,2)}。特にカチオン、アニオンの構成を工夫することで、グロッタス機構に基づくような高速なプロトン移動が可能となる³⁻⁵⁾。本研究ではこのプロ

トン性イオン液体を柔粘性結晶にすることで新しいプロトン伝導素材の開発を試みている。柔粘性結晶相では固体のように3次的にはイオンの配置が固定されているが、その配向が固定されていない⁶⁾。したがって、分子配列を工夫すれば、液体で観測されるような高速プロトン移動が可能となることが期

*Department of Molecular Chemistry and Biochemistry, Faculty of Science and Engineering, Doshisha University, Kyoto
Telephone: +81-774-65-6561, FAX:+81-774-65-6801, Email: yokimura@mail.doshisha.ac.jp

待される。本研究では、このようなプロトン性柔粘性結晶中にドーブされた蛍光分子のプロトン移動過程を時間分解蛍光測定により分子レベルで観測し、柔粘性結晶に用いたイオンの性質の違いがどのようにプロトン伝導機構に影響を及ぼすかを明らかにすることを目的とした。

本研究では柔粘性結晶相を示すプロトン性イオン性柔粘性結晶 (IPC) として、1-methylimidazolium triflate ([HMIM][TfO]; Fig.1) に着目した。[HMIM][TfO]は常温では固体であるが、86°Cで相転移を起こし柔粘性結晶相に転移し、その後 112°Cで液相へ転移することが報告されている^{7,8)}。このイオン結晶にプロトン移動可能な蛍光分子として 2-aminopyridine (2AP), 6-hydroxyquinoline (6HQ), および 8-hydroxypyrene-1,3,6-trisulfonic acid trisodium salt (HPTS) (Fig. 1) をドーブし、蛍光スペクトルならびに時間分解蛍光スペクトルの温度変化を測定した。

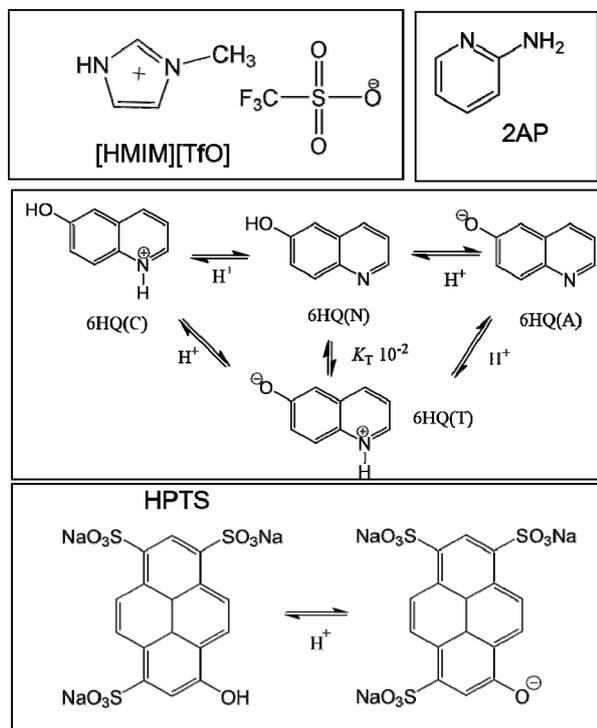


Fig. 1. Chemical structure of [HMIM][TfO], 2-aminopyridine (2AP), 6-Hydroxyquinoline, and 8-hydroxypyrene-1,3,6-trisulfonic acid trisodium salt (HPTS). 6HQ takes several forms due to protonation and deprotonation.

2AP は溶媒の酸性度によって蛍光スペクトルのシフトを示す。また 6HQ はそのプロトン受容、供与の状態によって様々な状態をとり、それぞれの状態に応じて、異なる吸収や蛍光スペクトルを示すことが知られている⁹⁾。そのスペクトル変化を調べることで PIL 中での溶存状態を調べることが可能となる。また HPTS はプロトンドナー分子であり^{10,11)}、周りのアニオンへのプロトン移動の可能性を検討した。

2. 実験

[HMIM][TfO]は既報の手法に従って合成した⁷⁾。蛍光分子のメタノール溶液を作成し、溶液に [HMIM][TfO]を溶解させた。その後メタノールを蒸発させ、蛍光分子を [HMIM][TfO]に溶解させたサンプルを得た。固体や柔粘性結晶中での蛍光分子の分布の測定には、共焦点顕微鏡システム (Nikon A1) に組み込まれた FLIM (Fluorescence Lifetime Imaging Microscopy)のシステム(PicoQuant 社製 Micro Time)を用いた。定常蛍光スペクトルの温度変化の測定は、水銀ランプを光源とし、小型ファイバー分光器 (Ocean Photonics 社製 USB2000+)でおこなった。一部の測定においては、蛍光高度計 (FP6300)を用いた。時間分解蛍光測定は励起光に Ti:Sapphire laser の基本波 (800 nm, 1 mJ, 120 fs) を光パラメトリック増幅器で波長変換し、さらに BBO 結晶を用いて波長変換したもの (320 nm および 370 nm) を用い、検出にはストリークカメラを用いた。

3. 結果と考察

3.1. 2AP

Fig. 2 に 2AP を [HMIM][TfO]にドーブしたときに得られる蛍光スペクトルを、通常有機溶媒に溶かしたときに得られるスペクトルと比較した図を示す。2AP は溶液の酸性度があがると、蛍光スペクトルのピーク位置が長波長にシフトする。[HMIM][TfO]中での蛍光スペクトルのピーク位置は、通常の溶液で見ると pH1 に塩酸で調整したメタノール溶液に近いところに存在し、このプロトン性イオン結晶が高いプロトン供与能を示していることが分かる。また固相(25°C)に比べて柔粘性結晶相(95°C)中でのスペク

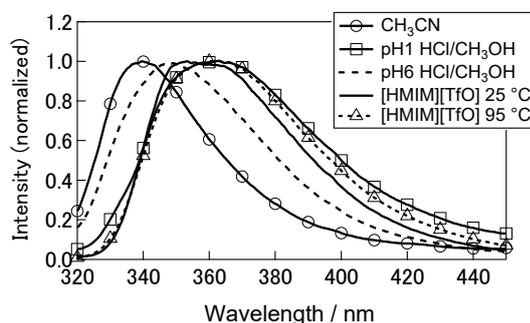


Fig. 2. Fluorescence spectra of 2AP in various solvents.

トルのほうがより長波長側にシフトしており、より酸性度の高い環境を提供しているといえる。柔粘性結晶中で溶媒イオンの回転自由度が許容されることが、このシフトの違いをもたらしていると考えられる。

3. 2. 6HQ

Fig. 3 の上図に 6HQ の通常溶液で pH を調整することで得られたノーマル体とカチオン体由来する

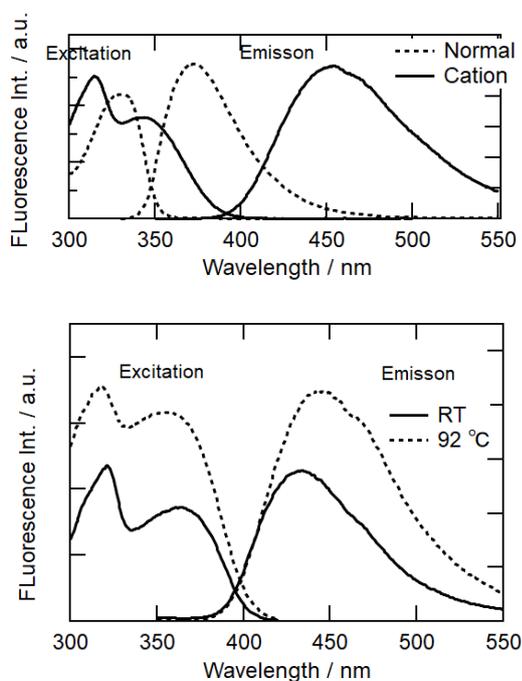


Fig. 3. (Upper) Absorption and fluorescence spectra of 6HQ in normal and cationic forms. (Lower) Fluorescence and fluorescence excitation spectra of 6-HQ in [HMIM][TfO].

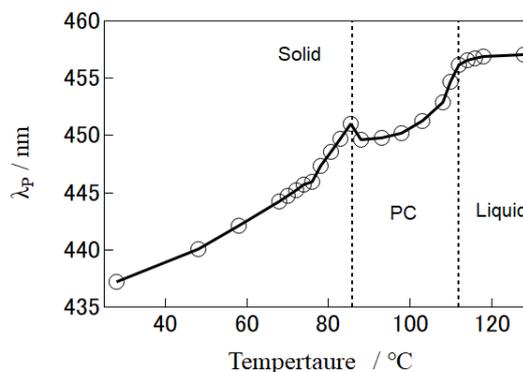


Fig. 4. Temperature dependence of fluorescence peak position of 6-HQ in [HMIM][TfO].

吸収と蛍光スペクトルを示す。下図には 6HQ を [HMIM][TfO] にドーピングした際の蛍光スペクトル (320 nm 励起) と蛍光励起スペクトル (450 nm モニター) を示す。[HMIM][TfO] 中の蛍光スペクトルは 6HQ のカチオン体由来する蛍光スペクトルと一致し、蛍光励起スペクトルはカチオン体の吸収スペクトルと一致することが明らかとなった⁹⁾。すなわち、6HQ は電子基底状態で周りの [HMIM][TfO] からプロトンを受け取り、光励起後もカチオン体のまま、さらなるプロトン移動は起こしていないことが考えられる。また蛍光顕微鏡をもちいた観測から 6HQ がサンプル中にほぼ均一に分布していることが示された。

Fig. 4 に 6HQ の蛍光スペクトルのピーク波長 (λ_p) の温度依存性を示す。図に示されるように固相では温度上昇とともに長波長側にシフトするが、相転移して PC 相に変化する際、いったん短波長シフトが観測される。これは PC に変化する際の構造変化により、6HQ 周りのイオン配置が大きく変化することによるものと考えられる。さらに温度を上げて、PC 相から液相に向かって変化する際には、実際の相転移の温度より 5°C 程度低い温度からスペクトルが急速に変化していることが分かる。液相に近い温度では PC での分子の流動性が大きくなっていることが考えられる。

3. 3. HPTS

Fig. 5 に含水量の異なる [HMIM][TfO] 中に HPTS をドーピングした際に得られる蛍光スペクトル (励起波長

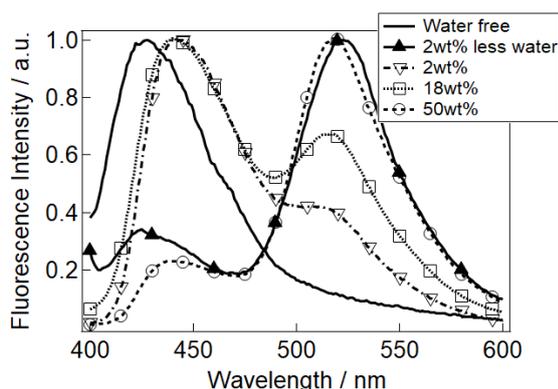


Fig. 5. Fluorescence spectra of HPTS in [HMIM][TfO] with various wt% of water.

410 nm) を示す。図に示されるように、水分量に応じてスペクトル形状が大きく変化した。完全に脱水するとプロトン移動を行っていないノーマル体の蛍光バンド(430 nm 付近)しか観測されない。ところが、ごく微量の水が[HMIM][TfO]内に存在すると (2 wt% 未満), プロトン移動をおこなったアニオン体由来の 525 nm を中心とする蛍光バンド強度が、プロトン移動前のノーマル体の蛍光バンド強度に比べて非常に強いことが分かった。また図に示すように水分量が 2 wt% だと、ノーマル体由来の蛍光バンドが逆に強くなり、さらに水分量を増やしていくと、徐々にアニオン体の蛍光強度が強くなっていくことが分かった。

アニオン体の蛍光が観測された 2 wt% 未満の水分量のサンプルの温度を上昇させ PC 状態に相変化させたときの蛍光スペクトルと蛍光励起スペクトルを Fig. 6 に示す。図に示されるように、温度上昇とともにアニオン体の蛍光強度が小さくなり、相対的にノーマル体の蛍光強度が大きくなる。アニオン体の蛍光波長でモニターした蛍光励起スペクトルは、あまり大きな変化が見られないが、長波長側のピークが温度上昇とともに短波長側にシフトしている様子が観測される。同じような蛍光励起スペクトルの変化は、水分量を 2 wt% 未満から 2 wt% に上げたときにも観測され、この微小な励起スペクトルの変化がアニオン体の生成効率と大きく関係していることが分かった。

以上のことから、HPTS の反応メカニズムについて以下のような仮説を立てた。ごく少量の水分が存

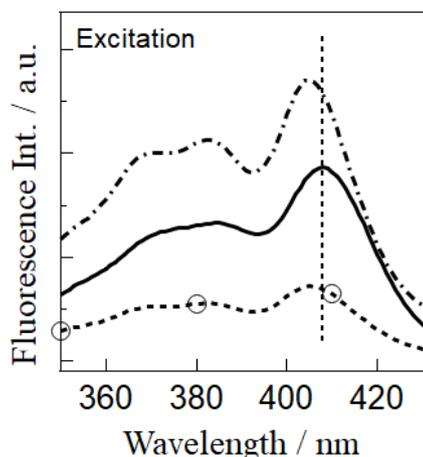
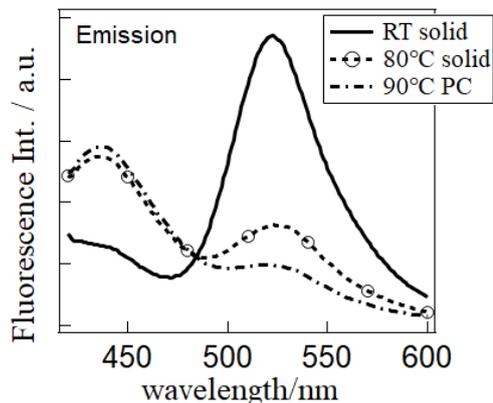


Fig. 6. Fluorescence spectra excited at 410 nm and fluorescence excitation spectra monitored at 520 nm of HPTS in various wt% water in [HMIM][TfO].

在するとき、水分子と HPTS の相互作用が強くなる位置に水分子が固定され励起状態でのプロトン移動が生じやすくなる。この状態で温度をあげ PC 相に転移すると、構成イオンが回転しやすいことから [HMIM][TfO] と HPTS が結びつきやすくなり、相対的に水との結合が切れプロトン移動が起こりにくくなる。また、水分量が増えたときも温度をあげたときと同様に結晶構造の揺らぎが増大し、[HMIM][TfO] と HPTS の相互作用が強くなり、水へのプロトン移動が生じにくくなる。ただ、水分量が過剰になると、水溶液と変わらない状況に近くなりプロトン移動が生じやすくなると考えた。以上の仮説は蛍光の時間分解測定の結果からも支持されており、詳細は講演で述べる予定である。

応用化学専攻), 藤井香里 (同志社大学理工学部特定
任用助教), および遠藤太佳嗣 (同志社大学理工学部
准教授) との共同研究である。また, 本研究は同志
社大学ハリス理化学研究所助成金によって行った。
ここに記して謝意を表す。

参考文献

- 1) T. L. Greaves, A. Weerawardena, C. Fong, I. Krodkiewska, C. J. Drummond, “Protic ionic liquids: solvents with tunable phase behavior and physicochemical properties”, *J. Phys. Chem. B*, **110**, 22479-22487 (2006).
- 2) H. Nakamoto, A. Noda, K. Hayamizu, S. Hayashi, H. Hamaguchi, M. Watanabe, “Proton-Conducting Properties of a Brønsted Acid-Base Ionic Liquid and Ionic Melts Consisting of Bis(trifluoromethanesulfonyl)imide and Benzimidazole for Fuel Cell Electrolytes”, *J. Phys. Chem. C*, **111**, 1541-1548 (2007).
- 3) M. Phonyiem, S. Chaiwongwattana, C. Lao-ngam, K. Sagarik, “Proton transfer reactions and dynamics of sulfonic acid group in Nafion(R)”, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **13**, 10923-10939 (2011).
- 4) M.L. Hoarfrost, M. Tyagi, R.A. Segalman, J.A. Reimer, “Proton Hopping and Long-Range Transport in the Protic Ionic Liquid [Im][TFSI], Probed by Pulsed-Field Gradient NMR and Quasi-Elastic Neutron Scattering”, *J. Phys. Chem. B*, **116**, 8201-8209 (2012).
- 5) K. Chen, Y. Wang, J. Yao, H. Li, “Equilibrium in Protic Ionic Liquids: The Degree of Proton Transfer and Thermodynamic Properties”, *J. Phys. Chem. B*, **122**, 309-315 (2017).
- 6) J. Timmermans, “Plastic Crystals: A Historical Review”, *J. Phys. Chem. Solids*, **18**, 1-8 (1961).
- 7) H. Zhu, X. Wang, R. Vijayaraghava, Y. Zhou, D. R. MacFarlane, and M. Forsyth, “Structure and Ion Dynamics in Imidazolium-Based Protic Organic Ionic Plastic Crystals”, *J. Phys. Chem. Lett.*, **9**, 3904-3909 (2018).
- 8) H. Zhu and M. Forsyth, “Ion Vacancies and Transport in 1-Methylimidazolium Triflate Organic Ionic Plastic Crystal”, *J. Phys. Chem. Lett.*, **11**, 510-515 (2020).
- 9) K. M. Solntsev, C. E. Clower, L. M. Tobert, and D. Huppert, “6-Hydroxyquinoline-N-Oxide: A New Class of “Super” Photoacids”, *J. Am. Chem. Soc.*, **127**, 8534-8544 (2005).
- 10) D. B. Spry and M. D. Fayer, “Charge redistribution and photoacidity: Neutral versus cationic photoacids”, *J. Chem. Phys.*, **128**, 084508 (2008).
- 11) J. E. Thomaz, A. R. Walker, S. J. Van Wyck, J. Meisner, T. J. Martinez, and M. D. Fayer, “Proton Transfer Dynamics in the Aprotic Proton Accepting Solvent 1-Methylimidazole”, *J. Phys. Chem. B*, **124**, 7897-7908 (2020).

Adsorption of Metallic Ions on Amidoxime-chitosan/Cellulose Hydrogels prepared by Ionic Liquid

Takaaki TATSUMI, Yoshiro TAHARA, Michiaki MATSUMOTO*

(Received September 17, 2021)

Adsorption is an attractive and efficient separation technique for recovering heavy metals from aqueous media. Although chitosan derivatives are environmentally benign adsorbents, they dissolve in an acidic aqueous medium. In this study, we prepared adsorbents consisting of chitosan modified with amidoxime groups and cellulose using an ionic liquid and examined their adsorption characteristics for metal ions. The prepared amidoxime-chitosan/cellulose hydrogels had a greater mechanical strength without cross-linking than the chitosan/cellulose hydrogels. All the investigated metals were adsorbed on the amidoxime-chitosan/cellulose hydrogels in the following adsorptivity order: $\text{Cu} \approx \text{Ag} > \text{Ni} > \text{Zn}$. The adsorptivity of the metal ions increased with pH due to a proton exchange reaction. From the adsorption isotherm, the Langmuir constant for Cu exceeded those of other metals because amidoxime has higher Cu affinity. The pseudo-second order reaction model best described the adsorption kinetics with metal chelate formation being rate-determining step. Because amidoxime-chitosan/cellulose hydrogels had higher physical stability and higher Cu selectivity, they were found to be a promising, environmentally benign adsorbent.

Key words : chitosan, cellulose, adsorption, metal ion, ionic liquid

キーワード : キトサン, セルロース, 吸着, 金属イオン, イオン液体

イオン液体から調製されるアミドキシムキトサン・セルロース複合材料 を用いた金属吸着

辰巳 貴昭, 田原 義朗, 松本 道明

1. はじめに

水質汚染物質には重金属や染料, フェノール類等があるが, とりわけ, 重金属は自然界での食物連鎖によって濃縮され, 生物に深刻な有害性を与える可能性が懸念されている. このため水中からの重金属イオンを分離する必要があり, その技術としては, 凝集法や吸着法, 膜ろ過法, 電気化学的手法などがある. 特に, 吸着分離は低コストで効率的に物質を分離す

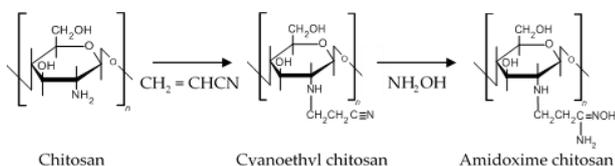
ることが可能であるため, 本手法を用いた重金属分離に関する研究が盛んに行われている¹⁾. 近年, 持続可能な社会の実現を見据え, 環境由来の素材を用いた重金属の吸着媒体が数多く報告されている. 中でも, β -(1,4)結合を持つ D-グルコサミンから構成されるキトサンは甲殻類に含まれるキチンを脱アセチル化して得られる天然多糖類で, 豊富なアミノ基により優れた金属イオン吸着能を示すことから, 環境に

*Department of Chemical Engineering and Materials Science, Doshisha University, Kyoto
Telephone & FAX +81-774-65-6655, E-mail: ctwf0773@mail4.doshisha.ac.jp, mmatsump@mail.doshisha.ac.jp

優しい金属イオン吸着媒体として注目されている²⁾。また、反応性に富んだアミノ基を化学修飾することで、金属の吸着能や選択性が向上できる特徴も兼ね備えており、著者らは、架橋キトサンにアミドキシム基を修飾させることで銅イオンの吸着能と選択性が向上することを報告している³⁾。しかし、キトサンはアミノ基のプロトン化により酸性水溶液に溶解するため、一般的には架橋により不溶化する必要がある。この際の架橋剤は生体適合性及び環境親和性に乏しいことが多い。この課題を解決するために、最近、イオン液体（1-エチル-3-メチルイミダゾリウムアセテート[Emim][Ac]）から調製したキトサンとセルロースの複合多糖類ゲルが架橋処理なしで、酸性溶液中で安定であり、ニッケルや銅イオンに対して優れた吸着能を有することが報告された^{4,5)}。イオン液体はキトサンやセルロース等の多糖類を溶解することができ、また、不揮発性であるため、従来の有機溶媒に比べて環境に優しい溶媒である。本研究では、[Emim][Ac]を用いてアミドキシム基を修飾したキトサンとセルロースの複合多糖類ゲルを調製し、金属イオンの吸着特性を検討した。

2. 実験方法

キトサンは 100% 脱アセチル化したものを使用し、イオン液体は 1-エチル-3-メチルイミダゾリウムアセテート ([Emim][Ac]) を用いた。既報の方法に従ってキトサンへアミドキシム基を修飾した³⁾。



Scheme 1. Preparation of amidoxime-chitosan

各々の濃度が 5% (w/w) になるように[Emim][Ac]にセルロースとアミドキシムキトサンを加え、80°Cで48時間攪拌することで均一な溶液を得た。得られた溶液を 1mL シリンジでイオン交換水 200mL に滴下し、1時間静置することでハイドロゲルを硬化させた。硬化後、イオン交換水で十分に洗浄し、イオン交換水中で保存した。金属吸着実験はそれぞれ Cu(II), Ni(II), Zn(II), Ag(I)の金属イオンを含む酢酸緩衝溶液

に、アミドキシムキトサン/セルロースゲルを添加し、100rpm, 30°Cで48時間反応を行った。平衡後、濾過してハイドロゲルを回収した。金属イオンの初濃度と平衡濃度は高周波誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (ICPS-8100, 島津製作所) で測定し、反応前後の溶液 pH は pH メーター (F-52, 堀場製作所) で測定した。ハイドロゲルに吸着された金属イオンの量 [q (mmol/g-gel)] は以下の式から算出した。

$$q = \frac{C_0 - C_e}{M} \times V \quad (1)$$

ここで、 C_0 及び C_e は吸着前後の金属イオン濃度 [mmol/dm³] で、 V 及び M はそれぞれ溶液の体積 [dm³] とハイドロゲルの重量 [g] である。

3. 実験結果及び考察

Fig. 1(A), (B)は銅イオン吸着後のキトサン/セルロースゲル及びアミドキシムキトサン/セルロースゲルである。それぞれ異なる色を一様に呈していたことから、銅イオンとの錯形成機構が異なることが示唆された。また、両者を3ヶ月イオン交換水で保存した様子を Fig. 1(C), (D)に示した。キトサン/セルロースゲル(D)はゲル表面が崩壊していたが、アミドキシムキトサン/セルロースゲル(C)は球形を維持していた。アミドキシム基の水素結合受容体能がアミノ基のそれよりも強いために、セルロースのヒドロキシ基との水素結合が強く、機械的強度が向上したと考えられる⁶⁾。Fig. 2は銅イオンの吸着の経時変化を示しており、48時間で平衡に達することがわかった。次に溶液 pH と金属イオン吸着量の関係を Fig. 3に示した。Cu ≈ Ag > Ni > Znの順序で金属イオンが吸着され、以前の論文で報告した架橋アミドキシムキトサンの吸着傾向と一致した³⁾。セルロースに金属吸着能がほとんどないことを考慮すると、金属イオンは1級アミノ基の窒素原子とオキシム基の酸素原子が配位し、オキシム基のプロトンとカチオン交換して吸着するため、金属イオンの吸着量は pH に応じて増加したと考えられる。Fig. 4に示した吸着等温線は Langmuir モデルによく一致し、非線形回帰から算出した Langmuir 定数を Table 1 にまとめた。また Table 1 にはセルロースキトサンゲルの結果も併せて

示している⁵⁾。銅イオンの Langmuir 定数が最も大きく、キトサン/セルロースゲルのそれよりも大きいことから⁵⁾、アミドキシム基が銅イオンに対して親和性が高く、銅の吸着能を向上させていることが示された。また、銅イオンの吸着等温線は低濃度から急激に上昇しており、低濃度の銅イオンを効率よく吸着できることが示された。Fig. 1 に示したデータを(2)式に示す擬二次反応モデル⁷⁾に従って解析した結果を Fig. 5 に示した。直線性は良好で、この速度論モデルに従うことがわかった。これはハイドロゲル状に存在する 2 つの活性部位が銅イオンにキレート配位する反応が律速であることが示唆された。

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{t}{q_e} \quad (2)$$

ここで、 q_t 及び q_e は時間 t および平衡時の吸着量で、 k_2 は擬二次速度定数である。

Table 1. Langmuir constants

Metal	q_{\max} [mmol/g]	K_L [dm ³ /mmol]	K_L [dm ³ /mmol] ^[5]
Cu	0.148±0.010	3.614±1.334	0.0121±0.0092
Ag	0.156±0.014	0.435±0.181	
Ni	0.092±0.018	0.097±0.049	0.162±0.085
Zn	0.046±0.019	0.102±0.093	0.171±0.091

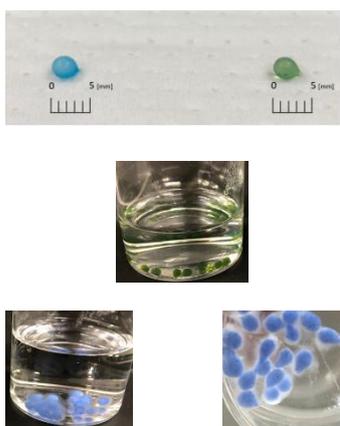


Fig. 1. Images of chitosan or amidoxime-chitosan/cellulose gel beads after copper adsorption. Immediately after copper adsorption ((A) chitosan, (B) amidoxime chitosan), and after three months ((C) amidoxime chitosan, (D)chitosan).

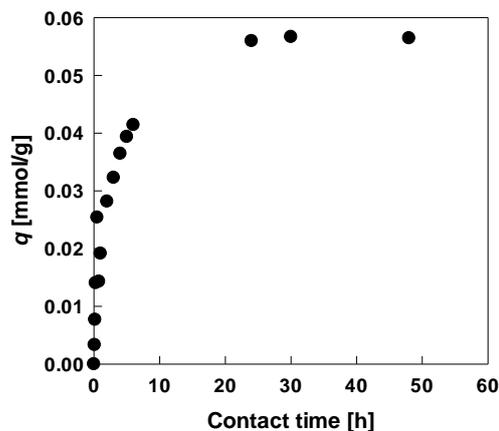


Fig. 2. Effect of contact time on copper adsorption on amidoxime-chitosan hydrogels. (gel dosage: 0.2 g, agitation speed 100 rpm, temperature 30°C)

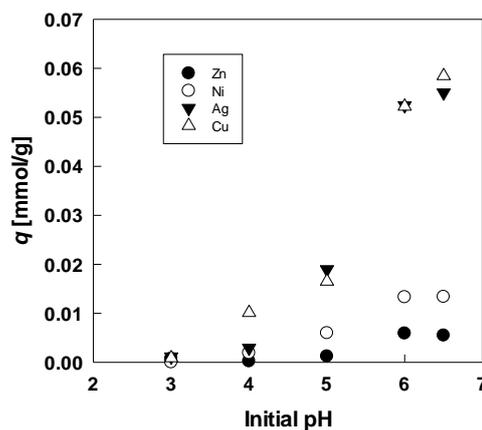


Fig. 3. Effect of initial pH on metal adsorption on amidoxime-chitosan hydrogels. (gel dosage: 0.3 g, agitation speed 100 rpm, temperature 30°C)

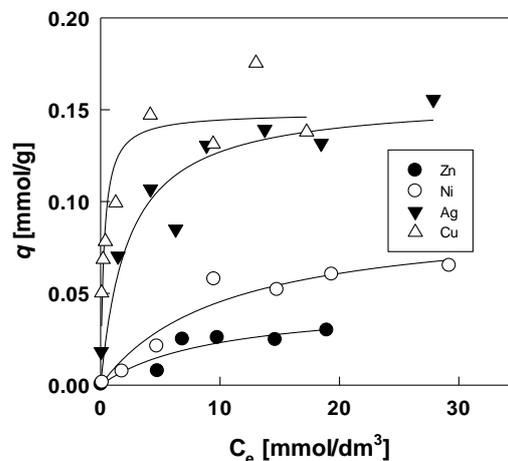


Fig. 4. Adsorption isotherm of metal on amidoxime-chitosan hydrogels. (gel dosage: 0.3 g, pH 6, agitation speed 100 rpm, temperature 30°C)

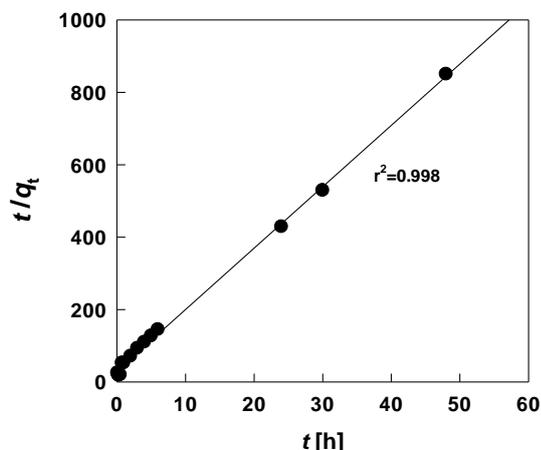


Fig 5. Plot of pseudo-second-order model based on Eq. (2) using data shown in Fig. 1.

4. 結言

本研究はアミドキシム基を修飾させたキトサンとセルロースの新規複合多糖類ゲルを調製し、その金属吸着能を検討した。従来のキトサン/セルロースゲルよりも機械的強度が向上し、また、銅イオンの吸着定数の増加が示された。以上のことから、アミドキシムキトサン/セルロースゲルは効率良く金属を吸着することが可能で、実用的な吸着剤であることがわかった。

本研究は、2020年度同志社大学ハリス理化学研究所研究助成金によって行った。ここに記して謝意を表す。

参考文献

- 1) A. Hussain, S. Madan and R. Madan, "Removal of Heavy Metals from Wastewater by Adsorption", In *Heavy metals-their environmental impacts and mitigation*, M. Nazal, H. Zhao, H., Eds., IntechOpen, On-line 2021.
- 2) S. Begum, N. Y. Yuhana, N. M. Saleh, N. H. N. Kamarudin and A. B. Sulong, "Review of Chitosan Composite as a Heavy Metal Adsorbent: Material preparation and properties", *Carbohydr. Polym.* **259**, 117613 (2021).
- 3) K. Kondo, M. Matsumoto and K. Okamoto, "Enhanced Adsorption of Copper (II) Ion on Novel Amidoxime Chitosan Resin", *J. Chem. Eng. Japan*, **32**, 217-222 (1999).
- 4) X. Sun, B. Peng, Y. Ji, J. Chen and D. Li, D. "Chitosan (Chitin)/Cellulose Composite Biosorbents Prepared Using

Ionic Liquid for Heavy Metal Ions Adsorption", *AIChE J.*, **55**, 2062-2069 (2009).

- 5) M. Matsumoto, S. Ishikawa and T. Kamigaki, "Durability of Chitosan/Cellulose Hydrogel Beads Regenerated from an Ionic Liquid in Acidic and Basic Media and their Metal Adsorptive Characteristics", *Prog. Chem. Appl. Chitin its Derivatives*, **24**, 145-150 (2019).
- 6) X. Guo, L. Huang, C. Li, J. Hu, G. Wu and P. Huai, "Sequestering Uranium from $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ in Seawater with Amine Ligands: Density Functional Theory Calculation", *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **17**, 14662-14673 (2015).
- 7) G. W. Kajjumba, S. Emik, A. Öngen, H. K. Özcan and S. Ayadin, "Modelling of Adsorption Kinetic Processes – Error, Theory and Application", In *Advanced Sorption Process Applications*, S. Edebalı, Ed., IntechOpen, On-line 2018.

Biom mineralization-Inspired Development of Novel Organic-Inorganic Hybrid Materials

Yohei Oe*

(Received September 17, 2021)

Organic-inorganic hybrid materials have been much focused as the biomedical materials, since mechanical properties of the materials such as tensile strength and elastic modulus can be regulated by the organic and inorganic components. Natural organic-inorganic hybrid materials such as bones, teeth, and shells are good models for the development of lightweight, high-toughness, and environmentally friendly materials. Based on the mechanism of natural biom mineralization, new organic-inorganic hybrid materials may be obtained by crystal growth of inorganic crystals in the presence of synthetic organic polymers with appropriately arranged functional groups which is crucial to the biom mineralization. However, there is no research on the development of such materials. We organized a divisional research group that integrates synthetic organic chemistry, polymer chemistry, and ceramic chemistry to develop such novel organic-inorganic hybrid materials based on biom mineralization. As our first attempt, we designed and synthesized a vinyl monomer having both methacrylate moiety and phosphoric acid. Polymer synthesis and the preparation of organic-inorganic hybrids using the designed monomer are now under investigation and will be presented in this presentation.

Key words : organic-inorganic hybrid materials, biom mineralization, biomedical materials

キーワード : 有機-無機ハイブリッド材料, バイオミネラリゼーション, 医用材料

バイオミネラリゼーションを規範とする 新規有機-無機ハイブリッド材料の開発

大江 洋平

1. はじめに

有機高分子と無機結晶が分子レベルで複合化した有機-無機ハイブリッド材料は、有機高分子であるプラスチックに比べて高い剛性をもつ。また、無機固体であるセラミックに比べて壊れにくい性質（高い靱性）をもつ優れた機械的材料として注目されており、医療の分野でも貢献し始めている。¹⁾ 天然の有

機-無機ハイブリッド材料である骨や歯、貝殻などは、軽量・高靱性であり、かつ、環境にやさしい材料開発のよいモデルである。実際、骨や歯と同じヒドロキシアパタイト (HAP) を無機成分とする有機-無機ハイブリッド材料は、骨や歯の代替材料としての応用が可能である。²⁾ さらに、バイオセラミックスをモデルとし、主成分が無機結晶であり、2~20 重

*Department of Biomedical Science and Informatics, Faculty of Life and Medical Sciences, Doshisha University, Kyoto
Telephone/FAX: +81-774-65-6505, E-mail: yoe@mail.doshisha.ac.jp

量%程度の少量の有機成分を含む有機—無機複合材料を開発することができれば、プラスチックよりも低コストで製造でき、また、廃棄する際の二酸化炭素発生も低減できることから、従来の様々な工業材料をそれらに置き換えることで環境に対する負荷を軽減できる。さらに、有機成分として生体適合性をもつ高分子成分と組み合わせることができれば、これらの複合材料は歯科材料や骨の代替材料としての応用も期待できる。

一方、近年、バイオセラミックスの生化学的な合成メカニズムに関する知見が得られており、³⁾ それに基づいて、人工的に優れた有機—無機ハイブリッド材料を開発する研究が可能になりつつある。たとえば、骨は、コラーゲン繊維の空隙に約 $40 \times 20 \times 2$ nm の HAP の微結晶が生成し、タンパク質である有機高分子のコラーゲンとリン酸カルシウム結晶である HAP の両者が強く結合し、HAP の結晶サイズや結晶方位がうまく制御された状態で複合化されることによって、非常に優れた機械的特性を示すと考えられている。⁴⁾ さらに、このとき、多くのセリン残基の側鎖ヒドロキシ基がリン酸エステル化されたタンパク質（ノンコラーゲンタンパク質）がバイオミネラルゼーションに関与することも分かってきた。⁵⁾ また、コラーゲンは疎水性のアミノ酸であるプロリン、アラニン、グリシンを物質比で 67%ほど含む特異なアミノ酸組成をもち、疎水性アミノ酸によって分子のパッキングや耐水性を確保していると考えられる。

このような天然のバイオミネラルゼーションのメカニズムを模倣し、リン酸基やヒドロキシ基など、バイオミネラルゼーションに関与し得る官能基を適切に配置した合成有機高分子の存在下で無機結晶を結晶成長させることで新しい有機—無機ハイブリッド材料が得られるのではないかと考えられる (Fig. 1)。しかしながら、そのような材料開発研究は進んでいないのが現状である。そこで本研究では、バイオミネラルゼーションを規範とする新規有機—無機ハイブリッド材料を開発に、有機合成化学、高分子化学、セラミックス化学の融合した部門研究グループを結成して取り組む。本発表では、本部門研究の研究体制および進捗状況を報告する。

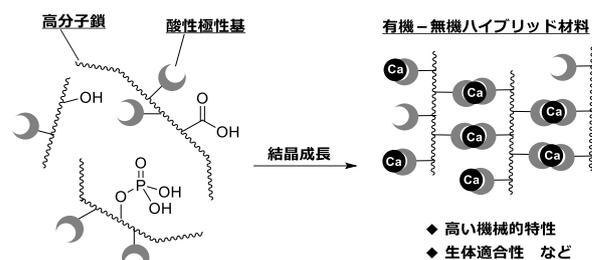


Fig. 1. Schematic representation of formation of organic-inorganic composite.

2. 研究体制

本研究グループの目指す新規材料の開発には、三つの鍵がある。それらは、① 無機結晶成長の制御に必要な官能基を有するモノマーの合成、② 官能基配列を制御した高分子の合成、および ③ デザインされた有機高分子の存在下での無機結晶成長である。これらの三つの鍵となる課題の解決には、それぞれ有機合成化学、高分子化学、セラミックス化学の高度な専門知識が必要となるが、それぞれの研究分野が大きく異なるため、専門分野に特化した縦割りの研究体制のもとですべての問題を解決することは困難である。そこで本部門研究では、上記の①～③について有機合成化学、高分子化学、セラミックス化学のそれぞれの専門家による研究グループを組織し、これらの三つのカギとなる問題を協力しながら解決し、バイオミネラルゼーションを規範とする有機—無機ハイブリッド材料を開発する (Fig. 2)。



Fig. 2. Research Group.

3. 有機—無機ハイブリッド材料開発の初期検討

有機合成化学グループでは、別途行っている機能性ポリマーの開発研究を進める中で、メタクリル酸ユニットと含窒素、含酸素官能基を併せもつ種々の

新奇ビニルモノマーの合成を行ってきており、メタクリル酸の官能基化に関する知見と技術を蓄積してきた。高分子化学グループでは、 α -アミノ酸骨格をもつビニルモノマーをラジカル重合させたアミノ酸側鎖をもつビニルポリマーが、温度応答性や pH 応答性などの機能をもつことを見出しており、⁶⁾これらの材料ではポリマーに導入するアミノ酸の種類によってその機能をチューニングできることも明らかにした。セラミックス化学グループでは、バイオミネラリゼーションを規範とした様々な有機-無機ナノコンポジットを合成しており、たとえば、セルロースナノファイバーと HAP から共沈法により得られる有機-無機ナノコンポジットでは、共沈方法や温度により結晶成長や成型後の機械的強度が変化することを見出している。⁷⁾

そこで、本研究では、これら知見を集積し、含アミノ酸ビニルビニルポリマーにバイオミネラリゼーションに重要なリン酸基を導入した有機高分子を合成し、それをハイブリッド材料の有機材料部分とすることにした。目的のビニルポリマーを合成するために、リン酸基をもつビニルモノマー **M1** をデザインした (Fig. 3)。ビニルモノマー **M1** は、ラジカル重合を担うメタクリル酸ユニットに、アミノエタノールスペーサーを介してリン酸基が結合している。このアミノエタノールのスペーサーは、メタクリル酸ユニットとリン酸基をつなぐ反応を容易にするとともに、バイオミネラリゼーションで重要とされているリン酸化セリン⁵⁾とよく似た構造ともつ。このビニルモノマー **M1** を合成し、種々のペプチド含有ビニルモノマーと共重合させ、有機-無機ハイブリッド材料へと変換し、その機能評価を行う。

4. 実験結果

4.1 実験試薬、分析機器

メタクリル酸無水物、*o*-ホスホリルエタノールアミン (以上 2 点、東京化成工業)、2,6-ジメチル-*p*-クレゾール (BHT)、トリエチルアミン、37%-塩酸、*t*-ブチルメチルエーテル (以上 4 点、富士フィルム)、炭酸水素ナトリウム (以上 1 点、ナカライ) は、市販品を購入し、特に精製することなくそのまま使用

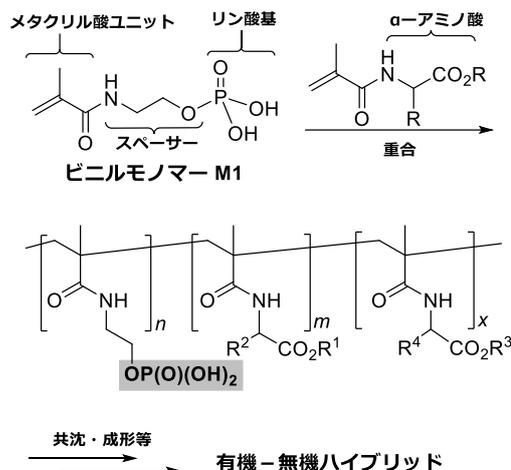
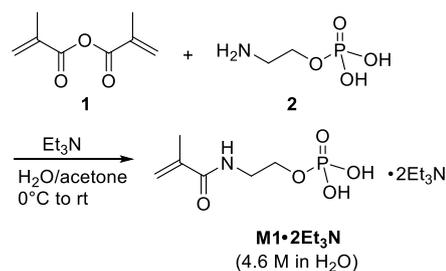


Fig. 3. Our first attempt.

した。生成物は、Brucker 400 MHz NMR (AVANCE-III) を用い、¹H NMR スペクトル (D₂O/DMSO) により分析した。モノマー濃度は、内部標準にマレイン酸を用いた ¹H NMR スペクトルより求めた。

4.2 モノマー **M1** の合成

種々の塩基存在下、メタクリル酸無水物 (**1**) と *o*-ホスホリルエタノールアミン (**2**) を反応させ、モノマー **M1** の単離を試みた。しかしながら、モノマー **M1** の高い水溶性や精製中の重合などの問題からモノマー **M1** の単離はその時点では困難であった。そこで、**M1** のトリエチルアミン塩 **M1·2Et₃N** の水溶液を調製することにした (Scheme 1)。すなわち、*o*-ホスホリルエタノールアミン (**2**) に、0°C で 2 当量の炭酸水素ナトリウム水溶液を加えた。この水溶液に、BHT、少量のアセトンを加えた後、メタクリル酸無水物 (**1**) のアセトン溶液をゆっくり滴下し、滴下終了後、室温で反応させた。



Scheme 1. Synthesis of monomer **M1·2Et₃N**.

反応終了後、*t*-ブチルメチルエーテルで分液することで BHT および未反応の無水物を除去した。水層に 4N HCl を慎重に加えて pH3-4 に調整した後、再度 *t*-ブチルメチルエーテルで分液することによりメタクリル酸などの副生成物を除去した。得られた水層をエバポレーターにかけ、揮発性有機物を除去することにより、**M1-2Et₃N** の水溶液として得ることができた。得られた溶液を ¹H NMR で分析したところ、その濃度は 4.6 M であることがわかった。

5. まとめ

以上、有機合成化学、高分子化学、セラミックス化学の融合によるバイオミネラリゼーションを規範とした新規有機-無機ハイブリッド材料開発をスタートした。それぞれの研究グループがもつ技術を活かした開発戦略のもとにデザインしたモノマー分子 **M1** を **M1-2Et₃N** の水溶液として得ることができた。このモノマー溶液を用い、リン酸基をもつビニルポリマー合成を行い、それを用いたハイブリッド材料の調製を現在検討しており、その結果も本発表にて併せて発表する予定である。

本研究は、ハリス理化学研究所研究助成「第 10 期部門研究第 C 部門」の助成金により行った。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 1) T. Miyazaki, K. Ishikawa, Y. Shirosaki and C. Ohtsuki, “Organic-Inorganic Composites Designed for Biomedical Applications”, *Biological and Pharmaceutical Bulletin*, **36** [11], 1670-1675 (2013).
- 2) E. K. Papynov, O. O. Shichalin, I. Y. Buravlev, A. S. Portnyagin, A. A. Belov, V. Y. Maiorov, Y. E. Skurikhina, E. B. Merkulov, V. O. Glavinskaya, A. D. Nomerovskii, A. V. Golub and N. P. Shapkin, “Reactive Spark Plasma Synthesis of Porous Bioceramic Wollastonite”, *Russian Journal of Inorganic Chemistry*, **65**, 263-270 (2020).
- 3) L. C. Palmer, C. J. Newcomb, S. R. Kaltz, E. D. Spoerke and S. I. Stupp, “Biomimetic Systems for Hydroxyapatite Mineralization Inspired By Bone and Enamel”, *Chemical Reviews*, **108** [11], 4754-4783 (2008).
- 4) F. Bouville, E. Maire, S. Meille, B. Van de Moortèle, A. J. Stevenson and S. Deville, “Strong, Tough and Stiff Bioinspired Ceramics from Brittle Constituents”, *Nature Materials*, **13**, 508-514 (2014).
- 5) G. He, A. Ramachandran, T. Dahl, S. George, D. Schultz, D. Cookson, A. Veis and A. George, “Phosphorylation of Phosphoryrin is Crucial for Its Function as a Mediator of Biomineralization”, *Journal of Biological Chemistry*, **280** [39], 33109-33114 (2005).
- 6) T. Koga, K. Tomimori and N. Higashi, “Transparent, High-Strength, and Shape Memory Hydrogels from Thermo-Responsive Amino Acid-Derived Vinyl Polymer Networks”, *Macromolecular Rapid Communications*, **41** [7], 1900650 (2020).
- 7) K. Okuda, T. Mizutani, K. Hirota, T. Hayashi and K. Zinno, “Nonbrittle Nanocomposite Materials Prepared by Coprecipitation of TEMPO-Oxidized Cellulose Nanofibers and Hydroxyapatite”, *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, **9** [1], 158-167 (2021).

Shiga toxin suppresses the production of amyloid β by altering the intracellular transport of amyloid precursor protein

Miho Takahashi*

Accumulation of amyloid β -peptide ($A\beta$) in the brain is one of the hallmarks of Alzheimer's disease (AD). $A\beta$ is generated from sequential proteolytic cleavages of amyloid precursor protein (APP) by β -secretase and γ -secretase in late/recycling endosomes after endocytosis of APP localized in the plasma membrane. We previously found that Shiga toxin 2 (Stx2), which is a major virulent factor of enterohemorrhagic *Escherichia coli*, can be transported to the late/recycling endosomes and degraded in a lysosomal acidic compartment. Since APP and Stx2 have some common features of the intracellular vesicular transport, we determined whether the treatment of APP-expressing CHO cells with Shiga toxin 2 affected the intracellular transport of APP and producing of $A\beta$.

Key words : amyloid β , shiga toxin, intracellular vesicular transport

キーワード : アミロイド β , 志賀毒素, 細胞内小胞輸送

志賀毒素による細胞内小胞輸送制御がアミロイド β 産生を抑制する

高橋 美帆

1. はじめに

アミロイド β ($A\beta$) は、40 個程度のアミノ酸からなるタンパク質であり、アルツハイマー病 (AD) 患者脳に見られる、老人斑と呼ばれる凝集体の主要な構成因子である。AD の発症には、 $A\beta$ の凝集が関与することが知られており¹⁾、 $A\beta$ の凝集を抑制したり、 $A\beta$ 自体の産生を抑制することは AD 治療として有効であると考えられている。

$A\beta$ の前駆体タンパク質 Amyloid Precursor Protein (APP) は 1 回膜貫通タンパク質であり、小胞体 (ER) で合成されると、細胞膜へと小胞輸送される²⁾。細胞膜上の APP は、 α セクレターゼによる切断を受けると、可溶性の sAPP α と CTF α が産生される。一部の APP は、コレステロールや糖脂質が豊富

に存在する脂質ラフトと呼ばれる細胞膜上の領域に局在し、エンドサイトーシスにより再び細胞内に取り込まれると、初期エンドソームからリサイクリングエンドソームあるいは後期エンドソームへと輸送され、その間 β セクレターゼによる切断を受け、可溶性の sAPP β と、膜貫通領域を含む CTF β (C99) が産生される。C99 は、さらに γ セクレターゼによる切断を受け、その結果、 $A\beta$ が産生される²⁾。産生された $A\beta$ は、小胞輸送を介して細胞外へ放出されるか、あるいは exosome 結合型として細胞外へ放出される。このことから、細胞内の $A\beta$ 産生経路や $A\beta$ 分泌経路のいずれかの過程を制御する薬剤は、 $A\beta$ 産生や放出を抑制して脳内 $A\beta$ を減らす AD 治療薬となることが期待される。

*Department of Biomedical Engineering, Doshisha University, Kyoto
Telephone & FAX: +81-774-65-6153, E-mail: mitakaha@mail.doshisha.ac.jp

本研究では、A β の産生や細胞外への放出を制御する新たな手法を確立することを目的としている。今回、O157:H7等に代表される腸管出血性大腸菌が産生する志賀毒素（Shiga toxin (Stx)）を用いて、APPの細胞内輸送を制御することで、APPの分解誘導が引き起こされ、A β 産生が抑制されることを見出した。

2. 実験方法

2.1 APP 発現 Stx 感受性 CHO 細胞の樹立

Lipofectamine 3000 (Invitrogen, Ma, USA)を用いて CHO (Chinese hamster ovary) 細胞にネオマイシン耐性遺伝子と Gb3 合成酵素遺伝子を含むプラスミド (pcDNA3-Gb3 synthase) を導入後、G418 存在下で培養し、Stx 高感受性を指標に Gb3 合成酵素安定発現株を樹立した。この細胞に、APP 遺伝子を含むプラスミド (pMX-APP-FLA-IRES-GFP) を導入し、G418 および Zeocin 存在下で培養し、APP 安定発現 Stx 感受性 CHO 細胞を樹立した。Stx の細胞障害活性は WST-1 cell counting kit (Wako Pure industries) を用いて測定した。

2.2 mStx2 と APP の細胞内局在性の観察

Stx2 の酵素活性部位に変異を導入した (E167Q および R170L) 無毒化 Stx2 (mStx2)を用いた。APP 安定発現 Stx 感受性 CHO 細胞に 1 μ g/ml mStx2 を添加し、37 度、各経過時間培養し、細胞を 4%PFA, 0.2% TritonX-100 で処理し、抗 Stx2 抗体、および Alexa Fluor 488-conjugated goat anti-rabbit IgG 抗体で mStx2 を検出した。細胞膜上の APP の細胞内挙動を検出する場合には、APP 安定発現 Stx 感受性 CHO 細胞にマウス抗ヒト APP (6E10) モノクローナル抗体を添加、4 度、30 分反応させ、細胞を洗浄後、37 度に昇温、経過時間後に細胞を 4%PFA, 100 μ g/ml digitonin 処理し、Alexa Fluor 546-conjugated goat anti-mouse IgG 抗体で APP を検出した。細胞内酸性コンパートメントを検出する場合には、細胞に 75nM LysoTracker DND-99 (Molecular Probes) を添加、30 分反応させ、PFA 処理により細胞を固定した。

2.3 ウェスタンブロット法による APP および A β の検出

APP 安定発現 Stx 感受性 CHO 細胞に mStx2 を添加し 37 度 6 時間培養後の細胞懸濁液と培養上清を回収した。細胞は 2%SDS, 80mM Tris-HCl (pH6.8), 7%glycerol, 250mM DTT, 0.025%phenolred で溶解した。APP, C99, A β は抗ヒト A β 抗体 (82E1) で検出した。

3. 結果および考察

3.1 APP と mStx2 の細胞内輸送

Stx は、AB5 型毒素であり、B サブユニット 5 量体を介して脂質ラフトに局在するスフィンゴ糖脂質 Gb3 に結合すると、エンドサイトーシスされ、小胞輸送によりゴルジ体および ER へと逆行輸送される。その後、A サブユニットのみが細胞質へ移行し、A サブユニットの N-グリコシダーゼ活性により、リボソームにおけるタンパク質合成が阻害される³⁾⁴⁾。

Stx には Stx1 と Stx2 の二つのサブファミリーが存在しており、マウスを用いた実験では Stx2 の方が Stx1 と比べて数百倍強毒であることが知られている。最近我々は、Stx が細胞内に取り込まれたのち、Stx1 と比較して Stx2 がより積極的に細胞外へ放出されること、一部の Stx2 は exosome 結合型として細胞外へ放出されており、この exosome 結合型 Stx2 が強毒性の本体であること、また Stx2 は後期エンドソームを経由してリソソームへと運ばれ分解されること、Stx1 にはこのような輸送が見られないことを明らかにしている⁵⁾。

本研究では、Stx2 が脂質ラフト上の Gb3 を認識しエンドサイトーシスされ、細胞内輸送される際に、同様に脂質ラフトに局在する APP の細胞内輸送は、どのような影響を受けるのかを明らかにするための各種検討を行なった。

APP と mStx2 の細胞内輸送過程を共焦点レーザー顕微鏡を用いて観察した。APP と Stx2 は各種抗体を用いた免疫細胞染色法により検出した。用いた mStx2 は、Stx2 の細胞内輸送は保持したまま、高濃度 mStx2 でも細胞毒性を示さないことを確認した。APP 安定発現 Stx 感受性 CHO 細胞に mStx2 と抗 APP 抗体を添加し、4 度、30 分反応させると、mStx2 は細

胞膜に局在し、また細胞表面上の APP は抗体を介して標識される。この状態で37度に昇温したところ、0分の時点ですでに両者は共局在しており、その後のエンドサイトーシスからゴルジ体へと輸送される15分間、両者は非常によく一致していた (Fig. 1)。

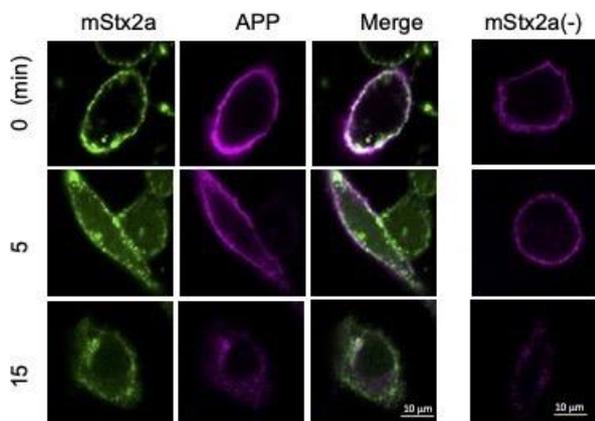
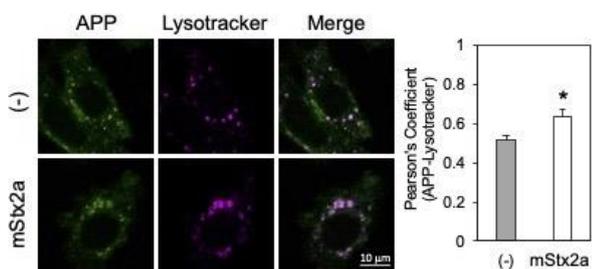


Fig.1 APP と mStx2 のエンドサイトーシス

次に、mStx2 添加 30 分後、APP のリソソームへの局在性を、リソソームマーカーである LysoTracker を用いて観察した。その結果、mStx2 非存在下と比較して、mStx2 存在下では APP のリソソームへの局在性が有意に増加していることが明らかとなった



(Fig. 2) .

Fig. 2 mStx2 による APP のリソソームへの局在性変化

以上より、細胞膜上の APP と mStx2 は、一緒にエンドサイトーシスされており、同じ小胞に乗って細胞内を輸送されていること、また APP は、Stx2 の輸送の影響を受けてリソソームへの輸送が促進されて

いることが明らかとなった。

3.2 Stx2 存在下の Aβ 産生

次に、mStx2 存在下における APP および Aβ 産生量を評価した。APP 安定発現 Stx 感受性 CHO 細胞に、mStx2 を添加し、48 時間、37 度培養した後、培養上清、細胞のライセートを回収し、細胞内 APP, C99, Aβ および培養上清中の Aβ を、ウエスタンブロット法により抗 Aβ 抗体を用いて検出した。その結果、mStx2 存在下では、細胞内 APP, C99, Aβ 量がいずれも有意に減少していることが示された。また、細胞外に放出される Aβ 量も有意に減少していることが明らかとなった (Fig. 3)。

このことから、APP は、mStx2 の輸送に伴ってリソソームへと運ばれたのちに分解され、その結果、細胞内外への Aβ 量が減少したと考えられる。

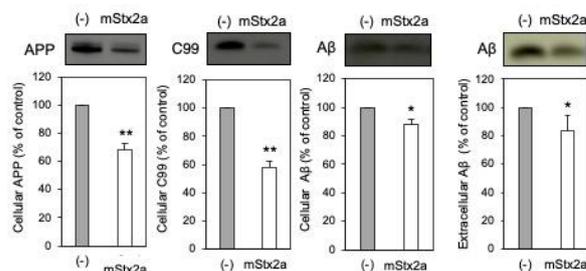


Fig. 3 mStx2 存在下における APP, C99, 細胞内外 Aβ 産生量

Stx B サブユニットには 3 カ所の Gb3 結合サイトが存在し、B サブユニット 5 量体では最大 15 分子の Gb3 が結合し、これにより両者の結合親和性は著しく上昇する⁶⁾⁷⁾。したがって、mStx2 と Gb3 が脂質ラフト上で相互作用する際には、Gb3 が高密度に集積しており、それに伴い脂質ラフト上に会合しているコレステロールなども高密度に集積した状態になっていると考えられる。APP は、コレステロール依存的に脂質ラフトに局在することが知られていることから⁸⁾、mStx2 によって高密度に集積した Gb3 やコレステロールの領域に APP も集積することとなり、これがその後の APP の細胞内輸送にも影響しているこ

とが考えられる。

4. 結語

本研究では、mStx2 を用いると、その特徴的な細胞内輸送によって APP の局在性が変化し、APP の分解誘導が促進されることを示した。Gb3 は神経細胞膜上にも多く存在していることから、本コンセプトに基づき、神経細胞での A β 産生を抑制する新たな薬剤開発も可能となることが期待される。

本研究の一部は、ハリス理化学研究所第 10 期部門研究の支援のもと実施された。ここに記して謝意を表す。

参考文献

- 1) Justin M.Long., David M. Holtzman., Alzheimer Disease: An update on pathobiology and treatment strategies. *Cell* 179, 2, 312-339, (2019).
- 2) Haass.C., Kaether. C., Thinakaran G., and Sisodia S., Trafficking and proteolytic processing of APP. *Cold Spring Harb. Perspect., Med.*2., a006270., (2012).
- 3) K.Sandvig., O.Garred, K.Prydz, J.V.Kozlov, S.H.Hansen, B.van Deurs, Retrograde transport of endocytosed Shiga toxin to the endoplasmic reticulum, *Nature*, 358, 510-512, (1992).
- 4) L.Johannes, W.Romer, Shiga toxins from cell biology to biomedical applications, *Nat. Rev. Microbiol.* 8, 105-116, (2010).
- 5) M.Watanabe-Takahashi, S.Yamasaki, M.Murata, F.Kano, J.Motoyama, J.Yamate, J.Omi, W.Sato, H.Ukai, K.Shimasaki, M.Ikegawa, M.Tamura-Nakano, R.Yanoshita, Y.Nishino, A. Miyazawa, Y.Natori, N.Toyama-Sorimachi, K.Nishikawa, Exosome-associated Shiga toxin2 is released from cells and causes severe toxicity in mice. *Scientific Reports*, 8(1), 10776, (2018).
- 6) H.Ling, A.Boodhoo, B.Hazes, M.D.Cummings, G.D.Armstrong, J.L.Brunton, R.J.Read, Structure of the Shiga-like toxin I B-pentamer complexed with an analogue of its receptor Gb3. *Biochemistry*, 37, 1777-1788, (1998).

7) M.Watanabe, K.Igai, K.Matsuoka, A.Miyagawa, T.Watanabe, R.Yanoshita, Y.Samejima, D.Terunuma, Y.Natori, K.Nishikawa, Structural analysis of the interaction between Shiga toxin B subunits and linear polymers bearing clustered globotriose residues. *Infect. Immun.*, 74,3,1984-1988, (2006).

8) M.Shimons, P.Keller, B.De Strooper, K.Beyreuther, C.G.Dotti, K.Simons. Cholesterol depletion inhibits the generation of beta-amyloid in hippocampal neurons. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA.*95,6460-6464, (1998).

Basic Study on Nonlinear Transient Response Analysis of Structure by Multi-Level Substructuring

Masataka KAWAGUCHI*

(Received September 14, 2021)

The automatic multi-level substructuring (AMLS) method has been provided for general purpose analysis code, i.e. NASTRAN, and is becoming popular in order to reduce extremely long calculation time, required for large-scale vibration analysis, which uses finite element models in the development of mass-products such as automobile and construction machinery, etc. However, the usage of AMLS is limited within linear structure and cannot be applied to complex structural systems which contain nonlinear elements such as viscoelastic materials or gap of connecting parts, etc. If applying nonlinear transient response analysis to the large-scale model of product development, it would not be realistic to solve its large-scale nonlinear equation of motion by the method of iterated integral in short time frame.

In this study, we have applied the multi-level mode synthesis method to a structural sample with about 30,000 degrees of freedom and conducted nonlinear transient vibration analysis. As a result, we have shown that the analysis accuracy could be maintained even when the number of degrees of freedom would be greatly reduced.

Key words : mode synthesis, parallel computing, multi-level substructuring, nonlinear system, transient response analysis

キーワード : モード合成, 並列演算, 多段部分構造, 非線形系, 過渡応答解析

多段モード合成法を用いた構造物の非線形過渡振動解析 に関する基礎的研究

川口 正隆

1. はじめに

自動車等の量産製品では開発の期間短縮やコスト削減の為に、製品規模の有限要素モデルによる大規模振動解析が多用されている¹⁻³⁾が、大規模モデル特有の解析時間の大幅な増加を抑制する為に、自動多段部分構造モード合成法 (AMLS: Automated Multi-Level Substructuring) が汎用構造解析コードに対して提供され普及しつつある⁴⁻⁸⁾。

しかし、線形構造物に限定され、ガタ等の非線形要素を含む複雑な構造系への展開ができない問題があるので、従来法⁴⁻⁸⁾では実験に対する解析精度の向上に対する要求に十分に答えられず、製品開発への適用は今後も容易でないと思われる。

そこで、著者は多段部分構造モード合成法 (以下、多段モード合成法) を上記の非線形分野への適用も含めた形で、回転機械の軸振動解析への解析プロセ

* Faculty of Life and Medical Sciences, Doshisha University, Kyoto
Telephone: +81-774-65-6403, Fax: +81-774-65-6825, E-mail: maskawag@mail.doshisha.ac.jp

スの提案や製品設計への適用に関する検討を進めてきた⁹⁻¹⁰⁾。本研究では約3万自由度のガタ系構造サンプルを対象に多段モード合成法を適用することによって、非線形の過渡振動解析を行った結果について述べる。

2. 非線形解析への展望

非線形要素を含む構造系はFig.1(a)のように、部分構造1および2毎に非線形要素と結合する節点の変位 u_{S1} , u_{S2} と周囲構造の節点の変位 u_{L1} , u_{L2} が存在する。線形構造である部分構造の内部節点の解析自由度 (変位 u_{L1} , u_{L2} に相当) は多く、年々大規模化しているので、非線形要素を含む過渡応答解析に膨大な解析時間を要する問題がある。

また、同図(b)に部分構造に多段モード合成を適用した場合を示す。各部分構造は多数の区切られたセグメントに分割されて固有値解析がなされ、内部節点の解析自由度はモード変位 χ_{ij} ($i=1,2$) に変換される。それらのモード変位を集めて更に固有値解析を行って、部分構造全体のモード変位 ξ に変換して、特性的に等価な解析モデルを導出する。物理変位を低次のモード変位に変換することによって、解析自由度の大幅削減を行って、解析時間の短縮を図る。

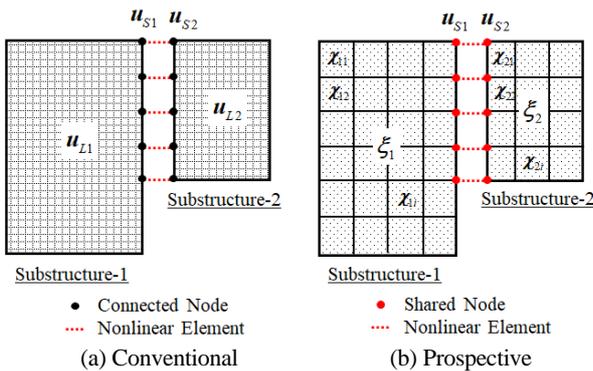


Fig. 1. Image of improvement for nonlinear vibration analysis.

3. 線形系の過渡応答解析

3.1 解析方法

非線形解析に入る前に、線形系での解析手法の妥当性を検討した。Fig.2に多段モード合成を適用した解析モデルを示す。剛な振動台上にアルミニウム製のスタンドの下面を剛結し、鋼製のフレーム状のドア (以下、フレームドア) をラッチと上下のヒンジ

ジを介して設置した。多段モード合成は自由度が最も多いスタンドに適用し、振動台には大質量を仮定した。更に、多段モード合成はMATLABでプログラムを作成し、過渡解析ではSIMULINKを用いた。

外力条件としては、振動台に持続時間50msecのステップ変位を発生させた時のフレームドアの過渡変位 (Fig.2のSD2とSD5) を汎用構造解析コード NASTRANとMATLAB/SIMULINKで解析した。

3.2 解析結果

Fig.3に一例として、フレームドアの振動変位を示す。同図にはNASTRANによるモーダル過渡応答解析 (SOL112)の結果も合わせて示すが、スタンドの影響の強いヒンジ部 (SD2) やドア端部 (SD5) において、MATLAB/SIMULINK解はNASTRAN解と一致しているため、多段モード合成は妥当であるため、非線形解析にも適用できることを示す。

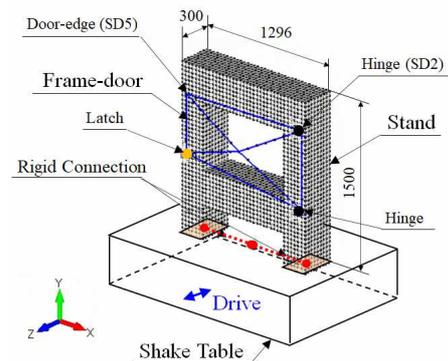


Fig. 2. Sample model of linear vibration analysis.

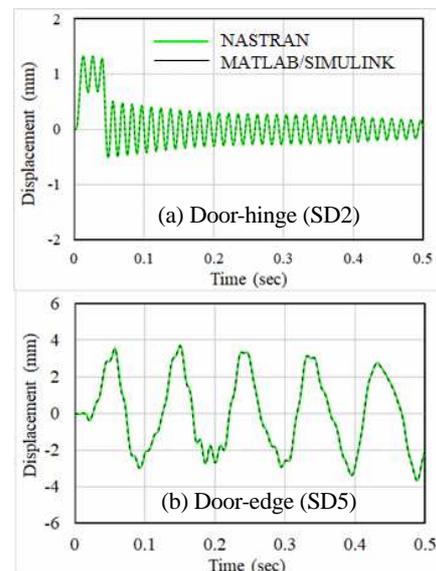


Fig. 3. Analyzed transient response of displacement for linear system model.

4. 非線形系の過渡応答解析

4.1 解析方法

基本的には Fig. 2 の線形モデルと同じである。即ち、線形モデルはラッチと上下のヒンジの前後 (z) 方向の自由度に関して、スタンドとフレームドアは共有しているが、非線形モデルは切り離されて、各々の自由度を有している。各節点間の相対変位を du とし、Fig. 4 の不感帯 (ガタ) を有する非線形ばね特性を適用することにより反発力を算定し、各節点に作用させる。外力は線形解析と同じ条件で、MATLAB/SIMULINK を用いて過渡応答解析を行った。

4.2 解析結果

Fig. 5 に NASTRAN によるフレームドア変位の非線形過渡応答解析 (SOL129) の結果を線形解析の結果と合わせて示す。線形解析ではパルス状の変位が生じた後には振動減衰が見られるが、非線形解析では明確な振動減衰は見られず、ガタの影響と考えられる周期の遅い不規則な振動変位が発生している。

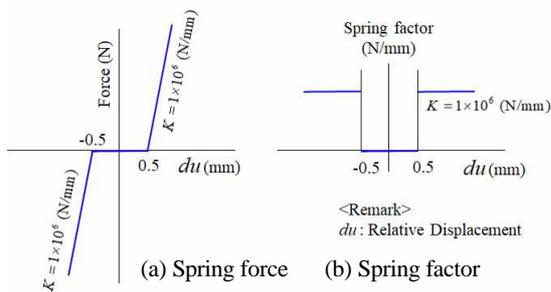


Fig. 4. Definition of nonlinear spring property for latch and hinge between stand and frame-door.

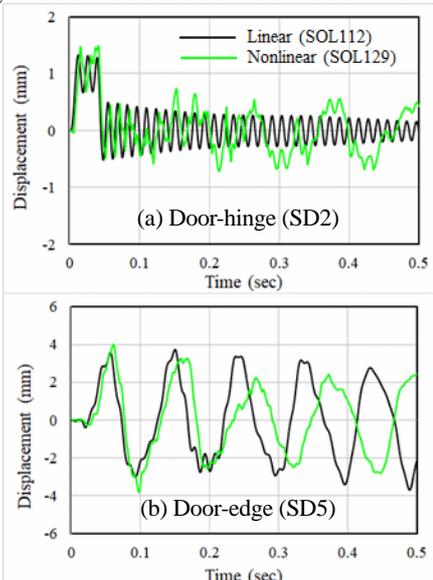


Fig. 5. Analyzed transient response of displacement for nonlinear system model on NASTRAN.

また、Fig. 6 に MATLAB/SIMULINK による非線形過渡応答解析の結果を示す。Fig. 5 の結果と比較すると、ほぼ同じ結果が得られているので、多段モード合成による非線形解析は妥当と考えられる。

4.3 解析自由度の削減

非線形系の解析モデルの自由度は 26,688、多段モード合成後の自由度は 1,781 であるので、93%の削減ができた。今回の NASTRAN による解析時間は線形解析に対して 521 倍の約 3,650sec であったが、NASTRAN で多段モード合成による解析プロセス (DMAP) を開発すれば、大幅な解析時間の短縮が可能と思われる。

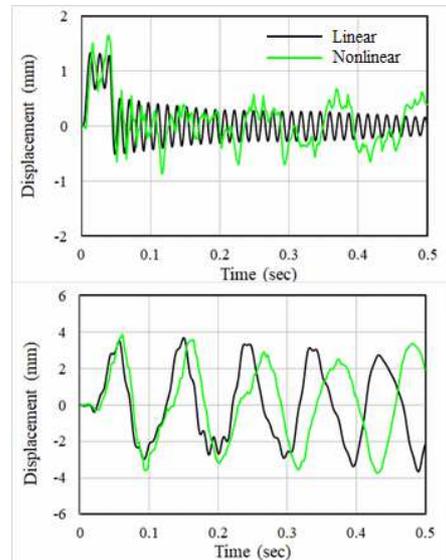


Fig. 6. Analyzed transient response of displacement for nonlinear system model on MATLAB/SIMULINK.

5. まとめ

自動車等の量産製品での大規模な非線形系の過渡応答解析の解析時間短縮を目標に、多段モード合成による解析自由度の削減に取り組んだ結果、次項が判った。

- (1) 線形解析では、構造サンプルを対象に多段モード合成法を適用し、解析精度を落とすことなく、解析自由度を 90%以上削減できた。
 - (2) 非線形解析でも、線形構造に多段モード合成法を適用して、同様の過渡振動解析を実施し、NASTRAN の解析結果と定性的に一致することを示した。
- 従って、今後は NASTRAN での解析時間の短縮に関する解析プロセスの開発を行い、大規模モデルへの適用と解析時間の短縮を進める所存である。

本研究は、2020年度の同志社大学ハリス理化学研究所からの研究助成を受けて実施した。ここに、記して謝意を表する。

参考文献

- 1) 宮下哲治, 岡澤重信, 中村哲也, 日田川真一, 高橋弘之, “大規模モデルに適用可能な流体-構造連成を考慮した船体振動解析手法の開発”, 日本計算工学会論文集, 2018 巻, p. 20180016 (2018).
- 2) 秋葉 博, 栗栖 徹, 中西浩一, 吉村 忍, “新しい並列処理固有値解析ソルバによる自動車エンジンの大規模振動解析”, 日本機械学会, 第 12 回設計工学システム部門講演会論文集, pp. 368-371 (2002).
- 3) 相澤伸夫, 井出史彦, 鍵山恭彦, “振動騒音用トリムボデーのモデル化技術の構築”, *Honda R&D Technical Review*, **16**[1], 173-187 (2004).
- 4) J.K. Bennighof and C.K. Kim, “An Adaptive Multi-Level Substructuring Method for Efficient Modeling of Complex Structures”, *AIAA Journal* (92-2327), 1631-1639 (1992).
- 5) J.K. Bennighof and M.F. Kaplan, “Frequency Window Implementation of Adaptive Multi-Level Substructuring”, *Journal of Vibration and Acoustics*, **120**[2], 409-418 (1998).
- 6) J.K. Bennighof, M.F. Kaplan, M.B. Muller and M. Kim, “Meeting the NVH Computational Challenge: Automated Multi-Level Substructuring”, *Proceedings of International Modal Analysis Conference XVIII (IMAC18)*, San Antonio (2000).
- 7) P. Ragnarsson, T.V. Gaal, B. Pluymers, S. Donders, D. Vandepitte and W. Desmet, “Fast Approximation of Synthesized Frequency Response Function with Automated Multi-Level Substructuring (AMLS)”, *Finite Elements in Analysis and Design* **47**[2], 195-199 (2011).
- 8) A. Kropp and D. Heiserer, “Efficient Broadband Vibro-Acoustic Analysis of Passenger Car Bodies Using an FE-based Component Mode Synthesis Approach”, *Journal of Computational Acoustics*, **11**[2], 139-157 (2003).
- 9) 川口正隆, 松山敬介, 杉本真, 川下倫平, 大和偵, 竹井佳子, 関直樹, “回転機械の大規模軸振動解析における並列演算手法の適用”, No. 362, 日本機械学会 D&D2016 講演論文集(2016).
- 10) 川口正隆, 坂手洗希, 田中和人, 渡辺公貴, “多段モード合成法によるガタ構造系の振動解析に関する基礎検討”, No. 337, 日本機械学会 D&D2021 講演論文集(2021).

Research on Small Exploration Rovers for the Moon and Planets

Kimitaka Watanabe*

(Received September 21, 2021)

In recent years, the U.S. and other countries around the world have been competing to explore the Moon and planets. In Japan, a small transformable small rover, which the author is jointly developing with the Japan Aerospace Exploration Agency, TOMY Corporation, Sony Group Corporation and Doshisha University, will be used to acquire data on the lunar surface for the realization of the lunar mobility "manned pressurized rover", utilizing the lunar landing mission to be conducted by ispace Inc. in 2022. There are many advantages to small exploration rovers. However, small exploration rovers are difficult to drive on the soft and uneven regolith that forms the surface of the Moon and planets because they get stuck. Since there are no paved roads on the Moon and planets, even a slight unevenness or slope of the ground is known from the joint research of small deformable lunar robots. In this study, we focused on the wheel shape of a small exploration rover to explore the Moon and planets, and verified the wheel shape that enables the rover to run uphill more than 20 degrees.

Key words : Small lunar exploration rover, stuck, wheeled type

キーワード : 小型月面探査ローバー, スタック, 車輪

月惑星を探索する小型探査ローバーの研究

渡辺 公貴

1. はじめに

アポロ 11 号の月面着陸から 50 年が経過した。近年、アメリカをはじめ世界各国が先を競って月・惑星探査を実施している、長期的な月・惑星探査のロードマップも発表されている。日本においても著者が国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構、株式会社タカラトミー、ソニーグループ株式会社の 4 者間で共同開発をしている変形型月面ロボットが、月面でのモビリティ「有人と圧ローバー」の実現の月面でのデータ取得のために、株式会社 ispace が 2022 年に実施予定の月着陸ミッションを活用した月面でのデータ取得等を行うことを決定した。変形型月面ロボットを Fig. 1. に示す

変形型月面ロボットは球体状態から変形拡大状態に形状が大きく変わる。球体の外形は $\Phi 78 \text{ mm} \times W88.2 \text{ mm}$ である。変形拡大後の外形は $W122.3 \text{ mm} \times L134 \text{ mm} \times H87.5 \text{ mm}$ である。質量は 0.250 Kg である。今までにはない超小型の月面探査ローバーである。



クレジット : JAXA/タカラトミー/ソニー/同志社大学

Fig. 1. Transformable lunar rover

*Department of Biomedical Engineering, Doshisha University, Kyoto
Telephone & FAX: +81-774-65-6467, E-mail: kiwatana@mail.doshisha.ac.jp

小型探査ローバーのメリットは月・惑星までの輸送費、開発費や製作費が低減でき複数の探査機を月・惑星に送り込むことにより不具合による活動停止の確率も低減できる。また、大型探査ローバーでは危険が伴う地形への投入も可能になる。しかし、小型探査ローバーは月・惑星の表面を覆う軟弱不整地¹⁾のレゴリス上を走行することはスタックが生じて困難になる²⁾。月・惑星には舗装された道路が存在しないため地盤の小さな凹凸や傾斜においても小型探査ローバーの走行が困難になることが先の共同研究から分かってきた。小型探査ローバーは、月・惑星のレゴリス上では 20° 前後の登坂が限界である³⁾と報告もされている。本研究では月惑星を探査する小型探査ローバーの車輪形状に注目して、登坂走行 20° 以上を可能にする車輪形状について検証を行った。

2. 実験方法

2.1 登坂走行実験用の小型探査ローバー

4輪小型探査ローバーを製作して、形状の異なる4種類の車輪を付け替えることにより登坂走行実験を行った。4輪小型探査ローバーをFig.2に示す。本体の長さは、220 mm、車軸間距離は、182 mm、車高は走行時に本体が地盤からの影響を受けないように20 mmとした。ローバー本体に重りを配置することで、車体重量を調整し、本体の総重量を0.5 kgした。

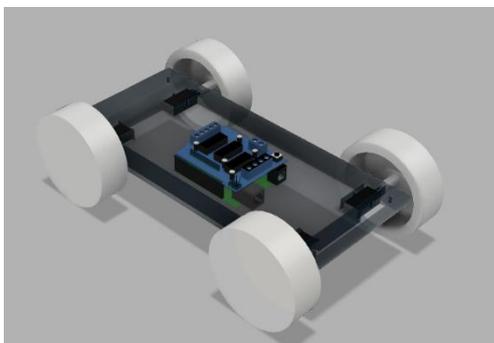


Fig. 2. CAD model of 4-wheeled small exploration rover

2.2 登坂走実験用車輪

登坂走行の実験にはFig.3からFig.6の4種類の車輪を使用して行った。

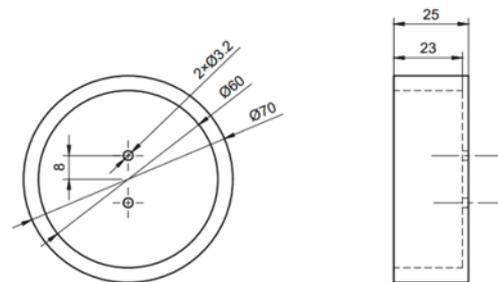


Fig. 3. Drawing of Cylindrical wheel.

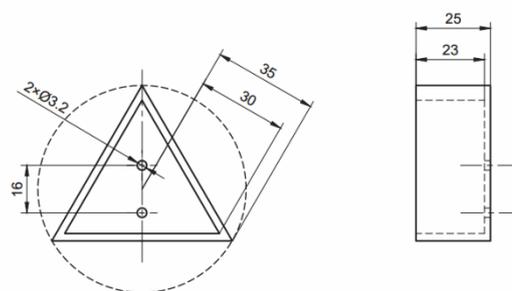


Fig. 4. Drawing of Triangular prism wheel

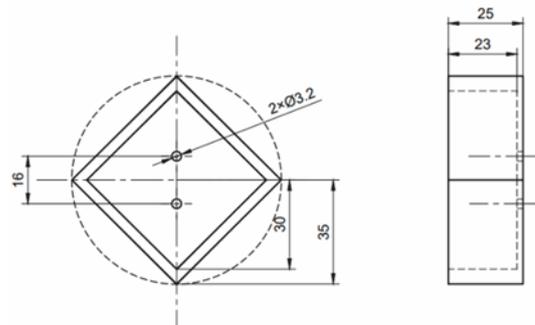


Fig. 5. Drawing of Prismatic wheel

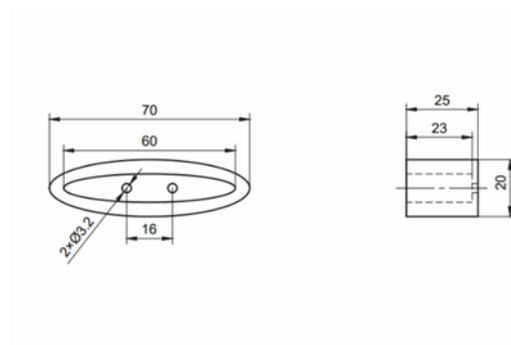


Fig. 6. Elliptical column wheel

車輪形状による登坂走行性能への影響を評価するため、直径 70 mm の円柱車輪を基準とし、三角柱車輪、四角柱車輪、楕円柱車輪の最外径が 70 mm の同心円上に重なるようにし、車輪巾は全て 25 mm で統一した。

2. 3 登坂走行試験場

走行コースは、幅 450 mm、長さ 1820 mm、高さ 308 mm とし、粒子径が 0.3~0.8 mm の乾燥した珪砂 5 号(竹折礫業所)と 0.2 ~0.3 mm の珪砂 4 号(竹折礫業所)を 1 : 1 の割合で混合したものを 80 mm 敷き詰めた。走行コースを Fig. 7 に示す。



Fig. 7. Driving test course

2. 4 登坂走行実験

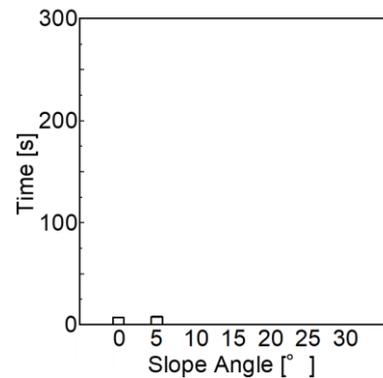
ローバーの登坂走行性能は、走行時間、走行時の消費電力量の 2 つのパラメータで評価した。登坂走行距離は 1000 mm とし、ローバーには直流安定化電源でモーターに 6 V の電圧を負荷した。走行試験を行う際の傾斜角度は 0° から 5° 刻みで 30° まで 7 段階とした。

3. 登坂走行試験実験結果と考察

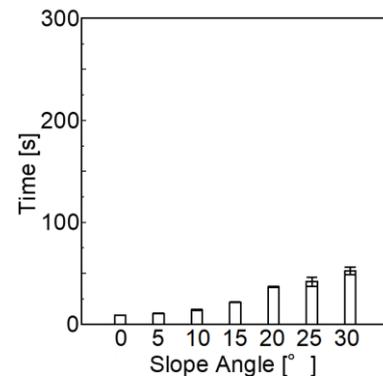
走行試験を行った結果、三角柱車輪、四角柱車輪、楕円柱車輪は、0° から 30° まですべての傾斜を登坂することに成功した。しかし、円柱車輪は 10° 以上の傾斜を走行することができなかった。車輪と地盤の接触部分に角度がつくと登坂性能が向上することが確認できた。これは車輪と地盤の摩擦に加えて、角度がつくことにより地盤を締め固めて密状態にして登坂走行することにより 20° 以上の登坂が可能であることが確認できた。

3. 1 登坂走行時間

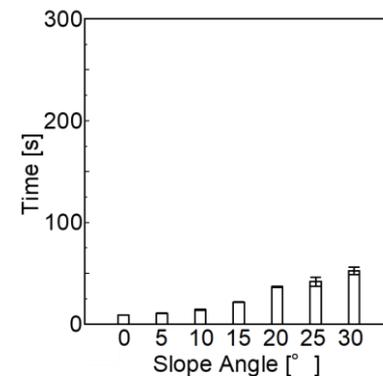
Fig. 9 に、走行時間の結果を示す。円柱車輪は 0 度と 5 度では差はなかった。三角柱車輪、四角柱車輪では 10 度まで緩やかに走行時間が増加 15 度以降においては徐々に増加した。楕円柱車輪は、傾斜 30 度になると、走行時間が急激に増えることがわかる。最も走行時間が短かった三角柱車輪で 52.5 s であった。



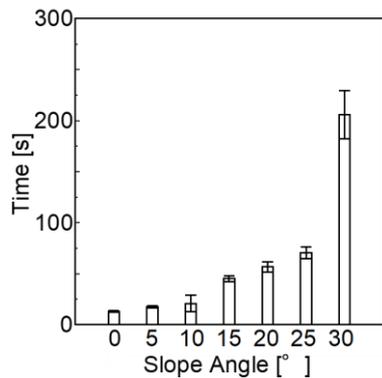
(a). Cylindrical wheel.



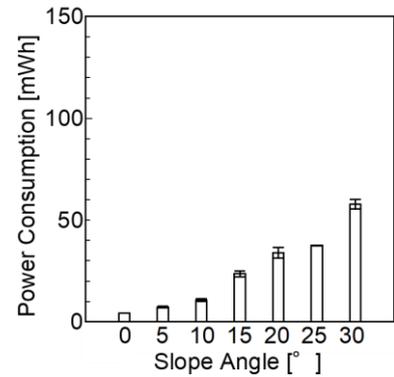
(b). Triangular prism wheel.



(c). Prismatic wheel.



(d). Elliptic column wheel.



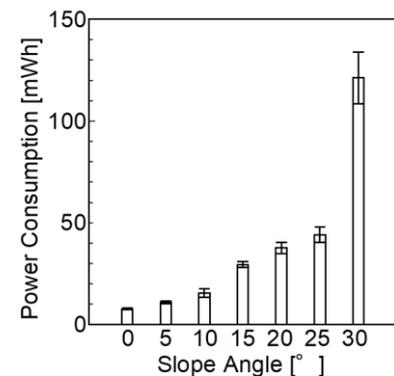
(c). Prismatic wheel.

Fig. 9. Driving time for the test course.

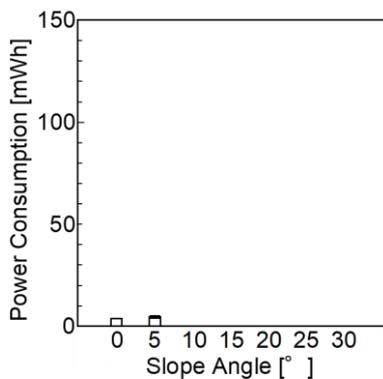
(N = 3, mean ± S. D)

3. 2 登坂走行消費電力量

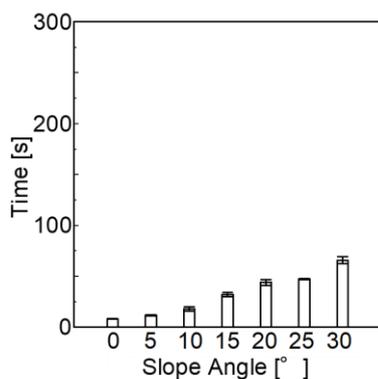
Fig. 10 に消費電力量の試験結果を示す. 5° までのはどの車輪においても消費電力量に差はなかった. 三角柱車輪, 四角柱車輪は緩やかに消費電力量が増加した. 楕円柱車輪は 30° で急激に増加した. 30° の登坂走行試験において, 最も消費電力量が小さかった車輪は三角柱車輪で 38.2 mWh であった.



(d). Elliptic column wheel.



(a). Cylindrical wheel.



(b). Triangular prism wheel.

Fig. 10. Power Consumption.

(N = 3, mean ± S. D)

4. 結論

本研究では, 月・惑星を覆うレゴリス上の軟弱地盤においても走行可能な小型探査ローバーの登坂性能向上を目的として, 4 種類の車輪形状を用い, 車輪と地盤の接触部分に角度がつくと登坂性能が向上することが確認できた. 車輪と地盤に角度がつくことにより地盤を締め固めて密状態にして登坂走行することにより 20° 以上の登坂が可能であることが実証できた. 月・惑星のレゴリス上の軟弱不整地でも低消費電力で走行を可能とする小型探査ローバーの車輪の開発を行った. 円柱車輪, 三角柱車輪, 楕円柱車輪の 4 種類の異なる車輪を用い, レゴリス上の軟弱地盤における小型探査ローバーの車輪形状による走行性能の違いを明らかにした. 以下に得られた知見 3 点を示す.

1. 三角柱車輪，四角柱車輪および楕円柱輪は 20 ° を大きく超える 30 ° までの乾燥珪砂の傾斜を登坂することが確認できた。
2. 本研究で用いた車輪の中で三角柱車輪が最も短い時間で登坂することができるため，軟弱地盤の走行に適している。
3. 車輪が軟弱地盤を走行する際は，車輪と地盤の接触部分に角度がつくことで砂を掻くことができる量が増加することと，地盤との設置面積を増やすことで，広範囲に締め固め効果を引き起こすことができることで，より多くの推進力を得ることができる。

本研究の一部は，2020 年度 同志社大学ハリス理化学研究所研究助成金の支援を受けて行ったもので，感謝いたします。

研究において次の修士生に協力をして頂いたことも併せて感謝します。

永江尚也，田中望己（同志社大学大学院生命医科学研究科）

参考文献

- 1) M. Horie, T. Kanbara, E. Kuroda, T. Miki, Y. Honma, S. Aoki and Y. Morimoto, “Possibility of Exacerbation of Allergy by Lunar Regolith”, Journal of UOEH, 34[3],237-243(2012).
- 2) G. Sitkei, G. Pillinger, L. mathe, L. Gurmai and P. Kiss, “Methods for Generalization of Experimental Results in Terramechanics”, Journal of Terramechanics, 81,23-34 (2019).
- 3) K. Yoshida, Research Issues on Lunar/Planetary Exploration Robots-A Technical Note on Traction Mechanics-, Journal of the Robotics Society of Japan, 27, [5], 506-509 (2009).

The Gap between Scientific Research and Policy Practice: The Meaning of Science

Kiyoshi YAMAYA*, Keita HASHIMOTO**

(Received September 17, 2021)

When considering the accountability of science and technology policy, the critical terms are evaluation, program, and the administrator who thinks about this program. This administrator, who thinks about personnel and budget within the government, is significant as a person who explains activities in a specialized field to the citizens in an easy-to-understand manner. In this study, we intend to clarify the challenges in current science and technology policy to examine this science administrator's potential.

Key words : science and technology policy, program, evaluation, accountability, science administrator

キーワード : 科学技術政策, プログラム, 評価, アカウンタビリティ, サイエンス・アドミニストレーター

科学研究と政策実践との乖離 —サイエンスの意味—

山谷 清志, 橋本 圭多

1. はじめに

本研究の最終目的は、科学技術政策において追求されるべき「成果」とは何かを制度と事例の双方から明らかにすることである。それは、政策と科学とのあいだの適切な関係構築を問うことでもある。

日本だけではなく、多くの国々には政府機関が科学技術政策において、予算や人材の面で大きな影響力を持っている。政府が求める「成果」(政策アウトカム)は、広く国民に共有されなければならないが、まずは情報の公開とその理解が必要であろう。そして、この成果とは、実は研究成果とは少し違っている。「その研究が役に立つ研究かどうか」の議論は、こうした研究と政策の成果の食い違いを象徴する言葉である。研究倫理の問題、再現不可能な実験の増

加、何でも数字を入れたがる悪癖は、理系研究者の長所の部分を誤読する文系政治家・官僚の意志から出てくる。市民の意志ではない。本研究はこの部分にこだわり、文理融合と常識ある科学(サイエンス)の構築を目指し、研究評価と政策評価の架け橋になることを目指したい。もちろん、その最終目的は市民に対するアカウンタビリティを確保することである。

2. プログラムとその評価システム

2.1 政策体系

政策を理解する上で重要となるのが政策体系の概念である。ここでは、政策 (policy) - 施策 (program) - 事務事業 (project) の三層構造として政策を体系

* Faculty of Policy Studies, Doshisha University, Kyoto, E-mail: kyamaya@mail.doshisha.ac.jp

** Faculty of Law, Kobe Gakuin University, Hyogo, E-mail: hashimoto@law.kobegakuin.ac.jp

的に理解する。科学技術政策の領域において政策体系の各層を担うのは、たとえば、政策であれば内閣、施策であれば中央府省、事務事業であれば大学や国立研究機関、独立行政法人（国立研究開発法人）などである。

戦後日本の科学技術政策は、旧総理府の外局であった旧科学技術庁が所管する原子力や宇宙分野などのナショナルプロジェクトを除けば、基本的には各省の所管する国立研究機関や特殊法人等において分権的に実施された。そのため、日本の科学技術行政は集権構造ではなく分権構造として理解されてきた。科学技術政策の領域では研究開発という高度に専門的かつ複雑な内容を扱うため、研究者・技術者の専門性や倫理、プロフェッショナルリズムに依拠せざるをえない。当時の科学技術政策は、こうした事情もあって、ボトムアップ的に展開されてきた。旧総理府の附属機関であった旧科学技術会議の役割も、各省があげてきたテーマをふるしきに包むだけであり、総花的な議論に終始していたのである¹⁾。

そうした状況が続く中、1990年代に入ると、科学技術政策を国策として展開する動きが現れてくる。科学技術政策に関する基本法の制定に向けて、1994年に自民党の科学技術部会（部会長：尾身幸次）で議論が開始され、1995年に超党派の議員立法として科学技術基本法が成立した²⁾。ここでは「科学技術創造立国」を謳うとともに、国が策定する「科学技術基本計画」に基づいて政策が推進されることとなった。こうした状況は、その後の1990年代後半の橋本行革や2001年の中央省庁再編などを経て今日まで続いており、いずれも科学技術政策がトップダウン的に展開される要因となっている。

このように、科学技術政策の分野では、政策体系において現場（政策実施）レベルのプロジェクト（project）や執政（政策決定）レベルの政策（policy）ばかりが注目され、その中間に位置するプログラム（program）にはあまり関心が払われてこなかった。日本では市民権を得ていないプログラムの概念は、社会福祉行政や政府開発援助（Official Development Assistance：ODA）、医療などの専門分野で重要な概念になっている。それは行政の現場でマネージャー

が担当するプロジェクトではなく、また組織のトップエグゼクティブが担う、抽象度の高い政策でもなく、プロジェクトと政策の中間にあって、政策目的を達成する手段であるプロジェクト群を整序するアイデアと仕組み、予算や資源・人員を調整するスケジュールの工程表を持つアイデアである³⁾。

日本でプログラムの概念に対して注目が集まったのは、中央府省で政策評価制度が導入されたことが契機となっている。日本で評価が政府内で公式に採用されたのは2001年の「行政機関が行う政策の評価に関する法律」である。その際、政策⇒プログラム⇒プロジェクトの政策体系の作成が各府省に勧められ、独立行政法人（代表はJICA）と研究開発機関（たとえばJAXA）についてはプロジェクトを担当する機関との位置づけになった。前身の特殊法人時代の「〇〇事業団」を思い起こせば理解できるであろう。独立行政法人がプロジェクトの実施を担うのに対し、中央府省はプログラムの企画立案に特化することとなった。評価とはまさにプログラムを推進し検証するためのツールであった。

2.2 プログラムの概念

海外では古くからプログラムの概念が注目されてきた。代表的な例としては、1960年代にアメリカの連邦政府で導入されたPPBS（planning programming budgeting system）がある。第二次世界大戦後、空軍の支援を受けて設立されたランド研究所が開発したシステム分析（systems analysis）の手法を予算編成へと応用したPPBSは、プログラムの概念をもとにした合理的な手法として期待された。PPBSはその後挫折したものの、プログラムというアイデア自体はその後も引き継がれている。1960年代後半にはアメリカの会計検査院（General Accounting Office: GAO）がプログラム評価（program evaluation）を採用した。これにより、従来の財務諸表に注目した監査（audit）から、政府のプログラムを事後的に検証する評価へと、GAOはその役割を大きく変容させたのである。GAOの職員も、会計学を専門とする者から、経済学や統計学などを専門としたり社会科学分野の学位を有したりする者が多くを占めるようになった⁴⁾。

評価者に対して学術的なバックグラウンドが求められたのは、政治と行政とのあいだにある線引きを明確にするために「科学的」な合理性を強調する必要があったからである。アメリカの行政では、民主主義の観点から行政への政治的介入が行われてきたが、政策の政治的偏向や官僚の情実任用など、行政の中立性に対して深刻な影響を及ぼした。そのため、20世紀への転換期になると政党政治の介入から行政

表 1 政治行政二分論⁵⁾

政治	行政	二分論に反する経験的証拠
決定	執行	行政はどう行動するかを決定しなければならない；政治家は政策の実施に干渉する
目的	手段	目的に従って行動することは目的を修正することを暗示するかもしれない
民主的	官僚的	もし行政が決定をするなら、民主的な方法に従わなければならない（ワルドー、ベン）
政治家は必ずしも専門家ではない	公務員は、試験を経て採用された専門家であることが求められる	政治の危機的状況において、専門家や技術者は政治にかりだされる。行政官の専門性は、伝統的な司法および会計技術をはるかにしのぎ、政治の目的が関係する領域（社会科学や政策科学）をカバーしている
恣意的	公明正大 (ラテン語で「怒りと情熱なしに」)	官僚的形式主義 裁量が求められる（リプスキーの「第一線職員」)
5年ごとに選挙人の合意によって正統化される	上司と政治家に対して責任を負う	上方へのアカウンタビリティだけではなく、下方へのアカウンタビリティも（オーウェン）
政治は一時的な職業である	行政は永続的な職業でありキャリアでもある	専門職業的な政治家が存在する。そして行政官は（新公共経営では）一時的な雇用形態を取りうる
政治科学の領域	行政科学の領域	学問領域の境界を越える必要性

を切り離す「政治行政二分論」が主張された(表 1)。行政は、民主主義の観点から政治的な意思決定に従う必要がある一方で、政治的な利害関係やイデオロギーに左右されないためにも科学的な合理性を基盤とした意思決定が求められたのである。

やがて、1929年の大恐慌と1930年代のニューディール政策を機に行政の役割が肥大化したことによって「政治行政融合論」の考え方が支配的になっていくが、戦後の米ソ冷戦やそれに伴う行動科学や政策科学など実証主義的アプローチの発展によって再び政治行政二分論の考え方が問い直されることになる。1960年代以降の政治的革新によって、目標・手段・目的を厳密に結びつけた「プログラム」の概念が登場し、その結果を検証することでアカウンタビリティを確保するためのツールとして「評価」が導入された⁶⁾。評価はあらためて政治と行政との間の関係、すなわち意思決定と執行、目的と手段、民主制と専門性などに関する議論を提起したのである。

2.3 科学技術政策の評価システム

今日、日本の科学技術政策領域ではさまざまな形で評価が行われている⁷⁾。それぞれ所管する府省が異なるため、評価のセクショナリズムともいえる状況をもたらしている。以下では代表的な評価制度を3つ取り上げたい。

2.3.1 研究開発評価

国の研究開発評価は、科学技術基本法に基づき策定された科学技術基本計画と、それを受けた「国の研究開発評価に関する大綱的指針」に基づいて行われている。研究開発評価自体は各府省においてそれぞれ評価指針を定めてボトプアップ的に取り組まれている。たとえば経済産業省では「経済産業省技術評価指針」を定め、技術に関する施策や事務事業を評価する際に配慮しなければならない事項を挙げており、「国際的に高い水準の研究開発、社会・経済に貢献できる研究開発、新しい学問領域を拓く研究開発等、優れた研究開発の効果的・効率的な推進に努めている」とされている。

また、内閣府の総合科学技術・イノベーション会

議では、内閣府設置法に基づき、2002年より「国家的に重要な研究開発の評価」（CSTI 評価）を実施している。具体的には国費総額が約300億円以上となる大規模研究開発を評価対象としている。総合科学技術・イノベーション会議は政府の科学技術政策の分野における「司令塔機能」を担うとされており、ここでの評価はトップダウン的な政策推進を意図している。

2.3.2 政策評価

政策評価には3つの方式があり、用いる手法や対象がそれぞれ異なる（表2）。事業評価方式では費用便益分析の手法を用い、事業の採否を決定する際に期待される政策効果が費用を上回るかどうかを事前に検討する。実績評価方式では、業績測定の手法を用い、業績指標を通じて施策の進捗状況をモニタリングしている。（なお、政策評価制度とは別に、事務事業を対象とした行政事業レビューが行われており、両者の連携がはかられている。）総合評価方式では、プログラム評価の考え方を背景として、政策・施策レベルについて特定テーマを取り上げ、問題点の把握分析や、政策効果の発現状況などを調査する。

表2 政策評価の3方式

	手法	対象
事業評価方式	費用便益分析	事務事業
実績評価方式	業績測定	施策
総合評価方式	プログラム評価	政策/施策

2.3.3 独立行政法人評価

独立行政法人には、国の機関から分離された「先行独法」と、従来の特種法人から新たに独立行政法人化された「移行独法」とがある。また、国立大学も法人化されたことで、独立行政法人と同様の仕組みによって管理されている。高専を含む研究機関と国立大学に関しては独立行政法人通則法（1999年）と国立大学法人法（2003年）によって評価が義務づけられている。

中央省庁等改革の中で考えられた独立行政法人制度の理念とは、政策実施機能を中央省庁から切り離すことで行政のスリムをはかると同時に、運営費交

付金を渡しきりの資金として交付し裁量ある組織運営を認めることで、効率的かつ効果的な公共サービスの実現を目指すことであった。独立行政法人を所管する府省は、評価を通じて定期的の実績を評価することとなった。

しかし、実際には評価による独立行政法人へのコントロールは強化されており、研究開発の現場に対して負荷をかけている。それゆえに、評価業務が本来業務を圧迫する「アカウンタビリティのジレンマ」⁸⁾ともいえるべき状況が生じている。運営費交付金や評価によるコントロールは国立大学法人においても顕著であり、研究費・人員の削減や基礎研究の軽視など近年はその弊害が指摘されるようになっている。

2.4 評価システムの重複と錯綜

以上、3つの評価制度を見てきた。それぞれの特徴は表3の通りである。本来なら評価の対象や視点がそれぞれ異なるはずだが、実際には運用の重複も見られ、整理されているとはいえない。

表3 科学技術政策の評価システム

	評価の対象	評価の視点
研究開発評価	プロジェクト	研究開発
政策評価	政策・施策・事務事業	政策
独立行政法人評価	業務実績	組織

日本の科学技術政策では評価制度が乱立し錯綜している状況にある。いずれの評価もそれぞれ異なる目的のもとで実施されているが、研究開発の現場にとってはそれらが十分に識別されてはおらず、結果として評価が重複したり、膨大な数の評価資料の作成を強いられたりするなど「評価疲れ」の原因となっている。

評価のもともとの役割に立ち返れば、政府のプログラムを検証しアカウンタビリティを確保することにあつたはずである。だとすれば、研究開発現場の負担によって支えられた現在の評価実務は研究開発プロジェクトのアウトプットや研究アウトカムを検証することに偏っており、プログラムアウトカムや社会的経済的な波及効果（インパクト）の検証には必ずしも寄与していない。

3. サイエンス・アドミニストレーター

日本では東日本大震災以降、原子力発電所の安全規制をめぐる問題のように、科学だけでは答えることのできない領域が増えている。それぞれの学問領域が専門知を深化させ蝸壺化していく傾向を乗り越えたいとのニーズが高まっている。

しかし、学問横断的な知の越境はいまだ十分とは言いがたい状況にある。たとえば日本では高校生の段階で文系か理系かを選択させられる。このことは、国家公務員において法学部出身者が多数を占める状況や、採用時における事務官と技官の区別とその後のキャリアシステムの違い、政策決定レベルにおける基礎研究の軽視と応用研究・イノベーションの重点化、国立大学法人や国立研究開発法人への過度なコントロールなど、多くの弊害を生じさせている。

学問が過度に蝸壺化した今日において、文理の垣根を越え、科学技術の取り組みを解釈し市民社会へとつなげるサイエンス・コミュニケーションに期待が集まっている。科学技術の現場での営みを社会へ伝えたり、気候変動問題や原子力政策など政府の取り組みをジャーナリズムの観点から報じたりするサイエンス・コミュニケーターの役割は重要な存在となる。その一方で、政府の科学技術政策がどのようなプログラム構造のもとに行われているのかを理解するためには、研究開発の現場（project）や政策決定を行う執政（policy）だけではなく、両層を媒介し資源配分や管理を行う行政（program）の理解が必要である。学界と実務双方でエビデンスに基づく政策のあり方が模索されている中⁹⁾、政策決定における専門家と専門知識（expert knowledge）の役割に注目が集まっており¹⁰⁾、政治と科学を媒介する「サイエンス・アドミニストレーター」の存在が鍵となる。

2020年の科学技術基本法改正により2021年4月から施行される科学技術・イノベーション基本法では、これまで除外されていた人文社会科学が対象に加わった。新たな法律では、あらゆる分野の知見を総合的に活用することで、少子高齢化や人口減少、グローバル化の進展、食糧問題、エネルギー問題、気候変動問題、社会経済構造の変化に伴う雇用の問題など、さまざまな社会課題への対応が謳われてい

る。そのため、法律中のあらゆる条文では「研究開発の成果」という言葉が用いられており、研究成果の社会実装や官民共同による研究開発成果の移転・活用などのための法制上の措置が行われる。しかし、政府が念頭に置く「成果」（政策アウトカム）と、現場の研究者が想定する研究の「成果」（研究アウトカム）とのあいだには共通の理解が必ずしもなされているわけではない。これでは、「同床異夢」のまま政策実施や研究開発のオペレーションが進み、政策評価と研究評価それぞれの評価段階で両者の齟齬が明らかになる可能性が高く、早急な検討が求められる。

本稿は、同志社大学ハリス理化学研究所第10期部門研究「研究と政策の乖離—成果とアカウントビリティの齟齬—」の助成を受けて行った研究の成果の一部です。

参考文献

- 1) 中村陽一，“科学技術政策とその機構”，年報政治学 [1983]，231–246（1984）。
- 2) 水間英城，“科学技術基本法について”，情報管理 38[12]，1080–1093（1996）。
- 3) 山谷清志，政策評価，（ミネルヴァ書房，京都，2012）。
- 4) F. C. Mosher, *The GAO: The Quest for Accountability in American Government*, (Westview Press, Boulder, 1979).
- 5) N. Stame, “The Politics / Administration Dichotomy and Evaluation”, J. Furubo and N. Stame eds., *The Evaluation Enterprise: A Critical View*, (Routledge, New York, 2019).
- 6) J. Furubo, “Understanding the Evaluation Enterprise”, J. Furubo and N. Stame eds., *The Evaluation Enterprise: A Critical View*, (Routledge, New York, 2019).
- 7) 橋本圭多，“日本の科学技術行政における評価の現状”，評価クォーターリー，[48]，43–56（2019）。
- 8) 山谷清志，政策評価の実践とその課題：アカウントビリティのジレンマ，（萌書房，奈良，2006）。
- 9) 野口晴子，“公共政策にとってのエビデンスとは何か”，UP，41[12]，16–20（2012）。
- 10) J. Cristensen, “Expert Knowledge and Policymaking: A Multi-disciplinary Research Agenda”, *Policy & Politics*, 49[3], 455–471 (2021).

Did One Year of the COVID-19 Pandemic Affect the General Mental Health of the Adult Population of the United Kingdom, France, or Germany?

Philip TROMOVITCH*

(Received August 18, 2021)

The second phase of the *Multinational Life Experience and Personality Project* (MLEPP) has been collecting data in waves since mid-September 2018. One of the waves completed in mid-December 2019, just before the start of the COVID-19 pandemic. Data collection was suspended for nearly one year and resumed in early-December 2020. Consequently, cross-sectional data was collected pre-COVID-19 and approximately one year into the COVID-19 pandemic. The MLEPP questionnaire is administered online to adults aged 18 to 59 and collects data on mental health using scales derived from items in the *International Personality Item Pool* (i.e., anxiety, depression, self-esteem). Independent group *t*-tests were used to contrast the pre-COVID-19 data collected from participants in Germany, France, and the United Kingdom, with the 1-year-later data for males and females separately, for each of the three countries, for each of the three measures (thus there were 18 *t*-tests performed). None of the 18 tests produced a statistically significant result. Thus, it is concluded that one year into the pandemic, there is little or no impact on the general mental health of adults in France, Germany, and the United Kingdom.

Key words : MLEPP, mental health, COVID-19

1. Introduction

The present researcher is the principal investigator on a large, multiphase, multinational set of cross-sectional studies (*The Multinational Life Experience and Personality Project*, MLEPP). The project is collecting cross-sectional data in small waves on a funds-available basis, which will be combined to form the final samples. It is expected that the full data collection for the current phase of the MLEPP, which involves collecting data from adults in at least ten countries with a per country $N > 2000$, will take five to ten years to complete. Data collection began for the present phase in mid-September, 2018. One of the waves of data collection completed in mid-December, 2019. Less than two weeks later, the World Health

Organization became aware of a new disease cluster in Wuhan, China. That new disease has become known as COVID-19, and it has spread to pandemic levels across the earth.

In addition to many other areas of inquiry, the MLEPP involves collecting data on mental health indicators, such as levels of self-esteem, anxiety symptoms, and depressive symptoms, from adults aged 18 to 59 in multiple countries. The COVID-19 pandemic caused this researcher to be concerned about possible adverse effects of the pandemic on the planned analyses due to possible changes in people's anxiety levels, and other mental health issues, stemming from the pandemic. Consequently, data collection was suspended for nearly one year, resuming in early

* Harris Science Research Institute, Doshisha University, Kyotanabe City, Kyoto 610-0394
Telephone: +81-774-65-6671, E-mail:ptromovi@mail.doshisha.ac.jp

December, 2020. It was hoped that any temporary increase in mental health problems related to the pandemic would have subsided within this timeframe, as people became accustomed to the reality of living during a time of pandemic.

Although not an originally planned analysis for the MLEPP, because pre-COVID-19 data had been collected, it became possible to assess potential changes that may have occurred in mental health indicators by contrasting the data collected pre-COVID-19 with the data collected soon after data collection was resumed. Although assessing changes in mental health will probably be the topic of primary interest to most readers of this article, investigating any changes was a high priority for this researcher due to the possible impact the pandemic may have on analyses using the MLEPP datasets.

1.1 The main statistical concern

Most correlational procedures ultimately are based on sample sizes, arithmetic means, and standard deviations. Indeed, a Student *t*-test, Pearson correlation, and two-group ANOVA can all be computed from just these values. This researcher's primary concern dealt with standard deviations, and secondarily with means. Because the data is being collected in waves at different points in time, but is to be combined for a single analysis (e.g., correlating adult anxiety with the occurrence of a childhood experience), elevated levels of anxiety due to the pandemic, for example, would raise the arithmetic mean for anxiety in later collected waves, leading to changes in key statistics. For example, if pre-pandemic levels of anxiety are lower than pandemic/post-pandemic levels, and these data are combined for analysis, then the combined data will have a higher variance and therefore a higher standard deviation (in addition to having an elevated mean).

1.1.1 An example

Consider a psychological scale containing 7 items that each utilize a 5-point Likert-like response. If the individual items are scored from 0 to 4, then the resultant measure can have a range of 0 to 28. In this author's data, such measures for mental health traits often have a standard deviation around 5.4. Using a random number generator that produces normally distributed values¹, this author ran multiple simulations to see the impact on the standard deviation of merging datasets having a specific difference in their mean (e.g., as might be caused by elevation during a pandemic). In the case of a 3 point increase in the mean (e.g., participants, on average, responding one point higher on 3 of 7 items in the later data collection waves), merging two $N=500$ data sets (that each have the same standard deviation individually) resulted in a standard deviation increase greater than 0.2 for the combined dataset. Although this might seem like a small and unimportant increase, when analyzing small relationships² (i.e., $.1 \leq r < .3$) and very small relationships (i.e., $r < .1$), such shifts are potentially problematic in that they reduce statistical power and attenuate effect sizes.

1.2 The goals of this investigation

The primary purpose of the present investigation is to determine if there are detectable differences in mental health indicators (i.e., statistically significant differences) between pre-pandemic data and data collected approximately one year after the pandemic had started. If differences in mental health are found, the secondary purpose is to determine if the magnitude of the differences will be problematic for planned MLEPP analyses.

2. Method

2.1 The samples

The MLEPP questionnaire is administered online to adults aged 18 to 59 via the Qualtrics platform.

Table 1. Sample sizes (*N*s).

	males (♂)		sample <i>N</i>	females (♀)		sample <i>N</i>	Country Total
	pre	1-year-later		pre	1-year-later		
the U.K.	452	353	805	521	289	810	1615
France	429	341	770	440	341	781	1551
Germany	432	575	1007	429	566	995	2002

Qualtrics Panels was employed to recruit general population samples from each of the target countries and direct them to the questionnaire. Sufficient data for the present analyses were collected from the United Kingdom, France, and Germany, both pre-pandemic (data collected mid-September 2018 through mid-December 2019; hereafter "pre") and after data collection resumed (early-December 2020 through mid-January 2021; hereafter "1-year-later"). The country-level sample sizes ranged from 1551 to 2002 and appear in Table 1. Respondents should not have been able to respond to the MLEPP questionnaire more than once, hence the pre and 1-year-later samples should be completely independent.

2.2 The psychological measures

Three measures of mental health were used: self-esteem, anxiety, and depression (see Tromovitch, 2014)³). Each of the three scales were derived from items in the *International Personality Item Pool*⁴) and were translated from the English versions into French and German for use in France and Germany. Each scale is composed of at least 7 items, with each item using a 5-point Likert-like scale.

2.3 The analyses

The analytical approach was to use *t*-tests to make comparisons/contrasts between the pre-pandemic data and the data collected approximately one year after the pandemic had started. Since the male and female data should be analyzed separately (due to possible average differences between the sexes in mental health

traits, as well as possible differences in the pandemic's impact on the sexes, e.g., if one sex was more psychologically affected by the pandemic than the other sex), six samples are available for analysis (2 sexes by 3 countries, see Table 1).

Since there are three mental health measures, 18 independent group *t*-tests were performed using the common $p < .05$ criterion for statistical significance on a per-test basis. Since this approach is expected to produce on average -- by chance alone -- one statistically significant finding per 20 tests, if only one or two tests produce a statistically significant result, these should be interpreted as being the result of Type I error.

3. Results

Sample sizes for the male and female groups from the three countries ranged from 770 to 1007 (mean = 861). Of the 18 *t*-tests, none were statistically significant. The *p*-values for all 18 tests were greater than .10 (see Table 2).

4. Discussion

The average sample size in the present analyses (see Table 1) was $N = 861$. This sample size generally provides at least 80% statistical power to detect a borderline-small effect size (e.g., $d = 0.2$). Given that 0/18 (0.0%) of the contrasts were statistically significant, and that Type I error was expected to cause approximately one statistically significant result, it seems clear that there were no substantive increases in mental health impairment as a result of the pandemic.

Table 2. Independent group *t*-test results comparing pre-COVID-19 mental health measures with data collected approximately one year into the pandemic.

		self-esteem		anxiety		depression	
		<i>t</i>	<i>p</i>	<i>t</i>	<i>p</i>	<i>t</i>	<i>p</i>
the U.K.	♂	-0.090	<i>p</i> > .10	0.727	<i>p</i> > .10	0.887	<i>p</i> > .10
	♀	-0.129	<i>p</i> > .10	0.660	<i>p</i> > .10	0.267	<i>p</i> > .10
France	♂	-0.427	<i>p</i> > .10	-0.413	<i>p</i> > .10	0.075	<i>p</i> > .10
	♀	-0.310	<i>p</i> > .10	0.073	<i>p</i> > .10	1.013	<i>p</i> > .10
Germany	♂	-1.425	<i>p</i> > .10	1.306	<i>p</i> > .10	1.610	<i>p</i> > .10
	♀	-0.528	<i>p</i> > .10	0.170	<i>p</i> > .10	0.839	<i>p</i> > .10

Since data was not collected during the initial stages of the COVID-19 pandemic, this research cannot address the question of whether there were increased mental health problems during the initial period. Nonetheless, it is reassuring to find that if there was an increase in mental health impairment, it subsided and essentially returned to baseline within one year.

Even though there appears to be no detectable increase in mental health impairment, it may be of note that 17/18 (94.4%) of the contrasts were (non-significantly) in the direction of increased impairment. Consequently, it may be that extremely small levels of impairment did occur, but were not detected due to their very small size. Even if this is the case, it is unlikely the change could rationally be considered to be of social import; for example, the *largest* of the 18 effect sizes (Germany, males, depression) was $d = 0.051$ -- moreover, across the 18 analyses $d = 0.016$ was the median effect size.

With regard to this researcher's concern that shifts in mental health indicators might affect MLEPP analyses by artificially increasing standard deviations, it seems clear this is not a valid concern.

This research was supported in part by grants-in-aid from the Harris Science Research Institute of Doshisha University.

References

- 1) Random.org. <https://www.random.org/>
- 2) Cohen, Jacob (1988). *Statistical Power Analysis for the Behavioral Sciences* (2nd edition). Lawrence Erlbaum Associates: Hillsdale, New Jersey.
- 3) P. Tromovitch, "Public Domain, English and Japanese Scales for Measuring Self-Esteem, Anxiety, Depression, Understanding, Warmth, Altruism, Creativity, and Intellectuality: Validity and Reliability for use with Male and Female Adults in Japan and the United States", *The Science and Engineering Review of Doshisha University*, **55**[3], 244-253 (2014). Available at https://doshisha.repo.nii.ac.jp/?action=repository_uri&item_id=23040&file_id=28&file_no=1
- 4) L. R. Goldberg, "International Personality Item Pool: A Scientific Collaboratory for the Development of Advanced Measures of Personality Traits and Other Individual Differences". Available at <http://ipip.ori.org/> updated September 23, 2019.