

Synthesiology

生分解性作動油に適合する
建設機械用油圧システム開発の新しい手法

家畜繁殖用精液の改良技術開発

不凍タンパク質の実用化への取り組み

エアロゾル粒子の質量を測る

シンセシオロジー編集委員会

Synthesiology 論文のポイント

本誌は、成果を社会に活かそうとする研究活動の目標、具体的なシナリオや研究手順、特に実用化のために要素技術を構成・統合するプロセスを記述した論文誌です。本号に掲載した論文の価値が一目で判るように、編集委員会が作成したシンセシオロジー論文としてのポイントを示します。

シンセシオロジー編集委員会

論文：生分解性作動油に適合する建設機械用油圧システム開発の新しい手法

—故障解析における要素解析手法とシステムモデルを用いた総合解析手法の統合事例— 大川 聡ほか

環境汚染の観点から、建設機械に生分解性作動油の使用が義務化されている国が増えてきている。しかし、生分解性作動油を使用した場合の不具合の発生メカニズムが複雑で、FTA等の事故解析手法では対策に至るまでの分析が難しかった。この論文では、SysML、SafeMLにより、成分解析作動油を用いた場合に生じる不具合の原因を探り、対策を決定するまでのシナリオが記載されている。

論文：家畜繁殖用精液の改良技術開発 永田 マリアポーシャほか

牛の繁殖性を改善するため、流体操作技術で凍結精液から運動性の高い精子を選別し、人工授精にそのまま使える数の精子を捕集する技術の開発について記載されている。企画段階から個体や環境といった条件を制御しきれない畜産現場への適用を前提に、構成的な研究開発を実施している。さらに、実証試験で良好な受胎成績を示すとともに、受胎に有利な精子の性質をその泳ぎの形と関連づけた興味深い論文である。

論文：不凍タンパク質の実用化への取り組み 石井 寛崇ほか

不凍タンパク質の産業応用を目指した取り組みがまとめられている論文である。冷凍食品分野での実用化を目指した取り組みから、新たな応用分野での実用化へとシナリオを変化させてきた経緯が記されている。なお、この論文は、当初「報告」として投稿されたが、シナリオやその構成要素（選択・統合）についての著者の独自性が見られることから、「研究論文」として掲載されることになった。

論文：エアロゾル粒子の質量を測る 榎原 研正ほか

これまで測定することができなかった微小質量領域にあるエアロゾル粒子の質量を測定するため、エアロゾル粒子質量分析機の測定原理を考案し、開発した装置を用いて様々な粒子特性評価に応用した事例が記載されている。キログラムの定義が130年ぶりに改定されたこともあり、質量標準の分野でも、これまで測定することができなかった0.1 µg以下の領域での質量計測ニーズが高まっており、新しい測定領域の開拓という点でもタイムリーな論文である。

Synthesiology 第12巻第2号(2019.8) 目次

論文のポイント	i
研究論文	
生分解性作動油に適合する建設機械用油圧システム開発の新しい手法 —故障解析における要素解析手法とシステムモデルを用いた総合解析手法の統合事例— ・・・大川 聡、尹 善吉、日比谷 孟俊、西村 秀和	57 - 74
家畜繁殖用精液の改良技術開発 ・・・永田 マリアポーシャ、山下 健一	75 - 83
不凍タンパク質の実用化への取り組み ・・・石井 寛崇、井上 敏文	84 - 91
エアロゾル粒子の質量を測る ・・・榎原 研正、Charles R. HAGWOOD、Kevin J. COAKLEY、福嶋 信彦、 Kittichote WORACHOTEKAMJORN、田島 奈穂子、桜井 博	92 - 106
編集委員会より	
編集方針	107 - 108
投稿規定	109 - 110
編集後記	115
「Synthesiology」の趣旨	
Research papers (Abstracts in English)	57
A new process to develop a hydraulic system adapted to biodegradable hydraulic oil for construction machinery —Case study integrating component analyses and SysML description in failure analyses— --- S. OHKAWA, S. YUN, T. HIBIYA and H. NISHIMURA	75
Development of a bovine sperm selection procedure for improvement of livestock fertility --- M. B. NAGATA and K. YAMASHITA	84
Efforts toward commercialization of antifreeze proteins --- H. ISHII and T. INOUE	
Measurement of mass of aerosol particles --- K. EHARA, C. R. HAGWOOD, K. J. COAKLEY, N. FUKUSHIMA, K. WORACHOTEKAMJORN, N. TAJIMA and H. SAKURAI	92
Editorial policy	111 - 112
Instructions for authors	113 - 114
Aim of <i>Synthesiology</i>	

生分解性作動油に適合する 建設機械用油圧システム開発の新しい手法

— 故障解析における要素解析手法とシステムモデルを用いた
総合解析手法の統合事例 —

大川 聰*、尹 善吉、日比谷 孟俊、西村 秀和

生分解性作動油により建設機械の油圧システムに様々な不具合が生じた。油圧サブシステムの損傷については従来の要素解析手法を用いて原因解明と対策がなされたが、油圧システムの作動不良については複雑なシステムと生分解性作動油の独特の化学特性のため長く解明できていなかった。新たにシステムモデルを用いて総合的に解析することで、作動不良の原因推定が可能となり安価で効果的な対策案が導出できた。要素解析手法とこの総合解析手法との統合によりシステムティックな開発を可能にできる。

キーワード: 油圧システム、建設機械、生分解性作動油、作動不良、不具合対策、システムモデル、SysML

A new process to develop a hydraulic system adapted to biodegradable hydraulic oil for construction machinery

—Case study integrating component analyses and SysML description in failure analyses—

Satoshi OHKAWA*, Sunkil YUN, Taketoshi HIBIYA and Hidekazu NISHIMURA

Causes and countermeasures for various kinds of hydraulic system failures in construction machinery generated by biodegradable hydraulic oil (bio-oil) are discussed. Previous component analytical methods can prevent all kinds of failures except hydraulic system malfunction, which requires a holistic approach for analysis. Using the Systems Modeling Language (SysML), the cause of malfunctions can be understood, and the most effective countermeasure can be obtained. Integration of a component analysis method and a holistic analysis method for system development is proposed.

Keywords: Hydraulic system, construction machinery, biodegradable hydraulic oil, malfunction, countermeasure, SysML

1 はじめに

建設機械は、図1の油圧ショベルの例のようにクローラ（またはタイヤ）を回転させて自力走行し、バケットにより掘削などの作業を行う車両である。その走行や掘削用の装置は高圧の油圧（34～45 MPa）で駆動され、作業者は複数の油圧パイロットバルブを介してこれらの複雑な操作を行う。この建設機械では、作業者が油圧システムの作動油の交換を作業現場で行う際や、作業中にホースを岩などに当て破損させて広い範囲に高圧のオイルを飛散させた際に、オイルが周囲に流出して環境汚染を引き起こすことが問題となる。具体的には飲料水への油膜による汚染、魚の死亡あるいは森林や畑の植物の枯れなどである。

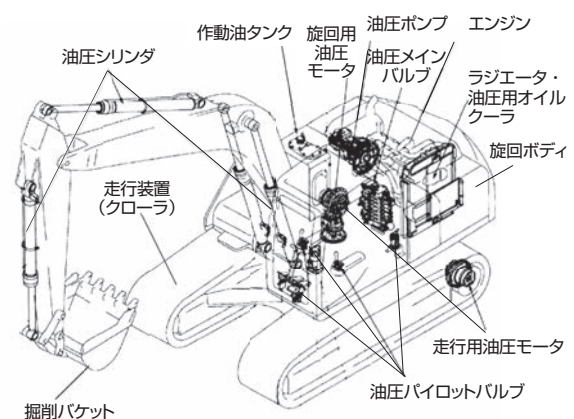


図1 建設機械の外観と油圧機器の配置¹⁾

慶應義塾大学大学院 システムデザイン・マネジメント研究所 (SDM) 〒223-8526 横浜市港北区日吉 4-1-1
SDM Research Institute, Graduate School of System Design and Management, Keio University 4-1-1 Hiyoshi, Kohoku-ku, Yokohama 223-8526, Japan * E-mail: ohkawakmt@gmail.com

Original manuscript received December 18, 2018, Revisions received February 15, 2019, Accepted February 18, 2019

そのため、1990年代に入り、ドイツ、スイスならびにオーストリアで建設機械に対して自然界の微生物により短期間に分解して炭酸ガスと水になる性質をもつ生分解性作動油（以下バイオ油）の使用が義務付けられた^{[2][3]}。これはドイツの水管理法^[4]などに基づく地方政府の行政指導^[5]によるものである。建設機械に対するバイオ油義務化は、現在は広く欧州全域に影響を与えて環境保護地域に普及し^[3]、2002年にはバイオ油の品質規格もISO規格となっている^{[3][6][7]}。また、日本のエコマークに相当する2011年のEUエコラベルでは、バイオ油に対して40項目以上の環境毒性試験に合格した製品のみを認証している^[8]。

図2は欧州における建設機械の使用環境と利害関係者（以下ステークホルダー）の関係の模式図である。次第に厳しくなる環境規制当局からのバイオ油使用の要求と近隣住民からの圧力も加わり、ユーザは建設機械メーカに早急な対応を迫っていた。オイル研究者である著者の一人は株式会社小松製作所にてバイオ油の全社プロジェクトを立ち上げて対応した。プロジェクトチームはサービス部門、設計部門、試験部門、工場部門、購買部門の担当者達をメンバーに加えて、部品メーカの協力を得ながら対策を立案して推進した。暫定対策としてバイオ油の取扱いマニュアルを半年内で作成すること、恒久対策として油圧システムを4～5年で改良することとした。

サービス員とユーザ向けのバイオ油の取扱いマニュアルは、EUの競争法^[9]（日本の独禁法に相当）にも注意して作成した。環境保護地域には岩場、森林や水源地も多いために作業負荷が高く、僻地であるため劣悪な現場でのメンテナンス作業も多いのでオイル洩れも起こり易い。ユーザは環境規制当局の指導に従ってバイオ油の採否を決め、マニュアルとサービス員の指導を参考にバイオ油の選定、運

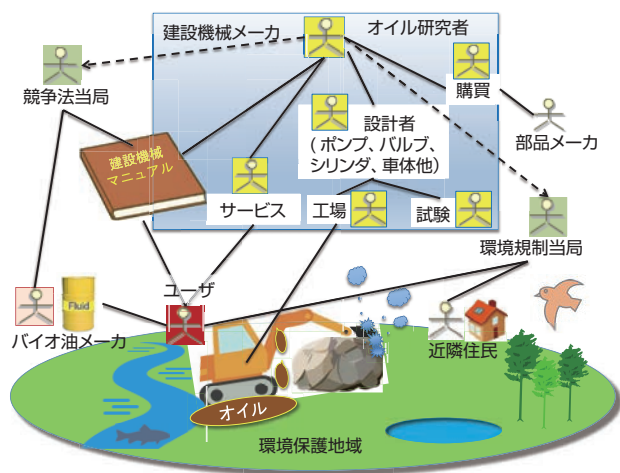


図2 欧州における建設機械の使用環境とステークホルダーの模式図（実線：直接の関係、破線：情報の収集）

転操作やメンテナンスなどを行う。

バイオ油には菜種油（グリセリンの脂肪酸エステル）や合成ポリオールエステル（以下合成エステル）などの主成分（以下基油）が使われるが、これらの基油は微生物による酵素反応で分解され、その微生物の栄養素（生体構成成分）として取り込まれる（資化と言われる）^[10]。菜種油や不飽和脂肪酸を含む一部の合成エステルは、二重結合を含むために酸化安定性が低い。酸化安定性が高い飽和脂肪酸の合成エステルを基油に用いた市販バイオ油であっても、石油系作動油に比べて酸化安定性は劣る。なぜならば厳しい環境規制により添加剤の配合に大きな制約があるため^[1]、石油系作動油に一般的に使用されるヒンダードフェノールや芳香族アミンの酸化防止剤あるいはジアルキルジチオリン酸亜鉛（以下ZDTP）の酸化防止・焼付き防止剤など^[1]は、水性環境有害性^[11]の観点から配合できない。すなわち石油系作動油はオイル洩れがないことが前提であるが、バイオ油は河川など自然環境に洩れることを前提に開発されている。

合成エステルの基油はその種類によっては、圧力による粘度増加（高压粘度^[12]）が石油系基油よりも小さい^{[13][14]}。このため油膜が薄くなり、油圧ポンプや油圧モータの軸受メタルの焼付きを起こす欠点がある。この油膜の薄さを補うZDTPなどの焼付き防止剤は上述のように配合ができない。これらの理由から市販バイオ油には酸化安定性が低く劣化し易い、油膜が薄いなどの多くの問題がある^{[3][15][16][17]}。複雑な油圧システムをもつ建設機械に、何の対策もせずこのバイオ油を採用すると不具合が発生することになり使い方が難しい。

バイオ油を使用可能とする油圧システムを開発するには、特性要因図、フォールトツリー解析 (Fault Tree Analysis, 以下FTA)^[18]、故障モードと影響解析 (Failure Mode and Effects Analysis, 以下FMEA)^[19]などの要素解析手法を用いることが考えられ、これらの解析に基づきバイオ油に適合する建設機械を構成する油圧システム中の機器（以下サブシステム）を開発することになった。FTAは設定した頂上事象の発生原因や要因を抽出して現象の発生条件や要因の解析を行う手法であり^[18]、FMEAはシステムの性能に関する潜在故障モードとその原因や影響を明確にする解析手法である^[19]。これらの要素解析手法は1980年位から自動車や建設機械のメーカで広く採用され、FTAは不具合原因の解析、FMEAは改良・設計時の故障予防に用いられるのが一般的である。

2 バイオ油に適合する建設機械の開発のシナリオ

今回の開発のシナリオを図3に示す。バイオ油には多く

表1 バイオ油の品質上の問題点と建設機械メーカーが要素解析手法を用いて実施した暫定対策と恒久対策

No.	一般に要求される潤滑油の品質項目	バイオ油の現状性能	市場での不具合	不具合発生要因	対策の有無と内容 (○:あり、×:なし)		備考
					暫定対策	恒久対策	
1	油膜強度	低い	軸受メタルの焼付き	・低い高圧粘度 ・極圧添加剤の配合不足	○*1	軸受メタルの幅拡大	*1: バイオ油の使用基準と適正な交換時間の推奨 *2: バイオ油の銘柄の推奨
2	ゴム膨潤の防止性	低い	・シールの油洩れ ・ホース破損	エステル基油のゴムとの強い親和性	○*1	ゴム材質変更	
3	防錆性	低い	作動油タンクの錆発生	防錆添加剤の配合不足	○*1	防錆処理	
4	青銅に対する防食性	低い	軸受メタルの異常摩耗	活性な硫黄系添加剤の配合	○*1,*2	青銅合金の改良	
5	摩擦係数	過剰に低い	駐車ブレーキの制動不良	エステル基油の特性	○*1	ブレーキ材料の改良	
6	石油系作動油との混合安定性	沈殿生成	フィルタ目詰まり	エステル基油と石油系作動油添加剤との反応で炭酸カルシウムやカルシウム石ケンが沈殿	○*1	バイオ油の工場充填	

の品質上の問題がある。暫定対策のマニュアルの開発では、それぞれの品質の問題に対して建設機械での使用方法を決め、市販バイオ油の銘柄を品質毎に区分した。暫定対策は恒久対策が完結した時点で終了した。恒久対策の対象は建設機械の油圧システムの機器の技術に関することが多数を占める。建設機械の生産に関連しては工場で充填した作動油との混合による問題がある。これらの課題については従来のFTAあるいはFMEAにより、バイオ油により引き起こされる不具合の原因を解析して対策方法を検討して導出することができる。しかし、多数のサブシステムから構成される複雑な油圧システムに加えて、オイルの化学的特性（酸化安定性）も複合的に絡む不具合に対しては従来の手法では原因究明が困難である。また、不具合対策の立案やその検証などの適切な手法もなかった。そこで、この論文では、複雑システムの分析、仕様決定、設計、検証および妥当性確認をサポートする図的なモデリン

グ言語である Systems Modeling Language（システムモデリング言語、以下 SysML）^[20] を用いて分野横断的アプローチのシステムズエンジニアリング^[21] 的な視点から、この未解決の問題の解析と対策の導出を試みた。

3 油圧システムのサブシステム毎の要素解析手法 (FTA、FMEA) による故障解析と対策

表1はバイオ油の品質上の問題点 No.1～6と、それぞれに対して著者らが行った暫定対策と、バイオ油に適合するサブシステムを開発するための恒久対策をまとめたものである。市場での不具合と、著者らが行った化学分析や机上試験によるバイオ油の品質の調査結果^{[17][22]} に基づいて要素解析手法を用いてマニュアルを検討した。暫定対策として低品質のバイオ油銘柄の使用禁止も検討したが、現地バイオ油メーカーが競争法当局へマニュアルの競争法抵触を訴えるおそれがあるため実施しなかった。このため

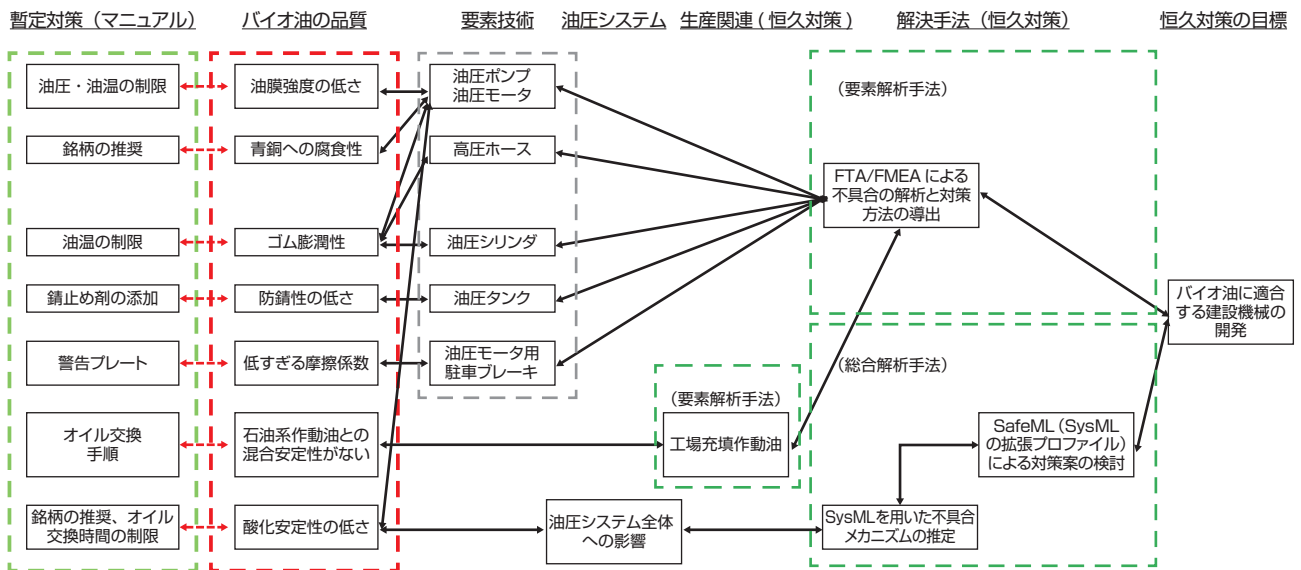


図3 バイオ油に適合する建設機械の開発のシナリオ

表2 バイオ油の品質等級付けと推奨の運転条件^[17]

品質等級	基油	油温、℃	油圧、MPa	オイル交換時間、hrs	駐車ブレーキ
1	菜種油	-10+80	32以下	1,500以下	警告プレート貼付、または改良ブレーキ材への交換
2	菜種油または合成エステル		35以下	3,000以下	
3	合成エステル	-30+100	42以下	5,000以下	
4					そのまま使用

表3 バイオ油の酸化の原因と暫定対策

市場での不具合とその可能性	不具合発生要因	暫定対策
油の変色	・不飽和のエステル基油 ・酸化防止剤の配合不足	表2のオイル交換時間の短縮
鉛青銅軸受の鉛溶出	酸化生成物による鉛の腐食・溶解	

表2のように、バイオ油の品質毎に、運転時の油温・油圧の制限、オイル交換時間の短縮ならびに品質毎の推奨銘柄についてのマニュアルを配布して、ユーザに対応を任せる方策を取っている^[17]。ユーザはこの推奨を参考として品質等級3の銘柄を選ぶようになり効果は得られている。

バイオ油を使用可能とするサブシステムの開発には要素解析手法を用いて表1に示す対策を行った。No.1の油膜強度が低い問題に対しては複雑な品質確認をしなくて済むように、軸受金属の幅（面積）を拡大する設計変更を行った。No.2のバイオ油によるゴムの膨潤は、クロロブレンゴム（CR）やニトリル成分の配合量が少ないニトリルゴム（以下NBR）などの強度を著しく低下させる^[16]。そこで、これらのゴム部品について、耐油性の高いニトリル配合量の多いNBRや水素化NBR（HNBR）などの材質に変更した。No.3のバイオ油の防錆性不足については作動油タンク内部への防錆塗装を施した。No.4の青銅の腐食については、その金属組成に錫などを加えて軸受け性能を維持しながら硫化水素に対する耐食性を改良した^[23]。No.5の低くなり過ぎる湿式多板式駐車ブレーキのトルクに対しては、ブレーキ材メーカーと共同でバイオ油中でも高いトルクを発生する材料を開発して採用した。No.6の石油系作動油の添加剤との反応で生じるフィルタ詰まりに対しては、バイオ油使用を希望するユーザ向けに予め工場バイオ油を充填して出荷することにより石油系作動油との混合を防ぐ対策を施した。

バイオ油の酸化安定性の低さについては、表3のように当初菜種油の変色（黒色化）だけが市場での不具合になっていた。鉛青銅軸受の鉛溶出の可能性も考えられたが市場での不具合は生じていなかった。このため、著者らはユーザへのオイル交換時間の指導で問題はないと判断して

いた。恒久対策として、品質等級4を目標とした酸化安定性の高いバイオ油を日本国内で開発^{[15][17]}したが、欧州の環境毒性規制^[8]に対応できず市場導入していない。

上記の一連の対策後にも次の問題が起こっている。建設機械の現場では、バイオ油による油圧バルブの作動不良が発生し、油圧ポンプの圧力不足、油圧シリンダや油圧モータなどの誤作動が問題となっていた。これらに対する調査結果からは、外部から侵入する砂塵と内部で発生する摩擦粉（以下油中ダスト）による油圧バルブの固着や摩耗が原因とされたものの、バイオ油との直接的な関係性は未だ解明されていなかった。バイオ油の酸化安定性が低いことで、油に不溶の酸化縮重合物^[1]（以下ラッカー）が生じ、油圧バルブにこれが付着して作動不良を起こすことも考えられたが、作動不良を生じた油圧バルブの検査結果ではラッカーの付着はなかった。結果的に、作動不良の現象は収まったように見えたが、油圧バルブの作動不良の原因が解明されないままになった。これによりバイオ油に適合する建設機械の開発が完了するに至らなかった。

4 システム全体の原因究明と対策決定のためのシステムモデルを用いた総合解析手法の適用

前述のように複雑な油圧システムに加え、バイオ油の酸化安定性が絡む不具合については新たにSysMLで記述したシステムモデルを用いた総合的な解析を試みる必要があった。SysMLはシステムの要求、構造、振る舞いを図的に表現でき、検証および妥当性確認をサポートするモデリング言語であるため、表4のように不具合の原因究明と対策立案にSysMLとSafeML（SysMLの拡張プロファイル、詳細は後述）を合わせて使えば有効と考えられる。従来の要素解析手法では原因が特に複雑な場合やシステム全体の解析を行うには適用が難しく、メカニズムを図示することもできない。要素解析手法では、専門家でないことと記述してある専門用語を理解できず内容を検討できない欠点がある。これに対してSysMLは原因が複雑な場合でも記述が可能であり、専門用語は平易な表現（例えば「油圧バルブ」は「油の流れをコントロールするサブシステム」とするなど）として図示するので専門家以外でも理解し易い。但し、対策の妥当性の検証はできるものの対策の立案や検証はできない。SafeMLは危険と危険状況、および危害の組み合わせをリスクとして定義し、これに対する防御方策を明確に記述する言語である。ただし、不具合のメカニズムを詳しく図示することは難しい。SysMLとSafeMLは技術者以外の人も加わって分野横断的な検討が可能である。

図4は要素解析手法を用いた従来の各サブシステムの解析と開発、そして総合解析手法を用いた油圧システムをシ

表 4 不具合の原因説明と対策立案の手法とシステムモデルを用いた方法の比較（○：可能、△：一部可能、×：不可能）

No.	使用する手法名 またはモデリング言語		原因説明			対策の立案			専門家以外の 検討
			不具合原因の 説明事例	複雑なシステム ・要因への適用	不具合のメカニズム (振る舞い) の図示	立案	検証	妥当性確認	
1	特性要因図		あり	×	×	×	×	×	
2	FTA		あり	×	×	×	○	×	
3	FMEA		あり	×	×	×	○	×	
4	SysML	SysML	なし	○	○	×	○	○	
5		SafeML	あり	△	×	△	○	○	

ステマティックに捉える解析と開発の双方を統合した手法を示す。要素解析手法はサブシステム毎に絞った原因究明と対策は有効であるが、この油圧バルブの作動不良のように油圧システムの全体を俯瞰しながら、バイオ油の状態変化も絡めて解決すべき複雑な問題には対応できない。

この論文では、SysML を用いて油圧システムの動作をシステムモデルとして記述して理解する。次に不具合に至る油圧システムのメカニズム（以下振る舞い）を記述し、バイオ油の状態変化との関係を把握し原因を推定する。また、バイオ油の状態変化から不具合との関係も把握する。

SysML は安全分析と統合する試み^{[24]-[26]}が多く行われているが、Biggs ら^[27]が提唱する SafeML が実用的である。SafeML は SysML の安全情報に特化した拡張プロファイルであり、システムのリスクやそのリスクに対する対策手段、リスク管理の結果を明確に記述できる^[28]。この SafeML を用いて作動不良が起こる状況から、対策を立案し、その効果の把握と妥当性検証に加え対策コストも検討する。ここで明確になった作動の安全性に関わる項目から安全スコア（後述）を算出して最終対策を決定する。このシステムモデルでは、サブシステムの部品担当者にも容易に理解できるように油圧部品レベルで記述する。SysML、

SafeML の図については日本語の記述では不完全になるため英文記述とする。

5 システムモデルを用いた総合解析手法による油圧システムの理解と不具合要因の技術的な検討結果

5.1 SysMLによるシステムモデル記述

建設機械全体のシステムの振る舞いを図5のアクティビティ図に示す。アクティビティ図は入力フロー、出力フロー、制御のフロー（点線）、オブジェクトのフロー（実線）ならびにアクションのブロックを用いて振る舞いを示す^[20]。エンジン (Engine) は発生した出力 (Generate Power) により油圧システム (Hydraulic System) を駆動する。オペレータは油圧システムを操作し (operator command force)、油圧を力や回転トルクとして作業機 (Work Component) に伝える (Provide Hydraulic Force)。これにより作業機を動かし、掘削作業 (Excavate Earth)、バケット旋回 (Rotate Excavating Direction)、あるいは走行 (Run Machinery) を行う。なお、油圧システムの圧力調整のために少量の空気 (Air) が不連続 (discrete) に吸入される。

同様に油圧システムのコンテキストを図6の内部ブロック図により示す。エンジン出力 (Engine Power) により油圧ポンプ (block1 pump: Oil Press Generation Subsystem) を駆動して、高圧油 (HP_oil, 35 MPa) と中圧 (3 MPa) のパイロット油 (Pilot_oil) を発生させる。オペレータは油圧バルブ (block2 valve: Oil Flow Control Subsystem) 中のパイロットバルブ (block2.1 pilot valve: Pilot Valve Device) を介して、油圧ポンプの圧力の調整と、メインバルブ (block2.2 main-valve: Actuator Moving Device) の操作を行う。メインバルブは高圧油の方向、流量ならびに圧力を制御する複数のユニットからなっている。制御された高圧油 (CHP_oil) は、作業機を動かすサブシステム (block3 actuator : Work Component Actuation Subsystem) 中の油圧モータ (Hyd- motor device) や油圧シリンダ (Hyd-cylinder Device) を作動させる。作動後の高圧油はメインバルブ中に戻って低圧油 (LP_oil, 0.1 MPa) となり、オイル供給サブシステム (block4:

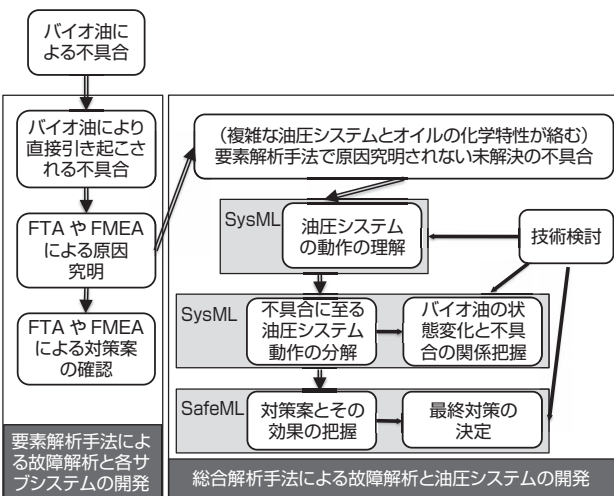


図 4 バイオ油に対する各サブシステムの開発と、SysML を用いた油圧システムの開発の手法

Oil Feed Subsystem) に入る。各部の摩擦や粘性抵抗による発熱と共に、高圧油が低圧油になる時の発熱により油温が上昇するのでオイルクーラ (Oil Cooler Device) で冷却する。その後、低圧油はフィルタ (block4.1.1 filter: Dust Eliminating Unit) により油中ダストが濾過され油圧タンク (Oil Tank Unit) に戻る。

5.2 不具合要因の技術検討

5.2.1 バイオ油の酸化を生じるサブシステム (ポンプ、

バルブ) についての考察

バイオ油における酸化安定性の低さに対しては恒久対策がされておらず、作動不良にも関わりがあると考えられる。そこで、油圧システムの作動不良の原因を理解するために、どのサブシステムの中でバイオ油が酸化するかを明らかにする必要があった。図6で酸化を起こす可能性が高いサブシステムは、負荷と温度が高い油圧ポンプであるが、メインバルブ (block2.2 main-valve) や作業機を動かすサブ

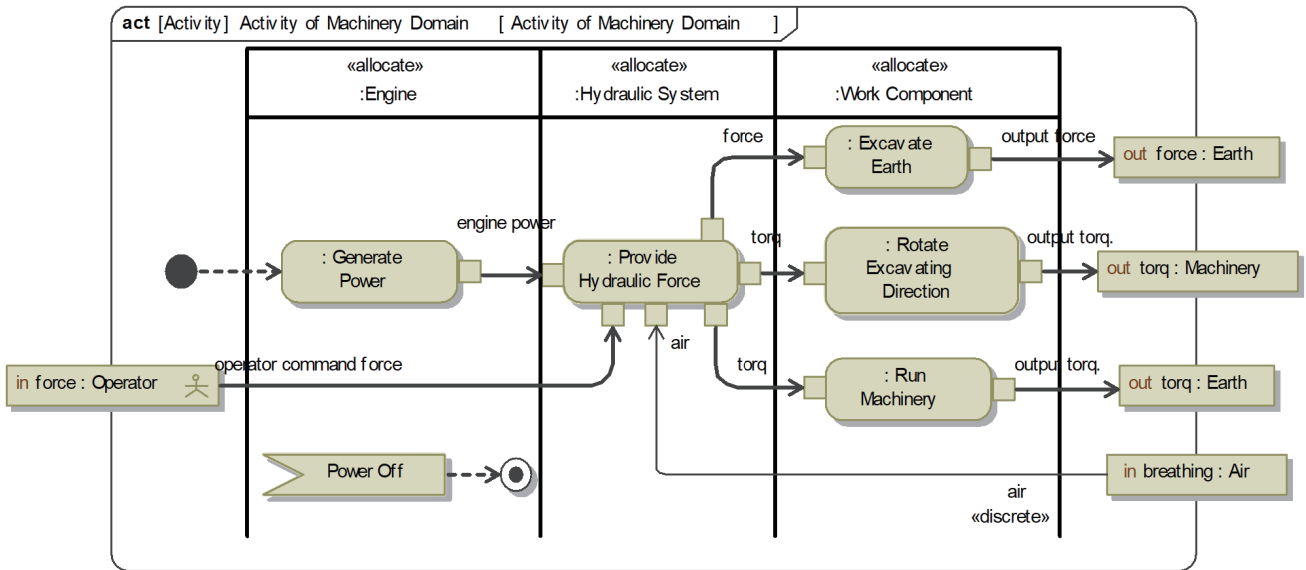


図5 建設機械ドメインのアクティビティ図

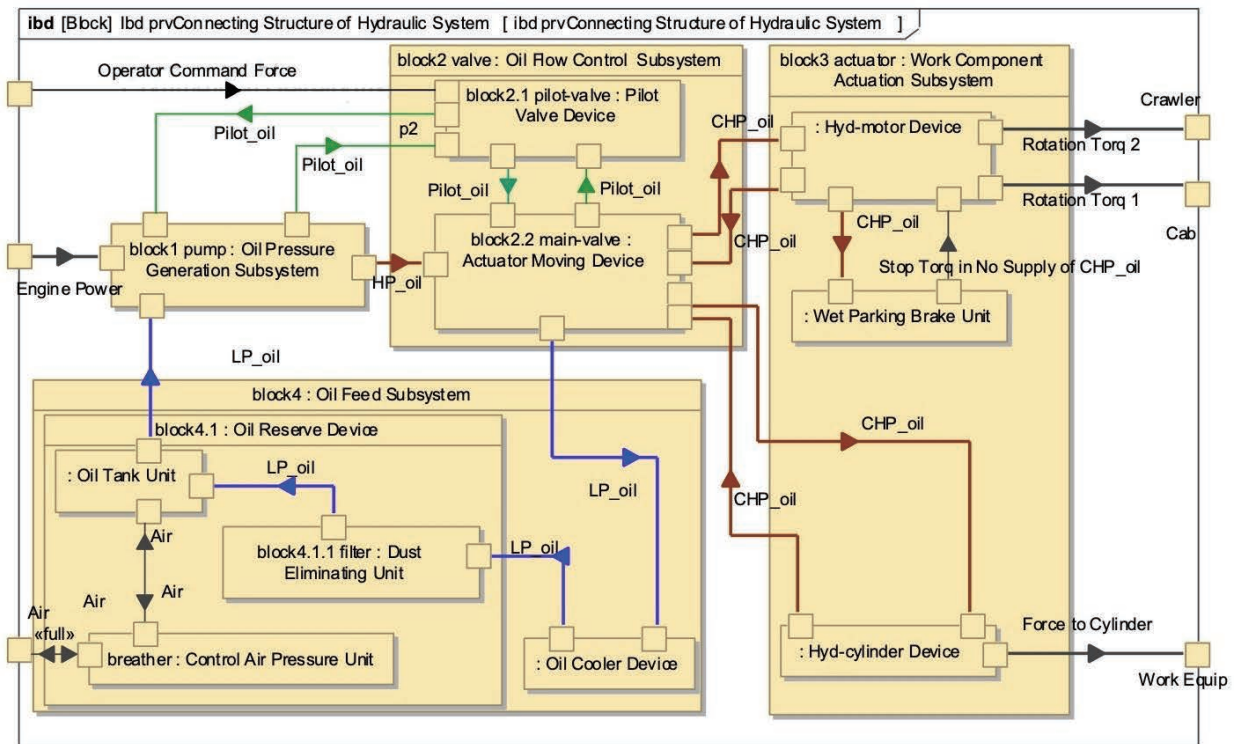


図6 建設機械の油圧システムの内部ブロック図

システム (block3 actuator) 中の油圧モータや油圧シリンダにおける酸化の可能性については検討されていない。風間ら^[29]は建設機械に使用される斜板アキシャルピストン式油圧ポンプ (21 MPa) で温度測定を行い、シリンダブロックで 30 °C 以上の温度上昇 (油温 80 °C の場合 110 °C) することを見出している。油中に気泡が存在する場合は断熱圧縮により 1,400 °C 以上 (35 MPa の場合) のホットスポットを生じて周辺のバイオ油を加熱するため^[30]、バイオ油が酸化してラッカーになると推定できる。

建設機械における稼働時の全てのサブシステムのエネルギー損失は 60 ~ 75 %^{[31][32]}に達するが、著者らの調査ではそのうち油圧ポンプが約 15 %、メインバルブが約 25 %であった。エネルギー損失は油温の上昇に繋がるので、メインバルブ内の油温が油圧ポンプ以上に高い場合もあると推定できる。また、メインバルブ内には高压油を低压の回路に排出するユニット (リリーフ弁) がある。建設機械が掘削バケットで大きな岩を取り除く時などに、油圧システムに過大な負荷が掛かった状態で油圧シリンダや油圧モータの動きが止まると、余剰な高压油がリリーフ弁から低压のオイル供給サブシステムの回路 (block2.2 main-valve から出る青の LP_oil 回路) に解放され、運動エネルギーが熱に変換される。この時発生するリリーフ弁での発熱量を式 (1)^[33]に従って算出すると、油温は約 100 °C (油温 80 °C の場合) となり油圧ポンプの油温と同等である。

$$H = p \cdot Q \quad (1)$$

ここで H はリリーフ弁からの発熱量 (KJ/min.)、 p はリリーフ圧力 (MPa)、 Q はリリーフ流量 (L/min.) である。

今西ら^[34]はメインバルブ (block2.2 main-valve) の動作をシミュレーションし、メインバルブからアクチュエータ (block3 actuator) への高压油の流れの方向を制御するユニットでもエネルギー損失はリリーフ弁ユニットと同等で大きいことを示している。この高压油の流れの方向を制御するユニットではオイルは流速 100 m/s 以上で流れて^[1]、激しいキャビテーションを起こす。これにより焼入れや浸炭を施した鋼部品にも損傷を生じる場合がある^[1]。このような激しいキャビテーションでは気泡の崩壊により高温・高压 (約 4,700 °C、100 MPa) のホットスポット^[35]が生じるとされる。その中ではほとんど原子状態まで分解されるか、あるいは炭素結合がランダムに裂かれる^{[35]-[37]}。これにより周辺のバイオ油は酸化してラッカーを生成すると推定される。なお、油圧ポンプ内でもキャビテーションによる損傷は小規模ながらも発生する^[38]。これらの検討から著者らは、油圧ポンプと油圧バルブでラッカーが生じることを新たに見出すことができた。

油圧モータや油圧シリンダでもラッカー生成が起こりえる

が、いずれも負荷頻度は油圧ポンプやメインバルブに比べ低い。過去には旋回用油圧モータが左右の回転切り替え時にキャビテーションによる問題を起したが、現在は油圧バルブの改良で対策されている^[31]。このため油圧モータや油圧シリンダでのラッカー生成は少ないと推定できる。生成したラッカーはバイオ油に溶けないのでフィルタに捕捉され、フィルタ詰りの要因となる。

5.2.2 油中ダストとフィルタについての考察結果

図 7 に油圧タンク、フィルタとブリーザの構造を示す (図 6 block-4.1)。フィルタ (block-4.1.1 filter) は低压油を 20 ~ 100 回通過させることで油中ダストを捕捉する。著者らの実車試験では従来のセルロースろ材 (後述) のフィルタは数時間で 5 μm 以上の油中ダストを 50 % 以上捕捉できる。これにより油中ダストの粒子数 (清浄度) は油圧システムに必要とされる上限値以下に抑えられる。フィルタが詰まり圧力が高くなると、フィルタ用バイパス弁が開いて低压油はフィルタを通らず直接油圧タンクに入る設計になっている。フィルタ交換時間は油中ダストの捕捉容量から設計され 250 ~ 500 hrs とされている。

前述のように油中ダストは外部ダストと内部の金属摩耗粉からなる。外部ダストは油圧タンクに装着されたフィルタ付きブリーザ^[39] (block4.1.1 breather) から、空気の入りと同時に粉塵や泥水として侵入する。ブリーザのフィルタは一回の通過だけなので、細かいダストの侵入を防げず油中ダストの一因となっている。このフィルタはオイル用フィルタと同じセルロースろ材を使っている。外部ダストは劣悪な現場ではオイル補給、フィルタ交換、油圧ホース交換やサブシステムの修理時にも混入する。

このため油中ダストには砂塵由来の珪砂 (石英) や長

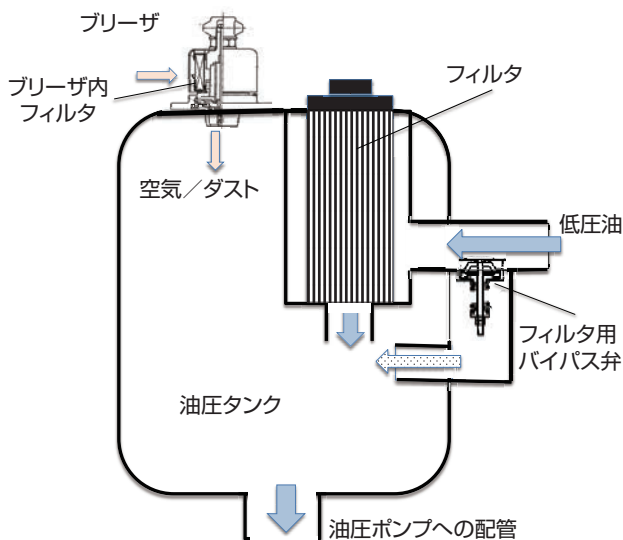


図 7 油圧タンクとフィルタ・ブリーザの模式図

表5 油圧ダストの粒径毎の粒子数（清浄度）の限界値と不具合が発生した作動油中の粒子数の典型例

粒径、 μm	5-15	15-25	25-50	50-100	>100
上限規格個数、 mL^{-1}	500,000	32,000	4,000	1,000	100
不具合が発生した汚染の例、 mL^{-1}	3,490,150	96,990	3,120	140	0

石、あるいは金属摩耗粉である酸化鉄や銅などの硬質（ビッカース硬度 Hv 600 以上）の成分が含まれている。表5は著者ら^[40]がまとめた油中ダストについての清浄度の限界値（Cleanliness limit）^[1]と、不具合が生じた典型的な清浄度の例である。この限界値を超えると、油圧バルブの固着による作動不良や摩耗を起こす原因となる^[33]。メインバルブやパイロットバルブの可動部の間隙は数 μm ～30 μm ^[1]であるので、清浄度限度内であっても油中ダストは隙間に入り込むが、ポンプ不具合を起こした例では油中ダストの個数は清浄度限界の最大7倍に達していた。

6 不具合に至る油圧システムの振る舞いの検討結果

6.1 油圧システムでの正常なバイオ油の振る舞い

図8に油圧システムの正常な振る舞いのアクティビティ図を示す。各アクティビティ区画は図6のサブシステムのブロックに一致する。油圧ポンプ（block1 pump）は高压油（HP_oil）を油圧バルブ（block2 valve）に送り出す。オペレータは油圧バルブを操作して、パイロット油（Pilot_oil）によりポンプ圧力の調整を行い、高压油の流れの方向あるいは流量を制御する。この制御された高压油（CHP_oil）

によって油圧モータや油圧シリンダなどのアクチュエータ（block3 actuator）を動かす。これにより作業機器（Work Component）が作動する。作業に使われた高压油は油圧バルブを経由して低压油（LP_oil）としてオイル供給サブシステム（block4）に戻り、冷却されて（Cool LP_Oil）、フィルタでろ過され（Filtrate LP_oil）、清浄な低压油（clean LP_oil）としてオイルタンク（Reserve LP_Oil）を経て油圧ポンプに入り再び高压化される。但し、低温始動時などバイオ油の粘度が高い時にはフィルタ差圧が高くなり（filtration pressure => 0.15 MPa）、フィルタ用のバイパス弁が一時的に開く。これによりバイオ油はフィルタを通過せずに（Bypass Filtration）、油中ダストを含んだままオイルタンクに流れる（contaminated LP_oil）。なお、始動後30分程度で油温は60℃以上に上がるため、この間に低压油はフィルタを通過するようになり油中ダストの量は直ちに減少する。

6.2 バイオ油の酸化による油圧システムの作動不良の振る舞いの検討結果

バイオ油の酸化によるラッカーの生成と油圧システムでの振る舞いについて図9のアクティビティ図で示すことができる。(1) 油温が上がった油圧ポンプでは、気泡の断熱圧縮によりラッカーが高压油中に生成される（Generate Oil Pressure and Generate Lacquer in HP_oil）。ラッカーを含んだ高压油（HP_oil + lacquer）は油圧バルブ内に流れる。(2) 油圧バルブでは激しいキャビテーションが発生して低压油中にラッカーが生成され（Control Oil Flow and Generate Lacquer in LP_Oil）、オイル供給サブシステムに

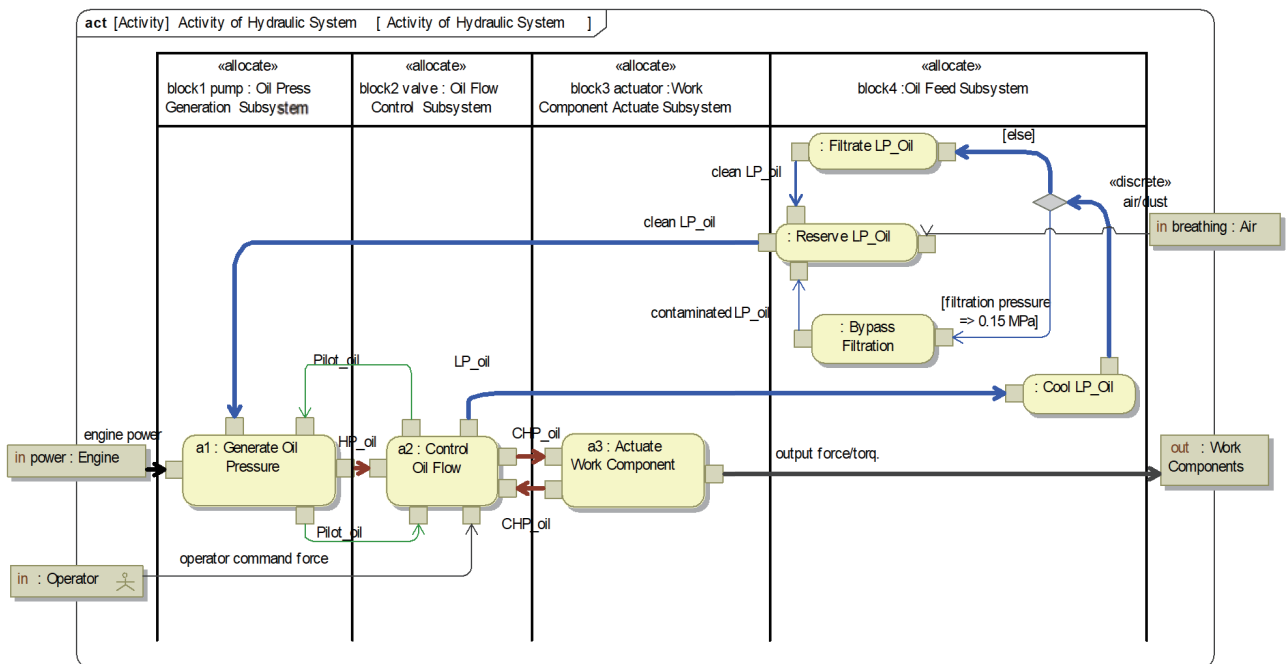


図8 油圧システムの正常な状態のアクティビティ図

流入する。(3) ラッカーを含んだ高圧油はアクチュエータにも流れるがアクチュエータへの影響は小さい。(4) ラッカーはオイル供給サブシステム内のフィルタに捕捉され (Filtrate LP_oil)、清浄な低圧油として油圧ポンプに戻る。しかし、次第にラッカーがフィルタに堆積すると、油温が 60 °C 以上でもフィルタ差圧が 0.15 MPa 以上となり、フィルタ用バイパス弁が開いたままの状態(以下フィルタ閉塞)となる (plug

filter with lacquer)。この結果、油中ダストやラッカーがろ過されずに低圧油に混入し (contaminate LP_oil)、油中ダストに汚染された低圧油が流れる (contaminated LP_oil)。

汚染された状態のバイオ油の油圧システム中の振る舞いを図 10 に示す。汚染された低圧油は油圧ポンプに吸入され、油中ダストとラッカーを含んだ高圧油とパイ

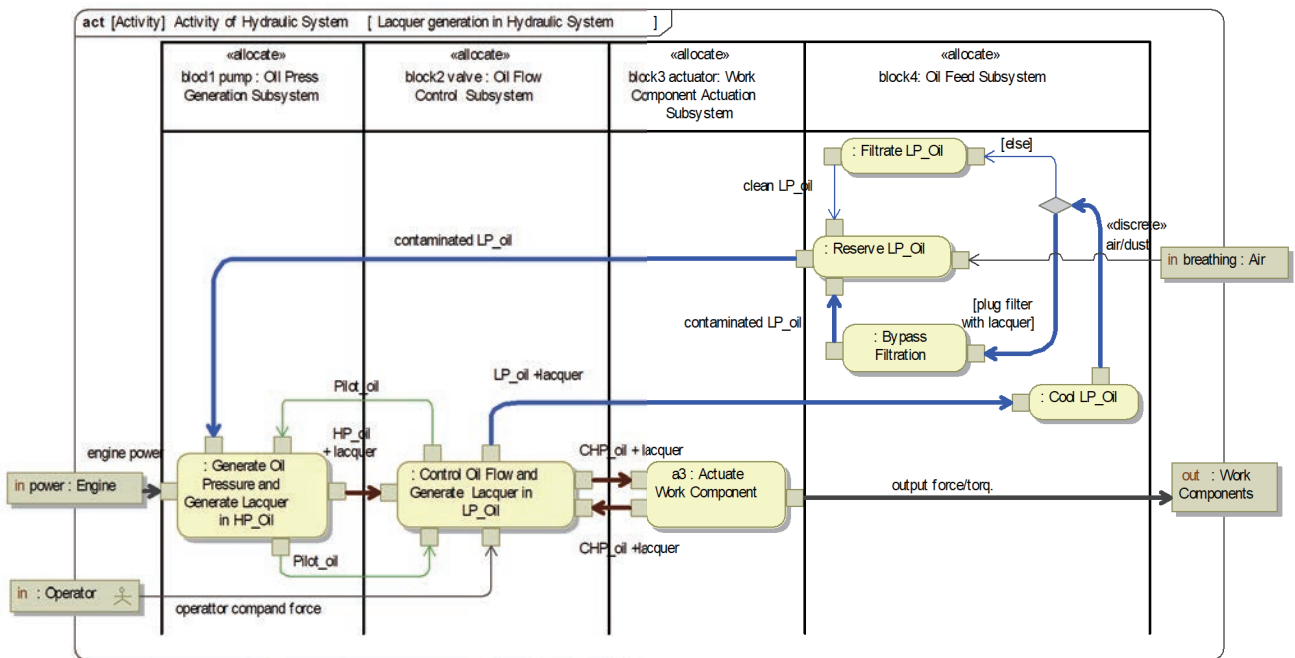


図 9 油圧システムにおけるバイオ油のラッカー生成とその挙動

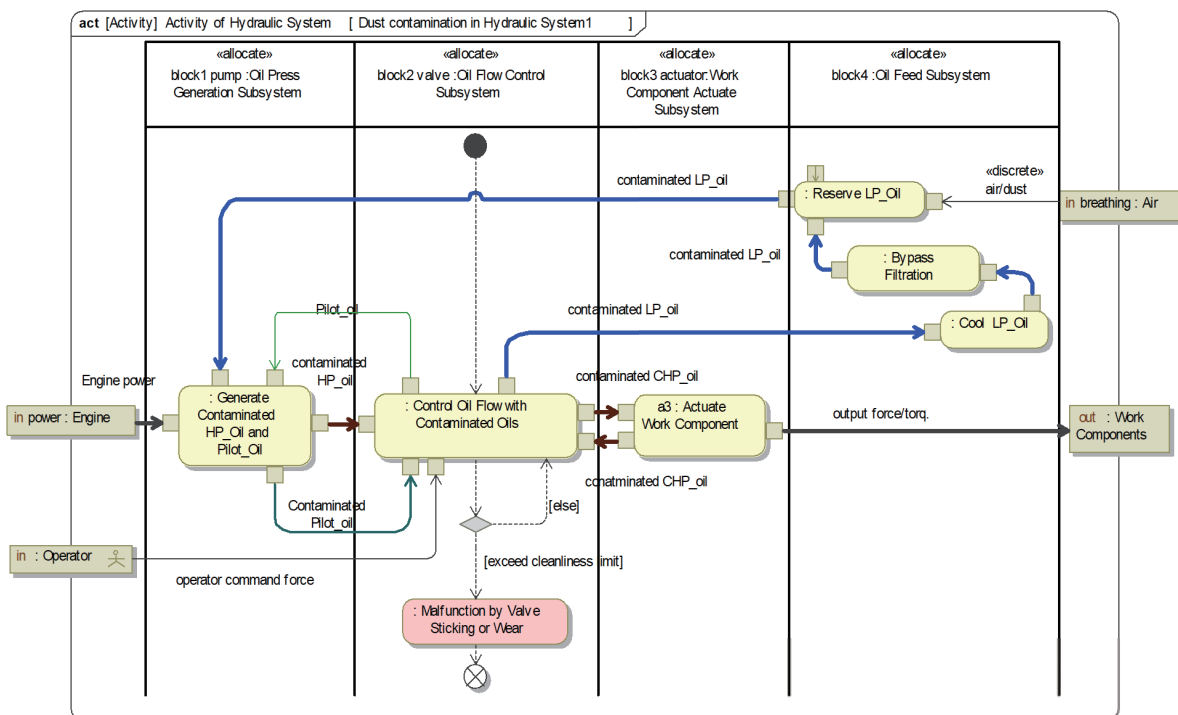


図 10 汚染されたバイオ油と油圧システムの作動不良

ロット油 (Generate Contaminated HP_Oil and Pilot_Oil) となり、油圧バルブに送られる。汚染された高压油 (contaminated HP_oil) にはアクチュエータなどで摩耗粉が入り、低压油としてオイル供給サブシステムに戻り、外部ダスト (air/dust) が混入する。これが繰り返されて油中ダストの濃度が清浄度の上限値を超えると (●下の◇、exceed cleanliness limit)、油中ダストが油圧バルブ (メインバルブとパイロットバルブ双方) の隙間に入り込んで固着や摩耗により作動不良が起こる (Malfunction by Valve Sticking or Wear)。フローは終了 (⊗) して修理が必要となる。油圧バルブの作動不良により、油圧ポンプ、油圧モータあるいは油圧シリンダのいずれかに誤作動が生じることが分かった。

7 バイオ油の状態遷移と不具合の関係の検討結果

7.1 バイオ油の状態遷移のシステムモデル記述

バイオ油の酸化とダスト混入に関する状態遷移の振る舞いを図 11 の状態機械図に示す。バイオ油は油中に酸素が溶解していると、油温 100 °C 程度でもバイオ油の一部が酸化によりラジカル (radical) になる^[41]。ラジカルとはオイル分子の一部の結合が切断して活性化した短寿命の分子であり^[42]、連鎖的に酸化を加速する作用がある。バイオ油のラジカルは石油系作動油と同様の反応メカニズムで酸化を起こす^[43]。

著者らは、バイオ油は 135 °C × 500 hrs 以上の条件で

酸化するとラッカーが生じ始めることを酸化安定度試験^[44]で確認している^{[15][22]}。石油系作動油はこの条件ではラッカーの生成は認められなかった。建設機械の油圧システムの最高油温は 110 °C と低く^[1]135 °C には達しない。このため、著者らは前述した気泡の断熱圧縮^[30]やキャビテーション^[35]のような局部的高温部 (ホットスポット) が生じて初めてバイオ油の急激なラジカル生成、酸化反応ならびにラッカー生成が起こると推定した。このようにして生成したラッカーを含むバイオ油は劣化状態 (deteriorating) にある。フィルタによりラッカーが除去されれば正常な状態 (Normal) と見なされる。ラッカーはフィルタの捕捉可能な容量 (lacquer elimination possible) まで除去される。ラッカーがフィルタに蓄積してフィルタ差圧が高まると、フィルタ閉塞の状態となり (図 9 の filter plugged with lacquer)、バイオ油は油中ダストとラッカーに汚染された状態になる。最終的には油中ダストによる汚染は、油圧システムの清浄度の限界値を超えることが本状態機械図の検討からも導出される。

なお、酸化反応で生成した酸化生成物 (oxidation products)^[45]やラジカルはオイル中に溶解しており、フィルタを通過して油圧システム内を循環する。反応性が高いラジカルは短寿命 (1 ns ~ 数時間) で、反応性の低いラジカルは 1 年以上の寿命がある^{[46][47]}。ラッカーを生成するような反応性が高いラジカルは油中に蓄積されることは少ないと思われる。但し、酸化生成物は油中に濃縮されることに

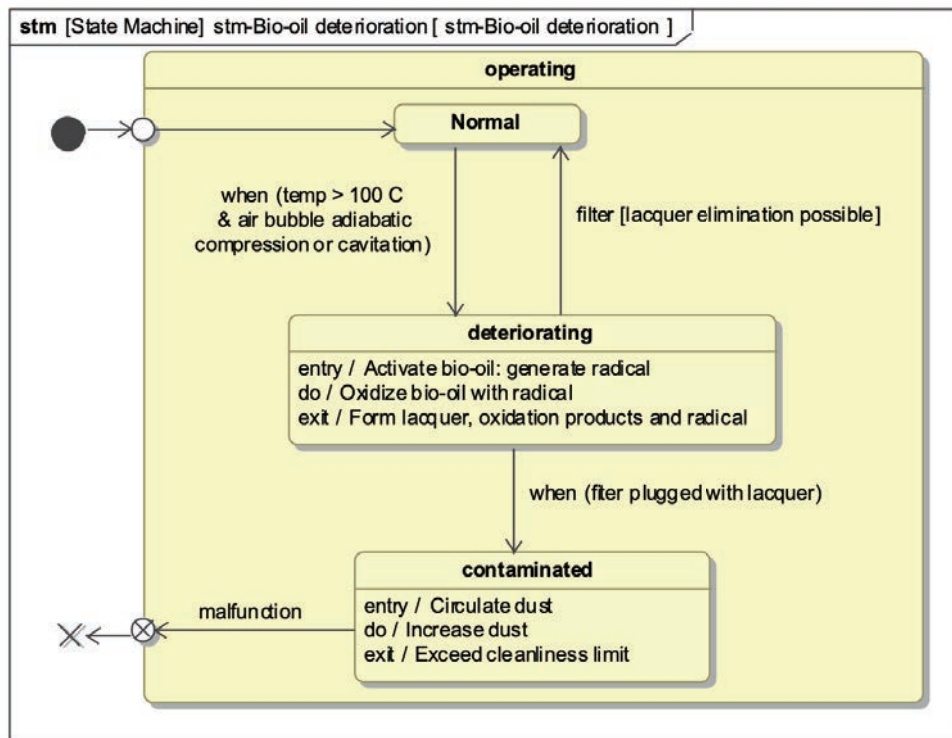


図 11 バイオ油の状態遷移を示す状態機械図

なる。

7.2 バイオ油状態遷移の技術的検討の結果

7.2.1 バイオ油のフィールド試験における酸価増加について

ラッカー生成に対するバイオ油の酸化生成物の濃縮の影響を調べるために、酸化安定性の高い飽和脂肪酸合成エステル基油の市販バイオ油について、建設機械のフィールド試験を行った結果^[48]を図12の実線で示す。酸化生成物の濃度の指標となるバイオ油の酸価は、3,000 hrsを超えると石油系作動油の使用限界値に近くなる。ここで酸価とは潤滑油中に含まれる酸性成分あるいは遊離脂肪酸の量の指標で、中和する水酸化カリウムの必要量で表す。この限界を超えると、酸化生成物が鉛青銅系軸受メタルに含まれる鉛を腐食・溶解して焼付きを生じるようになる^[49]。このため著者らは酸価を限界値以下にするように、欧州の標準的な飽和脂肪酸合成エステルバイオ油のオイル交換時間の推奨は3,000 hrs 毎（表2）と規格に定めた。石油系作動油では図の破線で示すように早期の酸価上昇は生じないため、オイル交換時間は5,000 hrs 毎としている。バイオ油の酸化増加がラッカー生成と関係があるかを次項で検討する。

合成エステルバイオ油は数%の水が混入すると加水分解が起こり酸価が増加すると言われる^[50]。しかし、Tottenら^[38]は油圧ショベルなどに混入する水分量は0.1%以下と少ないので加水分解は起きないと断定している。著者らも同様にフィールド試験で加水分解は起きていない結果^[48]を得ているので、図10には酸化だけの状態遷移を示した。

7.2.2 バイオ油以外のフィルタ閉塞の事例の検討

ラッカー生成メカニズムを検討するために、著者らは石油系作動油とエンジン油についてのラッカー生成について

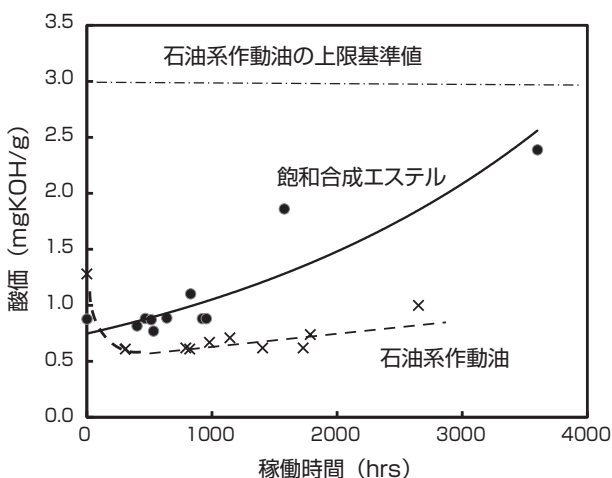


図12 建設機械のフィールド試験における飽和脂肪酸合成エステル基油のバイオ油^[48]と石油系作動油の酸価の経時変化

調べた。

石油系作動油を使用し、大型建設機械(ホイールローダ)のフィルタ交換時間を500 hrs から5,000 hrs 以上に延長するフィールド試験において、フィルタへの著しいラッカー付着を観察している(図13)。フィルタの白色エンドプレートとセルロースろ材(新品は黄色)に茶色のラッカーが付着しており、ろ材はラッカーにより目詰まりしていた。石油系作動油は4,000 hrs でも酸価は低い(図12)ので、酸価の増加はラッカー生成とは関係なく、ホットスポット周辺でのラッカー生成によってフィルタ閉塞が生じたと考えられる。

また、著者らはエンジンで同様な不具合の原因を解明している^[51]。燃焼ガス中の窒素酸化物(NOx)によりエンジン油中にラジカルができて多量のラッカーを生成し、早期のフィルタ閉塞によるエンジン部品の過大摩耗が引き起こされている。ここで使用されたエンジン油にはNOxによる酸化に対して有効な酸化防止剤が配合されていなかった。バイオ油がラジカルに有効な酸化防止剤を含まないのと同じ状況である。これらのラッカー生成によるフィルタ閉塞はバイオ油の状態遷移の振る舞いの推定を裏付ける。

8 拡張SafeMLによる作動不良の対策の提案

8.1 SafeMLの拡張

SysMLにより記述した作動不良の振る舞いをもとに、SafeMLを用いて危険状況を記述して対策を検討した。但し、従来のSafeMLは製品自体の不具合に対する危険源は対象ではなかった^[28]。そこで、著者らは製品不具合なども取り扱えるように、SafeMLの防御要素(Defence elements)として三つの紫色の元素で示す短期対策(Short-term defence)、長期対策(Long-term defence、以下対策)ならびに短期対策の効果を把握するための市場調査(Field Survey)を追加して拡張した(図14)。この論文では短期対策と市場調査については取り上げない。Biggsら^[27]は、複数の対策案について相対的で定量的な

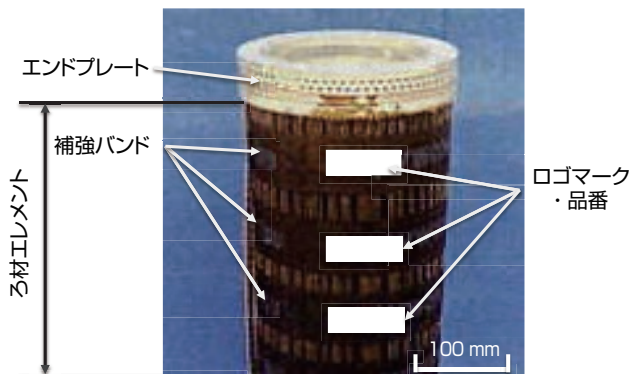


図13 フィルタ交換時間の延長試験(4,200 hrs)で付着したラッカー

安全スコア (Safety Score、付録 A 参照) を算出する試みを行っている。ここでは対策の選定について安全スコアの適用も試みる。

8.2 拡張SafeMLを用いた作動不良と対策に関する提案

拡張 SafeML を用いて三つの対策案を図 15 のように提案する。図 8 ~ 10 に記述した危険状況に対する対策案を記述している。建設機械用として不適切な劣化しやすいバイオ油の使用 (桃色のエレメント Unacceptable Bio-oil use in hydraulic system for hydraulic excavator) は危険源 (Hazard) であり、油中ダストによる油圧バルブの作動不良 (赤のエレメント Malfunction of hydraulic system by oil dust) は危害 (Harm) である。危険源の元はバイオ油にあるので、<<deriveHzd>>として関連付けて示している。危険状況 (黄色のエレメント Harm Context) は、バイオ油の劣化により早期にフィルタが閉塞し、油中ダストが油圧バルブの固着や摩耗を生じること (Valve sticking/wear caused by oil dust) である。危険状況を生じる要素は油圧バルブにあるので、<<deriveHC>>として関連付けて示している。対策 (緑のエレメント <<Long-term defence>>) は危険状況を防ぐための案であり、対策効果 (青のエレメント <<DefenceResult>>) には効果の内容を具体的に示す。赤・黄・緑・青のエレメント内には 5 項目のタグ値、すなわち対策の成功の確率 (probability of success)、危険状況発生の確率 (probability of occurrence)、危害発生の確率 (probability of harm)、

危害発生の範囲 (range)、危害の過酷度 (severity)^[27] を検討して記入する。<<reqDefence>>として関連付ける安全性要求 (薄桃色のエレメント <<requirement>>) を記述して対策案の妥当性を確認する。安全性要求に <<satisfy>>で関連づけられる対策用の装置と <<verify>>で関連づけられる試験 <<testcase>>は、設計部門と試験部門の情報共有のためにより具体的に記述することもできる。

作動不良の振る舞いから考えられる基本的な対策は、余剰な高圧油の発生を抑えてホットスポットの発生を防ぐこと、バイオ油の酸化を防ぐこと、ならびにフィルタの閉塞を防ぐことである。これら三つの対策の具体的な案を以下に示す。

8.2.1 対策案1

緑エレメント (1) Auto engine controller は、エンジン制御により余剰な高圧油のメインバルブのリリーフ弁ユニットからの排出を抑えて、キャビテーションを抑制しラッカーの生成を減らすことである。この対策案によって、低負荷時の余剰な油圧を下げる (薄桃色エレメント Hydraulic system shall reduce oil pressure at a low load operation) という安全性要求が生じる。この要求を満たすためのエンジン回転制御装置 (block、Engine Controller) については、エンジン車両を用いた試験 (Machinery Test) により検証する必要がある。対策の効果 (青エレメント Defence Result) は、フィルタの閉塞を防ぐために、油圧バルブの圧力を下げてラッカー生成を減らせることである (Reduction lacquer

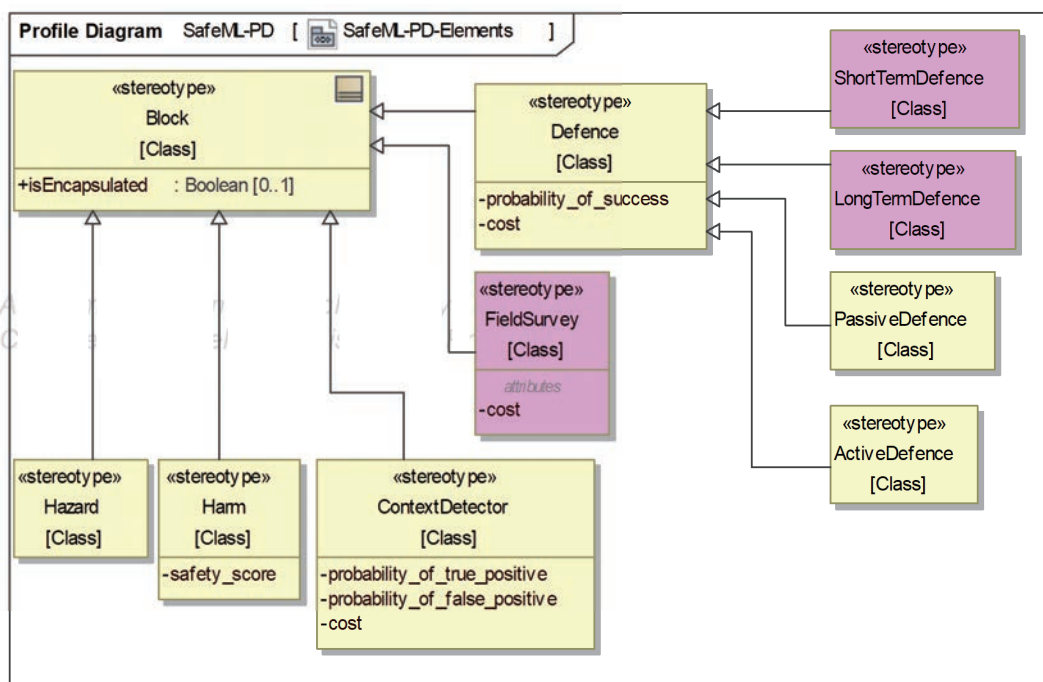


図 14 SafeML に追加した要素 (紫色のエレメント)

formation by lowering pressure at valve to prevent filter plugging)。

8.2.2 対策案2

「緑エレメント (2) Centrifugal air bubble separator」は、遠心分離装置^[30]を用いて油中気泡を除去し、油圧ポンプでの断熱圧縮によるラッカー生成を減らすことである。安全性要求は、バイオ油の酸化を防ぐために油中酸素量を下げること（薄桃色エレメント Hydraulic system shall reduce O2 content in Bio-oil）である。この安全性要求を満たす遠心分離装置 (Centrifugal Air Bubble Separator) については、オイル供給サブシステムによる試験 (Oil Feed Subsystem Test) をする必要がある。対策の効果は、バイオ油の劣化を抑制して油中ダストの通過を防ぐことである（青エレメント Prevention of dust bypassing of filter by reduction of bio-oil deterioration）。

8.2.3 対策案3

「緑エレメント (3) Improved Filter」は、フィルタのろ過性能を改良してラッカー閉塞を防ぐことである。安全性要求はラッカーによるフィルタ閉塞を防ぐことである（薄桃色エレメント Prevent filter plugging）。この要求を満たせる新しい

ろ材を採用した改良フィルタ (Improved Filter with New Media) についてはフィルタ台上試験による検証 (Filter Bench Test) をする必要がある。対策の効果は、フィルタの容量を増やすことで油中ダストの流出をさせないことである（青エレメント Prevention of dust flowing by increased filter capacity）。

8.3 対策案の技術検討

エンジンの自動制御で低負荷時に高压油の圧力を下げて、メインバルブのリリーフ弁から余剰な高压油の排出を減らせば油温は下がる。しかし、これ以外の油圧バルブ操作でもキャビテーションは発生するので効果は限定的である。作動油の劣化について坂間^[30]は、油中気泡を遠心分離する方法によって作動油中の酸素量を減らせば、酸化反応の進行を抑制できることを明らかにしている。しかし、バイオ油の場合は前述のようにラジカル反応を十分に抑えられる酸化防止剤が配合されないために、酸素量が減った状態でも酸化反応は起こると考えられる。このため遠心分離による方法では酸化防止の十分な効果が期待できない。

フィルタに関しては近年ろ材は改良が進み、ダストの捕

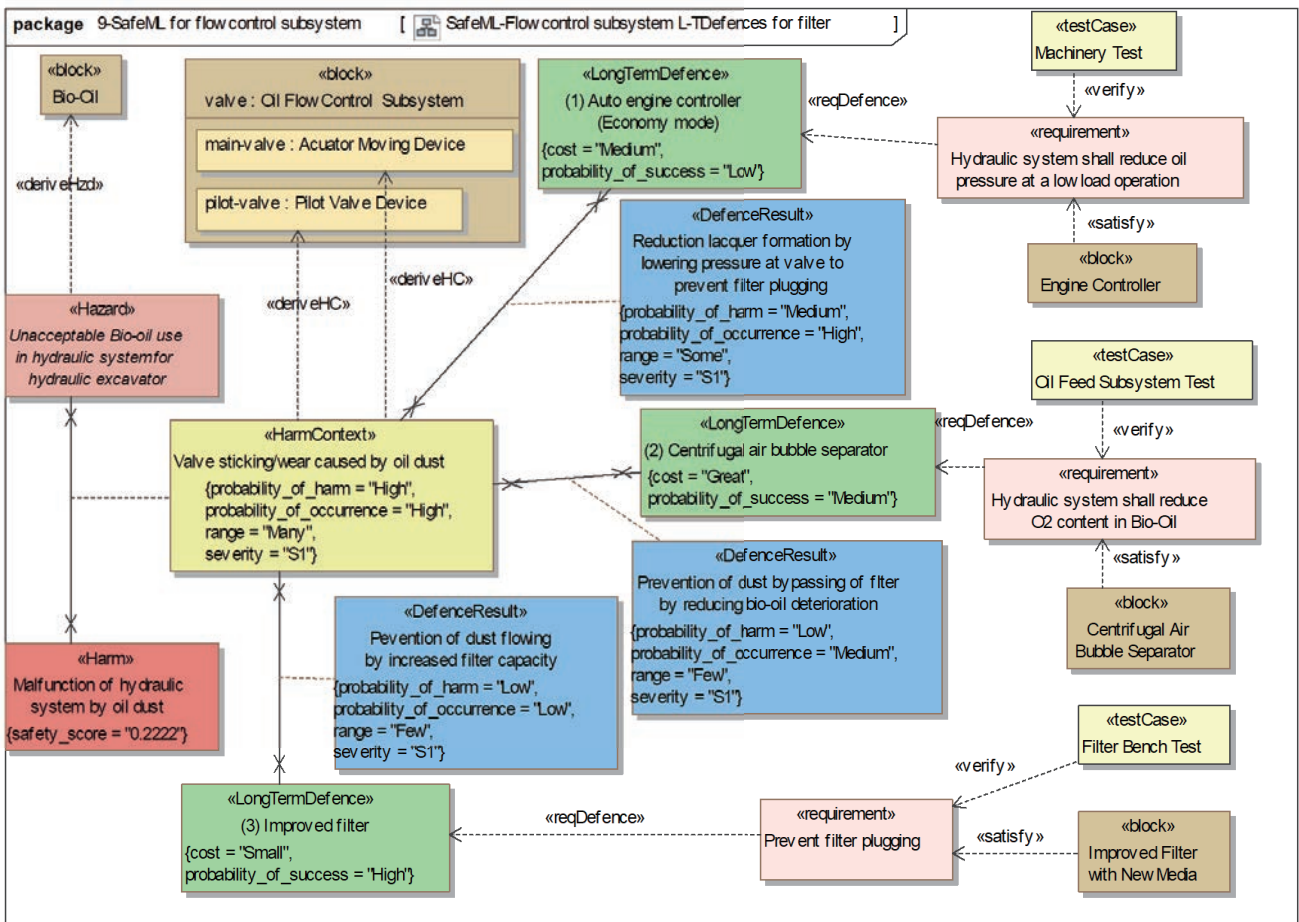


図 15 バイオ油による油圧バルブの作動不良に対する 3 つの対策案についての SafeML 図

表 6 作動不良未対策の場合と三つの対策案のタグ値 5 項目、そして安全スコアとコスト評価の比較

No.	対策案	対策の成功 確率、S	危険状況発生 の確率、 $P(Ou)$ または $P(Od)$	危害発生 の確率、 $P(Hu)$ または $P(Hd)$	危害発生 の範囲、 Ru または Rd	危害の過酷度、 Su または Sd	安全スコア、 SS	コスト評価
0	未対策の場合	-	High (1.0000)	High (1.0000)	Many (0.7500)	S2 (0.5000)	0.3750	-
1	エンジン回転制御 (エコミーモード)	Low (0.3333)	High (1.0000)	High (1.0000)	Some (0.5000)	S2 (0.5000)	0.3333	Small (0.5000)
2	遠心分離式の気泡除去 装置	Medium (0.6667)	Medium (0.6667)	High (1.0000)	Few (0.2500)	S2 (0.5000)	0.0741	Great (1.0000)
3	改良フィルタ	High (1.0000)	Low (0.3333)	High (1.0000)	Few (0.2500)	S2 (0.5000)	0.0000	Small (0.5000)

表 7 フィルタ改良前後の車両での作動不良の発生

	作動不良の年間の平均 発生件数 (2 年間)
従来のセルロースろ材 フィルタ採用車両	10.5
改良フィルタ採用車両	1.4 未満

捉性能の向上と同時に閉塞までの寿命を延長できるようになっている^[52]。JIS 油圧用フィルタ性能評価方法^[53]による測定結果では、従来のセルロースろ材は 20 ~ 30 μm 以上のダストを 50 % 以上捕捉するのに対して、最近のガラス繊維にポリプロピレン繊維など混ぜて抄紙した改良ろ材は 5 μm 以上のダストを 50 % 捕捉できる^[1]。また、改良ろ材を採用したフィルタ寿命は 2 倍以上になることも報告されている^[52]。ちなみにセルロース繊維の直径は最大 30 μm に対して、改良ろ材の繊維の直径は最大 1.0 μm である。これら過性能が改良された理由であり、この効果によりラッカーによるフィルタ閉塞が防がれ油中ダストは捕捉され、油圧バルブの固着や摩耗を防ぐことができる。

8.4 対策の決定

表 6 は未対策(Undefended Case)と各対策案について、図 15 中のエレメント内のタグ値から付録 A の計算式を用いて算出した安全スコア (Safety Score, SS) とコスト評価の表である。それぞれの発生確率は、低い (Low: 1/3)、中位 (Medium: 2/3)、そして高い (High: 1/1) の 3 段階に区分・数値化した。危害発生範囲は 0.3 % 未満の台数 (Few: 1/4) から中位 (Some)、多数 (Many)、そして 10 % 以上の台数 (Most: 4/4) など 4 段階とした。危害の過酷度は、ほとんど費用が掛からない部品交換や洗浄・調整で済む場合 (S1: 1/4)、現場での部品やサブシステムの一部交換あるいは分解洗浄が必要な場合 (S2: 2/4)、修理工場でのサブシステム修理が必要な場合 (S3: 3/4)、そして車両の全面修理や人身の負傷事故が発生した場合 (S4: 4/4) の 4 段階とした。コスト評価は、互換性があり安価 (Minimum: 1/4) から小 (Small)、中 (Medium)、そ

して新規サブシステム品番の追加や車体改造必要などの大 (Great: 4/4) までの 4 段階とした。

未対策の場合では安全スコアは 0.3750 であるが、フィルタ改良案は安全スコア 0.0000 と最も数値が小さく (効果が大きく) 安価である。従って、改良フィルタの採用が決定できる。エンジン回転制御の安全スコアは 0.3333 であり、遠心分離機の安全スコアは 0.0741 であるので、対策の効果は改良フィルタよりも小さい。コスト評価についてはエンジン回転制御がすでに一部の機種で採用されており全ての機種にも採用が決まっているため、コストは小 (Small) と評価した。遠心分離機は油圧タンクの新規設計が必要であり、一部機種^[54]以外には採用が決まっていないためコスト大 (Great) と評価した。改良フィルタはろ材強度の関係から従来フィルタとの互換性がないためコストは最小 (minimum) ではなく小とした。

8.5 対策の技術的な妥当性の確認

最近、著者らはオイル交換時間を延長するために改良ろ材のフィルタを採用した結果、この改良ろ材フィルタを採用した建設機械からはバイオ油による油圧バルブの作動不良が発生していないことを表 7 のように見出した。改良フィルタの採用で期待された効果は、油中ダストをより多く捕捉して除去することにより、酸化安定性が高く十分なオイル寿命を持つ石油系作動油のオイル交換時間を延長することであった。

エンジン回転制御は従来のセルロースフィルタを採用している一部機種では既に採用されていたが、作動不良にはほとんど影響がなかったと推定される。作動油の遠心分離による気泡除去装置は前述の様に一部の機種に採用された^[54]

が、バイオ油に対する影響は確認されていない。これらの確認結果から安全スコアによる対策の決定が適切であることが裏付けられた。

9 考察

プロジェクトチームは迅速な暫定対策と恒久対策を実行できたが、これは要素解析手法が建設機械メーカーに根付いているためである。これら一連の対策によりユーザやサービス員から一定の評価が得られたが、未解決の油圧バルブの作動不良はユーザやサービス員に不満をもたらしていた。

SysMLで記述したシステムモデルを用いた総合解析手法により未解決の不具合の解析と対策案を導出することで、バイオ油の使用を可能とする建設機械の油圧システムの開発を完結できた。SysMLへの記述に基づき作動不良の原因とそのメカニズムを記述することができ、SafeMLへの記述に基づき対策案を検討して対策を決定できることが分かった。この解析によりバイオ油の低い酸化安定性が起こす問題は、従来は油の変色や軸受メタル中の鉛の溶出ししか考えられていなかったが、新たに作動油においてもラッカーの生成によってフィルタ閉塞が起ることが明らかになった。フィルタが、油中ダストを捕捉するだけでなく、酸化によるラッカーを捕捉してオイルの酸化劣化を防ぐという新たな機能があることも見出された。今後この新しい総合解析手法によってシステム全体を見回した開発が可能である。SafeMLにより図的に表現された不具合の危険状況、対策案や安全性要求は、技術者以外も含めた分野横断的チーム全員で検討することが可能である。対策案の選定は安全スコアとコストの分かり易い指標から可能となる。要素解析手法は複雑なシステム全体に関わる問題に対しては欠点があるが、サブシステムや部品などの不具合の解析には短時間で実施できるので有効な手段である。SysMLの記述によるシステムモデルを用いた総合解析手法は使いこなすのに時間が掛かる欠点がある。このために図4に示した様にサブシステムの開発には要素解析手法、システムの開発や問題解決には総合解析手法を用いることを提案する。

10 結言

この論文では、ヨーロッパで進められている建設機械の生分解性作動油について、いくつかの問題点をシステムモデルを用いた総合解析手法により原因究明と対策を試みた。

その結果要素解析手法を用いたバイオ油のプロジェクトチーム活動により次のように対策を取ることができた。

1) 暫定対策として、バイオ油の取扱マニュアルを半年内で作成してサービス員を通じてユーザに配布できた。このマニュアルは恒久対策完了まで有効とした。

2) 恒久対策では多くの油圧サブシステムを予定通り4～5年で改良して逐次建設機械に搭載することができた。

しかし、建設機械のバイオ油による未解明の作動不良の原因とメカニズム（振る舞い）に関して、その後作動不良の発生が収まったため解明されず、不具合対策もされないままであった。

このため、新しい総合解析手法を用いて作動不良を解析して対策することで次の結果が得られた。

3) SysMLで記述したシステムモデルにより作動不良の原因と振る舞いが次のように解明できた。

3-1 油圧ポンプでの気泡の断熱圧縮と、メインバルブでのキャビテーションによりラッカーはバイオ油中に生成する。

3-2 生成したラッカーは次第にフィルタに堆積してフィルタを閉塞させる。フィルタでろ過されずに流れた油中ダストが油圧バルブの固着や摩耗を起こして、油圧バルブの作動不良が起きる。

これらの解析結果に基づき SafeML を用いて対策を検討して、安全スコアとコストの評価から、安価で最も効果がある改良ろ材フィルタによる対策を導出できた。

4) この解析によってバイオ油に適合する建設機械の開発を完了できた。

今後、経営に影響するような大きな不具合や開発に対し、従来の要素解析手法に加えて、この総合解析手法を用いて原因の解析と対策の立案をすることが期待される。

最後に産業技術総合研究所の Geoffrey Biggs 博士の SafeML に関する助言に感謝いたします。

付録 安全スコアの計算式^[27]

$$SS = Qu(1 - P(S)) + QdP(S) \quad (1)$$

$$Qu = P(Ou)P(Hu)RuSu \quad (2)$$

$$Qd = P(Od)P(Hd)RdSd \quad (3)$$

但し、

SS	安全スコア
Qu	未対策の場合の仮安全スコア
Qd	対策した場合の仮安全スコア
P(S)	対策の成功確率
P(Ou)	未対策の場合にコンテキストが起きる確率
P(Hu)	未対策の場合にハームが起きる確率
Ru	未対策の場合のハームが起きる範囲
Su	未対策の場合のハームの過酷度
P(Od)	対策した場合にコンテキストが起きる確率
P(Hd)	対策した場合にハームが起きる確率
Rd	対策した場合のハームが起きる範囲
Sd	対策した場合のハームの過酷度

参考文献

- [1] 日本トライボロジー学会（大川聰編）：産業用車両の潤滑，養賢堂，4，20–26，63–69，79–87，107–108，190–195（2012）。
- [2] 大川聰：生分解性作動油の現状と課題，日本フルードパワーシステム学会ウィンターセミナー，15–27（1997）。
- [3] 広沢敦彦，大川聰：環境負荷に対する生分解性作動油の採用，油空圧技術，49（8），25–32（2010）。
- [4] Wasserhaushaltsgesetz (Federal Water Act), 12 November 1996 (Federal Law Gazette I, 1695) (1996).
- [5] United Nation, Sustainable Development Goals: FRESHWATER COUNTRY PROFILE GERMANY, (2011), http://www.un.org/esa/agenda21/natinfo/countr/germany/germany_freshwater.pdf, 閲覧日2018-10-24.
- [6] ドイツ機械工業連盟規格VDMA 24-568: 1994, Biologisch schnell abbaubare Druckflüssigkeiten.
- [7] ISO 15380: 2016, Lubricants, industrial oils and related products (class L)—Family H (Hydraulic systems)—Specifications for hydraulic fluids in categories HETG, HEPG, HEES and HEPR.
- [8] The European Commission: Commission Decision of 24 June 2011 on establishing the ecological criteria for the award of the EU Ecolabel to lubricants, *Official Journal of the European Union*, L169/28–39 (2011).
- [9] 根岸哲：EU競争法と市場統合の総合的検討，日本EU学会年報，(32)，18–28（2012）
- [10] 武井俊晴：化学物質の環境受容性と生分解性，オレオサイエンス，2（7），403–409（2002）
- [11] 厚生労働省：GHS国連文書 第4部 環境に対する有害性，<https://www.mhlw.go.jp/bunya/roudoukijun/anzenseisei07/pdf/05-03.pdf>, 閲覧日2018-10-27.
- [12] 金子正人：潤滑油の高圧物性（第1報），トライボロジスト，62（10），654–666（2017）
- [13] 平野二郎：ポリオールエステル系合成潤滑油の動向，油化学，29（9），627–635（1980）
- [14] 鈴木章仁，益子正文，張禾暉：ヒンダードポリオールエステルの弾性流体潤滑油膜形成能力と境界潤滑特性，トライボロジスト，47（8），671–674（2002）
- [15] A. Konishi, S. Ohkawa, N. Nakamoto, M. Nanba and T. Yoshida: Development of a High Performance Biodegradable Hydraulic Oil for Construction Equipment, *SAE Transactions*, 971632 (1997).
- [16] R. Eguchi, Y. Ohtake, S. Ohkawa, M. Iwamura and A. Konishi: Compatibility of Hydraulic Seal Elastomer with Biodegradable Oils, *SAE Transactions*, 960210 (1996).
- [17] S. Ohkawa and A. Konishi: Biodegradable Hydraulic Oil for Heavy-Duty Construction Equipment, *1st Internationales Fluidtechnisches Kolloquium*, (1), 207–214 (1998).
- [18] JIS, デイペンダビリティ マネジメント—第 4-4 部：システム信頼性のための解析技法—故障の木解析 (FTA), C5750-4-4 (2011).
- [19] JIS, デイペンダビリティ マネジメント—第 4-3 部：システム信頼性のための解析技法—故障モード・影響解析 (FMEA) の手順, C5750-4-3, (2011).
- [20] S. Friedenthal, A. Moore and R. Streiner (著, 西村秀和 (監訳)): システムズモデリング言語 SysML, 東京電機大学出版局, (2012).
- [21] D. Walden, K.J. Dorsberg, R. D. Hamelin and T.M. Shortell: Model-based systems engineering, *INCOSE Systems Engineering Handbook—A Guide for System Life Cycle Processes and Activities*, Wiley, 11, 189 (2015).
- [22] S. Ohkawa, A. Konishi, H. Hatano, K. Ishihama, K. Tanaka and M. Iwamura: Oxidation and corrosion characteristics of vegetable-base biodegradable hydraulic oils, *SAE Technical Paper*, 951038 (1995).
- [23] 浜坂直治，斎藤秀明，石川勝司，大川聰，小西晃子：摺動材料，特開平9-67630，1995-08-29.
- [24] P. Wilkinson, M. Novak and A. Mavin: Integrating safety into system design with SysML, *Journal of Safety and Reliability Society*, 29 (4), 79–93 (2009).
- [25] F. Mhenni, J.Y. Choley and N. Ngyuyen: SysML extensions for safety-critical mechatronic systems design, *2015 IEEE International Symposium on Systems Engineering (ISSE)*, 242–247 (2015).
- [26] E. Villhauer and J. Brian: An Integrated model-based approach to system safety and aircraft system architecture development, *25th Annual INCOSE International Symposium*, 25 (1), 1373–1387 (2015).
- [27] G. Biggs, T. Sakamoto and T. Kotoku: A profile and tool for modeling safety information with design information in SysML, *Software & Systems Modeling*, 15 (1), 147–178 (2016).
- [28] G. Biggs, 坂本 武志, 神徳 徹雄: 2A2-I06システムの安全性を記述するためのモデリング言語「SafeML」(安全・安心なRT構築を目指して), ロボティクス・メカトロニクス講演会講演概要集, 2A2-I06 1–2A2-I06 4 (2013).
- [29] 風間俊治, 鶴野正真: 斜板式アキシャルピストンポンプの熱潤滑特性(斜板ならびにシリンダブロックの温度測定), 日本機械学会論文集C編, 74 (738), 425–430 (2008).
- [30] 坂間清子: 油圧動力伝達システムにおける油中気泡の分離除去に関する研究, 法政大学大学院デザイン工学研究科学学位論文, 11–12 (2014).
- [31] 岡部信也: 油圧ショベル大全, 日本工業出版, 60–61 (2007).
- [32] JXTGエネルギー：省エネルギー型油圧作動油, <https://www.no.jxtg-group.co.jp/company/rd/intro/lubricants/shoene.html>, 閲覧日2018-03-27.
- [33] 日本フルードパワー工業会：実用油圧ポケットブック, 244–248, 319 (2008).
- [34] 今西悦二郎, 南條孝夫, 筒井昭: 油圧ショベルの低燃費を支えるシミュレーション技術, *R&D Kobe Steel Engineering Reports*, 62 (1), 32–36 (2012).
- [35] 加藤隆二: 超音波による有機液体の分解反応, *高圧力の科学と技術*, 6 (3), 159–166 (1997).
- [36] K.S. Suslick, J.J. Gawlenowski, P.F. Schubert and H.H. Wang: Alkane Sonochemistry, *Journal of Physical Chemistry*, 87 (13), 2299–2301 (1983).
- [37] 香田忍：ソノケミストリーとは何か？, 日本音響学会誌, 57 (5), 345–350 (2001).
- [38] G.E. Totten (ed.): *Handbook of Hydraulic Fluid Technology*, Marcel Dekker, 461–463, 630–647, (2000).
- [39] ヤマシンフィルタ株式会社R&D部：エアブリーザ吸排気特性測定装置概要, YAMASHIN Technical Report, <http://www.yamashin-filter.co.jp/ja/technology/development/main/02/teaserItems1/01/linkList/0/link/20160115.pdf>, 閲覧日2018-04-25.
- [40] S. Ohkawa and H. Hamaguchi: Progress of A New Hydraulic Fluid Specification HX-1 for Construction Equipment, *SAE Asia Colloquia*, 11 (2003).
- [41] 飯塚宏平: 自動酸化反応に注目した潤滑油管理方法の検討, 高知工科大学実験レポート(2001), <http://www.kochi-tech.ac.jp/library/ron/2000/env/1010001.pdf>, 閲覧日2018-03-26.
- [42] 国際純正・応用化学連合: Radical (free radical), IUPAC Gold Book, <http://goldbook.iupac.org/html/R/R05066.htm>, 閲覧日2018-04-10.
- [43] J.R.J.Smith, E. Nagatomi and D.J. Waddington: The autoxidation of simple esters—Towards an understanding of the chemistry of degradation of polyol esters used as lubricants, *Journal of The Japan Petroleum Institute*, 46 (1), 1–14 (2003).

- [44] JIS, 潤滑油-酸化安定度の求め方-第 1 部: 内燃機関用潤滑油酸化安定度, K 2514-1, (2013).
- [45] 日本トライボロジー学会編: メンテナンストライボロジー, 養賢堂, 117 (2006).
- [46] 港宏: 過酸化エステルの化学, 有機合成化学, 23 (1), 12-22 (1965)
- [47] Iowa University: Lipid Oxidation an Overview, <http://www.public.iastate.edu/~duahn/teaching/Lipid%20oxidation/free%20radicals.pdf>, 閲覧日2018-11-15.
- [48] 飯島浩二, 大川聡, 小西晃子: 生分解性作動油のフィールドにおける劣化について, フルイドパワーシステム, 29 (5), 63-67 (1998).
- [49] 桜井俊男編: 石油製品添加剤, 幸書房, 263 (1979).
- [50] C. Kempermann and H. Murrenhoff: Reduction of water content in biodegradable and other hydraulic fluids, *SAE Technical Paper*, 981497 (1998)
- [51] K. Iwakata, Y. Onodera, K. Mihara and S. Ohkawa: Nitro-oxidation of lubricating oil in heavy-duty diesel engine, *SAE Technical Paper*, 932839 (1993).
- [52] Y. Kagami: Contamination control in earthmoving machines—Hybrid filter elements versus by-pass filters—Influence of biodegradable oil on filter life, *SAE Technical Paper*, 981501 (1998).
- [53] JIS, 油圧用フィルタ性能評価方法—第 8 部: フィルタエレメントのろ過性能試験(マルチバステスト法), B 8356-8, (2002).
- [54] 小西晃子, 石井庄太郎, 野原達郎: 作動油タンクの小形化, フルードパワーシステム学会誌, 39 (5), 272-276 (2008)

日比谷 孟俊 (ひびや たけとし)

1971年3月慶應義塾大学大学院工学研究科応用化学専攻博士修士課程修了。工学博士。1971年4月より2001年12月まで日本電気株式会社基礎研究所勤務。2002年1月より2007年3月まで、首都大学東京システムデザイン研究科教授。2007年4月より20011年3月まで慶應義塾大学教授。現在、慶應義塾大学システムデザイン・マネジメント研究所顧問。著者に『Thermophysical Properties of Molten Silicon, in “Crystal Growth Technology, From Fundamentals and Simulation to Large-scale Production”』(共著)、『マイクログラビティ』(編著)、『宇宙実験最前線』(共著)、『磁気光学の最前線』(共著)、『江戸吉原の経営学』(単著)など。日本結晶成長学会会員、日本熱物性学会名誉員、IEEEフェロー、European Low Gravity Research Associationなどの会員。この論文では、開発のシナリオや原因究明と対策立案の手法について助言、監修を担当した。



西村 秀和 (にしむら ひでかず)

1990年3月慶應義塾大学大学院理工学研究科機械工学専攻博士後期課程修了。工学博士。1990年4月より千葉大学工学部機械工学科助手、1995年より同助教授。2007年2月～3月バージニア大学訪問准教授。2007年4月より慶應義塾大学教授、現在、慶應義塾大学大学院システムデザイン・マネジメント研究科教授。モデルベースシステムズエンジニアリング、システム安全、制御システム設計などの教育・研究に従事。著書に『MATLABによる制御理論の基礎』(共著)、『MATLABによる制御系設計』(共著)の他、翻訳書『システムズモデリング言語 SysML』、『デザイン・ストラクチャー・マトリクス DSM』がある。日本機械学会フェロー。IEEE、ASME、INCOSEなどの会員。この論文では、バイオ油による作動不良の SysML の記述の助言と全体の取りまとめ、監修を担当した。



執筆者略歴

大川 聡 (おおかわ さとし)

1969年、慶應義塾大学工学部応用化学科卒業。同年(株)小松製作所技術研究所材料研究室、1983年エンジン開発センタ、1988年本社商品企画部主査、1990年建機研究所シニアエンジニア、2005年コマツ材料技術センタ主幹技師、2009年コマツ退職、1992～2005年(社)日本建設機械化協会油脂技術委員長。1996～2005年米国自動車技術者協会(SAE)燃料潤滑アジア運営委員会作動油リーダー。現在、慶應義塾大学大学院システムデザイン・マネジメント研究所研究員。1997年日本建設機械化協会奨励賞。著書に『写真でたどる建設機械 200年』(単著)、『産業用車両の潤滑-エンジン・油圧機器・パワートレイン・潤滑剤』(編著)。この論文では、建設機械メーカーにおいて欧州のバイオ油の品質とその規制実態の調査、バイオ油プロジェクト立ち上げと推進を行った。また、バイオ油による作動不良の SysML と SafeML の記述を行い、論文の執筆も担当した。



尹 善吉 (ゆん そんぎる)

2008年8月韓国アジュ大学機械工学部卒業。2008年より2010年まで Ezrobotics 会社で勤務。2014年慶應義塾大学システムデザイン・マネジメント研究科修士課程修了。現在、同大学院博士後期課程在学中。モデルベースシステムズエンジニアリング、システムモデリングに興味を持つ。日本機械学会会員、日本自動車学会会員。この論文では、油圧システムの SysML と SafeML による記述を担当した。



査読者との議論

議論1 全体

コメント(赤松 幹之:産業技術総合研究所、小林 直人:早稲田大学)

本論文は、建設機械用油圧システムにバイオ油を用いた場合に生じる不具合の原因を探り、対策を策定するための方法として、SysML と SafeML を適用した事例について書かれています。バイオ油による不具合の発生メカニズムが複雑であることから、FTA 等の事故解析手法では対策に至るまでの分析が難しいのに対して、サブシステムの相互作用を記述できる SysML を用いることで、対策を検討することを可能としたことを示しています。バイオ油導入に対する対策をどのように進めたかのシナリオが記述されており、構成的なアプローチの事例です。建設機械用油圧システムに生分解性作動油を応用する場合の実際課題の解決法を与え、油圧システム開発に資するとともに、SysML や SafeML によって複合的な課題に対する総合解析手法の有効性を示したという点で、シンセシオロジーに相応しい論文であると言えます。

議論2 対策の全体像

コメント(赤松 幹之)

先のサブシステムでの対策とシステム全体としての対策、暫定対策、恒久対策、ステークホルダーへの働き掛け(例えば、マニュアル)の互いの位置付けなどの全体像があるとシンセシオロジー論文らしくなると思います。フィルターによる対策によって、これまでの対策は不要になったのか、それぞれはそれぞれで重要な役割を今でも担っているの

か、などが読者として関心があるところかと思えます。

回答（大川 聡）

サブシステムの対策とシステム全体としての対策、暫定対策、恒久対策の位置付けについて図を修正追加して分かりやすくしました。暫定対策と恒久対策の定義は1章に記述しました。

議論3 環境への影響

質問（小林 直人）

建設機械用油圧システムに生分解性作動油を利用する際の動機として、油漏れを起こした時の環境への汚染の影響を低減するためとのことですが、現実到现在までの例でどれくらいの量と頻度で油漏れが起こっていたのでしょうか。

回答（大川 聡）

30トン級油圧ショベルでは年平均約2,000時間稼働しますが、その1年間で約40L漏れる可能性があります。近年は作業時の油漏れを防ぐための指導（サービス員が整備する時にブルーシートを敷く、油吸着剤で油を除去するなど）によって漏れ量は減ったと思います。なお、1Lの油漏れは1m³（2ton）土を汚染し、その処理費用は10万円/tonになるため汚染土の処理費用は年800万円になる計算です。一方、緊急対策がとられるケースは、油圧ホースを岩や鉄筋に打ちつけて切れてホースから油が噴霧するような場合です。1分間で350Lの油圧タンクが空になります。

議論4 従来の手法との違い

質問（小林 直人）

従来の要素解析手法（FTAやFMEA）と今回採用の総合解析手法（SysMLやSafeML）との違いが明示されていますが、実際にはその境界が必ずしも明確ではないと思います。そこで（1）まず従来の手法で取り扱ってみて、うまくいかない部分は新たな手法を適用するなどの使い分けの考え方、また（2）今回の手法（SysMLやSafeML）の適用可能性の高いシステムはどのようなものがあるか例示して頂ければと思います。

回答（大川 聡）

要素解析手法を使わずに、SysMLにより記述したシステムモデルを用いた総合解析手法だけでも全ての解析が可能です。実際に著者も総合解析手法だけで原因解析と対策決定を試みて、要素解析手法では気が付かなかった原因やメカニズムを見つけられました。しかし、総合解析手法（特にSysML）は著者らの習熟度合いも関係していますが、要素解析手法よりも数倍の時間を要しました。

（1）要素解析手法は簡便で素早くできるので全てに適用を試みる必要があると思われます。総合解析手法は本論文でも示した様に、要素解析手法では解析できない複雑な問題だけに適用すべきと思われます。

（2）総合解析手法はコンピュータ制御式の機械システム、人の行動が影響する機械システム、あるいは化学反応が影響する機械システムなどに適用の意味があると思われます。

議論5 ラッカー生成について

質問（小林 直人）

（1）油圧ポンプにおける気泡の断熱圧縮、（2）メインバルブでのキャピテーション、が酸化縮合物であるラッカー生成の大きな原因とされていますが、それを裏付けるデータや写真等（既発表論文あるいは他の論文のデータでも結構です）を用いて、その発生メカニズムについて説明が可能であればお願いします。なおラッカーはフィルターの

目詰まりを誘起する重要な影響を及ぼしていますが、典型的な化学構造や名称等が分かれば明記をお願いします。また、他の酸化生成物についてはいかがでしょうか。

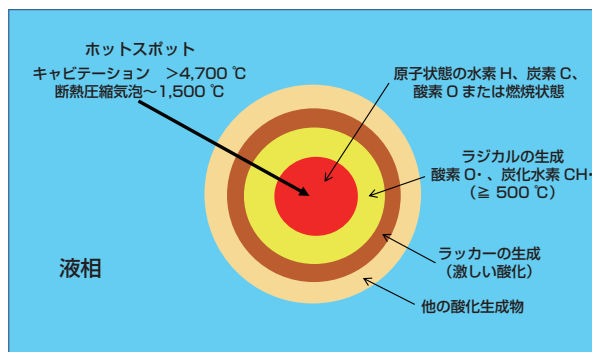
回答（大川 聡）

ラッカーの例として油圧ポンプ内の部品表面の写真を示します。油圧ポンプ内の断熱圧縮で生じたラッカーが附着したと推測しています。JIS規格の潤滑油酸化試験法（JIS K2514-1, 2018）には酸化によるラッカーの生成度合いの測定方法があります。著者も生分解性作動油についてこの酸化試験を実施した論文（S. Ohkawa, 他 “Oxidation and Corrosion Characteristics of Vegetable-Base Biodegradable Hydraulic Oils”, SAE Paper 951038, (1995)）を発表しましたが、当時はラッカーの重要性には気付かず記述を省略してしまいました。



市販作動油により生じた油圧ポンプ試験機のサーボバルブ表面のラッカー皮膜（茶色部分）（著者らによる）

生分解性作動油はラジカルによるランダムな酸化が始まると、アルコール(-OH)、アルデヒド(-CO)、酸(COOH)などを含んださまざまな分子量の複雑な組成の酸化生成物ができて粘度が上がります（分子量が200～8,000、高い場合は100,000）。ラジカルにより激しく酸化して高分子化すると、接着剤のような樹脂（ラッカー）になります。ラッカーはこのように制御されていない酸化により生成されるので、化学構造は一定しておらず分析は困難です。「他の酸化生成物」もやはり分析は困難であり、このような分析の先行研究例は見つかりません。ラッカーと「他の酸化生成物」の生成について、著者は図のように想像しています。



キャピテーションや断熱圧縮気泡により生じる生分解性作動油の酸化状態の想像図（著者による）

家畜繁殖用精液の改良技術開発

永田 マリアポーシャ、山下 健一*

家畜の繁殖性改善は、畜産業の生産性向上による食糧供給の安定化とともに、地方の産業振興やバイオエコノミーとしての位置づけなど、幅広い意義を持つ。我々は、牛の繁殖性改善のため、手薄とされる精子側の研究に取り組んだ。研究開発の方向性は、ヒトの不妊治療にかかる報告を参考にして、健全性の高い精子は、運動性も高いという点に着目し、運動している精子を周囲の溶液に流れを生じさせて集合させるという技術を開発することで、初めて人工授精にそのまま使える数の精子の捕集を成功させ、実証試験で良好な受胎成績を得た。併せて、実証試験の中で、受胎に有利な精子の性質を、その泳ぎの形に関係があることを明らかにした。

キーワード：化学工学、流体、家畜、繁殖、精子

Development of a bovine sperm selection procedure for improvement of livestock fertility

MariaPortia B. NAGATA and Kenichi YAMASHITA*

Improving the reproductive performance of livestock has wide-ranging significance that includes promotion of local industry, bioeconomy, and stabilization of food supply. Our research focused on sperm manipulation to improve the reproductive performance of cattle. Our experiments were based on previous studies on infertility treatment for humans by relying on the advantages of motile spermatozoa, i.e. spermatozoa that are able to swim against the flow of solutions, which is regarded as an attribute of healthy and physiologically functional spermatozoa. For the first time, we succeeded in collecting a number of spermatozoa that can be used for artificial insemination and obtained good conception results in a field trial. In addition, the field trial clarifies the advantageous relationship between sperm trajectory and conception.

Keywords: Chemical engineering, fluidics, livestock, breeding, spermatozoa

1 はじめに

世界の人口は今後しばらく増え続けると考えられており、さらに経済成長に伴う食生活の変化も加わって、量的な食糧需要とともに動物性タンパクという質的な需要の変化も見込まれ、畜産業における生産性向上への技術的要請は高い。併せて、畜産を含む農業の持続的発展は食文化や地方における産業振興など、幅広い側面の意義も持つ。さらに近年は、バイオエコノミー、SDGs、動物福祉などの新しい概念からの社会要請も加わり、これまではそれぞれ別分野と考えられてきたような概念を両立する方向性で研究開発を企画する必要がある。特にバイオエコノミーは近い将来の技術革新の軸のひとつと考えられており、例えば経済産業省は「バイオ×デジタルによる新たな経済社会（バイオエコノミー）に向けて」という資料^[1]をまとめており、その市場規模は2030年にはおよそ1.6兆ドルとも言われて

いる。

日本では、畜産は農業の生産高のおよそ35%を占め、米・野菜・果実をしのぎ分類別で1位に位置する規模である^[2]。一方で、動物相手という特性から常時就労が常態化し「休めない」産業の最たる例となっており^[3]、人口減少や高齢化の影響を特に大きく受けている。畜産の中でも、市場規模や環境影響の面で特に大きな影響力を持つのが「牛」である。本研究では、大きく育てる「肥育」ではなく、「繁殖」の段階への対応に焦点を絞った。牛は理想的な繁殖でも1年に一度しか産まず、しかも豚などと違い一度に1頭しか産まない。1頭の価格が高く、大型の動物であるために飼育費用も高額であり、繁殖の成否が経営に与える影響が大きい。また、種雄牛と呼ばれる、経済形質に優れ繁殖能力が確認された雄牛から採取された精液が希釈され、0.5 mLずつ小分けされストロー状の容器に封入したものが凍

産業技術総合研究所 製造技術研究部門 〒841-0052 鳥栖市宿町 807-1
Advanced Manufacturing Research Institute, AIST 807-1 Shuku-machi, Tosu 841-0052, Japan * E-mail: yamashita-kenichi@aist.go.jp

Original manuscript received May 16, 2019, Revisions received June 14, 2019, Accepted June 17, 2019

結状態で流通しており、これを解凍して雌牛の繁殖器官に注入するという、「種付け」すなわち人工授精による繁殖が行われている。つまり、牛の繁殖において生体の雄牛は登場しない。現在の牛の繁殖のほとんど（90%以上）は人工授精によるものであり、次世代技術としての体外受精や受精卵移植も実用化されているものの、人工授精の簡便さ、蓄積された実務経験に勝ることができず普及しているとは言い難い^[4]。国内の人工授精による繁殖の成功率（受胎率）は、この30年ほどの間は長期下落傾向にあり、現在ではおよそ、肉用牛で50～60%、乳用牛で40～50%である^[5]。繁殖性の向上のために、雄側（精子・精液）と雌側（卵子や繁殖器官）の両方からの研究が行われているが、多くは選抜育種、雌側の獣医学臨床のもの、加えて最近ではICTを活用した発情監視などであり、例えば凍結精液の製造方法自体は1950年代から変わっていない^[6]など、雄側の研究は手薄である。

一方、近年、ヒトの不妊治療の分野では、分析機器や胚培養技術の進歩などを背景に、精子側の要因の大きさが明らかになってきている。例えば、健全性の高い精子は、有意に着床率・受胎率・流産率で有利であることが報告されている^[7]。ここでいう精子の「健全性」とは具体的に、「DNAの断片化が少ない」など生殖細胞として持つべき要素や機能の完全性のことである。さらに、高い運動性を持つ精子^[8]や形態のよい精子^[9]は高い健全性を有していること、その運動性の高さは雌性生殖器内での移動に有利で、受胎性を高めるために重要であること^[10]が報告されている。また、牛の不受胎のうち4分の1は、受胎に気付

かれることもないほど超早期の流産であることも報告されており^[11]、授精後に発生停止しないような胚の健全性確保の観点からも、精子の健全性の改善が重要であることが示唆される。すなわち、日本の畜産における牛の受胎率向上、それがもたらす生産性向上や労務負担の軽減を目指すあたり、精子・精液側による改善余地は大きいと見越し、ほぼ未開拓であった繁殖用精液の改良に関する研究開発を始めた。

受胎率の長期下落傾向の原因は複合的なものであり、経済形質を追求してきた育種改良の結果進んだ近交退化や、暗黙知依存の発情監視体制の担い手の高齢化などが絡み合っており、多様な研究が必要であることは明らかである。我々は、ヒトの不妊治療分野で近年、精子側の重要性が知られるようになったことを参考に、ほとんど手付かずの凍結精液の改良に取り組むこととした。

2 研究計画の設計

社会的要請の整理から具体的な研究内容を構築していくまでの検討過程を整理したものが図1である。

橋渡しという最終目標のためには、運動性の高い精子を得るだけでなく、農場での実証試験が必須であり、当然ながら産総研だけでは対応できない課題である。つまり、異分野融合の取り組みが必要であるとともに、畜産という特性から共同して研究を進める相手先が地方に分散しており、必然的に地域連携の取り組みとなった。

異分野融合における注意点としては一般的に、常識と考えている前提が異なっていたり、期待するアウトプットと

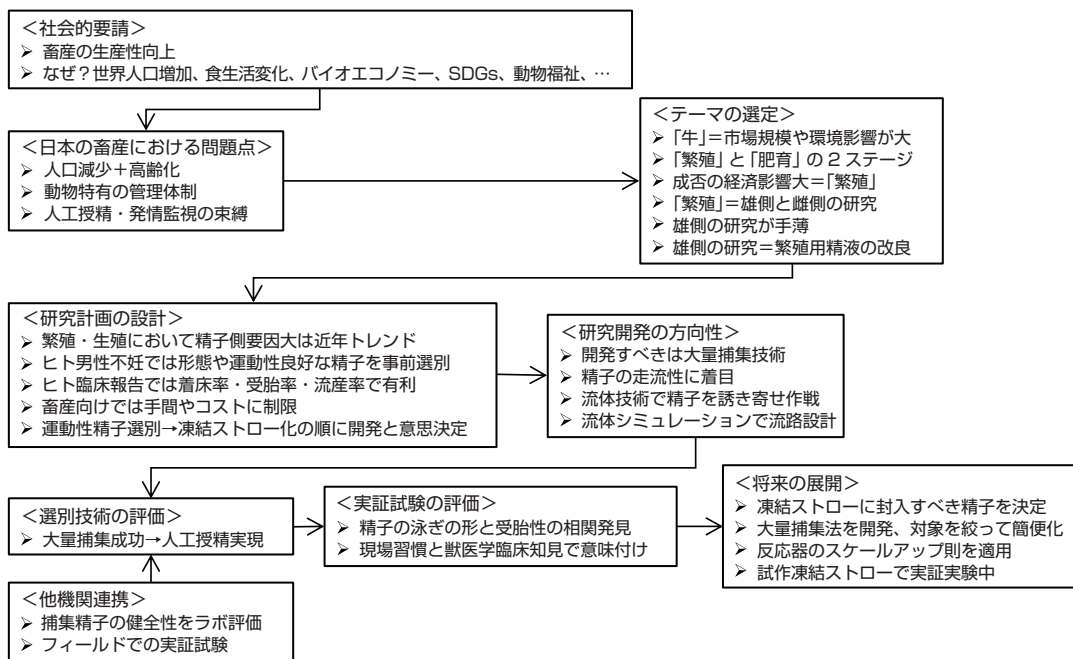


図1 社会的要請を踏まえた研究企画から具体的な取り組み内容へブレイクダウンしていく思考の流れの概略図

それを実現するハードルの高さについて共通認識を持ってないことなどがある。本研究でも同じであり、例えば、運動性の高い精子の選別によりフィールドで良好な成績が得られても、それを社会実装につなげるためには、精子選別のスケールアップという化学工学的なハードルが立ちほだかる。そのハードルを先に解決しなければ精子選別を研究する意味がないと考えるのか、それとも、精子選別の具体的な条件が決まらなければスケールアップを検討することができないと考えるか、事前には決着がつかない。また、産総研側からは、どのような作業内容がどの程度の作業負担になるのか想像がつかず、現実的に実施できない内容との指摘を他機関から受けることがあった。

そこで本研究を進めるにあたり、最初に研究方針の大枠と役割分担について決めるにとどめ、具体的な実験方法は各機関に一任した。その中で得られたデータを基に技術的優位性を評価することで、その精査を踏まえて次に取り組むべき内容を徐々に明確化した。つまり、工程表というような具体的な作業計画をはじめから準備していたものではない。また、このような進め方は、牛という大型動物を対象とした実験の場合、その実験機会は限られ、思い通りの実験計画を立てることはできないため、データの精査と次の実験計画の策定を都度繰り返す必要があったことも一因である。

家畜繁殖用精液の改良を行うにあたって、ヒトの男性不妊への対応とは違って、大型の設備や手間、金銭的成本をかけることができないという前提の下に研究開発を企画した。ヒトの不妊治療では、運動性の高い精子を選別することで健全性の高い精子を得るということは従来からなされてきたが、少数の精子しか集めることができないので、主に顕微授精に用いられてきた。一方、牛の繁殖のほとんどを占める人工授精に対応するためには、捕集する精子の数を従来技術の数十倍にまで高めなければならない。この点への対応は主に工学的な手法により取り組むべきであるので、産総研が担うこととした。農場にて、牛の様子を見ながら作業を行うという実証試験がいずれ必要になることから、煩雑な作業を求めないようなものとしなければならなかった。一方、実証試験を行う機関では、人工授精を行う前に精液の性状をその都度評価するとともに、雌牛の繁殖検診を行うことで、発情行動を発見した時刻、人工授精を行った時刻、卵胞の大きさや排卵の推定時刻などの記録を行った。大学は、主に精子の細胞生物学的な分析を行うことで、産総研による精子選別技術の妥当性、受胎性との因果関係の検討を行った。

加えて将来構想として整理したこととして、「最終成果物は凍結精液ストローである」とした。家畜繁殖用精液の規

格形態であるストロー型容器に封入され、この形態で成果物を提供するということは、農家にとっては、今までと何も変わらない日常作業であることを意味する。つまり、新たに技術を習得することも、設備を導入することも必要ない。どのような精子を封入すればよいかを明らかにし、そのような精子を大量捕集する方法を開発できた次の段階として、凍結ストロー化を進めるという手順について共通認識を整理した。このうち、産総研の主たる分担は、現行の精液ストローの製造工程と親和性の高い製造設備を、安価に簡便に開発するというプロセス技術である。しかしながら、異分野融合の体制では期待感が先行し、この各段階のハードルの高さについて何度も認識を整理することとなった。

3 参画機関の業務を踏まえた研究要素の選択

家畜の繁殖性の改善を、繁殖用精液の改良を通じて行うという大枠について、研究の流れとしては、運動性の高い精子を大量に捕集する技術の開発、捕集された精子が生殖細胞として高い健全性を有していることの確認、そして農場にて繁殖作業に用いて成績を実証する、という3つになる。産総研が主に分担したのは運動性が高い精子の捕集技術の開発の部分であり、捕集精子の分析は主に農業・食品産業技術総合研究機構、佐賀大学、富山大学、富山県農林水産総合センター、そして農場での実証は家畜改良センター、佐賀県畜産試験場、森永酪農販売株式会社が担った。これらの機関に産総研側から声をかけ、家畜の繁殖性改善に精子側の改良が重要であるとの認識を共有でき、その具体的方法として運動性が高い精子を選別することに同意した機関に、その機関での業務内容や設備を考慮して分担をお願いした。

産総研にて分担する運動性が高い精子の選別については、いくつかの従来技術や手法がある。もっとも単純なものとしては、運動性が高い精子が気液界面に集まることから、その部分からピペットなどで吸い取る作業が慣習的に行われている。遠心分離して沈降後に、運動性の高い精子が泳ぎ出てきたところで捕集すること（Swim-up法）もごく一般的になされており、加えてこの作業をより簡便かつ確実に行うための器具も使用されている。このほか、遠心分離の際に密度勾配を生じる溶液（パーコール）を用いる方法などが行われている^[12]。これら従来法は、運動性の高い精子を集めるというよりは、運動性を失ったり死んだりした精子を取り除くという観点で設計されたものと考え、我々の発想と区別しやすいと思われる。なお、このような前処理を行うことは、牛の体外受精やヒトの不妊治療では一般的である。

一方で、これら従来法によって集められる精子の数や質

は、両立できていなかった。健全性という点で質的均一性を確保しようとするれば精子の数は、例えば数百から千の単位である。一方、この数を大きく上回る数を集めようとするれば質を確保することが難しかった。牛の繁殖で主流の人工授精に適用するには、数百万から一千万を超える数の精子が必要と考えられていたため、数的にケタ違いに高いものが要求される。なお、従来法では質的健全性の高い精子だけを大量に集めることが難しかったため、このような精子だけで人工授精を行うために必要な精子数は不明であった点には注意されたい。

過去の文献の調査から、捕集する精子の質を確保するためには、マイクロ流体を選択するのが適していると考察した。精子の大きさ（数十マイクロメートル単位）と、マイクロ流路の大きさ（数百マイクロメートル単位）の関係が、ふるい以外の効果で精子を選び出すのにちょうどよく、そのためのツールも様々な形態が検討されており、さらに選別された精子の質的性質の検証の例も数多く報告されている^[13]。一方で、精子の大きさに対してマイクロ流路をあまり大きくできないため、一度に多くの精子を集めることに制限があり、数的なハードルをどのように超えるかに問題があった。

精子の運動にかかわる性質を整理すると「rheotaxis」という現象が知られている。一言で言えば「流れを遡る」性質である。現象自体は古くから知られるが、近年、その動きの詳細などの報告もなされている^[14]。この現象は、流れで精子を誘導できるという可能性を示すものと考え、「精子に自ら集まってもらう」という技術的構想に至った。ただし、これまで家畜繁殖分野の研究に携わってきた研究者には、当初は奇異な構想に思えたようであった。

一方、産総研以外の機関で行った実証試験では、ラボ内のように整理された条件の下に実験を計画することができないため、データの整理に機械学習などの技術を応用したが、詳細は後述する。人工授精は発情行動の発見に基づき行うものであるが、実際の現場では、牛の飼養規模や形態、人員体制により、当然見落としの可能性もある。今回の研究に携わった機関での牛の飼養形態は、牛舎内の個別区画につながれた状態のところと、放牧と牛舎を時間ごとに行き来するところの2つの形態があった。後者の場合、牛が放牧に出かけている間は、発情行動を発見することも人工授精を行うことも難しい。一方、牛舎飼いの場合は、牛の背中に発情行動を記録する簡易なステッカーを貼ったり、エコーによる卵胞の観察などを目安として頻繁な監視を行ったりすることで、ほぼ確実に発情行動を発見することができたとともに、人工授精後、エコーにより排卵を確認することも行った。

4 各要素の研究開発内容

運動性の高い精子を多数集めるために流れを用いること、そして流れによって精子を誘き寄せるといった研究の基本構成を実現するために、具体的に用いるべき手段を検討した^{[15][16]}。

「流れ」で「精子を誘導する」、すなわち流体操作技術と精子の運動という2つの要素の間をつなぐために、流体シミュレーション技術を用いて検証を行った。この時、設定したパラメータは、精子の運動の性質（速さが数十～百マイクロメートル毎秒であることなど）や、現実的に作製できるマイクロ流路の細さが100 μm程度であることなどを基とした。

また、マイクロ流路内での流れはゆっくりした流れの「層流」であり、流路の中心部は壁際より流速が速い。マイクロ流路1本だけでは、輸送できる精子の数はまだまだ足りないという計算になった。つまり、流速が速い部分と遅い部分の差ができるだけ小さくなるようにしなければ、精子の分離効率が上がらないという見積りである。この問題の解決の発想は単純なものであり、流路中に仕切り板を設ける構造とした。この時、精子の大きさや、現実的に作製できる壁の大きさを、シミュレーションの前提条件とした。例えば、数を増やすために壁を薄くしすぎると、仕切り壁は自立できなくなり、型から抜く時に壊れる、などの問題が起こる。しかし、捕集する精子の数は、まだこれでも足りない。

もっと積極的に精子を集める必要に迫られ、図2に示すような層状の三日月型流路を設けることにした。三日月型形の端部から運動性の有無にかかわらず精子を吸引捕集し、マイクロ流路の入口付近まで運ぶ。運ばれた精子のうち、運動性の高い精子はマイクロ流路の流れを感じて遡っていき、運動性のない精子は、流れに乗って押し戻される。このような分離が連続的に行われるような構造として三日月型形の流路を検討するという点に飛躍があると思われる

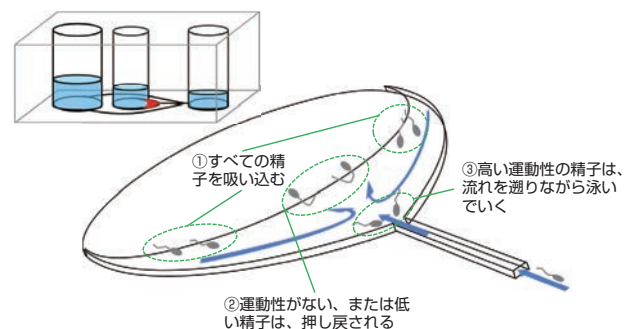


図2 運動性精子選別器具の全体概略図と三日月形層状流路（赤色部分）の位置関係、ならびに三日月層状流路内での溶液の流れと精子の動きの概略

かもしれないが、広い空間に流れが急に飛び出した時、周囲の液体を引き込むような流れが生じるということは、流体の粘性力に着目できる機械工学の知見がある者であれば思いつくことができるであろう。このような分離を繰り返すような流れとそれを実現する流路を流体シミュレーションで設計し、実際の精液処理量や農場での使いやすさも考慮の上、器具全体の設計を決定した。このような全体設計に続いて、切削加工による型起こしとシリコンゴムへの転写で器具を作製した。この技術で作製した運動性の高い精子選別器具は、図2の概略図、図3の写真のような見た目はシンプルなものであり、この器具の3つの液溜めの穴の液面の高低差で送液するため、ポンプなどの外部機械仕掛けなどは必要ない。

この器具を用いて、実際の運動の高い精子選別を行うと、例えば、一般的な繁殖精液の凍結ストロー1本分（封入精子数3000万～6000万、液量0.5 mL）から、約30分間の選別操作により、100万から1000万程度の運動性の高い精子が得られることを確認した。実際に得られる精子数は、元の精液中の精子の濃度や質に依存する。この精子数は、牛の場合、そのまま人工授精に用いることができる数を達成していることを示す。

加えて、送液の速度などを調整することで、単に運動しているかどうかだけでなく、「まっすぐ泳ぎ」「蛇行した泳ぎ」（図4）など、精子の運動の形で選別することも可能である。精子は成熟した精子細胞となっても最初から受精能力を有しているのではなく、雌性生殖路内で様々な生化学的な反応や運動性の増進を経て、受精可能な状態へと変化していく（Capacitation = 受精能獲得）が、この過程で泳ぎの形も変化することが知られている。つまり、精子を運動の形で選別するという事は、言い換えれば精子の変化のステージごとに選別するという事であり、どのような性質の精子が人工授精に有利であるかを調べるための手段を初めて実現したということでもある。



図3 運動性精子選別器具の外観写真

5 結果の評価

運動性の高い精子は、質的健全性も高いという相関は知られているが、本開発技術で選別処理された精子についても評価を行った。捕集した運動精子のDNA断片化率を調べたところ、処理前がおおよそ7%であったのに対し、処理後はおおよそ0.4%と、大幅な改善が確認された。DNA断片化率が低いということは、言い換えれば、精子が運んでいるDNAの完全性が高いことを示している。市販されている繁殖用精液のDNA断片化率が5%前後であること^[17]を踏まえると、十分に良好な値と考えられる。また、処理後精液は、ミトコンドリア活性が高く、かつ、その活性の高さが長時間維持されることが分かった。例えば、処理後6時間において、未処理精液のミトコンドリア活性が約20%まで低下していたが、処理済み精液は約60%の活性が残っていた。

本技術開発は家畜の牛の繁殖を目的とするものであるから、実際に農場で人工授精を行い、その成績を検証しなければならない。複数の農場に、上記器具をあらかじめ置いておき、雌牛の発情行動が発見されたら、解凍した精液をこの器具を用いて処理し、人工授精を行った。受胎/不受胎の鑑定は40～50日後に行われるものであり、後日、人工授精に用いた処理後精液の運動性の検査結果とともに妊娠鑑定結果の提供を受けるという流れで試験を行った。通常の人工授精に用いられる家畜繁殖用精液の凍結ストロー1本には2000万から3000万の精子が封入されているが、本試験では捕集する運動性の高い精子をおおよそ100万に統一し人工授精を行った。この精子数で、通算の受胎率が対象区（試験実施農場）の過去数年間の受胎率と同等であった。なお、妊娠の経過や産まれた子牛はすべて正常であった。

複数の農場にて実証試験を行ったため、各農場の業務運営の違いがあり、完全に試験条件を揃えることができないというのがこの種のフィールド試験の実際である。

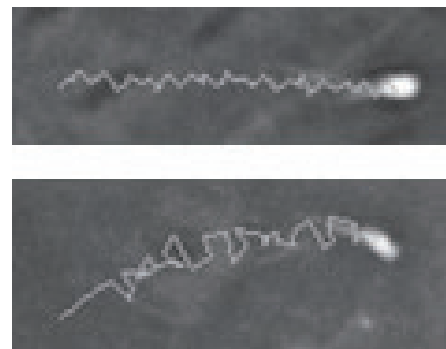


図4 精子の運動は均質ではなく、直線的な泳ぎや蛇行した泳ぎなどがある。泳ぎの形は、精子の状態を示す指標のひとつである。

条件を揃えることができない状況下で新たな知見の発掘を目指し、データの解析には、様々な統計的手法や機械学習を用いた。その結果、受胎 / 不受胎の結果と、人工授精に用いた精子の運動性と、人工授精のタイミングの間に、相関がみられることを発見した。具体的には、まっすぐ泳ぎの精子より、蛇行した泳ぎの精子の方が、受胎率がよかった。また、発情発見から、人工授精のタイミングが遅いほど、この傾向は顕著であった。

前述のとおり、精子は最初から受精能力を有しているのではなく、雌性生殖路内で様々な生化学的な反応や運動性の増進を経て、受精可能な状態へと変化していくが、この過程で泳ぎの形も変化する。市販の精子運動解析装置では、直線速度や曲線速度（精子は頭部を振りつつ円弧を描くように移動することもあり、軌跡の解釈により速度の表し方が数通りある）など精子の移動速度、頭部振動数などを計測できるが、「泳ぎの形」を表現する指標がないことから、独自に「泳ぎの形」を表現する指標として、SMI 指数を定義して評価を行った。SMI 指数は、直線速度と頭部振動数の積を、曲線速度で割った値とした。SMI 指数が大きいほど直線的な泳ぎ、小さいほど蛇行した泳ぎであることを示す。

人工授精後の受胎 / 不受胎の結果を示したものが図 5 である。雌牛の発情行動の発見から人工授精を行うまでの時間を横軸、人工授精に用いた精子の SMI 指数を縦軸、受胎 / 不受胎の結果をプロットの色分けで示している。この結果から、一般に人工授精のタイミングとして用いられている、8 時間から 24 時間の間では、蛇行して泳ぐ

精子の方が、受胎性は高いことが示された。また、その時間より早い段階でも、まっすぐ泳ぎの精子と同等の受胎性であり、少なくとも劣ることはなかった。このような結果は、雌性生殖器内での精子の移動にかかる時間と、排卵のタイミングが関係しているものと考えられる。この結果は、家畜繁殖用精液として供給すべき精子の性質を明らかにするとともに、泳ぎの形で見分けられるようにしたものと言うこともできる。一方、不受胎の結果が、時間に対して SMI がほぼ一定の横一線となっていることは、雌側の体調等の要因の存在を示唆している。

6 将来の展開

繁殖性の向上を実現する技術として社会実装につなげるため、得られた科学的知見と現場作業の実際の両方を同時に考慮の上、以下のような展開を構成した。

牛の人工授精では、牛の発情行動を午前中に見つけたらその日の午後人工授精を実施、午後発情行動を見つけたら翌日朝人工授精を実施、といういわゆる「AMPM 法」が定着している。つまり、排卵と人工授精の時間間隔が、大雑把ではあるが制御されているということである。このことを念頭に図 5 をもう一度見てみる。横軸の発情発見と人工授精までの時間について、短い時間帯ではなく、長い時間帯が AMPM 法での人工授精のタイミングに相当する。この長い時間帯での受胎 / 不受胎の分布を見ると、蛇行した泳ぎの精子の方がより多く受胎の結果につながっている。つまり、人工授精の用途に絞って考えると、凍結ストロー内に封入する精子は、蛇行した泳ぎの精子の含有

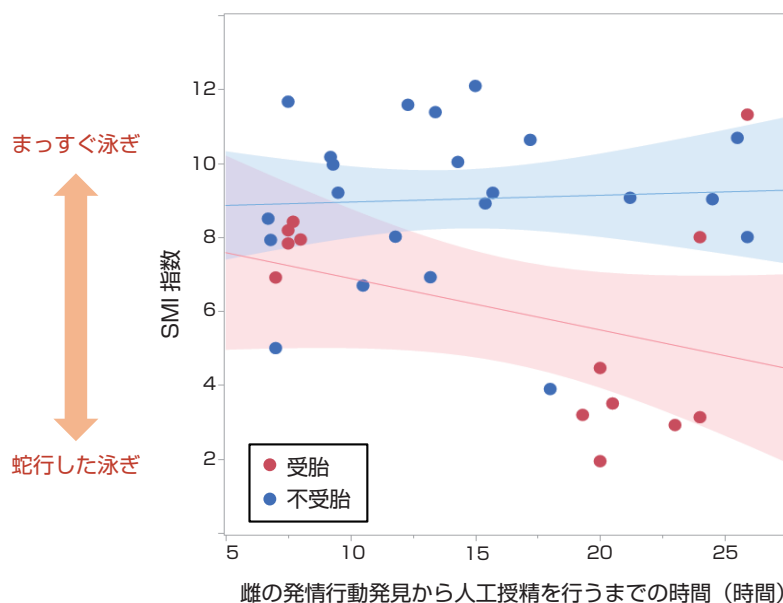


図 5 精子の泳ぎ方と人工授精成績の関係。網掛け部分は、受胎 / 不受胎それぞれにおける信頼区間 95 % の範囲を示す

表1 ヒトの不妊治療分野での報告と、牛の繁殖での運動性の高い精子の選別技術の効果

視点	ヒトの不妊治療分野で分かっていたこと	家畜繁殖で期待されること	本研究で明らかになったこと
(雌側ではなく) 精液側の改良を目指す理由	精子側要因の大きさが次々と明らかになっている	繁殖用精液の改良による効果が期待よりも大きいこと	運動性精子捕集を用い、約十分の一の精子数での人工授精で、従来とほぼ同じ受胎率を得た
精子の細胞としての質的健全性	形態や運動性が良好な精子は、質的健全性（DNA断片化が少ないなど）が良好	家畜の繁殖性改善のために、運動性の高い精子を捕集するという戦略は有効	独自の選別技術で集めた精子は、DNA断片化が大幅に少なかった（7%→0.4%）
臨床成績	高い着床率と受胎率、低い流産率	受胎率向上、胚死減（超早期の流産）の低減	少ない精子数でも受胎率維持
繁殖用精液としての改良の方向性	(該当なし)	家畜繁殖用精液の改良の方向性が明らかになること 受胎性向上が期待される精子を集めた凍結ストローの実現の可能性	人工授精での、精子の泳ぎの形と受胎性の関係
大量捕集の実現による波及効果	(該当なし)	体外受精・受精卵移植による繁殖の効率性を上げる	運動性精子選別で大量捕集技術を確立し、人工授精に成功

割合を高めておくことが有効であると推察される。すなわち、雌性生殖器内での卵子と精子の出会いのタイミングのチューニングを行うことで、受胎率向上が実現できるのではないかと、いう発想である。

現在は、このような「人工授精に適した状態の精子」を凍結ストローとして製造し、農場での検証を続けている。凍結ストロー化するためには、大量生産に適した製造設備を念頭にしつつ運動性の高い精子の捕集をスケールアップする必要があるとともに、凍結保存の工程の見直しが必要である。

運動性の高い精子の捕集のスケールアップは、化学反応器のスケールアップの考え方を基に検討を行っている。蛇行した泳ぎの精子にターゲットを絞ることで、実際の捕集操作時の設定条件を単純化するなど、現場実装の際にわかりやすい運用ができるよう心掛けています。一方凍結保存工程に対しては、精子と同時に封入する抗凍結剤の添加方法や濃度の検討が必要となるが、この抗凍結剤には、卵黄やグリセロールが使用されている。運動性の高い精子選別する技術は、その名のとおり、精子を運動させて捕集するものであるため、この工程に卵黄のような粒状の物体が、しかも精子の数よりはるかに多く共存することは、精子の運動進路を妨げるため、避けなければならない。一方で、凍結保存は、温度を4℃まで徐々に下げ、その後急速冷凍する段階を経るが、それぞれの段階で、精子を保護するために必要な凍結保存液の成分は決まっている。つまり凍結保存液を各成分にブレイクダウンして、どの段階でどの成分を入れておくべきであるのか、を検討しなければならない。

複数の条件の組み合わせで精液凍結ストローを試作

し、解凍後の精子の運動の状態を確認し、良好であれば農場での人工授精にて受胎率を確認するという実証の流れとなる。時間のかかる試験ではあるが、一般農家の協力なども得ながら進めており、近い将来、新しい家畜繁殖用精液を発表できるものと見込んでいる。

7 まとめ

本研究は家畜である牛の繁殖性改善を、精子・精液の側の改良により図ることを目指したものであったが、その具体的な進め方は、ヒトの不妊治療の分野での報告を参考とした部分が多かった。表1に、これまでヒトの不妊治療の分野で分かっていたこと、そこから類推して家畜繁殖で期待されること、そして本研究により実際に明らかになったことをまとめた。加えて本研究では、運動性の高い精子を数百万以上の数で捕集するための技術を開発し、この技術を用いた試験結果から、泳ぎ方と受胎性の関係を明らかにしたが、これらの成果は、ヒトの不妊治療へのフィードバックにつながるものと考えている。

この研究のオリジナリティは、下記の点にあると考えている。

- ・運動性の高い精子の誘導に流体技術を用いたこと、それによって大量処理を実現し、精液前処理による人工授精を世界で初めて成功させたこと。
- ・受胎に適した精子の性質を、泳ぎの形に「見える化」したこと、泳ぎの形ごとに均一な精子集団を単離する方法を実現したこと。

現状では、繁殖のほとんどを占める人工授精を対象として研究を進めているが、今後は得られた知見を活用して体外受精などへも展開したいと考えている。

謝辞

この研究は、国立研究開発法人 科学技術振興機構の研究成果展開事業「研究成果最適展開支援プログラム A-STEP フィージビリティスタディステージ 探索タイプの研究開発課題「解凍精液から元気な精子だけをオンサイトで簡便に得るための技術開発」、独立行政法人 日本学術振興会の科学研究費助成事業「基盤研究(B)の研究課題「流体操作技術による新たな精子選別技術の開発と実証試験」、農林水産省の委託事業「委託プロジェクト研究・繁殖性の改善による家畜の生涯生産性向上技術の開発」による支援を受けて行った。

参考文献

- [1] 経済産業省生物化学産業課「バイオ×デジタルによる新たな経済社会（バイオエコノミー）に向けて」<https://www.nedo.go.jp/content/100870410.pdf> 閲覧日2019-05-08
- [2] 生産農業所得統計<https://www.e-stat.go.jp/stat-search/files/data?sinfid=000031813108&ext=pdf> 閲覧日2019-05-08
- [3] 一般社団法人ストレスオフ・アライアンス「ストレスオフ白書2018-2019」<https://prtimes.jp/main/html/rd/p/000000002.000038683.html> 閲覧日2019-05-08
- [4] 農林水産省生産局畜産部畜産振興課「牛受精卵移植実施状況」http://www.maff.go.jp/j/chikusan/sinko/lin/1_katiku/attach/pdf/index-10.pdf 閲覧日2019-05-08
- [5] 一般社団法人家畜改良事業団家畜改良技術研究所「受精調査成績」<http://liaj.or.jp/giken/hanshoku/jyutai.html> 閲覧日2019-05-08
- [6] E. M. Walters, J. D. Benson, E. J. Woods and J. K. Critser: The history of sperm cryopreservation, *Sperm Banking: Theory and Practice* (A. A. Pacey and M. J. Tomlinson (eds.)), Cambridge University Press, 1–10 (2009).
- [7] A. Hazout, M. Dumont-Hassan, A. M. Junca, P. C. Bacrie and J. Tesarik: High-magnification ICSI overcomes paternal effect resistant to conventional ICSI, *Reproductive BioMedicine Online*, 12 (1), 19–25 (2006).
- [8] K. Shirota, F. Yotsumoto, H. Itoh, H. Obama, N. Hidaka, K. Nakajima and S. Miyamoto: Separation efficiency of a microfluidic sperm sorter to minimize sperm DNA damage, *Fertility and Sterility*, 105 (2), 315–321 (2016).
- [9] A. Berkovitz, F. Eltes, S. Yaari, N. Katz, I. Barr, A. Fishman and B. Bartoov: The morphological normalcy of the sperm nucleus and pregnancy rate of intracytoplasmic injection with morphologically selected sperm, *Human Reproduction*, 20 (1), 185–190 (2005).
- [10] M. Zaferani, G. D. Palermo and A. Abbaspourrad: Strictures of a microchannel impose fierce competition to select for highly motile sperm, *Science Advances*, 5 (2), eaav2111 (2019).
- [11] P. Humblot: Use of pregnancy specific proteins and progesterone assays to monitor pregnancy and determine the timing, frequencies and sources of embryonic mortality in ruminants, *Theriogenology*, 56 (9), 1417–1433 (2001).
- [12] 兼子智: 不妊治療における精子調製: 基礎と応用, *日本哺乳動物卵子学会誌*, 22 (1), 24–27 (2005).
- [13] S. M. Knowlton, M. Sadasivam and S. Tasoglu: Microfluidics for sperm research, *Trends in Biotechnology*, 33 (4), 221–229 (2015).
- [14] V. Kantsler, J. Dunkel, M. Blayney and R. E. Goldstein: Rheotaxis facilitates upstream navigation of mammalian sperm cells, *eLife*, 3, e02403 (2014).
- [15] M. P. B. Nagata, K. Endo, K. Ogata, K. Yamanaka, J. Egashira, N. Katafuchi, T. Yamanouchi, H. Matsuda, Y. Goto, M. Sakatani, T. Hojo, H. Nishizono, K. Yotsushima, N. Takenouchi, Y. Hashiyada and K. Yamashita: Live births from artificial insemination of microfluidic-sorted bovine spermatozoa characterized by trajectories correlated with fertility, *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 115 (14), E3087–E3096 (2018).
- [16] 産総研プレス発表「受精に有利な精子を泳ぎ方で選んで捕集する技術」, 2018年3月20日発表
- [17] K. Takeda, K. Uchiyama, M. Kinukawa, T. Tagami, M. Kaneda and S. Watanabe: Evaluation of sperm DNA damage in bulls by TUNEL assay as a parameter of semen quality, *Journal of Reproduction and Development*, 61 (3), 185–190 (2015).

執筆者略歴

永田 マリアポーシャ（ながた まりあぽーしゃ）

元産総研製造技術研究部門研究員。博士(情報学)。1997年フィリピン大学の微生物分野の修士課程を修了。同在学中に日本へ留学。その後、九州工業大学の博士後期課程を修了。2016年より産総研研究員、2018年退職。現在は製薬会社に勤務。この論文では、分子生物学や動物繁殖学にかかわる部分を担当した。



山下 健一（やました けんいち）

産総研製造技術研究部門研究グループ長。博士(工学)。2002年に九州大学大学院工学府化学システム工学専攻博士課程を修了し、産総研に研究職として採用。化学工学の専門性を活かして、この論文では、精子を誘導するための流体設計や、精子選別技術を現場で使用可能な具として提供するための設計などを担当した。



査読者との議論

議論1 全体について

コメント(湯元昇:国立循環器病研究センター)

流体操作技術で牛の凍結精液から運動性精子を選別し、人工授精にそのまま使える数の精子を捕集する技術を開発し、地域連携により、受精に有利であることを実際の牛の繁殖で証明した興味深い論文であり、*シンセシオロジー*誌の研究論文としてふさわしいものと判断します。

コメント(池上敬一:産業技術総合研究所)

著者らは、工学的手法を用いて、バイオ系の大学研究室や農場における実証を行う機関等と連携することにより、畜産の生産性向上に大きく寄与する可能性のある精子選別技術を開発しています。この開発研究においては、企画段階から個体や環境といった条件を制御しきれない畜産現場への適用を前提に、構成的な研究開発を実施しており、本誌の読者にとり示唆に富んだ事例となっています。

議論2 連携体制の構築について

コメント(池上敬一:産業技術総合研究所)

異分野連携という観点だけではなく、可能であれば、地域連携という観点からもご説明があるとありがたいです。

コメント（湯元昇：国立循環器病研究センター）

連携体制の構築には色々な苦勞があったと思いますが、どのように克服されたのでしょうか。連携体制の構築はシンセシオロジー誌に必要なシナリオとしては重要なポイントですので、可能な範囲で記述を追加して頂けないでしょうか。

回答（山下健一）

お尋ねの最重要ポイントは、「なぜこのメンバーなのか」ということかと思えます。詳しくは「3. 参画機関の業務を踏まえた…」の項目に追記しましたが、体制構築の流れとしては、産総研側から声をかけ、研究内容に同意していただき、かつ実際の実験に対応可能な設備等を有していたところをお願いしました。苦勞は、体制の構築の部分ではなく、各機関で統一できない試験条件や、各機関で得意なところの試験成績だけが部分的に積み上がっていく中で、どのように試験成績を読み取るか、というところでした。この解決方法は、この項目の最後の段落に書いております。

議論3 ヒトの不妊治療と牛の繁殖における研究の比較

コメント（湯元昇：国立循環器病研究センター）

ヒトの不妊治療における体外受精と牛の繁殖における人工授精で、分かっていること、分かっていたこと、著者らの研究で分かったことが分かりやすいように表を作成されては如何でしょうか。

回答（山下健一）

表1のようにまとめを追加するとともに、「7.まとめ」セクションに

説明を追記しております。また、もともとヒトの不妊治療で知られていなかったことと達成できていなかったことを、本研究では達成しておりますので、その点については本文中で「ヒトの不妊治療へのフィードバックの可能性」に言及しました。

議論4 精子の運動性と受胎率の関係について

コメント（池上敬一：産業技術総合研究所）

仮に運動性精子の数が100万であったとして、同一ストロー内に混入している非運動性精子の数が受胎率にどう影響するのか、非専門家に分かり易いように説明していただけないでしょうか？ DNAに損傷のある精子が悪影響をもたらすことは理解できますが、より明示的な説明があった方が良いと思います。例えば、非運動性精子は卵子に到達する確率が低いので少々の混入は問題にならないのでは？など、非専門家には良く分からない点があります。

回答（山下健一）

精子が雌性生殖器の中を移動し、卵子の近傍まで到達し、精子群として多数の精子が協調して卵子の中へ入るための道を作り、受精して卵割、発生までに至ることは、非常に多数の段階を経ております。以前より、死んだ精子が出す活性酸素が有害であることなどが多数報告されており、最近も同様の報告があります。死んだ精子（非運動性＝死んだ精子、とは限らない）は悪影響があり、損傷したDNAが運ばれることも悪影響であることは間違いないと考えられますが、その要因がどの段階にどれだけ影響したかを、定量的かつ明示的に述べることは難しいと考えております。

不凍タンパク質の実用化への取り組み

石井 寛崇*、井上 敏文

不凍タンパク質は氷結晶に吸着し、その成長を抑制する機能を有するユニークなタンパク質である。我々は氷結晶の粗大が冷凍食品の品質低下の原因となることから不凍タンパク質を応用することを目指し、大量精製法の開発と用途開発を進めていった。しかし、効果が期待できる冷凍食品が限定されることに加え、製造コストの課題が残った。その後、方針を変更し、社外への市場調査を実施したところ、新たな応用分野への広がりが見えてきた。利用者の要望に対応した製品の開発を進め、2016年に研究用不凍タンパク質試薬としての販売を開始した。現在、その製造販売を行いながら、各分野の課題解決に向けた取り組みを進めている。

キーワード: 不凍タンパク質、冷凍食品、氷結晶、試薬、魚、大量生産

Efforts toward commercialization of antifreeze proteins

Hiroataka ISHII* and Toshifumi INOUE

Antifreeze proteins adsorb to ice crystals and have the function of suppressing their growth. To apply antifreeze proteins to frozen foods where the coarsening of ice crystals leads to the deterioration of quality, we advance mass production technology. However, there were not many cases where the quality of frozen foods was improved by adding the antifreeze protein we developed. So, we changed the direction of development and conducted market research. Our market research revealed new possibilities for utilizing antifreeze proteins. We promoted the development of products that meet the needs of users and began sales as research reagents in 2016. Currently, we are working to address user problems, while manufacturing and selling research reagents.

Keywords: Antifreeze protein, frozen food, ice crystal, reagent, fish, mass production

1 はじめに

1.1 食品冷凍の歴史

冷凍とは、物質の物理的、化学的な変化を用いて低温を作り出し、それにより他の物品から熱を取り出す操作と定義されている。日本で初めて冷蔵庫を建設したのは中原孝太であり、1899年に鳥取県米子町で魚を冷凍している。1920年には、欧米を視察した葛原猪平が北海道森町に冷蔵庫を建設し、冷凍魚の生産を行った。これが日本における食品凍結事業の始まりであり、この場所（現在、株式会社ニチレイの子会社のニチレイフーズの森工場）が日本冷凍食品事業発祥の地とされている。

株式会社ニチレイ（ニチレイ）は戦時下の1942年、水産統制令に基づいて発足した国策会社「帝国水産統制株式会社」を前身とする。戦後の荒廃の中、当時の幹部は瀬死の食糧経済を立て直すことが使命であると認識し、1945年12月に民間企業「日本冷蔵株式会社」として再出発し

た。日本冷蔵株式会社は冷凍魚の取り扱いと製氷・冷蔵事業をベースとして、漁業や食品流通に不可欠な「冷力」によって食料増産に寄与することを責務と据えていた。食品の品質を保存料を使わずに長く保てる冷凍食品の可能性にいち早く注目し、パイオニアとして冷凍食品事業に乗り出していったという経緯をもつ。

1.2 冷凍食品について

ニチレイの事業に深く関わる冷凍食品とは、長期間の保存を目的に凍結して貯蔵を行う食品で、マイナス18℃以下で保存・流通することが一般社団法人日本冷凍食品協会の自主基準で定められている。凍結状態を保つことで微生物の活動や酵素の作用を遅らせることができるため、長期の保存を可能にしている。一方で、凍結時に食品中に含まれる水から氷結晶が生成し、組織やタンパク質を変性させ品質を低下させることがある。特に冷却速度が遅い場合に氷結晶が大きく成長するため、通常は熱伝達率を高めた急速

株式会社ニチレイ 技術戦略企画部 基盤研究グループ 〒261-0002 千葉市美浜区新港9
Technology Management, Nichirei Corporation 9, Shinminato, Mihama-ku, Chiba, 261-0002, Japan * E-mail: N1000X016@nichirei.co.jp

Original manuscript received May 24, 2019, Revisions received June 14, 2019, Accepted June 17, 2019

凍結が行われている。凍結時の品質変化のさらなる抑制に向け、新たな凍結装置の開発が進められているが、エネルギー負荷や設備費用、運用面の課題があり、装置からのアプローチだけでは限界がある。そのため、凍結前の加工処理技術が注目されている。一般的には、食品中の水分量の制御や食品中の自由水を減らすといったことが行われており、その他、凍結保護物質を食品に添加し、氷結晶による影響を受けにくくするといった試みがされている。多くの加工食品ではこれらの加工処理が有効であるが、野菜や水産物、畜肉といった素材本来の状態を維持したい場合には、味や食感が大きく変わる恐れのある加工処理が行えないという課題がある。

1.3 不凍タンパク質について^{[1][2]}

不凍タンパク質は、氷結晶に吸着し、その成長を抑える機能を有するタンパク質である。寒冷地に生息する一部の生物が体内に蓄えており、体が凍結するような低温に耐えて生存するために備わったものである。1969年に米国イリノイ大学 Arthur DeVries 教授により南極海に棲む魚の血清から発見されて以来、学術的に関心がもたれ、これまでに魚や昆虫、植物、菌類などから発見されている。一般に、不凍タンパク質の濃度が高くなるにつれて氷結晶の成長抑制効果が高まり、無数の小さい氷結晶が生成した凍結物となる。原料の違いでアミノ酸組成や立体構造が少しずつ異なるさまざまな種類があり、吸着する氷結晶の結晶面もそれぞれ異なる。そのため、不凍タンパク質の濃度や種類によって、生成する氷結晶の大きさや形状は多様なものとなる。

1.4 不凍タンパク質の産業応用に向けた共同研究

不凍タンパク質が氷結晶の成長を抑制する効果は極めて高く、同様の性能をもつ物質が他にないため、氷結晶の粗大化が品質に影響するアイスクリームや氷菓、冷凍食品、フリーズドライ製品などへの応用が当初から期待されていた。ニチレイでは冷凍食品の製造過程において、凍結時や冷凍保管時の品質変化を抑える技術開発を進めており、そのどちらにも効果が期待できる不凍タンパク質に注目し、効果を確認したいと考えていた。

半世紀前から不凍タンパク質は発見されていたにもかかわらず、なかなか実用化されなかった大きな理由として、その希少性にあった。特に魚類では南極の魚からしか取れないと半ば固定観念があったためである。アメリカの会社が1990年代後半から極地の魚類由来の不凍タンパク質を高額(\$10/mg)で販売していたのもそれを裏付けるものである。それを打破したのは国立研究開発法人 産業技術総合研究所 北海道センターの津田栄博士である。津田らは1990年代から不凍タンパク質の研究を行い、北海道近海

の魚や植物、菌類の一部が不凍タンパク質をもつことを発見した。それまでは極地の生物の血液などから微量しか採取できないものと考えられていたが、魚類の筋肉にも存在することがわかり、食品で効果を検証できる量の不凍タンパク質を入手するという道が開けた。我々は将来的に食品へ不凍タンパク質を実用化することを見据え、2002年に、不凍タンパク質の産業応用に向けた共同研究を産業技術総合研究所(以下、産総研)と開始した。

2 開発の経緯

2.1 産総研との共同研究の役割分担

先に述べた通り、不凍タンパク質の実用化が進まなかったのは、その希少性であり、そのため用途開発が十分に行われてこなかった。不凍タンパク質は寒冷地の生物から発見されてきてはいたが、各生物が蓄えている量や性能はまちまちで、氷結晶の成長を抑制する効果が高い不凍タンパク質を蓄えている生物由来原料(例えば、昆虫など)は大量入手が難しいという課題があった。また、抽出精製過程でのタンパク質の変性による失活や分離精製の難しさのため、天然物から容易に得られないという製造面の課題もあった。そのため、天然物ではなく、化学合成や遺伝子組換え技術を使った製造の検討が当時から進められていた。ただし、そこから得た物質の性能は天然物と比べて低く、費用に見合う効果が期待できるものは作製できていなかった。

産総研では、1) 実用化に適した不凍タンパク質の探索と機能解析 2) 実用化に必要な量の不凍タンパク質を精製するための手法の開発を既に進めていた^[3]。天然物からの抽出にこだわらず、遺伝子発現や化学合成も検討の対象としていたが、優れた性能を示し、グラム量以上の不凍タンパク質を入手できる魚類や菌類に注目していた。

我々は、このような状況を鑑み、食品の凍結解凍後の品質保持が期待できる不凍タンパク質の探索と量産化、効果的な使用方法の検討について産総研と共同で取り組むこととした。研究業務の役割分担としては、産総研に不凍タンパク質の分子機能の解明などの基礎研究を実施いただき、ニチレイでは食品への効果検証、用途開発、大量調製法の確立といった応用研究に取り組むこととした(表1)。

産業応用に向けたシナリオを図1に示す。産総研では既に100種類以上の生物で効果の確認を終えており、数十種類の生物が不凍タンパク質をもつことを確認していた。産総研ではその構造解析や機能解明を進めていたことから、ニチレイでは見つかっている不凍タンパク質について、食品で効果が期待できる不凍タンパク質の探索と濃度を見出すこととした。

表1 共同研究の役割分担

産業技術総合研究所の役割	ニチレイの役割
基礎研究	応用研究
不凍タンパク質の分子機能の解明 各不凍タンパク質の遺伝子解析と分子構造解析 生化学・物理化学的性質の解明	食品への効果検証 不凍タンパク質の大量調製法の確立 用途開発、新たな利用用途の探索

大量調製については、産総研がグラム量の不凍タンパク質を精製する技術を確認していたことから、ニチレイでは数百グラムから数十キログラムの生産が可能なパイロットスケールでの生産ができる設備の構築と数トン以上の商業規模に対応できる原料の探索、及びスケールアップでの効率的な精製法の検討を実施し、大量調製法の確立を目指すことにした。さらに、不凍タンパク質の用途開発をさまざまな食品で進めていながら、実際の製造や流通を見越し、添加方法や加工工程における失活のリスク、効果の持続性について検証を進めていくこととした。

これらの取り組みを進めていくことで、将来、不凍タンパク質の生産体制を確立し、多くの冷凍食品へ不凍タンパク質が利用されるというシナリオを描いた。

2.2 食品への効果検証

当初は幾多の不凍タンパク質の中で、ラボスケールでの精製が簡便な魚類の不凍タンパク質を使って食品への効果を検証した。これまでの研究論文では数 $\mu\text{g/ml}$ という非常に低濃度で実験を実施した報告が多かったため、食品への検証でもそれを参考に実験を進めていた。検証には身近な食品である寒天ゲルを用いた。寒天ゲルは凍結耐性

がない食品である。一度凍結すると氷結晶の粗大化により構造が破壊され、解凍すると水分が保持されないため、形状が保てなくなる。これを利用して、不凍タンパク質が凍結解凍した寒天ゲルの形を保つ効果を確認した。試験の結果、数 $\mu\text{g/ml}$ の添加量では効果はわずかであったが、濃度を少しずつ高くしていくと、反対に構造を大きく破壊し、負の効果を発揮することもあった。

当初は論文の方法に忠実に実験を行っていた。顕微鏡を用いた氷結晶の観察では数 $\mu\text{g/ml}$ の濃度でも氷結晶の形態や大きさに差が見られていたからである。しかし食品への効果を見るには、見た目や食感で差を実感しなければならない。それには高い濃度が必要で、食品内部に十分な量の不凍タンパク質が存在していなければならない。そのため不凍タンパク質の濃度を1000倍に高めて試験を行ったところ、効果を発揮し、寒天ゲルの凍結解凍後の品質は有意に向上した。ただし、この検証だけで1年も費やしてしまった。既報の論文に囚われたままでは、不凍タンパク質の食品への効果は“なし”と判断していたかもしれない。先行研究をすべて鵜呑みにすることの危険性を思い知らされた。今回であれば、実施濃度で効果がないのであれば、

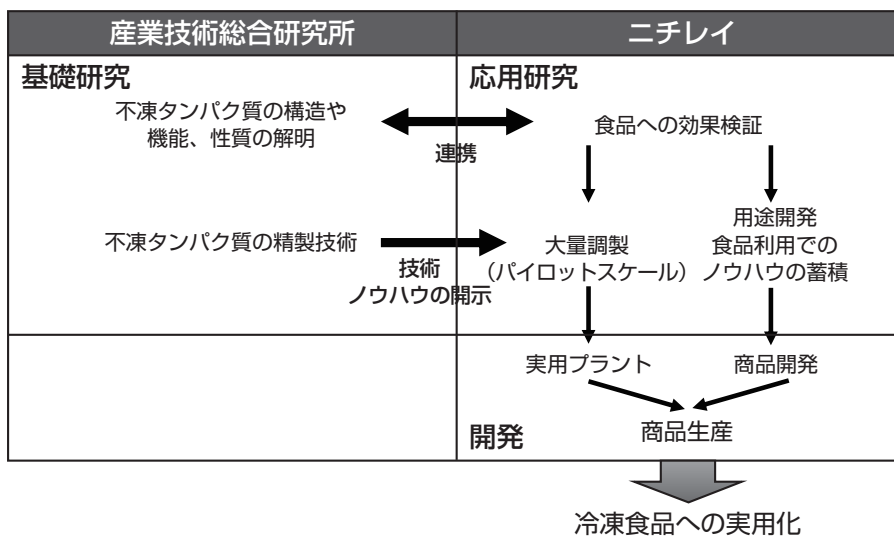


図1 不凍タンパク質の産業応用（冷凍食品への実用化）へのシナリオ

単純に濃度を高くすればよいだけのことである。とはいえ、不凍タンパク質がグラム量ではなく、もっと大量にあれば、状況は少し違ったかもしれない。この時期、ニチレイでの不凍タンパク質の調製法が十分に確立されていなかったことが単純な検証に時間を使いすぎた一因として考えられる。

2.3 大量調製の検討

氷結晶の成長を抑制する効果が高く、寒天ゲルへの添加試験で凍結耐性の付与効果が認められた魚を原料とする大量調製法の技術開発の検討を進めた。魚類は原料をキロ以上で確保でき、性能が高い不凍タンパク質が得られるため、魚類を優先して検討を開始した。

2.3.1 原料の選定

魚類の不凍タンパク質は大きく4種類(不凍糖タンパク質、I型、II型、III型)に分類され、いずれも氷結晶の成長を抑制する効果は有するが、性質はさまざまである。原料選択の指標としては、収率・収量の高さや抽出精製の簡便さ、精製した不凍タンパク質の性能を最も重視した。その他、原料コストや調達の持続可能性、漁獲場所、漁獲時期なども考慮している。国内外を問わず、魚や水産加工の残渣を含む多くの原料を入手し、漁獲時期の違いを考慮した検討を進めていたため、原料の選定には多大な時間を費やした。これが魚類でなければ、場所や時期による品質変化は少なかったのかもしれないが、なるべく性能が高い不凍タンパク質を大量に分取することを重要視していたため、このような結果となった。しかし、多くの原料の検討を行ったことにより、実用化に向けた最適な原料の知見が深まった。

2.3.2 精製法の検討

当初、氷結晶の成長を抑制する効果の高いIII型不凍タンパク質の原料からパイロットスケールでの効率的な精製法の確立を進めていた。しかし、III型不凍タンパク質は熱に弱く、食品向けの殺菌や加熱での製造には適さない。そこで耐熱性を考慮して不凍糖タンパク質とI型不凍タンパク質の原料を用いて精製法の検討を進めていった。粉碎、抽出、分離、分画、濃縮、乾燥のそれぞれで最適条件を検討した。粉碎、分離、分画の工程は自己消化による分解や生菌数の増加を避けるために低温での作業を進めていたが、魚類には脂質や他のタンパク質が多く含まれており、ろ過分離の際に脂質の析出やタンパク質の凝集による膜の目詰まりを起こすことが度々生じた。また、原料からの収率が1%以下と低く、残渣が多く出るため、残渣に不凍タンパク質が含まれないように、高い収率で効率良く不凍タンパク質を回収できる膜の選定や溶媒の選定が大きなポイントであった。設備投資予算がほとんどなかったため、満足のいく最適解ではなかったが、なんとかパイロットスケ-

ールで製造できる手法は開発できた。

2.4 用途開発のための食品利用における知見の蓄積

添加濃度を高めることで、寒天ゲル、アイスクリーム、茹で卵、豆腐と多くの食品で効果が見られるようになった。しかし、冷凍耐性が弱く、冷凍食品にも多く使われる野菜や水産品、畜肉ではほとんど効果が見られなかった。この原因として、当初は内部への浸透性の問題と考えていた。茹で卵や豆腐などでは浸漬時間を延長することで、氷結晶の成長が抑えられることを顕微鏡で確認していたからである。しかし、前述した食品では浸漬時間を延ばし、圧力を利用して浸透性を高めても、大きな改善が見られなかった。

当時は細胞レベルでの検証は行っておらず、細胞の冷凍保存の知見もなかった。そのため、細胞膜や細胞壁が浸透性の邪魔をするのではないかと考えていたが、その検証はできていなかった。その後、不凍タンパク質が細胞膜に吸着することや、細胞保存の知見が蓄積されるにつれて、効果が出ない理由が次第にわかってきた。結局、不凍タンパク質は凍る前の水にしっかり吸着しないと、効果を示さないのである。細胞がある食品では、組織や細胞の隅々まで不凍タンパク質を行き渡らせないと十分な効果が認められないことがはっきりしてきた。そのため、浸漬処理だけでは、野菜や水産品、畜肉の冷凍耐性を高めることは難しいと考えた。

3 製品化に向けた活動

冷凍食品への実用化を目指し、不凍タンパク質の大量調製や用途開発を進めてきたが、野菜や水産品、畜肉への冷凍耐性の付与が困難であったことや、精製した不凍タンパク質を安価な冷凍加工食品にわざわざ添加してまでも品質を差別化したいものが見当たらなかった。そのため当初のシナリオは変更を迫られた。検討の結果、パイロットスケールで製造した不凍タンパク質を社外へ提供し、別の用途を探ることにした。社外への不凍タンパク質の提供を考慮した産業応用へのシナリオを図2に示す。不凍タンパク質は添加濃度を高めれば実感できる効果を発揮するため、付加価値が高い利用用途であれば、応用が望めると推測した。そのような用途に向けた不凍タンパク質の提供が進めば、大量生産によるコストメリットが生まれ、ニチレイにおける利用も促進するというシナリオを描いた。

3.1 不凍タンパク質の試供品の取り組み

先に述べたように、不凍タンパク質で冷凍耐性を付与できる食品は限られている。既存の冷凍加工食品は水分量の制御などで冷凍耐性を高めているため、不凍タンパク質の添加による大きな品質向上は望めない。また、多くの糖類のように冷凍耐性を付与する素材が安価に出回っている

ため、効果に特別な優位性がない限り、精製した不凍タンパク質は採用されない。このような現状のため、食品以外へ幅広く用途開発を行う必要性に迫られ、社外に向けて不凍タンパク質の提供を進めることに着手した。実際には2009年にニチレイのホームページで不凍タンパク質の試供品提供の告知を行い、物質移動合意書（MTA）を締結して粗精製品の提供をおこなった。提供社数は数十社を超えた。この取り組みを通じて、応用の可能性がある分野が幾つか見えてきた。一方で、粗精製品だけの提供では、実用化へ繋げる検討がほとんど進まない分野もあり、さらなるサンプルを準備する必要に迫られた。

3.2 不凍タンパク質試薬の製品化に向けて

試供品の取り組みの中で高純度の不凍タンパク質の提供と生産規模で利用可能な安価なサンプル品の提供の要望をいただいていた。高純度の精製法は、産総研が既に確立していたことから、その手順を参考に製造を進めていった。しかし、同じ方法で製造しているにも関わらず、高純度の不凍タンパク質が十分に得られないという課題に直面した。試薬として製品化するためには、製品が一定以上の品質をクリアしていること、性能にばらつきがないことが最低条件であると考えていた。タンパク質であることから、電気泳動やタンパク質量を精製毎に行い、精製条件を少しずつ変えながら収量と品質の確認を進めた。最終的には少し改良した方法で高純度の不凍タンパク質を安定的に得ることができるようになった。前述のばらつきは使用する機器や試薬のわずかな違いから生じたものと考えているが、同じ方法を別の場所で再現する難しさを知る機会となった。

その他、試供品提供時に質問が多く寄せられた溶液への溶解性と熱安定性などについては、そのデータの取得を行い、保管中の性能変化の確認も行った。

試薬の製品化にあたっては、そのノウハウが全くないこともあり、手探りで進めざるを得なかった。既存事業とかけ離れた取り組みは社内の受け手がいないため、すべて自分達が動かないと前に進まなかった。法務面や知財面からのリスク確認、品質保証での注意点の確認、そしてホームページやカタログに載せる文面の作成など、すべて我々で行った。また、社内だけでは不十分であった試薬販売における関連法規の確認については、社外機関の専門家に相談することで、想定するリスクに事前に対処した。

4 製品化

4.1 魚類不凍タンパク質の製品化

2016年9月にニチレイのホームページで研究用試薬（図3）の販売を開始した。発売当日には、「不凍タンパク質発売のお知らせ」に関するプレスリリースをおこない、幾つかの報道関係者にも取り上げていただいた。

現在の不凍タンパク質製品の一覧を表2に示す。魚類不凍タンパク質と知られている不凍糖タンパク質、I型不凍タンパク質、II型不凍タンパク質、およびIII型不凍タンパク質の4種類を扱っている。いずれも低温域に生息する魚（不凍糖タンパク質：タラ科、I型不凍タンパク質：カレイ科、II型不凍タンパク質：カジカ亜目、III型不凍タンパク質：ゲンゲ科）から抽出精製を行っている。製品は純度が90%以上の「高度精製品」と原料由来の他のタンパク質を夾雑物として含む「粗精製品」の2タイプを用意しており、高度精製品は100mg単位、粗精製品は1g単位で販売している。高度精製品の利用は大学や研究機関での基礎研究や細胞保存の研究者を主な対象先と考えており、粗精製品は応用研究を行っている企業や大学の研究者を主な対象先としている。

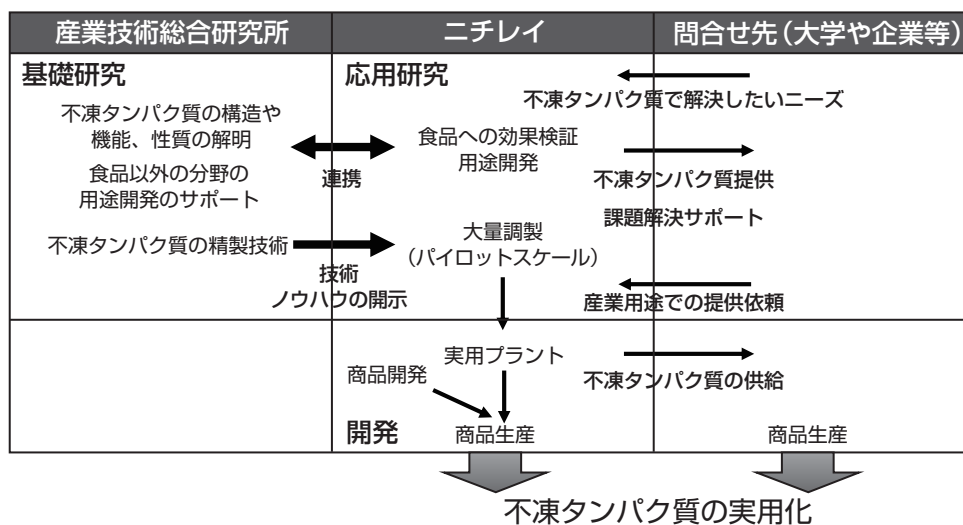


図2 社外への不凍タンパク質の提供を考慮した産業応用へのシナリオ

表2 販売している不凍タンパク質製品の一覧 (2019年5月現在)

製品名	販売単位
高度精製 魚類由来 不凍糖タンパク質	100 mg
高度精製 魚類由来 I 型不凍糖タンパク質	100 mg
高度精製 魚類由来 II 型不凍糖タンパク質	100 mg
高度精製 魚類由来 III 型不凍糖タンパク質	100 mg
粗度精製 魚類由来 不凍糖タンパク質	1 g
粗度精製 魚類由来 I 型不凍糖タンパク質	1 g
粗度精製 魚類由来 II 型不凍糖タンパク質	1 g
粗度精製 魚類由来 III 型不凍糖タンパク質	1 g

4.2 試薬販売の取り組みの実績

不凍タンパク質の問い合わせは2019年5月現在で数百件に及び、販売実績は100件以上となっている。問い合わせ内容は食品や医療、工業、そして研究目的と多岐にわたり、海外からの問い合わせもいただいている。

試薬の販売を通して、社外の方と接する機会が増えている。そこで、冷凍やその周辺の課題をヒアリングしたり、新しい技術情報について議論している。課題の多くは現在販売している不凍タンパク質だけでは解決できないことも多い。しかし、食品と分野が異なっても解決したい内容は似通っていることも多く、ニチレイが保有する他の冷凍技術も活用していくことで、将来的には、ほとんどすべての課題に対して解決策を提案できると考えている。

また、不凍タンパク質の取り組みを通じて、ニチレイでは多くの冷凍技術や鮮度保持技術の知見を増やすことができた。加えて、2017年には国際ナノテクノロジー総合展・技術会議にて、「ライフナノテクノロジー賞」を受賞した。これらの成果は、社内外におけるニチレイの冷凍技術の開発の取り組みを広く認知させることに役立った。

5 今後の課題、展望

2016年に魚類不凍タンパク質製品の販売を開始し、

現在までに多くの方々にその効果を実感していただいている。また、試薬販売をきっかけに不凍タンパク質の認知度は徐々に高まってきていると感じている。一方で、販売してから3年弱経過しているが、実用化へと繋がった実績は十分ではない。

しかし、この不凍タンパク質は将来的に広く実用化されるものと確信している。現在、細胞保存の分野では、大学や研究機関と共同でさまざまな細胞を使った評価を進めている。また、寒冷地での凍結制御や製品製造時の凍結制御の課題に対し、各企業と取り組みを進めている。食品においても、ニチレイでは検討していなかった食材で効果が見られ、相手先企業からは食品向けに利用できるのであればすぐにでも使いたいという声をいただいている。原料や製造法においても、当初は食品向けと決めていたために除外していた原料や製造方法を今では再検討している。その結果、従来では見られない性能を発揮できる不凍タンパク質が見つかってきており、現在はその大量調製に向けた取り組みを進めている。性能が高い不凍タンパク質の作用メカニズムの解明を行うことで、より効果的な不凍タンパク質を人工的に製造することもできるかもしれない。それが可能になれば製造コストの課題もクリアできると確信している。不凍タンパク質の作用はppmオーダーでの効果が期

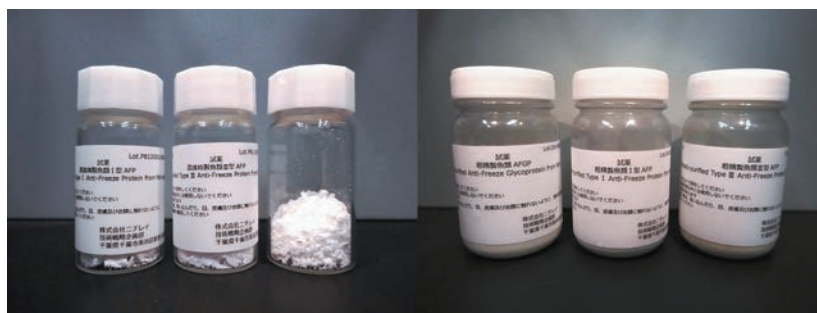


図3 販売している不凍タンパク質試薬の外観

待できるため、しっかりと水に作用させることができればわずかな量で十分な効果を発揮するからである。

不凍タンパク質を幅広い分野で活用していくためには、それぞれの分野で課題があることは認識している。例えば、食品向けに製造するには、夾雑物による味や風味の影響がなるべく抑えられた製品を製造する必要がある。また、医療向けに製造するには、動物由来の原料基準を満たした製造法を確立していくなどの必要がある。ニチレイでは試薬販売での実績が得られていることもあり、不凍タンパク質の研究開発を継続できている。今後は大学や研究機関との共同研究に限らず、企業間での連携も強化し、世の中の課題を不凍タンパク質の取り組みを発展させながら解決していきたい。

謝辞

本取り組みを進めるにあたり、共同研究を含め種々ご協力いただきました国立研究開発法人 産業技術総合研究所 津田栄博士にこの場を借りて御礼申し上げます。

参考文献

- [1] 田中正太郎, 小橋川敬博, 三浦和紀, 西宮佳志, 三浦愛, 津田栄: 不凍タンパク質, *生物物理*, 43 (3), 130–135 (2003).
- [2] 西宮佳志, 近藤英昌, 坂下真実, 三浦愛, 津田栄: 不凍タンパク質機能と応用, *化学と生物*, 48 (6), 381–388 (2010).
- [3] 西宮佳志, 三重安弘, 平野悠, 近藤英昌, 三浦愛, 津田栄: 不凍蛋白質の大量精製と新たな応用開拓, *Synthesiology*, 1 (1), 7–14 (2008).

執筆者略歴

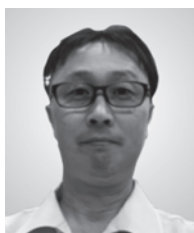
石井 寛崇 (いしい ひろたか)

株式会社ニチレイ 技術戦略企画部 基盤研究グループ。明治薬科大学大学院薬学研究科薬学専攻修了。2004年株式会社ニチレイ入社。入社以来、不凍タンパク質の探索、大量精製法の確立、用途開発に取り組んできた。不凍タンパク質試薬の製品化に向けて奔走し、販売開始後は、試薬の製造から販売まで一貫して担当している。現在、新製品の開発や実用化に向けての取り組みを行っている。この論文では、食品への効果検証、試薬の製品化の取り組み、論文の執筆を担当した。



井上 敏文 (いのうえ としふみ)

株式会社ニチレイ 技術戦略企画部 基盤研究グループ。九州大学大学院農学研究科食品製造工学専攻修了。1995年株式会社ニチレイ入社。不凍タンパク質の可能性を見出し、不凍タンパク質の取り組みの初期から関わっている。効果検証、原料探索、大量調製、用途開発などに主に取り組んだ。この論文では、食品への効果検証、大量調製の検討、試薬品の取り組みを担当した。



査読者との議論

議論1 全体について

コメント (湯元昇: 国立循環器病研究センター)

不凍タンパク質の産業応用が冷凍食品分野での実用化から他分野への応用にかわっていく中でシナリオが変化していくことを詳細に記述した興味深い論文です。「報告」として投稿されていますが、シナリオやその構成要素(選択・統合)についての著者の独自性が見られることから、*シンセシオロジー*誌の「研究論文」としての要件を満たしていると考えられます。従って、「研究論文」として掲載することを推薦します。

コメント (後藤雅式: 産業技術総合研究所)

この論文は、不凍タンパク質に関するニチレイ、産総研それぞれの基礎研究から、実用化を目指した両者の共同研究、さらには製品化までをまとめたものです。大量生産、実食品への応用など、アカデミアの研究者のみでは実施できない課題にも取り組んでおり、企業との共同研究を実施している研究者にも是非読んでいただきたいので、掲載を推薦いたします。

2.2項の「先行研究をすべて鵜呑みにすることの危険性」などは、基礎研究、実用研究を問わず考えさせられる事柄です。また、2.4項で野菜や水産品、畜肉の冷凍耐性を高められない原因を突き止めたことが、当時の限界を見極め、方向転換をするきっかけになったという点で、製品化においても基礎研究の重要性を物語っているのではないのでしょうか。一方、3.2項には本業とは異なる製品化の苦労話が記載されていますが、我々が知る由もない企業内の状況を垣間見ることができ、楽しく読ませて頂きました。

議論2 シナリオの変更について

コメント (後藤雅式: 産業技術総合研究所)

シナリオの変更が成功のきっかけであると思います。今でこそ、オープンイノベーション戦略をとっている企業は多いと思いますが、当時は、社外への情報、物質の提供について抵抗は無かったのでしょうか。

回答 (井上敏文)

当社製品への応用に向けた取り組みを進めていたことから、社外への提供には反対の声もありました。ただし、期待していた食品群において、十分な効果が認められなかったこともあり、出口が見えない状態にありました。最初の試供品の取り組みでは物質移動合意書に使用目的を記入いただき、成果や発明が出た場合は当社と協議するような制約を設けることで、社内のコンセンサスを取りました。

議論3 将来展望について

コメント (湯元昇: 国立循環器病研究センター)

今後、不凍タンパク質をどのような分野で展開するかは検討中とは思いますが、もう少し具体的な展望(例えば、細胞保存の分野とか)とそこでの課題について記述して頂けないでしょうか。

コメント (後藤雅式: 産業技術総合研究所)

恐らく、最も重要な部分は、将来展望だと思います。試薬としての製品開発には成功したものの、大きなビジネスにするためには、アプリケーション開発が課題です。特に、途中で頓挫するかたちになった細胞に対する活用を成功させ、食品のみならず医療分野への応用を図って頂きたいと思います。

回答 (石井寛崇)

5章に不凍タンパク質の実用化に向けた各分野の取り組み例の紹介と食品向けと医療向けの課題を追記しました。細胞保護効果については産総研の津田栄博士が長期間にわたり粘り強く研究されていました。細く長く続けていれば、よりよい活用方法や活用先が見つかるということは細胞保存に限らず、すべての用途開発に言えることだと

思います。不凍タンパク質の細胞保護効果は、既存の細胞保護剤とは異なる作用で働いていると考えています。作用メカニズムの解明が進むことで、実用化の推進が期待できます。当社では効果が期待で

きる不凍タンパク質の開発を進め、作用メカニズムの解明については外部と連携しながら進めていきたいと考えています。

エアロゾル粒子の質量を測る

榎原 研正^{1*}、Charles R. HAGWOOD²、Kevin J. COAKLEY²、福嶋 信彦³、
Kittichote WORACHOTEKAMJORN⁴、田島 奈穂子¹、桜井 博¹

エアロゾル粒子をその質量に応じて分級することができるエアロゾル粒子質量分析器 (APM) を開発した。APMは分級後の粒子を計数する装置と組み合わせることにより、粒子質量分布の測定のために使用することができる。APMの開発によって、質量分析器や天秤といった従来の質量測定技術がカバーしない質量範囲の一部を測定できるようになった。また、エアロゾル粒子の密度、空孔率、フラクタル次元、質量濃度などエアロゾル粒子の様々な特性を評価する新しい技術の開発が進んだ。この論文では、エアロゾル粒子の質量測定の意義、APMと他のエアロゾル粒子分級装置との原理の違い、APMの製品化までの道のり等について、構成学の観点から述べる。

キーワード: エアロゾル粒子、粒子質量、質量分布測定、エアロゾル粒子質量分析器

Measurement of mass of aerosol particles

Kensei EHARA^{1*}, Charles R. HAGWOOD², Kevin J. COAKLEY², Nobuhiko FUKUSHIMA³,
Kittichote WORACHOTEKAMJORN⁴, Naoko TAJIMA¹ and Hiromu SAKURAI¹

An aerosol particle mass analyzer (APM) which classifies aerosol particles according to their mass has been developed. Mass distributions of aerosol particles can be measured by the APM combined with a particle counting device. Particle mass that can be measured in this way ranges from 3×10^{-18} g to 2×10^{-12} g, which partially fills the mass range that is not covered by existing mass measuring instruments (e.g., mass spectrometers and conventional balances). The introduction of the APM has led to various new techniques for evaluating aerosol particle properties such as effective and true densities, porosities, fractal dimensions, and mass concentrations of suspended particulates. This article describes the principle of the APM and how it differs from other instruments for classifying aerosol particles. The article also describes the significance of measuring aerosol particle mass and the course of events that led to commercialization of the APM from the viewpoint of “synthesiology.”

Keywords: Aerosol particles, particle mass, mass distribution measurement, aerosol particle mass analyzer

1. はじめに

気体中に浮遊する固体または液体の粒子と媒体気体の二相系をエアロゾルという。エアロゾルは、気中粒子の健康・環境への影響、放射性物質の気中輸送、地球温暖化への関与、およびクリーンルームの管理などに関わりがあるため、広い分野で学際的関心が持たれている。また、負の側面ばかりでなく、エアロゾルによる新規材料創出など、有効活用の側面からの関心もある。

エアロゾルが関わるこのような効果や現象を評価・推定する目的で、エアロゾル粒子の様々な特性の測定が行われる^[1]。中でも粒径(粒子の直径)は、エアロゾルが関わる多くの現象に大きな影響を与えるため、重要な測定対象と

なっている。ただし、エアロゾル粒子は一般に非球形であるため、幾何学的粒径に代わる幾つかの有効粒径が測定対象となる。一方、粒子の質量は、粒子形状に依存しない粒子固有の特性であり、個々の粒子に含まれる物質の量を直接反映する指標として、また粒子の運動や外的効果に関与する物理量として、粒径に劣らない重要性をもつ特性と考えられる。しかし、エアロゾル粒子の質量を測定する技術はこれまで知られていなかった。この論文では、エアロゾル粒子の質量の測定^{脚注1}を初めて可能としたエアロゾル粒子質量分析器 (Aerosol Particle Mass Analyzer; 以下 APM) の開発について、構成学の観点から述べる。

1 産業技術総合研究所 〒305-8560 つくば市梅園 1-1-1、2 国立標準技術研究所 (米)、3 日本カノマックス (株) 〒565-0805 吹田市清水 2 番 1 号、4 プリンソブソンクラ大学 (タイ)

1. National Institute of Advanced Industrial Science and Technology 1-1-1 Umezono, Tsukuba, 305-8560, Japan * E-mail: ehara_k@meiji.ac.jp, 2. National Institute of Standards and Technology, USA, 3. Kanomax Japan Inc. 2-1 Shimizu, Suita, 565-0805, Japan, 4. Prince of Songkla University, Thailand

2 粒子質量測定の意味

ここではまず2.1節において、エアロゾル粒子の質量が様々な粒子特性の中でどのように位置づけられるかを説明する。これにもとづき2.2節では、粒子質量の測定技術の開発がエアロゾル測定の中でどのような意義があるかを述べる。2.3節では我々が粒子質量に着目した理由を述べる。

2.1 粒子質量と有効径

エアロゾル粒子の多様な形状の例を図1に示す。粒子質量は、どのような形状の粒子についても一意的に定義できる物理量である。しかし粒径はそうではない。非球形粒子に対しては、粒径に代わる幾つかの有効径、すなわち何らかの物理量に着目してそれが同じ大きさをもつ球形粒子に換算した直径が用いられる。代表的な有効径として、移動度等価径・空気力学径などの運動学的等価径、体積等価径・表面積等価径などの幾何学的等価径、および光散乱等価径などの光学的等価径がある^[1]。以下では、粒子質量と関わりの深い運動学的等価径について説明する。

移動度等価径 D_B は、一定の外力場中に置かれた気中粒子の終端速度（速度の漸近値）と外力の比として定義される力学的移動度 B の大きさ^{脚注2}が同じ球形粒子に換算した直径である。直径 D の球形粒子の力学的移動度は、 η を媒体気体の粘性係数、 $C(D)$ をすべり補正係数(Stokesの法則からのずれを表す係数)として、

$$B = C(D) / 3\pi\eta D \quad (1)$$

で与えられる。非球形粒子については、 B が既知のとき、上式を D について解いたものが移動度等価径 D_B である。 B や D_B は粒子の幾何学的広がりのみで決まり、質量や密度に依

存しない。なお、 B と粒子の電荷 q の積 $z = qB$ は電気移動度と呼ばれ、その測定技術(3.2節参照)が発達していることから、力学的移動度の代わりに測定されることが多い。以下では混乱のない範囲で、力学的移動度もしくは電気移動度を単に移動度ということがある。

空気力学径 D_A は運動学的等価径の一種で、重力や慣性力のように粒子質量 m に比例する力の中で粒子が運動するとき、それと同じ終端速度を有する密度 1 g/cm^3 の球形粒子(すなわち丸い水滴)に換算した直径である。重力 mg (g は重力加速度)のもとでの終端速度 v_T は、 $v_T = Bmg$ と書ける。直径 D の丸い水滴について $m = \rho_0 \pi D^3 / 6$ (ただし $\rho_0 = 1 \text{ g/cm}^3$) であることを使うと、 v_T の表式中の g にかかる係数は

$$mB = C(D) D^2 \rho_0 / 18\eta \quad (2)$$

と書ける。従って重力場中(もしくは既知の大きさの加速度場中)での終端速度 v_T の測定から mB 積の大きさが求まったとき、上式を D について解いたものが空気力学径 D_A である。 D_A が同じ大きさの粒子は、粒子の形状にかかわらず、同じ加速度場中で同じ終端速度をもつ。これが D_A を知りたい理由の一つである。

式(1)、(2)から、 m 、 D_B 、 D_A の3つの量のうち2つがわかれば残りは決まることがわかる。例えば m が既知であれば、 D_B から D_A を、逆に D_A から D_B を知ることができる。また一般に、質量 m と他の何らかの粒子特性を同時に測定することにより、粒子の様々な特性評価が可能であることがわかってきている(4章参照)。

2.2 エアロゾルの外的効果

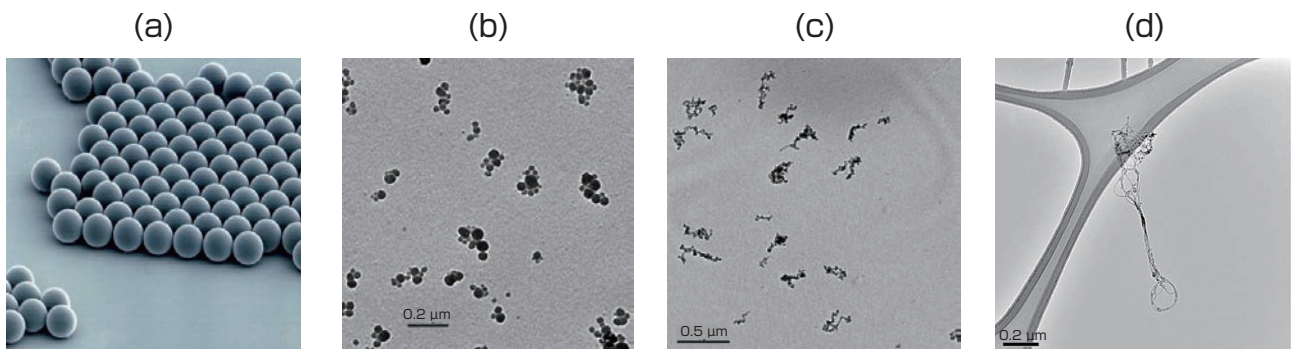


図1 様々な粒子形状の例：(a) ポリスチレンラテックス粒子、(b) Al_2O_3 粒子、(c) ディーゼル排気粒子、(d) 単層カーボンナノチューブ。写真(a)はJSR(株)の提供による。写真(b)、(c)は参考文献[2]、(d)は参考文献[3]から許可を得て再掲。

脚注1: 厳密には、質量分布の測定というべきであるが、簡単のためこの論文では質量の測定と表現する。エアロゾル測定では、特定の一粒子でなく粒子群全体に関心があるため、ほとんどの場合に粒子特性の分布が測定対象となる。また、「粒子質量の測定」は、捕集した粒子全体の秤量ではなく、個々の粒子の質量分布測定を表している。

脚注2: B は一般にテンソルであるが、ここでは簡単のためスカラーとして扱う。

表 エアロゾル粒子の代表的な分級装置において利用される力と分級対象特性

力の種類	静電気力	拡散力	慣性力	遠心力	重力	流体抵抗	分級対象特性
関与量 分級装置	電荷 (q)	(注 1)	質量 (m)	質量 (m)	質量 (m)	移動度 (B)	
微分型電気移動度分析器	✓					✓	移動度等価径
拡散バッテリー		✓				✓	移動度等価径
インパクト			✓			✓	空気力学径
遠心分離型分級器 (注 2)				✓		✓	空気力学径
エルートリエータ					✓	✓	空気力学径

(注 1) 拡散力は粒子の個数濃度を n として $-kT(\nabla n)/n$ で表され (k はボルツマン定数、 T は熱力学温度)、個別粒子の物理量には依存しない。

(注 2) Stöber 型遠心分離器、Goetz スペクトロメータ、円柱型エアロゾルスペクトロメータ等。

先に述べた有害性・有用性を含むエアロゾルの様々な働きをここでは外的効果と呼ぶことにする。エアロゾルの外的効果を制御するためには、その効果の大きさを評価する必要がある。しかし外的効果を直接評価するのは一般に容易でなく、また有効でない場合が多い。例えば、ナノ粒子に懸念されている有害性の場合、ヒトの健康の悪化がその外的効果であるが、それを直接かつ正確に評価するのは困難であるだけでなく、予防の目的には役立たない。そこで、様々な粒子特性をあらかじめ測定しておき、これらと生体毒性の関係を明らかにする吸入暴露試験等が行われる。エアロゾルの外的効果の制御は、このようにして明らかになった粒子特性—外的効果の関係と粒子特性の測定結果にもとづいて行う必要がある。

一般に、エアロゾルの特定の外的効果がどのような粒子特性と強い関係を有するかは、先験的にわかるわけではない。例えば、ナノ粒子の生体毒性が、サイズ^{脚注3}、質量、形状、表面積、化学成分等の特性のいずれに強く依存するかは、吸入暴露試験を行うまでは不明である。従って、エアロゾル測定の立場からは、できるだけ多様な粒子特性を測定できる技術を整備しておくことがその使命の一つである。粒子質量を測定可能量の一つに加えることは、この点で重要である。

2.3 粒子質量に着目した理由

粒子質量を測ろうと考えたのは、その明確なニーズがあったからというよりは、むしろその技術がそれまでに存在しなかったからという理由による。粒子質量を測定したいと考える研究者はエアロゾルのコミュニティの中にいたかもしれないが、そのようなニーズが明示的に喧伝されることは

なかった。ただし、質量は粒子の基本的な物理特性なので、これが測定可能量になれば、エアロゾルのふるまいや外的効果の解明に寄与し得るものと期待された。実際その通りであったことは、APMの実用化後に、その様々な利用技術の開発が進んだ(4章参照)ことからうかがえる。

3 エアロゾル粒子質量分析器 (APM)

3.1 既存の粒子分級装置

エアロゾル粒子の何らかの物理量の分布を測定する主な方法の一つは、粒子をまずその物理量について分級しておき、分級後の粒子の量を求めることである。分級物理量の大きさを変更しながら粒子量を求めれば当該物理量の分布がわかる。粒子の量は、個々の粒子を計数する凝縮核式粒子計数器 (CPC) や光散乱式気中粒子計数器 (LSAPC)、帯電粒子が運ぶ電流から粒子数を求めるエアロゾル電流計、あるいはフィルタ上に捕集した粒子を秤量する天秤などを用いて測定される。

表1に、既存の代表的なエアロゾル粒子分級装置について、利用される力と分級対象となる粒子特性を示す^[4]。粒子が周囲気体と相対速度 v で運動するとき、粒子には気体から流体抵抗 ($-v/B$) が働く。粒子の分級は、粒子に印加する外力と流体抵抗の平衡によって実現されるとみなすことができる。例えば、微分型電気移動度分析器では、電極中の帯電粒子に働く静電気力 (電荷 q に比例) と流体抵抗 (B に反比例) の平衡条件から定まる電気移動度 (qB) の特定の値をもつ粒子のみが外に取り出される (3.2 節参照)。同様に、粒子質量に比例する力 (慣性力、遠心力、重力) を利用する分級装置では、これらの力と流体抵抗の

脚注3: 粒子の幾何学的広がり程度をここではサイズという。有効径はサイズの定量的指標である。

平衡で分級が実現され、その結果、 mB 積で決まる空気力学径が分級対象特性となる。このように、既存の粒子分級装置では移動度に反比例する流体抵抗が主要な役割を果たすので、分級対象特性から移動度依存性をなくすことができず、結果として粒子質量の分級を実現することはできなかった。APMでは、流体抵抗が力の平衡に関与しないようにすることにより、粒子質量が分級できるように工夫した（次節参照）。

3.2 APMの原理

この節では、APMの原理を、移動度分級の目的で使われる微分型電気移動度分析器 (differential mobility analyzer; DMA)^[5] と対比して説明する。図2に示すように、DMAの主要部は同軸円筒型の電極で、電極内を軸方向に流れる清浄空気中に、外側円筒上部に設けたスリットを通じて試料エアロゾルが導入される。エアロゾル中の粒子は電気移動度の大きさに応じて異なる軌跡に従って電極内を運動し、特定の電気移動度を有する粒子のみが内側円筒下部に設けたスリットから取り出される。DMAはCPCと組み合わせてエアロゾル粒子の粒径分布（厳密には移動度等価径分布）を測定する目的で広く普及している。

一方、APMもその主要部はやはり同軸円筒型電極であるが、内外の電極が同じ角速度で回転する機構となっている

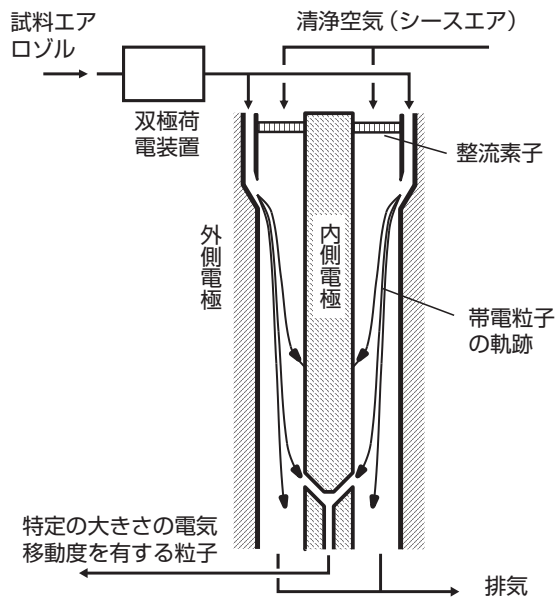


図2 微分型電気移動度分析器 (DMA) の原理

る(図3)。電極間に導入されたエアロゾル中の帯電粒子は、内側方向への静電気力と外側方向への遠心力の影響の下に運動し、これらの二つの力が平衡する粒子、すなわち特定の質量電荷比を有する粒子のみが電極下部から取り出される^{脚注4}。分級対象特性が質量電荷比であることから、エアロゾル粒子質量分析器の名前を与えた^[6]。

粒子が気体の中を運動する分級原理では、粒子に働く流体抵抗が移動度に依存するため、粒子質量の分級はできない。一方APMにおいて電極を通り抜ける粒子は、周囲空気と同じ速度で運動するため、流体抵抗が働かない^{脚注5}。このことが粒子質量の分級を可能としている。DMAを含む従来の分級装置は、一外力場中での粒子の移動距離の違いを利用している点で、いわゆる偏位法に分類できる。これに対し、APMは二つの外力の平衡を利用する零位法に分類できる。この違いが質量分級の可否につながっている。

APMの質量分級性能は、APM伝達関数^{脚注6} $\Omega(m; V)$ で特徴づけることができる^[6]。これは V をパラメータとする m の関数で、電極の印加電圧を V 、回転速度を ω に固定したとき、質量 m の粒子について電極入口に到来する粒子数流束と出口から出て行く粒子数流束の比として定義される。伝達関数は、電極内での粒子の運動方程式を解くことにより部分的に数値解析を行って計算することができる。個数濃度の質量分布が $n(m)$ で表されるエアロゾルがAPMに吸引されるとき、APMから取り出される粒子数濃度は伝達関数を用いて理論的に

$$C(V) = \int_0^{\infty} n(m) \Omega(m; V) dm \quad (3)$$

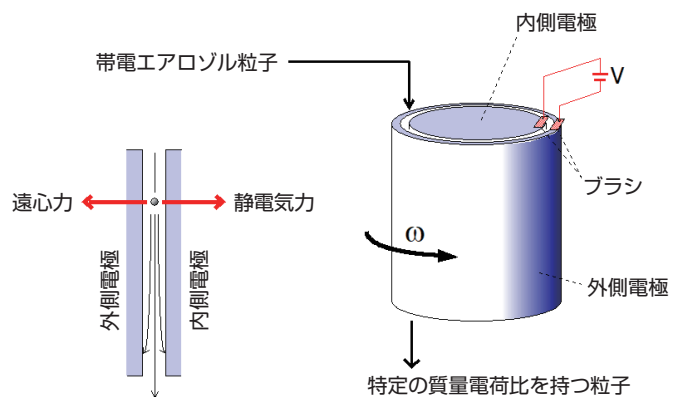


図3 エアロゾル粒子質量分析器 (APM) の原理

脚注4：APMは厳密には質量電荷比の分級装置というべきであるが、粒子の電荷の大きさは幾つかの条件下で推定可能なため、ここでは質量の分級装置として扱う。

脚注5：厳密には、粒子が取り出されるまでに動径方向に最大で電極間ギャップに相当する距離を運動する。粒子質量の分級分解能は、この動径方向運動によって移動度依存性を持ち得るが、これについてはここでは触れない。

脚注6：APM電極から取り出される粒子数流束と電極に導入される粒子数流束の比を粒子質量の関数として表したものを、DMAに対する同種の用語にならってこのように呼んでいる。

と表すことができる^{脚注7}。印加電圧 V についての関数 $C(V)$ をAPMスペクトルと呼ぶ。様々な V の値についての $C(V)$ を実験で求め、これを式(3)の理論スペクトルができるだけ再現するように $n(m)$ を定めることで、試料エアロゾル粒子の質量分布を求めることができる⁷。

3.3 APMについての第三者研究

APMの原理の発表以降、APMの実用化を目的に我々が実施した研究以外に、他の研究グループによるAPMの特性やデータ解析方法に関する研究が行われている。これらはAPM伝達関数の実験的評価⁸や理論的解析⁹、ブラウン拡散の効果の評価¹⁰、データ解析のための逆問題解法の検討¹¹などである。これらの技術的詳細についてはここでは触れない。

APMは内外の電極が同じ角速度で回転するように設計した。この制限を外し、内側電極を外側よりも高速に回転するように設計されたクエット遠心粒子質量分析器(Couette centrifugal particle mass analyzer; CPMA)が当時ケンブリッジ大学にいたOlfertとCollingsにより開発・実用化された¹²¹³。APMでは二つの外力の平衡は、不安定な平衡に対応するが、CPMAではこれを安定な平衡とすることができる。その結果、分級分解能が同じ条件で運転するとき、理論的には電極からより多くの粒子を取り出せる可能性がある。現実のCPMAでは、おそらく電極内流れを理想的なクエット流^{脚注8}に維持することが工学的に難しいとの理由で、理論性能を達成する装置はまだ実現できていない¹³。しかし理想的な装置が実現できれば、APMの粒子通過率を向上できる装置として期待できる。なお、以下ではCPMAも含めてAPMと呼ぶことにする。

3.4 質量測定装置としての位置づけ

図4に物体の質量を測る代表的な装置のおよその対象質量範囲を示す。微小質量向けに作られた天秤の最小読取りは0.1 μg 程度である。TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance; 先細振動子マイクロバランス)は、PM2.5などの空気中の粒子状物質を振動子上に捕集し

たときの固有振動数の変化から捕集質量を求めるもので、およそ 10^{-11} gから 10^{-5} gが対象質量範囲である¹⁴。一方、原子・分子の質量は質量分析器で測定され、そのうち測定可能範囲が広い飛行時間型の質量分析器(TOF-MS)では、約 1.7×10^{-24} gから約 1.7×10^{-18} g ($1 D_A$ からおよそ $10^6 D_A$)が対象質量範囲である。

以上のように既存の質量測定装置では、およそ 10^{-18} gから 10^{-11} gの質量範囲がカバーされていなかった。APMはこの空白範囲を部分的に埋めるもので、およそ 3×10^{-18} gから 2×10^{-12} gを対象質量範囲としている⁷。

4 APMの利用技術

APMの実用化後、これを利用したエアロゾル粒子の新しい特性評価技術の開発が進んだ。これらは、APM開発の直接的成果と言えるので、以下ではこれらについてやや詳細に述べる。

4.1 有効密度^{[15]-[20]}

DMAとAPMを直列に接続し、分級された粒子をCPC等で計数することにより、粒子の有効密度の分布を求めることができる。有効密度とは、質量 m を直径が移動度等価径 D_B に等しい球形粒子の体積で割ったものと定義され、粒子が球形であれば粒子密度に一致する。有効密度は、成分物質や粒子の形態(モルフォロジー)を反映することから、単にサイズ分布の測定だけでは得られない情報をもたらす。DMA-APMを利用した有効密度測定の方法はミネソタ大学のMcMurryらにより提案された¹⁵。彼らはこれを利用して、アトランタ市の大気中粒子が、有効密度が大きい成分と小さい成分の二成分で構成される場合があることを初めて示した。彼らの研究以来、各地の大気エアロゾル粒子や実験室で発生した様々な種類の粒子の有効密度測定が行われている¹⁶²⁰。

4.2 真密度・粒子密度^{[21][22]}

エアロゾル粒子の体積を電子顕微鏡等で決めることができれば、APMによる粒子質量測定結果と併せて、粒子

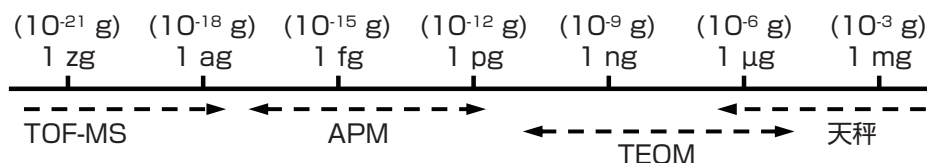


図4 代表的な質量測定装置の対象質量範囲 (TOF-MS: 飛行時間型質量分析器、TEOM: 先細振動子マイクロバランス)

脚注7: 簡単のため、ここではAPMに入る粒子はすべて1価帯電であると仮定した。このような条件はAPMの上流側にDMAを配置することにより近似的に実現可能である。

脚注8: 有限の相対速度をもつ2枚の平面状や同軸円筒状の面間の粘性流体の流れを一般にクエット (Couette) 流と呼んでいる。クエット流では、面間運動に平行な方向の流速には面に垂直方向の勾配が生じる。

の密度が求まる^[2]。得られる密度は、計算に用いる体積の値が空孔（ポイド）を含まない場合は真密度（material density）、含む場合は粒子密度（particle density）となる。メリーランド大学のKimらはこの方法を用いて、多層カーボンナノチューブの密度（中空部分を含む粒子密度）の決定に成功している^[21]。同様の方法で、ディーゼル排気粒子、金属粒子、酸化金属粒子などの密度測定が行われている^{[21][22]}。

4.3 粒子質量・粒子体積^{[23]-[32]}

揮発性成分を含むエアロゾル粒子は、加熱前後の粒子質量の比較から、揮発性成分の含有率を求めることができる。当時ミネソタ大学にいた桜井らは、この方法によりディーゼル排気粒子の揮発性成分の割合を粒径別に調べた^[23]。また、カリフォルニア大学ロサンゼルス校のLallらは、凝集粒子に対して彼らが提唱している理想凝集モデルの妥当性を実験的に検証する中で凝集粒子の質量を求めるためにAPMを利用した^[25]。

粒子の真密度 ρ_m がわかる場合には、粒子質量 m から粒子体積が求まる。東京大学の茂木らは、地球温度に影響を与える大気中の元素状炭素粒子（ブラックカーボン）の量を光学的に測定するSingle Particle Soot Photometerの性能評価において、炭素粒子の体積を求めるためにこの方法を利用している^[24]。

4.4 質量濃度^{[33][34]}

PM2.5や浮遊粒子状物質（SPM）のように、空気中に含まれる特定の空気力学径以下の粒子の質量濃度（単位空気体積あたりの総質量） M は、大気中の粒子汚染を監視する目的で用いられている。粒子の質量濃度の標準的測定法は、フィルタ上に捕集した粒子の天秤による秤量であるが、捕集中に起こりえる揮発や他成分吸着などが測定の系統誤差となり得ること、秤量可能な質量を捕集するまでに時間がかかることなどの欠点がある。ミネソタ大学のParkらは、移動度等価径 D_B を指定したときの平均粒子質量 $\bar{m}(D_B)$ をDMA-APM-CPCの組合せで求めておき、別途DMA-CPCの組合せで求める移動度等価径の個数分布 dN/dD_B （ N は個数濃度）を併用して、次式から質量濃度を求める方法を提案した^[33]。

$$M = \int \bar{m}(D_B) \frac{dN}{dD_B} dD_B \quad (4)$$

この方法は、粒子の捕集を要しないオンライン測定であるため捕集に伴う測定バイアスの発生がないこと、および $\bar{m}(D_B)$

が時間的に安定していれば dN/dD_B の測定だけから M を求められるため粒子質量濃度の低い清浄空気に対しても短時間で M を測定できること、などの長所がある。

4.5 フラクタル次元^{[35]-[49]}

図1(b)、(c)の例のように、1次粒子が凝集することで成長が進む凝集粒子については、フラクタル次元^{脚注9}が粒子形状の指標の一つとなる。粒子質量 m 、移動度等価径 D_B 、フラクタル次元 d_f の間にはいくつかの条件のもとで近似的に次のスケーリング則が成立することが知られている^[50]。

$$m \propto D_B^{d_f} \quad (5)$$

成長の様々な段階にある多数の凝集粒子を対象に、DMA-APMの組合せを用いて（ D_B 、 m ）を測定することにより d_f が求まる。この方法はミネソタ大学のParkらによって提案され、ディーゼル排気粒子のフラクタル次元のエンジン負荷依存性が明らかにされた^[35]。チューリッヒ工科大学のEggersdorferらは、実験室内で発生した銀のナノ凝集体を温度を変えて焼結させると、 d_f は2.07（焼結温度20℃）から球に近い2.95（600℃）まで変化することを示している^[47]。

4.6 動的形状因子^{[51][52]}

非球形粒子の移動度 B と、その粒子と同じ体積をもつ球形粒子の移動度 B_{ve} の比は動的形状因子 χ として知られている。粒子形状の球形からのずれが大きいほど χ の1からのずれが大きくなるため、 χ は粒子の形状を表す指標の一つとして利用される。上記4.3節の方法で粒子の体積がわかれば B_{ve} を計算することができ、また B はDMAを用いて測定できるため、これらから χ を求めることができる。

Pacific Northwest National Laboratory（米）のDeranikらはAPM、DMA、および粒子毎の成分分析を行うSPLATと呼ばれる装置を組み合わせた複合装置により、動的形状因子を含む幾つかの特性を同時に評価する方法を示した^[51]。またドレスデン工科大学のHillemannらは、焼結温度を変えて発生した粒子の動的形状因子が焼結温度にどのように依存するかを実験的に明らかにしている^[52]。

4.7 空孔率^{[53][54]}

空孔が粒子の内部に、もしくは表面に部分的に露出して含まれる場合に、空孔体積と粒子の包絡面で囲まれた体積の比を空孔率という。粒子包絡面がおおよそ球形であれば、移動度等価径から包絡面で囲まれた体積 V_e がわかる。さらに粒子の材質が既知であればその真密度と粒子質

脚注9：現実のエアロゾル粒子は、フラクタルが満たすべき自己相似則に厳密には従わないことから、 d_f は質量移動度指数やフラクタル様次元などと呼ばれることが多いが、ここでは簡単のためフラクタル次元と呼ぶ。

量から、空孔を除く粒子体積 V_i がわかる。これらの比から空孔率が計算できる。広島大学の Lee らは、幾つかの製法で作成したシリカ粒子の空孔率の違いを、この方法を用いて明らかにしている^[53]。

4.8 粒子毎の比表面積^{[3][55]}

粒子の形状とサイズが一定の条件を満たすとき、移動度等価径は粒子の投影面積等価径に近似的に等しいことが知られている^[56]。ウィルソンセンター（米）にいた Maynard らは、移動度等価径 D_B について分級した粒子の質量分布の最頻値 \bar{m} を DMA と APM の組合せで求め、これらを用いた次の指標を定義した^[3]。

$$\Gamma = \pi D_B^2 / \bar{m} \quad (6)$$

粉体に対して測定される通常の比表面積は、粉体群全体の総表面積と総質量の比を表すが、 Γ は粒子毎の表面積と質量の比を近似的に表す。彼らは、単層カーボンナノチューブについて、その製法やロットが違っていると Γ が、従って物理化学的特性が大きく違い得ることを示し、ナノ粒子の潜在的危険性を評価する際に粒子特性のこのようなばらつきに配慮する必要性を訴えている。

5 APM製品化までの道のり

APMの原理の着想からその製品化に到る過程の概略を3つの段階に分けて図5に示す。装置の試作を含む実験的研究は、環境庁（現在の環境省）による公害防止等試験研究費の課題（1994-1998）の一部として開始した。試作機が稼働することが確認できたときには、装置の実用化は難しくないと考えられたが、実際には幾つかの深刻な問題が発生し、それらすべての解決は、NEDO 材料ナノテクノロジープログラム「ナノ計測基盤技術プロジェクト」（2001-2007）にまで持ち越すこととなった。各段階の経過の概略を以下

に述べる。

5.1 実現可能性の確認（第1段階）

APMの原理は、榎原が1991年から1992年にかけて応用統計学に関わる客員研究を行うために米国国立標準技術研究所（NIST）に滞在中に考案した。榎原は統計の実験計画法の有効性を検証する目的で、DMAの性能評価実験を行っていた。実験にはNISTのBuilding and Fire Research LaboratoryにいたMulholland博士の協力を得ることができ、その成果はDMAに関する論文^[57]として後に発表した。一方、この実験を進める中で、エアロゾル粒子の質量を測定する技術がないことが気になっていた。DMAが分級対象とする移動度は、非球形粒子に対してはテンソル量で、粒子の空間姿勢にも依存するため、粒子固有の量とは言えない。一方、粒子質量は粒子の形状によらない粒子固有の物理量であり、重要な測定対象量と考えられる。原子・分子の質量は、質量分析法で測定可能である。これをエアロゾル粒子に適用することはできないだろうか。しかし、エアロゾル粒子の質量は原子・分子と比べて大きいと、装置が実用的でないほど大きくなる。また、気中の粒子を真空に持ち込むと、粒子の変質や粒子数濃度の大幅な低下が生じる可能性があった。そこで、粒子を気中に浮遊させたまま質量を分級する方法を検討し、その結果として3.2節に述べた仕組みを考案した。これだと机上に置ける大きさの装置でエアロゾル粒子の質量分析が実現可能である。

榎原が滞在していたNIST統計工学課は理論系研究の部署であり、新たな装置を試作し実験を進めることが困難であったため、技術の公開を促進する目的で特許を申請することとした。米国を対象とし、NISTに権利が帰属する特許US5428220Aが1993年に認められた。また後に日本国内を対象とし工業技術院長に権利が帰属する特許2517872が1996年に認められた。

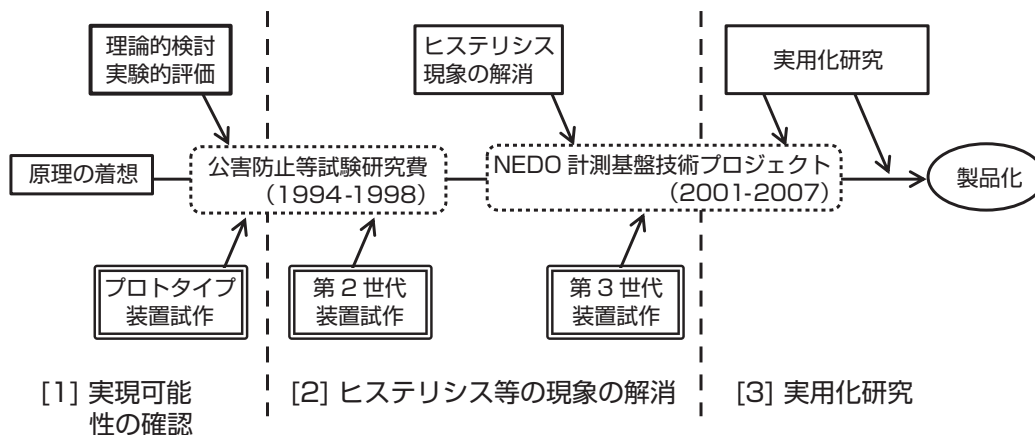


図5 APMの製品化までの道筋

NIST では幸運なことが二つあった。一つは、榎原が滞在していた部署には確率論や数理統計学の専門家が多くのいたことである。APM を微小粒子に適用するには、粒子のブラウン拡散の効果を解析する必要がある。このために必要な確率微分方程式に関する専門的知識を有する Hagwood と Coakley にこの解析に参加してもらうことができた。ブラウン拡散の効果を考慮した APM 伝達関数の性質は 1995 年までに明らかになり、その成果は APM に関する最初の論文となった^[58]。

今一つは、米国出張中であった日本カノマックス（株）の福嶋が NIST を訪れたことである。その際、APM 装置の実現の可能性について榎原が福嶋に相談する機会を持つことができた。福嶋はエアロゾル工学の専門的知識を有していたため、APM の実現がエアロゾル測定分野でのどのような意義があるかを直ちに理解することができた。また、装置設計に必要な機械工学・電気工学・流体工学についての包括的知識があったため、装置の実現のための技術的課題がどこにあるかを具体的に予測することができた。

1994 年に計量研究所（現在の産業技術総合研究所 計量標準総合センター）と日本カノマックスの間で共同研究契約を締結し、その成果として 1995 年に APM の最初の試作機（以下ではプロトタイプ装置と呼ぶ）が完成した。この装置には幾つかの明白な問題があったが、粒径と密度が既知のポリスチレンラテックス標準粒子（図 1(a)）に対して、およそ理論的に予想される質量位置に分級粒子のピークが観測され^[6]、APM の実現可能性を実験的に確認することができた。

5.2 ヒステリシス等の現象の解消（第2段階）

プロトタイプ装置には、ベアリングを通しての試料エアロゾルの漏洩など幾つかの問題があった。これらを解消し、さらに幾つかの点で性能向上を図った第 2 世代装置を 1996 年に試作した。この装置では、APM スペクトルの理論的に予想される位置に粒子通過率のピークが確かに観測

され、実用に足る性能を有していると思われた。しかし、性能評価実験を継続する中で、粒子通過率データの再現性が統計的ばらつきでは説明できないほど低くなる場合があること、また APM スペクトルのピーク高さが理論的予想よりも明白に低くなる場合があることなどの現象が 1997 年に見つかった。これらの原因が何か、榎原と福嶋の間で時間をかけて検討したが、明瞭な手がかりがつかめなかった。そこで、いずれも 2000 年に産総研に客員研究員として滞在することとなったプリンスオブソククラ大学（タイ）の Worachotekamjorn と NIST の Coakley に参加してもらい、実験と理論の両面からあらためて体系的に検討を進めることになった。

実験的評価では、APM の電極電圧を別の値に切り替えた後、粒子通過率が一定の値に漸近するまでに理論的予想よりずっと長い時間がかかること、および漸近の方向が前回電圧の値に依存するヒステリシス現象が見られること（図 6 の「第 2 世代」とあるデータ）が判明し、これらの現象の粒子質量や運転条件への依存性の詳細が明らかになった^[59]。

理論的には、電極電圧設定値のステップ状変化を考慮した非定常の確率微分方程式を数値的に解くことで粒子通過率の過渡応答を調べた。この中では、器壁近傍の運動速度が遅い粒子の存在、電圧設定値切り替え直後からの粒子軌跡の時間変化、それらへのブラウン運動などの影響などを考慮した計算を行ったが、原因究明には至らなかった。しかしこれらの計算結果は、検討の焦点を絞り込むための貴重な情報となった。

原因究明はその後しばらく進まなかったが、2002 年に可能性のある一つのモデルが浮上した。第 2 世代装置の電極出口の下流側には、正負電極を分離するための絶縁体の表面が帯電粒子の流れに露出している部分がある。図 7 に示すように、電極に電圧を印加すると、静電気力により絶縁体表面に帯電粒子の付着が生じる。付着が時間的に進むと

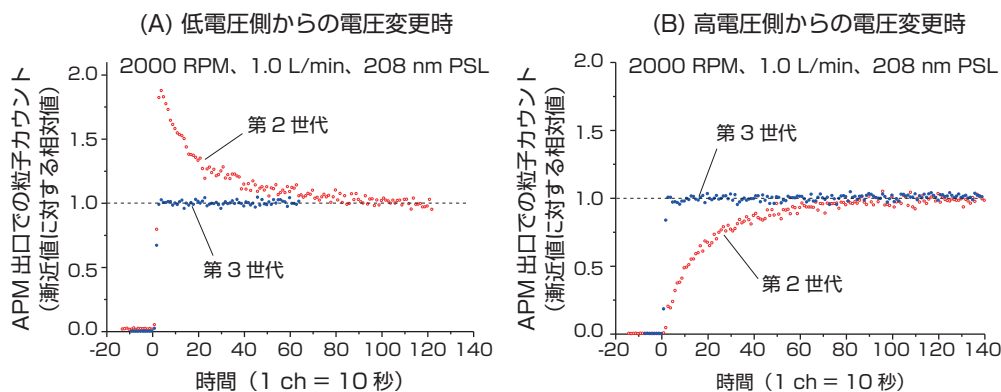


図 6 第 2 世代 APM の時間応答に見られたヒステリシス現象と、改良した第 3 世代 APM の時間応答

これらが二次的に作る静電場由来するクーロン斥力が強くなるため、この部分を通過する粒子数流束が減少する。時間が十分経過した後の付着粒子数の漸近値は印加電圧が高いほど多くなることからヒステリシスが説明できる。

このモデルに基づき、正負電極の絶縁方法を工夫して問題の現象が生じないようにした第3世代装置を2003年に試作した。その時間応答特性を調べたところ、図6の「第3世代」と示すデータのように、遅い応答とヒステリシスの両方が解消されていることが確認できた^[60]。さらに、理論的に予想される粒子通過率の値が実験値とほぼ厳密に一致することもわかった。これによりAPM実用化までの道が一気に見通せるようになった。第2世代装置の問題が発覚した1997年からここに至るまで約6年の時間を要した。

5.3 実用化研究(第3段階)^{脚注10}

ヒステリシス現象の問題が解消された後は、分級分解能の向上、電極を横置き(回転軸を水平方向に設置)することの可能性、遠心力に伴う電極変形の評価と低減、電極部の機械加工精度の向上など、装置を実用化するための検討を進めた。またAPMをディーゼルナノ粒子の特性評価や質量濃度測定に応用する研究も行った^{[16][34]}。この中で、電極電圧を時間の関数として階段状でなく連続的に変化させる走査モード運転においてもほぼ同様の精確さを与えるAPMスペクトルが得られることを桜井が見いだした^[61]。

これにより1セットのAPMスペクトルを得る時間をこれまでのおよそ40分から数分に短くできる可能性が開かれた。

最初の市販装置 APM Model 3600(日本カノマックス)は2008年に販売が開始された。この装置は、試料エアロゾル流量1 L/minで、0.01 fg から100 fg の質量範囲の粒子を分級可能である。田島と桜井はこの装置の詳細な性能評価を行う中で、粒子質量に応じた最適な運転条件を選択するツール“APM operation diagram”を提案した^[7]。その後、田島を中心とする詳細な設計パラメータの解析^[62]を経て、試料エアロゾル流量は0.3 L/minと小さいがModel 3600とほぼ同等の分級性能を有する小型のModel 3601が2012年に開発された。その本体部(図8)の寸法は、幅430 mm、奥行200 mm、高さ140 mmである。現在は、このモデルの制御方法を改良したModel 3602が販売されている。

5.4 実用化と製品化の間の壁

実用的な技術を開発しても、それが必ずしも製品化に結びつくわけではない。特にその技術に対するニーズが関連コミュニティの中で明白に意識されていない状況の中では、その技術がどの程度受け入れられそうかの予測が立ちにくく、製品化に進むことは簡単ではない。実用化と製品化の間には低くない壁がある。

ミネソタ大学のMcMurry教授は、第2世代APMを試

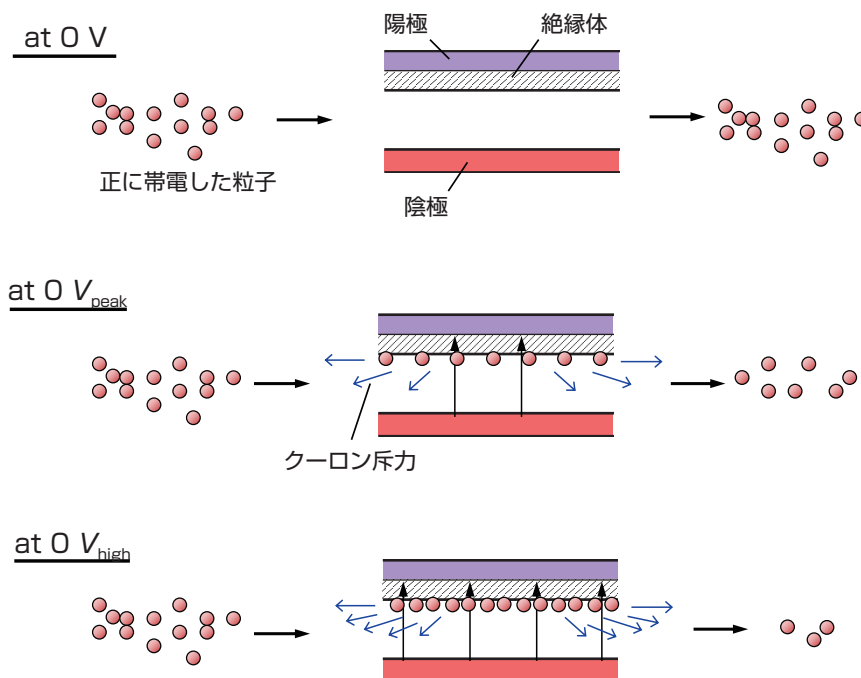


図7 APM 応答のヒステリシス現象を説明する電極出口の下流側部分のモデル。絶縁体表面に付着する帯電粒子によるクーロン斥力のため、印加電圧の大きさに応じてこの部分を通過できる粒子数割合が変わる。

脚注10: この論文では研究過程を具体的に説明する目的で、特定の商品名を記載することがある。このような記載は米国国立標準技術研究所による推奨を意味するものではなく、またその商品がその使用目的に最良のものであることを意味するものでもない。

作した直後に早くもこれに関心を寄せ、これと同型の装置を利用して行った研究の成果を10編以上の論文にして発表した。ミネソタ大学はエアロゾル研究における世界的な中心の一つと見なされており、McMurry教授はその研究陣の一人としてすでに著名な存在であった。彼の研究を通じてAPMという装置が国際的に認知されたことが、製品化の壁を乗り越える重要な鍵となった。

McMurry教授がAPMに関心を寄せた背景に、1994年に榎原がミネソタ大学に短期滞在したこと、またその数年後にMcMurry教授が計量研究所を訪問したことがある。いずれもAPMとは関連のない目的での訪問であったが、この中でAPMの構想や第2世代装置の性能についての情報を伝える機会があった。意図しなかったこのような偶然的機会が、APMの製品化に重要な役割を果たした。

6 まとめ

エアロゾル粒子に働く遠心力と静電気力の平衡を利用して粒子の質量について分級するエアロゾル粒子質量分析器（APM）を開発した。APMは、既存の質量測定装置がカバーしない質量測定範囲の空白領域を部分的に埋めるもので、およそ 3×10^{-18} g から 2×10^{-12} g を測定対象範囲とする。APMの応用技術として、有効密度、真密度、粒子体積、空孔率、フラクタル次元、質量濃度など、エアロゾル粒子の様々な特性の新しい評価技術が様々な研究グループによって開発された。

深刻な技術的課題を解消しつつ装置を実用化するまでに、エアロゾル測定の専門家だけでなく、動作原理の理論解析のための数的手法について専門的知識を有する研究者、および装置設計に必要な機械工学・電気工学・流体工学の包括的知識を有する研究者等の参加が必要であった。開発プロセスの中でこれらの人々の参加が得られたのは、

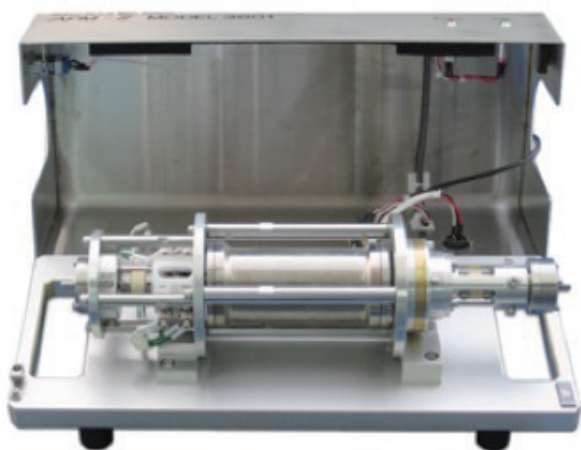


図8 APM Model 3601の本体部

幸運によるところもある。また、装置開発の初期の段階からAPMに関心をもち、その存在の国際的な認知につなげてくれた研究者と交流を持てたのも幸運なことであった。

APMについて研究すべき課題はまだ残されている。電圧連続走査モード運転の市販装置への実装は未完である。またAPMは零位法にもとづく装置として正確さの高い測定が期待できるため、APMを粒子質量のトレーサビリティに利用できる可能性がある。0.01 fg以下では、DMA測定粒径からの予想質量と系統的にずれる可能性があり^[63]、この問題の解決も待たれる。さらにCPMAの性能評価やその理想性能の実現も期待される。

謝辞

著者の一人（榎原）は、本研究のきっかけを与えていただいた故 Dr. Robert Lundegard, Dr. George Mulholland（いずれも元 National Institute of Standards and Technology）および向坂保雄大阪府立大学名誉教授、製品化前のAPMに関心をもち活用いただいた Prof. Peter McMurry（ミネソタ大学）、上司として研究推進を継続的に支援いただいた田中充博士（産業技術総合研究所）、APMを利用した多くの実験に貢献いただいた齊藤敬三博士および矢部明博士（いずれも元産業技術総合研究所）に感謝します。この論文で紹介した研究の一部は、環境庁（現在の環境省）国立機関公害防止等試験研究費「浮遊粒子状物質の組成別濃度および粒子個別特性の評価に基づく発生源制御に関する研究」（1994-1998）およびNEDO材料ナノテクノロジープログラム「ナノ計測基盤技術プロジェクト」（2001-2007）の中で実施されたものです。

参考文献

- [1] P. Kulkarni, P. A. Baron and K. Willeke (eds.): *Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications*, 3rd edition, Wiley, Hoboken, N.J., (2011).
- [2] K. Park, D. B. Kittelson, M. R. Zachariah and P. H. McMurry: Measurement of inherent material density of nanoparticle agglomerates, *J. Nanoparticle Res.*, 6 (2), 267–272 (2004).
- [3] A. D. Maynard, B. K. Ku, M. Emery, M. Stolzenburg and P. H. McMurry: Measuring particle size-dependent physicochemical structure in airborne single walled carbon nanotube agglomerates, *J. Nanoparticle Res.*, 9 (1), 85–92 (2007).
- [4] 榎原研正: 気中ナノ粒子のサイズおよび質量による分級, *化学工学*, 73 (2), 83–86 (2009).
- [5] E. O. Knutson and K. T. Whitby: Aerosol classification by electric mobility: apparatus, theory, and applications, *J. Aerosol Sci.*, 6 (6), 443–451 (1975).
- [6] K. Ehara, C. Hagwood and K. J. Coakley: Novel method to classify aerosol particles according to their mass-to-charge ratio—Aerosol particle mass analyser, *J. Aerosol Sci.*, 27 (2),

- 217–234 (1996).
- [7] N. Tajima, N. Fukushima, K. Ehara and H. Sakurai: Mass range and optimized operation of the aerosol particle mass analyzer, *Aerosol Sci. Technol.*, 45 (2), 196–214 (2011).
- [8] C. Presser, X. Ma, S. Guha, G. W. Mulholland and M. R. Zachariah: Online nanoparticle mass measurement by combined aerosol particle mass analyzer and differential mobility analyzer: Comparison of theory and measurements, *Aerosol Sci. Technol.*, 43 (11), 1075–1083 (2009).
- [9] M. Kuwata: Particle classification by the tandem differential mobility analyzer–particle mass analyzer system, *Aerosol Sci. Technol.*, 49 (7), 508–520 (2015).
- [10] G.-Y. Lin, B.-X. Liao, N.-J. Tzeng, C.-W. Chen, S.-N. Uang, S.-C. Chen, D. Y. Pui and C. J. Tsai: The effect of nanoparticle convection-diffusion loss on the transfer function of an aerosol particle mass analyzer, *Aerosol Sci. Technol.*, 48 (6), 583–592 (2014).
- [11] K. Park: In-situ measurements of physical properties of 50–500 NM particles: mass-mobility relationship, Ph. D. thesis, University of Minnesota, (2003).
- [12] J. S. Olfert and N. Collings: New method for particle mass classification—the Couette centrifugal particle mass analyzer, *J. Aerosol Sci.*, 36 (11), 1338–1352 (2005).
- [13] J. S. Olfert, K. St. J. Reavell, M. G. Rushton and N. Collings: The experimental transfer function of the Couette centrifugal particle mass analyzer, *J. Aerosol Sci.*, 37 (12), 1840–1852 (2006).
- [14] E. Weingartner, H. Burtscher, C. Hüglin and K. Ehara: Semi-continuous mass measurement, in *Aerosol Measurement: Principles, Techniques, and Applications, Third Edition*, P. Kulkarni, P. A. Baron, K. Willeke eds., John Wiley & Sons, 255–268 (2011).
- [15] P. H. McMurry, X. Wang, K. Park and K. Ehara: The relationship between mass and mobility for atmospheric particles: A new technique for measuring particle density, *Aerosol Sci. Technol.*, 36 (2), 227–238 (2002).
- [16] 齊藤敬三, 篠崎修, 矢部明, 瀬戸章文, 桜井博, 榎原研正: DMA-APM法によるディーゼル排気の質量濃度測定 (第1報) —有効密度の測定—, 自動車技術会論文集, 38 (6), 113–118 (2007).
- [17] Q. G. J. Malloy, S. Nakao, L. Qi, R. Austin, C. Stothers, H. Hagino and D. R. Cocker III: Real-time aerosol density determination utilizing a modified scanning mobility particle sizer—Aerosol particle mass analyzer system, *Aerosol Sci. Technol.*, 43 (7), 673–678 (2009).
- [18] S. Nakao, M. Shrivastava, A. Nguyen, H. Jung and D. R. Cocker III: Interpretation of secondary organic aerosol formation from diesel exhaust photooxidation in an environmental chamber, *Aerosol Sci. Technol.*, 45 (8), 964–972 (2011).
- [19] T. L. Barone, A. A. Lall, J. M. E. Storey, G. W. Mulholland, V. Y. Prikhodko, J. H. Frankland, J. E. Parks and M. R. Zachariah: Size-resolved density measurements of particle emissions from an advanced combustion diesel engine: Effect of aggregate morphology, *Energy Fuels*, 25 (5), 1978–1988 (2011).
- [20] X. Tang, D. R. Cocker III and A. Asa-Awuku: Are sesquiterpenes a good source of secondary organic cloud condensation nuclei (CCN)? Revisiting β -caryophyllene CCN, *Atmospheric Chem. Phys.*, 12 (18), 8377–8388 (2012).
- [21] S. H. Kim, G. W. Mulholland and M. R. Zachariah: Density measurement of size selected multiwalled carbon nanotubes by mobility-mass characterization, *Carbon*, 47 (5), 1297–1302 (2009).
- [22] M. Kuwata, S. R. Zorn and S. T. Martin: Using elemental ratios to predict the density of organic material composed of carbon, hydrogen, and oxygen, *Environ. Sci. Technol.*, 46 (2), 787–794 (2012).
- [23] H. Sakurai, K. Park, P. H. McMurry, D. D. Zarling, D. B. Kittelson and P. J. Ziemann: Size-dependent mixing characteristics of volatile and nonvolatile components in diesel exhaust aerosols, *Environ. Sci. Technol.*, 37 (24), 5487–5495 (2003).
- [24] N. Moteki and Y. Kondo: Effects of mixing state on black carbon measurements by laser-induced incandescence, *Aerosol Sci. Technol.*, 41 (4), 398–417 (2007).
- [25] A. A. Lall and S. K. Friedlander: On-line measurement of ultrafine aggregate surface area and volume distributions by electrical mobility analysis: I. Theoretical analysis, *J. Aerosol Sci.*, 37 (3), 260–271 (2006).
- [26] M. Kuwata and Y. Kondo: Measurements of particle masses of inorganic salt particles for calibration of cloud condensation nuclei counters, *Atmospheric Chem. Phys.*, 9 (16), 5921–5932 (2009).
- [27] M. Kuwata, Y. Kondo and N. Takegawa: Critical condensed mass for activation of black carbon as cloud condensation nuclei in Tokyo, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 114 (D20), (2009).
- [28] M. Shiraiwa, Y. Kondo, T. Iwamoto and K. Kita: Amplification of light absorption of black carbon by organic coating, *Aerosol Sci. Technol.*, 44 (1), 46–54 (2010).
- [29] X. Ma, A. A. Lall, G. W. Mulholland and M. R. Zachariah: Evaporation anisotropy of free nanocrystals, *J. Phys. Chem. C*, 115 (34), 16941–16946 (2011).
- [30] S. Guha, X. Ma, M. J. Tarlov and M. R. Zachariah: Quantifying ligand adsorption to nanoparticles using tandem differential mobility mass analysis, *Anal. Chem.*, 84 (15), 6308–6311 (2012).
- [31] M. Laborde, P. Mertes, P. Zieger, J. Dommen, U. Baltensperger and M. Gysel: Sensitivity of the Single Particle Soot Photometer to different black carbon types, *Atmospheric Meas. Tech.*, 5 (5), 1031–1043 (2012).
- [32] J. G. Radney, X. Ma, K. A. Gillis, M. R. Zachariah, J. T. Hodges and C. D. Zangmeister: Direct measurements of mass-specific optical cross sections of single-component aerosol mixtures, *Anal. Chem.*, 85 (17), 8319–8325 (2013).
- [33] K. Park, D. B. Kittelson and P. H. McMurry: A closure study of aerosol mass concentration measurements: Comparison of values obtained with filters and by direct measurements of mass distributions, *Atmos. Environ.*, 37 (9), 1223–1230 (2003).
- [34] 齊藤敬三, 篠崎修, 矢部明, 瀬戸章文, 桜井博, 榎原研正: DMA-APM法によるディーゼル排気PMの質量濃度測定 (第2報) —フィルター法との比較測定—, 自動車技術会論文集, 39 (4), 97–102 (2008).
- [35] K. Park, F. Cao, D. B. Kittelson and P. H. McMurry: Relationship between particle mass and mobility for diesel exhaust particles, *Environ. Sci. Technol.*, 37 (3), 577–583 (2003).
- [36] B. K. Ku, M. S. Emery, A. D. Maynard, M. R. Stolzenburg and P. H. McMurry: In situ structure characterization of airborne carbon nanofibres by a tandem mobility–mass analysis, *Nanotechnology*, 17, 3613–3621 (2006).
- [37] J. S. Olfert, J. P. R. Symonds and N. Collings: The effective density and fractal dimension of particles emitted from a light-duty diesel vehicle with a diesel oxidation catalyst, *J. Aerosol Sci.*, 38, 69–82 (2007).
- [38] R. Zhang, A. F. Khalizov, J. Pagels, D. Zhang, H. Xue and P. H. McMurry: Variability in morphology, hygroscopicity, and optical properties of soot aerosols during atmospheric

- processing, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 105, 10291–10296 (2008).
- [39] W. G. Shin, G. W. Mulholland, S. C. Kim, J. Wang, M. S. Emery and D. Y. H. Pui: Friction coefficient and mass of silver agglomerates in the transition regime, *J. Aerosol Sci.*, 40 (7), 573–587 (2009).
- [40] S. C. Kim, J. Wang, M. S. Emery, W. G. Shin, G. W. Mulholland and D. Y. H. Pui: Structural property effect of nanoparticle agglomerates on particle penetration through fibrous filter, *Aerosol Sci. Technol.*, 43 (4), 344–355 (2009).
- [41] J. Pagels, A. F. Khalizov, P. H. McMurry and R. Y. Zhang: Processing of soot by controlled sulphuric acid and water condensation—Mass and mobility relationship, *Aerosol Sci. Technol.*, 43 (7), 629–640 (2009).
- [42] N. Moteki, Y. Kondo, N. Takegawa and S. Nakamura: Directional dependence of thermal emission from nonspherical carbon particles, *J. Aerosol Sci.*, 40 (9), 790–801 (2009).
- [43] J. H. Scheckman, P. H. McMurry and S. E. Pratsinis: Rapid characterization of agglomerate aerosols by in situ mass–mobility measurements, *Langmuir*, 25 (14), 8248–8254 (2009).
- [44] W. G. Shin, G. W. Mulholland and D. Y. H. Pui: Determination of volume, scaling exponents, and particle alignment of nanoparticle agglomerates using tandem differential mobility analyzers, *J. Aerosol Sci.*, 41 (7), 665–681 (2010).
- [45] J. H. Scheckman and P. H. McMurry: Deposition of silica agglomerates in a cast of human lung airways: Enhancement relative to spheres of equal mobility and aerodynamic diameter, *J. Aerosol Sci.*, 42 (8), 508–516 (2011).
- [46] T. Torvela, A. Lähde, J. Mönkäre, J. Riikonene and J. Joutsensaari: Low-temperature aerosol flow reactor method for preparation of surface stabilized pharmaceutical nanocarriers, *J. Aerosol Sci.*, 42 (10), 645–656 (2011).
- [47] M. L. Eggersdorfer, D. Kadau, H. J. Herrmann and S. E. Pratsinis: Aggregate morphology evolution by sintering: Number and diameter of primary particles, *J. Aerosol Sci.*, 46, 7–19 (2012).
- [48] M. Shapiro, P. Vainshtein, D. Dutcher, M. Emery, M. R. Stolzenburg, D. B. Kittelson and P. H. McMurry: Characterization of agglomerates by simultaneous measurement of mobility, vacuum aerodynamic diameter and mass, *J. Aerosol Sci.*, 44, 24–45 (2012).
- [49] J. Olfert and S. Rogak: Universal relations between soot effective density and primary particle size for common combustion sources, *Aerosol Sci. Technol.*, 53 (5), 485–492 (2019).
- [50] A. Schmidt-Ott, U. Baltensperger, H. W. Gäggeler and D. T. Jost: Scaling behaviour of physical parameters describing agglomerates, *J. Aerosol Sci.*, 21 (6), 711–717 (1990).
- [51] J. Beranek, D. Imre and A. Zelenyuk: Real-time shape-based particle separation and detailed in situ particle shape characterization, *Anal. Chem.*, 84 (3), 1459–1465 (2012).
- [52] L. Hillemann, F. Babick and M. Stintz: Measurement of the dynamic shape factor using APM and SMPS in parallel, *Procedia Eng.*, 102, 1177–1182 (2015).
- [53] S. Y. Lee, H. Chang, T. Ogi, T. Iskandar and K. Okuyama: Measuring the effective density, porosity, and refractive index of carbonaceous particles by tandem aerosol techniques, *Carbon*, 49 (7), 2163–2172 (2011).
- [54] Q. Liu, X. Ma and M. R. Zachariah: Combined on-line differential mobility and particle mass analysis for determination of size resolved particle density and microstructure evolution, *Microporous Mesoporous Mater.*, 153, 210–216 (2012).
- [55] B. K. Ku and D. E. Evans: Investigation of aerosol surface area estimation from number and mass concentration measurements: Particle density effect, *Aerosol Sci. Technol.*, 46 (4), 473–484 (2012).
- [56] S. N. Rogak, R. C. Flagan and H. V. Nguyen: The Mobility and structure of aerosol agglomerates, *Aerosol Sci. Technol.*, 18 (1), 25–47 (1993).
- [57] K. Ehara, G. W. Mulholland and R. C. Hagwood: Determination of arbitrary moments of aerosol size distributions from measurements with a differential mobility analyzer, *Aerosol Sci. Technol.*, 32 (5), 434–452 (2000).
- [58] C. Hagwood, K. Coakley, A. Negiz and K. Ehara: Stochastic modeling of a new spectrometer, *Aerosol Sci. Technol.*, 23 (4), 611–627 (1995).
- [59] K. Worachotekamjorn and K. Ehara: Performance evaluation of the aerosol particle mass analyzer, *Proc 1st Asian Part. Technol Symp APT 2000 Bangk.*, S-VI-1 (2000).
- [60] K. Ehara, K. Fukushima, K. Worachotekamjorn and K. J. Coakley: Analysis and improvement of the temporal response of the aerosol particle mass analyzer, *J. Aerosol Sci.*, 35, Supplement 1 (Abstracts of European Aerosol Conference), (2004).
- [61] 櫻井博, 榎原研正: 粒子質量分析方法 特開2008-224246 (2008).
- [62] N. Tajima, H. Sakurai, N. Fukushima and K. Ehara: Design considerations and performance evaluation of a compact aerosol particle mass analyzer, *Aerosol Sci. Technol.*, 47 (10), 1152–1162 (2013).
- [63] H. Sakurai, K. Ehara, N. Tajima and N. Fukushima: Investigation on the cause for underestimation of density measured by the DMA-APM method, *Poster Presentation at 2010 Annual Conf. Am. Assoc. Aerosol Res., Portland Or.*, (2010).

執筆者略歴

榎原 研正（えはら けんせい）

1983年京都大学理学部物理学科卒業。1988年大阪大学基礎工学研究科博士課程修了。工学博士。同年通商産業省工業技術院計量研究所入所。2001年産業技術総合研究所計測標準研究部門。応用統計研究室室長、粒子計測研究室室長、材料物性科科长、首席研究員等を経て、2019年退職。現在、産業技術総合研究所名誉リサーチャー、明治大学兼任講師、学習院大学非常勤講師。本研究では、研究の中心として装置開発を推進した。



Charles R. HAGWOOD（チャーるず はぐうつど）

ノースカロライナ州立農工大学数学科卒業。ミシガン大学数学科研究科修了。Ph. D. (数学)。ダートマス大学およびバージニア大学数学科で講師を務めた後、1987年に米国国立標準技術研究所入所（統計工学課）、現在に至る。フォード財団奨学金を受けてスタンフォード大学統計学部にて一年間滞在。現在は、確率微分方程式とそのエアロゾル粒子への応用、形状解析、動的周波数アクセス、点過程のモデル化などについての研究と技術支援を提供している。本研究では、APM伝達関数に対するブラウン拡散の影響の理論的解析を担当した。APMに関する最初の論文の筆頭著者。



Kevin J. COAKLEY (けびん こーくりー)

エール大学物理学科卒業。ワシントン大学(シアトル)物理学修士号、スタンフォード大学統計学博士号取得。1989年に米国国立標準技術研究所入所(統計工学課)。統計的モデリング、物理学における実験計画・解析、広帯域マイクロ波イメージングやアトムプローブトモグラフィにおける統計的方法、ジョンソンノイズ温度計等に対する統計的学習法などの研究に従事。本研究では、APM伝達関数に対するブラウン拡散の影響および伝達関数の過渡応答特性の理論解析を担当した。



福嶋 信彦(ふくしま のぶひこ)

1978年金沢大学工学部化学工学科卒業。1978年日本科学工業(株)(現日本カノマックス(株))に入社。主に微粒子計測技術の研究開発に従事。1995年大阪府立大学博士後期課程修了、博士(工学)。1998年日本カノマックス(株)生産担当取締役、2007年同代表取締役副社長、2008年(株)カノマックスコーポレーション上席執行役員副社長、2011年日本カノマックス(株)代表取締役副会長、現在に至る。本研究では実用化初期段階でのAPM試作機器の設計・開発を行った。



Kittichote WORACHOTEKAMJORN (きていちょうと うおらちょうとかむよるん)

1992年プリンスオブソクラ大学(PSU)薬学部製剤工学科卒業。同年からPSU薬学部製剤工学科講師、現在に至る。1999年から2000年までJICA奨学金を得て計量研究所においてエアロゾル計測に関する研究を行った。本研究では第2世代APMの過渡応答特性の実験的解析を担当した。



田島 奈穂子(たじま なおこ)

1984年金沢大学工学部化学工学科卒業、1984年日本科学工業(株)(現日本カノマックス(株))入社、2013年退社。2013年広島大学大学院工学研究科化学工学専攻博士課程修了。工学博士。2014年より産業技術総合研究所ナノエレクトロニクス研究部門を経て、現在は同研究所ナノチューブ実用化研究センターにて特別研究員。本研究では、APM実用装置の設計・性能評価、装置の小型化のための理論解析と実験的評価を行った。



桜井 博(さくらい ひろむ)

1999年米国ペンシルベニア州立大学大学院化学専攻Ph.D.修了、1999年米国ミネソタ大学ポスドク研究員、2003年産業技術総合研究所ポスドク研究員、2004年産業技術総合研究所入所、2013年計測標準研究部門粒子計測研究室長、現在物質計測標準研究部門粒子計測研究グループ長。本研究では、ディーゼル排気粒子及び気中ナノ粒子特性評価へのAPMの応用のほか、走査モード運転の提案、APM運転条件選択ツールの開発などを行った。



近年、健康や環境、安全への関心が高まり、産業分野でもクリーンルームの管理などで微粒子評価の重要性が広く認識されるなかで、従来、測定することができなかった微小質量領域にあるエアロゾル粒子の質量を測るために筆者らが考案したエアロゾル粒子質量分析器(Aerosol Particle Mass Analyzer: APM)の測定原理と、そのために開発した装置を様々な粒子特性評価に応用した事例などが紹介されているという点で、質の高い論文であると思います。

この手法によって、従来用いられてきた計測技術である電子天秤による質量計測の下限の0.1 μg、先細振動子マイクロバランス(TEOM)による質量測定範囲の 10^{-11} gから 10^{-5} g、飛行時間型の質量分析器(TOF-MS)による質量測定範囲の 1.7×10^{24} gから 1.7×10^{18} gではカバーできなかった 3×10^{18} gから 2×10^{12} gの領域でのエアロゾル粒子の質量が評価できるようになったということは極めて画期的です。

2019年5月20日にキログラムの定義が130年ぶりに改定され、原器による定義からプランク定数による定義へ移行し、質量標準の分野でも、これまで測定することができなかった0.1 μg以下の領域での質量計測ニーズが高まっています。新しい測定領域の開拓という点でとてもタイムリーな論文であると思います。

コメント(一村 信吾:早稲田大学)

エアロゾル粒子質量分析器(APM)原理考案から装置開発、さらには実用化・製品開発に向けての様々な課題克服、およびAPMの波及効果としての(主として他者による)様々な粒子特性評価技術の開発までをコンパクトにまとめた論文です。「研究の目標設定と社会的価値、それに至る具体的なシナリオや研究手順、要素技術の統合のプロセスを記述」することを目的としたSynthesiologyの研究論文として掲載に値すると思います。

議論2 エアロゾル粒子質量分析器(APM)の測定原理とその不確かさ

質問1(藤井 賢一)

3.2節にAPMによるエアロゾル粒子の質量測定についての原理が説明しており、同じ角速度で回転する内外筒間に電圧を印加し、帯電した微粒子の質量と電荷との比(質量電荷比)によって粒子を分級するという事は理解できますが、具体的に粒子の質量を導くのに必要な測定パラメーターや誘導式などについての記述がありません。このことを具体的に記載すると、読者がこの測定原理をより深く理解できるようになると思います。

回答1(榎原 研正)

APMの分級特性はAPM伝達関数により特徴付けられ、APMで得られる実験データは伝達関数を用いて表すことができます。これらについての簡単な説明を3.2節に追加しました(改訂稿の式(3)を含むパラグラフ)。伝達関数についての詳細な説明については、引用文献を参照ください。

質問2(藤井 賢一)

APMによる質量計測は、粒子一粒の質量を測るのではなく、質量分布を測定することになる、との説明がありますが、代表的な例、あるいは、最高精度が得られた例でも結構ですので、質量分布の測定における不確かさの考え方やその相対不確かさ、主な不確かさの要因などについても触れて下さい。

回答2(榎原 研正)

APMよりも測定の精確さに優れる(しかし測定の実用性には劣る)方法として、平面電極を用いて静電気力と重力の平衡から粒子質量を求める“Electro-gravitational Aerosol Balance (EAB)”をAPMの派生技術として開発しました(Ehara, K. Takahata, K. Koike, M. *Aerosol Sci. Technol.* 40, 514-520 (2006). および *Aerosol Sci. Technol.* 40, 521-535 (2006).)。EABは、単分散粒子

査読者との議論

議論1 全体について

コメント(藤井 賢一:産業技術総合研究所)

（粒径が均一な粒子）の質量を高精度に決定することができるため、日本での粒子質量・粒径の国家計量標準として産総研で利用されています。EABは100 nm準単分散ポリスチレンラテックス(PSL)標準粒子(約0.57 fg)に対して粒径(個数基準平均径)で0.66%、質量(個数基準平均質量)で1.9%の相対拡張不確かさ(包含係数2)を実現しています。EABについては、本論文に含めることを当初は検討していましたが、論文の焦点が散漫になることを避けて、含めないことにしました。

APMは、50 nmから800 nmの粒径範囲のPSL粒子について、EABに基づいて決定した粒子質量と5%の範囲で一致することを確認しています(文献7)。

質問3(藤井 賢一)

3.3節で内側電極を外側よりも高速に回転するように設計されたクウェット遠心粒子質量分析器(Couette centrifugal particle mass analyzer; CPMA)についての説明がありますが、このなかで「クウェット流」という用語が出てきます。脚注などで説明して頂けると、この測定原理の特徴が理解できるようになると思います。

回答3(榎原 研正)

3.3節脚注にクウェット流についての説明を追加しました。

議論3 先細振動子マイクロバランス(TEOM)による質量計測の信頼性

質問1(藤井 賢一)

3.4節で先細振動子マイクロバランス(TEOM)による質量測定が 10^{11} gから 10^5 gの領域をカバーしているとの記述がありますが、振動原理を用いているので、質量と振動数との関係を校正するのが、トレーサビリティを確保するという点では難しい部分であると考えられます。通常、TEOMではどのような方法で質量標準へのトレーサビリティを確保しているのか、簡潔で結構ですので説明して下さい。

回答1(桜井 博、榎原 研正)

TEOMは、先細振動子の先端に交換可能な粒子捕集用フィルターカートリッジを取り付けた状態でエアロゾルを連続吸引し、フィルター上に捕集された粒子の質量を振動子の固有振動数の変化から求める原理となっています。校正は、天秤によってあらかじめ質量を正確に求めたフィルターカートリッジを取り付けたときと取り外したときの固有振動数をそれぞれ求めることにより行われます。

質問2(藤井 賢一)

TEOMによる粒子質量の測定では、質量と固有振動数との関係を、天秤によってあらかじめ質量を校正しておいたフィルターを振動子に取り付けたときと取り外したときの固有振動数の変化から求める、ということが確かに幾つかの文献に記載されています。しかしこの場合、天秤による質量測定の下限(0.1 μg)を振動原理によってより小さい領域へと外挿することになるので、この外挿がどの程度正しいのかということが問題になると思われます。また、振動子に取り付けたフィルターに粒子がトラップされるので、振動子・フィルター・粒子の系にばねで結ばれた何らかの力学的なカップリングがあれば、粒子の質量が固有振動数に正しく反映されない可能性もあります。このため、本当に10 pgまで正しく外挿できるのか、という意見もあり、振動原理による質量測定の信頼性を疑う声も質量標準の分野では少なくありません。

その一方で、振動原理にもとづく質量計測は感度が極めて高いので、この原理を積極的に応用しようとする動きが特にMEMSの分野を中心にあるのも事実です。

図4にTEOMによる質量測定の範囲が示されていますが、1 pgあたりでTEOMとAPMによる両者の測定結果を比較できると信頼性の向上に繋がると思います。原理の異なる方法によって測定した結果が整合するかどうかを検証した事例は過去にあるのでしょうか。

回答2(榎原 研正)

異なる原理による測定の検証については、EAB(議論2に対する回答参照)で測定した質量値と、別途測定した粒子密度とから算出した粒径の値が、他の原理による粒径測定結果と比較された例があります(Germer, T. A. *et al.*, *Proc. SPIE*. 4779: 60-71, 2002)。同一ロットの100 nmポリスチレンラテックス粒子に対して、EABによる私たちの値(100.8 nm ± 0.67 nm)と微分型電気移動度分析器(DMA)を用いてNISTが得た値(100.7 nm ± 1.0 nm)はよく一致します。APMとEABの間の整合性については議論2に対する回答の通りです。このようなことからEABやAPMは私たちが期待する水準の信頼性を有していると考えています。

EABやAPM等で質量を決定した単分散粒子を気体中に既知濃度で発生し、これをTEOMの測定試料とすることでTEOMの信頼性の検証が可能かも知れません。ただし、私たちはTEOMについて専門的知識を有しておらず、実際にこのような方法が実現可能かどうかは不明です。現時点でTEOMの信頼性がどのように確保されているかの詳細について、残念ながら私たちの調査の範囲で確認することはできませんでした。

議論4 製品化に向けた研究における知的財産の考え方

質問・コメント1(一村 信吾)

新しい計測装置の原理考案から製品化を目指す場合、一般的には、関連する知的財産(特許等)の創出・獲得が一つの大きなターゲットになるはずですが、しかしこの論文では、その観点での記述がありません。

本研究の推進に際して、知的財産をどのように位置づけて展開してきたか(仮に知的財産の獲得をあえて目指さなかった場合はそれに対する考え方)を加えて頂くと、読者の思考を深めるものと思います。ご検討をお願いします。

回答1(榎原 研正)

知的財産については確かに記述していませんでしたので、5.1節に特許取得に関する記述を付け加えました。

質問・コメント2(一村 信吾)

コメント1に対する回答を拝見しました。ご指摘のように、構想段階での知的財産の創出について追記(日米での基本的な特許出願に関して記載)頂いたことを確認しました。但し、本コメントの主眼は、企業との共同研究を進めて装置の改良を重ね、最終的な実用化(製品化)展開を進める上で、公的研究機関の立場としてどのような考え方を持っていたかを明らかにして頂くことにあります。例えば、改訂原稿の記述の中でも、

- ① 11 ページ
「1995年にAPMの最初の試作機(以下ではプロトタイプ装置と呼ぶ)が完成」
- ② 12 ページ
「正負電極の絶縁方法を工夫して問題の現象が生じないようにした第3世代装置を2003年に試作」
- ③ 14 ページ
「電極電圧を時間の関数として階段状でなく連続的に変化させる走査モード運転」
- ④ 14 ページ
「粒子質量に応じた最適な運転条件を選択するツール“APM operation diagram”を提案」
など、製品化展開に向けての知的財産創出の可能性を示唆する多くの記述を見いだせます。

このような場合に、製品化に向けた知的財産の獲得(場合によってはノウハウとしての秘匿)に関してどのように考えて共同研究を展開したかについて更に記述頂くことは、本格研究を目指す読者にとっても有益だと思います。ご検討をお願いします。

回答2（榎原 研正）

知的財産の扱いは、「構成学」の中で確かに重要なテーマであり、適切な戦略をもって臨むべき課題と考えます。しかし、知的財産について十分な見識と戦略をもって研究を展開してきたとは言えず、残念ながら論文中に記載できるような内容が思い当たりません。

公的機関が得た知的財産は社会で広く活用されるよう、その特許申請は原理特許にとどめるなど抑制的に行うことが適当だと思います。APM についての特許は結果的にそのような状況になりました。一方 DMA (3.2 節参照) は、1950 年代に現在の設計に近いものが開発されましたが、特許権が設定されなかったことで様々な研究者が研究対象として心理的に取り上げやすくなり、その結果、装置の改善や高度化についての研究や普及が進んだという側面があったと思われまます。これを見習って APM についても特許申請をしない選択肢はあったかもしれませんが。ただしこの場合、複数の企業が市販化を検討する可能性があるため、逆に市販化に踏み出しにくい可能性もあります。知的財産の扱いは、市場規模や様々なリスクを考慮した上で検討する必要があると思われ、今から振り返って分析しても、何が正しい選択枝だったか判然としません。公的機関による知的財産の扱いについて、もし何らかの御提言がありましたらお聞かせ頂ければ、今後の参考にさせていただきますと思います。

追加質問・コメント（一村信吾）

質問に対する回答を拝見しました。私としてはそれを本文中に記載頂くことで、構成学的な検討の加わった論文になると考えます。例えば「5.5 節 研究開発における知的財産の考え方」という形で記入頂くのも一案と考えますが、論文の体裁に係りますので、最終判断は著者にお任せします。

回答（榎原研正）

本文中に節を追加する形はとらず、査読者とのコメントの形で経緯を記載する形にさせていただきます。

議論5 将来への発展性について

コメント1（藤井 賢一）

2019 年 5 月 20 日にキログラムの定義がプランク定数に移行しました。質量計測のトレーサビリティは物体の質量 m をプランク定数 h に関係づけることによって実現できるので、国際度量衡委員会 (CIPM) の質量関連量諮問委員会 (CCM) がまとめた「キログラムの新しい定義の実現方法 (mise en pratique)」では、そのための代表的な測定方法として、ワット (キップル) バランス法と X 線結晶密度法が紹介されています。原理的には比 h/m をトレーサブルに測る方法であれば、どのような方法を用いてもよいことがこの mise en pratique には記載されています。APM の場合、どのようなルートをたどって h に繋げることができるのでしょうか。概念的な説明でも結構です。何と何をトレーサブルにする必要があるのでしょうか。

また、SI として新たに定義された電気素量 e やボルツマン定数 k などを活用しても微小質量を測ることができる可能性もあるかと思えます。エアロゾル粒子の場合で結構ですので、測定原理の開発における将来的な方向性や将来有望になると思われる要素技術などがあれば紹介して下さい。

回答1（榎原 研正）

APM より原理が単純な EAB (議論 2 の質問 2 に対する回答参照) のトレーサビリティについてまず説明します。簡単のため、対象粒子がすべて同一の質量 m を有する 1 価帯電粒子であるとの理想的な状況を想定します。EAB は、粒子に働く静電気力 eV/H (e : 電気素量、 V : 印加電圧、 H : 電極間距離) と重力 mg (g は重力加速度) が平衡するときの電圧 V を測定していると考えられます。2 つの力の平衡の式から質量 m は

$$m = \frac{eV}{gH} \quad (\text{A})$$

と求まります (現実の粒子は PSL 粒子であっても有限の質量分布幅を有するため、実際の EAB 測定でこの式を使うわけではありませんが、トレーサビリティの考え方は同じです)。改定後の SI では、 e は定義値、 V はジョセフソン電圧標準を経由して e, h , および $\Delta\nu_{\text{Cs}}$ (セシウム原子基底状態の遷移周波数) に、また H と g はいずれも c (光速) と $\Delta\nu_{\text{Cs}}$ に繋がります。これらから、粒子質量 m は究極的には、 $e, h, c, \Delta\nu_{\text{Cs}}$ の 4 定数にトレーサブルにすることが可能となります。

APM では、式 (A) の重力加速度にかえて電極回転に伴う遠心加速度が入り、また電場強度 V/H が動径座標依存性のある表式にかわりますが、トレーサビリティの遡及先については同じです。

今回の SI 改定が将来的に微小質量測定技術の発展に繋がるかもしれないと安易に予想することはできないと考えています。その理由の一つは旧キログラム原器へのトレーサビリティのありかたです。APM や EAB による粒子質量測定のトレーサビリティは、すでに旧 SI においても、キログラム原器に直接繋がっていたわけではなく、式 (A) で説明したように電圧標準の現示等を通してプランク定数 h や電気素量 e に繋がっていました。SI 改定でこれらの定数の不確かさがゼロになったことは、粒子質量測定の不確かさを低減し原理的には寄与するものの、これら由来の不確かさ成分はもともと無視し得る大きさでしかありません。言い換えると、粒子質量測定において、質量単位が巨視的人工物に依存していることが本質的障壁になっていたという状況は SI 改定以前からすでになかったということになります。

今回の SI 改定は、素粒子等に関わる微視の世界での測定にはすでに大きな恩恵を与えていますが、それは不確かさが小さくなるという点での恩恵であって、これまで測れなかった大きさの質量が測れるようになるわけではありません。将来的に新しい微小質量測定技術が開発され、それが今回の SI 改定に本質的に依存しているということはあり得ると思いますが、それが生じるのはまだだいぶ先のことのように思います。

コメント2（藤井 賢一）

EAB と APM による粒子質量測定におけるトレーサビリティの考え方を示して頂き有難うございました。キログラムをはじめとする今回の SI 定義改定では、プランク定数 h の不確かさがゼロになったので、原子干渉の原理を応用することで原子や素粒子の質量の他に微細構造定数の不確かさが確かに低減しました。SI の定義改定では、現在の不確かさを低減させるだけではなく、将来の技術革新にも通用するような定義しておくことが重要だと考えられています。長さが光速によって定義された結果、その後、光周波数測定の分野においていくつかの技術革新が誕生しました。粒子やエアロゾルの分野でも、今回の APM の開発が引き金となり、更なる技術革新に繋がることを願っています。

編集方針

シンセシオロジー編集委員会

本ジャーナルの目的

本ジャーナルは、個別要素的な技術や科学的知見をいかに統合して、研究開発の成果を社会で使われる形にしているか、という科学的知の統合に関する論文を掲載することを目的とする。この論文の執筆者としては、科学技術系の研究者や技術者を想定しており、研究成果の社会導入を目指した研究プロセスと成果を、科学技術の言葉で記述したものを論文とする。従来の学術ジャーナルにおいては、科学的な知見や技術的な成果を事実（すなわち事実に基づく知識）として記載したものが学術論文であったが、このジャーナルにおいては研究開発の成果を社会に活かすために何を行なえば良いかについての知見（すなわち当為的知識）を記載したものを論文とする。これをジャーナルの上で蓄積することによって、研究開発を社会に活かすための方法論を確立し、そしてその一般原理を明らかにすることを目指す。さらに、このジャーナルの読者が自分たちの研究開発を社会に活かすための方法や指針を獲得することを期待する。

研究論文の記載内容について

研究論文の内容としては、社会に活かすことを目的として進めて来た研究開発の成果とプロセスを記載するものとする。研究開発の目標が何であるか、そしてその目標が社会的にどのような価値があるかを記述する（次ページに記載した執筆要件の項目1および2）。そして、目標を達成するために必要となる要素技術をどのように選定し、統合しようと考えたか、またある社会問題を解決するためには、どのような新しい要素技術が必要であり、それをどのように選定・統合しようとしたか、そのプロセス（これをシナリオと呼ぶ）を詳述する（項目3）。このとき、実際の研究に携わったものでなければ分からない内容であることを期待する。すなわち、結果としての要素技術の組合せの記載をするのではなく、どのような理由によって要素技術を選定したのか、どのような理由で新しい方法を導入したのか、について論理的に記述されているものとする（項目4）。例えば、社会導入のためには実験室的製造方法では対応できないため、社会の要請は精度向上よりも適用範囲の広さにあるため、また現状の社会制度上の制約があるため、などの理由を記載する。この時、個別の要素技術の内容の学術的詳細は既に発表済みの論文を引用する形として、重要なポイントを記載するだけで良いものとする。そして、これらの要素技術は互いにどのような関係にあり、それらを統合

するプロセスにおいて解決すべき問題は何であったか、そしてどのようにそれを解決していったか、などを記載する（項目5）。さらに、これらの研究開発の結果として得られた成果により目標にどれだけ近づけたか、またやり残したことは何であるかを記載するものとする（項目6）。

対象とする研究開発について

本ジャーナルでは研究開発の成果を社会に活かすための方法論の獲得を目指すことから、特定の分野の研究開発に限定することはない。むしろ幅広い分野の科学技術の論文の集積をすることによって、分野に関わらない一般原理を導き出すことを狙いとしている。したがって、専門外の実験者にも内容が理解できるように記述することが必要であるとともに、その専門分野の実験者に対しても学術論文としての価値を示す内容でなければならない。

論文となる研究開発としては、その成果が既に社会に導入されたものに限定することなく、社会に活かすことを念頭において実施している研究開発も対象とする。また、既に社会に導入されているものの場合、ビジネス的に成功しているものである必要はないが、単に製品化した過程を記述するのではなく、社会への導入を考慮してどのように技術を統合していったのか、その研究プロセスを記載するものとする。

査読について

本ジャーナルにおいても、これまでの学術ジャーナルと同様に査読プロセスを設ける。しかし、本ジャーナルの査読はこれまでの学術雑誌の査読方法とは異なる。これまでの学術ジャーナルでは事実の正しさや結果の再現性など記載内容の事実性についての観点が重要視されているのに対して、本ジャーナルでは要素技術の組合せの論理性や、要素技術の選択における基準の明確さ、またその有効性や妥当性を重要視する（次ページに査読基準を記載）。

一般に学術ジャーナルに掲載されている論文の質は査読の項目や採録基準によって決まる。本ジャーナルの査読においては、研究開発の成果を社会に活かすために必要なプロセスや考え方が過不足なく書かれているかを評価する。換言すれば、研究開発の成果を社会に活かすためのプロセスを知るために必要なことが書かれているかを見るのが査読者の役割であり、論文の読者の代弁者として読者の知りたいことの記載の有無を判定するものとする。

通常の学術ジャーナルでは、公平性を保証するという理由により、査読者は匿名であり、また査読プロセスは秘匿される。確立された学術ジャーナルにおいては、その質を維持するために公平性は重要であると考えられているからである。しかし、科学者集団によって確立されてきた事実的知識を記載する論文形式に対して、なすべきことは何であるかという当為的知識を記載する論文のあり方については、論文に記載すべき内容、書き方、またその基準などを模索していかなければならない。そのためには査読プロセスを秘匿するのではなく、公開していく方法をとる。すなわち、査読者とのやり取り中で、論文の内容に関して重要な議論については、そのやり取りを掲載することにする。さらには、論文の本文には記載できなかった著者の考えなども、査読者とのやり取りを通して公開する。このように査読プロセスに透明性を持たせ、どのような査読プロセスを経て掲載に至ったかを開示することで、ジャーナルの質を担保する。また同時に、査読プロセスを開示することによって、投稿者がこのジャーナルの論文を執筆するときの注意点を理解する助けとする。なお、本ジャーナルのように新しい論文形式を確立するためには、著者と査読者との共同作業によって論文を完成させていく必要があり、掲載された論文は著者と査読者の共同作業の結果ともいえることから、査読者氏名も公表する。

参考文献について

前述したように、本ジャーナルの論文においては、個別の要素技術については他の学術ジャーナルで公表済みの論文を引用するものとする。また、統合的な組合せを行う要素技術について、それぞれの要素技術の利点欠点について記載されている論文なども参考文献となる。さらに、本ジャーナルの発行が蓄積されてきたのちには、本ジャーナルの掲載論文の中から、要素技術の選択の考え方や問題点の捉え方が類似していると思われる論文を引用することを推奨する。これによって、方法論の一般原理の構築に寄与することになる。

掲載記事の種類について

巻頭言などの総論、研究論文、そして論説などから本ジャーナルは構成される。巻頭言などの総論については原則的には編集委員会からの依頼とする。研究論文は、研究実施者自身が行った社会に活かすための研究開発の内容とプロセスを記載したもので、上記の査読プロセスを経て掲載とする。論説は、科学技術の研究開発のなかで社会に活かすことを目指したものを概説するなど、内容を限定することなく研究開発の成果を社会に活かすために有益な知識となる内容であれば良い。総論や論説は編集委員会が、内容が本ジャーナルに適しているか確認した上で掲載の可否を判断し、査読は行わない。研究論文および論説は、国内外からの投稿を受け付ける。なお、原稿については日本語、英語いずれも可とする。

執筆要件と査読基準

(2008.01)

項目	執筆要件	査読基準
1 研究目標	研究目標（「製品」、あるいは研究者の夢）を設定し、記述する。	研究目標が明確に記述されていること。
2 研究目標と社会とのつながり	研究目標と社会との関係、すなわち社会的価値を記述する。	研究目標と社会との関係が合理的に記述されていること。
3 シナリオ	研究目標を実現するための道筋（シナリオ・仮説）を科学技術の言葉で記述する。	道筋（シナリオ・仮説）が合理的に記述されていること。
4 要素の選択	研究目標を実現するために選択した要素技術（群）を記述する。 また、それらの要素技術（群）を選択した理由を記述する。	要素技術（群）が明確に記述されていること。 要素技術（群）の選択の理由が合理的に記述されていること。
5 要素間の関係と統合	選択した要素が相互にどう関係しているか、またそれらの要素をどのように構成・統合して研究目標を実現していったかを科学技術の言葉で記述する。	要素間の関係と統合が科学技術の言葉で合理的に記述されていること。
6 結果の評価と将来の展開	研究目標の達成の度合いを自己評価する。 本研究をベースとして将来の研究展開を示唆する。	研究目標の達成の度合いと将来の研究展開が客観的、合理的に記述されていること。
7 オリジナリティ	既刊の他研究論文と同じ内容の記述をしない。	既刊の他研究論文と同じ内容の記述がないこと。

投稿規定

シンセシオロジー編集委員会

制定 2007年12月26日

改正 2017年4月1日

1 掲載記事の種類と概要

シンセシオロジーの記事には下記の種類がある。

・研究論文、報告、論説、座談会記事、読者フォーラム

このうち、研究論文、報告、論説は、原則として、投稿された原稿から査読を経て掲載する。座談会記事は編集委員会の企画で記事を作成して掲載する。読者フォーラムは読者により寄稿されたものを編集委員会で内容を検討の上で掲載を決定する。いずれの記事も、多様な研究分野・技術分野にまたがる読者が理解できるように書かれたものとする。記事の概要は下記の通り。

①研究論文

成果を社会に活かすことを目的とした研究開発の進め方とその基となる考え方（これをシナリオと呼ぶ）、その結果としての研究成果を、実際に遂行された研究開発に関する自らの経験や分析に基づき、論理立てて記述した論文。シナリオやその要素構成（選択・統合）についての著者の独自性を論文としての要件とするが、研究成果が既に社会に活かされていることは要件とはしない。投稿された原稿は複数名の査読者による査読を行い、査読者との議論を基に著者が最終原稿を作成する。なお、編集委員会の判断により査読者と著者とで直接面談（電話・メール等を含む）で意見交換を行う場合がある。

②報告

イノベーションに繋がるような実用的価値のある技術の開発事例および新しい技術の実用化事例を記述した報告。記述の内容は、1) 目的、2) 開発の経緯（目的への道筋）、3) 成果、から成る。投稿された原稿は編集委員による内容の確認を行い、必要な修正点等があればそれを著者に伝え、著者はそれに基づいて最終原稿を作成する。

③論説

研究開発の成果を社会に活かすあるいは社会に広めるための、考えや主張あるいは動向・分析などを記述した記事。主張の独自性は要件としないが、既公表の記事と同一あるいは類似のものではないものとする。投稿された原稿は編集委員による内容の確認を行い、必要な修正点等があればそれを著者に伝え、著者はそれに基づいて最終原稿を作成する。

④座談会記事

編集委員会が企画した座談会あるいは対談等を記事にしたもの。座談会参加者の発言や討論を基に原稿を書き起したもので、必要に応じて、座談会後に発言を補足するための追記等を行うことがある。

⑤読者フォーラム

シンセシオロジーに掲載された記事に対する意見や感想また本誌の主旨に合致した読者への有益な情報提供などを掲載した記事とする。1,200文字以内で自由書式とする。

編集委員会で内容を検討の上で掲載を決定する。

2 投稿資格

投稿原稿の著者は、本ジャーナルの編集方針にかなう内容が記載されていれば、所属機関による制限並びに科学技術の特定分野による制限も行わない。ただし、オーサーシップについて記載があること（著者全員が、本論文についてそれぞれ本質的な寄与をしていることを明記していること）。

3 原稿の書き方

3.1 一般事項

3.1.1 投稿原稿は日本語あるいは英語で受け付ける。査読により掲載可となった論文または記事はSynthesiology (ISSN1882-6229) に掲載されるとともに、このオリジナル版の約4ヶ月後に発行される予定の英語版のSynthesiology - English edition (ISSN1883-0978) にも掲載される。このとき、原稿が英語の場合にはオリジナル版と同一のものを英語版に掲載するが、日本語で書かれている場合には、著者はオリジナル版の発行後2ヶ月以内に英語翻訳原稿を提出すること。

3.1.2 研究論文については、下記の研究論文の構成および書式にしたがうものとし、報告・論説については、構成・書式は研究論文に準拠するものとするが、サブタイトルおよび要約はなくても良い。

3.1.3 研究論文は、原著（新たな著作）に限る。

3.1.4 研究倫理に関わる各種ガイドラインを遵守すること。

3.2 原稿の構成

3.2.1 タイトル（含サブタイトル）、要旨、著者名、所属・連絡先、本文、キーワード（5つ程度）とする。

3.2.2 タイトル、要旨、著者名、キーワード、所属・連絡先については日本語および英語で記載する。

3.2.3 原稿等はワープロ等を用いて作成し、A4判縦長の用紙に印字する。図・表・写真を含め、原則として刷り上り6頁程度とする。

3.2.4 研究論文・報告・論説の場合には表紙を付け、表紙には記事の種類（研究論文・報告・論説）を明記する。

3.2.5 タイトルは和文で10～20文字（英文では5～10ワード）前後とし、広い読者層に理解可能なものとする。研究論文には和文で15～25文字（英文では7～15ワード）前後のサブタイトルを付け、専門家の理解を助けるものとする。

3.2.6 要約には、社会への導入のためのシナリオ、構成した技術要素とそれを選択した理由などの構成方法の考え方も記載する。

3.2.7 和文要約は300文字以内とし、英文要約（125ワード程度）は和文要約の内容とする。英語論文の場合には、和文要約は省略することができる。

3.2.8 本文は、和文の場合には9,000文字程度とし、英文の場合

合は刷上りで同程度(3,400ワード程度)とする。

3.2.9 掲載記事には著者全員の執筆者履歴(各自200文字程度。英文の場合は75ワード程度。)及びその後、本質的な寄与が何であったかを記載する。なお、その際本質的な寄与をした他の人が抜けていないかも確認のこと。

3.2.10 研究論文における査読者との議論は査読者名を公開して行い、査読プロセスで行われた主な論点について3,000文字程度(2ページ以内)で編集委員会が編集して掲載する。報告または論説における編集委員との議論は、編集委員が必要と認める場合に編集委員名を公開して行い、主な論点について800文字程度(半ページ以内)で編集委員会が編集して掲載する。

3.2.11 原稿中に他から転載している図表等や、他の論文等からの引用がある場合には、執筆者が予め使用許可をとったうえで転載許可等の明示や、参考文献リスト中へ引用元の記載等、適切な措置を行う。なお、使用許可書のコピーを1部事務局まで提出すること。また、直接的な引用の場合には引用部分を本文中に記載する。

3.3 書式

3.3.1 見出しは、大見出しである「章」が1、2、3、…、中見出しである「節」が1.1、1.2、1.3…、小見出しである「項」が1.1.1、1.1.2、1.1.3…、「目」が1.1.1.1、1.1.1.2、1.1.1.3…とする。

3.3.2 和文原稿の場合には以下のようにする。本文は「である調」で記述し、章の表題に通し番号をつける。段落の書き出しは1字あけ、句読点は「。」および「、」を使う。アルファベット・数字・記号は半角とする。また年号は西暦で表記する。

3.3.3 図・表・写真についてはそれぞれ通し番号をつけ、適切な表題・説明文(20~40文字程度。英文の場合は10~20ワード程度。)を記載のうえ、本文中における挿入位置を記入する。

3.3.4 図については画像ファイル(掲載サイズで350 dpi以

上)を提出する。原則は白黒印刷とする。

3.3.5 写真については画像ファイル(掲載サイズで350 dpi以上)で提出する。原則は白黒印刷とする。

3.3.6 参考文献リストは論文中の参照順に記載する。

雑誌: [番号] 著者名: 表題, 雑誌名(イタリック), 巻(号), 開始ページ-終了ページ(発行年)。

書籍(単著または共著): [番号] 著者名: 書名(イタリック), 開始ページ-終了ページ, 発行所, 出版地(発行年)。

ウェブサイト: [番号] 著者名(更新年): ウェブページの題名, ウェブサイトの名称(著者と同じ場合は省略可), URL, 閲覧日。

4 原稿の提出

原稿の提出は紙媒体で1部および原稿提出チェックシート(Word ファイル)も含め電子媒体も下記宛に提出する。

〒305-8560

茨城県つくば市梅園1-1-1 つくば中央第1

産業技術総合研究所 企画本部広報サービス室内

シンセシオロジー編集委員会事務局

なお、投稿原稿は原則として返却しない。

5 著者校正

著者校正は1回行うこととする。この際、印刷上の誤り以外の修正・訂正は原則として認められない。

6 内容の責任

掲載記事の内容の責任は著者にあるものとする。

7 著作権

本ジャーナルに掲載された全ての記事の著作権は産業技術総合研究所に帰属する。

問い合わせ先:

産業技術総合研究所 企画本部広報サービス室内

シンセシオロジー編集委員会事務局

電話: 029-862-6217、ファックス: 029-862-6212

E-mail: synthesiology-ml@aist.go.jp

Editorial Policy

Synthesiology Editorial Board

Objective of the journal

The objective of *Synthesiology* is to publish papers that address the integration of scientific knowledge or how to combine individual elemental technologies and scientific findings to enable the utilization in society of research and development efforts. The authors of the papers are researchers and engineers, and the papers are documents that describe, using “scientific words,” the process and the product of research which tries to introduce the results of research to society. In conventional academic journals, papers describe scientific findings and technological results as facts (i.e. factual knowledge), but in *Synthesiology*, papers are the description of “the knowledge of what ought to be done” to make use of the findings and results for society. Our aim is to establish methodology for utilizing scientific research result and to seek general principles for this activity by accumulating this knowledge in a journal form. Also, we hope that the readers of *Synthesiology* will obtain ways and directions to transfer their research results to society.

Content of paper

The content of the research paper should be the description of the result and the process of research and development aimed to be delivered to society. The paper should state the goal of research, and what values the goal will create for society (Items 1 and 2, described in the Table). Then, the process (the scenario) of how to select the elemental technologies, necessary to achieve the goal, how to integrate them, should be described. There should also be a description of what new elemental technologies are required to solve a certain social issue, and how these technologies are selected and integrated (Item 3). We expect that the contents will reveal specific knowledge only available to researchers actually involved in the research. That is, rather than describing the combination of elemental technologies as consequences, the description should include the reasons why the elemental technologies are selected, and the reasons why new methods are introduced (Item 4). For example, the reasons may be: because the manufacturing method in the laboratory was insufficient for industrial application; applicability was not broad enough to stimulate sufficient user demand rather than improved accuracy; or because there are limits due to current regulations. The academic details of the individual elemental technology should be provided by citing published papers, and only the important points can be described. There should be description of how these elemental technologies

are related to each other, what are the problems that must be resolved in the integration process, and how they are solved (Item 5). Finally, there should be descriptions of how closely the goals are achieved by the products and the results obtained in research and development, and what subjects are left to be accomplished in the future (Item 6).

Subject of research and development

Since the journal aims to seek methodology for utilizing the products of research and development, there are no limitations on the field of research and development. Rather, the aim is to discover general principles regardless of field, by gathering papers on wide-ranging fields of science and technology. Therefore, it is necessary for authors to offer description that can be understood by researchers who are not specialists, but the content should be of sufficient quality that is acceptable to fellow researchers.

Research and development are not limited to those areas for which the products have already been introduced into society, but research and development conducted for the purpose of future delivery to society should also be included.

For innovations that have been introduced to society, commercial success is not a requirement. Notwithstanding there should be descriptions of the process of how the technologies are integrated taking into account the introduction to society, rather than describing merely the practical realization process.

Peer review

There shall be a peer review process for *Synthesiology*, as in other conventional academic journals. However, peer review process of *Synthesiology* is different from other journals. While conventional academic journals emphasize evidential matters such as correctness of proof or the reproducibility of results, this journal emphasizes the rationality of integration of elemental technologies, the clarity of criteria for selecting elemental technologies, and overall efficacy and adequacy (peer review criteria is described in the Table).

In general, the quality of papers published in academic journals is determined by a peer review process. The peer review of this journal evaluates whether the process and rationale necessary for introducing the product of research and development to society are described sufficiently well.

In other words, the role of the peer reviewers is to see whether the facts necessary to be known to understand the process of introducing the research finding to society are written out; peer reviewers will judge the adequacy of the description of what readers want to know as reader representatives.

In ordinary academic journals, peer reviewers are anonymous for reasons of fairness and the process is kept secret. That is because fairness is considered important in maintaining the quality in established academic journals that describe factual knowledge. On the other hand, the format, content, manner of text, and criteria have not been established for papers that describe the knowledge of “what ought to be done.” Therefore, the peer review process for this journal will not be kept secret but will be open. Important discussions pertaining to the content of a paper, may arise in the process of exchanges with the peer reviewers and they will also be published. Moreover, the vision or desires of the author that cannot be included in the main text will be presented in the exchanges. The quality of the journal will be guaranteed by making the peer review process transparent and by disclosing the review process that leads to publication.

Disclosure of the peer review process is expected to indicate what points authors should focus upon when they contribute to this journal. The names of peer reviewers will be published since the papers are completed by the joint effort of the authors and reviewers in the establishment of the new paper format for *Synthesiology*.

References

As mentioned before, the description of individual elemental technology should be presented as citation of papers published in other academic journals. Also, for elemental technologies that are comprehensively combined, papers that describe advantages and disadvantages of each elemental technology can be used as references. After many papers are accumulated through this journal, authors are recommended to cite papers published in this journal that present similar procedure about the selection of elemental technologies and the introduction to society. This will contribute in establishing a general principle of methodology.

Types of articles published

Synthesiology should be composed of general overviews such as opening statements, research papers, and editorials. The Editorial Board, in principle, should commission overviews. Research papers are description of content and the process of research and development conducted by the researchers themselves, and will be published after the peer review process is complete. Editorials are expository articles for science and technology that aim to increase utilization by society, and can be any content that will be useful to readers of *Synthesiology*. Overviews and editorials will be examined by the Editorial Board as to whether their content is suitable for the journal. Entries of research papers and editorials are accepted from Japan and overseas. Manuscripts may be written in Japanese or English.

Required items and peer review criteria (January 2008)

	Item	Requirement	Peer Review Criteria
1	Research goal	Describe research goal (“product” or researcher's vision).	Research goal is described clearly.
2	Relationship of research goal and the society	Describe relationship of research goal and the society, or its value for the society.	Relationship of research goal and the society is rationally described.
3	Scenario	Describe the scenario or hypothesis to achieve research goal with “scientific words” .	Scenario or hypothesis is rationally described.
4	Selection of elemental technology(ies)	Describe the elemental technology(ies) selected to achieve the research goal. Also describe why the particular elemental technology(ies) was/were selected.	Elemental technology(ies) is/are clearly described. Reason for selecting the elemental technology(ies) is rationally described.
5	Relationship and integration of elemental technologies	Describe how the selected elemental technologies are related to each other, and how the research goal was achieved by composing and integrating the elements, with “scientific words” .	Mutual relationship and integration of elemental technologies are rationally described with “scientific words” .
6	Evaluation of result and future development	Provide self-evaluation on the degree of achievement of research goal. Indicate future research development based on the presented research.	Degree of achievement of research goal and future research direction are objectively and rationally described.
7	Originality	Do not describe the same content published previously in other research papers.	There is no description of the same content published in other research papers.

Instructions for Authors

“*Synthesiology*” Editorial Board

Established December 26, 2007

Revised April 1, 2017

1 Types of articles submitted and their explanations

The articles of *Synthesiology* include the following types:

- Research papers, reports, commentaries, roundtable talks, and readers’ forums

Of these, the submitted manuscripts of research papers, reports, and commentaries undergo review processes before publication. The roundtable talks are organized, prepared, and published by the Editorial Board. The readers’ forums carry writings submitted by the readers, and the articles are published after the Editorial Board reviews and approves. All articles must be written so they can be readily understood by the readers from diverse research fields and technological backgrounds. The explanations of the article types are as follows.

① Research papers

A research paper rationally describes the concept and the design of R&D (this is called the scenario), whose objective is to utilize the research results in society, as well as the processes and the research results, based on the author’s experiences and analyses of the R&D that was actually conducted. Although the paper requires the author’s originality for its scenario and the selection and integration of elemental technologies, whether the research result has been (or is being) already implemented in society at that time is not a requirement for the submission. The submitted manuscript is reviewed by several reviewers, and the reviewers will recommend whether the manuscript should be accepted, revised, or declined. The author completes the final draft based on the discussions with the reviewers. Views may be exchanged between the reviewers and authors through direct contact (including telephone conversations, e-mails, and others), if the Editorial Board considers such exchange necessary.

② Reports

A report describes a development example of technology which has practical value as well as an example of new technology which has been put to practical use. It contains 1) the aim, 2) the process of development (the course to the goal), and 3) the outcomes. The submitted manuscript is checked by the Editorial Board. The authors will be contacted if corrections or revisions are necessary, and the authors complete the final draft based on the Board members’ comments.

③ Commentaries

Commentaries describe the thoughts, statements, or trends and analyses on how to utilize or spread the results of R&D to society. Although the originality of the statements is not required, the commentaries should not be the same or similar to any articles published in the past. The submitted

manuscripts will be checked by the Editorial Board. The authors will be contacted if corrections or revisions are necessary, and the authors complete the final draft based on the Board members’ comments.

④ Roundtable talks

Roundtable talks are articles of the discussions or interviews that are organized by the Editorial Board. The manuscripts are written from the transcripts of statements and discussions of the roundtable participants. Supplementary comments may be added after the roundtable talks, if necessary.

⑤ Readers’ forums

The readers’ forums include the readers’ comments or thoughts on the articles published in *Synthesiology*, or articles containing information useful to the readers in line with the intent of the journal. The forum articles may be in free format, with 1,200 Japanese characters or less. The Editorial Board will decide whether the articles will be published.

2 Qualification of contributors

There are no limitations regarding author affiliation or discipline as long as the content of the submitted article meets the editorial policy of *Synthesiology*, except authorship should be clearly stated. (It should be clearly stated that all authors have made essential contributions to the paper.)

3 Manuscripts

3.1 General

3.1.1 Articles may be submitted in Japanese or English.

Accepted articles will be published in *Synthesiology* (ISSN 1882-6229) in the language they were submitted. All articles will also be published in *Synthesiology - English edition* (ISSN 1883-0978). The English edition will be distributed throughout the world approximately four months after the original *Synthesiology* issue is published. Articles written in English will be published in English in both the original *Synthesiology* as well as the English edition. Authors who write articles for *Synthesiology* in Japanese will be asked to provide English translations for the English edition of the journal within 2 months after the original edition is published.

3.1.2 Research papers should comply with the structure and format stated below, and reports and commentaries should also comply with the same structure and format except subtitles and abstracts are unnecessary.

3.1.3 Research papers should only be original papers (new literary work).

3.1.4 Research papers should comply with various guidelines of research ethics.

3.2 Structure

3.2.1 The manuscript should include a title (including

subtitle), abstract, the name(s) of author(s), institution/contact, main text, and keywords (about 5 words).

3.2.2 Title, abstract, name of author(s), keywords, and institution/contact shall be provided in Japanese and English.

3.2.3 The manuscript shall be prepared using word processors or similar devices, and printed on A4-size portrait (vertical) sheets of paper. The length of the manuscript shall be, about 6 printed pages including figures, tables, and photographs.

3.2.4 Research papers, reports, and commentaries shall have front covers and the category of the articles (research paper, report, or commentary) shall be stated clearly on the cover sheets.

3.2.5 The title should be about 10-20 Japanese characters (5-10 English words), and readily understandable for a diverse readership background. Research papers shall have subtitles of about 15-25 Japanese characters (7-15 English words) to help recognition by specialists.

3.2.6 The abstract should include the thoughts behind the integration of technological elements and the reason for their selection as well as the scenario for utilizing the research results in society.

3.2.7 The abstract should be 300 Japanese characters or less (125 English words). The Japanese abstract may be omitted in the English edition.

3.2.8 The main text should be about 9,000 Japanese characters (3,400 English words).

3.2.9 The article submitted should be accompanied by profiles of all authors, of about 200 Japanese characters (75 English words) for each author. The essential contribution of each author to the paper should also be included. Confirm that all persons who have made essential contributions to the paper are included.

3.2.10 Discussion with reviewers regarding the research paper content shall be done openly, and the Editorial Board will edit the highlights of the review process to about 3,000 Japanese characters (1,200 English words) or a maximum of 2 pages with the names of the reviewers disclosed. The edited discussion will be attached to the main body of the paper as part of the article. Regarding the reports and the commentaries, discussion with the Editorial Board members will be opened at the Board's discretion. In this case, the Editorial Board will edit the discussion to about 800 Japanese characters (less than half a page) with the names of the Board members disclosed.

3.2.11 If there are reprinted figures, graphs or citations from other papers, prior permission for citation must be obtained and should be clearly stated in the paper, and the sources should be listed in the reference list. A copy of the permission should be sent to the Publishing Secretariat. All verbatim quotations should be placed in quotation marks or marked clearly within the paper.

3.3 Format

3.3.1 The headings for chapters should be 1, 2, 3..., for subchapters, 1.1, 1.2, 1.3..., for sections, 1.1.1, 1.1.2, 1.1.3, for subsections, 1.1.1.1, 1.1.1.2, 1.1.1.3.

3.3.2 The chapters, subchapters, and sections should be enumerated. There should be one line space before each paragraph.

3.3.3 Figures, tables, and photographs should be enumerated. They should each have a title and an explanation (about 20-40 Japanese characters or 10-20 English words), and their positions in the text should be clearly indicated.

3.3.4 For figures, image files (resolution 350 dpi or higher) should be submitted. In principle, the final print will be in black and white.

3.3.5 For photographs, image files (resolution 350 dpi or higher) should be submitted. In principle, the final print will be in black and white.

3.3.6 References should be listed in order of citation in the main text.

Journal – [No.] Author(s): Title of article, *Title of journal* (italic), Volume(Issue), Starting page–Ending page (Year of publication).

Book – [No.] Author(s): *Title of book* (italic), Starting page–Ending page, Publisher, Place of Publication (Year of publication).

Website – [No.] Author(s) name (updating year): Title of web page, Name of website (may be omitted). If the name of the website is the same as that of the author(s), URL, Access date.

4 Submission

One printed copy or electronic file (Word file) of manuscript with a checklist attached should be submitted to the following address:

Synthesiology Editorial Board
c/o Public Relations Information Office, Planning Headquarters, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology(AIST)
Tsukuba Central 1, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8560
E-mail: synthesiology-ml@aist.go.jp

The submitted article will not be returned.

5 Proofreading

Proofreading by author(s) of articles after typesetting is complete will be done once. In principle, only correction of printing errors is allowed in the proofreading stage.

6 Responsibility

The author(s) will be solely responsible for the content of the contributed article.

7 Copyright

The copyright of the articles published in “*Synthesiology*” and “*Synthesiology English edition*” shall belong to the National Institute of Advanced Industrial Science and Technology(AIST).

Inquiries:

Synthesiology Editorial Board
c/o Public Relations Information Office, Planning Headquarters, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology(AIST)
Tel: +81-29-862-6217 Fax: +81-29-862-6212
E-mail: synthesiology-ml@aist.go.jp

編集後記

本号に掲載されている4報の論文のうち2報が生命工学に関連するものです。私もそのうちの1報である「不凍タンパク質の実用化への取り組み」の査読をさせて頂きましたが、企業からの投稿ということもあり、事業化の難しさが前面に出た論文でもあります。実はこの論文、2008年の創刊号で西宮氏らにより執筆された「不凍蛋白質の大量精製と新たな応用開拓 ―実用化を志向する蛋白質研究―」の続報とも言えるものです。2008年の時点では、様々な応用分野が考えられ、今にも実用化しそうな勢いで書かれてはいますが、実際には越えなければならない壁が沢山あり、社会実装の難しさを思い知らされたテーマであると言えるでしょう。最終的にはシナリオを大きく変更し、製品化までたどり着きましたが、さらに大きなビジネスとするために再度のシナリオの変更もあるかもしれません。そのときには、是非、別の論文としてまとめて頂きたいと思います。楽しみにしております。余談ですが、執筆者の石井氏は対応が極めて早く、企業のコスト意識の高さなのか、社会人としての常識なのか、見習わなければならないと感じさせられました。

もう1報の生命工学関連論文である「家畜繁殖用精液の改良技術開発」では、分析や実証試験に数多くの大学、研究所、

企業が参加しており、最初から役割分担を決め、最終型を見越したシナリオが描かれています。社会実装のかたちを最初から想定し、農家が受入れ易いものを目指している点でとても優れていると感じました。折しも、世間では東京オリンピックの話題で盛り上がり始めています。スポーツ選手の後ろには何倍、何十倍もの裏方がいて、それぞれの専門分野でバックアップしていると聞きます。製品が世の中に出ることも同じで、どんなに優れていても一人の研究者だけの力では製品に結びつかないことと似ていると言えるのではないのでしょうか。

このほかにも、環境を考慮した生分解性作動油についての課題解決が主題となっている「生分解性作動に適合する建設機械用油圧システム開発の新しい手法」や質量標準といったタイムリーな話題に関連した「エアロゾル粒子の質量を測る」の投稿を頂きました。紙面の都合で詳細は割愛させて頂きましたが、それぞれの分野で基礎から応用まで網羅した質の高い論文を掲載できたことを嬉しく思います。

(編集委員 後藤 雅式)

シンセシオロジー編集委員会

委員長：三木 幸信

副委員長：湯元 昇 (国立循環器病研究センター)、小原 春彦

幹事 (編集及び査読)：金山 敏彦、清水 敏美、牧野 雅彦

幹事 (普及)：赤松 幹之、小林 直人 (早稲田大学)

委員：綾 信博、有本 裕 (理化学研究所)、池上 敬一、一村 信吾 (早稲田大学)、小賀坂 康志 (国立研究開発法人 科学技術振興機構)、小野 晃、後藤 雅式、内藤 茂樹、藤井 賢一、松井 俊浩 (情報セキュリティ大学院大学)、吉川 弘之 (国立研究開発法人 科学技術振興機構)

事務局：国立研究開発法人 産業技術総合研究所 企画本部広報サービス室内 シンセシオロジー編集委員会事務局

〒 305-8560 つくば市梅園 1-1-1 中央第1 産業技術総合研究所企画本部広報サービス室内

TEL：029-862-6217 FAX：029-862-6212

E-mail：synthesiology-ml@aist.go.jp

ホームページ：http://www.aist.go.jp/aist_j/aistinfo/synthesiology/index.html

●本誌掲載記事の無断転載を禁じます。

Synthesiology Editorial Board

Editor in Chief: Y. MIKI

Senior Executive Editor: N. YUMOTO (National Cerebral and Cardiovascular Center), H. OBARA

Executive Editors: T. KANAYAMA, T. SHIMIZU, M. MAKINO, M. AKAMATSU, N. KOBAYASHI (Waseda University)

Editors: N. AYA, Y. ARIMOTO (RIKEN), K. IKEGAMI, S. ICHIMURA (Waseda University), Y. OGASAKA (Japan Science and Technology Agency), A. ONO, M. GOTOH, S. NAITOU, K. FUJII, T. MATSUI (Institute of Information Security), H. YOSHIKAWA (Japan Science and Technology Agency)

Publishing Secretariat: Public Relations Information Office, Planning Headquarters, AIST

c/o Public Relations Information Office, Planning Headquarters, AIST

Tsukuba Central 1, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8560, Japan

Tel: +81-29-862-6217 Fax: +81-29-862-6212

E-mail: synthesiology-ml@aist.go.jp

URL: http://www.aist.go.jp/aist_e/research_results/publications/synthesiology_e

● Reproduction in whole or in part without written permission is prohibited.

「Synthesiology」の趣旨 — 研究成果を社会に活かす知の蓄積 —

科学的な発見や発明が社会に役立つまでに長い時間がかかったり、忘れ去られ葬られたりしてしまうことを、悪夢の時代、死の谷、と呼び、研究活動とその社会寄与との間に大きなギャップがあることが認識されている。そのため、研究者自身がこのギャップを埋める研究活動を行なうべきであると考え。これまでも研究者によってこのような活動が行なわれてきたが、そのプロセスは系統立てて記録して論じられることがなかった。

このジャーナル「Synthesiology - 構成学」では、研究成果を社会に活かすために行なうべきことを知として蓄積することを目的とする。そのため本誌では、研究の目標設定と社会的価値、それに至る具体的なシナリオや研究手順、要素技術の統合のプロセスを記述した論文を掲載する。どのようなアプローチをとれば社会に生きる研究が実践できるのかを読者に伝え、共に議論するためのジャーナルである。

Aim of Synthesiology —Utilizing the fruits of research for social prosperity—

There is a wide gap between scientific achievement and its utilization by society. The history of modern science is replete with results that have taken life-times to reach fruition. This disparity has been called the *valley of death*, or the *nightmare stage*. Bridging this difference requires scientists and engineers who understand the potential value to society of their achievements. Despite many previous attempts, a systematic dissemination of the links between scientific achievement and social wealth has not yet been realized.

The unique aim of the journal *Synthesiology* is its focus on the utilization of knowledge for the creation of social wealth, as distinct from the accumulated facts on which that wealth is engendered. Each published paper identifies and integrates component technologies that create value to society. The methods employed and the steps taken toward implementation are also presented.

Synthesiology 第12巻第2号 2019年8月 発行

編集 シンセシオロジー編集委員会

発行 国立研究開発法人 産業技術総合研究所



Research papers

A new process to develop a hydraulic system adapted to biodegradable hydraulic oil for construction machinery
—Case study integrating component analyses and SysML description in failure analyses—

S. OHKAWA, S. YUN, T. HIBIYA and H. NISHIMURA

Development of a bovine sperm selection procedure for improvement of livestock fertility

M. B. NAGATA and K. YAMASHITA

Efforts toward commercialization of antifreeze proteins

H. ISHII and T. INOUE

Measurement of mass of aerosol particles

K. EHARA, C. R. HAGWOOD, K. J. COAKLEY, N. FUKUSHIMA, K. WORACHOTEKAMJORN, N. TAJIMA and H. SAKURAI

Editorial policy

Instructions for authors

Aim of *Synthesiology*