

Synthesiology

通信の大容量化に対応する「長さ」の国家標準

ソーラー水素製造の研究開発

モジュール化に基づく高機能暗号の設計

糖鎖プロファイリング技術がもたらすパラダイムシフト

ボールペン技術による家庭用高精細映像光伝送システム開発

シンセシオロジー編集委員会

「Synthesiology – 構成学」 発刊の趣旨

研究者による科学的な発見や発明が実際の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^(注1)。これまで研究者は、優れた研究成果であれば誰かが拾い上げてくれて、いつか社会の中で花開くことを期待して研究を行ってきたが、300年あまりの近代科学の歴史を振り返れば分かるように、基礎研究の成果が社会に活かされるまでに時間を要したり、埋没してしまうことが少なくない。また科学技術の領域がますます細分化された今日の状況では、基礎研究の成果を社会につなげることは一層容易ではなくなっている。

大きな社会投資によって得られた基礎研究の成果であっても、いわば自然淘汰にまかせたままでは、その成果の社会還元を実現することは難しい。そのため、社会の側から研究成果を汲み上げてもらうという受動的な態度ではなく、研究成果の可能性や限界を良く理解した研究者自身が研究側から積極的にこのギャップを埋める研究活動(すなわち本格研究^(注2))を行うべきであると考えます。

もちろん、これまでも研究者によって基礎研究の成果を社会に活かすための活動が行なわれてきた。しかし、そのプロセスはノウハウとして個々の研究者の中に残るだけで、系統立てて記録して論じられることがなかった。そのために、このような活動は社会における知として蓄積されずにきた。これまでの学術雑誌は、科学的発見といった基礎研究(すなわち第1種基礎研究^(注3))の成果としての事実的知識を集積してきた。これに対して、研究成果を社会に活かすために行うべきことを知として蓄積する、すなわち当為的知識を集積することを目的として、ここに新しい学術ジャーナルを発刊する。自然についての知の獲得というこれまでの科学に加えて、科学的知見や技術を統合して社会に有益なものを構成するための学問を確立することが、持続的発展可能な社会に科学技術が積極的に寄与するための車の両輪となる。

この「Synthesiology」と名付けたジャーナルにおいては、成果を社会に活かそうとする研究活動を基礎研究(すなわち第2種基礎研究^(注4))として捉え直し、その目標の設定と社会的価値を含めて、具体的なシナリオや研究手順、また要素技術の構成・統合のプロセスが記述された論文を掲載する。どのようなアプローチをとれば社会に活かす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。そして、ジャーナルという媒体の上で研究活動事例を集積して、研究者が社会に役立つ研究を効果的にかつ効率よく実施するための方法論を確立することを目的とする。この論文をどのような観点で執筆するかについては、巻末の「編集の方針」に記載したので参照されたい。

ジャーナル名は、統合や構成を意味する Synthesis と学を意味する -logy をつなげた造語である。研究成果の社会還元を実現するためには、要素的技術をいかに統合して構成するかが重要であるという考えから Synthesis という語を基とした。そして、構成的・統合的な研究活動の成果を蓄積することによってその論理や共通原理を見いだす、という新しい学問の構築を目指していることを一語で表現するために、さらに今後の国際誌への展開も考慮して、あえて英語で造語を行ない、「Synthesiology - 構成学」とした。

このジャーナルが社会に広まることで、研究開発の成果を迅速に社会に還元する原動力が強まり、社会の持続的発展のための技術力の強化に資するとともに、社会における研究という営為の意義がより高まることを期待する。

シンセシオロジー編集委員会

- 注1 「悪夢の時代」は吉川弘之と歴史学者ヨセフ・ハトバニーが命名。「死の谷」は米国連邦議会 下院科学委員会副委員長であったバーノン・エーラーズが命名。ハーバード大学名誉教授のルイス・ブランスコムはこのギャップのことを「ダーウィンの海」と呼んだ。
- 注2 本格研究： 研究テーマを未来社会像に至るシナリオの中で位置づけて、そのシナリオから派生する具体的な課題に幅広く研究者が参画できる体制を確立し、第2種基礎研究^(注4)を軸に、第1種基礎研究^(注3)から製品化研究^(注5)を連続的・同時並行的に進める研究を「本格研究 (Full Research)」と呼ぶ。本格研究 http://www.aist.go.jp/aist_j/information/honkaku/index.html
- 注3 第1種基礎研究： 未知現象を観察、実験、理論計算により分析して、普遍的な法則や定理を構築するための研究をいう。
- 注4 第2種基礎研究： 複数の領域の知識を統合して社会的価値を実現する研究をいう。また、その一般性のある方法論を導き出す研究も含む。
- 注5 製品化研究： 第1種基礎研究、第2種基礎研究および実際の経験から得た成果と知識を利用し、新しい技術の社会での利用を具体化するための研究。

Synthesiology 第7巻第2号(2014.5) 目次

「Synthesiology – 構成学」発刊の趣旨	i
研究論文	
通信の大容量化に対応する「長さ」の国家標準 —ファイバー型光周波数コムの開発— ・・・稲場 肇、大苗 敦、洪 鋒雷	68–80
ソーラー水素製造の研究開発 — 独創的な光触媒-電解ハイブリッドシステムの実現を目指して— ・・・佐山 和弘、三石 雄悟	81–92
モジュール化に基づく高機能暗号の設計 — 実社会への高機能暗号の導入における障壁の低減に向けて— ・・・花岡 悟一郎、大畑 幸矢、松田 隆宏、縫田 光司、Nuttapong ATTRAPADUNG	93–104
糖鎖プロファイリング技術がもたらすパラダイムシフト — フロンタル・アフィニティ・クロマトグラフィーから エバネッセント波励起蛍光検出法へ— ・・・平林 淳	105–117
ボールペン技術による家庭用高精細映像光伝送システム開発 — 安価で簡易な光接続を可能とするボール ペン型光インターコネクットの提案— ・・・当麻 哲哉、瀧塚 博志、鳥飼 俊敬、鈴木 等、小木 哲朗、小池 康博	118–128
編集委員会より	
編集方針	129–130
投稿規定	131–132
編集後記	139
Contents in English	
Research papers (Abstracts)	
National length standard supporting high-capacity optical fiber communication systems — Development of fiber-based optical frequency combs — --- H. INABA, A. ONAE and FL. HONG	68
Research and development of solar hydrogen production — Toward the realization of ingenious photocatalysis-electrolysis hybrid system — --- K. SAYAMA and Y. MISEKI	81
Methodology for designing cryptographic systems with advanced functionality based on a modular approach — Towards reducing the barrier to introducing newly-designed cryptographic schemes into real- world systems — --- G. HANAOKA, S. OHATA, T. MATSUDA, K. NUIDA and N. ATTRAPADUNG	93
Development of lectin microarray, an advanced system for glycan profiling — From frontal affinity chromatography to evanescent wave excitation fluorescence detection method — --- J. HIRABAYASHI	105
Development of a household high-definition video transmission system based on ballpoint-pen technology — A low cost, easily deployed optical connection using a ballpoint-pen type interconnect — --- T. TOMA, H. TAKIZUKA, T. TORIKAI, H. SUZUKI, T. OGI and Y. KOIKE	118
Messages from the editorial board	133–134
Editorial policy	135–136
Instructions for authors	137–138

通信の大容量化に対応する「長さ」の国家標準

— ファイバー型光周波数コムの開発 —

稲場 肇*、大苗 敦、洪 鋒雷

光周波数コムは、可視～近赤外波長域において、等しい周波数間隔でモードが並ぶ光周波数のものさしであり、光とマイクロ波領域の周波数とを精密に比較するなど、大きな技術革新を起こした。しかし、当初用いられていた、固体レーザーを用いた光周波数コムは、大型・高価で、かつ長時間安定に動作させることが困難だった。我々はファイバーレーザーを用いた光コムに早くから着目して研究開発を進めてきた。特に、レーザーも含めた光コムシステムの産総研内での開発に成功してからは、通信帯波長におけるレーザー周波数の校正をはじめ、長さの国家標準、そして次世代光周波数標準のための新しいレーザー制御技術を開発するなど、独自性のある成果を挙げている。

キーワード: 光周波数コム、ファイバーコム、光周波数計測、長さ標準、光通信帯波長、波長安定化レーザー、モード同期レーザー

National length standard supporting high-capacity optical fiber communication systems

– Development of fiber-based optical frequency combs –

Hajime INABA*, Atsushi ONAE and Feng-Lei HONG

Optical frequency comb is a collection of laser modes with equal frequency intervals in the visible to near-infrared regions that enables direct comparison of optical frequencies with the microwave atomic frequency standards. Traditional solid state laser-based frequency comb systems were large, expensive and very difficult to operate for long periods of time during experiments. From the early stage of development, we proposed fiber lasers as a feasible means for achieving a reliable frequency comb. After we succeeded in developing an in-house fiber-based frequency comb at AIST, we made further advances, including calibration of optical telecommunication band, establishment of national standards of length, and development of a narrow-linewidth comb for optical lattice clocks.

Keywords: Optical frequency comb, fiber-based frequency comb, optical frequency measurement, length standard, optical telecommunication band, wavelength-stabilized lasers

1 はじめに

光周波数コムが発明される以前は、光領域の周波数計測は極めて困難であった。測定装置として多くのマイクロ波発振器、特殊な非線形通倍混合素子、波長(周波数)安定化レーザー(以下、安定化レーザー)を用意して、セシウム原子周波数標準器の発生するマイクロ波周波数 9,192,631,770 Hz を基準に、順次通倍・混合を繰り返して光領域の周波数とリンクする「周波数チェーン」^{[1][2]} が用いられていた。これは非常に大がかりな装置であり、開発だけでなく、測定の実施に膨大なコストと人的資源を必要とした。さらに、この装置は1種類のレーザーの周波数しか測ることができず、別の波長のレーザーには異なる周波数チェーンを構築する必要があった。

このような事情から、国際度量衡委員会は実用的なメー

トル定義の実現のために、周波数チェーンで測定されたレーザーの周波数を基に、安定化レーザーのリストを作成し、これらを波長標準(長さ標準)として用いることを勧告^[3]している。各国の標準研究所で作られた安定化レーザーは、同等性を確認するために持ち寄って、国際的な周波数比較(国際比較)を行う。国際比較されたレーザーは、その国における長さ計測のための基準レーザーのおおもととなる。そして、実際に国際比較が行われるのは、ほとんどが波長 633 nm ヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーである。日本においても、長さ計測のトレーサビリティの頂点である国家標準(特定標準器)は、2009年まで産総研が保有するヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザー^[4]であった。

光領域の周波数計測には長さ標準以外にも多くの応用分野があり、社会的に最も重要な分野が光ファイバー通信

産業技術総合研究所 計測標準研究部門 〒305-8563 つくば市梅園 1-1-1 中央第3

National Metrology Institute of Japan, AIST Tsukuba Central 3, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8563, Japan * E-mail: h.inaba@aist.go.jp

Original manuscript received May 30, 2013, Revisions received October 4, 2013, Accepted October 24, 2013

である。1990年代から、大容量化に向けた波長多重伝送の導入が始まり、いずれ高精度な光周波数管理が必要となることが予想された。そのため波長 1.5 μm 帯の安定化レーザーを周波数標準として勧告リストに追加すること、および光通信波長帯のレーザー周波数測定技術の開発が求められていた。また、日本ではヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーが特定標準器となっていたため、光通信帯の安定化レーザーがこの特定標準器ヘトレーサブルであることも求められていた。

これまでの周波数チェーンを用いた光周波数計測の困難を打破する最初のブレイクスルーは 1999 年にやってきた。ドイツと米国のグループがモード同期レーザーを用いた「光周波数コム」(以下、光コム)を用いてレーザー周波数の絶対計測を実現し^{[5][6]}、この分野において極めて大きな技術革新が起こった。光コムは大きな成功を収め、レーザーの周波数をセシウム原子周波数標準の精度(平均時間や発振器の種類により 11 ~ 16 桁)で測ることが可能になった。一方、光コムにより(比較的手軽に)光周波数とマイクロ波周波数が繋がったことは、セシウム原子時計に代わる次世代周波数標準としての「光時計」の研究にも大きな弾みをつけた。光コムの発明に関わったホール(J. L. Hall)とヘンシュ(T. W. Hänsch)は、「光周波数コム技術を含む、レーザーを使った精密分光の発展への貢献」が評価され、2005 年度のノーベル物理学賞を受賞した。

しかし、ホールとヘンシュが開発した光コムによりすべての問題が解決されたわけではない。光コムを実用的なツールとして種々の分野に応用するためには、当時の光コムに用いられてきたモード同期レーザーであるチタンサファイア

(以下 Ti:S) レーザーやフォトニック結晶ファイバーに関わる問題を克服する第 2 のブレイクスルーが必要であった。Ti:S レーザーは大型であり、高価で電力消費の大きい励起レーザーを必要とした。また、装置が複雑であるため、光コムとして動作させるには、専門知識を有するオペレーターが必要であった。このため、製品化はいうまでもなく、実験室であっても、長時間にわたり連続動作させることさえ困難であり、実用化には多くの課題を残していた。

この研究は、上述した第 2 のブレイクスルーに関わるものであり、これまでの Ti:S レーザーを用いた光コム(以下 Ti:S コム)に代わる、信頼性に優れた光ファイバー型周波数コム(以下、ファイバーコム)の開発がその主体である。この論文では、まず光周波数コムの原理を簡単に説明し、Ti:S コムの問題点について述べる。次に、これらの問題を解決するためのファイバーコムの概要、およびその製作も含めた研究開発の経緯について説明し、さらに開発の結果得られた代表的成果を 3 つ紹介する。すなわち、光通信帯レーザーの周波数計測、国際的活動も含めた長さの国家標準、および次世代光周波数標準のための高速制御型光コムについて述べる。

2 光コムについて

光コムを理解するためには、時間軸上の波形と周波数軸上のスペクトルの両方について考える必要がある。図 1 に示すように、光コムは時間軸上で観察すると、一つ一つが数~数 100 フェムト秒の時間幅を持つ光パルスが等間隔で並んでいる超短光パルス列である。一方、周波数軸上ではそのフーリエ変換となり、等周波数間隔で並んだ線スペク

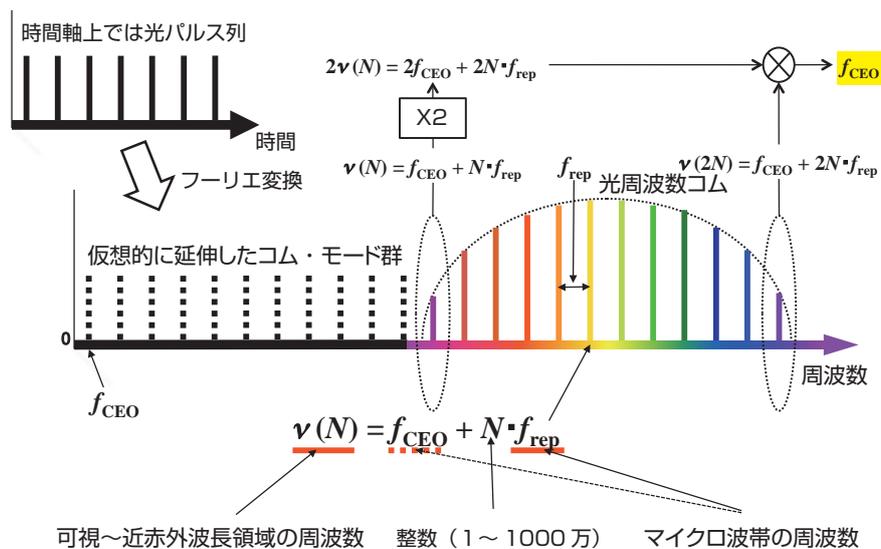


図 1 光周波数コムの概念図

時間軸上で観測される超短光パルス列は、周波数軸上ではフーリエ変換され光コムとして観測される。モード間隔が波長によらず一定なので、仮想的にコム・モードを実在するコム・モードの外側に延伸することに意味がある。RF である f_{rep} と光周波数である $\nu(N)$ を一意に繋いでいる。また、1 オクターブ以上に広がることで、比較的容易に f_{CEO} 信号が検出できる。

トルの集合として観察される。周波数軸上でのスペクトルの拡がりモード間隔は、それぞれ時間軸上での光パルスの鋭さ（時間幅）と光パルス列の間隔時間の逆数である。そして、これら周波数軸上の各線スペクトルは連続光であり、それらの位相が同期して全体として光パルスを形成していると考えられることもできる。

光コムのもっとも重要な特徴は、線スペクトルの周波数間隔が波長に依らず一定であることである。例えばファブリー・ペロー共振器に代表される光共振器の縦モードは、光コムに良く似たスペクトルを有しているが、その縦モード間隔 $c / 2nL$ (c は光の速さ、 n は位相屈折率、 L は共振器長) は大気や共振器の分散の影響により変化してしまう（波長に伴い n が変化する）。これに対し、光コムモード間隔はモード同期により等間隔になるため、波長に依らず一定である。そのため、図 1 に示すように、ゼロから数えて N 番目の、光領域のコム・モード周波数 $\nu(N)$ は

$$\nu(N) = f_{\text{CEO}} + N \cdot f_{\text{rep}} \quad (1)$$

と記述できる。ここで f_{rep} は隣り合うコム・モード間の周波数間隔であり、時間軸上の超短光パルス列の繰り返し周波数に等しい。 N は数万～数百万の整数である。また f_{CEO} は、光コム各モードの $N \cdot f_{\text{rep}}$ から一様なオフセット周波数である。この式から、数 10 MHz～数 100 MHz（以下、マイクロ波周波数）である f_{CEO} および f_{rep} を決めれば、180～600 THz（近赤外～可視波長に相当）である $\nu(N)$ が一意に決まることがわかる。特に、マイクロ波周波数である f_{rep} が整数倍（通倍）されて光周波数領域の周波数になっていることが重要であり、光コムはマイクロ波周波数と光周波数を繋ぐ周波数通倍器（または分周器）と考えることもできる。

数百テラヘルツの光周波数に比べて、 f_{CEO} の値は極めて小さい。しかし、 f_{CEO} は光領域の周波数とマイクロ波領域の原子による標準からの周波数を関係づける重要なパラメータである。 f_{CEO} を検出するためには、光コムスペクトルが「1 オクターブ」、すなわち周波数で $\nu \sim 2\nu$ （波長では $2\lambda \sim \lambda$ ）以上の拡がりを持つことが重要である。図 1 に f_{CEO} 観測の方法を示す。スペクトル拡がり ν が 1 オクターブを超えることは、 N 番目と $2N$ 番目のモードが実在することと等価である。 N 番目のモードの第二高調波と、 $2N$ 番目のモードとの差周波数が f_{CEO} となることから、 f_{CEO} を実験的に観測することができる。

モード同期レーザーの出力スペクトルは光コム状であるが、通常その拡がり ν は 1 オクターブに届かない。そこで、フォトニック結晶ファイバーや高非線形ファイバー等の大きな非線形光学効果を持つ媒体^{[7][8]}を用いて光スペクトルを広帯

域化する。その際、元々のコム・モードは自己位相変調、四光波混合、ラマン増幅等といった非線形光学効果により、周波数間隔を保ったまま外側に拡がっていく。この、光周波数領域で 1 オクターブもの拡がりを持つ「周波数のものさし」には、周波数の計測・標準分野をはじめとして多くの応用がある。

3 Ti:Sレーザーによる光コム課題とファイバーコムによる解決

初期の光周波数コムは、モード同期レーザーとして Ti:S レーザー、そして、広帯域化にはフォトニック結晶ファイバーという非線形媒質を用いていた。これらは光コムを実現し、大成功を収めたものではあるが、実用化に多くの課題が残されていた。ここでは、その中でも解決しなければならない重要な課題と、ファイバーコムでそれがどのように解決されるかについて述べる。

3.1 励起レーザーが大型かつ高価であること

Ti:S コムの概要図を図 2 に示す。Ti:S レーザーの励起には高出力の固体レーザーを使用し、市販されている典型的なレーザーヘッドと制御装置は、写真のように比較的大きなものである。また、励起レーザーおよび Ti:S レーザー本体には水冷装置が必要である。さらに、光コム用の Ti:S レーザーに使われる出力 5-10 W の励起レーザーは非常に高価であり、定期的に必要となる消耗品交換もまた高価である。

一方、ファイバーコムシステムの場合、図 3 に示された概要図の通り、励起光源として右下の写真のようなバタフライ型パッケージに組み込まれた小型の半導体レーザーが使用される。その制御装置も固体レーザー用のものよりかなり小型であり、システムとして Ti:S コムよりも遙かに小型化し得る。価格的にも Ti:S レーザーの励起用固体レーザーの 1/100 程度である。また、モード同期ファイバーレーザーは水冷装置を使う必要がない。

3.2 長期連続稼働の困難さ

Ti:S コムは、長期連続運転させるのが難しい。理由はいくつかあり、一つには光コム広帯域化に用いるフォトニック結晶ファイバーへの光結合の不安定性である。フォトニック結晶ファイバーはコア径が約 2 μm と小さいため（通常のシングルモードファイバーのコア径は約 10 μm ）、温度変化などによるレーザー光とファイバーコアの相対位置の変動が生じやすい。その上、大型の励起レーザーはそのビームポインティングが不安定であることが多く、Ti:S レーザーのビームポインティングも不安定になりがちである。その結果、レーザー光のファイバーへの結合効率は時間と共に変化し、光コム安定化に欠かせないオフセット周波数、お

よびレーザーとのビート信号のS/Nが低下し、制御不能に陥る。また、Ti:S レーザー自体、空間レーザーであることから防塵が難しく、長時間運転していると光強度が大きい結晶付近に微小な埃が付着するなどして動作が不安定になる。これらのことから、Ti:S コムを用いて24時間以上連続で光周波数計測を行うことは難しい。

一方、ファイバーコムの場合、モード同期ファイバーレーザー～光増幅器～高非線形ファイバー間はすべて光ファイバー系であり、ファイバー同士の融着接続が可能である。空間光学系に必須である精密なアライメントが不要になり、一本の光ファイバーですべて接続できる効果は大きく、上述した Ti:S コムの欠点はほぼ完全に解決する。

4 ファイバーコムの開発

上述したように、ファイバーコムが実現した際の長所は明らかであった。我々はまず「ファイバーコムの初期の評価」を行い、それが実現可能であることを確かめた。そして、「モード同期ファイバーレーザーの設計・製作」、「増幅器の設計・製作」、「高非線形ファイバーの評価」、「高速制御型光コムの開発」といった要素技術を開発すれば、堅牢で低雑音なファイバーコムを自家製作できると考えるに至り、それが実現できれば「光通信帯波長のレーザー校正」、「国家標準器の開発」、「光格子時計への応用」などの目標を一挙に達成できる光コムおよびその開発技術が得られる。さらにこれらの研究成果の企業や大学への技術移転を行

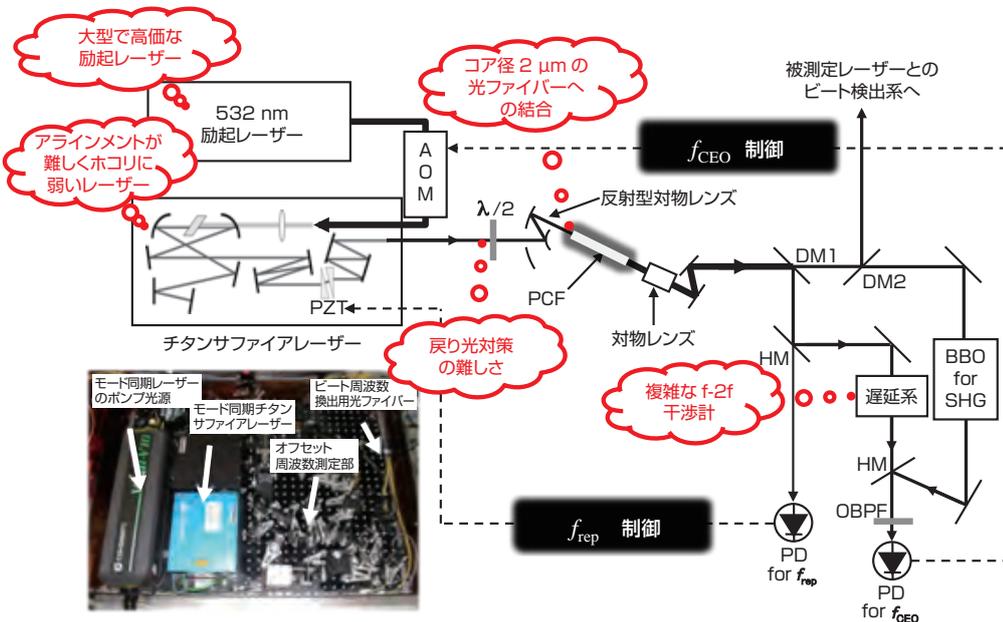


図2 チタンサファイアレーザーによる光コムシステムの概要図
基本的に空間光学系であり、長時間連続運転は難しい。写真は、コンパクトにまとめられたシステム例。PZT: 電歪素子、AOM: 音響光学変調器、 $\lambda/2$: 1/2 波長板、PCF: フォトニック結晶ファイバー、DM: 二波長鏡、HM: 半透過鏡、OBPF: 光バンドパスフィルター、BBO: β バリウム・ボレート結晶、SHG: 第二高調波発生、PD: 受光器。

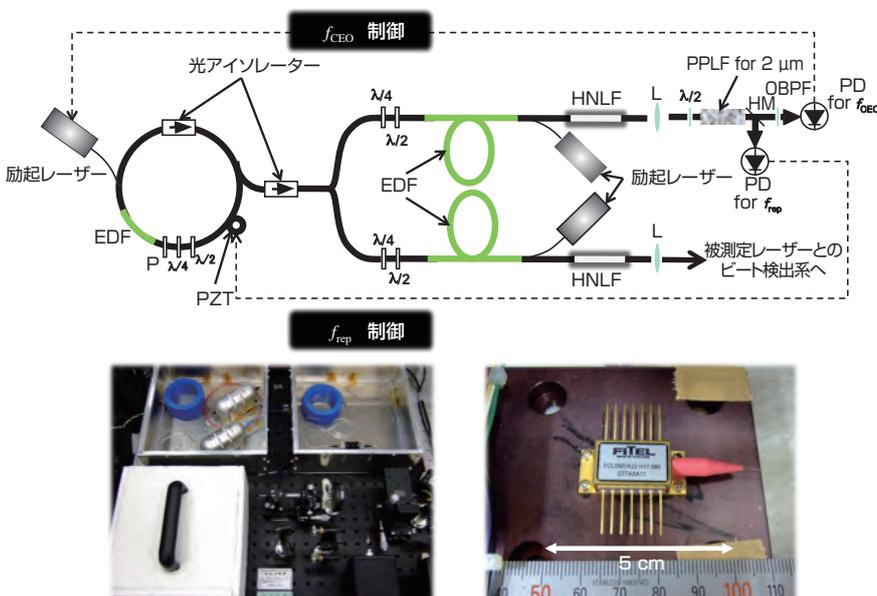


図3 ファイバーレーザーによる光コムシステムの概要図
左側のファイバリングが、非線形偏波回転を利用したモード同期ファイバーレーザーである。その出力は2～4分岐され、それぞれ必要に応じて増幅、広帯域化して使われる。不安定になりがちな部分がすべて光ファイバー光学系であり、長時間連続運転が可能である。写真は、国家標準として用いている光周波数コム装置のレーザー～光アンプ部(左)、および励起レーザー(右)。EDF: エルビウム添加光ファイバー、PZT: 電歪素子、P: 偏光子、 $\lambda/2$: 1/2 波長板、 $\lambda/4$: 1/4 波長板、HNLF: 高非線形ファイバー、L: レンズ、PPLN: 周器分極反転リチウムナイオベート、HM: 半透過鏡、OBPF: 光バンドパスフィルター、PD: 受光器。

い、最終的には時間周波数・長さ標準の信頼性向上に寄与したいと考えた（図4）。

しかし、当時ファイバーコムが Ti:S コムと同等の性能が得られる保証はなかった。実際にファイバーコムを開発し、Ti:S コムを置き換えるまでには、いくつかの研究ステップを踏む必要があった。ここでは光コムの開発初期に企業と行っていた共同研究の段階から、システム全体を産総研内で製作する体制への移行、そして製作ノウハウを確立していく過程について述べる。

4.1 オフセット周波数の検出から絶対周波数計測へ—企業との共同研究

モード同期 Ti:S レーザーは波長 800 nm 帯で、モード同期ファイバーレーザーは波長 1550 nm（光通信帯波長）帯でそれぞれ発振する。また、Ti:S レーザーの出力と光パルスの時間幅がそれぞれ 300-800 mW、10-30 fs であるのに対し、ファイバーレーザーではそれぞれ 1-10 mW、100 fs 程度である。このように特性が大きく異なるパルスのスペクトルを広帯域化する条件を見つけなければならなかった。また、Ti:S レーザーでは 800 nm 付近にゼロ分散波長を持つフォトニック結晶ファイバーを用いて広帯域化するが、波長 1.5 μm 帯で発振するファイバーレーザーには直接利用できない。当時共同研究を行っていた企業はモード同期ファイバーレーザーで世界有数のシェアを持ち、最先端の開発品でありながら信頼性に優れたレーザーを産総研に提供した。我々はそのレーザーを用いて波長 778 nm と 1556 nm の周波数リンク^[9] など、モード同期ファイバーレーザーとしては世界初の周波数計測を実現した。さら

に、このレーザーの第二高調波をフォトニック結晶ファイバーで広帯域化することで f_{CEO} 信号検出を目指した。Ti:S レーザーの場合と比較して長いフォトニック結晶ファイバーを用いても、広帯域化された光コムのスペクトル拡がりは 1 オクターブに満たなかったが、レーザーの第三高調波と、フォトニック結晶ファイバーにより広帯域化された光コム成分を波長 520 nm 帯で干渉させる、新しい自己参照法を開発し^[10]、世界で初めてファイバーコムの f_{CEO} 信号を観測することに成功した。そしてほどなく、1.5 μm 帯にゼロ分散波長を持つ高非線形ファイバーにより、1 オクターブに拡がった光コムが得られるようになった。制御系も含めたシステムについても企業と共同で開発し、ファイバーコムを用いた安定化レーザーの絶対周波数計測に世界で初めて成功した^[11]。

4.2 自家製作への移行から長期連続動作へ

ファイバーコムによる絶対周波数計測が可能になると、次の段階として「目的や用途に応じた仕様のカスタマイズ」「異なる用途のために複数の装置を準備」などの要求が生じた。そのためには企業からレーザーシステムの提供を受けるのではなく、自身で部品から組み立てるのが早道であろうとの結論に達した。幸い、波長 1550 nm 帯用のファイバー部品や光学部品は大きな産業分野である光通信で用いられるため、安価で優れた製品が多い。また、我々はコムの研究に従事する以前に CW ファイバーレーザーの研究開発にも携わっており、ファイバー光学系について技術的な知見があった。そこで、ファイバーコムシステムを所内で製作すること（以下、自家製作）が次の目標となった。

2004 年末頃、自家製作を開始するに当たり、上述した

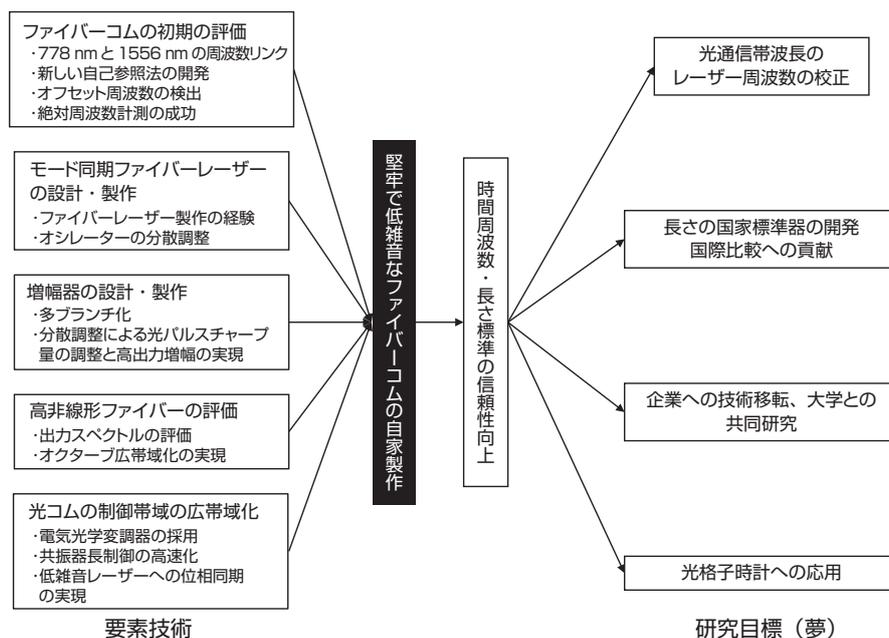


図4 ファイバーコムを自家製作するための要素技術から、研究目標へのシナリオ

要求から、目的や用途に不都合な機構は省き、製作しやすいシンプルで堅牢な構成を目指した。例えば、過飽和吸収体のように入りにくい特殊なデバイスの使用を避けて、モード同期機構を非線形偏波回転に変更し、空間光学系をできるだけ排除したファイバー中心の構成とした。とはいえ、自身でモード同期レーザーから製作するのは初めてのことであり、試行錯誤の連続であった。コムを広帯域化の鍵となる、波長1~2 μm帯で機能する高非線形ファイバーについては、(現時点でも)広帯域化において最高性能のファイバーが同じ時期に入手できた。このような経緯により、自家製作を開始してから約1年という速さで、モード同期ファイバーレーザー、超短光パルス増幅器の設計・製作、高非線形ファイバーによる光コムを広帯域化、オフセット周波数信号の検出、堅牢性確保のためのファイバー系の配置・固定、および位相同期や温調等の制御系構築まで行うことができた。2006年初頭には、1週間連続の光周波数計測^[12]という、Ti:S コムでは無論のこと、ファイバーコムであってもそれまで報告されたことのなかった長時間測定を実現した。このような堅牢性は、モード同期ファイバーレーザーの全ファイバー化、高いビート信号のS/Nを得るための光増幅部のブランチ化構成(図3)、および目的波長の光コム発生に最適な高非線形ファイバーの選定、などといった独自のレーザーシステムにより得られたものであり、自家製作による成果である。

長期連続測定はすぐに実質的な発見をもたらした。我々は、高い周波数安定度を持ち堅牢性にも優れた、波長532 nm ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーを開発してきた^[13]。保有している数台のレーザーのうち、1台の周波数が次第に

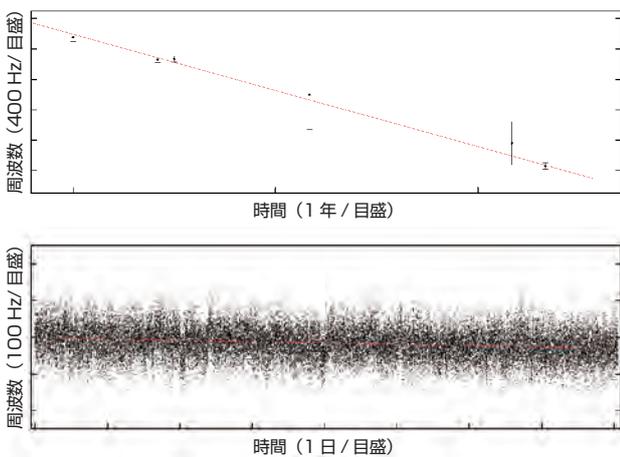


図5 我々が開発した波長532 nm ヨウ素安定化 Nd:YAG レーザーの周波数変化
Ti:S コムにより2年半にわたり断続的に測定された結果(上)、およびファイバーコムにより1週間連続で測定された結果(下)。どちらの結果も変化率は約-20 Hz/週であることを示している。

下がってきている現象が長期的な測定によって観測されていた(図5上)。ファイバーコムを用いた長期連続測定により、同じペースでの周波数減少(約-20 Hz/週)が観察され(図5下)、周波数変化が断続的なものではなく、連続的なものであることが明らかとなった^[12]。このように、長期連続測定はこれまで見えなかった現象を観察することができる。今後実用化される光周波数標準等への適用においても、連続測定できる堅牢性は実質的に必要な性能の一つである。

4.3 波長分散調整の重要性—製作ノウハウの確立

1台目の自家製ファイバーコムシステムが完成し、連続測定には成功したが、その後何台かのモード同期ファイバーレーザー(発振器)および超短光パルス増幅器を製作する過程で、超短光パルス増幅器からの出力やスペクトル、および高非線形ファイバーによる広帯域化の再現性が乏しいという問題点があった。光パルス増幅器へ入射する平均およびピークパワー、偏光依存性等の検討を行ったが、発振器と増幅器を繋ぐ光ファイバーの分散に起因する、光パルスのチャープ量の違いがその原因であった。

オシレーターの分散調整、増幅器~高非線形ファイバー間の分散調整の必要性はよく知られていたが、オシレーター~増幅器間の分散調整についてはそれほどよく知られていなかった。これまで実験結果として報告されていたのは、増幅器前で正か負どちらかに大きくチャープさせて光パルスのピークパワーを下げ、増幅した後に逆にチャープさせてパルス圧縮を行うチャープドパルス増幅法^[14]くらいであった。我々は、オシレーター~増幅器間の光ファイバー長を変えて増幅器に入射する光パルスのチャープ量を変化

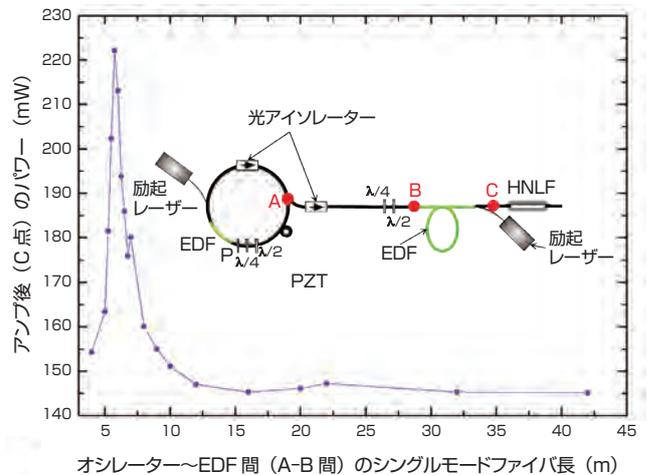


図6 オシレーター出力(A点)~光アンプ入力部(B点)間のシングルモードファイバー(SMF)長を変えたときの光アンプ出力部(C点)での光パワーの変化
出力がピークとなるSMF長が存在し、それが広帯域光コム発生の最適値である。

させると、増幅器からの平均出力が最大となる光ファイバー長が存在することを発見した(図6)^[15]。この条件では光パルスはチャープ補償で圧縮されながら増幅され、高い光パルスのピークパワー、狭い光パルスの時間幅、広いスペクトル、および高い平均出力が得られる。これは1990年に「断熱圧縮」として報告^[16]された条件と一致し、スペクトル拡大等は報告されていたが、出力の増大を伴うことは知られていなかった。出力が増大する理由はまだ明らかではないが、利得の不均一拡がりを持つエルビウムイオンが、スペクトル拡大により多数個寄与できるようになるためではないかと考えている。

またこの条件で増幅した光パルスは、高非線形ファイバーによるスペクトラムの広帯域化に適しており、同じ光パワーであっても、この条件以外で増幅した光パルスと比べ、遙かに広帯域化しやすい特性を持っていることがこの研究により明らかになった。この発見により、出力やスペクトラムの再現性は大きく向上し、その後の研究室でのファイバーコム「量産」のための重要な礎となった。また、この方法および装置は特許出願し、2013年1月に特許登録(登録番号5182867)された。

4.4 高速制御型光コムの開発・・・性能と実用性を兼ね備えた光コムへの進化

ファイバーコムは当初、実用的で堅牢ではあるが、位相雑音がTi:Sコムより大きいと言われており、ファイバーコムには特有の比較的大きな位相雑音が観察されていた^[10]。フリーランニング時のTi:Sレーザーでは f_{CEO} の線幅は100 kHz以下であるが、ファイバーコムでは数MHzまで大きくなる場合があり、ファイバーコムの最大の欠点としてしばらく議論の対象になっていた。位相雑音の起源は光パルス増幅器や高非線形ファイバーではなく、モード同期ファイバーレーザー(発振器)にあることが明らかになっている。その後、共振器の分散調整^[17]を含むオシレーターの製作ノウハウの蓄積により、位相雑音の面でTi:Sコムに劣ることはなくなった。

位相雑音に関して、問題を完全に解決するばかりでなくTi:Sコムを凌駕する決め手になった重要な性能が高速制御性である。光コムの周波数値には二つの自由度がある。例えば光周波数計測では、 f_{rep} と f_{CEO} をそれぞれ独立に制御する必要がある。多くの場合、 f_{CEO} はモード同期レーザーの励起光強度を変化させて制御し、 f_{rep} は共振器長を変化させて制御する。励起光強度は、Ti:Sレーザーでもファイバーレーザーでも比較的高速に制御することができるが、共振器長の高速制御は難しい。どちらのレーザーでも、普通は電歪素子(PZT)を用いてミラーやファイバーを動かすことで変化させる。しかし、この場合の制御帯域は数100

表1 モード同期レーザーの種類による光コムの特徴

	Ti:Sコム	Erファイバーコム	Ybファイバーコム
出力(平均パワー)	~1 W	~200 mW(増幅後)	~10 W(増幅後)
光パルス幅(チャープ補償後の典型値)	数フェムト秒	数十フェムト秒	数十フェムト秒
波長(オシレーターの中心波長典型値)	780 nm	1550 nm	1030 nm
波長領域(広帯域化後の典型値)	400-1200 nm	900-2500 nm	900-2500 nm または 700-1400 nm
フリーランニング時のCEO信号のスペクトル線幅	数十kHz~数MHz	数十kHz~数MHz	数十kHz~数MHz
制御帯域(共振器長)	~数十kHz	~数MHz	~数MHz
励起レーザー	主に固体レーザー	主に半導体レーザー	主に半導体レーザー
長時間動作、および堅牢性	△(空間光学系、励起レーザーの不安定性)	◎	○(分散補償用の空間光学系が必要)

Hz~数10 kHzに制限される。 f_{rep} をマイクロ波周波数基準に位相同期する場合は、キャリア周波数が低く位相雑音の絶対量が小さいため、この制御帯域の狭さはほとんど問題にならない。しかし、共振器長を制御して光コムのモードの一つを光周波数基準(安定化レーザー)に位相同期する場合、周波数が高いために周波数安定度が同じであっても位相雑音の絶対量が大きく、制御系の利得と帯域が不足して、位相雑音の低減は難しい。残留する位相雑音が多ければ、光コムの相対線幅は改善されない。相対線幅を改善するためには、二つのパラメーターの高速制御が必要である。我々は、モード同期ファイバーレーザーの共振器中に電気光学変調器(EOM)を挿入した高速制御型光周波数コムを開発し^[18]、両方ともに帯域1 MHz程度の制御を実現した^[19]。EOMを挿入したモード同期レーザーは今のところファイバーレーザーでしか報告がなく、モード同期ファイバーレーザーの長所となっている。

4.5 これまでのTi:Sコム、Yb添加光ファイバーを用いたファイバーコムとの比較

光コムの光源としてモード同期ファイバーレーザーを採用し、本章で述べてきたような開発を経て、これまで主流であったTi:Sコムの欠点の多くが克服された。また、我々が開発してきたファイバーコムは、波長1.5 μm帯に利得を持つエルビウム(Er)添加光ファイバーをレーザー媒質としたものであるが、波長1 mm帯に利得を持つイッテルビウム(Yb)添加光ファイバーを用いたファイバーコムもいくつかのグループで開発されている。

表1はTi:Sコム、Erファイバーコム、およびYbファイバーコムの特徴についてまとめたものである。

これら3タイプの光コムを比較すると、我々が採用したErファイバーコムの優れた点はパワーやパルス幅といった、時間軸上での光パルスとしての性能ではなく、低雑音(狭線幅)性、信頼性や高速制御といった、周波数軸上での

光コムとしての性能であることがわかる。

Ti:S コムや Yb ファイバーコムには出力が高い、波長が短い、光パルス幅が狭いなどの長所があるため、紫外領域への展開や時間軸上での高分解能性が重要である分野では、これらの光コムでなければ対応できない分野も多いだろう。しかし、可視領域より長い波長での周波数メトロロジーに限って言えば、Er ファイバーコムは最も性能・実用性に優れた光コムであると言える。

5 ファイバーコムの展開

ファイバーコムを自家製作できるようになったことで、堅牢で使いやすく、かつ高性能な光コムシステムを目的に合わせて使えるようになった。当初のもくろみ通り、光コムを研究や業務で展開していくことは必然の流れであった。グループ内で今までにファイバーコムシステムとして完成させたものだけでも 15 台を超える。ここでは、その中でも特に重要な「光通信帯波長レーザーの校正」「長さの国家標準」および「高速制御型光コムの開発」について述べる。

5.1 光通信帯波長レーザーの校正

光通信の伝送容量に対する要求は着実に増加しており、その増加率は年率数十%に及ぶ。通信波長を多重化し、チャンネル数を増やすことでこの状況に対応することは大容量化に有効であるが、現在広く使われているシングルモードファイバーが伝送できるパワー、および伝送損失が低い波長範囲は限られているため、通信チャンネルを設定するには周波数管理が必要である。このような波長多重技術のプラットフォームとして、通信帯 C バンドのキャリア周波数 193.1 THz を中心に、12.5 GHz、25 GHz、50 GHz、100 GHz 間隔で周波数グリッド (ITU-T G694.1) が設定されている。近年は急速にデジタルコヒーレント (無線分野で実用化されているデジタル信号処理を光通信に応用・発展させた技術) の実用化が進み、シングルモードファイバーの能力の限界近くまで波長多重の高密度化が進んでいる。フレックスグリッド (6.25 GHz 間隔のチャンネル) への対応を考えると、周波数管理技術、すなわち周波数計測の不確かさ低減がますます重要になってきている。

光計測器や光デバイス関連メーカー等において、光スペクトルアナライザーや波長計に 7~8 桁の精度が必要な場合、分子等の吸収に安定化された光源が使用される。これは 9 桁程度の精密さを持ち、我々は光コムが登場する以前から、このようなニーズを見越して波長 1.5 μm 帯における波長標準を開発してきている。我々の開発した波長 1542 nm アセチレン安定化レーザー^[20]は、国際度量衡委員会により 1.5 μm 帯唯一の波長標準として勧告されている。そして、このレーザーの出力をサイドバンド型光コ

ム^[21]により広帯域化することで、波長 1510-1570 nm におけるレーザー周波数の校正が可能になった。しかし、まだ課題が残されていた。第一に、安定化レーザーとサイドバンド型光コムによる校正の場合、基準周波数である安定化レーザー自身の国際比較や光コムによる校正が求められる。次に、波長の国家標準が波長 633 nm ヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーであったため、ダブルスタンダード状態となりかねないことである。一方で、光コムは周波数標準を基準に周波数 (波長) を測定するため、安定化レーザーを介することなく、633 nm と 1.5 μm 帯の両波長を直接 SI に繋ぐことができる。また、今後他の波長でのトレーサビリティ確保が求められた際の対応も容易である。とはいえ、初期の Ti:S コムでは、広帯域化してもそのスペクトル帯域は 500-1100 nm であり、光通信帯波長への適用は困難であった。被測定レーザーは CW 光であるために第二高調波発生の効率が低いからである。

ファイバーコムは波長 1~2 μm において動作し、光通信帯波長をすべてカバーしている。今後ますます細密化される通信グリッドに対応する光源や光フィルター等の部品の製造には、より高精度な波長計や光スペクトルアナライザーが要求され、これらの測定器の参照標準として、光通信帯波長におけるさまざまな波長の安定化レーザーが必要になっている。この波長帯にはアセチレン分子やシアン化水素分子等波長標準として好適な遷移が多く存在しており、それらの安定化レーザーを校正するためにも、ファイバーコムは最適と言える。さらに光コムはパルス光であるために第二高調波発生の効率が高く、可視波長帯にも適用できるため、Ti:S コムを置き換えることも期待できる。

5.2 長さの国家標準

長さの国家標準を原子時計 (周波数標準) + 光コムにすることができれば、両波長についてのトレーサビリティ体系をよりシンプルにまとめることができる (図 7)。また、メートルの定義により忠実に長さ標準を実現することができる。これまでの国家標準である波長 633 nm ヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーは、コンパクトかつ不確かさが 2.5×10^{-11} と小さく、長さ標準として完成されていた。しかし、国家標準として課題がいくつか残されていた。一つには、安定化レーザーであるが故に、光コムによる定期的な校正、あるいは国際比較が必要である。共振器アライメント等で周波数値が変化してしまう恐れがあるため、複数台の同等な装置の群管理を行い、個々の装置が正常動作していることを確認することも必要である。また、登録事業者が持つ特定二次標準器 (国家標準である特定標準器が直接校正する機器) もヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーであり、特定標準器と性能差がないため、校正結果は被

測定器物の性能を正しく評価できているとは限らない。特定標準器と特定二次標準器が同じ不確かさを持つ場合、校正結果の不確かさはそれぞれの $\sqrt{2}$ 倍になってしまう。すると、本来特定標準器と同じ不確かさであるはずのものが、実際よりも低い能力であると見積もられてしまう。そのような不確かさの劣化を避けるため、周波数比較を行って正常範囲にあれば、国家標準と同等であるとして、特定標準器と同じ不確かさであるとする運用が行われていた。さらに、ヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザー同士と比較においては、周波数差ゼロでは計測できないため、4本の吸収線にレーザーをそれぞれロックして計6組の差周波数測定により本来の差周波数を推定する方法（マトリクス法）が採られており、校正には手間と時間を要した。その上、ヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーは振動や音に敏感であり、産総研の装置はその点強化されているが、それでもややデリケートである。

我々の開発したファイバーコムはこれらの課題をすべて解決する。光コムの基準周波数は国際原子時に同期した周波数標準であり、定期的な校正は必要ない。本質的にマイクロ波周波数合成系（図3中の「 f_{rep} 制御」の部分に含まれる）の不具合くらいしか値がずれる心配はなく、それも測定時に検知できるので、群管理は不要である。不確かさは特定二次標準器の1/300であるため、校正結果はおよそ完全に被校正器物の性能を示す。そのため周波数値と校正の不確かさを校正証明書に明記できるようになった。さらに、ロック時の堅牢性も高く、1週間程度連続で動作させることは容易であるとともに、被校正器物の校正では、本来ロックすべき吸収線にロックされたレーザーの周波数値を測れば良く、手間と時間が大幅に圧縮された。かつて数日を要していた校正作業も、2009年7月の国家標準変更後は、半日から1日で終了している。

5.3 安定化レーザーの国際比較

国際的な同等性確認も重要である。各国の標準研究所が持つ安定化レーザーの同等性を確認するために、一同に持ち寄って国際比較を行う必要がある。これまでは、国際度量衡局の研究者が可搬型のヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーを各地域に持ち運び、そこで集まった地域各国のヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーと周波数比較を行っていた。これにより、世界中のヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーの同等性を確認してきた。しかし、国際度量衡局の業務内容の見直しにより、安定化レーザーの新たな国際比較制度（CCL-K11）が2007年から始まり、国際比較は各地域の計量標準組織ごとに行われることになった。まず全体を仕切るパイロット・ラボがあり、次にAPMP等大小9つに分かれる各地域の地域計量組織に対し、地域を仕切る「ノード・ラボ」を設置する。ノード・ラボは光コムを用いて、ヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーの周波数測定を定期的に行う。各国の標準研究所は地域のノード・ラボにレーザーを持って集まり、周波数を測定して同等性を確認する。ノード・ラボ間の周波数計測の同等性は、ノード・ラボが維持する協定世界時、および光コムのCMC登録によって担保される。APMP地域では2010年時点で日本、中国、韓国、シンガポール、オーストラリアが光コムを保有しており、うち数カ国はファイバーコムを保有しているが、日本以外は市販化された装置を購入したものであり、産総研は製作から行うなど関連技術の高さが評価され、APMPのノード・ラボとなっている。2010年4月に産総研で行われたヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーの国際比較は、我々のファイバーコムの威力を示す象徴的なイベントであった。アジア・オセアニア地区内の8ヶ国の標準研が633 nmヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーをノード・ラボである産総研に持ち寄り、開発されたファイバーコムを利

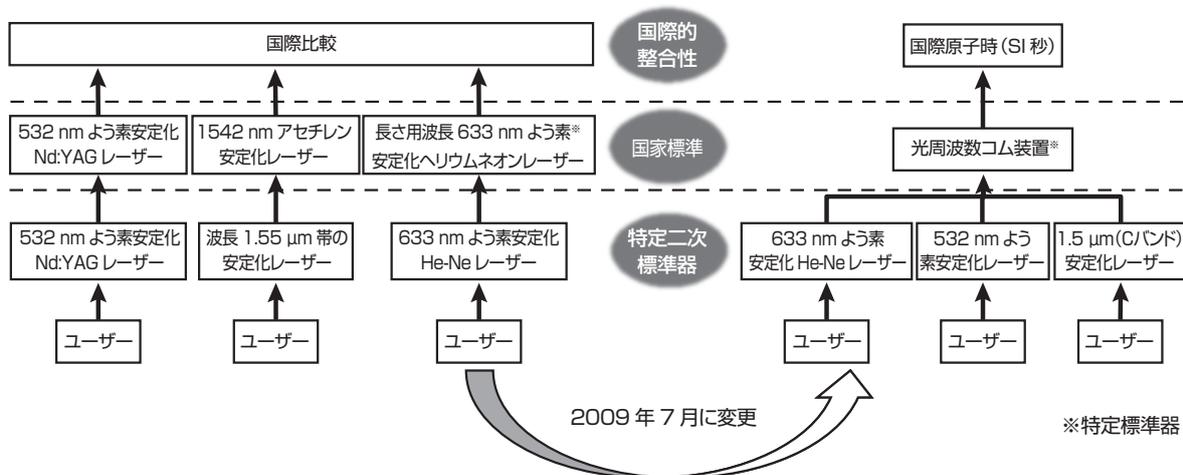


図7 新旧長さ計測のトレーサビリティ体系（SI～特定二次標準器）
光周波数コムを国家標準に据えることにより、すべての波長域でシンプルなトレーサビリティ体系を実現している。

用してレーザーの周波数比較を行った。我々のファイバーコムは堅牢かつ正確であり、前述した通り測定もシンプルであるため、測定は極めて順調に行われ、およそ1日ですべての測定が終了した。さらに、各研究所の希望で行った周波数安定度の測定には時間がかかるのだが、夜中でもファイバーコムの無人運転に不安はなく、すべての安定化レーザーに対して性能評価の一助となる長期周波数安定度測定を行うことができた。8ヶ国のレーザーの測定結果は、すべて国際度量衡委員会勧告リストの不確かさ範囲内に入っており、安定化レーザーの同等性が確認された^[22]。それらのレーザーは各国において長さの国家標準の役割を担っている。すなわち、これら8ヶ国において、長さのSIへのトレーサビリティを考えたとき、産総研のファイバーコムを必ず通っていることになる。

5.4 高速制御型光コムの光格子時計への適用

我々のグループでは、次世代の周波数標準を目指した「光格子時計^[23]」を開発している。光格子時計に代表される、光周波数領域の時計遷移を基準とした「光時計」においては、その遷移の周波数幅が極めて狭く、また遷移確率が低いため、時計遷移観察用レーザーのスペクトル線幅を狭くする必要がある。そのようなレーザーを実現するため、フィネスが高く、熱膨張率の低い共振器を真空中で温調して高度に安定化し、その共振器の透過モードにレーザーを安定化する方法が採られている。我々はYbおよびSr、二種の光格子時計を開発しており、時計遷移波長はそれぞれ578 nm、および698 nmである。それぞれの時計遷移波長用に高安定共振器を用意するのが一般的な方法であるが、我々は高安定共振器を時計遷移波長とは異なる波長1064 nmで用意し、高速制御可能な光コムを用いてその周波数安定度や線幅を578 nmおよび698 nmに転送する「線

幅転送」(図8)を提案・実現する^[24]に至っている。

この方法の利点には、①堅牢かつ高性能なレーザーが用意できる波長(例えば1064 nm)用の共振器を利用でき、かつ高安定共振器は一つ用意すれば良いため、信頼性の高い高安定レーザーシステムを構築できる。②二つの光格子時計の周波数比を測定する際、基準となる高安定レーザーの周波数揺らぎを相殺でき、この方法以外では実現できない高い周波数安定度が得られる。③高安定共振器の縦モード間隔(通常2 GHz程度)よりも光コムのモード間隔(40-200 MHz)は小さく、時計遷移周波数へ橋渡しするための音響光学変調器の選択に自由度が増す。などがあり、複数の光時計システムを運用する上で重要な技術となるだろう。

6 まとめ

どこまで分解して自家製作するか、または市販品で済ませるかは難しい問題だが、我々の場合、モード同期ファイバーレーザーおよび超短光パルス増幅器の自家製作化はもくろみ以上の大成功であった。元々我々が得意とする光学系の設計と構築、レーザー制御、および周波数計測といった技術を活かしやすいようにレーザー、増幅器系を最適化して設計・製作することができ、仕様変更も迅速に行えるため、開発スピードが飛躍的に向上した。その結果、短時間だけ使える光周波数計測器、またはデモンストレーションの道具であった光コムが、光通信帯波長の校正に対応し、長さの国家標準の置き換えを実現するだけでなく、光格子時計のレーザーシステム等で実戦配備されるようになったことは、光コムを実用的な装置にするための第2のブレークスルーであったと言えるだろう。

国家標準について、我々は早くから光通信帯での校正

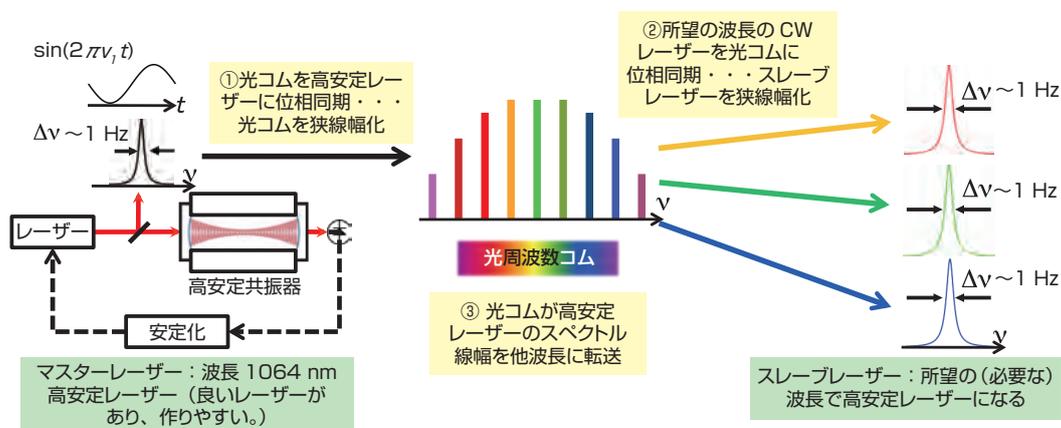


図8 光周波数コムを用いた「線幅転送」

任意波長の狭線幅化マスターレーザーに光コムの一モードを位相同期して狭線幅化し、同時に f_{CEO} も高速制御により狭線幅化することにより、広帯域光コムのすべてのモードが狭線幅化される。この方法により、マスターレーザーの線幅や周波数安定度を、所望の波長のレーザーに転送することができる。この方法を実現するには、「①光コムを高安定レーザーに位相同期」を可能とする「高速制御型光コム」が必要である。

サービスの重要性を認識し、トレーサビリティ体系の整備、および校正業務について、常に先手を打って運用を行ってきた。最近では、依頼試験の件数が着実に増えてきており、光通信帯に光のものさしを持つことの戦略的意義の大きさが実証されたと考えている。8ヶ国という大規模な国際比較が短時間で完了できたのは思わぬ副産物であったが、ファイバーコムの実力を象徴する実例となった。

ファイバーコムは高い信頼性と比較的シンプルな構成を持つが、他分野への応用や製品化を考えれば、より高いレベルでの信頼性向上とよりシンプルな構成が必要である。そのためには企業との協力が必要である。これまで、NEDO 産業技術研究助成事業等を活かした複数企業との共同研究や技術研修を通じて技術移転を行っている他、ファイバー光学系や制御系を分割してモジュール化することにより、高性能ファイバーコムの製品化も目指している。ファイバーコムの小型化・製品化・低価格化が実現されると、光通信分野では、校正のみならずグリッド波長に厳密に対応した信号光をそのまま発生させるなど、通信技術そのものに入り込む可能性が出てくるだろう。また、長さ標準分野においては、登録事業者が光コムを持つようになり、最終的にはヨウ素安定化ヘリウムネオンレーザーを持ち運ぶ必要がなくなる。光通信技術、国内でのトレーサビリティ体系、および安定化レーザーの国際比較 CCL-K11 のスキームも時代と共に変貌し、より合理的になっていくことが予想され、我々のファイバーコムがその一助となることを期待している。

用語の説明

用語 1: モード同期レーザー：縦モード間隔に近い周波数で、損失や屈折率の変調が共振器に加わると、縦モード間隔が変調周波数に引き込まれて等しくなる。これをモード同期といい、外部から変調を加えることでモード同期する場合を強制モード同期 (active mode-locking)、外部から変調を加えず、共振器内の光パワーの変動によってモード同期する場合を受動モード同期という。

用語 2: 高非線形ファイバー：モード同期レーザーの出力のスペクトルを1オクターブ以上に広帯域化するために使われる、高い非線形係数を持った光ファイバー。800 nm付近にゼロ分散波長を持つフォトニック結晶ファイバーも高非線形ファイバーではあるが、通常は1.5 μm帯にゼロ分散波長を持つものを指す。

用語 3: サイドバンド型光コム：モード同期レーザーによる光コム以前に用いられていた光コム的一种。共振器内に電気光学変調器を挿入し、縦モード間隔周波数に近い変調周波数を与えることで、入力するCWレーザーに比較

的広帯域にわたる多数のサイドバンドが得られる。非常に高いモード間隔周波数が得られ、1モード当たりのパワーも大きい。CEO信号が得られたという報告は今までになく、モード同期レーザーによる光コムの台頭後は周波数計測用にはあまり用いられなくなっている。

用語 4: APMP (Asia Pacific Metrology Programme) : アジア太平洋計量計画。1980年に発足し、APEC (アジア太平洋経済協力会議) 傘下でのメートル条約に基づくメトロロジー (計量) 活動における地域計量組織として、各国の標準器の国際比較や技術協力等の活動を行う。世界にはAPMPの他、北アメリカのSIM、ヨーロッパ大陸を中心としたEUROMET、およびその他大小6つの地域計量組織があり、相互に協力関係にある。

用語 5: CMC (Calibration and Measurement Capability) : 校正・測定能力。メートル条約に基づき、国際的に審査を経て認められた、各国の国家標準が持つ測定の不確かさ。

用語 6: 光格子時計：光周波数に時計遷移周波数をもつ「光時計」のうち、高い正確さと周波数安定度とを両立できることから、次世代の周波数標準として最も有力といわれる方式。東京大学の香取教授により提案された方法で、提案からわずか10年程度で世界中の有力標準研究機関で研究開発されるようになった。

参考文献

- [1] H. Schnatz, B. Lipphardt, J. Helmcke, F. Riehle and G. Zinner: First phase-coherent frequency measurement of visible radiation, *Phys. Rev. Lett.*, 76 (1), 18-21 (1996).
- [2] Y. Miki, A. Onae, T. Kurosawa, Y. Akimoto and E. Sakuma: Frequency chain to 3.39-μm CH₄-stabilized He-Ne-laser using Josephson point-contact as harmonic mixer, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 1*, 33, 1655-1658 (1994).
- [3] T. J. Quinn: Practical realization of the definition of the metre, including recommended radiations of other optical frequency standards (2001), *Metrologia*, 40 (2), 103-133 (2003).
- [4] 石川純: 誰でも作れて携行できる長さの国家標準器, *Synthesiology*, 2 (4), 276-287 (2009).
- [5] T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth and T. W. Hänsch: Absolute optical frequency measurement of the cesium D₁ line with a mode-locked laser, *Phys. Rev. Lett.*, 82, 3568-3571 (1999).
- [6] D. J. Jones, S. A. Diddams, J. K. Ranka, A. Stentz, R. S. Windeler, J. L. Hall and S. T. Cundiff: Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis, *Science*, 288 (5466), 635-639 (2000).
- [7] T. Okuno, M. Onishi, T. Kashiwada, S. Ishikawa and M. Nishimura: Silica-based functional fibers with enhanced nonlinearity and their applications, *IEEE J. Sel. Top. Quant. Electron.*, 5, 1385-1391 (1999).
- [8] J. K. Ranka, R. S. Windeler and A. J. Stentz: Optical properties of high-delta air silica microstructure optical fibers, *Opt. Lett.*, 25, 796-798 (2000).
- [9] A. Onae, T. Ikegami, K. Sugiyama, FL. Hong, K. Minoshima, H. Matsumoto, K. Nakagawa, M. Yoshida and

S. Harada: Optical frequency link between an acetylene stabilized laser at 1542 nm and an Rb stabilized laser at 778 nm using a two-color mode-locked fiber laser, *Opt. Commun.*, 183, 181-187 (2000).

[10] FL. Hong, K. Minoshima, A. Onae, H. Inaba, H. Takada, A. Hirai, H. Matsumoto, T. Sugiura and M. Yoshida: Broad-spectrum frequency comb generation and carrier-envelope offset frequency measurement by second-harmonic generation of a mode-locked fiber laser, *Opt. Lett.*, 28 (17), 1516-1518 (2003).

[11] T. R. Schibli, K. Minoshima, FL. Hong, H. Inaba, A. Onae, H. Matsumoto, I. Hartl and M. E. Fermann: Frequency metrology with a turnkey all-fiber system, *Opt. Lett.*, 29 (21), 2467-2469 (2004).

[12] H. Inaba, Y. Daimon, FL. Hong, A. Onae, K. Minoshima, T. R. Schibli, H. Matsumoto, M. Hirano, T. Okuno, M. Onishi and M. Nakazawa: Long-term measurement of optical frequencies using a simple, robust and low-noise fiber based frequency comb, *Opt. Express*, 14 (12), 5223-5231 (2006).

[13] FL. Hong, J. Ishikawa, ZY. Bi, J. Zhang, K. Seta, A. Onae, J. Yoda and H. Matsumoto: Portable I₂-stabilized Nd : YAG laser for international comparisons, *IEEE T. Instrum. Meas.*, 50 (1), 486-489 (2001).

[14] D. Strickland and G. Mourou: Compression of amplified chirped optical pulses, *Opt. Commun.*, 56 (3), 219-221 (1985).

[15] Y. Nakajima, H. Inaba, FL. Hong, A. Onae, K. Minoshima, T. Kobayashi, M. Nakazawa and H. Matsumoto: Optimized amplification of femtosecond optical pulses by dispersion management for octave-spanning optical frequency comb generation, *Opt. Commun.*, 281 (17), 4484-4487 (2008).

[16] M. Nakazawa, K. Kurokawa, H. Kubota, K. Suzuki and Y. Kimura: Femtosecond erbium-doped optical fiber amplifier, *Appl. Phys. Lett.*, 57, 653-655 (1990).

[17] L. Nugent-Glandorf, T. A. Johnson, Y. Kobayashi and S. A. Diddams: Impact of dispersion on amplitude and frequency noise in a Yb-fiber laser comb, *Opt. Lett.*, 36 (9), 1578-1580 (2011).

[18] Y. Nakajima, H. Inaba, K. Hosaka, K. Minoshima, A. Onae, M. Yasuda, T. Kohno, S. Kawato, T. Kobayashi, T. Katsuyama and FL. Hong: A multi-branch, fiber-based frequency comb with millihertz-level relative linewidths using an intra-cavity electro-optic modulator, *Opt. Express*, 18 (2), 1667-1676 (2010).

[19] K. Iwakuni, H. Inaba, Y. Nakajima, T. Kobayashi, K. Hosaka, A. Onae and FL. Hong: Narrow linewidth comb realized with a mode-locked fiber laser using an intra-cavity waveguide electro-optic modulator for high-speed control, *Opt. Express*, 20 (13), 13769-13776 (2012).

[20] A. Onae, K. Minoshima, J. Yoda, K. Nakagawa, A. Yamaguchi, M. Kourogi, K. Imai and B. Widiyatomo: Toward an accurate frequency standard at 1.5 μm based on the acetylene overtone band transition, *IEEE T. Instrum. Meas.*, 48, 563-566 (1999).

[21] M. Kourogi, K. Nakagawa and M. Ohtsu: Wide-span optical frequency comb generator for accurate optical frequency difference measurement, *IEEE J. Quant. Electron.*, 29, 2693-2701 (1993).

[22] M. Matus, P. Balling, P. Kren, P. Mašika, FL. Hong, J. Ishikawa, H. Inaba, K. Hosaka, M. Yasuda, D. Akamatsu, A. Onae, RH. Shi, JL. Peng, E. Howick, J. Qian, XY. Liu, M. Ranusawud, A. Tonmueanwai, S. L. Tan, ZX. Chao, KH. Yeoh, N. Mat Daud, T. K. Chan, R. Fira, O. Stalder, K. Tomanyiczka and L. Robertsson: The CCL-K11 ongoing key comparison: final report for the year 2010, *Metrologia*, 48 (2011).

[23] M. Yasuda, H. Inaba, T. Kohno, T. Tanabe, Y. Nakajima, K. Hosaka, D. Akamatsu, A. Onae, T. Suzuyama, M. Amemiya and FL. Hong: Improved absolute frequency measurement of the ¹⁷¹Yb optical lattice clock towards a candidate for the redefinition of the second, *Appl. Phys. Express*, 5 (2012).

[24] H. Inaba, K. Hosaka, M. Yasuda, Y. Nakajima, K. Iwakuni, D. Akamatsu, S. Okubo, T. Kohno, A. Onae and FL. Hong: Spectroscopy of ¹⁷¹Yb in an optical lattice based on laser linewidth transfer using a narrow linewidth frequency comb, *Opt. Express*, 21 (7), 7891-7896 (2013).

執筆者略歴

稲場 肇 (いなば はじめ)

1993年北海道大学大学院工学研究科応用物理学専攻修士課程修了。同年工業技術院計量研究所入所。連続発振ファイバーレーザーの開発に従事。2001年より産業技術総合研究所計測標準研究部門主任研究員。2004年博士(工学)(北海道大学)。以後、光コム の発生、制御、そして光周波数標準関連技術への応用の研究に従事。2008年文部科学大臣表彰。2012年市村学術賞。この研究においては、ファイバーコムの自家製作、国家標準化、および狭線幅化で主導的役割を果たした。



大苗 敦 (おおなえ あつし)

1988年東京大学大学院理学系研究科物理学専攻博士課程中退。同年工業技術院計量研究所入所。1990年理学博士(東京大学)。アセチレン分子を用いた光通信帯での波長標準器の開発、およびその評価のための光周波数計測技術の研究に従事。現在、産業技術総合研究所計測標準研究部門上級主任研究員。2003年応用物理学会・光・量子エレクトロニクス業績賞。2008年文部科学大臣表彰。この研究では、光通信帯波長における技術開発(安定化レーザー開発、および光コムを用いた周波数計測)で主導的役割を果たした。



洪 鋒雷 (こう ほうらい)

1992年東京大学大学院理学系研究科物理学専攻博士課程修了。92年理化学研究所基礎科学特別研究員。94年より工業技術院計量研究所入所、現在産業技術総合研究所計測標準研究部門時間周波数研究科長。高分解能レーザー分光、光コムと光周波数計測の研究に従事。2008年文部科学大臣表彰。2012年市村学術賞。この研究においては、ファイバーコム黎明期の学術的成果、ファイバーコムの国家標準化、および波長安定化レーザーの国際比較で主導的役割を果たした。



査読者との議論

議論1 全般

質問・コメント(小林 直人:早稲田大学研究戦略センター)

この論文は、光周波数コムの発生に関して、従来行われていた固体レーザーによるコム発生に関する数々の欠点を、ファイバーレーザーを利用することにより克服し、光通信周波数領域における標準等に結びつけて優れた性能を実証したものであり、優れた構成学の論文であると言えます。

質問・コメント（土田 英実：産業技術総合研究所）

Hall、Hänschらによる光周波数コムの基本原理解明をベースとして、より実用的な装置に仕上げるための研究開発と位置づけられます。ファイバーコム自体の開発に関しては、目標が明確であり、目標達成までの道筋も詳細に記述されています。

議論2 標題について

質問・コメント（土田 英実）

標題が「通信の大容量化に対応する長さの国家標準」となっていますが、光通信で必要とされるのは「長さ」標準ではなく、「光周波数」標準です。論文の趣旨と合致した標題、例えば、「光通信の大容量化を支える光周波数の国家標準」などのように変更することは可能でしょうか。

回答（稲場 肇、大苗 敦、洪 鋒雷）

通信帯波長への対応はもちろん重要なミッションであり、校正技術の確立において我々は常に先手を打ってきました。ただ一方で、長さ標準の実現技術もまた我々の重要なミッションであり、SIメートルを実現する国家標準の運用を長きにわたって行ってきました。歴史的にも、長さ標準の実現はより古くから行われており、光周波数標準が必要になったのは21世紀に入ってからですので、説明としては長さ標準→光周波数標準の順番にさせて頂きたいと存じます。また、そのような理由により、表題についても変更なしでご了承願えれば幸いです。

議論3 光ファイバーコムの応用分野

質問・コメント（土田 英実）

光ファイバーコムの主要な応用分野として、光通信に重点を置いていることは、標題から理解できますが、5章の内容は、光通信から長さ標準、国際比較、高速制御等多岐に渡っており、発散している印象を受けます。長さ標準に関わる内容を記載してもよいと思いますが、光通信の部分をもう少し膨らませることはできないでしょうか。光通信で規定されている周波数グリッド、周波数計測技術に対する要求、光ファイバーコムが産業界でどのように利用されているかなどの記述があれば、理解が一層深まると思います。

回答（稲場 肇、大苗 敦、洪 鋒雷）

今回解説したファイバーコムの成果では、「いろいろな応用ができた」ことも重要なポイントと考えていました。しかし、ご指摘のとおり発散しているという印象を持たせないよう、光通信の記述を充実させるために5章の冒頭に追記を行いました。

議論4 ファイバーコム開発の動機や予測

質問・コメント（小林 直人）

この論文によると、ファイバーコムにより固体レーザーコムの欠点をほとんど克服し、非常に高精度の光コムを作ることができたことですが、2点ほど質問があります。(1) ファイバーコムを開発しようという動機ですが、論文によると共同研究企業が高性能ファイバーレーザーを提供してくれたからとの記述がありますが、ファイバーコムを開発すれば高性能コムになりそうだとこの予測は始めからあったのでしょうか。(2) ファイバーコムを自作したことが今回の大きな開発要素となったとの記述がありますが、そうすることによって始めからうまくいく予測があったかどうかをお聞きしたいと思います。

回答（稲場 肇、大苗 敦、洪 鋒雷）

2002～2004年の科学技術振興調整費プロジェクト「ブロードバンド光シミュライザー」で、ある企業との共同研究が実現しました。その会社のモード同期ファイバーレーザーは信頼性が高く、非線形結晶

を内蔵するなど波長800nm帯の光コムも発生できるなど、優秀なレーザーでした。2004年には高非線形ファイバーと組み合わせた絶対光周波数計測も実現して、ファイバーコムの開発は一段落しました。

しかし、レーザーシステムはその会社が開発したものですから、例えばビート信号のS/Nが低くてもコム発生部には手を入れられず、他にも制御系等に不満がありましたが、改造はその会社に依頼しなくてはなりません。また、光コムを使って行いたい研究はたくさんあり、多数の光コムが必要でした。それらのことから、その後の改善、そしてツールとして研究を展開していくためには、モード同期ファイバーレーザーから増幅系、非線形ファイバ(HNLF)の選定など、すべてのシステムを自作することが重要だと考えました。

コムの製作については、Ti:Sコムおよびメーカ製ファイバーコムでの経験、CWファイバーレーザー製作の経験などがありましたので、超えなければならない課題は多いと思いましたが、少なくとも周波数計測できるシステムは自作できるだろうと思っていました。自作のシステムが最も使いやすく、高い性能のものになるという自信まではありませんでしたが。

しかし、現在、市販のコムシステムを見る機会がたまにあります、気に入らない仕様があっても、自分で改造しにくい構造になっていて、それを自分が使わなければならないとしたら辛い、と思います。

議論5 光コムとしての高性能の実現

質問・コメント（土田 英実）

4.1節の始めに、Ti:Sレーザーとファイバーレーザーの性能（出力、パルス幅）を比較した記述がありますが、光コムとして動作させるために、どのようにして性能の差を克服したのか明確には記載されていません。用いた手法（光増幅、パルス圧縮等）と、性能差がどこまで小さくなったかを具体的に記載して下さい。

回答（稲場 肇）

光コムの広帯域化においては、出力やパルス幅といったレーザー側の性能を上げることも有効ですが、高非線形ファイバーの選定やCEO信号検出方式の工夫といったレーザー以外の最適化も必要でした。今回は、例えば、波長帯域が1オクターブに満たないコムのCEO信号を2f-3f干渉計で検出したり、最適な高非線形ファイバーを見つけて適用したりすることにより、CEO信号を検出することができました。4.5節にも加筆しましたが、レーザーの自家製作以降も、Ti:Sコムと比較したとき、パワーやパルス幅といった時間軸上での性能差は特に小さくなっておりません。我々がめざし、開発したのは高速制御による低い雑音性能、および堅牢性を持つ、周波数軸上で高性能かつ実用的なファイバーコムです。

議論6 光コムとしての高性能の実現

質問・コメント（土田 英実）

4.3節に分散制御の必要性が詳しく記述されていますが、光ファイバー通信や超短光パルスに関わる研究者にとっては、常識的な内容に思われます。また、平均パワーとピークパワーの区別が明確ではなく、スペクトル拡がりとの関係も理解しにくくなっています。出力増大を伴う原因も含めて、わかり易い記述に改めて下さい。

回答（稲場 肇）

平均パワー、ピークパワーについては、ご指摘の通り区別いたしました。また、出力増大に伴う原因についても、仮説ではありますが加筆致しました。分散制御について4.3で述べた、光アンプへの入射光パルスのチャープ量を適正に調整すると、出力光の平均パワーが増大する現象は、論文、および特許として認められたオリジナルな成果ですので、ご了承いただければ幸いです。

ソーラー水素製造の研究開発

— 独創的な光触媒-電解ハイブリッドシステムの実現を目指して —

佐山 和弘*、三石 雄悟

新しい太陽エネルギー変換技術の実用化および再生可能エネルギー社会の実現のためには、今から方向性を見定めて段階的かつ戦略的に研究することが重要である。この論文では、「ソーラー水素製造」の意義を明確化した。さまざまなソーラー水素製造技術を比較し、その実現可能性を議論した。特に著者らが開発した産総研の独自技術である「光触媒-電解ハイブリッドシステム」について、他の技術と比較しながらその有効性を検討した。コスト試算を行うことで、このシステムが低コストのソーラー水素製造のための有力な候補技術になることを示すとともに、その実用化に向けたシナリオについて議論した。

キーワード: ソーラー水素製造、光触媒-電解ハイブリッドシステム、人工光合成、レドックス媒体

Research and development of solar hydrogen production

– Toward the realization of ingenious photocatalysis-electrolysis hybrid system –

Kazuhiro SAYAMA* and Yugo MISEKI

It is important to carry out research strategically and in a step-by-step manner in order to put new solar energy conversion technologies into practical use and to realize a society based on renewable energy. In this paper, we clarified the meaning of “solar hydrogen,” compared various solar hydrogen production technologies, and discussed their feasibilities. Specifically, we showed the effectiveness of the “photocatalysis-electrolysis hybrid system,” which was invented by AIST, as a promising candidate technology for low cost solar hydrogen production, based on preliminary cost estimations. The scenario toward the realization of the hybrid system is also discussed.

Keywords: Solar hydrogen production, photocatalysis-electrolysis hybrid system, artificial photosynthesis, redox mediator

1 緒言: 太陽エネルギー利用技術の意義と課題

化石資源の枯渇問題やその消費で排出される炭酸ガスによる地球温暖化問題が近年顕在化し、それらに対応するためには化石資源依存度をできるだけ早く低下させる必要がある。人類が持続可能な社会を構築し発展を続けるためには、再生可能エネルギーの革新的な有効利用技術の早期開発が不可欠である。再生可能エネルギーの中でも太陽エネルギーは最も膨大であり、風力、波力、潮力、バイオマスの源でもある。地球に降り注ぐ太陽エネルギーの1時間分で世界中の全エネルギー消費量の1年分を賄うことができ、その総量は風力や地熱、水力のそれぞれ約500倍、5千倍、5万倍も大きい。しかし、太陽エネルギーにはエネルギー密度が低いことおよび天候の影響が大きいという二つの重大な欠点があるため、有効利用できる技術が限定されている。太陽光発電や太陽熱利用、バイオマス利用による燃料製造はすでに実用化されているが、これらの

技術の延長上の研究によって化石資源を代替し、地球規模でのエネルギー問題の解決に至るかどうかはまだ見通せない。

エネルギー密度が低い太陽エネルギーをさらに有効利用するためには、太陽光発電以上に安価でかつ非常にシンプルな革新的技術開発が必要不可欠である。太陽エネルギー利用の選択肢の一つに、植物の光合成と同じように光子を直接化学エネルギーに変換する人工光合成技術(Artificial photosynthesis)がある。人工光合成という言葉は非常に魅力的であるが、定義が曖昧であるために誤解を招きかねない。広義には植物の光合成機構の全体または一部を模倣することであり、必ずしもエネルギー問題の解決を目的としない研究も多い。エネルギー問題が顕在化した状況において、新しい太陽エネルギー変換技術の実用化を早期に実現するためには、人工光合成に関する言葉の意味や研究開発シナリオを再考する必要がある。

産業技術総合研究所 エネルギー技術研究部門 〒305-8565 つくば市東 1-1-1 中央第5

Energy Technology Research Institute, AIST Tsukuba Central 5, 1-1-1 Higashi, Tsukuba 305-8565, Japan * E-mail:k.sayama@aist.go.jp

Original manuscript received July 2, 2013, Revisions received September 19, 2013, Accepted September 30, 2013

2 ソーラー水素製造とは何か

人工光合成技術の中で、光触媒や光電極を用いた「ソーラー水素製造 (Solar hydrogen production)」という言葉が使われはじめています。2012 年度には経産省の未来開拓技術実現プロジェクトにおいてソーラー水素という言葉を用いて光触媒や光電極による水分解水素製造の研究がスタートしている。ソーラー水素製造は太陽エネルギーによる水分解水素製造に特化し、かつクリーンで持続可能な水素社会実現のために用いる(図1)。人工光合成およびソーラー水素製造技術の研究の期待される最終ゴールはどちらも地球規模でのエネルギー問題の解決であるが、後者は目的指向の意味をより強く含んで用いられている点が重要である。光合成機構は明反応と暗反応に大別されるが、光子によりエネルギー蓄積型の化学反応を直接進行させているのは水から酸素を引き抜きながら高いエネルギー状態の還元体を生成する前段の明反応であり、水の分解反応が光合成の基本反応である。もし水を原料として太陽エネルギー由来の水素さえ膨大に製造できれば、後段の暗反応に相当する炭酸ガス固定化反応には多くの既存技術を応用できる。人工光合成の研究の中では暗反応の有機物合成のみに注目した研究例も多いが、明反応のエネルギー蓄積型の化学反応と結びつかなければ、エネルギー問題の解決にはつながらない。人工光合成という言葉から連想される目的や方向性は不明確であり、多くは第1種基礎研究の範疇である。この段階から第2種基礎研究に早急に移行するには目的指向の言葉を意識して用いる必要がある。以上の考えに基づき、この論文では人工光合成技術の中で、太陽エネルギーによる持続可能社会の構築という目的指向で、かつ水を分解して水素と酸素を製造する技術を「ソーラー水

素製造」として第2種基礎研究に位置づけて議論する。(なお、太陽光発電と電気分解の二つの技術を組み合わせるシステムは広い意味ではソーラー水素製造になるが、直接光子を化学反応に利用していないので人工光合成の範疇には入らない。また、太陽光を集光した高熱を用いる発電利用や熱化学サイクルによる水分解はこの論文では扱わない。)

図2にさまざまな太陽エネルギー変換利用技術に関して縦軸を太陽エネルギー変換効率、横軸をコストやシステムの複雑さとしてイメージした技術マップを示す。太陽光発電や太陽熱利用、バイオマス利用による燃料製造は右肩下がりの実用ラインに乗っている。現状の光触媒や光電極を用いたソーラー水素製造技術はまだ実用化には遠いが、第7章で議論するように、将来的には少なくとも太陽光発電+電気分解の組み合わせシステムと比較して、圧倒的にシンプル・低コストでありながら実用的な効率を示す必要が当然ある。ソーラー水素製造技術の実用化と普及、および将来の化石資源に頼らない再生可能エネルギー社会の実現は、決して容易ではなく長い時間がかかるので、今から方向性を見定めて段階的かつ戦略的に研究することが望ましく、将来的にどのような技術が一番早く実用化ラインを超えて最終的なゴールにたどり着くかを見定める必要がある。

この論文では、さまざまなソーラー水素製造技術を比較し、その将来性を議論する。特に著者らが開発した「光触媒-電解ハイブリッドシステム」^{[1][2]}について、他の技術と比較しながら、その有効性や経済性、実用化に向けたシナリオを示すこと、第2種基礎研究のスタートラインに立てるかどうか議論することを主な目的としている。

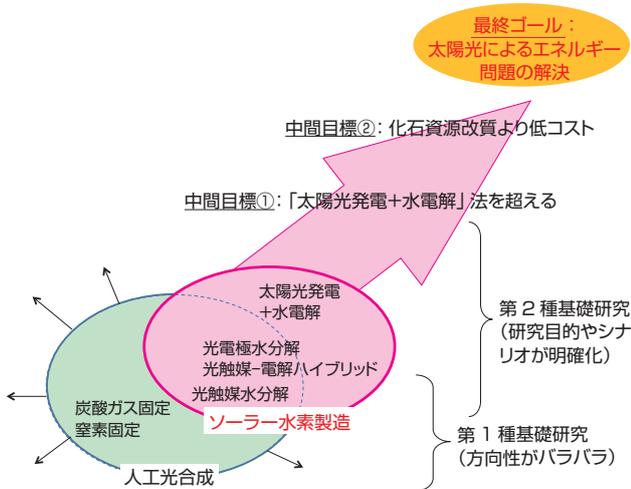


図1 ソーラー水素製造の位置付けおよび中間目標と最終ゴール

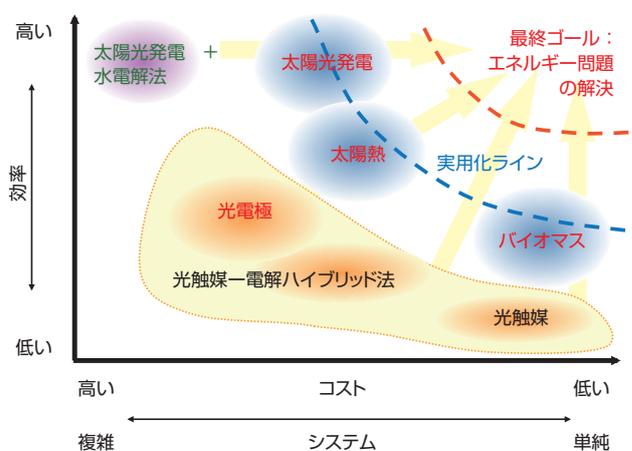


図2 さまざまな太陽エネルギー変換利用の技術マップ

3 ソーラー水素製造の実用化に向けた研究シナリオの重要性とコスト目標

3.1 長期的なシナリオと適切な中間目標の設定

人工光合成やソーラー水素製造の研究は化石資源価格に大きく影響を受けてきた。石油ショックの頃に第一次ブームがあったが、1986年以降石油価格が低下すると研究は急速に停滞した。1990年代になると、地球温暖化問題がクローズアップされ、さらに石油価格が上昇したことから、これらの研究が再度注目を集める状況になっている。米国では2010年からエネルギー省(DOE)のソーラー水素製造の大型プロジェクト(Solar Innovation Hub)がスタートしたが、シェールガス革命で天然ガス価格が大幅に下落してからは、太陽エネルギーへの関心が少し薄れてきている。このように、研究に盛衰の波があるのは仕方がないことであるが、実用化まで長期間かかる太陽エネルギー変換の研究開発にとっては望ましいことではない。長期的な研究を継続するためには、最終ゴールの研究意義の明確化だけでなく、実用化に向けた研究シナリオやロードマップ、中間目標、長期展望イメージの設定が非常に重要になる。まさにこの論文で主張すべきことを多くの人に理解してもらうことが、目標に到達するために最も効率的であり、安定して継続的な研究開発の推進につながる。東日本大震災以降、日本では再生可能エネルギー全般について関心が高まっている。期待が大きい反面、単なる理想論ではなく、実用化までの実現可能性やスピードも注目されている。

これまでに、政府のクールアース推進構想や日本学術会議、応用物理学会、日本化学会等がエネルギー関連のロードマップを作成している。例えば、東日本大震災以降にまとめられた日本学術会議の夢ロードマップ^[3]の中に人工光合成やソーラー水素製造のキーワードが多数出てくるが、その実用化は2030～2040年に置かれている。しかし、遠すぎる未来に単にキーワードが置かれている場合は、研究意義としては認められているが、短中期的な研究推進には役に立たないどころか、ネガティブに働く場合もある。今後は短中期的な戦略シナリオとともに実現可能性の高い中間目標の設定も重要になる。我々は後述のような議論を行い、図1に示すような二つの明確な中間目標、①太陽光発電と水電解を単に組み合わせた方法の水素よりも低コスト化、②化石資源改質の水素より低コスト化、を設定した。

3.2 水素製造コストとしての具体的な中間目標

新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)の燃料電池・水素技術開発における水素製造のロードマップ(2010年)^[4]ではコストに関する中間目標が記載されている。オフサイトの水素製造コストは、2020年には再生可能エネルギーを用いて低炭素化しながら、天然ガスの水蒸気改質と

同一コスト(30円/Nm³)、2030年にはそれ以下を目指している。一方、大規模太陽光発電コストに関して、政府の設置したエネルギー・環境会議のコスト等検証委員会(2011年末)の報告書^[5]での2030年見通しは9.9～26.4円/kWhである。また、NEDOの太陽光発電のロードマップ(PV2030+、2009年)^[6]では、2020年と2030年での発電コスト目標は14円および7円/kWhである。これらの値を用いて太陽光発電と大型固体高分子水電解装置を組み合わせた場合のコストを電力中央研究所の報告^[7]を基に試算すると、水素製造コストはたとえ7円/kWhの発電目標を達成しても35円/Nm³以上になる。

我々の示した二つの中間目標は太陽光発電や化石資源コストに大きく影響を受けるが、水素製造コストとしてはおおむね中間目標①で35～65円/Nm³を下回る、中間目標②で30円/Nm³以下、に相当する。将来このコスト目標を達成し、再生可能エネルギーを用いたクリーンな水素社会の実現を目指すのであれば、これまでの延長線にない革新的な技術の早期開発が不可欠である。理想的な技術であっても、克服が非常に難しい課題が多数ある場合は実用化に時間がかかることも考慮する必要がある。

4 半導体を用いたさまざまなソーラー水素製造技術の比較

4.1 半導体による水分解の原理

太陽光を利用する第一過程は光吸収材料による光子の吸収である。人工光合成の中のソーラー水素製造の研究において、光吸収材料としては半導体と色素に大別されるが、現状では前者の方が進んでいる。世界中で研究されてきた半導体を用いたさまざまなソーラー水素製造技術の研究は、歴史的には大きく光触媒系と光電極系の流れに分けられる。それぞれの原理を図3に示す。TiO₂光電極による水分解が日本で発明^[8]されて、その後に光触媒水分解の概念が確立された。半導体に光が吸収されると伝導帯に電子および価電子帯に正孔が生成し、それぞれ水の還元と酸化反応に利用される。光吸収と電荷分離の原理は太陽電池と同じであるが、太陽エネルギーを直接水素という化学エネルギーに変換して長期貯蔵できる点でその全体概念はバイオマスを利用した燃料製造に近い。

図4にさまざまな光触媒および電解による水分解技術とその電位図を示す。光触媒の水分解では、伝導帯電位は水素の酸化還元電位($E^{\circ}(\text{H}^+/\text{H}_2) = 0\text{ V}$)より負に、価電子帯電位は水から酸素を発生する電位($E^{\circ}(\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}) = +1.23\text{ V}$)より正に位置する制約がある。また、通常的光電極は図3のように外部バイアス(外部からの電力)を用いる。外部バイアスの使用により、光電極で用いる半導

体の準位の制約が無くなり、電荷分離が促進され、水素と酸素が分離発生できる長所がある。必要な外部バイアスの大きさは、図3のn型半導体の例では、理論上は伝導帯下端電位とH⁺/H₂電位の差になるので、通常の水の電気分解よりも低い電圧にできる。一方、光触媒は半導体粒子それぞれで反応が完結するので、電荷移動距離が短く、単純化できる長所をもつ。

4.1.1 光触媒系の多様化と発展

現在では光触媒系と光電極系は表1のようにさまざまな形態に分化・発展している。光触媒系は従来型光触媒（一段光励起型）、レドックス媒体を用いる二段光励起型光触媒（Z-スキーム型）、光触媒-電解ハイブリッドシステムに大きく分類される。レドックス媒体とは酸化と還元をサイクルしながら電子を受け渡す物質である。二段光励起の反応は植物の光合成と同様であり、電子の2回の光励起とレドックス媒体間の移動のジグザグな過程を形容してZ-スキーム型反応と呼ばれる。光触媒-電解ハイブリッドシステムでは、図4のように外部バイアスを用いるが、理論上はレドックス媒体の酸化還元電位と水素の酸化還元電位の

差になるので、通常の水の電気分解よりも低い電圧にできる。光触媒系はどれも日本の研究が先行している。従来型とZ-スキーム型光触媒はある条件下（太陽エネルギー変換効率で10%等）では30円/Nm³以下の水素製造コストは可能という試算があるが^[9]、表1や5章に示すように実用化のために克服すべき課題は多い。

4.1.2 光電極系の多様化と発展

光電極系はn型半導体、p型半導体、p型+n型半導体、pn接合膜に分類される。n型とp型の半導体を組み合わせたものは外部バイアス無しでも水分解できるようになる。しかし、p型半導体で水素を発生させると、Pt等の過電圧の低い水素発生助触媒の担持が膨大な面積で必要となるため、非貴金属の水素発生助触媒の開発が非常に重要になる。また、大面積での水素捕集のフードが必要である。p型半導体光電極はn型と比較して現状効率が高いが、太陽電池と同様の材料および調製方法で成膜する条件設定ではコストが非常に高くなる欠点があり、その延長上の技術では40円/Nm³以下の水素製造コストの達成は難しい^[9]（DOE試算ではセレン化合物半導体の多接合

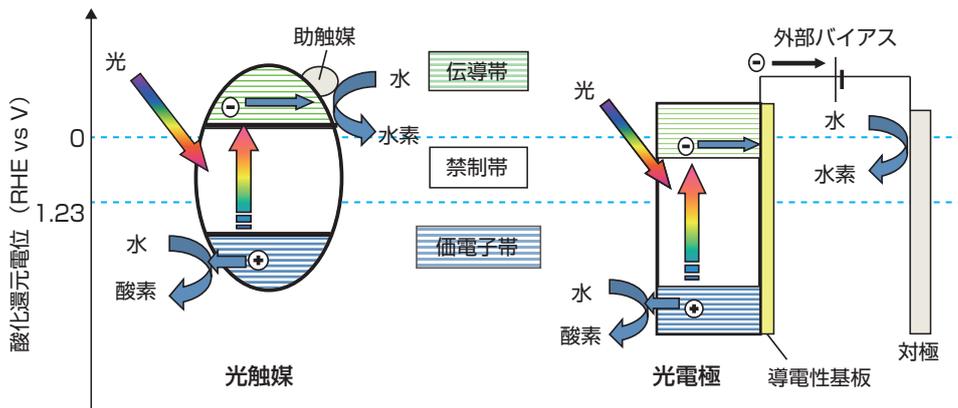


図3 半導体を用いた光触媒と光電極による水分解の原理
半導体に光が吸収されると伝導帯に電子および価電子帯に正孔が生成し、それぞれ水の還元と酸化反応に利用される。光電極の図はn型半導体の例。伝導帯の電子は対極へ移動して水素発生に使われる。

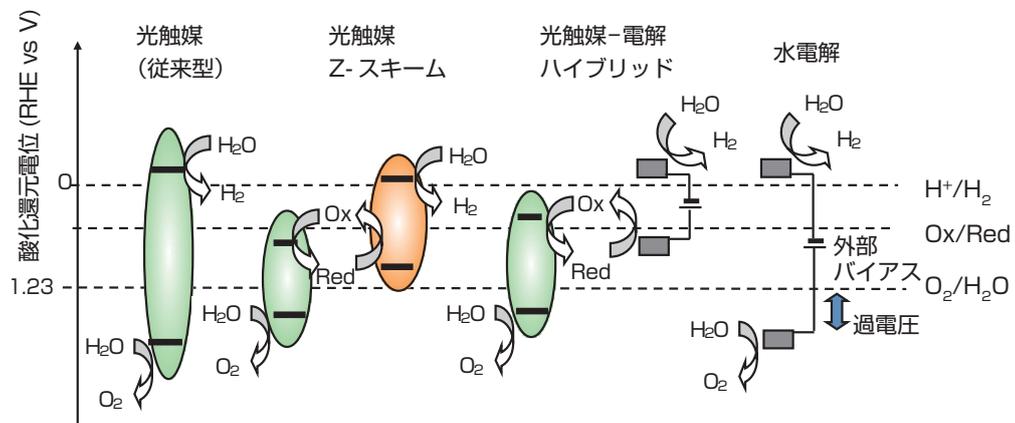


図4 さまざまな水分解水素製造技術とその電位図
OxやRedはレドックス媒体の酸化体および還元体。

表 1 半導体を用いたさまざまなソーラー水素製造技術の比較

	長所	短所
光触媒系	従来型光触媒 (一段光励起)	<ul style="list-style-type: none"> ・ 現状効率が低い ・ 水素と酸素の混合発生 ・ 水素発生用助触媒が大面積が必要 ・ 半導体の電位制約が厳しい ・ 大面積での水素捕集
	二段光励起型光触媒 (Z-スキーム型)	<ul style="list-style-type: none"> ・ 現状効率が低い ・ ガスが分離発生すると活性低下 ・ 水素発生用助触媒が大面積が必要 ・ 大面積での水素捕集
	光触媒-電解 ハイブリッドシステム	<ul style="list-style-type: none"> ・ 半導体の電位制約が少ない ・ 水素捕集が容易 ・ 効率が現状で高い
光電極系	光 n 型半導体	<ul style="list-style-type: none"> ・ 外部バイアス必要
	p 型半導体	<ul style="list-style-type: none"> ・ 効率が現状で非常に高い
	p 型+n 型半導体	<ul style="list-style-type: none"> ・ 外部バイアスが不要
	pn接合膜 (バイアス無し)	<ul style="list-style-type: none"> ・ 外部バイアスやケーブル不要 ・ 電荷の拡散長が短い

膜を使用)。n型半導体光電極に関しては明確なコスト試算は公開されていないが、調製方法や水素捕集が簡便、貴金属が対極で集約された利用なので、p型半導体光電極よりも低コスト化できると想定でき、欧州を中心に世界中で研究されている。著者らはn型の酸化物半導体光電極において最も高い太陽エネルギー変換効率の1.35% (外部バイアス考慮済み。Applied bias photon-to-current efficiency: ABPE) を報告している^[10]。

4.2 重点化すべき方式は？

もし研究開発に無限の時間があれば、最も単純な従来型光触媒での水素製造が最も低コストになるかもしれない。しかし近未来、例えば2030年までに実用化を考えるとすれば、将来的な水素製造コストだけでなく実現までの障壁の大小やスピードも考慮すべきである。図2に示すように、多くの技術に関して現状の太陽エネルギー変換効率とシステムコストや複雑さはトレードオフの関係にある。表1のソーラー水素製造技術の中でも同様の傾向がある。これらの長所短所が大きく異なる技術を比較するのは非常に難しいが、実用化を加速するには研究の重点化がある程度必要になる。著者らは、水素製造コストと実現までの障壁の両方を考慮して、独自開発した光触媒-電解ハイブリッドシステムが重点化すべき方式の一つになると考えて研究を行ってきた。次章以降では光触媒-電解ハイブリッドシステムに関して、その原理と開発に至った経緯、現状の進展状況、長所・短所を踏まえた重点化の理由、コスト試算、実用化に向けた研究シナリオについて説明する。

5 光触媒-電解ハイブリッドシステムの原理と長所

5.1 可視光を用いた光触媒水分解の限界

著者らは一段光励起による光触媒水分解の研究を25年以上継続している。紫外線での水の完全分解(H₂とO₂が化学量論比で定常的に生成すること)は多くの光触媒で実現していたが、可視光では困難であった。レドックス媒体を用いる色素増感太陽電池を同時期に研究していた関係で、少し視点を変えて、植物の光合成の二段光励起のZ-スキーム型反応を模倣し、2種類の光触媒とレドックス媒体を用いた水の完全分解に挑戦した。その結果、1997年に紫外線も一部必要であるが、Fe³⁺/Fe²⁺レドックスと光触媒、イオン光反応を組み合わせたZ-スキーム型の完全分解反応に成功した^[11]。さらに、2001年には可視光のみでの光触媒水分解に世界で初めて成功することができた^[12]。

これは、水素発生側にPt-SrTiO₃ (Crドーブ) 光触媒、酸素発生側にPt-WO₃ 光触媒、レドックス媒体としてIO₃⁻/I⁻を用いた系である。この系は人工光合成モデルとして学術的には興味深く、その後いくつかのグループから改良した光触媒の報告があったが、可視光での見かけの量子収率(QE)^{用語1}は6%程度、太陽エネルギー変換効率(η_{sun})^{用語2}は0.1%前後にとどまっていた。特に図4で示したように、伝導帯のポテンシャル制約の問題で最適な半導体材料が非常に限定され、水素発生側の光触媒の効率を高くすることが困難であった。

5.2 光触媒-電解ハイブリッドシステムの発明

光触媒による水分解反応には効率の低さだけでなく、実用化への大きなハードルがいくつかある。水素と酸素が爆鳴気として発生すること、大面積で漏れのない透明な水素捕集カバーが必要なこと、水素発生効率の性能向上のために大量の貴金属助触媒に頼らざるを得ないこと、等である。これらの問題を解決しなければ、例え高性能な光触

媒が見つかっていても実用化は困難になる。そこで著者らはより実用化に近いシステムの未来像を考えていた。

その時に会ったのが Fe^{2+} イオンによる低電圧電解水素製造のパイロットプラントの論文である^[13]。この論文では、石油化学工場から排出される H_2S ガスを焼却処分するのではなく、 H_2S から水素としてエネルギー回収することを目的としていた。 H_2S を Fe^{3+} イオンが存在するプールにバブリングすると硫黄と Fe^{2+} が生成するので、硫黄はろ過除去する。 $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ の酸化還元準位 (E^0) は + 0.77 V であるため、 Fe^{2+} を Fe^{3+} に酸化しながら水素を製造すると、電解電圧を 1 V 以下にすることができる (図 4)。通常の水の電解では、理論電解電圧の 1.23 V に加えて、酸素発生の過電圧が大きいためトータル 1.6 ~ 2 V 程度必要である。一般的な水電解による水素製造コストの大部分は電力コストであり、もし大量の Fe^{2+} さえ存在すれば、電解電圧を下げることで水素製造コストを大幅に削減できる可能性がある。

著者らはこれらをヒントにして、図 5 のように光触媒で水を酸化して酸素発生しながら Fe^{3+} から Fe^{2+} を生成し、水素発生低電圧電解と組み合わせる「光触媒-電解ハイブリッドシステム」を考案した^[14]。電解では Fe^{2+} を Fe^{3+} に戻しながら水素発生を行う。全体の反応式を図 5 下に示す。従来型の光触媒では上述の通り伝導帯電位と価電子帯電位の制約があるが、このハイブリッドシステムでは、半導体の電位制約が緩くなり、多くの可視光応答性材料が使える。さらに、光触媒表面上で水素を発生しないので、貴金属の助触媒に頼る必要が無く、水素捕集も非常に容易である。レドックス媒体にはさまざまなイオン対が利用できる。もし酸化還元準位が 0 V (RHE) に近いレドックス媒体を利用できれば電解電圧はゼロに近くなるので、このレドックス反応の光触媒の理論限界効率としては従来型の一

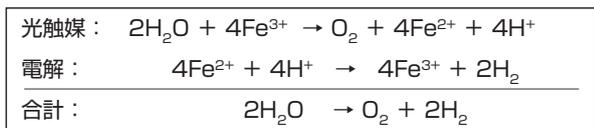
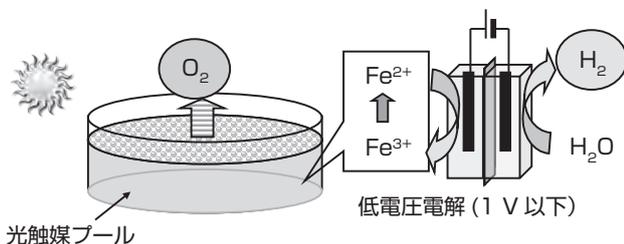


図 5 レドックス媒体を用いる光触媒-電解ハイブリッドシステム
光触媒プールは樹脂製で、光触媒粉末を成膜したフィルムおよびレドックス媒体を含む電解質水溶液から構成される。

段光励起光触媒と同等になる。レドックス媒体の反応自体が蓄電池と同様の機能を持っている。このように、「光触媒-電解ハイブリッドシステム」は、光触媒の Z-スキーム反応の水素発生側光触媒反応を電解と置き換えることで、これまでの光触媒反応の抱えるおおよそすべての問題を解決できる画期的なシステムと言える。

光触媒-電解ハイブリッドシステムで用いる外部バイアスの概念はわかりにくいですが、単なるエネルギーロスでは無いことは強調したい。外部バイアスにより供給されるエネルギーの大部分は水素として変換されている。通常の水の電気分解を 1.23 V で進行することができれば、電力から水素へのエネルギーの変換は 100 % 効率であり、過電圧分だけがエネルギーロスになる。 $\text{Fe}^{3+}/\text{Fe}^{2+}$ の過電圧は $\text{O}_2/\text{H}_2\text{O}$ よりも小さいので、エネルギーロスとしては小さくなる。外部バイアスを 1.23 V 以下にできることは、光エネルギーを用いて見かけの電解効率を 100 % 以上にできることを意味する点で重要である。

6 光触媒-電解ハイブリッドシステムの技術的な課題

6.1 レドックス反応の改善

光触媒-電解ハイブリッドシステムの実用化への要素技術を図 6 に示す。技術開発要素は光触媒やレドックス媒体以外に、電解装置およびシステム全体設計まで幅広い。光触媒-電解ハイブリッドシステムの実現のためには、特にレドックス反応に高性能な光触媒の開発が最も重要かつ困難な技術開発要素である。このレドックス反応の光触媒開発の現状を説明する。

鉄レドックス反応において、 Fe^{3+} 還元反応が高効率に進行するためには、 Fe^{3+} イオンが光触媒表面に優先的に吸着し、スムーズに電子を受け取らなければならないため、反応活性は Fe^{3+} イオンの状態に大きく影響されると考えられる。そこで著者らは、代表的な酸素生成用光触媒である TiO_2 粉末を用い、さまざまな鉄塩水溶液からの酸素生成反応を調べた^[14]。その結果、過塩素酸塩での酸素生成活性は、従来使用されている硫酸塩と比べ 10 倍以上高いことがわかった。最適条件での TiO_2 光触媒の見かけの QE は 55 % (365 nm) であった。これは可逆なレドックス反応において、太陽光に含まれる紫外線波長での QE としては最も高い値である。単純な光触媒でこのような高い QE を実現できたことは反応の将来性を推察する上で意義は大きい。

次に、可視光応答性の WO_3 光触媒についても同様に、鉄塩の対アニオン効果を検討した結果、過塩素酸塩での酸素生成活性が最も高かった。過塩素酸鉄水溶液では鉄イオンには水が優先的に配位して過塩素酸イオンは配位しに

くいが、硫酸イオンは鉄イオンに強く配位する。この鉄イオンに対する水やアニオンの配位の違いが活性に影響を与えていると推察される。また、さまざまな金属塩を含む水溶液中で WO_3 粉末に対する表面処理を行ったところ、セシウム塩水溶液中で表面処理を行った WO_3 光触媒が非常に高い酸素生成活性を示すことがわかった^[2]。420 nm での QE は 27 % まで向上し、可視光領域では最も高い値となった。セシウム処理により、 WO_3 表面にイオン交換サイトが新たに形成され、鉄イオンや H_3O^+ が吸着と反応をし易くなるメカニズムが推察される。太陽光のエネルギーが、 Fe^{2+} イオンという化学エネルギーに変換される太陽エネルギー変換効率 (η_{sun}) を計算すると、0.35 % に達した。この値は、バイオ燃料の有望原料作物として知られる雑草のスイッチグラス (0.2 %) を超える値である。また、 WO_3 よりも長波長が吸収できる他の半導体としては BiVO_4 が有望であり、520 nm までの光が利用できる。

鉄イオン以外のレドックス媒体の研究も非常に重要であり、近年いくつかのレドックス媒体が開発されている。 IO_3^-/I^- ($E^\circ = +1.086 \text{ V}$) や $\text{VO}_2^+/\text{VO}^{2+}$ ($E^\circ = +1.00 \text{ V}$)^[15]、 I_3^-/I^- ($E^\circ = +0.545 \text{ V}$)^[16] 等である。 E° がゼロに近づくほど電解に必要な電圧が小さくなる利点がある。現時点では光触媒活性やコスト、安定性、非毒性等の観点で鉄レドックス媒体が最適であると考えている。

6.2 太陽エネルギー変換効率の理論限界の評価

光触媒-電解ハイブリッドシステムの実用化の可能性を議論するために、まず理論限界太陽エネルギー変換効率 (η_{sun}) の見積もりを行った。図 7 は JIS-C-8911 で定められる AM-1.5 全天照射太陽スペクトルデータを基にして、QE を 100 % と仮定した場合の η_{sun} と半導体の光吸収波長端 (L_{max} , nm) との関係を示している。光吸収効率として L_{max} より短波長の光は 100 % 吸収 (光反射や透過のロス無し) と仮定している。ある反応の電位差 (V)

に必要な光子 1 個のエネルギー (eV) は $\lceil 1240/L_{\text{max}} \rceil$ で求められる。V と eV は等価と考えて良い。例として鉄レドックスを用いた場合および酸化還元準位が 0 V の理想のレドックス媒体を用いた場合、光触媒反応における理論限界 $\eta_{\text{sun}}^{\text{m}}$ (レドックスに蓄積されるエネルギー分) を示す。それぞれ 2700 nm および 1000 nm までのより長波長の光も理論上は利用できるが、反応過電圧に関するロス (U_{loss}) をゼロとすることは現実的ではない。 U_{loss} の見積もりに関して、これまでの水電解法では 1.6 V 以下の電解電圧 (U_{loss} として 0.37 V 以下に相当) を達成している。また、光合成においては非常に多くの電子移動過程でそのレドックス媒体の個々の電位差が 0.2 V 程度であることも参考になる。仮に U_{loss} 値を 2 種類の電子移動分の 0.4 V とすれば、鉄レドックス媒体および理想のレドックス媒体を用いた場合、それぞれ 1440 nm および 760 nm まで利用することができ、この時の $\eta_{\text{sun}}^{\text{m}}$ はそれぞれ最大 24 % と 30 % となる。このように $\eta_{\text{sun}}^{\text{m}}$ は現状で得られている η_{sun} と比較して理論上はかなり大きいので、実験値は今後十分に伸びる余地があると言える。

既存の半導体材料に関して、 WO_3 光触媒と同じ 480 nm までの光をすべて吸収し、QE = 100 % で鉄レドックス媒体の還元を行うと $\eta_{\text{sun}}^{\text{m}}$ は約 2.4 % となる。また、 BiVO_4 や Fe_2O_3 のように 520 nm および 600 nm までの光をすべてこの反応に利用できれば 3.6 % および 6.2 % まで達することがわかる。鉄レドックス媒体を用いて、QE を変数とした時の L_{max} と $\eta_{\text{sun}}^{\text{m}}$ の関係を図 8 に示す。520 nm までの光を利用して QE が 80 % 程度とすれば 3 % の $\eta_{\text{sun}}^{\text{m}}$ を達成できることがわかる。光触媒反応の大きな特徴は、粒子 1 個で反応が完結するため、複数の光触媒の混合や積層が容易な点である。光電極で異なる半導体を積層する場合は、伝導帯や価電子帯のマッチングが必要であるが、光触媒ではそれを考慮する必要が無い。つまり、複

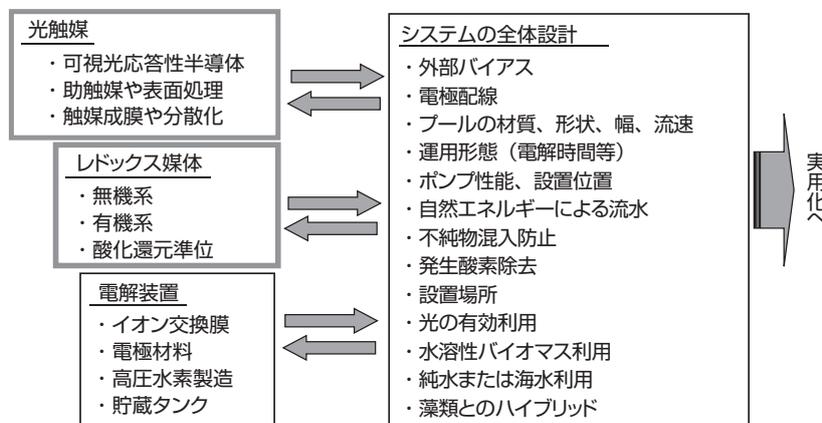


図 6 光触媒-電解ハイブリッドシステムの実用化への要素技術開発とシナリオ
太枠の光触媒とレドックス媒体は大きなブレイクスルーのために重点的に研究すべき課題である。

数の半導体光触媒について同時並行で QE を向上させる研究を行い、最後に組み合わせることで全体性能を向上することができる。

6.3 太陽エネルギー変換効率の実用的な評価

次に、実際に得られている太陽エネルギー変換効率 (η_{sun}) について議論する。これまでの成果としては上述の通り、粉末光触媒水分解の η_{sun} は 0.35 % 程度に達していることがわかった。この数字は太陽光発電と比較すればあまりにも小さい数字に見えるが、スイッチグラス等の植物の効率を超えるレベルになっている。例えば、バイオマスエネルギーを利用したバイオマスエタノール生産の場合、トウモロコシの η_{sun} は 0.8 % 程度、最も性能の高い藻類で 3 % 程度である。これは太陽光発電より 1 桁小さい数字であるが、一部の国や地域で実用化しているという事実は重要である。バイオマスエタノール生産はエネルギーを貯蔵できるという、太陽光発電にはない大きな利点もある。このように、 η_{sun} が小さくても条件やコスト次第で経済性が成り立つ場合が十分にある。光触媒水分解の概念は、太陽エネルギーを直接化学エネルギーとして貯蔵できる意味で、太陽光発電よりもバイオマスエネルギーに近いので、バイオマス利用の η_{sun} を超えることが大きなマイルストーンになる。

現状の光触媒による太陽エネルギー変換率は藻類のそれよりもまだ低いが、バイオマスの明反応自体の効率向上は遺伝子組み換えに頼る必要があり、人為的操作には限界がある。一方で、光触媒では材料探索とその調製法を工夫することで効率を飛躍的に高められる可能性がある。さらに、光触媒エネルギー変換貯蔵はバイオマスエタ

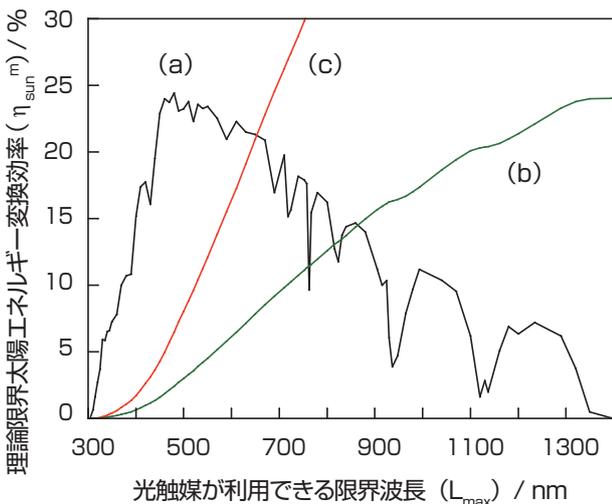


図7 光触媒のレドックス反応の理論限界太陽エネルギー変換効率 (η_{sun}^m) 光触媒が利用できる限界波長までの光吸収効率と量子収率が 100 % の場合 (a) 太陽光スペクトル、(b) 鉄イオンレドックス反応、(c) $E^\circ=0$ のレドックス反応

ノールとは異なり、収穫・粉碎・糖化・発酵等のプロセスが不要であり、枯れない、栽培の世話が少ない、砂漠や海上などどこでも使える、などの大きな利点がある。レドックスを用いた光触媒反応はおよそ開放形に近い単純なプールで進行する、まさに究極の人工光合成系である。バイオマス利用との比較により、 η_{sun} 目標としては 3 % 程度またそれ以上であれば太陽光発電とも十分に競争できると考えられる。

7 光触媒-電解ハイブリッドシステムのコスト試算と実用化の可能性

実用化の議論のために最終的には、システム全体のコスト試算を行って、水素製造コストを比較する必要がある。光触媒-電解ハイブリッドシステムにおいて、中間目標①の太陽光発電と水電解を組み合わせたシステムより低コストで水素製造が可能かどうか、中間目標②や NEDO 目標の 30 円 / Nm³ 以下になるかどうかを試算した。コスト試算の固体高分子膜型水電解については電力中研の報告書を参照した^[7]。また、光触媒プール部分および土地代については DOE の報告書を参考にした^[9]。

比較対象とする水電解装置としては、大型の固体高分子型電解装置 (32,000 Nm³/h) を仮定した。電力コストはその時間帯の最も安い電力を選択して用いるが、8 円 / kWh (夜間電力相当)、40 % 稼働率とした。光触媒-電解ハイブリッドシステムは、鉄イオンレドックスを用いて光触媒の太陽エネルギー変換効率 (η_{sun}) は 3 % とした。光触媒コストは WO₃ の 2 倍、光触媒プールはポリエチレン製、寿命 10 年で減価償却、昼間に Fe²⁺ を生成して夜間 (10 h) のみ電解を行う、とした。結果と計算の仮定の一例を図 9 に示す。上記水素発生に必要な光触媒プール面積は 3 km² となる。光触媒プールコストは 268 円 / m²

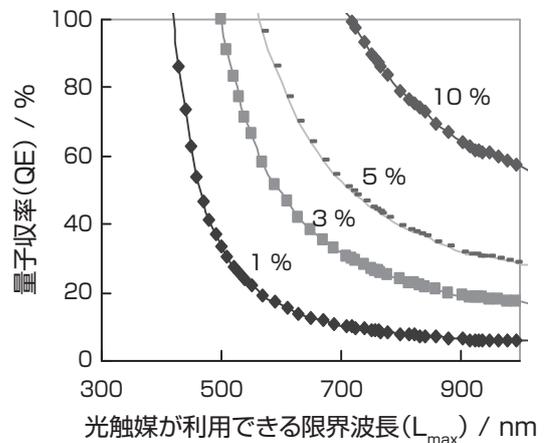


図8 光触媒の鉄イオンレドックス反応 ($E^\circ=+0.77$ V) の量子収率 (QE) と理論限界太陽エネルギー変換効率 (η_{sun}^m) 光触媒が利用できる限界波長までの光吸収効率 100 % の場合

であり、DOE の報告書 (約 300 円 /m²) と同じレベルである。光触媒プール関係 (設備、ポンプ、人件費、土地代、管理費、金利等) のコストの上乗せ金額は 3 円 /Nm³ 前後になる。Fe²⁺ を含む電解液の電解電圧を 0.8 V とすれば、電力部分のコストを約半分にするので、通常の電解と比べてこの部分のコストメリットは非常に大きい。以上の仮定から、光触媒-電解ハイブリッドシステムの水素製造コストは、25 円 /Nm³ 程度になると試算された。同じ条件で、8 円 /kWh の電力を用いた通常の大規模水電解による水素製造コストは、41 円 /Nm³ 程度になる。また 3 章で述べたように、太陽光発電による電力コストは現状で 40 円 /kWh 前後であり、仮に 2030 年の開発目標である 7 円 /kWh が達成されても、水素製造コストは 35 円 /Nm³ 以上となる。以上の試算結果の結論として、中間目標①について、光触媒-電解ハイブリッドシステムによって、太陽光発電と水電解を組み合わせたシステムより低コストで水素製造が可能であることが示された。さらに、太陽光発電を含めどのような電力を用いても、光触媒-電解ハイブリッドシステムによって水素製造を低コスト化できる可能性を示すことができた。また、中間目標②相当の 30 円 /Nm³ 以下も条件次第では達成可能であると言える。以上がコスト試算の基礎データとなる。

実際にはこれを基にコストアップ要因とコストダウン要因を追加考慮する必要がある。コストアップ要因としては、例えば、電力料金や土地関係および台風等の自然災害対策費用である。上記の前提で電力料金を 1.5 倍の 12 円 /kWh とすれば、光触媒とハイブリッドを行った電解システムと行わない通常電解ではそれぞれ 33 円 /Nm³ と 58 円 /Nm³ になる。コストダウン要因としては光触媒の太陽エネルギー変換効率の向上および鉄イオンよりも酸化還元電位がゼロに近い優れたレドックス媒体の開発等がある。理論

限界 (η_{sun}) は上述のように鉄イオンおよび理想のレドックス媒体で 24 % と 30 % 程度なので、伸び代を考慮すれば今後の光触媒の性能向上は十分可能であり、光触媒プールの面積減少につながる。また、理想的なレドックス媒体を用いて電解電力がゼロに近くすることができれば水素製造コストは 14 円 /Nm³ に近くなる。コスト試算結果と実用化までの障壁の低さ (実現可能性と時間) の両方を考慮すると、本システムを重点的に研究する意義は大きいと結論できる。

8 実用化へのシナリオ

8.1 社会的なロードマップ

経産省の未来開拓技術実現プロジェクトの光触媒の研究においては、太陽エネルギーが水素生成に寄与する効率の目標として、2014、2016、2019、2021 年度にそれぞれ 1 %、3 %、7 %、10 % の値が設定されている。最近、総合科学技術会議が地球温暖化対策に向けた 2050 年までの技術開発の工程表を盛り込んだ環境エネルギー技術革新計画の中で、人工光合成やソーラー水素の項目追加を検討しているが、上記の目標を踏襲している。数値目標の定義には曖昧な部分はあるが、太陽エネルギー変換効率として今後の実用化へのシナリオの時間的な目安となるであろう。水素製造コストについて、NEDO の水素製造のロードマップに準じるのであれば、2020 年より前に中間目標①、2030 年までに中間目標②の 30 円 /Nm³ 以下を目指すことになる。

8.2 ソーラー水素製造の今後の研究展開

光触媒 (および光電極) を用いた太陽光による水素製造はこれまで化学分野を中心に発展し、人工光合成の一部として研究されてきた。しかし、今後について著者らは、実用化を加速するために異分野融合 (ハイブリッド) しやす

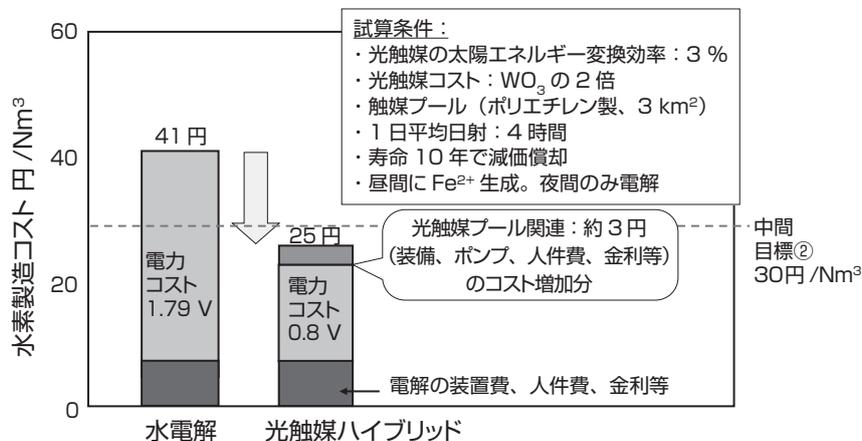


図9 光触媒-電解ハイブリッドシステムの詳細コスト試算
共通条件: 固体高分子型電解 (32,000 Nm³/h)、電力コスト: 8 円 /kWh、40 % 稼働率

いキーワードとして「ソーラー水素製造」を優先して使用した方が良い、と考えている。第2章で述べたように、ソーラー水素製造は目的指向の第2種基礎研究を明示する言葉である。また、外部バイアス利用の是非について、人工光合成では使わないことを良しとする考えがあるが、ソーラー水素製造では積極的に使いこなす考え方の違いがある。光触媒-電解ハイブリッドシステムが実用化できるかどうかは、光触媒反応の性能向上とともに図6の外部バイアスも含めたシステム全体設計も重要である。この分野の研究者はいまだに非常に少なく、異分野融合(異分野からの新規参入および異分野内部での発展)が進めば実用化への応用展開は加速度的に進むことが期待される。中間目標①の「太陽光発電+水電解」はライバルではなく、さらに異分野融合を進めるべき相手の一つである。

光触媒-電解ハイブリッドシステムはハイブリッド自動車の概念と似ている。ガソリンエンジンとモーターと蓄電池を単純に搭載すると車体価格が上がるのは当然であるが、一方で実際に燃費が良くなるとは限らない。すべての要素技術を最適化してかつ相互にうまく連携することによって初めて燃費が下がる。この燃費に相当するのが光触媒-電解ハイブリッドシステムの水素製造コストである。システム全体の初期投資が大きくなっても水素製造コストが低下できたり、付加価値を高めることができれば実用化への展望を拓くことができる。この研究の初期段階においては、新規の半導体や助触媒等の光触媒材料の新規開発が非常に重要である。著者らは材料開発の高速自動スクリーニング技術に注力している^[17]。半導体の金属の組成や助触媒、レドックス媒体の組み合わせは無数にあり、人力での探索には限界がある。高速自動スクリーニング技術を用いれば予想外の新規材料候補を早期に見いだすことができる可能性がある。さらにこの研究の波及効果として、レドックス媒体の光触媒反応の研究はZ-スキーム型反応の酸素発生光触媒の研究に直接応用できる。また、 Fe^{2+} イオンを用いた燃料電池やレドックスフロー電池の研究も行われているので、高い還元力を持つレドックス媒体を太陽エネルギーによって大量に生成できれば、蓄積されたエネルギーを水素ではなく電力に変換することも可能になる。

8.3 実用的な導入のシナリオ

この研究の初期段階の材料探索と並行して、全体システムの小さな実証試験を早期に行い、問題点を抽出しながら解決する必要がある。光触媒関連は当分大学や研究所を中心に材料開発が進行するが、電解や装置設計に関しては企業がそのポテンシャルを活かしながら早期に参入できるので、産学官連携が重要になってくる。著者らは全体を連結したシステムの小型実証試験を今後行う予定である。

光触媒プールは大きな蓄電池の働きをするので、太陽光発電だけでなく風力発電等のさまざまな変動の激しい再生可能エネルギーとの親和性が高いことも重要な特徴である。再生可能エネルギーの導入拡大に伴って、その出力変動の貯蔵が必要となるが、通常の電池よりも低コストに大量の電力を貯蔵する技術として近年、風力発電や太陽光発電の再生可能エネルギー余剰電力による水電解水素製造が研究されている。立地次第では、この電解装置に光触媒とレドックス反応を組み合わせ、昼間と夜間の電解を組み合わせれば設備稼働率が上がり、水素製造コストをさらに低下させることも可能になる。短い周期および長い周期での大規模な電力負荷平準化に貢献できる。余剰電力利用は、初期の導入実証としてはハードルが低いので、このような余剰電力電解と光触媒とのハイブリッドシステムによる本格的な実証研究が実用化の第一歩になると想定される。

用語解説

用語1: 見かけの量子収率(QE): ある特定の波長の入射する光子の数に対して、反応に利用された光子数の割合を示す。

用語2: 太陽エネルギー変換効率(η_{sun}): 入射する太陽エネルギーに対して、取り出したエネルギーの割合を示す。鉄イオンの反応の場合、水を酸素に分解して Fe^{3+} を Fe^{2+} に還元する反応として蓄積されたエネルギーの割合を示す。農作物の場合は、年間の太陽エネルギー総量に対して、年間で収穫された作物の乾燥物から計算した蓄積エネルギーの割合を示す。 η_{sun} は光吸収波長領域や光吸収効率、QE、光子のエネルギーが物質に蓄積される割合という多くの因子で決まるのでQEの値よりも小さくなる。

参考文献

- [1] K. Sayama, H. Arakawa, K. Okabe and H. Kusama: Jpn. Patent 3198298 (2001); U.S. Patent 09/028495 (1998).
- [2] Y. Miseki, H. Kusama, H. Sugihara and K. Sayama: Cs-modified WO_3 photocatalyst showing efficient solar energy conversion for O_2 production and Fe (III) ion reduction under visible light, *J. Phys. Chem. Lett.*, 1 (8), 1196-1200 (2010).
- [3] 日本学術会議, 理学・工学分野における科学・夢ロードマップ, (2011), <http://www.scj.go.jp/ja/info/kohyo/kohyo-21-h132.html>
- [4] NEDO燃料電池・水素技術開発ロードマップ2010, (2010), http://www.nedo.go.jp/news/other/FF_00059.html
- [5] エネルギー・環境会議のコスト等検証委員会報告書, (2011). <http://www.aec.go.jp/jicst/NC/tyoki/sakutei/siryosakutei10/siryosakutei2-2-3.pdf>
- [6] NEDO太陽光発電ロードマップ(PV2030+), (2009). http://www.nedo.go.jp/library/pv2030_index.html
- [7] Y. Asaoka and M. Uotani: Feasibility study on hydrogen production with off-peak electricity -evaluation of the effects of availability and electric power transmission, CRIEPI Research Report, T02039, 1-16 (2003).
- [8] A. Fujishima and K. Honda: Electrochemical photolysis of

- water at a semiconductor electrode, *Nature*, 238, 37-38 (1972).
- [9] B. D. James, G. N. Baum, J. Perez and K. N. Baum: Technoeconomic analysis of photoelectrochemical (PEC) hydrogen production, *DOE Report (2009)*, Contract No. GS-10F-009J (2009).
- [10] R. Saito, Y. Miseki and K. Sayama: Highly efficient photoelectrochemical water splitting using a thin film photoanode of BiVO₄/SnO₂/WO₃ multi-composite in a carbonate electrolyte, *Chem. Commun.*, 48, 3833-3835 (2012).
- [11] K. Sayama, R. Yoshida, H. Kusama, K. Okabe, Y. Abe and H. Arakawa: Photocatalytic decomposition of water into H₂ and O₂ by a two-step photoexcitation reaction using a WO₃ suspension catalyst and an Fe³⁺/Fe²⁺ redox system, *Chem. Phys. Lett.*, 277 (4), 387-391 (1997).
- [12] K. Sayama, K. Mukasa, R. Abe, Y. Abe and H. Arakawa: Stoichiometric water splitting into H₂ and O₂ using a mixture of two different photocatalysts and an IO₃⁻/I⁻ shuttle redox mediator under visible light irradiation, *Chem. Commun.*, 2416-17 (2001).
- [13] S. Mizuta, W. Kondo, K. Fujii, H. Iida, S. Isshiki, H. Noguchi, T. Kikuchi, H. Sue and K. Sakai: Hydrogen production from hydrogen sulfide by the Fe-Cl hybrid process. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 30, 1601-1608 (1991).
- [14] Y. Miseki, H. Kusama, H. Sugihara and K. Sayama: Significant effects of anion in aqueous reactant solution on photocatalytic O₂ evolution and Fe(III) reduction, *Chem. Lett.*, 39 (8), 846-847 (2010).
- [15] Y. Miseki, H. Kusama and K. Sayama: Photocatalytic energy storage over surface-modified WO₃ using V⁵⁺/V⁴⁺ redox mediator, *Chem. Lett.*, 41 (11), 1489-1491 (2012).
- [16] Y. Miseki, S. Fujiyoshi, T. Gunji and K. Sayama: Photocatalytic water splitting under visible light utilizing I₃⁻/I⁻ and IO₃⁻/I⁻ redox mediators by Z-scheme system using surface treated PtO_x/WO₃ as O₂ evolution photocatalyst, *Catal. Sci. Technol.*, 3, 1750-1756 (2013).
- [17] H. Kusama, N. Wang, Y. Miseki and K. Sayama: Combinatorial search for iron/titanium-based ternary oxides with a visible-light response, *J. Comb. Chem.*, 12 (3), 356-362 (2010).

執筆者略歴

佐山 和弘(さやま かずひろ)

1990年3月東京工業大学総合理工学研究科電子化学専攻修了。1997年博士(理学)取得(東京工業大学)。1990年4月物質工学工業技術研究所(当時、化学技術研究所)入所。組織再編で産業技術総合研究所に。現在、エネルギー技術研究部門太陽光エネルギー変換グループ研究グループ長。半導体光触媒を用いた水分解水素製造の研究開発を一貫して行ってきた。太陽光発電工学研究センター革新材料チーム長を兼務し、色素増感太陽電池の研究開発にも従事。この論文では、光触媒-電解ハイブリッドシステムの開発背景や特徴、他の技術との比較や実用化へのシナリオについて主に担当した。



三石 雄悟(みせき ゆうご)

2009年3月東京理科大学大学院理学研究科化学専攻博士課程修了。同年4月産業技術総合研究所に入所。現在、エネルギー技術研究部門太陽光エネルギー変換グループの主任研究員。学位論文より光触媒を用いた水分解のための新材料開発に従事してきた。この論文では、光触媒-電解ハイブリッドシステムのコスト試算について主に担当した。



査読者との議論

議論1 全般

質問・コメント(長谷川 裕夫:産業技術総合研究所、柳下 宏:産業技術総合研究所環境化学技術研究部門、立石 裕:産業技術総合研究所)

この論文は、太陽光水素製造の実用化に向けて、長期にわたる研究開発の推進において重要である、研究開発目標、シナリオの設定を主題とし、基礎研究の成果をプロジェクト化し発展させていく過程が述べられており、シンセシオロジーにふさわしい論文と思われます。一般には、第2種基礎研究として考えている内容が達成されて、初めて、実用化のシナリオができるという研究開発の流れとなると思われます。この研究では特に、実用化シナリオを基礎研究の段階で描いていますが、その必要性、重要性を強調してください。

回答(佐山 和弘)

まさしくご指摘の点がこの論文で最も伝えなかったことです。太陽光水素製造技術開発の歴史は長く、実用化まで長期間を有するエネルギー技術の開発に一般的に当てはまることですが、エネルギー価格の変動やエネルギー政策の転換等の影響により、基礎研究の進め方や方向性が大きく影響を受け、それが研究開発推進の障害となってきたように思われます。このような長い期間を有する研究開発の実用化を効率的に推進するために、明確な開発目標とマイルストーンを定めた長期の研究開発計画と、実用化シナリオの策定が特に重要と思われます。この点を第1章、2章に詳しく述べました。

議論2 シナリオと時間軸

質問・コメント(立石 裕)

一般的に、新しいエネルギー技術の導入を促進し実用化につなげていくためには、付加価値の大きい対象や他の研究開発と組み合わせることによって、高コストでも導入できるところから、実証研究を開始し、それと併せて基礎研究によってコストダウンを図っていく道筋が考えられます。第7章のシナリオの部分では、このような展開を明確に、できれば時間軸について触れながら記述してください。

回答(佐山 和弘)

ご指摘に従って、実用化を目指していく太陽光水素製造の研究全体の流れを時間軸に沿って、第7章の最初の段落に追加記載しました。なお、経産省の未来開拓技術実現プロジェクトの光触媒の研究においては、太陽エネルギーが水素生成に寄与する効率として、2021年度までに10%という目標値が設定されています。総合科学技術会議の環境エネルギー技術革新計画の中でもこの目標を踏襲しています。水素製造コストについて、NEDOの水素製造のロードマップに準じるのであれば、2020年より前に目標①、2030年までに目標②の30円/Nm³以下を目指すことになります。

議論3 目標設定、シナリオ、要素技術の構成・統合

質問・コメント(立石 裕)

シンセシオロジーの発刊趣旨の一つでもある、「目標設定と社会的価値を含めて、具体的なシナリオや研究手順、要素技術の構成・統合のプロセス」に関して、より明確に記述し、研究者自らが行った第1種基礎研究をどのように第2種基礎研究、製品化研究につなげていくか、研究分野の異なる研究者から見ても、容易に伝わるように心がけてください。

回答(佐山 和弘)

この研究分野の研究者だけでなく異分野の研究者から見ても良く分かるように、第1種基礎研究を第2種基礎研究および最終目

的であるエネルギー問題の解決につなげていくプロセスを記述しました。

議論4 「人工光合成」について

質問・コメント（柳下 宏）

この論文では、太陽光から水素を効率的製造する技術開発について主に述べられています。一方、この論文のような太陽光水素製造技術を含めて、一般には「人工光合成」という言葉も使われ、その名前を冠した国の研究開発プロジェクトも実施されています。「人工光合成」は植物の光合成と同様に太陽光から最終的に有機物を生産するプロセスと考えてよいのでしょうか。

回答（佐山 和弘）

一般の人が思い浮かべる「人工光合成」は炭酸ガスから有機物を合成するプロセスであり、この論文の対象である、太陽光を用いて水を分解して水素を製造する技術を「人工光合成」に含めることは違和感があると思います。一方、最近の総合科学技術会議の環境エネルギー技術革新計画のロードマップ中では、「二酸化炭素回収・貯蔵・利用」の区分の中で人工光合成と太陽光水素製造（ソーラー水素）が掲載されており、二酸化炭素利用と常にセットで議論されてきました。

光合成機構は水を分解する明反応と炭酸ガスを固定化する暗反応に大別されます。エネルギー問題を解決するためには前者を模倣すべきですが、一般には後者に強く注目が集まっています。前者の明反応を模倣した反応の重要性を明快に表す言葉はこれまでは無く、新しい言葉が必要でした。そこでこの論文では、最近少しずつ使われるようになった「ソーラー水素製造」という言葉を用いて詳しく説明することにしました。

分野の歴史的な発展の背景や原理を考えると、「ソーラー水素製造」は「人工光合成」の中でまずは位置づけるのが適切だと思います（図1）。幅広い人工光合成の分野の中で、太陽光水素製造の研究は近年急速に進んでおり、実用化への段階に進めると著者は考えております。この論文では、太陽エネルギーと水から水素を作る持続可能な社会の実現のための目的指向の第2種基礎研究を表す言葉として「ソーラー水素製造」を意味付けました。

一方で、今後に関しては、「ソーラー水素製造」を「人工光合成」の中で継続して位置づけることは弊害を生むかもしれないと考えています。例えば、「人工光合成」の言葉は、化学分野や第1種基礎研究と強く結びついており、「ソーラー水素製造」技術を実用化していくために不可欠である異分野（特に物理や工学、企業）での発展を難しくさせるのではないかと考えています。第1種基礎研究から第2種基礎研究への重心移動を表すキーワードとして「ソーラー水素製造」を今後広く使っていくのがよいと思っています。

議論5 実用化時期

質問・コメント（柳下 宏）

太陽光水素製造技術の実用化には、まだ多くのクリアすべき課題が残されており、遠い将来の技術と考えられている場合も多いと思われます。実用化時期についてはどのような見通しを持っておられるのでしょうか。

回答（佐山 和弘）

太陽光発電が、現在のように一般家庭に急激に普及することを20年前では想像できなかったように、「ソーラー水素発電」についても原理や前提が的確でシナリオが明快であれば、技術のブレークスルーにより実用化の展望は急に開けると考えています。第7章で記述したように、まずは余剰電力での実証研究が第一歩と思われるます。

議論6 研究開発の今後の戦略展開とシステム

質問・コメント（立石 裕）

この論文は燃料電池を中心とした水素社会を前提としていると思われる。燃料電池は定置用と自動車用が想定されますが、前者は化石燃料改質、後者は純水素利用が現在の流れとなっています。他方、太陽光発電は電気出力が直接得られるのが、現代社会における強力なセールスポイントとなっています。太陽エネルギーを水素のようなエネルギー媒体に変換して貯蔵することは、出力の時間的・空間的安定化の点では効果がありますが、同時に新たな課題も発生します。どうやって水素を貯蔵するのか－高圧、水素吸蔵物質、液化水素等が考えられます。そしてどのように輸送するのか。

また、この論文で提案されているシステムを実際に建設する場合、それが市街地なのか、砂漠や草原のような地域なのか、立地による技術的課題の差が考えられます。

このようなエネルギーシステムの設計を同時に進めることが必要であり、研究開発の今後の戦略展開において、ぜひシステムの人との議論をしていただければと思います。

回答（佐山 和弘）

我々のこれまでの研究の一番の動機は、太陽エネルギーの変換貯蔵の実現であり、もし、太陽と水から大量に水素が製造できればそれだけで非常にうれしいことですし、その利用法を考える研究者は大勢いるので、研究はどんどん進むのではないかと考えています。

一方で実用化にはエネルギーシステムとの設計と表裏一体と認識していますので、今後はシステムの関連の研究者を巻き込んで議論し、ソーラー水素製造の実用化を目指していきたいと考えています。

モジュール化に基づく高機能暗号の設計

— 実社会への高機能暗号の導入における障壁の低減に向けて —

花岡 悟一郎^{1*}、大畑 幸矢^{1,2}、松田 隆宏¹、縫田 光司¹、Nuttapong ATTRAPADUNG¹

この論文では新たに設計される高機能暗号技術が提供する機能や安全性について第三者が理解することが容易でないことが同技術を実社会へ導入する際の大きな障壁となっていることを指摘し、それを軽減するための設計思想について議論を行う。そのような高機能暗号技術の例として代理再暗号化技術を取り上げ、提案する設計手法によってそのような障壁が軽減されていることを論ずる。

キーワード: 公開鍵暗号、電子署名、代理再暗号化技術、証明可能安全性、標準化

Methodology for designing cryptographic systems with advanced functionality based on a modular approach

– Towards reducing the barrier to introducing newly-designed
cryptographic schemes into real-world systems –

Goichiro HANAOKA^{1*}, Satsuya OHATA^{1,2}, Takahiro MATSUDA¹, Koji NUIDA¹ and Nuttapong ATTRAPADUNG¹

In this article, we point out that in general, newly-designed highly functional cryptographic tools have significantly complicated structures that hinder user understanding. Furthermore, this fact may prevent these new technologies from being introduced into real world systems. We propose a new methodology for overcoming this barrier. We take proxy re-encryption as an example, and discuss how the barrier to user understanding is reduced by our proposed methodology.

Keywords: Public-key cryptosystems, digital signature, proxy re-encryption, provable security, standardization

1 はじめに

1.1 この研究の背景と目的

背景

ネットワーク社会の高度化に伴い、クラウドストレージに代表されるような複雑化する情報サービスをより安全に実現することを目的として、新たな高機能暗号技術の設計が盛んに行われている。そのような高機能暗号の代表例の一つとして、代理再暗号化技術^[1]が挙げられる。

代理再暗号化技術とは、送信者はいったん受信者を指定したうえで暗号化を行い、その後必要に応じて“プロキシ(代理人)”と呼ばれるサーバが、復号を行うことなく別の受信者を指定し直すことを可能とする。この技術を用いることで不特定多数の正規利用者に対してデータアクセスを許しながら、その一方でそれ以外の利用者による閲覧を防ぐことができる。例えば、病院の電子カルテは機密情報

であるがゆえに暗号化による保護を行いたいが、患者の転居や転院の際には病院間で共有する必要があり、このような場面で代理再暗号化技術は非常に有用となる。

しかし、代理再暗号化技術をはじめとするこれらの高機能暗号技術は極めて高度な安全性と利便性を提供可能であると期待されているものの、構成が非常に複雑となるためにその安全性や機能を直観的に理解することは容易でない。例えば、暗号理論分野に関して最も権威ある国際会議である CRYPTO2012 においては、4 件の高機能暗号の論文が発表されているが、これらは平均して 34 ページあり、そのうち安全性定義および安全性証明の記述は平均して 24 ページ以上にのぼる。その内容も難解な数式の羅列からなっており、これらの数式と実用上の安全性の対応関係を把握することが困難になっている。このことはこれらの技術の実社会への導入の大きな阻害要因と考えられる。

1 産業技術総合研究所 セキュアシステム研究部門 〒305-8568 つくば市梅園 1-1-1 中央第 2、2 東京大学大学院 情報理工学系研究科 〒113-8656 文京区本郷 7-3-1

1. Research Institute for Secure Systems, AIST Tsukuba Central 2, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8568, Japan * E-mail: hanaoka-goichiro@aist.go.jp, 2. Graduate School of Information Science and Technology, The University of Tokyo 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku 113-8656, Japan

Original manuscript received July 31, 2013, Revisions received November 9, 2013, Accepted November 15, 2013

特に、専門的な研究者ですら安全性に関する確信を得ることは非常に困難となるため、一般的な利用者がこれらの技術を安心して使用することは期待できない状況にある。事実、設計者によって安全であることを数学的に証明したとの主張がなされている方式に関しても、しばしば後になって証明の誤りが発見されるなどしている。以後、この問題を暗号の安全性検証問題と呼ぶことにする。

目的

この論文では上記の事態を鑑み、複雑な機能をもつ新たな高機能暗号技術の実社会への導入を促進するための方法論について議論を行う。特に、安全性の検証が非常に複雑で難解になりがちなそれらの暗号技術の安全性を、非専門的な研究者や技術者に対してもなるべく理解を容易とするための設計理念を提案する。より具体的には、複雑な機能をもつ高機能暗号の設計においていきなりスクラッチ開発^{用語}を行うのではなく、設計を行う前にまずは求められる機能を分解し、なるべく簡潔な機能の組み合わせで記述することの重要性を示す。その際には、個別の各機能がすでに広く利用されている、より基本的な暗号技術の機能そのものであるように機能を分解することが望ましい。求められる機能の分解を行い、スクラッチ開発を行うことなく既存技術の組み合わせだけで複雑な機能を実現することで、安全性の根拠を要素技術となる既存暗号技術の信頼性に依拠することが可能となる。さらに、これらの既存技術はすでに実社会において広く利用がなされていることから、その信頼性は十分に高いものとみなすことができる。

複雑な問題をより小さく、理解しやすい要素に還元するモジュール化はプログラミング分野等の常套手段であるが、暗号技術研究においては導入が遅れていた。その理由の一つは、「適切なことを行う」通常の情報技術と比べて「不適切なことは行えない」ことを保証する暗号技術は特性が大きく異なり、モジュール化手法の正当性に新たな論拠が必要な点である。また、従来の高機能暗号技術分野では理論研究として専門家向けの方式設計が主であり、モジュール化のような「理解を容易にする」作業が軽視される傾向にあった。しかし、近年の高機能暗号技術の複雑化に伴い専門家ですら新提案方式の正しい理解が困難になりつつあり、実際に権威の高いとされる査読付き国際会議に採録された方式においても、後に安全性証明の誤りが指摘されている事例もある。また、高機能暗号の実用化が始まった現在では専門家以外への技術の説明がより重要であることから、暗号技術研究にもモジュール化手法を取り入れる必要性和重要性が高まっていると考えられる。

なお、提案する方法論は暗号技術の安全性を強化する目的ではなく、同等の安全性をより第三者（潜在的な利用

者）が納得しやすい形で実現することを主目的としている点に注意されたい。この研究は、安全性に関する理論的な検証が（ある程度）なされているだけの暗号技術と安全性に関する検証結果の正当性が利用者にも納得されやすい暗号技術では、実社会への導入の容易さについて両者間で有意な相違があることが新たな高機能暗号技術の実用化に向けた障壁となっていることを指摘し、この障壁を除去することでこれらの高機能暗号技術の実社会における広範な活用を促そうとするものである。

以下においては、特に代理再暗号化技術を具体的な例として取り上げ、これをケーススタディとして提案する設計方針の説明を行う。

1.2 代理再暗号化技術の概要と現状

代理再暗号化技術の概要

代理再暗号化技術は、ある受信者に宛てて暗号化がなされたデータを復号することなく、別の受信者に宛てた暗号化データへ変換することが可能な暗号技術であり（図1）、1998年にBlazeら^[1]により最初の提案がなされた。代理再暗号化技術は通常時は一般的な公開鍵暗号と同様に機能するが、受信者は「プロキシ（代理人）」と呼ばれるサーバに対して自分以外の特定の利用者を指定し、それに対する「再暗号化鍵」を預託することができる。プロキシは各利用者に宛てられた暗号文に再暗号化鍵を作用させることで、指定された別の利用者宛ての暗号文に変換することが可能である。この技術を用いることで、特定の一人の利用者だけでなく複数の受信者を動的に指定可能となる。代理再暗号化技術においては再暗号化を複数回行えるものも存在するが、今回は再暗号化を一度だけ行えるものについて議論を行う。

代理再暗号化技術はクラウドストレージのような不特定多数が利用する環境における安全なアクセス制御を実現するうえで非常に有用であり、2006年頃から世界的に活発な研究開発が進められている。1998年当時は安全性に関する議論が十分になされていなかったのに対し、2006年以降の一連の研究においては強力な安全性を数学的に証明

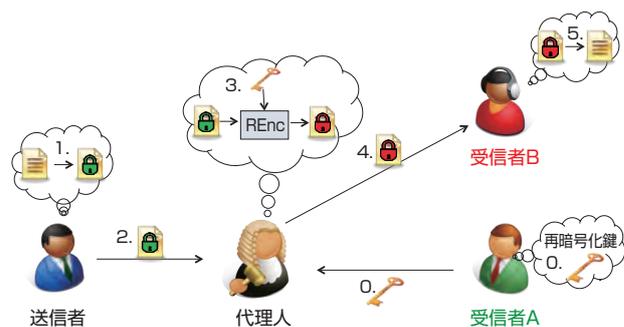


図1 代理再暗号化の概観

可能な方式の設計が主眼に置かれている。こうした強力な安全性の数学的証明は単なる理論的な興味追求ではなく、実用上の必要に迫られてのものである。標準化の現場においても、例えば我が国の事実上の標準暗号とみなされている CRYPTREC 電子政府推奨暗号^[2]の選定において、数学的安全性証明の有無は重要な選考基準となっている。

代理再暗号化技術の必要性

広く普及している Dropbox^[3]や Google Drive^[4]などのクラウドストレージにおいては、正当な権限をもつ複数の利用者のみがファイルの読み書きが可能であり、またそのような権限の設定を柔軟に行うことが可能である。

しかし、これらのストレージ上に格納されているデータは複数ユーザーで共有することを想定しているため、暗号化がなされていないか、データを格納するサーバ自身で復号が可能な暗号化がなされており、サーバの管理者であればデータへのアクセスは容易である。したがって、利用者自身がデータ管理に細心の注意を払っていても、サーバ管理者の故意、もしくは不注意によりデータが漏洩する危険性をはらんでいる。最近でもアメリカの中央情報局(CIA)および国家安全保障局(NSA)の局員による内部告発が明らかとなり、国際的に大きな波紋を呼んでいる。またサーバ側の過失により、Facebookにおいて600万人のユーザーのメールアドレスや電話番号が他人と共有されてしまった可能性があるというケースも報告されている。こうした事件は、サーバを無条件に信頼したシステム設計の限界を表す一例であると言える。

上記のようなサーバによるデータの覗き見や漏洩を防ぐ手段として、利用者側で暗号化したデータをストレージに保管することが考えられる。復号鍵をもたないサーバはデータの解読を行うことはできず、またサーバから平文が漏洩することもない。しかし、データへのアクセスに必要な復号鍵は安全に正当な権限をもつ利用者だけに配布できると仮定すべきではない。なぜならば、もしも正当な利用者のみ復号鍵を安全に配布可能な仕組みがあれば、そもそもその仕組みを用いて正当な権限者だけにデータを配布すればよいからである。

そのような状況において代理再暗号化技術を用いた場合、各利用者は暗号化された状態でデータをストレージ上に保管できるだけでなく、他の正当な権限者に対してはプロキシに再暗号化鍵を預託することで、柔軟にアクセス制御を行うことが可能となる。代理再暗号化を利用したクラウドストレージは、すでに一部で商用化も開始されている^[5]。上記のFacebook等に生じた問題は複合的な要因で発生しているため、代理再暗号化技術の導入によってすべて

解決されるとは限らないが、高度に信頼できるサーバの存在の仮定を排除することが可能となるため、極めて有効であると考えられる。

代理再暗号化技術の導入障壁

上述のとおり、サーバによるデータの覗き見や漏洩に対しても安全で、なおかつ柔軟なアクセス制御が可能なクラウドストレージの実現に関して代理再暗号化技術は極めて有用と考えられているが、実システムへの導入に関して障壁を残している。また、その障壁は代理再暗号化技術の機能に直接的に関係するものではなく、むしろ与えられた代理再暗号化技術が想定通りに機能することが確認できれば全く問題となるものではない。ここではそのような代理再暗号化技術の導入の障壁についてより詳しい説明を行う。

ほとんどの高機能暗号技術においては、本章の冒頭で述べた安全性検証問題を抱えており、代理再暗号化技術に関してはそれが特に顕著である。例えば、公開鍵暗号に関する権威ある国際会議 PKC2009で提案された代理再暗号化方式^[6]は優れた効率を誇っていたが、安全性証明が誤っており、攻撃可能であることが翌年の PKC2010において指摘されている^[7]。同論文中においては新たな代理再暗号化方式を提案しているが、これもその翌年の PKC2011において安全性証明の誤りを指摘され、攻撃されている^[8]。

そのためこれまで提案されたさまざまな代理再暗号化技術に関し、設計者の主張通りの機能と安全性が信認されている方式がほとんどないことが、実用化に向けた大きな障壁となっている。なお、上述の近年商用化された代理再暗号化技術^[5]は設計者の所属する企業自体がサービスを行っているため、技術の正当性が十分に広く認められた末の実用化とはなっていないことに注意されたい。

その他の高機能暗号技術

すでに述べたとおり、この論文は近年提案がなされているさまざまな高機能暗号技術に関し、それらの実用化を進めるうえでの共通した問題点に対する解決の指針を提案するものであり、代理再暗号化技術はあくまで例示である。代理再暗号化技術以外の高機能暗号の例としては、属性ベース暗号、キーワード検索暗号、準同型暗号、グループ署名等がある。これらの高機能暗号技術においては、いずれも代理再暗号化技術と同様に構成や安全性定義が複雑になりがちであり、実用化に向けた大きな障害となっているものと考えられる。

2 代理再暗号化技術の機能と安全性定義

本章では代理再暗号化技術の機能と安全性を紹介し、それを満足する方式を従来の方法論により設計しようとし

た場合、方式の構成と安全性証明がいかに複雑となるのかについて議論を行う。

2.1 代理再暗号化技術の数学的モデル

ここではまず代理再暗号化技術の機能について整理を行う。代理再暗号化技術の機能は大雑把には以下のとおりである。

【機能 1】 各利用者の鍵を生成する機能

代理再暗号化技術は、公開鍵暗号と同じく、各利用者は、公開される暗号化鍵と秘密にする復号鍵の生成を行う機能が必要となる。

【機能 2】 再暗号化鍵を生成する機能

利用者A宛ての暗号文を利用者B宛ての暗号文に変換可能な再暗号化鍵の生成機能も必要となる。利用者Aは、利用者Aの復号鍵と利用者Bの暗号化鍵を用いて、上記の再暗号化鍵を生成し、プロキシに預託することとなる。

【機能 3】 暗号化を行う機能

従来の公開鍵暗号と同じく、特定の受信者のみが復号可能な暗号文を作成する機能が必要となる。その際、暗号化の対象となる平文と受信者の暗号化鍵を用いて暗号化がなされる。また、この暗号化によって作成された暗号文は、上述のとおり、再暗号化鍵によって、別の受信者が復号可能な暗号文に変換可能でなくてはならない。

【機能 4】 再暗号化を行う機能

上記の機能 3.にある暗号化がなされた場合は、再暗号化鍵をもつプロキシが、元々指定された受信者とは異なる、別の利用者が復号可能となるよう暗号文の変換を行うことができる機能が必要となる。この機能では、変換前の暗号文と再暗号化鍵を用いて、変換後の暗号文の作成がなされる。

【機能 5】 復号を行う機能

上記の機能 3.にある暗号化により作成された暗号文を復号するための機能も必要である。この機能では、公開鍵で暗号化された暗号文と正当な受信者の復号鍵を用いて、平文が復元される。

【機能 6】 再暗号化された暗号文の復号を行う機能

同様に、上記の機能 4.にある再暗号化により作成された暗号文を復号するための機能も必要である。この機能では、復号の対象となる暗号文と正当な受信者の復号鍵を用いて、平文の復元がなされる。

以上の機能 1.～6.を見てわかるとおり、代理再暗号化技術を構成するアルゴリズムは6つにのぼり、しかもその一つ一つが複雑なものとなっている。そのため、代理再暗号化技術の設計者が、提案方式がこの機能を満足していると主張をしたとしても、その正当性を検証することは必ずしも容易ではない。

2.2 代理再暗号化技術の安全性定義

2.1 節で述べたように、代理再暗号化技術の数学的モデル化はすでに非常に複雑であるが、安全性の定義はそれよりはるかに複雑で難解となる。本節では、代理再暗号化技術の安全性要件について整理を行う。詳細については、例えば文献 [9] を参照されたい。

代理再暗号化機能をもたない通常の暗号化・復号機能のみを有する公開鍵暗号方式に標準的に要求される安全性は、「選択暗号文攻撃に対する安全性」と呼ばれる。この安全性は、攻撃対象の暗号文以外の任意の暗号文の復号結果を得ることが許されている攻撃者をもってしても、攻撃対象の暗号文から平文の情報を1ビットも得ることができないということを保証する。

代理再暗号化技術にも、基本的には上記のような安全性が求められる。しかし、すでに2.1 節で見てきたとおり、代理再暗号化技術には「再暗号化前の暗号文」、および「再暗号化後の暗号文」の2種類の暗号文があり、平文の情報を得たい攻撃者はどちらの暗号文を攻撃してもよい。さらに、代理再暗号化技術には再暗号化機能、および再暗号化鍵の鍵生成の機能も存在するため、攻撃者はこれらの機能を用いることで解読に関するヒントを抽出しようとすることも考えられる。したがって、代理再暗号化技術の安全性定義は、このような状況においても安全性を保証するものとなっていなければならない。特に重要なことのひとつとして、再暗号化を行うプロキシに対しても暗号文からは情報が漏れないことをとらえた安全性定義でなければならない。さらに、現実での利用状況を考え、安全性は複数の利用者およびプロキシが結託をしたとしても、正規のユーザーの情報が守られるものになっていなければならない。以上を考慮して代理再暗号化技術に求められる安全性を整理すると、次のとおりとなる。(以下では便宜上、攻撃を受ける利用者を A と呼ぶことにする)：

「再暗号化前の暗号文の安全性」

本安全性は、「攻撃を防ぎようのない結託以外のありとあらゆる利用者・プロキシ間結託が起こったとしても、A宛てに作成された再暗号化前の暗号文は平文の情報を1ビットも漏らさず、かつA宛ての再暗号化前暗号文は、「他の利用者宛て再暗号化暗号文」以外には意味のある別の暗号文へと改変ができないことを要求する。代理再暗号化技術の機能の定義から、「利用者B」と「A宛ての暗号文をB宛ての暗号文へと再暗号化できるプロキシ」が結託すると、A宛ての再暗号化前暗号文はすべて復号できてしまうことに注意されたい。本安全性は、この原理的に防ぎようのない結託以外のあらゆる攻撃状況を考慮している。

「再暗号化後の暗号文の安全性」

本安全性は、A 以外の利用者（B と呼ぶ）宛てに作成された再暗号化前の暗号文が A 宛てに再暗号化される状況において、A 以外のいかなる（B も含む）利用者・プロキシが結託したとしても、A 宛ての再暗号化暗号文は平文の情報を1ビットも漏らさず、かつ意味のある別の暗号文へと改変できないことを要求する。

以上が代理再暗号化に求められる安全性であるが、定義や証明が複雑難解という暗号の安全性検証問題が発生していることがわかる。

2.3 既存の代理再暗号化技術の例

図2に、Libert と Vergnaud^[10]により提案された代理再暗号化技術の構成の一部を示す。この方式は、「ペアリング」と呼ばれる特殊な双線形写像（図中の関数 e ）をもつ巡回群を使ってスクラッチから設計、実装されている。また、使用される巡回群上でのある計算問題を解くことの困難性を仮定することによって2.2節で挙げた安全性の証明もなされており、代理再暗号化技術の中でも安全性・効率性を両立した代表的な方式として知られている。

しかし、図からも明らかな様に方式の記述は複雑である。暗号文や各種鍵の各コンポーネントは、情報を隠すための部分、再暗号化を可能にするための部分、安全性に寄与する部分等に役割を明確に切り分けることができず、複雑に絡み合っている。方式の各パラメータの構成や計算順序は“職人芸的”に組み合わせられたものであり、暗号技術を専門としている我々でも個々の役割を明確に説明することは困難である。例えば、図2に示されるように、再暗号化暗号文中の構成要素 C_2' , C_2'' , C_2''' は互いに独立でなく、共通の内部乱数 t を介して相関をもっている。また、図中に明示的に記述されていないが、構成要素 C_2''' , C_3 , C_4 も同様に、共通の内部乱数 r を介して相関をもっており、さらに、構成要素 σ は、 C_1 , C_3 , C_4 に依存して生成がなされている。これらから、暗号文中のすべての構成要素は、お互いに密接な相関をもっており、したがって、代理再暗号

化技術の各機能に対して、なんらかの形で関与していることがわかる。また、上記の「ペアリング」をもつ巡回群は、現在のところ楕円曲線を用いた暗号技術の原理についての一定の知識をもつ技術者以外には扱うのが難しい特殊なライブラリを用いるしかなく、モジュラー性・移植性にも乏しい。

3 提案手法：方法論と代理再暗号化への適用例

本章では暗号の安全性検証問題を解決するため、代理再暗号化技術を始めとする複雑な機能および構造をもつ高機能暗号の機能や安全性が、潜在的な利用者となる第三者に対しても理解が容易となり、実社会に対して円滑に導入されるようになるための方法論について論じる。また、実際に同方法論に基づき設計された代理再暗号化技術を紹介し、その構成の背後にある設計思想について解説を行う。

3.1 提案する方法論の俯瞰

従来は複雑な機能をもつ高機能暗号技術において要求される機能と安全性をスクラッチ設計によって満足しようとするケースがほとんどであり、またスクラッチ設計により設計がなされた方式は求められる機能や安全性を膨大で複雑な数式により不可分な形で同時に達成しようとしているため、第三者による正当性の検証が極めて困難になっているものと考えられる。

ここでは高機能暗号技術の実社会への導入に関し、従来のスクラッチ設計が大きな阻害要因になっているものと考え、この問題を解決するための方法論として、「実際に設計を開始する前段階において、要求される機能と安全性のモジュール化を可能な限り行うステップを挿入する」ことの重要性を示す（図3）。特に、暗号の安全性検証問題に鑑みて、モジュール化された機能や安全性の概念が、すでに十分に解析のなされている既存技術の直接的な利用で充足されるようなモジュール化を追求する。既存技術に関する専門的知識が要求されることはやむを得ないが、それらはすでに十分な解析がなされており、代理再暗号化に比べれば正当性を検証できる研究者・技術者が格段に多い技術となっている。

このような機能と安全性に関する要件のモジュール化をしたうえで高機能暗号技術の設計を行うことにより、設計された方式が提供する機能や安全性について第三者に理解を促すことが可能となる。より詳しくは以下のような効果が期待できる。

- ・モジュール化された個々の機能や安全性が、方式の構成中においてどのような貢献をしているかの把握が容易となる。
- ・構成要素となる各技術は機能や安全性についてすでに深

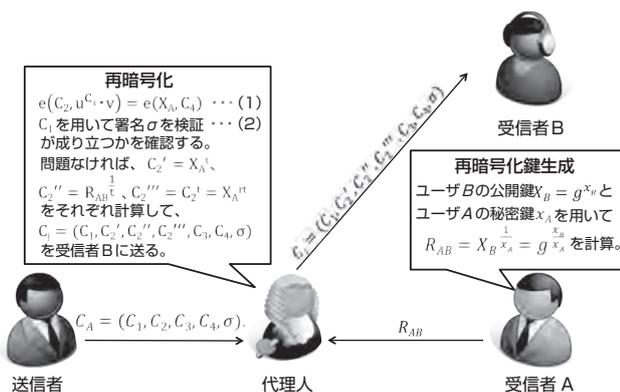


図2 代理再暗号化技術の方式^[10]の再暗号化機能

く理解されているため、方式の機能と安全性の正当性検証が容易となる。

- ・モジュール化された個々の機能や安全性について、アプリケーションに応じてより効果的に機能するものを選択することが可能となる。また、後に構成要素に問題が発見されても、他の構成要素へ置き換えることで容易に修正可能となる。

これらの効果により、新たに設計がなされた高機能暗号技術が実システムへ導入される際の障壁が著しく軽減されることとなる。

次節において、このような設計思想において設計がなされた具体的な代理再暗号化技術の例について紹介を行うが、それに先立ち、より簡潔な例として任意長の平文を許す公開鍵暗号のケースを取り上げ、提案手法により上述の効果が得られていることを確認する。

任意長の平文を許す公開鍵暗号の一般的構成

従来の公開鍵暗号技術、例えば^{[11][12]}においてはそれらの方式が依拠する代数的構造により、暗号化の対象となる平文のサイズが厳しく制限されている。しかし、実用上はさまざまな長さのデータの暗号化を行う必要がある。一方、共通鍵暗号技術においては、従来より任意の長さの平文の暗号化が可能であった。それに対し、2000年初頭において任意長の平文を許す公開鍵暗号の構成方法が整理され、次のような一般的構成の提案がなされた：(1) まず固定長の共通鍵 K を選び、暗号化の対象となる平文を共通鍵 K を用いて共通鍵暗号により暗号化する。(2) 次に、共通鍵 K を（固定長の平文のみ許す）公開鍵暗号により暗号化する。最後に、上記、(1)、(2) によって得られた二つの暗号文の組を本構成における暗号文とする。

この構成は、この論文で提案する高機能暗号技術の設計手法の具体例とみなすことができる。すなわち、公開鍵暗号としての基本機能と任意長の平文を暗号化する機能をそれぞれ（従来の）公開鍵暗号と共通鍵暗号に分解している。この構成はその後一層洗練され、現在では ISO を始

めとする公開鍵暗号技術の標準化の現場においても上記の(1)、(2)の機能に相当する部分について個別に標準化活動がなされている^[13]。この事例からも、この論文で提案する設計手法の有効性が理解できる。

3.2 代理再暗号化技術への適用

ここでは、前節において提案を行った手法に基づいて Hanaoka ら^[9]によって設計がなされた代理再暗号化技術について紹介する。この方式は、よく知られた暗号要素技術である公開鍵暗号^{[11][12]}、電子署名^{[11][14]}、閾値暗号^[15]を組み合わせて構成されており、また、要求されている個別の機能や安全性がそれぞれどの要素技術によっていかに満足されているかについての対応関係が理解しやすい。

構成要素技術

以下ではまず、簡単に公開鍵暗号、電子署名、閾値暗号の説明を行う。これらを用いて代理再暗号化技術の6つの機能を構成する方法については4章で後述する。なお、これらの構成要素技術はそれぞれ複数の機能をもっており、これらの個別の機能を組み合わせることで代理再暗号化技術の6つの機能の実現が可能になる。

・公開鍵暗号

メッセージの受信者側で秘密鍵と公開鍵を生成し、公開鍵を公開する。メッセージの送信者は受信者の公開鍵を用いてメッセージの暗号化を行い、暗号文を受信者に送信する。受信者は秘密鍵を用いて暗号文を復号することができる。事前の共有情報無しに秘匿通信が可能であり、SSL、TLS^[16]等をはじめ、非常に幅広く利用されている最も基本的な暗号技術の一つである。

・電子署名

メッセージの署名者が署名鍵と検証鍵を生成し、検証鍵を公開する。メッセージの署名者は署名鍵を用いてメッセージに署名を行う。署名とメッセージを得た検証者は、検証鍵を用いて署名の検証を行うことができる。電子署名は現実世界における印鑑を電子社会において実現するものであり、ネットワーク社会における認証基盤を支える最も重

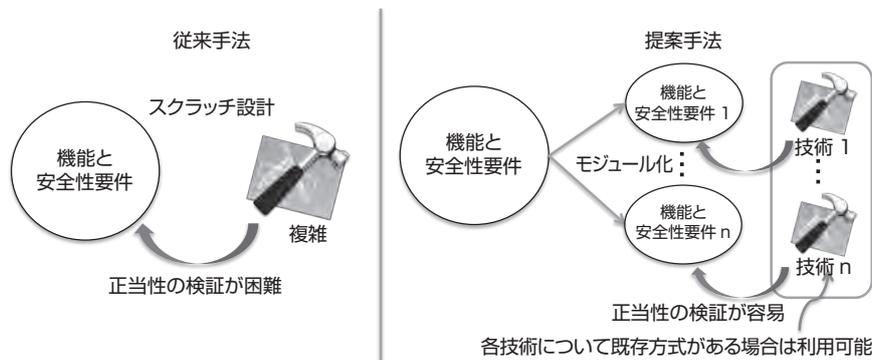


図3 従来手法と提案手法の構成指針の違い

要な要素技術となっている。PKI 等においてすでに広く利用がなされている。

・閾値暗号

公開鍵暗号の拡張であり、従来は単一となる秘密鍵が複数の部分秘密鍵に分割されていることが特徴となっている。閾値暗号においては従来の公開鍵暗号と同じく（単一の）公開鍵により平文の暗号化がなされ、そこで得られた暗号文に対して各部分秘密鍵を用いて復号を行うことで「復号シェア」と呼ばれる部分復号結果を導出することができる。そのような復号シェアを閾値以上集めることで復号が可能となる。なお、本節で紹介する代理再暗号化技術の構成においては秘密鍵を二つに分割し、復号シェアを二つとも集めることで復号可能になるような閾値暗号を用いる。

閾値暗号は電子投票システムの構成における重要な要素技術であり、1990年代より活発に研究開発がなされている。すでに実用システム上にも導入がなされており、広く機能や安全性が理解されているものと考えられる。

構成方法

ここで紹介する代理人再暗号化方式の構成では、閾値暗号が中心的な役割を果たす。同構成においては図4に示されるように、メッセージの送信者は閾値暗号を用いて受信者A宛ての暗号化を行い、暗号文を送信する。この暗号文は閾値秘密鍵を所持している受信者Aは復号でき、これが通常の公開鍵暗号の機能に相当する。

図5に示されるように、再暗号化鍵を生成する際にはユーザーAは二つある部分秘密鍵の片方を再暗号化後の宛先ユーザーBの公開鍵で暗号化し、代理人に渡す。ここで、電子署名を用いることで再暗号化鍵の正当性を保証する。再暗号化の際には、代理人は暗号文を暗号化されていない方の部分秘密鍵を用いて部分復号して復号シェアを計算し、これと暗号化された部分秘密鍵を合わせてユーザーBに送信する。

図6に示されるように、再暗号化された暗号文を受信したBは、暗号化された部分秘密鍵を復号し、それを用いてもう一つの復号シェアを得ることで平文の復元を行う。

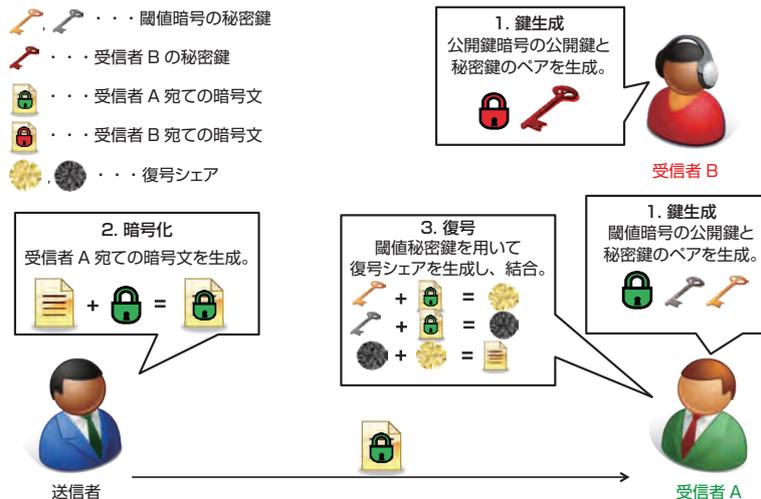


図4 提案手法の構成イメージ（鍵生成、暗号化、受信者Aの復号）

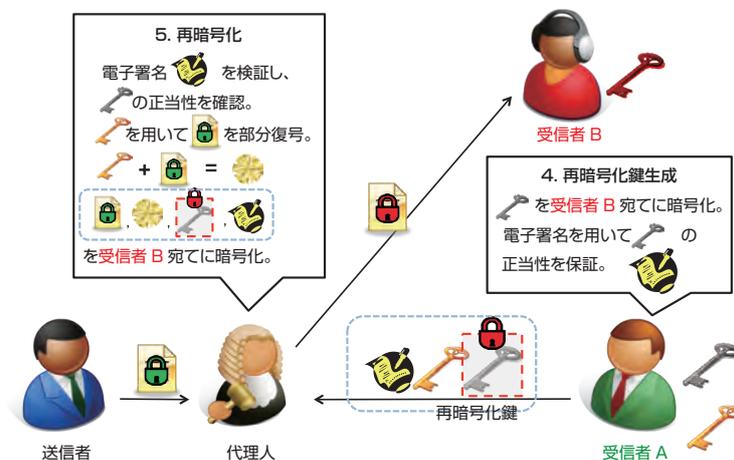


図5 提案手法の構成イメージ（再暗号化鍵生成、再暗号化）

4 提案手法の評価

高機能暗号技術の安全性を信頼できるようにするために、すでに広く用いられている基本的な技術に分解することが重要であることはこれまでに述べてきたとおりである。ここでは、まず、前章において紹介した代理再暗号化技術を例に、どのような基本的技術への分解が行われ、また、なぜそれらの基本的技術への分解を行ったのかについて、より詳しく説明を行う。

具体的には、前章の代理再暗号化技術は、公開鍵暗号、電子署名、閾値暗号といった基本的技術へ分解がなされているが、これらは、単に代理再暗号化技術に比べてより基本的なものであるだけでなく、いずれもすでに広く用いられている技術となっている。これは偶然にそのような分解がなされたのではなく、それらの技術について安全性を非常に高く信頼された実装がすでに存在することから、そのような分解がなされるよう意図されたうえのものとなっている。すなわち、公開鍵暗号として RSA-OAEP 方式、電子署名として RSASSA-PKCS1-v1_5 方式等が SSL/TLS においてすでに広く利用されている。実際、米国シマンテック・コーポレーションが発行しインストールされた SSL サーバ証明書は 80 万枚以上^[6]に達しており、これほどまでに広く利用されているがこれまで安全性上の問題は見つかっていない。（ただし、RSASSA-PKCS1-v1_5 方式については、すべての実装が必ずしも安全でないため、利用実績が高い信頼できる実装を慎重に選ぶ必要がある。）閾値暗号に関しては上記二つの技術に比べて広く普及しているわけではないが、電子投票等において活用がなされており、十分に信頼できる技術と考えられる。以上のことから、前章の代理再暗号化技術において、どのような方針により機能の分解が行われているかが理解できる。

上記のような機能の分解を行うことによる利点として、以下の 5 点が挙げられる。

【利点 1】 スクラッチな構成と比べて、代理再暗号化という高度な技術を達成できていることを把握しやすくなっている。2.1 節で述べた機能がどのように達成されているかを考

えると、

- 機能1の鍵生成は、受信者Aが閾値公開鍵と閾値秘密鍵のペアを生成し、受信者Bが通常の公開鍵、秘密鍵のペアを生成することで実現される(図4)。
- 機能2の再暗号化鍵生成は、二つある閾値秘密鍵のうち片方を受信者Bの(通常の)公開鍵で暗号化し、残りの閾値秘密鍵と合わせたものを再暗号化鍵とすることで実現される(図5)。
- 機能3,5の暗号化と復号は、閾値暗号の暗号化と復号によって実現される(図4)。
- 機能4の再暗号化は、代理人が得た閾値秘密鍵を用いて暗号文を部分復号し、得られた復号シェアとA宛ての暗号文、暗号化された閾値秘密鍵をまとめて受信者B宛てに暗号化して送信することで実現される(図5)。
- 機能6の再暗号化暗号文復号は、受信者Bが送られてきた暗号文を自身の秘密鍵で復号し、さらにその中の暗号化された閾値秘密鍵を復号する。得られた閾値秘密鍵でA宛ての暗号文を部分復号すると二つ目の復号シェアが手に入り、メッセージを復号できるようになることで機能6が実現される(図6)。

ということが難しい数式を追わずとも直観的に理解できる。

【利点 2】 利点 1 と関連して、代理再暗号化の各機能について構成要素技術間の役割分担を明確にしたことで、全体として達成できている安全性の把握も容易となっている。また、仮に安全性証明の誤りが発覚したとしても、誤り箇所がどの構成要素技術と対応しているか明確なため、証明の修正もしやすくなる。

【利点 3】 構成要素である暗号方式の一部を同等の機能をもつ別の方式と交換することで、方式全体の性能向上やカスタマイズを容易に行える。スクラッチな構成の場合、例えば実行速度向上のために 1 か所の構造を組み替えるごとに、全体の構成まで立ち返ってその変更が機能や安全性を損なわないことを確認しなければならないため負担が大きい。一方、今回の方法論であれば、ある構成要素の構

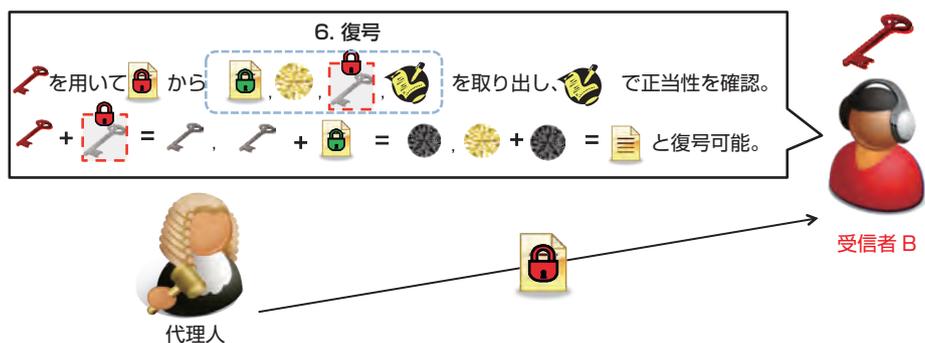


図6 提案手法の構成イメージ(受信者Bの復号)

造を変更する際には、その構成要素の機能が保たれているという局所的な性質のみ確認すればよいので作業が容易となる。

【利点4】利点3と関連して、将来的な暗号攻撃技術の向上に伴い暗号方式のアップデートが必要となった際にも、今回の方法論であれば、安全性が危殆化した要素技術のみを安全なものに置き換えればよいので、アップデートにかかる運用コストを引き下げることができる。同様に、将来的な量子計算機の実現を見越して量子計算機でも破れない（耐量子）代理再暗号化技術を構成したい場合、上述の3つの構成要素をそれぞれ耐量子構成にすればよい。これは耐量子代理再暗号化技術を一から開発するのに比べてはるかに容易である。

【利点5】利点4とも関連するが、今回の方法論の場合、例えば電子署名技術について従来よりも優れた方式を開発することで、電子署名技術それ自体の向上と、それを構成要素とする代理再暗号化技術の向上に同時に貢献できる。今回の方法論のこのような特徴は、暗号技術の研究開発という分野全体の研究資源配置の効率化にも資するものである。

5 他の高機能暗号技術への適用

本章ではこの論文にて提案を行った高機能暗号技術の設計方針について、代理再暗号化技術以外の暗号技術、特にグループ署名への適用可能性について議論を行う。また、提案手法を用いた場合に発生しうる構成要素同士の干渉、および回避方法についても併せて論じる。

5.1 グループ署名への適用について

グループ署名とは署名者のプライバシー保護機能が強化された電子署名技術であり、1991年に Chaum ら^[17]によりその概念が提唱されて以来、これまでに多くの具体的な構成方法が提案されている。グループ署名は従来の電子署名の機能の他に署名発行者の秘匿機能等を備えており、プライバシー保護機能が強化された電子署名であると言え、電子掲示板や電子オークション等において極めて有用な技術である。

しかし、従来の電子署名に比べ機能が非常に複雑となることから、代理再暗号化技術と同様に安全性が広く信頼されている方式はほとんど存在していなかった。それに対し、2003年に Bellare ら^[18]は電子署名、公開鍵暗号、ゼロ知識証明の機能を組み合わせることでグループ署名を実現できることを示した。この成果以降、グループ署名の設計者は上記のような機能の分解を念頭に、電子署名、公開鍵暗号、ゼロ知識証明の適切な選択を考慮した設計を行うようパラダイムシフトが起こっている。結果としてスク

ラッチ設計による従来の方式に比べ、新たに提案がなされた方式の機能や安全性が第三者によって深く理解されるようになり、商用化、標準化の進展にも大きく影響を与えるに至っている^[19]。

なお、電子署名や公開鍵暗号については、前述のようにすでに広く利用されている信頼できる方式が存在する。ゼロ知識証明に関しても、利用者認証技術等において広く活用がなされており、十分に信頼できる技術と考えられる。

この論文において提唱しているような高機能暗号技術の設計に際しての機能分解の重要性は、ある意味 Bellare らによって暗に述べられていたともいえるが、それを陽に議論しグループ署名に留まらない汎用的な設計思想であることを提示したことがこの論文の主結果となる。また、この論文における提案手法が暗に利用されていたグループ署名に関し、同技術の標準化が進んでいることから提案手法の有効性を理解することができる。

5.2 構成要素同士の安全性の干渉について

この論文は、設計対象となる高機能暗号技術の機能を基本的暗号技術の組み合わせによって実現することの有効性を主張するものである。しかしその際に利用される基本的暗号技術同士が干渉し、単体では安全性が保証されていても全体としては安全性が保証できなくなるケースが存在する。ここでは設計された方式において、そのような問題が生じていないかを検討する手法について述べる。

目的とする高機能暗号技術について基本的要素技術のみにより厳密な意味での一般的構成が行われた場合、同一一般的構成の安全性証明さえ行えばその特殊なケースとなる個別の方式についての安全性証明は不要となる。つまり、同一一般的構成を行ううえで求められる一定の条件を満足するものであれば、どのような基本的要素技術を構成要素として用いたとしてもそれらによって構成された具体的な方式の安全性は自動的に保証される。この論文において紹介を行った代理再暗号化技術の構成方法は、そのような厳密な意味での一般的構成となっている。

また、要素技術同士が干渉しないことを保証する安全性の概念として汎用的結合可能性と呼ばれるものがあり、この安全性概念を満足する構成要素技術を用いることで要素技術間の干渉を防ぐことができる。

5.3 分解先とすべき基本的技術

高機能暗号技術の機能を分解するにあたり、分解先となる基本的技術がすでに安全性を高く信頼されているものとなることを念頭におく必要がある。その際、安全性を高く信頼されているものであるかを判断するための基準として、広い範囲での利用実績があり、なおかつ、長期間にわたり本質的な安全性上の問題点の指摘がなされていないこ

とが挙げられる。そのような観点からは、公開鍵暗号、電子署名、共通鍵暗号、メッセージ認証コード等は信頼できる技術として疑う余地がない。公開鍵暗号と電子署名については前述のとおり、高い利用実績をもつ実装が知られており、また、共通鍵暗号については AES（市販製品採用実績 95.4 %）、メッセージ認証コードについては HMAC（市販製品採用実績 82.1 %）等、すでに広く普及し、かつ安全性上の問題も見つかっていない技術が存在する^[20]。これらに次ぐ基本的技術として、前述の閾値暗号やゼロ知識証明の他、放送暗号等もブルーレイディスクの著作権保護に広く実用されており、十分に信頼できる技術であると考えられる。

6 まとめ

近年の高度化したネットワークにおいて高機能暗号技術は有用であるが、その社会への導入は進みづらい状況にある。この論文では、高機能暗号技術の活用を促すためには機能や安全性が高度であるだけでなく、それらが理解しやすいものであることの必要性を指摘し、またそれを実現するための設計思想について提案を行った。

今後の一層のネットワーク技術の進展に応じて、さらに高度な機能や安全性をもつ高機能暗号技術の実現が要求されるものと思われる。それらの実用化を考慮した場合、単に要求される機能や安全性を満足するのではなく、それらが第三者に理解できるようにする必要があるが、この論文における提案手法を用いることで実用化を促すことが可能と考えられる。なお、提案手法は、“理解のしやすさ”を改善するためのものであるため、同手法の有効性について社会に広く納得させるうえで、“理解のしやすさ”の定量的な評価手法の確立も重要な課題となる。そのような手法として、安全性の自動検証ツールへ入力する際のデータサイズ等を用いて評価を行うことなどが考えられるが、これについては今後の研究課題としたい。

注) セキュリティを要求される通信のためのプロトコルであり、認証・暗号化・改竄検出の機能を提供する。具体的なアルゴリズムとしてそれぞれ複数の選択肢が定義されており、通信の開始時に双方が許容するアルゴリズムの中から選択される。

用語の説明

用語：スクラッチ開発：すでに存在する技術を流用せず、ゼロから（暗号）方式を構成すること。

参考文献

- [1] M. Blaze, G. Bleumer and M. Strauss: Divertible protocols and atomic proxy cryptography, *EUROCRYPT '98*, 1403,

- 127-144 (1998).
 [2] CRYPTREC暗号リスト, <http://www.cryptrec.go.jp/list.html>
 [3] Dropbox <https://www.dropbox.com/>
 [4] Google Drive <https://drive.google.com/>
 [5] デジタル貸金庫 <http://tosafebox.com/>
 [6] J. Shao and Z. Cao: CCA-secure proxy re-encryption without pairings, *PKC 2009*, 5443, 357-376 (2009).
 [7] T. Matsuda, R. Nishimaki and K. Tanaka: CCA proxy re-encryption without bilinear maps in the standard model, *PKC 2010*, 6056, 261-278 (2010).
 [8] J. Weng, Y. Zhao and G. Hanaoka: On the security of a bidirectional proxy re-encryption scheme from PKC 2010, *PKC 2011*, 6571, 284-295 (2011).
 [9] G. Hanaoka, Y. Kawai, N. Kunihiro, T. Matsuda, J. Weng, R. Zhang and Y. Zhao: Generic construction of chosen ciphertext secure proxy re-encryption, *CT-RSA*, 7178, 349-364 (2012).
 [10] B. Libert and D. Vergnaud: Unidirectional chosen-ciphertext secure proxy re-encryption, *PKC 2008*, 4939, 360-379 (2008).
 [11] R. Rivest, A. Shamir and L. Adleman: A method for obtaining digital signatures and public-key cryptosystems, *Commun. ACM*, 21 (2), 120-126 (1978).
 [12] R. Cramer and V. Shoup: A practical public key cryptosystem provably secure against adaptive chosen ciphertext attack, *CRYPTO '98*, 1462, 13-25 (1998).
 [13] V. Shoup: A proposal for an ISO standard for public key encryption (version 2.1), http://www.shoup.net/papers/iso-2_1.pdf (2001).
 [14] Digital Signature Standard, http://csrc.nist.gov/publications/fips/fips186-3/fips_186-3.pdf
 [15] Y. Desmedt and Y. Frankel: Threshold cryptosystems, *CRYPTO '89*, 435, 307-315 (1989).
 [16] 日本ベリサイン株式会社 「シマンテック、SSLサーバ証明書の発行が世界最多に」 https://www.verisign.co.jp/press/2012/pr_20120427.html (2012).
 [17] D. Chaum and E. Heyst: Group signatures, *EUROCRYPT '91*, 547, 257-265 (1991).
 [18] M. Bellare, D. Micciancio and B. Warinschi: Foundations of group signatures: Formal definitions, simplified requirements, and a construction based on general assumptions, *EUROCRYPT 2003*, 2656, 614-629 (2003).
 [19] NECプレスリリース: NEC セキュリティとプライバシーを両立する匿名認証をクラウド環境で実現する技術を開発, <http://www.nec.co.jp/press/ja/1106/0703.html> (2011).
 [20] CRYPTREC Report 2012 暗号運用委員会報告書(2013), http://www.cryptrec.go.jp/report/c12_opr_web.pdf

執筆者略歴

花岡 悟一郎（はなおか ごいちろう）

1997年東京大学工学部卒業、2001年同大学院工学系研究科電子情報工学専攻博士課程修了（博士（工学））、以降日本学術振興会特別研究員PDを経て2005年産総研入所。現在、産総研セキュアシステム研究部門次世代セキュリティ研究グループ長。効率的な公開鍵暗号方式の設計・安全性証明をはじめとする暗号・情報セキュリティ技術の研究開発に従事。英国計算機学会 The Wilkes Award(2007年)、電子情報通信学会論文賞(2008年)、暗号と情報セキュリティシンポジウム(SCIS)イノベーション論文賞(2012年)、電気通信普及財団賞(2005年)、SCIS20周年賞(2005年)、SCIS論文賞(2006年)、情報理論とその応用シンポジウム(SITA)奨励賞(2000年)等受賞。この論文の執筆全般を総括。



大畑 幸矢（おおはた さつや）

2011年3月千葉大学工学部情報画像工学科卒業、2013年3月東京大学大学院情報理工学系研究科修士（情報理工学）。現在、東京大学大学院情報理工学系研究科博士課程在学中。2012年5月より、産総研セキュアシステム研究部門次世代セキュリティ研究グループテクニカルスタッフ。主な研究内容は公開鍵暗号技術、証明可能安全性とその応用。この論文では代理再暗号化技術の技術的研究動向の調査および系統化作業、図の作成を担当。



松田 隆宏（まつだ たかひろ）

2006年3月東京大学工学部電子情報理工学系卒業、2011年3月東京大学大学院情報理工学系研究科電子情報学専攻博士課程修了（博士（情報理工学））。2011年4月より2年間、産総研情報セキュリティ研究センター（2012年4月よりセキュアシステム研究部門）での日本学術振興会特別研究員PDを経て、2013年4月より、同研究部門次世代セキュリティ研究グループ研究員。主な研究内容は、暗号技術の設計・安全性評価と暗号理論。この論文では代理再暗号化技術の安全性定義に関する整理を担当。



縫田 光司（ぬいだ こうじ）

2001年3月東京大学理学部数学科卒業、2006年3月東京大学数理学部研究科博士課程修了（博士（数理学））。同年4月より、産総研情報セキュリティ研究センター産総研特別研究員、同物理解析研究チーム研究員、産総研セキュアシステム研究部門次世代セキュリティ研究グループ研究員を経て、現在は同グループ主任研究員。主な研究内容は、先端的数学を用いた暗号技術の構成と安全性評価、およびその基盤となる理論整備。この論文では提案手法と既存手法の比較に関する検討を担当。



Nuttapong ATTRAPADUNG（あつたらぼどうん なつたぼん）

2001年タイ Chulalongkorn 大学工学部卒業、2007年3月東京大学大学院情報理工学系研究科電子情報学専攻博士課程修了（博士（情報理工学））。同年4月より産総研情報セキュリティ研究センター・日本学術振興会外国人特別研究員、同セキュリティ基盤研究チーム研究員、産総研セキュアシステム研究部門次世代セキュリティ研究グループ研究員を経て、現在は同グループ主任研究員。主な研究内容は、高機能暗号・認証技術の設計および安全性評価。2010年 Ericsson Young Scientist Award を受賞。この論文では高機能暗号全般の研究動向調査、および図の作成を担当。



査読者との議論

議論1 対象とする問題の定義

質問・コメント（松井俊浩：産業技術総合研究所セキュアシステム研究部門）

高機能暗号の安全性の検証や証明が難しいことが繰り返し述べられています。この難しさを克服する方法がこの論文の主題ですので、この言明に適切な名前を付けて、参照してはどうか。

文中では、「職人芸的」という言葉で難しさを情緒的に表現してい

ますが、安全性証明の難しさは、問題の定義にも当たるわけですから、より科学的に論述されるべきです。難しさの中身がわかれば、その解決法が導き出されるはずですが、難しさは、複雑性と重なります。複雑性とは、要素の種類、リンク（関係性）の種類、またそれらの総数などの数の問題に帰着されます。それをいかに解きほぐすかが解決の糸口になりそうです。

回答（花岡 悟一郎）

高機能暗号技術の安全性を第三者に納得させることの困難性を、この論文では「暗号の安全性検証問題」と名付けることにしました。暗号の安全性検証が困難であることの根拠として、暗号のトップ会議における高機能暗号に関する論文を調べ、論文において安全性定義、方式の記述、安全性証明がかなりのページ数を占めていることを具体的な数値で示しました。また、暗号の安全性検証問題の解決手段として、機械による安全性証明の自動検証が考えられ、それを用いた場合における入力データサイズに基づいた複雑性の数値化を行うアプローチもあり得ると思われそうです。しかし、現在のところ、この論文で取り扱われているような高機能暗号技術に対して安全性証明の自動検証ツールの適用は依然困難であるため、これについては今後の研究課題としています。

議論2 モジュールによる解法

質問・コメント（松井 俊浩）

論文では、問題の解決を、問題の要素への分解によるモジュール化に求めています。要素還元は、科学として正統的アプローチですが、正統的一般論の踏襲にもなってしまいます。モジュール化と対比される他の問題解決法と比較することはできないでしょうか。あるいは、モジュール化にも複数の方針があると推測されますが、高機能暗号の問題に即してより精密なガイドラインを与えることができないでしょうか。

質問・コメント（中島 秀之：公立はこだて未来大学）

難しい（あるいは一般の人に馴染みが薄い）話題なので、各所にもう少し説明が必要に思います。特に「どうしたか」だけではなく「何故そうしたか」という意図の記述がシンセシオロジーとしては重要に思います。

回答（花岡 悟一郎）

両編集委員よりいただきました上記の二つのコメントは、互いに深く関連しているものと解釈いたしましたので、まとめて返答させていただきます。

ご指摘の通り、提案手法は当然に検討されるべき正統的アプローチを踏襲したものともできると思います。しかし、これまでの暗号技術研究においてはモジュール化というアプローチが取られてきませんでした。その理由は二つ考えられます。一つ目は暗号技術においては、達成したい機能が達成できているという「正当性」だけでなく、達成したいこと以外は何もできないという「安全性」を示さなければならないことです。そのため、セキュリティ技術のモジュール化は他の技術に比べ層複雑になります。二つ目の理由としては、これまで暗号技術研究者にとって、そのような複雑なモジュール化を行う動機が不十分であったことが挙げられます。従来技術においては、あえてモジュール化を行わなくても利用者側でなんとか技術的内容を理解できる範囲であったと考えられ、暗号技術研究者が多大な労力を割いてまでモジュール化を行おうとするまでには及ばなかったのではないかと思います。それに対し、近年提案がなされている一連の高機能暗号については、その範囲を超えつつあるように思われます。そのような事態を迎え、要素還元という正統的一般論の重要性を明示的に指摘することは当該関連分野にとって極めて有益であると考えております。

また、モジュール化の方針としては、より信頼できる安全性を追求する観点から、モジュール化された個々の要素技術がすでに社会で

広く利用実績をもつようなものとなるようにすることを目指す方針を取ることにしています。

以上を含め、全体的に、この論文における著者らの意図が明確となるような記述を追加いたしました。

議論3 モジュールの干渉の問題

質問・コメント（松井 俊浩）

5.2節に述べられる、構成要素間の干渉が、要素還元論に立ちほだかる壁です。要素技術の単純な加算によっては、全体最適化は達成されません。代理再暗号では、そのような干渉が起こっているのかわからないのか、干渉があるとしたらいかに回避されたか、その経験をどの程度に一般化できるか（どういう場合は干渉が少ないと見なせるか）などの知見を追加できないでしょうか。

回答（花岡 悟一郎）

要素間の干渉の除去は、ご指摘の通り、本提案手法において慎重な検討を要する部分です。その対応方針としては、直感的で大雑把な要素還元ではなく、厳密な意味での一般的構成を数学的な安全性証明まで含めて行うこととなります。この論文で取り上げた代理再暗号化方式については、そのような一般的構成となっており、個々の要素技術が安全であれば、方式全体の安全性も自動的に保証されるものとなっております。また、より一般的な議論として、暗号要素技術を組み合わせるときに相互に干渉を起こさないことを保証するための安全性概念として、汎用的結合可能性が知られており、これについてもこの論文にて簡単に触れております。

議論4 モジュール化の効果

質問・コメント（松井 俊浩）

本問題に対比するアプローチである、全体最適化との比較があると説得力が増すでしょう。例えば、省エネシステムというのは、ボイラー、発電機、復水器等の要素機械を効率化するだけでなく、ボイラーで余った熱でお風呂をわかす、復水器の熱をボイラーに戻すなどの要素間の結合を増やして省エネ効果を増します。要素還元は強力ですが、究極の効率を求める場合は、全体で最適化を図る、スクラッチから作り込みをするという選択肢も魅力的なのです。そういう全体最適化と比べて、なぜ暗号技術の開発においては、モジュール化の方が大切なのかを論じるのも一つの方法でしょう。

回答（花岡 悟一郎）

ご指摘の通り、効率の良さ（暗号文長の長さ、計算コスト等）の観点からはスクラッチから作り込むことによって全体最適を目指すほうが良いと言えます。その一方、暗号技術においては十分な安全性の確保が最優先であり、安全性検証問題を鑑みるにモジュール化に分があると言えます。安全性証明がなされているかどうかは標準化の観点からも非常に重要であり、今後高機能暗号技術を普及させていくためにはこのような考え方が優先されるべきと思われます。また、モジュール化によって構成・安全性証明を行った後、要素技術として具体的な構成を当てはめることができ、何を当てはめるかによって要求する性質を持つ、かつ安全性に問題のない高機能暗号技術を構成できることもモジュール化の魅力と言えます。特に、各要素技術をより効率的なものに交換することで効率化も達成しやすくなることが考えられ、過去には実際にそのような研究例も存在します。

糖鎖プロファイリング技術がもたらすパラダイムシフト

— フロントアフィニティ・クロマトグラフィーから エバネッセント波励起蛍光検出法へ —

平林 淳

糖鎖は、遺伝子、タンパク質に次ぐ第3の生命鎖と言われるが、複雑な構造等が障害となり機能の解明は大幅に遅れている。近年、グライコミクスと呼ばれる糖鎖の総合解析が、プロテオミクスの隆盛に後押しされるかたちで進行し出した。その中で、糖鎖プロファイリングと呼ばれる簡易解析法が注目を浴びている。レクチンマイクロアレイは、特異性の異なる数十種の糖結合タンパク質（レクチン）をスライドガラス上にプリントし、蛍光標識された糖タンパク質や細胞抽出液を反応させるという新たな解析手法である。従来法と異なり、糖鎖の遊離と相互分離を必要としない点が利点であり、これにより、細胞の起源や状態を反映した糖鎖プロファイルが迅速、簡便に得られるようになった。レクチンマイクロアレイは、今や、腫瘍マーカー探索、幹細胞品質管理、バイオ医薬品開発等、さまざまなバイオ分野で利用される先鋭技術である。しかし、その実現には先行技術であるフロントアフィニティ・クロマトグラフィーの高性能化とそれを用いた原理検証が必要であった。開発からの10年を振り返る。

キーワード: 糖鎖プロファイリング、フロントアフィニティ・クロマトグラフィー、レクチンマイクロアレイ、エバネッセント波、GLIT (Glyco-innovation and Industrial Technology)

Development of lectin microarray, an advanced system for glycan profiling

– From frontal affinity chromatography to evanescent wave excitation fluorescence detection method –

Jun HIRABAYASHI

Glycans are called third class repeating biopolymers, after nucleic acids (first class) and proteins (second class). Elucidation of glycan functions has long been hampered by the difficulty in analyzing their structure. Recent progress in proteomics technology has accelerated progress in glycomics, which is the systematic study of glycans. Glycan profiling has increasingly attracted attention as a method that enables rapid analysis of complex features of glycans. Lectin microarray provides a novel platform and a simplified experimental procedure, which does not require glycan liberation and separation prior to the analysis. It is now being applied to tumor marker investigation, stem cell qualification, and biologics development. The author reviews the last 10 years of lectin microarray development, a period that began as a national project in which he has been actively involved.

Keywords: Glycan profiling, frontal affinity chromatography, lectin microarray, evanescent wave, GLIT (Glyco-innovation and Industrial Technology)

1 はじめに

1) なぜ糖鎖解析が困難か

糖鎖は複雑な構造と多様な存在形態をもつ生体情報分子である。核酸やタンパク質とは異なり、さまざまな結合様式と分岐構造をもつことや遺伝情報から糖鎖構造を予測できないことが糖鎖の解析と理解をたいへん困難なものにしている。糖鎖の構造的特徴の一つに多くの異性体の存在が挙げられる。これら異性体は互いに類似した性質をもつため、それぞれを完全に分離することが難しい。一方、糖鎖はミルクや尿中に遊離形で存在する場合もあるが、多くはタンパク質や脂質に結合したかたちで存在し、細胞上に提示されるか血液等の体液中に分泌される。糖タンパク

質では、その生合成過程でおびただしい種類の糖鎖修飾を受けることが知られている。図1に典型的な糖タンパク質のモデル構造を示す。糖鎖構造には単糖組成など基本的な共通性があるが、このことは糖鎖に対する抗体の調製を難しくし、糖鎖の組織分布や特異検出を困難にする。一方、糖鎖構造は生物ごとに少しずつ異なることが多い。近年では、動物細胞を用いてバイオ医薬品となるホルモンや抗体を生産させることが主流だが、多くのバイオ医薬品は糖タンパク質である。このため、タンパク質のアミノ酸配列はヒトと完全に同一でも、糖鎖構造は生産宿主に依存した異種型となってしまう。糖鎖構造を完全にヒト型にする技術は完成しておらず、CHO (Chinese hamster ovary) 細

産業技術総合研究所 幹細胞工学研究センター 〒305-8568 つくば市梅園 1-1-1 中央第2

Research Center for Stem Cell Engineering, AIST Tsukuba Central 2, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8568, Japan E-mail: jun-hirabayashi@aist.go.jp

Original manuscript received August 2, 2013, Revisions received October 14, 2013, Accepted October 15, 2013

胞等、動物細胞で調製したバイオ医薬品がアレルギーや急性拒絶反応を引き起こす危険性が指摘されている。

解析が極めて難しい糖鎖だが、幸いなことに我が国ではかねてより糖鎖研究が盛んであり、糖鎖の解析に不可欠なグリコシダーゼや解析技術の多くが我が国から生み出された^{注1)}。一方、21世紀初頭、糖鎖の構造解析は「質量分析法」が主軸になると考えられていた。しかし、質量分析法は、詳細な構造解析に威力を発揮する半面、生体試料の取り扱いが難しいという難点があった。その点、この論文のテーマである糖鎖プロファイリング技術は、質量分析法の難点のいくつかをクリアできる可能性があった。糖鎖プロファイリングとは、一言で言えば、糖鎖の構造的特徴を迅速簡便に取得することで、厳密な構造同定に至らずとも、主だった特徴（糖鎖の種類やエピトープ^{注2)}の存在、分岐度、修飾の度合いなど）、比較するサンプル間での差異、類似度等を明らかにすることである。

2) 2002年（糖鎖エンジニアリングプロジェクト発進前年）を振り返って

話が前後するが、著者は2003年に実質スタートする（独）新エネルギー・産業技術総合開発機構（NEDO）の糖鎖構造解析技術開発プロジェクト参画メンバーとして、2002年11月に（独）産業技術総合研究所（産総研）に入所した。プロジェクトリーダー予定者であった成松久 糖鎖工学研究センター・副センター長（当時）の招きで、21年勤務した私立大学を辞してのことだった。いわゆる糖鎖エンジニアリングプロジェクト（SG：Structural Glycomics と

略された）の始動である。成松副センター長はこれより数年前に大学から産総研に移り、経済産業省傘下の「糖鎖遺伝子ライブラリー開発プロジェクト」（GG：GlycoGene、2001年度～2003年度）を主導し、我が国の糖鎖遺伝子ライブラリー開発に貢献した^{注2)}。この成功を受け、糖鎖構造の解析技術の開発は最重要課題とされた。田中耕一氏によるマトリックス支援レーザー脱離イオン化法質量分析装置、とりわけAXIMA-QIT-MALDI装置が、複雑な糖鎖構造に対する解析の有効法として期待された。

実際のSGプロジェクトは、構造解析技術開発と合成技術開発の2部構成で進行した。著者が直接かかわった構造解析技術開発テーマの体制と研究テーマの詳細を表1に示す。

3) 目的とニーズ

糖鎖はタンパク質のなかの不均一な構造の混合物として存在するため、これらの化学構造を存在量とともに正確に決めることはほとんど不可能である。しかし、糖鎖の微細な構造差や量比の違いを迅速簡便に検出することができるなら、本手法で抽出された情報は、その後の詳細な構造解析やバイオマーカー探索に大いに役立つ。微生物の細胞表面糖鎖の比較など^{注3)注4)}、今まで解析例がなく、糖鎖プロファイリングだけで、十分意味のある結果が得られる場合もある。しかし、この技術はバイオマーカー開発などにおける解析戦略の導入部分で用いることを主眼としている。質量分析やLCマッピング法等の解析法との大きな違いは、糖鎖をタンパク質から切り出すことなく、そのままの状

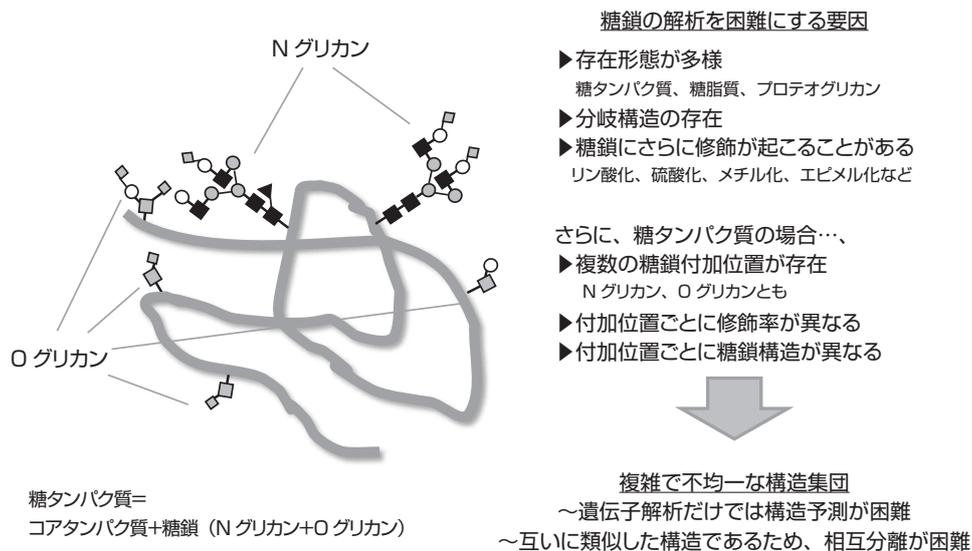


図1 糖タンパク質の模式図と糖鎖解析が困難である要因

コアタンパク質を形成するペプチド鎖部分を太いヒモ状の線で示す。分泌タンパク質と膜結合タンパク質のほとんどは翻訳中、および翻訳後過程で糖鎖修飾が施される。糖鎖付加位置は一家所の場合もあるし複数の場合もある。糖鎖の種類には大きく分けて、アスパラギン残基の側鎖（-NH₂）に付加する場合（Nグリカン）とセリン・トレオニン残基側鎖（-OH）に付加する場合（Oグリカン）がある。それぞれの付加位置における糖鎖修飾率は100%とは限らず、構造のバリエーションも10種以上共存するのが一般である。これらの要素を合わせると、糖タンパク質が有する構造的多様性は膨大となる。細胞の種類が変わると糖鎖構造も変化する。種々の糖鎖バイオマーカーはこの性質を利用したものに他ならない。糖鎖が「細胞の顔」と言われるゆえんである。

表1 SGプロジェクト（2002補正～2005年度）糖タンパク質構造解析技術開発のテーマと実施体制

1. 糖タンパク質構造解析技術の開発
1-1. グライコプロテオミクス（産総研、首都大、近畿大、島津製作所、ジールサイエンス、他）
・プロテオーム型戦略（プロテオーム解析手法による大規模糖タンパク質の同定）
・グライコム型戦略（タンパク質同定と糖鎖構造情報の双方を取得する方法論の開発）
・グライコフォーム解析（糖タンパク質から糖鎖を切り離し糖鎖する手法の解析）
1-2. 質量分析利用糖鎖構造解析（産総研、島津製作所、サイバーレーザ、三井情報、東京理科大、他）
・MALDI-QIT-TOF 質量分析計による糖鎖構造解析、糖ペプチドに適した高スループット・ソフトイオン化方法の探索、糖ペプチドの構造解析に適した断片化法の探索
1-3. 糖鎖プロファイリング技術（産総研、島津製作所、J-オイルミルズ、東大、他）
・FAC：レクチン・標準糖鎖間の網羅的相互作用解析
・糖鎖プロファイラー開発：エバネッセント波動起法に基づくレクチンマイクロアレイの開発
2. 糖鎖構造同定データベースの構築（産総研、三井情報、富士通）
・糖タンパク質データベースの構築
・オリゴ糖データベースの構築
・レクチンプロファイルの解析
・質量分析による糖鎖構造解析ソフトウェアの開発
・分子計算に基づく糖鎖断片化予測ソフトウェアの開発

態で蛍光標識し、解析する点である。LC マッピング法^[5]は我が国で開発された糖鎖構造の照合式同定法^[3]だが、この方法は、糖鎖をグリコシダーゼやヒドラジン分解で切り離したのち、相互分離と検出を容易にするために、タンパク質に結合していた糖鎖の還元末端を蛍光剤で標識するのが一般である^[6]。しかし、数十種から時には数百種に及ぶ糖タンパク質糖鎖の一斉分離と構造同定を行うのは容易ではない。したがってほとんどの場合、構造解析自体が研究目的になってしまい、その先にある真の目的には届かない。糖鎖の切り離しと相互分離という操作を省き、最短ルートに必要な情報が得られれば、糖鎖解析の速度と質は飛躍的に高まる。この時間差を縮め糖鎖の機能探求にいち早く導くことが、糖鎖プロファイリングの役目である（図2）。糖鎖研究が重要であると多くの研究者が気づいていたにも関わらず、それが進展しなかった理由は有効な糖鎖プロファイリング技術がなかったためと言える。

糖鎖研究の先哲である永井克孝・三菱生命科学研究所長（当時）は糖鎖エンジニアリングプロジェクトのスタートに際し、2003年7月4日付の日本工業新聞（20面）で装置開発の意義について、次のように語っている。「自動化装置がないと、研究にはスペシャリスト以外は入り込めない。専門家の言うことを聞き、許可を得るといような手続きを踏まなくても、自動化装置により、配列が分かり、必要とする糖鎖をつくり出せれば、誰でもやれる。それに

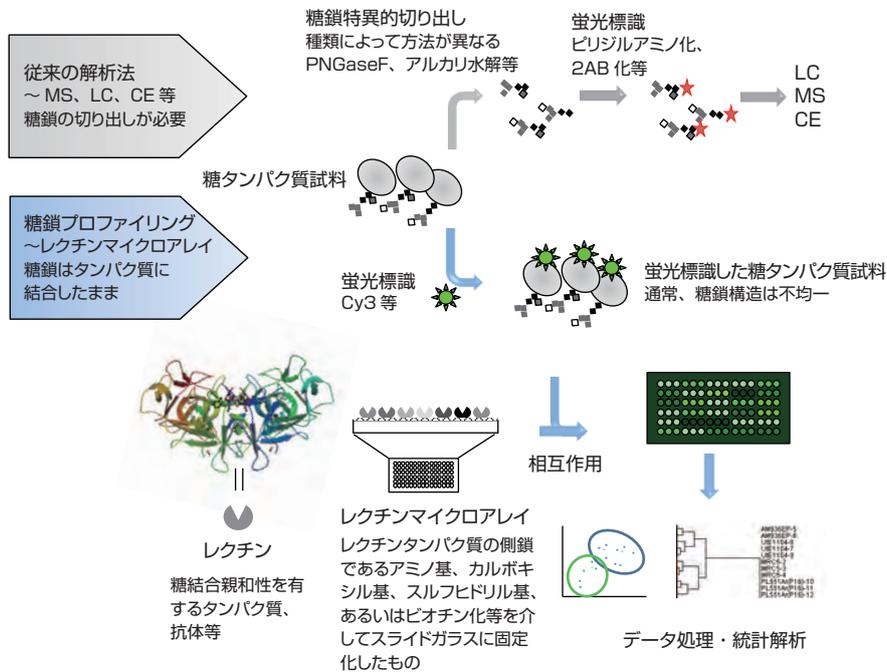


図2 これまでの糖鎖解析法（LC、MS、CE）とレクチンマイクロアレイによる糖鎖プロファイリングによる方法のちがい
前者では構造既知の標準品と比較するため（記憶照合法）、糖鎖を糖タンパク質から切り出す必要がある。MSでは異性体を事前に相互分離する必要があり、解析前にLC等で精製する必要も生じる。これに対し、レクチンマイクロアレイでは糖タンパク質試料をそのまま蛍光標識し、一連のレクチンとの相互作用を一括解析する。レクチンとの相互作用結果がアウトプットに反映されるので、糖鎖構造が同じでもコアタンパク質の種類や濃度が異なることで解析パターンが変化することもある。

より研究者人口が増え、爆発的に進歩する」。糖鎖プロファイリングはまさにこの目的・ニーズに合致したテーマだった。

2 要素技術と新コンセプト「糖鎖プロファイリング」

著者は糖鎖構造中のある特徴に特異的に結合するタンパク質（レクチン）に注目し、多種類のレクチンをスライドガラスにアレイ化した解析プラットフォームを考案した（図3）。いかにも「絵に描いた餅」だが、当時ある種の「新鮮さ」をもって各種学会、フォーラム、勉強会で受け入れられた記憶がある。多くの人が何もないところに新しいイメー

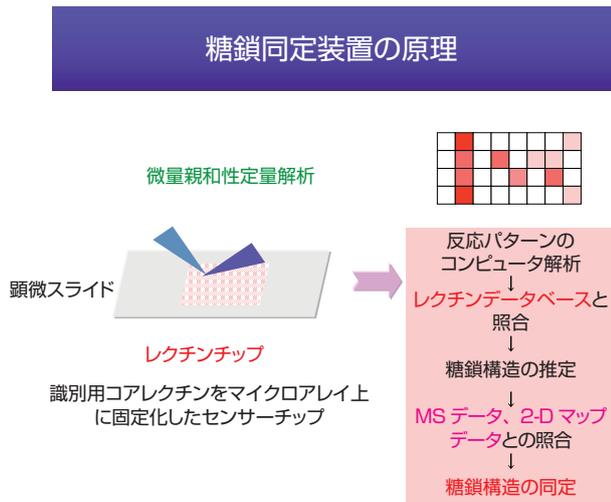


図3 糖鎖プロファイラーの原理を描き表したイメージ図
数十種のレクチン（糖に結合するタンパク質）をスライドガラスのようなガラス基板上に固定化し、そこに適当な標識基で修飾した糖鎖・糖タンパク質を作用させ、特殊な検出原理によってこれを微量検出することを想定した。（2002年7月30日に催されたバイオテクノロジー開発技術研究組合主催の勉強会で実際に使用した著者のプレゼンスライドから転載。）

ジが生まれることを感じたのかもしれない^{[7][8]}。

さて、糖鎖プロファイリングは厳密な化学構造の決定に目的があるのではなく、複数の試料間の構造の「差異」を見いだすことに特徴があると述べた。その原理・発想は突然思いついたものではなく、先行する技術によるイメージが重要なヒントになっていた。以下、糖鎖プロファイリング技術の実現に不可欠となった二つの要素技術について述べる。

1) 先行技術、FACによる原理検証とヘクト・バイ・ヘクトPJ

100のレクチンと100の糖鎖の相互作用を定量分析法FACで解析することで、相互作用情報をデータベース化、個々の糖鎖に（レクチンによって付けられた）固有の「指紋」があることを実験的に立証。

レクチンマイクロアレイが糖鎖プロファイリングの目的に適していることは十分予想できた。しかし、個々の糖鎖に本当に指紋のような固有の情報があるのか、どの程度の数のレクチンを用いれば糖鎖構造の識別が可能かについては、誰も検証していなかった。このため、著者は先行技術であるFACによる網羅的解析を行い、多数のレクチンと多数の糖鎖間の親和力を決定するという作業に挑んだ。

フロントル・アフィニティ・クロマトグラフィー（FAC）は前端分析法とも呼ばれ、1975年、北海道大学（当時）の笠井猷一氏らが開発した定量的相互作用解析法である^[9]。その理論は前年にB.M. DunnとI.M. Chaikenが報告し、後にゾーナル分析法と呼ばれる解析法と本質的に同一である^[10]。FACの操作法と原理を図4に示す。この技術はトリプシン等のプロテアーゼとその基質（阻害剤）との相互作用解析法として編み出されたが、20世紀末にアルバータ大学のD. SchriemerらがMS検出との連結に成功した

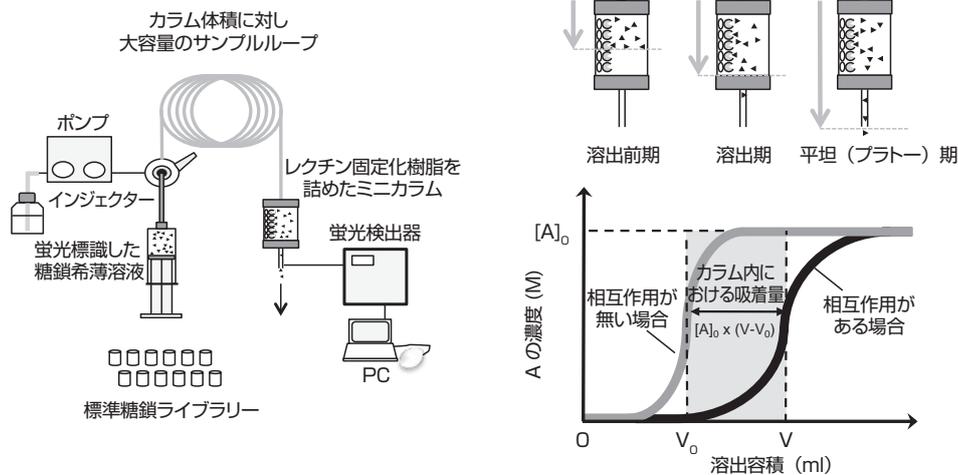


図4 FACの原理（右）と操作法（左）

カラムに固定化したリガンド（レクチン）に糖鎖が相互作用すると、カラムから漏れ出てくる溶出前端（フロント）容量（V）が、相互作用の無い対照物（ V_0 ）と比べ大きくなる。この差（ $V - V_0$ ）は糖鎖・レクチン間の親和性を表す尺度である解離定数（ K_d ）と $K_d = B_t / (V - V_0) - [A]_0$ の関係にある（ B_t は用いたカラムにおける有効リガンド量、 $[A]_0$ は糖鎖の初期濃度）。一般にレクチンの糖鎖に対する解離定数は大きく（解離しやすい）、蛍光標識糖鎖は十分希釈して用いるため、 $K_d \gg [A]_0$ が成り立つ。このため上式は $K_d = B_t / (V - V_0)$ となり、用いる糖鎖の濃度に依存しない式となる。FACが弱い相互作用解析に適した方法と言われる所以である。

ことで、ハイスループット化への道が拓けた^[1]。著者は、1998年の国際炭水化物学会(サンジェゴ)に参加した折、D. Schriemer のボスである O. Hindsgaul (現、カールスバーグ研究所) による「Whistler Award」の受賞講演を何気なく聴いた。Hindsgaul は講演の最後の部分で、「とっておきのニュースがある」と切り出した。上記、笠井献一氏が20年前に編み出した FAC を、コンビナトリアル化学で合成した化合物スクリーニングに応用展開したというのだ。彼らは 10 cm 程度の PEEK 製チューブにレクチンを固定化したビーズを充填し、この「カラム」を巧妙な手製デバイスを介して ESI・MS 装置に直結させるという離れ業をやっていた。著者は仰天した。著者のボスの名前が突然受賞講演で登場したこともあるが、何より彼らのやったことは今までの FAC の常識を覆すことだった。

著者は発奮せずにはいらなかった。ちなみに、当時、同僚たちはガラス製のオープンカラムとフラクションコレクターを用いて分析を行っていた。この先入観を捨て Schriemer とは異なる方法で、迅速、高感度、ハイスループット化への道を模索した。MS 装置など、当時の地方大学では手に入らなかったが、かわりに研究室には、共同研究先メーカーが置いて行った古いイソクラティック式の液体クロマトグラフィー (LC) 用ポンプ 1 台と蛍光検出機があった。都合のよいことに、当時市販されて間もないピリジルアミノ化糖鎖

(PA 糖鎖) という蛍光標識された標準糖鎖が何種類か手元にあった。これらを何とかモノにできないかと思いを巡らしていたある日、「発想の転換」が訪れた。FAC では薄めたアナライト (分析物) をカラム体積に対し過剰量流すことで、アフエニティー保持の破綻を「前端容量」として観察する。この二つの「体積」の関係を保つことが分析には不可欠なので、「カラムサイズを極力小さくし、逆にアナライトをその 20 倍以上の容量をもつサンプルループを使って注入できないか」と考えた。LC では通常分離能を維持するため小容量のサンプルループを用いるので、わざわざループを長くすることは想定外だった。しかし、適当な内径の PEEK チューブを数メートル用いれば 20:1 の体積比を簡単に達成できることがわかった。

試行錯誤の結果、カラムは市販のガードカラム (内系 4 mm、長さ 10 mm、体積 126 μl) で代用できた。ここに PA 糖鎖の溶液を 2 ml のサンプルループを介して一定流速で注入した。溶出してくる PA 糖鎖の蛍光を蛍光検出器につないだインテグレータにより追跡した。カラムには、手始めに市販の植物レクチンを固定化したアガロース樹脂を詰めた。すると、相互作用のあるとされる PA 糖鎖は遅れて溶出され、そうでない糖鎖は素通りして溶出された (図 5 左のクロマトグラム参照)^[12]。ある日、この溶出曲線の美しさに感激した同僚の荒田洋一郎氏 (現、城西大) は、蛍

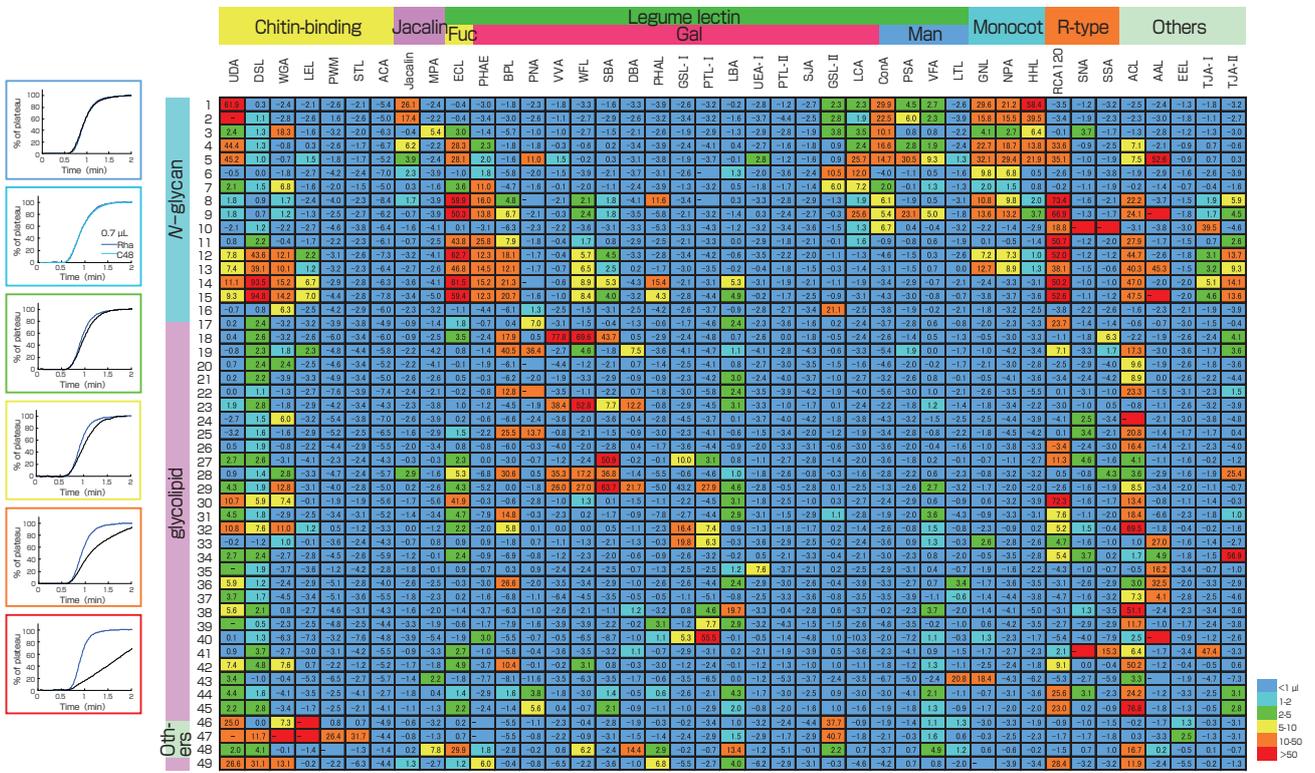


図5 ヘクト・バイ・ヘクトPJによって産出されたレクチン・糖鎖相互作用のデータ (一部) 相互作用の度合いは溶出前端の遅れ (V-V₀) として観察される。マトリックスでは最も強い相互作用を赤で、相互作用の無いケースを青で示している。

光検出器が読み取るデジタルデータをPC変換し、溶出前端容量（図4におけるV値）を自動算出するアルゴリズムを開発してくれた^[13]。高性能蛍光検出式FACの原型が誕生したのである。

その後、FACは改良を重ね、自動FACとして（株）島津製作所から受託製造販売された^[註4]。著者らの開発した蛍光検出を用いるFACはSchriemerらのMS直結式のFACとは操作法や用途が異なり、ほとんど独立した技術として位置づけられている^{[14][15]}。高性能FACは、冒頭述べたNEDO「糖鎖エンジニアリング」（SG）プロジェクトでヘクト・バイ・ヘクトPJ^[註5]として先陣を切る働きをした。ここでは、多くの既知・新規レクチンの特異性解析が今までにないスピードでなされた。しかし、高性能FACがもたらした最も重要なことは、各糖鎖に、さまざまなレクチンとの反応性という意味で、固有のパターンがあることを明らかにした点だ。すでにそのことは、大学でマニュアル装置をいじっていた時に感じてはいたが、ヘクト・バイ・ヘクトPJの膨大なデータ（図5）は、このことが正しいことを実証した。図5のマトリックスは縦軸（糖鎖の種類）と横軸（レクチンの種類）から構成され、それぞれのマス目が相互作用の強弱を表す。赤が最強、青が相互作用無し、を意味する。さて、このマトリックスを「縦方向」に切ってばらばらにして見ると、各短冊のパターンが異なることに気付く。このことは、各レクチンの糖鎖特異性に違いがあることを示すので、従来からのものを見方を確認しているに過ぎない。では「横方向」に切ったらどうか。各短冊に示された糖鎖毎のレクチンに対する親和性パターンがやはり相互に異なることがわかるだろう。このことは、レクチン親和性という「測り」にかけたとき、それぞれの糖鎖が異なる「指紋」を示すことを示している。

もし、FACが高性能化されなければ、スルーット向上によって数多くのデータを一覧することはできなかった。FACが弱い相互作用の測定に特に優れた方法であることを思い起こしてほしい（図4の説明参照）。多くの相互作用測定法は強い結合を探すことに適していて、弱い相互作用を測定することに主眼を置いていない。FACでは弱い相互作用に対しても正確に親和力（解離定数の逆数、 $1/K_d$ で表される）を求めることができるので、図5のマトリックスには豊かな相互作用情報が付与され、よって糖鎖固有の指紋も容易に見つけることができた。原理証明はできたので、あとは、どのようにして実際に糖鎖プロファイラーを構築するかである。

2) エバネッセント波励起蛍光検出法

レクチンアレイに蛍光標識した糖タンパク質を結合させ、洗浄操作なしに液相状態のまま結合分子を選択的に

検出する方法。相互作用が弱い糖鎖に有効。

新しい研究のアイデアはしばしば、およそ同時期に別のグループが独立に思いつく。事実、著者らがエバネッセント波励起蛍光検出原理によるレクチンマイクロアレイの開発に成功し、論文発表した2005年には、他に3つの研究グループがレクチンマイクロアレイ原理に関する論文を発表している^{[16][19]}。論文はずっと後発だったが、イスラエルのベンチャーであるプロコグニアも、これに先立ちいち早くレクチンアレイプラットフォームの開発に注力していた（<http://www.procognia.com/>）。レクチンマイクロアレイの原理開発に関する論文はその後さらに数編発表されるが^{[20][21]}、その着想には、FACではなく、Serial lectin-affinity chromatography法と呼ばれる先行技術の存在が影響している。この方法では、数種のレクチンカラムを用意し、そこにトリチウム等で放射性標識した糖鎖を順次流し、その吸着の程度（強、弱、無など）を調べて、糖鎖構造を推定する^{[22][24]}。理にはなっているが、手間と時間がかかるため、多くの分析研究者がより簡便な方法への転換を密かに考えていたにちがいない。一方、FACも高性能化されたが、LCであるため多検体の同時解析はできず、解析対象も精製糖鎖に限られる。研究開発の現場で求められるのは細胞抽出液や血清等を直接、自在に扱える技術である。

ここで、著者らがレクチンマイクロアレイ開発で主眼を置いたのは検出原理である。エバネッセント波^[註6]を蛍光の励起光として用いる技術は昔から知られており、エバネッセント顕微鏡等にも応用されていた。それをレクチンマイクロアレイというスライドガラス上で用いるには、顕微鏡のような微小領域ではなく、広視野への応用を可能にしなければならない。著者が産総研入所前に調べたところ、スライドガラスの端面から励起入射光を入れる方式でDNAマイクロアレイの開発を行っている日本レーザ電子（当時）というベンチャー企業があった。社のホームページに掲載されたエバネッセント波の説明図を参考にエバネッセント波励起蛍光検出のレクチンマイクロアレイの構想を描いた（図6）。

この技術の一つの特徴は、エバネッセント波をガラスの端面から入射して蛍光励起する点である。エバネッセント波はガラス表面からごく近接領域（ $< 100 \text{ nm}$ ）にしみ出る光なので、レクチン等を固定化したスライドガラスの表面付近にトラップされた蛍光標識糖鎖（実際には糖タンパク質）が選択的に励起される。レクチンと糖鎖間の親和力が、DNA・DNA（RNA）や抗体・抗原間のそれと比べ一般に弱いことを述べた。すなわち、レクチンに弱く結合している糖タンパク質は、反応後洗浄操作をすると容易に引き剥がされてしまうので、通常用いられる共焦点式蛍光スキャナーでは、この結合を見逃してしまう。FACで観測さ

れた糖鎖・レクチン間の解離定数 (K_d) はせいぜい 10^{-6} M (1 μ M) であり、多くが 10^{-4} M (100 μ M) 前後である抗原・抗体反応と比べ 100 倍以上弱いことになる。ガラス端面から入射することのもっとも重要な利益は、ガラス表面の全域がエバネッセント波で励起されることである。顕微鏡のような微小領域ではなく、マイクロアレイというプラットフォームにおけるハイスループットな解析作業はこの端面入射によって達成される。事実、この点は後の特許査定に際し重要なポイントとなった。エバネッセント波励起法を用いる副次的な利点も多い。洗浄操作がいらないので、操作が簡便になり、解析時間の短縮と再現性の向上に結びつく、などである。

今日まで、エバネッセント波励起式のスキャナーを用いているのは著者らのグループのみであり、他はすべて共焦点方式（洗浄操作が必要）を採用している。しかし、それでもレクチンアレイとして一応機能しているのは、実際に解析する糖鎖が多くの場合、糖タンパク質では多価の状態になっていて、オリゴマー構造をとるレクチンへの親和力が実用上十分高いことが理由として考えられる^[25]。ちなみに、切り出された糖鎖の結合を測定できた例は、本エバネッセント波励起法によるものだけである^[26]。しかし、本システムを用いる実際上の利点は何を置いても検出感度の高さであろう。洗浄操作を不要とする本原理において、ある意味当然と取られるかもしれないが、現実にはそれほど単純ではない。高出力ハロゲンランプの採択は高感度化に必須であったが、それ以上に、バックグラウンドの低減化は重要であった。具体的には、光学的に最適なフィルター、スライドガラスの選択、生化学操作における固定化法、ブロッキング法の最適化、画像処理における各種ノウハウ等であ

る。他機種との厳密な性能比較は難しいが、論文等で報じられている試料の使用量、使用者の感想等から、本エバネッセント波励起式蛍光検出スキャナーの検出感度は糖鎖関連装置の中でトップに位置する。現システムにおける公称の検出限界値は、RCA120 レクチンに対するアジアロフェツイン（代表的血清糖タンパク質フェツインの末端シアル酸を酸処理して除いたもの）、およびアジアロ 2 本鎖複合型 N グリカンそれぞれで 100 pg/ml、100 pM である（使用量約 0.1 ml）^[26]。レクチンマイクロアレイ (LecChipTM) とともにエバネッセント波励起式蛍光スキャナー (GlycoStationTM Reader 1200) は 2006 年 10 月、モリテックス（当時）から製造、販売された。

3 装置開発まで：企業連携と知財戦略～バイオベンチャーの現実

2002 年度補正予算でスタートした NEDO「糖鎖構造解析技術開発プロジェクト」であったが、レクチンアレイ開発に臨むパートナー企業の日本レーザー電子がスタート直後、経営困難で躓き、翌年経営破たんしてしまう。しかし、その間産総研は単独でレクチンアレイの原理開発に成功する。開発を担当していた久野敦氏と内山昇氏の活躍があって、糖鎖プロファイリング原理、およびレクチンアレイ解析法に関する基本特許を 2003 年 12 月 25 日に出願した。その後、(株)モリテックス NLE プロジェクトグループに事業継承されたレクチンアレイ関連グループは、大企業がもつ経営基盤と技術基盤に支えられ、日本レーザー電子時代の面影を強く残す試作 1 号機とは装いも新たに、製品第一号として本格的な装置が完成した。本成果は NEDO の成功事例としても注目された (http://www.meti.go.jp/committee/summary/0002220/024_02_12b.pdf)。ところが、2008 年世界を襲ったリーマンショックを境に会社経営が急激に悪化し、バイオ関連事業は分社化される。紆余曲折の末糖鎖メンバー 10 数人が GP バイオサイエンス (株) を設立する。この会社は関連業界のバイオベンチャーとして注目され、NEDO の「研究開発のその後を追う：シリーズ 1」でも紹介されたが (http://www.nedo.go.jp/hyokabu/jyoushi_2008/gp/index.html)、経営のやりくりはやはり大変で、結局 2013 年 4 月に破産申請と言う局面を迎えてしまう。

4 展開

1) 糖鎖医工学研究センターと糖鎖産業技術フォーラム (GLIT)

話が前後するが、上述のように、糖鎖プロファイリング技術は 2003 年 12 月に基本特許出願、2005 年 12 月に

NEDO Glycan Engineering Project S&G

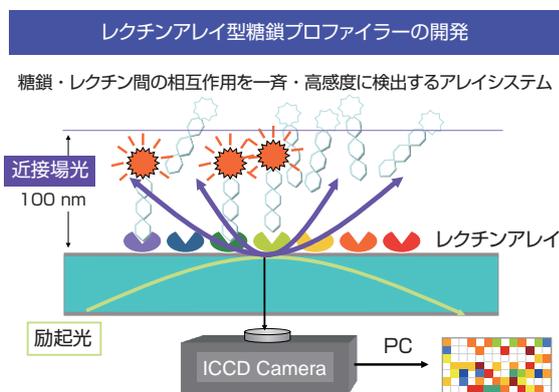


図6 エバネッセント波励起式蛍光検出法によるレクチンマイクロアレイの原理を描いた図
糖鎖エンジニアリングプロジェクトのキックオフを兼ねた日本糖鎖科学コンソーシアムの第一回会議（2003年11月3日、東京）で使用されたスライドを元に作成。前出の図3と比べるとかなり進歩している。

論文発表され、2006年4月糖鎖機能解析を主体とするNEDO新規プロジェクト「糖鎖機能活用技術開発」(MG: Medical Glycomics)が発進する。そして同年12月、医療分野での糖鎖活用を目指す糖鎖医工学研究センターが設立された(成松久研究センター長)。新センターの目標の一つは、これまで蓄積した糖鎖研究成果の普及だった。そのためには、ノンコンペティティブな基礎・基盤研究の状態から、優れた成果をすみやかに産業界へと橋渡しする場が必要と考えた。そこで、産総研内外の関係者と協議を重ね、「糖鎖産業技術フォーラム」(GLIT: Glyco-innovation and Industrial Technology; <http://www.glit.jp/wp/>)を各種業界団体、関係者とともに立ち上げた。GLITはバイオインダストリー協会(JBA)との共同事業の一環として各種研究会やシンポジウムを通し、産業界に向け糖鎖先端技術の普及と人材交流活動に尽力した。産総研の活動としても新たな取り組みだったことから、所内外でも注目された。産学連携推進の実質的な原動力になる半面、成果主義的な組織ではなく連携推進のためのワンストップ組織だったことから、常に次に何をすべきかを議論し続けなければならなかった。GLITの実質運営には糖鎖医工学研究センター内に新たに設置した連携戦略班の新聞陽一班長が大きく貢献した。

GLITが直面した課題は、バイोजパン2008のパネルディスカッション用の以下のスライドにもある程度反映されている。すでに5年前の議論であるが、糖鎖を含むバイオ研究の今後を占う上で参考になる点も多い。

- 日本の糖鎖研究の位置付けは、世界的にも突出した技術とコア・リソースの保有によりトップレベルにある。
- しかし、さまざまな要因による研究開発の長期化は予算獲得を困難にしている。
- その結果、企業や大学は、新たな糖鎖技術の利用に対し踏み出す「きっかけ」を必要としており、先端技術の利用・普及には多くの課題を残す。
- ブレークスルーを目指すには、これらの課題を戦略的にクリアしていくことが重要。
- 本ディスカッションでは現状分析と課題把握を通し、今後の戦略(技術・人材・しくみ)について討議することで意識の共有を図りたい。

GLITの応援もあり、GPバイオサイエンスのエバネッセントスキャナー、GlycoStationTM Reader1200は15台の販売実績を上げている(2013年7月現在)。すでにバイオ関連企業は糖鎖の重要性に気付き、さまざまな業種が糖鎖に興味を示している。ある企業はバイオ医薬品開発や再生医

療、さらに腫瘍マーカー等のバイオマーカー診断システムの開発に乗り出している。GlycoStationTM Reader 1200は、バイオ医薬品(特にバイオシミラー)開発支援で海外でも注目を浴びている^[27]。

販売当初は、学術論文における本システムの使用実績が著者らの研究室が独占状態であったが、現在では形勢が逆転しつつある。販路開拓を進めるが故の学術的なコンフリクトもしばしば発生していることも事実である。GLITはその役割をすでに終えたのかもしれない。しかし、GLITの活動とレクチンマイクロアレイは常に連動していたし、多くの技術を先導してきた。最近、レクチンマイクロアレイの集大成と言うべき総説を著者他、開発者グループ(山田雅雄、久野敦、館野浩章)が著したので詳細はそちらを参照されたい^[28]。

以下に、いくつかの研究テーマについてレクチンマイクロアレイ、およびその応用展開がうまく機能した例を示す。

2) バイオ分野における実用化例

上記MGプロジェクトでは、がん等の慢性疾患に注目し、肝線維化マーカーや難治性の肝内胆管がんマーカー等で優れた成果を上げた。いずれの場合もレクチンマイクロアレイが重要な役割を果たした(詳細は成松による文献[2]を参照)。糖鎖医工学研究センターの主軸であったMGプロジェクトを成功に導く一端をレクチンマイクロアレイが担った。開発者としてこれに勝る喜びはない。

さて、レクチンマイクロアレイの応用が最初に進んだのは、幹細胞である。国立成育医療センター研究所の梅澤明弘部長(現、副所長)との協力関係構築のもと、成育医療センターの有するバイオリソースを利用した間葉系幹細胞のラインアップに加え、マウスES(胚性幹細胞)やEC(胎児性がん細胞)の解析も行った^{[29][32]}。解析のストラテジーは2006年におよそ出来上がり、翌年には解析プラットフォームの成育医療センターへの技術移転を果たすために、著者はNEDOの橋渡し技術研究開発に関するプロジェクトに参画した(正式名:基礎研究から臨床研究への橋渡し促進技術開発/橋渡し促進技術開発/糖鎖プロファイリングによる幹細胞群の品質評価、安全評価システムの研究開発、開発期間:2007年10月~2009年3月、先導研究)。研究が開始される時、山中伸弥教授による「ヒトiPS細胞作製に成功」とのニュースが入ってきた。世界中が遺伝子リプログラミングの事実を驚嘆した。

残念なことに、当時、幹細胞の糖鎖解析を行っている研究者はほとんどいなかった。しかし、未分化細胞の表面マーカーとして知られているSSEA-1/3/4や、Tra1-60/81は紛れもなく糖鎖マーカーである。未分化細胞も含め、さまざまな細胞を、均質に調製できれば、それらの糖鎖プロファ

イルには明確な違いがあることを示せるはずである。間葉系幹細胞は不均一なので、iPS 細胞や ES 細胞こそ比較糖鎖プロファイリングの検証対象とすべきものと考えた。

そこで、上記橋渡し促進プロジェクトに続き、著者らは幹細胞を対象とした糖鎖プロファイリングをより本格的に推進するため、浅島誠器官発生工学研究ラボ長(当時)のグループと連携し、新規 NEDO プロジェクト(iPS 細胞等幹細胞産業応用基盤技術開発、2009 年 4 月～)に参加した。諸事情によりこのプロジェクトは 2 年で終了するが、その間に多岐に及ぶ未分化細胞の解析を精力的に進めた。

2006 年からレクチン応用開発チームに加わった館野浩章氏が系をリファインし、組み換えレクチンを含む 96 種のレクチンからなる高密度レクチンアレイを新たに開発していた。その「切れ味」を試すには 100 種強の ES/iPS 細胞は格好の題材だった。その後、著者らは幹細胞工学研究センターの伊藤弓弦研究チーム長、小沼泰子主任研究員らと協力連携し、一連の幹細胞を対象とした糖鎖プロファイリングを強力に推進した。その後の成果は、プレスリリース等で紹介される機会もあったため、ご存じの方もいると思うが、以下、時系列に沿った研究の展開を記す。

①糖鎖リプログラミングの事実

新たに開発した 96 レクチン搭載の高密度レクチンアレイを用いて 100 種を超えるヒト未分化細胞(ES/iPS)を解析した。その結果、体細胞にはない、未分化細胞に共通する特徴的な糖鎖構造をいくつか抽出した。その結果、山中 4 因子の導入により糖鎖構造もリプログラミングされることが初めて観察された^[33]。中でも、すべての未分化細胞に共通して反応する rBC2LCN と呼ぶ組み換えレクチンは、iPS 細胞作製の元となった親細胞(体細胞)とはまったく反応しないことから、rBC2LCN が新たな未分化マーカー検出のプロープとなることが示された^{注 7)}。

②iPS細胞と体細胞の糖鎖構造を定量比較解析

代表的な iPS 細胞である 201B7 とそのもとになる皮膚繊維芽細胞を大量に調製し、MS、グリコシダーゼ消化を組み合わせた LC マッピング法で糖タンパク質糖鎖(N グリカン、O グリカンとも)の総合解析を行った。①のレクチンマイクロアレイによる観察が実際に確認され、N グリカンにおけるシアル酸結合様式の α 2-3 型から α 2-6 型への劇的なシフト等が確認された^[34]。上記 rBC2LCN が認識可能な糖鎖未分化マーカーが実際何なのか注目されたが、H タイプ 3 構造(Fuc α 1-2Gal β 1-3GalNAc α)を有する構造が O グリカンの中に特異的に見つかった。

③rBC2LCNは未分化細胞を生きのまま染色できる

通常フローサイトメトリーや組織染色では抗体がプローブとして用いられる。上記表面マーカー SSEA-1/3/4 や Tra1-

60/81 も抗体で検出するが、その際細胞を固定化するのが一般的である。フォルマリンやグルタルアルデヒドで膜を処理するので細胞は死んでしまうが、rBC2LCN は生細胞の状態でも十分な結合力をもつことがわかり、さらに未分化細胞を薬剤で分化誘導すると染色性は速やかに消失した^[35]。抗体と比べた場合の開発コストが低いことなど、今後の実用化を考えた場合、多くの利点をもつことを特記したい^{注 8)}。
④rBC2LCNのリガンはポドカリキシンに提示されたHタイプ3構造である

ポドカリキシンは、腎臓やある種のがん細胞で発現が見られる巨大分子量の糖タンパク質である。シアロムチンと違って、細胞外ドメインのほとんどが無数の O グリカンで覆われていると予想されている。上記未分化マーカーを認識する rBC2LCN が実際に未分化細胞上のどの糖タンパク質を認識しているのかは、未分化メカニズムを解明する上でも重要な問題だが、遺伝子発現や分子構造上の特徴などから本分子を割り出し、ポドカリキシンに対する抗体を用いて標的の特定に至った^[36]。ポドカリキシンが無数の O グリカンを含有すること、rBC2LCN が特異的に結合していること、H タイプ 3 構造を有する O グリカンが iPS 細胞(201B7)から同定されていることなど、今までの観察がすべて一本の糸でつながった^{注 8)}。

5 今後の展開

バイオマーカー探索や幹細胞評価技術以外にも、レクチンマイクロアレイは多方面での活用が示されている。GlycoStationTM Reader 1200 の使用例は、論文公表されたものだけでも約 60 報だが、そのうちの 1/3 がすでに著者らとの直接かかわりのない完全な外部研究機関によるものである。外国研究機関からの論文も 10 件ほどある。この論文ではほとんど触れなかったが、バイオ医薬品(特にバイオシミラーと呼ばれる後続品)開発における本装置の需要は今後急速に増えるだろう。

最近、糖鎖が幅広い生命科学にまたがる基幹科学だと米国 NAS (National Academy of Science) が報告し、注目されている。“Transforming Glycoscience (変貌するグライコサイエンス)”と題される本報告書では、糖鎖が「健康」、「物質」、「エネルギー」の 3 大テーマで特に重要である点、今後、糖鎖科学の飛躍的発展が世界レベルで起こることを予告している^[37]。糖鎖が専門家の領分から解き放たれ、大きな飛躍とグローバル化を迎えようとしている。

糖鎖のデータや技術を集めた成書はよくある。それに対して、近々スプリング・ジャパン編集の著書の発刊趣旨は「糖鎖の周辺領域で話題になっているトピックス」を糖鎖以外の研究者へ紹介することである^[38]。バイオの研究に

においては、気付く、気付かざるにかかわらず、糖鎖課題に面しているはずである。我々が糖鎖を研究する理由は、それが重要で、普遍的で、そして難しいからである^[39]。糖鎖の存在が極めて幅広い点を忘れてはいけない。このことは糖の起源が古いことの裏返しでもある。逆説的な表現になるが、「糖鎖は重要だから存在するのではなく、存在したから重要になった」と言うのが著者の考えである^[40]。

合成技術には大きな課題が残されている。均質な糖鎖によるバイオ医薬品づくりはバイオロジクスの大きな目標である^[41]。ツールとして評価されつつあるレクチン（アレイ）であるが、レクチン自身も大化けする時が来るかもしれない。

6 総括：この技術の構成要素と融合の契機

最後に、本レクチンマイクロアレイ技術がどのように構成されていったのか、核となる技術要素とそれらの融合、ブレークスルーとなる契機を検証してみたい（図7）。まず、糖鎖に対する解析技術開発のニーズがあったこと。そして、これを開発する契機が2002年に著者に訪れる。当時著者は大学でFACの高性能化を達成するが、このことはレクチンを利用して糖鎖のプロファイリングが可能という発想の転換の契機を与える。およそその直後に産総研への入所、糖鎖構造解析プロジェクトへの参加が決定し、当時絵に描いた餅に過ぎなかった糖鎖プロファイリングの構想が、関連企業との連携、原理検証を経て着実に推進される。2003年基本特許の出願、2005年学術論文の発表、2006年糖鎖プロファイラーの上市が順調に達成される。しかし、この技術の開花はそれ以降も、次の糖鎖機能解析プロジェクトにおけるバイオマーカー開発で活用されるほか、GLIT

という成果促進のための組織活動により、より幅広い活路を見いだしていく。このことは糖鎖の産業界への橋渡しを強く後押しした。一方、あらたな応用展開の一つとして、幹細胞評価技術におけるrBC2LCNという新規未分化マーカー検出プローブの発見がある。これは再生医療における未分化細胞の検出、除去という新たな筋道や、組み換えレクチンへのシフト、という新たな展開への推進力にもなっている。レクチン工学と言う新しい学問領域への突破口が開けたとみるべきかもしれない。

一連の出来事を振り返り、もっとも重要なポイントは何であったか。著者は糖鎖・レクチン間に代表される「弱い相互作用」への徹底した技術探求ではなかったか、と思う。FACが原理的にそれを達成しえたが、糖鎖プロファイリングという着想にたどり着くには高性能化によるハイスループット化が必要であった。しかし、FACでは生体組織由来の粗抽出液は扱えないため、レクチンアレイという全く別のプラットフォームに鞍替えすることが必要であった。そこで、弱い相互作用を捉えることが可能なエバネッセント波励起法に注視した。同時期にレクチンアレイを考案するグループは複数あったが、結局最終性能を出しうる製品開発にまで漕ぎつけたのは、著者らのグループのみであった。弱い相互作用を検出可能とするエバネッセント波励起蛍光検出原理に躊躇なく拘ったのは、実は著者がこの光学分野の素人であり、それ以外の技術によそ見をしなかったためかもしれない。事実、理論上「エバネッセント=高感度」ではないが、本開発によるエバネッセント波励起式スキャナーの精度・感度を上回る装置は今日まで出現していない。

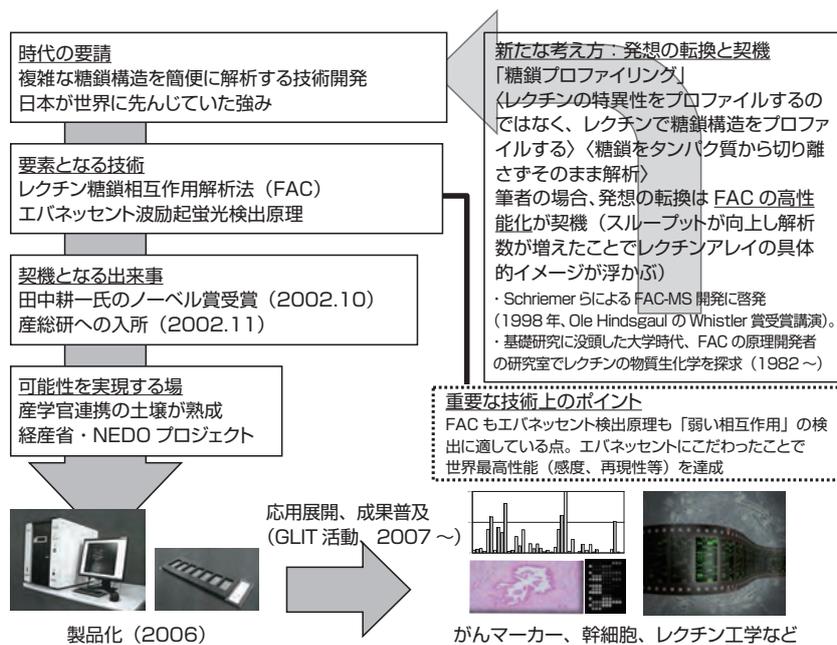


図7 レクチンマイクロアレイ技術の構成に関するまとめ

注1) 糖鎖は構造が複雑で機能不明であることから欧米先進国は大型研究費の投入には消極的であった。これに対し我が国は施策的にも糖質・糖質研究に理解があり、日本人研究者が興味半分・信念半分(?)で始めたグリコシダーゼに代表される酵素探索や構造解析技術の開発に国としてバックアップしてきた。さらに生化学的な精製技術の高さも、糖鎖リソースの蓄積とノウハウの基礎を強固なものとし、気づけば糖鎖関連特許・論文で他国を圧倒していた。一方、海外でも糖鎖に注目する動きは以前からあり、糖鎖生物学 (glycobiology) という新学問領域の立ち上げに関しては興味深い背景がある^[1]。

注2) 抗体が認識する抗原決定基のこと。より広くは結合認識にかかわる構造部分を表す。

注3) 構造既知の標準品との照合により構造を同定する方法で、記憶照合法とも。NMRやMSにおけるメチル化分析法など直接構造決定を行う方法と区別される。

注4) プロジェクト立ち上げ前の勉強会で知り合った(株)島津製作所の田中耕一氏にLC部門への橋渡しをお願いした。その後氏はノーベル賞受賞でプロジェクトへの参加を見送ることになった。

注5) 100のレクチンと100の糖鎖(構造既知の標準品)間の相互作用をFACで網羅的に解析しようというプロジェクト。レクチン集めにはホーネン(現、(株)J-オイルミルズ)の亀井麻直氏が全国行脚し、データ解析には三井情報開発(株)(現、三井情報(株))の菊池紀広氏と高橋順子さんが当たった。表1参照)。産総研で本プロジェクトを先導したのは特別研究員(当時)の中村祥子(旧姓)さんであった。

注6) 「束の間の光」の意で、エバネッセント場 (evanescent field)、近接場光 (near optic light) とも。電磁波(光)の反射現象において、特定の条件下で反射する媒質内部に発生する浸透性の電磁波のこと。ニコンの下記サイトにわかりやすい説明あり。<http://www.nikon.co.jp/profile/technology/rd/core/optical/evanescent/index.htm>

注7) 2011年6/22、産総研プレスリリース：糖鎖の迅速プロファイリング技術でiPS細胞を精密評価－高密度レクチンアレイにより幹細胞に共通した糖鎖構造を確認－

注8) 2013年3/19、ヒトiPS細胞を生きたまま可視化できるプローブを開発－細胞の状態を確認しながらの効率的な培養が可能に－産総研プレスリリース：糖鎖の迅速プロファイリング技術でiPS細胞を精密評価－高密度レクチンアレイにより幹細胞に共通した糖鎖構造を確認－

参考文献

- [1] A. Varki and N. Sharon: *Essentials of Glycobiology, 2nd edition* (edited by A. Varki, R.D. Cummings, J.D. Esko, H.H. Freeze, P. Stanley, C.R. Bertozzi, G.W. Hart and M.E. Etzler), Cold Spring Harbor Laboratory Press (2009).
- [2] 成松久: 糖鎖研究のための基盤ツール開発およびその応用と実用化－過去10年間の産総研糖鎖医学研究センターの研究戦略, *Synthesiology*, 5 (3), 190-203 (2012).
- [3] E. Yasuda, H. Tateno, J. Hirabayashi, T. Iino and T. Sako: Lectin microarray reveals binding profiles of *Lactobacillus casei* strains in a comprehensive analysis of bacterial cell wall polysaccharides, *Appl. Environ. Microbiol.*, 77 (13), 4539-4546 (2011).
- [4] A. Shibasaki, H. Tateno, A. Ando, J. Hirabayashi and T. Gono: Profiling the cell surface glycome of five fungi using lectin microarray, *J. Carb. Chem.*, 30 (3), 147-164 (2011).
- [5] N. Takahashi: Three-dimensional mapping of N-linked oligosaccharides using anion-exchange, hydrophobic and hydrophilic interaction modes of high-performance liquid chromatography, *J. Chromatogr. A*, 720 (1-2), 217-225 (1996).
- [6] S. Hase, S. Hara and Y. Matsushima: Tagging of sugars with a fluorescent compound, 2-aminopyridine, *J. Biochem.*, 85 (1), 217-220 (1979).
- [7] J. Hirabayashi and K. Kasai: Glycomics, coming of age!, *Trends Glycosci. Glycotechnol.*, 12 (63), 1-5 (2000).
- [8] T. Feizi: Progress in deciphering the information content of the 'glycome'--a crescendo in the closing years of the millennium, *Glycoconj. J.*, 17 (7-9), 553-565 (2000).
- [9] 平林淳: フロンタル・アフィニティクロマト分析法, *生物工学学会誌*, 89 (7), 394-397 (2011).
- [10] K. Kasai, Y. Oda, M. Nishikata and S. Ishii: Frontal affinity chromatography: theory for its application to studies on specific interactions of biomolecules, *J. Chromatogr. B*, 376, 33-47 (1986).
- [11] D.C. Schriemer, D.R. Bundle, L. Li and O. Hindsgaul: Micro-scale frontal affinity chromatography with mass spectrometric detection: a new method for the screening of compound libraries, *Angew. Chem. Int. Ed.*, 37, 3383-3387 (1998).
- [12] J. Hirabayashi, Y. Arata and K. Kasai: Reinforcement of frontal affinity chromatography for effective analysis of lectin-oligosaccharide interactions, *J. Chromatogr. A*, 890 (2), 261-271 (2000).
- [13] Y. Arata, J. Hirabayashi and K. Kasai: Application of reinforced frontal affinity chromatography and advanced processing procedure to the study of the binding property of a *Caenorhabditis elegans* galectin, *J. Chromatogr. A*, 905 (1-2), 337-343 (2001).
- [14] E.S. Ng, N.W. Chan, D.F. Lewis, O. Hindsgaul and D.C. Schriemer: Frontal affinity chromatography-mass spectrometry, *Nat. Protoc.*, 2 (8), 1907-1917 (2007).
- [15] H. Tateno, S. Nakamura-Tsuruta and J. Hirabayashi: Frontal affinity chromatography: sugar-protein interactions, *Nat. Protoc.*, 2 (10), 2529-2537 (2007).
- [16] S. Angeloni, J.L. Ridet, N. Kusy, H. Gao, F. Crevoisier, S. Guinchar, S. Kochhar, H. Sigrist and N. Sprenger: Glycoprofiling with micro-arrays of glycoconjugates and lectins, *Glycobiology*, 15 (1), 31-41 (2005).
- [17] K.T. Pilobello, L. Krishnamoorthy, D. Slawek and L.K. Mahal: Development of a lectin microarray for the rapid analysis of protein glycopatterns, *ChemBioChem*, 6 (6), 985-989 (2005).
- [18] T. Zheng, D. Peelen and L. M. Smith: Lectin arrays for profiling cell surface carbohydrate expression, *J. Am. Chem. Soc.*, 127 (28), 9982-9983 (2005).
- [19] A. Kuno, N. Uchiyama, S. Koseki-Kuno, Y. Ebe, S. Takashima, M. Yamada and J. Hirabayashi: Evanescent-field fluorescence-assisted lectin microarray: A new strategy for glycan profiling, *Nat. Methods*, 2 (11), 851-856 (2005).
- [20] R. Rosenfeld, H. Bangio, G.J. Gerwig, R. Rosenberg, R. Aloni, Y. Cohen, Y. Amor, I. Plaschkes, J.P. Kamerling and R.B. Maya: A lectin array-based methodology for the analysis of protein glycosylation, *J. Biochem. Biophys. Methods*, 70 (3), 415-426 (2007).
- [21] S.C. Tao, Y. Li, J. Zhou, J. Qian, R.L. Schnaar, Y. Zhang, I.J. Goldstein, H. Zhu and J.P. Schneck: Lectin microarrays identify cell-specific and functionally significant cell surface glycan markers, *Glycobiology*, 18 (10), 761-769 (2008).
- [22] K. Kornfeld, M.L. Reitman and R. Kornfeld: The carbohydrate-binding specificity of pea and lentil lectins, *J. Biol. Chem.*, 256 (13), 6633-6640 (1981).
- [23] K. Yamamoto, T. Tsuji, I. Matsumoto I and T. Osawa: Structural requirements for the binding of oligosaccharides and glycopeptides to immobilized wheat germ agglutinin, *Biochemistry*, 20, 5894-5899 (1981).
- [24] R.D. Cummings and S. Kornfeld: Fractionation of asparagine-linked oligosaccharides by serial lectin-Agarose affinity chromatography, *J. Biol. Chem.*, 257 (19), 11235-11240 (1982).

- [25] C.D. Rillahan and J.C. Paulson: Glycan microarrays for decoding the glycome, *Annu. Rev. Biochem.*, 80, 797-823 (2011).
- [26] N. Uchiyama, A. Kuno, H. Tateno, Y. Kubo, M. Mizuno, M. Noguchi and J. Hirabayashi: Optimization of evanescent-field fluorescence-assisted lectin microarray for high-sensitivity detection of monovalent oligosaccharides and glycoproteins, *Proteomics*, 8 (15), 3042-3050 (2008).
- [27] 久野敦, 武石俊作, 平林淳: レクチンマイクロアレイのタンパク質医薬品生産プロセス開発への応用, *バイオ医薬品開発における糖鎖技術* (早川堯夫, 掛樋一晃, 平林淳 監修) シーエムシー出版, 230-241 (2011).
- [28] J. Hirabayashi, M. Yamada, A. Kuno and H. Tateno: Lectin microarrays: concept, principle and applications, *Chem. Soc. Rev.*, 42 (10), 4443-4458 (2013).
- [29] A. Kuno, Y. Itakura, M. Toyoda, Y. Takahashi, M. Yamada, A. Umezawa and J. Hirabayashi: Development of a data-mining system for differential profiling of cell glycoproteins based on lectin microarray, *J. Proteomics Bioinformatics*, 1(2), 68-72 (2008).
- [30] M. Toyoda, M. Yamazaki-Inoue, Y. Itakura, A. Kuno, T. Ogawa, M. Yamada, H. Akutsu, Y. Takahashi, S. Kanzaki, H. Narimatsu, J. Hirabayashi and A. Umezawa: Lectin microarray analysis of pluripotent and multipotent stem cells, *Genes Cells*, 16 (1), 1-11 (2011).
- [31] Y. Itakura, A. Kuno, M. Toyoda, A. Umezawa and J. Hirabayashi: Podocalyxin-targeting comparative glycan profiling reveals difference between human embryonic stem cells and embryonal carcinoma cells, *J. Glycom. Lipidom.*, S5-004 (2013).
- [32] S. Saito, Y. Onuma, Y. Ito, H. Tateno, M. Toyoda, A. Hidenori, K. Nishino, E. Chikazawa, Y. Fukawatase, Y. Miyagawa, H. Okita, N. Kiyokawa, Y. Shimma, A. Umezawa, J. Hirabayashi, K. Horimoto and M. Asashima: Possible linkages between the inner and outer cellular states of human induced pluripotent stem cells, *BMC Syst. Biol.*, 5 Suppl 1, S17 (2011).
- [33] H. Tateno, M. Toyoda, S. Saito, Y. Onuma, Y. Ito, K. Hiemori, M. Fukumura, A. Matsushima, M. Nakanishi, K. Ohnuma, H. Akutsu, A. Umezawa, K. Horimoto, J. Hirabayashi and M. Asashima: Glycome diagnosis of human induced pluripotent stem cells using lectin microarray, *J. Biol. Chem.*, 286 (23), 20345-20353 (2011).
- [34] K. Hasehira, H. Tateno, Y. Onuma, Y. Ito, M. Asashima and J. Hirabayashi: Structural and quantitative evidence for dynamic glycome shift on production of induced pluripotent stem cells, *Mol. Cell. Proteomics*, 11 (12), 1913-1923 (2012).
- [35] Y. Onuma, H. Tateno, J. Hirabayashi, Y. Ito and M. Asashima: rBC2LCN, a new probe for live cell imaging of human pluripotent stem cells, *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, 431 (3), 524-529 (2013).
- [36] H. Tateno, A. Matsushima, K. Hiemori, Y. Onuma, Y. Ito, K. Hasehira, K. Nishimura, M. Ohtaka, S. Takayasu, M. Nakanishi, Y. Ikehara, M. Nakanishi, K. Ohnuma, T. Chan, M. Toyoda, H. Akutsu, A. Umezawa, M. Asashima and J. Hirabayashi: Podocalyxin is a glycoprotein ligand of the human pluripotent stem cell-specific probe rBC2LCN, *Stem Cells Transl. Med.*, 2 (4), 265-273 (2013).
- [37] National Research Council: *Transforming Glycoscience*, The National Academies Press (US), (2012).
- [38] N. Taniguchi, T. Suzuki and K. Ohtsubo (eds.): *Sugar Chains*, Springer, Tokyo (2014), in press.
- [39] J. Hirabayashi, A. Kuno and H. Tateno: Lectin-based structural glycomics: a practical approach to complex glycans, *Electrophoresis*, 32 (10), 1118-1128 (2011).

[40] 平林淳: 糖鎖のはなし, 日刊工業新聞 (2008).

[41] 平林淳: 転換期を迎えたバイオ医薬品～成否のカギはオープンイノベーションと糖鎖制御, *MEDCHEM NEWS*, 23 (2), 16-21 (2013).

執筆者略歴

平林 淳(ひらばやし じゅん)

1980年東北大学理学部卒業。1982年東北大学大学院理学修士。1982年帝京大学薬学部助手～講師。1989年東北大学大学院理学博士。2002年(独)産業技術総合研究所糖鎖工学研究センター研究チーム長。2006年同、糖鎖工学研究センター副センター長。2012年同、幹細胞工学研究センター上席研究員(現、首席研究員)。



査読者との議論

議論1 全体的なコメント

コメント(上田 次次:兵庫県立工業技術センター)

この研究の展開には、いくつかの重要な飛躍があったことが伺えます。物語風であるので、そのエピソードが強調されわかりやすくなっていると思います。しかし、それらの飛躍は、単なる偶然ではなく、何らかの仮説に基づいていたはずで、新しい要素技術を仮定したのか、あるいは、既存技術の構成のための仮説を立てたのかなど、明記してください。そうすると、シンセシオロジーの論文として、よりふさわしいものとなります。

また、読者の理解を容易にするために、この論文の構成に沿った流れ図のような説明図を加えるのがいいと思います。物語風の記述とセットになって、読者が論理的に理解しやすくなると思います。

コメント(湯元 昇:産業技術総合研究所)

この研究の目標は「糖鎖プロファイリング技術の開発」であり、「FACによる原理検証」という大きなブレイクスルーを軸に、「レクチンのアレイ化」、「エバネッセント波励起蛍光検出法」といった要素技術を統合してレクチンマイクロアレイを開発しています。しかし、そのシナリオは特にバイオ分野以外の人にとってはわかりにくいものとなっています。その大きな理由は、時系列に沿った記述となっているからと思われる。そこで、まずレクチンマイクロアレイとそれをを用いた糖鎖プロファイリングの概念図を入れて頂き、そのもととなる原理の検証が必要であったことと、マイクロアレイの要素技術を統合したという構成にして頂けないでしょうか。

回答(平林 淳)

後半の「応用展開」を除き全編にわたり、ご指摘の点を意識して技術シナリオ、仮説を明示しつつ修正を試みました。本技術の構成・論立てと物語の対応がわかるような図7を最後に加え、かつ技術中心のシナリオとして総括を加えてみました。

しかし、時系列(物語風)の論調をくずすと、その持ち味が失われること(文章力によりますが)、結局全部を書きなおすことになってしまうと感じます。熟慮の結果、時系列の記載はそのままとし、冒頭に糖鎖解析の難しさをイメージとしてまず植え付けさせ(課題を提示)、本技術であるレクチンマイクロアレイの操作法の従来法との違い(図2)、レクチンアレイの原概念(図3)⇒ブレイクスルーとなったFACの改良(図4)、そしてPJで得たデータ(図5)=レクチンアレイのイメージそのもの)という流れを明確に提示しました。さらに、最後に技術が中心のシナリオになるよう、読者にレビューしてもらおうべく、総括を加えてみました。

議論2 糖鎖の構造解析の困難性の明示

コメント(上田 次次)

糖鎖が、構造的多様性と時間的不安定性が大きく、複雑であることが、この研究の出発点として強調されています。糖鎖が核酸やタンパク

質に比べて数値的にどの程度違うのかを例示すると、読者にはわかりやすいのではないのでしょうか。

コメント (湯元 昇)

最初のところで、糖鎖プロファイリングがなぜ重要かが分野外の読者にもわかるよう記述して頂けないでしょうか。糖鎖の代表的化学構造なども入れられて、その複雑性がわかるような工夫、さまざまな糖鎖を認識するレクチンが存在することがわかるような工夫も入れて頂ければと思います。

回答 (平林 淳)

糖鎖の構造解析が他の高分子と比してなぜ困難なのかを、糖タンパク質の模式図と構造が複雑になる要素を階層性の視点を入れ説明する図1を新たに作成してみました。これによって糖鎖を切り出して相互分離する従来法と、レクチンアレイによる解析アプローチの違いを示した図2が旧稿より理解しやすくなったのではと思います。

議論3 開発したシステムの優位性

コメント (湯元 昇)

「エバネッセント波励起蛍光検出法」のところで、著者らの開発したシステムの優位性が良く理解できないものとなっています。「検出感度の高さ」が優位性としてあげられていますが、この特徴がどこから出てきているのかがわかりません。本文の最後のところで、『理論上「エバネッセント=高感度」ではないが』とありますので、高感度化がなぜ達成できたのかは説明できていないのかもしれませんが、少し説明的記述をお願いできないでしょうか。

回答 (平林 淳)

高感度の達成にはエバネッセント波励起原理の採用だけでなく、光学系、生化学系、ソフト系それぞれにおけるバックグラウンド低減の諸策が貢献した点を追記しました。

ボールペン技術による家庭用高精細映像光伝送システム開発

— 安価で簡易な光接続を可能とするボールペン型光インターコネクットの提案 —

当麻 哲哉^{1,2*}、瀧塚 博志^{1,2}、鳥飼 俊敬³、鈴木 等³、小木 哲朗²、小池 康博¹

ハイビジョン映像の品質を超える高精細なビデオフォーマットが開発されているが、その伝送のための高速データ通信技術は必ずしも一般家庭への適用が容易ではない。家庭向けには、高速通信というテクニカルな要求だけでなく、取り扱い易さ、接続不良のない信頼性、入手しやすい価格等の条件が満たされる必要があり、高速通信で代表的な石英系光ファイバーは、脆く折れやすい上、低コストで精度のよい簡単接続が困難なため、消費者のニーズに合わない。この研究では、折れにくく高速通信が可能な屈折率分布型プラスチック光ファイバーの端面に、球状のガラス・コリメータレンズを組み込んだ超小型ビーム拡大インターコネクットを、低コストで精度の高いボールペン製造技術の応用で実現し、4K3D高精細非圧縮映像伝送実験によるシステム検証を行った。

キーワード: 光通信、コリメータレンズ、光学デザイン、ボールペン、プラスチック光ファイバー

Development of a household high-definition video transmission system based on ballpoint-pen technology

— A low cost, easily deployed optical connection using a ballpoint-pen type interconnect —

Tetsuya TOMA^{1,2*}, Hiroshi TAKIZUKA^{1,2}, Toshitaka TORIKAI³, Hitoshi SUZUKI³, Tetsuro OGI² and Yasuhiro KOIKE¹

High quality video formats beyond HDTV are being developed, but these formats require data communication rates greater than 10 Gbps, which are not easily adaptable to household applications. Moreover, household usage requires ease of handling, robustness against poor connectivity, and affordable cost. Conventional silica optical fibers are not suitable for applications that involve high-speed, short-range communication, because of their fragility, and difficulty in achieving precise connectivity with a low cost connecting method. We proposed a novel expanded-beam interconnect using a graded-index plastic optical fiber (GI POF) with a glass spherical collimator lens uniquely fabricated by low cost ballpoint-pen technologies at both ends. Our power budget evaluation verified its suitability for consumer applications. Successful validation was then conducted by transmitting 4K-3D uncompressed video content.

Keywords: Optical communications, collimator lens, optical system design, ballpoint pen, plastic optical fiber

1 はじめに

家庭内の通信の中で非圧縮映像の伝送は、かなり広い帯域が要求されている。近年、急速に普及したハイビジョンテレビの映像フォーマット（画素数 1920 × 1080、毎秒 60 フレーム、インターレース）は、消費者には十分な高画質であると思われてきたが、リビングルームのテレビ画面サイズが年々大型化してきており、それに伴い同じ精細度では画素が拡大されて画質が落ちることから、さらなる高精細映像技術が必要とされ、研究開発が盛んに進められている。例えば画面サイズが 2 倍になった場合、リビングルームの同じ距離から視聴して同じ解像度を得るためには、画素数を縦横 2 倍ずつ、合計 4 倍に増やし、さらに

動きの速い映像に対応したフレームレートである 4K フォーマット（画素数 3840 × 2160、毎秒 60 フレーム、プログレッシブ）が必要で、データサイズはフルハイビジョンの 8 倍、伝送には、10 Gbps を超える帯域が必要になってくる。立体視（3D）映像を高精細にデュアル伝送するにはさらに 2 倍のデータ転送速度を要する。

こうした高精細映像の非圧縮伝送には、目標伝送速度を達成するために、既存の銅線、例えば同軸ケーブル、DVI (Digital Visual Interface)、HDMI (High-Definition Multimedia Interface) 等では不十分であり、銅線に代わる光通信の宅内導入が必要となっている。一般に短距離の光データ通信には、石英系マルチモード光ファイバー

1 慶應義塾大学 フォトニクス・リサーチ・インスティテュート 〒212-0032 川崎市幸区新川崎 7-1、2 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 〒223-8526 横浜市港北区日吉 4-1-1、3 三菱鉛筆株式会社 横浜研究開発センター 〒221-8550 横浜市神奈川区入江 2-5-12

1. Keio Photonics Research Institute, Keio University 7-1 Shin-Kawasaki, Saiwai-ku, Kawasaki 212-0032, Japan * E-mail: t.toma@sdm.keio.ac.jp, 2. Graduate School of System Design and Management, Keio University 4-1-1 Hiyoshi, Kohoku-ku, Yokohama 223-8526, Japan, 3. Research and Development Center, Mitsubishi Pencil Co., Ltd. 2-5-12 Irie, Kanagawa-ku, Yokohama 221-8550, Japan

Original manuscript received November 6, 2013, Revisions received November 21, 2013, Accepted November 25, 2013

(MMF) が広く使用されているが、家庭やオフィスの室内用途では、ケーブルを折り曲げたり束ねたり、むき出しで床に這わせたりするために、取り扱いに気を付けないと折れてしまうという欠点を持っている^{[1][2]}。また折れたファイバーのガラス破片が被覆を破って飛び出しユーザーを傷つける危険性もはらんでいる。さらに破損したガラスは、通常の燃えるゴミとして廃棄できない。さらにファイバーの端面にキズやホコリがつくと、接続不良が起りやすく、接続にあたって端面の汚れをアルコールで拭き取ったり、ホコリをエアブローで除去したりする必要があり、一般消費者にとっては扱いにくい。

端面処理の欠点を解消するために、従来からある技術として、光ファイバーの端面にボールレンズを付けて、端面から広がる光をコリメート(集光)し、コア径よりも出射光のビーム径を拡大させる「ビーム拡大コネクタ」が知られている^[3]。図1に示すように、通常は端面同士を精度よく密着させる必要がある光ファイバー接続において、ボールレンズを装着することにより、軸ズレ精度に余裕を持たせ、密着の必要性がなくなる上に、端面のキズやホコリの影響を受けにくくすることができる。過酷な屋外の条件下での光通信接続を可能にするため、航空機や船舶、車両、軍事用途等で用いられている^[4]。ところが光ファイバーの軸とボールレンズの中心の位置関係を精度よく固定するためには、コネクタのハウジング部分の設計および組み立て精度が必要で、大量生産に向かない上、非常にコストがかかることから、特殊用途にしか使われていない。またハウジングが大きくなりがちで小型化ができない。また、石英ファイバーの欠点である脆くて折れやすい点については、近年では折り曲げに強いものも出てきているが、被覆を厚くするなどケーブルが太くなってしまいうという欠点がある。

このような背景の中でこの研究では、一般家庭における高精細映像の非圧縮伝送を可能とするための、安全で扱

い易く、信頼性の高い低コストの高速光通信システムを提案するものである。具体的には、プラスチック光ファイバーの端面に小さなボールレンズを装着した、超小型光インターコネクタを開発し、このインターコネクタを複数組み合わせさせた新規コネクタ付きケーブルを試作、高精細映像を実際に流して検証を行った。

2 目標とシナリオ

一般家庭に普及可能な光通信システムを導入するにあたり検討しなければならない課題は、その通信速度(伝送帯域)というテクニカルな要求を満たすことだけではなく、ユーザーの視点に立って、安全で扱い易く、簡単に信頼性の高い接続が可能で、かつ低価格で提供できるかどうか、という点である。

この点で要求を満たすことが困難な石英系光ファイバーに代わって、プラスチック光ファイバー(POF)は、優れた柔軟性と物理的耐久性を示し、大量生産で安く製造することが可能な媒体として最も有力な候補である。

POFは石英系光ファイバーに比べて、折り曲げに強く、踏みつけても断線することがない。一般に普及しているPOFは、伝送帯域の狭いステップインデックス型(SI型)であり、コア径が大きく接続時の軸ズレや端面のキズ、ホコリに気をを使う必要がないので、消費者が使う室内の配線用途に向いていると考えられる。しかし、この研究が目指している非圧縮高精細映像の伝送を考えると、数100 Mbpsの帯域では、伝送速度が不足している。

一方で慶應義塾大学の小池らのグループが発明した全フッ素化屈折率分布型プラスチック光ファイバー(GI型POF)(図2)は、高速通信にも対応できるものとして商品化されており、プラスチックの素材の特徴である柔軟性を兼ね備えながら、40 Gbpsに迫る世界最速の伝送帯域を持つ。小池らは全フッ素化GI型POFを用いた大画面高

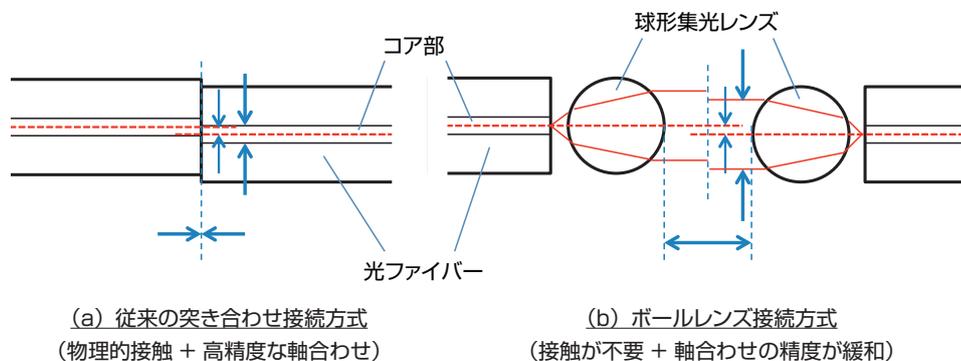


図1 ボールレンズの特徴

従来の光ファイバー接続は、端面を突き合わせて接触させ、光軸を正確に合わせる必要があった。これに対して、ボールレンズを終端に付けた光ファイバーは、コア径よりも拡大されたコリメート光が出射され、軸ズレの精度が緩和されるうえ、ギャップを開けて非接触でもつながるため、結合がとても簡単になる。

精細ディスプレイによる遠隔地間の「Face-to-Face コミュニケーションシステム」を提案している^[5]。

この全フッ素化 GI 型 POF は、石英系 MMF と同等の広い帯域を有しており、材料の物理特性では石英よりも優れているため、ジョージア工科大学のラルフらにより高い評価を受けた^[6]。プラスチック素材のため、押出成形技術で大量生産すれば低コストでの製品化が可能である。ただし、高速通信を可能にするために、コア径を小さくしており、接続の容易さの点では SI 型のような利点はなく、石英系 MMF と同様に軸合わせ精度のよい接続が求められ、端面のキズ、ホコリにも気を遣う必要があり、防塵キャップを付けたり、接続前に端面クリーニングをしたりすることが求められる。このキズ、ホコリについて言えば、プラスチックは石英よりも材料が柔らかい上に静電気を帯びやすく、むしろ石英以上に気を使っているのが現状である。

前述のボールレンズを組み合わせて、端面処理を改善する方法も考えられるが、低価格短距離通信を特徴とする POF のビジネス展開の上で、高コストになるボールレンズ装着は常識ではありえない選択であった。GI 型 POF が発明されて 20 年、特性の良さは理想的でありながら、実用

性を考えると、このようなトレードオフのために普及する用途が限定された状態が長年続いてきた。今回の我々の研究は、この事実をブレイクスルーできるイノベティブな統合技術である。

開発のシナリオを図 3 で説明する。光ファイバーの欠点である接続の精度要求の高さと端面のキズやホコリのケアについて解消する技術として、ボールレンズを装着する「ビーム拡大コネクタ」があることをすでに述べたが、POF を使うとコストが見合わないし、石英ファイバーでは、一般消費者に使用に耐える柔軟性がない。つまりボールレンズの機能は優れているが、従来のビーム拡大コネクタの組み立て技術では、トレードオフを抜け出せない。

一方、家庭用ではなくエレクトロニクス部品の用途で、基板上の狭く小さな場所をジャンパー線のようにつなぐことができる光コネクタを目指していた鳥飼（当時日本航空電子工業勤務）は、ボールレンズがあれば接続は容易になるものの、ジャンパー線に必要な超小型形状にすることに困難を憶えていた。2009 年、異業種交流で出会ったボールペンメーカー三菱鉛筆の技術者とのディスカッションがその方向性を大きく変えるきっかけとなった。「ボール」の材質



《特徴》

- 石英系と同等の高速通信
- 柔らかく折り曲げても断線しない
- 破断面から破片が出ず安全
- 連続大量生産で低価格化可能

《欠点》

- × 柔らかく端面がキズつきやすい
- × 静電気がホコリを引き寄せやすい
- × 少量生産が困難で需要が必要
- × 実績が少なく採用への障壁が高い

図 2 GI 型 POF の特徴と欠点

全フッ素化 GI 型 POF（屈折率分布型プラスチック光ファイバー）は、その物理的柔軟性によって、石英系ファイバーにはない折り曲げに対する耐久性を有し、破断による危険性もないため、一般家庭の消費者が取り扱い易い素材である反面、キズやホコリに対しては、石英系ファイバー以上に注意が必要である。

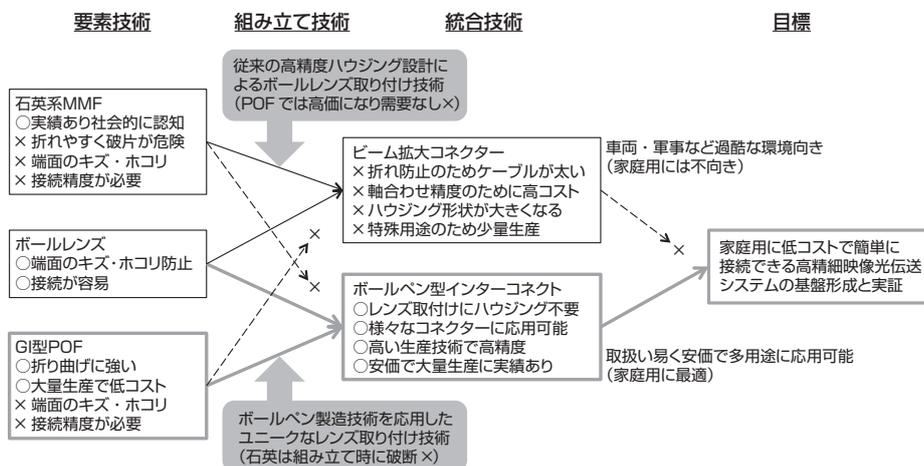


図 3 家庭用光接続技術開発のシナリオ

ボールレンズの効果はかつてより知られていたが、取り付けのためのハウジングを組み立てに精度が必要で、安価に製造することが難しく、特殊な用途にしか使われなかった。本研究は、ボールペン製造技術を応用することで、極めて精度良く低コストでボールレンズの取り付けを可能とした。

「○」は家庭用途に有利な特性、「×」は家庭用途に不利な特性。

においてはガラスと金属の違いはあるものの、細いチューブの先端にボールを装着する、という構造概念の共通性に気づいたのである。

さっそくニードルチップ型のボールペンに石英系光ファイバーを挿入し、超小型コネクタを開発する研究が2社の共同で始まった。しかし、ペン先の金属製スリーブに石英系光ファイバーを差し込み、通常のボールペンインクチューブと同じ方法で、外側からかきしめて固定しようとする、石英の材質の脆さゆえに破損してしまうことがわかった。開発を断念せざるを得ない状況にあった2010年、偶然に三菱鉛筆の技術指導にあっていた小池に相談したところ、石英ファイバーを小池らが開発したGI型POFに置き換えるアイデアが出された。インクチューブのようなプラスチック素材の柔軟性を利用すれば、実現できるという発想である。

さらに、ボールペン技術を使えば、ボールレンズの装着が低コストで実現することから、エレクトロニクス分野に限らず、コスト面で困難とされていた家庭用にもボールレンズ付きのコネクタが導入できると予想された。実験の結果、ボールペン製造と同じかきしめる固定方法で、ファイバーを破損することなく固定できることが明らかになり、この研究が本格的にスタートすることになったのである。

以上要約すると、この研究では一般家庭で利用される低コストで簡単に接続できる高精細映像光伝送システムの基盤形成と実証を目標とし、主要な要素技術としてのボールペン製造技術により、GI型POFの端面に超小型で高精度でありながら低コストでボールレンズ装着を可能とし、その実現を図るというシナリオで研究を遂行した。

3 ボールペン型光インターコネクタの開発

このようにして我々は、光ファイバーの端面にボールレンズを精度よく装着する方法として、世界で初めて、ボールペン製造技術を応用することに成功し、極めて低コストでの

光インターコネクタを実現した^[7]。このユニークで全く新しい概念のレンズ装着方法について、その構造を図4に示す。

ニードルチップ型ボールペンのペン先は、3種類の部品から構成されている。ニードル部分にあたる金属製スリーブ（内径0.5 mm、長さ7.8 mm）、スリーブの先端に取り付ける金属ボール（直径0.55 mmの真球）、インクが流れるキャピラリーの3点である。このうち、金属製スリーブはそのままに、先端の金属ボールを高透明度の球状ガラス（材質BK7、直径0.55 mm、研磨して真球状にしたもの）に替え、インクチューブの代わりに、旭硝子株式会社製の全フッ素化GI型POF「FOF FONTEX®」を挿入した。金属製スリーブには、POFの位置合わせのためのポンチ加工があり、挿入してポンチ加工までつき当てることで、先端のボールと端面の距離が正確に固定される。また、挿入したファイバーが抜けないように、スリーブの外側からかきしめることで固定した。

このときのボールレンズの中心とファイバーの中心軸は、精度よく位置合わせされていなければならない。その点で、ボールペン製造技術はもともと、高い精度のもとに設計、製造がなされてきたために、光通信の要求を満たす高精度のアライメントを実現することができた。また、先端に装着するボールは、光学特性を高めるために、真球でかつ表面に凹凸のないなめらかさが必要であるが、この点においても、従来からのボールペン技術で培われてきた金属球の研磨方法が、およそそのまま生かされた。

挿入したPOFを抜けないように固定する「かきしめ」についても、およそ現状のボールペン製造技術が使われた。かきしめの位置と箇所、かきしめ強度については、POFの光学特性にダメージを与えることなく、十分な引き抜き強度が出るように最適化されたが、この点についても現状の生産工程における調整の範囲内で可能であった。

これらの工程が、石英ファイバーでは達成できず、POF

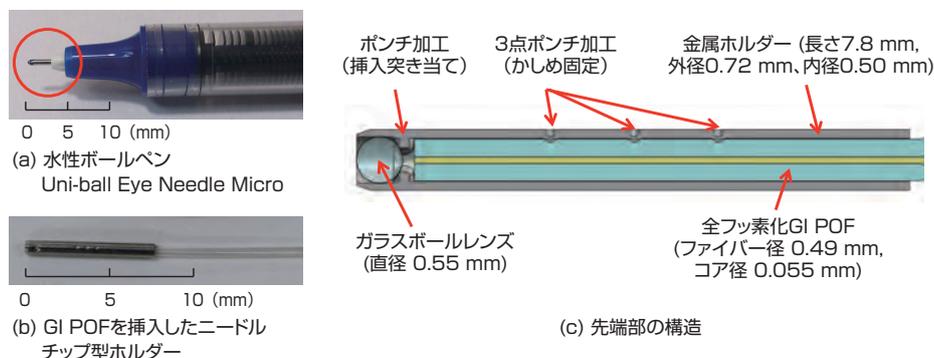


図4 ボールペン光インターコネクタの構造

ニードルチップ型のボールペン製造技術を応用することで、光ファイバーの先端にガラスのボールレンズを安価に精度よく装着することができる。コネクタのハウジングにボールを付けるのではなく、ハウジングレスでファイバー端に直接ボールが装着できるため、このあとのコネクタ設計に自由度が高い。

の特性をそのまま生かすことのできた、この研究における最も本質的にユニークな発明である。つまり、従来からのボールペンに必要とされてきた高精度のアラインメント、ボールの研磨、チューブの固定が、まさに光インターコネク트에求められる精度の高さと一致し、かつ極めて低コストでそれを実現するという、これまでの常識を覆す発明だったといえる。

4 実験方法と評価結果

それではここで、開発された新規光インターコネクットの性能を測定するための実験方法と、その結果を示す。

4.1 結合損失の評価

結合損失を測定するために、グレイテクノス社の光パワーメータ「Photom 205A」を使った。軸ズレ測定治具の上で、2本の光ケーブルを端部で結合させ、正確にその軸ズレ距離をx、y、zの3軸方向で制御して固定し、その2本のケーブルをパワーメータの入力と出力にそれぞれ接続し、各条件下で伝送される光のパワーを読みとった。光源の波長は850 nmである。ファイバー端部のゴミは取り付け前に、エアクリナーで除去した。パワーが最大となるxyz座標を原点と設定し、ここを起点にx、y、z方向に軸ズレさせたときの光パワーをdBm単位で測定し、原点での光パワーを基準に差を取って結合損失（単位dB）を計算した。

結合損失を実測するとともに、レイトレーシング法による工学設計ツールZEMAX™を用いて20万回のシミュレーションを実行し、実測データが理論的に間違っていないことを確認しながら実験を行った。シミュレーションで入力した条件は、現物に近い状態を再現するように、ファイバーの直径0.49 mm、コア径55 μm、屈折率1.350、開口数0.245、ボールレンズの直径0.55 mm、屈折率1.51とした。ファイバー端とボールレンズの距離は最適化された長さに設定した。

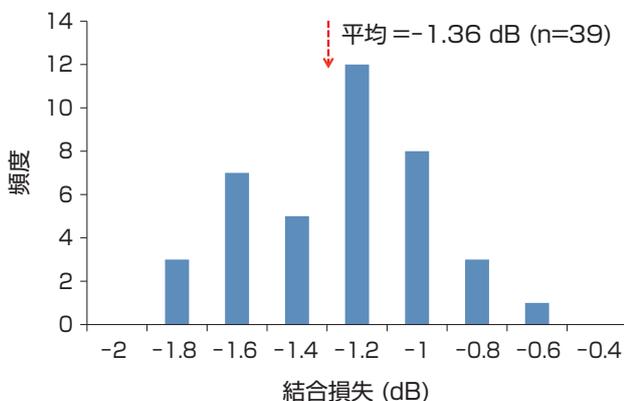


図5 試作サンプルの結合損失ヒストグラム
試作した40本のボールペン型インターコネクットサンプルの結合損失測定データ。平均損失は、1.36 dB。

結合損失は、最適な状態で結合したときのコリメーション損失と、結合時に軸ズレが生じて増加するアラインメント損失、端面間のギャップから生じる損失、光ファイバーの曲げから来る損失の4つに分けて評価した。その結果を以下に示す。

①結合そのものによるコリメーション損失

ボールレンズにより終端処理をしたGI型POFサンプルを40本作成し、そのうちの1本をマスターとして、残りの39本を1本ずつ、マスターに結合しながら損失量を測定した。平均損失は、-1.36 dBであった。その結果のヒストグラムを図5に示す。この結果から、パワーバジェット（送信側の最低出力と受信側の最低感度の差で、使用する機器での最悪の条件を想定した数値）の推定（5章）に使用される結合損失は、両端の結合を考慮して2倍し、2.72 dB（1.36 dB × 2）となった。

②軸ズレによるアラインメント損失

2本のケーブルの結合において、軸ズレ（軸に垂直なx、y方向にずれるもの）が生じた場合の結合損失を、ボールペン技術によりボールレンズが装着されたコネクタ同士の接続と、ボールレンズのない通常のファイバー端面つき合わせ接続とを比較して評価した。

図6は、パワーが最大となる点を原点とし、軸に垂直な方向に平行ずれを生じさせた場合の損失増加量を測定したデータを示している。この図が示すように、ボールレンズが装着されたものは、軸ズレの許容が高まり、高精度な結合を必要としなくてすむ。あるいは同じ精度の結合では損失を軽減することができる。

ボールがない従来のファイバー結合では、1 dB以下の損失に抑えるためには、10 μm以内の精度での結合が要

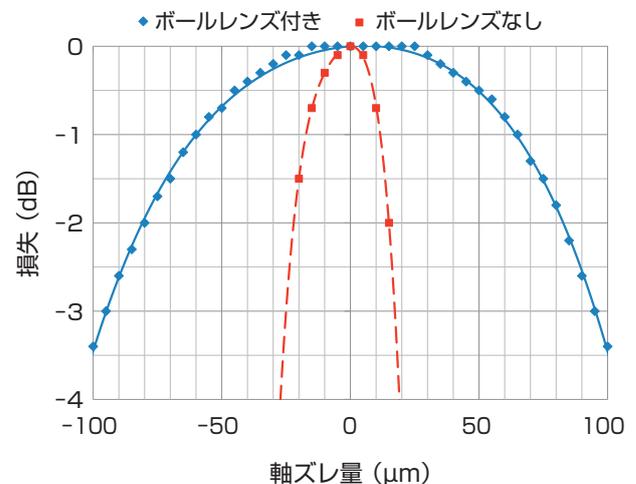


図6 軸ズレによる損失の比較データ
軸に垂直な方向のズレ量による光損失を、ボールレンズ装着の有無で比較したデータ。ボールレンズにより許容ズレ量が広がる。

求されるが、ボールレンズコネクタでは 60 μm のズレまで許容され、6 倍広いマージンを持つことがわかった。この特徴は、周辺のあらゆる部品の設計精度、組み立て精度、寸法安定性に影響して自由度を増すことにより、製造コストの削減に寄与できるものである。

③ギャップによる損失

図7は、ファイバーの端面間のギャップに対する損失量を示したものである。1 dB 以下の損失に抑えるためには、従来の結合方式では、ギャップはわずか 0.05 mm (50 μm) しか許されないが、ボールレンズを装着することにより、許容度が非常に大きくなり、10 倍の 0.5 mm のギャップでも損失はほとんどなく、測定された最大ギャップ 0.8 mm においても、損失は 0.5 dB 以下であった。ボールレンズによるビームのコリメート出力が、この重要な利点を提供しているといえる。

④曲げによる損失

また、全フッ素化 GI 型 POF と石英系 MMF の曲げ損失の比較も、同じ測定方法を用いて評価された。評価は、市販の石英系 MMF として古河電気工業製「OM2」と「OM3」の2製品を、また市販の POF として AGC 製全フッ素化 GI 型 POF FONTEX[®] を比較して行われた。図8に示すように、GI 型 POF の曲げ損失は、ケーブルをしっかりと結んだ状態 R=3.5 mm まで全く認められず、R が小さくなるほど損失が大幅に増大していく石英系 MMF よりはるかに低く、家庭やオフィスのネットワークへの応用が期待される。

4.2 光強度測定による特性評価

光パワーメータを使った光の減衰量等の測定により、この研究の光インターコネクタの特徴を調べた。

①BERTによるパワーペナルティの測定

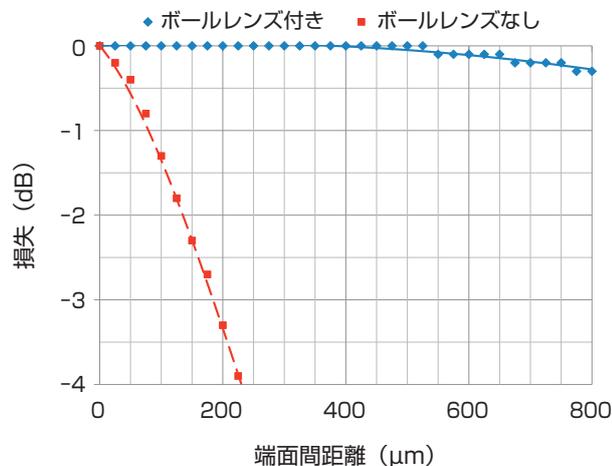


図7 軸方向のギャップによる損失の比較データ
軸方向のギャップによる光損失を、ボールレンズ装着の有無での比較データ。ボールレンズは間隔が空いても損失が非常に少ない。

ビット誤り率 (BER: 一定時間内に符号化して送られるデジタルデータの総数に対して、誤って受信された符号の数の比率) は、アンリツ社の「BERTWave MP2100A」(BERT、サンプリング・オシロスコープ) を用いて測定された。アジレント社の光減衰器 N7766A を介して、測定対象サンプルを BERT 測定器に接続し、減衰量を調整しながら、エラーが 1 となったときの光パワーをパワーメータで測定した。0.5 dBm ずつ変化させながらビット誤り率をプロットしていき、バックツーバック (送信機と受信機を直結し、損失が最も少ない基準となる状態) の石英系ファイバーのデータをリファレンスとして、ビット誤り率 1E-12 におけるパワー値の差を、パワーペナルティ (伝送路での損失を補うために増加させなければならないパワーの増加量) として算出した。

この方法により、ケーブル長とパワーペナルティの関係を評価した結果を、図9(a) に示す。長さとおよそ直線関係があることがわかる。100メートルのケーブル長のためのパワーペナルティは、1.12 dB であるが、50メートルでは 0.66 dB、20メートルでは 0.29 dB、10メートルで 0.11 dB であった。これらの値は、5章のパワーバジェットの計算で使用された。

②ケーブル損失の評価

アジレント社の PNA-X ネットワーク・アナライザ「N5242A」と光コンポーネント・アナライザ「N4376B」を使用し、ケーブルの周波数特性ならびに、ケーブル損失 (ゼロ周波数での DC モード値) を求めた。

さまざまな長さのケーブルを測定し、損失量を長さの関数として示したものが、図9(b)である。100メートル長のケーブル損失は 3.76 dB で、50メートルで 1.87 dB、20メートルで 0.75 dB、10メートルで 0.38 dB となった。これらの

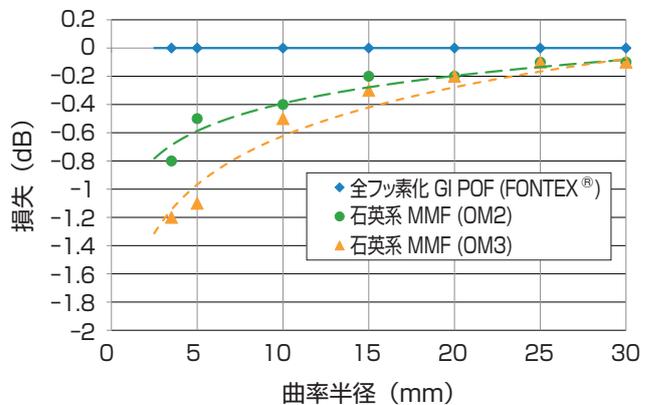


図8 曲げによる損失の比較データ
ファイバーを所定の半径で曲げたときの光損失を、従来の石英系 MMF と全フッ素化 GI 型 POF で比較したデータ。POF の曲げ損失は非常に小さい。

値も同様に、5章のパワーバジェット計算で使用された。

③レーザーの安全性評価

次に、万が一のケーブル破損による光漏れを想定し、レーザー光線による人体への影響、とくに目の安全のために被ばく放出限界 (AEL) 値に基づいた光パワーを評価した。ADCMT社の光パワーメータ「8250A/82311」と、NEC製の850 nm光源の光トランシーバー、その受信機を使用して安全性評価を実施し、AEL値のファイバー1本あたりが-1.57 dBmと算出され、家電向けクラス1のアイセイフティ安全基準 (レーザー光の安全性の規格で、家庭用機器では、最も安全なクラス1の規格値を守ることが要求される) を満たしていることを確認した。

5 パワーバジェットの評価

本提案システムが、目標とする家庭内高精細映像通信システムに適しているかどうかを確認するために、4章で述べた実験結果を組み合わせて、パワーバジェットの評価を行った。図10は、10メートル、20メートル、50メートルの3種のケーブル長におけるコリメーション損失、アライメント損失、パワーペナルティ、およびケーブル損失の4つの損失を積み上げて、目標とするパワーバジェットに対する余裕度 (マージン) を推定した結果である。パワーバジェットの目標値 (7.43 dB) は、IEEE802.3aeの受光感度 (Stressed Receiver Sensitivity: SRS) の数値 (-9 dBm) をもとに、アイセイフティを考慮して、Launch Powerの値 (レーザーの出射パワー: -1.57 dBm) を差し引いた分である (9 dB - 1.57 dB = 7.43 dB)。

コリメーション損失の値 (2.72 dB) は、図5の平均値 (1.36 dB) を2倍にしたもの (ケーブルの両端に結合損失があるため) である。アライメント損失は次の6章で述べる8チャ

ネルのGI型POFを束ねて作られたコネクタの総損失 (4.76 dB) から、各チャンネルの1本のファイバーのコリメーション損失分 (2.72 dB) を差し引いて算出したもの (4.76 dB - 2.72 dB = 2.04 dB) である。つまりコリメーション損失とアライメント損失を足したものが、コネクタ全体の挿入損失量となる。またケーブル長に依存するパワーペナルティ、およびケーブル損失の二つの損失値については、それぞれ図9 (a) および図9 (b) の近似直線から計算で求めた。

例えば、10メートル長のGI型POFにおけるパワーバジェットは、長さに依存しないコネクタの総損失 (4.76 dB) と長さに依存するパワーペナルティ (10メートルで0.11 dB) とケーブル損失 (10メートルで0.38 dB) をすべて合計した値 (5.25 dB) となり、目標バジェット (7.43 dB) に対して、2.18 dBの十分なマージンがあることがわかる。ここで示した10メートルという長さは、家庭用電化製品の室内配線接続には十分な長さであり、また、6.2節のシステム検証で実際に使用したプロトタイプケーブルのサンプル長でもある。

これらの他に4章では、軸ズレ損失 (図6)、ギャップ損失 (図7)、曲げ損失 (図8) の3つのミスアライメントによる結合損失の評価を行ったが、これらによって生じる損失を、図10で示したパワーバジェットのマージンから切り崩していくことになる。マージンの量が多ければ、接続精度が低くても目標に収まるが、マージンが少なく厳しければ、損失を最小限に抑える接続精度が必要となる。

4章で述べた結果からわかるように、この研究で提案し

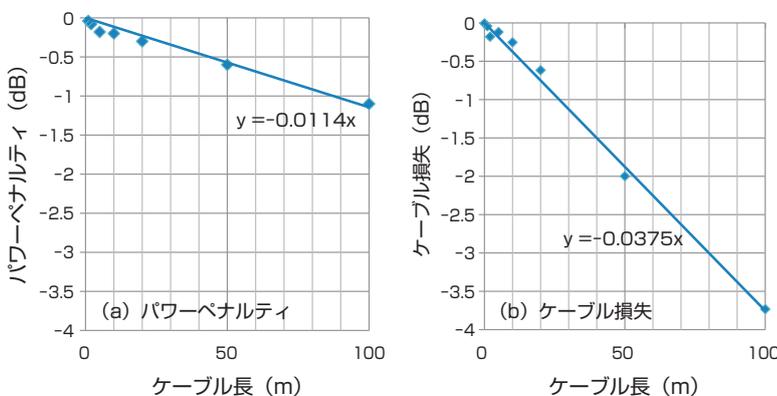


図9 ケーブル長に対するパワーペナルティと損失のデータ
左 (a) : 長さの異なるサンプルのパワーペナルティを実測し、近似直線の数式を求めた。
右 (b) : 光損失とケーブル長の関係を測定し、近似直線を求めた。

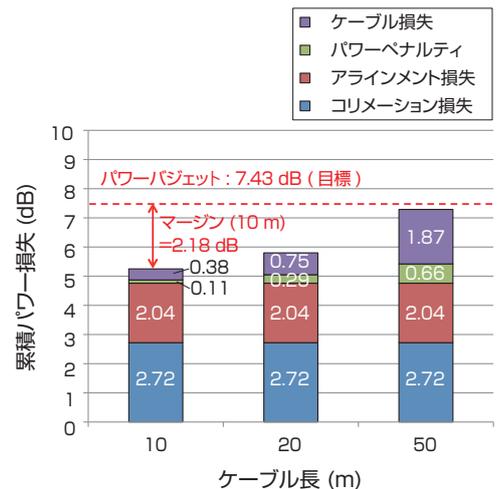


図10 トータルシステムの損失累計とパワーバジェット
損失の測定値を積み上げて累計し、トータルシステムのパワーバジェットに対する余裕度を求めた。10 mでは2 dB以上の余裕があり、20 mまでは問題なし、マージンがほとんどなくなる50 mくらいまで、用途拡大ができると予測できる。

ているボールレンズを端面に装着することによって、ラフな精度で結合しても損失の増大が小さいことから、パワーバジェットのマージンに対する接続精度の設計が楽になり、部品製造工程や品質管理にも良い影響を与え、部品コストを抑えることが可能となる。逆に言えば、ボールレンズがない従来の結合方法の場合には、かなり精度良く接続しないと、パワーバジェット内に収まらないことが想像でき、通信不良を起こす危険性が高く、家庭内での使用はあまり勧められない。要求を満たすために接続精度を高めようとするれば、コストがかかり消費者価格へも影響する上、接続時の取り扱いも難しくなってくる。したがって、本提案システムは家庭内での使用に十分耐えられる性能とコストを持つと考えられ、住宅の通信配線設計において、高い自由度をもっていることを示唆している。

図 10 が示す通り、ケーブルが長くなると、パワーバジェットのマージンが少なくなってくる。長さが 20 メートルになった場合を考えてみると、長くなることで室内にとどまらず部屋間の機器接続も可能となって利用価値が高くなる。パワーバジェットは、5.80 dB とわずかに上昇し、目標に対するマージンが 1.63 dB と若干下がるものの、まだ十分なマージン (1.63 dB) がある。

この研究では住宅内のネットワークへの活用を目指している。これまでのところ、パワーバジェットの目標以下に抑えるには、50 メートルが最長である (図 10)。マージンがほとんどない (0.14 dB) ので、リスクは高くなるが、本提案のボールレンズ方式であれば、ミスアラインメントによる結合損失が非常に少ないので、50 メートルまでの長さであれば十分に期待が持て、ホームネットワーク市場に光通信を実現するための有力候補となり得る。しかし住宅内のネットワークはこれより長い場合もあり、将来的にさらに長いアプリケーション (大きな住宅、集合住宅、オフィス等) にも展開するためには、コネクタのアラインメント損失 (2.04 dB) を低減する改善が課題である。

6 非圧縮映像伝送の検証

6.1 光電ハイブリッド高速映像伝送インターフェース

この章では、開発された光インターコネクタの活用事例として、高精細映像伝送のための光ケーブルとコネクタのプロトタイプを開発し、その妥当性の検証のための映像伝送実験を行ったことを報告する。

高精細映像伝送の光化のためには、映像機器類からの信号出力、それとつなぐ映像機器への入力も光化されていることが前提である。しかし現実問題として、機器の入出力端子が光化されているものは非常に少ない。急にすべてを光化することは難しいため、過渡期として電気信号での

入出力と光での入出力の両方ができるようにしておくことが重要である。

端子は全く電気のまま、伝送路は光に変換して伝送するアクティブ光ケーブル (AOC) も盛んに開発が進んでいるが、我々はもう一歩進んで、映像端子の横に、新たに光端子を設けて、電気だけで接続することも、光と組み合わせて接続することもできる「ハイブリッドコネクタ」のプロトタイプを開発した。

このハイブリッドコネクタは、図 11 に示すような構造になっている。既存の映像電気信号の入出力方法としては、コンテンツ保護を厳格に行っている HDMI が消費者にも一般的に使われていることから、今回のプロトタイプ試作では、HDMI との互換性を重視し、HDMI が規定するものと同様な信号の入出力ができる端子を基本に、その横に並べて、最大 40 Gbps の伝送を可能とした光入出力端子を組み合わせて、コネクタ設計を行った。この光端子の中には、この研究で開発した超小型ボールペン型光インターコネクタが 8 チャンネル組み込まれている。各チャンネルに最大 10 Gbps の信号が流せることから、4 本ずつを双方向で利用すれば、最大 40 Gbps の双方向伝送ができる。

プロトタイプ試作は、オスのコネクタ (プラグ側) とメスのコネクタ (レセプタクル側) をそれぞれ作成した。レセプタクルの左側、プラグの右側に HDMI Type-A と同等のコネクタを付けた。通常のハイビジョン映像を伝送するためにはこちらが使われ、さらなる高精細映像の伝送には、光端子が使われる。

6.2 4K3D非圧縮映像伝送によるシステム検証

この研究で開発したハイブリッドコネクタのプロトタイプを使用して、慶應義塾大学内の施設を利用して、4K3D 60i (画素数 3840 × 2160、立体視左右デュアルストリーム、毎秒 60 フレーム、インターレース) の非圧縮映像を一方向

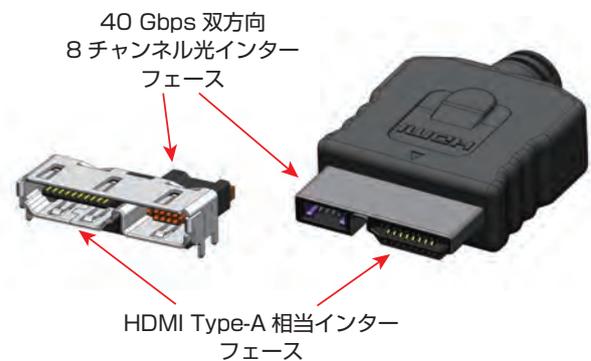


図 11 光電ハイブリッドコネクタ (試作品)
従来のハイビジョン映像伝送用コネクタ「HDMI」と同様の機能を備えながら、さらに高精細な映像を光通信で送受信できる光コネクタを組み合わせたもの。光コネクタには、8 本のボールペン型光インターコネクタが組み込まれている。

に、反対方向はフル HD 60p (画素数 1920 × 1080、毎秒 60 フレーム、プログレッシブ) の非圧縮映像を同期させて伝送、同一部屋内の離れた 2 箇所の間で通信を行い、映像が途切れたり止まったりすることがなく、システムとして正常に伝送できる性能を持つことを検証した。

使用した映像は、2010 年に慶應義塾大学と NHK メディアテクノロジー株式会社が共同で制作した約 10 分程度の映像で、米国の Red.com 社の 4K カメラ 2 台を、3D リグを使ってハーフミラーを介してお互いに垂直に配置する 3D 撮影方式で収録を行ったものである。映像は計測技研株式会社の UDR-20S にデータ保存されているものを再生して上映された。

図 12 は、その検証実験におけるデバイスとその接続を示すシステム構成図である。実験は、日吉キャンパスの協生館 3 階に設置されている CDF 教室 (Concurrent Design Facility) において 2012 年 5 月に実施し、非圧縮の 4K3D 映像を正常に伝送できることを確認した。

7 結論

この研究では、ボールペンの製造技術を応用することで、一般家庭における高精細映像の非圧縮伝送に求められる低コストで接続が容易で、かつ安全で信頼性の高い高速光通信システムを提案し実証を行った。具体的には、全フッ素化屈折率分布型プラスチック光ファイバー (GI 型 POF) の端面に、ボールペン製造技術を応用して小型ボールレンズを装着した超小型光インターコネクと、これを複数本組み合わせ合わせた新規コネクタつき光伝送ケーブルのプロトタイプを試作し、高精細映像を実際に流して検証を行った。

我々の提案する全く新しいボールペン型光インターコネ

クトは、POF の末端に直接ボールレンズを装着する形で、超小型化していることが特徴であり、そのまま機器内の基板接続を行うジャンパー線としても使用できるほか、複数本組み合わせることで、高速通信コネクタとすることもでき、その本数や形状の設計も自由度が高い。

また、ボールレンズの装着工程が、ボールペン製造技術を応用しているために、非常に安価に大量生産ができ、かつ実績のある高精度の軸合わせを達成できることから、極めて実現性と完成度の高い技術であるといえる。その性能についてもこの論文の中で示したが、ボールレンズによる接続の容易性、すなわち軸ズレやギャップが生じて、損失を最小限に抑えて結合できることが証明された。パワーバジェットの評価結果では、ケーブル長 50 m を超える中距離伝送、例えば家庭用ネットワークの光化等への活用にあたっては、パワーバジェットに余裕がないため、さらなる損失低減の改善が必要であるが、機器間接続のような短距離では、かなり余裕があることもわかり、実用性の高さを示すことができた。

謝辞

この研究は、総合科学技術会議により制度設計された最先端研究開発支援プログラム (FIRST プログラム) により、日本学術振興会 (JSPS) を通して助成されたものです。また、この研究に用いる評価サンプルの作成にあたって、旭硝子株式会社 AGC 電子カンパニーの渡邊勇仁氏、三菱鉛筆株式会社横浜研究開発センターの三井章仁氏の両氏に感謝申し上げます。なお論文作成にあたっては、慶應義塾大学 SDM 研究所の日比谷孟俊顧問より多大なるアドバイスをいただきました。お礼申し上げます。

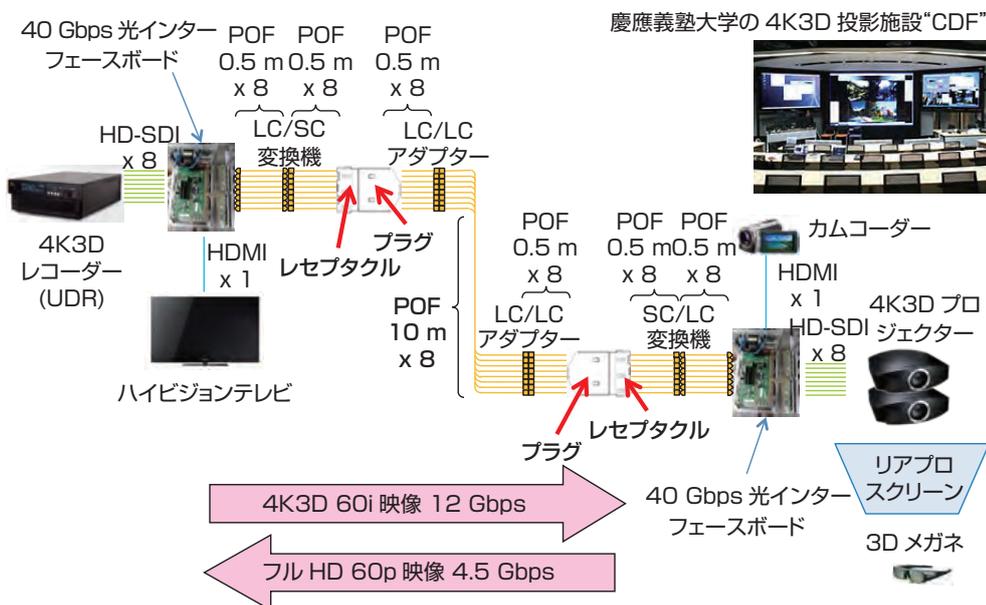


図 12 光電ハイブリッドコネクタを用いた 4K3D 映像伝送検証のシステム構成
8 チャンネルのボールペン型光インターコネクタを用いた 4K3D 高精細立体視映像を一方方向に伝送し、逆方向にハイビジョン映像を返す現場を想定した検証テストを実施。

参考文献

- [1] P. Polishuk: Plastic optical fibers branch out, *IEEE Commun. Mag.*, 44 (9), 140-148 (2006).
- [2] I. Mollers, D. Jager, R. Gaudino, A. Nocivelli, H. Kragl, O. Ziemann, N. Weber, T. Koonen, C. Lezzi, A. Bluschke and S. Randel: Plastic optical fiber technology for reliable home networking: overview and results of the EU project pof-all, *IEEE Commun. Mag.*, 47 (8), 58-68 (2009).
- [3] J. C. Baker and D. N. Payne: Expanded-beam connector design study, *Applied Optics*, 20, 2861-2867 (1981).
- [4] R. J. Pimpinella: A fiber optic connector designed for military optical backplanes, *IEEE Trans. Comp. Hybrids, Manufact. Technol.*, 15 (6), 992-997 (1992).
- [5] Y. Koike and T. Ishigure: High-bandwidth plastic optical fiber for fiber to the display, *J. Lightwave Technol.*, 24 (12), 4541-4553 (2006).
- [6] P. J. Decker, A. Polley, J. H. Kim and S. E. Ralph: Statistical study of graded-index perfluorinated plastic optical fiber, *J. Lightwave Technol.*, 29 (3), 305-315 (2011).
- [7] T. Torikai, T. Yamauchi, S. Mine, N. Moriya, A. Mitsui, H. Suzuki, Y. Watanabe, M. Kanou, H. Takizuka, T. Toma, and Y. Koike: Optical I/O connectors employing ball-point pen type optical collimator lenses suitable for plastic optical fiber communications, *Proc. 21st Int. Conf. POF (POF2012)*, (Atlanta, USA, 2012).

執筆者略歴

当麻 哲哉 (とうま てつや)

1988年、慶應義塾大学大学院理工学研究科応用化学専攻修士課程修了、同年住友スリーエム株式会社入社。2001年米国3M社の製品開発アドバンストスペシャリストとして転籍。2008年より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准教授。2014年同研究科博士課程修了。博士(システムデザイン・マネジメント学)。この研究を含む内閣府最先端研究開発支援プログラムのサブテーマ「Face-to-Face コミュニケーションシステム開発」のリーダーで、光ホームネットワーク開発プロジェクトを指揮し、この論文の全体の調整と執筆を担当した。



瀧塚 博志 (たきづか ひろし)

1978年慶應義塾大学大学院工学研究科電気工学専攻修士課程修了、同年ソニー株式会社入社。ホームネットワーク技術の開発に従事し、多くの製品を市場に送りだすとともに、家庭向け光インターフェース規格 OP i.Link、広色域規格 xvYCC、映像伝送規格 HDMI 等、さまざまな規格化を推進してきた。2013年6月より、慶應フォトニクス・リサーチ・インスティテュート研究員。この論文では、40 Gbps 光伝送システムの作成、ならびにコネクタ開発とその評価を担当した。



鳥飼 俊敬 (とりかい としたか)

1977年3月鳥取大学電子工学科卒業、4月日本電気株式会社(NEC)入社。2004年まで研究所にて光通信デバイス開発に従事。2004年から2013年まで日本航空電子工業株式会社(JAE)にて、コネクタ、光インターコネクション開発に従事。2013年4月より技術コンサルティングとして独立し、三菱鉛筆株式会社顧問。この論文のボールペン型光インターコネクタの共同発明者であり、光電ハイブリッド型コネクタの開発を担当した。



鈴木 等 (すずき ひとし)

1983年埼玉大学工学部機械工学科卒業、同年三菱鉛筆株式会社入社、機械技術部、米国会社勤務、横浜研究開発センター シャープペングループリーダーを経て、2005年より横浜研究開発センター所長。2013年4月より取締役。この論文では、ボールペン型光インターフェースの開発チームの統括指揮を担当した。



小木 哲朗 (おぎ てつろう)

1986年東京大学大学院工学系研究科修士課程修了。同年三菱総合研究所入社。1994年東京大学大学院工学系研究科博士課程修了。博士(工学)。1996年東京大学大学院工学系研究科助教授、2004年筑波大学大学院システム情報工学研究科准教授、2008年より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。システム工学、VR、ヒューマンインタフェース等の研究に従事。この論文では研究全体に対する助言とサポート体制の構築を担当した。



小池 康博 (こいけ やすひろ)

1982年慶應義塾大学大学院工学研究科応用化学専攻博士課程修了。1997年より慶應義塾大学教授。フォトニクスポリマーを専門とし、屈折率分布型プラスチック光ファイバー(GI型POF)、高輝度光散乱ポリマー導光体(HSOT)、ゼロ複屈折ポリマー等を発明。2010年より内閣府最先端研究開発支援プログラムとして、Face-to-Face コミュニケーションシステム開発の中心研究者としてプロジェクトを指揮。Society of Plastics Engineers (SPE) の International Engineering and Technology Award、藤原科学財団藤原賞、紫綬褒章を受章。慶應義塾評議員。この論文の基本的アイデアであるGI型POFとボールペン技術の融合は小池のオリジナルの発明。全体の指揮統括を担当した。



査読者との議論

議論1 全般

質問・コメント(小林 直人:早稲田大学研究戦略センター)

この論文は、家庭用高精細映像光伝送システムを実現するにあたり、高性能、簡便、安価、安全等の極めて厳しい要求を満たす技術として、ボールペン製造技術を利用したボールレンズとプラスチック・ファイバーを組み合わせた光インターコネクトを実現し、実際の高精細映像伝送システムの実証実験を行った成果を示しています。要素技術としてもユニークであるとともに、それらを統合してシステムに組み込んで実証したと言う点で十分価値の高い論文であり、シンセシオロジー誌に相応しい論文と考えられます。

質問・コメント(石川 浩:産業技術総合研究所)

ボールペン技術による低コストの光結合はPOF普及に向けての重要な開発成果だと高く評価します。また、異業種交流の場がこの技術開発のきっかけになったことは興味ある事実だと思います。

議論2 シナリオについて

質問・コメント(赤松 幹之:産業技術総合研究所)

この技術は、フッ素化GI型POFとボールペン型インターコネクトを組合せによって実現したことがポイントであり、そのシナリオが2章に書かれています。2章の前半の数段落でGI型POFのメリットが書かれ、第6段落で「POFを使ってボールレンズ装着はあり得なかった」としています。第7段落以降ではボールコネクタの話になり、第

9段落で「偶然にGI型POFの存在に触れ」と書かれています。前半を読んでいると、POFありきで、コネクタ技術を模索していたように書かれています。その一方で後半では、ボールコネクタの低コストを目指してボールペン型を見いだしたが、スリーブに石英ファイバーでは入らない問題を解決するものとしてPOFを発見したように書かれています。POF→ボールコネクタというシナリオと、ボールコネクタ→POFという逆向きのシナリオが併存して書かれており、読者が混乱すると思います。本当はどちらむきだったのか、あるいは実際には同時並行だったのかなど、シナリオを明確に記載して下さい。

回答（当麻 哲哉）

全く別の流れで開発をしていた二つのグループが、ある時点で偶然にお互いの共通点に気づき合流したことで、この研究が始まっております。記述をわかりやすく書きなおしました。

議論3 プラスチック・ファイバーの波長や帯域制限について

質問・コメント（石川 浩）

POFは0.8 μm帯で使われると思いますが、使用する波長をどこかに書いておいた方が良いと思います。また、大多数の読者は、SI-POF、GI-POFの帯域が制限される要因を知らないと思いますので帯域が制限される理由を簡単に説明されると良いと思います。私自身、石英ファイバーについてはわかりますが、POFの分散等の値についてよく知りません。

回答（当麻 哲哉）

通常のアクリルポリマーでは、水素-炭素結合の吸収が赤外にあるため、可視光領域に制限されますが、全フッ素化ポリマーを使用することにより、赤外の吸収が下がります。今回は850 nmを使っており（4.1に記載）が、700 nm～1300 nmの範囲では、石英と同じ波長でも問題ありませんし、むしろ石英より材料分散が小さいために、より高速の伝送が可能となります。また、SI型の場合は、光の経路によって、中心を直進する光と、コアとクラッドの界面を全反射しながら伝搬する光に、行路差が生じ、伝搬スピードに差が出るために、パルスがブロードに広がる欠点があります。しかし屈折率分布をつけたGI型の場合、光は全反射せずにコア内をサインカーブを描きながら最速経路を経由するように通り抜け、入射光の角度によらず同じ速度で伝搬するため、帯域を広く取ることができます。

議論4 ボールペン技術について

質問・コメント（小林 直人）

この研究では、①ボールペン製造技術を利用したレンズシステムの採用と②プラスチック・ファイバーの組み合わせ、が極めて重要なキー

テクノロジーだったと思います。実験結果も極めて良好ですが、今回特にこのような技術を実現する上で困難な点があったのであれば教えていただきたいと思います。

回答（当麻 哲哉）

この論文にあるように、プラスチック光ファイバーを、かきめて固定するのは容易でしたが、損失を発生させずに固定するかきめ方法の最適化には苦労しました。

議論5 異業種との交流

質問・コメント（小林 直人）

この研究のエッセンスであるボールペン製造技術を利用して光インターコネクタをした点について、この技術を生み出すには異業種との交流が重要だったとの指摘がありました。今後、このような異業種間の連携によりイノベーションを生み出すための積極的・意識的な方法についての考えがあればお教え下さい。

回答（当麻 哲哉）

異業種交流の場において、お互いの技術を一段高いレベルで抽象化して、概念的に見ることで共通する点を見つけ出すことが大切だと思います。システムの要素を物理的な視点と、機能的な視点とで抽象化することによって、新しい発想が生まれてくるものと考えます。

議論6 無線技術との競合

質問・コメント（小林 直人）

2020年の東京オリンピック等も視野に入れ、今後家庭内でも高精細映像伝送のニーズは高くなると思われませんが、一方でLTE等の無線技術が急速に進展しています。その結果高精細映像伝送等の特別な場合を除いて、光ファイバーは家庭まで信号を伝送すればよく、家庭内は無線という考えもあるようです。今後の家庭内での光通信と無線通信の競合・棲み分けについての考えがあればぜひお聞かせ下さい。

回答（当麻 哲哉）

無線は有線に比べ転送スピードが遅く、環境により通信品質が大きく変わるため、4Kや8KのSHVを非圧縮で伝送するのに必要とされる10 Gbps以上の伝送は困難です。また高周波（数十GHz）になればなるほど環境の影響を受けやすく、人が通るだけでも伝送できなくなる場合があり、壁を超えるのも難しいのが無線の現状です。10 Gbpsを超える高速転送では、無線のメリットはないと考えます。また、有線に比べ、無線はセキュリティの確保に手間が必要となります。

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おくか、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しない。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、専門外の研究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、その専門分野の研究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 2008年6月18日
 改正 2008年10月24日
 改正 2009年3月23日
 改正 2010年8月5日
 改正 2012年2月16日
 改正 2013年4月17日

1 投稿記事

原則として、研究論文または論説の投稿、および読者フォーラムへの原稿を受け付ける。なお、原稿の受付後、編集委員会の判断により査読者と著者とで、査読票の交換とは別に、直接面談（電話を含む）で意見交換を行う場合がある。

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、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。読者フォーラムへの原稿は、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読者への有益な情報提供などとし、1,200文字以内で自由書式とする。論説および読者フォーラムへの原稿については、編集委員会で内容を検討の上で掲載を決定する。

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 研究論文または論説の場合には表紙を付け、表紙には記事の種類（研究論文か論説）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、和文の場合は9,000文字程度とし、英文の場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。

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)。

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も含め電子媒体も下記宛に提出する。

〒305-8568

茨城県つくば市梅園1-1-1 つくば中央第2

産業技術総合研究所 広報部広報制作室内

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 広報部広報制作室内

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

MESSAGES FROM THE EDITORIAL BOARD

There has been a wide gap between science and society. The last three hundred years of the history of modern science indicates to us that many research results disappeared or took a long time to become useful to society. Due to the difficulties of bridging this gap, this stage has been recently called the valley of death or the nightmare stage^(Note 1). Rather than passively waiting, therefore, researchers and engineers who understand the potential of the research should actively try to bridge the gap.

To bridge the gap, technology integration^(i.e. Type 2 Basic Research – Note 2) of scientific findings for utilizing them in society, in addition to analytical research, has been one of the wheels of progress^(i.e. Full Research – Note 3). Traditional journals, have been collecting much analytical type knowledge that is factual knowledge and establishing many scientific disciplines^(i.e. Type 1 Basic Research – Note 4). Technology integration research activities, on the other hand, have been kept as personal know-how. They have not been formalized as universal knowledge of what ought to be done.

As there must be common theories, principles, and practices in the methodologies of technology integration, we regard it as basic research. This is the reason why we have decided to publish “*Synthesiology*”, a new academic journal. *Synthesiology* is a coined word combining “synthesis” and “ology”. Synthesis which has its origin in Greek means integration. Ology is a suffix attached to scientific disciplines.

Each paper in this journal will present scenarios selected for their societal value, identify elemental knowledge and/or technologies to be integrated, and describe the procedures and processes to achieve this goal. Through the publishing of papers in this journal, researchers and engineers can enhance the transformation of scientific outputs into the societal prosperity and make technical contributions to sustainable development. Efforts such as this will serve to increase the significance of research activities to society.

We look forward to your active contributions of papers on technology integration to the journal.

“*Synthesiology*” Editorial Board
(written in January, 2008)

- Note 1** The period was named “nightmare stage” by Hiroyuki Yoshikawa, the then President of AIST, and historical scientist Joseph Hatvany. The “valley of death” was used by Vernon Ehlers in 1998 when he was Vice Chairman of US Congress, Science and Technology Committee. Lewis Branscomb, Professor emeritus of Harvard University, called this gap as “Darwinian sea” where natural selection takes place.
- Note 2** *Type 2 Basic Research*
This is a research type where various known and new knowledge is combined and integrated in order to achieve the specific goal that has social value. It also includes research activities that develop common theories or principles in technology integration.
- Note 3** *Full Research*
This is a research type where the theme is placed within the scenario toward the future society, and where framework is developed in which researchers from wide range of research fields can participate in studying actual issues. This research is done continuously and concurrently from *Type 1 Basic Research*^(Note 4) to *Product Realization Research*^(Note 5), centered by *Type 2 Basic Research*^(Note 2).
- Note 4** *Type 1 Basic Research*
This is an analytical research type where unknown phenomena are analyzed, by observation, experimentation, and theoretical calculation, to establish universal principles and theories.
- Note 5** *Product Realization Research*
This is a research where the results and knowledge from *Type 1 Basic Research* and *Type 2 Basic Research* are applied to embody use of a new technology in the society.

Edited by *Synthesiology* Editorial Board
Published by National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

Synthesiology Editorial Board

Editor in Chief: S. ICHIMURA

Senior Executive Editor: M. SETO, N. YUMOTO

Executive Editors: C. KURIMOTO, T. SHIMIZU, M. TANAKA, S. TOGASHI, H. HATORI, M. AKAMATSU, F. UEDA (New Energy and Industrial Technology Development Organization), A. OKADA (Sumitomo Chemical Company, Limited), N. KOBAYASHI (Waseda University), T. MAENO (Keio University), M. YAMAZAKI, M. TAKAHASHI

Editors: H. AKOH, S. ABE, K. UEDA (Hyogo Prefectural Institute of Technology), A. ONO, A. KAGEYAMA, S. KANEMARU, T. KUBO, N. KOHTAKE (Keio University), K. SAKAUE, H. TAO, M. TAKESHITA (New Energy and Industrial Technology Development Organization), H. TATEISHI, H. TAYA (J-Space Inc.), K. CHIBA, E. TSUKUDA, H. NAKASHIMA (Future University Hakodate), S. NIKI, Y. HASEGAWA, Y. BABA (The University of Tokyo), T. MATSUI, Y. MITSUISHI, N. MURAYAMA, M. MOCHIMARU, Y. YANO, A. YABE, H. YOSHIKAWA (Japan Science and Technology Agency)

Publishing Secretariat: Publication Office, Public Relations Department, AIST

Contact: *Synthesiology* Editorial Board

c/o Website and Publication Office, Public Relations Department, AIST

Tsukuba Central 2, 1-1-1 Umezono, Tsukuba 305-8568, 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.

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 June 18, 2008

Revised October 24, 2008

Revised March 23, 2009

Revised August 5, 2010

Revised February 16, 2012

Revised April 17, 2013

1 Types of contributions

Research papers or editorials and manuscripts to the “Readers’ Forum” should be submitted to the Editorial Board. After receiving the manuscript, if the editorial board judges it necessary, the reviewers may give an interview to the author(s) in person or by phone to clarify points in addition to the exchange of the reviewers’ reports.

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 editorials should also comply with the same structure and format except subtitles and abstracts are unnecessary. Manuscripts for “Readers’ Forum” shall be comments on or impressions of articles in *Synthesiology*, or beneficial information for the readers, and should be written in a free style of no more than 1,200 words. Editorials and manuscripts for “Readers’ Forum”

will be reviewed by the Editorial Board prior to being approved for publication.

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 and editorials shall have front covers and the category of the articles (research paper or editorial) 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 with names of reviewers disclosed, 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. The edited discussion will be attached to the main body of the paper as part of the article.

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 text should be in formal style. 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).

4 Submission

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

Synthesiology Editorial Board
c/o Website and Publication Office, Public Relations
Department, National Institute of Advanced
Industrial Science and Technology(AIST)
Tsukuba Central 2, 1-1-1 Umezono, Tsukuba
305-8568
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 are 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 Website and Publication Office, Public Relations
Department, 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

Synthesiologyの発刊以来、7年目に入りました。本誌は、発刊の趣旨にもあるように「研究成果を社会に活かすために行うべきことを知として蓄積する、すなわち当為的知識を集積することを目的」として学術ジャーナルを発刊され、今日まで至っています。特に、従来の学術誌とは異なり、研究開発の成果を社会に活かすために何を行えば良いかについての知見を掲載すること(編集方針)を記載することを特徴としています。研究目標と社会とのつながり、研究目標を実現するためのプロセス(シナリオ)を記述するなど、これまでの学術論文誌とは異なった観点からの記載が執筆要件としています。

創刊当初は産総研関係者を中心とした運営でありましたが、昨年夏からは本誌のさらなる普及を図ることを目指し外部機関の方々に幹事をお願いし、種々の改革案を議論してきました。その中から次号から新たな取り組みとして掲載した論文についてSynthesiologyらしさを紹介するページを新しく設けることになり、今号で試行してみました。以下にしめします。

通信の大容量化に対応する「長さ」の国家標準

本論文では、「長さ」の国際標準や次世代光周波数標準に繋がる光周波数コムの研究開発を主題とした論文である。大型で電力消費の大きい励起レーザーを用いたレーザー光コムに代わり、信頼性に優れ、長時間の連続動作が可能な光ファイバー型周波数コムへの進化過程を記載している。研究開発の中で取り組んだ自家製作に至るシナリオやプロセスが記載されているなど、Synthesiologyらしい構成となっている。

ソーラー水素製造の研究開発

本論文は、再生可能エネルギーとして重要な太陽光エネルギーの利用技術の一つである太陽光水素製造技術の研究開発について紹介されている。実用化に向けて長期の時間を要する課題であり、研究開発の最終目標に向けて途中で2段階のコスト面からの中間目標を設定し、さまざまな水素製造技術を比較検討するとともに、独自に開発した「光触媒-電解ハイブリッドシステム」を対象に変換効率の理論的限界、ハイブリッドシステムのコスト試算を行い、将来の導入に向けたシナリオを展開している。

モジュール化に基づく高機能暗号の設計

情報セキュリティを支える暗号は、ときどき破られることがあり、改良が続けられている。そのたびに暗号は複雑になり、専門家にとってもその安全性を証明することは困難で、証明が間違ってしまうこともある。この論文では、代理再暗号というおもしろい性質を備えた高機能暗号を例にして、暗号をモジュールに分割

することで証明を容易にする方法が著されている。高度なIT技術を安全に社会に展開する有力な方策である。

糖鎖プロファイリング技術がもたらすパラダイムシフト

糖鎖は、遺伝子、タンパク質に次ぐ第3の生命鎖と言われるが、複雑な構造を簡便に解析する手法が欠けていることが障害となり機能の解明は大幅に遅れている。本論文では、特定の糖鎖構造に特異的に結合するタンパク質(レクチン)に注目し、糖鎖の構造的特徴を迅速、簡便に明らかにする新しいコンセプト「糖鎖プロファイリング」が構成された過程について述べられている。「糖鎖工学と言う新しい学問領域への突破口」への思いが伝わってくる。

ボールペン技術による家庭用高精細映像光伝送システム開発

本論文では、家庭でも普及したハイビジョンテレビなどの高精細映像を伝送する光ファイバーの接続技術の研究開発が紹介されている。研究目標として技術的な性能である通信速度の要求以外に、安全・簡単・高信頼・低価格などの目標を設定し、プラスチック型ファイバーとボールレンズを組み合わせた新たな光接続法の開発など要素技術とその統合化に向けたシナリオ、およびその実証実験の結果が記載されている。

これまでに本誌には、130編を超える論文が掲載されていますが、その多くは掲載論文も産総研研究者によるものであります。最近、大学や企業の研究者・技術者の方々からの投稿も徐々に増えてきましたが、その数はまだ多くはありません。社会の中で産・学・官の研究者・技術者が連携したプロジェクトが数多く展開されています。それらの研究開発成果の公表とともに、プロジェクト推進で行われた研究プロセスを本誌に掲載することにより、「社会に役立つ研究を効果的にかつ効率よく実施するための方法論」を確立し、社会の知として共有されることを願っています。

また、本誌の掲載論文は、産総研のホームページおよびJ-Stage(独立行政法人日本科学技術振興機構(JST)の総合電子ジャーナルプラットフォーム)上で、電子ジャーナルとして公開されています。是非、ご活用していただきたいと思います。

(編集委員 多屋 秀人)

電子ジャーナルのURL

産総研HP

http://www.aist.go.jp/aist_j/aistinfo/synthesiology/index.html
J-Stage

<https://www.jstage.jst.go.jp/browse/synth/-char/ja/>

Synthesiology 7巻2号 2014年5月 発行

編集 シンセシオロジー編集委員会

発行 独立行政法人 産業技術総合研究所

シンセシオロジー編集委員会

委員長：一村 信吾

副委員長：瀬戸 政宏、湯元 昇

幹事（編集及び査読）：栗本 史雄、清水 敏美、田中 充、富樫 茂子、羽鳥 浩章

幹事（普及）：赤松 幹之、植田 文雄（独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構）、岡田 明彦（住友化学株式会社）、
小林 直人（早稲田大学）、前野 隆司（慶應義塾大学）、山崎 正和

幹事（出版）：高橋 正春

委員：赤穂 博司、阿部 修治、上田 完次（兵庫県立工業技術センター）、小野 晃、景山 晃、金丸 正剛、久保 泰、神武 直彦
（慶應義塾大学）、坂上 勝彦、田尾 博明、竹下 満（独立行政法人 新エネルギー・産業技術総合開発機構）、立石
裕、多屋 秀人（株式会社 J-Space）、千葉 光一、佃 栄吉、中島 秀之（公立ほこだて未来大学）、仁木 栄、長谷川 裕
夫、馬場 靖憲（東京大学）、松井 俊浩、三石 安、村山 宣光、持丸 正明、矢野 雄策、矢部 彰、吉川 弘之（独立行政
法人 科学技術振興機構）

事務局：独立行政法人 産業技術総合研究所 広報部広報制作室内 シンセシオロジー編集委員会事務局

問い合わせ シンセシオロジー編集委員会

〒305-8568 つくば市梅園 1-1-1 中央第2 産業技術総合研究所広報部広報制作室内

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/synthesiology>

●本誌掲載記事の無断転載を禁じます。



Messages from the editorial board

Research papers

National length standard supporting high-capacity optical fiber communication systems

-Development of fiber-based optical frequency combs-

H.INABA, A.ONAE and FL.HONG

Research and development of solar hydrogen production

-Toward the realization of ingenious photocatalysis-electrolysis hybrid system-

K.SAYAMA and Y.MISEKI

Methodology for designing cryptographic systems with advanced functionality based on a modular approach

-Towards reducing the barrier to introducing newly-designed cryptographic schemes into real-world systems-

G.HANAOKA, S.OHATA, T.MATSUDA, K.NUIDA and N.ATTRAPADUNG

Development of lectin microarray, an advanced system for glycan profiling

-From frontal affinity chromatography to evanescent wave excitation fluorescence detection method-

J.HIRABAYASHI

Development of a household high-definition video transmission system based on ballpoint-pen technology

-A low cost, easily deployed optical connection using a ballpoint-pen type interconnect-

T.TOMA, H.TAKIZUKA, T.TORIKAI, H.SUZUKI, T.OGI and Y.KOIKE

Editorial policy

Instructions for authors