

**福井大学大学院
工学研究科
研究報告**

Vol.59 2011 MAR CH

目 次

授業動画の特徴シーン自動抽出システム石黒信啓 白井治彦 黒岩丈介 小高知宏 小倉久和	1
計算機処理に基づく純正律音楽表現の実現北川尚希 白井治彦 黒岩丈介 小高知宏 小倉久和	9
災害復旧支援ネットワーク用の新しいプロトコルの提案袴田暁人 白井治彦 黒岩丈介 小高知宏 小倉久和	17
インターネット技術を積極的に活用した効率的システム開発技法雲晴智彦 白井治彦 黒岩丈介 小高知宏 小倉久和	25
DTI ハブを用いたネットワーク管理の自動化牧野 潤 白井治彦 黒岩丈介 小高知宏 小倉久和	31
蒸発速度に及ぼす土壌塩析出の影響 —チャオソイルの場合— 寺崎寛章 福原輝幸	37
ペンチプチセン単位を主鎖に有する新規ポリ(パラフェニレンエチニレン)膜の合成と気体透過性真田耕大 坂口壽一 橋本保	45
ビニルエーテルのリビングカチオンポリマーと水との反応の再検討:アルデヒド末端およびヒドロキシ末端ポリビニルエーテルの合成.....徳永理子 漆崎美智遠 坂口壽一 橋本保	51
ひまし油由来分解性エステル結合を有するポリテトラメチレングリコールの合成とそれによるリサイクル可能なポリウレタン材料の開発.....菱輪岳郎 漆崎美智遠 坂口壽一 橋本保	61
デジタルコンパスの蟻型群ロボットへの応用—方位センサによる自己位置同定の向上へ—波田邦彦 高田宗樹 平田隆幸	73

CONTENTS

The Lecture Video Scene Extracting SystemNobuhiro ISHIGURO, Haruhiko SHIRAI, Josuke KUROIWA, Tomohiro ODAKA, Hisakazu OGURA	1
The Real Time Expert System to Support the Pure Temperament Music PlayNaoki KITAGAWA, Haruhiko SHIRAI, Josuke KUROIWA, Tomohiro ODAKA, Hisakazu OGURA	9
The Proposition of a New Protocol for Disaster Restoration Support NetworkAkito HAKAMADA, Haruhiko SHIRAI, Josuke KUROIWA, Tomohiro ODAKA, Hisakazu OGURA	17
Efficient System Development Method Using the Network TechnologyTomohiko UNSEI, Haruhiko SHIRAI, Josuke KUROIWA, Tomohiro ODAKA, Hisakazu OGURA	25
Automatic Network Management Using the DTI HubJun MAKINO, Haruhiko SHIRAI, Josuke KUROIWA, Tomohiro ODAKA, Hisakazu OGURA	31
Effects of Salt Crystallization on Soil Surface on Evaporation Flux - In Case of Chao Soil -Hiroaki TERASAKI and Teruyuki FUKUHARA	37
Synthesis and Gas Permeability of Novel Poly(<i>p</i>-phenyleneethynylene)s Having Pentiptycene Units in the BackboneKota SANADA, Toshikazu SAKAGUCHI, Tamotsu HASHIMOTO	45
Re-examination of Reaction of Living Cationic Polymers of Vinyl Ether with Water: Synthesis of Aldehyde-Capped and Hydroxy-Terminated Poly(Vinyl Ether)sRisako TOKUNAGA, Michiko URUSHISAKI, Toshikazu SAKAGUCHI, Tamotsu HASHIMOTO	51
Synthesis of Poly(Tetramethylene Ether) Glycol Containing Ester Linkages Derived from Castor Oil and Properties of Recyclable Polyurethanes Prepared TherefromTakeru MINOWA, Michiko URUSHISAKI, Toshikazu SAKAGUCHI, Tamotsu HASHIMOTO	61
An Application of a Digital Compass Module to Ant Type Swarm Robots - Improvement of Self Localization of the Robot by the RDCM-802 Compass Module -Kunihiko HADA, Hiroki TAKADA, Takayuki HIRATA	73

授業動画の特徴シーン自動抽出システム

石黒 信啓* 白井 治彦** 黒岩 文介*** 小高 知宏* 小倉 久和***

The Lecture Video Scene Extracting System

Nobuhiro ISHIGURO* Haruhiko SHIRAI**, Josuke KUROIWA***
Tomohiro ODAKA* and Hisakazu OGURA***

(Received February 10, 2011)

In this paper, we propose the system of extracting feature of scenes in a lecture video. To avoid a hand work on a lecture video, we propose a new method to automate the judgment of importance of a scene. This system uses the TF-IDF method that is the technique of the natural language processing. Our system has four functions to watch a lecture video efficiently. They are the function of extracting feature of scenes, character string choice, keyword search and important scene choice. These functions help to watch a lecture video efficiently.

Key words : Lecture Video, Keyword Search, Feature of Scenes, TF-IDF

1. はじめに

現在、大学における教育方法は大きく変わってきており、双方向授業や e-Learning などネットワークを介した学習が盛んになってきている^{[1],[2]}。その中でも、動画を配信する方法は昔から需要が高く、その効果的な利用が検討されている。

ネットワークを介した動画配信のシステムでは、動画に付属するデータである授業のスライドやテキストを、シーンに対応するマーカーを付けて、システム利用者が付属データから目的のシーンに移動できるようにしている。このとき、システムのマーカーの挿入は手作業で行われており、動画の時間が長くなるほど、またはスライドやテキストの量が増えるほど、一般的に作業量が増大して、コンテンツを作成する

ことが困難になる^{[3],[4]}。

動画に振られるマーカーはスライドやテキストの全ての単語に付けるわけではなく、重要と思われる箇所や講師が利用者に強調したい部分に振られる。そのため、マーカーを挿入するシーンの選定作業が必要になる。

本研究では、マーカーを付けるシーンの選定をシステムで自動的に行うことで、編集作業の負担を減らすことを目的として、授業動画視聴支援システムを作成した。

このシステムには、授業動画にマーカーの挿入を自動で行うための TF-IDF 法を利用した機能や授業動画を理解しやすくするために講義内容を文字データで表示する機能、視聴したいシーンに移動するためのキーワード検索機能、そして講師が講義で重要だとアピールしたシーンを表示する機能を組み込んだ。

2. システムによる授業動画の利用

授業動画を利用する機会は増えている。授業動画の利用法としては、自宅学習者を対象にして作成された動画の配信がある^[5]。他にも利用法として、大学などの講義室で行われるタイプの授業の受講者を対象に、受講者の復習を目的とした授業動画の貸し出

*大学院工学研究科 原子力・エネルギー安全工学専攻

**技術部

*** 大学院工学研究科 知能システム工学専攻

*Nuclear Power and Energy Safety Engineering Course, Graduate School of Engineering

**Dept. of Technology

***Human and Artificial Intelligent Systems Course, Graduate School of Engineering

しがある。授業動画の利用は、学校だけではなく学習塾などでも行われており、とくにインターネットを介した動画配信が盛んになりつつある。動画配信を行うシステムには、授業動画を配信するときに動画と共に授業資料も配信する機能を持つものもある。

学習を目的とする授業動画の利用は、好きに学習時間を選べる点、パソコンとインターネットに繋げる環境があれば学習する場所を選ばない点から増えている。また、授業動画は講師が授業改善を考えるための資料としても活用されており、そちらのほうでも動画を効率よく使用するためのシステムが作られている。このように授業動画の利用法は様々な面から考えられ、目的に合ったシステムが作られている^[6]。

2.1 一般的な動画の編集方法

一般的な動画編集の素材として使用されるものは、ドラマやアニメなどの企業が作成したものから、文化祭や運動会などで個人が撮影したものまで多岐に渡る。主な動画の編集方法として「シーンの挿入」、「シーンの削除」、「シーンの並び替え」がある。

ここで、シーンの並び替えについて図1を用いて説明する。まず編集前の動画には、A・B・C・D・E・Fのシーンがある。この編集前の動画から、編集後の動画のようにするためには、まず始めにシーンのA・C・D・FをA・B・C・D・E・Fから抜き出す。そして、次に抜き出した4つのシーンをC・A・D・Fの順に並び替える。最後に並び替えた4つのシーンを1つに連結して編集を終了する。これにより、C・A・D・Fの順にシーンが並んだ動画が作成される。

一般的な動画の編集では図1のように行われた後、さらに文字や絵、または音楽を動画内に挿入する。

動画の編集作業は、細くなるほど作業に手間が掛かり、手間の分だけ時間が掛かる。そのため、自動動画編集による作業時間の短縮が試みられている。自動動画編集のためには、どのような編集をするかを定めるために指標となるデータが必要になる。このデータはメタデータと呼ばれている。動画の自動編集をするために必要なメタデータは、画像、音情報、動画の付属データを処理することで取得することができる。

2.2 付属データからのメタデータの作成

付属するデータからメタデータを得る方法について述べる。ドラマやアニメなどの動画には台本という付属データがある。台本などの付属データから図2のようにメタデータを作成することができる。

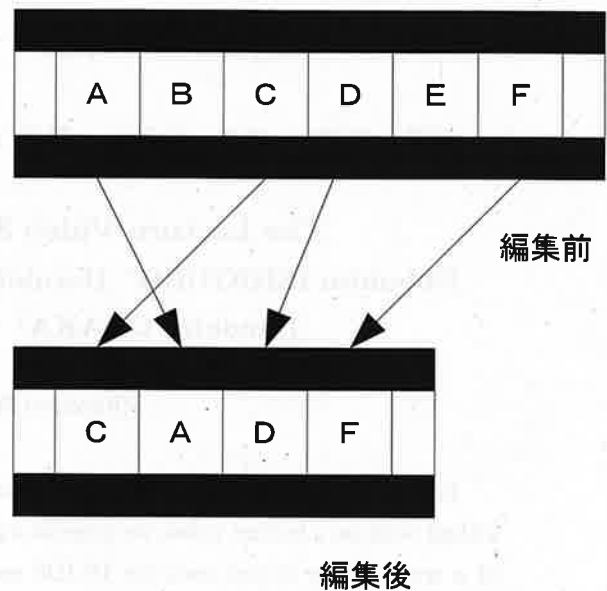


図1: 動画の編集例

付属データから取得したメタデータは、画像や音情報を処理して取得したメタデータに比べて、動画内容の正確性という点において優れている。また、付属データにはストーリーが存在するので、物語性を重視した動画編集を行う場合は、付属データから作成したメタデータの価値は高い。これらの特徴から、付属データが存在する動画では、画像と音情報の処理で得たメタデータとは違う自動編集の方法を選択することが可能である。

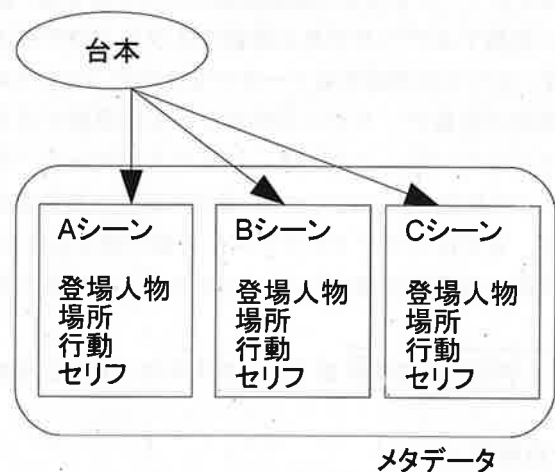


図2: メタデータの作成

付属データからの情報でメタデータを作成するとき、メタデータの中身の例として、シーンに登場する人物、その登場人物が行動している場所、登場人物の

行動やそのシーンで起こっている出来事を挙げる事ができる。このようなメタデータは画像や音情報の処理で取得することは難しい。しかし、付随データを用いると容易に作成することができる。

このメタデータの特徴は主に文章や単語で構成できる点である。そのため、このメタデータからシステムで処理をするとき、自然言語処理の手法を使用することができる。本研究では、この付随データの内容をメインにしたメタデータを作成して、システムに活用する。

2.3 授業動画を利用するシステムの問題点

授業動画を利用したシステムにおいて問題になることの1つに、システムで授業動画を利用できる状態にするまでの仕事の多さがある。とくに授業動画のシーンと講義資料の関連を付けてマーカーを入れる作業は手間が掛かり、細かくマーカーを付けるほど作業量も膨大なものになっていく。その問題を解決するためにマーカーの挿入の自動化が望まれている。

また、システムを使用するユーザの視点からの問題点として、授業動画を視聴しても、講師が講義内容で強調した点が見つけにくいことが挙げられる。講師は講義内容を受講者にわかりやすく伝えるために、重要な事柄を板書するときには字を大きく書いたり、大きな声で話したりなどして、他との差をつけるようにしている。

しかし、これらの差は授業動画を見るとき画面サイズやスピーカーの音量によってはわかりにくくなることもあり、そのとき受講者は強調された点からなくなる。そのため、授業動画を利用するシステムでは、その問題を克服することが求められる。

その他にも克服すべき問題として、シーンを検索する労力の問題が挙げられる。授業動画は動画時間が45分、60分、90分など長いものが多い上に、単純に撮影した動画には、区切りが入っていない。そのため、授業動画を最初から視聴していく場合は問題ないが、特定のシーンだけ確認したいときは、そのシーンを探すことに時間がとられる。

本研究では、先に挙げた問題を解決するための機能を持った授業動画自動支援システムを作成した。本システムではマーカーを付けるシーンの選定作業を自動化して作業量を減らした。講師が強調した点から分けにくいという問題は、講師が強調したとシステムが判断したシーンを、ユーザに表示する機能を組み込むことで解決を図った。シーンの検索問題は、システムにキーワード検索の機能を導入することで検索の自動化を行い、検索時間が短く済むようにした。

3. 授業動画視聴支援システム

授業動画視聴支援システムは、授業動画に付随するデータを用いてメタデータを作成した。本稿では、このシステム用のメタデータをスクリプトファイルと呼ぶ。

システムには図3のように視聴支援をするための機能として、特徴シーン選択機能・スクリプトファイル選択機能・特定シーン検出機能・重要シーン選択機能の4つの機能がある。その中で特徴シーン選択機能は、マーカーを付けるシーンの選定を自動で行う機能である。その機能を実現するために特徴シーン選択機能には、Web検索を利用したTF-IDF法(Term Frequency-Inverse Document Frequency)を用いた。各機能は、授業動画とスクリプトファイルを元データとして使用し、ユーザの目的のシーンに移動する。

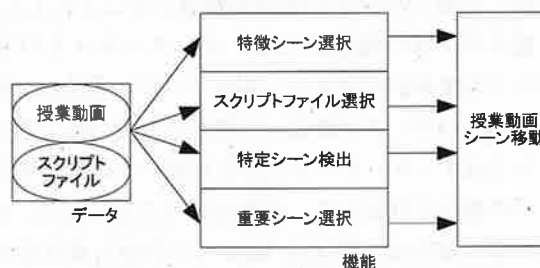


図3: 授業動画視聴支援システム (概要)

3.1 TF-IDF法について

TF-IDF法は、文書からキーワード抽出をしたときに、語の重みを付ける方法の1つである。TF-IDF法はシンプルな計算式で、キーワードを強力に性格付けできるため、文章要約や情報検索の分野の計算でよく使用される。

TF-IDF法はTF(term frequency)と、IDF(inverse document frequency)の2つの指標から成り立っており、その計算式は式1、式2、式3である。

$$tfidf = tf \times idf \quad (1)$$

$$tfi = \log n_i \frac{n_i}{\sum_k n_k} \quad (2)$$

$$idf_i = \log \frac{|D|}{\{d: d \ni t_i\}} \quad (3)$$

n_i は単語 i の出現頻度であり、 $|D|$ は総ドキュメント数を指し、 $\{d: d \ni t_i\}$ は単語 i を含むドキュメント数である。そのため、IDF は一種の一般語フィルタとして働き、多くのドキュメントに出現する語は重要度が下がり、特定のドキュメントにしか出現しない単語の重要度を上げる役割を果たす。

TF-IDF 法では、計算を行うためにはドキュメントの集合が必要となる。計算を行うとき、ドキュメントの集合の内容によって、計算結果は大きく影響を受ける。計算に用いるドキュメントの集合は、基本的には満遍なく幅広く集められたものが使用される。場合によっては故意に計算結果に影響を加えるために、ドキュメントの集合に偏りを持たせ、計算をすることがある。本システムでは多くの種類の講義に対応するために、集合の偏りは少ないほうが良く、そのため計算には偏りが少ない集合を使用することにした。

偏りの少ない集合として、インターネットの Web ページの集合が存在する。Web ページの集合は、様々な種類ののデータが集まって構成されている。本システムではインターネットにある Web ページをドキュメントの集合と見なして、計算を行うことにした。Web ページの集合は、膨大な Web ページから成り立っているため、数がとても少ない単語や造語、流行語、新語にも対応して計算することができる。

TF-IDF 法を使うにあたり、Yahoo!Web 検索 API を利用する方法を取った。このとき、Web ページ検索を利用した TF-IDF 法の計算式は式 (4) になる^[7]。

$$w_{i,j} = tf_{i,j} \times \log \frac{N}{df_i} \quad (4)$$

$w_{i,j}$ はキーワードの重み、 $tf_{i,j}$ はスクリプトファイルにおけるキーワード出現数である。また N は Yahoo! の総インデックス数、 df_i は Yahoo! の検索ヒット数である。

3.2 スクリプトファイルについて

動画を利用するシステムには、システムの処理に使用するためのデータが必要である。授業動画に付属するデータとしては、スライドや配布資料を代表例に挙げることができる。

本研究では、講師がスライドに映した文字データと授業動画のタイムラインから、システムに使用するスクリプトファイルを作成した。システムで用いるスクリプトファイルは次の表 1 のように構成している。

表 1: スクリプトファイルの例

タイムライン	文字データ
00:00:00	開始
00:06:24	Attendance 2 / 3
00:06:30	Report subject 1 - 2
00:07:00	Term End Examination
00:10:01	小高知 情報安全工学研究分野
00:11:21	Network Security
00:17:16	Topics
00:17:40	日経産業新聞 4 / 74 面
00:18:33	不正アクセス対策 業界一丸
00:19:00	なりすまし不正アクセスが急増
00:20:52	オンラインゲーム アイテム盗まれる
00:21:19	⇒「日本オンラインゲーム協会」

スクリプトファイルはタイムラインと文字データから構成されている。タイムラインは文字データがスライドに表示された時間である。システムの各機能は、このスクリプトファイルを用いて、入力されたシーンに移動するための処理を行う。

3.3 システムの機能

授業動画視聴支援システムは、授業動画とスクリプトファイルを使用して、ユーザの目的のシーンに移動する。システムには授業動画を利用するために必要な機能として、特徴シーン選択機能、スクリプトファイル選択機能、特定シーン検出機能、重要シーン選択機能を組み込んだ。

特徴シーン選択機能は、TF-IDF 法を用いた計算によって、特徴的なキーワード及び文章を抽出して表示する機能である。この機能の目的は 2 つある。1 つは授業動画を利用する環境を整える作業の負担軽減である。もう 1 つはユーザが計算結果を元にした評価から、新しい角度で授業動画を捉えて、講義への理解を深めさせることである。

スクリプトファイル選択機能は、スクリプトファイルを表示して、そこにあるキーワード及び文章を選択することで、該当シーンまで移動する機能である。この機能はユーザが講義内容を把握しやすいようにすることを目的としてシステムに組み込んだ。スクリプトファイルは講義のデータまとめたものである。従ってユーザはスクリプトファイルを見ることで講義内容を確認することができる。確認中に気になる点があった場合は、それを選択することで該当するシーンにすばやく移動することができるので、講義内容を把握することが容易になる。

特定シーン検出機能はキーワード検索機能である。この機能は、授業動画に出現するキーワード及び文章へのキーワード検索を目的として作成した。システムはスクリプトファイルに対してキーワード検索を掛ける。これによって、視聴者が視聴したいシーンをキーワードから探すことができ、目的のシーンに辿り着くことが簡単になる。

重要シーン選択機能は、動画内の文字を囲む強調記号である「」や<>に囲われているキーワードをユーザに対して表示する機能である。この機能は、講師が強調した場所をユーザが把握しやすくすることを目的として作成した。これによりユーザは講師が講義の要点と考えている箇所を、重要シーン選択機能で表示された文字データから確認できる。システムではスクリプトファイル内の鉤括弧に書かれた内容を重要な言葉として設定した。

3.4 各機能の設計

システムの各機能が、ユーザが目的とするシーンに移動するための仕組みについて述べる。

特徴シーン選択機能は、まずスクリプトファイルを読み込む。読み込んだスクリプトファイルから一行分のデータを取り出す。取り出したデータの文字データの部分から TF-IDF 法の計算に必要なキーワードを全て抽出して、キーワードごとに処理を行う。全てのキーワードの計算結果が得られたら、それらの計算結果を足し合わせ、その合計値を取り出した行の点数とする。その処理を全ての行に対して行って、全ての行の点数を得る。点数を得たあと、行の並びを点数の高いものから降順に並び替える。そして、並び替えた結果をユーザに表示する。

ユーザは表示された結果から、移動したいシーンを選択する。システムはユーザが選択した行を読み込む。読み込んだ行からタイムラインの部分を抽出する。タイムラインを取得したら、システムは授業動画の再生箇所を、タイムラインに記入された時間に移す。

スクリプトファイル選択機能は、まずスクリプトファイルを読み込む。その後、システムはユーザにスクリプトファイルを表示する。ユーザは表示されたスクリプトファイルから、スクリプトファイルの行を選択する。ユーザが選択した後、システム処理の流れは特徴シーン選択機能と同じである。

特定シーン検出機能は、まずユーザが入力した文字を取得する。次にシステムは、スクリプトファイルを読み込む。システムはスクリプトファイルから一行

分のデータを取得する。そして取り出したデータの文字データの部分に、ユーザが入力した文字と一致する箇所がないか調べる。調べた結果、文字と一致した箇所があった場合は、その行を保存する。その処理をスクリプトファイルの全ての行に対して行う。

全ての行に対して処理が終わった後、文字と一致して保存した行を1つにまとめる。システムは、まとめた結果をユーザに表示して、ユーザは表示されたものの中から1つの行を選択する。この後の処理の仕組みは特徴シーン選択機能と同じで、システムはユーザに選ばれた行のシーンを再生する。

重要シーン選択機能は、まずスクリプトファイルを読み込む。システムは読み込んだスクリプトファイルから一行分のデータを抽出する。システムは抽出したデータから文字データの部分を取り出し、その中に「」と<>に囲まれた文字がないか調べる。調べた結果、鉤括弧に囲まれたものがあつた場合は、その行を記録する。

この処理を全ての行に対して行った後、記録したデータを1つにまとめる。システムはまとめたデータを重要な行としてユーザに表示して、ユーザはその中から行を選択する。選択した後、システム処理の仕方は特徴シーン選択機能と同じである。

3.5 アプリケーションの実装

授業動画視聴支援システムは Microsoft の Visual Studio 2008 を用いてアプリケーションとして作成した。作成したアプリケーションの動画の再生システムには WindowsMediaPlayer を利用している。アプリケーションの外観は図4である。アプリケーションの左側に授業動画を表示し、右側に各機能の入力・操作部分を配置した。入力・操作部分は上から特徴シーン選択機能、スクリプトファイル選択機能、特定シーン検索機能、重要シーン検索機能の順に並んでいる。

4. 実験

授業動画視聴支援システムを作成して、動作確認を行った。そして4つの機能の動作を確かめた後に、ユーザを対象にアンケートを採った。アンケートを採った人数は6名である。

図5は実験に用いた授業動画の映像である。講師の手元にパソコンがあり、その画面をスクリーンに映して授業を行っている。実験に必要なスクリプトファイルは、講師がこの講義に使用したデータと動画のタイムラインから作成した。



図 4: アプリケーションの外観



図 5: 画面例

4.1 動作例

特徴シーン選択機能の動作の確認をした。スクリプトファイルに対して行ったTF-IDF法の計算結果は表2のようになった。

特徴シーン選択機能を使用するとき、アプリケーションは図6のように動作して、計算結果が表示されることが確認できた。アプリケーションで表示された内容も、得点の高いものから降順に並び替えられており、内部の処理が問題なく行われていることが分かった。またシーンの移動についても、表示された行の中から1つの行を選択したとき、該当する箇所に移動することが確認できた。

その他の機能であるスクリプトファイル選択機能・特定シーン検出機能・重要シーン選択機能もシステムの設計通りに動作することが確認できた。

表 2: TF-IDF 計算結果の一部

文字データ	点数
対策が必要, 業界共通の決済認証システムの導入 ワンタイムパスワードの導入など	54
不正アクセス対策 業界一丸	35
小高知宏 (N) 情報安全工学研究分野	30
⇒「日本オンラインゲーム協会」	25
業界全体として導入したい	24
なりすましによる 不正アクセスが急増	18
(earthquake,flood,tsunami wave)	16
(3)Availability 可用性	15



図 6: 特徴シーン選択機能の動作例

4.2 アンケート結果

アプリケーションを使用したユーザに対してアンケートを採った。アンケートの内容は表3である。

表3: アンケート内容

No	質問文
1	システムは授業動画を見る役に立つか
2	各機能の中で最も有益であるものはどれか
3	特徴シーン選択機能の良い点, 悪い点
4	スクリプトファイル選択機能の良い点, 悪い点
5	特定シーン検出機能の良い点, 悪い点
6	重要シーン選択機能の良い点, 悪い点
7	システムに追加してほしい機能とその理由
8	システムは他に何に使えるか

アンケートの結果は表4, 表5のようになった。

表4: アンケート項目1, 2の結果

No	選択肢	人数
1	はい	6
	いいえ	0
2	特徴シーン選択機能	4
	スクリプトファイル選択機能	0
	特定シーン検出機能	2
	重要シーン選択機能	0

5. 考察

アンケートの結果から授業動画視聴支援システムについて考察した。

アンケートで特徴シーン選択機能が4つの機能の中で最も評価が高いことが分かった。特徴シーン選択機能を使用することで授業の比較的重要な部分に効率よく移動できる点が大きく評価され、この結果に繋がったと考えられる。

TF-IDF法は特徴的なキーワードを抽出するためのアルゴリズムであり、最も重要なキーワードを調べることはできない。しかし、特徴的なキーワードは他の単語に比べて相対的に重要であることが多い。その結果、TF-IDF法の計算では比較的重要なキーワードに高い点数を付ける。

重要なシーンは、ユーザにとっても重点的に確認したいシーンである。それ故に、他のシーンと比べて相対的に重要であるシーンに移動できる特徴シーン選択機能は評価されたと考えられる。この機能により、

表5: アンケート項目3~8の回答の一部

No	回答
3	授業の比較的重要なシーンに移動できるのが良い
	手早く要点を見るのに便利
4	講義の流れが見えて探しやすい
	表示画面が小さいので見難い
5	知りたい情報を直接検索できる点が良い
	検出結果を別ウィンドで表示して欲しい
6	講師がどこを強調したか分かり易くて良い
	本当に重要部分であるか限らない
7	スクリプトファイルを動画の進行に合わせて表示して欲しい
	重要だと思った部分をチェックして保存できる機能
8	プレゼンの見直し
	ドラマや映画などの視聴

ユーザは効率よく授業動画を確認することができ、講義内容が掴めるようになると期待できる。特徴シーン選択機能は、人の代わりに重要シーンの選定作業を行うことを目的として作られており、アンケートの結果から、選定作業を行っていると判断することができる。

アンケートのスクリプトファイル選択機能の質問で、この機能の良かった点で講義の流れが見えて探しやすいという回答があった。実験で使用したスクリプトファイルは、時系列順に授業動画に現れた文字を記したものである。ユーザはスクリプトファイルを見ることで、講義の全体の流れを把握することができ

ユーザは流れを把握した結果、講義の中で気になる点を見つけやすくなったと考えられる。またこの機能を使用する効果として、ユーザが講義の全体の流れを把握することで、ユーザの講義内容への理解が深まることが考えられる。

アンケートの特定シーン検出機能の質問では、講義のシーンをキーワードで検索できることが評価された。この機能はユーザが知りたい情報をキーワード検索で直接調べることができて利便性が高い。またシーンを手動で探すことに比べて、シーンを見つけるまでに掛かる時間が大幅に少なくて済むので、授業動画をより効率的に視聴することができる。このことがアンケートで評価されることに繋がったと考えられる。

特定シーン検出機能の利点は、キーワードに関係

する授業動画の該当シーンを全てピックアップできる点にあると考えられる。手動で気になるキーワードに関連するシーンを探したとき、キーワードに関連するシーンが複数あった場合は見逃す恐れがある。しかし、特定シーン検出機能はキーワードに関係する授業動画の該当箇所を全てピックアップできるので、シーンの見逃しを防ぐことができる。シーンの見逃しがなくなることで、ユーザは機能を使って効率よくキーワードに関連する全ての講義内容を知ることができる。

重要シーン選択機能についてアンケートで質問したところ、講師がどこを強調したか分かりやすくてよいとコメントがあった。重要シーン選択機能は講師が強調した点をユーザに表示する機能である。システムでは鉤括弧に括られた部分を講師が強調したものと捉えて、ユーザに表示する。コメントを書いたユーザは表示された内容から重要なシーンに移動したと感じて、このように回答したと考えられる。

学生がアプリケーションのユーザになった場合について考察する。学生がユーザになった場合、アプリケーションを使用して勉強することで、勉強の効率が上がると考えられる。授業動画をそのまま利用して起こる問題の1つに、目的のシーンを探すことに時間が掛かることがある。しかし、この問題はアプリケーションの各機能を使うことで簡単に解決できる。

学生はアプリケーションを使用することで、効率よくシーンを移動することの他にも、スクリプトファイル選択機能によって、講義の全体の流れを把握できる。また重要シーン選択機能で講義の要点を掴むことができる。そのため学生はアプリケーションを使用することで授業動画を利用して要領よく勉強ができる。

次に、講師がアプリケーションのユーザになった場合について考察する。講師がユーザになった場合、特定シーン検出機能のキーワード検索は授業改善に役立つと考えられる。講師は受講者に講義するとき、講義内容の重要なキーワードを教えなければならない。従って授業改善では重要キーワードを授業で使用したかどうか確認する作業がある。講師は特定シーン検出機能を用いることで、この作業を手間を掛けずに行うことができる。他にも講師は授業改善を目的としてアプリケーションを使用したとき、講義中に強調して教えた内容や講義の流れを一目で確認することができる。

各機能の考察と学生と講師がアプリケーションのユーザだった場合の考察を行った。これらの考察から、アプリケーションは授業動画の視聴支援をするシステムとして役立つと考えられる。

6. まとめ

本研究では、授業動画をシステムで利用するために必要な編集作業の負担を減らすことを目的として、授業動画視聴支援システムを作成した。システムには編集作業を軽減するための特徴シーン選択機能の他に、授業動画を効率よく利用するための機能を持たせた。システムをアプリケーションとして作成し、アンケートを採ったところ、システムの評価は高く、授業動画を視聴するシステムとして利便性が高いことが分かった。今後の課題としては、アンケートで指摘されたアプリケーションの問題点の改善が挙げられる。それと同時にアンケートに記入されていた閲覧シーン記録機能等の新しい機能をアプリケーションに実装することで、システムの利便性を向上させる必要がある。

参考文献

- [1] 阿部昌信 堀口秀嗣 北根精美 坂井知志 塩雅之：大学教育のeラーニング化-TOKINETの試行と課題. 人間科学 23-2, 13-30, (2006).
- [2] 木村 昌史：大学教育系ネットワークにおけるCGM. 情報科学研究 17, 77-94, (2008).
- [3] 冬木正彦 辻昌之 植木泰博 荒川雅裕 北村裕：Web型自発学習促進クラス授業支援システム CEASの開発. 教育システム情報学会誌 21-04, 343-354, (2004).
- [4] 小林隆志 村木太一 直井聡 横田治夫：統合プレゼンテーションコンテンツ蓄積検索システムの試作. 電子情報通信学会論文誌 D-I, 情報・システム, I-情報処理 88-3, 715-726, (2005).
- [5] 末松美樹 加藤直樹：動画配信技術を活用したe-Learning コンテンツの開発. 年会論文集 18, 280-281, (2002).
- [6] レー ヒェウハン ルートラットデーチャークン ティティポー 横田治夫：講義講演ビデオの重要シーン抽出によるダイジェスト自動作成. 全国大会講演論文集 70-5, "5-219"-"5-220", (2008).
- [7] 森純一郎 松尾豊 石塚満：Webからの人物に関するキーワード抽出. 人工知能学会論文誌 AI 20, 337-345, (2005).

計算機処理に基づく純正律音楽表現の実現

北川 尚希* 白井 治彦** 黒岩 丈介*** 小高 知宏* 小倉 久和***

The Real Time Expert System to Support the Pure Temperament Music Play

Naoki KITAGAWA* , Haruhiko SHIRAI** , Josuke KUROIWA***
Tomohiro ODAKA* and Hisakazu OGURA***

(Received February 10 , 2011)

In this study, we developed the Pure Temperament Performance System (PTPS), that can play pure temperament music. The PTPS is a kind of expert system to coordinate the frequency interval of the chord based on the knowledge processing technology. The PTPS plays melody in equal temperament and a chord in pure temperament to avoid the conflict. The conflict is that we can not play better consonance by only equal temperament and pure temperament.

The PTPS has a knowledge base, it contains a value to convert equal temperament into pure temperament. We have created the knowledge base.

The PTPS can play the pure temperament by the MIDI data by using MIDI sound source such as GM(general MIDI) sound source that is installed in default on Windows. The PTPS uses a value to call a pitchbend. Pitchbend is the value used to adjust the frequency in the MIDI data.

Key words : MIDI, Audio, Frequency of Sound, Desktop Music, Computer Processing

1. はじめに

本研究では鍵盤楽器を使用して、純正律演奏を行うためのソフトウェアシステムの開発を行った。

音楽は人間の歴史とともに様々な発展をしてきた。現代における一般的な音楽の定義は「材料に音を用いる」「音の性質を利用して組み合わせる」「時間の流れの中で音を組み合わせる」というものである。また、クラシックや教会音楽が中心の西洋音楽では音楽

の3要素であるリズム(律動)、メロディー(旋律)、ハーモニー(和声)を持つものが音楽とされている。音楽の3要素の形式や形態の研究は積極的に行われ、それぞれの時代の音楽形態にあったものが開発され使われてきた。そして、音楽とともに発展してきたものが楽器である。

同じ旋律や和音であっても、演奏される楽器によってその印象は大きく変化する。そして、1人で奏法の異なる複数の楽器を習熟することは非常に難しく、習熟できたとしても同時に演奏することができる楽器は少ない。だからこそ人は、バンドやオーケストラなどの形態をとり、曲の演奏を行う。しかし、PCの性能が上がり様々なソフトウェアの開発が行われていくうえで、1人で複数の楽器を操ることも不可能ではなくなってきた。それがDTM(デスクトップミュージック)と呼ばれるジャンルの音楽である。

昨今の音楽業界ではこのDTMと呼ばれる、シンセサイザを中心とした電子楽器やPC上で動作するソフ

*大学院工学研究科 原子力・エネルギー安全工学専攻

**技術部

*** 大学院工学研究科 知能システム工学専攻

*Nuclear Power and Energy Safety Engineering Course, Graduate School of Engineering

**Dept. of Technology

***Human and Artificial Intelligent Systems Course, Graduate School of Engineering

に

DTMは作曲だけでなく、音の加工や編集などを個人レベルでより簡単により高いレベルで行えるようにしており、実際の楽器を使用して行う演奏では再現不可能な様々な発音、表現が可能である。実際の楽器を使用しての演奏が困難な音楽表現の1つに純正律というものがある。この純正律は、音響心理学的に最も協和して聞こえるように調整して作られている音律である。

本研究ではその純正律の再現を、計算機処理を用いて行う。純正律の再現には電子楽器の世界的な規格であるMIDIを利用した。Windows上での動作を想定し、ソフトウェアシステムの開発はC言語によって行った。

本稿では、第2章に協和音程と純正律、平均律についての説明と、本研究で使用した音律手法の具体的な方法を述べる。第3章には、本研究で作成した純正律演奏システムについての構成とその概要、そしてMIDIについての詳細について述べる。そして第4章では前述したシステムを使用時と不使用時の出力を解析、比較する。第5章ではシステムの動作実験を行い、考察と問題点の解決方法について述べる。第6章には本研究を通して判明したことや今後の課題をまとめとして述べる。

2. 協和音程と音律

一般的には一定の空気の振動のことを音とよんでいる。また、特定の周波数に名前をつけることで音の音程と音名を明確に定義し、万人に通じる概念としている。2音以上の音が同時に演奏された際、協和状態と不協和状態のどちらかの状態が発生する。しかし、この2つの状態に明確な線引きはなく、2音間の協和度が重要な要素となってくる。人間の耳は音響心理学的に、重音を構成する2音の振動数の比が単純であるほど協和して聞こえ、複雑な比になっているほど不協和音に聞こえるという性質がある。

2.1 協和音程

協和音程には完全1度(ユニゾン)、完全8度(オクターブ)、完全4度、完全5度といったものがある。

中でも、完全1度と完全8度は周波数比が1:1と1:2というとても単純な整数比であるため、どの音に適用した場合でも周波数のズレが発生することが無い。(図1) また、完全1度は完全同音、完全8度はオクターブ違いの同音である。

完全4度と完全5度は2つの異なる音で構成され

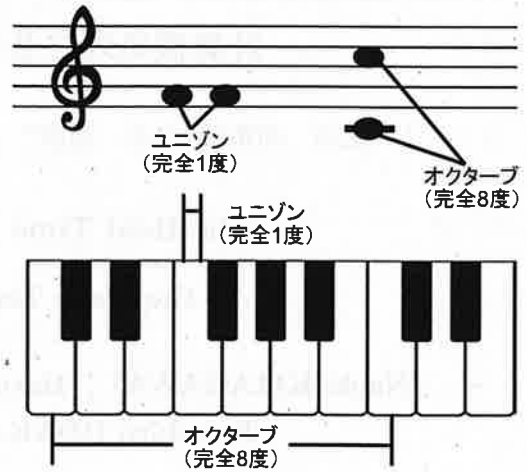


図1: ユニゾン (完全1度) / オクターブ (完全8度)

た和音であるが、その音は常に安定しており、1度、8度と共に完全和音と呼ばれている。また完全1度と完全8度はその中でもさらに絶対協和音程と呼ばれる。(図2)

長3度と短3度、長6度と短6度は、その和音を聞き慣れてない場合は必ずしも協和しているとは感じられないため、昔は不協和音とされていた。しかし、音楽のなかで多用されるようになり、バロック時代には協和音として認められるようになった。そのような時代背景もあり、これらは和音は不完全協和音と呼ばれる。(図3・図4)

以上で述べた以外の和音の組み合わせ、例えば長2度と短2度や長7度と短7度といった和音は音響学的には、全て不協和音と呼ばれる。(図5)

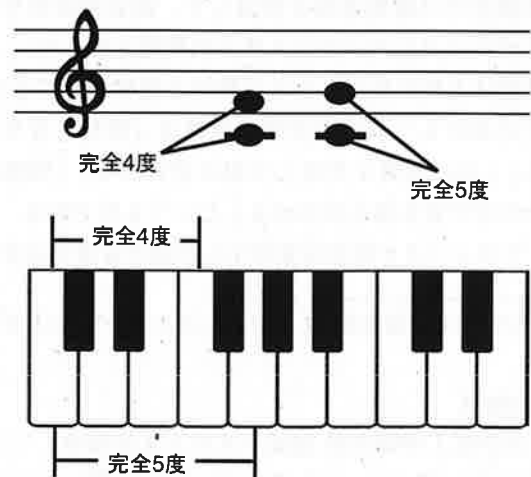


図2: 完全4度 / 完全5度

以上の協和音程と不協和音程を表1としてまとめ

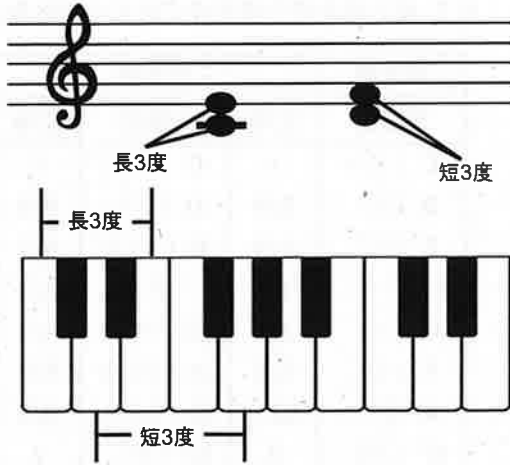


図 3: 長 3 度 / 短 3 度

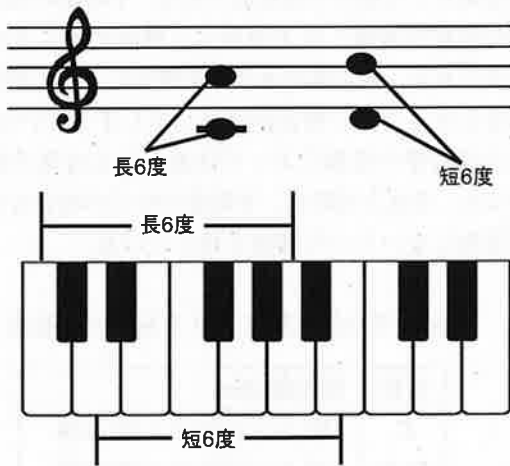


図 4: 長 6 度 / 短 6 度

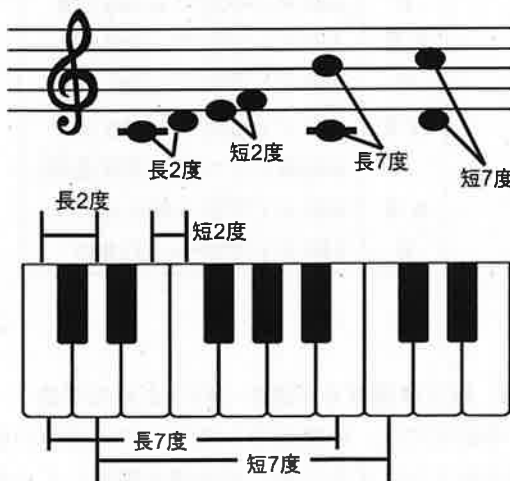


図 5: 不協和音程

た、表中の振動数比は和音を純正に取った場合の比となっている。最後の列の音名は、C (ド) を基音とした場合にその比率で和音となる音である。

和音は 2 音以上の場合に発生するが、同時に発音する音の数が増えても、人が感じる協和・不協和の音程条件は変わることが無い。そのため、音の数が増えれば増えるほど完全に協和するように音程を調整することは難しくなる。本研究では 3 音の和音を基本として想定している。これは、主旋律の 1 音に対して 2 音を和音として付加するためである。また、音楽的に 3 和音の種類は、長 3 和音、短 3 和音、増 3 和音、減 3 和音の 4 種類となっている。(図 6)

表 1: 協和音と不協和音のまとめ

大分類	小分類	名称	振動数比	音名
協和音程	絶対協和音程	完全 1 度	1:1	C
		完全 8 度	1:2	C
	完全協和音程	完全 5 度	2:3	F
		完全 4 度	3:4	G
	不完全協和音程	長 3 度	4:5	E
		短 3 度	5:6	D #
長 6 度		3:5	A	
不協和音程		短 6 度	5:8	G #
		長 2 度	8:9 他	D
	転回音程	短 2 度	16:17 他	C #
		長 7 度	8;15	B
		短 7 度	5:9	A #
	それ以外			

長 3 和音		短 3 和音	
第 5 音 → 8	短 3 音 長 3 音 } 完全 5 度	第 5 音 → 8	長 3 音 短 3 音 } 完全 5 度
第 3 音 → 8		第 3 音 → 8	
根音 → 8		根音 → 8	
増 3 和音		減 3 和音	
第 5 音 → 8	長 3 音 長 3 音 } 増 5 度	第 5 音 → 8	短 3 音 短 3 音 } 減 5 度
第 3 音 → 8		第 3 音 → 8	
根音 → 8		根音 → 8	

図 6: 3 和音の種類と音程

2.2 音律

音律とは、各音の周波数比を一定のルールに従って定義したものである。この音律によって作られた音の連なりを音階と呼んでいる。

この音律は明確な周波数によっては決まっておらず、多くは 1 音ごとの周波数の比によって表される。

そのため、同じ音律であっても基準の音をどの周波数の音にするかによってその内容は大きく変わる。例えば、現在は A (ラ) = 440Hz を基準音とすると 1939 年の国際会議で決められている^[3]が、17~18 世紀のオルガンは A = 395Hz で調整されていた。他にも、モーツァルトやベートーベン、シューベルトなどが活躍した古典派~ロマン派の時代ではオーケストラのピッチに 420~430Hz 前後がよく使われたとされている。このような事実が存在するため、作曲された当時の演奏と現代の演奏とではその印象自体大きく異なるはずである。この変化は楽器の製造技術や演奏方法の進歩によるものであり、現代においてもその研究が行われている。

音律自体も昔からの研究、研鑽によって様々なものが生み出されてきた。最も古い音律は、ピタゴラス音律とよばれるものであり、これは純正 5 度 (周波数比 2:3・表 1) を 12 回重ねることで作られた音律である。そのピタゴラス音律を改善したものが純正律と呼ばれる音律である。そして、現在ではより音楽的な改良が加えられた、平均律と呼ばれる音律が主流となっている。この平均律は現代の音楽に良く合い、幅広く使用されている。

2.2.1 純正律

本研究では純正律と平均律の両方を利用している。そのため、それぞれの音律の特徴を簡潔にまとめる。

純正律は前記したピタゴラス音律の発展系であり、周波数比が長 3 度を 4:5、短 3 度を 5:6、完全 5 度を 2:3 となるように調整した音律である。長音階の 7 音と短音階の 7 音を基準音からの周波数比率であらわす。各表の音階名は基準音を C (ド) とした場合に対応する音である。(表 2) その特徴としては、基準音に関する特定の和音では協和性の高い演奏を行うことができるが、それ以外の和音では著しい不協和になるという点がある。そのため、実際の楽器演奏での使用は非常に困難である。また、純正律は周波数比によって決定されるので、基準音の数だけ作ることができる。

2.2.2 平均律

一般に平均律と呼ばれているのは、1 オクターブの周波数を 12 等分した十二平均律である。平均律は 1 オクターブ (周波数比 1:2) の区間を隣り合う音の周波数比が等しくなるように 12 等分した音律なので、任意の隣り合った 2 音間の比は $1: \sqrt[12]{2}$ となる。平均

表 2: 純正律音階の基準音に対する周波数比

長音階		短音階	
音階名	比率	音階名	比率
C (ド)	1	C (ド)	1
D (レ)	9/8	D (レ)	9/8
E (ミ)	5/4	E (ミ) \flat	6/5
F (ファ)	4/3	F (ファ)	4/3
G (ソ)	3/2	G (ソ)	3/2
A (ラ)	5/3	A (ラ) \flat	8/5
B (シ)	15/8	B (シ) \flat	9/5
C' (ド)	2	C' (ド)	2

律は基準音を定めることによってそれぞれの音の周波数を単一に決定することができる。表 3 は A = 440Hz を基準とした場合の周波数である。平均律の利点は楽器の音程を調整し直す事無くに移調することが可能な点である。純正律の場合は基準音によって協和する和音とそうでない和音が決定してしまっていたので、この平均律の登場によって作曲される音楽の幅は広がった。それと同時に、平均律ではどの和音も完全には協和しないという問題も抱えている。

表 3: 平均律音階における各音の周波数

音程	周波数 (Hz)
C	$440 \times (\sqrt[12]{2})^{-9} = 261.626$
C #	$440 \times (\sqrt[12]{2})^{-8} = 277.183$
D	$440 \times (\sqrt[12]{2})^{-7} = 293.665$
D #	$440 \times (\sqrt[12]{2})^{-6} = 311.127$
E	$440 \times (\sqrt[12]{2})^{-5} = 329.628$
F	$440 \times (\sqrt[12]{2})^{-4} = 349.228$
F #	$440 \times (\sqrt[12]{2})^{-3} = 369.994$
G	$440 \times (\sqrt[12]{2})^{-2} = 391.995$
G #	$440 \times (\sqrt[12]{2})^{-1} = 415.305$
A	440.0(ドイツ国際高度基準)
A #	$440 \times (\sqrt[12]{2}) = 466.164$
B	$440 \times (\sqrt[12]{2})^2 = 493.883$

2.3 純正律演奏を矛盾なく行うための手法

本研究では、鍵盤楽器を使用して純正律の演奏を行えるようにするために平均律を利用している。具体的には、和音の基音を平均律でとり、その音に対して純正律の和音をとるという方法である。平均律の利点は平均律の基準音を設定することによって、各

音を単一の周波数で決定することができる点である。この利点を利用することで、純正律の欠点である、どの周波数の音でも基準にできてしまうために無数の純正律が作れてしまう、という点を解決できる。

より具体的な例として、C-E-Gの長3和音を使用して説明を行う(図7)。この和音の場合は3和音のうち、最も低い音であるC(ド)が基音となっている。ほとんどの和音は基本的に一番低い音が基音となるが、転回和音と呼ばれる和音ではその限りではない。その基音を平均律でとり、その平均律の周波数を基にして純正律の和音をとる。まず、1つ上のE(ミ)は基音との関係が長3度となっているので、周波数比を4:5でとる。もうひとつ上のG(ソ)は基音との関係が完全5度であるため、周波数比2:3でとる。このように和音をとることで、この長3和音の周波数比はC-E-Gの順に4:5:6となり、協和した和音を作ることができている。

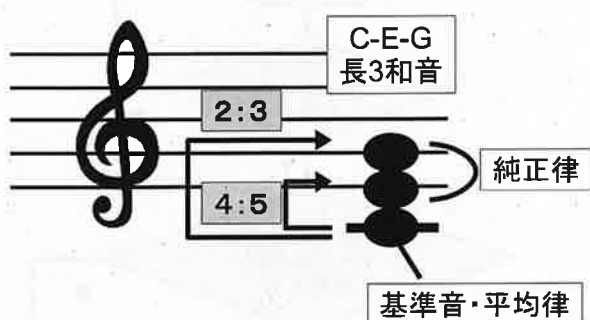


図7: 本研究での手法例

表4は平均律、純正律、本研究での手法のそれぞれでC-E-G(Cメジャー)の和音を構成する各音の周波数がどの程度異なっているかをHzで表したものである。平均律と純正律はA=440Hzを基準音としてハ長調の音階を作った場合の周波数である。純正律は表2のAの部分に440を代入して計算している。本研究での手法は図7と同じ場合のもので、C音は平均律でとったものなので同じ値となっている。この3パターンの周波数で和音中のうなりの数を算出して比較する。まず、長3和音の場合、3音が協和する周波数比は前述したとおり4:5:6となる。そのため、最小公倍数は60となり、最初に3音で重なる倍音はそれぞれCを15倍、Eを12倍、Gを10倍した音となる。計算の結果を表5に示す。音響学的には計算結果は同じ周波数にならないといけないが、平均律で作った和音に関しては他2つと比べて大きな差が見られる。純正律と本研究の手法では、計算結果に差がほ

んど見られず、基の和音の協和性の高さがわかる。

以上のことから本研究での手法は協和性を高める上で平均律よりも有効であるといえる。次に、この手法を使用しているシステムについて説明していく。

表4: 周波数の差(Cメジャー)

	平均律	純正律	本研究での手法
G	391.99	396.00	392.45
E	329.63	330.00	327.04
C	261.63	264.00	261.63

表5: うなりの回数の差

	平均律	純正律	本研究での手法
G*10	3919.9	3960.0	3924.5
E*12	3955.56	3960.0	3924.48
C*15	3924.45	3960.0	3924.45
最大最小の差	35.66	0.0	0.05

3. 実時間エキスパートシステムについて

本研究ではシステムの開発をC言語によって行った。Windows上での動作を想定し、システム内で扱う音楽データはWindowsに標準でインストールされているMIDI形式とした。

3.1 システム構成

システム構成図を図8に示す。今回作成したシステムには大きく分けて4つの処理部分がある。入力部ではMIDIキーボードからの入力の監視を行っている。キーボードからの入力が入力メッセージとして受け取れた場合、そのメッセージの解析、プログラム内での変数への代入を行う。

判別部では入力された音の判別を行っている。主に何音同時に入力されているか、入力された音はどの音なのか、入力された音の組み合わせは何の和音を構成しているのかを判別する。その判別を行う際は、和音テーブルを参照している。和音テーブルには、入力された音の組み合わせによってどの和音が構成されているかのデータが格納されている。

音程調整部では平均律の音程を純正律の音程へと上書きするという処理を行っている。音程の上書き

は和音の種類ごとに異なる値を適用する必要があり、どの和音のときにどの音に対してどういう値を上書きするかというルールはシステム内でリアルタイムに計算しておらず、ピッチ調整ルールに格納された値を参照して行っている。

最後に、出力部ではその名のとおり MIDI データの出力を行っている。出力されるデータは、入力データとピッチバンドに関する部分に上書きが行われただけの MIDI データとなる。MIDI の性質上、出力されるのは音そのものである波形データではなく、MIDI メッセージ形式のデータである。出力部からは PC 内の GM 音源へとデータが渡され、そこで発音されることとなる。

本研究で作成したシステムには、楽器的な演奏を行うためのインターフェースを含んでいない。実際にこのシステムを使用する際には、MIDI メッセージを行うことのできるピアノ鍵盤型キーボードをケーブルによって接続して使用することとなる。

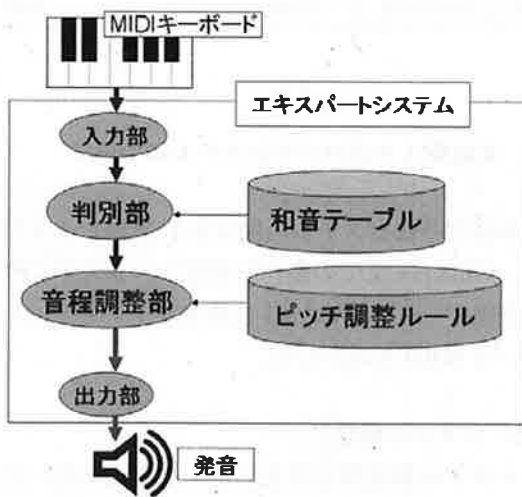


図 8: システム構成図

3.2 システム内の処理手順

システム内での処理手順を図 9 に示す。まず、システム内での処理は入力部への入力待ち状態となる。MIDI キーボードからのデータの入力を常に監視し、入力があるまで待機状態となる。キーボードからの入力が行われると、処理は判別部へと移る。判別部で入力された MIDI データの解析を行い、その結果を和音テーブルと照らし合わせる処理を行う。その際、入力された音が和音テーブル内に存在するかの確認を行い、テーブル内にデータが無かった場合は入力時

の MIDI メッセージに上書きを行わずにそのまま出力部へとデータを渡す。テーブル内にデータが存在した場合は、次の処理部である音程調整部へとデータが渡される。音程調整部では MIDI メッセージ内のピッチバンドの値に対して上書きを行う。この上書きが行われた段階で平均律から純正律への変換が行われたこととなる。純正律へと調整された上書きするためのピッチバンドの値はピッチ調整ルール内に格納されている。ピッチバンドの上書きを行った後、処理は出力部へと移る。出力部では、入力時の MIDI メッセージと照らし合わせることでエラーのチェックを行い、問題が見つからなければ MIDI メッセージとして出力する。本システムから出力された MIDI メッセージは PC 内の GM 音源によって波形化され、その後発音されることとなる。

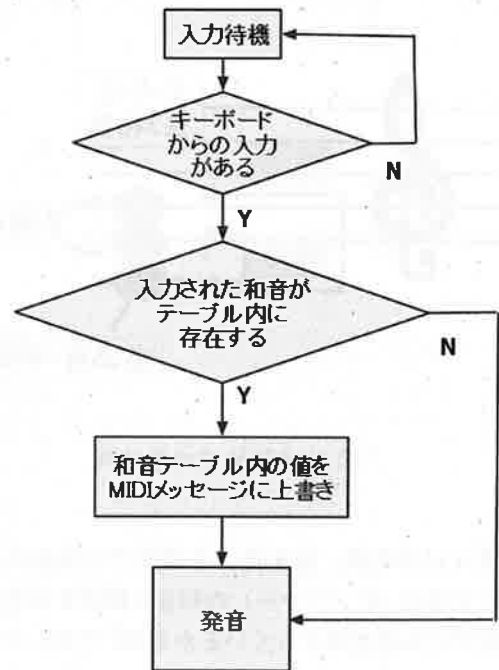


図 9: システム内の処理手順

3.3 MIDI を使用しての再現

本システムでは MIDI メッセージを利用して純正律の再現を行っている。MIDI は Musical Instrument Digital Interface の略称で、日本の MIDI 規格協議会と国際団体の MIDI Manufacturers Association (MMA) によって作られた、電子楽器間での世界共通の規格である。WAVE などの波形データとは異なり、音符の並びや使われる楽器、音色などを扱える楽譜データであり、Windows API によるプログラミングで扱うこと

ができる。また、MIDI 音源には Windows に標準搭載されている GM (General MIDI) 音源を使用する。

MIDI メッセージ内にはさまざまな情報が記されている。大きく分けて、個々のトラックや音を管理するチャンネルメッセージとシステム全体をコントロールするためのシステムメッセージが存在する。本研究では、チャンネルメッセージ内のピッチベンド (Pitch Bend) を利用して各音の音程を変化させる。ピッチベンドは MIDI 内で音程を操作するための固有の値で、ビブラートやスラー、ギターのコッキングの再現に使用されることが多い。-8192~0~+8191 (初期値は 0) の値を設定でき、その範囲で実際にどの程度音程が変化するかはピッチベンドセンシティブリティ (ベンドレンジ) という別の値によって決定される。ピッチベンドセンシティブリティは半音ごとに設定でき、初期値の 2 では上下どちらとも全音分変化することになる。本実験のシステム内では初期値の 2 を前提としている。

MIDI はデフォルトの状態では平均律になるように作られている。そのため、純正律での演奏を行う場合、平均律と純正律の周波数の差を求め、ピッチベンドに変換→MIDI 内の値の上書き、という手順を踏むこととなる。計算式は以下ようになる。

$$\log\left(\frac{F_p}{F_t}\right) \div \frac{\log 2}{6} * 8191 = 49146 \frac{\log\left(\frac{F_p}{F_t}\right)}{\log 2} \quad (1)$$

平均律の周波数を F_t 、純正律の周波数を F_p とおく。 $\log(F_p/F_t)$ を平均律の全音である $(\log 2)/6$ で割った値が補正值となり、それに対して全音分変化させるピッチベンドの値である 8191 (変化幅は -8192 からであるが、上下どちらも 8191 が全音分の変化に相当すると仮定する) を掛けた値が入力すべきピッチベンドの値となる。

本システムでは以上の計算をあらかじめ行い、実際にシステム内で上書きするピッチベンドの値を数値で格納している。

4. 実験

4.1 実験環境

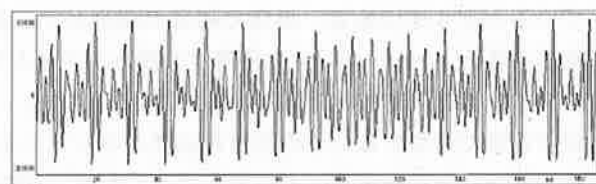
Windows 環境下で実験を行った。今回の実験では、GM 音源として Windows に標準でインストールされている、Microsoft Wavetable GS SW Synth を使用した。MIDI メッセージを送信できるソフトウェア MIDI キーボードとして K.Nukui さんが web 上で公開しているフリーソフトウェアの「midiKey」^[6]を使用した。

また、ソフトウェア MIDI キーボード、本研究での開発ソフトウェア、MIDI 音源をつなぐための仮想 MIDI ケーブルとして、「MIDI Yoke」^[7]を使用するためあらかじめインストールを行った。

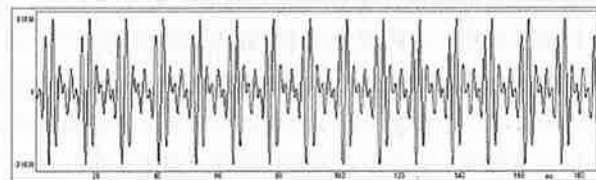
4.2 実験結果

実験の評価は、本研究で作成したソフトウェアの使用時と不使用時の MIDI データを比較することで行う。音ではなく目に見えるデータとして評価するために、今回は波形データを使用することとする。そのために以下の手順を行った。まず、MIDI データを PC 内で録音し、録音したデータを WAVE ファイルに変換する。その際本研究で作成したエキスパートシステムを使用時と不使用時の 2 パターン録音する。演奏の内容は同じである必要があるため、特定の和音を演奏することとする。その後 WAVE データを波形データへと変換するソフトウェアを使用し、波形データの作成を行う。

以上の手順で作成した波形データを図 10 に示す。なお、今回の実験では E メジャーの和音を利用した。



(1)平均律での出力



(2)純正律での出力

図 10: 波形の比較

(1) は本システムを使用しない平均律の場合の出力、(2) は本システムを使用した純正律の場合の出力となる。それぞれの波長を比較すると、平均律は一定の周波数ではなく、大きな周期で波打っていることが分かる。それに対して純正律は、一定の周波数で出力されていることが分かる。この実験結果から、本研究で作成したシステムによって周波数の変換が行われていることがわかる。

5. 考察

周波数は 1Hz 以下で測定可能であり、演奏される楽器や肉声の振動数は楽器や体のコンディション、演奏する環境、気温、聴衆との距離などの非常に多くの要素によって左右されるため、簡単に揺らぎが発生する。そのため、厳密な周波数を保つての演奏というのは、実際問題非常に難しい。

そのため、完全な純正律で曲の演奏を行うためには 2 つの大きな前提条件が必要となると考えられる。まず 1 つは、演奏空間の調整である。この場合の演奏空間は、音が演奏者から発せられて聴衆に届くまでの空間とする。演奏者から発せられた音が減衰、干渉、ノイズの混入が起こることなく聴衆まで届く空間が必要となるが、実際にそのような演奏空間は存在し得ない。音は演奏者から発せられた瞬間に空間からの干渉を受け、微小な変化をおこすこととなる。この変化は演奏者の演奏技術での軽減が難しく、あらかじめ完璧な演奏空間を用意しておくことが必要となる。2 つ目は演奏者から音が発せられた音の状態である。つまり、音が発せられた段階で和音が純正となっているかどうかである。単体で和音の演奏ができる楽器の場合、チューニングの段階での調整がひとつようである。また、演奏中に音をぶれさせることなく、一定の音程で演奏するための技術も必要となってくる。その技術は楽器の習熟によって上達可能だが、DTM ならばより簡単に発音可能であると考えられる。その点も含め、本研究では DTM の利点と考えている。

今回作成したシステムでは MIDI メッセージのピッチベンドの上書きを行うためにシステム外に和音テーブルを作り、そこから内容の検索・適用を行った。これにより、システム内での計算処理を軽減することができたが、それにより和音テーブル内にあらかじめ用意してある和音にしか対応ができないものとなった。今後の改良点として、周波数をテーブルで管理するのではなく和音パターンごとの計算式を作成することで対応させる必要がある。また、楽器として扱えるようにするための GUI インタフェースが必要である。より扱いやすいソフトウェアとするために、どのようなインタフェースが適しているか、作成と実験が必要である。

6. まとめ

本研究では純正律を使用しての演奏が可能なシステムの開発を行った。Windows 上での操作を前提とし、C 言語を使用して Windows アプリケーションと

して作成した。システム内部で扱う音楽データの形式には、windows に音源が標準搭載されており、音程の操作ができる MIDI データを使用した。システムを使用時と不使用時で出力された音をそれぞれ波形解析することで、本システムによって平均律から純正律への変換が行われていることが確認できた。今後、本研究で作成したシステムを一種の楽器として操作できるようにするために、GUI インタフェースの追加や対応できる和音数の増加などを行う必要がある。

参考文献

- [1] 小島知成, 黒岩丈介, 小高知宏, 小倉久和, 白井治彦: 平均律楽譜情報を用いる純正律演奏システム, 平成 16 年度電気関係学会北陸支部連合大会講演論文集
- [2] 北川尚希, 黒岩丈介, 小高知宏, 小倉久和, 白井治彦: 純正律による音楽表現を支援するエキスパートシステム, 平成 20 年度卒業研究, (2008)
- [3] 最相葉月: 絶対音感, 小学館, (1998).
- [4] 日本シンセサイザー・プログラマー協会 (JSPA): MIDI 検定 3 級公式ガイドブック, ミュージックトレード, (2002).
- [5] 日本シンセサイザー・プログラマー協会 (JSPA): MIDI 検定 2 級公式ガイドブック, ミュージックトレード, (2000).
- [6] midiKey : <http://hp.vector.co.jp/authors/VA018952/>
- [7] MIDI Yoke : <http://www.midiox.com/>

災害復旧支援ネットワーク用の新しいプロトコルの提案

袴田 暁人* 白井 治彦** 黒岩 丈介*** 小高 知宏* 小倉 久和***

The Proposition of a New Protocol for Disaster Restoration Support Network

Akito HAKAMADA* , Haruhiko SHIRAI** , Josuke KUROIWA***
Tomohiro ODAKA* and Hisakazu OGURA***

(Received February 10, 2011)

In this article, we propose a new disaster restoration support network, and show the new construction method for such network system. In this system, we use the Etherphone which is new communications technology using only the data link layer and the physical layer. The Etherphone network uses a broadcast for the transmission of a message of data. We proposed a new protocol for the disaster restoration support network which uses the wireless Etherphone system. We construct the simulator program to test our protocol. And, we simulated it in some patterns. The simulation showed that we were able to suggest a protocol for Etherphone.

Key words : Etherphone, Disaster Restoration Support, Protocol

1. はじめに

近年の情報通信技術 (IT) の発展と普及により, 多種多様なデジタルデータやそれを活用する技術が政府・自治体においても容易に利用可能な環境になってきた [1]. 地震等の災害時における復旧支援システムはネットワークに依存したものが多く, 災害の被害によってネットワークが途切れてしまった場合に使用できなくなってしまう. そこで, 障害が発生して既存のネットワークを利用できなくなった際に, ネットワークを代替的に構築する手段が必要である. 現在, その代替的なネットワークについて様々な研究がされている [2,3].

本研究では, イーサフォン [4] という通信技術を用いた無線端末を複数台設置することによりネットワークを構築する手法を提案する. 通常, 無線端末を用いてネットワークの構築を行う場合には, OLSR や AODV などのルーティングプロトコルを用いて, 無線マルチホップに最適化したルーティングプロトコルを考案する必要がある [5]. それに対して, イーサフォンは, OSI (Open Systems Interconnection) 参照モデルの第 2 層以下に相当するイーサネットの機能のみを用いて通信を行う技術である. データの送信にはブロードキャストを用いるため, イーサフォンはルーティングプロトコルの最適化設定に伴う手間を削減することができる.

本稿では, 無線イーサフォンによる災害復旧支援システムの実装シミュレーションを行った. ノードであるイーサフォン端末は, 送信側 PC からの情報を受け取り, そのデータをブロードキャストしてネットワーク全体に流す役割をしている. 我々は, ノードを動的に配置しネットワークの形成を行うシミュレーション実験により, 無線イーサフォンを用いた端末を複数台設置することで, 設定の手間を削減した災害復旧支援ネットワークの提案を行った.

*大学院工学研究科 原子力・エネルギー安全工学専攻

**技術部

*** 大学院工学研究科 知能システム工学専攻

*Nuclear Power and Energy Safety Engineering Course, Graduate School of Engineering

**Dept. of Technology

***Human and Artificial Intelligent Systems Course, Graduate School of Engineering

2. 無線イーサフォンによる災害復旧支援ネットワークの構成

2.1 災害復旧支援ネットワークの概要

災害復旧支援ネットワークとは、地震、津波、洪水、台風、竜巻などの影響により、敷設されているネットワークインフラに障害が発生した際に、それに代替するネットワークとして作成されるものである [6,7]。情報伝達の内容としては、災害が発生した時の警察や消防による捜索、救出、緊急通報、避難誘導、被害情報の収集・連絡、復旧活動支援、被災者同士の安否の確認などが挙げられる。また、情報の伝達内容や伝達頻度、利用目的や利用規模によってネットワークの構成方法は様々である。

2.2 イーサフォンについて

本研究では、災害時情報支援システムにイーサフォンの技術を取り入れて実装を行った。イーサフォンを用いることで、PCの相互通信における情報を容易にネットワークに流すことが可能となる。さらに、イーサフォンを用いることで非常に安価で設定不要のシステムを構築することができる。

イーサフォンとは福井大学が特許を有する通信技術（特許第4110251号）のことである [8]。イーサフォン開発における基本コンセプトとして2点挙げられる。1点は従来のアナログデータ通信基盤に変わる通信基盤を開発することである。もう1点は、昨今のインターネット通信環境が複雑になっており、近距離・閉鎖的な通信網には短所が多いと考えるからである。イーサフォンの特徴を表1にあげる。

イーサフォンは表1のように、OSI参照モデルの下位2層に相当するイーサネットの機能のみを用いることによって通信を行う通信方式である。さらに、イーサフォンの様々な特徴の中で一番の利点は通信設定なしにネットワークを構成し、接続できることである。

OSI参照モデルとは国際標準化機構であるISOにより、策定されたネットワーク通信の設計方針である。OSI参照モデルを表2に挙げる。OSI参照モデルでは通信機能ごとに、7つの階層に分けられている。上位層はソフトウェア寄りの内容で、下位層は逆にハードウェア寄りの内容になっている。この7層のうちイーサフォンは下位2層である物理層とデータリンク層の一部を用いて通信を行う。

まず、第1層となる物理層では、物理的な接続であるコネクタやケーブルのピン数や通信路の電気信号などの変換について定義されている。そして、第2層であるデータリンク層では、上位層からのサービス

表1: イーサフォンの特徴

	説明・特徴
(1)	イーサネットの機能のみを用いる ・OSI参照モデル L1,L2 を使用 ・イーサネット機器を使用できる ・L3 以上は利用不可
(2)	長距離でもノイズの影響を受けにくい ・信号増幅装置は必要なし
(3)	通信設定は必要なし ・TCP/IP などのプロトコルを使用しない ・電源と LAN インフラがあれば使用可能
(4)	無線通信も可能 ・有線 LAN/無線 LAN どちらにも対応 ・無線でも通信設定は不要
(5)	アナログ/デジタルデータを伝送可能 ・通信時はデジタル形式 ・アナログデータは A/D 変換により対応

要求に答えたり、下位層サービスを要求するために、フロー制御やエラー検査などの情報移動に関する役割を持っている。

イーサネットは、この物理層とデータリンク層を用いた通信規格であり、一般的によく利用される LAN(Local Area Network) で最も利用される通信規格である。イーサフォンでは、通信を行うにあたり、表2に示すOSI参照モデルにおける物理層及びデータリンク層に対応する通信プロトコルのみを使用する。つまり、イーサフォンは利用範囲を近距離・閉鎖的なネットワークのみに利用場所を限定することで、イーサネットの機能のみを用いて、TCP/IP等のプロトコルの設定なしに通信を行えるものである。

表2: OSI参照モデル

階層	OSI参照モデル	プロトコル例
7	アプリケーション層	WWW
6	プレゼンテーション層	データの変換
5	セッション層	コネクションの確立や開放
4	トランスポート層	TCP, UDP
3	ネットワーク層	IP
2	データリンク層	CSMA/CD
1	物理層	100 BASE-T

本稿では送受信用のPCとノードである無線端末を繋ぐための通信手段としてイーサフォンを用いた。通信手段にイーサフォンを用いた無線端末（イーサフォ

ン端末)は送信元から受け取ったデータをブロードキャストして全体に流す。これにより、送信元から送信先までのルーティングや経路選択等の設定が不必要となる。また、ノード端末の追加や削減、動的配置を簡単に行うことが出来る。

2.3 イーサフォンによる災害復旧支援ネットワークの概要

イーサフォンによる災害復旧支援ネットワークの概要について説明する。利用用途は災害時における、災害の規模や損害による影響などの災害情報、住民の避難状況、救助活動の進行状況、食料や日用品や暖房設備など必要物資の伝達をするためである。ネットワークの通信規模は各避難場所間と災害対策本部を繋ぐ上位的なものとする。ネットワークのイメージを図1に示す。

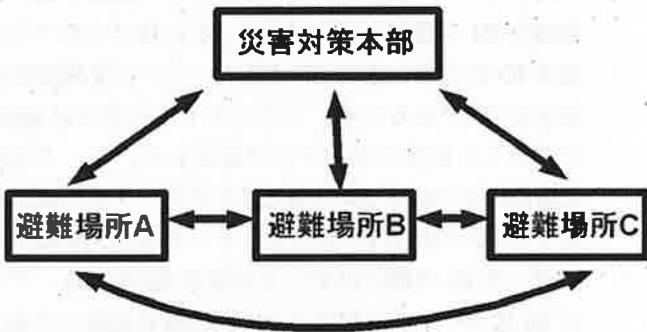


図1: ネットワーク環境の概念図

通信技術にイーサフォンを用いているため、通信におけるルーティングは、細かくルートを設定して通信するのではなく、周囲にある全ての端末にブロードキャストを行うことで通信を行う。通信における流れを、図2を用いて説明する。避難場所Aが災害対策本部にデータを送ろうとした場合、避難場所Aから直接災害対策本部にデータを転送することが出来る。しかし、災害対策本部にデータが届いた時点でデータの転送を止めるのではなく、避難場所Bにもデータを転送する。これはブロードキャストによって周囲にある端末全てに送信を行っているからである。

また、避難場所Bは受信したデータが自身に向けられたデータではないため、ブロードキャストを行う。それにより避難場所Cにも避難場所Aが送信した内容がわかる仕組みになっている。ここでイーサフォンを用いた災害復旧支援ネットワークの概要は以下のようにまとめられる。

- ・災害時における各避難場所間と災害支援対策本部を繋ぐネットワークの構築
- ・利用用途は災害情報、避難状況、救助状況、必要物資の伝達等
- ・ブロードキャストして通信を行い、全ての端末にデータを送信

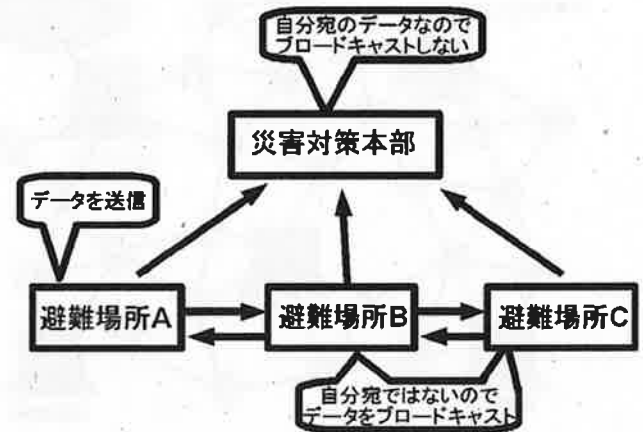


図2: イーサフォン通信の概念図

3. イーサフォンによる災害復旧支援ネットワークの設計と構築

3.1 イーサフォンによる災害復旧支援ネットワークの設定条件

イーサフォンによる災害支援ネットワークの構築の設定条件について説明する。各避難場所及び災害対策本部(支点)にはデータの送受信が可能なPCを設置する。支点間を無線で接続して通信が行えるようにイーサフォンの機能を持った中継端末(ノード)を設置する。各ノードは固定的且つ、どのルートも単一にならず複数になるように配置する。

災害復旧支援ネットワークの利用において災害対策本部は外部ネットワークとの通信が考えられる。イーサフォンはルータの壁を越えることは出来ないが、災害対策本部はネットワーク環境の破壊されてない場所に設置されるので、外部との通信が必要な際にはそちらのネットワークを利用して通信を行う。ここで、ネットワークの概念図を図3に示し、状況設定は以下のようにまとめられる。

- ・各避難場所及び災害対策本部(支点)にはデータの送受信が可能なPCを設置
- ・支点間を無線接続出来るように中継端末(ノード)

を設置

- ・中継端末は固定的に且つ、どのルートも複数になるように配置
- ・外部ネットワーク接続には通常のネットワークを利用

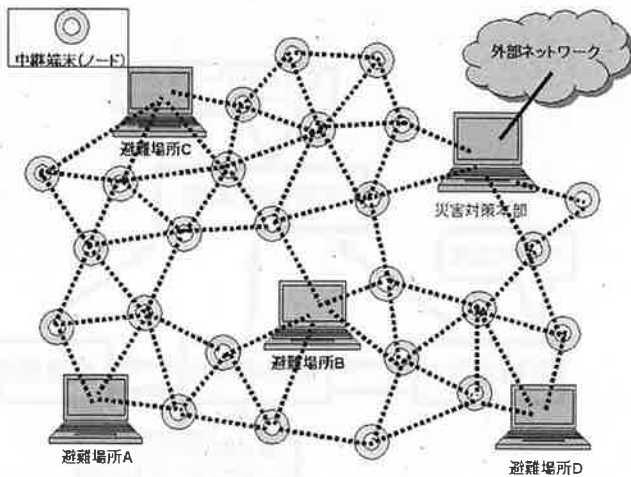


図3: イーサフォンによるネットワークの概念図

3.2 無線イーサフォンを用いたネットワークのルーティングプロトコル

具体的な前提条件について説明する。各支点の送受信 PC は固有の ID を持ち、全ての支点はお互いの MAC アドレスと固有 ID を把握しているものとする。プロトコルのフレームフォーマットはイーサネットのフレームフォーマットを利用した。その内容を図4示す。



図4: イーサフォンのフレームフォーマット

フレームフォーマットの各内容について説明する。イーサフォンはブロードキャスト通信を用いるため、宛先 MAC アドレスの欄にはブロードキャストアドレスが入る。送信元 MAC アドレスの欄には1ホップ前の端末の MAC アドレスが入る。MAC アドレスは6バイトの大きさを持っているため、このフィールドは6バイトである。タイプの欄ではイーサフォンのパケットであるか判定するためのイーサネットを示すフ

ラグが入るフィールドで2バイトである。データ部にはデータを送信する上で必要な情報が入り、フィールドの大きさは可変長で、最小が46バイトで最大が1500バイトである。データ部の具体的な内容については後ほど説明する。イーサフォン全体のフィールド情報を表3に示す。

フィールド名	バイト数	内容
宛先MAC アドレス	6	データを送信する宛先のMACアドレス
送信元MAC アドレス	6	1ホップ前の送信元のMACアドレス
タイプ	2	プロトコル識別するための識別番号。イーサフォンパケットか確認
データ部	46~1500	必要情報(表4参照)

表3: イーサフォン全体のフィールド情報

続いてデータ部の中の内容について説明する。宛先固有 ID の欄には宛先である PC に付けられている固有 ID が入る。固有 ID は端末一つ一つを識別する固有の ID であるため、フィールドの大きさは MAC アドレスと同等の6バイトに設定した。データ送信元情報の中の固有 ID の欄にはそのデータを作成し送信する PC の固有 ID が入る。データ送信元情報の中のデータ ID の欄にはデータの固有 ID が入る。データ ID はデータを送信する PC が情報を連続して送る際に何番目のデータであるか示すようなデータの固有 ID のことである。これは後述に示す受信処理の中の応答メッセージによる処理によって先に送ったデータが消されないようにする為のものである。フィールドの大きさは1日に情報を送信する回数等を考え、大きめに設定し、2バイトとした。データ消去要求の欄には削除するデータの固有 ID とデータ ID が入る。フィールドの大きさはデータ送信元情報と同じ8バイトである。そしてデータ(伝達事項)の欄に災害情報等の伝えたい情報を入れる。フィールドの大きさはイーサフレームのデータ部のフィールドの大きさから上記のフィールドを差し引き、24~1478バイトとした。データ部のフィールド情報を表4に示し、データ送信元情報のフィールド情報を表5に示す。データ消去要求のフィールド情報に関しては送信元情報フィールドとほぼ同じであるため省略する。

システムを初めて動作する際はデータ ID を全て利用可能状態にしてスタートさせる。ここで前提条件は以下のようにまとめられる。

- ・各支点は固有の ID を持つ
- ・支点の MAC アドレスと固有 ID は全ての支点がお

フィールド名	バイト数	内容
宛先固有ID	6	データを送信する宛先の固有ID
データ送信元情報	8	データを送る送信元の情報
データ消去要求	8	再送防止用記憶IDの削除要請
データ(伝達事項)	24~1478	伝達したい情報

表 4: データ部のフィールド情報

フィールド名	バイト数	内容
固有ID	6	データを送った送信元の固有ID
データID	2	送ったデータの固有ID

表 5: データ送信元情報内のフレーム情報

互いに把握している

- ・データ ID はデータに付けられた固有 ID
- ・データ ID を全て利用可能状態にしてシステムをスタートさせる

次にデータを送信してから受信するまでの処理の流れについて説明する。まず、データを送信する際の処理について説明する。送信側は、データを伝える宛先である PC の固有 ID を、送信するデータのデータ部の中の宛先固有 ID の欄に挿入する。データ送信元情報の欄に自身の固有 ID とデータ ID を挿入する。使用したデータ ID を利用不可能状態にする。初めてデータを送信する際はデータ消去要求には何も挿入しない。受信している応答メッセージがある際は、その応答メッセージのデータ部のデータ送信元情報の内容を送信するデータの消去要求の欄に挿入する。そしてデータ(伝達事項)に災害情報や避難情報のような伝えたい情報を入力して送信する。ここで送信処理は図 5 のようにまとめられる。

次にデータの中継する処理について説明する。データを受信した支店及びノードは受信したデータのデータ部の中のデータ送信元情報である固有 ID とデータ ID が自身の記憶領域に既に保存されているか照合を行う。照合した結果、保存されていないと判断されたデータ送信元情報は記憶領域に保存し、送られてきたデータを周囲の端末にブロードキャストして送信する。照合した結果、既に保存されていると判断された場合は、受信したデータのブロードキャストを行わず、受信した情報を破棄する。

データ部のデータ消去要求に情報が入っている場合は、そのデータ消去要求の中の固有 ID とデータ ID

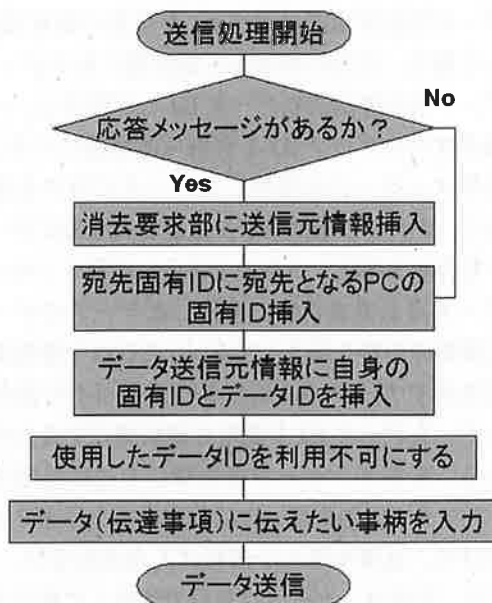


図 5: 送信処理の流れ

が自身の記憶領域に記憶されている場合、その情報に対応した固有 ID とデータ ID を消去(初期化)する。ここで中継処理は図 6 のようにまとめられる。

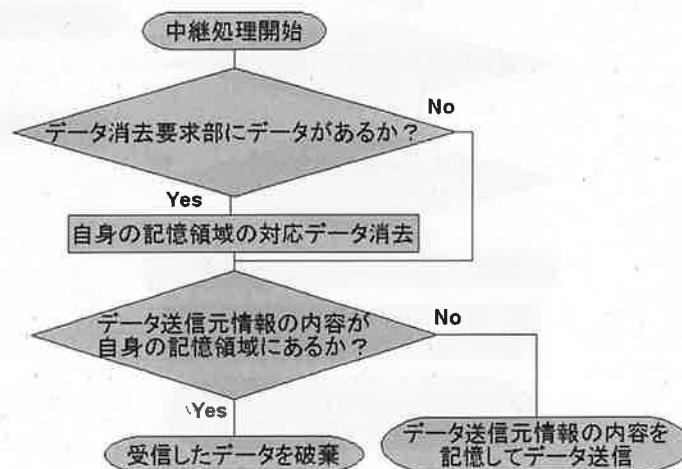


図 6: 中継処理の流れ

次に、データを受信した際の処理について説明する。まず、受信したデータのデータ部のデータ送信元情報の固有 ID と自身の固有 ID とを照合し、一致した場合は、そのデータを破棄する。次に、受信したデータの宛先固有 ID と自身の固有 ID とを照合する。一致した場合は、データ(伝達事項)を確認し、応答メッセージを返す。一致しなかった場合は、中継処理を行う。

データ消去要求部の固有 ID が自身の固有 ID と一致した場合、自身の利用不可能状態にあるデータ ID とデータ消去要求部のデータ ID とを照合し、一致した場合はそのデータ ID を利用可能状態にする。

応答メッセージは受信したデータに対する返事ではなく、データの送信側が、指定した宛先にデータが届いたのかを確認するものである。応答メッセージにはデータ消去要求の欄に受信したデータのデータ送信元情報の内容を挿入しておく。これは中継処理の初期化処理やデータの送信によって利用不可能状態になっているデータ ID を利用可能状態にするため等に用いる。応答メッセージ送信時にも送信処理を行うが、データ（伝達事項）には受理成功を示すメッセージだけで、返事や新たな情報は入力出来ない。

また、応答メッセージは自分で作成して返すものではなく、自動で送信するように設定されている。ここで受信処理は図 7 のようにまとめられる。

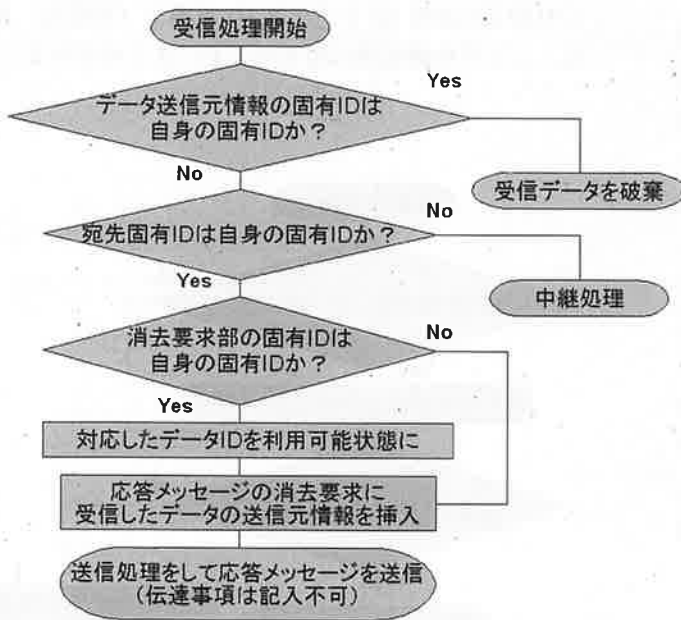


図 7: 受信処理の流れ

3.3 シミュレーションプログラムの設計

ノードの配置パターンを自由に設定でき、どの配置パターンでも提案したプロトコルが正しく動作するか調べるシミュレーションを行った。また、各配置パターンのデータ到達速度を調べることでシステムの信頼性をテスト出来るようにした。都市フィールドはマス目状にし、送信 PC を S、受信 PC を J、中継ノードを N として設定した。シミュレーションプロ

グラムの操作画面を図 8 に示す。送信 PC、受信 PC、中継ノードはラジオボタンを切り替えることで排他的に配置することが出来る。送信 PC と受信 PC は各 1 台のみ配置可能とし、ノードは複数個設置することが可能である。送信開始ボタンを押すことでデータの伝達を開始し、停止ボタンでネットワークをリセットする。

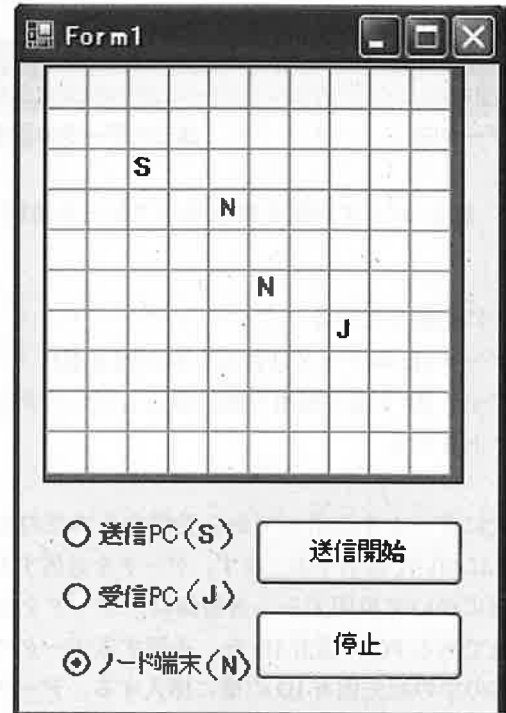


図 8: 操作画面例

4. 実装シミュレーション

4.1 シミュレーションの前提条件

シミュレーションの設定を以下のようにして実験を行った。

- ・ 10 × 10 のマス目都市
- ・ ノードの配置は動的に行う
- ・ データの転送は固定的に行う
- ・ 電波範囲は 4 マス
- ・ 伝送速度は 1 マスあたり 0.05ms
- ・ 処理速度は受信処理・送信処理共に 20ms

配置パターンには図 9、図 10、図 11 の 3 パターンを用いて行った。

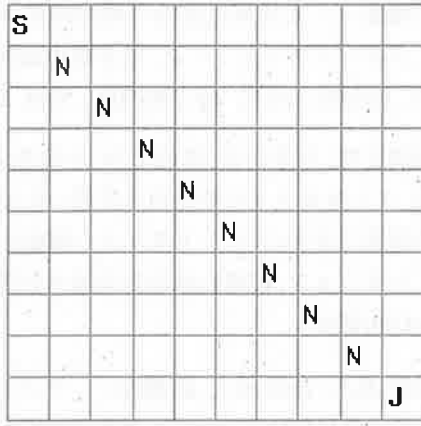


図 9: パターン 1

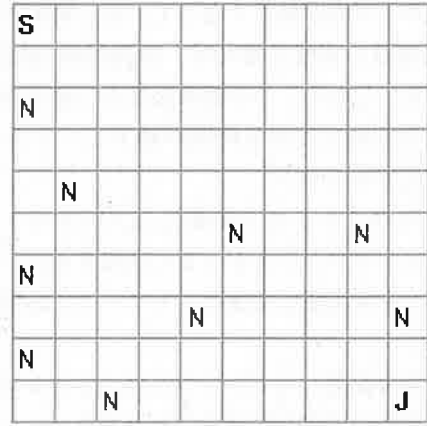


図 11: パターン 3

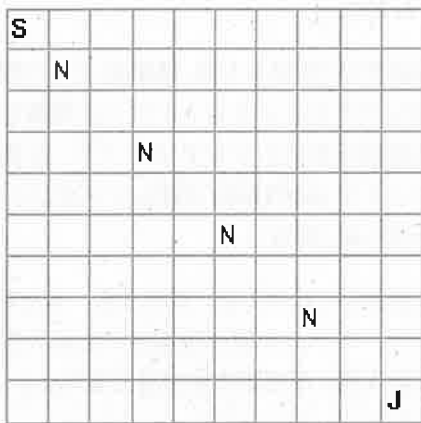


図 10: パターン 2

4.2 シミュレーション結果

前提条件に基づきシミュレーション実験を行ったところ、3パターンともデータの伝送が問題なく行われた。その結果を表6に示す。伝達速度はデータが宛先に届くまでの最短の時間である。伝達終了時間は範囲内の一番最後の端末がブロードキャストを行った終了時間である。配置中継ノードの数がマップ全体に配置された中継ノード数で、伝達までのホップ数が最短経路でのホップ数である。

	データの伝達	伝達速度 (ms)	伝達終了時間 (ms)	配置中継ノードの数	伝達までのホップ数
パターン1	○	200.9	201.0	8	5
パターン2	○	200.9	200.9	4	5
パターン3	○	401.3	401.3	9	9

表 6: シミュレーション結果

5. 考察

本研究では、無線イーサフォンを用いて災害復旧支援ネットワークを構成するための新しいプロトコルの提案を行った。そして、3章で述べたような方法でイーサフォン用のルーティングプロトコルを提案し、シミュレーション実験を行った。

その結果、全てのパターンでデータが伝達したことから、提案したプロトコルは正常に動作していることがわかる。

次に、パターン1と2を比較した。2つのパターンは最短ルートは同じだが端末の密度が違っている。このような場合、密度の高い方が全ての端末にデータを伝送するまでに時間がかかると考えられるが、イーサフォンによる通信はブロードキャストにより周囲の端末に一斉に送信しているため伝達終了時間にほとんど差がない結果となっている。

このことから、ノードを格子状に増やしてすべての送受信端末を繋げれば、伝達が終了するまでの時間を増やすこともなく理想的な配置が出来ることがわかる。

次に、パターン2と3を比較した。送信端末と受信端末の位置は同じだが、最短経路が大きく異なっている。そのため、同じ距離でも倍近く処理時間がかかってしまっている。これにより、どこにノードを追加すれば伝達時間が短縮されるかわかる。パターン3で例えると、送信PCから右に3、下に4の位置にノードを追加すれば、伝達速度を60.45ms短縮することが出来る。

最後に、パターン1と3比較した。パターン2と3を比較したときとほぼ同様に最短経路が大きく異なっている。それに加え、配置されたノードの合計もほぼ同じになっている。しかし、データが伝送されるまで

の最短ホップ数が倍近くになっている。通常同じ範囲に端末を増設し密度を増せば、伝達時間は短縮するはずである。しかし、この結果を見ると端末の配置場所を誤ると伝達にかかる時間が降下してしまうことがあることがわかる。

これらのことから、提案したプロトコルとシミュレーションプログラムをうまく使用すれば、無線イーサフォンを災害復旧支援ネットワークに応用できると考える。

本研究で提案したプロトコルは、シミュレーションである程度の成果を挙げることができた。しかし、作成したシミュレーションプログラムではまだ足りないと考えられる。そのため、今後は実環境に近いシミュレーションを行い、実際に端末を実装することで、さらなる成果を挙げると期待できる。

6. まとめ

本研究では、無線イーサフォンを用いた災害復旧支援ネットワークの構成方法の検討を行った。そこで、無線イーサフォン用プロトコルの新規提案とシミュレーションシステムの作成を行った。シミュレーション実験を行った結果、提案したイーサフォン用プロトコルが正しく動作することがわかった。また、設定の手間を省け、安価にネットワークを形成することが可能であることがわかった。このことから、無線イーサフォンを用いた災害復旧支援ネットワークの有用性を示すことが出来たと考えられる。

今後の課題としては、シミュレーション実験の内容の追加が挙げられる。建物などによる電波強度の変化、マス目ではなく地図に直接配置出来るようなシミュレーションを考えることで、実際に端末を設置する時に役立つと考えられる。また、この端末を実際に作成して動作実験を行い、実環境での実験を行う必要があると考えられる。

参考文献

- [1] 間瀬憲一, 阪田史郎. 「アドホック・メッシュネットワークーユビキタスネットワーク社会の実現に向けてー」, コロナ社, 2007.
- [2] 阿部 圭一. 画像処理と無線アドホックネットワークを統合した災害時ライフライン情報通信・復旧支援システム, 通信・放送機構地域提案型開発制度平成14年度研究成果報告書, (2003).

- [3] 間瀬憲一. 大規模災害時の通信確保を支援するアドホックネットワーク, 電子情報通信学会学会誌, vol.89, no.9, pp.796-800, Sept. 2006.
- [4] 吉岡正博, 白井治彦, 黒岩丈介, 小高知宏, 小倉久和. イーサネットの機能のみを用いた通信モデルの提案と実装-ブロードキャスト機能を利用したイーサフォン. 情報処理学会全国大会講演論文集 vol.69(2007).
- [5] 後藤 真人, 吉田 聡太, 間瀬憲一. アドホックネットワークにおけるテーブル駆動型経路制御プロトコルの性能評価, 電子情報通信学会技術研究報告. MoMuC, モバイルマルチメディア通信 103(422), 1-6, 2003.
- [6] 篠田孝祐, 野田五十樹, 國藤進. 「人の繋がりを利用したアドホックネットワーク環境を用いた災害時情報支援」 マルチメディア, 分散, 協調とモバイル (DICOMO 2003) シンポジウム論文集, pp.45-48, 2003
- [7] 岩倉寛幸, 松中正法, 柴田史久, 木村朝子, 田村秀行. モバイル複合現実感による災害時の設備復旧支援, 歴史都市防災論文集 Vol.1 (2007年6月)
- [8] 福井大学: 通信装置, 及び, 通信方法, 特許出願 2004-217916, 特許公開 2006-041842, 特許番号 (特許第 4110251) .

インターネット技術を積極的に活用した効率的システム開発技法

雲晴 智彦* 白井 治彦** 黒岩 丈介*** 小高 知宏* 小倉 久和***

Efficient System Development Method Using the Network Technology

Tomohiko UNSEI*, Haruhiko SHIRAI**, Josuke KUROIWA***

Tomohiro ODAKA* and Hisakazu OGURA***

(Received February 10, 2011)

We propose a method to create a system efficiently using a network technology. In this paper, we report a case bases on how it was achieved in a short time. The Web system development requires a lot of time from scratch. We apply the software design pattern method with reuse of software parts, and function based system building method. The method makes development more efficient. In an experiment, we created a system targeted at university lectures in a week and used in the lecture. We investigate the effectiveness of the system based on students feedback.

Key words : Web System, Network Technology, Development Method, Design Pattern

1. はじめに

本研究では, SaaS や Web 技術といったインターネットの関連技術を積極的に活用したシステムを素早く開発する. 特にシステムを効率よく作成するためのポイントや必要な技術を説明し, 具体的なシステムの構成を事例に基づいて報告する.

インターネットに代表されるネットワークは, 現社会において電話回線に代表される一般的なインフラと同様に, 一般家庭から大学, 公共機関まで幅広く普及している. このネットワークインフラを最大限に利用するコンピュータの利用形態としてクラウド・コンピューティングと呼ばれるサービス提供の方法がある. これはネットワークの先に共有スペースとして, サービスと運営するために必要なサーバやネットワークに関する機器をまとめて配置することで, 必要なサービスを

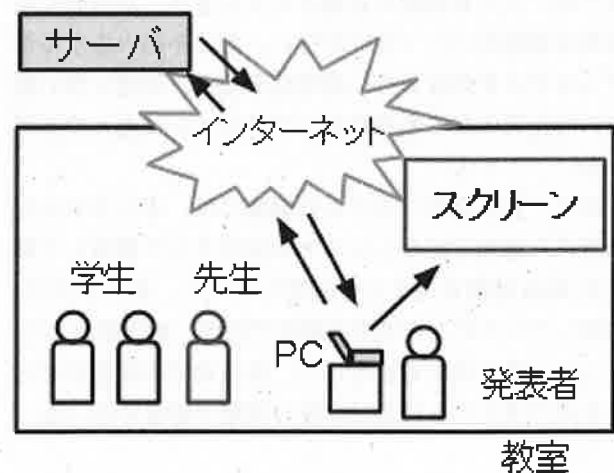


図 1: 発表時の講義

必要ときに利用できる仕組みである.

このクラウド・コンピューティングの形態でサービス提供を行うソフトウェアとして, SaaS(Software as a Service)がある. SaaSでは, 文章や表計算, 会計ソフトなどの通常では自分のコンピュータで動かしていたオフィスソフトなどが, インターネット経由でいつでも, どこからでも, 誰でも利用できる. そのため, システムを構築するための専用サーバやネットワークに関する機器を自社で構築・管理する必要がないため, コ

*大学院工学研究科 原子力・エネルギー安全工学専攻
**技術部

*** 大学院工学研究科 知能システム工学専攻

*Nuclear Power and Energy Safety Engineering Course,
Graduate School of Engineering

**Dept. of Technology

***Human and Artificial Intelligent Systems Course,
Graduate School of Engineering

ストを抑えることができる。サービスの契約をしてすぐ利用できるため、新しい事業を素早く開始することができる。このように、システムの利用に特別な制約を受けない方式は、大学の講義でも有効活用できると考えられる[1][2]。

本研究では、大学におけるクラウド・コンピューティングの適用例としてシステムの利用を行った[3]。講義は3回で構成されていて、受講した学生にスライド発表を行ってもらう。そのため、1回目の講義で学生に対し、発表するテーマを決めを行い、2、3回目の講義で学生が作成したスライドを発表及び質疑応答を行う。本システムは、講義を受講する学生と先生が利用者となる。スライド発表は図1のようにインターネット経由で資料をダウンロードし、スクリーンに映して発表する。そのため、事前に学生が作成した資料をWeb上で集め、Webブラウザ上で表示できるシステムを作成する。このシステムの要望があったのは講義が行われる1週間前で時間的制約があるため、効率よく開発を行う必要があった。

しかし、Webシステムを一から開発すると、機能から画面構成や依存関係など、様々な点について考慮するため、とても時間を必要としてしまう。本研究では必要な機能のパーツ分けを行い、部品を組み立てる形でシステムを作成を行い効率化を図る。開発に伴い問題の解決策となる処理をもつプラグインは進んで活用した。

以下、第2章のシステムの概要では、本システムを利用する講義を紹介しシステム設計として構成した機能をWeb技術を踏まえて説明していく。第3章では、作成したシステムを実際の講義で利用し動作確認した。そして、第4章で考察を述べ、第5章で本研究のまとめを述べるとともに及び今後の課題や展望を述べる。

2. システムの概要

本研究では、大学院での講義で利用するためにアップロードシステムを作成する。作成にあたった経緯や要求仕様、そしてシステム設計について本章で説明する。

2.1 システムの要件

本研究で対象とした講義のように、スライドをスクリーンに映してプレゼンテーションを行う機会は多くある。それらで行われている一般的な流れとしては、個人所有のパソコンをプロジェクターに接続する方法か、一台のパソコンに発表する資料を集める方法が考えられる。どちらの方法にしても、接続の手間やファイルの移動に時間が取られ、予定通りに進行できない。資料

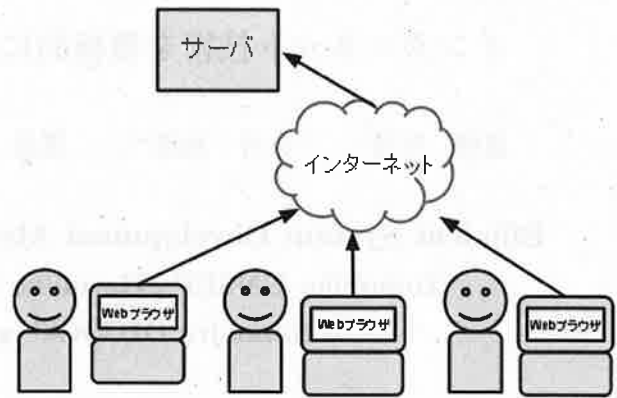


図2: Webサービスの利用

を集める場合、ファイルの移動に用いた外部記憶媒体にウイルスが含まれていると、移動先となるパソコンで感染する可能性も考えられ危険である。そこで本研究では、Webを利用したアップロードシステムを作成した。システムは図2のようにWebブラウザを介した利用を想定する。Webブラウザはどのオペレーティングシステムにも始めから導入されていて、ユーザがシステムを使うに当たり、専用のソフトをインストールする必要はない。そのためユーザには、システムを利用するためのURLを教えさえすれば利用可能となる。つまり利用に関しての制限がなく、どこからでもインターネットに接続された環境からならばシステムの利用が可能となる。

2.2 要求仕様

本研究で製作するシステムは、Webブラウザベースで利用できるサービスである。サービスを提供するためには、サーバーで動作するプログラムとクライアントで動作するプログラムがある。クライアント側では入出力処理を担当し、サーバー側ではユーザ管理からデータの編集や登録などを担当させ役割を分担する。それぞれのプログラムが複雑に連携をとることでサービスが成り立つ。これを実現するためには表1にまとめたソフトウェアやプログラム言語を使用し、クライアントサーバモデルを構築する。サーバー側ではLAMP環境を

表1: サーバ環境及び利用したプログラム言語

サーバ	Linux	クライアント	ブラウザ
プログラム	PHP	Web ページ	HTML
Web サーバ	Apache	スクリプト	JavaScript
データベース	MySQL	HTML 装飾	CSS

構築する。LAMP はオープンソースのソフトウェアを組み合わせた Web アプリケーションサーバの総称である。そのため、Linux をベースに Web サーバを Apache、スクリプト言語に PHP、データベースに MySQL を用いて LAMP 環境を実装した。

クライアント側では、HTML やスタイルシート (CSS)、Javascript などを利用して動的な Web ページを作成し、Internet Explorer、Google Chrome、FireFox などの主流なブラウザでも、期待通りの動作を行わせる。

Web システムの基本構成は図 3 で示すように、クライアントが Web サーバにアクセスした際、サーバ内では内部処理を行い Web ブラウザに結果を出力する。内部処理として作成するプログラムは、Web ブラウザの要求によって何を行うか決まっている。例えば、データベースからデータを取得する場合、一度データベースに接続する処理を行い、接続が完了すればクエリを発行して必要なデータを取得する。つまりクエリの内容によって取得できるデータを変えることができる。ここで示した接続・クエリ発行・データ取得という手続きは毎回同じなので、一連の流れとしてパーツ化できる。このように一度作成した機能を組み合わせることで効率よくシステム開発が可能となる。

クライアント側で動作する JavaScript は、動的な Web ページには欠かせない要素である。JavaScript では、重要な役割は 2 つある。1 つは DOM (Document Object Model) の操作である。基本的に HTML は静的な Web ページを構成していて、サーバから送られてきた情報をそのままブラウザ上で表示することしかできない。つまりユーザの操作に合わせて新しい情報を表示したいなら、ページ内の情報をすべて書き換える必要がある。

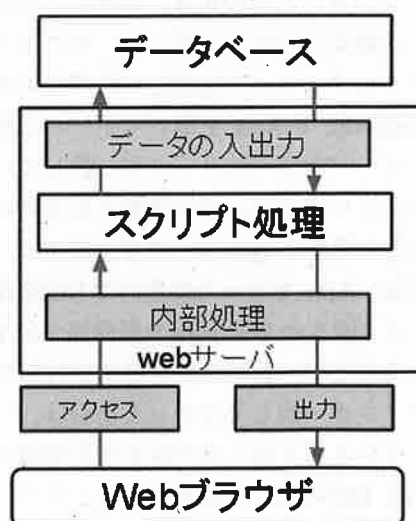


図 3: Web システムの流れ

この手法では毎回 Web サーバに接続し情報の取得を行うため、インターネット回線やサーバへ負荷をかけてしまう。これを解決する方法として考えられたのが DOM 操作である。この操作を行うと HTML 内のタグ要素に直接アクセスし、情報の追加、削除、書き換えができる。これにより Web ページ内の一部分だけの変更が可能となる。

もう 1 つが Ajax (Asynchronous JavaScript + XML) である。先程の DOM 操作で一部分だけを書き換える際、書き換える情報は基本的には JavaScript 内に記述している必要がある。そのため入力や時間に伴って変化する情報を Web ページ内に書き換える場合は、どうしても Web サーバとの接続が必要となる^[4]。そこで Ajax と呼ぶ技術を用いて非同期通信を行う。

同期通信だとサーバへの要求が返ってくるまで何も操作を受け付けなくなるのに対し、Ajax を用いた非同期通信を行えば、ブラウザ上でイベントが発生すると、Web ページ全体を再読込する必要なくバックグラウンドで Web サーバにアクセスし、クライアントの JavaScript 内に必要な情報を受け取ることができる。その情報をもとに DOM 操作による書き換えを行うことで、Web ページ内の一部だけの変更ができる。この 2 つの Web 技術を用いれば、動的でかつサーバの負荷を抑えられる Web ページを作成できる。

しかし実際にこの技術を使う場合は問題がある。動作環境となる Web ブラウザは、標準で入っている Web ブラウザから、別途で導入したものまで様々ある。そのため Web ブラウザによっては開発時の目的としている動作とは異なる動きをすることがある。これはブラウザ依存と呼ばれていて、Web ブラウザの種類やセキュリティの状況などの環境によって引き起こす現象を指している。例えば、Ajax で使用している XMLHttpRequest を用いた HTTP 通信においては、Web ブラウザによって仕様が異なる。そのため各ブラウザに対応したプログラムを作成する必要があり、より専門の知識が必要となっている。

これを改善する方法としてライブラリを用いる。利用するのは、jQuery と呼ばれる Javascript ライブラリでブラウザによる依存関係を解消できる。つまり 1 つのプログラムで各ブラウザでの動作が可能となる。その結果、開発者はプログラムの本質的なロジックを記述するのに専念できる。

本研究で作成するアップロードシステムでは、発表に使用するスライドを投稿できる「アップロード機能」、投稿された資料を表示する「閲覧機能」、これに加え特定の利用者のみで利用できるための「認証機能」が必要である。資料を投稿する際は、インターネットを

使うことになるため、講義の関係者だけでなく、インターネットを利用できるすべての人に資料へのアクセスを許すことになってしまう。資料は大学の講義で使用するため、情報の漏洩を防ぐ必要がある。そのため認証機能としてパスワード認証を用いて、パスワードを知っている関係者のみでシステムの利用が可能とした。

これらの機能に加えて、ユーザの入力に対して実際に行いたい処理を振り分ける機能を内部処理に記述する。これにより、作成した機能のパーツ化が最大限に活用できる。

Web ブラウザで表示した画面レイアウトは、HTML と CSS で構成している。そのため、どこに何を表示させるかが重要になっている。本研究では、横で3分割するレイアウトを採用する。画面上部にページのタイトルを画面下部にお問い合わせアドレスを表示してシンプルな Web ページを作成した。

2.3 システム設計

アップロードシステムとして必要な機能は、「アップロード機能」、「閲覧機能」、「認証機能」である。

アップロード機能では、利用者のパソコンからアクセス先の Web サーバに資料を転送する機能を持たせる。そのため、HTML で記述したファイル選択フォームをクライアント側に用意する。利用者は、ファイル選択フォームに資料を配置することで、アップロード処理ができる。サーバ側では、送信されたファイルを受け取り、指定のディレクトリに移動することで、ファイルのアップロードができる。

閲覧機能では、投稿された資料をブラウザ上で閲覧させる機能を持たせる。閲覧方法は資料のファイルフォーマットとクライアント側の環境によって異なる、そのため Web ブラウザの設定に従った表示がされる。そのためサーバ側では、クライアント側の要求に対し、資料をダウンロードさせる処理を行わせることで、資料の閲覧が可能となる。

認証機能では、システムを利用できるユーザを制限する。そのために、パスワード認証を用いたログイン機能を制作した。アップロード機能と同じ用にパスワードを入力するフォームを用意し、ログインしていないユーザに対し、パスワード入力を求める。ユーザが入力したパスワードは一度サーバに送られ、設定してあるパスワードと照合を行う。一致すれば、ログイン完了状態としてアップロードシステムの機能が用意されている画面に遷移させる。一致していなければ、エラーメッセージを表示させる。そして、ログイン完了状態は、セッション変数で管理する。セッション変数は、サー

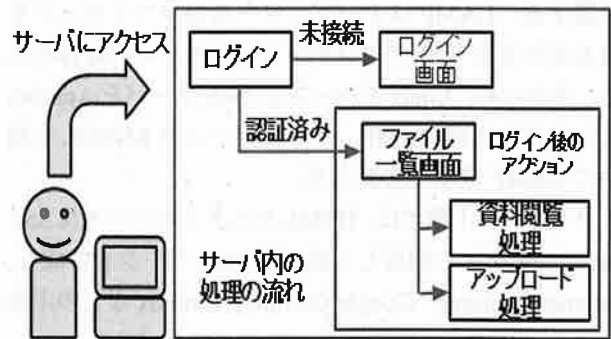


図4: ユーザ操作の流れ

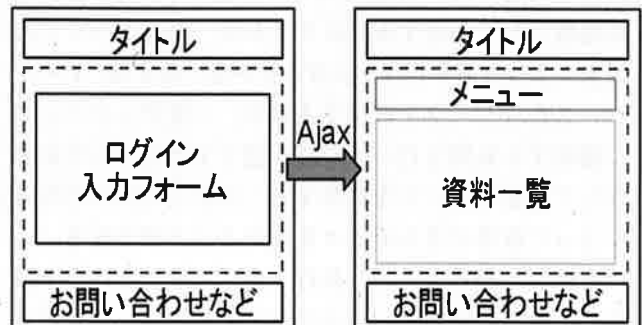


図5: Web画面構成

バ側でセッションIDと一緒に管理されている値で、新しくアクセス時に設定されている。一度ログイン完了状態になれば、その状態を引き継いでシステムを利用できる。

次に Web ブラウザで Ajax を用いた画面の切り替えを説明する。まずユーザがサーバにアクセスしたときのサーバ内の処理の流れは図4のようにになっている。サーバに始めてアクセスしたときは、ログイン入力フォームを表示した画面が現れる。そして、ログインに必要なパスワードをフォームに入力し、ログインボタンを押すと、Javascript で Ajax を用いてサーバに問い合わせを行う。サーバ内でパスワードが一致しているかの処理を行い正しい場合は、次の画面となるメニューと資料一覧を含む情報を Web ブラウザ返却する。Web ブラウザ内では、Ajax を行った関数内で DOM 操作を行う。それにより図5の Web 画面の構成図で示す点線内を書き換えることで、画面の切り替えが行われる。もちろんログインが一致してなかった場合は、パスワードが間違っている事を伝える内容を含む情報が返却され、点線内を DOM 操作で書き換えることで、ユーザにパスワードが違っていたことを伝えることができる。アップロード処理は、資料一覧のメニューからアップロードフォームを表示できるようにした。資料閲覧処

理は、資料一覧の表に添えてあるボタンを押すことで Web ブラウザ上で表示できる。

3. 実験

実験では、講義で使用するシステムを期間内に作成し、講義で用いて動作確認した。

3.1 アップロードシステム動作実験

本研究で作成したシステムは、図6で示す工程で開発を行った。システムの依頼を受けてから1日で要求仕様をまとめ、2日目では実際に利用できるまで完成させ、4日目までに細かい調整を行って、講義での利用に備えた。実験で対象とした講義は、学生28名を対象とした。図7が本研究で作成したシステムである。そのうちのログイン画面と資料閲覧画面を示している。上がログインがまだの状態であるときに表示され、ログイン後は下のページとなる。

1回目の講義では、受講した学生に対し本システムが設置してあるURLを教え、2、3回目の講義までに資料をアップロードしてもらうように指示した。2回目及び3回目では、システムを使ってスライド発表する。発表は質疑応答を合わせて5分で行われた。発表者の切り替えにかかった時間は移動と資料表示までの時間を合わせ、30秒前後であった。2、3回目での講義は時間内で終わることができた。



図6: システム製作工程



図7: アップローダ画面

3.2 実験結果

まず、システムの制作にあつたて、システム依頼を受けてから4日目で作成できたことから、素早く開発が行えたと言える。システムの質に関して、学生に対して資料をアップロードする指示のみで、システムの使用方は特に紹介は行っていなかったため、システムの使用方法についての質問があると期待していたが、誰一人としてそのような連絡をした学生はいなかった。受講していた学生の資料が全員分提出されていたことから、システムの利用方法は単純で分かりやすかったと考える。スライド発表では、発表及び質疑応答で5分と発表者の切り替わり時間を30秒前後であるから、一人に対し5分30秒使用していた。なので発表者28人全員が発表するには、154分必要となる。1回の講義時間は90分であり、2回合わせると180分である。1回の時間内で余裕を持った進行を行えることが出来ていた。このことからシステムを使った講義は、発表を行う講義で有効活用できていた。

4. 考察

本研究では、Webシステムを素早く作成する手法を実際にシステムを作成し、大学院の講義で利用することによって検証した。

まず始めに、Webシステムの作成する手法について考察する。本システムは、必要な機能のパーツ分けを行って、部品を組み立てる形でシステムを作成した。今回は大学院の講義で利用するために資料をWeb上にアップロードするシステムを作成した。時間的制約がありつつも、期間内に開発できたことから素早く作成する為には有効な開発であったと言える。

次に、Webを用いたシステムについて考察する。本システムはWebブラウザベースのシステムであり、インターネットに接続されている環境であればどこからでも利用することができる。その為、ユーザがシステムを利用する場所や時間に依存せず利用が可能であったことから、ユーザビリティなシステムであると言える。さらに必要な機能として認証機能を用意した。これにはパスワード認証の方式を採った。それにより、講義に関係の無いユーザを排除することが可能になり、情報漏洩を防ぐことができた。

本システムを利用した実験について考察する。実験の対象とした講義では、発表者28人に対し一人5分で発表と質疑応答を行った。発表者の切り替わり時間の30秒を含めると154分必要であったが、2回の講義で発表を行うことから1回の講義では77分必要とした。前年度までは、学生が作成した資料はUSBなどの外部メモリに入れて発表時にパソコンに読み込ませた後に発表していた。そのため、発表までに時間がかかってしまい90分の講義内では終了できなかった。このことから、本システムを利用することは授業の進行に大きく貢献できていると考えられる。システムの使い方については詳しく紹介していなかったにもかかわらず、誰一人として質問してくることなく、受講した学生全員分の資料が提出されていた。このことから、容易に本システムを使用することができていた事を裏付けている。

全体の考察として、Webシステムの利用価値は大きいと言える。しかし、効果的なシステムを作成するには、サーバ内で動く処理のパーツとなる機能が重要となっている。同じWeb画面構成を使用し研究室内では、ドキュメント管理システムやデータベースバックアップ管理システムも作成している。そのことから、本研究でWebシステムの生産性は高いと考えられる。

5. まとめと今後の課題

本研究では、Webシステムを素早く作成する手法を実際にシステムを作成し、大学院の講義で利用することで検証した。

Webシステムの基本構成は、クライアントの要求に対して、サーバ内で処理を行って、クライアントのWebブラウザに結果を出力する流れとなっている。つまり、サーバ内の処理を変更することで様々なシステムを構築できる。そのため一連の処理をパーツ化し、一度作成した機能の組み合わせで効率よくシステム開発が可能である。Webベースのシステムは、インターネットが利用できる環境であれば場所や時間に関係なく利用するこ

とができ、利便性が高いことが言える。また、WindowsやMac, LinuxなどのOSにも依存せる利用でき、使用するブラウザにも左右されないことから、専門的な知識に乏しいユーザでも簡単に利用することができるシステムであると言える。

本システムは大学院の講義を対象として開発し実際に利用した。講義に対してシステムを導入することにより講義の進行をスムーズに行うことができた。そのことから、Webシステムを講義への利用は効果的であると言える。

本システムは、発表時の進行を支援する目的でシステムを作成した。そのためにWebの基本構成を分析し、効率良くシステム作成を行ったが、実際にどのようなシステム要求にも対応できるかを検討する必要があると考えられる。

参考文献

- [1] 板倉由知, 山口龍太郎, 白井治彦, 黒岩丈介, 小高知宏, 小倉久和: Web技術を用いた双方向情報共有を行うリアルタイム授業支援システムの設計と開発, 教育システム情報学会 全国大会 (第35回) 28-E1-2,8 2010.
- [2] 山口龍太郎, 板倉由知, 白井治彦, 黒岩丈介, 小高知宏, 小倉久和: Web技術を用いた双方向情報共有を行うリアルタイム授業支援システムの設計と実装, 教育システム情報学会 全国大会 (第35回) 28-E1-3,8 2010.
- [3] 雲晴智彦, 白井治彦, 黒岩丈介, 小高知宏, 小倉久和: ネットワーク技術を用いた研究室内の情報共有システム, 教育システム情報学会 全国大会 (第35回) 28-F1-4,8 2010.
- [4] 小須田優介, 佐々木良一: Ajaxを用いたsshクライアントシステムの提案と実装, 情報処理学会研究報告書 2008(21), 297-302

DTI ハブを用いたネットワーク管理の自動化

牧野 潤* 白井 治彦** 黒岩 文介*** 小高 知宏* 小倉 久和***

Automatic Network Management Using the DTI Hub

Jun MAKINO*, Haruhiko SIRAI**, Jousuke KUROIWA***
Tomohiro ODAKA* and Hisakazu OGURA***

(Received February 10, 2011)

We propose a novel device that makes a PC disconnect from the network if the device detected an abnormal data traffic. This device monitors the network traffic and decides a behavior based on the rules that have been set by a network administrator. This device forces the security policy to user. This device makes a PC disconnect based on the rule from the network and prevents expansion of the damage. We manage the network using this device and reduce the burden of the administrator by this device.

Key words : Firewall, IDS, IPS, Network Management, Network Security

1. はじめに

ネットワークにおいて、ネットワーク管理者が末端の各 PC へ管理ポリシーを徹底させることは、セキュアなネットワークを構築するにあたって重要なことであるが、ネットワーク管理者にとっては困難なことである^[1]。端末側ではユーザがどのような挙動をしているかわからず、それにより危険なコンピュータウイルスがネットワークへと流出し、被害が拡大する可能性がある。本研究では端末側を監視し、ネットワーク管理者の定める管理ポリシーに反する挙動を検知した際に端末側のネットワーク接続の権利を奪うデバイスとして Dynamic Traffic Inspection(DTI) ハブ^[2]を実装した。これは問題となる PC を強制的にネットワークから切り離すことによって被害の拡大を防ぐものである。これを

用いてネットワーク管理の自動化、省力化を進め、ネットワーク管理者の負担軽減を目指す。

2. 既存の防御対策と DTI ハブ

DTI ハブはネットワーク末端の PC からもっとも近いハブにおいてネットワークベースでトラフィックの監視を行い、ネットワーク管理者が定める管理ポリシーに反する挙動を行う端末を自律的にネットワークから強制的に切り離すシステムを実装した。これはファイアウォール (FW) や Intrusion Detection System(IDS), Intrusion Prevention System(IPS), 検疫ネットワークとは異なるものである。DTI ハブはネットワーク管理者の定める管理ポリシーに反する挙動を行う PC からネットワークへ接続する権利を奪い、強制的にネットワークから切り離す (図 1)。これによりネットワークの安全を確保し、管理者の作業負担を軽減するためのデバイスである。

以下に DTI ハブに要求される機能をあげる。

- ネットワーク装置のハブとしてパケットを取得・解析

末端 PC からのパケットを監視対象とするため複数のポートを監視でき、ネットワークトラフィック

*大学院工学研究科 原子力・エネルギー安全工学専攻
**技術部

*** 大学院工学研究科 知能システム工学専攻

*Nuclear Power and Energy Safety Engineering Course,
Graduate School of Engineering

**Dept. of Technology

***Human and Artificial Intelligent Systems Course,
Graduate School of Engineering

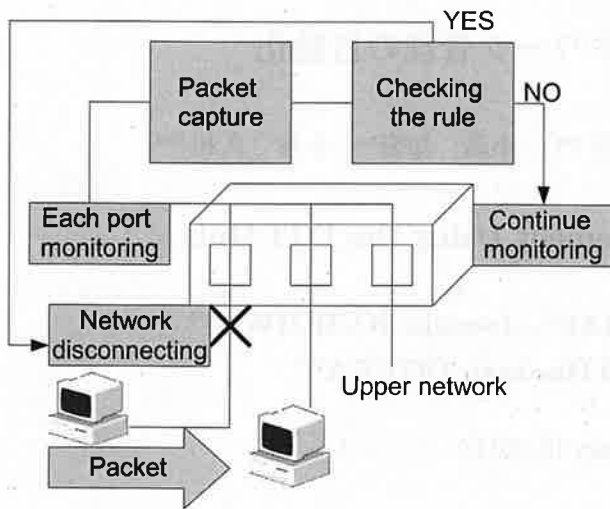


図 1: DTI ハブシステム

クを監視することができるネットワーク型の接続方法を用いる。そこで、内部ネットワークに手軽に設置することができるネットワーク装置のハブにおいて常時トラフィックを監視し、パケットの取得・解析を行う。接続位置は、スイッチングハブが使用される位置であり、ユーザに最も近い位置に接続する。

- 異常であると判断した際に異常元を切断

ネットワーク管理者の定める管理ポリシーに反して、異常であると DTI ハブが判断した場合に違反 PC をネットワークから強制的に切り離す。異常であるかどうかの判断は切断ルールを用いることによって行う。切断ルールは、管理ポリシーに基づいて作成することができる。FW や IDS はネットワーク全体を保護しているが、DTI ハブはネットワークの一部を保護するためのデバイスである。ある末端 PC がネットワーク管理者の定める管理ポリシーに反する挙動を行っているとは判断された場合、PC を利用しているユーザの意思に関わらず強制的にネットワークから切り離すことによってネットワークの安全を確保するものである。

3. DTI ハブの実装

DTI ハブの構成とその実装方法について述べる。また、DTI ハブにおいて重要な切断ルールについての説明も行う。本研究で開発を進めている DTI ハブは、デスクトップ PC をネットワーク装置であるハブのように機能させ動作させたものである。DTI ハブは、ネッ

トワークトラフィックを監視し、ネットワーク管理者の定める管理ポリシーに反する挙動を行う PC をネットワークから強制的に切断させる。

本研究で開発を進めている DTI ハブは、Linux の Bridge 機能を使用することで PC をスイッチングハブの役割を果たすものとした。Linux の Bridge 機能は、複数の分離された LAN セグメントを接続し、単一の LAN として働かせるという機能を有している。Bridge 機能をもったカーネルで PC を起動させてこれを有効にすることで、Bridge 機能を使用することができる。

本研究で DTI ハブに使用した PC のスペックは表 1 に示した通りであり、Linux ディストリビューションには Fedora を使用した。また、USB-LAN アダプタを用いて複数ポートのハブとして動作させた。

表 1: DTI ハブ使用 PC スペック

OS	Linux Fedora 10
CPU	Intel Celeron 2.8GHz
メモリ	512MB

プログラムは、ネットワークトラフィックを監視し、管理ポリシーに反する挙動をした違反 PC をネットワークから強制的に切断させるプログラムで、そのプログラムには pcap ライブラリを使用して作成している。pcap ライブラリは Van Jacobson 氏らが開発したライブラリで、このライブラリを使用することによって、ネットワークインタフェースが取得することができるすべてのパケットをデータとして取得することが可能になる。

切断判定には、管理ポリシーに基づいて作成された切断ルールを用いて行う。切断ルールベースを作成し、記法に基づいて切断ルールを記述していく。切断ルールベースとトラフィック監視システムを独立して実装するために、切断ルールベースを字句解析と構文解析を用いて解析した。切断ルールベースを監視システムとは別に作成し、そのファイルを監視システムに定期的に確認させることによってトラフィック監視システムと切断ルールとを独立して実装している。切断ルールベースの内容を一文ずつ取り込み、構文解析を行うことでその切断ルールが何を示しているかを判断させる。切断ルールの記述方法について述べる。まず、先頭に識別子を記述する。この識別子を用いることで、この後にどの切断ルールを記述するかを判別させる。識別子を記述した後は、切断判定に用いる切断ルールを記述する。実際の記述としては、送信流量についての記述は「a20000」と記述する。このように記述した場合は、送信流量が

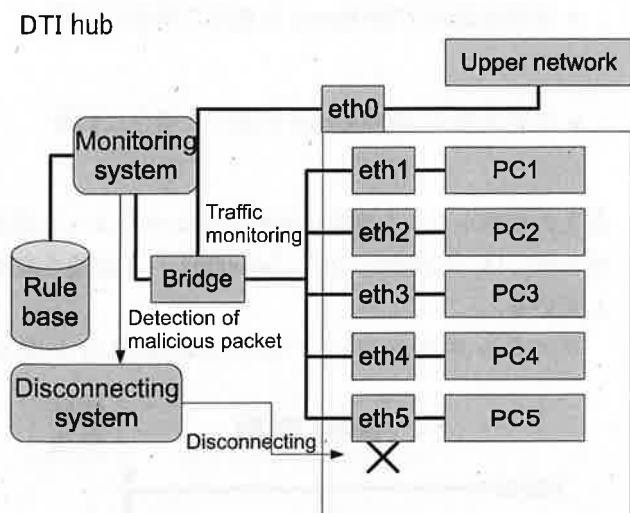


図 2: DTI ハブ構成図

20000 を超えると切断する、と解釈する。さらに切断ルールを追加する場合は、次の行に記述する。また IP アドレスの記述については、「b192.168.111.147」のように記述する。この場合は、IP アドレス 192.168.111.147 を検知した際に切断すると解釈している。ポート番号の記述についても、「c22」のように記述する。この場合、ポート番号 22 を検知した際に切断するルールとなっている。このように、先頭から順番に文字を取り込み、解析を行っている。識別子を先頭につけることによって、その行に何の切断ルールが書かれているかの判別を可能にした。現在の識別子は、送信流量を「a」、IP アドレスを「b」、ポート番号を「c」と設定している。この識別子は字句解析と構文解析のプログラムを変更することで、さらに追加していくことが可能である。

この切断ルールベースをトラフィック監視システムに定期的に確認させることによって切断ルールの更新を行う。トラフィック監視システムと切断ルールベースを独立させて実装しているため切断ルールベースの置き換えも可能であり、切断ルールの追加・変更を容易に行うことができる。また、DTI ハブを停止させることなく、非同期的に切断ルールの追加・変更を行うことが可能である。

4. 動作実験

DTI ハブをネットワーク内に設置し、管理ポリシーに反する挙動をした PC を切断する実験を行った。DTI ハブをキャンパスネットワークの末端に設置し複数ポートのハブとして運用して、実際にキャンパスネットワーク内の PC の大部分を DTI ハブによって管理する。DTI

ハブは LinuxPC をスイッチングハブとして動作させ、5 ポートのハブとして実装した(図 2)。末端 PC を DTI ハブに接続させて外部ネットワークへ通信するために必ず DTI ハブを通過させることで末端 PC を管理する。ネットワークトラフィックを監視して、管理ポリシーに基づいて切断ルールを作成する。作成した切断ルールに反する挙動を行う端末をネットワークから切断する。また、DTI ハブ動作中にも切断ルールの変更が行えることを示すために DTI ハブ動作中に切断ルールの変更を行い、切断ルールの変更が正常に行われるか実験を行った。

動作実験として 3 つの実験を行った。

実験 1 では、パケットを監視し、ネットワークセキュリティを脅かす脅威である可能性がある場合に異常元の PC をネットワークから切断する実験を行った。DoS 攻撃やワーム攻撃などが見せるトラフィックの増大を想定した。切断ルールの設定のため、実験 PC のトラフィック調査を行った結果、パケット流量が異常と判断できるのは、30 秒間にパケット流量が 0(byte) である回数が 10 回より少ない場合となった。本研究では、20 秒連続してパケットを観測した時点で異常が発生したものとみなし、切断ルールを設定した。ファイルダウンロード時にトラフィックが増加するが、パケットの総流量が PC から送信されるパケット流量の 5 倍以上である場合はファイルダウンロードとみなすよう切断ルールに設定している。

正常な通信時は、バースト的なトラフィックが生じたが、これは Web ページ閲覧で発生したものであり、パケットも離散的に発生しているため切断ルールに異常と判断せず監視を続けた。

DoS 攻撃で使用される攻撃の 1 つの ICMP Flood 攻撃がある。ICMP Flood 攻撃は、Ping コマンドを利用してターゲットサーバに大量の ICMP パケットを送りつけることでサーバを過負荷状態にする攻撃である。この攻撃を用いて図 3 のように実験 PC2 から実験 PC4 へ攻撃を行い実験した。パケットの総流量は、送信されるパケットとその応答パケットの二つを足した値になり、連続してパケットが発生した。20 秒連続してパケットを観測した場合、異常とみなすため 20 秒目を観測した瞬間にネットワークインタフェースを無効にすることで、異常元をネットワークから切断したことを確認した。

実験 2 で、各ユーザごとに異なる管理ポリシーを強制させ、各端末ごとに管理できることを示す。管理ポリシーに反する PC はネットワークから強制的に切り離す実験を行った。キャンパスネットワークの管理を行うにあたり、以下のような管理ポリシーを設定した。

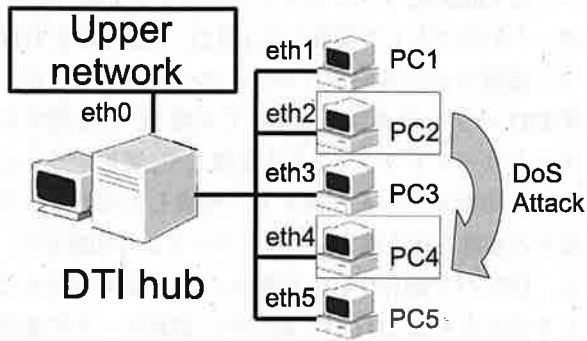


図 3: DoS 攻撃実験図

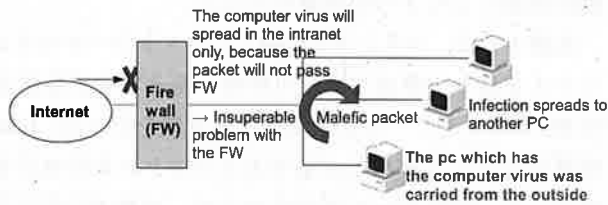


図 4: 内部ネットワーク内でのウイルス感染拡大

- 学生の中で指定した学生のみ動画サイトを閲覧してはいけない。
- 指定した学生以外は指定した動画サイトを閲覧しても良い。

以上の管理ポリシーから以下のような切断ルールを作成した。

- 動画サイトを閲覧する際に使用するポートを検出時に切断

この切断ルールを用いて DTI ハブの動作実験を行った。切断ルールとして、HTTP、HTTPS、DNS のポート番号、それぞれ 80、443、53 を検出時に切断するというルールを設定し実験を行った。DTI ハブに接続されているすべての実験 PC において、Web サイト閲覧を行ったが、切断ルールを適用している実験 PC2 と 4 は Web ページ閲覧を試みると切断されることを確認した。以後、管理者が復旧させるまでネットワーク利用不可状態が継続した。これ以外の PC においては、この切断ルールを適用していないため、問題なく Web ページの閲覧ができた。

実験 3 で、切断ルールの変更が DTI ハブ動作中に示す。DTI ハブ動作中に切断ルールの送信流量の閾値を変更し、正常に切断動作が行われるか実験を行った。あらかじめ DTI ハブに与える切断ルールと変更する切断ルールを以下のように設定した。

- 送信流量が 25000byte/s を超えた場合に切断
- 送信流量が 20000byte/s を超えた場合に切断

以上の切断ルールを実際に切断ルールベースへと記述する際には、「a25000」から「a20000」へと記述を変更している。

ファイルダウンロード中に送信流量の上限を

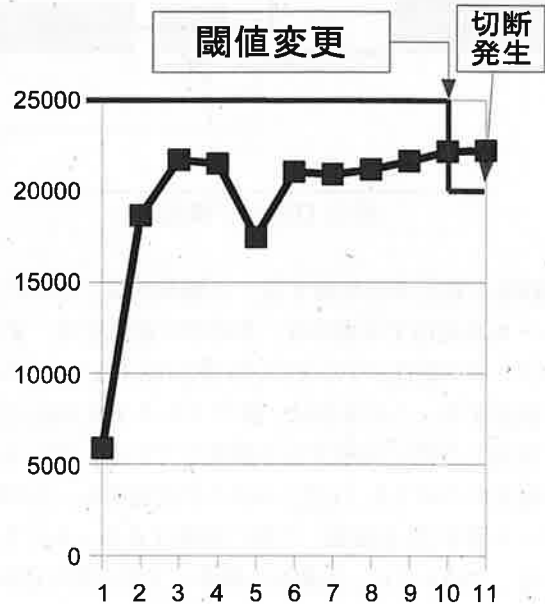


図 5: 切断ルール変更実験図

25000byte/s から 20000byte/s へと変化させる実験を行った。トラフィック監視システムには定期的に切断ルールの確認を行わせている。今回の実験では、1 秒毎に切断ルールを確認させている。図 5 のようにファイルダウンロードを開始するとパケット流量が増加した。しかし、流量の上限が 25000byte/s であるため異常であると検知されず、トラフィックの監視を継続した。ファイルダウンロードを開始してから 10 秒後に切断ルールの変更を行った。送信流量の上限を 25000byte/s から 20000byte/s へ変更した。トラフィック監視システムには、1 秒毎に切断ルールの確認を行わせている。そのため、ファイルダウンロード開始から 11 秒後にはルールが変更されており、11 秒後の送信流量が上限の 20000byte/s を超えている。その時点で DTI ハブは異常であると判断し、切断動作が発生した。その後、復旧するまでネットワーク利用不可状態が継続した。

5. 考 察

ネットワーク装置であるハブにおいて、異常元を自律的にネットワークから切断するシステムを組み込んだ DTI ハブを提案し、実装した。動作実験から DTI ハブは、ネットワークに害をもたらすような挙動を行う端末を強制的にネットワークから切り離せることを確認した。DTI ハブを用いることで各端末ごとの管理が可能になり、またネットワーク内部からの攻撃に対処できるため既存の防御策と併用することでよりセキュアで管理のしやすいネットワークを構築できると考える。

本研究では、DTI ハブの切断ルールベースを監視・切断システムから切り分け、独立させた。今までの DTI ハブはトラフィック監視システムと同一のプログラム上に切断ルールを記述していた^[2]。そのため、切断ルールの変更を行うためには DTI ハブを停止させ、再コンパイルを行う必要があった。切断ルールベースをトラフィック監視システムから独立して実装させることで DTI ハブを停止させることなく、非同期的に切断ルールの追加・変更が可能である。これは、DTI ハブについて詳しい知識を持っていないネットワーク管理者が切断ルールの追加・変更を行う必要があったとしても、容易に変更することが可能であると考えられる。また、切断ルールを監視・切断システムと切り分けたことは、DTI ハブの可能性を広げたと考えられる。例えば、いくつかの切断ルール群が存在する場合でも、切断ルール群 A を切断ルール群 B に置き換えるだけで変更が可能である。

また、サーバクライアント型を用いて切断ルールの変更を行うことが可能になったと考える。現在の DTI ハブは、ネットワーク管理者が手動で切断ルールの更新を行うようになっている。切断ルールの更新をネットワーク管理者に行わせることは、切断ルールの変更があるたびに、その都度更新作業を行わなければならない、管理の負担を増加させてしまう可能性がある。ネットワーク管理者は、DTI ハブを設置するだけで自動で運用してくれる形が望ましい。この問題を解決するために、サーバクライアント型を用いて切断ルールを自動的に更新させることで解決できるのではないかと考える。これは、サーバクライアント型を用いて DTI ハブ管理サーバで追加・変更された切断ルールをネットワーク経由でダウンロードを行わせて更新させるという方法である。この方法を用いることで切断ルールの更新を自動的に行うことができる。そのため、DTI ハブを利用するネットワーク管理者にとっては、DTI ハブをネットワーク内に設置するだけで自動的に切断ルールの更新を行い、運用し続けることができる。これに

より、ネットワーク管理者の行う切断ルール更新作業を削減できるため、よりネットワーク管理者の負担を減らすことができるのではないかと考える。

既存の防御対策である FW は、パケットをチェックすることでトラフィックの流れを制御するシステムである。FW は外部ネットワークと内部ネットワークとの境界に設置して内部ネットワークを保護するが、外部のネットワークからウイルスに感染した PC を内部ネットワークへ持ち込み、接続した場合は FW を通過しないため図 4 のように内部ネットワークへとウイルスが拡散してしまい、ウイルスなどの脅威から末端 PC を保護することができない^[3]。また感染した PC をネットワークから切断するには管理者が再設定する必要があり、管理者の手間が増加するなど FW は動的な変化に弱い問題がある。DTI ハブは、全体ではなくネットワークの一部分の端末を管理者の管理ポリシーに基づいて、これに反する端末をネットワークから強制的に切り離している。そのため、内部ネットワークからの攻撃に対処することが可能である。また、ハブであるため設置する数を増やすことで大多数の端末を管理することができる。

IDS を用いた対策での問題は、ネットワークの異常を管理者に通知するだけであるため、異常な通信を防ぐことはできない点である。また、広域ネットワークで使用した場合、現在のネットワーク IDS では処理が間に合わない可能性がある^[4]。そのためパケットを取りこぼし、見逃してしまう可能性がある。DTI ハブは、接続されている端末に異常が発生した場合に自律的にネットワークから切り離すことができるため、管理者が連絡を受けて対処を行うという作業をする必要がない。そのためネットワークへの被害拡大を防ぎ、管理者の負担の軽減が可能であると考えられる。

IPS は、ネットワークにおいて特定のネットワーク及び PC への不正な侵入を防御するシステムである。IPS は IDS の持つ機能に加えて、検知した侵入行為を自動的に切断する機能を持つものである。IPS を用いた対策での問題は、bridge とは異なりパケットを詳細に分析して検知処理を行う必要があるため、転送処理だけでなく、検知処理も含めたスループットが高くないと、ネットワークの性能がダウンしてしまうという問題がある^[5]。また、IPS 装置をネットワークに挿入しているため、IPS 装置が故障などした場合、ネットワークがストップしてしまう問題もある。DTI ハブは、bridge を用いて実装しているため問題にならない。また、DTI ハブはネットワークの末端に設置するため、DTI ハブが故障しても DTI ハブに接続している PC のみの影響にとどめることができる。

検疫ネットワークを用いた対策での問題は、検疫ネットワークに対応しているネットワーク機器を導入する必要があるため、費用がかかることとネットワークの再構築に手間がかかることである。また、最新のパッチやウイルス定義ファイルを適用したくても、ネットワーク内で使用されているアプリケーションとの動作確認が取れないためにそれらを適用できないという運用にかかわる問題がある。この場合、最新のパッチやウイルス定義ファイルのチェックが行われると適用されていない端末は隔離されてしまう。そのため、ポリシーの定義更新を遅らせる、特定の端末に対して例外的にセキュリティ対策状況のチェックを行わないという運用が必要となるため管理者の負担が増加してしまう可能性がある。DTIハブはネットワーク装置であるハブであるため、ネットワークの再構築などを行う必要がなく容易にネットワーク内に設置することができる。また、DTIハブは管理者ベースのデバイスであり、管理ポリシーに反する端末は強制的にネットワークから切り離す機能を持っている。そのためユーザを考慮に入れる必要はなく、管理者の負担を軽減できると考える。

DTIハブはネットワーク内に容易に設置でき、管理ポリシーに反する端末を個別にネットワークから切り離す機能を持っているため、内部ネットワークからの攻撃を防ぎたい場合や端末を個別に管理したい場合に効果を発揮すると考える。しかし、現在のDTIハブは端末をネットワークから切り離した後、手動で復旧作業を行っているため負担軽減効果が半減している。そのため、自動で復旧するシステムを実装するか、管理者の負担が少ない復旧システムを構築する必要がある。

6. 結 言

本論文では、新たなセキュリティ機器としてDTIハブの設計と実装を行った。DTIハブは、ネットワーク装置としてトラフィックを監視し、ネットワーク管理者の定める管理ポリシーに反する動作を行う端末をネットワークから強制的に切断するシステムを組み込んだハブである。DTIハブは既存の防御対策であるFWやIDS、IPS、検疫ネットワークとは違い、ネットワークの一部のみを保護するシステムである。外部からコンピュータウイルスに感染したノートPCなどが持ち込まれ、内部ネットワークへの感染の拡大を防止できる。また、現在のDTIハブはデスクトップPCで実装しているため、検疫ネットワークを構築するよりも低コストで運用が可能である。

DTIハブの重要な要素である切断ルールベースを監視システム等から独立して実装することにより、DTI

ハブの可能性が広がった。いくつかの切断ルール群が存在する場合でも、ルール群Aをルール群Bに置き換えるだけで切断ルールを一括で変更することが可能であるため、切断ルールの変更が容易になった。また、サーバクライアント型を用いて切断ルールを自動的に更新させることも可能になった。DTIハブは、既存の防御策であるFWやIDS、IPS、検疫ネットワークと併用することで、よりセキュアで管理のしやすいネットワークを構築できると考える。

参考文献

- [1] 村瀬一郎. インシデント対応におけるマイクロ分析とマクロ分析の融合に向けて. 情報処理, Vol. 48 No. 7 pp. 718-725, 2007.
- [2] 富田陽祐, 白井治彦, 黒岩文介, 小高知宏, 小倉久和. トラフィックの常時監視に基づくネットワークセキュリティの向上-dtiハブの設計と実装-. 福井大学大学院工学研究報告, Vol. 56, pp. 61-68, Mar 2008.
- [3] 前田 秀介, 馬場 達也, 大谷 尚通, 角 将高, 稲田 勉. 感染プロセスに着目したワーム感染防止システムの実装に関する検討. 電子情報通信学会技術研究報告. ISEC, 情報セキュリティ 105(193), 7-14, Jul 2005.
- [4] 林 経正, 横山 幹, 高原 厚, 岩橋 政宏. Snortを用いた侵入防止システムの構築と侵入検知処理高速化の検討. 情報処理学会研究報告. CSEC, [コンピュータセキュリティ] 2003(45), 59-64, May 2003.
- [5] 菊池 一平, 佐藤 友暁, 深瀬 政秋. 不正アクセス防御システムのハードウェア実装. 情報処理学会研究報告. CSEC, [コンピュータセキュリティ], 2007(126), 13-18, Dec 2007.

蒸発速度に及ぼす土壌塩析出の影響

—チャオソイルの場合—

寺崎 寛章* 福原 輝幸**

Effects of Salt Crystallization on Soil Surface on Evaporation Flux - In Case of Chao Soil -

Hiroaki TERASAKI* and Teruyuki FUKUHARA**

(Received February 10, 2011)

This paper introduces two new methods “Water Absorption Paper method” and “Microscope Visualization method” to help a better understanding of the properties of evaporation from Chao soil surface saturated with saline water. The former can measure the salt concentration on the soil surface, C_{surf} . The latter can visualize the occurrence-multiplication of salt crystal and the growth of the educed salt.

These new methods found the following two results; (i) the commencement of 1st falling-rate evaporation period is mostly in agreement with the appearance time of the crystal form of salt (salt crystal) on the soil surface after C_{surf} reached the saturation salt concentration, (ii) the commencement of 2nd falling-rate evaporation period is mostly in agreement with the appearance time of educed salt caused by drying of the salt crystals.

Key Words : Falling-Rate Evaporation, Salt Crystal, Educed Salt, Microscope Visualization Method, Soil Surface Salt Concentration, Water Absorption Paper Method, Chao Soil

1. はじめに

乾燥・半乾燥地における灌漑農地では、表層土壌に塩類が集積する塩害により土壌が荒廃していく例が、数多く見られる^[1]。塩害が深刻な国の一つである中国では、東は沿岸部から西はチベット高原まで広範囲に亘って塩類集積が見られ、その面積は約 3666 万 ha に達し、中国の農耕地面積の約 25% を占める^[2]。今後の人口増加に伴う食糧増産を考慮すると、塩害の拡大防止および土壌改良は極めて重要となる。

上述の塩類集積は、塩性地下水位の上昇および不適切な灌漑水の使用により引き起こされることが多

い。前者に対しては排水設備(暗渠)の設置やマルチによる蒸発抑制^[3]、後者に対しては塩性化した灌漑用水の淡水化^[4]や塩濃度のモニタリング^[5]などの塩害防止策がある。

一方、塩類集積土壌に対しては、灌漑水を用いて土壌中の塩を排出させるリーチング法^[6]、^[7]や塩類捕集シート^[8]を用いた Dehydration 法^[9]などの除塩技術が開発されている。さらに、土壌改良剤の使用や耐塩性植物の導入^[10]などの対策が試みられている。

いずれの方法においても確実に塩害防止効果を上げようとするれば、土壌表面からの塩析出(乾燥に伴って土壌表面に結晶化した白い塩が現れる現象)を予測し、除塩効率を上げる必要がある。しかしながら、除塩効率向上の鍵の一つとなる塩析出と蒸発速度の相互作用については、未解明な部分が多い。

蒸発に伴う塩析出は、(1)土壌表面の乾燥に伴う塩析出、(2)湿潤状態からの塩析出、に大別される。(1)の塩析出に関して、例えば、安部^[11]、^[12]は土性の異なる

* 福井大学大学院工学研究科システム設計工学専攻

** 福井大学大学院工学研究科

* Systems Design Engineering Course, Graduate School of Engineering, University of FUKUI

** Architecture and Civil Engineering Course, Graduate School of Engineering, University of FUKUI

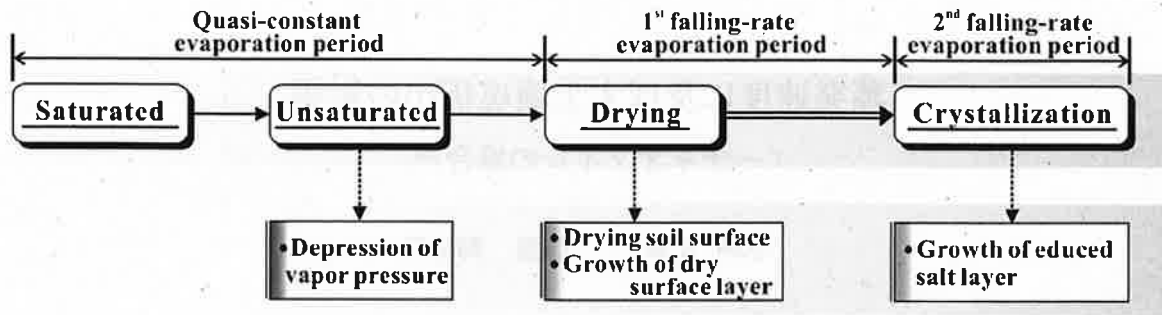


図1 土壤表面の乾燥に伴う塩析出と蒸発減少

表1 湿潤状態からの塩析出と蒸発減少に関する問題点とその解決策

	問題点	解決策
1	塩析出の開始 ⇒数mm～数10mm厚のサンプリングでは C_{surf} は求め難い	サンプリング法の改善 ⇒吸水紙法
2	塩析出が確認される以前で起こる減率蒸発(湿潤減率蒸発) ⇒水蒸気密度(蒸気圧)の低下では説明し難い	塩析出の可視化 ⇒マイクロSCOPE可視化法

るカラムを用いて塩集積現象を再現し、粘土含有量の違いによる土壌内の水分変化を調べるとともに、塩集積層厚および塩集積層内の濃度勾配などを詳細に検討した。松川と中野^[13]は飽和土壌カラムからの蒸発実験を行い、乾燥に伴う土壌内部の塩濃度変化に加えて、土壌表面塩濃度および析出塩量を数値解析により予測した。また藤巻ら^[14]は浅い地下水面を持つ土壌カラムからの蒸発に伴う塩集積実験を行い、移流分散方程式の適用の妥当性について検討した。

これらの研究から得られた塩析出による蒸発速度の変化は、1)表層土壌の塩濃縮によって、土壌表面の水蒸気密度(蒸気圧)が低下して、蒸発フラックスがわずかに減少する擬似恒率蒸発、2)土壌表面の乾燥層の発達に伴う第一減率蒸発(乾燥減率蒸発と呼称)、3)析出塩層の成長に伴う第二減率蒸発(塩析出減率蒸発と呼称)、に分類される(図1を参照)。

一方、(2)の塩析出は、見かけ上(1)のそれと類似するものの、現象の原因解明には多くの問題点を残す(表1を参照)。その代表的な現象は、飽和状態で土壌表面が十分に湿潤しているにも関わらず、塩析出の前に起こる蒸発速度の著しい低下である(湿潤減率蒸発と呼称)。この湿潤減率蒸発は乾燥減率蒸発と類似しており、上述した1)の水蒸気密度の低下だけでは説明できない^[15]。湿潤減率蒸発および塩析出減率蒸発を定量的に評価するためには、(i)塩析出の前に土壌表面で起こる素過程、(ii)塩析出開始時間、および(iii)析出塩の成長過程、をそれぞれ詳細に調べる必要がある。

塩析出開始時間に関する研究は、藤巻ら^[14]が照度

計を用いて開始時間を推定した以外は殆ど皆無である。地表面の乾燥とは異なり、塩水湿潤土壌表面では塩析出の前に色彩的な変化が現れ難いので、この方法では湿潤減率蒸発の開始を検出することが難しい。従って、湿潤減率蒸発および塩析出に到る素過程を正確に把握するためには、土壌表面塩濃度が重要となるが、土壌表面塩濃度を実測した研究は未だない。

そこで本研究では、表1に示す問題点を解決するため、吸水紙を用いて土壌表面塩濃度を測定する方法(吸水紙法^[16])を提案するとともに、マイクロSCOPEを用いて、塩水飽和チャオソイルの湿潤減率蒸発および塩析出減率蒸発の特性を明らかにすることを目的とする。

2. 実験概要

2.1 カラム実験概要

実験は恒温恒湿室内(温度:21℃, 相対湿度:15%)で16本の塩化ビニル製カラム, 給水タンクおよびチャオソイルを用いて行われた(図2を参照)。16本のカラム(高さ:0.17m, 内径:0.077m)のうち, 14本は塩水を供給した塩水土壌カラム, 残り2本は比較用に淡水を供給した淡水土壌カラムである。

塩水土壌カラム12本は厚さ0.01mおよび0.02mのリングを積み重ねて構成され, カラム分割法によりリング毎にサンプリングした。塩水土壌カラム2本および淡水土壌カラム1本には, 熱電対を挿入し, 土壌温度を測定した。また, 温・湿度センサー(Vaisala)

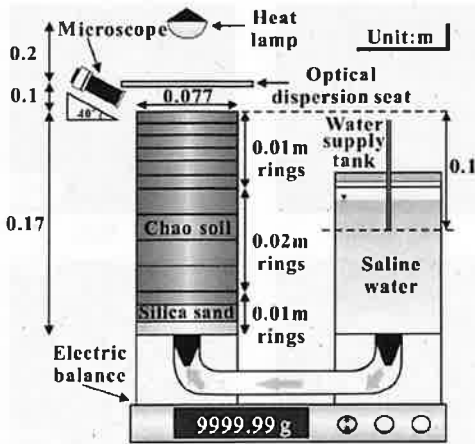


図2 実験概要

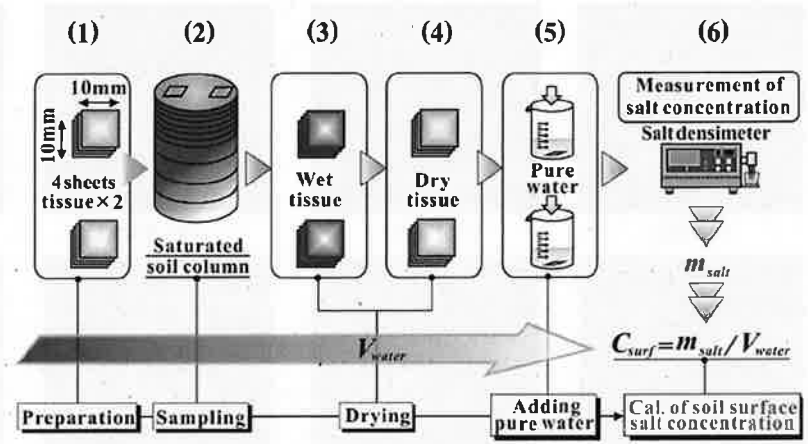


図3 吸水紙法

により、空気温度・湿度を計測した。蒸発量は最小読み 0.01g の重量計(Mettler Toledo)を用い、土壌カラムの重量減少分から求めた。析出塩量 $M_{crystal}$ (kg/m^2) は析出塩直接測定法^[15]により、最小読み 0.001g の重量計(Mettler Toledo)を用いて測定した。

次に、実験手順について述べる。カラムにチャオソイルを乾燥密度 $1600\text{kg}/\text{m}^3$ で充填した後、給水タンクより 7 本の塩水土壌カラムには供給塩濃度 $C_{supply} = 10\text{kg}/\text{m}^3$ の塩水を、残り 7 本の塩水土壌カラムには $C_{supply} = 80\text{kg}/\text{m}^3$ の塩水を、それぞれカラム底面から供給した。マリオット管で水面を地表面下 0.1m に保つことでカラム内土壌を毛管飽和させた。その後、膨潤が終了した時点で余盛り土壌を取り除き、光散乱シート(地表面より高さ 0.1m)および 125W のランプ(地表面より高さ 0.3m)を取り付け、ランプを照射して実験を開始した。 $M_{crystal}$ は実験開始 120 時間, 168 時間, 210 時間および 288 時間後に、それぞれ計測した。また蒸発量および土壌温度は 10 分間毎に自動計測した。

2.2 吸水紙法

実験開始から塩析出に至るまでの土壌表面塩濃度 C_{surf} の経時変化を、吸水紙法(以下の手順)で調べた(図3を参照)。(1) 4枚重ねにした 10mm 四方の厚さ 0.075mm の吸水紙(ティッシュ)を 2つ用意する。(2) 吸水紙を土壌表面の異なる 2 点に静かに置き、それに土壌表面の塩溶液を吸水させる。(3) 吸水後、最小読み 0.001g の重量計にて、塩溶液を含む吸水紙の質量を計測する。(4) 吸水紙を乾燥させ、その質量を計測することで吸水量およびその吸水体積 V_{water} を求める。(5) 乾燥吸水紙と純水をビーカーに入れ、十分に攪拌する。(6) 塩分濃度測定器を用いて、採取した塩量 m_{salt} を測定し、2 点の平均値より $C_{surf} (=m_{salt} / V_{water})$ を決めた。

なお、 C_{surf} の計測は実験開始から目視にて塩析出が観測される時点まで、0.5~3 時間毎に行った。

2.3 マイクロスコープ可視化法

結晶塩の発生と増加の様子を詳しく観察するため、マイクロスコープを用いて土壌表面を 10 分間毎に撮影した(以下、マイクロスコープ可視化法と呼称)。またマイクロスコープ可視化法で、塩析出の開始および析出塩の成長状態も観察した。

3. 実験結果および考察

3.1 塩析出状況

図4は、マイクロスコープにて撮影された初期塩濃度 $C_{init} = 80\text{kg}/\text{m}^3$ の土壌表面の様子を、実験開始から順次示す。実験開始約 4 時間後に土壌表面に逆ピラミッド型の透明な結晶塩が観察された(図4(3)、(4)を参照)。その後、結晶塩は時間とともに数を増し、平面的な広がりを見せ、約 5 時間後に土壌表面全体を覆った。結晶塩の存在は、土壌から出て来た空気塊が土壌表面で閉じ込められた状態、すなわちエントラップエアとして観察されたことにより気づくことができた。さらに、結晶塩は互いにくっついて膜状になり、時間とともに厚くなった。その後、結晶塩が乾燥することにより、約 18 時間後に析出塩が観察され、さらに成長して層状となった。

3.2 土壌表面塩濃度

図5は、吸水紙法により得られた土壌表面塩濃度 C_{surf} の経時変化を示す。図5より、 $C_{init} = 10$ および $80\text{kg}/\text{m}^3$ の C_{surf} は実験開始初期において概ね線形的に増加したが、その後に増加率は減少した。また $C_{init} = 10\text{kg}/\text{m}^3$ は実験開始から約 26 時間後に、 $C_{init} = 80\text{kg}/\text{m}^3$ は約 4 時間後に、それぞれ C_{surf} は飽和(飽和

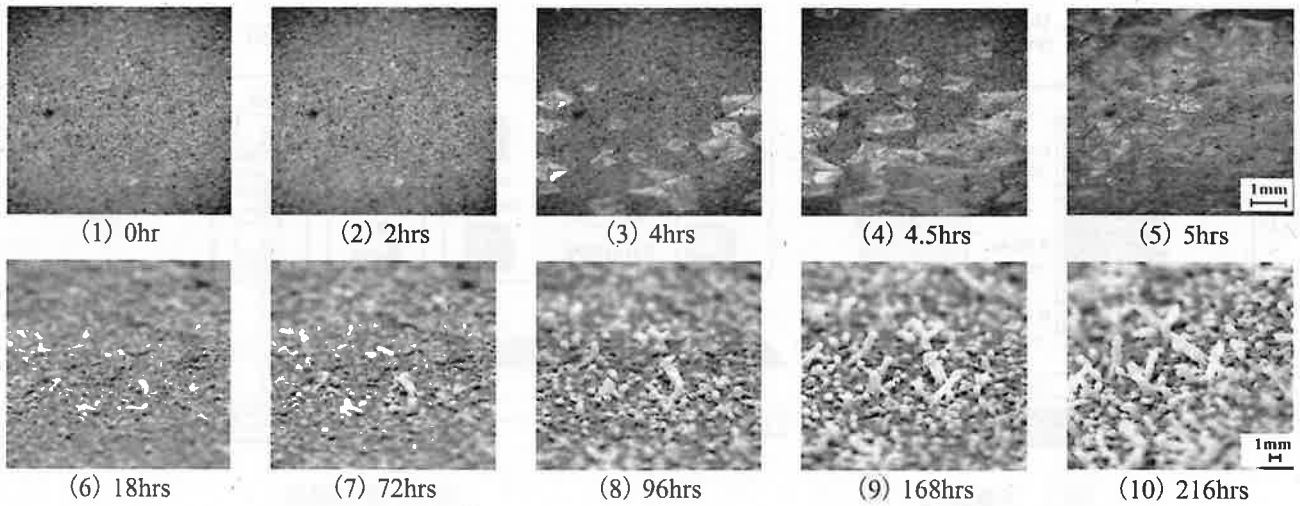


図4 結晶塩の発生・増加(上段)および析出塩の成長(下段) ($C_{init}=80\text{kg/m}^3$)

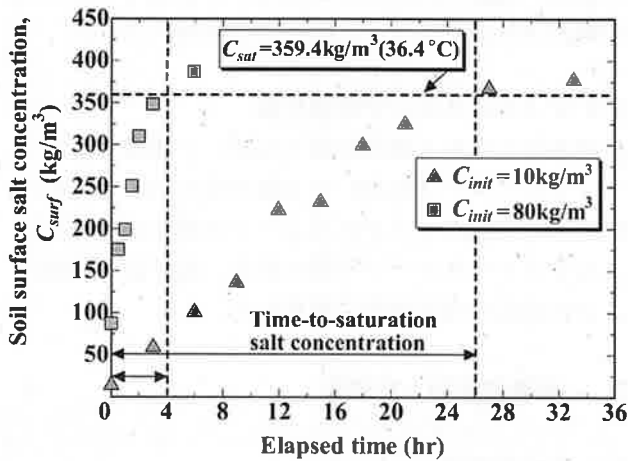


図5 土壌表面塩濃度 C_{surf} の経時変化

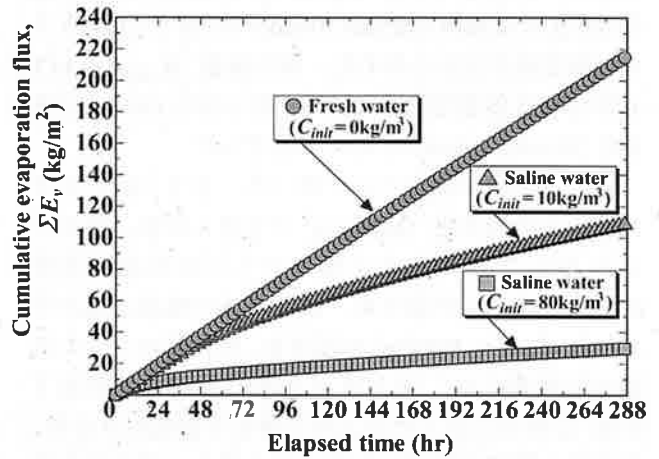


図6 積算蒸発量 ΣE_v の経時変化

塩濃度 $C_{sat}=359.4\text{kg/m}^3$ 、地表面温度 36.4°C)に達した。この飽和塩濃度到達時間は、 $C_{init}(=C_{supply})$ が高いケースで早い。また2つのケースともに、図4に示す結晶塩が観察され始めた時間と飽和塩濃度到達時間は概ね一致した。

なお、飽和塩濃度到達時間後の C_{surf} が C_{sat} を超えているが、これは吸水紙に結晶塩が付着したためと考えられる

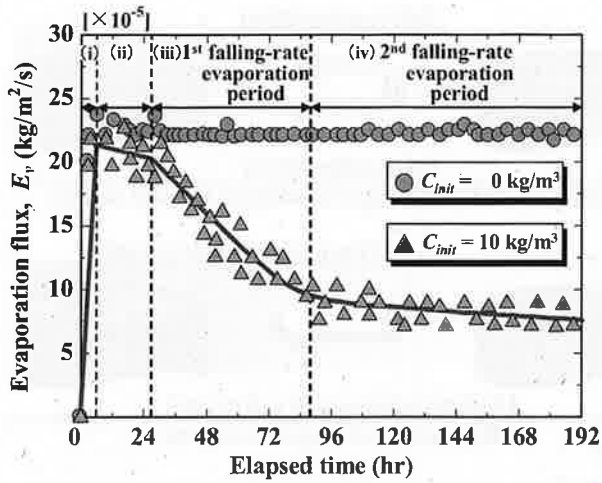
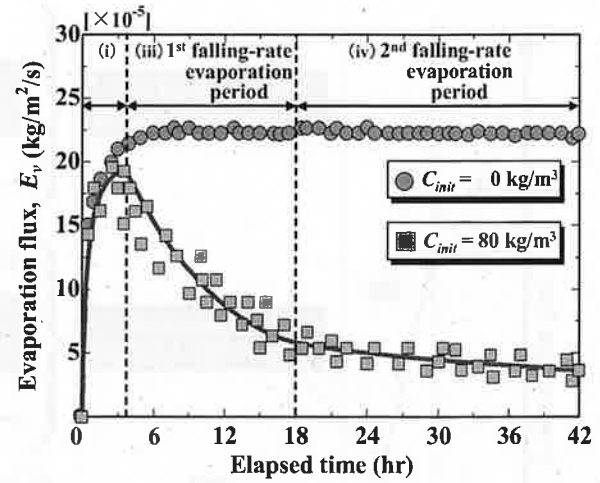
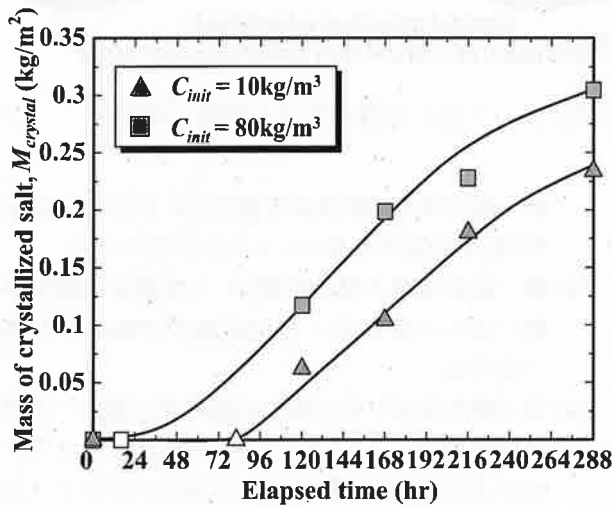
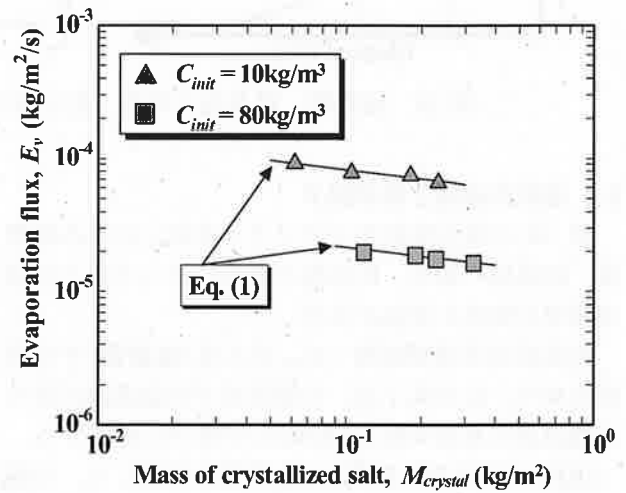
3.3 蒸発量

図6は、積算蒸発量 ΣE_v (E_v : 蒸発フラックス)の経時変化を示す。淡水土壌カラムの ΣE_v は実験期間中、時間とともに線形的に増加した。これに対して、塩水土壌カラムの ΣE_v は、実験開始初期において淡水土壌カラムのそれと重なっていたが、時間の経過とともにその時間増加率(勾配)は小さくなった。塩水土壌カラムの ΣE_v が淡水土壌カラムの ΣE_v から離脱する時間は、 $C_{init}(=C_{supply})$ が高いほど早まる。最終的に、実験終了時(288時間後)の蒸発比(塩水土壌

カラムの ΣE_v / 淡水土壌カラムの ΣE_v) は、 $C_{init}=10$ および 80kg/m^3 で、それぞれ 0.51 および 0.14 となった。

図7は $C_{init}=10$ および 80kg/m^3 の蒸発フラックス E_v の経時変化を示す。 $C_{init}=10\text{kg/m}^3$ の E_v の変化は、概ね4つの期間に分けられる。すなわち、(i) 実験初期、ランプ照射により E_v が急上昇する期間、(ii) その後、ほぼ恒率蒸発に相当するような期間(擬似恒率蒸発期間)、(iii) 急激に E_v が減少するような第一減率蒸発期間(湿潤減率蒸発期間)、(iv) 緩やかに E_v が低下するような第二減率蒸発期間、である。一方、 $C_{init}=80\text{kg/m}^3$ では期間(ii)は判別し難く、期間(i)、(iii) および (iv) のプロセスを経た。この理由は、 E_v の上昇中に C_{surf} が飽和に達したため、結晶塩の形成に起因して期間(ii)が現れることなく、 E_v の急激な低下が始まったと推察される。

擬似恒率蒸発は、Heら^[17]によって指摘されているように、塩濃縮に伴う水蒸気密度の低下によると考えられる。第一減率蒸発の開始時間は、図5の飽和塩濃度到達時間、つまり図4の結晶塩の発生開始時

(a) $C_{init} = 10 \text{ kg/m}^3$ (b) $C_{init} = 80 \text{ kg/m}^3$ 図7 蒸発フラックス E_v の経時変化図8 析出塩量 $M_{crystal}$ の経時変化図9 析出塩量 $M_{crystal}$ と蒸発フラックス E_v の関係

間にほぼ等しい。したがって、第一減率蒸発の原因は、結晶塩の平面的な広がりに伴う蒸発面積の減少によると推察される。第二減率蒸発の開始時間は、概ね析出塩の発生時間と同じであることから、第二減率蒸発の原因は析出塩の成長に伴う水蒸気移動抵抗によると思われる。それゆえ、第二減率蒸発を塩析出減率蒸発と呼ぶことにした。

3.4 析出塩量

図8は析出塩量 $M_{crystal}$ の経時変化を示す。図中の▲および■は $C_{init} = 10$ および 80 kg/m^3 の $M_{crystal}$ をそれぞれ意味し、白抜きのプロット(△および□)は $C_{init} = 10$ および 80 kg/m^3 に関して析出塩が観察され始めた時間の $M_{crystal}$ を意味する。

$M_{crystal}$ は C_{init} に関係なく同じような分布形を呈しているが、同じ経過時間でも $C_{init} = 80 \text{ kg/m}^3$ の $M_{crystal}$ は、 $C_{init} = 10 \text{ kg/m}^3$ のそれよりも大きい。

なお、本実験における塩収支(カラム内増加塩量+析出塩量=供給塩量)の誤差は±5%以内であった。

図9は、析出塩量 $M_{crystal}$ と蒸発フラックス E_v の関係を示す。同じ $M_{crystal}$ でも C_{init} が大きいと、 E_v は小さくなる。これは図5に示したように、 $C_{init} = 10 \text{ kg/m}^3$ に比べて $C_{init} = 80 \text{ kg/m}^3$ では、 C_{surf} が飽和に達する時間が短いため、 E_v の上昇期間も短縮し、 E_v の最大値が相対的に小さくなったことによる。各塩濃度に対する $M_{crystal}$ と E_v の関係は次式で表わされる。

$$\ln(E_v) = a + b \ln(M_{crystal}) \quad (1)$$

ここに a および b は係数であり、 $C_{init} = 10 \text{ kg/m}^3$ において、 $a = -9.931$ および $b = -2.28 \times 10^{-1}$ であり、 $C_{init} = 80 \text{ kg/m}^3$ において、 $a = -1.126 \times 10^1$ および $b = -2.22 \times 10^{-1}$ であった。

本実験に関する限り、 $M_{crystal}$ の増加に伴う E_v の減少割合は C_{init} に依存しなかった。

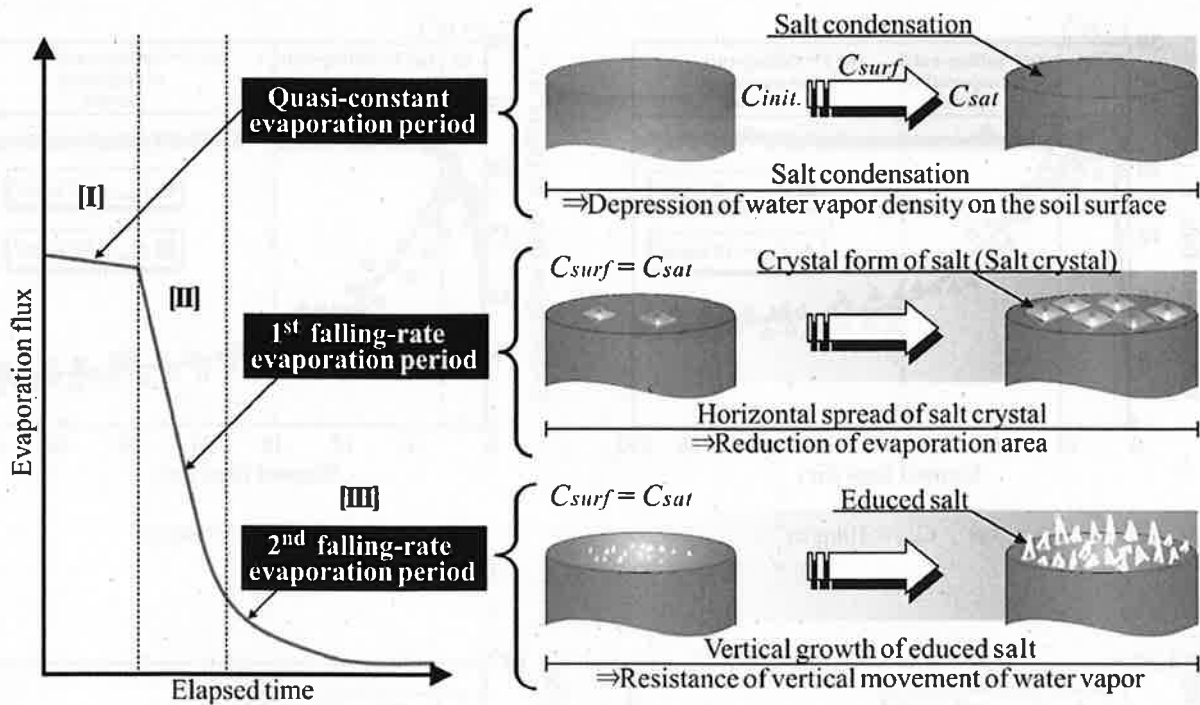


図 10 塩濃縮，結晶塩の発生，析出塩の成長に伴って起こる減率蒸発の特性と原因

3.5 塩析出過程と蒸発減少

図 10 は塩水飽和チャオソイル表面における塩濃縮，結晶塩の発生，析出塩の成長に伴って起こる減率蒸発の特性と原因を示す。

[I]擬似恒率蒸発期間： C_{surf} が上昇(塩濃縮)する期間を表す。 E_v の低下は，土壤表面での塩濃縮に伴う土壤表面の水蒸気密度(蒸気圧)の低下に起因する。

[II]第一減率蒸発期間： C_{surf} が飽和に達して，土壤表面に結晶塩が発生し，時間とともに土壤表面全体に結晶塩が広がっていく期間を表す。この期間の E_v の著しい低下は，結晶塩の広がりによる蒸発面積の減少に起因する。

[III]第二減率蒸発期間：結晶塩が厚くなり，局部的に乾燥が進行して，析出塩が発生し，水平方向および鉛直方向に成長する期間を表す。 E_v の低下は，析出塩による水蒸気移動抵抗に起因する。

4. おわりに

本研究では吸水紙法により土壤表面塩濃度の上昇(塩濃縮)および飽和塩濃度到達時間を，マイクロスコープ可視化法により結晶塩の発生および析出塩の成長を詳細に観察し，湿潤減率蒸発および塩析出減率蒸発の原因を明らかにした。

本実験により得られた知見を，以下に列挙する。

- (1)吸水紙法は土壤表面塩濃度の測定に有効である。
- (2)塩水飽和チャオソイル表面からの蒸発は，土壤表面の乾燥に伴う蒸発と同じように，擬似恒率蒸発，

第一減率蒸発(湿潤減率蒸発)および第二減率蒸発(塩析出減率蒸発)の3つに分類される。

- (3)第一減率蒸発の開始時間は，土壤表面塩濃度が飽和に達した後に起こる結晶塩の出現時間と概ね一致する。
- (4)第二減率蒸発と析出塩の出現時間は概ね一致する。
- (5)供給塩濃度が高いほうが析出開始時間は早いものの，析出塩量の増大に伴う蒸発フラックスの低下率は，本析出塩量の範囲内において供給塩濃度に関係なく同じである。

参考文献

- [1] 王遵亲ら：中国塩漬土，科学出版社，1993。
- [2] Yang, J. S. : Integrated management for sustainable use of salt affected soils in China: Extent, causes and management, *Proceedings of the 2nd international workshop on integrated soil management of salt affected soils*, Philippines, pp. 61-73, 1999.
- [3] Terasaki, H., Fukuhara, T., Ito, M. and He, C. : Effects of gravel and date-palm mulch on heat moisture and salt movement in a desert soil, *Proceedings of 16th IAHR-APD Congress and 3rd Symposium of IAHR-ISHS*, China, pp. 320-325, 2008.
- [4] Islam, K. M. S., Fukuhara, T., Asano, F. and Mutawa, H. A. A. : Productivity of the tubular solar still in the United Arab Emirates, *Proceedings of MTERM international conference*, Asian Institute of Technology, Thailand, pp.

- 367-372, 2005.
- [5] 井上光弘：塩分動態モニタリングシステム，日本砂丘学会誌，Vol. 45, No. 1, pp. 1-11, 1998.
- [6] 山本太平，藤山英保：乾燥地における砂漠緑化と農業開発(その4)－塩類特性とリーチング技術－，農業土木学会誌，Vol. 57, No. 1, pp. 53-60, 1989.
- [7] 門野浩二，福原輝幸，Chao HE：散水－蒸発サイクルに伴う塩集積土壌カラム中の塩洗脱と再集積，水工学論文集，Vol. 49, pp. 37-42, 2005.
- [8] Ii, H., Ohtsuka, Y., Ogawa, T., Abe, Y. and Yamaguchi : Tracing the movement during evaporation of salt water through a sand layer and solid paper core using three different anions as tracers, 砂漠研究, Vol. 5, No. 1, pp. 33-42, 1995.
- [9] 安部征雄，仲谷知世，桑島健也，横田誠司：蒸発力を利用した新たな集積塩類除去法(Dehydration 法)と地表灌漑方式による Leaching 法との比較研究，砂漠研究，Vol. 10, No. 2, pp. 147-156, 2000.
- [10] 郝金标ら：新疆塩生植物，科学出版社，2006.
- [11] 安部征雄：土性の相異と塩類集積特性との関係－塩類集積の機構とその対策に関する土壌物理学的研究(Ⅰ)－，農業土木学会論文集，Vol. 94, pp. 32-40, 1981.
- [12] 安部征雄：飽和供試体の乾燥過程における塩類集積形態－塩類集積の機構とその対策に関する土壌物理学的研究(Ⅱ)－，農業土木学会論文集，Vol. 106, pp. 61-71, 1982.
- [13] 松川進，中野政詩：結晶析出過程を含む土中の塩類集積，農業土木学会論文集，Vol. 161, pp. 1-9, 1992.
- [14] 藤巻晴行，取手伸夫，山本太平，井上光弘：浅い地下水面を持つ砂丘砂カラムからの土壌面蒸発に伴う溶質移動，農業土木学会論文集，No. 190, pp. 77-86, 1997.
- [15] 寺崎寛章，福原輝幸，竹嶋大貴：析出塩直接測定法による飽和チャオソイルの塩析出特性，水工学論文集，Vol. 53, pp. 511-516, 2009.
- [16] Wang, Y., Terasaki, H., Kido, T. and Fukuhara, T. : Measurement of salt concentration on the soil surface by the Water Absorption Paper method, 土木学会第 64 回年次学術講演会講演概要集，Ⅱ－153, pp. 305-306, 2009.
- [17] Chao HE, 福原輝幸，高野保英，南条雅志，Jingsong YANG: 塩集積層を有する土壌中の散水－蒸発過程における熱・水分・塩移動，土木学会論文集，No. 747/Ⅱ－65, pp. 15-28, 2003.

ペンチプチセン単位を主鎖に有する新規ポリ (パラフェニレンエチニレン)膜の合成と気体透過性

真田 耕大* 阪口 壽一* 橋本 保*

Synthesis and Gas Permeability of Novel Poly(*p*-phenyleneethynylene)s Having Pentiptycene Units in the Backbone

Kota SANADA*, Toshikazu SAKAGUCHI*, and Tamotsu HASHIMOTO*

(Received January 18, 2011)

Poly(phenyleneethynylene)s [PPEs] have rigid backbone composed of benzene ring and carbon-carbon triple bond, and they are promising as the material for gas separation membranes. In this study, we synthesized PPEs having pentiptycene units in the backbone and investigated their gas permeation properties. PPEs bearing pentiptycene units were prepared by Pd/Cu-catalyzed polymerization. The free-standing membranes of PPEs with pentiptycene units could be prepared by solvent casting method, and the gas permeability was measured. The gas permeability was found to be low compared to that of PPE without pentiptycene units.

Key Words : Poly(*p*-phenyleneethynylene), Gas Permeability, Gas Separation, Membrane, Pentiptycene, Metal-catalyzed Polymerization

1. 緒言

高分子膜を用いた気体分離は、膜分離装置がシンプルかつ操作や保守が容易なこと、他の分離方法に比べてエネルギー消費が少ないことなどの利点を有し、環境問題や省エネルギーの観点から近年では実用化が求められている技術である。気体分離において、膜材料の気体透過性および透過選択性は気体分離過程の効率を決定するために重要であり、膜分離技術の発展のためには、優れた新素材の開発が必要不可欠である。多種多様なポリマーが気体分離膜材料として検討され、それらの研究から高分子膜が高い気体透過性を示すためには、ポリマー主鎖が芳香環、二重結合、三重結合といった剛直な成分から成

り立っていること、かつ嵩高い置換基を有していることが重要であることが分かってきた^{[1]-[3]}。主鎖骨格が剛直であることでかさ高い置換基によって形成される大きな分子間隙を維持することが可能となり、結果として高い気体透過性を示す。

これらのことより筆者らはポリ(パラフェニレンエチニレン)[PPE]誘導体に着目した。PPE類は光・電子機能材料として研究されてきたが^{[4]-[9]}、気体分離膜材料として応用された例は今までにない。代表的な気体分離膜材料であるポリイミド、置換ポリアセチレン、ポリスルホンなどは剛直な主鎖骨格を有しており、高い気体透過性を示す^{[10]-[13]}。PPE類も主鎖骨格がベンゼン環とアセチレンで構成されており、剛直な主鎖骨格をとっているため、高分子鎖間で間隙を維持しやすいということから高气体透過性を示すと考えられる。筆者らは既にアルキル基やアルコキシ基を有するPPE類膜が比較的高い気体透過性を示すことを報告し^{[14],[15]}、PPE膜が気体分離膜材料と

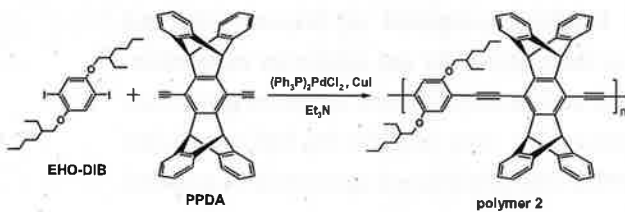
* 工学研究科材料開発工学専攻

* Materials Science and Engineering Course, Graduate School of Engineering

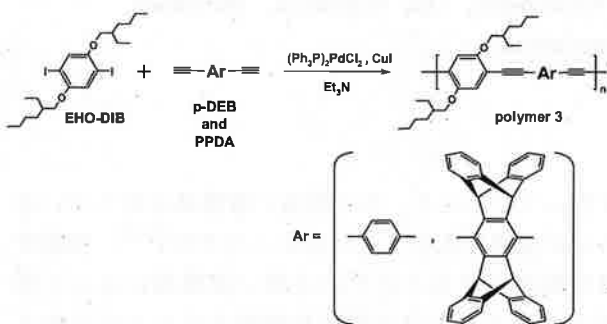
して応用できる可能性を見出した。

また、ポリ(フェニレンエチニレン)の主鎖中に導入されたペンチプチセン単位は、ポリマー主鎖の π スタッキングを妨げ、ポリマー鎖間の相互作用を弱めるという報告がある^[16]、それにより生まれたポリマー鎖間の空洞は、膜中へ小さい有機物を取り入れることができるほど大きい。ポリマー膜内のそのような間隙は、気体分離膜として応用する際に、気体拡散性を高める効果があると期待される。

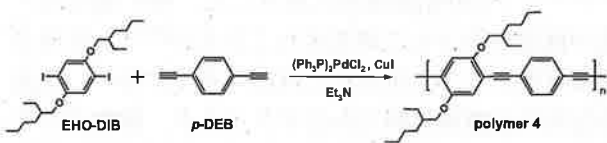
そこで本研究では、新しい高気体透過膜材料の開発を目的として、アルコキシ基とペンチプチセン単位を有する PPE の合成を検討した(Scheme 1-3)。そして、そのポリマー膜の気体透過性および透過選択性を調べ、ポリマー中のペンチプチセン単位の割合が気体透過性に及ぼす影響について考察した。



Scheme 1. Polymerization of EHO-DIB and PPDA



Scheme 2. Polymerization of EHO-DIB, *p*-DEB, and PPDA



Scheme 3. Polymerization of EHO-DIB and *p*-DEB

2. 実験

2.1 試薬

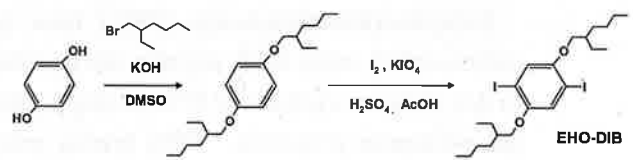
ジクロロビス(トリフェニルホスフィン)パラジウムは、トリフェニルホスフィンと塩化パラジウム

(II)の反応により以下のように合成した。ナスフラスコにトリフェニルホスフィン(15.8g, 0.0564mol)、塩化パラジウム(5.0g, 0.0282mol)、ジメチルホルムアミド(200ml)を入れ、オイルバスで60℃に加熱し、4時間かくはん後、常温まで冷やし氷水で冷やして結晶化させ、ろ過し黄色の結晶を乾燥させたものを使用した。

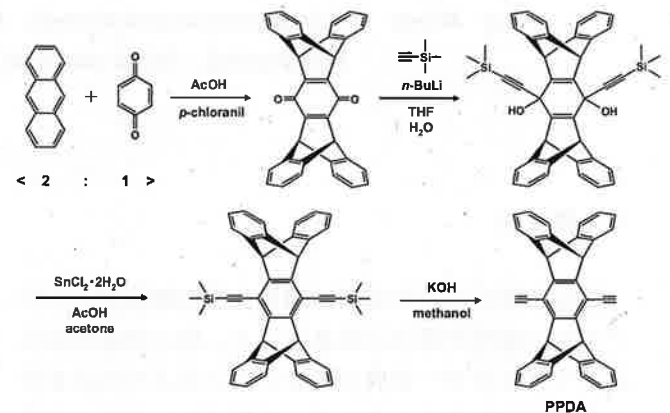
その他のモノマー原料試薬および有機溶媒は市販品をそのまま使用した。

2.2 モノマー合成

1,4-ビス-(2-エチルヘキソキシ)-2,5-ジヨードベンゼン EHO-DIB^[17]およびペンチプチセンジアセチレン PPDA^{[16],[18]}は文献を参考にしてスキームに示すように合成した(Scheme 4, 5)。



Scheme 4. Synthesis of EHO-DIB



Scheme 5. Synthesis of PPDA

2.3 重合

重合は文献を参考にしてパラジウム触媒を用いて行った^[16]。以下に(EHO-DIB : PPDA)=(1:1)の重合例を示す。100 mLのナス型フラスコに還流管、三方コックを取り付け窒素置換し、ジクロロビス(トリフェニルホスフィン)パラジウム(II)(0.062 g, 0.088 mmol)、ヨウ化銅(I)(0.104 g, 0.546 mmol)を入れた。そこに EHO-DIB(0.70 g, 0.86 mmol)と PPDA(0.413 g, 0.86 mmol)をトルエン(18 mL)に溶解させたものを加えた。さらにトリエチルアミン(12 mL)を加え重合を

開始させた。その後オイルバスで 80°C に加熱し、3 時間かくはんした。重合溶液の粘度が出てきたら、反応後の溶液を多量のメタノールに再沈殿することで重合を停止させた。メタノール不溶部をメタノールで十分に洗浄し、ろ過により回収してテトラヒドロフランに溶解させた。生成ポリマーが完全に溶解したら、再び多量のメタノールを用いて、ポリマー溶液を再沈殿させた。不溶部をろ過により回収し、メタノールで十分に洗浄しデシケーター内で真空乾燥した。

2.4 自立膜の調製

合成したポリマー3(0.20 g)およびポリマー4(0.18 g)をそれぞれクロロホルム(40, 25 mL)に溶解しガラスフィルターでろ過後、ガラスシャーレに流し入れた。その後、室温で数日間放置して溶媒を自然蒸発させた。溶媒が完全に蒸発したらシャーレからポリマー膜をはがしてメタノールに1日浸し、再度ポリマー膜を乾燥させた。このようにして得られた自立膜を気体透過測定に用いた。

2.5 測定

生成ポリマー(3, 4)の分子量分布測定はゲルパーミエーションクロマトグラフィー(GPC)により行った。数平均分子量(M_n)、重量平均分子量(M_w)、多分散度(M_w/M_n)はポリスチレン換算により求めた。GPCは、本体に島津 LC-10AD, プレカラムに(Shodex A-800P), 2本のポリスチレンゲルカラム(Shodex A-80M×2本, KF-802.5×1本), 示差屈折計に島津 RID-6A, 溶媒にテトラヒドロフランを用いて行った。

核磁気共鳴スペクトル(NMR)は、JEOL, LA-500, FT-NMR 分光計で溶媒に重水素化クロロホルムを用いて室温で測定した。

熱重量分析(TG-DTA)は理学 TG-DTA8078G1 により、窒素雰囲気下、昇温速度 10°C/min で行った。熱分解温度(T_d)は重量が5%減少した温度とした。

マイクロメーターで膜厚を10箇所測定し、その平均値を膜厚とした。膜密度は、ポリマー膜の硝酸ナトリウム水溶液中での浮力を測定し、膜の体積を計算し、膜密度を測定した。

気体透過率測定は、本体に気体透過測定装置(理化精機工業株式会社, K-315-N)を用いて、室温で測定した。

3. 結果と考察

3.1 重合

EHO-DEB と PPDA の共重合の結果を Table 1 に示

す。重合時間が3時間で96%のポリマーを得ることが出来た。しかし、得られたポリマー2はあらゆる溶媒に不溶であったため、GPCにより分子量を測定することはできなかった。

Table 1. Copolymerization of EHO-DIB [M_1] with PPDA [M_2] ^{a)}

[M_1] ₀ mM	[Et ₃ N] ₀ M	solvent	temp. °C	time h	yield %	M_n	M_w/M_n
40.9	2.87	toluene	70	3.0	96 ^{b)}	- ^{c)}	- ^{c)}

^{a)} Polymerized by (Ph₃P)₂PdCl₂ and CuI ; [M_1]₀ = [M_2]₀, [M_1]₀/[(Ph₃P)₂PdCl₂] = 10, [M_1]₀/[CuI] = 2

^{b)} Methanol insoluble part.

^{c)} Insoluble in CHCl₃ and THF.

そこで、EHO-DEB と *p*-DEB と PPDA の三成分共重合を検討し、その結果を Table 2 に示す。12時間の重合の結果、可溶性のポリマーを得ることが出来た。得られたポリマー3の数平均分子量は20200と高く、クロロホルムを溶媒に用いたソルベントキャスト法により比較的丈夫な自立膜を調製することができた。ポリマーの収率が22%と低い理由は、重合時間を延長して重合度が高くなるとポリマーが不溶化してしまうため、早い段階で重合を終了しオリゴマーが多数生成していたためであると考えられる。

Table 2. Copolymerization of EHO-DIB [M_1] with *p*-DEB [M_2] and PPDA [M_3] ^{a)}

[M_1] ₀ mM	[Et ₃ N] ₀ M	solvent	temp. °C	time h	yield %	M_n	M_w/M_n
48.7	3.08	toluene	90	12	22 ^{b)}	20200	3.97

^{a)} Polymerized by (Ph₃P)₂PdCl₂ and CuI ; [M_1]₀ = 2[M_2]₀ = 2[M_3]₀, [M_1]₀/[(Ph₃P)₂PdCl₂] = 13.3, [M_1]₀/[CuI] = 3.3

^{b)} Methanol insoluble part.

また、ペンチプチセンを含まない類似のポリマーを得るため、EHO-DEB と *p*-DEB の共重合を行った (Table 3)。得られたポリマー4は有機溶媒に可溶であり、数平均分子量は10900であった。

Table 3. Copolymerization of EHO-DIB [M_1] with *p*-DEB [M_2] ^{a)}

[M_1] ₀ mM	[Et ₃ N] ₀ M	solvent	temp. °C	time h	yield %	M_n	M_w/M_n
68.2	1.80	CHCl ₃	60	24	18 ^{b)}	10900	2.76

^{a)} Polymerized by (Ph₃P)₂PdCl₂ and CuI ; [M_1]₀ = [M_2]₀, [M_1]₀/[(Ph₃P)₂PdCl₂] = 10, [M_1]₀/[CuI] = 2

^{b)} Methanol insoluble part.

合成した可溶性のポリマーであるポリマー3, 4の¹H-NMR スペクトルをそれぞれ Figure 1, 2 に示す。いずれも、重合生成物のスペクトルにはモノマー由来のアセチレンプロトンのピークが見られず、その他のピークは2つのコモノマーに対応するピークが観測されたことから、目的のポリマーが生成してい

ることを確認できた。また、アルコキシ基由来のピークの積分値(図中 b)とペンチプチセン由来のピークの積分値(図中 e)を比較することで、アリール部分の割合は(ベンゼン:ペンチプチセン) = (0.97:1.03)であることが分かった。

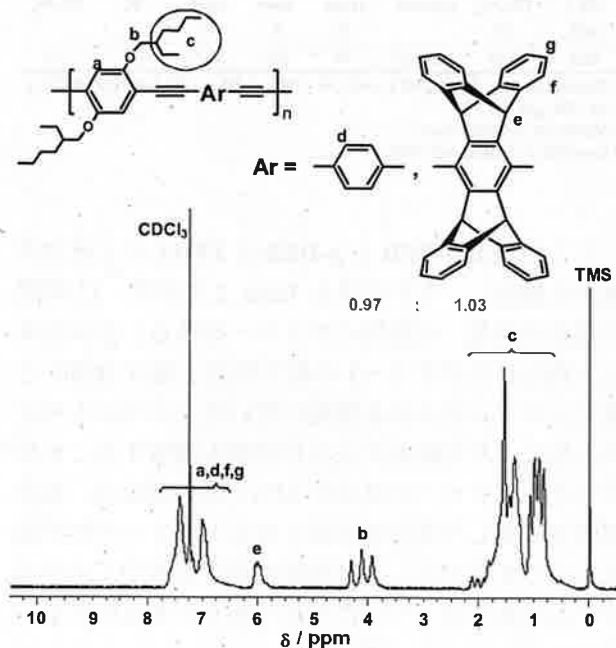


Figure 1 $^1\text{H-NMR}$ spectrum of polymer 3

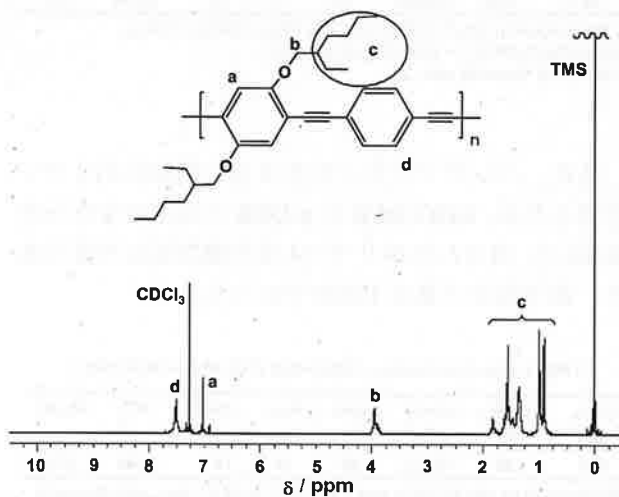


Figure 2 $^1\text{H-NMR}$ spectrum of polymer 4

3.2 ポリマーの溶解性

すべてのポリマーの溶解度試験の結果を Table 4 に示す。ポリマー2 はあらゆる溶媒に不溶であった。ポリマー3, 4 はクロロホルム, テトラヒドロフランに可溶であり, 一般的な有機溶媒に比較的良好な溶解性を示した。この結果からポリマーのペンチプチセ

ン部分の割合が増加すると, 溶解性が減少する傾向があることが分かる。

Table 4. Solubility of polymers

polymer	hexane	toluene	CHCl_3	THF	CH_2Cl_2	acetone	DMF	DMSO
2	-	-	-	-	-	-	-	-
3	-	+-	+	+	+-	-	-	-
4	-	+	+	+	+	-	-	-

+ : soluble, +- : partly soluble, - : insoluble

3.3 ポリマー3, 4 膜の気体透過性

ポリマー3, 4 膜の気体透過性および膜密度を Table 5 に示す。比較として側鎖に2-エチルヘキソキシ基を有するPPE(EHO-PPE)のデータを示す。表から分かるように, ペンチプチセン部分を有するポリマー3 は最も低い気体透過係数を示した。この原因として, かさ高いペンチプチセン部分がポリマー鎖間の間隙を減少させ, 気体が透過しにくくなった事が考えられる。このことは, ポリマー膜の膜密度の値からも分かる。また, 2-エチルヘキソキシ基の割合が高いEHO-DEBの膜密度が低く, 気体透過性が高いことから, アルコキシ基がPPEを疎な膜にする効果が高いことがわかった。

Table 5. Gas permeability, selectivity, and density of polymers 3, 4

	$P_{\text{N}_2}^a$	$P_{\text{O}_2}^a$	$P_{\text{CO}_2}^a$	$P_{\text{O}_2}/P_{\text{N}_2}$	$P_{\text{CO}_2}/P_{\text{N}_2}$	density(g/cm ³)
3	1.02	4.24	18.5	4.16	18.2	1.10
4	2.19	6.65	29.8	3.04	13.6	1.07
EHO-PPE	4.12	12.7	56.0	3.08	13.6	0.99

^a In the unit of barrer (1 barrer = $10^{-10}\text{cm}^3(\text{STP})\text{cm}/(\text{cm}^2\cdot\text{s}\cdot\text{cmHg})$).

4. 結論

主鎖中にペンチプチセン単位を有するポリ(パラフェニレンエチニレン)誘導体を合成することができた。ペンチプチセン含量の多いコポリマーはあらゆる溶媒に不溶であったが, 三成分の共重合によって比較的分子量の高いポリマーが得られ, クロロホルムを溶媒として用いたソルベントキャスト法により比較的丈夫な自立膜を調製することができた。ポリマー3, 4 膜および側鎖に2-エチルヘキソキシ基を有するPPEのデータを比較すると, ペンチプチセンを有するポリマー膜の気体透過係数が最も低いことが分かり, 主鎖中のペンチプチセン部分がポリマー鎖間の間隙を減少させていると考えられた。

参考文献

- [1] K. Nagai: *Koubunshi Ronbunshu*, **61**, 420 (2004).
- [2] T. Masuda and T. Sakaguchi: *Mirai Zairyo*, **5**, 26 (2006).
- [3] K. Nagai, T. Masuda, T. Nakagawa, B.D. Freeman, and I. Pinnau: *Prog. Polym. Sci.*, **26**, 721 (2001).
- [4] J. Kim and T.M. Swager: *Nature*, **411**, 1030 (2001).
- [5] T. Sato, D.L. Jiang, and T. Aida: *J. Am. Chem. Soc.*, **121**, 10658 (1999).
- [6] L. Arnt and G.N. Tew: *J. Am. Chem. Soc.*, **124**, 7664 (2002).
- [7] V. Francke, T. Mangel, and K. Mullen: *Macromolecules*, **31**, 2447 (1998).
- [8] G. Brizius, N.G. Pschirer, W. Steffen, K. Stitzer, H.C. Zur Loye, and UHF. Bunz: *J. Am. Chem. Soc.*, **122**, 12435 (2000).
- [9] L. Kloppenburg, D. Jones, and UHF. Bunz: *Macromolecules*, **32**, 4194 (1999).
- [10] T. Masuda, E. Isobe, T. Higashimura, and K. Takada: *J. Am. Chem. Soc.*, **105**, 7473 (1983).
- [11] T. Aoki: *Prog. Polym. Sci.*, **24**, 951 (1990).
- [12] R. L. Burns and W. J. Koros: *Macromolecules*, **36**, 2374 (2003).
- [13] Y. Dai, M. D. Guiver, G. P. Robertson, Y. S. Kang, K. J. Lee, and J. Y. Jho: *Macromolecules*, **37**, 1403 (2004).
- [14] T. Sakaguchi, D. Nojiri, and T. Hashimoto: *Polym. Bull.*, **60**, 271 (2008).
- [15] T. Sakaguchi, K. Sanada, C. Nakasuji, and T. Hashimoto: *Polym. Bull.*, in press.
- [16] J. Yang and T. M. Swager, *J. Am. Chem. Soc.*, **120**, 11864 (1998).
- [17] T. Sakaguchi, K. Sanada, C. Nakasuji, and T. Hashimoto: *Polym. Bull.*, in press.
- [18] J. Cao, H. Lu, and C. Chen, *Tetrahedron.*, **65**, 8104 (2009).

ビニルエーテルのリビングカチオンポリマーと水との反応の再検討： アルデヒド末端およびヒドロキシ末端ポリビニルエーテルの合成

徳永 理子* 漆崎 美智遠* 阪口 壽一* 橋本 保*

Re-examination of Reaction of Living Cationic Polymers of Vinyl Ether with Water: Synthesis of Aldehyde-Terminated and Hydroxy-Terminated Poly(Vinyl Ether)s

Risako TOKUNAGA*, Michio URUSHISAKI*, Toshikazu SAKAGUCHI*, and Tamotsu HASHIMOTO*

(Received February 10, 2011)

The reaction of living cationic polymers of *n*-butyl vinyl ether (NBVE; CH₂=CH-O-*n*Bu) with water was investigated to obtain the aldehyde-terminated poly(vinyl ether)s. The polymerizations of NBVE with 1,4-di(vinyloxy)butane-acetic acid adduct [1; CH₃CH(OCOCH₃)-O[CH₂]₄O-CH(OCOCH₃)CH₃]/Et_{1.5}AlCl_{1.5}/CH₃COOEt system in toluene at 0 °C and with the 2-acetoxyethyl vinyl ether-hydrogen chloride adduct [2; CH₃CH(Cl)-OCH₂CH₂OCOCH₃]/ZnCl₂ system in toluene at -30 °C produced bifunctional and monofunctional living polymers, respectively. The termination of these living polymers with aqueous ammonia gave the aldehyde polymer terminals (-CH₂-CHO) quantitatively. In contrast, the termination with pure water under the same reaction conditions resulted in the formation of a small amount of the acetal polymer terminals [-CH₂-CH-(OnBu)₂]. 2-Methoxyethyl vinyl ether (MOVE) was also polymerized with the 2/ZnCl₂ system and treated with aqueous ammonia under the similar reaction conditions to give the corresponding aldehyde-capped polymers. The reduction of the aldehyde groups of these polymers with NaBH₄ or LiAlH₄ afforded hydroxy-terminated telechelic poly(vinyl ethers)s.

Key Words : Living Polymerization, Cationic Polymerization, Vinyl Ether, Aldehyde-Terminated Polymer, Hydroxy-Terminated Polymer, Termination Reaction with Water

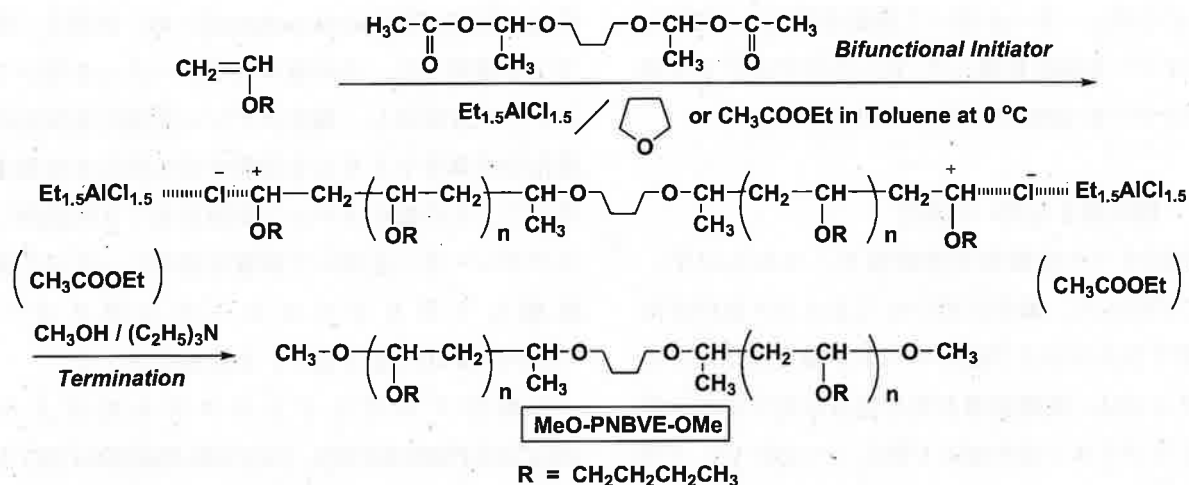
1. 緒言

ポリウレタンは複数個のイソシアナート基を有する分子と複数個のヒドロキシ基を有する分子（ポリオール）との反応により合成され、様々な用途に用

いられている。^{[1],[2]} ポリウレタンの原料ポリオールとして、ポリエーテルポリオール、ポリエステルポリオール、ポリオレフィンポリオールなどが知られている。^{[1],[2]} ポリウレタンの性質や機能を大部分決定づけるのは原料ポリオール^{[1],[2]} であるので、高性能、高機能のポリウレタンを開発するためには新規のポリオールの開発が重要である。我々は、ポリウレタンに新しい性能や機能を付与できる新規原料ポリオールの開発のために、種々な置換基を側鎖とし

* 工学研究科材料開発工学専攻

* Materials Science and Engineering Course, Graduate School of Engineering



Scheme 2. Synthesis of methoxy-capped poly(vinyl ether)s.

を備え付けた別の三つ口フラスコに塩化ナトリウム（和光）を入れ、窒素を通しながら滴下ロートから硫酸（和光）を少しずつ落として、発生した塩化水素を塩化カルシウム管に通してそのヘキサン溶液に吹き込み合成した。その濃度は、ヘキサン溶液 1 mL を水 50 mL に入れ室温で攪拌し、遊離した塩化水素を pH メーターを用いて 0.1 mol/L 水酸化ナトリウム水溶液で滴定して求めた。^[3] その後、アンプルにて冷蔵庫で保存した。エチルアルミニウムセスキクロライド ($\text{Et}_{1.5}\text{AlCl}_{1.5}$; Aldrich, 0.96 M トルエン溶液) は、アンプルにて冷蔵庫で保存した。重合溶媒であるトルエン（和光、1 級）は、水素化カルシウムで一晩乾燥後、水素化カルシウム上で 2 回蒸留した。重合に使用した酢酸エチル (CH_3COOEt ; 和光、1 級) は塩化カルシウムで一晩乾燥後、水素化カルシウム上で 2 回蒸留し、アンプルにて冷蔵庫で保存した。重合に使用したジエチルエーテル（和光、1 級）は水素化カルシウム上で 2 回蒸留し、アンプルにて冷蔵庫で保存した。還元反応に使用したジエチルエーテルは、水素化カルシウム上で 1 回蒸留した。重合の停止に用いたメタノール（和光、1 級）は、水素化カルシウム上で 1 回蒸留しアンプルにて冷蔵庫で保存した。トリエチルアミン（和光、1 級）は、モレキュラーシーブスで一晩乾燥させた。その他の試薬は、市販品をそのまま使用した。

2.2 重合

2.2.1 開始剤 1 を用いた重合

重合はすべて乾燥窒素雰囲気下、トルエン中、 0°C で行った。重合に用いた三方コックを付けたナス型フラスコおよびシュレンク管は、乾燥窒素を吹き込みながらヒートガンによりフラスコを外側より熱し ($\sim 450^\circ\text{C}$) フラスコ内部を乾燥した。重合の開始は、 CH_3COOEt を含む NBVE モノマーのトルエン溶液をシュレンク管に 4.0 mL ずつ分けた後、1 のトルエン溶液を 0.5 mL、 $\text{Et}_{1.5}\text{AlCl}_{1.5}$ のトルエン溶液 0.5 mL を順に注入して行った。重合の停止は、トリエチルアミンを含むメタノール、純水、または 1 mol/L のアンモニア水を重合系に 3.0 mL 加えて行った。反応溶液は分液ロートに移し塩化メチレンで希釈した後、1 mol/L の塩酸で 1 回、水で 2 回洗浄

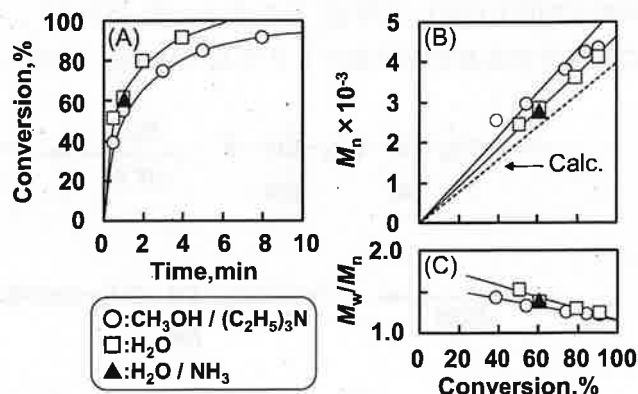


Figure 1. Polymerization of NBVE with bifunctional initiator 1/ $\text{Et}_{1.5}\text{AlCl}_{1.5}$ / CH_3COOEt in toluene at 0°C : terminator, $\text{CH}_3\text{OH}/(\text{C}_2\text{H}_5)_3\text{N}$ (O); H_2O (□); $\text{H}_2\text{O}/\text{NH}_3$ (▲). (A) Time-conversion curves; (B) M_n vs. conversion; (C) M_w/M_n vs. conversion.

し、エバポレーターを用いて溶媒を除去し、回収したポリマーを減圧乾燥した。得られたアルデヒド末端ポリマーを OHC-PNBVE-CHO と記す。

2.2.2 開始剤 2 を用いた重合

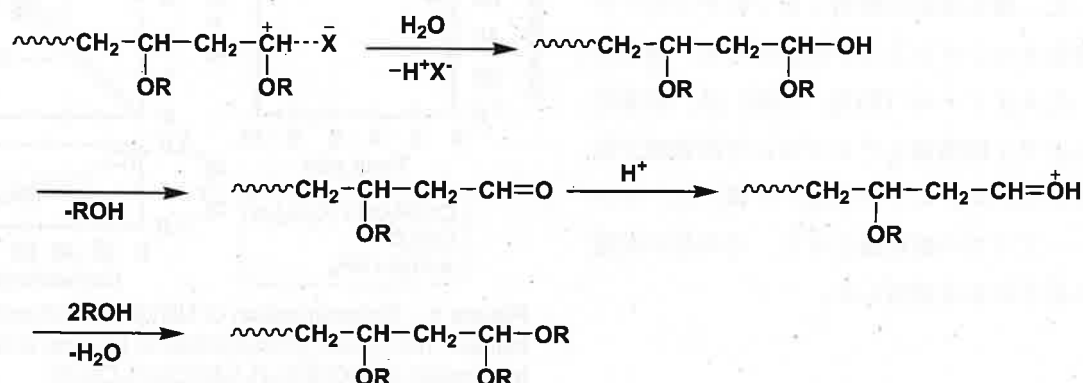
重合はすべて乾燥窒素雰囲気下、トルエン中、 $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ で行った。重合に用いた三方コックを付けたナス型フラスコおよび滴下ロートを備え付けた三口フラスコは、乾燥窒素を吹き込みながらヒートガンによりフラスコを外側より熱し ($\sim 450\text{ }^{\circ}\text{C}$) フラスコ内部を乾燥した。重合の開始は、NBVE もしくは MOVE モノマーのトルエン溶液 460 mL に滴下ロートから 2 のトルエン溶液 20 mL、塩化亜鉛のジエチルエーテル溶液 20 mL を順に注入して行った。重合の停止は、1 mol/L のアンモニア水を重合系に 70 mL 加えて行った。反応溶液を分液ロートに移し塩化メチレンで希釈した後、1 mol/L の塩酸で 1 回、水または飽和塩化ナトリウム水溶液で 2 回洗浄し、エバポレーターを用いて溶媒を除去し、回収したポリマーを減圧乾燥した。NBVE を重合して得られたポリマーを $\text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}$ 、MOVE を重合して得られたポリマーを $\text{CH}_3\text{COO-PMOVE-CHO}$ と記す。

2.3 ポリオールの合成

両末端アルデヒドの OHC-PNBVE-CHO を用いて、水素化ホウ素ナトリウム (NaBH_4) を使用しアルデヒド末端をヒドロキシ末端に還元し、ポリビニルエーテルポリオールを合成した。^{[3]-[5]} OHC-PNBVE-CHO (2.78 g) をエタノール (52 mL) に溶解させ水素化ホウ素ナトリウム (NaBH_4 , 2.28

g : $[\text{NaBH}_4]/[\text{CHO in the polymer}] = 43$) を加え、常温で 1 日攪拌した。その後エバポレーターを用いてエタノールを除去し、塩化メチレンを加え未反応の水素化ホウ素ナトリウムを分解するために水を加えた。そして、その塩化メチレン溶液を水で 3 回洗浄し、エバポレーターを用いて溶媒を除去し、さらに減圧乾燥してポリビニルエーテルポリオール (HO-PNBVE-OH と記す) を合成した。

末端がアルデヒドとエステル of the polymer $\text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}$, $\text{CH}_3\text{COO-PMOVE-CHO}$ を用いて、水素化リチウムアルミニウム (LiAlH_4) を使用しアルデヒド末端およびエステル末端をヒドロキシ基末端に還元し、ポリビニルエーテルポリオールを合成した。^{[3],[11]} ポリマー ($\text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}$: 20.2 g ; $\text{CH}_3\text{COO-PMOVE-CHO}$: 15.2 g) をジエチルエーテル ($\text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}$: 200 mL ; $\text{CH}_3\text{COO-PMOVE-CHO}$: 150 mL) に溶解させ水素化リチウムアルミニウム (LiAlH_4 , $\text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}$: 3.8809 g, $[\text{LiAlH}_4]/[\text{CHO and CH}_3\text{COO in the polymer}] = 7$; $\text{CH}_3\text{COO-PMOVE-CHO}$: 2.8920 g, $[\text{LiAlH}_4]/[\text{CHO and CH}_3\text{COO in the polymer}] = 5$) を加え、常温で 1 日攪拌した。その後、水と 10 wt% 水酸化ナトリウム水溶液を加え未反応水素化リチウムアルミニウムを分解させ、生じた塩をろ過で取り除き、塩化メチレンを加え希釈しその溶液を水または飽和塩化ナトリウム水溶液で洗浄した。そして、エバポレーターを用いて溶媒を除去し、減圧乾燥してポリビニルエーテルポリオール (それぞれ HO-PNBVE-OH ,



Scheme 3. Possible mechanism of formation of acetal terminal during termination of living cationic poly(vinyl ether) with H_2O .

HO-PMOVE-OH と記す) を合成した。

2.4 測定

重合率は、内部標準にヘプタンを用い、ガスクロマトグラフィー (GC) で測定した残存モノマー量より計算した。生成ポリマーの分子量 (M_n) および分子量分布 (M_w/M_n) は、ゲルパーミエーション (GPC) を用いて測定し、標準ポリスチレン (分子量: 775000, 355000, 186000, 50000, 17700, 2800) により作成した検出線を基にポリスチレン換算で求めた。GPC 本体に島津製作所作製 LC-10AD, 示差屈折計 (RI) に島津製作所作製 RID-6A, カラムに昭和電工製ポリスチレンゲルカラム 3 本 (shodex K-807L, K-805, K-804)

を直列につないで使用した。溶媒にクロロホルムを用い、カラム温度は 40 °C, 0.5 wt/vol% に調製した試料溶液を装置に注入し、流速 1.0 mL/min で測定した。核磁気共鳴スペクトルは、日本電子製 LA-500 FT-NMR スペクトルメーターを使用し、内部標準にテトラメチルシラン、溶媒にトルエン- d_8 もしくはクロロホルム- d を用いて室温で測定した。

ヒドロキシ末端ポリマーのヒドロキシ基含量は、アセチル化法によって求めた。^{[5],[12],[13]} ヒドロキシ基末端ポリマー 0.3 g を 100 mL の三角フラスコに取り、そこにアセチル化試薬 (無水酢酸 1.5 mL をピリジン 48.5 mL に溶解させた溶液) をホールピペットで 5.0 mL 加え、還流冷却管を備え付けてオイルバスによ

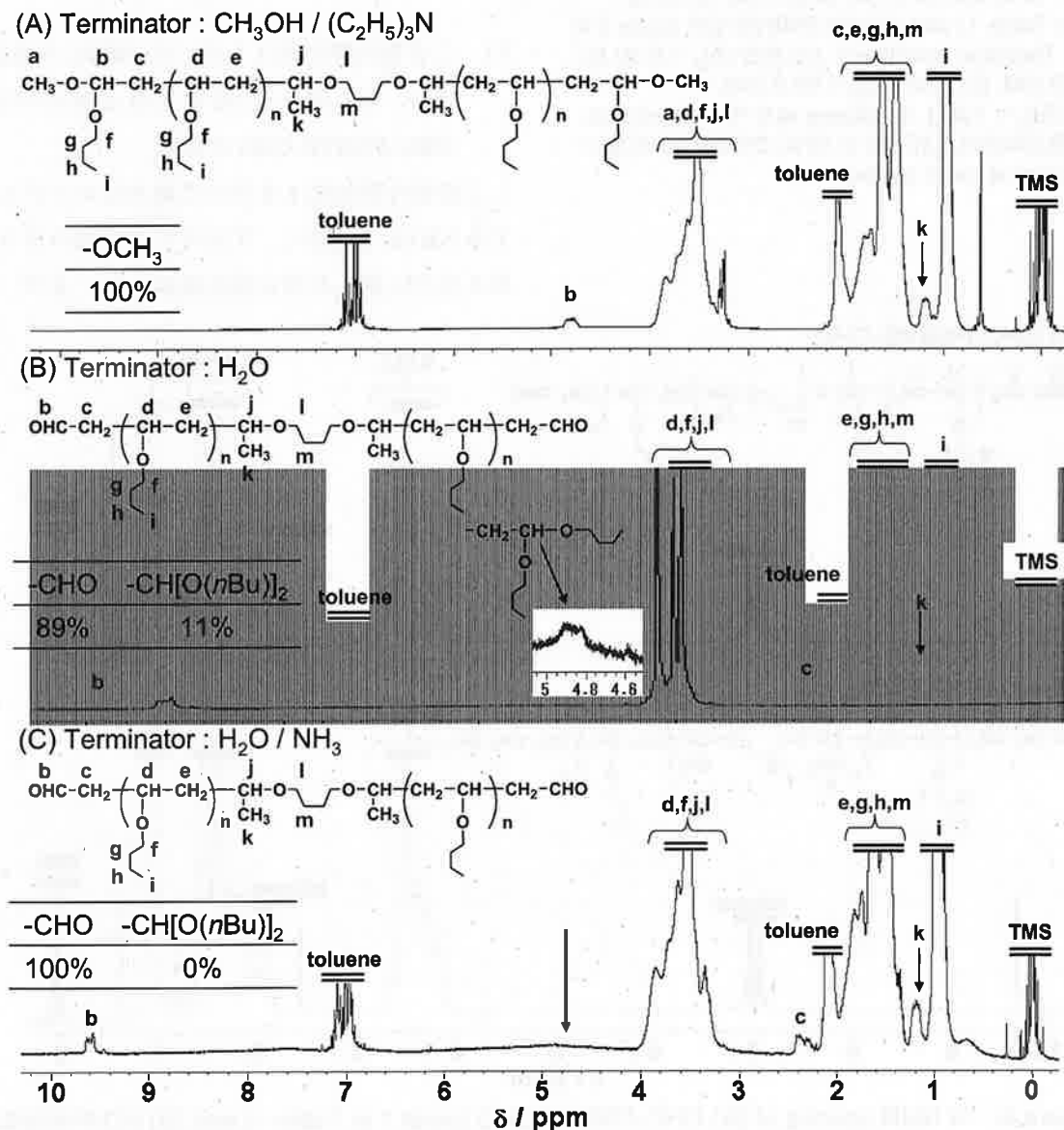


Figure 2. ^1H NMR spectra of the obtained polymers in $\text{C}_6\text{D}_5\text{CD}_3$. Terminator: (A) $\text{CH}_3\text{OH}/(\text{C}_2\text{H}_5)_3\text{N}$; (B) H_2O ; (C) $\text{H}_2\text{O}/\text{NH}_3$. Reaction conditions: $[\text{NBVE}]_0 = 0.60 \text{ M}$, $[\text{I}]_0 = 15.0 \text{ mM}$, $[\text{Et}_{1.5}\text{AlCl}_{1.5}]_0 = 60.0 \text{ mM}$, $[\text{CH}_3\text{COOEt}]_0 = 1.0 \text{ M}$, in toluene at 0 °C.

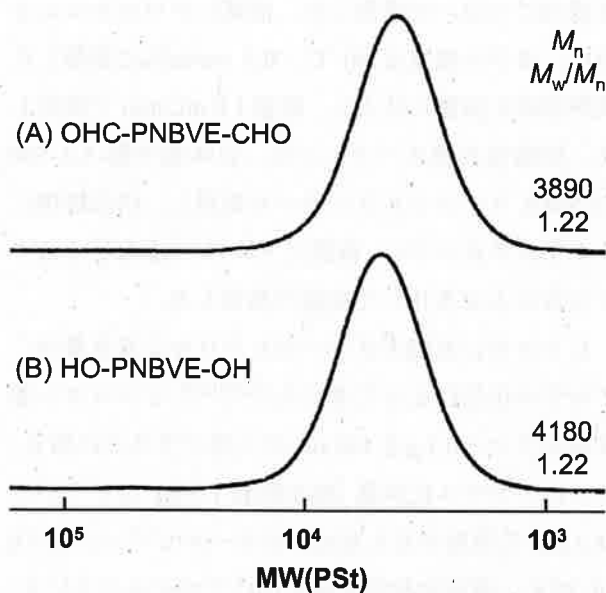


Figure 3. GPC curves of (A) OHC-PNBVE-CHO (code 1 in Table 1) and (B) HO-PNBVE-OH (code 2 in Table 1). Reaction conditions: (A) $[NBVE]_0 = 0.60$ M, $[1]_0 = 15.0$ mM, $[Et_{1.5}AlCl_{1.5}]_0 = 60.0$ mM, $[CH_3COOEt]_0 = 1.0$ M, in toluene at 0°C , conversion = 96 %; (B) $[NaBH_4]_0/[CHO \text{ in OHC-PNBVE-CHO}]_0 = 43$, in ethanol at room temperature.

り約 95°C で 2 時間反応させた。室温に冷やしてからイオン交換水を還流冷却管の上から約 15 mL 加えて未反応の無水酢酸を完全に酢酸にした。その反応溶液に指示薬 0.1 wt% エタノール性フェノールフタレイン溶液を数滴加え、0.05 mol/L エタノール性水酸化カリウム溶液をホールピペットで 50 mL 加えた後、マグネットスターラーで攪拌しながらビュレットを用いて滴定した。同様にブランク試験も行い、両者の滴定値の差より求められたヒドロキシ基相当量とポリマーの重量から、そのポリマーのヒドロキシ基含量を求めた。

3. 結果と考察

3.1 二官能性開始剤 **1** を用いた NBVE の重合: アルデヒド末端を生成する停止反応の確立と OHC-PNBVE-CHO の合成

二官能性開始剤 **1** を用いて疎水性のブチル基を有する NBVE を重合し、アルデヒド末端のポリマーを与えるのに適した停止剤を検討した。まず、停止剤

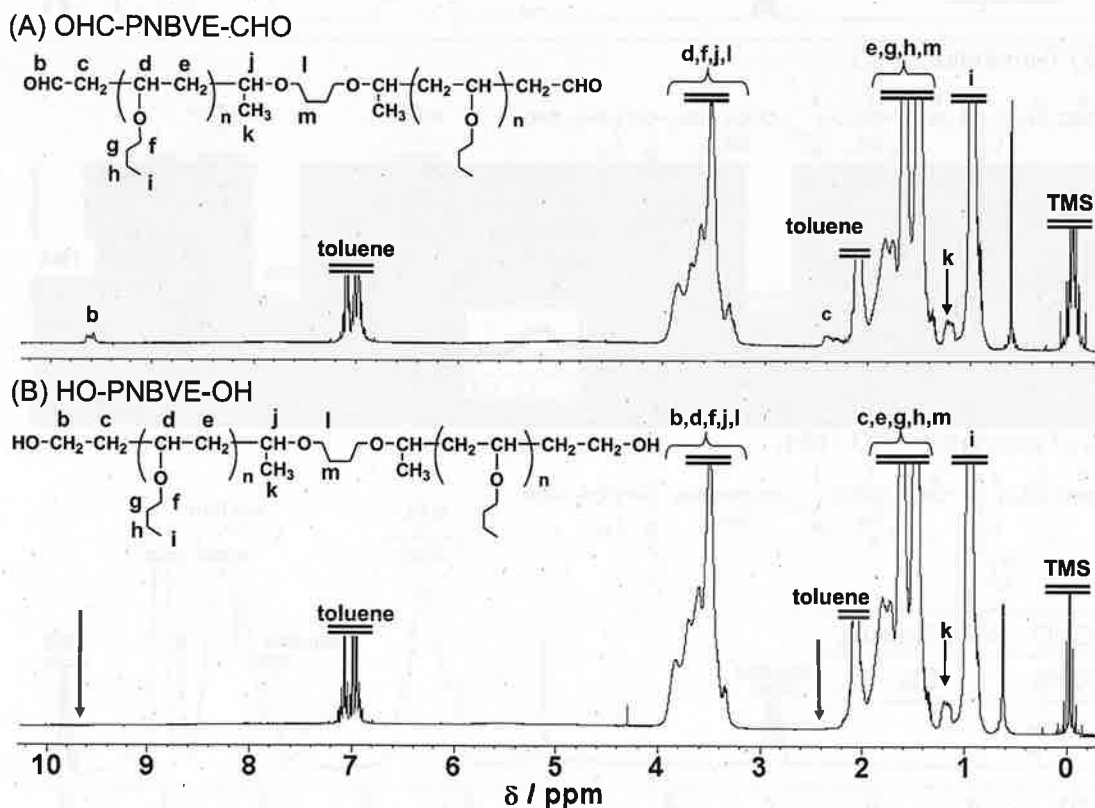
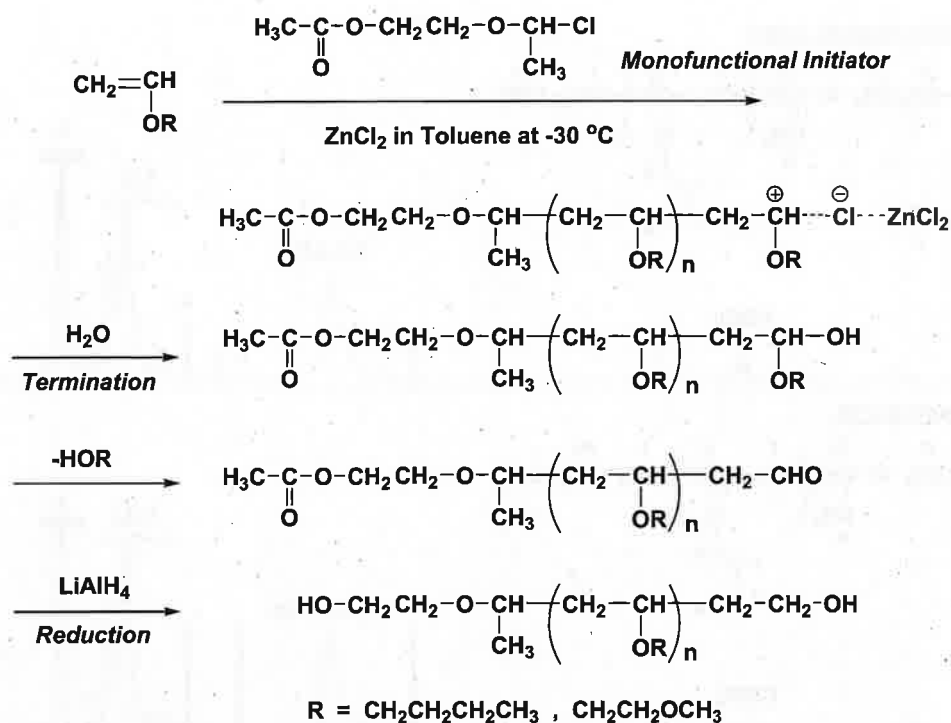


Figure 4. ^1H NMR spectra of (A) OHC-PNBVE-CHO (code 1 in Table 1) and (B) HO-PNBVE-OH (code 2 in Table 1) in $C_6D_5CD_3$. Reaction conditions: (A) $[NBVE]_0 = 0.60$ M, $[1]_0 = 15.0$ mM, $[Et_{1.5}AlCl_{1.5}]_0 = 60.0$ mM, $[CH_3COOEt]_0 = 1.0$ M, in toluene at 0°C , conversion = 96 %; (B) $[NaBH_4]_0/[CHO \text{ in OHC-PNBVE-CHO}]_0 = 43$, in ethanol at room temperature.



Scheme 4. Synthesis of hydroxy-capped poly(vinyl ether)s.

に通常カチオン重合で利用されメトキシ末端を与えるトリエチルアミンを含むメタノールと、アルデヒド末端を与える水を用いた (Scheme 1, Scheme 2). 図 1 に示すように、重合は誘導期なく進行し重合率ほぼ 100 % に達した。生成ポリマーの分子量は、重合率に比例して増加し、リビング重合を仮定とした

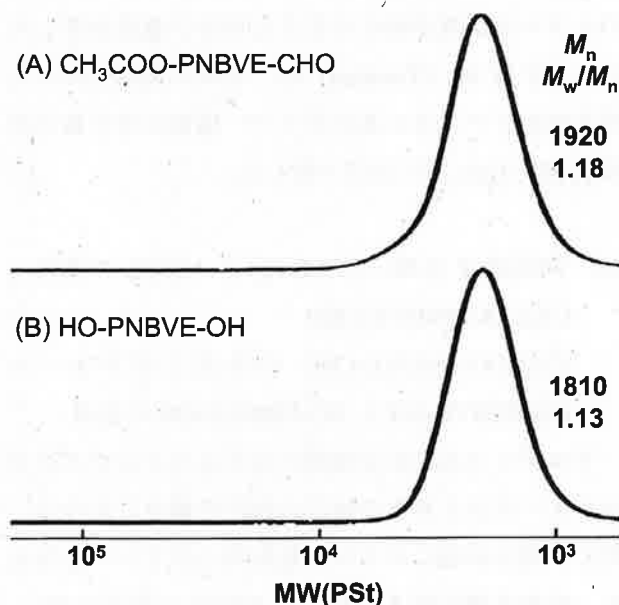


Figure 5. GPC curves of (A) $\text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}$ (code 3 in Table 1) and (B) HO-PNBVE-OH (code 4 in Table 1). Reaction conditions: (A) $[\text{NBVE}]_0 = 0.38 \text{ M}$, $[\text{Z}]_0 = 20.0 \text{ mM}$, $[\text{ZnCl}_2]_0 = 2.0 \text{ mM}$, conversion = 100 %, in toluene at -30°C ; (B) $[\text{LiAlH}_4]_0/[\text{CH}_3\text{COO and CHO in } \text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}]_0 = 5$, in diethyl ether at room temperature.

理論値に近い値になった。

得られたポリマーの末端構造を $^1\text{H NMR}$ スペクトルにより調べた (図 2)。水で停止して得られたポリマー [図 2(B)] には、アルデヒド基の水素のピーク b が見られ、アルデヒドに隣接するメチレン基の水素のピーク c も見られた。しかし、4.9 ppm 付近にアセタールのメチン基に帰属できるピークがわずかに見られた。両ピーク以外には末端構造に帰属されるピークは存在しないことから、両ピークの強度に基づきアセタール末端の存在量を求めると、全末端基のうち 11 % がアセタール末端であることがわかった。

重合を水で停止したにもかかわらず、アセタール末端が生じたのは、カチオン成長末端に水が反応して、ヘミアセタールの生成と脱アルコールを経てアルデヒドがまず生成するが、その末端アルデヒドに反応系中に存在する酸が触媒となり、脱離して生じたアルコールが反応することによりアセタール化するものと考えられる (Scheme 3)。

そこで、停止反応によって遊離する酸をトラップするため、停止剤に塩基性のアンモニアを含むアンモニア水を用いた。アンモニア水によって停止したポリマーの $^1\text{H NMR}$ スペクトルでは、アルデヒド基

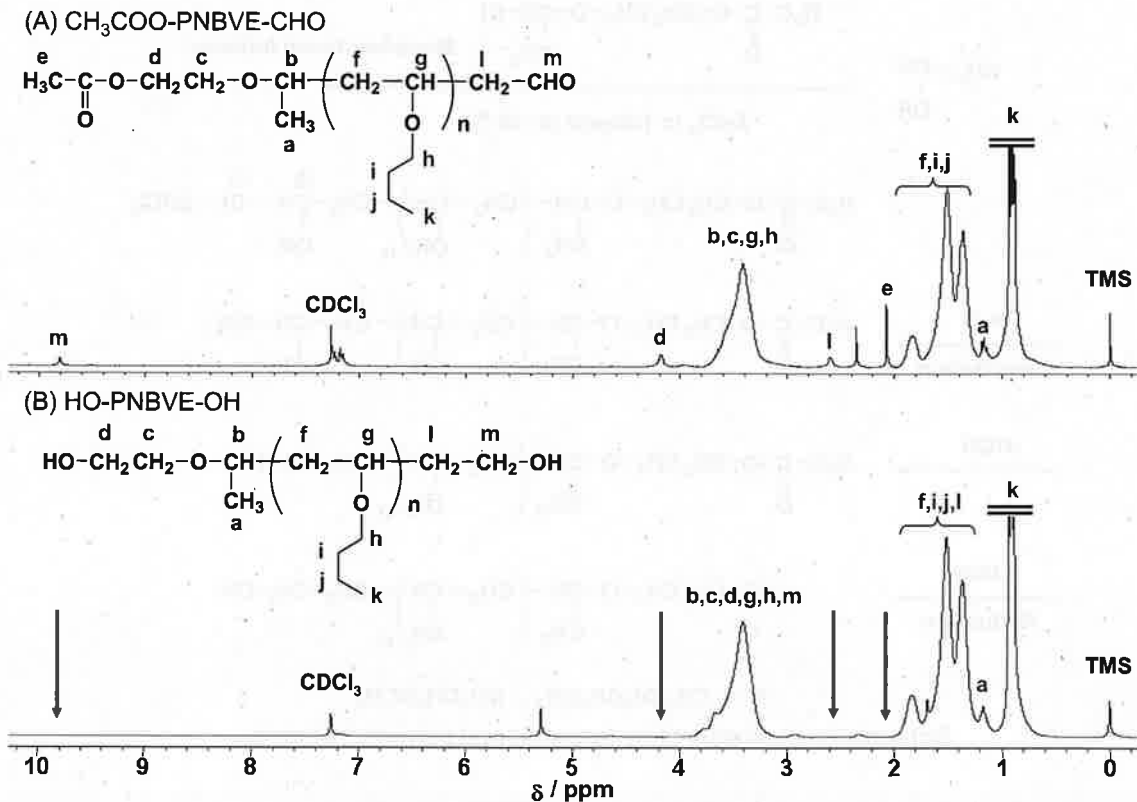


Figure 6. ^1H NMR spectra of (A) $\text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}$ (code 3 in Table 1) and (B) HO-PNBVE-OH (code 4 in Table 1) in CDCl_3 . Reaction conditions: (A) $[\text{NBVE}]_0 = 0.38 \text{ M}$, $[\mathbf{2}]_0 = 20.0 \text{ mM}$, $[\text{ZnCl}_2]_0 = 2.0 \text{ mM}$, conversion = 100 %, in toluene at -30°C ; (B) $[\text{LiAlH}_4]_0/[\text{CH}_3\text{COO}$ and CHO in $\text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}]_0 = 5$, in diethyl ether at room temperature.

の水素のパーク b と隣接するメチレン基の水素のパーク c がはっきりと見られる [図 2(C)]. 一方、アセタールのピークは全く見られなかった。したがって、停止剤にアンモニア水を用いることによりアセタール末端の生成を完全に抑制できることがわかった。

3.2 アルデヒド末端のヒドロキシ末端への変換：ポリオール HO-PNBVE-OH 合成

得られたアルデヒド末端ポリマー (OHC-PNBVE-CHO) をヒドロキシ基末端ポリマー (HO-PNBVE-OH) に変換した。^{[3]-[5]} 図 3 の GPC カーブに示すように、反応の前後でポリマーの分子量及び分子量分布にほとんど変化がないことがわかる。図 4 のこの還元反応前後のポリマーの ^1H NMR スペクトルに示すように、反応後はアルデヒドのピークおよびアルデヒドに隣接するメチレン基のピークが完全に消失している。従って、末端のアルデヒド基がヒドロキシ基に変換され、両末端ヒドロキシ基のポリマーが生成したことがわかる。そのポリマーのキャラクターゼーションの結果を表 1 に示す。ヒ

ドロキシ基末端ポリマーのヒドロキシ基含量をアセチル化法により定量し、ポリマー 1 分子当たり 2 個のヒドロキシ基が存在するとして分子量を計算した。その分子量 M_n (Titration) は、目的の構造を持った両末端がヒドロキシ基のポリマー構造の分子量の計算値 M_n (Calc.) にほぼ一致した。

3.3 開始剤 $\mathbf{2}$ を用いた NBVE と MOVE の重合： $\text{CH}_3\text{COO-PNBVE-CHO}$ と $\text{CH}_3\text{COO-PMOVE-CHO}$ の合成とポリオール HO-PNBVE-OH と HO-PMOVE-OH の合成

アルデヒド末端を定量的に与えるリビングポリビニルエーテルと水との反応の条件を確立したので、次に、開始末端にエステル基を持つポリマーを与える一官能性開始剤 $\mathbf{2}$ を用いた NBVE の重合を行い、アンモニア水により重合を停止し、片方の末端にエステル基をもう片方の末端にアルデヒド基を持つポリマーの合成を検討した (Scheme 4)。このポリマーの両末端は還元反応によりヒドロキシ基に変換可能

Table 1. Characterization of Poly(Vinyl Ether)s

Code	Polymer	Conversion %	M_n			M_w/M_n
			Calc.	GPC ^{a)}	Titration ^{b)}	GPC ^{a)}
1 ^{c)}	OHC-PNBVE-CHO	96	3880 ^{h)}	3890	—	1.22
2 ^{d)}	HO-PNBVE-OH	96	3880 ⁱ⁾	4180	4130	1.22
3 ^{e)}	CH ₃ COO-PNBVE-CHO	100	1980 ^{h)}	1920	—	1.18
4 ^{f)}	HO-PNBVE-OH	100	1920 ⁱ⁾	1810	1760	1.13
5 ^{g)}	CH ₃ COO-PMOVE-CHO	100	2010 ^{j)}	2170	—	1.49
6 ^{h)}	HO-PMOVE-OH	100	1960 ^{k)}	2080	1720	1.51

a) Measured by GPC with polystyrene calibration.

b) Measured by acetylation method.

c) [NBVE]₀ = 0.60 M, [1]₀ = 15.0 mM, [Et_{1.5}AlCl_{1.5}]₀ = 60.0 mM, [CH₃COOEt]₀ = 1.0 M, in toluene at 0 °C.

d) [NaBH₄]₀/[CHO in OHC-PNBVE-CHO]₀ = 43, in ethanol at room temperature.

e) [NBVE]₀ = 0.38 M, [2]₀ = 20.0 mM, [ZnCl₂]₀ = 2.0 mM, in toluene at -30 °C.

f) [LiAlH₄]₀/[CH₃COO and CHO in CH₃COO-PNBVE-CHO]₀ = 5, in diethyl ether at room temperature.

g) [MOVE]₀ = 0.38 M, [2]₀ = 20.0 mM, [ZnCl₂]₀ = 2.0 mM, in toluene at -30 °C.

h) [LiAlH₄]₀/[CH₃COO and CHO in CH₃COO-PMOVE-CHO]₀ = 5, in diethyl ether at room temperature.

i) Based on $M_n(\text{Calc.}) = 144.21 + (\text{MW of monomer}) \times \{[M]_0/[1]_0 \times (\text{monomer conversion})/100 - 2\} + 86.09$.

j) Based on $M_n(\text{Calc.}) = 144.21 + (\text{MW of monomer}) \times \{[M]_0/[1]_0 \times (\text{monomer conversion})/100 - 2\} + 90.12$.

k) Based on $M_n(\text{Calc.}) = 131.15 + (\text{MW of monomer}) \times \{[M]_0/[2]_0 \times (\text{monomer conversion})/100 - 1\} + 43.04$.

l) Based on $M_n(\text{Calc.}) = 89.11 + (\text{MW of monomer}) \times \{[M]_0/[2]_0 \times (\text{monomer conversion})/100 - 1\} + 31.03$.

である。^[3] 開始剤 **2** を用いる重合では、塩化亜鉛 (ZnCl₂) と組み合わせてビニルエーテルのリビング重合が可能である。^[3] 塩化亜鉛は、先の重合で使ったエチルアルミニウムセスキクロライド (Et_{1.5}AlCl_{1.5}) より酸性度が低く取り扱いやすく、また **2** と組み合わせると少量の使用でビニルエーテルのリビング重合を起こすことが可能であるという利点がある。^[3]

図 5(A) に示すように、分子量 1920、多分散度 1.18 と分子量分布の狭いポリマーが得られた。図 6 の ¹H NMR スペクトルに示すように、ポリマー中には末端基として、酢酸エステル基の水素のピーク d, e と、アルデヒドの水素のピーク m とアルデヒドに隣接するメチレン基水素のピーク l がはっきりと見られた。一方、アセタール末端の存在を示すピークは全く見られなかった。従って、開始末端にエステル基を停止末端にアルデヒド基を持つポリマー CH₃COO-PNBVE-CHO が合成できたことが分かった。

このポリマーの開始末端であるエステル基と停止末端のアルデヒド基を LiAlH₄ を用いヒドロキシ基に変換した。^[3] 反応の前後でポリマーの分子量及び分子量分布にほとんど変化がなかった (図 5)。図 6

のこの還元反応前後のポリマーの ¹H NMR スペクトルに示すように、反応後はエステル末端基とアルデヒド末端基のピークが完全に消失している。従って、両末端ヒドロキシ基のポリマーが生成したことがわかる。そのポリマーのキャラクタリゼーションの結果を表 1 に示す。ヒドロキシ基末端ポリマーのヒドロキシ基含量をアセチル化法により定量し、ポリマー 1 分子当たり 2 個のヒドロキシ基が存在するとして分子量を計算した。その分子量 M_n (Titration) は、目的の構造を持った両末端がヒドロキシ基のポリマーの分子量の計算値 $M_n(\text{Calc.})$ にほぼ一致した。

同様に、側鎖に親水性のオキシエチレン鎖を有するポリマー CH₃COO-PMOVE-CHO と HO-PMOVE-OH の合成を行った。HO-PMOVE-OH のヒドロキシ含量に基づく分子量は、目的の構造を持った両末端がヒドロキシ基のポリマーの分子量の計算値にほぼ一致した (表 1)。

4. 結論

NBVE をモノマーに用いたリビングカチオン重合を水により停止させると、アルデヒド末端ポリビニルエーテルが得られるかを検討した。NBVE のリビ

ングカチオン重合は、 $1/\text{Et}_{1.5}\text{AlCl}_{1.5}/\text{CH}_3\text{COOEt}$ の開始剤系を用いてトルエン中、 0°C で二官能性リビングポリマーを生成し、また、 $2/\text{ZnCl}_2$ の開始剤系を用いてトルエン中、 -30°C で一官能性リビングポリマーを生成した。それらリビングポリマーの停止剤にアンモニア水を用いると、定量的にアルデヒド末端ポリマーが得られた。一方、同じ条件で停止剤に純水を用いると、少量のアセタール末端が生じた。また、MOVE をモノマーに用いても、 $2/\text{ZnCl}_2$ の開始剤系によりトルエン中、 -30°C の反応条件で重合を行うとアルデヒド基末端のポリマーが合成できた。さらに、それらのポリマーの両末端基は、還元反応によりヒドロキシ基に変換でき、NBVE または MOVE からなるポリビニルエーテルポリオールを合成することができた。

参考文献

- [1] D. Randall and S. Lee: *The Polyurethanes Book*, Wiley, New York, Chapter 6, p.89 (2002).
- [2] 松永 勝治 監修: 最新ポリウレタン材料と応用技術—ポリウレタン創製への道—, シーエムシー出版, 第2章, p.23 (2005).
- [3] T. Hashimoto, S. Iwao, and T. Kodaira: *Makromol. Chem.*, **194**, 2323 (1993).
- [4] T. Hashimoto, H. Aizawa, and T. Kodaira: *Macromol. Rapid Commun.*, **16**, 521 (1995).
- [5] T. Hashimoto, A. Takahashi, M. Urushisaki, and T. Sakaguchi: *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **48**, 1641 (2010).
- [6] V. Heroguez, A. Deffieux, and Fontanille, M: *Makromol. Chem. Macromol. Symp.*, **32**, 199 (1990).
- [7] T. Hashimoto, A. Suemoto, K. Okano, and T. Kodaira: *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **33**, 1921 (1995).
- [8] V. Bennevault, F. Larrue, and A. Deffieux: *Macromol. Chem. Phys.*, **196**, 3075 (1995).
- [9] 徳永 理子, 漆崎 美智遠, 阪口 壽一, 橋本 保: 高分子学会第58回北陸支部研究発表講演会講演要旨集, **24**, A1-11 (2009).
- [10] S. Aoshima, T. Nakamura, N. Uesugi, M. Sawamoto, and T. Higashimura: *Macromolecules*, **18**, 2097 (1985).
- [11] J. A. Marshall, N. H. Anderson, and A. R. Hochstetler: *J. Org. Chem.*, **32**, 113 (1967).
- [12] T. Hashimoto, A. Umehara, K. Ishizuka, and T. Kodaira: *Proc. Jpn. Acad., Ser B*, **77**, 63 (2001).
- [13] T. Hashimoto, H. Mori, and M. Urushisaki: *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **46**, 1893 (2008).

ひまし油由来分解性エステル結合を有するポリテトラメチレングリコールの 合成とそれによるリサイクル可能なポリウレタン材料の開発

養輪 岳郎* 漆崎 美智遠* 阪口 壽一* 橋本 保*

Synthesis of Poly(Tetramethylene Ether) Glycol Containing Ester Linkages Derived from Castor Oil and Properties of Recyclable Polyurethanes Prepared Therefrom

Takero MINOWA*, Michio URUSHISAKI*, Toshikazu SAKAGUCHI*, and
Tamotsu HASHIMOTO*

(Received February 4, 2011)

Ricinoleic acid derived from castor oil was utilized for the preparation of ester linkages-containing poly(tetramethylene ether) [or poly(tetrahydrofuran)] glycol {HO-CH[(CH₂)₅CH₃]CH₂CH=CH(CH₂)₇-C(=O)O-[(CH₂)₄O]_{n-1}-(CH₂)₄-OC(=O)-(CH₂)₇-CH=CH-CH₂CH[(CH₂)₅CH₃]-OH; PTHF-RA-OH}. This polyol was reacted with two-fold amount of 4,4'-diphenylmethane diisocyanate followed by the chain-extension reaction with 1,4-butanediol to give a new polyurethane with degradable ester moieties. The obtained polyurethane (PTHF-RA-BD-PU) exhibited similar thermal and mechanical properties to those of the polyurethane (PTHF-BD-PU) prepared from poly(tetramethylene ether) [or poly(tetrahydrofuran)] glycol (PTHF-OH). The treatment of PTHF-RA-BD-PU with potassium hydroxide in tetrahydrofuran/ethanol (9/1 v/v) solvent in the presence of a small amount of water caused hydrolysis reaction of the recinolate ester linkages to give the mixture of PTHF-OH and the urethane oligomers capped with ricinoleic acid moieties. The extraction of PTHF-OH with methylene chloride from the mixture resulted in the recovery of PTHF-OH in over 90% yield based on the poly(tetrahydrofuran) segments of PTHF-RA-BD-PU. Enzymatic degradation of PTHF-RA-BD-PU was carried out with lipase as a catalyst. Both of the heterogeneous reaction with film specimens in water using phosphate buffer solution (pH 7.4) at 37 °C and the homogeneous reaction in *N,N*-dimethylformamide at 45 °C caused the decrease in the molecular weight of PTHF-RA-BD-PU. This is probably due to the lipase-catalyzed hydrolysis of the recinolate ester groups of PTHF-RA-BD-PU.

Key Words : Polyurethane, Poly(Tetramethylene Ether) Glycol, Castor Oil, Ricinoleic Acid, Polymer Degradation, Chemical Recycling

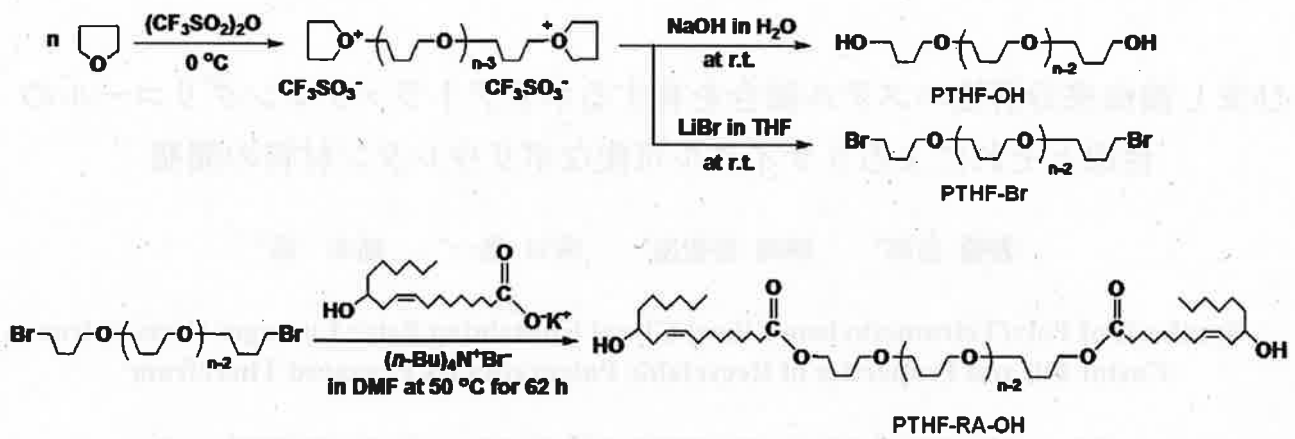
1. 緒言

廃棄材料を化学反応により分解して原料や中間体を再生し、それらを再び材料合成に利用するのがケ

ミカルリサイクルである。高分子のケミカルリサイクルの克服すべき問題は、これまで製造されてきた一般の汎用高分子材料はもともと分解するようには設計されていないため、化学分解するには高温、高圧といった過酷な分解反応条件が必要なことが多く、効率やコスト面で現実的でないことである。たとえば、フォーム材、ゴム・エラストマー、繊維、樹脂として多用されているポリウレタン材料をケミカル

* 工学研究科材料開発工学専攻

* Materials Science and Engineering Course, Graduate School of Engineering



Scheme 1. Synthesis of PTHF-based polyols (PTHF-OH and PTHF-RA-OH) and polyol precursor (PTHF-Br).

リサイクルするため、ウレタン結合を加水分解、アルコール分解、アミン分解し、原料であるポリオールを再生する試みは以前から活発に研究されている。^[1]しかし、化学的にも熱的にも安定なウレタン結合を分解するには過酷な反応条件が必要で、そのため原料ポリオールと同じポリオールを高収率で再生させることはできない。そのため、ポリウレタンのケミカルリサイクルはほとんど普及していない。

我々は、資源循環型社会に真に対応したリサイクルを実現するには、分解して原料分子を再生できる結合部位を分子構造中に有した高分子を、材料の設計の段階から意識して開発することが重要と考えた。^[2]このような高分子材料として、これまでに、酸の作用により分解するアセタール結合を分子構造中に導入したポリウレタンエラストマーとポリウレタンフォームの開発を行った。^{[2]~[5]}その性能は従来のポリウレタン材料とほぼ同じレベルであり、適度な酸強度の酸性水溶液を作用させると、室温、常圧でアセタール結合が加水分解し、対応する原料ポリオールがもともと使われた重量に対して約80%の収率で再生されることを明らかにした。^{[2]~[5]}しかし、この分解可能なポリウレタン材料は、分解生成物として原料ポリオールとともにアセトアルデヒドを発生した。アセトアルデヒドは揮発性有機物質に当たり、たとえば自動車室内や建物の中で使用されるウ

レタン材料^{[6], [7]}にとっては危険因子であると懸念され、現在のところ実用化が見送られている。

その点を踏まえ今回は、分解しても有害物質を発生しない分解性結合として、植物由来のリシノレイン酸エステル単位を有する汎用タイプのポリウレタン材料を開発することを目的とした。すでに、ポリウレタンの原料ポリオールの一つであるテトラエチレングリコールに、ひまし油を加水分解して得られるリシノレイン酸を用い、エステル結合を導入したポリオールとそれを原料に用いてポリウレタンを合成した。^[8]このポリウレタンは、アルカリの作用により室温という温和な条件下でエステル結合が選択的に加水分解され、原料であるテトラエチレングリコールとウレタンオリゴマーを生成した。^[8]本研究では、汎用ポリウレタンエラストマーの最も一般的な原料である、テトラヒドロフランの開環カチオン重合により得られるポリテトラメチレングリコールに、前報^[8]の研究と同様に植物由来で分解性のリシノレイン酸エステルを導入した新規のポリテトラメチレングリコール (PTHF-RA-OH; Scheme 1) を合成した。そしてこのポリオールを原料としてポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU; Scheme 2) を合成し、その物性を検討した。リシノレイン酸エステル構造を持つひまし油は自然界で分解する生分解性を有している。^{[9], [10]}一方、生物由来のリパーゼは代表的なエステ

Table 1. Characterization of PTHF-based Polyols (PTHF-OH and PTHF-RA-OH) and Polyol Precursor (PTHF-Br)

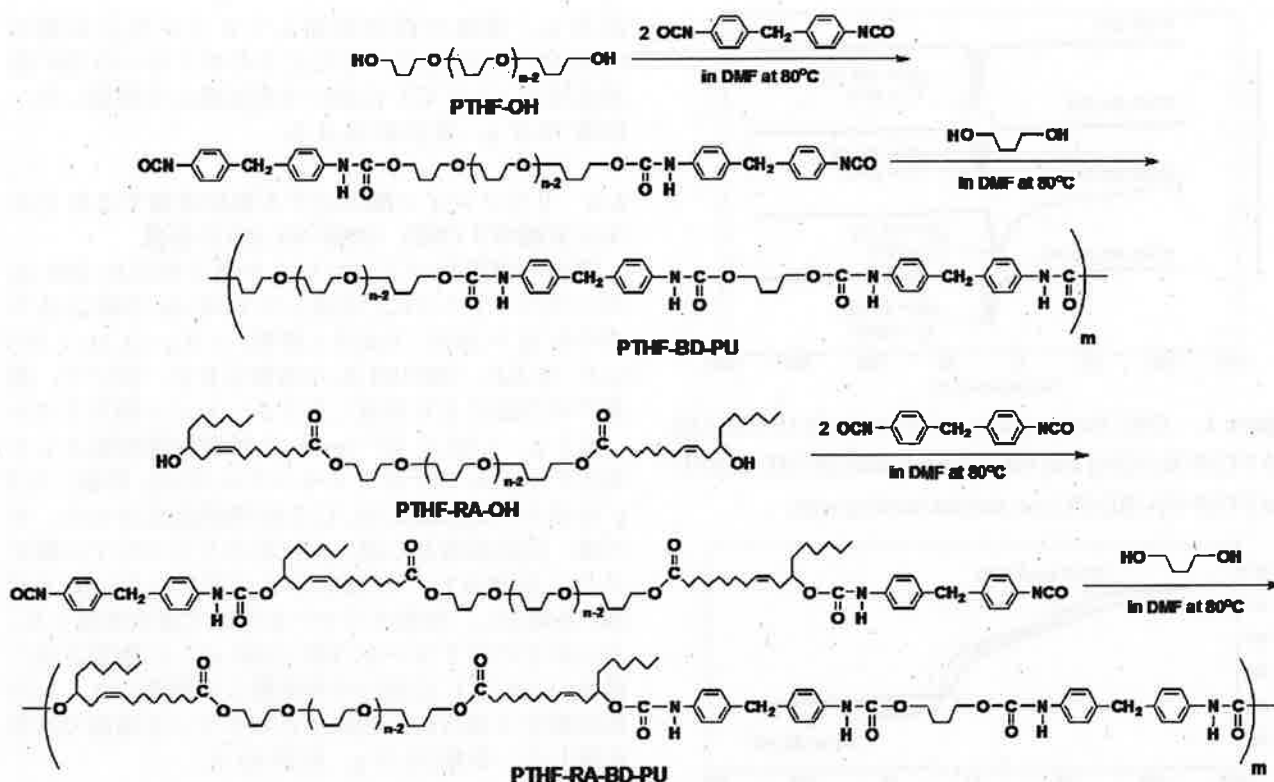
Polymer	$M_n(\text{GPC})^{\text{a}}$	$M_w/M_n(\text{GPC})^{\text{a}}$	$M_n(\text{Calc.})^{\text{b}}$	$M_n(\text{NMR})^{\text{c}}$	$M_n(\text{Titr.})^{\text{d}}$
PTHF-OH	4030	1.35	2550	—	2690
PTHF-Br	4160	1.35	2690	2830	—
PTHF-RA-OH	5240	1.28	3120	3130	3420

a) Measured by GPC with polystyrene calibration.

b) Measured based on DP_n of PTHF segment = $[\text{THF}]_0 / [\text{Initiator}]_0 \times (\text{Initiator Efficiency})^{\text{[16]}}$.

c) Measured by ^1H NMR spectroscopy.

d) Measured by acetylation method.



Scheme 2. Synthesis of PTHF-based polyurethanes (PTHF-BD-PU and PTHF-RA-BD-PU).

ル加水分解酵素である。[11],[12] そこで今回は、前報^[8]の研究で行ったアルカリ加水分解だけでなく、リパーゼを用いた酵素の作用による分解反応も検討した (Scheme 3)。

2. 実験

2.1 試薬

モノマーとして使用するテトラヒドロフラン (THF; 和光, 一級) はモレキュラーシーブスで一晩予備乾燥し, 水素化リチウムアルミニウム上で3回蒸留した。カチオン重合の開始剤として用いるトリフルオロメタンスルホン酸無水物は, 市販のトリフルオロメタンスルホン酸 (和光, 特級) に五酸化二りんを加えて90分放置して合成し蒸留した。^[13]その後少量の五酸化二りんの存在下, 再度蒸留し精製した。得られたトリフルオロメタンスルホン酸無水物はアンプルに詰め使用直前まで冷蔵庫で保存した。伊藤製油により製造されたひまし油由来リシノレン酸 (品番 H-1657) はそのまま使用した。4,4'-ジフェニルメタンジイソシアナート (和光, 一級) はそのまま使用した。1,4-ブタンジオール (和光, 特級) は水素化カルシウム上で2回蒸留し, アンプル詰めをして使用直前まで冷蔵庫で保存した。N,N-ジメチルホルムアミド (DMF; 和光, 特級) はモレキュラーシーブスで一晩予備乾燥し, 水素化カルシウム上で1回蒸留した。酵素触媒としては, *Phycomyces nitens* 由来 Lipase (活性:100~200 unit/mg; 和光, 生化学用) と *Candida rugosa* 由来 Lipase AYS Amano (活性 30,000 unit/g 以上; 和光) を使用した。酵

素による加水分解反応に用いた緩衝溶液は, りん酸緩衝溶液 pH 7.4 (和光) を使用した。その他の試薬は市販品をそのまま使用した。

2.2 臭素末端ポリ (THF) (PTHF-Br) の合成

開始剤にトリフルオロメタンスルホン酸無水物を用いて THF を開環重合すると, 二官能性の THF のリビングカチオンポリマーが生成する。^{[14]~[16]}これに停止剤として臭化リチウムを反応させ, 臭素末端のポリテトラヒドロフラン (PTHF-Br) の合成を行った。^[14]

三方コックを備え付けた 200 mL ナス型フラスコに乾燥窒素を吹き込みながらヒートガンによりフラスコを外側より熱し (~450 °C), フラスコ内部を乾燥した。THF 90 mL を注射器で入れ, 氷浴して 0 °C にした。その後, トリフルオロメタンスルホン酸無水物を注射器で 1.2 mL (7.13×10^{-3} mol, 反応溶液中で 0.080 mol/L) 加えて氷浴中で 15 分間かくはんした。その後反応溶液を, 臭化リチウム 31.7 g (0.36 mol) を THF (200 mL) に溶かした溶液に注ぎ, 重合反応を停止させた。その後, 反応溶液からエバポレーターを用いて THF を除去し, 生成物を塩化メチレンに溶解させ, ろ過により不溶な残存臭化リチウムを除去した。ろ液は 10 wt% 塩化ナトリウム水溶液で洗浄を行い, エバポレーターを用いて塩化メチレンを除去し, 室温で真空乾燥して臭素末端の PTHF-Br を回収した。さらにそのポリマーの THF 溶液を冷水 (~0 °C) に注いで再沈殿して精製した。収量 13.1 g, 重合率 16.4 %。

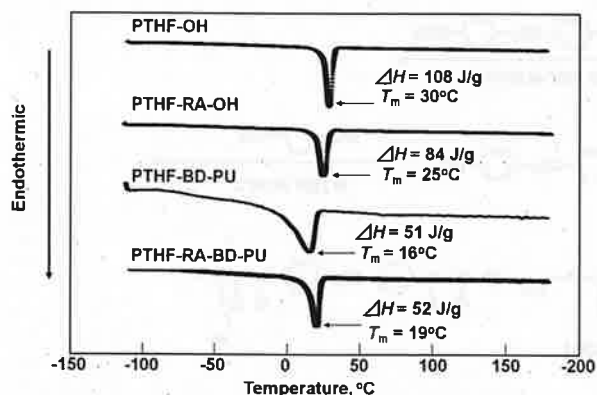


Figure 1. DSC thermograms of the polyols (PTHF-OH and PTHF-RA-OH) and the polyurethanes (PTHF-BD-PU and PTHF-RA-BD-PU) on second heating scan.

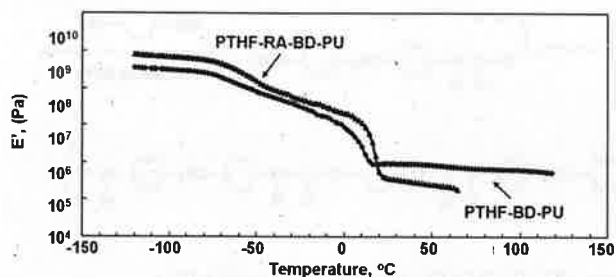


Figure 2. Temperature dependence of (E') for the polyurethanes (PTHF-BD-PU and PTHF-RA-BD-PU).

2.3 ヒドロキシ末端ポリ(THF) (PTHF-OH)の合成

PTHF-Brの合成と同様な方法で、まずTHFの二官能性リビングポリマーを合成した。停止反応は、重合溶液をNaOH 14.6 g (0.36 mol)をイオン交換水(100 mL)に溶かした水溶液に注いで行った。その後、エバポレーターによりTHFを除去し、生成物を塩化メチレンに溶解させ、10 wt%塩化ナトリウム水溶液で洗浄を行い、エバポレーターより塩化メチレンを

除去し、室温で真空乾燥してヒドロキシ末端のPTHF-OHを回収した。さらにそのポリマーのTHF溶液を冷水(〜0°C)に注いで再沈殿して精製した。収量12.8 g, 重合率16.6%。

2.4 リシノレイン酸エステル単位を有するヒドロキシ末端ポリ(THF) (PTHF-RA-OH)の合成

還流冷却管及び三方コックを備え付けた200 mLの三口フラスコに、合成したPTHF-Br (NMRにより求めた $M_n = 2830$; Table 1参照) 9.9 g (3.46×10^{-4} mol)を入れ、DMF 100 mLに溶解させた。次いで、既報^[8]の方法により合成したリシノレイン酸カリウム(3.5 g, 1.04×10^{-3} mol)と相間移動触媒として臭化テトラ α -ブチルアンモニウム(和光, 特級) 3.3 gを加え、反応温度50°Cで62時間反応させた。その後、反応溶液をろ過し未反応のリシノレイン酸カリウムを除去し、ろ液からエバポレーターによりDMFを除去し、生成ポリマーを室温で真空乾燥した。さらにそのポリマーをTHF(100 mL)に溶解させ、冷水(〜0°C)に注いで再沈殿して精製した。この再沈殿を2度行い、回収したポリマーを室温で真空乾燥した。収量11.3 g, 収率93%。

2.5 ヒドロキシ末端ポリ(THF)を用いたポリウレタン(PTHF-BD-PU)の合成

還流冷却管, 三方コック, 滴下漏斗を備えた100 mLの四口フラスコに4,4'-ジフェニルメタンジイソシアナート 0.8890 g (3.55×10^{-3} mol)を入れて乾燥窒素雰囲気下にした。そこへ、滴下漏斗を用いてPTHF-OH(ヒドロキシ含量により求めた $M_n = 2690$; Table 1参照) 4.7828 g (1.78×10^{-3} mol)をゆっくりと滴下し、80°Cで2時間反応させ両末端にイソシアナート基を有するプレポリマーを合成した(Scheme 2)。次いで、鎖延長剤として1,4-ブタンジオール 0.1601 g (1.78×10^{-3} mol)とウレタン化反応触媒としてジラウリン酸ジ α -ブチル

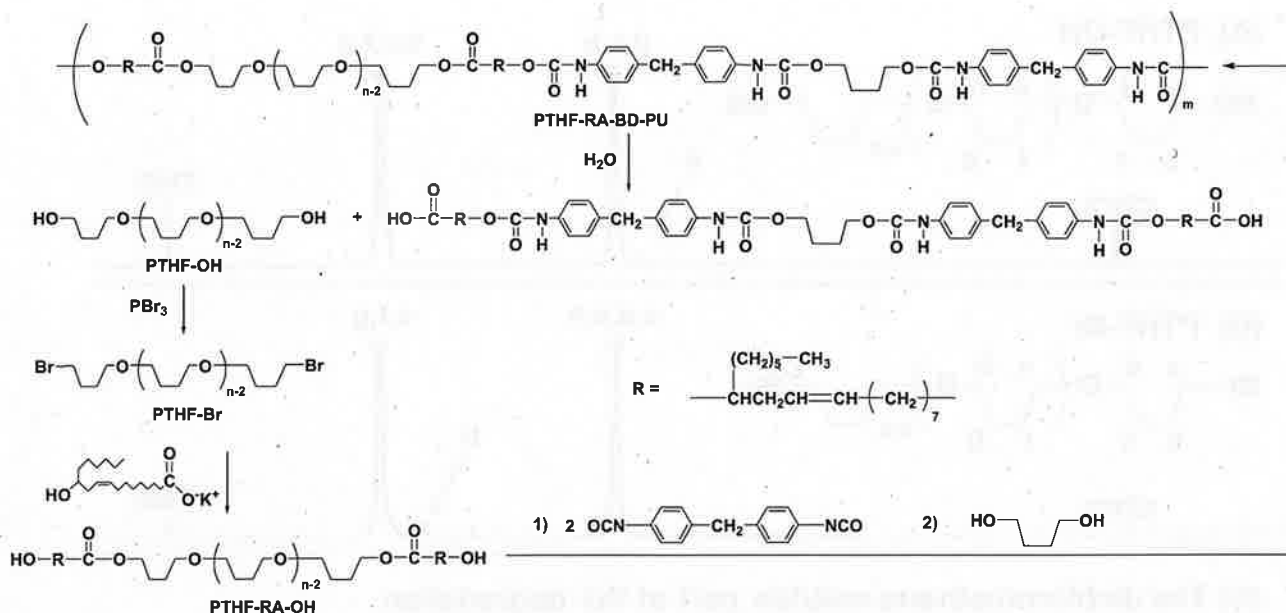
Table 2. Properties of the Polyols (PTHF-OH and PTHF-RA-OH) and the Polyurethanes (PTHF-BD-PU and PTHF-RA-BD-PU)

	$M_n^a)$	Viscoelastic Test		DSC	TG-DTA
		Rubbery Plateau Area, °C	°C	$T_m^b)$ of Soft Segment, °C	$T_d^c)$, °C
PTHF-OH	4030	-	-	30	262
PTHF-RA-OH	5240	-	-	25	355
PTHF-BD-PU	42600	20~120		16	327
PTHF-RA-BD-PU	36200	20~70		19	315

a) Measured by GPC with polystyrene calibration.

b) Melting temperature; on second heating scan.

c) Thermal decomposition temperature; 5% weight loss.



Scheme 3. Chemical recycling of PTHF-RA-BD-PU by hydrolysis of the recinolate units.

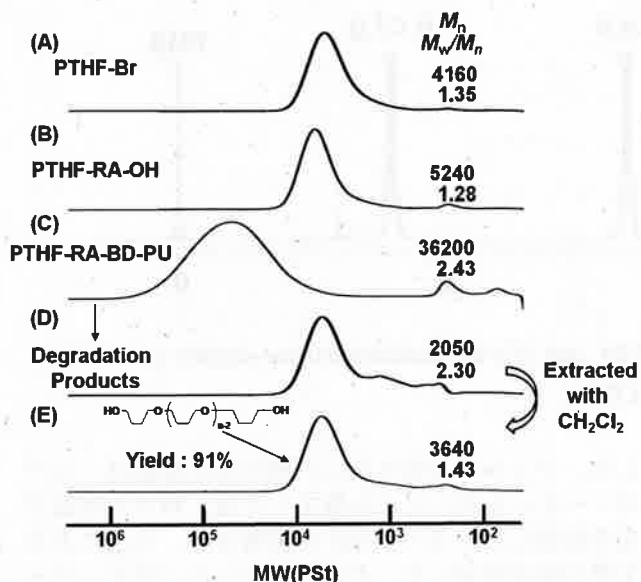


Figure 3. GPC curves of (A) PTHF-Br, (B) PTHF-RA-OH, (C) PTHF-RA-BD-PU, (D) the degradation products of PTHF-RA-BD-PU, and (E) the dichloromethane-soluble part of the degradation products of PTHF-RA-BD-PU: the degradation reaction was carried out by hydrolysis with 0.05 mol/L-KOH in ethanol/THF (9/1 v/v) solvent at room temperature.

スズ(Aldrich) を約 0.4 mg を加え, 80 °C で 2 時間反応させポリウレタンを合成した (Scheme 2). この時, 反応が進むに従い粘度が上昇するため, 適量の DMF 溶媒を加えて反応溶液を希釈した. その後反応溶液を室温に戻し, メタノール中に注いで生成ポリマーを沈殿させ回収し, 室温で真空乾燥した. さらにそのポリマーを THF (50 mL) に溶解させ, メタノール中に注ぎ再沈殿して精製した. 収量 4.5 g, 収率 77 %.

2.6 リシノレイン酸エステル単位を有するポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU) の合成

還流冷却管, 三方コック, 滴下漏斗を備えた 100 mL 四つ口フラスコに 4,4'-ジフェニルメタンジイソシアナート 0.4317 g (1.73×10^{-3} mol) を入れて乾燥窒素雰囲気下にした. そこへ, 滴下漏斗を用いて PTHF-RA-OH (ヒドロキシ含量により求めた $M_n = 3420$; Table 1 参照) 2.9528 g (0.86×10^{-3} mol) をゆっくりと滴下した後, ウレタン化反応触媒としてジラウリン酸ジ*n*-ブチルスズを約 8 mg を加え, 80 °C で 3 時間反応させ両末端にイソシアナート基を有するプレポリマーを合成した (Scheme 2). 次いで, 鎖延長剤として 1,4-ブタンジオール 0.0773 g (0.86×10^{-3} mol) を加え, 80 °C で 6 時間反応させポリウレタンを合成した (Scheme 2). この時, 反応が進むに従い粘度が上昇するため, 適量の DMF 溶媒を加えて反応溶液を希釈した. その後反応溶液を室温に戻し, メタノール中に注いで生成ポリマーを沈殿させ回収し, 室温で真空乾燥した. さらにそのポリマーを THF (50 mL) に溶解させ, メタノール中に注ぎ再沈殿して精製した. 収量 3.0 g, 収率 88 %.

2.7 リシノレイン酸エステル単位を有するポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU) のアルカリ加水分解

50 mL ナス型フラスコにポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU) 0.3 g; PTHF-RA-BD-PU:0.3 g, エステル基含量 = 1.8×10^{-4} mol/g) を入れ, THF 9.0 mL を加えて溶解させた. 次いで, 0.5 mol/L エタノール性水酸化カリウム溶液 1.0 mL (5.0×10^{-4} mol) を加えた後, イオン交換水 0.1 mL (5.6×10^{-3} mol) を加え, 室温にて 24 時間かくはんしながら反応させた. その後, エバポレーターを用いて溶媒を除去し, 生成物を室温で真空乾燥を行った. そして, その回収した分解

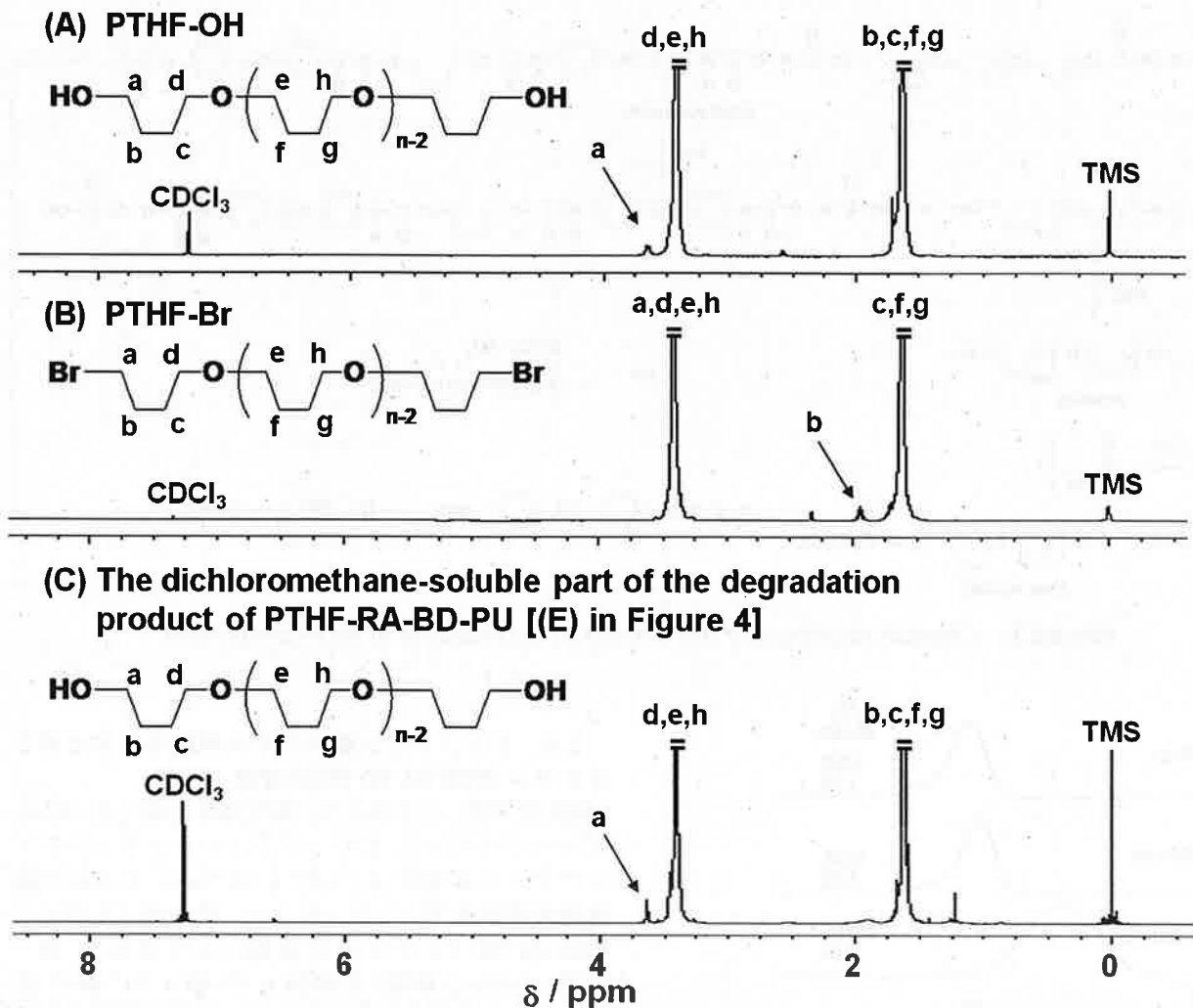


Figure 4. ¹H NMR spectrum of (A) PTHF-OH, (B) PTHF-Br, and (C) the dichloromethane-soluble part of the degradation product of PTHF-RA-BD-PU [(E) in Figure 3] in CDCl₃.

生成物混合物から、塩化メチレンを溶媒として用いて原料ポリオールに相当するヒドロキシ末端ポリ(THF) (PTHF-OH)を抽出して回収した。

2.8 リシノレイン酸エステル単位を有するポリオール (PTHF-RA-OH) およびそのポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU) の酵素による加水分解反応

酵素による加水分解反応は、緩衝溶液 (りん酸緩衝溶液 pH 7.4) 中の水系不均一反応と DMF 溶媒中の有機溶媒系均一反応により行った。水系不均一反応では、試験管にポリオールまたはポリウレタンを 40 mg 入れ、緩衝溶液 5 mL と *Phycomyces nitens* 由来 Lipase (活性: 100~200 unit/mg; 和光, 生化学用) 30 mg 加えた。このとき酵素は溶解しているが、ポリオールは粉末状で、ポリウレタンはフィルム状で浮遊していた。この不均一溶液を 37 °C でかくはんした。所定時間経過後、ポリオールの反応生成物はジエチルエーテルで抽出し、エバポレーターを用いてジエチルエーテルを除去した後、室温で真空乾燥を行い、分析に供した。一方、ポリウレタンの反応では、ポリマーフィルムを反応溶液から取り出し、イオン交換水で十分に洗浄した後、室温で真空乾燥

した。フィルムを取り出した後の反応溶液は、エバポレーターを用いて水を除去した後、残さを室温で真空乾燥した。その後 THF に溶解させ、ろ過により不溶な塩を除去した。そのろ液からエバポレーターを用いて THF を除去した後、室温で真空乾燥を行い、反応水溶液中に存在していたかもしれない分解生成物を回収した。回収したフィルムと反応溶液からの抽出物を一つにまとめて分析に供した。

有機溶媒系均一反応では、試験管にポリウレタンを 40 mg 入れ、DMF を 10 mL を加え溶解させ、*Candida rugosa* 由来 Lipase AYS Amano (活性 30,000 unit/g 以上, 和光) 40 mg を加えた。このときポリウレタンは溶解しており、酵素の一部は溶解していると考えられるが大部分は不溶のまま浮遊していた。この反応溶液を 45 °C でかくはんした。所定時間経過後、反応溶液をろ過し、そのろ液からエバポレーターを用いて DMF を除去し、反応生成物を室温で真空乾燥した。

2.9 測定

ポリマーの分子量分布はゲルパーミエーションクロマトグラフィー (GPC) を用いて測定し、標準ポリ

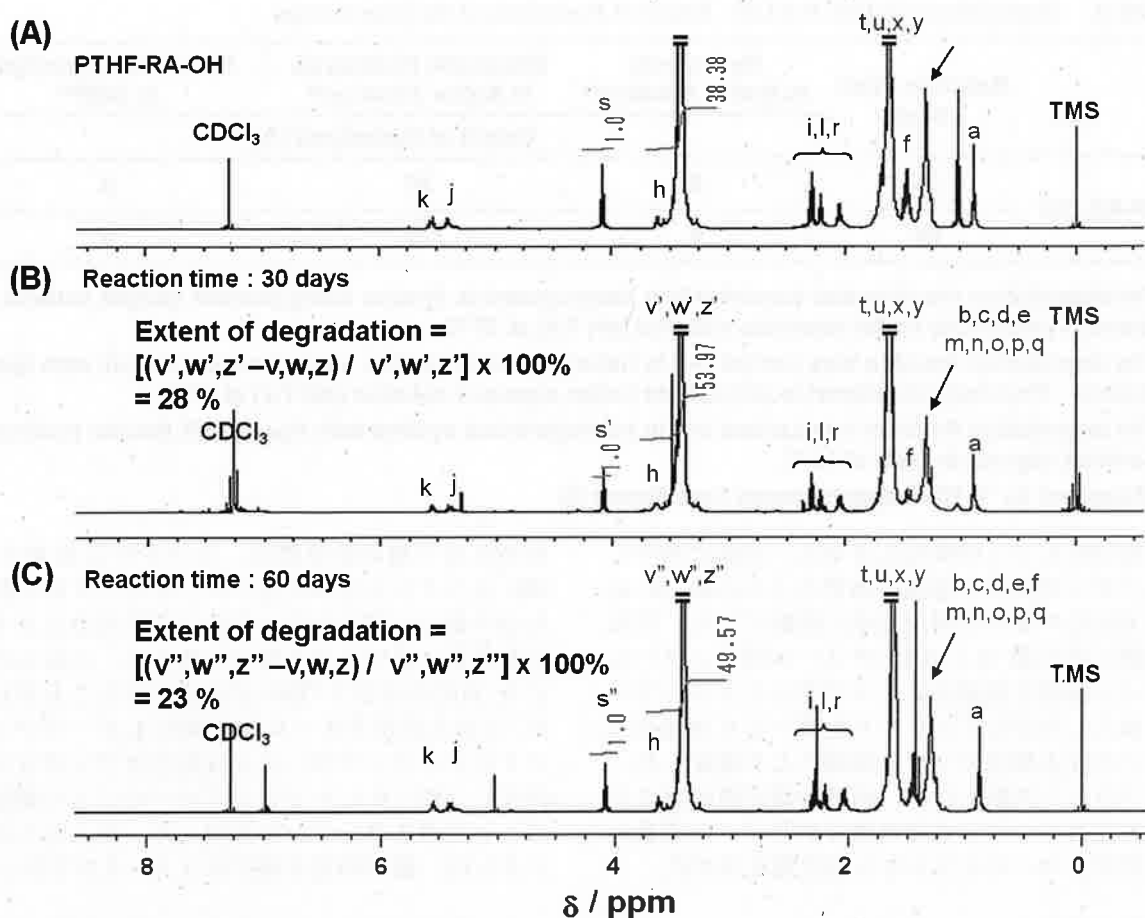


Figure 5. ^1H NMR spectra of (A) PTHF-RA-OH and (B), (C) the enzymatic degradation products of PTHF-RA-OH; the degradation reactions were carried out in heterogeneous system using powder sample with lipase (source : *Phycomyces nitens*) in phosphate buffer aqueous solution (pH 7.4) at 37°C .

スチレン (分子量: 8420000, 775000, 186000, 50000, 16700, 2800) により作成した検量線を基に数平均分子量 (M_n) と多分散度 (M_w/M_n) をポリスチレン換算で求めた。GPC 本体に島津製作所製 LC-10AD, 示差屈折計 (RI) に島津製作所製 RID-6A, プレカラムに昭和電工製 Shodex A-800P, カラムに昭和電工製ポリスチレンゲルカラム Shodex A-80M を 2 本と Shodex KF-802.5 を 1 本を直列につないで使用した。カラム温度は 40°C , 溶媒には THF を用いて, 0.5 wt/vol% に調製した試料溶液を装置に注入し, 流速 1.0 mL/min で測定した。ポリマーの分子量分別は, 分取用ゲルパーミエーションクロマトグラフィーで行った。本体に日本分光製 Tri Rotar-II, 示差屈折計 (RI) に昭和電工製 Shodex RI SE-31, プレカラムに昭和電工製 Shodex GPC K-LG, カラムに昭和電工製ポリスチレンゲルカラム Shodex Megapac GEL201 を使用した。流速 3.0 mL/min, カラム温度は室温, 溶媒にクロロホルムを使用した。核磁気共鳴スペクトルは, 日本電子製 LA-500 FT-NMR スペクトロメーターを使用し, 内部標準にテトラメチルシランを用いて, 室温で測定した。フィルム状試験片はポリマーの 2~5 wt/vol% の THF 溶液をテフロンモールド内にキャストし, 室温, 常圧で 2~3 日かけて THF を自然蒸発させ所定の厚さのポリマーフィルムを作製し, その後,

フィルムを室温で真空乾燥した。ポリマーのガラス転移温度は, 示差走査熱量測定 (DSC) によって求めた。本体にはリガク製 Thermo Plus DSC 8230L を使用し, 標準サンプルにはアルミナを入れたアルミパンを用い, 測定温度変化を昇降温度 $5^\circ\text{C}/\text{min}$ に設定し, 窒素雰囲気下で測定した。動的粘弾性測定試験 (DMA) は, ユービーエム製 Rheogel-E4000 を使用し, 試験片は幅 5 mm, 長さ 20.0 mm, 厚さ 0.5 mm のサンプルを用い, 周波数 1.0 Hz, 昇温速度 $2^\circ\text{C}/\text{min}$, 温度範囲 $-120\sim 150^\circ\text{C}$ で, 貯蔵弾性率 (E') と損失正接 ($\tan \delta$) の温度依存性を測定した。ポリマーの熱分解温度は, 熱重量分析 (TG-DTA) によって求めた。本体にはリガク製 TG-DTA 8071G1 を使用し, 標準サンプルにはアルミナの入ったプラチナパンを用い, 窒素雰囲気下で測定した。室温から 650°C までの温度範囲で昇温速度 $10^\circ\text{C}/\text{min}$ の条件で測定した。熱分解温度 (T_d) は, サンプルの 5% 重量減少時の温度とした。

ヒドロキシ末端ポリマーのヒドロキシ基含量は, アセチル化法によって求めた。ヒドロキシ末端ポリマー 0.3 g を 100 mL のナス型フラスコに取り, そこにアセチル化試薬 (無水酢酸 1.5 mL をピリジン 48.5 mL に溶解させた溶液) をホールピペットを用いて 5.0 mL を加え, 還流冷却管を備え付け, オイルバス

Table 3. Degradation of PTHF-RA-OH : Extent of Hydrolysis of the Ester Groups

	Reaction Time (day)	Hydrolysis In Buffer Solution ^{a)}	Enzymatic Hydrolysis in Buffer Solution ^{b)}	Enzymatic Hydrolysis In DMF ^{c)}
		Extent of Hydrolysis (%) ^{d)}		
PTHF-RA-OH	30	0	28	0
	60	0	23	0

- a) The degradation reaction was carried out in heterogeneous system using powder sample without lipase in phosphate buffer aqueous solution (pH 7.4) at 37°C.
 b) The degradation reaction was carried out in heterogeneous system using powder sample with lipase (source : *Phycomyces nitens*) in phosphate buffer aqueous solution (pH 7.4) at 37°C.
 c) The degradation reaction was carried out in homogeneous system with lipase AYS Amano (source : *Candida rugosa*) in DMF at 45°C.
 d) Measured by ¹H NMR spectroscopy (see Figure 5).

により約 100 °C で 2 時間反応させた。室温に冷やしてからイオン交換水を還流冷却管の上から約 15 mL 加えて未反応の無水酢酸を完全に酢酸にした。その反応溶液に指示薬 0.1 wt% エタノール性フェノールフタレイン溶液を数滴加え、マグネットスターラーでかくはんしながらビュレットを用いて 0.05 mol/L エタノール性水酸化カリウム溶液により滴定した。同様にブランク試験も行い、両者の滴定値の差より求められたヒドロキシ基相当量とポリマーの重量から、そのポリマーのヒドロキシ基含量を求めた。

求めた分子量の計算値は、エステルに由来する ¹H NMR スペクトルにおけるプロトンピークから計算した分子量およびアセチル化法により求めたヒドロキシ基含量に基づく分子量と一致した。これらのことから、目的の各ポリ(THF)が合成できたことがわかった。これらのポリオールを過剰の 4,4'-ジフェニルメタンジイソシアナートと反応させプレポリマーを合成し、次いで 1,4-ブタンジオールにより鎖延長することでポリウレタンを合成した。得られたポリウレタンは、数平均分子量が約 3 万~4 万であった。

3. 結果と考察

3.1 ポリオール (PTHF-RA-OH) 及びポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU) の合成

Table 1 に得られたポリオールの分子量及び分子量分布を示す。ポリオールのポリテトラメチレンジリコール鎖長はいずれも約 2700 であり、ポリオールの本重合系の開始剤効率^[16]を考慮した重合度から

3.2 ポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU) の熱的性質

Figure 1 に得られたポリオール及びポリウレタンの DSC サーマグラムを示す。ポリオールの融点 (T_m) はいずれも同程度の値を示した。一方、ポリウレタンでは DSC の冷却過程でポリ(THF) ソフトセグメントが結晶化するためガラス転移温度は観測されなかったが、ソフトセグメントの T_m が観測され、いずれも同程度の値を示した。ポリウレタンの T_m はポリオ

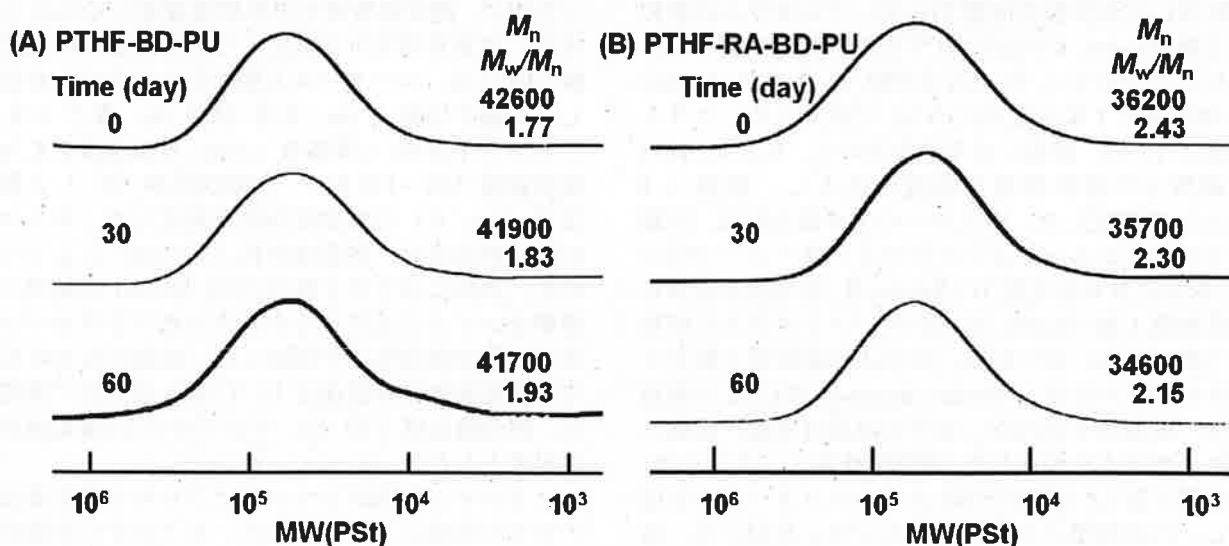


Figure 6. Change in molecular weight distribution curves of the polyurethanes measured by GPC; the degradation reactions were carried out in heterogeneous system using film specimens (10 mm x 10 mm; 1 mm thickness) without lipase in phosphate buffer aqueous solution (pH 7.4) at 37°C.

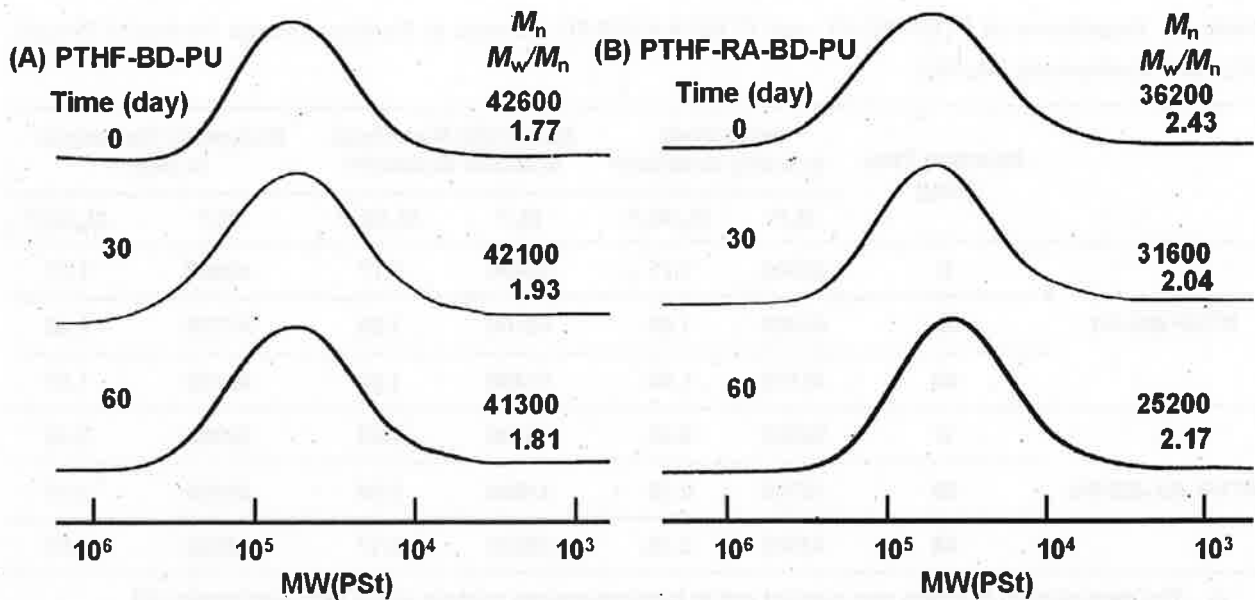


Figure 7. Change in molecular weight distribution curves of the polyurethanes measured by GPC; the degradation reactions were carried out in heterogeneous system using film specimens (10 mm x 10 mm; 1 mm thickness) with lipase (source : *Phycomyces nitens*) in phosphate buffer aqueous solution (pH 7.4) at 37°C.

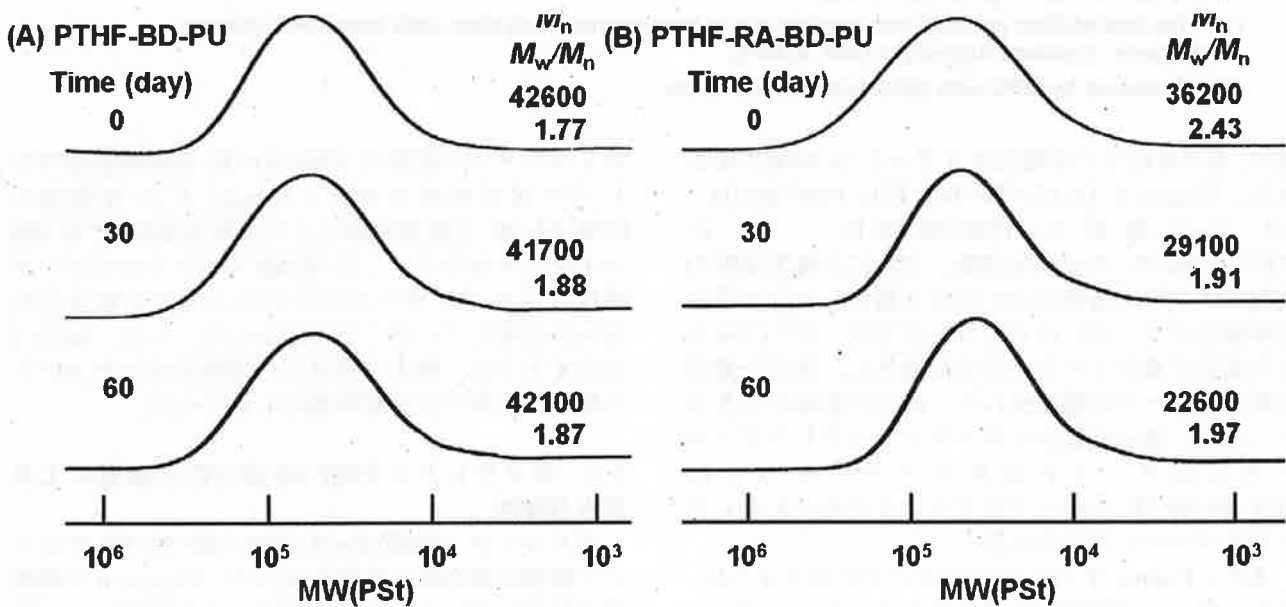


Figure 8. Change in molecular weight distribution curves of the polyurethanes measured by GPC; the degradation reactions were carried out in homogeneous system with lipase AYS Amano (source : *Candida rugosa*) in DMF at 45°C.

ールの T_m より低く、融解熱 (ΔH) も低かった。Table 2 に各ポリオール及びポリウレタンの熱的性質をまとめて示す。ポリウレタンの 5% 重量損失温度 (T_d) はいずれも 300 °C 付近であり熱的に安定であることがわかった。また、分解性エステル結合を周期的に導入した PTHF-RA-BD-PU の T_d が汎用ポリウレタン材料である PTHF-BD-PU と同程度であることがわかった。

3.3 ポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU) の力学的性質

Figure 2 に各ポリウレタンの動的粘弾性試験による貯蔵弾性率 (E') の温度依存性を示す。

PTHF-BD-PU, PTHF-RA-BD-PU のどちらのポリウレタンも 20 °C 付近でポリ (THF) ソフトセグメントの結晶の融解による急激な貯蔵弾性率の減少が見られ、この温度領域は DSC により測定された各融点と一致した。また、分解性エステル結合を有するポリウレタンの 20 °C 付近からみられるゴム状平坦領域における貯蔵弾性率は、汎用ポリウレタンである PTHF-BD-PU の貯蔵弾性率とほぼ同じであった。

3.4 ポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU) のアルカリ加水分解性

PTHF-RA-BD-PU を室温にて THF/エタノール混合溶

Table 4. Degradation of PTHF-BD-PU and PTHF-RA-BD-PU: Change in Number-Average Molecular Weight (M_n) and Polydispersity (M_w/M_n)

	Reaction Time (day)	Hydrolysis in Buffer Solution ^{a)}		Enzymatic Hydrolysis in Buffer Solution ^{b)}		Enzymatic Hydrolysis in DMF ^{c)}	
		M_n ^{d)}	M_w/M_n ^{d)}	M_n ^{d)}	M_w/M_n ^{d)}	M_n ^{d)}	M_w/M_n ^{d)}
PTHF-BD-PU	0	42600	1.77	42600	1.77	42600	1.77
	30	41900	1.83	42100	1.93	41700	1.88
	60	41700	1.93	41300	1.83	42100	1.87
PTHF-RA-BD-PU	0	36200	2.43	36200	2.43	36200	2.43
	30	35700	2.30	31600	2.04	29100	1.91
	60	34600	2.15	25200	2.17	22600	1.97

- a) The degradation reaction was carried out in heterogeneous system using film specimens (10 mm x 10 mm; 1 mm thickness) without lipase in phosphate buffer aqueous solution (pH 7.4) at 37°C.
- b) The degradation reaction was carried out in heterogeneous system using film specimens (10 mm x 10 mm; 1 mm thickness) with lipase (source : *Phycomyces nitens*) in phosphate buffer aqueous solution (pH 7.4) at 37°C.
- c) The degradation reaction was carried out in homogeneous system with lipase AYS Amano (source : *Candida rugosa*) in DMF at 45°C.
- d) Measured by GPC with polystyrene calibration.

媒中, 水の存在下で水酸化カリウムを 24 時間作用させた. Figure 3 (A) に PTHF-Br, (B) に PTHF-RA-OH, (C) に分解前の PTHF-RA-BD-PU, (D) に PTHF-RA-BD-PU の分解生成物, (E) に分解生成物の塩化メチレン可溶部の GPC により測定した分子量分布曲線を示す. (D) の GPC カーブでは, (C) でみられた高分子量のピークが完全に消失し, 低分子量部に新たなピークが観測された. 高分子量部の大きなピークは, 流出位置からポリテトラメチレングリコールであり, それ以外のフラクションは PTHF-RA-BD-PU のハードセグメントであったウレタンオリゴマーと考えられる.

また, Figure 3 (E) の GPC カーブに示すように, 塩化メチレン可溶部にはポリテトラメチレングリコールのみが 91% という高収率で回収された. その塩化メチレン可溶部の ¹H NMR スペクトルを Figure 4 (C) に示す. (A) の PTHF-OH と比較してほぼ同じで, すべてのピークが PTHF-OH のピークに帰属されることから, 本分解反応条件において, ポリウレタン分子中のエステル結合のみがアルカリの作用により加水分解し, PTHF-OH を分離回収できたことがわかった. この PTHF-RA-BD-PU の分解反応での生成物は PTHF-OH であり, PTHF-RA-BD-PU の原料であった PTHF-Br ではない (Scheme 1, Scheme 2). しかし PTHF-OH は三臭化りん (PBr₃) との反応により PTHF-Br に変換できる. [8]

3.5 ポリオール (PTHF-RA-OH) の酵素による加水分解性

ポリウレタンの原料の PTHF-RA-OH を緩衝溶液中でリパーゼを作用させた. Figure 5 に分解前の PTHF-RA-OH と酵素分解による分解生成物の ¹H NMR スペクトルを示す. この ¹H NMR スペクトルのピーク強度比よりポリオール分子中のエステル結合の約 30% が分解していることがわかった. 一方, Table 3 に示すように, 酵素を含まない緩衝溶液中や DMF 中の酵素の作用では分解は進行しなかった.

3.6 ポリウレタン (PTHF-RA-BD-PU) の酵素による加水分解性

ポリウレタン PTHF-BD-PU 及び PTHF-RA-BD-PU について酵素分解挙動の検討を行った. Figure 6 に緩衝溶液中で処理した生成物の GPC により測定した分子量分布曲線を示す. この図より, PTHF-RA-BD-PU は反応時間にかかわらず分子量や多分散度には変化はなく, 分解反応が進行していないことがわかる. このことより, PTHF-RA-BD-PU は水に対する耐性が優れていることがわかる. また, Figure 7 に緩衝溶液中において酵素を作用させた生成物の GPC により測定した分子量分布曲線を示す. この図より, PTHF-RA-BD-PU は反応時間が増加するに従い, 高分子量部の流出位置が低分子領域にシフトしており, 分子量が減少していることがわかる. 一方, 同条件下における PTHF-BD-PU の分解生成物の分子量分布曲線では, 反応時間にかかわらず分子量や多分散度には変化はなく, 分解反応が進行していないことがわかる. このことより, 分解反応はポリウレタン分子中のポリエーテル鎖やウレタン結合部分で起こる

のではなく、エステル結合部分でのみ反応が起こると考えられる。また Figure 8 に有機溶媒中において、酵素を作用させた生成物の GPC により測定した分子量分布曲線を示す。この図より、PTHF-RA-BD-PU は反応時間が増加すると、高分子量部の流出位置が低分子領域にシフトしており、分子量が減少していることがわかる。一方、同条件下で処理した PTHF-BD-PU の分子量分布曲線では、分子量分布や多分散度には変化はなく、反応時間にかかわらず分解反応が進行していないことがわかる。従って Figure 7 に示す緩衝溶液中で酵素を作用させた加水分解反応と同様に、DMF 中でも酵素の作用によりポリウレタン分子中のエステル結合部分が分解していると考えられる。Table 4 にこれらの酵素による分解実験の結果をまとめて示す。

4. 結論

汎用ポリウレタンの原料であるポリテトラメチレングリコールの分子中に植物由来のリシノレイン酸エステルを導入した新規ポリオールを合成し、得られたポリオールを用いて、分子中に周期的に分解性のエステル結合を有するポリウレタンを合成した。この分解性エステル結合を有する新規ポリウレタンは、従来の汎用ポリウレタンと類似の力学的性質を示し、熱的にも安定であることがわかった。

また、アルカリの作用による加水分解反応条件においてポリウレタン分子中のエステル結合が分解し、分解生成物より原料であるポリテトラメチレングリコールを高収率で回収することができた。したがって PTHF-RA-BD-PU はケミカルリサイクルが可能なポリウレタン材料と位置づけられ、汎用 PTMG-PU の代替ポリマーとして期待できる。また、ポリウレタン材料の原料であるポリオールのリパーゼ酵素を用いた水中での分解試験において PTHF-RA-OH 分子中のエステル結合が分解することがわかった。ポリウレタンである PTHF-RA-BD-PU は水に対する耐性は良かったが、水中および DMF 中でリパーゼ酵素を作用させると、分解反応が進行することがわかった。一方、同条件下でエステル結合を持たない PTHF-BD-PU の分解が起こっていないことから、酵素の作用によりエステル結合部分のみが分解していると考えられる。

参考文献

- [1] J. Scheirs: *Polymer Recycling*, John Wiley & Sons, Chapter 10, 339 (1998).
- [2] 橋本 保: *高分子*, **57**, 350 (2008).
- [3] T. Hashimoto, H. Mori, and M. Urushisaki: *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **46**, 1893 (2008).
- [4] T. Hashimoto, A. Umehara, and M. Urushisaki, and

- T. Kodaira: *J. Polym. Sci., Part A: Polym. Chem.*, **42**, 2766 (2004).
- [5] 橋本 保, 三澤蔵充, 漆崎美智遠: *高分子論文集*, **65**, 178 (2008).
- [6] D. Randall, S. Lee: *The Polyurethanes Book*, Wiley & Sons, Chapter 1, 1 (1987).
- [7] 松永勝治 編: *最新ポリウレタン材料と応用技術—ポリウレタン創製への道—*, シーエムシー出版, 第2編 第2章, 145 (2005).
- [8] 菱輪岳郎, 漆崎美智遠, 阪口壽一, 橋本 保: *福井大学大学院工学研究科研究報告*, **58**, 55 (2010).
- [9] 浜口隆司: *機能材料*, **26**, 45 (2006).
- [10] H. J. Wang, M. Z. Rong, M. Q. Zhang, J. Hu, H. W. Chen, and T. Czigani: *Biomacromolecules*, **9**, 615 (2008).
- [11] J. Pan, G. Li, Z. Chen, X. Chen, W. Zhu, and K. Xu: *Biomaterials*, **30**, 2975 (2009).
- [12] S. Li, M. Pignol, F. Gasc, and M. Vert: *Macromolecules*, **37**, 9798 (2004).
- [13] J. Burdon, I. Farazmand, M. Stacey, and J. C. Tatlow: *J. Chem. Soc.*, 2574 (1957).
- [14] S. Smith and A. Hubin: *J. Macromol. Sci.*, **A7**, 1399 (1973).
- [15] S. Smith, W. J. Schultz, and R. A. Newmark: *Ring-Opening Polymerization*, *ACS Symposium Series.*, **59**, 13 (1977).
- [16] T. Hashimoto, K. Takeda, and T. Kodaira: *J. Macromol. Sci., Pure and Appl. Chem.*, **A37**, 293 (2000).

The first part of the document discusses the importance of maintaining accurate records of all transactions. It emphasizes that every entry should be supported by a valid receipt or invoice. This ensures transparency and allows for easy verification of the data.

Furthermore, it is noted that the records should be kept in a secure and accessible format. Regular backups are recommended to prevent data loss in the event of a system failure or disaster. The document also mentions the need for periodic audits to ensure the integrity and accuracy of the information stored.

In addition, the text highlights the role of these records in financial reporting and tax compliance. Accurate records are essential for preparing financial statements and providing evidence in the event of an audit. The document concludes by stating that maintaining proper records is a fundamental responsibility of any business or organization.

The second part of the document provides a detailed overview of the accounting system used. It describes the various modules and features that are available to users. The system is designed to be user-friendly and efficient, allowing for quick data entry and reporting.

Key features include the ability to create and manage multiple accounts, track expenses and income, and generate various financial reports. The system also offers integration with other business systems, such as CRM and HR, to provide a comprehensive view of the organization's operations.

The document also discusses the security measures in place to protect the data. This includes user authentication, role-based access control, and data encryption. Regular security updates and patches are applied to ensure the system remains secure against emerging threats.

The third part of the document outlines the procedures for data entry and reporting. It provides step-by-step instructions for users on how to input data into the system and how to generate and review reports. The goal is to ensure that all users are able to use the system effectively and consistently.

The document also includes a section on troubleshooting common issues that may arise during data entry or reporting. This includes advice on how to handle errors, such as duplicate entries or missing data, and how to contact support if needed.

Finally, the document provides information on the system's maintenance and support. It details the schedule for updates and backups, and provides contact information for the support team. The document concludes by expressing confidence in the system's ability to meet the organization's needs and improve its financial management processes.

The fourth part of the document discusses the future plans for the accounting system. It outlines the roadmap for new features and improvements that will be implemented in the coming months. These include enhanced reporting capabilities, improved user interface, and integration with new business systems.

The document also mentions the ongoing commitment to user training and support. Regular training sessions and workshops will be held to ensure that users are up-to-date on the latest features and best practices. The support team will continue to provide prompt and helpful assistance to all users.

The document concludes by expressing a strong commitment to the organization's success and the continuous improvement of the accounting system. It invites users to provide feedback and suggestions for future enhancements.

デジタルコンパスの蟻型群ロボットへの応用 — 方位センサによる自己位置同定の向上へ —

波田 邦彦 高田 宗樹 平田 隆幸

An application of a digital compass module to ant type swarm robots — Improvement of self localization of the robot by the RDCM-802 compass module —

Kunihiko HADA*, Hiroki TAKADA* and Takayuki HIRATA*

(Received February 10, 2011)

The properties of the RDCM-802 compass module were investigated to use it as a compass of an ant type robot. The RDCM-802 compass module can determine the direction with 3-bit accuracy, which means that it outputs direction in basic 8-points (N, NE, E, SE, S, SW, W, NW). The experiments show that the outputs of the compass module as a function of direction has high reproducibility. Therefore, although the outputs of the RDCM-802 compass module are eight principal compass points, the combination of the compass module RDCM-802 and out robot driven by stepping motors enable to know the direction with high precision (about $\pm 2^\circ$).

Key Words : RDCM-802 Compass Module, Swarm Robot, Ant, Self Localization.

1. はじめに

自律分散システムは、全体を統括的に制御する集中管理部分がなく、各要素が自律的に働き、相互作用することにより、全体としての仕事を達成するシステムである。自律分散システムの特徴の大部分は、集中管理部分がないことに起因する。例えば、ある特定の仕事を効率よく達成させるのを目的にシステムを設計したとき、自律分散システムはもっとも効率の良いシステムにならないことがある。なぜなら、各要素が自律的に判断し行動するため、システム全体としての効率性が保証されていないからである。つまり、各要素の自律性に起因するシステム全体からみると冗長性が生じ、非効率性が発生する。一方、この冗長性は、短所ばかりでなく、長所も生み出す。後述するように、自律分散システムには柔軟性(flexibility)と頑健性(robustness)という長所がある。

群知能(Swarm Intelligence)は、自律分散システムによる人工知能の研究分野の一つである^[1]。群知能と

は、要素間の相互作用によって創発(emergence)現象が発生し、より高度な知的システムが現われることに注目したものである。ところで、群知能の研究にはコンピュータ・シミュレーションによるものが多い。なぜなら、コンピュータ・シミュレーションではさまざまな相互作用を試すことができるからである。しかし、現実の系を理想化および単純化したコンピュータ・シミュレーションによる研究だけでは不完全といえる。そのため、実機をもちいた群ロボットの研究がなされるようになってきた^[2]。

群ロボットの研究には、相互作用する小型ロボットがもちいられる。群ロボットに使用される個々の小型ロボットの性能は、一般的に高くない。しかし、協調行動により、単独のロボットでは不可能な仕事を達成することができるのが特徴である。個々の小型ロボットに高度な能力を要求しない群ロボットには、次のような特徴がある。1) 個々のロボットを安価に製作できる。2) 安価ゆえに、多数のロボットを製作できる。さらに、自律分散システムとしての3) 多数のロボットが協調行動をおこない仕事を達成することから、たとえ数台のロボットが故障しても群ロボット全体の仕事は影響を受けない頑健性がある。

* 知能システム工学専攻

* Department of Human & Artificial Intelligent Systems

4)用途を限定し特殊化したロボットをもちいていないので、プログラムを変えるだけで、さまざまな作業(task)をこなせるという柔軟性がある。

さて、一般的に、群ロボットの設計には大きな自由度がある。個々のロボットにどれだけの機能をもたせるか？また、どのように相互作用をさせるか？など設計に大きな自由度がある。この設計上の自由度は、両義性をもつことになる。例えば、個々のロボットを高機能化すれば、個々のロボットのコストがあがり、多数のロボットをもちいるという群ロボットとしての長所が失われていく。また、複雑すぎる相互作用の導入は、コロニーとしての協調行動に現れる創発現象の理解を困難にしてしまう可能性がある。

では、どのように群ロボットを設計すればよいのだろうか？生物現象は、創発現象の宝庫である。特に社会性昆虫(social insect)の群れとしての行動は、創発現象の典型例である。そこで、蟻や蜂などに代表される社会性昆虫の行動をヒントに、群知能を考えようとする研究がおこなわれている^[3]。例えば、餌場探索において、蟻はフェロモンを介しての情報伝達をおこなっている。蟻コロニーのフェロモンによる巣-餌場間の運搬路形成は、AOL(Ant Colony Optimization)として、最適化問題へと応用されている^{[4],[5]}。さらに、蟻の行動をヒントにした群ロボットを使った研究がおこなわれている^[6]。

さて、コロニーとしての蟻の行動は非常に興味深いものであるが、一個体として見ても、蟻は知的な行動をする^[7]。蟻は、せいぜい10万個程度のニューロンしかもっていないにもかかわらず、歩測によって移動距離を知っている^[8]。さらに、蟻が太陽の動きなどによって、体内にコンパスを持っていることが知られている^[9]。

ここでは、蟻型群ロボットを製作するために、安価な方位センサをもちいて、蟻のコンパス機能を再現できるか、また方位センサを群ロボットに搭載したときの可能性を調べた。

2. 方位センサ

2.1 デジタルコンパスモジュール RDCM-802 の概要

蟻型ロボットに搭載するデジタルコンパスとして、GEOSENSORY社(オーストラリアのRobotron Groupの一部)のRDCM-802 Digital Compass Moduleの特徴を調べた^[10]。コンパスモジュールRDCM-802は、小型・軽量で、比較的安価なため、ロボット、産業機器、のみならず、教育用、おもちゃなどに使うことが期待されている。Fig. 1に、コンパスモジュール

RDCM-802の写真を示す。

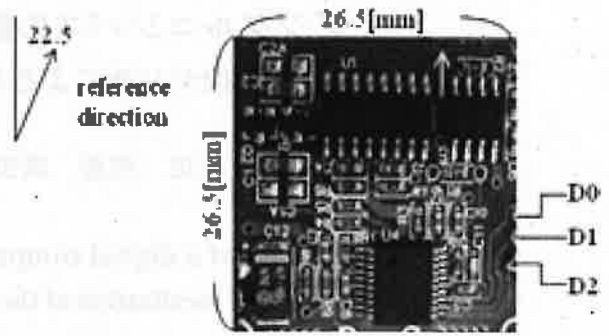


Fig. 1 RDCM-802 Compass Module (GEOSENSORY社).

コンパスモジュール RDCM-802には、磁気抵抗効果(magnetoresistive effect)を用いた磁気センサが搭載されている。磁気抵抗効果(Magnetoresistive effect: MR 効果)とは、物質に外部磁場をかけたとき、その物質の電気抵抗が変化する性質のことである。一般的には、MR 効果は半導体で大きく現れ、コンパスモジュール RDCM-802にも半導体センサが搭載されている。半導体センサは、メカニカルな部分がないため、小型軽量で高速なレスポンスをするものを作ることができる。また、”sticking problem“(方位磁針がコンパスにくっつく問題)が存在しないという特徴がある。

コンパスモジュール RDCM-802は、地球磁場に対するモジュールの方向に関して、2進数 3-bit の出力をする。つまり、モジュールが出力する方向は、8方向(N, NE, E, SE, S, SW, W, NW)である。出力は、3-bit parallel で TTLあるいはCMOS コンパチブルレベルで出力される。Fig. 1中のD0, D1, D2が3-bitの出力端子である。出力と8つの方位との関係を、Table 1(マニュアル^[10]では、NとEの出力値が反対であったので修正した)に示す。また、マニュアルによると、精度は $\pm 5^\circ$ 、ヒステリシスは $\pm 5^\circ$ 、セットリングタイム(settling time)は最大で500msである。なお、モジュールの大きさは、 $26.5 \times 26.5 \times 5\text{mm}$ である。

Table 1 コンパスモジュール RDCM-802 の出力

	N	NE	E	SE	S	SW	W	NW
D0	1	0	0	1	0	0	1	1
D1	1	1	1	0	0	0	0	1
D2	0	0	1	1	0	1	1	1

2.2 方位計測の基礎データ

コンパスモジュール RDCM-802 をもちいて方位の計測をおこなった。なお、計測した場所は、福井大学総合研究棟 I の 7 階の実験室である。コンパスモジュール RDCM-802 をゆっくりと時計回りに 1° ずつ回転させて、出力値を計測した (100 回出力値を読み取ったのち、手動で 1° ずつ回転させて計測をおこなった)。Fig. 2 は、コンパスモジュール RDCM-802 を回転させた角度に対して、8 方位の出力の比率を示したものである。

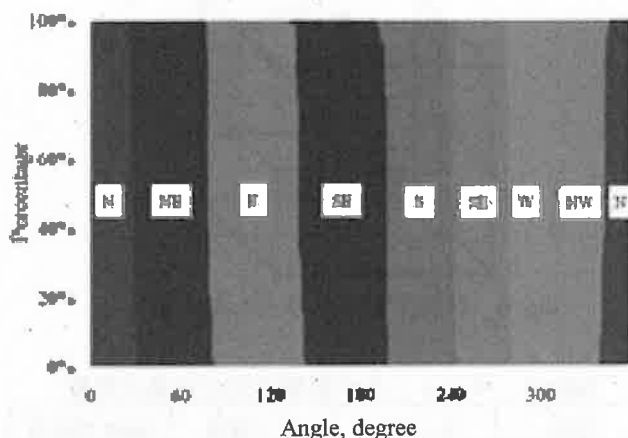


Fig. 2 コンパスモジュールを時計回りに回転させて、出力 (8 方位) の比率をプロットしたものの。

コンパスモジュール RDCM-802 の出力は、8 方位の境界付近で揺らぐ。例えば、N (北) と NE (北東) の境界値付近で、コンパスモジュールを時計回りに回転させて計測すると、最初、出力値は 100 回計測すると 100 回とも N であったものが、回転させるに伴い変化する。コンパスモジュールの回転角度が 24° から N という出力が減少し、NE という出力が増加し、 32° で NE という出力の比率が 100% になる。つまり、 $24^\circ \sim 31^\circ$ の範囲では、出力は、N と NE をゆらいでいる。

Fig. 2 から、8 方位の境界で、コンパスモジュール RDCM-802 の出力は、シャープに切り替わるのではなく、ゆらぎを伴い比率を変えながら切り替わっていくのが分かる。さらに、それぞれの方位を出力する角度の範囲は、等分割された 45° ではない。8 方位の方向の出力の範囲には、大小があることが分かった。

コンパスモジュール RDCM-802 の方位の出力の再現性を調べた。自動で計測するため、コンパスモジュール RDCM-802 を蟻型ロボット^[11]に搭載してロボットを 3 回転時計回りに回転させて計測した。

ロボットは、ステッピングモーター (日本電産サーボ KH39EM2-801) で駆動されている。KH39EM2-801 は、1-2 相励磁では、1 パルスで 0.9° 回転する。ロボットの 1 回転 (360°) を 128 分割 (ステッピングモーターへの CPU からの出力 4 パルス毎) して、コンパスモジュール RDCM-802 の出力を計測した。ロボットは、約 90 秒で 1 回転させた。

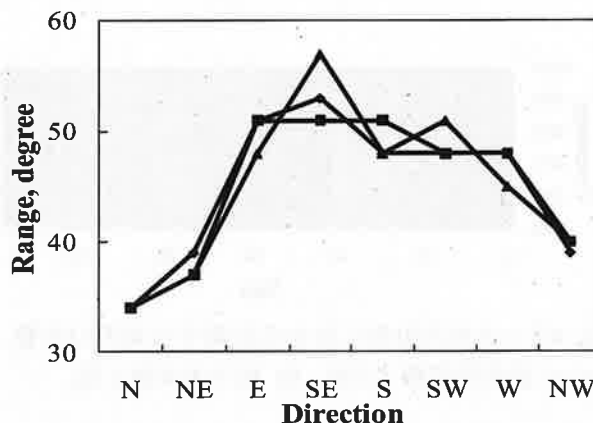


Fig. 3 8 方位を出力する範囲をそれぞれ各方位に対してプロットしたものの。3 回回転させたときの値が重ねてプロットされている。

Fig. 3 に、8 方位を示す角度範囲をそれぞれ 8 方位に対してプロットしたものを示す。なお、8 方位の境界は、出力比が 50 パーセントになったときの値をもちいた。Fig. 3 から、8 方位を示す角度範囲には、ばらつきがあることが分かる。ここで計測したコンパスモジュールの場合、E と SE の範囲が広く、N を出力する範囲は狭い。しかし、3 回回転させて計測したときの値はほぼ一致しており、同じコンパスモジュールを用いて計測したときには再現性があることが分かった。

次に、計測する場所の影響を調べるため、2 ヶ所で計測したときの結果を比較する。計測は、福井大学の総合研究棟 I の 7 階実験室と第 2 体育館 (柔剣道場) の 1 階でおこなった。計測する場所として、第 2 体育館を選んだ理由は、第 2 体育館の 1 階は剣道場として設計されており床が木造であるため、方位の計測に影響を与える可能性がある鉄骨材料などの影響が少ないと考えられるからである。Fig. 4 に、2 ヶ所での回転角度に対する出力の頻度分布を示す。計測は、コンパスモジュール RDCM-802 をロボットに搭載して自動計測によっておこなった。なお、ロボットの回転の角度の精度は、 360° を 115 分割 (ステッピングモーター 5 パルス毎) したものであった。Fig. 4 から、場所による差異はあまり大きくないことが分かる。

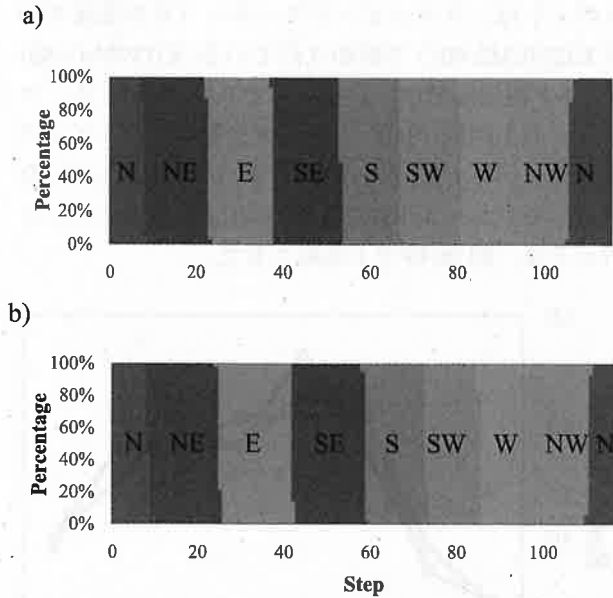


Fig. 4 8つの出力分布に対する計測する場所の影響.
a) 総合研究棟 I 7階, b) 第 2 体育館 1 階.

最後に、コンパスモジュール RDCM-802 個々の影響、つまり個体差を調べた。5つのコンパスモジュールについて、8つの方位の範囲分布を計測した。計測は、ロボットにコンパスモジュールを搭載し、1周(360°)を約140分割して、それぞれの地点で100回ずつ出力値を計測することによっておこなった。Fig. 5は、5つのコンパスモジュールそれぞれについて、8つの方位がしめる角度範囲を示している。Fig. 5から、個々のコンパスモジュールには再現性があるが(Fig. 3参照)、5つコンパスモジュールの出力には、ばらつきがあることが分かる。

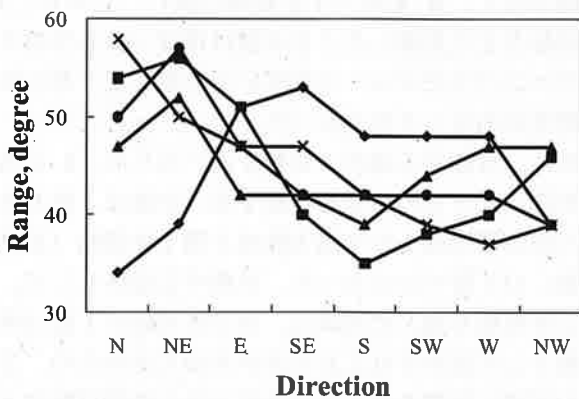


Fig. 5 コンパスモジュール間の差異. 5つのコンパスモジュールの8つの方位を示す範囲をプロットした。

3. 蟻型ロボットへの搭載

3.1 ロボット部品のセンサへの影響

我々の蟻型ロボットは、ステッピングモーター(日

本電産サーボ KH39EM2-801)、電池など磁性体を含む部品を有している。そのため、センサを搭載するためには、磁性を持つ部品の影響を考慮して、ロボットを設計しなければならない。ここでは、26の方向に関して、部品がセンサに影響を与える距離を求めた。計測は、センサをNとNEの境界方向に設置し、磁性を持つ部品をセンサに近づけ、出力値が変わったときの距離をセンサモジュールの中心から測った。26方向(ミラー指数(方向)(Fig. 6参照))について影響が出ない距離を調べた結果をTable 2に示す。

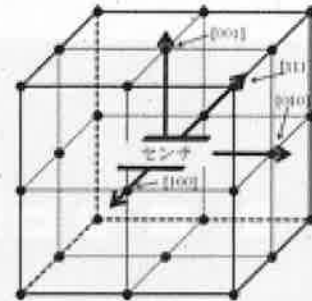


Fig. 6 計測方向(ミラーの軸指数).

Table 2 モジュールが影響を受ける最大距離

方向	モーター	単三電池	006P型電池
100	120±0	30±0	42±4.0
110	120±0	30±0	40±0
010	130±0	20±0	40±0
110	130±0	—	30±0
100	110±0	20±0	50±0
110	100±0	30±0	42±4.0
010	100±0	20±0	50±0
110	102±4	30±0	60±0
001	130±0	20±0	20±0
101	120±8.9	22±4.0	50±0
111	118±4	30±0	38±4.0
011	130±0	20±0	40±0
111	130±0	20±0	36±4.9
101	102±4	26±4.9	44±4.9
111	90±0	20±0	50±0
011	92±4	20±0	50±0
111	98±4	20±0	50±0
001	140±0	—	40±0
101	120±0	10±0	42±4.0
111	120±0	—	30±0
011	124±4.9	—	30±0
111	128±4	—	30±0
101	110±0	—	50±0
111	90±0	32±4.0	40±0
011	90±0	10±0	50±0
111	106±4.9	30±0	50±0

*) 各5回計測した平均値と標準偏差が示されている。単位は、mmであり、—は、10mm以下を意味する。

Table 2 からステッピングモーターがもっとも強くセンサに影響を与えることが分かる。また、方向によってセンサに与える影響が異なることも明らかになった。Table 2 には、掲載していないがサーボモーター (FUTABA S3003) についても計測した結果、影響する距離は、40mm 以下であった (最大はミラー指数[110]方向のとき 40mm)。蟻型ロボットのボディは、アルミニウムで製作されており、磁性体としてのステッピングモーターをセンサから 140mm 以上離して搭載すれば、良いことが分かる。Fig. 7 にセンサを搭載した蟻型ロボットを示す。

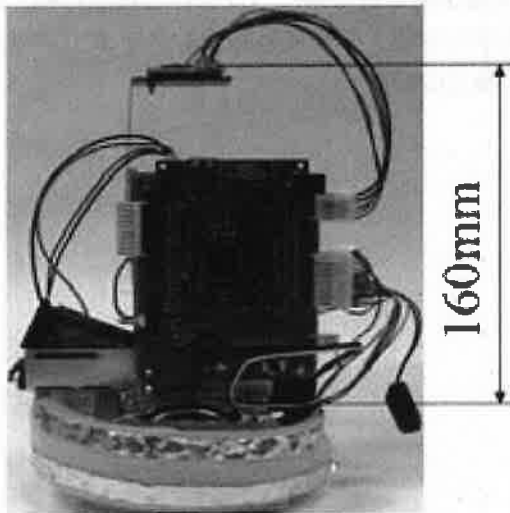


Fig. 7 コンパスモジュールを搭載したロボット。

3.2 ロボットの高精度な方位決定法へ

コンパスモジュール RDCM-802 は、方位を 3-bit の分解能で出力する (Table 1 参照)。ナイーブに考えると、このコンパスモジュールを使用した時のロボットの方位決定精度は、約 45° と思える。また、それぞれの方位を示す分布自身にもばらつきがあり、ロボットの方位決定精度は、もっと悪くなると思われるかもしれない。しかし、ステッピングモーターを駆動装置としてつけた蟻型ロボットの移動精度は、高く、約 1° の精度でロボットの回転を制御できる。Fig. 3 から同一のコンパスモジュールを用いた場合、方位分布には再現性があることが分かる。この再現性とロボットの高い回転移動精度を組み合わせることによって、ロボットは、高い精度で自己の向いている方向を知ることができる。

まず、詳細に計測した Fig. 3 のデータを既知のものとする。出力が切り替わる境界 (頻度が 50 対 50 になる角度) の角度を D_1, D_2, \dots, D_8 とする。この値をロボットに既知のレファレンスデータとして与

えておく。

ロボットを設置し、1 回転させ (回転に必要な時間は約 65 秒)、出力値が変わる角度を計測した値を M_1, M_2, \dots, M_8 とする。レファレンス値としての D_1, D_2, \dots, D_8 は、変わらないが、 M_1, M_2, \dots, M_8 は、ロボットの初期設置方向によって変わってくる。このため、なにもしないとロボット自身の方位決定精度は、低くなる。しかし、 M_1, M_2, \dots, M_8 をうまく、 D_1, D_2, \dots, D_8 と合わせる (マッチングさせる) ことによって、ロボットの初期設置方向を高い精度で決定できる。

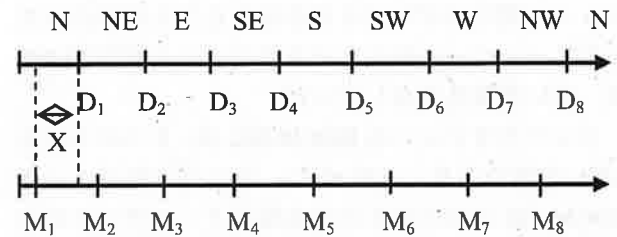


Fig. 8 レファレンス系列 $\{D_i\}$ 、計測系列 $\{M_i\}$ とずれ X の関係を示す模式図。

X をレファレンス系列 $\{D_i\}$ と計測系列 $\{M_i\}$ とのずれとする。ずれ X を考慮した 2 つの系列の要素間の差の 2 乗したものの和 $S(X)$,

$$S(X) = \sum (D_i - (M_i + X))^2 \quad (1)$$

を考える。この $S(X)$ を最小にする X を求めることによって、レファレンス系列 $\{D_i\}$ と計測系列 $\{M_i\}$ のずれを補正する。式(1)では、 $\{D_i\}$ 、 $\{M_i\}$ は定数であり、 X のみを変数である。よって、 X に関する 2 次方程式となる。

$$S(X) = \sum (X^2 + 2(M_i - D_i)X + D_i^2 - 2D_iM_i + M_i^2) \quad (2)$$

$$\begin{aligned} S(X) &= 8X^2 + (\sum 2(M_i - D_i))X + \sum (D_i^2 - 2D_iM_i + M_i^2) \\ &= 8\{(X + \sum (M_i - D_i)/8)^2 \\ &\quad + \sum (D_i^2 - 2D_iM_i + M_i^2)/8 - (\sum (M_i - D_i)/8)^2\} \end{aligned} \quad (3)$$

となる。それゆえ、

$$X = -(\sum (M_i - D_i))/8 \quad (4)$$

のとき、 $S(X)$ は最小値をとる。ここで、 \sum は $i=1$ から 8 までの和をとるものとする。

つまり、 X だけ初期設置方位を補正することによって、高い再現性をもってロボットを同じ方向に設置できる。Fig. 3 の再現性から 8 つの方位の境界をマッチングすることによって、 $\pm 1^\circ$ 程度の精度でのマッチングが期待できる。また、ロボットの回転移動精度が $\pm 1^\circ$ 程度であることを考慮すると、初期設置方位を $\pm 2^\circ$ 程度で決定できることが期待できる。

4. おわりに

コンパスモジュール RDCM-802 の特性を詳細に調べることによって、蟻型ロボットへの応用の可能性を調べた。まず、ロボットに搭載する磁性体部品のコンパスモジュール RDCM-802 の方位出力に影響を与える距離を詳細に調べた。その結果、ステッピングモーターがもっとも強くコンパスモジュールへ影響を与えることが分かった。また、ステッピングモーターをコンパスモジュールから 140mm 以上離すと影響がなくなることを明らかにした。さらに、コンパスモジュール RDCM-802 について、個々のモジュール間にはばらつきが存在することが分かった。しかし、一つ一つのコンパスモジュール RDCM-802 は、高い再現性を有していた。

コンパスモジュール RDCM-802 は、8つの方位を 3-bit で出力する。それゆえ、コンパスモジュール RDCM-802 の出力をそのまま使うと、ロボットの方向の精度は、約 $\pm 22.5^\circ$ となってしまう。しかし、高精度の回転移動能力をもつロボットに搭載した場合、高い精度で方位を知ることができることを明らかにした。

歩測によって自己位置同定をおこなう場合、ロボット同士の衝突や障害物との接触によって、ロボットの自己認識している方位と実際の方位に大きなずれが生じることがある。そのため、ロボットに方位センサを搭載することは、自己位置同定の精度向上のためには、重要なことと考えられる。しかし、高精度な方位センサの搭載は、コストやサイズ・重量の面などで困難である。ここでは、安価かつ軽量小型のコンパスモジュールをもちいても、高い精度での方向決定ができる可能性を示すことに成功した。

謝辞

本研究をおこなう上で、福井大学大学院工学研究科知能システム工学専攻非線形科学研究室のメンバーには、実験および議論において大変お世話になりました。ここに感謝の意を表させていただきます。

参考文献

- [1] E. Bonabeau, M. Dorigo, G. Theraulaz: *Swarm Intelligence*, Oxford Univ. Press, New York (1999).
- [2] F. Mondada, L. M. Gambardella, D. Floreano, S. Nolfi, J-L Deneubourg, M. Dorigo: *IEEE Robotics & Automation Magazine*, 12-2, 21 (2005).
- [3] 川村秀憲: 生命複雑系からの計算パラダイム, 森北出版, pp.1-81(2003).
- [4] M. Dorigo and T. Stützle: *Ant Colony Optimization*, MIT Press, Cambridge (2004).

- [5] M. Dorigo: *Ant Colony Optimization*, <http://iridia.ulb.ac.be/~mdorigo/ACO/>
- [6] T. Hirata, M. Yamazaki, N. Shuto : *Proceedings of SCIS&ISIS*, pp. 262-266 (2006).
- [7] 例えば, MSN エンカルタ総合大百科.
- [8] M. Wittlinger, R. Wehner, H. Wolf: *Science*, 312, 1965 (2006).
- [9] M. Müller & R. Wehner: *Naturwissenschaften*, 94, 589 (2007).
- [10] RDCM-802 Digital Compass, GEOSENSORY 社 <http://www.geosensory.com/pdf/rdcM-802.pdf>
- [11] 大場公隆: 群ロボットにおける協調行動, 福井大学大学院工学研究科知能システム工学専攻修士論文(2009).