

電子科学研究

第1卷

平成5年

北海道大学電子科学研究所

Research Institute for Electronic Science

Hokkaido University

1993(Vol.1)

発 刊 の 辞

北海道大学電子科学研究所は、50年の歴史をもつ応用電気研究所がその設置目的である「電気の応用に関する総合研究」を学術研究の動向及び時代の要請に対処して厳しく見直した結果、今後は電子技術の基盤をなす電子科学の研究へこそ向かうべきであると結論し、それに基づいて平成4年度より「電子科学に関する学理及びその応用の研究」を目的とする研究所に改組・転換して出発したものである。

本研究所は、従来の研究部門を「電子材料物性」「電子機能素子」「電子計測制御」「電子情報処理」の4つの大研究部門に統合再編成して、学術の動向に柔軟に対処できる体制をとっている。研究部門の中には、研究の単位となるものが「研究分野」の名称で設けられ、各研究部門は4ないし5の研究分野から構成されている。その中の一つは客員研究分野であり、加えて附属電子計測開発施設を有している。

本研究所での研究は各研究分野での独自の研究展開を中核としているが、工学、理学及び医学などの異なる分野の研究者を擁している特色と新しい研究体制を生かし、境界領域の共同研究にも積極的に取り組んでいる。その一例として、研究所特定研究費で、幾つかの部門の研究領域にまたがるプロジェクト研究を推進するとともに、所内措置として部門内の幾つかの研究分野が共同で行なう研究プロジェクトに経費の支援を行なっている。

本研究所では、研究成果はすべて学会誌、学術雑誌等を通じて世界に広める方針をとっているが、研究所の研究活動をより広く理解してもらうため、今年度より年刊の「電子科学研究」を刊行することとした。

「電子科学研究」は、「解説」、「プロジェクト研究報告」及び「研究」からなる。「解説」は各研究部門が順次担当執筆するもので、その研究部門に属する各研究分野が最近取り組んできた重要な研究課題に関して、専門の異なる読者にも理解できるように平易な解説を行なうことを目的としている。本号ではそれを「電子情報処理研究部門」が担当している。「プロジェクト研究報告」は、前年度から所内で行われている研究部門にまたがる研究または研究部門内の共同研究プロジェクトの報告からなる。本号では研究部門内の共同研究プロジェクトの報告2件を掲載し、現在継続中の研究所特定研究の報告は次号に回す。また、「研究」の項では、本年度の電子科学研究所研究発表会での講演原稿を研究速報として掲載する。「プロジェクト研究報告」及び「研究」の中の主なものは後日論文としてまとめられるものである。

応用電気研究所では、研究所で蓄積された特殊な計測データや新しく開発された技術などで重要ではあるが印刷公表する機会の少ないものの発表を目的として、不定期に「応用電気研究所技術報告」を刊行してきた。これは13号におよんだが、今後は技術的な研究報告は研究支援組織である技術部の報告に移し、「電子科学研究」の発刊により、この「技術報告」は廃刊とする。

この「電子科学研究」を通じて電子科学研究所の中心的な研究課題および主要な研究成果が広く理解され、学内外との共同研究へと発展することを期待する。

平成6年1月

北海道大学電子科学研究所

所長 安 藤 毅

目 次

発刊の辞

解 説（電子情報処理部門）

情報数理研究分野	1
神経情報研究分野	7
信号処理研究分野	14
感覚情報研究分野	20
並列分散処理研究分野	26

プロジェクト研究報告	35
------------------	----

研 究（研究発表会要旨）

電子材料物性部門	49
電子機能素子部門	65
電子計測制御部門	79
電子情報処理部門	92
附属電子計測開発施設	101

解 説 (電子情報処理部門)

Golden-Thompson の不等式をめぐって

情報数理研究分野 安藤 毅 1

神経細胞のパルス密度変調特性の非線形解析

神経情報研究分野 下澤 楯 夫, 清水 利 伸
馬場 欣 哉 7

量子現象を用いた新しい物質設計への分布定数回路理論の応用

信号処理研究分野 永井 信 夫, 大谷 直 毅
真田 博文, 任 捷 14

盲人の聴覚による障害物知覚機構の仮説

感覚情報研究分野 伊福部 達, 関 喜 一
梶 井 健
田 中 良 広(札幌高等盲学校) 20

随意運動制御の計算モデル

並列分散処理研究分野 川 人 光 男 26

Golden-Thompson の不等式をめぐって

情報数理研究分野 安藤 毅

この不等式は、統計力学の分野で、エルミート作用素 H 及び K をそれぞれのハミルトニアンとしてもつ系の分配関数と、それをミックスした $-(H + K)$ をハミルトニアンにもつ系の分配関数の比較として現われた

$$\text{Tr}(e^H e^K) \geq \text{Tr}(e^{H+K})$$

を指し、1965年に発表された Golden[1] と Thompson[2] の論文に由来している。

この総説では、この不等式を成立させる数学的な深い背景、また $\text{Tr}(e^{H+K})$ を下から評価する不等式の確立及びその一般化について、本質をより明快に理解してもらうために「離散化」して、行列の固有値の問題として selfcontained な解説を行なうことを目的としている。

1. はじめに

ここで H と K が「可換」すなわち $HK = KH$ の場合は $e^{H+K} = e^H e^K$ なので、上の不等式(GT 不等式と呼ぼう)は等式になってしまう。可換性は、直感的には同時対角化可能性に、また物理の言葉で言えば同時観測の可能性に対応する。(勿論ここで H, K は非有界な作用素なので、数学的には可換性の定義 $HK = KH$ はもっと厳密にしなければならないが、そこまでは立ち入らない。)

H, K が非可換のときは、 e^{H+K} と e^H, e^K の間には一般には何等の代数的な関係も存在しないが、それでも Tr (トレース)をとった「期待値」の間には上記の不等式関係が常に成り立つというのが数学的に大変興味を引くのである。

この不等式は氷山の一角で、関連した一連の不等式が成り立つことは、Lenard[3] や Thompson[4] 自身により巧みな方法で確立されているが、ここでは更に深く背景を探り、その考察を発展させて $\text{Tr}(e^{H+K})$ の下からの評価も導出しようというのであるが、本質を判りやすくするため全て行列の場合に話を限る。

この総説の数学的な内容は、数年前まで応用電気研究所の応用数学部門に在職した日合文雄と筆者の共同研究による処が多い。

2. 固有値と特異値

必要な用語の解説から始めよう。以下では、 A, B, \dots 等はすべて $n \times n$ (複素)行列とする。行列 A の固有値(eigenvalues)はその特性をある程度代表するユニタリ不変量であり、 $\lambda_1(A), \dots, \lambda_n(A)$ と書くことにする。一般にこれは複素数であり、それのみからはあまり行列そのものに関する情報は得られない。例えば、すべての固有値が 0 となるがそれ自身は行列として 0 ではないものは沢山ある。固有値がユニタリ不変量だといったのは、行列 A, B を $B = U^*AU$ なる関係で結び着けるユニタリ行列 U が存在するときは、 A の固有値と B の固有値は集合として同一になる。ここで U^*AU は A に直交座標変換を加えたものと見ることができるから、固有値は座標のとり方に依存しないことを言っている。

A がエルミート行列の場合は固有値はすべて実数となるので、

$$\lambda_1(A) \geq \dots \geq \lambda_n(A)$$

と、いつも大きい順に番号を付けることにする。エルミート行列 A に関しては固有値は、直交座標変換を除いて行列のすべての情報を與える。すなわちユニタリ行列 V を

$$V^*AV = \text{diag}(\lambda_1(A), \dots, \lambda_n(A))$$

と選ぶことができる(主軸変換)。行列 A のエルミート性は、すべての(縦)単位ベクトル x での A の期待値 x^*Ax が実数となることで特徴付けられる。そして期待値の最大値が $\lambda_1(A)$ であり、最小値が $\lambda_n(A)$ となるわけである。さらにこれらの期待値が非負(または正)のとき A は半正定値(positive semi-definite)(または正定値(positive definite))と呼ばれている。 $A \geq 0$ 及び $A > 0$ でそれぞれ A が半正定値および正定値行列であることを表わそう。

一般の行列 A の別のユニタリ不変量としては特異値(singular values) $\sigma_i(A)$ ($i = 1, \dots, n$) がある。これは、行列 A の複素共役転置行列を A^* と書くと A^*A は常に半正定値行列となるから、 A の(行列としての)絶対値(modulus) $|A|$ を A^*A の(行列としての非負の)平方根(non-negative square root) $(A^*A)^{1/2}$ で定義し、 $\sigma_i(A) \equiv \lambda_i(|A|) = \lambda_i(A^*A)^{1/2}$ で定める。これは非負な実数なので、これも

$$\sigma_1(A) \geq \dots \geq \sigma_n(A)$$

と並べる。エルミート行列の特異値はその固有値の絶対値で、また半正定値行列に対しては固有値と特異値は同じものである。

行列の固有値または特異値を計算するのは困難な場合が多い。しかし、2次方程式の根と係数の関係に見られるように、行列 A のすべての固有値の和と積は容易に計算できる。すなわち次の関係がある：

$$\sum_{i=1}^n \lambda_i(A) = \text{Tr}(A) \equiv \text{対角要素の和,}$$

$$\prod_{i=1}^n \lambda_i(A) = \det(A) \equiv \text{行列式.}$$

更に固有値を絶対値の大きな方から番号を付け

$$|\lambda_1(A)| \geq \dots \geq |\lambda_n(A)|$$

と並べておくと、この他にも(固有ベクトルでの期待値を考えて)判ることは、

$$\sigma_1(A) \geq |\lambda_1(A)|, \quad |\lambda_n(A)| \geq \sigma_n(A) \quad (1)$$

である。しかし驚くべきことに、(1)はすべての $k = 1, \dots, n$ に対して次のように一般化される：

$$\prod_{i=1}^k \sigma_i(A) \geq \prod_{i=1}^k |\lambda_i(A)|. \quad (2)$$

(ここで $k = n$ では(2)は等式になることに注意する。)

このような関係が初めて認識されたのは Weyl[5] による積分方程式の固有値に関する不等式の考察から

である。(2)は(1)からある数学的な「魔術」を使うとたちまち出てくる。

その魔術は、行列 A にその k 次の反対称積 $\wedge^k A$ を対応させる写像を考えることである。 $\wedge^k A$ は古くから行列の理論でも考察の対象となっていたが、それを $\binom{n}{k} \times \binom{n}{k}$ の行列で、その行列要素は A の k 次の正方小行列の行列式として定義したので、直感的な思考を妨げていた。物理との関連からいって一番判り易い定義は A の k 次のテンソル積 (tensor product) $\otimes^k A$ を k 次の反対称テンソル (anti-symmetric tensor) のなす部分空間での写像と考えたときの表示行列とするものである。そうすれば、次のような関係式は直ちに判る：

$$\wedge^k(AB) = \wedge^k A \cdot \wedge^k B$$

$$\wedge^k A^* = \{\wedge^k A\}^*.$$

そして一番重要なのは、反対称テンソルのみを考えたことの結果として

$$\lambda_i(\wedge^k A) = \prod_{i=1}^k \lambda_i(A), \quad (3)$$

及び

$$\sigma_1(\wedge^k A) = \prod_{i=1}^k \sigma_i(A) \quad (4)$$

が成り立つことである。したがって、驚くべき不等式群(2)は、一般的な不等式(1)を $\wedge^k A$ に適用することにより、(3)と(4)から直ちに出るのである。

ここで更に言えることは、行列 A の固有値と特異値の間の一般的な関係は(2)及びその $k = n$ の場合の等式で尽くされることである。これを数学的に正確に表現すると次のようになる。非負のベクトル $[\sigma_i]$ と複素ベクトル $[\lambda_i]$ の成分が、

$$\sigma_1 \geq \dots \geq \sigma_n$$

$$|\lambda_1| \geq \dots \geq |\lambda_n|$$

のように並んでおり、どの $k = 1, \dots, n$ でも、

$$\prod_{i=1}^k \sigma_i \geq \prod_{i=1}^k |\lambda_i|$$

なる不等式を満たし、かつ $k = n$ ではこれが等式となるなら

$$\sigma_i(A) = \sigma_i, \quad \lambda_i(A) = \lambda_i (i = 1, 2, \dots, n)$$

を満たす行列 A が存在する。勿論、これはいわゆる「存在定理」であるから、 A を作り出す algorithm はそう簡単ではない。

3. 優位関係

行列から離れて、実(縦)ベクトル $a = [a_i]$ と $b = [b_i]$ の比較に関する新しい概念を導入しよう。まず自然な順序として、 $a_i \geq b_i (i = 1, 2, \dots, n)$ のとき $a \geq b$ と書く。

次にそれぞれのベクトルの成分を大きい方から番号を付け直して

$$a_{[1]} \geq \dots \geq a_{[n]}, \quad b_{[1]} \geq \dots \geq b_{[n]}$$

と書く。 a が b に優位 (majorize) な立場にある、記号で $a \succ b$ とはどの $k = 1, \dots, n$ に対しても

$$\sum_{i=1}^k a_{[i]} \geq \sum_{i=1}^k b_{[i]} \quad (5)$$

が成立し、そして $k = n$ では

$$\sum_{i=1}^n a_i = \sum_{i=1}^n b_i \quad (6)$$

となるときとする。(5)だけを満足し、(6)までは要求しないとき準優位 (weakly majorize) な立場にあるといい、記号で $a \succ_w b$ と書くことにする。

ここで注意することは、(5)は累積したものの比較であるから、 a が b に優位な立場にあれば、確かに $a_{[1]} \geq b_{[1]}$ であるが、2番目のものからの順序に関しては一般的にはいえないし、最後の n 番目に関しては、(6)の影響で、逆に $a_{[n]} \leq b_{[n]}$ とならざるをえない。すなわち、 $a \succ b$ から $a \geq b$ は出ない。勿論、 $a \geq b$ なら $a \succ_w b$ であることは明かであるが、 $a \succ b$ は出ない。

このような優位関係の意味するところは何か。もっとも基本的な事実、 $a \succ b$ となる必要かつ充分な条件はある双確率行列 $D = [d_{ij}]_{i,j=1}^n$ が存在し

$$b = Da \quad (7)$$

の関係で a が b に変換できるという、古典的な Hardy-Littlewood-Polya (1922) の結果である。ここで D が双確率行列 (doubly stochastic) であるとは、その要素がすべて ≥ 0 で、かつ各行及び各列の和がすべて 1 となるもののことである。すなわちどの $k = 1, \dots, n$ に対しても

$$\sum_{i=1}^n d_{ik} = \sum_{j=1}^n d_{kj} = 1.$$

また並行して、 $a \succ_w b$ である必要十分条件は、 $b \leq Da$ となる双確率行列 D が存在することである。

ここでも難しいのは D の存在の保証で、そこにも

algorithm が確立されているが複雑である。実際に有用なのは、 D の存在から出てくる易しい方向である！例えば、 $b = Da$ は、すべての $i = 1, \dots, n$ に対して

$$b_i = \sum_{j=1}^n d_{ij} a_j$$

のことであるから、 $f(t)$ が凸関数ならば、

$$[f(a_i)] \succ_w [f(b_i)], \quad (8)$$

すなわち

$$a \succ b, f(t) \text{ が凸関数} \Rightarrow f(a) \succ_w f(b) \quad (9)$$

が示された。もちろんここで $f(a) = [f(a_i)]$ のことである。同じ考察から、更に $f(t)$ が増加関数であれば、 $a \succ_w b$ から上の結論が導き出せる。

優位関係が多くの不等式を生み出す根拠がここにある。

4. 対数的優位関係

正ベクトル $a, b > 0$ が $\log(a) \succ \log(b)$ の優位関係にあるとき、 a は b に対して対数的に優位 (log-majorize) な立場にあるといい $a \succ_{(\log)} b$ で表わす。これはすなわち、どの $k = 1, \dots, n$ に対しても

$$\prod_{i=1}^k a_{[i]} \geq \prod_{i=1}^k b_{[i]} \quad (10)$$

の不等式が成立し、特に $k = n$ では等式

$$\prod_{i=1}^n a_i = \prod_{i=1}^n b_i \quad (11)$$

を要求することと同じである。(10)のみを要求するとき、対数的に準優位 (weakly log-majorize) な立場にあるといい $a \succ_w b$ で表わす。

e^t は凸増加関数であるから、(10) から

$$a \succ_{(\log)} b \Rightarrow a \succ_w b \quad (12)$$

が得る。勿論逆向きは正しくないが、 $-\log t$ が凸関数なことから、

$$a > 0, a \succ b \Rightarrow a^{-1} \succ_w b^{-1} \quad (13)$$

が得る。

さてここで Weyl の不等式 (2) は、一般の行列 A の固有値と特異値の間に対数的優位関係

$$[\sigma_i(A)] \succ_{(\log)} [|\lambda_i(A)|] \quad (14)$$

が成り立っていることを示すものである。

5. 行列の和及び積の固有値と特異値

まず2つのエルミート行列 A, B の和 $A + B$ の考察から始めよう。可換性 $AB = BA$ があるときは、固有値の番号付けを除いては A, B は共通のユニタリ行列で対角化ができる。このことから $\{1, 2, \dots, n\}$ の順列 π, δ があり、どの $i = 1, \dots, n$ に対しても

$$\lambda_i(A + B) = \lambda_{\pi(i)}(A) + \lambda_{\delta(i)}(B)$$

となり、和 $A + B$ の固有値に関する情報は、 A 及び B それぞれの固有値に関する情報から完全に得られる。

可換性がないときには、 $A + B$ の固有値と A, B の固有値の間には

$$\sum_{i=1}^n \lambda_i(A + B) = \sum_{i=1}^n \lambda_i(A) + \sum_{i=1}^n \lambda_i(B)$$

を除いては、一般的な代数関係はない。しかし majorization の立場からすると多くの関係が見いだされる。いちばん簡単なのは

$$[\lambda_i(A) + \lambda_i(B)] \succ [\lambda_i(A + B)] \quad (15)$$

で、より導出が困難で Lidskii-Wielandt の定理の名前で知られているのは

$$[\lambda_i(A + B)] \succ [\lambda_i(A) + \lambda_{n-i+1}(B)] \quad (16)$$

であるが、その他にも種々の majorization の関係が証明されている。

1 個の行列の固有値と特異値が一般的に有すべき相互関係が (2) とその $k = n$ の場合の等式に尽くされるのに反して、3 つの実ベクトル $[a_i], [b_i], [c_i]$ が (15), (16) に対応した

$$[a_i] + [b_i] \succ [c_i], [c_i] \succ [a_i] + [b_{n-i+1}]$$

をはじめ上に触れたその他諸々の majorization 関係を満たしていても、果して

$$\lambda_i(A) = a_i, \lambda_i(B) = b_i$$

及び

$$\lambda_i(A + B) = c_i$$

をすべての $i = 1, \dots, n$ に対して満たすエルミート行列の対 A, B が存在するかどうかは未解決の問題である。

エルミート行列 A, B の固有値が $[\lambda_i(A)] \succ [\lambda_i(B)]$ を満たすとき、 A は B に対して優位 (majorize) な立場にあるといい $A \succ B$ と書くことにする。Hardy-Littlewood-Polya の定理の結果として、この関係はユニタリ行列の列 $U_j (j = 1, \dots, m)$ と $\alpha_j \geq 0 (j = 1, \dots, m)$ で $\sum_{j=1}^m \alpha_j = 1$ なるものが存在して

$$B = \sum_{j=1}^m \alpha_j U_j^* A U_j$$

と表示できることと同値であることが証明される。 $U_j^* A U_j$ は A の直交回転とも考えられるから、これは B が A をいろいろに直交回転したものを平均 (average) したものであることを示している。

同様に、準優位 (weak majorization) の関係 $A \succ_w B$ を $[\lambda_i(A)] \succ_w [\lambda_i(B)]$ で定義しよう。

順序関係 $A \geq B$ は通常のように $A - B \geq 0$ を表わすが、これは非常にきつい要請であり、(自明なことではないが)

$$A \geq B \Rightarrow \lambda_i(A) \geq \lambda_i(B)$$

が証明される。したがって

$$A \geq B > 0 \Rightarrow [\lambda_i(A)] \succ_{(log)} [\lambda_i(B)] \quad (17)$$

となるわけである。

次に非可換の場合は2つのエルミート行列の積はエルミートにはならないことに注意して、一般の行列 A, B 及びその AB に関しては特異値の関係を考察する。まず (15) に対応しては log-majorization の形で、

$$[\sigma_i(A) \sigma_i(B)] \succ_{(log)} [\sigma_i(AB)] \quad (18)$$

が成り立つが、この証明にも §2 で述べたような魔術が使われる。(16) に対応するものとして Gelfand-Naimark の定理と名付けられる

$$[\sigma_i(AB)] \succ [\sigma_i(A) \cdot \sigma_{n-i+1}(B)] \quad (19)$$

が成り立つが、証明は大変難しい。和の場合と同様に、(18), (19) 等の逆命題もまだ解決されていない困難な問題である。

$A, B > 0$ の間の対数的優位関係 (log-majorization) $A \succ_{(log)} B$ を $[\lambda_i(A)] \succ_{(log)} [\lambda_i(B)]$ で定義しよう。対数的準優位関係 (weak log-majorization) $A \succ_w B$ も対応して定義される。(12) から

$$A \succ_w B \Rightarrow A \succ_{(log)} B \quad (20)$$

が導かれる。

6. ユニタリ不変なノルム

ベクトル $a = [a_i]$ の大きさは普通

$$\|a\| = \left\{ \sum_{i=1}^n |a_i|^2 \right\}^{1/2}$$

で計るが、行列の大きさを計るノルム (norm) としてはその問題の性格に応じて種々のものを考える必要が起る。

行列 A のノルム $\|A\|$ とは次の条件を満たすものをいう：

- (1) $\|A\| \geq 0$ ($\|A\| = 0 \Leftrightarrow A = 0$),
- (2) $\|\gamma A\| = |\gamma| \cdot \|A\|$,
- (3) $\|A\| + \|B\| \geq \|A + B\|$.

更に、どのユニタリ行列 U, V に対しても次の条件を満たすときユニタリ不変なノルム (unitarily invariant norm) とよぶ：

- (4) $\|UAV\| = \|A\|$.

定義から当然ではあるが、最初の基本的な結果は、ユニタリ不変なノルムの値 $\|A\|$ は A の特異値だけで決まることである：

$$\|A\| = \|\text{diag}(\sigma_1(A), \dots, \sigma_n(A))\|.$$

ユニタリ不変なノルムの典型的な例としては

$$\|A\|_1 \equiv \sum_{i=1}^n \sigma_i(A) = \text{Tr}(|A|)$$

(トレース・ノルム),

$$\|A\|_2 \equiv \left\{ \sum_{i=1}^n \sigma_i(A)^2 \right\}^{1/2}$$

$$= \{\text{Tr}(A^*A)\}^{1/2} = \left\{ \sum_{i,j=1}^n |a_{ij}|^2 \right\}^{1/2}$$

(フロベニウス・ノルム),

$$\|A\|_\infty \equiv \sigma_1(A)$$

$$= \max\{\|Ax\| : \|x\| \leq 1\}$$

(スペクトル・ノルム),

があるが、これらを統一して

$$\|A\|_p \equiv \left\{ \sum_{i=1}^n \sigma_i(A)^p \right\}^{1/p}$$

$$= \{\text{Tr}(|A|^p)\}^{1/p} (1 \leq p < \infty)$$

(p -ノルム)。

majorization がノルムの比較に有効に働くのは次の Ky Fan[6] の定理に基づいている：すべてのユニタリ不変なノルムに関して

$$|A| \succ_w |B| \Rightarrow \|A\| \geq \|B\|, \quad (21)$$

特に

$$A \succ_{(\log)} B \Rightarrow \|A\| \geq \|B\| \quad (22)$$

が有効にはたらく。

7. GT 型不等式(上からの評価)

本題の GT 不等式にもどらう。 H, K が非可換なエルミート行列の対のとき、 e^{H+K} , e^H , e^K の間には代数的な関係はないと述べたが、分数巾(fractional

power)を使うことにより limit として関係付けるのが Lie-Trotter の公式である：

$$e^{H+K} = \lim_{\alpha \downarrow 0} \{e^{\alpha H/2} e^{\alpha K} e^{\alpha H/2}\}^{1/\alpha}.$$

いま $A \equiv e^{H/2}$ 及び $B \equiv e^K$ と置くと、 $A, B > 0$ となる。 $e^{\alpha H/2} = A^\alpha$, $e^{\alpha K} = B^\alpha$ であるから、上で limit をとる前の $0 < \alpha < \beta$ のときの $(A^\alpha B^\alpha A^\alpha)^{1/\alpha}$ と $(A^\beta B^\beta A^\beta)^{1/\beta}$ との比較が GT 不等式の背景の解明となるであろうというのが Thompson[4] や Hiai-Petz [7] の発想である。

どの正定値行列 C も $C = e^L$ と書かれるので、以下では A, B が一般の正定値行列として議論を進める。次の結果が基本となる： $0 < \alpha < 1$ のとき

$$ABA \succ_{(\log)} (A^\alpha B^\alpha A^\alpha)^{1/\alpha}. \quad (23)$$

これは Araki[8] によるものであるが、この証明には §2 の魔術が使える、

$$\lambda_1(ABA)^\alpha \geq \lambda_1(A^\alpha B^\alpha A^\alpha)$$

の証明に帰着される。それはさらに命題

$$I \geq ABA \Rightarrow I \geq A^\alpha B^\alpha A^\alpha$$

に、そしてついには

$$A^{-2} \geq B \Rightarrow A^{-2\alpha} \geq B^\alpha$$

なる命題と同値となるが、これは古典的な Loewner の定理(1933)： $0 < \alpha < 1$ のとき

$$X \geq Y \geq 0 \Rightarrow X^\alpha \geq Y^\alpha$$

により保証される。実際、命題 (23) と Loewner の定理とは同値なのである。

GT 不等式に戻って、(23) と Lie-Trotter の公式から次が得られる。

定理 1.

$$e^{H/2} e^K e^{H/2} \succ_{(\log)} e^{H+K}.$$

これから一般原理 (22) に支えられて、どんなユニタリ不変なノルム $\|\cdot\|$ についても

$$\|e^{H/2} e^K e^{H/2}\| \geq \|e^{H+K}\| \quad (24)$$

という GT 不等式の一般化が得られる。ここで特にトレース・ノルムを考えたときが元々の Golden-Thompson 不等式である。

このように Hiai-Petz[7] では、(23) を (24) の背後にある原理として確立した。

8. GT型不等式(下からの評価)

Ando-Kubo[9] は非可換な $A, B > 0$ の平均 (mean) をどのように定義すべきかを行列の順序関係の立場から考察した。特に幾何平均 (geometric mean) の合理的な定義がなにかを一般論の中で検討し、その結果 A, B の幾何平均 $A \# B$ としては

$$A \# B \equiv A^{1/2} (A^{-1/2} B A^{-1/2})^{1/2} A^{1/2}$$

をとるのが適当であるとの結論に達した。この定義は一見 A と B とで非対称に見えるが、実際には $A \# B = B \# A$ となるし、ユニタリ行列 U を選ぶと $A \# B = A^{1/2} U B^{1/2}$ と表示され、 A, B が可換のときは当然 $(AB)^{1/2}$ と一致する。最も重要な点は $(A, B) \rightarrow A \# B$ なる写像が各変数 A, B に関して単調(増加)写像となっていることにある。この点からいって、幾何平均の一つの候補である $e^{(\log A + \log B)/2}$ はこの単調性を欠いており適当ではない。

GT型の不等式で上からの評価のためには、 e^{H+K} と $e^{H/2} e^K e^{H/2}$ とを比較したが、下からの評価を得るために e^{H+K} と $e^{2H} \# e^{2K}$ を比較するというのが Hiai-Petz [7], Ando-Hiai[10] の発想である。

まずここでも Lie-Trotter 型の公式が成り立つことが判る：

$$e^{H+K} = \lim_{\alpha \downarrow 0} \{e^{2\alpha H} \# e^{2\alpha K}\}^{1/\alpha}.$$

したがって §7 と同じように、 $A, B > 0$ に対して $0 < \alpha < \beta$ のときの $(A^\alpha \# B^\alpha)^{1/\alpha}$ と $(A^\beta \# B^\beta)^{1/\beta}$ の比較の問題となる。これに関する基本的な結果： $0 < \alpha < 1$ のとき

$$(A^\alpha \# B^\alpha)^{1/\alpha} \underset{(\log)}{>} A \# B \quad (25)$$

が Ando-Hiai[10] により確立された。ここでもまた §2 の魔術が使えるので、結局は

$$X^{2\alpha} \geq (X^\alpha Y^\alpha X^\alpha)^{1/2} \Rightarrow X^2 \geq (XYX)^{1/2}$$

を証明することに帰着される。これに対応する古典的な結果はない。(25) と Lie-Trotter の公式を合わせると次が得られる。

定理 2.

$$e^{H+K} \underset{(\log)}{>} e^{2H} \# e^{2K}.$$

これから一般原理 (22) に支えられて、どんなユニタリ不変なノルム $\|\cdot\|$ に対しても

$$\|e^{H+K}\| \geq \|e^{2H} \# e^{2K}\| \quad (26)$$

が出る。特に

$$\mathrm{Tr}(e^{H+K}) \geq \mathrm{Tr}(e^{2H} \# e^{2K})$$

が得られる。

このように (26) の背後にある原理が (25) というのが Ando-Hiai[10] の要点である。

9. 結果の検討

Hiai-Petz[7] 及び Ando-Hiai[10] ではこの他に、エントロピーに関連した種々の不等式を導いているが、もっとも期待されるのは非古典的な行列不等式の導出であろう。この方向では Furuta[11] も研究を進めている。

【参考文献】

- [1] S. Golden, Phys. Rev. 137, B1127 (1965).
- [2] C.J. Thompson, J. Math. Phys. 6, 1812 (1965).
- [3] A. Lenard, Indiana Univ. Math. J. 21, 457 (1971).
- [4] C.J. Thompson, Indiana Univ. Math. J. 21, 469(1971).
- [5] H. Weyl, Proc. Nat. Acad. Sci. U.S.A. 36, 408 (1949).
- [6] Ky Fan, Proc. Nat. Acad. Sci. 37, 760 (1957).
- [7] F. Hiai-D. Petz, Linear Alg. Appl. 181, 153 (1993).
- [8] H. Araki, Lett. Math. Phys. 19, 1167 (1990).
- [9] F. Kubo-T. Ando, Math. Ann. 249, 205 (1979).
- [10] T. Ando-F. Hiai, Linear Alg. Appl.(印刷中)
- [11] T. Furuta, Linear Alg. Appl.(印刷中)

神経細胞のパルス密度変調特性の非線形解析

神経情報研究分野 下澤 楯夫, 清水 利伸, 馬場 欣哉

神経系を非線形な信号処理装置と見立て、Wiener の非線形解析法で同定を行った。刺激として Gauss 白色雑音を与えて、コオロギ気流感覚細胞の 1 次と 2 次の Wiener 核を推定した結果、2 次の核は 1 次の核の直積の形をしていた。従って感覚細胞は、線形なフィルタと非線形なパルス密度変調器が縦列接続したモデルと等価である。変調器は無記憶で、出力にパルスを発射する確率は入力瞬時値にのみ依存する。線形フィルタの出力も Gauss 過程なので、変調器の入力の Hermite 多項式と出力との内積計算から、入力瞬時値と出力のパルス発射確率との関係を推定できる。このようにして感覚細胞を解析した結果、1) 入力瞬時値の大小によって、活動電位の発射タイミングが 0.5 msec 程度ゆらくこと、2) 刺激のパワーレベルに応じて感度が変わる順応機構があること、が明らかになった。

1 はじめに

動物は食べ、走り、追い、つがい、戯れるものである。これらの機能は線形な要素の集合では成し得ないことは明らかで、神経系の非線形性がその動作の鍵である。また、神経系は、外界との相互作用を繰り返しながら自己組織化¹⁾する情報処理装置である。神経系の設計原理を明らかにすることは、行動の発現機構という生物学上の謎の解明のみならず、柔軟な機能をもった情報処理装置を実現するための基礎としても不可欠である。

一方で、神経系は進化の産物であり、自然は我々のためにその設計図を用意してはくれない。設計図のない機械の設計を知るためには、その機械をていねいに解体し、中身を丹念に調べて図面に描き出すか、その機械を巧妙にだまして相手の「誤動作」²⁾からその設計を推し量るのが定石である。我々は、未知の信号処理系としての神経系のシステム同定と機能解剖を行っている。一般に強い非線形性を持ったシステムの解析は容易ではない。しかし線形近似に逃げるわけには行かない。なぜなら冒頭に挙げたように、神経系から学ぶべき原理そのものが系の非線形性なくしてはあり得ないからである。そこで、システムをその非線形性まで含めて解析するための道具立てが必要になる。

我々は、Wiener の提唱に始まる、Gauss 白色雑音を用いた統計的システム同定法、いわゆる“Wiener の非線形解析法”を用いている。これは、システム全体をひとつのブラックボックスと見なして、それに白色雑音を入力したときの応答からシステムの動作を特徴づける積分変換核(Wiener 核)を抜き出すやり方である³⁾。以下は、この方法で昆虫の感覚細胞という単純な神経系を同定した際に垣間見た、奇妙で厄介な性質の一端である⁴⁾。

2 Wiener の非線形解析法の概要

Wiener の非線形解析では、系に Gauss 白色雑音(以下 GWN と略す) x を入力したときの応答 y を

$$\begin{aligned} y(t) &= \sum_{n=0}^{\infty} G_n[x; t], \\ G_n[x; t] &= \int_{R^n} h_n(\tau_1, \dots, \tau_n) \\ &\quad \cdot H_n[x(t - \tau_1), \dots, x(t - \tau_n)] \\ &\quad d\tau_1 \dots d\tau_n, \\ H_n[x_{j_1}, \dots, x_{j_n}] &= \exp\left[\frac{1}{2} \sum_{i=1}^n x_i^2\right] \end{aligned}$$

$$\cdot \left[\prod_{\nu=1}^n \left(-\frac{\partial}{\partial x_{j\nu}} \right) \right] \exp \left[-\frac{1}{2} \sum_{i=1}^L x_i^2 \right]$$

$$(1 \leq j_1 < \dots < j_n \leq L \leq n)$$

のように入力 x の直交汎関数級数に展開する。 H_n は多変数 Hermite 多項式である。 x が GWN のとき H_n は

$$H_0 = 1,$$

$$H_1[x(t_1)] = x(t_1),$$

$$H_2[x(t_1), x(t_2)] = x(t_1)x(t_2) - P\delta(t_1 - t_2),$$

⋮

(P は GWN のパワースペクトル密度, δ は Dirac のデルタ関数) のような形になるため, 級数の各項 $G_n[x; t]$ は x と積分変換核 h_n との高次の畳み込み積分である。上の直交汎関数級数をもう少し具体的に畳み込み積分の形に書き下すと,

$$\begin{aligned} y(t) = & h_0 \\ & + \int_0^\infty h_1(\tau) x(t - \tau) d\tau \\ & + \int_0^\infty \int_0^\infty h_2(\tau_1, \tau_2) \\ & \quad \cdot x(t - \tau_1) x(t - \tau_2) d\tau_1 d\tau_2 \\ & \quad - P \int_0^\infty h_2(\tau, \tau) d\tau \\ & + \\ & \quad \vdots \end{aligned}$$

となる(以下, 文中では時間のみの関数としての信号しか扱わないので, ここでは因果律をみたく積分範囲の下限を 0 としている)。この積分変換核 h_n を n 次の Wiener 核と呼ぶ。 n 次の Wiener 核は自乗可積分かつ各変数について対称な関数である。この展開は線形系における入出力関係を表す畳み込み積分 $y(t) = \int k(\tau) x(t - \tau) d\tau$ の形式的な拡張であり, Wiener 核はいわば線形系におけるインパルス応答の考え方の一般化である⁵⁾。

GWN 入力と応答から未知の系の Wiener 核を推定するには, Lee と Schetzen による入出力間の多重の相互相関をとる方法⁶⁾ を用いる。それによれば

$$\begin{aligned} h_n(\tau_1, \dots, \tau_n) \\ = \frac{1}{n! P^n} \frac{\{y(t) - \sum_{\nu=0}^{n-1} G_\nu[x; t]\}}{\cdot x(t - \tau_1) \cdots x(t - \tau_n)} \end{aligned}$$

と再帰的に求めることができる。

3 実験と結果

コオロギやゴキブリは腹部後端に“尾葉”と呼ばれる一対の突起をもち, 各々の尾葉には数百本の細かい毛が生えている。これらの毛は“気流感覚毛”と呼ばれ, 周囲の空気の動きを検出している⁷⁾。

各々の気流感覚毛の根元には感覚神経細胞があり, 細胞の先端部は毛が傾くと圧縮応力を受ける。感覚細胞は, 毛の傾きに関する情報を活動電位(幅 0.5 msec 程度の電氣的なパルス)の列に変換して中枢へ伝える。

GWN で周りの空気を機械的に駆動し, 感覚細胞の活動電位のパルス列を出力として, この気流感覚器の Wiener 核を求めた(図 1)。活動電位を 1 V, 0.5 msec のパルスの有無に直してあるので, 得られた Wiener 核は出力パルスの発射確率の時間変化を表わすことになる。

感覚細胞の Wiener 核(図 1)を見ると, 2 次の核は 1 次の核をふたつ縦横に並べて積をとった形になっている。つまり, ある自乗可積分な関数 $f: \mathbf{R} \rightarrow \mathbf{R}$ が存在して, 1 次の核 $h_1(\tau)$ は $f(\tau)$ に, 2 次の核 $h_2(\tau_1, \tau_2)$ は $f(\tau_1) \cdot f(\tau_2)$ にそれぞれ比例していることになる。

このように 2 次の核が 1 次の核の積の形に書ける最も単純なモデルは, 図 2 に示すような, 線形要素と記

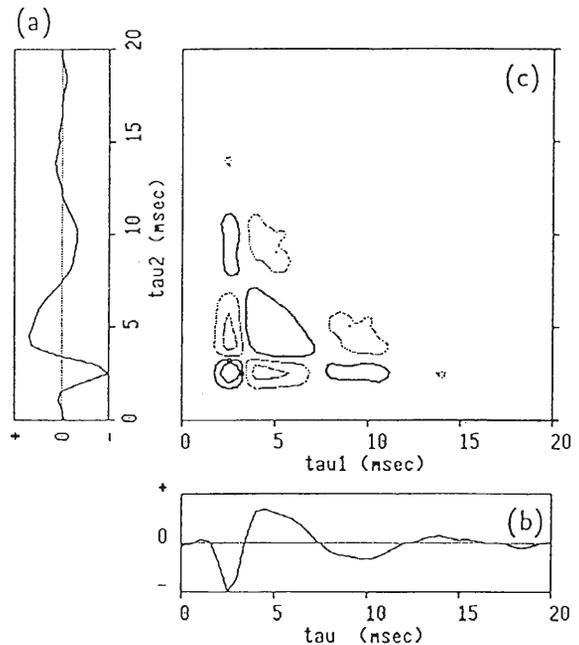


図 1 感覚神経細胞の 1 次(a,b)と 2 次(c)の Wiener 核。時間スケールは msec

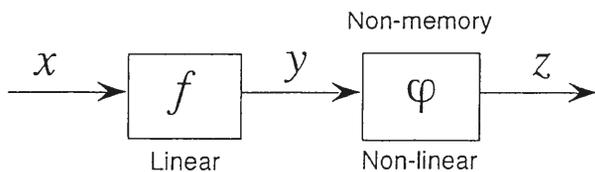


図2 感覚細胞の等価モデル

憶のない非線形要素との縦列接続である。ここで言う線形要素とは自乗可積分な変換核との畳み込みの操作であり、変換核の Fourier 変換を周波数伝達函数にもつ線形フィルタである。記憶のない非線形要素は、出力パルスの発射確率はその瞬間の入力信号の瞬時値だけで決まる、非線形なパルス密度変調器である。

図2のモデル全体の1次の Wiener 核 h_1 は線形要素のインパルス応答 f に比例する。従って線形要素 f は1次の核 h_1 に適当な規格化を施せば得られる。後述の非線形要素の推定では、その入力の分散 (σ_y^2) を振幅基準として用いるので、ここでは出力 y の実効値 (σ_y) が1になるように規格化する(インパルス応答 f の自乗ノルムを $\frac{1}{P}$ にとればよい)。

次に非線形要素 φ を推定する。まず出力 z のパルス発射確率 \tilde{z} を入力 y の Hermite 多項式に展開する。

$$\tilde{z}(t) = \varphi(y(t)) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n H_n(y(t)/\sigma_y)$$

この要素への入力 $y(t) = \int f(\tau)x(t-\tau) d\tau$ がやはり Gauss 過程であることから、この級数の各項は互いに直交する。従って各項の係数は入力の Hermite 多項式と出力との内積計算から求まる。すなわち、

$$a_n = \frac{1}{n!} \overline{z(t) H_n(y(t)/\sigma_y)}$$

この方法で実際に感覚細胞の無記憶非線形要素(パルス密度変調器の変調特性)を推定すると、図3 A のような非単調な山型のカーブを描く。 y とパルス列 z から、 $y(t)$ の値ごとにパルスの出た数を数えると、図3 B のヒストグラムが得られ、A と B はよく合っている。入力瞬時値 $y(t)$ がある一定の値を超えると感覚細胞のパルス発射確率 $\tilde{z}(t)$ は逆に減少するようになる。これまでの神経生理学の知見では、神経細胞の非線形性といえはしきい値特性もしくはシグモイド特性と相場が決まっている。このようなある強さ以上の入力で応答がなくなる上閾値現象は、中枢の神経細胞でのみ観察され、神経細胞が相互に活動を抑えあう側

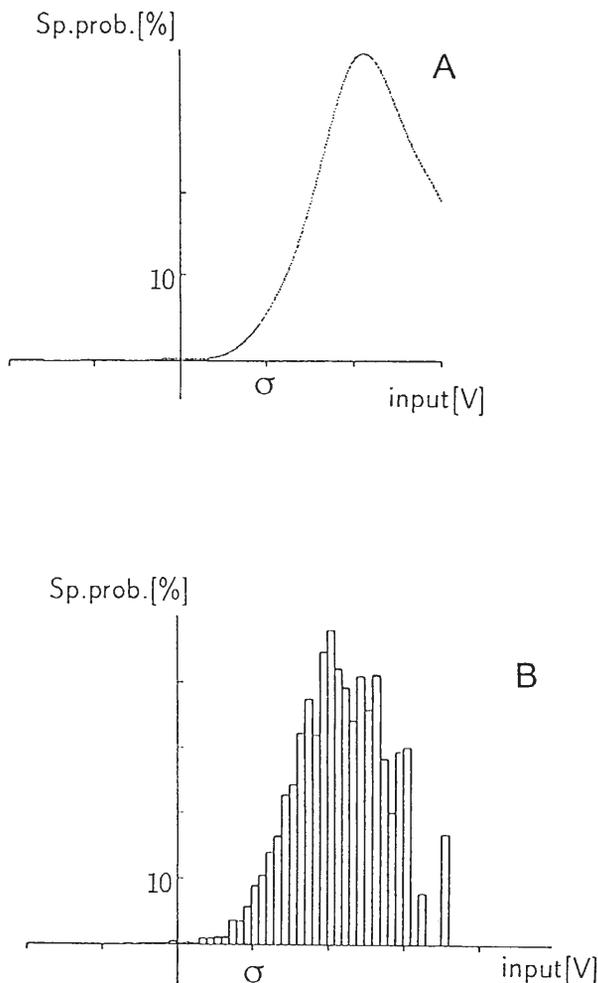


図3 A: 感覚細胞の非線形要素 φ の出力パルス発射確率。横軸は変調器への入力瞬時値。B: 内積計算ではなく、入力が各瞬時値をとったところから出ているパルスを数えたヒストグラム

抑制効果によると説明されている⁸⁾。では、単一の感覚細胞で見られたこの奇妙な特性はどう解釈すればよいのだろうか。

まず、これまでに神経生理学で知られているパルス密度への変換特性は、準静的な方法で測ったものである。つまり、ある一定の強さの刺激を与えて、発射される神経パルスを数え、単位時間あたりの平均パルス頻度と入力の強さとの関係を描いたものである。一般に、神経細胞は刺激を受けてからパルスを発生するまでに若干の時間がかかる。刺激が強ければパルスは早めに発生し、刺激が弱ければパルスは遅れて発生する。つまり、刺激の受容から神経パルス発生までの間には、神経細胞膜上の電位依存性イオンチャネルによる膜

キャパシタンスの充電などの物理化学的なプロセス(決定論的なダイナミクス)が働いている。実際の神経細胞では同じ入力波形に対してもパルスの発生のタイミングはかなりのゆらぎを示す。このゆらぎは、一見確率過程を内に含むかのように振る舞う⁹⁾。このため神経生理学では、刺激(入力事象)や運動(出力事象)などと単一神経細胞の活動を関連づけようとするとき、同じ事象と神経活動の組を繰り返し観測し、神経パルスの発射確率が時間とともにどう変わるかを示すヒストグラムを作って、事象の波形と較べる。つまり、単一の神経細胞の出力をパルスの発射確率として統計的に扱わなくてはならない¹⁰⁾。

図2のモデルでは非線形要素 φ を無記憶としているし、時間シフト(遅延要素)は線形だから、系全体の時間シフト量は平均化されて線形要素 f の推定値に含まれている。つまり f は、感覚細胞がインパルス状の刺激を受けてから自分でパルスを発射するまでの平均の時間遅れを含んでいる。従って、非線形要素 φ のみを見ると、その入力が大きいたときにはその出力パルスは平均より“早めに”出るであろうし、入力が小さければ平均より“遅れて”出ることが予測できる。図3で見た山型の変調特性はパルス発射タイミングのこのゆらぎが非線形要素の推定に及ぼした影響に違いない。

そこで、出力パルス列 z をわずかに遅らせて、内積 $a_n^{(\tau)} = \frac{1}{n!} z(t - \tau) H_n(y(t)/\sigma_y)$ をとって非線形要素の特性 $\varphi^{(\tau)}$ を求めてみた。函数 $\varphi^{(\tau)} (= \sum a_n^{(\tau)} H_n)$ は、パルス密度変調器の平均の時間遅れより τ だけ前の時刻でのパルス発射確率を表す。こうして推定された $\varphi^{(\tau)}$ は、図4 Aのように、入力瞬時値の高いところでパルス発射確率が高くなっている。入力が大きければパルスの発射時刻は平均より早まるのである。このため、時間遅れ量を全て線形要素 f に押し込めて、内積計算により非線形要素 φ を推定すると、出力パルスが発射された時点での入力 y はまだ低い値であり、入力 y が高い値に達する時点では出力パルスの発射確率は低く見積もられることになる。これが図3 Aの奇妙な特性の解釈である。

ここで、図3 Aと図4 Aとを合計した特性 $\varphi + \varphi^{(\tau)}$ を求めると、一般になじみの深いシグモイドが得られる(図4 B)。すなわち、非線形要素 φ は、ある時刻の近傍のどこかにパルスを発生させる(平均的)確率でみ

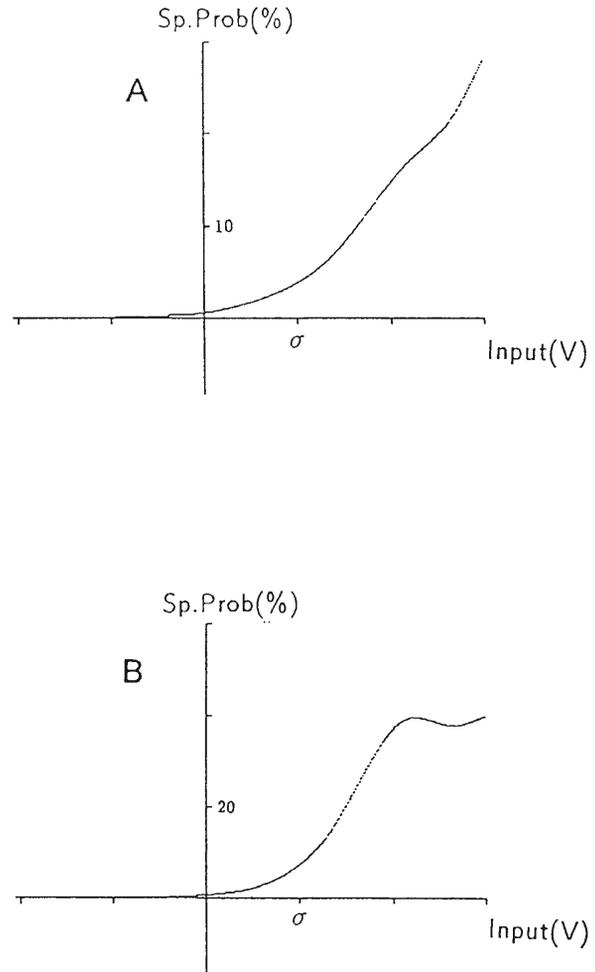


図4 A: 出力 z を入力 y に対して0.5 msec遅らせて推定した場合のパルス密度変調器 φ の特性。
B: Aとまったく遅らせない場合(図3 A)とのパルス密度変調器 φ の特性の和

れば入力のシグモイド函数と考えてよい。

このようにして抽出した線形要素 f と非線形要素 φ の縦列接続モデルが、系の振る舞いをどの程度表現できるか見てみよう。

まず、ある神経細胞の活動を記録し、20秒間のGWN刺激波形 x と神経パルス出力 z から f と φ を推定する。ついで、 f と φ の推定に用いたものとは別のGWN波形を150 msec分だけ切り出して、同じ神経細胞に刺激として繰り返し200回与え、小さな時間幅に出力パルスが出現する回数を測ってヒストグラム(Post-Stimulus Time Histogram: PSTH)を得る。PSTHの縦軸を刺激回数で割れば、入力波形 x に対する神経パルスの発射確率 \bar{z} の実測値とみなすことが

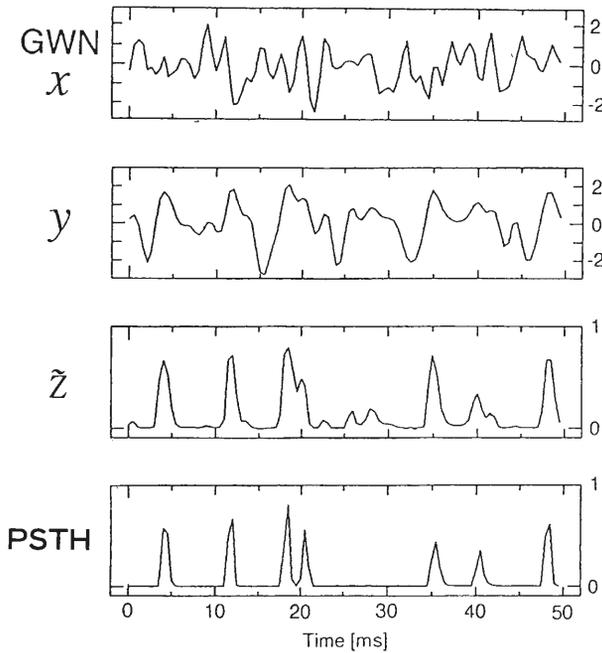


図5 推定された f と φ のモデルに刺激波形を与えたときに予測される f の出力 y と φ の出力 z 。PSTH は、同じ刺激波形を繰り返し与えて、出力パルスを数えたヒストグラム。

出来る(図5)。前もって推定された f と φ にこの150 msec 分の GWN 波形を与えてモデルの出力 z を予測し、実測値(PSTH)と比べる。 z は実際の出力をかなりよく表わしていることが分かる。

このように、Wiener の非線形解析法を変形することによって、高次の Wiener 核という抽象的表現から抜け出して、ある程度まで系の物理的構造と関連づけながら神経系の振る舞いを記述できることが分かる。

4 問題点

わずか 0.5 msec のパルスタイミングの違いが φ の推定に大きな影響を及ぼす。つまり φ はパルス密度変調器であるとともにパルス位置変調器のようにも振る舞う。これに関連して、この系の出力パルスの平均頻度とパルス列に載る信号の周波数帯域の関係を見てみよう。

図5の PSTH に見るように、この系はたかだか10パルス/50 msec、つまり200パルス/sec程度でパルス列を送り出している。一方、その上に載る変調信号 y の周波数帯域幅も200 Hz程度である。搬送波のパルスレート信号の帯域幅の何十倍もの高さにとる工学

的なパルス密度変調とはまるで違う「奇妙な」変調系を調べていることに気付くであろう¹¹⁾。

そもそも便宜上ここまで暗黙裡に用いてきた「変調(encoding)」というコトバは、その逆操作としての「復調(decoding)」と対比して初めて意味を持つ。そして「変調-復調」は、その過程で何ら情報の取捨選択が行われない全くの「伝送経路」についての概念である。その意味では、ここで「変調」というコトバを用いるのはほんとうは好ましいことではない。

なぜなら第一に、感覚受容から運動制御にいたるまでの神経系における情報処理の過程で我々の興味を引くのは、神経系が外界の種々雑多な物理量の時間変化(信号)の中から、繁殖成功率(自らを作り上げた遺伝子群のコピー効率)¹²⁾を上げ得る情報を抽出してゆく過程である。それは裏を返せば「いかに(余分なものを)捨てるか」であって、「いかに保つか」ではない。上に述べた感覚細胞の奇妙な振る舞いは、それが単なる伝送路ではなく、中枢神経系での処理の前に既に感覚細胞が情報の取捨選択を行っている可能性を示している。

さらに問題なのは、感覚細胞からの情報の受け手である中枢神経系が、受け取ったパルス列からどのような情報をどのような規則に従って取り出しているのか、それ自体がこれから明らかにされることである点である。

この感覚細胞にはもっといやな性質がある。同一の感覚細胞に与える刺激入力のパワーを変えてパルス密度変調特性を推定すると、その特性は入力強度につれて変わる。つまり、線形要素 f が変わらないとして、無記憶非線形要素 φ への入力瞬時値をその分散で規格化した量を横軸にとると、入力強度の如何に関わらず似たような形のパルス密度変調特性が得られるのである(図6)。もし系が自ら変わったりしないものなら、図6(a)を推定してから刺激入力を10 dB低くすると、(a)の中央部 $1/3$ しか見ないことになるから、新しい刺激の実効値 σ' で特性を描けば $3\sigma'$ でたかだか5%くらいのパルス発射確率を与えるなどらかな特性を示す筈である。しかし、この細胞は新しい刺激の実効値の2倍程度のところで30%ものパルス発射確率を示すのである。つまりこの感覚細胞は刺激のパワーによってパルス密度変調器としての感度を2桁以上にわたって変える¹³⁾ことが明らかになった。この感度変化は1秒

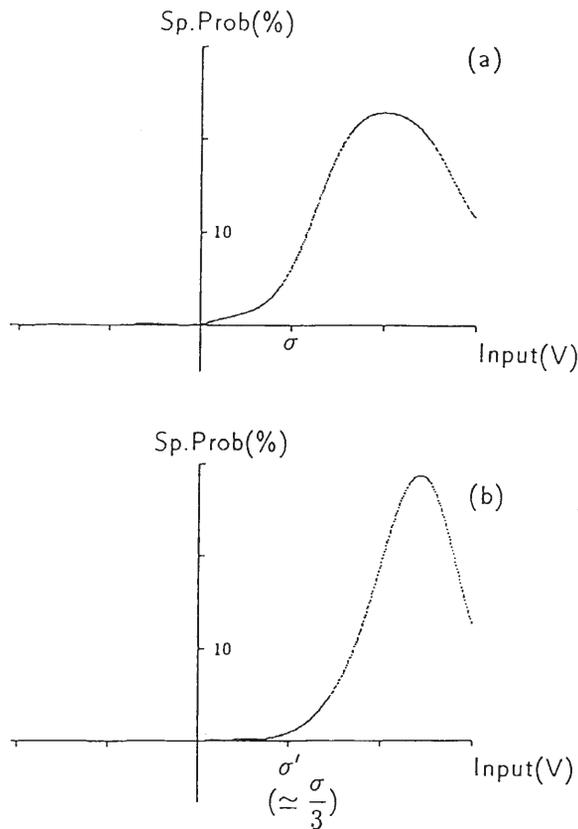


図6 同一の感覚細胞を異なる強度で刺激した場合の
パルス発射特性の違い。(b)は(a)に比べて強度が
10 dB 低い(約 1/3 の強さ)。

程度の時間経過で起こるらしい。言い換えればこの系は時不変ではない。

5 おわりに

Wienerの方法は、観測しようとする系が時不変であることを前提としている。しかし神経細胞は時不変ではない。このような系をWienerの方法で推定した場合、手に入るのは系の挙動の巨視的・統計的な性質のみである。さらにまた、わずか0.5 msecのパルスタイミングのズレがその推定に大きく効くことから、非線形要素 φ は無記憶ではなく、その内部に何らかのダイナミクスをもつことも認めざるをえない。はっきりしていることは、遙か昔に設計図を失った神経系という生の非線形信号処理装置を調べる際、いきなりダイナミクスから手をつけることは難しく¹⁰⁾、まずブラックボックス的記述法からモデル作りを始めざるを得ないということである。

神経系のもつ非線形性は、その機能の多様性を実現する立役者であると同時に、その解析を困難にしている張本人でもある。そして、系全体をブラックボックスととらえてその現象論的な記述を行うWiener流の視点と、「もの」としての神経膜の微視的な状態遷移に着目するダイナミクスの視点との間には、今なお大きな溝がある。神経系の物理的・化学的な構造に眼もくれない現象論的抽象化だけでは空中楼阁しか築けないし、システム論的視点を欠いたまま「もの」の性質のみにこだわり続けても「樹を見て森を見ない」ことになる。ヌルヌルした生物系をもうまく掴まえる一般的方法の確立を待ち続けるわけにも行かない。当面は、Wiener流の視点とダイナミクスの視点という数学的には反対向きのふたつの立場を行き来しながら、神経系の周りを発掘しなくてはならない。

【註および参考文献】

- [1] 自己組織化とは、ある系の構造や機能が入力秩序構造に対応して出来上がることを言う。決して、系に内在している(遺伝子のような)情報を使って自分を作り上げるのではない。
- [2] 生物の動作は目的的存在とする立場に立てば、人工的なニセの刺激や生物学的に意味のない刺激は、神経系を「誤動作」させていることになる。しかし、進化自体を生物系の時間発展ととらえれば、「目的」はあり得ない。従って、

たとえ個体の死を招く結果になっても、神経系はその特性に従って「正しく」動作している(下澤楯夫, 逃避行動の神経学——感覚受容から運動出力まで——, 1991, 日本動物学会編, 現代動物学の課題(8)「行動」, 学会出版, p. 107—150)。

- [3] システムをばらばらに解体してしまうわけではないから、上述の定石のうちでは後者寄りと言える。
- [4] 下澤楯夫・清水利伸・馬場欣哉, 非線形神経学, 数理科学

No.363, p.54—58 (1993)

- [5] n 次の Wiener 核は、系の入力に与えられた n 個のインパルスが相互干渉を起こす様子を時間領域で表わしている。系が線形で重ね合わせの原理に従えば、インパルス間での干渉は起こらず、2 次以上の Wiener 核はすべてゼロである。しかし、時間領域での干渉として表わした非線形性はあまりにも抽象的で、系の物理的意味を捉えることは非常に困難である。
- [6] Lee, Y.W. and Schetzen, M. Measurement of the Wiener Kernels of a Non-linear System by Cross-correlation, *Int.J.Control*, 2, 237, 1965
- [7] 昆虫のような小動物は、流体力学的には Reynolds 数の小さな世界（慣性力よりも粘性力が主に効く世界）に棲んでいる。そこでは、視覚に頼らなくとも、気流を観測すれば近くで動く物を検出できる（下澤楯夫，動物の習性とその神経基盤，計測と制御，Vol.30, 426—435, 1991）。
- [8] 菅乃武男，聴覚，生理学 1（入来，外山編），文光堂，p. 261—312, 1986。
- [9] これらの決定論的側面と確率過程的側面とは互いに相容れないように見えるが、パルス発生機構が強い非線形性を持ち、そのためパルス発生タイミングに強い初期値感受性が

あると考えれば矛盾はしない。Fitzhugh, R. Impulses and physiological states in theoretical models of nerve membrane, *Biophysical J.* Vol. 1, 445—466, 1961

- [10] 通常、神経系には似たような振る舞いをする神経細胞が数十～数百個はあるから、これらの Ensemble 平均をとれば、神経系全体としては 1 度しか起こらない現象についてもヒストグラムで得たものと同じ応答をしていると考えてよいことになる。
- [11] 1 個 1 個は奇妙な変調器でも、多数が並列に信号を送っており、Ergode 性が成り立てば、全体としては高いパルスレートをもっているのと同じになる。註 10 参照。
- [12] メイナード＝スミス，J.，寺本他訳，進化とゲーム理論，産業図書。ドーキンス，R.，日高他訳，利己的な遺伝子，紀伊國屋書店。
- [13] 感覚器が刺激のパワーに応じてその感度を変え、出力のレベルをほぼ一定に保つ現象を生理学では順応と呼ぶ。最も顕著な例は我々の視覚で、明るい場所と暗い場所とでは感度が 4 桁も変わる。
- [14] 設計図がないのだから、ダイナミクスつまり微分方程式の立てようがない。

量子現象を用いた新しい物質設計への 分布定数回路理論の応用

信号処理研究分野 永井信夫, 大谷直毅, 真田博文, 任捷

量子効果を利用したデバイスの設計のためには、有効質量近似されたシュレディンガー方程式を満足する電子や正孔が量子井戸構造や多重バリヤ構造で作らざる固有エネルギー準位や共鳴準位を求めることができ、それを基に所望の現象を生じるポテンシャル構造を合成することが必要である。そのようなデバイスの設計に回路理論を応用するために、ここでは電子や正孔を電圧波と見なし、そのような電圧波を生じる回路を虚数抵抗を含む複素分布定数回路で表した。この回路によって、量子井戸は通常の無損失線路に、また量子障壁は導波管などで知られているカットオフ線路に等価となる。ヘテロ界面で波動方程式が不連続になる場合があるが、そのような境界条件の複素等価回路も求めている。これらの複素回路を用いると従来知られた現象が回路理論の範疇に入ってしまう、量子デバイスの設計に回路の合成論を有効に用いることができると考えられる。

1. はじめに

回路理論は古くから研究されてきた基礎工学の理論の一つの体系であって、それ単独では**今さらやるべき問題はもうない**という大方の見方に頷かざるをえません。また、回路理論の適用範囲をマイクロ波の周波数まで拡げて、マイクロ波 IC の実現への道を開いた**等長分布定数回路**の誕生からでも既に 40 年が経過し、古い学問と思われるのももっともようです。しかしながら、システム理論、デジタル信号理論などと手を結びながら、発展してきた**回路理論**を一つの工学理論と見た場合、それはもっと多方面に活用できるように思われます。

ここでは、量子現象を用いて新しい物質が設計できるという有効質量近似されたシュレディンガー方程式を満足する各種の多重量子井戸や超格子の設計に分布定数回路理論を適用する試みを述べますので、皆様からいろいろご批判を頂ければ有り難いと思います。

2. 回路理論の歴史

本論に入る前に、本文に關係する回路理論の歴史を極く簡単に述べておきます。⁽¹⁾⁻⁽⁵⁾

2.1 集中定数回路

回路理論は工学理論の一つの体系であって、その誕生は実に 1 世紀半もの昔、1845 年、電流および電圧についての**キルヒホフの法則**の発見にまで遡ることができる。その後、マクスウェルの電磁気学との密接な関係により、交流理論へと発展した。1886 年、ヘビサイドは**虚数**の導入と**インピーダンス**という術語の提案により、微分方程式で扱う交流理論を**代数方程式で扱う交流理論**へと変換した。すなわち、交流理論に $j\omega$ を導入し、ラプラス演算子(複素周波数パラメータ) $s = j\omega$ を介して複素関数論と手を結べるようにした。この変換は物理的および数学的の両面に対して、極めて重要な貢献であった。

線形回路理論の応用として最も重要なものは、通信回線に賞用されているフィルタの設計理論である。初期のフィルタは、伝送線路を伝搬する波の透過・反射の研究から生まれた影像インピーダンスの整合問題であり、1923 年ゾーベルによって**影像パラメータフィルタ**設計法が確立されるに及んで、この影像量による回路理論は広く普及し、その後の通信技術の進歩にははかり知れない影響を与えた。

1931 年ブルーネが**正実関数**を導入した。正実関数は、有限個の線形受動集中定数素子のみからなる回路のイ

ンピーダンスが満たすべき必要十分条件であり、回路の設計を複素関数論で行うことを可能にした。この成果は当然フィルタ設計法にも反映し、1939年のダーリントンに代表される**動作パラメータフィルタ設計理論**へ発展し、今日の高度精密な通信技術の基礎を築いた。なお、ダーリントンの合成法と今日よばれているのは、正実関数が無損失回路を抵抗終端した形で回路合成されることをいう。

2.2 等長分布定数回路

伝送線路の距離が長いと損失による減衰が問題となり、その対策がいろいろと研究された。その研究の中で次の事実が明らかとなった。すなわち、VHFのように周波数が高くなると、コイルなどの回路素子はその働きをしなくなり、それに代わって短い伝送線路が回路素子として働く。そこで、その振る舞いが $\sin \beta l$ および $\cos \beta l$ (ここに、 β は位相定数、 l は線路長) によって表され、これは伝送線路形回路あるいは分布定数回路と呼ばれた。

1947年リチャーズは $\lambda = \tanh \gamma l$ (ここに、 γ は伝搬定数) を複素周波数パラメータに用いれば、従来の回路理論の拡張になることを示した。1957年頃より、我が国の研究者が中心となって、線路長 l を全て等しくした無損失線路を用いた**等長分布定数回路**の研究を行い、直列 C 素子を実現できないなどという欠点はあるものの、低域通過フィルタの合成論は完成した。直列 C 素子をも実現するために、無損失で各モードの伝搬速度が全て等しいと理想化された**多線条回路**の研究も本研究所の松本(秋)元所長などが中心となって行われ、ダーリントンの合成法に必要な Brune 区間などの基本無損失回路を求めることができた。ただし、多線条線路の特性アドミタンス行列がハイパードミナント行列になるという実現条件のため、多線条回路の合成には一般に与えられた次数より非常に多くの数の線路を必要とする。これらの研究成果はマイクロ波 IC となって実用化されている。

2.3 ウェーブデジタルフィルタ

デジタル信号処理では、信号の処理・加工を行うために、デジタルフィルタを用いる。また、観測データからその背後の確率過程の確率的性質を推定する時系列解析の数学モデルをデジタルフィルタとすることが多い。

1971年板倉・斉藤によって音声の分析合成に対して

与えた PARCOR 方式は、**デジタルラティスフィルタ(DLF)**を与え、その係数は Levinson-Durbin アルゴリズムで求められる。すなわち、この DLF は予測誤差フィルタであり、この方法で AR 過程の線形予測フィルタが得られることになる。なお、DLF の周波数パラメータは z 変換の z^{-1} である。

ウェーブデジタルフィルタ(WDF)は無損失集中定数回路の電圧波(あるいは電流波)の挙動を模擬してデジタルフィルタを合成しようとの考えから、1971年フェットバイスにより提案されたもので、 z^{-1} の双1次変換が低い周波数では複素周波数 s に近似できるとの考えに基づいている。ところで、 z^{-1} の双1次変換は λ と等しくなる。すなわち、WDF も DLF も等長分布定数回路と等価である。この等価性を用いれば、与えられた次数と等しい遅延素子の使用で WDF は合成可能となり、また、その回路は2チャンネルの DLF として合成できることにもなった。

デジタルフィルタの加算器および乗算器が複素数も処理できるならば、そのデジタルフィルタは複素係数のフィルタとなる。複素係数 WDF を用いると通過域の素子感度が極めて良いフィルタが得られることが知られている。

2.4 正関数

複素係数回路に関連する重要な関数である**正関数**について簡単にみておく。

正実関数 $f(s)$ が、次の条件

- (1) $f(s)$ は s の有理関数
- (2) s が実数のとき $f(s)$ は実数
- (3) $\text{Re}[s] > 0$ で $\text{Re}[f(s)] \geq 0$

を満たす関数として定義されることは周知のとおりです。条件(1)を

- (1') $f(s)$ は $\text{Re}[s] > 0$ で正則

に一般化した関数も正実関数とよばれる。

条件(2)を取り去り、条件(3)をより一般化した、次の条件

- (1') $f(s)$ は $\text{Re}[s] > 0$ で正則
- (3') $\text{Re}[s] > 0$ で $\text{Re}[f(s)] > 0$

を満たす複素関数は、主に数学の分野で研究の対象となっており、**class-C** と呼ばれている。class-C の関数族は、正実関数を自然に複素係数の関数に拡張したものにとらえることができ、正関数と呼ばれる。

正関数の反射係数は class-S とよばれ、J-lossless

行列の利用から得られる直交デジタルフィルタによる合成論が提案された。この理論は、回路理論とデジタル信号処理との深い結びつきを明らかにし、スペクトル推定やシステム理論へ回路理論が大きな寄与を示した。

1968年ベルヴィッチは**虚数抵抗**を導入した。すなわち、純虚数の定数値をもつインピーダンスを一つの回路素子として従来の回路素子に追加することにより、正関数の回路表現が可能となることを示し、その追加した回路素子を虚数抵抗と呼んだ。

このように、複素係数回路を用いることによって明らかになった事実は多くあり、理論面での有効性は確実なものとなった。しかしながら、実際の物理現象などにおいて有効性を示さない限り、理論で終わってしまうように感じる。そこで、**有効質量近似されたシュレディンガー方程式**が複素係数を持つ偏微分方程式となっていることに着目して、超格子の設計などに複素係数回路を応用することを考える。

3. 準備

量子現象へ回路理論を適用するためには、複素係数で与えられる偏微分方程式とそれを解いて得られる分布定数線路とを効果的に用いなければならない。その準備として、虚数抵抗と一様線路について簡単にみておく。

3.1 集中定数回路と虚数抵抗

電気回路の基礎は集中定数回路理論であって、それは回路素子として抵抗、コンデンサおよびコイルを用い、それらの回路素子が電圧および電流と実係数の微分および積分で結ばれており、それをラプラス変換して得られる方程式も実係数となることを用いている。

ベルヴィッチ⁽⁵⁾は通常の実数値信号に関連づけて虚数抵抗を導入し、複素係数の回路方程式を取り扱った。すなわち角周波数 ω_0 で変調された実数値信号を考えたとき、その複素包絡信号については、インダクタンス L のコイルは純虚数の定数値をもつインピーダンス $j\omega_0 L = jX_0$ がそのコイルに加わったようにみえる。これに基づき、純虚数の定数値をもつ回路素子を従来の回路素子に追加することにより、正関数の回路表現が可能となった。

3.2 一様な伝送線路

一様な線路の往復線単位長あたりの抵抗とインダク

タンスを R と L 、往復両導体間の単位長あたりの漏れコンダクタンスと静電容量を G と C とし、両導体間の電位差 $v(x, t)$ および往復する電流 $i(x, t)$ は次式を満たす。

$$-\frac{\partial}{\partial x}v = L \frac{\partial}{\partial t}i + Ri \quad (1.1)$$

$$-\frac{\partial}{\partial x}i = C \frac{\partial}{\partial t}v + Gv \quad (1.2)$$

式(1.1)を x で偏微分した式に、式(1.2)および式(1.2)を t で偏微分した式を代入すれば、次式を得る。

$$\begin{aligned} (RC + LC) \frac{\partial}{\partial t}v \\ = \frac{\partial^2}{\partial x^2}v - LC \frac{\partial^2}{\partial t^2}v - RGv \end{aligned} \quad (2)$$

式(2)において $R = G = 0$ ならば、通常の波動方程式である。式(2)は減衰を伴う波動を示している。式(2)を式(1)の二つの式に分解できれば、波の散乱を表現できる特性インピーダンス(物理では波動インピーダンスということがある)を求められる。

伝送線路上の過渡現象を求める場合には、上式を時間 t に関してラプラス変換するのがよい。ここでは、正弦波交流(角周波数 ω)で、しかも定常状態について考える。したがって、電位差および電流は次のように表される。

$$v(x, t) = V(x) \exp(j\omega t) \quad (3.1)$$

$$i(x, t) = I(x) \exp(j\omega t) \quad (3.2)$$

この式を(2)式に代入して整理すると次式を得る。

$$\frac{d^2}{dx^2}V(x) = \gamma^2 V(x) \quad (4)$$

上式の γ は平方根の実部が非負の値をとると約束すれば、

$$\begin{aligned} \gamma &= \sqrt{(R + j\omega L)(G + j\omega C)} \\ &= \alpha + j\beta \quad (\alpha \geq 0) \end{aligned} \quad (5)$$

上式の γ を伝搬定数、 α を減衰定数、 β を位相定数と呼ぶ。

式(4)は積分定数 A および B を用いて、

$$V(x) = A \exp(-\gamma x) + B \exp(\gamma x) \quad (6.1)$$

が得られ、式(1.2)を用い、次式も得られる。

$$I(x) = Z_0^{-1} [A \exp(-\gamma x) - B \exp(\gamma x)] \quad (6.2)$$

ただし、

$$Z_0 = \sqrt{(R + j\omega L)/(G + j\omega C)} \\ = R_0 + jX_0 \quad (R_0 \geq 0) \quad (7)$$

であって、 Z_0 を特性インピーダンスとよぶ。

式(6)のA, Bは端末条件で定まるので、 $x = 0$ および $x = l$, すなわち、線路長の一様線路は次式を満足する。

$$\begin{pmatrix} V_0 \\ I_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cosh \gamma l & Z_0 \sinh \gamma l \\ Z_0^{-1} \sinh \gamma l & \cosh \gamma l \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_1 \\ I_1 \end{pmatrix} \quad (8)$$

この式は伝送線路を2端子対回路とみなしたときの縦続行列である。

式(1)において、 $R = 0, G = 0$ ならば、その線路は無損失線路とよばれ、伝搬定数は位相定数のみの $j\beta$ 、特性インピーダンスは特性抵抗のみの R_0 で表される。

この無損失線路の線路長 l を全て等しい l_0 にした線路をコンデンサおよびコイルの代わりの回路素子に用いるのが等長分布定数回路であり、その複素周波数パラメータは、

$$\lambda = \tanh \gamma l_0 = \tanh sT/2 \quad (9)$$

ここに、 T は長さ l_0 の線路を波が往復する時間。

デジタルフィルタで用いる z 変換の z と λ との関係を示すと、

$$\lambda = \frac{1 - z^{-1}}{1 + z^{-1}} \quad (10)$$

ここに、 $z = \exp(sT)$

となり、 z^{-1} の双一次変換が λ となる。このことは、等長分布定数回路はデジタルフィルタに等価変換できることを意味し、それがウェーブデジタルフィルタである。

4. 量子現象の回路理論

量子論的現象と回路理論との類似性がKron⁽⁶⁾などにより示されて以来、量子効果現象の解明に回路理論を応用しようとする試みが、数多くなされた。

半導体超格子の提案と共に、量子効果を利用したデバイスの開発が注目される中で加藤⁽⁷⁾は、映像インピーダンス、反復パラメータ、その他の回路関数および行列を用いて共鳴トンネル現象が解明されることを示し、両理論の対応関係をより密接なものとした。

本研究では、虚数抵抗を用いた複素等価回路によって無損失分布定数回路を導出し、それを用いて共鳴ト

ネル現象、固有関数、共鳴状態の存在寿命などの量子現象を解析・合成することを目指す。

4.1 複素等価回路

時間を含む有効質量近似された1次元シュレディンガー方程式は、次式で表される。

$$-j\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi = -\frac{\partial}{\partial x} \frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial}{\partial x} \psi + U\psi \quad (11)$$

ここに、 U はポテンシャル、 m は有効質量、 \hbar はプランク定数、 $\psi(x, t)$ は波動関数である。

式(11)を式(2)に示す一様線路の電信方程式と比べてみると、 ψ を電圧 $v(x, t)$ に対応させて、

$$\psi(x, t) = v(x, t) \quad (12)$$

とすることができる。そうして、両式の係数を比べてみると、 L か C のどちらかを零にする必要がある。そこで、 $L = 0$ と仮定しよう。そうすれば、式(11)の左辺の係数の関係から、 R を虚数としなければならない、虚数抵抗が必要となる。また RG が実数であるから、 G も虚数抵抗となる。その結果、式(11)は次のように二つの式に分解される。

$$-\frac{\partial}{\partial x} v(x, t) = j \frac{m}{\hbar} i(x, t) \quad (13.1)$$

$$-\frac{\partial}{\partial x} i(x, t) = 2 \left(\frac{\partial}{\partial t} - j \frac{U}{\hbar} \right) v(x, t) \quad (13.2)$$

ここに、 $i(x, t)$ は電流を表す。

したがって、単位長あたりの等価回路は図1のようになり、直列素子にインピーダンス jm/\hbar 、並列素子の一つにアドミタンス $-j2U/\hbar$ なる虚数抵抗を用いている。

エネルギー E の波動関数は

$$\psi(x, t) = \phi(x) \exp(-jtE/\hbar) \quad (14)$$

と表され、ドブロイの関係式

$$E = \hbar \omega \quad (15)$$

に従う周波数変数 ω を用いて回路表現を求める。すなわち、電圧および電流を次のようにする。

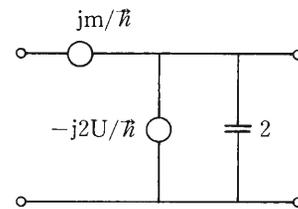


図1 単位長あたりの複素等価回路

$$v(x, t) = V(x) \exp(j\omega t) \quad (16.1)$$

$$i(x, t) = I(x) \exp(j\omega t) \quad (16.2)$$

この式を式(13)に代入して整理すると次式を得る。

$$\frac{d^2}{dx^2} V(x) = \gamma^2 V(x) \quad (17.1)$$

$$\gamma^2 = -2m(\hbar\omega - U)/\hbar^2 \quad (17.2)$$

$x = 0, x = l$ の2点間でポテンシャルおよび有効質量が一定であるとすれば、

$$\begin{pmatrix} V_0 \\ I_0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cosh\gamma l & Z_0 \sinh\gamma l \\ Z_0^{-1} \sinh\gamma l & \cosh\gamma l \end{pmatrix} \begin{pmatrix} V_1 \\ I_1 \end{pmatrix} \quad (18)$$

なる縦続行列が得られる。ここに、

(i) $m(\hbar\omega - U) < 0$ の場合：

$$\gamma = \alpha, Z_0 = jm/\hbar\alpha = jX_0 \quad (19)$$

(ii) $m(\hbar\omega - U) > 0$ の場合：

$$Z_0 = [m/2(\hbar\omega - U)]^{1/2} = R_0 \\ \gamma = jm/\hbar R_0 = j\beta \quad (20)$$

4.2 井戸の等価回路

式(20)で与えられる場合は、量子現象としての井戸にあたる。回路的にみれば、位相定数と特性抵抗とであらわされるから、通常の無損失線路であり、良く知られた無損失線路の取扱いができる。量子現象としてみた場合、有効質量 m は正にも負にもできて、正の場合は電子の井戸を表し、負の場合はホール井戸に相当するが、回路的扱いは同じである。

4.3 障壁の等価回路

式(19)で与えられる場合は、量子現象としての禁制帯にあたる。回路的にみれば、減衰定数と虚数の特性インピーダンスをもつから、カットオフ線路であり、エネルギーが伝送されないところである。ところが量子現象の立場からみれば、薄い禁制帯によってトンネル

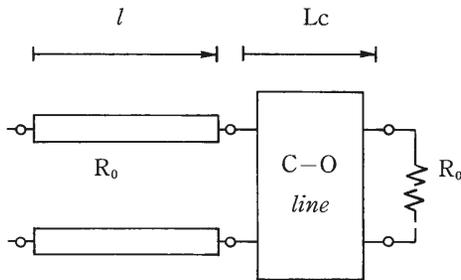


図2 無損失線路、カットオフ線路および負荷抵抗からなる回路

現象の生じる極めて重要な所である。

この区間が回路的に全く無用であったわけではなく、例えば導波管においては窓としてフィルタ構成にも用いられている。

カットオフ線路を用いて得られる有用な回路を示しておこう。図2には、長さ l の特性抵抗 R_0 の無損失線路、長さ L_c のカットオフ線路および負荷抵抗 R_0 が接続された回路を示している。 L_c を零から大きくしたときの、カットオフ線路から負荷側をみたインピーダンスは R_0 から jX_0 に変化する。これはスミスチャートで考えれば、半径が零の中心から半径が大きくなりスミスチャート上半径が最大の所まで変わることを示している。そのインピーダンスを長さ l の特性抵抗 R_0 の無損失線路で変化させるのであるから、 l と L_c との選び方で任意のインピーダンスを作り出すことができる。したがって、図2の回路を用いれば、共鳴トンネル現象を作りだせることが分かる。

4.4 クローニツヒ・ペニー模型

GaAs と $Al_xGa_{1-x}As$ の組み合わせのようなタイプ I の超格子系では、クローニツヒ・ペニー模型が極めて妥当であるとの結論が得られている⁽⁸⁾。これは、3.2 と 3.3 で述べた井戸と障壁のみでできている。回路的手法で共鳴トンネル現象を求めるには、分布定数回路ではおなじみのスミスチャートを使用でき、インピーダンスの整合の条件により、新しい物質設計への確かな道具となる。

5. ヘテロ構造の等価回路表現

GaAs 系の材料を用いたポテンシャル構造では、そのヘテロ界面での境界条件として、(i) 波動関数が連続、(ii) 波動関数の一次導関数を有効質量で割ったものが連続、が一般に用いられる。GaAs 系以外の例えば、InAs/GaSb 等の材料のヘテロ界面では界面行列⁽⁸⁾によって境界条件を表す手法が提案されている。また GaAs 系であっても、 Γ 谷と X 谷の間で波動関数の結合 (Γ -X 混合) が問題となることがある。 Γ -X 混合は文献(14)にゆずり、ここでは界面行列の複素等価回路を導く。

界面は $x = d$ にあり、 $x < d$ の領域に半導体 A が、 $x > d$ の領域に半導体 B があるとする。半導体 A, B での波動関数をそれぞれ $\phi_A(x)$, $\phi_B(x)$ とするとき、界面行列 T_{BA} は次のように定義される。

$$\begin{pmatrix} \phi_B(d) \\ \nabla \phi_B(d) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} t_{11} & t_{12} \\ t_{21} & t_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \phi_A(d) \\ \nabla \phi_A(d) \end{pmatrix} \quad (21)$$

ここに、 $\nabla = ad/dx$ 、 a は格子定数。

この界面行列を式(12)、(14)、(16)の定義を用いて電圧、電流の関係で表せば、次の縦続行列がえられる。

$$\frac{1}{\det T_{BA}} \begin{pmatrix} t_{22} & jt_{12} am_B/\hbar \\ -jt_{21} \hbar/am_A & t_{11} m_B/m_A \end{pmatrix} \quad (22)$$

ここに、 m_A 、 m_B は A、B の有効質量を表す。

界面行列では確率保存の法則が考慮されており、この縦続行列をもつ回路は無損失 2 ポートとなる。また、その等価回路は周波数に無関係の定数であるから、虚数抵抗の組み合わせで表せる。

6. おすび

回路理論の研究の歴史からみて、ヘビサイドによって導入された虚数を用いた $j\omega$ と複素数であるインピーダンスは画期的なものであった。それにもかかわらず、複素係数をもつ回路に関しては理論面のみが進歩して、実用面の効用は余りみられない。

この局面を開いて、複素係数回路の有効性を示すには実際の物理現象に応用すべきであろう。現在、量子効果を利用したデバイスの設計が重要となっている。回路理論にとって幸いなことに、量子現象を記述するシュレディンガー方程式は虚数の係数をもっている。

本文では、量子井戸構造や多重バリヤ構造の設計に応用できる複素等価回路の導出を述べた。これらの研究の詳細は文献(9)–(14)などに示している。このような研究を通して、新しい回路理論の発展がなされればこれに越した喜びはない。

【参考文献】

- [1] 渡部：伝送回路網の理論と設計，オーム社(1968)
- [2] Matsumoto A. (Ed.): Microwave filters and circuits, Academic Press (1970)
- [3] 永井：“定常確率過程の回路網モデルとウェーブデジタルフィルタ”，信学誌，68, p.885(1985)
- [4] 鈴木，永井：“ウェーブデジタルフィルタとそのデジタル信号処理への応用”，システム/制御/情報，33, p.75 (1989)
- [5] Belevitch V.: Classical network theory, Holden-Day (1968)
- [6] Kron G.:“Electric circuit model of the Schrodinger equation”, Phys. Rev., 67, p.39 (1945)
- [7] 加藤：“超格子構造における共鳴トンネル効果の回路論的定式化”，信学技報，CAS 87-104(1987)
- [8] 日本物理学会編：半導体超格子の物理と応用，培風館(1984)
- [9] 大谷，永井，鈴木，三木：“複素等価回路による量子効果現象の定式化”，信学論 C-I, J 73-C-I, p.683(1990)
- [10] 大谷，永井，鈴木，三木：“対称 3 重バリヤの共鳴条件に関する回路論的一考察”，信学論 C-I, J 74-C-I, p.276 (1991)
- [11] 大谷，永井，鈴木，三木：“加藤文夫氏に対する回答”，信学論 A, J 75-A, p.970(1992)
- [12] 大谷，永井，三木：“スミスチャートを用いる共鳴準位合成法”，信学論 C-II, J 75-C-II, p.497(1992)
- [13] 大谷，真田，永井，鈴木，三木：“共鳴状態の存在寿命に関する回路論的一考察”，信学論 C-II, J 76-C-II, p.59 (1993)
- [14] 真田，永井，大谷，三木，大鎌：“ヘテロ界面における波動関数の接続を表す複素等価回路”，信学論 C-I, J 76-C-I, p.344(1993)

盲人の聴覚による 障害物知覚機構の仮説

感覚情報研究分野 伊 福 部 達, 関 喜 一, 梶 井 健
田 中 良 広 (札幌高等盲学校)

18 世に出版された「盲人書簡」に、盲人の多くはその周囲の環境の様子や障害物を何らかの感覚で知ることができるという「障害物知覚」の能力について記されている^[1]。幾人かの心理学者によりこのメカニズムの解明に関する研究がなされ、聴覚的な手がかりが必要十分条件であることが判明していた。しかし、多くの未解決の問題を残したまま 30 年間にわたり障害物知覚は研究の対象にならないままだった。我々は、盲人の環境認識補助のために障害物知覚の能力を有効に活用することを目的として、札幌高等盲学校と約 5 年間にわたり共同研究を行ない、そのメカニズムの解明に取り組んできた。その結果、障害物へ向かって歩行して行くに従い、「エコーロケーション」、「先行音効果」さらに「両耳相関係数」を手がかりにして障害物を知覚するようになるという仮説が得られた。また、盲人が静止している場合には、環境雑音の「カラーレーション」と 2 kHz 以上の「スペクトル成分の増減」が障害物の大きさ、方向、距離の知覚に関与しているという仮説を立て、その一部を実証する実験を行なった。

1. 従来仮説

障害物知覚に優れた盲人は、障害物までの距離の弁別については正眼者の片眼による能力を上回り、材質の弁別では、木材、金属、布だけではなく、同じ布でもベルベットとデニムの違いまでも聞き分けができるのである (Kellog^[2] および Rice^[3])。

障害物知覚の要因については幾つかの仮説があり、Supa^[4] らはそれらを大きく 3 つに分類している。第 1 は、障害物知覚は、ある感覚器官が鋭敏になった結果得られた能力であるという「感覚説」である。第 2 は、色々な感覚からの情報を統合して知覚する能力が向上したとする「知覚説」である。第 3 は、磁気や電気などを感じる第 6 感によって得られる能力だとする「オカルト説」である。

このような仮説は盲人の内観報告から、「皮膚感覚説」と「聴覚説」の 2 つに整理された。何人かの盲人は障害物があることを顔面、額、頭頂部で知覚すると主張し、ある盲人は障害物の存在が聞こえるという言うことが仮説の根拠となっている。しかし、耳栓で盲

人の聴覚を遮断した状態と、フランネルの布で皮膚感覚を遮断した状態で障害物知覚能力の比較実験を行なった結果から、聴覚的な手がかりが重要であることが明らかにされている。このことは Cotzin^[5] らの厳密な実験によって裏付けられた。彼らは、盲人のかわりにマイクロホンで障害物に近づけて行き、マイクロホンから得られた音をヘッドホンを通じて盲人に聞かせても障害物知覚ができることを見だし、障害物からの反射音はその手がかりになっていることを導いている。しかし、反射音のどの成分が重要なのか、あるいは近距離の障害物の知覚のメカニズム、さらに盲人が静止した状態でも障害物知覚ができるという事実など説明がつかない問題は残されたままであった。

2. 数 m 先の障害物の知覚に関する仮説

障害物知覚の従来仮説の多くは、障害物からの反射音が要因であるということが前提であった。実際、被験者 (先天全盲 3 名, 19-20 歳) に協力してもらい、盲学校の体育館の壁に向かって歩かせると、2~3 m のところで「何かがあるような感じがする」といって

おり、さらに、数十 cm のところで「何かぶつかりそうになる」といって立ち止まった。

確かに足音の反射音を手がかりにしているようにみえる。実際、比較的遠方にある障害物については「足音などの反射音が聞こえる」との内観報告があり、反射音が障害物知覚の要因となり、いわゆる「エコーロケーション」の機能が働いていることが推論される。

ただし、2～3 m のところで、「何かがあるような感じがする」というのは別の要因も働いている可能性がある。そこで、まず、足音を想定して直接音源が足元にあるとしたときに、被験者は障害物からの反射音の方向をどのくらい正確に定位しているのかを調べた^[6,7]。

人が日常障害物に遭遇する状況は複雑な場合が多い。ここでは問題を単純にするため、十分大きな平面をもつ障壁が地面から垂直に立っているようなものを障害物と想定した。また、被験者は障害物に対して顔の前面が直立して静止しているものとした。このとき足音とその障害物からの反射音の方向は、足元のつま

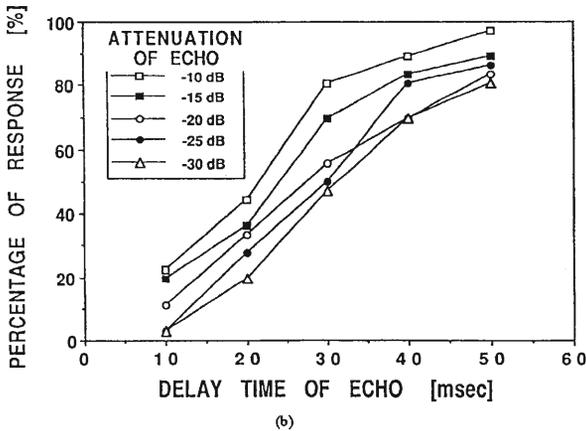
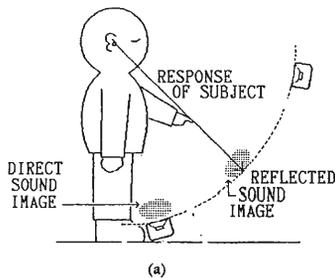


図1 (a)被験者が指示する反射音像の方向
(b)縦軸：知覚される反射音の方向(100%が反射音源の方向, 0%が足元の方向)
横軸：直接音と反射音の時間差, パラメータは反射音の減衰量

先に置いた音源と障害物によって反射する方向から提示される音源でシミュレートすることができる。反射音の直接音に対する遅延時間や減衰量を変えて、どの方向から反射音が聞こえるかを、図1(a)に示したように、「指さし」によって指示させてみた。被験者(先天全盲人2名, 19-20歳)に協力してもらい、どのくらいの精度で反射音の方向を捉えるのかを調べた。

指先が反射音源の方に向いているのを100%とし、足元の方に向いているのを0%として集計すると、図1(b)のようになる。図は減衰量をパラメータとし遅延時間と指さしの方向との関係が示されている。図から、反射音の遅延時間が40 msec以内になってくると反射音の方向から足元の方向に音源の位置がずれて知覚されるようになり、それが反射音の減衰量が大きいほど顕著になっているのが分かる。この現象は「先行音効果」と呼ばれており、この効果があるために、例えば遅延時間が10 msecすなわち障害物までの距離が2 mのときに反射音は足元の方向に移動して定位するようになる。

このとき「何かがあるような感じがする」という盲人の内観報告に対応している。先行音効果は正確に障害物の位置を知覚するには役に立っていないが、その効果による音像の移動が盲人にとって障害物知覚の重要な手がかりになっていると推論される。ただし、「何かぶつかりそうになる」というときの近距離にある障害物の知覚には他の物理的要因も考慮しなければならない。

3. 数十 cm 先にある障害物の知覚に関する仮説

近距離にある障害物については「障害物方向が静かになる」などの内観報告もあり、障害物知覚の要因が単に障害物からの反射音にあるのではないことが想像される。障害物の遮音効果も障害物知覚の要因であると示唆している研究者(Welch^[8] および Kohler^[9])もいたが、この可能性は立証されていない。

そこで、反射音が手がかりにならないように、被験者(先天性全盲人3名, 17-19歳)に約3 mの距離から障害物に向かってゆっくり歩かせ、障害物の存在を感じた場所で立ち止まってもらうという実験を行った。この実験では、障害物として90 cm × 90 cm(厚さ24 mm)の木の板を用い、障害物からの反射音が生じないように板の前面に25 mmのガラスウールを貼

り、さらに足音が立たないように床に絨毯を敷いた。グラスウールボードで作った簡易な無響室内に、障害物を配置し、その後方2mのところから環境雑音を模擬して雑音を出すスピーカを置いた。

障害物から足の爪先までの距離を求めると、図2(a)のように、障害物に接近した距離に間違いなく立ち止まり、その距離の平均は約38cmに集中している。被験者が音場以外からの情報を手がかりにしていなかったことを確かめるために、雑音を止めると3名の被験者は障害物に衝突した。また、障害物を取り除くと、3名ともスピーカの位置まで歩いていった。これらのこと

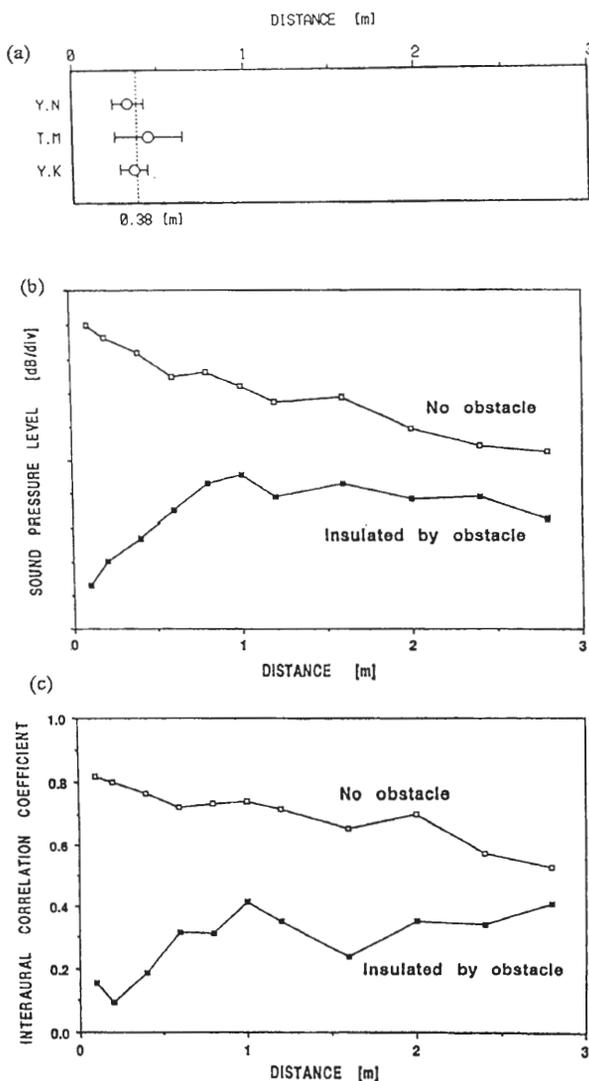


図2 (a)被験者が立ち止まったときの障害物から足の爪先までの距離
(b)障害物までの距離と音圧の関係
(c)障害物までの距離と両耳間相関係数の関係

から、被験者は障害物の遮音効果による音場の微妙な変化を手がかりにして障害物知覚を行っていることは明かである。

障害物に近づくとどのような音場の変化が生じて、どのような変化を手がかりにしているのかを調べるため、被験者の代わりに両耳のところにマイクロホンが内蔵されているダミーヘッドを用いて、それをゆっくりと障害物の方へ近づけて行き、物理量の測定を行った^[10]。測定項目は、音圧の強度と、両耳に入ってくる音波の相関係数すなわち「**両耳間相関係数**」である。両耳間相関係数は知覚される音像の広がり感と関連し、その値が1に近いと音像の広がりがシャープな感じになり、逆に小さいと広がった感じになることが知られている。

図2(b)と(c)に、音圧と両耳間相関係数が障害物に近づくとどのようなように変化したかを示した。参考のために、障害物の無い場合のデータもプロットした。音圧、両耳相関係数ともに障害物が無いと単調に増加しているが、障害物の存在によりある距離から減衰が始まる。音圧は約1mから徐々に減衰し、遮音効果が明瞭に観測される。これは「障害物方向が静かになる」という盲人の内観報告を裏付けている。さらに、障害物から60cm~20cmにかけて両耳相関係数が急小さくなっている。このことは、この範囲で音像が広がって知覚されるようになることを意味している。したがって、障害物の直前では弱い音が盲人の前面に広がってくるように感じている可能性がある。このことは、障害物の数十cmのところでは「何かにつかりそうになる」という盲人の内観報告と何らかの関係があるのであろう。

4. 静止した状態における障害物知覚の仮説

盲人の多くは静止していても近距離に障害物を置くと、その存在の有無が分かる。この場合、「顔や額に圧迫感を感じる」「気配がする」「音が静かになる」など遠距離の障害物とは異なる曖昧な内観報告が得られる。ただし、「圧迫感」や「気配」は耳を塞ぐと無くなることから、近距離の障害物においても、何らかの音場の違いが障害物知覚の要因となっているのであろう。

そこで、盲人に体や頭を静止させたままで障害物の有無を答えさせるという簡単な実験を行った^[11]。実験

は、周囲に大きな構造物がない平坦なところで、通常の屋外の環境騒音下で行った。障害物としては 50 cm × 50 cm (厚さ 24 mm) の木の板を用い、頭部の中心から前に 50 cm の位置あるいは横に 50 cm の位置に置いた。被験者は、障害物知覚の経験を有する盲人 (先天性全盲, 20 歳) である。実験では、両耳を用いたときと片耳の場合だけのときの 2 通りで行った。まず、耳栓をしてもらい障害物の 50 cm のところ、あるいは十分離れたところまで被験者を移動させて静止させ、そののち耳栓をはずして障害物の有無を答えさせた。被験者には、足音を出したり頭を動かさないよう

にあらかじめ指示を与えておいた。

その結果、両耳を用いた場合、障害物が横にある時には 100% の正当率でその有無を答えしており、前にあるときでも 95% の正答率であった。被験者からは「両耳とも耳栓をしている間は障害物の気配は感じとれない。両耳のときは、障害物が横にある場合の方が、正面にあるときよりも分かりやすい。また、片耳のときは両耳のときよりも分かりにくい。」という内観報告が得られている。障害物の存在によって被験者の耳元で音場がどのように変化するかを調べるために、ダミーヘッドを利用し、その耳元での音響測定を行なった。

無響室内にダミーヘッドを中心として 3 m のところに色々な方向にスピーカを置き、引き伸ばしパルスを放射させた。このパルスのパワースペクトルとダミーヘッドのマイクロホンで検出した信号のパワースペクトルの差を求めると、スピーカからダミーヘッドまでにスペクトルがどのように変化したかという情報のみが求められる。いうまでもなく、音響的变化が何も無ければパワースペクトルの差は 0 dB のところでフラットになる。

盲人による実験で用いたものと同じ障害物をダミーヘッドの前面 50 cm および横面 50 cm のところに置き、8 方向から音を放射したときのスペクトルの変化を調べた。図 3 (a) は障害物が前面にあるときの、また、図 3 (b) は障害物が横面にあるときの右耳におけるスペクトルの変化を示している。これらのスペクトル変化の特徴を詳しく観察すると図中の α , β , γ の領域に示されるように 3 つに分類される。

まず、図 (a) と (b) の α 領域は 2 kHz あたりから音圧が 10 dB ~ 20 dB 減少している。すなわち障害物と同方向に音源がある場合には、遮音効果により高音部の音圧が減少していることが観測される。この減少が盲人の一般的な内観報告である「音が静かになる」という心理的印象の原因の一つになっているのであろう。さらに、 α の大きさは障害物の大きさにも依存したことから、障害物の大きさの知覚に α 領域が手がかりになっている可能性がある。

次に、 β の領域をみるとディップが多数ありスペクトルが波打っていることが分かる。これは音源が障害物の反対方向にあるときに現れている。この原因は、障害物と反対方向から到来する直接音と障害物からの

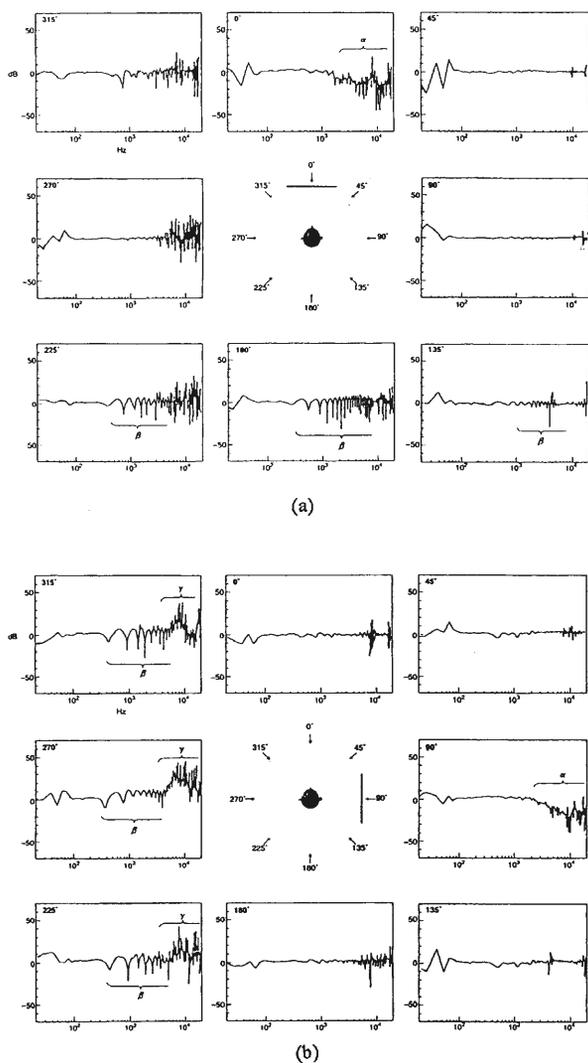


図 3 雑音源 (8 方向) からダミーヘッドまでのパワースペクトルの変化
(a) 障害物が前面にあるとき
(b) 障害物が横にあるとき

反射音とが位相干渉を起こすためである。このように、位相干渉によりスペクトルが変化すると一般に「カラーレーション」と呼ばれる音色の変化が生じる。近距離の障害物の知覚においては音色の変化も手がかりにしている可能性がある。障害物の距離によって α だけでなくカラーレーションも大きく変化したことから、カラーレーションは距離の識別の手がかりの一つになっている可能性がある。

さらに、図(b)にだけ現れた γ の領域では 3 kHz あたりから 20 dB くらいの音圧の増加が見られる。これも障害物と反対方向からくる直接音と障害物からの反射音が加算されたためである。ただし、高音部では波長が短いため頭部による回り込みが少なく、ダミーヘッドの右耳に入る音の強度は小さい。一方、反射音はあまり減衰せずに右耳に入る。そのため、 β 領域と異なり、二つの音の音圧差が非常に大きいためカラーレーションが生じなくなり、高音部が増加したのである。一方、前面に障害物があるときには γ 領域が現れなかったことから、高音部の増加は障害物の方向の知覚と何か関連があることが想像される。実際、障害物を色々な方向に呈示すると、スペクトルと、 α や β の起こる方向も変化した。また、 γ 領域の大きさも変化した。 γ 領域は障害物方向の識別の一つの手がかりになっているのであろう。

5. 障害物までの距離の識別に関する実証実験

最後に、障害物までの距離は、環境雑音の障害物からの反射音と直接音との干渉によって知覚される「カラーレーション」が手がかりになっているという仮説を実証する実験を試みた^[11]。そのため図 4(a)のような実験システムを作り、左右に置いたスピーカから時間差を付けてピンクノイズを放射した。このとき左右の時間差を 1, 2, 3, および 4 ms ずらしたのを作り、それらをランダムに選び 2 秒間放射したのち、2 秒後にまたランダムに選んだ音を 2 秒間放射した。被験者(先天性全盲 2 名, 20-21 歳)にどちらが遠くに障害物があるように知覚されたかを応答させた。

その結果、図 4(b)に示したように、仮想障害物までの心理的距離(縦軸)は左右の時間差(横軸)に大きく依存し、時間差が小さいほど心理的距離も小さくなることが実証された。1, 2, 3, 4 ms はそれぞれ 17, 34, 51, 63 cm に対応し、障害物からの反射音と直接音の時

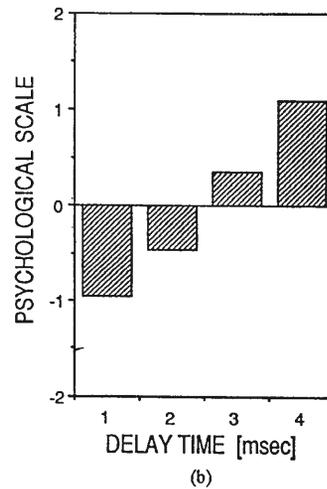
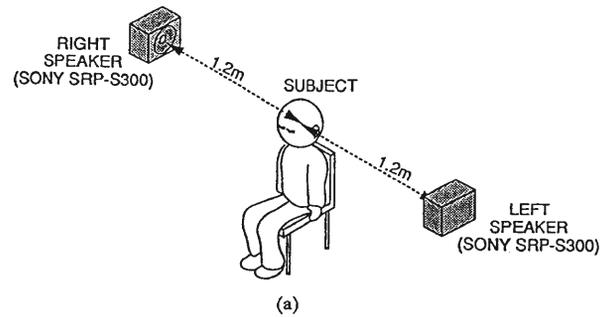


図 4 障害物までの距離の識別に関する仮説の実証実験
(a)実験システムと配置図
(b)心理的距離と左右音源の時間差

間差で被験者はこれらの障害物までの距離の違いを識別できることを示している。

6. おわりに

以上、障害物へ向かって歩行したときのその知覚の手がかり、障害物が近距離にあるときの知覚の手がかり、さらに、盲人が静止しているときの障害物知覚の手がかりについて幾つかの仮説を立てた。これらを一一つ実証していくには、仮説に基づいて音場を制御し、実際の障害物知覚と同様な結果が得られるかを調べていかなければならない。最後の節ではその実証の一例として障害物からの反射音と直接音の時間差が障害物までの距離の知覚に関連していることを示した。

このことは、障害物までの距離判断をさせる学習方法として音場制御が有効であることを示している。将

来は、他の仮説についても実証する研究を行い、障害物知覚を有効に利用する環境認識補助方式を構築して

いきたい。

【参考文献】

- [1] 佐藤泰正：視覚障害心理学(学芸図書，東京,)pp.41-45, pp.68-74(1987)
- [2] Kellogg W.K.:“Sonar system of the blind” The Research Bulletin No.4 of the American Foundation for the Blind, pp.55-69 (1964)
- [3] Rise C.E:“Human echo perception” Science 155, pp.656-664 (1967)
- [4] Supa M, Cotzin M, and Dallenbach K.M.:“Facial vision: The perception of obstacle by the blind, “ Amer.J. Psychol. 57, pp.133-183 (1944)
- [5] Cotzin M. and Dallenbach K.M.:“Facial vision: The role of pitch and loudness in the perception of obstacle by the blind” Amer.J.Psychol. 63, pp.485-515 (1950)
- [6] 伊福部達：“気配のもとを聴覚から探る” 日経サイエンス 10 pp. 39-46 (1993)
- [7] 関喜一，伊福部達，田中良広：“盲人の障害物知覚と反射音定位の関係” 日本音響学会誌(印刷中)
- [8] Welch J.R.:“A psychoacoustic study of factors affecting human echo-location” The Research Bulletin No.4 of the American Foundation for the Blind, pp.1-13 (1964)
- [9] Kohler I.:“Orientation by aural clues” The Research Bulletin No.4 of the American Foundation for the Blind, pp.14-53 (1964)
- [10] 関喜一，伊福部達，田中良広：“盲人の障害物知覚における遮音効果の影響” 日本音響学会誌(印刷中)
- [11] Seki K., Ifukube T., Tanaka Y.:“Analytic study of obstacle sense for rehabilitation of the blind”, IEEE. Trans., RE. (submitted)

随意運動制御の計算モデル

並列分散処理研究分野 川 人 光 男

人や動物の速くて滑らかな運動はフィードフォワード制御で行われている。運動中の人腕の機械的剛性をダイレクト・ドライブ・マニピュレータを用いて計測すると、姿勢保持中と同じか小さいぐらいで、腕などの制御対象の内部モデルが脳内にあることが示唆される。小脳のマイクロゾーンの一つ一つが制御対象の異なる運動での逆モデルを提供しているというモデルを提案した。眼球運動中のサルの小脳プルキンエ細胞の発火頻度を解析すると、このモデルを支持する結果が得られた。

1. はじめに

並列分散処理分野では脳の情報処理機能を明らかにしようとする計算論的神経科学の研究と、人工的なニューラルネットワークや並列計算機構の工学的応用の研究が行われている。本稿では前者のしかも随意運動制御の計算モデルについて紹介する。特に脳の中に制御対象の内部モデルが必要なのか、また学習でそれがどのように、どんな場所に獲得されるのかを中心に話を進めていく。

E. Saltzman や J. Hollerbach の先駆的な研究に基づいて、筆者らは随意運動制御に必要な計算を図1に示すように列挙した。この図ではいくつかの計算過程が直列的に並んでいるように描かれている。「机の上にある水の入ったコップを手を取る」という問題を例にこのモデルを説明する。まず、視覚系により位置が決定されているコップの位置までの無数に存在する軌道のうちからただ1つの軌道を、視覚系の作業座標で決定しなくてはならない。次にこのようにして決定された軌道を、筋肉の長さや関節角といった身体座標に変換する座標変換を行わなければならない。最後に身体座標で表現された軌道を実際に実現するためのトルク、筋の張力を発生する制御を行なう必要がある。以上のように随意運動の制御では、軌道決定、座標変換、制御の少なくとも3つの問題が解決されなければならない。これら3つの問題が解かれなければいけないことは確かだが、脳内でこれら3つの過程がきれいに分

かれ、かつ直列的に独立して解かれているかどうかは明らかではない。

図1の計算モデルでは、左から右に行くに従って、情報表現が視覚の作業座標系からより筋肉骨格系に固くむすびついた座標系へ、また目標点や運動の方向などよりキネマティックな量から筋肉の張力や関節のトルクのようなよりダイナミックな量へと変化している。

計算理論の用語である順ダイナミクス、逆ダイナミクス、順キネマティクス、逆キネマティクスを説明しよう。多関節の腕、体幹、調音器官などの運動制御対象の状態の時間変化は次のような非線形の常微分方程式系で表せる。

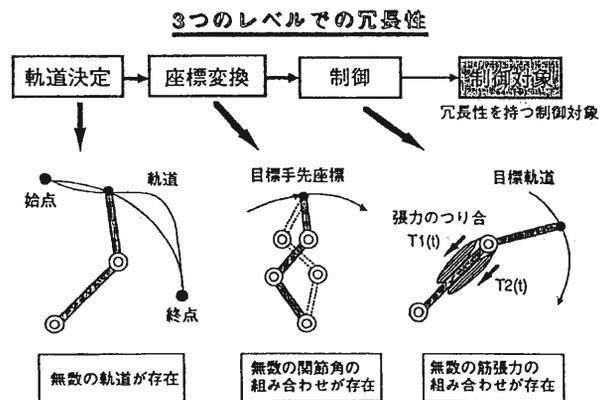


図1 随意運動の制御における3つのレベルでの冗長性

$$d\theta/dt = f(\theta, u)$$

ここで θ は制御対象の状態を表す n 次元ベクトル、 u は張力やトルクなどの制御入力を表す m 次元ベクトル、 f は n 次元の非線形ベクトル関数である。生体の運動制御の多くの場合、 m が n より大きくなっていて、ダイナミクスに冗長性があるという。例えば肘関節の運動を考えると、回転角の自由度 n は 1 であるが、肘の運動にかかわる単関節筋や 2 関節筋の数 m は 10 個前後もある。さて制御変数 u の時間経過を決めて、状態 θ の初期値を決めてやると、常微分方程式にしたがって状態 θ の時間経過がすべて決まる。このように運動指令 u から軌道 θ を決定する問題を順ダイナミクスと呼ぶ。逆に、望ましい軌道 θ が与えられたときそれを実現する制御変数 u を決定する問題を逆ダイナミクスと呼ぶ。この問題を解くには軌道 θ の時間微分と軌道 θ を上の常微分方程式に代入してやり、 u を未知数と考えて u に関する陰関数の方程式を解けばよい。以上の順ダイナミクスと逆ダイナミクスは制御対象のダイナミックな特性によって規定される計算問題である。

次にキネマティクスを定義しよう。制御対象の身体座標での状態が上と同様 n 次元ベクトル θ で表されているとする。これと同時に、作業座標で制御対象のある作用点の状態が k 次元ベクトル x で表現されているとする。例えば人の片腕で肩、肘、手首までの関節を考えれば $3 + 1 + 3 = 7$ 自由度が身体座標の状態 θ である。一方、手の三次元空間内での方向と位置を指定するには $3 + 3 = 6$ 自由度が必要で、これを表すのが作業座標 x である。運動制御の多くの問題では身体座標系の方が作業座標系よりも自由度が大きい $n > k$ 。このような制御対象をキネマティクスに冗長性をもつという。一般に身体座標の状態 θ を決めれば作業座標での作用点の状態 x は、次のキネマティクスの方程式にしたがって一意に決まる。

$$x = g(\theta)$$

上の方程式にしたがって θ から x を決める問題を順キネマティクスと呼ぶ。逆に x から θ を決める問題を逆キネマティクスと呼ぶ。運動制御で必要となるのは一般に、逆キネマティクスの問題である。例えば、机の上のコップをつかむ運動を考えると、コップの位置やコップの長軸の方向は視覚系によって計算され運動系に渡される。把持運動のためには、手の位置と方

向をコップの位置と長軸方向に合わせなければならない。このためには、逆キネマティクスの問題を解いて、それを実現できるような関節角や筋長を決めてやらなければならない。以上の順キネマティクスと逆キネマティクスは制御対象の幾何学的な(キネマティック)特性によって規定される問題である。

2 仮想軌道制御仮説

Bizzi らは正常なサルと求心性の体性感覚神経線維を切断したサルに肘の単関節運動を行なわせた。発光ダイオードで示された目標位置まで手先を動かすとジュースや水などの報酬がもらえる。十分訓練を繰り返すと正常なサルだけでなく脱求心線維の手術を施したサルでも、自分の手先を見ることができないような状況下で、課題が遂行できるようになる。手先の位置に関する視覚情報が与えられない条件下では、脱求心線維の手術を施されたサルは、自分の手先の位置を知る感覚情報は体性感覚も視覚も全くないことになる。目標位置の視覚情報は与えられるのだが、自分の手先位置は分からないのだからフィードバック制御は使えない。これは完全なフィードフォワード制御だけで肘の運動が行なえることを示している。しかも、肘の屈筋と伸筋の活動レベルを調節することで、平衡位置が決定されている。

このような制御は筋肉が持つバネ特性と、伸筋と屈筋の釣り合いによって可能となっている。簡単のために、図 2 に示すように、肘関節に 1 対の伸筋と屈筋だけがつけられているとして、A. Feldman, Bizzi らによって提案された平衡位置制御仮説を説明する。図 3 に伸筋と屈筋が発生する張力を肘の関節角度の関数として描いた。このような関係は所謂筋肉の長さ張力曲線に

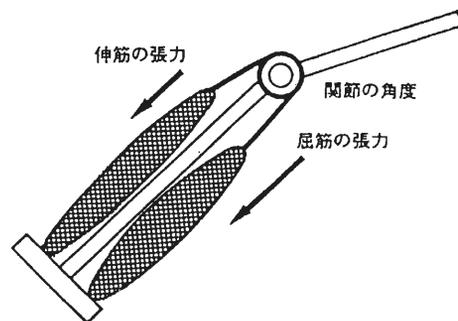


図 2 1 対の伸筋と屈筋だけがついた単関節のモデル

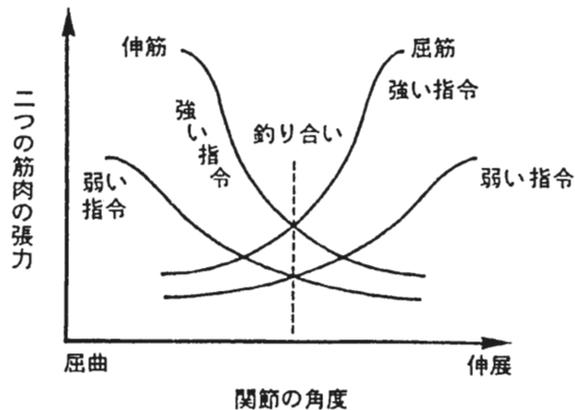


図3 伸筋と屈筋の張力と関節角

由来する。つまり、筋肉を支配している運動神経の発火頻度が同じであれば、筋肉の長さが伸ばされるほど、大きな張力が発生する。これが筋肉のパネ特性である。伸筋と屈筋では筋肉の長さが肘関節が曲がるにつれ、それぞれより大きく、また小さくなるから、図3では傾きが正負反対になっている。簡単のために、伸筋と屈筋の肘関節でのモーメントアームが等しいとすれば、肘関節は伸筋と屈筋の回転トルク、つまりこの簡単な場合は張力が釣り合ったところが安定な平衡位置となる。つまり図3で2つの張力曲線が交わる点での関節角度が安定な姿勢となる。この平衡姿勢より関節の曲がりが大きいと、屈筋はたわんで張力が小さくなり、逆に伸筋は伸ばされて張力が大きくなる。その結果、関節は伸ばされて平衡姿勢に戻る。関節がより伸ばされたときにも、逆の事態がおきて平衡姿勢が達成される。

さて図3の実線の交点で示される姿勢で張力が釣り合っているときに、屈筋を支配する神経の発火頻度が減少し、逆に伸筋を支配する神経の発火頻度が増加したとする。すると図4(A)の破線で示したように、屈筋の長さ張力曲線は全体として小さくなり下に移動する。それに対して、伸筋の長さ張力曲線は全体として大きくなり上に移動する。これは、同じ長さでは運動神経の活動度が高いほど張力は大きくなるからである。また長さ張力曲線の傾きは、筋肉が単位長さだけ伸ばされたときに、張力がどれほど大きくなるかという、機械的な剛性を表している。神経の活動度が上がれば、同じ長さでも剛性が増えるのである。これらの変化の結果、新しい平衡姿勢は、2つの破線の交点で

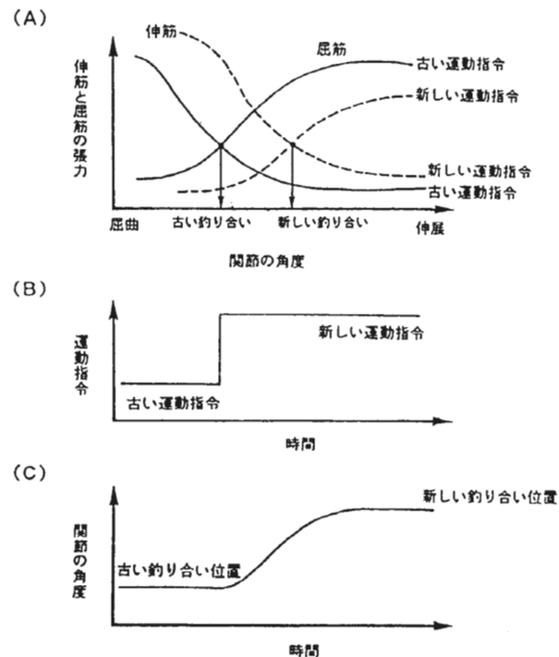


図4 前図と同じ関節について、今度は屈筋は運動指令を下げて、伸筋は運動指令が大きくなったとする(A)。このとき屈筋の張力は下がり、伸筋の張力は上がるから、新しい釣り合い位置は古い釣り合い位置に比べて、より関節が伸びたものになる。(B)：(A)に示したような運動指令の変化をある時刻に突然おこなっても、(C)：腕のもっている慣性や粘性のために、引きつづいて起こる手の運動はなめらかなものになり、観測される実際の運動と似たものになる。

示されるより伸展したものとなる。したがってたとえ自分の肘関節の位置が体性感覚や視覚情報で知ることができなくても、伸筋と屈筋に送る運動指令の組み合わせを適当に調節することによって任意の姿勢を実現できるのである。

Bizziはこのような方法が姿勢制御だけでなく、運動の制御にも使われていると考えて、図4に図解する終端位置制御仮説を提案した。このモデルでは、図4(A)の実線の交点から破線の交点へ移動するような運動を行なうとき、運動指令(筋肉を支配する神経の発火頻度)を、実線を規定するものから破線を規定するものへ図4(B)で示すように階段関数的に変化させる。腕には、慣性や粘性があるから、運動指令が瞬間的に変化しても、関節角は滑らかに図4(C)に示すように変化するのである。この仮説は、サルや人間の腕や頭部の運動中に瞬間的に、あるいは継続的に擾乱や力を加える実験に基づいて提案されたもので、大変魅力的であるが、現在では実験データに基づいて否定されている。第一に、こ

のモデルでは運動の開始時に力、ひいては加速度が不連続になる。ところが実験データによれば、加速度は運動の開始時にも連続的に変化する。

第2は Bizzi 自らのサルを用いた実験である。正常又は脱求心線維手術を施したサルの運動中に、肘を取付けたマニピュレータをサーボモータで強制的に目標位置まで持ってくる。サーボの動作を、正常の運動時間が終わる前に停止すると、手はいったん通常の軌道の途中まで戻りその後通常の軌道にそって目標位置まで近づいていく(図5参照)。もし終端位置制御仮説が正しいとすれば、サーボを切ったとき、手はすでに目標位置に到達しているのだから、それ以上変化を起こす力は存在せず、手は目標位置に留まるはずである。実験データが示しているのは、脳内で単に目標位置だけが指定されているのではなく、運動軌道全体が脳によって指定されていることを示している。これは図1で示した軌道が脳内に表現されていることを支持するデータである。ただしここでの軌道は視覚の座標系で表されているか、関節角や筋肉の長さなどの身体座標系で表されているかは分からない。Bizzi, Hogan, Mussa-Ivaldi らはこの実験に基づいて、終端位置制御仮説を発展させて、次に説明する仮想軌道制御仮説を提案した。このモデルでは、平衡位置が軌道として計画され、それが滑らかに変化する。実際の手の軌道はこの仮想軌道を追いかけるようにして実現される。

Feldman, Bizzi, Hogan, Mussa-Ivaldi, Flash といった研究者は、次次に示すように、脳は仮想軌道

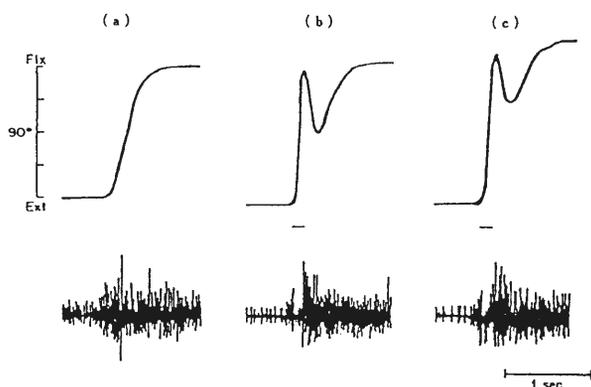


図5 サル肘関節運動のサーボ動作による擾乱実験。図上は肘関節角度を時間の関数としてプロットしている。図下は筋電図。(a)は正常の運動、(b),(c)の横棒で示したところでサーボ動作により肘を目標点まで強制的に動かしている(Bizzi から引用)。

$X_{virtual}$ を脊髄の運動制御中枢に送り、実際の軌道 $X_{realized}$ と仮想軌道 $X_{virtual}$ の差に手が持つ剛性行列 K_{hand} がかけられて力が発生し運動が実現されていると考えた。この剛性行列には筋肉のバネ特性による純粋に機械的な剛性だけでなく、脊髄内の負のフィードバック神経回路による寄与も含まれている。

$$F = K_{hand} (X_{virtual} - X_{realized})$$

これを仮想軌道制御仮説と呼び、制御対象の機械的インピーダンスを能動的に制御しようという方法とともに計算論的神経科学やロボティクスで主流の考え方になっていた。このモデルの魅力はダイナミクスの複雑な計算が必要でない点である。躍度最小モデルのような簡単な直線軌道で仮想軌道を計画しても、実現された軌道が人間のそれに近いなら、制御対象の内部モデルを獲得したりそれを用いて逆ダイナミクスを解くなどの複雑で困難な計算が不要となる。Flash はかなり大きな機械的剛性を仮定すると、これが可能であることを示した。しかし、D. Bennett や筆者らによる運動中の人腕の機械的剛性の測定によれば、剛性はかなり低く、姿勢制御中に比べて低いときもある。この測定データに基づいて、筆者らはヒト腕の2関節6筋モデルを制御し、仮想軌道がまがりくねらないと直線的な軌跡を再現できないことを示した。この研究によれば、仮想軌道制御仮説の意義がほとんどなくなる。曲がりくねった仮想軌道を計画し計算することは逆ダイナミクス問題を解くのと同じくらい難しいし、広い見方をすれば逆ダイナミクス問題そのものであるとも言える。これらの研究は、逆ダイナミクス問題を解くために脳が制御対象のモデルを獲得しなければならないことを強く示唆している。

3 教師有り運動学習

逆ダイナミクスモデルを脳内に獲得するためには運動学習が必要である。教師有りの運動学習は、高等動物、特にヒトでは最も重要である。例えば、親が子に言葉の発音を教えたり、スポーツの初心者が熟練者の真似をするなどの例がある。ほとんどの場合に、教師は、生徒に運動司令つまり筋肉へ伝えられる神経パルス列を直接示すことはできない。お手本となる運動パターンは、視覚や聴覚を通して観測できる。しかし生徒(つまり運動制御を行う神経回路)は、実現された運動パターンのお手本からのずれはわかるが、運動司令

そのものの誤差を直接知ることにはできない。

従って、運動制御の場合には、たとえ教師有り学習でも、運動を制御する神経回路の出力について直接の教師信号が得られない。このような困難は運動の制御に特有の問題で、パターン認識の教師有り学習では生じない。これをどのように解決するかを中心に話を進めていきたい。

以下では筆者らが研究してきたフィードバック誤差学習を紹介した後で小脳の運動学習モデルとして議論を行なう。最後にサルの小脳腹側傍片葉のプルキンエ細胞の発火パターン解析から、小脳皮質に眼球プラントの逆ダイナミクスモデルの主要な部分があるという最近の成果も紹介する。

4 フィードバック誤差学習則

筆者らが提案した随意運動の制御モデルを図6に掲げる。連合領で目標軌道が計画され、これが運動領へ送られ、そこで筋張力を決定する運動司令となって筋骨格系へ送られて実際に運動が行われる。そしてこのとき実際に行われた運動は受容器が計測しトランスコーティカルループを介して再び運動領へフィードバックされる。ところがこのフィードバックループはループ遅れが非常に長く(100~300ミリ秒)、かつゲインが小さいので、これだけでは速くて滑らかで正確な運動を行うことはできない。小脳の中でも外側小脳と呼ばれる部分は連合野から目標軌道を受け取って出力を運動野へ送っていると考えられる。筆者らは外側小

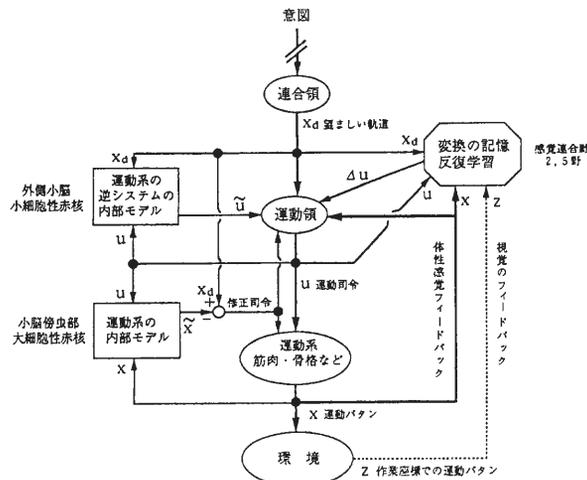


図6 随意運動制御のモデル

脳が運動野からフィードバック信号に関する情報を受けて、筋骨格系の逆ダイナミクスモデルを形成していると考えた。

図6から一部を取り出してブロック図で書き表したのが図7である。腕あるいはマニピレータのような制御対象に対して、まず最初はフィードバック制御を行う。つまり、目標とする関節角軌道と実際に測定された関節角軌道との差をとって、これにたとえばPID(比例:proportional,積分:integral,微分:differential)のゲインをかけてトルクを発生して制御を行う。しかしこれだけではフィードバック制御であるから目標軌道を完全に実現することはできない。そこでフィードバックループと並列にフィードフォワード制御を行う逆ダイナミクスモデルを重畳する。この逆ダイナミクスモデルは、フィードバックコントローラが出すフィードバックトルクを誤差信号としてモニターし、シナプス学習則を適用して形成されるもので、この逆ダイナミクスモデルから出力されるフィードフォワードのトルクとフィードバックトルクを足し合わせて制御対象に与えることにする。以上の学習則をフィードバック誤差学習と呼ぶ。

目標軌道 θ_d が図7に示すように、逆モデルとフィードバックコントローラの両者に与えられる。学習前には、制御は主に次式で与えられるフィードバックコントローラからの出力によって行われる。

$$\tau_{fb} = K_P(\theta_d - \theta) + K_D(\dot{\theta}_d - \dot{\theta}) + K_A(\ddot{\theta}_d - \ddot{\theta}) \quad (1)$$

基本的なフィードバックループの上に、フィードフォワードコントローラとしての、逆モデルが重畳されている。逆モデルは、シナプス荷重 w を可変パラメータとして持つ神経回路モデルの中に、制御と同時にシナプス荷重を学習によって変化させて獲得されて

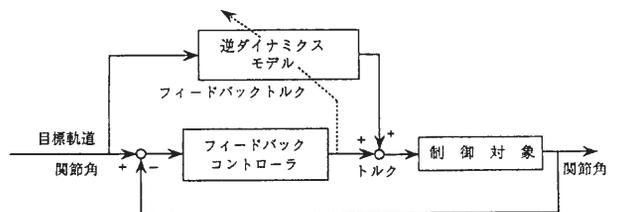


図7 フィードバック誤差学習のブロックダイアグラム

いく。

逆モデルは、目標軌道、速度、加速度入力から、そのときのシナプス荷重に基づいて、次式にしたがってフィードフォワード運動司令を計算して出力する。

$$\tau_{ff} = \varphi(w, \theta_a, \dot{\theta}_a, \ddot{\theta}_a) \quad (2)$$

関数 φ は、具体的にどのような神経回路モデルが逆モデルに使われるかに依存してきまる。つまりフィードバック誤差学習は逆モデルを具体的に構成する神経回路モデルより上のレベルの学習スキームである。

制御対象には、次式に示すようにフィードバックコントローラからのフィードバック運動司令と、逆モデルが計算するフィードフォワード運動司令の和が与えられる。

$$h(\theta, \dot{\theta}, \ddot{\theta}) = \tau_{fb} + \tau_{ff} \quad (3)$$

ここで、制御対象のダイナミクスを h で表した。逆モデルの獲得は、次式で表されるフィードバック誤差学習則によって行われる。

$$dw/dt = \varepsilon(\partial \tau_{ff} / \partial w)^T \tau_{fb} \quad (4)$$

この式を、教師有り学習則として良く知られている Widrow-Hoff 則などと比べると、フィードバック運動司令が、逆モデルを学習するための運動司令の誤差信号として働いていることがわかる。

フィードバック誤差学習は、関数空間の広義ニュートン法と見なせる⁽¹⁾。この見方からすれば、フィードバックコントローラは、制御対象の近似的で線形な逆モデルを提供しており、作業座標の軌道の誤差を運動司令の誤差に変換する役割をはたしている。

フィードバック誤差学習スキームでは、学習と制御が同時に行える。さらに、目標指向性を持っていることも証明できる⁽¹⁾。つまり、シナプス荷重は逆モデルを与えるという意味で最適の値に収束し、それと同時に、実現された軌道は目標軌道に収束することが証明できる。証明では、学習方程式を確率微分方程式と見なし、シナプス荷重の変化が軌道の変化と比べて十分遅いという仮定のもとにその平均化方程式を導き、それにリヤプノフの安定性理論を用いる。

またフィードバックコントローラが無数の解からただ一つを選んでくれるので不良設定な逆ダイナミクス、逆キネマティクスの問題も解ける。

5 小脳運動学習の計算モデル

フィードバック誤差学習は、図6に示したように、

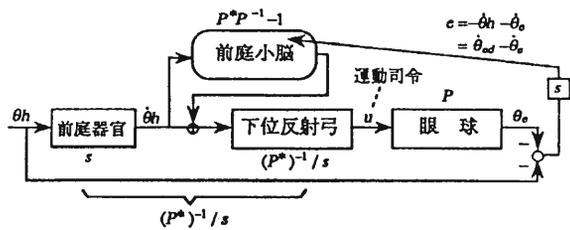
元々は、小脳外側部と小細胞性赤核のモデルとして提案された。逆モデルは小脳外側部と小細胞性赤核に、フィードバックループはトランスコーティカルループに、フィードバックコントローラ及びフィードバック運動司令とフィードフォワード運動司令を足し合わせる部分は大脳皮質運動野に対応する。

小脳は系統発生的にも解剖学的にも、前庭小脳、小脳虫部、小脳中間部、小脳外側部の4部位に分かれている。小脳半球は末梢からの直接のフィードバック情報を受け取らず、かなり純粋な形で前向き制御をしている。ところが、他の3部位はすべて末梢からフィードバック情報を受け取っている。入力と出力が画然と分かれているので、各部位で運動制御に果たす役割は異なっている。しかし一方で、小脳皮質内の神経回路網の細胞レベルでの構造は一樣であるから、本質的な情報処理原理は部位に依存しないと考えられる。

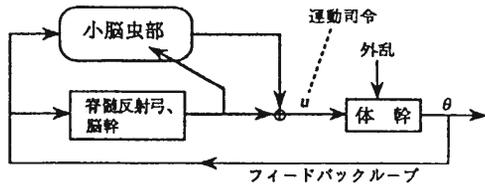
また伊藤正男らが発見した小脳皮質のプルキンエ細胞のシナプス可塑性“長期抑圧”は小脳部位によらない。これはプルキンエ細胞の主要な2入力、平行線維入力と登上線維入力と同時に発火すると平行線維入力の伝達効率が減少するというものである。小脳皮質プルキンエ細胞の長期抑圧と前庭動眼反射の適応的修飾に関する知見などから、筆者ら⁽²⁾は図8に示す小脳4部位の統一モデルを提案している。特に小脳半球について詳細な神経回路網を図9に示す。

ここで登上線維入力はフィードバックコントローラの運動司令を表現していると仮定する。筆者らは、フィードバック誤差学習スキームが、不安定制御対象を含む閉ループの、モデル規範形適応制御に適用できることを見いだした。その制御ダイアグラムは、図8に示すように、小脳虫部の姿勢制御の適応機構のモデルと見なせることも指摘されている。

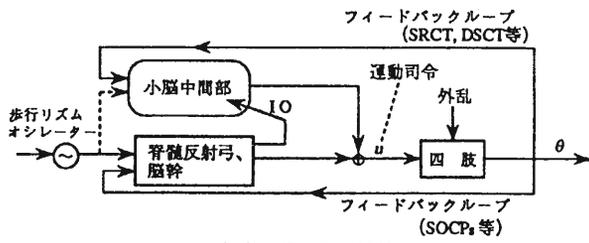
小脳の適応機構で最も有名なのは、伊藤正男らの研究⁽³⁾と藤田昌彦のモデル⁽⁴⁾によって明らかにされた、前庭動眼反射を適応的に修飾する小脳片葉のシナプス可塑性であろう。このシステムには、神経回路としてのフィードバックループはないから、フィードバック誤差学習の枠組みでは理解できないように見える。視覚システムは、網膜上の像のブレから、頭と眼球の動きの和の速度を計測している。実はこれは、眼球運動にとって望ましい軌道、つまり頭の運動の符号をひっくり返した軌道から実際の眼球運動をひいて、時間微



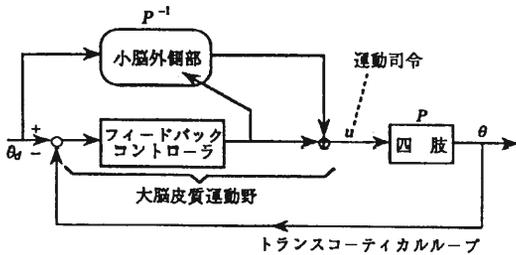
(a) 前庭動眼反射の適応機構



(b) 姿勢制御の適応機構



(c) 歩行の適応的制御



(d) 随意運動の学習制御機構

図8 小脳の異なる部位の異なる入力と機能が、フィードバック誤差学習の枠組みで統一的に理解できることを示したブロック図

分を取っていることになる。これは、微分形のフィードバックコントローラが計算する運動司令の誤差そのものである(図8参照)。従って、小脳片葉の可塑性も計算論的にはフィードバック誤差学習で、もう少し一般的に言えば関数空間の広義ニュートン法として理解できる⁽¹⁾。

図10に提案したモデルの概念図を示す。図10で、すべての小脳部位(Cerebellar Cortex)へ送られる登上線維信号(Climbing fiber inputs)は、運動司令座標系での誤差を表している。これは、図7に示したフィー

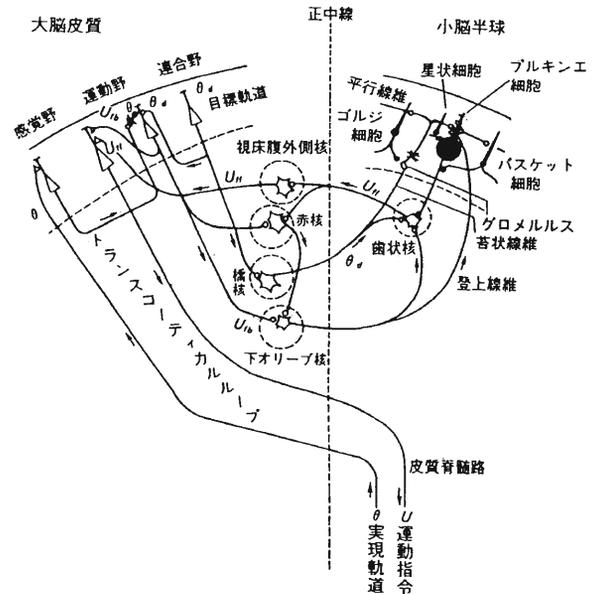


図9 大脳小脳連関とフィードバック誤差学習
図は、小脳半球と大脳皮質の相互連絡路である大脳・小脳連関が、どのようにフィードバック誤差学習を実現する神経回路として理解できるかを模式的に示したものである。図中 θ は実現した軌道、 θ_d は目標とする軌道、 U は運動指令、 U_{fb} はフィードバック指令、 U_{ff} はフィードフォワード運動指令を示す。

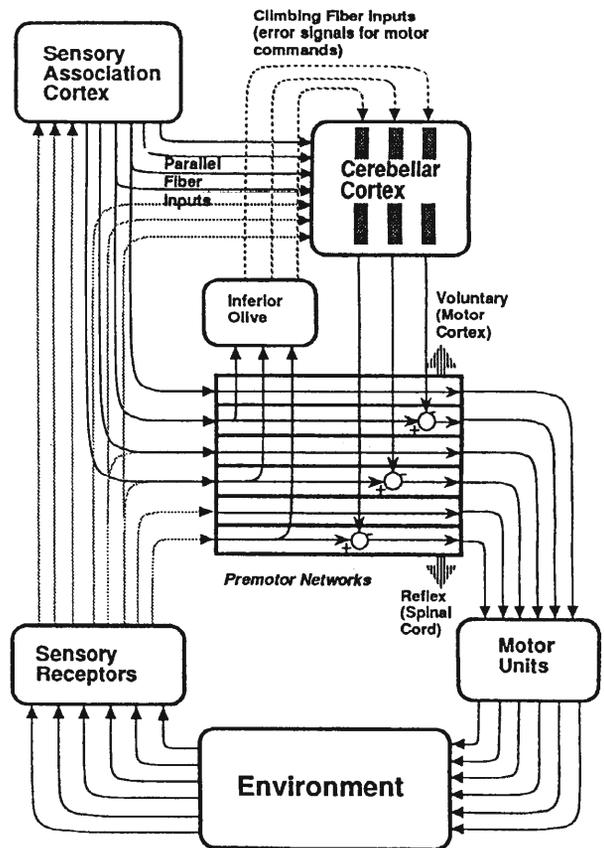


図10 小脳運動学習の統一計算モデル

ドバック誤差学習における、フィードバック制御器の出力に対応する。この誤差信号は、図 10 に示されているように、運動司令を生成する神経回路、すなわち脊髄・脳幹・大脳皮質運動野などで生成される。特定の小脳深部核とつながる小脳皮質のおおののマイクロゾーンでは、先に説明した長期抑圧によって平行線維とプルキンエ細胞の間の信号伝達効率に変化する。その結果、環境との相互作用によって生ずるさまざまな感覚受容器からの入力、あるいは大脳皮質からの信号が、運動司令となって筋肉(Motor Unit)に伝わる際に、それを調整して、多種の円滑な運動を実現する。このスキームが以前のモデルに比べて発展した点は、皮質各部位における学習を統一的に「フィードバック誤差学習」で説明していること、一部の機能について、計算論的に実現可能であることを示していること、である。特に、小脳への誤差信号が、各運動系における運動司令座標系で表されていることを主張したことが、さまざまな運動に対する学習を統一的に計算論として扱うためのキーポイントであった。

ここで、モデルの中で学習のための誤差信号を表している、下オリブ核を介して送られる登上線維信号の生理学的側面を考えてみる。この信号は、非常に発火頻度が低いと、誤差の方向性や大きさを表していないととられることが多い。また、Premotor network がそのような誤差を生成できるかという問題も完全に整理されているわけではない。しかし、小脳片葉に限って言えば、登上線維信号の統計的な性質が、運動司令誤差の方向性と大きさをコードしていることは、実験

的に示されている。さらに、その信号が網膜で検出され、網膜での像のぶれを表す信号であることも調べられている。これらの事実は、前庭動眼反射・視機性眼球反応の適応系において、フィードバック誤差学習による計算論的モデルと、神経回路・生理学的現象との対応を示す上で重要なデータとなった。

さて、姿勢制御や歩行制御に関しては、その適応調節機構と小脳との関係は古くから知られている。これらの部位では、おおのの神経回路の様子から、主にフィードバック制御適応系を構成していると考えられる。これは、計算論的にも理にかなっており、姿勢・歩行は不安定制御系であるためフィードバック制御を必要とする。これらの運動の小脳での学習モデルに、前庭動眼反射適応モデルおよび随意運動学習モデルでの考え方を拡張すると、図 10 に示したように、下オリブ核からの情報が「運動司令誤差」を表す信号になってフィードバック誤差学習を行っているという推察ができる。しかし、それらの部位でのより詳細なモデルを構築するためには、今後の生理学的データと計算論的検討を待たなければならない。最近この点に関して大きな進歩が得られた。電子技術総合研究所の設楽・河野博士らと共同で⁽⁵⁾ 追従性眼球運動中のサル腹側傍片葉のプルキンエ細胞の発火パターンを、眼球運動に基づいて再構成した。その結果、小脳のこの部分が眼球プラントの逆ダイナミクスモデルの主要な部分をなしていることが明らかになった。この方向の研究のさらなる進展が望まれる。

【参考文献】

- [1] M. Kawato (1990). Feedback-error-learning neural network for supervised motor learning, In R.Eckmiller (Ed.), *Advanced Neural Computers*. North-Holland, Amsterdam, 365-372.
- [2] M. Kawato and H. Gomi (1992). The cerebellum and VOR/OKR learning models, *Trends in Neurosciences*, 15, 445-453.
- [3] M. Ito (1984). *The Cerebellum and Neural Control*, Raven Press, New York
- [4] M. Fujita (1982). Adaptive filter model of the cerebellum, *Biological Cybernetics*, 45, 195-206.
- [5] M. Shidara, K. Kawano, H. Gomi & M. Kawato (1993). Inverse-dynamics model eye movement control by Purkinje cells in the cerebellum, *Nature*, 365, 50-52.

2 波長による蛍光モニタリングが可能な水溶性蛍光イオンセンサーの分子設計と細胞内イオン濃度のセンシング

プロジェクト研究報告

2 波長による蛍光モニタリングが可能な水溶性蛍光イオンセンサーの分子設計と細胞内イオン濃度のセンシング

電子機能素子部門（細胞機能素子研究分野）	神	隆	
電子機能素子部門（超分子分光研究分野）	西	村	吾
	野	村	保
			友
		 37

極端紫外光による物性研究

電子材料物性部門（相転移物性研究分野）	木	下	修	一	
電子計測開発施設	笠	原	勝		
電子材料物性部門（電子物性研究分野）	松	見	豊	 42

2波長による蛍光モニタリングが可能な水溶性蛍光イオンセンサーの分子設計と細胞内イオン濃度のセンシング

電子機能素子部門 細胞機能素子研究分野 神 隆
電子機能素子部門 超分子分光研究分野 西村 吾朗
野村 保友

細胞内におけるイオン濃度の分布を画像化するために、蛍光イオンプローブを用いた蛍光顕微分光法が画像処理技術の発展とあいまって近年飛躍的な進歩を遂げている。現在のところ、実用的な細胞内金属イオンに対する蛍光プローブとしては、カルシウムイオンにのみ限られているが、Tsienらの開発したFura-2により、細胞内カルシウムイオン濃度の蛍光測定は、細胞内情報伝達機構の研究にとり必要不可欠な研究手段となってきた。一方、細胞生理学的に極めて重要なアルカリ金属イオンであるナトリウム、カリウムイオンについては、現在のところ数種の蛍光プローブが報告されているが、細胞膜透過性の低さ、測定感度の点での問題があり、実用化まで至っていない。本研究では、細胞内のナトリウム、カリウムイオン濃度を蛍光法より高感度に検出するため、2波長による蛍光モニタリングが可能な蛍光イオンセンサーの分子設計をおこなった。

はじめに

細胞内に存在する各種アルカリ金属イオンのうち、ナトリウムおよびカリウムイオンは代表的な電解質成分であり、哺乳動物の骨格筋細胞内ではナトリウムイオンで約12 mM、またカリウムイオンでは約155 mMと高濃度に含まれている。また、細胞内外でのこれらイオンの濃度勾配は、ナトリウムイオンで約12倍(細胞外145 mM)、カリウムイオンで約40倍(細胞外120 mM)あり、これらイオンの濃度勾配が、細胞の形態維持、細胞の電気的活動、細胞膜を介した物質の輸送、細胞内の他のイオン濃度の調整などに関係している。近年、細胞内での情報伝達機構の研究の進展にともない、細胞内におけるナトリウム、カリウムイオン濃度の変化を空間的かつ時間的にモニターできる測定法の開発が望まれている。

生きたままの状態での細胞内のナトリウム、カリウムイオンの濃度を測定する方法としてはこれまで、おもにイオン選択性電極を用いる分析法が使われてきた。この方法は、測定感度の面で優れているが、電極を細胞膜を突き破って細胞内に挿入しなければならないため

非破壊的な測定法とはいえ、また細胞内でのイオン濃度の空間分布が測定できない欠点をもっている。一方、非破壊的な測定法として近年、ディスプレイウムをシフト試薬として利用する²³Na、あるいは³⁹K核の核磁気共鳴法が、細胞内ナトリウム、カリウムイオン濃度を測定する手段として発展してきているが、この方法も重金属であるシフト試薬を使わなければならないため、生理的条件下での研究には問題があるといえる。最近では、細胞内外でのナトリウム、カリウム核の緩和時間の差を利用することにより、シフト試薬なしでもイオン濃度の測定が可能となってきた。しかしながら、核磁気共鳴法は、測定感度が微小電極法などにくらべ著しく低く、臓器の灌流系など比較的感受度の稼げる系では応用可能であるが、細胞一個のレベルでの測定には適さない。近年、核磁気共鳴法を用いた微小空間のイメージング(NMR顕微鏡)の開発が進められているが、イオン濃度の空間分布を画像化するまでは至っていない。

一方、蛍光法による細胞内イオン濃度の測定法は、1980年にTsienらがカルシウム蛍光プローブ(Fura-2)を開発して以来、急速な発展を見せてきてい

る。現在、細胞内でのカルシウムイオン濃度の測定は、ほとんどが、Fura-2 もしくはそれに改良を重ねたカルシウム蛍光プローブを用いておこなわれており、また顕微蛍光分光法の発展とあいまって、細胞内カルシウムイオン濃度の空間分布を画像化できるようになってきている。

しかしながら、細胞内で、最も高濃度に存在するナトリウム、カリウムイオンに対しては、いまだ有効な蛍光プローブは見当たらない。Tsien らは、1989 年に、細胞内ナトリウム、カリウムイオンに対する蛍光プローブとしてアザクラウンエーテルの誘導体である SBFI(ナトリウムイオンプローブ)、PBFI(カリウムイオンプローブ)を発表しているが、これらプローブの蛍光特性として、イオンとの錯形成後、蛍光波長がわずかしきシフトしないという欠点をもっている。そのため、イオンの濃度変化を測定するために、わざわざ 2 つの異なる波長で励起し、それぞれの発光強度の比をモニターする必要がある、特にイオン濃度の時間変化などをみる場合にはあまり適したプローブとはいえない。この点では、錯形成後、著しい蛍光波長のシフトが起こるようなプローブの方が、2 波長で蛍光変化を迫るためイオン濃度の変化を測定する場合有利といえる。また、プローブのイオン選択性の比は、SBFI でカリウムイオンに対して 18 倍、また PBFI ではナトリウムイオンに対して 1.5 倍の値であり、細胞内のナトリウム、カリウムイオン濃度比を考えると十分な選択性があるとは言えない。

本研究では、従来知られている SBFI や PBFI の欠点を克服し、細胞内ナトリウム、カリウムイオン濃度を高感度に測定するため、2 波長での蛍光モニタリングが可能な高感度な蛍光イオンセンサー分子設計をおこなった。細胞内のナトリウム、カリウムイオン濃度を測定するための理想的な蛍光プローブとしての基本的条件は、大きく

- 1) 細胞内に存在する他のイオンの影響が無視できる程度のイオン選択性を持つこと
- 2) イオンとの錯形成において蛍光変化が、強度変化だけではなく、蛍光の色が変わる程度鋭敏であること
- 3) 錯解離定数が測定対象とする細胞内イオン濃度に近い値をもつこと
- 4) 蛍光の量子収率が高く、光分解しにくいこと

5) 細胞内へ導入するために十分な膜透過性(疎水性)を持つこと

また、いったん導入後は細胞外に漏れ出さないこと

6) 細胞毒性がないこと

などが考えられる。

実用的には、これらすべての条件を満たす蛍光プローブの開発が求められるが、本研究ではとくに 1)、2) の条件を満足する分子設計の指針を得るため、いくつかのモデル化合物を合成し、その基本的な蛍光特性を調べた。

2 波長でのモニター可能な 蛍光イオンプローブの分子設計

ナトリウムあるいはカリウムイオンに対する蛍光プローブの条件として、第 1 に高いイオン選択性をしめす必要がある、これまでは、環状配位子であるクラウンエーテルあるいはクリプタンドを基本骨格とした蛍光イオンプローブの設計が行われてきた。ただし、これら化合物に、蛍光色素を導入するためには基本骨格となっているクラウンエーテルあるいはクリプタンドのイオン結合部位となっている酸素原子を一部窒素原子に置換しなければならなかった。このことは結果的に、ナトリウムあるいはカリウムイオンに対する選択性を減少させることとなる。

この点では、クラウンエーテルあるいはクリプタンド系化合物と同じようなイオン選択性を示す化合物としてカリックスアレンの方が有利である。カリックスアレンはフェノールとアルデヒドと縮合反応から得られる環状オリゴマーであり、そのエステル誘導体は、環径の違いによってイオン半径の異なるアルカリ金属イオンに対してイオン選択性を示すことが知られている。イオン結合部位がエステル部分のカルボニル酸素であるため、蛍光色素はその末端に導入すればよく、クラウンエーテルあるいはクリプタンドを基本骨格とする場合のようにイオン結合部位に手をくわえる必要がない。このことは、イオンの選択性を低下させることなく、蛍光イオンプローブを分子設計することが可能であることを意味する。このような理由から、カリックスアレンを基本骨格とした蛍光イオンプローブの分子設計をおこなった。

蛍光プローブの分子設計で最も重要なのが、どのよ

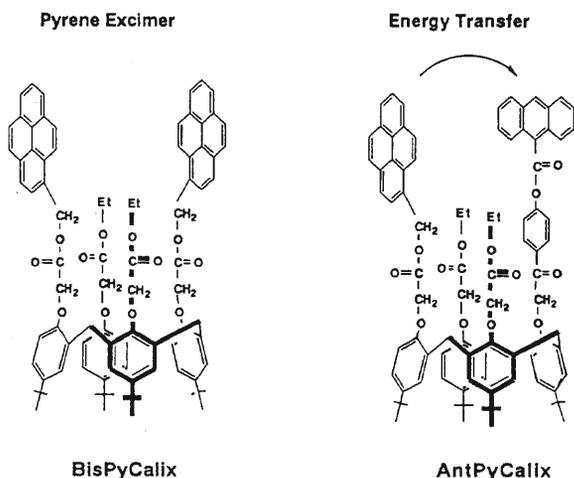


Fig.1 Newly Synthesized Fluorescent Na⁺ Probes

うに蛍光変化をイオンのセンシングと結びつけるかという点である。蛍光変化としては、蛍光強度の変化あるいは蛍光の色の変化(発光波長のシフト)が考えられる。定量性の観点から考えると、蛍光強度の変化よりは、蛍光の色の変化が起こるようなプローブが望ましい(2波長での検量が可能)。また蛍光測定では、しばしば励起光による蛍光の退色が起こるため、蛍光強度のみから濃度を見積もると大きな誤差を含むことになる。このことから2波長での蛍光測定は重要である。

以上のような観点から、カリックス[4]アレンを基本骨格として、2波長での蛍光変化が期待できる2種類の蛍光プローブ(図1)を設計し、合成をおこなった。それぞれの化合物、BisPyCalix および AntPyCalix は、ナトリウムとの錯形成後に、ピレンの分子内エキシマーとモノマー蛍光の強度変化あるいはエネルギー移動にともないドナー/アクセプターの蛍光変化が起こるようなプローブとしてデザインした。

合成

BisPyCalix および AntPyCalix の合成は、以下の手順でおこなった。

BisPyCalix: p-tert-Butylcalix[4]arene の Bis-ethoxycarbonylmethyl ether 100mg (0.122 mmol)と 1-Pyrenemethyl iodoacetate 100mg (0.250mmol)を 100 ml の無水テトラヒドロフランに溶かし、さらに 100 mg の無水炭酸カリウムを加える。酸化反応をおさえるため、アルゴン雰囲気下で 15 時間還流する。冷却後、反応液を 0.1 N 塩酸で洗い、有機層を分離する。

精製は、シリカゲルを担体としてカラムクロマトグラフィによりおこなった。溶出液はクロロホルムとメタノールの 20 : 1 混合溶媒を用いた。

AntPyCalix: BisPyCalix 合成と同様な手順により、p-tert-Butylcalix[4]arene の Bis-ethoxycarbonylmethyl ether に対して 1-Pyrenemethyl iodoacetate つづいて p-(9-anthroyloxy)-phenacyl bromide を反応させ合成した。分離精製も BisPyCalix の場合と同様。

それぞれの化合物の同定は、¹H NMR, MS スペクトルおよび元素分析からおこなった。

結果と考察

まず最初に、合成した BisPyCalix および

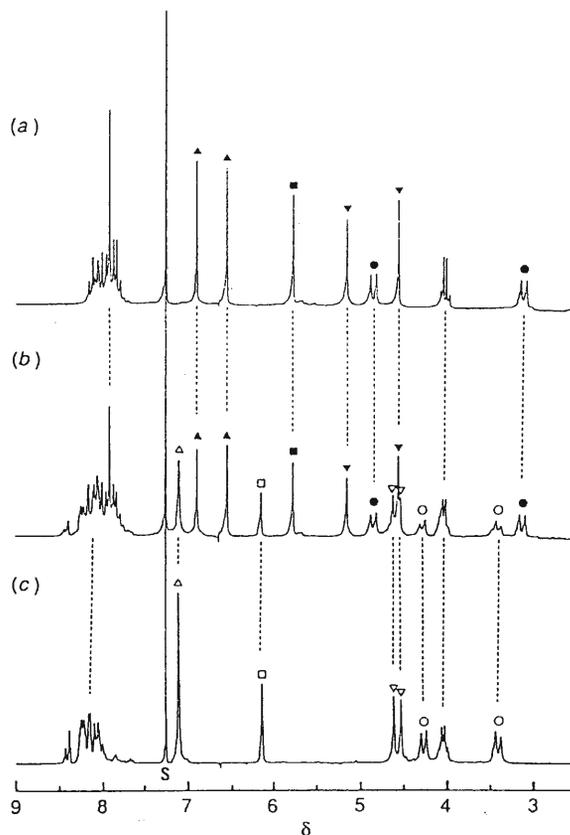


Fig.2 Partial ¹H NMR spectra of the fluorescent BisPyCalix [1] in CDCl₃ at 25°C: (a) R = [NaSCN]/[1] = 0, (b) R = 0.37, (c) R = 1, where [1] = 5.1 mol dm⁻³. Aliquots from a CD₃OD solution of 1 mol dm⁻³ NaSCN were added directly to a CDCl₃ solution of [1] in a NMR tube. (▲, △ = ArH; ●, ○ = ArCH₂Ar; ▼, ▽ = OCH₂O; ■, □ = pyrene-CH₂) The signal marked S is due to CHCl₃.

AntPyCalix のナトリウムイオンに対する錯形成能を確認するために、チオシアン酸ナトリウムをそれぞれのクロロホルム溶液に添加した時の ^1H NMR スペクトルの変化を調べた。その結果、それぞれの化合物が、ナトリウムイオンと 1:1 の錯体を形成することが明らかとなった。図 2 には、BisPyCalix のクロロホルム溶液にチオシアン酸ナトリウムを添加した時の ^1H NMR スペクトルを示した。フリーの BisPyCalix のクロロホルム溶液中でのコンホメーションは、ベンゼン環を架橋しているメチレン基が AB 型のスペクトルであることから、Cone 構造をとっていることがわかった。また、NOE の測定から、ケミカルシフトの値が 3.14 および 4.88 の吸収は、それぞれ equatorial および axial プロトン対応することが判明している。

ナトリウム塩を添加した時、BisPyCalix のスペクトルは、著しい変化をしめた。ナトリウム塩を少しずつ加えていくと、フリーの BisPyCalix とは異なる吸収ピークが新たに出現するが、ちょうどナトリウム塩と BisPyCalix のモル比がちょうど 1:1 になると、フリーの BisPyCalix の吸収ピークは完全に消失し、スペクトルは 1 つのコンホメーションに対応する単純な形となる。興味深いことに、このスペクトルはさらに塩を添加しても変化しない。これら NMR の実験結果は、BisPyCalix がナトリウムイオンと 1:1 の錯体を形成することをしめしている。同様なスペクトル変化は、AntPyCalix の溶液でも得られており、AntPyCalix の場合も 1:1 錯体を形成することが判明している。

NMR の結果は、蛍光ラベルしてもカリックスアレンの錯形成能が失われないということを示しており、このことはカリックスアレンを用いて蛍光プローブを設計する場合、きわめて重要な指針である。すなわち、カリックスアレンではそのイオン結合部位 (C = 0) の末端に蛍光色素を導入しても、錯形成能が阻害されないことを意味している。

つぎに、BisPyCalix および AntPyCalix がイオン添加にともない、蛍光変化を示すかどうかを調べた。図 3 および 4 は、チオシアン酸ナトリウムを BisPyCalix および AntPyCalix のメタノール + テトラヒドロフラン混合溶液に加えた時の蛍光スペクトルの変化を示したものである。BisPyCalix の蛍光スペクトルは、ピレンのモノマー (380 nm 付近) およびエキシマー

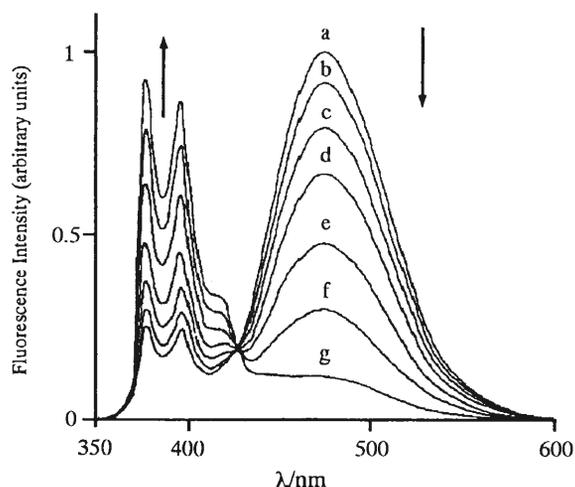


Fig.3 Na^+ titrations of the fluorescence spectra of BisPyCalix ($4.8 \mu\text{mol dm}^{-3}$) in methanol-tetrahydrofuran (v/v 15:1) at 25°C : a = $[\text{NaSCN}] = 0$, b = 2.9, c = 5.8 d = 12, e = 33, f = 82, g = $428 \mu\text{mol dm}^{-3}$. The spectra were measured with excitation at 330nm.

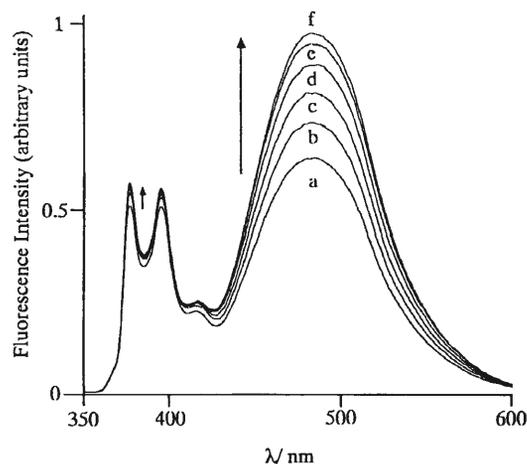


Fig.4 Na^+ titrations of the fluorescence spectra of AntPyCalix ($5.0 \mu\text{mol dm}^{-3}$) in methanol-tetrahydrofuran (v/v 15:1) at 25°C : a = $[\text{NaSCN}] = 0$, b = 5.8, c = 17.4 d = 46.3 e = 104, f = $218 \mu\text{mol dm}^{-3}$. The spectra were measured with excitation at 330nm.

(480 nm 付近) 2 種類の発光帯で特徴づけられる。このエキシマー発光は濃度をさらに低くしても消失しないため、分子内で形成されたエキシマーからの発光であると結論できる (分子間でのエキシマー形成は mM 程度の高濃度でなければ起きない)。したがって、ナトリウムイオン添加によるエキシマー発光の減少は、錯形

成後の BisPyCalix 分子のコンホメーション変化に起因しているものと考えることができる。このことは、図 2 で示した ^1H NMR のスペクトル変化の結果とも呼応している。

BisPyCalix のイオン選択性は、他のアルカリ金属イオンに対する同様な滴定実験から錯解離定数を求めることによって評価した。BisPyCalix のナトリウム錯体の錯解離定数はメタノール + テトラヒドロフラン (15:1) 中で $37\ \mu\text{M}$ であり、他のアルカリ金属イオンの場合に比べ錯解離定数の比で 100 倍以上小さい値であった。細胞内で特に問題となるカリウムイオンに対する選択性は、ナトリウムイオンにくらべて 154 倍も低く、蛍光ナトリウムイオンプローブとして十分な選択性をもつことがわかった。

AntPyCalix も、BisPyCalix 同様その蛍光変化はナトリウムイオンに特異的であった。蛍光スペクトルは、アンスロイル基およびピレンのモノマーに由来する 2 つの発光帯で特徴づけられる。485 nm にピークをもつブロードなスペクトルは、一見ピレンとアントラセンのエキサイプレックス形成をおもわせるが、これはアンスロイル基からの発光である。実際、このブロードな発光は、ピレンを除去してもその発光波長を変えない。また、アンスロイル基とピレンを別々に蛍光ラベルしたカリックスアレンの 1:1 混合物の蛍光スペクトルと AntPyCalix の蛍光スペクトルとの比較から、AntPyCalix では、ピレンからアンスロイル基へのエネルギー移動が起こっていることが明らかとなった。

ナトリウムイオン添加後、アンスロイル基からの発

光は、ピレンのモノマーの発光に比べ、その強度を著しく増加させる。この原因として、錯形成後、ピレンからアンスロイル基へのエネルギー移動の効率が増加したことが考えられる。この点を明らかとするため、ドナーであるピレンの蛍光の減衰曲線を測定した。予想どおり、錯形成後ピレンの蛍光寿命は減少し、エネルギー移動効率の増加が蛍光変化の原因であることが明らかとなった。AntPyCalix のナトリウムイオンに対するイオン選択性は、BisPyCalix にくらべ低く、カリウムイオンに対する親和性の差は約 60 倍であった。

まとめ

2 波長による蛍光モニタリングが可能な水溶性蛍光イオンセンサーを開発するため、エキシマー発光の変化あるいはエネルギー移動による蛍光変化を利用した蛍光イオンプローブ合成し、アルカリ金属イオンに対する蛍光特性を調べた。いずれの化合物も、疎水性であるためすぐに細胞レベルでの研究に応用できるわけではないが、非水溶媒中ではナトリウムイオンを選択的に検出するための蛍光プローブとして充分機能することがわかった。実用的観点からいえば、まだ初歩的な段階にとどまっているが、エネルギー移動による蛍光変化を利用した蛍光イオンプローブの有効性を示すことができたことは、2 波長による蛍光モニタリングが可能な水溶性蛍光イオンセンサー分子設計上の基本戦略が確立できたといえる。

極端紫外光による物性研究

電子材料物性部門 相転移物性研究分野 木下修一*
電子計測開発施設 笠原勝
電子材料物性部門 電子物性研究分野 松見豊

強誘電体相転移と電子との関連はこれまでほとんど取り扱われなかった。共鳴ラマン散乱によりフォノンを通じて電子状態の相転移点に於ける変化を観測することを最終目的とする。その予備実験としてラマン散乱強度の波長依存性を、透明結晶である燐酸二水素アンモニウム、硫酸三グリシンで測定した。さらに吸収端が長波長領域にある亜硝酸ナトリウムを対象にして、紫外光による電子の励起、それにとまなうルミネッセンス、および共鳴ラマン散乱の観測により、相転移に於ける電子状態の変化、フォノンの非調和性を観測できる可能性を議論する。光源として使用するダイレーザーの製作、性能について報告する。

1. はじめに

強誘電体相転移は、ある温度を境にして自発分極が発生する電氣的な相転移であると共に、この分極発生はイオンの変位に起因しているため構造が変化する構造相転移とも考えられる。原子は原子核と電子から成り立っているため、相転移によって構造が変化するとき、原子核の位置が変化のみならず電子雲もその形を変えているはずである。あるいは、原子核は電子雲を引きずって運動しているといえるため、相転移に際し電子も重要な役割を果たしていると考えべきである。このことは物質の電子状態に直接関わった測定をすることにより、直接この電子状態の変化を観測し、相転移とどのような関連を持つのか調べることで確かめることができる。ところで、一般にほとんどの強誘電体結晶は可視光領域で透明であり、電子の励起状態への遷移に対応する光吸収帯は紫外領域に分布しているのが普通である。物質の構造を調べるには光散乱の一種であるラマン散乱が使われることが多いが、これまで報告されたほとんどの実験は透明領域で行われているため、非共鳴のラマン散乱であるといえる。そこで、本研究では紫外光を光源とし、吸収帯もしくは吸収帯の裾を光励起することによって、直接

電子励起状態に関係する共鳴ラマン散乱ないし準共鳴ラマン散乱を行い、相転移に伴う電子状態の変化を調べることを目的としている。

2. 実験方法

試料としては、可視域で全く透明な $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (ADP) と硫酸三グリシン (TGS) 及びわずかに黄色味を帯びる亜硝酸ナトリウム (NaNO_2) 結晶を用いた。このうち、ADP については吸収端が 190 nm 前後であることが報告されているが、TGS についてはまったく不明である。このように一般に強誘電体結晶では電子状態に関する情報が殆ど無いのが現状である。一方、 NaNO_2 については、加藤らにより電子状態が詳しく調べられており、吸収帯も約 380 nm と比較的長波長であり、測定に都合がよい。そこで初めに NaNO_2 の電子状態について概観してみよう。

NaNO_2 は 163 K で相転移を示す強誘電体である [1]。NO₂ イオンが電気双極子を担い、NO₂ イオンが回転することによって、転移点以下で電気双極子の方向が揃うと考えられている。加藤等によって求められた 2 K での吸収 [2]、及びルミネッセンススペクトル [3] を図 1 に、その結果求められた電子状態の概念図を図 2 に示す [3]。吸収線の間隔は励起状態の格子振動準位の間隔を、ルミネッセンスの間隔は基底状態の格子

*現在の所属：大阪大学理学部物理学科

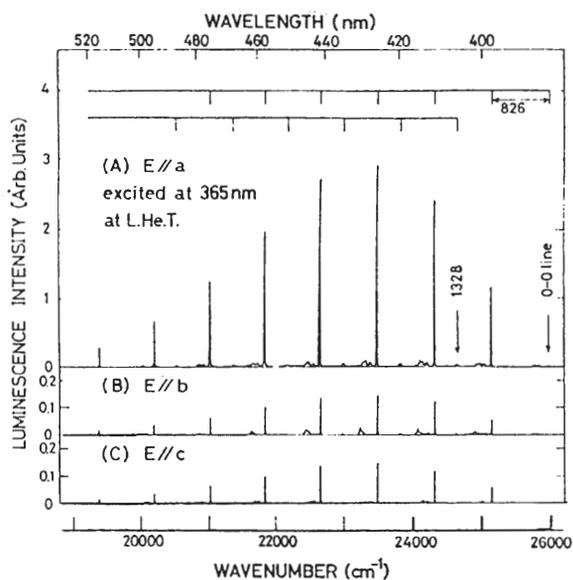
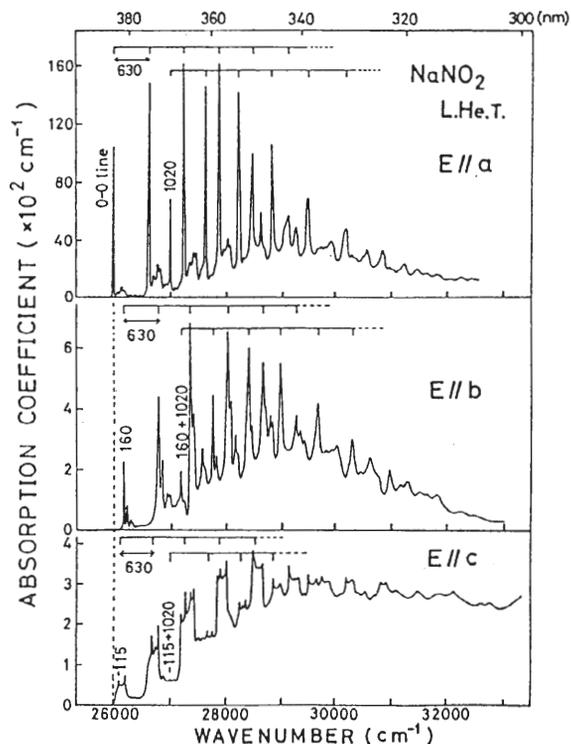


図1 NaNO₂の吸収スペクトル(上)とルミネッセンススペクトル(下)。(After ref. [2] and [3])

振動準位を示す。従って調和近似が成立すると考えられる低温で等間隔に現れたルミネッセンスの間隔が、相転移点近傍では格子振動の非調和項の増大によって、変化すると考えられる。ここで考えられているモー

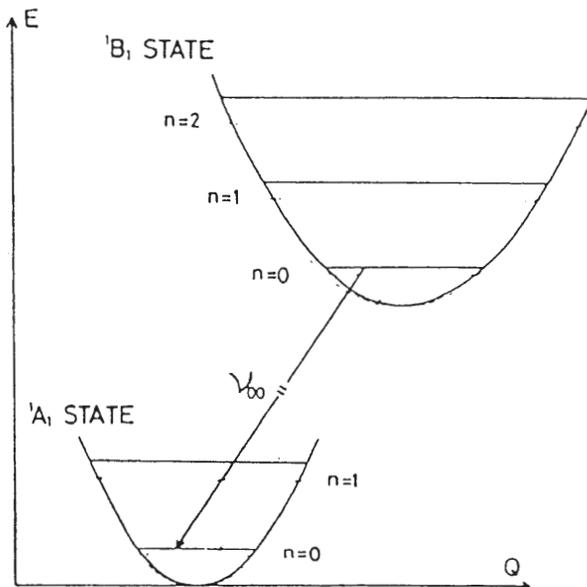


図2 NaNO₂の電子基底状態と励起状態のエネルギー概念図。

ドは分子内振動であって直接相転移に関するモードではないが、秩序無秩序ユニットであるNO₂イオンがどのような非調和ポテンシャルで運動するかを知ることが出来る。吸収及びルミネッセンススペクトルから格子振動準位の温度変化の詳細を得た後、相転移点に於て変化の大きい格子振動(非共鳴ラマン散乱で調べられている)が関与するような共鳴ラマン散乱を観測し、電子格子相互作用を調べることができる。

共鳴効果を調べるには、吸収帯の近傍の色々な波長での共鳴ラマン散乱の測定が必要で、そのためには波長が吸収帯の近くにあり、更に可変で波長幅の狭い光源が必要である。そこで、本研究ではまず初めにYAGレーザー励起の波長可変の色素レーザーの製作を行った。また、ADPおよびTGSについては、紫外光励起のラマン散乱の予備的な測定を行ったので、その結果も併せて報告する。

3. 結果と検討

製作した色素レーザーの概要を図3にのせる。これはモレクトロン社のセルタイプ色素レーザーを参考に製作した。石英製菱形の色素セル及びプリズムは当研究所ガラス工作室に、ケースの製作は同じく機械工作室に依頼した。YAGレーザーの2倍波533 nmで発信、増幅し、800 nm前後で線幅約10 cm⁻¹のレーザー

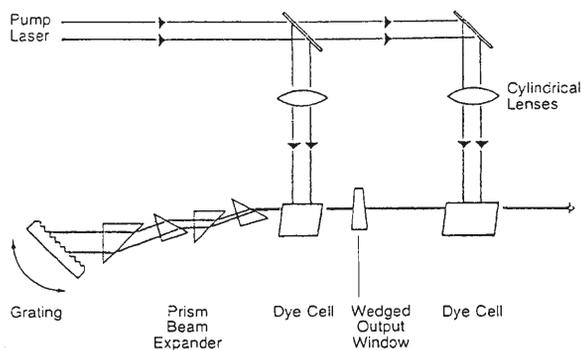


図3 製作したダイレーザーの概観図

光を得ている。励起光エネルギー 200 mJ に対し出力は 20 mJ 弱であった。実験には LBO 結晶の SHG で得た 2 倍波を用いる。現在色素レーザーを完成させた段階で、まず NaNO_2 のルミネッセンスの測定をこれから行う予定である。

一方、色素レーザーの製作と平行して、共鳴ラマン散乱の予備的実験も行った。試料は水溶液から育成した $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ (ADP) 及び硫酸三グリシン (TGS) 単結晶を用いた。ADP と TGS について可視から紫外にわたるさまざまな波長でラマン散乱の測定を行った。用いた光源は YAG レーザーの 2 倍波 (533 nm), 3 倍波 (355 nm), 4 倍波 (266 nm), 或は必要に応じて Ar

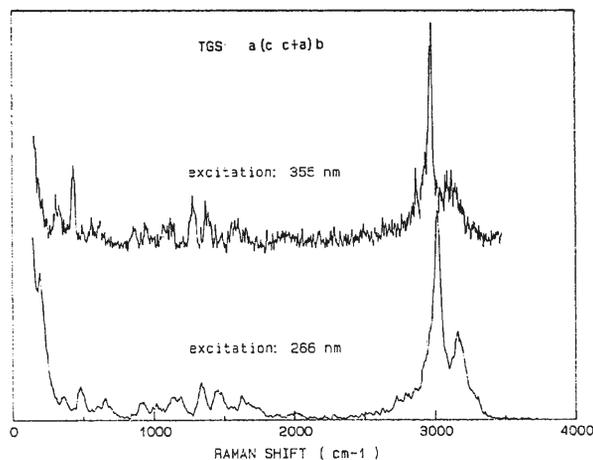


図4 異なる励起波長に対する、硫酸三グリシンのラマンスペクトル。

表1 TGSラマン強度の励起波長依存性。各励起波長に対しTGS 3000 cm^{-1} ラマン線の強度を、アセトニトリル 3000 cm^{-1} ラマン線で規格化した。

exciting wavelength (nm)	I(TGS)/I(ACE) at 3000 cm^{-1}
266	1.2
355	0.9
488	0.9

レーザー (514.5~457.9) を用いた。散乱光は分光器 (1200/mm グレーティング, 焦点距離 25 cm) で分光し、検出にはダイオードアレイ検出器を用いた。TGS スペクトルの一例を図4に示す。ラマン線強度の波長依存性を見るために、700 nm から 200 nm まで共鳴効果の無いことが調べられているアセトニトリル (CH_3CN) を標準とする [4]。各励起波長に対し、同じ実験条件で収録した両者の 3000 cm^{-1} ラマン線強度の比較を表1に示す。TGS のラマン強度の波長依存性は、ほぼアセトニトリルに類似していると考えられる。ADP に対しても TGS と同様の結果を得たので、最短波長 266 nm では準共鳴効果が観測されないと結論できる。これらの強誘電体では吸収端が 200 nm より短波長側にあるため、長波長側に延びた吸収帯の裾を励起する準共鳴ラマン散乱の測定をするのにも、より短波長の真空紫外領域の励起光源が必要であることが解った。

今回の測定ではこのように共鳴ラマン散乱そのものの測定は出来なかったが、完成した色素レーザーはちょうど NaNO_2 の吸収帯の裾からその中心付近を波長を変えながら測定することが出来るので、相転移における電子状態の変化を直接調べることが出来ると期待している。

謝辞

色素レーザー製作に当たり、技術部 長谷川慶治氏、黒田紀夫氏及び太田隆夫氏の協力に感謝致します。

【参考文献】

- [1] S. Sawada, S. Nomura, S. Fujii and I. Yoshida: Phys. Rev. Letters 1, 320 (1958)
- [2] M. Kamada, M. Yoshikawa and R. Kato: J. Phys. Soc. Jpn. 39, 1004 (1975)
- [3] H. Yamanaka, M. Hangyo, Y. hishikawa and R. Kato: J. Phys. Soc. Jpn. 50, 2689 (1981)
- [4] J. M. Dudik, C. R. Johnson and S. A. Asher: J. Chem. Phys. 82, 1732 (1985)

研 究

電子科学研究所第1回研究発表会要旨

平成5年10月21-22日

電子材料物性部門

真空紫外レーザー分光法による大気化学素反応 光電子物性研究分野 川崎昌博	49
光電子分光法による GaAs 基板表面反応 光電子物性研究分野 正源 聡	51
K ₂ ZnBr ₄ における α - β 転移のブリルアン散乱による研究 — 1次相転移機構解明のための新しい試み— 相転移物性研究分野 武貞正樹, 八木駿郎	53
シリカ・エアロゲルにおけるフラクトン・ダイナミクス 相転移物性研究分野 辻見裕史	56
粘土に吸着した光学活性ルテニウム錯体の光物理化学的挙動 有機電子材料研究分野・北大理* 清水直樹, 橋本 訓, 竹村 健, 川崎昌博, 山岸皓彦*	58
癌蛍光診断薬としての HAT-D 01 の光物理化学的特性 有機電子材料研究分野 梅内士郎, 竹村 健, 竹中信夫	60
可視域発光半導体の研究 光材料研究分野 末宗幾夫	62

電子機能素子部門

光化学ホールバーニングとその応用 量子機能素子研究分野 迫田和彰	65
高温超伝導体研究の現状と電子ラマン散乱 量子機能素子研究分野 山中明生	67
二次元分子組織を用いた分子素子 分子認識素子研究分野 下村政嗣	69
脳機能研究の新しい道具 —脳灌流法— 超分子分光研究分野 稲垣陸史, 田村 守	72
キノンによる酸化的ストレスと防御機構 —ラット脳, 肝細胞下面分のデータを中心に— 超分子分光研究分野 中村正雄	75

単一分子蛍光法による DNA 認識酵素の評価 細胞機能素子研究分野 金城 政 孝	77
---	----

電子計測制御部門

多重散乱光の波長相関特性 光システム計測研究分野 岡 本 卓, 朝 倉 利 光	79
レーザー放射圧 —動的散乱における影響— 光システム計測研究分野 原 田 康 浩, 朝 倉 利 光	81
視覚系における競合的情報処理機構に関する研究 量子計測研究分野 小 林 哲 生, 大和田 徹, 加 藤 和 夫, 栗 城 真 也	84
脳磁界計測用多チャンネル SQUID センサシステムの設計と試作 量子計測研究分野 平 田 恵 啓, 栗 城 真 也	86
血管内膜表面上におけるリポ蛋白の濃縮現象 —水透過速度に及ぼす血清濃度及び流れの影響— 自律調節研究分野 内 貴 猛, 狩 野 猛	88
膝前十字靭帯組織修復のバイオメカニクス 自律調節研究分野 大 山 直 樹, 山 越 憲 一, 山 田 康 晴, 磯 田 由 美 内 山 英 一, 黒 沢 秀 樹	90

電子情報処理部門

Riccati 方程式と行列のノルム不等式 情報数理研究分野 中 村 美 浩	92
昆虫の場所記憶 神経情報研究分野・Univ. Arizona* 水 波 誠, Weibrecht J.M.*, Strausfeld N.J.*	94
音声生成系の数値シミュレーションに関する研究 信号処理研究分野 広 奥 暢, 松 崎 博 季, 三 木 信 弘, 永 井 信 夫	96
盲人の障害物知覚機構の解析 感覚情報研究分野・北海道高等盲学校* 関 喜 一, 梶 井 健, 伊 福 部 達, 田 中 良 広*	98

附属電子計測開発施設

位相計測と光アナログ演算 電子計測開発施設 岩 井 俊 昭	101
--	-----

真空紫外レーザー分光法による 大気化学素反応

光電子物性研究分野 川崎 昌博

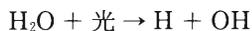
115~140 nm のドップラフリー真空紫外レーザー光をプローブ光として、 O_2 、 O_3 、 N_2O 、 NO_2 、 SO_2 、ハロカーボン(フロン)の157~532 nm 光分解で生成する $O(^3P)$ 、 $O(^1D)$ 、 $Cl(^2P)$ 原子を直接検出し、その速度分布、角度分布を調べ、親分子の分解ダイナミックスを検討した。

現在地球大気の21%を占める酸素の源は、原始大気中の水などの光分解と生物の光合成によるものです。今から28億年ほど前に植物による光合成が始まりました。光合成により大気中の酸素濃度は次第に増加して、約6億年前には大気光化学反応により大気中に2%程度の濃度となりました。この酸素の光分解により高空にオゾンを含む大気の層が生じ、この時から生物のエネルギー獲得の主流は呼吸を主体とするものにかわり、地上生物の増殖と進化が促進されました。では、その大気光化学反応とはどのようなものなのでしょうか？ それはどのような方法で研究すればよいのでしょうか？

上に述べたように、地球大気に酸素が存在する理由の一つには水の光分解があります。分子の光吸収により起こる分解を光分解と呼びます。気相における光化学反応は、学問的には分子科学の立場から興味を持たれるほか、地球上の生態系の存続に関わる大気化学現象の解明のために大変重要なのです。

① 水(H_2O)

水は波長が190 nm より短い光により光分解します。これを化学式で書くと、

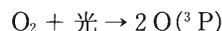


H は水素原子、OH は水酸基と呼ばれるものです。

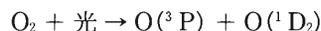
水の光分解で生成する H 原子の真空紫外レーザー光で見たドップラー波形スペクトルから、 H_2O の157 nm 光解離は 1B_1 電子励起状態を経て分解していることがわかった。

② 酸素(O_2)

酸素分子は242 nm よりも波長の短い光によって次の様に光分解します。



光の波長を175 nm よりも短くすると次の光分解も起こるようになります。



酸素原子 O の後に付けた記号 1D_2 及び 3P は光分解で生じた酸素原子 O の電子状態を示す記号です。生成した O 原子は、酸素分子と反応してオゾンを形成します。これが地球オゾン層の成因です。図1には、真空紫外レーザー光で観測した酸素原子 $O(^1D)$ のドップラー波形スペクトルを示します。これから上の光化学反応がどのような電子励起状態をとって生成物になるかがわかります。

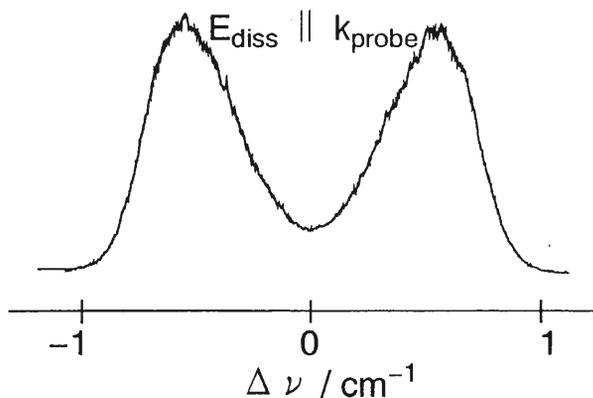


図1 酸素分子 O_2 の157 nm 光分解で生成する酸素原子 $O(^1D)$ の真空紫外レーザー誘起ケイ光ドップラー波形スペクトル。

光電子分光法による GaAs 基板表面反応

光電子物性研究分野 正 源 聡

GaAs(ガリウム砒素)基板表面における TMGa(トリメチルガリウム)の紫外レーザー光による分解機構を光電子スペクトルにより説明する。さらに, GaAs の化学的エッチング処理により形成される表面構造について角度分解光電子スペクトルにより議論する。

GaAs はシリコンに替る次世代の半導体材料として注目され, デバイスプロセスの素過程として酸化膜や金属薄膜の成長過程, GaAs 成長過程などに関して数多くの研究がされてきた。近年, STM や AFM などの新しい実験手法により金属, 半導体などの表面構造が原子スケールで観察できるようになり極小スケールでのデバイスが期待されている。このようなデバイスを製造する新しい方法の一つとして, 数個の分子・原子スケールで加工が可能なレーザー光を用いた光 CVD (Chemical Vapor Deposit) が考えられる。光 CVD を実用化するには, その基板表面光反応機構を理解する必要がある。また, GaAs 基板の表面構造は複雑であるため, デバイスプロセスにおいて清浄化処理による表面構造の違いを理解することが重要である。そこで本研究では, 角度分解 X 線光電子分光法 (ARXPS) を用いて清浄 GaAs 基板表面における有機金属化合物の光分解反応, 濃塩酸溶液によりエッチング処理をした GaAs の表面構造について調べたのでこれらを報告する。

光電子スペクトルを得るに当たって, 各試料は以下の条件で処理を行った。

試料基板として面方位(100)ノンドーピングの GaAs を使い, 有機金属試料としてトリメチルガリウム (TMGa) を用いた。アルゴンイオンによるスパッタリングと 800 K でのアニーリングにより試料基板表面を清浄化処理を行った。その後, 実験中, 液体窒素を用いて試料基板温度を約 150 K 前後に維持した。吸着処理は, 有機金属試料を真空チャンバー内に導入して, 試料基板を有機金属蒸気に露出させることにより

行った。分解光としては 193 nm のエキシマーレーザーを用いた。化学的清浄化処理に関しては, 試料基板を濃塩酸溶液に 10 分間浸し, 乾燥アルゴンガスにより乾燥させた後, 真空チャンバーに入れ, 角度分解光電子スペクトルを測定した。

TMGa を 150 K に冷却した GaAs 基板に吸着させ 193 nm のレーザー光を照射した前後の光電子スペクトルを図 1 に示した。極角度は基板表面を基準に表示している。(A)~(C)は極角度 20 度で, (D)~(F)は極角度 45

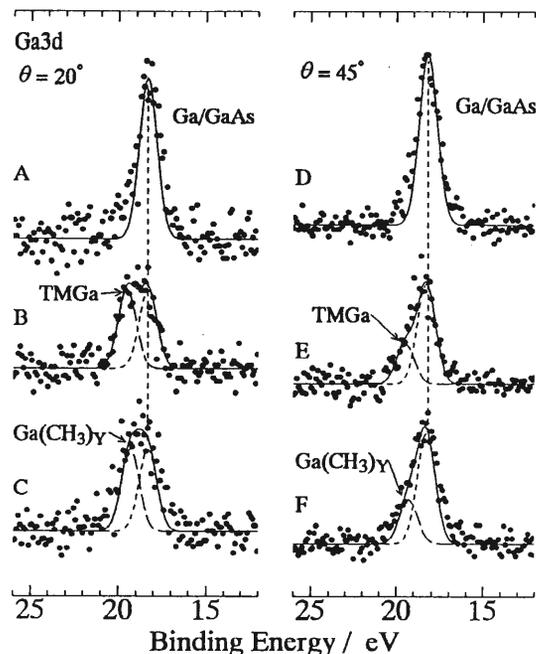


図 1 TMGa を吸着させた GaAs(100)基板に 193 nm のレーザー光を照射した時の XPS の変化。

度で測定したガリウム 3d ピークである。(A), (D)は清浄 GaAs のガリウム 3d ピークである。(A), (D)の両方とも一つのピークで説明でき、表面から約 20 Å の深さまでほとんどガリウムと考えられる単一の化学種のみ存在することを示している。これは、表面がガリウムで覆われている特殊な表面状態で、イオンスパッターとアニール処理により形成される⁽¹⁾。TMGa を吸着させた時の(B), (E)では、高エネルギー側に TMGa のガリウムに帰属されるピークが現れているのがわかる。しかも、極角度が小さくなるとこの TMGa の強度が大きくなっている。さらに、193 nm のレーザーを照射した

(C), (F)では TMGa に帰属したピークが低エネルギー側にシフトし、レーザー照射によって TMGa が分解してジメチルガリウム (DMGa) などの表面吸着種が形成されることがわかる。このことは、炭素/ガリウム比がレーザー照射前後で 2.8 から 1.4 に減少していることから明らかである。トリメチルインジウムについて 193 nm のレーザーを用いて同様の実験を行い、同様の結果を得ている⁽²⁾。

濃塩酸処理したガリウム砒素基板の光電子スペクトルを図 2 に示した。(A)~(C)は砒素 2p, (D)~(H)はガリウム 2p のピークである。ガリウム 2p のピークは 3 つのピークで合成できる。3つのピークはそれぞれ、低エネルギー側から GaAs, 塩化ガリウム, 2 塩化ガリウムに帰属できる。しかし、中間のピークに関しては酸化ガリウム、左のピークは水酸化ガリウムとする報告^(3,4,5)もあり、これが含まれている可能性もある。砒素 2p のピークも 3 成分に分解でき、低エネルギー側からガリウム砒素、結晶欠陥中に存在する原子砒素⁶、酸化砒素 (As_2O_3)^(3,4,5) に帰属できる。ガリウムのピークにおいて、極角度が小さくなると、塩化ガリウム, 2 塩化ガリウムが GaAs よりも大きくなっている。これより $GaCl_x$ が表面吸着種として存在していることがわかる。砒素のピークでは、酸化砒素が表面に偏在している傾向は見られるが、大きな変化は見られず、砒素を含む表面吸着種はほとんど存在しない。

これらのことから、塩酸処理のみを行うと塩素が GaAs 基板表面に残ることを確認した。しかも、塩化ガリウムでエッチングが止っている領域があることがわかった。

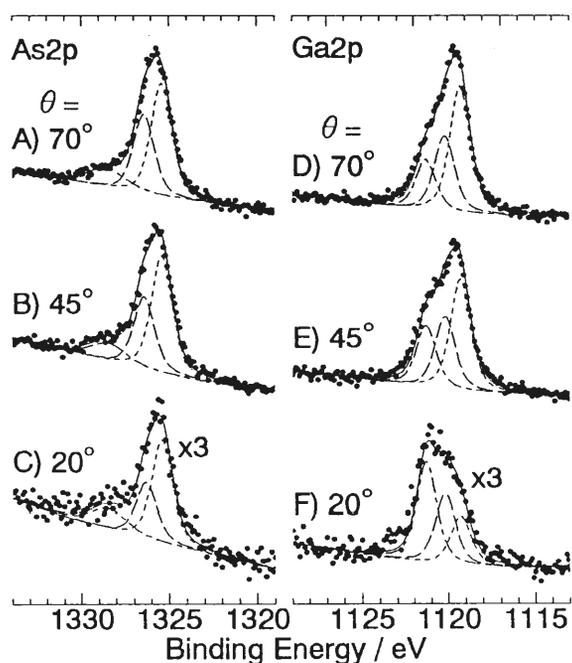


図 2 濃塩酸処理をした GaAs(100)基板の XPS

【参考文献】

- [1] D.K. Biegelsen, et.al., Phys.Rev. B41, 5701(1990).
- [2] S.Shogen, M.Ohashi, Y.Matsumi, and M.Kawasaki, Jpn. J.Appl.Phys. 32, 115(1993).
- [3] C.J. Sandroff, et.al., J.Vac.Sci.Technol., B7, 841(1989).
- [4] L.L. Kazmerski, et.al., J.Vac.Sci.Technol., 17, 521(1980).
- [5] C.Webb, et.al., J.Vac.Sci.Technol., 21, 659(1982).
- [6] Z.H.Lu, et.al., J.Vac.Sci.Technol., A7, 646(1989).

K₂ZnBr₄における α - β 転移のブリルアン散乱による研究

—— 1次相転移機構解明のための新しい試み ——

相転移物性研究分野 武 貞 正 樹, 八 木 駿 郎

強誘電体 K₂ZnBr₄ の 1 次構造相転移である α - β 転移についてブリルアン散乱実験を行った。低温相(α 相), 高温相(β 相)の両相においてブリルアン散乱スペクトルを温度の関数として得た。この結果は X 線実験から考察した, α - β 転移の際に α 相から Virtual Intermediate States(VIS)として bcc, hcp 状態を経て β 相に相転移するモデル(VIS モデル)を支持した。

はじめに

相転移現象には 1 次相転移と 2 次相転移がある。従来の相転移の研究は後者のものが多い。それは 2 次相転移は以下に示す普遍性(ユニバーサリティー)を持つことに興味を持たれたため広く研究され多くの成果が上げられてきた。この 2 次相転移は連続的転移とも呼ばれ必ず前駆現象を伴い相転移が起こる。この前駆現象を含む臨界現象は相互作用の詳細には依存せず, 二三の“グローバル”な性質(系の次元, 秩序変数の数, 相互作用の到達距離など)にのみ依存する。セミマクロな立場から 2 次相転移を見ると系は一様にそして連続的に相転移が起こり, マクロな秩序変数により系を記述するランダウの現象論(巨視的物理学)によりこの 2 次相転移, さらに 2 次相転移をはさむ高温相と低温相間の関係をうまく説明することが出来る。

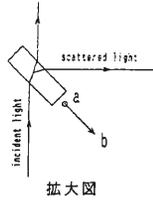
一方, 1 次相転移においては水が氷に転移したり水蒸気に転移するように我々が日常的に経験する多くの現象が見られるにも関わらず, 不連続的転移と呼ばれ上に述べた様な普遍的な臨界現象は示さないため研究例は乏しい。さらに多くの 1 次相転移では高温相から低温相に移る際, 何の前駆現象も示さない。つまり相転移において高温相の中に低温相のドメインが成長することで 1 次転移をして低温相に移るので, 非常に小さなドメイン境界にしかその前駆現象を示す領域が存在しないことが特徴である。そのためこれまでの巨視的均一系における現象を取り扱うことが中心であった

物性物理学では, この 1 次相転移機構解明の研究は困難であるために研究が遅れている問題の一つである。しかしこの 1 次相転移機構解明の研究, つまり 1 次相転移におけるユニバーサリティーは何であるか, さらに 1 次, 2 次を含めた相転移共通のユニバーサリティーが何であるかを解き明かすことはさらに相転移の現象全体を理解する上で本質的な課題である。

本研究においてはこの 1 次相転移機構解明の手がかりを得る為, 強誘電体 K₂ZnBr₄[1] の α - β 転移(1 次相転移)を例に取り, 1 次相転移をはさむ低温相と高温相間の結晶軸の関係を, 結晶の弾性異方性を精度良く測定することが出来るブリルアン散乱により調べた。この結果を X 線実験によって考察したモデル[2]をもとに解析し, K₂ZnBr₄ の 1 次相転移機構を考察する。

実 験

本実験におけるブリルアン散乱の光学系を図 1 に示した。光源には Ar⁺ レーザーを用い, また 5-pass Fabry-Perot interferometer を用い散乱光を分光した。サンプルセル内部で結晶, 結晶軸に対する入射光, 散乱光を拡大図に示した。この図 1 に見るようにこのブリルアン散乱実験は 90 度散乱ではないが観測する phonon wave vector は低温相(α 相)の b 軸に常に平行にセットされた。この様にセットされた処女単結晶を室温から 520 K まで加熱し, この温度範囲でブリルアン散乱スペクトルを測定した。またこの様な過程を



拡大図

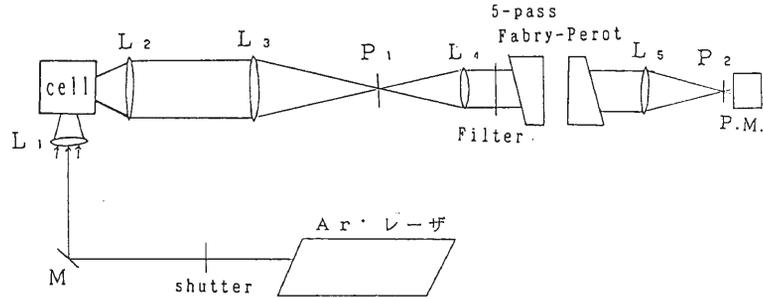


図1 ブリルアン散乱測定光学系

十数回繰り返して行った。

結果と考察

観測されたブリルアン散乱スペクトルは三つの acoustic modes を示した。そこでブリルアンシフトの大きいものから順にモードの種類を LA, TA 1, TA 2 モードとした。ブリルアンシフトは α 相と高温相である β 相の両相で温度の関数として得られた。図 2 (1) で、LA モードの結果を示した。但しこの結果は系統的誤差を補正するため、実験ごとの α 相、 β 相でそれぞれ linear fitting し転移点直下の $T_t = 458 \text{ K}$ における α 相のブリルアンシフトの値で normalize されている。 α 相においては出発の条件が同じであるため良い

再現性が得られるのに対し、 β 相においては図 2 (1) が示すように六つのグループに discrete に分かれて分布すること(ランダムにならること)が分かる。ここで β 相においてブリルアンシフトの温度依存性の違いは β 相において結晶軸の違いを意味することを考慮に入れると、 α 相から β 相に転移する際、 β 相の結晶軸の方向は α 相の結晶軸の方向と何らかの法則によって結びついていることが考えられる。

そこで X 線の研究から考察された α 相から β 相に転移する際、いくつかの統計熱力学的に等しい β 相での軸方位を実現させるために Virtual Intermediate States (VIS) として bcc, hcp 状態を経て転移が起こると考える VIS モデルに従うと図 2 (1)の結果はどの様

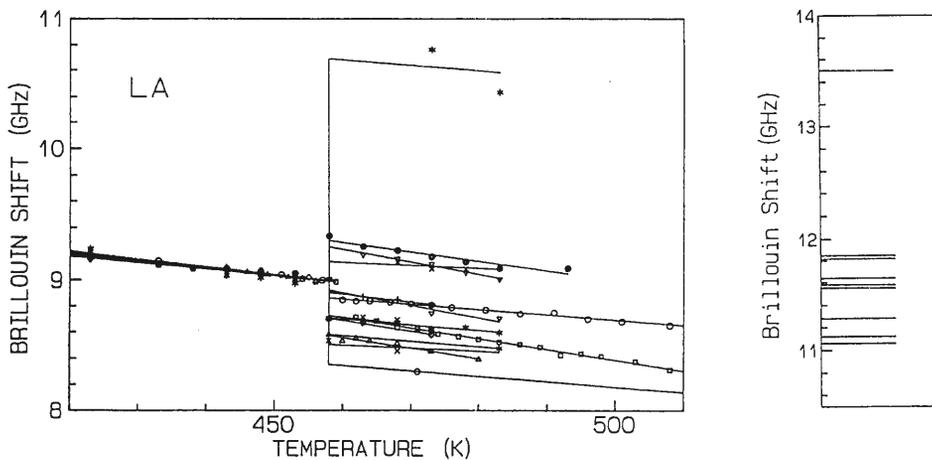


図2 1) K_2ZnBr_4 における縦波音響(LA)モードによるブリルアン散乱シフトの温度依存性。2) VIS モデルに従って計算された β 相における LA モードのシフトパターン。

な傾向を示すかを考察する。ここで K_2ZnBr_4 の β 相での stiffness constant が必要になるが、現在のところ β 相での単結晶を得ることが非常に困難なことから測定されていない。そこで $\alpha-\beta$ 転移は示さないが β 相と構造が本質的に等しい Rb_2ZnCl_4 の stiffness constant を用い、[3] VIS モデルから β 相での Brillouin シフトを計算した。結果は図 2 (2) に示す。この様に実験結果と VIS モデルに従った計算結果は定性的に良く似

た傾向を示すことがわかる。つまりこの結果は 1 次相転移である $\alpha-\beta$ 転移の際、低温相と高温相の間に VIS を持つようなモデル、つまり VIS モデルを支持する結果を得たと考えられる。またもし準安定相と安定相の境界において中間的な状態が存在するとすれば、その状態と VIS は密接な関係にあると考えられる。また他の物質に見られる 1 次相転移と VIS モデルがどの様に結びつくかは今後の課題である。

【参考文献】

- [1] F. Shimizu et al.: J. Phys. Soc. Jpn. 59 (1990) 1936. Soc. Jpn.
[2] M. Takesada and H. Mashiyama: submitted to J. Phys. [3] Y. Luspín et al.: J. Phys. C 15 (1982) 1581.

シリカ・エアロゲルにおける フラクトン・ダイナミクス

相転移物性研究分野 辻 見 裕 史

シリカ・エアロゲルは $\xi > r > a$ なるスケール領域 r で典型的なフラクタル構造を有する。ここで ξ と a はそれぞれ密度相関距離とシリカ・エアロゲルを形成するシリカ粒子の直径である。このスケール領域において、フォノンとは異なる分散関係を持つ新しい振動励起であるフラクトンのスペクトルを初めてラマン散乱で観測することに成功した。

シリカ・エアロゲルは直径 a 程度のシリカ粒子が凝縮し、 ξ (相関距離) 程度の大きさの空孔を含む多孔質の物質である。この物質は通常の、つまりぎっしり詰まった物質には見られない興味深い性質を示す。例えば、この物質は $a < r < \xi$ なるスケール領域 r で空間次元 $D = 2.4 \pm 0.03$ を持つことが知られている。この D はフラクタル次元と呼ばれるが、通常の3次元物質では3で、2次元物質では2となるものである。なお、 ξ と a はそれぞれ、密度を ρ とし、 $7.2 \times 10^5 \rho^{-1.67 \pm 0.05} \text{ \AA}$ と約 20 \AA である [1]。

我々はフラクタル構造を持つシリカ・エアロゲルの振動モードに興味がある。振動モードの波長 λ が、 ξ より長い場合、乱れは波長 λ の範囲内でならされてしまい、この振動モードは空孔の影響をあまりうけない。したがって、この振動モードは一様な物質に励起される振動励起(フォノン)であると考えて良い。波長 λ が a より短くなると、シリカ粒子のバルク振動や表面振動が重要となる。さらに $a < \lambda < \xi$ の波長領域では、振動モードはフォノンとは異なった挙動を示す。この振動モードをフラクトンと呼ぶ。フラクトンの分散関

係は理論的に $\omega \sim q^{D/\bar{d}}$ と予想されている。ここで \bar{d} はフラクトン次元あるいはスペクトル次元とか呼ばれるスケール指数である。振動モードの分散関係上、 ξ と a とに対応する周波数をそれぞれ $\omega_{co1}/2\pi$ と $\omega_{co2}/2\pi$ とすると、フラクトンはこれらの振動数の間に存在することになる。

我々はフラクトンを初めてラマン散乱実験でとらえることに成功した [2]。実験に先だつてフラクトンの存在する周波数領域を見積もった。見積もりには Courtens らのブリルアン散乱の結果 [3] を用いているが、見積もり方法は文献 [4] に詳しく解説してある。実験には密度 ρ がそれぞれ 158, 201, 260, 357 (Kg/m³) の4つ試料を用いた。それぞれの試料で見積もった結果は cm^{-1} を単位として表1のようになる。この表から、 $\omega_{co1}/2\pi$ は ρ に依存し 0.01 cm^{-1} から 0.2 cm^{-1} 程度まで大きく変化するが、 $\omega_{co2}/2\pi$ は ρ に依らず 10 cm^{-1} 程度であることが分かる。

図1は密度 ρ が 357 Kg/m^3 のシリカ・エアロゲルで観測されたフラクトンによるラマン散乱スペクトルの例であり、また図2は散乱スペクトル強度 $I(\omega)$ に対してポーズ・アインシュタイン因子 $n(\omega)$ 補正したラマン感受率 $\chi(\omega)$ の角周波数 ω 依存性である。図中の直線にのっている部分がフラクトンによる散乱スペクトルである [5, 6]。ここで直線部分を $\chi(\omega) \sim \omega^x$ のように書くと、密度 ρ にほぼ依らずに $x = -0.35 \sim -0.39$ が得られる。

表1 エアロゲルのパラメータの値

サンプル	A	B	C	D
ρ (kg/m ³)	158	201	260	357
$\omega_{co1}/2\pi$ (cm ⁻¹)	0.013	0.030	0.074	0.222
$\omega_{co2}/2\pi$ (cm ⁻¹)	12	12	12	12

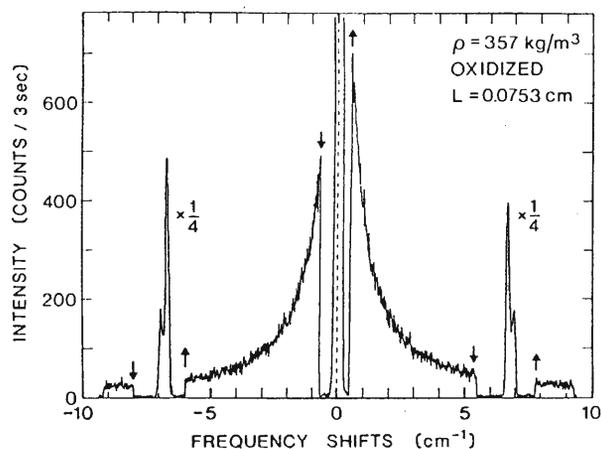


図1 シリカ・エアロゲルにおける光散乱スペクトルの例。(文献3より転載)

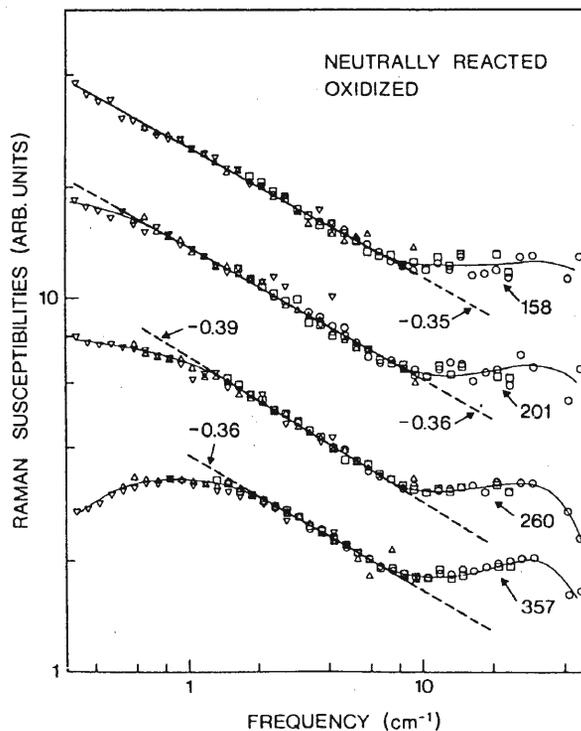


図2 密度が異なる4つの中性反応によるシリカ・エアロゲルにおけるラマン感受率の周波数依存性。図中右側の数値は kg/m^3 単位での密度の値。(文献3より転載)

【註および参考文献】

- [1] R. Vacher, E. Courtens, E. Stoll, M. Boeffgen and H. Rothuizen: J. Phys. Condens. Matter 3, 6531 (1991).
- [2] E. Courtens and R. Vacher: Proc. R. Soc. Lond. A423, 55 (1989).
- [3] Y. Tsujimi, E. Courtens, J. Pelous and R. Vacher: Phys. Rev. Lett. 60,2757 (1988).
- [4] 辻見裕史, 中山恒義: 分光研究 42, 205(1993).
- [5] すべての物理量はフラクタル領域では距離 r でスケールされるはずである。したがって $\chi(\omega) \sim \omega^x \sim q^{(D/d)x} \sim r^{-(D/d)x}$ が予想され、この関係は両対数プロットでは直線となる。

また x はスケール指数であるから密度 ρ に依らない。

- [6] 表Iに示した $\omega_{co1}/2\pi$ と $\omega_{co2}/2\pi$ の見積もりと、図2でデータが直線からはずれる両端周波数とがオーダ1程度で対応している。(i) 試料の密度 ρ が大きいほど、低周波側でのデータの直線からのずれが激しい。これは ρ が大きいほど $\omega_{co1}/2\pi$ が高くなることに対応している。(ii) 高周波側でのデータの直線からはずれる周波数 ($\sim 10 \text{ cm}^{-1}$) はあまり ρ に依っていない。これは $\omega_{co2}/2\pi$ が ρ にあまり依らないことに対応している。なお、 30 cm^{-1} 付近の幅広いピークは粒子振動からの寄与と考えられる。

粘土に吸着した光学活性ルテニウム錯体の光物理化学的挙動

有機電子材料研究分野・北大理* 清水直樹, 橋本 訓, 竹村 健
川崎昌博, 山岸皓彦*

合成粘土ラポナイトに吸着した $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ と $[\text{Ru}(\text{phen})_3]^{2+}$ の発光挙動の違いから粘土面上での吸着機構について考察した。定常光を励起光源とした発光スペクトルの吸着率依存性と時間変化, 窒素レーザーを用いて観測した発光減衰曲線について, 各錯体のラセミ混合物とエナンチオマーで比較, 検討した。その結果, どちらの錯体も, 吸着量が陽イオン交換容量(CEC)に対して約0.01%付近になるまで(1リットル当たり約 10^{-8} mol/1 g)会合体として存在している事がわかった。

はじめに

粘土鉱物は, シリカ, アルミナ, マグネシア等からなる2次元層状の構造を持った無機高分子である。スメクタイトと呼ばれる種類の粘土は水に容易に分散し, 表面が負電荷を持つ為に, 種々の陽イオンを層間に吸着する⁽¹⁾。ここで光学活性な金属錯体イオン(トリス(2,2'-ビピリジル)ルテニウム(II)錯体 = $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$, トリス(1,10-フェナンソロリン)ルテニウム(II)錯体 = $[\text{Ru}(\text{phen})_3]^{2+}$ 等)を飽和吸着させる場合, ラセミ混合物を用いるのと, 一方のエナンチオマーのみを用いる時とで, 吸着量に大きな差が生じる事がわかっている⁽²⁾。これは層表面上に吸着する際の, ラセミ対とエナンチオ対の立体的制約の違いから生ずる現象である。エナンチオマーのみが飽和吸着した粘土層表面には, このとき不斉な空間が発生しており, これを利用して, 様々な有機化合物, 生体関連物質のラセミ混合物の光学分割に応用できる。これまでにHPLC用のカラムが開発され, 1,1'-ビナフトール, アミノ酸誘導体などの光学分割に成功している。

ルテニウム錯体-粘土系の光物理化学的研究は, J. K. Thomasら^(3,4), N.J. Turroら⁽⁵⁾によって行なわれていたが, P.K. Ghoshらは, 飽和吸着量に対して数%の吸着量でも, ラセミ混合物とエナンチオマーの発光スペクトルに大きな違いが生じている事を報告し

た^(6,7)。 $[\text{Ru}(\text{phen})_3]^{2+}$ が 10^{-3} moldm⁻¹程の濃度の水溶液中で会合する事は知られているが⁽⁸⁾, 上の場合はその百分の一の濃度である。このような吸着錯体イオンの特異な挙動に関する基礎的な情報が望まれている為, 本研究では分光学的手法を用いて, その吸着機構について考察した。

実 験

粘土 Iaponite XLG (Laporte Industry, 組成: $\text{Na}_{0.6}[\text{Si}_8\text{Mg}_{5.4}\text{Li}_{0.4}\text{Na}_{0.2}\text{O}_{20}(\text{OH})_4]$, 陽イオン交換容量(CEC) = 79 meq/100 g)は純水に分散させたものを用いた。 $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ はAldrichから購入し, $[\text{Ru}(\text{phen})_3]^{2+}$ は合成した。錯体の光学分割には分割剤として酒石酸アンチモニル(III)ナトリウムを用いた。発光スペクトルは日立850蛍光分光計で測定した。発光寿命測定のための励起光源はMoletron UV-22窒素レーザーを用い, 発光を分光, 光電子増倍管で検出した信号をデジタイジングオシロで積算した。

結果と考察

光学活性分子のラセミ混合物とエナンチオマーの光物理化学的性質を比較すると, 分子が孤立して存在する場合には, 旋光性以外の性質は同一であると考えられる。従って両者の間でスペクトルに差異が生じた場合には, 分子が会合していると考えられる事ができる。つ

まりラセミ会合体あるいはエナンチオ会合体が形成されれば、それぞれの会合体の重なり方のジアステレオメリックな違いから、エネルギーレベルの差が生じ、結果的にスペクトルの差異として現れるのである。

$[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ を CEC の約 5% まで吸着させた試料について、吸収及び発光スペクトルをラセミ混合物とエナンチオマーとで比較すると大きな違いが見られる為、この時錯体分子は会合している。吸着率を次第に下げると、発光スペクトルの極大波長は短波長側にシフトしながらその差を縮めて行き、CEC の約 0.01% 付近で両者のスペクトルはほぼ一致した。この時錯体分子は孤立して粘土上に吸着していると考えられる。

$[\text{Ru}(\text{phen})_3]^{2+}$ についても同様の実験を行なった所、 $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ と同様の結果が得られたが、CEC の 0.01% 付近でも、発光極大波長のラセミ混合物とエナンチオマーでの違いは僅かに存在した。これは $[\text{Ru}(\text{phen})_3]^{2+}$ が $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ に比べて配位子の疎水性が大きい為、会合の傾向が強いことを示している。

$[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ についての発光減衰曲線を図 1 に示す。フィッティングは 2 成分として行なった。飽和吸着量の数%の吸着量では、ラセミ混合物とエナンチオマーで発光寿命が異なるのに対して、吸着量が CEC の 0.01% になると、ラセミ混合物とエナンチオマーとの間の差はほぼ消失する。この事は発光スペクトルから得られた結果と一致する。 $[\text{Ru}(\text{phen})_3]^{2+}$ も同様な挙動を示した。

以上から、粘土表面上において錯体分子は、比較的吸着量の少ない、飽和吸着量の数%の存在率下であっても主として会合体として存在し、吸着量 0.01% 付近まで会合体がある事がわかった。

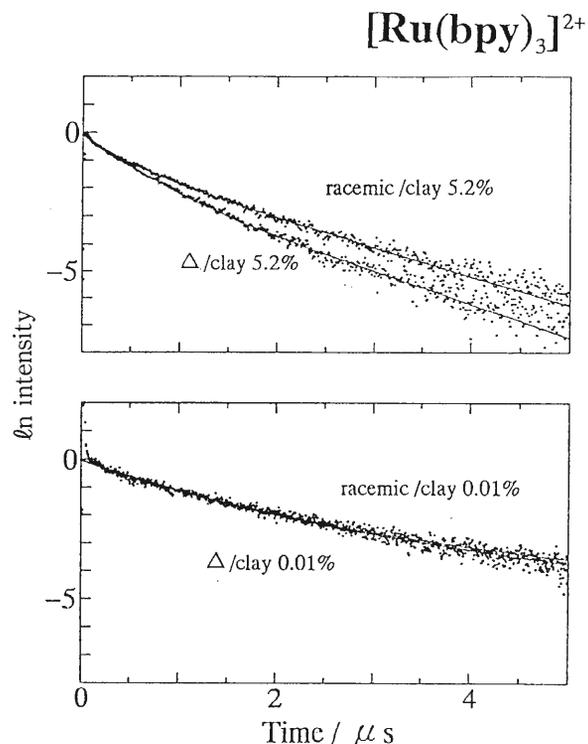


図 1 Emission decay of $[\text{Ru}(\text{bpy})_3]^{2+}$ adsorbed on laponite.

【参考文献】

- [1] 白水晴雄 粘土鋳物学—粘土科学の基礎—朝倉書店 1988
- [2] YAMAGISHI A., J.Coord.Chem. 16, 131 (1987).
- [3] THOMAS J.K., Acc. Chem.Res. 21, 275 (1988).
- [4] KUYKENDALL V.G. and THOMAS J.K., J.Phys. Chem. 94, 4224 (1990).
- [5] TURRO N.J., KUMAR C.V., GRAUER Z., and BARTON J.K., Langmuir 3, 1056 (1987).
- [6] JOSHI V. and GHOSH P.K., J.Am. Chem. Soc. 111, 5604 (1989).
- [7] KAMAT P.V., GOPIDAS K.R., MUKHERJEE T., JOSHI V. and GHOSH P.K., J.Phys. Chem. 95, 10009 (1991).
- [8] MASUDA Y. and YAMATERA H., Bull. Chem. Soc. Japan 57, 58 (1984).

癌蛍光診断薬としての HAT-D 01 の光物理化学的特性

有機電子材料研究分野 梅内 士郎, 竹村 健, 竹中 信夫

光毒性のない蛍光腫瘍診断薬の開発を主要目的としてポルフィリンのヘテロダイマーを合成しその光物理化学的特性を究明した。そのダイマーの一方はクロロリンであり、他方は銅やマンガンの金属クロロリンで種々のスペーサーで結合したものである。

序

ポルフィリンは光合成、血液等と直接に関係し生体系における機能性物質としての最も重要なキー化合物である。我々はこれまで、ポルフィリンの持つ生体組織との特異的親和性と光化学反応性とに着目して癌の光物理化学的療法の基礎的研究を行ってきた。今回は蛍光腫瘍診断薬の開発を主要目的としてポルフィリンのヘテロダイマーを合成しその光物理化学的特性を究明した。蛍光腫瘍診断剤としての条件は、(1)腫瘍集積性があること、(2)蛍光を高い収率で発すること、(3)光毒性がないこと等である。ここで光毒性とは主として一重項酸素による障害を意味する。これまでの研究から、ある種のポルフィリン類は癌腫瘍集積性が高いことを見出してきており、光物理化学的療法増感剤、腫瘍診断シンチ剤、腫瘍診断 MRI 増感剤等の開発を行って来ている。

実 験

装置：定常状態における吸収スペクトルおよび蛍光スペクトルは、それぞれ、日立 228 A 形分光光度計、日立 850 形分光蛍光光度計を用いて測定した。遅延蛍光スペクトルおよび寿命の測定は、ボックスカー方式の蛍光寿命計を用い、光源は窒素レーザーを用いた。

化合物：今回我々が用いた化合物のうち代表的なマンガンクロロリン(MnC)―無置換クロロリン(H₂C)ヘテロダイマーを Fig.1 に示す。

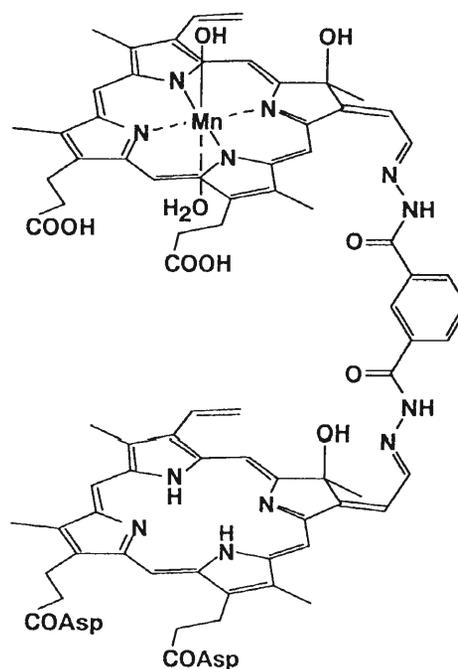


Fig.1 MnC-H₂C Hetero Dimer

結果および考察

スペーサーを介した異分子二量体の作製：ポルフィリンへのある種の金属イオン、例えば、Fe, Co, Ni, Mn, Cu イオン等の導入は三重項寿命 τ_p を著しく短縮し、同時に S-T 間の項間交差速度を著しく速めることによってこれら化合物は無蛍光性であると共に光毒性がないことが知られている。ここでは以下 Mn³⁺ ポルフィリン錯体を無蛍光性金属ポルフィリンの代表とし

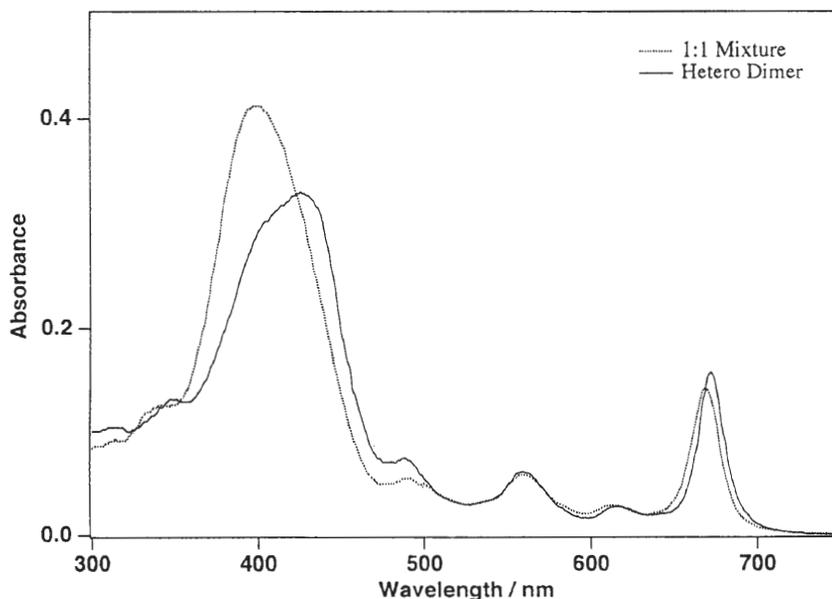


Fig.2 Absorption spectra recorded in methanol for a 1:1 mixture of MnC + H₂C and for the MnC-H₂C dimer.

て以下議論を進める。無置換ポルフィリンに Mn ポルフィリンをある一定距離近づけることによって相互作用をもたらし、その結果無置換ポルフィリンの S-T 間のエネルギー緩和速度を速める事が期待される。そこで本研究においては無置換ポルフィリンと金属ポルフィリンを種々のスペーサーで繋いだ化合物を合成しその分光学的特性を調べた。金属としては Mn および Cu を選び、スペーサーとしては -CH₂-, -(CH₂)₄-, meta-phenylene, para-phenylene を用いた。

光物理化学的特性：Fig.2 に MnC モノマーと H₂C モノマーの等量混合物、MnC-H₂C ヘテロダイマーのメタノール中における吸収スペクトルを示す。ダイマーの 400 nm 付近の Soret 帯は混合物のスペクトルに比べプロードで強度が減少し、20 nm 程長波長側にシフトしている。これに対し 670 nm 付近の最長波長領域では両者に殆ど差はない。また、混合物の吸収スペクトルは MnC モノマーと H₂C モノマーのスペクトルの和に一致する。これらのことは、ヘテロダイマーとすることで2つのクロールン環の間に相互作用が生じていることを示している。

Table 1 に本研究に直接関係のある化合物の発光特性と光化学反応性を示す。表中における相対蛍光強度は 410-420 nm 付近の蛍光励起スペクトルの極大値における励起で、観測は蛍光スペクトルの極大値で行って得られた結果である。光酸化反応の速度は単位

Table 1 Relative fluorescence intensity and photooxygenation rate of porphyrin dimers

Metal		Spacer			
M 1	M 2	-CH ₂ -	-(CH ₂) ₄ -	meta-phenylene	paraphenylene
2 H	2 H	(8)	(8)	(7)	(7)
Mn	2 H	40 (0)	60 (0)	45 (0)	(0)
Cu	2 H	12 (trace)	50 (trace)	70 (trace)	

Photooxygenation rates are in parentheses.

時間において生成した光酸化物の相対量を示している。いずれのスペーサーにおいても Mn ヘテロダイマーでは光酸化反応は全く起こらず、一方、Cu ヘテロダイマーでは僅かに光酸化物が認められた。Table 1 に示された結果の範囲内で Mn ヘテロダイマーでは用いたスペーサーの種類によらず相当に蛍光を発し、Cu ヘテロダイマーでは -CH₂- でダイマーの個々の構成ポルフィリン間の相互作用が最も強く、他のスペーサーでは差がなく十分な蛍光強度を有している。

可視域発光半導体の研究

光材料研究分野 末 宗 幾 夫

これまで進めてきた研究に関する二つのトピックスを紹介する。その第一は、間接遷移型で発光遷移確率が低いと思われていたシリコンからの可視発光に関する話題である。その構造、発光機構に関する我々の研究を紹介する。第二は青色半導体レーザに関する研究であり、研究の現状と今後の課題、展望について述べる。

1. 発光するシリコンについて

シリコンはLSIに用いられることで良く知られているが、バンド構造が間接遷移型であるために、効率良い発光は期待できないと考えられていた。しかし1990年9月にはL.T.Canham⁽¹⁾が、室温でも肉眼で確認できる可視発光を報告し、こうした“常識”を打ち破った。これはシリコン基板をフッ酸溶液中で陽極化成し、表面にできたポーラス（多孔質）シリコンからの発光を示したものであった。こうしたシリコン自体の発光を用いた発光素子が形成できれば、VLSI上への光素子の集積化が大きく進む可能性もあり、現在その基礎研究が活発に進められている。

2. ポーラスシリコンの構造と発光機構

この分野の研究当初から、結晶シリコンに比べてなぜそんなに良く光るのが最大の関心事であった。これまで、量子サイズ効果、エキシトン効果、化合物(シロキセン)モデル、格子緩和局在モデルなどが提案されているが^(2,3)なお結論はでていない。

我々は研究当初、陽極化成した多孔質層が厚さ方向に均一ではないことに着目し、断面から発光層の確認を行った。その結果、ごく表面層のみが発光すること、その表面層は図1に示すように径5~30nmの微粒子構造をしていることを確認した⁽⁴⁾。一方紫外光励起で観測したフォトルミネッセンスは、空気中での光励起による多孔質シリコン表面の酸化により、照射時間とともにブルーシフトを示す。こうしたブルーシフトの過程で、図2に示すように発光スペクトルに重畳した

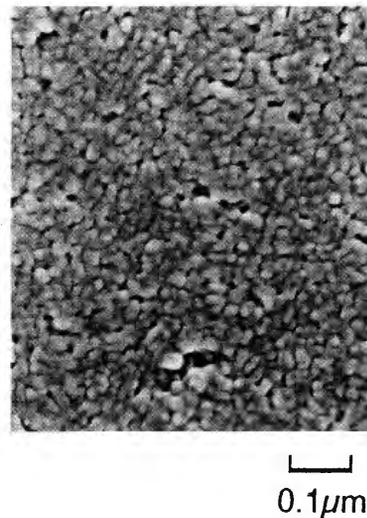


図1 ポーラスシリコンのSEMによる表面観察像

サブピークが観測された。このサブピークエネルギー位置は、量子箱モデルで合理的に説明され、表面酸化により図1の半導体微粒子径が一原子層づつ小さくなったためと理解できる⁽⁵⁾。こうした実験結果は明かに量子サイズ効果の寄与を示している。

3. 青色レーザ研究の現状と今後

1991年には青緑半導体レーザの低温パルス発振が3Mから報告されたが⁽⁶⁾、この背景には1980年代からの不純物制御ならびに強励起光物性に関する基礎研究の進展が大きく貢献していると言える⁽⁷⁾。1993年にはソニーから室温連続動作も報告されるに至っている⁽⁸⁾。

今後の課題としては、こうしたII-VI族半導体で格子

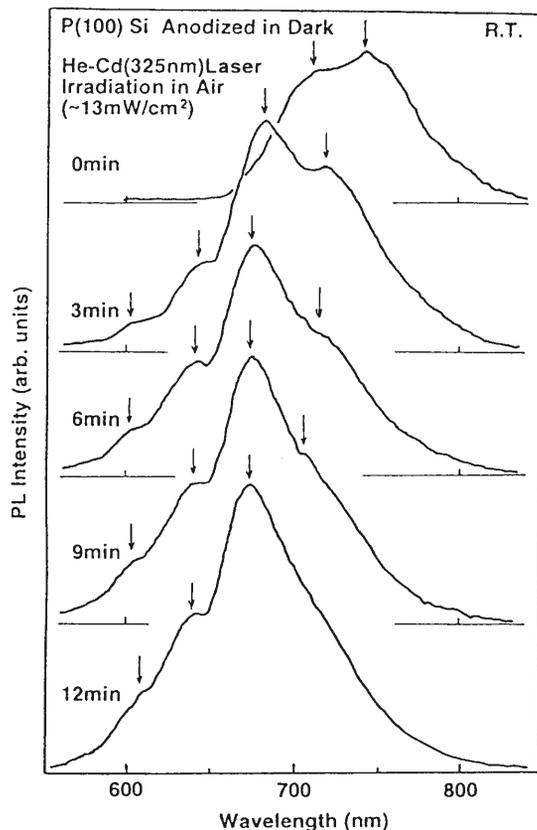


図2 発光スペクトルの経時変化で観測されるサブピーク

整合ヘテロ構造を製作できる唯一の材料系である ZnMgSSe 系で、高いバンド不連続を持ったヘテロ構造の MBE ならびに MOVPE による製作技術の確立があげられ、レーザ動作ならびにその基礎物性の研究にも重要度を増すと思われる。また窒素アクセプター添加で最大 $2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ のネットアクセプター濃度を得られているが、現在乗り越えがたい“壁”となっており、その物理を理解することによりさらに改善する必要がある。またレーザの連続動作に関しては、ダイオードの動作電圧が異常に高い困難が残されている。

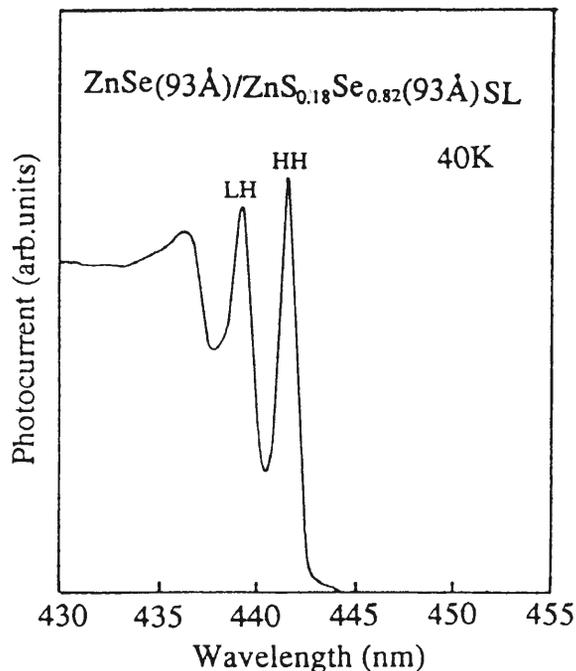


図3 光電流スペクトルの測定で観測される重い正孔 (HH) 軽い正孔 (LH) エキシトンピーク

る。これは金属/p-ZnSe 界面の障壁高さによるトンネル過程で定量的な理解ができ⁽⁹⁾、さらに成長法の選択によっては障壁高さを低減できることが我々の研究で示されている。

青色レーザに関してこれまで進められてきている研究は、主に III-V 半導体による半導体レーザですでに得られている研究成果の足跡を辿る感がある。しかし II-VI 半導体ではエキシトンの束縛エネルギーが大きく、図3の光電流のスペクトル測定に示されるように、超格子構造では特にエキシトン吸収が明瞭に現われる。こうした II-VI 半導体の物理的な特徴を生かした青色発光素子の高性能化は、今後の進展が期待される分野のひとつであると考えられる。

【参考文献】

- [1] L. T. Canham, Appl. Phys. Lett., 57, 1046 (1990).
- [2] 末宗幾夫, パリティ, 7, 12, 4 (1992).
- [3] 例えば「討論の広場」, 応用物理, 61, 12, 1269 (1992).
- [4] N. Noguchi, I. Suemune, M. Yamanishi, G.C. Hua and N. Otsuka, Jpn. J. Appl. Phys., 31, 4B, L490 (1992).
- [5] I. Suemune, N. Noguchi and M. Yamanishi, Jpn. J. Appl. Phys. 31, 4B, L494 (1992).
- [6] M. A. Hasse, J. Qiu, J. M. DePuydt and H. Cheng, Appl.

- Phys. Lett. 59, 1272 (1991).
- [7] 例えば, 末宗幾夫, 応用物理, 60, 6, 536 (1991).
- [8] N. Nakayama, S. Itoh, T. Ohata, K. Nakano, H. Okuyama, M. Ozawa, A. Ishibashi, M. Ikeda, and Y. Mori, Electron. Lett., 29, 16, 1488 (1993).
- [9] I. Suemune, Appl. Phys. Lett. (印刷中)

光化学ホールバーニングとその応用

量子機能素子研究分野 迫田和彰

低温固相中での光化学反応を用いたホールバーニング(光化学ホールバーニング)は、将来の超高密度光記録の原理として、また、不均一に広がった吸収スペクトル中から1分子の吸収スペクトルを抜き出す強力な分光法として極めて有用である。

1. 光化学ホールバーニングの機構[1]

有機色素を透明なポリマーに分散して、液体ヘリウム温度(4.2 K)程度まで冷却することを考える。充分低温であってフォノンの影響が抑えられるため、個々の色素分子の吸収線(半値幅を $\Delta\omega_h$ と書く)は極めて鋭くなる(図1)。通常、 $\Delta\omega_h$ は $10^{-1}\sim 10^{-2}\text{ cm}^{-1}$ 程度である。このとき試料全体としての吸収スペクトル(半値幅を $\Delta\omega_i$ と書く)も鋭くなるかというところ、そうはならない。実際、 $\Delta\omega_i$ は 10^3 cm^{-1} のオーダーであって、室温での値とさほど変わらない。これは、色素分子が非晶質であるポリマーに取り囲まれているために、分子ごとに異なる摂動を受けてエネルギー準位が不規則にシフトした結果、吸収波長も広い範囲に分布したためである。このように、 $\Delta\omega_i$ は試料の不均一性によってもたらされた幅なので不均一幅と呼ばれる。これに対して $\Delta\omega_h$ を均一幅と呼ぶ。

次に、このような状況にある試料にレーザー光を照射することを考える。レーザー光は単色性が高いので、

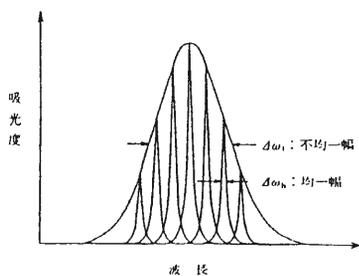


図1 色素/ポリマー系の吸収スペクトル

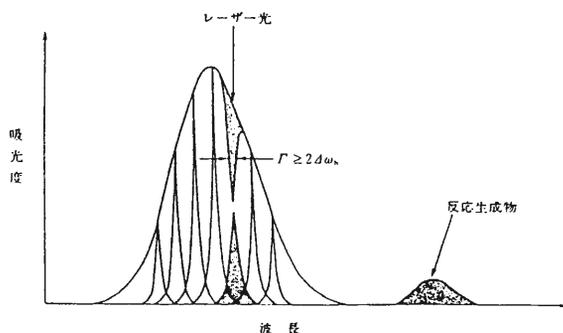


図2 レーザー光によるホールの形成

レーザー波長に共鳴する色素分子の数は全体から見れば少数である。これらの色素分子はレーザー光を吸収して“反応”を起こす。一般に、“反応”の前後では色素分子の吸収波長が変化するので、レーザー波長に吸収線をもつ色素分子の数が減少し、吸収スペクトルにくぼみが生ずる(図2)。これが光化学ホールバーニング(PHB)であり、生成したくぼみをホールと呼ぶ。さて、“反応”の中身であるが、これまでに各種の機構が知られている。列挙すると、①光互変異性(フタロシアニン、ポルフィン)、②水素結合の組み替え(キニザリン)、③光分解(テトラジン)、④光イオン化(亜鉛-テトラベンゾポルフィン)、⑤シストランス光異性化(オクタテトラエン)、⑥光物理過程(クレシルバイオレット)等である。また、無機物についても、⑦電子放出(Sm^{2+} イオン)、⑧準安定超微細準位への緩和過程(Eu^{3+} イオン)等が知られている。

2. 光化学ホールバーニングの応用

(1) 工学的応用

上述のように、液体ヘリウム温度における均一幅は不均一幅に比べて極めて小さい。そこで、レーザー波長を変えて多数のホールを形成し、それぞれのホールに1ビットの情報を担わせれば、波長多重記録が可能となる。期待される多重度は液体ヘリウム温度において $10^3 \sim 10^4$ である。したがって、従来の光記録媒体を凌駕する記録密度が得られる可能性がある。このように将来の高密度記録媒体の有力候補と期待されるPHB材料であるが、実用化にはいくつかの課題が残されている。最大の問題点は、PHBが低温でしか起こらないことであり、高温化を目指した研究が各地で続けられている。我々は、イオン性置換基をもつポルフィン誘導体を水素結合性ポリマーに分散した系で、初めて液体窒素温度におけるPHBを観測した[2]。また、この試料はホストフォノンの周波数が比較的高いため、デバイ・ワーラー因子の温度変化が小さいことを明らかにした[3]。

(2) 学術的応用

生成したホールのスペクトルにはいくつかの直接的な情報が含まれている。第1に、ホールの半値幅 Γ から均一幅 $\Delta\omega_h$ が求まる。第2に、ホールスペクトルは励起波長に一致した位置に現われる幅の狭い零フォノン線によるホールと、その両側に現われる幅の広いホール(フォノンサイドバンド)からなり、後者からホストフォノンの周波数分布、両者の相対強度から1次の電子格子相互作用の強さを表わすデバイ・ワーラー因子が求まる。第3に、試料が吸収した光エネルギーと生成したホールの面積の比から、反応の効率(量子収率)が求まる。第4に、ホールスペクトルの時間および温度変化から、非晶質試料中の構造緩和に関する情報を得ることができる。第5に、電場、磁場、圧力などの外場を加えたときのホールスペクトルの変化から、色素分子の微視的パラメーターが求まる。このようにPHBは、不均一に広がった吸収スペクトル中から1分子の吸収スペクトルに関する情報を得るための強力な分光法である。

【参考文献】

- [1] 迫田和彰, 齋官清四郎, 日本物理学会誌, 47, 204(1992).
[2] K. Sakoda, K. Kominami and M. Iwamoto, Jpn. J. Appl. Phys., 27, L1304 (1988).

- [3] S. Saikan, A. Imaoka, Y. Kanematsu, K. Sakoda, K. Kominami and M. Iwamoto, Phys. Rev. B41, 3185 (1990).

高温超伝導体研究の現状と電子ラマン散乱

量子機能素子研究分野 山中 明生

電子ラマン分光による銅酸化物高温超伝導体の超伝導ギャップ研究の現状について報告する。特に、電子ラマン散乱の温度依存性、偏光依存性、そしてキャリア濃度依存性に見られる高温超伝導体の特徴と今後の課題について簡単に議論する。

I. 序論

La-Ba-Cu-O系で高温超伝導が発見されて以来、多くの研究が行われている。超伝導機構解明にとって重要なことは、超伝導ギャップの性質(波数空間上でどのような対称性を持つのか)、ギャップの大きさ(電子間引力の強さ)を実験的に明らかにすることである。この目的のため、トンネル分光・赤外吸収・中性子散乱・核磁気共鳴・光電子分光等の実験が行われている。しかし超伝導ギャップの性質は明かではない。ここでは、電子ラマン散乱による高温超伝導体超伝導ギャップ研究の現状を報告する。

II. 実験

本研究で用いた試料は、科学技術庁無機材質研究所竹川博士が、フローティングゾーン法により作製した $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (Bi-2212)単結晶である。超伝導転移温度 T_c は 86 K (零抵抗) で、転移幅は 2 K 程度と極めて良質な試料である。この試料を光学クライオスタット中に設置し、電子ラマン散乱を測定した。クライオスタットは、本研究所技術部で製作された He ガスフロー型で、 $F/0.5$ 以下と極めて明るく、かつ 20 K ~ 300 K の範囲で使用可能である。励起光源は、Ar レーザー・Kr レーザー・色素レーザー等を用いた(ここでは Ar レーザー励起の結果のみを記す)。散乱光は、本研究用に当分野で開発したトリプルステージ分光器を用いて観測した。この分光器は明るく ($F/4.2$)、かつ鏡の使用を減らしたため透過率の高いのが特徴である。

III. 電子ラマン散乱の温度依存性

入射光・散乱光ベクトルを a 軸方向に向けた配置((xx)散乱)で観測された電子ラマンスペクトル(A_{1g})を図1に示す。常伝導相(90 K)では、電子ラマン散乱は構造のない平坦なスペクトルとして観測される。超伝導相では、連続スペクトルの低エネルギー領域の強度が減少し、一方中間エネルギー(波数 200~600)で増加し、ブロードなピークを持つスペクトルに変化する^(1,2)。増加した面積強度の変化を示したのが図2で、スペクトルの変化が超伝導電子数の増加を反映していることを表している。しかし、低温度(30 K)のスペクトルにはBCS理論で予想される超伝導ギャップに対応する構造が見られない。同様の結果は、 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 等の物質でも報告され、高温超伝導体の特徴である。

電子ラマン散乱は異なる偏光配置でも観測される⁽³⁾。図1の B_{1g} スペクトルは(xy)配置で観測された

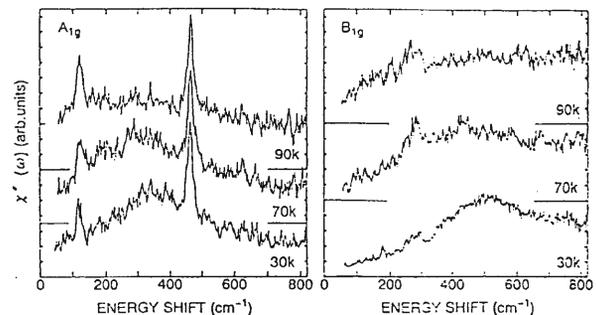


図1 (xx) 散乱配置, (xy) 散乱配置でそれぞれ観測される A_{1g} 及び B_{1g} 電子ラマン散乱スペクトルの温度変化。

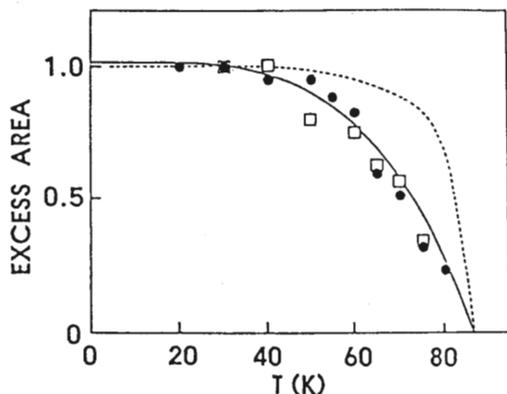


図2 中間エネルギー領域の電子ラマン散乱強度の温度変化。黒丸、白四角はそれぞれ A_{1g} , B_{1g} を表す。

もので、 T_c 以下で散乱強度の再分布が生じる(図2)。注目すべき点は、散乱強度の再分布が(xx)配置とは異なるエネルギー領域で生ずることであり、この事実は、超伝導ギャップの波数空間での異方性の存在を示唆している。

IV. 電子ラマン散乱のキャリア濃度依存性

高温超伝導体の T_c のキャリア濃度依存性は、低濃度側では濃度増加とともに T_c は上昇し、一方高濃度側では逆に下降する。この特異な性質と超伝導ギャップとの関係を明らかにする為、キャリア濃度の異なる試料で電子ラマン散乱を観測した⁽⁴⁾。図3に異なるキャリア濃度を持つ Bi-2212 単結晶の超伝導相 (30 K) における電子ラマンスペクトル((xy)散乱配置)を示す。超伝導ギャップ励起スペクトルのピークがキャリア濃度増加とともに低エネルギー側に移動することがわかる。同様の変化は(xx)配置で観測される電子ラマンスペクトルでも見られ、ギャップ励起スペクトルの共通の特徴である。 T_c は低濃度側・高濃度側とも低下するので、この結果はピークエネルギーと T_c とは明確な相関を持たないことを意味する。

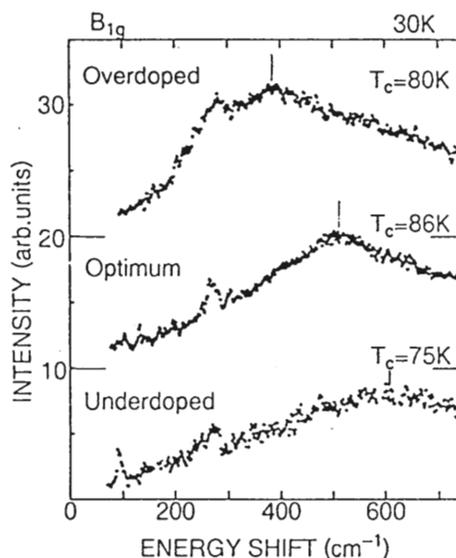


図3 電子ラマン散乱スペクトル(30 K)のキャリア濃度依存性。

V. まとめと今後の課題

得られた結果を簡単にまとめると、1)BCS型ギャップが観測されない、2)偏光依存性を持つ、3)散乱強度の変化は超流動密度を反映する、4)ピークエネルギーは顕著な温度変化を示さない、5)ピークエネルギーには T_c との相関が見られない。これらの特徴は、3)を除きすべて“異常”な振る舞いである。高温超伝導体の“異常さ”は他の分光実験でも見られ、統一的理解の妨げとなっているのが現状である。

今後の課題としては、電子ラマン散乱が、フェルミ面上のどの電子の応答を観測しているかを明らかにする必要がある。最近の角度分解型光電子分光実験の進歩に伴い、高温超伝導体のバンド構造がかなりわかってきた。現在、バンドの異方性と、電子ラマン散乱の偏光依存性との関係を検討しており、近い将来“異常”のいくつかは解決できるものと考えられる。

【参考文献】

[1] A.Yamanaka, et al., Jpn.J.App.Phys. 27, L1902 (1988).
 [2] A.Yamanaka, et al., Phys.Rev. B46, 516 (1992).

[3] A.Yamanaka, et al., Physica C 162-164, 1099 (1989).
 [4] A.Yamanaka, et al., J.Phys.Chem.Solids 53, 1627 (1992).

二次元分子組織を用いた分子素子

分子認識素子研究分野 下村政嗣

本研究分野は平成4年度に新設されたものであり、分子配列や配向を思いのままに制御する分子ナノテクノロジーを確立し、分子認識をはじめとする様々な機能を有する分子デバイスとして分子集合体を設計・作製することを研究目的としている。当面の目標は二次元分子集合体、とりわけ二分子膜や Langmuir-Blodgett (LB)膜の高度な組織性に着目してその作製・構造評価法を確立し、分子集合体の特徴を活かした化学センサーや光合成を模倣した超分子光リアクターなどを作製する。本稿では、本研究分野の研究方針と最近の研究例をまとめた。

1. はじめに

生物は多種多様な分子認識と情報伝達を行なっている。例えばアセチルコリンがレセプターに認識受容されると、アデニル酸サイクラーゼの活性化によりサイクリック AMP が増加し、他の酵素系を賦活化することで情報が伝達される。このプロセスは、レセプターによる特異な認識情報がサイクリック AMP の合成による増幅・非特異化を介して他の化学反応系へ変換されたと考えることができる。この機構を模倣すれば、特異的な認識部位と非特異的な情報増幅部・変換部位から構成される分子認識デバイスとしてのセンサーを設計できる。これらの機能をあわせ持った単一の化合

物の分子設計と化学合成はかならずしも容易ではなく、また認識されるゲスト分子の多様性を考えると現実的ではない。そこで、それぞれの機能を分子あるいは分子集団に持たせ、各モジュールを効果的に組み合わせる方法を採用する(図1)。この方法はすでに生体膜によって実現されており、チラコイド膜やミトコンドリア膜での色素分子や蛋白質分子の配列と、方向性を持つエネルギーや電子の移動にその範をみることができる。

二分子膜や気液界面単分子膜・LB膜などは生体膜類似の分子集合構造を形成する。これらは共通して、(i)二次元方向に秩序性を持つ分子配列、(ii)相転移などで可逆的に変化する高度な分子配向、(iii)動的制御が可能な二次元面内の分子分布、などの構造的特徴を有しており分子あるいは分子集団の配列制御が可能である。それゆえに分子認識デバイスの実現化には最も適した材料である^[1,2]。

2. 機能性モジュールの開発

(1) 認識部位の二次元分子集合体への導入

すでに基質特異性にすぐれた多くのレセプター分子が知られ合成されている。これらの分子を特異的な認識機能モジュールとして分子集合体に導入し配列を制御するためには、長鎖アルキル基の導入など化学修飾による配向性の付与が必要となる。

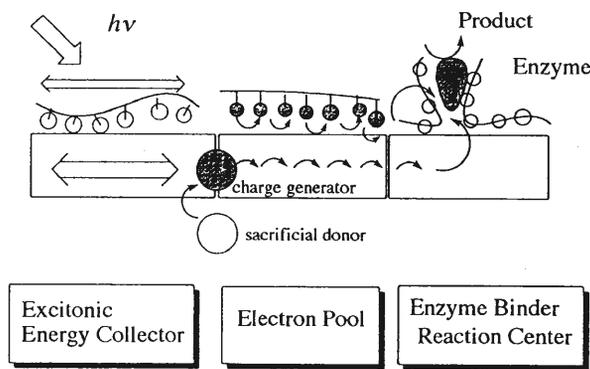


図1 機能性モジュールを組み合わせた人工光合成分子素子の概念モデル

(2) 情報増幅・変換部位の設計

認識部位における受容情報を分子集合体に特徴的な非特異的な特性に変換すれば、認識部位だけを交換することで基質に対する多様性が得られる。また、情報の安定性・高感度化という点では光情報への変換が望ましい。例えば、基質と二分子膜との特異な相互作用が、基質取り込みにより誘発される相分離や膜電位変化のような非特異的な物理特性の変化に変換され、膜あるいはプローブ分子の吸収あるいは蛍光スペクトル変化として感度よく検出できる。あるいは、高度に二次元配向した分子群中で形成された励起子から、きわめて少量のアクセプターにエネルギーが移動する現象を用いることで高感度検出が可能となる。

3. 分子分布制御技術の確立

高度に配向した情報増幅・変換モジュール部位に認識モジュールが無秩序に混入すると分子配向が攪乱され、例えば励起子形成などの機能発現が妨げられる。それゆえ分子認識システムとして各モジュールを組み立てるためには、各機能モジュールをランダムに混合するのではなく、分子集合体におけるモジュール間での有機的な結合と空間配列が要求される。しかし現時点では、二次元面内において分子あるいは分子クラスターを思いどおりに配列する技術は確立されていない。そこで、二分子膜や単分子膜・LB膜における相分離現象を支配する諸要因を探り分子分布制御の技術を確立する。具体的には、蛍光顕微鏡や走査トンネル顕微鏡などによる分子クラスターの観察と微小領域の分光分析を組み合わせることで二次元分子薄膜の計測手法を確立し、クラスター形成に及ぼす集合体構成成分や集合体の作製条件などの影響とそれらの相関性を明らかにする。

4. 機能モジュールの有機的な結合と分子ナノテクノロジーの確立

特定の機能分子のドメインを高分子化することで他の分子群との混合を抑えたり、水素結合や特異な相互作用などを利用して特定の分子クラスター間での結合を行なう。また、光エネルギー捕集、電子伝達、酵素との電子的コミュニケーションなどを司る機能モジュールから構築される人工光合成などの分子デバイスを作製し、二次元分子集合体における分子分布制御

技術の確立がモлекуラーナノテクノロジーの中核的技術として不可欠であることを実証してゆく。

5. 最近の研究成果

膜電位感受性色素とバリノマイシンを含むジアルキルリン酸LB膜の蛍光強度がカリウムイオンの濃度の対数に比例して変化することを見いだした(図2)。これは、LB膜へのカリウムイオンの選択的な取り込みに伴う膜電位変化を蛍光強度の変化として検出したものである。さらにLB膜作製条件によっては、イオンとの相互作用によって膜の相状態変化が誘発されその結果として蛍光強度変化がおこることを蛍光顕微鏡による単分子膜の直接観察によって見いだした^[3,4]。LB膜の蛍光強度は、センシングの対象とするゲスト分子とそのレセプターとの親和性、マトリックス膜であるLB膜との相互作用(静電的相互作用、疎水的相互作用など)、膜電位変化、さらには光化学的プロセスなどの影響を受ける。すなわち、ホストマトリックスであるLB膜構成分子の化学構造や作製条件、蛍光プローブである膜電位感受性色素の化学構造などを様々に変化させることで、ゲストに対する蛍光応答も多様になるものと期待される。それぞれのホストLB膜に特徴的な蛍光応答が得られれば、いく種類かのホストLB膜からなるマルチチャンネル型オプティカルセンサーを作製し様々なゲストに対する蛍光応答をパターン化し多変量解析処理を施すことでゲストのパターン認識と定量化が可能となる^[5]。

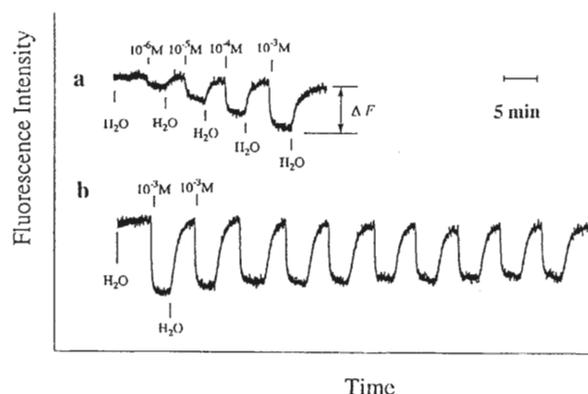


図2 LB膜蛍光のカリウムイオン応答
a. 濃度依存性, b. 繰り返し応答

【参考文献】

- [1] 下村政嗣, 固定化二分子膜, 有機エレクトロニクス材料研究会編, ふんしん出版 (1990)
- [2] M.Shimomura, Prog.Polym.Sci., 18, 295-339 (1993).
- [3] M.Shimomura, A.Honma, S.Kondo, N.Tajima, E.Shinohara, K.Koshiishi, *Sensors & Actuators*, B14, 629-631 (1993).
- [4] M.Shimomura, S.Kondo, N.Tajima, E.Shinohara, *Sensors and Materials*, 29-39 (1992).
- [5] 本間, 下村, 田島, 近藤, 篠原, 越石, 第 54 回応用物理学会秋季学術講演会予稿集, p.1102 (1993).

脳機能研究の新しい道具

— 脳灌流法 —

超分子分光研究分野 稲垣 陸史, 田村 守

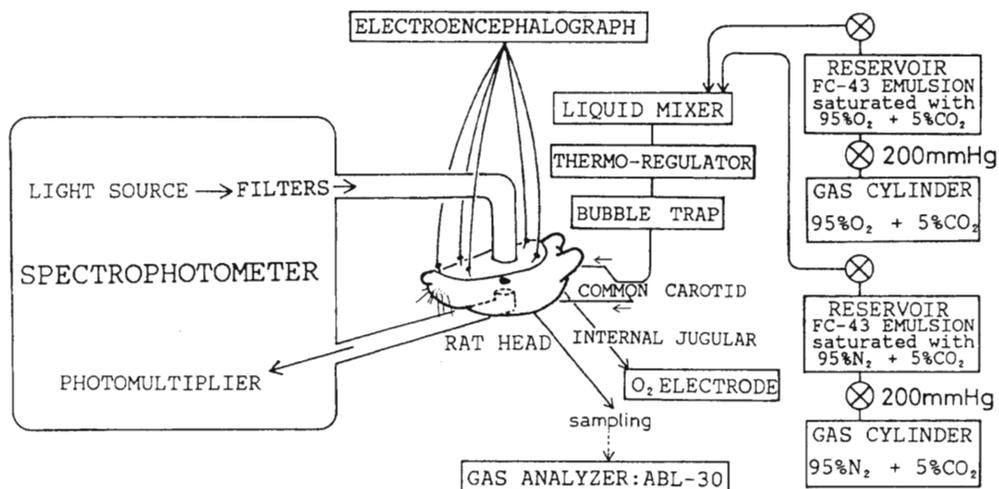
ラット頭部の人工血液による脳灌流標本の作製とその分光学的性質を詳細に検討した。FC-43の人工血液を定圧下で総頸動脈よりカニューレを介して灌流を行った。灌流標本の自発脳波は正常ラットと同様であり、灌流開始後～6時間にわたって記録できた。また、光刺激に対しても正常な応答が見られた。種々のテンカン誘発薬物に対しても、典型的なスパイク状脳波の応答が観察できた。以上より、電気生理学的には“intact”な脳灌流標本であると結論した。

可視-近赤外領域の吸収スペクトル測定より、脳内ミトコンドリアは完全酸化の状態にあり、低酸素負荷に対し、チトクロームオキシダーゼの二つの酸化-還元中心、ヘムと銅、は速やかに還元され、同時に脳波が消失した。これらの事より、我々が作製した、血液を用いない摘出ラット脳灌流標本は今後の脳機能研究に有効であると結論した。

はじめに

脳組織は各種の臓器の中でその機能が最も強く酸素代謝に結びついている。このことは、脳機能研究の上で、循環動態の変動がしばしば脳組織の種々の応答を埋もれさせてしまう。このため、循環系から切り離れた脳灌流標本は脳機能研究の上で優れた実験系といえ

る。しかしながら、現在までその生理的・生化学的に正常に機能し得る、摘出脳灌流標本の作製は困難であった。特に、他の心臓や肝臓で行われている血液を用いない灌流法はまだ確立されていない。今回、我々は人工血液(FC-43)を用いた新しい脳灌流法をラット頭部に採用し、良好な結果を得たのでその一部を紹介する。



Schematic diagram of the perfusion system for a rat head. The isolated rat head was perfused with the oxygenated FC-43 emulsion at a constant pressure (200 mmHg) using cylinder pressure regulators. The apparatus in this system was carefully insulated against electric noise.

図1 ラット脳灌流系のブロックダイアグラム

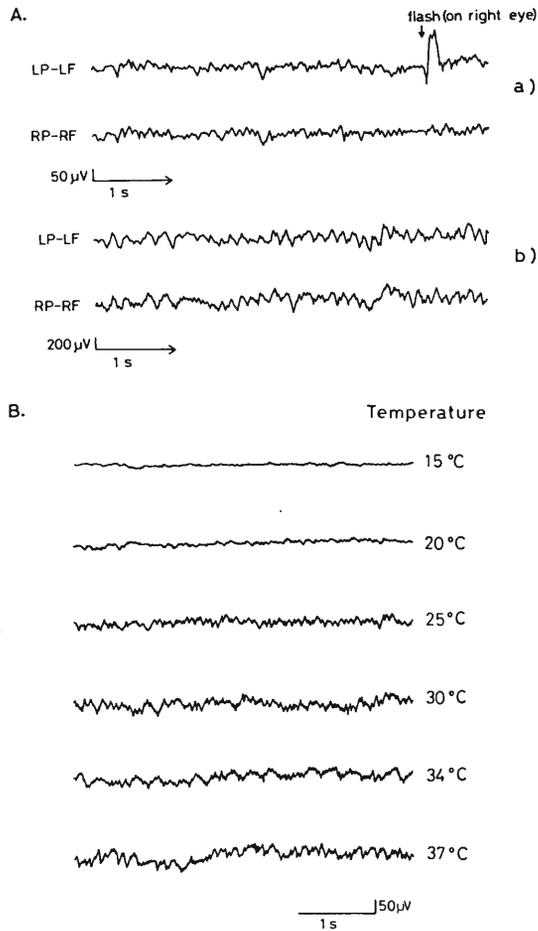


図2 (A) (a) 摘出灌流脳の自発脳波と光刺激
 (b) 麻酔ラットの自発脳波
 (B) 灌流脳の温度依存性

脳灌流標本の作製

図1に全体の実験系のブロックダイアグラムを示す。95%酸素と5%炭酸ガスで飽和した人工血液(FC-43)を200 mmHgの動脈圧でラット総頸動脈よりカニューレを介して灌流を開始する。この時、手術中、脳への血液が常に維持される特別なループカニューレを用いた。ラット頭部に脳波用電極を着け、同時に近赤外吸収スペクトルの測定用のライトガイドを装着した。

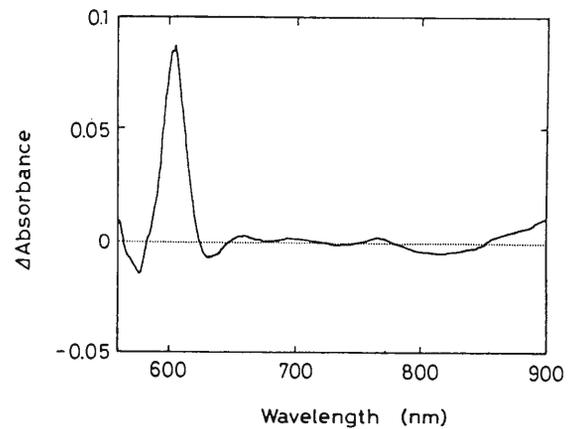


図3 灌流脳の好気-嫌気差スペクトル

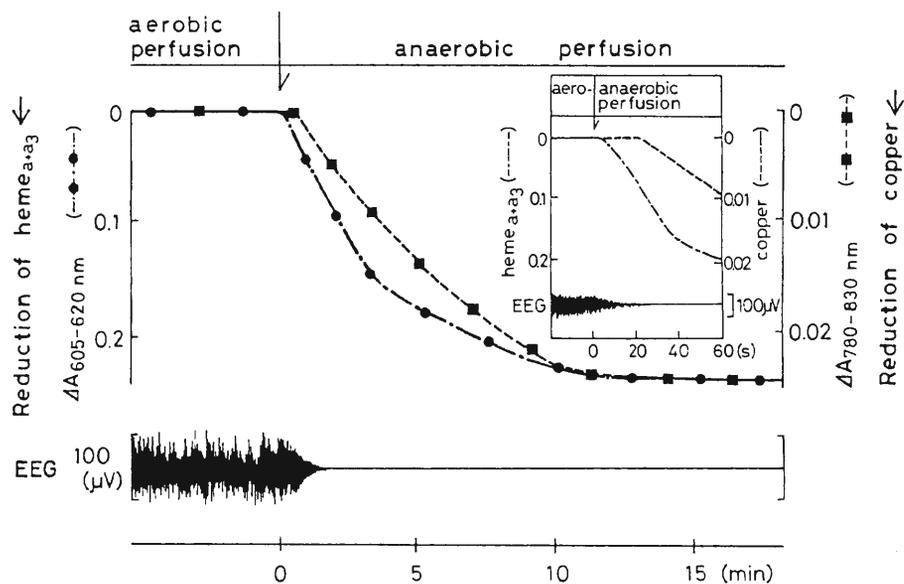


図4 好気-嫌気における灌流脳のチトクロームオキシダーゼの変化と脳波

結 果

図2の(A)は摘出脳標本の自発脳波(a)と右目に光を照射した時、(B)は正常麻酔ラット脳波である(b)。(B)は灌

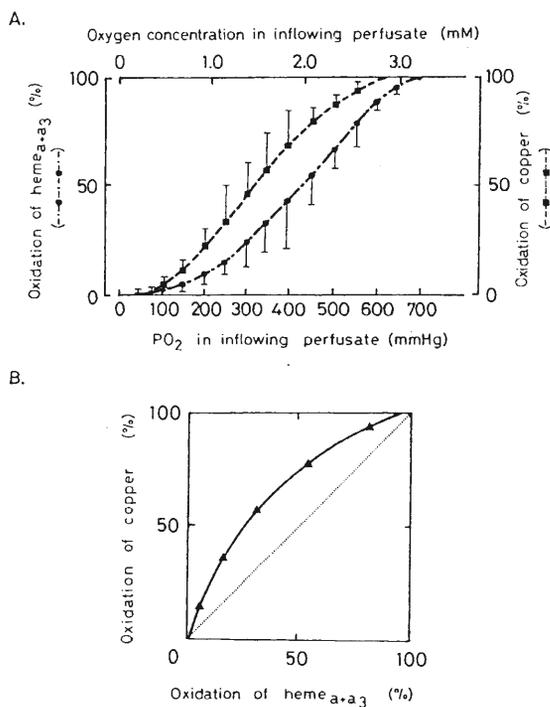


図5 (A) 灌流脳のチトクロームオキシダーゼの酸素濃度依存性
(B) チトクロームオキシダーゼのヘムと銅のプロット

流脳の脳波の温度依存性を示しており、25-30°Cで灌流開始後約4~6時間、正常な脳波が観察された。

図3にラット頭部の好気-嫌気のスpekトルを示す。605 nmに吸収極大、~830 nmに吸収極小が見られ、前者はミトコンドリアのチトクロームオキシダーゼのヘムの還元、後者は銅の還元に対応する。

次に摘出脳標本を好気状態から嫌気状態に変えると図4に見られるようにヘムの還元が銅の還元を先行し、約40%還元された時に脳波が消失する。この時に脳内の酸素濃度は 10^{-7} 近くまで下がっていることが判る。図5に図4で得られたチトクロームオキシダーゼのヘムと銅の酸化-還元を灌流液の酸素濃度に対しプロットした(A)と、相互の関係(B)を示す。

考 察

血液を用いない脳灌流標本を作製し、脳波、光刺激、薬物応答からほぼ正常な脳機能を維持していると結論できた。また、図3, 4からも理解されるように、血液が存在しないため、各種の分光学的手段が利用でき、特に近赤外領域でのチトクロームオキシダーゼの酸化-還元を追求できる。この結果は正常血流下での各種の結果と比較し得るもので、特に図4の(B)から、脳組織は活発な酸素消費を行うState-3呼吸であると結論した。今後、この標本を用いて種々の薬物等や生化学的挙動の研究を行いたい。

【参考文献】

M. Inagaki, and M. Tamura, J. Biochemistry, 113 650-657 (1993)

キノンによる酸化ストレスと防御機構 (ラット脳, 肝細胞下画分のデータを中心に)

超分子分光研究分野 中村正雄

キノンによる肝毒性は、酵素によるキノンの1電子還元を経た酸素ラジカル生成に起因する。肝細胞でキノンは主に NADPH-P-450 還元酵素で1電子還元されセミキノンラジカルとなり酸素と反応し $O_2\cdot^-$ を生成する。一方 DT-ジアホラーゼはキノンを2電子還元し、酸素ラジカルの生成を抑制する。従ってキノンの肝毒性発現を解明するには、局在した個所のそれぞれの活性を明らかにする必要がある。細胞下画分の相対的な酵素活性を算定してみると、肝細胞レベルでは細胞表面膜がキノン肝毒性の防御にあたりと結論される。

目 的

生体に生じる還元酸素種生成 (H_2O_2 , $O_2\cdot^-$) に基づく酸化ストレスと種々の疾病、発癌、老化との関連が強く示唆されている。これは還元酸素種生成により開始するラジカル連鎖反応で、この結果、生体膜、酵素、核酸が酸化修飾を受ける。これに対して生体は多重な防御機構①抗酸化物(ビタミンCやEなど)②抗酸化酵素(SOD, カタラーゼ, グルタチオンペルオキシダーゼ, DT-ジアホラーゼ, etc)を持ち、活性酸素種の消去と障害の抑制と修復を行う。ここではキノン(2-メチル-1,4-ナフトキノン)による肝毒性発現とこれに対する防御の仕組みを述べる。キノンによる肝毒性は、酵素によるキノンの1電子還元を経た酸素ラジカル生成に起因する。肝細胞でキノンは主に NADPH-P-450 還元酵素で1電子還元されセミキノンラジカルとなり酸素と反応し $O_2\cdot^-$ を生成する。その結果、細胞表面のブレブの形成や、細胞内の情報伝達能の消失を経て細胞死に至ることが知られている。一方 DT-ジアホラーゼはキノンを2電子還元し、酸素ラジカルの生成を抑制する。従ってキノンの肝毒性発現を解明するには、局在した個所のそれぞれの活性を明らかにする必要がある。

方 法

ラット遊離肝細胞から常法によりサイトゾル, ミク

ロソーム, 形質膜を調製した。得られた画分は標識酵素活性で検討した。ラット脳ミクロソームは灌流脳から細胞分画法で得た。酵素活性は2波長法で測定した。DT-ジアホラーゼ活性はジクマロールによる阻害から算定した。メナジオン(MK)の還元を介した酸素ラジカル生成はDMPOをスピントラップ剤としESRで観測した。

結果と考察

ラット肝の NADPH-MK 還元活性(比活性)はサイトゾル>ミクロソーム>形質膜画分の順で、 $10\mu M$ ジクマロールによる阻害率はそれぞれ92%, 65%, 70%であり、細胞下画分の MK 還元活性は主として DT-ジアホラーゼで触媒される(Table I)。MK を介した $O_2\cdot^-$ の生成は形質膜画分ではミクロソームの1/10で NADPH-cyt.c 還元活性の比と一致した。NADH-MK 還元反応中の $O_2\cdot^-$ 生成はミクロソームで NADPH の1/2, 形質膜画分では観測されない。従って、ミクロソームに結合した NADH-b₅ 還元酵素も MK の1電子還元を介して $O_2\cdot^-$ を生成することが明らかである。いずれの $O_2\cdot^-$ 生成も DT-ジアホラーゼの阻害剤で影響を受けず、MK を介したラジカル生成は本酵素によらないことを示している。脳のサイトゾル, ミクロソームでも NADPH-, NADH-MK 還元活性に占める DT-ジアホラーゼ活性の割合は肝のそれらと同じで、キノンの毒性に対する十分なジアホラー

ぜによる防御能力を示している。脳のミクロソームでは明らかに NADH-MK 系での $O_2 \cdot$ 生成が NADPH-MK 系での生成を上回り、肝ミクロソームの電子伝達経路との差を示しているとみられる。以上から肝細胞レベルでは細胞表面膜の DT-ジアホラーゼがまずキノンの肝毒性の防御にあたることが示唆された。

Table I Effect of Dicoumarol upon the NAD (P) H-Menadione Reductase Reactions by Subcellular Fractions.

Subcellular Fractions	Electron Donor	MAD (P) H-Menadione Reductase Activity		Activity Remaining (%)
		-	+10 μ M Dicoumarol	
(n mol/mg protein. min)				
Cytosol	NADPH	135	11	8.1
	NADH	125	8.1	6.4
Microsomes	NADPH	13.1	4.6	35
	NADH	10.4	3.5	34
Plasma Membranes	NADPH	5.3	1.6	30
	NADH	4.1	1.2	29

単一分子蛍光法による DNA 認識酵素の評価

細胞機能素子研究分野 金城 政 孝

Klenow 酵素と Rhodamine-4-dUTP を用いて蛍光標識をした DNA を合成し、その拡散速度を自己相関蛍光測定法を用いて測定した。50 bp から 500 bp の範囲の 2 重鎖 DNA の拡散速度はその鎖長にほぼ比例し、また得られた値は回転楕円体や棒状分子として計算した拡散速度に良く一致した。蛍光標識 DNA (500 bp) を T7 exonuclease を用いて 3' 末端から順次分解してその時の拡散速度の変化から酵素活性を測定した結果 $1.5 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$ と 0.03s^{-1} の速度常数が得られた。また放出される Rho-dUMP の分子数から標識 DNA 1 分子当たり約 20 分子の Rho-dUTP が取り込まれたことが分かった。

はじめに

DNA や RNA の検出と分子量測定は生化学や分子生物学の研究において最も重要な分析手段であり、現在極めて一般的な検出法はアガロースやポリアクリルアミドを用いたゲル電気泳動法である。本研究はアルゴンレーザーと自己相関蛍光測定法 (Fluorescence correlation Spectroscopy, FCS) を組み合わせた単一分子検出法を DNA のサイズと溶液中の分子数の同時測定に応用したものである。近年の FCS 開発の進展は様々な FCS の特徴を明らかにした [1-3]。1) 測定される並進拡散速度の範囲が広いこと。この事は、アミノ酸や核酸などの低分子基質から、蛋白質、染色体、生体膜や細胞までの複合体まで広い範囲をカバーできることを示唆している。2) 共焦点顕微鏡を用いることにより観察している視野が微小領域 ($0.24 \times 10^{-15} \text{l}$) となり、必要な試料量は少なくてすむ。この特質は試料を調整するのが困難なときや、生物学や遺伝学でしばしば起きるが、希産種や変種などサンプル量自体が制限されているときに重要である。3) データを解析するプログラムやパーソナルコンピュータの発展により、データを集める時間や、データ分析の時間が短くなり応用分野が広がるようになった。

本稿では蛍光標識をした 2 重鎖 DNA の水溶液中の拡散速度の性質、特に拡散速度と鎖長の関係について報告する。また、蛍光標識 DNA を 3' 末端から順次 T7

exonuclease を利用して切断して行き、その時に切り放される蛍光分子を FCS を用いて数えることにより、酵素活性の測定と 2 重鎖 DNA に含まれる蛍光プロープの数を見積った。

方 法

種々の長さの 2 重鎖 DNA (50 bp, 217 bp, 343 bp, 500 bp) を PCR を用いて合成し、エタノール沈澱法により回収した。以上のサンプルと 1 重鎖 M13 mp18 DNA (7250 b) を鋳型とし、Rhodamine-4-dUTP 存在下、DNA polymerase として klenow 酵素を用いて蛍光標識 2 重鎖 DNA の合成を行った。合成した蛍光標識 DNA は Sephacryl S-400 カラムクロマトグラフィにより精製し、溶出液をそのまま FCS の試料とした。

自己相関蛍光測定装置は cw アルゴンレーザー (SP model 165, 514.5 nm, 500 μW)、共焦点蛍光顕微鏡 (Leitz)、アバランチホトダイオード (EG&G, SPCM-100)、コリレーター (ALV, ALV 5000) からなる。試料は顕微鏡の対物レンズの表面に直接乗せた。

測定で得られた相関関数の相関強度の逆数から視野中に存在する平均蛍光分子数が決定され、相関値が 1/2 になる時間で定義される相関時間から平均の並進拡散時間が決まり、拡散速度が推定される。

結 果

Fig.1 に2重鎖DNAの鎖長に依存する相関時間の変化を示す。鎖長が長くなるにしたがって相関時間も長くなることが分かる。DNAやダバコモザイクウイルスのような棒状をした物質の溶液中での拡散速度(摩擦係数)についての理論的研究はPerrin, Broersma, Bloomfieldなどがあるが、我々の結果は7250bp DNA(環状)の拡散時間のデータを除いてそれらの理論値とよく一致した。

次に蛍光標識した500bpDNAを基質としてT7 exonuclease(T7exo)による分解過程を調べた(Fig.2)。時間と共に相関関数が右から左へシフトし、かつ相関強度は時間と共に小さくなり蛍光分子が増加していることが示されている。これはT7exoがDNAの3'末端からDNAを順次切断するに従って、元々のDNAが短くなることと切り出されたモノマー

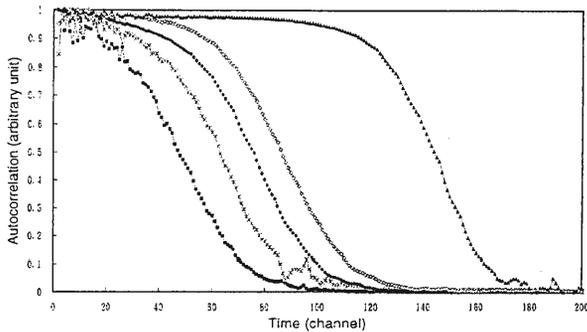


Fig.1 Autocorrelation function of diffusion of DNA molecule. Each DNA was synthesized by using the Klenow enzyme (4U) in the presence of 50mM dUTP and 25mM dTTP. Translational diffusion time for 7250 bp (▲): 10m sec, 500bp (◇): 2.25m sec, 217bp (●): 0.95m sec, 50bp (*): 0.45m sec and Rho-dUTP (◆): 0.086m sec. Ordinate scale is normalised to unity.

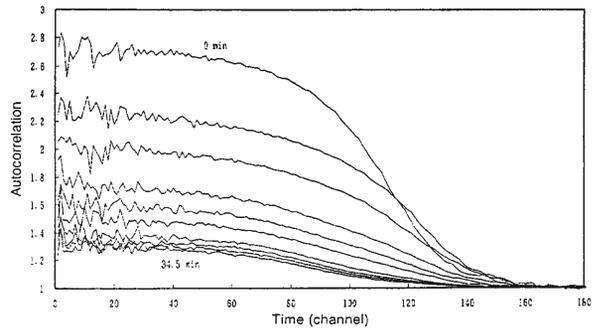


Fig.2 The change of autocorrelation function of 500bp DNA treated by T7 exonuclease. The reaction was carried out with T7 exonuclease (3 μ M) and 500bp DNA (4nM) in 10 μ l buffer contained 10mM Tris-HCl (pH 8.0), 0.1M NaCl, 1mM EDTA and 10mM MgCl₂ at 20°C. The reaction was started by adding the enzyme (1 μ l) and then measured after 0.5, 1.5, 3.5, 6.5, 9.5, 14.5, 19.5, 29.5 and 34.5min.

の蛍光分子(Rho-dUMP)の増加の双方の要因により説明される。詳しい解析の結果、 $1.5 \times 10^{-3} \text{s}^{-1}$ と 0.03s^{-1} 速度常数を得た。また酵素反応に従って蛍光分子は500bpDNAの4.1nMから反応終了後には26.7nMに増加しており、これはDNA鎖一分子当たり約6分子のRho-dUMPを放出したことになる。さらに切れ残りのDNA鎖の長さを拡散速度から350bpと見積ることができ、その結果20分子のRho-dUTPが500bp中に含まれていたことになる。

【終わりに】

自己相関蛍光測定法によりDNAの鎖長と酵素反応液に含まれる基質濃度の変化を同時に測定できることを示した。この方法は微量、希釈条件下において酵素活性を測定するのに今後有効になるとと思われる。

【参考文献】

- [1] Rigler, R. & Widengren, J. in BioScience (Klinge and Owman eds) 3; 180-183(1990)
- [2] Soper, S.A., Shera, E.B., Martin, J.C., Jett, J.H., Hahn, J.H., Nutter, H.L. & Keller, R.A. Anal Chem 63; 432-437 (1991)
- [3] Rigler, R. & Metz, U. SPIE 1921; 239-248 (1992)

多重散乱光の波長相関特性

光システム計測研究分野 岡本 卓, 朝倉 利光

移動微粒子懸濁液に二つの異なる波長のレーザー光を照射したときに得られる動的多重散乱光の波長相互相関特性について実験的に研究した。散乱光強度の相関係数は、光学的厚さおよび粒子数密度に依存する。一方、相関時間は粒子のブラウン運動の影響を受けず、懸濁液全体の流れだけを反映する。この結果、従来困難であった多重散乱流体の速度計測が可能であることが明らかとなった。

1. はじめに

粗面に二つの異なる波長をもつレーザー光を照射すると、それぞれの波長の散乱光によって生じる二つのスペックルパターンは粗面の粗さによってその相関度を変化させる。この性質を利用した二波長スペックル相関法は表面粗さの測定法として提案されているが[1], 原理的には粗面に限らずランダムな光散乱を起こすあらゆる物体に適用可能である。そこで私達は、対象物体として微粒子懸濁液を選び、それがもつさまざまな性質と得られる散乱光強度の相互相関関数の特性との関係を実験的に調べた[2]。特に、微粒子の運動が光強度の時間的ゆらぎに及ぼす影響に注目した。

2. 実験系

実験系の概略を図1に示す。多波長のアルゴンレーザー光を直径約20mmの平行ビームにして、厚さ1mmのガラスセルに照射する。セル中に入れる試料として、一定の直径をもつポリスチレン粒子を水に分散させたものを用い、セル全体を光軸に垂直な方向に一定速度で移動させる。懸濁液から出た動的散乱光は結像レンズを通して直径50 μ mのピンホールに集められ、分散プリズムDPおよびレンズによって波長ごとに分離したのち、異なる二波長の光が光電子増倍管PM1およびPM2で検出される。得られた光強度変動 $I_1(t)$ および $I_2(t)$ は、FFTアナライザへ送られ、直流分を除去したゆらぎ成分の相互相関関数が計算される。

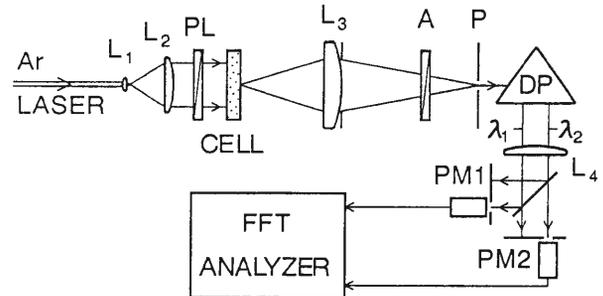


図1 実験系。L₁, L₂, L₃, L₄, アクロマートレンズ; PL, 偏光子; A, 検光子; P, ピンホール; DP, 分散プリズム; PM1, PM2, 光電子増倍管。

3. 光強度ゆらぎの相互相関関数

実験で得られた相互相関関数の一例を図2に示す。

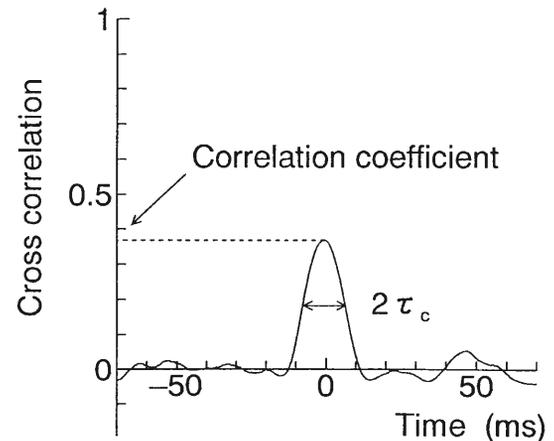


図2 散乱光強度ゆらぎの二波長相互相関関数。

この相関関数のピーク値（相関係数）は懸濁液中の散乱光の光路長分布などで決まるため、微粒子の直径や濃度に関係した量である。一方、相関ピークの半値半幅で定義される相関時間 τ_c は微粒子の運動状態を反映している。以下にこれらの関係について得られた結果を示す。

4. 実験結果

図3は、波長488 nmと514.5 nmの散乱光で得られた相関係数が、微粒子の体積濃度によって変化する様子をプロットしたものである。濃度が高くなると散乱回数が増加し、光路長の分布が広がるために相関が低下する。また、粒子直径によって異なる相関係数が得られるが、これは、相関係数が粒子濃度だけに依存するのではなく、散乱体の光学的厚さと粒子数密度に支配されているためである。ここで、光学的厚さとは試料の厚さを光子の平均自由行程で割ったものである。

セルの移動速度（微粒子の平均速度）と相関時間の関係を図4に示す。自己相関関数（波長488 nm）から

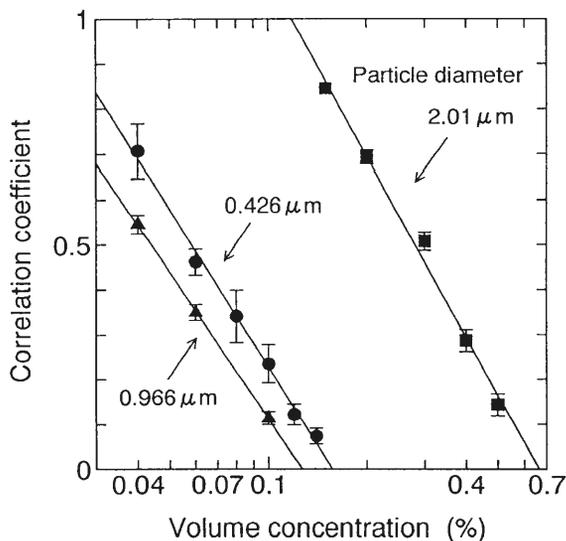


図3 粒子の体積濃度と散乱光強度ゆらぎの相関係数の関係。

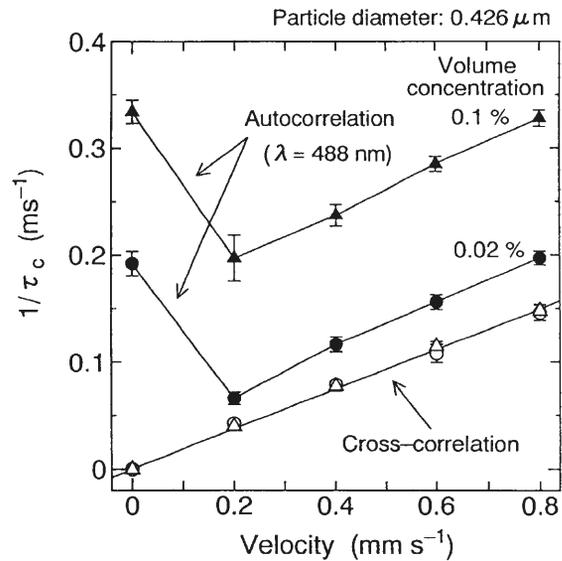


図4 粒子の平均移動速度と相関時間の逆数の関係。

得られる相関時間は、粒子のブラウン運動の影響を大きく受けているのに対し、相互相関関数（波長488 nm, 514.5 nm）から計算した相関時間は、ブラウン運動の影響を受けず、その逆数が粒子の平均速度に比例する。さらにその比例係数は粒子濃度にほとんど影響しない。したがって、相関ピークが検出できる濃度範囲において、二波長相関法は多重散乱媒質の速度測定に有効な方法であることがわかった。

5. おわりに

二波長相関法は、粗面に限らずコロイド溶液のような多重散乱体に対しても応用できることが明らかとなった。二波長の相関をとるということは、散乱光の中の直進成分に近いものだけを選択的に取り出していることに対応するため、光CTの手法を応用したと見ることもできる。ただし、生体のような高濃度媒質では前方散乱光の二波長相関成分がほとんどないため、本手法は皮膚血流のような表面散乱光の解析に有効だと思われる。

【参考文献】

[1] B. Ruffing: J. Opt. Soc. Am. A, 3, 1297 (1986).

[2] T. Okamoto and T. Asakura: Opt. Commun., 103, 355 (1993).

レーザー放射圧

—— 動的散乱における影響 ——

光システム計測研究分野 原田 康浩, 朝倉 利光

測定対象の場を乱さないと認識されている光波散乱微粒子センシング法の中で、測定対象の運動形態がその測定原理に密接に関連する動的散乱法をとりあげ、そこでのレーザー放射圧の測定結果への影響の存在を実験的に明示するとともに、その影響の粒径依存性に注目して解析する。

1. はじめに

コロイド分散のようにランダム運動を伴う多粒子系の構造や大きさ、運動形態などの情報を抽出する光学的手法に動的散乱法[1,2]がある。この場合、照射光波は多粒子系のランダムな位置変動にもなって位相変調を受けるだけで、対象物体の動態を乱すことは無いと仮定されている。一方で、レーザー光の放射圧を利用したマイクロオーダーの微小粒子のトラッピング法とその応用技術に関する研究[3]が活発に行なわれており、そこでは光波と微粒子との間の散乱現象を介した運動量に関する相互作用を主題にしている。したがって、先の動的散乱法においても、照明系の設計如何によってはこの相互作用が顕在化する可能性がある。本研究では、動的散乱法におけるこの相互作用を明確にするために、比較的高出力のレーザーで照射された微粒子懸濁液に対して、異なる波長の低出力レーザーをプローブ光として照射し、その動的散乱光をホモダインおよびヘテロダイン検出する方式により、最終的に得られる光電子相関関数に現れる光の放射圧の効果を実験的に調べた[4]。

2. 実験系

Fig.1に実験系の概略を示す。放射圧に寄与する照明光波として出力が可変のAr⁺レーザー($\lambda = 514.5 \text{ nm}$, スポットサイズ $7.32 \mu\text{m}$)を、そのビームウェスト部でポリスチレン標準粒子の蒸留水懸濁液が充填された厚さ 2 mm のガラスセルに照射する。これと

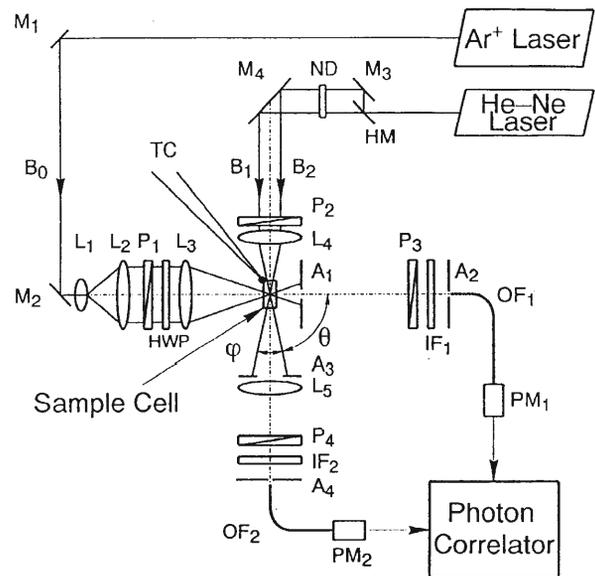


Figure 1 Schematic diagram of the experimental setup.

直交する方向から、プローブ光としてHe-Neレーザービーム B_1, B_2 ($\lambda = 632.8 \text{ nm}$, 交差角度 10 度, ホモダイン検出時はビーム B_1 のみ)を照射する。微粒子懸濁液からのプローブ光の動的散乱光は、ホモダイン検出時には右側の光学配置で、ヘテロダイン検出時には下に配した光学系においてそれぞれ光電子増倍管PMにより検出され、光電子パルス列に変換された後、光電子パルス数の時間相関関数(光電子相関関数)が光子相関計において測定される。

3. 実験結果

直径 $2.062 \mu\text{m}$ のポリスチレン標準粒子を用いた実験で得られた相関関数のアルゴンレーザーパワーへの依存性を Fig.2(ホモダイン検出)および Fig.3(ヘテロダイン検出)に示す。ホモダイン検出時には、測定された相関関数の形状と相関値が $1/e$ に低下する遅延時間で定義される相関時間から、多粒子系の相互の位置関係の時間的変動(ブラウン運動)の速さが議論でき、ヘテロダイン検出時の相関関数からは微粒子系全体での一定速度運動が推定できる。なわち、これらの図より、1)レーザービーム内に微粒子がトラップされることにより、多粒子系の流体および熱力学的条件で決定されるブラウン運動が抑制され、2) Ar^+ レーザー光の伝播方向への微粒子系全体にわたる一定速度運動が誘起されていることがわかる。

一方、照射レーザーのパワーとホモダイン検出時の相関時間の関係を示した Fig.4 から、粒径の大きな粒子ほどレーザー放射圧によるブラウン運動の抑制効果が顕著に現れていることが分かる。すなわち、動的光散乱法による微粒子分散系の拡散定数や微粒子粒径の測定においては、高々出力数十 mW のレーザー光による測定であっても、照明光波によるこれら放射圧の影響

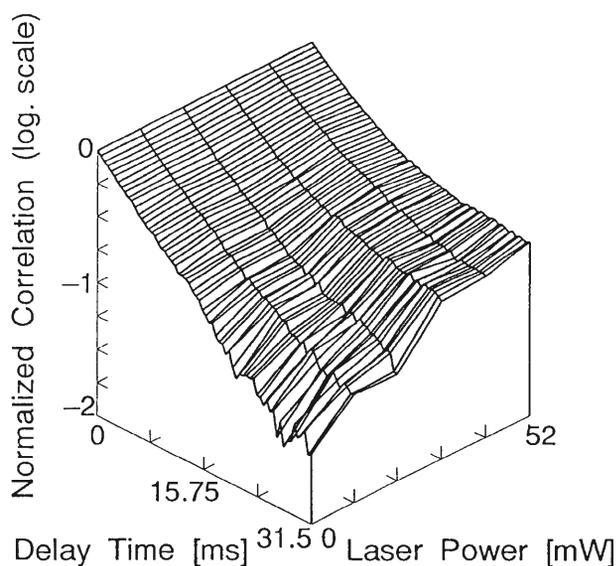


Figure 2 Evolution of normalized photon correlation functions of the light scattered by the particle suspension having the diameter of $2.062 \mu\text{m}$ for six different powers of the Ar^+ laser.

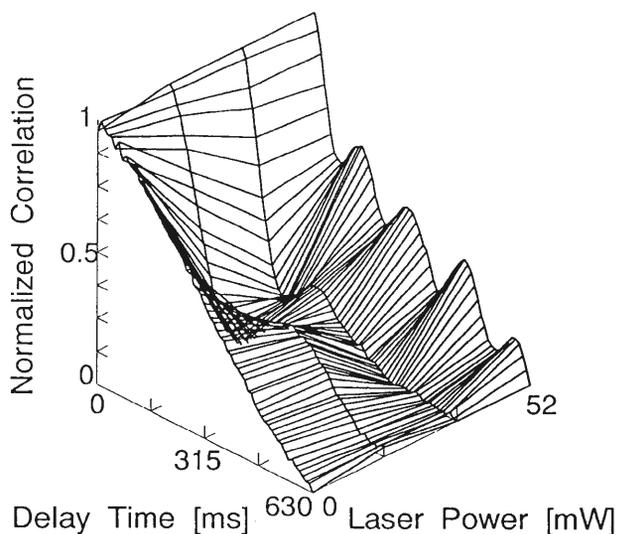


Figure 3 Evolution of normalized photon correlation functions of the light scattered by the particle suspension having the diameter of $2.062 \mu\text{m}$ for four different powers of the Ar^+ laser by the use of the optical configuration of photon correlation velocimetry.

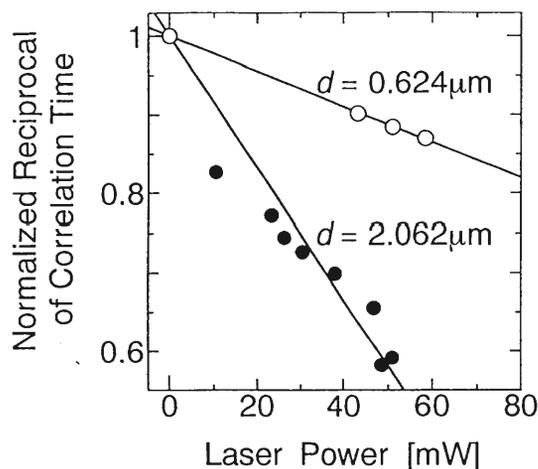


Figure 4 Dependence of the normalized reciprocal of the correlation time on the Ar^+ laser power: Symbols (●) for $2.062 \mu\text{m}$ and (○) for $0.624 \mu\text{m}$ in particle diameter, respectively.

響を考慮する必要があることを示している。

4. おわりに

動的光散乱法におけるレーザー放射圧の影響を、その粒径依存性に注目して実験的に解析した。その結果は、プローブとしてのレーザー光が測定対象の運動形

態を変えてしまうと言う意味で、本来この影響は望ましくないものであるが、一方でレーザーによる測定対象運動形態の積極的な外部制御に基づく能動的光散乱

微粒子計測法へと発展する可能性をも示唆するものである。

【参考文献】

- [1] B. J. Berne and R. Pecora, *Dynamic Light Scattering* (Wiley, New York, 1976).
- [2] K. S. Schmitz, *An Introduction to Dynamic Light Scattering by Macromolecules* (Academic, San Diego, 1990).
- [3] K. Sasaki, M. Koshioka, H. Misawa, N. Kitamura, and H. Masuhara, *Opt. Lett.* **16** 1463 (1991).
- [4] Y. Harada, T. Asakura, and K. Enomoto, *Proc. SPIE* **1983** 323 (1993).

視覚系における競合的情報処理機構 に関する研究

量子計測研究分野 小林 哲 生, 大和田 徹, 加藤 和 夫, 栗城 真 也

視覚系の競合的情報処理が時間的に如何に行われているかを解明することを目的とし、両眼視野闘争過程の心理物理実験、神経回路モデル解析並びに視野闘争時と融合時にみられる脳の自発リズムの空間的差異の解析を行った。神経回路モデルのシミュレーションにより、視野闘争過程の統計的性質の説明を試みるとともに、視野闘争時と視野融合時における α 波の頭皮上分布の空間的差異を明らかにした。

1. はじめに

脳の情報処理機能の中でも、視覚系の行う知覚、認知に関わる機能は疑いなく非常に重要なものである。ここで、人間のように左右両眼の視野に重複部がある動物では、両眼に加えられた視覚刺激による相互作用が脳内で生じ、その結果として両眼視に固有の知覚過程が起きる。本研究では、この両眼視の中でも特に時間特性が顕著に観測される両眼視野闘争過程（左右の眼に与えられる刺激の形や動き等が互いに極端に異なり1つに融合できない場合に各々の視覚刺激が交互に知覚される過程）に注目し、視覚系の競合的情報処理が時間的に如何に行われているかを解明することを目的としている。本稿では、これまで行ってきた心理物理実験、神経回路モデル解析並びに視野闘争時と融合時にみられる脳の自発リズムの空間的差異を中心に報告する。

2. 神経回路モデル解析

これまでに左右の優位期間の頻度分布が経験的にガンマ分布と一致するという事が知られている[1,2]が、現在のところ、その明確な理由は分かっていない。我々はこの統計的性質を説明するため、方位選択性を有する一群のNeural Element (NE) からなる3層の視野闘争モデルを提案し、解析を行ってきた[3]。モデルにおいて各NEには刺激強度に応じて繰り返し周波数の変化するインパルス列が入力され、興奮性、抑

制性の結合により各々指数関数的に減衰する興奮性シナプス後電位と抑制性シナプス後電位とが発生し、これらの時間加重がいき値を越えるか否かで競合する二つのNEのon, offの関係が決定され視野闘争が生ずる。ここで左右の眼からの刺激に対応する2つのインパルス列の周波数が一定でかつ位相が一致している場合、視野闘争は生じない。位相がずれている場合視野闘争は生じるが、実験で得られたようなガンマ分布とはならない。そこでインパルス列の繰り返し周波数にゆらぎを与えてゆくと、ゆらぎの種類に応じて優位期間の頻度分布に変化が現れる。 χ^2 検定によりガンマ分布との適合度を調べた結果、インパルス列の周期のパワースペクトルが白色の場合、最もガンマ分布と良く一致することが確認された。またシミュレーションの結果は、いずれも一方の眼からの刺激が減少するとその眼の平均優位期間、分散、優位度も減少し、逆に他の眼では増加するという傾向を示しており、実験結果と一致している。

3. 自発脳波リズムの解析

次に、視野闘争過程という心理現象と脳波との関連性に関する検討を行った。脳波測定部位は国際式10-20電極法に基づき頭皮全体をカバーする12ないし16カ所である。ここでは呈示図形として斜め45°方向に運動する格子を用いて計測・解析を行った結果について述べる。図1は、 α 波帯域での視野闘争時、視野融合時の閉眼安静時に対する α 波減衰率である。

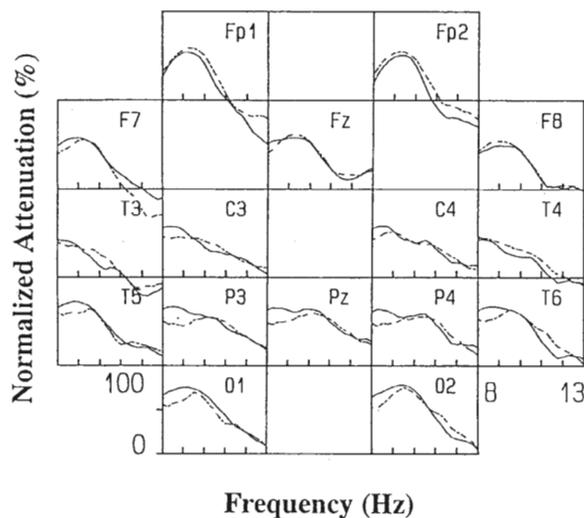


Fig.1 Alpha attenuations in the conditions of binocular rivalry (solid line) and binocular fusion (dotted line) at 16 electrode positions on the scalp. These are grand averages of five subjects.

ピーク周波数(8.75 Hz)付近で減衰率に差が見られる。この8.75 Hzにおける闘争時、融合時の減衰率の差を求めトポグラフ表示した結果を図2に示す。頭頂及び後頭付近で両者の差が大きくなっているのが分かる。この結果は、サルを用いた視野闘争実験でMT野、MST野のニューロンが、運動に関連した視野闘争過

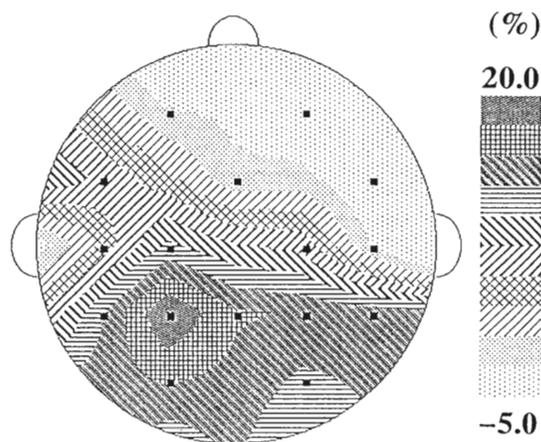


Fig.2 Topological map of the difference of alpha attenuations in binocular rivalry and fusion at the frequency of 8.75 Hz

程に関与しているとの報告[4]と位置的に符合すると思われる。これまでの線や幾何学図形を刺激として用いた実験結果[5,6]と本研究で得られた結果を比較すると、呈示図形の有する主たる性質の違いにより、 α 波の減衰率分布が異なる可能性が示唆される。更に、Ray等[7]、Toffol等[8]の報告にある様に大脳皮質活動と α 波減衰との間に正の相関があるとするなら頭皮上の α 波の減衰率分布が視覚系の階層性を反映していることが考えられる。

【参考文献】

- [1] R.Brake, Psycho. Rev., 96, 145 (1989)
- [2] R.Fox and F.Rache, Percep. & Psychophys., 5, 215 (1969)
- [3] T.Kobayashi, Frontiers of Med. and Biol. Eng., 4, 19 (1992)
- [4] N.K. Logothetis, J.D. Schall, Science, 245, 761 (1989)
- [5] T.Kobayashi, M.Morita, S.Kuriki, Proc.14th Ann. Int. Conf. of IEEE-EMB, 14, 2742 (1992)
- [6] T.Kobayashi, M.Morita, T.Owada and S.Kuriki, Applied Electromag. in Materi., in press.
- [7] W.J. Ray, H.W. Cole, Science, 228, 750 (1985)
- [8] B.De. Toffol, A.Autret, B.Gaymard and E. Degiovanni, Electroenceph. clin. Neurophysiol., 82, 423 (1992)

脳磁界計測用多チャンネル SQUID センサシステムの設計と試作

量子計測研究分野 平田 恵啓, 栗城 真也

量子計測研究分野では、これまでの SQUID デバイスの開発及び脳磁界計測で培ったノウハウをもとに、新たに脳磁界計測用の多チャンネル SQUID センサシステムの設計と試作を行っている。このシステムは、デバイス・グラジオメータ・エレクトロニクス・デュワー・ガントレー・シールドルーム等のハードウェア及びソフトウェアから成り立つ。本報ではそのハードウェアの概要について述べる。

1. はじめに

量子計測分野では、これまで超高感度の磁束センサである SQUID を用いたシングルチャンネルでの脳磁界計測を行ってきた。脳内部の活動領域を推定するためには、頭皮上の磁場分布を求める必要がある。シングルチャンネルの測定では一つの分布を得るのに数十回の測定を繰り返す必要があり、そのため一つの測定に数日を要すこともあった。近年、生体磁気計測用の多チャンネル SQUID システムが市販されており、わが国でもいくつかの大学病院で高度先進医療の適用が認められてきた。当研究室では、これまでに SQUID デバイスの研究および脳磁界計測で培ったノウハウをもとに、現在、新たに多チャンネル SQUID システムの設計と試作を行っている。本報告では、センサシステムのハードウェアの概要について述べる。

2. SQUID と駆動用エレクトロニクス

センサシステムの磁束分解能は、SQUID および駆動用エレクトロニクスのノイズレベルによって決定される。今回 SQUID センサに用いたデバイスは、ダブルワッシャー型、large β_L 、R-shunted SQUID で、その磁束ノイズは $5 \times 10^{-6} \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ 以下である。また、エレクトロニクスのプリアンプ部に低雑音の FET、OP アンプ等を用いた結果、後で述べるインサートに結合した状態でのノイズは $1 \text{ nV} / \sqrt{\text{Hz}}$ 以下であった。その結果、エレクトロニクスノイズを含む SQUID の磁束換

算ノイズは $1 \sim 2 \times 10^5 \Phi_0 / \sqrt{\text{Hz}}$ となった。これにグラジオメータを取り付けた場合の入力磁場換算ノイズは $5 \sim 10 \text{ fT} / \sqrt{\text{Hz}}$ であり、本システムは脳磁界を測るために十分な感度を有している。

3. デュワー

本システムに使用している SQUID は液体ヘリウムの中で動作するため、液体ヘリウムを保持するためのデュワーが必要になる。液体ヘリウムは潜熱がきわめて小さいので、蒸発量を抑えるためにデュワーの材質には熱伝導率の低い FRP を使用している。デュワーの先端はヒトの頭部に密着させることができるように 10.5 cm の曲率を与え、この曲面に対して同心円状に 19 個のグラジオメータを配置した(図 1)。このデュワーの容積を 30 l と決め、蒸発量の目標値を 3 l/日 以下として試作改善の結果、デュワー単体では 0.1 l/時 以下の特性が得られた。よって後で述べるインサートの導線の熱流入を加えても、一回の液体ヘリウムの補給で約 1 週間の測定が可能である。

4. グラジオメータ(GM)とインサート

頭皮上の磁束を SQUID へ導くためのピックアップコイルとして、本システムでは 2 次微分型の GM ($D = 18 \text{ mm}$, $BL = 30 \text{ mm}$, 2 ターン)を用いている。これにより地磁気などの一様な磁場と傾斜磁場を取り除き、勾配磁場のみを検出することが可能である。また GM の先端はデュワーの曲面に合わせて、傾斜角度が 0° ,

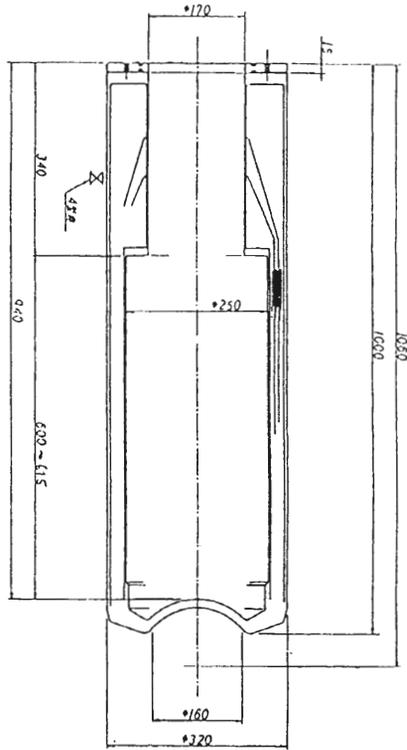


図1 液体ヘリウムと SQUID を収めるデュワー

15°, 30° の 3 種類を設計した。各々のチャンネルは 1 個の GM と 1 個の SQUID を 1 つのインサートに納めるようにした。そのため、19 個のセンサの内のいくつかに故障がみられた場合には、そのチャンネルのインサート毎交換すれば済むようになっている。本システムでは液体ヘリウムの蒸発量を極力抑えることを 1 つの目標として、銅に比べ熱伝導率の非常に小さなステンレススチール製の同軸ケーブルを採用し、1 チャンネルあたりのヘリウム蒸発量を 0.11/日以下とすることができた。このケーブルにエレクトロニクスを取り付け、ノイズを測定したが $1 \text{ nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ であり、ケーブル自体の熱雑音に関しても問題はなかった。

5. ガントレーと電磁シールドルーム

液体ヘリウム、インサートをおさめたデュワーの総重量はおよそ 50 kg にもなる。そのため従来使用して

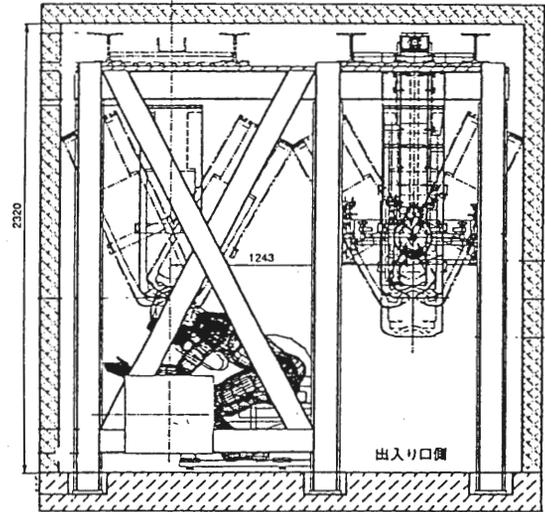


図2 電磁シールドルーム内のガントレーとデュワー

いた木製の架台では支えることができないので、新たにアルミ製のガントレーを設計した。このガントレーはヒトが実験に合わせて様々な姿勢をとっても頭部にデュワーの先端が密着するように、6 軸方向への駆動が可能となっている(図 2)(可動範囲: x 軸 = 1275 mm, y 軸 = 745 mm, z 軸 = 425 mm, 左右傾斜 = $\pm 35^\circ$, 前後傾斜 = $\pm 50^\circ$)。操作は手動とし空気圧制御のデュワー固定装置を取り付けた。測定時の環境雑音を低減するため、ガントレーを含むすべてのシステムは電磁シールドルーム(内寸: 2410(W) * 2410(D) * 2280(H)mm)に収められている。電磁シールドは 2 重のパーマロイと銅箔からなる簡易型であり、DC~100 Hz の磁束遮蔽率は 0.05~0.01 である。

6. おわりに

本報では、脳磁界計測システムを設計する際に、考慮しなければならない仕様と試作中の性能について述べた。本システムが実際に稼働するためには、19 チャンネル分の SQUID センサ出力を記録できるデータアキュイジションシステムが不可欠であり、今後ソフトウェアを含めたこの部分の仕様を設計することが必要である。

血管内膜表面上におけるリポ蛋白の濃縮現象 (水透過速度に及ぼす血清濃度及び流れの影響)

自律調節研究分野 内 貴 猛, 狩 野 猛

動脈硬化の発症に関与していると考えられる, 血管内膜表面上でのリポ蛋白の流速依存性濃縮現象に関して, 血管のモデルとして半透膜チューブを用いて実験を行った。その結果, 水透過速度は測定開始からの経過時間と共に低下するが, 血管の場合と同様に, リポ蛋白濃度が高いほど, また灌流流量が少いほど低い事がわかった。これらの結果から, 血管の水透過速度が流量に依存して変化する現象は単なる物理的現象であり, 血管内膜表面上におけるリポ蛋白の濃縮現象によるものである事が明らかになった。

はじめに

動脈硬化症 (アテローム性動脈硬化症) は, コレステロールが血管内膜中に蓄積し, マクロファージの侵入や, 平滑筋細胞の増殖等が起こり, 血管内面が粥状に盛り上がり起こる血管病である。この病変には, 大きな動脈でしか起こらず, 小さい動脈や静脈では起こらないという特徴がある。更に, 血流が乱れる様な動脈分岐部や弯曲部に起こりやすいと言う性質を示すため, 血流が何らかの形で発症に関与しているのではないかと考えられて来た。多くの研究の結果, 現在では血管壁近傍の流れが遅い所 (低壁せん断応力部) で動脈硬化が発生することがわかってきた[1,2]。

コレステロールは血液中ではリポ蛋白に含まれて輸送されるため, 血管壁へのその浸透量を決めているのは血圧と血管内膜表面上でのリポ蛋白濃度, 水透過速度である。何らかの原因で, リポ蛋白の浸透量が多くなると, 栄養の供給過剰となり, 平滑筋細胞の増殖を促し, あるいは内弾性板の内側に貯まるコレステロールの量が増えることになり, 動脈硬化へ発展していくと考えられる。

我々は血管内膜表面上でのリポ蛋白濃度に着目し, 血管が分子の大きいものほど通しにくいという, 半透膜のような性質を示すことから, 血管内膜表面のごく近傍ではリポ蛋白を含む巨大分子の濃度が高くなっているのではないかと考えた。そしてこの現象は血流速

度と拡散速度とのバランスから, 近傍の血流速度が遅いほど濃度が高くなり, その結果, 血管壁へのリポ蛋白の浸透量が多くなると考えた。このリポ蛋白の濃縮現象によって, 動脈硬化以外にも血管内に起こる様々な血管病の発生のメカニズムを説明することが出来る。

リポ蛋白の濃縮現象は非常に重要な現象であるが, その現象が実際に血管内で起こっているかどうかはまだわかっていない。当研究室では, いろいろな方法を用いて, この仮説を実証するための研究を行っている。[これまでの研究] Deng と狩野[3]は, 血管を水透過速度が一定な半透膜と仮定し, リポ蛋白を含む液を3段階の流量で流し, リポ蛋白濃度が半径方向にどの様に変化しているのかを数値計算により調べた。その結果, 血管壁のごく近傍でリポ蛋白の濃度が上昇していること, 濃度の上昇割合は流速が遅いほど大きくなっていることがわかった。次に, 犬の総頸動脈と大腿静脈の水透過速度を測定し, 灌流液中のリポ蛋白濃度の増加にともなって水透過速度が低下することを明らかにした。灌流液中のリポ蛋白濃度の増加に伴って血管内膜表面上のリポ蛋白濃度も同時に増加しているので, この結果から, 血管壁面上のリポ蛋白の濃度の増加に伴って水透過速度が減少する事がわかった。また, 灌流液の流量と水透過速度との関係を調べた結果, 動脈・静脈とも灌流液流量の増加にともない, 水透過速度が上昇することがわかった。これらの結果から, 血

管内膜表面上におけるリポ蛋白の流速依存性濃縮現象の存在が間接的に証明された。

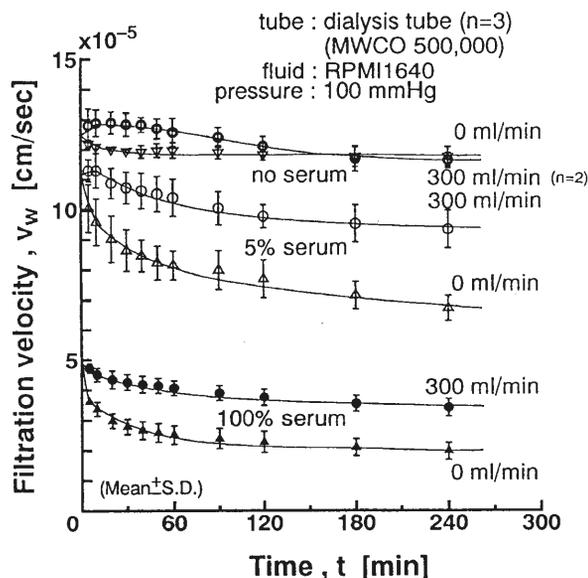
〔半透膜による研究〕 本研究では、上述の血管で見られたリポ蛋白存在下での流速に依存した水透過速度の変化が単なる物理的現象であるのか、あるいは血管内皮細胞特有の生化学反応を伴う現象であるのかを調べた。これを解明するため、血管のモデルとして半透膜チューブを用い、血管の場合と同様の実験を行い、水透過速度に及ぼす血清濃度及び流れの影響について検討した。

方法

水透過速度測定用のアクリル製密閉容器内に外径7.5 mmの透析用半透膜チューブ (Spectra/por CE, MWCO 500,000) を装着し、その内部に牛胎児血清及びそれを含む細胞培養液 (RPMI 1640) を一定圧力の下で十分に発達した層流状態にして流した。実験は25°Cで行った。密閉容器に取り付けたメスピペット内の液面の上昇速度から透過流量を求め、それを半透膜チューブの表面積で除して水透過速度を求めた。

結果

半透膜チューブの水透過速度は生体血管の場合と同様に、灌流圧の増大と共に直線的に増加する事がわかった。また、図からも明らかなように、灌流圧一定の条件下では水透過速度は時間的な変化を示し、時間の経過と共に低下した。更に水透過速度は、灌流液中の血清濃度 (リポ蛋白濃度) が高いほど低く、灌流流量が大きいほど減衰が少ないことがわかった。また、流れがない状態での測定後 (4時間後)、流れを加えると水透過速度は流れのある時の値近くまで上昇した。これらの結果より、半透膜においても生体血管同様に、水透過速度は灌流液の流量変化に追従して可逆的に変化することがわかった。この実験から、血管の水透過



水透過速度に及ぼす血清濃度と流量の影響

速度が流量に依存して変化する現象は単なる物理的現象であり、血管内膜表面上におけるリポ蛋白の濃縮現象によるものである事が明らかになった。

おわりに

以上の研究から、血管内膜表面上においてリポ蛋白の濃縮現象が起こっており、壁近傍の流れが遅い所ほどリポ蛋白の濃度が高く、血管壁への浸透量が增大し、動脈硬化の発症を促すことが強く示唆された。現在、この現象を直接観察する方法として、リポ蛋白を蛍光物質でラベリングし、蛍光顕微鏡下で蛍光強度を測定する事により、管壁近傍のリポ蛋白の濃度分布を測定することを考えている。また、当研究室ではこのリポ蛋白の濃縮現象を別な角度から検証する事を目的として、生体血管に近い水透過性を有する生体由来の人工血管の移植実験や、高分子物質の定期的な静脈注射による動脈硬化の抑制機序の解明も行っている。

【参考文献】

- [1] Zarins CK, Giddens DP, Bharadvaj BK, Sottiurai VS, Mabon RF, Glagov S, Circulation Research, 53, 502 (1983).
- [2] Asakura T and Karino T, Circulation Research, 66, 1045 (1990).
- [3] Deng X, Ph.D. Thesis, McGill University, Montreal, (1991).

膝前十字靭帯組織修復の バイオメカニクス

自律調節研究分野 大山直樹, 山越憲一, 山田康晴, 磯田由美
内山英一, 黒沢秀樹

ヒトの膝前十字靭帯(以下, ACL)の自己修復能については現在のところ不明な点が多い。そこで, われわれは日本白色系家兎後肢の ACL に対して, 2 種類の部分断裂例を作製し, 2, 4, 12 週と経時的に力学的及び組織学的特性について検討した。今回の研究から, ACL の部分断裂において, 外側の線維は内側の線維に比べて伸びやすいため, 経時的に断面積を増加させ, その力学的特性を保とうと組織修復を行っていると考えられた。この相違は内外側にかかる力学的負荷が関与していることが示唆された。

目的

通常, ヒト膝前十字靭帯(ACL)が一旦損傷すると, ACL は吸収, 消失すると言われているが, 現在でも十分な確証は得られていない。そこで, 我々は日本白色系家兎後肢の ACL に対して, 2 種類の部分断裂例を作製し, 2, 4, 12 週飼育後にその力学的及び組織学的特性について検討した。

対象と方法

対象は体重 2.9 ± 0.23 kg の成熟日本白色系家兎 58 羽である。作製モデルは, 強度試験として, 内側群: ACL 中央外側 1/2 を切離した群 ($n = 25$), 外側群: ACL 中央内側 1/2 を切離した群 ($n = 21$) とし, 対照は切離膝の反対側とした。引張試験システムは, まずレーザー変位計を用いて ACL の断面積を測定し, 次に, CCD camera を用いた試作 dimensional analyzer により歪みを, load cell により張力を同時に計測でき, 応力-歪線図が計算されるものである。術後経時的に ACL の面積比(切離側/対照側), 応力-歪線図から高応力領域の弾性係数(E_c) (主にコラーゲン線維の弾性特性), 破断強度(σ_p) を求め (Fig.1), 更に切離部の組織学的所見も 2, 4, 12 週と各 2 羽ずつ経時的に検討した。

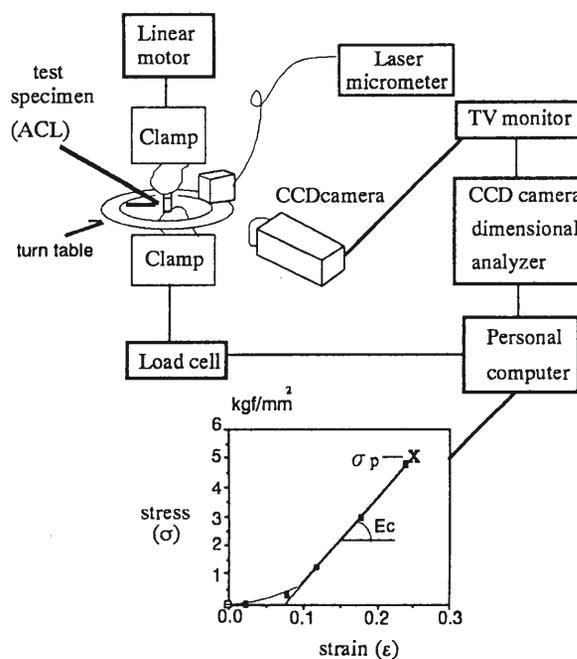


Fig.1 Experimental set-up for the measurement of mechanical properties of anterior cruciate ligament (ACL)

結果及び考察

Fig.2 に示される様に, 両群とも切離側は対照側に比べてどの時期でも ACL の面積は大きかった。内側群では, 術後 2 週に比べて 12 週の方が有意に ($p < 0.05$) 減少し, 外側群では, 術後 2 週に比べて 12 週において有意に ($p < 0.05$) 面積が増加していた。また,

Ratio of area

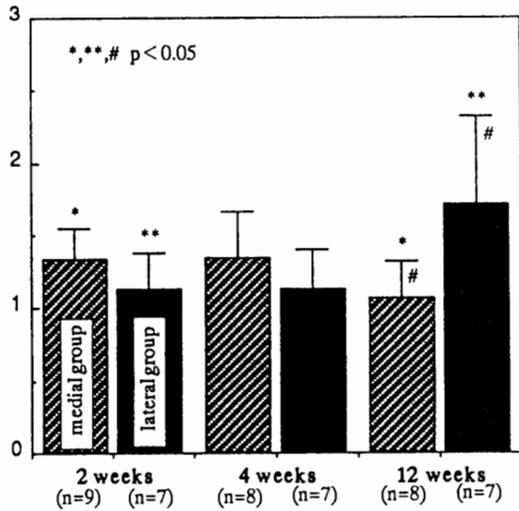


Fig. 2 Ratio of area of the desected to the control side vs. postoperative period

kgf/mm²

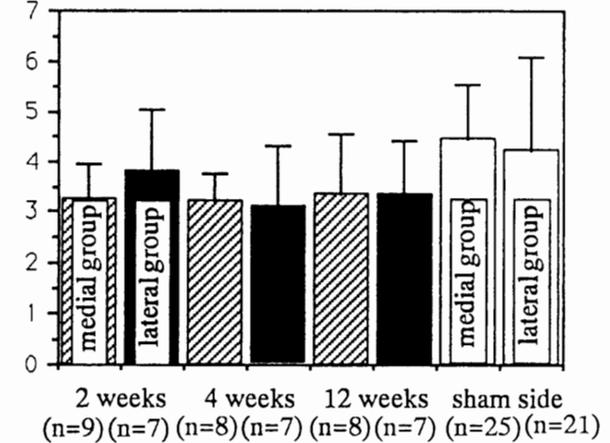


Fig. 4 Tensile strength (σ_p) of the medial and lateral group vs. postoperative period. The σ_p values in each group of the sham side are shown in the right end of this graph.

kgf/mm²

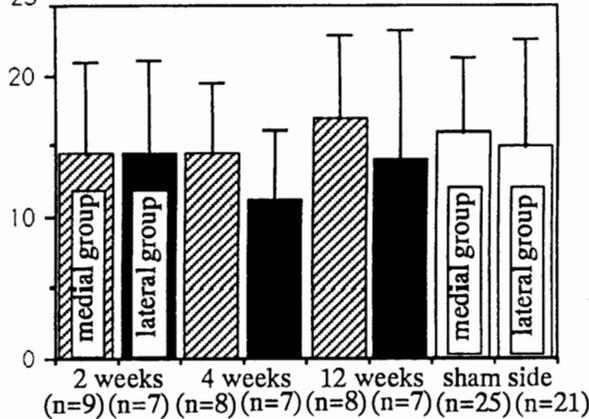


Fig. 3 Elastic modulus (E_c) of the medial and lateral group vs. postoperative period. The E_c values in each group of the control (sham side) are indicated in the right end of this graph

術後 12 週において、外側群の面積は内側群のそれより

も有意に ($p < 0.05$) 増加していた。

一方、弾性係数の経時的变化では、内側群は術後 2 週と比べて 12 週では増加する傾向が見られるのに対して、外側群ではやや低下する傾向があった (Fig. 3)。破断強度については両群とも切離側は対照側に比べて低下するも有意差は認められず、両群間でも有意差は認められなかった (Fig. 4)。切離部の組織学的所見は、術後 2、4 週では両群とも明らかな癒痕組織は認められず、術後 12 週ではやや癒痕組織が認められ、内側群よりも外側群において膠原線維の蛇行及び細片化が強く認められた。

結論

今回の実験から、ACL の部分断裂において、外側の線維は内側の線維に比べて伸びやすいため、経時的に断面積を増加させ、その力学的特性を保とうと組織修復を行っていると考えられる。

【参考文献】

- [1] Amiel, D. et al.: The Phenomenon of "Ligamentization": Anterior Cruciate Ligament Reconstruction with Autogenous Patellar Tendon. *J Orthop Res* 4: 162-172, 1986.
- [2] Arnoczky, S.P.: Microvasculature of the Cruciate Ligaments and Its Response to Injury. *J Bone and Joint Surg* 61-A: 1221-1229, 1979.
- [3] Hefti, F.L. et al.: Healing of the Transacted Anterior Cruciate Ligament in the Rabbit. *J Bone and Joint Surg* 73-A: 373-383, 1991.
- [4] Woo, S.L.-Y. et al.: A Comparative Evaluation of the Mechanical Properties of the Rabbit Medial Collateral and Anterior Cruciate Ligament. *J Biomechanics* 25: 377-386, 1992.

Riccati 方程式と行列のノルム不等式

情報数理研究分野 中村美浩

行列のユニタリ不変ノルムについて知られている Bhatia-Davis の不等式を、代数的 Riccati 方程式の解の表示式を利用した新しい方法で証明する。これによって、一般の von Neumann 環の場合にも Bhatia-Davis の不等式が成立することがわかる。さらに、これと関連した行列の写像のノルムの上と下からの評価を行う。

1. はじめに

線形あるいは非線形システムの安定性を問題にするとき、行列のある種のノルム不等式によってそれを保証したり評価したりすることがしばしばある。もちろん固有値の分布全体の挙動が重要な場合もあるが、ここでは計量としてユニタリ不変ノルム、すなわち行列の絶対値の固有値（特異値）にだけ依存するノルムを考える。たとえば、 n 次行列 A に対してその絶対値の固有値を $s_1(A) \geq s_2(A) \geq \dots \geq s_n(A)$ のように大きい順に並べたとき、絶対値の最大固有値 $\|A\|_\infty = s_1(A)$ や絶対値の固有値の総和 $\|A\|_1 = \sum_{i=1}^n s_i(A)$ などがユニタリ不変ノルムの典型的な例である。また、ノルム不等式の簡単な基本的な例は、 $\|A+B\| \leq \|A\| + \|B\|$ (このノルムが計量・距離であることを示す) と $\|AB\| \leq \|A\| \|B\|$ である。

2. 問題

2つの n 次行列 A, B に対して次のような特異値の関係が知られている ([1]):

$$2s_i(A^*B) \leq s_i(AA^* + BB^*), \quad i = 1, 2, \dots, n.$$

これから、どんなユニタリ不変ノルム $\|\cdot\|$ についても

$$2\|A^*B\| \leq \|AA^* + BB^*\|$$

が成り立つことがわかる。このノルム不等式をもう少し拡張したものとして次も知られている ([2]):

$$2\|A^*CB\| \leq \|AA^*C + CBB^*\|. \quad (*)$$

この不等式はよく知られた Golden-Thompson の不等式 ([3, 4]) の部分的な精密化にも当たっていることも注意して置きたい。発見者の証明は行列の固有値の特

質をうまく用いたものであるが、もっと広い設定（具体的には一般のフォン・ノイマン環）でもこういった不等式は成り立つはずだとの信念のもとに、ここではこの不等式の持つ意味をもう少し掘り下げて調べる。さらに、この不等式に関連した行列の写像 $X \mapsto SXS^{-1} + S^{-1}XS$ (S は固定された可逆な行列) についても考察する。

3. 考察

まずはじめに、式 (*) は A, B が非負のときに成り立てば一般に成り立つことに注意する。さらに、よく使われるテクニックによって $A = B$ の場合に帰着されることもわかる。すなわち問題とすべき不等式は、 $A \geq 0$ のときすべての C に対して

$$2\|ACA\| \geq \|A^2C + CA^2\| \quad (**)$$

というものである。

次に、式 (**) の意味するところは行列の対応 $\Psi: A^2C + CA^2 \mapsto 2ACA$ が縮小的であるという点が重要な観察になる。この対応は、実際明確に式で書き表すことができる:

$$ACA = \int_0^\infty e^{-tA^2} A(A^2C + CA^2) A e^{-tA^2} dt. \quad (\#)$$

この等式から直ちに2つのことが導かれる。すなわち、ベクトルを関数に対応させる写像 $\xi \mapsto \sqrt{2} A e^{-tA^2} \xi$ がユニタリであることが第一。これは、仮想的に $C = A^{-2}$ と置いて得られる。第二に、 $2ACA$ は $A^2C + CA^2$ のコピーの直和の一部と見做せるということである。したがってこれらから、不等式 (**) は自明の帰結となる。

さて、行列の写像 Ψ を逆向きに $\Phi: 2AC A \mapsto A^2C + CA^2$ と見ると、これは A が可逆のときには $\Phi(X) = (AXA^{-1} + A^{-1}XA)/2$ である。したがって、式 (#) は方程式 $\Phi(X) = A^2C + CA^2$ の解を書き表しているとも見ることが出来る。与えられたデータ D に対して方程式 $\Phi(X) = D$ を解くことは、Riccati の行列微分方程式に関連した代数的 Riccati 方程式の特別な場合を扱うことに相当する。この観点から、可逆な S に対する写像 $\Phi: X \mapsto SXS^{-1} + S^{-1}XS$ に関してのノルム不等式も得られる： S^2 のスペクトルが右半平面に入るならば、

$$\|SXS^{-1} + S^{-1}XS\| \geq K \|X\|.$$

ここで、定数 K は方程式 $SZS^{*-1} + S^{-1}ZS^* = I$ の解

Z_2 と $S^*ZS^{-1} + S^{*-1}ZS = I$ の解 Z_2 から $K^{-2} = \|Z_1\|_\infty \|Z_2\|_\infty$ で定まり、 S がエルミートの場合には $K = 2$ である ([5])。

4. 補足

$X \mapsto AX - XB$ の形の写像については上からのノルムの評価が既に知られている。 $\phi(X) = S^{-1}(S^2X + XS^2)S^{-1}$ と見ることによって ϕ のノルムの上からの評価も得られるが、これはあまり精密ではない。若干の考察により、 S がエルミートの場合には最良であるようなもう少し精密な評価を得ることが出来る。

【参考文献】

- [1] R. Bhatia and F. Kittaneh: SIMAX 11, 272 (1990)
- [2] R. Bhatia and C. Davis: SIMAX 14, 132 (1993)
- [3] S. Golden: Phys. Rev. 137B, 1127 (1965)

- [4] C.J. Thompson: J. Math. Phys. 6, 1812 (1965)

- [5] G. Corach, H. Porta and L. Recht: LAA 142, 153 (1990)

昆虫の場所記憶

神経情報研究分野 水 波 誠, Weibrecht J.M.*, Strausfeld N.J.*

*University of Arizona

多くの昆虫は場所を記憶する能力を持つが、昆虫の脳のどの領域が場所の記憶に関与するのかは未解明であった。私たちは、ゴキブリを材料とし、微小金属片の埋め込みによる脳の局所破壊と新しく考案した場所学習実験のパラダイムを用いて場所記憶に障害が起こる脳領域を検索した結果、脳の高次中枢の一つであるキノコ体を両側性に破壊すると場所学習が出来なくなることが明らかになった。種々の対照実験の結果と併せて、キノコ体が場所記憶に関与すると結論づけられた。

ハチやアリなどの多くの昆虫が餌場や巣の周囲の景色を記憶する能力を持つことは古くから知られており、ことにジガバチの場所記憶についてのティンバーゲンの観察は有名である⁽¹⁾。しかし、昆虫の脳のどの領域が場所記憶に関与しているかは従来不明であった。そこで、私たちは、昆虫の脳の様々な領域を手術により破壊し、場所の学習に異常が起こる領域の探索を行った⁽²⁾。材料にはワモンゴキブリを用いた。

ワモンゴキブリは円形の広場の中央に置かれた。広場の床は約50度の高温であるが、熱くない小部分(ゴール)がある。ゴールは床の他の部分と視覚的には区別出来ない。広場のまわりの壁には視覚的なパターン(模様)を配した。壁の模様と床のゴールの配置は訓練中一定に保ち、模様とゴールとの位置関係を記憶すればゴールに到達できるようにした。床には薄いプラスチックのシートを敷いて頻繁に交換または回転させ、床の匂いなどの手がかりは使えないようにした。この試行を5分間隔で繰り返すと、3-5回の訓練でゴキブリは有意に短い時間でゴールに到達できるようになった。対照実験として、学習成立後、壁を回転させて壁の模様とゴールとの位置関係を変えてしまうと、ゴキブリは誤った方向に向かってしまい、ゴール到達に要する時間が有意に長くなった。壁に手がかりがなければ、試行を繰り返してもゴール到達時間はほとんど減少しなかった。これらの結果から、ゴキブリはゴールのまわりの景色を記憶する能力があると結論

づけられた。

次に微小手術により、脳のどの領域が場所記憶に関与しているかの検討を行った。この種の実験では、脳手術によって記憶に障害が起こったのか、それとも視覚機能や運動機能に障害が起こったのかを区別する対照実験が必要である。対照実験ではゴールに紙を置き、ゴールが直接見えるようにした。ゴキブリはゴールを直接見てそこへ到達することが要求される。脳手術をしたゴキブリが対照実験では正常ゴキブリと同様な速さでゴールに到達できる場合、ゴール到達に必要な視覚や運動の機能は正常であるとみなした。そして、そのゴキブリがゴールが見えず壁の模様を手がかりにゴールを発見することが要求される場所記憶実験ではゴール到達に要する時間が正常ゴキブリよりも有意に長かった場合、そのゴキブリは場所の記憶に障害があると判定した。ゴキブリは高温に長期間さらされると次第に弱ってくるので、以後の実験ではできるだけ早く学習が成立するよう、ゴキブリは訓練を始める前にゴールに置かれ、床に常温の領域があること、またゴールからどのような景色が見えるかを覚える機会が与えられた。

脳の局所破壊は幅0.15-0.17 mm、長さ0.35-0.4 mmの微小なアルミニウムの薄片を脳の目標とする場所に慢性的に埋め込むことによって行った。行動実験の終了後、脳の組織切片を作り、どの領域の神経繊維がアルミ片により切断されているかを顕微鏡観察

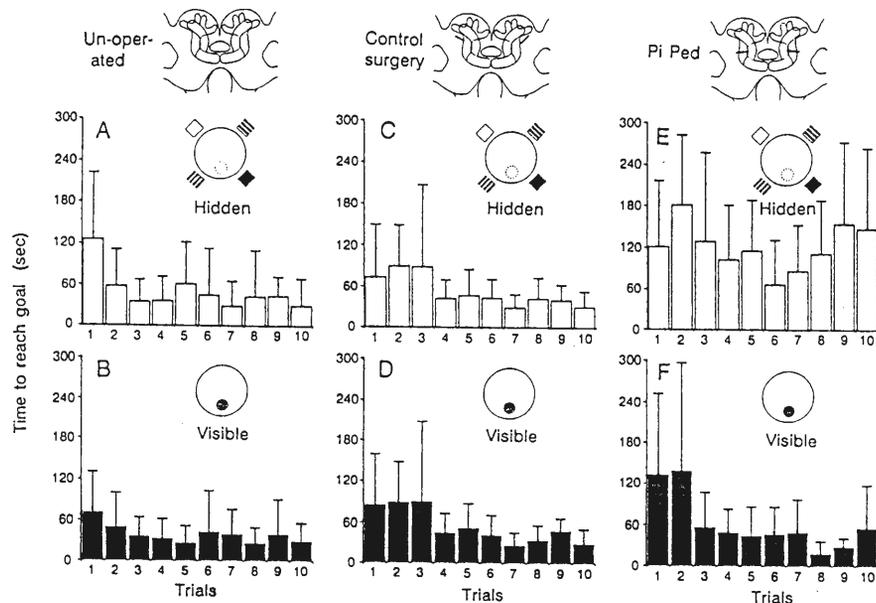


図1 キノコ体破壊手術の場所学習への影響。無手術のゴキブリ(A, B), 対照手術としてキノコ体付近の脳表面に傷をつけたゴキブリ(C, D), 両側のキノコ体を切断したゴキブリ(E, F)での, 対照実験(ゴールが直接見える場合)と場所記憶実験(ゴールが見えない場合)でのゴール到達時間。試行は5分間隔で10回繰り返した。10匹(A, B), 9匹(C, D), 9匹(E, F)のゴキブリでの実験結果を平均値と標準偏差で表わした。

によって確認した。

多くの手術と行動実験の結果, 脳のキノコ体と呼ばれる領域⁽³⁾を左右とも切断すると場所の記憶に障害が起こることが明らかになった。図1では正常なゴキブリ, 対照手術としてキノコ体付近の脳表面に傷をつけたゴキブリ, 両側のキノコ体を破壊したゴキブリでの実験結果を比較した。ゴールが直接見える対照実験では, 最初の2-3回の試行では手術をしたゴキブリのゴール到達時間は正常なゴキブリよりも長く, 手術の影響が多少出ているようであった。しかし, 学習が飽和に近づく4回目以降では, 手術をしたゴキブリのゴール到達時間は正常なゴキブリとほとんど変わらな

かった。一方, 壁の模様と床のゴールとの位置関係を覚える場所学習実験では, 両側のキノコ体を破壊したゴキブリでは繰り返し訓練をしてもゴールへの到達時間はほとんど減少しなかった。対照手術をしたゴキブリのゴール到達時間は正常ゴキブリと変わらなかった。これらの結果から, キノコ体は場所の記憶に関与すると結論づけられた。

このような場所記憶がどのような神経機構に基づいてなされるのか極めて興味深い。今後, さらに電気生理学的な手法を用いてキノコ体による場所記憶のメカニズムを探っていきたい。

【参考文献】

- [1] 本能の研究。ニコラス・ティンバーゲン著, 永野為武訳。三共出版。(1975)
- [2] Mizunami M., Weibrecht J. M. and Strausfeld N. J. A new role for the insect mushroom bodies. In: Biological neural networks in invertebrate neuroethology and robotics(Beer R.D.他編)Academic Press. pp.199-225 (1993)
- [3] Atlas of an insect brain. Strausfeld, N.J.著。Springer社 (1976)

音声生成系の数値シミュレーションに関する研究

信号処理研究分野 広 奥 暢, 松 崎 博 季, 三 木 信 弘, 永 井 信 夫

人間の音声生成系の詳細な研究により、音声生成機構を解明し、より高品質の合成音声を得ることは、機械と人間のより円滑な対話に寄与すると期待される。実際の音声生成機構について知るには直接観測するのが望ましいが、発声状態で人体内部の計測を行なうのは不可能ではないが困難である。有限要素法によるシミュレーションはこのような場合に有効な解析手段である。本稿では、声道の内部の音圧分布と、声帯の振動についての有限要素法による解析の研究について報告する。

1 はじめに

デジタル音声処理手法の確立により機械による音声の合成や認識などが可能となった。今日では、計算機の性能の向上により、これらは、小規模な個人向け計算機上でも可能となっている。しかし、これらの技術は実用の域に達しているとはいえ、解決すべき課題を抱えている。例えば音声合成においては、その合成された音声の明瞭度、了解度は満足できるものであるが、その自然性については課題を残している。これらの課題を解決しより高度な技術を構築することにより、機械と人間のより円滑な対話といった成果が期待される。従って、音声処理の分野においては、これらの技術についても、今日まで基礎的な研究が継続的に行われている。

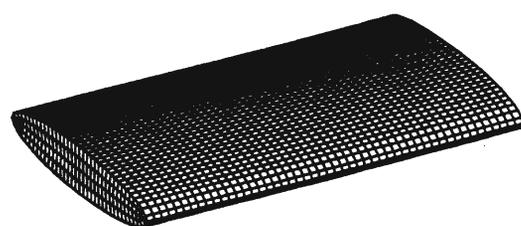
音声処理の分野における課題の一つとして、人間の音声生成機構の解明があげられる[1]。この音声生成機構を解明する研究の成果は、前述の合成音声の自然性の向上に寄与するものと考えられる。さらに、音声の個性を生ずる仕組みを解明するための重要な示唆を与えるものと期待される。従来、音声生成機構を解明するために、カメラなどにより発声の状態を観測する研究が行なわれている。しかし、音声の生成は主に人体の内部で行なわれるために、直接観測することは困難を伴う。計算機を用いて現象を支配する方程式の解を求め、その現象を計算機上で模擬する数値シミュ

レーションは、このような観測に困難を伴う場合には、有力な方法の一つである。

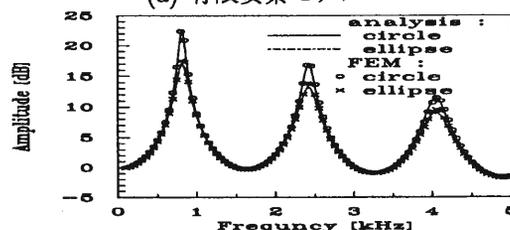
本稿では、数値計算法の中でも特に有限要素法(FEM)を用いて、調音器官である声道の伝達特性と、音源を成す声帯振動の解析の試みについて報告する。

2 声道の伝達特性の3次元有限要素解析[2]

近似的解法の一つであるFEMを用いて、声道内の音響特性の解析を試みた。声道部の単純化されたモデルとして音響管を用いて、形状が与える影響を調べる



(a) 有限要素モデル



(b) 声道伝達特性

図1 有限要素モデルおよび声道伝達特性

ため、管の断面形状を円(circle)から楕円(ellipse 図1(a)参照)へ変化させたとき、さらに、壁インピーダンスの影響を調べるため、壁インピーダンスの分布状態を変えたときの音響特性を解析した結果を報告する。人間の口腔内部を考慮して管の上半面を剛壁とし、下半面に舌にあたるインピーダンスを入れたときの声道伝達特性を一次元的に得られる解析解と比較した結果を図1(b)に示す。断面が円るとき本手法と解析解はよく一致しているが、楕円のときスペクトルのピーク(ホルマント)付近で若干の差が見られる。円から楕円へ断面が潰れるに従って、また、ここには示されていないが、壁がやわらかさを増すに従ってホルマント帯域幅が増加することがわかった。

3 声帯振動の有限要素シミュレーション[3]

図2(a)に示す声帯を模擬した形状に対して解析を行う。ある時刻から x 方向に力 f を加える。境界条件(B.C.)は、 $y = 0$ となる $z-x$ 面での変位を 0 とし、 $x-y$ 面に平行な面について固定する条件を考える。この場合、2次元のモデルでは表現できない問題となる。解析は、力 f が加えられた時刻を 0 秒として、0.015 秒まで行なう。図2(b)は、初期状態と x 方向に最大変位が得られた時刻の変形の様子を示している。

4 むすび

従来、音声の分野では音波や声帯の振動といった現象を1次元や2次元で近似してきた。この際に自然性などの情報が欠落するものと考えられる。3次元解析によって、音声の自然性や個人性の音声生成過程における要因として考えられる声道形状、壁インピーダンス等の影響を調べる必要がある。本稿で紹介した研究

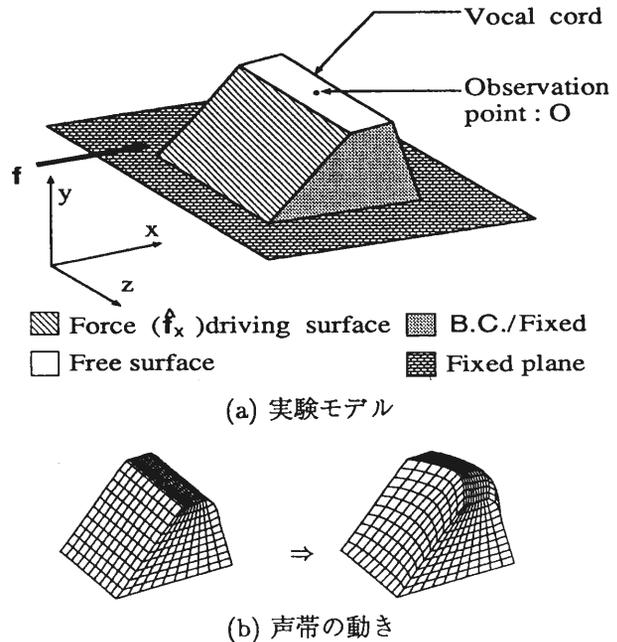


図2 声帯振動のシミュレーション

で用いた数値シミュレーションという手段は、その現象を引き起こす各要因の影響を分離して解析することが可能である。例えば、2章の実験からは、声道の断面形状による影響、壁インピーダンスの分布の影響をそれぞれ別個に解析できる。このような特徴は自然性や個人性の要因を特定する際に有効であると考えられる。ただし、数値シミュレーションによる現象の再現は、計算誤差を必ず含んでいるので定量的な議論には注意が必要である。しかしながら、同じ現象をさまざまな視点から観察することのできる数値シミュレーション技術の長所は、定性的な議論であるにしても音声の自然性や個人性の要因を特定する研究において新たな知見をもたらすものと期待される。

【参考文献】

- [1] 三木：“音声生成過程の音響理論の最近の進歩”，日本音響学会論文誌，48，1，pp.69-73 (1992).
- [2] 松崎，広奥，三木，永井：“不均一壁インピーダンスを持つ音響官の3次元FEM解析”，日本音響学会講演論文集，1，pp.279-280 (1993).
- [3] 広奥，三木，永井：“有限要素法による3次元声帯振動解析についての考察”，信学会秋季大会講演論文集，1，p.134 (1993).

盲人の障害物知覚機構の解析

感覚情報研究分野・北海道高等盲学校* 関 喜一, 梶井 健
伊福部 達, 田中良広*

近距離に存在する障害物に対する盲人の障害物知覚の要因を調べるために、障害物の存在によって起こる音場の変化を近似的に再現する実験装置を用いて心理実験を行った。その結果、障害物の存在による音場の変化が障害物知覚の要因となることをあらためて確認し、また反射音の遅れ時間が障害物の距離感の要因の一つであることが分かった。

1. はじめに

盲人の多くは、豊富な聴覚的経験から、音響の手がかりにより、周囲の障害物の存在を認識できる。この経験的能力は「障害物知覚」と呼ばれている。我々は、いわば自然の感覚代行能力ともいえる障害物知覚を、視覚障害者のリハビリテーション、及び歩行補助方法として更に積極的に活用することを検討している。と

ころが、障害物知覚の要因については、音響的变化が手がかりであるということが過去の研究[1]で知られている以外、詳細は不明な点が多い。そこで我々は現在までに、障害物知覚のメカニズムの解明に着手してきた。

本報告では、障害物が近距離(約1m以内)に存在する場合の障害物知覚の要因を調べる研究の1例を紹介する。

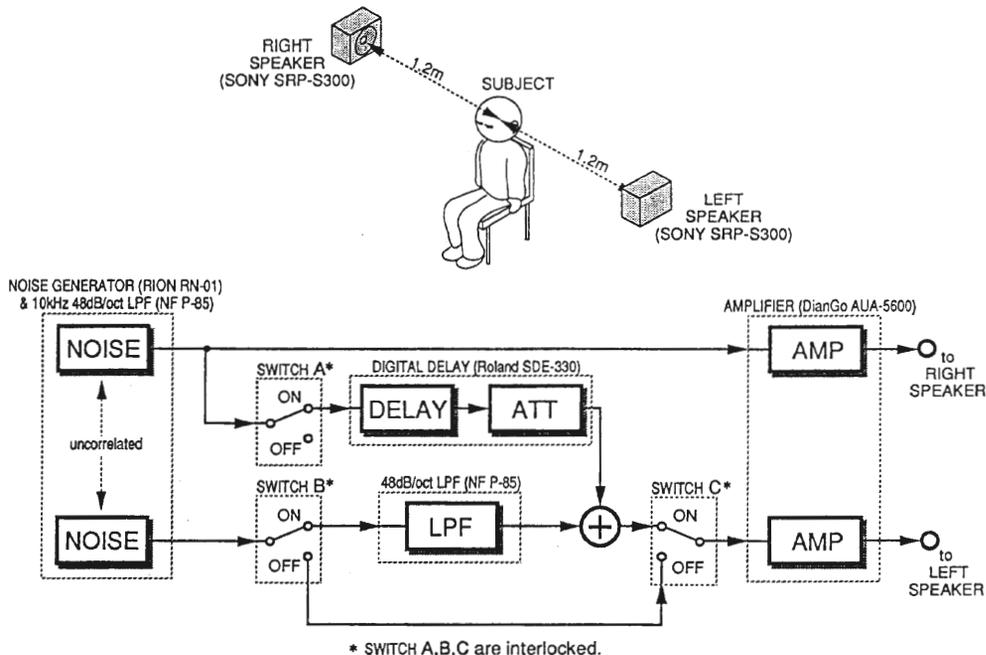


Fig.1 実験装置

2. 音場の変化と障害物知覚の関係

近距離に障害物が存在する場合の印象を盲人に質問すると、「(障害物の) 気配がする」「圧迫感を感じる」等、聴覚とは関係のない回答が返ってくるのが一般的

である。この印象から、「障害物知覚は皮膚感覚によって起こる」という説が過去に存在していた[1]。しかし耳を塞ぐとこの印象は消えてしまうことから、障害物知覚は聴覚による音響心理現象であり、障害物の存在によって起こる音場の変化が障害物知覚の物理的要因

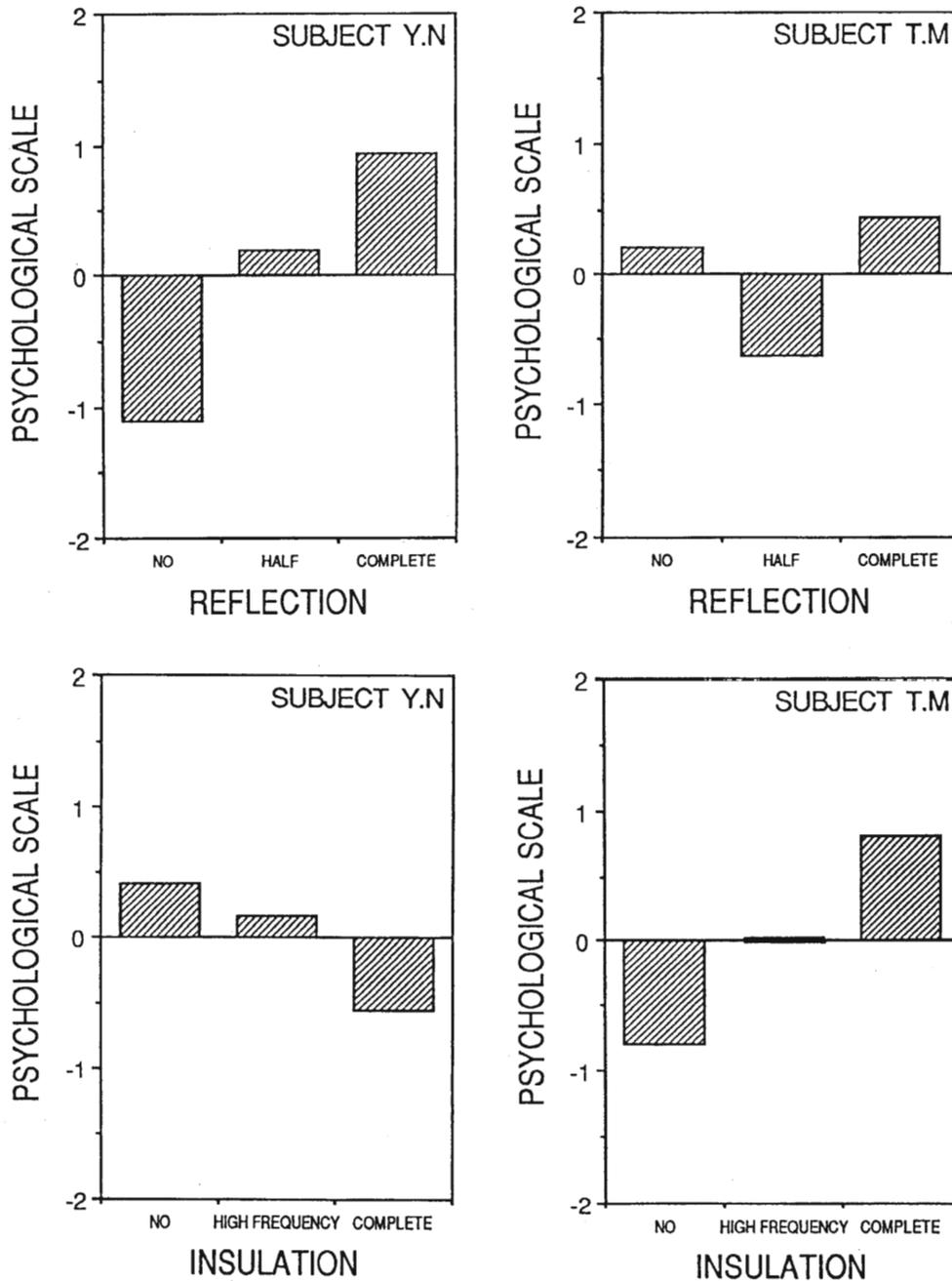


Fig.2 反射及び遮音の強さと、障害物の存在感の関係(心理尺度が大きいかほど、障害物の存在を強く感じることを示す)

であると考えべきである。

我々は、近距離に障害物が存在する場合の音場の変化を近似的に再現する実験装置を製作した(Fig.1)。近距離に障害物が存在することによって起こる音響現象は、反射と遮音に大別されるが、本実験装置はこれら2つの音響現象を独立して制御できる。

この実験装置を用いて以下の仮説を検証した。

- (1) 反射と遮音が、障害物知覚の要因の1つである。
- (2) 直接音に対する反射音の遅れ時間が、障害物の距離感の要因の1つである。

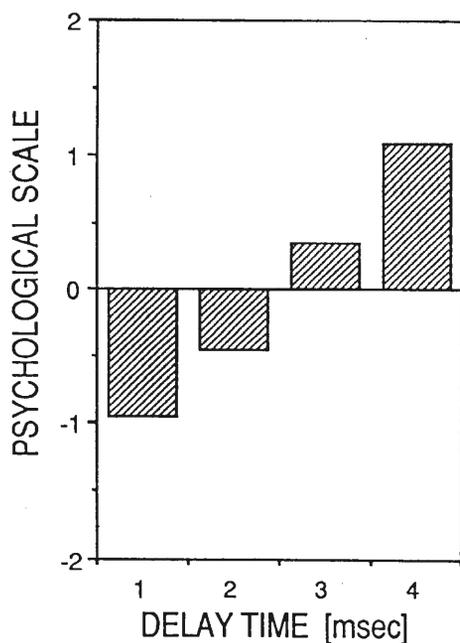


Fig.3 反射音の遅れ時間と、障害物の距離感の関係
(心理尺度が大きいほど、障害物の距離を遠く感じることを示す)

被験者は障害物知覚の能力を有する盲人2名(先天性全盲20歳男と21歳女)とした。Fig.2は、反射の変化(完全反射, 半反射(-3 dB), 反射なし)及び、遮音の変化(完全遮音, 高音部のみ遮音(2 kHzLPF), 遮音なし)に対し、「障害物の存在を強く感じる」心理尺度を表したものであり、Fig.3は反射の変化(遅れ時間1, 2, 3, 4 msec)に対し、「障害物の距離を遠く感じる」心理尺度を表したものである。なお心理実験方法は一対比較法を用い、心理尺度はThurstoneのcaseV[2]に従い構成した。

Fig.2に示す結果は、被験者Y.Nが「反射依存型」、被験者T.Mが「遮音依存型」の傾向にある等、被験者によって傾向が異なるが、少なくとも反射と遮音の両方が障害物知覚に関与していることを示している。

Fig.3については、2人の被験者とも傾向がほぼ等しいので1つにまとめて心理尺度を構成した。Fig.3は遅れ時間の増加に伴い、障害物の距離をより遠く感じていることを示している。

以上の結果は、仮説(1)(2)の正当性を支持している。

3. おわりに

近距離に障害物が存在する場合の障害物知覚と音場の変化との関係について述べた。

なお、本報告で述べた心理実験の他に、正眼者を被験者として、音の変化に関する印象(障害物に関する印象ではない)を調べる心理実験もあわせて行っている。今回述べた実験もあわせて、これらの実験により得られた知見は、これから障害物知覚を獲得する必要のある視覚障害者のための、訓練方法の構築に寄与するものと期待する。

【参考文献】

- [1] 佐藤泰正編, 視覚障害心理学, 学芸図書, 1988
- [2] 増山英太郎, 小林茂雄, センソリー・エバリュエーション,

垣内出版, 1989

位相計測と光アナログ演算

電子計測開発施設 岩井俊昭

光波干渉計測法は、レーザー応用計測において基礎となる計測手法である。本報告ではマイケルソン干渉計とランニングスペクトルの光演算とを結合したウィグナー分布関数法と干渉を用いずに物体からの回折強度のみを用いる反復位相回復法について報告する。

1. はじめに

レーザー光の高コヒーレンス性と波動性を利用した光波干渉法は、位相物体の形状や屈折率分布の情報を干渉縞強度分布なる可観測量に変換し、強度検出後の縞解析を行なうことで形状や分布を再構成する。本報告では、マイケルソン干渉計とランニングスペクトルの光演算を結合した干渉計による位相計測と位相物体の回折強度分布を既知情報とする逆問題として位相分布を推定する手法について報告する。ここでは、前者をウィグナー分布関数法とよび、後者を反復位相回復法とよぶことにする。

2. ウィグナー分布関数法

ウィグナー分布関数は、物体面上の位置 x と空間周波数 f を 2 変数とする関数であり、次式で定義される^[1]。

$$W(f, x) = \int_{-\infty}^{\infty} J(x, y) e^{j2\pi y f} dy \quad (1)$$

ここで、物体を透過してきた光波の振幅を $E(x)$ とすると、

$$J(x, y) = E(x + y/2) E^*(x - y/2) \quad (2)$$

である。サンプル物体として純位相物体

$$E(x) = e^{j\phi(x)} \quad (3)$$

を考え、その位置の変化に対する位相変化が滑らかであるとすると、(3)式の位相物体のウィグナー分布関数は、次式で与えられる。

$$W(f, x) = \delta[f - 1/2\pi \cdot d\phi(x)/dx] \quad (4)$$

(4)式は、1次元位相物体のウィグナー分布関数は空間周波数が位相の空間微分に等しくなるとき値をもつことを示す。したがって、光学的に位相物体のウィグナー分布関数を実現できれば、その空間周波数に対する分布を位置変数に関して単純に積分すると位相関数を再構成できる。

図1は、1次元位相物体のウィグナー分布関数を全光学的に演算する光学系を示す。図において、LCLVは反射型液晶空間光変調器であり、インコヒーレント像をコヒーレント像に変換する素子である^[2]。LCLVの後方が(2)式の定義を実現する光学系であり、前方は図中の上下方向にのみ1次元フーリエ変換する光学系で(1)式を実現している。図2(a)は、スクリーン上に実現した位相物体のウィグナー分布関数を示し、これをカメラで検出しその水平方向の変数について積分して

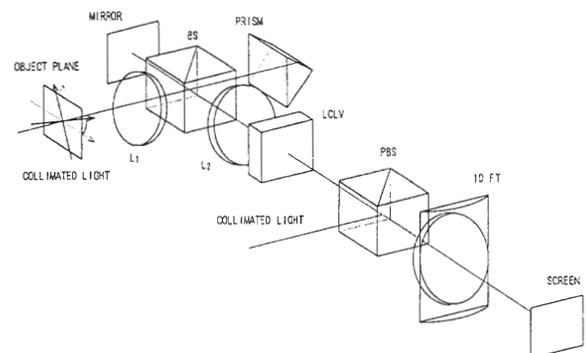


図1 全光学的にウィグナー分布関数を実現するための光学系。

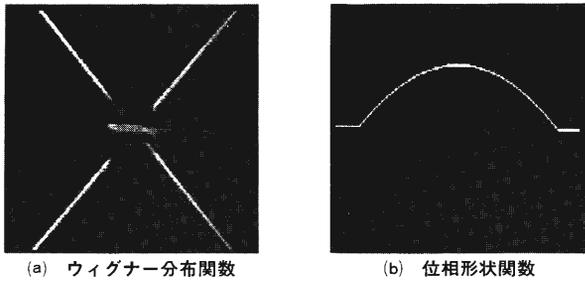


図2 シリンドリカルレンズのウィグナー分布関数と再構成されたレンズ形状。

再構成した位相関数の形状を図2(b)に示す。

3. 反復位相回復法^[3,4]

反復位相回復法^[3,4]は、位相物体を透過してきた回折強度分布をカメラで検出しコンピューターのメモリに転送した後は、すべて数値的に位相関数を回復する手法であり、まったく干渉を用いない。図3は、反復位相回復法のアルゴリズムを示す。ここで、GIファイバーに矩形開口を密着させ、物体関数 $|\tilde{f}(x,y)|e^{j\phi(x,y)}$ を形成する。この物体からのフラウンホーファー回折強度分布を測定し、その平方根をとると物体関数のフーリエスペクトル振幅 $|\tilde{F}(u,v)|$ を得る。ここで、既知情報は、物体に密着させた矩形開口の開口幅と測定したフーリエスペクトル振幅であり、回復すべき量は物体位相関数 $\phi(x,y)$ である。このアルゴリズムは、観測されたスペクトル振幅に対して、フーリエ変換と逆フーリエ変換を繰り返しながら、物体面では開口関数の広がりによる推定信号の打ちきりを、フーリエ面では観測されたスペクトル振幅による帯域内の推定スペクトルに対する置換を行なっていくことにより、帯域内情報を回復していく手法である。

図4に回復された光ファイバーの位相関数形状を示す。この関数を逆アーベル変換すると屈折率分布を再

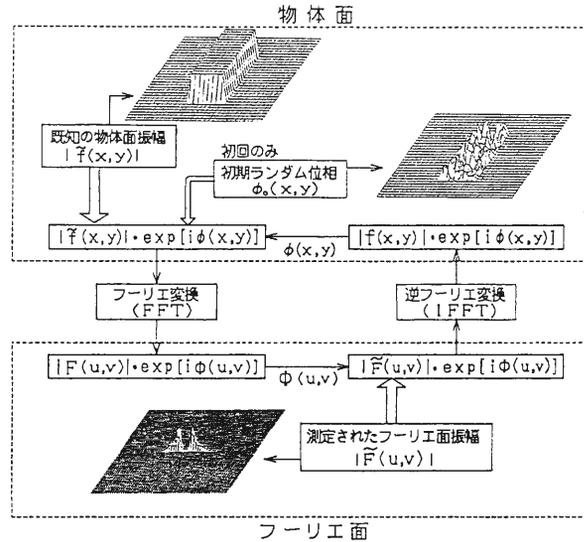


図3 反復位相回復法のアルゴリズムと各ステージの振幅分布。

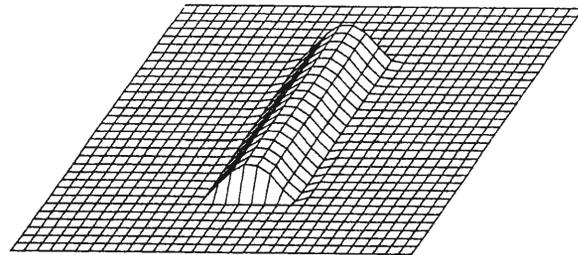


図4 回復された光ファイバーの位相関数。

構成できる。

4. 結 論

本報告では、位相形状計測において単純な積分操作のみで形状を再構成できるウィグナー分布関数法とまったく干渉法を用いずにコンピューター内の数値演算のみで位相を再構成する反復位相回復法について報告した。

【参考文献】

- [1] T. Iwai, A.K. Gupta, and T. Asakura: Opt. Commun. Vol.58, No.1, pp.15-19 (1986).
- [2] 河村直樹, 岩井俊昭, 竹森民樹: 光学, Vol.22, No.5, pp. 281-288 (1993).
- [3] T. Iwai and H. Masui: Opt. Commun. Vol.72, No.3/4, pp. 195-201 (1989).
- [4] T. Iwai, H. Masui, K. Kiyono: SPIE Proc. of ICO-15, Vol.1319, pp.502 (1990).

北海道大学電子科学研究所

〒060 札幌市北区北12条西6丁目

TEL (011)716-2111(代表) FAX (011)758-6098