京都工芸繊維大学

	くあっとてぃ かーんづぁん
氏　　名	KHUAT THI KHANH VAN
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　１１３０　号
学位授与の日付	令和６年９月25日
学位授与の要件	学位規則第４条第１項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　物質・材料化学専攻
学位論文題目	Cross-linked Polyimide Nanofibrous Aerogels with Hierarchical Cellular Structure （階層的細胞構造を有する架橋ポリイミドナノファイバーエアロゲル）
審査委員	(主査)准教授　木梨 憲司 教授　坂井 亙 教授　櫻井 伸一

論文内容の要旨

従来のエアロゲルは、ソル-ゲル法を凍結乾燥、超臨界乾燥、および真空乾燥と組み合わせて作製される多孔質材料である。これらは通常、低密度、透明性、低熱伝導率を示し、触媒、分離、および断熱材などで利用されている。しかし、従来のエアロゲルは脆さと高い製造コストのため、実用的な使用が制限されている。低密度エアロゲルの機械的特性を向上させるために、無機-有機ハイブリッド化や繊維材料の追加などの技術が提案されているが、コストや柔軟性の観点からナノファイバー由来のエアロゲルが注目されている。例えば、セルロースナノファイバーやキトサンナノファイバーなどの生体材料に基づくエアロゲルが提案されており、これらは高い強度、柔軟性、透明性、および低熱伝導率を示すことが報告されている。しかし、これらはバイオベースの材料であり柔軟性を向上させることは可能であるが、親水性であるため、吸水性が高く、エアロゲルの繊細な構造が崩れる可能性がある。一方、シリカエアロゲルは、超疎水性で現在広く使用が検討されているが、その脆さが制限となり構造の強化が主な課題であると共に、製造プロセスに超臨界乾燥を必要とするためコストの面で課題が残っている。

本研究では三次元架橋ポリイミドナノファイバーエアロゲルを提案し、高い熱安定性、低密度、柔軟性、そして低熱伝導率を有したエアロゲルの開発を目的とし、繊維工学の視点から検討を行った。

本論文は、最終章を含めた四章から構成され、各章の要旨は次のとおりである。

第一章では、研究概略、エアロゲル、ナノファイバーエアロゲル、ナノファイバーエアロゲル作製法、ポリイミド、断熱材、圧力センサの概要とナノファイバーエアロゲルに関する既往の研究（１２４論文）をまとめた図表と本研究目的を解説し、最後に参考文献を記載している。

第二章では、三次元架橋ポリイミドナノファイバーエアロゲルの材料、設計、作製方法、特性評価法そして研究結果の考察について解説し、最後に参考文献を記載している。結果として、凍結乾燥および追加のバインダーを用い、裁断されたポリイミドナノファイバー分散体の架橋を伴う固体テンプレート作製法を提案し、これはエレクトロスピニング法で作製されたポリイミドナノファイバーエアロゲルが効果的に三次元のミクロサイズの細孔を有するエアロゲルに加工できることを示した。また、トリエトキシシランの加水分解と縮合反応を通じて、Si-O-Si 架橋構造が形成されることを示した。そして、得られたエアロゲルは 10.6 mg cm^{-3}という低密度で 99.15%の高い多孔性、および階層的な細胞構造を持ち、超疎水性表面を形成していること示した。また、高い機械的安定性および熱的安定性を示し、33.2 mW m^{-1} K^{-1}という低い熱伝導率を持つことを確認し、優れた断熱材となることを示した。したがって、三次元架橋ポリイミドナノファイバーエアロゲルは、その低密度、高い多孔性、機械的安定性、および超疎水性の特性が応用可能であることを提案し、高温化における触媒、分離および断熱材などの用途に適している可能性を示し

た。
第三章では、軽量で柔軟性を有した導電性三次元架橋ポリイミドナノファイバーエアロゲルの材料、設計、作製方法、特性評価法そして研究結果の考察について解説し、最後に参考文献を記載している。結果として、密度 32.04 ± 1.02 mg cm^{-3}の軽量で柔軟性があり、導電性を持つ PEDOT でコーティングされた三次元架橋ポリイミドナノファイバーエアロゲルの作製に成功した。これらの結果の詳細は走査型および透過型電子顕微鏡観察、各種分光測定によって、階層的なセルラー微細構造を明らかにした。また、得られた導電性エアロゲルは、最大 80%の圧縮ひずみとそれに対応する最大圧縮応力 250 kPa に耐える優れた圧縮性を示すことを明らかにした。また、抵抗変化率は 0 から 96.10%の範囲であり、ゲージファクターは圧縮ひずみの約 0%から 80%の範囲で 4.06 から 0.82 で変動することを示した。さらに、500 回の圧縮開放試験でも構造的な安定性を維持し、電気抵抗の変化において高い再現性を示すことを明らかにした。これは個人の健康モニタリング、人間の動作解析、など、さまざまなウェラブルデバイスに応用が可能であることを示唆している。
最終章では、第一章から第三章までの結論をまとめるとともに、本研究における今後の展望を述べ、本論文の結びとしている。

論文審査の結果の要旨

エアロゲルは、科学技術の多様な分野で新素材として急速に注目を集めている。特に、低密度、高い多孔性、優れた熱絶縁性、および機械的特性のバランスが取れた材料として評価されており、断熱材、触媒担体、センサー、ろ過材料などの用途において有望である。しかし、エアロゲルの脆弱性や製造プロセスの複雑さと高コストが、これまでその実用化を妨げる大きな課題となっている。ポリイミドエアロゲルは、これらの課題に対処するための優れた材料の一つとして、特にその高い耐熱性と機械的安定性から注目されている。近年では、エレクトロスピニング法を用いて作製された三次元架橋ナノファイバーエアロゲルが、自己強化構造によって機械的脆弱性を克服したと報告されている。エレクトロスピニング法は、微細かつ均一な繊維を簡便かつ経済的に生成できる点で大きな利点を持ち、さまざまなナノスケール材料の開発において有望である。
本研究では、エレクトロスピニング法を駆使した三次元架橋ポリイミドナノファイバーエアロゲルの設計、作製、特性評価そして応用に焦点を当て、研究結果を既出の三次元架橋ナノファイバーエアロゲルとシリカ系エアロゲルと比較を行い、その有用性を説明した。その説明では、ポリイミドの基礎物性、エレクトロスピニング法の原理、そしてエアロゲルの原理も併せて説明した。また、本研究においてはコスト効率の高い凍結乾燥プロセスを利用し、三次元架橋ポリイミドナノファイバーエアロゲルを作製する新しい製造プロセスを提案し、このプロセスにより作製された材料の優れた特性について高分子繊維化学の観点から考察した結果を説明した。また、ナノファイバーの特徴を活かし、導電性高分子を付与し、過酷環境下の圧力センサーとしての有用性を示した。
以上の申請者により実施された三次元架橋ポリイミドナノファイバーエアロゲルは、低密度、高い多孔質性、耐熱性、耐薬品性、そして優れた機械的安定性などの優れた特性を有していることから、断熱材、触媒担体、センサー、ろ過材料など、さまざまな用途において有望な候補であり、世界の掲げる SDGs（Sustainable Development Goals：持続可能な開発目標）の「エネルギーをみんなに、そしてクリーンに」に対しても貢献可能な取り組みであり学術的、産業的、社会

的に高く評価できる。

本学位論文の基礎となった学術論文 2 編は、査読制度の確立した学術雑誌に掲載されており、いずれも申請者が筆頭著者である。

[主論文]

1. Khanh-Van Thi Khuat, Hoan Ngoc Doan, Phu Phong Vo, Masaki Negoro, Kenji Kinashi, Kazuyoshi Kanamori, Wataru Sakai & Naoto Tsutsumi, "Cross-linked Polyimide Nanofibrous Aerogels with Hierarchical Cellular Structure for Thermal Insulation", *ACS Applied Polymer Materials*, 5, 4767, (2023).
   DOI: 10.1021/acsapm.3c00335
2. Khanh-Van Thi Khuat, Hoan Ngoc Doan, Phu Phong Vo, De Nguyen, Kenji Kinashi, Wataru Sakai, Naoto Tsutsumi, "Lightweight, flexible, and conductive PEDOT:PSS coated polyimide nanofibrous aerogels for piezoresistive pressure sensor application", *Journal of Materials Chemistry C,* 12, 7240, (2024).
   DOI: 10.1039/D4TC00815D

京都工芸繊維大学

氏　　名	ぐえん そんはん NGUYEN SONG HAN
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 3 1　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　物質・材料化学専攻
学位論文題目	Study on Bacteriophages for Controlling Pathogenic Bacteria. （病原性細菌を制御するためのバクテリオファージに関する研究）
審査委員	(主査)教授　亀井加恵子 教授　堀内 淳一 教授　黒田 浩一

論文内容の要旨

食中毒は世界的な公衆衛生上の大きな問題となっている。一般的に細菌感染症の治療には抗生物質が用いられるが、抗生物質耐性菌の発生が深刻な問題となっており、抗生物質代替の開発が急務となっている。本論文では、細菌性食中毒の代表的な原因菌である腸炎ビブリオ菌、大腸菌およびサルモネラ菌を対象に、細菌の菌種特異的に感染し、溶菌することができるバクテリオファージについて抗生物質代替としての可能性を検討した。本論文は、以下に示す 6 章から構成される。

第 1 章「序論」: 本論文で扱う細菌性食中毒を引き起こす主要な 3 種の細菌、腸炎ビブリオ菌、大腸菌およびサルモネラ菌について概説した。また、抗生物質耐性菌を含む細菌を菌種特異的に溶菌するバクテリオファージ（以下、ファージ）を説明した。ファージは人を含む動物や植物には感染せず、環境中に普遍的に存在することから、抗菌剤や抗生物質の代替としてファージは安全であることが知られており、人の感染症治療、畜産業、農水産業、食品生産業において活用が始まっている。さらに、本論文の目的が、畜産業や水産業において、より現場に近い状態、すなわち複数の細菌が存在する環境において、宿主菌種の異なるファージを混合したファージカクテルの有効性を検討することであると述べている。

第 2 章「研究手法と材料」: ファージのスクリーニングに用いた材料、ファージの単離方法、形態観察法、宿主特異性や増殖パラメーターなどファージの特性解析法、ゲノム解析法、ファージカクテルの作成法と増殖阻害活性の評価方法など、本論文で使用し研究手法と材料について記述した。

第 3 章「腸炎ビブリオ菌に対する新規ビブリオファージ KIT04 の単離、特性解析および全ゲノム配列の決定」: ムール貝より腸炎ビブリオ菌を特異的に溶菌するファージ KIT04 の単離に成功した。全ゲノム配列解析の結果、ビブリオファージ KIT04 はインテグラーゼ、溶原性関連遺伝子の両方を保有しないことが明らかとなり、腸炎ビブリオに対する生物防除剤の候補となる可能性が示唆された。

第 4 章「ナリジクス酸耐性大腸菌を制御できる大腸菌ファージ KIT06 の全ゲノム解析」: 鴨の腸

より大腸菌に感染するファージ KIT06 を単離した。抗生物質ナリジクス酸に対する耐性大腸菌 ATCC700609 株を含む 11 株中 7 株に感染した。ファージ KIT06 は大腸菌のリポ多糖に吸着後、外膜タンパク質であるヌクレオシド特異的チャネル形成タンパク質 tsx に付着し、細菌への感染を開始することを明らかにした。さらに、KIT06 のゲノムには病原性や溶原性に関連する遺伝子が存在しないことから、ファージ KIT06 はファージセラピーに活用可能であることを示した。

第５章「C3 形態を持つ新規サルモネラファージ KIT07 の単離、特性解析、ゲノムおよびプロテオミクス研究」: 鶏肉からサルモネラ（S*almonella enterica*）ファージ KIT07 を分離した。ファージ KIT07 は、非常にユニークな C3 形態を持つポドウイルスであり、サルモネラ菌に加え大腸菌も溶菌することできる。ファージ KIT07 は 4℃から 55℃、pH6 から pH11 で活性を保持し、ゲノム中に毒性遺伝子および溶原性関連遺伝子は検出されなかった。これらのことから、ファージ KIT07 はサルモネラ菌および大腸菌の生物防御に活用可能であることが明らかとなった。

第６章「バクテリオファージカクテルによる混合細菌の制御」: ファージは特定の標的細菌に対してのみ感染する厳密な特異性を有する。しかし、畜産業や水産業において抗菌剤としてファージを応用する場合、現場では複数の細菌が混在していることが問題となる。その解決策として、異なる菌種を溶菌するファージを混合したファージカクテルの利用が考えられる。本研究では、KIT04、KIT06、KIT07 から構成されるファージカクテルを作成した。カクテルをそれぞれの宿主菌（腸炎ビブリオ、大腸菌およびサルモネラ菌）の混合物に添加し、培養を継続すると、混合菌の増殖を抑制する効果は認められたものの、その効果は弱く、実用化に適さないことが明らかとなった。一方、KIT06 と KIT07 の 2 つのファージからなるカクテルは、それぞれの宿主菌の混合物（大腸菌とサルモネラ菌）の増殖を強く抑制し、その抑制効果はそれぞれのファージ単独の抑制効果を足し合わせたものより強く、ファージカクテルの有効性が明らかとなった。

第 7 章「考察」: 本研究で得られた結果をまとめ、考察を行った。宿主細菌の異なる 3 種のファージ（KIT04、KIT06、KIT07）あるいは 2 種のファージ（KIT06、KIT07）からなるカクテルによる、それぞれの宿主菌の混合物に対する増殖抑制効果は、単独のファージによる細菌抑制効果から予想される結果とは異なっていた。 その原因としてファージ間の何らかの相互作用の可能性が考えられるが、そのメカニズムの解明は今後の課題である。異なる菌種を標的としたファージカクテルを実用化するためには、ファージ間の相互作用を考慮したファージの選抜が必要であると結論した。

論文審査の結果の要旨

一般的に細菌感染症の治療には抗生物質が用いられるが、抗生物質耐性菌の発生が深刻な問題となっており、抗生物質代替の開発が急務となっている。申請人は、細菌性食中毒の代表的な原因菌である腸炎ビブリオ菌、大腸菌およびサルモネラ菌を対象に、細菌に菌種特異的に感染し、溶菌することができるバクテリオファージについて抗生物質代替としての可能性を検討した

序論では、本論文で扱う細菌性食中毒を引き起こす主要原因細菌３種、腸炎ビブリオ菌、大腸菌およびサルモネラ菌について概説した。また、抗生物質耐性菌を含む細菌を菌種特異的に殺す（溶菌する）バクテリオファージ（以下、ファージ）を説明した。本論文の目的が、畜産業や水産業に

おいて、より現場に近い状態、すなわち複数の細菌が存在する環境において、宿主菌種の異なるファージを混合したファージカクテルの有効性を明らかにすることであると述べている。

申請者は、標的細菌の異なる３種類のファージ、すなわちムール貝より腸炎ビブリオ菌を特異的に溶菌するファージ KIT04、鴨の腸より大腸菌を溶菌するファージ KIT06、鶏肉からサルモネラ菌（S*almonella enterica*）を溶菌するファージ KIT07 を分離した。全ゲノム配列解析から、いずれのファージも新規であることを明らかにした。また、いずれも毒性遺伝子および溶原性に関連する遺伝子を保有しておらず、生物防御に活用可能であることを示した。また、電子顕微鏡による形態観察、宿主特異性、増殖パラメーター、安定性など各ファージの基本的な特性を明らかにするとともに、KIT06 および KIT07 に関しては感染の際にファージが利用する受容体分子を明らかにした。

ファージは特定の標的細菌に対してのみ感染する厳密な特異性を有する。しかし、畜産業や水産業においてファージを抗菌剤として応用する場合、現場では複数の細菌が混在していることが問題となる。その解決策として、異なる菌種を溶菌するファージを混合するファージカクテルの利用が考えられる。宿主細菌の異なる 3 種のファージ（KIT04、KIT06、KIT07）あるいは 2 種のファージ（KIT06、KIT07）からなるカクテルによる、それぞれの宿主菌の混合物に対する増殖抑制効果を検討した。3 種のファージカクテルは腸炎ビブリオ菌、大腸菌およびサルモネラ菌の混合物に対して、その増殖抑制効果は弱く、期待した効果が得られなかった。一方、2 種のファージ（KIT06、KIT07）カクテルは、大腸菌およびサルモネラ菌の混合物の増殖をほぼ完全に抑制し、それぞれ単独のファージ効果を足し合わせたよりも大きな効果が得られ、ファージカクテルの有効性の実証に成功した。これらの結果は、ファージカクテルによる混合菌の増殖抑制効果は、単独のファージによる細菌抑制効果から予想される効果とは異なることを示している。これはファージ間での何らかの相互作用が原因であると考えられるが、そのメカニズムの解明が今後の課題である。本論文の結論として、畜産業や水産業で実用化可能な異なる菌種を抑制するファージカクテルを実用化するためには、ファージ間の相互作用を考慮したファージの選抜が必要であると結論した。

本論文は、標的細菌の異なる 3 種の新規ファージを取得し、これらのファージからなるカクテルによる細菌混合物に対する効果を明らかにしたものである。本研究成果は、畜産業や水産業における細菌感染症対策を目的とした抗生物質代替としての、ファージカクテルの有効性を示しており、本研究の学術的な意義は高いと評価できる。

学位論文は、査読制度が確立されている下記の国際科学雑誌に掲載されている原著論文 2 編を基礎としている。

1. Nguyen Song Han, Mana Harada, Nguyen Huan Pham-Khanh, and Kaeko Kamei. Isolation, Characterization, and Complete Genome Sequence of Escherichia Phage KIT06 Which Infects Nalidixic Acid-Resistant *Escherichia coli*. Antibiotics. 2024, 13(7):581. doi: 10.3390/antibiotics13070581.
2. Anh Vo Thi Tu, Nguyen Huan Pham-Khanh, Song Han Nguyen, Hirofumi Sunahara, Trang Dai Thi Xuan, Kaeko Kamei. Isolation, characterization, and complete genome

sequence of vibrio phage KIT04, a novel lytic phage of the subfamily ermolyevavirinae. Virology. 2023; 579:148-155. doi: 10.1016/j.virol.2023.01.008.

京都工芸繊維大学

氏　　名	しんぐ すみっと くまる SINGH SUMIT KUMAR
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 3 2　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　物質・材料化学専攻
学位論文題目	Vector holography using azo composite films for information optics （情報光学のためのアゾ複合フィルムを用いたベクトルホログラフィー）
審査委員	(主査)准教授　木梨 憲司 教授　坂井 亙 教授　山雄 健史

論文内容の要旨

ホログラフィーは、高密度記録、３次元映像、ビーム成形、イメージング技術など、幅広い応用が可能な光学技術である。特に、ベクトルホログラムは、光の振幅、位相に加え、偏光状態（偏光ベクトル）も記録するホログラムであり、通常のホログラムがスカラー場（光の強度や位相）を扱うのに対し、ベクトルホログラムは光の偏光状態をも扱うため、光の振動方向も含めたより多くの情報が記録可能である。しかし、これらのホログラムを記録・再生・消去・保存を行うためには、使用される材料の記録速度、回折効率、保持時間が優れていなければならなく、かつ書き換え特性も必要となる。そして、特にベクトルホログラムの記録には光の偏光状態を記録できるという特性も併せて必要となる。これらの必要条件により、多くの感光性材料はベクトルホログラムの記録には有用ではない。

本研究では、ベクトルホログラムの記録・再生・消去・保存が可能なポリマーフィルムを探索し、その特性活用した新しい高密度記録、３次元映像、ビーム成形、イメージングを目指すことを目的とする。

本論文は、七章から構成され、各章の要旨は次のとおりである。

第一章では、研究動機、研究目的、各章のアウトライン、各章の成果の概要を記載している。

第二章では、ホログラフィーの歴史と背景、ホログラフィーの基本原理、薄膜ホログラムと厚膜ホログラムの分類、強度ホログラムと偏光ホログラムの原理、強度ホログラム用の材料、計算機合成ホログラム、ホログラムの応用例について記載している。

第三章では、アゾ複合材料を用いたベクトルホログラムの原理、アゾ複合材料の基礎物性、アゾ複合材料フィルムの作製条件、アゾ複合材料フィルム中の複屈折率の原理と測定方法、アゾ複合材料フィルムのスカラーホログラムとベクトルホログラムの原理、測定方法、結果と考察について解説し、最後に参考文献を記載している。結果として、アゾ複合材料フィルムは、顕著な複屈折性を示し、ベクトルホログラムの記録・再生に適していることを示した。スカラーホログラムにおける回折効率は、円偏光に比べて直線偏光の書き込みビームおよび読み取りビームを使用した場合に理論限界値の特性を示し、直線偏光スカラーホログラムの記録に適している

ことを示した。偏光ホログラムにおいては、円偏光ホログラムの回折効率が非常に高く、両方のタイプの偏光ホログラムの記録に適していることを示した。また、多重化にも有益となるさまざま光学特性を明らかにした。さらに、室温から低温で記録されたホログラムの保持時間は、少なくとも２００日の保存が可能であり、記録・再生・消去・保存の特性を持つことが分かった。

第四章では、多様な応用に向けたアゾ複合材料を用いた多重化ベクトルホログラムの原理、光学システム、多重化の原理、測定方法、結果と考察について解説し、最後に参考文献を記載している。結果として、データ記録に有望なハイブリッド偏光角度多重化を示し、次に、ハイブリッド空間偏光多重化を示した。ここでは、CGH（計算機合成ホログラム）を用いてさまざまな空間的に分離されたパターンを持つ複数のスカラーホログラムをアゾ複合材料フィルムに記録した結果を示した。そして、最後にハイブリッド偏光深度多重化を示した。これらの 3 つの革新的な書き換え可能な多重化アプローチは、データ記録、動的ディスプレイシステム、および 3-D ホログラフィックディスプレイ技術のさらなる進展の可能性を示した。

第五章では、二光束干渉露光を用いた偏光多重化ホログラムのベクトル構造化光ビームの生成の原理、光学システム、測定方法、偏光多重化ホログラムのベクトル構造化光ビームの結果と考察について解説し、最後に参考文献を記載している。結果として、偏光ホログラムのテンソル理論に基づく包括的な数学モデルを提示し、提案された概念を正当化するための、検証実験結果を示した。これらの結果は、基本ポアンカレ球、高次ポアンカレ球、およびハイブリッドポアンカレ球上で表されるさまざまな種類の光渦を示した。また、ベクトルラゲールガウスビームやベクトルベッセルガウスビームなど、任意の構造を持つベクトルビームの生成にも成功しており、この方法が複雑な構造化された光を生成する特性を有していることを示した。

第六章では、単一光記録技術を用いた構造化光ビームの生成の原理、光学システム、測定方法、ベクトル構造化光ビームの結果と考察について解説し、最後に参考文献を記載している。アゾ複合材料と CGH を統合した単一光記録技術を用いて、多様な構造化された光ビームの生成に成功したことを示した。これらのビームは、フィルム上のわずか 1 平方ミリメートルの限られた領域内で効率的に生成できたことを示した。また、本システムは、4f 光学系のような複雑な光学装置を必要とせずに簡単に再構成できることが強調されており、この手法の簡便さを示している。さらに、このシステムは拡張性に優れており、多数のビームを生成できるため、その実用性の高さを示した。

第七章では、第二章から第六章までの結論をまとめるとともに、本研究における今後の展望を述べ、本論文の結びとしている。

論文審査の結果の要旨

ホログラフィーは、高密度記録、３次元映像、ビーム成形、イメージング技術など幅広い分野で応用が期待されており、中でも光の振幅、位相、そして偏光状態（偏光ベクトル）という三つの光学特性を記録し再現できる特殊なベクトルホログラムを記録・再生するため感光性材料が求められている。

本研究では、ベクトルホログラムの記録と再生に適した光感応性ポリマーの探索を行い、次世代の高密度記録、３次元映像、ビーム成形、イメージング技術を光学、光物理化学、高分子材料

化学の観点から検討した。

本研究では、アゾ複合材料フィルムを、以下の３種の情報光学で利用することを検討し、その研究成果を数学的解釈から実際まで詳細に説明した。１）「ハイブリッド偏光−角度多重化」。２）「ハイブリッド空間−偏光多重化」および「ハイブリッド偏光−深さ多重化」。３）「２つの異なる光学技術を用いた構造化した光ビーム生成」。また、数学的理論計算で予測したベクトルホログラムと同様の結果をアゾ複合材料中に作製することに成功した。このベクトルホログラムは熱的に安定であり、多重記録も可能であることを示し、最後に単一光記録システムの構築に取り組み、あらゆる構造化された光の作製に成功し、そのデモンストレーションを行い、その結果を詳細に報告した。

以上の申請者により実施された情報光学にむけたアゾ複合材料を用いたベクトルホログラフィーに関する研究は、高密度記録、３次元映像、ビーム成形、イメージング技術に対して貢献でき、さらに世界の掲げる SDGs（Sustainable Development Goals : 持続可能な開発目標）の「産業と技術革新の基盤をつくろう」に対しても貢献可能な取り組みであり学術的、産業的、社会的に高く評価できる。

本学位論文の基礎となった学術論文 4 編は、査読制度の確立した学術雑誌に掲載されており、いずれも申請者が筆頭著者である。また、参考論文として学術雑誌に掲載済みの学術論文（査読あり・筆頭著者） １編があり、本論文に関連した内容が記述されている。

[主論文]

1. S. K. Singh, H. Haginaka, B. J. Jackin, K. Kinashi, N. Tsutsumi & W. Sakai, “Generation of Ince–Gaussian beams using Azocarbazole polymer CGH”, *Journal of Imaging*, 8(5), 144, (2022).
   DOI: 10.3390/jimaging8050144
2. S. K. Singh, K. Kinashi, N. Tsutsumi, W. Sakai & B. J. Jackin, “Azo-carbazole copolymer-based composite films for rewritable vector holograms”, *Optical Materials Express*, 14(2), 277-292, (2024). DOI: 10.1364/OME.510788
3. S. K. Singh, S. Notte, R. Yamaguchi, K. Kinashi, N. Tsutsumi, W. Sakai, Y. Awatsuji & B. J. Jackin, “Generation of arbitrary vector vortex beams on a higher-order Poincaré sphere using a double-exposure polarization-multiplexed hologram”, *Optics Letters*, 49(4), 1053-1056, (2024). DOI: 10.1364/OL.510177
4. S. K. Singh, K. Kinashi, N. Tsutsumi, W. Sakai & B. J. Jackin, “High-density polarization multiplexed holograms using azo-carbazole films for diverse applications”, *Optics Express*, 32(13) (2024), 22602-22614. DOI: 10.1364/OE.522262

[参考論文]

5. S. K. Singh, K. Kinashi, N. Tsutsumi, W. Sakai & B. J. Jackin, “Tailoring arbitrary large vectorial structured light beam array utilizing the tensor theory of multiplexed polarization hologram”, *Optics Express*, 32(18), 31162-31178, (2024). DOI: 10.1364/OE.529943

京都工芸繊維大学

氏　　名	たらのわ あなすたしあ TARANOVA ANASTASIIA
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 3 3　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　物質・材料化学専攻
学位論文題目	Low-band gap nanostructured semiconductors for solar energy harvesting （太陽エネルギー収集用の低バンドギャップナノ構造半導体）
審査委員	(主査)教授　朱 文亮 教授　森田 辰郎 教授　PEZZOTTI　Giuseppe

論文内容の要旨

太陽エネルギーに係る研究は、その再生可能な性質と限られた資源への最小限の影響から、持続可能で尚且つクリーンな電源を求める世界の最前線で推進されている。太陽エネルギーは、電気の発電だけでなく、暖房、冷房、および水蒸発システムなどに利用される可能性があり、これらは人口増加や気候変動によって引き起こされる緊急の問題の解決に役立つと考えられている。本研究では、太陽エネルギーを利用可能な形に変換する際の太陽光吸収体(ソーラーアブソーバー)の役割に焦点を当て、選択的吸収体の重要性を強調している。また、デバイスの性能に重要な役割を果たすキルヒホッフ（Kirchhoff）の法則に従って太陽エネルギー変換とエネルギー再放出を組み合わせることにより、太陽光吸収体の光学的特性を探求している。その結果、太陽光を利用した水蒸発は、再生可能エネルギーを活用し、費用対効果も期待できる水不足に対する持続可能な解決策として提案されている。この太陽光水蒸発技術を最適化するための継続的な研究の必要性は、低効率、天候依存性、および水質感度などの課題によって浮き彫りになっている。

この論文では、太陽エネルギー変換の強化に使用できる低バンドギャップ半導体 $CoSb_x$（$2 < x < 3$）および遷移金属セレン酸塩水和物の構造と機能的特徴に関する実験的研究および計算的調査を組み合わせて行っている。調査には、溶媒熱法と水溶法を用いた材料合成方法、X 線回折、ラマン分光法、走査型電子顕微鏡、高分解能透過型電子顕微鏡、および X 線光電子分光法などの詳細な特性評価技術が含まれている。更に、光学特性の解析の為に、密度汎関数理論を用いた計算シミュレーションも行っている。太陽光吸収体の性能は、光熱挙動を捉える赤外線イメージングを伴ってソーラーシミュレーターを用いて評価を行っている。この調査結果は、$CoSb_x$ が高いスペクトル太陽光選択性を持つ、本質的に選択的な太陽光吸収体であることを示した。ニッケルとコバルトセレン酸塩水和物は、太陽光駆動の水蒸発における効率性についても調査を行っている。これらの無機材料は、優れた太陽光吸収率と親水性により、太陽光による海水淡水化において有望な候補である。以上のように、この研究は太陽エネルギーを効率的に変換し、水を蒸発させる材料の開発に貴重な知見を与えるものである。

論文審査の結果の要旨

太陽熱による水の蒸発は、水不足に対する持続可能な解決策として、再生可能でクリーンなエネルギーであり、潜在的に費用対効果が高い。この論文では、太陽エネルギー変換の強化に使用できる低バンドギャップ半導体の構造と機能的特徴に関する実験的研究および計算的調査を組み合わせて行った。太陽光による水蒸発試験では、強固な実験設定、薄膜の作製、および詳細な特性評価が含まれている。

本論文は、科学雑誌向けに書かれた複数の研究論文を単に「つなぎ合わせた」ものではなく、モノグラフ形式でよく書かれ、整理されている。第一章と第二章では、それぞれ関連文献に基づいて申請者の研究を設定し、特定の太陽光吸収体のナノ材料を評価するために使用される方法論について説明している。本論文の主題は斬新かつ独創的である。具体的には、温度の関数としての遷移金属セレン酸塩水和物の微細構造特性評価により、このナノ構造システムにおける興味深い脱水プロセスが構造機能関係の観点から初めて解明されている。$CoSb_x$ 薄膜については、照明下で非常に高い表面温度を持ち、実用的な太陽光応用の可能性があることが強調して示されている。この複数の特性評価データセットを一貫したモデルで整理する能力は、博士レベルの候補者の批判的思考能力を実証している。これらの成果は太陽エネルギーを効率的に変換し、水を蒸発させる材料の開発に非常に有用であると認められる。

本論文は、査読制度の確立した以下の 4 編の学術論文を基礎としている。

［1］ A. Taranova, K. Akbar, K. Yusupov, S. You, V. Polewczyk, S. Mauri, E. Balliana, J. Rosen, P. Moras, A. Gradone, V. Morandi, E. Moretti, A. Vomiero, “Unraveling the optoelectronic properties of $CoSb_x$ intrinsic selective solar absorber towards high-temperature surfaces,” *Nature Communications* **14**, pp. 7280-1-8 (2023).

［2］ A. Taranova, E. Moretti, K. Akbar, G. Dastgeer, A. Vomiero, “Emerging Strategies to Achieve Interfacial Solar Water Evaporation Rate Greater than 3 $kg \cdot m^{-2} \cdot h^{-1}$ under One Sun Irradiation”, *Nano Energy* **128**, pp. 109872-1-30 (2024).

［3］ A. Taranova, K. Akbar, E. Moretti, A. Vomiero, G. Pezzotti, T. Morita, E. Marin, W. Zhu, “Temperature-Dependent Structural Properties of Nickel and Cobalt Selenite Hydrates as Solar Water Evaporators,” *Materials* **17**, pp. 2482-1-14 (2024).

［4］ A. Taranova, E. Lushaj, K. Akbar, E. Ghedini, I. Barroso-Martín, A. Gradone, V. Morandi, E. Rodríguez-Castellón, W. Zhu, E. Moretti, A. Vomiero, “Nickel and Cobalt Selenite Hydrates as Broad Solar Absorbers for Enhanced Solar Water Evaporation,” *Solar RRL* (2024), accepted.

以上から、本論文の内容は十分な新規性と独創性、工学的な意義があり、博士論文として優秀であると審査員全員が認めた。

京都工芸繊維大学

氏　　名	れ ちゅん にあ LE TRUNG NGHIA
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 3 4　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　物質・材料化学専攻
学位論文題目	Anticancer potential of *Sphaerocoryne affinis* fruit and its active compound, acetylmelodorinol, against cervical cancer HeLa cells （子宮頸がん HeLa 細胞に対する Sphaerocoryne affinis 果実およびその活性化合物アセチルメロドリノールの抗がん作用）
審査委員	(主査)教授　亀井加恵子 教授　小堀 哲生 教授　片岡 孝夫

論文内容の要旨

子宮頸がんは、世界的に重大な健康問題の一つである。いくつかの治療法があるにもかかわらず、薬剤耐性は依然として大きな課題であり、新たな治療法の開発が必要とされている。本論文は、植物 *Sphaerocoryne affinis* 果実のエタノール抽出物、およびその抽出物より単離した化合物アセチルメロドリノールについて、子宮頸がん HeLa 細胞に対する細胞毒性活性とその作用機序を明らかにし、新規抗がん治療法開発の可能性を見出したものである。本論文は、第１章「序論」、第２章「子宮頸がん HeLa 細胞に対する *S. affinis* 果実の細胞増殖抑制およびアポトーシス誘導を介した強力な抗がん活性」、第３章「*S. affini* 種子から単離されたアセチルメロドリノールは HeLa 細胞の細胞増殖を抑制し、アポトーシスを活性化する」、第４章「結論」から構成されている。

第１章 序論：本研究の背景および目的について述べている。子宮頸がんの有病率、危険因子、現在の治療選択肢など、子宮頸がんについて概説した。また、既存の治療法の限界を指摘し、新しい治療戦略の必要性を強調している。次に、がん治療における天然物、特に植物由来化合物の可能性とともに、薬効で知られる植物 *S. affinis* を抗がん研究の有望な候補として紹介している。最後に本研究の目的が、*S. affinis* 果実抽出物および抽出物より精製したアセチルメロドリノールについて、子宮頸がん HeLa 細胞に対する細胞毒性作用を調べ、その基礎となるメカニズムを解明することであると述べている。

第２章 子宮頸がん HeLa 細胞に対する *S. affinis* 果実の細胞増殖抑制およびアポトーシス誘導を介した強力な抗がん活性：本章では、HeLa 細胞に対する *S. affinis* 果実抽出物の抗がん活性を調べた結果について詳述した。*S. affinis* 果実エタノール抽出物の溶媒分画によって得られたヘキサン画分が HeLa 細胞に対して選択的な強い細胞毒性を示し、細胞増殖を抑制し、アポトーシスを誘導することを見出した。その作用機序を詳細に解析した結果、細胞周期タンパク質の抑制、Proliferating Cell Nuclear Antigen (PCNA)のダウンレギュレーション、AKT/mTOR 活性化の減少、γH2AX、P53、カスパーゼ-3、カスパーゼ-9 などのアポトーシスマーカーの発現増加などを明らかにした。

第３章 *S. affinis* 種子から単離されたアセチルメロドリノールは HeLa 細胞の細胞増殖を抑制し、アポトーシスを活性化する：本章では、*S. affinis* 果実抽出物の酢酸エチル画分から、HeLa 細胞に対する抗がん活性を有するアセチルメロドリノールを単離・同定した。アセチルメロドリノールは HeLa 細胞に対して強力な細胞毒性作用を示し、その細胞毒性は正常細胞と比較して HeLa 細胞に選択的であることを見出した。その作用機序の解析により、アセチルメロドリノールはサイクリン E、CDK1/2、AKT/mTOR 経路タンパク質の発現を低下させることにより細胞増殖を阻害することを明らかにした。さらに、アセチルメロドリノールはカスパーゼ-3 とカスパーゼ-9 の活性化、DNA の断片化、核の崩壊を通じてアポトーシスを誘導することを示した。

第 4 章 結論：本論文で得られた知見を要約し、結論として *S. affinis* 果実のエタノール抽出物および単離した化合物アセチルメロドリノールの子宮頸がん HeLa 細胞に対する強力な抗がん作用を強調した。これらの天然物の研究が新規抗がん治療法の開発に繋がる可能性を示唆するとともに、前臨床試験および臨床試験に進めるために、さらに詳細なメカニズムを解明する必要性について指摘した。

論文審査の結果の要旨

子宮頸がんは、いくつかの治療法があるにもかかわらず、依然として世界的に重要な健康課題である。申請者は、*Sphaerocoryne affinis* 果実のエタノール抽出物に子宮頸がん HeLa 細胞に対する選択的な抗がん作用を見出し、抽出物より抗がん活性を有する化合物アセチルメロドリノールの単離に成功した。さらに、*S. affinis* 果実抽出物およびアセチルメロドリノールの HeLa 細胞に対する抗がん機構を解明した。

まず、*S. affinis* 果実エタノール抽出物の溶媒分画によって得られたヘキサン画分（SAF-Hex）が HeLa 細胞に対して選択的な強い細胞毒性を示し、細胞増殖を有意に抑制し、アポトーシスを誘導することを明らかにしている。作用機序の解析により、主な知見として細胞周期タンパク質の抑制、Proliferating Cell Nuclear Antigen (PCNA)のダウンレギュレーション、AKT/mTOR 経路の活性化の減少、γH2AX、P53、カスパーゼ-3、カスパーゼ-9 などのアポトーシスマーカーの発現の増加を明らかにした。

次にアセチルメロドリノールの HeLa 細胞に対する強力な細胞毒性作用を明らかにし、正常細胞と比較してがん細胞の細胞増殖を選択的に阻害することを見出した。さらに、その作用機序を解析し、アセチルメロドリノールは、サイクリン E、CDK1/2、AKT/mTOR 経路タンパク質の発現を低下させることにより細胞増殖を阻害し、カスパーゼ-3 およびカスパーゼ-9 の活性化、ならびに DNA 断片化および核の崩壊を通じてアポトーシスを誘導することを明らかにした。

これらの研究は *S. affinis* 果実抽出物およびアセチルメロドリノールの子宮頸がんに対する選択的な抗がん作用を解明したものである。子宮頸がんに対する新規抗がん剤開発に貢献できる可能性を示しており、本研究の学術的な意義は高いと評価できる。

学位論文は、申請者が筆頭著者である査読制度が確立されている下記の国際科学雑誌に掲載されている原著論文 2 編を基礎としている。

1. Nghia Le-Trung, Tue Minh Duong, Thao Thi Phuong Dang and Kaeko Kamei, Potent anti-cancer activity of *Sphaerocoryne affinis* fruit against cervical cancer HeLa cells via inhibition of cell proliferation and induction of apoptosis. BMC Complementary Medicine and Therapies, **23**, 290 (2023), doi, 10.1186/s12906-023-04127-0.
2. Nghia Le-Trung, Kenji Kanaori, Tomonori Waku, Thao Thi Phuong Dang and Kaeko Kamei, Acetylmelodorinol isolated from *Sphaerocoryne affinis* seeds inhibits cell proliferation and activates apoptosis on HeLa cells. BMC Complementary Medicine and Therapies, **24**, 59 (2024), doi, 10.1186/s12906-024-04357-w.

京都工芸繊維大学

	のなか ともゆき
氏　　名	**野中　知行**
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 3 5　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　電子システム工学専攻
学位論文題目	**C_4F_8 プラズマ中で堆積した側壁保護膜の特性と Bosch process の加工形状への影響**
審査委員	(主査)准教授　高橋 和生 教授　一色 俊之 教授　山下 馨

論文内容の要旨

（ここに要旨貼り付け）

論文審査の結果の要旨

（ここに審査結果の要旨貼り付け）

京都工芸繊維大学

	わたなべ あかり
氏　　名	**渡邉　明理**
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 3 6　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　電子システム工学専攻
学位論文題目	**共振器集積導波モード共鳴ミラーを用いた光回路表面実装レーザに関する研究**
審査委員	(主査)教授　裏 升吾 教授　粟辻 安浩 教授　山下 兼一 教授　山雄 健史 助教　井上 純一

論文内容の要旨

光回路への光源実装形態として、垂直共振器面発光レーザ（VCSEL）を表面実装する方法が模索されている。共振器集積導波モード共鳴ミラー（CRIGM）は、高反射性基板上の一対の分布ブラッグ反射器(DBR)による導波路共振器と、その内部に集積されたグレーティングカップラ(GC)から構成され、空間光に対して共鳴波長で疑似的な反射位相不定性を示す。CRIGM をレーザの外部ミラーとして用いれば、共振器長変動による発振波長変化を抑制することが期待できる。また、共鳴導波モードを一部取り出すことで、結合器として機能させることもできる。しかしながら、これまで実証されてきた CRIGM の反射率は、ガウシアンビーム入射光に対して 20%程度であった。本論文では、高い反射率を実現する表面実装レーザ用 CRIGM の設計と実証実験について記述している。また、CRIGM を外部ミラーとしたレーザ発振および発振波長抑制効果の検証を行なっている。さらに、CRIGM の波長多重光源への適用可能性について論述している。

第２章では、反射光がガウシアンビームとなる CRIGM の設計について記述している。反射光に光強度分布を与えるため GC の結合係数を分布させる。結合係数分布の手法として、グレーティングの屈折率境界位置をずらす方法と、グレーティング凸部の占有割合（フィルファクタ）を変化させる方法を検討している。結合係数や屈折率境界の位置、フィルファクタの分布を変化させることをアポダイゼーションと呼んでいる。ビーム径 7.2 μm のガウシアンビーム入射光に対して共鳴波長 1050 nm の CRIGM を設計し、二次元の有限差分時間領域法によってシミュレーションを行なっている。反射光分布は、ユニフォームな結合係数の CRIGM ではガウシアン分布と大きく異なること、フィルファクタアポダイズド CRIGM および屈折率境界位置アポダイズド CRIGM ではガウシアンビームとの一致率が高まることが予測され、GC のアポダイゼーションの有用性が示されている。一方で、クラッドモードが発生していること、反射ガウシアンビームにサイドローブが生じていることをシミュレーションにより突き止めている。

第３章では、クラッドモードの発生による損失は、GC/DBR 境界での不連続な実効屈折率の変化に起因すると考察し、アポダイズド DBR 領域を設けることで実効屈折率の平滑化を狙っている。また、反射ガウシアンビームのサイドローブは、ビームウェスト外での反射光とガウシアン

ビームとの不一致が原因と考察し、ビームウェストが GC 開口サイズであった従来の CRIGM からの再設計を行なっている。GC 長とチャネル幅の二次元方向で GC 開口サイズを最適化し、表面実装レーザ用 CRIGM を設計している。解析計算により反射光のガウシアンビームとの一致率が、それぞれ 0.99、0.92 となることが予測されている。

第４章では、表面実装レーザ用 CRIGM を作製し、特性評価を行なっている。グレーティングパターンは電子ビームリソグラフィにて作製しており、高フィルファクタ実現のための条件出しについて詳述している。また、反射位相およびガウシアン反射率を測定する光学系の構築について述べている。反射位相が共鳴波長付近で約 2πの変化することを確認している。共鳴波長での表面実装レーザ用 CRIGM とユニフォーム CRIGM の反射率は、ガウシアン径 7.2 μm 用 CRIGM で 75%と 45%、ガウシアン径 3.6 μm 用 CRIGM で 90%と 80%を示しており、反射率の改善が実証されている。

第５章では、CRIGM を外部ミラーとしたレーザ発振を実証し、発振波長変化抑制効果の検証を行なっている。VCSEL の片側ミラーを取り外した Half-VCSEL と CRIGM を対向させ、垂直外部共振器型面発光レーザ（VECSEL）を構成している。Half-VCSEL には、電気配線が不要で位置合わせが容易な光励起半導体レーザのゲインミラーを使用し、CRIGM には第４章で作成した表面実装レーザ用 CRIGM を使用している。実装トレランス評価のため、ナノメートルの精度でレーザ共振器長変化特性を測定可能な光学系を構築している。多層膜ミラーを外部ミラーとした VECSEL では、発振波長が共振器長に対して線形に変化する様子を確認している。CRIGM を外部ミラーとした VECSEL では、発振波長が共鳴波長付近で固定化している様子を確認している。

第６章では、CRIGM の波長多重光源への適用可能性について論述している。複数の CRIGM をカスケード接続させ、各 CRIGM の上部に Half-VCSEL を集積させレーザアレイを構成する。導波光は他の波長で動作する CRIGM 中を伝搬させる必要がある。挿入損失の原因となる DBR 領域での反射と GC 領域での放射を低減させる構造を設計している。４波長多重で波長間隔を 20 nm としたときの各 CRIGM の特性について見積もりを行なっており、全ての波長において挿入損失が 1 dB 未満となることを予測している。

論文審査の結果の要旨

集積光回路は基板上光導波路に光学素子を集積したもので、バルク光学システムに比して、高効率で光制御が可能となり、光ファイバ通信システムや光センサシステムの重要な構成要素となっている。しかしながら、光回路基板と半導体レーザは異なる材料で構成されるため、半導体レーザの集積化が常に実用化の大きな課題となっている。モノリシック集積、異種基板接合集積、ハイブリッド集積などが、用途に応じて、研究開発されている。本論文では、実用化が最も容易なハイブリッド集積の中で、半導体レーザの集積位置や２次元配列の自由度および結合パラメータ（結合方向、波長特性、偏光特性、開口数整合など）の自由度に優れる表面実装法として、導波モード共鳴現象を導入した全く新規な実装法の可能性を理論的および実験的に検証している。まず、提案手法の基盤となる共振器集積導波モード共鳴ミラーを、理論、数値シミュレーションに

基づき具体設計し、高精度成膜技術、微細加工技術を駆使して素子を作製し、独自の評価光学系を構築し、基本特性を実証している。さらに、半導体光増幅器と組み合わせる垂直共振器型表面実装レーザの評価光学系を構築し、実際にレーザ発振を実証し、レーザ発振スペクトルが光回路に集積した共鳴ミラーの共振波長で制御できることを示している。

これらの成果は、集積光回路が提唱されてから半世紀に渡り大きな課題となっていた光源集積に関して、画期的な新方式の可能性を示すものである。今後の光回路集積技術およびデバイスの普及におおきく貢献できることが期待できる。

本論文は、レフェリー制度の確立した以下の 4 編の学術論文を基礎としている。

[1] A. Watanabe, K. Ozawa, R. Ueda, J. Inoue, K. Kintaka, and S. Ura, “An apodization method for guided-mode resonance grating with waveguide cavity,” Japanese Journal of Applied Physics, **61**, SK1008 (2022).

[2] A. Watanabe, K. Ozawa, S. Teranishi, A. Taniguchi, J. Inoue, K. Kintaka, and S. Ura, “Demonstration of small-aperture cavity-resonator-integrated guided-mode resonance mirror with grating apodization for vertical-external-cavity surface-mounted laser,” Proceedings on 11th IEEE CPMT Symposium Japan, pp. 164-167, (2022).

[3] A. Watanabe, K Ozawa, S. Teranishi, A. Taniguchi, J. Inoue, K. Kintaka, and S. Ura, “Reflection characteristics of a cavity-resonator-integrated guided-mode resonance mirror for a microdiameter Gaussian beam,” Applied Optics, **62**, pp. 3496-3501 (2023).

[4] A. Watanabe, S. Teranishi, K. Ozawa, A. Taniguchi, J. Inoue, K. Kintaka, and S. Ura, “Cavity-resonator-integrated guided-mode-resonance mirrors for hybrid integration of wavelength-multiplexed light source,” Proceedings on 73rd Electronic Components and Technology Conference, pp. 761-766 (2023).

以上から、本論文の内容は十分な新規性と独創性、工学的な意義があり、博士論文として優秀であると審査員全員が認めた。

京都工芸繊維大学

	おちょあ あすとるが へすす えどぅあるど
氏　　名	OCHOA ASTORGA JESUS EDUARDO
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 3 7　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　設計工学専攻
学位論文題目	Fundus Images Registration with Bifurcation Detection and Entropy Evaluation （分岐点検出とエントロピー評価を用いた眼底画像のレジストレーション）
審査委員	(主査)准教授　杜 偉薇 教授　梅原 大祐 教授　水野 修 京都大学医学部医学研究科眼科学　特定講師 ＊三宅 正裕

論文内容の要旨

This thesis addresses the challenge of improving fundus image registration accuracy through innovative techniques such as bifurcation detection and entropy evaluation. Accurate fundus image registration is crucial for tracking retinal changes over time, diagnosing and monitoring diseases, and ensuring consistent treatment planning. Despite its importance, existing methods often lack validation due to the absence of suitable datasets for quantitative evaluation and comparison.

Several challenges hinder the clinical implementation of fundus image registration, including the lack of standardized validation and the impracticality of many algorithms due to their long execution times. To enhance both accuracy and speed, this study employs a comprehensive feature-based registration pipeline. It proposes detecting bifurcation points in fundus images as landmarks, utilizing methods such as traditional pixel-wise segmentation, Frangi filter-based detection, and deep learning for region-of-interest delineation and feature extraction. Restrictions are introduced to mitigate localization errors, and a new metric is proposed for evaluating feature extraction quality.

The study leverages the FIVES dataset to train a U-Net deep learning model, enhancing blood vessel segmentation and bifurcation detection. U-Net is used to produce a probability map for bifurcations, creating a pseudo-ground-truth using the FIVES dataset. Experimental evaluations with the FIRE dataset, which provides ground truth for assessment, show that integrating deep learning into the registration pipeline significantly improves accuracy and efficiency. The inclusion of U-Net for bifurcation probability mapping not only enhances registration accuracy but also accelerates the process.

Results indicate that bifurcation points effectively register fundus images, performing

comparably to more complex methodologies. The research also finds that simpler transformation models can be equally effective, challenging the assumption that complexity yields better results.

Key findings include achieving an Intersection Over Union of 0.7559 for blood vessel segmentation and an Area Under the Curve of 0.626 on the FIRE dataset, with a notable 0.720 in the Longitudinal Study subset. This research advances medical imaging by providing robust, accurate, and efficient methodologies for fundus image registration, contributing valuable insights for clinical decision support systems and enhancing diagnostic precision in ophthalmology.

論文審査の結果の要旨

精度の高い眼底画像のレジストレーションは，時間の経過による網膜の変化を把握でき，診断及び疾患の観察に非常に重要である．しかし，従来の方法では，眼底画像のレジストレーションにかかる実行時間が長すぎるため，臨床での実用性ができない．

眼底画像のレジストレーションの精度及び速度を向上させるために，本研究では，眼底画像を適切に表現できる特徴量を用いた眼底画像のレジストレーション方法を提案する．眼底画像の分岐点をランドマークとし，伝統的な pixel-wise 分割法(1)，Frangi filter-based 検出法(2)，及び深層学習モデル(3)を用いて，Region of Interest (ROI)を特定し，特徴量を抽出する．Localization のエラーを低減するために，高品質な特徴量を評価する方法(1)を提案した．また，Intersection over Union (IoU)や，Area Under the Curve(AUC)等の評価法を用いて，提案法の有効性を確認した．

本学位論文は，いずれも申請者が著者に含まれる，レフェリー付きの学術雑誌論文 3 編及び国際会議プロシーディングス 2 編を元に作成された．このうちの 4 編全ての論文において申請者が筆頭著者である．

「学位論文の基礎となった論文」

(1)**A Straightforward Bifurcation Pattern-Based Fundus Image Registration Method,** Jesús Eduardo Ochoa-Astorga, Linni Wang, Weiwei Du and Yahui Peng, Sensors Vol. 23, No. 18: 7809, September 2023.

(2)**Fundus Image Registration with Binary Morphology Extraction of Feature Points,** Jesús Eduardo Ochoa Astorga, Weiwei Du, Yahui Peng and Linni Wang, The 6th International Symposium on Computer, Consumer and Control (IS3C), Page(s): 182-185, June 2023.

(3)**Enhanced Vascular Bifurcations Mapping: Refining Fundus Image Registration,** Jesús Eduardo Ochoa-Astorga, Linni Wang, Weiwei Du and Yahui Peng, Electronics Vol. 13, No. 9: 1736, May 2024.

京都工芸繊維大学

氏　　名	きん けんしん JIN JIANCHEN
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 3 8　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　設計工学専攻
学位論文題目	**同種および異種材料テーラードブランクの接合強度，成形性および耐食性に関する基礎的な研究**
審査委員	(主査)教授　飯塚 高志 教授　森田 辰郎 教授　射場 大輔

論文内容の要旨

軽金属や複合材料の使用は輸送機器の軽量化を実現する有効な手段である．しかしながら，自動車の安全性や生産コストから考えると，軽金属や複合材料で鉄鋼材料を完全に代替することは困難である．したがって，素材のマルチマテリアル化が現実的で有効な方法であり，鋼/アルミニウムテーラードブランクの実用化が求められている現状にある．鋼/アルミニウムテーラードブランクを実現するには，三つの重要な課題を解決しなければならない．すなわち，接合強度の向上，成形性の確保および電界腐食の抑制である．また，金属板材は本質的に異方性であるため，同種金属のテーラードブランクであっても異方向の接合材であれば，素材とは異なる変形挙動や成形性を示すと考えられる．このような観点から，本研究は同種および異種金属テーラードブランクの接合強度，成形性および耐食性に関する基礎的な課題について現状を確認し，解決策を検討することを目的とする．

本論文は 9 章で構成され，まず第 1 章において異種金属接合における現状についてまとめた．次に第 2 章では，鋼とアルミニウムを供試材料として，本研究室が開発した突合せレーザ接合法を用いて，鋼/アルミニウムテーラードブランク作製し，異種金属テーラードブランクの接合強度の課題について取り扱った．突合せレーザ接合の各加工パラメータを変化させて作製した接合材に対して，一軸引張試験およびエネルギー分散型分光（Energy Dispersive X-ray Spectroscopy, EDS）分析を行い，接合材の接合強度に及ぼす各加工パラメータの影響および接合強度と金属間化合物層の形態の関連を明らかにした．十分なレーザ出力で接合を行うと，低加圧力と高加圧力の条件で母材アルミニウムと同程度（70 MPa 以上）の高接合強度が実現できる．金属間化合物については，鋼側に幅広い鉄リッチな金属間化合物層が形成され，オフセット位置によって鉄リッチな金属間化合物層の形態が変化することわかった．一方，アルミニウムリッチな金属間化合物層の厚さは均一であるが，複雑な界面構造となることが確認できた．

次にテーラードブランクの成形性を理解するために，第 3 章および第 4 章で同種異方向材料を，第 5 章で異種金属テーラードブランクを作製し，前者には一軸引張試験および深絞り試験を，後者にはエリクセン試験，張出試験，穴広げ試験などの成形性試験を行い，同種異

方向テーラードブランクの変形挙動と深絞り性，異種金属テーラードブランクの成形性を明らかにした．異方向テーラードブランクでは，変形抵抗の差が小さいほど全伸びが大きくなり，破断は変形抵抗が低い側で発生する．破断の形態についてはおおむねランクフォード値によって決定されることがわかった．また，同種異方向アルミニウム接合材の耳の個数および発生位置は，基本的に材料の方向に依存しており，接合ビード部で耳の増幅と吸収が観察された．異種金属テーラードブランクの破断形態については，基本的に接合強度不足および接合ビードの延性不足に起因する二つの様式が存在すると考えられる．

第 6 章から第 8 章において複合サイクル試験を行い，異種金属テーラードブランクの耐食性および腐食メカニズムを調査した．第 6 章では，鋼/アルミニウム合金の摩擦圧接材の耐食性を明らかにした．試験開始後，初期の接合強度を約 30 サイクルまで維持するが，その後，接合強度が急激に低下し，50 サイクルで 0 MPa になった．第 7 章では鋼/アルミニウム合金摩擦攪拌接合材の複合サイクル試験を行った．やはり初期段階では強度変化は生じず，20 サイクルを越えた辺りから緩やかに低下し始めた．30 サイクルを越えると急激な強度低下がみられ，最終的に 40~50 サイクルで実質的に 0 MPa となった．腐食メカニズムについては，鋼を覆ったアルミニウム被覆部が先に腐食され，その後に界面近傍のアルミニウム側が三角形状に浸食される．第 8 章では，接合界面近傍に金属間化合物がある異種金属レーザ接合材について耐食性と腐食のメカニズムを検討した．レーザ接合材では，接合強度が低くなるほどその接合強度が長く維持し，逆に接合強度が高くなるほど腐食により受ける減少が大きい．接合強度が低い接合材については，鉄リッチな金属間化合物層のアルミニウム元素割合が高いため，腐食の速度が遅くなると考えられる．

最後に第 9 章で結論をまとめるとともに展望を簡単に述べている．本論文で扱った鋼/アルミニウムの突合せレーザ接合は国際的にほとんど研究例のないもので，特にここで得られた成形性や耐食性については全く新しい知見であり価値が高い．レーザ接合材の界面近傍の微細構造とその接合強度との関連について明らかにしたが，これらは大変意義のある結果であると考えられる．成形性試験では，接合材の基本的な変形挙動を解明したことに加えて，破断のメカニズムについての貴重な情報を提供できた．複合サイクル試験を用いた評価では，特にレーザ接合材との耐食性や腐食メカニズムの差異を確認できたことは非常に価値あるものである．このように本論文で展開された研究により，鋼/アルミニウムテーラードブランクの実用化に対する課題を解決できたとは言えないものの，実用化のための重要な知見を体系的に整理できた．今後，得られた結果を基にして，さらなる接合強度向上，成形性の確保および腐食の抑制を行うことによって，輸送機器の軽量化による二酸化炭素排出量を低減し，持続可能な社会の構築に役立てることができる．

論文審査の結果の要旨

鋼/アルミニウムの異種金属接合については，輸送機器の軽量化やマルチマテリアル化の観点から求められているが，強度および電界腐食の問題から中々実用化できない課題である．さらに板材についてはテーラードブランクにすることによって，より効率的な利用が可能と

なるが，この場合は成形性という課題が追加される．これら異種金属接合材の課題については，実はあまり研究されていないのが現状である．この研究は，そのような異種金属接合材に関する課題について総合的に取り扱ったものであり，実際に非常に貴重な実験結果が得られている点で評価が高い．

特にこの論文で主として扱っている鋼/アルミニウムの突合せレーザ接合に関しては，国際的にほとんど研究された例がなく，その成形や腐食などに関しては全く研究されていないといって過言ではない．接合強度と界面構造の関係については，金属間化合物層の状態が大きく変化することは大変興味深く，全く新しい知見である．さらに，それら界面構造と成形時の破断や腐食メカニズムの関係など，これまでにない多くの知見が得られている．摩擦攪拌接合材の腐食メカニズムについては，界面の腐食より被覆アルミニウムの腐食が先行することやレーザ接合によって生じる金属間化合物層の存在が腐食の進行を遅らせることなどは，大変興味深い内容であり，電界腐食の抑止に関する新しいアイデアの基になる可能性がある知見である．残念ながら最終的に問題解決というところまでは行っていないものの，得られた知見は非常に有用であり，今後の発展も期待できるものである．

このように，この研究は新規性やオリジナリティが高く，また研究から得られた成果は工学的・工業的に非常に有用なものである．将来的に新たな異材接合材の強度－成形性－耐食性の理論の構築に繋がるものであると考えられ，博士の学位を授与するに値する内容であると判定できる．

以下に学位論文の内容に関連している 4 編の公表論文を示す．

公表論文（査読付き国際会議プロシ―ディングを含む）

[1] J. Jin, H. Sakamoto, T. Iizuka: “Deformation of dissimilarly oriented aluminum sheets welded by friction stir welding under uniaxial tension perpendicular to the weld bead”, Journal of Materials Processing Technology, Vol.319 (2023), 118065.（第 3 章）

[2] J. Jin, H. Sakamoto, T. Iizuka: “Correlation between sheet formability and joint strength of A1050-O/SPCC butt laser welded tailored blanks”, Materials Research Proceeding, Vol 41(2024), pp.1343-1352.（第 5 章）

[3] J. Jin, T. Iizuka: “Combined-cycle corrosion testing of steel/6000 series aluminum alloys joined by friction welding”, Proceedings of 24th International Conference on Material Forming (ESAFORM2021), (2021), pp. 3665/1-3665/9.（第 6 章）

[4] 金建晨，阪本大夢，飯塚高志: “SPCC/A6061-T6 摩擦攪拌接合材の複合サイクル試験におけるガルバニック腐食挙動”，塑性と加工, 64 巻 753 号(2023), pp. 188-193.（第 7 章）

京都工芸繊維大学

氏　　名	ちゃん ふぉ かん なん TRAN VO KHANH NGAN
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 3 9　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　設計工学専攻
学位論文題目	A Study on Prediction of Plasma Discharge Video （プラズマ発光動画の予測に関する研究）
審査委員	(主査)教授　寶珍 輝尚 教授　澁谷 雄 教授　延原 章平 准教授　野宮 浩揮

論文内容の要旨

核融合科学研究所では大型ヘリカル装置を用いた核融合科学実験が行われている。実験中に異常な発光が生じることがあるが、異常な発光は実験装置を損傷することがあり、事前の予測が求められている。予測に当たり、近年注目されている深層学習を使用しようとすると、異常発光のデータ（ビデオ）が十分でなく、十分なデータ数を得るための異常発光ビデオの生成が望まれる。また、プラズマ放電実験中にオペレーターがペレットを投入し、発光が急変することがある。このようなオペレーターの介入によるプラズマ発光の急変に対応したプラズマ発光ビデオの生成も求められている。そこで本研究では、これらの通常ではないプラズマ発光ビデオの生成に関する検討を行った。

まず、異常発光プラズマビデオを敵対的生成ネットワーク（GAN）と補間により生成する手法を提案している。異常発光の発生位置をランダムに決定し、異常発光後の暗画像の数を暗画像の分布をもとにして決定する。動画を構成する画像の種別（通常か異常）に応じて、GAN を用いて通常発光の画像、または、異常発光の画像を生成する。生成された画像間を補間して発光が滑らかに変化するプラズマ発光ビデオを生成する。提案手法を実験的に評価し、ビデオの非類似度 Fréche Video Distance（FVD）と目視により、良好なビデオの生成を確認している。

次に、オペレーター介入を含むプラズマ発光ビデオの生成手法を提案している。ここでは、ペレット追加により生じる 1 枚の画像からそれ以降の画像列を生成する。本研究では、この画像列の生成を 3 段階に分けて実現する。まず、Conditional GAN を用いて、最初、もしくは、オペレーターのペレット投入により生じる 1 枚の画像からそれ以降の 4 枚の画像を生成し、5 枚の画像とする。次に、この 5 枚の画像からそれ以降の 5 枚の画像を畳み込み LSTM により生成し、10 枚の画像とする。以降、10 枚の画像から以降の 10 枚の画像の畳み込み LSTM による生成を繰り返し、60 枚の画像列からなるプラズマ発光ビデオを生成する。提案手法を実験的に評価し、平均二乗誤差、FVD ならびに目視により、良好なビデオの生成を確認している。

論文審査の結果の要旨

本研究では、核融合科学実験におけるプラズマ発光の予測を行うための機械学習において必要とされながら、核融合科学実験からは十分なデータが得られない異常プラズマ発光ビデオ、ならびに、オペレーターの介入によるプラズマ発光の急変に対応したプラズマ発光ビデオの生成に関する検討を行っている。

異常プラズマ発光ビデオの生成では、敵対的生成ネットワーク（GAN）による画像生成、生成された画像が異常発光画像か否かの識別、異常発光後の暗画像分布をもとにした暗画像数の決定ならびに生成された画像間の補間による画像生成という手法を提案している。提案手法を実験的に評価し、ビデオの非類似度 Fréche Video Distance（FVD）と目視により良好なビデオの生成を確認している。

オペレーター介入を含むプラズマ発光ビデオの生成手法では、最初またはオペレーター介入により生じる 1 枚の画像から Conditional GAN を用いてその後の 4 枚の画像を生成し、次に、この計 5 枚の画像からその後の 5 枚の画像を畳み込み LSTM により生成し、以降、10 枚の画像からその後の 10 枚の画像を畳み込み LSTM により生成する手法を提案している。提案手法を実験的に評価し、平均二乗誤差、FVD ならびに目視により良好なビデオの生成を確認している。

核融合科学では、プラズマ発光の予測が強く要求されている。機械学習による精度の高い予測のためには、通常の発光ビデオと同数程度の異常発光ビデオを使用することが望まれるが、実際の実験では異常発光はあまり見られない。また、オペレーター介入を伴うプラズマ発光の予測では、介入によるプラズマ発光の急変に対応する必要があり、複数の画像列から推定を行う従来手法では対応不可能である。本研究では、これらの課題を解決している。

本研究では、核融合科学実験におけるプラズマ発光の高精度の予測に不可欠な異常プラズマ発光ビデオの生成ならびにオペレーター介入プラズマ発光ビデオの生成を可能としており、核融合科学の発展に大きく貢献できるものと考えられる。

本論文は、申請者を筆頭著者とする査読を経た以下に示す 3 編の論文を基礎としている。

1. Tran Vo Khanh Ngan, Teruhisa Hochin, Hiroki Nomiya, Hideya Nakanishi, Mamoru Shoji: Generation of Unusual Plasma Discharge Video by Generative Adversarial Network, International Journal of Software Innovation (IJSI), Vol.10, No. 1, 24 pages, 2022.
2. Tran Vo Khanh Ngan, Teruhisa Hochin, Hiroki Nomiya, Hideya Nakanishi, Mamoru Shoji: Prediction of Plasma Discharge Video by Convolutional Long Short Term Memory, Proceedings of 2022 IEEE International Conference on Big Data, pp. 6821-6823, 2022.
3. Tran Vo Khanh Ngan, Teruhisa Hochin, Hiroki Nomiya, Hideya Nakanishi, Mamoru Shoji: Generation of Plasma Discharge Video from a Single Frame by Using Conditional GAN, Accepted to IEEE/ACIS 26th International Conference on Computer and Information Science, 7 pages, 2024.

京都工芸繊維大学

氏　　名	ぐえん ごく み NGUYEN NGOC MY
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 4 0　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　設計工学専攻
学位論文題目	Studies on Effective Preparation of Medical Image Dataset for Assisting Machine-Learning-based Computer-Aided Diagnosis （機械学習に基づくコンピュータ支援診断のための医用画像データセットの効率的な作成に関する研究）
審査委員	（主査）准教授　福澤 理行 教授　寶珍 輝尚 教授　水野 修

論文内容の要旨

CT, MRI, 超音波などの医用画像診断の分野では，コンピュータ支援診断 (CAD)への機械学習の応用が急速に進んでいる．モデルの学習には教師データセットの作製が不可欠であるが，医用画像の場合，匿名化を医療機関内で完結させた上で，複数の医師による診断情報をクロスアノテーションとして対応付けさせる必要があること，画像モダリティや診断目的によって必要な前処理が多様であることの 2 点が効率的なデータセット作製の障壁となっている．そこで，本論文では，医用画像の効率的なデータセット作製に特化した画像処理の統合システムを提案する．

提案システムは，医用画像の匿名化を医療機関内で自動完結可能で，複数の医師によるクロスアノテーションを累積的に対応付けるモダリティ共通部と，モダリティや診断目的によって最適化された半自動の前処理部から構成される．システムの有効性は，モダリティと診断目的が異なる複数の応用において実験的に調べられた．

MRI 画像からの乳癌検出に関する応用では，関心領域(ROI)を重畳表示するサムネイルの生成と，Radiomics および尤度特徴量の抽出に関する前処理部が開発された．各特徴量を用いてボクセル毎の腫瘍予測モデルを試作した結果，感度 80.4%，F1 スコア 79.5%，精度 89.7%の性能を示した．

乳癌摘出術に伴う乳房再建術の整容性評価に関する応用では，モダリティ共通部分を用いて 2D/3D 乳房画像の増分匿名化とクロスアノテーションが医療機関内で実現できた．さらに，2D 乳房画像からのフィンガープリント特徴量および 3D 乳房画像からの幾何特徴量を半自動抽出できる前処理部が実現でき，一部の特徴量は医師の整容性評価スコアとの相関を示した．

新生児超音波動画像診断に関する応用では，超音波プローブ静止シーンの抽出機能が前処理部として開発された．本機能は，動画像の 64 フレーム断片毎に求めた各画素の周波数特徴量とランダムフォレストモデルによって実現され，特異度 100%における感度が 93%と高い検出性能を示した．

以上の通り，提案システムは，複数の医用画像診断の教師データ作製において有効性が認められた．症例数が限られる特定疾患の画像診断への機械学習の応用に幅広く適用可能と考えられる．

論文審査の結果の要旨

本論文では，機械学習を用いた医用画像診断における教師データセットの効率的な作製に関する画像処理の統合システムを提案している．提案システムは，画像匿名化やクロスアノテーションを扱うモダリティ共通部と，モダリティや診断目的に応じた半自動の前処理部から構成される．モダリティ共通部は再利用が容易で，処理を医療機関内で完結できる点で実用性が高いと考えられる．前処理部は最低限の手作業と自動化スクリプトの組み合わせによって半自動化されているため，特定疾病への新規応用でもデータセット作製効率の向上が期待できると考えられる．

乳癌検出に関する応用では，ROI 重畳表示サムネイルの自動生成によってアノテーション効率が向上された．Radiomics および尤度特徴量抽出によって，画像そのものを入力とする学習モデルに比べて所要症例数を低減できた．乳房再建術の整容性評価に関する応用では，画像の増分匿名化を医療機関内で完結することで症例収集効率が飛躍的に向上された．また，2D/3D 乳房画像からの特徴量抽出によって，症例数が限られる段階でも整容性評価モデルの学習が可能となった．新生児の超音波動画像診断に関する応用では，超音波プローブ静止シーンの自動抽出機能が開発され，これまで困難であった 1000 症例規模の動画像アーカイブの後方視解析が可能となった．

以上の通り，本論文の提案手法は，複数のモダリティで教師データセットの効率的な作製に成功しており，症例数が限られる特定疾患の医用画像診断に広く応用可能であるものと評価できる．

本論文は，査読を経た以下に示す 4 編の論文を基礎としており，このうち 3 編は申請者が筆頭著者である．

1. My N. Nguyen, R.Kawamidori, Y. Kitsunezuka, M. Fukuzawa, Discrimination of probe-stabilized scene from neonatal cranial ultrasonic movies by supervised learning for selective detection of pulsatile tissues, Medical Imaging and Information Sciences, Vol. 41 (2), pp. 46-52, 2024, DOI: 10.11318/mii.41.46
2. My N. Nguyen, K. Harada, T. Yoshimoto, N. P. Duong, Y. Sowa, K. Sakai, and M. Fukuzawa, Integrated dataset-preparation system for ML-based medical image diagnosis with high clinical applicability in various modalities and diagnoses, SN Computer Science, Vol. 5:676, 2024, DOI: 10.1007/s42979-024-03025-7
3. My N. Nguyen, R. Kawamidori, Y. Kitsunezuka, and M. Fukuzawa, Retrospective Analysis of a Large-Scale Archive of Ultrasonic Movies for Ischemic Diseases of Neonatal Brain, Proc. of Intelligent Systems and Data Science (ISDS 2023), Communications in Computer and Information Science, Vol. 1949, pp.55-64, 2024, DOI: 10.1007/978-981-99-7649-2_5.

4. K. Harada, T. Yoshimoto, N. P. Duong, My N. Nguyen, Y. Sowa, and M. Fukuzawa, A New Integrated Medical-Image Processing System with High Clinical Applicability for Effective Dataset Preparation in ML-Based Diagnosis, Proc. of Intelligent Systems and Data Science (ISDS 2023), Communications in Computer and Information Science, Vol 1950, pp. 41-50, 2024. DOI: 10.1007/978-981-99-7666-9_4

京都工芸繊維大学

氏　　名	ちぇん しぇんじょう **陳　晟洲**
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 4 1　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　設計工学専攻
学位論文題目	Consumer Perceptions of Color and Color Changes in Textiles （繊維製品における色と色変化に対する消費者の認識）
審査委員	（主査）准教授　北口 紗織 教授　佐久間 淳 教授　木谷 庸二 京都工芸繊維大学　名誉教授　*佐藤 哲也

論文内容の要旨

繊維産業の持続可能な発展は、繊維製造プロセスのみならず、消費者の認識にも大きく依存する。特に繊維の黄ばみ、汚れ、経年劣化に伴う色彩変化に対する消費者の認識が、繊維製品の製品寿命に影響を与える。色彩変退色のメカニズム、防止方法、評価手法に関する先行研究は多岐にわたるが、消費者の認識に焦点を当てた議論は十分になされていない。既存の白色度指数（Whiteness Index）および黄変度指数（Yellowness Index）は、適用範囲が極めて限定的であり、消費者の認識を完全には反映し得ていない。これを踏まえ、本研究では、繊維製品の色彩変化に対する消費者の認識特性を「黄ばみ」、「経年変化」、「汚れ」の観点から詳細に調査し、各属性の相違に注目した研究を行った。また、黄ばみ、経年変化、汚れを評価する既存指標の適用性と有効性について検証を行い、測定された色彩パラメータに基づく経年変化の視覚的認識の数量化を行った。

第 1 章では、研究の背景として、繊維製品における色彩変化の物理的側面と心理的側面の両方からのアプローチの重要性を論じ、本研究の目的、対象課題、および論文構成を示した。第 2 章では、本研究に関連する先行文献をレビューし、人間の視覚システムの概要、測色理論、Whiteness Index および Yellowness Index の指数とその応用、視感評価手法、繊維素材に対する黄変および経年変化の定義やメカニズム、変退色予防および評価方法について述べた。また、実験で使用するサンプル作成技術および統計分析手法についても示している。第 3 章では、「白色」、「黄色」、「黄変」、「黄ばみ」、「汚れ」、「古めかしさ」に関する色彩認識の範囲を調査し、これらの用語の類似点および相違点を測色パラメータの観点から比較した。また、これらの評価における Whiteness Index および Yellowness Index の適用性と有効性を検証した。第 4 章では、基準色（変化前）と変化後の色差に着目し、基準色の違いが「黄変」、「黄ばみ」、「汚れ」、「古めかしさ」の色彩変化の認識範囲および許容範囲に与える影響を議論し、その差異を比較した。第 5 章では、繊維製品における「古めかしさ」に関する認識と色彩パラメータの関係を論じ、評価式を示した。第 3 章および第 4 章ではテキスタイルサンプルを使用したが、第 5 章では認識の数量化を行うために、色彩キャリブレーションされたモニターを用いて画像サンプルを作成し、評価実験を行っ

た。第 6 章では、本研究の結論をまとめ、課題点および今後の展望を述べた。

論文審査の結果の要旨

色彩堅牢性は、繊維製品の品質において重要な要因とされている。消費者調査でも、機能性よりも退色や変色が衣類の廃棄の主要な原因であることが示されている。近年、繊維製品においても環境負荷の低減、製品寿命の延長、リサイクル手法の確立といった課題がある中で、環境負荷の高い染色プロセスに関する多面的な議論が行われており、色彩堅牢性の是非に関する議論も進展している。その中で、本研究は、製品デザインにおいて重要な要素となる消費者の色彩および色彩変化に対する認識、特に色彩変化の許容度の理解を深めるものである。また、本研究では、従来の研究で行われてきた白色度や黄色度の評価に加え、繊維製品における汚れや経年劣化の概念を細分化し、消費者の認識を測色パラメーターと関連づけて詳細に分析した。特に、黄色度や黄変度の評価指標として確立されている Yellowness Index の適用性を検証し、消費者の黄変に対する認識を評価するには不十分であることを示し、新たな指標の必要性を提起している。さらに、経年劣化の認識に関し、色彩パラメーターを用いた数量化方法を提示し、指標設計の具体的方法を示すことで、消費者の認識を反映した指標づくりの基礎を築いた。また、「黄変」「黄ばみ」「汚れ」「古めかしさ」に対する色彩認識に加えて、色彩許容度に関する分析では、基準色（変化前）と変化後の色彩特性を関連付けた結果、CIE が提唱する均等色空間における色差の概念では許容度を適切に示すことが難しく、基準色の寄与を考慮する必要性が示された点は、今後の指標づくりの重要な知見であり高く評価できる。

本論文の基礎となっている学術論文は、査読付き学術学会誌に掲載されたもの 1 編と採択された論文 1 編、国際会議で発表を行った査読付き要旨 1 編である。

1. Shengzhou Chen, Tetsuya Sato, Saori Kitaguchi, Investigation of yellowing perception: comparison of “whitish,” “yellowish,” “yellowing,” “yellowed,” “aged” and “dirty” colors, Textile Research Journal, Vol.94(5-6), pp. 622-635, 2024.
2. Shengzhou CHEN, Saori KITAGUCHI, Influence of Textile Color on Consumer Color Perception—Perception of Yellowing, Aging, and Dirtiness in Near-White Textile—, The Japan Research Association for Textile End-Uses (accepted).
3. Shengzhou Chen, Saori Kitaguchi, AGED COLOR PERCEPTION, Book of proceedings: AUTEX 2024 World Conference, Czech Republic, 2 pages, ISBN: 978-80-7494-705-6, 2024.

京都工芸繊維大学

氏　　名	ほん ちょんとん HONG JUNTONG
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 4 2　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　設計工学専攻
学位論文題目	Bridging Source Code and Natural Language for Code Search （コード検索のためのソースコードと自然言語の接続手法の提案）
審査委員	(主査)教授　水野 修 教授　澁谷 雄 教授　馬　強 准教授　杜 偉薇

論文内容の要旨

コード検索は，自然言語で書かれたクエリに基づいて，大規模なコードリポジトリから関連性の高いコードを探し出すタスクであり，ソフトウェア工学において重要な役割を果たしている．このタスクは，ソフトウェア開発において多角的な改善を可能にする．例えば，ターゲット機能を実装する際に既存のコードを少し修正して利用したり，同様の機能の実装にインスピレーションを得たりすることができる．また，高品質なリポジトリから適切に書かれたコードを見つけることで，大規模プロジェクトの機能モジュールを再利用する際の迅速な特定が可能となる．そのため，コード検索の性能向上が近年注目されている．

コード検索モデルは，コードとクエリの間に存在するギャップを埋めるという大きな課題に直面している．このギャップは，プログラミング言語で書かれたコードと自然言語で書かれたクエリが本質的に異なる性質を持つためである．そのため，コードとクエリの間の関係を効果的に把握し，確立することが重要である．従来の情報探索(IR)ベースの方法は，主に情報探索技術に依存し，外部知識データベースを通じて特徴を拡張し，テキスト類似性技術を用いてアライメント(語の並び)を捉えようとするが，クエリの理解や単語特徴の適切な表現に課題がある．これらの課題に対処するために，深層学習(DL)技術を用いたコード検索方法が注目されている．DL ベースの方法は，コードやクエリのセマンティクスを学習し，未見の特徴をより適切に扱うことで，IR ベースの方法の限界を克服する可能性がある．しかし，DL ベースの方法にも課題が存在し，特に異なるエンコーダによって異なるコードトークンの表現を生成する問題や，新しいトークンを作成する際に語彙の問題が生じることがある．さらに，コードをプレーンテキストとして扱うと語彙が過剰となる問題が発生し，階層的な構造情報を学習することが難しくなる．

このような課題に対処するため，本論文では以下の点に焦点を当てる．1）コードとクエリのアライメント学習の探求，2）特徴エンジニアリングへの過度の依存とコード埋め込みの表現強化の探求，3）語彙なしでコード埋め込みを学習する新しいアプローチの探求．これらの課題に対応するため，統合アライメントモデルとグローバルアライメントモデルを提案し，またコードを画像として表現するモデルも提案する．実験結果は，これらのアプローチがコード理解を強化し，新

しい洞察を提供することを示している．

論文審査の結果の要旨

本論文は，ソフトウェア開発において自然言語で書かれたクエリに基づいて大規模なコードリポジトリから関連性の高いコードを探し出すタスク「コード検索」の精度を向上させる手法についての研究を行ったものである．従来の手法は主に情報探索(IR)技術に依存していたが，近年は深層学習(DL)技術を応用した手法が見られるようになった. DL 技術ではコードやクエリのセマンティクスや意味を学習することができ，より精緻な検索を可能にすると期待されている．しかし，一方で，DL ベース手法にはエンコーダによる内部表現の違いや，多量の語彙を扱うことができなくなる問題が知られており，解決が必要であった．

多くの DL ベース手法は，コード特徴の拡張に依存してコードとクエリの間のアライメント(語の並び)学習を促進しようとするのに対し，提案する統合アライメントモデルは，限られた特徴エンジニアリングの下でコード検索性能を向上させることを目指した．

そのために，コードとクエリの間のアライメントを捕捉するための新しいアライメント学習アプローチを提案した．また，クロスモーダルアライメントを提案し，コード検索の性能を向上させる効果を示している．クロスモーダルモデルの有効性と改善を測定するための評価実験をいくつか実施している．評価実験の結果，統合アライメントモデルが限られた特徴の下で従来の研究よりも良好な性能を発揮することを示した．

また，コードとクエリの埋め込みを多様で特徴的な表現に変換し，密なグラフ畳み込みネットワークを提案することでグローバルアライメントモデルを提案した．評価実験から，提案モデルがコード検索の性能を大幅に向上させ，以前の研究を大きく上回ることを確認した．

また，コードやクエリをプレーンテキストで扱うことに起因する過剰な語彙の問題に対応するためにコードをテキストではなく画像で扱う手法の検討も行っている．コードを画像として扱うことで語彙を考慮せずに学習データとして扱うことができることを示した．

以上の通り，本論文において提案された手法は，コード検索技術の精度向上に寄与しており，ソフトウェア開発におけるコスト削減や信頼性向上につながることが期待できる．

本論文は，以下に示す 3 編の査読を経た論文を基礎としており，これらは全て申請者が筆頭著者である．

[1] Juntong Hong, Eunjong Choi, Kinari Nishiura, and Osamu Mizuno, “Global Alignment Learning for Code Search,” In Proc. of 22nd International Conference on Software Engineering Research, Management and Applications (SERA2024), (in press), 6 pages, May 2024. (Honolulu, HI, USA)

[2] Juntong Hong, Eunjong Choi, and Osamu Mizuno, "A Combined Alignment Model for Code Search," IEICE Transactions on Information and Systems, E107-D(3), pp. 257-267, March 2024.

[3] Juntong Hong, Osamu Mizuno, and Masanari Kondo, "An Empirical Study of Source Code Detection Using Image Classification," In Proc. of 10th International Workshop on Empirical Software Engineering in Practice (IWESEP 2019), 6 pages, December 2019. (Tokyo, Japan)

京都工芸繊維大学

	おがた かずひろ
氏　　名	**緒方　胤浩**
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 4 3　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　デザイン学専攻
学位論文題目	**フードデザインの枠組みとデザインリサーチの応用に関する研究** **ーフード 3D プリンタを活用した未来の食の探求**
審査委員	(主査)教授　水野大二郎 教授　櫛 勝彦 准教授　津田 和俊

論文内容の要旨

本論文は、デザイン分野における「フードデザイン」の枠組みを整理しつつ、未来の食を探るためのデザインリサーチの方法論を提示することを目的とした実践的デザイン研究の成果である。

第1章では、本論文の背景と目的を述べるとともに、研究の対象となる「フードデザイン」の定義と範囲について論じた。第2章では、国内外のフードデザインおよびフードデザインリサーチの歴史的な変遷を丹念に辿り、フードデザインの対象が、食器や調理器具などの道具のデザインから、食体験やサービス、さらには食をめぐるシステム全体へと拡張してきたことを示した。第3章では、フードデザインに関連する新興研究領域として、ヒューマンフードインタラクションと 3D フードプリンティングの両分野を中心に、それぞれの研究動向と課題をレビューし、その上で、これらの領域の知見をフードデザインリサーチの活用法について考察を行った。

以上の理論的考察を踏まえ、第4章のオートエスノグラフィによる調査では、フード 3D プリンタを用いた実証実験を行い、デザイン原則を導き出した。さらに第5章のワークショップでは参加型デザインのアプローチを応用し、フードデザインの更なる設計要件を明らかにした。

これらの理論的・実践的デザイン研究を通じて得られた知見を統合した本論は、フードデザインに対するデザイン研究の可能性を明らかにした。ユーザ視点に立ったオートエスノグラフィ法および参加型デザインの手法の導入がフードデザインに対する有効なアプローチであることを明らかにした一方、食に関する多様な文脈の理解や人間中心主義を超えた視座の導入も今後の課題として明らかとなった。結論として、本研究は日本におけるフードデザイン研究の理論的・実践的基盤の構築に貢献し、より豊かで持続可能な食の未来を実現するデザインリサーチの新たな地平を切り拓いた。また、学際的連携を深め創造的な融合の追求が、フードデザインの更なる発展に向け必要であることを展望として示した。

論文審査の結果の要旨

食をめぐる問題の危機感の高まりは、過去数十年に渡り、食料安全保障のための技術発展と共振してきた。一方、生産システムの工業化や画一化は、環境負荷や生産地域の自然破壊や食料廃棄などの問題を招いてきた。このような背景のもとフードデザイン領域が創出され、従来食べなかった食材やその加工法、食べ方など、持続可能な食の探求が検討されている(Cerpina and Stenslie 2022)。このような比較的新しいデザイン対象の学術的体系化の動きは、2009年のInternational Food Design Societyの設立に始まり、2016年に初めて刊行された国際ジャーナルが現在まで継続され、フードスタディーズ分野として、領域横断的に発展している(Bonacho et al. 2018)。一方、我が国におけるフードデザインの領域は、デザインリサーチにおいて比較的新しいものであるどころか、十分に議論されていない。

以上の今日の社会的・学術的背景を前提に本論は、日本のデザインリサーチにおいてほとんど議論されていない「フードデザイン」についての枠組みを第1章において整理し、第2章は、国内外のフードデザインおよびフードデザインリサーチの変遷を整理、考察するものであることを理解した。その結果、本研究はフードデザインの変遷および概念の拡張に対する領域区分を示すことができた。この区分により、フードデザインの対象が食器や調理器具などの道具から、体験やサービス、システムへの拡張を明らかにしたことを確認した。また、第3章はフードデザインと関連する新たな研究領域として注目されるヒューマン・・フード・インタラクション(HFI)と3Dフードプリンティング(3DFP)の動向をレビューし、近年注目される「フードテック」も含め、フードデザインは人間と食の多様な関わり方を見据えつつ推進すべき領域であることを確認した。

以上の理論的検討を前提に、諸問題の解決策として期待される未来の食を探るべく実証的デザインリサーチを展開した第4章では、フード3Dプリンタを用いた未来の食体験のためのデザイン原則を導出するために、オートエスノグラフィ法を用いた調査を実施したことが理解された。その結果、「理想と現実を調和するデザイン」、「人と食べもの・人と人をつなぐデザイン」、「健康的な食を安全にファシリテートするデザイン」という三つの基本的枠組みが導出されたことを確認した。第5章ではフード3Dプリンタを活用しながら、参加者とともに未来シナリオを作成し、プロトタイピングを行うワークショップを実施した。その結果、「未来シナリオを3Dプリント食品と連動させる」、「結果のクオリティを高めるための変数の絞り込み」、「テクノロジーを道具として使い、つくることで学ぶこと」、「予想外の結果に即興的に応える」、「馴染みのある食から新たな食へとアイデアを展開する」という五つのデザイン要件が基本的枠組みの上に提示されたことを確認した。

第6章では、第4章および第5章の事例研究をKoskinenら(2012)が示したデザインリサーチの分類に基づき分析した。第4章がプロトタイプを通した生理的、心理的な分析などを行う実験(Lab)としてのデザインリサーチと、エスノグラフィ調査やグラウンデッド・セオリー・アプローチなどの社会科学的データ分析を行うフィールド(Field)におけるデザインリサーチであったことに対し、第5章は、フィールド(Field)的な分析に加えて、展示(Showroom)におけるリサーチの要素も含んでいたことを示した。つまり、ワークショップという場で参加者が能動的に自身、食品、未来体験の関係性を問い、試作物の制作を通して知の貢献となすデザインリサーチのあり方が、フードデザインにおいても有効であることを明らかにした。

本研究を通して、デザインリサーチがフードデザインに貢献する可能性として、ユーザ視点に立ったデザインリサーチの実施により、フードテック関連研究に見られる技術主導のアプローチに偏ることなく、人間と食の多様な関わり方を見据えた研究と実践を推進できる可能性が示された。状況的学習としてのフ

ード3Dプリンタの利活用や、作った料理を介した対人インタラクションの変化など、日常的実践と連動するフードデザインの総体的な知見を本研究は創出できたといえる。

本研究はフードデザイン研究に対し、デザインリサーチにおけるエスノグラフィ調査法の応用妥当性が示された。また、本研究では参加型デザインの手法を取り入れたことにより、ユーザのアイデアや願望、潜在的ニーズを可視化できる点も示された。短期間でもワークショップ参加者は未来シナリオ作成とプロトタイピングを通じて、ありうる未来の食体験を可視化できたこと、また参加者自身による日常的な食生活の見直しへと意識を向かわせる様子が観察できた点は、人と食生活の関係性をデザイン対象とするフードデザインの有意性を明らかにした点だといえる。

以上、本研究はフードデザインの枠組みを整理し、デザインリサーチの具体的な活用方法を示したことから、日本におけるフードデザインリサーチの基盤となる理論および方法論に寄与する新規的な研究として評価できると判断した。

なお、候補者は2本の国際論文（国際カンファレンス梗概集、フルペーパー2本、査読有）をアクセプトされており、本学博士後期課程デザイン学専攻における要件を充足させていることを確認した。書誌情報は以下の通りである。

“Ogata, K., Mizuno, D., Huffman, E. F., & Okada, E. (2021).” 掲載：*IASDR 2021: [ ] With Design: Reinventing Design Modes* Print ISBN: 978-981-19-4471-0, Online ISBN: 978-981-19-4472-7

“Ogata, K., & Mizuno, D. (2023). Design principles for a workshop using 3D food printers: participatory digital food design research.” 掲載：*IASDR 2023: Life-Changing Design*

また、申請者は筆頭著者として『Food Design フードデザイン　ありうる未来の食を探るデザインリサーチ』（緒方、水野、2022年、BNN新社、208ページ）を出版していることを確認した。

なお、最終審査においては以下の点についての指摘と軽微な修正指示があったことを付記する。

1)図1-1,表2-7で整理された概念の名称に一部曖昧さがあるので、改訂を行うこと

2)オートエスノグラフィやワークショップ参加者に対するインタビューなどの1次資料があるにも関わらず添付されていないので、appendixに関連する資料を全て掲載すること

京都工芸繊維大学

氏　　名	ぞれあ まりん ZOREA MARINE
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 4 4　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　デザイン学専攻
学位論文題目	Sound-As-Relation Examining the Meanings and Design of Sound Interactions at Home Through a Relational Lens （サウンド・アズ・リレーション 関係性理論の観点からの家庭におけるサウンド・インタラクションの意味とデザインの考察）
審査委員	(主査)教授　櫛 勝彦 教授　木谷 庸二 准教授　北口 紗織 准教授　照井 亮

論文内容の要旨

家庭に存在する多くのモノ（人工物）は何かしらの音を発生させるが、その稼働状況を単純な信号音で伝えるものに始まり、半導体部品の小型化、ユビキタス・コンピューティングや、IoT（Internet of Things)の一般化、人工知能の進展に伴い、それらは音情報の豊かさだけではなく、家庭内の音は、多様なインタラクションを媒介し、家庭内生態系において、複雑な相互関係を生み出している。本論は、この相互関係性を、人-システム間の情報伝達といった従来の人間中心パラダイムを超え、「リレーショナル・レンズ」の新たな視点のもと、家庭内の「音」の新たな意味を探求し、HCI(Human Computer Interactions) 領域の実践研究に向けた概念的基盤を構築するものである。

本論第 1 章では、技術進展が生み出した日常のモノたちが生み出すインタラクションが、これまでの人間中心設計規範からすでに逸脱した状況にあることを述べ、本論の目的、対象課題、及び論文構造を示している。第 2 章は、HCI での関連研究の現状、特に、本研究の理論的基礎とするリレーショナル・アプローチの持つ可能性と未開拓部分について述べている。第 3 章は、京都市で収録された家庭音を使用した、テルアビブ市での展示と来場者を対象とした意味生成ワークショップを報告し、参加者が描いたドローイングの分析から、人の音に対する意味生成戦略を抽出し、音により作り出される意味ネットワークの網が、聴く者の、生活経験、社会・文化との接続、物質生態系によって形成されていることを導き出した。第 4 章では、民俗誌的手法による家庭音調査（京都市）から得られたデータを、ポスト人間中心主義・ケア概念の視点から分析した。ここではケア的関係の構成概念を導き出すとともに、新たな時代（ポスト人間中心）における音の知覚特性を導いた。さらに、それらを援用した家庭製品の未来イメージをプロトタイプにより提示した。第 5 章は、現在普及しているベビー・モニターを対象に、その音を介した母親と乳児の相互関係について分析し、親子間での意味生成及び共感性の問題を指摘し、乳児の身体データの単なる信号音・音アイコンへの変換による一方向の通信ではなく、相互の生体情報の交換を音により行うことで、本来の母子間の豊かな意味交換の実現を、リレーシ

ョナル・アプローチの視野から訴求した。第 6 章は、3、4、5 章で得られた結果の統合化を行い、家庭での人–人以外（植物・生物・モノ）間の音の相互作用と、そこから発生する新たな意味を説明し、それに至る新たなサウンド・デザインの概念（Sound-As-Relation）を提言した。第 7 章は、本研究の HCI 研究における位置付け、特に、近年注目されるポスト人間中心主義やリレーショナル理論を軸とした研究における意義、サウンド・デザイン研究への影響、そして、今後の研究展望を述べた。

論文審査の結果の要旨

身の回りの多くのモノたちが IoT 化され、それらがネットワークを介して相互に繋がり、クラウドや AI に接続される現代、人とモノ・システムとの対話を主眼とし、認知心理学を援用した人間中心設計とその展開としてのインタラクション・デザインのみでは、我々を取り巻く複雑な情報環境を理解することが困難となってきている。より包括的な学際的研究が望まれる中、認識論的視点、つまり、STS（科学技術社会論）および、そのサブカテゴリーであるフェミニスト STS といった学際研究を参照する傾向が、先端的 HCI（ヒューマン・コンピュータ・インタラクション）分野で強まっている。

本研究は、人と人以外の存在の相互的関係の問題と理想的なあり方を、家庭内の「音」を通して理解しようとするものである。まず、申請者は、京都市内の家庭を対象としたフィールドワークを行い、独自作成のサウンド・ダイアリー・キットにより、生活者自らに家庭内の音を収録させるともに、音の発生源が何かだけでなく、その音がどのように生活に意味を与えるかを記述させた。このデータの質的分析により、音によって編まれるケア的関係性の存在とその特性を分類明示している（論文 2）。また、この分析と並行し、京都とは文化的にも遠く離れたテルアビブにおいて、収録音を描画イメージによって類推させる参加型ワークショップを実施し、描画の分析から人の音に対する具体的イメージ・意味形成の特質を示している（論文１）。この２つの研究における方法（音の収録・記述／描画による音の意味表現）は、フィールドから洞察を得るための探索的アプローチとして独特であり、すでに先端的事例として HCI 研究者から引用されていることからも、学術的価値を評価できる。一方、現代の IT 製品（ベビー・モニター）の音インタフェースに起因する家庭内の意味・関係性の欠損を指摘し、上記 2 研究の成果を応用するかたちで、家庭内のあらゆる存在の相互関係性強化の可能性を論文 3 で示している。以上からは、抽象的解釈や構想に偏りがちな認識論ベースの HCI 研究に対し、妥当かつ具体的カタチを与えるといった成果を生み出しており、デザイン研究としての新たな意味を示したと評価できる。

以下は、査読付き学術学会誌での掲載状況である。

1. Audible Imagery: Creative Contemplations on the Sounds of Home, Marine Zorea, Katsuhiko Kushi, Proceedings of the 15th Conference on Creativity and Cognition (C&C '23), 150-161, Association for Computing Machinery (ACM), New York, NY, USA (2023)
2. All Is Heard: Reimagining The Sounds of Home With Care, Marine Zorea, Katsuhiko Kushi, Designing Interactive Systems Conference (DIS ’24) July 01–05 2024, IT University of Copenhagen Denmark, ACM, New York, NY, USA (2024)
3. Empathic Directions for The Sounds of Parenting Technology: The Case of Baby Monitors,

Marine Zorea, Katsuhiko Kushi, Scrutinizing Empathy-Centric Design Beyond the Individual (EmpathiCH) May 11–18 2024, Honolulu, HI, USA, ACM, New York, NY, USA (2024)

京都工芸繊維大学

氏　　名	あんどう ちほこ **安藤　千穂子**
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 4 5　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　デザイン学専攻
学位論文題目	**幕末・明治初期における写真術の展開に関する研究** **―薩摩藩主島津斉彬の実践分析を中心に―**
審査委員	(主査)教授　平芳 幸浩 教授　中野 仁人 准教授　井戸 美里 特定教授　並木 誠士

論文内容の要旨

本論文は、最初期の写真技法であるダゲレオタイプならびにカロタイプと次世代の写真技法であるコロディオン湿板法（以下、湿板法）の間に「断絶」があるとしてきた日本写真史の定説に対する疑問を出発点に、薩摩藩主島津斉彬の実践を中心に初期写真実践を再検討することで、以後の「日本の写真」への連続的展開を明らかにすることを目的とする。

日本における写真受容は、1848 年にダゲレオタイプの器材一式がもたらされて始まる。ただし日本人が作製したダゲレオタイプは、薩摩藩主の島津斉彬を写した一点の肖像しか現存していない。カロタイプについては、尾張藩主の徳川慶勝が残した写真帖が残るものの、幕末期の成立と推定される現存写真は、同じく島津斉彬が居城の鹿児島城を撮影したと伝わる、一点のネガのみとなる。

島津斉彬をはじめとする一部の大名らは、自藩の近代化に資する欧米の科学技術のひとつとして写真を実践したと、日本の初期写真史研究では解釈されている。しかし島津斉彬による現存写真が証している、幕末期におけるダゲレオタイプとカロタイプの実践は、次の二つの疑問から、湿板法へと連続的に展開した可能性が考えられる。第一に、物質的な特徴や特性を異にする二つの写真技法がともに薩摩藩で実践された点にたいする議論が、初期写真史研究ではおこなわれていない。第二に、日本人の心性においても、最初期の写真実践と湿板法の受容との間には、連続性が無いといえるのであろうか。これらの疑問を出発点とする本論文は、序章、ダゲレオタイプやカロタイプの実践を個別に考察する本論部 3 章、および終章の全 5 章で構成される。序章では研究の目的を詳述し先行研究の整理と問題点を抽出することで、島津斉彬の初期実践を再考することの重要性を確認した。

第 1 章では、島津斉彬の書簡や薩摩藩士の日記、編纂物、島津家伝来の翻訳写真技法書等の文献史料を紐解きながら、島津斉彬が二つの技法を実践した動機に迫った。その結果、技法書の指南のとおりに、ダゲレオタイプで肖像を、カロタイプで景色（城郭）を写したものと推定された。さらにダゲレオタイプにたいしては、近しい人びとに像主の存在を伝え遺すための、一点の肖像写真としての価値が見出されていたことを指摘した。

第 2 章では、ダゲレオタイプの代替技法として 1850 年代に誕生したアンブロタイプが、19 世

紀後半の日本で好まれ続けた事実に注目した。湿板法のガラス・ネガ自体を加工して一点きりのポジの写真とするアンブロタイプは、日本では湿板法の普及後も一個人の肖像がアンブロタイプによって写され続けた。大名から市井の人びとまで数々の肖像を留めるアンブロタイプを検討した結果、島津斉彬とダゲレオタイプとの間に見られた像主の代替物として肖像写真を捉える心性が、アンブロタイプにおいても看取された。この背景には、「もの」としてのアンブロタイプの唯一性と、日本の伝統的な肖像画観からの影響が考慮され、ダゲレオタイプからの内発的展開が明らかとなった。

第 3 章では、島津斉彬が残したカロタイプネガを掘り下げた。展覧会への出品履歴や被写体となっている城内建物の特定等をもとに再検討した結果、複数のカロタイプネガが撮影され、いずれも景色に類する被写体が選択されていたことが判明した。そこで、景色という被写体にたいする認識へと議論を拡大させたところ、島津斉彬が残したカロタイプネガは、たとえば 1860 年代以降に登場する為政者の記録等のために撮影された城郭の写真とは異なり、あくまで身近な存在であった居城を技法書の教えのとおりに写そうとした写真であったと考えられた。

終章においては、島津斉彬の実践について総括し、さらにアンブロタイプと紙焼き写真がともに現存する作例を追加検討することで「非複製性」の問題を提議した。ダゲレオタイプ・アンブロタイプとカロタイプの大きな違いは、複製性の有無にあるが、島津斉彬らが残したカロタイプは、いずれもネガ自体を鑑賞する形態で伝来している。したがって、日本における最初期の写真実践には、ネガもポジもともに唯一性を備えた写真として捉える、「非複製性」への志向を読み取ることができる。つまり、この志向においてダゲレオタイプとカロタイプの実践は共通しており、それがアンブロタイプにおける唯一性と肖像との結びつきへと連続していったのである。この「非複製性」への志向を、日本の写真展開の連続性の見定めることで、島津斉彬の写真実践までさかのぼって「日本の写真」の始まりを捉える意義を結論として提示した。

論文審査の結果の要旨

本論文は、日本の幕末から明治初期にかけての初期写真の実践において、薩摩藩主島津斉彬の実践に着目し、数少ない現存例と当時の文献資料を詳細に分析したうえで、ダゲレオタイプ、カロタイプ、アンブロタイプという定着技法の異なる写真術の日本における初期受容の様態を解明する研究である。本論文には以下のように評価すべき点が存する。

第一に、これまでの先行研究では簡単に触れられるだけであった日本の初期写真実践について、現存作例が極めて乏しいなか、当時島津斉彬が読解したと考えられる文献資料の記述を詳細に分析し、実例と突き合わせることで、写真術の受容理解の実態を初めて明らかにしたことが挙げられる。

第二に、肖像写真という写真類型に着目することで、初期写真の複製を許さない「もの」としての唯一性が被写体人物への愛着と結びつく特有の心性を形成していることを明らかにしたことが独創的研究として評価されるべき点である。肖像写真に用いられたダゲレオタイプとアンブロタイプの日本独自の流行が示す歴史的価値を浮き彫りにする試みは、これまでの写真研究で顧みられることのなかった画期的な研究である。本論では、さらに風景を写したカロタイプネガを含

め、日本の初期写真実践がその「非複製性」への志向に支えられてきたことを明らかにした意味でも写真史研究に新しい視座をもたらす点で、その研究意義は極めて大きい。

第三に、島津斉彬の実践と周辺資料を発掘することによって、まだ未発掘の初期実践例が残されている可能性を導出している点においても、日本の写真研究の発展を推進していく影響力を有している。

上記のように、本論文は文献的・実践的資料の慎重かつ緻密な調査作業を踏まえて、これまで見過ごされてきた島津斉彬の写真実践の歴史的意義を発見し、それを独自の視点から分析・考察したもので、日本写真史を書き換えるほどのインパクトを有する研究であり、博士学位論文として十分評価に足るものである。

なお、本論文の一部は、いずれも以下の査読付論文２篇および紀要論文２篇、国際カンファレンス・プロシーディング１篇としてすでに公表されている。

査読付論文

① 安藤千穂子：「薩摩藩主島津斉彬が取り組んだダゲレオタイプとカロタイプに関する一試論−実践動機の文献的再考−」日本写真芸術学会『日本写真芸術学会誌』第 28 巻・第 2 号 5 頁−15 頁（2018）

② 安藤千穂子：「幕末・明治期におけるアンブロタイプへの愛着を支えた「もの」 −木箱・ガラス・無彩色−」美学会『美学』第 74 巻 1 号 49 頁−60 頁（2023）

紀要論文

① 安藤千穂子：「写真と絵図による城郭像の検討 −カロタイプネガ「鶴丸城内の藩主居館」の日本写真史上の位置づけに関する試論−」公益財団法人鹿島美術財団『鹿島美術研究』年報第 40 号別冊 294 頁−306 頁（2023）

② 安藤千穂子：「幕末・明治期における写真の複製性にたいする一考察」DNP 文化振興財団『学術研究助成紀要』Vol.5 10 頁−23 頁（2023）

Proceeding of a conference

① ANDO, Chihoko, "Foreseeing the Future: Ambrotype portrait photos as a symbol of life and death in 19th century Japan," *Don't Press Print: De/Re-constructing the collodion process*, the Royal Photographic Society, pp.60-69（2021）

京都工芸繊維大学

	わたなべ きくま
氏　　名	**渡辺　菊眞**
学位(専攻分野)	博　士　(学 術)
学 位 記 番 号	博　1 1 4 6　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研 究 科 ・ 専 攻	工芸科学研究科　建築学専攻
学 位 論 文 題 目	**地域－地球型建築の設計手法に関する研究** **－パッシブシステムの導入とフィールドの読解をとおして－**
審　査　委　員	(主査)教授　長坂 大 教授　角田　暁治 准教授　木下 昌大

論文内容の要旨

本論文は、自然環境に適応する建築設計手法として「パッシブシステムの導入」を、文化環境に適応する建築設計手法として「フィールドの読解」を提示し、両者の統合により総合的な環境に適応する建築設計手法を示すものである。手法の有効性を自らの建築作品の設計を通じて実証的にまとめている。なお、ここでいう手法とは、建築の空間構成や形態などを具体的に定める方法のみならず、その上位概念の取り扱い方法を含んでいる。

第 1 章「序論」では、研究の背景、目的と意義、対象と方法、研究の位置付けと既往研究、論文の構成が示される。

第 2 章「地域-地球型建築の概念」では、「地域-地球型建築」を定義する。また、「地域-地球型建築」は実存を可能にする「いる空間」であり、「居る空間」と「祈る空間」の二つの位相からなることが示される。

第 3 章「パッシブシステムの導入手法とフィールドの読解手法」ではまず、パッシブシステムの導入手法が「自然利用による省エネルギーを可能にする手法」と「自然を根元的に感受する手法」の重なりであること、フィールドの読解手法が「〈地域〉フィールド読解への応答手法」と、「〈地球〉フィールドを象徴させる手法」の重なりであることが示される。次に「自然を根源的に感受する手法」と「〈地球〉フィールドを象徴させる手法」が「地球感受の空間の形成手法」に統合されることが示される。

第 4 章「建築作品とプロジェクトの概要」では、対象とする 10 の建築作品・プロジェクトの概要が示される。

第 5 章「パッシブシステムの導入にもとづく建築設計手法」では、「自然利用による省エネルギーを可能にする手法」に、「地球感受の空間」を重ねる手法が示される。

第 6 章「フィールドの読解にもとづく建築設計手法」では、「居る空間」と、「祈る空間」において、フィールドの読解への応答手法に「地球感受の空間」を重ねる手法が示される。

第 7 章「地域-地球型建築の設計手法」では、上記にもとづいて設計手法がまとめられる。

①「居る空間」における、地域-地球型建築の設計手法として、パッシブシステム導入建築とフィールド読解建築を複合し、総合的な環境に適応する地域型建築を設計する手法が示される。ここに「地球感受の空間」を重ねて、地域-地球型建築の設計が成立する。

②「祈る空間」における、地域-地球型建築の設計手法として、「祈る空間」の中核をなす「地球感受の空間」の形成手法と、それを〈地域〉フィールドに定位する手法が示される。
③地域-地球型建築における、「居る空間」と「祈る空間」の関係が示される。
④地域-地球型建築において根幹をなすことが、3 つの要点としてまとめられる。
第 8 章「結論」では、各章の要約とともに、研究から得られた知見が示される。

論文審査の結果の要旨

本論文は、20 世紀末から注目を浴び、現在も追求が進められている自然環境に適応する建築設計手法としての「パッシブシステムの導入」と、地域空間のコンテキスト読解にもとづく建築設計手法としての「フィールドの読解」、その両者を統合する設計手法を、申請者が設計した 7 つの建築・設計プロジェクトを対象に、原理的かつ実践的な設計手法論として提示するものである。

自然環境に適応する建築設計手法である「パッシブシステムの導入」では、「自然を利用する省エネルギー手法」を４つの建築作品・プロジェクトを対象に論じている。具体的な手法としては、①四季を通じて温熱調節が切り替わるパッシブクーリングとパッシブヒーティングの両立手法（「宙地の間」に適用）、②斜面地付帯温室による冬季の空気集熱暖房手法（「葡萄棚パッシブハウス」に適用）、③建築構法の編成にもとづく熱帯地域のパッシブクーリング手法（「『虹の学校』学舎：天翔ける方舟」に適用）が論じられる。次に「自然を根源的に感受する手法」として「地球感受の空間」を、上記に重ねる手法が示される。ここでは「パッシブシステム」が省エネルギー技術にとどまらず、かけがえのない自然の実感をもたらす、意識変革を含む技術であることが論じられる。

文化環境に適応する建築設計手法である「フィールドの読解」においては、6 つの建築作品・プロジェクトを 4 つの「居る空間」、2 つの「祈る空間」に分別して、〈地域〉フィールドの読解にもとづく建築設計手法が示される。「居る空間」の具体的な設計手法としては、①フィールドの読解にもとづく都市型住居の設計手法（「角館の町家」に適用）、②フィールドに見る建築構法の読解にもとづく設計手法（(「南シューナ地区コミュニティセンター」に適用)が論じられる。「祈る空間」の具体的な設計手法としては、①「祈る空間」を更新する設計手法（(「金峯神社」に適用)、②「祈る空間」を創生する設計手法（(「産泥神社」に適用)が論じられる。また〈地域〉フィールドを包含する〈地球〉フィールドが設定され、それを象徴する「地球感受の空間」の導入手法が示される。フィールドの階層が大きく乱れた現代においては、〈地域〉フィールドに安定した構造を見出すことが困難であり、〈地球〉フィールドと建築が「地球感受の空間」を介して結びつくことで人間が「根無し草」にならないことが示される。

このように環境に適応する建築設計手法が、「パッシブシステムの導入」、「フィールドの読解」という 2 つのアプローチに一旦分解されるものの、それらが「地域-地球」という枠組みを通して、総合的な環境に適応する手法に昇華される。自然環境適応、文化環境適応が「地球感受の空間」で結合することで、水平世界と垂直な開けが両立し、人間の実存が可能になる。このことは 20 世紀後半から現在まで継続する課題「実存は可能か」に対して、有効な建築概念と設計手法を示すものだと言える。

本論文によって得られた知見は二つである。
一つ目は「パッシブシステムの導入」「フィールドの読解」を統合する概念と手法を示したことである。両者の統合により総合的な環境に適応する建築の設計手法を示したことには、大きな意義がある。

二つ目は、対象領域を地域−地球とし、地球を媒介として水平世界と垂直な開けを結びつけたことである。両者の結びつきは実存成立の条件である。地球を介して、実存が可能になることを建築設計手法として示した意義は大きい。これらの知見は申請者個人の建築家としての仕事の範囲を超える成果であり、建築界に重要な貢献を果たすものとして、高く評価できる。

なお、本論文で対象とした、申請者の設計による 7 件の作品・プロジェクトについては、下記の建築賞を受賞し、主要な建築雑誌に掲載されている。

(1) 「角館の町家」:『新建築住宅特集』2006 年 7 月号、渡辺菊眞
(2) 「南シューナ地区コミュニティセンター」:『新建築』2010 年 3 月号、渡辺菊眞
(3) 「産泥神社」: 2013 Faith & Form/IFRAA Award【アメリカ】優秀賞 2013 年、にいがた水と土の芸術祭 2012 招待作家、渡辺菊眞
(4) 「『虹の学校』学舎：天翔ける方舟」: AZ Awards (Best Architecture Under 1,000 ㎡)【カナダ】最優秀賞 2014 年、Architectural Review AWARD for Emerging Architecture【イギリス】優秀賞 2014 年、Architizer+A Awards 2015【アメリカ】審査委員賞 2015 年、『新建築』2013 年 11 月号、渡辺菊眞
(5) 「宙地の間」:『新建築住宅特集』2016 年 6 月号、渡辺菊眞
(6) 「金峯神社」: 第３回日本建築設計学会賞 2020 年、『新建築』2019 年 5 月号 、渡辺菊眞
(7) 「葡萄棚パッシブハウス」:『新建築住宅特集』2021 年 1 月号、渡辺菊眞

京都工芸繊維大学

氏　　名	れいのるず えみりー きゃさりん REYNOLDS EMILY KATHRYN
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 4 7　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　建築学専攻
学位論文題目	Durability to Precipitation of Unstabilized Earthen Walls Based on Experiment and Extant Structures in Japan （日本国内に現存する土構造物の調査と実験に基づく安定化材を含まない土壁の降雨に対する耐久性）
審査委員	(主査)准教授　村本 真 教授　金尾 伊織 教授　満田 衛資 教授　阪田 弘一 岐阜市立女子短期大学　准教授　*畑中久美子

論文内容の要旨

本論文は、日本に存在する厚壁の土構造物の雨水に対する耐久性を検討したものであり、全 6 章から構成されている。対象とする土構造物は、国内で伝統的木造建築に使用される竹小舞下地による土塗り壁ではなく、より素朴で素人による施工が可能な練り土積み構法である。世界には土を使った構法が数多くみられ，セメント等を混入して土を安定化させる構法がある。本研究では、安定化材を含まない自然材料のみからなる練り土積みによる土壁の構法を対象としている。日本では西日本にこうした構法の土構造物が見られ、左官による施工ではないが、100 年近く残存している。しかし、土のみでは十分な耐久性を持たないと一般的に考えられている。日本は台風や湿潤な気候で知られており、本研究で対象とするような日本の土構造物の研究は、世界的な土建築の施工に関する重要な資料を提供するものである。本論文は特に、雨水に対する耐久性に焦点を当てている。

第 1 章では、気候変動が続く環境の中で土を対象とした建築物の可能性を議論し、本研究の背景と目的を説明している。

第 2 章では、2000 年から 2023 年の間に発表された現代の土建築に関する研究をレビューし、いくつかのキーワードから英語の学術論文を抽出し、過去 24 年間にわたる世界的な論文出版の傾向を述べている。タイトルを分析し、そこに含まれるキーワードの頻度を示している。また、対象とする土構造物の地域と論文著者の所属から、研究ネットワークの広がりを確認している。また、日本から発表された関連論文が少ないことに触れ、3 章以降で述べる本研究の位置付けを示している

第 3 章では、国内では「練り土積み構法(Japanese Cob)」として知られる、日本の農村におけるあまり知られていない土構造物の特徴を述べている。これは、国際的に知られている北アメリカで実践されている「Monolithic Cob」と共通点を持つものである。本章では、日本の Cob の特徴をフィールドワークによって整理した結果と比較している。

第 4 章では、日本の 3 つの農村地域における土で作られた構造物の灰屋等の劣化を調査している。これらの土構造物の起源が確認され、その地域の気象統計とともに、現存する土構造物の築年数に関する調査結果が示されている。土構造物の劣化は、壁の長さと壁の厚さの変化によって測定され、基礎の仕様や状態との関係で議論されており、劣化が 140 mm を超えない状況が記録されている。

第 5 章では、異なる基礎、仕上げの有無，2 種類の材料を組み合わせた土壁構造物の試験体に対して、促進降雨試験を実施している。この試験は、90 分間連続して散水するものであり、異なる量の水を 5 段階に分けて散水し、各壁面に 6,500 mm の総降雨量に相当する水を掛ける。土壁の劣化状況は、各段階で 3D スキャンによって詳細な形状分析が可能となっている。その結果、大量の水を受ける土構造物は、仕上げが剥がれ落ちることがあっても、壁厚の劣化は最大で 40 mm 程度であり、土を正しく選べば劣化を 4 mm 以下に抑えられることが確認された。実験は降雨時の促進劣化試験と見なすことができ、大量の散水を受ける雨水に対する耐久性の高さを実験により結論づけている。

また、ここで実施した促進降雨試験は、簡略化することで普遍的な耐久性試験として提供できる可能性があることを述べている。このような試験は現存せず、土建築の耐久性試験を一般化するための提案となっている。

第 6 章では、現代の建築・建設分野のニーズを踏まえ、日本の安定化材を使用しない自然素材のみで構成される土構造物の降水による耐久性を評価し、その結果から建築材料としての可能性について論じている。さらに、実験的な研究を重ねることで、安定化材を用いない土が現代建築において国際的に受け入れられる可能性が期待できることを指摘している。

論文審査の結果の要旨

申請論文は、日本に存在する厚壁の土構造物の雨水に対する耐久性を明らかにするため、フィールドワークと実験を実施した結果を述べている。本論文では、竹小舞下地による土塗り壁構法とは異なり、団子状の土を厚壁として構築する練り土積み構法を対象としている。また、この構法は、世界の多くの地域で試みられているセメント等を混入した厚壁の土構造物とも異なる。これまであまり議論されてこなかった、セメント固化に依らない自然材料のみからなる土構造物を対象としている。

2000 年以降、土構造物に関する学術論文数は急速に増加しているが、日本における自然素材のみからなる厚壁の土壁構法に関する学術的な報告は非常に少ない。地震や台風に見舞われる日本において、土構造物は現存しているが、その耐久性に関する調査は十分に行われていなかった。

申請論文では、西日本各地に見られる築年数がかなり古い土構造物の壁面の劣化状況を調査している。基礎や小屋組の状況などを整理し、これらの土構造物が素人の施工によるものであるにもかかわらず、土の劣化は最大で 140 mm 程度であることが明らかになった。

ただし、申請論文のフィールドワークの調査が簡易的な測量であったため、土壁の劣化がどのように進展するかは不明であった。これに対して、改めて雨水に対する耐久性を実験し、土の移動を 3D スキャンで評価している。多量の散水試験ごとのスキャン結果を比較し、壁土の移動と

壁厚の変化を詳細に描写し、分析した。実験は降雨時の促進劣化試験と見なすことができ、大量の散水を受けても土構造物の壁厚の変化は最大で 40 mm 程度で、土によってはほとんど劣化を生じなかったことから、雨水に対する耐久性の高さを実験により結論づけている。また、この実験は新たな散水試験の基礎を提示するものであり、今後、簡易的な評価法となる可能性が示されている。

本研究の成果は厚壁の土構造物の雨水に対する耐久性についての現状を示し、その劣化の詳細を明らかにした先駆的なものとして評価できる。

本論文は，審査を経た以下の 2 編の論文にその内容が発表されている。

〔1〕 Emily K. Reynolds and Makoto Muramoto: Circumstances contributing to the deterioration of old cob structures in Japan, Journal of Asian Architecture and Building Engineering, Vol. 21, No. 5, pp. 1981-2008, 2021

〔2〕 Emily K. Reynolds and Makoto Muramoto: Durability of Japanese earth cob walls subjected to accelerated rain simulation, Heritage Science, Vol. 12, Article 154, 19p., 2024

京都工芸繊維大学

氏　　名	たかがき けんいち **高垣　賢一**
学位(専攻分野)	博　士（学術）
学位記番号	博　1 1 4 8　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　先端ファイブロ科学専攻
学位論文題目	Study on charging properties of electrospun electret ultrafine fiber mats and their applications （電界紡糸エレクトレット極細繊維膜の帯電特性評価およびその応用に関する研究）
審査委員	(主査)准教授　石井 佑弥 教授　桑原 教彰 教授　山下 馨

論文内容の要旨

近年、健康管理や病気の診断に使用できるウェアラブルデバイスが注目されており、特に脈拍、呼吸、血圧などの生体信号を検出可能なフレキシブル圧力センサが注目されている。電界紡糸法により作製される電界紡糸極細繊維膜は、機械的に柔軟で優れた通気性と極軽量というユニークな特徴を持っている。さらに、フィルム状態では圧電性を示さないポリスチレン(PS)からなる電界紡糸マイクロファイバ膜が、強誘電エレクトレットとして機能し、圧電特性に酷似した疑似圧電特性を示すことが報告されている。これらの特徴により、電界紡糸極細繊維膜は自己発電型のフレキシブル圧力センサの材料として注目されている。しかし、電界紡糸法を荷電法として捉えたときの他の荷電法との差異や電荷の保持特性、ファイバ膜内部の電荷の分布などの詳細な帯電特性や、自己発電型の圧力センサとしてふるまう電荷の出力原理など多くの点が未解明のままである。本論文では、PS からなる電界紡糸マイクロファイバ膜を用いた電界紡糸法とコロナ荷電法の荷電方法としての比較、およびバイオマスから製造可能であり生分解性を示すポリ(L-乳酸) (PLLA)からなる電界紡糸サブマイクロファイバ膜の帯電特性の評価を行った。さらに、電界紡糸極細繊維膜の応用展開として、これらのファイバ膜を用いたマスク型音響および呼気センサを開発した。

第 1 章では、代表的なフレキシブル圧力センサの概観を説明し、その後電界紡糸極細繊維膜が疑似圧電方式と静電誘導方式により電荷を出力することを述べた。また、これまでに報告されているフレキシブル圧力センサを用いた音響センサと呼気センサについて概説し、課題について述べた。そのうえで、本研究の意義と目的を述べた。

第 2 章では、電界紡糸法を荷電法として捉え、代表的な荷電法であるコロナ荷電法との帯電特性の差異を同等の構造を持ったファイバ膜を用いて比較した。電界紡糸ファイバ膜はコロナ荷電法により荷電を行ったコロナ荷電ファイバ膜に比べて多くの実電荷を担持出来ることが示され、その原因について考察した。また、低湿度環境下、大気環境下、高湿度環境下に 240 日保管しても、電界紡糸ファイバ膜は多くの実電荷を保持することを示した。さらに、最近提案された帯電電荷の分布モデルを用いた電界紡糸ファイバ膜とコロナ荷電ファイバ膜の

実効的な表面電荷密度の数理モデルを新たに構築した。

第 3 章では、電界紡糸 PS マイクロファイバ膜を市販の使い捨てマスクに組み込んだ、自己発電型のマスク型音響および呼気センサを開発し、その特性を評価した。当該マスク型センサに音波を照射すると、静電誘導と疑似圧電効果により電圧を出力した。特に、正と負のそれぞれの極性の高電圧で作製した電界紡糸 PS マイクロファイバ膜を両方組み込むことで、単一の電界紡糸 PS マイクロファイバ膜のみを組み込んだマスク型センサに比べて大きな電圧を出力することを明らかにした。さらに当該マスク型センサが、音響および呼気センサ、エナジーハーベスタとして機能することを示した。特に、当該マスク型センサをヒトが着用して発話を行うと、話した言葉に応じた電圧を出力し、さらにマスク型センサをタブレットに直接接続して発話をすると、音声認識ソフトを通じて発話の内容を文字化できることを示した。

第 4 章では、電界紡糸 PLLA サブマイクロファイバ膜の帯電特性を評価した。始めに、当該ファイバ膜の優れた疑似圧電特性が分極電荷や結晶構造による圧電効果由来ではなく、主に実電荷の帯電に由来することを明らかにした。正極性の電圧で電界紡糸した電界紡糸 PLLA ファイバ膜は、当該ファイバ膜の上部に正の実電荷、下部に負の実電荷を担持するエレクトレットであることを明らかにし、さらに正の実電荷の方が多く担持されていることを示した。この帯電電荷の分布モデルを用いて、上部の電極とファイバ膜表面の距離が変化したときの電荷の出力モデルを新たに構築した。続いて電界紡糸 PLLA ファイバ膜の電荷の保持特性を評価したところ、低湿度環境下に保管することで 240 日を経過しても良好に電荷を保持できることを示した。この電界紡糸 PLLA サブマイクロファイバ膜の応用展開として、当該ファイバ膜をアクティブ材料とした、ほとんどの部品をバイオマスから製造可能であり生分解性を示す材料で構成するタッチセンサとマスク型センサを開発した。

第 5 章では、本論文で得られた成果を総括した。

論文審査の結果の要旨

本研究は、廉価な汎用ポリマーであるポリスチレン(PS)もしくは生分解性を示しバイオマスから製造可能なポリ(L-乳酸) (PLLA)を材料とした電界紡糸極細繊維膜の帯電特性や発電特性について、詳細に明らかにすることを目的とした。加えて、これらの電界紡糸極細繊維膜を用いた新たな応用展開について知見を得ることも目的とした。電界紡糸極細繊維膜は、機械的な柔軟性、優れた通気性、極軽量性といったユニークな特性を示す。加えて最近、フィルムでは圧電性を示さない PS からなる電界紡糸マイクロファイバ膜が、強誘電エレクトレットとしてふるまい、圧電特性に酷似した疑似圧電特性を示すことが報告されている。これらの特徴から、自己発電型のフレキシブルな圧力センサの材料として注目されている。しかし、電界紡糸極細繊維膜の帯電特性や発電特性については、未解明の部分が多く、特に電界紡糸を荷電法としてとらえたときの他の荷電法との差異や、帯電電荷の保持特性などの詳細な帯電特性、または当該繊維膜が自己発電型の圧力センサ材料として動作するときのより厳密な理論的理解は未解明であった。したがって、本研究の目的と研究内容の新規性は高い。

本研究は、代表的な荷電法であるコロナ荷電法で荷電した極細繊維膜と電界紡糸極細繊維膜の帯電特性を詳細に比較している。この結果、電界紡糸で特異的に生じる 3 次元的な帯電や帯電電荷の良好な保持特性などを世界に先駆けて明らかにしている。さらに、電界紡糸極細繊維膜の帯電電荷の分布のモデルについて、従来報告されていたモデルよりもさらに正確なモデルを提案し、このモデルから実効的な表面電荷密度や発電特性の数理モデルを新たに提案している。加えて、当該繊維膜が音波の照射に良好に応答して発電することを示し、マスク型の音響センサおよび呼気センサおよびエナジーハーベスタとして動作することも明らかにしている。特にマスク型の音響センサについては、ヒトがこのセンサを着用して発話したときに生じる電気信号をタブレットにそのまま入力すると、良好に文字化出来ることを示した。

一連の研究内容は、新規性、独創性ともに高く、これまで未解明の部分が多かった電界紡糸極細繊維膜の帯電特性や発電特性の学理解明に大いに貢献し、学術的な意義も高い。加えて、当該繊維膜を用いた新たな応用展開について、新しい研究領域を開拓している。

本論文の基礎となっている学術論文は、レフェリー制度の確立した学術雑誌に掲載されたもの 2 編である。全て申請者が筆頭著者であり、以下の論文において二重投稿など研究者倫理に反する事象は認められなかった。

<u>基礎論文</u>

1. Mask-Type Acoustic Sensor Featuring a Conventional Disposable Mask Embedded with Electrospun Poly(styrene) Fiber Mats, Kenichi Takagaki, Kyoka Takahashi, Tomoki Hayashi, Shunji Takeuchi, Noriaki Kuwahara, and Yuya Ishii, Advanced Energy and Sustainability Research, 2024, Vol. 5, 2300228.
2. Charging Properties of Electrospun Poly(L-lactic acid) Submicrofiber Mat and Its Electrical Applications, Kenichi Takagaki, Heisuke Sakai, Taiki Nobeshima, Sei Uemura, Mitsuo Kaneko, and Yuya Ishii, Advanced Energy and Sustainability Research, 2024, Vol. 5, 2300298.

以上の結果より、本論文の内容は十分な新規性と独創性、さらに学術的な意義があり、博士論文として十分な水準を満たしていると審査員全員が認めた。

京都工芸繊維大学

	はなわ ようすけ
氏　　名	**塙　洋祐**
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 4 9　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　先端ファイブロ科学専攻
学位論文題目	**半導体乾燥工程における昇華乾燥過程の Si 基板上の固化膜形成カイネティクスとナノ構造パターンの倒壊メカニクス**
審査委員	(主査)教授　佐久間 淳 教授　桑原 教彰 准教授　山田 和志 准教授　安永 秀計 准教授　岡久 陽子

論文内容の要旨

本論文は，半導体デバイスの高性能化と生産効率の向上に貢献することを目指して，Si 基板上における固化膜形成のカイネティクスとナノ構造パターンの倒壊メカニクスを明らかにし，昇華乾燥プロセスの最適化を図ることを目的とする．特に，Si 基板上での固化膜形成の基礎解析モデルを構築し，固液界面張力によるパターン倒壊の評価方法を提案したものである．

まず第 1 章において，この研究の背景と本論文の目的および構成について記述した．

第 2 章においては，基本的な系として Si 基板上の水および氷の凝固挙動を詳細に分析した．まず，起点となる結晶核の違いによる膜性状の変化を体系的に議論し，凝固プロセスの初期段階における結晶成長とその後の膜形成の違いを明確にした．具体的には，凝固の初期段階での結晶成長が，その後の膜形成にどのように影響するかを詳述し，結晶核の形状や成長速度が膜の最終的な構造に与える影響を明らかにした．これにより，最適な乾燥条件を設定するための基礎データを提供した．さらに，異なる冷却条件や基板の種類が結晶核形成に与える影響を定量的に評価し，これらの要因が膜形成に及ぼす影響を詳しく分析した．

第 3 章においては，ナノ構造パターン内での昇華材の凝固点降下現象を詳細に検討した．特に，ナノスケールの構造内では未凍結領域とパターン上部に固液界面が形成されることを確認し，これが凝固時の倒壊を引き起こす主要な要因であると結論づけた．また，水/氷の凝固・融解時におけるパターン倒壊挙動の in-situ 観察により，パターン上部に固液界面が形成されることがパターン倒壊の要因であることも示した．

第 4 章においては，シクロヘキサノールを用いて冷却速度や基板パターンの違いが核形成率にどのように影響するかを実験的に解析した．この結果，冷却速度が速いほど急速に形成される結晶核が多数発生し，これが膜形成の均一性に与える影響を明らかにした．また，基板パターンの違いが凝固プロセス全体に与える影響も大きく，特にナノスケールのパターンが結晶成長の方向性や速度に影響を及ぼすことを示した．

第 5 章においては，固化膜の機械的特性とパターン倒壊との関連性を詳細に検討した．具体的には，固化膜の粘性変化率と倒壊率との相関を実験的に確認し，固液界面張力がパターン倒壊に

与える影響について新たなモデルを提案した．実験では，複数の昇華剤を使用して様々な冷却条件下での固化膜の粘性変化を観察し，それがナノ構造の安定性に与える影響を詳細に分析した．特に，昇華剤が液相から固相に相変化する際の粘性変化率と倒壊率との間に強い相関があることを示し，固化膜が形成される際に生じる内部応力がナノ構造パターンの倒壊を引き起こす可能性を示した．また，上記知見を元に，固液界面張力によるパターン倒壊モデルを定式化した．また，実験結果から倒壊率の実験結果と理論モデルの整合性を確認し，昇華材の固化がナノ構造の倒壊にどのように影響するかを示した．

第 6 章の結論においては，前章までの成果を総括するとともに，倒壊率の実験結果と理論モデルの整合性を確認し，固化膜形成のメカニクスに対する知見をまとめた．

以上の成果により，Si 基板上での固化膜形成の基礎モデルを構築し，固液界面張力によるパターン倒壊モデル研究体系の基盤を示した．

論文審査の結果の要旨

本博士論文は，Si 基板上での固化膜形成の基礎解析モデルを構築し，固液界面張力による基板上のパターン倒壊の評価方法を提案することで，半導体製造プロセスの最適化に関する研究を行い，その成果について報告したものである．

まず，本研究の背景と本論文の目的および構成について記した上で，基本的な系として Si 基板上の水および氷の凝固挙動を詳細に分析し，異なる冷却条件や基板の種類が結晶核形成に与える影響を定量的に評価し，これらの要因が膜形成に及ぼす影響を詳しく解析した．また，ナノ構造パターン内での昇華材の凝固点降下現象を詳細に観察することで，ナノスケールの構造内では未凍結領域とパターン上部に固液界面が形成されることを確認し，パターン上部に固液界面が形成されることがパターン倒壊の要因であることも確認した．さらに，冷却速度や基板パターンの違いが核形成率にどのように影響するかを実験的に解析することで，冷却速度が膜形成の均一性に与える影響を明らかにした．固化膜の機械的特性とパターン倒壊との関連性も検討し，膜の粘性変化率と倒壊率との相関を実験的に確認した上で固液界面張力がパターン倒壊に与える影響について新たなモデルを提案した．

本論文の基礎となっている学術論文は，レフェリー制度の確立した雑誌に掲載が決定された，次に示す申請者を筆頭著者とする学術論文 2 報と，参考論文 2 報である．また，いずれの論文においても，二重投稿等の研究者倫理に反することがないことを確認している．

（基礎論文）

1. Y. Hanawa, J. Zhang, A.P. Sasmito, M. Xu, S. Akhtar, M. Mohit, J. Yoshida, K. Sawada, Y. Sasaki, A. Sakuma，Kinetics formulation for two-dimensional growth behavior of water/ice interface on Si substrate，Langmuir，40, 4033–4043 (2024.2)
2. Y. Hanawa, J. Zhang, A.P. Sasmito, M. Xu, S. Akhtar, M. Mohit, J. Yoshida, K. Sawada, Y. Sasaki, A. Sakuma，New Formulas for Evaluation of Cyclohexanol Solidification on Substrates with Surface Nanostructures，ACS Omega，9, 24299−24307 (2024.5)

（参考論文）

1. Y. Hanawa, Y. Sasaki, S. Uchida, T. Funayoshi, M. Otsuji, H. Takahashi, A. Sakuma, Thermomechanical formulation of freezing point depression behavior of liquid on solid surface with nanostructure，Proceedings of ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition，IMECE2020-23759, V011T11A014-1 (2020.11)
2. Y. Hanawa, Y. Sasaki, K. Sawada, J. Yoshida, M. Xu, M. Mohit, A. P. Sasmito, J. Zhang, A. Sakuma, Mechanical property evaluation of sublimation agents on nanostructure stability in semiconductor，Proceedings of ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition，IMECE2024-143402 (2024.11)

以上の結果より，本論文の内容は新規性と独創性，さらに学術的な意義に加えて工学的な意義もあり，博士論文としての水準に到達していると審査員全員が認めた.

京都工芸繊維大学

	しぇりー あぶでらてぃふ えるさいーど あしゅあ
氏　　名	SHERRY ABDELLATIF ELSAID ASHOUR
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 5 0　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　バイオベースマテリアル学専攻
学位論文題目	Kinematics of Melt Electrowriting and Its Printability on Poly(lactic acid) （溶融電解書き込みの運動学とポリ乳酸の印刷性に関する研究）
審査委員	(主査)准教授　徐　淮中 教授　櫻井 伸一 教授　佐々木 園 横浜国立大学大学院環境情報研究院　教授　*高崎 緑

論文内容の要旨

本学位論文は、メルトエレクトロライティング（Melt Electrowriting, MEW）技術を用いた高精度スキャフォールドの製造に関する研究成果をまとめたものである。MEW は微細な構造を作成するための先端的な押出型積層製造技術であり、特に医療分野への応用が期待されている。本学位論文は 2 つの主要な章で構成され、それぞれ MEW のプロセスと成果を詳述している。まず冒頭の General Introduction では、MEW の概要と、他の技術と比較した場合の MEW の優位性が述べられている。

第 1 章では、MEW ジェット（ノズルからコレクターに伸びた溶融流体）の挙動が高精細イメージングを用いて解析された。その結果、異なる層におけるジェット径の変動は見られたが、各層の着地点では一定の径が保持されていることが見出された。また、印刷直後から積層数の増加に伴い、ジェットラグ角（ポリマーメルトの押し出し速度とコレクターの移動速度にミスマッチがある場合）が増加したが、数層で安定化することが分かった。この安定化は、残留電荷の影響によるもので、MEW の安定した印刷能力を示すものである。さらに、印刷速度（着地電極板掃引速度）がジェットの径および速度に与える影響が調べられた。その結果、印刷速度の増加に伴い、繊維径は線形に減少し、ジェット速度は非線形に変動することが明らかとなった。この解析により、MEW プロセスを効率的に制御するためには、ジェット運動学を理解することが重要であると示唆されたと述べられている。

第 2 章では、医学的応用に向けた生分解性ポリマー（ポリ L 乳酸: PLLA）の印刷性と機械的特性の向上が検討された。生分解性ポリマーは低い MEW 印刷性が問題とされており、本研究では前処理としての PLLA の乾燥が印刷性能に及ぼす影響が調べられた。結果として、PLLA の前乾燥はポリマーの劣化を抑制し、連続印刷が可能であることが示され、平面 PLLA スキャフォールドが繊維間距離 100μm で最大 25 層の積層で形成でき、チューブ状のスキャフォールドも 6 層の積層で形成できた。また、得られた PLLA スキャフォールドの機械的特性は電界紡糸不織布に匹敵することが確認され、顕著な改善が見られた。さらに、PLLA スキャフォードからの薬剤（パクリタキセル）の制御放出についても調べられ、初日で 60%、7 日後に 85%の放出が確認され、非 Fickian 輸送メカニズムに従っていることもわかった。これらの結果は、医療用途において重要な意義を持つ。

本学位論文研究全体を通じて、MEW 技術における生分解性ポリマーの印刷性向上が認められたことは、医療用グレードのスキャフォールド開発において重要な成果である。MEW 技術によって高度なカスタマイズが可能なスキャフォールドが製造できると期待されるため、再生医療や薬物送達システムのような医療分野での応用研究の展開に関して、本学位論文研究の成果は非常に有意義である。

論文審査の結果の要旨

本学位論文では、高精度のスキャフォールドを製造するために使用される革新的な 3D 印刷技術であるメルトエレクトロライティング（MEW）のプロセスの理解を深めるための研究成果がまとめられている。この手法は、マイクロファイバー製造に用いられる電界紡糸法の一種であり、3D プリンター技術と組み合わせた技術である。まず、2 つのフェーズでの MEW ジェット（ノズルからコレクターに伸びた溶融流体）の動作を解析した。まず最初に、高精細イメージングを用いて、多層堆積中のジェットダイナミクスを分析した。その結果、ジェットの直径はスピンラインに沿って変動したが、異なる層での着地点では一貫して同じ直径であることがわかった。一方、ジェットラグ（ポリマーメルトの押し出し速度とコレクターの移動速度にミスマッチがある場合）の角度については、残留電荷の影響により層が追加されるにつれて増加したが、MEW が一貫した繊維直径と安定したダイナミクスを維持できる能力を示すことが明らかとなった。一方、テイラーコーン（静電場にさらされた液滴の先端に形成される円錐形の流体構造）から着地点までの MEW ジェットの直径と速度に対する印刷速度（着地電極板掃引速度）の影響が調べられた。繊維直径は印刷速度の増加に伴い線形に減少したのに対して、ジェット速度（スピンラインに沿った各ジェットセグメントの速度）は静電気と引張力の組み合わせにより、非線形の変化を示した。これにより、印刷プロセスを効果的に管理するためには、ジェットの運動学的理解が重要で、精密で安定した MEW 印刷を実現するためのジェット速度とジェットの運動学的理解の重要性が示された。さらに、複雑な階層的スキャフォールドを生成するために、プロセスパラメータの最適化が重要であることも示された。

実用的な観点からは、MEW は医療用途において重要な 3D 印刷技術として発展しており、ポリ L 乳酸（PLLA）などの生分解性ポリマーや生体適合性ポリマーの使用の要求が高まっている。しかしながら、これらのポリマーは低い印刷性を示し、医療用途への展開を大幅に制限している。本学位論文研究では、PLLA を十分に乾燥させることが劣化を低減させ、これによってほぼ 1 日 MEW 連続印刷を可能にできることが明らかになり、MEW における PLLA の印刷性の向上と機械的特性の向上に成功した。具体的には、平面的な PLLA スキャフォールドとして、100μm の繊維間距離で 25 層の積層を達成できることが示され、さらに、チューブ状のスキャフォールドとしては、6 層の積層に成功を収めた。これらの PLLA スキャフォールドの機械的特性は、電界紡糸不織布のそれに匹敵し、かなりの向上が達成された。また、薬剤であるパクリタキセルの制御放出も検討され、1 週間以内に大幅な放出が達成された。これにより、医療グレードとしての性能を具備するスキャフォールドが MEW 技術によって印刷可能であることが示され、MEW 技術に使用できる材料の拡大において大きな進展が持たらされた。このような内容は学術的にも工学的にも非常に価値が高いと認められ、学位論文として十分な水準を満たしていると判定された。

本論文の基礎となった学術論文 2 編を以下に示す。すべてレフェリー制度の確立した国際的に著名な学術誌に掲載されており、いずれも申請者が筆頭著者である。また、剽窃や二重投稿などの研究倫理に違背する不正行為がないことを確認した。

1. Ashour S, Du L, Zhang X, Sakurai S, Xu H. Unlocking the print of poly (L-lactic acid) by melt electrowriting for medical application[J]. European Polymer Journal, 2024, 204:

112675.
2. Ashour S, Xu H. Melt electrowriting: A study of jet diameters and jet speeds along the spinline[J]. Polymers for Advanced Technologies, 2022, 33(9): 3013-3016.

京都工芸繊維大学

	ねいまたらー ほすに もはめど まーむーど
氏　　名	NEIMATALLAH HOSNI MOHAMMED MAHMOUD
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 5 1　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　バイオベースマテリアル学専攻
学位論文題目	Studies on Competitive Formation of Homo and Stereocomplex Crystals in Equimolar Blends of Poly(L-lactic acid) and Poly(D-lactic acid) （ポリ L 乳酸とポリ D 乳酸の等量ブレンドにおける競争的ホモ／ステレオコンプレックス結晶化に関する研究）
審査委員	(主査)教授　櫻井 伸一 教授　佐々木 園 准教授　丸林　弘典

論文内容の要旨

本学位論文では、プラスチック環境汚染問題の解決に資する生分解性のバイオベースポリマーであるポリ乳酸を対象としている。ポリ乳酸は、現在最も多く使用されているバイオベースポリマーであるが、その耐熱性と力学物性のさらなる向上が求められており、これが実現できれば、さらなる用途の拡大が期待できる。本学位論文では、耐熱性向上の方策として、ステレオコンプレックス（SC）結晶に着目した。SC 結晶とは、ポリ L 乳酸（PLLA）とポリ D 乳酸（PDLA）の１：１の混合物が形成する共結晶で、その融点がそれぞれの単独の成分である PLLA あるいは PDLA が形成する結晶（以後ホモ（HC）結晶とする）の融点よりも 50℃以上も高いという特徴を有する。これが耐熱性の向上に資する根拠であるが、試料の作製条件を最適化しないと、試料中で HC 結晶も形成され、SC 結晶と混在するという問題があった。本学位論文では、試料中で SC 結晶のみを形成させる方法を提供することを最終目標にした研究成果がまとめられている。具体的な方策として、第１章では「熱処理温度の最適化」が、第２章では「可塑剤添加による方法」が、示差走査熱量測定と広角 X 線回折測定によって検討された。

まず第１章では、熱処理温度の最適化が検討された。それは、HC 結晶の融点直下の 170℃での熱処理である。融点より高温では HC 結晶は形成されないので、SC 結晶のみが形成される。それに対して、低すぎる熱処理温度では HC 結晶形成が競争的に起こるため、検討に値する最適な温度として 170℃が選ばれた。その結果、熱処理時間が短い場合は SC 結晶が優先的に形成されたが、結晶化度は低かったため、熱処理時間を長くして結晶化度の増加が検討された。その結果、HC 結晶も形成され、本来の目的を達成することはできなかったが、この条件下で形成された HC 結晶の融点は、これまでに報告されている文献値よりもかなり高い最高の融点を示すことがわかった。この結果は、HC 結晶の融点の高温化による耐熱性の向上の方策として工学的に有意義である。

一方、第２章では、可塑剤添加による方法が検討された。これは、これまでに明らかにされている可塑剤添加による結晶化促進効果を利用したものである。そもそも可塑剤は高分子のガラス転移温度の低下と融点降下を招くが、その一方で結晶化を加速する効果があることが発見されている。本学位論文研究では特に、ごく少量の１～５wt%の添加で結晶化促進を示すバイオベース素材である有機モノグリセリド（OMG）が用いられた。熱処理温度が 170℃の場合、4.0wt%以上の添加で HC 結晶の形成が完全に抑制され、SC 結晶のみの形成が認められ、さらに添加量を増やした場合の 5.0wt%の添加では、SC 結晶のみの形成が認められたことに加えて、最終結晶化度も 40%を達成した。それ以上の OMG 添加によって最終結晶化度の増大が見込まれ、耐熱性達成のための指針とされる結晶化度 50%以上の達成も視野に入ることが示された。可塑剤添加の方法で、上述の排他的 SC 結晶化が達成された理由として、HC 結晶の融点の降下が有効に作用したことが挙げられ、可塑剤添加の複合的な効果が見出された。このような簡便な手法により目的が達成されたことは、学術的のみならず工学的にも重要である。

論文審査の結果の要旨

本学位論文では、プラスチック環境汚染問題の解決に資する生分解性のバイオベースポリマーであるポリ乳酸を対象としている。ポリ乳酸は、現在最も多く使用されているバイオベースポリマーであるが、その耐熱性と力学物性のさらなる向上が求められており、これが実現できれば、さらなる用途の拡大が期待できる。本学位論文では、耐熱性向上の方策として、ステレオコンプレックス（SC）結晶に着目した。SC 結晶とは、ポリ L 乳酸（PLLA）とポリ D 乳酸（PDLA）の１：１の混合物が形成する共結晶で、その融点がそれぞれの単独の成分 PLLA あるいは PDLA が形成する結晶（以後ホモ（HC）結晶とする）の融点よりも 50℃以上も高いという特徴を有する。これが耐熱性の向上に資する根拠であるが、試料の作製条件を最適化しないと、試料中で HC 結晶も形成され、SC 結晶と混在するという問題があった。本学位論文では、試料中で SC 結晶のみを形成させる方法を提供することを最終目標にした研究成果がまとめられている。

具体的な方策として、「熱処理温度の最適化」と「可塑剤添加による方法」が検討された。熱処理温度の最適化とは、HC 結晶の融点直下の 170℃での熱処理である。融点より高温では HC 結晶は形成されないので、SC 結晶のみが形成される。それに対して、低すぎる熱処理温度では HC 結晶形成が競争的に起こるため、検討に値する最適な温度として 170℃が選ばれた。その結果、熱処理時間が短い場合は SC 結晶が優先的に形成されたが、結晶化度は低かったため、熱処理時間を長くして結晶化度の増加が検討された。その結果、HC 結晶も形成され、本来の目的を達成することはできなかったが、この条件下で形成された HC 結晶の融点は、これまでに報告されている文献値よりもかなり高い最高の融点を示すことがわかった。この結果は、HC 結晶の融点の高温化による耐熱性の向上の方策として工学的に有意義である。一方、可塑剤添加による方法では、これまでに明らかにされている可塑剤添加による結晶化促進効果を利用したものである。そもそも可塑剤は高分子のガラス転移温度の低下と融点降下を招くが、その一方で結晶化を加速する効果があることが発見されている。本学位論文研究では特に、ごく少量の１～５wt%の添加で結晶化促進を示すバイオベース素材である有機モノグリセリド（OMG）が用いられた。熱処理温度が 170℃の場合、4.0wt%以上の添加で HC 結晶の形成が完全に抑制され、SC 結晶のみの形成が認められ、5.0wt%の添加では最終結晶化度も 40%を達成した。それ以上の添加によって最終結晶化度の増大が見込まれ、耐熱性達成のための結晶化度 50%以上の達成も視野に入ることが示された。可塑剤添加の方法で、上述の排他的 SC 結晶化が達成された理由として、HC 結晶の融点の降下が有効に作用したことが挙げられ、可塑剤添加の複合的な効果が見出された。このような簡便な手法により目的が達成されたことは、学術的のみならず工学的にも重要である。以上、本学位論文の内容は学術的にも工学的にも非常に価値が高いと認められ、十分な水準を満たしていると判定された。

本論文の基礎となった学術論文 2 編を以下に示す。すべてレフェリー制度の確立した国際的に著名な学術誌に掲載されており、いずれも申請者が筆頭著者である。また、剽窃や二重投稿などの研究倫理に違背する不正行為がないことを確認した。

１. N. H. M. Mahmoud, H. Takagi, N. Shimizu, N. Igarashi, S. Sakurai; “Exclusive formation of stereocomplex crystallites in PLLA/PDLA (50/50) blends by the addition of a plasticizer”, Polymer Journal, 56, 819-831 (2024).

２. N. H. M. Mahmoud, H. Takagi, N. Shimizu, N. Igarashi, S. Sakurai; “Significantly High Melting Temperature of Homopolymer Crystals Obtained in a Poly(L-Lactic Acid)/Poly(D-Lactic Acid) (50/50) Blend”, ACS Omega 2023, 8, 40482-40493.

京都工芸繊維大学

氏　　名	たなか るいと **田中　塁登**
学位(専攻分野)	博　士（工学）
学位記番号	博　1 1 5 2　号
学位授与の日付	令和 6 年 9 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科　バイオベースマテリアル学専攻
学位論文題目	Studies on Strain-Induced Crystallization of Vulcanized Natural Rubber by Synchrotron Wide-Angle X-ray Diffraction （シンクロトロン放射光を用いた広角X線回折による加硫天然ゴムのひずみ誘起結晶化に関する研究）
審査委員	(主査)教授　櫻井 伸一 教授　佐々木 園 准教授　丸林　弘典

論文内容の要旨

本学位論文では、加硫天然ゴムのひずみ誘起結晶化（SIC）についての研究成果が第１章と第２章でまとめられている。まず、General Introduction で、SIC は天然ゴム材料の強靭化に寄与しているため、その結晶化メカニズムを正確に理解することは非常に重要であることが述べられている。さらに、これまでの SIC の説明には不備があることも指摘している。すなわち、伸長方向に高度に引き伸ばされた天然ゴム鎖が核となり、結晶化が起こるとする説が一部の研究者によって提唱されているが、これは SIC が通常のポリマーの結晶化とは異なるメカニズムで起こるかのような印象を与える。SIC が通常のポリマーの結晶化である核形成・成長メカニズムにしたがうことを実証するためには、SIC によって形成された微結晶の融点を求めることや、温度上昇にともなう融解直前の微結晶サイズを評価することが重要であるとも述べられ、本学位論文研究の位置付けが示されている。実際、室温で加硫天然ゴムを７倍に一軸伸長した状態で結晶を形成させ、その状態で試料を固定し、室温から装置の限界温度である 110℃まで昇温させ、シンクロトロン施設において２次元広角 X 線回折（2d-WAXD）測定を実施した結果が、第１章にまとめられている。天然ゴムを一軸伸長した場合の結果に対して、逐次二軸伸長した場合、より興味深い現象が未発表ではあるが申請者によって見出されていることが、同じく General Introduction で述べられている。それは、第一段階の伸長によって形成された結晶が、第二段階の直交方向への伸長によって結晶の融解が促進されるというものである。これは、SIC によって生じた結晶の融点が、その結晶配向の方位とアモルファス鎖の配向方位のズレによって影響を受け、低下するという示唆を与える。一軸伸長ではこれらの方位は一致しているのに対して、逐次二軸伸長では直交あるいは複雑な関係にある。つまり、二軸伸長は、結晶配向方位とアモルファス鎖の配向状態の関係を多様に変化させることができる伸長様式であるため、結晶の融点に与える配向方位のズレの影響を調べる有効な手段になる。このような研究を行う上で、結晶の配向状態を正確に把握することが重要であるため、第２章でまとめられているような研究の重要性が位置づけされ、結晶の融点や融解挙動に与える配向の影響を精密に解明する第一歩であるとの観点から、これら二つの章の関連性が General Introduction で述べられている。

まず第１章では、室温で加硫天然ゴムを７倍に一軸伸長した状態で結晶を形成させ、その状態で試料を固定し、室温から装置の限界温度である 110℃まで昇温させ、シンクロトロン施設において 2d-WAXD 測定を実施した結果がまとめられている。その結果に基づき、昇温過程での結晶格子の軸長（直方晶の *a*, *b*, *c* 軸長）の変化と微結晶サイズの変化が評価され、昇温とともに *a*, *b* 軸長は増加し *c* 軸長は減少することがわかった。*c* 軸長の減少は高分子鎖のセグメント運動の活発化によるものと説明され、高分子の種類によらない共通の挙動である。また、融点に達する前に、装置の限界によってそれ以上の温度に上昇させることができなかったため、微結晶がまだ残存している状態からの冷却過程で同様の測定が実施された。その結果、昇温過程で *a* 軸方向、*b* 軸方向には微結晶サイズが減少したが、*c* 軸方向には増大し、その後の冷却過程では、微結晶サイズが全ての方向で増大した。したがって、微結晶の形状の変化としては、室温で形成された微結晶がほぼ等方的な形状であったが、昇温過程で伸長軸方向に少し伸びたような形状に変化し、その

後の冷却過程で伸長方向に少し伸びた形状を維持しながら、その体積を増大させていくことがわかった。このように、温度変化に応じた構造の変化が詳細に明らかにされた。この結果は、室温のみならず、高温にゴム材料が曝された時の力学物性や強靭性を考察する上で重要な知見となることが期待される。

第２章では、冒頭の General Introduction で述べられた逐次二軸伸長の特異的な融解挙動に関連した構造解析の結果がまとめられている。逐次二軸伸長の第一段階の伸長過程においては、伸長と垂直な方向で試料が収縮しないようにチャックで固定されているため、そのような変形様式は平面伸長と呼ばれる。先行研究で、平面伸長あるいは等二軸伸長によって生じた結晶は面配向を示すこと、すなわち、結晶格子の *ac* 面が試料表面に平行に配向することが報告されているが、再度、この場合の配向状態の詳細を明らかにすることを目的として、シンクロトロン施設で７倍に平面伸長した加硫天然ゴム試料を伸長軸周りに回転させ 2d-WAXD 測定を実施した。回折スポットの強度の回転角度依存性を考察し、*ac* 面が試料表面に完全に平行ではなく、わずかに 6.4°傾斜していることや、(120)面が試料表面に平行である面配向状態も存在していることが明らかにされ、これまで定説であった面配向に修正を加えるべきであることが述べられている。

以上、本学位論文研究で明らかにされた成果は、ゴム材料が高温に晒された場合の力学物性の低減を阻止するための対策を考える際にも有効である。実際、タイヤ、特に航空機のタイヤは着陸時に大きな負荷がかかると同時に、地面との摩擦により高温に曝されるため、乗客・乗員の生命に直接関わる問題となる。したがって、本学位論文研究の成果は、学術的のみならず、工学的にも非常に価値が高いと認められた。

論文審査の結果の要旨

本学位論文では､加硫天然ゴムのひずみ誘起結晶化(SIC)についての研究成果がまとめられている。SIC は天然ゴム材料の強靭化に寄与しているため、その結晶化メカニズムを正確に理解することは非常に重要である。伸長方向に高度に引き伸ばされた天然ゴム鎖が核となり、結晶化が起こるとする説が一部の研究者によって提唱されているが、これは SIC が通常のポリマーの結晶化とは異なるメカニズムで起こるかのような印象を与える。SIC によって形成された微結晶の融点を求めることや、温度上昇にともなう融解直前の微結晶サイズを評価することによって、SIC が通常のポリマーの結晶化である核形成・成長メカニズムにしたがうことを実証することができる。具体的には、室温で加硫天然ゴムを７倍に一軸伸長した状態で結晶を形成させ、その状態で試料を固定し、室温から装置の限界温度である 110℃まで昇温させ、シンクロトロン施設において２次元広角 X 線回折（2d-WAXD）測定を実施した。その結果に基づき、昇温過程での結晶格子の軸長（直方晶の *a, b, c* 軸長）の変化と微結晶サイズの変化を評価し、昇温とともに *a, b* 軸長は増加し *c* 軸長は減少することがわかった。*c* 軸長の減少は高分子鎖のセグメント運動の活発化によるものと説明され、高分子の種類によらない共通の挙動である。また、融点に達する前に、装置の限界によってそれ以上の温度に上昇させることができなかったため、微結晶がまだ残存している状態からの冷却過程で同様の測定が実施された。その結果、昇温過程で *a* 軸方向、*b* 軸方向には微結晶サイズが減少したが、*c* 軸方向には増大し、その後の冷却過程では、微結晶サイズが全ての方向で増大した。したがって、微結晶の形状の変化としては、室温で形成された微結晶がほぼ等方的な形状であったが、昇温過程で伸長軸方向に少し伸びたような形状に変化し、その後の冷却過程で伸長方向に少し伸びた形状を維持しながら、その体積を増大させていくことがわかった。

一方、室温での加硫天然ゴムの逐次二軸伸長によって、次のような興味深い結果が得られていることが冒頭で述べられている。それは、第一段階の伸長によって形成された結晶が、第二段階の直交方向への伸長によって結晶の融解が促進されるというものである。これは、SIC によって生じた結晶の融点が、その結晶配向の方位とアモルファス鎖の配向方位のズレによって影響を受け、低下するという示唆を与える。一軸伸長ではこれらの方位は一致しているのに対して、逐次二軸伸長では直交あるいは複雑な関係にある。つまり、二軸伸長は、結晶配向方位とアモルファス鎖の配向状態の関係を多様に変化させることができる伸長様式であるため、結晶の融点に与える配向方位のズレの影響を調べる有効な手段になる。このような研究を行う上で、結晶の配向状態を正確に把握することが重要である。上述の逐次二軸伸長の第一段階の伸長過程においては、伸長と垂直な方向で試料が収縮しないようにチャックで固定されているため、そのような変形様式は平面伸長と呼ばれる。先行研究で、平面伸長あるいは等二軸伸長によって生じた結晶は面配向を示すこと、すなわち、結晶格子の *ac* 面が試料表面に平行に配向することが報告されているが、再度、この場合の配向状態の詳細を明らかにすることを目的として、シンクロトロン施設で７倍に平面伸長した加硫天然ゴム試料を伸長軸周りに回転させ 2d-WAXD 測定を実施した。回折スポットの強度の回転角度依存性を考察し、*ac* 面が試料表面に完全に平行ではなく、わずかに 6.4°傾斜していることや、(120)面が試料表面に平行である面配向状態も存在していることが明らかにされ、これまで定説であった面配向に修正を加えるべきであることが述べら

れている。
　これらの内容は学術的にも工学的にも非常に価値が高いと認められ、本学位論文は博士論文として十分な水準を満たしていると判定された。

　本論文の基礎となった学術論文 2 編を以下に示す。すべてレフェリー制度の確立した国際的に著名な学術誌に掲載されており、いずれも申請者が筆頭著者である。また、剽窃や二重投稿などの研究倫理に違背する不正行為がないことを確認した。

１. R. Tanaka, T. Yasui, H. Takagi, N. Shimizu, N. Igarashi, H. Masunaga, Y. Kitamura, K. Tsunoda, T.-T. Mai, K. Urayama, S. Sakurai; “Revisit of crystal orientation in a vulcanizate of natural rubber under planar elongation”, Polymer Journal, 56, 753-763 (2024).
２. R. Tanaka, T. Yasui, Y. Kitamura, K. Tsunoda, H. Takagi, N. Shimizu, N. Igarashi, H. Masunaga, K. Urayama, S. Sakurai; “Application of a Strained Natural Rubber at High Temperatures”, ACS Applied Polymer Materials 2024, 6, 2799-2806.