



道總研

ISSN2189-1230

CODEN HOKSA 9

北海道立総合研究機構 工業試験場報告

Reports
of
Hokkaido Research Organization Industrial Research Institute

(No.318)

2019

地方独立行政法人 北海道立総合研究機構
産業技術研究本部

工業試験場

目 次

一般論文

- | | |
|-----------------------------------|---|
| 1 OCT技術の食品・工業製品検査への応用に関する研究 | 岡崎 伸哉, 飯島 俊匡, 本間 稔規 …………… 1
大村 功 |
| 2 機械学習を用いた物体認識技術に関する研究 | 近藤 正一, 全 慶樹, 藤澤 怜央 …………… 7
堀 武司 |
| 3 積雪寒冷地におけるコンクリート劣化の評価技術の開発 | 板橋 孝至, 田中 大之, 高橋 英徳 …………… 13
谷口 円 |
| 4 欠測に対応可能な水稲収量予測ツールの開発 | 神生 直敏, 佐藤 博一 …………… 23 |
| 5 樹脂系3Dプリンタ造形品の平滑化処理 | 安田 星季, 岩越 睦郎 …………… 31 |
| 6 金属粉末積層造形法におけるマルエージング鋼造形物の寸法精度向上 | 鈴木 逸人, 戸羽 篤也 …………… 37 |
| 7 マルエージング鋼による水冷管を内蔵した金属3D造形金型の製作 | 戸羽 篤也, 鈴木 逸人, 平野 繁樹 …………… 45
長船 康裕, 葛西 勝明, 葛西 健央 |

研究ノート

- 1 移動作業ロボットのセンシング情報補完技術の開発 鈴木 慎一, 浦池 隆文, 今岡 広一 53
- 2 気象観測センサによるデータ収集と営農への活用 堀 武司, 全 慶樹, 近藤 正一 57
藤澤 怜央, 大村 功
- 3 新規機構を有する熱音響デバイスに関する研究 平野 繁樹, 戸羽 篤也, 鈴木 逸人 63
保科 秀夫
- 4 電気分解法による排水処理技術 佐々木雄真, 若杉 郷臣, 鎌田 樹志 67
富田 恵一, 三津橋浩行
- 5 鉄系資材によるひ素及びセレンの除去技術 富田 恵一, 若杉 郷臣, 明本 靖広 73
稲野 浩行
- 6 熱交換器にスケールの固着が生じる源泉からの熱回収 白土 博康, 藤澤 拓己, 保科 秀夫 79
- 7 中温度域における直接接触熱交換式潜熱蓄熱システムの研究 藤澤 拓己, 白土 博康, 富樫 憲一 85
平野 繁樹, 保科 秀夫
- 8 イオン液体を用いたチタンの窒化処理に関する研究 坂村 喬史, 斎藤 隆之 89
- 9 装飾めっきを代替するスパッタリング成膜プロセスの開発 斎藤 隆之, 坂村 喬史, 土永 賢治 93
- 10 鉛ガラス, プリント基板, 炭酸カルシウム系廃棄物の熔融による金属回収 稲野 浩行, 富田 恵一, 堀川 弘善 99
- 11 熱溶融積層型 3D プリント造形物の機械特性向上の検討 吉田 昌充, 可児 浩, 瀬野修一郎 105
大市 貴志, 山岸 暢

CONTENTS

Regular Paper

1	Research on Application of Optical Coherence Tomography for Food and Industrial Product Inspection	1
	Shin'ya OKAZAKI, Toshimasa IIJIMA, Toshinori HONMA Isao OHMURA	
2	Study on Object Detection Method by Machine Learning	7
	Shouichi KONDOU, Keiki ZEN, Reo FUJISAWA Takeshi HORI	
3	Development of Deterioration Evaluation Method for Damaged Concrete in Cold Region	13
	Koji ITABASHI, Hiroyuki TANAKA, Hidenori TAKAHASHI, Madoka TANIGUCHI	
4	Development of Paddy Rice Yield Prediction Tool that can Deal with Missing Data	23
	Naotoshi KAMIO, Hirokazu SATOH	
5	Smoothing Process for Resin Type 3D Printer Models	31
	Seiki YASUDA, Mutsuro IWAKOSHI	
6	Accuracy Improvement of Maraging Steel Parts in Powder Bed Fusion Additive Manufacturing	37
	Hayato SUZUKI, Atsuya TOBA	
7	Production of 3D-Printing Metallic Mold that has Inner Water-Cooling Channels by Maraging Steel	45
	Atsuya TOBA, Hayato SUZUKI, Shigeki HIRANO, Yasuhiro OSAFUNE, Katsuaki KASAI, Takeo KASAI	

Research Note

1	Development of Method to Achieve Work by Supplementing Sensing Results for Mobile Work Robots	53
	Shinichi SUZUKI, Takafumi URAIKE, Kouichi IMAOKA	
2	Data Acquisition using Meteorological Sensors and its Applications to Farming.....	57
	Takeshi HORI, Keiki ZEN, Shouichi KONDO Reo FUJISAWA, Isao OHMURA	
3	Research on Thermoacoustic Device with Advanced Structure	63
	Shigeki HIRANO, Atshuya TOBA, Hayato SUZUKI Hideo HOSHINA	
4	Waste Water Treatment Technologies by Electrolysis	67
	Takema SASAKI, Motoomi WAKASUGI, Tatsuyuki KAMADA Keiichi TOMITA, Hiroyuki MITSUHASHI	
5	Removal of Arsenic and Selenium with Iron-Based Materials	73
	Keiichi TOMITA, Motoomi WAKASUGI, Yasuhiro AKEMOTO Hiroyuki INANO	
6	Heat Recovery from a Hot Spring where Scale can Easily Stick to a Palisaded Heat Exchanger Combined with Plastic Pipes	79
	Hiroyasu SHIRATO, Takumi FUJISAWA, Hideo HOSHINA	
7	Study on Direct-contact Heat Storage System using Erythritol as a Latent Heat Storage Material	85
	Takumi FUJISAWA, Hiroyasu SHIRATO, Kenichi TOGASHI Shigeki HIRANO, Hideo HOSHINA	
8	Study on Nitriding Processing of Titanium using Ion Liquid	89
	Takashi SAKAMURA, Takayuki SAITOU	
9	Development of the Sputtering Deposition Process Replacing to Decorative Electroplating	93
	Takayuki SAITOU, Takashi SAKAMURA, Kenji TSUCHINAGA	
10	Metal Recovery by Melting of Leaded Glass, Printed Circuit Board and Waste Containing Calcium Carbonate	99
	Hiroyuki INANO, Keiichi TOMITA, Hiroyoshi HORIKAWA	
11	Improvement of Mechanical Properties of FDM 3D Printed Objects	105
	Masamitsu YOSHIDA, Hiroshi KANI, Shuichiro SENO Takashi OHICHI, Tohru YAMAGISHI	

一 般 論 文

Regular Paper

OCT技術の食品・工業製品検査への応用に関する研究

岡崎 伸哉, 飯島 俊匡, 本間 稔規, 大村 功

Research on Application of Optical Coherence Tomography for Food and Industrial Product Inspection

Shin'ya OKAZAKI, Toshimasa IIJIMA, Toshinori HONMA, Isao OHMURA

抄 録

非破壊・非接触で計測対象物の表面・内部構造を計測可能な技術として、光コヒーレンストモグラフィ(Optical Coherence Tomography, 以下OCT)がある。主に医療診断技術として実用化されており、非接触・非侵襲、数 μm ～数十 μm の高空間分解能、計測可能な深度が数mmという特徴を有している。

本研究では、OCTの産業分野への応用を目的に光軸方向における計測範囲拡大のための改良型SD-OCTシステムを構築し、食品では骨を含む鮭の切り身、工業製品では傷があるユニバーサル基板と打痕があるベアリングの計測を行った。その結果、表層付近の骨やマイクロメートルオーダーの傷・打痕の計測が可能であり、食品内部や工業製品の表面における傷検査への適用が可能であることを確認した。

キーワード：光コヒーレンストモグラフィ, 食品, 工業製品, 内部検査, 製品検査

Abstract

Optical Coherence Tomography (OCT) can be used to measure the surface and internal structure of an object non-invasively. OCT has been mainly put to practical use as a medical diagnostic technology. OCT features are non-invasive, high spatial resolution of several μm to several tens μm and measurable depth of several mm.

In this research, an improved SD-OCT system for the purpose of applying to the industrial field has been developed by expanding the measurement range in the direction of the optical axis. The fillet of salmon with bone, the electric circuit board and the bearing with scratches and dents were evaluated by the OCT system. As a result, the system has shown good performance, and we confirmed that the system can be applicable to the internal inspection of food and industrial products.

KEY-WORDS : Optical Coherence Tomography, Food, Industrial Products, Internal Inspection, Product Inspection

1. はじめに

光干渉の原理を応用して対象物の表面・内部の構造情報を取得する技術として、光コヒーレンストモグラフィ(Optical Coherence Tomography, 以下OCT)がある^{1,2)}。OCTは光が一定量内部に到達可能なサンプルに対して断層画像を取得可能な技術であり、非接触・非侵襲、高空間分解能(数 μm ～数十 μm)、計測深度が数mmという特徴を有している。主に医療分野において研究・開発が進められており、

眼底検査で実用化されている。一方で、医療分野以外への適用事例は少ない。

そこで本研究では、医療分野以外、主に産業分野へのOCTの適用を目的に、食品の内部検査、及び工業製品の表面における欠陥検査への適用可能性について検討した。

事業名：経常研究

課題名：OCTの産業応用に向けた断層情報解析技術に関する研究

2. OCTの概要

2.1 OCTの原理

OCTの構成は低コヒーレンス光源を用いたマイケルソン干渉計である。低コヒーレンス光とはレーザーのような高コヒーレンス光とは異なり、時間方向の狭い範囲でのみ干渉をおこす光である。OCTの原理を図1に示す。光源から出射された平行光束はビームスプリッタにより、リファレンス光とサンプル光の2つに分割される。サンプル光はサンプル表面及び内部の屈折率が変化する境界面で反射し、リファレンスミラーで反射したリファレンス光とビームスプリッタで再度1つに合成され、検出器に入射する。このとき、リファレンス光の光路長 L_R とサンプル光の光路長 L_S が一致したときのみ干渉がおり、増幅された信号が得られる。リファレンスミラーを光軸方向に走査し、光路長を変化させることにより、サンプル内部の境界面を走査することができ、構造情報（屈折率が変化する境界面の位置）を取得することができる。

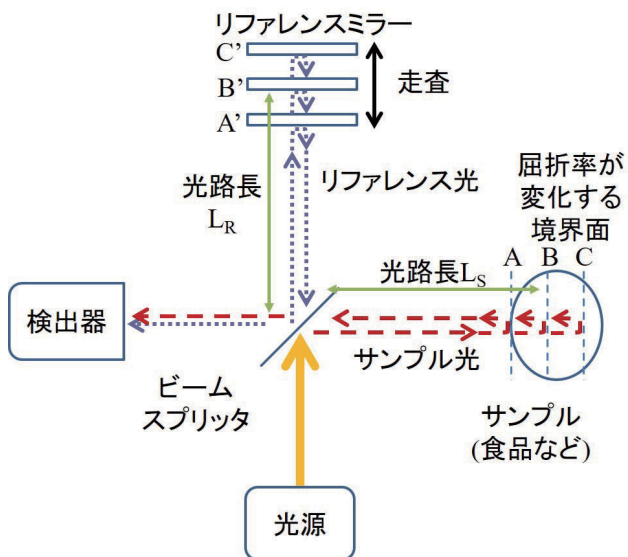


図1 OCT原理図

2.2 OCTの分類

OCTは大きく2つの方式に分類される。2.1節で説明した方式はタイムドメインOCT (Time-Domain OCT, 以下TD-OCT) と呼ばれており、リファレンスミラーを走査しながら強度信号を取得する。光路長が一致すると干渉現象による信号の増幅が生じることから、強度信号のピーク位置を解析して光軸上の構造情報を得ることができる。一方、フーリエドメインOCT (Fourier-Domain OCT, 以下FD-OCT) と呼ばれる方式では、検出器にマルチチャンネル分光器などを用いて干渉スペクトルを計測する。干渉スペクトルは光路長の差に応じて変調されることから、フーリエ解析を行うことにより、リファレンスミラーを固定した状態で、光軸上の一

定範囲の構造情報を得ることができる。

それぞれの方式はさらに複数の方式に分類される³⁾(図2)。

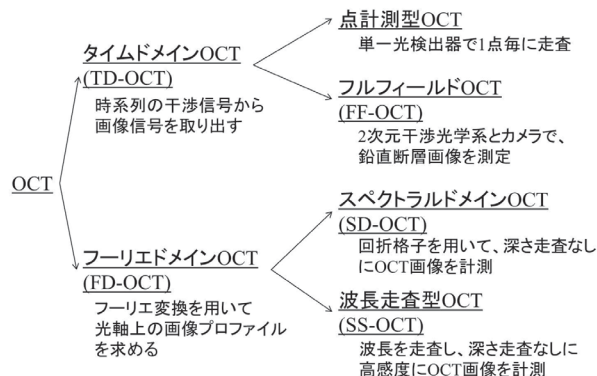


図2 OCTの分類

3. 構築したOCTシステム

3.1 SD-OCTシステムの構築

本研究では、感度・測定速度で優れているFD-OCT⁴⁾のうち、検出器にマルチチャンネル分光器を用いることで構成可能なSD-OCTをベースとし、サンプルホルダを電動ステージに設置することにより、光軸方向に対してサンプルを走査可能な改良型SD-OCTを構築した。

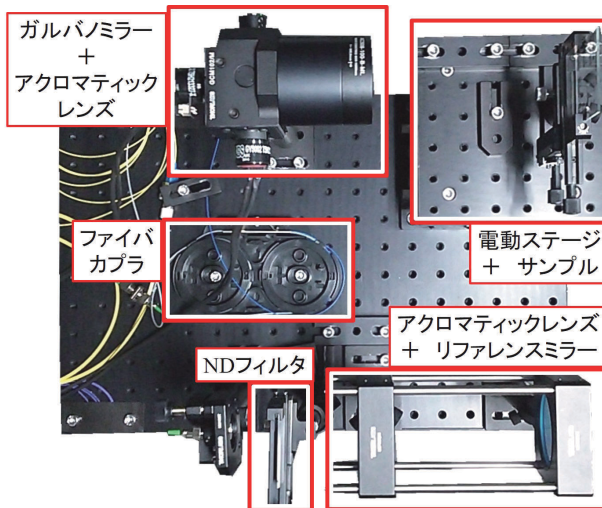


図3 構築した改良型SD-OCT

SD-OCTは光軸方向に対し、リファレンスミラーを基準として、一定範囲の構造情報を一括で取得可能である。その計測深度 z_{max} は次式で表わされる。

$$z_{max} = \frac{1}{4n} \frac{\lambda_c^2}{\delta\lambda} \dots (1)$$

ここで、 n は計測対象物の屈折率、 λ_c は光源の中心波長、 $\delta\lambda$ は検出器の波長分解能である。今回構築したSD-OCTシステムの場合、 $\lambda_c = 850 \text{ nm}$ 、 $\delta\lambda = 0.369 \text{ nm}$ であり、 $n = 1$

(空气中) の場合は、 z_{max} は約 $490\mu\text{m}$ となる。一方、光軸に直行する軸方向については、ガルバノミラーを用いて光を走査する。ガルバノミラーには2枚のミラーが内蔵されており、それぞれのミラーの角度を制御することにより、光軸に直行する軸方向に光を走査することができる。

空間分解能については、光軸方向と光軸に直行する軸方向に分けて考える。光軸方向の分解能 Δz は、光源のコヒーレンス長により決定され、次式で表わされる。

$$\Delta z = \frac{2 \ln 2}{\pi} \frac{\lambda_c^2}{\Delta \lambda} \dots (2)$$

ここで、 λ_c は光源の中心波長、 $\Delta \lambda$ は光源の半値全幅(FWHM)、 \ln は自然対数である。また、光軸と直行する軸方向の分解能 Δx は、光束の直径により決定され、次式で表わされる。

$$\Delta x = \frac{4 \lambda_c}{\pi} \frac{f}{d} \dots (3)$$

ここで、 f はレンズの焦点距離、 d はコリメート光の直径である。

3.2 改良型SD-OCTシステム

今回構築したシステムでは光軸(深さ)方向に対して約 $490\mu\text{m}$ しか計測することができず、産業分野への適用を考えた場合、厚さが $490\mu\text{m}$ 以下の対象物に限られてしまう。前述したとおり、SD-OCTはリファレンスミラーまでの光路長を基準に一定範囲、本システムでは約 $490\mu\text{m}$ の範囲を一括で計測できることから、計測対象物を電動ステージで走査し、対象物からの反射光が得られる範囲において、異なる基準面からの構造情報を取得・合成可能な改良型SD-OCTシステムを構築し、光軸方向における計測範囲の拡大を図った。

3.3 空間分解能の検証

構築した改良型SD-OCTシステムの空間分解能について検証を行った。3.1節でも記載した通り、空間分解能は光軸方向と光軸に直行する軸方向に分けて考える。

光軸方向の空間分解能については式(2)で算出できる。検証時の各パラメータは $\lambda_c = 873.9\text{nm}$ 、 $\Delta \lambda = 35.6\text{nm}$ であり、理論値は $\Delta z = 9.46\mu\text{m}$ となる。実測値については、取得した強度ピークプロファイルに対してガウスフィッティングを施すことにより、その半値全幅が実測値となる。図4にテストターゲットを対象に取得したプロファイルとガウスフィッティングの結果を示す。得られたガウスフィッティングの半値全幅、即ち実測値は $10.11\mu\text{m}$ となり、ほぼ理論値通りの空間分解能が得られていることが確認できた。

一方、光軸と直行する軸方向の空間分解能については式(3)で算出できる。本システムでは $f = 50\text{mm}$ と $f = 100\text{mm}$ のレンズにて検証を行った。そのほかのパラメータは $\lambda_c = 873.9\text{nm}$ 、 $d = 2.1\text{mm}$ である。理論値は $f = 50\text{mm}$ の場合、

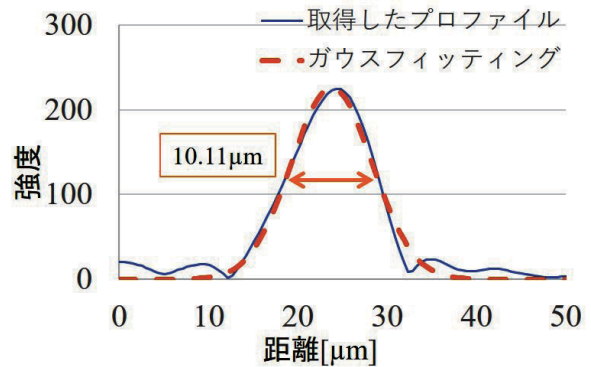


図4 光軸方向の空間分解能の検証

$\Delta x = 26.49\mu\text{m}$ 、 $f = 100\text{mm}$ の場合、 $\Delta x = 52.98\mu\text{m}$ となる。

実測値の算出には、図5のテストターゲットを使用した。テストターゲットには明・暗のラインが垂直・水平方向に5本ずつ描画されている。1つのラインと次のラインまでの空間を1つのサイクルとしており、サイクルの周波数[サイクル/mm]が数値で表示されている。例えば、40のラインであれば、暗のラインから次の暗のラインまでの距離が $1/40 = 25\mu\text{m}$ となっている。

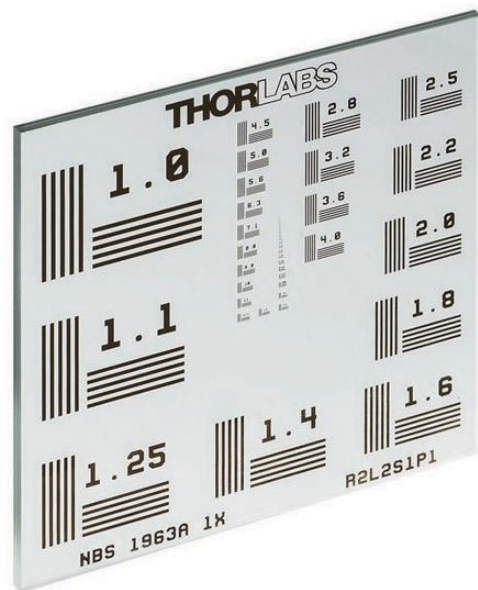


図5 使用したテストターゲット (THORLABS 製)

図6に $f = 50\text{mm}$ において40のラインを計測した結果を示す。左図が取得したスライス画像、右図がスライス画像の一部における明度変化をグラフ化したものである。右図のグラフより、垂直・水平ラインにおける明・暗が分離されていることから、 $1/40 = 25\mu\text{m}$ とほぼ理論値通りの空間分解能が得られていることがわかる。また、図7に $f = 100\text{mm}$ において20のラインを計測した結果を示す。各図は図6と同様で、こちらからも $1/20 = 50\mu\text{m}$ とほぼ理論値通りの空間分解能が得られていることがわかる。

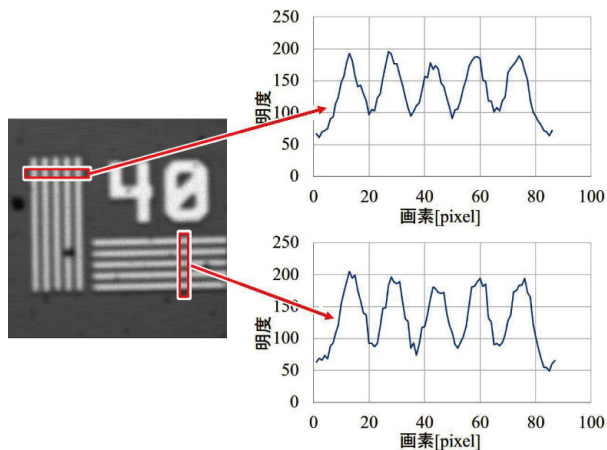


図6 光軸と直行する軸方向の空間分解能の検証 ($f=50\text{mm}$)

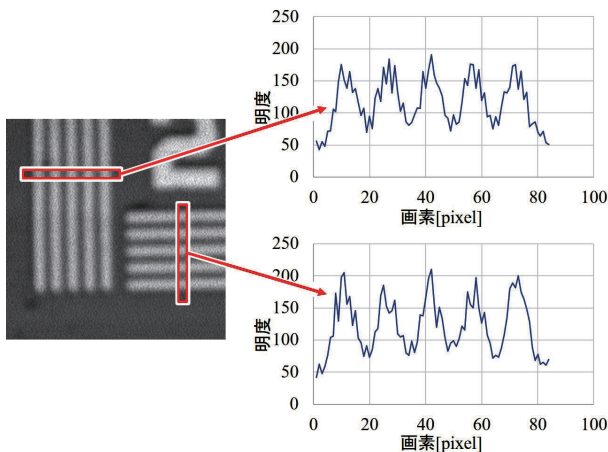


図7 光軸と直行する軸方向の空間分解能の検証 ($f=100\text{mm}$)

4. 工業製品や食品の計測事例

表面検査への適用事例として、銅箔にカッターで傷を付加したユニバーサル基板と打痕があるベアリングを計測した。また、内部検査への適用事例として乳白色の樹脂で電極がパッケージされているLEDと骨を含む鮭の切り身を計測した結果を示す。

4.1 銅箔に傷があるユニバーサル基板の計測事例

銅箔部分に傷があるユニバーサル基板の表面構造を計測した。銅箔厚さは $35\mu\text{m}$ であり、 $f=50\text{mm}$ のレンズを使用した(光軸と直行する軸方向の分解能 $\Delta x=25\mu\text{m}$)。光軸に直行する軸方向への光の走査は $1.57\mu\text{m}$ 刻みでX軸方向に161点、Y軸方向に161点、合計25,921点計測した。1点計測するのに30ミリ秒、全体の計測に約13分を要する。計測したユニバーサル基板の写真と計測範囲及び取得した表面の構造情報を図8に示す。視認性の観点から点群データそのままでは

なく、三角メッシュを生成し、表面をレンダリングしている。グレースケールは高さ(紙面奥行き方向、またはZ軸方向)情報を示しており、単位は μm である。

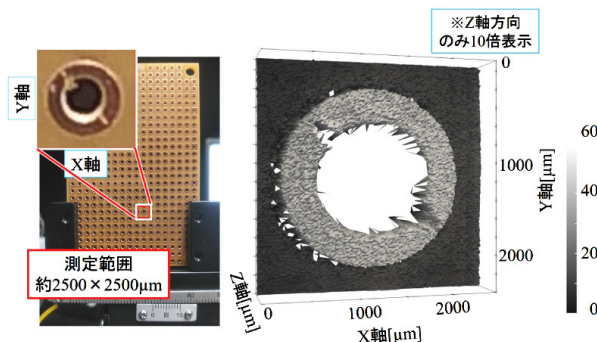


図8 計測したユニバーサル基板(左)と点群データから生成した三角メッシュ(右)

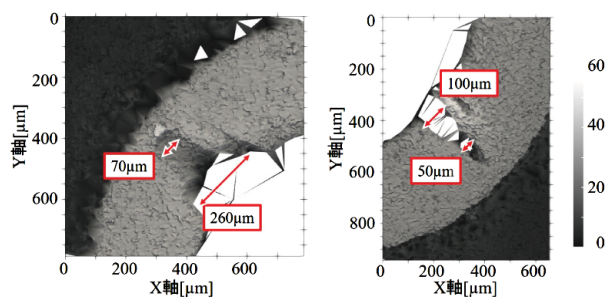


図9 傷部分の拡大図

銅箔の平面とそれ以外の平面、それぞれの平均値の差分を計算すると約 $35\mu\text{m}$ となった。また、傷部分についてはデータが欠落しており、欠陥があることがわかる。図9に傷部分を拡大した図を示す。画像上で傷の大きさを計測したところ、約 $50\mu\text{m}$ ~ $260\mu\text{m}$ の欠陥があることが確認できた。以上のことから、マイクロメートルオーダーの欠陥検査が可能であると考えられる。

4.2 打痕があるベアリングの計測事例

打痕があるベアリングの表面構造を計測した。ベアリングは外径 19mm 、内径 10mm であり、 $f=100\text{mm}$ のレンズを使用した(光軸と直行する軸方向の分解能 $\Delta x=50\mu\text{m}$)。光軸に直行する軸方向への光の走査は $3.26\mu\text{m}$ 刻みでX軸方向に101点、Y軸方向に101点、合計10,201点計測した。1点計測するのに30ミリ秒、1面の計測に約5分を要する。加えて、サンプルを光軸方向に $100\mu\text{m}$ 刻みで走査し、計3回計測したことから、全体の計測には約15分を要した。計測したベアリングの写真と計測範囲及び取得した表面の構造情報を図10に示す。前節と同様に三角メッシュを生成し、表面をレンダリングしている。グレースケールは高さ(紙面奥行き方向、またはZ軸方向)情報を示しており、単位は μm である。

図10の左下に打痕なしのデータを、右下に打痕ありのデー

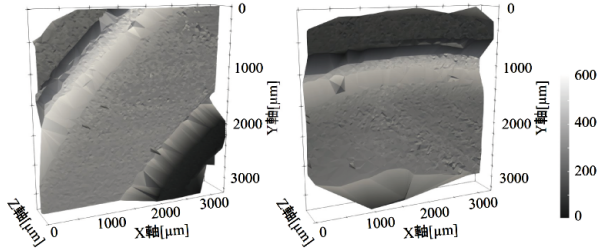


図10 計測したベアリング(上)と点群データから生成した三角メッシュ(左下:打痕なし, 右下:打痕あり)

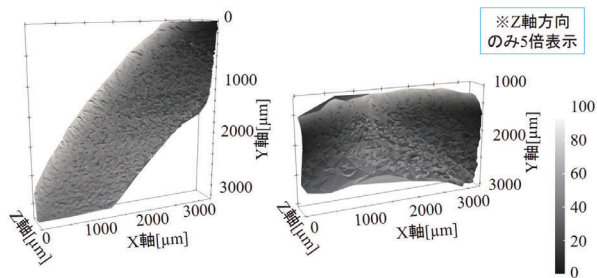


図11 打痕部分の拡大図(左:打痕なし, 右:打痕あり)

タを示している。一見すると両データとも、打痕はないように見える。図11に打痕がある面と、打痕なしのデータと同じ面を拡大した図を示す。打痕なしのデータ(左)では左下から右上に向かって濃度、即ち奥行き値に変化はあるが、一様な変化をしていることから、フラットな面であり、打痕は存在しないことわかる。一方で打痕ありのデータ(右)では左右から中央に向かって濃度、即ち奥行き値の変化が生じていることから、中央に凹みがあることを示しており、打痕の存在が確認できる。またその深さは、約60~80μmであった。

4.3 LEDの計測事例

乳白色の樹脂で電極がパッケージされているLEDを計測した。樹脂パッケージの厚さは2mmで、電極は厚さ方向に対しほぼ中央にある。計測には $f=100$ mmのレンズを使用した(光軸と直行する軸方向の分解能 $\Delta x=50\mu\text{m}$)。光軸に直行する軸方向への光の走査は $3.26\mu\text{m}$ 刻みでX軸方向に101点、Y軸方向に101点、合計10,201点計測した。1点計測するのに30ミリ秒、1面の計測に約5分を要する。加えて、樹脂表面と電極が計測できるようサンプルを光軸方向に走査し、計2回計測したことから、全体の計測には約10分を要した。計測したLEDの写真と計測範囲及び取得した表面及び

内部の構造情報を図12に示す。前節と同様に三角メッシュを生成し、表面をレンダリングしている。グレースケールは高さ(紙面奥行き方向、またはZ軸方向)情報を示しており、単位はμmである。

得られた点群データにおいて、Z軸の0μm付近にある平面が樹脂パッケージの表面、Z軸の1000μm付近にある平面が内部の電極の構造情報である。LEDの構造上、樹脂-電極-樹脂の3つの平面が得られることが予測されるが、後ろ側の樹脂面は計測できなかった。原因としては、樹脂による光の減衰により後ろ側の樹脂面からの反射光が得られず、計測することができなかったと考えられる。

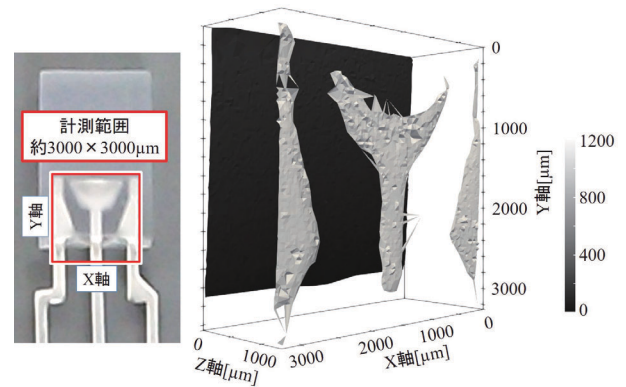


図12 計測したLED(左)と点群データから生成した三角メッシュ(右)

4.4 骨を含む鮭の切り身の計測事例

内部に骨がある鮭の切り身を計測した。計測には $f=100$ mmのレンズを用いた(光軸と直行する軸方向の分解能 $\Delta x=50\mu\text{m}$)。光軸に直行する軸方向への光の走査は $3.26\mu\text{m}$ 刻みでX軸方向に101点、Y軸方向に101点、合計10,201点計測した。1点計測するのに30ミリ秒、1面の計測に約5分を要する。加えて、サンプルを光軸方向に $100\mu\text{m}$ 刻みで走査し、計3回計測したことから、全体の計測には約15分を要した。計測した骨を含む鮭の切り身の写真と計測範囲及び取得した内部の構造情報を図13に示す。右図にある構造情報はボリュームデータであり、XYZ軸の3次元位置情報に加え、各点の強度をグレースケールで表示している。面状に生

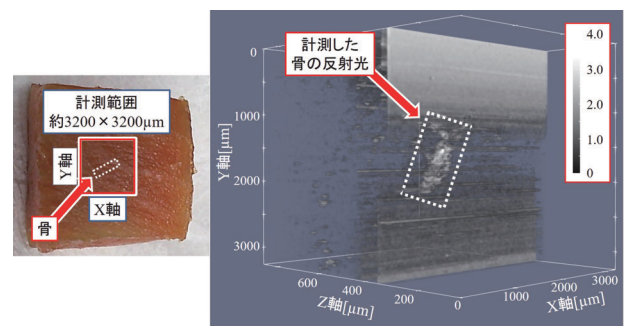


図13 計測した鮭の切り身(左)と取得したボリュームデータ(右)

じているデータはノイズであり、中央の点線で強調しているデータが切り身内部の骨からの反射光となる。今回の実験条件では、深さ600 μ m程度まで計測できたが実用化を考えた場合、600 μ m程度の深度では範囲が狭いため、更なる計測深度の向上が必要である。

5. OCTによる計測の優位性についての考察

4.2節のような光沢物を、カメラを用いた画像処理により検査しようとした場合、欠陥の検出は可能であるが、欠陥の向きなどにより照明の当て方を工夫する必要がある。一方で、本技術の場合は計測面に対してほぼ垂直に光を照射することにより、構造情報を得ることができるため、光沢の有無にかかわらず、検出が可能である。

また、4.3節のような光の散乱の影響が大きい対象物の内部構造を、カメラを用いた画像処理により検出しようとした場合、光の散乱の影響で検出が困難となる可能性がある。一方で、本技術を用いた場合、図12のように電極の構造情報が得られており、4.1節のユニバーサル基板や4.2節のベアリングのように欠陥を検出できる可能性が高いことから、本技術による欠陥計測は有効であると考えられる。

6. おわりに

本研究では、OCTの産業分野への応用を目的に改良型SD-OCTシステムを構築し、光軸方向における計測範囲の拡大を実現した。また、食品として骨を含む鮭の切り身、工業製品としてマイクロメートルオーダーの傷があるユニバーサル基板や打痕があるベアリングの計測を行った。その結果、内部の骨や傷・打痕が計測できたことから、食品の内部検査、工業製品の表面における微小な傷検査への適用が可能であることが確認できた。

今後は計測深度の拡大や高速化などの性能向上を目的としたシステム改良を行い、OCTの産業分野への応用について更なる開発を進める予定である。

引用文献

- 1) Brett E.Bouma, Guillermo J.Tearney : Handbook of Optical Coherence Tomography, informa, 756PP., (2001)
- 2) 佐藤学・丹野直弘：光コヒーレンストモグラフィの基礎, 光学, Vol.32 No.4, pp.268-274, (2003)
- 3) 島田敏男：バイオメディカルフォトンクスー生体医用工学の基礎と応用－, 社団法人 電気学会, 198PP., (2009)
- 4) R.Leitgeb, C.K.Hitzenberger and A.F.Fercher : Per-

formance of fourier domain vs. time domain optical coherence tomography, Opt. Express, Vol.11, pp.889-894, (2003)

機械学習を用いた物体認識技術に関する研究

近藤 正一, 全 慶樹, 藤澤 怜央, 堀 武司

Study on Object Detection Method by Machine Learning

Shouichi KONDOU, Keiki ZEN, Reo FUJISAWA, Takeshi HORI

抄 録

近年、物体認識性能は機械学習により著しく向上している。本研究では、機械学習による物体認識手法である畳み込みニューラルネットワーク（CNN）を用いて、一次産業を中心とした様々な分野への適用を試みた。小麦粒の赤かび病発生判定、木材断面領域の検出、じゃがいもの芽領域の検出および動物の姿勢推定について、機械学習データセットを構築した。CNNによる学習および識別を行い、適切なデータセットを整えることで良好な結果が得られることがわかった。

キーワード：機械学習, ディープラーニング, 画像解析, 物体認識, 畳み込みニューラルネットワーク

Abstract

Recently, the performance of object recognition has been improved remarkably by machine learning. In this research, we tried application of convolutional neural networks (CNN) which is object recognition method by machine learning to various fields focus on primary industry. We build machine learning datasets for diagnosing of Fusarium blight of wheat grain, detection of wood cross section, detection of potato-eyes and pose estimation of animals. We trained and tested by CNN, it was found that good results are obtained by preparing appropriate datasets.

KEY-WORDS : Machine Learning, Deep Learning, Image Analysis, Object Recognition, Convolutional Neural Network

1. はじめに

近年、様々な分野で自律的に動作するシステムの開発が行われている。これらのシステムでは自ら環境を認識し、判断し、行動（処理）することが求められる。この中で環境を認識するために不可欠な技術要素として、画像から得られるシーンから物体を抽出したり、それが何であるかを認識する物体認識技術がある。

画像のカテゴリ分類を行う一般物体認識は、画像認識の分野において重要かつ困難な課題として取り組まれてきたが、近年著しく性能が向上し、国際的な大規模画像認識コンペティションILSVRCにおいて2015年には人間を超える精度を達成した¹⁾。現在この分野において最も顕著な成功を収めているのは、畳み込みニューラルネットワーク（CNN）と呼ばれる、脳の視覚野の構造に関する知見をもとに考案された機

械学習手法である。機械学習はデータを元に、識別モデルのパラメータを決定する手法であり、良質な訓練データが必要である。動物や乗り物、機械等の様々な種類の画像1,400万枚、2万クラスを超える大規模な画像データセットであるImageNetの登場、それに伴うCNNモデルの複雑化、計算機性能の向上等の要因により、高い認識性能が達成されたと考えられている。

また、画像のカテゴリ分類より難しい処理である物体検出、物体領域検出、骨格推定等（図1）へもCNNが応用され、これらに対しても従手法より著しく性能が向上し、実用レベルに近づいている。

当场では、これらの物体認識技術を様々な分野において活用する検討を進めている。本研究では、一次産業を中心としたいくつかの事例について適用結果を報告するとともに活用の可能性について検討した。

事業名：経常研究

課題名：機械学習による一般物体・空間・現象認識



図1 画像認識における処理

2. 機械学習による物体認識技術

2.1 畳み込みニューラルネットワーク (CNN)

畳み込みニューラルネットワーク (CNN) は、画像認識分野において高い性能を達成している機械学習手法である。従来の画像認識手法では、認識・解析する内容に応じて熟練者が適切な空間フィルタの設計をする必要があった。一方、CNNは、フィルタの係数を大量のデータを用いた機械学習により決定することができる。良質なデータによる学習を行うことで高い認識性能が期待できる。

図2はCNNによる画像分類の例である。CNNは大きく特徴抽出層と分類器に分けられる。特徴抽出層では空間フィルタによる特徴量の抽出、分類器では抽出された特徴量による分類を行うことで、入力された画像を対応したカテゴリーに分類する。処理に必要な係数は対象とする物体の画像を学習させることで得られるため、様々な物体の検出・分類に広く用いることができる。特に、対象物の色や形状がさまざま、撮像環境の変化や汚れなどがある一次産業分野では、従来手法では精度向上が困難であったため、今後の自動化を進める上で重要な技術となる。

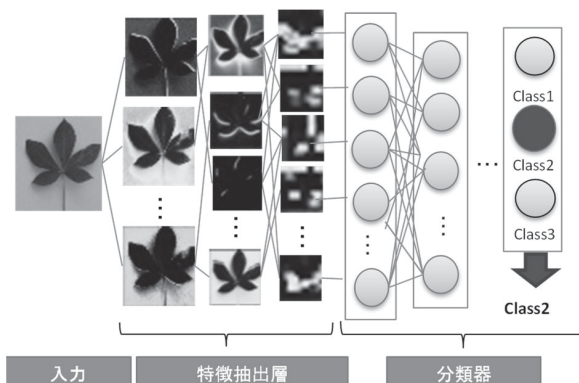


図2 CNNによる画像分類の例

2.2 物体検出手法・物体領域検出手法

物体検出手法は、画像内の物体のカテゴリー分類に加えてその位置と大きさを検出する手法である。また、物体領域検出は、物体の形状を画素レベルでのカテゴリー分類を行って検出する手法である。

CNNを用いた代表的な物体領域検出手法であるMask R-CNN²⁾を図3に示す。入力画像に対して①特徴抽出を行い、得られた特徴量をもとに②領域候補検出を行う。各領域候補内の特徴量に対して畳み込み演算を行うことで、③位置調整、

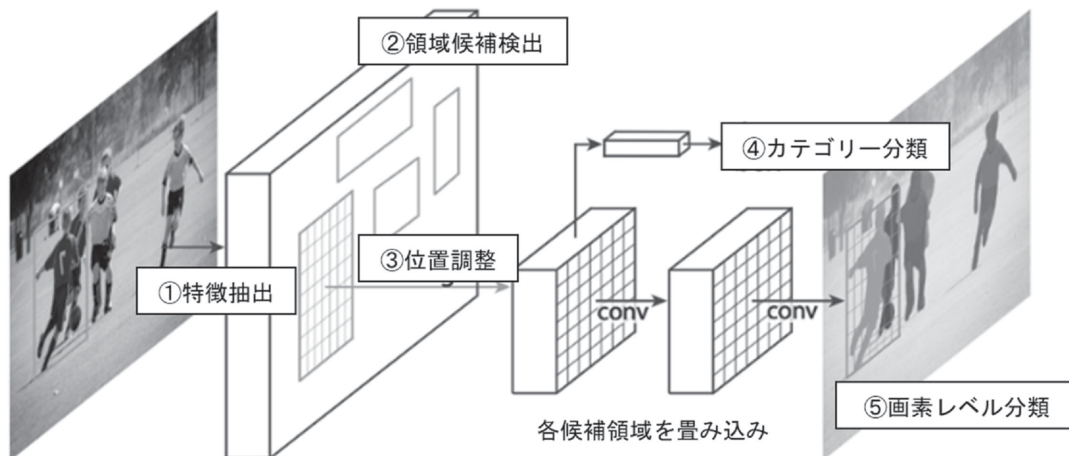


図3 CNNによる物体検出手法 (Mask R-CNN)

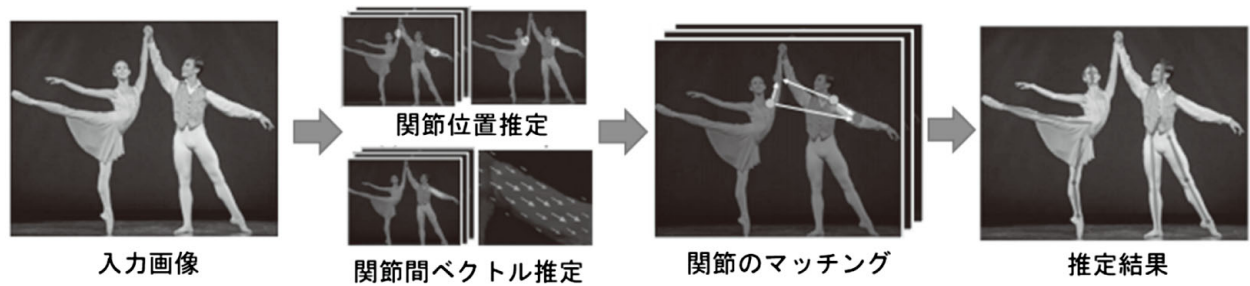


図4 CNNによる骨格推定手法 (OpenPose)

④カテゴリー分類および⑤画素レベルの分類を行い、物体の形状を検出する。

画像分類手法であるCNNにおいて、後段の分類器に相当する部分を置き換えることで、物体の位置や形状等の認識を行うことができる(図3)。

2.3 骨格推定手法

骨格推定手法は、物体の姿勢を推定する手法である。単純化した骨格モデルと関節位置を学習させることで、骨格の状態として姿勢を推定することができる。人間に対しては大規模で良質なデータセットが公開されており、リアルタイムに複数人数の骨格を推定する手法が提案されている。代表的な骨格推定手法であるOpenPose³⁾を図4に示す。入力画像から抽出した特徴量をもとに関節位置推定と各関節をつなぐベクトルの推定を行い、それらの連結性を評価することで骨格の推定を行っている。

姿勢や動きの評価が可能となることから、家畜等の健康管理、人の作業負荷計測などへの適用に応用できる。

3. 機械学習による物体認識技術の適用

これまでに検討を進めた物体認識手法により、実際の課題に対して、適用した結果を報告する。

3.1 学習用データセットの作成

機械学習の適用には適切なデータセット(データと教示値との組合せ)を人手により用意する必要があるため、各課題についてデータセット構築を行った。また、多くのサンプルを収集できなかった場合、拡大、縮小、回転等の処理を施すことでデータセットの拡張を行うことも有効な方法である。本研究では、これらの作業の一部について、ツール作成を行い、効率化をはかった(図5)。

3.2 解析システム

機械学習による解析を行う場合、多くのデータを用いた繰り返し学習が必要となる。このため、本研究では高速な演算機能を有するGPU(Nvidia GeForce GTX 1080 Tiまたは

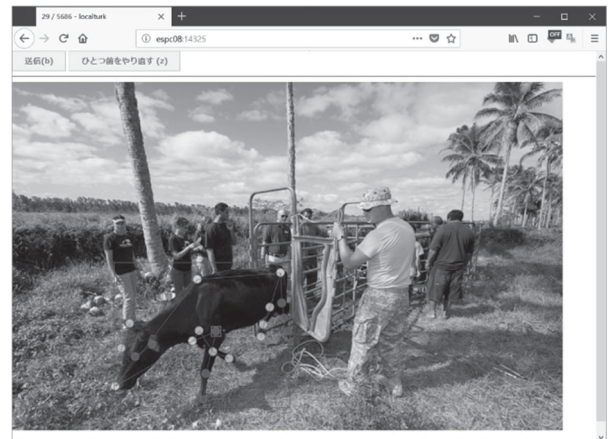


図5 作成したデータセット構成ツール

Nvidia GeForce GTX Titan X)を搭載したPC(OSはWindowsまたはLinux)を用いた。また、ソフトウェアの実装にはオープンソースのCNN用ライブラリであるKerasを利用した。

3.3 小麦粒の赤かび病発生判定

小麦に発生する赤かび病は収量や品質に大きな影響を及ぼす病害であり、赤かび病に強い品種の育成や、適切な時期の適切な薬剤散布による防除等の対策が重要である。

赤かび病の発生有無は外観で判別することが出来る(図6)。外観による判別は熟練者による目視で行われており、画像解析で判定することができれば、より簡便な検出が可能となる。本研究では、機械学習による物体認識技術を用いた小麦粒の赤かび病の発生有無の判別として、小麦粒が並んだ画像から個体分離をし、分離された各小麦粒について赤かび病の発生

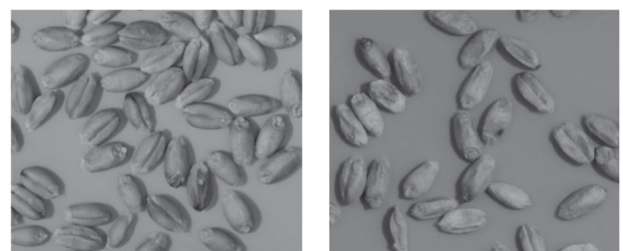


図6 健全粒(左)と赤かび発生粒(右)

を判別するという二段階の処理による判別を行った。

個体分離については、物体領域検出手法であるMask R-CNNを用いた。小麦粒が並んだ画像17枚に対して人手で各個体の輪郭を記録したデータと、それらを拡大・縮小・回転等の処理で拡張した1,000枚の画像を学習用データとして用いた。計算には、NVIDIA GeForce GTX 1080 Tiを搭載したPCを用いた。2回の繰り返し学習を行い、学習にかかった計算時間は約50分だった。図7に個体分離の検出結果を示す。

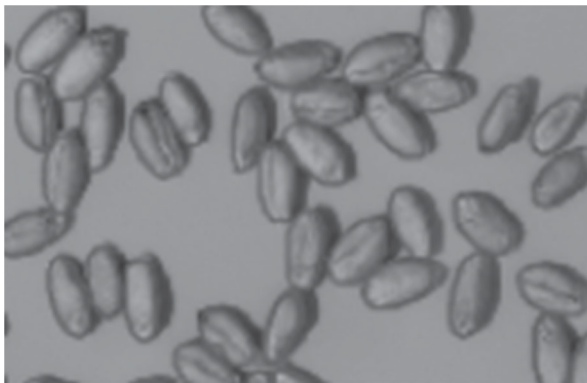


図7 Mask R-CNNによる個体分離結果

赤かび病の発生の判定は、CNNによる画像分類手法のひとつであるResNetを用いた。学習用に1,154枚の小麦粒画像を用い約800回の繰り返し学習を行った。学習にかかった時間は約200分だった。384枚の小麦粒画像を用いて評価した結果、そのうち380枚で検査員の目視による判定結果と一致した。検出率は99.0%である。誤判定した4枚(図8)はすべて、検査員が健全粒と判定したものを赤かび病発生粒と判定したものであった。今後、検査員にこれらの画像を提示し、学習データを厳格化することで判定精度の向上を目指す。また、穀物や豆など、類似した検出を行うケースは多くあると考えられ、コスト等を含めた適用の可能性について、さらに検討を進める。

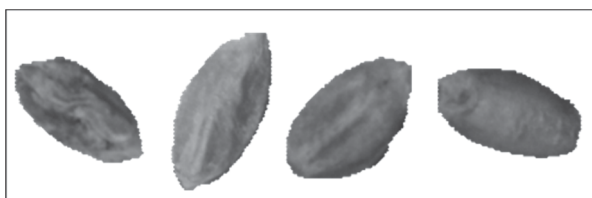


図8 誤判定した個体(健全粒を赤かび粒と判定)

3.4 木材断面領域の検出

林業において、伐採された木は丸太の状態に加工され、その価格は樹種や直径等により決定される。直径の計測は、図9のように土場に積まれた木材をものさし等により手作業で計測する場合が多く、簡便な計測手段による労働負荷の低減が求められている。



図9 土場に積まれた木材

本研究では、土場に積まれた木材の写真に対して機械学習による物体認識技術を適用し、丸太の断面領域検出を行うことで計測方法の簡便化を検討した。

手法はMask R-CNNを用いた。学習用データとして人手で画像内の約90本の丸太の断面の輪郭を記録し、それらを拡大・縮小・回転等の処理で拡張した1,000枚の画像を用いた。計算には、NVIDIA GeForce GTX 1080 Tiを搭載したPCを用いた。2回の繰り返し学習を行い、学習にかかった計算時間は約27分だった。図10に丸太断面の検出例を示す。各丸太の断面形状が検出できており、断面形状から直径を求めることができる。

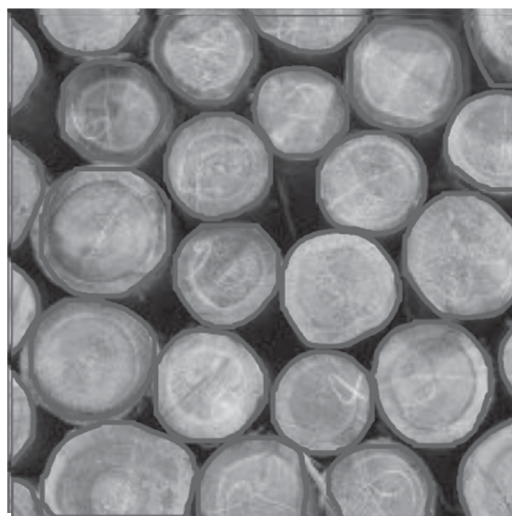


図10 Mask R-CNNによる木材の断面領域検出結果

Mask R-CNNは、上記のような高速な演算機能を有するGPUでは1秒で画像数枚程度の処理が可能であるが、タブレット等の計算性能では1枚の画像を処理するのに数分以上かかる。そこで、現場にて簡便な計測を可能とするために、タブレット等で動作する、計算量を大幅に低減したCNNモデルを用いたアプリケーションの試作を行い、実用化を進めている(図11)。一般的に機械学習の演算は計算コストが高く、特に学習に時間がかかるため、学習時は計算性能の高いGPUを搭載したPCにより計算を行い、作成した機械学習モデルのデータを用いて認識処理のみタブレットで行うことで



図 11 タブレット上で動くアプリケーションの試作

実用システムの効率的な開発が可能となる。

今後は、撮影時に大きさのわかる基準となるものを置き、画像から読み取るなどすることで、実用化の取組をはかっていく。

3.5 ジャがいもの芽領域の検出

加工食品用のじゃがいもは芽や痛み等の不用部除去が必要であり、現場においてもそれらの自動除去を行うシステムの開発を行っている⁴⁾。除去性能の向上のためには、芽や痛みの位置の正確な計測が必要となる。そこで、物体領域検出技術によるじゃがいもの芽領域の検出に取り組んだ。

学習用に皮を剥いたじゃがいもの画像180枚を用い、20回の繰り返し学習を行った。計算には、NVIDIA GeForce GTX 1080 Tiを搭載したPCを用いた。学習にかかった計算時間は約47分だった。図12にじゃがいもの芽領域の検出結果を示す。じゃがいもと芽の領域の輪郭が検出できることを確認した。今後、より多量のデータを用いた学習による高精度化や芽以外の傷や痛み等の検出への適用を検討する。

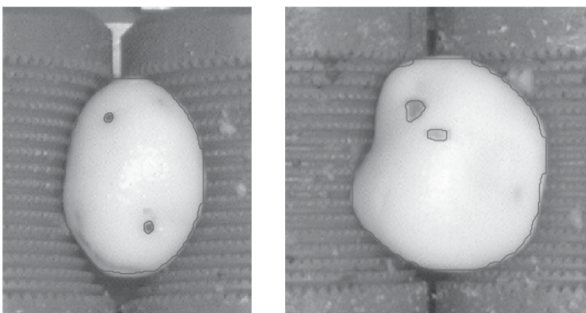


図 12 Mark R-CNN によるじゃがいもの芽検出結果

3.6 動物の骨格推定

動物の動作解析は、従来マーカやセンサの装着や複数台カメラによる撮影等の環境が必要であった。しかし、CNNによる骨格推定手法の発展により、画像のみからリアルタイムに姿勢推定が行うことが可能となり、特別な環境を準備せず

に動画から動作解析が行える可能性が出てきた。そこで、家畜の健康管理等への活用のため、動物の骨格推定に取り組んだ。

推定する馬の骨格は図13に示すモデルとした。学習用データの構築には、ImageNetおよびMicrosoft COCOデータセットに含まれる馬と牛の画像を用いた。作成したデータセット構成ツールを用いて、画像内の各馬と牛の関節位置の記録をしたものを学習用のデータとした（馬：約1,700枚、牛：約200枚）。

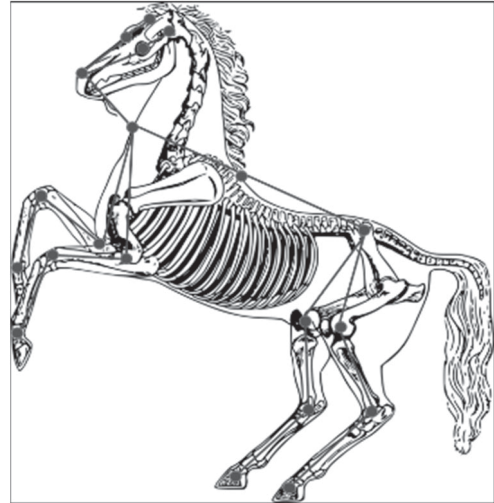


図 13 推定する馬の骨格モデル

骨格推定手法はOpenPoseを用いた。計算には、NVIDIA GeForce GTX Titan Xを搭載したPCを用いた。約2,000回の繰り返し学習を行い、学習にかかった計算時間は約7日間だった。

図14に関節位置および関節間ベクトルの推定結果および、それらを用いた最終的な骨格推定結果を示す。画像中の複数の馬について、異なる馬の関節が接続することなく推定できている。また、図15にその他の馬や牛の最終的な骨格推定結果を示す。色や柄の異なる個体に対しても骨格推定が出来ることを確認した。遮蔽により推定できていない関節もあるため、今後データセットの拡充等により改善を検討する。

また、異常動作検知等への応用については、時系列での動作解析を行い、処理手法の検討を進める。

4. おわりに

本研究では、機械学習による物体認識手法である畳み込みニューラルネットワーク（CNN）を用いて、小麦粒の赤かび病発生判定、木材断面領域の検出、じゃがいもの芽領域の検出および動物の姿勢推定を行い、一次産業を中心とした様々な分野への適用を試みた。その結果、実用化には検討すべき課題があるが、計測環境を整えることで良好な結果が得られることがわかった。

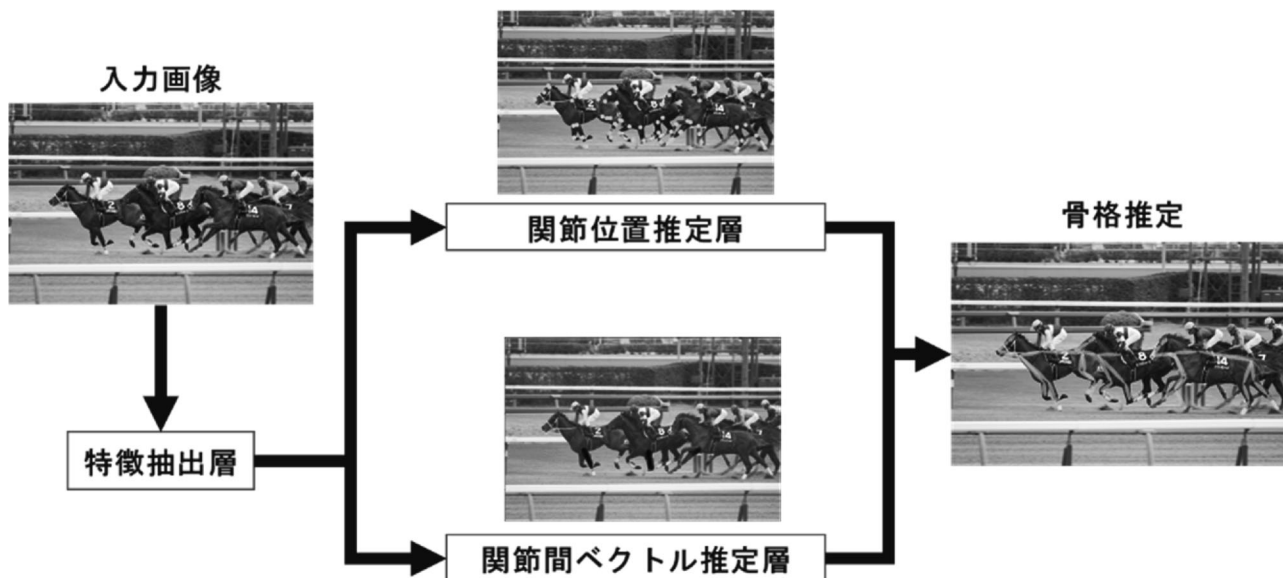


図 14 馬の骨格推定の様子



図 15 馬・牛の骨格検出結果

今後は、実用化のための課題を明確にし、各応用事例の実用化の検討を進めるとともに、他の産業応用についても本研究の手法の適用可能性について検討を進めていく。

4) 井川 久・中西洋介・川島圭太他：じゃがいもの不用部除去システムの開発，北海道立総合研究機構工業試験場報告，No.317，pp.23-30（2018）

参考文献

- 1) Kaiming He, Xiangyu Zhang, Shaoqing Ren, et al.: Deep Residual Learning for Image Recognition, The IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition (CVPR), pp. 770-778, (2016)
- 2) Kaiming He, Georgia Gkioxari, Piotr Dollar, et al.: Mask R-CNN, The IEEE International Conference on Computer Vision (ICCV), pp. 2961-2969, (2017)
- 3) Zhe Cao, Tomas Simon, Shih-En Wei, et al.: Realtime Multi-Person 2D Pose Estimation Using Part Affinity Fields, The IEEE Conference on Computer Vision and Pattern Recognition (CVPR), pp. 7291-7299, (2017)

積雪寒冷地におけるコンクリート劣化の評価技術の開発

板橋 孝至, 田中 大之, 高橋 英徳, 谷口 円*

Development of Deterioration Evaluation Method for Damaged Concrete in Cold Region

Koji ITABASHI, Hiroyuki TANAKA, Hidenori TAKAHASHI, Madoka TANIGUCHI*

抄 録

積雪寒冷地のコンクリート構造物の凍害及び塩害による劣化の分析評価技術への要望が増えていることから、X線CTを用いた劣化コンクリートの定量的かつ立体的なひび割れ評価技術、及びEPMAを用いたコンクリートに浸入した低濃度塩素の定量分析技術の開発を行った。ひび割れ評価技術については、コンクリート試験体のX線CT撮影条件、撮影画像からのひび割れ抽出方法、及び抽出したひび割れの定量性の検討によって適切な条件を選定した結果、直径100mmの円柱試験体について0.200mm以上のひび割れを非破壊で定量的かつ立体的に評価する技術を確立した。この技術を用いて、一面からの繰り返し凍結融解によるひび割れの深さ方向に浸入した様子を把握できた。塩素分析技術については、低濃度域に対応した検量線を作成することによりEPMAを用いたコンクリート中の塩素の定量的面分析技術を確立した。

キーワード：コンクリート劣化，積雪寒冷地，X線CT

Abstract

The two methods were developed that a quantitative and three-dimensional crack evaluation method using X-ray CT system and a quantitative analysis method of trace Chlorine infiltrated into concrete using EPMA. There is an increasing demand for evaluation method of deterioration due to frost damage and salt damage of concrete structures in cold region. We established the method to evaluate crack of concrete structures nondestructively and three-dimensionally. This method is able to evaluate the cracks of 0.200mm or more in concrete structures for a cylindrical specimen of 100mm in diameter, with appropriate conditions such as taking the photographing conditions, crack extraction method from the X-ray CT image and examining the quantitiveness of the extracted cracks. Using this method, it was possible to grasp how the crack penetrated into the concrete specimen in the depth direction by repeated freeze-thaw from one side. With regards to the Chlorine analysis method, we established a quantitative analysis mapping method for chlorine in concrete using EPMA by making calibration curve Corresponding to the low concentration range.

KEY-WORDS : Damaged-concrete, Cold-region, X-ray CT system

1. はじめに

社会インフラの維持管理において、構造物の劣化診断技術の確立は喫緊の課題である。国土強靱化基本法（平成25年12月）では、科学的知見に基づく研究開発の推進及びその成果の普及を図りながら、地域の特性に応じて施設又は設備の効率的かつ効果的な維持管理に資することを定めており、北海

道においても平成27年3月に地域計画である「北海道強靱化計画」を策定したところである。一連の施策動向を踏まえて、道内の非破壊検査企業から、橋梁や建築物の鉄骨系検査に加えて社会インフラも含めたコンクリート構造物検査への参入に対する技術支援が強く要望されている。

コンクリート構造物の凍害による損傷の進行を予測するためには、現状を詳細に把握することが重要である。特に、供

* 北方建築総合研究所 Northern Regional Building Research Institute

事業名：重点研究

課題名：積雪寒冷地におけるコンクリート劣化の分析評価技術の開発（平成27～29年度）

用中のコンクリートに発生したひび割れの大きさや分布等を詳細に評価することでより精度の高い寿命予測法の確立に必要な基礎データを得ることができる。松村ら¹⁾は、凍害の際に発生する微細ひび割れに着目し数mmごとに切断したコンクリート断面の顕微鏡観察から得られる微細ひび割れ密度より力学特性値を推測する手法を提案した。一方、近年、産業用マイクロフォーカスX線CT装置（以下X線CT）を用いてコンクリートの空隙（気泡+ひび割れ）構造や骨材分布を立体的に観察した報告が増えてきている。杉山ら²⁾はAEモルタル中の空隙構造を定量的に評価した。また、吉川ら³⁾はモルタル中に導入した曲げひび割れの3次元可視化を行った。しかし、これらの空隙評価はコンクリート中の巻き込み空気及び連行空気由来する気泡も含んでおり、ひび割れのみを抽出し、その定量性を評価した事例は、ほとんど報告されていない。

塩害については、道総研の分野横断型研究会活動である「塩害等による構造物・環境影響に関する研究会」においても融雪剤等による鉄筋コンクリート建築物への影響が指摘されている。分析手法としては、コンクリート構造物からのコア抜き試料あるいは削孔粉末に対し、JIS A 1154に規定されている湿式法により分析するのが一般的であるが、cm単位の一定体積の平均値しか得られないため詳細な進行予測には適さないという課題があった。この課題を解決するために、近年、土木学会において、固体表面における微小領域の元素の定量分析及び面分布に関する測定が可能なEPMAを用いた元素分析方法を規定した「EPMA法によるコンクリート中の元素の面分析方法(案)」(2006)⁴⁾が制定されている。

このような背景を受けて、(一社)日本非破壊検査協会や(公社)日本コンクリート工学会等の関連学協会においても検査技術に関する特別シンポジウムや劣化診断に関する委員会などを設けて、新たな非破壊検査技術の開発や劣化診断のための指針作りを進めている。しかし、北海道を含む積雪寒冷地におけるコンクリート構造物は凍害などの厳しい環境作用を受けているにもかかわらず、コンクリート劣化の非破壊・分析評価技術が十分に開発されていない。

本研究では、積雪寒冷地におけるコンクリート構造物の凍害・塩害による劣化を定量的に評価し、道内の非破壊検査業界のコンクリート構造物検査分野への参入に向けた技術支援を行うために、新たな非破壊検査技術と分析技術の開発を行うこととした。

2. 実験方法

2.1 X線CTによるひび割れ等の評価技術の開発

図1に、コンクリートのひび割れ量を計測する手法の一つであるASTM C 457に準拠したリニアトラバース法の模式図を示す。コンクリート試験体の任意の断面を顕微鏡観察に

より2000mm以上走査し、ひび割れ密度を算出する方法である。

ひび割れ密度は、式(1)により算出される。

$$\begin{aligned} & \text{ひび割れ密度 (本/mm)} \\ & = \text{ひび割れ交差本数} / \text{顕微鏡走査長さ} \quad \dots(1) \end{aligned}$$

断面の顕微鏡観察によるひび割れ本数の計測は、非常に微細なひび割れまで検出可能だが、試験体の任意の断面しか測定できない。また、ひび割れの3次元的な分布の定量的評価や、ひび割れの伝播経路推定をする点に課題がある。そこで、物質の密度にほぼ比例するX線吸収係数を立体的に計測し輝度値の違いとして表示できるX線CTを用いて、コンクリートの内部に存在するひび割れを輝度値により分離し、立体的かつ定量的に計測する技術を検討した。

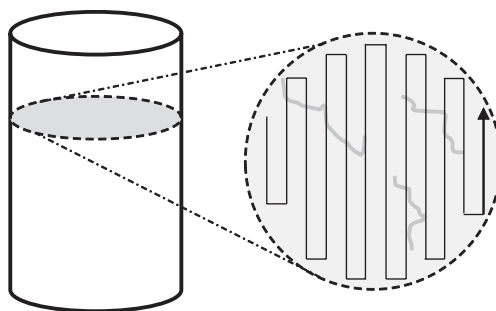


図1 リニアトラバース法模式図
(黒折れ線が走査線、灰曲線がひび割れ)

2.1.1 試験体

試験に用いたコンクリート試験体の形状は、円柱試験体及び梁型試験体とした⁵⁾。円柱試験体の寸法は直径100×高さ200mmであり、ひび割れ抽出方法の検討では、一軸圧縮応力を载荷しひび割れを導入して試験体として用いた。また、実構造物の塩化物量の測定にも利用した。梁型試験体は、寸法が100×100×400mmの断面が正方形の角柱状で、凍結解凍繰り返し試験体を作製した。

2.1.2 X線CTによる撮影条件の検討

コンクリート内部のひび割れ検出に用いたX線CT装置は、当場所有の(株)島津製作所製inspeXio SMX-225CTおよび苫小牧市テクノセンター所有の(株)ニコンインステック製XT_H 225_STである。いずれもX線発生管の最大管電圧は225kV、X線検出器としてフラットパネル型検出器(FPD)を搭載している。これらを用いて、画像解析において優先される画像のコントラスト、鮮明さを評価の視点とし、X線発生管電圧を155~205kV、X線発生管電流を300~900μA、ビュー数1000~3000枚、1ビューあたりの撮影時間を256~2000msec、と変化させ、適切な撮影条件を検討した。また、本研究で取り扱うような大型でX線吸収係数が比較的高いサンプルを撮影する場合には、X線の線質が変化することに起因してサンプ

ル中央と外周部において画像の平均輝度値が変化するカップリングアーチファクトが生ずることが知られている⁶⁾。これは厚さ0～2mm金属フィルターを装着して低減⁷⁾した。

図2に、予備実験として100×100×400mmの梁型試験体全体を撮影したX線CT撮影試験体配置図を、図3に撮影した断層画像例を示す。様々な条件を検討したが、いずれのX線CT装置を用いても平均輝度値の変動が複雑かつ大きく、非破壊で全体を撮影・評価することは困難であった。そこで梁型試験体については、試験体を分割して評価することとし、長軸と垂直な方向にスライスして検討した。スライス幅は、100×100×10～30mm厚さと変化させた。また、スライス試験体設置角度を垂直～30°の範囲で変化させた場合の影響について検討した。

図4に、スライスした梁型試験体のX線CT撮影試験体設置及び撮影したスライス全体撮影断層画像の例を示す。スライスして100×100×30mm厚さのサイズとするとアーチファクトの少ない画像が得られた。

図5に、100×100×30mm試験体の撮影範囲を示す。凍結融解試験体においては、開口幅が小さいひび割れを抽出する必要があったため、凍結融解試験後スライスした試験体を凍結融解面から反対面までを含む中央部の直径35mmの範囲を拡大撮影した。これらを踏まえてSMX-225CTを用いた最適撮影条件を検討した結果、X線発生管電圧199kV、X線発生管電流200μA、SDD（X線焦点からX線検出器までの距離）1000mm、SRD（X線焦点から試験体中心までの距離）97mm、サンプル1回転あたりのビュー数3600枚、ボクセル（2次元画像データのピクセルに相当）サイズ0.034mm、サンプルサイズ100×100×20mm、サンプル設置角度は垂直であった。試験体をスライスし垂直に立てることによりサン

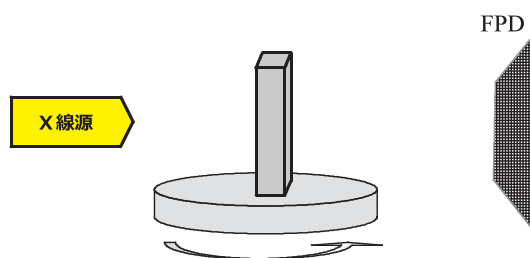


図2 コンクリート梁型試験体の全体撮影配置図

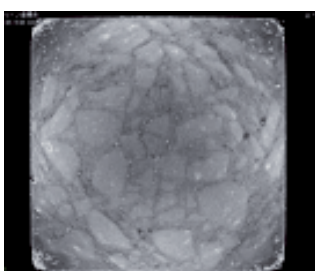


図3 コンクリート梁型試験体全体撮影の断層画像例

ルを透過するX線量が増加し、平均輝度値の変動の低減に寄与したと考えられる。

円柱試験体については、平均輝度値の変動は認められたが、分布は単純形状であったため、試験体ではなく撮影した画像を中央部と周辺部に2分割することでひび割れ抽出が可能であった。

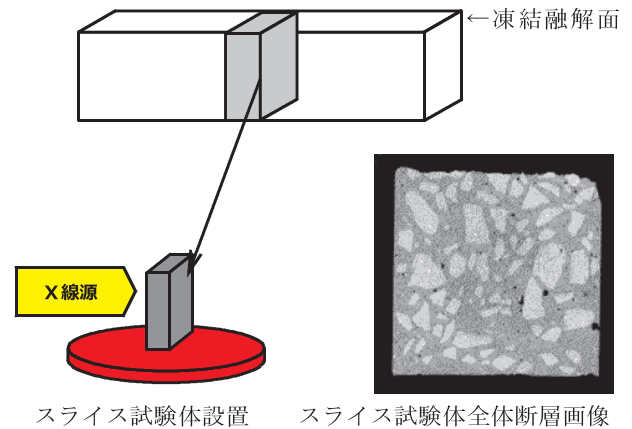


図4 梁型試験体スライス試験体撮影配置とX線CT画像

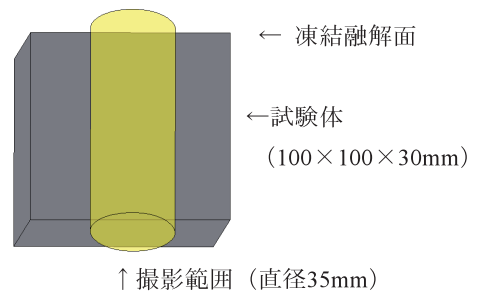


図5 凍結融解試験体の拡大撮影範囲模式図

2.1.3 撮影画像からのひび割れ抽出方法

図6に、解析手順のフローチャートを示す。画像解析には、ラトックシステムエンジニアリング㈱のTRI/3D-BON-FCS64（以下、画像解析ソフト）を用いた。円柱試験体のX線CT撮影画像解析に当たって、バックグラウンドの除去後、画像の白黒反転を施し関心領域（周辺空気を含まないコンクリート）を指定した。関心領域は外側が白く、その内側が徐々に黒く表示されるカップリングアーチファクトを生じているため、全体を単一の閾値で二値化処理すると、中央部は過剰に周辺部は過小に空隙を抽出することになる。そこで、対象画像の関心領域を中央部と円環状の周辺部に分割し、それぞれの領域において最適な輝度値を閾値として設定し空隙を検出した。

図7に、円柱試験体全体撮影時の断層画像例を、図8に、図7の中央を通る線分における輝度値のラインプロファイル例を示す。コントラストと鮮明さのバランスのとれた画像が得られているが、わずかにカップリングアーチファクトが生じ、試験体中央部と外周部において画像の平均輝度値が1000/

65535ほど変化することが明らかとなった。この平均輝度値の差によるひび割れ抽出の誤差を解消するため、関心領域を中央部と周辺部に分割して再合成することとした。図7と図8に点線でその境界を示した。中央部とする範囲は、図8のラインプロファイルから直径60mmとし、それぞれの領域において最適な輝度値の閾値を設定して空隙を抽出し、後に2つの関心領域の空隙を合成した。

図9に、撮影空間全体の輝度値ヒストグラムの一例を示す。2つのピークは、左がサンプル周辺の空気に、右がコンクリートに帰属しており、空隙に帰属する輝度値はコンクリートのピークにも含まれていることがわかった。

空隙のみを選択できるように輝度値の閾値を設定し、二値化処理を行い空隙を検出した。図10にコンクリートを関心領域に指定した輝度値ヒストグラム（灰色）と、コンクリートにおける関心領域を中央部（細点線）と周辺部（1点鎖線）に分割することにより得られるヒストグラムを示す。垂線は、関心領域を分割して得られたそれぞれの閾値である。関心領域をコンクリートに限定した場合の最低輝度値は、図9における左ピークと右ピーク間の最も頻度が小さい輝度値とほぼ同一で、約16300であった。最適な閾値は、コンクリートの最低輝度値と最頻度輝度値を二等分する値となり、中央部は約21000、周辺部は約22000であった。この値は、測定環境及び試験体状態により変動があるため、ひび割れの抽出漏れがないように微調整を行った。

検出した空隙は、輝度値ではひび割れと気泡に分別できないため、空隙の形状を回転楕円体で近似し、長軸と短軸の比が2より小さいすなわち球形に近い空隙を気泡と見なして分離することにより、ひび割れのみを抽出した。このようにひび割れを抽出したそれぞれの関心領域の3次元データを合成し全体のひび割れを抽出した。

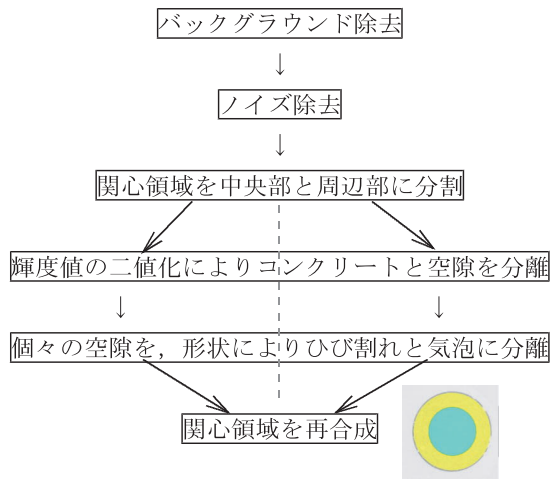


図6 解析手順のフローチャート

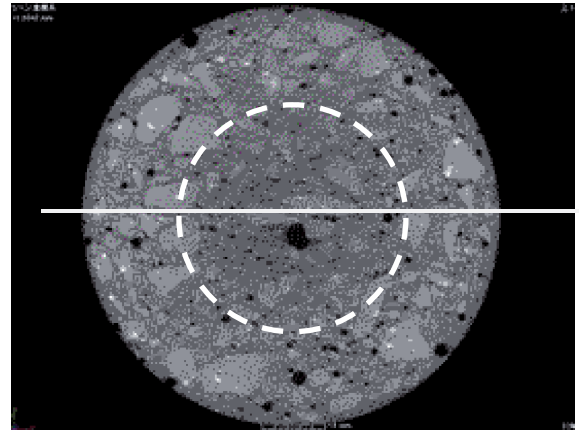


図7 円柱試験体のCT断層画像例
(カッピングによりわずかに中央が暗い)

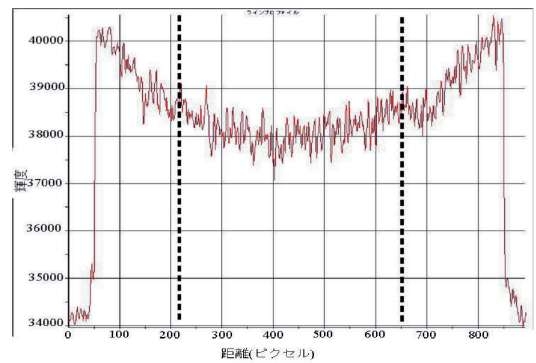


図8 図6の中央線分における輝度ラインプロファイル
および領域分割位置

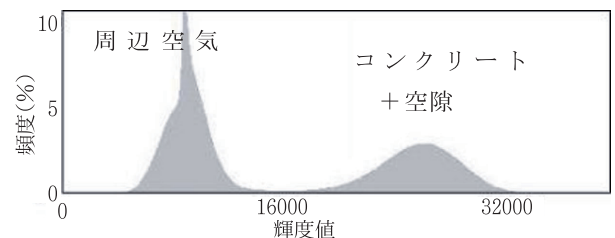


図9 撮影空間全体の輝度値ヒストグラム例

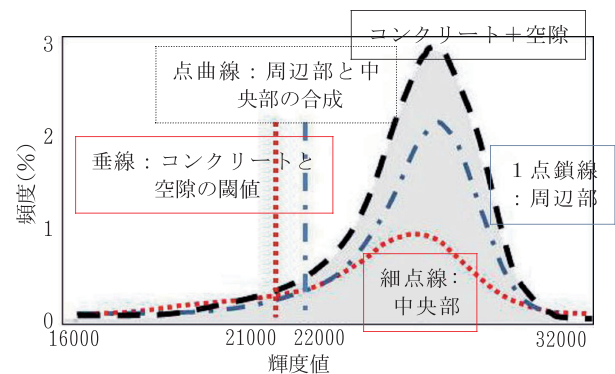


図10 関心領域の輝度値ヒストグラムと
分割による空隙分離輝度値

2.1.4 抽出したひび割れの定量性の検証

コンクリートのX線CT画像から抽出したひび割れについては開口幅や体積率等のデータが得られるが、それらの定量性の検証が必要である。そこで、

- a) 検出可能なひび割れの最小開口幅の検証
 - b) 超音波伝播速度比とX線CTによるひび割れ体積率との比較
 - c) 室内凍結融解試験体を用いたひび割れの抽出を検討した。
- a) 最小開口幅

X線CTは解像度の限界があるため、抽出可能なひび割れの最小開口幅の検証が必要である。そこで、X線吸収係数がコンクリートより小さく、一定の厚みを持ち入手が容易なプラスチックフィルムを擬似ひび割れとして用いた。円柱試験体打設の際に中央付近に直径50mm、厚さ0.080, 0.100, 0.150, 0.200mmのフィルムをあらかじめ埋入した試験体を作製し、X線CTで抽出可能なひび割れの最小開口幅を検証した。

図11に、擬似ひび割れの配置模式図を示す。撮影条件は、金属フィルターとして1.5mmの銅板を設置し、X線管電圧199kV、管電流値400 μ A、SDD800mm、SRD420mm、ビュー数3600枚、1枚あたりの露光時間は250msec、ボックスサイズは0.100mmである。

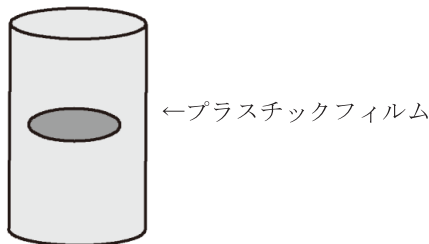


図 11 擬似ひび割れ配置模式図

b) 超音波伝播速度と試料中のひび割れ体積率

X線CTで抽出したひび割れ体積率が全体のひび割れ量を反映しているかを検証するために、圧縮荷前後の超音波伝播速度比とX線CTで抽出したひび割れ体積率との相関関係を調べた。超音波伝播速度比のデータは、中村ら⁸⁾によって、荷重直角方向に試験体上端より20mm間隔で9測線の透過法による超音波伝播速度の測定（振動数54kHz、センサー径25mm）から得られた。

図12に、超音波伝播速度の測定概略図を示す。あらかじめ超音波伝播速度を測定した円柱試験体に一軸圧縮最大応力(32.6N/mm²)を1回荷重しひび割れを導入した。荷重後の超音波伝播速度を測定し、荷重垂直方向に約20mm間隔で切断した試験体をX線CT撮影した。X線CTによるひび割れ体積率は、式(2)によって算出した。

$$R_v = V_c / V_s \times 100 \quad \dots(2)$$

R_v : ひび割れ体積率(vol%)

V_c : X線CT画像から抽出した全ひび割れ体積(mm³)

V_s : X線CTが算出した試験体の体積(mm³)

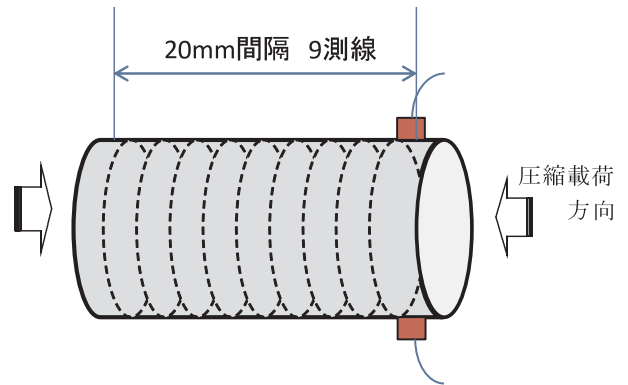


図 12 超音波測定位置

c) 室内凍結融解試験体のひび割れの抽出

実環境を模した一面吸水凍結融解室内促進試験法(CIF試験法)により、繰り返し凍結融解で劣化させた梁型試験体を用いて、表層からのひび割れ浸入の検出を調査した。

図13に、CIF試験法の模式図を示す。図のような下面吸水状態で最高温度+20℃を1時間保持、最低温度-20℃を3時間保持、温度勾配±10K/hrで1日2サイクルの一面凍結融解試験を1100サイクル繰り返した。

X線CT撮影画像から抽出したひび割れの評価は、凍結融解面から所定の距離における断面のひび割れ面積率を、式(3)によって算出した。

$$R_a = A_c / A_s \quad \dots(3)$$

R_a : 断面のひび割れ面積率(%)

A_c : X線CT画像から抽出したひび割れ面積(mm²)

A_s : X線CTが算出した試験体の断面積(mm²)

断面の顕微鏡観察によるひび割れ密度と比較しひび割れ面積率の妥当性を検証した。

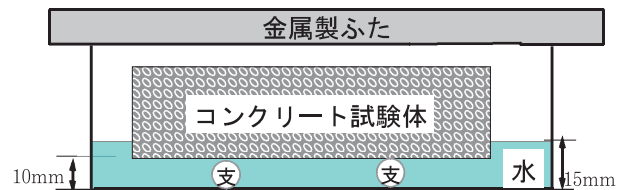


図 13 凍結融解試験模式図

2.2 EPMAによる低濃度塩素分析評価技術の開発

2.2.1 低濃度塩素の検量線作成用標準試料

一般に、低濃度域を精度良く面分析するためには、実試験体に即した成分濃度の標準試料を用いた検量線が必要である。塩素濃度の異なる4水準の塩素濃度で標準試料を作製した。図14に、作製した標準試料の外観を示す。認証標準物質の普通ポルトランドセメントに対し、配合後の塩素濃度が0.02、

0.1, 0.5, 1.0mass%となるように塩化ナトリウム水溶液及び蒸留水を添加・混練後、内径15mmの塩化ビニルパイプに充填硬化させてセメントペースト硬化体を作製した。続いて、内径43mmの型枠に設置後、塩素を含まないエポキシ樹脂で充填し、樹脂硬化後、高さ約10mmに切断して端面を研磨することにより標準試料を作製した。試料研磨は、土木学会規準⁴⁾を基に、SiC研磨紙を用いて無水研磨した。研磨の順序は、#240, #400, #800, #1200, #2000である。標準試料への導電性付与は、日本電子JEE-4Xを用いてカーボン蒸着により行った。本装置の到達圧力は 2.67×10^{-4} Pa、カーボンロッド電圧は25Vで一定である。

検量線作成におけるEPMA分析条件は、土木学会規準⁴⁾に準拠し、加速電圧：15kV、照射電流： 1×10^{-7} A、プローブ径：50 μ m、測定時間：40ms、分光結晶：PETH 151.18mm、ピクセルサイズ：0.100 \times 0.100mmの条件で、標準試料中央の10 \times 10mmの領域を測定した。

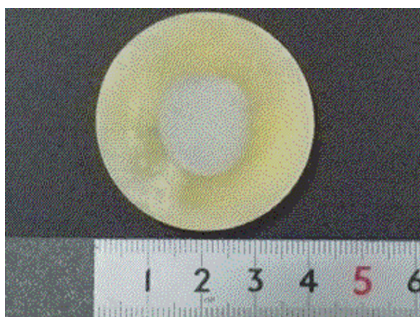


図14 NaClを添加したセメントペースト標準試料の外観

2.2.2 実構造物試験体による低濃度塩素の定量的評価

図15に、実環境において長年海水浸漬を受けた約50 \times 50mmのコンクリート試験体の写真を示す。測定条件は検量線作成条件に揃え、ピクセルサイズ0.100 \times 0.100mmの条件で、海水接触面を含む45 \times 45mmを測定した。

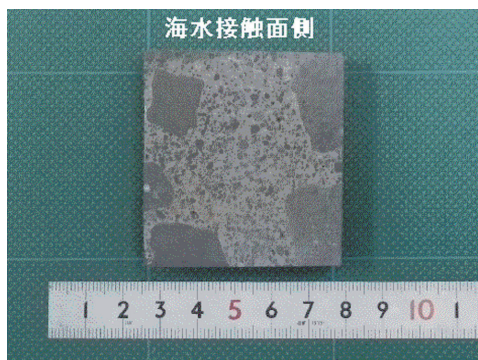


図15 海水浸漬を受けたコンクリートサンプル

3. 結果と考察

3.1 X線CTによるひび割れ等の評価技術の開発

3.1.1 X線CTによる撮影条件の検討

X線CT撮影では、X線発生管電圧、X線発生管電流、試験体1回転あたりの撮影枚数（ビュー数）、撮影1枚あたりの露光時間の変化が、それぞれX線の透過力、画像のコントラスト、画像の鮮明さに影響を与える。

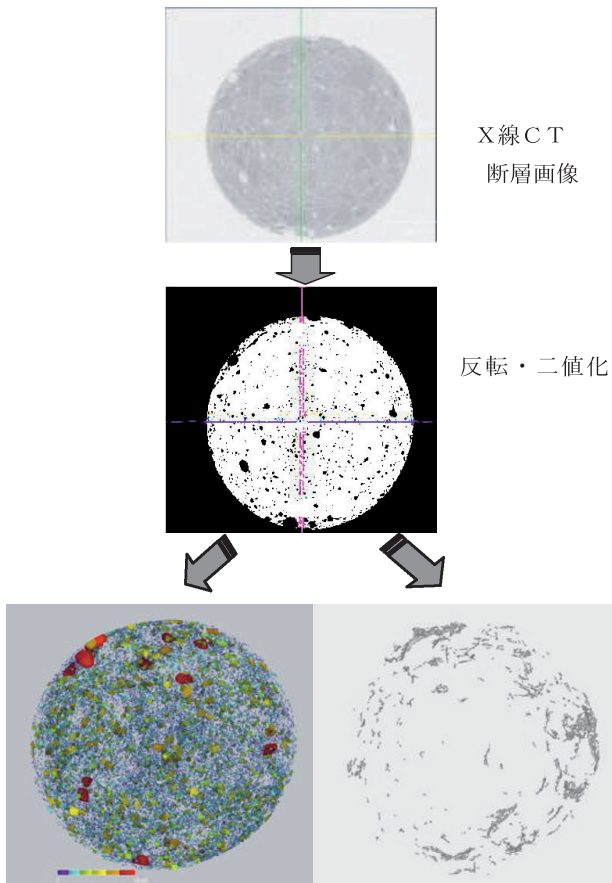
一般に、X線発生管電圧を高くすると、透過力の高いX線が発生するため、金属フィルターを装着してカップリングアーチファクトを低減することにより一定のコントラストの画像が得られる。一方、X線発生源のスポット径が大きくなるため、画像の鮮明さが低下する。これらを踏まえて様々な条件で円柱試験体撮影した結果、XT_H225_STにおいては金属フィルターとして2.0mmの銅板を設置し、X線管電圧200kV、管電流値580 μ A、SDD1000mm、SRD710mm、ビュー数を3000枚、1枚あたりの露光時間を500msec、ボクセルサイズは0.100mmに設定することで画像のコントラストと鮮明さのバランスがとれた撮影条件となることが確認された。同様にSMX-225CTにおける最適な撮影条件は、金属フィルターとして2.0mmの銅板を設置し、X線管電圧199kV、管電流値250 μ A、SDD600mm、SRD220mm、ビュー数3600枚、1枚あたりの露光時間は250msec、ボクセルサイズは0.100mmであった。

梁型試験体の撮影条件検討結果については、3.1.3項c)で述べる。

3.1.2 撮影画像からのひび割れ抽出方法

図16に、一軸圧縮応力を载荷しひび割れを導入した円柱試験体のX線CT断層画像及び分離したひび割れと気泡の3次元透過画像の一例を示す。検出した空隙は、2.1.3項で述べた方法により気泡とひび割れに分離した。

気泡の3次元透過画像においては、連行気泡が試験体全体に均一に検出できていることから、気泡を含めた空隙は両方の領域において同等に検出できており、領域分割による空隙検出は円柱試験体のような単純形状試験体におけるカップリングの影響を除去するために有効な手段であると確認された。また、ひび割れの3次元透過画像において、試験体外周部は中央部と比較してひび割れが多いことが明らかとなった。一般的に、一軸圧縮したコンクリート試験体の場合、ひび割れは外周部から発生することから、その現象を捉えることができた。



分離した気泡と抽出したひび割れ（ともに立体透過画像）

図16 X線CT画像からのひび割れと気泡の分離例

3.1.3 抽出したひび割れの定量性評価

a) 最小開口幅

図17に、厚さ0.080, 0.100, 0.150, 0.200mmのプラスチックフィルムを埋入した円柱試験体の撮影画像から抽出した擬似ひび割れ形状を示す。プラスチックはコンクリートの半分以下の密度であるため、一定以上の厚みがあるフィルムについてはX線CTによる検出が可能であると予想された。厚さ0.080および0.100mmの擬似ひび割れの場合、画像上で目視による識別はできたが、画像解析ソフトによる気泡との分離が全く行えず擬似ひび割れ形状の抽出は困難であった。厚さ0.150mmの擬似ひび割れの場合、気泡との分離は不十分であるが形状を抽出することができた。厚さ0.200mmの擬似ひび割れの場合、気泡との分離は可能となり形状を抽出することができた。一般に、X線CTの検出限界は、装置や撮影条件による因子、対象物による因子、ソフトウェア技術による因子が考えられ、輪郭形状の高精度化が検討されている⁹⁾。特に、ソフトウェア技術における画像処理において、対象物とそれ以外を識別するための等値面を設定するために、少なくとも $2 \times 2 \times 2$ すなわち8ボクセル以上の分解能が必要となる。実際の評価では最小ボクセルサイズが0.100mmであることから上記の結果は妥当であると考えられる。

以上のことから、抽出可能なひび割れの最小開口幅は、ボクセルサイズの2倍であり、直径100mm円柱試験体の全体撮影においては、0.200mm以上のひび割れを定量的に抽出可能であることがわかった。

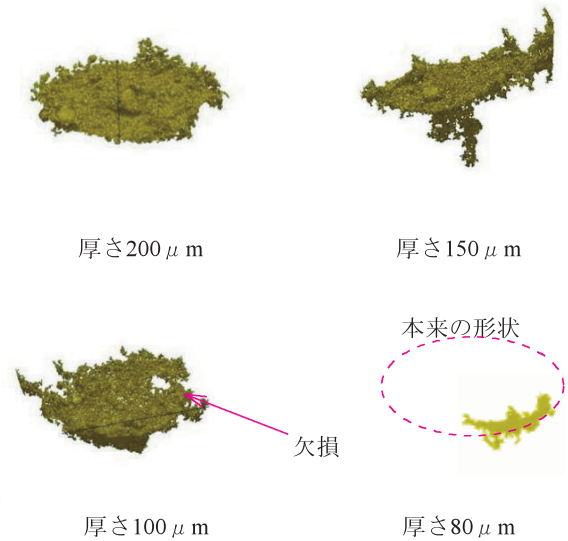


図17 ひび割れの検出下限開口幅の評価例

b) 超音波伝播速度と試料中のひび割れ率

図18に、切断した各スライスの超音波伝播速度比(細棒)とひび割れ体積率(太棒)を示す。

ひび割れ体積率は、約40mmの測定位置で最大値を示し、離れるにしたがって減少する傾向を示した。一方中村ら⁹⁾は、超音波伝播速度比が、同じく約40mmの測定位置で最小値を示し、表面におけるひび割れ発生位置と概ね一致していること及び離れるにしたがって増加する傾向を報告しており、同様の結果となった。

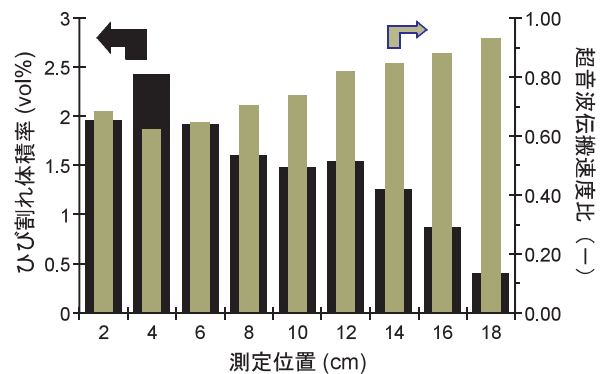


図18 サンプルの測定位置ごとにおけるひび割れ体積率及び超音波伝播速度比

図19に、X線CTによるひび割れ体積率と超音波伝播速度比の関係を示す。超音波伝播速度比とX線CTで抽出したひび割れ体積率に負の相関があり、 $R^2=0.88$ であった。

中村ら⁹⁾は、コンクリートの損傷度を直接的に評価する顕

微鏡を用いたひび割れ密度と載荷前後における超音波伝播速度の比（超音波伝播速度比）に負の相関があることを報告している。このことから、超音波法と同様にX線CTを用いてひび割れ体積率を評価することで、非破壊でコンクリートの内部損傷を評価できた。

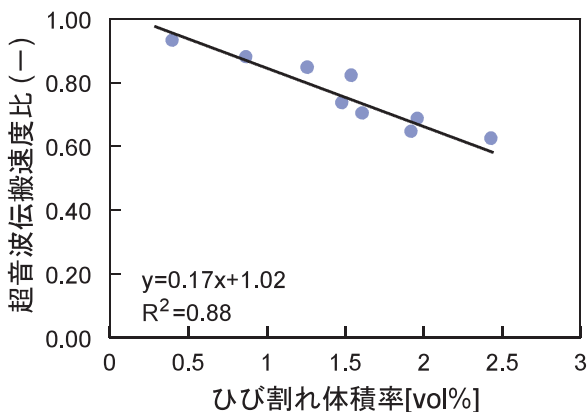


図 19 ひび割れ体積率の変化による超音波伝播速度比の影響

c) 凍結融解試験体におけるひび割れ抽出

図20に、凍結融解面からの距離とその距離における断面のひび割れ面積率の変化を、図21に、凍結融解面からの距離とその距離における断面の顕微鏡観察によるひび割れ密度の変化を示す。

凍結融解面から5 mmの範囲におけるX線CTによるひび割れ面積率を詳細に検討すると、それより深い範囲のひび割れ面積率より小さい。一方、顕微鏡観察においては、凍結融解面から5 mmの範囲におけるひび割れを検出できている。X線CTによる表面付近の測定では、画像を二値化して空隙を検出する段階においてコンクリートに囲まれた独立空隙を検出しているため、外表面に開口しているひび割れが検出不可能であることによると考えられる。一方、顕微鏡観察においては、そのような検出漏れがない。このことから、X線CTを用いて表面付近のひび割れを検出するためには、試験体あるいは画像解析過程のいずれかにおいて、ひび割れの開口部を閉塞させる処理が必要であることがわかった。

凍結融解面から5 mmより深い領域については、X線CTのひび割れ面積率と顕微鏡によるひび割れ密度は、凍結融解面から離れるに従って漸減していた。一方向からの凍結融解繰り返し試験による凍結面から深さ方向にひび割れが減少する傾向を、X線CTを用いることにより捉えることが可能であることが確認された。

顕微鏡観察における90mmの位置でのひび割れ密度上昇については、谷口らは、1000サイクル（500日以上）の長期にわたるCIF試験であったため、上面に落下した結露水による影響が表れたと考察している¹⁰⁾。

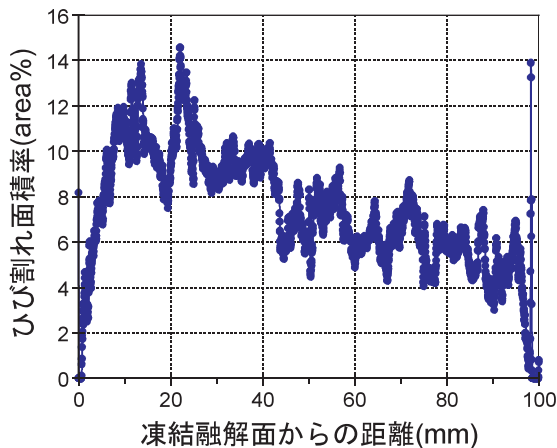


図 20 CIF 試験体におけるひび割れ面積率の変化

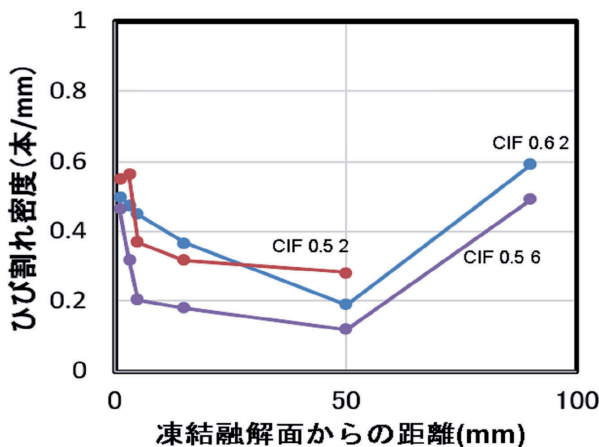


図 21 CIF 試験体におけるひび割れ密度の変化¹⁰⁾

3.2 EPMAによる低濃度塩素分析評価技術の開発

3.2.1 低濃度塩素検量線作成用標準試料

表1に作成した標準試料の一覧を示す。硬化、乾燥により塩素濃度が変動するため、同じ試料を JIS A 1154 硬化コンクリート中に含まれる塩化物イオン濃度の試験方法である電位差滴定法で湿式分析し、その結果を実濃度とした。湿式分析により確定した標準試料の塩化物イオン濃度は、0.022、0.143、0.636及び1.225mass%であった。

表 1 作成した標準試料 (mass%)

試料番号	配合塩素濃度	実濃度
1	0.02 (NaCl無添加)	0.022
2	0.1	0.143
3	0.5	0.636
4	1.0	1.225

3.2.2 分析試料の前処理方法（加工、導電処理等）の検討

図22に、カーボン蒸着試験用の試料を示す。図の左の試料は、薬包紙で4分の1ずつマスキングしながら、蒸着時間を7秒に固定し、右上から時計回りに、カーボンロッド電流

35A, 25A, 25A, 30Aの条件におけるカーボン蒸着を比較したものであり、右の試料は、同様なマスキングにより、右上から時計回りに、35A×10s, 30A×10s, 30A×5s, 35A×5sの条件におけるカーボン蒸着を比較したものである。

種々の条件を検討した結果、カーボン薄膜の厚さが10nm以下の場合、均一な膜厚にならず測定値がばらつき、30nm以上の場合、検出されるX線の強度が低下することが明らかとなった。

1.33×10⁻³Pa, カーボンロッド電圧25V, 電流35Aで10sの蒸着を行うことにより、安定的に約20nmのカーボン薄膜を蒸着することが可能となった。

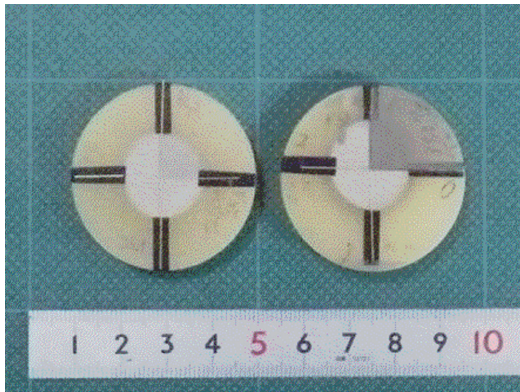


図22 カーボン蒸着条件を検討中の試料外観

3.2.3 標準試料による低濃度塩素用検量線の作成

図23に作成した検量線を示す。横軸が湿式分析により測定した標準試料の塩化物イオン濃度(mass%), 縦軸がEPMAによる標準サンプルの塩素に帰属するX線の強度平均値(count/msec/μA)である。得られた検量線は、R²=0.994と高い直線性を有しており、塩素濃度0.022~1.225mass%の範囲において適切にコンクリート中の塩素濃度分布を分析することが可能となった。

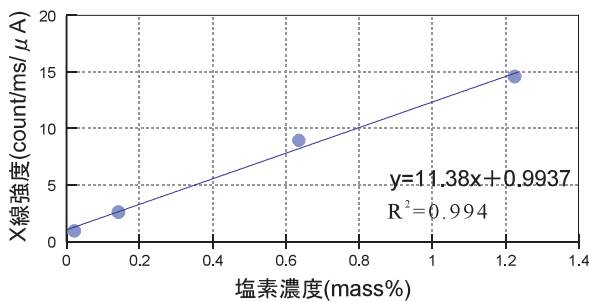


図23 作成した低濃度塩素の検量線

3.2.4 実構造物サンプルによる低濃度塩素の定量的評価

図24に、実環境において長年海水浸漬を受けた試験体を、装置内蔵の汎用検量線で計算した塩素分布の面分析結果を示す。測定条件は検量線作成条件に揃え、ピクセルサイズ: 0.100×0.100mmの条件で、海水接触面を含む45×45mmを

測定した。図の左側の分布図が塩素濃度を色分けで表示しており、色分けは、図の右側のカラーバーに示すとおり、黒→灰色→白の順に塩素濃度が高いことを示している。海水接触面は、分布図の上面であり、その直下から図の下方、すなわち内部に向かって徐々に塩素濃度が低下する傾向がうかがえる。図中の黒い領域は、骨材に対応しており塩素が検出されなかった上に、塩素濃度がマイナスにカウントされていた。一方、セメントマトリックスを示す着色部を詳細に検討したところ、濃く表示された範囲の塩素濃度はマイナスとなっており、汎用検量線は低濃度塩素の定量に適さないことが確認された。また、分布図全体の塩素濃度の平均値が-0.030mass%になった。

図25に、同じ測定データに対して、作成した低濃度塩素検量線で計算した面分析結果を示す。骨材以外のセメントマトリックスを示す着色部の塩素濃度はすべてプラスに補正され、分布図全体の塩素濃度の平均値が0.556mass%とプラスに転じていた。塩素濃度分布図中において、1.225mass%以上の範囲については検量線の範囲外であるため外挿の値となるが、作成した低濃度塩素検量線はおおむね適正な分析値を与える

海水接触面側

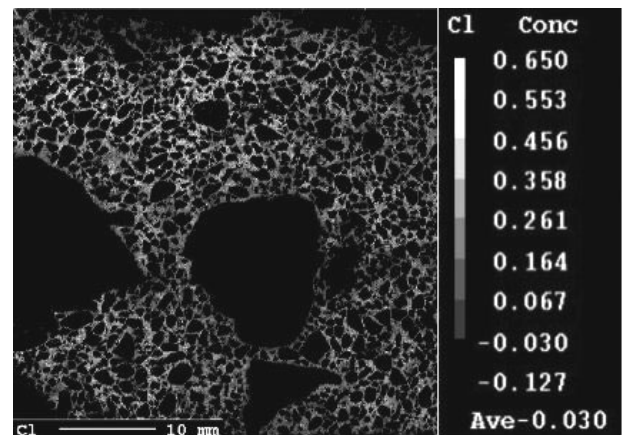


図24 汎用検量線による低濃度塩素の面分析結果

海水接触面側

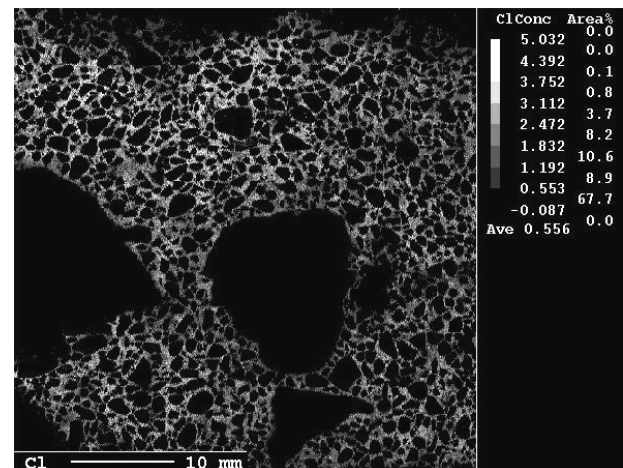


図25 低濃度塩素用検量線による面分析結果

ことができたと考えられる。なお、分布図中の骨材の塩素濃度がマイナスとなるのは、主な組成が標準試料と異なり検量線適用範囲外であるためと考えられる。

4. まとめ

北海道を含む積雪寒冷地におけるコンクリート構造物の凍害・塩害による劣化を定量的に評価するために、X線CTを用いた新たな非破壊検査技術とEPMAを用いた低濃度塩素の分析技術の開発を行い、次の結論が得られた。

- 1) 2種のX線CT装置で、円柱試験体の撮影条件を検討した結果、XH_H225_STを用いた最適撮影条件は、金属フィルターとして2.0mmの銅板を設置し、X線管電圧195kV、管電流値580 μ A、ビュー数を3000枚、1枚あたりの露光時間500msecであった。同様にSMX-225CTにおける最適撮影条件は、金属フィルターとして2.0mmの銅板を設置し、X線管電圧199kV、管電流値250 μ A、ビュー数3600枚、1枚あたりの露光時間250msecであった。試験体全体撮影時のボクセルサイズはともに0.100mmであった。
- 2) 撮影画像からのひび割れ抽出方法を検討した結果、対象画像の関心領域を中央と周辺部に分割することにより、カップリングアーチファクトの影響を除去できた。さらに、それぞれの領域において平均化処理によるノイズ除去を実施してから、輝度値の二値化によりコンクリートと空隙を分離し、個々の空隙を形状分離することにより、ひび割れのみを抽出可能となった。
- 3) 抽出可能なひび割れの最小開口幅を検討した結果、円柱試験体全体撮影においては、ボクセルサイズの2倍である0.200mm以上のひび割れを定量的に抽出可能であることがわかった。
- 4) X線CTで抽出したひび割れ体積率が全体のひび割れ量を反映しているかを検証するため、超音波伝播速度比を用いて検証した結果、ひび割れ体積率が大きくなるほど超音波伝播速度比は直線的に低下する傾向が認められた。
- 5) CIF試験法により、1方向からの凍結融解に伴うひび割れの侵入状況をX線CTである程度把握することができたが、凍結融解面に開口したひび割れを検出するためには、コンクリート表面付近の開口部についての処理が必要である。
- 6) 低濃度域塩素(0.022~1.22mass%)に対応した検量線を作成し、コンクリート内の塩素量を定量的かつ0.100mm単位で面分析することが可能となった。

参考文献

- 1) 松村 宇, 桂 修, 吉野利幸: 凍害を受けたコンクリートの性状と劣化度評価法に関する研究, 日本建築学会構造系論文集, 第563号, pp.9-13, 2003.1
- 2) 杉山隆文, 志村和紀, 畠田大規: 高解像度型X線CTによるAEモルタル中の空隙構造の透視, 土木学会論文集E2, Vol.67, No.3, pp.351-360, 2011
- 3) 吉川昂純, 杉山隆文, Ivan sandi darma, 他: X線CTによる曲げひび割れ及び炭酸セシウム水溶液の移動の可視化, コンクリート工学年次論文集, Vol.34, No.1, 2012
- 4) 土木学会: 土木学会規準「EPMA法によるコンクリート中の元素の面分析方法(案)(JSCE-G 574-2005)」の制定, 土木学会論文集E, vol.62, No.1, pp246-259, 2006.2
- 5) (一財)日本規格協会: JISハンドブック 10 生コンクリート, 2008
- 6) JIS B 7442産業用X線CT装置-用語, 2013
- 7) 紋川 亮, 中川朋恵, 金城康人, 他: X線CT画像計測技術による上流技術支援システムの構築, 東京都立産業技術研究センター研究報告, 第7号, pp.26-29, 2012
- 8) 中村拓郎, 谷口 円: 繰り返し載荷履歴を受けたコンクリートの微細ひび割れと力学特性, コンクリート工学年次論文集, vol.38, No.1, pp.435-440, 2016
- 9) 金子 奨, 青木義満, 滝 克彦: 産業用X線CT画像の形状精度追求に関する考察(メディア工学), 映像情報メディア学会技術報告 31(14).2 p.17-20, 2007
- 10) 谷口円, 板橋孝至, 田中大之, 中村拓郎: 凍結融解作用による内部損傷の評価, コンクリート工学年次論文集, Vol.41, No. 1, pp.863-868, 2019

欠測に対応可能な水稲収量予測ツールの開発

神生 直敏, 佐藤 博一*

Development of Paddy Rice Yield Prediction Tool that can Deal with Missing Data

Naotoshi KAMIO, Hirokazu SATOH*

抄 録

北海道における稲作農業では、安定した収穫量を確保するために気象変動の影響を受けにくい品種の生育試験を実施し、その収穫量（収量）を把握しておく必要がある。しかし、生育試験の実施には制約が多いため、何らかの予測手法を使って収穫量の予測を行うことが求められている。収穫量を予測するには、土壌や気象などの過去の水稲栽培データが必要だが、品種・収集地点によってはデータが欠測しているため、統計解析や機械学習等の通常の予測ツールでは満足な結果が得られないケースが多い。そこで本研究では、品質工学のT法を応用して、データに欠測があっても解析可能な収量予測ツールを開発し、地域および気象別（低温・平年・高温）に水稲の収穫量の推定を行い、本ツールの有効性を検証した。

キーワード：水稲, 収量予測, 品質工学, T法, 欠測

Abstract

In rice farming in Hokkaido, in order to secure the stable production, it is necessary to carry out surveys and growth tests of varieties that are not easily affected by climate change, and to grasp the amount of harvest(yield). However, there are a lot of restrictions in the implementation of growth tests, so it's required to predict the yield, using some forecasting methods. Growth data in the past of the soil and weather is necessary to predict the yield, but there are any missing data, there are a lot of cases from which a result satisfied with the usual predictive tool by which it's not obtained for statistical analysis and mechanical learning. Therefore, in this study, we applied the T method of Quality Engineering to create a yield forecasting tool that can be analyzed even if there are missing data, and conducted prediction model creation and yield estimation by region and weather (high temperature year, normal year, low temperature year.).

KEY-WORDS : paddy rice, yield prediction, Quality Engineering, T-method, missing

1. はじめに

「日本の食糧基地」とも呼ばれる北海道は、かつての開拓使時代には「稲作は不適地」と言われていたが、品種改良・栽培技術の改良が進み、現在では利尻島でも水稲が栽培されるなど、全国トップクラスの水稲の生産地となっている。

また、品種では、昭和63年に誕生した「きらら397」が、丼物の外食チェーンを中心に全国的に利用されるようになり、現在では「ななつぼし」や「ゆめびりか」が、日本穀物検定

協会の食味ランキングで最高位「特A」を獲得するに至っている。

近年は温暖化の影響と見られる収量（収穫量）の鈍化傾向が見られ（図1）、気象変動の影響を受けにくい品種についての調査・生育試験が行われている。しかし、圃場試験の実施は制約が多いため、可能な限り予測モデルを使うことで、圃場試験を最低限にする品種選定の研究が求められている。

* 道総研 中央農業試験場, * HRO, Central agricultural experiment station

事業名：経常研究（理事長枠）「一次産業におけるビッグデータの取得技術と利活用解析技術に関する研究」

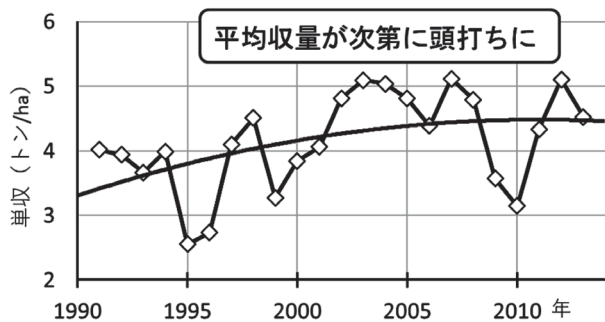


図1 道内における水稻収量の推移

水稻の収量を予測する作物モデルとしては、植物成長理論に基づく、堀江らのSIMRIW(Simulation Model for Rice-Weather relations)¹⁾が知られている。SIMRIWは、品種パラメータと気温、日射量などの気象データから、収量を算出する予測モデルである。

しかし、SIMRIWはモデル構築から20年以上経過しており、かつモデル構築に使用した当時の品種がほぼ栽培されておらず、予測結果の適合性が問題となっている。加えて、品種情報を得るには相当な年数の圃場試験が必要で、品種開発が初期の場合、品種設計者が性能の見込みを早期に得るためには、利用しにくいという問題がある。

また、過去に収集した水稻栽培・気象データには、欠測(欠損)が多数存在しており、収量の予測解析を進めるためには、欠測についての処理(補間)も必要となる。

そこで本研究では、比較的簡便な手法ながら、従来の統計手法などと異なる特徴を持つ、品質工学のT法を用いた予測モデルの確立を目的に、欠測処理方法の比較とともに、SIMRIWや一般的な統計解析手法である重回帰分析などとの性能比較を行うことで、T法の有効性を確認した。また、それらの知見を踏まえ、収量予測モデルを作成し、そのモデルにより地点別・気象別での水稻5品種の性能を比較した。

2. T法とは

多変量データによる予測手法としては、重回帰分析、機械学習が有名であるが、これらと比較して、簡便かつ異なる特徴を持つ予測手法としてT法が挙げられる。

T法は、開発技法である品質工学を体系化した田口玄一博士により提案された、簡便な予測・判別手法である²⁾。T法には3種類あるが、一般的に使用されるものがT法(1)(別名、両側T法)である。T法(1)は、目的値のある場合の予測値(総合推定値)を算出する方法であり、総合推定値の算出式は、品質工学におけるバラつきの指標値である「SN比」使った式(a)で表される。なお、実際の計算手順は、文献³⁾等を参照されたい。

$$T = \frac{1}{\sum \eta} \left(\frac{\eta_1}{\beta_1} X_1 + \dots + \frac{\eta_k}{\beta_k} X_k \right) \quad (a)$$

T : 総合推定値 η : SN比
β : 比例定数 X : 変数(平均値で校正後)

またT法(1)を統計解析の重回帰分析と比較すると、予測式の構造が一次線型式という類似点がある一方、多重共線性などの解析制約がない⁴⁾などの相違点がある(表1)。特に、使用するデータに「欠測(欠損)」があっても、エネルギー比型SN比⁵⁾を用いて、欠測状態のままでも演算可能なように改良することで解析可能なことが、増田により報告⁶⁾されている。本研究では、増田により改良されたT法(1)を便宜的に「欠測対応T法(以下、欠測T法)」と呼び、水稻の収量予測に使用することとした。

表1 T法(1)と重回帰分析の比較

	重回帰	T法(1)
既知データ自身の推定	◎	○
未知データの推定	△	○
説明変数がデータ数より多い	×	○
多重共線性存在	×	○
欠測が存在	△ (欠測処理)	○ (欠測T法)
手軽さ(使用ツール)	専用ソフトなど	Excel

3. 使用データと解析方法

3.1 使用データ

今回解析に使用したデータの全体概要を表2に示す。

表2 解析用データ概要

品種データの総数と収集地点	総数 624 : 2005-2017年 (H17-H29) 【内訳】 : ななつぼし 164 きらら397 151 ゆめぴりか(2008-) 133 そらゆき(2011-) 92 そらゆたか(2011-) 84 <small>※そらゆき(食用)、そらゆたか(飼料用)は多収性の新品種</small> 収集地点 : 道内 25地点
説明変数	89個 【内訳】・生育データ19(土壌等) ※変数毎の最大欠測率 0~52% ・気象データ70 平均気温、最高気温、最低気温、 積算日射量、積算日照時間の5種を、 14旬毎(5月中旬~9月下旬)に
目的変数	精玄米重 (g/m ²) = (kg/10a) ※総重より難易度高いが、一番知りたい値

解析用データは、平成17年~平成29年の5種類の品種について、北海道立総合研究機構(以下、道総研)農業試験場が栽培方法や品種改良の検討を行うために蓄積している、土壌、穂数など生育に関するデータと、農業・食品産業技術総合研究機構で提供している1kmメッシュ気象データから抽出したデータとを統合したものである。データ収集地点(図2)

は、道総研農業試験場3地点や協力農家の圃場22地点の計25地点である。説明変数は、研究当初、生育と気象の132種類で解析を実施したが、協力農家は、一部の品種しか栽培していないこともあり、農学的見地から、研究途中で改めて説明変数の見直しを行い、最終的には89種類で解析を実施した。



図2 データ収集地点 (25地点)

なお、生育データについては、過去のデータ収集過程において、様々な事情により欠測が存在するデータとなっている(図3)。統計解析や、機械学習では予測を行うためには、補間による欠測処理が必要である。

(気象を除く)

土性	苗葉質	第一穂高	穂長	苗葉節	穂粒重	移植方法
中苗紙筒	10.0	2.6	3.3	1.0	1.94	中苗紙筒
中苗紙筒	10.9	3.1	3.0	1.0	2.14	中苗紙筒
中苗紙筒	11.4	2.7		1.0	2.48	中苗紙筒
中苗紙筒	11.3	2.4		1.0	2.47	中苗紙筒
中苗紙筒	11.2	2.6		1.0	2.47	中苗紙筒
中苗紙筒	10.4	2.5		1.0	2.27	中苗紙筒
中苗紙筒	11.5	2.7		1.0	2.37	中苗紙筒
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット						成苗ポット
成苗ポット	11.2	2.7	1.8	4.1	3.90	成苗ポット
成苗ポット	11.5	2.7	1.9	3.9	3.58	成苗ポット
成苗ポット	11.2	2.6	1.9	4.1	3.64	成苗ポット
成苗ポット		2.0			4.16	成苗ポット
成苗ポット			1.7		4.04	成苗ポット
成苗ポット	11.8	2.2	1.4	3.7	3.10	成苗ポット
成苗ポット	11.8	1.8	1.5	3.8	3.30	成苗ポット

図3 欠測データの例

図4に精米過程における、過程毎の収量値名を示す。SIMRIWは、刈取り後に充分乾燥した地上部全重量である「総重」を目的変数として収量予測を行う。本研究では、精米過程の最終段階であり、不確定要素はあるものの、予測ニーズが高い「精玄米重」を目的変数として、収量予測を行った。



図4 収量の種類

3.2 解析方法

欠測T法の性能は、以下の3項目で評価した。

- ①欠測処理方法による予測性能比較
- ②予測モデルの性能
- ③ロバスト性評価

性能評価の指標として、実測値と予測値の相関係数R、RMSE (2乗平均平方根誤差)を使用した。相関係数は絶

対値にして0~1の値を取るが、1に近いほど良好で、またRMSEは、0に近いほど良好となる。

解析に使用したツールは、欠測補間の処理には「JMP」(SAS)や機械学習ツール「Weka」⁹⁾をそれぞれ使用した。

また、欠測T法での解析については、有)増田技術事務所の協力を得て、Microsoft Excel2013以降で動作する「欠測T法解析ツール」を研究を進める過程で作成し、解析を行った(図5)。

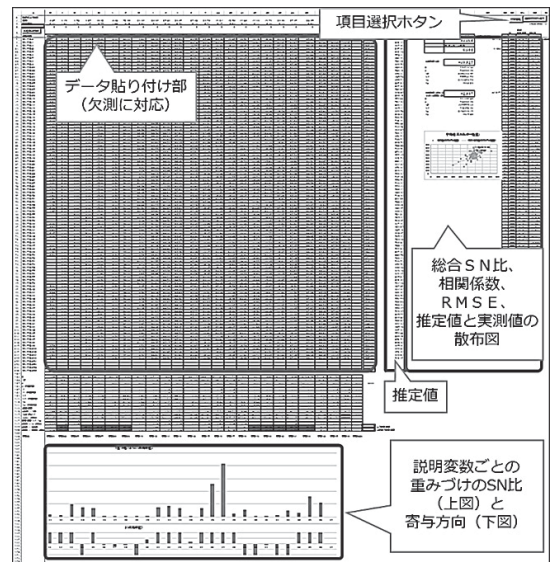


図5 欠測T法解析ツール画面

4. 欠測T法の性能評価

4.1 欠測処理方法の比較

重回帰分析などの統計解析では、欠測変数における残りデータの平均値で補間する「平均値補間」、目的変数との単回帰分析結果による予測を利用する「多変量正規分布補間」、多量データ処理を得意とする「特異値分解補間」などの方法を使用してデータの欠測処理を行うのが一般的である。そこで、これらの欠測処理方法と、欠測が存在するままのデータを解析することができる欠測T法の予測性能を比較した。

欠測T法の性能評価結果の詳細については、文献⁹⁾に譲り、ここでは結果の概要のみを表3に記載する。

表3 T法における欠測処理方法の比較

欠測処理方法		きらら397	
		R	RMSE
補間	平均値補間	0.57	92.3
補間	多変量正規分布補間	0.58	90.9
補間	特異値分解補間	0.57	92.1
無処理	欠測T法	0.57	94.2

結果を総合的に比較すると、各方法の予測性能に大きな差異は見られなかった。なお、水稻の収量予測については、厳密な精度よりも、解析作業が簡単・効率的にできる方が、品種開発等の段階では有益であり、その点では、欠測T法は、欠測処理作業が不要という大きなメリットがある。

4.2 既知データによる、SIMRIWとの性能比較

次に、欠測T法と既存予測モデルSIMRIWとの予測性能を比較した。結果を表4に示す。なお、SIMRIWの標準の出力は総重であること、また、欠測のままでは解析できないこともあり、道総研農業試験場で標準的な値を使って、欠測補間や精玄米重に変換するなどの処理を事前に行っている。

欠測T法は、予測モデル式として一次線形式(b)で表すことが可能である(係数値等は割愛)。

$$\text{予測値} = a_1(x_1 - b_1) + a_2(x_2 - b_2) + \dots + T \quad (b)$$

a_1 : 係数, b_1 : 解析に使用した変数データの平均値
 x_1 : 変数, T : 解析に使用した目的値データの平均

さらに、欠測T法では、項目の重要度を算出し、モデル式の性能向上を目的に、重要度の高い変数を残した形での予測モデル式も作成可能である(項目選択)。項目選択は、重回帰分析での変数選択に相当するが、どの変数が目的値にどれだけ影響(寄与)を与えるかが、SN比の大ききで表現される。図6は、説明変数毎のSN比の表示例だが、この結果を見て、変数の絞り込みをする。絞り込み方法は、実験計画法で使用する直交表を使って分析する方法、モデル式から変数を1つずつ増減させてSN比の増減状況から判断する方法な

どが存在する。今回は、1変数ずつ行う方法を欠測T法解析ツールに追加して、項目選択の性能を評価した。

表4に説明変数を89個から44個に絞り込んで予測モデル式を作成し、解析した結果を示す。

解析した結果、欠測T法は、精玄米重の予測において、既存のSIMRIWよりも相関係数およびRMSEの点で良好な性能であり、また欠測T法は項目選択を行うことで、さらに予測性能が向上することが判明した。

4.3 ロバスト性の比較

本来、予測モデルの良し悪しは、未知(将来)のデータによる予測性能で評価されるものである。予測モデルの作成に使用した既知データについての予測性能が良好でも、そのことが「未知データの予測性能(ロバスト性)」を担保しているものでないためである。そのため、予測モデルが未知のデータに対して、どの程度対応できるかを評価する必要がある。

予測手法の妥当性検証には、データ数が少ない場合に有効である交差検証法(Cross-validation)を研究の初期段階で利用していたが、その後、使用できるデータを一定程度確保できたこともあり、以後は、道総研農業試験場で、予測モデル作成用データとして、「データ多(5年:2009-2013)」と「データ少(3年:2011-2013)」の2パターンとした予測モデルを品種毎に作成し、未知データとして3年分(2014-2016)データからの精玄米重の予測精度を調査した。

調査結果を表5に示す。なお、新品種そらゆきとそらゆたかは、データが2011年からとなるため、「データ少」のみとなることに留意されたい。また、参考として品種の年数が一番長い、きらら397での重回帰分析とSIMRIWの結果も示すが、欠測処理等については4.2節と同じ処理を行っている。

調査の結果、データ数が多い方が、より予測性能が良好であること、欠測T法は重回帰分析やSIMRIWと比較しても、同等もしくはそれ以上の予測性能を有することがわかった。重回帰分析とSIMRIWの実施は、きらら397しか実施していないが、他品種でも欠測T法の有効性は同様と見込まれる。

表4 既知データによる性能比較結果

予測手法	きらら397	
	R	RMSE
SIMRIW	0.37	162.2
欠測T法	0.61	93.0
欠測T法(項目選択後)	0.70	74.5

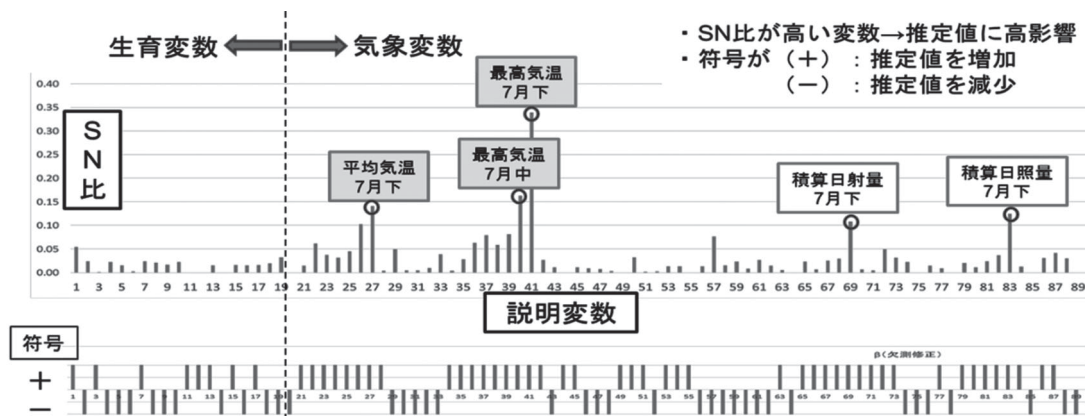


図6 説明変数毎のSN比の表示例

表5 未知データの予測性能（中央農業試験場調査）

手法	品種名	予測モデル作成データ	未知データのRMSE
欠測T法	きらら397	2009-2013年	61.8
		2011-2013年	91.5
	ななつぼし	2009-2013年	64.0
		2011-2013年	82.1
	ゆめぴりか	2009-2013年	55.7
		2011-2013年	80.4
そらゆき	2011-2013年	71.1	
	そらゆたか	2011-2013年	78.2
重回帰	きらら397	2009-2013年	105.8
		2011-2013年	616.6
SIMRIW		—	94.2

5. 地点毎・気象毎の予測

これまでの結果を踏まえ、欠測T法を用いて、5品種の25地点別および気象別に精玄米重の収量予測を行った。図7から図11に品種毎の地点別・気象別（高温年、平年、低温年）の予測結果を示す。なお、図7から図11は、横軸にある地点名は低緯度からの番号としている。品種による地域特性も見られるが、多収性品種として開発された「そらゆき」の収量は、気温変動の影響を受けにくい傾向があることが解析結果から読み取れる。また、「そらゆき」と同じく多収性品種として開発された「そらゆたか」については、特に高緯度地域では、気温変動が収量に影響しやすい可能性を示唆する結果となった。

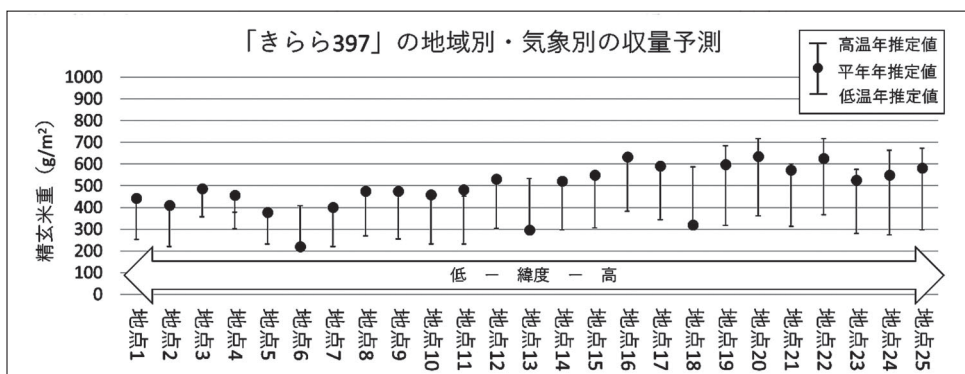


図7 きらら397の地点別・気象別の収量予測

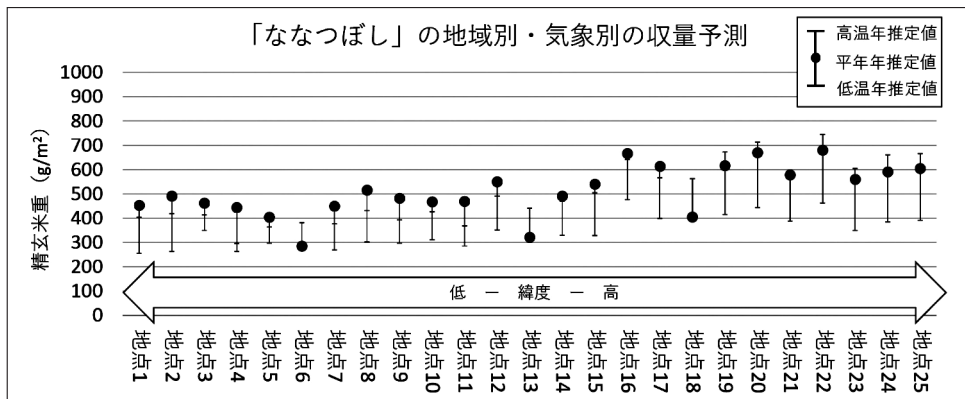


図8 ななつぼしの地点別・気象別の収量予測

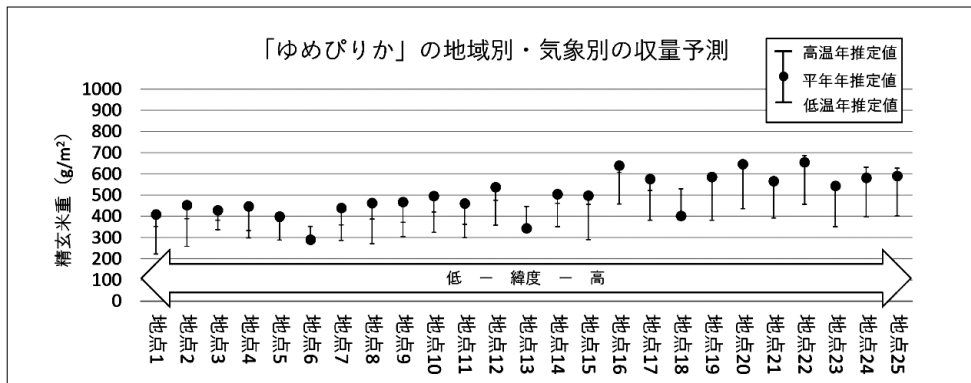


図9 ゆめぴりかの地点別・気象別の収量予測

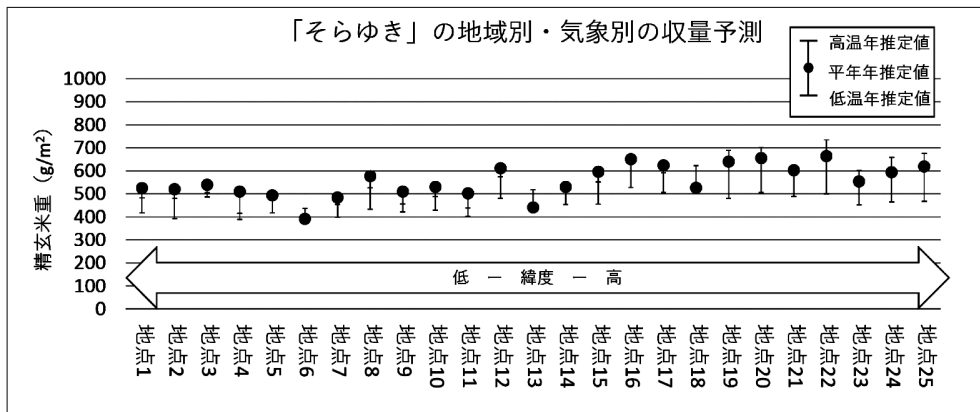


図10 そらゆきの地点別・気象別の収量予測

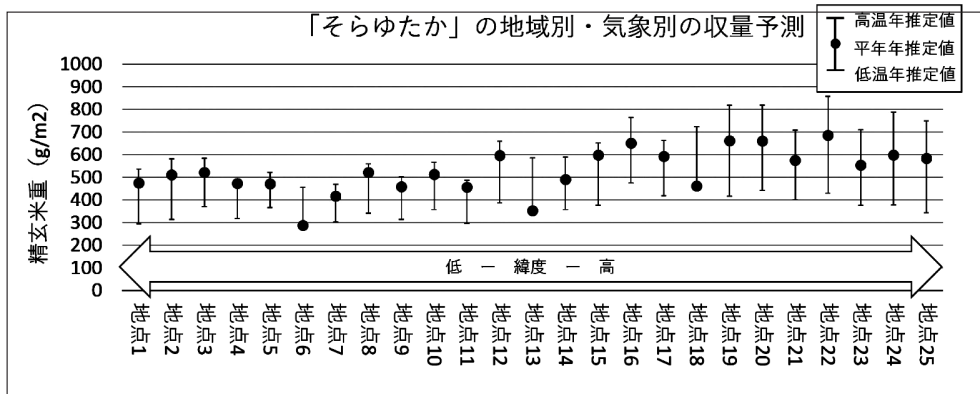


図11 そらゆたかの地点別・気象別の収量予測

一方で、全品種に共通して、地点6、13、18の平年の収量推定値がほかの地点の推定値と明らかに異なっていることがわかる。これは、今回の解析データに含まれていない要因（例えば地形、風データ）が影響したものと考えられる。また、欠測T法はどの程度の欠測率や欠測パターンに影響されるか、調査が必要な部分もあり、今後の検討課題としたい。

図12に、全地点平均の気象別予測結果を示す。そらゆきとそらゆたかは、気象変動があっても既存品種の予測収量をほ

ぼ上回る結果となった。また、そらゆきの方が、気象変動が収量に及ぼす影響を受けにくいことを示す結果となった。

6. おわりに

本研究では、欠測T法の解析ツールを作成し、生育・気象データを用いて、欠測処理方法の比較、ロバスト性の比較を行った。欠測T法を利用することで欠測処理作業が不要となり、その収量予測結果は、誤差精度やロバスト性において、既存の予測モデルでの予測結果と比較して、同程度もしくは良好であった。

また、水稻5品種の25地点における、気象変動を想定した収量予測を実施した結果、多収性として開発された新品種のそらゆき、そらゆたかについて、欠測T法を用いることで不完全かつ少ないデータ数でも精度良く収量が予測可能であり、その結果、これらの品種が多収性であることを確認することができた。

データ数が重回帰分析等では不十分な場合や、欠測が存在する不完全データの場合でも、欠測T法解析ツールを用いることで、精度良く収量が予測可能であり、品種特性の傾向を掴むことができることを確認した。欠測T法を使うことで、従来、専用ソフトによる予測システムの構築や解析作業に費

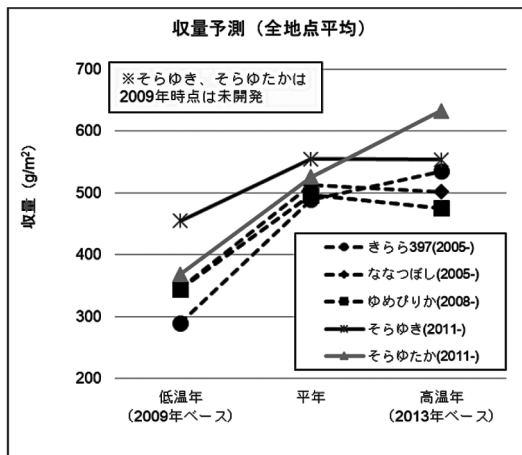


図12 気象別の収量予測 (全地点平均)

やしていた労力・コストを新たな品種設計・開発に費やすことが可能となることから、欠測T法の利用については十分検討に資すると思われる。

本研究で作成した「欠測T法解析ツール」は、農業以外の分野でも活用可能であることから、今後の予定として、これまでデータの取り直しなどをしてきた不完全データの有効活用のために、技術移転等を進める予定である。また、欠測T法の項目選択手法をさらに検討し、予測精度向上が可能かどうかを今後検討する。

謝辞

本研究を進めるにあたり、有限会社増田技術事務所 増田雪也氏、KTS & C 菊地富男氏、アマノ株式会社 鈴木真人氏にそれぞれ多くの助言を頂いた。記して感謝の意を表す。

参考文献

- 1) Horie et al : The Rice Crop Simulation Model SIMRIW and Its Testing in Modeling the Impact of Climate Change on Rice Production in Asia, R.B. Matthews, M.J. Kropff, D. Bachelet, and H.H. van Laar, Eds. CAB International, Wallingford, UK, ch.5, pp51-66, (1995a)
- 2) 田口玄一：目的機能と基本機能(6)－T法による総合予測, 品質工学Vol.13.3, 品質工学会, pp 5-10, (2005)
- 3) 鈴木真人：試して究める！品質工学 MTシステム解析法入門, 日刊工業新聞社 (2012)
- 4) 菊地富男：TS法, T法における推定精度の研究, 第14回品質工学研究発表大会論文集, 品質工学会, pp18-21, (2006)
- 5) 清水, 太田, 鶴田他：新SN比の研究(4), 第16回品質工学研究発表大会論文集, 品質工学会, pp422-425, (2008)
- 6) 増田雪也：T法における欠測データの活用に関する研究, 第20回品質工学研究発表大会論文集, 品質工学会, pp94-97, (2012)
- 7) <http://www.cs.waikato.ac.nz/ml/weka/>
- 8) 神生, 飯田, 佐藤他：欠測データを用いたT法による水稻育種における収量予測, 第27回品質工学研究発表大会予稿集, 品質工学会, pp130-133, (2017)

樹脂系3Dプリンタ造形品の平滑化処理

安田 星季, 岩越 睦郎

Smoothing Process for Resin Type 3D Printer Models

Seiki YASUDA, Mutsuro IWAKOSHI

抄 録

樹脂材料の3Dプリンタは多様化, 低価格化が進み, 道内企業でも様々な機種を導入し, 幅広く利用されている。一般的に3Dプリンタ造形品は積層段差により表面が粗くなるため, より高品質なモデルを製作するにはそれぞれの造形品表面の特性に合った方法で表面を平滑にする必要がある。そこで, 本研究では代表的な5種の材料の3Dプリンタ造形品について表面粗さや塗料の付着性などを調べ, その表面を適切かつ効率的に平滑化する方法を検討した。

キーワード: 3Dプリンタ, 表面粗さ, 塗料付着性

Abstract

Resin type 3D printers are becoming more diverse and less expensive, and many companies in Hokkaido are introducing various models and are widely using. In general, 3D printer shaped articles have roughened surfaces due to stacking steps, so to produce higher quality models it is necessary to smooth the surface in a way that matches the characteristics of each shaped article surface. Therefore, in this research, surface roughness, adhesion of paint, etc. were examined for representative 3D printer shaped articles of five types of materials, and methods for smoothing the surface appropriately and efficiently were examined.

KEY-WORDS : 3D printer, Surface roughness, Adhesive of paint

1. はじめに

樹脂材料の3Dプリンタは多様化, 低価格化が進み, 北海道内の企業でも様々な機種を導入し, 開発中の製品を実体化し, 外形や内蔵部品のレイアウトなどを検討するために幅広く利用されている。一般的に3Dプリンタ造形品は積層段差により表面が粗くなるため, 最終製品に近いモデルを製作したり, 造形品をシリコン型のマスターモデルに使用したりする場合などは, それぞれの造形品表面の特性に合った方法で表面を平滑にする必要がある。樹脂系3Dプリンタ造形品の表面を平滑にする一般的な手法は塗装である。小野澤らは, ナイロン粉末焼結方式の造形品について塗料の付着性を調べ, 表面を平滑にする適正な塗装工程をまとめた¹⁾。しかし, 当該研究で対象にした3Dプリンタは本体価格が数千万円と高

価でかつ造形コストも高く, 北海道内の企業が利用する頻度は低いと考えられる。また, 当該研究で報告された手法は中低価格帯の3Dプリンタでは採用されていないナイロン粉末焼結方式で造形した造形品を対象としたものであり, 表面特性の異なる中低価格帯の3Dプリンタ造形品に適用できるか不明である。そこで, 本研究では北海道の企業が導入, 利用する可能性が高いと思われる本体価格が数百万円台の3Dプリンタ造形品の表面を適切に平滑にする方法をまとめるため, 代表的な5種の造形品を対象に表面粗さや塗料の付着性などを調べ, 各造形品を適切かつ効率的に平滑にする処理工程を検討した。

事業名: 経常研究

課題名: 樹脂系3Dプリンタ造形品の平滑化処理に関する研究

表 1 対象 3D プリント機種, 材料名, 標準積層ピッチ

試料名	プリンタ機種名 (メーカー)	造形方式	材料名	標準積層 ピッチ(μm)
A	Projet660 (3D Systems)	バインダー ジェット	Visijet PXL	100
B	Projet3500 (3D Systems)	インクジェット	Visijet M3	32
C	FORTUS 250mc (Stratasys)	熱溶解積層	ABS-M30	254
D	FORTUS 400mc (Stratasys)	熱溶解積層	ASA	254
E	RM-3000 (シーメット)	光造形	TSR-832	100

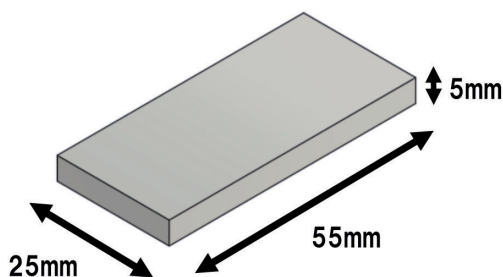


図 1 試験片の外形

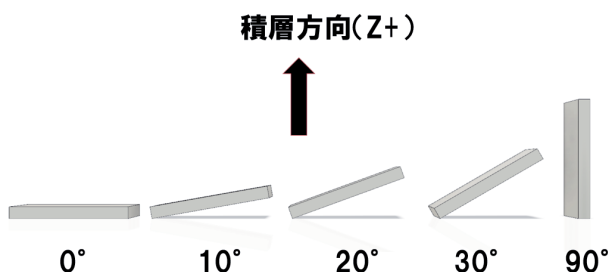


図 2 造形角度

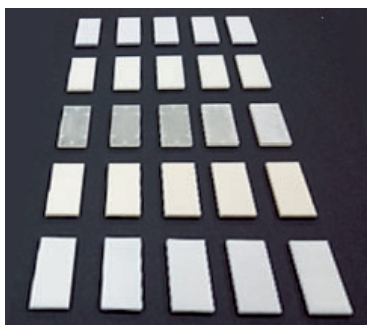


図 3 試験片

2. 樹脂系 3D プリント造形品表面の特性

2.1 対象 3D プリント機種, 材料

本研究で対象とした 3D プリントの機種, 材料および標準積層ピッチを表 1 に示す。3D プリントの機種は, 造形コストが比較的低いバインダージェット方式と, 造形品表面が比較的滑らかなインクジェット (マテリアルジェット) 方式, さらに本体価格が比較的低く最も普及が進んでいる熱溶解積層方式の機種の中から, 道内企業が業務用途に利用する可能性が高い本体価格が数百万円程度の中価格帯の 4 機種を選定した。また, 参照用機種として 3D プリントの最初の造形方式であり, 当工業試験場で最も稼働実績のある光造形方式の機種を加えた。材料は各 3D プリントで利用可能な材料のうち, 道内企業が利用する可能性が高い標準的なものを選定した。

2.2 試験片

各造形品表面の特性を調べるため, 選定した 3D プリントと材料で平板状の試験片を, 各 3D プリントの標準積層ピッチで造形した。試験片の外形を図 1 に示す。造形品表面の段差の大きさは造形角度と大きく関係することが知られている。ここで, 造形角度は積層方向に対する造形面の角度を指す。本稿では積層方向 (Z+ 方向) に垂直な角度を 0°, 積層方向に平行な角度を 90° と表す。一般的に造形角度が小さい場合は角度が大きい場合よりも積層段差が大きくなる。そこで, 各造形品表面粗さの差を明確にし, 特性を理解しやすくするため, 基本的な造形角度 (0°, 90°) のほかに造形角度が小さい条件 (10°, 20°, 30°) の計 5 つの角度で試験片を造形した。造形角度の模式図を図 2 に, 造形した試験片の外観を図 3 に示す。

2.3 反り量の評価

3D プリントの形状再現性を表す指標の一つである反り量を調べるため, 非接触 3 次元測定機 (Steinbichler 社製, Comet5) で試験片を 3D スキャンし, 解析ソフト (Geomagic 社製, Studio2012) で試験片の CAD データとスキャンデータを比較した。その結果の一例を図 4 に示す。図 4 でグレーの濃淡は CAD データとスキャンデータとの誤差量を, ヒストグラムは測定点の分布を表す。

解析した結果, すべての試験片で試験片表面の 6 面のうち最も面積が大きい 2 面 (Z+ 面, Z- 面) の誤差量 (反り量) が最も大きいことがわかった。各 3D プリントの特性を把握するため, 造形角度 0°, Z+ 面の結果を並べたグラフを図 5 に示す。

図 5 からインクジェット方式のプリンタ (3D Systems 製, Projet3500) で造形した試験片 (以下, 試料 B) の誤差量

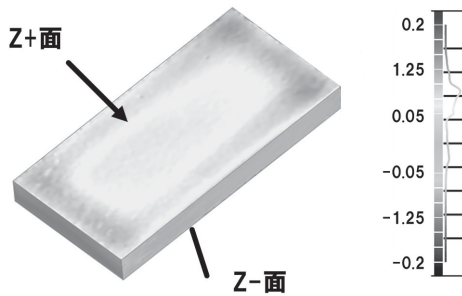


図4 試験片のCADデータとスキャンデータの比較結果例

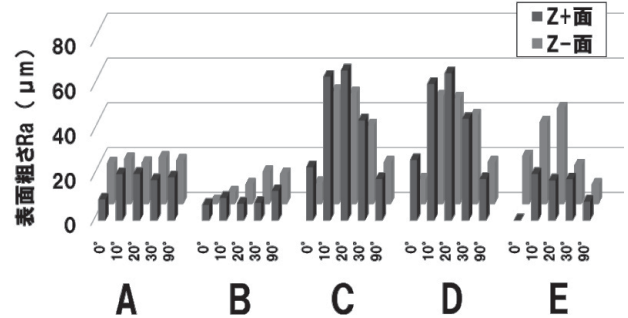


図6 試験片の表面粗さ

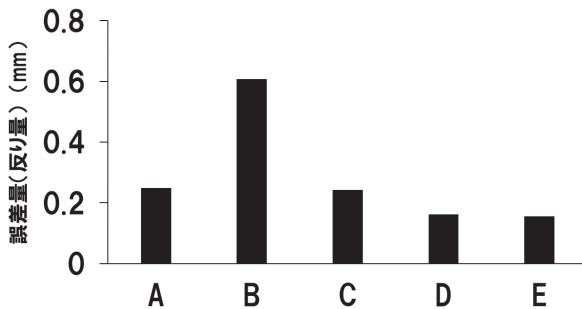


図5 試験片の誤差量(反り量)
(造形角度0°, Z+面)

(反り量)が最も大きいことがわかった。これは、本試料が面状に塗布した紫外線硬化樹脂の全面に紫外線を繰り返し照射して積層造形されたため、硬化収縮による反りが累積し、形状に大きく影響したためと考えられる。光造形方式の機種(シーメット製, RM-3000)で造形した試験片(以下, 試料E)の誤差量(反り量)が最も小さく、次いで熱溶解積層方式のプリンタ(Stratasys製, FORTUS400mc)で造形した試験片(以下, 試料D)の誤差量(反り量)が小さいことがわかった。

2.4 表面粗さの評価

粗さ計(ミットヨ製, SV-648)で試験片表面の面積が最も大きいZ面の算術平均粗さRaを測定した。結果を図6に示す。

バインダージェット方式のプリンタ(3D Systems製, Projet660)で造形した試験片(以下, 試料A)はすべての造形角度で概ね同程度の表面粗さであることがわかった。これは本機が樹脂粉末に接着材を塗布、硬化して積層する方式であるため、粉末粒子による凹凸が造形角度によらず同程度に生じるためと考えられる。試料Bは他の試験片と比べて表面粗さが比較的小さいことがわかった。これは本試料の積層ピッチが32μmで他の試料よりも特に小さかったためと考えられる。熱溶解積層方式のプリンタ(Stratasys製, FORTUS250mc)で造形した試験片(以下, 試料C)および試料Dは他の試験片と比べて表面粗さが比較的大きく、最

も値が大きい造形角度が20°の場合、試料Bの約9倍の値であることがわかった。これは、本試料の積層ピッチが254μmで他の試料よりも特に大きかったことと、線状の材料を積層した造形品の表面に生じる凹凸が他の試料よりも大きかったためと考えられる。試料Eは造形品が垂れ下がるのを抑止する目的で設けられる「支柱」(サポート)が接する面(造形角度0°~20°のZ-面)の粗さがZ+面の約2倍大きいことがわかった。

2.5 下塗り塗料の付着性の評価

樹脂系3Dプリンタ造形品の表面を平滑にする一般的な手法は塗装である。塗装工程において、下塗り塗料の付着性は塗膜の強度や仕上りの良し悪しに大きく影響する。一般的に表面粗さが小さいほど塗料は付着しにくい。そこで、各試験片の下塗り塗料の付着性を評価するため、試験片の表面粗さが最も小さい造形角度0°, Z+面に対し下塗り塗料の付着性試験を行った。

2.5.1 試験方法

試験片の全面に市販のウレタンプラサフ(関西ペイント製, SUウレタンプラサフ2エコ)をメーカー推奨条件でスプレー塗装した。乾燥後、試験片に対しクロスカット法による塗料の付着性試験(JISK5600-5-6)を行った。試験結果の表し方の分類を表2に示す。

表2 試験結果の分類

分類	説明
0	カットの縁が完全に滑らかで、どの格子の目にもはがれない。
1	カットの交差点における塗膜の小さなはがれ。クロスカット部分で影響を受けるのは、明確に5%を上回ることはない。
2	塗膜がカットの縁に沿って、及び/又は交差点においてはがれている。クロスカット部分で影響を受けるのは明確に5%を超えるが15%を上回ることはない。
3	塗膜がカットの縁に沿って、部分的又は全面的に大はがれを生じており、及び/又は目のいろいろな部分が、部分的又は全面的にはがれている。クロスカット部分で影響を受けるのは、明確に15%を超えるが35%を上回ることはない。
4	塗膜がカットの縁に沿って、部分的又は全面的に大はがれを生じており、及び/又は数か所の目が部分的又は全面的にはがれている。クロスカット部分で影響を受けるのは、明確に35%を上回ることはない。
5	分類4でも分類できないはがれ程度のいずれか。

2.5.2 試験結果

試料A, C, D, Eは脱脂の前処理を行わない場合でも分類0であり、塗料の付着性は良好だった。例として、試料Cの結果を図7に示す。試料Bは塗装前にエタノールで脱脂を行わなかった場合、分類5だった。塗装前に脱脂を行った場合、分類2だった。これは、造形品の形状を保つために全面に付着するワックス系のサポート材が表面に残存していたためであると考えられる。脱脂なしの結果を図8に、脱脂ありの結果を図9に示す。

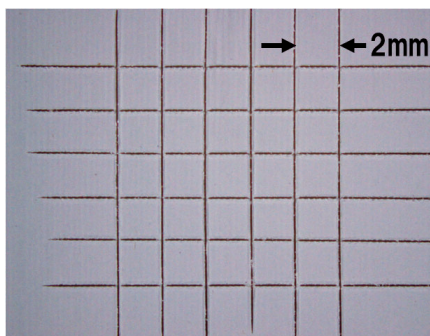


図7 試料C (ABS) の付着性試験結果 (分類0)

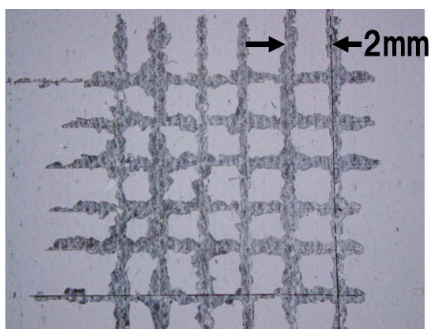


図8 試料B (Visijet M3, 脱脂なし) の付着性試験結果 (分類5)

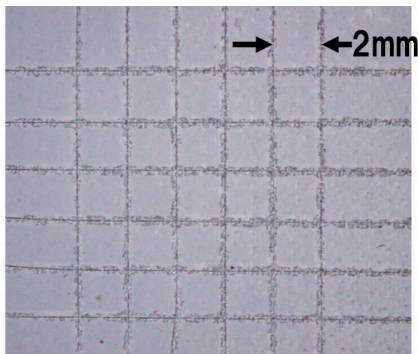


図9 試料B (脱脂あり) の付着性試験結果 (分類2)

3. 適切な塗装工程

樹脂部品に対する標準的な塗装工程を基に設計した、当工業試験場で従来行ってきた光造形品に対する一般的な塗装工程を表3に示す²⁾。本塗装工程と前章までの試験結果を踏まえ、対象とした樹脂系3Dプリンタ造形品の適切な塗装工程をまとめた。工程の一覧表を表4に示す。

表3 当試験場における光造形品の塗装工程

下塗り	中塗り①	中塗り②	上塗り
サポート跡除去 #360ペーパー ブラサフ	#360ペーパー パテ ブラサフ	#600ペーパー ブラサフ	#1000ペーパー クリヤ

表4 塗装工程

	下塗り	中塗り①	中塗り②	上塗り
A	#360ペーパー ブラサフ	-	#600ペーパー ブラサフ	#1000ペーパー クリヤ
B	脱脂 #360ペーパー ブラサフ	-	#600ペーパー ブラサフ	#1000ペーパー クリヤ
C	#360ペーパー ブラサフ	#360ペーパー パテ ブラサフ	#600ペーパー ブラサフ	#1000ペーパー クリヤ
D	#360ペーパー ブラサフ	#360ペーパー パテ ブラサフ	#600ペーパー ブラサフ	#1000ペーパー クリヤ

試料A, Bは比較的表面粗さが小さいため、パテ作業は不要で中塗り工程は1回である。試料Bは前処理としてエタノールなどで脱脂を行う。試料C, Dはパテ作業が必要なため、中塗り工程を2回とした。

4. パテ作業の効率化手法の検討

各試料の処理前の表面粗さと、上記表4にまとめた塗装工程における中塗り②後、上塗り後の表面粗さを測定した結果を並べ、工程における表面粗さの推移を表したグラフを図10に示す。この図から、中塗り②までの工程において表面粗さ

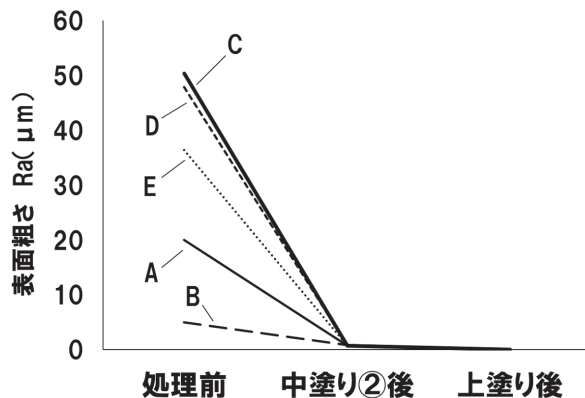


図10 表面粗さの推移

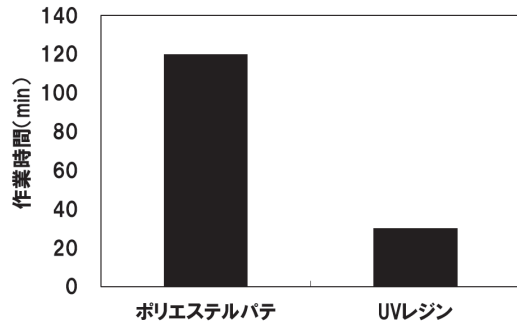


図 11 ポリエステルパテと UV レジンの作業時間

表 5 従来手法と本手法

従来手法	—	下塗り	中塗り① (パテあり)	中塗り ②	上塗り
本手法	切削加工	下塗り	—	中塗り ②	上塗り

が大幅に小さくなることを確認した。これは、主にパテ作業による積層段差解消の効果である。表 4 と 2.4 節の図 6 で示した表面粗さの測定結果を照らし合わせると、表面粗さが概ね 20 μ m よりも大きい箇所はパテ作業が必要といえる。また、最も普及が進んでいる造形方式で、道内企業が利用する可能性が最も高い熱溶解積層方式の 3D プリント造形品（試料 C、D）は、造形角度が 30° より小さい角度の表面粗さが 40~60 μ m 程度であることから、パテによる段差解消作業が必要であると考えられる。一方、パテ作業はほぼすべてが手作業で行われ、かつ難度が高い作業であるため、適切に仕上げるには手間と時間を要する。そこで、パテ作業を効率化する手法を検討した。

4.1 紫外線硬化パテ

当工業試験場では光造形品のパテは主に車両用ポリエステルパテ（久保考ペイント製、T-UP）を使用している。研磨可能になるまでの硬化時間は 30 分以上であり、パテ作業を含む 1 回目の中塗り工程は硬化待ち時間を含め 2 時間程度を要する。そこで、硬化時間が数分程度の紫外線硬化材料によるパテ作業の作業性を確認するため、パテとして流用可能な UV レジン（清原製、UV クラフトレジン）を用いて 1 回目の中塗り工程の作業時間を測定した。その結果、従来のポリエステルパテを使用する場合と比較して、1/4 程度の作業時間になることがわかった。作業時間を比較したグラフを図 11 に示す。

ただし、UV レジンの単価はポリエステルパテの 10 倍程度であることから、小さい面積を処理する場合に限って使用す

るなど、状況に応じてポリエステルパテと併用すると効果的であるといえる。また、硬化した UV レジンはポリエステルパテよりも表面が硬く研磨しにくいいため留意が必要である。

4.2 切削加工

前節まではパテで積層段差を埋める方法について議論してきた。本節では熟練を必要とするパテ作業の代わりに切削加工で段差を除去する手法について検討した内容について述べる。本手法は処理前に切削加工などを施すことで、中塗り①工程を省く狙いがある。パテ作業を伴う従来手法と切削加工を取り入れた本手法の流れを表 5 に示す。本研究では実際の鋳造品の木型モデルをテストケースとして、処理前に当該モデルに切削加工を行うことで段差を除去する手法を検討した。対象とした実際の鋳造品と木型の外観を図 12 に示す。

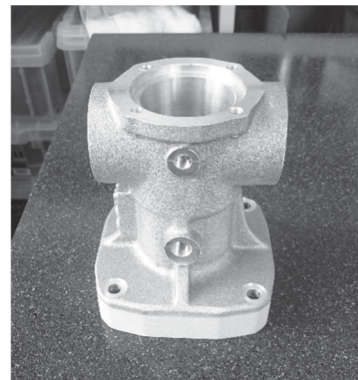


図 12 鋳造品（上）と木型（下）

4.2.1 木型モデルの造形、切削加工

熱溶解積層方式の 3D プリント（Raise3D 社製、Raise3D Pro2）でメーカー純正品の ABS 材料を使用し標準的な造形条件で木型モデルを造形した。この際、あらかじめ表面に数 mm 程度の削り代を付加した。造形品の外観を図 13 に示す。造形品を 5 軸 NC 加工機（庄田鉄工社製、NC7000U-1631X）に設置し、表面を仕上げ加工した。加工の様子を図 14 に示す。

4.2.2 表面粗さ

切削加工の有無による表面粗さの違いを図 15 に示す。木型

モデル表面において造形角度が30°程度に相当する箇所は表面粗さが切削加工により大幅に小さくなることを確認した。従来手法における中塗り②後の表面粗さよりも大きな値ではあるが、切削加工を施すことで時間と熟練を要するパテ作業を含む中塗り①工程を省くことが可能となる。

4.2.3 本手法の利点、欠点

本手法の利点はパテ作業を省略できる点に加え、造形品の精度が大幅に向上する点である。切削加工を行わずに3Dプリンタのみで造形した造形品は反り、収縮など複合的な要因で最大で数mm程度の誤差が生じる場合があるが、NC切削加工を加えると機械の繰り返し位置決め精度（上記加工機で±0.02mm）まで誤差を低減することが可能となる。しかし、

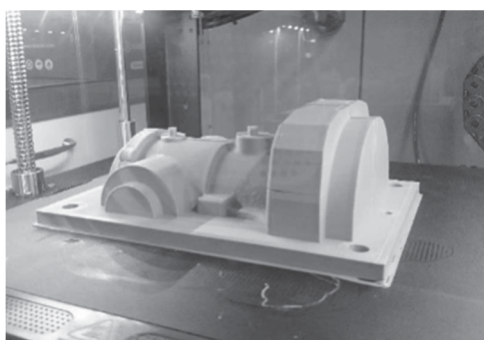


図 13 3D プリンタによる木型モデル



図 14 木型モデルの5軸切削加工の様子

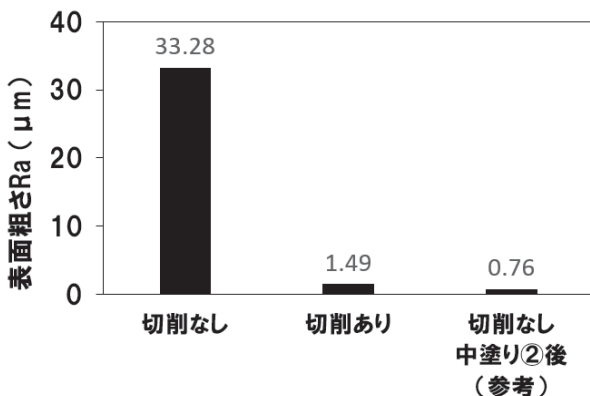


図 15 切削加工の有無による表面粗さの違い
(造形角度 30°，未塗装処理箇所)

削り代を付加した3Dモデルデータを追加で作成する必要がある。さらにCAMプログラミング作業、加工段取り作業が生じるなどの欠点がある。製品の要求精度や追加発生する作業量を考慮し、状況に応じて本手法の採否を検討する必要がある。なお、今回テストケースとして作成したモデルの木型としての実用性については耐久性などさらなる検討が必要である。

5. まとめ

本報は樹脂系3Dプリンタ造形品の平滑化処理に関する下記項目について報告した。今後は得られた知見を道内企業の技術支援に活用していく。

- ① 本体価格が数百万円程度の樹脂系3Dプリンタ4機種と光造形について、造形品表面の特性に関する指標である造形品の反り量、表面粗さ、下塗り塗料の付着性を調べ、各造形品の特徴を把握した。
- ② 各造形品の表面特性と既往の知見を踏まえ、本研究で対象とした造形品表面を適切かつ効率的に平滑にする方法を一覧にまとめた。
- ③ ポリエステルパテ作業を主とした大きな積層段差を解消する従来手法の効率化を図る新たな手法として、硬化時間が早い紫外線硬化パテを使用する手法と、作業工程に切削加工を取り入れて段差を除去する手法について検討し、各手法の利点、欠点を把握した。

謝辞

本研究で使用した5軸NC加工システムは競輪の補助を受けて整備されました。記して感謝いたします。

参考文献

- 1) 小野澤明良, 村井まどか, 神谷嘉美他: ナイロン粉末焼結型積層造形品への塗装技術の開発, 日本デザイン学会デザイン学研究 BULLETIN OF JSSD, pp88-89, (2014)
- 2) 岩越睦郎: 塗装による光造形物の鏡面化手法の検討, 北海道立工業試験場報告, pp157-161, (1995)

金属粉末積層造形法におけるマルエージング鋼造形物の寸法精度向上

鈴木 逸人, 戸羽 篤也

Accuracy Improvement of Maraging Steel Parts in Powder Bed Fusion Additive Manufacturing

Hayato SUZUKI, Atsuya TOBA

抄 録

材料を積層することでのづくりを行う方法は、国際規格ではアディティブマニュファクチャリング (Additive manufacturing ; AM), 国内では3Dプリントとよばれ、近年、装置や材料などの技術開発が加速し、市場規模が急激に成長している。活用される産業が拡大するなか、AM造形物に求められる精度要求が高くなっている。高精度なAM造形物を得るためには、造形物を測定し得られた造形誤差をCADデータにフィードバックさせ、製作を繰り返すことで造形誤差を収束させるクローズドループエンジニアリングが有効であるが、実証報告が少ない。本研究では、クローズドループエンジニアリングを用いて造形物の精度がどの程度向上するのかを検証することを目的とし、切削機構を有する粉末床溶融結合方式の金属AM装置でマルエージング鋼による造形を行った場合について検討した。研究の結果、切削機構を有する金属AM装置で発生する主な造形誤差要因は、造形物の熱膨張・収縮であることがわかった。また、測定した造形誤差量に基づきCADデータを修正することで最大0.2mm程度であった造形誤差を0.05mm以内に低減させることができることを実証した。

キーワード : アディティブマニュファクチャリング, 粉末床溶融結合方式, マルエージング鋼, クローズドループエンジニアリング, 精度向上

Abstract

Additive manufacturing (AM) is a process of joining materials to make objects from 3D model data, usually layer upon layer, as opposed to subtractive manufacturing methodologies. In recent years, AM market expand rapidly with the development of equipment and materials. One of the methods for producing a high-precision object is closed loop engineering that improves the accuracy of the object by repeatedly feeding back the error to CAD data. However, there have been few reports of studies that applied the method to accuracy improvement of metal AM products. The purpose of this study was to examine how the precision of the product with maraging steel in powder bed fusion AM device with a cutting machine was improved by using the closed loop engineering. As a result of this study, it was found that the main error factor generated in the AM device was thermal expansion and contraction of the product. In addition, it was demonstrated that the error of about 0.2 mm reduced within 0.05 mm by modifying the CAD data based on the measured error.

KEY-WORDS : Additive manufacturing, Powder bed fusion, Maraging steel, Closed loop engineering, Accuracy improvement

1. はじめに

アディティブマニュファクチャリング (Additive manu-

facturing ; AM) は、国内では3Dプリントとよばれ、3Dモデルデータから材料を積層することで物体を造形する手法である。国際規格では、7種類の方式に分類され¹⁾、この

事業名 : 委員委嘱

課題名 : 産総研戦略予算プロジェクト 3D計測エボリューション(3D3プロジェクト)

うち主に、6種類の方式の装置が産業分野で活用されている(図1)。近年、日本を含む世界各国で装置開発が進み、また使用可能な材料の増加などの技術的な発展が著しく、市場規模が急激に成長している²⁾。特に、金属を用いたAM法(金属AM法)は、樹脂AM法と異なり、実際に最終製品として使用可能な造形物を製作することができる。さらに、複雑形状や軽量化構造を製作可能で設計自由度が高いといった利点があり、金型分野、航空宇宙分野、医療分野で活用が期待されている³⁻⁵⁾。金型分野では、従来の機械加工では実現することができなかつた成形面に沿うような立体的で複雑な配管構造が造形可能である。例えば、プラスチック射出成形においてこのような配管構造を有した金型を用いた高機能冷却を行うことで、サイクルタイム短縮による生産性向上や抜型後の二次収縮防止による成形品質の向上が期待できる⁶⁾。

AM法の造形物における寸法精度は、造形方式により異なる。最も安価に入手可能な材料押出方式(Material extrusion)の場合、多種材料を使用できる一方、材料フィラメントが太く、積層厚さが厚いため寸法精度が悪くなる傾向がある。結合剤噴射方式(Binder jetting)の場合、数百 μm の粉末に結合剤を噴射するため、結合剤の浸透などにより余剰硬化が発生することがあり、粉末粒径程度の誤差があり得る。材料噴射方式(Material jetting)や液層光重合方式(Vat photopolymerization)の場合、使用する材料が液体であることから、材料噴射方式であればプリントヘッド駆動系の平行度や直角度に起因する誤差、液層光重合方式であれば硬化に使用するレーザー等の集光精度や走査経路に起因する余剰硬化による誤差が考えられる。金属AM法で最も用いられる指向性エネルギー堆積方式(Direct energy deposition)と粉末床溶融結合方式(Powder bed fusion)では、溶融池が凝固する際に周辺の未溶融粉末が表面に付着することで材料粉末粒径程度の誤差が発生する可能性がある。金属AM装置では、造形のみ装置と造形と切削を行うことができる装置がある。切削機構を有する装置であれば、切削面では未溶融粉末の付着による造形誤差は排除することができる。しかし、熱収縮による誤差が考えられる。特に、粉末床溶融方式では、造形物の周辺が未溶融の金属粉末で覆われ、冷却等を行うことができないことから、製作中に造形物の温度が上昇していると予想される⁷⁾。以上のように、AM法は、方式により誤差の原因、程度が異なるものの、高い寸法精度が要求される場合、完成形の3D CADデータをそのまま使用することが困難である。

高精度なAM造形物を製作する方法にクローズドループエンジニアリングと呼ばれる手法がある(図2)。製品の設計、製造、検査などの一連の工程においてデジタルデータを用いて効率化するデジタルエンジニアリングの一手法であり、デジタルデータを活用してものづくり工程のPDCA(Plan:計画, Do:実行, Check:評価, Action:改善)サイクル

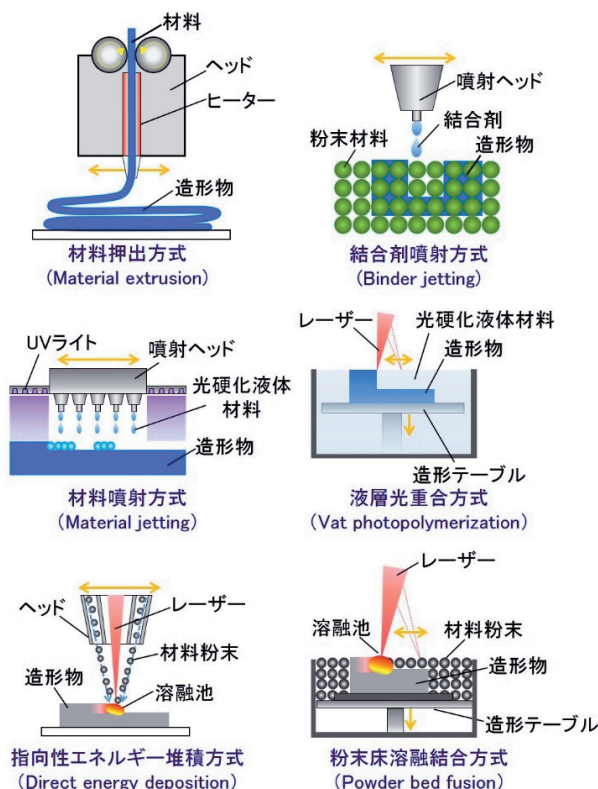


図1 AM法で実用的に用いられている6方式

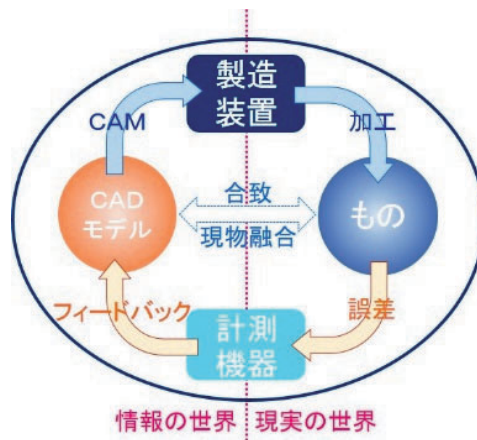


図2 クローズドループエンジニアリングの概要

を有機的に回すことにより生産性を向上させる方法である⁸⁾。AM法におけるクローズドループエンジニアリングの具体的な方法は、AM法で製作した造形物を測定し、測定データと造形に用いた3Dデータとを照合することで幾何誤差を定量化した後、3Dデータにフィードバックさせ修正し、再造形のループを繰り返すことで造形物の形状誤差を収束低減させる。測定には、ノギス等の汎用機器を用いる他、複雑な3D造形物に対応するため、接触式および非接触式3次元測定機を用いる。理論上このループを数回繰り返すことで、造形誤差を排除することが可能だが、現実的にどの程度まで造形誤差が収束するのかは実証が必要である。

そこで、国立研究開発法人産業技術総合研究所計量標準総合センターがプロジェクトリーダーとなり、国内50カ所以上の公設試験研究機関が参加し、クローズドループエンジニアリングの実証を目指すプロジェクトを実施した。本プロジェクトでは、運営協議会から提示されたガイドラインに基づき、各機関が所有するAM装置で造形した器物を測定し、方式による造形誤差について検証を行った。

本研究では、金属AM法の金型製作で最も用いられるマルエージング鋼造形物に対して、クローズドループエンジニアリングを活用することで造形物の形状誤差がどの程度収束するのかについて明らかにすることを目的として検討を行った。はじめに、造形物を測定し形状誤差を定量化した。次に、3Dデータにフィードバックさせ再造形し、造形精度について検証を行った。

2. 造形方法および測定方法

2.1 造形物形状

本研究では、3次元造形誤差評価用器物（以下、「3次元器物」とする）と2次元造形誤差評価用器物（以下、「2次元器物」とする）の2種類の評価用器物を造形し、各々の寸法精度を評価した。図3に3Dデータを示す。3次元器物は、一辺30mmの直方体の各頂点と直径15mmの球の中心が一致するように配置されている。器物全体に切削を行うため、積層方向の球間に円柱を配置した。2次元器物は、100×100×5mmの直方体に直径2mmの穴を15mm間隔で25個配置した。粉末床溶融結合方式では、ベースプレート上に造形を行うため、ベースプレートと器物の間に空間があると造形することができない。このため、器物下面にサポートを配置した。サポートは、厚さ0.6mm、ピッチ5mmの格子状とした。

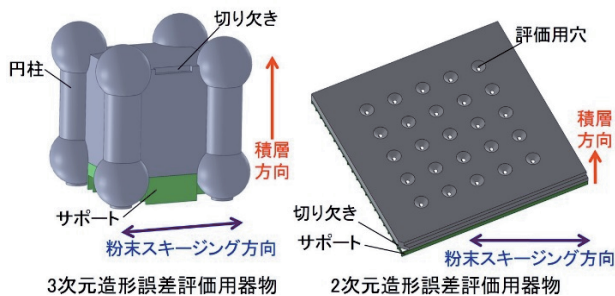


図3 造形誤差評価用器物

2.2 造形装置および造形条件

造形には、金属光造形複合加工機（松浦機械製作所社製、Lumex Avance-25）を用いた（図4）。材料は、マルエージング鋼粉末（松浦機械製作所社製、マツウラマルエージングII）を用いた。ベースプレート上面をz方向原点とし、z方向に積層した。ベースプレートは、造形前に平面研削を行っ

た厚さ19.897mmのS50C板材を用いた。積層厚さは、0.05mmとし、10層毎に直径1mmのボールエンドミルで切削加工を行った。3次元器物、2次元器物のレーザー照射条件を表1に示す。ベースプレート予熱温度は50℃とした。造形中、造形室内は窒素雰囲気とした。2次元器物は、造形後にサポート部分をバンドソーでベースプレートから切断し、サポート痕が見えなくなるまで平面研削を行った。

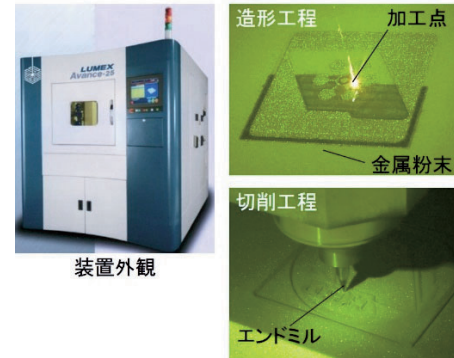


図4 金属光造形複合加工機（粉末床溶融結合方式）

表1 レーザー照射条件

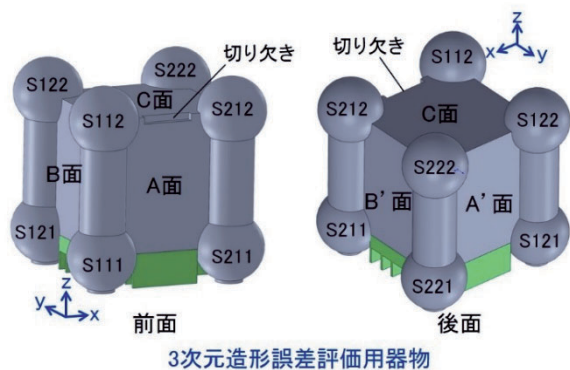
レーザーパラメータ	3次元器物	2次元器物
パワー P [W]	160	160
スポット直径 D [mm]	0.2	0.2
走査速度 v [mm/s]	320	160
走査間隔 e [mm]	0.1	0.2

2.3 測定装置および測定位置

図5に器物の各球および面、穴の名称および座標系を示す。3次元器物では、球にS111からS222まで名称を付け、立方体の面をそれぞれA、B、C面とし、対面をそれぞれA'、B'、C'面とした。また、S111-S211方向をx方向、S111-S121方向をy方向、S111-S112方向をz方向とした。2次元器物では、図に示すように切り欠きを左下で設置したときの左下を1番穴、右下を5番穴、左上を21番穴、右上を25番穴とした。以後、これらの名称を用いて測定位置を示す。

3次元器物の測定には、マイクロメーターを用いた。3次元器物の測定位置は、各球の直径、球間の最大距離、立方体面間距離とした。球直径は、各球のx-y平面に対して測定を行った。z方向における球間の最大距離に関しては、上側の球とベースプレート下面の最大距離を測定し、ベースプレート厚さを引いた値を測定値とした。A、B面内対角の球間最大寸法のみベースプレートとの干渉のためマイクロメーターでは測定できないことからノギスを用いた。器物は測定テーブル上に置き、必要の場合はベースプレートをクランプして測定を行った。

2次元器物の測定には、2次元画像測定機（ミットヨ社製、QI-B3017B）を用いた。照明は、透視照明で行い、他の照明は用いなかった。測定面上における1番穴の中心を原点と



3次元造形誤差評価用器物

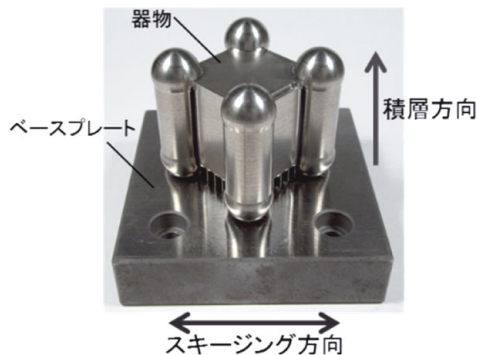
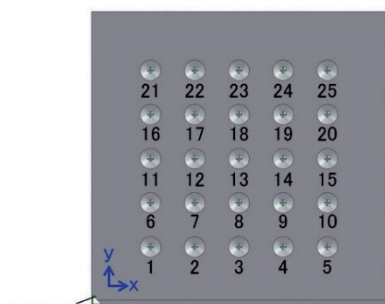


図7 3次元造形誤差評価用器物外観



2次元造形誤差評価用器物

図5 器物各要素の名称

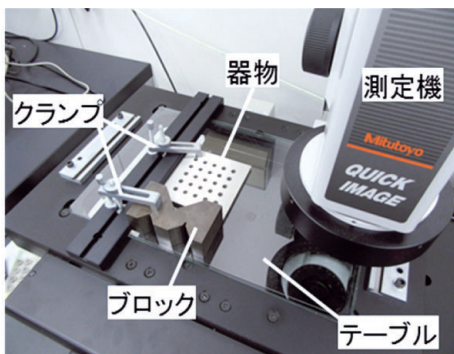


図6 測定装置および器物設置状態

し、1番穴の中心と5番穴の中心を通る直線をx軸、x軸から反時計回りに90度の方向をy軸とする器物座標系を設定して測定を行った。穴に対して円近似を行い、中心座標と円直径を1番穴から25番穴まで順番に3回測定を行った。測定の際には、器物の設置位置の再現性を向上させるため、テーブル上にクランプとブロックを設置し器物を固定した(図6)。

いずれの測定も20℃恒温測定室内で行った。器物は、造形後にエアブローと吸引により金属粉末を十分に除去し、20℃恒温室に24時間以上保管した後に測定を行った。

3. 造形誤差の定量化

3.1 3次元器物の測定結果

図7に造形した器物を示す。外観検査では測定の誤差要因

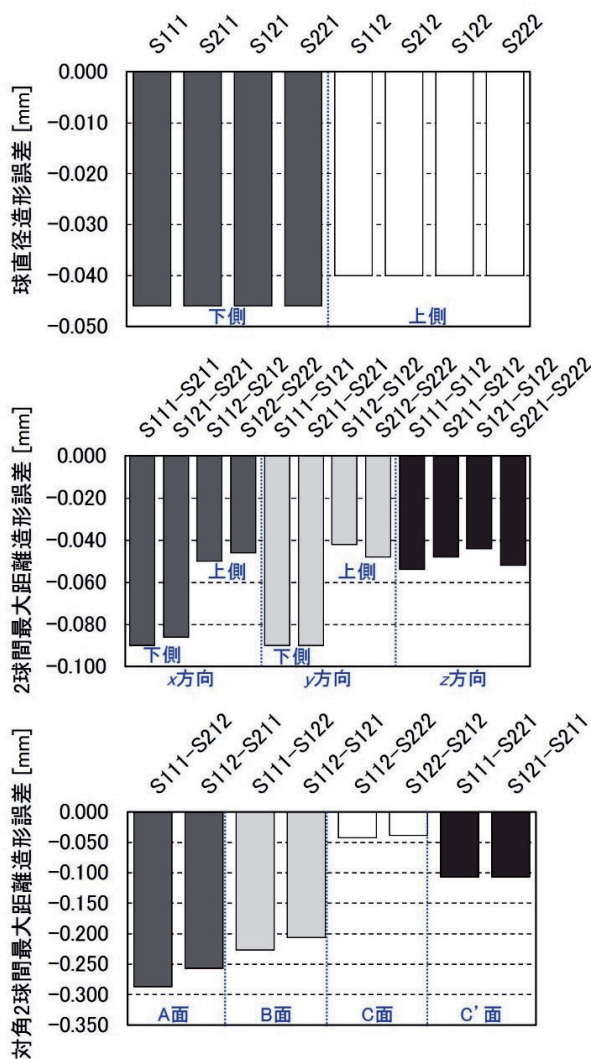


図8 3次元器物の造形誤差

となり得る目立つ傷や空孔などは認められなかった。図8に造形誤差(測定値から設計値を引いた差)の測定結果を示す。正の値は設計値に対して膨張、負の値は収縮を表す。上側球(S112, S212, S122, S222)の直径は、すべて14.960mmとなり、設計値に対して0.040mm小さくなった。また、下側球(S111, S211, S121, S221)の直径は、すべて14.954mm

となり、設計値に対して0.046mm小さくなった。上側球と下側球の値を比較すると上側球の方が若干大きくなった。

2球間の最大距離においてx軸方向とy軸方向で差は見られなかった。上側球と下側球の2球間最大距離の平均と標準偏差は、それぞれ $44.954 \pm 0.003\text{mm}$ と $44.911 \pm 0.002\text{mm}$ となり、上側球間の方が若干大きくなった。また、z軸方向の2球間最大距離は、平均と標準偏差が $44.951 \pm 0.004\text{mm}$ となり、全体的に設計値よりも小さくなった。

A, B面内の対角2球間最大距離は、0.2mm以上設計値より小さくなっているが、ノギスで測定したため他の測定箇所よりも測定誤差が大きくなったためと考えられる。C面内での対角2球間最大距離の平均と標準偏差は、 $57.386 \pm 0.003\text{mm}$ となり設計値よりも0.040mm小さくなった。この設計値との差は、上側球の直径の設計値との差とほぼ同じ値であることから、C面間の球間が収縮したわけではなく、球自体の収縮による差であると考えられる。C面の対面内での対角2球間最大距離はどちらも、 57.320mm となり設計値よりも0.106mm小さくなった。この設計値との差は、下側球の直径収縮量以上に小さい結果となった。

C面付近での直方体のA-A'面間, B-B'面間距離は、どちらも 29.986mm となり、設計値よりも0.014mm小さくなった。また、C'面付近では、どちらも 29.960mm となり、設計値よりも0.040mm小さくなった。これまでの傾向と同様に下側の方が大きく収縮した。上述のC面の対面内での対角2球間最大距離が下側球の直径収縮量以上に小さくなった理由は、球の収縮と直方体のx-y平面内の収縮の複合要因によると考えられる。

3.2 2次元器物の測定結果

図9に造形した器物を示す。図10に円の中心座標の測定結果を示す。図中では、誤差の傾向をわかりやすく表示するため円中心座標の設計値からの差 [μm]を100倍拡大させ表示した。円中心の座標の設計値からの差は、すべて負の値となった。円中心座標の設計値からの差の平均と標準偏差は、x座標とy座標でそれぞれ $-0.03 \pm 0.02\text{mm}$ と $-0.04 \pm 0.03\text{mm}$ であった。円直径の平均と標準偏差は、 $1.98 \pm 0.01\text{mm}$ となった。全体として、穴位置、穴直径ともに設計値に対して収縮する方向に造形誤差が見られた。これは、3次元器物と同様に熱収縮による造形誤差だと推察される。

4. 3Dデータ修正および再造形器物による評価

4.1 3Dデータ修正方法および器物の再造形方法

測定結果より、どちらの器物も収縮する方向で造形誤差が発生することがわかった。従って、設計値へ造形物の寸法を近付けるには、3Dデータの寸法をあらかじめ拡大しておく必要がある。そこで、測定した造形誤差に基づき3次元器物

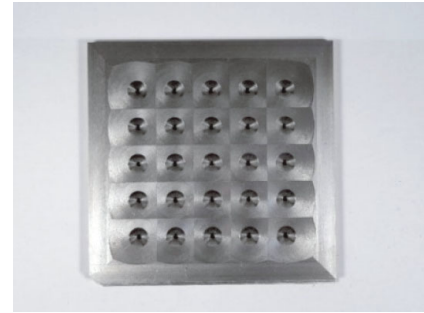


図9 2次元造形誤差評価用器物外観

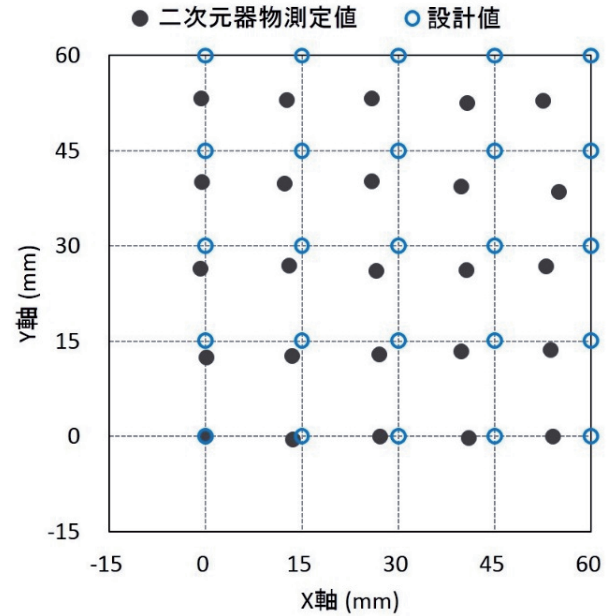


図10 2次元造形誤差評価用器物の造形誤差

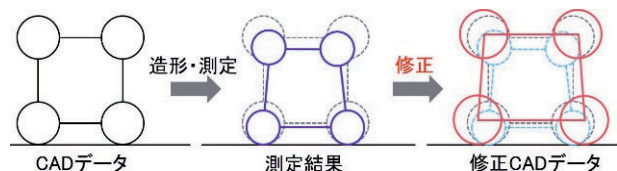


図11 3次元造形誤差評価用器物の3Dデータ修正方法

の3DCADデータを以下の様に修正した(図11)。

- * 球に対して直径を0.040mm (0.125%) 拡大
- * 立方体上面の各辺を0.015mm (0.05%) 拡大
- * 立方体底面の各辺を0.039mm (0.13%) 拡大
- * 立方体高さ方向は修正なし

また、2次元器物の造形誤差について、器物の中心である13番穴を基準として図11と同様に表示すると図12ようになる。器物中心に向かって中心からの距離にはほぼ比例して収縮していたことがわかった。この収縮量を修正するため、2次元器物の3Dデータを以下の様に修正した。

- * 器物中心(13番穴)から穴間の直線距離および器物全体を0.099%拡大

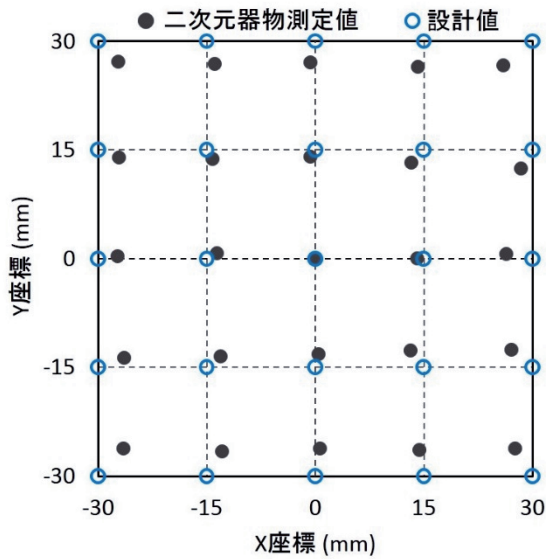


図 12 2次元造形誤差評価用器物の造形誤差 (13 番穴を中心として再表示)

造形装置，造形条件，測定方法は，変更することなく，すべて修正なし器物と同じ方法で行った。

4.2 修正 3 次元器物の測定結果

図13に造形誤差（測定値から設計値を引いた差）の測定結果を示す。

球直径は，最大で0.004mmの造形誤差となり，3Dデータを修正した効果が非常に良く現われた。同様に，C面およびC'面の対角2球間の最大距離に対する造形誤差は，0.014mm以内となり，平面に対する寸法修正が非常に有効である結果となった。

2球間の最大距離においてx軸方向とy軸方向の最大造形誤差は，0.010mmとなった。修正なし3Dデータでの器物では上側球と下側球の2球間最大距離の差に若干の差が見られたが，寸法補正の効果により上下間の差は見られなくなった。z軸方向は，平均0.026mm設計値よりも長くなった。z軸方向は寸法補正で0.040mm高くしているのに対して，測定値が0.026mm大きくなったので，今回の器物のz軸方向は，約0.014mm収縮する結果となった。

A面およびB面の対角2球間の最大距離は，-0.026mmから0.034mmと大きくばらついた。この測定値のばらつきは，ノギスで測定したため，測定誤差が大きくなったと考えられる。

4.3 修正 2 次元器物の測定結果

図14に修正2次元器物と2次元器物の円中心座標の測定結果を示す。図中では，円中心座標の設計値からの差 [μm]を100倍拡大させ表示している。円中心座標の設計値からの差の平均と標準偏差は，x座標とy座標ともに -0.01 ± 0.01

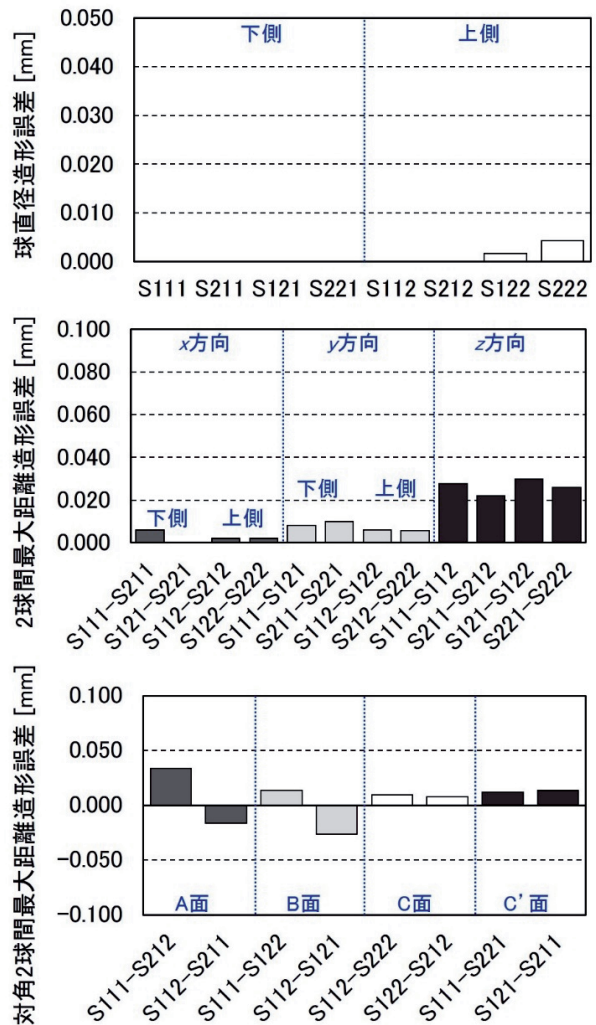


図 13 修正 3 次元造形誤差評価用器物の造形誤差

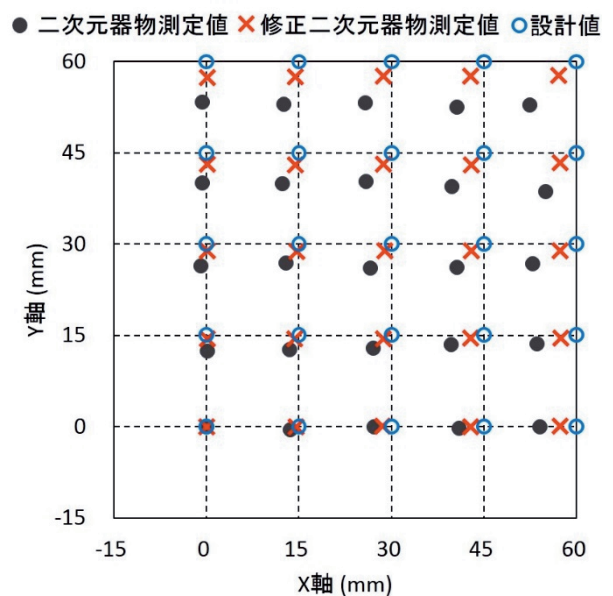


図 14 修正 2 次元造形誤差評価用器物の造形誤差

mmであった。また、円中心座標の設計値からの差は、基準位置から離れるほど収縮量が大きくなり、25番穴で x 、 y 座標それぞれで -0.03mm 、 -0.02mm であった。円直径の平均と標準偏差は、 $1.96\pm 0.00\text{mm}$ となった。円直径に関しては修正を行っていないため修正の有無にかかわらず同程度の値となった。

5. 考察

3次元器物の測定結果(図8)で示した様に、粉末床溶融結合方式のAM装置でマルエージング鋼を用いて造形した場合、器物下方ほど平面内の収縮量が大きくなる傾向となった。本研究では、切削機構を有するAM装置で造形を行っており、未溶融粉末が溶融池表面に付着したことによる誤差はない。本研究の器物を造形する際には、切削を行うために器物に対して平面方向 0.030mm 、 z 方向 0.400mm の削り代をCAMで設定した。造形物全体に切削を行えていること、また修正器物では造形誤差が明らかに低減したことから、本研究で発生した造形誤差の主要因は、切削精度ではなく、切削工程終了後に器物温度が下がることで生じる熱収縮であると推察できる。さらに、平面内での収縮量が造形物高さで異なったことから、造形物高さ方向に対して内部に温度分布が生じたと考えられる。この温度分布による収縮量の差が造形中に蓄積されることで、 z 軸方向の2球間距離およびA、B面の対角2球間の最大距離といった高さ方向に関わる造形誤差が大きくなったと説明できる。

修正2次元器物の結果(図14)では、造形誤差測定値に基づき修正量を決定したが、2次元器物ほど修正効果が現われておらず、さらにループを行う必要がある結果となった。本研究の修正2次元器物の造形誤差要因として、修正量不足と造形物のそりが考えられる。図15に造形した器物のベースプレート下部の拡大写真を示す。ベースプレート下面にそりが観察された。また、ベースプレートに設置した状態で器物中心付近では圧縮の残留応力が発生していた。ベースプレートから切断した際に、修正量を上回る量で残留応力により器物にそりが発生したため、2次元器物では修正効果が低減したと考えられる。ベースプレートを厚くすることや熱処理によるひずみ緩和を行うことで器物の造形精度はさらに向上すると考えられる。

本研究では、ループを1回行った場合の効果について報告した。さらに数回のループを回すことで、造形誤差はさらに低減すると考えられるが、何回のループでどの程度の造形誤差で収束するかについては今後検討が必要である。

6. おわりに

本研究では、粉末床溶融結合方式で切削機構を有するAM

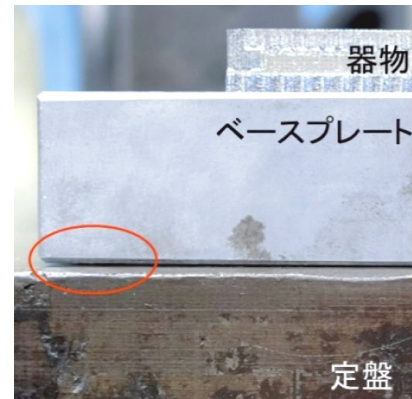


図15 修正2次元器物におけるベースプレートのそり

装置を用いてマルエージング鋼で造形を行った場合の造形精度について検証した。粉末床溶融結合方式の金属AM法では、高さ方向に対して平面内の収縮量が異なることが示唆された。切削機構を有する金属AM装置で発生する主な造形誤差要因は、熱による造形物の膨張・収縮であることがわかった。最大で 0.2mm 程度であった造形誤差を、測定した造形誤差量に基づきCADデータを修正することで 0.05mm 以内の造形誤差に低減させることができることを実証した。

謝辞

本研究は、産総研戦略予算プロジェクト 3D計測エボリューション(3D3プロジェクト)(2016-2018)により実施した。本研究で使用した基準器物、測定方法および解析方法は、本プロジェクトで発行したガイドラインに基づき行っており、ガイドラインを作成頂きました運営協議会の皆様に感謝申し上げます。また、本研究で使用した2次元画像測定機は、公益財団法人JKAの機械工業振興補助事業により整備されました。記して感謝いたします。

参考文献

- 1) 榎原弘之：日本におけるAdditive Manufacturingの概要とこれからの課題，計測と制御，Vol.54 No.6，pp.381-385，(2015)
- 2) 経済産業省編：新ものづくり研究会 報告書「3Dプリンタが生み出す付加価値と2つのものづくり」，pp.21-28，(2014)
- 3) C. Gao・C. Wang・H. Jin・Z. Wang et al.：Additive manufacturing technique-designed metallic porous implants for clinical application in orthopedics, RSC Advances, Vol.8 No.44, pp.25210-25227, (2018)
- 4) A. Zadpoor：Frontiers of Additively Manufactured

Metallic Materials, Materials, Vol.11 No.9, 1566,
(2018)

- 5) 小岩井修二：金属積層造形技術の航空宇宙分野への適用，
铸造工学, Vol.90 No.6, (2018)
- 6) 戸羽篤也・中村勝男・平野繁樹他：金属粉末積層造形に
よる内水冷式金型の製作，北海道立総合研究機構工業試
験場報告, No.314, pp.67-76, (2015)
- 7) P. Hooper : Melt pool temperature and cooling
rates in laser powder bed fusion, Additive
Manufacturing, Vol.22, pp. 548-559, (2018)
- 8) 高辻利之：ものづくりと計測，2016年度精密工学会秋季
大会学術講演会講演論文集, pp.47-48, (2016)

マルエージング鋼による水冷管を内蔵した金属 3 D 造形金型の製作

戸羽 篤也, 鈴木 逸人, 平野 繁樹, 長船 康裕*, 葛西 勝明**, 葛西 健央**

Production of 3D-Printing Metallic Mold that has Inner Water-Cooling Channels by Maraging Steel.

Atsuya TOBA, Hayato SUZUKI, Shigeki HIRANO, Yasuhiro OSAFUNE*,
Katsuaki KASAI**, Takeo KASAI**

抄 録

金属粉末積層造形法による実用可能な金型製作に関する知見を得るため、マルエージング鋼粉末を使用して内部に三次元水冷管を配置したプラスチック射出成形用金型を製作した。造形後の時効硬化処理に関しては、事前の溶体化処理を必要とせず、500℃以下×3時間以上でHRC50程度の表面硬さが得られた。また、熱処理時の熱影響による変形も少ないことがわかった。製作した金型で冷却水温度と成形後保持時間を変えた樹脂成形試験を行い、脱型後に生じる収縮変形量を調べた。その結果、材料によって収縮量を小さくする最適な冷却条件があり、PA材やPBT材に対しては冷却水温度を30℃としたときに脱型後の変形が最も小さくなった。また、金型内水冷管による強制冷却で成形後保持時間を短くできることを確かめた。

キーワード：金属 3 D 造形, マルエージング鋼, 内水冷式金型、樹脂射出成形

Abstract

In order to get knowledge about the production of practically useable Metallic-Mold by metal 3D-Printing method, we manufactured a Metallic-Mold for the plastic injection molding that located inner three-dimensional water-cooling channel by using maraging steel powder. About the aging heat-treatment after molding, we found the prior solution treatment is not needed, and surface hardness of HRC50 degree was provided in 500 degree Celsius or less and 3 hours or more time. And, it was found that there was little deformation caused by heat influence at the heat-treatment. We performed an examination of resin molding using the metallic-mold by changing retention time after molding and coolant temperature. And we measured a size of shrink deformation after demolding. As a result, we found that there is the most suitable cooling condition to lower quantity of shrinkage for a material, and deformation after demolding it became smallest when we set up coolant temperature with 30 degrees Celsius for PA and PBT. In addition, we checked it was able to get short retention time after molding by forcibly cooling with the inner-cooling Metallic-Mold.

KEY-WORDS : Metal 3D-Printing, Maraging Steel. Inner Cooling Metallic-Mold, Resin Molding

* 室蘭工業大学, ** 株式会社サカイ技研

* Muroran Institute of Technology, ** Sakai-Giken Co., LTD.

事業名：重点研究

課題名：金属 3 D 造形による実用金型製造のための加工・熱処理プロセス技術の開発（平成28～30年度）

1. はじめに

積層造形法は、三次元形状モデル情報から多層に分割した水平断面を積み重ねて実立体を製作する加工法である¹⁾。造形する材料に金属粉末を用いる金属粉末積層造形法（以下「金属3D造形」という）は、粉末を水平に敷き詰め、その表面にレーザー光などの熱線を照射して金属粉末を熔融し、直下の既造形材と溶接して積み上げていく技法である。この方法によれば、通常の機械加工で製作し難い複雑な形状や、内部構造を比較的容易に製作できるほか、機械的性質、熱特性、電気特性など、金属特有の機能を有する三次元立体物を得ることができる^{2,3)}。これらの特質を有効に活用する事例として、内部に三次元の水冷管を配置した金型が挙げられ、樹脂成形用金型への応用例が散見される^{3~6)}。しかし、その詳細な加工プロセスや強制水冷による効果等について評価をした報告は少ない。

一般に、金型には、多数回の成形に耐えるだけの耐久性が求められる。これを満足させるには、金型表面の硬さを十分に硬くする必要がある。近年、金属3D造形による金型製作に適合した粉末材料として、マルエージング鋼^{7,8)}が入手可能となり、金属3D造形の主要材料として使われている。

当場では、平成22年に金属粉末積層造形装置を導入し、いくつかの金属粉末による造形試験に関する基礎データの積み重ねを進めており、平成27年からマルエージング鋼粉末も取り扱っている。金属3D造形においては、その製作時のレーザー照射条件が造形物の金属組織や物性に大きく影響するため、金属3D造形に供する金属粉末ごとに、その造形に適した条件を把握する必要があり^{9,10)}、当場ではこれまでの試験でマルエージング鋼の最適な造形条件を把握した¹¹⁾。

本報は、金属粉末造形法を金型製作に応用するための具体的な加工プロセスに関する知見を得るため、造形後の時効熱処理に関わる試験と、具体的に内部に三次元水冷管を配置した樹脂射出成形用金型を製作し、金型として要求される機能面から種々の評価を行ったので、その結果を報告する。

2. 試験方法

2.1 時効硬化に関わる熱処理条件の影響

試験片および試験金型の製作は、(株)松浦機械製作所製金属粉末積層造形装置 (LUMEX Avance-25, 図1) を使用した。

通常、時効硬化処理を行うに当たり、材料内の化学組成の均質化を図るための溶体化処理を施した後、所定温度の炉内に所定の時間保持して空冷する。これらの処理を想定し、造形材料の溶体化と時効硬化の熱処理条件の影響を調べた。

溶体化処理条件の影響について、試験片をマルエージング鋼粉末で20×12mmの矩形を厚さ4.5mmで造形した後、上



図1 金属粉末積層造形装置の外観
(株)松浦機械製作所製 LUMEX Avance-25

面と底面を平面研削加工した。溶体化処理は、830~860℃のAr雰囲気中の電気炉内に1時間保持後、炉外で空冷した。その後、試験片を室温に冷却してから表面硬さ計測を行い、同試験片を再度500℃のArガス雰囲気中で3時間の時効硬化処理を行って、表面硬さの変化を計測した(図2)。

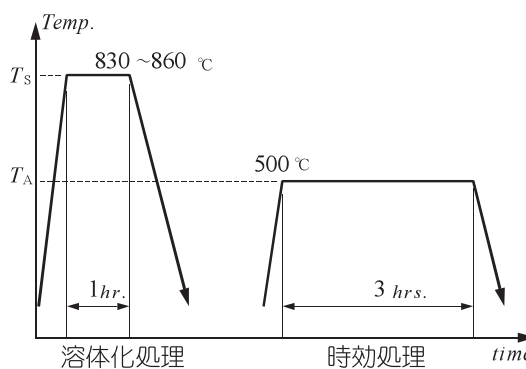


図2 熱処理パターン模式図

時効硬化処理条件の影響については、試験片を12×9mmの矩形を厚さ4.5mmで造形した後、上面と底面を平面研削加工した試験片を用いて、温度を460~520℃の4水準、炉内保持時間を1時間、2時間、3時間、5時間、10時間保持後、炉外空冷した後の試験片表面硬さを計測した。

熱処理に伴う熱影響による変形の度合いを確認するため、時効硬化処理前後の各部位の寸法の変化を計測した。試験片は、80mm×80mm×厚さ20mmの炭素鋼 (S50C) 製ベースプレートの上に、一辺が30mmの立方体の各頂点に直径φ15mmの球を配置した形の試験片を造形した(図3)。試験片の寸法は、マイクロメータを用い、上下に配置したそれぞれ4つの球に対して、図3に示す座標方向についてX方向、Y方向および対角の45°方向、135°方向の6方向(図中①~⑥)ずつ計12カ所と、立方体の対向面について水平X方向、Y方向の距離(図中⑦、⑧)を上、下部で計4カ所計測した。併せて、ベースプレートの寸法についても、ノギスを使用してX方向とY方向の対辺距離を計測した。

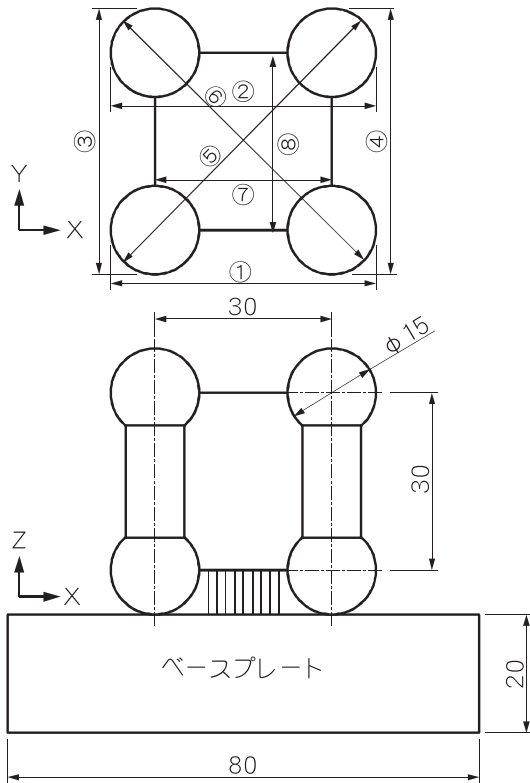


図3 熱変形量試験片

2.2 水冷管を内蔵した金型の製作

金属3D造形法の大きな特徴である“内部構造を有する金属製品”への応用例として、冷却用水冷管を内部に三次元配置した金型を想定し、樹脂射出成形試験用金型を製作してその機能性を評価した。

金型で成形する製品は、今後応用展開の参考を得るため、板厚やその拘束状態、肉厚の変化など、種々の評価要素を含んだ形状を考案し、図4に示す形状の製品を設計した。成形時にこれを効果的に冷却するための水冷管を三次元的に配置

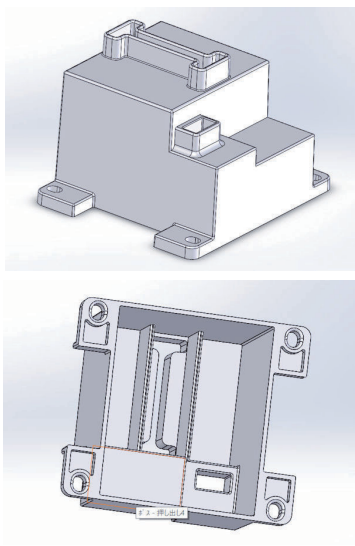


図4 成形試験用に用意した樹脂成形品の形状

することとし、図5に示すような冷却管配置を設計した。

水冷管の内径は、製品形状や部位ごとの制約を受けるので一様ではないが、基本内径を $\phi 7$ mmとし、金型設計上の制約条件に応じて、 $\phi 4$ mm～ $\phi 8.5$ mmの内径を選択した。

具体的な金型を製作するに当たり、樹脂材料の射出位置、脱型方法等を勘案して、金型の可動型と固定型の分割を検討した結果、樹脂材料の射出口を備えた製品外側の成形に用いる固定型は図6-a)と図6-b)で示す2つの金型で構成し、一方の製品内側の成形に用いる可動型は図6-c)に示す金型で構成することにした。

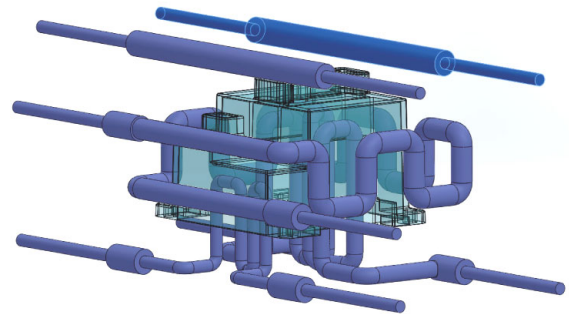
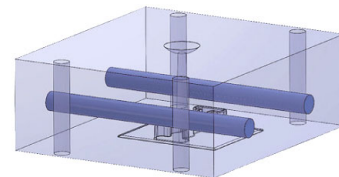
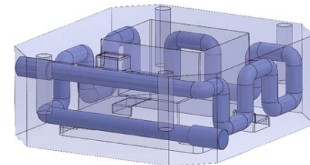


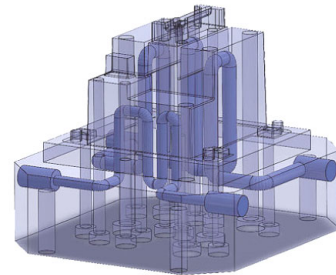
図5 金型内冷却システムの設計



a) 射出口を備えた固定型 I



b) 製品外観形状を成形する固定型 II



c) 製品内側を成形する可動型

図6 樹脂成形金型の構成

これら3つの金型は、マルエージング鋼粉末を用いた金属3D造形で製作し、これらが入れ子として収まるように、モールドベースを設計した。

水冷管内蔵金型の熱履歴とその熱応力に対する耐久性を確認するため、簡易的水冷管内蔵金型を製作し、加熱・冷却を繰り返し、その金型表面の状態、亀裂の有無などを観察した。

金型形状は、図7に示す矩形形状の金型の内部に水冷管を設けた。図中の d [mm]は、金型表面から水冷管までの距離を示し、 t [mm]は、熱応力を集中させる目的で金型表面に設けた十字形溝の深さ方向先端から水冷管までの距離を示す。製作した試験金型は、 d については3.4mmと4.6mmの2水準、 t については2.3mmと2.8mmの2水準に変化させた。

熱履歴試験は、上記金型試験片から2つを対向させて組み合わせ、内部キャビティ（金型表面側）に電熱ヒータ（100V/500W相当）を挟んだ状態で水冷管に水を流しながら電熱ヒータへの給電と停止を一定サイクルで繰り返し、所定回数の加熱サイクルを終えた後、金型表面の状態を観察した。

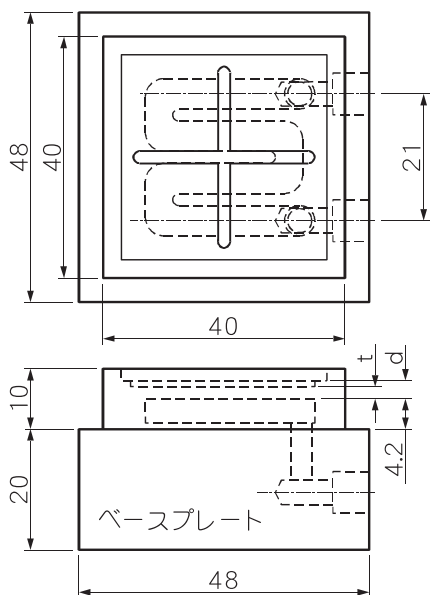


図7 熱履歴耐久性試験金型の形状・寸法

処理後の表面硬さはHRC28付近でほぼ一定となり、溶体化処理温度に関わらず、材料の状態が均質に整えられている状況が推定された。これらの試験片に対して500℃×3時間で時効硬化処理をすると、溶体化処理温度の違いにかかわらずHRC50程度で変化がないことがわかった。

一般に溶体化処理とは、鑄塊として造られた金属材料中の微量元素を均質に飽和させた固溶体にするための熱処理をいうが¹²⁾、均質な金属粉末をマイクロなサイトでの溶接材の集合と見なせる金属3D造形材は、造形した段階で既に合金元素の偏析の少ない均質状態となっているため、一般に行われる溶体化処理で得ようとする効果が造形後に既に得られていると考えることができる。すなわち、金属3D造形で製作した部材は、溶体化処理を省略することができる。

次に、時効硬化に着目して熱処理条件を変えた場合の試料表面硬さの試験結果を図9に示す。熱処理温度を460℃～520℃

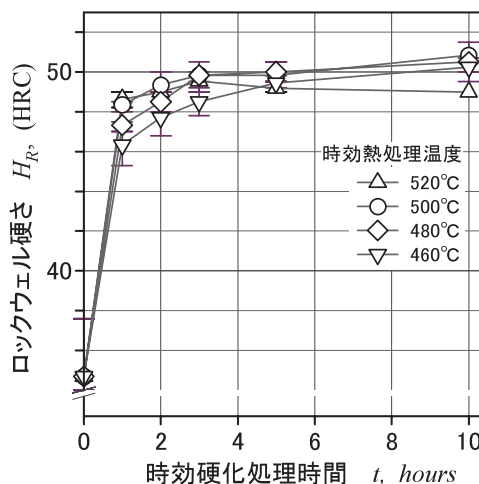


図9 試験片硬さに及ぼす時効硬化処理条件の影響

3. 実験結果と考察

3.1 時効硬化処理に関わる熱処理条件の影響

時効硬化処理前に行われる溶体化処理の熱処理条件を変化させた試験で、溶体化処理直後と、引き続き時効硬化処理を行った後の試験片の表面硬さ試験の結果を図8に示す。

溶体化処理温度を830℃～860℃に変化させた場合の溶体化

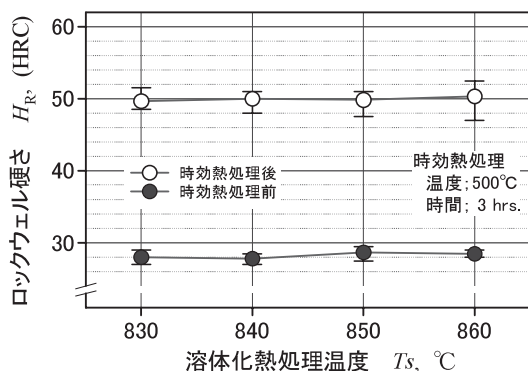


図8 試験片硬さに及ぼす溶体化処理条件の影響

℃と変化させた場合、いずれも熱処理時間の経過に伴って試験片硬さが増大する傾向を示した。また、熱処理温度が高いほど、初期の硬化速度が速くなった。熱処理温度が500℃以下で、処理時間の経過により硬さの増大傾向が認められるが、熱処理温度を520℃とした場合は熱処理時間が3時間経過した時点を経点として、その後の時間経過とともに硬さが減少する過時効が認められた。

この実験結果から、処理温度を480～500℃で3時間以上の条件で時効硬化処理を行うのが適正と判断した。

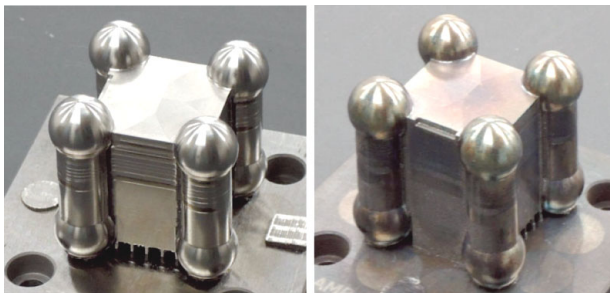
時効硬化処理時の熱影響による造形物の変形に関して、図3で示した試験片の各部位の寸法を、時効硬化処理の前後で計測した結果を表1に示す。表中の①～⑧の数字は図3で示した計測方向を示す。また、表中の「上部」、「下部」の表現は、それぞれ造形物の天井付近とベースプレート直上付近での計測結果である。

熱処理前後の寸法変化は、いずれも20μm以下であり、基準寸法に対する変化率は-0.02%～+0.03%の範囲であった。

表1 熱処理前後の試験片寸法変化

計測部位		計測時期		差分	
位置	方向	熱処理前	熱処理後	[mm]	[%]
上部	①	45.005	45.010	+0.005	+0.011
	②	45.007	45.003	-0.003	-0.007
	③	45.005	45.008	+0.003	+0.007
	④	45.005	45.008	+0.003	+0.007
	⑤	57.373	57.390	+0.017	+0.029
	⑥	57.370	57.363	-0.007	-0.012
	⑦	30.025	30.025	+0.000	+0.000
	⑧	30.000	30.002	+0.002	+0.006
下部	①	45.005	45.012	+0.007	+0.015
	②	45.002	45.012	+0.010	+0.022
	③	45.002	45.008	+0.007	+0.015
	④	45.012	45.012	+0.000	+0.000
	⑤	59.370	57.387	+0.017	+0.029
	⑥	59.383	57.390	-0.003	-0.006
	⑦	30.017	30.020	+0.003	+0.011
	⑧	30.012	30.013	+0.001	+0.006
ベース プレート	X方向	79.996	79.990	-0.006	-0.008
	Y方向	79.990	79.984	-0.006	-0.008

20μm程度の寸法差は、ほぼ機械加工の精度範囲内であり、よほどの厳しい寸法精度が要求される場合を除いて、許容誤差の範囲内と考えられる。当初危惧された、造形時の残留応力の解放などによる大きな熱変形は生じておらず、金型製作において時効熱処理による変形は軽微なものと考えてよいことがわかった。図10に熱処理前後の試験片外観を示す。熱影響による若干の表面の変色は認められるが、酸化被膜などの付着は見られなかった。



a) 熱処理前 b) 熱処理後
図10 寸法計測に供した試験減の外観

3.2 金型による樹脂射出成形試験

内部に三次元水冷管を配置した樹脂射出成形用の試験金型を製作した。全体構造は、図11に示すモールドベースの固定部と可動部に金属3D造形で製作した3個の入れ子を配置し、冷却水の接続管および継ぎ手と、成形後の脱型用押し出しピンなどを設けた。製作したモールドベース外観を図12-a)、固定側（樹脂射出口側）の入れ子金型の外観を図12-b)、可動側の入れ子外観を図12-c)に示す。

この金型を用いて、樹脂射出成形試験を行った。成形試験は、東芝機械(株)製プラスチック射出成形機 (EC100SX-3A)

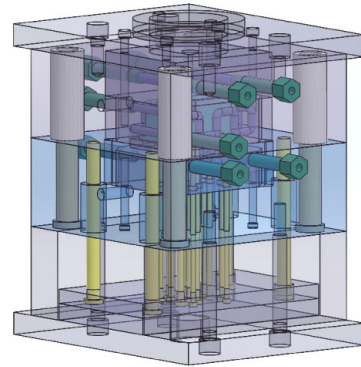
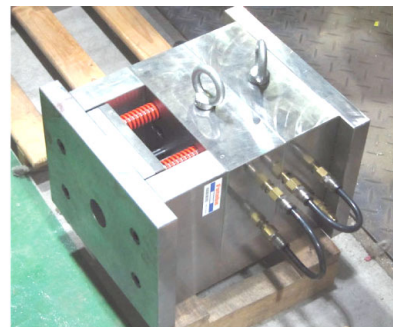
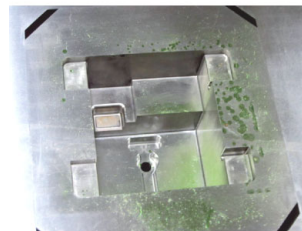


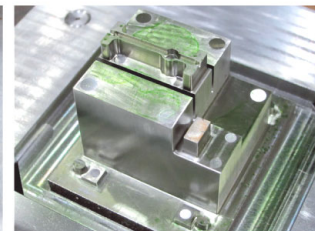
図11 射出成形試験用金型の設計概念図



a) モールドベース



b) 固定側

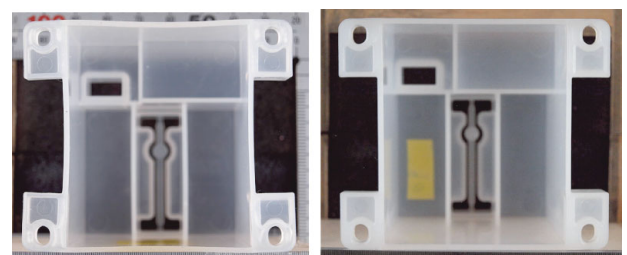


c) 可動側

図12 製作した試験金型の外観

を使用し、型締力480kN、射出圧力50MPa、射出材料温度250℃の条件とし、射出後の型締保持時間を5～60秒、金型へ供給する冷却水温度を15℃、30℃、60℃に変化させて行った。成形材料には、比較的熱収縮量の大きいとされるナイロン系の材料 (PA) と、自動車部品など寸法精度が要求される精密部品に使用されるポリブチレンテレフタレート樹脂 (PBT) を使用した。

図13に試験成形品の外観写真を示す。成形後の製品を観察



a) 冷却水機能不使用 b) 冷却水 30℃20秒保持

図13 試験成形品の外観

すると、成形条件によって図14に示すような箱形試験片の開口部で成形後収縮による内側への二次変形が認められた。そこで、製品品質をこの収縮量の大きさに評価した。



図 14 成形品に生じた収縮変形の例

PBT材成形品の射出成形後型締め保持時間 t [秒] と脱型後の収縮変形量 δ [mm] との関係を図15に示す。金型の冷却条件として、冷却水の温度を15℃、30℃、60℃の試験結果を併記している。変形量は、開口片中央付近の最も収縮が大きくなる部位の変形量を、画像計測法で計測した数値である。

いずれの冷却水温度に対しても、射出成形後の保持時間が長くなるにつれて変形量が小さくなる傾向を示した。これは、金型で成形物が冷却される時間が長いほど、脱型時の成形品温度が下がり、脱型後の温度変化が少なくなるためと考える。冷却条件の変形量への影響については、冷却水温度の上昇

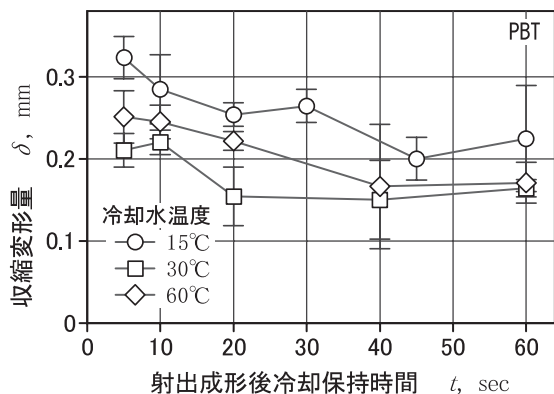


図 15 射出成形後の保持時間と収縮変形量 (PBT)

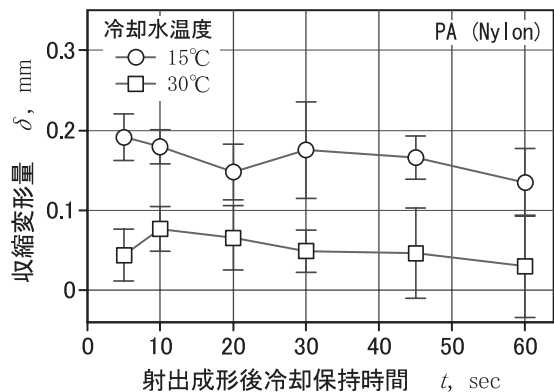


図 16 射出成形後の保持時間と収縮変形量 (PA)

に対して変形量は単純増加とはならず、冷却水を30℃とした場合に最も変形量が小さくなった。同様にPA材を使用した実験で、脱型後の変形を計測した結果を図16に示す。この材料について冷却水60℃で実験を行っていないが、冷却水温度15℃で強く冷却した条件よりも、冷却水温度を30℃として成形した方が、脱型後の変形量を小さく抑えられた。

当初、脱型後の変形は脱型直後の成形品温度の影響が大きいものと推測したが、その後の調査で、高分子材料には結晶性樹脂と非晶性樹脂があり、結晶性樹脂を成形時に急速冷却すると非晶質で成形され、その後結晶化する際に変形を伴うことがわかった¹³⁾。今回の実験に供したPBT材、PA材ともに結晶性の高分子材料である。今回の実験では、これら特有の再結晶化温度の影響により、射出成形に適正な金型温度条件として冷却水30℃で成形したときに最も変形を抑えられる結果となったと考える。このことは、対象とする樹脂材料ごとに射出成形後の冷却速度に適正値があることを示唆しているが、金型の冷却能は、冷却水温度だけでなく、金型表面から冷却管までの距離、すなわち冷却時の温度勾配の設計によっても制御可能である。その意味から、金属3D造形による金型の設計自由度は、他の金属加工法に比べて優位性が高いものとなる。非晶質の材料（例えばABS材）については実験をしていないので、今後の検証課題とする。

さらに、図15で示したPBT材による成形試験の結果から、冷却水温度が15℃あるいは60℃の試験では、射出成形後の保持時間を長くするほど脱型後の変形が小さくなる傾向が認められるが、これは、良い製品品質を得るために成形後一定以上の型締め保持時間を要することを示している。これに対して、冷却水温度を30℃で行った試験では、型締め保持時間を20秒以上長くしても脱型後の変形量は変わらない。すなわち、この条件では、射出成形後の型締め保持時間を20秒だけ保てば良いことになり、生産性を向上させる効果が期待できる。

一方、金型の耐久性を確認する試験は、図7で示した試験用金型を用いて、図17に示す熱サイクルパターンで行った。加熱温度は、樹脂射出成形を想定し、金型表面でおおよそ300℃に設定し、この温度に達したらヒータの電力を遮断して室温付近に下がるまで冷却した。予備試験により、冷却条件と

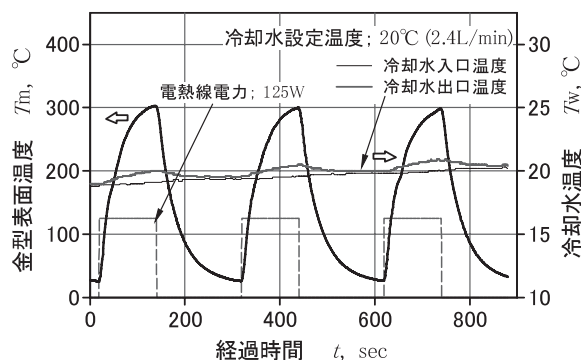


図 17 熱履歴耐久性試験の加熱・冷却パターン

して温調水槽で調整した20℃の水を2.4リットル/分の流量で金型の内部冷却管に常時流す状態で、加熱に120秒、冷却に180秒の1サイクル当たり5分間で、当初500回、さらに追加で500回（合計1,000回）まで熱履歴を与えて、表面の状態を観察した。熱履歴試験の金型の様子を図18に示す。2個の試験金型の間に電熱ヒータを配置し、5分間おきに120秒間125Wの電力を与えて加熱後、電力を遮断して冷却水で冷却した。図19に1,000回の加熱・冷却を繰り返した後の試験金型の表面外観を示す。観察の結果、中央付近に設けた深溝部も含めて、亀裂の発生などの影響は認められず、一定の耐久性を確認した。

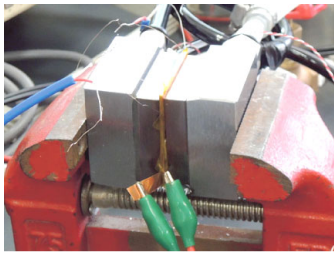


図18 熱履歴耐久試験中の試験金型の様子

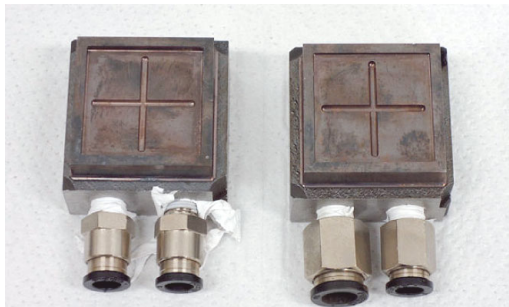


図19 加熱・冷却を繰り返した後の金型外観（1,000回）

4. まとめ

金属粉末積層造形法で金型等の実用金属製品を製作するために多用されるマルエージング鋼粉末を用いた金属3D造形法について、その有効性を調べるため、内部に三次元冷却管を配置した樹脂射出成形用試験金型を製作し、成形試験を行った。実用金型に求められる金型表面硬さの付与について、マルエージング鋼の特徴である時効硬化に関する溶体化処理、時効硬化処理の条件、および熱処理前後の変形について調査を行い、適正な熱処理条件を得るとともに、熱処理に伴う熱影響による変形が少ないことを確認した。

また、金型内部に配置した三次元水冷管による金型冷却の効果を検証するため、射出成形試験用の金型を製作し、樹脂材料を用いて射出成形試験を行った。成形品の脱型後の変形量で品質評価を行い、使用する樹脂に対して射出成形に適正な冷却条件があり、部位による金型温度の精細な制御が有効であることを確認した。また、金型の強制冷却は射出成形後

の脱型までの保持時間を短縮する効果があり、生産性向上にも寄与することを検証した。

参考文献

- 1) 山口修一他：「産業用3Dプリンターの最新技術・材料・応用事例」, シーエムシー出版 (2015.5)
- 2) 京極秀樹：「最近のレーザ積層造形技術の開発状況」, 近畿大学次世代基盤技術研究所報告 Vol.1 (2010)
- 3) 前田寿彦：「レーザ焼結型AM システムのマニュファクチャリングへの活用について」, 素形材 Vol.53 No.2 (2012)
- 4) 米山 猛・香川博之・末廣栄覚他：「金属光造形複合加工金型を用いた射出成形サイクルタイムの短縮」, 成形加工 Vol.19 No.10 (2007)
- 5) 東 喜万・阿部 諭・峠山裕彦他：「金属光造形法の開発と金型への応用」, 松下電工技法 No.78 (2002)
- 6) 阿部 諭・不破 勲・東 喜万他：「金属光造形複合加工システムによる高機能射出成形金型製作」, 松下電工技法 Vol.53 No.2 (2005)
- 7) 木下禾大・徳永洋一・豊島孝行：「マルエージング型ステンレス鋼の組織図と時効硬化」, 日本金属学会誌 Vol.33 (1969)
- 8) 清水謙一・岡本尚機：「18%Niマルエージング鋼におけるNi3Mo析出物の電子顕微鏡による研究」, 日本金属学会誌 Vol.35 (1971)
- 9) 戸羽篤也・平野繁樹：「金属粉末積層造形における製造品質に及ぼす熱線照射条件の影響」, 日本鑄造工学会第165回全国講演大会 (2014.10)
- 10) 戸羽篤也・平野繁樹：「金属粉末積層造形による多孔質金属材料の熱伝導率に及ぼす空隙率の影響」, 日本機械学会2014年度年次大会 (2014.9)
- 11) 戸羽篤也・鈴木逸人・平野繁樹他：「3D積層造形法で製作したマルエージング鋼材の金属組織」, 北海道立総合研究機構工業試験場報告No.316, pp.69~76 (2017.8)
- 12) 野口 徹・中村 孝：「機械材料工学」, 工学図書, pp.73~74 (2006.3)
- 13) 中條 澄：「エンジニアのためのプラスチック教本」, 工業調査会, pp.144~154 (1991.12)

研究ノート

Research Note

移動作業ロボットのセンシング情報補完技術の開発

鈴木 慎一, 浦池 隆文, 今岡 広一

Development of Method to Achieve Work by Supplementing Sensing Results for Mobile Work Robots

Shinichi SUZUKI, Takafumi URAIKE, Kouichi IMAOKA

キーワード：労働力不足，移動作業ロボット，ROS，人協働

1. はじめに

近年，ロボット技術やICTを活用したスマート農業を推進して労働力不足への対応や精密農業，作業の均一化に基づく農産物の品質向上などの研究が行われ，農作業ロボットの研究では，完全自動作業を目指した開発が進められている¹⁾。しかし，屋外環境においては，日中の時間・天候による日射の状態，茎葉の繁茂や作業路の状態変化などによってセンシング環境が大きく異なるため，計測および情報処理後の結果から得られる情報（センシング情報）において検出漏れや誤検出を無くすることが難しい。そこで，ロボットのセンシング情報の誤りを人（作業管理者）の高度な認識能力を用いて補完することにより，ロボット作業の確実性向上が望まれている。

本研究では，汎用ロボット用ミドルウェアとしてROS（Robot Operating System）を搭載した小型移動作業ロボットシステムを用いて，ロボットがセンシング情報の補完情報を受け取り，選択ピックアップ作業を達成することを確認した。

2. センシング情報の補完

様々な分野において，人手作業を代替する自律型ロボットの活用範囲は広く，多数の研究が進められているが，作業対象の誤検出や検出漏れがあり実用化が進められていない。これは，屋外環境における計測条件の多様性に基づく計測精度の低下を起因とするところも少なくない。そこで，ロボットのセンシング情報を作業管理者に提示し，管理者がセンシング情報を補完することで作業の確実性向上が図られることが有効と考えた。図1にセンシング情報の補完作業イメージを

示す。ここで，カメラを搭載したロボットが，球形や四角形の物体が複数ある中を移動しながら，画像センシングを行い球形の物体を認識し，ピックアップ作業を行う。

このとき，ロボットと人が協調して作業する流れを以下に示す。



図1 センシング情報補完作業のイメージ

1. ロボットはセンシング情報を作業管理者の携帯端末に提示する。
2. 作業管理者は，センシング情報から誤検出や未検出を判断して収集作業対象の追加，削除を行うことでセンシング情報を補完し，その補完情報をロボットに送信する。図1では，模様をついた球体を作業する対象から削除（キャンセル）し，円柱の陰にある球体を追加している。
3. ロボットは補完されたセンシング情報に従ってピックアップ作業を行う。

3. 移動作業ロボットの製作と機能検証試験

3.1 ROS（Robot Operating System）の概要

移動作業ロボットの試作にあたり，制御プログラムの開発にROS²⁾を用いた。ROSは，ロボット用アプリケーションプログラム作成を支援するライブラリとツールを提供している。

事業名：経常研究

課題名：移動作業ロボットのセンシング情報補完技術の開発

具体的には、a) ハードウェア抽象化, b) デバイスドライバ, c) ライブラリ, d) 視覚化ツール, e) メッセージ通信, f) パッケージ管理などの機能が提供される。

ROSの特徴³⁾を以下に示す。

- ①分散処理：ノードと呼ばれる最小単位のプロセス（実行単位）が独立して並列的に動作し、双方向のデータ送受信を行う。
- ②パッケージ管理：各ノードは、同一の目的で作成された複数のノードをパッケージとしてまとめて管理するため、パッケージの共有、修正、再配布が容易である。
- ③公開リポジトリ：開発されたパッケージはGitHub（プログラムバージョン管理サービス）等の開発者のリポジトリを通して公開される。
- ④APIの整備：ROSとは無関係に開発されたプログラムもROSで提供されるAPIを用いることにより簡単にROSから利用可能となる。
- ⑤多数のプログラミング言語への対応：Python, C++, Lisp, Java, C# 等に対応。

このような特徴を持つため、国内外のロボット研究現場ではROSを用いた研究・開発が盛んである。また、ROSはOSと呼ばれているが一般的OSのLinux上でロボットの機能を提供するためのミドルウェアにあたる。ROSはオープンソースのBSDライセンスによってライセンス化されているため、著作権の表示・免責条項を明記することで再利用・再配布が自由となる。今回使用したROS、OSのバージョンとソフトウェア開発言語を表1に示す。また、ROSのスタック構成⁴⁾を図2に示す。

表1 ROS、OSのバージョン

ROS	Kinetic Kame
OS (Linux)	Ubuntu (16.04 LTS)
開発言語	C++

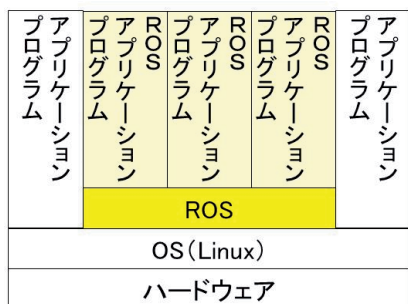


図2 ROSのスタック構成

3.2 試作した移動作業ロボットの概要

本研究で試作した小型移動作業ロボットを図3に示す。このロボットは、デブスカメラ2台と移動ロボット、アームロボット、ロボット制御パソコン各1台で構成した。各ロボット、カメラの主な仕様⁵⁾を表2に示す。

ロボットの移動部として使用した移動ロボット (YujinRobot

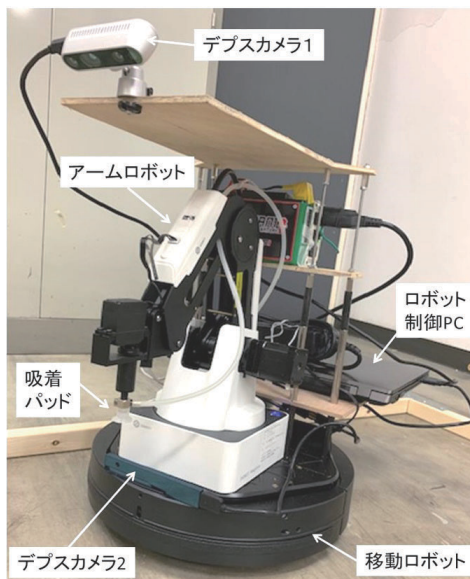


図3 試作した移動作業ロボット

表2 ロボット、カメラの仕様

移動ロボット (Kobuki)	
最大速度	70cm/s
最大回転速度	180deg/s
稼働時間	3時間
寸法(直径:D, 高さ:H)	D:351.5mm×H:124.8mm
アームロボット (DobotMagician)	
ペイロード	500g
マックスリーチ	320mm
位置再現性	0.2mm
ベース寸法	158mm×158mm
デブスカメラ (R200)	
動作範囲(最小 - 最大)	0.5m - 3.5m
深度センサ視野角	H: 59°, V: 46°, D: 70°
寸法	101.6mm × 9.6mm × 3.8mm
デブスカメラ (D435i)	
動作範囲(最小 - 最大)	0.2m - 10m
深度センサ視野角	H: 87°, V: 58°, D: 94°
寸法	90mm × 25mm × 25mm

製Kobuki)は、対向2輪型(2輪駆動1キャスト)の移動ロボットであり、開発のプラットフォームとして国内外の大学のロボット研究室などで広く利用され、豊富なROSアプリケーションプログラムが公開されている。

また、作業用に使用したアームロボット (Shenzhen Yuejiang Technology製DobotMagician)は、垂直多関節型(4軸)で、搬送や組み立て作業等で使用される産業用ロボットとして広く普及しているタイプのロボットである。センサとして使用したデブスカメラ (Intel製R200, D435i)は、画像と距離情報を出力する。これらロボットとカメラは、

ROSに対応している。

3.3 移動作業ロボットの制御

移動作業ロボットの構成要素であるロボット、カメラはロボット制御用のパソコン（CPU：Intel製corei5）を中心にシリアル通信（USB）で接続した（図4）。また、作業管理者がセンサのデータ確認、補完指示を行う端末機器としてノートパソコン（CPU：Intel製corei5）を用い、ロボット制御用と同じOS（Linux）を搭載した。ロボットとはSSH（SecureShell）というTCP/IPネットワークを利用する通信プロトコルを用いて無線通信を行った。そのため、通信の応答性は早くなく、用途に応じては改善が必要である。

ROS上でアームロボット、移動ロボット、デブスカメラ、画像処理の制御プログラムをパッケージとして作成し、各々が独立して動作する（図5）。また、デブスカメラからの画像・距離情報は、OpenCVという画像処理用フリーウェアを用いて描画や特徴点抽出などの処理によって対象物の認識を行った。

次にROSプログラムによる通信動作を、デブスカメラのセンシング情報を基にしたアームロボットの動作を例に示す（図6）。デブスカメラ1のパッケージには画像取得、距離情報送信などのノードがあり、ノード間では画像・距離情報がメッセージとして通信される。画像処理パッケージには、距離画像描画や特徴点抽出、座標送信などのノードがある。アーム

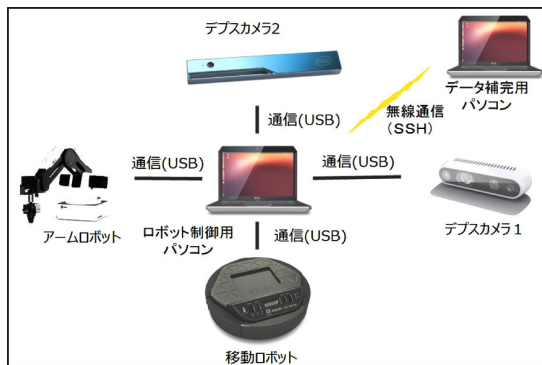


図4 移動作業ロボットの構成要素の接続

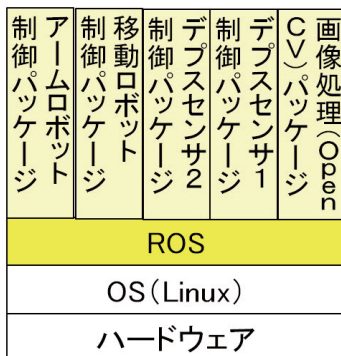


図5 ロボット制御プログラムの構成

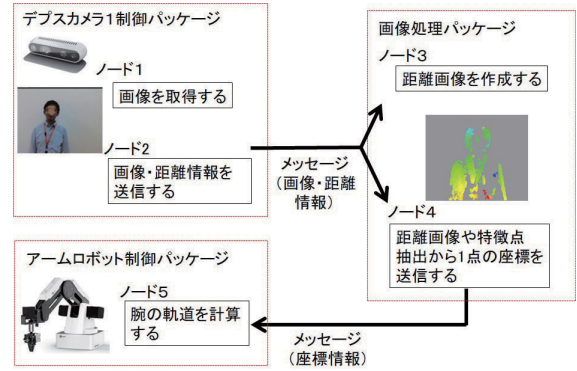


図6 移動作業ロボットの通信動作

ムロボット制御パッケージでは、指定された座標値へアーム先端を動かすノードがあり、画像処理ノードからのメッセージによって受け取ったデブスカメラの計測位置へアームロボットの動作を行う。

3.4 機能検証試験

この試作ロボットを用いてセンシング情報補完の機能検証試験を行った。検証用の目的作業としてボールのピックアップ作業を行った。ピックアップ対象のボールは卓球のボール（直径30mm）を用いて、そのボールが高さ165mmのスタンド上に1つ配置される。この組み合わせが複数存在する設定とした（図7）。

作業管理者とロボットは、無線通信を行って情報の送受信を行う。また、ロボットへは、事前情報としてピックアップの最低回数と作業終了位置（ゴール位置）を与えることとした。

機能検証試験の動作は以下とした（図8）。

- ① 作業管理者からロボットへ動作開始指令を発信。
- ② ロボットは、カメラ画像からピックアップ対象のボールをセンシングしてその結果を作業管理者へ発信。
- ③ 作業管理者は、センシング結果を確認して、ピックアップ対象の追加・削除等の補完情報をロボットへ送信する。図9は、3つあるボールの一番奥のボール検出を失敗していたため、管理者がその場所をマウスカーソルで指定している。
- ④ ロボットは受信した補完情報を基に再センシングを行う。再センシングでは、検出の基準値の変更や検出手法の変更などを行い、改めてピックアップ対象を認識するよう試みる。今回は、この再センシングの回数を1回とした。再センシングでも認識ができなかった場合、その結果を作業管理者へ報知するとともに作業管理者から指定された指示位置から動作座標を計算して追加した。
- ⑤ ロボットの初期センシング結果、再センシング結果、補完情報から経路計画を行い、ロボットは移動・ピックアップ作業を実施する（図10）。

⑥ ロボットはピックアップの回数とゴール位置の判定から動作の終了判定を行う。

この①～⑥を実行するノードを作成して統合化し、全体システムの動作が実現できることを確認した。



図7 機能試験の作業対象

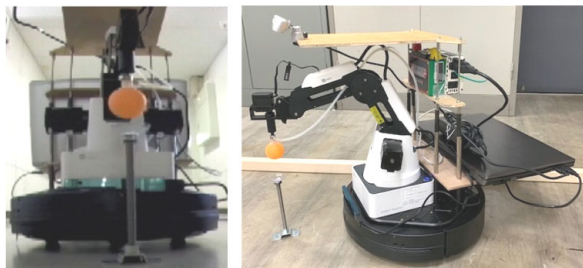


図10 ピックアップ作業の様子

4. まとめ

ロボットのセンシング情報を作業管理者に提示して、センシングの検出漏れ・誤検出を補完することでロボットが作業を達成するセンシング情報補完技術をROS上で開発し、ロボットを用いた機能検証を行った。

試作した小型移動作業ロボットを用いてボールのピックアップ作業を行い、補正情報を与えて移動ロボットの作業が達成できることを確認した。

今後は、センシング情報補完技術の実用化に向けてロボットに搭載可能な組込み型制御システムの開発とユーザビリティの向上を図り、農場などにおいて早期の自動化が難しい果実の収穫作業や株間の除草作業等の省力化を行うロボットへの展開を図る。

引用文献

- 1) 農林水産省 スマート農業の実現に向けた研究会
http://www.maff.go.jp/j/kanbo/kihyo03/gityo/g_smart_nougyo/pdf/b02_roadmap_an.pdf
- 2) ROS wiki <http://wiki.ros.org/ja>
- 3) 銭飛：ROSプログラミング，森北出版，3PP，(2016)
- 4) 西田健他：実用ロボット開発のためのROSプログラミング，2PP，(2018)
- 5) kobuki <http://kobuki.yujinrobot.com/>
- 6) Dobot <https://www.dobot.cc/dobot-magician/specification.html>
- 7) Intel製品仕様
<https://ark.intel.com/content/www/jp/ja/ark/products/92256/intel-realsense-camera-r200.html>
<https://ark.intel.com/content/www/jp/ja/ark/products/190004/intel-realsense-depth-camera-d435i.html>

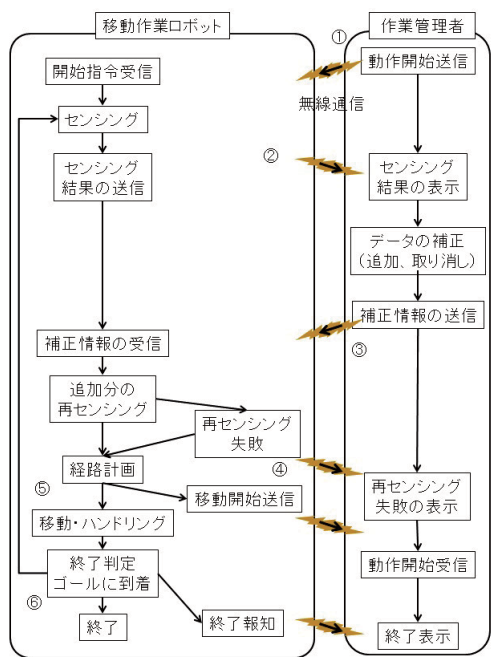


図8 機能検証試験の流れ



図9 センサ情報の補完指示
 左：カーソルによる作業対象の指示，
 右：センシング（R200）結果（距離画像）

気象観測センサによるデータ収集と営農への活用

堀 武司, 全 慶樹, 近藤 正一, 藤澤 怜央, 大村 功

Data Acquisition using Meteorological Sensors and its Applications to Farming

Takeshi HORI, Keiki ZEN, Shouichi KONDO, Reo FUJISAWA, Isao OHMURA

抄 録

北海道の大規模畑作を営む農業法人の圃場において、農業気象観測センサによるデータ収集、及び得られたデータの営農への活用を試みた。農業用の気象観測センサ機器3機種4基を圃場に設置し、2カ年に渡って継続的なデータ収集を行った結果、気温や降水量など営農での活用度が高い項目に関して有効なデータ収集が可能であることが確認できた。さらに、少数の気象観測センサからより詳細な局所気象データを得るために、センサによる実測値に加えて公開されているメッシュ気象データ等を用い、約60mメッシュの詳細化気象データを簡便に推定する手法を開発した。営農における気象データの活用事例として、秋まき小麦播種量計算ツールmakiDASに対して60m詳細化気象データ(日平均気温)を適用し必要播種量、越冬前茎数の予測計算を試みた結果、最寄りのアメダス観測点データを用いた場合と比較して、より実際の栽培実績に近い予測を得ることができた。

キーワード：IoT, 農業気象観測センサ, メッシュ気象データ, クラウドサービス

1. はじめに

近年、IoT (Internet of Things) とセンサ技術によるデータ収集、ビッグデータ解析など ICT分野における新たな技術、手法が注目を集めており、農業分野においても活用が期待されている。特に気象データは営農における基本的なデータであり、圃場設置用の気象観測センサ機器が様々な企業から販売されている。

施設園芸や水稲など一部の分野ではこのようなセンサの活用が進みつつある一方で、畑作においては、圃場設置型の気象観測センサを有効活用するための方策が確立していないため、現場への普及はあまり進んでいない。また、機器メーカーも、農業者に対して導入コストを上回るメリットを提案できていない。

そこで本研究では、畑作を営む大規模な農業法人の圃場において実際に農業気象観測センサの導入と運用を試み、実践的な取組みの中で大規模畑作における気象観測センサの活用方策の検討に取り組んだ。

2. 圃場での気象観測データ収集

網走郡津別町の農業法人A社の協力のもとに、A社圃場に4基の気象観測センサを設置し、2017年から2ヶ年に渡って継続的に圃場での気象データ収集を行った。

2.1 機器の選定

使用した気象観測センサ(3機種4台)は、いずれも農業用として開発、販売されているものである。各機器の仕様を表1に示す。

これらのセンサ機器はいずれも、太陽電池とバッテリーによる自立電源で動作するタイプである。施設園芸などの場合と異なり、大規模畑作においては圃場の気象観測センサに対して商用電源から給電することは困難であるため、自立電源での動作は事実上の必須要件である。

また、いずれの機器においても、観測されたデータは携帯電話回線を経由して機器メーカーが運用するサーバに随時送信される。利用者はPCやスマートフォンなどの端末を用い、機器メーカーが運営するクラウドサービスを経由して観測データにアクセスする構成である。




計測可能な気象データの項目は、気温、湿度は全機種とも対応しているが、その他の項目は機種により異なる。

機種1は、小型の強制通風筒を備えており日射等の影響を受けない高精度の気温計測が期待できること、小型カメラに

事業名：経常研究

課題名：一次産業におけるビッグデータ取得技術と利活用に関する研究(平成28～30年度)

表1 使用した気象観測センサ

メーカー・機種	みどり工学研究所 機種1	ニシム電子 機種2	データテクノロジー 機種3
機器外観			
計測データ種別	気温, 湿度 (強制通風式) 圃場の静止画像	気温, 湿度, 雨量, 風向, 風速, 照度	気温, 湿度, 雨量, 風向, 風速, 照度
電源	太陽電池+バッテリー	太陽電池+バッテリー	太陽電池+バッテリー
データ伝送	3G回線	3G回線 (親機) 特定省電力無線 (親-子機間)	3G回線

より圃場の画像を遠隔から取得できることが特長である。

機種2及び3は異なるメーカーの製品であるがセンサユニットとして同一の製品(簡易気象観測ユニット Sensus 1502, データテクノロジー社製)を用いており, 雨量, 風向, 風速, 日照など多様なセンサによる計測を比較的安価に実現している。

機種2は, 子機である複数台の気象観測センサと親機の間を920MHz帯の特定省電力無線による通信で結び, 親機の携帯電話回線でサーバへのデータ送信を行うシステム構成である。

導入, 運用に関するコストは機種によって異なるが, センサ機器本体の価格は一台あたり概ね30万円程度であり, 通信回線やクラウドサービスの利用料(月額数千円)が別途発生する。



図1 気象観測センサの設置位置

2.2 圃場へのセンサ設置位置の検討

農業法人A社の圃場付近は携帯電話の電波状態が非常に厳しく, 地形の影響により通信が困難になる場合が多い。そのため, 気象観測センサの設置位置検討にあたっては, 営農上の必要性に加えて, 当該位置における通信の可否が重要となった。

農業法人A社の圃場の主要部分は, 沢沿いに細長く整列する形で約10kmの範囲に広がっている。これらを広くカバーし, かつ携帯電話等による無線通信が可能な位置を検討した結果, 図1に示す4箇所を選定し気象観測センサを設置した。

2.3 センサ運用実績と得られた気象データ

圃場に設置した気象観測センサ4基を用いて2017年度から2ヶ年に渡ってデータ収集を行い, センサ機器自体の可用性, 及び得られたデータの評価を行った。

運用の初期段階では, 一部の機器に関して設計上の問題と思われる機器の停止, データ欠測などが頻繁に発生したが, 機器の改修などによって不具合は順次解決し, 最終的には実用上十分な可用性が得られた。

センサ4基及び津別アメダス観測地点から得られた気温データの事例を図2に示す。全体的な気温増減の傾向は一致しているが, 観測地点により最大4℃程度の気温差が見られる。これらの気温差には, 局所的な気象条件の差異と, センサ自体の計測誤差の両方の影響が含まれていると考えられる。

機種2及び機種3(センサ2,3,4)は気温計測用の強制通風筒を持たず自然換気に依存する構造であるため, 日射の影響等による誤差が大きいことが予想される^{1,2)}。実際の観測値でも, 日射が強い時間帯にはアメダス観測点よりも高い値を示す傾向が見られた。また, 独自設計による強制通風筒を備える機種1(センサ1)の計測値も若干だが同様の傾向を示しており, 日射の影響を完全には排除しきれない可能性がある。

湿度に関しては, 最寄りアメダス観測地点が湿度データを提供しておらず, データの妥当性評価はできなかった。センサとして Sensus 1502を用いている機種2及び機種3については, 湿度の観測値が100%まで振り切れるケース(図3)が頻発しており, センサ機器の構造上の問題もしくは故障により正しい値が得られていないと判断した。

降水量(図4)に関しては、局所的な降雨も考えられるので厳密な検証は困難だが、津別アメダス等のデータと比較して概ね妥当な結果が得られていると判断した。

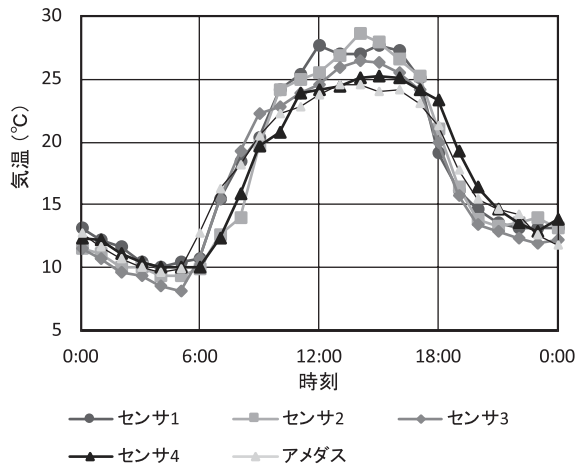


図2 センサ1～4 及びアメダス観測地点の気温データ (2018年8月6日)

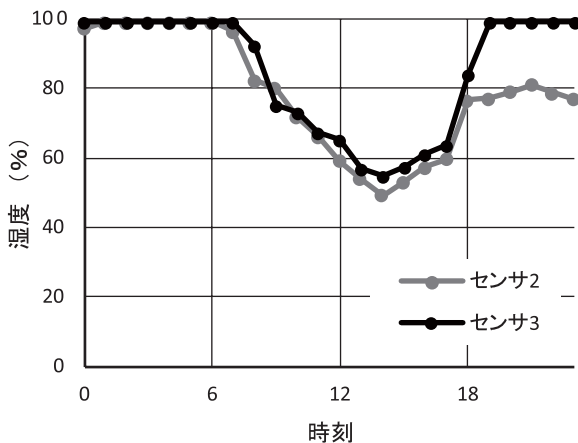


図3 湿度データの計測データ例 (2018年8月6日, センサ2,3)

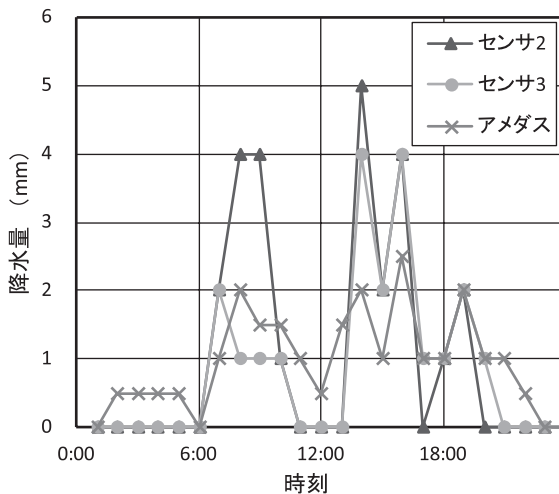


図4 降水量の計測データ例 (2018年8月6日, センサ2,3 アメダス)

3. 詳細な局所気象情報の推定

広い範囲に圃場を有する大規模農業法人の場合、保有する圃場すべてに渡って信頼度の高い気象データを取得するためには多数の地点にセンサを設置することが求められるが、機器の導入コストを考えると現実的ではない。そこで、公的機関等から公開されている各種気象データを活用することで、センサを設置した圃場の近傍におけるより詳細な局所気象情報の推定値を計算する手法を検討した。

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構(農研機構)が運用している「メッシュ農業気象データシステム」^{3,4)}は、アメダス等の気象データを元に標高などの地形情報を考慮した補間処理を行い、日本全国の日別気象データを約1 kmメッシュの単位でオンデマンドに提供するサービスである。日平均気温など14項目の気象データに関して、過去値(1980年～)、平年値(2011～2020年)、及び予報値(9日先又は26日先まで)のデータが提供されている(ただし、項目により提供されないデータがある)。

メッシュ農業気象データシステムを用いることで、アメダス観測地点(概ね20km間隔で配置)より密度が高い1 kmメッシュの気象データを得ることができる。しかし、これらのデータは近傍のアメダス観測地点の実測値、及び標高補正のみから計算されたものであり、圃場付近での実測値に基づくデータではない。また、圃場一つひとつの大きさを考えると、1 kmメッシュよりも更に細分化された詳細な局所気象データが得られることが望ましい。

そこで、圃場に設置した気象観測センサ、近傍のアメダス観測地点から得られる実測値、及びメッシュ農業気象データシステムの1 kmメッシュ気象データを利用し、センサ近傍において約60mメッシュの局所気象データを生成する手法を検討した。具体的な処理手順の概要は次に示す通りである。

1. 1 kmメッシュ農業気象データ(平年値)に対して予め補間計算を行い、60mメッシュのデータを用意する(平年値メッシュデータ)。
 2. 気象観測センサ及び周辺のアメダス観測地点で実測された値の平年値との差分に対して逆距離加重による補間計算を行い、60mメッシュデータを得る(平年差メッシュデータ)。
 3. 平年値メッシュデータと平年差メッシュデータを加算することで、実測値が反映されたメッシュデータを得る。
- 一連のデータ処理の実装には、python3言語、及び農研機構から提供されるメッシュ気象データ利用ライブラリを使用した。

詳細化の事例として2017年9月11日の日平均気温のデータを示す。図5は農研機構メッシュ気象データ(1 kmメッシュ)、図6は詳細化計算で得られた60mメッシュのデータである。

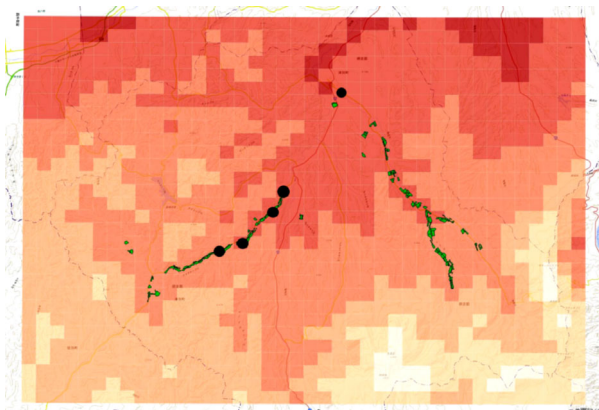


図5 農研機構メッシュ農業気象データ
(2017年9月11日, 日平均気温)

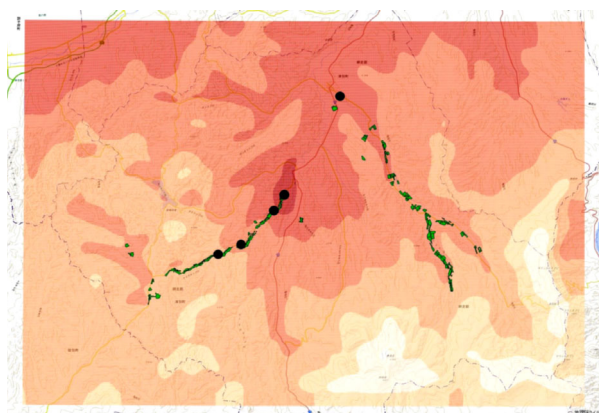


図6 60mメッシュ詳細化気象データ
(2017年9月11日, 日平均気温)

本手法で生成された詳細化局所気象データは、圃場において直接計測されたデータが反映されていることから、少なくとも気象観測センサを設置した圃場の近傍では良好な結果が得られているものと考えている。ただし、現時点では実測値に基づく精度検証がまだ十分に行われていない。今後、圃場での実測地点を増やし、交差検定などの手法による検証を進める必要がある。

4. 気象観測データの営農への活用

4.1 農業法人へのデータ提供と活用状況

気象観測センサの運用期間中、観測されたデータはクラウドサービスを経由して農業法人A社に随時提供し、農業者の視点からの気象データ活用の検討を依頼した。

農業法人A社、及び他の農業法人に所属する農業者に対し、日々の農作業における気象観測センサの活用状況、機器やクラウドサービスの改善項目、今後のセンサ活用に関する期待などに関して聞き取り調査を行ったところ、次のような結果が得られた。

* 日常の農作業においてよく参照する観測項目は、主に気

温と降水量の二つであった。

- * 気象観測センサによって明らかとなった圃場毎の気温差は、農業者の経験による知識とも近い結果であり、納得できる、とのコメントが得られた。
- * 降水量データは主に、雨天における圃場内での機械作業の可否を判断するために利用されていた（降り始めからの積算量により圃場の状態を判断）。
- * センサ機器のメーカー毎に異なるクラウドサービスの利用が求められること、ユーザインターフェースがメーカー毎に異なっていること、の二点はユーザビリティを著しく損なう原因となっていた。日常的な気象データの利用では、比較的ユーザインターフェースの設計が良好で、かつ子機2台のデータを同時に参照できる機種2が主に利用されており、他機種のデータはほとんど参照されていなかった。
- * 気温、降水量以外の気象データ（湿度、風向、風速、日照など）は、現時点ではあまり活用できていない。
- * 現在の気象観測センサはまだ高コストであり、10万円/台程度までの低コスト化を期待する意見があった。
これらの聞き取り調査の結果から、気象観測センサの普及活用を推進するための方策として、以下のような取組みが有効と考えられる。
- * 気温、降水量など、現場でのニーズが高い部分に機能を絞った、低コスト（10万円程度）な気象観測センサ機器の開発
- * 複数メーカーの機器間の相互運用性の向上（複数メーカーのセンサデータやアメダス等の外部データを横断的に参照できるユーザインターフェースの整備）

4.2 秋まき小麦栽培管理への活用

近年の農業分野へのICT技術の普及により、様々な作物に関する栽培計画設計支援や病虫害予察などを行うためのツール^{5,6)}が開発、提供されており、営農での活用が進んでいる。

これらのツール内で用いられている予測モデルの多くは有効積算気温などの気象データを用いて構築されており、正確な予測を実現するためには精度の高い気象データが求められる。

今回は、気象観測センサから得られた詳細化局所気象データの活用事例の一つとして、秋まき小麦播種量計算への適用を試みた。

道総研農業試験場は、秋まき小麦の生育管理ツールの一つとして、播種量計算ツールmakiDAS^{6,7)}を農業者向けに公開、配布している。makiDASはMicrosoft Excelのマクロ機能を用いて実装されたツール（図7）であり、播種予定日及び使用種子を与えると目標とする越冬前茎数を確保するために必要な播種量を計算する機能、播種日と播種量から見込まれる越冬前茎数を計算する機能を提供する。これらの計算では、

The screenshot shows the makiDAS software interface with two main calculation sections. The first section, '必要播種量の算出' (Calculation of required sowing amount), shows results for three scenarios: 'アメダス' (4.3 kg/10a), '農研機構メッシュ' (5.8 kg/10a), and '60mメッシュ' (7.2 kg/10a). The second section, '越冬前茎数の算出' (Calculation of winter stem count), shows results for the same scenarios: 'アメダス' (1,939 stems/m²), '農研機構メッシュ' (1,664 stems/m²), and '60mメッシュ' (1,392 stems/m²). The actual results for the 2017 experiment are shown in parentheses: (8.0 kg/10a) and (1,280 stems/m²).

図7 makiDASの実行画面

表2 makiDASによる小麦播種量及び越冬前茎数計算 (圃場1, 播種日2017年9月11日)

	播種量 [kg/10a] (目標 1,000 本/m ²)	越冬前茎数[本/m ²] (播種量 8.0kg/10a)
アメダス平年値	4.3	1,939
農研機構メッシュ	5.8	1,664
60mメッシュ	7.2	1,392
(実績値)	(8.0)	(1,280)

表3 makiDASによる小麦播種量及び越冬前茎数計算 (圃場2, 播種日2017年9月20日)

	播種量 [kg/10a] (目標 1,000 本/m ²)	越冬前茎数[本/m ²] (播種量 8.0kg/10a)
アメダス平年値	4.3	1,122
農研機構メッシュ	5.8	1,093
60mメッシュ	7.2	961
(実績値)	(8.0)	(896)

基礎データとして当該地域での日平均気温(平年値)から計算される有効積算温度を使用しており、通常はツールに組み込まれた各地域の平年値、もしくは最寄りのアメダス観測点のデータを使用することが推奨されている。

津別町のアメダス観測地点は市街地付近に設置されており、農業法人A社の圃場とは気温差がある。9月から11月の有効積算温度を比較すると、アメダス観測地点と圃場の各気象センサの値は場所により約-100℃から+50℃の差があり、これは生育管理上無視できない大きさである。そこで、3章の手法で生成した60mメッシュ詳細化気象データの9月~11月の日平均気温データを makiDAS に入力し、播種量計算及び越冬前茎数の推定を行った。また、2つの秋まき小麦圃場において実際に越冬前茎数の計数を行い、makiDAS で得られた予測結果との比較を行った。

試験の結果を表2に示す。2017年の圃場1における栽培実績では、9月11日に播種を行い、播種量は8.0kg/10aであった(播種量の決定は農業者の経験に基づく)。また、越冬前茎数の計数結果は1,280本/m²であり、目標値である1,000本/m²に対してやや多い結果となった。

これに対して、makiDASを用いた必要播種量計算では、

津別アメダス観測地点の平年値を用いた場合の必要播種量は4.3kg/10aとなったのに対して、農研機構メッシュ気象データ、60mメッシュ詳細化データを用いた場合の必要播種量はそれぞれ5.8kg/10a、7.2kg/10aとなり、農研機構メッシュ農業気象データ、60mメッシュ詳細化気象データの順に、より栽培実績に近い結果が得られた。また、播種量を8.0kg/10a(実績値)として越冬前茎数の予測計算を行った場合についても、60mメッシュ詳細化気象データの方がより実績値に近い値が得られた。

播種日が異なる圃場2に関しても同様にmakiDASによる計算及び越冬前茎数の計数を行ったが、こちらについても圃場1と同様に60mメッシュ詳細化気象データに基づく計算の方が実績値により近い値が得られた(表3)。

秋まき小麦以外の作物の生育予測モデルでの検討はまだ行っていないが、多くの作物の生育予測モデルにおいて有効積算温度は重要なパラメータとなっているため、詳細化気象データを活用することで同様に予測精度の向上が期待できるものとする。

5. まとめ

北海道の大規模畑作を営む農業法人の圃場において、農業気象観測センサによる気象データ収集とデータ活用を試みた。農業用として販売されている気象観測センサ機器3機種4基を圃場に設置し、気象観測データ収集を行った。2カ年に渡ってセンサ運用を続けた結果、気温や降水量など、営農での活用度が高い項目に関して有効なデータ収集が可能であることが確認できた。

さらに、大規模な圃場において少数の気象観測センサからより詳細な局所気象データを得るために、圃場での実測値に加えて農研機構メッシュ気象データや近傍アメダス観測点等のデータを用い、約60mメッシュの詳細化気象データを簡便に推定する手法を開発した。

営農における気象データの活用事例として、秋まき小麦播種量計算ツール makiDAS に対して60m詳細化気象データ(日平均気温)を適用し必要播種量、越冬前茎数の予測計算を試みた。その結果、最寄りのアメダス観測点データを用いた場合と比較して、より実際の栽培実績に近い予測結果を得ることができた。

現時点では、得られた気象データの蓄積はまだ2カ年分であり、圃場における局所気象の傾向を正確に把握するには十分ではないため、今後も既設の気象観測センサによるデータ収集を継続しつつ、農業法人との協力により得られたデータの更なる活用検討に取り組む。また、開発した詳細化気象データ推定手法については、圃場に追加設置したセンサのデータを用いた交差検定などによって推定結果の妥当性検証を進め、最小限のセンサ設置台数による詳細な気象データ取得の実現

を目指す。

引用文献

- 1) 福岡峰彦・桑形恒男・吉本真由美他：建築資材を活用した低コスト強制通風筒 NIAES-09の製作法，生物と気象，11巻，pp.10-16，(2011)
- 2) 福岡峰彦・桑形恒男・吉本真由美：低コストで高精度の気温測定を可能にする強制通風筒，研究成果情報，農業環境技術研究書，26，pp.6-7，(2010)
- 3) 清野 豁：アメダスデータのメッシュ化について，農業気象，48巻4号，pp.379-383，(1993)
- 4) 大野宏之・佐々木華織・大原源二他：実況値と数値予報，平年値を組み合わせたメッシュ気温・降水量データの作成，生物と気象，16巻，pp.71-79，(2016)
- 5) 道総研 農業研究本部：メッシュ農業気象データを利用した飼料用とうもろこし収穫適期予測システム，<https://www.hro.or.jp/list/agricultural/research/konsen/labo/sakumotsu/corntekikiyosoku.html>，(2019)
- 6) 道総研農業研究本部：秋まき小麦生育管理ツール～NDAS, makiDAS, T-NDAS～，<https://www.hro.or.jp/list/agricultural/center/ndas/index.html>
- 7) 道総研 農業研究本部：秋まき小麦「きたほなみ」生育管理ツール利用の手引き，(2018)

新規機構を有する熱音響デバイスに関する研究

平野 繁樹, 戸羽 篤也, 鈴木 逸人, 保科 秀夫

Research on Thermoacoustic Device with Advanced Structure

Shigeki HIRANO, Atsuya TOBA, Hayato SUZUKI, Hideo HOSHINA

抄 録

音響の共鳴を利用したエネルギーと熱とのエネルギー変換を行う熱音響現象に関する基礎的な研究を行った。直径50mmの片側開放端のステンレス直管に周波数制御を行うことが可能な音波発生器と増幅器及びスピーカを設置し70dB程度の音波を発生させ、管長の約1/4の位置にスタックを設置した。スタックは多孔体構造を有し、音響のエネルギーを温度差に変換する熱デバイスである。温度差を発生させるスタックは3D-CADにより設計し、レーザ光を用いた金属粉末積層造形3Dプリンタを用いて、多孔質構造体を試作開発した。音波源及び共鳴管により構成される熱音響デバイスにより温度差の発生を確認し、周波数依存性及び音波発生強度による発生温度差の影響について実験的に検討を行い、熱音響デバイスの基礎的な熱特性を明らかにした。

キーワード：熱音響, エネルギー変換, スタック, 3D-CAD, 3Dプリンタ

1. はじめに

音響の共鳴を利用したエネルギーと熱とのエネルギー変換を行う物理現象である熱音響現象 (Thermoacoustics) を利用した熱音響デバイスについて報告する。熱音響現象は、スタックと呼ばれる多孔質構造を有する部材に温度差が生じると共鳴により音響を発生するソンドハウス (Sondhaus) 管やレイケ (Rijke) 管としても知られており、日本でも古来より米を炊く釜の共鳴音により吉凶を占う鳴釜神事として、岡山県の吉備津の釜などが知られている。

この現象は微細構造部に温度差を発生させて音響を発生させるだけでなく、逆に共鳴管に音響を与えることにより、スタックに温度差を発生させることも可能な、音響と熱のエネルギー変換現象である。これらの現象を総じて熱音響現象と呼んでいる (図1)。この物理現象を利用した熱音響デバイスは装置構造が単純で可動部が無くメンテナンスがしやすいことなどから、1950年代から極低温や航空宇宙関連部品として特殊な環境下で使用されてきた¹⁻³⁾。近年は常温域における研究が進み、騒音や排熱を利用し、音響から熱を利用する機器についての研究が進められている⁴⁻⁷⁾。本研究では、直管を用いた基本的な熱音響現象を検証するとともに、3D-CADにより設計し、レーザ焼結による金属粉末積層造形装置 (金属3Dプリンタ) を用いて、これまでにない新しい構

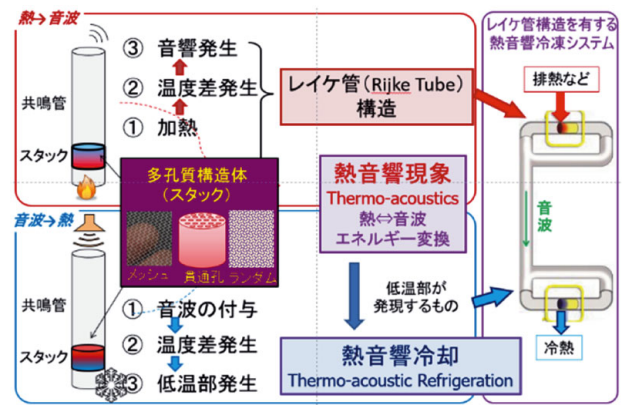


図1 熱音響現象の模式図

造を有する熱と音響のエネルギー変換を行う部品 (スタック) の作製を行った。

2. 試験方法

2.1 熱音響デバイス

本研究では熱音響現象のうち、管に音波を作用させて多孔体構造であるスタックに温度差を発生させる実験を行った。直径50mmのステンレス直管を共鳴管とし、片方を開放端とし、もう片方にスピーカを設置し音の強さと周波数を制御した。共鳴管は全長約1.4mのもの (以下Short Tube) と全長約2.1mのもの (以下Long Tube) の2種類を用意し、それぞれの全長の約1/4の位置に多孔質体であるスタックを設

事業名：経常研究

課題名：熱音響デバイスによるエネルギー回収技術に関する研究

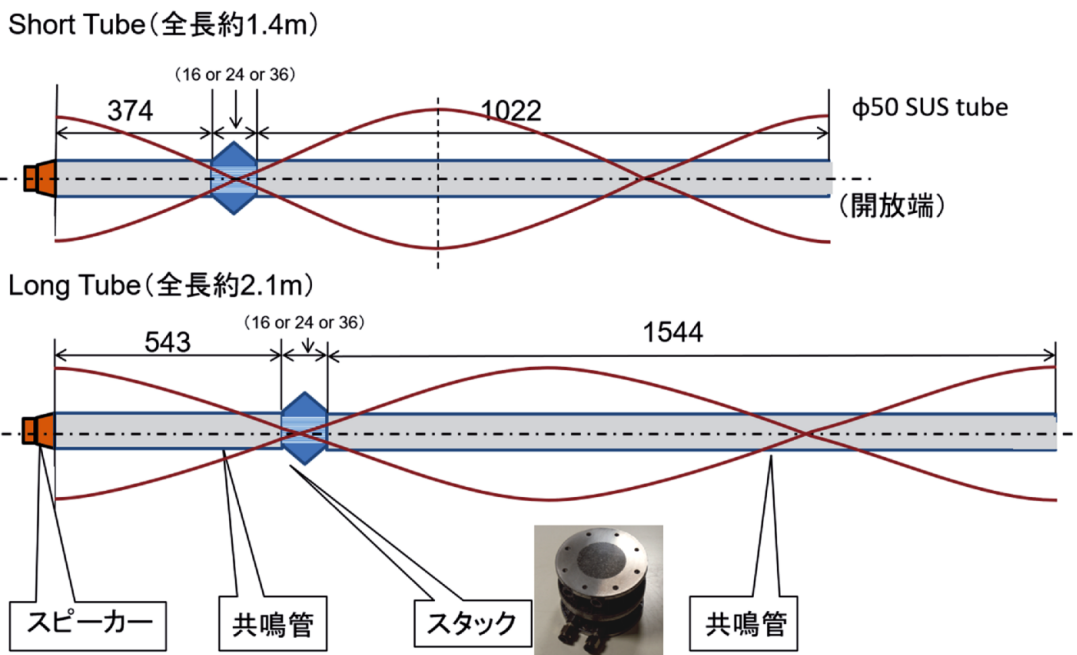


図2 熱音響デバイスのレイアウト

置した(図2)。熱音響デバイスは共鳴させることにより大きな熱音響効果が得られることが知られており、開放端を有する直管構造の場合、端部より1/4において大きな効果が得られる⁸⁾ことから各管のその位置にスタックを設置した。また、共鳴周波数は式(1)により計算されるが、共鳴周波数が可聴域となるよう各管の長さを選択した。

$$V = f \cdot \lambda \tag{1}$$

ここで、

V：音速 m/s, f：周波数 Hz, λ：波長 m

であり、半波長整数倍が管長となるよう、かつ共鳴部の谷の部分にスタックが設置されるよう各管の長さ、スタックの位置を設定した。

2.2 スタック

従来熱音響デバイスに使用されてきた多孔質構造であるスタックは、図1に示すようにメッシュ状の金網やセラミックス、スチールウールや針金を束ねた様なランダム形状のものが多く見られた。このような場合、微細構造形状が一定では無いことや、材質が非金属であること、金属の場合でも密な構造ではないことなどからスタック構造の熱伝導率が小さく、熱交換に不利であった。また、発生した冷熱や温熱を外部へ取り出すために、別体の熱交換器が必要となり、装置が複雑化大型化する上、別体構造であることによる接触抵抗等により、さらに熱移動に不利な状況となっていた。

そこで、本研究では3D-CADにより設計し、レーザー焼結による金属粉末積層造形装置(金属3Dプリンタ)を用いて、多孔質構造と熱交換構造が一体化したスタックを作製した。

スタック高さは16, 24, 36mmの3種類とした。作製したスタックは図3に示すように中央部に直径0.92mmの貫通孔が多数開けられており、その開口率は0.411であった。なお本構造を有するスタックは、特許出願を行った。

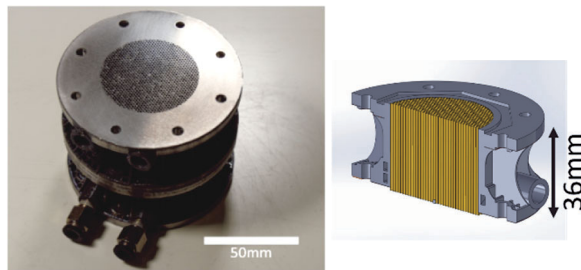


図3 スタックの外観(左)とCADによる断面図(右)

2.3 熱音響実験

図2で示す長さの異なる直管タイプの熱音響デバイス2種にそれぞれ音波を付与し、スタック両端に発生する温度差を測定した。周波数は約100~600Hzの範囲で調整し、騒音レベルは騒音計により開放端にて測定し、管長や共鳴の違いにより79.8-103.9dBの範囲となった。図4にスタック両端に生じる温度差の時間推移を示す。この図より、熱音響デバイスのスタック両端には、音波付与とともに徐々に温度差が発生し、約100秒後にほぼ一定の温度差となり安定することがわかった。各付与音波の周波数において、この安定した温度差を測定し、付与音波の周波数による発生温度差を測定した。

3. 実験結果

印加電圧による発生温度差の違いを図5に示す。また管長の違いによる発生温度差に及ぼす音波周波数の影響を図6、7に示す。図5よりスピーカへの印加電圧が大きいほどスタック両端に生ずる最大温度差が大きくなることも確認され、周波数により発生温度差が大きく変化することがわかった。

また、図6及び7より、管長と最大温度差を生じる周波数が異なり、Short Tube (1.4m) では約200Hzで温度差が2.9K、Long Tube (2.1m) では約150Hzで温度差が3.1K発生したことが確認された。また、周波数によってはスタックに発生する温度差が変化し、高温部と低温部の逆転現象も見られるなど、周波数によりその温度発生特性が大きく影響されることが確認された。また、スタック厚さは36mmのもので最大の温度差が見られた。

4. おわりに

音と熱とのエネルギー変換を行う熱音響デバイスを作製しその基礎的な特性について実験的に検討を行った。本研究では音から温度差へのエネルギー変換を行いその温度特性を明らかにした。また3Dプリンタを用いて新たな構造を有する多孔質体であるスタックを作製し特許を出願した。

参考文献

- 1) J. Wheatley, et al. : Understanding some simple phenomena in thermoacoustics with applications to acoustical heat engines, American J. Phys. 53, 147-162 (1985)
- 2) W. H. Keesom, : Helium (Elsevier), 174 (1942)
- 3) W. E. Gifford, : Pulse-tube refrigeration, Syracuse Univ. Research Institute Technical Report No. 1, 2 (1963)
- 4) E. I. Mikulin, et al. : Low temperature expansion pulse tubes, Advances in Cryogenic Engineering 29, 629 (1984)
- 5) G. W. Swift, : Analysis and performance of a large thermoacoustic engine, J. Acoustical Society of America 92, 1551-1563 (1992).
- 6) T. Yazaki, et al., : Traveling Wave Thermoacoustic Engine in a Looped Tube, Phys. Rev. Lett. 81, 3128 (1998).
- 7) S. Backhaus and G. W. Swift, : A thermoacoustic Stirling heat engine, Nature (London) 399, 335-338 (1999).
- 8) 富永 昭, : 熱音響工学の基礎, 内田老鶴圃, (1998)

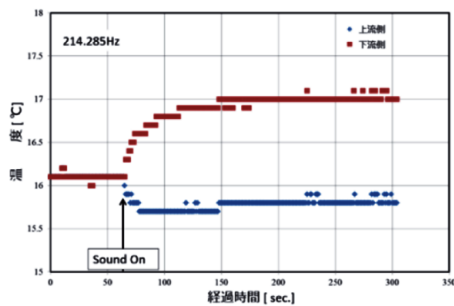


図4 スタック両端に生じる温度差の時間推移

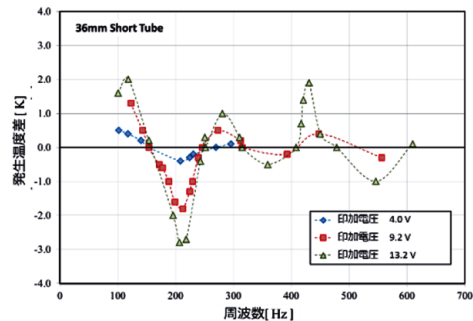


図5 印加電圧による発生温度差の違い

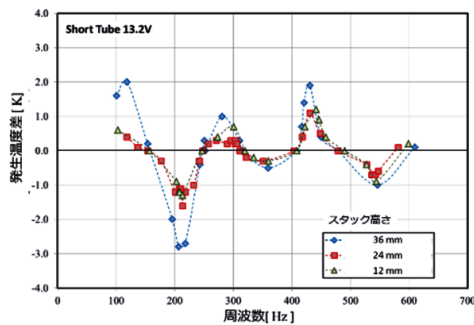


図6 発生温度差におよぼす音波の周波数の影響 (Short Tube (管長 1.4m) の場合)

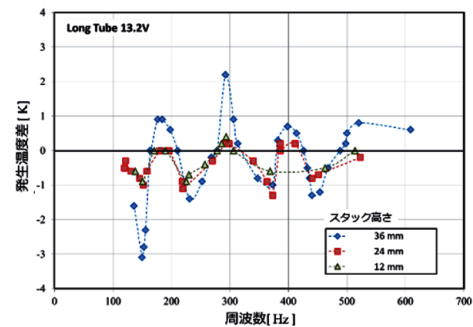


図7 発生温度差におよぼす音波の周波数の影響 (Long Tube (管長 2.1m) の場合)

電気分解法による排水処理技術

佐々木雄真, 若杉 郷臣, 鎌田 樹志, 富田 恵一, 三津橋浩行

Waste Water Treatment Technologies by Electrolysis

Takema SASAKI, Motoomi WAKASUGI, Tatsuyuki KAMADA,
Keiichi TOMITA, Hiroyuki MITSUHASHI

抄 録

排水処理において、活性汚泥法などの生物処理のみで排水基準を満たすのは容易ではなく、物理化学的な処理方法との組み合わせが必要とされている。そこで、本研究では、制御が簡単でコンパクトな水処理技術である電気分解法に着目し、その基本的な処理特性を把握するため、各種通電条件における処理試験を行った。その結果、鉄電極を用いた凝集処理について、電極からの鉄の溶出特性、通電した電気量と処理水質の関係、極性反転の効果などを確認することができた。また、不溶性電極を用いたアンモニア性窒素除去について、電極の種類、排水の塩化物イオン濃度、直流電源の印加電圧などの諸条件が処理に及ぼす影響を明らかにした。

キーワード：電気分解法, 排水処理, 凝集, アンモニア性窒素

1. はじめに

排水処理において一般的に用いられる処理方法は、活性汚泥法などの生物処理である。しかし、この方法は、反応速度が遅いため大きな処理槽が必要で、さらに負荷変動や温度変化などの影響で処理が不安定になりやすいなどの問題点を抱えている。また、各種産業・生活排水には高濃度の有機物や難分解性物質などが含まれているが、排水基準は年々厳しくなる傾向にあり、生物処理だけで基準を満たすのは難しい状況となっている。そのため、排水処理プロセスにおいて、物理化学的な処理方法を組み合わせる必要性が高まっている。

電気分解法は、制御が容易でコンパクトであることから、生物処理を補完する処理方法として期待されている。しかしながら、これまでに研究されている水処理プロセスなどは、電気化学工業で用いられているものを模倣したものが多く、用排水処理に適用する場合には電解槽の構造、操作条件などを検討する必要がある¹⁾。

本研究では、鉄電極を用いた凝集処理および不溶性電極を用いたアンモニア性窒素除去を対象に、排水処理における電気分解法の基本的な処理特性を把握することを目的とした。様々な条件下でバッチ式の電気分解試験を行い、通電条件が処理に及ぼす影響などについて検討した。なお、前述した電気分解法の長所を生かすことを念頭に置き、排水中に直接電

極を浸漬して電気分解する、電解質を添加しないなど、試験装置はなるべく簡素な構成となるようにした。

2. 鉄電極による凝集処理

2.1 原理と特徴

図1のように、鉄を電極として直流電流を通電すると、陽極から鉄が溶出し、凝集剤と同様に作用する。酸性で腐食性の高い塩化第二鉄やポリ塩化アルミニウムなどの凝集剤よりも安全性が高い利点がある。また、リンの除去において、これらの凝集剤と比較して、ランニングコストが低く、設置スペース的にも有効とされている²⁾。

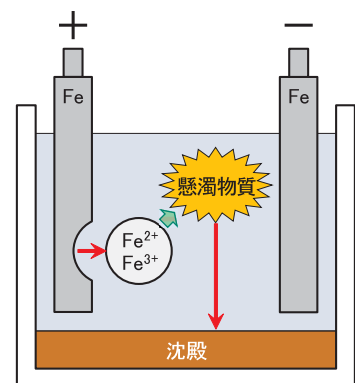


図1 鉄電極による凝集処理の原理

2.2 試験方法

供試排水として懸濁物質 (SS) が1,000mg/Lとなるように希釈したメタン発酵消化液を用いた。この排水のpHは8.5、電気伝導率は1.9mS/cmで、その他の水質項目は表1のとおりであった。なお、全有機体炭素 (TOC) および全窒素 (T-N) はTOC-TN計 (株島津製作所 TOC-VCPH, TNM-1)、ア

事業名：経常研究

課題名：電気分解法を利用した排水処理技術に関する研究

ンモニア性窒素 (NH₄-N) および全リン (T-PO₄) はポータブル吸光光度計 (ハック社 DR 2800) で測定した。

凝集処理試験の装置を図2に示す。1Lビーカーに供試排水500mlを入れ、スターラーで攪拌した。電極として縦100mm×横50mm×厚さ1.0mmの鉄板を2枚用い、それぞれ陽極、陰極とした。これらを間隔10mm、深さ50mmで排水中に浸漬し、直流電源装置 (㈱千代田エレクトロニクス CM80-13R5) に接続した。定電流モードで通電し、電流と印加電圧を連続測定した。

通電条件が処理水質等に及ぼす影響を調べるため、電流および通電時間を変化させ、それぞれの条件下でバッチ式の処理試験を行った。電流は0.25A, 0.50A, 1.00A, 通電時間は15分, 30分, 60分, 120分とした。通電終了後、処理水を500mlポリ瓶に移し、一晩静置した後、上澄み液を採取して水質を測定した。また、処理前後における電極の重量変化から、鉄の溶出量を求めた。

表1 供試排水の水質

水質項目	TOC	T-N	NH ₄ -N	T-PO ₄
測定値 (mg/L)	905	253	171	121

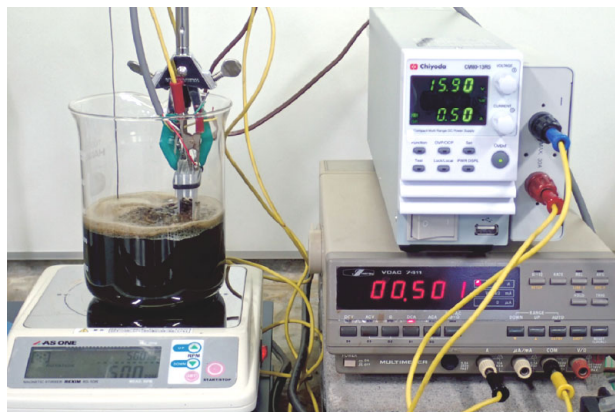


図2 凝集処理試験の装置

2.3 結果と考察

2.3.1 鉄の溶出特性

電極からの鉄の溶出特性を明らかにするため、処理前後の電極を比較した。処理後の電極の様子を図3に示す。陽極の表面には、孔食とみられる細かい穴が両面に観察された。重量測定の結果、陽極のみで重量の減少が認められ、各通電条件下における減少量は表2のとおりであった。このことから、鉄の溶出は陽極のみで発生し、溶出量は通電した電気量に比例することがわかった。また、1F (=96,500C) 当たりの平均溶出量を求めると27.8g (=0.498mol) となり、2 価の鉄が溶出する際の理論値と一致した。したがって、電気分解法は鉄の溶出量を容易に制御できると推察される。

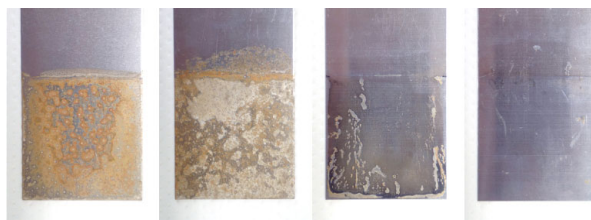


図3 試験終了後の電極の様子

表2 各通電条件における陽極の減少量

電流 (A)	0.50	0.50	0.50	0.25	1.00
通電時間 (分)	15	30	60	120	30
電気量 (C)	450	900	1,800	1,800	1,800
陽極減少量 (mg)	130	258	519	519	518

2.3.2 通電条件と処理特性

電流0.50Aで通電時間を15分, 30分, 60分と変化させた場合の凝集状態を図4に示す。通電時間が長いほど、凝集処理が進行することがわかった。各種通電条件における処理水の水質測定結果から、処理前の水質に対する除去率を求めた (図5)。一般的に通電した電気量が多いほど除去率が高くなる傾向が見られ、特にSS, TOC, T-PO₄の項目で高い除去率が得られた。一方で、T-Nの除去率は他に比べ低かった。これは、T-Nのうち68%を占めるNH₄-Nの除去率が低かったことに起因すると推測される。なお、電流および通電時間が異なっても、電気量が等しければ、処理水質に有意な差は認められなかった。電気量が同じ場合、表3のとおり電



図4 処理水の凝集状態

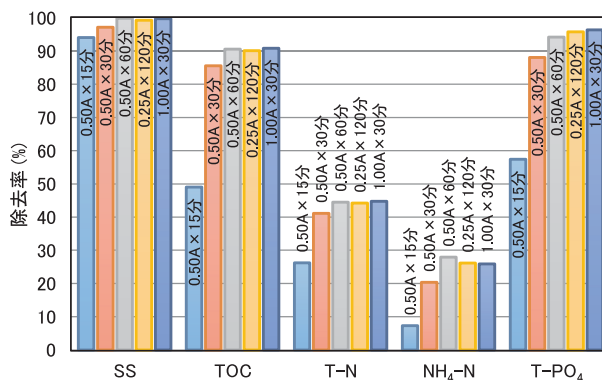


図5 各通電条件における処理水質の比較

表 3 各通電条件における電源装置の平均電圧

電流 (A)	0.50	0.25	1.00
通電時間 (分)	60	120	30
電気量 (C)	1,800	1,800	1,800
平均電圧 (V)	11.1	5.6	20.5

流を小さくした方が電圧が低く抑えられ、消費電力量は少なく済む。一方で、処理時間は長くなる。そのため、処理する排水の濃度や量などに応じて適切な通電条件を選定する必要があると考えられる。

2.3.3 極性反転による電圧上昇抑制

電流を一定として通電を続けると、徐々に印加電圧が上昇する傾向が認められた。通電終了後に電極を引き上げると、図6のように陽極側に凝集物が付着していたことから、これが電気抵抗となったと推測される。

そこで、一定時間ごとに陽極と陰極を切り換える極性反転を行う方法を試みた。陰極では水素ガスが発生するため、一度付着した凝集物を剥離させる効果が期待できる。前述の試験と同一の電流で15分ごとに極性反転を行った結果、図7のように電圧の上昇が抑制された。したがって、極性反転により消費電力量の削減効果が期待できることが明らかとなった。



図6 陽極 (右側) への凝集物の付着

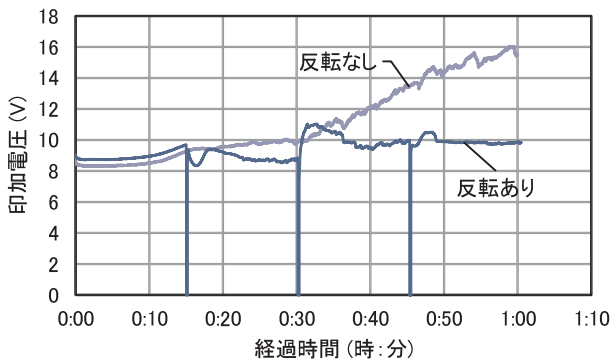


図7 極性反転の有無における印加電圧の経時変化

3. 不溶性電極によるアンモニア性窒素除去

3.1 原理と特徴

アンモニア性窒素は、前述のとおり鉄電極による凝集処理では除去率が低かったが、不溶性電極を使用することにより効果的な除去が可能となる。不溶性電極とは白金または貴金属酸化物をチタンなどの基材にコーティングしたもので、こ

れを用いて塩化物イオン (Cl⁻) を含む水を電気分解すると、図8のように次亜塩素酸 (HClO) が生成する。この次亜塩素酸の酸化作用により、アンモニア性窒素 (NH₄-N) はモノクロラミン (NH₂Cl) やジクロラミン (NHCl₂) を経て窒素ガス (N₂) となり除去される。

この方法は、生物処理である硝化・脱窒法と異なり、メタノールなどの炭素源を必要としない。また、塩化物イオンが排水中に一定濃度含まれていれば、それを利用することができる。

(1)~(6)の反応式から、通電した電気がすべてアンモニア性窒素の除去に使われると仮定すると、1 molのアンモニア性窒素を除去するために必要な電子の物質量は3 mol、電気量に換算すると2.89 × 10⁵ Cとなる。

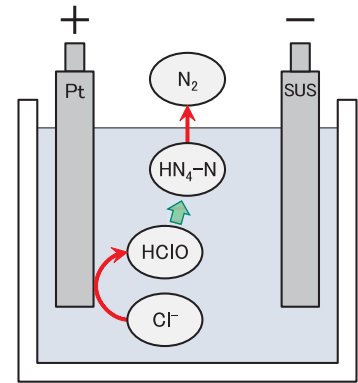
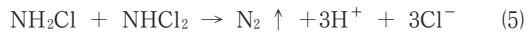
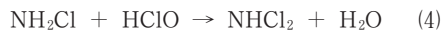


図8 不溶性電極によるアンモニア性窒素除去の原理

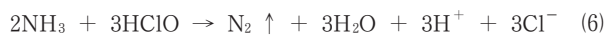
陽極での反応



液中の反応



(3) × 2 + (4) + (5)より



3.2 試験方法

供試排水は、試薬の塩化アンモニウムおよび塩化ナトリウムから調製した人工排水で、アンモニア性窒素100mg/L、塩化物イオン2,000mg/Lを基本組成とした。処理装置を図9に示す。1Lのビーカーに排水1,000mlを入れ、スターラーで攪拌した。電極は、陽極には150mm × 50mm × 1.0~2.0 mmの不溶性電極、陰極には150mm × 50mm × 1.0mmのステンレス (SUS304) 板を用いた。これらを間隔5 mm、深さ50mmで排水に浸漬し、直流電源装置で印加電圧を一定として通電した。また、pHコントローラー (㈱日伸理化 NPH-690D) により、pHが5.5以下になったらアルカリを自動添加し、pHを制御した。電源装置の電流と電圧、および排水のpHを連続測定した。

定期的に処理水の一部をサンプリングし、ポータブル吸光度計 (ハック社 DR 2800) により、アンモニア性窒素、遊離塩素および全塩素の濃度を、イオンクロマトグラフ (メトローム社 IC861) により、塩化物イオンおよび硝酸性窒

素の濃度を測定した。

また、アンモニア性窒素を完全に除去するために必要な理論的電気量と、実際に通電した電気量から、式(7)より電解処理効率を求めた。

$$\text{電解処理効率(\%)} = \frac{\text{必要な理論的電気量}}{\text{実際に通電した電気量}} \times 100 \quad (7)$$

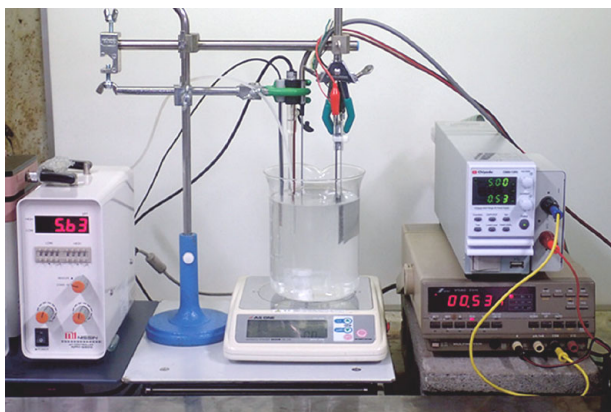


図9 アンモニア性窒素の除去試験装置

3.3 結果と考察

3.3.1 アンモニア性窒素除去とpHの関係

陽極に塩素発生用電極を用い、印加電圧5Vで通電した際のアンモニア性窒素とpHの経時変化を図10に示す。アンモニア性窒素は直線的に減少し、2時間余りで除去が完了した。pHはアンモニア性窒素の除去が進行している間は低下し続け、アルカリの添加により5～6を保持していた。しかし、除去が完了すると、pHは上昇に転じた。アンモニア性窒素をリアルタイムで測定するのは困難であるが、pHは容易に測定できる。このことから、処理の終点がpHの推移でわかるのは大きな利点と考えられる。

次に、遊離塩素と結合塩素(=全塩素-遊離塩素)の経時変化を図11に示す。ここで、遊離塩素は電気分解により生成する次亜塩素酸、結合塩素は中間生成物であるクロラミンと考えられる。アンモニア性窒素の除去が進行している間、次亜塩素酸の蓄積はなく、また、除去が完了すると、直後にクロラミンも低下した。このことから、次亜塩素酸は速やかに

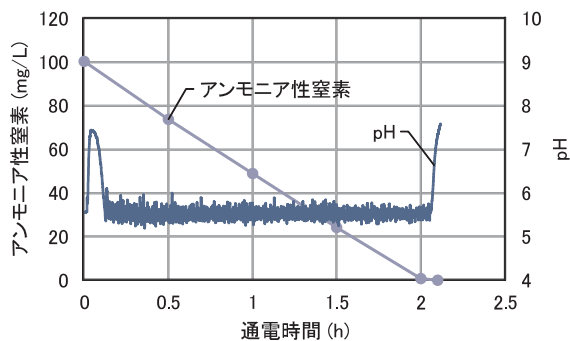


図10 アンモニア性窒素とpHの経時変化

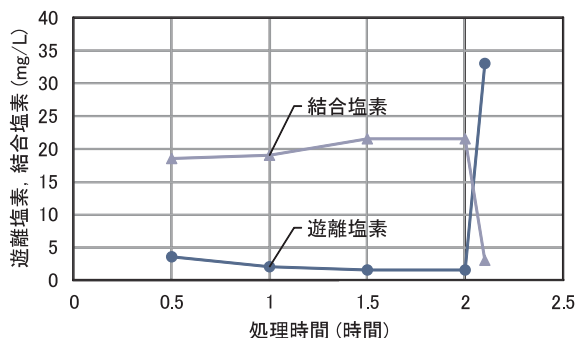


図11 遊離塩素と結合塩素の経時変化

アンモニア性窒素と反応しクロラミンとなり(式(3), (4)), また、クロラミンも速やかに窒素ガスに変換される(式(5))と推測される。したがって、この処理では陽極における塩素の生成(式(1))が律速となっていると推察され、その結果アンモニア性窒素が直線的に減少したと考えられる。

3.3.2 電極種類の比較

陽極に塩素発生用電極、酸素発生用電極、白金電極を用い、印加電圧5Vで通電した際のアンモニア性窒素の経時変化を図12に、平均電流と電解処理効率を表4に示す。処理速度は塩素発生用、酸素発生用、白金の順に速く、処理効率も同じ順に高かった。この塩素発生用電極は次亜塩素酸生成用の電極であり、それを裏付ける結果となった。

また、アンモニア性窒素の除去完了後の処理水には、一部が硝酸性窒素に変換されて残存することがわかった。その濃度は、塩素発生用が1.3mg/L、酸素発生用が1.4mg/L、白金が7.9mg/Lであった。したがって、塩素発生用電極は、処理速度および処理効率に優れ、かつ硝酸性窒素の生成も抑制できることが明らかとなった。

塩化物イオン濃度は、いずれの電極においても処理前後で

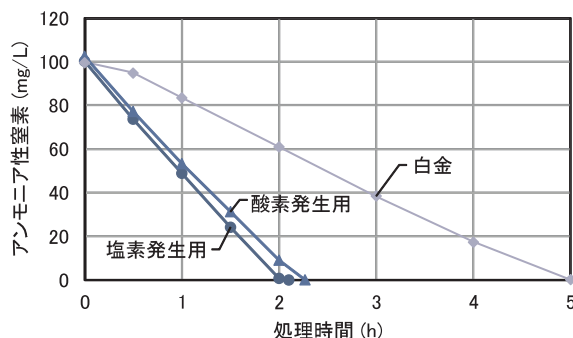


図12 電極別におけるアンモニア性窒素の経時変化

表4 電極別における平均電流と電解処理効率

電極の種類	塩素発生用	酸素発生用	白金
平均電流 (A)	0.540	0.575	0.487
電解処理効率 (%)	51.4	44.2	23.6

優位な差は認められず、塩素ガスとしての大気中への分散はほとんどなかったと推測される。

3.3.3 塩化物イオン濃度の比較

塩化物イオン濃度が処理に及ぼす影響を調べるため、排水の塩化物イオン濃度を1,000mg/L, 2,000mg/L, 4,000mg/Lに変化させた。陽極に塩素発生用電極を用い、印加電圧5Vで通電した際のアンモニア性窒素の経時変化を図13に、電気伝導率、平均電流および電解処理効率を表5に示す。塩化物イオン濃度が高いほど処理速度と電解処理効率が高くなった。要因としては、電解質の添加により電気伝導率が高くなり、電流が増加したことが考えられる。さらに、塩化物イオン濃度の上昇に伴い、通電した電気量に対する塩素の生成率、すなわち電流効率が向上したためと推測される。

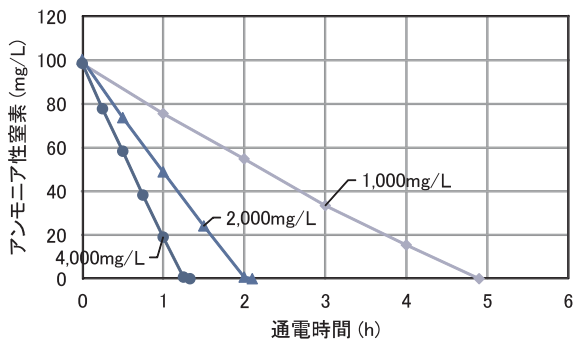


図13 異なる塩化物イオン濃度におけるアンモニア性窒素の経時変化

表5 異なる塩化物イオン濃度における電気伝導率、平均電流、電解処理効率

塩化物イオン濃度 (mg/L)	1,000	2,000	4,000
電気伝導率 (mS/cm)	2.9	5.3	9.8
平均電流 (A)	0.350	0.540	0.696
電解処理効率 (%)	33.5	51.4	62.8

3.3.4 印加電圧の比較

印加電圧と処理特性の関係を調べるため、陽極に塩素発生用電極を用い、直流電源の印加電圧を4V, 5V, 6Vで通電した。アンモニア性窒素の経時変化を図14に示す。処理速度は6V, 5V, 4Vの順に印加電圧が高いほど速い傾向となった。しかし、表6のとおり、電解処理効率では5Vが最も高かった。電流効率は一般に電流密度に依存しており、電流密度(または電解電流)を増加させても期待したように反応速度が増加しない場合も多いとされている³⁾。印加電圧を高くすると電流も増加する。しかし、6Vでは電流密度が高すぎて、塩素生成以外の反応に使われた電気量の比率が増加し、処理効率が低下したと推測される。以上により、処理効率が極大を示す印加電圧の存在が示唆された。

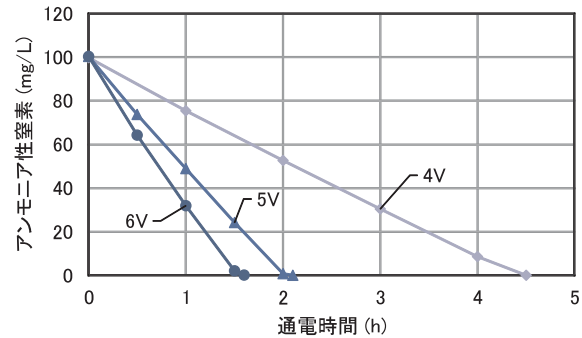


図14 異なる印加電圧におけるアンモニア性窒素の経時変化

表6 異なる印加電圧における平均電流と電解処理効率

印加電圧 (V)	4	5	6
平均電流 (A)	0.326	0.540	0.787
電解処理効率 (%)	39.2	51.4	46.4

4. まとめ

排水処理における電気分解法の基本的な処理特性を把握するため、様々な設定条件が処理に与える影響を調査した。鉄を電極とした凝集処理および不溶性電極を用いたアンモニア性窒素除去について、ピーカースケールによるバッチ処理試験を行った結果、以下の知見が得られた。

- 1) 鉄を電極とした電気分解法では、鉄は通電した電気量に比例して溶出し、理論的な溶出量とも一致した。このことから、鉄の溶出を容易に制御できることがわかった。
- 2) 鉄電極による凝集処理では、電気量の増加とともに凝集処理が進行し、特に懸濁物質、全有機体炭素、全リンについて高い除去効果が得られた。
- 3) 定期的に極性反転を行うことで、電圧の上昇を抑制できることがわかった。このことから、消費電力量の削減効果が期待できる。
- 4) 不溶性電極を用いた次亜塩素酸によるアンモニア性窒素除去では、pHの推移から処理の終点を把握できること、および塩素発生用電極が優れていることがわかった。
- 5) 排水の塩化物イオン濃度が高いほど、処理速度および電解処理効率が高くなることがわかった。
- 6) 電源装置の印加電圧が高いほど処理速度は上昇する傾向となったが、電解処理効率については極大となる電圧が存在することが示唆された。

謝辞

本研究で使用したイオンクロマトグラフおよび純水製造システムは、競輪の補助を受けて整備されました。また、デノラ・ベルメック株式会社には、塩素発生用電極をご提供いただきました。ここに記して感謝いたします。

参考文献

- 1) 榊原 豊：電気分解法による排水・汚水処理のメカニズム（ケーススタディ），排水・汚水処理技術集成，（2007）
- 2) 森泉雅貴，福本明広，小田謙治 他：高度水処理技術における鉄電解法の応用，水環境学会誌，Vol.24，No.9，（2001）
- 3) 岸本直之：電解による処理技術 総説，排水・汚水処理技術集成，Vol.2，（2013）

鉄系資材によるひ素及びセレンの除去技術

富田 恵一, 若杉 郷臣, 明本 靖広, 稲野 浩行

Removal of Arsenic and Selenium with Iron-Based Materials

Keiichi TOMITA, Motoomi WAKASUGI, Yasuhiro AKEMOTO, Hiroyuki INANO

キーワード：ひ素, セレン, 酸化水酸化鉄, 汚染土壌, パッシブトリートメント

1. はじめに

自然由来の汚染土壌に関する取り扱いを含む土壌汚染対策法の改正(平成22年)された。これに伴い、土壌溶出量基準が定められている項目のうち、自然由来汚染の可能性がある項目として、カドミウム、クロム(VI)、水銀、セレン(以下Se)、鉛、ひ素(以下As)、ふっ素、ほう素が該当することになり、これらの汚染物質に関する経済性の高い汚染土壌対策技術が望まれている。一方、北海道内においては、多くの種類の有害元素に対して高リスクな鉱化変質帯の地質以外にも、湖沼堆積物、氾濫原堆積物、炭質物層(As)、海域堆積物(As及びSe)など多種の自然由来土壌からの溶出リスクが知られている¹⁾。

汚染土壌の処理法のなかで、パッシブトリートメントは、自然界で得られる地形勾配、微生物代謝、光合成、化学反応などを処理のエネルギー源として利用し、低頻度の保守管理だけで設計寿命の間十分に機能するような、土壌汚染をその場で回避・抑制ないし処理する工学的手法である²⁾。そのため、運用時のエネルギー消費が少なく、汚染土壌の移動がないので掘削、運搬などに伴う経済的及び環境負荷が発生しない手法として注目されており、具体的には、人工湿地や嫌気性石灰石水路などによる処理のほか、図1に示す汚染土壌の地下水脈に透水性かつ反応性の資材を使用した透過反応壁(Permeable Reactive Barrier, 以下PRB)²⁻⁴⁾を設置し、有害物質を系外に出さないようにするシステムが検討されている。PRBは汚染土壌に含まれる有害物質を直接除去する方法ではないため、全ての有害物質を除去するまでは長時間を要するが、施工後、設計寿命までの間はメンテナンスフリーに近く、北海道のような積雪地において厳冬期の保守の容易さなど大きな利点がある。

筆者らは、有害物質として六価クロムを対象に鉄粉を用い

る還元処理に関して、反応速度などについての基礎的な検討⁵⁾を行ってきた。

本研究では、As及びSeを処理対象とし、環境基準や土壌汚染対策法での濃度規制値0.01mg/Lの10~1000倍程度の汚染の拡散防止を考慮した処理資材の基礎検討を行った。また、PRBによるパッシブトリートメントを想定して、透水性を確保するために担体への担持物を試作し、有害元素の除去に関する基礎的な反応特性を調べた。

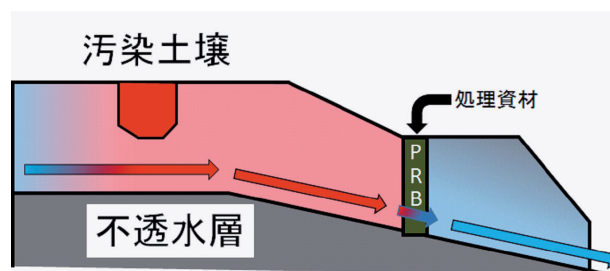


図1 透過型反応壁 (PRB) の概念

2. 実験

2.1 装置及び試薬

2.1.1 装置

試薬による除去試験にはシェーカー(YAMATO製SA-31型、振とう幅40mm)を、振とう速度を200rpmで使用した。担持物による除去試験にはミキサー(EYELA製高速振とう機キュートミキサーCM-1000型、振とう幅3mm、回転数400rpm)を使用した。カラム試験で送液にはペリスタルティックポンプ(レーニン製DYNAMAX PR-1型)を、外径1.30mm内径0.85mmのタイゴンR3607製チューブをセットして予め回転数と流量の関係を確認して使用した。カラムは柴田科学製カラムHLC-15S型、カラム長150mmを使用した。

2.1.2 試薬

除去試験に用いる有害元素として、As(III)は原子吸光分析用標準液(キシダ化学As:1000mg/L, 原料:三酸化二ひ素, 微塩酸酸性), As(V)はひ酸水素二ナトリウム七水和

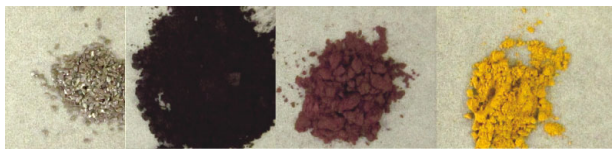
事業名：経常研究

課題名：有害元素類汚染土壌の化学形態分析および無害化資材に関する研究

物(和光純薬製, 特級), Se (IV) は原子吸光分析用標準液(キシダ化学Se: 1000mg/L, 原料: 亜セレン酸), Se (VI) はセレン酸(関東化学製)を用い, ICP 発光分光分析装置(島津製作所製ICPS-8100特型, 以下ICP-AES)により精確に定量して適宜希釈して使用した。また, pH緩衝液として炭酸水素ナトリウム(関東化学製, 特級)を使用した。

除去の検討には, 比較的安価な資材と考えられる鉄系の化合物として, 鉄粉(キシダ化学製C, S定量用, 0.2~0.9mm), 四三酸化鉄(関東化学製, 一級), 酸化第二鉄(関東化学製, 特級), 酸化水酸化鉄は水酸化鉄(III)(キシダ化学製, 「approx. FeO(OH)」と記載されている)の各試薬を用いた。図2に各種試薬資材を示す。

また, 酸化水酸化鉄を担持させる担体としては5号硅砂を使用した。各種化学処理及び湿式分析には硝酸(関東化学製, 電子工業用ELグレード)と塩酸(関東化学製, 原子吸光分析用)を用い, 純水は超純水製造装置(ELGA-オルガノ製PURELAB ultra Analytic)で精製した超純水を使用した。



鉄(Fe) 四三酸化鉄(Fe₃O₄) 酸化第二鉄(Fe₂O₃) 酸化水酸化鉄(FeO(OH))
図2 鉄系化合物試薬

2.2 各種分析方法

溶液中の全元素濃度測定には濃度領域に応じてICP-AESまたはICP質量分析装置(agilent製7700x型, 以下ICP-MS)を使用した。ただし, 測定液に懸濁物質が含まれている場合は, 必要に応じて孔径0.2μmメンブランフィルターでろ過した。また, 除去資材の表面観察は走査型電子顕微鏡(日本電子製JSM-6610LA)及びエネルギー分散型特性X線分析装置(JED-2300/DrySD検出器)を用いた。

2.3 除去資材の検討

As及びSeの除去資材として各種鉄化合物(試薬)の除去能力について検討した。AsまたはSe溶液と各種還元資材を混合し, 振とうするバッチ式除去試験を行った。図3に試験のフローを示す。反応前の有害物質濃度に対する反応前後の有害物質濃度減少分を除去率として算出した。

2.4 酸化水酸化鉄担持物によるAs除去の検討

酸化水酸化鉄は, PRB等で使用するには粒度が小さく透水性が低いため, 透水性の確保を目的として, 5号硅砂に酸化水酸化鉄を担持させた資材を試作(図4)し, As溶液と混合し振とうするバッチ式除去試験を行った。図5に試験のフローを示す。この資材では粒子同士の摩擦による破損を防ぐため, 溶液が緩やかに動く程度の撹拌とした。なお, 炭酸水

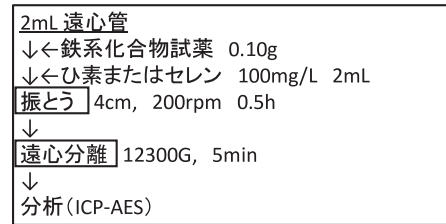


図3 鉄系化合物(試薬)によるAs, Se除去試験フロー

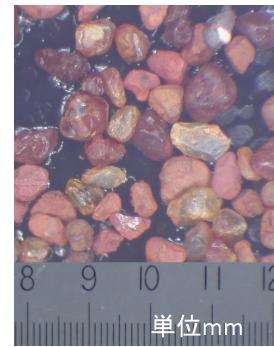


図4 試作した酸化水酸化鉄担持処理資材(担持量 10.8mg/g-wet)

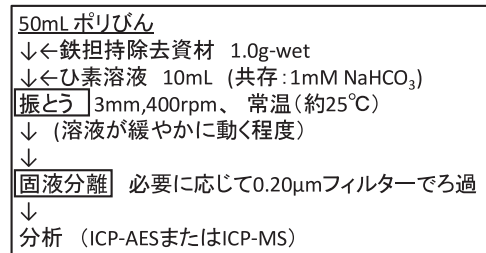


図5 酸化水酸化鉄担持物によるAs除去試験フロー

素ナトリウムはpHを中性付近にするために1mM濃度になるように添加した。

2.4.1 酸化水酸化鉄担持物によるAs除去時間の影響の検討

試作資材がAsを除去するのに必要な時間について調べるため, 振とう時間を0.25~21hに変化させて除去試験を行った。試作資材の酸化水酸化鉄担持量は10.8mg/g-wetとした。溶液のAsはIII価で初期濃度は10mg/Lとした。

2.4.2 酸化水酸化鉄担持物によるAs価数及び濃度の影響

処理するAsの価数(III, V)及び濃度(0.1~10mg/L)を変化させて2.4.1項と同様の試験を行った。試作資材は前項と同じものを用い, 処理時間は4hとした。

2.4.3 酸化水酸化鉄担持量の影響

単位硅砂質量に対して担持酸化水酸化鉄量を0~16mg/g-wetまで変化させた担持処理資材を試作し, 溶液のAs(III)の初期濃度10mg/Lで2.4.1項と同様の試験を行った。処理時間は5hとした。

2.5 酸化水酸化鉄担持物によるSe除去の検討

Se(IV)を用いて2.4.1項と同様の試験を行った。試作資材の酸化水酸化鉄担持量は12.0mg/g-wetとした。溶液のSe(IV)初期濃度は10mg/L、液量は10mLとした。また、Se(VI)については、酸化水酸化鉄担持量10.8mg/g-wetの試作資材を1.0gのみの場合と、同試作資材1.0gに鉄粉1.0gを加えた場合の除去試験を行った。鉄粉は塩酸(約6M)で表面を洗浄し純水で十分塩酸を洗い流したものを使用した。

2.6 酸化水酸化鉄担持物による透水性の検討

硅砂の透水層で挟まれた酸化水酸化鉄担持処理資材層を設けた図6に示した実際の土壤を模したカラムに、純水を約1年間通液し、透水性の確認を行った。

カラムへの充填は端部に石英ウールを充填し、十分水洗した5号硅砂をカラムの下部まで純水を用いて流し込み表面を平にならしたところに担持酸化水酸化鉄量0~6.1mg/g-wetの酸化水酸化鉄担持処理資材10gと純水洗浄した硅砂10gを混合して純水で流し込み、カラム上端まで同様に5号硅砂を満たした。ペリスタルティックポンプのチューブとはPTFE製のチューブで接続した。カラムは内径15mmで酸化水酸化鉄担持処理資材層の厚さは実測72mmであった。硅砂(石英)の真比重⁹⁾より空隙の体積を計算し、さらに空隙1mLあたりの長さや流速から処理層中の線速度を算出した。



図6 酸化水酸化鉄担持物充填カラム

3. 結果と考察

3.1 除去資材の検討

図7に除去資材に対するAs(III)及びSe(IV)除去率を示す。全ての資材においてAs(III)、Se(IV)とも溶液中の濃度が減少した。しかし、除去率には差が見られAsに対してSeは除去率が低い傾向にあった。また、鉄粉による除去率は20%未満と低く、四三酸化鉄及び酸化第二鉄では30~70%、酸化水酸化鉄ではほぼ100%であった。したがって、酸化水酸化鉄は、鉄粉などより除去率が高く、環境基準の1000倍濃度(100mg/L)のAsまたはSeをほぼ完全に除去できるほ

か、比較的安価であることから、処理資材として有望であると考えられる。

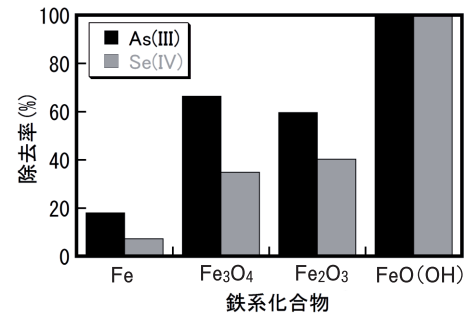


図7 鉄系化合物によるAs(III)、Se(IV)除去試験結果

3.2 酸化水酸化鉄担持物によるAs除去の検討

3.2.1 酸化水酸化鉄担持物によるAs除去時間の影響の検討

図8に振とう処理によるAs(III)の時間ごとの濃度変化を示す。これより、As濃度は2hで大きく低下し、その後、緩やかに低下していくと考えられることから、以降の検討では振とう時間を4hまたは5hとした。しかし、21h後でもAs(III)は完全に除去されなかった。このとき除去されたAsの量から計算すると担持物1g-wet(酸化水酸化鉄10.8mg)では0.08mgのAs(III)を除去でき、これは酸化水酸化鉄に対して0.74%の量である。

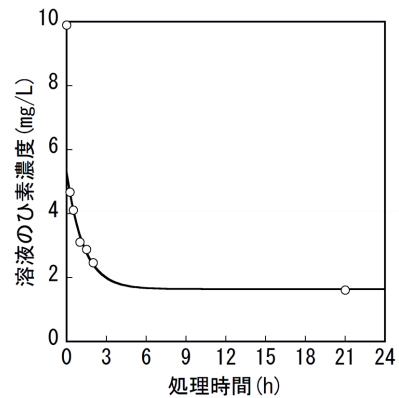


図8 担持物によるAs(III)除去に対する処理時間の影響 (担持量: 10.8mg/g-wet)

3.2.2 酸化水酸化鉄担持物によるAs価数及び濃度の影響

図9にAsの価数及び初期濃度を変えて除去試験を行った結果を示す。全体的にIII価よりV価の方が除去率が高く、特に初期濃度1mg/L以下ではほぼ完全に除去できていることがわかった。

As化合物と鉄化合物の溶液からの水酸化鉄共沈では、V価の方が共沈しやすいとされており⁷⁾、As(V)のほうが鉄化合物に対しての親和性が高く、除去率も高かったと推察される。

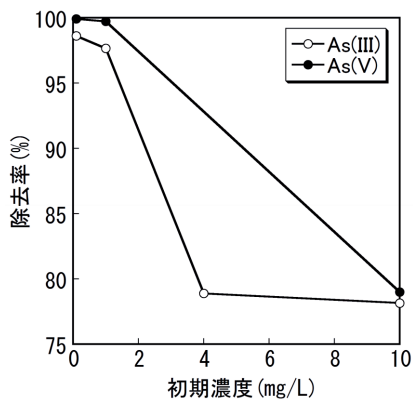


図9 担持物による As 除去に対する As の価数及び濃度の影響 (処理時間: 4h)

3.2.3 酸化水酸化鉄担持量の影響

図10に、酸化水酸化鉄担持量を変化させて As (III) を除去した結果を示す。これから、担体である珪砂のみでは全く As (III) が除去されておらず、担持量の増加につれて、

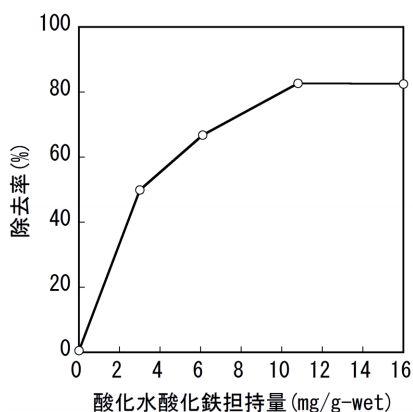


図10 担持物による As 除去に対する酸化水酸化鉄担持量の影響 (初期濃度: 10mg/L, 処理時間: 5 h)

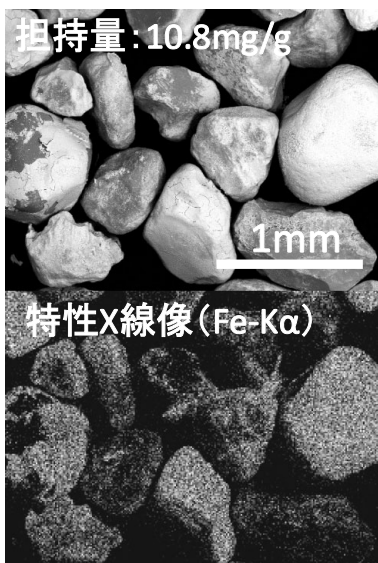


図11 担持物の走査型電子顕微鏡写真 (反射電子立体像) 及び鉄の特性 X 線像

10mg/g-wetまで、Asの除去率も増加することがわかった。ただしそれ以上では、除去率が増加しないことから、酸化水酸化鉄層の厚さなどが影響している可能性が示唆されるが詳細は不明である。

また、図11に示す10.8mg/g-wet担持物の走査型電子顕微鏡写真 (反射電子立体像) 及び鉄の特性X線像から、鉄が検出されない部分があり、すでに一部が剥離していることが観察された。これより、最大でも10mg/g-wet程度の担持が望ましいことがわかった。

3.3 酸化水酸化鉄担持物によるSe除去の検討

図12に振とう処理による Se (IV) の時間ごとの濃度変化を示す。これより、Se濃度は As (III) 同様 2h で大きく低下し、その後緩やかに低下している。しかし、24h 後でも Se (IV) は完全に除去されず、残存する Se濃度は As (III) と比較しても高く、量に換算すると酸化水酸化鉄12.0mg に対しての Se (IV) 除去量は 0.032mg となり、これは酸化水酸化鉄に対して0.27%の量で、酸化水酸化鉄に対して除去可能な As (III) の率 (0.74%) と比較して半分以下である。

次に、図13に Se (IV), Se (VI), Se (VI) (ただし、処理資材として酸化水酸化鉄担持物に鉄粉を添加) に対する Se の除去率を示す。Se (IV) の除去率は20%程度と低く、Se

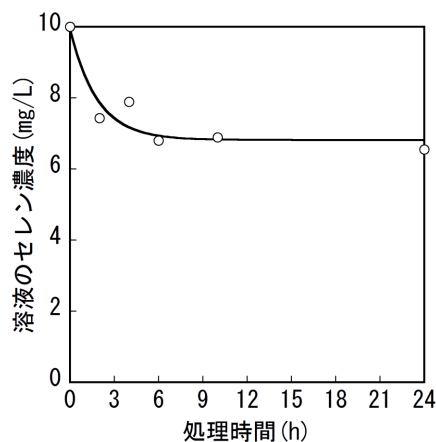


図12 担持物による Se (IV) 除去に対する処理時間の影響 (担持量: 12.0mg/g-wet)

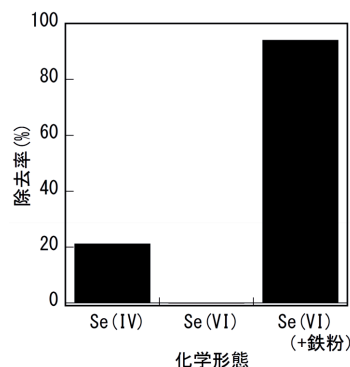


図13 担持物による Se 除去に対する価数及び鉄添加の影響

(VI) はほとんど除去されない。しかし、鉄粉を併用すると Se (VI) は94%除去された。これは、Se (VI) が鉄粉により還元され Se (IV) になり、さらに酸化水酸化鉄担持物だけでなく追加した鉄粉の表面でも Se が除去されているためと考えられる。ただし、実際の PRB 等で使用する場合、鉄粉は錆びて粒子同士が固着し透水性が著しく低下する可能性があるため、さらなる検討が必要であると考えられる。

3.4 酸化水酸化鉄担持物による透水性の検討

透水性を確認するため酸化水酸化鉄担持物及び珪砂を充填したカラムに純水を 1 mL/h の流量で長期間通水した。線速度は空隙率等からの計算から 1.39 cm/h である。この流速で約 12 ヶ月連続通水したところ目詰まりや送圧上昇による問題は認められなかった。その後カラムを分解し、充填されていた担持物を確認したところ、全く目詰まりや粒子同士の固着等は認められなかった。これより、本資材は長期間安定して透水性を維持できることがわかった。ただし、この資材は担持体表面に酸化水酸化鉄層が覆う構造であり、寒冷地での使用時には凍害等による剥離等の懸念があり、劣化度合いなどさらなる検討が必要であると考えられる。

4. まとめ

- (1) As, Se 汚染土壌処理を念頭に安価な素材である鉄系化合物試薬資材について検討した結果、鉄粉、四三酸化鉄、酸化第二鉄、酸化水酸化鉄により As (III), Se (IV) の除去が可能で、酸化水酸化鉄が最も除去性能が高いことがわかった。
- (2) PRB 等での使用を念頭に透水性を有する資材が必要であることから、酸化水酸化鉄を珪砂の表面に担持させた資材を試作し、各種 As 及び Se 除去試験を行ったところ、As (III 及び V), Se (IV) については除去可能で、設計に必要な酸化水酸化鉄単位量に対する各元素についての除去量も明らかになった。さらに、酸化水酸化鉄に対しての除去量は As (III) > Se (IV) であること、及び濃度平衡に達するまでには 4 h 程度の時間が必要であることがわかった。また、Se (VI) については本資材単独では除去されないが、鉄粉を混合して使用することで除去可能となった。
- (3) PRB を念頭に、本資材と珪砂を混合して実際の土壌を模したカラムを試作し、長期間の通水性試験を行ったところ、線速度 1.39 cm/h において、少なくとも約 12 ヶ月間は目詰まりや粒子の固着がなく使用できることがわかった。

謝辞

本研究で使用した純水・超純水製造システム、ICP 発光分光分析装置、ICP 質量分析装置は、競輪の補助を受けて整備

されました。記して感謝いたします。

引用文献

- 1) 垣原康之・野呂田晋・高橋良 他：北海道における自然由来有害物質の分布状況，地質研究所調査研究報告第 41 号，(2014)
- 2) 納篤：JOGMEC の新たな鉱害防止への取り組み－鉱害環境情報交換会資料－平成 19 年 12 月 4 日，(2007)
- 3) United States Environmental Protection Agency: Permeable Reactive Barrier Technologies for Contaminant Remediation, EPA/600/R-98/125, p.1-7, (1998)
- 4) David W. Blowes・Carol J. Ptacek・Shawn G. Benner, et. al.: Treatment of inorganic contaminants using permeable reactive barriers, Journal of Contaminant Hydrology, 45, p.123-137, (2000)
- 5) 富田恵一・若杉郷臣：土壌中の六価クロム還元処理の基礎検討，北海道立総合研究機構工業試験場報告，No.316, p.163-166, (2017)
- 6) 地学団体研究会・地学事典編集委員会編：増補改訂地学事典, p.573, (1981)
- 7) 並木博編：詳解工業排水試験方法 [JIS K 0102:2013] 改訂 5 版, p.507, (2014)

熱交換器にスケールの固着が生じる源泉からの熱回収

白土 博康, 藤澤 拓己, 保科 秀夫

Heat Recovery from a Hot Spring where Scale can Easily Stick to a Palisaded Heat Exchanger Combined with Plastic Pipes

Hiroyasu SHIRATO, Takumi FUJISAWA, Hideo HOSHINA

抄 録

樹脂製熱交換器を用い、熱交換器にスケールを固着させる源泉から熱回収し、給湯を予熱するシステムを導入した。熱交換器の熱交換量は、熱交換器に固着したスケール厚みに相関があると考えられ、定期的な除去が必要であることが明らかになった。スケール除去方法として、濃塩酸1時間浸漬、排水を数回繰り返して、スケールを溶解処理する手法を確立した。給湯エネルギーに対する熱交換システムの日別の寄与率は概ね40%以上であり、省エネルギー性の高いシステムとなった。

キーワード：樹脂製熱交換器、温泉熱、熱交換量、スケール、濃塩酸処理

報告する。

1. はじめに

北海道は積雪寒冷地であり、全国と比較してその給湯、暖房負荷が大きく、熱エネルギーを効率的に利用することは非常に重要である。特に、現在未利用なエネルギーを活用することができれば、環境に対する負荷を大きく軽減することが可能となる。

この未利用エネルギーの一つとして温泉施設の源泉や排湯熱がある。本研究は、温泉水を熱交換するにあたって、強酸性の温泉水でも腐食せず、付着物質を容易に洗浄可能な樹脂製柵状浸漬形熱交換器（以下、樹脂製熱交換器）を開発するとともに、温泉、浴場施設の源泉または排湯熱を回収する熱交換システムについて提案し、施設の省エネルギー化、経営改善に貢献することを目的としている¹⁻⁶⁾。汚れを有する排湯を用いた熱回収については、既に実用化しており、既報^{2-4,6)}で報告済みである。現在その次の取組として、本樹脂製熱交換器のさらなる活用を目指して、特に熱回収が困難と考えられる熱交換器にスケールを固着させる源泉からの熱回収を試みている。本報では、システムの概要や熱交換器へのスケール固着、熱交換器の熱交換量・熱通過率に対するスケール固着の影響、スケール除去方法、システムの熱交換量について

2. 熱回収する源泉の概要

実験フィールドは自治体が管理するA温泉施設とした。当該温泉の源泉は海水の1.3倍の塩分濃度である国内でも珍しい泉質であり、源泉の温度は約60℃、揚水量は180L/min程度である。この源泉を入浴に適した温度とするために、熱交換器を用いて、温度を低下させるとともにその熱を回収して給湯・暖房に利用する手法が考えられるが、本源泉中に含まれる豊富な二酸化炭素とカルシウムイオンが結晶化し、炭酸カルシウムの堆積物（以下スケールと呼ぶ）となって熱交換器表面に厚く析出する課題がある（図1）。一般的に使用されるプレート熱交換器（図2）はプレート同士を圧着して使用するので、熱回収の際に頻りに流路の閉塞を引き起こすことから、これまで熱回収は行われていなかった。そのため、浴用に利用するために、樋での空冷や、差し水等により、源泉水を冷却、調温していた。



図1 配管・温泉槽の壁へ固着したスケールの外観

事業名：短期実用化研究開発

課題名：温泉施設における樹脂製熱交換器を用いた給湯予熱システムの施工と評価、評価と維持管理

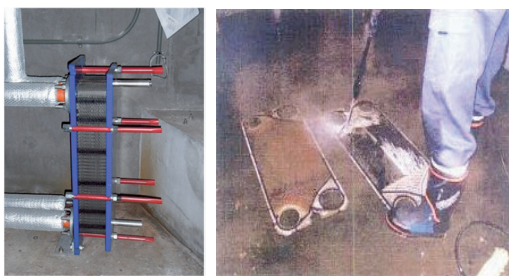


図2 プレート熱交換器の外観（左）と
プレートの解体洗浄の様子

3. 熱交換システムの概要

3.1 システムの概要

図3に新たに導入した熱交換システムの模式図を示す。熱交換器を利用して源泉を冷却するとともに、その熱を井水の予熱に活用して給湯に用いるシステムである。

一般に温泉の源泉は、エアを含んでいることも多く、源泉汲み上げ用ポンプの空回りを防ぐことが必要である。また、汲み上げシステムの凍結を防止する必要もあり、源泉は浴場の営業時間外でも汲み上げられている。本施設では熱交換器への大量のスケールの固着と熱交換器の腐食防止の観点から、これまで報告した樹脂製熱交換器を採用している。給湯需要がない時でも、樹脂製熱交換器、金属製のプレート熱交換器（以下プレート熱交換器と呼ぶ）、及びそれらを繋ぐ配管内部の熱媒（不凍液）と、蓄熱槽、プレート熱交換器、及びそれらを繋ぐ配管内部の熱媒（井水）を常時循環させ、蓄熱槽に蓄熱するシステム（間接熱交換型）³⁾を採用した。給湯需要があると井水が蓄熱槽、貯湯槽を経て、浴場で使用される。井水は貯湯槽でバックアップボイラーにより60℃以上に加温される。

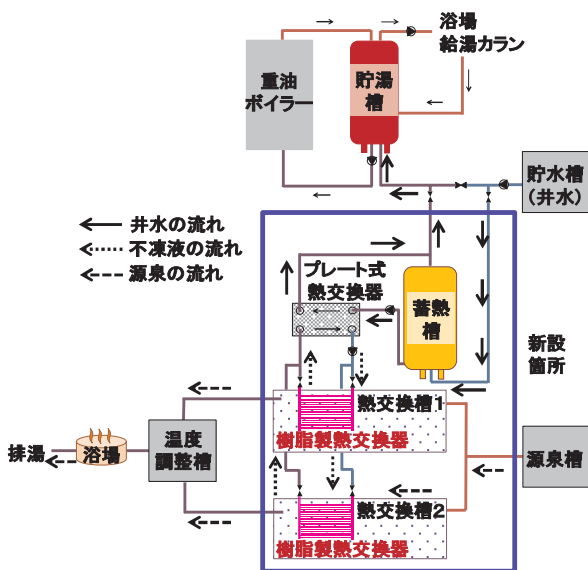


図3 熱交換システムの模式図

3.2 導入した樹脂製柵状熱交換器

図4に導入した樹脂製熱交換器の概要図を示す。熱交換器の材質はポリプロピレンである。φ27 mmの上下のヘッダ管に20mmピッチで孔を開け、そこにφ13mmの細管を50本熱融着させ、柵状のユニットとした。これを9枚または8枚上部のヘッダ管（連通管と呼ぶ）で連結したものを組み合わせ、合計17枚配置した構造とした。源泉を2つに分岐した2つの槽のそれぞれにこの熱交換器を一つずつ導入した。

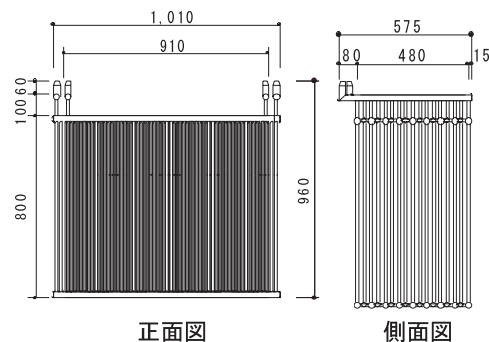


図4 樹脂製熱交換器の概要図

3.3 熱交換槽、熱交換器の設置

図5に熱交換槽に熱交換器を導入した状況を、図6に熱交換槽に源泉を導入した状況を示す。熱交換槽として内寸2,510×680×1,160（高さ）mmのFRP製水槽を2つ作製し、その中に図4の熱交換器を一つずつ導入した。樹脂製熱交換器とプレート熱交換器間の配管、蓄熱槽とプレート熱交換器間の配管は塩化ビニル管で接続し、塩化ビニル管と樹脂製熱交換器はテーパネジ留めとしており、継手も含めて熱交換器はすべて樹脂製である。本施設では2018年度当初から試験的に熱交換を行い、11月6日に熱交換器を新設して本格的に運用した。

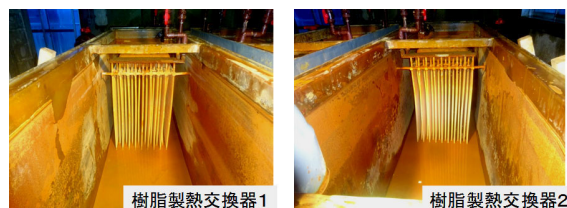


図5 熱交換槽に熱交換器を導入した状況
（導入1ヶ月後）

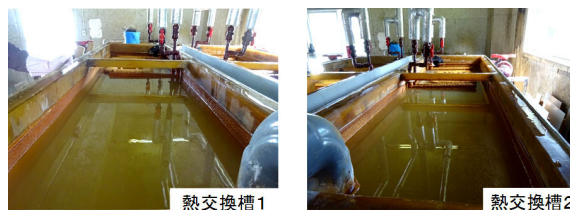


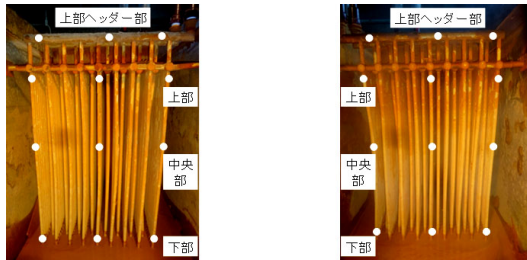
図6 熱交換槽に源泉を導入した状況

4. 源泉熱利用給湯予熱システムの導入評価

4.1 評価方法

4.1.1 熱交換器へのスケールの固着

樹脂製熱交換器へのスケールの固着については、2～5週間毎に熱交換器の源泉槽側の側面部のヘッダ管、細管の厚みをノギスで測定することにより、スケール厚みの経時変化を求めた。計測箇所を図7に示す(白丸印)。



樹脂製熱交換器1 樹脂製熱交換器2
図7 スケール厚みの計測箇所

4.1.2 熱交換器の熱交換量、熱通過率

表1に樹脂製熱交換器の熱交換量、熱通過率に関する測定の概要を示す。測定間隔は1分とした。樹脂製熱交換器の熱交換量、熱通過率はそれぞれ式(1), (2), (3)で求めた。

$$q_{ex} = C_{p_{anti}} \times \rho_{anti} \times f_{anti} \times (T_{out} - T_{in}) \quad (1)$$

$$q_{ex} = K \times A \times \Delta T \quad (2)$$

$$\Delta T = (\Delta T_{inlet} - \Delta T_{outlet}) / \ln (\Delta T_{inlet} / \Delta T_{outlet}) \quad (3)$$

4.1.3 熱交換温度、熱交換システムの熱交換量

表2にプレート熱交換器の一次側出入口不凍液温度、二次側出入口水温、熱交換システムの熱交換量に関する測定の概要を示す。測定間隔は1分とした。また、時間別の熱交換システムの熱交換量 $q_{hour\ system}$ を(4)式で定義して評価した。

$$q_{hour\ system} = \sum_{n=1}^{60} \{ C_{p_w} \times \rho_w \times f_{w\ system} \times (T_{w\ system} - T_{w\ tank}) \} / 60 \quad (4)$$

表1 樹脂製熱交換器の熱交換量、熱通過率に関する測定の概要

測定箇所	測定器
樹脂製熱交換器入口不凍液温度	シースT熱電対
樹脂製熱交換器出口不凍液温度	シースT熱電対
樹脂製熱交換器-金属製プレート熱交換器間の不凍液の循環流量	超音波流量計
熱交換槽入口源泉温度	シースT熱電対
熱交換槽出口源泉温度	シースT熱電対

表2 プレート熱交換器出入口不凍液・水温度、熱交換システムの熱交換量に関する測定の概要

測定箇所	測定器
プレート熱交換器一次側入口不凍液温度	シースT熱電対
プレート熱交換器一次側出口不凍液温度	シースT熱電対
プレート熱交換器二次側入口水温	シースT熱電対
プレート熱交換器二次側出口水温	シースT熱電対
源泉温度(熱交換槽入口、出口)	シースT熱電対
貯水槽の井水水温	シースT熱電対
貯水槽から熱交換され蓄熱槽を経て貯湯槽へ導入される井水水温	シースT熱電対
貯水槽から蓄熱槽を経て貯湯槽へ導入される井水の通水流量	電磁流量計

4.1.4 日別の熱交換システムの熱交換量、寄与率

表3に日別の熱交換システムの熱交換量、寄与率に関する測定の概要を示す(表2と重複する箇所あり)。測定間隔は1分とした。蓄熱槽から熱交換され貯湯槽へ導入される井水、浴場へ導入される給湯水の日別の平均温度をそれぞれ $T_{day\ ave\ w\ tank}$, $T_{day\ ave\ w\ system}$ として(5), (5)'式で定義して評価した。また、日別の熱交換システムの熱交換量 $Q_{day\ sum\ system}$ 、ボイラーによる日別の熱供給量 $Q_{day\ sum\ boiler}$ をそれぞれ(6), (6)'式で、日別の施設の給湯熱供給量 $Q_{day\ sum\ hot\ water}$ を(7)式で、施設の給湯熱供給量に対する熱交換システムの寄与率を(8)式で定義して評価した。

$$T_{day\ ave\ w\ tank} = \sum_{n=1}^{1440} (f_{w\ system} \times T_{w\ tank}) / \sum_{n=1}^{1440} f_{w\ system} \quad (5)$$

$$T_{day\ ave\ w\ system} = \sum_{n=1}^{1440} (f_{w\ system} \times T_{w\ system}) / \sum_{n=1}^{1440} f_{w\ system} \quad (5)'$$

$$Q_{day\ sum\ system} = \sum_{n=1}^{1440} \{ C_{p_w} \times \rho_w \times f_{w\ system} \times (T_{w\ system} - T_{w\ tank}) \times 60 / 1000 \} \quad (6)$$

$$Q_{day\ sum\ boiler} = \sum_{n=1}^{1440} \{ C_{p_w} \times \rho_w \times f_{w\ boiler} \times (T_{w\ boiler\ outlet} - T_{w\ boiler\ inlet}) \times 60 / 1000 \} \quad (6)'$$

$$Q_{day\ sum\ hot\ water} = Q_{day\ sum\ system} + Q_{day\ sum\ boiler} \quad (7)$$

$$\text{熱交換システムの寄与率[\%]} = Q_{day\ sum\ system} / Q_{day\ sum\ hot\ water} \times 100 \quad (8)$$

表3 日別の熱交換システムの熱交換量、寄与率に関する測定の概要

測定箇所	測定器
貯水槽の井水水温	シースT熱電対
貯水槽から熱交換され蓄熱槽を経て貯湯槽へ導入される井水水温	シースT熱電対
貯水槽から蓄熱槽を経て貯湯槽へ導入される井水の通水流量	電磁流量計
ボイラーから出湯される、またはボイラーに戻る井水水温	シースT熱電対
ボイラーで加温される井水の循環流量	超音波流量計
浴場へ導入される給湯水温	シースT熱電対

4.2 評価結果と考察

4.2.1 熱交換器へのスケールの固着

図8に熱交換器を新設した11月6日以降の熱交換器に固着したスケール厚みを示す。樹脂製熱交換器1,2ともに上部ヘッダ部、上部細管部には時間経過とともに厚いスケールが固着する傾向にあるが、中央部、下部ではスケールは薄い。本熱交換器を導入した他の施設では熱交換槽の下部に温泉水を吹き出し、熱交換後上部から排出する構造としている(図

9)が、本施設では熱交換槽に源泉を導入する配管にもスケールが厚く固着する傾向にあるため、脱着を容易とするように熱交換槽の上部へ吹き出す構造としている(図10)。このため、源泉流れが上部中心になっていると考えられる。なお、スケール厚みが前回の測定時よりもやや低下する場合もあるが、熱交換槽から源泉を抜き、スケール厚みを測定する際に、熱交換器表面が冷却され、スケールの一部が剥がれることが原因と考えられる。

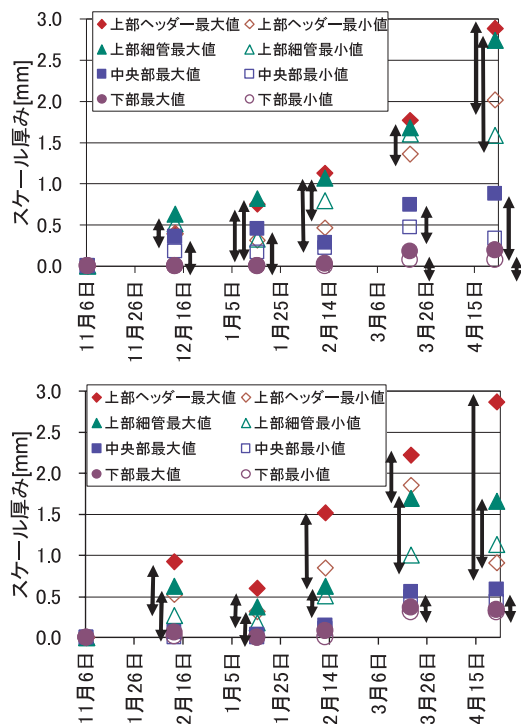


図8 スケール厚みの経時変化
(上；樹脂製熱交換器1, 下；樹脂製熱交換器2)

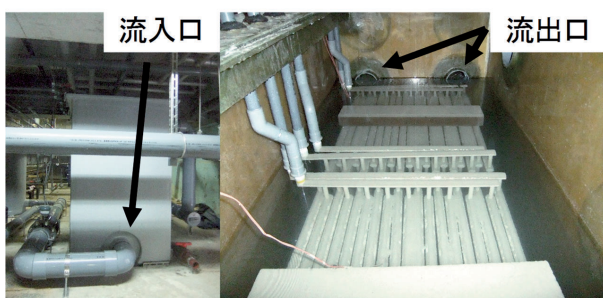


図9 他の温泉施設における温泉水の熱交換槽への流入・熱交換槽からの流出



図10 本施設における温泉水の熱交換槽への流入

4.2.2 熱交換器の熱交換量, 熱通過率

図11に樹脂製熱交換器1の11月6日以降の熱交換量を、図12に熱通過率を代表して示す。それぞれ分かりやすいように1日の平均値で示した。また、4月23日にスケール除去を行い、後述するように完全にスケール除去できたことから、図11、図12では5月末までのデータを掲載した。1日平均の熱交換量, 熱通過率は3月中旬から大きく低下傾向にある。その原因は図8との比較から、熱交換器に固着したスケール厚みの相違にあると考えられる。本熱交換器の熱通過率は3月中旬以前においても、基礎データ取得時(65~73W/m・K)⁴⁻⁶⁾と比較してやや低い、4.2.1項で記載したように源泉流れの影響があると推察される。

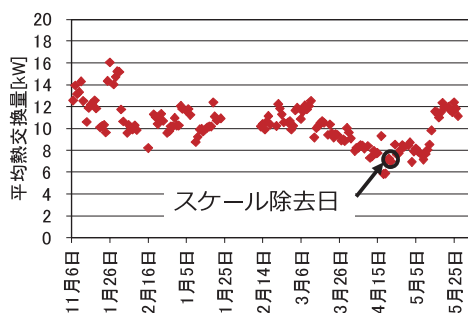


図11 樹脂製熱交換器1の一日平均の熱交換量

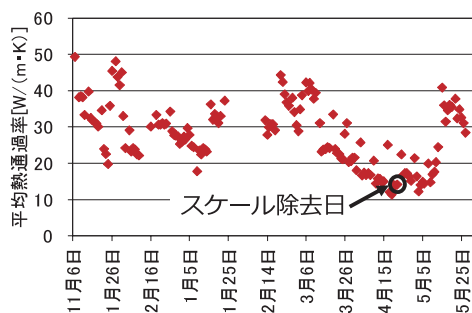


図12 樹脂製熱交換器1の一日平均の熱通過率

4.2.3 熱交換温度, 熱交換システムの熱交換量

図13に例として12月23日におけるプレート熱交換器の一次側出入口不凍液温度, 二次側出入口水温, 熱交換槽出入口源泉温度を、図14に貯水槽の井水, 蓄熱槽で熱交換され貯湯槽へ導入される井水水温, 熱交換システムの熱交換量を示す。給湯需要がない4時頃までは、プレート熱交換器一次側, 二次側ともに温度が上昇した。プレート熱交換器二次側入口には蓄熱槽の下部からの水が循環・流入していることから、蓄熱槽の水は4時頃までに47℃程度まで昇温された。5時過ぎに大きな給湯需要があると蓄熱槽下部の温度が下がり、プレート熱交換器二次側温度が大きく低下した。それとともにプレート熱交換器周りの他の温度は低下した。浴場の営業時間である10時から21時にかけては、プレート熱交換器二次側温度入口・出口温度から、蓄熱槽下部の水が35~36℃まで加温され

ていた。営業時間後は給湯需要がないことから、再びプレート熱交換器一次側、二次側ともに温度が上昇し、蓄熱槽内の水の温度が回復(加温)されるのが確認できた。貯湯槽導入温度は、6時までは高いが、それ以降は蓄熱槽内の水温が低下するのに伴い、徐々に低下した。営業時間内(10:00~21:00)は熱交換量と給湯需要がバランスされ、33~36℃程度となっていた。時間別の熱交換量は大きく変動しているが、給湯需要が大きく変動することが主な理由と考えられる。この日の1日の平均の熱交換量は28kW、2400MJ/日の熱を源泉から取得できた。

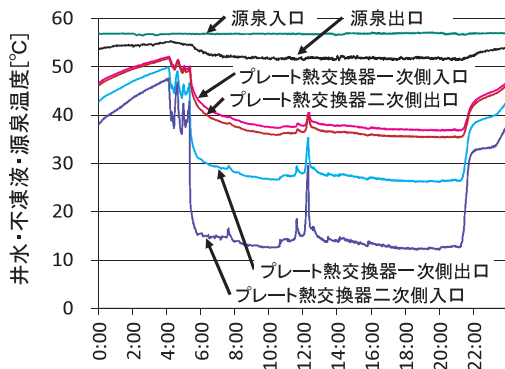


図13 代表日における各温度

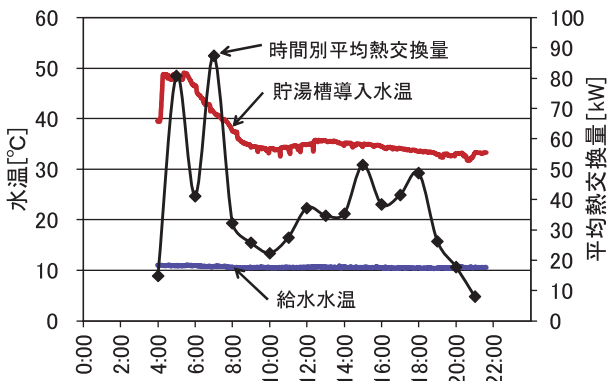


図14 代表日の井水水温、熱交換システムの熱交換量

4.2.4 日別の熱交換システムの熱交換量、寄与率

図15に日別の給湯量(ここでは、貯水槽から熱交換され貯湯槽へ導入される井水の量を指す)、日平均の各水温(貯水槽井水水温、貯水槽から熱交換され貯湯槽へ導入される井水水温、ボイラーからの出湯水温)を、図16に日別の熱交換システムの熱交換量、施設の給湯熱供給量に対する熱交換システムの寄与率を示す。いずれも施設の工事等でシステムが通常運転していない12月11日から18日までを除いている。貯水槽から熱交換され貯湯槽へ導入される井水水温は、休館日である火曜日に40℃以上となり、水曜日以降温度が低下して再び火曜日に回復する。この原因は蓄熱槽の容量が設置スペースの関係で小さく、夜中に蓄熱した熱量が日中に枯渇し、回復していないことが原因と考えられる。また、3月中旬以降、図11の平均熱交換量の低下に伴い、貯湯槽へ導入される井水

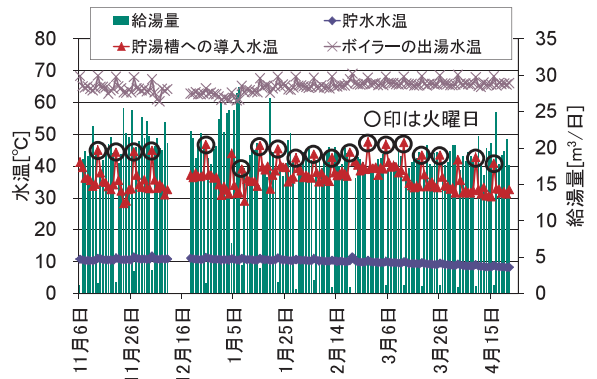


図15 日別の給湯量、日平均の各水温

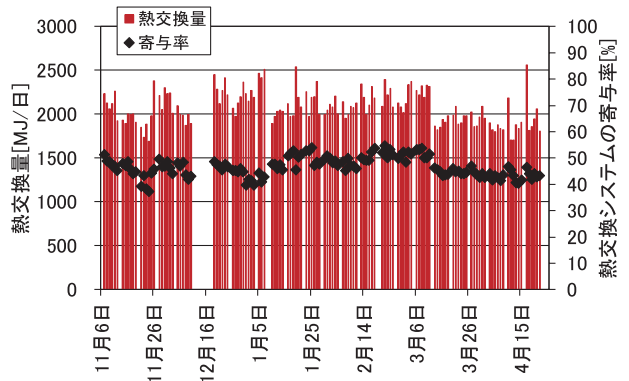


図16 日別の熱交換システムの熱交換量、寄与率

水温の低下が見られた。施設の給湯熱供給量に対する熱交換システムの寄与率は、多くの日で40%を超え、50%以上の日も見られるなど省エネルギー性の高いシステムとなった。

5. 熱交換器に固着したスケールの溶解処理

熱交換器に固着したスケールを除去する方法を種々検討した結果、20 vol% の濃塩酸に最大1時間浸漬し(図17)、排水することを数回繰り返す手法を確立し、スケール除去マニュアルにまとめた。図18に4月23日に実施した(5ヶ月半使用)濃塩酸処理前後の樹脂製熱交換器1の写真を示す。処理を数回繰り返す理由は、濃塩酸浸漬直後は反応速度が速いことが、大量の二酸化炭素の発生により確認できるが、時間経過とともにその発生量は低下し、反応速度が遅くなることによる。



図17 濃塩酸に浸漬した熱交換器



図18 濃塩酸水によるスケールの溶解

(左：濃塩酸水処理前(5ヶ月半使用)，右：処理後)

以降，図11の平均熱交換量の低下程度を鑑み，本施設では半年に1回濃塩酸処理を行うこととした。

6. おわりに

樹脂製熱交換器を用い，熱交換器にスケールを固着させる源泉からの熱回収，給湯を予熱するシステムを導入した。以下に得られた知見をまとめる。

- (1) 熱交換器の熱交換量は，熱交換器に固着したスケール厚みに相関があると考えられ，定期的な除去が必要である。
- (2) 濃塩酸1時間浸漬，排水を数回繰り返して，スケールを溶解処理する手法を確立した。
- (3) 給湯における熱交換システムの日別の寄与率は概ね40%以上であり，省エネルギー性の高いシステムとなった。

参考文献

- 1) 白土博康他：空気調和・衛生工学会学術講演会論文集，vol.2, pp.141-144, (2014)
- 2) 白土博康他：空気調和・衛生工学会学術講演会論文集，vol.2, pp.157-160, (2015)
- 3) 白土博康他：空気調和・衛生工学会学術講演会論文集，vol.2, pp.233-236, (2016)
- 4) 白土博康他：北海道立総合研究機構工業試験場報告，vol.315, pp.43-56, (2016)
- 5) 白土博康他：空気調和・衛生工学会論文集，vol.2, pp.21-31, (2016)
- 6) Hiroyasu Shirato et al.: Proceedings of GRAND RENEWABLE ENERGY2018, O-He-3-1, (2018)

記号

q	：(瞬時の)熱交換量	[kW]
q_{ex}	：樹脂熱交換器の熱交換量	[kW]
$q_{hour\ system}$	：時間別の熱交換システムの熱交換量	[kW]
C_p	：熱媒の比熱	[kJ/(g・K)]
ρ	：熱媒の密度	[kg/L]
f	：熱媒の循環または通水流量	[L/s]

T	：温度	[K]
K	：樹脂製熱交換器の熱通過率	[W/(m ² ・K)]
A	：樹脂製熱交換器の内表面積	[m ²]
ΔT	：対数温度差	[K]
n	：時間	[min]
Q	：日別の熱交換量	[MJ/日]
Q_{system}	：日別の熱交換システムの熱交換量	[MJ/日]
Q_{boiler}	：日別のボイラーによる熱供給量	[MJ/日]
$Q_{hot\ water}$	：日別の施設の給湯熱供給量	[MJ/日]

添え字

ex	：樹脂製熱交換器
anti	：不凍液
out	：樹脂製熱交換器から流出する不凍液
in	：樹脂製熱交換器へ流入する不凍液
inlet	：熱交換槽へ流入する源泉と樹脂製熱交換器へ流入する不凍液
outlet	：熱交換槽から流出する源泉と樹脂製熱交換器から流出する不凍液
hour	：1時間平均
system	：熱交換システム(給湯予熱システム)
w	：給湯用井水
w tank	：貯水槽内の井水
w system	：貯水槽から熱交換され貯湯槽へ導入される井水
day	：日
ave	：平均
day sum	：日別(積算)
boiler	：ボイラー
hot water	：浴場への給湯水
w boiler	：ボイラーで加温される井水
w boiler outlet	：ボイラーから出湯される井水
w boiler inlet	：ボイラーに戻る井水

中温度域における直接接触熱交換式潜熱蓄熱システムの研究

藤澤 拓己, 白土 博康, 富樫 憲一, 平野 繁樹, 保科 秀夫

Study on Direct-contact Heat Storage System using Erythritol as a Latent Heat Storage Material

Takumi FUJISAWA, Hiroyasu SHIRATO, Kenichi TOGASHI,
Shigeki HIRANO, Hideo HOSHINA

抄 録

約100~250℃の中温度域の未利用熱の活用を目指し、熱輸送媒体にシリコンオイル、蓄熱材にエリスリトールを用いた潜熱蓄熱装置を試作した。高温のシリコンオイルを蓄熱装置に流入させ、装置内のエリスリトールを融解状態にすることで、蓄熱が可能であることを確認した。また、融解状態のエリスリトールに低温のシリコンオイルを流入させて、蓄熱した熱を回収し利用することが可能であることを確認した。さらに蓄熱操作、放熱操作時の蓄熱材の融解・凝固挙動を把握した。

キーワード：潜熱蓄熱、直接接触熱交換、未利用熱

1. はじめに

日本の工場排熱量の7割以上が100~250℃の中温度域の温度の排熱とされており¹⁾、この温度域の排熱の活用が省エネルギー推進に効果的だと考えられる。蓄熱技術は、そのような工場排熱や太陽熱などの未利用熱を活用する際に課題となる「時間」の差異や、「場所」の不一致による熱損失を軽減する技術の一つである。

主な蓄熱方式に、顕熱蓄熱、潜熱蓄熱、化学蓄熱がある。顕熱蓄熱では、物質の比熱と温度差の積である顕熱を利用する。潜熱蓄熱では、蓄熱材の固相-液相間の相変化時の潜熱を利用する。化学蓄熱は、化学反応時の反応熱を利用する。一般的に、単位質量あたりの貯蔵熱量である蓄熱密度の大きさは、化学>潜熱>顕熱の順だが、化学蓄熱は蓄熱材の劣化や装置への腐食性、化学反応の制御など課題が多いため、本研究では潜熱蓄熱を選択した。

潜熱蓄熱技術は、蓄熱材の固相-液相間の相変化に伴って吸収又は放出される熱(潜熱)を利用する技術で、単位質量あたりの貯蔵熱量が大きい蓄熱方式である。また、相変化している間は融点付近の温度を保つため、温度を保持できる時間が長い。潜熱蓄熱に関しては、長年研究が進められている

が²⁾、固相の熱伝導率が低いという伝熱における課題などがある。この課題を改善する方法の一つとして、たとえば直接接触式の熱交換が検討されている³⁾。一般に、熱交換器を用いて熱輸送媒体と蓄熱材の熱移動を行う間接触式が用いられるが、放熱時には熱交換器周囲に蓄熱材が凝固し熱抵抗となる。一方、熱交換器を用いずに熱輸送媒体と蓄熱材を直接接触させて熱移動を行う直接接触式では、熱媒が次々流入し熱交換するため、蓄熱材が熱抵抗となりづらく、蓄熱材自体の流動により熱移動が促進される。デメリットとして蓄熱材が流出する危険性があるが、本研究では高い熱交換効率を持っている直接接触式を選択した。それぞれの熱交換方式のイメージを図1に示す。

本研究では、100℃以上の温度の熱利用を目的とした潜熱蓄熱装置を試作し、基礎的な蓄熱・放熱特性を把握したので、以下に報告する。

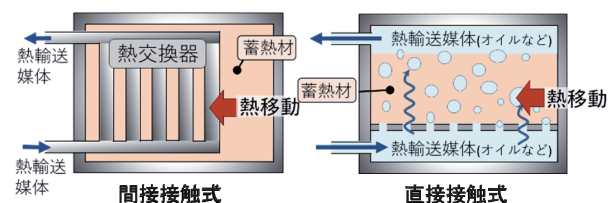


図1 熱交換方式のイメージ

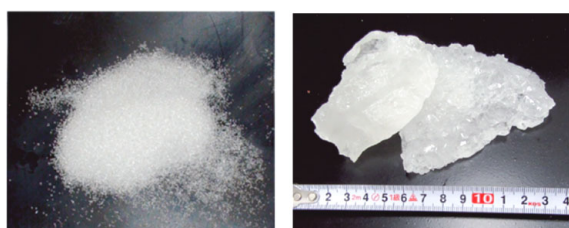
事業名：職員研究奨励事業

課題名：中温未利用熱活用のための直接接触熱交換式潜熱蓄熱システムに関する研究

2. 試験方法

2.1 蓄熱材(エリスリトール)

本研究では蓄熱材としてエリスリトールを用いた。エリスリトールの写真を図2に、物性を表1に示す。エリスリトールは糖類の一種で、果物やキノコ類、ワインや清酒、醤油などの発酵食品に含まれる安全な食品素材である⁴⁾。融点は118℃、融解潜熱量は約320kJ/kgであり、この潜熱量は1kgの水を25℃から100℃まで温度上昇させる熱量に相当する。また、熱輸送媒体に使用したシリコンオイルに溶解しない特徴を持っている。



白色結晶粉末 融解→凝固後の固体

図2 エリスリトール写真

表1 エリスリトールの物性

化学式	C ₄ H ₁₀ O ₄
分子量	122.12 g/mol
特徴	耐熱(150℃まで)、低吸湿、安全(ワインや果物に含まれる)、シリコンオイルに不溶
融点	118℃
融解(凝固)潜熱量	320 kJ/kg

2.2 蓄熱装置

2.2.1 装置の概要

試作した蓄熱装置の概略図を図3に示す。蓄熱装置は蓄熱材を投入した蓄放熱槽、熱輸送媒体の温度調整槽(高温側・低温側)、放熱用熱交換器、ポンプ、流量計で構成し、それぞれをSUS304配管で接続し、グラスウールで断熱した。温度調整槽では、電気ヒーターと攪拌機で熱輸送媒体であるシリコンオイル(以下、Oilという)の温度調整を行った。蓄熱材は蓄放熱槽内に投入し、Oilをポンプで循環させる仕組みとなっている。

2.2.2 蓄放熱槽

蓄放熱槽の写真を図4に示す。蓄放熱槽は観察用に、外径φ200mm、高さ400mmの耐熱ガラス管を用いた。蓄放熱槽下部にはφ1.6mmの孔が多数空いた多孔板を設置しており、Oilが下部より流入し、蓄熱材との直接接触により熱交換し

た後、蓄熱材とOilの密度差と相互不溶性を利用して、Oilのみを上部から回収する仕組みである。蓄放熱槽内の蓄熱材温度とOil温度はT型シース熱電対で測定し、蓄熱材温度は中心部の高さ10mm、100mmの位置、Oil入口温度は多孔板の下部、Oil出口温度は蓄放熱槽上部のOil送出配管内を測定点とした。

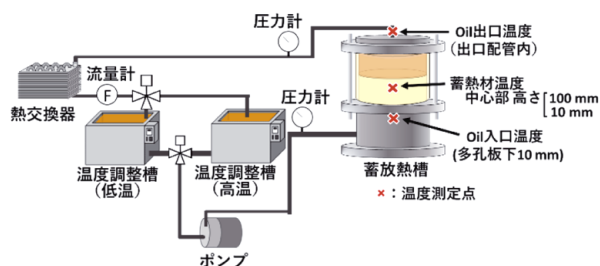


図3 蓄熱装置概略図

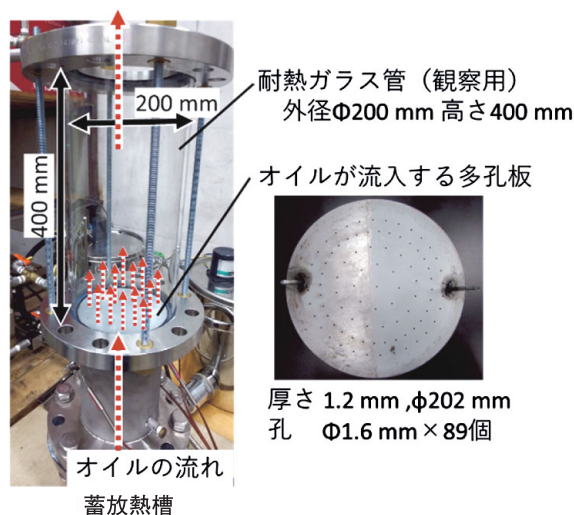


図4 蓄放熱槽写真

2.3 実験と放熱量計算

2.3.1 蓄放熱実験

蓄熱操作として、蓄放熱槽にエリスリトール固体4kgを投入し、高温用温度調整槽で145℃に加熱したOilを蓄放熱槽内に流量1L/minで流入させて、蓄放熱槽内のエリスリトールを完全に融解させた。その後、放熱操作として、低温用温度調整槽で55℃に調整したOilを流量1L/minで流入させて蓄熱材から放熱を行った。蓄熱時及び放熱時の装置を流れるOilの動きと蓄熱材の状態変化のイメージを図5、図6にそれぞれ示す。

2.3.2 放熱量計算

放熱実験時のOil出入口温度差とOilの流量、比熱、密度から放熱量 \dot{Q} を(1)式で定義して計算した。測定間隔は1秒とした。また、Oil出口温度が130℃から100℃になるまでの各測定時間における放熱量の合計を累計放熱量 Q_c として(2)

式で定義して計算した。

$$\dot{Q} = f_{oil} \times \rho_{oil} \times c_{p_{oil}} \times (T_{out} - T_{in}) \quad (1)$$

$$Q_C = \sum_{t=t_{130}}^{t_{100}} \{f_{oil} \times \rho_{oil} \times c_{p_{oil}} \times (T_{out} - T_{in})\} \Delta t \quad (2)$$

※ t_{130} は、 $T_{out} = 130^\circ\text{C}$ (403K) となった時間、 t_{100} は、 $T_{out} = 100^\circ\text{C}$ (373K) となった時間とする。

- \dot{Q} : 放熱量 [W] (J/s)
- Q_C : 累計放熱量 [J]
- f_{oil} : Oil 流量 [ml/s]
- ρ_{oil} : Oil 密度 [g/ml]
- $c_{p_{oil}}$: Oil 比熱 [J/(g·K)]
- T_{out} : Oil 出口温度 [K]
- T_{in} : Oil 入口温度 [K]
- Δt : 測定間隔 [s]

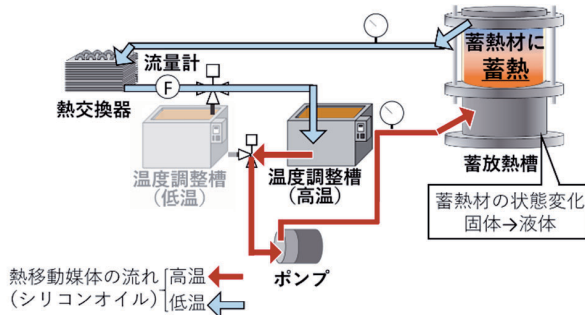


図5 蓄熱時のシリコンオイルの流れ

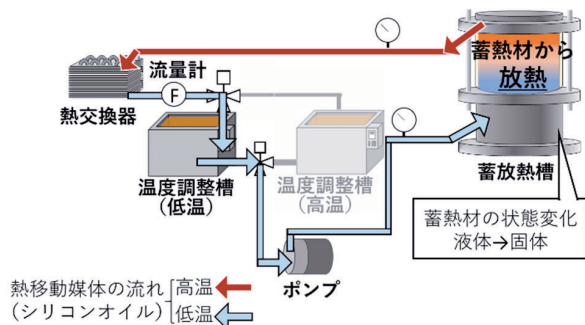


図6 放熱時のシリコンオイルの流れ

3. 実験結果と考察

3.1 蓄熱

図7に、Oil温度調整槽設定温度 145°C 、Oil流量 1 L/min の条件における、蓄熱時の各温度測定点の温度経時変化を示す。また、蓄熱材の融解状況写真を図8に示す。Oil入口温度が上昇するにしたがって蓄熱材(高さ 10 mm)の温度が上昇し、その後、エリスリトール融点である 118°C で一部の融解が始まると蓄熱材温度は融点付近で温度上昇が緩やかになった。経過時間 25 分 の蓄熱材画像より、エリスリトールの一部

が融解してオイル液滴周りを包んだ泡状になっていることが観察された。経過時間 55 分 の画像より、蓄熱材下部の融解が進んでいることが観察され、その時間の蓄熱材(高さ 10 mm)の温度は融点よりも高くなった。経過時間 70 分 を過ぎると蓄熱材(高さ 100 mm)の温度が融点付近で横ばいとなったため、この位置の融解が進んでいると考えられる。経過時間 85 分 の画像を見ると蓄熱材下部の融解は完了し、蓄熱材(高さ 100 mm)付近より上部位置に固体のエリスリトールが残っていることが見られた。経過時間 110 分 の画像を見ると、エリスリトールが全て融解し、蓄熱が完了していることが確認された。

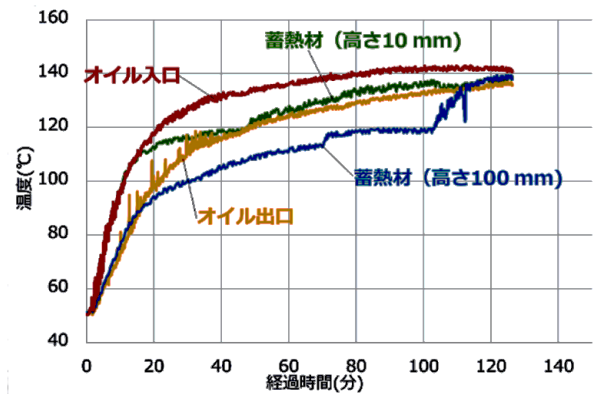


図7 蓄熱時の温度経時変化

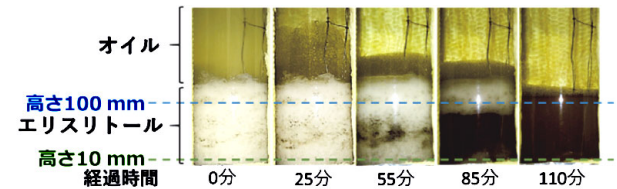


図8 蓄熱時の蓄熱材融解状況

3.2 放熱

図9に、Oil温度調整槽設定温度 55°C 、Oil流量 1 L/min の条件における、放熱時の各温度測定点の温度経時変化を示す。また、蓄熱材の凝固状況写真を図10に示す。Oil入口温度が低下すると蓄熱材の温度が低下し、経過時間 10 分 程度でエリスリトールの融点である 118°C 付近で横ばいとなった。経過時間 10 分 の画像を見ると、蓄熱材上部にエリスリトールの凝固体が形成されていることがわかる。凝固が進む際には、まず、Oilとエリスリトールの境界面付近で凝固体の層が形成された後、その下部の融解状態のエリスリトール中に細かい固体が生じて、上昇と下降を繰り返しながら、細かい固体が積み重なっていく様子が観察された。Oilとエリスリトールの境界面付近に、Oil液滴と液体状のエリスリトールで形成された液泡が生じるため、その液泡部分で熱交換が進み、Oilとエリスリトールの境界面付近で凝固体が形成されると考えられる。

経過時間15分では、下部の凝固が進んでいる様子が確認され、経過時間30分では、さらに凝固領域が拡大しており、グラフから蓄熱材温度が融点よりも低くなっていることが確認された。

次に、Oil入口温度とOil出口温度を見ると、経過時間15分以降には50～60℃程度で流入したOilが、蓄熱された熱を受け取ることによって、昇温されて蓄放熱槽から送出されており、最大で55K程度の温度上昇が確認された。しかし、経過時間12～25分のOil出口温度と蓄熱材温度を比較すると、蓄熱材温度が融点付近の高い状態であるにもかかわらず、Oil出口温度は低い状態となっており、熱移動が速やかに行われていない可能性がある。

糖アルコール類を蓄熱材とし、シリコンオイルを熱輸送媒体とする直接接触式潜熱蓄熱では、放熱時に流入するオイルの流路周りに、円筒状の凝固体が形成されることが報告されている³⁾。本実験においても、Oilの流路周りに柱状の凝固体が形成された(図11)。このOil流路周囲に形成された凝固体が、Oilの拡散と熱移動を阻害している原因の一つであると考えられる。速やかな熱移動のため、今後Oil流入の方法やOil流入多孔板の改良などを検討する必要がある。

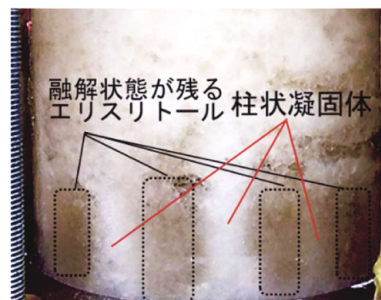


図 11 放熱時の凝固途中に観察された柱状凝固体

3.3 放熱量

本研究では、100℃以上の熱利用を想定しているため、放熱時のOil出口温度が130℃から100℃になるまでの各測定時間における放熱量を合計すると約1670kJであり、蓄熱材の顕熱量、潜熱量、Oil顕熱量から計算した理論値の約78%であった。蓄熱材中に、熱が回収しきれていない部分があると考えられるため、より効率のよい熱交換を行うための改良が必要であると考えられる。

4. まとめ

試作した潜熱蓄熱装置を用いて、高温のシリコンオイルを流入し、蓄放熱槽内のエリスリトールを融解状態にすることで、蓄熱が可能であることを確認した。また、融解状態のエリスリトールに低温のシリコンオイルを流入させることで、蓄熱した熱の回収が可能であることを確認した。さらに、本試作装置を用いた際のエリスリトールの融解・凝固挙動を把握した。

謝辞

本研究を進めるにあたり、岡山大学堀部明彦教授にご助言、ご協力頂きました。心より感謝致します。

参考文献

- 1) 未利用熱エネルギー革新的活用技術研究組合 技術開発センター：産業分野の排熱実態調査報告書(2019)
- 2) 鈴木 洋他：潜熱蓄熱・化学蓄熱・潜熱輸送の最前線，シーエムシ出版，251PP.，(2016)
- 3) 堀部明彦・春木直人・頃末英之：混合潜熱蓄熱材を充填した直接接触蓄熱槽の凝固・融解特性，日本機械学会2013年度年次大会講演論文集，G061043(2013)。
- 4) 早川幸男他：良くわかる食品新素材，食品化学新聞社，684PP.，(2010)

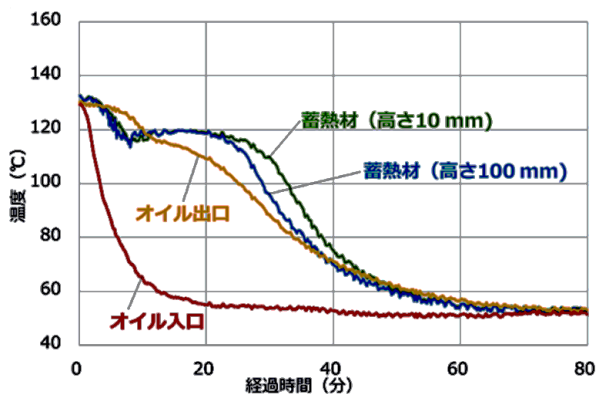


図 9 放熱時の温度経時変化

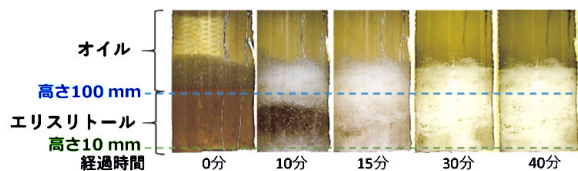


図 10 放熱時の蓄熱材凝固状況

イオン液体を用いたチタンの窒化処理に関する研究

坂村 喬史, 斎藤 隆之

Study on Nitriding Processing of Titanium using Ion Liquid

Takashi SAKAMURA, Takayuki SAITOU

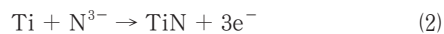
キーワード：イオン液体，チタン，窒化処理，電気化学

1. はじめに

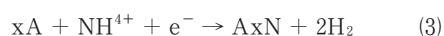
窒化チタンTiNは高硬度，高耐食性，耐摩耗性に優れた素材であり，工業的利用としては，切削工具及び金型などへのコーティングとして施され，耐摩耗性の高強度な部材として，また樹脂素材の離型性向上のために利用されている。

窒化チタンの成膜方法はイオンプレーティングのような物理蒸着法(PVD)やイオン注入法など表面窒化法が用いられるが，これらの方法では装置構成が複雑であり，複雑形状への成膜には適さず，また窒化処理に800℃以上の高温を要するなどの問題点がある。これらの問題解決に向けた新しい窒化処理法として，電気化学プロセスによる窒化処理法が検討されている。

従来の陽極酸化法では水溶液を用いるため酸化物以外の成膜が困難であったが，2000年以降200℃以上の温度域で熔融塩を用いた窒化処理を行う方法が提案され^{1,2)}，非水液体を用いた窒化処理の可能性が示されている。後藤らの論文では³⁾，反応(1)のように450℃の熔融塩中で窒素ガスを陰極にてナイトライドイオン化し，陽極にチタンを用い，反応(2)でナイトライドイオンの酸化により窒化チタンを成膜している。



また，伊藤らの特許では²⁾，熔融塩の種類にもよるが200℃以上の熔融塩にアンモニウム塩を溶解させ，窒化処理したい目的金属を陰極に用いることで，アンモニウムイオンの還元反応で窒化処理を行う方法である。反応は(3)で表わされ，窒化処理したい目的金属Aを陰極電極に用い，金属Aが還元されない電位，かつアンモニウムイオンが還元される電位で電気分解を行うことにより，電極上でアンモニウムイオンが還元され，窒化金属AxNとして形成するとされている。



本研究では，低い温度での窒化処理を可能としている，伊

藤らの特許²⁾を参考にし，熔融塩をイオン液体に置換することで，より低温の窒化処理法を検討した。

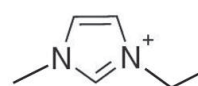
2. イオン液体の特徴

イオン液体は，塩などのようにイオンだけで構成されているにもかかわらず室温付近で液体状態の物質の総称である。下記にその特徴を示す。

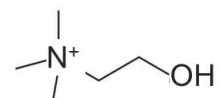
- ① 水素，炭素や窒素から構成されている。有機溶媒のように，水のように電流を流すことができる。
- ② -30～300℃の温度域でも液体である。
- ③ 難揮発性，この特徴を利用し宇宙空間のような真空中での潤滑剤としても研究されている。
- ④ 難燃性，耐熱性が高い化学物質である。
- ⑤ 種類によっては親水性，疎水性を示す。

このような特徴があるためイオン液体は水でもなく有機溶媒でもない「第3の液体」とも呼ばれている。イオン液体を構成する代表的な陽イオンと陰イオンの例を図1に示す。これら陽イオンと陰イオンの組合せや分子の構造により自由にイオン液体を設計することができ，これによって目的に合わせた物性を付与できることも特徴の一つであり，幅広い分野への応用展開が期待されている。例えば，難揮発性を利用し

(a)陽イオン



1-エチル-3-メチル
イミダゾリウムイオン



コリンイオン

(b)陰イオン

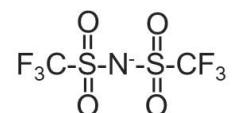
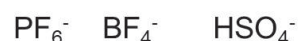


図1 イオン液体の (a) 陽イオンと (b) 陰イオンの例

事業名：経常研究

課題名：イオン液体を用いた金属窒化物系硬質皮膜形成法の開発

電子顕微鏡用のイオンコートに置き換わる前処理剤³⁾として、また、電気伝導性を利用し、電解質としてpHメーターの電極⁴⁾などが実用化されている。

3. 実験方法

3.1 イオン液体とアンモニウム塩の選定

イオン液体の選定は還元反応での窒化処理であることを考慮し、アルミニウムめっきの研究⁵⁾で実績のあるイミダゾリウム系イオン液体(図1(a)左側)と、クロムめっきの研究⁶⁾で用いられるコリン系イオン液体(図1(a)右側)を選定し、これらに対して、窒素源としてアンモニウム塩の組み合わせを検討した。

イミダゾリウム系イオン液体では1-エチル3-メチルイミダゾリウムアセテート(シグマアルドリッチ製、純度 $\geq 90\%$ 、融点： -20°C 、以下EMI-ace)、と酢酸アンモニウム(関東化学製、融点： 114°C 、純度 $\geq 97\%$)を用いた。酢酸塩同士の組み合わせを選択することで溶解すると考えたが、混合しただけでは酢酸アンモニウムは溶解しなかった。そこで、酢酸アンモニウムの融点以上まで加熱し溶解させ、液相状態において混合することで、室温まで冷却しても液相を保つことを見出した。酢酸アンモニウムの添加量は15, 30, 50mol%とした。

コリン系イオン液体は、塩化コリン(和光純薬製、純度 $\geq 95\%$ 、融点： 305°C 、以下ChCl)と酢酸アンモニウムを用いた。塩化コリンはイオン液体ではないが、酢酸アンモニウムとモル比1:1で混合すると、お互いの融点より低い 60°C 以上から溶解し合い、イオン液体を形成することを見出した。また、比較のため、酢酸(和光純薬製、融点： 15.5°C 、純度 $\geq 99.7\%$)を1:1のモル比で混合し 90°C で溶融させ調製したものも用いた。

3.2 電気化学測定と窒化処理

EMI-ace+酢酸アンモニウム混合イオン液体、及びChCl+酢酸アンモニウム混合イオン液体に対するチタン板の測定を行った。測定には、ポテンショスタット(HZ-5000、北斗電工製)を用い、擬似参照極(以下Q.R.E.)として $\Phi 3\text{ mm}$ の白金線、対極にはカーボンを用い、目的金属となる試料極にはチタン板(純度 $\geq 99\%$ 、神戸製鋼製)を試料サイズ $30 \times 10 \times 1\text{ mm}$ とし、電解部分が $10 \times 10\text{ mm}$ になるようにポリイミドテープにて被覆した。走査速度は 10 mV/sec とした。この結果に基づき、窒化処理である定電位電解の電位を決定し、定電位電解を1h行った。また、比較のためイオン液体に1, 5, 15, 60min浸漬させたものも行った。液温は、EMI-ace+酢酸アンモニウム混合イオン液体は 60°C 、ChCl+酢酸アンモニウム混合イオン液体では 90°C で行い、水分があると窒化反応が阻害されることを考え、実験はすべてグローブボックス

内でArガスを流し続けることで、湿度10%以下を保持して行った。また、チタン板は電解直前にリユーターで表面を機械研磨し酸化皮膜を取り除いた後、試験片として供した。窒化処理後の試験片の評価ではX線光電子分光装置(Axis-HSi, KRATOS製、以下XPS)により、チタン試験片表面の定量分析と深さ方向の化学状態分析を行い、電解中の電極表面に発生したガスをガスクロマトグラフ(Automass Sun, 日本電子製)により分析した。

4. 実験結果及び考察

4.1 イミダゾリウム系イオン液体を用いた窒化処理

4.1.1 イミダゾリウム系イオン液体のボルタモグラム

図2(a)に酢酸アンモニウム未添加液と、30mol%添加液でのボルタモグラムを示す。図2(a)の電位走査範囲は $-2 \sim 4\text{ V vs. Pt (Q. R. E.)}$ である。図2(b)には -1 V 付近のグラフの拡大図を示す。図より2つの曲線に大きな差は見られない結果となった。負への走査で -1 V あたりから電流が流れ始め、 -2 V の時点で -10 mA/cm^2 以下の電流が流れるが、正への走査では 4 V までの間で大きく電流が流れなかった。また、 -1 V 以下で流れる電流は、この2つの曲線が同じような挙動を示すことから、イオン液体のイミダゾリウムイオンの分解と考えられる。図2(b)からも、 -1 V 付近で電解が起こり始め、その際の電流値は2つの液で異なっているが、電解が起こり始める電位がほぼ同じであることから同じ反応と考えられる。

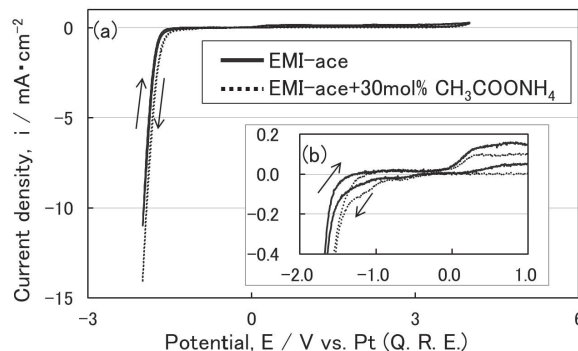


図2 (a)EMI-ace及び $\text{CH}_3\text{COONH}_4$ 添加液のボルタモグラム、(b) -1 V 近傍の拡大図

このボルタモグラムからはアンモニウムイオンの電解反応の電流は確認できていないが、窒化処理のための定電位電解を -1 及び -2 V で1h行った。電解後のチタン試験片の外観は、未電解と -1 V で電解を行った試験片は色の変化などは見られなかった。また、 -2 V で電解を行った試験片は若干の黄色い色味が付いたが、窒化チタンのような金色では無く、薄い皮膜が形成されたことによる干渉色と考えられる。図3にXPSを用いたTi2pとN1sの分析結果を示す。このス

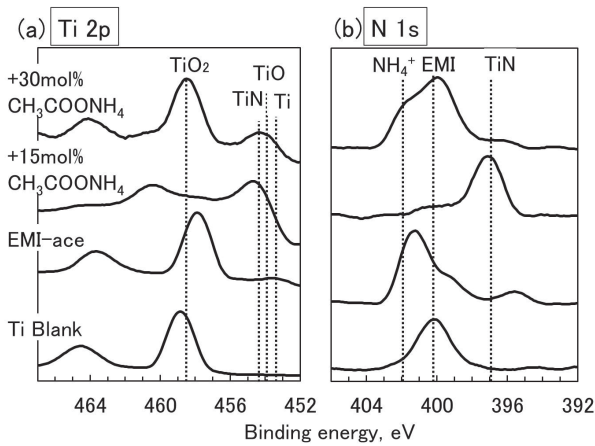


図3 各イオン液体を用い-1.0Vで電解処理を行った試験片のTi 2p(a), N 1s(b)のXPSスペクトル

スペクトルより、イオン液体に酢酸アンモニウムを15mol%添加し電解を行った試験片のみ、Ti 2p及びN 1sのスペクトルからTiNに相当するピークが確認された。しかし、-2Vで電解した試験片を含むそれ以外の試験片からはTiO、及びTiO₂に相当するピークしか確認できず、窒化チタンの生成は認められなかった。チタンが酸化したのは元々イオン液体に含んでいる水分や、ボルタモグラム測定によって、イミダゾリウムイオンと酢酸イオンが電解されて生成した水分によるものと考えられる。

4.1.2 イミダゾリウム系イオン液体への浸漬

15mol%酢酸アンモニウム添加液のとき、窒化チタンに対応するスペクトルのピークが確認できたが、図2のボルタモグラム測定結果からはアンモニウムイオンの還元反応に起因した電流値は確認できず、アンモニウムイオンの濃度を変えてもアンモニウムイオンの電解は確認できていない。そこで窒化チタンが形成されたのは、電解ではなく電解前の浸漬した瞬間から進行する表面反応の可能性を考え浸漬試験を行った。試験は30mol%酢酸アンモニウム添加液を用いチタン試験片を1, 5, 15, 60minで浸漬処理を行った。先の電解処理において30mol%酢酸アンモニウム添加液では窒化チタンの生成は認められなかったが、実験手順を見直し、新しくイオン液体を調合し、ボルタモグラム測定を行わずに浸漬試験に供した。

図4(a)に各時間浸漬処理を行った試験片のXPS分析結果を示す。図より、すべての試験片から窒化チタンに相当するN 1sのピークが確認できた。また、図4(b)に各浸漬時間の試験片とNの割合を示すが、全ての試験片においてNの割合は7%程度となり、浸漬時間によるNの割合の変化は確認できなかった。また、アルゴンエッチングを用いて、深さ方向の窒素の割合を調べた結果、浸漬時間60minの試験片は、SiO₂換算値で29nmの厚みであった。これより、60℃という

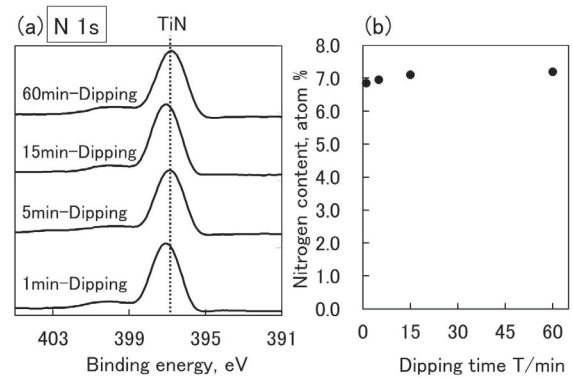


図4 (a) 各時間浸漬処理を行った試験片のXPSスペクトル, (b) Nの濃度と時間の変化推移

室温近傍である温度帯でアンモニウムイオンとチタンが反応し、窒化チタンを形成することが分かった。文献²⁾では、アンモニウム塩の添加量は0.1~3 mol%であるのに対して、イオン液体では15~50mol%添加し、アンモニウム塩が高濃度のため、低温化においても窒化反応が起きたと考えられる。

4.2 コリン系イオン液体を用いた電解及び浸漬による窒化処理

次にChCl+酢酸アンモニウム混合イオン液体を用いた、ボルタモグラム測定の結果を図5に示す。比較のため、ChCl+酢酸混合イオン液体を用いた結果も合わせて示す。この2つ曲線はイミダゾリウム系のときと異なり、電位を負への走査をしていくと、-0.5Vから還元電流が流れ始め、-1.8V近傍で還元電流のピークが確認された。その後、負の電位の増加に伴い負の電流値が増加した。ピーク以降の電流は、電解し続けることでイオン液体の色が褐色に変化したことから、コリンイオンの分解に起因するものと考えられる。また、-1.8V近傍で見られる還元電流であるが、その際にチタン試験片上に発生した気体を回収し、ガスクロマトグラフ分析を行った結果、アルゴン、酸素、窒素、水素が検出された。酸素と窒素はその割合から空気からの不純物と考えられるが、水素が検出されたことから、-1.8V近傍で還元反応はアンモニウムイオン及び水素イオンの還元に伴ったピーク電流であると考えられる。これらの結果より窒化処理のための定電位電解電位を-1.8及び-2.5Vとし1h行った。また、浸漬試験を1h行い比較した。

電解及び浸漬後の試験片は、色の変化は確認できなかった。図6にXPS分析結果を示す。図6(a)から、電解及び浸漬後の試験片表から、窒化チタンに相当するN 1sのピークが確認でき、未処理の試験片表面からは確認できなかった。また、浸漬後の試験片からはアンモニウムに起因するピークも確認された。窒化チタンに相当するN 1sのピークから、Nの割合を算出したものを図6(b)に示す。未処理の表面よりも、浸漬することでNの割合の増加が確認でき、また電解するこ

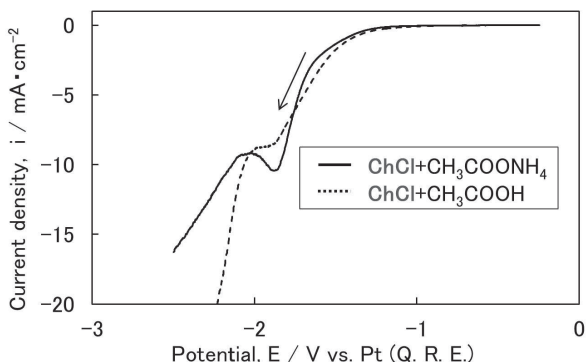


図5 ChClとCH₃COONH₄もしくはCH₃COOH混合イオン液体のボルタモグラム

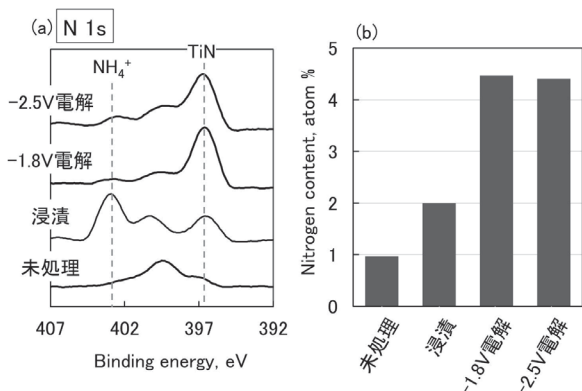


図6 各処理を施したチタン試験片の(a)XPS スペクトル, (b)スペクトルからナイトライドイオンのピークから算出したNの濃度

とで、さらにNが増加した。

この結果から、熔融塩を用いた手法と同様、イオン液体を用いた場合でもアンモニウムイオンを電解し、窒化反応を促進させることが見出され、電解によるNの増加は約2倍であった。しかし、-1.8Vと-2.5Vの電解条件では有意な差が見られなかったため、電位と窒化処理との相関は不明である。また、-2.5Vで電解した試験片を用い、生成した皮膜の厚さを調べるために、アルゴンスパッタでNの存在の深さ方向を分析した結果、SiO₂換算値で28nmの深さまで確認できた。

5. おわりに

低温の窒化処理のためのイオン液体としてEMI-ace+酢酸アンモニウム混合イオン液体と、ChCl+酢酸アンモニウムの混合イオン液体を見出した。イミダゾリウム系イオン液体で-1.0V、1h電解処理及び1h浸漬処理を行うことで窒化チタンの存在が確認された。また、その皮膜の厚さは1hの浸漬処理時間で、SiO₂換算値で29nmであった。コリン系イオン液体を用い、電解処理及び浸漬処理を行った試験では全ての試験片から窒化チタンの存在が確認され、電解処理を行うこ

とでNの濃度が浸漬処理の約2倍増加した。これらの結果から低温の窒化処理の可能性を見出した。

謝辞

本研究におきましてご協力、ご指導を頂いた、北海道大学工学研究院教授上田幹人先生に心より感謝の意を表します。

参考文献

- 1) T. Goto and Y. Ito, *Electrochimica Acta*, 43(1998), 3379-3384.
- 2) 特許第4471728号
- 3) ㈱日立ハイテクノロジーHP,
<https://www.hitachi-hightech.com/jp/science/products/microscopes/peripheral-equipment/ionic-liquid/>
- 4) 芝田学, *HORIBA "Readout"*, 40(2013), 59-63.
- 5) 上田幹人, 宇井幸一, *表面技術*, 60(2009), 491-496.
- 6) A. P. Abbott, *Chem. Eur. J.* 10(2004), 3769-3774.

装飾めっきを代替するスパッタリング成膜プロセスの開発

齋藤 隆之, 坂村 喬史, 土永 賢治*

Development of the Sputtering Deposition Process Replacing to Decorative Electroplating

Takayuki SAITOU, Takashi SAKAMURA, Kenji TSUCHINAGA*

キーワード：めっき, スパッタリング, 自動車外装部品, 耐久性, ステンレス

1. はじめに

樹脂基材への金属装飾は、特に耐久性が重視される自動車外装部品（フロントエンブレムなど）では、クロムを最外層とする複層めっきが用いられている。しかし前処理工程を含めて工程が非常に煩雑であり、有害な六価クロムなどを含む廃液を伴う。需要の大きな樹脂基材への金属装飾を道内で普及させるためには、有害物質の排出がなく、かつ工程が簡便な代替技術の開発が重要と考えられる。

薄膜の成膜方法にはめっき等のウェットプロセスの他、真空（減圧）装置内で行なうドライプロセスがある。スパッタリング（sputtering）、蒸着、CVD（Chemical Vapor Deposition）及びイオンプレーティング法など様々な種類があるが、特にスパッタリングと蒸着はガスも含めて廃棄物がほとんど排出されず、金属やセラミックスの成膜方法として広く普及している。さらにスパッタリングについては、材料を問わず供給物質とほぼ同一の薄膜が形成できる特徴がある。

本研究は、めっきと比較して操作が簡便なスパッタリングを用い、自動車外装部品の耐久性規格に適合する樹脂基材への金属成膜プロセスを開発することを目的とした。

2. スパッタリングとめっきの比較及び開発の方針

2.1 スパッタリングとめっきの比較

スパッタリングは、真空容器内に基材とターゲットと呼ばれる薄膜の供給物質を配置し、ターゲットにアルゴンガスなどのイオンを衝突させ、飛び出した粒子を基材に成膜する方法である。イオン化は高電圧で起こすが、このときプラズマが発生する。その飛び出した粒子の運動エネルギーが大きい

ため、基材の前処理が無くとも皮膜の密着性は高いとされる。

電気めっきは、金属イオンが溶解した溶液中に電極と基材を入れ、電解により基材に金属皮膜を形成する。基材が樹脂の場合、あらかじめ無電解めっきで導電性にする。また、皮膜の密着性を確保するため、最初に樹脂表面の表面粗化処理が必要である。自動車外装部品規格に適合するめっき工程例を簡略化して図1に示した。規格では密着性・耐食性と共に、耐摩耗性、耐ヒートサイクル性（温度の変動に対する耐久性）、耐洗剤性など多くの耐久性が求められる。これに適合するためこのような煩雑なプロセスが必要で、省略した洗浄等まですべて含めると数十工程にもなる。

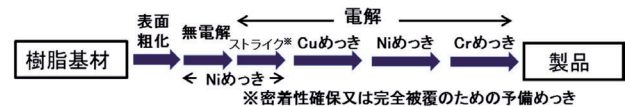


図1 自動車外装部品規格に適合するめっき工程例

本研究では、めっきと同等の金属光沢などの意匠性ととも耐久性を、スパッタリング単独で実現できるプロセスを目指した。特に密着性は薄膜で必須の特性であり、外装用という使用目的から耐食性も特に重要と考えられたため、これらを満たすべく二つの方針を立てて開発を行った。一つは経験的に金属密着性の良いABS樹脂上に、安価な金属皮膜を成膜し、最外層をスパッタリングによる透明な保護皮膜で覆う方法である。もう一つは、樹脂上に耐食性の高い金属を単独で成膜する方法である。前者を保護皮膜法、後者を単独金属膜法と呼ぶこととし、それぞれについて先行技術を調査し、これらを参考にさらに具体方針を設定した。

2.2 保護皮膜法での具体方針

金属皮膜の上に透明な保護皮膜を成膜すれば、意匠性を保ちながら耐食性向上が見込まれる。スパッタリング成膜可能で透明な材料としては、二酸化珪素（SiO₂）が主成分であるガラスが考えられるが柔軟性が乏しく、樹脂基材が変形した際に剥離する懸念がある。一方、有機高分子（ポリマー）は

* 上原ネームプレート工業株式会社, *Uehara Name Plate Industry Co., Ltd.

事業名：経常研究 他

課題名：めっき代替性能を有するスパッタリング成膜プロセスの開発

柔軟であり透明な材料も多く、耐食性も付与できることが期待される。有機高分子のスパッタリング成膜の研究は金属・セラミックスのように多くないが、例えば、ポリイミド (PI)^{1),2)} やポリテトラフルオロエチレン (PTFE)^{3),4),5)} を主として、ポリメタクリル酸メチル (PMMA)、ポリエチレン (PE) 及びナイロン 6 (PA6) 等の事例がある。特に PTFE はその誘電特性、光透過性および低摩擦性などからスパッタリングによる成膜に古くから関心が持たれて来たとされる⁴⁾。また成膜速度が、他の有機高分子と比べて非常に速い⁵⁾。そこで保護皮膜として、これらの特徴を持つ PTFE を利用することとした。

2.3 単独金属膜法での具体方針

この方法の樹脂基材には、ABS よりもより硬さや強度を有する PMMA とポリカーボネート (PC) を選定した。金属膜としては白金や金などの貴金属は耐食性が良いが、ターゲット材料が非常に高価である。また耐食性の高いニッケルやクロム単独も、貴金属ほどではないがやはり高価である。比較的安価でありながら、耐食性の高い金属としてはステンレス合金が挙げられる。ステンレスのスパッタリング成膜は研究例がいくつかあるが^{6),7)}、いずれも SUS304 のガラス基板への成膜である。樹脂基材へのステンレス成膜が可能としている企業の受託広告もあるが、研究報告はほとんど見受けられない。本研究では、樹脂基材へ複数のステンレス品種での成膜を実施した。

3. 実験

3.1 保護皮膜法

3.1.1 ABS へのスズ及び PTFE ターゲットでの成膜

基材は ABS (50×50×2 mm) とし、比較的安価な金属としてスズを選択した。スズはスパッタリングに頻りに利用され知見が多く、成膜速度は非常に速い。成膜にはキャノンアネルバ製の RF スパッタリング装置 SPF-332H を用いた。操作条件は、到達真空度：1～2×10⁻³Pa、投入電力：100W、ガス圧力 (Ar)：1 Pa、成膜時間：30sec であった。このときの膜厚は約 60nm である。なお、今後の実験では装置と到達真空度は今回とすべて同様である。

この皮膜上に、スパッタリング装置内で連続して PTFE を成膜した。PTFE ターゲットは市販されていないため、厚さ 1 mm のシート (ニチアス製：ナフロンシート) を円盤状 (直径 76.2mm) に切り取り、同直径のアルミ合金の円盤に貼り付けてターゲットとした。その際、通常の耐熱性両面テープでは熱伝導率が低く、ターゲット背面から冷却をしてもスパッタリング中に短時間で PTFE が焼損した。そこで、PTFE シートの貼付面をやすりで荒らした上で、導電性 (熱伝導性も有する) 接着剤で貼付して用いた。

さらにスパッタリング操作は、自己スパッタリング⁸⁾で行っ

た。これはターゲットを構成する原子 (分子) と同じ原子 (分子) からなるイオンがターゲットに衝突して生ずるスパッタリングで、化学反応が起こりにくい。図 2 に PTFE でのアルゴン圧力・投入電力とスパッタリングの関係を模式的に示した。スパッタリングはある投入電力以上では、アルゴンの供給を停止しても継続する⁴⁾。これが自己スパッタリングであり、揮発したターゲット分子のフラグメント (断片) が十分に発生することにより、アルゴンを絶ってもスパッタリングが続く。実験では、先ずアルゴン圧力を 10Pa、投入電力 100W 程度でスパッタリングを起こし、圧力を徐々に絞り最終的に完全に供給停止した。この上で、電力：80W、圧力：0.3Pa (自己スパッタリングによる圧力)、成膜時間：6 min で PTFE ターゲットによる成膜を行った。

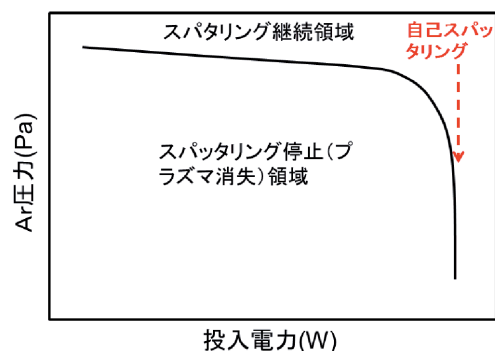


図 2 PTFE での Ar 圧力・投入電力とスパッタリングの関係

3.1.2 PTFE ターゲットによる皮膜の XPS 分析と結果

スパッタリングは原子 (分子) やフラグメント又はそれらの集合粒子が真空中を飛行して基板に沈着するため、高分子の分子構造がそのまま保たれるとは考え難い。そこで、PTFE ターゲットで成膜した皮膜について、X線光電子分光装置 (XPS) (島津/KROTOS 製：AXIS-HSi) で組成を分析した。試料は、ABS へスズを成膜した上にさらに PTFA 成膜した試料である (スズ PTFA 試料)。比較のため、PTFE シートのみも測定した。

いずれも表面からは、ふっ素と炭素のみが検出された。このスペクトル強度から組成を求めると、スズ PTFA 試料についてはふっ素：66、炭素：33 (Wt%) で、PTFE シートについてはふっ素：74、炭素：26 (Wt%) となった。PTFE の分子式 C₂F₄ から計算するとふっ素は 76Wt% で炭素は 24Wt% でありシートの分析値はこれにほぼ一致している。スズ PTFA 試料の分析値から、皮膜中のふっ素含有率はもとのシートよりやや減っていることが分かる。このことはもとのターゲット材料と分子構造が変化していることを意味する。しかし、保護皮膜は下地への耐食性付与が目的で、必ずしもターゲットと同一物質の成膜を意図していない。以後、自己スパッタリングで PTFE ターゲットから成膜された膜を、分子構造は完全に保たれてはいないが PTEF 膜と呼ぶことにする。

3.1.3 密着性と耐食性の評価

ABS上のスズPTFA 試料についてテープ試験で密着性を評価した。テープは幅25mm, 密着力が10N/cmのものを用い、皮膜面に強く貼り付けた後、約30度の角度で素早く引きはがし、状態を観察した。

耐食性評価は当場の複合サイクル試験機（スガ試験機製：CYP-90）で実施した。条件はJIS H8502「めっきの耐食性試験」中性塩水噴霧サイクル試験（8時間）に準拠し21サイクル（168時間）行った。試験後に、表面状態を目視評価した。

3.1.4 密着性の改善

結果の詳細は4章で示すが、ABS上のスズは密着性を有していたが、さらにスズPTFA 試料は上記のテープ試験で簡単にPTFA膜が剥離した。そこで2層の界面に中間層として、透明な樹脂であるナイロン6（PA6）のターゲットで成膜を行った。このときスパッタリングガスは窒素とした。条件は、投入電力：50W, ガス圧力（N₂）：0.4Pa, 成膜時間：5 minである。これによりABS上の膜の構成は、基材側からスズ→PA6 ターゲットによる膜→PTFE ターゲットによる膜となる。

3.2 単独金属膜法

3.2.1 ステンレスの選定と結果

スパッタリングは金属やセラミックスではターゲットと同一の皮膜を形成できるとされているが、合金の場合、スパッタリング率（イオンがターゲット物質に衝突したとき、衝突イオン1個あたりから放出されるターゲット物質の原子またはイオンの個数）の差により組成が変化する場合もある。これを確認するため、ステンレス3種類を選びABS（50×50×2mm）に成膜を行った。条件は、投入電力：100W, ガス圧力Ar：1 Pa, 成膜時間：5 min等とした。成膜した皮膜の組成は蛍光X線分析装置（堀場製作所製：XGT-5000）で測定した。結果をターゲットの組成と共に表1に示した。SUS304とSUS310Sではターゲットとほぼ同一組成の皮膜が形成され、SUS316についてはターゲット中の成分であるMoが皮膜から欠落していた。この結果から、皮膜の耐食性が最も高いと判断されるSUS310Sを以後の実験に用いた。

表1 各ステンレスのターゲットとABS上の皮膜の組成(%)

元素	SUS304			SUS316				SUS310S		
	Fe	Cr	Ni	Fe	Cr	Ni	Mo	Fe	Cr	Ni
ターゲット	73	18	9.2	72	16	11	1.7	55	23	22
皮膜	74	17	8.9	73	16	11	0.0	54	25	20

3.2.2 PMMAとPC基材へのステンレスの成膜と密着性向上

PMMAには実用的にめっきができないとされ、スパッタリングにおいても金属とは難密着性基材として知られている。PCも金属によっては直接スパッタリングをしても密着性に

乏しい。予備実験として平板なPMMA 基材にステンレスSUS310S, クロム, スズ及びアルミニウムをそれぞれ直接スパッタリングしても全く密着しなかった。PCにはスズ, クロムは密着したが、ステンレスやアルミニウムとは密着性が悪かった。これらの基材への密着性向上の前処理として、有機塗装を施す方法もある。またPMMA 基材への密着性付与のため、あらかじめ装置内でシロキサン結合（Si-O）を有する有機膜をCVD前処理した研究事例がある⁹⁾。

ステンレスをスパッタリング単独で密着させるため、基材にも皮膜中の鉄にも親和性が高いと期待される純カーボンのターゲットを用い、この中間層をアルゴンガスによるスパッタリングで導入した。これをプロセス1と呼び、その処理条件を図3に示した。また密着性の付与のため、基材を逆スパッタリングする方法が知られている。これは、通常はターゲットに負の電位を与えガスイオンを衝突させるが、極性を反転し基材にガスイオンを衝突させる操作をいう。ステンレス成膜に先立ちあらかじめ基材側に対しアルゴン, メタン, 純空気, 水素それぞれのガスでの逆スパッタリングを試みた。これをプロセス2とし、図4に示した。いずれの方法でもステンレス成膜した直後に、簡易的に幅25mmで密着力が10N/cmのテープの貼付-引きはがしで1次評価した。

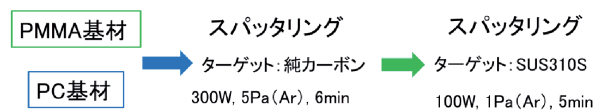


図3 プロセス1の処理条件

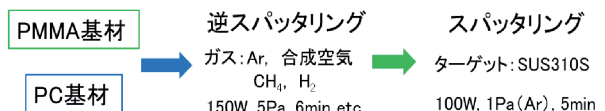


図4 プロセス2の処理条件

3.2.3 ステンレス皮膜の耐久性評価

ステンレスSUS310Sを成膜した2種類の基材の試験体について、自動車メーカーの自動車外装部品用規格（約10項目）のうち、最も重要と判断した以下の3つの耐久性試験を行った。

① 密着性

カッターナイフで、素地まで達する2mm間隔の5×5=25マスの基盤目状の切り込みを入れ、セロハンテープを密着させ面と約30度に保ち手前に引き剥がす。

判定基準：剥離しないこと

② 耐食性

腐食溶液（NaCl：4.0～6.0%, CuCl₂：0.26g/L, CH₃COOH：0.1～0.3%の水溶液）を50℃で噴霧する（JIS H8502のCASS試験）。

判定基準：32時間後に外観上異常がないこと

③ 耐ヒートサイクル性

【80℃×4時間→室温×0.5時間→-40℃×1.5時間→室温×0.5時間→50℃、湿度98%RH×3時間→室温×0.5時間→-40℃×1.5時間→室温×12.5時間】=合計24時間を2サイクル行う。

判定基準：サイクル終了後、異常がないこと

なお、耐食性についてはJIS H8502に複数の方法が規定されているが、ここで用いた自動車外装部品規格ではCASS試験を指定している。

3.2.4 前処理したPMMA表面のXPS分析

PMMAについてプロセス1及びプロセス2の水素処理後の表面について、XPSで表面分析を行った。装置は3.1.2項と同様である。

4. 評価結果と考察

4.1 保護皮膜法について

4.1.1 ABSへの成膜結果と密着性及び耐食性

ABS基材とABS基材にスズを成膜した試料を図5に示した。成膜後の金属光沢を判断し易いように、背景に間隔1cmのチェッカーフラッグ模様を配置している。



図5 ABS基材とスズを成膜した試料

スズの上にさらにPTFEのターゲットから成膜した試料(スズPTFE試料)の外観を図6に示した。膜はほぼ無色透明であったが、円環状の干渉模様はやや見られた。これは膜厚が可視光波長に近く、なおかつ厚さが不均一であるためと考えられた。

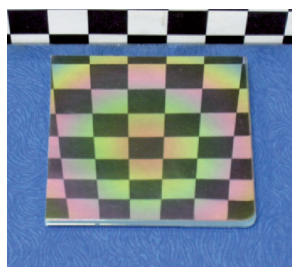


図6 スズPTFE試料例

次に耐食性試験の結果について示す。図5のABS基材にスズを成膜した試料と図6のスズPTFE試料は複合サイクル試験21サイクル(168時間)の結果、スズのみは激しく腐食しABS素地が部分的に露出したが、スズPTFE試料は全く変化せず、PTFE膜が下地のスズに耐食性を付与できることが分かった。最後に密着性の結果を示す。スズのみ成膜試料は、テープの貼り付け引きはがしでは全く剥離しなかった。しかしスズPTFE試料は、スズ皮膜を残して

PTFE膜が完全に剥離した。これはPTFE等のフッ素系ポリマーは、一般的に表面自由エネルギーが非常に低く、化学結合しない限り他の物質とは密着しにくいと考えられる。

4.1.2 ナイロン6によるPTFEの密着性改善と耐食性

前項の結果から、スズとPTFEの間に中間層を導入し密着性を高める物質を検討した。ナイロン6(PA6)は透明で、既に述べたようにスパッタリング成膜された事例がある。PTFEと同様にナイロン6シートからターゲットを作製し、窒素ガスでのスパッタリングにより中間層として導入した。この中間層導入試料はスズPTFE試料とほとんど変わらない外観であり、テープ試験でもPTFE層は剥離しなかった。スズのみ、スズPTFE試料及びこの中間層導入試料について複合サイクル試験を実施した前後の外観を図7に示した。中間層導入試料も、スズPTFE試料と同様に十分な耐食性が確認できた。

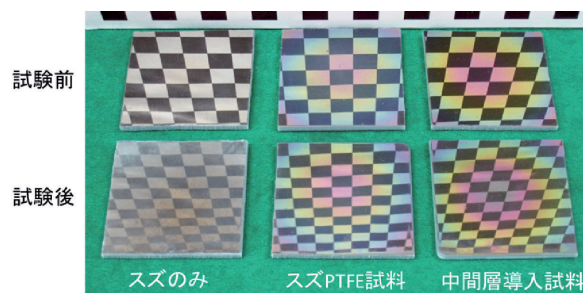


図7 3種類の試料の複合サイクル試験前後

4.2 単独金属膜法について

4.2.1 PMMAとPCへのステンレス皮膜の密着性

PMMA及びPCにプロセス1でステンレスSUS310Sを成膜した試料に、3.2.3項①のテープ試験を行った結果、いずれも剥離せず密着性を有していた。また、両基材にプロセス2の処理をした場合、逆スパッタリングで水素を用いたときのみ密着性を有していた。ただし、プロセス1,2とも処理時間が短すぎると密着が乏しくなるが、長すぎると基材が熱変形するため、3.2.2項で示した条件の最適化が必要だった。

プロセス1の場合、純カーボンの不活性なアルゴンでスパッタリングしているため、基材表面には炭素のみからなる層が成膜され、この層は基材中の炭素と分子間力で容易に密着できるだろう。その上に成膜するステンレスは鉄が主成分のため、ステンレスターゲットから飛び出した粒子の運動エネルギーによりこの層と反応し、鉄と炭素の化合物であるFe₃C等が生じ密着すると考えられたが、確認には至っていない。未処理のPMMA表面にステンレスが密着しないのは、その表面に水酸基(-OH)やカルボニル基(>C=O)が存在するためと思われる。プロセス2で水素による逆スパッタリングでのみ密着性が付与できるのは、水素による還元で酸素が引き抜かれて、炭素に富んだ表面が生成するためと考えられる。

4.2.2 ステンレス皮膜の耐久性評価結果

PMMA及びPCにプロセス1でカーボン中間層を導入したステンレス皮膜について、3.2.3項の自動車外装規格の耐久性試験結果を表2に示した。PMMAについては、基材自体の耐熱性が80℃程度のため、耐ヒートサイクル性は未実施である。それ以外の試験では、いずれの試験後も両基材とも十分な金属光沢を保ち、割れや剥離なども認められず、規格に適合した。

表2 カーボン中間層導入ステンレス皮膜の耐久性

	① 密着性	② 耐食性	③ 耐ヒートサイクル性
PMMA	○	○	—
PC	○	○	○

4.2.3 前処理したPMMA表面のXPS分析結果

未処理のPMMAを含めて、プロセス1,2で処理した表面のXPS分析を行った。まずワイドスペクトルを図8(a~e)に示す。比較のため、グラファイト(黒鉛)も測定を行った。a:未処理PMMAでは酸素と炭素が同程度の強度である。e:グラファイトは炭素のみから成るため酸素はほとんど検出されない。b:PMMAのプロセス1による1分処理では炭素を基準に相対的に酸素が少なくなり、c:プロセス1の6分処理分では非常に少なくなる。実際にはステンレスの十分な密着性は後者のみで得られている。プロセス1の処理時間とともに酸素が減少する結果は、4.2.1項で述べた炭素のみからなる層が生成していることに対応する。一方、d:プロセス2(水素6分処理)でも酸素強度は弱くなり、その相対強度はプロセス1の1分と6分処理の間である。従って、4.2.1項で推測したように炭素に富んだ表面が生成していると裏付けられる。

さらにXPSで価電子帯の測定を行った。価電子とは原子の最も外側の軌道の電子で、他の原子との結合に関与し、化合物の形態(状態)でスペクトル形状変化が大きい。具体的にはスペクトル横軸で概ね0~20eV付近である。図9に5つの試料の価電子帯スペクトルを重ねて示した。図でPMMA(未処理)の25eVを中心に強く認められるピークはO_{2s}軌道のスペクトルで価電子帯ではない。対応する範囲を、図に灰色で示した。グラファイトは炭素のみからなるため、この領域にピークは無く、18eVを中心として炭素のみの価電子ピークが広がっている。一方、PMMA(未処理)はそのO_{2s}の低エネルギー側にやや複雑な構造を有する酸素と炭素の価電子ピークがあり、グラファイトと比較して中心は明らかに低エネルギー側である。有機化合物どうして炭素、酸素及び窒素などの内核電子ピークのそれぞれの比較だけでは区別が困難でも、化合物ごとに価電子帯の形状が様々に異なりおたがいが区別できることが多く有用な情報を持つ。プロセ

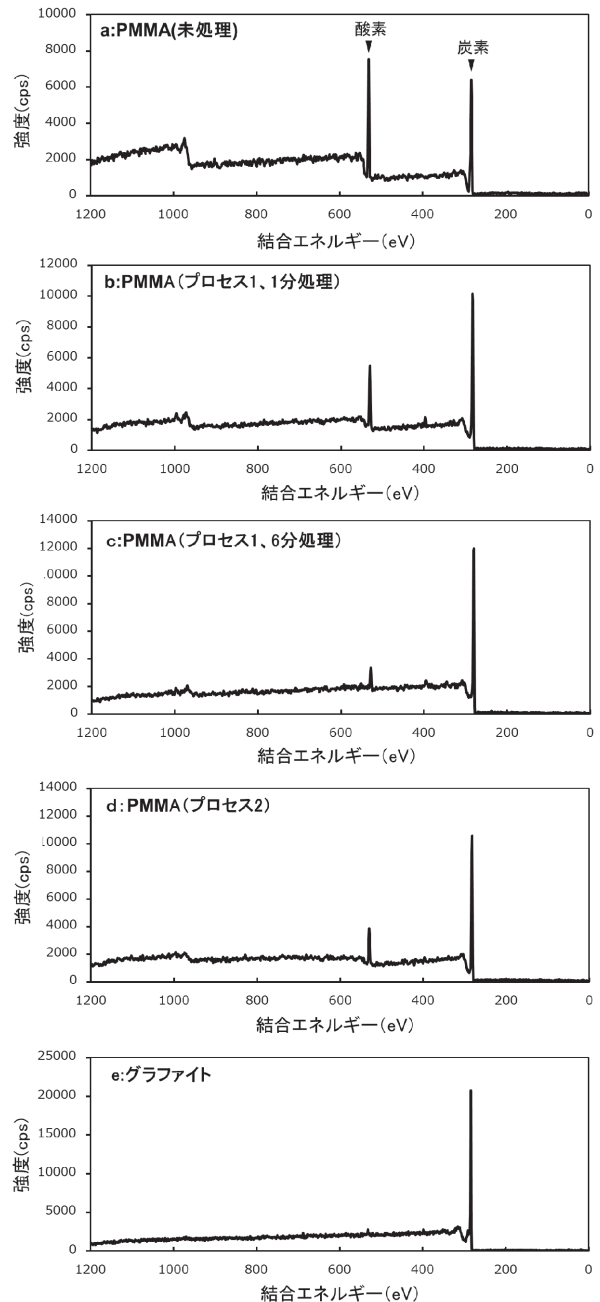


図8 PMMAとグラファイトのワイドスペクトル

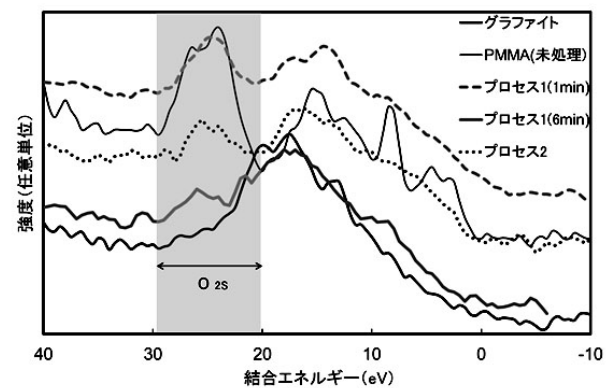


図9 PMMAとグラファイトの価電子帯スペクトル

ス1の1分処理で、 O_{2s} 強度がかなり小さく、6分処理ではほとんど見られなくなる。それと同時に、価電子帯スペクトルが明らかにシフトしてグラファイトにほぼ一致している。これは表面にグラファイトかそれに類似の化合物が形成されていることを意味する。プロセス2のスペクトルはこれらの中間的な O_{2s} 強度と価電子帯のシフト量であり、このことから炭素に富んだ層の形成が支持される。

5. 大型基材への成膜試作

PTFEを利用した保護皮膜法では、干渉模様が現れるとともに、耐摩耗性が金属表面より劣ることが考えられた。また、共同開発企業の生産実機のパルスDC電源方式では、非導電性の樹脂は原理的に成膜できないため、

実際にはステンレスによる金属単独膜法のみが利用可能である。そこで本法のプロセス1でドーム状の亚克力基材（高さ：2.5cm，外形：12cm）を用いて、



図10 金属単独膜法プロセス1の試作品

成膜した試作品を図10に示す。天井照明の反射などから分かるように、外観は十分な金属光沢を有しており、この程度の大きさで立体的な基材にも十分利用できる成膜プロセスであることが分かる。

6. まとめ

スパッタリング工程単独で、自動車外装用部品の耐久性規格に適合する樹脂基材上への金属成膜プロセス開発を進め、以下の結果を得た。

保護皮膜法について：

- (1) ABS上のスズにPTFEターゲットから自己スパッタリングで成膜した保護皮膜は、スズに耐食性を付与できたが、保護層は密着性に乏しかった。
- (2) スズと、保護層の間に中間層としてナイロン6ターゲットからの皮膜を導入すると、外観もほとんど変化せず密着性も向上した。
- (3) XPS分析から、PTFEターゲットからの保護皮膜は、PTFEに比べてふっ素の濃度がやや低く、分子構造もやや異なると見られた。

単独金属膜法について：

- (4) PMMAまたはPC基材へのステンレスSUS310S皮膜の密着性は、純カーボンターゲットからのArスパッタリングによるカーボン中間層を導入すると向上した。別法

として、ステンレスの成膜に先立って、基材を水素で逆スパッタリングした場合も同様だった。

- (5) PMMAまたはPC基材でカーボン中間層を導入したステンレスSUS310Sの成膜試料は、自動車外装規格の密着性と耐食性を、PC基材に関してはさらに耐ヒートサイクル性を満たすことができた。
- (6) PMMA基材のカーボン中間層成膜及び水素での逆スパッタリング試料の表面をXPS分析した結果、炭素に富んだ表面層が形成されていることが分かった。

今後、PMMAとPCへのステンレス成膜でカーボン中間層を導入したプロセスについて、生産実機を用いて実用化を進める予定である。このプロセスと基材を水素で逆スパッタリングするプロセス及び成膜した樹脂部材について、既に特許出願を行った。

引用文献

- 1) 林 利江, 福島 和宏, 菊地 直人ほか：ポリイミド・ターゲットのスパッタリングによる薄膜作製，表面技術，Vol.53, No.7, p.47-50, (2002)
- 2) 岩森 暁, 上村 彰宏：ターゲットにポリイミドを用いて作製したスパッタ高分子薄膜の摩擦・摩耗特性と銅基板の密着性（窒素ガスの効果），日本接着学会誌，Vol.42, No.3, p.89-96, (2006)
- 3) 山田 良穂, 永山 裕一, 田中 久一郎：PTFEスパッタ膜の摩擦耐久性，トライボロジスト，Vol.38, No.9, p.817-824, (1993)
- 4) Hynek Biederman: Organic films prepared by polymer sputtering, J. Vac. Sci. Technol. A 18(4), Jul/Aug, p.1642-1648, (2000)
- 5) 永山 祐一, 岩森 暁, 山田 良穂：高周波スパッタリングにより金属基板上に形成したポリテトラフルオロエチレン(PTFE)薄膜の機械的特性，真空，Vol.46, No.12, p.827-834, (2003)
- 6) 井上 尚三, 佐伯 俊明, 小寺澤 啓司ほか：SUS304鋼ターゲットを用いた非平衡マグネトロンスパッタ法によるステンレス鋼薄膜，日本金属学会誌，Vol.64, No.12, p.1218-1223, (2000)
- 7) 水谷 光克, 吉木 啓介, 生津 資大ほか：SUS304ターゲットを用いて作製したスパッタステンレス鋼薄膜の機械的性質，2016年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集，p.327-328, (2016)
- 8) 金原 繁：スパッタリング現象，p.86, (1984) 東京大学出版会
- 9) 市岡 聖菜, 吉牟田 利典, 徳田 敏ほか：樹脂上への高速スパッタ成膜機構の研究，島津評論，VOL.72, No.3-4, p.195-201, (2016)

鉛ガラス、プリント基板、炭酸カルシウム系廃棄物の溶融による金属回収

稲野 浩行, 富田 恵一, 堀川 弘善

Metal Recovery by Melting of Leaded Glass, Printed Circuit Board and Waste Containing Calcium Carbonate

Hiroyuki INANO, Keiichi TOMITA, Hiroyoshi HORIKAWA

キーワード：鉛ガラス、プリント基板、都市鉱山、ライムケーキ、貝殻

1. はじめに

パソコンやスマートフォンなどのプリント基板（図1）は天然鉱石よりも高濃度の金、銅、レアメタルなどを含有しているため、それらの廃棄物は都市鉱山と呼ばれ、そこからの金属回収が注目されている。廃電子機器は回収後、解体され、そのプリント基板は仮焼後、銅製錬所で各金属が取り出される。

一方、ブラウン管式テレビは解体後、ブラウン管が取り出され、さらに各部分に解体されるが、後部のファンネル部分には人体に有害な鉛が含まれている。図2にテレビから取り出したブラウン管の写真を示す。鉛ガラスは鉛の溶出による人体への害が懸念されるために、放射線遮断以外の用途ではほとんど使われなくなっており、ファンネルガラスの有効利用の方法はない。しかし、バッテリーの電極材料として世界的に鉛の需要は増加しており、ファンネルガラスからの鉛回収が乾式法¹⁻⁷⁾および湿式法^{8,9)}で検討されている。

当場ではブラウン管ファンネルガラスに融剤と還元剤を加えて溶融し鉛を金属として回収する技術^{10,11)}を開発し、さらには、プリント基板を加えて溶融することで、プリント基板に含まれる金、銀、銅、ニッケルを鉛と共に、ガラス質の残渣スラグから分離して回収する技術^{12,13)}を開発した。しかし、残渣スラグにはわずかに鉛が残留し、埋立基準、土壤環境基準以上の鉛溶出があるため、そのまま埋め立てることや、土木資材などのリサイクル品として有効利用することができない。鉛の溶出量は、残留する鉛濃度、鉛の化学状態、スラグ全体の化学的耐久性が影響してくる。特に融剤として炭酸ナトリウムを加える手法では、最終的な残渣スラグ中のナトリウム濃度が高くなりスラグの化学的耐久性が低下するため、スラグ中鉛濃度が低くても鉛溶出量が増える。その鉛の溶出を抑えるためには酸化加熱¹⁴⁾や塩化揮発¹⁵⁾などが提案されている。

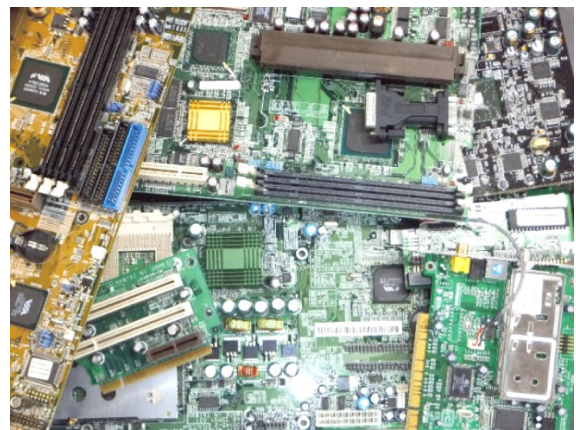


図1 プリント基板

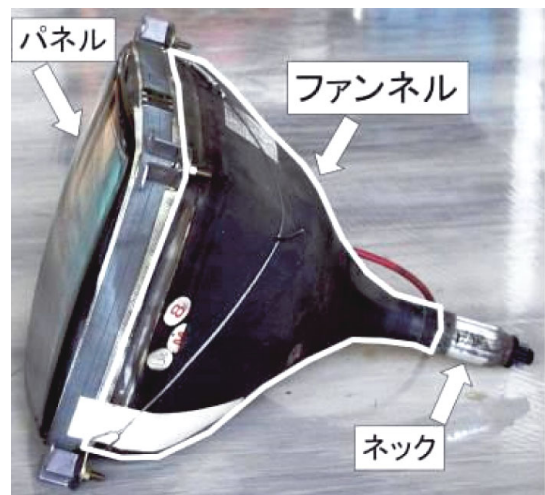


図2 ブラウン管

本研究では、残渣スラグからの鉛の溶出を低減させるために融剤としてカルシウム系の資材を使うこととした。残渣スラグ中のカルシウム濃度が増加することによりスラグの化学的耐久性が向上し鉛溶出が低減されることが期待できる。カルシウム系資材には、北海道で大量に発生する炭酸カルシウム含有廃棄物を使用し、コストダウンと廃棄物の有効利用を目指した。水産廃棄物であるホタテ貝殻や、製糖工程で発生

事業名：経常研究

課題名：金属回収残渣スラグの安定化に関する研究

する炭酸カルシウム汚泥のライムケーキを使い、ブラウン管廃ガラス、廃プリント基板、カルシウム含有廃棄物を組み合わせた金属回収の可能性を検討したので報告する。

2. 実験

2.1 試料

ブラウン管ファンネルガラスは、家電解体工場でファンネルガラスを破碎したときに発生した破碎くずのうち、開き目1mmの篩を通過したものを使用した。その蛍光X線分析値を表1に示す。プリント基板は、パソコンから取り出し、ファンやアルミニウム放熱板など大きな部品を取り除いてカッターミルで粗粉碎した後、凍結粉碎し開き目1mmの篩を通過し

酸化物	分析値 (mass%)
SiO ₂	49
Al ₂ O ₃	3.5
PbO	22
Na ₂ O	6.3
K ₂ O	8.4
MgO	1.6
CaO	3.8
SrO	1.5
BaO	1.8

表2 パソコンプリント基板粉碎物の蛍光X線分析値

元素	分析値 (mass%)
O	29
Na	0.13
Mg	0.57
Al	10
Si	17
S	0.48
Ca	11
Ti	0.45
Cr	0.19
Fe	5.3
Ni	0.26
Cu	8.2
Zn	0.31
Br	12
Ag	0.10
Sn	2.0
Sb	0.91
Ba	1.3

たものを使用した。その蛍光X線分析値(原子番号8, O以降)を表2に示す。プリント基板には、樹脂や、金属のAl, Siも含まれているので、プリント基板自体が鉛ガラス中のPbOに対しての還元剤となる。

貝殻は北海道で発生したホタテ貝殻を粉碎したものを使用した。ライムケーキは北海道内製糖工場で発生したものを使用した。

2.2 融剤の評価

貝殻およびライムケーキは化学成分分析、熱分析で評価した。

化学成分分析は蛍光X線分析法により行い、粉碎試料を塩化ビニールのリングに充填して加圧しペレット状にしたものを測定試料とした。測定には全自動蛍光X線分析装置(リガク製ZSX Primus II)を使用し、標準試料を用いないファンダメンタルパラメータ法によりオーダー分析を行い、原子番号11以上の元素について分析結果を酸化物mass%に換算した。

熱分析(TG/DTA)には示差熱重量同時分析装置(セイコーインスツルメンツ製EXSTAR TG/DTA6300)を用いた。白金製の測定容器に20mgの試料を充填し、昇温速度10°C/min、測定雰囲気はAir中(100ml/min)の条件で測定した。また、対照にはα-アルミナを用いた。

2.3 熔融試験方法

ファンネルガラス50gとプリント基板10gを基本原料として、それに融剤として貝殻またはライムケーキ25gを加えて混合した。還元剤を加える場合には活性炭(C)を使用した。融剤として貝殻を使用した場合には、活性炭を1.2g添加して熔融したところ、還元力が不足していることがわかったので、1.5g加えた試験も行った。融剤としてライムケーキを使用した場合には、0.3g添加して熔融したところ、還元力が不足していることがわかったので、0.8g加えた試験も行った。

混合した原料を容量100mlのアルミナ95%のつばに充填し、穴をひとつ開けたアルミナ95%のふたを載せ、高温用無機接着剤で接着した。さらに、排気用のムライト管をふたの穴に接着し、つば内で発生した気体が自然排気されるようにした。このつばを電気炉で300°C/hで昇温し、1300°Cで1時間保持した後、室温まで放冷した。

2.4 熔融試料の評価

放冷後のつばをダイヤモンドカッターで切断して断面を観察した。残渣スラグを粉碎し、目視で金属粒子を取り除いたものを試料として蛍光X線分析を行った。金属回収の効果については、残渣スラグ中のPbO, CuO濃度を指標として比較した。

3. 結果と考察

3.1 融剤の評価

貝殻とライムケーキの蛍光X線分析結果を表3に示す。酸化物換算値なので、CaOは、CaCO₃などのCa含有化合物である可能性を含んでいる。貝殻は98%がCaの化合物であったが、ライムケーキは、Mg、Al、Si、Pの化合物などを含んでいるため、CaOの含有比率は貝殻よりも低くなっている。

図3に貝殻の熱分析測定結果を示す。横軸は温度(°C)、左縦軸は示差熱(DTA, μV)、右縦軸は熱重量変化(TG, %)である。有機物が燃焼する350~500°Cにかけての発熱は非常に小さく、重量減少は0.7%であった。また、650°C付近から800°Cにかけて吸熱を伴う44%の重量減少が見られた。これは炭酸カルシウムの熱分解と一致する。以上から、使用した貝殻粉砕物は微量の有機物を含む炭酸カルシウムであることがわかった。

図4にライムケーキの熱分析測定結果を示す。熱分析の結果

表3 貝がらとライムケーキの蛍光X線分析結果 (酸化物換算値)

酸化物	分析値 (mass%)	
	貝殻	ライムケーキ
Na ₂ O	0.6	
MgO		2.0
SO ₃	0.5	
Al ₂ O ₃		1.8
SiO ₂		5.2
P ₂ O ₅		3.1
CaO	98	85

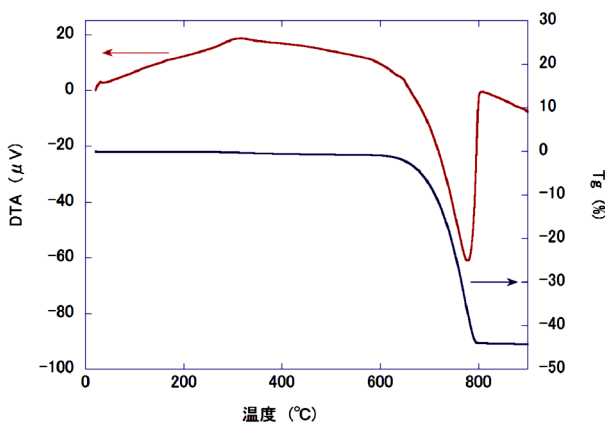


図3 貝殻のTG/DTA曲線

果より、200~400°Cの間で大きな発熱と重量減少が見られたので、有機物がここで燃焼していると考えられる。重量減少から考えて有機物含有量は全体の3%程度と推定される。また、貝殻と同様に650°C付近から800°Cにかけて吸熱を伴うおよそ34%の重量減少が見られた。以上より、ライムケーキは、炭酸カルシウムを主成分として、有機物や、Mg、Al、Si、P

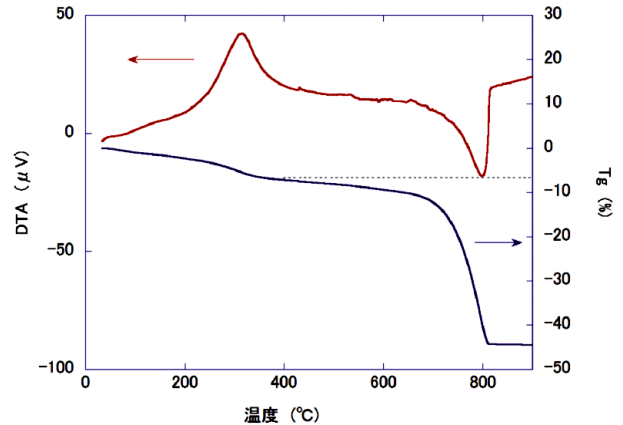


図4 ライムケーキのTG/DTA曲線

の化合物などを含んでいる混合物であることがわかった。

3.2 熔融試験

3.2.1 貝殻を加えた熔融試験

融剤として貝殻を使用し、活性炭を1.2g加えて混合し熔融した試料の熔融後の断面を図5に示す。残渣スラグ部分は赤く不透明であったが、破断面は光沢があり目視ではガラス状で、結晶化は見られなかった。残渣スラグが赤色を示しているのは、残留しているCuが金属微粒子としてスラグ中に分散しているためと考えられる。また底面に見られた大きな金属沈殿は、今までの試験^{12,13)}から、鉛ガラス中のPbOが、活性炭、プリント基板に含まれる樹脂、Al、Siなどによって還元されて生じたPbと、プリント基板に含まれるCu、Ni、Snなどが沈降し固化したものと推定される。

残渣スラグ部分を蛍光X線分析した結果、PbOは3.75mass%、CuOは0.50mass%であった。これでは残留金属濃度が高く、還元剤が不足していることがわかった。

そこで活性炭を1.5gに増やして熔融した。熔融後の試料断面を図6に示す。切断すると断面のスラグ部分は灰色で、その中に銅色の金属粒子が見られた。中央には炭素が残っていた。添加した活性炭が未反応のまま残ったものと思われる。これ以上活性炭を加えても還元反応は進行しないと考えられる。図5で見られるようなスラグ底部の大きな金属の塊は見られなかった。残渣スラグ部分の蛍光X線分析の結果、PbO



図5 基本原料に、貝がら25g、活性炭1.2g混合、熔融後の試料断面

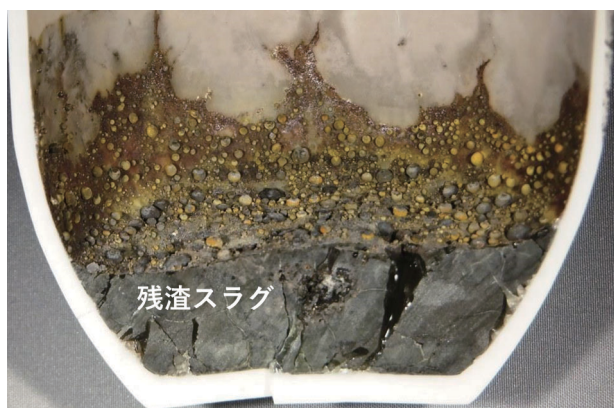


図6 基本原料に、貝がら 25 g、活性炭 1.5 g 混合、溶融後の試料断面

は0.16mass%、CuO は0.047mass%であり、活性炭1.2 g 添加に比べ著しく減少した。

3.2.2 ライムケーキを加えた溶融試験

熱分析により、ライムケーキには有機物が含まれていることから、まずは活性炭を加えず、基本原料にライムケーキ25gを加え混合し、1300℃で溶融した。溶融後の試料断面写真を図7に示す。残渣スラグ部分は赤く、結晶化は見られなかった。底部には沈降した後に固化した金属が見られた。残渣ス

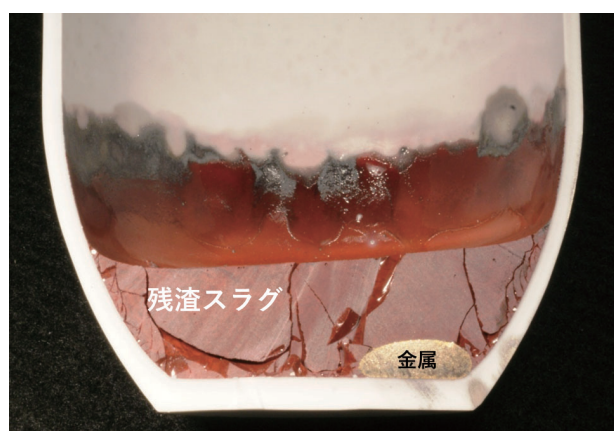


図7 基本原料にライムケーキ 25 g 混合、溶融後の試料断面

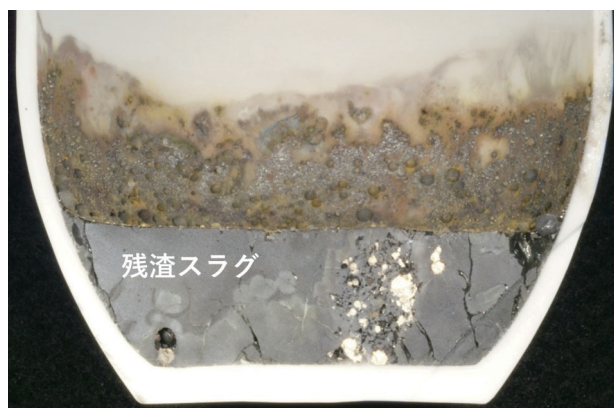


図8 基本原料に活性炭 0.7 g 混合、溶融後の試料断面

ラグ部分の蛍光X線分析の結果、PbO は4.1mass%、CuO は0.44mass%と高かった。

次に上記組成に対し活性炭0.3 gを混合し溶融した。溶融後の試料断面を観察したところ、残渣スラグ部分は赤く、底部には沈降した金属が見られた。残渣スラグ部分の蛍光X線分析の結果、PbO は1.8mass%、CuO は0.25mass%であり、活性炭未添加のものに比べ減少した。

さらに、上記組成に対して活性炭を0.7 gに増やした混合物を溶融した。溶融後の試料断面を図8に示す。残渣スラグ部分は灰色で試料上部には金属粒子が見られる。断面には未溶融部分や炭素は見られない。残渣スラグ部分の蛍光X線分析の結果、PbO は0.36mass%、CuO は0.06mass%であった。

3.2.3 貝殻とライムケーキの結果の比較

基本原料に、貝殻またはライムケーキ25 gを融剤として加えて混合したのに対し、活性炭を加えた量と、残渣スラグ中の残留金属酸化物濃度の関係を図9に示す。ライムケーキを融剤とした場合、活性炭添加量が増えると残渣スラグ中金属酸化物濃度が減少した。活性炭を0.7 g添加した場合に残渣スラグ中 PbO 濃度は0.36mass%であった。貝殻の場合はライムケーキに比較して有機物の含有量が少ないので、還元剤として、より多くの活性炭を加える必要があった。貝殻を融剤にした場合は、活性炭を1.2 g加えて溶融したときの残渣スラグ中酸化物濃度は、ライムケーキを融剤として活性炭を加えずに溶融した場合とほぼ同等であった。1.5 gの活性炭を加えた場合に、残渣スラグ中 PbO 濃度は0.16mass%であった。ナトリウム系融剤を使った場合の残渣スラグ中 PbO 濃度は0.8mass%だったので、貝殻およびライムケーキを融剤にすると残渣スラグ中 PbO 濃度はより低下したといえる。

以上から、カルシウム系廃棄物であるライムケーキと貝殻は、ブラウン管ガラスとプリント基板から還元溶融法で金属回収をする場合の融剤として有効であることがわかった。

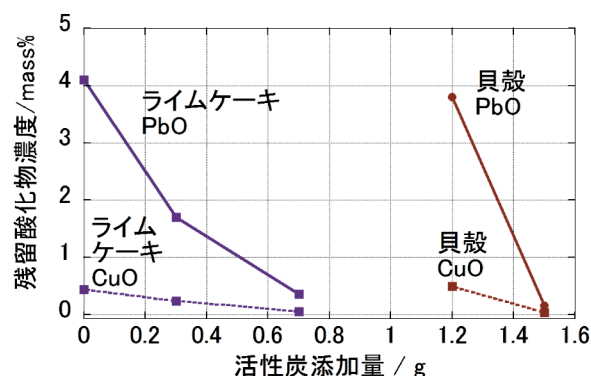


図9 活性炭添加量と残渣スラグ中の残留金属酸化物濃度の関係

4. まとめ

都市鉱山と呼ばれる電気電子廃棄物であるプリント基板を、ブラウン管鉛ガラスと融剤と共に溶融することにより、含まれる有価金属を回収する試験を行った。融剤には、残渣スラグを化学的に安定させるカルシウム系の廃棄物である貝殻とライムケーキを用いた。その結果、以下の知見を得た。

1. 融剤として貝殻およびライムケーキは使用可能であり、溶融時に還元剤として活性炭を加えることで、より金属分離効果が高まる。
2. ライムケーキを融剤として使用する場合、含有する有機物は還元剤として作用するため、活性炭の添加量は少なくても効果が出る。
3. プリント基板、ブラウン管鉛ガラス、貝殻およびライムケーキという廃棄物を合わせて溶融することで、廃棄物処理と有価金属回収が同時にできる。

謝辞

本研究で使用した蛍光X線分析装置は、公益財団法人JKAの機械振興補助事業により整備されました。記して感謝いたします。

参考文献

- 1) 稲野浩行・橋本祐二・工藤和彦：還元溶融による廃ブラウン管ガラスからの鉛分離，北海道立工業試験場報告，No.304，pp.71-77，(2005)
- 2) H. Inano: Pb Recovery from the Waste CRT Glass by Reduction Melting Method, *Proc. Eco Design 2009, 6th Int. Symp. on Environmentally Conscious Design and Inverse Manufacturing*, Dec.7-9, Sapporo, Japan, (2009)
- 3) H. Inano: Effect of Alkali Metal Oxide on Pb Recovery from the Waste CRT Glass by Reduction Melting Method, Matsumoto et. al. (Eds.), *Design for Innovative Value towards a Sustainable Society, Springer* (Online), pp. 896-900, (2012)
- 4) T. Okada・H. Inano・N. Hiroyoshi: Recovery and immobilization of lead in cathode ray tube funnel glass by a combination of reductive and oxidative melting processes, *J. Soc. Inf. Display*, 20, 508-516 (2012)
- 5) H. Inano・T. Tada・T. Okada et al.: Recycling Technology for Waste CRT Glass, *Proc. Eco Design 2013, 8th Int. Symp. on Environmentally Conscious Design and Inverse Manufacturing*, Dec. 4-6, Jeju, Korea, (2013)

- 6) G. Grause・N. Yamamoto・T. Kameda et al.: Removal of lead from cathode ray tube funnel glass by chloride volatilization, *Int. J. Environ. Soc. Technol.*, Vol.11, pp. 959-966, (2014)
- 7) Hiroyuki Inano・Keiichi Tomita・Tatsumi Tada・Naoki Hiroyoshi: Lead generation and separation mechanisms from lead silicate glass by reduction-melting, *J. Ceram. Soc. Jpn.*, 126 [8], pp. 595-601, (2018)
- 8) R. Sasai・H. Kubo・M. Kamiya et al.: Development of an Eco-Friendly Material Recycling Process for Spent Lead Glass Using a Mechanochemical Process and Na₂EDTA Reagent, *Environ. Sci. Technol.*, Vol.42, pp. 4159-4164, (2008)
- 9) 中村崇：ブラウン管用ガラスのカレットリサイクルの現状と課題，セラミックス，Vol. 47, No.247, pp. 86-89, (2012)
- 10) 稲野浩行・富田恵一・多田達実：ブラウン管ガラスを利用した都市鉱山からの金属回収，技術移転フォーラム2015 地方独立行政法人北海道立総合研究機構産業技術研究本部工業試験場成果発表会プログラム・発表要旨，pp.27, (2015)
- 11) H. Inano・K. Tomita・T. Tada, et. al.: Recovery of Metals from E-waste Mediated by Molten CRT Lead Glass, M. Matsumoto et. al. (Eds.) *Sustainability through Innovation in Product Life Cycle Design*, Springer, pp. 525-536, (2016)
- 12) 稲野浩行：乾式試金法を基にして鉛ガラス媒介とした廃棄物からの各種金属の回収方法，平成26年度環境研究総合推進費補助金総合研究報告書(3K-123019)，(2015)，https://www.env.go.jp/policy/kenkyu/suishin/kadai/syuryo_report/h26/pdf/3K123019.pdf
- 13) H. Inano・K. Tomita・T. Tada, et. al.: “Metal Recovery from Printed Circuit Boards Using CRT Glass by Reduction Melting”，A. H. Hu, M. Matsumoto, T. C. Kuo, S. Smith (Eds), *Technologies and Eco-innovation towards Sustainability II*, Springer, pp.185-197, (2019)
- 14) 山下勝・赤井智子・松本佐智子：特開2014-73920
- 15) 稲野浩行・多田達実・岡田敬志 他：還元溶融/塩化揮発ハイブリッド法によるブラウン管ガラスからの鉛の分離抽出技術，セラミックス，Vol.47, No.2, pp.96-100, (2012)

熱溶融積層型3Dプリンタ造形物の機械特性向上の検討

吉田 昌充, 可児 浩, 瀬野修一郎, 大市 貴志, 山岸 暢

Improvement of Mechanical Properties of FDM 3D Printed Objects

Masamitsu YOSHIDA, Hiroshi KANI, Shuichiro SENO,
Takashi OHICHI, Tohru YAMAGISHI

キーワード：3Dプリンタ, 熱溶融積層, 機械特性, プラスチック, ガラス繊維

1. はじめに

近年、各種の3Dプリンタが市販されており、中でも熱溶融積層型 (Fused Deposition Modeling, 以下FDM式とする) 3Dプリンタは、安価な個人用途向けから業務用まで様々な機種が販売されており、2015年では23万2336台が出荷され、2019年には3Dプリンタ全体の97.5%を占める552万7493台の出荷予測とする調査報告もある¹⁾。このFDM式3Dプリンタは、溶融した熱可塑性プラスチックをソフトクリームのように、ノズルから吐出・積層することで、金型を使うことなく迅速に成形体を造形することが可能な装置であり、近年では製品や部品のデザイン開発、治具等の製作などに活用されている。

一方、プラスチック成形体の製造は、射出成形などで行われているが、金型を製作する必要があるためこれにかかる費用が少なくないことから、生産量の多い成形体の製造には経済的に有利であるが、生産量が少ないものには不向きである。

3Dプリンタは先に述べた用途での利用にとどまらず、このような生産量の少ないプラスチック成形体の製造などでの活用も期待されるが、この造形物についての機械特性などのデータはあまり明らかにされていないことから、当场ではこれまでにいくつかのFDM式3Dプリンタで製作した造形物の機械特性の評価を行ってきた^{2),3)}。本報告では、3Dプリンタ造形物の機械特性向上を目的に、プラスチック成形体の特性向上に使われる技術のひとつであるガラス繊維を複合化した材料をフィラメントに使用したときの造形物の機械特性評価を行った結果について報告する。

2. 試験方法

2.1 3Dプリンタ

図1、表1に示す仕様のFDM式3Dプリンタ (プリンタス (株)製CUBIS CBS-150) を使用した。



図1 試験に使用した3Dプリンタ

表1 試験に使用した3Dプリンタの仕様

造形方式	熱溶融積層法(FDM)
最大造形サイズ	幅185×奥行140×高さ125mm
造形スピード	20~120mm/sec
ノズル数	1
ノズル径	直径0.4mm
積層ピッチ	0.15~0.4mm
フィラメント材料の直径	φ1.75mm
フィラメント材料	ABS樹脂、PLA樹脂
ノズル温度	200~230°C
成形テーブル温度制御	65~110°C

2.2 フィラメント材料

フィラメントには、ABS樹脂系とポリ乳酸 (PLA) 樹脂系の2種の材料を検討した。

ガラス繊維を複合化したABS樹脂のプリンタ用フィラメント材料は、市販のプラスチック成形材料であるガラス繊維 (GF) 含有率30%の強化ABS (テクノ UMG (株)製130G30, メ

事業名：経常研究

課題名：熱溶解3Dプリンタ造形物の機械特性向上に関する研究
(平成29~30年度)

ルトフローレイト (MFR) : 10g/10min) やガラス繊維を含有しない2種類の非強化ABS ([テクノ UMG (株)製130, MFR : 18g/10min], [旭化成(株)製 スタイラック190F, MFR : 47g/10min]) の各ペレットを所定のガラス繊維含有率になるような比率で配合・混合し, 90°Cで4時間以上乾燥した後に単軸押出機 (Brabender 社製 EXTRUSIOGRAPH 19/25D) を用いて, シリンダ温度160~230°C, φ 3 mm 径ダイスノズル温度220~230°Cで熔融混練・均質化し, GF含有率が0%, 5%, 10%, 15%, 17.5%で, 直径が1.75mm前後のフィラメント材料を得た (図2~3)。

ポリ乳酸樹脂 (PLA) のガラス繊維を複合化したプリンタ用フィラメント材料は, 市販のプラスチック成形材料であるガラス繊維含有率30%のGF強化PLA (ユニチカ(株)製 TE-8003G30), ガラス繊維を含有しない非強化PLA (ユニチカ(株)製 TE-2000) の各ペレットを所定のガラス繊維含有率になるような比率で配合・混合し, 80°Cで4時間以上乾燥した後に単軸押出機を用いて, シリンダ温度150~190°C, φ 3 mm 径ダイスノズル温度180~190°Cで熔融混練・均質化し, GF含有率が7.5%, 10%, 15%で, 直径が1.75mm前後のフィラメント材料を得た。

また, 機械特性比較用にガラス繊維を含有しないフィラメント材料として, 使用した3Dプリンタに純正のABS樹脂及びPLA樹脂フィラメント材料をそれぞれ使用した。



図2 押出機でのフィラメント材料の製作



図3 製作したフィラメント材料

2.3 3Dプリンタによる特性評価用試験片の製作

特性評価に使用する試験片は, 曲げ特性評価用と引張特性評価用試験片の2種類を3Dプリンタで, 表2に示す設定条件で造形した (図4~6)。このとき, フィラメント材料の吐出量の設定を変えて材料充填率の異なる試験片を得た。

曲げ特性評価用の試験片形状は, JIS K 7171「プラスチック-曲げ特性の求め方」を参考に長さ50mm×幅25mm×厚さ2.4mmとした。また引張特性評価用は, JIS K 7161-2「プラスチック-引張特性の求め方-第2部」の1B試験片形状で厚さ2.4mmとした。

表2 造形物製作時のプリンタ設定条件

	ABS樹脂フィラメント プリンタ造形物	PLA樹脂フィラメント プリンタ造形物
積層ピッチ	0.3mm	
積層数	8層	
造形物の製作方向	・成形テーブルのXY平面上に平行 ・試験片の長手方向をX軸方向に設定	
ノズル温度	230°C	210°C
成形テーブル温度	110°C	70°C
造形物の外壁枚数	3	
フィラメント出力速度	30mm/sec	
フィラメント間隔充填率設定	1.0	
フィラメントの充填パターン	Rectilinear (格子)	
フィラメントの充填パターン角度	0°/90°	
フィラメント材料吐出量	① 標準, ② 15%増量, ③ 30%増量	
天面パネルの開閉状態	造形時は, パネル閉	
正面パネルの開閉状態	造形時は, パネル閉	

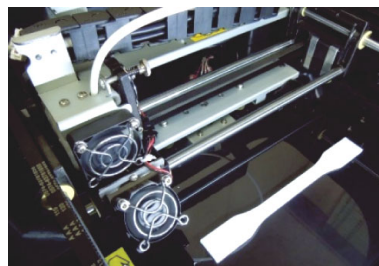


図4 3Dプリンタでの造形

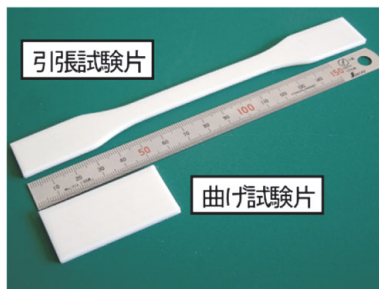


図5 3Dプリンタで製作した造形物

フィラメント充填パターン角度0°/90°

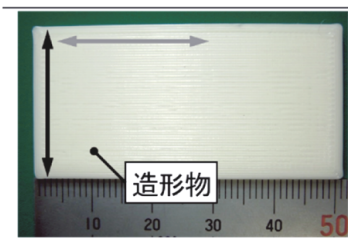


図6 3Dプリンタ造形物のフィラメント充填パターン角度

2.4 圧縮成形による特性評価用試験片の製作

3Dプリンタに使用されている純正フィラメントの材料特性を把握し、3Dプリンタで製作した造形物の機械特性との比較を行うため、一般的なプラスチックの成形加工方法である圧縮成形法でも試験片を製作した。

3Dプリンタの純正材料フィラメントを市販のプラスチック成形材料と同様の長さのペレット形状にカットし、2.2節に示した条件で乾燥後、JIS K 7151「熱可塑性プラスチック材料の圧縮成形試験片」に準拠し、平押し金型で長さ180mm×幅150mm×厚さ2.4mmの平板を圧縮成形した。このとき、金型温度は、ABS樹脂系が220℃、PLA樹脂系が200℃とした。成形した平板を試験片製作機（㈱東洋精機製作所製サンプルマシンMD）などで切削加工し、2.3節に示した3Dプリンタ造形物と同形状の曲げ・引張特性用試験片を得た。

2.5 各特性の評価試験方法

プリンタ造形物の曲げ特性、引張特性、断面観察、材料充填率、フィラメント材料の流動特性について、評価試験を行った。

曲げ最大応力及び曲げ弾性率の評価は、JIS K 7171に準拠して行った。試験温度は23℃とし、万能材料試験機（㈱島津製作所製オートグラフAG-100kNXplus）を用いて、支点間距離は40mm、試験速度は1mm/min、試験片数は3片とした（図7）。

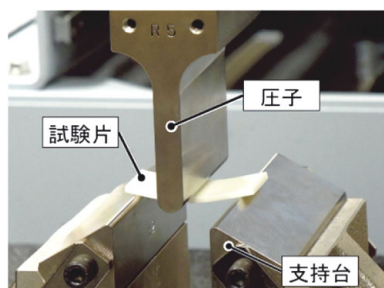


図7 曲げ特性試験

引張最大応力及び引張弾性率の評価は、JIS K 7161-1「プラスチック-引張特性の求め方-第1部」に準拠して行った。試験温度は23℃とし、万能材料試験機を用い、試験片数は3片とした（図8）。試験速度は、引張最大応力の測定については各プラスチック成形材料の試験方法を参考に、ABS樹脂系では50mm/min、PLA樹脂系では5mm/min、引張弾性率の測定はともに1mm/minとした。



図8 引張特性試験（引張最大応力測定）

プリンタ造形物の断面構造観察には、走査型電子顕微鏡（日本電子製JSM-6610LA）を使用した。

プリンタ造形物の材料充填率は、次のようにして求めた。JIS K 7222「発泡プラスチック及びゴム-見掛け密度の求め方」を参考にして、製作した曲げ特性用試験片造形物の質量を長さ・幅・厚さから算出した体積で除して見掛け密度の値を求め、この値を同一材料からなる圧縮成形体の密度で除して算出した。試験片数は3片とした。なお圧縮成形体の密度の測定は、JIS K 7112「プラスチック-非発泡プラスチックの密度及び比重の測定方法」の水中置換法で行った。

フィラメント材料の直径は、ノギスを使って20箇所を測定した。

フィラメント材料の溶融時の流動特性として、JIS K 7210-1「プラスチック-熱可塑性プラスチックのメルトマスフローレイト及びメルトボリュームフローレイトの求め方-第1部」に準拠して、メルトボリュームフローレイト（MVR）を測定した。試験条件はABS樹脂の標準条件である220℃、10kgとした。

3. 試験結果

3.1 ABS/GF複合材を使った3Dプリンタ造形物の機械特性

ABS樹脂にガラス繊維を複合化したフィラメント材料を使用した3Dプリンタ造形物の機械特性がどのように変化するかについて、GF含有率やフィラメント材料の吐出量を変えて造形し評価した。このうち、GF含有率10%と15%については、材料の溶融時の流動特性MVRを調整した①・②の2種類を使用した。また、フィラメント材料の吐出量は、装置設定の標準値と15%増量の2条件とした。図9に曲げ最大応力、図10に曲げ弾性率を示す。

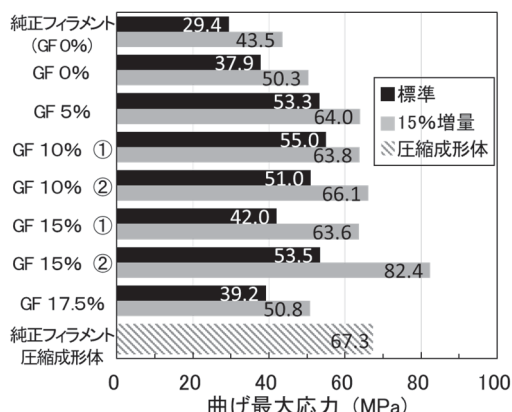


図9 ABS/GF 複合材プリント造形物の曲げ最大応力

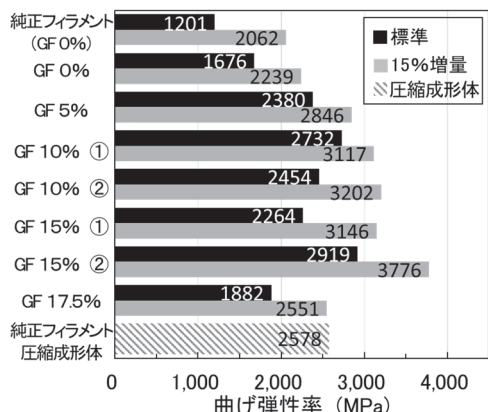


図10 ABS/GF プリント造形物の曲げ弾性率

プリント造形物の曲げ最大応力や曲げ弾性率は、GFを5～17.5%含有したフィラメント材料を使用することで、GFを含有しない純正フィラメントの造形物に比べ、高い値を示した。また造形時のフィラメント材料の吐出量を15%増量した造形物の方が、標準吐出量の造形物より曲げ最大応力・弾性率ともに高い値を示した。GF含有材料を使用することで造形物の曲げ特性は、純正フィラメント材料の圧縮成形体と同等以上の特性値が得られ、中でも材料がGF含有率15%②で樹脂吐出量を15%増量した造形物が、最も高い値を示した。

図11にプリント造形物の断面構造を示す。プリント造形物を構成する細いフィラメント中に、複合化したGFがフィラメントと同方向に配向・分散していることを確認し、GFの

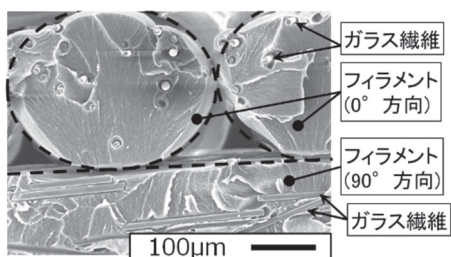


図11 ABS/GF プリント造形物の断面構造 (GF含有率5%, フィラメント材料吐出量: 標準)

補強効果により曲げ最大応力や曲げ弾性率が向上したものと考える。通常、圧縮成形や射出成形で製作したプラスチック成形体は、ガラス繊維含有率が増加するとともに曲げ最大応力や曲げ弾性率が高くなる傾向を示すが、GF含有率15%①やGF含有率17.5%のプリント造形物はガラス繊維含有による補強効果が低い結果となった。そこで造形物の材料充填率(図12)やフィラメント材料の熔融時の流動特性(図13)を調べたところ、GF含有率15%①やGF含有率17.5%の造形物は、材料充填率が低く空隙が多い傾向にあった。また、これら造形物に使用したフィラメント材料はMVRが小さく、熔融時の流動性が悪いことからプリント造形物製作時の熔融粘度が高くなり、得られた造形物の材料充填率が低くなったものと推察する。これに対し、GF複合フィラメント材料のMVRを大きくし流動性を調節したGF含有率10%②やGF含有率15%②のフィラメント材料では、最大曲げ応力や弾性率が向上する動きが見られた。

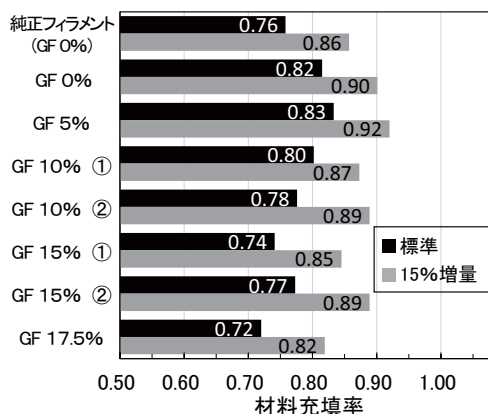


図12 ABS/GF 複合材プリント造形物の材料充填率

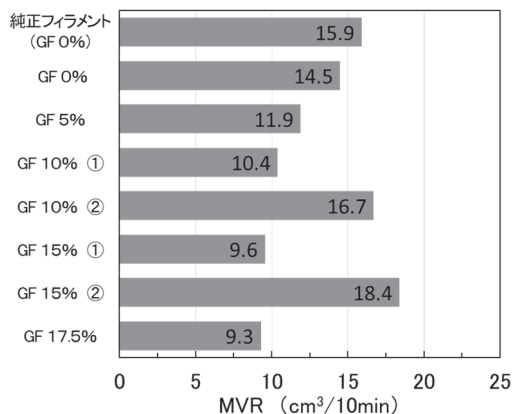


図13 ABS/GF 複合材フィラメント材料の熔融時の流動特性

上記曲げ特性と同様に、ABS/GF複合材を使用したプリント造形物の引張特性についての試験を行った。図14に引張最大応力、図15に引張弾性率を示す。プリント造形物の引張最大応力・引張弾性率は、GFを5～17.5%含有したフィラメント材料を使用することで、GFを含有しない純正フィラ

ントの造形物に比べ高い値を示した。また造形時のフィラメント材料の吐出量を標準条件より15%増量した造形物の方が、引張最大応力・弾性率ともに、より高い値を示した。GF含有材料を使用することで造形物の引張特性は、純正フィラメント材料の圧縮成形体と同等以上の特性値が得られ、中でも材料がGF含有率15%②で樹脂吐出量を15%増量した造形物が、最も高い値を示した。

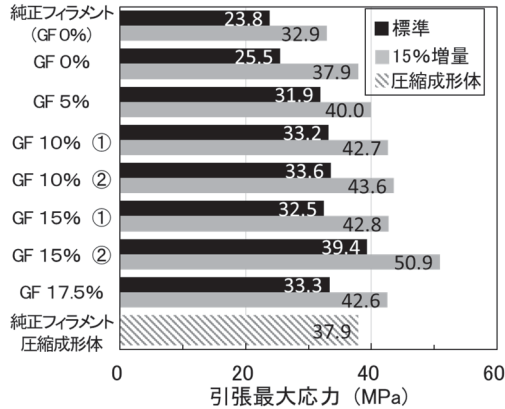


図 14 ABS/GF 複合材プリンタ造形物の引張最大応力

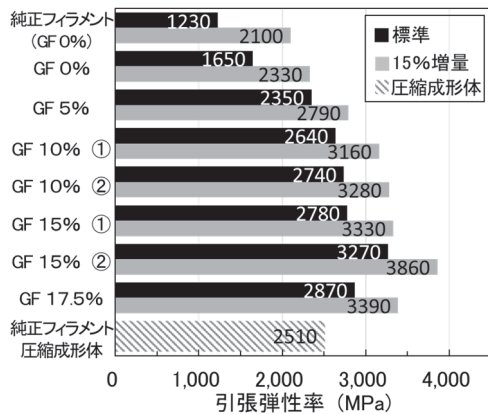


図 15 ABS/GF 複合材プリンタ造形物の引張弾性率

3.2 PLA/GF複合材を使った3Dプリンタ造形物の機械特性

PLA樹脂にガラス繊維を複合化したフィラメント材料を使って製作したプリンタ造形物についても、前節と同様に機械特性を評価した。ここではプリンタ造形物製作時のフィラメント材料の吐出量は、装置設定の標準値と15%増量、30%増量の3条件とした。図16に曲げ最大応力、図17に曲げ弾性率を示す。プリンタ造形物の曲げ最大応力や曲げ弾性率は、GFを7.5~15%含有したフィラメント材料を使用することで、GFを含有しない純正フィラメントの造形物に比べ、高い値を示した。また造形時のフィラメント材料の吐出量を15%若しくは30%増量した造形物の方が、標準吐出量の造形物より曲げ最大応力・弾性率ともに高い値を示した。GF含有材料を使用することで造形物の曲げ特性は、純正フィラメント材料の圧縮成形体と同等以上の特性値が得られ、中でも材料が

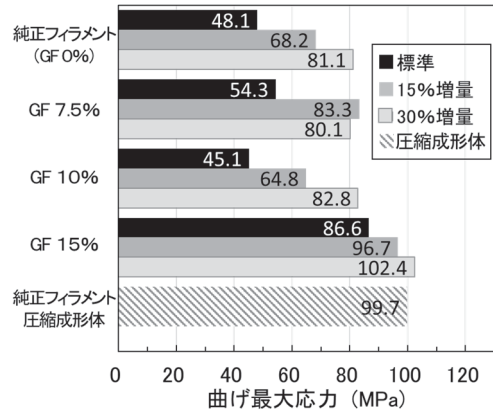


図 16 PLA/GF 複合材プリンタ造形物の曲げ最大応力

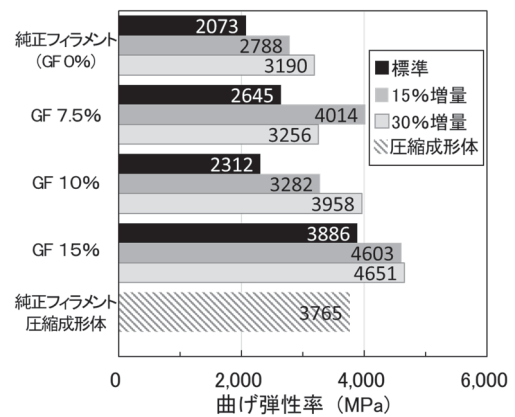


図 17 PLA/GF 複合材プリンタ造形物の曲げ弾性率

GF含有率15%で樹脂吐出量を15%増量や30%増量した造形物が、最も高い値を示した。GF含有率10%の造形物は、曲げ最大応力・曲げ弾性率ともにGF含有率7.5%の造形物に比べGF含有率が多いにもかかわらず低い結果となった。そこで造形物の材料充填率(図18)やフィラメント材料の直径(表3)を調べた。GF含有率10%のフィラメント材料は、直径が他フィラメント材料に比べて細いため、プリンタで造形物を製作する際のフィラメント材料の供給される体積量が少なくなり、結果として造形物の材料充填率が他造形物に比べ

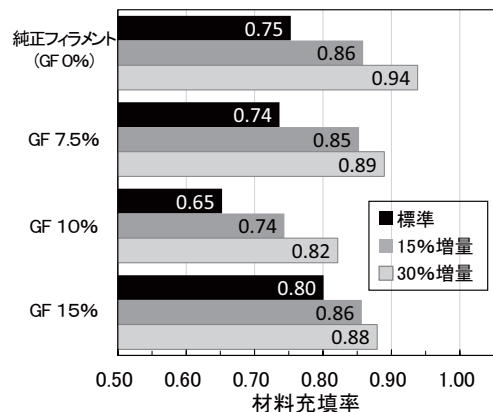


図 18 PLA/GF 複合材プリンタ造形物の材料充填率

低くなったものと推察する。フィラメント材料の直径は、造形物の機械特性に大きく影響すると考える。

表3 PLA/GF 複合材フィラメント材料の直径

フィラメント材料	直径 (mm)
純正フィラメント (GF 0%)	1.68~1.82
GF 7.5%	1.66~1.82
GF 10%	1.44~1.63
GF 15%	1.64~1.78

上記曲げ特性と同様に、PLA/GF 複合材を使用したプリンタ造形物の引張特性についての試験を行った。図19に引張最大応力、図20に引張弾性率を示す。プリンタ造形物の引張最大応力・引張弾性率は、GFを7.5~15%含有したフィラメント材料を使用することで、曲げ特性と同様にGFを含有しない純正フィラメントの造形物に比べ高い値を示した。またGF含有率7.5%や15%の造形物では、造形時のフィラメント材料の吐出量を標準条件より15%増量若しくは30%増量した造形物の方が、引張最大応力・弾性率ともに、より高い値を示した。GF含有率10%の造形物の引張特性は、曲げ特性と同様にフィラメント材料の直径が細かったため造形物の材料

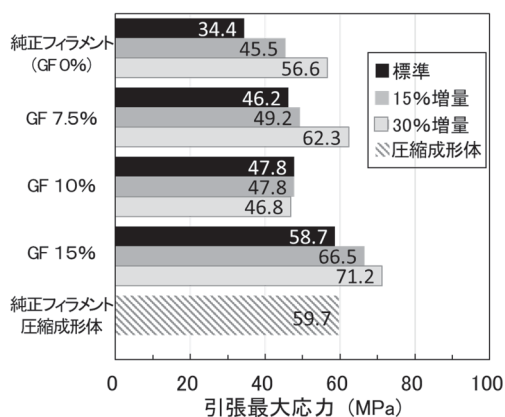


図19 PLA/GF 複合材プリンタ造形物の引張最大応力

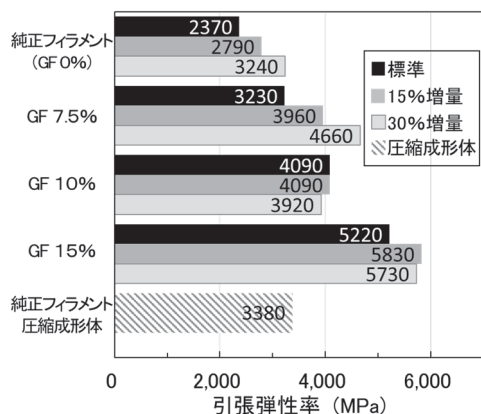


図20 PLA/GF 複合材プリンタ造形物の引張弾性率

充填率が低くなり、特性値が低かったものと推察する。GFを含有するフィラメント材料を使うことで、造形物の引張特性は純正フィラメント材料の圧縮成形体と同等以上の特性値が得られ、中でも材料がGF含有率15%で材料吐出量を15%若しくは30%増量した造形物が、より高い値を示した。

4. まとめ

FDM式3Dプリンタで、ガラス繊維を複合化したフィラメント材料を使用したときのプリンタ造形物の機械特性について評価を行い、次の結論が得られた。

- (1) ABS樹脂やPLA樹脂にガラス繊維を複合化したフィラメント材料を使うことで、プリンタ造形物の曲げ・引張の最大応力や弾性率は、純正フィラメントの造形物に比べ高くなることがわかった。
- (2) 造形物製作時にフィラメント材料の吐出量を調整し、プリンタ造形物の材料充填率を高めることで、曲げ・引張の最大応力や弾性率が、さらに高くなることがわかった。
- (3) ABS/GF複合材について、同じガラス繊維含有率でもフィラメント材料の溶融時の流動特性を調整することで、得られるプリンタ造形物の材料充填率が変わり、機械特性に大きく影響することがわかった。

今後は、プリンタ機種や装置のノズル直径、造形物の形状などを変えて製作した3Dプリンタ造形物の特性評価などを行い、さらに技術蓄積を進める予定である。

謝辞

本研究で使用した万能材料試験機及び試験片製作機は、競輪の補助を受けて整備されました。記して感謝いたします。

参考文献

- 1) Gartner : Forecast, 3D Printers, Worldwide, 2015
- 2) 吉田昌充・板橋孝至・印南小冬 他：熱溶解積層型3Dプリンタ造形物の特性評価, 北海道立総合研究機構工業試験場報告, No.315, pp123-127, (2016)
- 3) 吉田昌充・可児浩・瀬野修一郎 他：熱溶解積層型3Dプリンタ造形物の機械特性, 北海道立総合研究機構工業試験場報告, No.317, pp77-81, (2018)

北海道立総合研究機構工業試験場報告
No.318 (2019)

発行 令和元年 8月31日

発行所 地方独立行政法人 北海道立総合研究機構
産業技術研究本部
工業試験場
〒060-0819 札幌市北区北19条西11丁目
電話 (011) 747-2321 (代表)

印刷所 小南印刷株式会社