



道総研

ISSN 2189-1230
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.323)

2024

地方独立行政法人 北海道立総合研究機構
産業技術環境研究本部

工業試験場

北海道立総合研究機構工業試験場報告 (No.323) 2024

目 次

一般論文

- | | |
|----------------------------------|---|
| 1 引き抜き式除草機構を備えた小型株間除草ロボットの開発 | 今岡 広一, 浦池 隆文, 伊藤 壮生…………… 1
江丸 貴紀 |
| 2 四脚型運搬補助ロボットの開発 | 伊藤 壮生, 浦池 隆文, 今岡 広一…………… 7 |
| 3 ロボットを介したスイッチ遠隔操作支援システムの開発 | 宮島 沙織, 浦池 隆文, 井川 久…………… 13
高木 友史, 川島 圭太, 吉田 道拓 |
| 4 バイオマス由来ナノ繊維シートを利用した繊維強化複合材料の開発 | 瀬野修一郎, 細川 真明, 土田 晋士…………… 19
可児 浩, 吉田 昌充, 山岸 暢 |
| 5 ステンレス鋼の応力腐食割れの評価方法の研究 | 板橋 孝至, 坂村 喬史, 櫻庭 洋平…………… 27
飯野 潔, 中嶋 快雄, 植竹 亮太
三戸 正道, 宮腰 康樹 |
| 6 触媒反応を活用した道産天然物バイオリファイナリー | 近藤 永樹, 松嶋景一郎, 吉田誠一郎…………… 35
小川 雄太 |
| 7 パンチング加工における反り抑制技術の開発 | 鶴谷 知洋, 三戸 正道, 鈴木 逸人…………… 43
櫻庭 洋平, 佐々木克彦, 本田 真也
武田 量, 東野 颯真, 海老原達郎
石川 和彦 |
| 8 食品に関する物体の動きの3DCG再現に関する研究 | 安田 星季, 印南 小冬, 大久保京子…………… 53
高木 友史 |

研究ノート

- | | |
|-----------------------------|--|
| 1 静的解析技術を用いたIoTシステム検証作業の効率化 | 堀 武司, 本間 稔規…………… 61 |
| 2 五感への感覚刺激提示技術の開発 | 栗野 晃希, 前田 大輔, 泉 巖…………… 69
川崎 佑太 |
| 3 繊維補強無機ポリマーの基礎的検討 | 大市 貴志, 細川 真明, 瀬野修一郎…………… 73
吉田 昌充 |
| 4 水熱処理法による多孔質炭素の低温合成 | 森 武士, 小川 雄太, 吉田誠一郎…………… 81
執行 達弘, 松嶋景一郎 |

Reports of the Hokkaido Industrial Research Institute (No.323) 2024

CONTENTS

Regular Paper

1	Development of the Intra-row Weeding Robot with a Pull-out Mechanism	1
	Koichi IMAOKA, Takafumi URAIKE, Soki ITO, Takanori EMARU	
2	Development of a Quadruped Robot for Conveyance Assistance	7
	Soki ITO, Takafumi URAIKE, Koichi IMAOKA	
3	Development of a Support System for Remote Switch Operation with Robots	13
	Saori MIYAJIMA, Takafumi URAIKE, Hisashi IGAWA, Tomohito TAKAGI, Keita KAWASHIMA, Michihiro YOSHIDA	
4	Development of Fiber-reinforced Composite Materials using Biomass-derived Nanofiber Sheet	19
	Shuichiro SENO, Masaaki HOSOKAWA, Shinji TSUCHIDA, Hiroshi KANI, Masamitsu YOSHIDA, Tohru YAMAGISHI	
5	Research on Evaluation Methods for Stress Corrosion Cracking of Stainless Steel	27
	Koji ITABASHI, Takashi SAKAMURA, Yohei SAKURABA, Kiyoshi IINO, Yoshio NAKAJIMA, Ryota UETAKE, Masamichi MITO, Yasuki MIYAKOSHI	
6	Hokkaido Natural Product Biorefinery using Catalytic Reactions	35
	Hisaki KONDOH, Keiichiro MATSUSHIMA, Seiichiro YOSHIDA, Yuta OGAWA	
7	Development of Warp Restraining Technology in Punching Process	43
	Tomohiro TSURUYA, Masamichi MITO, Hayato SUZUKI, Yohei SAKURABA, Katsuhiko SASAKI, Shinya HONDA, Ryo TAKEDA, Soma HIGASHINO, Tatsuro EBIHARA, Kazuhiko ISHIKAWA	
8	Research on 3DCG Reproduction of Food-related Objects Movements	53
	Seiki YASUDA, Kofuyu INNAMI, Kyoko OOKUBO, Tomohito TAKAGI	

Research Note

1	Improvement of IoT System Verification using Static Code Analyzer.....	61
	Takeshi HORI, Toshinori HONMA	
2	Development of Technology for Presenting Sensory Stimuli to the Five Senses	69
	Koki KUWANO, Daisuke MAEDA, Iwao IZUMI, Yuta KAWASAKI	
3	Fundamental Study on Fiber-Reinforced Inorganic Polymers	73
	Takashi OICHI, Masaaki HOSOKAWA, Shuichiro SENO, Masamitsu YOSHIDA	
4	Low-temperature Synthesis of Porous Carbons by Hydrothermal Treatment	81
	Takeshi MORI, Yuta OGAWA, Seiichiro YOSHIDA Tatsuhiko SHIGYO, Keiichiro MATSUSHIMA	

一 般 論 文

Regular Paper

引き抜き式除草機構を備えた小型株間除草ロボットの開発

今岡 広一, 浦池 隆文, 伊藤 壮生, 江丸 貴紀*

Development of the Intra-row Weeding Robot with a Pull-out Mechanism

Koichi IMAOKA, Takafumi URAIKE, Soki ITO, Takanori EMARU*

抄 録

畑作農業において、除草作業は作物の収量や品質に多大な影響を与える重要な作業であるが、同時に負担の大きい作業の一つとなっている。特に、薬草栽培や無農薬・減農薬栽培などでは除草剤の使用が厳しく制限されていることから株間の除草作業を人手で行っており、当該作業の省力化・省人化が求められている。

そこで、本研究では小型の株間除草ロボットを開発した。本ロボットはロボット本体に取り付けたカメラを用いて上方からほ場を撮影し、取得した画像に対して深層学習を適用することで雑草と作物を識別する。また、本ロボットは引き抜き式除草機構を備えており、株間の雑草のみを引き抜いて除草する。深層学習にはMask R-CNNを用いており、二値化しきい値を最適化することにより作物と雑草の識別精度を高めている。また、引き抜き式除草機構は、マニピュレーターの先端に一对のベルト状のエンドエフェクターを取り付けたものとなっており、ベルトを互いに反対方向へ回転させることで雑草を挟み込んで引き抜く。性能検証のため室内で模擬畝を用いて除草実験を実施した結果、本ロボットが作物を認識しながら畝に沿って走行し、雑草のみを識別して除草することを確認した。

キーワード：農業用ロボット、株間除草、深層学習、画像認識、引き抜き除草

Abstract

In field crop farming, weed control is a critical task that significantly impacts the yield and quality of crops. However, it also places a heavy burden on farmers. Particularly in herbal and organic farming, the use of herbicides is strictly limited, necessitating manual weeding between plants (Intra-row). Given the recent significant decline in the agricultural workforce in Japan, the mechanization and automation of intra-row weeding are pressing issues. In this study, we developed a small intra-row weeding robot. The robot captures images of the field using a camera mounted on its body and distinguishes between weeds and crops by applying deep learning to these images. The robot then removes the intra-row weeds using a manipulator. We utilized Mask R-CNN for deep learning and optimized the binarization threshold to enhance the accuracy of crop and weed identification. The end of the weeding manipulator is equipped with a pair of belt-type grippers, which rotate in opposite directions to pinch and pull out the weeds. To verify the robot's performance, we conducted an indoor weeding experiment using simulated ridges. It was confirmed that the robot can move along the ridge while recognizing crops and stopping to weed when weeds are detected.

KEY-WORDS : Agricultural Robot, Intra-row Weeding, Deep Learning, Image Recognition, Pull-out Weeding

* 北海道大学, * Hokkaido University.

事業名：経常研究

課題名：選択式株間除草機構の開発

1. はじめに

畑作農業において、除草作業は作物の収量や品質に多大な影響を与える重要な作業である^{1,2)}。しかし、近年の農業就業人口の減少は著しく、除草作業は作業者にとって大きな負担となっている^{3,4)}。除草作業は除草剤による化学的な除草と、除草機械などで雑草を物理的に除去する機械除草に大別される。一般的には、ブームスプレイヤーなどの乗用の農作業機械を用いて畑全面に除草剤を散布する、あるいは除草機械を取り付けたトラクターなどで畝間（畝と畝の合間のこと、図1参照）の雑草を物理的に除草し、機械での除草が困難な株間（作物と作物の間のこと、図1参照）にのみ除草剤を散布するといった方法がとられることが多い。近年、トラクターやコンバインなどの操縦補助システムや自動操縦システムが実用化されており、これらの農作業機械を用いることで除草作業の負担は軽減されつつある。

一方、葉草栽培⁵⁾や無農薬・減農薬栽培などでは除草剤の使用が厳しく制限されていることから、畝間だけではなく株間についても物理的な除草を行う必要性がある。前述したように畝間の除草に関してはトラクターによるけん引ユニットや手押しの除草機械など、様々な種類の機械が古くから開発・市販されているが⁶⁾、株間の除草については対応可能な機械はほとんど存在しない。作物によっては株間の除草に使用可能な機械も存在するが、作物を傷つけないための機械の調整に熟練が必要であったり、作物近傍の雑草を除去することができないなどの課題がある。そのため、これらの除草剤が使用できない作物の育成では株間の除草を人力で行っており、その負担軽減が求められている。

そこで、筆者らは一本の畝を跨ぐ大きさの小型の株間除草ロボットを開発している⁷⁾。本ロボットは、本体に取り付けたカメラを用いて上方からほ場を撮影し、取得した画像に深層学習を適用することで雑草と作物を判別し、引き抜き式の除草機構を用いて株間の雑草を除草する。深層学習にはMask R-CNN⁸⁾を用いた。二値化しきい値を独自の手法で

最適化することにより、作物を雑草と誤識別する偽陽性の確率を0.7%まで低下させることができた。また、従来の除草機械では土中の雑草の根を除去することは困難であり、雑草の種類によっては残された根から再生するものも多い。そのため、除草する回数を減らすためには雑草を根ごと除去することが望ましい。そこで本ロボットには、マニピュレーターの先端にベルト型のエンドエフェクターを設置し、本エンドエフェクターで雑草を挟み込み、引き抜いて除草する仕組みを採用した。

開発した株間除草ロボットの性能検証のため、模擬畝を使用した室内実験を行った結果、作物を認識して自動走行すること、さらに雑草の識別と除草が可能であることを確認したので報告する。

2. 開発した小型株間除草ロボット

開発したロボットの外観を図2に、また諸元を表1に示す。本ロボットは、一本の畝を跨いで走行することを想定した小型の4輪車両型ロボットである。本体は、アルミフレームを用いて構成されており、跨ぐ畝の幅に応じてトレッド幅（左右の車輪の距離）を変更することが可能である。

車輪は、後輪2輪が駆動輪、前輪2輪が駆動力のない操舵輪となっており、畝を跨ぐために左右の駆動輪は別々のモーターで駆動する。駆動部のモーターと4輪のタイヤは児童用乗用玩具（図3）に使われるものであり、モーターはDL-550C（12V駆動DCモーター）、減速ギア比は102:1である（図4）。操舵輪には左右それぞれ2個ずつのサーボモーター（KRS-9004HV ICS・近藤科学社製）が取り付けられている。

本体には、図5に示すようにロボットの前方中心に畝道従用RGBカメラと、中央部中心に除草用RGBカメラ2台（RealSense D435・Intel社製）を下向きに取り付けており、作物と雑草を上方から撮影する。また、除草用のマニピュレーター、ROS（Robot Operating System）を搭載した制御用PC、マイコン（Arduino Mega）を搭載している。

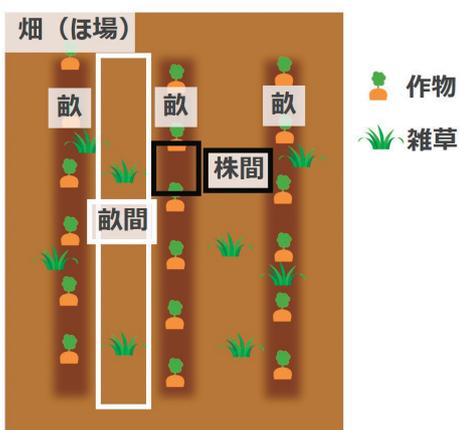


図1 ほ場内の畝間と株間の位置関係

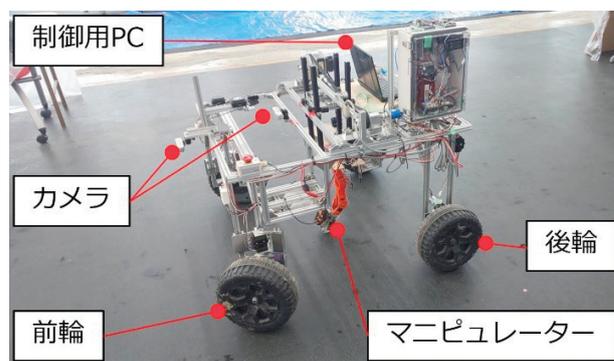


図2 開発した除草ロボットの外観

表1 開発した除草ロボットの諸元

項目	数値	単位
重量(バッテリー含まず)	35.0	kg
全幅×全長×全高	1060×980×1300	mm
トレッド幅	600-1010	mm
ホイールベース	700	mm



図3 児童用乗用玩具

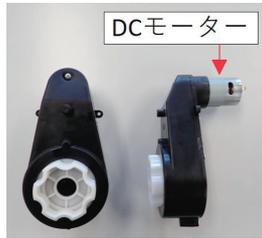


図4 駆動部のDCモーター

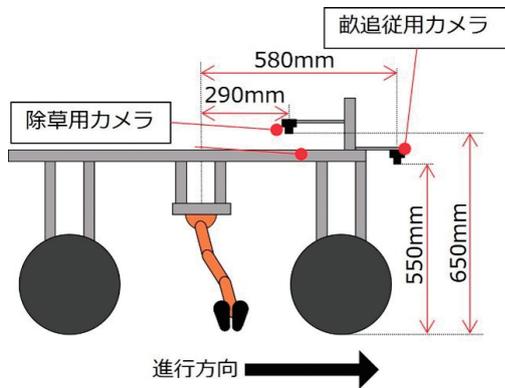


図5 カメラの取り付け位置

本ロボットの制御系を図6に示す。敵追従用カメラは敵に追従して走行するための画像を撮影するためのものであり、除草用カメラは、主として除草時に雑草の座標を特定するために用いられる。これらのカメラ画像を制御用PCに取り込み、次章で説明する深層学習手法を適用することで作物と雑草の識別や、作物と雑草の座標の計算を行う。本ロボットは敵追従用カメラ画像で作物列を認識することで敵に沿って自動的に走行し、雑草を発見するとその場で停止する。敵に沿う経路追従手法については、4章で述べる経路追従アルゴリズムを用いた。次に除草用カメラ画像より雑草の座標を算出

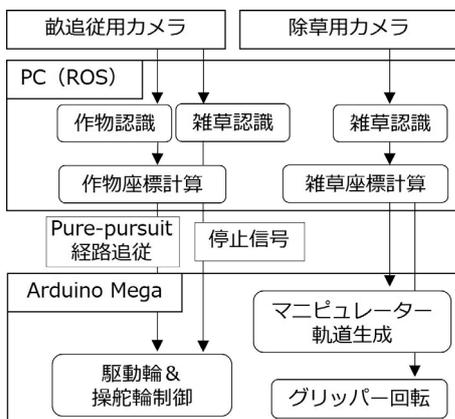


図6 除草ロボットの制御系ダイアグラム

し、車体中央のマニピュレーターおよびエンドエフェクターからなる引き抜き式除草機構を用いて除草を行う。本マニピュレーターの制御および、駆動輪・操舵輪の制御はマイコン (Arduino Mega) を用いて行った。

マニピュレーターの先端には、一対のベルト状のエンドエフェクターを設置し、これらのベルトを互いに逆方向に回転させることで雑草を引き抜いて除草する。本除草機構の詳細については、5章で述べる。

なお、本研究で用いたRealSense D435はステレオ式の深度カメラであるが本研究では深度情報を使用していない。そのため、一般的な単眼式のRGBカメラでも本研究で提案する識別手法は使用が可能である。

3. 作物と雑草の識別手法について

本ロボットは深層学習を用いてRGB画像から作物と雑草を識別する。本研究では深層学習の手法としてMask R-CNNを採用した。Mask R-CNNは、しきい値(二値化しきい値)を設定して背景と物体を区別するが、本研究では独自の手法⁹⁾で二値化しきい値を最適化することで作物と雑草の識別精度を高めている。ハトムギのは場で撮影した画像に本手法を適用した結果を図7に示す。上図が識別結果、下図が元画像である。識別結果では作物と識別された領域は白く囲われ、雑草と識別した領域は黒枠でマスクされる。画像の中央右寄りにあるハトムギが白く囲われて作物として正しく識別されていること、その他の小さい雑草が黒枠で囲われて雑草として正しく識別されていることがわかる。

大豆およびハトムギは場で、作物と雑草を識別した結果を表2、表3にそれぞれ示す。作物を雑草と誤識別する偽陽性の確率は、大豆:0.7%、ハトムギ:5.1%となっており、特に大豆では極めて低い。この確率が低いということは誤って作

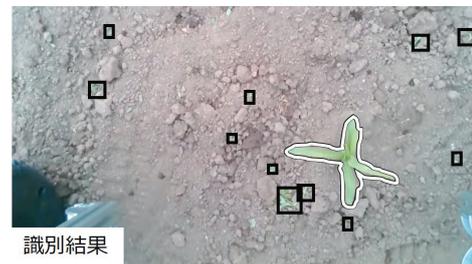


図7 作物と雑草の識別例 (上図: 識別結果 下図: 元画像)

表2 大豆ほ場での作物と雑草の識別率

	作物と推定	雑草と推定
実際の作物	77.2%	0.7%
実際の雑草	22.8%	99.3%

表3 ハトムギほ場での作物と雑草の識別率

	作物と推定	雑草と推定
実際の作物	79.0%	5.1%
実際の雑草	21.0%	94.9%

物を除草するという最も避けるべきミスを犯す危険性が少ない手法となっていると言える。

4. 敵追従走行アルゴリズム

ロボットを敵に沿って自動的に走行させることを考えた場合、あらかじめ敵一本一本のGNSS座標を手動で計測しておき、それらの座標をもとにロボットを走行させることは労力の面から実用的ではないと考える。そこで本研究では、ロボット前方に取り付けたカメラ画像と前章で述べた作物と雑草の識別手法を用いて作物を検出し、Pure-pursuitアルゴリズム¹⁰⁾を用いて操舵輪の角度を決定することで敵に沿ってロボットを走行させる手法を採用した。本章では、Pure-pursuitアルゴリズムについて説明する。

Pure-pursuitアルゴリズムは自動車の自動運転などにも採用されるアルゴリズムであり、車体前方に目標点を設定し、その目標点に対して旋回半径一定で到達できるように操舵角を制御する。図8に目標点と旋回中心および操舵角の関係を示す。目標点が車体前方にあり、後輪（駆動輪）の中心と目標点の間の距離を L 、車体の中心線と目標点のなす角度を ψ とすると、旋回半径 R は次式で表される。

$$R = \frac{L}{2 \sin \psi}$$

目標点に向かうためには、旋回中心に対して前輪（操舵輪）が接線方向を向く必要がある。そのため、前輪の角度 ϕ は、前輪の中心と後輪の中心の距離（ホイールベース）を W とした時に、次式で表される。

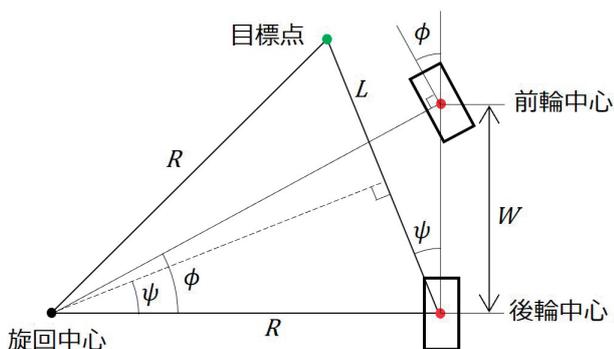


図8 旋回中心と目標点および操舵角の関係

$$\tan \phi = \frac{W}{R}$$

$$\phi = \tan^{-1} \frac{2W \sin \psi}{L}$$

本研究では、目標点を画像中の最も遠方の作物の中心座標とした。

本アルゴリズムを用いて、ほ場においてロボットを走行させたところ、敵に沿ってロボットが自動で走行する様子が確認できた。しかし、本来一定間隔で植えられている作物が生育不良等で欠けているような欠株箇所では、作物を検出できずにふらついて走行する場合があった。本課題については、目標点を見失った場合はそれまでの走行軌跡から進行方向を推定するなどのアルゴリズムの改良や、車両の直進性を担保するためのGNSSの補助的な使用などで解決可能と考える。

5. 引き抜き式除草機構の開発

ロボットの除草機構部分を図9に示す。除草機構はマニピュレーターとその先端に取り付けたエンドエフェクターから成っている。マニピュレーターはシリアルリンク型のマニピュレーター Tinkerkit Braccio (Arduino.org製)を採用し、車体に下向きに取り付けた。エンドエフェクターには2個のDCモーターが内蔵されており、それぞれのモーターが歯車を介して左右のベルトを駆動する。モーターは互いに逆方向に回転するようになっており、ベルトとベルトの間に雑草を巻き込んで引き抜く仕組みとなっている。エンドエフェクターの諸元を表4に示す。本マニピュレーターおよびエンドエフェクターの詳細については文献¹¹⁾も参照していただきたい。

本除草機構の開発にあたり、雑草を引き抜くために必要な力を測定した。単子葉植物のヒエと双子葉植物のハコベに対して引き抜き力測定実験を行った。測定の様子を図10に示す。雑草にビニール紐を括り付け、ワイヤを介しデジタルフォースゲージ (DSV-50N・IMADA社製)を用いて垂直上方に雑草を引き抜いた際の最大荷重を測定し、引き抜き力とした。測定結果を図11および図12に示す。測定は大きさが20cm以下の雑草を対象として行ったが、その後の農業者へのヒアリングにおいて、実際のは場では雑草が

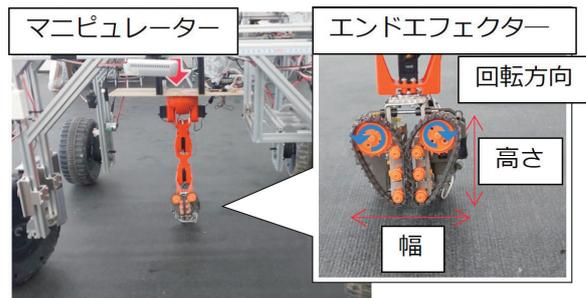


図9 マニピュレーターおよびエンドエフェクターの外観

表4 エンドエフェクターの諸元

項目	数値	単位
幅	100	mm
高さ	90	mm
奥行	90	mm
ベルト幅	17	mm

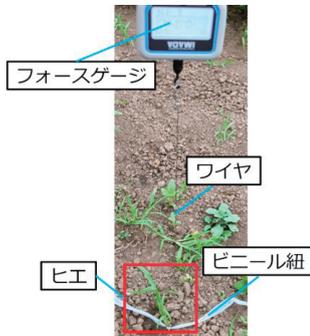


図10 雑草引き抜き力測定の様子

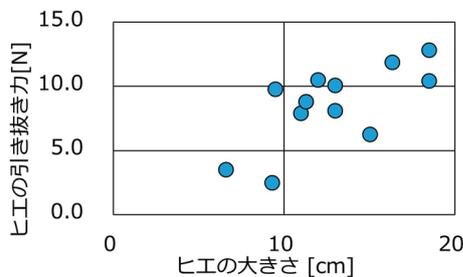


図11 ヒエの大きさと引き抜き力の関係測定の結果

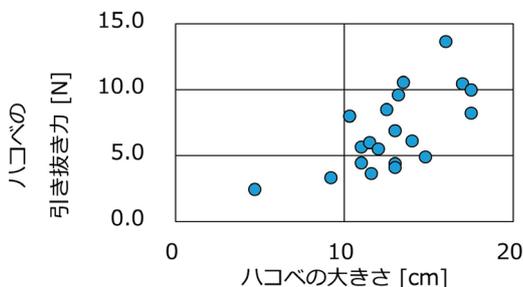


図12 ハコベの大きさと引き抜き力の関係測定の結果

10cmを超える前に除草を行うことがわかった。図11, 12をみると、大きさが10cm以下の場合、ヒエ・ハコベともにおおむね5N以下の力で引き抜くことができていることがわかる。このため、本研究で開発するエンドエフェクターの引き抜き力の目標値は5Nとした。なお、紙面の都合上割愛するがアカザとオオツメクサにも同様の試験を行っており、それらについても10cm以下では、ほぼ5N以下の力で引き抜き可能であった。

次に、開発したエンドエフェクターの引き抜き力を測定した。図13に測定の様子を示す。フォースゲージを定盤に固定し、厚み1.45mmの試験片(雑草に相当)の一端をフォースゲージにとりつけた。もう一端を試作したエンドエフェクターの中心に挟み込み、コンベアを回転させて試験片を

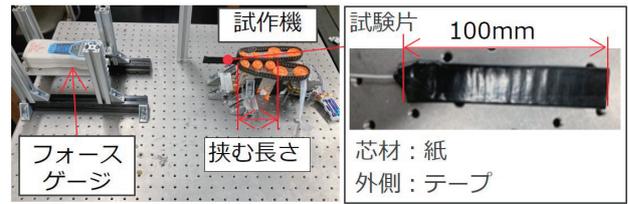


図13 試験機の引き抜き力測定の様子

引っ張った。試験片を挟む長さを、15mm, 31mm, 45mm, 59mmに変えて引き抜き力を計測した結果を図14に示す。必要な引き抜き力5Nに対し、いずれの試験片長さにおいても引き抜き力が大幅に上回っていることを確認した。そこでベルトのテンショナーを廃し、雑草挟み込み部を60mmから35mmに短縮することでエンドエフェクターを小型化した。小型化したエンドエフェクターの引き抜き力を測定した結果、引き抜き力は5.39N(5回の平均値、標準偏差1.19N)となった。

本エンドエフェクターを手に持ち、ヒエの引き抜き試験を行った。雑草が根から引き抜けた場合を成功、根もしくは茎がちぎれてしまった場合を失敗とした。試験の結果、29本の雑草に対して成功数は18本なり、成功率は62.1%であった。ちぎれてしまう要因としては、根が深く、引き抜く力に雑草自体が耐えられないと推測された。そのため、今後は引き抜き以外の方式の機械除草と組み合わせることも検討したい。

図15に引き抜いた雑草の成功例と失敗例を示す。成功例では、雑草が根ごと引き抜けている様子が、失敗例では根本がちぎれている様子が観察できる。

6. 性能確認試験

室内には場を模擬した環境(模擬畝)を構築し、開発した除草ロボットの性能確認試験を行った。

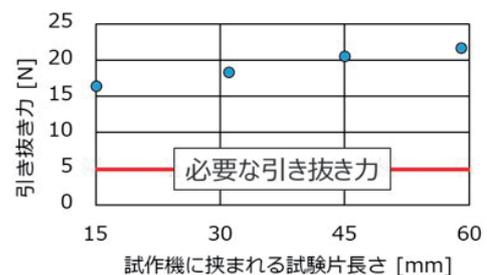


図14 試験機の引き抜き力測定結果

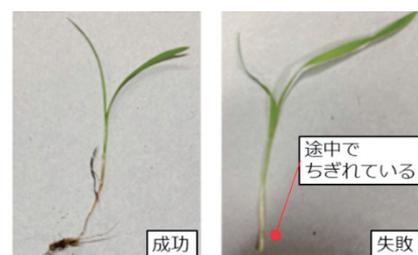


図15 引き抜きの成功例(左)と失敗例(右)

模擬畝を図16に示す。幅0.6m、長さ1.2m程の面積に園芸用の土を敷き、模擬畝を作製した。模擬畝上に30cm間隔でハトムギ（作物）を模した造花とハコベ（雑草）を模した造花を植えた。

実験の様子を図17に示す。畝を跨ぐようロボットを配置し走行を開始させた結果、次の一連の除草動作を確認した。

- (1) ロボットは前方のカメラで作物を認識して畝に追従走行し、雑草を識別するとその場で停止した。
- (2) ロボットは中央のカメラで雑草の座標を検出すると、マニピュレーター先端を雑草の上部へ移動させた。
- (3) ロボットはエンドエフェクターのベルトを回転させ、雑草を巻き込み引き抜いた。
- (4) ロボットはマニピュレーターを格納し、雑草を除去できていることを確認すると、畝に追従した走行を再開した。

本結果より、作物と雑草の識別部とロボットの走行系、引き抜き式除草部の各々が統合され、一連の除草動作が実現できていることを確認した。

7. おわりに

本研究では、株間の除草を機械化・自動化するために深層学習によって雑草と作物を判別し、雑草のみを選択的に除草するロボットを提案した。ロボット車体に取り付けたカメラによって上方から畝を撮影し、取得した画像に深層学習を適用することにより雑草と作物を識別可能であることを確認した。また、ベルト型のエンドエフェクターとマニピュレーター

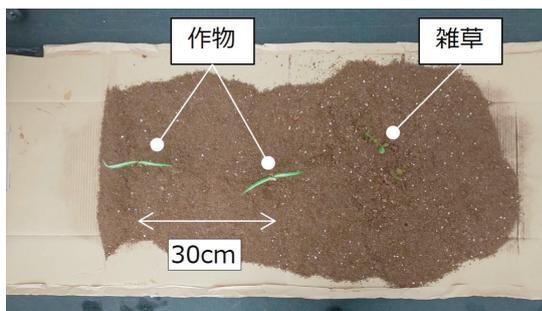


図16 模擬ほ場



図17 実験の様子
(マニピュレーターが雑草上部へ移動した瞬間)

からなる引き抜き式除草機構を用いて、株間の雑草のみを選択的に除草可能であることを確認した。

今後は実際のは場での確認試験を行うとともに、識別精度の向上と、除草機構部分の改良による除草速度の向上を行い、実用化を目指す。

参考文献

- 1) T. J. Monaco, A. S. Grayson et al. : "Influence of Four Weed Species on the Growth, Yield, and Quality of Direct-Seeded Tomatoes (*Lycopersicon esculentum*)", *Weed Science*, vol.29, no.4, pp.394-397, (1981).
- 2) T. Heisel, C. Andreasen, and S. Christensen : "Sugarbeet yield response to competition from *Sinapis arvensis* or *Lolium perenne* growing at three different distances from the beet and removed at various times during early growth", *Weed Research*, vol.42, no.5, pp.406-413, (2002)
- 3) 手島 司・後藤隆志・清水一史・他 : 「畑用株間除草機のアンケート調査」, 農業機械学会誌, vol.64-Supplement, pp.57-58, (2002)
- 4) "Agricultural Labor Force Statistics", *Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries*, <https://www.maff.go.jp/j/tokei/sihyo/data/08.html> (accessed Aug.4, 2023).
- 5) 農業・食品産業技術総合研究機構中央農業研究センター : 「薬用作物の機械除草マニュアル～カンゾウ、トウキ、センキュウ～」, (2020)
- 6) 古池寿夫 : 「機械的手段による雑草防除」 *雑草研究*, vol.23-No.2, pp.49-54, (1978).
- 7) 今岡広一・土井 匠・北村知大・他 : 「画像認識による株間の抜き除草機構を備えた除草ロボットの開発」, *ロボティクス・メカトロニクス講演会講演概要集*, pp.1A1-L07-, (2022)
- 8) He, K., Gkioxari, G., Dollar, P. et al. : "Mask R-CNN", *IEEE International Conference on Computer Vision (ICCV)*, pp.2980-2988, (2017)
- 9) 本庄 匠・土井 匠・井内悠介・他 : 「深層学習における領域検出の精度向上を実現する閾値の準最適化手法の提案」, 第22回計測自動制御学会システムインテグレーション部門講演会予稿集, pp.426-431, (2021)
- 10) Coulter, R. : "Implementation of the Pure Pursuit Path Tracking Algorithm", *DTIC document*, (1992).
- 11) 土井 匠・本庄 匠・井内悠介・他 : 「抜き除草を実現するためのグリッパー開発およびマニピュレータ制御」, 第22回計測自動制御学会システムインテグレーション部門講演会予稿集, pp.939-944, (2021)

四脚型運搬補助ロボットの開発

伊藤 壮生, 浦池 隆文, 今岡 広一

Development of a Quadruped Robot for Conveyance Assistance

Soki ITO, Takafumi URAIKE, Koichi IMAOKA

抄 録

重量物の運搬作業には台車やリヤカーなどが使用されているが、段差や急傾斜の多い不整地ではこれらの器具を使用することが困難であることから、不整地での運搬作業は作業者にとって大きな負担となっている。一方、近年踏破性に優れた四脚ロボットの実用化が進んでおり、不整地での活用が期待されている。しかし、四脚ロボットは台車のように簡単な操作では運搬作業に活用できないため、既存の運搬機器を四脚ロボットに単純に置き換えることはできない。

本研究では、四脚ロボットを台車やリヤカーのように簡単に操作し、運搬補助に活用可能とすることを目的として、小型四脚ロボットの開発と、その制御技術の開発を行った。シミュレーションと開発した実機による動作検証の結果、四脚ロボットに押す・引くといった台車と同様の簡単な操作を行うことで、任意の方向に移動できることを確認した。

キーワード：四脚ロボット, シミュレーション, 運搬補助

Abstract

While carriages and handcarts are used to transport heavy loads, they are difficult to use on uneven terrain with many steps and steep inclines, placing a heavy burden on the operator. In contrast, quadruped robots which have been put to practical use in recent years, are expected to be utilized on uneven terrain because of their superior treading ability. However, they cannot be used for conveyance work as easily as carriages, so carriages and handcarts cannot be simply replaced by quadruped robots in conveyance work.

In this study, we developed a prototype of a small quadruped robot and control technology for the purpose of using it as a conveyance assistance by making it as easy to operate as a carriages and handcarts. As a result of operation verification using the simulation and actual prototype, it was confirmed that the robot can be moved in any direction by performing simple operations such as pushing and pulling on the quadruped robot.

KEY-WORDS : Quadruped Robot, Simulation, Conveyance Assistance

1. はじめに

重量物の運搬作業には台車やリヤカーなどが使用されているが、段差や急傾斜の多い不整地ではこれらの器具を使用することが困難であることから、不整地での運搬作業は作業者にとって大きな負担となっている。一方、近年踏破性に優れた四脚ロボットの実用化が進んでおり、車輪やクローラなどの一般的な移動機構を使用することが困難な不整地での活用

が期待されている。しかし、四脚ロボットは台車のように簡単な操作では運搬作業に活用できないため、既存の運搬機器を四脚ロボットに単純に置き換えることはできない。

ロボットで人間の補助を行うシステムとして、人とロボットの協調制御が提案されている¹⁾。このようなロボットシステムは自動化を目的とした場合と比較し、簡潔なシステム構成で実現できることが特徴であり、一般的にロボットや機械の導入が困難である不整地環境での利用に適していると考え

事業名：経常研究

課題名：不整地運搬補助のための人間協調四脚ロボットシステムの研究

られる。

本研究では四脚ロボットを活用し、台車やリヤカーのように簡単な操作で運搬補助に活用可能とすることを目的として、小型四脚ロボットと制御技術の開発、およびシミュレーションと実機による動作検証を行ったので報告する。

2. 開発したロボット

本研究では全長55cm、全幅44cm、全高36cm、重量12kgの小型四脚ロボットを開発した(図1)。1脚あたり3個の関節を有し、合計12個の関節駆動用モータを搭載することで前後左右への移動と旋回を可能にした。脚部を構成する部材は軽量化と低コスト化のために3Dプリンタを用いて製作した。ロボットの制御に必要な姿勢や速度などの計算は、モータに内蔵された角度センサと6軸センサ(SBG SYSTEM社製 Ellipse-E)を組み合わせて行った。電源(リチウムポリマーバッテリー)や制御プログラムを実行するためのシングルボードコンピュータ(Raspberry Pi4B)を本体に内蔵することにより、ロボット単体で歩行が可能な構成とした。

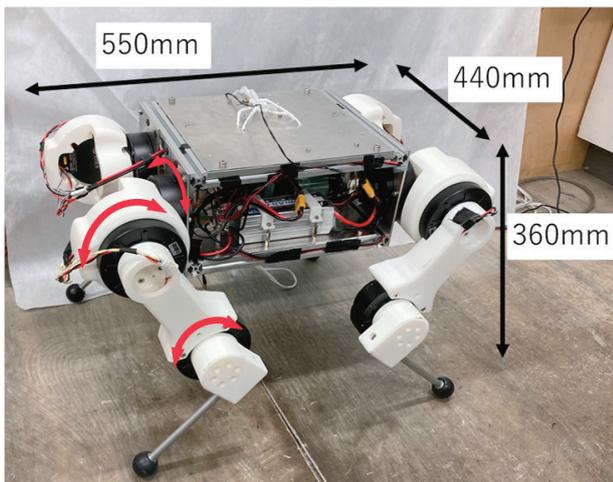


図1 開発した四脚ロボット

3. 歩行制御システム

四脚ロボットによる運搬補助を安全に行うためには、動作中の揺動を小さく抑えることや、押す・引くなどの外力に対しても安定性を維持する必要がある。このため、制御アルゴリズムにはKimらによるMPC(Model Predictive Control)とWBIC(Whole Body Impulse Control)のハイブリッド制御²⁾を採用した。この手法は、動力学にもとづいた各関節のトルク制御を行うことで、外力に対して安定性を維持したまま動作することが可能といった特徴がある。歩行制御システムの構成を図2に示す。本制御システムでは、目標となる速度、旋回速度、高さといった歩行指令を与えると、まず後述する歩容生成アルゴリズムにより脚の目標位置など歩行に

必要な脚の動作軌道の生成を行う。次にMPCとWBICによる制御アルゴリズムによって各モータへのトルク指令値等を計算する。また、制御に必要な胴体速度など、ロボットに搭載されているセンサから直接得られない状態を計算するため、カルマンフィルタによる状態推定を行う。歩行制御システムはROS(Robot Operating System)のパッケージとして開発することで、シミュレータの利用やセンサの追加などの改良を容易に行うことを可能とした。

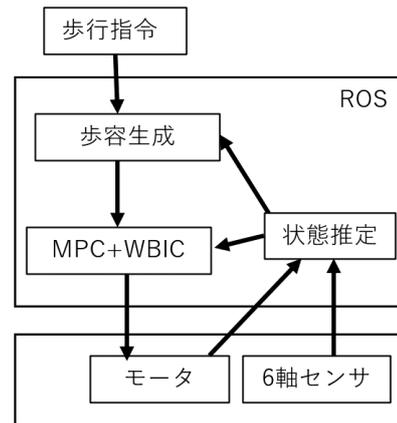


図2 歩行制御システム

3.1 歩容生成アルゴリズム

本研究で開発した歩行制御システムでは、事前に定めた脚の動作順序とタイミングにもとづいて歩容生成を行う。四足歩行の場合、ロボットの脚は地面に接触している支持脚と地面から離れている遊脚の2つの状態を一定の周期で繰り返す。このとき、支持脚期の割合や、脚ごとの遊脚期となるタイミングを変えることにより様々な歩容を生成することができる(図3)。本研究では、歩行速度と安定性のバランスに優れたトロット歩容を採用した。トロット歩容では対角にある脚のペアをもう片方のペアと半周期ずらして支持脚期と遊脚期を交互に繰り返す。歩行1周期あたりの時間は0.5秒とし、支持脚期と遊脚期の期間の比率を6:4とすることですべての脚が地面に接触する期間を確保し、歩行時の安定性向上

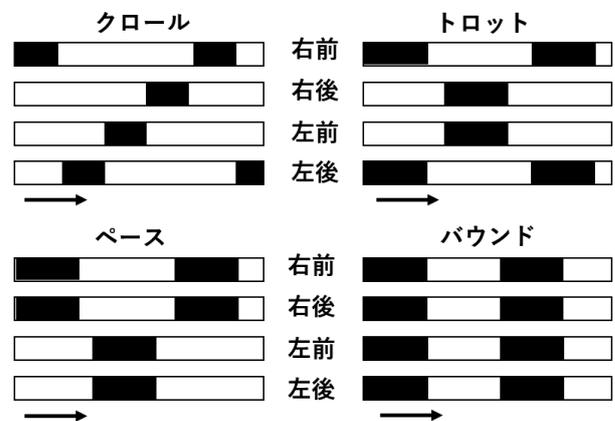


図3 歩容の種類による遊脚期のタイミングの違い
黒:遊脚期, 白:支持脚期

を図った。また、遊脚の軌道は歩行指令とロボット胴体の速度から算出し、脚が地面から離れる瞬間と地面に接地する瞬間の速度が0となるようにすることで脚の着地による衝撃を小さくし、滑らかな歩行を可能とした。

3.2 トルク制御アルゴリズム

3.1節で生成した歩容からMPCとWBICを用いて関節駆動用モータへの指令値の計算を行う。MPCは未来の状態を予測しながら最適化計算を行うことで、目標値に追従するようにフィードバック制御を行う手法である³⁾。MPCを歩行制御に適用することで歩容に応じた最適な制御を実現することが可能である。一方でMPCは処理に時間がかかるため四脚ロボットの運動モデルを簡略化する必要があり、その結果、運動モデルと実物の運動には誤差が生じる。そこで、WBICによりMPCの計算時にモデルの簡略化によって生じる誤差を修正し、最終的なモータへの指令値を計算する。本節ではMPCとWBICのアルゴリズムについて簡単に説明する。

MPCでは計算を簡略化するため、ロボット脚の質量を無視した単一質点モデルとして扱う(図4)。単一質点モデルはロボットのすべての質量が胴体の重心に集中していると仮定したモデルであり、質点の運動と支持脚の位置のみを考慮する。歩行指令に従った動作を実現するためには、支持脚で地面を押すことで得られる地面反力を変化させる。単一質点モデルについて未来の状態を予測するため下記の離散状態方程式を考える。

$$x_{t+1} = A_t x_t + B_t u_t \quad \text{式(1)}$$

状態変数 x はロボットの運動状態を表すオイラー角、角速度、位置、速度からなるベクトルである。 A と B はロボットの姿勢と支持脚の位置を変数とした関数になっている。また、添え字の t は時間ステップを表す。未来の状態 x_{t+n} は現在の状態である x_t と地面反力 $u_t \cdots u_{t+n-1}$ を用いることで式(1)から再帰的に計算することが可能である。例えば $t+2$ のときの状態 x_{t+2} は下記のように計算する。

$$x_{t+2} = A_{t+1} A_t x_t + A_{t+1} B_t u_t + B_{t+1} u_{t+1} \quad \text{式(2)}$$

このように $t+1$ から $t+n$ までの未来の状態 $x_{t+1} \cdots x_{t+n}$ を計算し、歩行指令から求められるロボットの理想的な状態と可能な限り一致するように地面反力 $u_t \cdots u_{t+n-1}$ の最適化計算を行う。最適化計算を行う際に、地面反力の最大値や地面の摩擦係数を考慮して制約条件として与えることで、モータの定格トルクを超えない範囲で地面反力を計算することや、地面と脚が接触した際の滑りを防ぐことができる。

次にWBICのアルゴリズムについて説明する。WBICではMPCの計算時に無視した関節の状態などを考慮し、モータ

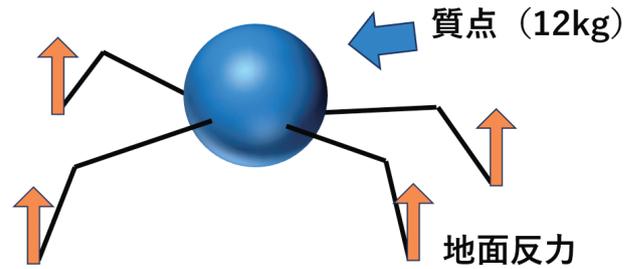


図4 単一質点モデルのイメージ
(単一質点と足の位置、地面反力のみを考慮する)

への駆動指令を求める。関節の状態を含む四脚ロボットの運動方程式は式(3)で表される。

$$M(q)\ddot{q} + b(q, \dot{q}) + g(q) = \tau + J_c(q)^T u \quad \text{式(3)}$$

q はロボット胴体の位置・姿勢、関節角度からなる一般化座標ベクトル、 M は慣性力、 b は遠心力とコリオリ力、 g は重力、 τ は関節トルク、 J_c はロボットと地面の接触点に関するヤコビ行列、 u は地面反力を表す。 $M(q)$ 、 $b(q, \dot{q})$ 、 $g(q)$ 、 $J_c(q)$ の各行列はロボットの状態により変化する関数であり、各行列の成分を高速に計算するためオープンソースで公開されているRBDL⁴⁾を使用した。式(3)について、関節トルク τ には胴体位置・姿勢に関する成分が含まれるが、それらは駆動軸ではないため常に0とする必要がある。よって胴体の運動のみに着目すると、四脚ロボットの運動は下記の制約条件を満たす必要がある。

$$[I_6 \ 0_{12}] (M(q)\ddot{q} + b(q, \dot{q}) + g(q)) = [I_6 \ 0_{12}] J_c(q)^T u \quad \text{式(4)}$$

I_6 は6×6の単位行列、 0_{12} は12×12の零行列である。

関節トルクを計算する手順としては、まず3.1節で生成した歩容に追従するようにPID制御則と逆運動学計算によって目標加速度 \ddot{q} を計算する。次に式(4)や摩擦などの制約条件を満たすよう、最適化計算により目標加速度 \ddot{q} とMPCで求めた地面反力 u を修正する。修正された目標加速度 \ddot{q} と地面反力 u を式(3)に代入することにより関節トルク τ を計算する。

MPCとWBICは計算量の問題から制御周期を十分に短くすることができず不安定になってしまう場合がある。そこで高速なフィードバックにより安定性を高めるため、サーボモータ内部でPD制御を行う。PD制御によって計算されたトルク出力をWBICのトルク出力に加算し、最終的な関節トルクとして出力する。PD制御はロボットの歩行指令と遊脚軌道から逆運動学計算によって計算した関節角度と関節角速度を目標値として行う。各指令値はCAN通信によってシングルボードコンピュータから関節駆動用モータへ送信する。

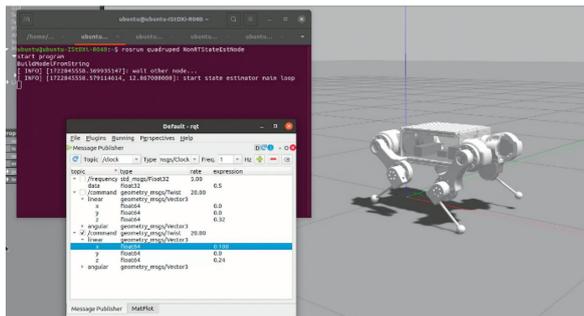


図5 Gazeboによるシミュレーションの様子



図6 段差を乗り越える様子

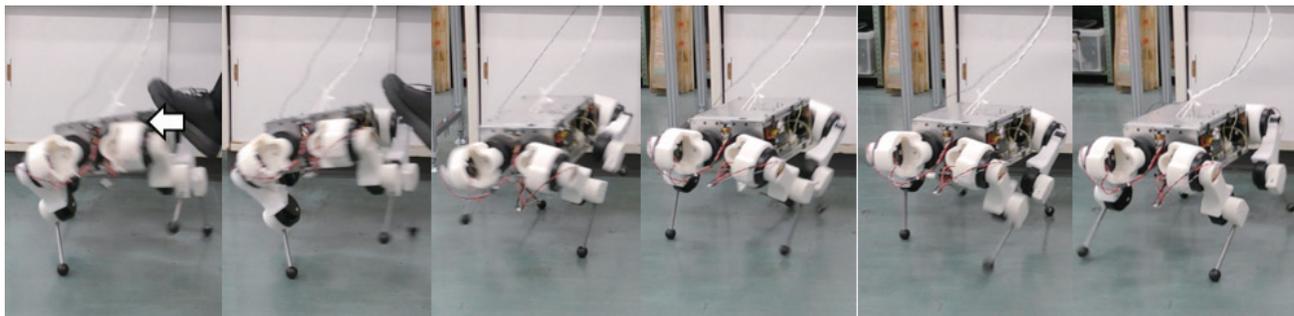


図7 衝撃に耐えて転倒を回避する様子

3.3 状態推定

3.2節で説明したトルク制御アルゴリズムを実行するためには関節の角度、角速度に加え、胴体の位置、速度、姿勢、角速度が必要となる。このうち関節の角度、角速度に関してはサーボモータに搭載されている角度センサで直接計測することが可能である。胴体の角速度についても6軸センサで直接計測することが可能であり、姿勢については6軸センサが有する機能により単体で取得することが可能になっている。しかし、ロボット胴体の位置と速度については直接測定することが困難であるため、Bledtらによる実装⁵⁾を参考にカルマンフィルタによる推定を行った。

カルマンフィルタは複数のセンサ等から得られる情報を組み合わせることで最適な推定値を得るアルゴリズムである。Bledtらの手法では胴体の運動に関して加速度を積分することによって得られる位置・速度の情報と関節角速度から支持脚の順運動学を計算することで得られる速度の情報を利用する。これらを組み合わせることでカルマンフィルタによる計算を行うことで、胴体の位置、速度について誤差が最も小さくなる最適な推定値を得ることが可能である。

3.4 歩行制御アルゴリズムの動作検証

実機の製作に先立ち、シミュレーションにより歩行制御アルゴリズムの動作検証、およびロボット各部の設計値と制御パラメータの調整を行った。シミュレーションはオープンソースのロボットシミュレータであるGazebo⁶⁾を使用して行った(図5)。製作する実機と同じ物理特性を有するモ

デルをシミュレータ上に構築し、3.1～3.3節の歩行制御システムによる歩行動作を行わせたとこ、前後左右への移動や旋回などの歩行指令に応じた動作が可能であることを確認した。シミュレーション結果をもとに実機を製作し、動作検証を行った。その結果、シミュレーションと同様に歩行指令に応じた動作が可能であることを確認するとともに、高さ50mm程度の段差の歩行(図6)や、側部からの強い衝撃に対して自動的に姿勢を保持して転倒を回避できることなどを確認した(図7)。

4. 操作力によるロボットの操作

台車など同様の操作でロボットを意図した方向へ移動させるための制御手法を検討し、シミュレーションによる動作検証を行った。この際、ロボットを移動させるために作業者がロボットに加える力を操作力と呼ぶこととする。本研究では図8に示すように作業者とロボットで荷物の両端を支え合

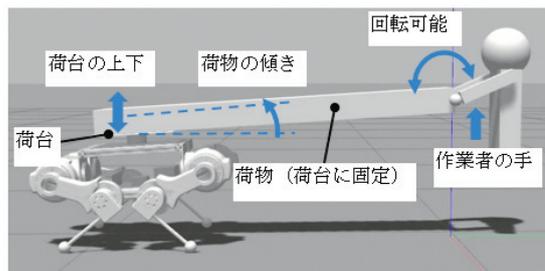


図8 シミュレーションによる荷台高さ調整実験の様子

うことで、ロボットに運搬作業を補助させる方法を想定した。シミュレーションの条件として、荷物はロボットに取り付けた荷台に固定され、かつ作業者と一定の距離を保ち、さらに図8に示すように作業者の手で回転支持されているものとした。また、作業者は前後と上下の移動のみ可能とした。

4.1 ロボットの高さの調整

作業者と荷台の高さが異なる場合は荷物が傾き（図8）、ロボットも同様に傾いた姿勢となる。荷物を水平に保ち安全に運搬作業を行うためには、ロボットの荷台高さを自動調整する必要がある。このため、一定以上の傾きを検知した際にロボットの姿勢に応じて荷台の高さを上下させることにより、荷物を水平に保つこととした。図9にシミュレーションによる動作検証の結果を示す。作業者が荷物を持つ「手の高さ」を変化させた際に、荷物が水平になるようにロボットの「荷台高さ」が自動的に調整されることを確認した。

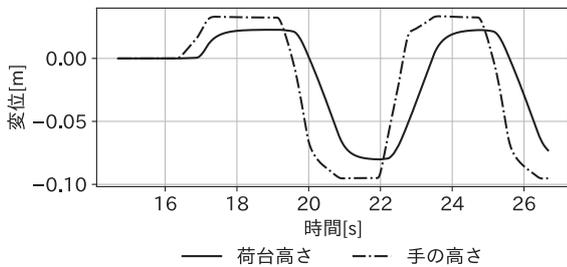


図9 高さの自動調整の実験結果

4.2 ロボットの前後の移動

四脚ロボットが外力に対して安定であることを利用して、台車やリヤカーなどと同様に、押す・引くなどの操作力に応じて四脚ロボットを受動的に移動させる動作の検証を行った。関節のトルク計算を行う際、水平方向の位置に関する目標値との誤差を無視するように制御パラメータを設定し、さらに速度指令を0とすることにより、操作力を加えた方向に受動的にロボットを歩行させることが可能である。また、ロボットの停止と歩行を操作力によって切り替えるため、足先の胴体からの相対位置を常に監視し、相対位置が変化してい

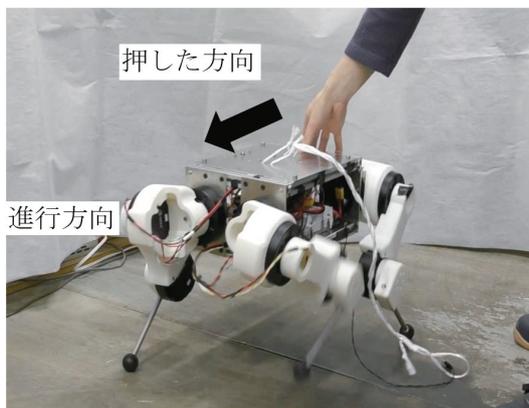


図10 ロボットを押して操作する様子

ない時は歩行を停止、作業者が操作力を加えることで相対位置が変化した時は歩行を開始する機能を実装した。シミュレーションによる検証を行い、作業者が移動することでロボットに操作力が加わると歩行を開始し、作業者が停止するとロボットも停止することを確認した。

実機を用いた実験においても図10のように操作力を加えたところ、ロボットを前後左右・旋回など任意の方向に操作できることを確認した。この際、前方へ移動させるために必要な操作力は約12Nであった。

4.3 操作力の大きさに関する検証

質量の大きな荷物を運搬する場合、荷物に合わせて四脚ロボットのサイズを大きくする必要があり、その際に操作力の増加が予想される。そこで、ロボットの大きさや質量と操作力の関係をシミュレーションで検証した。検証の結果、ロボットの操作に必要な操作力はロボットと荷物を合わせた質量に概ね比例して増加することがわかった（図11）。

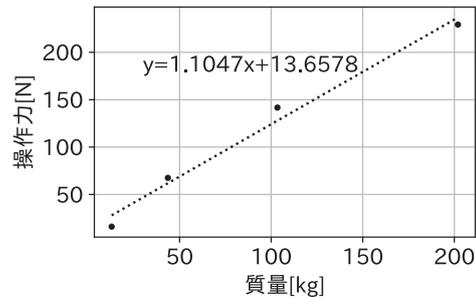


図11 ロボットと荷物の質量と操作力の関係

5. 操作力の低減

ロボットを移動させるための操作力はロボットと荷物を合わせた質量に比例することから、重量物を運搬するためにロボットを大型化すると、非常に大きな操作力が必要になることがわかった。このため、操作力を低減する仕組みが必要となる。

そこで図12に示すように、ロボットと荷台の間に操作力を計測するための力センサを設置し、計測した操作力をもとに能動的にロボットを歩行させる制御を検討した。操作力をもとにした歩行制御の指令値の計算には、慣性や粘性といった機械インピーダンスを制御するための手法であるアドミッタ

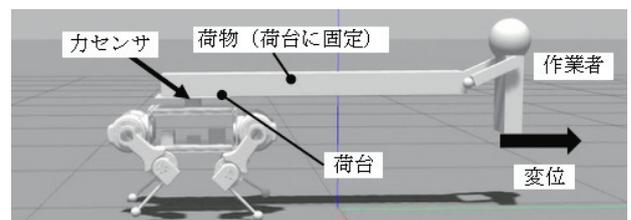


図12 操作力によるロボットの前後移動のシミュレーション

ンス制御を使用した。アドミッタンス制御では、式(4)の運動方程式により、目標とする特性を持つ仮想物体に力を加えた場合の運動を計算し、これと等しい運動をするように制御指令値を決定する。

$$M_d \ddot{x} + D_d \dot{x} + K_d x = F_{ext} \quad \text{式(5)}$$

ただし、 M_d , D_d , K_d は目標の慣性、粘性、剛性であり、 \ddot{x} , \dot{x} , x は仮想物体の加速度と速度、位置、 F_{ext} は外力を表す。

本研究 F_{ext} ではに力センサで計測した操作力を代入し、式(4)を計算することで得られる仮想物体の速度を歩行制御アルゴリズムへ目標速度として入力することでロボットを制御した。仮想物体の慣性および粘性を小さく設定するほど小さい操作力でロボットを動かすことが可能となるが、歩行の揺動による影響を受けやすくなる。そのため、ロボットの動作が不安定にならず、操作力を可能な限り小さくすることができるパラメータを試行錯誤によって決定した(表1)。

シミュレーションによる検証を行い、上記制御を組み込んだ際の操作力の変化を確認した。図13に示すように「力センサあり」の場合、ロボット操作に必要な力が「力センサなし」の場合と比較して平均で約1/3となることを確認した。

表1 アドミッタンス制御パラメータ

慣性 M_d	30kg
粘性 D_d	1.0N・s/m
剛性 K_d	0N/m

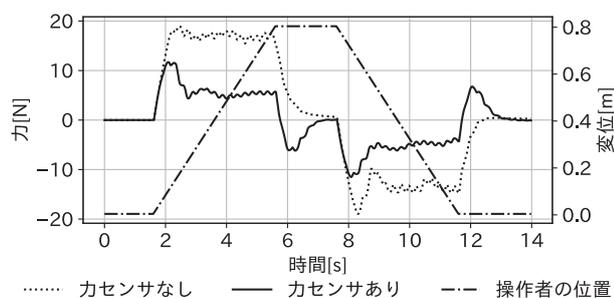


図13 カセンサの有無による操作力の違い

6. おわりに

本研究では台車やリヤカーの使用が困難な不整地において、簡単な操作で運搬作業の補助が可能な四脚ロボットの実現を目指し、小型四脚ロボットを開発するとともに、作業者の力によって簡便にロボットを操作するための制御技術の開発を行った。さらに、作業者がロボットに加える操作力を力センサで計測し、制御に活用することでロボットの操作に必要な操作力を小さく抑えることができることをシミュレーションによる動作検証を通して確認した。

今後は斜面を想定した際の操作性向上などについて検討を進める。また、本研究で得られたロボット制御技術やシミュレーション等を利用した開発手法について、技術支援等を通じて普及を図る予定である。

参考文献

- 1) 田窪朋仁・荒井裕彦 他:「人とロボットによる長尺物の協調運搬: 仮想非ホロノミック拘束による水平面内の制御手法」, 日本機械学会論文集C編, 66巻, 648号, pp.2677-2684, (2000)
- 2) KIM, Donghyun, et al., “Highly dynamic quadruped locomotion via whole-body impulse control and model predictive control.”, *arXiv preprint arXiv:1909.06586*, (2019)
- 3) 大嶋正裕, 小河守正:「モデル予測制御-I: 基礎編: 発展の歴史と現状, システム/制御/情報」, 46巻, 5号, pp.286-293, (2002)
- 4) Felis, M.L., “RBDL: an efficient rigid-body dynamics library using recursive algorithms.” *Auton Robot* 41, pp.495-511 (2017)
- 5) Bledt, Gerado et al. “MIT Cheetah 3: Design and Control of a Robust, Dynamic Quadruped Robot.” *IEEE International Conference on Intelligent Robots and Systems*, October 2018, Madrid Spain, Institute of Electrical and Electronics Engineers, January, (2019)
- 6) N. Koenig, A.Howard, “Design and use paradigms for gazebo, an open-source multi-robot simulator,”, in *Proc. IEEE/RSJ International Conference on Intelligent Robots and Systems*, pp.2149-2154, (2004)

ロボットを介したスイッチ遠隔操作支援システムの開発

宮島 沙織, 浦池 隆文, 井川 久, 高木 友史, 川島 圭太, 吉田 道拓

Development of a Support System for Remote Switch Operation with Robots

Saori MIYAJIMA, Takafumi URAIKE, Hisashi IGAWA,
Tomohito TAKAGI, Keita KAWASHIMA, Michihiro YOSHIDA

抄 録

全国的に深刻化している人手不足の対策として、ロボットを活用した作業の自動化や遠隔化などが挙げられる。しかし、たとえばカメラ映像を観ながらロボットを遠隔操作する場合、操作盤のスイッチを押すだけのような単純な作業でも、二次元のカメラ映像のみではロボットの手先とスイッチとの正確な距離感が把握できない。そのため、操作に習熟が必要であるなどの課題がある。

そこで本研究では、遠隔地からロボットを介してスイッチの操作を直感的に行えるような遠隔操作支援システムを開発した。開発したシステムは、スイッチを操作するロボット動作の生成技術と、ユーザが直感的にロボットに対してスイッチ操作の指示を与えることができるユーザインタフェース技術で構成される。本システムを用いて人協働ロボットを動作させる検証を行った結果、押しボタン・ロッカースイッチ・非常停止ボタンの操作が可能であることを確認した。

キーワード：ロボットビジョン, 三次元点群処理, 物体検出, ロボットマニピュレーション

Abstract

Automation of work using robots is one way to counter the labor shortage, which is becoming increasingly serious in Japan. However, when a robot is operated remotely through camera footage, even simple tasks such as pressing a switch are hard to perform because it is difficult to estimate the distance or requires training the operation.

In this research, we developed a support system for remote operation that allows users to intuitively operate switches on the equipment from a remote location using robots. The developed system consists of a technology for generating switch operation actions by a robot and a user interface. We verified the system by operating a collaborative robot using the developed system and confirmed that it was possible to operate push buttons, rocker switches, and emergency stop buttons.

KEY-WORDS : Robot vision, 3D Point cloud analysis, Object detection, Robotic manipulation

1. はじめに

人手不足の解消や作業者の負担軽減のため、ロボットを活用した作業の自動化や遠隔化が注目されている。すでにロボットは物体の運搬や移載などに活用されているが、省人化を推進するには、より多様な作業への適用が求められる。本研究では汎用的な作業として機器の操作、具体的には機器に設置されているスイッチの操作に着目し、ロボットを用いたスイッチの遠隔操作技術の開発を目的とする。

作業を遠隔地から行う場合、作業現場に設置されているカメラの映像を見ながらロボットを操作することが想定されるが、二次元のカメラ映像を通してロボットと操作対象物との位置関係を正確に把握するのは困難であり、そのためロボット操作には習熟が必要となる。そこで本研究では、ユーザがロボットを直接操作するのではなく、ユーザが選択したスイッチを、ロボットに自動的に操作させるための技術を開発した。具体的には、スイッチを操作するロボット動作の生成技術¹⁾と、遠隔地にいるユーザがカメラ映像を通して操作したいスイッチを直感的に確認・選択できるユーザインタフェースを開発した。

スイッチの自動操作を可能としたロボットに関する先行研究としては、巡回ロボットへの適用を目的とし、深層学習を用いてエレベーターのボタンを認識して自動で操作する手法が開発されている²⁾。しかし、この研究ではエレベーターの押しボタンのみが対象であり、ロッカースイッチやトグルスイッチなど他の様々なスイッチの操作は対象としていない。また、Wangらが開発したロボット³⁾は様々な種類のスイッチを操作できるが、操作対象とする全てのスイッチについて操作に必要なパラメータを個別に登録しておく必要があるため、未登録のスイッチは操作できない。

本研究では、事前の操作パラメータ登録を必要とせず、様々な種類のスイッチを自律的に操作するため、次の手順に従ってスイッチを操作するロボット動作の生成を行う。

1. RGB-Dカメラを用いて装置等のRGB画像と三次元点群を取得する
2. 深層学習による物体検出を用いて、RGB画像から装置等に設置されているスイッチの種類と位置を検出する
3. 検出結果からユーザが操作したいスイッチを選択する
4. 三次元点群から取得した情報を基に、選択されたスイッチを操作するロボット動作を生成する

なお、装置を撮影するRGB-Dカメラはロボットの手先に取り付けられていると想定する。次章より、詳細な手法と成果について述べる。

2. 深層学習によるスイッチの検出

2.1 検出対象スイッチの定義

スイッチとは、機械的に電気信号を切り替えることができる装置全般を指す。装置等に使用されているスイッチはJIS C4256において規格が定義されている。そのうち、本研究では以下の2点に当てはまるスイッチを操作対象とした。

- ・人の手指によって操作されるもの
- ・操作部が壁や装置に固定されているもの

したがって、操作部が固定されていない引きひもスイッチや足で踏むフットスイッチ、握ることでオンになるグリップスイッチ等は対象外とした。

前述の項目に当てはまるスイッチについて、操作方法や外観に基づき10クラスに分類し、深層学習による検出対象とした。さらに、各スイッチを操作する動作を次の3通りで定義した。

- ・垂直に押す動作
- ・平行に押す動作
- ・回転させる動作

分類した10クラスのスイッチについて、画像例と操作部の概要図を図1に示す。概要図には、そのスイッチの操作動作を矢印で示している。



図1 検出対象のスイッチと操作部の概要

2.2 データセットの作成とスイッチの検出

装置等のRGB画像からスイッチの種類と位置を検出するため、独自のデータセットを作成し、深層学習による物体検出アルゴリズムYOLOv5⁴⁾に転移学習を適用することでスイッチ検出モデルを作成した。

作成したデータセットは、工作機器や医療機器、家電機器など様々な装置や電気機器類のスイッチ画像844枚から構成され、各画像にはスイッチの位置を示す矩形領域とスイッチの種類を示すラベルの情報を付与した。ラベルは図1に示した10種類に、スイッチと類似した外見を持つ「ランプ」と「鍵穴」を加えた12種類である。

データセットを訓練用画像657枚、検証用画像187枚に分割し、バッチサイズ16、エポック数300としてYOLOv5sモデルの転移学習を行った。学習後のスイッチ検出モデルの精度を検証するため、データセットに含まれない94枚の画像を用いてスイッチの検出を行った。検証によって得られたクラス別の検出精度を図2のグラフに示す。また、検出結果の例を図3に示す。検出精度の指標としてはAverage Precision⁵⁾(以下AP)を使用した。グラフより、キースイッチとスライダを除く8種類のスイッチについてはAP>0.7と7割以上の精度で検出された。本研究では検出結果を受けて人間が操作するスイッチを選択するため、8種類のスイッチについては十分な精度が得られたと考えられる。

一方、キースイッチのAPが0.16、スライダのAPが0.55と、検出精度が低い結果となった。これは、データセットに含まれるキースイッチの画像が不足していること、同じクラスのスイッチでもデザインや形状など外見のばらつきがあることなどが原因と考えられる。使用したデータセットのクラス内訳を図4に示す。これらのスイッチの検出精度を向上するためには、学習データの追加や、データ加工・拡張による学習データの増強が必要である。

3. スイッチ操作動作の生成

3.1 操作動作の構成要素

2.1節で述べた3種類のスイッチ操作動作のうち、本研究では直線的な動作である「垂直に押す動作」の生成に取り組んだ。この動作は次の3つの要素から構成されると仮定し、各要素を取得する手法を提案する。

- ・押す位置
- ・押す方向
- ・押し動作の終了条件

押す位置と押す方向を求める手法については、次節以降で述べる。押し動作の終了条件として、本研究ではスイッチを押している際にロボットの手先に作用するスイッチからの反力をロボットに内蔵された力センサで計測し、反力が閾値を超えた場合に押し動作を終了するとした。

3.2 押す位置の取得

取得した三次元点群とスイッチ検出モデルによってRGB画像から検出したスイッチの位置(矩形領域)を用いて、スイッチを押す位置を取得する方法について述べる。

垂直に押す動作によって操作される押しボタン、タッチパネルボタン、非常停止ボタン、ロッカースイッチの4種類のうち、ロッカースイッチ以外の3種類はどの位置を押しても操作可能であるため、検出されたスイッチの位置を示す矩形領域の中心点を押す位置と設定した。

一方、ロッカースイッチは図1に示すように操作部がシー

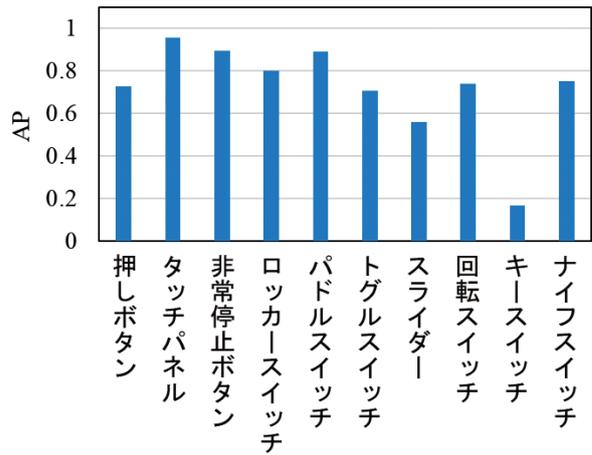


図2 種類別のスイッチ検出精度 (AP)

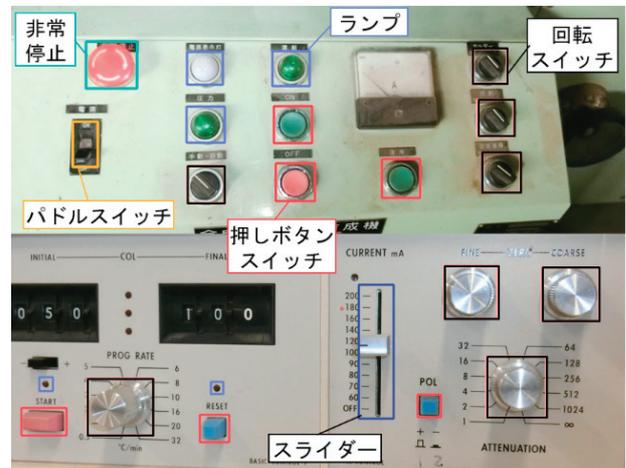


図3 検出したスイッチの位置(矩形)とラベルの例

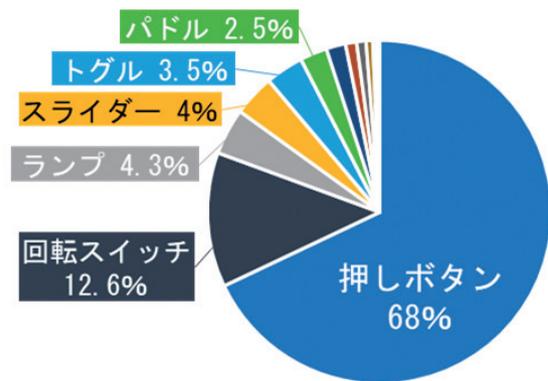


図4 データセットに含まれるスイッチの内訳

ソーのように傾いており、立ち上がっている片側を押す必要がある。そこで、矩形領域を長辺の二等分線で分割し、各領域に含まれる三次元点群の高さの平均値を比較することで、立ち上がっている片側を識別した。この識別された片側領域の中心点を押す位置と設定した。

3.3 押す方向の取得

次に、押す方向を取得する方法について述べる。押す方向を取得する最も単純な方法は、スイッチ検出モデルによって検出された矩形領域内の点群を抽出して法線方向を求める方法である。しかし、スイッチには操作部が半透明のもの、光沢があるものなど、点群に欠けが生じやすいものが多く存在する。そこで、スイッチは装置等の平面上に設置されていると仮定し、矩形領域内の点群のみではなく設置面内の点群全てを使用して平面推定を行い、その設置面の法線方向を、スイッチを押す方向とした。具体的には、次の手順によって押す方向を求めた。

1. 取得した全点群に対し Density Based Spatial Clustering of Applications with Noise (DBSCAN)⁶⁾ を適用してクラスタリングを行い、スイッチと設置面の両方が含まれる点群クラスタを取得する
2. 取得した点群クラスタについて Random Sample Consensus (RANSAC) を適用し、近似平面と平面の法線ベクトルを算出する

3.4 押す位置と方向の取得試行

前述の手法を用いて、実際のスイッチに対する押す位置と押す方向の取得を試行した。試行には図5に示す複数種類のスイッチを取り付けた樹脂パネルを使用した。押す位置と押す方向の取得結果を、RGB-Dカメラで取得した点群とあわせて図6に示す。図内の矢印は押す方向を表している。

押しボタンと非常停止ボタンについては、設定したとおりにスイッチの中心を垂直に押す矢印が描画されている。加えて、パネルに設置された4個全てのロッカースイッチに対し、立ち上がっている片側を押す位置とした矢印が描画されており、提案した手法で押す位置と押す方向の取得が可能であることが確認された。

3.5 ロボット動作の生成

まず、ロボットの手先に取り付けられたRGB-Dカメラを用いて操作対象の装置を撮影し、RGB画像と点群を取得する。この時のロボットの手先位置を撮影位置と呼称する。次に3.2節・3.3節の手法を用いて押す位置と押す方向を取得し、押す位置から押す方向と逆向きに10mm離れた位置を初期位置とする。

また、ロボットの手先に作用するスイッチからの反力を F 、押し動作を終了する手先反力の閾値を \hat{F} として、スイッチを操作するロボット動作を次の手順にて設定した。

1. ロボットの手先を初期位置に移動
2. 手先反力 $F \leq \hat{F}$ の間、押す方向にロボットの手先を移動し続ける
3. 手先反力 $F > \hat{F}$ の時、ロボットの手先を初期位置に戻す

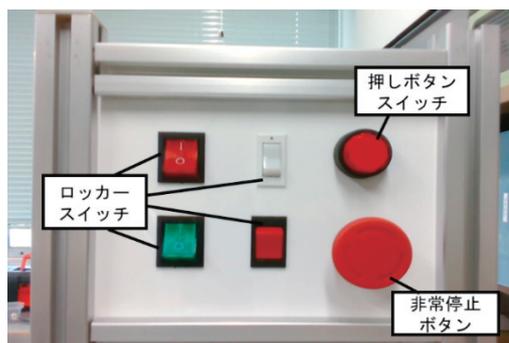


図5 試行に使用した樹脂パネル

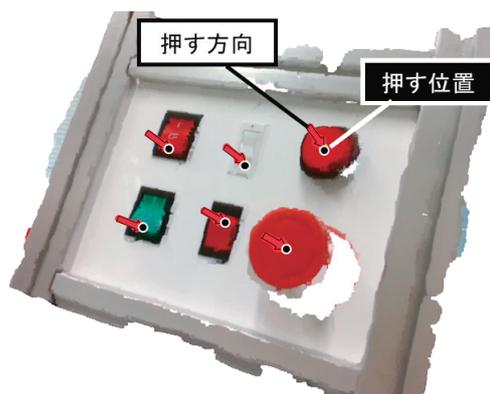


図6 取得した押す位置と押す方向 (矢印として描画)

4. ロボットの手先を撮影位置に戻す

上記の手順により、スイッチがロボットの可動範囲内に存在する限りスイッチを押す動作の生成が可能である。

4. ユーザインタフェースの作成

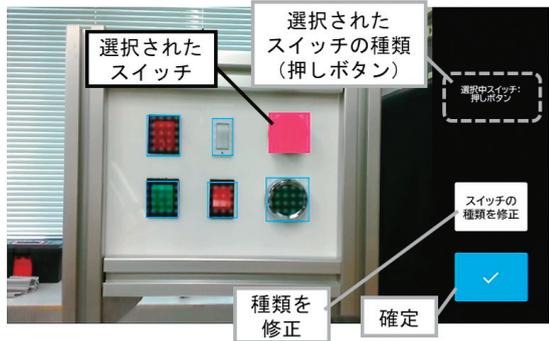
遠隔地から簡便に、操作対象となるスイッチをロボットに指示するためのユーザインタフェース (以下UI) を作成した。UIはスイッチを選択する画面、ロボットの動作を確認する画面の2つで構成した。タッチ操作のみで直感的に操作できるように、作成にはPythonのtkinterというグラフィックユーザインタフェースツールキットを使用した。

作成したUIの画面遷移を図7に示す。スイッチを選択する画面は図7(1)と(2)である。本画面では撮影したRGB画像上に検出したスイッチの矩形領域を重畳表示し、矩形領域をタッチすることでスイッチの選択ができるよう設定した。図7(1)の画面でスイッチをタッチ選択すると、図7(2)のようにUIの右上に選択されたスイッチのクラス名が表示される。万が一クラス分類に誤りがある場合は、クラス名表示の下の「スイッチの種類を修正」ボタンを押すことでクラスを再設定できる。選択した内容に問題がなければUIの右下にある確定ボタンを押し、操作するスイッチを確定する。

操作対象を確定すると、図7(3)に示すロボット動作を確



(1) スイッチ選択前画面 (RGB-Dカメラ画像)



(2) スイッチ選択後画面 (RGB-Dカメラ画像)



(3) ロボット動作中の様子 (ロボット動作確認用カメラ画像)

図7 作成したUIの画面遷移

認する画面が表示される。本画面では、図7(2)まで表示していたRGB-Dカメラの画像を、ロボット動作確認用カメラの映像に切り替えて表示している。このカメラは図8に示すようにロボットハンドの先端が写るようロボットの手に設置しており、選択したスイッチが想定どおりに操作されたかを確認できる。加えてUIの右下にはロボットを停止させる丸型のボタンを配置し、不具合が生じた場合はスイッチ操作を中断し、ロボットの手先を前述の撮影位置に戻すことが可能である。また、画像上には「ロボット動作を生成しています」「操作中です」等のメッセージを表示させ、作業状況を把握できるようにした。

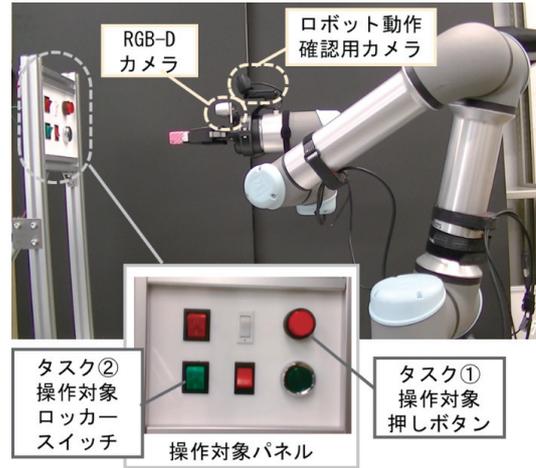


図8 実験環境と使用した機器類

5. 人協働ロボットへの実装とユーザによる操作試行実験

5.1 実験の概要

開発したスイッチ操作動作の生成技術とUIを使用し、ロボットを介して指定されたスイッチを遠隔操作する実験を行った。

スイッチの操作には人協働ロボット (UR5e・Universal Robot社製) を使用した。ロボットの手先には電動グリッパ (2F-85・ROBOTIQ社製) を取り付け、閉じたグリッパの先端でスイッチを押すようにした。また、RGB画像と三次元点群の取得にはRGB-Dカメラ (RealsenseD435・Intel社製) を使用し、ロボット動作確認用カメラとしてウェブカメラ (C1000eR・Logicool社製) を使用した。加えて、操作対象のスイッチは樹脂製の操作対象パネルに設置した。使用した機器と操作対象のスイッチを図8に示す。

本実験は30代から50代の男性4名・女性3名の計7名の被験者を対象に行った。被験者にはUIを操作して以下2つのタスクを個別に実施してもらった。

- ・タスク①：右上の赤い押しボタンを操作する
- ・タスク②：左下の緑色のロッカースイッチを操作する

被験者は「開始してください」の指示を受けてUIの操作を開始し、指示されたスイッチを選択して確定ボタンを押す。その後、操作が終了したと被験者が感じた時に「終了しました」と申告してもらうこととした。加えて、タスク終了後にヒアリングを実施し、UIの使いやすさ等を調査した。

5.2 実験結果と考察

実験の結果、全被験者がタスク①・②ともに実施に成功した。タスクの実施にかかった作業時間を、開始の合図から被験者による終了の申告までとすると、タスク①の作業時間は平均で33秒、タスク②の作業時間は平均で24秒であった。被験者別の作業時間を図9に示す。作業時間のうち、被験者の介入を必要としないロボット動作生成などの内部処理が終了

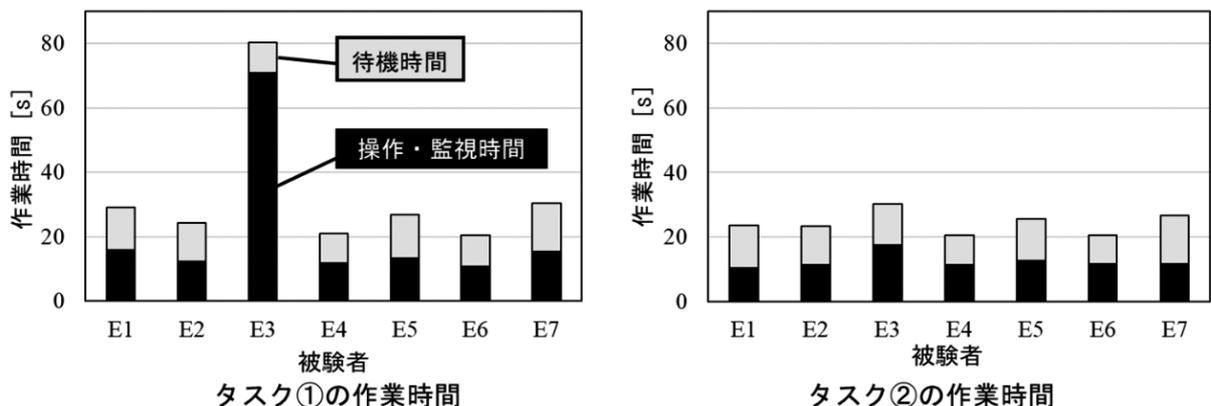


図9 被験者別の作業時間とその内訳

するまでの待ち時間を「待機時間」として灰色で示し、被験者の介在が必要な、UIを操作している時間やロボットが動作している時間を「操作・監視時間」として黒色で示している。E1～E7は被験者の識別番号である。

被験者E3のタスク①における「操作・監視時間」は70秒と他の被験者の約5倍だが、これは操作方法の理解に時間がかかったためである。またE3以外の被験者の「操作・監視時間」の平均値はタスク①で13秒、タスク②で12秒であり、短時間でスイッチの操作が行えたと考えられる。

タスク後のヒアリングでは、多くの被験者からスイッチを選択・確定するだけでよいため操作が簡単であるという感想が得られた。一方で操作方法の理解に時間がかかったという意見もあり、実際にタスク①ではシステムの操作方法が理解できず、作業にもたつく被験者もいた。しかし、タスク②では全被験者がスムーズにUIを操作でき、図9のグラフからもタスク②ではタスク①よりも全体的に操作時間が短縮していることから、タスク①を通して十分操作に慣れることができたと考えられる。

以上の結果から、開発したシステムにより、ロボットを介したスイッチの遠隔操作が簡便に実行可能であることが確認された。今後のUIの改善点として、操作ガイドを追加するなどユーザの理解を助ける改良が考えられる。加えて、多くの被験者から処理を待つ時間が長く不安を感じたとの意見があったことを受け、処理アルゴリズムの最適化による応答性の向上と待ち時間の短縮や、処理状況を示すアイコンやインジケータ等の追加が有用と考えられる。

6. おわりに

本研究では、ロボットを介して遠隔地の装置に設置されているスイッチを簡便に操作することが可能なロボット動作生成技術とユーザインタフェースを開発した。被験者7名による検証実験の結果、開発したシステムを用いて実際にスイッチの操作が可能であることが確認された。

今後の展望としては、今回対象としなかった平行に押すスイッチや回転式スイッチの操作動作の生成に加え、開発したロボット動作生成技術とUIを自律移動が可能な巡回ロボット等へ実装し、プラントやデータセンター等の実作業環境でのスイッチ類遠隔操作検証実験を目指す。また、本システムを使用しない場合との比較実験を行い、システムの有用性を評価する必要がある。

参考文献

- 1) 宮島沙織, 橋本 学, 他:「ロボットによる多様なスイッチ操作自動化のためのスイッチ位置と姿勢の認識」, 動的画像処理実利用化ワークショップ2024講演論文集, pp.83-88, (2024)
- 2) Shang Li, Yujing Chen, Yuhao Meng, et al.:“Autonomous Elevator Button Recognition and Operation Framework for Multi-Floor Mobile Manipulator Navigation,” in *Proc. of IEEE/ASME Int. Conf. on Advanced Intelligent Mechatronics*, pp.383-388, (2021)
- 3) Fan Wang, Gerry Chen and Kris Hauser : “Robot Button Pressing in Human Environments,” in *Proc. of IEEE Int. Conf. on Robotics and Automation*, pp.7173-7180, (2018)
- 4) Glenn Jocher : “YOLOv5 by Ultralytics,” *doi:10.5281/zenodo.3908559*, (2020)
- 5) Rafael Padilla, Wesley L. Passos, Thadeu L. B. Dias, et al. : “A Comparative Analysis of Object Detection Metrics with a Companion Open-Source Toolkit,” *Electronics*, Vol.10, No.3, 279, (2021)
- 6) Martin Ester, Hans-Peter Kriegel, Jörg Sander, et al. : “A density-based algorithm for discovering clusters in large spatial databases with noise,” in *ACM SIGKDD Conf. on Knowledge Discovery and Data Mining*, Vol.96, pp.226-231, (1996)

バイオマス由来ナノ繊維シートを利用した繊維強化複合材料の開発

瀬野修一郎, 細川 真明, 土田 晋士, 可児 浩, 吉田 昌充, 山岸 暢

Development of Fiber-reinforced Composite Materials using Biomass-derived Nanofiber Sheet

Shuichiro SENO, Masaaki HOSOKAWA, Shinji TSUCHIDA,
Hiroshi KANI, Masamitsu YOSHIDA, Tohru YAMAGISHI

抄 録

セルロースやキチンをナノ解繊したバイオマスナノファイバー (BNF) は軽量・高強度のバイオマス新素材として注目されている。材料のバイオマス化が求められる社会となるなか、バイオマス原料を活用した軽量・高強度の複合材料開発を目指し、BNFが疑似連続構造を形成するナノシートと熱可塑性樹脂からなる積層複合材料の開発を行った。プレス条件や積層構成など種々の検討を行った結果、一部の機械的特性においてガラスマット繊維強化樹脂相当の材料を作製することができた。一方で構造材料としての利用には物性が不足するため、さらなる改良が必要となる。

キーワード：バイオマスナノファイバー, シート, 積層, 複合材料

Abstract

Biomass nanofibers (BNF), which are made by nano-fibrillating cellulose and chitin, are attracting attention as a new lightweight and high-strength biomass material. As a society in which materials made from biomass resources required, we aimed to develop lightweight and high-strength composite materials using biomass resources, and developed a laminated composite material consisting of nanosheets in which BNF forms a pseudo-continuous structure and thermoplastic resin. As a result of various investigations into pressing conditions and lamination configurations, we were able to develop a material equivalent to glass mat fiber-reinforced resin in some mechanical properties. But further improvement will be required for use as a structural material.

KEY-WORDS : Biomass nanofiber, Sheet, Lamination, Composite

1. はじめに

樹脂関連材料が目指す方向性の一つとして自動車や航空機等の車体及び部品等に利用できる連続炭素繊維強化樹脂 (CFRP) のような金属材料に代わりうる軽くて強い材料の開発が強く期待されている。一方、政府によって策定された

プラスチック資源循環戦略では、2030年までに約200万トンのバイオマス樹脂導入が目標とされており、バイオマス由来の材料が今後もより一層求められる社会となる。

バイオマス由来のセルロースやキチンをナノサイズに解繊したバイオマスナノファイバー (BNF) は、ポスト炭素繊維として大変注目されている新素材^{1,2)} で、音響機器・スポー

事業名：経常研究

課題名：環境に優しいBNFシート積層複合材料の開発 (令和3～5年度)

ツ用品・食品など様々な用途での利用が拡大している。道内には原料となるセルロース資源（木材，農業残さなど）やキチン資源（カニ殻，エビ殻など）が豊富にあることから，こうした地域資源の高付加価値化を図り，産業利用につなげることが期待されている。

このBNFと樹脂の複合化によりバイオマス由来の軽量・高強度材料の開発が活発に行われているなか，近年実用化が進んでいるセルロース系BNF強化樹脂³⁾については，繊維が個々に独立して樹脂中に分散した状態の複合材料であるため，連続繊維の繊維強化樹脂のように繊維強度のポテンシャルを最大限に活用できていないと推測される。繊維自身が持つ強度を最大限に引き出すためには，複合材中で繊維同士が連続した構造であること（たとえばシート状のBNFなど）が必要であると考えられる。実際にバクテリアセルロースナノファイバーシートに熱硬化性樹脂を含浸させた複合材料においては最大強さが400MPa以上，弾性率が30GPa程度のマグネシウム合金並の物性となることが報告されている⁴⁾。

そこで，本研究ではそのような疑似連続構造の形成が推測されるBNFシートを用いて，熱硬化性樹脂のかわりに成形性に優れた熱可塑性樹脂からなる高強度・高剛性のBNF複合材料の作製を試みた。

2. 実験方法

2.1 BNFシートと樹脂粉末からなる中間複合材の作製

たとえばCFRPにおいては，炭素繊維間への樹脂の含浸度が最終的な成形体の物性に大きく影響するため，プリプレグ（樹脂が事前中含浸された繊維シート）と呼ばれる中間複合材が製造されており，そのプリプレグを積層複合化して，連続繊維のCFRP成形体が作製されている。BNFのシート化はBNFの懸濁液を吸引ろ過などの方法でシート状に脱水した後，乾燥することで得ることができる。BNFにおいてもシート化することでその繊維間は非常に狭くなり，樹脂の含浸が容易ではないことが予想されるため，CFRPを参考にまず中間複合材の作製を試みた。

BNFの繊維間に樹脂が含浸しやすいようにBNFをシート化する前に懸濁液の段階で樹脂粉末と混合し，その後，吸引ろ過を行い，シート化・乾燥することでBNF間に樹脂粉末が分散した中間複合材を作製した（図1，2）。BNFにはマイクロフィブリル化セルロース（セリッシュ KY100S，ダイセルミライズ社製，繊維長300 μ m～1000 μ m，平均繊維径0.14 μ m）を，樹脂にはナイロン6（以下，PA6）とポリ乳酸（以下，PLA）を使用した。PA6にはユニチカナイロン6 A1020LP（ユニチカ社製，MFR*=18.9g/10min [240 $^{\circ}$ C，0.35kg]）およびPLAにはテラマックTE-2000（ユニチカ社製）を用いた（*Melt Flow Rateの略，熱可塑性樹脂の流動性の指標となる値）。

さらにPA6においては，流動性が物性に与える影響を調べるために，より分子量が高く，流動性が低いグレード（アミラン CM1026，東レ社製，MFR=8.4g/10min[240 $^{\circ}$ C，2.16kg]，以下，高PA6）についても中間複合材の作製を試みた。高PA6とPLAにおいては形状がペレット状のグレードであったため，液体窒素下での凍結粉碎によって平均粒径が100 μ m程度までになるよう粉碎を行った。



図1 熱プレス前の中間複合材のサンプルイメージ

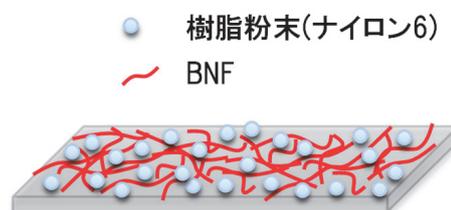


図2 作製した中間複合材のサンプルイメージ

2.2 中間複合材の機械的特性評価

2.1節で作製した中間複合材を熱プレス機を用いて圧縮成形（温度：240 $^{\circ}$ C，加圧時間：1分，ゲージ圧力：10MPa）した後，ダンベル型の打ち抜き刃で打ち抜き試験片を作製した。続いて，万能材料試験機を使い，作製した試験片の引張試験を行った。引張試験条件については以下のとおりである。

試験速度：2mm/min

試験片：JIS K7162 5B形

試験温度：23 $^{\circ}$ C

試験装置：オートグラフAG-100kNXplus（榊島津製作所）

2.3 BNFの疎水変性

BNFの疎水化による影響を調べるために，既報文献⁵⁾を参考に無水酢酸を用いたアセチル化により疎水変性を行った。この時の水酸基の変性度は赤外分光分析によるアセチル基の吸収から算出した結果，0.54であった。変性度はセルロースを構成するグルコース中の3つの水酸基がすべて置換された場合に3となる。

2.4 中間複合材と樹脂からなる積層複合材料の圧縮成形

2.1節で作製した中間複合材と厚み0.3mmの市販の樹脂シートを積み重ねた後，熱プレス機を用いて加熱圧縮成形することで，一体化させ積層複合化を行った。成形条件については圧力（ゲージ圧力）・時間・温度を変えて圧縮成形を行

い好適な成形条件を求めた。

2.5 中間複合材の断面観察

2.1節で作製した中間複合材を液体窒素に浸漬することで脆性破壊した断面の形態観察を電界放出形走査電子顕微鏡（JSM-7001F, 日本電子(株)）で観察した。観察面の蒸着は白金薄膜により行った。

2.6 積層複合材料の機械的特性評価

2.4節で作製した積層複合材料を切断し、短冊状（幅10mm, 長さ50mm程度, 厚み1～1.3mm程度）の試験片を作製した。万能材料試験機を用いて、作製した短冊状の試験片の三点曲げ試験を行った。試験条件については以下のとおりである。

試験速度：2mm/min

支点間距離：20mm

試験温度：23℃

試験装置：オートグラフAG-100kNXplus (株島津製作所)

3. 結果と考察

3.1 BNFシートと樹脂粉末からなる中間複合材の好適なBNF比率について

BNFと樹脂の配合比率が機械的特性に影響を与えることが予想されるため、好適なBNF比率を探索するために配合量を変えてBNF重量比が異なる中間複合材を作製し、引張最大強さの評価を行った。その結果を図3に示す。

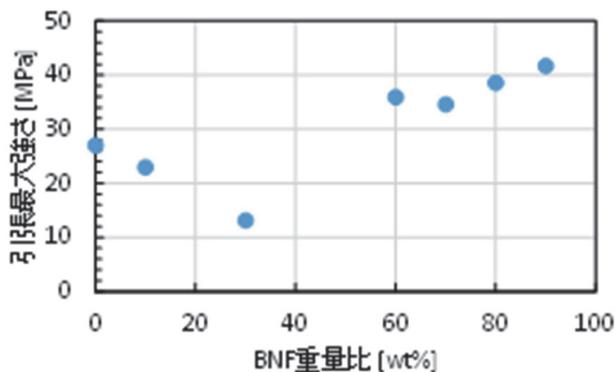


図3 BNF重量比と中間複合材の機械的特性の相関

この結果からBNF比率が向上するにつれて、引張最大強さが向上する傾向が見られており、60wt%以上では特に高い最大強さの結果が得られた。これはBNFとPA6の密度をそれぞれ1.50g/cm³、1.13g/cm³として計算を行い、60wt%を体積分率に換算すると53vol%となり、50vol%を超過していることから、BNF成分が系内で孤立した相ではなく、連続相をとりうることができ、BNF同士が分子間ネットワーク構

造を構築することができたため、急激に機械的特性が向上したものと考えられる。一方、体積分率が低下しBNFが系内で孤立した分散相となった場合は、BNFの表面が樹脂で覆われ、BNF間の水素結合が不十分となり強固なネットワークが構築できないため、BNF重量比が30wt%以下では機械的特性が大幅に低下したものと推測される。

以上の結果から、BNFの配合比率は60wt%以上の配合比率が機械的特性の観点からは好適な配合比率であると考えられる。一方で、成形性や積層性の観点からではバインダーとなりうる樹脂成分が可能な限り多い方がよいことが予想されるため、中間複合材のBNF/樹脂配合比率は6/4として今後の試験を実施することとした。

3.2 BNFの疎水変性と樹脂の粘度が中間複合材の機械的特性に与える影響について

BNFと樹脂の界面強度やBNF間への樹脂の含浸度が中間複合材の機械的特性に影響することが予想され、その影響因子としてBNF表面の極性や樹脂の粘度が考えられる。そこでBNFの変性の有無や樹脂の粘度を変えることによってその影響について調べた。アセチル化により疎水変性したBNF（A-BNF）を用いた中間複合材や、樹脂を粘度の高い高分子量グレードのPA6（高PA6）に変えた中間複合材をそれぞれ作製し、熱プレスにより圧縮成形した後、引張試験を行い比較した。BNFと樹脂の配合比率は3.1節の結果よりいずれの試験体においても6/4とした。

機械的特性試験の結果を図4に示す。樹脂の粘度を高くした場合（BNF/高PA6）、BNFの表面をアセチル化により疎水変性した場合（A-BNF/PA6）のいずれも最大強さは低下することがわかった。樹脂の高粘度化についてはバインダーとなりうる樹脂の粘度が高くなり、流動性が低下した結果、BNF間への含浸性が悪化し、引張最大強さが低下したものと考えられる。BNFの疎水変性についてはBNF表面の極性が低下し、樹脂とBNF間の界面強度は向上したものと予想されるが、一方でBNF間では水素結合などの分子間相互作用

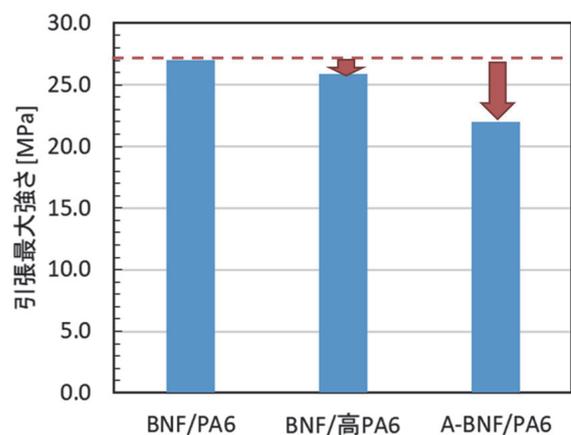


図4 BNF比率と中間複合材の機械的特性の相関

用が低下するため、マイナスの影響が大きく寄与したものと予想される。以上の結果より、PA6については従来の低粘度グレード、BNFについては未変性で検討を継続した方がよいことがわかった。

さらに樹脂の含浸程度や樹脂とBNFの界面の様子を捉え、先程の物性低下の要因の考察を支持するデータを収集するべく、圧縮成形後の中間複合材を液体窒素で脆性破壊した破断

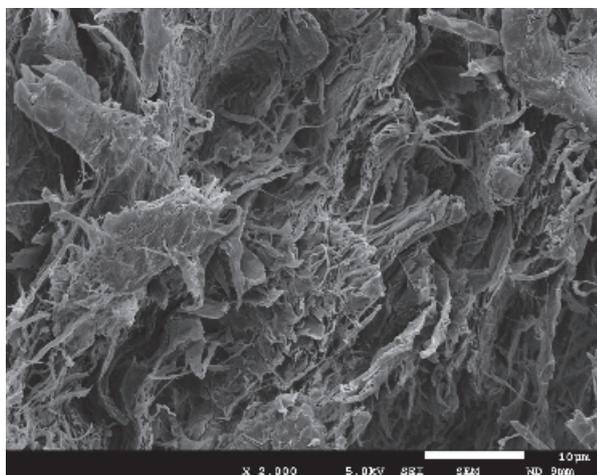
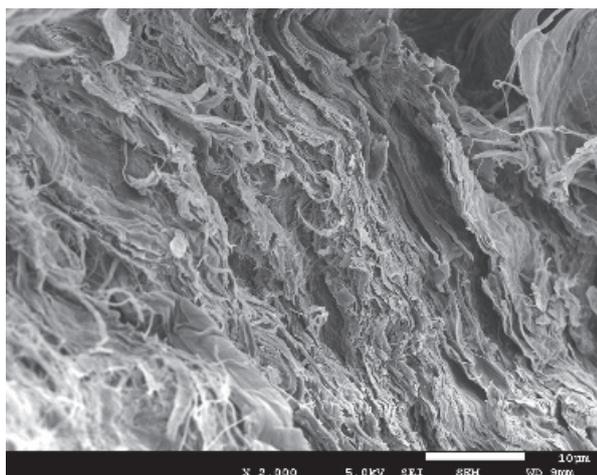
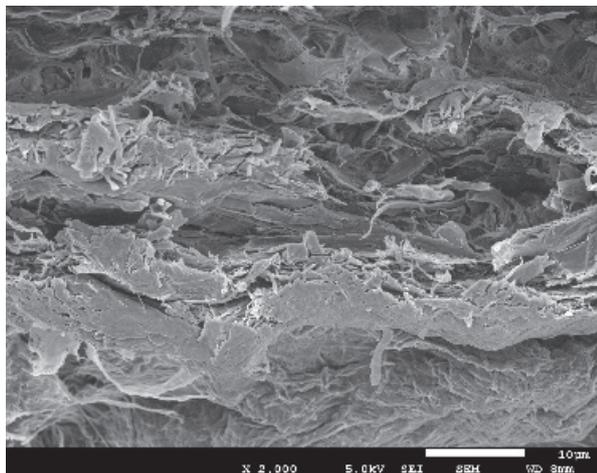


図5 脆性破断面の電子顕微鏡画像
(上：BNF/PA6，中：BNF/高PA6，下：A-BNF/PA6)

面の観察を行った(図5)。しかしながら、それぞれ観察された様子に明確な差異はみられず、推察を明確に支持するデータは得られなかった。

3.3 中間複合材と樹脂からなる積層複合材料の成形条件の探索

中間複合材と樹脂からなる積層複合材料の成形条件を探索するにあたり、中間複合材の上下を樹脂の重量比が約29%となるように挟み込んだ状態の積層体を、圧力(ゲージ圧力)・時間・温度を変えて熱プレスした機械的特性試験用の試験片を作製した。検討した熱プレス条件は以下のとおりである。

- ① 圧力=0.5, 1, 2, 3, 4MPa, 温度=230℃固定, 時間=1分固定
- ② 時間=1, 3, 5分, 温度=230℃固定, 圧力=1MPa固定
- ③ 温度=230, 240, 250℃, 時間=1分固定, 圧力=2MPa固定

それぞれの条件でプレスした後のシート外観を図6に示す。圧力においても時間においてもある一定の値以上ではBNFシートに割れが発生していることから、適切なプレス条件が必要であることがわかった。割れが発生しなかった条件で作製した試験片をダンベル状の試験片(JIS K7162 5B形)で打ち抜き、2.2節と同様の条件で引張試験を行った。得られた弾性率と引張最大強さの結果を図7～9に示す。

圧力については増加するにつれて、引張最大強さ・弾性率も共に増加し、割れが起きない程度に高い圧力(2MPa)が物性の面から良好であることがわかった。これは圧力が高いほど、BNF間の空隙に樹脂が浸透していったためと推測される。時間については引張最大強さ・弾性率に与える影響が小さく、圧力の影響の方が大きかった。以上の結果から物性の値が最も良好な条件は、圧力と時間については2MPa, 1分であった。

プレス温度については230℃と240℃でそれほど物性に变化がなく、250℃において引張最大強さが微減することがわかった。また、外観はプレス温度が高くなるにつれて成形体は褐色となっており、何らかの成分の熱劣化が進んでいることが予想される。これらのことからPA6の融点を超える温度で、できるだけ低い温度の230℃が好適であることが考えられる。

		プレス圧力(ゲージ圧) [MPa]				
		0.5	1	2	3	4
プレス時間 [分]	1					
	3					
	5					

図6 様々な条件で成形した積層複合材料の外観

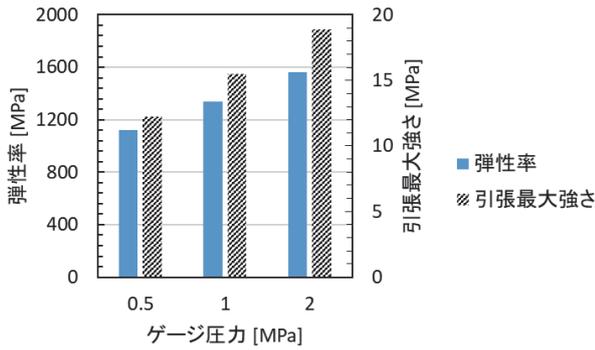


図7 プレス圧力の影響（温度=230℃、時間=1分）

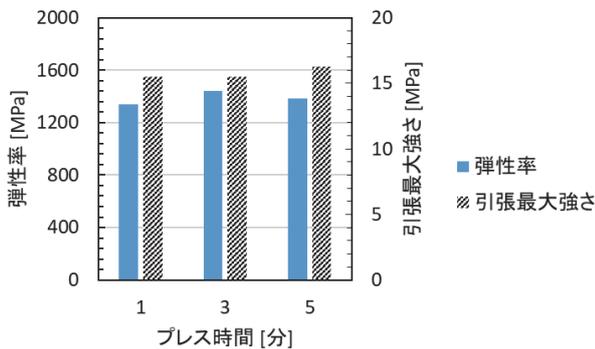


図8 プレス時間の影響（温度=230℃、圧力=1MPa）

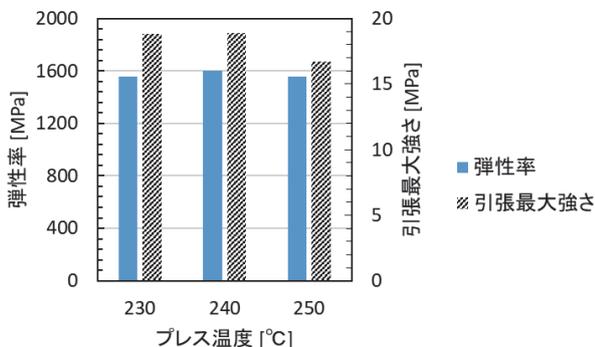


図9 プレス温度の影響（時間=1分、圧力=2MPa）

3.4 積層複合材料の積層構成と機械的特性の関係

中間複合材と樹脂シートからなる積層複合材の積層構成と機械的特性を評価するために、樹脂と中間複合材を交互に三層まで積層した交互積層複合材料と中間複合材を連続して四層まで積層した連続積層複合材料（図10）を3.3節で探索した好適なプレス条件をもとに作製し、短冊状の試験片を切り出し、三点曲げ試験による機械的特性評価を実施した。

積層複合材料の曲げ特性をBNF体積含有率で整理した結果を図11, 12に示す。BNF体積含有率についてはBNFとPA6の密度をそれぞれ1.50g/cm³、1.13g/cm³として計算を行った。可能な限り体積含有率の誤差をなくすため、圧縮成形により周囲にはみ出した樹脂部分については切り取って、重量

を計量し、体積分率を求めた樹脂部分の質量から除外し算出をした。

曲げ最大強さ、弾性率ともに中間複合材を交互積層したものの、連続積層したもののどちらにおいてもBNF体積含有率の増加とともに値が増加していく傾向であることがわかった。

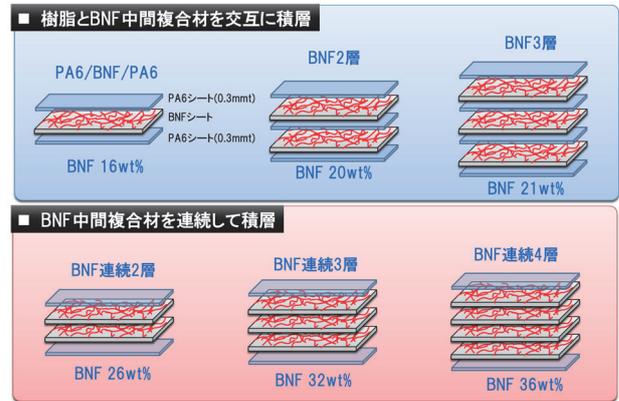


図10 積層構成の模式図

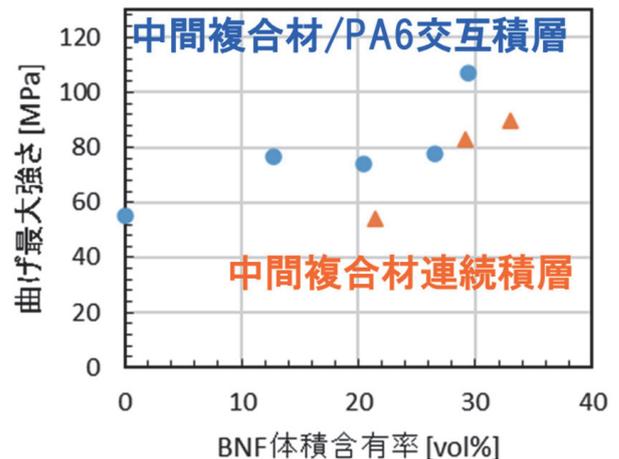


図11 曲げ最大強さとBNF体積含有率の関係

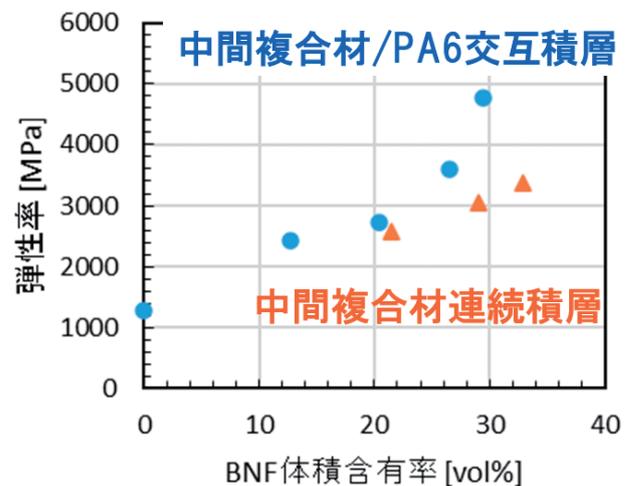


図12 弾性率とBNF体積含有率の関係

これは樹脂より曲げ最大強さ・剛性が高いBNFの割合が増加した結果だと考えられる。

一方で連続積層した積層複合材料は交互積層したものに比べて同程度の体積含有率では物性が低下することがわかった。曲げ試験後の試験片を見てみると層間剥離が生じており、この層間剥離が物性低下を招いたものと考えられる。交互積層したものには明確な層間剥離は確認されなかった。中間複合材中に含まれる樹脂成分だけでは層間のバインダーとなりうる樹脂が少なく、接着が不十分であると推察される。

3.5 積層複合材料の物性的な位置づけ

作製した積層複合材料の位置づけを把握するべく、鉄道車両部品のガラス繊維強化樹脂の規格⁶⁾を参考に汎用プラスチック（ポリエチレン、ポリプロピレン等）の物性領域と併せて、その位置づけを確認した。最も物性が良好なBNF体積含有率が高く交互積層した積層複合材料では最大強さが100MPa程度、弾性率が5GPa程度であったことから、力学的特性だけをみるとガラスマット繊維強化樹脂相当の材料であることがわかった。

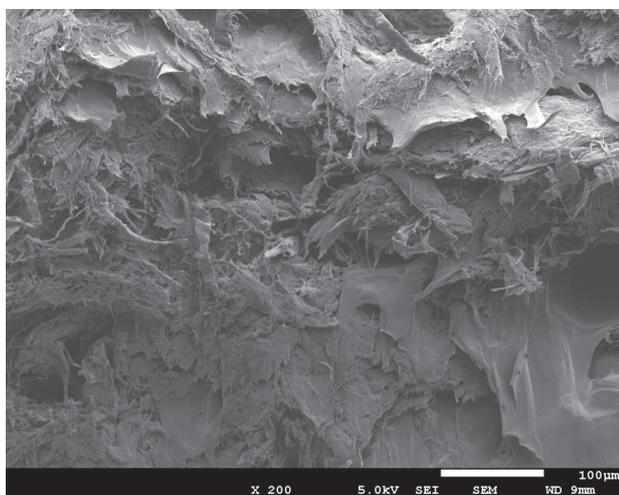
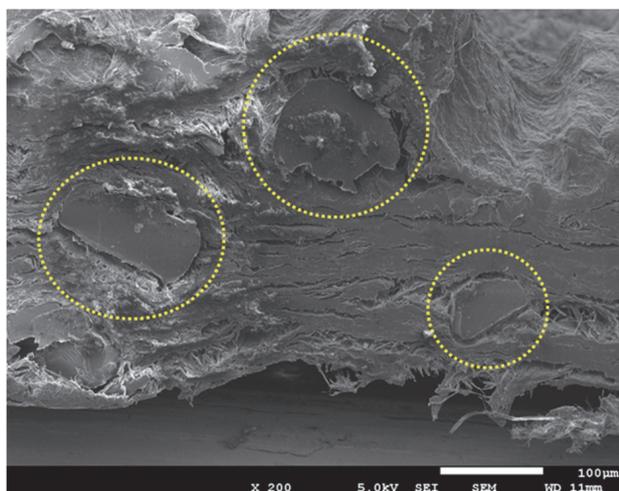


図13 積層複合材料のプレス前後の断面
(上：プレス前，下：プレス後)

BNFの持つ物性ポテンシャルからすると期待した機械的強度からは少し遠い結果となったが、その原因について考察した。積層複合材料の断面を観察すると（図13）、プレス前にはBNF間にあった約100 μ m径の樹脂粒子（点線丸部）がプレスにより消失し、繊維間に含浸している様子がわかるが、BNF間の空隙は樹脂粒子よりもさらに細かいため、粒子をさらに細かくすることでBNFの体積含有率を高め、機械的強度の向上が図れる可能性があると考えられる。BNFが水の懸濁液で得られることを考えると、たとえばエマルジョンのような水中に懸濁した粒子を活用することでさらなる機械的強度向上の可能性があると考える。

3.6 オールバイオマス積層複合材料の作製

原料がオールバイオマスとなる積層複合材の作製を目指し、樹脂成分にPLAを用いて、これまでの熱圧縮成形条件や積層構成の知見を基に積層複合材料を作製した。圧縮成形条件についてはPA6とPLAでは融点が異なるので、PLAの融点を超え、可能な限り低い温度の200 $^{\circ}$ Cとし、圧力は2MPaだと割れが起きたため、1.5MPaとした。成形時間についてはPA6の場合と同様にして1分で積層複合材が得られた。積層構成については中間複合材と樹脂の交互積層とした。得られた積層複合材料を短冊状に切り出し、三点曲げ試験を行った結果を図14に示す。PA6の場合と同様に体積含有率の異なる積層複合材を数種作製し、機械的特性とBNF体積含有率の相関を整理すると、弾性率はPA6と同様に体積含有率とともに向上することがわかった。しかしながら、曲げ最大強さについてはPA6の場合とは異なり、物性の向上が見られなかった。これはBNFとPA6の界面の相互作用がPLAと異なっていたためと予想される。最大強さも向上させるにはBNFと樹脂間の界面最大強さを向上させるべく、BNFの表面処理などの工夫が必要であると考えられる。

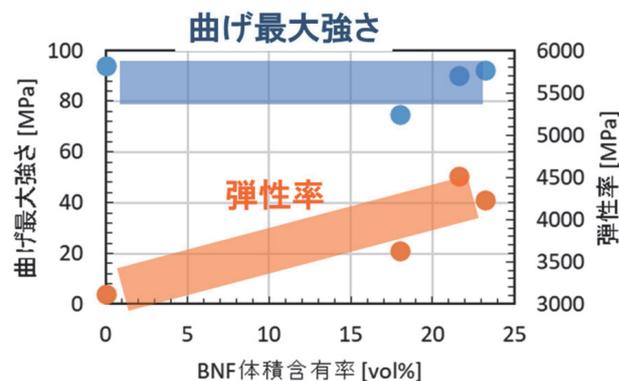


図14 曲げ最大強さ・弾性率とBNF体積含有率の関係

4. おわりに

バイオマス由来で軽量かつ高強度な構造材料を目指し、BNFが連続繊維様構造を有する積層複合材の作製を試みた。曲げ最大強さと弾性率においては熱硬化性樹脂をベースとするガラスマット繊維強化樹脂相当の位置づけとなる材料であることがわかったが、構造材料としての利用にはさらなる機械的特性の改良が必要となる。バイオマス由来の構造材料は持続可能な社会構築を目指すためには今後も必ず必要とされる環境循環型材料であると考えられるため、さらなる改良を加え実用化・普及に向けて、引き続き開発を進める予定である。

謝辞

本研究で使用したオートグラフAG-100kNXplus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) 矢野浩之：構造用CNFの現状と将来展望，工業材料，第68巻，第8号，pp.14-16（2020）
- 2) Shinsuke Ifuku and Hiroyuki Saimoto, "Chitin nanofibers : preparations, modifications, and applications", *Nanoscale*, 4, pp.3308-3318 (2012)
- 3) Takeshi Semba, Akihiro Ito, et al., "Thermoplastic Composites of Polyamide-12 Reinforced by Cellulose Nanofibers with Cationic Surface Modification", *J. Appl. Polym. Sci.*, 131, pp.40920 (2014)
- 4) A.N. Nakagaito, S Iwamoto, et al., "Bacterial cellulose : the ultimate nano-scalar cellulose morphology for the production of high-strength composites", *Applied Physics A*, 80, pp.93-97 (2005)
- 5) 角田惟緒, 佐々木健一郎 他：紙パ協会誌, Vol.74, No.12, pp.82-85, (2020)
- 6) JRS-17433-2A-15AR5. 日本国有鉄道規格「車両用強化プラスチック一般」(昭和40年11月27日制定).

ステンレス鋼の応力腐食割れの評価方法の研究

板橋 孝至, 坂村 喬史, 櫻庭 洋平, 飯野 潔,
中嶋 快雄, 植竹 亮太, 三戸 正道, 宮腰 康樹

Research on Evaluation Methods for Stress Corrosion Cracking of Stainless Steel

Koji ITABASHI, Takashi SAKAMURA, Yohei SAKURABA,
Kiyoshi IINO, Yoshio NAKAJIMA, Ryota UETAKE,
Masamichi MITO, Yasuki MIYAKOSHI

抄 録

オーステナイト系ステンレス鋼には、腐食環境下で引張応力が加わる状況が続くと応力腐食割れ（SCC）が生じることがある。当场にもステンレス製品の割れに関する相談が寄せられることがあり、割れ発生前のSCC診断や熟練を要する外観観察によらない検査法が求められている。そこでオーステナイト系ステンレス鋼のJIS G 0576応力腐食割れ試験方法に割れ発生による引張応力低下を非破壊で測定できるX線回折を利用した応力測定を組み合わせることで各種実験を行った。その結果、オーステナイト系ステンレス鋼については、JIS試験においてはSCCの発生や進展を推定できること、また、暴露試験においては、SUS304の未処理材と熱処理材で応力低下速度に違いを検出できたことから、JIS試験法にX線応力測定を組み合わせることは、SCC発生・進展の外観観察を応力の観点から補完でき実製品の評価に展開できることがわかった。

キーワード：オーステナイト系ステンレス鋼、応力腐食割れ、応力測定

Abstract

Stress corrosion cracking (SCC) can occur in austenitic stainless steels when tensile stresses are continually applied in a corrosive environment. We sometimes receive inquiries about cracks in stainless steel products, and there is a need for SCC diagnosis before cracking occurs and inspection methods that do not rely on visual observation that requires skill. Therefore, various experiments were conducted by combining the JIS G 0576 stress corrosion cracking test method for austenitic stainless steel with stress measurement using X-ray diffraction, which can non-destructively measure tensile stress loss due to cracking. As a result, for austenitic stainless steels, the occurrence and evolution of SCC can be estimated in the JIS test, and in the exposure test, the difference in stress reduction rate between the untreated material of SUS304 and the heat-treated material can be detected. It was found that the visual observation of SCC generation and evolution can be supplemented from the viewpoint of stress, and it can be applied to the evaluation of actual products.

KEY-WORDS : Austenitic stainless steel, Stress corrosion cracking, Stress measurement

1. はじめに

腐食に対する耐性が高く幅広い用途で使用されているオーステナイト系ステンレス鋼は、特定の腐食環境（塩化物イオンの存在など）において引張応力が加わると、応力腐食割れ（以下、SCC）により短期間で急速に破損することがある。溶接などの熱影響で、粒界近傍のクロムが炭化物となりクロムが不足し腐食感受性が高くなる鋭敏化と呼ばれる組織変化が発生した材料にはさらにSCCが発生しやすくなる。過去においては、化学プラントや原子力発電所の配管破損¹⁾、温水プールの天井崩落^{2,3)}等々、応力腐食割れに起因すると考えられる重大な破損事故が発生している。その対策として、材料開発の面からは高ニッケルかつモリブデン添加により不動態層を緻密化して耐食性を向上させたSUS316、低炭素化して鋭敏化組織が形成されにくくしたSUS304LやSUS316L、SCCが生じないフェライト組織とオーステナイト組織を混合させた二相系ステンレス鋼の開発など、耐SCC性の良好な鋼種の開発などが続けられてきた。これらの材料開発にあたってのスクリーニング試験としては、U字曲げ試験を用いたJIS G 0576「ステンレス鋼の応力腐食割れ試験方法」（以下、JIS試験）が用いられてきたが、試験片の曲げ応力など力学的な条件が明らかでないため、材料のSCC感受性を定量的に評価することが困難である⁴⁾。

当場にはステンレス鋼製品の破損に関する様々な相談が寄せられており、使用環境の調査、破断面の観察、材料組成の分析などにもとづいた原因の推定や対策の提案などの技術支援を行ってきた。SCCは主要な破損原因のひとつであり、相談者からは溶接や曲げなどの加工による影響を知りたいといった、実製品の加工状態とSCC感受性の関係についての要望が寄せられ、鋭敏化した材料を含めたSCC評価技術の必要性が高まっている。また、JIS試験によるSCCの進展速度と、実際の製品のSCC進展速度との相関関係を知りたいという要望も少なからずあるが、JIS試験はSCC感受性を比較評価するための加速試験であり、この相関関係の知見は多くない。さらに、割れ発生前のSCC診断や熟練を要する外観観察によらない検査法が求められていることから、割れ発生による引張応力低下を非破壊で経時的に測定できるX線回折を利用した表面応力測定（以下、X線応力測定）に着目し、応力測定の方法としてポータブル機器によるX線応力測定が有効ではないかと考えた。

そこで本研究では、各種ステンレス鋼についてJIS試験にX線応力測定を組み合わせることで割れの応力変化による検出を試みた。また、暴露試験片の応力変化をJIS試験の結果と比較することで、JIS試験の加速度推定も目指した。

2. 試験方法

2.1 供試材料

実験には代表的なオーステナイト系ステンレス鋼のSUS304およびSUS316とSUS316L、近年実用化されたリン二相系ステンレス鋼SUS821L1の受取そのままの材（以下、未処理材）、熱処理で意図的に鋭敏化させた材（以下熱処理材）とそれらの溶接材を用いた。表1に各ステンレス鋼の化学成分を示す。SUS304の熱処理条件は真空中、630℃で30分保持、炉冷とし、SUS316およびSUS316Lについては真空中、700℃で3時間保持、炉冷とした。

また実際の溶接によるSCCへの影響も調査するため、SUS304同士およびSUS316L同士のI型開先による突合せ溶接試験片を作製した。図1に溶接試験片の外観を示す。なお溶接熱影響部の酸化膜は、3μmまでのダイヤモンド研磨を施し除去した。

表1 ステンレス鋼の化学成分 (wt%)

鋼種	化学成分 (wt%)											
	C	Si	Mn	P	S	Cu	Ni	Cr	Mo	N	Co	Fe
SUS304	0.05	0.50	1.2	0.03	0.01	0.26	7.9	18.0	0.1	-	-	Bal.
SUS316	0.05	0.43	0.9	0.03	0.00	0.25	9.8	16.6	2.1	-	-	Bal.
SUS316L	0.02	0.65	1.1	0.03	0.01	-	12.2	17.6	2.0	-	0.24	Bal.
SUS821L1	0.01	0.33	3.2	0.02	0	0.61	2.1	21.2	0.4	0.17	0.06	Bal.

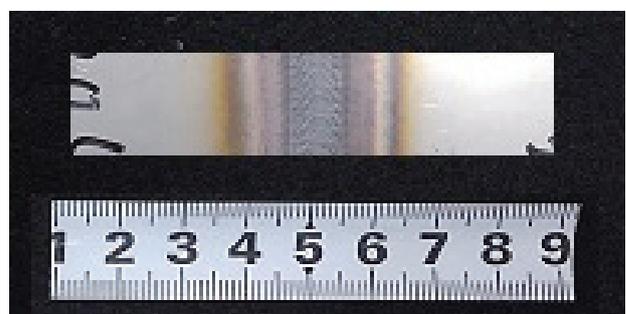


図1 曲げ加工前の溶接試験片 (SUS304)

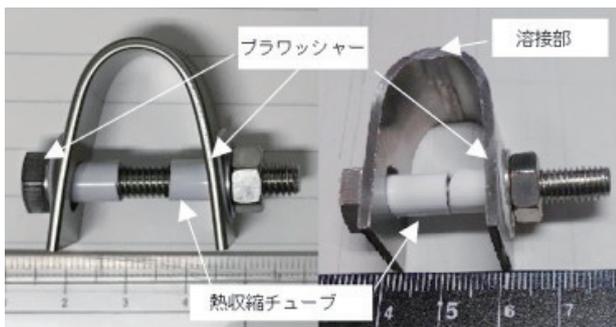
2.2 応力腐食割れ試験法

応力腐食曲げ試験に使用する標準試料と溶接試料は、次のように作製した。

標準試料は、2.1節に示した各材料から切り出した厚さ2.0mm、幅15mm、長さ75mmの板材の切断面を研削、φ8mmの貫通穴加工を施した試験片とし、これを半径8mmの鋼製円柱でローラ曲げした後、試験片にボルトを挿入し両脚がほぼ並行になるまでナットを締め付けた。このとき試験片とボルト・ナットを電気的に絶縁するため、プラスチックワッシャーをはさみ、ボルトの軸と試験片の接触面に熱収縮樹脂チューブを挿入した。

溶接試料は、2.1節に示した溶接試験片の溶接ビードが曲げの外側になるように加工し、標準試料と同様の試料を作製した。図2-a, bにSCC評価試料の外観を示す。

JIS試験はJIS G 0576のA法とし、密閉三つ口付きフラスコ（容量500ml）に塩化マグネシウム試薬685gおよび蒸留水75gを入れて、還流冷却器を接続し、マントルヒーターを用いて143±1℃に加熱した。図3に、JIS試験の様子を示す。沸騰後、標準試料または溶接試料の同一材種2個を浸漬し、15分、30分、45分、60分、90分、120分に試料を取り出して水洗し、実体顕微鏡を用いて表面の割れを観察後、X線残留応力測定装置を用いて表面応力を測定した。表面観察については、最初に割れが確認されるまでの時間（以下、割れ発生時間）および割れが進展し試料の両端まで連続した割れが確認された時間（以下、割れ横断時間）を調べた。割れが横断した試料については、試料側面を研磨し光学顕微鏡（オリンパス（株）製：金属顕微鏡GX71）または走査型電子顕微鏡（日本電子（株）製：JSM-6610LA）で断面観察した。



a) 標準試料 b) 溶接試料

図2 試料外観

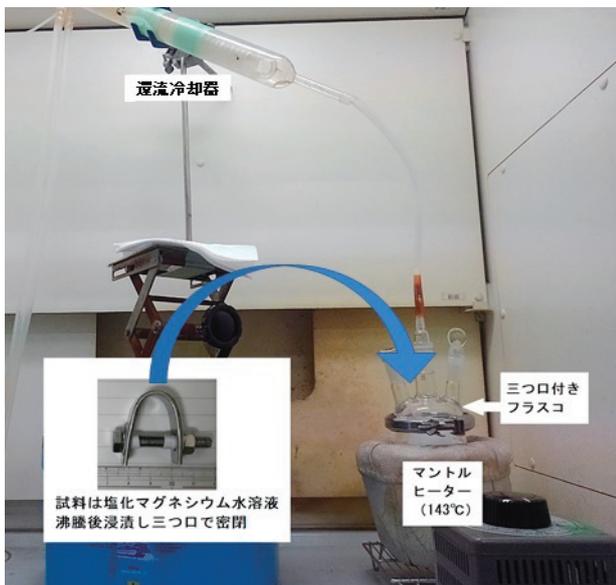


図3 JIS試験の様子

2.3 応力測定法

表面応力の測定には、ポータブル型X線残留応力測定装置（パルステック工業（株）製、 μ -X360n）を使用した（図4）。標準試料の応力値は、曲げ先端部3カ所を測定しその平均値とした（図5-a）。溶接試料の応力値は、溶接ビードと母材の境界から約1mm母材側を両側で3点ずつ測定し、計6点の平均値とした（図5-b）。図中の黒丸は、表面観察および表面応力の定点測定用のマーカである。

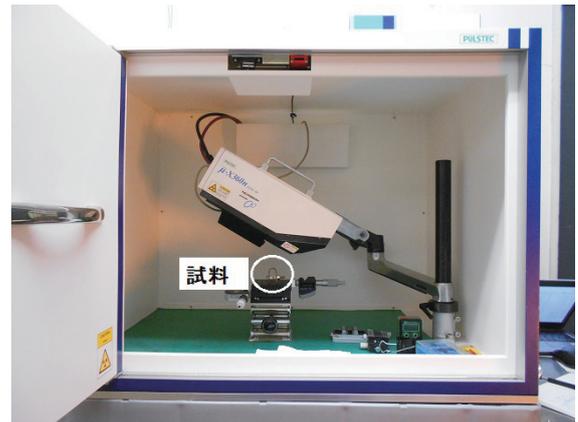
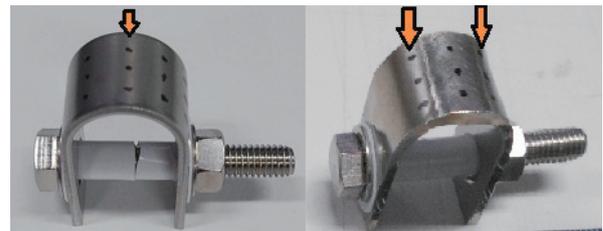


図4 X線残留応力測定装置の外観



a) 標準試料 b) 溶接試料

図5 応力測定位置

2.4 暴露試験

暴露試験は、道内の4カ所（札幌、苫小牧、函館、小樽）の屋外で最大25か月間暴露を行い、表面割れの観察と応力測定を実施した。試料は各3個とし、曲げの頂点が天側（上向き）になるよう設置した。また飛来物や野生動物による損傷を防ぐため、試料をネットで覆い保護した。図6に設置状況を示す。



図6 暴露試料設置状況

3. 試験結果と考察

3.1 標準試料のSCC試験結果と考察

図7にSUS304のJIS試験における累積試験時間および表面応力の関係を示す。未処理材・熱処理材ともに試験開始後15分で割れ発生が確認された。SUS304未処理材は15分以降の応力低下速度（グラフの傾き）が小さくなったが引張応力は完全には解放されず、90分後に図8のような割れ横断と横断していない短い割れが多数観察された。これに対し、熱処理材は15分以降の応力低下速度がほぼ変わらず、60分後には引張応力が完全に解放され割れ横断も確認された。割れ横断後に試料側面を研磨し断面観察したところ、図9に示すとおり割れの断面形状は直線的でなく折れ曲がって進展しており、SCC特有の割れ形状を呈していた。未処理材（図9-a）はそれぞれの割れ深さが100 μ m程度であったのに対し、熱処理材（図9-b）は800 μ m程度まで深く進展しており鋭敏化の影響を受けたことが示唆された。このことが応力低下速度の違いとして現れたと考えられる。

図10にSUS316のJIS試験における累積試験時間および表面応力の関係を示す。SUS316未処理材はSUS304未処理材より60分以降の応力低下速度が小さく、割れ発生が確認できるまでに120分かかった。SUS316熱処理材は、試験開始から45分後に再度応力低下速度が大きくなり60分で割れ発生が確認された。図11に試験120分後のSUS316外観写真を示す。白丸で割れの位置とおおよその長さを示した。SUS304と逆に、未処理材には比較的大きな割れが確認されたのに対し、熱処理材には多数の短く浅い割れが確認された。

図12にSUS316LのJIS試験における累積試験時間および表面応力の関係を示す。SUS316L未処理材は、他の未処理材と異なり45分まで応力低下速度が小さくならなかったが、それ以降はほとんど応力低下が認められないまま120分後に割れ発生が確認された。一方、SUS316L熱処理材は、90分後に割れの発生が確認された。どちらに発生した割れも、断面観察によると深さ50 μ m以下の浅い割れであった。

図7、10および12を比較したところ、SUS304未処理材、SUS316未処理材と熱処理材、SUS316Lの熱処理材について15分までの応力低下速度が15分以降のものより大きいという共通点があることがわかった。また15分で応力低下速度が変化しないSUS304熱処理材とSUS316L未処理材についても、その傾きは先の4材種と類似していた。そこで、試験開始後15分までの応力低下の原因について、JIS試験の液温の影響を調べるため、SUS304未処理材を大気中で143 $^{\circ}$ Cに加熱し応力変化を測定した。結果の例として図13にSUS304のJIS試験および143 $^{\circ}$ C大気加熱の比較を示す。大気加熱はJIS試験と同様に15分までの応力低下速度が15分以降のものより大きいこと、割れは未発生であることが確認された。このことから、JIS試験による表面応力の低下はSCCの発生による応力

の解放に加え、約15分までは試験液の熱による何らかの変化の影響が含まれると考えられる。

図14に二相ステンレス鋼であるSUS821L1のJIS試験における累積試験時間および表面応力の関係を示す。JIS試験開始から30分後に表面の引張応力が92%低下したが、図15に示すように表面全体に微細な孔食が多数発生し、オーステナイト系ステンレス鋼で見られたような割れは確認されなかった。表面応力は孔食の発生によっても低下する⁵⁾ことから、応力値の変化だけでSCCの発生を特定することはできず、二相ステンレス鋼の耐SCC性評価に今回提案するJISと応力の複合評価は適用が難しいと思われた。

以上から、オーステナイト系ステンレス鋼はJIS試験で開始後15分以降の応力低下を測定することでSCCの発生や進展を推定でき、SUS304については鋭敏化の有無で応力低下速度が明らかに異なることがわかった。

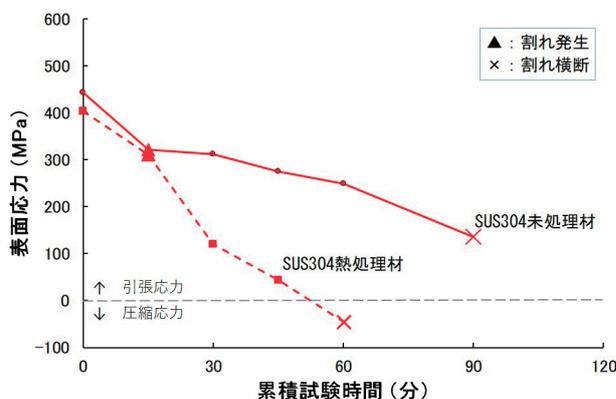


図7 JIS試験による標準試料の応力低下 (1) (SUS304)

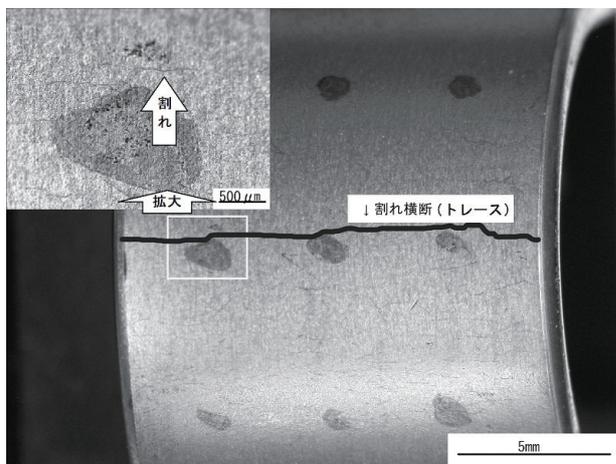
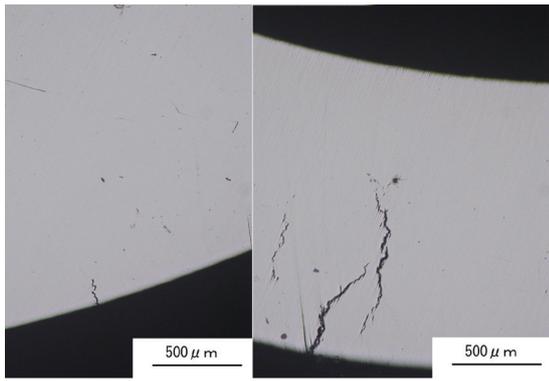


図8 SUS304未処理材の割れ横断 (JIS試験90分)



a) 未処理材 b) 熱処理材
図9 SUS304割れ横断後の割れの断面形状

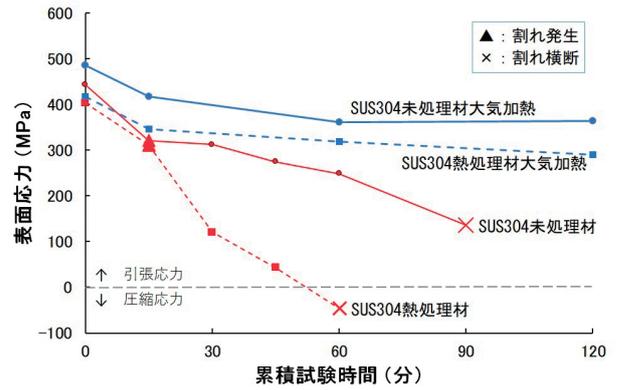


図13 143°CにおけるJIS試験と大気加熱でのSUS304標準試料の応力低下の比較

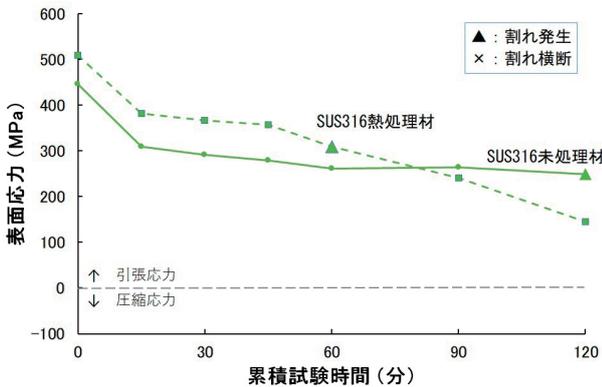


図10 JIS試験による標準試料の応力低下 (2) (SUS316)

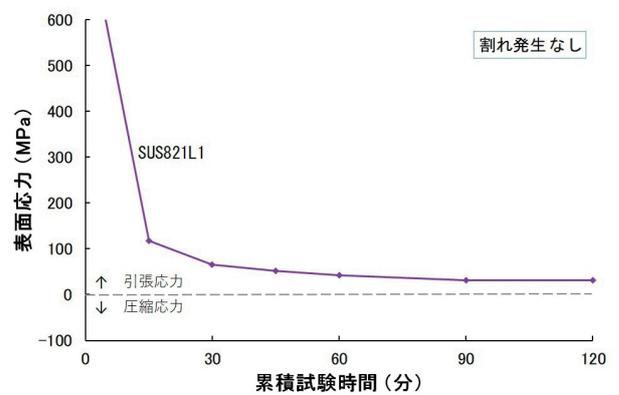
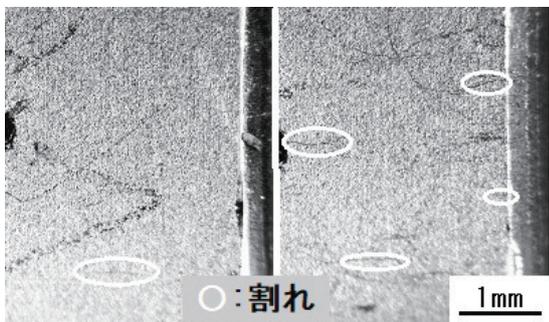
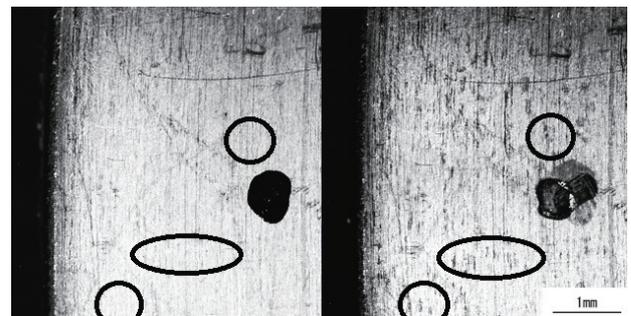


図14 JIS試験による標準試料の応力低下 (4) (SUS821L1)



a) 未処理材 b) 熱処理材
図11 SUS316のJIS試験120分後の外観



a) 試験開始前 b) 90分経過後
図15 SUS821L1のJIS試験前後の外観

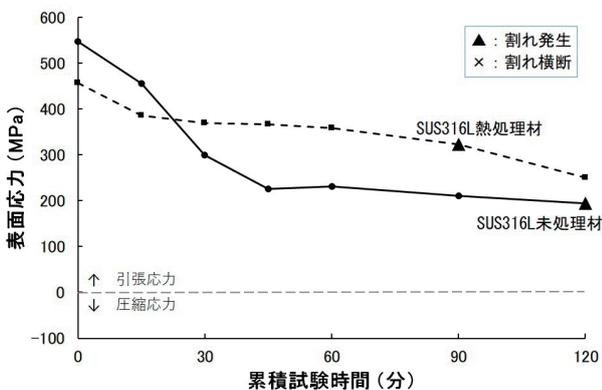


図12 JIS試験による標準試料の応力低下 (3) (SUS316L)

3.2 溶接試料のSCC試験結果と考察

図16に、SUS304およびSUS316Lの溶接材のU字曲げ試料によるJIS試験における累積試験時間および表面応力の関係を示す。SUS304溶接材は、試験開始後の応力低下速度が大きく変わらないまま割れが横断した。SUS316L溶接材は、30分までに応力が40%低下し、その後は応力の低下速度が小さくなった。図7および図12の試験結果と比較すると、それぞれの曲線はSUS304熱処理材およびSUS316熱処理材とほぼ同様な応力低下および割れの発生・横断であった。

図17に、SUS304溶接材のJIS試験30分後の外観を示す。楕円部に長さ0.8mm程度の微細な割れ発生が確認された。図18に、割れ横断後のSUS304溶接材の断面組織を示す。母材と溶接ビードの中間の熱影響部には深さ約0.5mmの浅い割れが、溶接金属の境界から母材側へ約2mmの位置で深さ1mm以上に達する深い割れが確認される。図19にこの深い割れの拡大画像を示す。粒界を主体に割れが進展しており、枝分かれが発生していることから、割れは粒界型応力腐食割れによるものと推定される。また図1に示したSUS304溶接材の曲げ加工前の外観では、溶接ビードの外側3mmが強く焼け、その外側2mmの範囲は若干弱い焼けが観察されていたことから、この範囲で熱影響を受けたことが予想された。割れの発生位置は図1における熱影響部とほぼ一致することから、溶接の熱影響で鋭敏化が生じ粒界近傍のSCC感受性が高まったと考えられる。

以上の結果から、オーステナイト系ステンレス鋼の溶接材のJIS試験による応力低下・割れの挙動は、熱処理材とほぼ同様である。未処理・熱処理したオーステナイト系ステンレス鋼と同様に、溶接材にも表面応力測定によるSCC検出手法が適用できることがわかった。

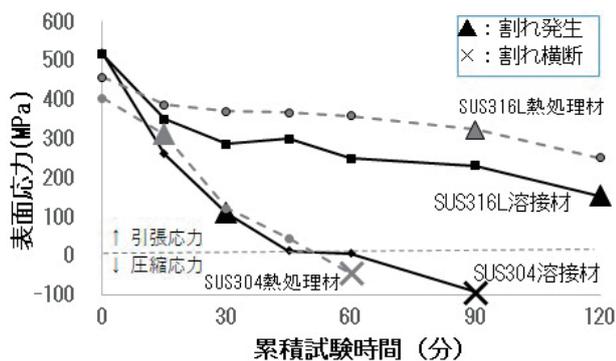


図16 JIS試験による標準試料の応力低下 (5) (溶接試料)

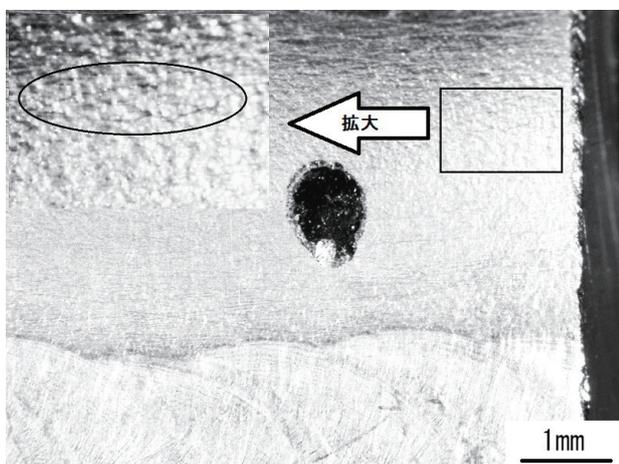


図17 SUS304溶接試料のJIS試験30分後の外観

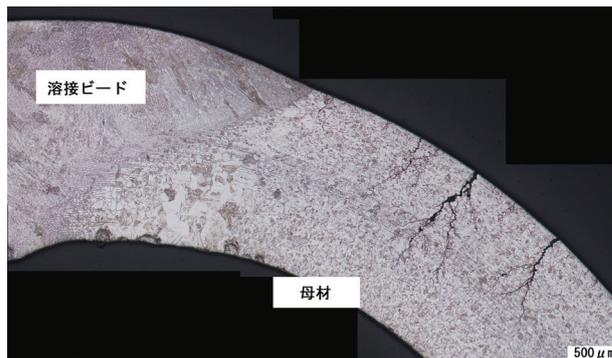


図18 割れ横断後のSUS304溶接試料断面画像

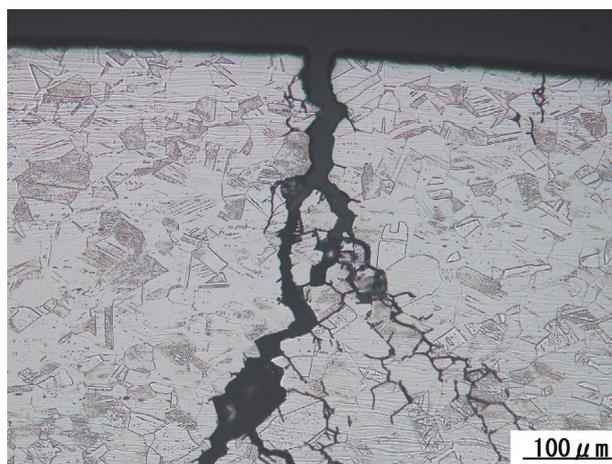


図19 図18の割れ拡大図

3.3 暴露試験の結果と考察

図20に、SUS304未処理材および熱処理材の暴露期間と応力の変化を示す。グラフの上4本が4地点の未処理材、下4本が4地点の熱処理材と大きく分かれる結果となった。SUS304熱処理材の応力低下速度は、いずれの設置地点においても未処理材よりも大きく、割れの発生も札幌、小樽、函館の3地点において暴露開始より1年から1年半で確認され、既報とほぼ同様の結果であった⁶⁾。これに対し、未処理材は札幌の試料のみ25か月目で割れ発生が確認された。

図21にSUS316未処理材および熱処理材の暴露期間と応力の変化を示す。4地点の応力低下速度は未処理材・熱処理材ともに類似しておりSUS304より小さかった。割れについては、札幌の未処理材および苫小牧の熱処理材にわずかに発生していた。

図22に示したSUS316Lは、札幌に設置した熱処理材の応力低下速度のみ大きかったが、全体としてはSUS316よりもさらに応力低下は小さく、すべての試料で割れは観察されなかった。

外観観察の例として図23にSUS304熱処理材を札幌に16か月暴露した試料の外観を示す。JIS試験と異なり全体に錆の

発生が確認された。腐食の程度に違いがあるもののいずれの試料にも孔食が認められたことから、割れが発生していない試料の応力低下は、20倍観察では見落とす程度の極めて微細な割れの発生か、孔食の発生が主な要因と考える。

札幌の試料に割れ発生が多いことから、試験片の周辺に付着した塩分を回収し塩分量を測定した。各地点ともわずかな塩素が検出されたが、札幌と他の地点と比較して大きな違いは見られなかった。そこで表2の暴露期間における気象データをもとに塩分濃縮の可能性を検討したところ、当該期間の札幌は年間降水量が他の3地点より小さかった。このため、札幌の試料に割れ発生が多かった要因の一つは、付着した塩分が濃縮されやすい状況であったことではないかと考えている。

以上の当該期間での暴露試験結果から、期間内には加速度推定に至らなかったが、SUS304についてはJIS試験と同様に未処理材と熱処理材で応力低下速度に違いが認められ、X線応力測定を屋外構造物のSCC検査に利用できる見込みを得られた。SUS316およびSUS316Lでは明確な違いは確認することができなかったことから、より長期間の観察が求められる。さらに、暴露試験における応力低下とSCC発生の関係について議論するためには、孔食の影響などを解明する必要があることがわかった。

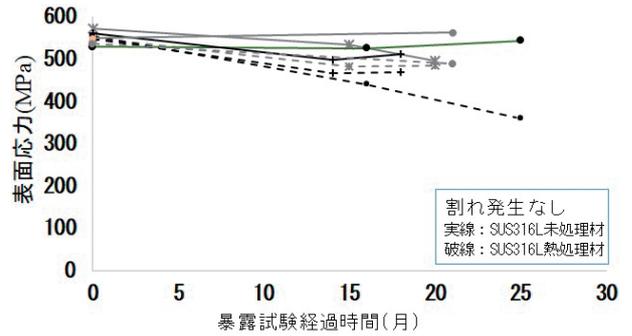


図22 暴露期間と応力低下の関係 (SUS316L)



図23 SUS304鋭敏化材に発生した割れ

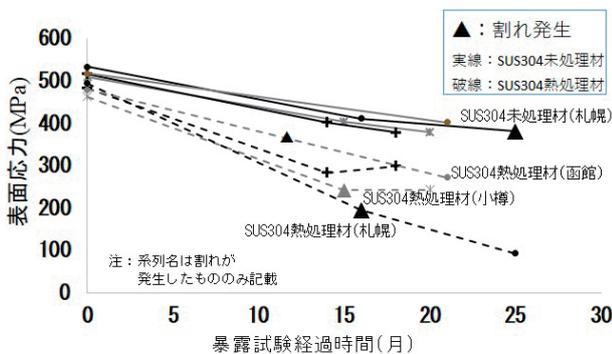


図20 暴露期間と応力変化の関係 (SUS304)

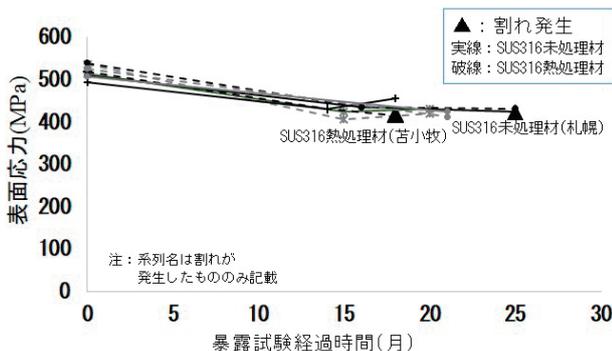


図21 暴露期間と応力変化の関係 (SUS316)

表2 暴露地点の2022-2023の気象データ⁷⁾

2022-23平均気象データ	年間降水量(mm)	年間平均湿度(%)	大気現象		年間平均気温(°C)	日照時間(h)
			霧日数	雪日数		
札幌	1060	71.0	3	109	10.6	1869
函館	1223	76.5	6	104	10.7	1906
苫小牧	1280	77.5	49	95	9.2	1847
小樽	1328	76.0	7	121	10.0	1755

4. まとめ

各種ステンレス鋼に対し、JIS G 0576「ステンレス鋼の応力腐食割れ試験方法」を実施し、表面応力測定を組み合わせることで、SCCの発生や進展を推定できた。また、SUS304については鋭敏化の有無で応力低下速度が明らかに異なることがわかった。

- 1) オーステナイト系ステンレス鋼は、JIS試験で開始後15分以降の応力変化を測定することで、SCCの発生や進展を推定できた。また、SUS304については鋭敏化の有無で応力低下速度が明らかに異なることがわかった。
- 2) オーステナイト系ステンレス鋼の溶接材についてのJIS試験による応力低下・割れの挙動は、熱処理材とほぼ同様であった。未処理・熱処理したオーステナイト系ステンレス鋼と同様に、溶接材にも表面応力測定によるSCC

検出手法が適用可能と考えられる。

3) 暴露試験においては、期間内にはJIS試験の加速度推定に至らなかったが、オーステナイト系ステンレス鋼3種のうち、最もSCCが発生しやすいとされるSUS304の未処理材と熱処理材で、応力低下速度に違いが認められたことから、X線応力測定を屋外構造物のSCC検査に利用できる見込みを得られた。

以上のことから、JIS試験に非破壊検査であるX線応力測定を組み合わせることは、SCC発生・進展の外観観察を応力の観点から補完できること、実製品の評価に展開できることがわかった。

謝辞

本研究で使用したポータブル型X線残留応力測定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。また、暴露試験においては、苫小牧市テクノセンター、北海道立工業技術センター（函館）、道総研 エネルギー・環境・地質研究所小樽館にご協力いただきました。記して感謝いたします。

参考文献

- 1) MatGuide 損傷事例データベース,
<https://matguide.com/data/failure-cases-list-jp/scc-cases-list-jp.pdf>
- 2) 藤井哲雄：金属の腐食 事例と対策, (株)工業調査会, pp.144-145
- 3) 野口 徹：技術者のための破損解析の手引き, 工学図書(株), pp.155-158
- 4) 山中和夫：規格化された腐食試験法の由来と課題3. ステンレス鋼のSCC試験法, 材料, Vol.45, No.10, pp.1157-1163 (1996)
- 5) 山中和夫, 小松正倫：応力腐食割れとその問題点—ステンレス鋼の塩化物応力腐食割れ試験に関して—, 日本金属学会会報, VOL.21, No.12, pp.942-951
- 6) 梅村文夫, 松倉伸二, 他：ステンレス鋼の常温大気中応力腐食割れに関する暴露試験結果と実験室的検討, 防食技術, No.36, pp.571-577 (1987)
- 7) 気象庁：過去の気象データ検索,
<https://www.data.jma.go.jp/stats/etrn/index.php>

触媒反応を活用した道産天然物バイオリファイナリー

近藤 永樹, 松嶋景一郎, 吉田誠一郎, 小川 雄太

Hokkaido Natural Product Biorefinery using Catalytic Reactions

Hisaki KONDOH, Keiichiro MATSUSHIMA, Seiichiro YOSHIDA, Yuta OGAWA

抄 録

北海道は、豊富な天然資源を有する地域であり、これらの未利用、低利用資源を活用したバイオリファイナリー技術の開発が期待されている。本研究では、農・林・水産系バイオマスを原料とし、触媒反応および高温高圧水を活用して高付加価値な化成品への変換を目指した。具体的には、リジン、グルコース、グルタミン酸を対象とし、それぞれの化合物からバイオプラスチックなどの原料となる化成品を生成するプロセスを検討した。触媒には、固体酸や固体塩基、さらにその両機能などの特徴を持ち、加えて、過熱水中でも安定な金属酸化物等に着目し、単一金属酸化物、複合金属酸化物、天然物由来無機物を用い、それぞれの特性を評価した。本報告では、これらの触媒を用いた農・林・水産物由来物質の変換反応における触媒種を中心とした各反応条件の影響などについて述べる。

キーワード：バイオリファイナリー, 触媒反応, 金属酸化物, 天然未利用資源, 炭素循環型社会

Abstract

Hokkaido is a region rich in natural resources, and the development of biorefinery technologies utilizing these underutilized and low-utilized resources is highly anticipated. The conversion of agricultural, forestry, and marine biomass into high value-added chemicals was investigated using catalytic reactions. Specifically, the researchers focused on lysine, glucose, and glutamic acid and investigated processes for producing chemical products from each compound that can be used as raw materials for bioplastics and other products. The characteristics of metal oxides, which are stable in superheated water and possess properties such as solid acid-base and bifunctionality, were evaluated using single metal oxides, composite metal oxides, and naturally derived inorganic materials as catalysts. This study reports on the effects of various reaction conditions, focusing on the types of catalysts used in the conversion reactions of substances derived from agricultural, forestry, and marine products.

KEY-WORDS : Biorefinery, Catalytic reaction, Metal oxides, Natural unused resources, Carbon Circular Society

1. はじめに

近年、炭素循環型社会の実現に向け、豊富な天然・未利用資源を活かした産物や製品の生産・再利用を促進し、高付加価値化を進めることが望まれている。その方法として、バイオリファイナリー技術の活用が注目されている。バイオリファイナリーとは、有限な化石資源を用いた「オイルリファ

イナリー」に対する用語であり、植物が太陽光、水、二酸化炭素から光合成によって作るバイオマスを原料に有用化学品およびバイオディーゼル等を製造する技術である。これにより、再生可能資源から重要な化成品をつくることができ、炭素循環型社会の構築に貢献が可能となる(図1)。

事業名：経常研究

課題名：触媒反応を活用した道産天然物バイオリファイナリーに関する基礎的検討

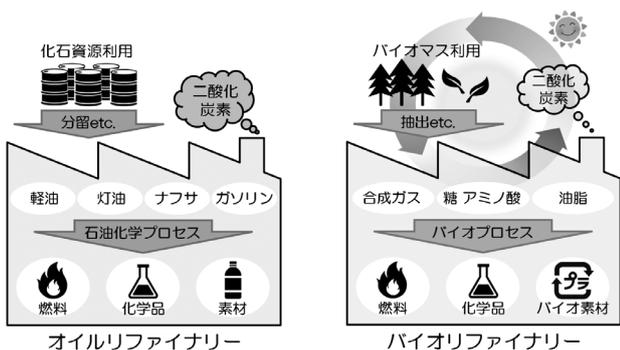


図1 バイオリファイナリー技術の概念図^{a)}

一方、農・林・水産分野から排出される天然・未利用資源は、糖やアミノ酸で構成されているものが多く、それらを道内において化学製品の原料として利用できれば、北海道の豊富な天然・未利用資源を有効利用した製品開発や道産食品の高付加価値化が可能になる。そこで、本研究では、農林水産系の未利用バイオマスに含まれるリジン、グルコース、グルタミン酸の3種の化合物を対象に、有用物質への高付加価値化を目指した変換反応を行うこととした(図2)。

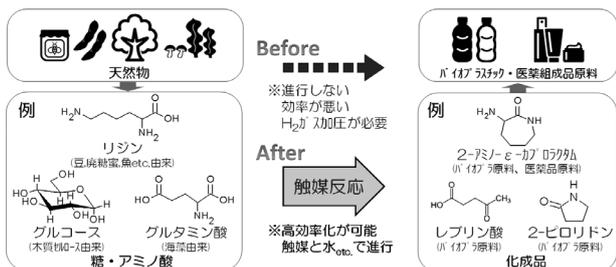


図2 農林水産物由来化合物から触媒反応により誘導可能な化成品の例

有用物質への変換方法として、当场における既往研究である高温高压水を利用した技術の利用に加え、「触媒」を活用する技術を導入することで、特定の反応を著しく促進させる、または反応経路を見いだすことにより、新しい触媒反応プロセスの構築を目指す。これにより高温高压水の高い反応性による変換を実現し、かつ触媒利用による高効率化により省資源・省エネルギー化を図り、天然・未利用資源の活用に取り組む。

以上から、本研究では、触媒反応を活用し、農・林・水産系バイオマスに含有する糖およびアミノ酸から高付加価値な化成品への変換するプロセスを検討することを目的とする。

2. 実験方法

本研究では、触媒を調製した後、反応器に、触媒、水および農・林・水産物由来の反応原料を封入し、加熱して変換反

応を開始した。所定時間後に生成液および触媒を取り出し、分析を行った。使用した試薬、反応原料、触媒の調製・特性評価、および触媒を用いた変換反応の詳細を以下に記す。

2.1 試薬等

触媒の調製に使用した試薬および変換反応に用いた糖・アミノ酸を表1に示す。

表1 触媒調製や変換反応に使用した試薬等

添加剤	試料名	供給元
Mg源	JRC-MGO-4	宇部マテリアルズ(株) (触媒学会参照触媒)
Al源	α -アルミナ	キシダ化学(株)
	γ -アルミナ	Stream Chemicals
Ti源	硝酸アルミニウム九水和物	富士フィルム和光純薬(株)
	酸化チタン(IV)アナターゼ型	富士フィルム和光純薬(株)
Fe源	チタンテトライソプロポキシド	富士フィルム和光純薬(株)
	硝酸鉄(IV)九水和物	富士フィルム和光純薬(株)
Ni源	酸化ニッケル(II)	富士フィルム和光純薬(株)
	硝酸ニッケル(II)六水和物	富士フィルム和光純薬(株)
Zr源	JRC-ZRO-7	第一稀元素化学工業(株) (触媒学会参照触媒)
	Zirconium(IV)n-propoxide	Stream Chemicals
	硝酸ジルコニル二水和物	富士フィルム和光純薬(株)
Nb源	JRC-NBO-2	CBMM(双日) (触媒学会参照触媒)
	ニオブ(IV)エトキシド	富士フィルム和光純薬(株)
Sn源	酸化スズ(IV)	キシダ化学(株)
	酢酸スズ(II)	BLD Pharmatech Ltd.
Ce源	JRC-CEO-5	第一稀元素化学工業(株) (触媒学会参照触媒)
	硝酸セリウム(III)六水和物	富士フィルム和光純薬(株)
農産物	L(+)-リジン(リジンと表記)	富士フィルム和光純薬(株)
林産物	D(+)-グルコース(グルコースと表記)	富士フィルム和光純薬(株)
水産物	L-グルタミン酸(グルタミン酸と表記)	関東化学(株)

農・林・水産物由来の原料は、各産物の残渣などに多く含まれる化合物として以下を選択した。これらの原料は、それぞれ特有の化学特性を持ち、効率的な変換反応を通じてバイオプラスチック原料となることが期待される。反応原料として、以下に示すものを使用した。

農産物由来のリジン(Lys, 化学式: $C_6H_{14}N_2O_2$): アミノ基とカルボキシル基を持つ基本的なアミノ酸。豆類や蔗糖蜜などに豊富に含有する。リジンから脱水環化反応により、バイオプラスチック原料となる α -アミノ- ϵ -カプロラクタム(ACL, 2-アミノ- ϵ -カプロラクタム)が生成する。

林産物由来のグルコース(Glc, 化学式: $C_6H_{12}O_6$): 最も一般的な単糖類。木質バイオマスの主成分である多糖類のセルロースを加水分解することで得られる。さらに、脱水反応により、バイオプラスチック原料となるレブリン酸が生成する。

水産物由来のグルタミン酸(Glu, 化学式: $C_5H_9NO_4$): うまみ成分として広く知られるアミノ酸。魚介類や海藻類に

多く含まれており、食品添加物としても利用されている。水素化反応等によりバイオプラスチック原料や化粧品原料となる2-ピロリドン (2P) が生成する。

2.2 触媒の調製・特性評価

本研究では、酸・塩基触媒反応において優れた性能を発揮し、高温高圧水条件下などの過酷な反応条件でも安定して使用することができる金属酸化物に着目し、次の方法で触媒の調製を行った。

2.2.1 単一金属酸化物の調製

試薬の金属塩等を空气中で焼成して酸化物を得る熱分解法により、単一金属酸化物触媒 (MgO, Al₂O₃, TiO₂, Fe₂O₃, NiO, ZrO₂, Nb₂O₅, SnO₂, CeO₂) を調製した。焼成条件は空气中500～600℃, 2時間とした。

2.2.2 複合金属酸化物の調製

2種以上の金属イオンを含む水溶液から沈殿を生成し、それを焼成することで固溶体を合成する沈殿法 (共沈法およびゾル-ゲル法 (図3)) により、複合金属酸化物 ((TiZr-Ox, CeZr-Ox, SnAl-Ox, FeCeZrAl-Ox (2.4節に述べる結果に基づき金属成分を選定した。AB-OxはAとBの複合酸化物を表す。例として, SnO₂-Al₂O₃はSnAl-Oxと表記する。)) を調製した。焼成条件は空气中500～600℃, 2時間とした。

2.2.3 天然物由来触媒の調製

北海道北部地域に膨大に埋蔵する天然無機資源である稚内層珪質頁岩 (WS) を担体として用い、この担体を活性金属の前駆体溶液に浸すことで活性金属種を担体上に担持させる含浸法 (図3) により、天然物由来触媒 (WS, Nb-WS, Zr-WS, Ni-WS, Sn-WS (A-WSは珪質頁岩担持Aを表す。)) を調製した。

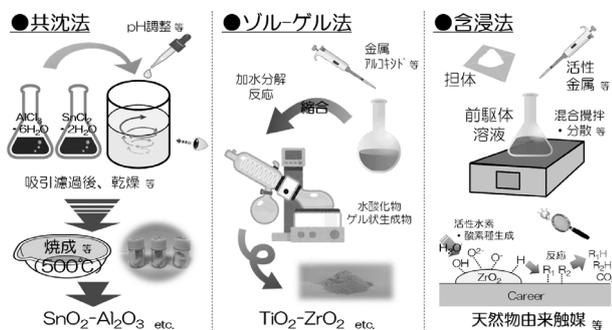


図3 触媒調製法の概要

2.3 触媒キャラクターゼーション

調製した触媒の特性は、以下の装置を用いて評価した。こ

れらの評価により、触媒の物理化学的特性を詳細に把握し、その性能に影響を与える要素を検討し、最適化に活用した。

- 窒素吸着装置 (BELSORP-mini II, マイクロトラックベル(株)) : 比表面積および細孔容積の測定
- 電界放出形走査電子顕微鏡 (FE-SEM, JSM-7001F, 日本電子(株)) : 触媒の形態観察
- エネルギー分散型X線分光装置 (EDS, 日本電子(株)) : 元素組成の分析
- 蛍光X線分析装置 (XRF, ZSX Primus II, (株)リガク) : 元素の定量分析
- X線回折装置 (XRD, ULTIMA IV, (株)リガク) : 結晶構造の解析
- 昇温脱離分析装置 (TPD, BELCAT II, マイクロトラックベル(株)) : 固体表面分析

2.4 触媒を用いた変換反応

反応実験には、回分式反応器を用いた。体積一定の反応器をSUS316ステンレス鋼で作製し、設定圧力に達する量の原料水溶液および触媒を反応器に密閉した。次に、予備昇温した加熱媒体 (電気炉あるいはオイルバス) へ反応器を入れた。所定温度までの昇温時間は考慮せず、全ての反応圧力・温度条件で、所定温度まで達した時点を開始とし、反応器を2時間静置 (=反応時間2h) して、変換反応を実施した。所定の時間が経過した後、速やかに加熱媒体から取り出し、冷水浴に浸して反応を終了させた。次に、反応器を開封し、内部を所定量の脱イオン水で洗浄した。洗浄液に含まれる目的生成物の濃度をガスクロマトグラフ (GC, GC-2012, (株)島津製作所), ガスクロマトグラフ質量分析計 (GCMS, JMS-Q1500GC, 日本電子(株)), 高速液体クロマトグラフ (HPLC, Chromaseter 5210, (株)日立ハイテック) を用いて測定した。

3. 実験結果と考察

3.1 触媒キャラクターゼーション

表2に調製した触媒一覧、図4に酸化物のSEM像で観察された表面微細構造 (代表4種), 図5にEDSマッピングによる元素分析 (代表2種), 図6にXRDスペクトル (代表2種) を示す。なお、表2では調製した触媒種と特性が一覧化され、図4ではSEM画像により触媒の表面微細構造が示される。図5ではEDSマッピングにより元素の分布状態が明らかになり、図6ではXRDスペクトルにより結晶構造が示される。これらのデータを複合することで、触媒の特性や合成条件の違いが具体的に示され、触媒の性能や応用可能性についての新たな知見が得られる。

表2 調製した単一金属酸化物触媒、複合金属酸化物触媒、天然物由来触媒の特性と触媒種一覧

	特性	触媒種
金属酸化物	固体酸	Al_2O_3 , Nb_2O_5 , SnO_2
	固体塩基	MgO
	両機能	TiO_2 , ZrO_2 , CeO_2
	他	NiO , Fe_2O_3
複合酸化物	複合効果*	CeZr , CeZrAl , TiZr SnAl , FeZrAlCe (- Ox 絡配)
天然物由来	担体効果*	珪質頁岩 (WS) 金属担持珪質頁岩 (Sn [Nb , Ni , Zr]-WS)

SEM画像分析により、各酸化物がおおむね球状の凝集体を形成していることが確認された。単一金属酸化物 (図4左上, ZrO_2 , BET表面積 $S_{\text{BET}}=101\text{m}^2/\text{g}$) では、おおむね均一な粒子が存在し、これらは数マイクロメートルの直径を持つ球状の形態であった。表面には凹凸が観察され、これらの結晶粒界は明瞭なものあるいは凝集したものとして観察された。これらの観察結果から、単一金属酸化物の均一性が示唆された。

複合酸化物 TiZr-Ox (図4右上, $S_{\text{BET}}=187\text{m}^2/\text{g}$) は、比較的、均一に分布した粒子や顆粒が見られる表面を示しており、個々の粒子がサブミクロンの範囲にあることがわかる。表面の粗さは顕著で、顆粒の構成が主である。一方、同じ複合酸化物である SnAl-Ox (図4左下, $S_{\text{BET}}=137\text{m}^2/\text{g}$) は、基礎層の上に大きく明確な形成物が見られる。複合酸化物の双方を比較すると、表面の状態や粒子サイズに明らかな違いがあり、材料の特性や合成条件などの処理プロセスの違いを示唆している。

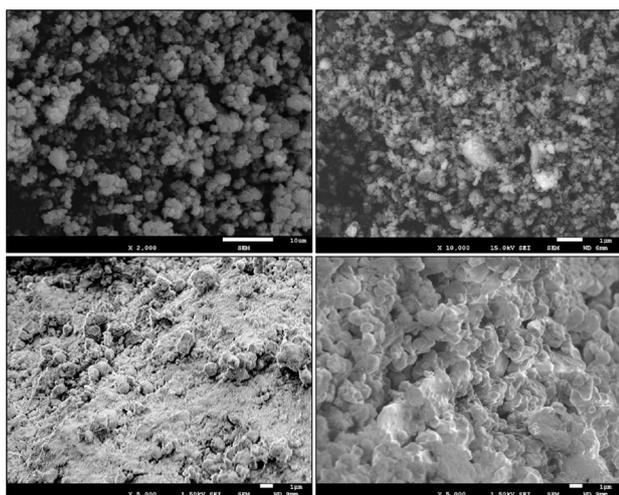


図4 酸化物のSEM像における表面微細構造 (左上: ZrO_2 ($\times 2,000$), 右上: TiZr-Ox ($\times 10,000$), 左下: SnAl-Ox ($\times 5,000$), 右下: Ni-WS ($\times 5,000$))

天然物由来である Ni-WS (図4右下, $S_{\text{BET}}=94\text{m}^2/\text{g}$) は、大小さまざまな不規則な形状の粒子や構造が集まっており、非常に複雑な表面が見られる。これらの粒子は、細かい隙間や凹凸が多く、全体として粗い表面を持つことがわかる。

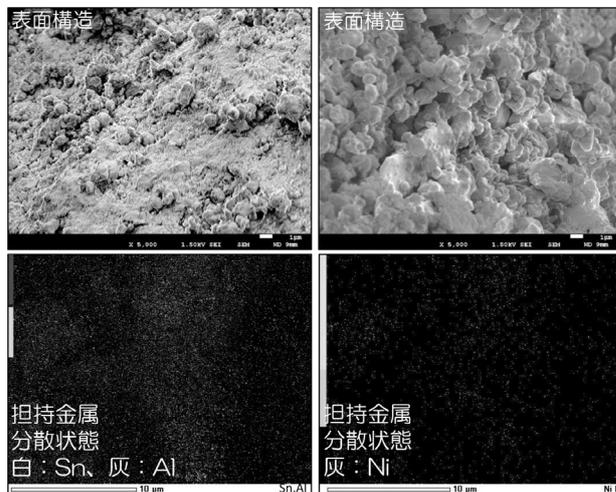


図5 SnAl-Ox と Ni-WS のEDSマッピングによる元素分析 (左: SnAl-Ox , 右: Ni-WS)

図5のEDSマッピング分析の結果、調製した試料中の担持金属の分散状態が明らかになった。合成時に混合された金属イオンが確認され、異なる金属元素が試料全体にわたって均一に分布していることがわかった。この結果、触媒活性種が特定の領域に集中することなく、全体にわたって均一に分散していることがわかった。また、XRF分析では、各担持金属の量が調製時の目標範囲内であることが確認された。これらの結果から、複合酸化物および天然物由来の試料が均一であり、異物や不均一な領域が存在しないことが明らかになった。

次に、図6に示したXRD分析の結果、単一金属酸化物の測定において明確な回折ピークが観察された。これらのピークは各金属酸化物の結晶構造に対応しており、試料が高い結晶性を持つことが確認された。また、図6の SnAl-Ox のスペクトルは、 SnO_2 とほぼ同様のピークを示した一方で、 Al_2O_3 に起因するピークは観測されなかった。XRF分析の結果からは Al_2O_3 の存在が確認されているため、 Al が水酸化物などを経て溶出したとは考えにくい。観測されたピークと SnO_2 のピークの位置を詳細に比較すると、各ピーク位置はいずれもわずかに高角側へシフトしていることがわかる。これは、 Sn^{4+} と Al^{3+} のイオン半径がそれぞれ 71pm と 50pm で同程度であるため、生成した化合物が置換型固溶体 (異なる種類の金属イオンが結晶構造内で互いに置き換わることで形成される固体) である複合酸化物が形成された可能性を示唆している。具体的には、 Sn^{4+} と Al^{3+} が結晶構造内で置き換わり、均一に分散した複合酸化物が形成されたことを意味する。このような構造は、触媒反応において高い性能を発揮すること

が期待される。

さらに、図6のNi-WSの結果から、WS担体とNi酸化物のピークがそれぞれ現れていることが確認された（Opal-CT、石英：WS由来ピーク）。これにより、含浸法で作製したNi-WSは、Ni酸化物がWSの表面に均一に分散していることを示している。加えて、XRDパターンのピークの鋭さと強度から、Ni-WSの結晶性が良好であることがわかる。これにより、触媒の活性部位が高い結晶性を持ち、優れた触媒性能を発揮する可能性があると考えられる。

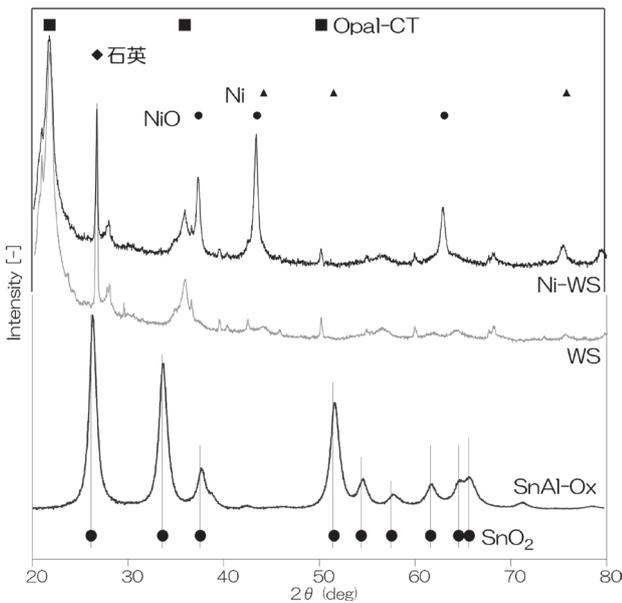


図6 SnAl-OxおよびNi-WSのXRDスペクトル (2θ = 20 ~ 80°)

3.2 農産物由来物質（リジン）の変換反応

はじめに、反応圧力の最適化を行うため、高温高压水中において、リジンの分解実験を行った。反応器に約1gのリジンと、一定圧力（5, 10, 20, 30, 40MPa）が得られるように算出した量の水を入れ、封入した後、300℃で2時間加熱した。リジン転化率とリジンが脱水環化されることで得られるα-アミノ-ε-カプロラクタム（ACL）収率の圧力の違いによる影響を図7に示した。図7より、5MPaでは反応が十分に進行せず、一方で、10~40MPaでは、ACL収率が約30%となった。これより、本反応は気相条件では反応しにくく、液相条件下で反応が進行するとともに液相条件下では圧力の影響が小さいことがわかった。

次に、リジン転化率とACL収率の時間変化を検討した。前検討より、液相となる圧力条件として10MPa、リジン転化率が約100%となる温度として200℃を選定し、圧力・温度一定のもと、反応時間を5, 10, 20, 30, 60分として反応を実施した。その結果、反応時間が20~30分でACL収率が極大となった（図8）。

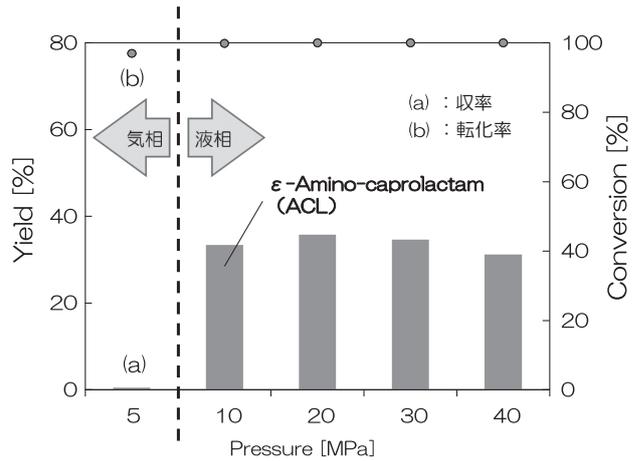


図7 リジンを原料とした回分式反応におけるリジン転化率とACL収率の圧力の違いによる影響（反応器：10ml バッチ反応器，反応温度：300℃，反応時間：2h，リジン量：0.93g，無触媒，点線は気液相の境界を示す。）

さらに、触媒種の選定を行うため、表2で示した異なる特徴を持つ単一金属酸化物3種（Nb₂O₅：固体酸，MgO：固体塩基，ZrO₂：両機能）を選定し、圧力・時間を一定のもと、触媒種ごとの反応温度の違いによる影響を検討した（図9）。図9より、いずれの触媒も180℃以上でACL収率が向上したとともに、低温側の180℃では両機能触媒および酸触媒が効果的に働いたことがわかる。すなわち、プレンステッド酸だけでなくルイス酸点と呼ばれる活性点を有する両機能触媒のZrO₂等が効果的に触媒することが示された。

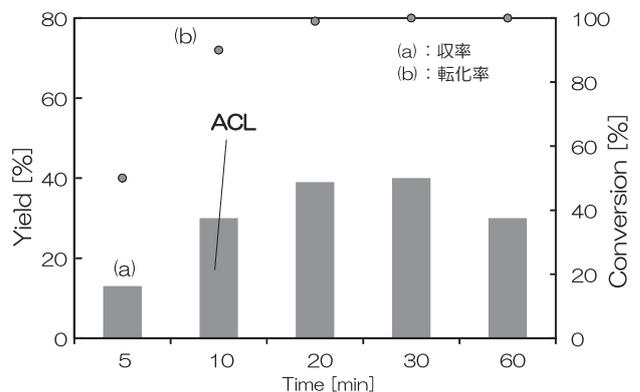


図8 リジンを原料とした回分式反応におけるリジン転化率とACL収率の時間の違いによる影響（反応器：10mlバッチ反応器，反応温度：200℃，反応圧力：10MPa，リジン量：0.93g，無触媒）

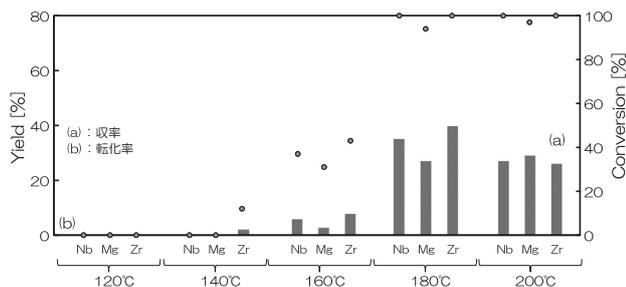


図9 リジンを原料とした回分式反応におけるリジン転化率とACL収率の触媒種ごとの反応温度の違いによる影響(反応器:10mlバッチ反応器, 反応圧力:10MPa, 反応時間:10min, リジン量:0.93g, 触媒: Nb₂O₅, MgO, ZrO₂)

加えて、両機能触媒および酸触媒を中心とした単一金属酸化物触媒、複合金属酸化物触媒、天然物由来触媒を用いて、リジンの変換反応を行うこととした。複合金属酸化物には、TiとZrを複合させたTiZr-Oxに加え、Zrとの複合が効果的とされるCeも用いて、CeZr-Oxを用いた。天然物由来触媒には、両機能および固体酸としての機能向上を期待し、Zr, Nb, SnをWSに担持したZr-WS, Nb-WS, Sn-WSを用いた。その結果、Zr-WSを触媒として用いた反応が最も高収率を示した(図10)。

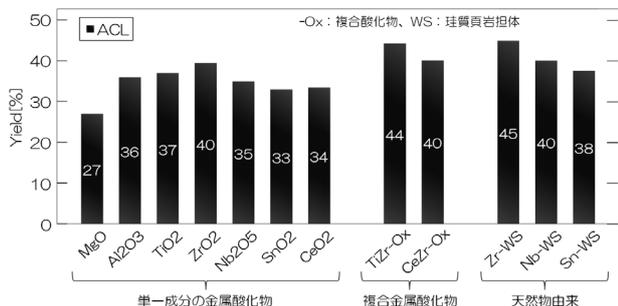


図10 リジンを原料とした回分式反応におけるACL収率の触媒種の影響(反応器:10mlバッチ反応器, 反応温度:180°C, 反応圧力:10MPa, 反応時間:10min, リジン量:0.93g)

3.3 林産物由来物質(グルコース)の変換反応

3.2節と同様に、グルコースの分解実験を行った。既往研究を参考に、反応温度180°C, 反応時間3時間で実験を行った結果を図11に示す。グルコースの変換には、異性化と脱水を逐次的に進行させる必要があるため、酸触媒および両機能触媒が効果的に働くと推定した。そこで、酸触媒と両機能触媒を中心に単一金属酸化物を選定し、スクリーニングを行ったが、十分な触媒作用は得られなかった。一方で、既往研究よりSnとAlの組み合わせがグルコース変換に効果的であることがわかったため、これらの複合化によりSnAl-Oxを調製し使用した。また、複合効果の確認のため、単純にSnO₂とAl₂O₃を物理混合した触媒でも実験を行ったが、レブリン

酸収率が低くなることがわかった。これらの結果から、複合化による高機能作用で反応の進行が促進されることが示された。さらに、天然物触媒の利用を行った結果、Nb-WSはSnAl-Oxには及ばないものの、比較的高い収率(12%)を得ることができた。他の金属成分を担持した天然物触媒は有効な機能を発現しなかったことから、適切な金属成分の選定によって、天然鉱物を担体とした触媒設計が可能であることが示された。

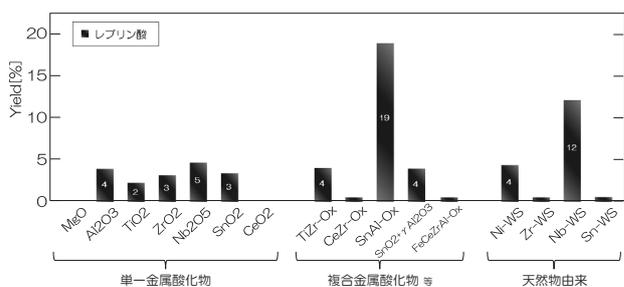


図11 グルコースを原料とした回分式反応におけるレブリン酸収率の触媒種の影響(反応器:10mlバッチ反応器, 反応温度:180°C, 反応圧力:10MPa, 反応時間:3時間)

3.4 水産物由来物質(グルタミン酸)の変換反応

水産物由来物質であるグルタミン酸の変換反応を行った。反応条件は、反応温度390°C, 反応圧力24MPa, 反応時間3時間とした。触媒種の影響を検討するため、単一金属酸化物、複合金属酸化物および天然物由来触媒を用いた。各触媒の収率を図12に示す。単一金属酸化物としては、MgO, Al₂O₃, TiO₂, Fe₂O₃, NiO, ZrO₂, SnO₂を使用した。これらの触媒のなかで、ZrO₂が最も高い収率を示し、約52%の収率を得た。複合金属酸化物には、FeCeZrAl-Oxを選定使用した結果、こちらも高い収率を示した。天然物由来触媒では、Ni-WS, Zr-WS, Nb-WSを使用した。Ni-WSは最も高い収率を示し、約60%の収率を得た。Nb-WS, Zr-WSも高い収率を示し、54~56%の収率を得た。これらの結果から、天然物由来触媒がグルタミン酸の変換反応において効果的であることが示された。

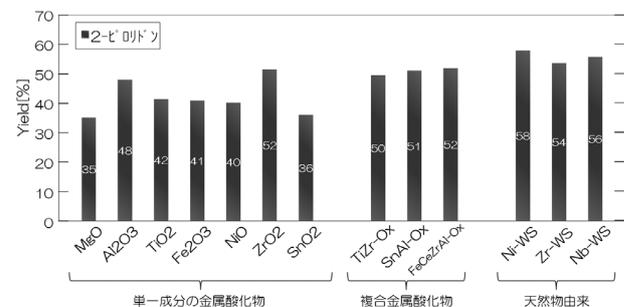


図12 グルタミン酸を原料とした回分式反応における収率の触媒種の影響(反応器:10mlバッチ反応器, 反応温度:390°C, 反応圧力:24MPa, 反応時間:3時間)

3.5 触媒機能発現の原理に関する考察

触媒機能発現のメカニズムを解明するため、温度プログラム脱離法 (TPD) を用いて触媒の特性を評価した。特に、天然物由来触媒が金属成分の担持により機能発現する原理について考察するため、WSおよび各担持触媒について考察を行った。アンモニアを触媒に吸着させ、温度を上昇させることで脱離するアンモニアの量と脱離温度を測定し、これにより酸点の強度を把握した。図13に天然物由来触媒のNH₃-TPD測定結果を示した。

WS, Ni-WS, Sn-WS, Zr-WS, Nb-WSの各触媒において、脱離温度と脱離量に違いが見られた。また、担体であるWSは、低温で脱離するNH₃ガスが多く、弱い酸点を有することが示唆された。一方、Nb-WS, Zr-WS, Sn-WSは、高温での脱離量が多く、強い酸点を有することが示唆された。しかしながら、各変換反応の結果と照らし合わせると、酸点量との単純な相関は見られない。そのため、反応性を評価するためには、酸点量以外にも比表面積や細孔径などを考慮する必要があると推定される。

今後の研究では、当初、担体の状態を考慮した上で、比表面積や細孔径の詳細な測定を行い、触媒の物理的特性と反応性の関係を明らかにすることが重要である。また、触媒の表面化学特性をさらに解析し、酸点および塩基点の分布と強度を詳細に評価する必要がある。これらの研究を通じて、触媒の機能発現メカニズムをより深く理解し、より高性能な触媒の設計・開発に寄与することが期待される。

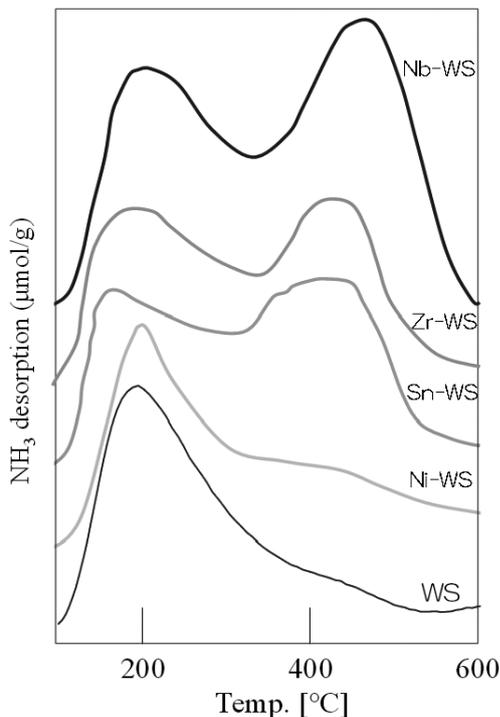


図13 天然物由来触媒のNH₃-TPD測定結果

4. おわりに

本研究では、触媒反応を活用した効率的なプロセスで、農・林・水産系バイオマスに含有する糖およびアミノ酸を高付加価値な化成品へ変換するプロセス反応を検討した。具体的には、以下の取り組みを行った。

- 触媒の調製と評価：単一金属酸化物、複合金属酸化物、天然物由来触媒を調製し、それぞれの物理化学的特性を評価した。
- 変換反応の実施：調製した触媒を用いて、リジン、グルコース、グルタミン酸の変換反応を行い、各反応条件における収率を測定した。
- 触媒機能の解析：触媒の機能発現メカニズムを解明するため、NH₃-TPD等を用いて触媒の表面特性や活性点の特性を詳細に解析した。

これにより、高効率な触媒反応プロセスの構築し、天然・未利用資源の有効活用に貢献することを目指した。その結果、以下の成果を得た。

- 天然・未利用資源由来の糖およびアミノ酸を変換可能な触媒の開発に成功した。特に、複合酸化物触媒および天然物由来触媒が高い触媒能を示した。
- 農産物由来のリジン、林産物由来のグルコース、水産物由来のグルタミン酸をそれぞれ高付加価値な化成品に変換する反応を実施し、各反応において触媒使用時に高収率を達成した。具体的には、リジンの変換反応ではACL収率45%、グルコースの変換反応ではレブリン酸19%、グルタミン酸の変換反応では2P収率58%の収率を達成した。いずれも参考文献に示されるような高価な触媒ではなく、酸化物や天然物を用いた触媒により、それらと同等以上の結果が得られた。
- 触媒機能発現の原理を解明するため、NH₃-TPD等を用いた評価を行い、触媒の表面特性や活性点の特性を明らかにした。反応性を評価するファクターは多岐にわたることが示唆されたため、引き続き、触媒設計に関する検討が必要であることがわかった。

今後は、さらに触媒の性能向上を図るとともに図り、実用化に向けた研究を進めていく予定である。

謝辞

本研究において、NH₃-TPD分析装置の貸与にご協力いただきました北海道大学触媒科学研究所物質変換研究部門（福岡研究室）の皆様へ感謝申し上げます。この場を借りて、厚く御礼申し上げます。また、本研究で使用したX線回折装置は、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。

参考文献

- 1) M. Goto, M. Umeda, *et al.*, “Synthesis of 2-Amino- ϵ -caprolactam by Cyclodehydration of Lysine in Subcritical Water”, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 37, pp.353-356, (2002)
- 2) 富永健一, 「化学的アプローチによるセルロース系バイオマスのリファイナリー技術」, オレオサイエンス, 21 (2021) 409-415.
- 3) S. Suganuma, A. Otani, *et al.*, “One-Step Conversion of Glutamic Acid into 2-Pyrrolidone on a Supported Ru Catalyst in a Hydrogen Atmosphere: Remarkable Effect of CO Activation” : *ChemSusChem*, 12, pp.1381-1389, (2019)
- 4) 相 衛, 「複合酸化物の酸化触媒作用と酸・塩基性」: 有機合成化学協会誌, 35 (1977) 201-211.
- 5) 松嶋景一郎・吉田誠一郎, 他, 「高温・高圧水マイクロ化学プロセスによる多糖の高速・高選択低分子化反応」: 北海道立総合研究機構工業試験場報告, Vol.317, pp.65-69, (2018)
- 6) 吉田誠一郎・松嶋景一郎, 他, 「水蒸気を用いたセルロースからのヒドロキシメチルフルフラール (HMF) の製造」: 北海道立総合研究機構工業試験場報告, Vol.319, pp.7-10 (2020)
- 7) H. Kondoh, Y. Nakasaka, *et al.*, “Upgrading of oil sand bitumen over an iron oxide catalyst using sub- and super-critical water” : *Fuel Processing Technology*, 145, pp.96-101, (2016)
- 8) 八幡正弘, 「いわゆる“稚内層珪藻土”の地質鉱物学的特徴」, 北海道立地質研究所報告, 第74号, 83-95, (2003)
- 9) H. Kondoh, K. Tanaka, *et al.*, “Catalytic cracking of heavy oil over TiO₂-ZrO₂ catalysts under superheated steam conditions”, *Fuel*, 167, pp.288-294, (2016)
- 10) W. Deng, P. Wang, *et al.*, “Transformation of cellulose and related carbohydrates into lactic acid with bifunctional Al (III)-Sn (II) catalysts” : *Green Chemistry*, 20, pp.735-744, (2018)
- 11) P. Wattanapaphawong, P. Reubroycharoen, *et al.*, “Conversion of cellulose into lactic acid using zirconium oxide catalysts”, *RSC Advances*, 7, pp.18561-18568, (2017)
- 12) 山下弘己, 福岡 淳, 他: 触媒総合辞典, 朝倉書店 (2023)

引用

- a) 日本製紙グループHP「木質バイオマス変換」
<https://www.nipponpapergroup.com/research/organize/biomass/>

パンチング加工における反り抑制技術の開発

鶴谷 知洋, 三戸 正道, 鈴木 逸人, 櫻庭 洋平, 佐々木克彦*, 本田 真也*,
武田 量*, 東野 颯真*, 海老原達郎**, 石川 和彦**

Development of Warp Restraining Technology in Punching Process

Tomohiro TSURUYA, Masamichi MITO, Hayato SUZUKI, Yohei SAKURABA,
Katsuhiko SASAKI*, Shinya HONDA*, Ryo TAKEDA*, Soma HIGASHINO*,
Tatsuro EBIHARA**, Kazuhiko ISHIKAWA**

抄 録

汎用金型を用いて様々な形・サイズの穴あけを行うパンチングプレスでは、加工品に反りが発生しやすいことが課題となっており、反りが発生した場合には、要求品質を満たせないことに加え、パンチングプレスと加工品の衝突による加工停止や、後工程での反り修正によるコスト増加などの影響が出ている。

本研究では、反りの少ない加工条件で加工を開始し、加工中は実際の反りに応じて加工条件を変更することで反りを抑制することを目指し、金型のIoT化と取得データによる加工中の反りの推定手法、複数穴加工に対応したシミュレーション技術とこれを用いた加工条件導出技術、加工中の反りに応じた加工条件補正技術を開発し、これらの機能を搭載した加工システムにより有効性を検証した。

キーワード：穴あけ，パンチングプレス，反り，シミュレーション，IoT

Abstract

Punch presses, which use general-purpose dies to make holes of various shapes and sizes, are prone to warping in the processed product, which makes it impossible to meet the required quality. In addition, issues include the need to stop processing due to collisions between the punching press and the processed product, and increased costs due to warping correction in post-processing.

In this study, the goal is to start processing under conditions that cause minimal warping, and then suppress warping by changing the processing conditions during processing according to the actual warping. To achieve this, a method was developed to estimate warping during processing using IoT-based dies and acquired data, a simulation technology compatible with multiple hole processing and a processing condition deriving technology using this, and a processing condition correction technology according to warping during processing. The effectiveness of the method was verified using a processing system equipped with these functions.

KEY-WORDS : Punching, Punch Press, Warping, Simulation, IoT

* 北海道大学, * Hokkaido University

** 株式会社道央メタル, ** Douou Metal Co.,Ltd

事業名：重点研究

課題名：IoT金型と加工状態推定・補正技術による高品質板金加工システムの開発

1. はじめに

プレス加工は金型を用いる加工であることから、他の加工法と比較して加工速度が大きく、均一な製品を大量に生産できる¹⁾。また、加工コストが安く、材料歩留まりも高いため、自動車を中心に電気製品、住宅関連製品、日用品などの分野において量産加工技術として広く普及している。特にせん断加工は、プレス加工の他の加工法と異なり、材料を分離する加工法であることから使用頻度が高く、打抜きや穴あけなど板金部品の製作や他のプレス加工部品の半加工品の製造などに適用されている²⁾。このため、パンチングプレス（図1）は汎用金型（図2）を用いて様々な形・サイズの穴あけを行うが、多数の穴をあける加工品（パンチングメタル）には反りが発生しやすいことが課題となっており³⁻⁵⁾、反りが発生した場合には、要求品質を満たせないことに加え、パンチングプレスと加工品の衝突による加工停止や、後工程での反り修正によるコスト増加などの影響が出ている。なお、穴あけにおける品質向上について、逆押さえ力の最適化による反り低減⁶⁾、センシングによる金型摩耗の監視⁷⁾などの研究が行われているが、パンチングプレスを対象とした反りの抑制についての報告は見当たらない。

本研究では、パンチングプレス加工時に発生するパンチングメタルの反り抑制を目的として、加工前にシミュレーション技術の活用により反りの少ない加工条件を導出し、加工中は監視により反りの設定値を超えた場合に加工条件を変更し反りを抑制する加工技術の開発を試みた。具体的には、①加工中の反りを把握するためIoT化した金型からデータを取得し反りを推定する手法、②単一穴が対象の従来のシミュレーション技術と異なる加工条件の導出が可能な複数穴に対応したシミュレーション技術とこれを用いた加工条件導出技術、③推定した反りに応じた加工中の加工条件補正技術を開発し、これらの機能を搭載した反り抑制加工システムの実証試験により有効性を確認した。



図1 パンチングプレス



図2 汎用金型

2. 金型のIoT化と反りの推定

2.1 加工システムの構築

パンチングプレスは、材料を平面移動させ金型を上下動させることで穴あけを行う。加工技術の開発にあたり、はじめにパンチングプレスと同等の穴あけ機構をもつ加工システムを構築した（図3）。金型を上下動させる加工部は、サーボプレス機（NC1-800（D）・アイダエンジニアリング(株)製）を用いた。サーボプレスの加圧能力は800kN、連続ストローク数は最大65spmである。材料を平面移動させる搬送部は、スカラロボット（RH-12FH7035M-D・三菱電機(株)製）を用いた。スカラロボットの可搬重量は12kg、サイクルタイムは0.3secである。サーボプレス機とスカラロボットは、電気制御盤にてプログラマブルコントローラを用いて同期させた。



図3 構築した加工システム

2.2 センサの選定と設置

反りの発生により加工品の表面が湾曲することで、加工荷重の変化やAE信号（Acoustic Emission：物体の変形・破壊により振動が発生する現象）の変化、材料表面高さの変化が起こると考えられる。そこで、反りを把握するために使用するセンサとして加工荷重計、AEセンサ、レーザ変位計を選定した。加工荷重計はサーボプレス内蔵のセンサを使用し、AEセンサは加工品が接する下型にマグネットホルダで固定し、レーザ変位計は加工品の上面の高さを測定するため上型と下型間に設置した（図4）。センサはデータロガーを介して制御PCと接続し、電気制御盤についても制御PCと接続することで、制御PCを介したネットワークを構成し金型をIoT化した。

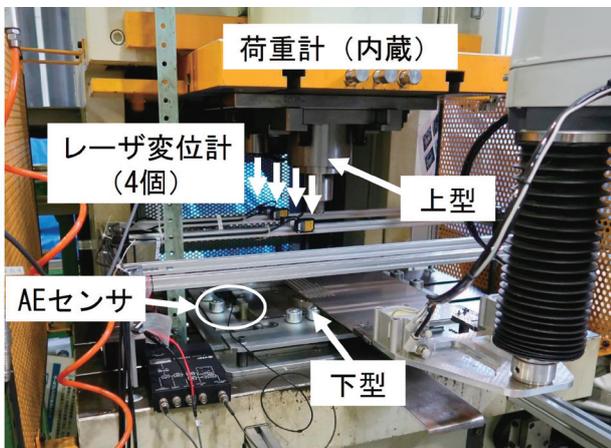


図4 加工システムに配置したセンサ

2.3 加工実験と取得データの解析

センサの取得データから反りを推定するため、加工実験を行い、取得データと反りの関係について解析した。加工品を図5に示す。被加工材の材質はSUS304ステンレス鋼（板厚2.0mm）、孔径は $\phi 6.0\text{mm}$ 、穴ピッチは10.0mmとし、720個（24穴 \times 30穴）の穴あけを行った。加工の模式図を図6に示す。加工は、金型の上型と下型で被加工材を挟むことにより行う。このとき、パンチは被加工材を貫通するが、押さえはパンチ周囲の被加工材を押し付ける。加工荷重計で荷重値、AEセンサで単位時間当たりのAE発生数、レーザ変位計で加工品表面の直線状4点の高さを取得した。反りは、所定の加工穴数ごとに加工システムから加工品を取り外し、図7に示すマルチセンサ測定機（ZEISS O-INSPECT 8/6/3・カールツァイス（株）製）により測定した。加工品の表面208点の3次元座標を測定し、4隅にフィットする平面と最遠点の距離を加工品の実測の反りとした（以後、実測の反りと呼ぶ）。加工条件として、押さえ角度、押さえ径、ダイ角度、クリアランスを変えた実験を行った。これらの金型に関する設定値の模式図を図8に示す。

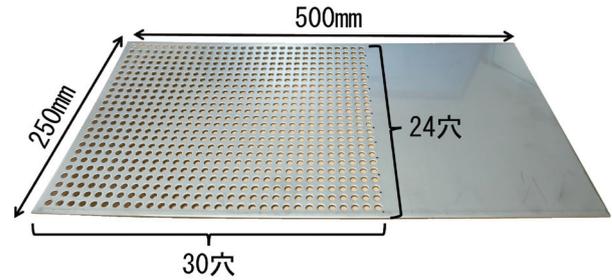


図5 加工品

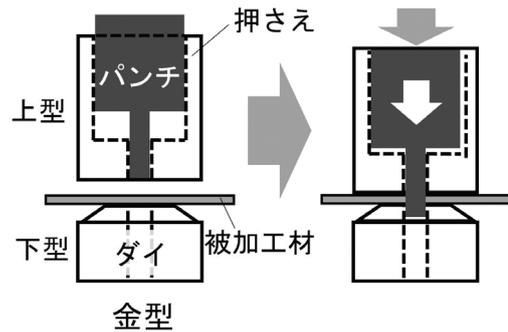


図6 加工模式図



図7 マルチセンサ測定機

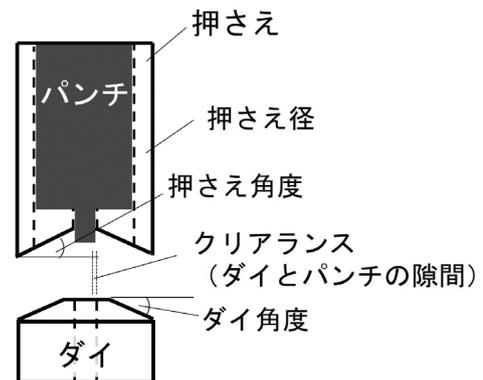


図8 金型設定値の模式図

取得データの一例を図9～図11に示す。それぞれ1shot(穴一つの加工)のデータである。荷重については、被加工材の破断(分離)時のピークが見られる。AE発生数については、被加工材が塑性変形し破断に至る範囲で値が大きくなっている。加工品表面高さについては、全範囲に加工に伴う被加工材の振動が見られ、かつ被加工材が上型に押されたことに起因する大きな上下動が確認できる。測定した反りのデータを図12に示す。標準の加工条件(押さえ角度 0° 、押さえ径 $\phi 26.0\text{mm}$ 、ダイ角度 0° 、クリアランス 0.5mm (直径))と、各条件のうち押さえ角度を 1.0° 、ダイ角度を 1.0° 、クリアランスを 0.6mm (直径)、押さえ径を $\phi 48\text{mm}$ に変更した5条件の実験を行った。反りがマイナスの場合は下に凸であること、プラスの場合は上に凸であることを表す。加工穴数の増加に伴い反りが大きくなり、標準加工条件では反りが -5.4mm であった。また、ダイと押さえに角度をつけた場合に反りが小さくなる傾向が見られた。

次に、取得データと反りの関係について解析した結果を図13～図15に示す。荷重は1shot中の最大荷重、AE発生数は1shot中の総和、表面高さはデータ取得開始から 0.1秒 の平均値をそれぞれ特徴量とした。そして、加工条件ごとに加工開始から加工終了まで所定の加工穴数ごとに測定した224個の反りの値とその時の取得データの特徴量の相関係数を算出した。最大荷重と反りについては相関係数 -0.084 、AE発生数の和と反りについては -0.301 、表面高さと反りについては 0.958 となり、最大荷重およびAE発生数の和と反りはほぼ無関係であるが、表面高さのデータと反りの間にかなり強い正の相関があることがわかった。

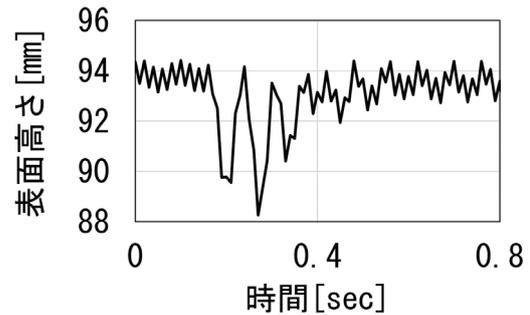


図11 取得データの一例(レーザ変位計)

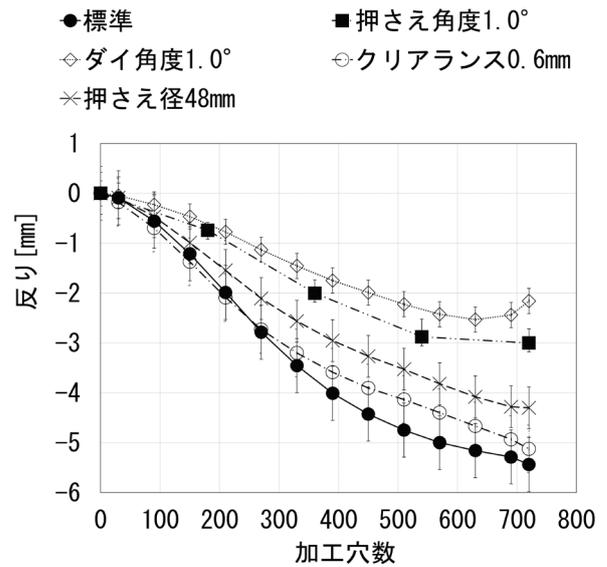


図12 反りの測定データ

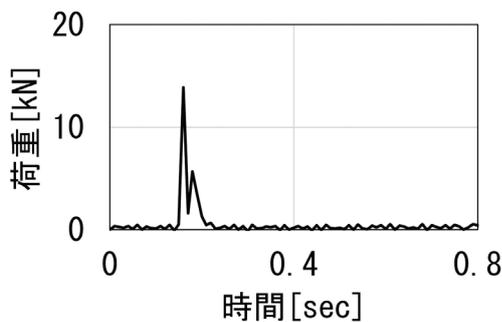


図9 取得データの一例(荷重計)

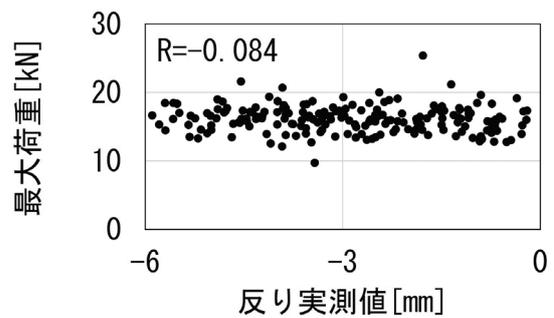


図13 取得データと反りの相関(荷重)

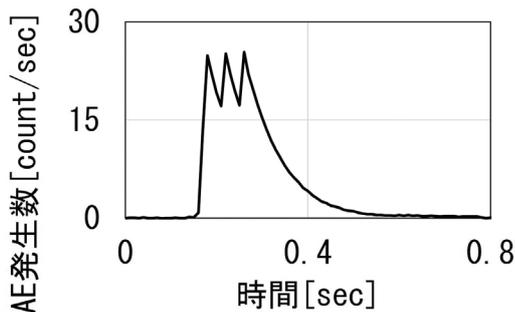


図10 取得データの一例(AEセンサ)

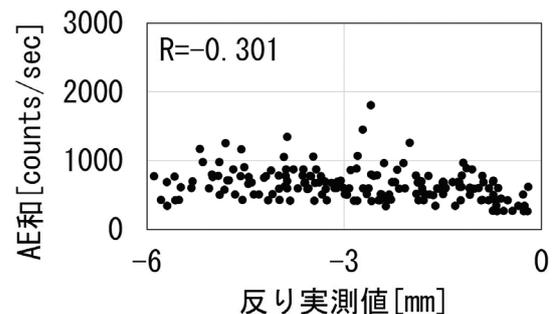


図14 取得データと反りの相関(AE発生数)

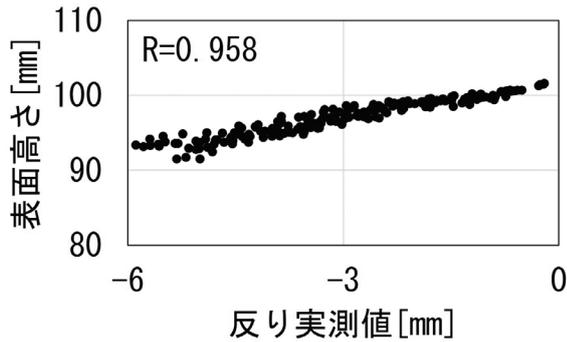


図15 取得データと反りの相関（材料表面高さ）

2.4 反り推定手法の開発

表面高さと反りの間にかなり強い正の相関があること、加工穴数の増加にともない反りも大きくなることから、反りを目的変数、高さデータと加工穴数を説明変数とする重回帰分析を行い、得られた係数を使用して反りを算出した。標準加工条件での反りの推定例を図16に示す。推定値と実測値を比較した結果、誤差の平均は0.4mm/m（11.9%）となった。反りの推定値と実測値を比較した結果を図17に示す。決定係数は0.955となり、推定手法の有効性が確認できた。

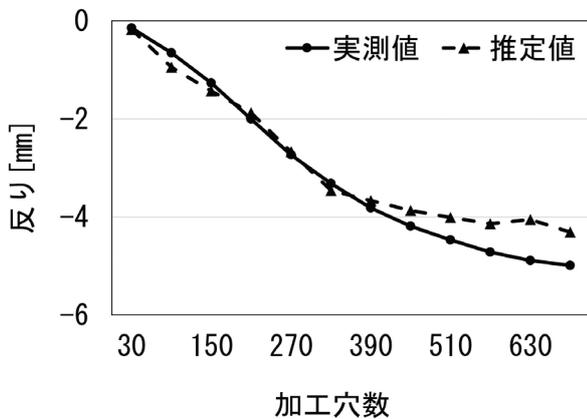


図16 反り推定例

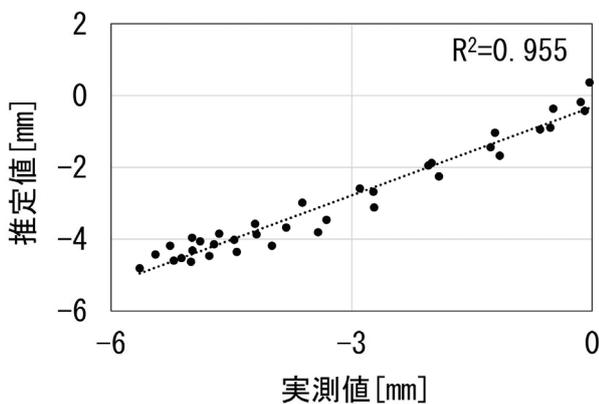


図17 反り推定結果

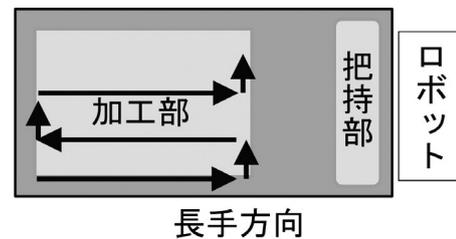
3. シミュレーション活用による加工条件導出

3.1 反り制御因子の確認

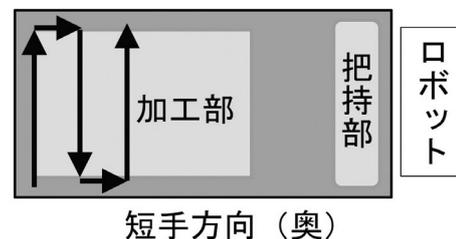
反りの制御因子を明らかにするため、2.3節の加工条件に加えて加工穴順を変えた実験を行い、加工品の反りを測定した。加工条件を表1に、加工穴順を図18に示す。反りは2.3節と同様にマルチセンサ測定機で測定した。標準の加工条件は、押さえ角度0°、押さえ径φ26.0mm、ダイ角度0°、クリアランス0.5mm（直径）、加工穴順：長手方向とした。反りの測定結果を図19に示す。反りがマイナスの場合は下に凸であること、プラスの場合は上に凸であることを表す。標準の加工条件から変更した条件のみを記している。各種の加工実験の結果、標準の加工条件の反りの発生方向がマイナスであるのに対し、押さえとダイの両方に角度をつけた場合の反りの発生方向がプラスになっていることから、押さえとダイの角度により反りを制御できる可能性が高いことが示された。

表1 加工条件

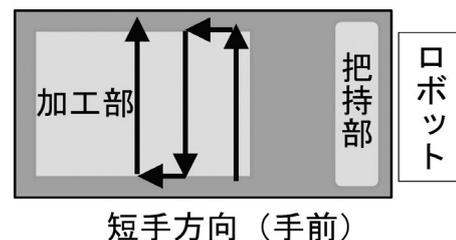
押さえ径	26mm, 48mm
押さえ角度	0°, 0.5°, 1.0°
クリアランス	0.5mm, 0.6mm
ダイ角度	0°, 0.5°, 1.0°



長手方向



短手方向（奥）



短手方向（手前）

図18 加工穴順

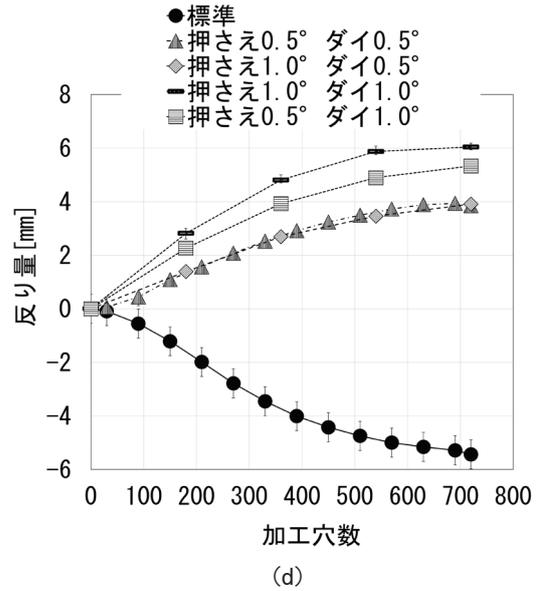
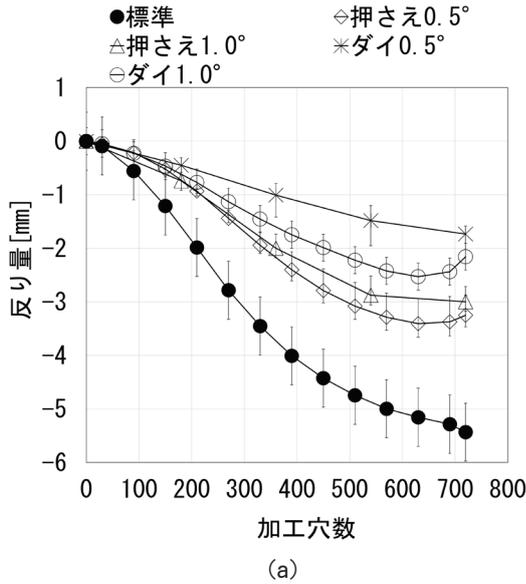


図19 反り測定結果 (続き)

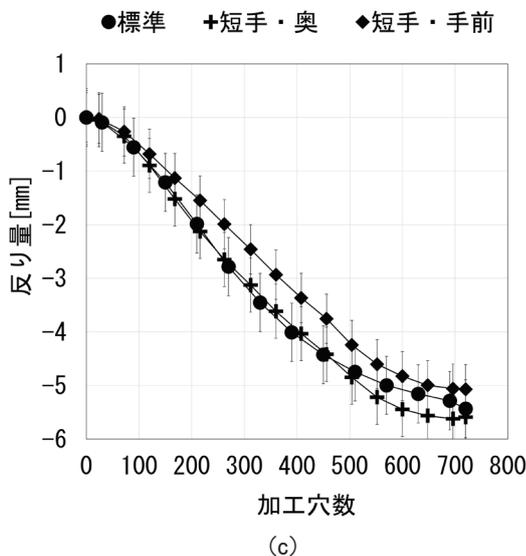
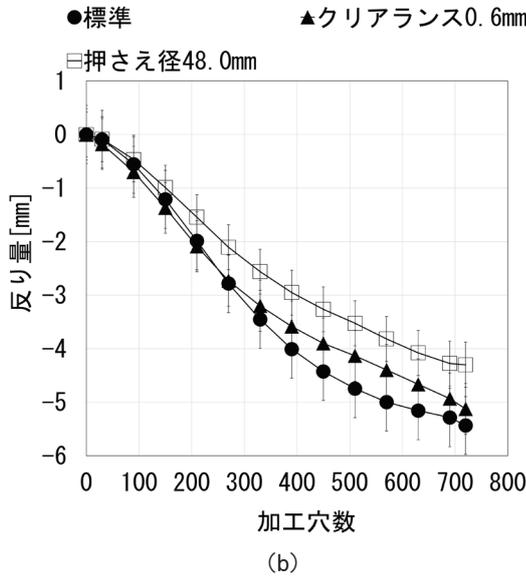


図19 反り測定結果

3.2 シミュレーション技術の開発

従来のシミュレーション技術⁸⁾は単一穴が対象であるため、反りの少ない加工条件の導出が可能な複数穴に対応したシミュレーション技術を検討した。3.1節の結果から、導出する加工条件は押さえ角度およびダイ角度の組み合わせとした。シミュレーションは非線形解析ソフトウェアであるAnsys LS-DYNAを用いた。モデルは弾性と塑性の性質を合わせ持ち応力とひずみの関係を直線で近似した弾塑性体、塑性変形中の力と変形の関係である加工硬化則は速度依存性があるCowper-Symondsモデルとし、相当塑性ひずみの値56%を破壊基準として要素を削除することで穴あけ加工時の材料分離を表現した。また、実際の金型に合わせてパンチ径6.0mm、押さえ内径6.6mm、ダイ径6.5mmに設定し、被加工材はSUS304板厚2.0mmとした。押さえ角度とダイ角度を変えた場合のZ変位(被加工材表面の鉛直方向)のシミュレーション結果例を図20に示す。単一穴でのシミュレーションにおいても加工により被加工材が変形していることが確認できた。解析時間は4.5時間であった。次に、複数穴として1列×6穴および2列×3穴でのシミュレーションを行った。シミュレーション結果を図21に示す。1列および2列ともに単一穴と同様に被加工材が変形していることが確認できた。穴数が増え被加工材も長くなったことから変形も大きくなった。しかし、穴数が増えることで解析時間は1列×6穴で105時間、2列×3穴で65時間となり、条件を変えて複数のシミュレーションを行うには膨大な時間がかかることから加工条件の導出に使用することは困難といえる。そこで、単一穴のZ変位のシミュレーション結果を用いた反りの計算手法を検討した。計算手順は、始めにXZ平面上の穴近傍断面(図20に示す線の位置の断面)を平行移動して一端を原点に一致させ、次に回転移動によりもう一方の一端をX軸上に移動さ

せ、最後にX軸と穴近傍断面との距離を反りとして計算する(図22)。シミュレーション結果を用いた反りの計算値と、2.3節で示した方法による加工品全体の実測の反りを図23に示す。反りの値の比較ではなく、上に凸となる加工条件と下に凸となる加工条件の境界を比較した。シミュレーションにより計算した反りと実測の反りは、反りの発生方向の境界が一致していることから、反りが小さくなる加工条件の導出が可能である。

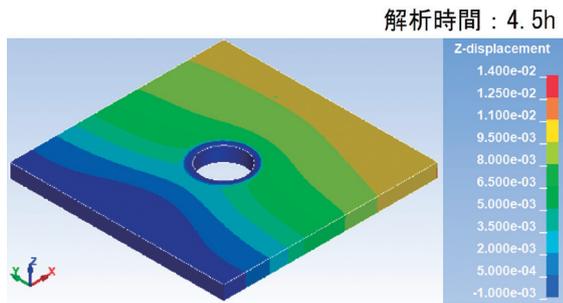
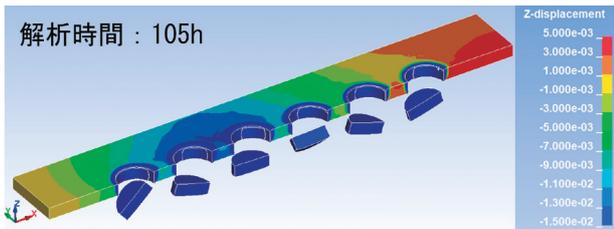
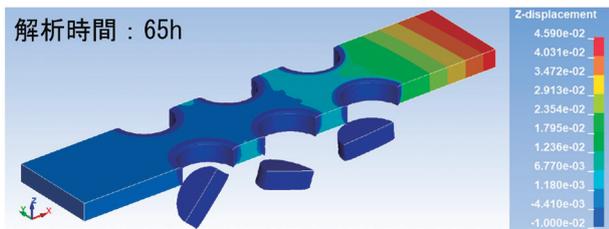


図20 単一穴シミュレーション結果例



(a) 1列×6穴



(b) 2列×3穴

図21 複数穴シミュレーション結果例

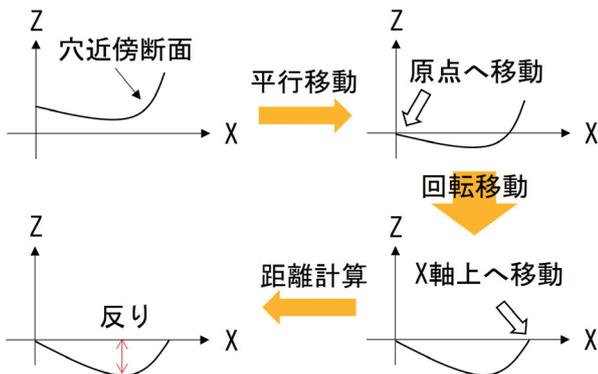


図22 反りの計算方法

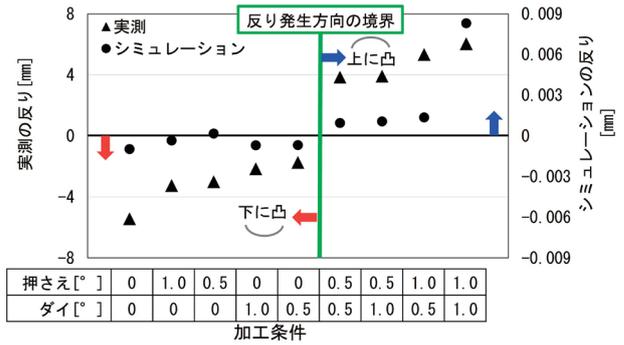


図23 反りの計算値と実測値の比較

3.3 初期加工条件導出技術と加工条件補正技術の開発

3.2節で示したとおり、実測の反りとシミュレーションにより計算した反りを比較した結果、反り発生方向の境界は一致している。そこで、反りが最小となる初期加工条件は、シミュレーションにより加工条件ごとの反りを計算して反り発生方向の境界を求め、境界近傍の加工条件とした。なお、加工条件である押さえ角度およびダイ角度は0.5°ずつ変化させた。

導出した初期加工条件による加工開始後、発生する反りに応じた加工条件の変更にあたり、加工中の反りの実測が困難なため、IoT金型から得た高さデータによる反りの推定値を用いた。推定値が設定値を超える場合、その差に応じて反りを抑制する加工条件に変更する。加工条件の決定は、あらかじめシミュレーションを行い加工条件と反りの関係から作成した補正加工条件表(表2)にもとづいて行った。反りの推定値から補正すべき反りの方向(上に凸あるいは下に凸)とその強弱を決定し、補正加工条件表から現在の加工条件に対して必要なレベルの加工条件を補正加工条件として選択する。

表2 補正加工条件表

レベル	加工条件
上に凸(強)	押さえ 1.0° ダイ 1.0°
上に凸(弱)	押さえ 1.0° ダイ 0.5°
0	押さえ 0.5° ダイ 0.5°
下に凸(弱)	押さえ 0° ダイ 1.0°
下に凸(強)	押さえ 0° ダイ 0°

4. 反り抑制加工システムの有効性検証

4.1 反り抑制加工システムの構築と有効性検証実験

IoT金型からのデータを用いた反りの推定手法、シミュレーション技術を用いた加工条件導出技術と加工条件補正技術を搭載した反り抑制加工システムを構築し実証試験を行った。構築したシステムの概要を図24に示す。加工前にシミュ

レーションを活用し反りを最小化する初期加工条件とともに、補正加工条件表を導出した(表2)。加工中は、導出した初期加工条件で加工開始後、IoT金型からのデータにもとづいて反りの推定を行い、推定値が設定値を超える場合は補正加工条件表にもとづいて加工条件を選択した。設定値を超えない場合は加工条件を変更しなかった。一般的な加工条件で加工した場合の反りが10.8mm/mであったのに対し、開発した機能を用いた場合は1.7mm/mとなり、開発技術の有効性が確認できた(図25)。

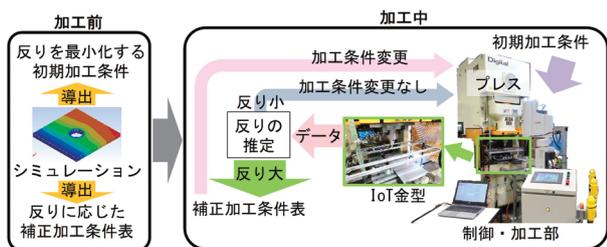


図24 反り抑制加工システムの概要

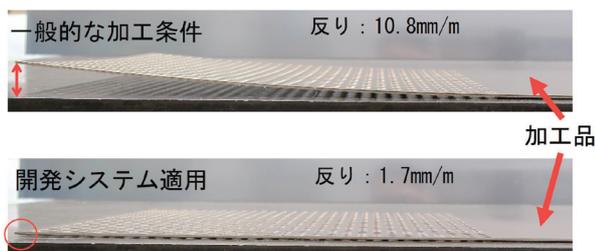


図25 有効性の検証実験結果

4.2 実工場での検証実験

4.1節の検証実験において、加工条件の補正は反り発生方向の境界前後の加工条件を交互に適用する結果となった。そこで、事前に設定した列ごとに反り発生方向の境界前後の加工条件を交互に適用することでIoT金型による加工条件補正が不要な簡易実装方法を開発し(図26)、企業の実工場においてパンチングプレスを用いた検証実験を行った(図27)。その結果、一般的な加工条件での反りが5.0mm/mだったのに対して、同実装方法を適用することで1.0mm/mにとどめることができ、大きな抑制効果を確認した(図28)。

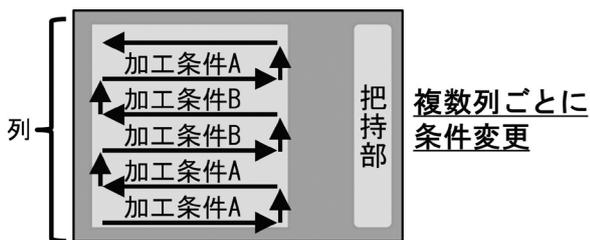


図26 簡易実装方法の概要



図27 実工場における検証実験の様子

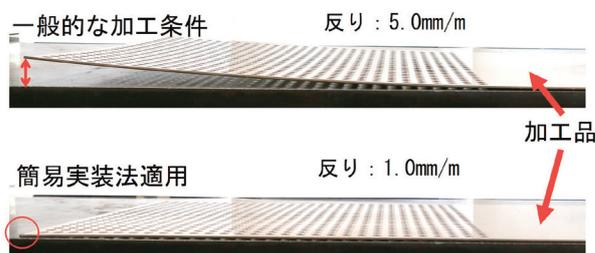


図28 実工場での検証実験結果

5. おわりに

本研究では、パンチングプレス加工時に発生するパンチングメタルの反り抑制を目的として、加工前にシミュレーション技術の活用により反りの少ない加工条件を導出し、加工中はIoT金型の活用により反りを監視して設定値を超えた場合に加工条件を変更し反りを抑制する加工技術を開発した。これらの機能を搭載した加工システムを構築し検証実験を行った結果、反りを大幅に抑制することができた。また、IoT金型を活用した加工システムが不要な簡易実装方法も考案し実工場で検証実験を行った結果、同様に反りを抑制することができた。

今後は、被加工材の材種や板厚、穴ピッチ、穴パターンなどの変化に対する影響を調査し、より汎用性の高い加工技術の開発を進める予定である。

謝辞

本研究で使用したマルチセンサ測定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) 吉田弘美：プレス加工大全，日刊工業新聞社，320PP，(2015)
- 2) 前田禎三：塑性加工，誠文堂新光社，568PP，(1972)

- 3) Isamu Aoki, Toshinori Takahashi : Journal of Materials Processing Technology, Vol.134, No.1, pp.45-52, (2003)
- 4) 坂本潤嗣, 工藤誠一 他 : 長野県工業技術総合センター研究報告, No.5, pp.115-118, (2010)
- 5) 小野田一夫 : プレス技術, Vol.61, No.1, pp.18-22, (2023)
- 6) 廣田健治 : 天田財団助成研究成果報告書, Vol.28, pp.100-104, (2015)
- 7) 増田 新, 高橋勇樹 他 : 日本機械学会中国四国支部総会・講演会 講演論文集, 2014.52巻, pp.514-1-514-2, (2014)
- 8) 田中 徹, 萩原世也 他 : 塑性と加工, Vol.52, No.609, pp.1104-1108, (2011)

食品に関する物体の動きの3DCG再現に関する研究

安田 星季, 印南 小冬, 大久保京子, 高木 友史

Research on 3DCG Reproduction of Food-related Objects Movements

Seiki YASUDA, Kofuyu INNAMI, Kyoko OOKUBO, Tomohito TAKAGI

抄 録

感染症の流行による観光客の激減, 外国の日本産食品の輸入規制等により道産食品の売上が大きく低下した経験を踏まえ, 道内食品製造企業はその対策としてネット販売の強化を志向している。ネット販売では, 消費者に商品の特徴や魅力を瞬時に印象づける画像や動画が重要で, 近年3DCG技術が急速に進展, 普及し, 食品の広告等にも採り入れられてきている。しかし, 消費者が違和感を覚えずに好印象を抱く食品のCGを制作するには3DCGソフト上で多数のパラメーターを何度も調整し直し, 試行錯誤する必要がある。

そこで本研究では, 広く知られている道産食品の一つである「菓子」に着目し, その動画広告等で頻繁に用いられる, 動き方の制御が難しい液体などの物体の動き2種を対象に, 3DCGソフトの物理シミュレーション機能等で再現できるプログラムおよびパラメーターのプリセットを開発した。また, これらを用いて制作したCGの動きの再現性を評価するWebアンケートを行った結果, 実写との類似度(再現性)の平均が5点満点中約4点と概ね高い評価を得た。

キーワード: 3DCG, 食品, 物理量, シミュレーション

Abstract

Sales of Hokkaido-produced foods have declined significantly due to the spread of infectious diseases and foreign import restrictions on Japanese-produced foods, and food manufacturing companies in Hokkaido are looking to strengthen online sales as a countermeasure. In online sales, images and videos content that instantly impress consumers with products are important. On the other hand, in recent years, 3DCG technology rapidly advanced and become popular, and the technology is being applied to food images and videos such as advertisements. However, in order to create food CG that consumers do not feel uncomfortable with, or that leave a positive impression on consumers, it is necessary to readjust many parameters over and over again, and through trial and error.

In this research, we focused on confectionery, which is one of the widely known Hokkaido foods, and focused on two types of movements of objects such as liquids that are often used in advertisements, etc., and whose movements are difficult to control. We investigated the physical quantities related to these, and based on them we developed and created a program and parameter presets that can reproduce the movement of the object using the physical simulation function of 3DCG software. We also conducted a web questionnaire to evaluate the reproducibility of object movements in CG created using the developed program and created presets. We also conducted a web questionnaire to evaluate the reproducibility of the movement of CG objects created using these tools, and the result of the average score on the survey was about 4 out of 5, which was generally high.

KEY-WORDS : 3DCG, Food, Physical quantities, Simulation

1. はじめに

感染症の流行による観光客の激減、外国の日本産食品の輸入規制等により道産食品の売上が大きく低下した経験を踏まえ、道内食品製造企業はその対策としてネット販売の強化を志向している^{1,2)}。ネット販売では、消費者に商品の特徴や魅力を瞬時に印象づける画像や動画が重要で、近年3DCG技術が急速に進展、普及し、食品の広告等にも採り入れられてきている。しかし、消費者が違和感を覚えずに好印象を抱く食品のCGを制作するには3DCGソフト上で多数のパラメーターを何度も調整し直し、試行錯誤する必要がある。

CG動画は一般的に「モデリング」「アニメーション（シミュレーション）」「ライティング」「レンダリング」などの工程で制作されるが、「シミュレーション」工程は他の工程と比べてコンピュータによる計算時間が長く、結果の確認までに長時間を要する。シミュレーションのパラメーター設定作業に関して、佐藤らは3DCGソフトHoudiniのシミュレーション機能を用いてパスタ料理の麺とソースの動きの効率的な再現手法を提案した³⁾。また、3DCGソフトBlenderの機能拡張ソフト「Flip Fluids」は、食品を含む様々な流体の動きをシミュレーションで効率的に再現できる機能を提供している⁴⁾。しかし、いずれの方法も動きを制御する各種パラメーターと実物の物理量との関係性が不明確なため、再現したい動きに必要なパラメーター調整の目安を立てづらく、調整に時間がかかるという課題があった。

そこで本研究では、広く知られている道産食品の一つである「菓子」に着目し、その動画広告等で頻繁に用いられる、動き方の制御が難しい2種の動きを対象に、これらに関する寸法、粘度の物理量を調べ、それらの値を参考に、対象の動きを3DCGソフトBlenderの物理シミュレーション機能等で再現できるプログラムを開発し、パラメーターのプリセットを作成した。

2. 3DCGソフトBlender

Blenderは、オランダの非営利団体Blender Foundationが開発するオープンソースの統合型3DCGソフトで、他の著名な3DCGソフトよりも多機能でありながら、軽快に動作し、現時点（2024年8月）ではライセンス料が無料である。このため、導入コストが低く、ユーザーが多いという利点がある一方、多機能で習得が難しいという欠点があるとされる⁵⁾。

また、同ソフトで作成した3Dデータや同ソフト向けに開発された機能拡張ソフトを販売・配布できる公式の配信システムがあるなど、世界中のユーザーが提供する豊富な技術情報や多様な機能拡張ソフトを組み合わせ活用できる。以上の点から、本研究では同ソフトを使用した。

3. 菓子に関する物体の動きのCG再現

本研究では、菓子の広告等で頻繁に用いられる、動き方の制御が難しい「クッキーが破断する際の破片の動き」（以下、動き1）と「スプーンでハチミツを掬う際のハチミツの動き」（以下、動き2）を対象とした。

3.1 動き1 クッキーの破片の動き

3.1.1 実写動画撮影

実物の動きを参照するため、動き1の実写動画を以下の方法で撮影した。

- ① 市販のクッキーの端部をロボットアーム（MG400・DOBOT社製）で把持し、他端を人が手で把持
- ② ロボットアームの先端軸を一定の加速度で回転
- ③ クッキーが破断し、破片が飛散、落下する様子をビデオ撮影

撮影の様子を図1に、撮影した動画の一部を図2に示す。

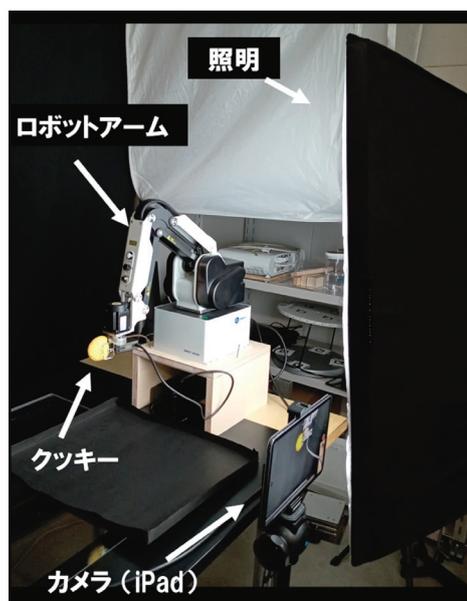


図1 撮影の様子

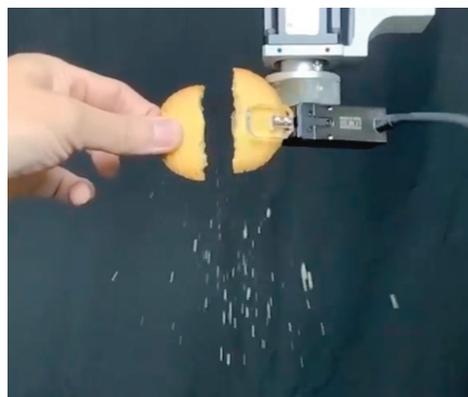


図2 実写動画

3.1.2 クッキーの破片の寸法分布

動き1の再現のため、破片の寸法の分布を下記の方法で求めた。

- ① 破片が散乱した平面をカメラで撮影
- ② 撮影画像をオープンソースの画像解析ソフトImageJに入力
- ③ 破片に楕円を近似し、長軸の寸法を割り出す
- ④ 階級幅0.5mmで度数(個数)を集計

上記②, ③に該当する画面例を図3に示す。

クッキーを破断させて得た複数枚の画像に対し、上記解析を行った結果、クッキー1枚あたりの破片の総数は概ね120個であり、近似楕円長軸長さが0.5mm以下の破片が概ね70個(全体の約60%)であることなどがわかった。代表的な度数分布例を図4に示す。

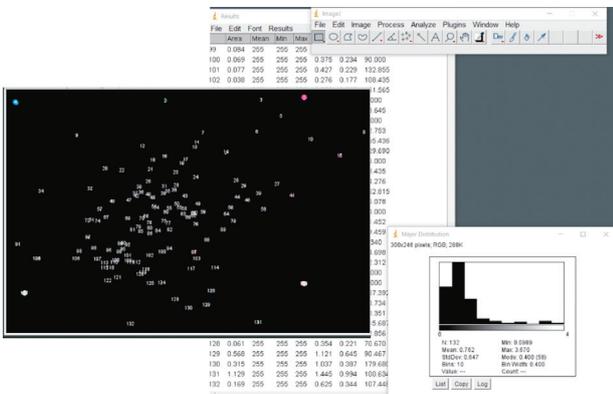


図3 画像に写った各破片に対し、楕円を近似し、寸法を割り出した画面例

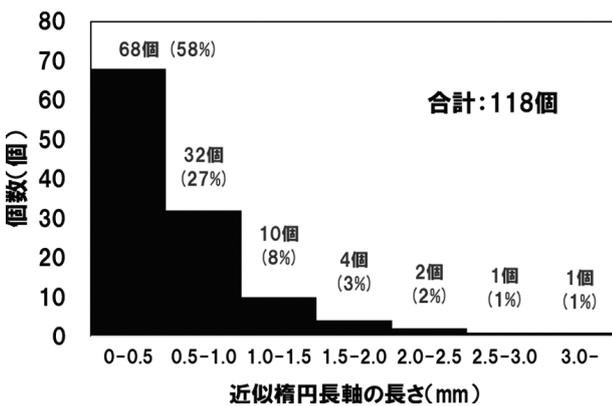


図4 クッキーの近似楕円長軸長さの度数分布例

3.1.3 Blenderによる再現

前項の結果をもとに、Blenderの標準機能であるノードベースプログラミング機能を用いて、破片が飛散、落下する動きを再現するプログラムを開発し、パラメーターのプリセットを作成した。ノードプログラムとパラメーターのプリセットの表示画面の一部を図5に、制作されたクッキーの破

断画像の表示画面を図6に示す。

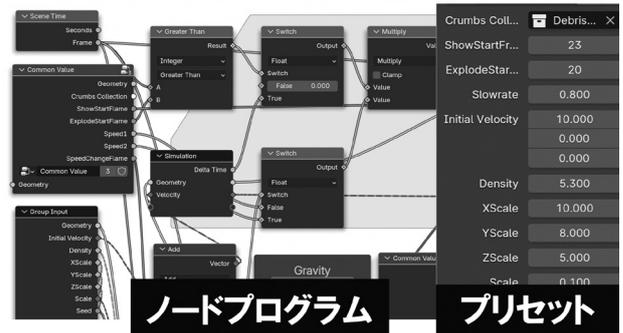


図5 ノードプログラムとパラメーターのプリセット画面の一部

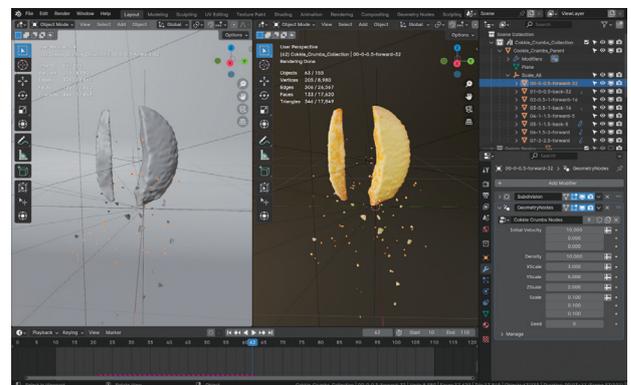


図6 クッキーの破断画像の表示画面

3.2 動き2 ハチミツの動き

3.2.1 実写動画撮影

実物の動きを参照するため、動き2を模した実写動画を以下の方法で撮影した。

- ① 実物のハチミツは温度や保存状態により粘度のバラつきが大きく撮影条件の管理が難しいため、粘度標準液として使用されるシリコンオイルのうち、食品粘度データ図⁵⁾のハチミツの粘度に相当するもの(KF96-1万cs・信越化学工業製)を選定し、透明容器(500mL・シントー化学製)に注入

- ② スプーン先端部をロボットアーム先端に取り付け、液面下に浸け、一定の加速度で上昇

- ③ 液体の動きをビデオ撮影

撮影の様子を図7に、撮影した実写動画の一部を図8に示す。



図7 撮影の様子



図8 実写動画

3.2.2 Blenderによる再現

動き2の再現のため、Blenderの流体シミュレーション機能に粘度や表面張力などに相当する約20種のパラメーターを入力し、値を調整して、実際の動きと類似した液体の動きを再現可能なパラメーターのプリセットを作成した。パラメーターを入力した画面を図9に、主なパラメーターと目安値を表1に示す。

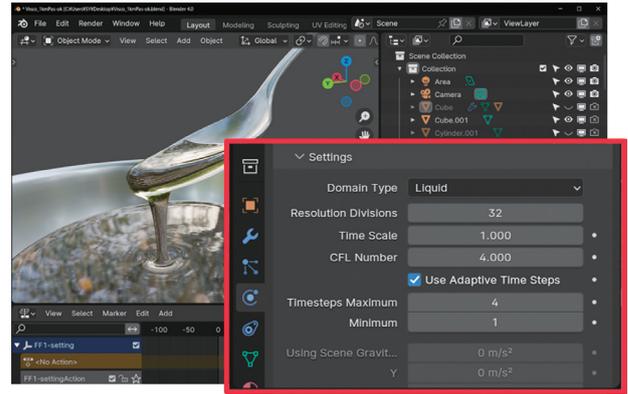


図9 パラメーター入力画面

表1 主なパラメーターと目安値

項目	目安値
スケール	10
粘度	0.1
表面張力	0.005
摩擦係数	0.5
解像度	250
計算方法	APIC
液面のスムージング回数	2
シート化効果-強度	0.75

4. 再現性評価アンケート調査

開発したプログラム、作成したプリセットを用いて制作したCGの物体の動きの再現性を評価するアンケート調査を行った。

4.1 調査概要

形式	Webアンケート
実施時期	2023/9下旬～
対象者	筆者所属機関関係者および道内企業従業員
対象者数	約 200名
回答数	51件 (回収率約 25%)

4.2 設問

評価用CG動画、およびアンケートは下記の点に配慮して作成した。

- ① 動画広告を見る頻度が高いデバイスと考えられるスマートフォンの縦長の画面サイズを想定し、動画のサイズは縦横比(2:1)、大きさ(幅1400ピクセル、高さ2800ピクセル)とした。
- ② 実写動画とCG動画を見比べやすいように、これらがほぼ同じタイミングで同じ状態になるように再生速度を調整した2つの動画を、上下に並べて配置した。
- ③ 物体の動きのみを評価対象とするために動画をグレースケール化し、色情報を排除した。
- ④ 画像・動画を評価する機会が多いと考えられるカメラマン、デザイナー等広告従事者と一般消費者との違いを調べる設問を設けた。
- ⑤ 実写動画の動きに対してCG動画の動きが似ている度合(実写との類似度)を「まったく似ていない:1」から「たいへん似ている:5」の5段階で回答させる形式とした。
- ⑥ CG動画について気になる点や感想などを表記する自由記述欄を設けた。

設問画面例を図10に示す。



図10 設問画面

5. アンケート結果と考察

5.1 回答者の職種

回答者の属性を図11に示す。広告従事者の割合は27%だった。

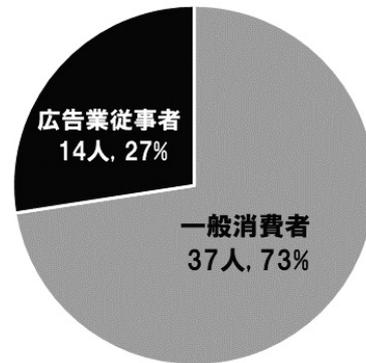


図11 職種割合

5.2 回答結果と考察

動き1の回答結果を図12に、動き2の回答結果を図13に示す。

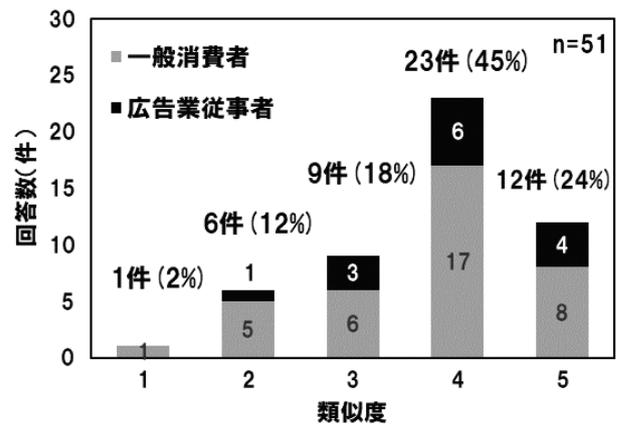


図12 動き1の回答結果

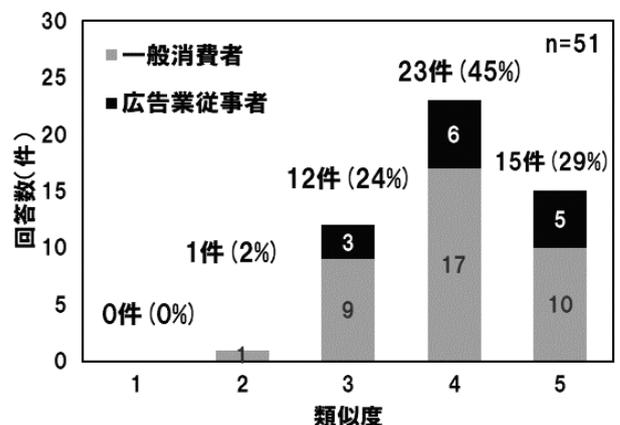


図13 動き2の回答結果

いずれの回答結果においても、一般消費者、広告業従事者の回答数を合計すると4点の回答数が最も多く、全回答数の45%だった。次いで5点の回答数が多く、全回答数のおおむね25～30%だった。1点の回答数が最も少なかった。

一般消費者、広告業従事者の平均点の結果を図14に示す。

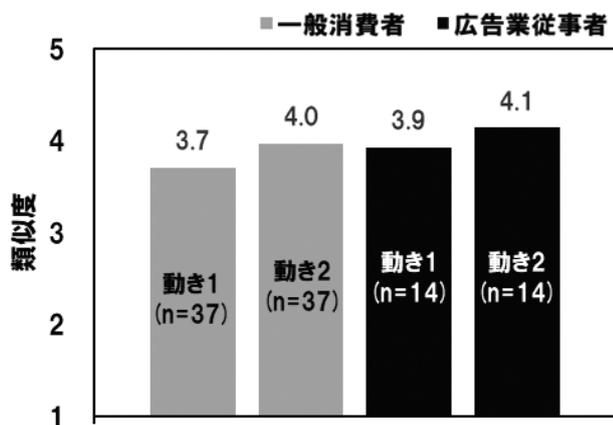


図14 平均点

一般消費者よりも広告業従事者の方が若干点数は高かったが、両者に大きな差はなく、おおむね4点だった。このことから、一般消費者、広告業従事者いずれもCG動画と実写動画との類似度はおおむね高いと評価した。したがって、評価用CG動画は比較的違和感が小さい動画だと言える。

5.3 自由記述の回答と考察

自由記述回答の件数は、動き1は48件、動き2は44件だった。

動き1についての自由記述回答には、

- ・実写動画に比べてCG動画の方が“破壊”の“勢い”が乏しいように感じる。(一般消費者)
- ・破片のスピードと方向が一定すぎる。(広告業従事者)

など、実写動画に比べてCG動画の方が動きの変化が小さいとの意見が複数あった。

動き2についての自由記述回答には、

- ・CG動画の方がねっとり感が少し足りない感じがした。(一般消費者)

- ・スプーンからこぼれる液体の太さがCG動画の方が細くさらさらして見える。(広告業従事者)

など実写動画に比べてCG動画の方の粘度が小さいとの意見が複数あった。

これらの点から、さらに実写動画との類似度を向上するには、破片の速度、回転、拡散範囲の変化量をより大きくする、粘度の設定値を若干大きくするなどが考えられる。

その他の要素に関する意見・感想として、

- ・クッキーの破片の動きについて、CG画像にはモーシ

ャンブラーがなく、高シャッター速度の撮影に見える。(一般消費者)

- ・ハチミツの動きについて、スプーンを入れるときについてくる気泡がないように見える。(一般消費者)

といった回答があった。

これらの点から、より実写動画との類似度を向上するには、モーシオンブラー(被写体のブレ)の量、液体内の気泡などについて検討する必要がある。

6. 研究成果がパラメーター調整作業に与える効果

開発したプログラムおよびプリセット(以下、開発物)がパラメーター調整作業に与える効果を確認するため、同作業量を表す指標として、Blender起動直後の状態からパラメーターを入力し、シミュレーション計算準備完了状態までに要したマウスクリック回数およびキーボード入力回数を、開発物使用時と不使用時について計測した。動き1,2のマウスクリックおよびキーボード入力の積算回数を図15に示す。

その結果、開発物使用時は不使用時よりも操作回数が50%～70%程度少ないことがわかった。また、クッキーの破片の寸法分布やハチミツの粘度など実物の物理量と動きの制御に重要なパラメーターとの関係が明らかになったことから、再現したい動きに必要なパラメーター調整の目安を立てやすくなった。こうした点から本研究成果はパラメーター調整作業効率化に一定の効果があると考えられる。

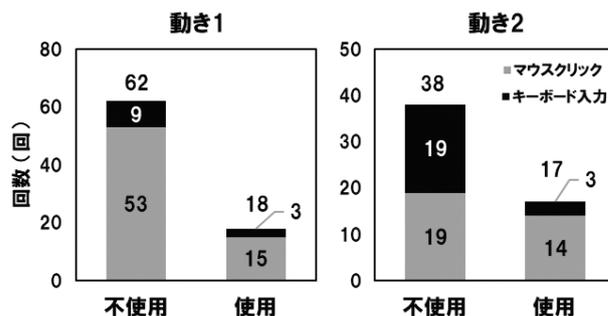


図15 パラメーター入力作業に要したマウスクリックおよびキーボード入力の積算回数

7. おわりに

本研究では、菓子の広告等で頻繁に用いられる、動き方の制御が難しい液体などの動き2種を対象に、これらを3DCGソフトBlenderの物理シミュレーション機能等で再現できるプログラムを開発し、パラメーターのプリセットを作成した。また、開発したプログラム、作成したプリセットを用いて制作したCGの動きの再現性を評価するWebアンケートを実施

した結果、実写との類似度（再現性）の平均が5点満点中約4点とおおむね高い評価を得た。

一方で、物体の動きについて、CG動画は実写と比べて動きの変化が小さいという意見が複数あった。また、動画のその他の要素としてモーションブラー（被写体のブレ）の量、液体内の気泡など、より再現性を向上するために解決すべき課題が明らかになった。これらについては、今後道内企業のニーズ等を考慮しながら解決に取り組む。

本研究で開発したプログラム、得られた知見等は、乳製品等菓子以外の食品や化粧品等美容商品などにも適用可能と考える。今後は本研究成果を利活用可能な道産商材等を探索しながら、本技術に関心のある道内企業等に普及を図る。

参考文献

- 1) 北海道庁経済部：企業経営者意識調査（R3年7-9月期），p.39, (2021)
- 2) NHK：中国 水産物輸入停止1年 ホタテの販路多角化する動き，2024-08-23, 北海道NEWS WEB, <https://www3.nhk.or.jp/sapporo-news/20240823/7000069302.html>, (参照2024-08-25)
- 3) 佐藤陽斗, 伊藤智也 他：VellumとFLIPを用いたパスタ料理のビジュアルシミュレーション手法の提案，映像情報メディア学会技術報告，Vol.46 No.10, pp.33-36, (2022)
- 4) Flip Fluids販売サイト，<https://blendermarket.com/products/flipfluids>, (参照2024-08-25)
- 5) Taka Tachibana 他：実写合成のためのBlender 3DCG制作ワークフロー，pp.6-8, (2022)
- 6) 東機産業(株)：食品粘度データ図，<https://tokisangyo.co.jp/guide03/>, (参照2024-08-25)

付録



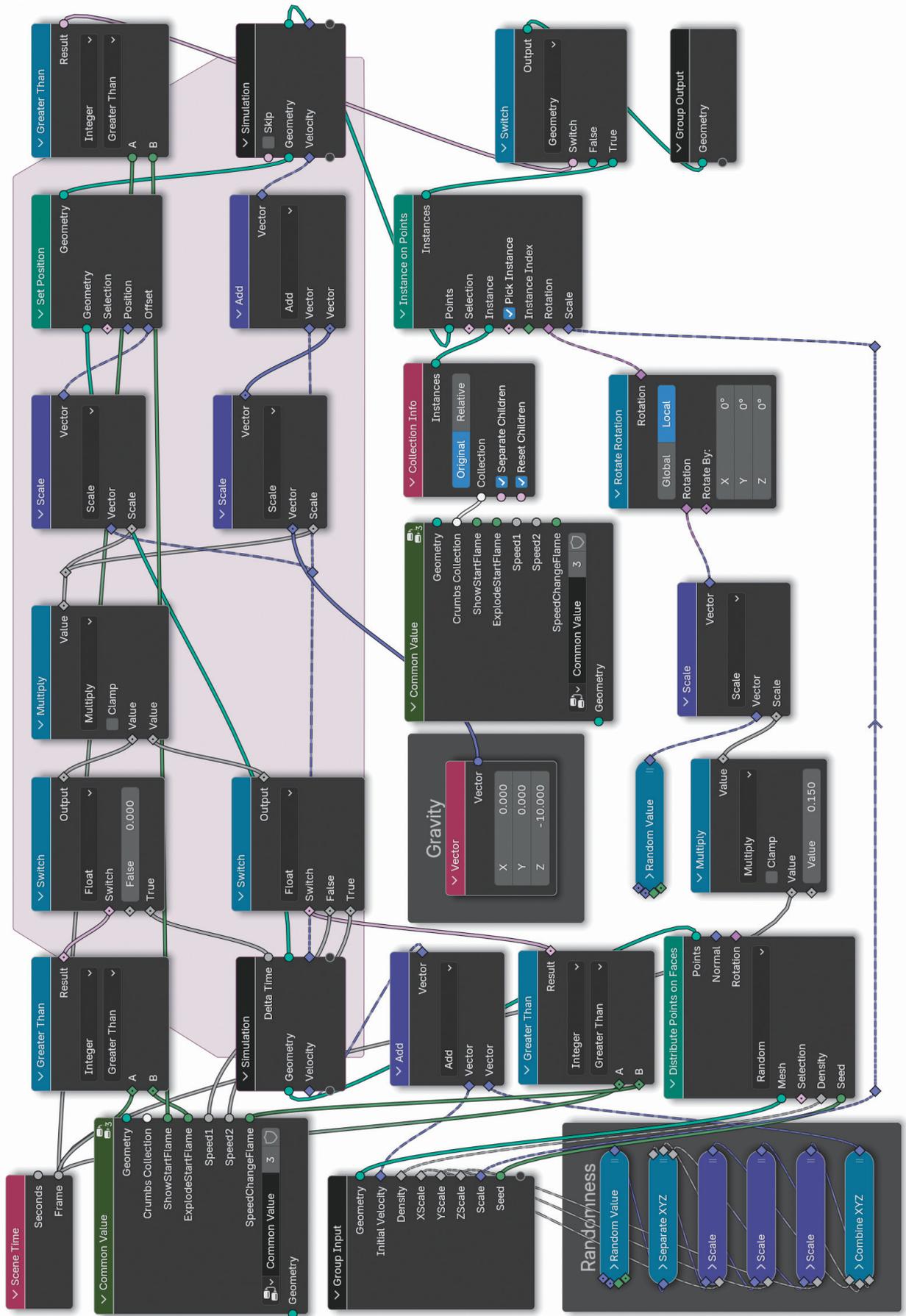
アンケート画面（職種についての質問）



アンケート画面（動き2の評価）



アンケート画面（表紙）



動き 1 を再現するノードプログラム

研究ノート

Research Note

静的解析技術を用いたIoTシステム検証作業の効率化

堀 武司, 本間 稔規

Improvement of IoT System Verification using Static Code Analyzer

Takeshi HORI, Toshinori HONMA

抄 録

IoTシステム利用の広がりに伴い、IoTソフトウェアに含まれるセキュリティ脆弱性の検出を効率的に行う技術が求められている。そこで、脆弱性の発生原因となる不正なメモリ操作などの欠陥を検出する、無償で利用可能なオープンソース静的解析ツールinfer, clang static analyzerの2ツールについて、欠陥検出能力を評価した。組み込みTCP/IPスタックTINETに対して両ツールを適用した結果、欠陥検出の偽陽性は少なかったが、既知脆弱性に対する検出率は約15%と低く、検出漏れがある事が判明した。また、IoTソフトウェア環境向けにinferの解析機能を強化する方法として、 μ ITRON OSのサービスクール検証機能を試作し、その性能を評価した。これらの結果にもとづき、従来のソフトウェアテスト作業の一部を静的解析ツールで置き換えて自動化する検証作業の方針を、作業ノウハウ等とともに手引きとしてまとめた。

キーワード：静的解析, セキュリティ脆弱性, infer, clang

1. はじめに

近年、IoT技術が社会に幅広く普及し社会インフラの一部として活用されている。それに伴い、これらを支えるIoTソフトウェアの信頼性やセキュリティ品質の確保が重要な課題となっている。我が国においても、2010年頃から経済産業省が「制御システムセキュリティ」を重要施策の一つとして位置づけており、IoT機器開発者向けのガイド文書¹⁾を刊行するなどセキュリティ品質確保を呼びかけている。

IoTシステムにはその特性上、(1) 製品開発者が想定しない形でシステム間の通信や相互作用が発生する、(2) 適切に保守管理されない状態の機器が長期間に渡って利用される場合がある、(3) 家電、自動車等の機器では身体や財産に物理的危険を及ぼす可能性がある、(4) 問題が発生してもユーザが気付きにくい、といった特有のセキュリティリスクが存在し、一般の情報システム以上にセキュリティ品質の向上が求められる。そのためIoT機器メーカーに対しては製品のセキュリティ脆弱性を確実に除去することが求められ、検証作業の

負担が増大している。

ソフトウェアのセキュリティ脆弱性は様々な原因で発生しうるが、米国の情報セキュリティ関連団体MITREの調査²⁾では、その原因の半数近くはプログラム内で確保したメモリ領域の境界外での読み込み・書き込み、解放済みメモリ領域へのアクセス、演算結果の桁溢れなどといった、単純なソフトウェア欠陥（バグ）によって占められている。この種の欠陥を効率的に除去しセキュリティ脆弱性を未然に防止することが、IoTシステムにおけるセキュリティ品質向上のための重要な課題の一つである。

近年、ソフトウェア検証技術の分野では、プログラムのソースコードを対象として数理的技法を応用したツールによって機械的に検査し、そこに含まれる欠陥を自動的に検出する静的解析技術が注目されている。静的解析ツールはソースコードのみを検査対象とするため発見できる欠陥の種別には制約があるが、セキュリティ脆弱性の原因となる境界外メモリアクセス等の欠陥検出に適しており、かつ検査作業がツールにより自動化されているため作業工数の削減が可能である。

事業名：経常研究

課題名：静的解析技術を用いたIoTシステム検証作業の効率化に関する研究（令和4～5年度）

産業界でも、自動車や航空宇宙など特に高信頼性が求められる分野では静的解析ツールの普及が進んでおり様々な商用製品が活用されている。しかし、これらの商用ツールはいずれも非常に高価（年額で数百万円）であり、中小ソフトウェア企業が導入することは困難である。一方で、大学等での研究成果を基盤としてオープンソースソフトウェアとして公開されている静的解析ツールもいくつか存在している。そこで本研究では、無償で利用可能なオープンソース静的解析ツールを導入、活用することで、中小ソフトウェア企業におけるIoTシステム検証作業を効率化するための方策について検討した。

2. 無償の静的解析ツールの調査と選定

オープンソースソフトウェアとして無償配布されている静的解析ツールには様々な製品が存在し、機能や性能もそれぞれ異なっている。最初に、本研究で調査対象とする静的解析ツールの候補を次に示す基準に沿って選定した。

1) C言語プログラムの解析に対応すること。

組込みIoTシステム開発ではC言語が用いられる場合が多い。またC言語はポインタを用いたメモリ操作の自由度が高い一方、危険な処理も記述できるため静的解析での検証が有用である。

2) 解析作業に人手を介さない、完全な自動解析型ツールであること。

静的解析ツールの一部には対話的な検証作業を伴うタイプ（Frama-C, Verifastなど）もあり検証能力は高いが、人間の作業工数が発生するため効率化には適さない。

3) ツール自体の開発・保守が継続していること。

オープンソースソフトウェアは少数のボランティアで開発される製品も多く、開発・保守活動が中断してしまうリスクがある。そのため開発元の組織体制が安定している製品を選択する。

上記基準に従って検討した結果、infer、及びclang static analyzerの二つのツールを調査対象として選定した。

2.1 infer

infer³⁾は、Meta社を中心に開発が進められている静的解析ツールであり、University College London等の研究者が設立したスタートアップ企業Monoidics社で開発された後Facebook社（現Meta社）に買収され、2015年からオープンソースソフトウェアとして公開されている。Java, C, C++, 及びObjective-C言語で書かれたプログラムの解析に対応し、境界外メモリアクセス、メモリ等のリソース解放忘れ、並行実行における競合状態など、様々な種類の欠陥検出機能を備えている。

inferの特長は、プログラムの正しさに関する形式体系であるホーア論理を拡張した分離論理⁴⁾にもとづく解析により、ポインタ参照や動的メモリ処理に関する高い解析能力を有する点である。

inferのソースコードはオープンソースライセンスの一種であるMITライセンスで配布されており、商用利用も含め無償利用可能である。

2.2 clang static analyzer

clang static analyzer⁵⁾は、ソフトウェア業界で広く普及しているオープンソースのコンパイラ開発基盤のLLVM及びC/C++/Objective-C言語のコンパイラclangの一部として開発されている静的解析ツールである。clang本体と同じくC, C++, 及びObjective-C言語で書かれたプログラムに対する静的解析をサポートする。

clang static analyzerを含むLLVMプロジェクトの成果物はApache License 2.0で頒布されており、inferと同様に商用利用も含めて無償で利用可能である。

3. IoTソフトウェアへの適用による性能評価

オープンソース静的解析ツールの活用を検討するためには、これらのツールがIoTソフトウェアの検証作業においてどの程度の能力を有しているかを把握する必要がある。そこで、実際のオープンソースIoTソフトウェア製品に対してinfer, clang static analyzerの両ツールを適用し、その結果を分析することでツールの解析能力、特に脆弱性につながる欠陥の検出能力の評価を行った。

3.1 適用対象ソフトウェアTINET

ツール適用対象のIoTソフトウェアとして、TOPPERSプロジェクトから配布されているオープンソースのTCP/IPプロトコルスタック実装TINET⁶⁾を選定した。

TINETは μ ITRON TCP/IP API仕様に準拠したコンパクトなTCP/IP実装であり、組込み向けリアルタイムOS μ ITRONの一種であるTOPPERS/ASPカーネル上で動作する。TINETは2004年からオープンソースライセンス（TOPPERSライセンス及びBSDライセンス）で公開されており、国内の商用製品を含むIoTシステムでの利用実績がある。そのため、TINETのセキュリティ品質確保は重要な課題であり、TOPPERSプロジェクトでは2020年頃からTINETに含まれるセキュリティ脆弱性の発見と修正に関する活動を組織的に進めてきた。2024年時点の最新版であるTINET1.7では、利用者からの報告、ファジングテスト（大量のランダム入力データを与えて潜在的欠陥を発見する手法）等を用いた検査によって、メモリ境界違反などの脆弱性原因となりうる欠陥が27件発見されており、それぞれコード

の修正も行われている。

3.2 TINETへの静的解析ツール適用試験の結果

TINET1.7のソースコードに対してinfer及びclang static analyzerを適用した。両ツールから出力された欠陥レポートを、TINETソースコードの部位及び欠陥の種類別に集計した結果を表1に示す。

inferの欠陥レポートでは9種類、合計で90件の欠陥が検出された。欠陥の種類では、整数演算の桁溢れ、メモリ境界違反、NULLポインタ参照など多様な種類の欠陥が検出された。inferが得意とするメモリ解放漏れは未検出であるが、これはTINETのコードでは動的メモリ管理がほとんど用いられていないためである。また、欠陥の検出箇所は、TINETの中でもコードの複雑度が比較的高いnetinet6及びtcpモジュールにやや多く分布する傾向が見られた。

clang static analyzerの欠陥レポートでは、NULLポインタ参照2件、未使用代入5件の2種類、合計7件検出され、inferと比べてかなり少ない検出件数となった。また、inferで検出された整数桁溢れ、メモリ境界違反に関してはclangでは検出されなかった。整数桁溢れの未検出は、clangの解析機能の項目に含まれていないためと思われる。しかし、メモリ境界違反の検出についてはclangも対応しており、今回の試験で一件も検出されていない点には疑問が残る。ツール適用方法に不備があった可能性もあるが、詳細な原因は不明である。

3.3 偽陽性の分析

静的解析ツールは、実際には欠陥がない箇所を欠陥として検出（偽陽性）する場合がある。欠陥検出レポートに占める偽陽性の割合が極端に多い場合、人手による確認作業の工数

が増大し効率的な検証作業が困難となる。そこで、両ツールの検出結果に関して指摘箇所のコードレビューを行い、検出結果の妥当性を分析した。

inferの総検出項目は90件と多く全箇所のレビューは作業工数上困難であったため、特に重要な欠陥種別と考えられセキュリティ脆弱性と関連が深いメモリ境界違反、NULLポインタ参照、及び未使用代入の3種類（計9件）を調査対象とした。人手によるコードレビューを行った結果、inferが検出した9件すべてで欠陥レポートの内容に合致するコードの不備を発見した。

clang static analyzerによる検出項目は合計7件であるため、同様の確認作業を全件実施した。こちらについても、すべての検出箇所についてコードの不備が発見された。

これらの結果から、対象とする欠陥種別をセキュリティ上重要なものに絞り込んだ場合は偽陽性の影響はさほど大きくなく、inferによる検出結果は検証作業において有効に利用できると思われる。

3.4 既知脆弱性の検出

3.1節で述べたとおり、TINET1.7にはこれまでに27件の脆弱性が発見されている。今回の試験では脆弱性が修正される前のソースコードを用いているため、静的解析ツールによってこれらの既知脆弱性が発見されることが期待される。そこで既知脆弱性の情報と静的解析ツールの欠陥レポートの内容を比較し、ツールの欠陥検出能力の評価を行った。具体的な評価は次の手順で実施した。

- ① TINETの脆弱性報告データベースに含まれる項目、及びそれに関連するソースコード修正履歴の情報から、脆弱性が存在する場所と内容を確認する。

表1 TINET1.7に対する静的解析ツールの適用結果

モジュール名	問題点の種別									
	整数桁溢れ	メモリ境界違反	Nullポインタ参照	事前条件違反	未使用代入	Bad footprint	Cannot star	アサーション違反	Abduction case	計
Infer										
net	1	1	-	1	1	2	-	1	1	8
netdev	2	-	-	-	-	-	-	-	-	2
netinet	5	1	-	3	-	2	-	3	-	14
netinet6	9	1	-	9	-	10	2	3	4	38
tcp	14	-	1	3	4	1	4	-	1	28
計	31	3	1	16	5	15	6	7	6	90
Clang Static Analyzer										
netdev	-	-	-	-	1	-	-	-	-	1
netinet	-	-	1	-	-	-	-	-	-	1
tcp	-	-	1	-	4	-	-	-	-	5
計	-	-	2	-	5	-	-	-	-	7

```

h7ga40 commented on Oct 10, 2021

IPv4のARPアドレスにIPv6サイズでコピーしている
Fuzzingにより検出

/* Ethernet ARP ヘッダを設定する。*/
memcpy(et_arph->thost, et_arph->shost, ETHER_ADDR_LEN);
memcpy(et_arph->shost, ifaddr->lladdr, ETHER_ADDR_LEN);
- 変更前 memcpy(et_arph->tproto, (uint8_t*)&et_arph->sproto, sizeof(T_IN_ADDR));
+ 変更後 memcpy(et_arph->tproto, (uint8_t*)&et_arph->sproto, IPV4_ADDR_LEN);
ahtonl(et_arph->sproto, taddr);
    
```

図1 検出に成功したTINET既知脆弱性の例

```

230
231 /* Ethernet ARP ヘッダを設定する。*/
232 memcpy(et_arph->thost, et_arph->shost, ETHER_ADDR_
233 memcpy(et_arph->shost, ifaddr->lladdr, ETHER_ADDR_
234 memcpy(et_arph->tproto, (uint8_t*)&et_arph->sproto
235 ahtonl(et_arph->sproto, taddr); I 13
236
237 /* Ethernet ARP ヘッダを設定する。*/
238 arph->opcode = htons(ARPOP_REPLY); I 12
239
240 /* Ethernet ヘッダを設定する。*/
    
```

図2 inferによる検出結果

- ② ツールが出力した欠陥レポートを探索し、ソースコード上の検出位置に近い項目を抽出する。
- ③ 両者の内容を比較し、ツールが検出した欠陥と既知脆弱性との関連の有無を評価する。

なお、この評価は3.2節の適用試験において、より多数の欠陥を検出したinferの欠陥検出結果を対象として実施した。

評価の結果、既知脆弱性とinferの欠陥レポートの間に直接的な対応関係が認められ検出成功と判断できた事例は、27件中4件（約15%）であった。検出成功と判断された既知脆弱性、及び対応するinferの検出結果の例をそれぞれ図1、2に示す。

図1の箇所ではARP（Address Resolution Protocol）通信の応答パケット構築処理を実装しており、IPv4アドレス（4オクテット長）をメモリ間でコピーする際に誤ってIPv6アドレスのメモリサイズ（16オクテット長）を指定しているため、コピー先で境界外メモリへの書き込みが発生する。これに対してinferは、境界外メモリ領域へのアクセスを示す“BUFFER_OVERRUN_L3”を報告しており、この欠陥を適切に検出できている。

検出できなかった残り23件の既知脆弱性も、その大半はメモリ境界違反に関するものである。入力値等の条件によって欠陥が顕在化するなど図1の事例より複雑であるが、静的解析による検出が期待できる事例である。

静的解析ツールは対象のすべての欠陥検出を保証するものではないが、既知脆弱性に対する検出率15%は高い検出性能とは言えず、inferによる静的解析結果にはかなりの比率で

見落としがあることを確認した。

inferの検出性能が十分に発揮できていない原因の一つとして今回対象としたTINETのコードの特殊性が挙げられる。TINETでの通信プロトコルの実装では、メモリ上に展開された通信パケットのデータ列を扱うために、通常のプログラムでは推奨されない低水準の危険なメモリ操作を多用している。例えば、パケットを格納するメモリ領域中のEthernetヘッダやIPヘッダの先頭アドレスを取り出し、ヘッダのデータ構造を表す構造体へのポインタに型変換してアクセスする処理が頻繁に用いられている。このようなスタイルの小さなテストコードを作成して試験したところ、inferのメモリ境界違反の検出が正常に機能しない場合があった。

これ以外にも構造体内部のメンバに関するメモリ境界検査、大域変数が関係する処理など、いくつかのパターンでinferが検出失敗することを確認した。

4. IoTシステム向けのツール機能の拡張

infer等のオープンソース静的解析ツールの多くは、Unix、Windows等の汎用OSや、近年市場拡大が著しいスマートフォン向けソフトウェア環境（iOS、Android等）向けに書かれたプログラムの解析を前提に開発されている。これらの環境向けの静的解析では、プログラム自体に含まれる欠陥の検査に加えて、OS機能を利用するためのサービスコールや標準ライブラリの呼び出しの妥当性に関する検査が行われる。

一方、IoTシステムでは小型化、省電力性、及びコストなどの面から一般的に用いられる汎用OSではなく、特殊な組込み向けOS、ミドルウェア、ライブラリ等が用いられる場合が多い。この場合でもプログラム自体に含まれる欠陥の検査は可能であるが、対象ソフトウェア環境に固有のライブラリやOSサービスコールに関する情報をツール側で認識していないため、それらに関連する検査は行われぬ。

組込みIoTシステムのソフトウェア環境は、対象ハードウェアや製品開発プロジェクトに応じて極めて多様な製品が用いられているため、ツール開発元による個別対応は期待できない。

そこで、組込みIoTソフトウェア環境向けに静的解析ツールの機能強化を行う方法について検討した。具体的には、静的解析ツールinferを対象として、国内の組込みシステム開発で比較的高いシェアを有するμITRON OSのサービスコールの解析機能を独自に追加するための試作を行った。

4.1 inferツール実装の調査と機能拡張方法の検討

inferには、第三者による様々な機能拡張手段が提供されている。inferの各種解析機能は個別にモジュール化されており、ユーザー自身で独自の解析機能を開発しツールに組み込

むことも可能であるが、infer本体の実装に用いられる関数型言語OCamlの知識が必要となるなど技術的難易度が高く、一般のツール利用者が独自に実施することは困難である。そのため、より簡便な方法として、OSサービスコール等の振る舞いを解析対象のプログラム言語を用いてモデル化する方法を用いた。

inferはUnix環境向けC言語プログラムに関して、次のような要素を考慮した解析に対応している。

- 標準Cライブラリ
- ヒープメモリの確保、解放 (malloc, free等)
- 主要なUNIXサービスコール
- pthread API

これらの解析機能は、inferツールの内部に直接実装するのではなく、解析対象プログラムと同じC言語で記述されたモデルを用意することで実現されている。

図3は、標準Cライブラリに含まれるmemcpy関数のモデル記述を抜き出したものである。memcpy関数の振る舞いは、メモリ領域s2からs1へ長さnのデータをコピーするものであるが、このモデルはプログラムとしてのデータコピー操作を記述したのではない。その代わりに、memcpy関数を呼び出す側の解析対象のプログラムが守るべき条件を仕様として記述している。

- ポインタs1, s2が、正しく割り当てられたメモリ領域を指していること
- 長さnが、s1, s2が指すメモリ領域の長さを超えないこと

モデル中に出現している__required_allocated_array, INFER_EXTRUDE_CONDITION等はinferが認識する特殊関数であり、解析エンジンとの間の情報の受け渡しに用いられる。

```
void* memcpy(void* s1, const void* s2, size_t n) {
    int size_s1;
    int size_s2;
    __require_allocated_array(s1);
    size_s1 = __get_array_length(s1);
    __require_allocated_array(s2);
    size_s2 = __get_array_length(s2);
    INFER_EXCLUDE_CONDITION((n < 0) || (n > size_s1) ||
(n > size_s2));
    return s1; }
```

図3 inferに含まれるmemcpy () 関数のモデル

4.2 μITRONサービスコール検証機能の試作

infer標準のモデル記述と同様の方法で、μITRON系の組込みOSであるTOPPERS/ASPカーネルのサービスコール呼

び出し検証用モデルの試作を行った。

事例としてloc_cpu(), unl_cpu() サービスコールのモデル化について説明する。これらのサービスコールはシステム状態の一つであるCPUロック状態への遷移及び解除を行う。システムがCPUロック状態である期間は一部のサービスコールの呼び出しが制限される。例えば図4ではCPUロック状態でディスパッチ禁止 dis_dsp()を利用しているが、これは不正な呼び出しであり、静的解析等で事前に検出し修正するのが望ましい。

```
void task1() {
    loc_cpu(); // CPU ロック状態に遷移
    dis_dsp(); // ディスパッチ禁止 (不正呼び出し)
    unl_cpu(); // CPU ロック状態の解除
```

図4 CPUロック状態からの不正サービスコール呼出し

```
typedef struct {
    int loc_cpu;
} itron_kernel_state_t;
static itron_kernel_state_t kernel = { 0 };

ER __unl_cpu(itron_kernel_state_t* s){
    s->loc_cpu = 0;
    return E_OK; }

#define unl_cpu() __unl_cpu(&kernel)

ER __loc_cpu(itron_kernel_state_t* s){
    s->loc_cpu = 1;
    return E_OK; }

#define loc_cpu() __loc_cpu(&kernel)

ER __dis_dsp(itron_kernel_state_t* s){
    INFER_EXCLUDE_CONDITION_MSG
    (((s)->loc_cpu==1),
    "dis_dsp() is called on cpu-lock state.");
    ER ret = __infer_nondet_int();
    if (ret) {
        __infer_itron_ena_dsp_state = 0;
        return E_OK; } }
```

図5 loc_cpuサービスコールのモデル化

このような「ある状態において、何らかの操作を禁止する」というパターンの記述はinfer標準モデルでも用いられており、それらを参考として図5のモデル化を行った。

システム状態を表現するためのデータ型である__infer_itron_kernel_state_tと、これを保持するグローバル変数を定義した。loc_cpu, unl_cpuのモデル内では、それぞれCPUロック状態を示すフラグの設定、解除の処理を記述した。CPUロック状態での呼び出しが禁止されるdis_dspの内部では、システム状態フラグを検査しCPUロック状態であればinferの特殊関数を用いて欠陥レポートを出力する。なお、最初の試作ではloc_cpu等の内部でシステム状態を保持するグローバル変数の状態を直接書き換えるモデル記述をしていたが、inferの検証機能が正しく機能しなかったため、サービスコールの引数として変数への参照を明示的に渡す形に変更している。実際のサービスコールにはこの引数は存在しないため、C言語のマクロ定義を用いて引数を隠蔽し、本来のμITRONサービスコールの表記と一致させている。

作成したモデルを用いて図4のサンプルプログラムの検証を行った結果を図6に示す。検出箇所の行番号にずれが生じるなどの細かな不備があるものの、CPUロック状態からのdis_dspサービスコール呼出しを不正操作として検出できていることがわかる。

この方法を用いることで、μITRON以外の様々な組み込みOS、例えばFreeRTOSなどへの対応も実現できる。また、各種ミドルウェア、ライブラリ等についても、ツール利用者自身によるモデル化が比較的容易に可能となる。

```

Found 1 source file to analyze in
/home/hori/Projects/sa-samples/model/
Test2.c:94 error: Dis Dsp is called on cpu-lock state.
  Detected at line 89, column 1.
91. loc_cpu(); // CPU ロック状態に遷移
92. dis_dsp(); // ディスパッチ禁止 (不正呼び出し)
93. unl_cpu(); // CPU ロック状態を解除
94. }

```

図6 不正なサービスコール呼び出しの検出例

5. IoTシステム検証効率化の活用方策

2～4章で得られた知見や成果物を活用して、中小企業が行うIoTシステム開発の検証作業にオープンソース静的解析ツールを導入し効率化を図るための方策を検討した。

5.1 静的解析ツールによるテスト作業の置き換え

静的解析の作業はツールによって自動的に実行されるため、ツール適用の準備ができた後は、人が関与する作業工数はほぼゼロである。従来のテスト工程の一部を静的解析で置き換えることができれば大幅な工数削減となるため、具体的

なテスト作業の置き換え方針について検討した。

ソフトウェアテストには様々な技法が存在しているが、大まかに分類すると、仕様ベーステストと構造ベーステストに分けられる⁷⁾。

仕様ベーステストは、テスト対象の仕様にもとづいてテスト設計を行い、仕様に対して実装が合致していることを確認する。テスト対象プログラムの内部構造は考慮せずブラックボックスとして扱う場合が多い。

静的解析ツールは原則としてプログラムソースコードのみを対象として解析を行い、仕様の情報は扱わない。そのため、仕様ベーステストを代替する目的では利用できない。

構造ベーステストは、テスト対象のプログラムの内部構造に着目し、構造要素に関して漏れなくテストすることを目標としてテスト設計を行う。プログラムの実行フローの構造に着目する場合は、文網羅、分岐網羅などの基準にもとづいて、高い網羅率(カバレッジ)を目標としてテストケースを設計し実行する。この場合のテスト目的は、様々な実行条件の下でプログラムが正しく動作することと考えられるが、その中には、仕様との合致だけではなく、メモリ境界違反やNULL参照などの、プログラムとしての明らかな欠陥がないことの確認も含まれる。この部分は静的解析ツールの機能と共通であるため、ツールによる置き換え、自動化の対象となる。

静的解析ツールは原理上100%の欠陥検出を保証するものではないが、従来の構造ベーステストでも完全な欠陥検出ができない点は同じである。静的解析ツールの特性を把握し検出性能が十分に引き出された状態であれば、少数の有限なテストケースでテストを行うよりも静的解析の方が実質的な網羅度が高くなることも考えられる。

5.2 技術導入のための手引き

infer等のオープンソース静的解析ツールは大規模、複雑なソフトウェアであり、機能を理解し、使いこなすことは容易ではない。また、関連する技術情報等も不足しており、特に日本語で系統的にまとめられた情報は少ない。

そこで、道内中小企業への技術支援における活用を想定して、静的解析導入による検証作業効率化の方針、ツール活用のための技術ノウハウ等を手引きとして取りまとめた。手引きでは図7に示す作業効率化方針を提案し、その概要は以下のとおりである。

① 設計・実装工程

静的解析ツールが苦手とするパターンを把握し、解析しやすい形でプログラム設計を行う。危険なメモリ・ポインタ操作を最小限とする。関数、モジュールの規模を小さく保ち、複雑度を下げる。大域変数の利用を減らす。

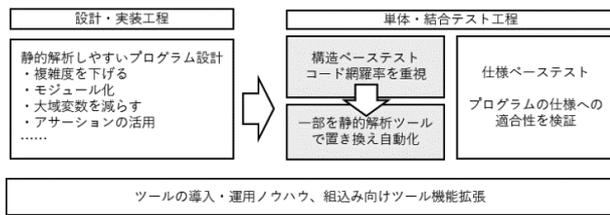


図7 提案する検証作業効率化方針の概要

② 単体・結合テスト工程

各種テスト作業のうち、構造ベーステストの一部を静的解析ツールで置き換え、自動化によりテスト工数の削減を図る。

③ ツールの導入・運用に関するノウハウ

ツールのインストール手順。IoTプロジェクトへのツール適用手順。欠陥レポートの解釈。特殊なOS及びソフトウェア環境に向けたツール機能の強化。その他。

6. まとめ

IoTソフトウェア脆弱性の発生原因となる不正なメモリ操作などの欠陥を効率的に検出するため、無償で利用可能なオープンソース静的解析ツールinfer及びclang static analyzerの能力評価を行った。組み込みTCP/IPスタックTINETに対して両ツールを適用した結果、欠陥検出の偽陽性は少ないことが確認できた。しかし、静的解析ツールが不得手とするプログラムコードを多く含むTINETの既知脆弱性の検出率は約15%と低い結果となり検出漏れがあることが判明した。また、IoTソフトウェア環境向けにinferの解析機

能を強化する方法を検討し、組み込みμITRON OSサービスコール検証用のモデルを試作した。これらの結果にもとづき、従来のテスト作業の一部を静的解析ツールで置き換え自動化する効率化方針を検討し、作業ノウハウ等とともに手引きとまとめた。

今後は、TINET以外のIoTソフトウェアを対象とした欠陥検出能力の評価を実施し、様々なプログラムコードに対する検出の成功、失敗の条件など、ツールの精密な挙動把握を行う。これらの結果にもとづき手引きの内容の改善を進み、企業等への技術支援への活用を予定している。

引用文献

- 1) IPA/SEC編：つながる世界の開発指針，情報処理推進機構，(2017)
- 2) MITRE：2020 CWE Top25 Most Dangerous Software Weaknesses, https://cwe.mitre.org/top25/archive/2020/2020_cwe_top25.html
- 3) <https://www.fbinfer.com/>
- 4) O’Hearn：“Separation logic”, Communications of the ACM, Volume62, Issue2, (2019)
- 5) <https://clang-analyzer.llvm.org/>
- 6) 阿部 司, 吉村 斎, 他：“組み込みシステム用TCP/IPプロトコルスタックの実装と評価”, 情報処理学会論文誌44(6) 1583-1592, (2003)
- 7) ISO/IEC 29119-4：2021 Software and systems engineering-Software testing, Part4：Test techniques

五感への感覚刺激提示技術の開発

栞野 晃希, 前田 大輔, 泉 巖, 川崎 佑太

Development of Technology for Presenting Sensory Stimuli to the Five Senses

Koki KUWANO, Daisuke MAEDA, Iwao IZUMI, Yuta KAWASAKI

抄 録

VR（仮想現実）空間と現実空間との複合現実環境を構築して機械設計業務や旅行の疑似体験に活用する技術が進展している。しかし、VR空間で扱われる感覚情報は主として視覚・聴覚であるため現実空間との間に感覚の差異が生じ、VR空間では十分な臨場感・操作感を得ることができないことが課題となっている。そこで、VR空間における臨場感や操作感を創出するため、視覚・聴覚を含めた人の五感に訴える感覚刺激の提示技術を開発した。具体的には、VR空間における手指による物体操作を対象として、手指に装着した振動装置により物体への接触や持ち上げ時の触覚および反力を疑似的に生成できる疑似力覚生成装置の開発と、送気装置（ブロウ）を用い香料を送気して匂いを提示する嗅覚刺激提示装置の開発を行った。

キーワード：五感, 感覚刺激, 触覚, 嗅覚, VR

1. はじめに

サイバーフィジカルシステム、デジタルツイン、VR（仮想現実）等の概念や技術が身近になってきている。私たちの身体が存在する現実空間からコンピュータ上に作られたVR空間にアクセスして分析やシミュレーションを行い、現実空間にフィードバックするこれらの技術は、既にロボットの遠隔作業や機械設計業務の効率化、また旅行の疑似体験などに活用されている。たとえばVRゴーグルは、サイバー空間に作った仮想的な環境や物体をゴーグルのディスプレイやヘッドフォンに提示することで操作者が現実空間に存在するような錯覚を抱かせ、適切な判断や操作を可能とする装置である。

VR空間において環境や物体を認識するために利用されている感覚は、五感のうち視覚と聴覚が主だったものである。そのため、五感を利用している我々にとって、環境や物体を認識するには、これらの感覚だけでは不十分であり、実体験との乖離やVR空間からフィードバックされた情報が十分に伝わらないといった課題がある¹⁾。

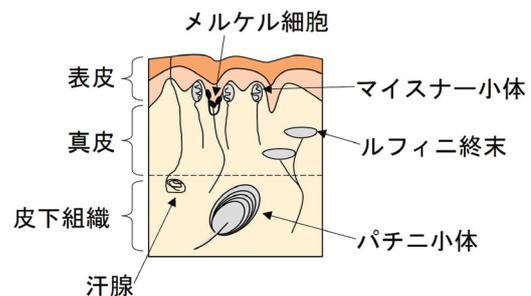
そこで、本研究では遠隔作業時のVR空間における臨場感や操作感を創出するため、視覚・聴覚以外の感覚である「触覚」と「嗅覚」に着目し、これらの感覚を利用するための刺激提示技術の開発に取り組んだ。

2. 感覚刺激提示技術の開発

2.1 触覚刺激提示技術

2.1.1 触覚刺激による疑似力覚生成装置の開発

触覚とは皮膚に物体が触れたときに生成される感覚であ



マイスナー小体：荷重変化に反応
数 Hz ~ 200 Hz

メルケル細胞：荷重強度に反応
DC~100Hz

パチニ小体：荷重の発生に反応
約 70 ~ 1000 Hz

ルフィニ終末：皮膚変形に反応
変位

図1 機械受容器と振動検出能力

事業名：経常研究

課題名：五感による擬似的な経験創出のための感覚刺激生成技術の開発

る。人の皮膚には振動や皮膚の伸展等に反応する、機械受容器と呼ばれる微小な神経の終末部がある。特に手足の指腹部や手のひら等のヒトの無毛部には、主要な機械受容器としてパチニ小体、マイスナー小体、メルケル細胞、ルフィニ終末の4種類が存在している²⁾。これらの機械受容器はそれぞれ、刺激への応答性が異なる(図1)。これらの応答は、刺激を受けた瞬間の応答(ダイナミック応答)と、刺激を受け続けている際の応答(スタティック応答)の2種類に分類される。さらに、これらの機械受容器に与えられる刺激の特性により、様々な錯覚が生じることが知られている。たとえば、一方に強い加速度と逆方向に弱い加速度をもつ非対称振動を受けた場合、振動しているにもかかわらず一方に牽引される感覚(疑似力覚)を誘発する^{3,4)}。

そこで、本研究では触覚刺激による力覚の生成とその明瞭度を調べるため、疑似力覚生成装置を開発した。非対称振動の発生に利用できる振動装置として、重りを回転運動、あるいは往復運動をさせる方式(図2左上)、金属板を変形させる圧電方式(図2右上)、スピーカの仕組みを使ったスピーカ方式(図2中央下)などの振動装置が市販されている。今回、皮膚の機械受容器の振動検出能力に幅広く対応可能で、強い振動を発生可能なスピーカ方式の振動装置(Vp2・㈱アクーヴ・ラボ製)(以下、振動スピーカ)を選定した。図3に開発した疑似力覚生成装置を示す。

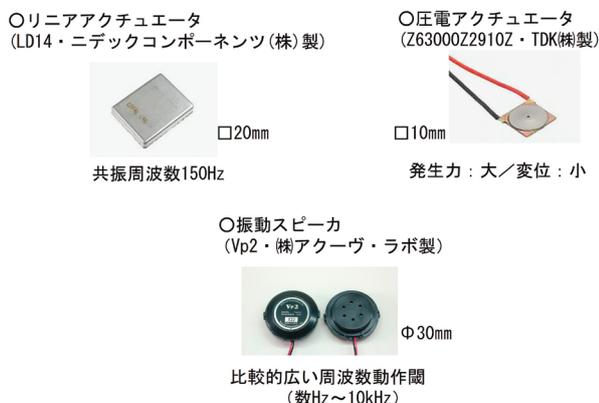


図2 振動装置と特性

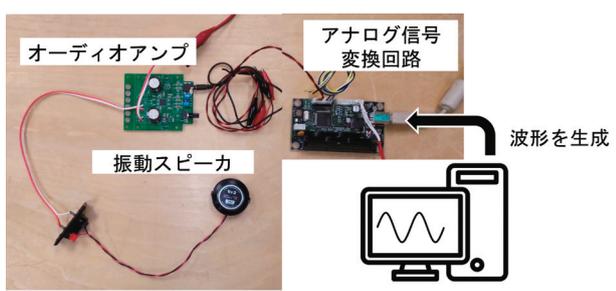


図3 疑似力覚生成装置

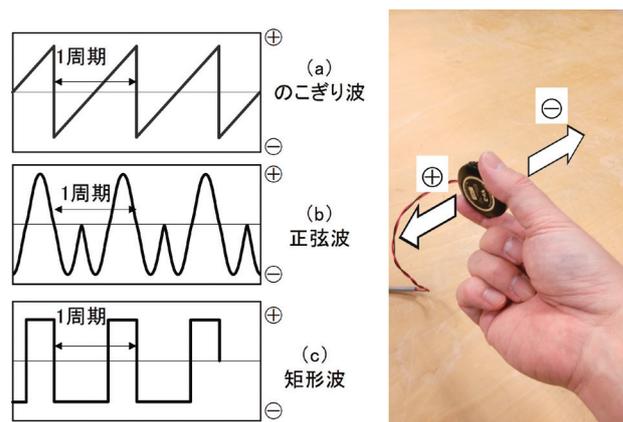


図4 非対称振動による疑似力覚の生成

2.1.2 疑似力覚の生成

振動波形として正負に非対称な形状を有する、(a) のこぎり波、(b) 正弦波の組み合わせ、(c) 矩形波などを選択し(図4左)、周波数やデューティ比を調整して力覚の生成と明瞭度を次のように調べた。

振動スピーカを手指で把持し、電圧振幅を一定とした(a)、(b)、(c)それぞれの波形ごとに、力覚の生成の有無と明瞭度の主観評価を行った。繰り返し周波数を20Hzから200Hzまで10Hz刻みで波形を提示し、さらに波形(c)ではデューティ比を0.6から0.9まで0.1刻みで提示した。その結果、すべての波形において繰り返し周波数が約60Hzで強く力覚を感じることがわかった。次に、繰り返し周波数を60Hzに固定し、力覚の明瞭度を各波形間での一対比較法で評価した。その結果、(a)のこぎり波で最も明瞭に力覚を感じることがわかった。

また、振動スピーカの把持方法、手指への装着方法による影響についても併せて検討した。その結果、図4右に示すように母指と示指(人差し指)や中指で把持した場合に明瞭であり、手掌や手背に配置した場合、力覚を感じることはなかった(図5)。力覚の生成方向は振動スピーカの振動方向であり、図4に示す波形の場合、+の方向に力覚が生じることが



図5 振動スピーカの把持、装着方法

わかった。このことについては、前述の機械受容器のうち、せん断変形に応答するルフィニ終末は指先に多く分布しているため、手指で把持した場合、振動方向がせん断変形を生じさせることから、力覚が生成したと考えられる。

2.2 嗅覚刺激提示技術

2.2.1 嗅覚刺激提示装置の開発

嗅覚とは鼻腔内の嗅覚受容体に匂い物質が付着することで生じる感覚である。匂い物質は揮発性の分子化合物であり、それを鼻腔に、ねらいとする濃度で届ける方法が嗅覚刺激提示技術である⁵⁾。ここで、匂い物質の揮発量を制御する方法が考えられるが、それには匂い物質を含む固体や液体を温度制御したり、また過熱対策を施すなど複雑な仕組みが必要となる。そこで、本研究では比較的容易に制御できる因子として、次の①、②に着目し、これらが嗅覚刺激濃度に与える影響を調べることにした。

- ①匂い物質（香料）を送気する量（以下、送気量）
- ②香料を放出する香料送気口と嗅覚受容体との距離（以下、香料距離）

ここで、②については、嗅覚受容体を「匂いセンサ」(VOC*ガスセンサ、BME688・ボッシュ社製)で代替した。この匂いセンサは濃度を電気抵抗値として出力し、濃度が高いほど、低い抵抗値を示す。ただし、一般に匂いセンサは濃度に対して出力値は非線形であり、かつ同じ濃度の匂いであっても温度や湿度、気圧、また分子量に近い物質の混入等により値が変わる。したがって、本研究では濃度の絶対値でなく、一定の温湿度（室温26℃、湿度65%）とした室内における上記因子による抵抗値に基づく相対的な影響を調べた。

構築した嗅覚刺激提示装置を図6に示す。香料を送気する送気装置（送気ブロウ）として、圧電式マイクロブロウ（MZB1001T02・村田製作所⁶⁾製）を使用し、送気する香料は市販されている香料成分（ひのきオイル・アロマセラピー⁷⁾製）を使用した。同香料0.1mLを脱脂綿に含浸させ、ブロウで送気し、送気量（L/分）はブロウ電圧によって制御した（送気量はブロウ電圧と線形関係）。香料距離は150mm、200mm、300mmとし、送気量はブロウ電圧を11.5V（0.60L/分）、20.0V（1.13L/分）に設定し、香料を送気した。なお、香料入りボトルの容量は有限なため、送気前にボトル内の匂

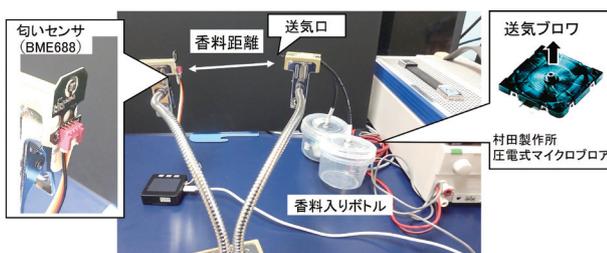


図6 嗅覚刺激提示装置

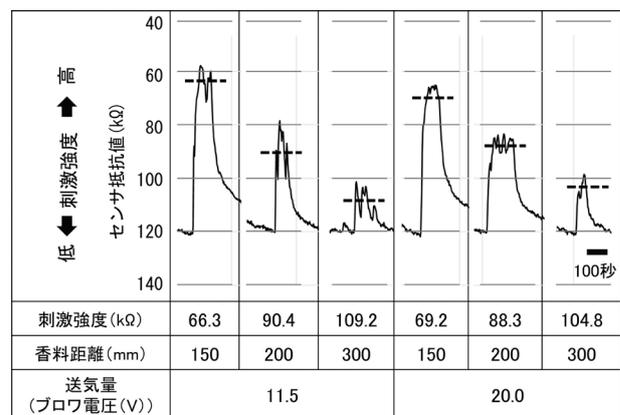
い濃度を一定値にし、さらにブロウの運転は送気を開始して匂いセンサの値が定常値と確認できた時点で停止しデータを取得した。

2.2.2 嗅覚刺激実験結果

実験結果を表1に示す。図の縦軸（センサ抵抗値：kΩ）は香料による嗅覚刺激濃度を表し、濃度が高いほど抵抗値は低下する。ブロウ電圧が11.5Vの場合、香料距離が大きくなるほど、匂いセンサで計測された刺激濃度が低下することがわかる。この傾向はブロウ電圧を20.0Vとした場合も同様であった。距離が大きくなるほど、香料成分が拡散することで、刺激濃度が低下すると思われる。一方、香料距離を150mmとし、ブロウ電圧を11.5Vと20.0Vとした場合の刺激濃度は大きく変わらないことがわかる。このことは、香料距離を200mm、300mmとした場合も同様であった。この結果から、本装置のような一定濃度の匂い物質を貯留し、ブロウ等で送気する方法の場合、嗅覚刺激濃度は送気量の影響を受けないこと（送気量では制御できないこと）、また香料距離に大きく影響を受けることがわかった。

(※VOC：揮発性有機化合物。植物由来の香気成分に含まれる。)

表1 嗅覚刺激強度の測定結果

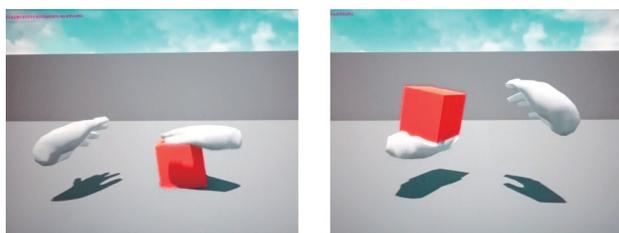


3. VR空間内の物体操作への適用

VR空間内に配置した3D物体の操作を対象とし、開発した感覚刺激提示技術の有効性を確認する実験を行った。図7に構築したシステムの外観を示す。VR空間内に操作対象となる立方体をUnreal Engine (Epic Games社製)で作成し、これをトラッキング装置 (LeapMotion・LeapMotion社製)で取り込んだ手指の動きに追従する手指モデルで操作する。このとき触覚刺激を提示し、立方体の操作感覚を評定した。操作は「接触」、「押しつけ」、「持ち上げ」とした(図8)。2.1.1項で説明した実験で、振動スピーカを母指と示指等の手指で把持した場合に力覚を感じやすいことを確認している。その



図7 仮想物体の操作感の評定



接触感と押しつけ

重さ

図8 仮想物体との接触、反力生成時の様子

操作種類	接触	押しつけ	持ち上げ
聴覚刺激 ：ホワイトノイズ	ON		
触覚刺激 ：振動	OFF		

図9 仮想物体操作時の刺激提示

ため、グローブの同様の位置にゴムベルトで振動スピーカを装着してウェアラブルな形態とした。図9のように各操作に同期させ、触覚刺激として振動スピーカから60Hzの「のこぎり波」を提示し疑似力覚を生成した場合と、比較対象として聴覚刺激としてスピーカからホワイトノイズを提示した場合のそれぞれの操作感覚を比較した。

その結果、「接触」においては、聴覚刺激および触覚刺激のいずれによっても接触感覚が得られた。ただし、「押しつけ」と「持ち上げ」においては、聴覚刺激のみでは「接触している」ことと感覚にとどまり、触覚刺激による疑似力覚および反力によって、重さのある立方体として認識でき、実際に近い操作感覚が得られることがわかった。

4. まとめ

遠隔作業の臨場感や操作感を創出するため、人の五感のうち、触覚と嗅覚に訴える感覚刺激の提示技術を開発した。VR（仮想現実）空間の手指による物体操作において、振動スピーカへ60Hzの「のこぎり波」を印加することで疑似的力覚と反力を生成し、より実際に近い操作感覚が得られることを確認した。また、送気ポンプ（ブロウ）を用いた香料送気による嗅覚刺激提示装置を開発し、嗅覚刺激濃度を制御するパラメータの一つとして、香料距離が重要であること確認した。

触覚刺激提示技術はVR空間内や遠隔からの作業において臨場感を向上させ、操作対象を的確に認識する技術として活用可能であり、また嗅覚刺激提示技術を組み合わせることで、バーチャル体験等のエンターテインメント分野を含め様々であり、場面や目的に応じて本研究成果を活用する予定である。

参考文献

- 1) 古賀広志 他：仮想現実空間と観光の課題：世界遺産三重津海軍所跡の事例，情報システム学会 第12回全国大会論文集，Vol.12，S2-A.3，(2016)
- 2) 中谷正史：皮膚を支配する機械受容器と指腹部の構造的な機能，システム／制御／情報，Vol.64，No.4，pp.126-130，(2020)
- 3) 雨宮智浩：触覚・身体感覚の錯覚を活用した感覚運動情報の提示技術，基礎心理学研究，Vol.36，No.1，pp.135-141，(2017)
- 4) 小村 啓 他：触覚ディスプレイの技術動向，トライボロジスト，Vol.69，No.8，pp.572-577，(2024)
- 5) 平澤佑啓 他：嗅覚と化学：匂いという感性，化学と教育，65巻10号，pp.492-493，(2017)

繊維補強無機ポリマーの基礎的検討

大市 貴志, 細川 真明, 瀬野修一郎, 吉田 昌充

Fundamental Study on Fiber-Reinforced Inorganic Polymers

Takashi OICHI, Masaaki HOSOKAWA, Shuichiro SENO, Masamitsu YOSHIDA

キーワード：無機ポリマー, 繊維補強, 曲げ特性, ひずみ

1. はじめに

熱硬化性樹脂は、材料配合や成型加工の多様性、優れた機械的特性などから樹脂系建築材料として様々な製品に利用されている。しかし、建築材料分野では火災安全上に問題があれば、他の性質が優れていても使用される用途が限定されるため、樹脂系建築材料の用途を拡大するには不燃化が求められている。

近年、メタカオリン等の非晶質アルミノシリケート材料と、水ガラス等のアルカリシリカ溶液の縮重合反応による無機ポリマー（ジオポリマーとも称される）が注目されている¹⁻⁴⁾。この材料は、硬化前は高粘性の液体状であるとともに、加熱すると縮重合反応により硬化することから、フェノール樹脂やエポキシ樹脂等の熱硬化性樹脂の代替材料としての可能性が考えられる。また、無機ポリマーの原料には可燃性材料が使われていないため不燃であることから、熱硬化性樹脂を無機ポリマーで代替した新しい不燃建築材料の可能性が期待される。

一方で、無機ポリマーの反応は水存在下で進行し、水の一部は無機ポリマー中に残存して空隙を形成するため、無機ポリマーが多孔質となり脆性的な破壊を生じてしまい、建築材料として利用するためにはその改良が求められる。同じように脆性破壊するセメント系材料は繊維材料で補強することにより、強度、ひずみ、靱性等が大きく改善されるが、補強材として用いる繊維の種類、繊維長など取り得る範囲は非常に広く、適切な材料選定が必要である⁵⁾。

本報告では、建築材料への無機ポリマーの適用を図るため、各種繊維材料を添加した無機ポリマーの機械的特性を測定し、繊維材料による無機ポリマーへの脆性改善効果を検証した。

2. 実験方法

2.1 使用材料と配合

試験に供した無機ポリマーの原料および配合条件を表1に示す。配合はメタカオリンを100とする重量比で示した。補強用の繊維材料は、材質や繊維長など多様な種類の繊維を用い、表2に示す。硬化前の無機ポリマーは強アルカリ性のため、無機繊維には耐アルカリガラス繊維およびバサルト繊維を用いた。合成繊維としては、繊維材料が親水的であるか疎水的であるかにより補強効果が異なると考えられるため、親水的なビニロン繊維およびナイロン繊維と疎水的なポリプロピレン繊維を用いた。また、天然繊維としてセルロース繊維を用いた。各種繊維材料は、重量比で無機ポリマーに対し0～10%の範囲で添加した。

表1 無機ポリマーの配合条件

材料名	種類	重量比
メタカオリン	PoleStar MK450	100.0
けい酸ナトリウム	JIS 3号 水ガラス	139.6
アルカリ水溶液	48% NaOH水溶液	23.6
シリカヒューム		16.6
水酸化カルシウム		6.5

2.2 無機ポリマー供試体の成型

アルカリシリカ溶液は、けい酸ナトリウムとアルカリ水溶液（48%NaOHaq）を混合後、安定化のため室温にて1週間以上放置して用いた。アルミノシリケート材料であるメタカオリン、シリカヒュームおよび水酸化カルシウムは、プラスチック製容器に入れ、ミックスローターで十分に攪拌混合し

事業名：経常研究

課題名：繊維複合化無機ポリマーに関する研究（R3～4年度）

表 2 実験に使用した補強繊維

種類	品名	メーカー	繊維長 (mm)	繊維径 (μm)	
無機繊維	耐アルカリガラス繊維	ACS13H-103	13		
	バサルト繊維	チョップドストランド	9		
合成繊維	ポリプロピレン繊維	TSファイバープラスタ	6,9,12		
	ナイロン繊維	タフバインダー	5,10,15		
	ビニロン繊維	クラテックRF400	(株)クラレ	30	660
		パワロンREC15		12	40
パワロンRF400.		6		27	
天然繊維	セルロース繊維	KCフロックW-50GK	日本製紙(株)		
		針葉樹晒クラフトパルプ	日本紙パルプ商事(株)		
		バージンパルプ	(株)ティーディーアイ	1	

た。これに調整したアルカリシリカ溶液および所定量の繊維材料を加え、高速攪拌脱泡機(マゼルスター KK-250S・倉敷紡績(株))を用いて3分間攪拌混合した。

攪拌混合した材料を厚さ3mm、長さ200mm、幅30mmのゴム製型枠内にゴム製ローラで均しながら充填し、型枠の上下面をプラスチックフィルムで覆い密閉状態とした。80℃の強制循環式恒温器内で48h加熱して硬化させたのち、室温にて1週間養生した。脱型した成形体側面のバリを耐水ペーパー#240で研磨したのち、恒温恒湿室内(23±2℃, 50±10%RH)で1週間以上放置して状態調節を行い、曲げ試験の供試体とした。

2.3 曲げ試験

機械的特性の評価として、JIS K 7171に準拠して万能材料試験機(オートグラフAG-100kNXplus・(株)島津製作所製)を使用して3点曲げ試験を行い、曲げ応力と曲げ弾性率を測定した。また、試験機のクロスヘッド移動量から算出した曲げひずみと曲げ応力の関係を曲げ応力-ひずみ線図として記録した。曲げ試験は標準雰囲気(23±2℃, 50±10%RH)で行い、試験速度は2mm/minとした。

3. 結果と考察

3.1 無機ポリマーの特性

図1に繊維を添加していない無機ポリマーの代表的な曲げ応力-ひずみ線図を示す。応力-ひずみ曲線は、荷重開始から破壊に至るまではほぼ線形性を保ち、最大応力に達した後は急激に応力が低下し、供試体は完全に二つに分断された。分断された供試体の破断面は滑らかであり、他にひび割れ等は見られず、最初に発生した亀裂が急激に進展し、供試体の破壊に至ったと思われる。曲げ破壊時の応力は10MPa、曲げ破壊時ひずみは0.13%であり、ほぼ変形せず脆性的な破壊を示す材料であった。

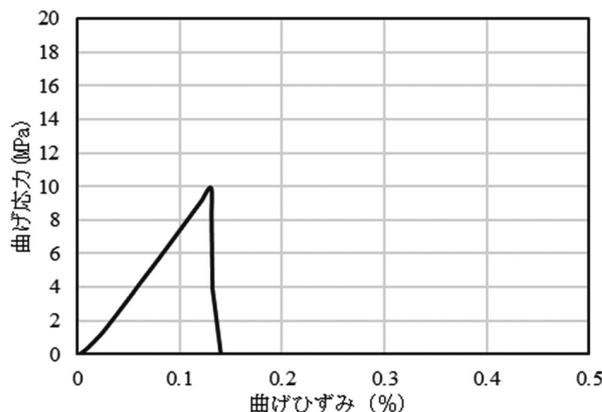


図1 無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図

3.2 無機繊維の添加効果

図2に耐アルカリ性ガラス繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。図中では、ガラス繊維の添加量を変えた供試体の結果をそれぞれ異なる線で示している。

応力-ひずみ曲線は、荷重開始から破壊近傍まで線形性を保っていた。ガラス繊維の添加量が増加するとグラフの最大点から得られる曲げ破壊時応力が向上するとともに、グラフの傾きから得られる曲げ弾性率も向上した。破壊時の応力は、基材の無機ポリマーと比較して繊維添加量5%で約1.3倍、10%で約1.5倍まで増加した。また、破壊時の曲げひずみも増

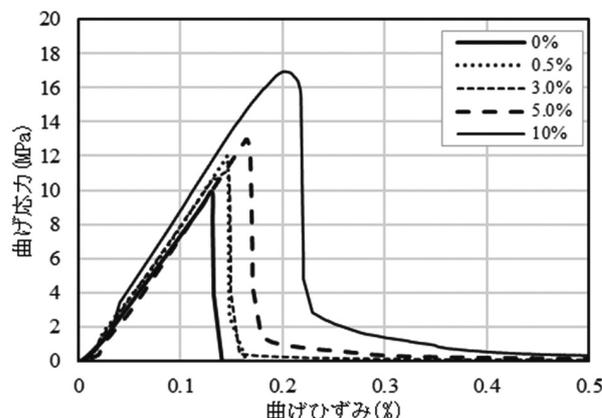


図2 耐アルカリ性ガラス繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図

加していることから、基材である無機ポリマーの初期ひび割れを繊維が架橋して応力負担することにより、破壊に至らず応力が向上したと思われ、繊維の補強効果が認められた。一方で、最大応力後は、急激に応力が低下するとともに、試験片が分断されるなど少ないひずみで急激な破壊が起きていた。分断された供試体の破面には、引き抜かれたガラス繊維が見られるとともに、破断したガラス繊維も確認され、繊維の破断により急激な破壊に至ったと思われる。

図3にバサルト繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。ガラス繊維添加と同様に、応力-ひずみ曲線は、荷重開始から破壊近傍まで線形性を保ち、繊維添加量が増加するとグラフの最大点から得られる曲げ破壊時応力が向上するとともに、グラフの傾きから得られる曲げ弾性率も向上した。その効果はガラス繊維よりも高く、曲げ破壊時応力は繊維添加量5%で約1.4倍、10%で約1.8倍となった。また、ガラス繊維と同様に最大応力後は急激に応力が低下し、試験片が分断された。分断された供試体の破断面には、破断した繊維が見られることから、繊維破断による急激な破壊が起きたと思われる。これらのことから、無機繊維の添加は曲げ応力に対する補強効果は認められるが、少ないひずみで発生する急激な破壊を防ぐことは難しいことが示された。

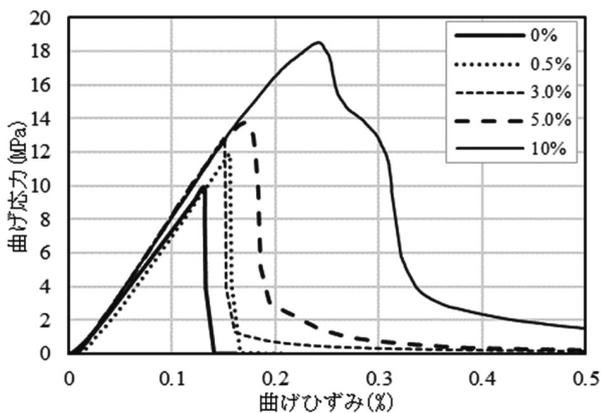


図3 バサルト繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図

3.3 合成繊維の添加効果

図4にポリプロピレン繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。この時のポリプロピレン繊維の繊維長は9mmとした。なお、(a)と(b)は横軸の値のみを変更した同一の測定データである。

(a)より、荷重開始からの線形弾性挙動後、基材の初期ひび割れによる最初の応力低下が見られた。その時の応力は、繊維添加量が多くなるほど小さくなり、繊維添加量3%で8MPa、5%で6.5MPaであった。なお、繊維添加量10%では、供試体を作製することができなかった。

ポリプロピレン繊維は基材との接着が弱く、初期ひび割れに対する補強効果は見られず、繊維を多く添加すると繊維が

基材の欠陥となり、初期ひび割れ時の応力が低下したと思われる。一方で、初期ひび割れ後も一定応力で曲げひずみが増加し、供試体の破断を防ぐ効果は得られた。

次に(b)より、繊維添加量3%以上では、初期ひび割れ後の急激な応力低下が抑えられ、ひずみ増加とともに応力の上昇、下降を繰り返しながら大きく変形した。供試体には多数のひび割れと破断面に露出した繊維が見られることから、基材のひび割れを繊維が架橋して応力を負担するとともに埋め込まれた多数の繊維が基材より引き抜かれる際の摩擦力が応力を負担しながら大きく曲げ変形したと思われる。

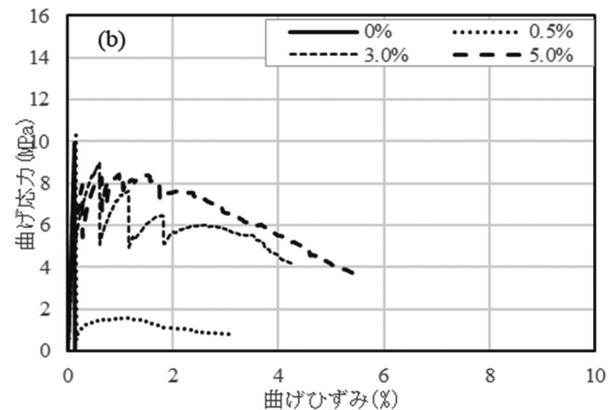
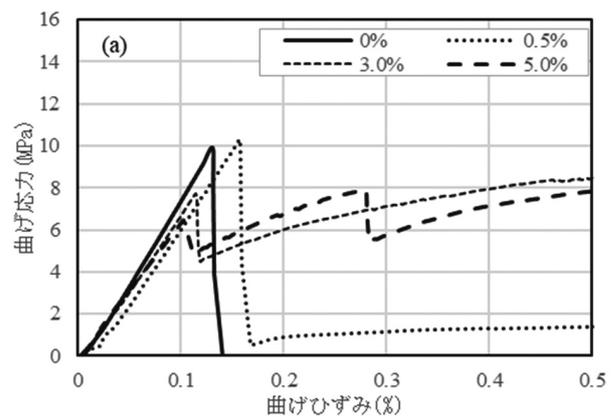


図4 ポリプロピレン繊維(繊維長9mm)を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図
(a) ひずみ0.5%まで (b) ひずみ10%まで

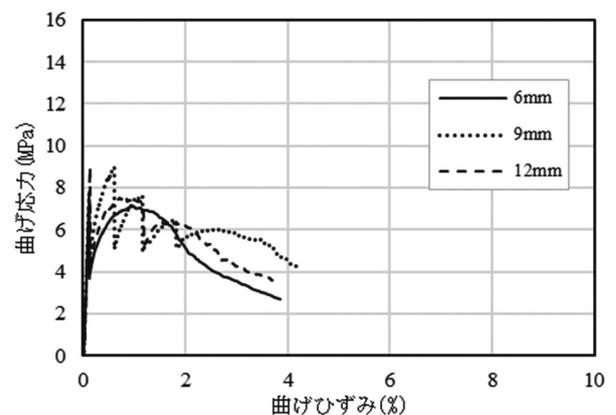


図5 繊維長の異なるポリプロピレン繊維(3%)を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図

図5に繊維長が6, 9, 12mmと異なるポリプロピレン繊維を3%添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。応力-ひずみ曲線は、応力の上下の振れ幅は異なるものの、ひずみ増加時の応力低下傾向がほぼ同様に推移し、繊維長による影響は見られなかった。繊維長が長いほど、基材からの繊維引き抜き抵抗が大きく曲げ応力が高くなると考えられるが、基材との付着が弱いポリプロピレン繊維では長さの影響は少ないことが示された。

図6にナイロン繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。この時のナイロン繊維の繊維長は10mmとした。(a)より、線形弾性挙動後の初期ひび割れ時の応力は、繊維添加量5%で8.5MPaとポリプロピレン繊維の6.5MPaより高く、いずれの繊維添加量においてもポリプロピレン繊維添加時より高くなっていた。(b)より、繊維添加量5%以上では、ひずみ増加とともに応力も増加し、初期ひび割れ時の応力より高い値を示した。また、曲げ試験後の供試体には、複数のひび割れが観察された。複数ひび割れが生じて大きく変形するとともに、応力が漸増する挙動を示すことなどナイロン繊維と無機ポリマーとの付着が良好であることが確認された。

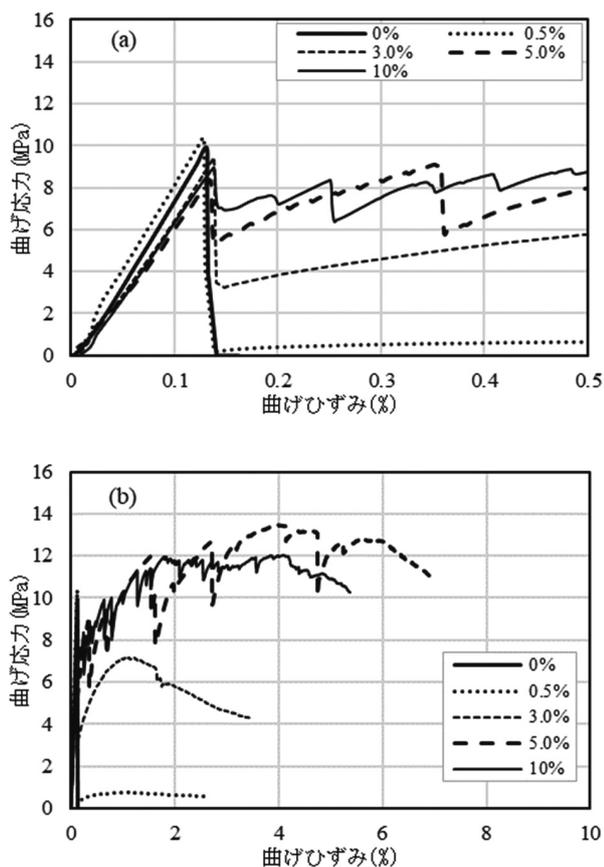


図6 ナイロン繊維（繊維長10mm）を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図
(a) ひずみ0.5%まで (b) ひずみ10%まで

図7に繊維長が5, 10, 15mmと異なるナイロン繊維を5%添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。繊維長5mmは、ひずみが1%を超えると応力が低下し始めた。繊維長10mmでは、ひずみが4%まで応力の上下を繰り返しながら上昇し、最大13MPaであった。繊維長15mmでは最大15MPaとなった。基材との付着力が良好なナイロン繊維では、繊維長が長いほど曲げ変形時の補強効果が良好であることが示された。

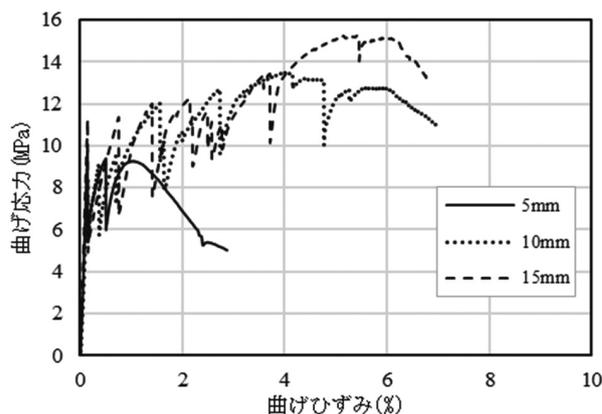


図7 繊維長の異なるナイロン繊維（5%）を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図

図8にビニロン繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。この時のビニロン繊維は、繊維長が12mmで図6のナイロン繊維とほぼ同じである。

(a)より、繊維添加量5%では、荷重開始直後の応力ひずみ曲線の傾斜が小さく、初期ひび割れによる明確な応力低下が見られなかった。その他の繊維添加量では、初期ひび割れに起因する応力低下が見られるものの、ナイロン繊維添加に比較し小さく抑えられていた。

(b)より、曲げひずみ増加時の応力は、繊維添加量0.5%では曲げひずみ2%に達すると供試体が破断した。添加量3%になると初期ひび割れ時の応力より上昇して15MPa近傍で推移し、曲げひずみが2%を超えると減少し始めた。繊維添加量5%では、応力が上下する振れ幅も小さくなり最大23MPaまで上昇し、曲げひずみが5%を超えると急激な減少となった。一方、10%添加では、最大応力は13MPaまでしか上がらず、曲げひずみが1%に届かないうちに応力が減少し始めた。ビニロン繊維は、基材との付着がナイロン繊維よりさらに良好と思われるが、曲げひずみ時の応力はナイロン繊維添加より高く推移するものの、応力レベルを維持しているひずみ量が少なく、終局ひずみにおける応力減少がより急激であることが示された。また、応力-ひずみ曲線は繊維添加量により異なる挙動を示すが、その影響もナイロン繊維添加より大きいことが確認された。

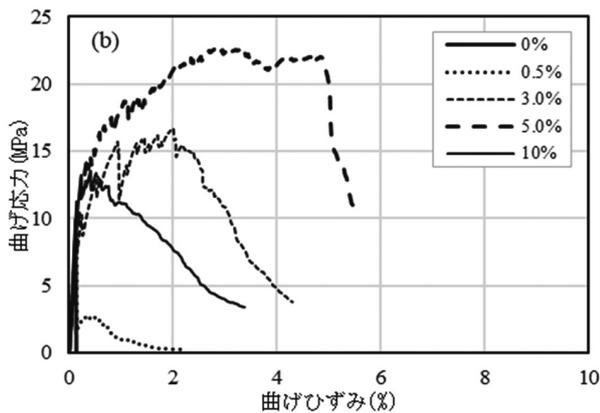
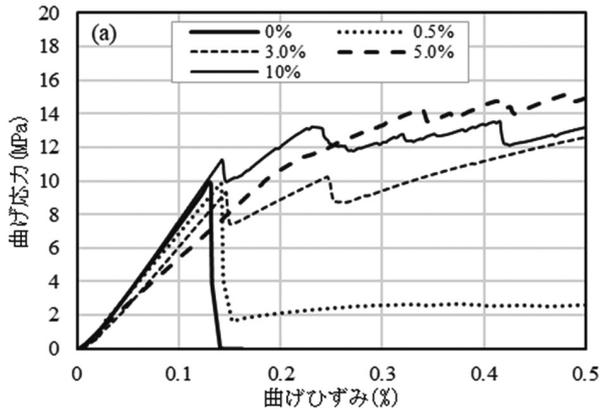


図8 ビニロン繊維（繊維長12mm）を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図
(a) ひずみ0.5%まで (b) ひずみ10%まで

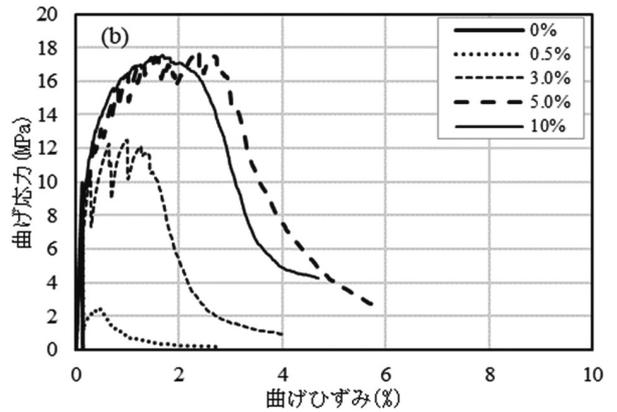
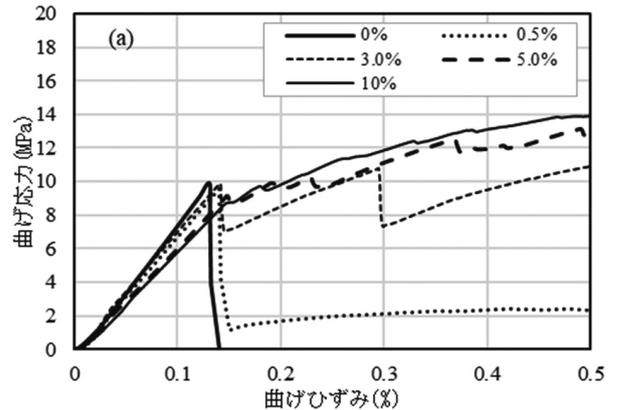


図9 ビニロン繊維（繊維長6mm）を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図
(a) ひずみ0.5%まで (b) ひずみ10%まで

図9に繊維長6mmのビニロン繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。

(a)より、繊維添加量3%では、初期ひび割れに起因する応力低下は、基材に等しい約10MPaであり、繊維添加量5%以上では、初期ひび割れによる応力低下が明確には見られなくなるなど、初期ひび割れに対する補強効果が見られた。

一方、(b)より、繊維添加量5%における最大曲げ応力は約18MPaであり、曲げひずみが2%を超えると応力が急な減少を示し、ビニロン繊維においても、繊維長が短いと少ないひずみで応力が低下することが確認された。

図10に繊維長30mmのビニロン繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。この時の繊維径は、他のビニロン繊維よりかなり太いものである。

繊維添加量3%以上でも、最大曲げ応力は10MPa程度と繊維添加による曲げ応力の向上は見られず、応力-ひずみ曲線はひずみ増大に伴って応力が漸減していた。添加した繊維が太く長い為、同じ添加量では繊維の本数が少なく、基材のひび割れを架橋する繊維が不足し、曲げ応力が増加しないものの、繊維が長い為基材から引き抜かれ難く、ひずみが増加しても曲げ応力が保たれ、供試体は大きなひずみでも分断し難かった。

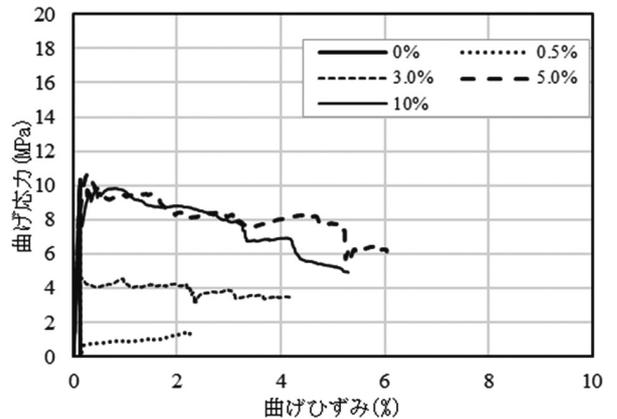


図10 ビニロン繊維（繊維長30mm）を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図

3.4 セルロース繊維の添加効果

図11にセルロース繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。この時のセルロース繊維は、樹脂充填材などに利用される粉末状のセルロースである。

応力-ひずみ曲線は、荷重開始から破壊に至るまでほぼ線形性を保っているが、繊維の添加とともに初期傾きが小さくなり曲げ弾性率が低下した。初期ひび割れによる明確な応力低下が見られず、破壊時の応力は、基材の無機ポリマーに比

較し繊維添加量5%で約1.3倍、10%では約1.2倍であった。また、いずれの繊維添加量においても最大応力に達した後は急激に応力が低下し、供試体は分断された。粉末状のセルロース繊維では、基材の初期ひび割れに対する補強効果はあるものの、繊維長が短いためひずみ増加への効果はほぼ得られなかった。

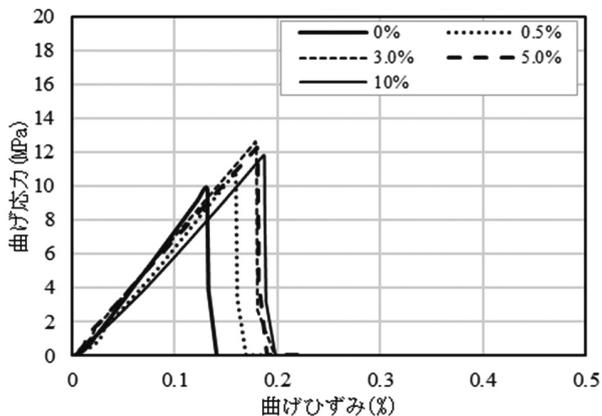


図11 セルロース繊維 (KC) を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図

図12に市販の建材原料用のセルロース繊維を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図を示す。この時のセルロース繊維の繊維長は、約1mmと無機繊維や合成繊維よりかなり短いものである。

(a) より、応力-ひずみ曲線は、粉末状のセルロース添加と同様に、繊維の添加とともに初期傾きが小さくなり曲げ弾性率が低下するとともに、初期ひび割れによる応力低下も明確には見られなくなった。(b) より、破壊時の応力は、基材の無機ポリマーに比較し繊維添加量5%で約1.3倍、10%では約1.7倍となり、曲げ応力に対する補強効果が見られた。一方、繊維添加量10%においても、ひずみが0.5%にも満たずに最大応力に達し、その後は急激に応力が低下し供試体は分断された。供試体の破断面には無数の引き抜かれたセルロース繊維が確認されたものの、繊維長が短いため急激な応力低下を防ぐことは難しいことが示された。

4. おわりに

本報告では、各種繊維を添加した無機ポリマーについて、曲げ試験によって力学的特性を測定し、各種繊維ごとの無機ポリマーへの複合効果を検証した。得られた知見を以下にまとめる。

- 無機ポリマーは、少ないひずみで初期ひび割れが発生するとともに急激に拡大し、供試体の分断を伴う破壊となった。
- 無機ポリマーに無機繊維を添加すると曲げ破壊応力は増加するものの、少ないひずみで供試体の分断を伴う破壊となった。
- 合成繊維添加では、繊維が供試体の分裂を防ぐ役割を果た

していた。

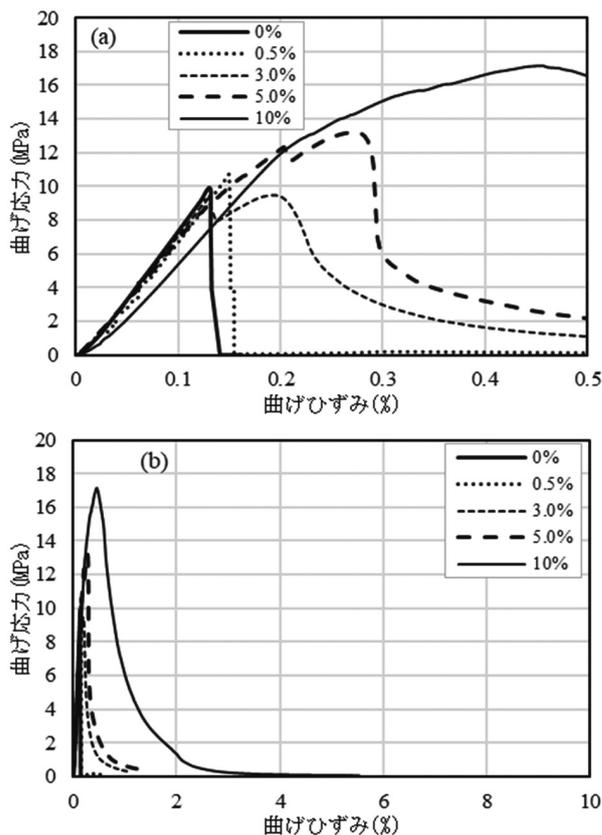


図12 セルロース繊維 (繊維長1mm) を添加した無機ポリマーの曲げ応力-ひずみ線図
(a) ひずみ0.5%まで (b) ひずみ10%まで

- 基材との付着が弱いポリプロピレン繊維では、初期ひび割れに対する補強効果は認められないものの、大きく曲げ変形した。
- 基材との付着力が良好なナイロン繊維では、初期ひび割れによる応力低下が抑制されたとともに、より靱性的な挙動を示した。また、繊維長が長いほど曲げ変形時の補強効果が良好であった。
- 基材との付着力がより良好なビニロン繊維では、曲げ応力はナイロン繊維添加より高く推移するものの、終局ひずみにおける応力減少がより急激であった。また、繊維添加量や繊維長等の影響が大きかった。
- セルロース繊維添加では、曲げ破壊応力は増加するものの、少ないひずみで供試体の分断を伴う破壊となった。

以上実験室レベルにおける各種繊維の特徴を示したが、現場レベルの評価には無機ポリマー中への繊維の分散性や作業性などの課題も合わせて検討しなければならない。また、それぞれの特徴を活かした繊維のハイブリッド化も検討の余地がある。

今後は、企業とともに繊維補強無機ポリマーを利用した建築材料の開発を進める予定である。

謝辞

本報告で使用したオートグラフAG-100kNXplus（㈱島津製作所製）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) Dabidovits, J, “Geopolymers : Inorganic Polymeric New Materials” : *J. Thermal Analysis*, 37, pp.1633-1656, (1991)
- 2) Duxson, et al. “The role of inorganic polymer technology in the development of ‘green concrete’” : *Cement and Concrete Research*, 37, pp.1590-1597, (2007)
- 3) 一宮一夫 他：建設分野へのジオポリマー技術の適用に関する研究委員会報告, コンクリート工学年次論文集, Vol39, No.1, (2017)
- 4) 一宮一夫 他：ジオポリマーの研究開発の現状, コンクリート工学, Vol55, No.2, pp131-137, (2017)
- 5) 菊田貴恒 他：繊維補強コンクリートの構成要素と材料の基本的性能, コンクリート工学, Vol.50, No.5, pp.414-417, (2012)

水熱処理法による多孔質炭素の低温合成

森 武士, 小川 雄太, 吉田誠一郎, 執行 達弘, 松嶋景一郎

Low-temperature Synthesis of Porous Carbons by Hydrothermal Treatment

Takeshi MORI, Yuta OGAWA, Seiichiro YOSHIDA,
Tatsuhiko SHIGYO, Keiichiro MATSUSHIMA

抄 録

脱炭素社会の実現に向け、産業界における二酸化炭素排出量の削減は喫緊の課題である。特に、多孔質炭素は樹脂などの原料を1,000℃近い高温で熱処理して製造されることから、その製造プロセスは大量のエネルギーを消費し、二酸化炭素を排出する。そのため、二酸化炭素の排出量を削減するためには、製造時の熱処理温度を低減する必要がある。こうした背景から、近年、多孔質炭素の原料を水とともに耐圧容器に入れて加熱することで、200℃程度の低温で多孔質炭素を製造できる水熱処理法が注目されている。しかし、得られる多孔質炭素の比表面積が低いため、その用途は限定されていた。そこで本研究では、高比表面積な樹脂のナノ粒子を合成できるゾルゲル法に注目し、この樹脂のナノ粒子を水熱処理することで、高比表面積な多孔質炭素を低温で製造することに成功した。

キーワード：脱炭素社会、二酸化炭素、多孔質炭素、水熱処理法、ゾルゲル法

1. はじめに

我が国は、温室効果ガスの排出量ゼロを目指すパリ協定に批准し、二酸化炭素の排出量を削減するための様々な法整備を進めてきた。北海道においても、「ゼロカーボン北海道推進計画」等により二酸化炭素の排出量を削減するため取り組みが進められていることから、本道においても脱炭素社会の実現に向けた技術導入が必要である。こうした二酸化炭素の排出量の大部分は産業界に由来し、特に化学工業、窯業・土石製品における二酸化炭素の排出量は約8,200トン/年と鉄鋼業に次いで多く、産業部門全体の23%を占めていることから、その削減が急務とされている¹⁾。化学工業の主要な製品である炭素・黒鉛製品および窯業・土石製品は、原料を高温で熱処理して製造されるので、これらの製造プロセスは大量のエネルギーを消費し二酸化炭素を排出する。そのため、二酸化炭素の排出量を削減するためには、製造時の熱処理温度を低減することが必要である。

これまで当場では、窯業製品の製造プロセスに関して、前述の高温熱処理を行わずにタイル状硬化体を作製できる「非焼成硬化技術」の研究を行ってきた^{2,3)}。一方、低温熱処理

で炭素・黒鉛製品を製造する技術に関しては着手していなかったことから、本研究ではその開発に取り組んだ。炭素・黒鉛製品の中でも、多孔質炭素は、材料内部に微細な空間（細孔）を持ち、吸着材や触媒等として広く利用されており、多様な展開先が考えられることから、本研究ではこの多孔質炭素を製造する技術開発に着手した。

通常、こうした多孔質炭素は、木材などの原料を無酸素雰囲気中で1,000℃近くまで加熱して製造されるため、この温度を低減する必要がある（図1）。こうした背景から、近年、多孔質炭素を低温で製造できる水熱処理法が注目されている⁴⁾。この手法では、原料を水とともに耐圧容器に入れて加



図1 一般的な多孔質炭素の製造方法

事業名：経常研究

課題名：水熱処理法による高表面積炭素材料の開発

熱することにより、原料の脱水反応などが促進され、200°C程度の低温でも多孔質炭素を合成できる。しかし、この手法で得られる多孔質炭素は比表面積が低いため、その用途は土壤改良剤などの付加価値の低いものに限定されていた。

そこで本研究では、高表面積な樹脂のナノ粒子を合成できる技術であるゾルゲル法⁵⁻⁷⁾に注目した。この手法では、①有機化合物（レゾルシノール、ホルムアルデヒド）が溶けた水溶液を調製、②水溶液にナトリウムイオンを添加、③ナトリウムイオンを核として、レゾルシノールとホルムアルデヒドを重合させる。その結果、粒子径が数十ナノメートルの微粒子を形成させることができる。本研究では、この樹脂のナノ粒子を水熱処理し、高比表面積な多孔質炭素を低温で製造することを試みた（図2）。

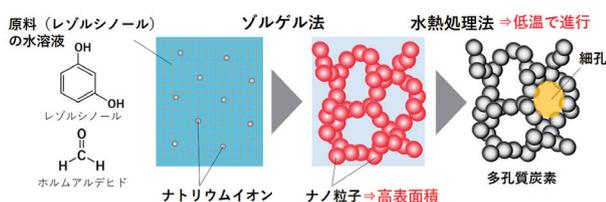


図2 ゾルゲル法と水熱処理法を組み合わせた多孔質炭素の低温合成方法

2. 実験方法

2.1. 調製方法

原料（レゾルシノール、フェノール、フロログルシノールのいずれか1種類）、37wt%ホルムアルデヒド水溶液、炭酸ナトリウム、蒸留水の入ったテフロン容器をSUS304鋼製ステンレスジャケットに入れ、ステンレスジャケットの上蓋をボルトで固定し密閉した。このステンレスジャケットを所定の温度（120-250°C）に設定したインキュベーターに入れて水熱処理を1-24h行った後、このステンレスジャケットを取り出して流水中で冷却し、常温になるまで放置した。その後、ステンレスジャケットおよびテフロン容器を開封してサンプルを取り出し、110-120°Cに設定したインキュベーターに入れて乾燥し、サンプルを得た。また、原料にグルコースおよびリグニンを用いたサンプルも調製した。このサンプルを調製する際は、原料と四ホウ酸ナトリウムの混合液を上記の条件で水熱処理および乾燥した。

2.2. 評価方法

得られたサンプルの微構造を、電界放出形走査電子顕微鏡（JSM-7001F, 日本電子(株)製）により観察した。また、サンプルの窒素吸脱着等温線（77K）を自動蒸気吸着量測定装置（BELSORP MAX, マイクロトラック・ベル(株)製）により測定した。測定の前に、サンプルを減圧条件（<0.1kPa）下、120°Cで6時間加熱し乾燥した。この測定で得られる窒素吸

脱着等温線の吸着枝をBrunauer-Emmett-Teller (BET) 法⁸⁾でフィッティングし、サンプルの比表面積を算出した（相対圧 $p/p_0=0.05-0.2$ ）。また、サンプルの細孔径分布は、窒素吸脱着等温線の吸着枝にDollimore-Heal (DH) 法⁹⁾を適用して算出した。

3. 結果・考察

代表的な条件（原料の種類：レゾルシノール、原料濃度：27wt%，処理時間：2h、処理温度：250°C）で製造した多孔質炭素の外観は図3（a）に示す通り茶色の粉末であった。この粉末の微構造を電子顕微鏡で観察したところ、直径数十ナノメートルの微粒子が凝集・結合している様子を確認でき（図3（b））、高比表面積を有していることが期待された。実際に窒素吸着法により比表面積を測定したところ、この粉末は従来の活性炭に匹敵する高比表面積（ $280\text{m}^2\text{g}^{-1}$ ）を有していた（表1、#1）。また、この多孔質炭素が有する細孔のサイズはおおむね1-200nmの間に分布しており、その平均値は約60nmであった（図3（c））。以上の結果から、この多孔質炭素は図3（d）に示すような微構造を有していると推測している。

次に、様々な製造条件（原料濃度、処理時間、処理温度、原料の種類）で試作した多孔質炭素の比表面積を測定し、これらの比較を行った（表1）。原料濃度の影響が最も大きいことが判明した。原料濃度が27wt%の場合、得られる多孔質炭素の比表面積は $280\text{m}^2\text{g}^{-1}$ であるが、これを2.7wt%まで減少させると比表面積は $12\text{m}^2\text{g}^{-1}$ に低下した（表1、#2）。一方、原料濃度を41wt%まで増加させたところ、比表面積は $190\text{m}^2\text{g}^{-1}$ に低下した（表1、#4）。この原因を考察するため、

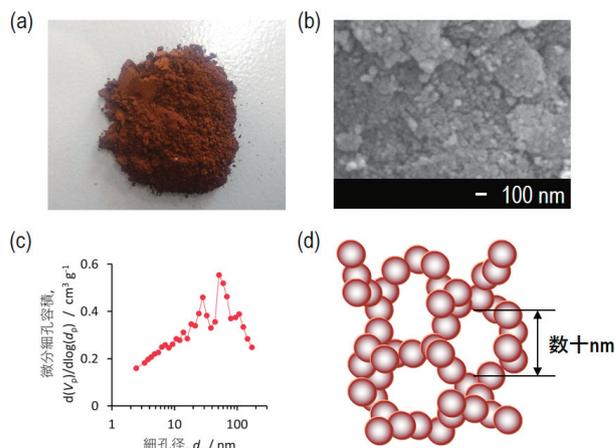


図3 本研究で開発した代表的な多孔質炭素（原料の種類：レゾルシノール、原料濃度：27wt%，処理時間：2h、処理温度：250°C）の外観（a）、電子顕微鏡像（b）、細孔径分布（c）、微構造のイメージ図（d）。

表1 様々な製造条件（原料の種類、原料の濃度、処理温度、処理時間）で作製した多孔質炭素の比表面積

#	原料の種類	製造条件			比表面積 [m ² g ⁻¹]
		原料の濃度 [wt%]	処理温度 [°C]	処理時間 [h]	
1	レゾルシノール	27	250	2	280
2	レゾルシノール	2.7	250	24	12
3	レゾルシノール	27	250	24	280
4	レゾルシノール	41	250	24	190
5	レゾルシノール	27	250	6	230
6	レゾルシノール	27	120	2	270
7	レゾルシノール	27	150	2	420
8	レゾルシノール	27	200	2	400
9	フェノール	23	250	24	1
10	フロログルシノール	30	250	24	6
11	リグニン	30	250	24	1
12	グルコース	30	250	24	130

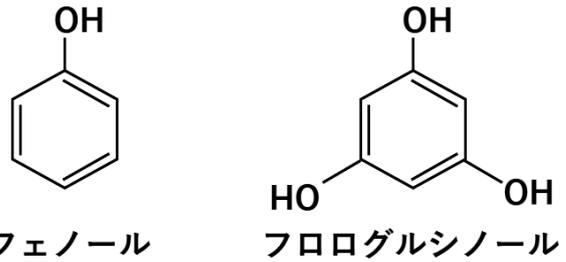


図5 フェノールとフロログルシノールの化学構造式

える影響を調べた。処理時間に関しては、比表面積に大きく影響しないことが判明し、処理時間を2時間まで低減できることがわかった（表1, #1, #3, #5）。また、処理温度に関しては、原料濃度と比較して比表面積に与える影響は小さいものの、これを最適化することにより比表面積を最大で420m²g⁻¹まで向上できることがわかった（表1, #6～#8）。この比表面積は、従来の製造法（樹脂等の原料を窒素等の不活性ガス流通下で熱処理する方法）において400°Cから600°Cで熱処理して得られる多孔質炭素の比表面積に相当する（温度400°C, 600°Cで熱処理して得られる多孔質炭素の比表面積はそれぞれ約200m²g⁻¹, 約600m²g⁻¹）¹⁰。このことから、従来法では400°Cから600°Cの熱処理で製造していた多孔質炭素を、本手法を用いることにより150°Cの低温熱処理で製造できることが明らかになった。

加えて、レゾルシノール以外の原料からも多孔質炭素を調製し、原料の化学構造が多孔質炭素の比表面積に与える影響についても検討した。まず、レゾルシノール（1, 3-ベンゼンジオール）と類似した構造を持つ化学物質であるフェノールおよびフロログルシノール（1, 3, 5-トリヒドロキシベンゼン）から多孔質炭素を製造した（図5）。フェノールを原料とした多孔質炭素の比表面積は1m²g⁻¹と非常に小さく（表1, #9）、ナノメートルサイズの細孔を有していなかった。この原因として、フェノールはレゾルシノールと比較して水に対する溶解度が小さいため、水溶液中に均一に分散しなかったことが考えられる。一方、フロログルシノールを原料とした多孔質炭素の比表面積も6m²g⁻¹と小さい（表1, #10）が、数十ナノメートル程度の細孔が僅かに存在することを確認している。

これまでに検討してきた原料はいずれもフェノールから誘導される化学物質であり、石油製品から合成されるものである。こうした化学物質は製造時に温室効果ガスを排出することから、カーボンフットプリントの観点からこうした原料ではなく、木材等のバイオマス由来の原料から多孔質炭素を製造することが望ましい。そこで、木材の主成分であるリグニン、および、同じく木材の主成分であるセルロースの基本構成単位であるグルコースを原料として多孔質炭素を試作した。リグニンを原料とした多孔質炭素の比表面積は1m²g⁻¹（表

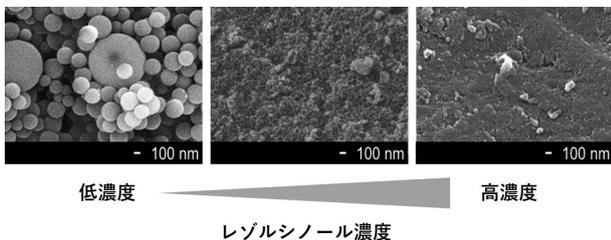


図4 様々な原料（レゾルシノール）濃度で調製した多孔質炭素の電子顕微鏡像

これらの多孔質炭素の微構造を電子顕微鏡により観察した（図4）。原料濃度2.7wt%で調製した多孔質炭素は、直径が数百ナノメートルから数マイクロメートルの微粒子で構成されており、これは原料濃度27wt%で調製した多孔質炭素と比較して一桁程度サイズが大きい。このことから、原料濃度が低い場合は微粒子が粗大化し、比表面積が低下したと考えられる。一方、原料濃度41wt%で調製した多孔質炭素は微細な微粒子で構成されているが、隣接している微粒子が互いに融着し、これらの間隙（細孔）の容積が減っている様子が確認された。この結果から、原料濃度は多孔質炭素の比表面積に影響するため、その制御は重要であることがわかった。

さらに、処理温度と処理時間が多孔質炭素の比表面積に与

1, #11) と非常に小さく、フェノールと同様に水に対する溶解性が低いことが原因で高比表面積な多孔質炭素を製造できなかったと考えられる。一方、水に溶解しやすいグルコースを原料とした多孔質炭素の比表面積は $130\text{m}^2\text{g}^{-1}$ と比較的高い(表1, #12)。このことから、本手法はこうした水溶性のバイオマス由来の原料から多孔質炭素を製造するのに有効であると考えられる。

4. おわりに

水熱処理法とゾルゲル法を組み合わせることで、高比表面積な多孔質炭素を低温での熱処理で製造する手法を確立した。製造条件の最適化を行ったところ、得られる多孔質炭素の比表面積は、原料濃度と水熱処理の温度により大きく変わることが判明した。これらの条件最適化を行った結果、低温(150°C)で熱処理しているにも関わらず、 $420\text{m}^2\text{g}^{-1}$ もの高い比表面積を持つ多孔質炭素を製造することができた。この比表面積は従来の高温熱処理(400°C から 600°C)で得られる多孔質炭素の比表面積に相当する。このことから、本手法を用いることで、多孔質炭素を従来法よりも低温で製造できることがわかった。さらに、本手法はバイオマス由来の原料であるグルコースから多孔質炭素を製造するのにも有効であることが明らかとなり、その汎用性を確認した。

従来法で製造される活性炭等の多孔質炭素は吸着材や触媒担体等に利用されており、本手法で得られた多孔質炭素も同等の比表面積を有していることから、こうした用途でも利用可能であることが期待される。加えて、本材料は従来の多孔質炭素と比較して酸性官能基を多く含んでいることから、従来の多孔質炭素にはない様々な機能を発現することも確認している。例えば、本材料が細菌の増殖を抑制する効果があることを見出しており¹¹⁾、抗菌資材として展開できる可能性がある。また、本材料には、木材の主成分であるセルロースの加水分解反応を促進する効果があることを見出しており、セルロースから化学製品を製造する技術であるバイオリファイナリーに展開できる可能性も見出している。このように、本材料は工業的に有用であることが判明している一方、技術移転に向けてはその量産方法の確立が課題であり、今後はその技術開発に取り組んでいきたい。

謝辞

本研究で使用した自動蒸気吸着量測定装置は、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。

参考文献

- 1) 環境省, 2020年度(令和2年度)の温室効果ガス排出量(確報値)について
- 2) 特許第5070529号
- 3) 執行達弘, 野村隆文: 技術移転フォーラム2016-工業試験場成果発表会-プログラム要旨集
- 4) M. Titirici編: Sustainable Carbon Materials from Hydrothermal Processes, WILEY, 357PP., (2013)
- 5) Richard W. Pekala: *Journal of Materials Science*, vol24No9, pp.3221-3227, (1989)
- 6) Takuji Yamamoto, Shin R. Mukai, et al.: *Carbon*, vol40No8, pp.1345-1351, (2002)
- 7) 特許第4728142号
- 8) Stephen Brunauer, Edward Teller, et al.: *Journal of the American Chemical Society*, vol60No2, pp.309-319, (1938)
- 9) David Dollimore, G. Roger Heal: *Journal of Colloid and Interface Science*, vol33No4, pp.508-519, (1970)
- 10) 稲田 幹: セラミックス, Vol.52 No.1, pp.35-38, (2017)
- 11) Takeshi Mori, Keiichiro Matsushima, et al.: *Life*, vol13No11, pp.2185-2194, (2023)

北海道立総合研究機構工業試験場報告
No.323 (2024)

発行 令和7年2月

発行所 地方独立行政法人 北海道立総合研究機構
産業技術環境研究本部
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