

高耐久性有機光応答分子材料の開発()

泊有佐^{*1}, 竹内正俊^{*1}, 阪本尚孝^{*2}, 入江正浩^{*3}

Development of Thermostable Photoresponsive Materials()

Arisa TOMARI^{*1}, Masatoshi TAKEUCHI^{*1}, Naotaka SAKAMOTO^{*1} and Masahiro IRIE^{*2}

我々は固体薄膜状態での光記録媒体の光応答効率の向上を目指し、単一成分でかつ溶媒を必要とせずに固体状態で光応答できる有機材料の設計・構築を行ってきた。本研究では、分子構造におけるアモルファス状態の安定性と融点の相関から、ジアリールエテンの三量体という分子設計及び合成を行い、高ガラス転移温度を実現することができた。この誘導体は、極めて安定なアモルファス状態を形成するばかりでなく著しく高い光異性化率およびモル吸光係数を有していることから、新規の光記録材料として期待される。

1 はじめに

高度情報化社会において記録媒体の高密度化、大容量化、高速化が求められており、従来の記録方式に代わる光による記録方式が期待されている。現在、光記録材料として有機光応答分子であるジアリールエテンは、熱安定性や繰り返し耐久性の優れていることから材料としての将来性が有望とされている。前報¹⁾では、固体薄膜状態での光記録媒体の光応答効率を向上させるためにアモルファス薄膜を形成できる非対称ジアリールエテン誘導体の分子設計・合成を報告した。しかし、得られた非対称型ジアリールエテンは、室温で安定なアモルファス状態である一方、ガラス転移温度が室温以下であるという欠点があった。そこで、アモルファス化に適した分子構造と高ガラス転移温度の関係について再検討し、アモルファス状態が安定でありかつ、室温以上のガラス転移温度をもつことを目的として分子設計・合成を試み、得られたジアリールエテン三量体について解析を行った。

2 分子設計

前報で合成した対称・非対称ジアリールエテン誘導体についてアモルファス薄膜の安定性とガラス転移温度の関係から、以下のようなことが明らかになった。

- (1) 分子サイズの大きなものほど安定なアモルファス薄膜を形成する。
- (2) 対称な分子では置換基の導入による分子サイズ

の増大からアモルファス化しやすくなるという傾向が認められたが、時間と共に結晶化がおり安定なアモルファス薄膜は得られなかった。

(3) 非対称な分子では最も分子サイズの小さい分子でも容易にアモルファス化できた。

(4) 非対称な分子は対称な分子と比べると分子間力が減少し融点 (T_m) が著しく低下する傾向がある。

以上のことから、高融点である条件は、分子構造において平面性があり、分子間力を維持しているもの、アモルファス状態が安定である条件は、分子サイズが大きく、分子の再配列を妨げる効果のあるものという分子設計指針に達した。指針に基づいて、トリフェニルアミンを中心とした平面構造を核とし(高融点化)、複数の分子構造をとり得る(アモルファス化)ためにジアリールエテンを三量体化にすることを検討することにした。

3 実験方法

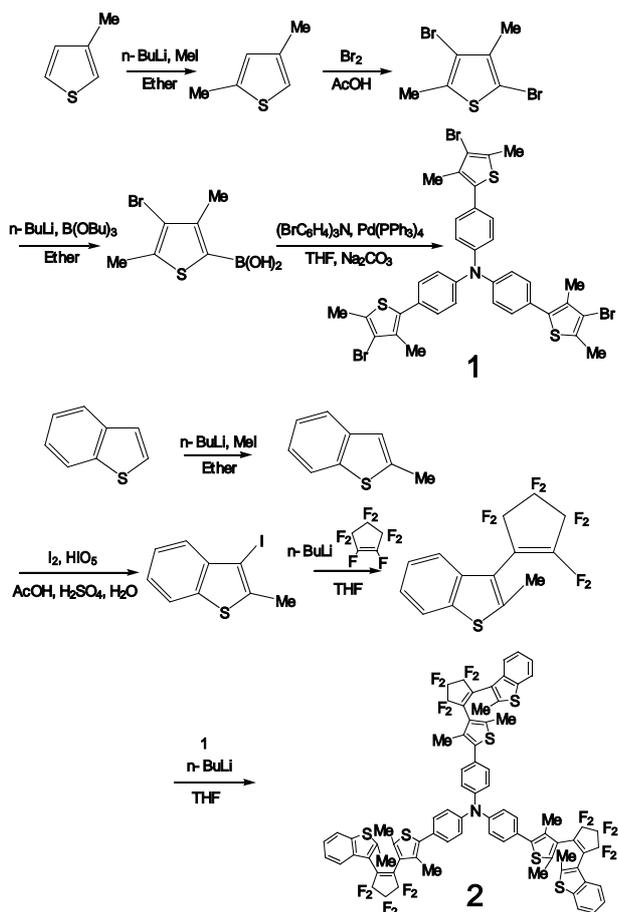
3-1 三量体ジアリールエテン誘導体の合成

以下のような反応スキームに従ってトリス-(4-{4-[3,3,4,4,5,5-ヘキサフルオロ-2-(2-メチル-ヘンソ[*b*]チオフェン-3-イル)-シクロペンテン-1-イル]-3,5-ジメチルチオフェン-2-イル}フェニル)アミン(以下、三量体ジアリールエテン)の合成を行った(Scheme 1)。目的物は、カラムクロマトグラフィーおよびHPLCによって精製し、¹H-NMR, TOF-MASSによって同定を行った。

*1 化学繊維研究所

*2 企画管理部

*3 九州大学



Scheme 1

3 - 2 三量体ジアリールエテン誘導体の薄膜化

合成した誘導体とジアリールエテンの基本分子とされている1,2-ビス(2-メチルペンゾ [b]チオフェン-3-イル)プロパルジエン(図1 - 以下、対称型3,) について、それぞれヘキサン溶液を調製し、空气中15 で石英基板に展開する方法(キャストニング)と及び誘導体を融点+10 で融解し、氷冷にて急冷する方法(クエンチング)を用いて製膜した。

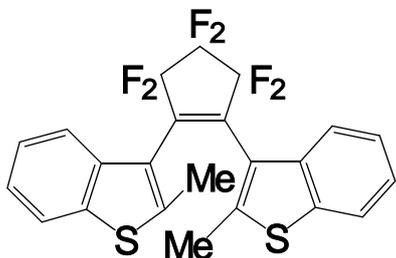


図-1 対称型3

3 - 3 評価

3 - 3 - 1 光学特性

調製試料への光照射は、超高压水銀灯500W光源を用い、色ガラスフィルターにより任意の波長を選択し

て行った。光異性化については、紫外光(313nm)または可視光(532nm)を30分照射後、紫外可視分光光度計(UV-2400PC:島津)を用いて吸収スペクトルの測定を行い評価した。開環体から閉環体への変換率は、三量体については、光照射後、HPLCにて1閉環体、2閉環体、3閉環体をそれぞれ分取後、変換率をHPLCにより求めた。それ以外は光照射後、閉環体を吸収スペクトルにより求めた。モル吸光係数については、閉環体、開環体、光定常状態について吸収スペクトル及び、HPLCにより求めた。

3 - 3 - 2 アモルファス化の確認

キャストニングとクエンチングにより作成した薄膜について偏光顕微鏡観察、熱分析(示差走査熱量測定: DSC)を行い、アモルファス状態の評価を行った。

4 結果と考察

4 - 1 三量体ジアリールエテンの光異性化

得られた三量体ジアリールエテンと基本分子である1,2-ビス(2-メチルペンゾ [b]チオフェン-3-イル)プロパルジエン(以下、対称型3)について溶液状態の光照射後の吸収スペクトルを図-2に示した。

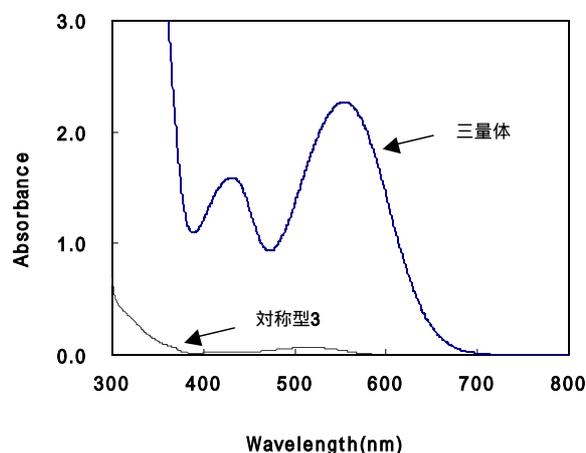


図-2 三量体と対称型3の光照射後の吸収スペクトル

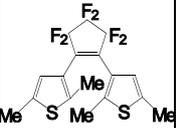
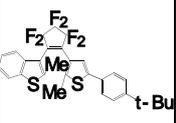
同じ濃度では、三量体ジアリールエテンは、対称型と比較して光応答で13倍の効率が認められた。これは、対称型が1分子につき光応答部位が1つに対し、三量体ジアリールエテンは1分子につき3つの光応答部位を有するためであるといえる。さらに光応答効率が、単純に3倍になるのではなく13倍と飛躍的に向上していることから、トリフェニルアミンを核とする三量体ジ

アリールエテンはそれ自身のモル吸光係数が対称型より高いと考えられる。表1に三量体ジアリールエテン(2), 対称型(3, 4), 非対称型(5)の開環体から閉環体への変換率(%)と光定常状態のモル吸光係数(total), 開環体のモル吸光係数(open) 閉環体のモル吸光係数(close), を示した。

光定常状態のモル吸光係数が、対称型3(total = 800)と比較して三量体(total = 25200)が約3倍以上である。また開環体から閉環体への変換率が対称型3が45%であることと比較して三量体は96%であった。

また、他の対称型分子4や非対称型分子5と比較しても三量体の感度、及び開環体から閉環体への変換率は優れているといえる。

表1. 開環体から閉環体への変換率とモル吸光係数

構造式及び 名称	変換率 %	(total) * 10 ³	(Open) * 10 ³	(Close) * 10 ³
対称型3 	45	0.8 (519nm)	14.0 (258nm)	9.1 (517nm)
対称型4 	74	3.1 (504nm)	5.3 (303nm)	8.0 (505nm)
非対称型5 	72	5.7 (542nm)	23.7 (264nm)	11.0 (542nm)
三量体2	96	25.2 (556nm)	36.3 (351nm)	13.6 ⁽¹⁾ 25.4 ⁽²⁾ 36.6 ⁽³⁾ (559nm)

: dm³ / (mol · cm), 三量体の (Close)は、1開環体(1)、2開環体(2)、3開環体(3)

4 - 2 三量体ジアリールエテン誘導体の薄膜化

対称型3を用いてキャストリングによる製膜を行った場合、溶媒の乾燥と同時に粉状化(結晶化)が観察された。また、クエンチングによる製膜でも一時的に無色透明なアモルファス膜が得られるものの、調製から2日後には結晶化が確認されたため、対称型ではいずれの方法でも安定したアモルファス膜を得ることは

できなかった。一方、三量体ジアリールエテンについてはキャストリングおよびクエンチングによる製膜を行った結果、どちらも無色透明な固体膜を得ることができた。

三量体ジアリールエテンの固体膜について偏光顕微鏡観察を行った。その結果、偏光顕微鏡観察では、対称型で結晶による島が認められるのに対し、三量体ジアリールエテンでは均一な暗視野像が得られており、このことから三量体による固体薄膜がアモルファス状態にあることが確認できた。

4 - 3 三量体ジアリールエテンの熱物性

また、三量体ジアリールエテンのクエンチングで作製した固体膜について、DSC測定を行った。その結果を図-3に示す。

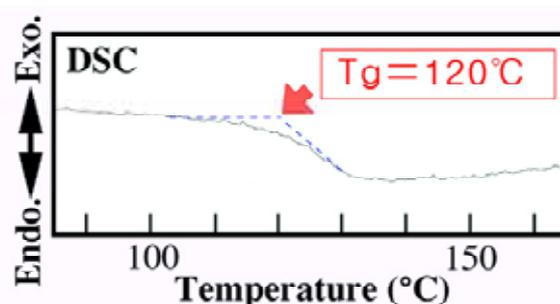


図-3 キャスティング薄膜の熱分析

三量体ジアリールエテンでは、120 にガラス転移点が認められ、過冷却液体となった後、292 に融解に基づく吸熱ピークが観測された。これは、これまでの非対称型ジアリールエテンでは、得られなかった高いガラス転移温度、および融点を得ることができた。

5 まとめ

室温以上で安定な高ガラス転移温度をもつ光応答性を有する有機分子単一成分の薄膜調製を目的として、ジアリールエテン誘導体のアモルファス化について検討を行い、以下のような知見を得た。

- ・トリフェニルアミンを中心とした三量体ジアリールエテンは、ガラス転移温度が120、融点が292と熱安定性の優れたアモルファス材料であることが分かった。

・三量体ジアリールエテンは、光応答効率が対称型に比べて13倍であった。

・三量体ジアリールエテンは、光定常状態におけるモル吸光係数が対称型分子と比較して3倍以上あり、かつ開環体から閉環体への変換率が96%であることから、高感度かつ高変換率を有している。

この三量体ジアリールエテンについては、国内特許（特開2002-275458）に出願している。

6 参考文献

- 1) 泊, 他3名: 福岡県工業技術センター研究報告, 10号, p.1(1999)
- 2) M. Hanazawa, et al.: J. Chem. Soc. Commn., p.206(1992)
- 3) S. Kobatake, et al.: J. Am. Chem. Soc., vol. 121, p.2380(1999)

鉄鋼中イオウの高精度分析技術の開発(2)

鋳鉄のイオウ分析の高精度化と化学物質による検量線の作成

古賀弘毅^{*1}

Precise Analysis of Trace Amounts of Sulfur in Iron and Steel

Improvement of Analytical Value of Sulfur in Cast Iron and

Calibration using Chemical Materials as a Primary Standard

Hiroki Koga

高周波燃焼 - 赤外線吸収法を用いた鉄鋼中イオウ分析については、鋼種の違いによりイオウ分析値が低値となるものがあることを前報で報告した。今回はイオウ分析値が低値となる高炭素含有材料(主に鋳鉄)に着目しその解決法を検討した。その結果、助燃剤の加熱酸化処理及び適切なルツボを選定することにより分析値を改善することができた。また、化学標準物質を用いた検量線作成法についても検討し、チオ尿素を化学標準物質に用いた石英セル法を適用した検量線を作成した。これにより直線性に優れた検量線が得られることが分かり、鉄鋼中イオウ分析の検量線作成法として有効であることが明らかとなった。

1 はじめに

製鋼技術の高度化により鉄鋼中のイオウ(以下元素名は元素記号を記す)は大幅に低減され高品質な材料が生産されるようになってきた。鉄鋼中のSの多くはMnSとして粒界存在物として存在するとされるが、S成分は高温脆性の原因となる成分の一つであることから、薄板材料や高温条件で用いられる材料等ではS濃度を極力低減する必要がある。ステンレス鋼などでは既に数ppmレベルのものが市販されているし、より過酷な環境で使用される自動車マニホールド用ステンレスや航空機向けのタービン材料等に用いられるスーパーアロイ等はすでにppm以下のものが開発されている。

一方、鉄鋼中Sの分析方法であるが、燃焼赤外線吸収法が一般的に用いられている。これは試料を酸素気流中で燃焼させ、含有するSを酸化しSO₂として気化抽出し、SO₂の赤外線吸収量を測定する方法である。現場の分析技術者が少なくなっている中、多くのスキルを必要としないフローインジェクション分析法(FIA)の手法を取り入れたこの方法は、品質管理の上で非常に重要な役割を担っている。近年、装置の進

歩によりppmレベルの分析が可能となってきており、今後、益々活躍する分析方法であるといえる。

しかしながら、装置のFIA化により分析工程が完全にブラックボックス化され、分析担当者は試料を投入した後、装置が計算したデータだけを受け取る状況となっている。従って試料中のSが完全にSO₂として抽出されたかは不明であり、分析値の信頼性の根拠については極めて曖昧である。

そこで本研究では、燃焼赤外線吸収法を用いたS分析法について、試料の燃焼反応とS成分の抽出メカニズムを明らかにすることを目的とし、前報¹⁾に引き続き鉄鋼試料の燃焼反応とそれに伴う各現象について検討した。その結果、鋳鉄を初めとする高炭素含有材料の多くで燃焼温度の低下などが起こり、分析値が低値を示すことが明らかとなった。

今回は鋳鉄について助燃剤の配合、使用ルツボの選定及び助燃剤の酸化処理によってS分析値の改善を図った。また、近年ISOとの整合性の観点から化学標準物質を用いた標準化が用いられているため、石英セルを用いた標準化法²⁾をS分析にも適用しその信頼性を検証した。

*1 機械電子研究所

2 研究, 実験方法

2-1 装置・試薬等

2-1-1 装置及び器具

S の分析には炭素イオウ同時分析装置（LECO 製 CS-444LS 型）を用いた。装置の基本的な設定条件を表 - 1 に示す。本装置には微量の S を高感度に分析するために、SO₂ の濃縮機構が付属しているが、分析値を求める場合にはこの機能を用いたが、SO₂ の抽出状況の観察にはこの機能は用いなかった。また、反応容器となるルツボ及びルツボカバーは LECO 製のものを用いた。

表 - 1 装置設定条件

Power	18MHz, 2.2kW
Carrier Gas FlowRate	2.5L / min
Pre-analyze PurgeTime	20sec
Pre-analyze DeleyTime	30sec
C Analysis Time	120sec
S Analysis Time (Nomal-mode)	120sec
(Trap-mode)	40sec
S Trap Time	120sec

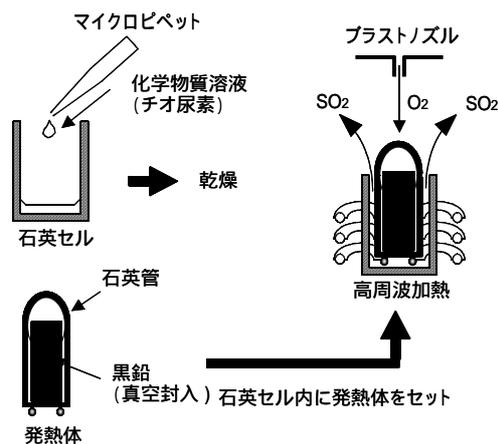


図 - 1 石英セル及び発熱体

2-1-2 試薬及び試料

分析試料には日本鉄鋼連盟の鉄鋼認証標準物質及び手持ちの試料の中から適当なものを選択した。試料の燃焼を促進させる助燃剤には LECO 製の W と Sn を用いた。また、化学標準物質としてはチオ尿素（林純薬製 特級）を 105 で乾燥させたものを使用した。

2-2 実験方法

2-2-1 助燃剤の最適化

燃焼法による S の分析では助燃剤の量、配合比の違いが分析値に影響することが知られている¹⁾³⁾⁴⁾。今回は分析試料を 1g とし、それに対する適切な助燃

剤の量及び配合比を検討した。なお、測定に用いたルツボは 1300 で 3 時間事前に加熱処理を行ったものを用い、使用直前にも 550 の電気炉内で 30 分以上加熱・保管して用いた。

2-2-2 助燃剤の加熱酸化処理による分析値の改善

前報¹⁾では、鑄鉄の分析では析出 C の直接還元効果により溶湯中の酸化鉄が還元され、その吸熱反応により溶湯温度が低下し、S の酸化反応が阻害されるのではないかと報告した。この現象を改善するために、助燃剤として用いる W を加熱処理により酸化タングステンとすることにより、溶湯形成時の溶湯中の酸素濃度を高く維持し、S の酸化反応を速やかに行わせる試みを行った。助燃剤の加熱処理は 550 と 700 においていずれも 10 分間の条件で比較した。

2-2-3 化学標準物質による標準化法の検討

近年、ISO との整合性を図るため、JIS⁵⁾では化学標準物質として硫酸カリウムを用いた検量線作成法が示されている。しかし、この方法では助燃剤として用いる純鉄や Sn カプセル中に含まれる S 成分が分析値に上乘せられるため、特に微量域では分析値の信頼性が疑われる。そこで今回は助燃剤を用いない標準化法を検討することにし、既報²⁾で用いた石英セル法を応用した。この方法では、高温分解が必要な JIS⁵⁾の硫酸カリウムに代わり、比較的低温で酸化分解する有機物で、S を含有するチオ尿素を選定した。なお、標準試料の作製は、チオ尿素を水溶液とし調整する濃度に応じて適量を石英セルにマイクロピペットで分取し、これを 105 で乾燥させて使用した。なお、石英セル及び発熱体については使用前に 1000 以上で空焼きした。

3 結果と考察

3-1 助燃剤の最適化

試料の燃焼における助燃剤の役割としては、W は溶湯を高温に保ち S の酸化反応促進のための十分な熱エネルギーを供給すること、また、Sn は溶湯の流動性を高め攪拌を助けることであると考えられる。

まず試料 1g に対する W の最適量を検討した。実験には手持ちの試料の中から鑄鉄 No46 (S 0.0154%) を選択した。結果を図 - 2 に示す。W 量を変化させても分析値（平均）には差が認められなかったため、分析精度の点から W 使用量は 0.75 ~ 1g を適量とした。

しかしながら W のみでは十分な分析値が得られないことから、Sn 量の最適化を検討した。結果を図 - 3 に示す。W 量 0.75g, 1g のいずれについても Sn 量 0.25g 添加した場合に最も S 分析値が高くなった。このことには Sn の添加による溶湯の流動性の向上が寄与していると考えられる。しかし添加量が多くなりすぎると発生ダスト量が増加し、装置内に付着したダストに溶湯から気化分離された SO₂ が吸着するため、一部が検出器までたどり着かず分析値の低下が起こるのではないかと考えられる。ダストへの S 成分の吸着は宮城ら⁴⁾からも報告されており、燃焼法を用いた S 分析におけるメモリー効果⁴⁾にも大きな影響を与えていると考えられる。以上のことから Sn 使用量は 0.25g を最適とした。

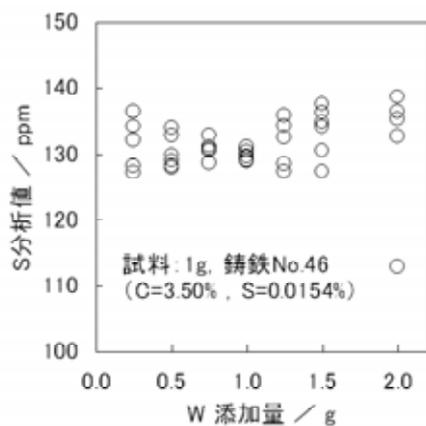


図 - 2 タングステン量とイオウ分析値の関係

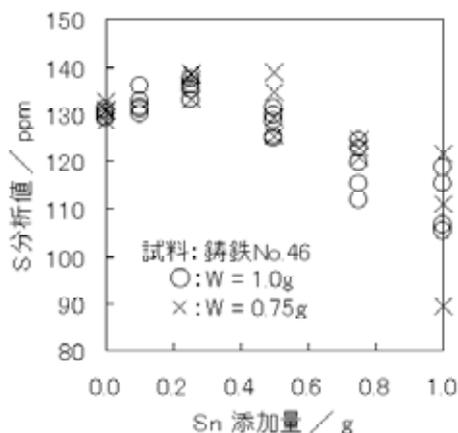


図 - 3 タングステン量固定, スズ添加量とイオウ分析値の関係

3-2 ダスト及びルツボ残分へのSの残留

S 分析値を低値とする要因として、ダストへの吸着と溶湯のルツボへの浸食が考えられる。溶湯内の酸化

反応は対流により進行すると考えられるが、分析初期にルツボ内部へ浸食した溶湯の一部は十分な酸化反応を受けることができず、そこに含まれる S 成分もそのまま残留する可能性がある。

ルツボ残分及びダスト中に残留する S 成分を硫化水素気化分離メチレンブルー吸光光度法⁶⁾により分析した結果を表 - 2 に示す。ダストの S は試料 1g, W 1g, Sn 0.25g を 10 回連続して酸化燃焼し、装置内に付着したものを捕集し分析した。この結果、ダスト中には大量の S が吸着されていることが明らかとなった。これは分析 1 回分に換算すると、鑄鉄の場合、S=3.6μg に相当する。また、ルツボ残分にも大量の S が残留しており、低合金鋼と比較して鑄鉄で著しく多くなっていることがわかった。

表 - 2 ルツボ残分及びダスト中のイオウ量

	低合金鋼	鑄鉄
ダスト	発生量: 1.15g S 濃度: 47.2ppm	発生量: 1.47g S 濃度: 23.9ppm
ルツボ残分	S 濃度: 4.2ppm	S 濃度: 28.5ppm

低合金鋼: No.40 (C=0.31%, S=0.0138%),
鑄鉄: No.46 (C=3.50%, S=0.0154%)

3-3 S分析値の改善

助燃剤の分析直前に加熱処理することによる分析値の改善を試みた。助燃剤は電気炉中大気雰囲気中で加熱を行った。なお、550 10 分間の加熱処理では粒状の W は表面のみが黒色に変色したものの、内部は金属のままであるのに対し、700 で 10 分以上加熱処理すると大半が橙色の微粉となった。この微粉は常温に放冷すると黄緑色に変化するが、これは X 線回折分析により WO₃ と確認された。

550 及び 700 でそれぞれ 10 分間助燃剤を加熱処理した条件で分析した結果を表 - 3 に示す。また、併せてルツボの浸食の違いを確認するために高密度品及び低密度品について調査した。なお、試料には鑄造用銑鉄 (JSS111-12, C 4.25%, S 0.0155%) を用いた。

分析結果より加熱処理については 700 の処理により W を WO₃ としたもののほうが認証値により近い値を得た。これは溶湯内の酸素濃度が 550 と比べてかなり高いことから、試料中の析出 C による直接還元の影響が緩和され、S の酸化反応がスムーズに行われたのではないかと考えられる。また、ルツボについて

は明らかに高密度品の値が認証値に近い値を示した。これによりルツボの浸食の影響が大変多いことが明らかとなり，助燃剤の酸化処理及び高密度ルツボの使用が鑄鉄等の S 分析に極めて有効であることが明らかとなった。

表 - 3 ルツボ素材及び助燃剤酸化処理条件の差による分析値の変化

N	測定値 (mass-ppm)			
	低密度ルツボ 550	低密度ルツボ 700	高密度ルツボ 550	高密度ルツボ 700
1	119.10	131.88	139.55	155.50
2	126.21	138.87	140.68	154.56
3	121.04	146.48	143.91	155.04
4	123.37	135.41	145.75	150.49
5	121.37	123.84	146.69	149.18
Ave.	122.0 (78.7%)	135.3 (87.3%)	143.3 (92.5%)	153.0 (98.7%)
	1.17	5.95	2.56	2.49

括弧内は認証値に対する分析値の割合

3-4 化学標準物質による標準化

化学標準物質には溶液化して使用でき，かつアルカリ金属塩などの形をとらないチオ尿素を選択して，石英セル法により検量線を作成した。化学物質にアルカリ塩などを含むと加熱時に石英セル等の表面を侵すため好ましくない。チオ尿素の構造式を図 - 4 に示す。発熱体は高周波により 1200 以上に加熱され，有機物を酸化分解するには十分な熱量を供給できる。検量線作成の操作については既報²⁾に準じた。適切な濃度に調整したチオ尿素標準試料を分析したときに得られる強度と設定濃度の関係を図 - 5 に示す。

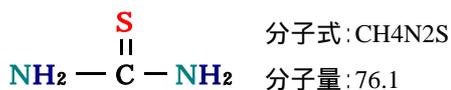


図 - 4 チオ尿素の構造式

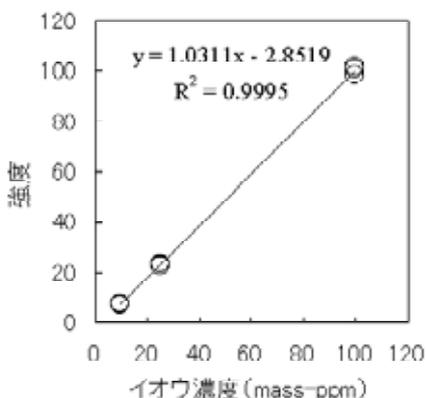


図 - 5 石英セル法によるチオ尿素を用いた検量線

点数が少なく十分ではないが，10 ~ 100ppm の間で大変良好な直線性を有した検量線が作成できた。この検量線を用いて実試料を分析した結果を表 - 4 に示す。NIST2168 についてはほぼ良好な値を得たものの，JSS003-4 では大きく高めに外れた。これは近似直線の切片が負の値となることから，S 濃度の低い標準試料ではチオ尿素の酸化分解がやや不十分であり，含まれる S 成分を完全に抽出できなかったためと考えられる。このため数 ppm の S 分析にこの手法を適用するためには，チオ尿素中の S を効率的に抽出するためのなんらかの工夫が必要と考えられる。

表 - 4 本法による実試料の定量結果

試料	S 認証値 (ppm)	S 分析結果 (n=3)	
		分析値 (ppm)	RSD (%)
JSS003-4	1.5	4.3	1.24
NIST2168	10	11.1	2.36

4 まとめ

鑄鉄等の高炭素含有材料中の S 分析法について検討し，助燃剤の加熱酸化処理及び適切なルツボを選定により，従来低値となって分析されていた S の分析値を改善することができた。また，化学標準物質を用いた検量線の作成法についても検討し，石英セル法を適用したチオ尿素を化学標準物質とした検量線の作成が可能であった。検量線は良好な直線性が得られたが，微量域でややチオ尿素中の S 成分の抽出が不十分であり，ppm レベルの分析への適用には課題を残した。しかしながら鉄鋼中 S 分析の検量線作成法として有用であることが明らかとなった。

5 参考文献

- 1) 古賀弘毅：福岡県工業技術センター研究報告，第 12 号，p.108(2001)
- 2) 古賀弘毅，緒方道子：分析化学，Vol.51，p.825(2002)
- 3) 針間矢宣一，他：鉄と鋼，Vol.67，p.S1096(1981)
- 4) 宮城知代子，他：分析化学，Vol.51，p.1019(2002)
- 5) JIS G1215-1994 附属書 6
- 6) JIS G1215-1994 附属書 7

高周波用誘電体薄膜の作製と応用

有村雅司*¹ 牧野晃久*¹ 藤吉国孝*² 山下洋子*² 山口博文*³

Preparation and Application of the Dielectric Films for High-Frequency

Masashi Arimura, Teruhisa Makino, Kunitaka Fujiyoshi, Yoko Yamashita and Hirofumi Yamaguchi

高周波用誘電体セラミックスは、通信周波数の更なる高周波化に対応するために誘電特性の向上（高誘電率，低誘電損失，低温度係数）が必要とされ、また、同時に機器の小型化に伴い軽薄短小化も要求されている。本研究では高周波用セラミックスとして有名な Ba-Ti-O 系材料を固相法によって調製し、GHz 帯における誘電特性の評価を行った。そして、焼成温度の低温化及び薄膜化を試みるためにゾルゲル法によって同材料の調製を行った。その結果、Ba:Ti=1:4 の BaTi₄O₉ が優れた誘電特性を示し、8GHz における誘電率は 36、誘電損失は 2.0×10^{-4} 、共振周波数の温度依存性 (τ_f) は -1.9ppm/°C であった。同材料はゾルゲル法でも調製を行うことができ、急速加熱焼成を行うことで生成温度の低温化が図れることが判明した。

1 はじめに

近年、通信情報量の増加のため大容量高速通信の要求が高く、また、移動通信端末の急激な増加による通信周波数帯の飽和の懸念から、より高周波の通信周波数が必要とされている。一方、移動通信端末の機能集積化、小型化は目覚ましく、搭載されている部品の小型化、高密度実装の要求はますます高くなっている。これらの要求に応えるために、高周波デバイスで重要な役割を果たしている誘電体セラミックスには、高周波帯において 高誘電率、低誘電損失及び 低温度係数の三つが必要とされている。その理由として、誘電体中で電波の波長は誘電率の平方根に反比例して短くなることから、素子の小型化につながる。と は誘電体として必要とされる一般的な条件で、電波の伝送損が少なく誘電特性の温度安定性が良いことを意味している。実際の材料では と 及び の両立は困難であるが、バリウムとチタンの複合酸化物である Ba-Ti-O 系材料は上記 3 条件を同時に満たしやすい誘電体セラミックスとして知られている¹⁾。しかし、Ba-Ti-O 系材料は高温で長時間の焼成を必要とする欠点がある。近年、高周波デバイスの小型化を目的として、配線基板に誘電体セラミックや抵抗体を内蔵する動きがあり²⁾、これに対応するためには Ba-Ti-O 系材料の薄膜化、そして焼成温度を基板あるいは他の部品の耐熱

温度以下にする必要がある。

そこで本研究では、Ba-Ti-O 系誘電体セラミックスを Ba:Ti を変化させて固相法によって調製し、GHz 帯での誘電特性を評価した。その中で誘電特性に優れた材料について、焼成温度の低温化及び薄膜化を目的として、ゾルゲル法による調製を試みた。

2 実験方法

2-1 固相法による Ba-Ti-O 系バルク体の調製

図 - 1 に固相法によるバルク体の調製プロセスを示す。出発原料として炭酸バリウム（片山化学製）とルチル構造の酸化チタン（林純薬製）を用いた。これらの原料を Ba:Ti が 1:4, 2:9, 1:5 となるように 50g 秤量した。混合は、蒸留水 90ml を溶媒として、SUS304 製ミルポットに充填し、5mm ZrO₂ 製ボール 160g をメディアとして遊星ボールミル混合した。混合したスラリーは #330 ステンレスメッシュを用いてコンタミネーションを除去した後、大気中にて仮焼した。仮焼粉末はらい潰機を用いて解砕し、#330 ステンレスメッシュにて分級した。分級した粉末は、10mm の金型を用いて 1t/cm² の圧力にて一軸加圧プレス成型し、厚さ 6mm のペレットを作製した。焼成は大気中 1300 °C にて行い、昇降温速度は 10 °C/min とし、保持時間は 2 時間とした。

* 1 機械電子研究所

* 2 化学繊維研究所

* 3 日本タングステン株式会社

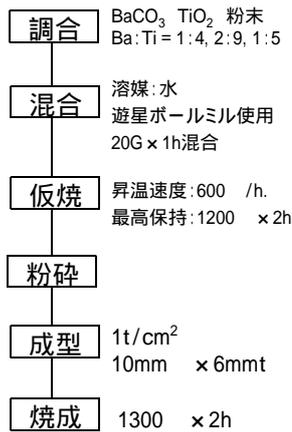


図 - 1 固相法によるバルク体調製フロー図

2 - 2 ゼルゲル法によるBa-Ti-O系バルク体の調製

ゾルゲル法によるバルク体の調製プロセスを図 - 2 に示す。Ba:Ti が 1:4, 2:9, 1:5 となるようにバリウムジエトキシド（高純度化学製）とチタンテトライソプロポキシド（高純度化学製）を、メタノールと 2-メトキシエタノールの混合溶媒に乾燥室素中において溶解させて前駆体溶液を調製した。前駆体溶液の全金属濃度は 1.5mol/L とし、前駆体溶液を 60 で還流後、0 において水蒸気噴霧による加水分解を行いゲル化させた。得られたゲルを 30 で 3 日間エージングを行った後、ゲルを粉碎し大気中にて仮焼を行った。仮焼後の操作は固相法と同様に行った。

2 - 3 ゼルゲル法によるBaTi₄O₉薄膜の作製

ゾルゲル法によって調製した Ba:Ti が 1:4 のゲルを 2-メトキシエタノール中に BaTi₄O₉ の濃度が 0.1mol/L となるように超音波分散させてコーティング溶液を作製した。コーティング溶液を Pt/Ti/SiO₂/Si 基板上に滴下し、スピンコーティング法によって成膜を行った。成膜後、大気中 150 で乾燥を行った。乾燥後の薄膜の焼成は表 - 1 に示す三つの条件で行った。通常焼成には電気炉（九州日晶製），また急速加熱焼成には赤外線加熱炉（サーモ理工製，IVF-298）を用いて行った。

2 - 3 試料評価

得られた試料の結晶相の同定は、X 線回折装置 (XRD) (理学製, RINT2500) によって行った。ゲルの熱分析は示差熱重量同時測定装置 (セイコー電子工業製, TG-DTA320) を用いて行った。バルク体の GHz 帯における誘電特性の評価は、試料の直径 d と厚み h

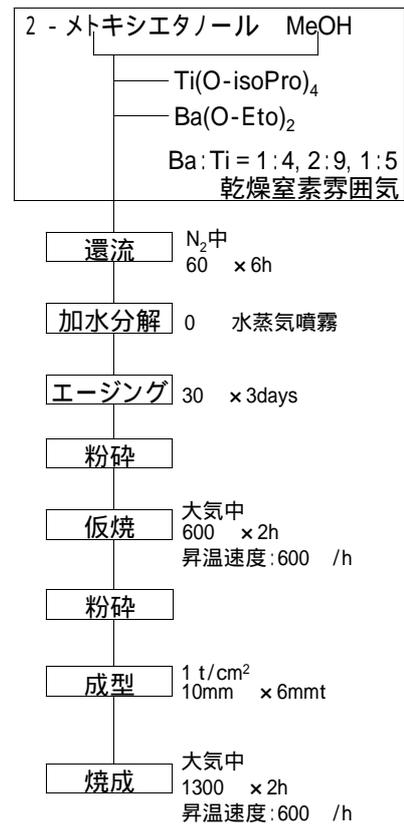


図 - 2 ゼルゲル法によるバルク体調製フロー図

表 - 1 薄膜の焼成条件

	開始温度	升温速度	熱処理温度 時間	升温速度	焼成温度 時間
パターンA 通常焼成	150	10 /min	-	10 /min	1000 1時間
パターンB 急速加熱焼成	150	1000 /min	-	1000 /min	1000 1時間
パターンC 急速加熱焼成 (2段階)	150	100 /min	500 30分	1000 /min	1000 1時間

の比 (d / h) が約 2 となるように平面研削したものをを用いた。

3 結果と考察

3 - 1 固相法によるBa-Ti-O系バルク体の調製

バルク体の焼成条件を検討するために温度を変化させて焼成を行った。その結果を表 - 2 に示す。Ba:Ti が 1:4 の場合、1200 で焼成したときには BaTi₄O₉ の単一相が得られたが、Ba:Ti が 2:9 あるいは 1:5 の場合は 1400 で焼成しても単一相は得ることができなかった。

単一相が得られた BaTi₄O₉ についてバルク体を作製し誘電特性の評価を行った。その特性は測定周波数 (共振周波数) 8.2GHz において、誘電率 (ϵ_r) は 36, 誘電損失 ($\tan \delta$) は 2.0×10^{-4} , 共振周波数の温度依存性 (τ_f)

表 - 2 固相法によって調製した場合の生成相

	Ba:Ti = 1 : 4	Ba:Ti = 2 : 9	Ba:Ti = 1 : 5
1000	BaTi4O9 BaTiO3 TiO2 BaTi2O5	BaTi4O9 BaTi5O11 TiO2	BaTi4O9 BaTi5O11 TiO2
1100	BaTi4O9 Ba4Ti13O30	BaTi4O9 BaTi5O11 Ba2Ti9O20	BaTi4O9 TiO BaTi5O11 Ba2Ti9O20
1200	BaTi4O9	BaTi4O9 Ba2Ti9O20 TiO2	BaTi4O9 Ba2Ti9O20 TiO2
1400	-	BaTi4O9 TiO2	BaTi4O9 TiO2

表 - 3 GHz 帯におけるバルク体の誘電特性

	BaTi4O9 (固相法)	BaTi4O9 (ゾルゲル法)	BaTi5O11 (ゾルゲル法)
共振周波数	8.2GHz	8.6GHz	10GHz
τ_r	36	35	25
tan	2.0×10^{-4}	2.2×10^{-4}	4.1×10^{-4}
f_i (ppm/)	-1.9	17.7	17.4

は-1.9ppm/ と非常に良好な値であった(表 - 3)。

3-2 ゾルゲル法によるBa-Ti-O系バルク体の調製

ゲルの焼成温度及びBa:Tiによる生成相の違いを表 - 4に示す。Ba:Ti が 1:4 の場合、固相法と同様に 1200 の焼成で BaTi₄O₉ の単一相が得られた。ゾルゲル法では、原子レベルでの均一混合が可能であるために BaTi₄O₉ の生成温度の低温化が期待されたが、低温で BaTi₅O₁₁ と Ba₄Ti₁₃O₃₀ が生成し、その後、これらの固相反応によって BaTi₄O₉ が生成したために、固相法と同等の焼成温度が必要であったと考えられる。Ba:Ti が 1:5 の場合、固相法では単一相が得られなかったが、ゾルゲル法では 800 で BaTi₅O₁₁ の単一相が得られた。BaTi₅O₁₁ は準安定相であり高温(1000 以上)で焼成を行うと安定相に転移するため、単一相の合成が困難であると考えられているが³⁾、本研究では 1200 まで安定していた。Ba:Ti 比が 2:9 の場合は、固相法と同様に単一相は得られなかった。

単一相が得られた BaTi₄O₉ と BaTi₅O₁₁ については、バルク体を作製し GHz 帯での誘電特性の評価を行った。その結果を表 - 3 に示す。ゾルゲル法によって作製した BaTi₄O₉ は誘電率、誘電損失とも固相法と同等の値であったが、共振周波数の温度依存性を表す τ_r

表 - 4 ゾルゲル法によって調製した場合の生成相

	Ba:Ti = 1 : 4	Ba:Ti = 2 : 9	Ba:Ti = 1 : 5
800	BaTi5O11	BaTi5O11 BaTi2O5	BaTi5O11
1000	BaTi5O11 Ba4Ti13O30	BaTi2O5 Ba4Ti13O30	BaTi5O11
1200	BaTi4O9	Ba4Ti13O30 BaTi4O9	BaTi5O11

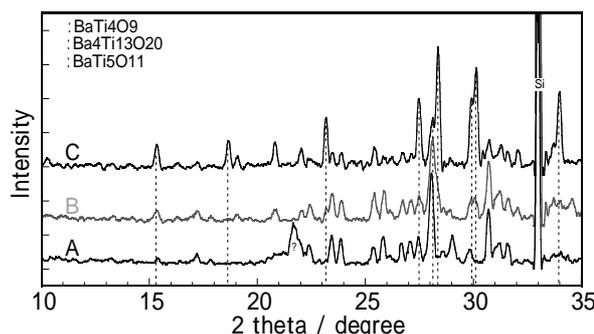


図 - 3 Ba : Ti = 1 : 4 のゲルから調製した薄膜の XRD パターン。図中の A, B, C は薄膜の焼成条件を表している(表 - 1 参照)。

は 1 桁ほど大きな値であった。 τ_r 増加の原因として、ゾルゲル法によって調製した仮焼粉は固相法と比較して粒径が小さく、加圧成型する際の充填率が低くなっていると考えられる。固相法と同等の結果を得るためには、仮焼粉の粉碎方法やペレットの作製方法を検討する必要があると考えられる。BaTi₅O₁₁ の誘電特性はすべての値について他の 2 つの材料より劣っていた。

3-3 ゾルゲル法によるBaTi₄O₉薄膜の作製

異なる焼成条件で焼成した Ba:Ti が 1:4 の薄膜の X 線回折パターンを図 - 3 に示す。パターン A (通常焼成) で焼成を行った試料は BaTi₅O₁₁ と Ba₄Ti₁₃O₃₀ のピークのみが認められ、BaTi₄O₉ の生成は確認できなかった。パターン B (急速加熱焼成) で焼成を行った場合、わずかに BaTi₄O₉ のピークが確認できた。パターン C (2 段階急速加熱焼成) で焼成を行った場合、BaTi₄O₉ の回折ピーク強度が強くなり、主成分が BaTi₄O₉ の薄膜が 1000 の焼成で得られたことが分かる。2 段階急速加熱焼成の 1 段階目(500)は、熱分析の結果を参考に残留有機物を完全に除去するために設定した。このことから、残留有機物を除去後、急速加熱を行うことで BaTi₅O₁₁ や Ba₄Ti₁₃O₃₀ 等の低温相の生成が

抑制され、アモルファス状態から直接高温相の BaTi_4O_9 が生成したと考えられる。その結果、 BaTi_4O_9 の生成温度が通常の焼成と比較して約 200℃ 低温化できたと考えられる。

今後、 BaTi_4O_9 単一相での薄膜化を目指して、焼成条件、薄膜作製に用いるゲルの調製条件を検討する必要がある。

4 まとめ

本研究では、Ba:Ti を変化させて固相法によって Ba-Ti-O 系のバルク体を調製し GHz 帯での誘電特性を評価した。その中で優れた特性を示した材料について、焼成温度の低温化及び薄膜化を試みるためにゾルゲル法によって調製を行い以下の結果を得た。

- ・固相法では、1200℃ 焼成で BaTi_4O_9 単一相が得られた。その誘電特性は優れており、共振周波数 8.2GHz において、誘電率は 36、誘電損失は 2.0×10^{-4} 、共振周波数の温度依存性は -1.9ppm/℃ であった。

- ・ゾルゲル法では、 BaTi_4O_9 が 1200℃ 焼成で、 $\text{BaTi}_5\text{O}_{11}$ は 800℃ 焼成で単一相が得られた。 $\text{BaTi}_5\text{O}_{11}$ は低温における準安定相と言われているが本研究では高温でも安定して存在していた。

- ・急速加熱焼成により $\text{BaTi}_5\text{O}_{11}$ や $\text{Ba}_4\text{Ti}_{15}\text{O}_{30}$ 等の低温相の生成を抑制でき、かつ従来の BaTi_4O_9 生成温度よりも 200℃ 以上低温で合成可能であることが分かった。

5 参考文献

- 1) H. M. O'Bryan and J. Thomson: J. Am. Ceram. Soc., Vol. 57, No. 12, p. 522(1986)
- 2) 福岡義孝ら: エレクトロニクス実装学会誌, Vol. 5, No. 7, p. 622(2002)
- 3) S. Hirano and J. Otsuka: Ceramic Transactions, Vol. 8, p. 203(1990)

染料を使わないエコフレンドリー動物繊維着色技術の開発

堂ノ脇靖巳*¹ 藤田祐史*¹ 浦川稔寛*¹ 藤 信和*¹ 宮外清貴*²

大島邦裕*² 中瀬一博*² 中崎正広*² 中村賢司*³ 正泉寺秀人*⁴

Development of Eco-Friendly Coloring Technology for Animal Fiber Without Dyestuffs

Kiyoshi Donowaki, Yuji Fujita, Toshihiro Urakawa, Nobukazu Tou, Kiyotaka Miyagai,

Kunihiro Ohshima, Kazuhiro Nakase, Masahiro Nakazaki, Masashi Nakamura, and Hideto, Shosenji

平成 11 年度～平成 13 年度まで新技術研究開発特別事業（生体発色機構を模倣した機能性色素に関する研究 - トリプトファン発色反応を利用した動物繊維の着色 - ）において行った研究成果の羊毛衣類製品への展開を目的として研究開発を行った。ここでは、パステル色と濃色をそれぞれ 6 色づつ設定し、羊毛にて 12 色の発現を行った。本稿では、主に 12 色発現のためのアプローチとして行った発色構造、機構の解析による理論の確立、発色に必要な分子の設計、基礎的な発色条件、さらに濃色における環境負荷結果について報告する。

1 はじめに

染色産業は資源エネルギー大量消費、環境負荷型産業と言われており^{1), 2), 3), 4)}、低環境負荷型への技術開発が必要となっている。特に、羊毛では濃色物にクロムなどの有害な重金属を主に使用していることから、世界的なクロムフリー、環境低負荷型染色が注目されている。そこで、環境負荷が大きい合成染料を用いず、天然から得られる動物繊維の構成成分を発色体とする新しい技術開発を行った。本研究は、福岡県工業技術センターの研究シーズである「蛋白質発色による動物繊維の高堅牢な着色」^{5), 6), 7), 8), 9)}を用いて、動物繊維の中でも世界的な需要が大きい羊毛衣類製品の実用化に向けて「12 色の色を発現」と「工程の確立」を目標とした。この結果、染料を使うことなく 12 色を発現し、特に濃色物をクロムフリーで実現できた。また、排水処理負荷が大幅に削減できることを明らかとした。そこで、本稿では目標達成のためのアプローチとして行った発色理論の確立、発色条件の検討、および環境負荷測定結果を報告する。

2 研究, 実験方法

2-1 発色理論の確立

先の報告でトリプトファン誘導体（アセチル L-ト

リプトファンエチルエステル：Ac-Trp-OEt）⁷⁾、高分子中でのトリプトファン誘導体（アセチル L-トリプトファンを縮合結合したオキシム樹脂：Ac-Trp-Oxime resin）⁸⁾にて発色構造は示しているが、今回は反応の中核になっていると考えられるインドール基に着目し、3-メチルインドールを主に用いて、既報に従って発色構造解析、発色機構の解明を行った。また、この結果から発色に必要な芳香族アルデヒド誘導体の分子設計を行い、12 色の発現への分子設計指針を確立した。

2-2 発色条件の検討

一般的に実用機に適用できる染色試験機、全自動工程制御システム 12 色二槽式回転ポット染色試験機 MC-APS-12WE（（株）テクサム技研）にて条件検討を行った。生地は P3674（倉敷紡績（株）製）羊毛 100%を使用した。

発色条件は、分子設計指針から必要な色を発現すると考えられる芳香族アルデヒド誘導体を選択し、種々の濃度変化、時間、温度などの条件を系統的に検討した。発色した生地の評価は、目視、および日本電子工業株式会社の Spectro Color Meter SE2000 により測定し、Lab 表色系で評価した。また、発色の程度は、積分球付属装置 ISR-2200 を付属した島津紫外可視分光光度計 UV-2400PC により反射率を測定し、Kubelka-Munk 式で定義される以下の式により評価した。

*1 化学 繊維研究所 *2 倉敷紡績株式会社

*3 株式会社ピラミッド *4 九州大学

$$K/S = (1-R)^2 / (2R)$$

(K: 光の吸収係数, S: 光の散乱係数, R : 分光計で測定した可視光の最大吸収波長における反射率)

2-3 廃水の環境負荷測定

環境負荷測定は、廃水等の環境負荷を評価する際に指標として用いられる化学的酸素要求量 (COD) を吸光度式 COD 測定セット D R 4000 V (HACH 社製) により行った。特に一般的に分子量が大きく、染料濃度が高いと言われている濃色の黒に着目し、本法から出る廃水との比較を行った。

3 結果と考察

3-1 発色理論の確立

3-1-1 発色構造と機構

3-メチルインドールと 4-ジメチルアミノベンズアルデヒドの反応混合物を精製し、無色物質 **3** (収率 61%) と青色物質 (収率 1%) を単離した。この青色物質はメタノール溶媒中で 621 nm に極大吸収を示し、¹H-NMR スペクトルより **4** であることが推定された。**3** に 2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノ-1,4-ベンゾキノ (DDQ) を作用させ酸化させたところ **4** に変化した。**4** は水素化ホウ素ナトリウムを用いた還元反応で **3** に変化した。これは **3** から **4** の変化では化合物の骨格が変化していないことを示しており、**4** が上記の構造であることを間接的に証明するものである (図 - 1)。つまり、3-メチルインドールと 4-ジメチルアミノベンズアルデヒドの発色反応では、2:1 で結合して **3** が生成し、これが酸化により *p*-キノイド構造の **4** となることで発色することが明らかになった。また、青色物質の電

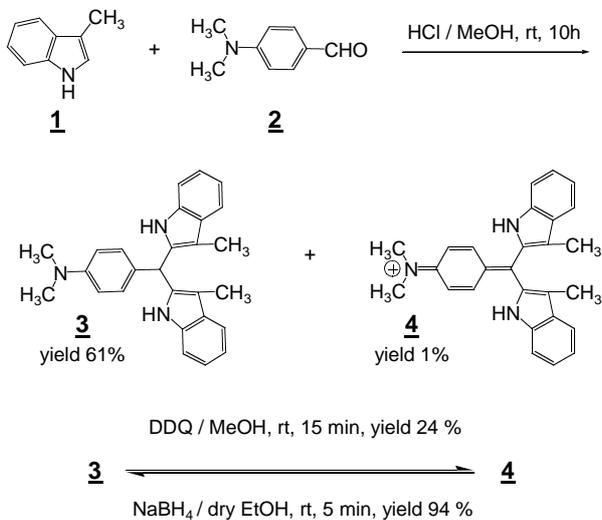


図 - 1 発色反応生成物の構造と酸化還元反応

気泳動実験からも正電荷を持つことが支持された。さらに、4-ヒドロキシベンズアルデヒドを用いた発色生成物も同様な構造が得られたこと、Ac-Trp-OEt⁷⁾ と Ac-Trp-Oxime resin⁸⁾ での結果と一致することから、この発色は芳香族アルデヒド誘導体の構造に依存せず、トリプトファンインドール基が反応の中核となっていることが示された。

以上の結果から、発色反応機構は図 - 2 のように考えられ、芳香族アルデヒド誘導体部分がキノイド構造をとることで結合が形成され、発色していると考察できた。

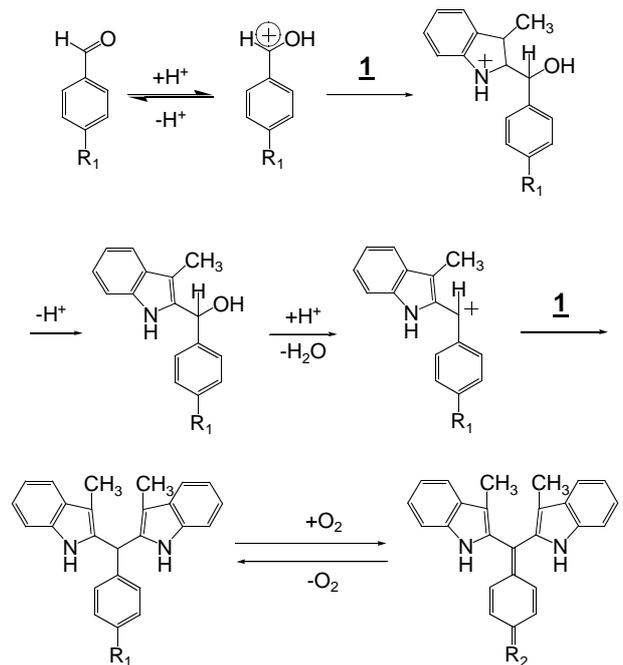


図 - 2 発色反応機構

3-1-2 芳香族アルデヒド誘導体の分子設計指針

以上の発色構造、発色機構の情報、また既報の耐光性結果⁵⁾、芳香族アルデヒド誘導体と色彩分布の関係⁸⁾から図 - 3 のような分子設計指針を確立した。つまり、分子設計には芳香族アルデヒド誘導体の 2, 4 位が重要であり、黄色系統の発色を求める場合は 2 位に水酸

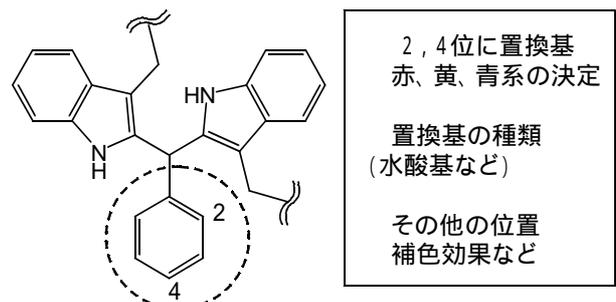


図 - 3 分子設計指針

基，赤系統の場合は4位に水酸基，青系統であれば4位に，より電子吸引性の強いジアルキルアミノ基を配置することで基本的な色は発現でき，その他の位置，官能基の種類は，補色機能，耐光性向上機能があると考えられる。この分子設計指針は HyperChem pro 5.0 を用いた計算シミュレーションからも支持されており，計算した最大吸収波長とメタノール中での実測値との相関関係が得られている¹⁰⁾。

3-2 発色条件の検討

この発色反応は芳香族アルデヒド誘導体，酸，動物繊維の3つが必須条件であり，塩を添加することでその発色効率が向上することを報告している^{5), 11)}。そこで，一つの例として青発色に関する条件検討を報告する。分子設計指針から，青の発色に4-ジメチルアミノベンズアルデヒドを選択し，羊毛生地の色を検討した。4-ジメチルアミノベンズアルデヒド濃度と酸濃度変化を図-4に示すが，4-ジメチルアミノベンズアルデヒド濃度が4倍高くなってもK/S値は約1.5倍程度の向上であるが，酸濃度は2倍の濃度変化で3倍向

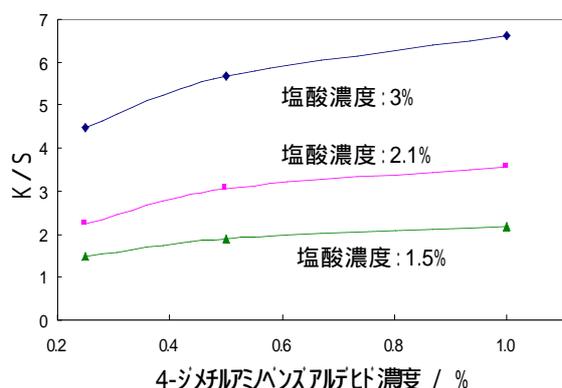


図-4 塩酸濃度変化による4-ジメチルアミノベンズアルデヒド添加効果

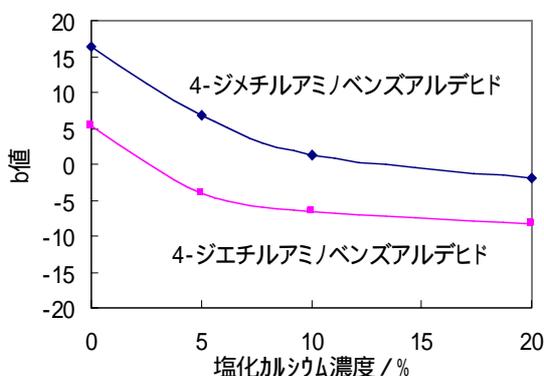


図-5 芳香族アルデヒド誘導体のアルキル鎖効果

上した。この結果から直接反応する芳香族アルデヒド誘導体濃度よりも反応環境が発色効率に影響を与えることが示された。また，アルキル基の効果についても検討した。青色の指標として Lab 色度の b 値がマイナス側になるが，b 値と塩化カルシウム濃度との関係を図-5に示す。この結果から，ジエチルアミノ基の方が低い塩化カルシウム濃度条件下で青に発色していることが分かる。

このように芳香族アルデヒド誘導体の構造や各種濃度条件などから12色の発色に必要な化合物の種類，濃度を表-1のように決定した。また，これらの堅牢度試験を表-2に示す。濃色は物性が良好であったが，パステル色は全体的に耐光性が悪く，一部変退色が見られた。

表-1 12色の発色条件

色	化合物名	色評価 (Lab)
青	0.25% 4-ジエチルアミノベンズアルデヒド	28.1, -2.2, -8.9
赤	0.25% 4-ジメチルアミノ-2-メチルベンズアルデヒド	33.4, 18.9, 4.4
黄	0.05% 3-イソプロピル-2-ヒドロキシベンズアルデヒド	70.2, -2.3, 38.1
ハズレ	0.25% 3,4-ジヒドロキシベンズアルデヒド	60.4, 8.2, 16.1
ブルー	0.25% 4-ヒドロキシベンズアルデヒド	51.6, 15.4, 8.5
クサシ	0.25% 4-ジエチルアミノサリチルアルデヒド	52.4, 21.0, 16.4
黒	0.5% 3,4-ジヒドロキシベンズアルデヒド	14.1, 0.1, -0.3
濃紺	0.2% 3,4-ジヒドロキシベンズアルデヒド 0.5% 没食子酸	13.8, 0.6, -1.5
焦茶	0.3% 3,4-ジヒドロキシベンズアルデヒド	19.3, 1.1, 2.2
茶	0.4% 3,4-ジヒドロキシベンズアルデヒド 0.1% 2,4-ジヒドロキシベンズアルデヒド	26.6, 2.6, 5.4
緑	0.2% 3,4-ジヒドロキシベンズアルデヒド	25.0, 0.2, 2.3
グレー	0.1% 3,4-ジヒドロキシベンズアルデヒド 0.1% 没食子酸	35.4, 1.3, -0.3

3-3 廃水の環境負荷測定

表-1の条件から濃色を中心にスケールアップ試験を行い，試験機での発色を再現することができた。そこで，環境負荷が大きい濃色物(黒)について本技術と従来染料を用いたときのCOD値を測定し，環境負荷について検討を行った。従来使われているクロム染料を基準として評価したところ本着色方法では60%COD値を削減できた(図-6)。また，クロム染

料に代わる反応染料との比較も行った。比較した染料は赤色であったが、55 %程度の削減が示された。これは、浴中で染料を使わず、染料よりも低分子な成分のみで処理するために、環境負荷値が抑えられたものと考えられる。

表 - 2 堅牢度試験結果

色	耐光	汗(酸)		汗(アルカリ)		摩擦	
		変色	汚染	変色	汚染	乾	湿
青	3以下	4-5	5	4	5	4-5	4
赤	3以下	2	4-5	2	4-5	4-5	4
黄	4	4	5	4	4-5	5	4-5
パープル	4以上	4	4-5	4	4-5	4-5	4
ピンク	3以下	2	4-5	2	4-5	5	4-5
サモン	3以下	3-4	5	3	5	4-5	4
黒	4以上	5	4-5	5	4-5	4-5	3-4
濃紺	4以上	4-5	4-5	4-5	4-5	3-4	3-4
焦茶	4以上	4	4-5	4	4-5	4	4-5

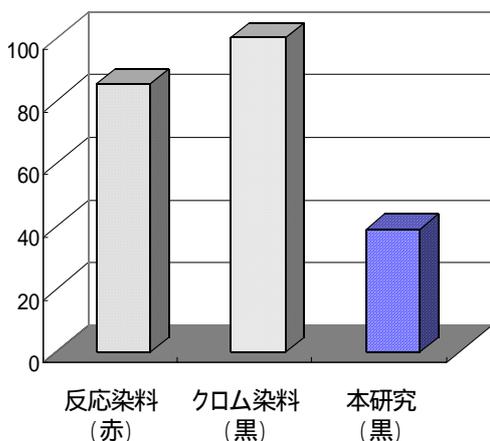


図 - 6 化学的酸素要求量 (CODcr/羊毛1kg処理)
(従来法クロム染料を100として換算)

4 まとめ

福岡県工業技術センターの研究成果である「蛋白質発色による動物繊維の高堅牢な着色」をもとに、羊毛にて12色を発現した。ここでは、発色生成物の構造解析、分子設計指針をもとに多くの芳香族アルデヒド誘導体を用いて、濃度などの条件検討と物性評価を行って最適な発色条件を決定した。特に、世界的に問題となっている含クロム染料を用いず、かつ染料を使わずに深みのある濃色が発現したことは羊毛業界では画

期的な成果であると言える。本稿ではスケールアップについては言及しなかったが、小型染色機で行った試作品はほぼ試験機で行った色を再現でき、濃色については物性も問題なかった。さらに、環境の観点からも本技術は従来の染料よりも大幅にCOD値を削減し、環境低負荷型であることを明らかとした。

また、本技術は蛋白質特異的な発色技術であることから、羊毛以外の蛋白質材料(絹、皮革)の着色や蛋白質認識としての技術展開も期待できる。

5 謝辞

発色理論の確立に関する研究でご協力下さいました熊本大学の坂田賢哉君、太田 太君に感謝します。

6 参考文献

- 1)山田 稔：繊維学会誌「繊維と工業」, Vol.57, No.1, p39(2001)
- 2)中小企業庁編：平成 12 年度調査 中小企業の原価指標, 同友館
- 3)上田充夫：染色工業, Vol.45, No.8, p.368 (1997)
- 4)堂ノ脇靖巳：京染と精練染色, Vol.53, No.2, 1-7 (2002)
- 5)堂ノ脇靖巳：福岡県工業技術センター 平成 11 年度研究報告, Vol.10, 5-8 (2000)
- 6)堂ノ脇靖巳：繊維/染色/仕上 加工技術, Vol.35, No.4, 253-257(2000)
- 7)堂ノ脇靖巳：福岡県工業技術センター 平成 12 年度研究報告, Vol.11, 13-15 (2001)
- 8)堂ノ脇靖巳：福岡県工業技術センター 平成 13 年度研究報告, Vol.12, 1-4 (2002)
- 9)堂ノ脇靖巳：繊維学会誌「繊維と工業」, Vol.58, No.4, 110(2002)
- 10) H. Shosenji, T. Sawada, K. Sakata, K. Donowaki : Proceedings 2nd International Conference on Advanced Fiber/Textile Materials 2002 in Ueda with Forum of Asian Young Scientists on Fiber/Textile Materials, 147(2002)
- 11) 堂ノ脇靖巳ら：繊維の発色制御方法, 特願 2002-130613

トリプトファン選択的反応による蛋白質着色技術の各種検査試薬への応用

浦川稔寛*1 堂ノ脇靖己*1 森田博之*2

Application to the Various Inspection Reagents of the Protein Coloring Technology by the Tryptophan Selective Reaction

Toshihiro Urakawa, Kiyoshi Donowaki and Hiroyuki Morita

本研究ではタンパク質に含まれるアミノ酸のトリプトファン(Trp)に着目し、アルデヒドとトリプトファンの特異的発色反応を利用したタンパク質着色技術の開発について検討した。その結果、タンパク質にリゾチームを用い、各種芳香族アルデヒドと最適な pH 条件で反応を行う事で、タンパク質を発色させることに成功した。また、アルデヒドの種類を変えることで、紫・赤紫・青・緑へと色彩を変更させることが可能となった。トリプトファンは以前から化学反応により着色することが知られており、これを応用してタンパク質が主成分の動物繊維を発色させる技術が開発されているが、本研究によりトリプトファン発色作用が生体中のタンパク質へも適用可能であることを明らかとした。

1 はじめに

近年、各国でゲノム解読競争が激しく行われており、そのゲノム上の遺伝子がコードするタンパク質の機能に関する研究も製薬会社を中心とした医薬・バイオ分野において熾烈に競争が行われている。このような状況下、その目的タンパク質を電気泳動により分析する検査・検出技術は、ますます重要となってきている。

従来、タンパク質の検出は電気泳動分析(SDS-PAGE)により各タンパク質を分析ゲル上で分離した後、目的とするタンパクに特異的に結合する蛍光性物質や色素、もしくは抗体に発色物質を担持させた物質を結合させて検出する方法、タンパク質との親和性が高い銀溶液を数時間反応させて化学的に着色する方法等により行われている。しかし、これらの着色技術には高価な試薬を必要とし、操作も煩雑であるなど多種多様なタンパク質を検出するには費用だけでなく、手間と時間が必要で汎用性に欠く面がある。このような現状の中、汎用的に用いられているタンパク質検出方法には、まだ改善すべき課題が残されていると言える。

一方、アミノ酸の一つであるトリプトファンは反応性の高さから、酸性条件下でアルデヒドと選択的に結合して発色することが知られている。また、アミノ酸はタンパク質の構成要素であり、その中にはトリプトファンも含まれている。よって、トリプトファンを

含んだタンパク質で構成されている物質は着色できるものと考えられる。このコンセプトを基に、主にタンパク質で構成されている動物繊維に着目し、着色反応を応用した動物繊維着色技術が開発されている¹⁾。

ここで視点を変えると、このトリプトファン発色技術は、医薬・バイオ分野で広く汎用されているタンパク質の電気泳動分析(SDS-PAGE)に適用できる可能性がある。つまり、トリプトファン特異的な発色反応を利用すれば、目的とするタンパク質を可視化できる。これは、従来のタンパク質に色素を付加する染色とはまったく異なり、タンパク質自らが発色するもので新規なタンパク質検出技術の開発にも繋がる(図-1)。この技術が実現すれば、高価な試薬と煩雑な操作を必要とした従来に比べて、安価かつ短時間で検査が可能となるものと期待できる。そこで、この技術の実現に向けた可能性を探るべく検討を行った。

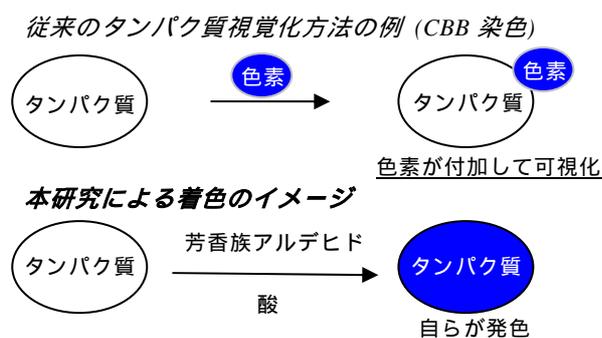


図-1 タンパク質発色の概念図

*1 化学繊維研究所

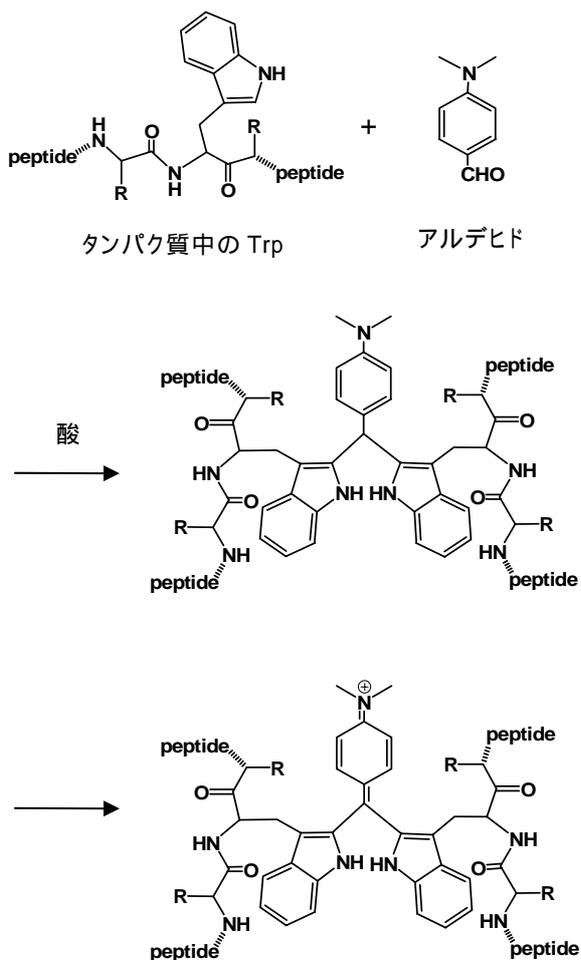
*2 株式会社 ナインラボ

2 実験方法

トリプトファンは酸性条件下、アルデヒドと反応して発色する。この発色反応をトリプトファンなど、アミノ酸の集合体で構成されるタンパク質への適用を目的に以下の項目について検討を行った。

2-1 発色条件の検討

トリプトファン発色反応は以下の反応により発色体へと変化する(スキーム-1)。



スキーム-1 トリプトファン発色反応式

ここでは、反応に必要な酸媒体として塩酸、硫酸、酢酸を用いて発色強度の変化を測定し、評価検討を行った。発色強度の評価は、反応溶液について可視光域の吸光度を測定することで行った。測定は島津製作所製、紫外可視分光光度計 UV-2400 を用いた。

2-2 トリプトファン選択的反応の確認

トリプトファンを6残基含むリゾチームと、それをまったく含まないヒルジン変異体タンパクについて、トリプトファン選択的着色反応の確認を行った。

2-3 カラーバリエーションの拡大

発色タンパク質のカラーバリエーション拡充とタンパク質発色を可能とするアルデヒド類の探索を目的に、各種芳香族アルデヒドとのスクリーニングを行った。実験はリゾチームについて67種類の種々のアルデヒドとの反応を行うことにより発色有無及び色彩を観察した。実験操作は、リゾチームの HCl+酢酸 50% v/v 溶液を用い、この溶液に室温で各種芳香族アルデヒドを添加し、24 時間攪拌した。反応終了後、それぞれについて発色変化を観察して評価を行った。

2-4 電気泳動実験

発色させたタンパク質について、電気泳動実験を行った。サンプルは卵白製リゾチームに芳香族アルデヒド誘導体として 4-Dimethylaminobenzaldehyde (4NMe₂) を導入したリゾチーム(4NMe₂{ Lysozyme(4NMe₂) }と、卵白製リゾチームに 4-Hydroxybenzaldehyde (4OH) を導入したリゾチーム(4OH) { Lysozyme(4OH) } を用いた。発色させたリゾチームはサンプルバッファー(0.125 M Tris/HCl (pH 6.8), 4% SDS, 20% グリセロール, 10% 2-メルカプトエタノール, BPB (プロモフェノールブルー) 0.001%の混合溶液)に溶解させ、それぞれ 2.5 mg/ml, 及び 0.25 mg/ml サンプル溶液とした。その後、各サンプルチューブを5分間煮沸しサンプル調製を行った。電気泳動はリゾチーム(4NMe₂)、及びリゾチーム(4OH)を 2.5 mg/ml, 及び 0.25 mg/ml に調製した各4サンプル、および分子量マーカーを 7.5% ポリアクリルアミドゲルを用いて行った。各 well へのサンプル添加量は 10 µl とした。

3 結果と考察

3-1 発色条件の検討結果

タンパク質におけるトリプトファン発色反応の酸媒体について、塩酸、酢酸(AcOH)、硫酸を用いて検討を行った。検討項目は 塩酸、塩酸+酢酸(50% v/v)、

硫酸、硫酸+酢酸(50% v/v)の4種類とした。また、モデルタンパクには卵白製リゾチーム、トリプトファンと作用するアルデヒドには 4-ジメチルアミノベンズアルデヒド(4-Dimethylaminobenzaldehyde)を選択した。

上記の4条件でそれぞれ3時間の反応を行った結果、いずれも無色の状態から 635 nm に吸収を持つ深青色の溶液へと変化した。0.17 mg/ml のリゾチーム濃度の吸光度を測定した結果、塩酸+酢酸の系に特に大き

な吸収が観察された(図-2)。

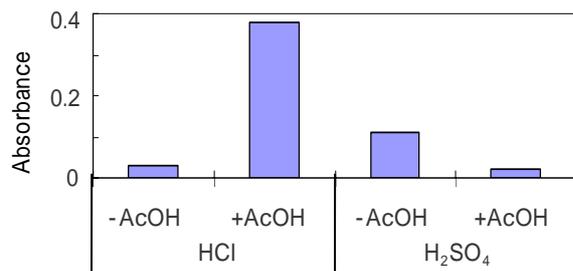


図-2 発色試験結果

タンパク質といくつかのイオンは互いに相互作用を及ぼす事が知られている²⁾。その中で SO_4^{2-} イオンはタンパク質を安定化, Cl^- , AcO^- イオンは不安定化する作用がある。今回の実験において各反応系に発色強度の違いが発生したのは、これら溶液中に含まれるイオンによるタンパク質への相互作用が強く影響しているものと考えられる。特に、塩酸+酢酸の系に発色強度の増加が起こった原因は、この不安定化を及ぼす2因子が作用することで、タンパク質高次構造が崩れてアルデヒドとの反応が起こりやすくなったためであると考えられる。逆に硫酸を用いた系では、 SO_4^{2-} イオンによりタンパク質の構造が安定化し、トリプトファンがアルデヒドと反応しにくい状態を形成し、発色が弱くなったものと考えられる。

3-2 トリプトファン選択的発色反応の確認結果

卵白製リゾチームとヒルジン変異体タンパクの発色試験を行った。反応条件については、3-1の実験から発色性の良かった塩酸+酢酸(50% v/v)の系を用いて行った。その結果、深青色に発色したリゾチームに対して、ヒルジン変異体タンパクではまったく発色することがなかった。各タンパク質 0.17 mg/ml の紫外可視吸収スペクトルを図-3 に示す。

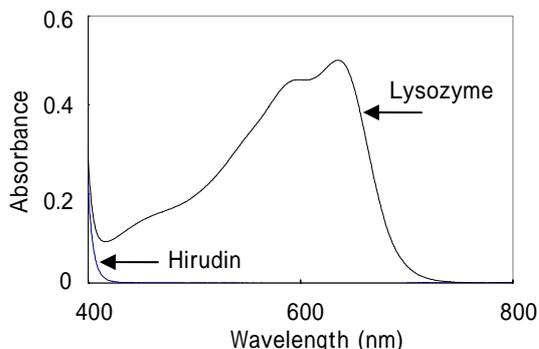


図-3 発色反応後の吸収スペクトル

測定の結果、リゾチームではアルデヒド処理で吸光度

が0.50まで増加していた。しかし、ヒルジンではアルデヒドとの発色反応を行っても可視光域にまったく吸収が見られなかった。卵白製リゾチームはアミノ酸129残基中にトリプトファンを6残基含んでいる。一方、ヒルジン変異体タンパクは66残基中にトリプトファンをまったく含んでいない(表-1)。

表-1 Trp 残基数の比較

	ヒルジン変異体	リゾチーム
全残基数	66	129
Trp 残基数	0	6

トリプトファン以外でリゾチームにあり、ヒルジンに無いアミノ酸はメチオニンとアルギニンだけである。しかし、どちらもアルデヒドとの反応性は乏しく、反応に関与したとは考えにくい。このことから、反応が起こったアミノ酸はトリプトファンであると考えられる。よって、この実験結果からタンパク質中においてもアルデヒドとトリプトファンが選択的な発色反応をしていることが明らかとなった。

3-3 カラーバリエーションの拡大

試験を行った67種類中、発色性が良好であったアルデヒドについて、化合物名、可視光域極大吸収波長、色彩を表-2に示す。

表-2 スクリーニング結果

化合物名	極大吸収波長 (nm)	色彩
4-Dimethylaminobenzaldehyde	630	青
4-Diethylaminobenzaldehyde	628	青
2,3-dimethoxybenzaldehyde	620	青
4-Hydroxybenzaldehyde	523	紫
3,4-Dimethoxybenzaldehyde	550	紫
4-(Diethylamino)salicylaldehyde	584	赤紫
4-Acetamidobenzaldehyde	598	緑

試験した各種アルデヒドから確認されたカラーバリエーションを大別すると青系、紫系、赤紫系、緑系の4種類が確認され、その中の多くは紫系か、もしくは青系の色彩を示した。以上のように、トリプトファン発色反応を利用して、種々のアルデヒドと反応を行うと、タンパク質がアルデヒドに対応した色彩に着色す

ることが確認された。よって、アルデヒドの種類に応じて色彩を自由に变化できることが明らかとなった。

3-4 電気泳動実験結果

リゾチーム(4NMe₂)、及びリゾチーム(4OH)の 2.5 mg/ml、及び 0.25 mg/ml 溶液について電気泳動(SDS-PAGE)を行った。結果を図-4 に示す。

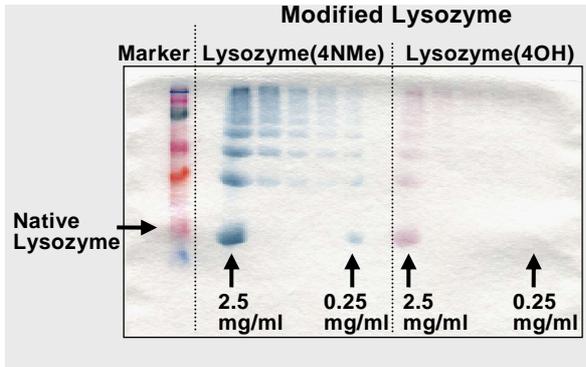


図-4 発色タンパク質の SDS-PAGE 結果

結果は左のレーンからリゾチームを含む分子量マーカー(Marker)、次がリゾチーム(4NMe₂)、リゾチーム(4OH)の順である。各サンプルの 2.5 mg/ml、及び 0.25 mg/ml のレーンを図中に矢印()で示している。また、分子量マーカー(Marker)中のリゾチームを Native Lysozyme として示している。測定結果からアルデヒドにより発色させたリゾチーム(4NMe₂)、リゾチーム(4OH)は共に 2.5 mg/ml のレーンで認識でき、0.25 mg/ml についてはリゾチーム(4OH)では認識できなかったものの、リゾチーム(4NMe₂)については認識が可能となった。更にマーカーのリゾチーム(Native Lysozyme)と同列に泳動されていることが確認できる。このことから、発色したリゾチームは発色前状態と同様に泳動できていることが確認された。

また、各レーンでマーカーのリゾチームと同列でないバンドが確認されたが、これは発色反応がアルデヒド 1 分子に対してトリプトファン 2 分子を必要とすることが要因であろう。つまり、タンパク質分子内のトリプトファンが反応するだけでなく、タンパク質分子間でもトリプトファンが反応しているものと考えられる。しかし、これは重合体であり、SDS-PAGE では等間隔な分子量に相当する生成物のバンドが現れることになる。よって、重合体も分子量に応じたバンドを形成することが判明し、この実験結果から発色反応を利用した分子量マーカーの開発ができる可能性を確認で

きた。

4 まとめ

本報告では、トリプトファン発色反応を利用してタンパク質中のトリプトファンを着色させ、医薬・バイオ分野で広く汎用されている電気泳動(SDS-PAGE)を用いたタンパク質検出への展開を図り、検出に用いる染色キット、分子量マーカーの開発を行う事を目的として検討を行った。そこで、モデルタンパク質に卵白製リゾチームを用い、反応条件の検討、トリプトファン選択的反応の確認、各種アルデヒドとの反応によるスクリーニング試験、そして発色タンパク質の電気泳動を行った。検討の結果、タンパク質においてもトリプトファン発色が可能であること、その反応がトリプトファン選択的であること、アルデヒドに応じた色彩の変化が可能であること、さらに発色処理したタンパク質においても SDS-PAGE が可能であることを明らかとなった。

これらの結果から、目的であったタンパク質を発色させる試みは成功し、タンパク質を可視化することで検査検出技術への応用の可能性を大きく広げることができた。

5 参考文献

- 1) 堂ノ脇靖巳: 福岡県工業技術センター平成 13 年度研究報告, Vol.12, p.1-4(2002)
- 2) Donald Voet: ヴォート生化学(上), p.152, 東京化学同人(1996)

高感度フォトクロミック色素の開発

新規光メモリー用ジアリールエテン誘導体の開発

山口忠承*¹ 野見山加寿子*¹ 諫山宗敏*¹ 入江正浩*²

Development of the High Sensitive Photochromic Dyes

Studies on Novel Diarylethene Derivatives for Optical Memories

Tadatsugu Yamaguchi, Kazuko Nomiyama, Munetoshi Isayama, Masahiro Irie

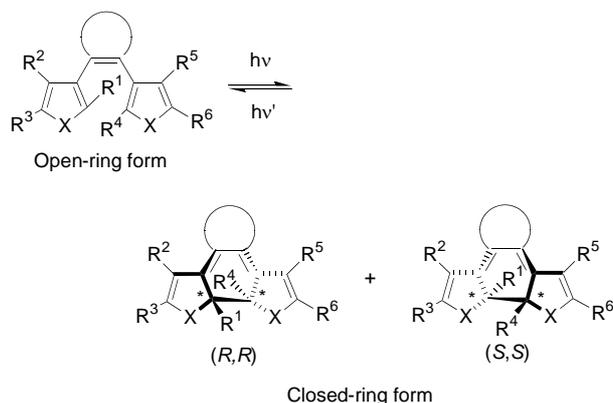
機能性有機フォトクロミック材料として知られているジアリールエテン誘導体は、結晶やアモルファス状態などの固体媒体中でフォトクロミック反応することが知られており、書き換え可能な光ディスクなどの材料として適用できるものと考えられている。しかし、光ディスクとして適用するためには微小領域に情報を書き込む必要があるため、微弱な光照射により高感度にフォトクロミック反応する必要がある。そこで、光ディスクとして適用可能な媒体を作製する目的で、アモルファス媒体中で高感度にフォトクロミック反応性を示すジアリールエテンの合成を行なった。スピコート法を用いてバルクジアリールエテンナノ薄膜を作製し、アモルファス薄膜中における光反応性を評価した。

1 はじめに

フォトクロミック材料は、光にตอบสนองして可逆に色調を変える性質を持っており、この特徴を生かした様々なフォトニクス分野への応用が期待されている。有機フォトクロミック材料の1つであるジアリールエテン誘導体は、光メモリー材料として基本的性能を有していることが確認されている[1]。その中の基本的性能として、結晶、アモルファスなどの固相の媒体中でフォトクロミック反応が起こることが知られており[2-4]、ポリマー分散型のフォトクロミック記録媒体よりも高密度で高感度な光メモリー媒体の作製が可能であると考えられている。

また、ジアリールエテンを光記録材料として用いた場合、ジアリールエテン自身の吸収変化を用いた検出法では、検出に用いる光によって光異性化が促され、何度か情報を検出していくうちに記録された情報の破壊が起こる。このような不都合をなくすため、ジアリールエテン異性化反応に伴う屈折率変化[5]、赤外吸収の変化[6]、旋光性の変化[7]を検出する方法がある。旋光性を用いる変化は、ジアリールエテン閉環体に2つのエナンチオマーが存在することによって起こり、エナンチオ選択的に1つの閉環異性体を生成させることによって不斉光学的変化が生じることに基づいている。閉環異性体はヘリセン類似の

構造になることにより、ジアリールエテンの吸収の無い近赤外の波長域で大きな旋光度を持つ異性体へと変化するため、記録媒体に書き込まれたジアリールエテンの異性化に伴う記録情報を、旋光度を検出する方法によって、記録された情報の非破壊的な検出が可能となる。



そこで、本研究では、不斉置換基を分子内に導入した誘導体を合成し、まず、ジアリールエテンのヘキサン溶液中における不斉光閉環反応について検討した。更に、アモルファス薄膜を作製し、アモルファス薄膜中における不斉光閉環反応について検討を行った。

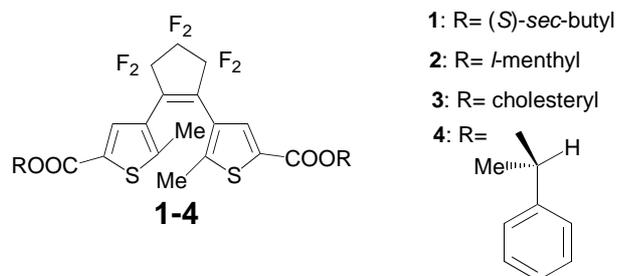
*1 化学繊維研究所

*2 九州大学大学院工学研究院

2 研究, 実験方法

2-1 各種誘導体の合成

各種不斉な置換基を有するジアリールエテン(1-4)を合成した。合成した誘導体は、 ^1H NMR、マススペクトル、元素分析を測定することによって構造を確認した[8]。引き続き、ヘキサン溶液中における吸収スペクトル等を測定した。スピコート法を用いて薄膜を作成し、薄膜の性質について検討した。



3 結果と考察

3-1 溶液中でのフォトクロミズム

ヘキサン溶液中、1-4 はフォトクロミック反応性を示した。図1にヘキサン中における1の吸収スペクトル変化を示す。

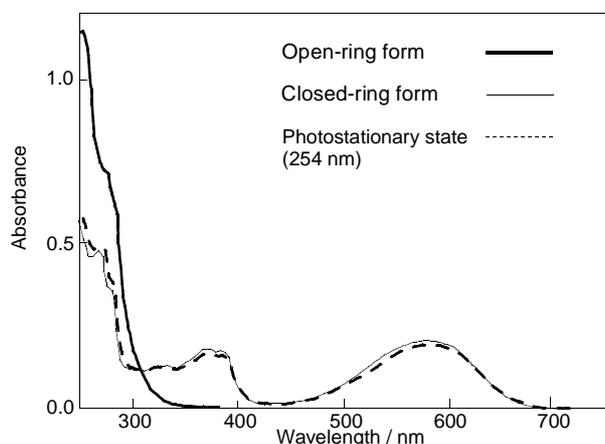


図1 1のヘキサン中の吸収スペクトル

開環体は、250 nm ($\epsilon: 3.41 \times 10^4$) に吸収を示し、閉環体は、582 nm ($\epsilon: 6.1 \times 10^3$), 371 nm, 269 nm, 254 nm に吸収を示す。254 nm 光照射時の光定常状態での変換率は95%であった。他の2-4の誘導体もほぼ同じ形の吸収スペクトルが得られ、キラル置換基の変化による吸収極大波長のシフトは無かった。254 nm 光照射時の光定常状態での

変換率は94-95%でありほぼ同じであった。

光閉環したジアリールエテン 1-4 は、光学活性カラム (Daicel, Chiralcel OD) を用いると、閉環体由来の2つのエナンチオマーに分離可能である。ヘキサン溶液中紫外光を照射すると、ジアリールエテンに基づく2つのエナンチオマーは等量生成した。化合物1の2つの閉環異性体を分離し、円偏光二色性スペクトルを測定した。2つの閉環異性体は、371 nm, 317 nm, 276 nm に極大を持ち、それぞれ逆の符号をもつ曲線として得られた。等量の閉環異性体が生成するので、CDスペクトル上、254 nm 光を照射した変換率94%の光定常状態の時も変化が現われず、開環、光定常状態の間で全く変化は無かった。ジアリールエテンの光異性化の起こらない693 nm 光での旋光度の測定結果も開環体 + 20°, 光定常状態 + 25° とほとんど変化が無かった。

3-2 薄膜中でのフォトクロミズム

次に、1の薄膜を作製し、作製した薄膜のフォトクロミック反応性について検討した。薄膜の作製は、1の結晶を加熱溶解する方法、エーテルに溶かしディップする方法、エーテルに溶かしスピコートする方法を試みた。均一な膜を塗布するためには、スピコート法で行なう方法が適切であった。石英板上に作製した膜の写真を図2に示す。

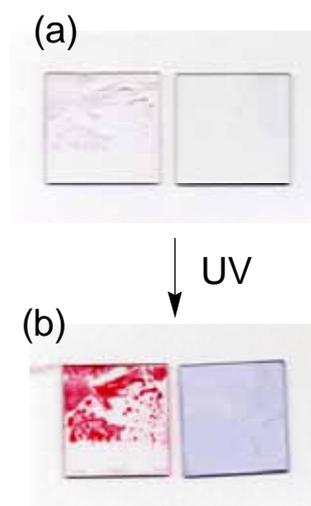


図2 石英板上のジアリールエテン膜の写真 (a) UV 光照射前、(b) UV 光照射後

図2 (a)は UV 光照射前の写真を示す。図の左が結晶中でフォトクロミック反応するビス(2,5-ジメチル-3-イ)ヘキサフルオロシクロペンテン(5)、右が作製した 1 の薄膜を示す。5は、スピンコート後の5分間程度で、石英板上で結晶化するために、安定な膜は作製できなかった。しかし、1 は、石英板上で安定であり、均一な厚さの膜が作製できた。図の石英板上の膜の厚さは約 70 nm であった。

この膜に 334 nm の紫外光を照射すると、フォトクロミック反応を示した(図2 (b))。紫外光照射後、再び可視光(>550 nm 光)を照射すると、もとの図2 (a)の状態へと戻った。

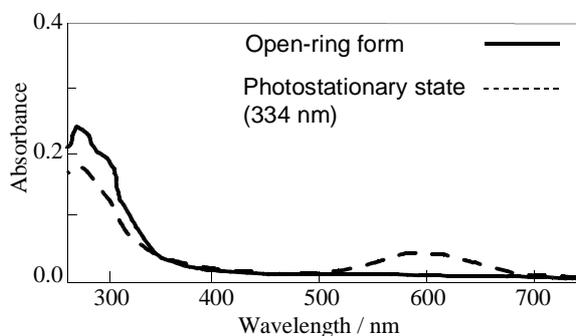


図3 1のアモルファス膜の吸収スペクトル

作製した膜の吸収スペクトルを図3に示す。334 nm の光を照射すると光閉環し、>550 nm の光照射すると開環体が生成した。この作製した薄膜の光閉環反応の量子収率は 0.56(313 nm)で、ヘキササン溶液中の値 0.56 (313 nm)と同じであり、非常に高感度な光反応性を示した。紫外光照射波長における光定常状態時の閉環体の生成の割合は、366 nm 光で 0.5%, 334 nm で 68%, 313 nm で 86%であった。313 nm では、エナンチオ選択的不斉閉環反応は認められなかったが、334 nm、366 nm 光照射時は、エナンチオ選択的不斉閉環反応が認められた。化合物1の場合は、334 nm 光照射時で 24 %d.e.で得られた。薄膜中ではジアステレオ選択的の反応が起こった。

同一ジアリールエテン濃度における PMMA 膜の測定では、ジアステレオ選択的不斉閉環反応は起こらなかった。また、他の誘導体の場合も同様に膜が作成できた。化合物 2 の膜の場合、ガラス転移点は17 に現れる。光照射時の温度変化を検討すると、10 では 10%d.e.の割合

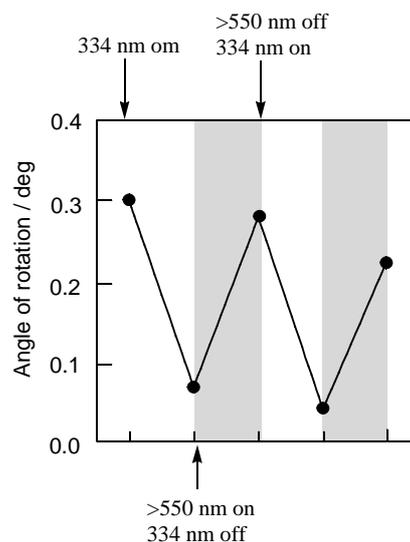


図4 1のアモルファス薄膜中における旋光度変化

で不斉閉環反応するが、25、40 ではまったく不斉閉環しなかった。

波長 766 nm でモニターした、紫外光・可視光を可逆に照射した場合の回転角の変化を図4に示す。334 nm の光を照射すると閉環体の生成に伴って回転角は増大し、>550 nm の光を照射すると開環体となって回転角が減少した。この図に示すように、可視光、紫外光照射により、可逆に回転角が変化した。測定した波長は、ジアリールエテンの異性化する波長ではなく、作成した膜が情報の非破壊検出可能な材料であることを示している。

4 まとめ

今回の実験でナノメートルの厚さの薄膜中で、ジアリールエテンが可逆に異性化し、また、旋光度測定により、情報の非破壊検出可能な材料として適用可能であることを明らかにした。また、量子収率の測定により、溶液中と同様な光応答性を確認することが出来た。今後、不斉閉環の反応の割合が 20%以下であるため、今後この割合を増やすための研究に取り組んでいきたい。

5 参考文献

- 1) Masahiro Irie, Chem Rev. 100 (2000), 1685.
- 2) Tetsuhiro Kodani, Kenji Matsuda, Taro Yamada, Seiya Kobatake and Masahiro Irie, J. Am. Chem. Soc. 122 (2000), 9631.
- 3) Meyong Kim, Tsuyoshi Kawai and Masahiro Irie, Chem Lett. 2001, 702.
- 4) Jerome Chavin, Tsuyoshi Kawai and Masahiro Irie, J. J. Appl. Phys. 40 (2001), 2518.
- 5) Norihisa Tanio and Masahiro Irie, J. J. Appl. Phys. 33 (1994), 1550.
- 6) Kingo Uchida, proceeding of international symposium on photochromic diarylethene 2002, 39.
- 7) Tadatsugu Yamaguchi, Uchida Kingo and Masahiro Irie, J. Am. Chem. Soc. 119 (1997) 6066.
- 8) Tadatsugu Yamaguchi, Kazuko Nomiyama, Munetoshi Isayama and Masahiro Irie, Adv. Mater. in press.

混練装置を利用した加硫ゴムの高温微粉碎技術の開発

吉海和正^{*1}, 鍛冶茂樹^{*1}, 野見山加寿子^{*1}, 藤 道治^{*2}

The research of recycling technology of the vulcanized rubber waste by the fine grinding

Kazumasa Yoshikai, Shigeki Kaji, Kazuko Nomiyama

100～150 程度の高温下で混練装置により高剪断力を負荷して加硫ゴムの微粉碎（高温微粉碎）することを検討した。混練装置を使って高温下で高剪断力を負荷することによって加硫ゴムは微粒子状のゴム粉にまで破壊されるが，そのままではゴム粉同士が融着するため微粒子状での回収は困難であった。シリカ等のフィラーを加硫ゴムに対して10重量部程度添加した上で混練装置に投入して高温微粉碎を行うと，融着が防止され微粒子状のゴム粉を高収率で回収可能であった。2軸押出機を使って連続プロセスで加硫ゴムの高温微粉碎し，高収率で微粒子状のゴム粉を回収可能であることを明らかにした。今後，高温微粉碎技術を用いて加硫ゴムをリサイクルすることが期待できる。

1 はじめに

加硫ゴムは高いゴム弾性のため微粉碎することは容易ではなく，しばしば液体窒素等で冷却してゴム弾性を消失させた上で微粉碎が行われている¹⁾。一方，加硫ゴムは100 以上の高温下では強靱性が急激に低下し，150 度では強靱性の尺度である抗張積が室温での10分1以下にまで低下する場合もある²⁾。このことは，高温下ではゴムを比較的容易に破壊して微粉碎することが可能であることを示している。筆者らは，加硫ゴムの微粉碎方法として2軸押出機のような混練装置を利用して，高温下で高剪断力を負荷して微粉碎することを考えた。混練装置であれば150 程度の温度は容易に設定可能であり，高温下で強靱性の低下した加硫ゴムは負荷される高剪断力で容易に破壊可能と考えられる。また，混練装置は比較的小ロットでの処理が可能であり，温度や剪断力の設定範囲を広範囲に変えることも容易に可能である。従って，混練装置を利用した加硫ゴムの微粉碎方法は，少量多品種の加硫ゴムの小ロットで微粉碎可能な方

法であり，少量多品種のため困難とされてきた加硫ゴム廃棄物のリサイクルへ利用することが期待できる。

本研究では，2軸押出機を利用して加硫ゴムの高温微粉碎することについて検討したので報告する。

2 実験方法

2-1 加硫ゴム試料

加硫ゴム試料は，当所にて2mm厚にプレス加硫して作製したスチレン-ブタジエンゴム（SBR）のシート（SBR試料），0リングの成型工程で排出されたニトリルブタジエンゴム（NBR）のバリ（NBR試料），更正タイヤの製造工程で排出された天然ゴム（NR）とSBRより成るバフ粉（NR/SBR試料）を用いた。表-1にSBR試料の配合を，表-2にNBR試料とNR/SBR試料の分析結果を

SBR	100
ZnO	3
StAc	3
S	1.75
C.B.(HAF)	50
BBS	1
オイル	9
加硫条件	170 × 8min

*1 化学繊維研究所

*2 久留米高専

表-2 NBR試料及びNR/SBR試料の分析結果

	NBR	NR/SBR
アセトン抽出分/%	15.6	5.1
ゴム分/%	42.2	61.0
カーボンブラック分/%	36.6	29.4
灰分/%	5.6	4.5

示す。

フィラーは、湿式シリカ（ニブシールV N3：日本シリカ製）、乾式シリカ（アエロジル#200：日本アエロジル製）、カーボンブラック（HAF旭#70：旭カーボン製）、酸化亜鉛、重質炭酸カルシウム、タルクを用いた。

2-2 高温微粉砕

ブラベンダー社製プラスチックコーダーPL-2001に装着したパッチ式の試験用混練装置（容量55ml、ローラー型ブレード）を用いて予備実験を行った後、神戸製鋼所製の2軸押出機KTX-37（スクリー径：37mm、L/D：30、スクリー/ハレルキヤップ：0.3mm、同方向回転）を用いて高温微粉砕の実験を行った。

3 結果と考察

3-1 試験用混練装置による高温微粉砕

SBR試料を試験用混練装置に投入して、設定温度：100℃、ブレード回転数：80rpm、試料の充填率：80%、粉砕時間：5分の条件で高温微粉砕を行った。粉砕時の試料温度は、剪断発熱のため150℃程度まで上昇した。回収したゴム粉の500μm以下の微粒子成分の含有率は15%程度であった。回収したゴム粉の中で大粒径のものは、微粒子同士が融着したような形態を示していた。この融着は強固ではなく比較的容易にほぐすことが可能であった。また、粉砕時間や設定温度を変えた場合は、粉砕時間が長くなるほど、粉砕時の試料の温度が高くなるほど、融着は顕著であった。高温によってゴム粉の表面が可塑化して融着が生じたものと考えられる。大粒径のゴム粉が微粒子の融着で形

成されていることは、高温と高剪断力によって加硫ゴムの破壊による微粒子化自体は進んでいることを示す。従って、融着を効果的に防ぐことさえできれば微粒子成分を高収率で回収可能であると考えられる。そこで、シリカ等のフィラーを粉砕時に添加して打ち粉のような働きをさせることによって融着を防止することを検討した。

3-2 フィラーの添加による融着防止

SBR試料に対してフィラーを添加した上で、試験用混練装置に投入して高温微粉砕を行った。フィラーは、湿式シリカ（以下単にシリカと記述）、カーボンブラック、乾式シリカ、酸化亜鉛、タルク、炭酸カルシウムを用いた。添加量は、シリカを用いた場合は試料に対して10重量部を基本とし、他のフィラーの場合はシリカの10重量部と同一体積となる量を添加した。

図-1に、シリカを添加して高温微粉砕を行った場合の、粉砕時間と297μm以下及び500μm以下の微粒子成分の収率の関係を示す。シリカを添加したことと粉砕時間以外の条件は、3-1の場合と同様である。粉砕時の試料の温度は、剪断発熱のため160℃程度まで上昇した。粉砕時間5分で収率はピークに達し、297μm以下の粒径成分が約40wt%、500μm以下の粒径成分が約60wt%の収率で得られた。粉砕時間

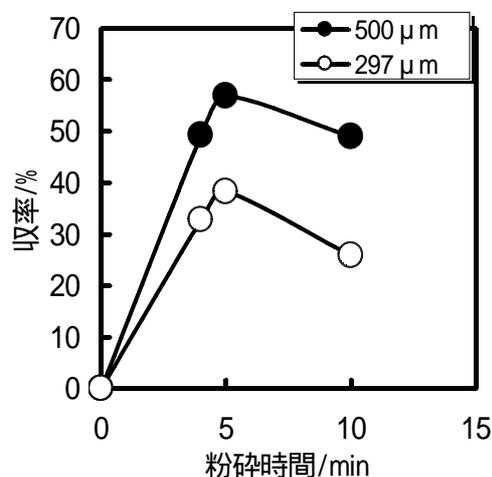


図-1 粉砕時間と微粒子成分の収率

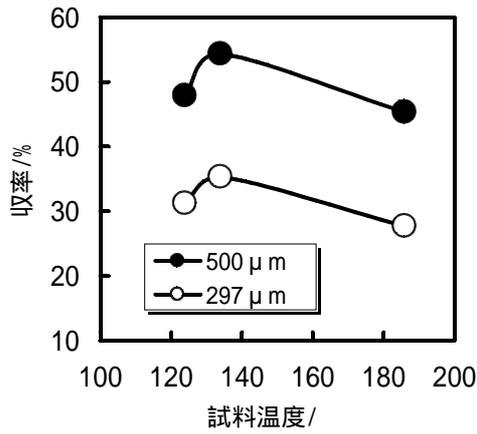


図-2 試料温度と微粒子成分の収率

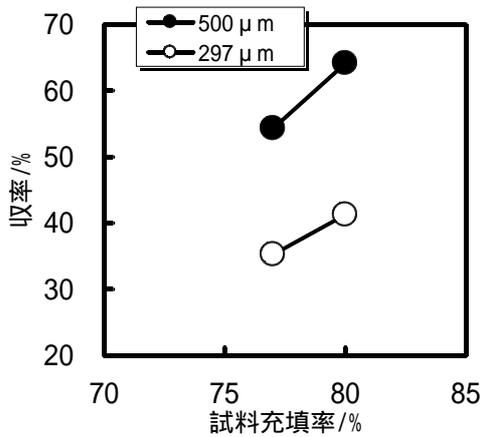


図-3 試料充填率と収率

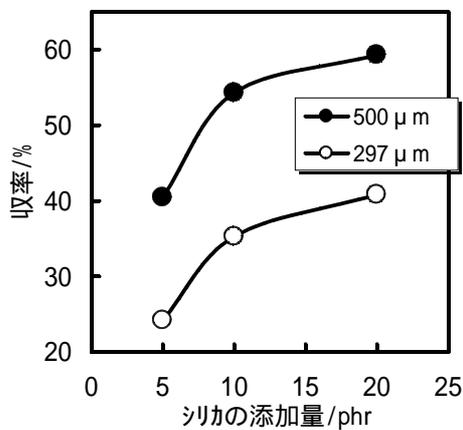


図-4 シリカの添加量と微粒子成分の収率

が5分を超えると収率が低下しているが、これは長時間の混練により表面が可塑性したゴム粉にシリカが取り込まれて、凝集防止効果が低下したためではないかと考えられる。図-2~4に高温微粉碎の条件と500 μm以下及び297 μm以下の粒径成分の収率の関係を示す。収率は、温度、試料の充填率を調整することで向上した。シリカの添加部数を増加させると収率も向上するが、10部以上では添

加部数増加の効果は少なかった。

シリカ以外のフィラーを用いた場合は、カーボンブラック（HAF）や乾式シリカのようなゴムに対する補強性を有するフィラーでシリカと同様に良好な結果が得られた。

3-3 2軸押出機による高温微粉碎

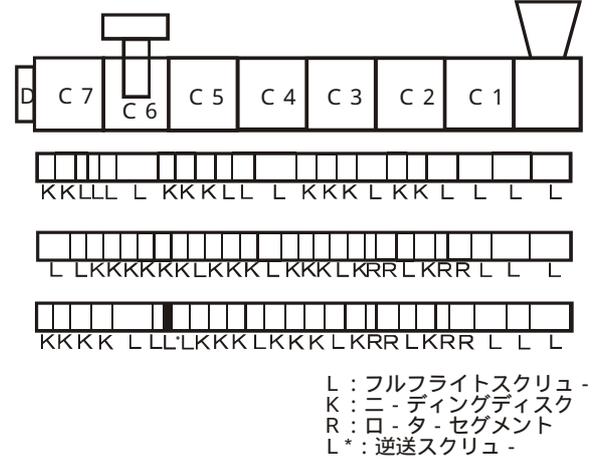


図-5 2軸押出機のシリンダー構造とスクリー構成

表-3 2軸押出機のシリンダー温度設定

	C7	C6	C5	C4	C3	C2	C1
設定	150	150	150	150	150	130	120
設定	120	80	120	120	120	120	100
設定	120	80	100	120	120	120	100
設定	100	60	80	100	100	100	80

試料にシリカを10重量部予備混合した後、2軸押出機に投入して連続プロセスで高温微粉碎を行った。図-5に使用した2軸押出機のシリンダーの構造とスクリー構成を示す。シリンダーは7つのゾーンより構成されており、各ゾーン毎に温度設定可能である。C6のゾーンにはベント口が開いており、この部分ではシリンダー内に圧力がかからない構造になっている。スクリー構成のは、プラスチックにフィラーを高充填するために設計されたスクリー構成であり、比較的高い剪断力を負荷できる構成である。は、をベースとしてより高剪断力を負荷できるようにニーディングディスクやロータセグメントを多数組み込んだスクリー構成である。は、ベント口前のC5のゾーンにおいて試料が高充填状態となるようにC6の直前に逆送スクリーを組

表-4 2軸押出機によるNBR試料の高温微粉碎結果

	E-1	E-2	E-3	E-4	E-5	E-6	E-7	E-8	E-9
ゴム	NBR								
スクリー回転数/rpm	200	200	100	200	100	200	200	200	200
フィード量/kg/h	15	5	15	15	10	10	20	20	20
スクリー構成									
設定温度									
500 μm 含有率/%	46.5	35.0	46.4	50.0	66.6	71.4	78.0	73.6	82.0
297 μm 含有率/%	27.6	19.8	27.2	30.5	50.6	56.6	60.4	55.5	62.6

み込むと共に，C5の部分に高剪断力を負荷できるニーディングディスクを連続して組み込んだスクリー構成である。表-3に検討したシリンダー温度設定を示す。のスクリー構成の場合においては，実質的な粉碎ゾーンであるC5において最適条件となるような温度設定とした。表-4に2軸押出機を使いNBR試料を用いて高温微粉碎を行った結果を示す。

のスクリー構成で粉碎を行った場合，フィード量を増加させて試料の充填率を増加させること及びスクリー回転数を増加させることで，500 μm以下と297 μm以下の粒径成分の収率向上が認められたが，最高でも500 μm以下の収率が50%程度であった。また，同一の条件であれば，よりも高剪断力が負荷できると考えられるのスクリー構成の方が，良好な結果を示した。のスクリー構成で粉碎を行った場合は，の場合とほぼ同一の条件で比較した場合においても，500 μm以下と297 μm以下の粒径成分の収率が大幅に向上した。さらに，C5の設定温度を最適化すると共にフィード量を増加させると，297 μm以下の粒径成分の含有率が60%以上，500 μm以下の粒径成分の含有率が80%以上のゴム粉を回収できた。この時，試料投入から回収までの時間は1分程度であり，非常に高い効率で加硫ゴムを微粉碎可能であることが明らかになった。以上の結果より，2軸押出機を用いた高温微粉碎においては，微粒子成分の回収率向上のためには，スクリー構成の設定

が最も重要な操作条件であると考えられる。次いでシリンダー温度の設定，スクリー回転数，フィード量が重要な操作条件であると考えられる。シリンダー内での試料の充填率と粉碎時の試料の温度を上記の操作条件によって制御しているためであると考えられる。表-5にのスクリー構成によってSBR試料とNR/SBR試料を高温微粉碎した結果を示す。SBR試料はNBR試料とほぼ同様に高収率で微粒子成分を回収可能であった。一方，NRを含む場合は，微粒子成分の回収率はNBR，SBRと比較して低くなった。

表-5 2軸押出機によるSBR,NR/SBR試料の高温微粉碎結果

	E-10	E-11	E-12
ゴム	SBR	NR/SBR	NR/SBR
スクリー回転数/rpm	200	200	200
フィード量/kg/h	20	20	20
スクリー構成			
設定温度			
500 μm 含有率/%	78.1	48.8	53.0
297 μm 含有率/%	57.2	26.6	30.7

4 まとめ

混練装置を利用した高温微粉碎によって，加硫ゴムを高効率で微粉碎可能であることを確認した。小回りの利く混練装置を用い，小ロットで効率良く加硫ゴムを微粉碎可能な高温微粉碎は今後，加硫ゴムのリサイクル技術としての利用が期待できる。

5 参考文献

- 1) 寺沢 広，松崎 俊雄，戸倉 健郎：日本ゴム協会誌，52,271(1979)
- 2) 日本合成ゴム(株)編：JSR HANDBOOK 改訂新版第2版，189(1985)

高性能ノーマルモード型（高分子／液晶）複合膜の開発

蓮尾 東海¹ 山口 雅裕¹ 梶山 千里² 菊池 裕嗣² 郡島 友紀³ 木村 礼子³
北村 輝夫⁴ 馬場 潤一⁴ 河内 孝明⁵ 齋藤 伸一⁶ 天谷 直之⁷ 海谷 法博⁷

Development of High-performance Normal Mode Type (Polymer/Liquid Crystal) Composite Films using UV curable monomers

Haruumi Hasuo, Masahiro Yamaguchi, Tisato Kajiyama, Hirotsugu Kikuchi, Tomoki Gunjima, Reiko Kimura,
Teruo Kitamura, Junnichi Baba, Takaaki Kawachi, Shinichi Saitou, Naoyuki Amaya, Norihiro Kaiya

（高分子／液晶）複合膜の性能向上を目的として、新規な2官能モノマーとしてビニルエーテルアクリレート系モノマーを用い、その添加量、作製条件等の検討を行った。その結果、ジビニルエーテル系複合膜と同程度のシャープネス 1.34、駆動電圧 5.05V を達成できた。さらに、第3モノマー成分として HDDVE を添加する事により複合膜性能を向上する事が明らかとなり、TL213 / TMHA / ACCHMVE / HDDVE = 80 / 17.5 / 1.5 / 1.0 の組成比で調製した複合膜材料は、駆動電圧 4.35V、シャープネス 1.29、コントラスト 77 の高性能を示した。

1 はじめに

（高分子／液晶）複合膜は、従来の液晶表示素子と異なり液晶機能を柔軟なフィルム内で発揮させることができ、偏光板を必要としない光散乱に基づく新しい光スイッチングモードである。この（高分子／液晶）複合膜は、光の利用効率の飛躍的な向上が期待できるだけでなく、液晶のみでは実現できない機能の展開ができる新規ハイブリッド型材料として注目されている¹⁾。その作製法及び機能物性は梶山らによって初めて報告され²⁾、その後基礎および応用研究が盛んに進められているが、複合膜の要素と特性の関係は十分に解明されているとは言えず、今なお高コントラストと低電圧駆動及び低ヒステリシスを同時に満たすことが課題となっている。

ノーマルモード型（高分子／液晶）複合膜の表示素子としての実用化を図る上で重要な電気光学特性としては、駆動電圧、シャープネス（ γ ）、コントラスト等が挙げられる。これらの諸特性を決定する要因としては、駆動電圧では液晶ドメインサイズ、液晶の誘電

異方性（ ϵ_{\parallel} ）、及び液晶／高分子間の相互作用、シャープネスでは液晶ドメインサイズの均一性、コントラストでは液晶ドメインサイズ及び形状、使用する液晶の複屈折（ n ）等が考えられる。これらの要因は使用する液晶の特性だけでなく、高分子（モノマー）の性質に大きく依存すると考えられる。

本研究では、大面積ノーマルモード型（高分子／液晶）複合膜の表示素子としての応用・実用化を目的とし、モノマー、液晶等材料の検討、作製条件の最適化を行うことにより複合膜性能の向上を行う。これまでに複合膜特性を目指し、モノマー種の探索、作製条件の最適化を行ってきており^{3),4),5)}、液晶にフッ素系液晶 TL213（Merck社製）、単官能モノマーに TMHA、2官能モノマーに 1,6-Hexanedil Divinylether（以下 HDDVE）を用いることにより、従来のアクリレート系モノマーに比べ複合膜性能が飛躍的に向上する事を明らかにした。しかし、この高性能材料を用いてフレキシブル大面積複合膜を作製すると、透明剥離等により均一な複合膜の作製が出来なかった。ビニルエーテル基はアクリレート基に比べて反応性が低く、単独では重合反応が進行しない。このためアクリレート系モノマーに比べ生成する高分子の分子量、及び強度の低下すると考えられ、上記不具合の一因と

1化学繊維研究所 2九州大学 3福岡県新産業・技術振興財団 4正興電機製作所(株) 5九州電力(株)
6チッソ石油化学(株) 7日本油脂(株)

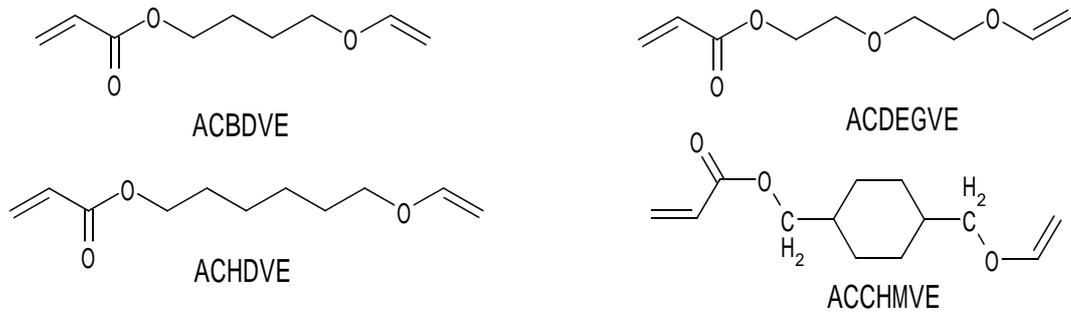


図 - 1 今回使用した 2 官能モノマーの構造

なっていると推測される。フレキシブル大面積複合膜作製の実現には高性能を維持し且つ前述の問題点を解消できる新規モノマーの開発が必要である。本研究では、複合膜性能の更なる向上およびフレキシブル化の実現を目的とし、一方の末端官能基にビニルエーテル、もう一方に反応性の高いアクリレート基を有する 2 官能モノマーの検討、及び作製条件の最適化を行った。

2. 実験

2 - 1 ノーマルモード複合膜の作製方法及び電気光学特性測定

今回合成した 2 官能モノマーの構造を図 - 1 に示す。複合膜の作製は、液晶 TL213 (Merck), 単官能モノマー 3,5,5-Trimethylhexyl Acrylate (以下 TMHA; Aldrich), 合成した 2 官能モノマー、及び光重合開始剤 2,2-Dimethoxy 2-phenyl acetophenone (以下 DMAP) を所定の重量比で混合し、T_c点 (透明点) 以上の温度で ITO 電極付き標準ガラスセルに導入後、恒温プレート上で標準ガラスセルを所定温度、所定の UV 照射強度 (トスキューア-251, 360nm) で所定時間 UV 照射することにより行った。得られた複合膜の電気光学特性の測定は、高集光角 (集光角 6°) 電界印加装置を用い、1kHz の方形波を 2V_{rms}/sec. で変調させた AM 波を最大 20V まで印加し、印加電圧に対する複合膜の透過率変化 (ヒステリシス曲線) を測定・算出することにより行った。ここでは、電界無印加時の光透過率を T₀、電界印加時飽和透過率を T₁₀₀、透過率 80% 時の印加電圧を V₈₀、透過率 80% 時の印加電圧を透過率 5% 時の加印

電圧で除した値をシャープネス (V₈₀/V₅), V₈₀ 時の透過率を式 (1) より算出した V_{off} (V_{on} = V₈₀, N=8 として算出される電圧) 時の透過率で除した値をコントラストとして定義する。

$$\frac{V_{on}}{V_{off}} = \sqrt{\frac{\sqrt{N} + 1}{\sqrt{N} - 1}} \quad (1)$$

3. 結果

3 - 1. ビニルエーテルアクリレート系モノマーを用いた複合膜の作製条件最適化

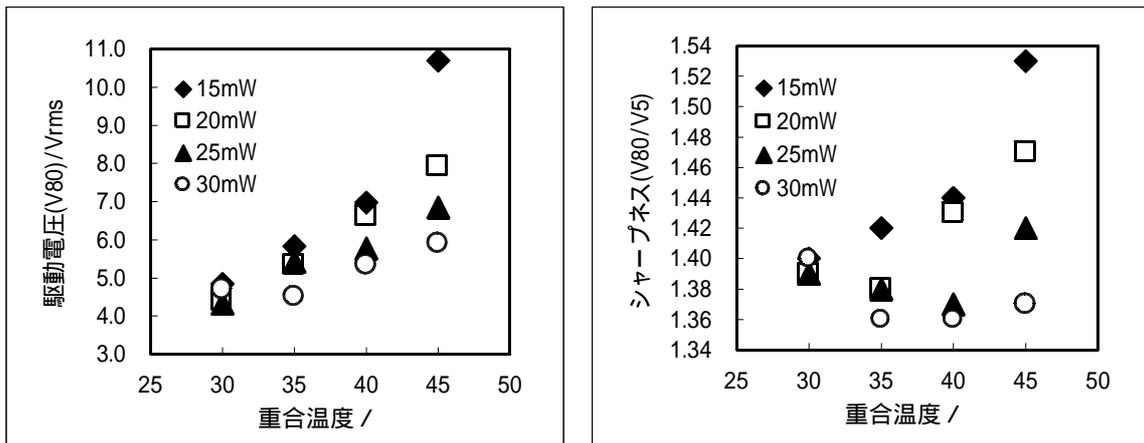
液晶 (TL213) を 80wt%, モノマー全体量を 20wt%, DMAP をモノマーに対して 5wt% に固定した時の TMHA / ACBDVE 混合比の影響を調べた (表 - 1 参照)。ACBDVE 添加量を 1.5 から 3.0wt% の間で変化させたところ駆動電圧 (V₈₀), シャープネスにおいてそれぞれ最適値を有することが明らかとなった。今回は最も良好なシャープネス及びコントラストを示す添加量条件 2.5wt% を選択した。次に 2 官能モノマーに ACBDVE を用いた時の作製条件 (重合温度, UV 照射強度) の影響を図 - 2 に示す。駆動電圧は、重合温度の上昇に伴い増加、照射強度の増加に伴い低減する傾向が見られる。しかし、シャープネスは、重合温度に対して最適値を有しており、重合温度 40 の時に最も低いシャープネス 1.36 を示した。駆動電圧, シャープネス, コントラスト等の複合膜性能のバランスを考慮すると、作製条件: 40 - 30 秒 / 30mW/cm² が最適であると考えられる。

他の 3 種の 2 官能モノマーについてもそれぞれ添加量

表 - 1 ACBDVE モノマー添加量の影響

ACBDVE(wt%)	T ₁₀₀ (%)	T ₀ (%)	駆動電圧(V)	シャープネス	コントラスト
1.5	72.8	6.63	9.59	2.90	1.40
2.0	85.7	0.82	4.88	1.61	6.82
2.5	84.5	0.40	7.83	1.45	13.3
3.0	80.2	-0.50	14.70	1.51	10.7

作製条件: 40 - 60sec / 15mWcm⁻²



TL213/ACBDVE/TMHA=80/2.5/17.5, Photoinitiator: DMAP (5w% based on monomer)

図 - 2 ACBDVEを2官能モノマーとして用いた時の複合膜作製条件の影響

表 - 2 最適条件で作製した複合膜におけるモノマー種の影響

	T100 (%)	T0 (%)	駆動電圧 (V)	シャープネス	コントラスト
ACBDVE	81.8	0.30	5.34	1.36	27.0
ACCHMVE	83.5	0.48	5.05	1.34	42.1
ACHDVE	84.2	0.12	5.40	1.37	29.8
ACDEGVE	83.2	1.20	6.48	1.52	8.36

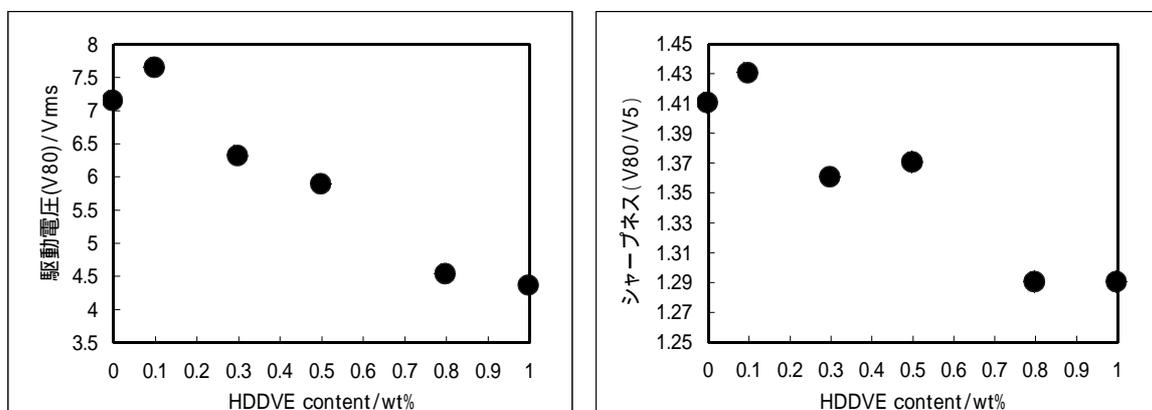
作製条件: TL213/TMHA/2官能モノマー = 80/17.5/2.5(wt%), 40 -30sec / 30mWcm⁻²

、作製条件の最適化を行ったところ、ACBDVE とほぼ同様の傾向を示した。この最適条件でのビニルエーテルアクリレートモノマー種の影響を表 - 2 に示す。ACCHMVE を用いて最適条件で作製した複合膜は、4種のモノマー中で最も良い特性を示し、駆動電圧 5.05V、シャープネス 1.34、コントラスト 42.1 の高性能を達成した。

3 - 2. 第3モノマー成分の添加の影響

(高分子 / 液晶) 複合膜特性の更なる向上を目的とし、TMHA / ACCHMVE混合モノマーへの第3モノマー

成分の添加の影響を調べた。第3モノマー成分としては、これまでの研究において良好な複合膜性能を発現することが確認されている2官能モノマー1,6-Hexanediol Divinyl ether (以下HDDVE)を用いた。液晶 (TL213) を80wt%、単官能モノマー (TMHA) を17.5wt%、2官能モノマーを2.5wt%に固定し、2官能モノマーの組成を変化させ、最適条件下で複合膜作製を行った (図 - 3 参照)。その結果、HDDVE添加量の増加に伴い複合膜性能が向上し、HDDVE添加量が1.0wt%の時、駆動電圧4.35V、シャープネス1.29、コントラスト77の高性能を示した。今回作製した複合膜とこれま



TL213/TMHA/ACCHMVE/HDDVE=80/17.5/(2.5-x)/x; x=0 ~ 1.0wt%
Photoinitiator: DMAP (5w% based on monomer)

図 - 3 第3モノマー成分 (HDDVE) 添加の影響 (ACCHMVE系)

表 - 3 複合膜の電気光学特性

	開発した複合膜	従来の複合膜
T100 (%)	82.8	85.0
T0 (%)	0.13	0.25
駆動電圧 (V)	4.35	6.20
コントラスト	77.1	5.67
シャープネス	1.29	1.67

TL213/TMHA/ACCHMVE/HDDVE=80/17.5/1.5/1.0 (wt%)
Photoinitiator: DMAP (5wt%), 40 -30sec/30mWcm⁻²

でのジアクリレート系 2 官能モノマーを用いた複合膜を比較すると(表 - 3), 駆動電圧で約 2V 低減, コントラストに関しては 10 倍以上向上しており, 大幅な複合膜性能向上に成功した。

3 - 3 . モノマー材料の接着せん断強度測定

2 cm 幅短冊状の ITO/PET フィルム 2 枚の先端部にモノマー材料を導入, UV 重合する事により接着(接着面積 2 × 2 cm)した物を試験試料とし, 接着せん断強さを測定した(表 - 4 参照)。製膜後に不具合が生じた HDDVE モノマー系の最適条件モノマー組成と ACBDVE モノマー系の最適作製条件近辺の組成で作製した試料の引張りせん断強さを比較すると, ACBDVE のの方が約 2 倍の高いせん断強度(540kPa)を示すことが明らかとなった。これは, 反応性の高いアクリレート基をモノマー構造に導入することによって高分子の分子量, 強度などが向上したためと推察され, HDDVE 系で生じた透明剥離等不具合の解消が期待される。

表 - 4 モノマー材料の接着せん断強度

	モノマー組成	
	単官能モノマー	TMHA (90wt%)
2 官能モノマー	ACBDVE (10wt%)	HDDVE (30wt%)
重合開始剤	DMAP (1wt%)	DMAP (1wt%)
接着せん断強さ (KPa)	540	280

重合条件: 40 -48sec / 25mWcm⁻²

3 - 4 . フレキシブル(高分子 / 液晶)複合膜素子の試作

ビニルエーテルアクリレートモノマー ACBDVE を用いてロール装置による幅 30cm のフレキシブル(高分子 / 液晶)複合膜の試作を行った。フィルム基板には ITO 透明電極付き PET フィルムを用いた。作製したフィルムの電気光学特性を表 - 5 に示す。評価用ガラスセルと比較するとシャープネス, 及びコントラスト等の性能が低下する事が明らかとなった。しかし, HDDVE 系複合膜で見られたような透明剥離が発生せ

ず, 均一な複合膜の作製が可能となった。

4 . まとめ

(高分子 / 液晶)複合膜の性能向上を目的として, 新規な 2 官能モノマーとしてビニルエーテルアクリレート系モノマーを用いて作製条件等の検討を行った。その結果, ジビニルエーテル系複合膜と同程度のシャープネス 1.34, 駆動電圧 5.05V を達成できた。第 3 モノマー成分として HDDVE を添加する事により複合膜性能が更に向上し, 駆動電圧 4.35V, シャープネス 1.29, コントラスト 77 の高性能複合膜材料の作製に成功した。

また, 今回合成したビニルエーテルアクリレートモノマーを用いることにより ITO/PET フィルムとの接着性が向上し, HDDVE 系フレキシブル複合膜で発生した透明剥離等の不具合が解消された。しかし, 今回の複合膜材料を用いて作製したフレキシブル複合膜は, 試験用ガラスセルに比べ性能低下が見られた。今後, フレキシブル複合膜での高い複合膜性能の実現を目的とし, 複合膜材料の粘度等の改良による装置への適合, ロールプロセスでの作製条件最適化等材料と装置両方からのアプローチが必要があると考えられる。

表 - 5 (高分子 / 液晶)複合膜フィルム素子の特性

	フィルム素子 ^{*1}	評価用ガラスセル ^{*2}
T100 (%)	73.1	81.8
T0 (%)	0.04	0.30
駆動電圧	4.81	5.34
シャープネス	1.41	1.36
コントラスト	18.7	27.0
Hystresis (V)	0.86	0.84

作製条件: *1:40 -30sec/35mWcm⁻², *2:40 -30sec/30mWcm⁻²
複合膜材料: TL213/TMHA/ACBDVE = 80/17.5/2.5 (wt%)

5 . 参考文献

- 1) 梶山千里, 他 1 名: 日本化学会誌, No.10, 1019 (1992)
- 2) 梶山千里, 他 3 名: Chem.Lett, 679 (1979)
- 3) 山口雅裕, 他 1 名: 福岡県工業技術センター 平成 10 年度研究報告, P84
- 4) 山口雅裕, 他 1 名: 福岡県工業技術センター 平成 11 年度研究報告, P55
- 5) 蓮尾東海, 他 9 名: 福岡県工業技術センター 平成 13 年度研究報告, P14
- 6) 郡島友紀, 他 8 名: ILCC, Prepr. (2002)

誘電体薄膜の形成と機能性に関する研究

- 熱処理における構造の変化と電気的特性の変化 -

藤吉国孝*¹ 有村雅司*² 牧野晃久*² 山下洋子*¹

Study on Preparation and Functional Estimations of Ferroelectric Thin Film

- The Change of dielectric properties and structure of Barium Titanate Thin Films -

Kunitaka Fujiyoshi, Masashi Arimura, Teruhisa Makino, Yoko Yamashita

チタン酸バリウムの結晶性ナノ粒子及びそれを用いて作製した薄膜の、熱処理過程における電気的特性の変化及び膜の構造等について検討した。その結果、熱処理温度を高くするとチタン酸バリウムの生成・粒成長が起こり、比誘電率は増加することが確認された。一方、誘電損失は 550 ~ 650 で最も低かった。これは、450 以下では残存有機物や-OH 基が存在するため誘電損失が大きく、750 以上では空孔やクラック等の空隙が生じるため、誘電損失が大きくなると考えられる。

1 はじめに

チタン酸バリウムはコンデンサーやメモリー等に用いられている代表的な誘電体材料であり、一般的には固相反応法で合成されている。しかし、固相反応法では組成の不均一性や異相析出、不純物混入、粗粒子生成、高温焼成が必要といった様々な問題点がある。これらの問題点を改善する為の方法として、溶液中の化学反応でチタン酸バリウム結晶を合成可能な液相合成法(クエン酸・シュウ酸を用いる方法やゾルゲル法)が検討されている。

ここで、下岡、桑原らは、高濃度金属アルコキシド前駆体溶液を用いてチタン酸バリウムの結晶性ゲルを合成しており¹⁾、この結晶性ゲルを用いて透光性セラミックスを作製している²⁾。一方我々は、これまで、この結晶性ゲルを分散させた溶液を用いてチタン酸バリウム薄膜を作製してきた³⁾。

この結晶性ナノ粒子を用いたチタン酸バリウム薄膜の作製方法を、我々はナノ粒子コーティング法と呼んでいる。ナノ粒子コーティング法では、まず金属アルコキシド溶液に水分を添加し、エージング処理を行うことで、加水分解・重縮合反応により、結晶性ナノ粒子を含んだゲルを合成する。ついで、この結晶性ナノ粒子を有機溶媒中に分散させ、コーティング溶液とし、

この溶液を基板上に塗布し、熱処理することで薄膜を作製している。

ここで、我々が検討しているナノ粒子コーティング法と一般的なゾルゲル法とを比較してみると、一般的なゾルゲル法で用いている金属アルコキシド溶液は空気中の水分の影響を受けやすく沈殿しやすい。これに対し、ナノ粒子分散溶液は既に水分を添加して加水分解・重縮合反応をさせ結晶化させたナノ粒子を用いているので空気中の水分の影響を受けにくいという特徴を有している。また、有機溶剤に対して分散性が良く、コーティング溶液の安定性に優れている。

更に、一般的なゾルゲル法では、原材料に有機成分を多く含んでいるため、焼成後の薄膜にクラック等の空隙が生じやすいが、本手法では、結晶性ナノ粒子中の残存有機物は少ないために、焼成してもクラック等の空隙は生じにくいというメリットがある。

今回は、このナノ粒子コーティング法を用いて作製したチタン酸バリウム薄膜について、焼成(熱処理)過程における構造の変化と電気的特性の変化について検討した。

2 研究, 実験方法

2-1 チタン酸バリウム(BTO)結晶性ナノ粒子の合成

結晶性ナノ粒子の合成は、定法³⁾に従い原料の金属アルコキシド溶液を加水分解・重縮合させて行った。

*1 化学繊維研究所

*2 機械電子研究所

2-2 チタン酸バリウム結晶性ナノ粒子の熱分析

合成した結晶性ナノ粒子を真空乾燥させた後 150 で 1 時間熱処理し、熱重量 - 示差熱測定 (TG-DTA ; セイコー電子工業(株)製 熱分析システム SSC5200) 及び昇温脱離ガス測定 (TPD-MS ; FISIONS (株)製) を行った。

2-3 チタン酸バリウム薄膜の作製

合成した結晶性ゲルを 2-メトキシメタノールに投入後、超音波処理を行い、0.2mol/L の結晶性ナノ粒子分散液を調製した。この分散溶液を Pt / Ti / SiO₂ / Si 基板上にスピンコーティングで塗布し、図 - 1 の手順でプリベーク (150 × 5min), 仮焼成 (所定温度 × 5min), 仮焼成 (仮焼成 と同一温度 × 所定時間) を行い、チタン酸バリウム薄膜を作製した。

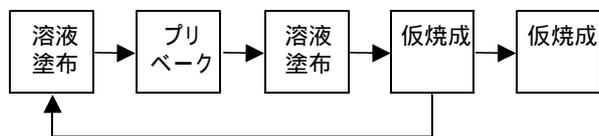


図 - 1 BTO, BSTO 薄膜作製方法

2-4 チタン酸バリウム薄膜の評価

450 ~ 850 の所定の温度で熱処理して作製した各サンプルについて、X 線回折 (XRD ; マックサイエンス (株)製 MXP18A) 測定, 走査型電子顕微鏡 (FE-SEM ; 日本電子データム (株)製 JSM-840F) による表面観察を行った。また、作製した薄膜の表面にアルミ電極を真空蒸着し、インピーダンスアナライザー (アジレント (株)製 HP4192A) を用いて電気的特性 (比誘電率及び誘電損失) を測定した。

3 結果と考察

3-1 熱処理に伴う電気的特性の変化

ナノ粒子コーティング法を用いて所定の熱処理温度で作製したチタン酸バリウム薄膜について、インピーダンスアナライザーを用いて比誘電率と誘電損失を測定した。比誘電率は 550 と 650 ではあまり変わらなかったが、熱処理温度を高くすることによって上昇し、850 で約 250 であった (図 - 2)。誘電損失は、1kHz の低周波数側では熱処理温度を高くすると低くなった。1MHz の高周波数側では、熱処理温度が 550 ~ 650 の場合が最も低く、約 3% だった (図 - 3)。

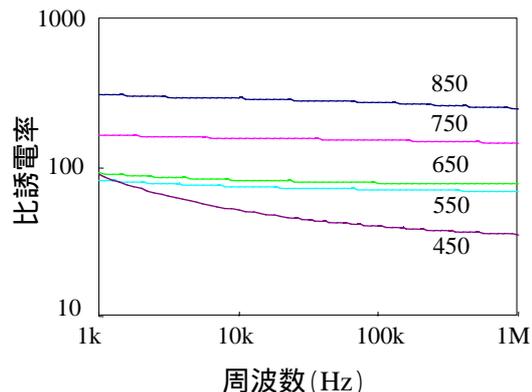


図 - 2 熱処理に伴う比誘電率の変化

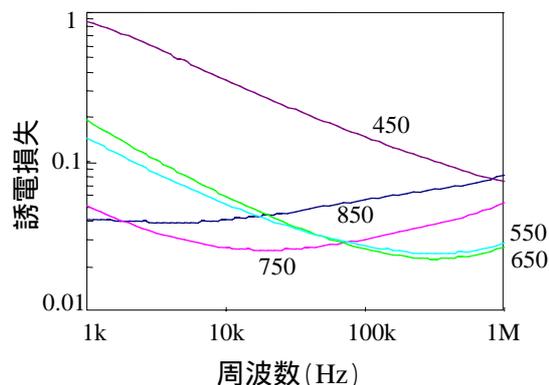


図 - 3 熱処理に伴う誘電損失の変化

3-2 熱処理に伴う薄膜構造の変化 (1: XRD 測定)

次に、同一サンプルについて XRD 測定を行った。得られた回折パターンにはチタン酸バリウムと基板のピークしか見られず、熱処理温度の上昇に伴い、チタン酸バリウム由来のピーク強度が増加した (図 - 4)。

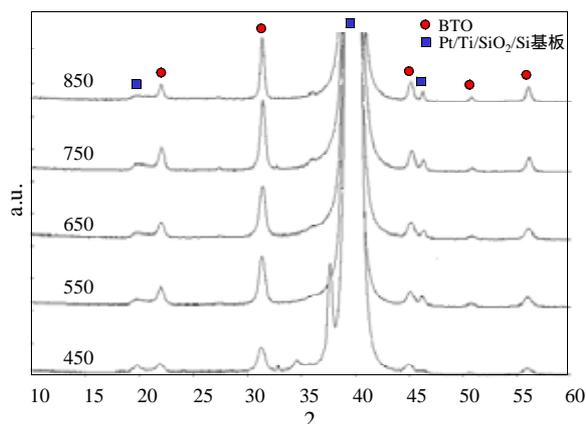


図 - 4 熱処理に伴う XRD パターンの変化

2θ = 31 (deg) 付近のチタン酸バリウムの (110) 面のピークに注目すると、熱処理温度の上昇と共にピークトップは高角度側にシフトした (図 - 5)。これは、

熱処理温度の上昇に伴い、チタン酸バリウムの結晶性が良くなっている為と考えられる。また、熱処理温度の上昇に伴い半価幅は減少し（図 - 6）ピーク強度が増大している（図 - 5）ことから、熱処理温度の上昇に伴いチタン酸バリウムの生成・成長が進行していると考えられる。

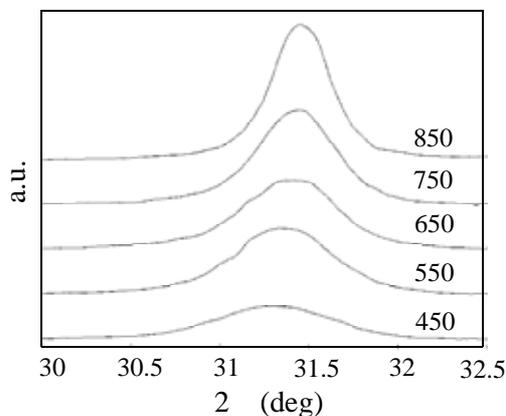


図 - 5 熱処理に伴う(110)ピークの変化

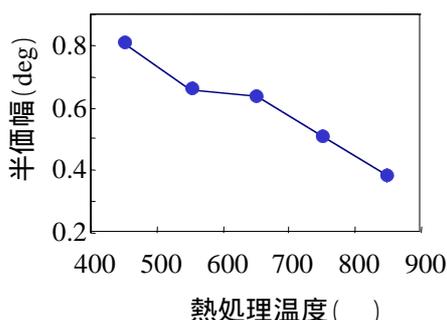


図 - 6 熱処理に伴う(110)ピークの半価幅の変化

3 - 3 熱処理に伴う薄膜構造の変化(2:SEM観察)

各サンプルについて薄膜表面の SEM 観察を行い、平均粒径を算出した。

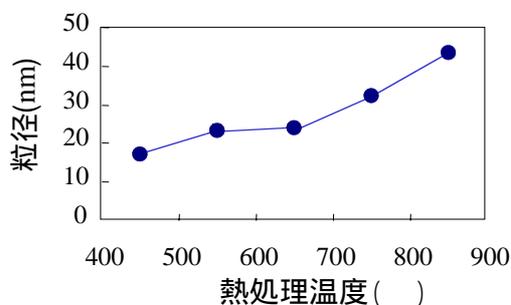


図 - 7 熱処理温度に伴う粒径の変化

その結果、熱処理温度の上昇と共に粒径が増大していた。この粒径の増大が比誘電率の増大に対応してい

ることから、熱処理に伴う比誘電率の増大は、粒成長に起因すると考えられる。また、750 以上の高温で熱処理すると空孔やクラックなどの空隙が生じていた。高周波数域での誘電損失の増大はこの空隙が原因であると考えられる。

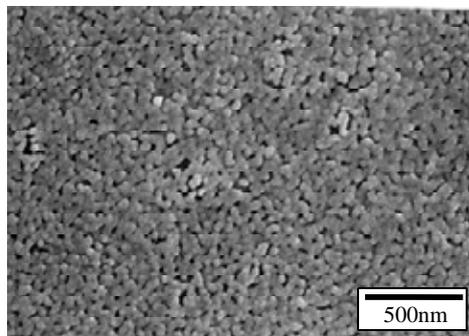


図 - 8 チタン酸バリウム薄膜表面の SEM 写真
(750 焼成)

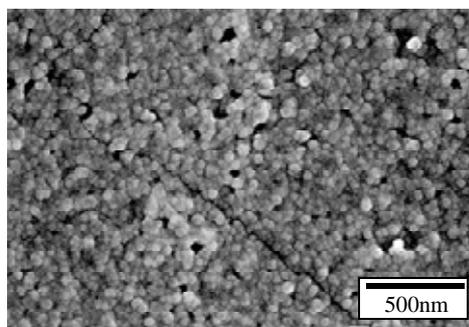


図 - 9 チタン酸バリウム薄膜表面の SEM 写真
(850 焼成)

3 - 4 熱処理に伴う薄膜構造の変化(3:熱分析)

乾燥させたチタン酸バリウムの結晶性ナノ粒子粉末の、熱分析結果を図 - 10, 図 - 11 に示す。昇温脱離ガス (TPD-MS) 測定は、真空中の試料を加熱し、発生したガスを四重極質量分析計で検出することで測定した (図 - 10)。その結果、質量数 18 の水は全温度域で発生した。また、質量数 44 の二酸化炭素は 200 ~ 580 で発生した。

TG 曲線は 580 まで大きな重量減少があり、DTA 曲線には 285 付近に極大ピークが見られた (図 - 11)。

これらの結果から、200 以下の低温度域では残存有機溶媒や水が脱離しており、水は物理吸着水や加水分解時の添加水や脱水縮合によって生成したものであると考えられる。200 から 580 までは、これらの水の脱離や残存有機物の燃焼が起こっていると考えら

れる。また、580 以上の高温域では残存している -OH 基の脱離が起こっていると考えられる。

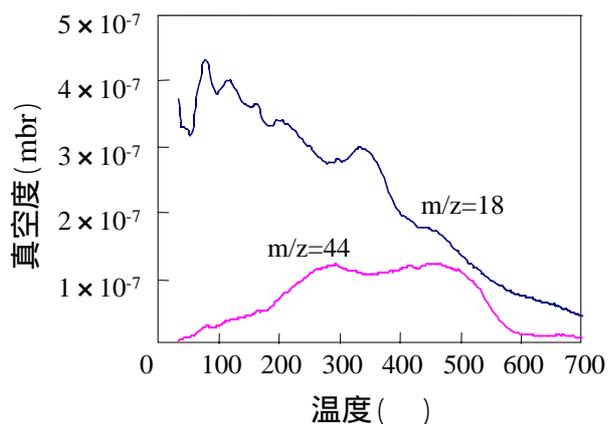


図 - 10 結晶性ナノ粒子の TPD-MS 測定結果

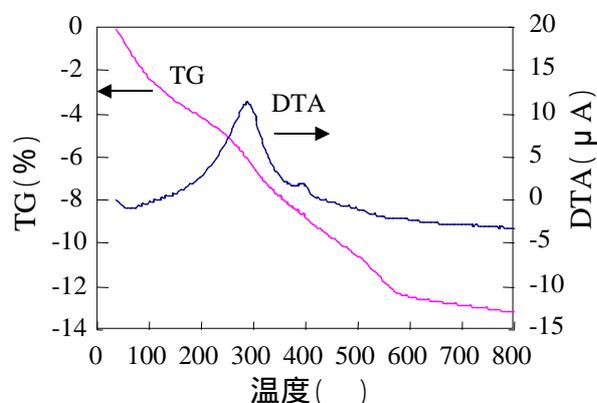


図 - 11 結晶性ナノ粒子の TG-DTA 測定結果

4 まとめ

チタン酸バリウムの結晶性ナノ粒子及びそれを用いて作製した薄膜の、熱処理過程における電気的特性の変化及び膜の構造等について検討した結果、以下の知見が得られた。

(1) 熱処理温度を高くするとチタン酸バリウムの生成・粒成長が起こり、比誘電率は増加することが確認された。

(2) 誘電損失は 550 ~ 650 で最も低かった。これは、450 以下では残存有機物や-OH 基が存在するため誘電損失が大きく、750 以上では空孔やクラック等の空隙が生じるため、誘電損失が大きくなると考えられる。

(3) 以上の様に、焼成条件を制御することで、チタン酸バリウム薄膜の特性が制御可能であった。

5 参考文献

- 1) Shimooka, Kuwabara, *J. Am. Ceram. Soc.*, **78**[10] 2849-52(1995)
- 2) Matsuda, Kuwabara, *J. Am. Ceram. Soc.*, **81**[11] 3010-12(1998)
- 3) 桑原誠, 倉田奈津子, 緒方道子, 山下洋子, 有村雅司: セラミックス, **36**[6] 415-416(2001)

鉄 - 炭素合金の組織と機械的特性に及ぼす純度の影響

小川俊文*¹ 安彦兼次*²

Influence of Purity on the Microstructure and Mechanical Property of Iron-Carbon Alloy

Toshifumi Ogawa and Kenji Abiko

純度が 2N と 4N の Fe-2%C 合金と市販のパーライト可鍛鋳鉄とほぼ同じ組成で、純度 4N レベルの Fe-2%C-1%Si-0.5%Mn 合金をコールドクルーシブル溶解炉で溶製した。次に熱処理によって組織制御を行った後、丸棒の引張試験片を作製して引張試験を行った結果、Fe-2%C 合金は、高純度化によって引張強さは低下したが、伸びは大幅に向上した。一方、高純度のパーライト可鍛鋳鉄と同じ組成の合金は、引張強さの低下は少なく、伸びは大幅に向上することが明らかになった。

1 はじめに

最近、環境負荷が小さくリサイクル性に優れた単純組成の鉄鋼材料が重要視されており、それに向けた各種鉄鋼材料の高性能化の研究が盛んに行われている。鉄 - 炭素合金の特性に関する研究も数多く行われてきているが、炭素量が1%以上という高炭素鋼の純度に注目した研究はほとんど行われていない。著者らは、Fe - 2%C合金について、その凝固組織の初析セメンタイトの形態及び熱処理で得られる析出炭素と炭化物の形態が、純度に大きく影響されることを明らかにしてきた¹⁾。そこで本研究では、純度の異なるFe - 2%C合金を用い、熱処理の保持時間を変化させて熱処理組織に及ぼす純度の影響を調べるとともに、熱処理を施した試料を用いて引張試験を行い機械的特性に及ぼす純度の影響を検討した。

2 実験方法

2 - 1 インゴットの溶製

純度と合金元素の影響を検討するため次の3種類の鉄 - 高炭素合金をそれぞれ1.5kg溶製した。

- ・低純度Fe - 2%C合金 (合金FL)
- ・高純度Fe - 2%C合金 (合金FH)
- ・高純度Fe - 2%C - 1%Si - 0.5%Mn合金 (合金FM)

原材料として、合金FLには機械構造用炭素鋼と高純度黒鉛を、合金FHには高純度の電解鉄と黒鉛を、合金

FMには高純度の電解鉄、黒鉛、シリコン及びマンガンを用いた。溶解は、富士電機製のコールドクルーシブル溶解炉で行った。水冷銅ルツボ中に原材料を全て入れ、チャンバー内を一度 10^{-4} torr台まで真空排気した後、チャンバー内の圧力が300cmHgになるまでアルゴンガスを導入し溶解した。溶解条件は、約15kWで3分間予備加熱を行った後、約1分毎に出力を10kWづつ上げていった。出力が120kWになったところで約6分間保持し、原材料の溶け残りが無いことをチャンバー上部の観察窓から目視確認してから、速やかに出力をゼロにし、溶湯をそのまま水冷銅ルツボ中で凝固させ、これをインゴットとした。溶解合計時間は約20分間である。

2 - 2 熱処理による組織制御

溶製したインゴット中の引け巣や急冷組織部分を除いた均質な組織部分から、10mm角の試料を切り出し熱処理用試験片に用いた。パーライト可鍛鋳鉄の熱処理を参考に²⁾、アルゴンガスを流しながら横型電気抵抗加熱管状炉中で熱処理を行い、塊状黒鉛と球状セメンタイトが分散した組織を得るための熱処理条件を検討した。

2 - 3 機械的特性評価

熱処理した試料から全長約67mm、平行部長さ15mm、平行部直径4mmの丸棒の引張試験片を作製した。今回の試験片はチャック部長さが20mmと短いため、チャック部をM8のネジに加工し、工具鋼で作製した治具にねじ込んで試験を行った。引張試験は、島津製作所製の30t万能試験装置を使用して行った。

*¹ 機械電子研究所研究所

*² 東北大学大学

3 結果と考察

3 - 1 熱処理組織に及ぼす純度の影響

各合金の熱処理前の組織，すなわち凝固組織を図 - 1 に示す。いずれの合金も初析セメント（白色の部分）とパーライト（色が濃い部分）から成る組織である。しかし，合金FLと合金FMでは初析セメントが網目状に析出していたのに対し，合金FHでは粗大な板状に析出していた。このような凝固組織から，塊状黒鉛と粒状セメントが分散した組織を得るため，パーライト可鍛鋳鉄の熱処理条件²⁾を参考に図 - 2 に示すような工程 1 に続いて工程 2 を行う 2 段階熱処理

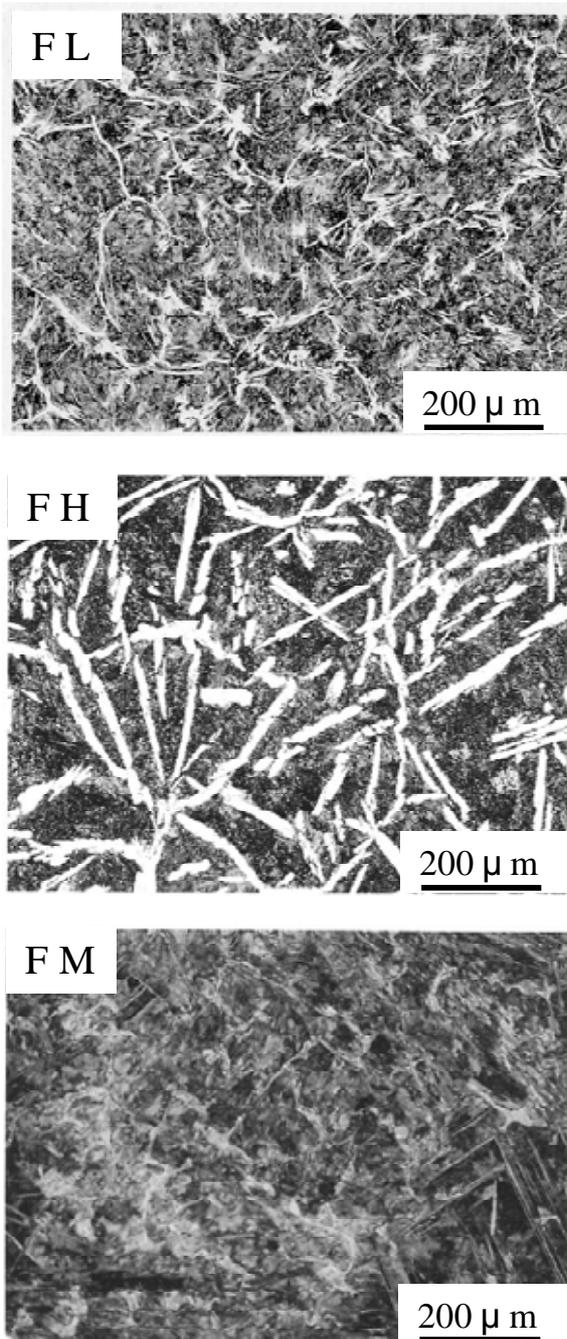


図 - 1 各合金の凝固組織

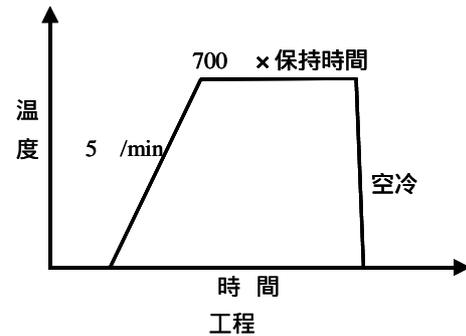
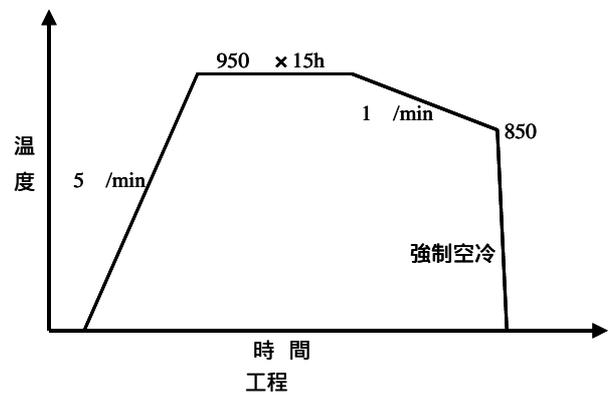


図 - 2 2 段階熱処理パターン

を行った。今回は，セメントの粒状化を完了させるために700 °Cでどれくらい保持すればよいのか検討するため，工程 2 における700 °Cの保持時間を2.5，5，10時間と変化させて実験を行い次のような結果が得られた。

2.5時間保持

合金FLでは，網目状初析セメントの分断と基地パーライトにおけるセメントの数 μmサイズの粒状化が始まっていたが，全体的にまだ網目状初析セメントの形跡が残っており，パーライトだった領域に20 μm前後の粒状セメントが見られるようになった。合金FHにおいても，粗大板状初析セメントの分解と基地パーライトにおけるセメントの粒状化が始まっていたが，まだ板状初析セメントが部分部分に残っており不均質な組織であった。一方，合金FMにおいては，網目状初析セメントもパーライトも見られなくなっておりセメントの球状化が完了して，全体が均質な組織になっていた。

5時間保持

700 °Cで5時間保持したときの各合金の組織を図 - 3 に示す。合金FLでは，2.5時間保持の場合に比べ，ラメラ組織は大部分崩れ，数 μmサイズのセメントまで粒状化が進んでいたが，初析セメントがまだ残っていた。合金FHでは，粗大な板状初析セメンタ

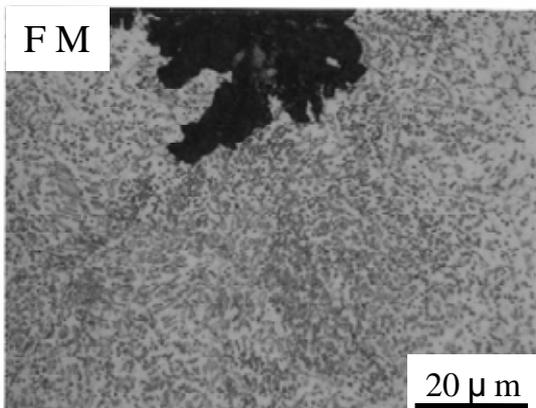
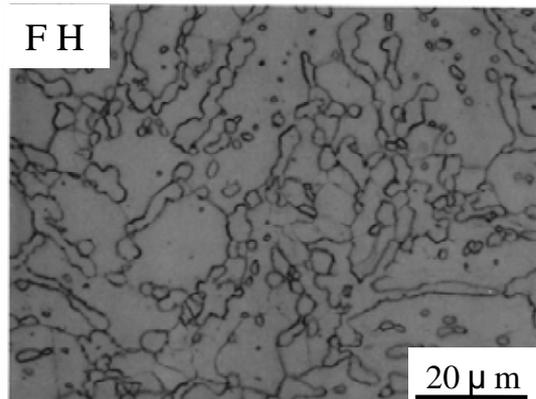
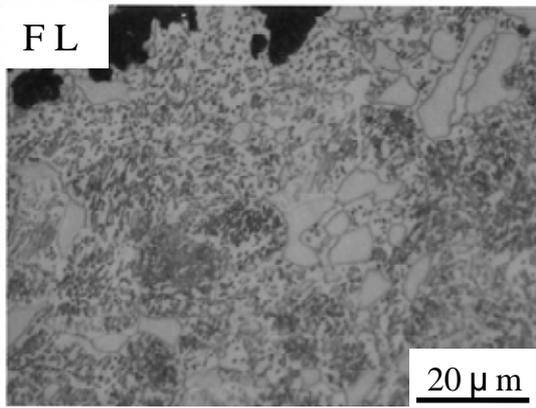


図 - 3 5 時間保持した場合の各合金の組織

イトは見られず、塊状黒鉛と粒状や鎖状のセメントイトが均質に分散しているのが観察された。合金FMでは、2.5時間保持の場合に比べ塊状黒鉛周辺のフェライト領域が広がっていた。

) 10時間保持

合金FLでは、かなりの範囲でセメントイトの粒状化が進んだが、初析セメントイトが完全に分解されず残っていた。合金FHでは、5時間保持の場合と大きな違いはないが塊状黒鉛の周囲にあるフェライト領域が広がっていた。合金FMでは、粒状化したセメントイトの分散状態が不均一になっているのが観察された。また、合金FMでは合金FHと比べて塊状黒鉛及び球状セ

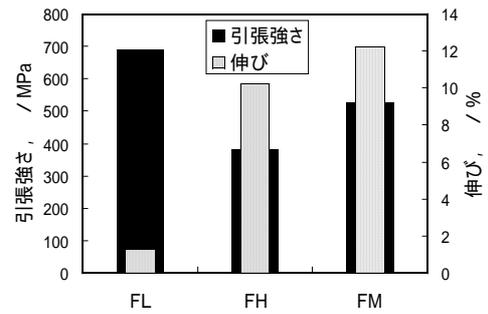


図 - 4 引張試験結果

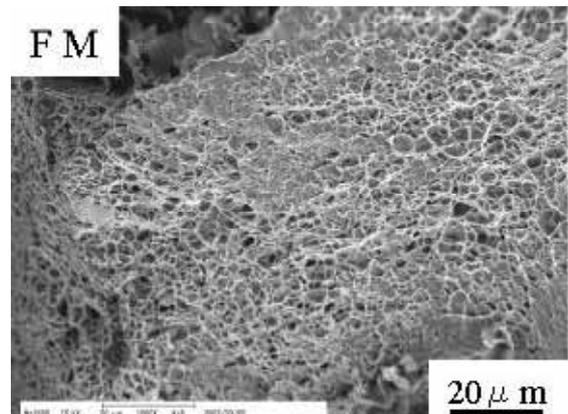
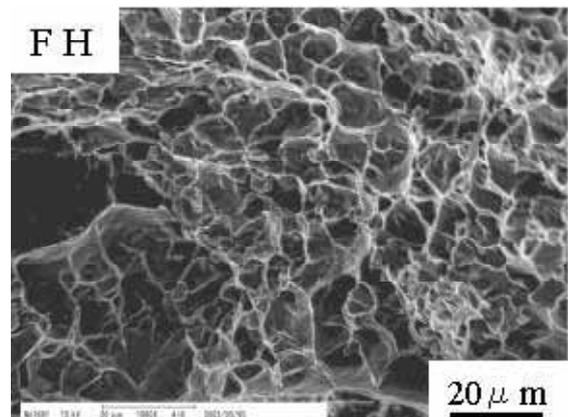
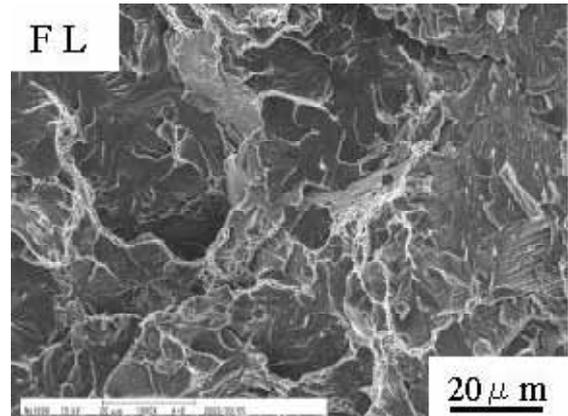


図 - 5 各合金の破面組織

メントイトのサイズが平均的に小さかった。

以上のことから、初析セメントイトを完全に無くし粒状又は鎖状セメントイトを析出させるためには、工程における700 の保持時間が、合金FLは10時間以

上必要と考えられ、合金FHは5時間程度、合金FMは2.5時間程度で充分と考えられる。

3 - 2 引張特性に及ぼす純度の影響

試験片は、図 - 3 に示したような組織を持った、熱処理の工程で700℃5時間保持させた試料から作製したものをを用いた。引張試験は室温大気中で2本ずつ行った。図 - 4 にその結果を示す。単純組成の合金FHにおいて引張強さは、合金FLより約300MPa低くなったが、伸びは合金FLの約8倍であった。SiとMnを添加している合金FMの引張強度は、合金FLより約160MPa低くなったが、伸びは合金FLの約10倍であった。

引張試験後の破面を走査電子顕微鏡で観察した結果を図 - 5 に示す。合金FLでは、伸びがほとんどなかった引張試験結果に対応して、脆性破面で見られるリバーパターンが破面全体に渡って観察された。合金FHでは、200 μm前後の塊状黒鉛と10 μm程度のデインプルが観察された。合金FMでは、100 μm前後の塊状黒鉛と数 μmのデインプルが観察された。これらの破面状態は、図 - 3 で示している各合金の熱処理組織と非常に対応しており、粒状セメントタイトの大きさとデインプルの大きさがほぼ一致している。これらのことから、高純度合金では、粒状セメントタイト/基地界面や黒鉛/基地界面がポイド発生の基点となって破断に至ったと考えられる。

4 まとめ

1) 高純度合金の方が低純度合金に比べて、熱処理で凝固組織を崩しやすいことがわかった。

2) 今回の熱処理条件の範囲では、高純度合金は単純な2元系のままでは、セメントタイトの微細粒状化は難しいが、合金元素SiとMnを添加することで可能になることがわかった。

3) 熱処理を施して球状化したFe - 2%C合金においては、高純度化によって引張強度が低下するものの、伸びは大幅に改善される。また、SiとMnを添加した高純度合金では、引張強度の低下はそれ程大きくなく伸びは大幅に改善できることなどが明らかになった。

5 参考文献

1) 小川俊文, 小野幸徳, 古賀弘毅, 安彦兼次: 平成13年度福岡県工業技術センター研究報告, p 105 - 107

(2002)

2) 草川隆次, 堤信久, 松田公扶, 宮下格之助, 田村啓治: 鑄造技術講座4 特殊鑄鉄鑄物, p 144 - 155 (1966)

反応性スパッタリング法で作製したTi-B-N膜の薄膜特性に及ぼす窒素ガス流量の影響

南 守*¹

Effect of Nitrogen Gas Flow Rate on Properties of Ti-B-N Films

Prepared by Reactive Sputtering

Mamoru Minami

反応性スパッタリング法を用い、高い硬度を示し耐摩耗性に優れるといった特徴を有している Ti-B-N 膜を超硬合金 (WC-Co) 及びシリコン (Si) 基板上に作製し、薄膜特性に及ぼす成膜条件の影響について調査した。主要な成膜条件である窒素ガス流量を変化させることにより膜の組成、結晶構造、硬さ及び密着性は変化することが明らかとなった。また、成膜条件に関わらず、形成された薄膜は極めて平滑な表面を有することが判明した。

1 はじめに

従来から、各種基材の耐摩耗性、耐摺動性あるいは耐食性を向上させるために、セラミックスや金属膜を基板上に形成させることが試みられてきた。上記のような特性を有する代表的な薄膜として窒化物薄膜が挙げられる。中でも TiN 膜は、金色を呈し、硬度が高く、鋼や超硬合金との密着性も良好なことから、保護コーティング材料として非常に広範な分野で利用されている。しかしながら、近年、各種機器、装置の高性能化、高機能化が進展するにつれ、従来使用されている TiN 膜以上に優れた特性を有する薄膜の開発が求められている。

これらの要求に答える薄膜材料として、高い硬度を示し、耐摩耗性に優れるといった特徴を有している Ti-B-N 膜が注目されている^{1)~4)}。通常、Ti-B-N 膜の形成には PVD 法や CVD 法が主に用いられており、形成された Ti-B-N 膜の特性を調べた研究は多数報告されている^{1)~4)}。しかし、PVD 法や CVD 法では被覆処理に関わる制御因子が非常に多く、形成される Ti-B-N 膜の特性と制御因子との関連性などについては未だに十分解明されていないのが現状である。

そこで本研究では、多元系化合物膜の作製が容易にできる反応性スパッタリング法により Ti-B-N 膜を作製し、膜の結晶構造、硬さなどの特性が、主要な成膜条件である窒素ガス流量により如何なる影響を受けるかを調査した。

2 研究, 実験方法

2-1 薄膜作製方法

既報⁵⁾と同様に、薄膜作製には直流電源を有するマグネトロンスパッタリング装置 (ユーテック, YE1825-3) を用いた。ターゲットには直径 102mm の TiB₂ (純度 99%) を用いた。スパッタリングガスにはアルゴン (純度 99.999%) と窒素 (純度 99.999%) の混合ガスを用いた。成膜時の混合ガス圧力は 0.3Pa, アルゴンガス流量は 30cm³/min 一定とし、窒素ガス流量のみを変化させた。なお、ターゲットと基板間の距離は 190mm で実験した。

基板には、Si ウェハ (100) と鏡面研磨仕上げした WC-Co 合金 (35.5 × 8 × 5mm) を用いた。これらの基板をアセトン中で超音波洗浄した後、回転式基板ホルダー (回転速度: 3rpm) に取り付け、真空ポンプにより装置内を 4.0 × 10⁻⁴Pa 以下の圧力になるまで排気した。所定の圧力に到達後、膜形成に先立ち基板の前処理として、アルゴンによる基板のイオン bombard を RF 電力 50W で 5 分間行った。続いて、表 - 1 に示す条件にて成膜処理を行った。作製した薄膜の膜厚は、接触式表面粗さ計 (テラーホブソン, Talysurf) を用い、成膜前に基板の一部をマスクングしておき、成膜後のマスクングしている部分としていない部分との段差から求めた。

2-2 薄膜の特性評価

結晶構造の解析は、X 線回折装置 (理学電機, RINT-2550V) を用いた。入射 X 線には CuK α 特性 X

*¹機械電子研究所

表 - 1 成膜条件

基板温度 (K)	523
基板回転速度 (rpm)	3
使用ターゲット	TiB ₂ (2N)
アルゴンガス流量 (cm ³ /min)	30
窒素ガス流量 (cm ³ /min)	0 ~ 10
圧力 (Pa)	0.3
ターゲット - 基板間距離 (mm)	190
基板RF電力 (W)	50
ターゲット電力 (W)	500
膜厚 (μm)	1.0 ~ 1.5

線 (40kV, 200mA) を用い, 入射角は 1° とした。

膜の組成は, グロー放電発光表面分析装置 (GD-OES) ((株)堀場製作所製, JY-5000RF) を用いることにより評価した。

膜の化学結合状態は, Mg-Kα 線 (10kV, 10mA) を X線源とする X線光電子分光分析装置 (島津製作所製) を用いることにより評価した。

薄膜の硬さは, ナノ・インデンテーション・テスター (エリオニクス, ENT-1100a) を用い, 荷重 5mN, 圧子先端形状 (三角錐, 稜間隔 115°) の条件で塑性変形量と弾性変形量を含んだ圧子の最大変位を測定することにより評価した。

薄膜表面及び劈開面の観察には走査型電子顕微鏡 (SEM) (日立製作所, S-4500) を用いた。

薄膜の密着性は, 圧痕試験を行うことにより評価した。圧痕試験は Rockwell 硬度計を用い, 試料表面から基板に達するまでダイヤモンド圧子 (C スケール) を押し込み, 圧痕周辺部に発生する皮膜の損傷状態を光学顕微鏡により観察した。

3 結果と考察

3-1 膜特性に及ぼす窒素ガス流量の影響

3-1-1 組成に及ぼす窒素ガス流量の影響

GD-OES により, 窒素ガス流量を 0 ~ 10cm³/min 変化させ Si 基板上に作製した Ti-B-N 膜の組成分析を行った。その結果を図 - 1 に示す。窒素ガス流量の増加に伴って膜中に含まれる Ti と B の割合は減少するものの, Ti と B の組成比はほとんど変化していないことが確認できた。これは, 一般的に合金や化合物などの多元系物質をスパッタ成膜すると, ターゲットと同一化学組成のスパッタ膜が得られることによるものと思われる⁶⁾。

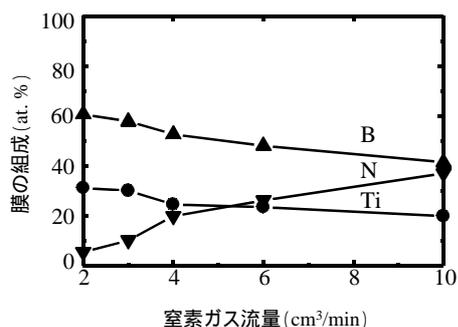


図 - 1 膜の組成に及ぼす窒素ガス流量の影響

3-1-2 結晶構造に及ぼす窒素ガス流量の影響

窒素ガス流量を変化させることにより膜の組成が変化することから, 膜の結晶構造も十分変化することが予想される。そこで結晶構造に及ぼす窒素ガス流量の影響について検討した。

Si 基板上に作製した (a)TiB₂ 及び (b)Ti-B-N 膜の X線回折結果を図 - 2 に示す。窒素ガス流量が 0cm³/min の場合 (図 - 2 (a)), ランダム配向な TiB₂ 膜が形成されていることが分かった。しかし, 反応ガスとして窒素ガスを 2cm³/min 流した場合 (図 - 2 (b)), TiB₂ に関するスペクトルは得られているものの, その強度は窒素ガス流量が 0cm³/min の場合と比べて減少し, ピークもブロードになっていることが分かった。窒素ガス流量が 4cm³/min では, TiB₂ の回折強度は著しく低下し, 6cm³/min 以上になると TiB₂ に起因する回折線は消滅し, TiN の 111, 200 回折線が得られていることが分かった。これらのことから, 薄膜の結晶状態は窒素ガス流量を増加させるに従い, TiB₂ から TiN へ変化すると考えられる。

一方, X線回折からは高窒素ガス流量時の TiN に関する情報は得られるものの, B 元素に関する情報は得られていない。そこで次に膜の化学結合状態に及ぼす窒素ガス流量の影響について調査した。

窒素ガス流量を変化させ Si 基板上に作製した Ti-B-N 薄膜の X線光電子分光分析結果を図 - 3 に示す。B1s 光電子スペクトルからは TiB₂ と BN に相当するピークが, Ti2p 光電子スペクトルからは TiB₂ と TiN に相当するピークが, また N1s 光電子スペクトルからは BN に相当するピークが確認できた。これらのことから, 反応ガスとして窒素を添加することにより BN 相が形成されることが判明した。また, X線回折からは BN に関する情報が得られていないことから,

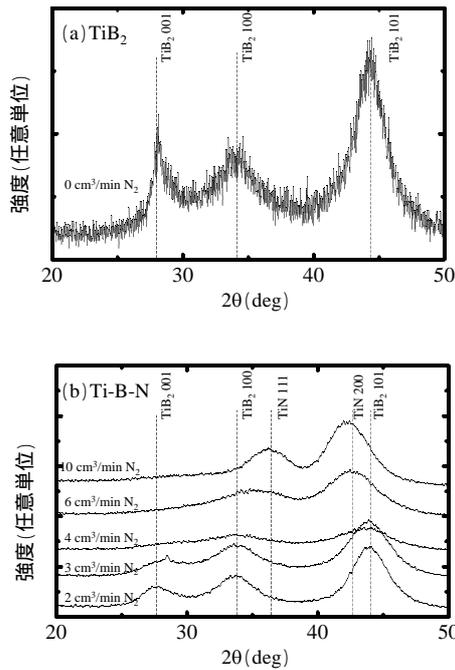


図 - 2 X線回折結果

BN は非晶質相として存在しているものと考えられる。

以上の結果より、窒素ガス流量が増加するに従い、薄膜の結晶状態が次のように変化するものと考えられる。

TiB₂ 単層構造

TiB₂ と非晶質 BN の複合構造

TiB₂ と TiN と非晶質 BN の複合構造

TiN と非晶質 BN の複合構造

3 - 1 - 3 膜形態に及ぼす窒素ガス流量の影響

代表例として、Si 基板の上に窒素ガス流量 4cm³/min で作製した Ti-B-N 膜の表面及び劈開面の SEM 像を図 - 4 に示す。表面 SEM 像に見られる粗大な白い物体は焦点合わせに用いた異物である。今回作製したいずれの試料においても明瞭な結晶粒は観察されず、薄膜は極めて平滑な表面を有し、緻密な構造をしていることが分かった。このような膜形態を示す理由に関しては特定できていないが、他の研究者の結果と同様に、Ti を母材とした膜中に B が存在することにより結晶粒の微細化が生じるためではないかと推察される³⁾。

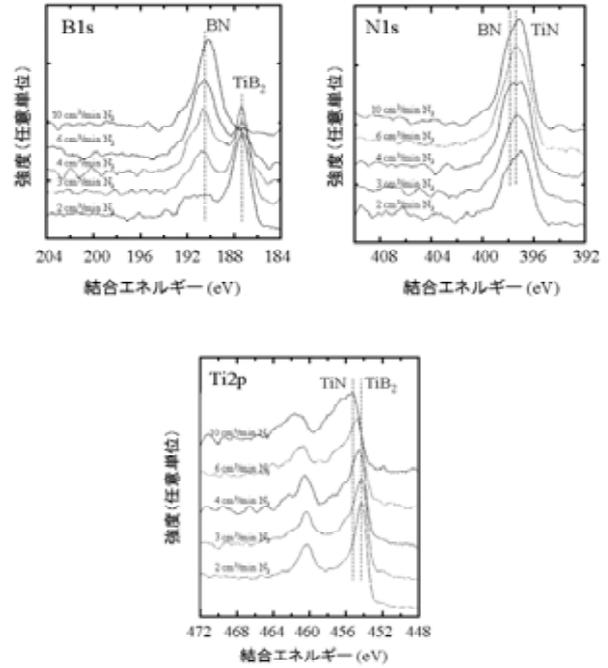


図 - 3 X線光電子分光分析結果

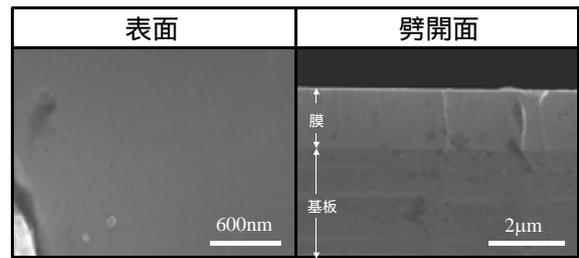


図 - 4 膜表面、劈開面SEM像(窒素ガス流量4cm³/min)

3 - 1 - 4 硬さに及ぼす窒素ガス流量の影響

窒素ガス流量を変化させることにより膜の組成、結晶構造が変化することから、膜の機械的性質も十分変化することが予想される。そこで硬さに及ぼす窒素ガス流量の影響について検討した。

図 - 5 に Si 基板の上に作製した Ti-B-N 膜の皮膜硬さと窒素ガス流量の関係を示す。硬さは、窒素ガス流量が 2cm³/min のとき最大となり、30GPa 以上の高い値を示している。さらに窒素流量を増やしていくと、硬さは低下する傾向を示し、窒素ガス流量が 10cm³/min では単層の TiN⁵⁾ より低い値を示した。窒素ガス流量の増加による硬さの減少に関しては以下の理由が考えられる。

一つは窒素ガス流量が増加すると高硬度を有する TiB₂ 相の割合が減少すること、もう一つは非晶質 BN

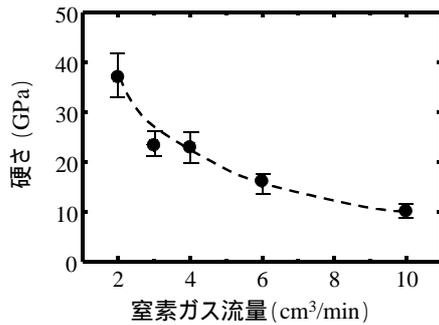


図 - 5 膜の硬さに及ぼす窒素ガス流量の影響

相の割合が増加しクラック伝播が生じ易くなること²⁾によるものと推察される。高窒素ガス流量で作製した Ti-B-N 膜が TiN 膜と比べて低い硬さを示しているのも、Ti-B-N 膜中には非晶質相が存在しているのに対して、TiN 膜中には非晶質相がなく TiN 粒子同士が直接接触しているという構造の違いによるものと考えられる。

3 - 1 - 5 密着性に及ぼす窒素ガス流量の影響

窒素ガス流量を変化させることにより膜の結晶構造や硬さが変化することから、膜の密着性も十分変化することが予想される。そこで膜の密着性に及ぼす窒素ガス流量の影響について検討した。

窒素ガス流量を変化させ WC-Co 基板上に作製した Ti-B-N 膜の圧痕試験結果を図 - 6 に示す。圧痕周辺部の膜の剥離面積は、窒素ガス流量が 4 cm³/min までは流量とともに低下するものの、6cm³/min 以上になると増加し一定の値となることが分かった。このことから、膜の密着力は、窒素ガス流量が 4 cm³/min までは流量とともに増加し、6cm³/min を超えると低下することが判明した。よって、窒素ガス流量は膜の構造や硬さに対してだけでなく膜の密着性にも影響を与えていると言える。窒素ガス流量による密着力変化の理由に関しては現段階では特定できていないが、おそらく膜の結晶構造や内部応力が関係しているものと推察される。なお、この件に関しては今後の検討を要する課題である。

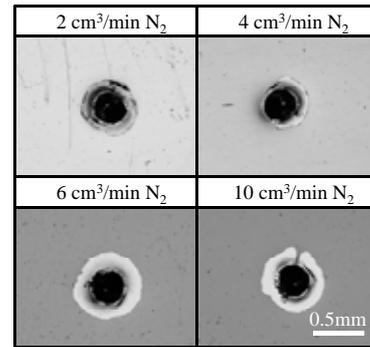


図 - 6 圧痕試験結果

4 まとめ

種々の窒素ガス流量で成膜した Ti-B-N 膜の特性について調査した。窒素ガス流量を変化させることにより Ti-B-N 膜の組成、結晶構造、硬さ及び密着性は変化することが判明した。また、成膜条件に関わらず、形成された薄膜は極めて平滑な表面を有することが明らかになった。

終わりに、本実験を遂行するにあたり久留米工業大学の蓮山寛機氏、産業技術総合研究所の秋山守人氏、(株)堀場製作所の中村龍人に有益な助言を頂いたことに対し、ここに感謝の意を表します。

5 参考文献

- 1) Jianli HE, Yuichi Setsuhara, Ippei Shimizu and Shoji Miyake : Trans. JWRI, Vol.29, No.1, P.9(2000)
- 2) J.F.Pierson, F.Bertran, J.P.Bauer and J.Jolly : Surf. Coat. Technol, Vol.142-144, P.906(2001)
- 3) C.Rebholz, A.Leyland, P.Larour, C.Charitidis, S.Logothetidis and A.Matthews : Surf. Coat. Technol, Vol.116-119, P.648(1999)
- 4) T.P.Mollart, J.Haupt, R.Gilmore and W.Gissler : Surf. Coat. Technol, Vol.86-87, P.231(1996)
- 5) 南 守, 土山 明美 : 福岡県工業技術センター平成 13 年度研究報告, 第 12 号, P.55(2002)
- 6) 和佐 清孝, 早川 茂 : 薄膜化技術第 2 版, P.88(1992)

細胞活性のモニタリングを目的とする計測技術の開発

誘電率を用いた酵母及び動物細胞の細胞数測定法の確立

廣藤祐史*1

1行あける

Development of the Measurement Method Aiming at the Monitoring of Cell Activity

Establishment of the Cell Number Measuring Method about Yeasts and Mammals using Dielectricity

Yushi Hirofuji

従来行われてきた濁度法や計数法による測定と異なり、生存している細胞数のみをカウントすることを期待できる誘電率による細胞数測定を検討した。酵母を対象とした比誘電率測定による細胞数計測を試みたところ、電極法による細胞数測定は困難であることが判明した。電極法で細胞数を測定する場合には、細胞をグルコース等張液に懸濁することが有効であると考えられる。

1 はじめに

特に清酒の醸造工程管理は経験者の勘に強く依存しており、造り中の酵母の状態管理は明確な指標の元に行われてはいない。誘電率による細胞数測定は、従来行われてきた濁度法や計数法による測定と異なり、生存している細胞数のみがカウントされる。培養状態の変遷に伴う細胞の生死を的確かつ迅速に把握できる方法は他になく、培養状態の管理手法として非常に有望かつ効果的であると考え、測定方法の評価を行った。

2 研究, 実験方法

2-1 測定装置

誘電率測定にはアジレントテクノロジー社製 Agilent 4285A 型 LCR メータを使用した。当初は測定対象は液体測定用電極 Agilent 16452A による検討を行ったが、培地組成の影響を除くことが困難であったため、四電極法に基づく測定電極を自作した。

2-2 培地と使用菌株

測定対象としては、YM 培地で 30 時間、一夜振とう培養した協会 7 号酵母を使用した。

2-3 イオン交換水および YM 培地の比誘電率の測定

培地組成の影響を評価するために、測定を実施するのに先立ち、イオン交換水及び YM 培地について、比誘電率の測定を行った。測定引加電圧は 0.5V、測定周波数範囲は 75kHz ~ 1MHz とした。

2-4 酵母を対象とした比誘電率の測定

測定条件は水および培地の測定と同様に、酵母懸濁液の比誘電率測定を行った。

2-5 YM 培地構成成分毎の比誘電率の測定

YM 培地を構成する成分である Yeast Extract, Malt Extract, Peptone, Glucose について、成分ごとの比誘電率測定を行った。

2-6 動物細胞用培地の比誘電率の測定

動物細胞用培地である F12 + FBS 培地を対象として比誘電率測定を行った。

3 結果と考察

3-1 測定電極

今回使用した 4 電極法に基づく測定電極を写真 1 に示した。

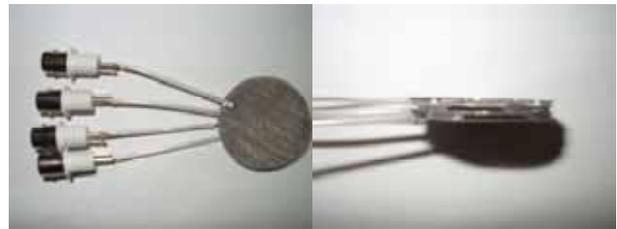


写真 1 測定電極

電極材質は SUS304 であり、ポリエチレンテレフタレートスペーサとして使用して直径 38mm の電極 4 枚を 1mm の間隙で平行に配置した構造とした。

3-2 4 電極法による測定結果

4 電極法によって測定した電極間容量を図 1 に示した。

*1 生物食品研究所食品課

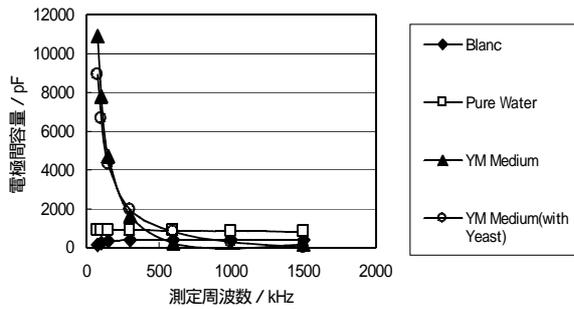


図1 4電極法による電極間容量

4電極法による測定を行っても、培地成分が共存する場合には低周波数域で高い比誘電率が観測され、液体測定用電極 Agilent 16452A による測定結果(図2)と同様な誘電挙動を示した。電極法により細胞膜の誘電率のみを測定することは困難であることが明らかとなった。

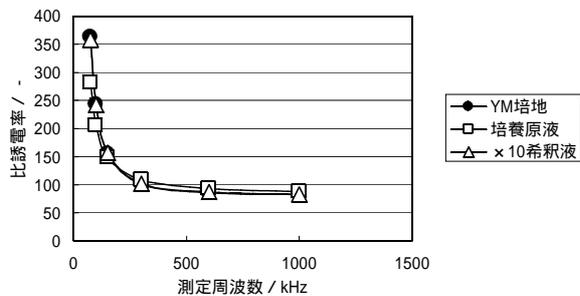


図2 液体測定用電極による酵母懸濁液の比誘電率

3-3 誘電挙動に影響する培地組成の検討

誘電挙動に影響を与える培地成分を明らかにするために、YM培地を構成する4成分、Yeast Extract, Malt Extract, Peptone, Glucose について、成分ごとの比誘電率測定を行った。各成分の濃度は YM培地と同様に、それぞれ 3g/L, 3g/L, 5g/L, 10g/L とした。測定結果を図3に示した。

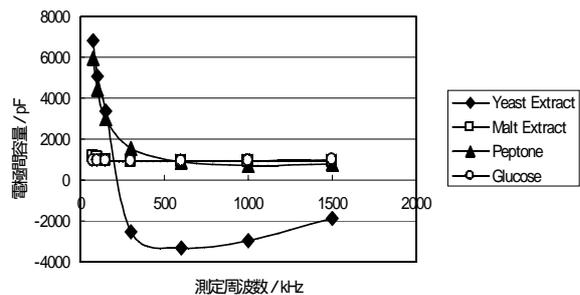


図3 誘電挙動を示す培地成分

Yeast Extract と Peptone が強く影響していることが明らかとなった。Malt Extract と Glucose は誘電挙動を示さなかった。

3-3 動物細胞用培地の誘電挙動の検討

動物細胞用培地である F12 + FBS 培地の誘電挙動を検討した結果を図4に示した。

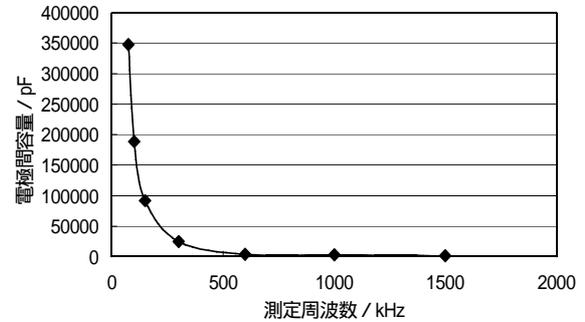


図4 動物細胞用培地の誘電挙動

動物細胞用培地の誘電挙動は YM培地と同様であり、電極法により細胞誘電率を測定することは困難であることが明らかとなった。細胞誘電率を電極法によって測定する場合には、図3の結果に明かなように、Glucose 等張液に細胞を懸濁し、オフライン計測を行うことが有効であると考えられる。

4 まとめ

4電極法による細胞誘電率の測定を試みたが、4電極法によっても、培地組成の影響を除くことは困難であった。YM培地の場合、最も影響を与える成分は酵母エキス、次いでペプトンであった。ブドウ糖と麦芽エキスの存在は殆ど影響を与えなかった。動物細胞用培地として、F12+FBS培地の誘電特性を評価したが、YM培地と同様の傾向を示し、細胞誘電率のみを評価することは困難であった。電極法で細胞誘電率を評価する場合には、グルコース等張液などに細胞を懸濁せざるをえず、オンライン計測は困難であることが明らかとなった。

5 参考文献

- 1) 第4版実験化学講座9「電気・磁気」, pp.215-243, 丸善(1991)
- 2) 花井哲也, "不均質構造と誘電率~物質を壊さずに内部構造を探る", 吉岡書店(2000)

食品関連未利用資源の素材化に関する調査研究

脱臭スカム(サラダ油製造副産物)の有効利用の検討

古田 正範*¹ 樋口 智子*¹ 廣藤 祐史*¹

Investigation research on Material-izing of Food Related Unused Resources

Study on effective use of deodorization SUKAMU(a cooking oil manufacture by-product)

Masanori Furuta , Tomoko Higuchi , Yushi Hirofuji

食用植物油(サラダ油)製造の際,生じる精製残渣,脱臭スカムの有効利用を図るため,当年度は HPLC ,GC ,GC-MS を用いスカム中のトコフェロール,ステロール,脂肪酸組成の分析を行った。その結果,スカム中のトコフェロールは α -Toc > β -Toc > γ -Toc > δ -Toc の順に多く,総量,10%前後(w/w),ステロールは β -Sitosterol, Campesterol, Brassicasterol, Stigmasterol, Cholesterol 等,総量,20%前後(w/w)含まれていると推察された。また,トコフェロールとステロールの GC による同時分析の可能性も推察された。脂肪酸組成の分析については HPLC と GC-MS 分析を行ったが,脂肪酸全部を検出する GC-MS 法が一般的と考えられた。

1 はじめに

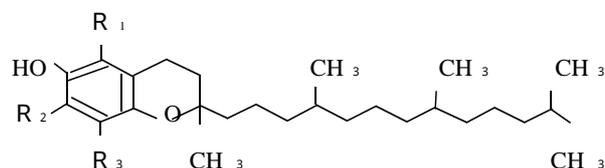
食品リサイクル法が施行され,食品製造業では廃棄物として処理していたものを,未利用資源ととらえ,有効利用しようとするニーズが顕著になっている。本研究は県内企業から出される様々なニーズに対応するための FS(調査研究)の一つで,当年度は食用油製造業からの,「食用植物油(サラダ油)製造の際,生じる精製(スカム)の有効利用」について分析を主に行った。スカムは食用油(大豆油,菜種油)の製造過程で大量に排出され,現在は飼料として利用されているが大半は廃棄物として処理されている。スカム中には遊離脂肪酸,ステロール,トコフェロール,炭化水素,グリセリド他が含まれている¹⁾が,これら成分の含有量は製造条件により左右される。スカム中の有用成分の分離回収,製品への再添加による付加価値の向上,あるいは製造条件改善によるスカム中への機能性成分損出の低減化による製品の機能性向上がニーズとして出されている。そのために,まず,スカム中のこれら有用物質の分析法の確立が急がれている。そこで企業と連携をとりながら HPLC(液クロ),GC(ガスクロ),簡易キット等によりスカムを分析し検討した。

2 研究,実験方法

2-1 スカムの食品一般成分

大豆スカム,菜種スカムの食品一般成分を分析した。

2-2 スカム中のトコフェロール



- Toc : R₁ = R₂ = R₃ = CH₃

- Toc : R₁ = R₃ = CH₃, R₂ = H

- Toc : R₂ = R₃ = CH₃, R₁ = H

- Toc : R₃ = CH₃, R₁ = R₂ = H

スカム中に含まれる上記4種類のトコフェロールについてけん化抽出法²⁾により,けん化後,HPLCにより分析した。

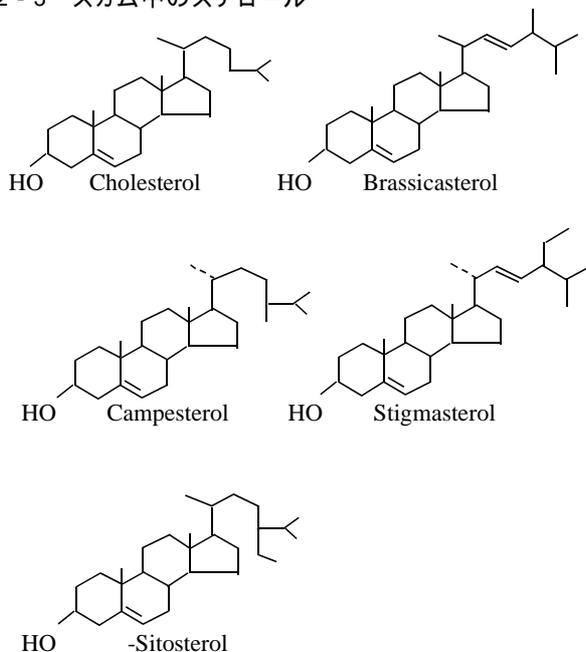
大豆スカム,菜種スカム試料約 0.5g を共栓付ガラス遠心管 50ml に精秤し 1%NaCl 1ml 加え軽く振り混ぜ,6%ピロガロール・エタノール液 6ml 加え混和。60%KOH 1ml 加え,蓋をし,70 の水浴中で約 30 分けん化した。氷水中で冷却後,1%NaCl 15ml,10%酢酸エチル・ヘキサン溶液 15ml 加え,5 分間激しく振とう抽出する。氷水中で 5 分冷却し,3000rpm,5 分遠心分離した。酢酸エチル・ヘキサン層を 100ml ナシ形フラスコに分取した。更に酢酸エチル・ヘキサン

* 1 生物食品研究所

抽出を 2 回繰り返して有機溶媒層を集めた。5%デカン・ヘキサン 1ml を加え、ロータリーエバポレーターで、40 以下の水溶液中でデカンを残し、溶媒を留去し、残さにヘキサン 10ml を加え溶解、HPLC 試験液とした。標準液は和光純薬工業(株)のトコフェロールセットを用いた。α-, β-, γ- トコフェロール各バイアル 50mg 全量をヘキサン 1ml で溶解し、これより 20 μ l をとりヘキサン 980 μ l に希釈し 1ml とした (1 μ g / μ l)。次に各液を等量混合し、すなわち α-, β-, γ- トコフェロール各々 0.25 μ g / μ l 標準液を調製し、10 μ l を HPLC で分析した。

HPLC の条件は次のとおり。カラム：Ymc-PackSILA-002, 溶離液：hexane / THF / Acetic acid (97 / 3 / 0.25), 流量：1.0ml/min, 検出器：UVat295nm, 注入量：10 μ l

2-3 スカム中のステロール



スカム中に含まれる植物性ステロールについてけん化³⁾後、HPLC 法により分析した。

スカム約 0.5g をキャップ付き試験管に精秤し、1N - KOH・エタノールを 10ml 添加、1h 加熱けん化を行った。時々振とう。次に、室温まで放置、水 50ml と石油エーテル 50ml で分液ロートに添加して移し、1 分間、激しく振とうした。二層に分離。上層の石油エーテル層を集めた。更に石油エーテル 50ml を加え同様の操作を 2 回行い、集めたエーテル層を 40ml の水で 4 回洗浄した。硫酸ナトリウムを加え脱水し、石油エーテル層をロータリーエバポレーターを用い濃縮

乾固した。ヘキサン 5ml を添加し完全にシールした容器に保管。試験液とした。標準液はコレステロール、スチグマステロール、カンペステロール、β-シトステロールを各々 0.5, 0.5, 0.345, 0.5mg / ml を含む混合液を用いた。内標準として 5 α-コレストアン(0.5mg / ml) を標準液及び試験液に 1:1 添加し分析した。

HPLC の条件は次のとおり。カラム：YMC Jsphere ODS-M80, 溶出液：メタノール / 水 (100/2), 流量：0.8ml / min, 温度：37, 検出器：UV, 210nm, 0.64AUFS, 注入量：10 μ l

2-4 2-3のけん化抽出物のGC分析

ニーズ提案元、企業より、トコフェロールとステロールの GC による同時分析を検討したいとのことで、前項で調製したけん化抽出物をガスクロにより分析した。

カラム：DB-5, 0.53mm I D, 15m。

注入量：1 μ l。カラム流速：? cm/sec。 温度：270。 注入口温度：280。 検出器温度：280。

2-5 スカム中の脂肪酸

GC-MS による分析

スカム中に含まれる脂肪酸についてメチルエステル化⁴⁾後、GC-MS により分析した。

スカム、約 25mg をスクリーキャップ式試験管に精秤し、0.5M NaOH-メタノール 1.5ml 添加、窒素で置換後、100, 7 分加熱した。冷却後、三-フッ化ホウ素-メタノール 2ml 添加、100, 5 分加熱した。30 ~ 40 冷却後、ヘキサン 3ml 加え、窒素置換後、振とうした。飽和食塩水 5ml 加え窒素置換後、混合し別の試験管別にヘキサン層を分取した。更にヘキサン 2ml を加え抽出し、抽出液を合わせた。ヘキサンで 5 倍希釈して GC 用サンプルとした。

GC-MS の条件は次のとおり。

カラム：DB 2 3, 0.25mm I D, 30m。

注入量：1 μ l。カラム流速：30cm/sec (at 50)。

昇温：50, 1min 10 /min, 170 1.2 /min, 210

注入口温度：250。 検出器温度：280。

簡易測定キットと HPLC による分析

(株)ワイエムシー社製のエステル型短鎖・長鎖脂肪酸分析キット S-FA-CR-01 を用い処理後、HPLC により分析した。

カラム：YMC - Pack FA, 溶出液：アセトニトリ

ル/メタノール/水 (75/11/14, V/V/V), 流量: 1.2ml / min, 温度: 35, 検出器: UV, 230nm, 7 AUFS, 注入量: 10 µl。スタンダードはパルミチン酸, ステアリン酸, オレイン酸, リノール酸, リノレイン酸約 0.5mg を精秤し 10ml ヘキサンに溶解し 100 µl をとりヘキサンを溜去し, サンプルと同様にキットで処理した。

3 結果と考察

3-1 スカムの一般成分分析

結果を表-1に示す。食品一般成分の分析方法では水分と脂質(エーテル可溶分)でほぼ100%であった。

表-1 スカムの食品成分

	水分	脂質	灰分
菜種スカム	1.99	98.0	trace
大豆スカム	1.66	98.3	trace

3-2 トコフェロール分析

大豆及び菜種スカム中のトコフェロールは, α-Toc > γ-Toc > β-Toc の順に多く, 総量, 10%前後(w/w)が含まれていると考えられた。

3-3 スカム中のステロール分析

HPLCでは, カンペステロールとスチグマステロールのリテンションタイムが近くピークが一部重なり分離できなかった。大豆及び菜種スカム中のステロールは, β-シトステロール > (カンペステロール + スチグマステロール) > コレステロールの順に多く総量, 20%前後(w/w)が含まれていると考えられた。今回, ブラシカステロール標準品の分析を行っていないがピーク面積値からすると多く含まれていると推察された。

3-4 2-3のけん化抽出物のGC分析

トコフェロール及びステロールのGC分析のリテンションタイムについて表-2に示す。α-Toc と γ-Toc が, またコレステロールと β-Toc が保持時間が近かった。今回分析に用いた DB-5 カラムが 15m であるが, 更に理論段数の高いカラムの使用により分離が可能と考えられ, 企業から提案されているスカム中のトコフェロールとステロールの同時分析は可能と推察された。

3-5 スカム中の脂肪酸

GC-MSによる遊離脂肪酸のR.T(保持時間)の結果を表-3に示す。

脂肪酸分析キットとHPLCによる分析では, 操作は

簡単であったが, 標準物質との比較により定性が可能で, 対象をリノレン酸, リノール酸, パルミチン酸, オレイン酸, ステアリン酸の5標準物質に限りおこなったので, 全部の脂肪酸組成について行うにはGC-MSが一般的と考えられた。

表-2 GC分析の保持時間と各成分

保持時間	物質名	保持時間	物質名
5.997	- Toc	9.883	β-シトステロール
7.040	- Toc	11.143	カンペステロール
7.391	- Toc	11.881	スチグマステロール
8.889	コレステロール	13.407	α-シトステロール
9.064	- Toc		

表-3 各脂肪酸の保持時間

	R.T(保持時間)(分)
ミリスチン酸 (C14:0)	14.4
ペンタデカ酸 (C15:0)	17.1
パルミトリン酸 (C16:1)	17.5
パルミチン酸 (C16:0)	18.7
ヘキサデカトリエン酸 (C16:3)	19.4
ステアリン酸 (C18:0)	20.9
オレイン酸 (C18:1)	21.6
リノール酸 (C18:2)	22.9
イコサトリエン酸 (C20:3)	23.7
リルイン酸 (C18:3)	24.5
アラキジン酸 (C20:0)	25.9
エイコセン酸 ((C20:1)	26.7
ベヘン酸 (C22:0)	32.5

4 まとめ

スカム中のトコフェロール, ステロール, 脂肪酸組成について GC, GC-MS, HPLC を用いた分析法を検討した結果, 次のようにまとめられた。

- 1) スカムは食品分析法では 98%が脂質で, 水分をあわせれば 100%であった。
- 2) 大豆及び菜種スカム中のトコフェロールは, α-Toc > γ-Toc > β-Toc の順に多く, 総量, 10%前後(w/w)が含まれていると考えられた。
- 3) 大豆及び菜種スカム中のステロールは β-シトステロール > (カンペステロール + スチグマステロール) > コレステロールの順に多く総量, 20%前後(w/w)が

含まれていると考えられた。今回、ブラシカステロール標準品の分析を行っていないがピーク面積値からすると多く含まれていると推察された。

4) トコフェロールとステロールの分析について GC による同時分析が可能と考えられ、今回分析に用いた DB-5 カラムが 15m であるが、更に理論段数の高いカラムの使用により分離が可能と考えられた。

5) 大豆及び菜種スクラム中の脂肪酸組成の分析について HPLC と GC-MS を用い検討した結果、HPLC 法は標準物質との比較により定性が可能で、脂肪酸全部を検出する GC-MS 法が一般的と考えられた。

5 参考文献

- 1) 神村義則監修：食用油脂入門（食品知識ミニブックシリーズ），p122-127
- 2) （社）日本食品科学工学会編纂：新・食品分析法，p.338 - 340
- 3) （社）日本食品科学工学会編纂：新・食品分析法，p.716
- 4) （社）日本食品科学工学会編纂：新・食品分析法，p.523

食品関連未利用資源の乳酸発酵をベースとした技術による高度利用

おから、焼酎粕特異的乳酸菌のスクリーニング

樋口智子*¹

Advanced Use of Food Related Undeveloped Resource by the Lactic Acid Fermentation Technology

Screening of Specific Lactic Acid Bacteria for *Okara* and/or *Shochu Kasu*

Tomoko Higuchi

当所で保有する福岡県内食品関連工場周辺 57 カ所から採取した 61 サンプルより分離した、酸産生嫌気性細菌 457 株を用いて、おからや焼酎粕培地による乳酸発酵能を検討した。おからは水抽出液を用い、焼酎粕は遠心上清を用いて各 200 倍希釈液に金属塩および Tween80 を添加したものを検定培地とした。検定菌 457 株の内、検定培地で生育が見られたものは 93 株で、その内訳は桿菌が 27 株、短桿菌が 9 株、長桿菌が 1 株、二連球菌が 27 株、および Pedio 型球菌が 29 株であった。このうち少なくとも 70 株が乳酸菌であると考えられた。

1 はじめに

おから及び焼酎粕の利用については、多くの研究がなされているものの、現在までインパクトのある利用方法は見いだされていない。これら食品関連未利用資源はいずれも腐敗しやすく処理・利用が困難である。乳酸菌、酵母等による処理は腐敗の問題を解決できる上、機能性物質を生産でき、高付加価値資源利用が可能となる。ところが、世界的な乳酸発酵技術は乳資化性乳酸菌による研究が主であり、おから及び焼酎粕等の植物性資源の発酵利用には不向きである。我が国は植物資化性乳酸菌発酵技術の先駆であるが、漬物以外の利用例は未だほとんど無く、歴史の長い技術でありながら研究領域としては未踏の分野である。

本研究ではこれら植物性未利用資源の乳酸発酵に利用できる乳酸菌の取得を目的とし、食品製造現場や自然界から分離した酸産生嫌気性細菌457株を用いて、おからや焼酎粕の発酵に適した特異的乳酸菌のスクリーニングを行った。

2 実験方法

2-1 使用菌株

当所で保有する福岡県内食品関連工場周辺 57 カ所

* 1 生物食品研究所

から採取した 61 サンプルより分離した酸産性嫌気性細菌 457 株を試験に供した。

2-2 培地

2-2-1 おから

おからはオーケー食品工業株式会社より入手した。500g の生おからに 1,500ml の蒸留水を添加、かくはん後ろ過し、ろ液を 1,350ml を得た。これをおから液原液とした。

2-2-2 焼酎廃液

焼酎廃液は西吉田酒造株式会社より入手した。

焼酎廃液は遠心上清をそのまま焼酎廃液原液とした。

2-2-3 培地調整

菌株の継代培養および前培養には MRS broths Lactobacilli (Difco 社) を使用した。

検定用培地はおから液 200 倍希釈液、焼酎廃液 200 倍希釈液、おから液 200 倍希釈液と焼酎廃液 200 倍希釈液混合液にそれぞれ Tween80 : 50mg/l, MgSO₄·7H₂O : 40mg/l, MnSO₄·4H₂O : 2mg/l, FeSO₄·7H₂O : 2mg/l, NaCl : 2mg/l を添加し、pH7.0 に調整したものを使用した。

2-3 培養および評価

検定菌を MRS 培地で 1 昼夜培養し、その培養液を 5 % 接種した後、37 °C で 24 時間培養後、その生育の有無を目視で評価した。

表 おからおよび焼酎廃液生育試験結果

菌株名	細胞形	おから液	おから液 + 焼酎 廃液	焼酎 廃液
87 - 1	長桿菌	+	+	+
88 - 2	二連球菌	+	+	+
88 - 7	桿菌	+	+	
88 - 8	桿菌		+	+
89 - 1	短桿菌	+	+	+
89 - 2	短桿菌	+	+	+
89 - 3	短桿菌	+	+	+
89 - 4	短桿菌	+	+	+
89 - 5	二連球菌	+	+	+
89 - 6	二連球菌		+	+
89 - 10	二連球菌		+	
89 - 11	桿菌	+	+	+
90 - 3	二連球菌	+	+	+
90 - 8	二連球菌	+	+	+
90 - 10	Pedio型球菌		+	+
90 - 11	Pedio型球菌		+	+
95 - 6	Pedio型球菌		+	+
95 - 7	Pedio型球菌		+	+
95 - 8	二連球菌	+	+	+
96 - 1	Pedio型球菌		+	
96 - 2	二連球菌		+	+
96 - 5	二連球菌		+	+
96 - 6	二連球菌		+	+
97 - 1	二連球菌		+	+
97 - 3	Pedio型球菌		+	+
97 - 7	二連球菌			+
98 - 1	二連球菌		+	+
98 - 2	二連球菌			+
104 - 8	Pedio型球菌		+	+
104 - 9	Pedio型球菌		+	+
104 - 10	Pedio型球菌		+	+
104 - 11	Pedio型球菌		+	+
104 - 12	Pedio型球菌		+	+
104 - 13	Pedio型球菌		+	+
104 - 14	Pedio型球菌		+	+
104 - 15	Pedio型球菌		+	+
104 - 16	Pedio型球菌		+	+
104 - 17	Pedio型球菌		+	+
106 - 7	二連球菌		+	+
106 - 8	Pedio型球菌		+	+
106 - 9	二連球菌			+
106 - 10	Pedio型球菌		+	+
106 - 11	二連球菌		+	+
106 - 12	Pedio型球菌		+	+
106 - 14	Pedio型球菌		+	+
106 - 15	二連球菌		+	+
106 - 16	二連球菌		+	+

+ は生育陽性を示す

菌株名	細胞形	おから液	おから液 + 焼酎 廃液	焼酎 廃液
109 - 1	二連球菌		+	
110 - 1	二連球菌	+	+	+
122 - 1	二連球菌		+	
124 - 1	二連球菌		+	
125 - 8	桿菌		+	
126 - 4	桿菌		+	
126 - 9	桿菌		+	
127 - 1	桿菌		+	
127 - 2	二連球菌		+	
127 - 3	短桿菌	+	+	
127 - 4	二連球菌		+	
127 - 5	二連球菌		+	
127 - 6	短桿菌	+	+	
127 - 8	短桿菌	+	+	
127 - 9	桿菌	+	+	
128 - 3	桿菌	+	+	
128 - 4	桿菌		+	
128 - 6	桿菌		+	
128 - 7	桿菌	+	+	
128 - 8	桿菌	+	+	
128 - 9	桿菌		+	
129 - 1	Pedio型球菌		+	
129 - 2	Pedio型球菌		+	
129 - 3	桿菌	+	+	+
129 - 4	桿菌	+	+	+
129 - 5	桿菌	+	+	+
129 - 6	桿菌	+	+	+
129 - 7	桿菌	+	+	+
129 - 10	Pedio型球菌	+	+	
130 - 6	桿菌	+	+	+
130 - 7	Pedio型球菌	+	+	+
130 - 8	Pedio型球菌	+	+	+
130 - 9	Pedio型球菌	+	+	+
130 - 10	Pedio型球菌	+	+	+
130 - 11	Pedio型球菌	+	+	+
131 - 4	Pedio型球菌	+	+	+
131 - 5	桿菌		+	
131 - 6	桿菌		+	
132 - 1	桿菌		+	+
135 - 5	二連球菌		+	+
136 - 4	桿菌	+	+	+
137 - 7	短桿菌	+	+	
140 - 1	短桿菌	+	+	+
140 - 2	桿菌	+	+	+
140 - 3	桿菌	+	+	+
140 - 6	桿菌	+	+	+

3 結果と考察

検定菌 457 株のうち検定培地で生育が見られたものを表に示した。

検定菌全 457 株のうち 93 株で生育がみられ、その内訳は桿菌が 27 株、短桿菌が 9 株、長桿菌が 1 株、二連球菌が 27 株、および Pedio 型球菌が 29 株であった。また、これら 93 株のうち少なくとも 70 株がグラム陽性、カタラーゼ陰性、非運動性であり、乳酸菌であると考えられた。

おからおよび焼酎粕資化性株 93 株は 25 カ所、26 サンプルより高頻度で得られており、伝統的に植物性乳酸菌を利用してきた我が国の風土を反映していると考えられる。

また、この 93 株のうち 2 株の培養液は *Bacillus subtilis* に対する抗菌作用を示しており、なんらかの抗菌物質を生産していることが明らかとなった。また、この 2 株について GABA の生産を確認したため、今後の詳細な検討が必要である。

おからの有効利用や焼酎粕の有効利用については多くの研究がなされてきているものの現在までインパクトのある利用方法は見いだされていない。これらの食品関連未利用資源を組み合わせ、さらに乳酸発酵を行うことで保存性を高め、機能性物質の生産を行う技術の開発が急務である。しかしながらこれらの食品関連未利用資源は植物系資源であるため栄養要求性が複雑な乳資化性乳酸菌で乳酸発酵を行うことは非効率的である。そのため、おからや焼酎粕の発酵に適した特異的乳酸菌をおから、焼酎粕産出現場や広く自然界からスクリーニングし、それら乳酸菌の高血圧予防機能のある γ -アミノ酪酸 (GABA)、バクテリオシン等の抗菌物質、その他抗酸化性物質等、機能性物質生産能を詳細に評価し、効率的な乳酸発酵および機能性物質生産に対する発酵技術を開発することが重要となる。

4 まとめ

おからおよび焼酎粕培地において、検定菌全 457 株のうち 93 株で生育がみられ、その内訳は桿菌が 27 株、短桿菌が 9 株、長桿菌が 1 株、二連球菌が 27 株、および Pedio 型球菌が 29 株であり、そのうち少なくとも 70 株が乳酸菌であった。このうち 2 株について、なんらかの抗菌物質を生産し、MRS 培地より GABA を生産していることを確認した。

本試験研究は平成 14 年度の (財) 福岡県産業・科学技術振興財団マッチングコーディネート事業実用化可能性試験における受託研究の成果である。

チェックリスト

分類	著者	課長	内 容
提出物			原稿（複写1部）
総 合	1		共著者全員が原稿に目を通している
	2		他著書から転載の場合、原著者、著作権者の許可を得ている
	3		原稿はA4，4頁以内である。「学協会誌投稿論文の概要」は2頁以内である
	4		フォーマットは適正である（マージン、文字数、表題部など）
	5		テーマ名・機関名・著者名・英文表題の誤字，抜け字はない
	6		見出しは 1，1-1，1-1-1等とする。参考文献にも見出しがついている
	7		文章は当用漢字，現代かなづかい（付録の用語資料参照），「である」体
	8		数字はアラビア数字，単位・量記号はSI単位（付録の国際単位表参照）
脚 注 等	1		脚注，文献は本文中で必ず引用している
	2		脚注，文献に通し番号がついている
図 表	1		図表は本文中に引用している
	2		図表に通し番号がついている
	3		図表に日本語の説明文がついている
	4		説明文だけで図表を理解できる，A4に縮小しても読める
	5		図表中の記号の説明がある
	6		図の縦・横軸の説明は「物理量/単位」の形式である
	7		大きさを示す図には基準寸法が入っている
	8		写真の写りは良い。別紙添付の場合トリミングや番号・著者名を記入している
コ メ ン ト	担当課長コメント		
	研究所長コメント		

細胞表面情報を用いた細胞膜センサーの開発

- 合成2分子膜再構成型分子認識細胞膜センサーの構築 -

奥村史朗*¹ 赤尾哲之*¹ 井上國世*²

Development of biosensor by incorporating functions of human cell membrane proteins

Interaction between *Bacillus thuringiensis* -endotoxin and self-assembling biosensor composed of whole cell membrane proteins with artificial phospholipid

Shiro Okumura , Tetsuyuki Akao , Kuniyo Inouye

細胞の生命活動の最終的なインターフェースは細胞膜であり、細胞による特異的な分子認識や物質の透過、放出などは細胞膜の機能によって制御されている。細胞膜上で実際に物質認識を行っているのは膜タンパク質であり、細胞膜上の全タンパク質をすべて載せたセンサーが作成できれば、細胞の物質認識を検定するスクリーニング系を構築できる可能性がある。そこで*Bacillus thuringiensis* が産生するトキシンとヒト培養ガン細胞の細胞膜タンパク質を材料として実際に細胞膜センサーを構築した。平成13年度は表面プラズモン共鳴現象 (SPR) を用いたセンサー上にヒト培養ガン細胞の細胞膜タンパク質をビオチン化して固定化し、スクリーニングを目的としたセンサーの開発が可能であることが示唆された。平成14年度は応答量の改善を目的として合成2分子膜を用いた細胞膜再構成型のセンサーについて検討を行い、さらにヒト培養ガン細胞の細胞膜画分を陰イオン交換クロマトグラフィにより分画し、細胞膜センサーを細分化することによる応答量の改善を検討した。

1 はじめに

細胞の生命活動の最終的なインターフェースは細胞膜である。細胞による特異的な分子認識や物質の透過、放出などは細胞膜の機能によって制御されている。最近では細胞をプログラム死 (アポトーシス) に至らしめるスイッチが細胞膜上にあるといった報告もされており、各種の病理細胞、特にガン細胞にアポトーシスを起こさせることで治療を行える可能性などが示唆されている。細胞膜上で実際に物質認識を行っているのは膜タンパク質であり、細胞膜上の全タンパク質をすべて載せたセンサーが作成できれば、細胞の物質認識を検定するスクリーニング系を構築できる可能性がある。

Bacillus thuringiensis (以下*B. thuringiensis*) はグラム陽性の桿菌で孢子形成時にクリスタルと呼ばれるタンパク質を形成する。*B. thuringiensis* がつくるクリスタルには特定のガン細胞に対して細胞破壊活性を示す⁽¹⁾ものがあり、新規の抗ガン剤やガン診断薬として期待されている。我々はこれまで*B. thuring*

ensis HD-73 株由来のトキシンについて表面プラズモン共鳴法 (SPR) を用いて作用機構の解明を行ってきた⁽²⁾。*B. thuringiensis* が産生するトキシンは株ごとに異なるため、どの株のトキシンがどの細胞系に活性を持つのかスクリーニングする必要がある。そこで細胞膜センサー構築についての研究材料として*B. thuringiensis* が産生するトキシンおよびヒト培養ガン細胞を用いることとした。

本研究においては、平成13年度は SPR を用いたセンサー上にヒト培養ガン細胞の細胞膜タンパク質をビオチン化して固定化し、トキシンとの相互作用を検討した。センサーでの応答から測定された親和定数 (KD) やトキシンの結合量と細胞傷害活性の間に正の相関が見られたことから、スクリーニングを目的としたセンシングが可能であることが示唆されたが、応答の絶対量が少なく実際に判定するのは困難であった。そこで平成14年度は応答量の改善を目的として合成2分子膜を用いた細胞膜再構成型のセンサーについて検討を行った。さらにヒト培養ガ

*1 生物食品研究所

*2 京都大学大学院農学研究科

ン細胞の細胞膜画分を陰イオン交換クロマトグラフィーにより分画し、細胞膜センサーを細分化することによる応答量の改善を検討した。

2 研究, 実験方法

2-1 合成2分子膜再構成型分子認識細胞膜センサーとトキシンの応答

応答の絶対量が少ない原因としては次の2点が考えられた。ひとつは膜タンパク質をビオチン化する際に膜タンパク質の細胞外に露出した部分がビオチン化され、これをセンサー上に固定化すると、センサーチップ上に固定化したアビジンにビオチン部分が結合するため、トキシンの結合部位が立体障害を受けている可能性があることである。もうひとつは、細胞膜上にはラフトと呼ばれるスフィンゴ脂質やGPIアンカータンパク質が豊富なドメインが存在し、このラフト上に特定のレセプターが集合していることが明らかにされている。この場合、レセプターが集合することでリガンドとの結合能が飛躍的に上昇することがわかってきているが、アビジン-ビオチン結合型の細胞膜センサーではこのラフト構造を形成することが原理的に不可能であることである。以上の点からアビジン-ビオチン結合型の細胞膜センサーでは応答の絶対量が少ないと考えられた。そこで細胞膜タンパク質セットを合成2分子膜と混合し、擬似的な細胞膜をセンサー上に構築する細胞膜再構成型のセンサーを検討することにした。このセンサーは細胞膜タンパク質が疎水結合によってセンサー上に固定化されるため、原理的にはレセプターとリガンド間の結合の立体障害を解消し、ラフト構造の形成が可能となるため、応答量の増加が見込めると考えられる。

実験方法は直径10 cmのシャーレ2枚分(10⁷ cells)のヒト子宮ガン細胞(HeLa細胞)をプロテアーゼ阻害剤を含む1.5 mlの緩衝液(25 mM Tris, 250 mM sucrose(pH 7.4))に分散し、超音波破碎を1分間(duty 50%, output level 6)行った。これを10,000 ×g, 30 min, 4 で遠心し、ミトコンドリアや核を沈殿除去した。上清にNaCl(100 mM), MgSO₄(0.2 mM)を加えて細胞膜の凝集を促進し、0 で30 minインキュベートし、58,

000 ×g, 30 min, 4 で遠心して、沈殿画分として細胞膜を回収した。集めた細胞膜画分にHBS(pH 8.0) 450 μl とプロテアーゼ阻害剤(シグマ製) 50 μlを加えて分散させ、細胞膜画分溶液とした。この細胞膜画分溶液のタンパク質量を定量し、合成2分子膜PC14を加えて、タンパク質濃度が250 μg/mlに、PC14濃度が500 μg/mlになるように調製した。こうして得たPC14と細胞膜タンパク質の混合物を超音波をかけてリポソーム化し、適当に希釈してHPAチップに固定化し、100~400 nMに調製した*B. thuringiensis* 1190株トキシンをインジェクトした。*B. thuringiensis* 1190株トキシンはHeLa細胞に対して破壊活性を持っており、構築した細胞膜センサーと反応することが期待される。センサー構築時の条件は、流速1 μl/minで、溶出bufferはHBS(pH 8.0), 3% MeOHを使用した。センサーとトキシンの反応測定時の条件は流速10 μl/min, センサーの再生は4 mM NaOHで行い、溶出bufferはHBS(pH 8.0), 8 μM BSA, 3% MeOH を用いた。

2-2 細胞膜タンパク質の陰イオン交換クロマトグラフィーによる分画

ヒト培養ガン細胞として白血病由来のMOLT-4細胞を用いた。まずMOLT-4細胞の細胞膜画分を抽出、精製し、可溶化剤で可溶化して陰イオン交換クロマトグラフィーにより分画した。100 ml(5 × 10⁷ cells)のMOLT-4細胞を用意し、PBSで2回洗浄後、冷HBS(pH 8.0)を10 ml添加し、ビオチン化試薬Biotin-(AC5)₂-OSuを5 mg/mlの濃度でDMSOに溶解したものを200 μl添加して0で30 minかるく振とうし、PBSで2回洗浄後、1,000 ×g, 2 minの遠心により細胞を回収した。これを顕微鏡で観察しながらポッターエルベジェム型のホモジナイザーで細胞を破碎した。破碎にあたっては緩衝液はプロテアーゼ阻害剤を添加した3 mlの低張液(5 mM Tris, 50 mM sucrose(pH 7.4))にタンパク安定化剤として0.5 mM DTT, 0.5 mM CaCl₂を添加して用いた。核・ミトコンドリアと未破壊の細胞を除くために破碎液を8,000 ×g, 10 min遠心し、細胞膜とERを含む上清を回収し、沈殿にプロテアーゼ阻害剤を含む低張液を2 ml入れて再度破碎した。同様に8,000 ×g, 10 min遠心し、上清を回収、最初の上清に加えた。こうして得た上清を55,000 ×g, 120 min遠心して、沈殿を回収し、これを細胞膜画分とした。この細胞膜画分に25

mM Tris-HCl(pH 8.0), 1% TritonX-100, 0.5 mM DTTを加えて0, 30 min静置して可溶化した。可溶化サンプルを55,000 ×g, 30 minで遠心して、不溶画分を沈殿除去し、上清をサンプルとした。これを陰イオン交換クロマトグラフィカラム(Resouse Q, 1 ml)で、25 mM Tris-HCl(pH 8.0), 0.1% TritonX-100, 0.5 mM DTTを流して未吸着画分を溶出し、1 M NaClでグラジエントをかけて、吸着画分を溶出し、各1 mlのフラクションを得た。

2 - 3 陰イオン交換クロマトグラフィにより分画したMOLT-4細胞膜タンパク質と*B. thuringiensis* 1470トキシンとの相互作用

2-2で得た各フラクションをバイオスピカラム(BIO-RAD)にかけてbuffer置換を行い、抗ピオチン抗体を固定化したセンサーチップに流し、フラクション中のピオチン化された膜タンパク質をピオチン-抗ピオチン抗体の結合を介してセンサーチップ上に固定化した。これに*B. thuringiensis* 1470株が産生するトキシンを流して各フラクション中の膜タンパク質と1470株のトキシンとの相互作用を検討した。*B. thuringiensis* 1470株が産生するトキシンはMOLT-4細胞に対して破壊活性を持っており、こうして得た細胞膜センサーに対して反応することが期待された。手順としては、まずセンサーチップを20 mM オクチルグルコシドで洗浄(0.5 min)し、続いてbuffer置換した膜タンパク質フラクションをインジェクトした(1.5 min)。これに200 nM 1470トキシンを1 minインジェクトし、膜タンパク質との結合を観測した後、30 mM HClを1 minインジェクトして、結合した膜タンパク質を洗い流した。2-2で得たすべてのフラクションについてこれを繰り返した。

3 結果と考察

3 - 1 合成2分子膜再構成型分子認識細胞膜センサーとトキシンの応答

HeLa細胞の膜タンパク質について、合成2分子再構成型のセンサーを構築し、1190トキシンとの相互作用を検討したところ、400 nMの1190トキシンは約130 RUの応答を示した(図 - 1)。これはアビジン-ピオチン結合により構築した膜タンパク質センサーの応答量(約70 RU)と比較して倍のシグナル量となっており、

当初考えていたようにS/N比の向上が可能なが判明した。

ただし、この合成2分子再構成型のセンサーはきわめて不安定で、測定を重ねるごとにベースラインが揺らいでくることが観察された。順調に測定が推移した場合だいたい20サンプル程度の測定が限度であった。さらにサンプル中に微小な泡が発生することがあり、この泡はセンサーのシグナルにおいてはスパイクとして観察されるが、一旦スパイクが観察されるとトキシンに対するセンサーの応答が変化した。これは泡の界面に合成2分子再構成型センサーの合成二分子部分が結合し剥がれてしまうためと考えられた。図 - 1においても100 nMのサンプルをインジェクトした際にベースラインが乱れている。これを防止するために、通常サンプルは十分脱気して使用するが、たまに発生する微小な泡を完全に防ぐことはできないため、安定性の点でこの合成2分子再構成型のセンサーは実用には適さないと考えられた。

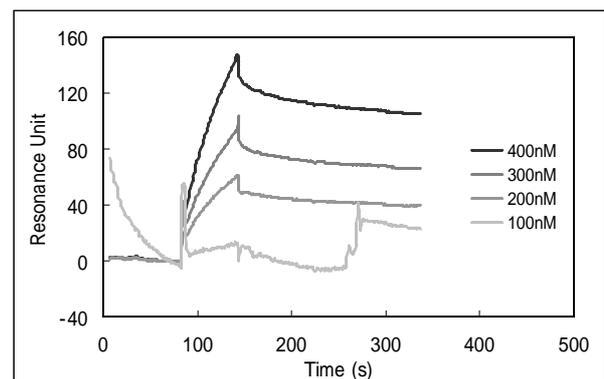


図 - 1 HeLa細胞の細胞膜センサーと*Bacillus thuringiensis* 1190株トキシンの応答

3 - 2 細胞膜タンパク質の陰イオン交換クロマトグラフィによる分画

細胞膜タンパク質を陰イオン交換クロマトグラフィで分画し、レセプタータンパク質の濃縮を行い、可溶化したタンパク質を15のフラクションに分割することができた。(図 - 2)

まずMOLT-4細胞の細胞膜タンパク質の可溶化画分を陰イオン交換クロマトグラフィにかけると素通り画分が溶出してくる(フラクション1~5)。そこから直線的に塩濃度を上げていくと、陰イオン交換樹脂との結合強度の低い物から順に膜タンパク質が溶出されてくる。各フラクションの分割位置をグラフの下に太線で

示した。

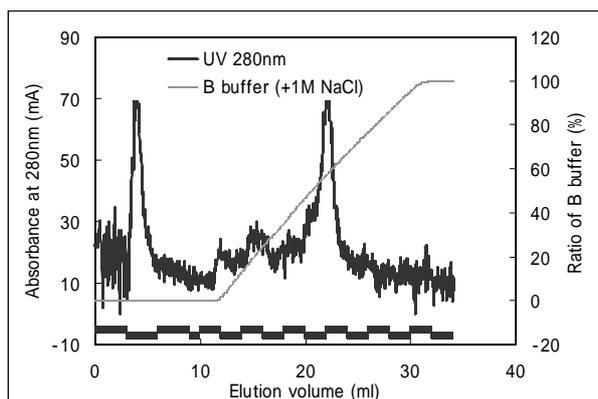


図 - 2 陰イオン交換クロマトグラフィによる MOLT-4 細胞の可溶化細胞膜画分の分画

3 - 3 陰イオン交換クロマトグラフィにより分画した MOLT-4 細胞膜タンパク質と 1470 トキシンとの相互作用

陰イオン交換クロマトグラフィによって分割した MOLT-4 の各膜タンパク質フラクションと 1470 トキシンとの相互作用を観察したところ (図 - 3), 9 番目のフラクションのみが他のフラクションに比べて高い応答を示し, 1470 トキシンに対するレセプターがこの画分に含まれていると考えられた。このことから

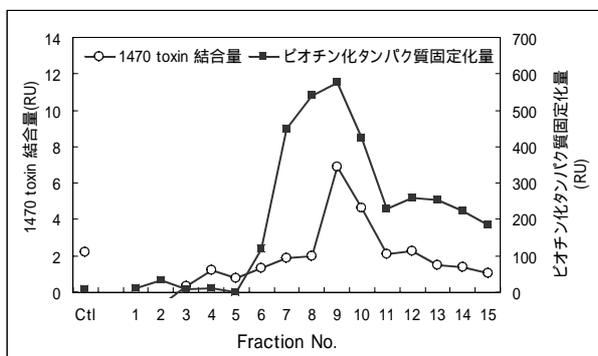


図 - 3 MOLT-4 細胞膜画分フラクションの抗ビオチン抗体固定化センサーチップへの固定化量と *Bacillus thuringiensis* 1470 株トキシンとの結合量

陰イオン交換クロマトグラフィにより膜タンパク質を分画することでセンサーの応答を上げることが可能なが示された。

4 まとめ

本研究により, 陰イオン交換クロマトグラフィにより膜タンパク質を分画することでセンサーの応答を上

げることが可能であることを示したが, この方法は実際に測定チップとしての流通を想定したときに, 測定用のサンプル量や測定時間も増加する必要があるというデメリットも存在する。このデメリットを解決するためには, 例えば膜タンパク質フラクションを 10 分割した場合は, センサーに 10 流路用意しておいて, それぞれの流路に分割した膜タンパク質を順に固定化しておくといった方法が考えられる。これにより, 投入したサンプルは流路を順に流れていき, それぞれの画分との応答を測定できることから, サンプル量も時間も大きく短縮することが可能である。ただし, このような改善は測定器に関するノウハウに直結しており, 今後協力機関と相談しながら検討していく必要があると考えられた。

5 参考文献

- 1) E. Mizuki et al. :Unique activity associated with non-insecticidal *Bacillus thuringiensis* parasporal inclusions: in vitro cell-killing action on human cancer cells. *J Appl. Microbiol.*, 86, 477-486 (1999).
- 2) S. Okumura et al. :Screening of the *Bacillus thuringiensis* CryIAc delta-endotoxin on the artificial phospholipid monolayer incorporated with brush border membrane vesicles of *Plutella xylostella* by optical biosensor technology. *J Biochem. Biophys. Methods*, 47, 177-188 (2001).

木材抽出成分のアレロパシーに関する研究

- 木質廃材からのアレロケミカルズ特定に関する研究 -

脇坂政幸*¹ 藤井義晴*² 平野吉男*¹ 小野昌志*¹

Study of the Allelopathy on wood extracts

-Study of isolate the allelochemicals from waste of wood-

Masayuki Wakisaka, Yoshiharu Fujii, Yoshio Hirano, Masashi Ono

植物は生育に適した環境へ自ら移動する事ができないため、生長を脅かす外敵の忌避や繁栄に必要な共生関係を、他の植物や生物を対象に2次代謝物質を介して影響を及ぼし合うが、このような作用をアレロパシーという¹⁾。福岡県大川地域には家具・建具及び製材業が集積した日本有数の家具産地があり、当該産地品は輸入材を多用する。主要構成は南洋材、アフリカ材、北米材などで、当地域では多種樹木を入手しやすい環境であることと併せ、当地で発生する年間約37万m³の木質廃棄物の利用を目的に、除草・抑草剤として同樹木抽出成分のアレロパシー研究を行った。本稿では流通材のほか国内材を含めメタノールにて材中成分を抽出し、レタス(*Lactuca sativa*)に対するアッセイを検討した結果、4樹種が生長阻害作用を示し、1種の樹木に生長促進作用が認められたので報告する。

1 はじめに

大川地域家具業界では製材に伴い非常に多くの端材の廃棄物が発生する。従って、木質系廃材のカスケード型有効利用の一手法として、材料中からの有効成分の利用技術を考えていく。特に植物は動くことの出来ない自分の身を外的から守るため、忌避的作用物質を持つことが知られる一方、他の植物の生長を促す物質の存在も検証されている。しかし、これら作用の詳細は良く知られておらずどの様な成分が単一、または複合的に作用するのか課題は多いと考えられる。前年は大川地域において流通する木材を対象としたが、本年度からは流通材以外も含め多くの樹種を対象とし、抽出成分が植物の生長に与える影響についてアッセイを行う。

2 研究, 実験方法

2-1 対象材料

現在、家具、建具、製材関連産業において取り扱っている材料は広葉樹を主とした輸入材が大部分を占めており、廃棄物として排出される端材もそれに従う。

しかし、国産材にも入手可能な廃材端材が多く、そ

の様な材料も含めアレロパシー活性測定検体として用い実施した。今回用いた材料を以下に示す。

2-1-2 試験材料

アッセイは試験対応数の関係からA及びBの2グループに分け実施した。

A群

アイアンウッド *Eusideroxylon zwageri*

コクタン *Diospyros* sp.

モアビ *Baillonella toxisperma* Pierre

ブピンガ *Guibourtia* sp.

レッドウッド *Sequoia sempervirens* Endl.

ブラックウォールナット *Juglans nigra* L.

ケヤキ *Zelkova serrata* Makino

センノキ *Kalopanax pictus* Nakai

B群

ジャラ *Eucalyptus* sp.

ミズキ *Cornus* sp.

ニヤトー *Palaquium* spp.

メルサワ *Anisoptera* spp

イペ *Tabebuia* spp.

メラピ *Shorea* spp.

2-2 方法

2-2-1 抽出試料の調整

ミルで粉碎した対象材約100gを500ml三角フラス

*1 インテリア研究所

*2 独立行政法人 農業環境技術研究所

コに投入，100%MeOH400ml をフラスコに注ぎ，室温での静置抽出を2回繰り返し行った。抽出液は濾過後に減圧濃縮し，最終的にはバイアル中で真空脱気して乾固する。

2-2-2 抽出物のレタスに対するアッセイ

操作2-2-1により抽出した化合物をDimethylsulfoxide(DMSO)を用いて寒天に分散させ，これにレタス(グレートレークス366号)を植え付け，幼根(Radicle)と下胚軸(Hypocotyl)の伸長率，種子の発芽率を測定し，活性作用の検証を行った。測定n数は各濃度条件とも3反復とし，1反復あたり4粒の種子を寒天に播種した。A群のアッセイ結果を図-1，図-2に示す。なお，寒天：0.5%，DMSO：1%，サンプル：500ppm，300ppm，200ppm，100ppmで行った。

3 結果

図-1及び図-2にA群8樹種のRadicleとHypocotylの伸長率を示す。

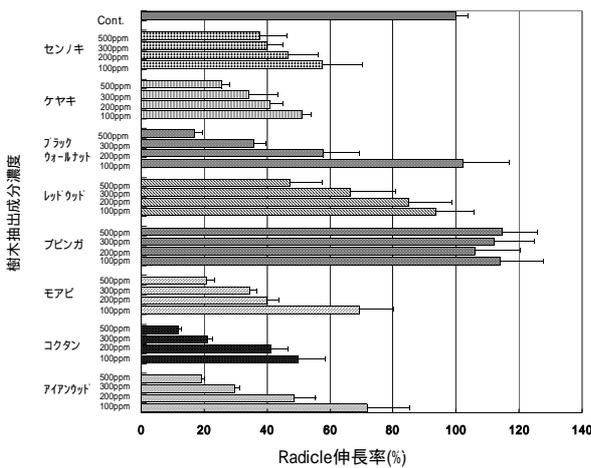


図-1 Radicle伸長率と樹木抽出成分濃度の関係

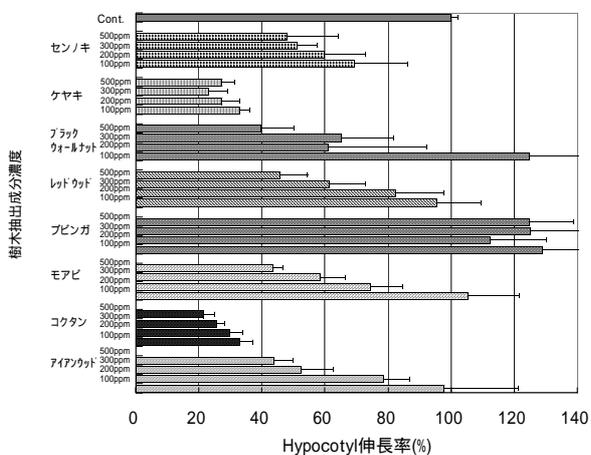


図-2 Hypocotyl伸長率と樹木抽出成分濃度の関係

図-1及び図-2の結果から，A群8樹種抽出物におけるレタスの生長への影響では，ブピンガ(*Guibourtia* sp.)を除く全ての樹木でRadicle及びHypocotylの生長阻害に対する抽出物の濃度依存性が確認できた。また，ブピンガについては生長促進作用を示し，その際の濃度相関は見られなかった。

B群7樹種についてはA群と同様の挙動を示しており個別の図は下記総括図に示し割愛した。

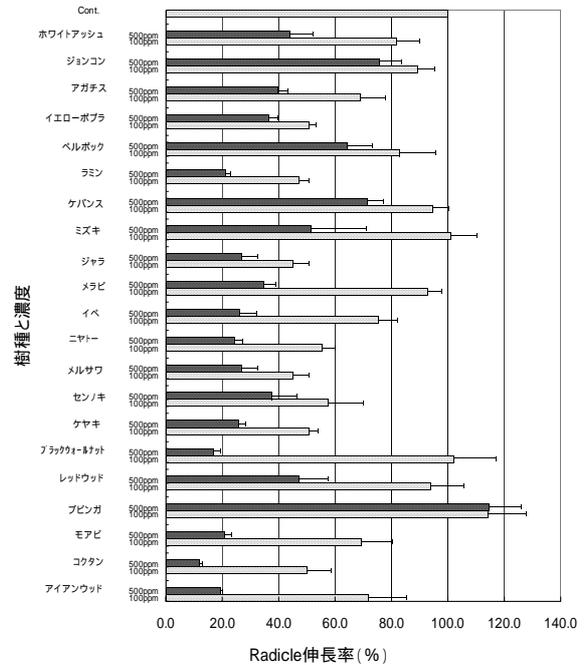


図-3 21樹種抽出物(500ppm,100ppm)によるRadicle伸長率(%)への影響

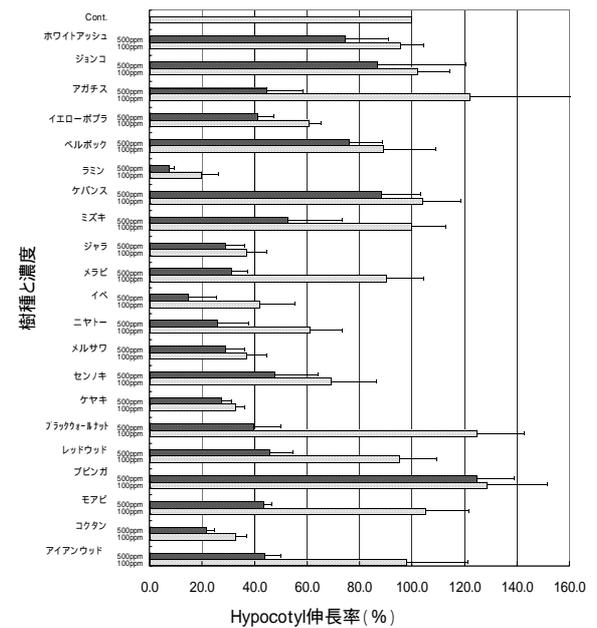


図-4 21樹種抽出物(500ppm,100ppm)によるHypocotyl伸長率(%)への影響

図 - 3 及び図 - 4 に前報²⁾報告の 6 樹種を含めた 21 樹種の抽出物について、抽出物濃度を 500ppm と 100ppm に調整したときのレタスへのアレロパシー作用の結果を示す。その結果は図 - 1 及び図 - 2 と同様に各樹種とも生長の影響は濃度に依存することが示され、樹種固有のアレロパシー強度の違いがうかがえる。一方、抽出物の濃度が 100ppm の時に伸長率が 50% 以下であるときを、アレロパシー作用の基準³⁾として判断した場合、Radicl e ではジャラ、メルサワ、ケヤキ、コクタン、ラミンが、また Hypocotyl ではジャラ、イペ、メルサワ、ケヤキ、コクタン、ラミンが該当する。これより双方向とも生長阻害が重なる樹種は「ジャラ、メルサワ、ケヤキ、コクタン、ラミン」となる。ただし、ラミンについては既に検証しており、今回は他の 4 樹種への絞り込みが完了した。

また、A 群 8 樹種抽出物がレタスに及ぼす作用を発芽率にて調べた結果を図 - 5 に示す。

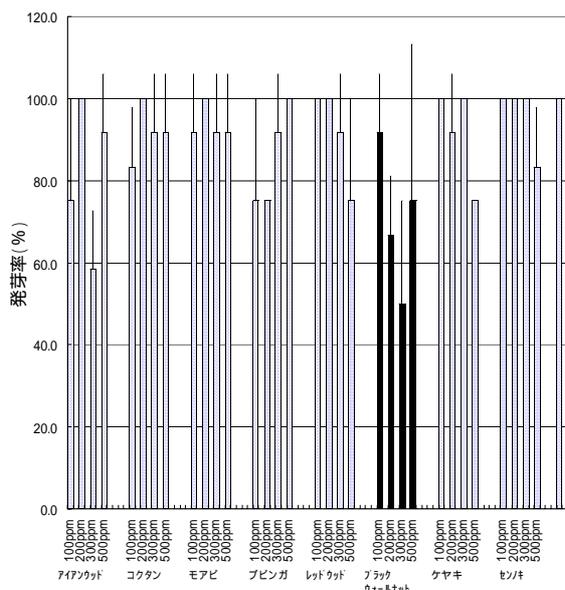


図 - 5 A 群 8 樹種におけるレタス発芽率(%)
(右端：Cont.)

今回、当該研究では高いアレロパシー活性を示すとされるブラックウォールナットを用いて比較検討を試みた。ブラックウォールナットは樹下において非常に強い生長阻害を示す樹として知られている。その作用物質がユグロン (1,4-naphthoquinone) であることが分かっている⁴⁾が、図 - 1 及び図 - 2 では特に強い作用を示していない。材中における存在形態はユグロンへの変化前の構造物質であり、そのものの作用の低さを

裏付ける結果であった。しかし、図 - 5 の発芽率の結果から、わずかながら発芽に及ぼす効果の相対的高さがうかがえた。

一方、一般的にアレロパシーの研究を行う上で生長阻害を示す作用が多い中、本結果では生長促進作用を示す樹種も確認できた。植物の場合、二種類を混植したときに互いの育成がよくなる組み合わせを共栄植物 (Companion plant) といい、養分、光といった因子による物理的、化学的相互作用と言われるが、化学物質による作用の可能性も示唆されている⁵⁾。当該樹木の生長速度を考慮した場合、共栄関係までは言及できないが、農業作物或いは森林資源増産などにおいて利用の可能性が期待される。

4 まとめ

以上より、今回の樹種の系でレタスに対する生長阻害作用を示す樹木 4 種と生長促進を促す樹木 1 種が確認できた。生長阻害作用では抑草剤として、また生長促進作用では作物の増加や観葉植物の延命剤として可能性が考えられることから、今後は作用成分の単離と特定を行い実用化の可能性について検討を行う。

5 参考文献

- 1) 藤井義晴：アレロパシー，農文協，p27 (2000)
- 2) 脇坂ら：木材抽出成分のアレロパシーに関する研究 - 木質廃材からのアレロケミカルズに関する研究 - 平成 13 年度福岡県工業技術センター研究報告，No.12，p88-90(2001)
- 3) Zahida Iqbal：Journal of Weed Science and Tech.，Vol. 47 Supplement p.161
- 4) 藤井義晴：アレロパシー，農文協，p94 (2000)
- 5) 藤井義晴：アレロパシー，農文協，p44-46 (2000)

自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発(1)

- ボールエンド形状の軸付き弾性砥石のための学習型モーション/力制御系の開発 -

永田寅臣*1 楠本幸裕*1 安田仁徳*2 津田邦博*2 渡辺桂吾*3 木口量夫*3

Development of Super Polishing System for Metallic Molds with Curved Surface

Development of Learning-based Motion and Force Control Strategy

for Mounted Abrasive Rubber Tools with Ball-end Shape -

Fusaomi Nagata, Yukihiro Kusumoto, Kiminori Yasuda,

Kunihiro Tsuda, Keigo Watanabe and Kazuo Kiguchi

平成13年度補正即効型地域新生コンソーシアム事業「自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発」により、自由曲面を有するPETボトル金型の磨き工程を自動化するためのシステムを試作開発した。本稿では、従来の自動磨きシステムがPETボトル金型の磨き作業に対応できなかった問題点を客観的に整理するとともに、それらを解決するために提案した学習型モーション/力制御法について詳述する。提案手法では、まず、Windows APIを有する腕型マニピュレータのアーム先端にボールエンド形状の弾性ゴム砥石を装着し、磨きシステムを構成する。つぎに、砥石の押付力と砥石に作用する摩擦力の合力を磨き力として定義し、この磨き力を安定的に制御することで高品位な磨き機能を目指すものである。

1 はじめに

現在、ペットボトル製造用の金型の需要は世界的規模で益々増大している状況にある。この金型製造において最も自動化が望まれているのが、NC加工後の磨きの工程である。金型の製造分野においては、3次元CAD/CAMシステムやマシニングセンタの普及により、設計/加工の工程が大幅に合理化されてきている。しかしながら、最終工程である磨きの工程は未だ熟練者の手磨きに支えられている状況である。現状では、限られた人数の熟練作業者が砥石などを使用し、例えばペットボトル用金型の場合、熟練者一人当たり3日に約1個のペースで手作業にて仕上げられている。このため、安価な人件費で対抗してくる中国などアジア地域の金型製造業に対して日本国内の企業は非常に大きな危機感を抱いている。このような背景から、仕上げ精度、製造時間、製造コストの全ての点で優位に展開していくことができる自動磨きシステムの研究開発に大きな期待が寄せられている。

本研究では、まず、軸付き砥石を装着した産業用ロボットにより動作自由度の高い磨きシステムを構成する。つぎに、軸付き砥石のための学習型モーション/力制御法¹⁻³⁾を提案し、凹型曲面を有するアルミワ-

クの磨き実験によりその有効性を検証する。

2 従来システムの問題点

これまでに行われてきた金型磨き工程の自動化研究の代表的なものとして、マシニングセンタや産業用ロボットに専用の研磨工具を取付け、工具の押付力を一定に保ちながら磨くことで目標とする仕上精度を実現しようとした自動研磨装置が多数提案されている。しかしながら、エア駆動あるいは電気駆動の回転式・振動式の磨き工具が使用されているため、複雑な駆動ノイズの発生により、これら工具を使用した場合の最適な押付力(数百gf程度)の検出が困難である、回転・振動による研削力が強く、工具駆動トルクと押付力の微調整が困難である、磨き品質に重要な影響を及ぼす運動摩擦力や粘性摩擦力が考慮されていないため、均一な仕上げ品質が得られない、といった問題点がある。このため、パーティション部のエッジを過研磨しやすいなどペットボトル金型で使用されている程度の曲率を有する自由曲面の高品位磨きに対応できていないようである。

3 学習型モーション/力制御系の提案

本節では、本プロジェクト事業で開発する磨きシステムの基本制御戦略であるモーション/力制御法について述べる。これまでに、位置と力のハイブリッド

*1 インテリア研究所

*2 株式会社エーエスエー・システムズ

*3 佐賀大学大学院工学系研究科

制御法やインピーダンス制御法など、マニピュレータと環境との間に作用する力を制御するための手法が提案されているが、自由曲面を有する金型ワークの磨きシステムを実現するためには、工具の押付力の調整だけでは十分とはいえない。そこで我々は、砥石工具の押付力に加えて砥石工具と金型ワークとの間に作用する摩擦力を制御しながら所望の磨き品質を達成していくことができる磨き方法を提案する。

3-1 システム構成

図-1には、磨きシステムの概略図を示す。磨きシステム本体には、人間の腕に近いリンク機構を備えていること、既に産業界における実績が多数あり信頼性と安定性を確保できること、技術情報を得やすいなどの理由により、垂直多関節型の産業用ロボットを想定している。特に最近では、従来の教示方式インタフェースに加えて、ユーザがアプリケーション開発を行えるように内部アーキテクチャが公開されたオープンインタフェースを有するコントローラが提供されてきているため、本システム開発においても積極的に採用することとする。これにより、例えば、VC++からコールできるキネマティクスやサーボコントロールなどのAPIを利用することで、ユーザ側で開発する速度指令の制御則を容易に適用できるようになる。

つぎに、ロボットアーム先端には、図-2のように各方向の力覚情報を独立に観測できる力センサを装着し、その先にアルミ製の軽量アタッチメントを介して様々な軸付き砥石を固定できる。基本的な磨き戦略として、従来から問題となっている砥石周辺部とワークとの干渉を防ぐために砥石の姿勢は変化させず、図-3のように工具軸をロボットベース座標系(O-XYZ)のZ軸に固定し、工具の3自由度並進移動と磨き力(押付力と摩擦力の合力)のハイブリッド制御で磨きを行う。この場合、砥石が自由曲面を有する金型ワークとの良好な接触状態を維持できるように、ボールエンド形状の砥石を用いる。例えば、図-3において、ワーク底面は砥石のボールエンド(先端)部分で磨かれ、ワーク側面は砥石のフラット(側面)部分で磨かれることになる。これにより、砥石の外周を効率的に消費しながら磨きを実行できるため、長時間の自動運転にも適用できるものと期待される。

3-2 弾性砥石とワーク間に作用する摩擦力の制御

準備実験として、軸付き砥石をハンディタイプの電動工具に装着し、平面金属ワークを手動操作で磨いて

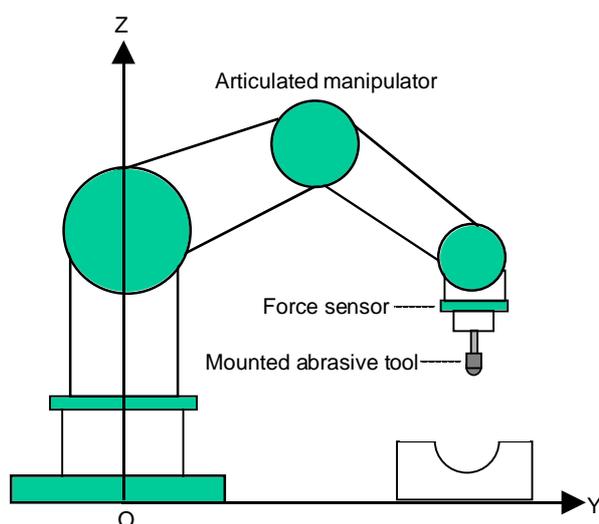


図-1 磨きシステムの概略図

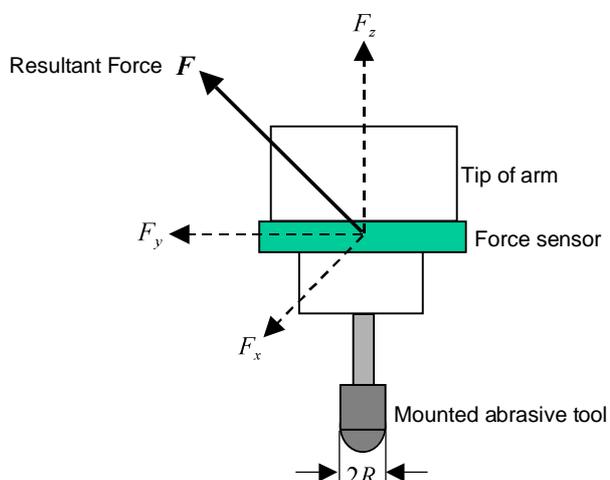
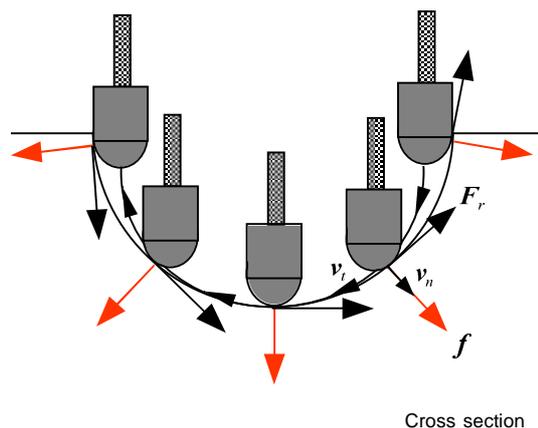


図-2 アーム先端に装着する力センサと軸付き砥石



Cross section

図-3 軸付き砥石のためのモーション・力制御法

みた。ところが、ハンディタイプの電動工具では軸回転速度が 10,000 r/min 以上にもなるため、研削力が非常につよく、数百グラム程度の押付力でも火花が発生し過研磨ぎみになってしまった。また、既に商品化されている木工用ロボットサンダー⁴⁻⁶⁾の先端にエア駆

動工具を装着し、アタッチメントを介して軸付き砥石を取付け同様な磨き実験を行ったが、工具の回転運動に伴う高周波数の振動が発生するため、力センサで数百グラム程度の押付力の変化を観測することは困難であった。さらにこの場合は、ロボット本体、力センサ、アタッチメント、工具などに弾性成分が含まれておらず、非常に硬い系での力制御を行う必要があったため、ゲインを小さくすることで制御系の安定化を図った。この準備実験により、軸付き砥石を高速回転させその回転運動による研削力で磨きを実行する方法は適用が困難であると思われたため、実際に熟練者の磨き作業風景を観察し、その熟練者スキルに基づく磨き戦略について検討することとした。熟練者は、電動式やエア駆動式の工具は使用せず、竹へらの先端にゴム材を介して研磨紙を貼り付けた専用工具を使用している。この場合、NC加工後の大きなカスプマーク除去から仕上げ磨きまでに対応するため、研磨紙の粒度を #320 #400 #600 #800 #1000 #1200 #1600 #2000 のように細かくしながら作業を進めている。特に、磨きの方向を横方向や縦方向に適度に变化させながら磨くことで、磨きに伴う傷を効率的に除去していた。そこで、本システムでもこのような熟練者の磨き技能を目標とし、砥石とワーク間に発生する摩擦力を考慮した磨き方法を検討した。

本システムでは、まず、**図-3**に示す軸付き砥石とワーク間に作用する摩擦力として、運動摩擦力 $-\mu |f| (v_x / |v_x|)$ kgf と粘性摩擦力 $-v_x$ kgf を考慮する。つぎに、この摩擦力と工具の押付力 $f(f_x, f_y, f_z)$ kgf との合力を磨き力(Polishing force) $F(F_x, F_y, F_z)$ kgf として定義する。ただし、押付力 f は工具とワークの接触地点におけるワークの法線方向速度 $v_n(v_{nx}, v_{ny}, v_{nz})$ mm/s により与える。また、 μ と γ はそれぞれ、運動摩擦係数と粘性摩擦係数であり、 $v_t(v_{tx}, v_{ty}, v_{tz})$ mm/s は工具の接線方向速度である。従来、軸付き砥石工具はその回転運動(数千~2万 r/min 程度)や往復運動により研削力を得ていたが、本システムでは磨き力の目標値を繊細に設定できるように、かつ、ノイズの少ない力覚情報を測定できるように、軸付き砥石をアタッチメントに固定し工具の回転をロックして使用する。なお、砥石の外周を均一に消費していくため、マニピュレータの6軸目を使用し、 $\omega = 1/180 \sim 1/18$ rad/s 程度の低速度で砥石を往復回転させる。

つぎに、**図-2**のように、磨きを実行中に力覚センサ

で検出された各方向の力の合力 $F(F_x, F_y, F_z)$ kgf には、押付力と摩擦力が含まれているため、これを磨き力とみなすことができる。この力覚信号には工具回転に伴うノイズ成分がほとんど含まれないため、500 Hz のカットオフ周波数でフィルタ処理した信号を用いた。この場合、砥石に作用する運動摩擦力と粘性摩擦力の合力 $F_r(k)$ は次式で与えられるものとする。

$$F_r(k) = -\mu |f(k)| \left(\frac{v_x(k)}{|v_x(k)|} \right) - v_x(k) \quad (1)$$

ただし、 k は離散時刻を表す。さらに、前述のように **図-2**に示す力センサで観測された各方向の力の合力 $F(k)$ が工具の押付力、運動摩擦力および粘性摩擦力から構成される磨き力であることから、 $F(k)$ は次式で表すことができる。

$$F(k) = f(k) + F_r(k) \quad (2)$$

式(2)に示される砥石工具の磨き力は、次式に示すインピーダンスモデル追従型力制御法を用いてフィードバック制御する⁴⁾。

$$v_n(k) = e^{-M_d^{-1} B_d \Delta t} v_n(k-1) - \left\{ e^{-M_d^{-1} B_d \Delta t} - I \right\} B_d^{-1} K_f \{ F(k) - F_d \} \quad (3)$$

ただし、 $K_f = \text{diag}(K_{fx}, K_{fy}, K_{fz})$ はカフィードバックゲイン行列である。 $M_d = \text{diag}(M_{dx}, M_{dy}, M_{dz})$ 、 $B_d = \text{diag}(B_{dx}, B_{dy}, B_{dz})$ はそれぞれ、目標慣性行列および目標粘性行列である。 M_d 、 B_d 、及び K_f は正定の対角行列に設定する。 $F_d(F_{dx}, F_{dy}, F_{dz})$ は、目標とする磨き力ベクトルであり、 Δt と I はそれぞれ、サンプリング幅と単位行列である。

3-3 目標軌道の自動調整

これまでも産業用ロボットの教示作業を効率的に行う手法が多数提案されている⁷⁾。既に開発している木工用ロボットサンダーにおいては、研磨実行時の理想的な目標軌道を安全に獲得する目的で、ジョイスティック支援による教示システムを開発している⁸⁾。さらに、3次元CAD/CAMシステムで設計・加工されている場合には、CAMのメインプロセッサが算出するカッターロケーションデータ(CLデータ)⁹⁾を直接目標軌道に利用できるように位置・姿勢補償器⁶⁾を開発し、ロボットに実装してきた。今回課題とされている金型

ワークもCADで設計されているため、弾性砥石の並進移動を行う方向の目標軌道にCLデータを用いることができる。

図-4と図-5には、シリンダー形状をしたアルミワーク金型の研磨実験で使用する横方向と縦方向の目標軌道を示す。例えば横方向のパスでは、経路条件としてワークの断面に沿った送り幅 0.2 mm のジグザグパスを指定しているため、CAMのメインプロセサは、工具が図-6の(1) (2) (3) (4) (5) (6) (7) (6) (5) (4) (3) (2) (1)と往復移動するようなパスを生成する。このため、このCLデータを磨きシステムの目標軌道として直接参照すると、(1)や(7)のように磨き戦略上好ましくない状況が発生する。これは、(1)あるいは(7)の状態まで工具が移動すると、その過程でパーティション部分のエッジを過研磨してしまい品質を著しく損ねてしまうためである。この問題点を解決するため、提案システムでは、パスの最下点からの最大高さ h mm をパラメータ(Max. height)として考慮し、使用する工具形状に応じて例えば、(2)及び(6)の高さ

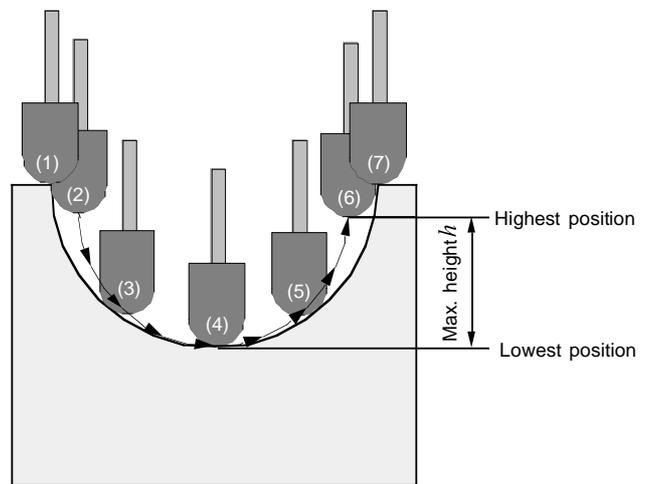


図-6 最大高さ h を考慮した目標軌道の補正

上工具が上昇しないようにした。具体的には、CLデータの中で最大高さ以上の値を持つステップは全て強制的に読み飛ばす処理を行うが、工具最上点((1)あるいは(7))でのステップにはピックフィード(送り動作)のための移動量(今回は 0.2 mm)が記述されているため、この送り量だけは自動的に抽出できるようにしている。これにより、ユーザは使用する工具形状に応じて最大高さを設定するだけで、汎用的なCLデータをそのまま適用できるようになった。このほか、自動研磨中における不意の異常を検知するため、力センサからの値が突然零に変化したり(例えば、砥石破損による非接触状態の発生による)、工具先端の位置が最下点以下の値を示した場合には、自動的に運転を停止し、ワークを不用意に傷つけることのないようにしている。

通常、ペットボトル製造用のアルミ製金型は3次元CAD/CAMとマシニングセンタで設計・加工されているため、本システムで採用しているCLデータを参照するテクニックは、これまで切望されてきた教示レス化を簡単に実現するための有効な手法といえる。

3-4 軸付き砥石の軌道制御

砥石の最初の基本経路には、CAMのメインプロセサがジグザグパスや渦巻きパスなどで生成したCLデータ $T(n) \in \mathbb{R}^6$ を用いることができる。このCLデータは、指定されたトレランスを満足するような直線近似により生成される。 $T(n)$ は位置ベクトルと姿勢ベクトルから構成され、 n はそのステップ数を表す。砥石の軌道は、指定された速度ノルムとCLデータに基づいて算出された接線方向速度 $v_t(k)$ によりフィードフォワード制御される。なお、式(3)により磨き力を制御する場合、速度 $v_n(k)$ は $v_t(k)$ に対して直交する方向へ加える。と

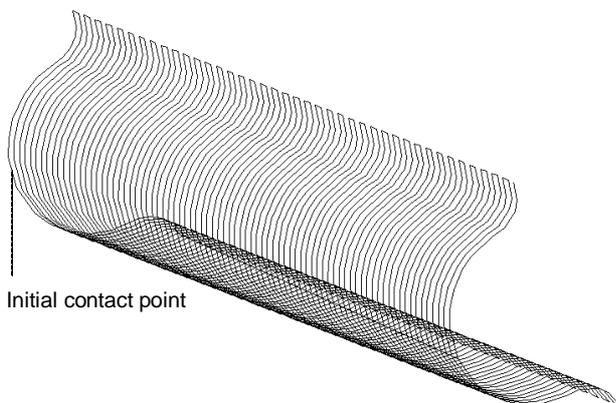


図-4 CAMで生成された横方向のジグザグパス

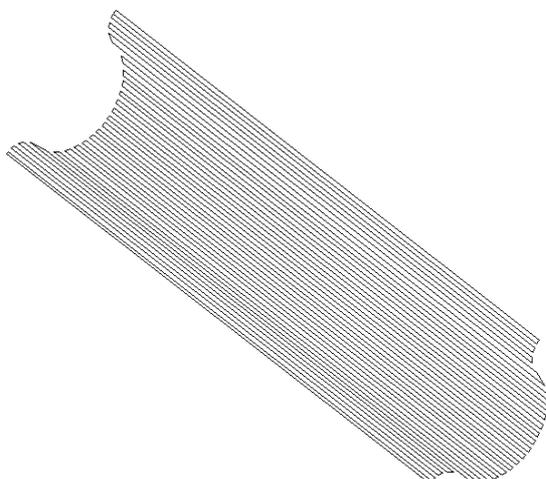


図-5 CAMで生成された縦方向のジグザグパス

ここで、ペットボトル金型はパーティション部で2分割された形状をしているため、オーバハング部分が存在しない。このため、砥石工具の先端がボールエンド形状であれば、砥石とワークは良好な接触点を持ち続けることができる。このような理由から、本提案システムでは砥石の姿勢は変化させず、姿勢がワーク座標系のZ軸方向に追従するように制御している。結果的に、砥石の姿勢変化に伴うワークとのクリティカルな接触状態が発生しないため、磨き力の急激な変化（振動やオーバシュート）が発生しにくくなった。マシニングセンタが3次元加工を行う場合に使用されるCLデータの形状精度は $1\mu\text{m}$ 程度であるが、研磨ロボットが目標軌道として参照するCLデータのそれは 1mm 程度である。このことから1,000倍程度精度を粗く設定してCLデータを生成しても問題ないことがわかる。これは、開発した研磨ロボットでは、砥石工具のフィードフォワード制御のための操作量をだまかに算出するためにCLデータが参照されるだけであるが、ワークの形状精度や固定位置に関する誤差及び不確かさは、式(3)で与えられる力制御戦略により理想的に吸収されてしまうからである。

3-5 目標軌道の学習機能

提案システムでは、個々のワークの磨き作業における最初の目標軌道としてCLデータを参照するが、2回目以降の磨き作業では、前回の磨き作業で得られた砥石の実軌道を用いることができる。これは、図-7に示す磨き戦略により得られる力偏差の少なくなった実軌道 $P^i(k)\{P_x^i(k), P_y^i(k), P_z^i(k)\}$ をつぎの磨き工程の目標軌道として繰り返し保存しているためである。 i は作業回数を表す。例えば、砥石の粒度を#150 #300

#600 #900 #1200 酸化クロムパフと変化させて仕上げる場合、作業回数は6となる。この目標軌道の学習機能により、磨き作業を進める過程で力偏差 $\sum_{k=1}^n |F(k) - F_d|$ (k は離散時刻で、 n は一工程に要した時間である) の発生が少ない望ましい磨き応答が得られるようになるため、ワーク表面の仕上げ品質も大きく改善されるものと期待される。その他、砥石が最初にワークに接触する際(アプローチ時)の応答を改善するためにニューラルネットワークを応用した力制御法¹⁰⁾を併用している。

4 実験

提案するモーション/力制御法の基本性能を評価するため、図-8のように(株)メイホー製の軸付き弾性砥石を用いた做い制御実験を行った。まず、砥石は 2mm/s の低速で図-4に示す最初の接触地点まで降下する。つぎに、ワークとの接触を検知するとロボットの第6軸を使用し、 5rad/s で工具を往復回転させながらジグザグパスに沿った做い移動を開始する。設定した目標の磨き力 F_d は 3kgf である。図-9には磨き力の制御結果を示す。工具が最上点から降下する際に磨き力が減少していることが確認できるが、これは力フィードバック制御ゲイン $K_f = \text{diag}(K_{f_x}, K_{f_y}, K_{f_z})$ を各方向とも同じ値に設定していることに起因している。磨き実行中は、砥石先端が押下されるA地点付近(Z方向への力制御が主に働いている)に比べて、砥石側面が撓るように接触するB及びC地点付近(X方向への力制御が主に働いている)の方が系の剛性が低いため、 K_f を各方向で独立に設定することで応答を改善できるものと考えられる。

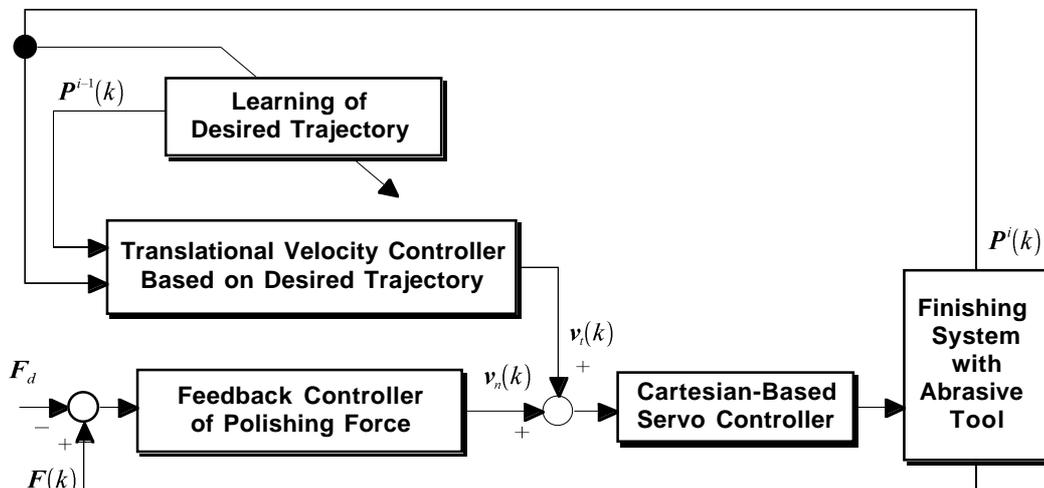


図-7 学習型モーション/力制御法

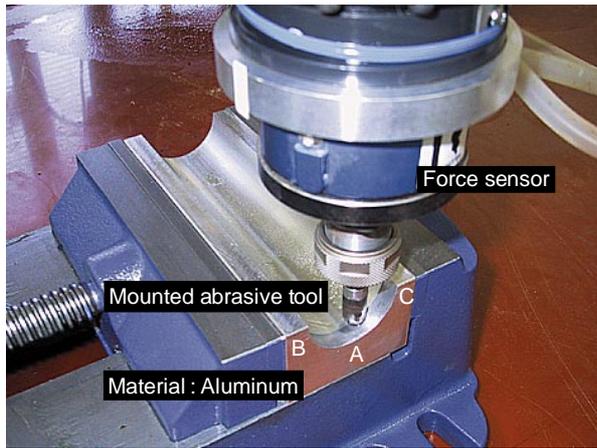


図-8 オフセットのない砥石の接続

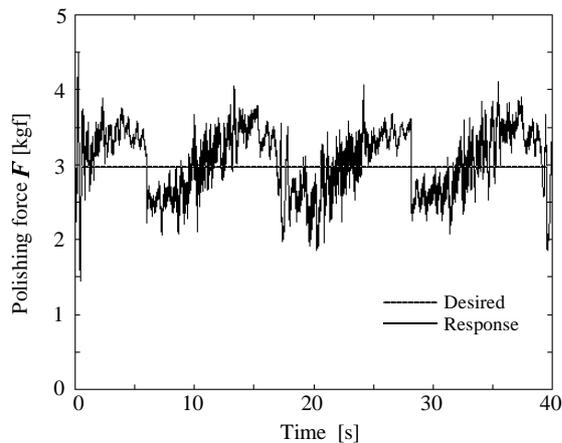


図-9 FS20による磨き力の制御結果

さて、磨き実行後のワーク表面を目視と触感により評価した結果、全体的に安定した綺麗な表面性状が確認された。これは、人間に比べて平均的に安定した磨き力を発生できたことによる磨き効果と考えられる。

5 おわりに

本研究では、ボールエンド形状の軸付き弾性砥石のための学習型モーション/力制御法を提案し、その実現方法を詳述した。シリンダー形状のアルミワークを用いた簡単な磨き実験により、提案手法の有効性が確認された。

謝 辞

本研究は、平成13年度補正即効型地域新生コンソーシアム研究開発事業の一環として、九州経済産業局から委託を受けた(財)北九州産業学術推進機構から再委託された研究開発業務「自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発 - 学習型モーション/力制御系の開発と磨き実験による性能評価 - 」として実施したものである。

6 参考文献

- 1) 永田, 楠本, 渡辺, 津田, 安田: ペットボトル金型の高品位磨きシステムの開発 - ボールエンド形状砥石のハイブリッドモーション/力制御法 -, 第3回SICEシステムインテグレーション部門講演会論文集, pp. 83-84, 神戸市産業振興センター, (2002)
- 2) 永田, 楠本, 渡辺, 津田, 安田: 金型の高品位磨きのための軸付砥石のモーション/力制御法, 第12回インテリジェント・システム・シンポジウム講演論文集, pp.133-136, アバンセ(佐賀県立女性センター・佐賀県立生涯学習センター), (2002)
- 3) F. Nagata, K. Watanabe, Y. Kusumoto, et al.: New Finishing System for Metallic Molds Using a Hybrid Motion/Force Control, *2003 IEEE International Conference on Robotics and Automation (ICRA2003)*, The Grand Hotel, Taipei, Sept. (2003), accepted.
- 4) 永田, 渡辺, 津田, 川口, 他3名, “多軸制御用CLデータに基づく倣い制御器を用いた力制御ロボットサンダーの開発とその評価実験”, *精密工学会誌*, Vol. 68, No. 7, pp. 953-957, (2002)
- 5) F. Nagata, K. Watanabe, et al.: 3D Machining and Finishing System for New Designed Furniture, *Procs. of 2002 Japan USA Symposium on Flexible Automation*, Vol. 3, pp. 1239-1245, Hiroshima, Japan, July (2002)
- 6) F. Nagata, K. Watanabe, et al., Flexible Finishing System Using Hyper Cutter Location Data, *Procs. of The 6th International Conference on Mechatronics Technology*, pp. 218-223, Kitakyushu, Japan, Sept. (2002)
- 7) 水川, 小山: 産業用ロボットの教示方法の現状と展望, *日本ロボット学会誌*, Vol. 17, No. 2, pp. 180-185, (1999)
- 8) F. Nagata, K. Watanabe, et al.: Polishing Robot Using a Joystick Controlled Teaching system, *Journal of Robotics and Mechatronics - Special Issue on Recent Advances in Robot Control -*, Vol. 13, No. 5, pp. 517-525, (2002)
- 9) JISハンドブック, 工作機械 B6325 (数値制御プロセッサの出力 - CLDATA), 日本規格協会
- 10) F. Nagata, K. Watanabe, et al.: Learning of Contact Motion Using a Neural Network and Its Application for Force Control, *Procs. of the 4th Asian Control Conference (ASCC2002)*, pp. 420-424, Singapore, Sept. 25-27, (2002)

自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発(2)

- 学習型モーション・力制御法の産業用ロボットへの適用と磨き実験による性能評価 -

永田寅臣*1 楠本幸裕*1 安田仁徳*2 津田邦博*2 尾本正明*3 森 直樹*3 梅津真弓*4 横山和彦*4 渡辺桂吾*5

Development of Super Polishing System for Metallic Molds with Curved Surface

- Application of Learning-based Motion and Force Control Method to an Industrial Robot and its Evaluation via Polishing Experiments -

Fusaomi Nagata, Yukihiro Kusumoto, Kiminori Yasuda, Kunihiro Tsuda, Masaaki Omoto,

Naoki Mori, Mayumi Umetsu, Kazuhiko Yokoyama and Keigo Watanabe

平成13年度補正即効型地域新生コンソーシアム事業「自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発」により、自由曲面を有するPETボトル金型の磨き工程を自動化するための基本システムを試作開発した。本稿では、提案した学習型のモーション・力制御法をオープンインタフェイスを有する産業用ロボットにインプリメントするとともに、アルミ製の凹型曲面の磨き実験により性能を評価した。その結果、NC加工後に発生するカスプマーク除去（#220から#400の砥石による初期の粗磨き）から、磨きに伴う傷を小さくしていく中磨き（#600から#800の砥石による磨き）を経て、酸化クロムを含浸させた工具による仕上げ磨きにまでフレキシブルに対応できることが確認されたので報告する。

1 はじめに

本研究では、Windows APIを介してモーション制御が可能な腕型マニピュレータのアーム先端にボールエンド形状の弾性ゴム砥石を装着し、動作自由度の高い磨きシステムを構成する。これまで産業用ロボットのユーザインタフェイスは、安全上の問題などから教示方式が一般的であった。最近では、ユーザ側でのアプリケーション開発のニーズに応えるため、運動制御系（各関節角度のフィードバック制御）などが公開されたオープンインタフェイスを有する産業用ロボットが登場してきている。APIは、腕型マニピュレータの各関節を動かしたり、各関節の角度情報を読み込んだりするための基本関数であり、Windows上でのアプリケーション開発を可能とする基本ドライバソフトである。さて、従来の磨きロボットでは煩わしい教示作業によりアームの動きを入力する必要があるだけでなく、位置制御が中心であったため、熟練者のような繊細な磨き機能が達成されていなかった。本研究では、既に提案している学習型のモーション/力制御技術¹⁾を応用することで、教示レスで利用でき、砥石とワーク間に作用する磨き力（工具押付力と摩擦力の合力）を安定的

に制御できる基本磨きシステムを開発し²⁻⁴⁾、実用化を図ることを目的とする。具体的な数値目標として、磨き品質と磨きスピードの点で熟練作業員以上の性能を目指す。なお、磨き品質の比較については、熟練者の目視や触感による定性的評価により行うこととする。

2 腕型マニピュレータへの学習型モーション/力制御法の実装

本節では、既に提案している学習型モーション/力制御法をどのようにして、オープンインタフェイスを有する腕型マニピュレータに実装するかについて詳述する。従来は、ロボットメーカーが提供する教示再生方式のユーザインタフェイスしか利用できなかったため、現場でのカスタマイズを十分に行うことができなかった。本システムでは、磨きシステムのための基本機能を新たに開発し、金型磨きシステムとして実用化できるようにカスタマイズを行う。

2-1 オープンインタフェイスを有する腕型マニピュレータ

実験で使用する腕型マニピュレータは、図-1に示す(株)安川電機製の6自由度垂直多関節型産業用ロボットMOTOMAN UP-6である。本システムでは、ユーザサイドにおける効率的なアプリケーション開発を支援するために、キネマティクスや座標変換、作業座標サーボコントロールなどのAPIを提供している。このAPIは

*1 インテリア研究所

*2 株式会社エーエスエー・システムズ

*3 株式会社メイホー

*4 株式会社安川電機

*5 佐賀大学大学院工学系研究科



図-1 腕型マニピュレータMOTOMAN UP-6

表-1 MOTOMAN UP-6が提供するAPI関数の一例

yeapi_SetSegmentJoint()	: 関節座標系での速度指令
yeapi_SetSegmentCartesian()	: 作業座標系での速度指令
yeapi_MoveJoint()	: 関節座標系での移動指令
yeapi_MoveCartesian()	: 作業座標系での移動指令
yeapi_GetMotionJoint()	: 各関節角度情報の取得
yeapi_GetMotionCartesian()	: 位置・姿勢情報の取得
yeapi_SetSpeed()	: 移動指令時の速度を指令
yeapi_SetDo()	: デジタル出力指令
yeapi_SetToolCoord()	: ツール座標系の変換行列を設定
yeapi_SetUserCoord()	: ユーザ座標系の変換行列を設定
yeapi_GetAxes()	: ロボットの軸数を取得
yeapi_Stop()	: 強制停止指令
yeapi_Restart()	: 動作停止状態からの復帰指令
yeapi_Initialize()	: ユーザプログラム起動時の初期化
yeapi_Quit()	: ユーザプログラム終了時の処理
yeapi_ShutdownServer()	: ロボット制御常駐プログラムの終了
yeapi_SetParamData()	: 7軸目モータなど各パラメータの設定
yeapi_SetStatusData()	: 7軸目モータなど各ステータスの取得

Windows Visual C++ の開発環境下で使用することができる。表-1には API 関数の一例を示す。例えば、力制御法を直交座標系における速度指令で導出しておけば、yeapi_SetSegmentCartesian()により簡単に力制御機能を実装することができる。従来は、逆キネマティクスや逆ヤコビアンを用いて、一旦関節座標系における操作量に変換してからコントローラへ出力する必要があったため、この機能は非常に有用である。また、座標変換は yeapi_SetToolCoord() や yeapi_SetUserCoord()を用いれば、汎用の3次元CAD/CAMシステムを用いて作成したCLデータの座標系とロボットの座標系を一致させることができる。これにより、CLデータを磨きシステムの目標軌道としてダイレクトに使用することができるようになった。

2-2 プログラム開発

プログラム開発は、Windows Visual Studioの開発ツールを用いて行った。マニピュレータのーム先端に装着された砥石は、10 msec のタイマー割り込みを用いて、ワークの接線方向の速度 $v_t(k)$ と式(3) で与えられる法線方向の速度 $v_n(k)$ がハイブリッド制御される。速度 $v_n(k)$ により押付力 f を加える方向は、砥石とワークの接触地点における法線方向からであるが、これはCLデータに記述されている姿勢情報から算出している。また、力センサからの情報 $F(F_x, F_y, F_z)$ も10 msec 間隔でモニターしているが、500 Hz のカットオフ周波数でフィルタ処理した信号をフィードバック制御に用いた。図-2には、開発した基本ユーザインタフェースを示す。従来は、教示再生方式のユーザインタフェースが一般的となっていたが、このようなオープンインタフェースを利用すれば、ユーザサイドでのスキルフルなアプリケーション開発が可能になる。

2-3 磨き実験による性能評価

図-3には、磨きシステムの砥石工具接続部を示す。オープンインタフェースを有する腕型マニピュレータ((株)安川電機 MOTOMAN UP-6)のーム先端フランジ面にニッタ(株)の6自由度力覚センサを装着している。力覚センサの先端には、アタッチメントを介してエア駆動式工具を装着し、図-4と図-5 にそれぞれ示す軸付き砥石と弾性ゴム砥石を固定できるようにしている。実験で使用した砥石は、(株)ナカニシのキャップサンダー(CS: #150, #320), ゴム砥石(#80, #120, #320), グリーンポリリッシャ(GP: #150, #220, #400)と、(株)メイホーの弾性ゴム砥石(#220, #320, #400, #600, #800)などである。

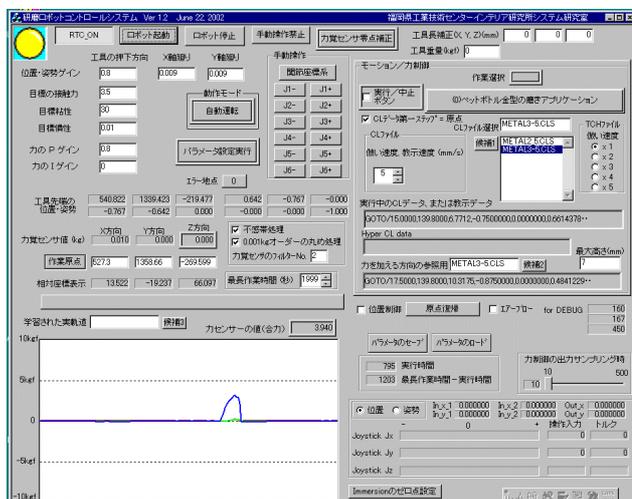


図-2 Windows上で開発した磨きシステムの基本操作画面

特に、弾性ゴム砥石は耐磨耗性と曲面への適応性に優れた工具であり、自動化システムによる長時間の使用に適している。今回使用した砥石の粒度は#150～#800で、シャンク径は3 mmと6 mmである。なお、実験では工具回転に伴う過研磨を防ぐために、ロボットの6軸目を用いて1～40 deg/s程度の低速度で往復回転させた。磨き対象であるアルミ製の金型ワークについては、ロボットをアンカーで固定している床面上に鉄製のテーブルを配置し、その上に簡易なバイ

スを用いて固定しているだけである。ロボットのベース座標系とワークの座標系の座標合わせは、ロボットを実際にX軸方向、Y軸方向、Z軸方向に動かしながら、ワーク固定位置を微調整し、目視で行った。このように非常に簡単にワークを固定できるのも力制御戦略を採用していることの恩恵であり、従来の高い剛性と精度を持った特殊なジグなどを一切必要とせず、かなりラフな位置決めでも十分適用できることがわかってきた。

2-4 アルミ製のワークを用いた磨き実験

つぎに、提案システムの有効性を検証するため、シリンダー形状のアルミワークの磨き実験を行った。このワークは事前にマシニングセンタにより3次元加工されたもので、ワーク表面にはNC加工では除去することができない高さ0.1 mm程度のカスパマークが残っている。磨き工程では、ワークの形状寸法を変えることなく、表面性状を均一にスムーズに仕上げていく必要がある。シリンダー形状のワークは、その断面がどこも同じ形状となっているため、磨きの難易度としては優しいと思われるが、逆に、エッジ部の過研磨を出さずに接合部付近をシャープに磨き上げる必要があるため、安定した磨き力の制御が不可欠である。

さて、既に述べたようにボールエンド形状の軸付き弾性砥石を装着した磨きシステムは、磨き力が一定に推移するように、砥石の法線方向速度と接線方向速度を制御する。まず、動作確認のために、目標の磨き力、接線方向の速度、インピーダンスパラメータなどを表-2のように設定し、磨き実験を行った。使用した砥石工具は、図-4に示した軸付き砥石工具である。特に、木工用ロボットサンダー⁵⁻⁷⁾と比較して非常に硬い

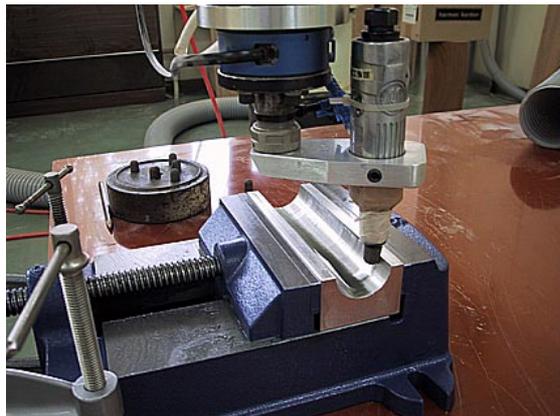


図-3 エア駆動式の砥石工具の接続部



図-4 従来の軸付き砥石(シャンク径: 3 mm)



図-5 (株)メイホー製弾性ゴム砥石(シャンク径: 6 mm)

表-2 磨き実験で使用した制御パラメータ

Base pass along the cross section	Zigzag
Pick feed in longitudinal direction	0.2 mm
Radius of abrasive rubber tool	5 mm
Grit size of abrasive rubber tool	#150, #320, #400
Rotational velocity of the 6-axis	10 or -10 deg/s
Rotational limits of the 6-axis	$-45 < \theta_6 < +45$ deg
Max. height h	14 mm
Desired polishing force $ F_d $	3 kgf
Tangent directional velocity $ v_t $	6 mm/s
Desired mass coefficient M_{d1}, M_{d2}, M_{d3}	0.01 kgf · s ² /mm
Desired damping coefficient B_{d1}, B_{d2}, B_{d3}	30 kgf · s/mm
Force feedback gain K_{f1}, K_{f2}, K_{f3}	1.2, 1.2, 0.4
Sampling width Δt	10 ms

系で力制御を実行する必要があったため、カフィードバックゲインを0.4程度に小さく設定することで振動の発生を抑えた。また、実験当初は図-3のように砥石工具の回転軸とロボットの6軸の回転軸がオフセットしている状態で、工具のZ軸廻りに低速回転させたため、力制御の応答に好ましくない挙動が発生した。そこで、オフセットが発生しない状態で砥石工具を装着できるアタッチメントを使用することで安定性を向上させた。

3 磨き条件に関する考察

磨き品質に影響を及ぼす重要なパラメータとして、使用するマニピュレータ、砥石の種類とその粒度、磨き力、倣い速度(接線方向速度)、工具の回転速度、制御ゲイン、および工具経路とそのピックフィード(ジグザグパスにおけるパスとパスとの間隔、送り量のこと)などが挙げられる。望ましい磨き条件を抽出していくために、まず、実験者の主観によりランダムに条件を変えながら磨き実験を行った。本章では、これまでの実験結果から得られた各条件と磨き品質の関係について述べることにする。特に、今回の実験では、従来高速回転(20,000 r/min程度)させて使用されていた軸付き砥石の回転をロックし、ボールエンド形状の輪郭を均一に消費していくための目的で、超低速(1~40 deg/s)で回転させて使用している。

1) マニピュレータ本体

使用したロボット本体は、川崎重工業製の産業用ロボット FS20N(最大可搬質量:20 kg)と安川電機製の腕型マニピュレータ MOTOMAN UP-6(最大可搬質量:6 kg)である。FS20NはMOTOMAN UP-6が開発されるまで、事前の準備実験に用いた。どちらも、繰り返し位置精度として0.1 mm程度を保証しているが、UP6では最新の高分解能を有するモータが使用されているため、非常に安定した力制御性能を得ることができた。

2) 砥石

キャップサンダーはボールエンド形状のゴム材にキャップ式の研磨布を被せたもので、研削力はかなり強い。使用した粒度は#150と#320であり、カスプマークをかなり効率的に除去することができたが、どちらの場合も後工程で除去しにくい傷が残るケースが発生した。また、3~4 cm程度磨くと、キャップが破れてしまうことがあったため、長時間の連続運転に使

用するには信頼性に問題が残った。磨き力を3~3.5 kgf程度に設定していたため、磨き力の設定値を小さくすれば、傷の発生やキャップの破れを防ぐことができると思われる。ボール形状をしたゴム砥石とグリーンポリシャは#80~#320の粒度のものをを用いた。研削力が比較的弱い初期のカスプマーク除去には不向きであったが、カスプマーク除去後の中磨きに適していると思われる。最後に、本プロジェクトで研究開発された弾性ゴム砥石(図-5)の特徴について述べる。まず、砥石の粒度が#220~#1200までの範囲をカバーできるために、カスプマーク除去のための粗磨きから中磨き、仕上げ磨きの工程に対応することができる。また、ゴムの含有量を自由に決定できるため、望ましい弾性特性を發揮させることができる。さらに、シャンク径を従来の3 mmから6 mmに太くすることで横方向の剛性を高くするだけでなく、砥石の根元(フラット)部分を長く設計することで長時間の連続運転に耐え得るように配慮されている。このような弾性ゴム砥石の優秀性により、自動磨きシステムでも安定的に使用することができた。図-6には、メイホー製の弾性ゴム砥石を用いた磨き風景を示す。

3) 磨き力

本プロジェクト研究で定義している磨き力は、磨き性能、磨き品質に最も大きな影響を及ぼす条件の一つである。磨き力は工具の押付力と、工具とワーク間に作用する摩擦力の合力であり、磨き力を大きく設定すれば研削力が上がり、小さい値に設定すれば研削力が下がる。本実験では、磨き力を1.5~4 kgfの範囲で変化させ、磨き品質との関係を調べてみた。その結果、3.5 kgf以上に設定すると、工具の進行方向に後工程で除去しにくい傷が発生することが明らかとなった。

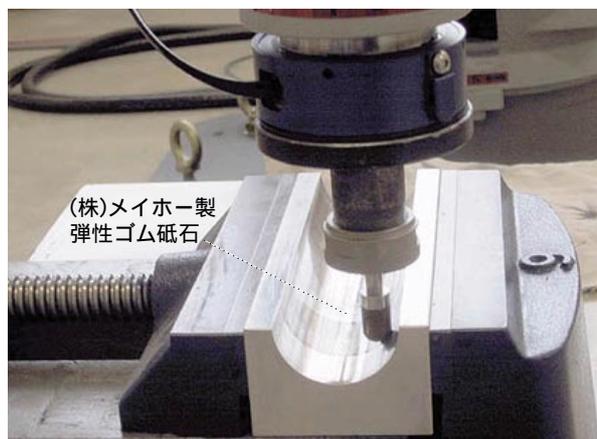


図-6 弾性ゴム砥石を用いた磨き風景

初期のカスプマークを効率的に除去するためには、2 ~ 3 kgf の磨き力が適していることが確認された。なお、磨き効率(如何に少ない磨き回数で所望の表面性状を創出するか)を最優先しなければ、例えば、1.5 kgf 程度の弱い磨き力で数回磨く方が美しく高品位に磨けることが分かった。

4) 倣い速度(接線方向速度)

倣い速度は、砥石工具のワーク接線方向での速度のことであり、これはそのまま磨き速度を表すものである。このため、現場では同じ磨き品質が得られるのであれば、少しでも大きな倣い速度を設定し、磨き作業に要する時間を短縮したいというニーズが大きい。今回提案した磨き戦略の中では、倣い速度の値が粘性摩擦力の大きさを左右する。理想的には倣い速度を大きく設定したいところであるが、これとのトレードオフとして力偏差が大きくなるという問題点があるため、今回の実験では、断面方向ジグザグパス使用時で 3 ~ 8 mm/s、縦方向ジグザグパス使用時で 5 ~ 15 mm/s の値に設定した。この結果から、上下方向の起伏の少ないワークほど倣い速度を大きく設定できることが確認された。

5) 工具回転速度

提案システムでは、軸付き砥石の高速回転に伴う過研磨を防止するため、回転をロックして使用しているが、ボールエンド形状の砥石の輪郭を均一に消費していくために低速(1 ~ 5 deg/s)で往復回転させて使用した。また、砥石の側面で磨く場合に磨き残し(カスプマークが除去されずに残る症状)が見受けられたため、5 ~ 40 deg/s で回転させることで砥石の周速を発生させ、磨き能力を高めた。

6) 最大高さ

最大高さを設定することで、砥石がその高さ以上上昇しなくなるため、例えばパーティション部の研磨など過研磨が発生しやすい状況を回避することができるようになった。今回使用した砥石の場合、13 ~ 15.5 mm 程度の値を設定した。この値は、使用する工具のボール半径を考慮すれば容易に決定することができる。

7) カフィードバック制御ゲイン

これは、力制御性能の感度を表すパラメータであり、インピーダンスモデル追従型力制御法の対角行列 K_f により与えることができる。この力制御法では、ロボットベース座標系における砥石の X, Y, Z 各方向の

速度が操作量となっている。このため、力制御の感度も各方向で独立に設定できる仕様となっている。木工用ロボットサンダーでの設定値には 1 前後の値を使用していたが、ペットボトル金型の磨きシステムでは力制御系の剛性が高いため、0.3 ~ 0.6 程度の値で良好な力制御特性が得られた。また、実験開始当初は各方向で同じ値を設定していたが、0.3 ~ 0.6 程度の設定値ではシリンダーの側面付近(X 方向での力制御が主の場合)で目標値への追従性が悪くなり、1 程度まで上げると底の付近(Z 方向での力制御が主)で振動が顕著に発生する結果となった。そこで、X 方向と Z 方向の力制御ゲインをそれぞれ、1.3, 0.3 のように独立に設定することでこの問題を解決することができた。これは、例えば、3 ~ 6 mm 程度のシャンク径の砥石を用いる場合には側面で磨くと横方向のたわみが発生しやすくなるため、力制御則の X 方向と Y 方向のカフィードバックゲインを Z 方向の値よりも大きな値に設定することで、接触の感度を高める必要があるということである。図-7にはそれぞれ、各方向で異なるカフィードバックゲインを設定した場合のカセンサの値を示す。

8) CLデータ

本システムでは、3次元CAD/CAMシステムのメインプロセッサが生成するCLデータを、砥石の最初の目標軌道に用いることができる。これにより、従来の煩わしい教示作業を省くことができるだけでなく、力制御性能を大幅に改善することができた。実験で使用した3次元CAD/CAMシステムは、米国EDS社のUnigraphics V. 10. 2である。まず最初に作成したCLデータは、断面方向のジグザグパスと縦方向のジグザグパスでピックフィードは0.2 mmである。このCLデータにはモデルの表面上における通過点の座標とその法線ベクトルが含まれているため、この法線ベクトルを参照して砥石を押し付ける方向を決定している。すなわち、砥石は、ワークとの接触点における法線方向へ押し付けられるように力制御される。例えば、CAMが生成するCLデータは、砥石先端の中央部分がモデル表面に沿って移動しようとするような軌道で生成されているが、磨きが実行されている場合は力制御機能により、工具先端部分が工具半径に応じてオフセットして移動することになる。また、マシニングセンタで精密な3次元加工を行う場合に使用されるCLデータの精度(μm 単位)と比べて、非常に粗い精度(mm 単位)でも磨きシステムには適用できることが確認され

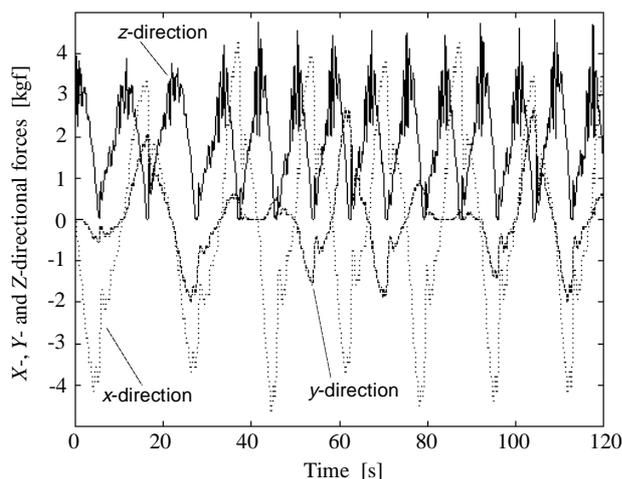


図-7 各方向で異なる力フィードバックゲインを設定した場合の力センサの値の変化

た。このように、腕型マニピュレータのアーム先端に取り付けられた砥石工具は、CLデータに基づき大まかに軌道制御されるとともに、磨き力が一定で推移するように力制御法により法線方向の速度が繊細に制御されることになる。

4 定性的評価

さて、このような磨き品質に影響を及ぼすと思われる条件を試行錯誤的に変更しながら磨き実験を行い、磨き後の表面性状を目視と指による触感で評価したところ、パーティション部の磨きダレなどが発生することなく、高品位な磨き面が確認された。これは、開発した磨きシステムを用いることで全体的に均一な磨き力を発生させることができたことによる効果と思われる。図-7には、磨き実行中の力覚センサの値の変化を示す。さらに、磨きシステムで磨いたワークの表面品質を客観的に評価するために、実際にペットボトル金型の磨き作業に携わっている熟練者に観察してもらった。その結果、使用した砥石の粒度、磨きに要した時間、磨かれた表面の品質といった点から、高い評価を得ることができた。熟練者の評価技術を最優先している理由は、3次元粗さ計測器などを用いれば定量的な粗さは測定できるものの、その値は使用する砥石の粒度にほぼ左右されるだけでなく、ワークの測定部分における局所的な評価(参考値程度)にしかならないため、美観や触感など現場におけるワーク全体の商品としての合否判断は熟練者により行われているからである。

5 おわりに

本研究では、オープンインタフェースを有する腕型

マニピュレータに対して、ボールエンド形状の軸付き砥石のためのモーション/力制御法を適用し、基本的な磨き実験により性能を評価した。その結果、NC加工後の凹型曲面のカスプマークの除去などに優れた効果が確認された。

謝 辞

本研究は、平成13年度補正即効型地域新生コンソーシアム研究開発事業の一環として、九州経済産業局から委託を受けた(財)北九州産業学術推進機構から再委託された研究開発業務「自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発 - 学習型モーション/力制御系の開発と磨き実験による性能評価 - 」として実施したものである。

6 参考文献

- 1) 津田, 安田, 永田, 他2名: 研磨装置及び研磨方法, 特願2002-286901, (2002)
- 2) 永田, 楠本, 渡辺, 他11名: オープンインタフェースを有する産業用ロボットを用いた金属材料の高品位磨きシステムの開発, 第4回日本ファジィ学会九州支部学術講演会予稿集, pp. 13-16, (2002)
- 3) 永田, 楠本, 渡辺, 他2名: 金型の高品位磨きのための軸付砥石のモーション/力制御法, 第12回インテリジェント・システム・シンポジウム講演論文集, pp. 133-136, アバンセ(佐賀県立女性センター・佐賀県立生涯学習センター), (2002)
- 4) F. Nagata, K. Watanabe, Y. Kusumoto, et al.: High Precision Polishing Robot Using a Learning-Based Surface Following Controller, *Procs. of 2003 IEEE International Symposium on Computational Intelligence in Robotics and Automation (CIRA2003)*, pp. 91-96, (2003)
- 5) 永田, 渡辺, 津田, 他4名, “多軸制御用CLデータに基づく倣い制御器を用いた力制御ロボットサンダーの開発とその評価実験”, *精密工学会誌*, Vol. 68, No. 7, pp. 953-957, (2002)
- 6) F. Nagata, K. Watanabe, et al.: 3D Machining and Finishing System for New Designed Furniture, *Procs. of 2002 Japan USA Symposium on Flexible Automation*, Vol. 3, pp. 1239-1245, Hiroshima, Japan, July (2002)
- 7) F. Nagata, K. Watanabe, et al., Flexible Finishing System Using Hyper Cutter Location Data, *Procs. of The 6th International Conference on Mechatronics Technology*, pp. 218-223, Kitakyushu, Japan, Sept. (2002)

自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発(3)

- ペットボトル金型の磨き実験と表面粗さ測定器による定量的評価 -

永田寅臣*1 楠本幸裕*1 安田仁徳*2 津田邦博*2 尾本正明*3 森 直樹*3

Development of Super Polishing System for Metallic Molds with Curved Surface

-Polishing Experiments of PET Bottle Molds and

its Quantitative Evaluation with a Stylus Instrument -

Fusaomi Nagata, Yukihiro Kusumoto, Kiminori Yasuda,

Kunihiro Tsuda, Masaaki Omoto and Naoki Mori

平成13年度補正即効型地域新生コンソーシアム事業「自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発」により、自由曲面を有するPETボトル金型の磨き工程を自動化するための基本システムを試作開発した。本稿では、試作開発した磨きシステムで磨いたシリンダーワークの磨き面を表面粗さ計を用いて定量的に評価するとともに、自由曲面を有するペットボトル金型の磨き実験を行ったので報告する。メイホー製の弾性ゴム砥石を用いた場合、磨きシステムでは #400 程度までの砥石で磨くだけで、熟練者が #800 程度の砥石まで仕上げた場合と同程度の磨き品質が得られることが確認された。さらに、カスプマークが効率的にかつ高品位に除去できたため、酸化クロムで拭き上げると鏡面性状を達成することができた。

1 はじめに

本研究では、まず、安川電機製の腕型マニピュレータにメイホー製の弾性ゴム砥石を装着し、基本的な磨きシステムを構成した。つぎに、弾性ゴム砥石のための学習型モーション/力制御法を開発し¹⁻³⁾、この磨きシステムにインプリメントすることで自由曲面を研磨できる自動磨きロボットを構築してきた⁴⁻⁶⁾。

本稿では、試作開発した磨きロボットで磨いたアルミ製ワーク表面の定量的評価を行い、熟練者が磨いた場合と比較検討する。つぎに、磨きロボットのためのCAMシステムを構築するために、力制御系と位置制御系が干渉しあうハイブリッド制御法を提案する。最後に、自由曲面を有するペットボトル金型の磨き実験を通じて、提案手法、提案システムの有用性について検証したので報告する。

2 金型磨き面の定量的評価

本章では、**図-1**に示すシリンダー形状のワークを用いて、熟練作業者が磨いた場合と磨きロボットで磨いた場合それぞれについて表面粗さを測定し、定量的な比較検討を行う。**図-2,3**には、熟練者と磨きロボットによる磨き風景をそれぞれ示す。使用した表面粗さ測

定器は、**図-4**に示す(株)東京精密のSURFCOM-1400である。**図-5**には計測結果を示している。熟練者の測

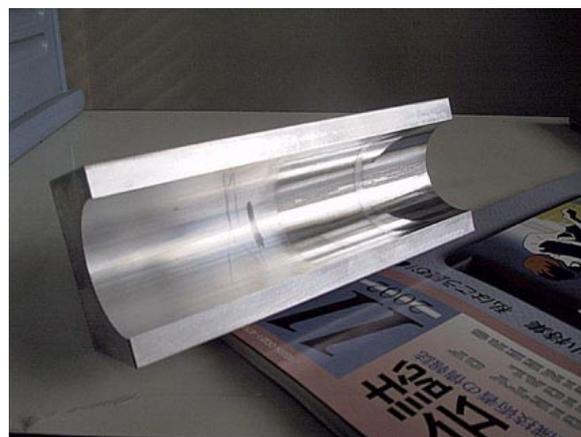


図-1 定量的評価のためのアルミワーク



図-2 熟練者による金型の磨き風景

*1 インテリア研究所

*2 株式会社エーエスエー・システムズ

*3 株式会社メイホー

定データ(I : 算術平均粗さ Ra μm , I : 最大高さ Ry μm)は, 砥石の粒度を #220 #320 #400 #600 #800と細かくして磨いた場合のそれぞれの値と, 酸化クロムで鏡面に仕上げた面の値を折れ線グラフに表している。一方, 開発した磨きロボットの測定データ(I : 算術平均粗さ Ra μm , I : 最大高さ



図-3 開発した磨きシステムによる磨き風景



図-4 表面粗さ測定器SURFCOM-1400

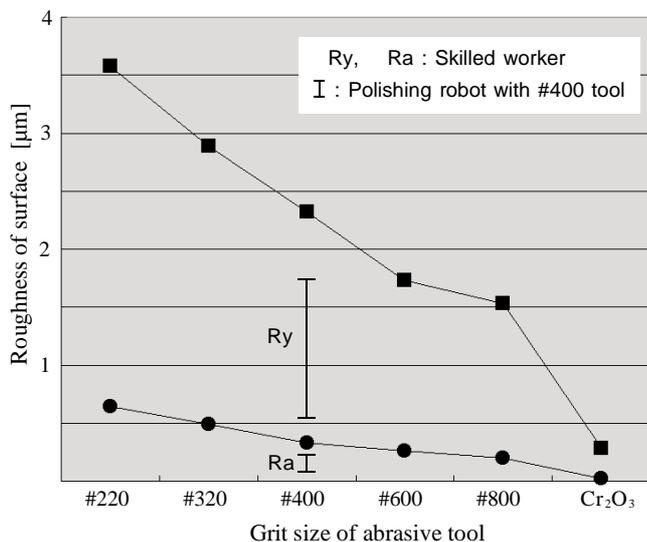


図-5 シリンダーワークの底部磨き面の定量的評価

Ry μm)は, これまで行ってきた磨き実験の中で, 砥石の粒度を #220 #320 #400と細かくしながら磨いた場合の値である。複数のワークを用いて条件を試行錯誤的に変えながら磨き実験を行っていたため, 測定結果にバラツキが発生しているものの, ほぼこの範囲内に収まることが確認された。これまでの実験結果から, 磨きシステムでは #400 程度までの砥石を用いるだけで, 従来熟練者が #800 程度まで粒度を細かくしながら磨いていたときと同程度の仕上げ面を得ることができるものと思われる。

3 磨きロボットのためのCAMシステムの開発

3-1 力制御系と位置制御系が干渉しあうハイブリッド制御法

実際にペットボトル金型の磨き評価を行うために, まず, 図-6に示すようなCADモデルをもとにNC加工されたアルミワークの微い制御実験を行った。このアルミワークでは, 断面方向にカスプラインが発生している。微い制御実験で使用した工具は, 図-7に示す軸付きフェルトパフである。シリンダー形状のワークをジグザグパスで磨いたときは, 磨き力の閉ループ処理を行う方向(工具接触地点における法線方向)がロボット座標系における X 及び Z 軸方向であり, ピックフィードは Y 軸方向に 0.2 mm ずつ行わせていた。Y 軸方向への工具のピックフィードは, 腕型マニピュレータ用API の `yeapi_SetSegmentCartesian()`を用いたオープンループで行っていたが, 力制御に伴う操作量が Y 軸方向に発生しないため, ほぼ正確に0.2 mm ずつの送りを実行することができた⁷⁻⁹⁾。一方, 図-7のようなペットボトル金型の場合は, 例えば径が変化する部分で 3 方向同時に力制御を行うことになる。このため, Y 軸方向にも力制御に伴う操作量が発生することになり, ジグザグパスに沿った Y 軸方向への正確な送り(0.2 mm ずつ)が実行できなくなる。具体的には, 径が小さくなる方向の場合は工具が上昇できなかったり, 逆に径が大きくなる場合は工具が滑り落ちるような現象が起きてしまう。この問題点を解決するために, すなわち, ジグザグパスに伴う工具のピックフィード量を正確に実行できるように, 工具のピックフィード方向では磨き力の閉ループに加えて P 動作による簡単な位置の閉ループを併用する構成とした。この場合, 磨き力の制御性能に影響しないように速度への変換ゲインを 0.01 程度の小さな値に設定している。

図-8には、開発した磨きロボットの制御系のブロック線図を示す。まず、 $f(f_x, f_y, f_z)$ と $x(x, y, z)$ はそれぞれ、力覚センサで計測された力ベクトルと、順キネマティクスで求められたツール先端の位置・姿勢ベクトルである。 $v_n(v_{nx}, v_{ny}, v_{nz})$ と $v_t(v_{tx}, v_{ty}, v_{tz})$ はそれぞれ、

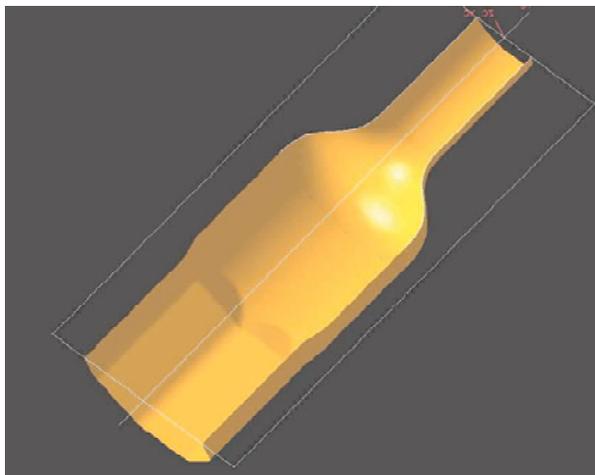


図-6 ペットボトル金型用のCADモデル



図-7 フェルトパフ工具での倣い実験

力フィードバック制御則(インピーダンスモデル追従型力制御法)と、CLデータに基づくフィードフォワード位置補償器が生成する速度ベクトルである。 v_n と v_t はそれぞれ、砥石とワークの接触地点における法線方向と接線方向に与える。 $f_d(f_{dx}, f_{dy}, f_{dz})$ は目標とする磨き力ベクトルである。また、 $v_p(v_{px}, v_{py}, 0)$ は位置のフィードバック制御則が生成する速度ベクトルであり、次式で与えられる。

$$v_p = K_v(x_d - x) \quad (1)$$

ただし、 $K_v = \text{diag}(K_{vx}, K_{vy}, 0)$ は速度への変換ゲイン行列であり、 $x_d(x_{dx}, x_{dy}, 0)$ はCLデータに基づく目標の位置ベクトルである。 v_p を与えることで砥石はCLデータのXY成分に追従しながらワーク表面上を移動することができる。なお、この制御戦略により、目標の磨き力で研磨しながら、自由曲面上をCLデータに沿って移動させることができるようになった。

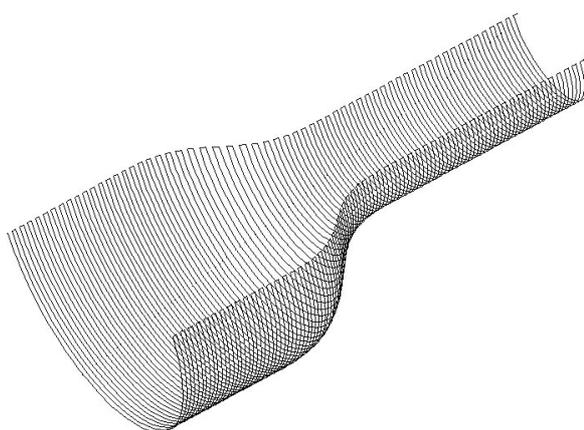


図-9 断面方向のジグザグパスの例

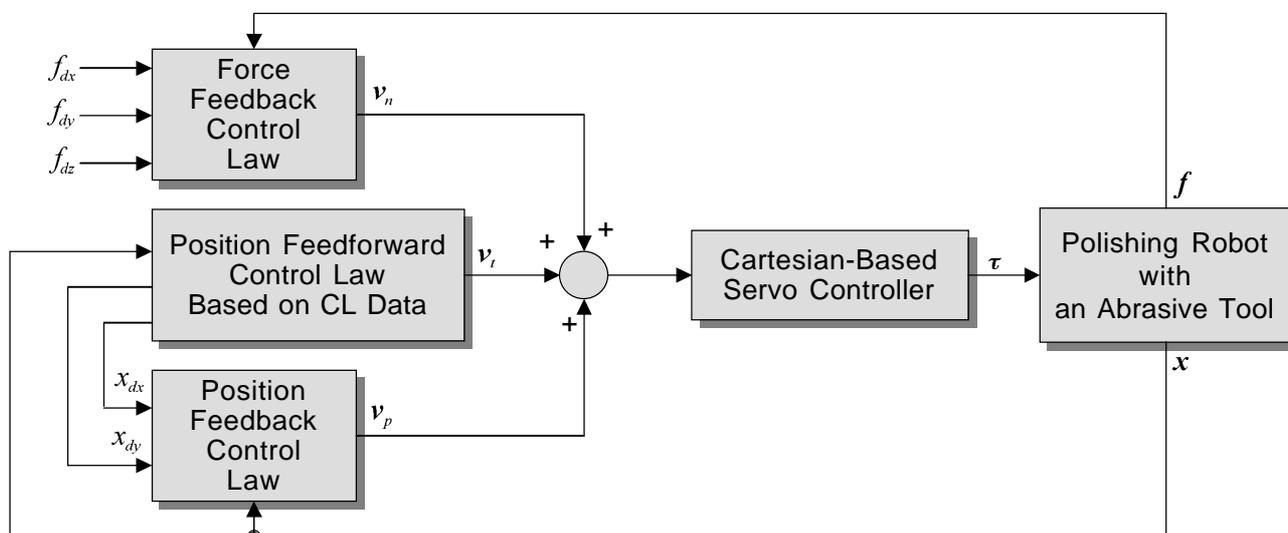


図-8 開発した磨きロボットの制御系のブロック線図

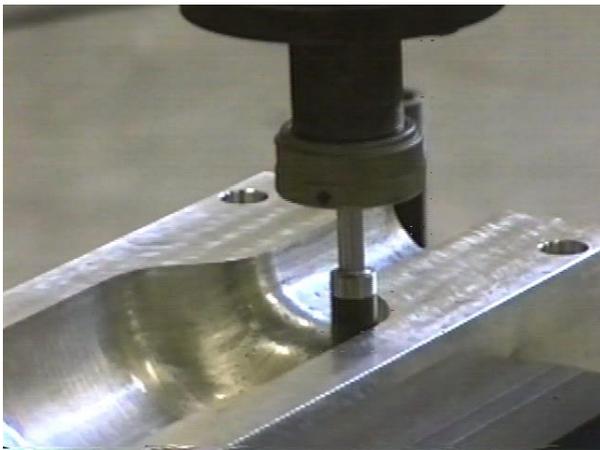


図-10 ペットボトル金型の磨き風景

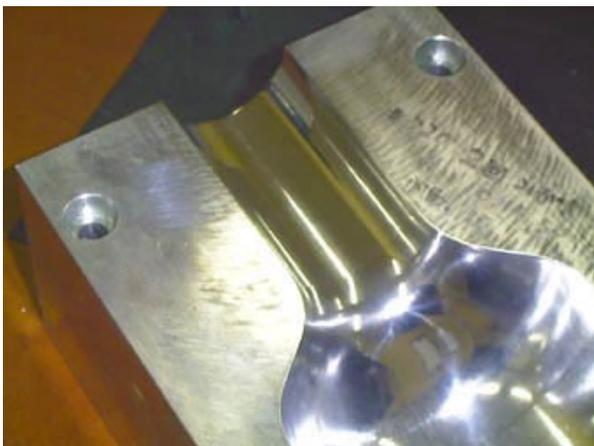


図-11 酸化クロムで拭き上げたワーク表面(1)

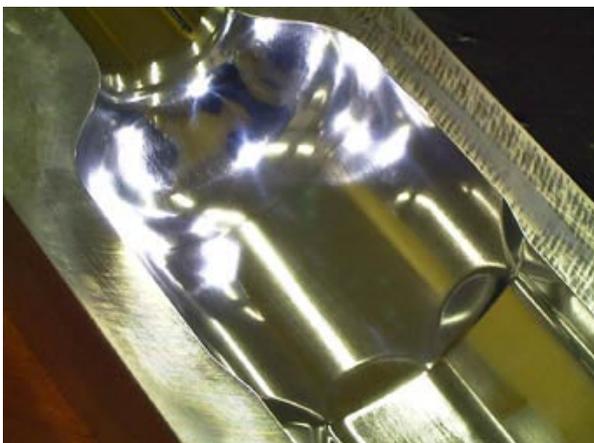


図-12 酸化クロムで拭き上げたワーク表面(2)

3-2 アルミ製ペットボトル金型の磨き実験

つぎに、図-9に示すピックフィード 0.2 mm の断面方向のジグザグパスを用いて磨き実験を行った。使用した砥石はメイホー製の弾性ゴム砥石 #220, #320, #400 である。図-10には磨き風景を示している。図-11,12には、その後ワーク縦方向のジグザグパスを用いて磨いた後に酸化クロムで拭き上げた後の状態を示している。これらの写真から #400 までの砥石を

使用しただけで鏡面特性を発現できることが確認された。この場合、算術平均粗さ Ra と最大高さ Ry の測定値はそれぞれ、 $0.05 \sim 0.11 \mu\text{m}$, $0.61 \sim 1.60 \mu\text{m}$ の範囲内であった。磨きロボットでは、磨き効率を大きく左右する磨き力を均一に発生させることができるために、このような磨き性能を発揮できたものと考えられる。本章で紹介した磨き実験結果から、提案する磨きロボットはこのような自由曲面に対してもストレスなく適用できることが確認できた。

4 成果と今後の展開

4-1 成果

従来、「低剛性な産業用ロボットベースでは、NC加工後の金型磨きの工程を自動化することはできない」、「産業用ロボットが発揮できる程度の繰り返し位置精度(0.1 mm 程度)では、金型磨きは不可能である」ということが定説となっていた。本研究では、マシニングセンタなどと比べて非常に安価な腕型マニピュレータ(垂直多関節型の産業用ロボット)に弾性ゴム砥石を装着し、既に提案している摩擦力を考慮に入れた磨き戦略を適用することで、現場普及型の画期的な自動磨きロボットを開発することができた。その後、シリンダー形状とペットボトル形状のアルミワークを用いて磨き実験を行い、システムの有効性を検証した。その結果、まず、手磨きの場合の第一工程であり、最も時間と負荷を必要としていたカスプマークの除去作業に対して優れた性能が確認された。#220 ~ #320 程度の砥石工具を用いるカスプマークの除去作業が安定的に自動化されるだけでも、システムの高い商品効果が期待される。つぎに、カスプマークが除去された金型ワークに対して、#400 程度の砥石を使用し、磨き実験を行った。その結果、図9に示した断面方向のパスとそれに直交した方向のパスを交互に用いて磨いていくに従い、ワーク表面の傷が小さくなり、非常に綺麗な表面性状が確認された。この場合、酸化クロムで拭き上げると最終目標である鏡面特性も確認することができた。現時点でも、カスプマークの除去を主目的とする基礎磨き程度の工程には十分適用できることが熟練作業者により評価された。

最後に、本稿で提案した磨きシステムの特徴は、以下のとおりである。

- 1) 従来、回転トルクにより研削力を発生させている軸付き砥石を回転させず、回転をロックして磨く。

ただし、ボールエンド形状の軸付弾性ゴム砥石の外周を均一に消費しながら磨くために、低速回転を併用する。

2) 回転による研削力ではなく、工具の押付力と並進移動速度によりそれぞれ発生される運動摩擦力と粘性摩擦力を考慮して磨く。

3) 工具の押付力と、運動摩擦力および粘性摩擦力など摩擦力との合力を磨き力として定義し、インピーダンスモデル追従型力制御法により磨き力を目標値に追従させるながら磨く。

4) 1 mm 程度のワーク固定位置の不確かさを吸収しながら磨くことができるため、位置決め精度を保証するための特殊な治具などを必要としない。

4-2 今後の展開

今後は、本プロジェクト研究で試作開発し有用性が確認された磨きロボットの商品化を早急に図るために、様々なペットボトル金型の磨き実験を実施し、システムの安定性と信頼性を高めていく予定である。加えて、産業界に広く多種存在するその他の金型磨き工程にフレキシブルに対応できるように、更に以下のような研究課題を解決しながら高度化を図っていく。

1) 仕上げ磨きにも十分対応できるようにするために、熟練者の腕のような柔らかさを発揮できなければならない。このため、軽量・安全な材質によるリンクの設計と、低剛性な関節機構について検討する。

2) オーバハングを持った金型ワークにも適用できるように7関節以上の自由度を持った冗長自由度を有するロボットへの拡張を検討する。

3) 制御戦略(ソフトウェア)としては、前述のロボット本体の各関節をコンプラインス制御しながら、ロボットアーム先端に装着する磨き工具の軌道制御と磨き力制御をハイブリッドに行うことで、熟練作業者のようなしなやかで高速な磨き動作を実現する。これにより、仕上げ磨きにも対応できるようにする。

4) 同一サイズのロボットであってもより大きな金型ワークを磨けるように、また、長時間運転に不可欠な効率的なミスト機能を実現するため、ワーク固定台に3自由度の並進制御機能と2自由度のチルト制御機能を持たせる。

5) ペットボトル程度の小型の金型ワークから、自動車ボディのような大型の金型ワークに対応できるロ

ボットのラインナップ構成を実現する。

6) 磨き工具については、大型の金型ワークを効率的に研磨するための軽量の磨き工具を開発する。現在使用している直径1 cm程度から直径10 cm程度までの回転トルク制御可能な砥石工具をツールチェンジャーで自動交換できるようにする。さらに、小型の押付力センサを開発し、砥石工具のシャンク取付け部に実装することで、磨き工具を高速に動作させた場合でも工具押付力を高精度に観測できるようにする。

7) #600~#1200程度の弾性砥石工具を用いた磨き実験とフィールドテストによる総合評価

8) 曲率半径1 mm程度の微小曲面を有するワークを繊細に研磨できるように、1 gf~500 gf程度の力制御機能について検討する。

今後もこのような高度化研究に取り組み、それらの成果を融合させることで、材料やサイズ、目標精度などの様々な金型磨きニーズにフレキシブルに対応できる「万能型金型磨きロボット」を構築していく。これにより、世界的な競争下であっても、ハードとソフトの両面で優位性を確保し続けることができるものと思われる。

5 おわりに

本研究では、まず、試作開発した金型磨きロボットを用いてペットボトル金型の磨き実験を行い、自由曲面への適応性を中心に基本性能を評価した。その結果、ペットボトルで使用されている程度の曲率を持った凹曲面に十分対応できることが確認された。特に、最も時間を必要としていたカスプマーク除去に優れた効果が見られた。つぎに、表面粗さ測定器を用いて研磨後のワーク表面を局所的に定量評価した結果、軸付弾性ゴム砥石を使用することで、磨き精度と磨き効率を大幅に改善できることが確認された。

謝 辞

本研究は、平成13年度補正即効型地域新生コンソーシアム研究開発事業の一環として、九州経済産業局から委託を受けた(財)北九州産業学術推進機構から再委託された研究開発業務「自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発 - 学習型モーション/力制御系の開発と磨き実験による性能評価 - 」として実施したものである。

6 参考文献

- 1) 津田，安田，永田，他2名：研磨装置及び研磨方法，特願2002-286901，(2002)
- 2) F. Nagata, K. Watanabe, Y. Kusumoto, et al.: New Finishing System for Metallic Molds Using a Hybrid Motion/Force Control, *2003 IEEE International Conference on Robotics and Automation (ICRA2003)*, The Grand Hotel, Taipei, (2003), accepted.
- 3) F. Nagata, K. Watanabe, Y. Kusumoto, et al.: High Precision Polishing Robot Using a Learning-Based Surface Following Controller, *Procs. of 2003 IEEE International Symposium on Computational Intelligence in Robotics and Automation (CIRA2003)*, pp.91-96, (2003)
- 4) 永田，楠本，渡辺，木口：自由曲面金型のスーパー磨き自動仕上げシステムの開発 - 学習型モーション/力制御系の開発と磨き実験による性能評価 - ，平成13年度補正地域新生コンソーシアム研究開発事業成果報告書，pp. 80-103，(2003)
- 5) 津田，安田，永田，楠本：金型研磨ロボットシステムの開発，*機械と工具* 5月号別冊 - 最新金型加工技術 - ，pp. 77-82，工業調査会 (2003)
- 6) 津田，安田，永田，楠本：熟練職人技を低コストで代替する自由曲面金型の磨きロボットシステムの開発，*ツールエンジニア*5月号，Vol. 44, No. 5, pp. 60-65，(株)大河出版 (2003)
- 7) 永田，楠本，渡辺，他2名：ペットボトル金型の高品位磨きシステムの開発 - ボールエンド形状砥石のハイブリッドモーション/力制御法 - ，第3回SICEシステムインテグレーション部門講演会論文集，pp. 83-84，神戸市産業振興センター，(2002)
- 8) 永田，楠本，渡辺，津田，安田：金型の高品位磨きのための軸付砥石のモーション/力制御法，第12回インテリジェント・システム・シンポジウム講演論文集，pp. 133-136，アバンセ（佐賀県立女性センター・佐賀県立生涯学習センター），(2002)
- 9) 永田，楠本，渡辺，ほか10名：オープンインタフェースを有する産業用ロボットを用いた金属材料の高品位磨きシステムの開発，第4回日本ファジィ学会九州支部学術講演会予稿集，pp. 13-16，(2002)

研磨工具を駆動するエア圧力のスキルフルコントローラーの開発

楠本幸裕^{*1} 永田寅臣^{*1} 津田邦博^{*2} 安田仁徳^{*2} 小菟正樹^{*2}

Development of a Skilfull Controller of Air Pressure for Air Driven Sanding Tools

Yukihiro Kusumoto, Fusaomi Nagata, Kunihiro Tsuda, Kiminori Yasuda and Masaki Komino

木製家具の製造工程における自由曲面の研磨や、膜厚の薄い塗装面の研磨は機械による自動化がされておらず、熟練者による手作業で行われているのが現状である。一方、当所のシーズである研磨ロボットシステムは、自由曲面はもちろん、塗装面の研磨にも対応できるが、研磨工具を駆動するエア圧力の調節に課題を残している。高品位な研磨を実現するためには、研磨中に研磨工具の駆動トルク、すなわちエア圧力をスキルフルに制御することが重要となっており、この課題をクリアすることで研磨ロボットの性能を大幅に改善させることができる。そこで本稿では、パソコンでエア圧力を任意に制御できるコントローラーの開発を行い、研磨ロボットに実装し研磨実験によりその有効性を確認したので報告する。

1 はじめに

現在、木製家具の製造工程において、そのほとんどが機械により自動化がされているにもかかわらず、研磨作業だけははまだ熟練者による手作業で行われているのが現状である。これは、木材に特有の吸湿・乾燥による変形や、ワークの移動に伴う固定位置の誤差により、位置制御だけでは高精度な磨きを行うことが非常に困難になるためである。特に最終工程となる塗装面の研磨においては、数百 μm の膜厚しか持たない塗装面がこの誤差によって削り取られてしまい、著しく製品の品質を落としてしまう原因となる。

機械による研磨作業の自動化への期待は高く、これまでも様々な自動研磨システムの開発に関する研究が行われてきた。しかし機械の自由度の低さから3次元の曲面にまでは対応できるものは無かった。そのため、3次元の自由曲面を採り入れた高付加価値型の家具は、手彫りにより彫刻的に加飾されたもの以外ほとんど生産されていなかった。また一方では、3次元の曲面に対応させる為に、自由度の高い産業用コンピュータの先端に研磨装置を取り付けて研磨を行った例もあるが、煩わしい教示作業を必要としたり、繰り返し位置精度が0.1mm程度しか達成できない等の問題が残っていた。しかし、当所では平成12年度NEDOベンチャー企業支援型地域コンソーシアム研究開発事業の一環として開発した研磨ロボットシステム(図-1)



図 - 1 研磨ロボットシステム

により、3次元自由曲面を有する木材ワークの木地研磨および塗装面研磨を実現している¹⁾。

さて、研磨ロボットシステムを用いた研磨作業において高品位な研磨を実現する為には、研磨性能に大きな影響を及ぼすいくつかのパラメータの調整を研磨作業中に行うことが不可欠であり、我々はこのパラメータを“研磨パラメータ”と呼んでいる²⁾。研磨パラメータには、研磨工具の押付力・食い速度(ワーク表面に対する接線方向の速度)・駆動トルクの3つがあり、研磨作業中にこれら研磨パラメータの調整を行うことで高品位な研磨が実現できる。この中で、研磨工具の押付力と食い速度はパソコンを使ってロボット制御アプリケーションから新しい目標値を入力する事で簡単に調節が行えた。しかし工具の駆動トルクの調節を行うには問題点があった。エア駆動式の研磨工具のため、

^{*1} インテリア研究所

^{*2} (株) エーエスエー・システムズ

駆動トルク，すなわちエア－圧力を調節するためには，工具とエア－コンプレッサーの間にある手動式の圧力弁の調節ネジを手で回す必要があるからである。そのため，これまでこのエア－圧力の調節を行うために，ロボットの操作とは別にもう一人エア－圧力調節専用の人手を要しており，大変効率が悪かった。さらに，手動で調節ネジを回しエア－圧力を調節するため，レスポンスが非常に悪いという問題点もあった。

本稿では，この問題を解決するためにパソコンから簡単に調節が行えるエア－圧力のスキルフルコントローラーの開発を行った。

2 研磨ロボットシステム

本章では，エア－圧力のスキルフルコントローラーを実装する研磨ロボットシステムについて解説を行う。

2 - 1 オープンアーキテクチャ型産業用ロボット

既に開発している研磨ロボットシステムでは，研磨を行うロボットとして，高自由度・高信頼性・低価格の面から産業用ロボットを採用している。従来，産業用ロボットはティーチングペンダントを用いて座標点をロボットに記憶させ，それを追従させることで動作を行わせる教示再生方式のユーザインタフェースのみが提供されていた。生産工場などのラインで部品の移動，設置，ハンドリングなどの直線的な動きを行うにはそれで十分であったが，今回のように3次元の自由曲面上に沿って研磨工具を做わせるような曲線的で滑らかな動きを行わせる場合には，非常に多くの座標点を記憶させるための教示作業が必要となるため，実用的でなかった。さらに，仮にこの非常に煩わしい教示作業が行われたとしても，ロボットの繰り返し位置精度が十分でないために，たとえ同じ形状であっても，複数のワークに対して平均的な研磨を行うことは非常に困難であった。一方，図 - 1にあるロボットは，現在研磨ロボットシステムのベースとして使用している川崎重工業社製の6自由度産業用ロボットFS30で，近年登場してきているオープンアーキテクチャ型³⁾のコントローラを有するロボットであり，メーカーから提供されるAPI(Application Programming Interface)を使うことで，独自のロボット制御アプリケーション(ユーザインタフェース)の開発が可能となっている。

筆者らはこれまでに，CLデータからワークの形状を読み込み，容易にワーク表面を做わせることが可能な

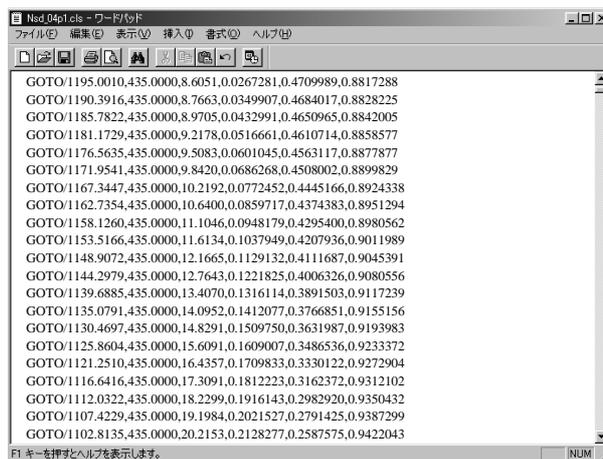


図 - 2 CLデータの記述

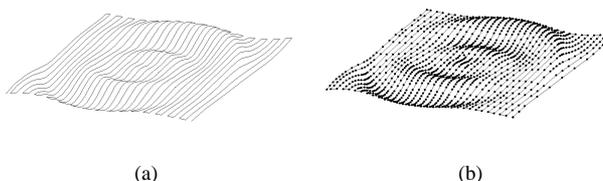


図 - 3 CLデータに基づいた加工の軌道

ロボット制御アプリケーションを開発してきた。さらに手先に取り付けた力覚センサからの力覚値をフィードバックし，ワークへの押付力を安定的に制御することを可能にしている。

2 - 2 CLデータ

CLデータにはワークの3次元座標値及びその座標点における法線ベクトルが1セットとして図 - 2のように記述されている。ロボットはこのCLデータの情報により，手先に取り付けた研磨工具が常にワークに対して垂直に当たるように制御される。CLデータの座標点は，CAMのメインプロセッサが生成した渦巻きやジグザグのパス上に並んでいる。ジグザグパスを使用した場合のCLデータの軌跡の一例を示したのが図 - 3(a)である。一方，図 - 3(b)におけるパス上の点は，実際にCLデータに記述されている座標点をプロットしたものである。研磨ロボットシステムでは，このCL

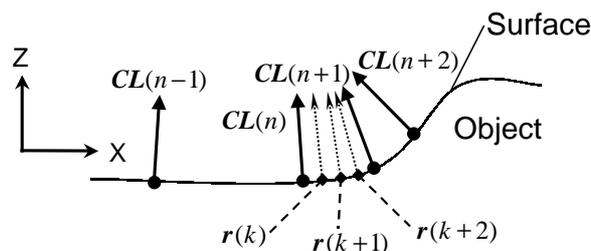


図 - 4 CLデータを用いた目標軌道の生成

データに基づき微制御器¹⁾を用いて離散時刻 k における目標軌道ベクトル $r(k)$ を生成する (図 - 4 参照)。

2 - 3 押付力の調節機能

ロボットは研磨中、力覚センサからの情報よりワークに対する押付力が常に目標値になるように制御されるため、ワークの表面全体を均一に研磨することが可能であると同時に、CLデータと実際のワークの形状との誤差を吸収することができる。また、目標値を変えることで、同じワークに対して強く押付けながら研磨することも、軽くなできるように優しく研磨することも可能である。この特徴により、産業用ロボットの繰り返し位置精度の低さをカバーできるだけでなく、NC加工後のツールマーク除去を目的とした木地研磨も、塗装を施した後の繊細な塗装面研磨にも適用できるようになった。この押付力の制御には、次式に示す速度指令のインピーダンスモデル追従型力制御を用いる⁴⁾。

$$\begin{aligned} \dot{x}(k) = & \exp(-M_d^{-1}B_d\Delta t)\dot{x}(k-1) \\ & - \{\exp(-M_d^{-1}B_d\Delta t) - E\}B_d^{-1}K_f\{\tilde{F}(k) - F_d\} \\ & + K_i \sum_{n=1}^k \{F(n) - F_d\} + K_r \left\{ \frac{r(k) - r(k-1)}{\Delta t} \right\} \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 $\dot{x}(k) \in \mathcal{R}^6$ はベース座標系での離散時刻 k における工具の速度ベクトル、 $M_d = \text{diag}(M_{d1}, \dots, M_{d6})$ 及び $B_d = \text{diag}(B_{d1}, \dots, B_{d6})$ はそれぞれ目標慣性行列、目標粘性行列であり、これらをインピーダンスパラメータと呼ぶ。 $F(k) \in \mathcal{R}^6$ は $F^T(k) = [f^T(k) \ n^T(k)]$ で定義され、 $f(k) \in \mathcal{R}^3$ は工具とワーク間に作用する接触力ベクトル、 $n(k) \in \mathcal{R}^3$ はモーメントベクトルである。 $F_d^T = [f_d^T \ n_d^T]$ は目標とする力・モーメントベクトルである。 $K_f = \text{diag}(K_{f1}, \dots, K_{f6})$ は力フィードバックゲイン行列である。 $K_i = \text{diag}(K_{i1}, \dots, K_{i6})$ と E はそれぞれ、積分制御ゲイン及び単位行列である。さらに図 - 4 の $r(k)$ をフィードフォワード項として用い

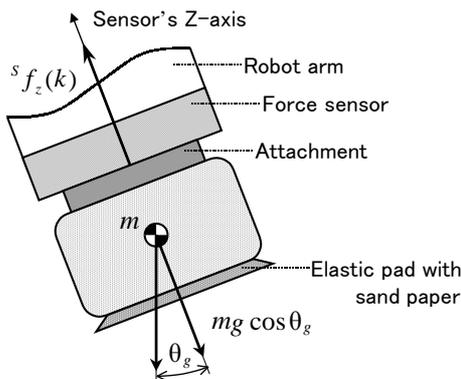


図 - 5 研磨工具の傾きによる力覚センサ値の変化

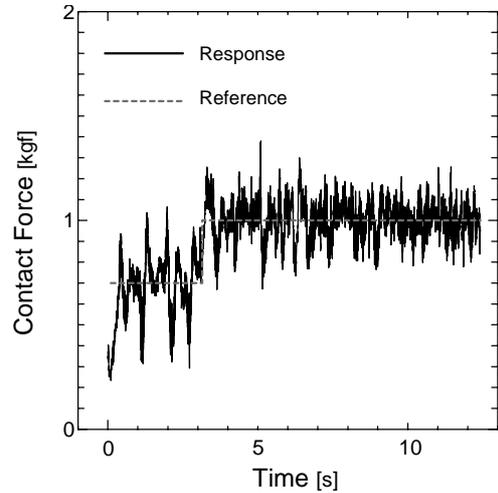


図 - 6 力制御実験の結果 (工具停止時)

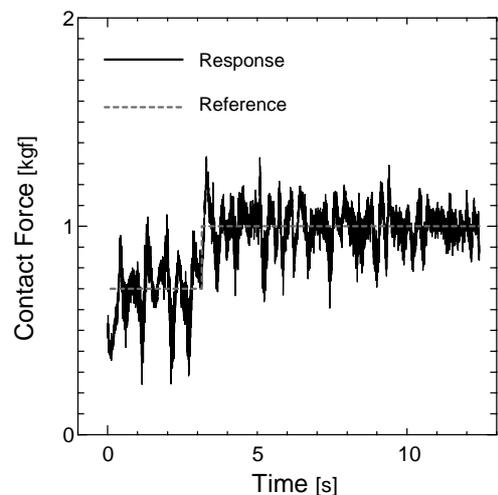


図 - 7 力制御実験の結果 (工具駆動時)

ており、 $K_r = \text{diag}(K_{r1}, \dots, K_{r6})$ は、そのフィードフォワードゲインである。ここで、図 - 5 のように研磨工具が傾いた場合、力覚センサの測定値に、工具の自重に起因する測定誤差が生じる⁵⁾。故に、力覚センサ座標系における力ベクトル ${}^S f(k)$ の z 軸方向成分 ${}^S f_z(k)$ (図 - 5 参照) に対し、以下の式に示す重力補償を行う。

$${}^S \tilde{f}_z(k) = {}^S f_z(k) - mg \cos \theta_g \quad (2)$$

ここで、 m は研磨工具の質量、 g は重力加速度、 θ_g は研磨工具の重力方向に対する傾斜角である。なお、式 (1) 中の $\tilde{F}^T(k) = [\tilde{f}^T(k) \ \tilde{n}^T(k)]$ の $\tilde{f}(k)$ は ${}^S \tilde{f}(k)$ を力覚センサ座標系からベース座標系へ変換したものである。図 - 6 と図 - 7 には、式 (1) を用いて、3次元自由曲面を持つ木質ワークに対する力制御実験を行った時の工具押付方向の力覚センサ値を示している。図 - 6, 7 はそれぞれ工具のパワーを OFF 及び ON にしたときの値を示している。この図から分かるように、研磨工具の

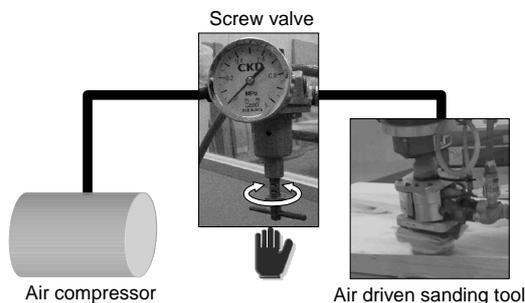


図 - 8 従来のエア圧力調節方法

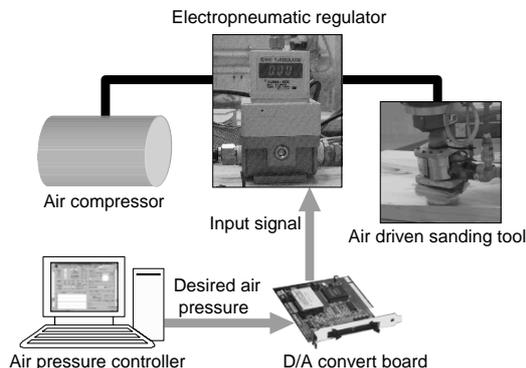


図 - 9 開発したエア圧力コントローラー

ON/OFF に関係なく目標値に良好に追従している。

3 エア圧力のスキルフルコントローラー

以上の研究成果により、3次元自由曲面および塗装面にも対応した研磨ロボットシステムを開発した。しかし、第1章でも述べたとおり高品位な研磨面を得るためにはエア圧力のスキルフルな調節が課題として残っており、研磨ロボットシステムを実際に商品として販売するためには、この課題をクリアする必要があった。そこで本年度の研究課題としてエア圧力のコントローラーの開発を行った。本章ではその内容の詳細について述べる。

3-1 現状での問題点

ではまず、なぜエア圧力のコントローラーの開発が必要であったかを整理してみる。図-8は従来のエア圧力調節装置の概略図である。この図を見ても分かる通り、単純に手動式の圧力調節弁を用いてエア圧力の調節を行っているだけである。従って以下のような問題点が挙げられる。

- パソコンでロボットの操作や他の研磨パラメータの調整をする作業員以外にもう一人必要である。
- 人の手で圧力調節ネジを回してエア圧力を調節するため、レスポンスが非常に悪い。
- 研磨中のエア圧力の調節以外にも、研磨の開始/終了時における工具のON/OFFの役割も担っているため、弁の開閉作業は必ず発生している。

以上のことから、現状のままではエア圧力の調節が非常に煩わしく研磨作業全体の効率を悪くしていること、しかし省くことのできない工程である、ということが分かる。

3-2 エア圧力コントローラーの開発

そこで本研究では、これらの問題点を解決し研磨ロボットの性能を向上させるため、エア圧力コントロー

ラーの開発を行った。まず、使用していた手動式の圧力調節弁の代わりに電空レギュレータを設置した。電空レギュレータは入力信号（電圧）に応じてエア圧力を調節できる電子式のエア圧力調節弁であり、入力信号である電圧を変化させることにより、スキルフルにかつ瞬時にエア圧力を調節する事が可能である。つぎにこの電空レギュレータへの入力信号をパソコンから出力させるためのアプリケーションソフトの開発を Microsoft Visual C++ を用いて行った。開発したソフトでは、キーボードからの入力や画面上のスライダーを移動させることでエア圧力の目標値を自在に変更でき、直感的・感覚的に使いやすいインタフェースとなっている。入力された目標のエア圧力は、アプリケーションソフト内で目標圧力に応じた電圧値に変換され、D/A ボードを介してパソコンから電圧として出力され、電空レギュレータへ入力される。このエア圧力コントローラーにより、パソコンからの操作で工具のエア圧力を自在に変化させたり、工具駆動のON/OFFの切り換えが可能となった。図-9は開発したエア圧力コントローラーの概念図である。また、すでに開発しているロボット制御アプリケーションの中に今回開発したエア圧力コントローラーのアプリケーションを組み込むことにより、1つのアプリケーションでロボットの動作と研磨工具の圧力を制御できるようになっている。

3-3 ハイパーCLデータ

さて、以上から開発したエア圧力コントローラーにより、研磨工具の駆動トルクが他の研磨パラメータと同様にパソコン上で調節できるようになった。しかし今回さらに、自動化という観点から研磨ロボットの更なる性能向上のために、新しい概念のCLデータを提案した。それがハイパーCLデータである²⁾。エア圧

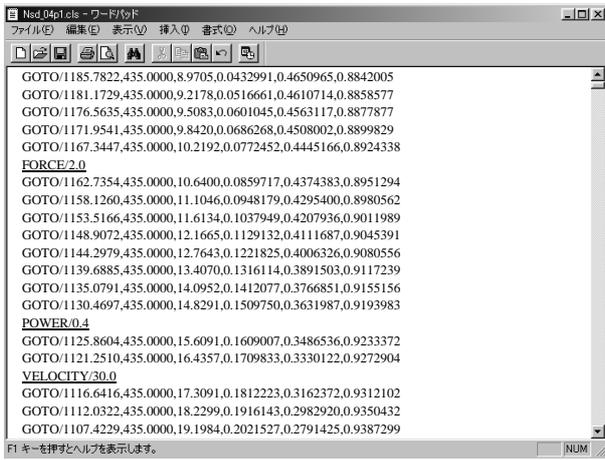


図 - 10 ハイパー CL データの記述例

表 - 1 ハイパー CL データ中のコマンド

Commands	Controlled objects	Unit
POWER	Air pressure of sanding tool	MPa
FORCE	Contact force	kgf
VELOCITY	Moving velocity of sanding tool	mm/s
BLOW	Air blow	0...OFF 1...ON

力コントローラーの開発により、全ての研磨パラメータをスキルフルに調整することが可能となり、高品位な研磨を可能とした。しかしこの研磨パラメータ調整は、研磨中にパソコンからキーボード等による手入力で行う必要があるため、現場でこれら研磨パラメータの調整が頻繁に発生しては効率が悪く、作業員への負担も大きい。そのため、研磨パラメータの調整も自動で行える機能が必要となる。そこで今回、これまで手入力で行ってきた研磨パラメータの調整を作業員の代替として行うハイパー CL データを提案する。ハイパー CL データには、位置・姿勢情報に加えて研磨パラメータの調整に関する記述を行うことができる。通常研磨ロボットは CL データの“GOTO”で始まる行を位置・姿勢情報として認識しそのデータを基に動作を行う。ハイパー CL データでは更に、それ以外の記述を読み取ると研磨パラメータの調整を行うコマンドとして認識し、適時そのコマンドに従い調整を行う。図 - 10 はハイパー CL データの一例で、この中の下線部分はそのコマンドの記述例である。表 - 1 は今回ハイパー CL データとして新たに追加したコマンドの一覧である。この表より、例えば図 - 10 の場合、最初の“FORCE/2.0”というコマンドで研磨工具の押付力が 2.0 [kgf](19.6 [N])になる。次の“POWER/0.4”というコマンドで研磨工具のエア圧力が 0.4 [MPa] になり、さらに“VELOCITY/30.0”で俵い速度が 30.0 [mm/s]に

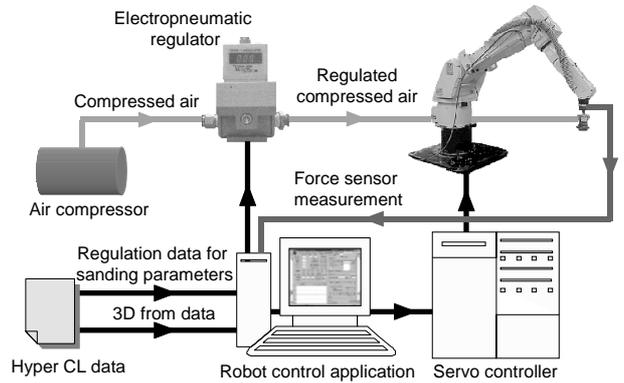


図 - 11 ハイパー CL データを用いた研磨ロボットシステム

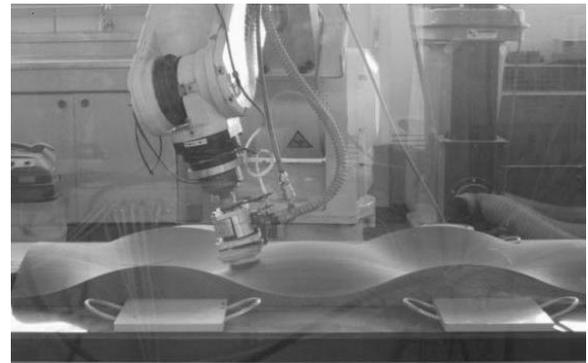


図 - 12 研磨実験風景

調整される。ハイパー CL データを用いた場合の研磨ロボットシステムの概念図を図 - 11 に示す。この図を見ても分かる通り、ハイパー CL データからロボット制御アプリケーションに対しワークの 3 次元形状データだけでなく研磨パラメータの調整に関するコマンドも入力され、従来の CL データではキーボードなどから手入力していた研磨パラメータ調整を、ハイパー CL データの場合は記述されたコマンドに基づき自動で行うことができる。

4 研磨実験

つぎに、今回開発したエア圧力のスキルフルコントローラーの有効性を検証するため、研磨ロボットによる 3 次元自由曲面を有する木質ワークの研磨実験を行った。図 - 12 はその様子である。ワークのサイズは 1200.0×450.0 [mm] で、材質はマホガニー材である。ワークにはあらかじめ NC 工作機械で曲面に加工したものをを用いる。そのため表面にはツールマークが残っており、このツールマークを除去し表面を滑らかにすることが研磨の目的である。なお、研磨中におけるインピーダンスモデル追従型力制御のゲイン等の各制御

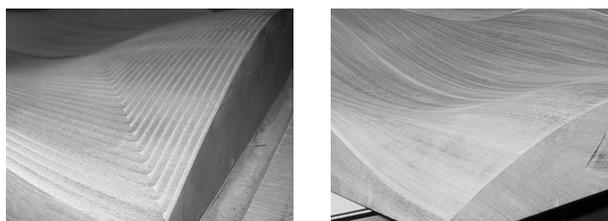
表 - 2 制御パラメータ

Contents	Parameters	Values	Units
Desired mass coefficient	M_{d1}, M_{d2}, M_{d3}	0.01	kgf·s ² /mm
Desired damping coefficient	B_{d1}, B_{d2}, B_{d3}	20.0	kgf·s/mm
Force feedback gain	K_{f1}, K_{f2}, K_{f3}	1.0	-
Integral control gain	K_{i1}, K_{i2}, K_{i3}	0.0005	-
Feedforward gain	K_{r1}, K_{r2}, K_{r3}	0.8	-
Sampling width	Δt	10.0	ms



写真提供: 家具工房西田

図 - 14 アトラクティブな自由曲面をもつベンチ



(a) Before sanding

(b) After sanding

図 - 13 研磨前後のワーク表面

パラメータは表 - 2 に示すとおりである。図 - 13 が研磨前後のワーク表面を比較したものである。ロボットによる研磨によって、ツールマークが除去され、滑らかな表面になっていることがわかる。さらにワーク表面の形状自体も維持され、全体にわたって均等に研磨が行われていた。研磨終了までには3回の工程を要し、それぞれ $\#60$ によるツールマーク除去の木地研磨、 $\#120$ での中研磨、 $\#180$ による仕上げ研磨、と順に研磨紙の番手を細かくしている。研磨に要した時間は1工程当たりが15分程度で、合計45分程度を要した。また、高品位な研磨面が得られるよう研磨中に随時研磨パラメータの調整を行っていたが、ハイパーCLデータによる自動調整を行ったため、研磨開始時に1度操作をしただけで研磨中は何の操作も必要としなかった。この実験で使用したワークは加工依頼があったもので、研磨ロボットでの研磨後に、裏面及び脚部の加工が施され商品化されている(図 - 14)。今回の依頼の1年前にも同形状の加工依頼があったが、マホガニーという硬い材質のため、当時は $\#60$ での研磨でツールマークを完全に除去するだけでも3回の研磨を行っていた。しかし今回は式(2)の重力補償や今回開発したエア圧力コントローラーにより非常に効率よく研磨を行えたため $\#60$ での研磨は1回で済み、すぐに仕上げ研磨に移行できた。

5 おわりに

本研究では、研磨工具を駆動するエア圧力のスキルフルコントローラーの開発を行った。これにより、研磨ロボットによる研磨中、自在に研磨力を調節する事が可能となり、高品位な研磨面を得ることが可能となった。更に、ハイパーCLデータの採用により、研磨パラメータ調整作業の自動化にも成功した。その結果、共同研究相手である(株)エーエスエー・システムズより、平成14年10月に“インテリジェントサンダー・ロボ”として研磨ロボットシステムが商品化された。

6 参考文献

- 1) 永田, 渡辺, 他3名: 多軸制御用CLデータに基づく微制御器を用いた力制御ロボットサンダーの開発とその評価実験, 精密工学会誌, Vol. 68, No. 7, p. 953-957 (2002)
- 2) 楠本, 永田, 他3名: ハイパーCLデータを用いたロボットサンダーの研磨性能の改善, 第12回インテリジェント・システム・シンポジウム講演論文集, 佐賀, p. 137-140 (2002)
- 3) 水川, 小山: 産業用ロボットの教示方法の現状と展望, 日本ロボット学会誌, Vol. 17, No. 2, p. 180-185 (1999)
- 4) 永田, 渡辺: 研磨ロボットのためのジョイスティック支援による力制御教示システム, 日本機械学会論文集(C編), Vol. 67, No. 655, p. 767-774 (2001)
- 5) F. Nagata, K. Watanabe, et al.: Flexible Finishing System Using Hyper Cutter Location Data, *Procs. of The 6th International Conference on Mechatronics Technology*, Kitakyushu, p. 218-223 (2002)

立体設計を中核とした『IT活用金型製造支援システム』の開発

摩耗工具 CAM の開発に関する研究

野中 智博

Development of “The system which supports manufacture of the metallic mold which utilized IT”

A Study of The Development of “The wear tool CAM function”

Tomohiro Nomaka

九州経済産業局の平成 13 年度から 15 年度の地域新生コンソーシアム事業¹⁾で、金型全体を立体的に設計する立体設計法を中核にして、設計と連動した NC データが作り出せる立体設計連動 CAM 機能、2 次元設計図を自動的に作り出す金型立体図面化機能、金型の生産情報をコンピュータネットワークによって、金型生産の各部門に効率良く配信できる生産情報ネットワーク機能をもつ『IT 活用金型製造支援システム』^{2) 3)}の開発を行っている。このシステムに、他のシステムにはない、レーザを使った工具の測定データに基づいて、NC データを作り出すことができる「摩耗工具 CAM 機能」を付加する。本年度は、その中核部分になる 3 次元図形として表された任意の工具形状とワーク形状の間で、精度の高い走査線仕上げ加工、等高線仕上げ加工用の NC データを作り出す「自由工具形状 CAM 機能」と、透過型レーザ測定に対応した「自動工具径・長測定システム」の開発を行ったので、その概要を報告する。

1.はじめに

金型の製造分野では、近年、低賃金を背景にした中国の急速な台頭をはじめ、台湾、韓国等の近隣諸国との本格的な国際競争時代を迎えている。このような状況のもと、日本の金型製造業は、海外では対応できない付加価値の高い高品位な金型を低価格、短納期で製作することを迫られている。

この高品位金型の製作を可能にするのが摩耗工具 CAM 機能である。摩耗工具 CAM 機能とは、レーザを使って工具を NC 工作機械上で回転中に測定し、その測定データに基づいて、工具形状を CAD 上に立体図形として定義し、立体として定義された加工物形状(ワーク)との間で、その加工物を製作するために必要な工作機械の動作指令 (NC データ) を作り出す機能である。

従来の金型用 3 次元 CAD / CAM システムでは、工具形状は、理想的な形状として数値で定義されている。例えば、直径 10mm の円筒形形状、球半径 5mm のボール形状などである。しかし、実際の工具形状は、そ

の使用度合いに応じて磨耗する。そのために、従来では、この工具の磨耗・変形を無視した NC データしか作り出せないために、要求形状と実際の加工物には、誤差を生じる。また、工具形状を数値で定義するために、スクエアエンドミル、ボールエンドミル、ラディアスエンドミル等の特定の工具しか使用出来なかった。

摩耗工具 CAM 機能では、実際の工具形状を測定で求めるので、磨耗状態を考慮した NC データの作成が可能になり、要求形状と実際の加工物には、誤差を少なくすることができる。

また、この機能では、工具を一旦、立体図形として定義するために、任意の工具形状に対して NC データを作り出すことができるので、工具の形状の制限を受けずに、加工形状に最適な工具を使用して加工を行うことが可能になる。

この機能は、従来の CAD / CAM システムには全くない機能で、「IT 活用金型製造支援システム」を特徴づける独自機能の一つであり、平成 13 年度～15 年度の期間で開発を進めている。

本年度は、摩耗工具機能の中核部分である「自由工具形状 CAM 機能」の開発を行った。この機能によれば、昨年度開発した「自動工具径・長測定システム」

* 1 機械電子研究所

によって得られた測定点列データを基にして、3次元CAD上に回転体形状として表示された工具形状だけではなく、任意な工具形状をCADで3次元図形として作成すれば、その工具形状と任意のワーク形状との間で、加工のためのNCデータを作成することができるようになる。

また、昨年度開発した「自動工具径・長測定システム」は反射型のレーザ変位計による反射型測定を利用したものであったが、これまでの研究の結果、反射型測定には、問題点もあることが判った。そこで、本年度は、この問題点を解決するために、「自動工具径・長測定システム」をレーザマイクロメータによる透過型測定にも対応できるように機能強化を行った。以下にその内容を報告する。

2. 研究方法

2-1. 自由工具形状CAM機能

磨耗工具CAM機能では、工具の測定データを基にして、工具を回転体形状として3次元CAD図形として表し、その工具形状とCAD上で3次元図形として表されたワーク形状との間で精度の良いNCデータを作成できるようにする。

この機能の中核部分は、3次元図形として表わされた工具形状とワーク形状を使って、NCデータを作り出す機能である。この機能によれば、必ずしも工具形状を測定データから作成する必要はない。工具形状を通常のCADの操作方法により、3次元形状として図形化すれば良い。

磨耗工具機能の中核部分である3次元図形として表された任意の工具形状とワーク形状の間でNCデータを作成するこの機能を「自由工具形状CAM機能」と呼ぶ。

この機能の実現するために、福岡県とコンピュータエンジニアリング株式会社で共同特許を取得した「干渉線投影法」とよぶ工具経路計算方法(特許第3010002号)を使用した。また、プログラム開発は、VisualC++6.0を使用し、開発した機能群を3次元CADである「SolidWorks」に組み込んで使用することができるように、COM(Component Object Model)技術を活用した。

今年度開発した機能は、コンピュータの計算ロジックが主要な部分を占め、結果は、NCデータのもとにな

る数値が出力されるだけである。そこで、開発した機能を検証するために、走査線仕上げ加工用NCデータ作成における計算過程の各段階を可視化できるようにした。

2-2 「自動工具径・長測定システム」の透過型測定への対応

昨年度、開発を行った「自動工具径・長測定システム」は、写真1に示すように、レーザ変位計を使用した反射型測定システムであった。

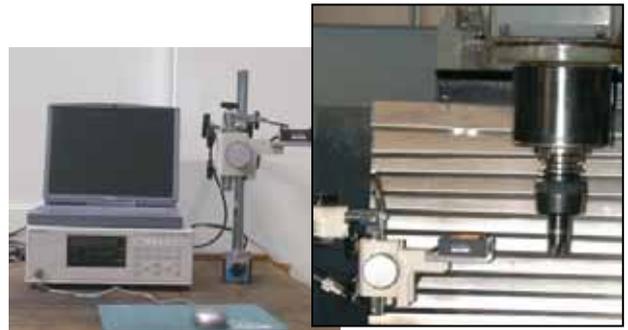


写真1 レーザ変位計を利用した
「自動工具径・長測定システム」

しかし、開発の結果として、このシステムには以下の問題点があることが判った。

- (1)反射型のレーザ変位計を用いているために、基準工具径からの変位量しか測定できないために、基準工具径をマイクロメータ等を使用して、あらかじめ測定しておく必要がある。
- (2)反射光を利用するために、測定を確実に行うためには、レーザ変位計を測定距離内の最適な位置に設置する必要があり、設置に手間がかかる。
- (3)一点に照射したレーザ光により測定を行うために、工具全体を測定するための、工作機械の測定動作が複雑になり、測定に時間がかかる。

そこで、本年度は、これらの問題点を解決するために、ライン状のレーザ光を利用したレーザマイクロメータによる透過型測定にも対応できるように、新たな測定動作および測定データ処理のプログラム開発を行った。写真2に開発実験に使用したレーザマイクロメータとシステム全体を示す。また、表1に開発実験用のレーザマイクロメータの主な仕様を示す。

プログラム開発には、VisualC++6.0を使用し、加工現場端末としてのノートパソコンを利用してシステム構成ができるように機能開発を行った。



写真2 レーザマイクロメータを利用した
「自動工具径・長測定システム」

表1 レーザマイクロメータの主な仕様

レーザ光源(発光波長)	可視光半導体レーザ (650nm, 1mW, クラス2)
測定幅	120mm
最小検出物体	1mm
レーザ走査範囲	126mm
最小読み取り幅	0.1 μm
繰り返し精度	±2 μm
直線性指示精度	±8 μm
位置誤差	±10 μm
レーザ走査回数	1,600 回/s
レーザ走査速度	452m/s

3 結果と考察

3-1 自由工具形状CAM機能

本年度の開発目標は、磨耗工具CAM機能の中核部分となる「自由工具形状CAM機能」を開発することであり、コンピュータの計算ロジックの開発が主要な部分を占める。このロジックは、来年度のマンマシンインターフェースの開発により、立体設計連動CAMと一体化された機能として、整備される。

しかし、開発全体を段階的に確実に進めると同時に開発したロジックの正しさを検証し、動作確認を行うために、仮の開発コマンドを決め、その内容の開発整備を行った。

以下に、表2に試作コマンドの一覧と図1にCADに組み込まれた試作メニューを示す。

表2 試作コマンド

コマンド名	機能の概要
工具形状作成	「自動工具径・長測定システム」で得られる工具形状を表すX,Y,Z値のアスキー点列ファイルから回転体3次元形状として工具形状を作成、表示する機能
走査線仕上げ加工	工具形状とワーク形状を3次元図形として指定し、「干渉線投影法」により、設定した条件で走査線仕上げ加工用のNCデータ用点列データを算出する機能
等高線仕上げ加工	工具形状とワーク形状を3次元図形として指定し、「干渉線投影法」により、設定した条件で等高線仕上げ加工用のNCデータ用点列データを算出する機能
工具断面カーブ作成	工具を指定した方向に切断し、その断面線を作成、表示する機能
交線カーブ作成	曲面同士の交線カーブを作成、表示する機能
点列の表示	アスキー点列ファイルからデータを読み込み、点列を表示する機能



図1 試作メニュー

開発した機能を使い、走査線仕上げ加工を例にして、3次元図形として表現されたダミー工具に対して、「干渉線投影法」を利用してNCデータを作成する工程を図2～図10に示す。

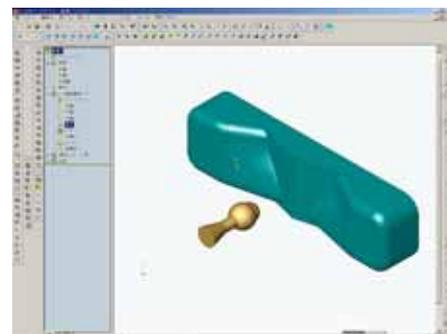


図2 <工程1>ワークおよび工具をアセンブリに配

置する。



図3 <工程2> 試作コマンドの走査線仕上げ加工設定ダイアログで工具，ワーク形状を選択し，設定項目を入力する。

線を求める。

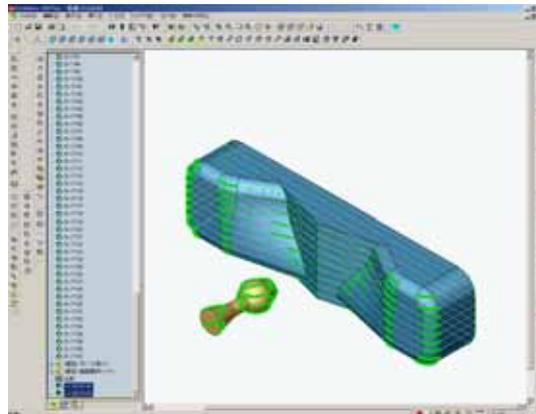


図6 <工程5> 各交線との弦長トランスが規定値以内の補間点を求める。

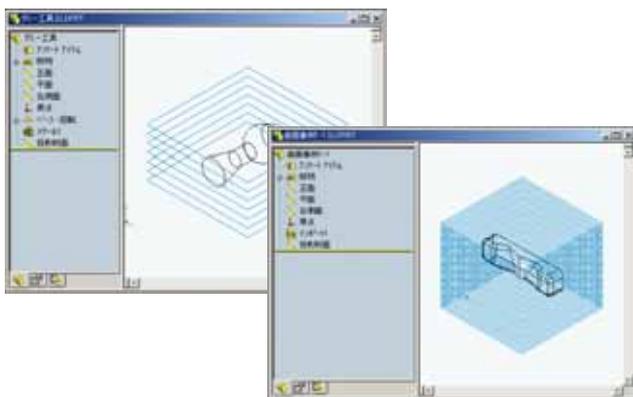


図4 <工程3> 工具とワークに対し，走査線方向に平面を自動作成する。

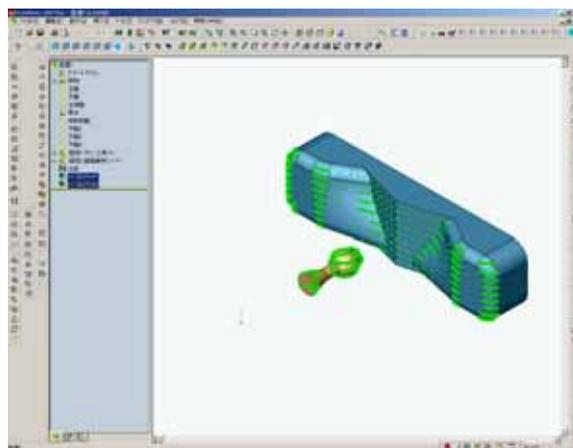


図7 <工程6> 補間点の中で，「干渉線投影法」を適応する必要のない点を除外する。

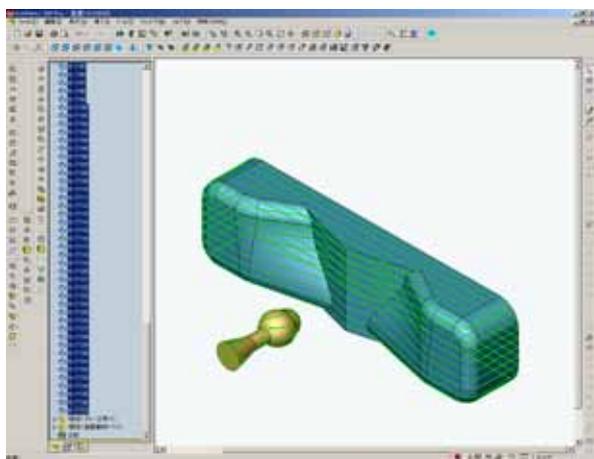


図5 <工程4> 工具とワークに対し，平面との交

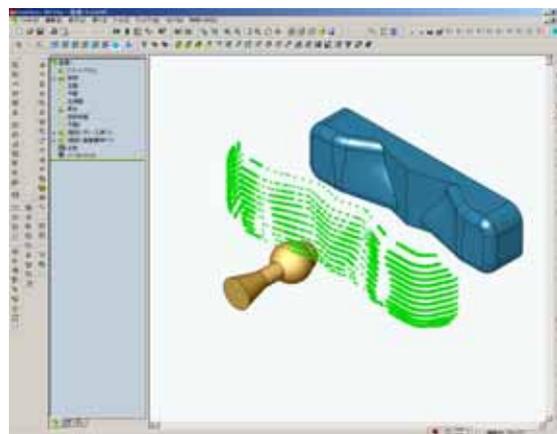


図8 <工程7> 工具基準点を走査線上の補間点毎に移動させて，「干渉線投影法」および「干渉点投影法」を適応し，工具とワークが接触する位置の工具基準点

高さを求める。

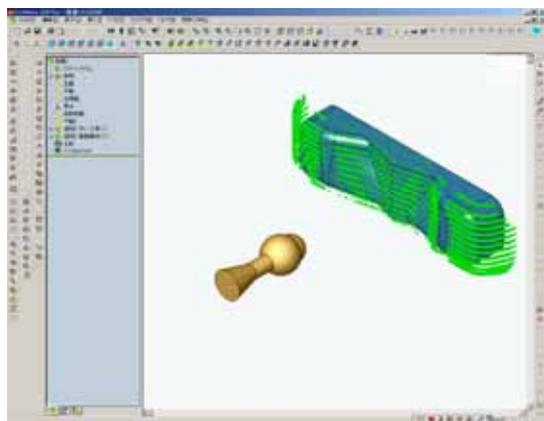


図9 <工程8> 工具基準点高さから工具先端高さの差分だけZ値を差し引く。これが、工具先端位置の工具経路になる。

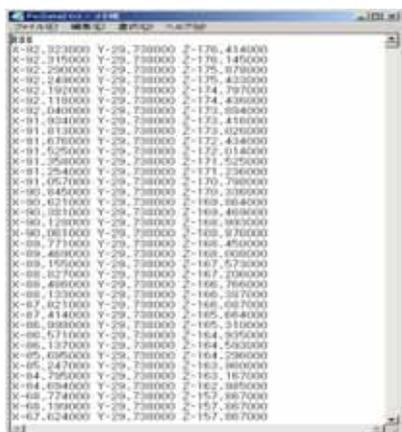


図10 <工程9> 工具先端点を走査線毎に直線で結ぶ。これが 直線補間 (G01) NCデータ点群になる。

3-2 「自動工具径・長測定システム」の透過型測定への対応

レーザマイクロメータによる透過型の工具測定では、帯状のレーザ光を用いて工具径および工具長の測定を行なう。

この方法の場合、レーザ変位計による反射型の測定に比べて、工作機械の測定動作は単純になるが、工具回転時の特定断面における回転円の直径(以下回転直径と呼ぶ)を測定するためには、反射型とは違った処理が必要になる。

図11に示すように、任意の断面形状をもつ工具の測定では、単純にレーザ光の遮断幅を測定するだけで

は、回転直径値を、直接得ることは出来ない。そこで、ソフト的に処理をすることによって、回転直径を得るようにした。

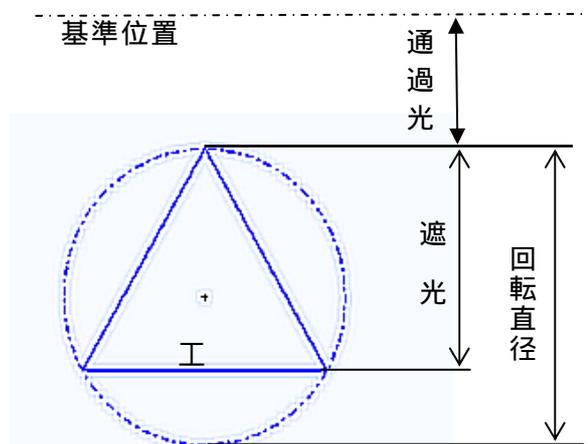


図11 工具と測定幅の関係

図12に試作した測定設定画面、図13に、レーザマイクロメータを用いて、工具径・長を測定する場合の処理方法を示す。



図12 測定設定画面

本年度開発を行った「自由工具形状CAM機能」は磨耗工具機能の中核部分であり、「IT金型製造支援システム」を他のシステムと差別化する機能のひとつで、ユニークな機能である。

本年度「干渉線投影法」ロジックをプログラム化し、「自由工具形状CAM機能」の基本機能を実現することができたことは、来年度マンマシンインターフェースを開発することにより、磨耗工具機能全体の実現可能性を確実なものにしたと言える。

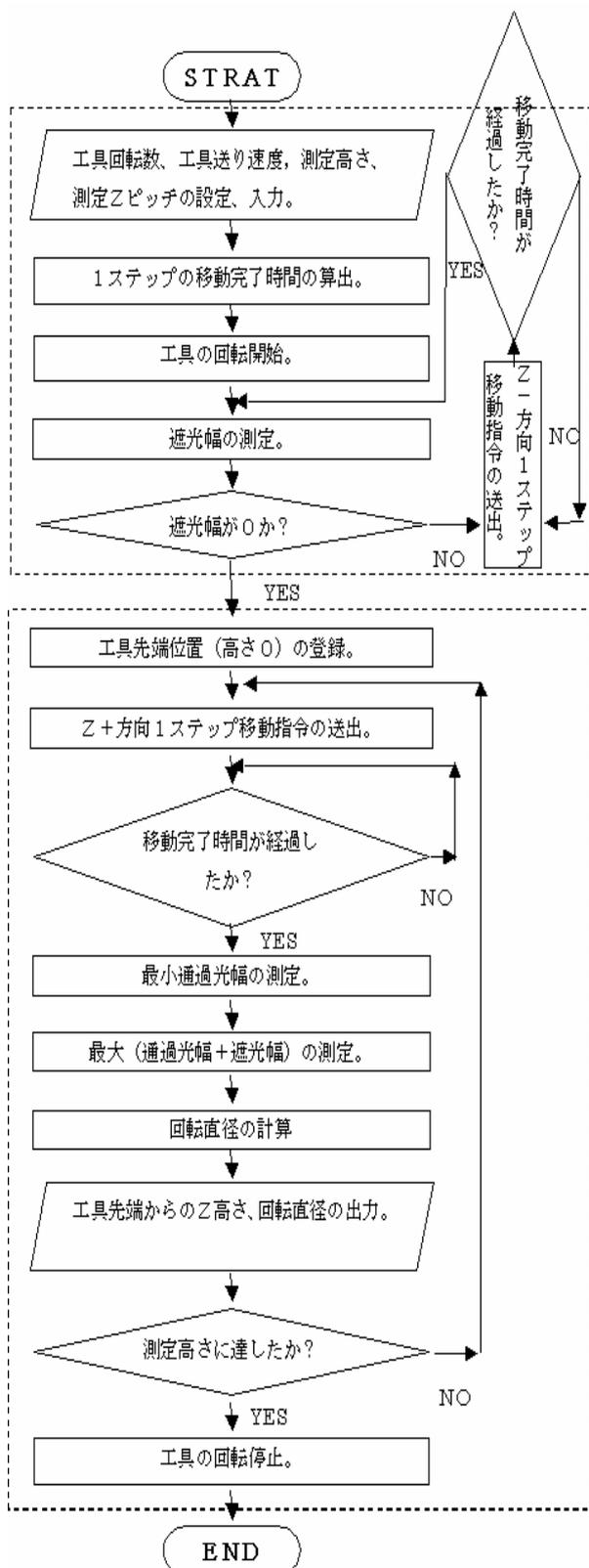


図 1 3 レーザマイクロメーターによる処理方法

本年度の主なテーマは、ロジックのプログラム化で

あるために、成果が見えなくなる恐れがあった。そこで、「干渉線投影法」の処理過程の可視化を試みながらプログラム群の開発を進めたが、この方法が効率的にロジックをプログラム化することを可能にし、個別開発プログラムのデバック、正しさの検証に大いに役に立った。

一方、「自動工具径・長測定システム」をレーザ変位計による反射型測定だけではなく、レーザマイクロメータによる透過型測定にも対応できるようにしたことは、工具の測定を、より実用的なものにすることができた。また、この透過型測定による「自動工具径・長測定システム」は、本プロジェクトの「IT金型製造支援システム」での利用だけでなく、金型製造業が現在、困っている問題の解決のために応用展開をすることができる。

これまでの磨耗工具機能の開発での成果は、本年度、「工具の自動測定方法および装置」(特願 200-229587号)と「任意工具形状に対応した3次元CAD/CAMシステム」(特願 2002-132951号)として特許出願することが出来た。

4.まとめ

本年度の成果を踏まえて、来年度はマンマシンインターフェースを開発することにより、磨耗工具機能全体を整備し、運用実験と連動させながら、立体設計連動CAM機能と一体化した、システム化する。

また、本年度開発した「自由工具形状CAM機能」単体としても機能強化を図っていきたい。

「自動工具径・長測定システム」の応用展開については、今後、本プロジェクトとは別に、適応分野の開拓、適応方法の検討、応用アプリケーションの開発等、新たな技術シーズとしての技術開発に取り組みたい。

5.参考文献(論文投稿)

- 1)野中智博：次世代金型設計・製造システムの実際、機械と工具、Vol144, No4(2000) 27-30
- 2)野中智博他6名:立体設計を中核とした"IT活用金型製造支援システム"の開発、型技術、VOL17, No13(2002) 90-91
- 3)財団法人九州産業技術センター：平成14年度地域新生コンソーシアム研究開発事業「立体設計を中核とした『IT活用金型製造支援システム』の開発」成果報告書

ものづくりの高度化に関する研究

オンマシンウェルディングシステム装置の試作

竹下 朋春*1 野中 智博*1 中村 憲和*1 中村 裕章*1

谷川 義博*1 安部 年史*1 石田 康弘*2

Studies and Developments of Tradition System in Manufacturing Skill

Studies and Developments of welding System

Tomoharu Takeshita , Tomohiro Nonaka , Norikazu Nakamura , Hiroaki Nakamura

Yoshihiro Tanigawa , Toshifumi Abe and Yasuhiro Ishida

現在，工業製品は，消費者ニーズの多様化や商品サイクルの短縮化により，高品質な製品を短納期で製作する必要にせまられている。その中でいかにコスト，納期を縮めるかが企業の生き残り策となっている。しかし設計変更や加工ミスが発生しても，納期の変更が出来ない。そこでこのような問題を解決でき，企業のセールスポイントとなるようなオンマシンウェルディングシステムの開発を行う。マシニングセンター等の切削加工用工作機械上で，CAD/CAM からの NC データ（技能者の技術を数値化）に基づき自動溶接を行うことで，金型の高品質化と製作期間の短縮を実現することを目的としてオンマシンウェルディングシステムの研究開発を行った。

1 はじめに

現在，消費者ニーズの多様化により，金型加工メーカーも短納期で高品質な製品の要求が高まっている。しかし発注後の設計変更も多く，納期厳守のまま金型加工メーカーも対応している。

また CAD/CAM システムの発達により，装置を導入することで 3 次元形状の加工が可能となっている。しかし作業や CAM データのミスなどで，金型企業では 1 型あたり 4, 5 件，加工ミスが発生しているのが現状である。

このような，設計変更や加工ミスの発生時には，熟練した技能者が溶接機を使用して手動で肉盛溶接を行っている。しかしこのような作業は大変な熟練を要すが，年々の熟練工の減少は，即座の対応ができないため経営者の不安材料となっている。

また金型の意匠にかかる箇所においては，県内の企業では出来ないため，大阪の業者に依頼している。したがって往復の輸送時間と費用がかかっている。

そこで，この問題を解決するためにオンマシンウェルディングシステムの開発を行う。

2 工作機械上での溶接システムの開発

2-1 オンマシンウェルディングシステム

図 - 1 に，工作機械上でのオンマシンウェルディングシステムを示す。

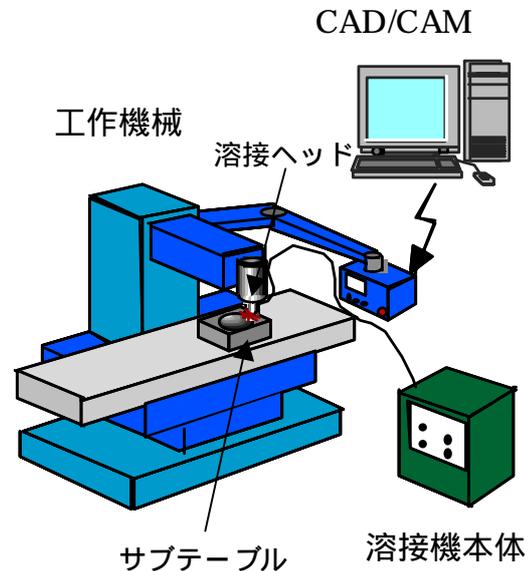


図 - 1 オンマシンウェルディングシステム

従来の金型加工の設計変更や加工ミスの発生時に，熟練した技能者が溶接機を使用して，手動で金型などの肉盛溶接を行っている。このオンマシンウェルディングシステムは，既存の工作機械を使用して，自動化を行うものである。通常，工作機械の主軸ヘッドには

*1 機械電子研究所

*2 機械電子研究所

工具ホルダを介してドリルやエンドミルなどの切削工具が取り付く。この部分に溶接ヘッドを取り付けて、肉盛溶接を行うものである。この溶接ヘッド部分は、3次元形状の肉盛溶接を行うために、溶接トーチの旋回、傾斜、前後動作が可能となる。(特願 2000-79621 工作機械上での溶接システム) また溶接装置は、パソコン側から溶接電流や、溶接パルスをコントロールし最適溶接条件で溶接する。さらに CAD/CAM 装置の部分では、3次元形状の肉盛溶接を行うための、NC データを作成する部分となる。また従来では肉盛溶接のために、毎回工作機械から金型をおろして溶接作業を行い、再度工作機械に載せ直して、段取りを再度行い再加工する。このシステムでは、工作機械上に金型を載せたまま、溶接、再加工を行うための、サブテーブルを用いる。このテーブルで溶接熱を工作機械本体から遮断し、工作機械に熱影響をおよぼさない。

2-2 溶接ヘッドの開発

溶接ヘッドの設計は、設計ミスを極力無くするために、ソリッドタイプの3次元 CAD を用い、全ての部品、構造を3次元的に設計をする3次元設計を新規に行った。3次元 CAD には、溶接用 CAM 開発システムに利用する CAD を使用し、試作した溶接ヘッドは、全体をコンパクトにまとめるとともに、主要部分にアルミを用い、軽量化を図った。また、安全性を考慮し、工作機械主軸が回転しても装置が壊れないように工夫している。3次元 CAD を用いることにより、溶接トーチの干渉などを考慮して設計が行えた。図-2に、今回3次元 CAD で設計を行った装置を示す。また、写真-1に、今回試作した溶接ヘッド及び制御装置を示す。

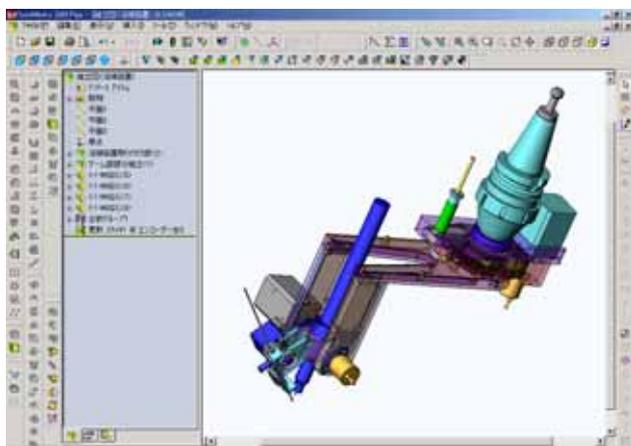


図 - 2 組立図 (3次元)



写真 - 1 溶接ヘッド及び制御装置

2-3 CAMソフトウェアの開発

オンマシンウェルディングシステムを開発する場合、溶接ヘッドが、複雑な曲面を持つ金型の表面上から一定距離を保つように工作機械本体を制御する必要がある。そこで、金型用3次元 CAD/CAM システムを使って、その制御用の NC データを作り出せるかどうかシステムを実現するための重要な技術要素となる。

従来の CAD/CAM システムでは、円筒形や球形をした工具を用いて形状を切削加工する場合の NC データは作り出すことができるが、本システムの溶接ヘッドを想定し、金型表面形状と一定の距離を保った NC データを作り出す CAM 機能はない。そこで、溶接ヘッド制御と工作機械制御とを行う NC データを作り出す CAM 機能を開発した。溶接用 NC データ作成例を図-3に示す。

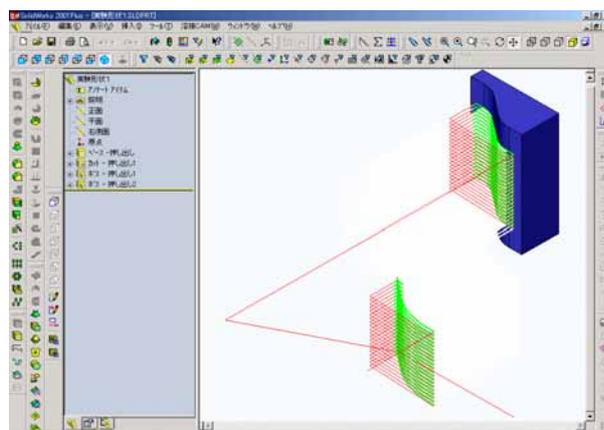


図 - 3 溶接用 NC データ表示例

2-4 制御用ソフトウェアの開発

工作機械上で、様々な形状をもつ金型の補修溶接を行えるようにするためには、溶接ヘッド部の溶接棒を

溶接条件に合わせて適切に供給すると同時に従来の人手による溶接時の手の動きを自動化する必要がある。そこで、CAMソフトウェアで作られたNCデータに基づいて、工作機械と溶接ヘッド制御装置にデータを転送する装置の開発を行った。図 - 4 に制御用ソフトウェアのGUI画面を示す。

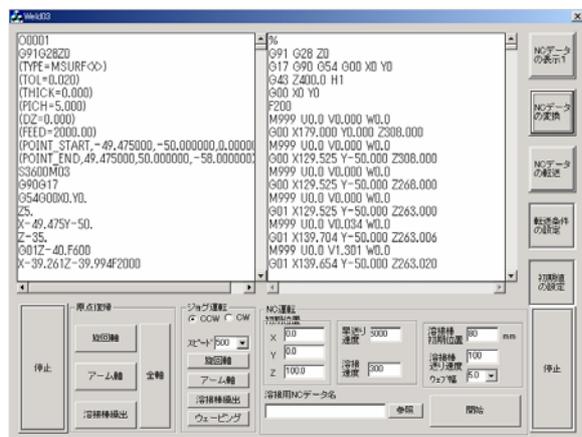


図 - 4 制御用ソフトウェアのGUI画面

画面左側が通常企業が保有するCAMで算出したデータである。このデータをソフトウェア内で計算を行い溶接ヘッドのオフセット量及び傾き等を考慮したデータが右側画面に表示される。

また、算出された溶接用NCデータに従って、溶接ヘッドを制御すると同時に工作機械へNCデータの一部を転送し、工作機械に指定した動作をさせる役割を果たす。

3 結果と考察

3-1 熱影響試験

サブテーブルによる工作機械への熱影響及びオンマシウェルディングヘッドの温度上昇を測定するため、写真 - 2 に示すように熱電対を各所に取付け温度測定を行った。



写真 - 2 実験状況

サブテーブルに100×100mmのワークを取付け、ワーク中心に溶接時と同様なアークを飛ばすことによる、ワーク中心下面、サブテーブル中心下面、工作機械テーブル中心上面、オンマシウェルディングヘッドのトーチ取付け部の温度測定を10分間行った。測定結果を図 - 5 に示す。図からワーク下面の温度は400近くに達したが、工作機械テーブルは、サブテーブルの効果により温度上昇は見られなかった。また、オンマシウェルディングヘッドについても56であった。

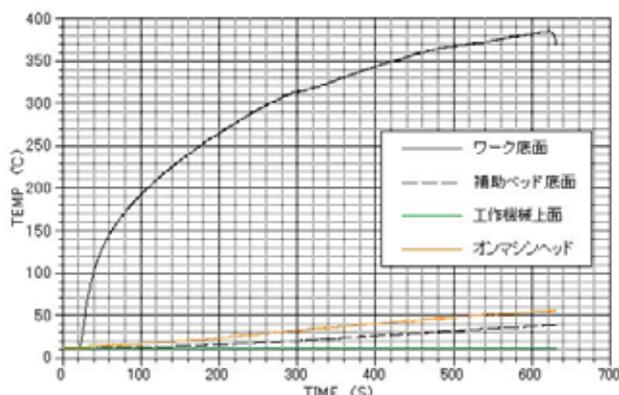


図 - 5 10分の溶接による温度上昇

3-2 ノイズ対策

昨年度の実験においては、工作機械のメモリ運転モードにより溶接が可能であることを確認していたが、本年度は3次元の曲面についても対応可能とするためにDNC運転においても利用可能とした。DNC運転モードは、大量のデータを一度に工作機械に転送するのではなく、小さなデータを工作機械が要求する毎にデータ転送装置からシリアル通信経路で転送するものである。この方式は、10数年前の工作機械から搭載されているが、誤り伝送についての機能が貧弱であるため、溶接開始時に間隙をぬってアークが飛び瞬間の大きなノイズにより、伝送不良となることがわかった。工作機械及び伝送装置であるパソコン類はまったく問題が無かった。そこで、伝送部に改良を加え、光ファイバ伝送及び光伝送装置の電池駆動とすることで、対策を行った。PLC装置を用いて、アークを1秒ON,0.5秒OFFさせることを繰り返し行い、その回数をカウントすることでノイズ対策試験を実施した。その結果、1500回のONOFFを行っても、一度もエラーが発生しないことを確認し、試験を打ち切った。結果を図 - 6 に示す。

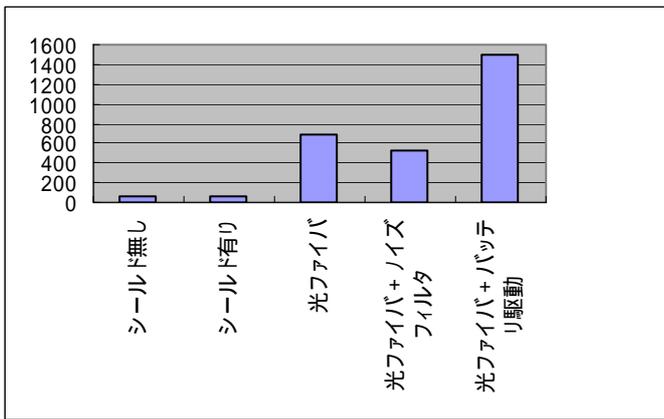


図 - 6 伝送試験結果

3-3 サンプル溶接試験

オンマシンウェルディングシステムの最大の特徴である、工作機械にワークを取付けたまま自由曲面の溶接が可能であることを実証するため、100×100mm の自由曲面に対し溶接が可能であることを確認した。

写真 - 3 は、金型材料の一つである NAK 材における曲面溶接写真である。写真から分かるように、人間には不可能な安定した肉盛溶接を行っていることが確認できた。

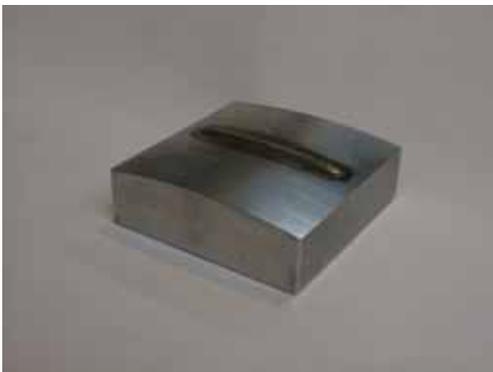


写真 - 3 NAK材への溶接



写真 - 4 S50Cへの溶接

写真 - 4 は、急な曲面を持つ S50C のサンプル形状への溶接結果である。写真からも分かるように、曲面に対し逐次法線方向のトーチ角度を維持しているため可能な溶接である。曲面に対しトーチ角度一定のまま溶接行くと、アークの距離が変化するために、部分部分で玉になるような溶接になってしまう。

写真 - 5 には、凸レンズのような曲面についても行った例を示す。

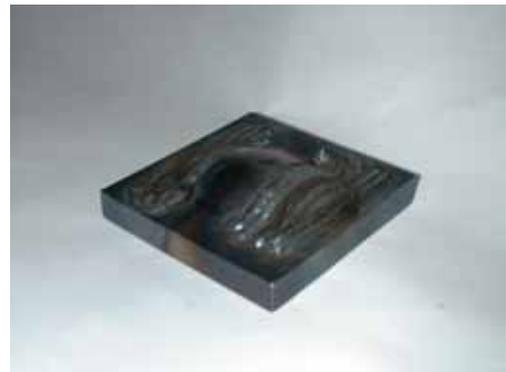


写真 - 5 凸レンズ面への溶接

4 まとめ

本年度は、オンマシンウェルディング装置のハードウェア開発、CAM ソフトウェアの開発、制御用ソフトウェアの開発を実施し、それら統合したシステムとしての評価を行うことができた。

今後は、「オンマシンウェルディングシステム」を、同じ工作機械上で計測を行なう「オンマシン計測」と CAD/CAM システムでの「リバースエンジニアリング」と組み合わせて、肉盛溶接により形状を形成し、計測を行い、不要部分を切削加工したり、計測により金型の欠陥部を自動認識できるようにして、このシステムを高度に利用できるようにしていきたい。

このことで、最近、国内の金型製造業では、安い人件費を背景にして、中国へ金型生産がシフトするのではないかとの危惧が強まっている。このような状況下において、金型生産を差別化し、高付加価値金型を短納期化、低コスト化するために、「オンマシンウェルディングシステム」の必要性はますます増大していると捉えている。

円筒の圧縮ピーク応力に関する研究

春山繁之^{*1} 牛島邦晴^{*2} 陳 玳珩^{*2}

Study on Compression Peak Stress of Circular Tubes.

Shigeyuki HARUYAMA^{*1}, Kuniharu USHIJIMA^{*2} and Dai-Heng CHEN

本研究では、自動車車体など輸送機器の構成部材として多く用いられている円筒形状部材において、構成部材の機能として求められる衝撃吸収機能を制御するために必要な、圧縮破壊時の初期ピーク応力に与える形状パラメータの影響および材料特性の影響について有限要素法汎用ソフトを用いて検討を行った。その結果、ピーク応力は長さ L に無関係で、肉厚 t と半径 R との比 t/R の関数として整理できること、降伏応力が大きいほどピーク応力は大きい、ピーク応力が降伏応力より大きければ、ピーク応力は降伏応力に無関係となることが分かった。

1 はじめに

自動車車体などの基本構成部材として、薄肉円筒あるいは角筒形状の部材が幅広く用いられている。その理由として、自動車衝突時の乗客の安全性を確保するため、衝突時に車体の一部を適度に圧潰させ、運動エネルギーをできるだけ効率よく吸収する必要がある点が考えられる。

図1は模式的に示した、軸圧縮荷重を受ける円筒問題での、軸方向圧縮応力 σ_x と圧縮ひずみ u_x/L (L は円筒の長さ)との関係図である。乗客の安全性を確保するため、基本構成部材に対し、図中の斜線部で示した吸収エネルギー量 W をできるだけ大きくすると同時に、初期のピーク応力 σ_1 をできるだけ抑える設計をすることにより、不幸にして衝突が起こった場合の衝撃を効率よく吸収しなかつ、ピーク応力を低くすることにより人体への衝撃を小さくすることができるためである。こうした薄肉形状部材に対し、軸方向の圧縮荷重下での理論的、実験的あるいは解析的研究が、これまで数多く行われてきた⁽¹⁾⁻⁽¹¹⁾。

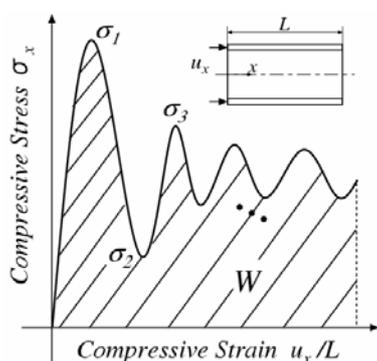


図 - 1 圧縮変形と圧縮荷重模式図

そこで、本研究では、弾塑性変形を考慮した薄肉円筒問題について、静的荷重下での圧潰特性と動的圧潰特性には関連性があると考えられることから、静的な軸方向圧縮荷重を受ける円筒問題について、有限要素法による弾塑性数値解析を行い、まず初期ピーク応力 σ_1 に及ぼす、各種材料ならびに形状パラメータの影響について報告を行う。

2 解析方法

本研究では有限要素法汎用ソフト *MSC.Marc* を用い、図2に示す円筒形状(長さ L 、円筒平均半径 R 、肉厚 t)について弾塑性大変形解析を行う。解析モデルは二次元軸対称モデルを用い、境界条件として円筒右端を固定壁に完全拘束し、左端より別の剛体を変位制御 u_x で円筒に押し付けたシミュレーションを行う。

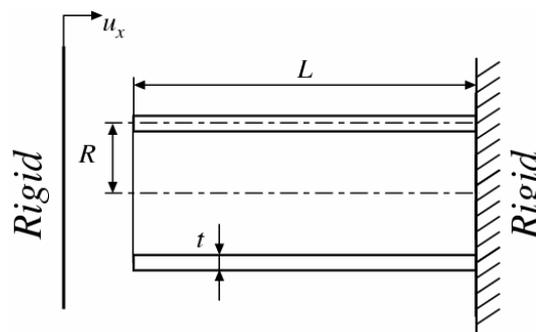


図 - 2 解析モデル

また、図3は、円筒右端を壁に固定させた弾性解析により求めた、圧縮のピーク応力 σ_1 (図中の、印)と、円筒の肉厚 t と平均半径 R との比 t/R との関係を示したものである。図中の縦軸は圧縮方向を正とし、縦弾性係

*1 機械電子研究所

*2 東京理科大学

数 E で無次元化している。図中の σ_{cr} 、 σ_l は、同様な有限要素法汎用ソフトを用い、弾性固有値解析で求めた座屈応力 σ_{cr} を、実線は *Timoshenko*⁽¹⁾ による座屈応力 σ_{cr} の理論解をそれぞれ示している。この図からわかるように、図 2 に示す本解析モデルでの解析は方法で求めたピーク応力 σ_l は、座屈応力 σ_{cr} に相当する。

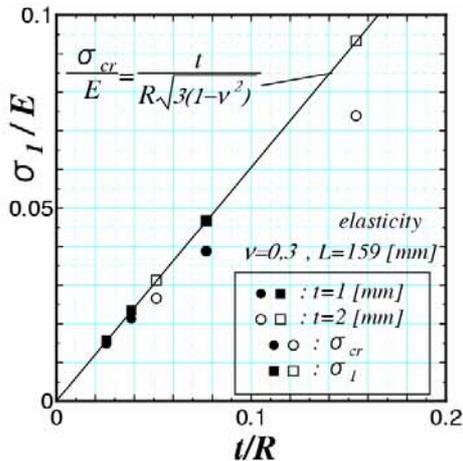


図 - 3 弾性解析による圧縮のピーク応力 σ_l と円筒の肉厚 t と平均半径 R との比 t/R との関係

次に弾塑性材料特性として、式 (1)、式 (2) に示すような 2 種類の硬化則を用いる。まず第一の硬化則として、塑性域 ($\sigma > \sigma_y$, σ_y は降伏応力を表す) における加工硬化が一定な二直線硬化則

$$\sigma = \sigma_y + E_h \left(\varepsilon - \frac{\sigma_y}{E} \right) = \frac{E - E_h}{E} \sigma_y + E_h \varepsilon \quad (1)$$

を用いる (ただし、式中の E は縦弾性係数、 E_h は加工硬化係数、 ε は弾性ひずみと塑性ひずみの和を表す)。もうひとつの硬化則として、応力勾配 $\partial\sigma/\partial\varepsilon$ がひずみとともに変化する n 乗硬化則

$$\sigma = \sigma_y + K \left(\varepsilon - \frac{\sigma_y}{E} \right)^n \quad (2)$$

を用いる (ただし、式中の K は加工硬化係数、 n は加工硬化指数を表す)。本研究では、それぞれの硬化則におけるピーク応力 σ_1 への影響を調べるとともに、異なる硬化則の間でのピーク応力 σ_1 の対応についても検討を行った。

円筒の軸方向荷重による座屈には、軸対称変形の簡単な提灯型座屈、円周方向に幾つかの波数をもって折りたたまれる非軸対称型の座屈、さらには軸対称型の座屈が生じた後、非軸対称型の変形に切り替わる座屈などがあるが、これまでの研究により、おおよそ $t/R > 0.02$ 、 0.025 の比を持つ円筒の場合は軸対称の座屈モードを形成することが知られている^{(8),(11)}。弾性座屈に関する *Timoshenko* の研究によれば、円筒長さ L が長く、軸方向に座屈のしわが多く作られれば、その座屈応力は常に軸対称変形モードとして求めたそれに等しい⁽²⁾ ことが知られている。本研究では、衝撃吸収材として円筒の軸圧潰問題を取り上げ、衝突軸圧潰時に多数のしわが軸方向に形成できるように円筒長さ L を設定している。従って、軸対称モデルとして円筒の軸圧潰問題を取り扱う。このことの有効性を確認するため、図 4 には 1 例として二次元軸対称モデルと三次元円筒モデルを用いた時の、軸方向応力 σ_x (以下ではすべて圧縮を正とする) と軸方向ひずみ u_x/L との関係を示す。

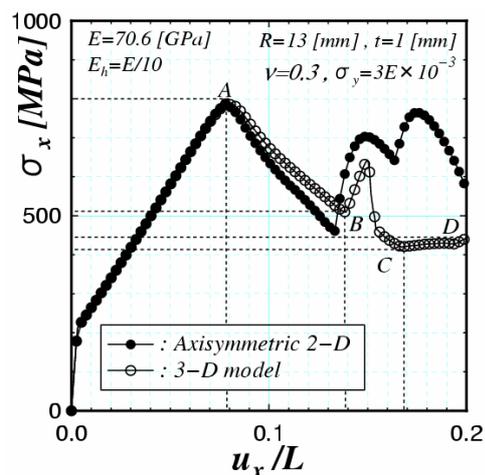


図 - 4 軸方向応力 σ_x と軸方向ひずみ u_x/L の関係 (二次元軸対称モデル, 三次元円筒モデル)

また、図-5(a)~(d) は図 4 中の各点 (A, B, C, D) における、三次元円筒モデルでの変形形状を表している。これらの図からわかるように、モデルの違いに関わらず初期ピーク応力 σ_1 はほぼ一致し、三次元円筒モデルでは初期ピーク応力 σ_1 まで軸対称変形 (図 5(a) 参照) が生じた後、非軸対称変形 (図 5(b)~(d)) が生じる。本研究ではこの初期ピーク応力 σ_1 に対する各因子 (材料、形状パラメータ) について検討を行うため、軸対称モデルを用いた解析が妥当であると考え、解析に用いている。

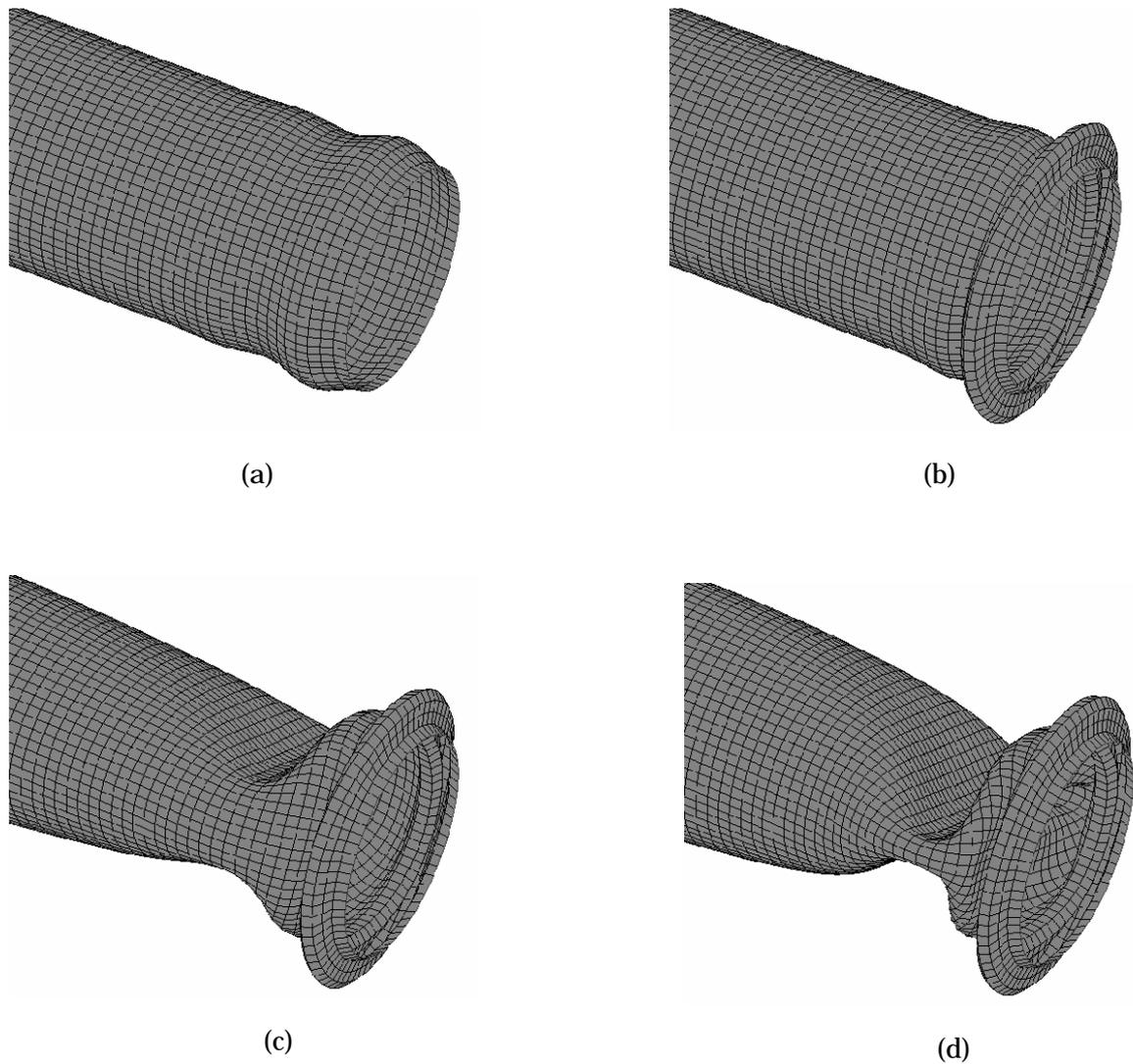


図 - 5 三次元円筒モデルの変形形状(A,B,C,D 点)

3 解析結果および考察

3-1 降伏応力 σ_y による σ_1 への影響

図-6 は(1)式の硬化則に従う弾塑性材料において、弾性座屈応力 $\sigma_{cr}^{(1)}$ (この問題では $\sigma_{cr}/E = t / (R\sqrt{3(1-\nu^2)}) = 0.047$) よりも低い値で降伏応力 σ_y を変化させた時の、硬化係数 E_h とピーク応力 σ_1 との関係を示したものである。(縦弾性係数 $E = 70.6$ [GPa] とし、両軸とも E で無次元化している。この図からわかるように、硬化係数 E_h が小さいとき、ピーク応力 σ_1 の値は σ_y の値に近づく。また、硬化係数 E_h が大きくなるにつれて、ピーク応力 σ_1 は大きくなるが、 σ_1 が降伏応力 σ_y より大きければ、 σ_1 の値は σ_y に無関係でほぼ E_h/E のみの関数として整理することができると思われる。

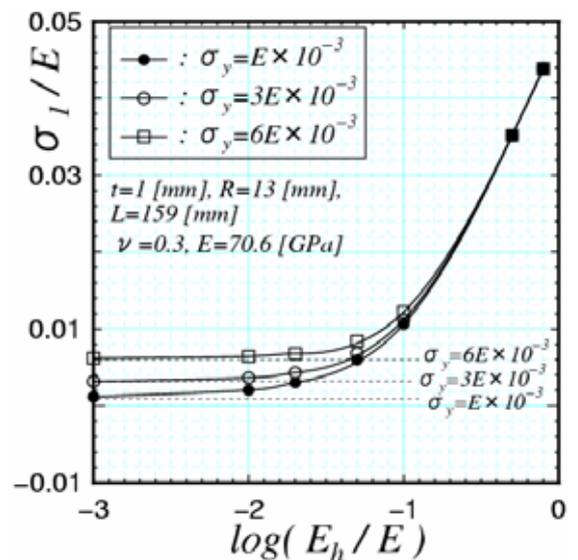


図-6 硬化係数 E_h とピーク応力 σ_1 との関係

3-2 形状パラメータ(肉厚 t , 平均半径 R , 長さ L)による影響

図 7 は初期ピーク応力 σ_1 に及ぼす, 円筒の長さ L の影響を示したものである。この図からわかるように, 円筒長さ L を平均半径 R (ここでは $13[mm]$) より大きい程度に設定すれば, ピーク応力 σ_1 の値も長さ L に無関係でほぼ一定値をとる。ただし, L があまり長くなると局所的な座屈ではなく, 長柱型の全体座屈(オイラー座屈)を生じる可能性がある。本研究では局所的な座屈について検討を行うため, 形状パラメータとして, 円筒長さ $L=159[mm]$ と固定し, 肉厚 t を $1, 2, 3[mm]$, 半径 R を $13, 26, 39[mm]$ の間で設定する。この範囲の円筒形状において, 長柱型のオイラー座屈は確認されなかった。また, 図 8 (a), (b), (c) に長さ $L=10, 20, 50mm$ での変形図を示す。

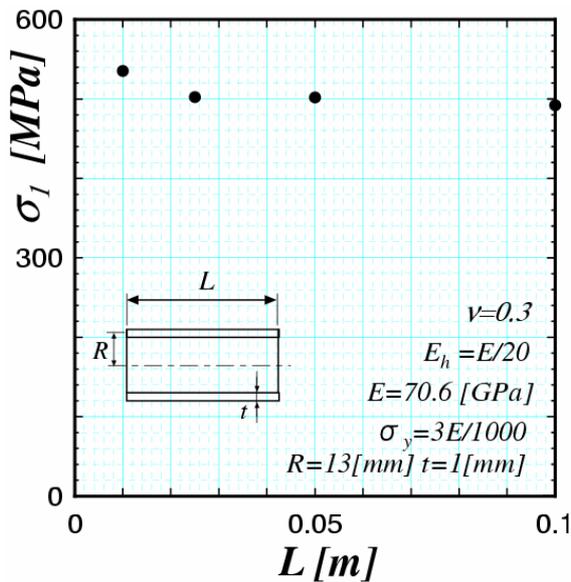
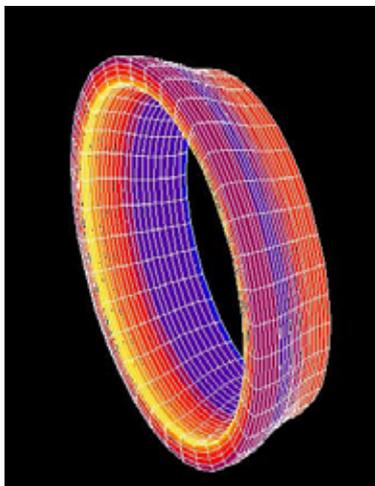
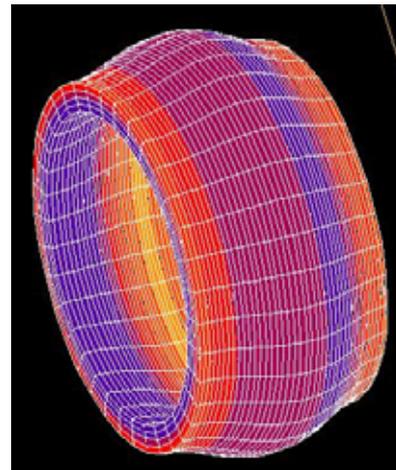


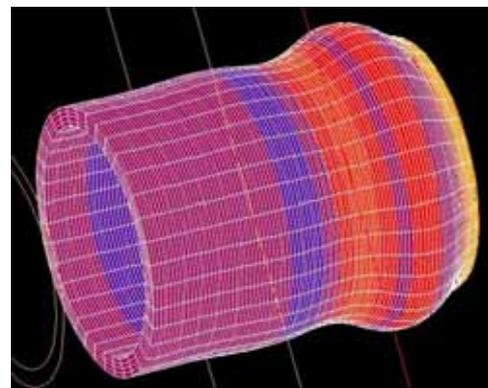
図-7 初期ピーク応力 σ_1 に及ぼす, 円筒の長さ L の影響



(a) $L=10mm$



(b) $L=20mm$



(c) $L=50mm$

図 - 8 長さ L を変化させた際の変形図

図 9 は加工硬化係数 $E_h = E/20$ で, 円筒の肉厚 t と半径 R との比 t/R を $t/R=0.077$ と固定した各円筒モデルでの, 軸方向の応力 σ_x と軸方向ひずみ u_x/L との関係を示したものである。この図からわかるように, 肉厚 t の違いに関わらず同じ肉厚比 t/R でピーク応力 σ_1 はほぼ一致する。また, 図 10 は各円筒モデルでの, 肉厚比 t/R とピーク応力 σ_1 との関係を示したものである。この図からわかるように, 同じ肉厚比 t/R を持つ円筒で, ほぼ同一の初期ピーク応力 σ_1 を持ち, その値は肉厚比 t/R の増加とともに比例的に増加する。以上のことから, 初期ピーク応力 σ_1 に及ぼす形状パラメータの影響を整理すると, σ_1 は次式

$$\sigma_1 = f_1(L, t, R, E, E_h) \quad f_2(t/R, E, E_h) \quad (3)$$

のように, 肉厚比 t/R の関数として表すことができる。

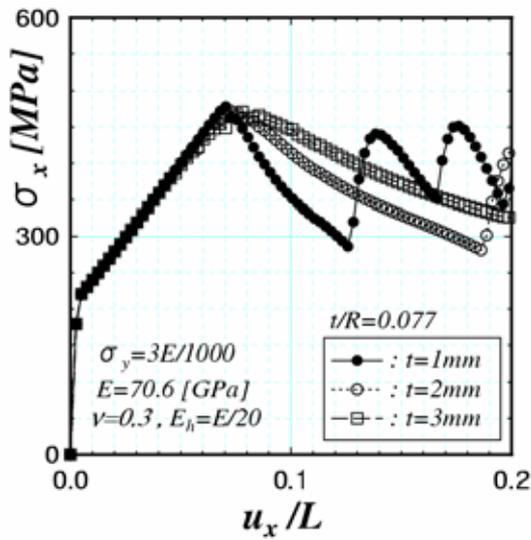


図 - 9 軸方向の応力 σ_x と軸方向ひずみ u_x/L との関係

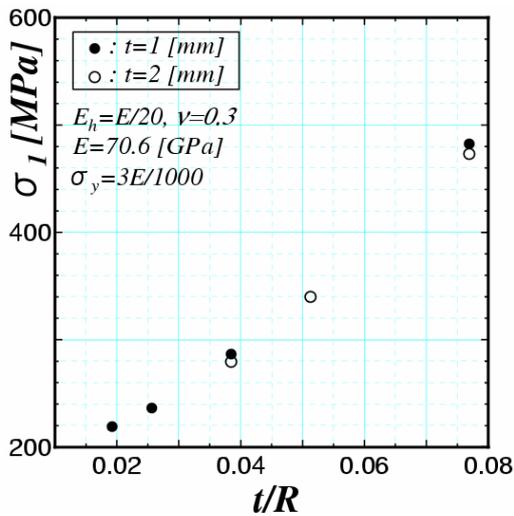


図 - 10 肉厚比 t/R とピーク応力 σ_1 との関係

3-3 材料パラメータ(縦弾性係数 E , 加工硬化係数 E_h) による影響

図 11~13 は肉厚比 $t/R=0.077$ の円筒モデルに対し、縦弾性係数 E と硬化係数 E_h の組み合わせをいくつか変えた時の、軸方向応力 σ_x と軸方向ひずみ u_x/L との関係を示したものである。まず図 11 は縦弾性係数 E が等しく ($E_1 = E_2$), 加工硬化係数 E_h が異なる ($E_{h1} \neq E_{h2}$) 2 つの円筒モデルでの軸方向圧縮応力とひずみとの関係を比較したものである。この図からわかるように、各円筒モデルにおいて生じるピーク応力 σ_1 は、降伏応力 σ_y の値

より 2 倍以上大きく、またそれぞれの値を比較すると、硬化係数 E_h の違いにより異なった σ_1 の値となる。次に図 12 は、縦弾性係数 E は異なる ($E_1 \neq E_2$) が、 E_h が等しい ($E_{h1} = E_{h2}$) 2 つの円筒モデルにおける、軸方向圧縮応力とひずみとの関係を比較したものである。この図からわかるように、同じ硬化係数 E_h を持つそれぞれの円筒モデルにおいても、ピーク応力 σ_1 は異なる結果となる。そこで、図 13 は縦弾性係数 E も硬化係数 E_h も異なる ($E_1 \neq E_2, E_{h1} \neq E_{h2}$) が、それぞれの係数比 E_h/E が等しい ($E_{h1}/E_1 = E_{h2}/E_2$) 円筒モデルにおける、軸方向圧縮応力とひずみとの関係を比較したものである。この図からわかるように、それぞれの円筒モデルにおけるピーク応力 σ_1 の差は、両モデルでの縦弾性係数の比 E_1/E_2 にほぼ等しい(図 13 の場合、約 2 倍)結果となる。さらに、種々の係数比 E_h/E に対し無次元化ピーク応力 σ_1/E を求め、その関係を図 14 に示す。この図からわかるように、縦弾性係数 E の違いに関わらず、無次元化ピーク応力 σ_1/E は各係数比 E_h/E に対してほぼ 1 本の直線関係となる。以上のことから、二直線硬化則に従う円筒モデルでの無次元化したピーク応力 σ_1/E は、次式

$$\sigma_1/E = f_2(t/R, E, E_h) = f_3(t/R, E_h/E) \quad (4)$$

のように円筒の肉厚 t と内半径 R との比 t/R , および硬化係数の比 E_h/E の関数として表され、具体的には図 14 中の実線で示すように、肉厚比 t/R に対し直線関係となる。

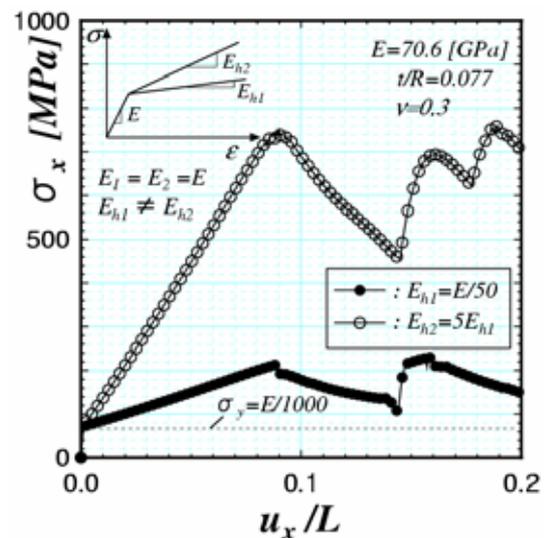


図 - 11 軸方向応力 σ_x と軸方向ひずみ u_x/L との関係 ($E_1 = E_2, E_{h1} \neq E_{h2}$)

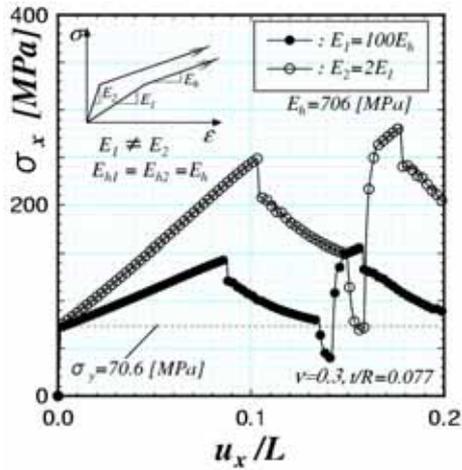


図 - 12 軸方向応力 σ_x と軸方向ひずみ u_x/L との関係 ($E_1 \neq E_2, E_{h1} = E_{h2}$)

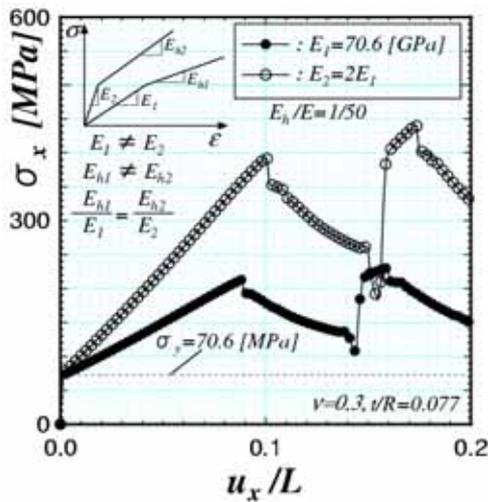


図 - 13 軸方向応力 σ_x と軸方向ひずみ u_x/L との関係 ($E_1 \neq E_2, E_{h1} \neq E_{h2}, E_{h1}/E_1 = E_{h2}/E_2$)

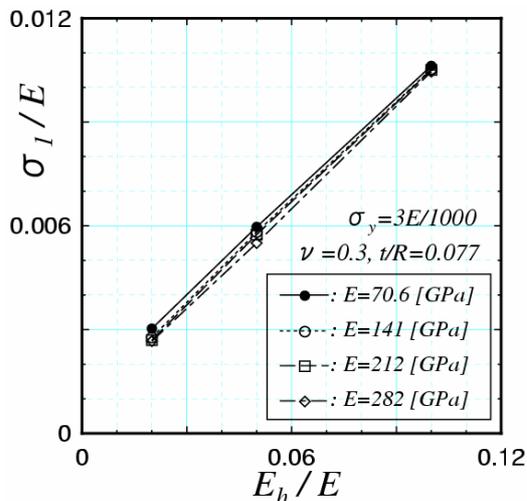


図 - 14 種々の係数比 E_h/E に対し無次元化ピーク応力 σ_1/E

4 まとめ

本研究では、静的な軸方向圧縮荷重を受ける薄肉円筒問題について、有限要素法による弾塑性数値解析を行い、初期ピーク応力 σ_1 に及ぼす、各種形状ならびに材料パラメータの影響について検討を行った。解析結果により、以下の点が明らかになった。

- (1) 円筒形状の影響として、円筒の軸方向長さ L が円筒半径 R より大きく、オイラー座屈を生じない程度の長さであれば、ピーク応力 σ_1 は L に無関係で、肉厚 t と半径 R との比 t/R の関数として整理できる。
- (2) 塑性降伏後のピーク応力 σ_1 は、 $\sigma_1 > \sigma_y$ であれば、ピーク応力 σ_1 は降伏応力 σ_y に無関係である。

5 参考文献

- (1) S.P.Timoshenko and J.M. Gere, Theory of Elastic Stability, 2nd, Ed., McGraw-Hill (1961), pp.462--468.
- (2) S.P.Timoshenko and J.M. Gere, Theory of Elastic Stability, 2nd, Ed., McGraw-Hill (1961), pp.462--468.
- (3) 都井裕, 川井忠彦, 薄肉構造の離散化極限解析(その5)-軸圧縮荷重を受ける円筒殻の非軸対称塑性座屈モード, 日本造船学会論文集, 154,(1983), pp.337--344.
- (4) 村瀬勝彦, ノーマン・ジョーンズ, 円管の衝撃軸圧縮塑性座屈実験, 材料, 42-483, (1993), pp.1420--1426.
- (5) 十河敬寛, 宇治橋貞幸, 松本浩之, 足立忠晴, 薄肉円管の衝撃軸圧潰によるエネルギー吸収特性の解析, 機論, 63-605, A(1997), pp.146--151.
- (6) 佐々木健, 黒川知明, 円管の衝撃軸対称崩壊過程と緩衝材評価, 日本機械学会論文集, 63-616, A(1997), pp.2610--2617.
- (7) 藤原昭文, 橋村徹, 円筒の軸圧壊特性, 日本機械学会論文集, 64-620, A(1998), pp.1069--1076.
- (8) 山崎光悦, 韓昌, 石川秀樹, 円筒の衝撃座屈圧壊吸収エネルギー最大化設計に関する研究, 日本機械学会論文集, 64-620, A(1998), pp.1077--1083.
- (9) 谷村真治, 三村耕司, 石川雄一, 榎田務, 段付薄肉円管に対する衝撃圧潰試験および同部材のエネルギー吸収能の評価に関する研究, 日本機械学会論文集, 65-635, A(1999), pp.1622--1628.
- (10) 谷村真治, 三村耕司, 石川雄一, 榎田務, 鋼製薄肉円管の連続塑性座屈に関する研究, 日本機械学会論文集, 66-642, A(2000), pp.382--389.
- (11) Jones, N., Structural Impact, (1989), 385, Cambridge University Impress.

アルミニウム合金鋳物の構成式パラメータの同定

春山繁之^{*1} 森田茂隆^{*2}

Study on Impact Properties of Aluminum Casting Alloy.

Shigeyuki HARUYAMA^{*1} and Shigetaka MORITA^{*2}

リサイクル性に優れ軽量で複雑形状に対応できるアルミニウム合金鋳物が、自動車用部材などの衝撃を受ける部分へ使用されはじめている。そのため、高ひずみの動的負荷を受けると準静的試験と比べ降伏応力の上昇が起こる材料特性を考慮した動粘弾塑性構成式などのパラメータを明らかにすることが求められている。そこで本研究では、高ひずみ速度域における応力 - ひずみ評価方法として信頼性の高い引張型ホプキンソン棒試験装置を用いてアルミニウム合金鋳物の材料特性評価を行い、多くの汎用動解析ソフトなどを使用することができるCowper - Symonds 構成方程式用パラメータの同定を行った。

1 はじめに

鋳造アルミニウム合金の衝撃破壊現象下における材料特性^{(1),(2)}は、これまで十分な評価がなされていない。そのため、衝撃エネルギーの吸収方法をコントロールするための部材破壊方法の設計や破壊現象を評価することが困難になっている。そこで、本研究では、鋳造アルミニウム合金の高ひずみ速度下における材料特性を正確に把握し設計解析に思量するために必要な各種鋳造材料における構成方程式などのパラメータを同定するため、信頼性の高い衝撃試験装置を用いてアルミニウム合金の動的な材料特性を明らかにし、動解析シミュレーションに使用することができる構成方程式⁽³⁾の係数を算出した。

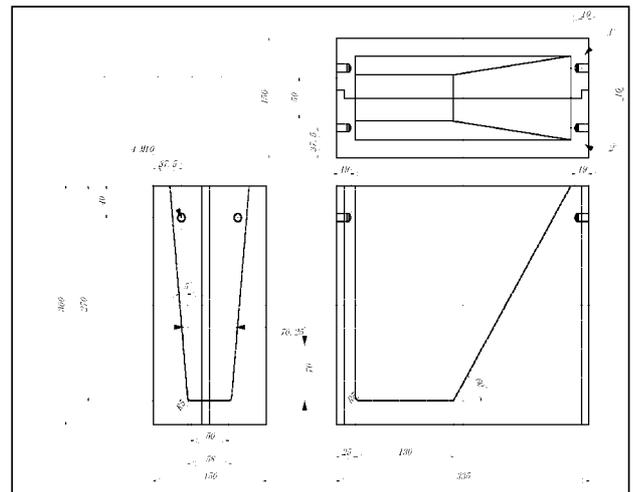


図 - 1 鋳造金型

2 実験方法

供試材としては、金型鋳造材料を用いた。以下に鋳造条件を示す。

2-1 鋳造条件

図-1 に示す金型に金型温度：333(±5)K、注湯温度：983(±5)K の条件で鋳造を行った後、中間材、高延性材、高靱性材、非熱処理材用の処理を行った。それぞれの熱処理条件を表-1 に示す。また、溶湯の成分を表-2 に示す。

表 1 金型鋳造材熱処理条件

熱処理	溶体化	時効
T4(高延性)	813K × 7h	-
T6(中間)	813K × 7h	423K × 4h
T6(高耐力)	813K × 7h	443K × 4h

表 - 2 金型鋳造材化学成分(AC4CH 材) (mass%)

Si	Mg	Fe	Mn	Cu	Ni	Sn	Ti	Sr	Al
7.0	0.33	0.10	Tr	Tr	Tr	Tr	0.10	0.01	Bal.

*1 機械電子研究所

*2 日立金属株式会社 素材研究所

2-2 DAS(Dendrite Arm Spacing)評価

鋳造アルミニウム合金は、凝固時の冷却条件により組織の違いが生じるため、試験片の採取位置により材料特性が異なる。そこで、試験片の組織をそろえるため特大舟形試験片の変化について評価を行った。特大舟形試験片の底面からの距離とDASの関係(表-3、図-2)を交線法⁴⁾により計測を行った。また、試験片のDASは、一般的に使用される範囲である45 μm 、65 μm の2種類を採用するため底面からの距離5mm、35mmの部分を用いた。

表 - 3 特大舟形試験片の底面からの距離と DAS の関係

底面からの距離 (mm)	DAS 平均 (μm)	DAS (μm)測定値		
0				
5	45	44.6	46.3	43.5
10	48	46.7	45.9	50.5
15	51	49.0	51.5	52.6
20	59	58.8	62.5	56.2
25	61	61.7	58.8	61.0
30	63	65.8	63.3	61.0
35	64	63.3	67.6	61.7
40	76	76.9	79.4	71.4
45	77	74.6	75.8	80.6
50	76	78.3	75.8	72.5

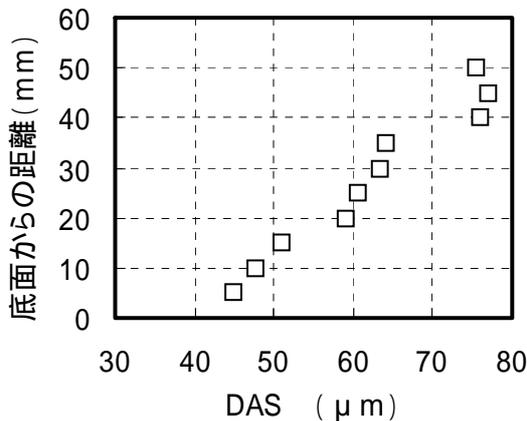


図 2 特大舟型の DAS 分布

2-3 試験片形状

本実験に用いた準静的(低ひずみ速度)、衝撃(高ひずみ速度)試験片形状を図-3(円柱状試験片)にそれぞれ示す。表-4に試験片形状NO,寸法,材質などの一覧を示す。

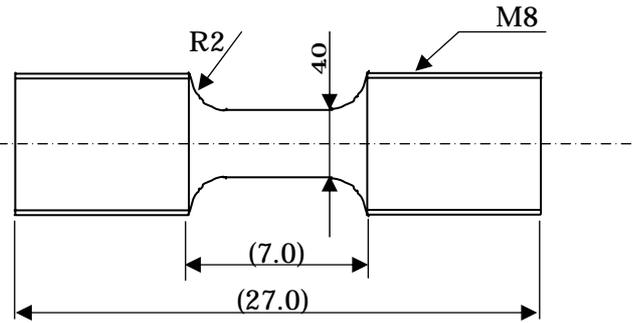


図-3 円柱型試験片(標点間3mm)

表 - 4 試験片条件一覧表

No	DAS	熱処理	標点間
1	45 μm	T6(中間)	3mm
2	45 μm	T6(中間)	6mm
3	65 μm	T6(中間)	3mm
4	65 μm	T6(中間)	6mm
5	45 μm	as cast	3mm
6	45 μm	T4(高延性)	3mm
7	45 μm	T6(高耐力)	3mm

3. 引張実験

3-1 衝撃引張試験装置の検討(高精度直接引張型ホプキンソン棒試験装置⁵⁾)

高歪速度域における応力 - 歪評価の方法として1) Block to Block 2) Bar to Block 3) Bar to Bar の3つの測定原理に分けることができるが、歪速度が10 s^{-1} 以上の応力波の影響を無視することができる高速変形では、応力波の干渉を防ぐことができるBar to Barが理論的に最も優れている。そこで、Hardingらにより考案された引張型ホプキンソン棒法を衝撃試験に用いることとした。また、引張型ホプキンソン棒法には、反射引張型、直接引張型があるが本研究では試験片内に圧縮波の通過がない直接引張型の試験装置を導入した。本実験に使用した衝撃引張型ホプキンソン棒試験装置((有)エコマス社製)の概略を図-5に示す。本装置は先に説明したとおり直接引張型試験装置で、入力棒(AI2017-T4)・銃身(JIS G 3454)、打出し円管(AI2017-T4)および測定系から構成されている。本装置は入力棒側に取り付けたLoading blockの自由端で生じる反射引張応力波を利用して衝撃試験を行うものであり、打出し棒の縦衝撃により入力棒内に発生させた圧縮応力波に変換するNicholas式衝撃引張試験装置とは異なり、試験片は試験の初期段階において圧縮応力波の作用を全く受けないといった特徴がある。応力波の様子をラグランジュ線図を用いて示すと図-6のよ

うになる。ラグランジュ線図から分かるように従来のホプキンソン衝撃引張試験装置と比べ本衝撃試験装置では、入力波と反射波の間隔を広くできることにより、伸びの大きな材料についても評価を行うことが可能となる。また、入射波、反射波、透過波は、応力波が干渉することなく測定できるように、弾性棒No.1、No.2にそれぞれ試験片取り付け面より1200mm、300mmの弾性棒表面上に貼付したひずみゲージにより検出した。データは0.1μsのサンプリングタイムで取り込んだ。

B部詳細

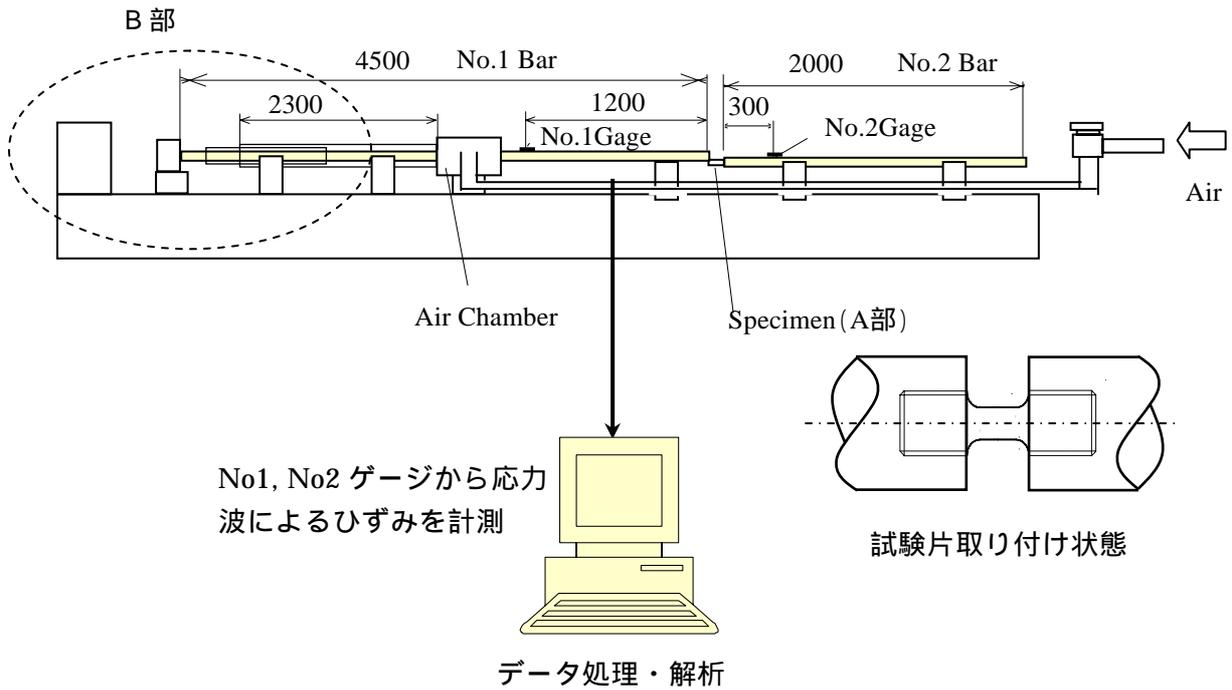


図 - 5 直接引張型衝撃試験装置

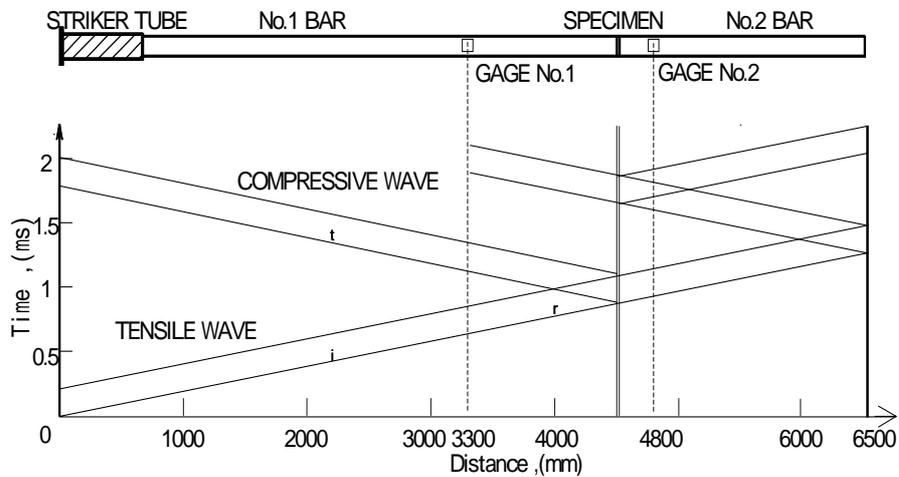
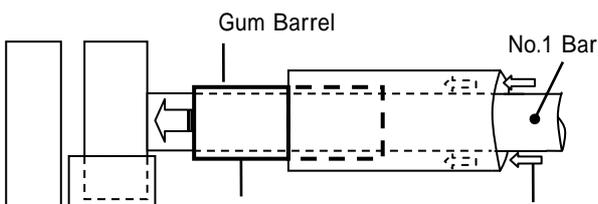


図 - 6 ラグランジュ線図

3-2 衝撃引張試験



試験片の衝撃引張試験より得られたひずみ波形の代表例を図-7に示す。図左よりひずみゲージNo1による入力波の出力、ひずみゲージNo2による透過波の出力、ひずみゲージNo1による反射波の出力である。同図より本試験装置は比較的きれいな引張波が入射され破断するまでに応力波の干渉がなく入射波と反射波がきちんと計測できていることが分かる。このひずみ波形の入射波、透過波、反射波の出力から一次元弾性波伝ば理論⁽⁶⁾に基づいて試験片ゲージ長部(標点部)における公称ひずみ、公称ひずみ速度、公称応力を波動方程式(1)~(3)を用いて計算処理することにより衝撃引張応力-ひずみ速度-ひずみ線図(図-8)を求めることができる。この図から、ひずみ速度は変形初期と破断後を除いて、塑性変形中のひずみ速度はほぼ一定であることがわかる。そこで、この値をひずみ速度とした。また、破断位置は、ひずみ速度が急激に上昇し始める付近とした。

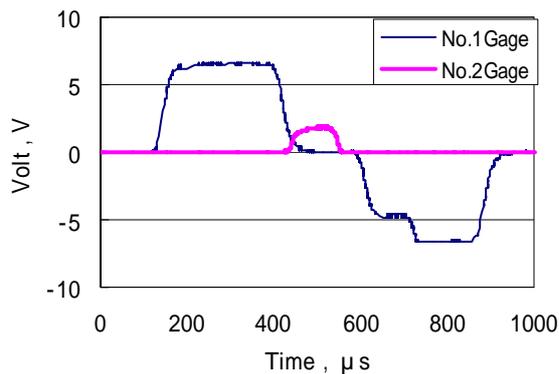


図-7 衝撃試験によるひずみ波形

$$\varepsilon(t) = \frac{-2C_0}{L} \int_0^t \varepsilon_r(t') dt' \quad (1)$$

$$\dot{\varepsilon}(t) = \frac{-2C_0}{L} \varepsilon_r(t) \quad (2)$$

$$\sigma(t) = \frac{EA}{a} \varepsilon_t(t) \quad (3)$$

ここで、 C_0 は棒内を一次元的に伝播する波の速度、 L は棒の長さ、 ε_r は透過波によるひずみ、 E は縦弾性係数、 A は棒の断面積、 a は試験片の断面積である。

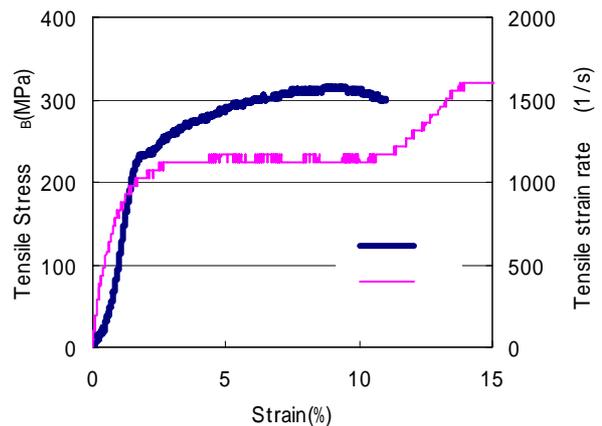


図-8 衝撃引張応力-ひずみ速度-ひずみ線図

3-3 準静的引張試験

準静的引張試験には、島津製作所製オートグラフを使用して、0.5mm/min(低ひずみ速度)のクロスヘッド速度で、室温下にて行った。荷重および変位は、それぞれ共和製動ひずみ測定器に10HZのサンプリング速度でロードセル出力・変位計出力として計測を行った。準静的試験の様子を図-9に示す。



図-9 準静的引張試験

4 実験結果

各歪み速度における実験結果を図-10 から 12 に示す。同図から、各歪み速度ともきれいな応力 - 歪み線図が得られていることが分かる。

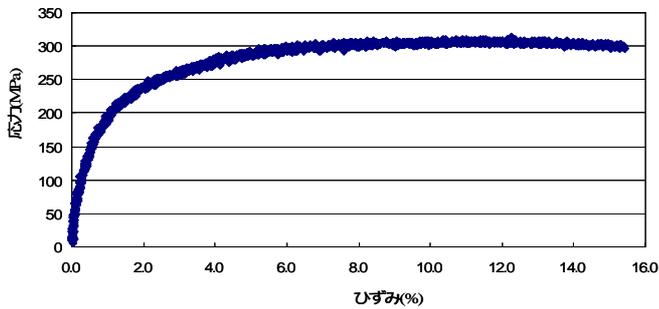


図-10 応力 ひずみ
(準静的試験:ひずみ速度 2.78E-03S⁻¹)

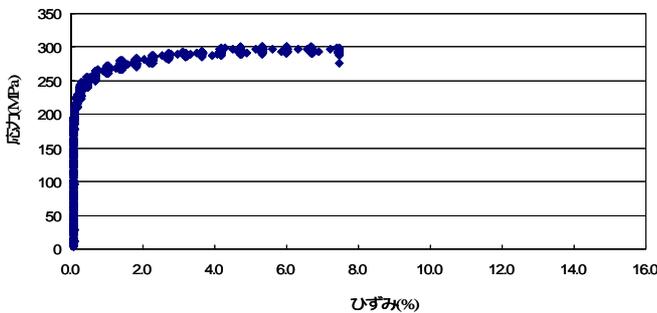


図-11 応力 ひずみ
(準静的試験:ひずみ速度 5.56E-01S⁻¹)

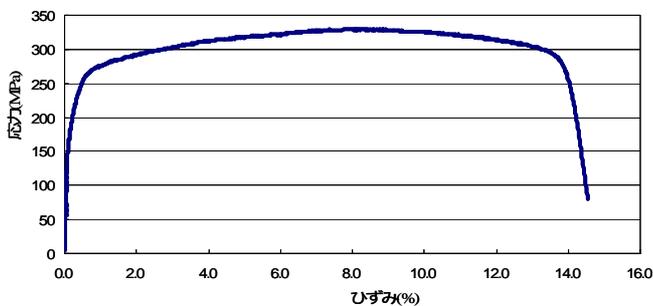


図-12 応力 ひずみ
(衝撃試験:ひずみ速度 1.02E+03S⁻¹)

表 5 に実験結果の一覧を示す。同表からそれぞれの材料 NO.での降伏応力とひずみ速度については、ひずみ速度が大きくなるに従い降伏応力が大きくなっていることがわかる。

以上の結果をもとに構成方程式に関する検討を行う。

4-1 動的構成式

動的構成式には、多くの汎用衝撃解析ソフトに使用されている Cowper-Symonds の構成式を用いる。これまでの各ひずみ速度による降伏点の変化を用いて Cowper

表-5 実験結果一覧

No	歪速度	引張応力(MPa)	降伏応力(MPa)	歪 (%)	歪速度 (1/s)
1	静 1	308.1	197.2	12.7	2.78E-03
	静 2	307.6	250.9	7.7	5.56E-01
	動 1	319.3	260.5	12.3	7.47E+02
2	静 1	293.5	179.6	14.8	1.39E-03
	動 1	313.8	261.7	15.3	1.02E+03
3	静 1	307.4	174.5	11.5	2.78E-03
	静 2	307.4	236.4	6.2	5.56E-01
	動 1	318.4	256.0	9.7	7.32E+02
4	静 1	295.0	182.7	15.1	1.39E-03
	静 2	305.9	216.8	9.1	2.78E-01
	動 1	312.4	249.2	12.9	1.30E+03
5	静 1	175.2	63.0	19.3	2.78E-03
	静 2	181.4	132.2	12.5	5.56E-01
	動 1	201.7	157.4	17.1	1.03E+03
6	静 1	268.5	130.1	17.7	2.78E-03
	静 2	267.4	185.8	10.7	5.56E-01
	動 1	276.6	227.7	16.3	1.50E+03
7	静 1	325.5	228.2	11.3	2.78E-03
	静 2	335.9	267.4	4.1	5.56E-01
	動 1	336.5	276.4	9.8	6.55E+02

-Symonds の材料固有の定数 P と D を求めることができる。Cowper-Symonds 構成方程式を式 (4) に示す。

$$\frac{\sigma_d}{\sigma_s} = 1 + \left(\frac{\dot{\epsilon}}{D} \right)^{1/P} \quad (4)$$

σ_d : 動的降伏応力, σ_s : 静的降伏応力
 $\dot{\epsilon}$: ひずみ速度, P, D : 材料固有の定数

材料固有の定数 P と D を求めるため、式 (4) の両辺対数をとって整理すると式 (5) が得られる。

$$\log_{10} \left(\frac{\sigma_d}{\sigma_s} - 1 \right) = \frac{1}{P} \log_{10} \dot{\epsilon} - \frac{1}{P} \log_{10} D \quad (5)$$

式 (5) を用いて $(\sigma_d / \sigma_s - 1)$ とひずみ速度の関係とし直線近似することにより定数 P, D を求めることができる。図-13 にひずみ速度と引張強さ、図-14 に降伏応力の関係、ひずみ速度と $(\sigma_d / \sigma_s - 1)$ の関係の代表例を示す。

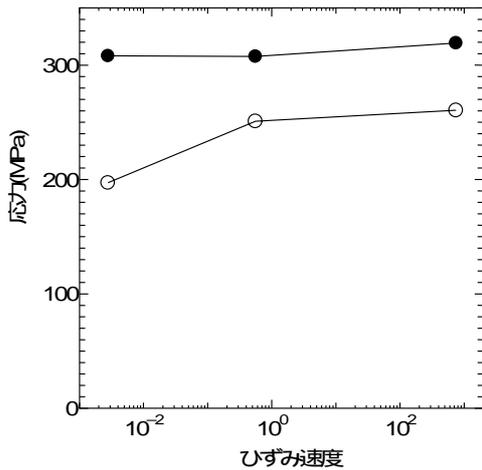


図-13 応力 ひずみ速度の関係
(DAS = 45 μm, T6(中間))

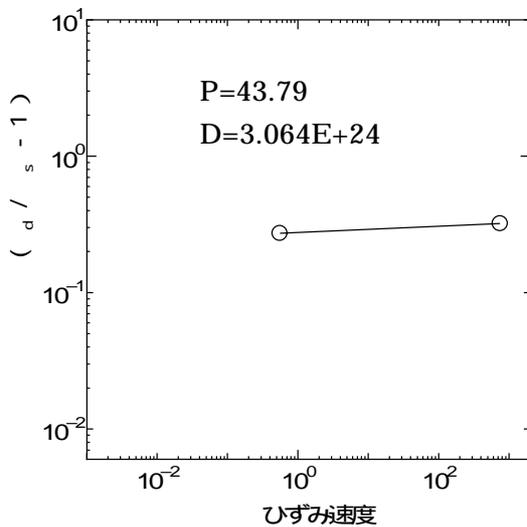


図-14 ひずみ速度と (d / s^{-1}) の関係
(DAS = 45 μm, T6(中間))

表 - 6 パラメーター一覧

No	DAS	熱処理	評点間	P	D
1	45 μm	T6(中間)	3mm	43.8	3.064E+24
2	45 μm	T6(中間)	6mm	8.42	7.42E+05
3	65 μm	T6(中間)	3mm	26.1	3.15E+11
4	65 μm	T6(中間)	6mm	12.7	4.68E+08
5	45 μm	as cast	3mm	24.2	5.73E+02
6	45 μm	T4(高延性)	3mm	14.1	8.59E+04
7	45 μm	T6(高耐力)	3mm	34.2	8.30E+25

以上の結果から求められた P と D を用いることにより、各材料に対応した動的粘塑性方程式を衝撃解析に使用することができる。

5 まとめ

鋳造アルミニウム合金の高速変形特性に関する検討を行い以下のような成果を得た。

- 1) 高ひずみ速度, 低ひずみ速度において, 鋳造アルミニウム合金の材料特性を評価する方法を構築した。この方法によれば, 非常にきれいな応力ひずみ, ひずみ速度曲線を得ることができる。
- 2) 鋳造アルミニウム合金の低圧金型鋳造法で製作された, 鋳造部材に関して, 各種ひずみ速度に対応した材料特性を評価することが可能になった。
- 3) 動的解析ソフトに利用することができる Cowper-Symonds 動粘塑性構成方程式のパラメータを明らかにした。

以上のように, 衝撃吸収部材の設計に必要なひずみ速度に依存する材料特性を評価する試験方法, 構成方程式のパラメータ同定方法を提案した。

6 参考文献

- 1) 上西 研: 機構論, 熊本地方講演会, No 0 1 8 - 2, (2001)
- 2) 春山繁之: 日本機械学会材料力学部門講演会講演論文集, (2002) 685
- 3) 石川博将, 固体の非線形力学, (2000), 72, 養賢堂
- 4) 資料: 軽金属, 38(1988), 54.
- 5) 横山 隆: 材料, 45 巻 7 号, (1996), 88-96
- 6) K.F.Graff: Wave Motion in Elastic Solids, Oxford University Press, (1975), Chap. 2.

鋳造アルミニウム合金の衝撃引張特性に関する研究

春山繁之^{*1} 新川和夫^{*2} 東藤 貢^{*2} 馬田俊雄^{*2}

Study on Impact Properties of Aluminum Casting Alloy.

Shigeyuki HARUYAMA^{*1}, Kazuo ARAKAWA^{*2}, Mitugu TOUDOU^{*2} and Toshio MADA^{*2}

安全性,低燃費,リサイクル性からの環境への配慮から,自動車部材の衝撃を受ける部分などに鋳造アルミニウム合金が使用されるようになってきた。そのため鋳造アルミニウム合金の衝撃引張特性を正確に把握することが重要な課題となってきた。そこで本研究では,特に自動車の衝突速度を考えた場合に必要となる, $\dot{\epsilon} = 10^2 \text{ s}^{-1}$ 程度のひずみ速度領域での衝撃引張強度特性を評価する手法として光学的計測システムを用いた落錘式衝撃引張試験装置により,ホプキンソン棒法などの衝撃実験方法では評価が困難である歪速度領域 $\dot{\epsilon} = 10^2 \text{ s}^{-1}$ 程度における衝撃引張試験方法の検討及び実験結果について報告を行う。

1 はじめに

近年,環境や安全に対する自動車産業への要求はますます厳しくなっている。そのため,安全性,低燃費,リサイクル性からの環境への配慮が必須¹⁾となってきた。この解決策の一つとして,リサイクル性に優れ軽量で設計自由度が高い鋳造アルミニウム合金が,自動車部材の衝撃を受ける部分へ使用されはじめている。従って,鋳造アルミニウム合金の衝撃引張特性を正確に把握することが重要な課題となりこれまでに,準静的($\dot{\epsilon} = 10^{-3} \text{ s}^{-1}$),動的($\dot{\epsilon} = 10^3 \text{ s}^{-1}$)の歪速度²⁾の範囲における評価などがなされている。しかし,自動車の衝突速度を考えた場合,その歪速度は $\dot{\epsilon} = 10^2 \text{ s}^{-1}$ 程度が予想されることから,その歪速度領域での衝撃引張強度特性を把握することも重要となっている。そこで,本研究では,光学的計測システムを用いた落錘式衝撃引張試験装置により歪速度領域 $\dot{\epsilon} = 10^2 \text{ s}^{-1}$ 程度下における衝撃引張試験が行えることを検討するとともに,衝撃荷重下における鋳造アルミニウム合金の引張強度特性について検討を行った。

2 実験方法

2-1 供試材

本研究では,自動車用鋳造材料として多く利用され

ている,AC4CH 鋳造アルミニウム合金を用いた。試験に用いた材料の化学成分を表-1 に示す。また熱処理条件は,540 × 4 hの溶体化後水冷し,145 × 4 hの T6 時効処理とした。さらに,試験片は舟形ブロック(290 × 95 × 40mm)の長手方向が負荷方向と平行になるように採取し図-1 に示す形状(厚み 2mm)に加工を行った。

2-2 衝撃試験

本実験に用いた,落錘式引張試験装置を図 2 に示す。変位は,光学的高速伸び計を用いて,荷重は,ピエゾゲージ試験材を直列に装置し時間 - 変位,荷重 - 変位の関係についてそれぞれ計測を行った。また,衝撃試験に用いた錘は 10.0Kg,落下高さは 42cm とした。

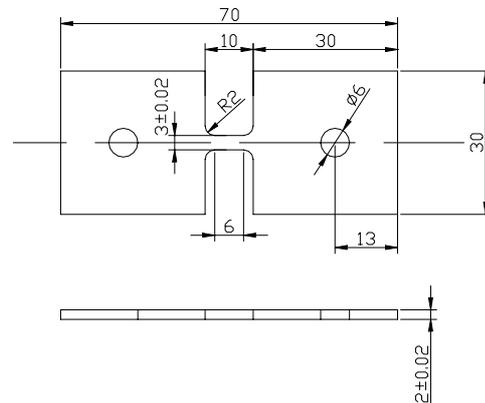


図-1 試験片形状

表 - 1 金型鋳造材化学成分 (AC4CH 材) (mass%)

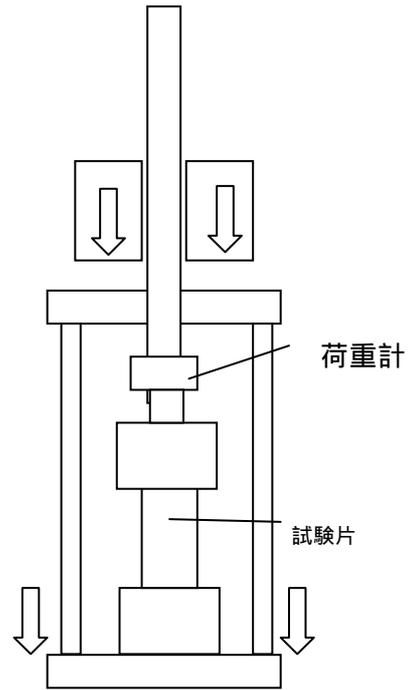
Si	Mg	Fe	Mn	Cu	Ni	Sn	Ti	Sr	Al
6.9	0.3	0.15	0.01	0.02	Tr	Tr	0.15	0.001	Bal.

*1 機械電子研究所

*2 九州大学



図-2 衝撃試験装置



A部詳細

3 実験結果及び考察

図-3 に衝撃実験により得られた荷重と変位(ひずみ)の一例を示す。同図から荷重変位ともにきれいなデータを得ることができていることが分かる。また、図-4 に変形初期の時間 - 変位の関係を示す。図-4 から、変位の傾きがほぼ一定になっており、試験中のひずみ速度に変化がないことが分かる、このことから安定した条件で試験が行われたことが確認できる。よって本実験に用いた衝撃試験装置による中ひずみ速度域での衝撃試験が可能であることが分かった。

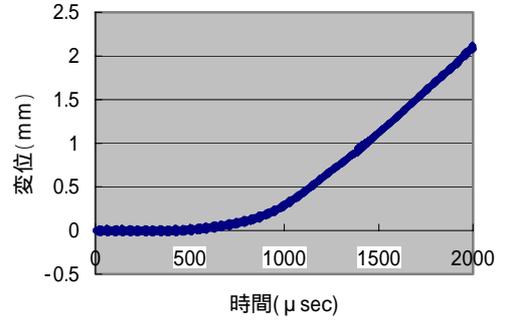


図-4 荷重の時間と変位の関係

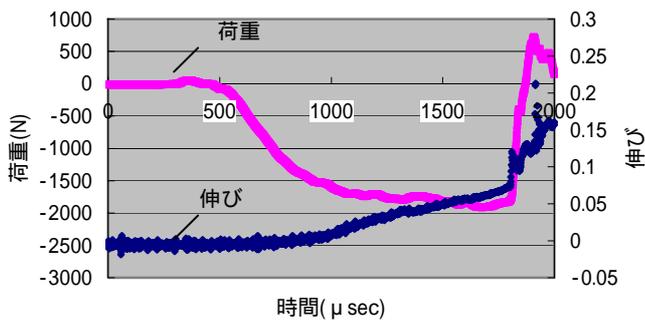


図-3 AC4CH アルミニウム合金鋳物の荷重-時間、伸び-時間の関係

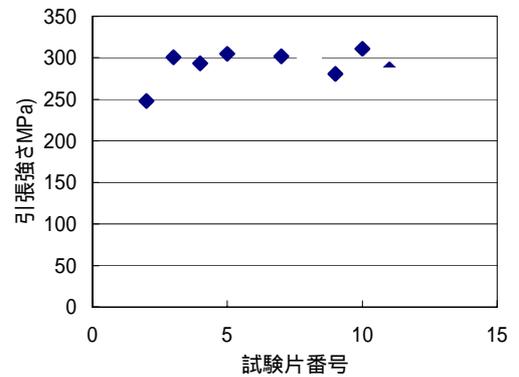


図-5 衝撃引張試験の結果(引張強さ)

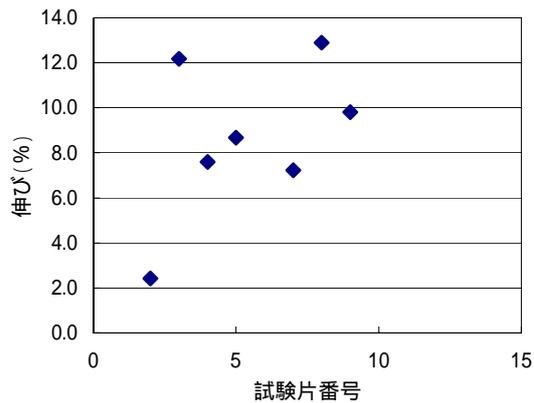


図 - 6 衝撃引張試験の結果(伸び)

実験から得られた各試験片の引張強さと伸びをそれぞれ図-5, 図-6 に示す。試験結果から引張強さのばらつきは少ないが, 伸びは大きくばらついていることが分かる。本研究では, 試験片の凝固条件を分けずに試験片を舟形ブロックから切り出していることから, 試験片個々で DAS (Dendrite Arm Spacing) や欠陥の発生状況が異なるためこのように強度, 伸びともにばらつきが発生していることが考えられる。

4 まとめ

本実験に用いた衝撃実験装置および試験片形状により鋳造アルミニウム合金の中ひずみ速度域における特性評価が可能であることが分かった。また, 試験片個々での引張強さ, 伸び特性のばらつきを抑えるため, 今後は非破壊検査などにより試験片の内部欠陥の影響を考慮した試験片による評価を行う予定である。

5 参考文献

- 1) 総合エネルギー調査会需給部会中間報告
- 2) 石川博将：固体の非線形力学

電子部品実装基板の熱変形強度評価に関する研究

電子部品実装基板の熱変形強度評価に関する基礎的検討

小金丸正明*¹ 内野正和*¹ 貝田博英*¹ 原田豊満*¹ 永井誠*¹ 井芹陽一*²

Mechanical Evaluation of Thermal Deformation for Substrate

Basic Research of Mechanical Evaluation for Substrate

Masaaki Koganemaru, Masakazu Uchino, Hirohide Kaida, Toyomitsu Harada, Makoto Nagai and Yoichi Iseri

電子部品実装における機械的強度信頼性評価技術は、半導体産業発展においてハード面の技術革新を支えるキーテクノロジーの一つである。本研究では、電子部品実装において最も問題となる熱変形に関して強度評価法を構築することを目的とした。本年度は、各要素技術（有限要素法を用いた実装時の応力・ひずみの評価、光学的手法による実装時の変形挙動計測、X線CTによる実装接合部の信頼性評価、鉛フリーはんだの特性評価）に関する基礎的な検討を行った。

1 はじめに

現在、半導体産業の急速な発展にともない、電子機器の小型化、高性能化等が、これまでに例を見ない勢いで進展している。このため超高密度に集積したLSIや超小形電子部品の開発が急ピッチで行われている。最新の電子機器では、このような電子部品をプリント基板上に高密度に、しかも過酷な環境（超高密度LSIからの発熱や携帯電話の落下衝撃など）に耐えるように装着しなければならない。電子部品を基板に装着する実装技術の研究開発が、LSI等のデバイス開発とともに半導体産業発展の鍵を握る技術として認識されている。また最近では、鉛の毒性への配慮から、鉛フリーはんだによる実装技術を実用化する必要が生じてきた。鉛フリーはんだは従来のはんだに比べて融点が30以上も高く、実装時の高温による基板のソリ等に起因する接合部の破壊やデバイスの動作不良等、実用化にむけて解決しなければならない課題が山積している。これらの問題は、県内企業においてもその必要性は認識されているが、体系的、組織的な取り組みはなされていないのが現状である。

材料強度研究室では、これまで機械や構造物の強度信頼性、破壊、非破壊に関する研究・指導を行ってきた。本研究では、これらの技術を電子部品実装基板の熱変形問題へ適用し、電子部品実装基板の熱変形強度評価法を構築することを目的とした。

本年度は、(1)ベアチップ実装における信頼性評価(2)光学的手法を用いた熱変形挙動計測(3)X線CTによる接合部の信頼性評価(4)不純物元素による鉛フリーはんだの強度特性、に関する基礎的な検討を行った。

2 研究,実験方法

2-1 ベアチップ実装における信頼性評価

ベアチップを基板上に実装し、防湿、絶縁のため樹脂で封止する際に、樹脂の硬化収縮に伴いベアチップが外力を受け、微小な変形が生じて電気的特性が変化し製品に動作不良が生じることが問題となっている。そこで本研究では、ベアチップ実装時にベアチップに生じる応力、ひずみと電気的特性変動の関係を評価し、ベアチップ実装設計時に利用できる信頼性評価手法を構築することを目的とした。本年度は、ベアチップ実装時における残留熱応力・ひずみの評価が行える3次元有限要素法解析モデルの構築を行った。

まず、3次元CADシステム(Solid Works)を用いて、図-1に示すようなベアチップ実装部の3次元有限要素法モデル(1/4モデル)を構築した。このモデルを用い、表-1を入力データとして3次元熱応力解析を行った。140を熱応力フリーの基準温度として25における残留熱応力を評価した。有限要素法の要素分割図を図-2に示す。要素分割及び有限要素法解析にはCosmos Worksを用いた。

表-1 有限要素法入力データ

	E(GPa)		Tg()	CTE ($\times 10^{-6}/$)
Siチップ	170	0.28	-	3.5
封止樹脂	10	0.3	140	40
接着剤	10	0.3	(47)	53
基板	5.9	0.3	-	15.8

E: ヤング率, ν : ポアソン比, Tg: ガラス転移点
CTE: 線膨張係数

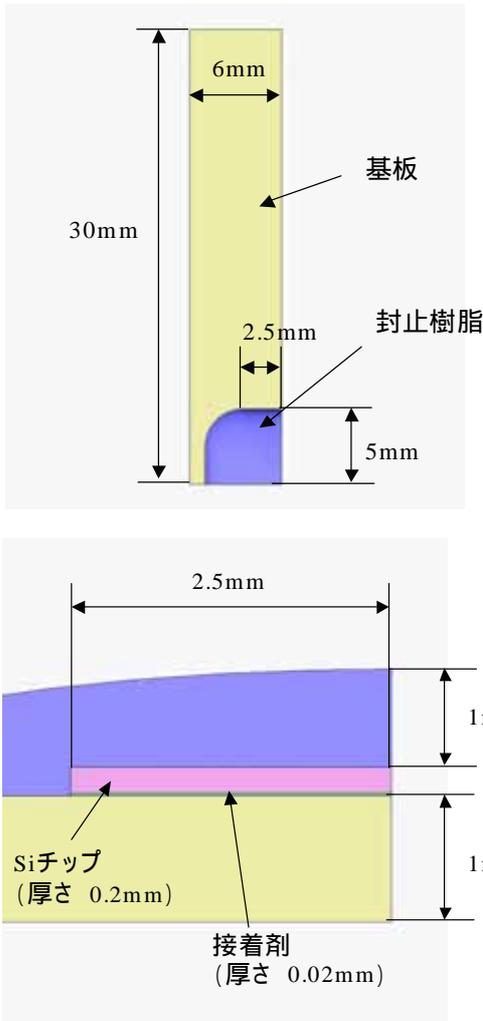


図-1 有限要素法解析モデル(1 / 4モデル)

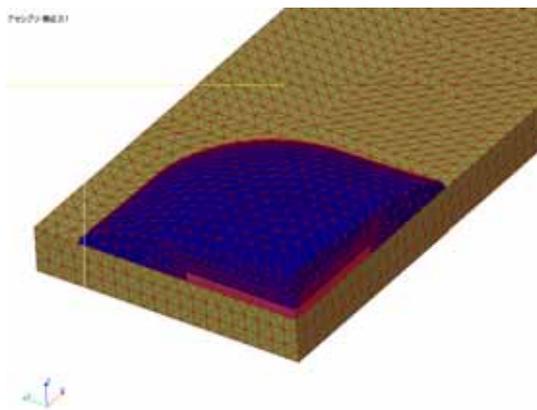


図-2 要素分割図

2 - 2 光学的手法を用いた熱変形挙動計測

電子部品の熱変形挙動計測として、CCD カメラを用いたデジタル画像相関法を利用した面内変位計測システムを構築し、検証のため IC チップの駆動時の変形挙動計測を行った。更に高温炉と組み合わせてペアチップが装着された基板の熱変形計測を行った。

デジタル相関法は測定対象物表面に模様（今回は白と黒のスプレー）をつけ、測定対象物の変形前後を CCD カメラ等で撮影したデジタル画像を画像処理することで、表面の変形の大きさと方向の両方を計測することが可能な方法である。図-3 にデジタル相関法の概略図を示す。変形前の画像中の任意の位置を中心とする小さい画像領域（サブセット： $N \times N$ 画素）を基準として、変形後の画像よりもっとも相関の良い位置を求めることにより変形と移動方向を求める。相関関数 C を求める方法として使用した残差最小法を次式に示す。

$$C = \sum_{i=-M}^M \sum_{j=-M}^M |I_d(X+u+i, Y+v+j) - I_u(X+i, Y+j)| \quad (1)$$

ここで $I_u(X, Y), I_d(X+u, Y+v)$ はそれぞれ変形前、変形後の画像強度を示し、 X, Y はサブセットの中心座標で、 u, v はそれぞれ x 方向、 y 方向への移動量である。 $N = 2M+1$ である。式(1)の総和が最小になる位置がそのサブセットの中心が移動した位置の最近接画素となる。しかしながらこの画素の位置が必ずしも最も高い相関を得るとは限らない。即ち、実際の移動量は1画素の大きさよりも小さく移動するために画素間に相関のピークが来ることが一般的である。そのため画素間の補間を行う。その方法の一例として最近接画素の前後の画素での相関値を用いて2次曲線を利用した補間を行い、最も相関の良い位置を求める方法を利用した。

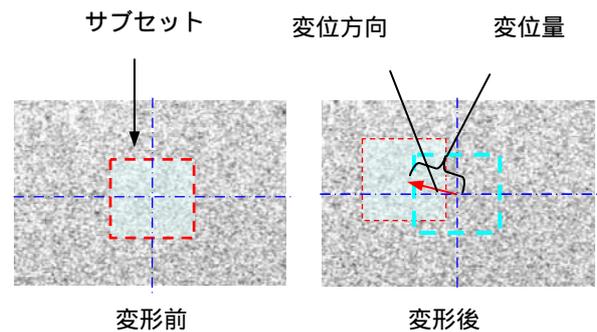


図-3 デジタル相関法の概略図

2 - 3 X線 CT による接合部の信頼性評価

電子部品実装における鉛フリー接合部の信頼性については、従来の鉛はんだの経験則が適用できないため、早急に信頼性試験を行って確立する必要がある。しかし、接合部をカッターで切断して切断面を観察する従来の評価方法では多数のサンプルと膨大な時間と手間を費やし

てしまうため、非破壊で欠陥を検出し効率的に信頼性評価を行う技術が必要とされている。本研究では、鉛フリー接合部の信頼性評価法の高度化・効率化を目指して、X線CT法を用いた欠陥評価法を検討するが、今年度はボイドやクラック等の欠陥を検出するために最適なテストピース基板とCT撮影条件について検討した。



図-4 マイクロフォーカスX線CT装置

図-4に本研究で使用したマイクロフォーカスX線CT装置(HMX225-ACTIS+3, テスコ株式会社製)を示す。テストピースは、格子状に配列されたはんだボールで接合されているBGA(Ball Grid Array)基板とICパッケージから出たリード部ではんだ付けされているSOP(Small Outline Package)基板を用いた。図-5に示すように、SOPは機械的疲労試験¹⁾が実施可能なSOPを3分の1のサイズ(幅5mm程度)にカットしたものを使った。なお、接合箇所は片側3ヶ所(3点)以上、両側で合計6ヶ所(6点)以上確保されている。はんだ接合部内部にあるボイドやクラックを検出するための最適CT条件について繰り返し検討した。

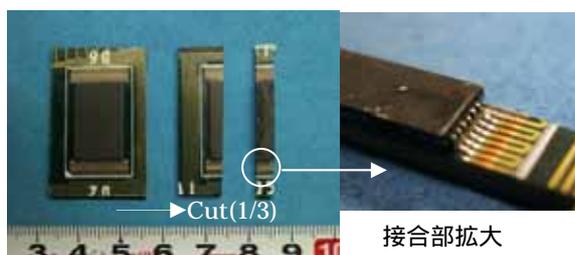


図-5 SOP基板の外観

2-4 不純物元素による鉛フリーはんだの強度特性

環境保全の視点から、従来の鉛を含む共晶はんだから、鉛を含まない鉛フリーはんだへの転換が急がれている。鉛フリーはんだへの転換においては、融点が高くなることやはんだ接合部の強度特性の解明などが技術課題となっているが、はんだ槽内において、プリント基板や電子部品から溶け出す微量元素が、はんだを脆化させる

ことも、実装工程において問題となっており、脆化を把握する方法の確立が望まれている。

そこで本研究では、実装ラインのはんだ槽から取り出した鉛フリーはんだと新品の鉛フリーはんだの機械的性質を測定し、脆化の実態の把握と脆化の評価方法の検討を行った。

機械的性質は、引張試験から得られる引張強さおよび伸びと簡便に測定できるビッカース硬さとした。はんだ槽のはんだ、新品のはんだとも直径30mmの丸棒に鋳造し、試験片形状に加工した。融点は、新品はんだの場合で227であるが、電気炉を300に設定して溶解した。当初材料学会の規格²⁾に従って、丸棒の試験片の加工を試みたが、材料が極端にやわらかいため、旋盤での加工はできなかった。そのため平板の試験片とした。引張試験は精密万能試験機でクロスヘッドスピード1.2mm/secで行った。標点距離は50mmとし、非接触式の伸び計を用いた。ビッカース硬さは、マイクロビッカース硬度計を用いて測定した。

3 結果と考察

3-1 ベアチップ実装における信頼性評価

図-6に有限要素法解析結果を示す。この結果は基板の裏面から1.17mmの部分(Siチップ内部の断面に相当)の相当応力を示している。この解析では、Siチップに250MPa程度の残留熱応力が発生していることになり、これはSiの引張強度の半分に相当する大きな値である。ベアチップ実装工程により、Siチップに大きな応力(ひずみ)が生じ、動作不良を起こさせる原因となる可能性があることが示唆された。

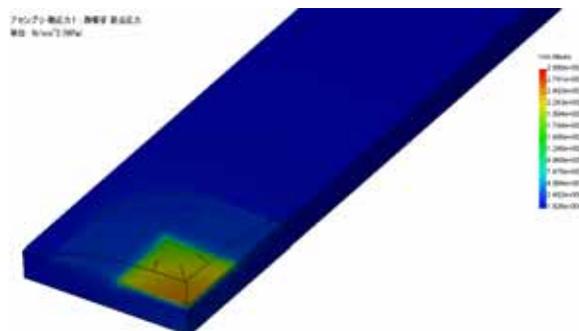


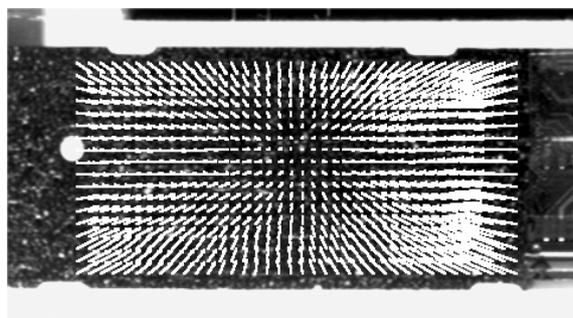
図-6 有限要素法解析結果(相当応力)

本年度の研究により、ベアチップ実装時の3次元有限要素法解析フローを確立した。今後、有限要素法解析に

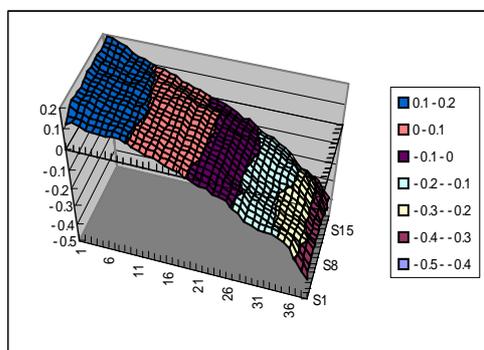
よって得られた結果と、デジタル相関法により実測されたひずみの値を比較検証する必要がある。また、現在、有限要素法の入力データは主に文献値を用いているが、精度向上のため実験により材料定数データを取得する必要がある。

3-2 光学的手法を用いた熱変形挙動計測

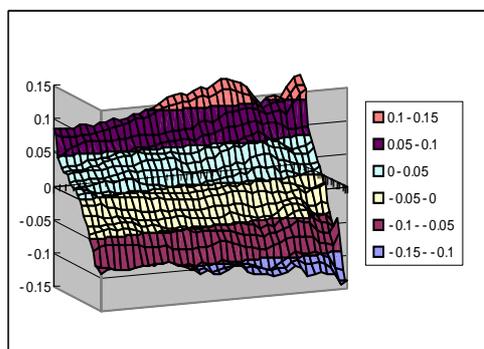
電子デバイスの評価実験として高温炉によりヘアチップを装着した基板を120度に一定時間保った後、炉内で自然冷却させ変形計測を行った。図-7に100度から40度まで冷却した条件で、ヘアチップを装着していない側の基板の熱変形挙動計測を行った結果を示す。熱収縮により基板が収縮している様子が観察された。この結



(a) デジタル相関法



(b) 水平方向の変位分布



(c) 垂直方向の変位分布

図-7 ヘアチップの変形計測結果

果より炉内の高温環境下でデジタル相関法を用いることで変位分布計測が可能であることが確かめられた。今後は、基板のみの計測を行い、ヘアチップが装着された条件との違いを明らかにし、ヘアチップと樹脂、基板との変形挙動の計測を行う。

3-3 X線CTによる接合部の信頼性評価

試行錯誤の結果、表-2に示す条件でCTを行うことにした。

表-2 CT撮影条件

項目	テストピース	
	SOP	BGA
管電圧 (KV)	200	200
管電流 (μA)	114	211
フィルター (Cu: mm)	1	2
幾何倍率 (SID/SOD)	600/20	600/50
スライス幅 (mm)	0.012	0.03
マトリックスサイズ	512×512	512×512
ビュー数	800	800
積分回数	4	4
撮影枚数 (枚×回)	34×4=136	34×3=102

SOPについてX線CT撮影の様子とスライス画像の例を図-8に示す。スキャン範囲(高さ)は、1.3mmで、1回のスキャンで34枚(スキャン高さ0.408mm)のスライス画像を取得する。スキャン高さを0.408mm送って、これを4回繰り返してスキャン範囲全体のスキャンを行うボリュームCT方式で行うが、スキャンが終了するまでに約30分を要す。スライス画像だけを見ても良く分からないので、MPR (Multi Planar Reconstruction) 表示機能を使用して、スライス画像を積層した3次元的イメージの断面をディスプレイ上に表示した例を図-9に示す。CT撮影を行った領域全体が表示され、任意のX, Y, 断面をリアルタイムに表示できるので、内部の状態を詳細に効率良く観察できる。ポイドについては、リード幅が

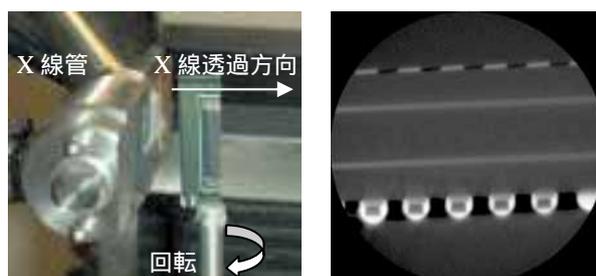


図-8 SOP基板のCT撮影の様子とスライス画像

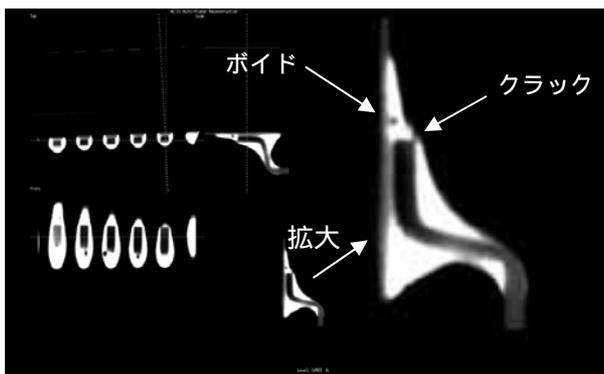


図-9 SOP はんだ接合部の MPR 表示

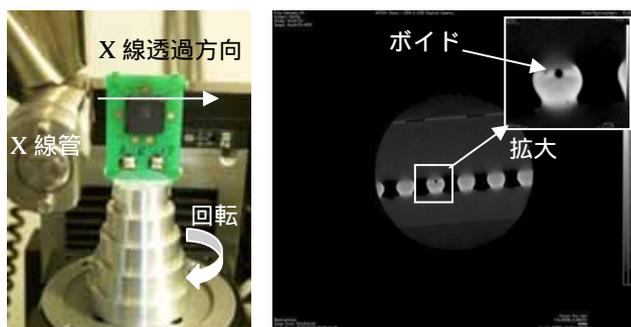


図-10 BGA 基板の CT 撮影の様子とスライス画像

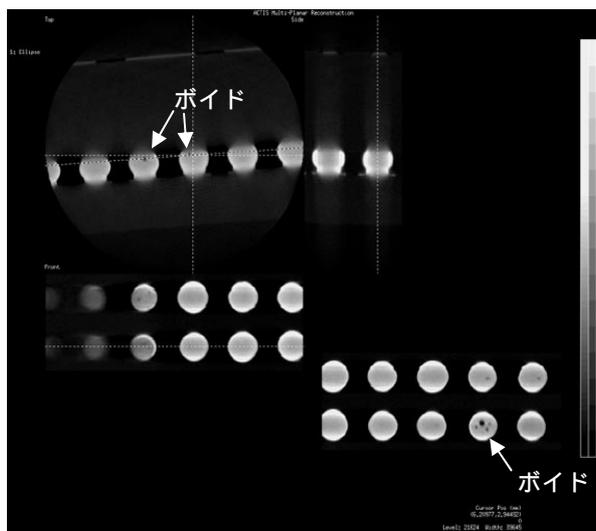


図-11 BGA 接合部の MPR 表示

約 0.7mm であることから幅 0.1mm 程度以上のボイドは良く見える。しかし、クラックについては開口部などの幅 (0.1mm 以上) のあるところは見えるものの、クラックの幅 (隙間) がほとんどなく母材が密着している状態のクラック、またはリードに沿って進行しているような幅のないクラックは良く見えない。したがって、疲労強度を評価するために重要であるクラックの先端の位置は判別困難であるため、クラックの進展の観察は断念する。次に BGA について、X 線 CT 撮影を行った様子とスラ

イス画像の例を図-10 に、また MPR 表示した例を図-11 に示す。BGA の直径が約 0.8mm であるので、0.1mm 程度以上のボイドは明瞭に判別できる。SOP 基板のように 3 分の 1 程度、幅をカットすればもっと明瞭な画像が得られると考えられるが、BGA デバイスは格子状に配列されており幅方向の応力成分が無視できないので SOP のようにカットできない。クラックについては、テストピースでは見つからなかったが SOP と同様にクラック先端は検出困難と考えられる。

いずれにせよ、クラックの進展の観察は断念し、今後は、ボイドの影響を解明する方向で検討する。

また当初、CT に適した基板を提案する予定で検討したが、実使用条件と異なってしまうと無意味と思われるので、特に SOP については実使用条件に近い状態で温度サイクル試験や疲労試験が行え、X 線 CT でボイドの評価が可能な幅 5mm 程度の短冊状 (接合部 5 点程度) の基板を CT 評価用基板としたい。

3 - 4 不純物元素による鉛フリーはんだの強度特性

表-3 にはんだの機械的性質を、表-4 に化学成分 (はんだメーカー分析値) を示す。また図-12 に、応力 - ひずみ曲線を示す。

表-3 はんだの機械的性質

	引張強さ(MPa)	伸び(%)	硬さHmv
新品	38	80	12.6
はんだ槽	42	55	12.8

表-4 化学成分

	Cu	Ag	Sb	Pb
新品(規格)	0.5 ~ 0.7	0.05以下	0.05以下	0.05以下
はんだ槽	0.603	0.014	0.019	0.292

表-3 から、はんだ槽のはんだと新品のはんだで、破断時の伸びが大きく異なることがわかる。しかし引張強さや硬さには大きな違いはない。また応力 - ひずみ曲線も 40% を過ぎるまでは、大きな違いはなく、ピッカース硬さに大きな違いがないことを裏付ける結果となっている。また表-4 から、はんだの脆化は、電子部品等からはんだ槽に溶け出す鉛によるものと考えられる。

以上のことから、はんだ槽のはんだの脆化は、引張試験の破断時の伸びから、評価可能であることがわかる。

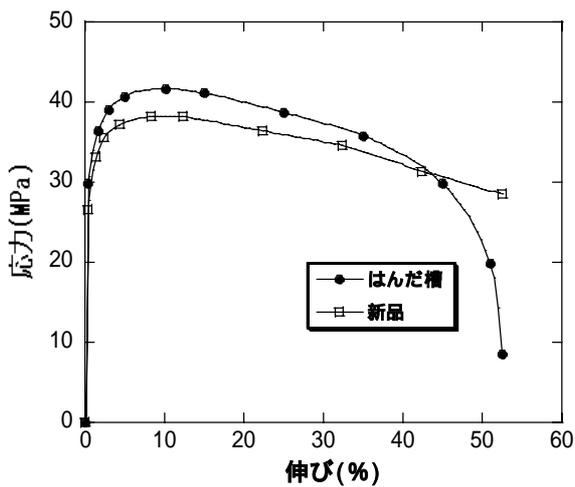


図-12 はんだの応力 - ひずみ曲線

4 まとめ

- (1) ペアチップ実装部の3次元有限要素法モデルを構築した。また、本研究で検討を行ったデジタル相関法を用いて、ペアチップ実装部のひずみを実測した。今後、両者を比較検証する必要がある。
- (2) デジタル相関法を用いて、熱変形拳動計測が可能な面内変位計測システムを構築した。本システムにより、駆動したICチップの熱膨張及び高温炉と組み合わせてペアチップ基板の収縮過程の変形分布計測を行った。
- (3) SOPとBGAの接合部については0.1mm程度以上の幅をもつ内部欠陥(ポイド、クラック等)は検出可能

である。幅の狭いクラック部やクラックの先端は判別できないため、クラックの進展の観察は断念する。SOPについては実使用条件に近い状態で温度サイクル試験や疲労試験が行え、X線CTでポイドの評価が可能な幅5mm程度の短冊状(接合部5点程度)の基板をCT評価用基板とする。

- (4) はんだ槽のはんだの脆化は、引張試験の破断時の伸びから評価できる。しかし測定がより簡単な硬さ試験の結果から、脆化を判断することはできない。

次年度は、今年度の基礎的検討をもとに、実際の実装条件・評価ターゲットに対する熱変形強度評価を実施する。

謝辞

CADシステムによる有限要素法解析モデルの作製については、生産技術課野中智博氏、村上洋氏から、はんだの鑄造および試験片加工については、生産技術課廣瀬政憲氏と安部年史氏から多大な協力を得た。ここに記して謝意を表します。

5 参考文献

- 1) 上西 研, 他3名: 日本機械学会松山地方講演会講演論文集, p.105(2002)
- 2) 坂根政男(主査): はんだの引張試験法標準, 日本材料学会, p.9(2000)

電子デバイス評価を対象にしたヒータブロック開発に関する研究

デジタル相関法を用いた面外変位計測装置の開発

内野 正和^{*1} 永井 誠^{*1} 出海 靖子^{*2} 崎野 通泰^{*2} 山口 哲也^{*2} 高宮 雄一^{*2}

Development of Heater Block for Electronic Devices

Construction of Measurement System of Out-of-Plane Deformation using Digital Correlation Method

Masakazu Uchino, Makoto Nagai, Yashuko Izumi, Toshiyashu Sakino, Tetsuya Yamaguchi and Yuichi Takamiya

電子部品の製造過程で加熱法の一例としてヒータブロックが使用されているが、実装部品の小型化や多種多様な部品構成、複雑な構造、使用目的温度の上昇等に伴い、高温下で熱膨張によるヒータブロックの平面性が重要視され、平面性が得られないことにより、温度むらによる半田バラツキや製品検査工程での効率の低下等の問題が生じている。そこで市場ニーズの高い設定温度で平面性が得られるヒータブロック開発のために高温下での面外変位分布計測を行う。ヒータブロックを水平方向に設置し、計測を行うため測定空間に大気の揺らぎが問題となる。スペックル干渉やモアレ干渉法のようなレーザの干渉を利用した方法は非常に高精度な計測方法であるが、大気の揺らぎ影響を受けやすく、計測は難しい。そこで比較的大気の揺らぎに強いデジタル相関法を用いた面外変位計測方法を検討した。デジタル相関法はスペックル干渉やモアレ干渉法に比べると計測精度が劣るため計測精度の向上を目的として1画素以下の校正曲線を利用した方法を開発した。計測例として IC パッケージの熱変形を計測した結果を示す。

1 はじめに

電子部品の製作過程ではリードフレームや IC ウェハ、電子パッケージ等の加熱作業を行っている。加熱にはヒータブロックを使った加熱方法があり、現在、ヒータブロックの熱膨張が問題となっている。具体的には高温下で熱膨張によりヒータブロックの平面性が損なわれ、仮にブロック表面の温度を均一に保つことができたとしても、その上に載せた製品は、直接ふれる部分とふれない部分が生じ、その結果、製品に温度むらが生じ、半田付けにバラツキが生じるという問題が起こる。また、半田テストをする際にヒータブロックの平面性がないためにプローブによる試験範囲が狭くなり、時間が掛かり、生産効率が悪くなるという欠点を持つ。そこで、電子部品の製作過程におけるリードフレームや IC ウェハ、電子パッケージ等を加熱す

る際、均等に加熱すること、すなわち高温下で温度均一で平面性が得られることが非常に重要で、その達成により、製品検査をする上でも効率を高めることが可能となる。設定温度で平面性が得られるヒータブロックの開発を行うためには、温度上昇による面外変位を精密に計測する必要がある。本研究では室温から目的温度までの面外変位形状計測を目的として面外変位計測システムを製作し、ヒータブロックの計測を行う。

2 デジタル相関法

2-1 デジタル相関法の原理³⁻⁵⁾

デジタル相関法は測定対象物表面に模様（白、黒の斑点模様を試料表面にスプレーする）をつけ、測定対象物の変形前後を CCD カメラ等で撮影し、得られたデジタル画像を画像処理することで、試料表面の変形量と方向を同時に計測することが可能な方法である。変形量と移動方向は変形前の画像中の任意の位置を中

*1 機械電子研究所

*2 株式会社九州日昌

心とする小さい画像領域（サブセット： $N \times N$ 画素）を基準として、変形後の画像よりもっとも相関の良い位置を求める。相関関数 C を求める方法として使用した残差最小法を次式に示す。

$$C(X+u, Y+v) = \sum_{i=-M}^M \sum_{j=-M}^M |I_d(X+u+i, Y+v+j) - I_u(X+i, Y+j)| \quad (1)$$

ここで $I_u(x, y), I_d(x+u, y+v)$ はそれぞれ変形前、変形後の画像強度を示し、 x, y はサブセットの中心座標で、 u, v はそれぞれ x 方向、 y 方向への移動量である。 $N = 2M + 1$ である。式 (1) の総和が最小になる位置がそのサブセットの中心が移動した位置の最近接画素となる。しかしながらこの画素の位置が必ずしも最も高い相関を得るとは限らない。即ち、実際の移動量は 1 画素の大きさよりも小さく移動するために画素間に相関のピークが来ることが一般的である。そのため画素間の補間を行う。その方法の一例として最近接画素の前後の画素での相関値を用いて 2 次曲線を利用した補間を行い、最も相関の良い位置を求める方法を利用した。

図 - 1 に IC チップ（HD74SN04N：19x5 mm²）を基板に装着し、電流を流し駆動させたときの熱膨張をデジタル相関法で計測した結果の一例を示す。導通後、約 10 秒後の変形を表している。矢印は縦 10 画素、横 20 画素毎のその位置の変形を表しており、矢印の大きさが変位量、向きが変形の方法を示している。デ

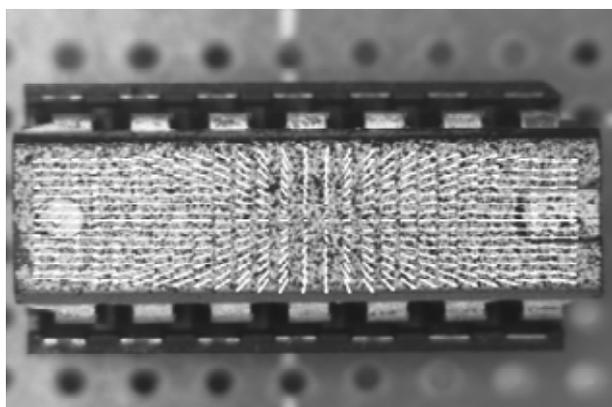


図 - 1 IC チップのデジタル相関法を用いた面外変位計測結果

ジタル相関法を利用した面外変位計測は 2 台以上のカメラを用いて異なる方向から画像を取り込み得られた面内変位から面外変位成分を取り出すことで計測が可能となる。

2 - 2 ヒータブロック計測

CCD カメラで得られる画像は 2 次元データであるため異なった方向から得られた 2 枚の画像を利用して面内変位と面外変位を分離し、面外変位を求める。そのため分離作業が 3 次元計測では最も重要となる。CCD カメラ 2 台を用いた面外変位計測装置の概略図を図 - 2 に示す。本計測では CCD カメラをヒータブロックに対して 90 度で相対した位置に固定し、斜め方向より計測を行う。この光学系では、各カメラで得られた水平方向の成分は、基本的にヒータブロックの観察方向からの面内変位の水平成分のみに対応しており、垂直成分は面内変位の垂直成分と面外変位成分の両方の和になっている。即ち CCD カメラ 1 で計測された水平方向の変位成分（面内変位のみ）が CCD カメラ 2 で計測した垂直方向の変位成分中の面内変位に対応する。そのため CCD カメラ 2 で得られた垂直成分（面内変位の垂直成分と面外変位成分の両方の和）より CCD カメラ 1 で計測された水平方向の変位成分

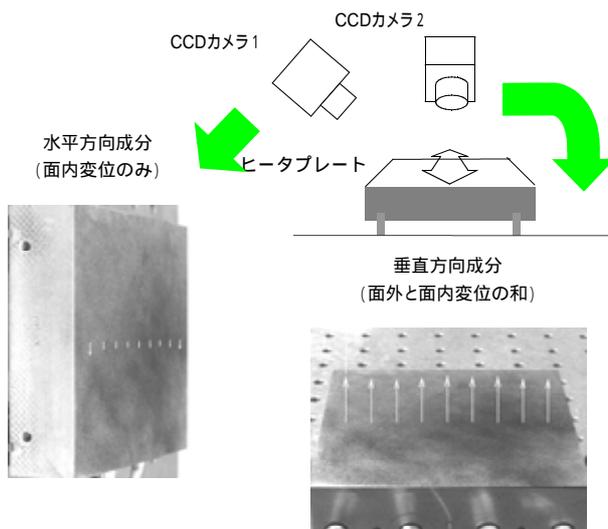


図 - 2 デジタル相関法を利用した面外変位計測の概略図

を引くことで CCD カメラ 2 で観察された位置での面外変位を求めることができる。しかしながら 3 次元計測では斜め方向から計測するためにヒータブロックの形状（台形になるため）と垂直成分の方向が異なる。そのため、各画素位置での傾き角を求め、水平 - 垂直座標から座標変換を行わなければならない。図 - 3 に座標変換の概略図を示す。また、用いた座標変換式を次式に示す。

$$\begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix} = \frac{1}{\sin(\alpha - \beta)} \begin{pmatrix} -\sin\beta & \cos\beta \\ \sin\alpha & -\cos\alpha \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix} \quad (6)$$

更に、それぞれのカメラで得られた画像よりヒータブロックの同じ位置、並びに角度を特定するため、計測

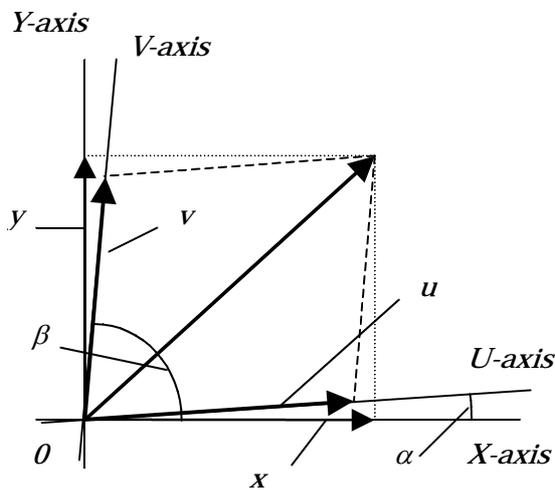


図 - 3 座標変換図

前に碁盤の目のようなものをあらかじめ計測することで相対位置を求める。図 - 4 に 300 度昇温、1 時間後の室温からの変形分布を示す。これは図 - 2 の中心部の変形量を求めた結果である。中心部の変形量が外側に比べて少ない計測結果が得られた。

次に、本手法を用いて微小変形を繰り返し与えた条件での移動量と移動画素数の関係を図 - 5 に示す。図 - 5 に見られるように変形量に対して移動画素の線形性が十分でないことが認められた。ヒータブロックの変位量は非常に微小であるため 1 画素以下の高精度な補間が非常に重要である。そこで計測の校正の意味も含めて微動ステージを利用した 1 画素以下の高精度な

計測法を提案する。

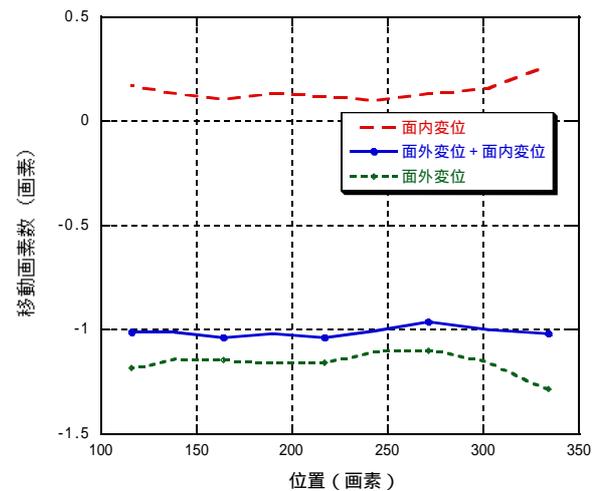


図 - 4 デジタル相関法を利用したヒータブロック中央部の面外変位計測の計測結果

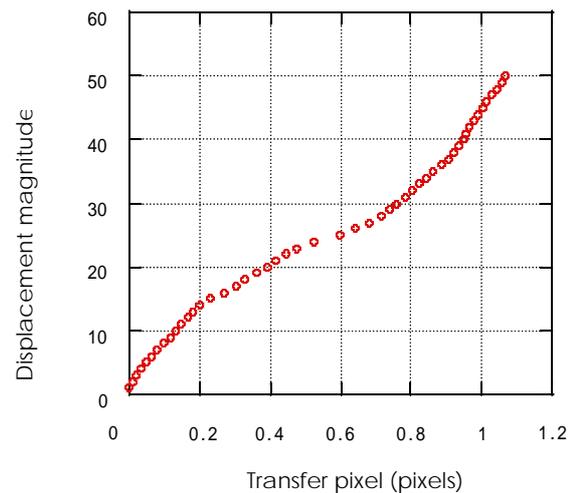


図 - 5 デジタル相関法による微小変位と移動画素数の相関曲線

2 - 3 1 画素以下の校正曲線の検定法

デジタル相関法を利用した面内変位計測装置の構成図を図 - 6 に示す。装置は計測用の CCD カメラと画像取り込みボード、画像処理と解析用のコンピュータ、試料を微小に移動させるための微動ステージより構成されている。試料は微動ステージ上に計測範囲に対して斜め方向（対角線上）に移動させることが可能な向きに取り付ける。試料を任意の移動量（希望の精度）

で1ステップ移動させ、画像を取り込む。この操作を繰り返し行い、移動量と移動画素数を演算し、校正曲線を作成する。ICチップ(19x8mm)を計測対象とし、サブセットの大きさが61x61画素として1.0 μ mの移動量で構成曲線を作成した。図-7に作成した校正曲線の例を示す。校正曲線は変形が非常に微小であるため校正する画素の範囲を-10から10 μ mの移動量の範囲で示している。また、校正曲線として3次関数を利用した。これらの校正曲線を利用し変換を行った結果と光学的に求められるCCDカメラ1画素に対応する長さ(30.84 μ m/画素)を利用して移動量に変換した結果を図-8に示す。また、図-8にはスペックル干渉法を用いてほぼ同条件で計測した水平方向の変位分布矢印も併せて示している。図より校正を行った変位分布はスペックル干渉法による変位計測結果と良い相関が得られており、この方法の有効性が証明されている。

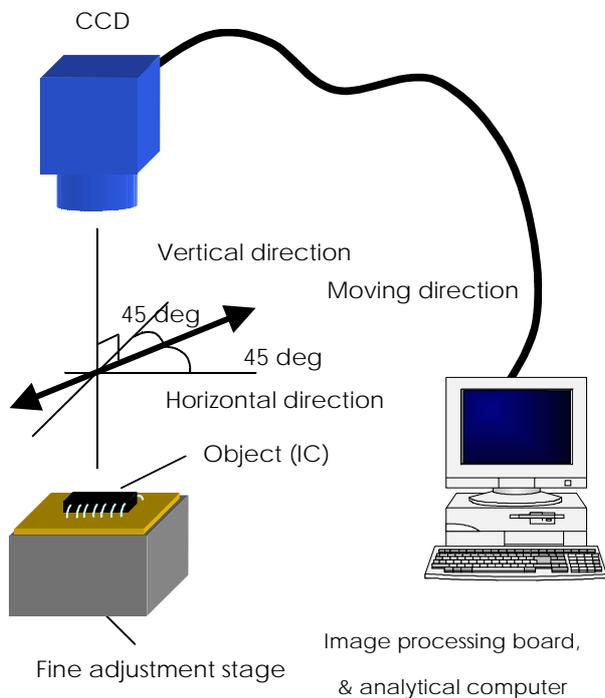


図-6 デジタル相関法を利用した面内変位計測装置の構成図

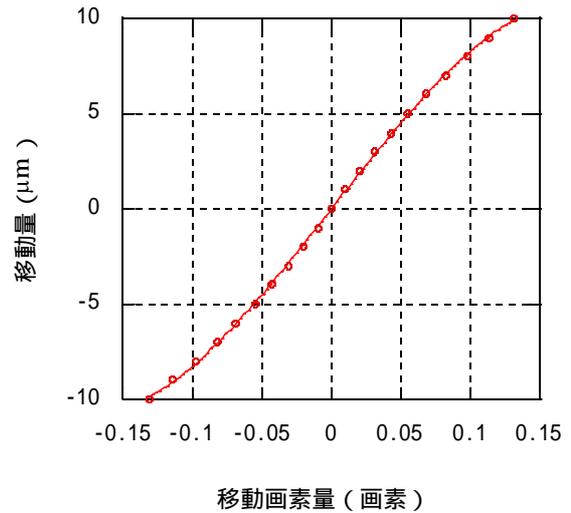


図-7 校正曲線

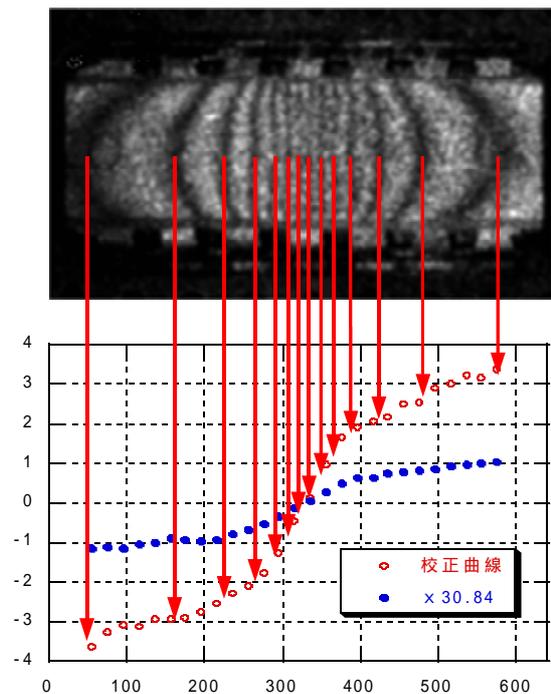


図-8 ICチップの中心部の計測結果

3 まとめ

スペックルパターンを利用した面外変位計測では水平方向に設置したヒータブロックの計測が、ヒータブロックより発生した熱による大気の揺らぎのために不可能であることが判明したため比較的大気の揺らぎに強いデジタル相関法によるヒータブロックの面外変位計測を行った。計測の結果、中央が外側に比べて変形量の少ない計測結果が得られた。更に微小変位計測の精度を向上させるために校正曲線を利用する方法を提案した。校正曲線を利用した結果、スペックル干渉法の計測結果と同様の結果が得られ、この手法の有効性が確かめられた。今後、本手法を利用してデジタル相関法による高精度3次元変位分布計測法を確立する。

4 参考文献

- 1) Pramod, K. R.: Digital Speckle Pattern Interferometry and Related Techniques, John Wiley & Sons, Ltd Press, Chichester (2001).
- 2) M. Uchino, Proc. APCFS & ATEM'01, (2001), pp.836-839.
- 3) M. A. Sutton, S. R. McNeill, J. D Helm, and Y. J. Chao, Advances in Two-Dimensional and Three-Dimensional Computer Vision, Springer-Verlag, (2000), pp. 323-372.
- 4) Z. H. He, M. A. Sutton, W. F. Ranson, and W. H. Peters, Exp. Mech., 24 (1984), pp. 117-121.
- 5) A. Kato and H. Wate, Proc. APCFS & ATEM'01, (2001), pp.840-845.

光学的手法を用いた電子パッケージの微視的計測

内野正和^{*1} 森田康之^{*2} 東藤貢^{*2} 新川和夫^{*2}

Particle Measurements of Electronics Packages using Optical Methods

Masakazu Uchino, Kazuyuki Morita, Mitsugu Todo and Kazuo Arakawa

スペックル干渉法，並びにモアレ干渉法を用いてICチップの動的な温度変化過程（熱膨張）の変形計測を行い，電子パッケージの信頼性評価のための実計測方法の検討を行った。スペックル干渉法の干渉縞はノイズが多いのに対し，モアレ干渉法の干渉縞は非常に鮮明な干渉縞が得られた。しかしながら，スペックル干渉法は測定対象物が鏡面以外のほとんどのものが測定対象であるのに対し，モアレ干渉法は格子を貼り付けるため，高度な技術が必要となる。また，スペックル干渉法では干渉縞が2画像間の変位分布として得られるため，干渉縞が密になり干渉縞の判別が難しくなる前に基準となる初期画像を更新することで変形を続けて計測することが可能であるが，モアレ干渉法では密になれば計測はできない。このようにそれぞれの方法で利点，欠点があり，それぞれを相補的に利用することで非常に高精度な計測が可能であると考えられる。計測例として駆動させたICチップの水平方向の面内変位分布を両計測法を用いて計測した結果を示す。

1 はじめに

IT 新技術として電子機器の高性能・高機能化（複合化・融合化），小型携帯化（高密度化）の動きが急激に進行しており，これを支えるキーテクノロジーは超高密度実装技術である。現在の技術開発は，複数部品の搭載にあたって従来の平面的に配置する二次元実装から部品を積み重ねた三次元実装に移行し，部品間の配線を短縮，実装面積効率を高めシステムの高密度化を図っている。しかしながら，その実現にはパッケージ材料の小型化や構造，複雑化する組立技術，異なったデバイスの混在，発熱対策等の課題が上げられ，その信頼性の評価技術が非常に重要となっている。本研究では光学的手法を用いて電子パッケージの微視的計測を行い，電子デバイス信頼性評価のための実計測法の確立を目指す。

2 計測方法

レーザー光を粗面に照射した場合，レーザー光は粗面で散乱・反射し，レンズ等を用いて結像させるとレーザーのコヒーレンシによってランダムな位相の光が干渉し，ぎらぎらと輝く斑点模様を観察される。この干渉パターンはスペックルパターンと呼ばれる。スペックル干渉法は，測定面上に2つ以上の光路を通ったレーザー光を重ね合わせた時に生じるスペックパターンを利用して変位を求める^{1,2)}。図-1に面内変位の光学系を示す。この光学系は

測定面の法線に対して対称な2方向からレーザー光を照射し，法線方向から観察する。そして測定面が面内方向に u だけ変形したとすると，変形前後で二つの光路を通る光の位相差 $\Delta\phi$ は次式で表される。

$$\Delta\phi = \frac{4\pi u}{\lambda} \sin\theta \quad (1)$$

ここで， λ はレーザーの波長で， θ は照射光が測定面の法線となす角である。また，変形前後のスペックルパターンの差の絶対値 I を取ると次式のようになる。

$$I = 4|a_1 a_2| \left| \sin\left(\phi + \frac{\Delta\phi}{2}\right) \right| \left| \sin\left(\frac{\Delta\phi}{2}\right) \right| \quad (2)$$

これは位相差 $\Delta\phi$ が $2n\pi$ の奇数倍（ $(2n+1)\pi$ ）の場合は強度が最も大きくなり，偶数倍（ $2n\pi$ ）の場合は強度がゼロ

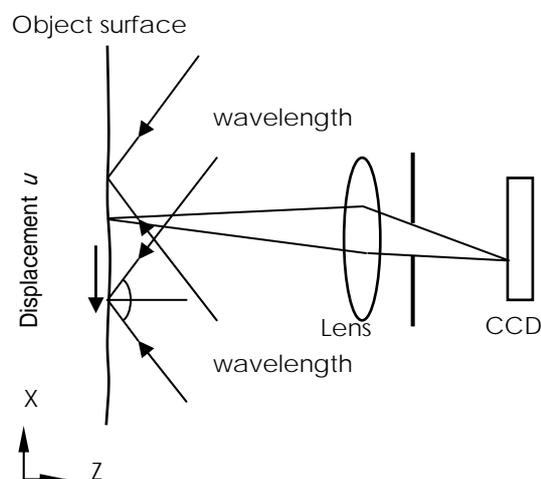


図-1 スペックル干渉法を用いた面内変位計測系の概略図

* 1 機械電子研究所

* 2 九州大学

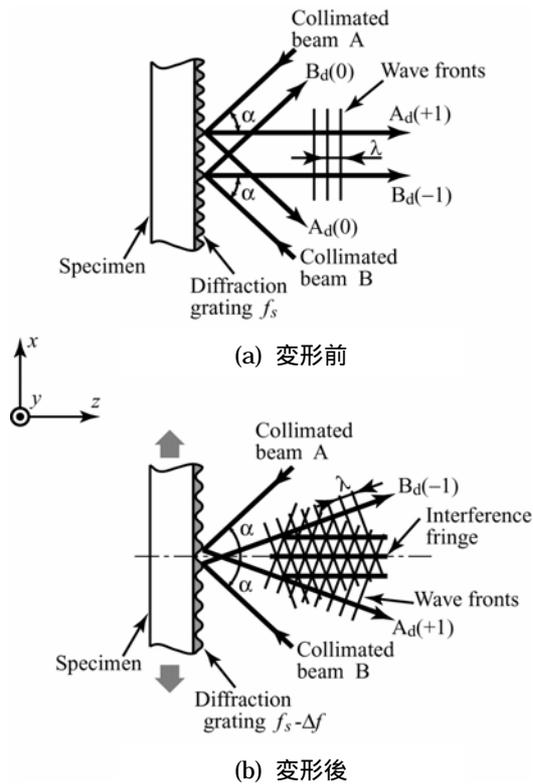


図 - 2 モアレ干渉法の概略図

となることを示している。これによりスペックルの干渉縞が形成される。この原理を利用し、得られる縞分布と式(1)よりレーザ照射方向の面内変位分布を求めることができる。

次にモアレ干渉法^{3,4)}による面内変位計測の概略図を図 - 2 に示す。試料表面に空間周波数 f_s の光回折格子を転写し、平行にしたレーザ光を次式の角度 α を満足するように2方向から照射する。

$$\sin \alpha = f_s \lambda \quad (3)$$

ここで、 λ はレーザの波長である。このとき一次反射回折 Ad, Bd は試験片表面に対して垂直に発生するため干渉が起こらず干渉縞は生じない。しかし(b)のように試験片が変形すると、回折格子の空間周波数が変化し、 Ad, Bd の回折角も変化する。そのため互いに平行ではなくなり干渉縞が発生する。このときの変位量 u は次式で表される。

$$u = \frac{N}{2f_s} \quad (4)$$

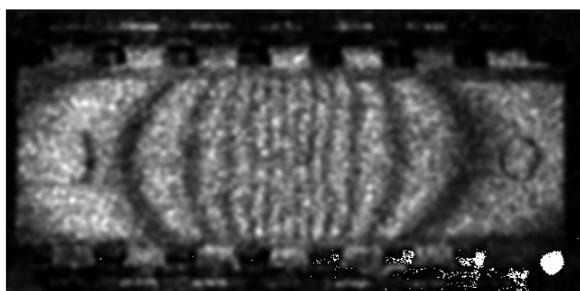
ここで N は縞次数であり、この縞次数や縞次数間の位相を評価することで変位量を求めることができる。

3 計測結果

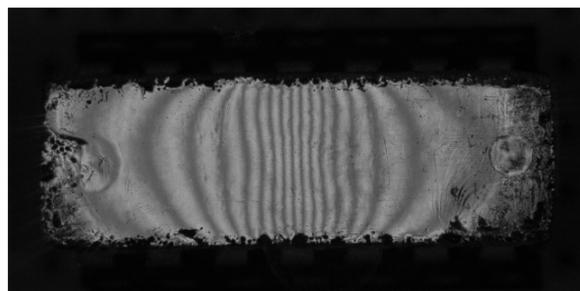
ICチップ (HD74SL04N : 19x5 mm²) を基板に装着し、電流を流し駆動させたときの熱膨張をスペックル干渉法、モアレ干渉法を用いて計測した結果を図 - 3 に示す。S-* はスペックル干渉計測結果でM-* はモアレ干渉計測結果で、10,30の意味はそれぞれ導通後、約10秒、30秒後の変形の干渉縞を表している。スペックル干渉法の計測結果には画像処理を行い縞にコントラストをつけている。今回計測に用いた光学系は照射角が47.5度で、式(1)より干渉縞1本に対応する変位量は429nmと見積もられる。また、モアレ干渉法では式(4)より干渉縞1本に対応する変位量は417nmと見積もられる。スペックル干渉法による干渉縞は変形前と変形後の2枚の画像を利用して得られるが、モアレ干渉法では試料表面の直接観察で、変形に応じた干渉縞が得られる。スペックル干渉法による干渉縞は得られた画像にはノイズが多く、画像処理を行い、コントラストを上げているのに対し、モアレ干渉法の干渉縞は非常に鮮明な干渉縞が得られている。これは計測に用いたカメラ解像度の違いも一つの原因であるが、スペックルという不規則な散乱光の干渉を利用している計測原理の違いによるところが大きい。しかしながら、スペックル干渉法は測定対象物が鏡面以外のほとんどのものが測定対象となり、表面処理が可能であれば、白や銀色のスプレーで色づけすることで鏡面の計測も可能であり、モアレ干渉法のように格子を貼り付ける手間のかかる工程が不要である。また、スペックル干渉法では干渉縞が2画像間の変位分布として得られるため、干渉縞が密になり干渉縞の判別が難しくなる前に基準となる初期画像を更新することで変形を続けて計測することが可能である。初期画像を変更した例を図 - 4 に示す。図 - 4 は図 - 3 S-30 を0秒から10秒(図 - 3 S-10)と10秒から30秒の2つに分割している。このようにスペックル干渉法では縞が観察しにくい場合(図 - 3 S-30)でも初期画像を変更することで解析することが可能となる。

4 まとめ

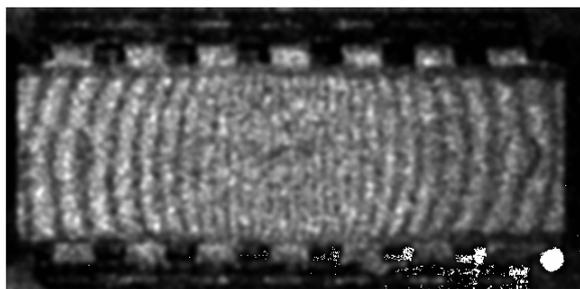
スペックル干渉法、並びにモアレ干渉法を用いてICチップの動的な温度変化過程(熱膨張)の変形計測を行い、電子パッケージの信頼性評価のための実計測方法の検討を行った。それぞれの方法で利点、欠点があり、それぞれを相補的に利用することで非常に高精度な計測が可能であると考えられる。今後は当所で研究しているス



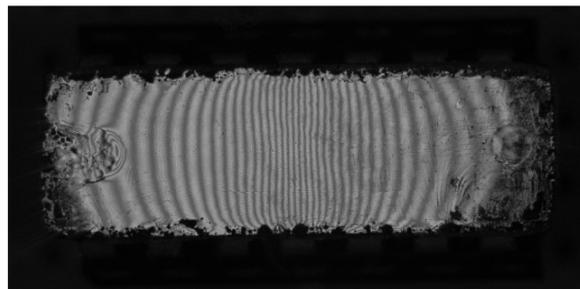
S-10



M-10

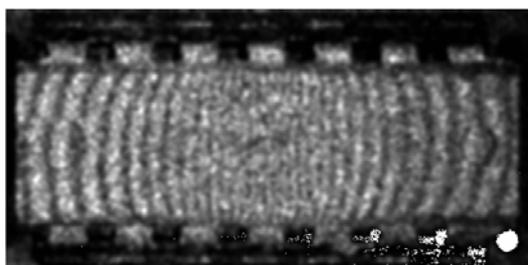


S-30

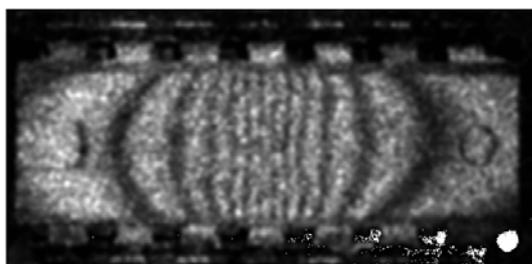


M-30

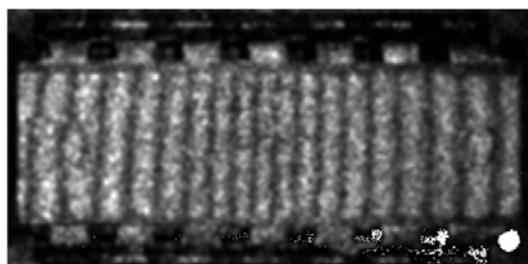
図 - 3 スペックル干渉法とモアレ干渉法の干渉縞. S:スペックル干渉法 M:モアレ干渉法



(a) 0-30 s



(b-1) 0-10 s



(b-2) 10-30 s

図 - 4 スペックル干渉法による干渉縞の分割図 (a) 通電 30 秒後の変位分布, (b-1) 通電 10 秒後の変位分布, (b-2) 通電 10 秒から 30 秒後の変位分布

ペックル干渉法に関して動的位相解析法の検討を行う。
具体的には計測した画像の独立した1画素に着目し、時
系列に画素毎の強度変化を評価する手法である。来年度
以降、本解析手法の研究を進める。

5 参考文献

- 1) Pramod, K. R., Digital Speckle Pattern Interferometry and Related Techniques, John Wiley & Sons, Ltd Press, Chichester (2001).
- 2) Uchino, M., Two-Directional Simultaneous Measurement System of the Surface Deformation using Speckle Interferometry Method, Proc. of the APCFS & ATEM'01, (2001), 863-839.
- 3) Post, D., Han, B., and Ifju, P., High Sensitivity Moiré, Springer-Verlag, New York, (1994)
- 4) 鈴木新一, 田康之, 上賢一, 速度ホログラフィー顕微鏡法とモアレ干渉法による分裂き裂の開口変位計測, 機論, 67-655, A (2001), 462-439.

研磨ロボットシステムのためのファジィ補償による力制御器の性能向上

楠本幸裕^{*1} 永田寅臣^{*1} 津田邦博^{*2} 安田仁徳^{*2} 渡辺桂吾^{*3}

An Improvement of Force Control Performance Using a Fuzzy Compensator for Robot Sander

Yukihiro Kusumoto, Fusaomi Nagata, Kunihiro Tsuda, Kiminori Yasuda and Keigo Watanabe

当所で開発した研磨ロボットシステムの大きな特徴の1つに力制御機能が挙げられる。研磨中、ロボットは手先と研磨工具の間に取り付けられた力覚センサからワークに対する押付力を検知し、その値をフィードバックすることで常に押付力を目標値に追従させている。力制御を行うことで同一形状ワークの個体差による位置精度の不確かさを吸収できるだけでなく、数百 μm という非常に薄い膜厚しか持たない塗装面の研磨をも可能にしている。従って高精度な力制御を行うことは研磨ロボットシステムにとって重要な項目である。さて、様々な形状のワークに対して研磨実験を行っているとき、曲率の非常に大きな曲面部分を研磨する際、力制御の追従性が鈍くなるという現象が認められた。本稿では、ファジィ補償を用いて力制御器の性能改善を行いこの問題を解決したので報告する。

1 はじめに

近年日本の家具製造業界は、中国に代表されるアジア諸国からの安価な人件費を活かした安い輸入家具の猛威にさらされている。そこで国内の家具メーカーでは、容易に真似できない3次元の自由曲面を採り入れた高付加価値なインテリア家具を開発し、これに対抗している。図-1はその一例である。しかしこのような高付加価値な家具は複雑な形状を持っているため、従来のシンプルな家具に比べ製造に多くの人手と時間を必要とし、大量生産を得意としていない。そのため機械による自動化の期待が高まっている。

一方、家具の製造過程は大きく“設計”、“加工”、“研磨”の3つに分けることができ、現在ではCAD/CAMやNC工作機械の普及により、設計から加工までの工程は非常に合理化・自動化が進んでいる。しかし最終工程である研磨作業は未だに人手によって行われているのが現状である。粉塵の舞う悪環境下で行われ、なおかつその作業自体非常に労力を必要とするため、研磨作業は機械による代替・自動化が熱望されている工程である。それにもかかわらずこれまで機械による自動化はあまり進んでいない。例えば、従来からあるベルトサンダー等の研磨機械では自由度が低いために、平面や単純な2次元の曲面にまでしか対応できない。この問題を解決するために、自由度の高い産業用ロボッ



図-1 自由曲面を採り入れたベンチ

トを用いて研磨を行おうとした例もある。しかし産業用ロボットを動作させるためには教示作業を必要とし、3次元の自由曲面上に沿ってロボットを滑らかに動作させるためには莫大な量の教示作業が必要となるため、とても現実的ではなく実用化にはいたらなかった。また、もし仮にこの莫大な量の教示作業ができたとしても、木材特有の吸湿・乾燥に起因する形状変化やワークの移動に伴う位置の微妙なずれにより、ロボットの動きと実際のワークとの間に誤差が生まれ、ロボットの手先についた研磨工具の研磨面がワークに接する部分と接しない部分が生じるため、平均して高品位な研磨を行うことは困難であった。ましてや数百 μm しか厚さを持たない塗装面の研磨は実現できるものではなかった。

当所では、「オープンアーキテクチャ型産業用ロボットの応用」、「CAD/CAMとの連携」、「力制御技術」の融合により、上述の問題点を解消し、教示レスで動か

^{*1} インテリア研究所

^{*2} (株) エーエスエー・システムズ

^{*3} 佐賀大学大学院

すことができ、なおかつワーク個々に応じて自動で微調整を行い位置のずれを吸収し、3次元自由曲面の研磨や、従来不可能とされてきた塗装面の研磨も可能な研磨ロボットシステムを開発した。

さて、開発した研磨ロボットシステムを用いて様々な形状のワークに対して研磨実験を行っている時、曲率の大きな曲面部分を研磨している時、力制御の追従性が鈍くなり研磨残しが発生する現象が認められた。そこで今回、この問題を解決するために、ファジィ補償による力制御器の性能向上を行い、研磨実験によりその有効性を検証したので報告する。

2 研磨ロボットシステム

まず最初に、当所で開発した研磨ロボットシステムの特徴について解説する。

2-1 オープンアーキテクチャ型産業用ロボット

当所の研磨ロボットシステムでは、近年登場してきているオープンアーキテクチャ型の産業用ロボットを採用している。従ってメーカーから提供されるAPIを使用して、パソコンからロボットを操作できる独自の制御アプリケーションを開発している。このアプリケーションでは、CADデータを基にCAMから生成されるCLデータを基本軌道としてロボットに与える。CLデータは主にNC工作機械を動作させるために用いられている。つまり、NC工作機械と同じ様にデータを入力するだけでロボットを動かすことができ、これにより教示レスを実現した。さらに研磨対象となるワークはあらかじめCADで設計しNC工作機械により加工が施されているため、再度ロボット用にCADデータを起こす必要もない。

2-2 CLデータ

CAMから生成されるCLデータには、ジグザグや渦巻状になった一筆書きの線上に並んだワーク表面の3次元座標と、その座標点における正規化された法線ベクトルが記述されている。図-2はジグザグの場合の

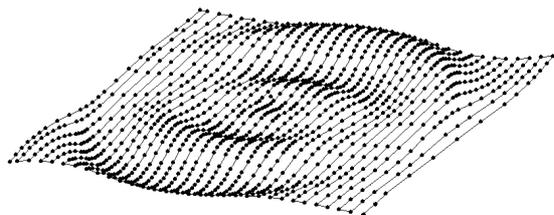


図-2 一筆書きの線上に並んだCLデータ

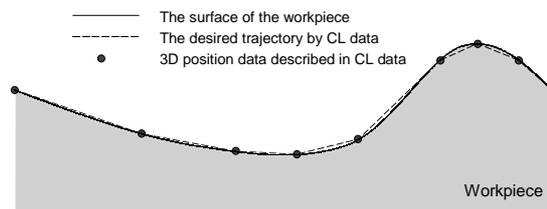


図-3 粗いCLデータと実際のワーク表面

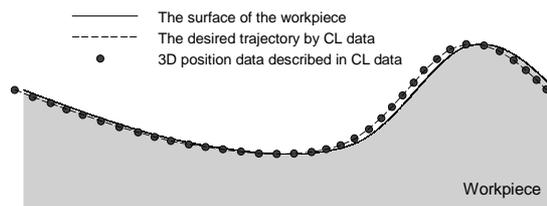


図-4 相対位置のずれによる目標軌道とワークとの誤差

一例である。図中の●点が、実際にCLデータに記述されている座標点の場所である。研磨ロボットシステムではこのCLデータを基本的な目標軌道とし、手先についた研磨工具先端が同じようにジグザグや渦巻状の一筆書きの線上を通るように倣いながら、なおかつその時研磨工具が常にワーク表面に対して垂直に接するように姿勢を制御する。

2-3 押付力の調整機能

ロボットは研磨中、フランジ面と研磨工具の間に取り付けた力覚センサからの情報をフィードバックし、ワークに対する押付力が常に目標値に追従するように力制御を行っている¹⁾。これは単に力を制御するというだけでなく、CLデータと実際のワーク表面との誤差を吸収するという役割も担っている。図-2に示すように、CLデータは非常に粗い精度で構成されているため、実際にロボットのフィードフォワード制御のために与える目標軌道は、すでに開発している倣い制御器²⁾を用いて直線補間により求める。従って図-3のように実際のワーク表面とCLデータを基に求められた目標軌道との間に誤差が生じる。また、CAMの機能を使ってCLデータの密度を細かく生成し、ある程度この誤差を小さくすることはできるが、ワークの移動に伴う相対位置のずれや、木材特有のそりやねじれによる形状変化により図-4のような誤差が生じ、結果的には十分な位置精度を発揮するのは非常に困難である。そこでCLデータによるフィードフォワード制御と力制御によるフィードバック制御のハイブリッド制御を行うことにより、これらの誤差を吸収する。研

磨口ロボットシステムでは、研磨中のワークに対する押付力を常に目標値に追従させるために、インピーダンスモデル追従型力制御器を用いて押付方向に対して軌道の微調整を行っている。つまり、ミクロンオーダーの絶対的な位置の精度を上げるのではなく、今実際に接触しているワークとの相対的な位置精度を高めることで位置の誤差を吸収し、ワーク全体にわたって平均的な研磨を実現している。また、目標とする押付力を変化させることで、NC加工後のツールマーク除去を目的とした粗研磨も、数百 μm しか膜厚を持たないない塗装面の仕上げ研磨のどちらも可能となっている。なお、使用した力制御器は次式に示すとおりである。

$$\begin{aligned} \dot{x}(k) = & \exp(-M_d^{-1}B_d\Delta t)\dot{x}(k-1) \\ & - \{\exp(-M_d^{-1}B_d\Delta t) - E\}B_d^{-1}K_f\{\tilde{F}(k) - F_d\} \\ & + K_i \sum_{n=1}^k \{F(n) - F_d\} + K_r \left\{ \frac{r(k) - r(k-1)}{\Delta t} \right\} \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 $\dot{x}(k) \in \mathcal{R}^6$ はベース座標系での離散時刻 k における工具の速度ベクトル、 $M_d = \text{diag}(M_{d1}, \dots, M_{d6})$ 及び $B_d = \text{diag}(B_{d1}, \dots, B_{d6})$ はそれぞれ目標慣性行列、目標粘性行列であり、これらをインピーダンスパラメータと呼ぶ。 $F(k) \in \mathcal{R}^6$ は $F^T(k) = [f^T(k) \ n^T(k)]$ で定義され、 $f(k) \in \mathcal{R}^3$ は工具とワーク間に作用する押付力ベクトル、 $n(k) \in \mathcal{R}^3$ はモーメントベクトルである。 $F_d^T = [f_d^T \ n_d^T]$ は目標とする押付力・モーメントベクトルである。 $K_f = \text{diag}(K_{f1}, \dots, K_{f6})$ 、 $K_i = \text{diag}(K_{i1}, \dots, K_{i6})$ 、 E はそれぞれ、力フィードバックゲイン、積分制御ゲイン及び単位行列である。なお、 $r(k)$ は微力制御器²⁾より生成されるフィードフォワード項であり、 $K_r = \text{diag}(K_{r1}, \dots, K_{r6})$ はそのフィードフォワードゲインである。また、 $\tilde{F}(k)$ は、研磨工具による重力補償³⁾を施した押付力・モーメントベクトルである。

3 ファジィ補償を併用した力制御器の開発

以上までの研究成果により、これまでは実現できなかった3次元自由曲面を対象とした研磨の自動化システムの開発に成功し、なおかつ繊細な力制御により品質を損なうことなく塗装面を研磨する技術を獲得した。しかしながら、様々な形状での研磨実験を重ねていくと、図-5のように曲率の大きな曲面部分を研磨するときに力制御の追従性が鈍くなり、その部分だけ研磨残しが発生する現象が確認された。本研究では、これまでの力制御器に対しファジィ推論による力補償器を併用した力制御器を開発することで、この問題を解決

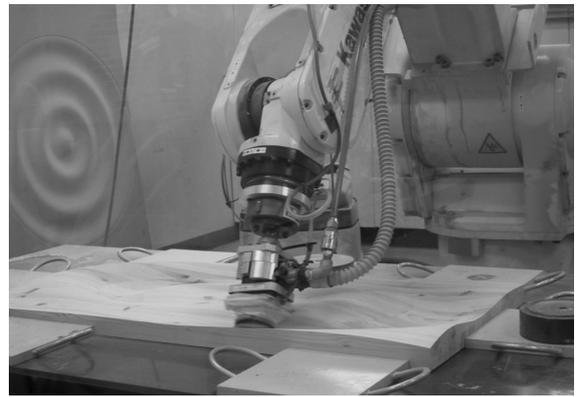


図 - 5 曲率の大きいワークの研磨

する⁴⁾。

3-1 ファジィ推論による力補償

上述のような現象が発生するのは、ワークの曲面の曲率が大きい部分では研磨工具の姿勢変化が極端に激しくなるため工具がワークから離れてしまい、その時に発生する急激な力誤差（例えば目標押付力が1.5 [kgf](14.7 [N]) であるのに対し実際は0.0 [kgf](0.0 [N])）に対して、力制御器の応答が瞬時に対応しきれなかったことに原因があると考えられる。この場合、力制御器の各インピーダンスパラメータの組み合わせを即応性が良くなる方向に変更することでこのような急激な力誤差にも瞬時に対応できるが、そうすると逆に力誤差が緩やかな時にもハイゲインな力フィードバックが働いてしまい、安定性が悪くなってしまう。一方、緩やかな力誤差の時も急激な力誤差の時もどちらにも効率良く力を制御できるような理想的なインピーダンスパラメータの組み合わせを見つけようとしても、膨大なパラメータの選択肢が存在するため不可能に近く、また実際そのような理想的なパラメータの組み合わせが必ず存在するという保証もない。そこで本研究では、インピーダンスパラメータを調整して万能な力制御器を設計するのではなく、ファジィ推論による力補償器と従来のインピーダンスモデル追従型力制御器を併用させた力制御器を開発することで、この問題の解決を図った。

3-2 ファジィ力補償器

ファジィルールへの入力変数には次式に示す離散時刻 k における力誤差 $e(k)$ およびそのレートである $\dot{e}(k)$ を用いる。

$$e(k) = {}^S f_z(k) - {}^S f_d \quad (2)$$

$$\dot{e}(k) = e(k) - e(k-1) \quad (3)$$

ここで、 ${}^S f_z(k)$ および ${}^S f_{d_z}$ はそれぞれセンサ座標系におけるZ軸方向の、力覚センサから得られた離散時刻 k での押付力および目標押付力である。ただし力誤差のレートを算出する場合、力覚センサのフィルタを力誤差を求める場合と同じ 125 [Hz] のフィルタを用いると、ノイズの影響が大きくなってしまうため、より周波数の低い 7.8 [Hz] のフィルタを用いた。前件部にはそれぞれ3つのラベルを用意し、合計9つのルールを用意した。なお、メンバシップ関数には次式に示すガウシアン形を用いた。

$$\mu(x) = \exp\{\log(0.5)(x - \alpha)^2 \beta^2\} \quad (4)$$

ここで、 α と β はそれぞれメンバシップ関数の中心値と標準偏差の逆数であり、値に関しては、表 - 1 に示すとおりである。なお、図 - 6, 7 は前件部メンバシップ関数をグラフに表したものである。推論法には後件部が定数である簡略型ファジィ推論法を用いた。後件部定数値は表 - 2 に示す通りである。図 - 8 は、今回提案するファジィ力補償器を併用した力制御器のブロック線図である。ここで K_{fuzzy} はファジィ力補償器からの出力ゲインであり、今回設計した力制御器では $K_{fuzzy} = 1.0$ である。また、 S_p , S_o , S_f はそれぞれ位置制御系、姿勢制御系、力制御系の切替えを行うスイッチ行列である。

表 - 1 メンバシップ関数の各パラメータ

	N	ZO	P
$e(k)$			
α	-2.0	0.0	2.0
β	1.0	1.0	1.0
$\dot{e}(k)$			
α	-1.0	0.0	1.0
β	2.0	2.0	2.0

表 - 2 後件部定数値

$e(k) \setminus \dot{e}(k)$	N	ZO	P
N	-2.0	0.0	-0.1
ZO	-0.1	0.0	0.1
P	0.1	0.2	0.3

4 研磨実験

つぎに、提案するファジィ力補償器を併用した力制御器の有効性を検証するために、図 - 2 に示す自由曲面を持った木質ワークの研磨実験を行った。ワークはあらかじめNC工作機械により曲面形状に加工されたものを使用した。そのためツールマーク（NC工作機械の

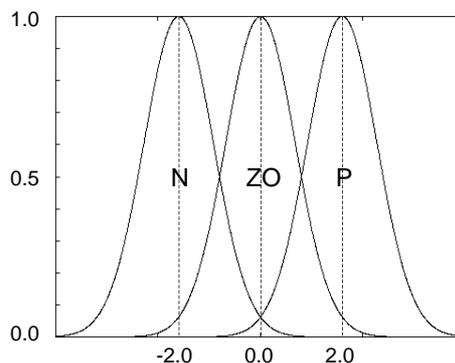


図 - 6 力誤差 $e(k)$ のメンバシップ関数

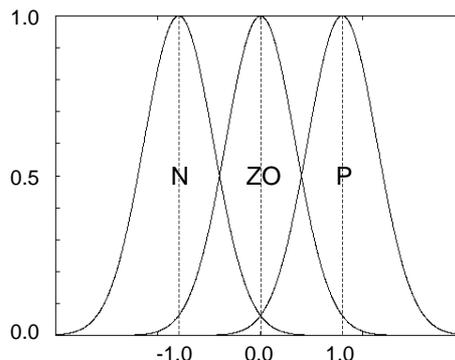


図 - 7 力誤差のレート $\dot{e}(k)$ のメンバシップ関数

回転刃物を通った後)が残っており、これを除去し表面を滑らかにすることが研磨の目的である。今回の実験に用いた自由曲面は曲率が大きい部分を有しており、従来のインピーダンスモデル追従型力制御器だけでは力制御性が鈍くなり、この部分だけ研磨残し(ツールマークが完全に除去できていない)が発生していた。図 - 9 中の左のグラフがその時の力覚応答を示したグラフである。このグラフを見ても、曲率の大きい曲面部分で押付力が目標値 1.5 [kgf](14.7 [N]) に追従できていないのが分かる。一方同図の右のグラフは、今回開発したファジィ力補償器を併用した力制御器を用いて研磨実験を行った時の力覚応答である。両図を比較すると、今回提案する手法で設計した力制御器を用いることで、押付力の追従性が大幅に改善されていることが分かる。加えて初期のレスポンスまでも向上していることが分かる。また、実際に研磨を行ったワークの表面を観察することで、ファジィ力補償器を併用した方が全体にわたって均一に研磨できていることから、力制御器の性能が向上したことがうかがえる。なお、この比較実験において、ファジィ力補償器の有無以外の全ての条件(インピーダンスパラメータ、目標押付力等)は全て同じであり、表 - 3 に示すとおりとなっ

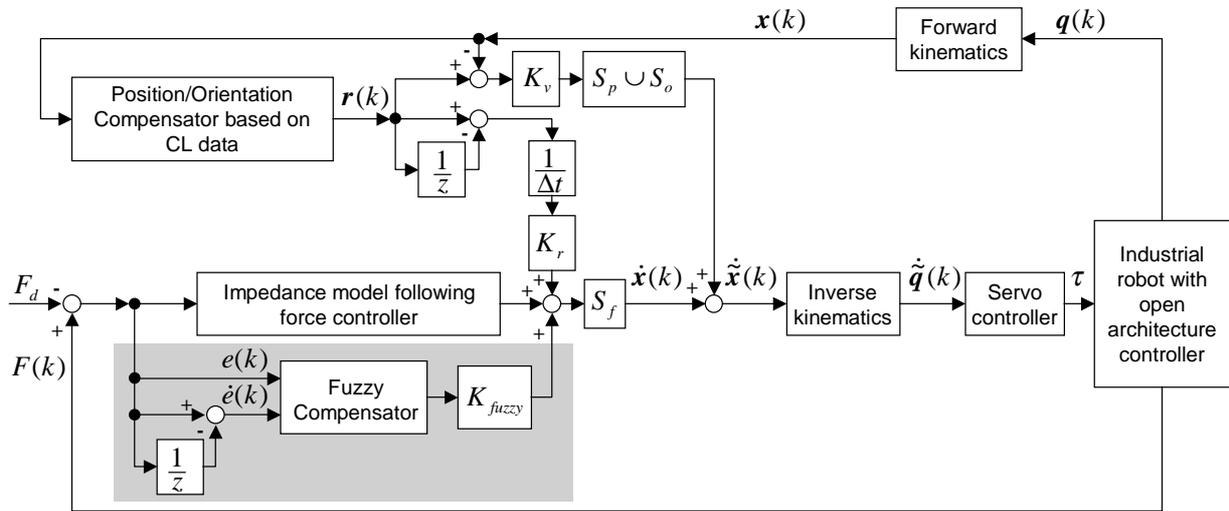


図 - 8 ファジィ力補償器を併用した力制御器のブロック線図

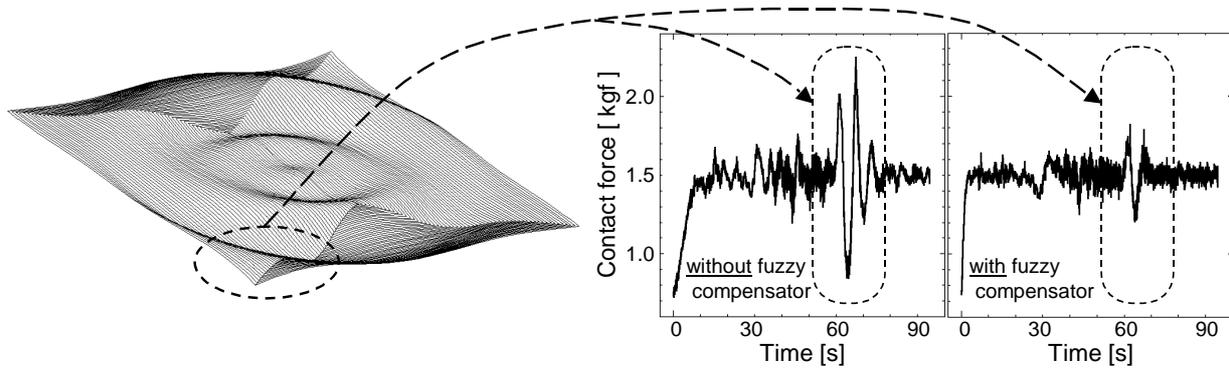


図 - 9 力制御器の違いによる力追従性の比較

Contents	Parameters in Eq. (1)	Values	Units
Desired contact force	$ F_d $	1.5	kgf
Desired mass coefficient	M_{d1}, M_{d2}, M_{d3}	0.01	kgf · s ² /mm
Desired damping coefficient	B_{d1}, B_{d2}, B_{d3}	20.0	kgf · s/mm
Force feedback gain	K_{f1}, K_{f2}, K_{f3}	1.0	-
Feedforward gain	K_{r1}, K_{r2}, K_{r3}	0.5	-
Sampling width	Δt	10	ms
Sanding velocity (tangential velocity)	-	20	mm/s
Air pressure of sanding tool	-	0.3	MPa

表 - 3 研磨実験における諸条件

ている。

5 おわりに

本研究では従来のインピーダンスモデル追従型力制御法を用いた力制御器に対し、ファジィ力補償器を併用することで力制御器の性能を向上させる手法を提案し、実験によりその有効性を証明した。このことにより、研磨ロボットシステムを用いた研磨作業の高効率化および高品位な研磨を実現した。

6 参考文献

- 1) 永田, 渡辺: 研磨ロボットのためのジョイスティック支援による力制御教示システム, 日本機械学会論文集 (C 編), Vol. 67, No. 655, p. 767-774 (2001)
- 2) 永田, 渡辺, 泉: 多軸制御用 CL データに基づく位置補償器を用いた産業用ロボットの微細制御, 精密工学会誌, Vol. 66, No. 3, p. 473-477 (2000)
- 3) F. Nagata, K. Watanabe, et al.: Flexible Finishing System Using Hyper Cutter Location Data, *Procs. of The 6th International Conference on Mechatronics Technology*, Kitakyushu, p. 218-223 (2002)
- 4) 楠本, 永田, 他4名: ロボットサンダーのためのファジィ補償を用いたインピーダンスモデル追従型制御法, 第4回日本ファジィ学会九州支部学術講演会予稿集, 北九州, p. 9-12 (2002)

電磁環境の改善に関する研究

アクティブ磁気シールド空間の形成に関する研究

古賀文隆*¹ 竹内信次郎*² 酒井福夫*³ 円福敬二*⁴

A Study on Improvement of Electromagnetic Environment

A Study on Formation of Magnetically Shielded Space Using Active Compensation

Fumitaka Koga, Shinjiro Takeuchi, Fukuo Sakai and Keiji Enpuku

低コスト、省資源で高性能な磁気シールドシステムを実現する有効な方法の一つとして、磁気シールドルーム内部に補償コイルを付帯させ、動的に侵入磁界を補償する内部アクティブ磁気シールドシステムが挙げられる。このシステムの実現のための内部補償コイルの適切な配置を導出することを目的として、実際の磁気シールドルームにおける磁界分布の状態を実測し、そのデータを基に有限要素法による数値計算モデルを作成して磁界解析を行った。その結果、内寸幅 2.1 m、奥行 2.3 m、高さ 2.1 m の磁気シールドルームに対して、2.06 m×2.26 m の長方形のループコイルを 1.1 m 間隔で配置すれば、高さ方向成分の磁界を良好に補償可能であることがわかった。

1 はじめに

病院に設置されているMRI装置や、脳磁図・心磁図等の極微弱な生体磁気を計測する磁気計測システムでは、電車の通行等によって生じる変動磁界の影響を受けやすく、診断画像に歪みが生じて画像解析精度が悪くなる。また、電子顕微鏡やEB（電子ビーム）描画装置でも同様に悪影響を受ける。そのためこれらの悪影響を除去するには磁氣的にシールドされた空間が必要となる。しかし、磁気遮蔽性能を上げるためにパーマロイ等の磁気遮蔽材を多量に用いて多層化するのみでは、重量、コストや省資源化の観点から問題がある。そこで、軽量、低コストで高い磁気遮蔽性能を実現するためにアクティブ磁気シールドシステムの研究が行われている¹⁻⁴⁾。これは、磁気シールドルームに補償コイルを付帯させ、磁気センサによる同ルームへの侵入磁界の測定値を補償コイルに帰還させて打ち消し磁界を発生させ、侵入磁界を動的にキャンセルすることで磁気遮蔽性能を向上させるものである。この補償コイルは、磁気シールドルーム外部¹⁻³⁾または内部⁴⁾に配置する方法が考えられるが、内部に配置する内部アクティブ磁気シールドシステムでは、コイルで発生した磁界が新たな磁気障害源にならず、またコイルに流す

電流が小さいため安定化が容易で省電力化できる等の利点があるが、これまで十分な研究開発は行われていない。

本稿では、共同研究機関に設置されている内寸幅2.1 m、奥行2.3 m、高さ2.1 mの磁気シールドルームにおいて磁界分布を実測するとともに、同形状の数値計算モデルを作成し、有限要素法を用いて内部磁界分布の解析を行った。更に、磁気シールドルームモデルに内部補償コイルを付加した状態で解析を行うことにより、ルーム内の中央部付近に一樣で低磁界な領域を形成するための適切な内部補償コイル配置の導出を行った。その結果、2.06 m×2.26 mの長方形のループコイルを1.1 m間隔で配置すれば、高さ方向成分の磁界を良好に補償可能であることがわかった。

2 磁気シールドルームの磁界分布測定

2-1 実験方法

磁界分布の実測を行った磁気シールドルームの主な仕様を表-1に示す。この磁気シールドルームに、図-1のように配置した磁界印加用コイルにより磁界を印加し、内部の磁界分布をフラックスゲート磁界セン

表-1 磁気シールドルームの仕様

磁気遮蔽材	パーマロイ
構造	2重
外側寸法	幅2.304 m 奥行2.504 m 高さ2.304 m 厚さ1.6 mm
内側寸法	幅2.100 m 奥行2.300 m 高さ2.100 m 厚さ2.0 mm

*1 機械電子研究所

*2 ユニテック(有)

*3 (株)エムティアイ

*4 九州大学大学院システム情報科学研究院

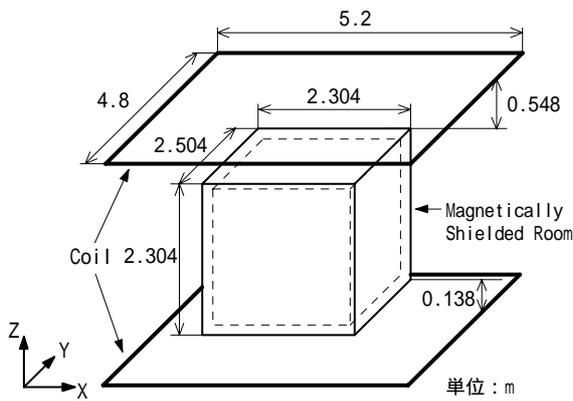


図 - 1 磁界印加用コイルの配置

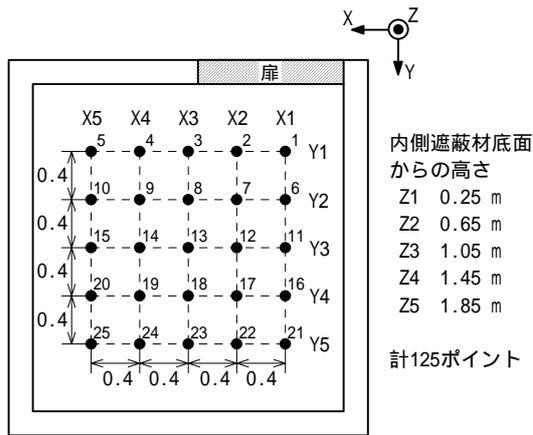


図 - 2 磁界（磁束密度）測定ポイント

サにより測定した。磁界印加用コイルの位置が上下非対称なのは、設置スペースの制限によるものである。印加する磁界の強さは、磁気シールドルーム内の中心点に相当する位置に、磁気シールドルームがないと仮定したときに生じる磁束密度の大きさとして定義した。測定ポイントは、図 - 2 に示す125ポイントとし、磁界センサを移動させながら1ポイントごとに磁束密度の測定を行った。

2 - 2 直流磁界の測定

磁気シールドルームに磁界印加用コイルにより0 +3 μT -3 μT 0の順で磁界を印加し、それぞれの状態で磁束密度を測定した。図 - 3 に印加磁界がゼロのときの磁気シールドルーム内部の磁束密度のz成分の分布を示す。図 - 3 の磁束密度が不均一に分布しているのは、磁気遮蔽材の磁化状態が場所により異なっていたり、磁気シールドルームが設置されている環境の地磁気が建築物の鉄骨や周辺の機材等の影響で一様性に欠けているためであると考えられる。図 - 4 に -3 μT の磁界印加時の磁束密度を基準とした、+3 μT の磁界印加時の磁束密度のz成分の差分を示す。図 - 4 で

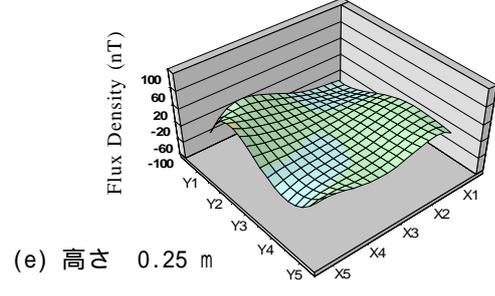
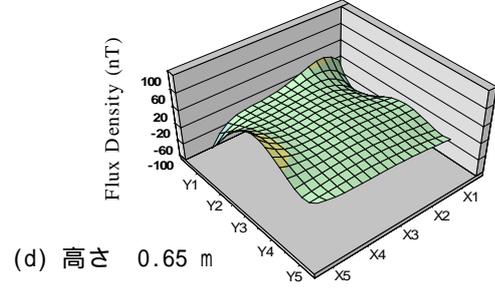
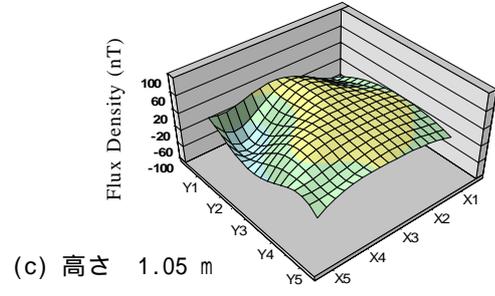
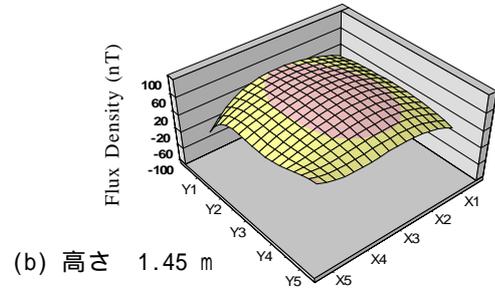
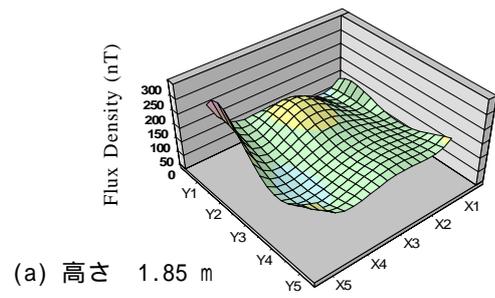


図 - 3 印加磁界ゼロのときの磁束密度のz成分の分布

は、磁束密度は図 - 2 に示したX3のラインとY3のラインを軸にほぼ対称な分布となっていた。図 - 3, 図 - 4 より、磁気シールドルーム内部の磁界（磁束密度）の初期値は不規則な分布であっても、その変動成分に関しては磁気シールドルームによって均等に減衰され

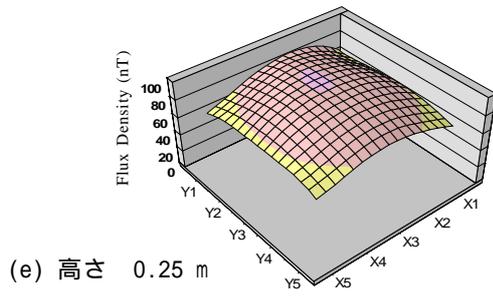
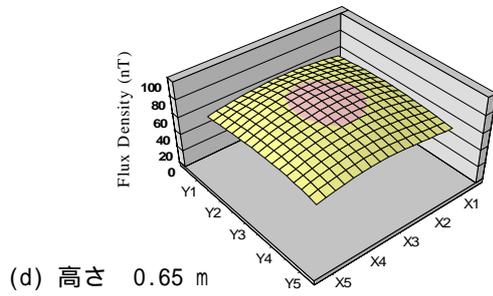
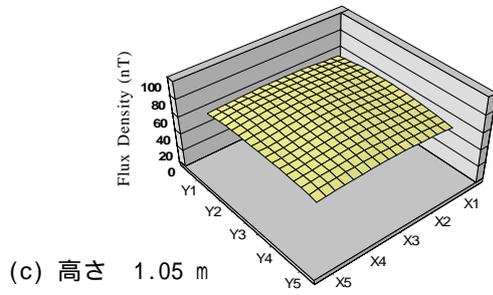
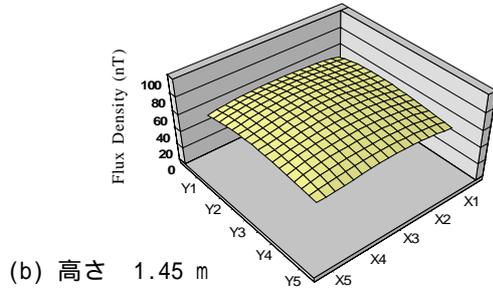
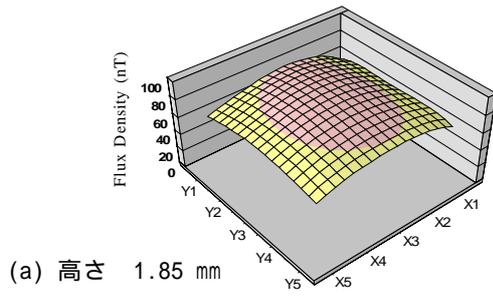


図 - 4 ±3 μT 印加時の磁束密度 z 成分の差分

ていることがわかる。したがってこの変動成分に対しては、内部に配置した単純な形状の補償コイルで打ち消すことが可能であると考えられる。

2-3 交流磁界の測定

磁気シールドルームに磁界印加用コイルにより振幅

3 μT, 周波数50 Hzの交流磁界を印加し, ロックインアンプを用いて磁束密度の50 Hz成分のみを測定した。図 - 5 に磁気シールドルーム内部における磁束密度のz成分の分布を示す。ただし, この図では磁束密度の振幅を示しており, 位相は考慮していない。磁束密度の大きさは, ±3 μTの直流磁界を印加したときより1桁程度小さかったが, 図 - 2 に示したポイント1 ~

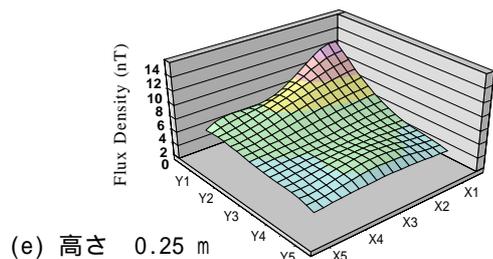
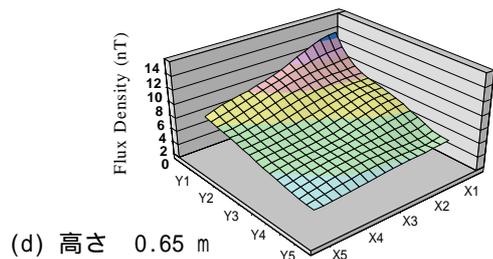
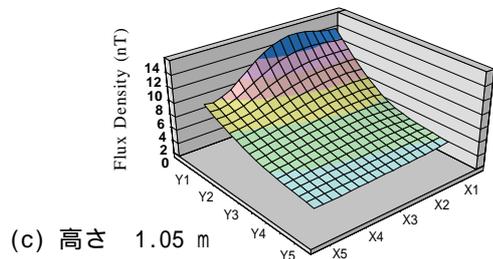
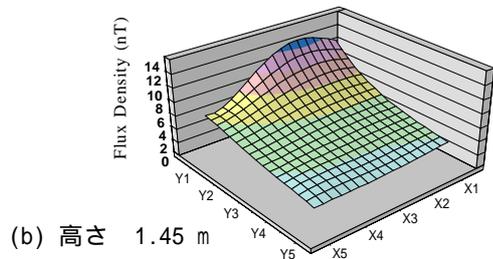
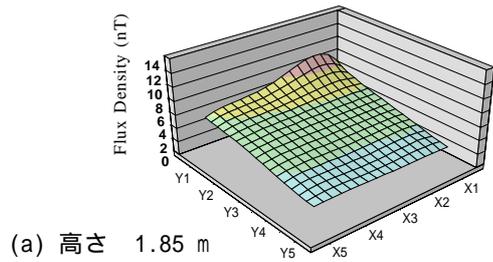


図 - 5 振幅 3 μT の 50 Hz 交流磁界印加時の磁束密度 z 成分の分布

3 近傍で大きくなる分布となっていた。直流磁界印加時に比べ全体的に磁束密度が小さいのは渦電流シールドの効果によるが、ポイント 1 ~ 3 近傍で磁束密度が大きくなったのは、磁気シールドルームの扉の存在のために部分的に壁面の電気抵抗が大きくなり渦電流シールドの効果が低減したことによると考えられる。

3 アクティブ磁気シールドルームの磁界数値解析

有限要素法を用いて、前述の磁気シールドルーム及び磁界印加用コイルと同形状の数値計算モデルを作成し、線形磁界解析を行った。2章の結果からもわかるように、交流磁界(50 Hz)より渦電流シールド効果の得られない直流磁界の方が磁気シールドルームに侵入する磁界のレベルが大きいことから、動的な補償は主に直流磁界から数Hz程度の低周波磁界に対して行うことを前提とし、ここでは静磁界解析を行った。

3-1 磁気シールドルームの磁界分布解析

数値解析は、図 - 6 に示す1/4モデルで行った。ただし、この図では空気部の要素は表示していない。また、磁界印加用コイルは1/4ではなく全体を表示している。2章の磁界分布測定実験での $\pm 3 \mu\text{T}$ の磁界印加と同条件となるように、磁界印加用コイルで $6 \mu\text{T}$ の磁界を発生させた状態とし、磁気遮蔽材の比透磁率の設定を変えることにより種々の条件下での計算を行った。図 - 7 は、磁気遮蔽材の比透磁率を20000としたときの磁気シールドルーム内部の磁束密度のz成分の分布の計算結果である。図 - 4 に示した実測値と比較し、レベル、分布ともに近い傾向を示す結果が得られた。

3-2 内部補償コイルの配置

内部補償コイルは、システム構成の単純さを優先し、

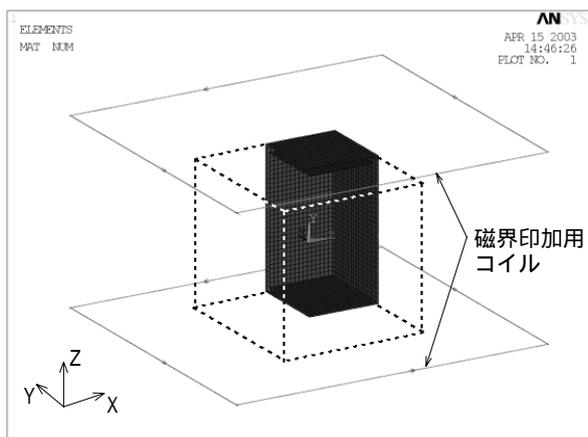


図 - 6 磁界解析用磁気シールドルームモデル

ループコイル 2 個構成として磁気シールド内に配置した。このときのモデルを図 - 8 に示す。この図でも空気部の要素は表示しておらず、補償コイルは1/4ではなく全体を表示している。コイルの寸法は、X方向2.06 m、Y方向2.26 mであり、内側の磁気遮蔽材から更に20 mm

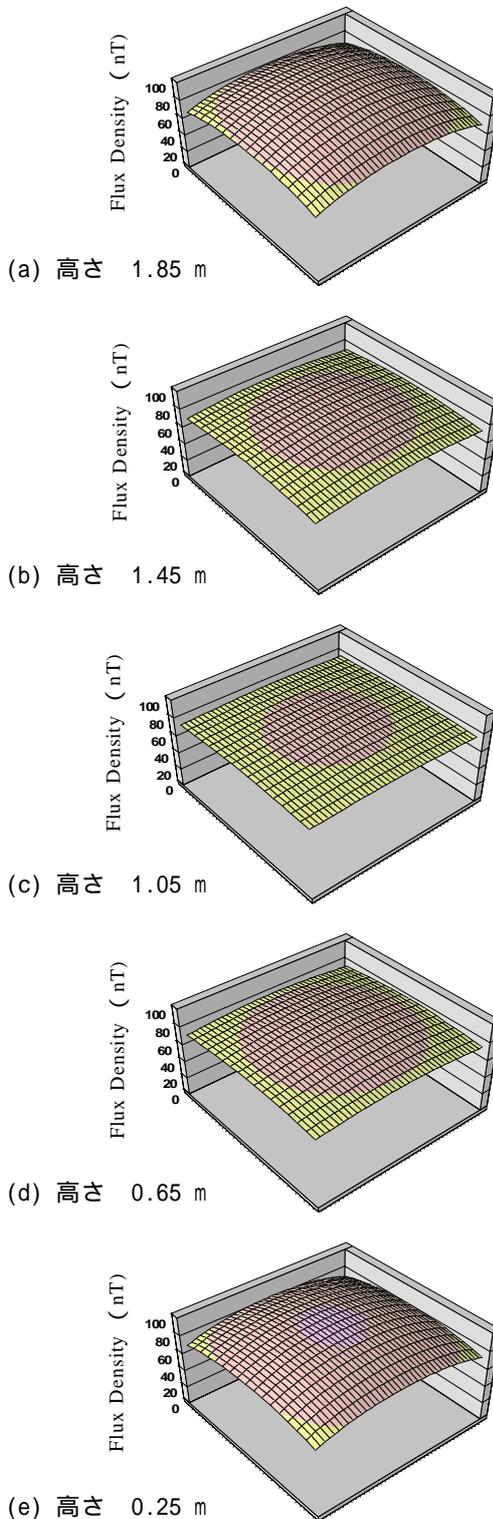


図 - 7 磁気シールドルーム内磁束密度 z 成分分布計算値

内側の位置に配置している。これは、実際の磁気シールドルームの内装の厚みを考慮したものである。磁気シールドルームに加える外部磁界は、磁界発生用コイルにより生じさせるのではなく一様なz成分の磁界とし、その磁束密度は6 μT とした。補償コイルの間隔を0.9, 1.0, 1.05, 1.1, 1.2, 1.3 mとした6通りについて磁束密度分布の計算を行った。このとき補償コイルに流す電流は、磁気シールドルーム内の中心点での磁束密度がほぼゼロ(1 pT以下)となるように設定した。

磁気シールドルーム内の中心点を原点と定義し、X, Y, Z各座標軸に沿った磁束密度のz成分の変化を示したのが図 - 9である。また、X, Y, Z軸上で磁束密度のz成分が、外部磁界(磁束密度)の1/10000である0.6 nT以下に収まる領域を補償コイルの間隔に対して表現したものを図 - 10に示す。図 - 9, 図 - 10より、ある大きさの磁束密度を設定し、その値以下の領域を有効な磁気シールド領域とみなす場合、着目する座標軸や設定する磁束密度の大きさにより、有効な磁気シールド領域を広く確保できる補償コイルの最適な間隔は異なることがわかる。ここでは、各方向に比較的バランスよく有効な磁気シールド領域を確保できているコイル間隔1.1 mを採用することとした。このときの磁束密度のz成分の分布の計算値を図 - 11に示す。

3-3 補償コイル間の干渉

実際のアクティブ磁気シールドシステムでは、x, y, zすべての成分の補償を行うために3組の直交させた補償コイルを用いる。そのため、例えば磁界のz成分を打ち消すためにz成分補償コイルによって発生される磁界にはx, y成分も含まれていることから、それがx, y成分の補償系に影響を与える可能性が考えられる。そ

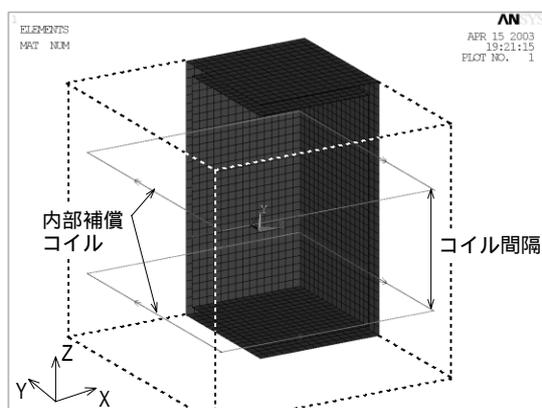


図 - 8 内部補償コイルを付加した磁界解析用磁気シールドルームモデル

ここで、図 - 8のモデルを用いて外部に一様磁界は印加せず、z成分補償コイルのみで磁界を発生させた状態で磁束密度分布の計算を行い、各成分の比較を行った。対称性から各座標軸上ではx, y成分の影響は見られないが、座標軸から遠ざかるにしたがって影響が大きくなると考えられる。そこで、直線X = Y = Zに沿った磁束密度の各成分の変化を図 - 12に示す。この図において、磁束密度の大きさは原点でのz成分の値で正規化

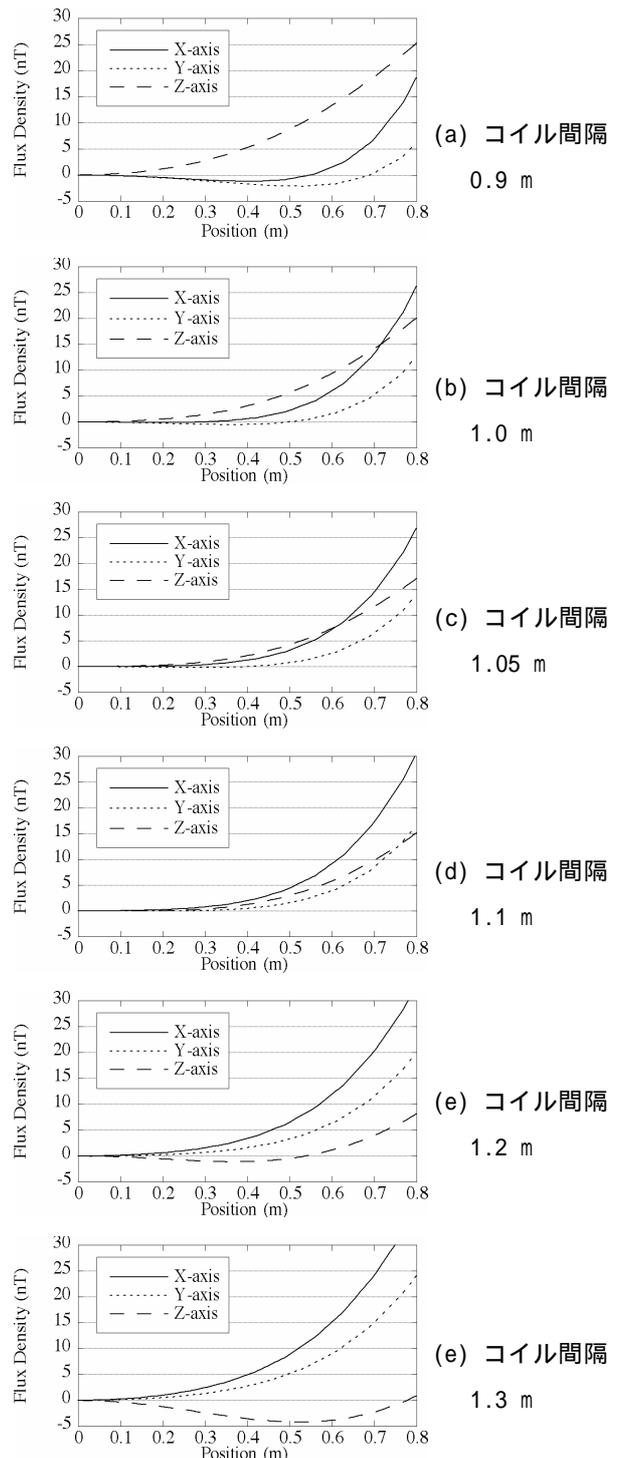


図 - 9 各座標軸に沿った磁束密度 z 成分の変化

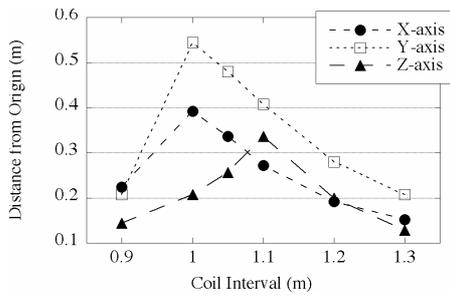


図 - 10 磁束密度のz成分が0.6 nT以下に収まる領域の各軸上での原点からの距離

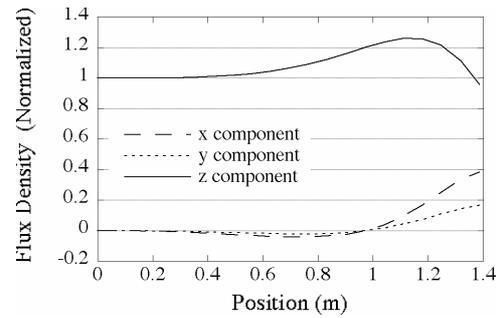


図 - 12 直線 $X = Y = Z$ に沿った磁束密度の各成分の変化

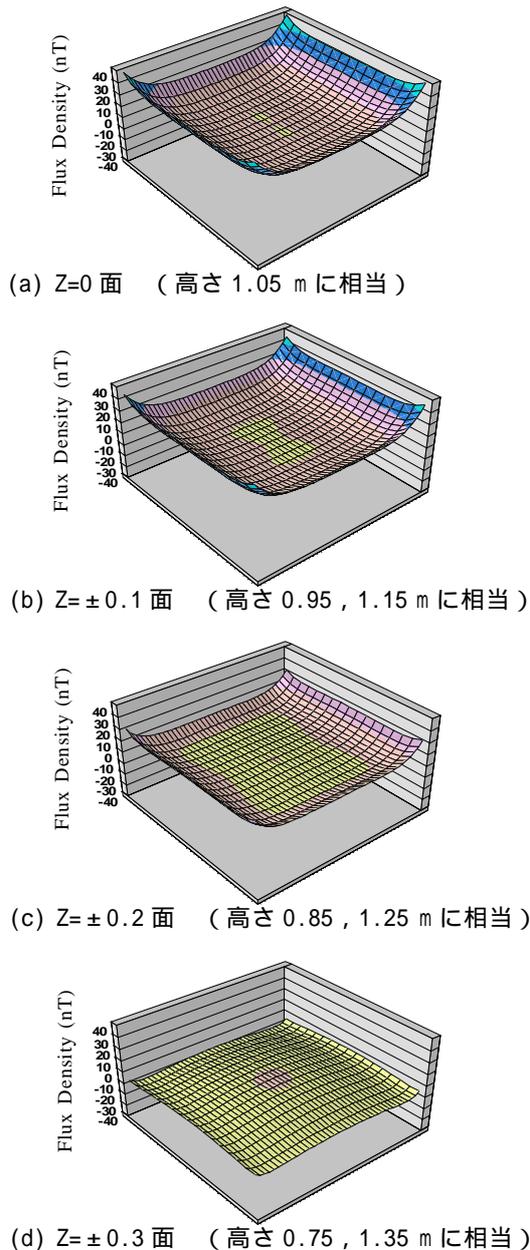


図 - 11 間隔 1.1 m のコイルで補償を行ったときの磁束密度 z 成分分布計算値

している。有効な磁気シールド領域として原点を中心とした半径0.3 m程度の球を考えると、図 - 12 におい

て原点からの距離0.3 m以下の範囲では磁束密度のx, y成分はz成分より2桁小さかった。以上のことから、同範囲では3方向3組の補償系が、互いに及ぼし合う影響は小さいと考えられる。

4 まとめ

磁気シールドルームにおける内部磁界分布の実測を行い、その磁界（磁束密度）の初期値是不規則な分布であっても、変動成分に関しては磁気シールドルームによって均等に減衰されていることが確認できた。

また、有限要素法を用いて、実測データを基に数値計算モデルを作成して線形静磁界解析を行い、内寸幅2.1 m、奥行2.3 m、高さ2.1 mの磁気シールドルームに対して、2.06 m×2.26 mの長方形のループコイルを1.1 m間隔で配置すれば、高さ方向成分の磁界を良好に補償可能であることがわかった。このとき、磁束密度の高さ方向成分が外部磁界（磁束密度）の1/10000以下になる領域は、原点（中心）から幅方向に±0.27 m、奥行き方向に±0.40 m、高さ方向に±0.33 mであった。

本研究の一部は、(財)福岡県産業・科学技術振興財団が実施する産学官共同研究開発事業の一環として行ったものである。

5 参考文献

- 1) 風見, 足立, 河合, 上原, 尾形, 賀戸: 日本生体磁気学会誌, Vol. 13, No. 1, p. 166 (2000)
- 2) 加藤, 山崎, 松葉, 炭: 日本生体磁気学会誌, Vol. 13, No. 1, p. 170 (2000)
- 3) 山崎, 藤原, 栗城, 林, 平田: 電気学会論文誌 A, Vol. 121, No. 12, p. 1085 (2001)
- 4) 竹内, 坂井, 酒井, 円福: 三島光産技報, No. 22, p. 26 (2001)

IT技術を用いたロボット制御に関する研究

IT化等がロボットの動特性に及ぼす影響に関する研究

末廣利範*¹ 西村圭一*¹

Study on Robot Control Applying Information Technology

The effect of the application on Robot Dynamics

Toshinori Suehiro and Keiichi Nishimura

近年、ロボットは従来の製造業向けを中心とした産業用にとどまらず、関連技術をさらに高度化させ、より幅広い分野へ応用展開することが期待されている。本研究では、高度化が進むIT技術を利用したロボット操作制御技術の開発を目指すに当たって、まず通信や演算処理等による遅れ及び人間による操作介入が過渡的にロボットの動特性に及ぼす影響についてそれぞれ検討を行った。その結果、遅れや人間の操作介入によって、ロボット動特性の変動や目標軌道への追従特性低下等が発生することが明らかとなった。

1 はじめに

わが国は、21世紀において、少子・高齢化や環境・エネルギーに代表される様々な厳しい社会問題を抱えるとともに、急速に進展するグローバル化の中で、産業競争力を維持しつつ活力にあふれた社会を実現することが強く望まれている。このような背景の下、ロボットは従来の製造業向けを中心とした産業用にとどまらず、関連技術をさらに高度化させ、災害救助や医療・福祉等をはじめとするより幅広い分野へ応用展開することが望まれている¹⁾。

このような背景の下、計算機・人間協調型のロボットなど、IT技術を活用したロボット制御に関する研究が活発化しつつある。IT技術を用いてロボットの制御を行う場合、デジタル機器を用いた演算処理や通信等を実施することから、制御性能の向上を図るためには、デジタル（離散時間）領域での制御系設計を考慮する必要がある。しかしながら、従来研究開発の多くは、演算や通信の高速化を前提とした連続時間領域での制御系設計に留まっているのが現状である²⁾。

また、最近ではヒューマノイドロボットに代表されるように自律型ロボットの研究開発が盛んであるが、完成度を高め非産業分野への実践的な応用を達成するには、技術的課題がまだ多々ある。従って、必要に応じて人間がロボットの運転操作を支援することにより、非産業分野へのロボット応用を図る研究開発は重要で

*1 機械電子研究所

ある。計算機と人間が協調しながらロボットを制御する場合、すなわち計算機による自動制御と人間による手動制御を交互に選択しながらロボットを運転する際、人間による操作を介入または中断することが、過渡的にロボットの動作性能に与える影響やその補償についての研究はまだまだ少ない³⁾。

本研究では、高度化が進むIT技術を利用したロボット操作制御技術の開発を目指すに当たって、無視できない要因である演算・通信時間遅れ及び人間による操作介入を取り上げ、まずそれぞれがロボット動作性能に及ぼす影響について検討を行った。

2 研究, 実験方法

2-1 演算時間及び通信時間遅れを考慮したモデルの導出

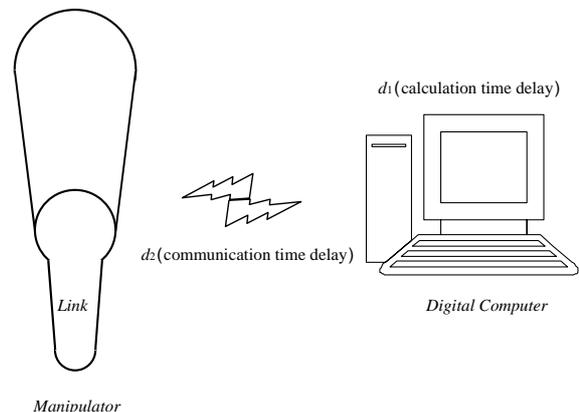


図 - 1 対象システム

ここでは、図 - 1 に示す計算機の演算処理遅れ d_1 及び通信時間遅れ d_2 を含む系を取り上げる。

一般に、 n 自由度多関節形マニピュレータの運動方程式は、次式で表せる。

$$M\{\theta(t), m_p\}\ddot{\theta}(t) + H\{\theta(t), \dot{\theta}(t), m_p\} + V\dot{\theta}(t) + G\{\theta(t), m_p\} = \tau(t) \quad \dots (1)$$

ここで、 $\theta(t) \in R^{n \times 1}$ は関節変位ベクトル、 $\tau(t) \in R^{n \times 1}$ は関節トルクベクトル、 $M \in R^{n \times n}$ は慣性行列、 $H \in R^{n \times 1}$ は遠心力およびコリオリ力を表すベクトル、 $V \in R^{n \times n}$ は粘性摩擦行列、 $G \in R^{n \times 1}$ は重力ベクトルである。また、 m_p は手先負荷の質量である。

(1) 式の M 、 H 、 V および G の変化は、サンプリング周期において一定であると仮定し、零次ホールドを前置して同式を離散化すると、次式を得る。

$$A(z^{-1})y(k) = z^{-1}B(z^{-1})\{Cmu(k) + f\} \quad \dots (2)$$

ここで、

$$A(z^{-1}) = (1 - z^{-1})^2 \quad \dots (3)$$

$$B(z^{-1}) = 1 + z^{-1} \quad \dots (4)$$

$$y(k) = \theta(k) \quad y(k) \in R^{n \times 1} \quad \dots (5)$$

$$C_M = 0.5T^2 M^{-1} \quad C_M \in R^{n \times n} \quad \dots (6)$$

$$f = -0.5T^2 M^{-1}(H + V + G) \quad f \in R^{n \times 1} \quad \dots (7)$$

である。ただし、 M は正則であり、 T はサンプリング周期、 k はサンプリング時点を表す。

なお、駆動部である直流サーボ系の動特性を含めたマニピュレータの運動方程式は、(1) 式と同形であることより、(2) 式では、制御入力をモータへの入力電圧 $u(k) \in R^{n \times 1}$ とした。

つぎに、演算処理時間遅れ d_1 と通信時間遅れ d_2 の総和を d とし、(2) 式にむだ時間を含めると、

$$A(z^{-1})y(k) = z^{-(d+1)}B(z^{-1})\{Cmu(k) + f\} \quad \dots (8)$$

$$d = d_1 + d_2 \quad \dots (9)$$

となる。ここでは、(8) 式を対象とする数式モデルとする。

2-2 人間及び計算機の操作介入について

2-2-1 実験装置

本節で制御対象として用いるロボット制御支援システムは、双腕型の7軸ソフトマニピュレータで、各軸(6軸)に対して指令を同時出力可能なジョイスティックを使用しバイラテラルマスタスレーブ制御方式の採用が可能である。また、シミュレータ内のモデルを用いたマニピュレータへの動作教示を行える。図 - 2

にそのシステム構成を示す。

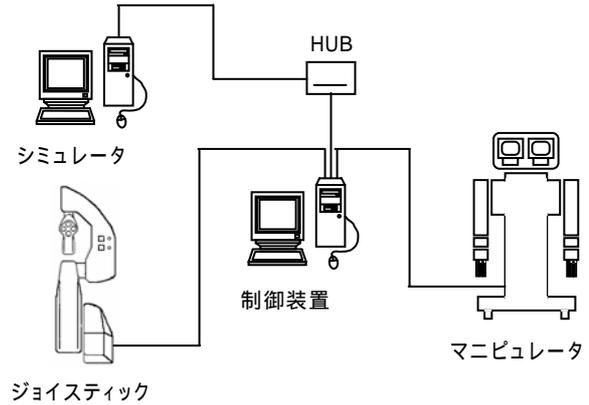


図 - 2 ロボット制御支援システム

2-2-2 操作器の選択

図 - 2 に示すマニピュレータの操作方法としては、シミュレータ内のロボットモデルを用いて各軸角度指令を制御用PCへ送る方式(自動制御)と、ジョイスティックから人間が与える操作量に応じ、マニピュレータの関節角を回転させる方式(手動制御)があり、どちらか一方を選択可能である。

本研究では、人間による操作介入がロボットの動作性能に及ぼす影響について検討することを主な目的としているため、まずその準備として、図 - 2 においてマニピュレータを自動制御している最中に、人間による操作を介入させ、介入中止後、再び自動制御へ復帰可能な操作環境を実現する必要がある。

そこで、ここではマニピュレータの操作器としてシミュレータおよびジョイスティックの双方が使用できるようシステムに変更を施した。

2-2-3 指令方式の変更

図 - 2 の従来システム仕様では、制御装置からマニピュレータへの操作指令は角度指令である。この角度指令に基づき、マニピュレータの各関節に設置されているモータを駆動する。従って、既存の制御装置は開ループ制御器となっているため、位置制御指令では、制御性能の向上を図ることは非常に困難である。

今後、制御性能の向上を図るためには、図 - 2 の制御装置を、目標指令と出力間の誤差に基づき制御アルゴリズム処理演算を行い、制御入力を算出するフィードバック制御器に変更する必要がある。

そこで、本研究では、制御装置からマニピュレータへの操作指令を角度から電流へ変更し、モータドライバを電流アンプとして使用することにより、図 - 2 の制御装置をフィードバック制御器として使用できるよう従来システムに変更を施した。

3 結果と考察

3-1 遅延が制御結果に及ぼす影響

前年度研究において開発した、可調整制御パラメータを導入し逐次演算調整することにより、ロバスタ(頑健)性を向上するロボットマニピュレータ制御系を図 - 3 に示す。

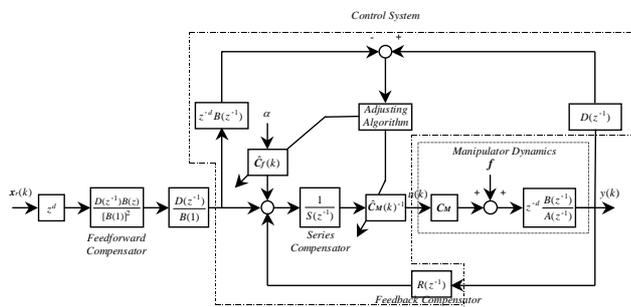


図 - 3 ロボットマニピュレータ制御系

図 - 3 において、 $T = 10\text{ms}$ 、 $d = 2$ とし、制御を開始し 2.8s 後に 100ms の遅延を挿入、すなわち、(8) 式において $d = 10$ とした場合の制御結果を図 - 4 に示す。

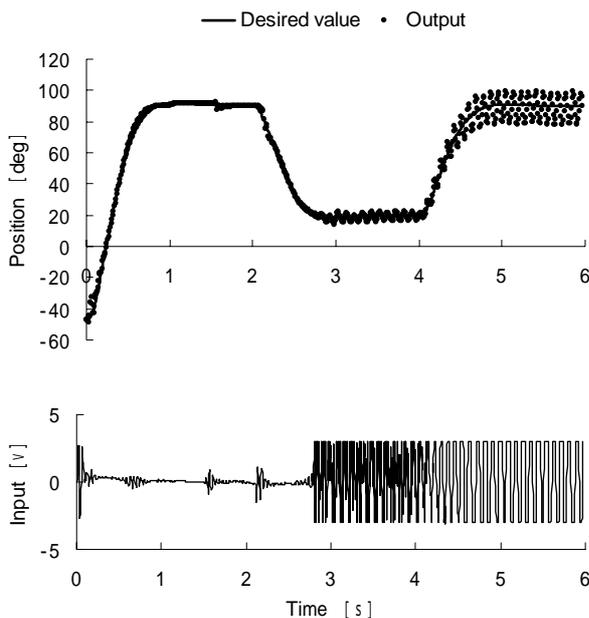


図 - 4 制御結果 (可調整制御パラメータ)

図 - 3 の制御系は、デジタル計算機が制御ゲインを逐次自動調整システムの変動に対して頑健な特徴を有しているが、図 4 から、遅延の影響により、本来の入出力特性が得られないため、制御補償器が収束せず、遅延挿入後、不安定化現象を生じていることがわかる。

つぎに、ロボットマニピュレータに関するパラメータ値は既知かつ一定とし、定値制御パラメータを用い制御系を設計した。 T 及び d はそれぞれ先の条件と同一とし、制御開始 2s 後に 100ms の遅延を挿入、すなわち $d = 10$ とした場合の制御結果を図 - 5 に示す。

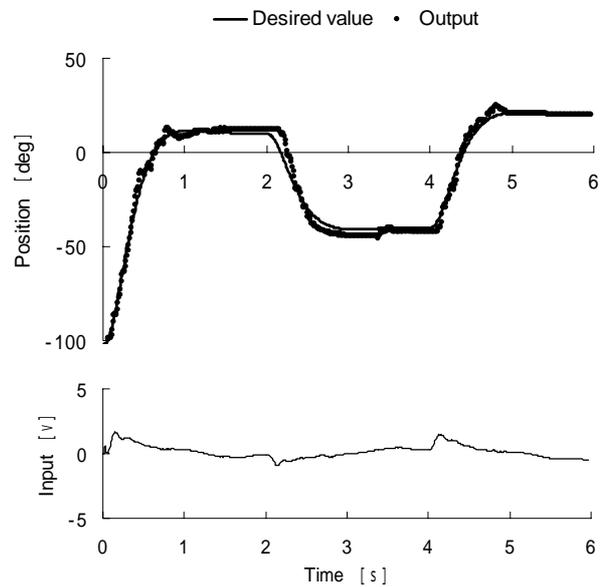


図 - 5 制御結果 (定値制御パラメータ)

パラメータ値は既知かつ一定という条件の下、制御系を設計しているため、安定性は確保されているが、遅延挿入後、出力の立ち上がりが遅れ、その補償に伴う行き過ぎが発生し、制御性能が低下していることがわかる。

3-2 人間及び計算機の操作介入について

3-2-1 操作器の選択

2-2-2 節に示したシステムへの変更を施した後、マニピュレータの第 1 軸 (肩関節) を 0deg と 135deg の間で繰り返し上下させる動作を自動制御により実行し、制御中にジョイスティックを用いて人間による操作 (手動制御) を介入させた場合の出

力結果及び指令値を図 - 6 に示す。

図 - 6 より、操作方式が手動制御に切り換わった直後と、手動制御を停止し自動制御に復帰した直後に出力が急に変化していることが分かる。また、装置仕様の制約から、ジョイスティックによる操作が無効となる場合がある。図 - 6 において、約 33s から 44s にかけてと 50s 以降で、ジョイスティックの指令がマニピュレータの出力に反映していないのはこの制約によるものである。

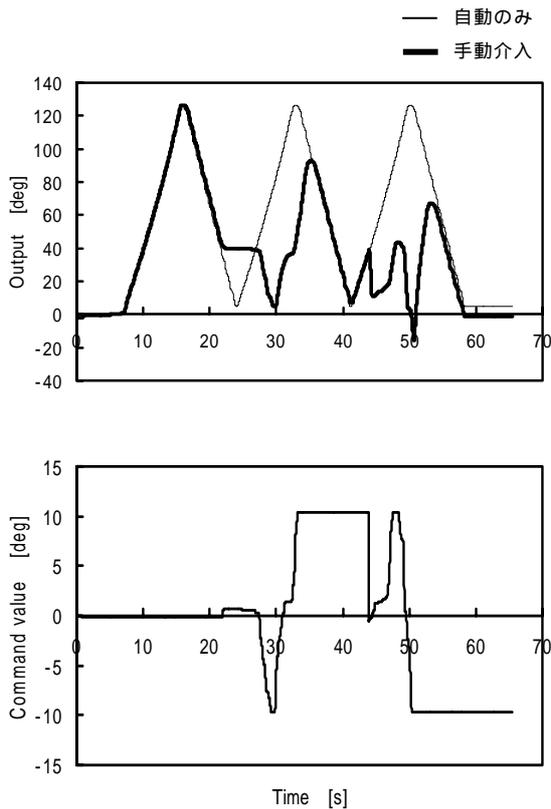


図 - 6 手動操作介入実験結果

3 - 2 - 2 指令方式の変更

2 - 2 - 3 節の変更を施した図 - 2 のシステムにおいて、PID制御及びP制御によるマニピュレータ制御実験を行った。それぞれの制御出力及び入力波形を図 - 7 および図 - 8 に示す。ここで、PID制御系の設計パラメータは $K_p = 132$, $T_i = 0.04375$, $T_d = 0.0109375$ とした。また、P制御系の設計パラメータについては、制御系が安定限界となるように $K_p = 220$ と選んだ。

図 - 8 では、制御系を安定限界に設定したため、図 - 7 と比較すると制御出力の定常状態において持続振動が発生していることが分かる。また、制御入

力についても同様のことが分かる。ただし、いずれの場合も ± 500 pulse の入力制限を設けている。

ここで、図 - 7 および図 - 8 は、自動制御のみによる結果であるが、人間による手動制御を途中で介入させ、その後再び自動制御に復帰する場合においても同様の現象を確認することができた。

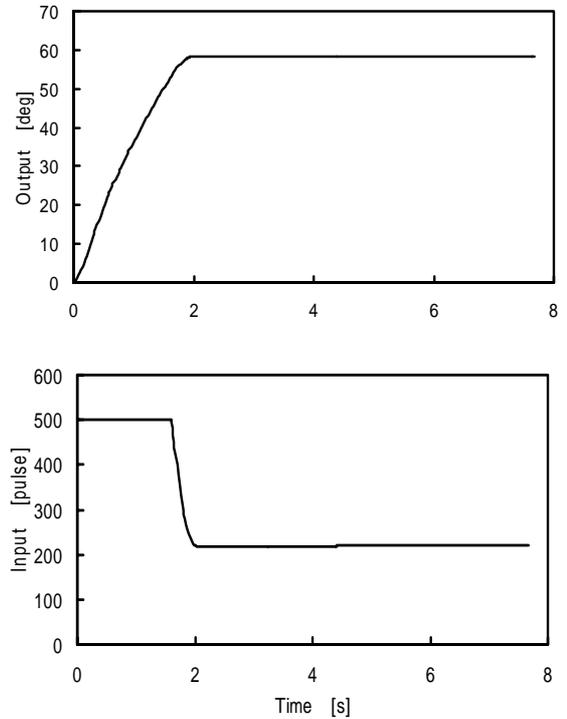


図 - 7 PID制御実験結果

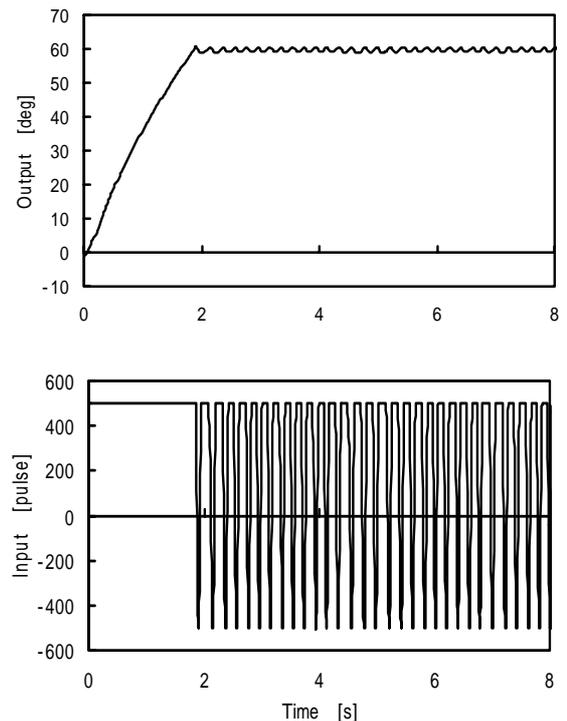


図 - 8 P 制御実験結果

4 まとめ

ここでは、高度化が進む I T 技術を利用したロボット操作制御技術の開発を目指すに当たって、まず通信や演算処理等による遅れ及び人間による操作介入が過渡的にロボットの動特性に及ぼす影響についてそれぞれ検討を行った。

その結果、数値シミュレーションや実験等を通して、演算処理・通信時間遅れによってロボットの運動特性が不安定化することや、目標軌道への追従特性が劣化することが検証された。また、人間及び計算機による操作指令の介入により、ロボットの動作特性が過渡的に変化したり、人間の操作指令に対する出力の追従特性が低下したりすることが明らかとなった。

今後は、前述のロボット動作性能低下を補償する制御手法について検討する予定である。

5 参考文献

- 1) 21 世紀を切り開く日本のロボット産業，日本ロボット工業界 (2001)
- 2) ロボットと I T，日経メカニカル，No.563，22/29 (2001)
- 3) 平井：Shared Autonomy の理論，日本ロボット学会誌，Vol.11，No.6，788/793 (1993)

レーザーによる導体の高速イメージセンシングに関する研究

レーザー計測によるプリント配線の微小欠陥検出装置の開発

林 宏充^{*1} 古賀 文隆^{*1}

Study of Magneto-Optic/Eddy Current Imaging of Electric Conductors

Development of Defect Detection Device for Printed Circuit by Using Laser Sensing

Hiromitsu Hayashi and Fumitaka Koga

電子機器の高機能化・小型化に伴い、プリント配線パターンは細密化・複雑化しており、検査が困難になっている。プリント配線の導通検査は接触法によって行われるが、二次不良などの問題が発生する。渦電流探傷法は非接触で導通検査を行えるためにプリント配線の欠陥検出として有用であるが、測定時間が長い。本研究では計測時間短縮のためレーザー計測を用い、効率良くプリント配線の導通検査方法を開発する。まず、導体上と絶縁体上に設置したファラデー結晶を用いて高周波磁界を測定することにより、提案方法の妥当性について検討した。その結果、本提案方法により導体周辺の渦電流による影響を測定することができた。また、CCDカメラにより高周波磁界中のファラデー結晶の観察を行い、高周波磁界を測定可能であることが確認された。従って、本提案方法がプリント配線の欠陥検出に有効であることが明らかとなった。

1 はじめに

現在、電子機器のほとんどにプリント配線が使われており、この欠陥は機器の不良に直結する。また、電子機器の高機能化、小型化に伴い、プリント配線のパターンは細密化・複雑化しており、検査が困難になってきている。現在、プリント配線の検査は、外観検査や接触による電氣的導通検査方法が用いられている。しかし、接触による電氣的導通検査では測定電極の接触到に伴う断線によって二次不良が発生する可能性がある上、特定端子間の導通を調べるため欠陥位置を特定できない。外観検査においては透明配線や視覚的に検査が厳しいクラック等への対応が困難である。

一方、プリント配線の断線検査方法の一つとして渦電流探傷法¹⁻³⁾が検討されている。この方法は非接触計測なので測定による断線が発生せず、基板上を走査して検査するので欠陥位置の特定が可能である。また、透明配線やクラック等、視覚的に厳しい断線に対しても電氣的に測定するため対応可能である。

しかしながら、渦電流探傷法は測定時間と測定精度にまだ問題点がある。この課題を改善するために本研究では、ファラデー結晶を用いたレーザー磁界計測法と

渦電流探傷法を組み合わせた MOI⁴⁻¹¹⁾と呼ばれる測定方法をプリント配線の欠陥検出に応用することを検討し、測定時間及び測定精度を改善に取り組む。

2 研究, 実験方法

2-1 実験装置

導体近傍磁界の測定実験装置の写真を図 - 1 に示す。実験装置は、光源として波長 1310nm のレーザー、ファラデー結晶として Bi:YIG、検光子として偏光ビームスプリッター、及び磁界発生コイルとフォトダイオードを用いて構成した。ファラデー結晶には透過率に対して高いヴェルデ定数を示す希土類鉄ガーネットの Bi:YIG¹²⁻¹⁷⁾を用いた。

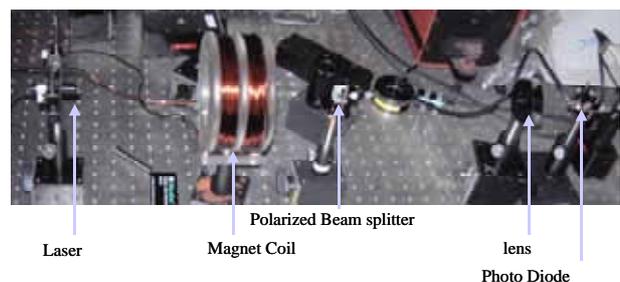


図 - 1 導体近傍磁界の測定実験装置の写真

* 1 機械電子研究所

ファラデー結晶である Bi-YIG にレーザー光等の直線偏光を入射すると、磁界が十分に小さな範囲では Bi-YIG に加わる磁界の強さに比例して偏光角が回転する。また、ファラデー回転角（Bi-YIG によって回転した偏光角）が十分に小さい範囲において、レーザー光の偏光角と検光子の偏光角を $45[\text{deg}]$ 傾けることにより、検光子を透過した光はファラデー回転角に比例した出力を示す。以上のことから、フォトダイオードの出力は Bi-YIG に加わっている磁界に比例した出力を示すので、磁界を測定することができる。

2-2 導体近傍磁界測定の高周波数特性

プリント配線上に設置するファラデー結晶によってプリント配線上の磁界分布を測定する。まず、図-2 に示す配置で導体近傍の渦電流に起因し発生した磁界の高周波数特性を Bi-YIG 結晶を用いて測定することにより、本提案測定法の妥当性について検討した。

2-3 CCDカメラによる高周波磁界測定

CCD カメラによって高周波磁界分布を測定するために、高周波磁界を Bi-YIG に加えた時のレーザー出力を CCD カメラで観測した。測定装置の光学配置を図-3、装置写真を図-4 にそれぞれ示す。レーザー光を Bi-YIG で $250\mu\text{m}$ 径のスポットに集光し、検光子を透過させた後の出力を CCD カメラで観測した。Bi-YIG には 3.4mT の磁界を高周波数 1kHz で印可した。磁界による偏光の回転が CCD カメラの取り込みレートに対して非常に早いので、検光子を入射レーザーに対してクロスニコルに配置しレーザー光を取り込んだ。

3 結果と考察

3-1 導体近傍磁界測定の高周波数特性

2mT の磁界を $10\text{Hz} \sim 5\text{kHz}$ の範囲でアクリルと銅に対して加えた場合の、測定結果を図-5 に示す。同図より、銅上の磁界が 1kHz 程度から渦電流によって減衰していることが確認された。この結果と銅の表皮効果と磁界高周波数間の特性¹⁸⁾から、厚さ $100\mu\text{m}$ の導体に対する測定には 400kHz 程度の高周波磁界を用いる必要がある。

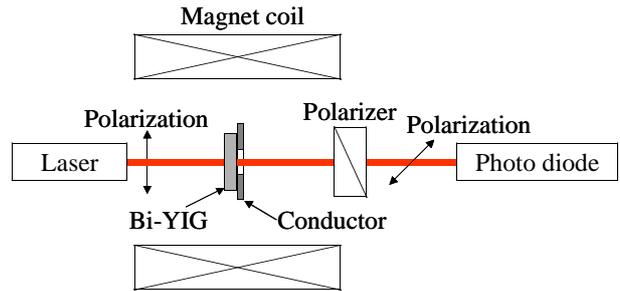


図-2 導体近傍磁界の測定配置図

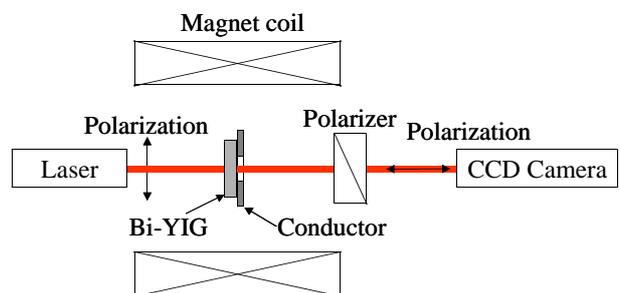


図-3 レーザと CCD カメラによる高周波磁界測定配置図

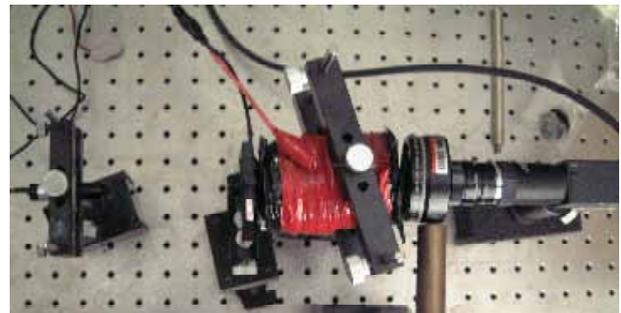


図-4 レーザと CCD カメラによる高周波磁界測定装置の写真

3 - 2 CCDカメラによる高周波磁界測定

2 - 3の実験に基づき, CCD カメラによる高周波磁界の測定を行い, 導体の高速イメージングの可能性について検討する。図 - 6 にレーザと CCD カメラによる高周波磁界(1kHz)の測定結果を示す。高周波磁界を加えた場合, 図 - 6 の(a)に示す約 250 μm 径の発光部が観測された。磁界加えない時は, 図 - 6 の(b)に示すように発光部が現れなくなる。磁界をオンオフすると瞬時に図 - 6 (a)と(b)に示す現象が観測され, オンライン計測への可能性が期待される。

4 まとめ

ここでは, レーザとファラデー結晶を用いた磁界計測法と導体の渦電流を利用した渦電流探傷法を組み合わせることによって, 高速で高精度のプリント配線の欠陥検出を非接触で行う方法について検討を行った。まず, 導体上と絶縁体上に設置したファラデー結晶とレーザ光源を用いて高周波磁界を測定する。レーザ計測によって導体近傍の渦電流測定を行い, 提案計測方法の妥当性について調べた。レーザ計測による磁界測定時の周波数特性を調べることによって, 導体周辺の渦電流による影響を測定することができた。また, CCD カメラを用いて高周波磁界を測定することにより, 導体の高速イメージングの可能性についても検討を行った。その結果, 250 μm 径の微小領域において磁界の有無に応じた明暗現象が観測された。今後, この特性を活用したオンライン計測について検討する予定である。

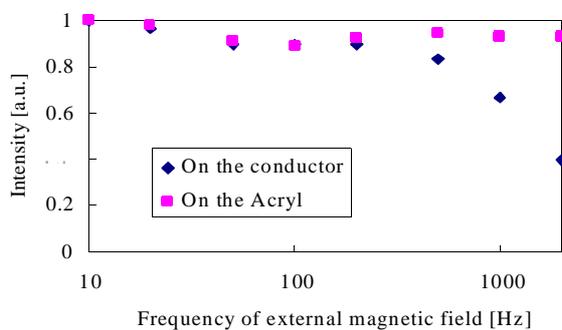


図 - 5 導体近傍磁界測定時の周波数特性



(a)磁界印可時

(b)磁界を加えていない時

図 - 6 レーザと CCD カメラによる高周波磁界測定結果

5 参考文献

- (1) 藤城 久, 山田外史, 岩原正吉: 日本応用磁気学会誌, Vol.22, NO.4-2, p.853-856(1998)
- (2)宮腰貴久, ダリウス・カスプラザック, 山田外史, 岩原正吉: 日本応用磁気学会誌, Vol.23, No.4-2, p.1613-1616(1999)
- (3)古賀文隆: 福岡県工業技術センター研究報告, No.12, p.76-81(2001)
- (4)Gerald L. Fitzpatrick: Review of Progress in Quantitative Nondestructive Evaluation, Vol.4B, p. 807-818 (1985)
- (5)Gerald L. Fitzpatrick, David K. Thome: Paper Summaries. ASNT Conference and Quality Testing Show (American Society for Nondestructive Testing), p.148-150 (1990)
- (6)W. C. L. Shih, G. L. Fitzpatrick, S. Simms, K. McLaughlin: The magneto-optic imager: a 2001 perspective, Vol.43, No.12 p.814-817(2001)
- (7)Gerald L. Fitzpatrick: 11th World Conference on Nondestructive Testing, Vol. 1, p. 186-191(1985)
- (8)D. K. Thome, G. L. Fitzpatrick, R. L. Skaugset: Paper Summaries. ASNT Conference and Quality Testing Show (American Society for Nondestructive Testing), p. 175-177 (1996)
- (9)Gerald L. Fitzpatrick, David K. Thome, Richard L. Skaugset, Eric Y. C. Shih, William C. L. Shih: Materials Evaluation, p. 1402-1407 (1993)
- (10)Sandra Simms: Materials Evaluation, p. 529-534 (1993)
- (11)李 鎮伊, ドリアン ミンコフ, 庄子 哲雄, 日本機械学会東北支部総会・講演会講演論文集, p. 95-96 (1997)

- (12)林 宏充, 岩佐宗八, 植田清隆, 寺園完一, 竹下 博人, 樋口貞雄: 九州大学大学院総合理工学報告, Vol.23, No. 1, p.1-7 (2001)
- (13)Hiromitsu Hayashi, Souhachi Iwasa, Nilesh J. Vasa, Tsuyoshi Yoshitake, Kiyotaka Ueda, Shigeru Yokoyama, Sadao HiguchiHirohito Takeshita, Michitaka Nakahara: Applied Surface Science, 197-198, p.463-466(2002)
- (14)Hiromitsu Hayashi, Souhachi Iwasa, Nilesh J. Vasa, Tsuyoshi Yoshitake, Kiyotaka Ueda, Shigeru Yokoyama, Sadao Higuchi: Jpn. J. Appl. Phys. Vol. 41 , Part 1, No. 1, p. 410-411(2002)
- (15)樋口貞雄, 植田清隆, 林 宏充, 栗林英行: 電気学会論文誌 A, Vol. 121-A, No. 6, p.541-546(2001)
- (16)奥田高士, 腰塚直己, 林 邦彦, 高橋隆雄, 小谷英之, 山元 洋: 日本応用磁気学会誌, Vol. 11, No. 2, p.147-152 (1987)
- (17)H. Hayashi, S. Iwasa, N. J. Vasa, T. Yoshitake, K. Ueda, S. Yokoyama, S. Higuchi: Proceedings of the 10th International Symposium on Laser-Aided Plasma Diagnostics, p. 259-264 (2001)
- (18)松森徳衛編著 :「電磁気学例題論文集」,p.262-264, コロナ社(1977)

相関解析と誤差最小化に基づくシステム同定法における3段階モデル推定法

増野 貢*1

Three-Step Model Estimation Method in System Identification Based on Correlation Analysis and Error Minimization

Mitsuki MASHINO

有色出力雑音のある入出力データから伝達関数モデルを推定する問題について、相関解析と誤差最小化の観点から再検討し、従来法の理論的特長を包含する新しい同定法を開発した。まず、モデル次数が既知の場合、真の次数より高い次数の下で入出力相関情報を拡大して求めたオーバーパラメータ推定値を、出力雑音の自己相関関数推定値を用いて、真の次数の下でパラメータ圧縮変換すると、最小分散推定量に相当するバイアス補償最小2乗推定値を得るという3段階パラメータ推定法を提案した。つぎに、モデル次数が未知の場合には、上記の3段階推定法の枠組みを保持し、プロセス出力とモデル出力間誤差の自己相関関数の最小化に基づくモデル適合度の評価法を導入して、3段階モデル推定アルゴリズムを開発した。その理論的妥当性と有用性はシミュレーションと実データ実験により確認した。

1 はじめに

化学や鉄鋼プラントなどにおけるいろいろなプロセス出力、例えば温度、流量、液面などの制御にはPID制御が従来からよく用いられている¹⁾。PID制御だけでは対応できない場面では、プロセスの数式モデルをベースにした先進的なモデルベース制御もよく用いられるようになった。したがって、高精度な数式モデルを求めることは重要であるが、実際のシステムは複雑であるため、物理・化学法則のみから理論的に導くことは困難である。そこで例えば、ステップ応答試験などの古典的な推定法が用いられるが、観測雑音により推定精度はあまり期待できない¹⁾。そこで、入力データと観測雑音を含む出力データから数式モデルを推定する統計的システム同定法が考えられてきた¹⁻⁴⁾。しかしながら、制御系設計に必要な簡潔なモデル構造の下で推定精度の高い数式モデルを求めるという課題については、決定的な手法は確立されていない。

本研究の目標は、最も基本的な単一入出力線形離散時間システムを対象に、理論的な裏付けのある実用的な同定法を新たに開発することである。出力雑音の下での同定法についてはすでに完成済みとみなされていたが、本研究では相関解析と誤差最小化の点から再検討を行い、従来から提案されてきた手法の理論特長を包含する3段階モデル推定法を開発した⁵⁾。まず、モデル次数が既知の場合、真の次数より高い次数の下で入出力相関情報を拡大して求めたオーバーパラメータ推定値を、出力雑

音の自己相関関数の推定値を用いて、真の次数の下にパラメータ圧縮変換すると、最小分散推定量に相当するバイアス補償最小2乗推定値を得るという3段階パラメータ推定法を提案した。パラメータ圧縮変換式は高次数モデル出力と真のモデル出力間の平均2乗誤差(MSE)の最小化に基づくモデル変換によって得るものであり、パラメータ推定値の精度向上ができる。つぎに、実際のモデル次数が未知の場合には、3段階パラメータ推定法の枠組みを保持し、プロセス出力とモデル出力間誤差の自己相関関数の最小化に基づくモデル適合度の評価法を導入して、3段階モデル推定アルゴリズムを開発した。その理論的妥当性と有用性はシミュレーションと実データ実験により確認した。

2 問題の設定

連続動作する対象でも、コンピュータによるデジタル処理を前提とすることが多いので、離散値システムを取り上げる。ここでは、最も基本的な単一入出力線形離散値システムを扱う。 k 時点でのプロセス出力を x_k 、そして観測出力を y_k とすると

$$y_k = x_k + v_k \quad (1)$$

である。ここで、 v_k は有色な出力観測雑音を表す。プロセス出力 x_k と入力 u_k の因果関係は次の差分方程式を満たすものとする。

$$x_k = \sum_{i=1}^{\nu} \alpha_i x_{k-i} + \sum_{i=0}^{\mu} \beta_i u_{k-i-\delta} \quad (\nu \geq \mu) \quad (2)$$

δ (0 または自然数) は時間遅れであり、 x_k は u_k に対して δ の遅れがあるものとする。 u_k, x_k および v_k はすべて定常エルゴート性¹⁾ を満足するものとする。

*1 機械電子研究所

u_k と x_k の入出力関係はプロセス伝達関数

$$G(q^{-1}) = \frac{q^{-\delta} \cdot B(q^{-1})}{1 - A(q^{-1})} \quad (3)$$

で与えられる。ここで

$$1 - A(q^{-1}) = 1 - \sum_{i=1}^{\nu} \alpha_i q^{-i}, \quad B(q^{-1}) = \sum_{i=0}^{\mu} \beta_i q^{-i}$$

である。 q^{-1} は後向きシフトオペレータであり、 $q^{-1}u_k = u_{k-1}$ を示す。 $G(q^{-1})$ は安定かつ最小位相推移系、つまり $G(q^{-1})$ の極および零点は複素 q 平面上の単位円内にあるものとする。また、 $G(q^{-1})$ の分母の次数 ν (自然数)と分子の次数 μ (0または自然数)からなる組を次数 (ν, μ) で示す。時間遅れ δ と次数 (ν, μ) をまとめてプロセス構造 $(\delta; \nu, \mu)$ とする。伝達関数 $G(q^{-1})$ を用いて、(1)式を表すと

$$y_k = G(q^{-1})u_k + v_k \quad (1)'$$

となり、図-1のように図示できる。

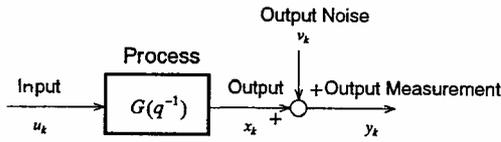


図-1 出力観測雑音のあるシステム

有色な出力雑音 v_k とプロセス入力 u_k は以下の一般的な条件を満たすものとする。つまり

$$\left. \begin{aligned} E[u_j v_k] &= 0 \\ E[x_j v_k] &= 0 \end{aligned} \right\} \quad (\text{for all } j, k) \quad (4)$$

のように入力 u_k および x_k とも無相関と仮定する。 $E[\cdot]$ は期待値を示す。

さらに、入出力の相互相関関数 $\phi_{uy}(l)$ および出力の自己相関関数 $\phi_y(l)$ を次式で定義する。

$$\left. \begin{aligned} \phi_{uy}(l) &= E[u_{k-l} y_k] \\ \phi_y(l) &= E[y_{k-l} y_k] \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

ここで、 l は相関時間(ラグ)であり0または自然数である。また、 u_k と y_k が定常なので、以下の性質をもつ。

$$\left. \begin{aligned} \phi_{uy}(l) &= \phi_{yu}(-l) \\ \phi_y(l) &= \phi_y(-l) \\ \Phi_{uy}^T(l) &= \Phi_{yu}(-l) \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

$\Phi_{uy}(l)$ は相関行列を示す(本章の最終段落に要素表示)。

さらに、(4)式の条件より次式も成り立つ。

$$\left. \begin{aligned} \phi_{uy}(l) &= \phi_{ux}(l) \\ \phi_y(l) &= \phi_x(l) + \phi_v(l) \end{aligned} \right\} \quad (7)$$

ここで、 $\phi_v(l)$ は v_k の自己相関関数である。

エルゴート性の仮定の下で、相関関数 $\phi_u(l)$ 、 $\phi_{uy}(l)$ 、 $\phi_y(l)$ は入出力データから時間平均として推定できる。例えば

$$\hat{\phi}_{uy}(l) = \frac{1}{N} \sum_{k=1}^N u_{k-l} y_k \quad (8)$$

である。 N はデータ数である。 $\hat{\phi}_{uy}(l)$ 、 $\hat{\phi}_u(l)$ および $\hat{\phi}_y(l)$ のことを、まとめてラグ l についての入出力相関関数、その集合を入出力相関情報と呼ぶことにする。ここで、“ $\hat{\cdot}$ ”は推定値であることを示す。

問題は、(1)~(8)式の前提条件の下で、「入出力データの集積 $\{u_k, y_k\}$ ($k = 1, \dots, N$)からプロセス伝達関数 $G(q^{-1})$ のパラメータ (α_i, β_i) と構造 $(\delta; \nu, \mu)$ を推定すること」である。この一般的な問題に対して、本研究では「相関解析と誤差の最小化の観点から検討し、理論的裏付けがあり実用性を考慮した同定法を新たに開発すること」である。

なお、次章以降用いる相関行列と相関ベクトルについての表記法を記す：Toeplitzタイプで表される $(m+1) \times (n+1)$ の相互相関行列 $\Phi_{uy}(l)$ を以下のように定義する。

$$\Phi_{uy}(l) = \begin{bmatrix} \phi_{uy}(l) & \phi_{uy}(l-1) & \cdots & \phi_{uy}(l-n) \\ \phi_{uy}(l+1) & \phi_{uy}(l) & \cdots & \phi_{uy}(l+1-n) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \phi_{uy}(l+m) & \phi_{uy}(l+m-1) & \cdots & \phi_{uy}(l+m-n) \end{bmatrix}$$

とくに、 $n = m$ のとき $\Phi_{uy}(l)$ は $(n+1) \times (n+1)$ 次元のToeplitz行列になる。さらに記述の簡単化のため $\Phi_{uy}(0)$ 、 $\phi_{uu}(l)$ および $\Phi_{uu}(l)$ をそれぞれ Φ_{uy} 、 $\phi_u(l)$ および $\Phi_u(l)$ と記す。 $(m+1)$ 次元の相関ベクトル $\phi_{uy}(l)$ は以下のように定義する。

$$\phi_{uy}(l) = [\phi_{uy}(l), \phi_{uy}(l+1), \dots, \phi_{uy}(l+m)]^T$$

記述の簡単化のため、 $\phi_{uy} = \phi_{uy}(0)$ 、 $\phi_y(l) = \phi_{yy}(l)$ および $\phi_y = \phi_y(0)$ とする。

3 3段階パラメータ推定法

2つのモデルを考える。1つは真の構造 $(\delta; \nu, \mu)$ をもつモデル2であり、他は真の次数 (ν, μ) より高めの次数 $((n = \nu, m = \mu)$ を除く $(n \geq \nu, m \geq \mu + (\delta - d))$)からなる構造 $(d; n, m)$ をもつ高次数モデル(モデル1)である。ここで、モデル1の時間遅れ d は $d \leq \delta$ とする。高次数の及ぼす直感的意味は、Toeplitzタイプで表される入出力相関行列の構成要素である入出力相関情報を拡大させることである⁵⁾。

プロセス出力 x_k の1段予測値であるモデル1出力

$$x_k^o = \sum_{i=1}^n a_i^o x_{k-i} + \sum_{i=0}^m b_i^o u_{k-i-d} \quad (9)$$

におけるパラメータベクトルは以下のように定義される。

$$\begin{bmatrix} \hat{a}_n^o \\ \hat{b}_m^o \end{bmatrix} = [a_1^o, a_2^o, \dots, a_n^o, b_0^o, b_1^o, \dots, b_m^o]^T \quad \times \begin{bmatrix} \hat{\Phi}_y - \hat{\Phi}_v & \hat{\Phi}_{uy}^T(d-1) \\ \hat{\Phi}_{uy}(\delta-1) & \hat{\Phi}_u(\delta-d) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{a}_n^o \\ \hat{b}_m^o \end{bmatrix} \quad (13)$$

一方、モデル2出力

$$x_k^t = \sum_{i=1}^{\nu} a_i x_{k-i} + \sum_{i=0}^{\mu} b_i u_{k-i-\delta} \quad (10)$$

におけるパラメータベクトルは以下である。

$$\begin{bmatrix} a_\nu \\ b_\mu \end{bmatrix} = [a_1, a_2, \dots, a_\nu, b_0, b_1, \dots, b_\mu]^T$$

最終的に (a_ν, b_μ) の推定精度の向上が可能な3段階パラメータ推定法を以下に示す。

(i) 第1段階：パラメータ推定の初期推定⁶⁾

モデル1-構造 (d, n, m) の下で、プロセス出力に基づく補助変数(IV)法(相関法)を用いることによって、オーバーパラメータ推定値

$$\begin{bmatrix} \hat{a}_n^o \\ \hat{b}_m^o \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \hat{\Phi}_{uy}(d-1) & \hat{\Phi}_u \end{bmatrix}^{-1} \hat{\Phi}_{uy}(d) \quad (11)$$

が得られる。ここで、 $\hat{\Phi}_{uy}(d-1)$ は $(n+m+1) \times n$ 次元、 $\hat{\Phi}_u$ は $(n+m+1) \times (m+1)$ 次元の相関行列、 $\hat{\Phi}_{uy}$ は $(n+m+1)$ 次元の相関ベクトルである。

(ii) 第2段階：出力雑音の自己相関関数の推定⁵⁾

モデル1-構造 (d, n, m) の下で、出力雑音の自己相関関数の推定値

$$\hat{\phi}_v = [\hat{\phi}_v(0), \hat{\phi}_v(1), \dots, \hat{\phi}_v(n)]^T$$

が次式によって、第1段階の \hat{a}_n^o と \hat{b}_m^o から、求められる。

$$\hat{\phi}_v = \hat{\phi}_y + \Gamma_{a^o}^{-1} \hat{\Phi}_{uy}^T(d) \hat{b}_m^o \quad (12)$$

ここで、 $\hat{\Phi}_{uy}(d)$ は $(m+1) \times (n+1)$ 次元の相関行列、および $\hat{\phi}_y$ は $(n+1)$ 次元の相関ベクトルであり

$$\Gamma_{a^o} = \begin{bmatrix} \hat{a}_0^o & 0 & \dots & 0 \\ \hat{a}_1^o & \hat{a}_0^o & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ \hat{a}_{n-1}^o & \hat{a}_{n-2}^o & \dots & 0 \\ \hat{a}_n^o & \hat{a}_{n-1}^o & \dots & \hat{a}_0^o \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 0 & \hat{a}_1^o & \dots & \hat{a}_{n-1}^o & \hat{a}_n^o \\ 0 & \hat{a}_2^o & \dots & \hat{a}_n^o & 0 \\ \vdots & \vdots & \vdots & \vdots & \vdots \\ 0 & \hat{a}_n^o & \dots & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \dots & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

は $(n+1) \times (n+1)$ なる行列であり、 $\hat{a}_0^o = -1$ と記している。なお、第1段階の $(\hat{a}_n^o, \hat{b}_m^o)$ に基づく伝達関数の推定値 $\hat{G}^o(q^{-1})$ が不安定であれば、 $\hat{\phi}_v(l)$ は発散する。

(iii) 第3段階：パラメータ圧縮変換⁵⁾

第1段階で求めたオーバーパラメータ推定値 $(\hat{a}_\nu^o, \hat{b}_\mu^o)$ をモデル2-構造 $(\delta; \nu, \mu)$ の下に、パラメータ変換式

$$\begin{bmatrix} \hat{a}_\nu \\ \hat{b}_\mu \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \hat{\Phi}_y - \hat{\Phi}_v & \hat{\Phi}_{uy}^T(\delta-1) \\ \hat{\Phi}_{uy}(\delta-1) & \hat{\Phi}_u \end{bmatrix}^{-1}$$

を用いて圧縮する。 $\hat{\Phi}_v$; $\nu \times n$ の成分 $\{\hat{\phi}_v(0), \hat{\phi}_v(1), \dots, \hat{\phi}_v(n-1)\}$ は(12)式の $\hat{\phi}_v$ から求まる。上式は、モデル出力間の平均2乗誤差(MSE)

$$J_m = E[(x_k^t - x_k^o)^2] \quad (14)$$

を最小化することによって導出される。

なお、プロセス出力とモデル2出力間の誤差(プロセス出力誤差)についてのMSE

$$J = E[(x_k^t - x_k)^2] \quad (15)$$

の最小化によってバイアス補償最小2乗(BCLS)推定式

$$\begin{bmatrix} \hat{a}_\nu \\ \hat{b}_\mu \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \hat{\Phi}_y - \hat{\Phi}_v & \hat{\Phi}_{uy}^T(\delta-1) \\ \hat{\Phi}_{uy}(\delta-1) & \hat{\Phi}_u \end{bmatrix}^{-1} \begin{bmatrix} \hat{\phi}_y(1) - \hat{\phi}_v(1) \\ \hat{\phi}_{uy}(\delta) \end{bmatrix} \quad (16)$$

が導出される^{*1}。また、上式はパラメータ推定誤差の分散を最小にする最適IV法⁸⁾の観点からも導出できる⁹⁾。このBCLS推定式(16)は、両立条件^{5)*2}の下で、パラメータ変換式(13)に一致する。したがって、オーバーパラメータ推定値 $(\hat{a}_n^o, \hat{b}_m^o)$ を圧縮したパラメータ推定値 $(\hat{a}_\nu, \hat{b}_\mu)$ は、BCLS推定値に一致するので、最小分散推定量に相当する。

ところで、パラメータ変換式(13)において $d = \delta$ の場合、マッチ次数または低次数 $(n \leq \nu, m \leq \mu)$ を選択すると最終段階でのパラメータ推定値の精度向上はなされない⁵⁾。一方、高次数 $((n = \nu, m = \mu)$ を除く $(n \geq \nu, m \geq \mu)$) を選択すれば、(13)式は

$$\begin{bmatrix} \hat{a}_\nu \\ \hat{b}_\mu \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \hat{a}_\nu^o \\ \hat{b}_\mu^o \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \hat{\Phi}_y - \hat{\Phi}_v & \hat{\Phi}_{uy}^T(\delta-1) \\ \hat{\Phi}_{uy}(\delta-1) & \hat{\Phi}_u \end{bmatrix}^{-1} \times \begin{bmatrix} \hat{\Phi}_y(-\nu) - \hat{\Phi}_v(-\nu) & \hat{\Phi}_{uy}(-\delta-\mu) \\ \hat{\Phi}_{uy}(\delta-\nu-1) & \hat{\Phi}_u(-\mu-1) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \hat{a}_{\nu+1, n}^o \\ \hat{b}_{\mu+1, m}^o \end{bmatrix} \quad (17)$$

のように、右辺第2項にある補正項を伴う圧縮変換式の形に変形されるので、パラメータ推定値の精度が向上する可能性があることが分かる。ここで

$$\hat{a}_\nu^o = [\hat{a}_1^o, \hat{a}_2^o, \dots, \hat{a}_\nu^o]^T, \hat{a}_{\nu+1, n}^o = [\hat{a}_{\nu+1}^o, \hat{a}_{\nu+2}^o, \dots, \hat{a}_n^o]^T$$

$$\hat{b}_\mu^o = [\hat{b}_0^o, \hat{b}_1^o, \dots, \hat{b}_\mu^o]^T, \hat{b}_{\mu+1, m}^o = [\hat{b}_{\mu+1}^o, \hat{b}_{\mu+2}^o, \dots, \hat{b}_m^o]^T$$

であり、右辺の相関行列の次元は次のとおりである。

$$\begin{matrix} \nu & \{ & \hat{\Phi}_y - \hat{\Phi}_v & \hat{\Phi}_{uy}^T(\delta-1) \\ \mu+1 & \{ & \hat{\Phi}_{uy}(\delta-1) & \hat{\Phi}_u \end{matrix}$$

*1(16)式は出力雑音 v_k が白色である場合⁷⁾を一般化したもの。
*2両立条件は、3段階パラメータ推定法の第1,2段階において高次数を選択すれば満足される。

$$\begin{matrix} \nu \\ \mu+1 \end{matrix} \left\{ \begin{matrix} \widehat{\Phi}_y(-\nu) - \widehat{\Phi}_v(-\nu) & \widehat{\Phi}_{yu}(-\delta - \mu) \\ \widehat{\Phi}_{uy}(\delta - \nu - 1) & \widehat{\Phi}_u(-\mu - 1) \end{matrix} \right\}$$

$\underbrace{\hspace{10em}}_{n-\nu} \quad \underbrace{\hspace{10em}}_{m-\mu}$

つまり、3段階パラメータ推定法は、BCLS推定を与える手法の中で、第1、2段階において真の次数より高次数を設定することによって、パラメータ推定値の精度を向上できる手法である。

4 モデル構造とパラメータの同時推定法

4-1 モデル構造の推定⁵⁾

本章以降ではプロセス構造 $(\delta; \nu, \mu)$ は未知とし、推定するモデル2-構造を $(\widehat{\delta}; \widehat{\nu}, \widehat{\mu})$ とする。

(15)式に示すBCLS推定のための評価関数 J は、モデル2出力 x_k^t とプロセス出力 x_k 間の誤差分散である。さらに、プロセス出力誤差の自己相関関数

$$J(l) = E[(x_{k-l}^t - x_{k-l})(x_k^t - x_k)] \quad (18)$$

を考える(J は $J(0)$ を示す)。推定値 $\widehat{J}(l)$ は次式で与えられる。

$$\widehat{J}(l) = \begin{bmatrix} \widehat{a}_{0,\widehat{\nu}}^T & \widehat{b}_{\widehat{\mu}}^T \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \widehat{\Phi}_y(l) - \widehat{\Phi}_v(l) & \widehat{\Phi}_{yu}(l - \widehat{\delta}) \\ \widehat{\Phi}_{uy}(l + \widehat{\delta}) & \widehat{\Phi}_u(l) \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \widehat{a}_{0,\widehat{\nu}} \\ \widehat{b}_{\widehat{\mu}} \end{bmatrix} \quad (19)$$

ここで、 $\widehat{a}_{0,\widehat{\nu}} = [\widehat{a}_0, \widehat{a}_1, \dots, \widehat{a}_{\widehat{\nu}}]^T$ 、ただし、 $\widehat{a}_0 = -1$ である。相関行列の次元は次のとおりである。

$$\begin{matrix} \widehat{\nu}+1 \\ \widehat{\mu}+1 \end{matrix} \left\{ \begin{matrix} \widehat{\Phi}_y(l) - \widehat{\Phi}_v(l) & \widehat{\Phi}_{yu}^T(l - \delta) \\ \widehat{\Phi}_{uy}(l + \delta) & \widehat{\Phi}_u(l) \end{matrix} \right\}$$

$\underbrace{\hspace{10em}}_{\widehat{\nu}+1} \quad \underbrace{\hspace{10em}}_{\widehat{\mu}+1}$

$\widehat{\Phi}_v$ および $(\widehat{a}_{0,\widehat{\nu}}, \widehat{b}_{\widehat{\mu}})$ は3段階推定法における第2段階の(12)式と第3段階の(13)式から求められる。

さらに、 $\widehat{J}(l)$ の2乗和からなる総合的評価

$$S_J = \widehat{J}^2(0) + \widehat{J}^2(1) + \dots + \widehat{J}^2(\tau) \geq 0 \quad (20)$$

を導入する。ここで、 τ は考慮するラグの範囲である。

ついで、モデル構造の推定について検討する。まず

a) モデル1-構造 $(d; n, m)$ およびモデル2-構造 $(\widehat{\delta}; \widehat{\nu}, \widehat{\mu})$ は S_J を最小にするものを選択すること

を基本とする。しかしながら、次数は少ないほうがよいという「ケチの原理¹⁰⁾」に反して、最小値を示す S_J が大きなパラメータ数 $(\widehat{\nu} + \widehat{\mu} + 1)$ を与える場合には、人間の直感的な判断に頼ることになる。このことを以下の処理によって補う。

b) S_J が漸近的に小さくなる場合には、 S_J が大きな変化を示すモデル構造を選択する。それは、並べた構造の中で i 時点での構造における S_J を $S_J^{(i)}$ とし、その変化を絶対値差分の比(RDS_J : Ratio of Differences in S_J)

$$RDS_J^{(-)} = \frac{|S_J^{(i-1)} - S_J^{(i)}|}{|S_J^{(i)} - S_J^{(i+1)}|} \quad (21)$$

によって数値化し、最大値を示すモデル構造を変化点(Bending Point)とみなす。

一方、漸近的に大きくなる S_J の中から S_J が大きな変化を示すモデル構造を選択するには、次の絶対値差分の比

$$RDS_J^{(+)} = \frac{|S_J^{(i+1)} - S_J^{(i)}|}{|S_J^{(i)} - S_J^{(i-1)}|} \quad (22)$$

によって S_J の変化を数値化し、最大値を示すモデル構造を変化点とみなす。

上記のa) S_J の最小化、あるいはb) S_J の変化点によるモデル構造の評価法が S_J に基づく推定法である。

4-2 3段階モデル推定アルゴリズム⁵⁾

提案する3段階モデル推定アルゴリズムは、3段階パラメータ推定法の枠組みを保ち、 S_J に基づくモデル構造の推定法を追加したものである。つまり、高次数からなるモデル1-構造 $(d; n, m)$ の下で、第1段階;初期パラメータ推定値 $(\widehat{a}_n^0, \widehat{b}_m^0)$ と第2段階;出力雑音の自己相関関数の推定値 $\widehat{\Phi}_v(l)$ を求めた後、モデル2-構造 $(\widehat{\delta}; \widehat{\nu}, \widehat{\mu})$ の下で第3段階;パラメータ圧縮変換による推定値 $(\widehat{a}_{\widehat{\nu}}, \widehat{b}_{\widehat{\mu}})$ を得る。このとき、モデル1-構造 $(d; n, m)$ とモデル2-構造 $(\widehat{\delta}; \widehat{\nu}, \widehat{\mu})$ の組み合わせに対する S_J を求めておき、この中から S_J に基づいて $(d; n, m)$ と $(\widehat{\delta}; \widehat{\nu}, \widehat{\mu})$ を選択する。

5 数値例

提案した推定アルゴリズムの妥当性はシミュレーションによって検証済みである⁵⁾。ここでは実データ実験を行う。そのデータは、MathWorks社のMATLABのシステム同定ツールの中に提供されているサンプルデータ(Dryer2)であり、ヘアードライヤーの入出力データ $\{u_k, y_k\}$ からなる³⁻⁴⁾。入力 u_k は電熱線に加えらる電圧、出力観測値 y_k は送風口の温度である(図-2参照)。推定用のデータは $N = 800$ 、総合的評価 S_J の成分 $\widehat{J}(l = 0, 1, \dots, \tau = 5)$ とした。

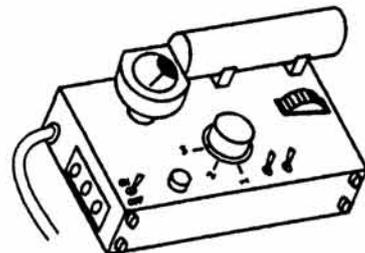


図-2 同定対象:ヘアードライヤー⁴⁾

同定アルゴリズムの実行手順と結果は以下のとおりである：

1) モデル1-次数 (n, m) の選択

第1, 2段階において, 構造 $(d; n, m) = (0; 5, 5)$ を選択することによって, 入出力相関情報を拡大させた (図-3の Range-1参照)。

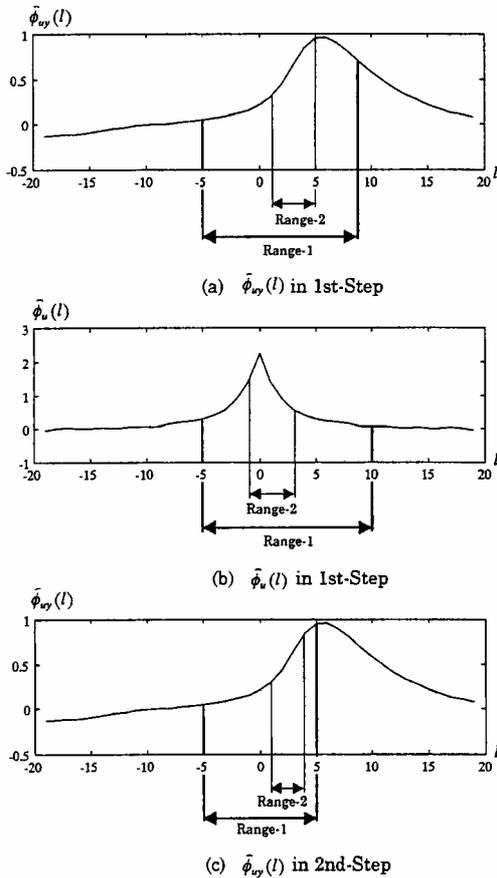


図-3 入出力相関情報の拡大

(構造 $(0; 5, 5)$ の下での入出力相関情報に対応する Range-1 は次数の低い構造 $(3; 2, 1)$ の下での Range-2 を包含。 $(3; 2, 1)$ は最終的に第3段階で選択するもの。)

2) 時間遅れ $\hat{d}(=d)$ の推定

パラメータ変換公式 (13) を用いて, モデル1-構造 $(0; 5, 5)$ からモデル2-構造 $(\hat{d}; \hat{\nu}, \hat{\mu})$ への変換を行った。固定次数 $(\hat{\nu}, \hat{\mu})$ は, モデル適合不足とならないよう高めに設定した。候補とする \hat{d} を $\{0, 1, \dots, 6\}$ のように大きくすると, S_J は大きくなる傾向を示すので, $RDSJ^{(+)}$ による変化点から $\hat{d} = 3$ を推定した (図-4の例は $(\hat{\nu}, \hat{\mu}) = (3, 3)$ における S_J と $RDSJ^{(+)}$ を示す)。以下, $d = \hat{d}$ として $d = 3$ とした。

3) モデル2-次数 $(\hat{\nu}, \hat{\mu})$ の推定

パラメータ圧縮変換式 (17) 式を用いて, 構造 $(3; 5, 5)$ から $(3; \hat{\nu}, \hat{\mu})$ への変換を行った。候補とする次数 $(\hat{\nu}, \hat{\mu})$ を $\{(1, 0), (2, 0), \dots\}$ のように高めるにつれて適合誤差は小さくなり, S_J は漸近的に小さくなる。そこで,

$RDSJ^{(-)}$ によって S_J の変化点を示す $(\hat{\nu}, \hat{\mu}) = (2, 1)$ を推定した (図-5は S_J と $RDSJ^{(-)}$ を示す。)

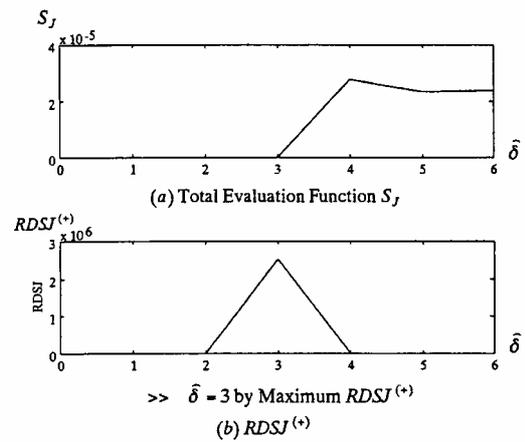


図-4 時間遅れ \hat{d} の推定

(Model-1: $(0; 5, 5) \Rightarrow$ Model-2: $(\hat{d}; 3, 3)$)

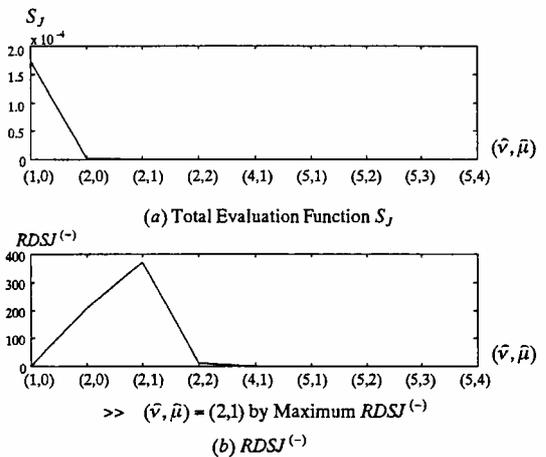


図-5 次数 $(\hat{\nu}, \hat{\mu})$ の推定

(Model-1: $(3; 5, 5) \Rightarrow$ Model-2: $(3; \hat{\nu}, \hat{\mu})$)

(横軸の次数 $(\hat{\nu}, \hat{\mu})$ は, パラメータ数 $(\hat{\nu} + \hat{\mu})$ の同じものから最小な S_J を与える次数を選びだしたものであり, $(\hat{\nu} + \hat{\mu}) = (1 \sim 9)$ の順に並べている。)

4) 最終的なモデル2の推定

いろいろなモデル1-次数 (n, m) の中から, 適切な $\hat{\phi}_v(l)$ をもち小さな $S_J = 1.0582 \times 10^{-9}$ を与える $(n, m) = (2, 4)$ を選択し直した (図-6参照)。

最終的にモデル1-構造 $(3; 2, 4)$ からモデル2-構造 $(3; 2, 1)$ の下での伝達関数モデル

$$\hat{G}(q^{-1}) = \frac{q^{-3}(0.0652 + 0.0397q^{-1})}{1 - 1.3208q^{-1} + 0.4368q^{-2}}$$

を求めた。この推定値は, 第3段階でBCLS推定式 (16) を適用したときの推定値に一致する。図-7に示すように第1段階の $\hat{G}^o(q^{-1})$ は第3段階の $\hat{G}(q^{-1})$ に圧縮された。出力雑音の自己相関関数の推定値 $\hat{\phi}_v(l)$ を図-8に示す。最終段階でのモデル出力 \hat{x}_k は出力観測値 \hat{y}_k に追従した (図-9参照)。

パラメータ推定について、システム同定ツールボックスにある出力誤差法に基づく Box-Jenkins(BJ) 推定法と比較すると、構造 (3; 2, 1) において $S_J = 1.6129 \times 10^{-9}$ を与える BJ 推定法より 3 段階パラメータ推定法が良い結果が得られた。モデル構造の推定については、有名な最小 AIC 推定法¹⁰⁾が S_J に基づく推定法と同等とみなせたが^{*3}、誤差 $(y_k - \hat{x}_k)$ の正規分布を仮定し形式的に BJ モデルに用いる最小 AIC 推定法の適用条件には制約されない。

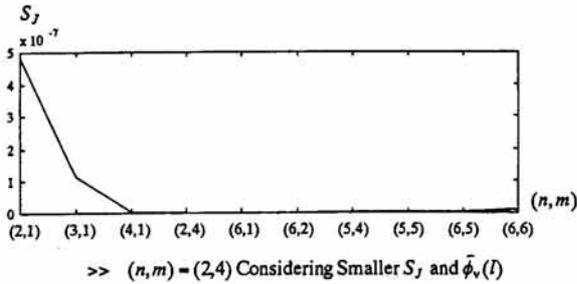


図-6 モデル次数 (n, m) の推定

(Model-1:(3;n,m) \Rightarrow Model-2:(3; 2, 1))

(横軸の次数 (n, m) は、パラメータ数 $(n+m)$ の同じものから最小な S_J を与える次数を選びだしたものであり、 $(n+m) = (3 \sim 12)$ の順に並べている。)

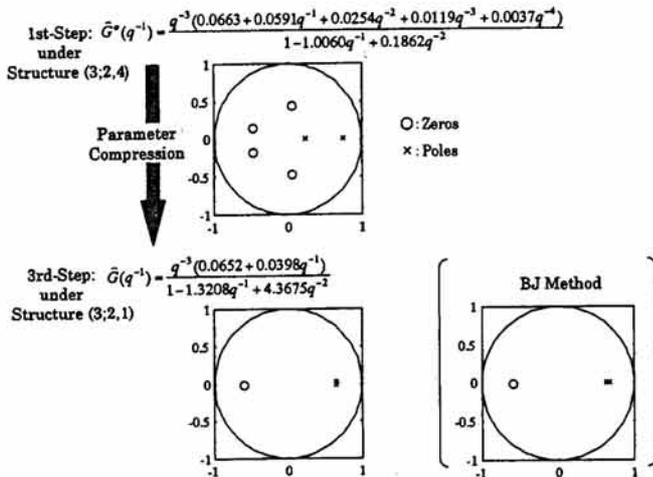


図-7 第1段階から第3段階へのパラメータ圧縮変換

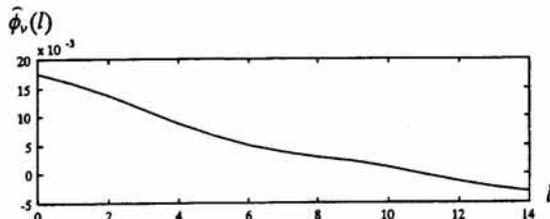


図-8 出力観測雑音の自己相関関数の推定

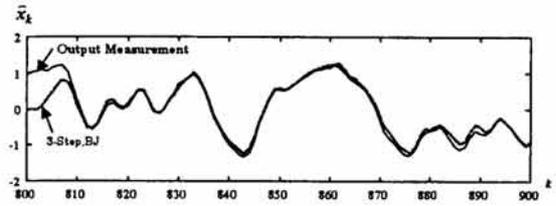


図-9 構造 (3;2,1) の下でのモデル出力 \hat{x}_k

6 おわりに

最も基本となる単一入出力線形離散値システムにおける伝達関数モデルの同定について、相関解析と誤差最小化の観点から従来法を見直し、いくつかの基本アイデアを導入することによって、新たな同定法を開発した。

まず、入出力相関情報を拡大して求めるオーバーパラメータモデルを制御系設計に必要なノミナルモデルに一意に低次元化でき、しかも圧縮されたパラメータ推定値は BCLS 推定量を満足するという 3 段階パラメータ推定法を開発した。さらに、この枠組みを保持して、プロセス出力誤差の自己相関関数に関する総合的評価に基づくモデル構造の推定法を追加した 3 段階モデル推定アルゴリズムを開発した。シミュレーションによる検証実験⁵⁾(本報告では省略)の後、MATLAB の提供するサンプルデータへの適用実験の結果、提案アルゴリズムの優位性や有用性など有効性を確認した。

7 参考文献

- 1) 自動制御ハンドブック, 計測自動制御学会 (1983)
- 2) T.Söderström and P.Stoica : System Identification, Prentice Hall (1989)
- 3) L.Ljung : System Identification Toolbox User's Guide, The Math Works, Inc. (1995)
- 4) 足立 : MATLAB による制御のためのシステム同定, 東京電機大学出版局 (1996)
- 5) M.Mashino, F.Ohkawa, K.Nakano and M.Tomizuka : Algorithm for Three-Step Estimation of Transfer Function with Unknown Delay Steps and Order, Proc. of 12th IFAC Symp. on System Identification (SYSID2000), Vol.1, 373/378, Santa Barbara (2000)
- 6) W.R.Wouters : On-Line Identification in an Unknown Stochastic Environment, IEEE Trans. Syst. Man Cybern., Vol.SMC-2, No.5, 666/668 (1972)
- 7) A.I.Zhdanov and O.A.Katsyuba : Specifics of Applying the Method of Least Squares to Estimation of Linear Difference Operators in Identification Problems, Avtom. Telemekh., No.8, 86/92 (1979)
- 8) K.Y.Wong and E.Polak : Identification of Linear Discrete Time System Using Instrumental Variable Method, IEEE Trans., AC-12, No.6, 707/718 (1967)
- 9) R.N.Pandya : A Class of Bootstrap Estimators and Their Relationship to the Generalized Two Stage Least Squares Estimators, IEEE Trans. Automat. Contr., Vol.AC-19, No.6, 831/835 (1974)
- 10) H.Akaike : A New Look at the Statistical Model Identification, IEEE Trans., AC-19, 716/723 (1974)

*3 シミュレーションでは S_J に基づく推定法がやや優位、実データ実験では最小 AIC 推定法がやや優位。

資源の有効利用とリサイクルに関する技術開発

-触媒を用いた家具廃材の低温分解法に関する研究-

蓮尾 東海^{*1} 原田 智洋^{*1} 諫山 宗敏^{*1} 朝倉 良平^{*2}

Development of the Utilization and Recycling Method of Biomass Resources

-Research on the Low-Temperature Decomposition Method of the Woody Waste using Catalyst-

Haruumi Hasuo, Tomohiro Harada, Munetoshi Isayama, Ryohei Asakura

バイオマスからのエネルギー変換法の一つとしてガス化 - ガスタービン発電が期待されている。ガス化発電の高効率化ためにはバイオマスからの高発熱量燃料ガスの製造が重要となる。本研究では600℃以下の低温接触ガス化反応による高発熱量ガスの製造を目的とし、固定床型ガス化装置を用いてガス化触媒の探索、及びガス化反応条件の影響を検討した。触媒に固体酸触媒である $\text{-Al}_2\text{O}_3$ を用いた場合、無触媒反応に比べてガス化率が20%程度向上し、 K_2CO_3 を担持することによりガス化率が更に向上しガス化率約100%を達成した。また、カリウム系触媒は500℃の低温でも高いガス化率を維持し、低温でのガス化触媒として有効であることが明らかとなった。

1. はじめに

近年、石油資源の枯渇に伴うエネルギー問題、及び化石燃料の使用による温暖化ガスの排出等による地球環境問題が深刻化し、その対応策として太陽光・熱、水力風力などの自然エネルギーに注目が集まっている。自然エネルギーの中でバイオマスは唯一の有機資源であり、また再生可能で地球規模でCO₂バランスを崩さない(カーボンニュートラル)環境調和型エネルギーと言う観点から、石油等の化石燃料に代わるエネルギー資源として注目されている。エネルギー資源としてのバイオマスは木質系に代表されるように資源量が多く、また間伐材、建築廃材、農業廃棄物等の廃棄物処理問題等の理由からも多くの利用法が研究・検討されている。福岡県大川地区においても製材・家具製造工場から端材、木くず等が産業廃棄物として排出されている。これまで、端材等廃棄物の半数以上は自社で焼却処理されてきたが、2000年1月のダイオキシン規制法の施行に伴い、処理手段の50%以上を占める自社焼却が困難となるため、外部の廃棄物処理業者に委託せざるを得なくなる。その処理費用を試算すると約16億円/年間と言う莫大な費用となり、大川地区の産業を圧迫することが懸念される。上記問題の解決法の一つとして、バイオマス資源からのエネルギー製造技術の開発が考えら

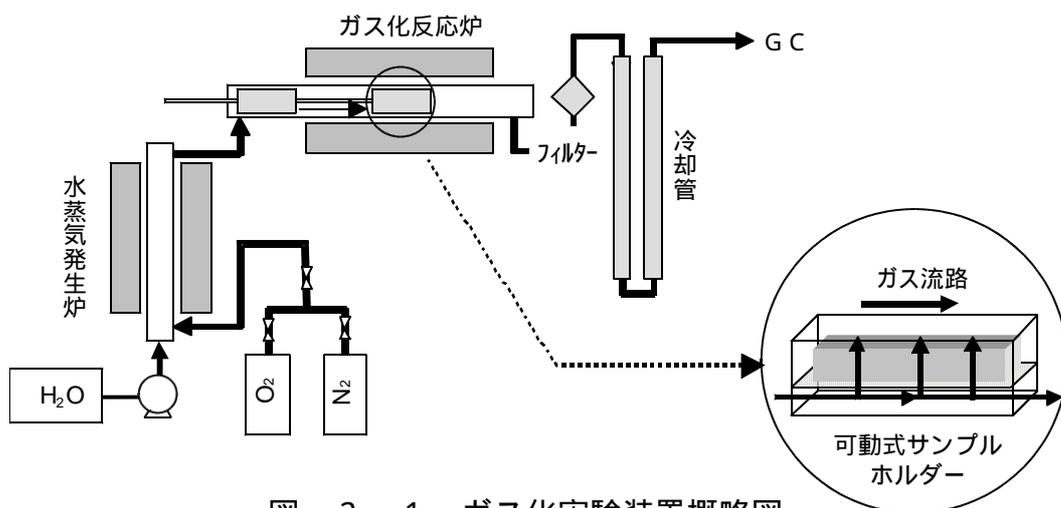
れる。家具製造工場では切削・加工等の工程で電力、熱を多量に使用するため、木質バイオマスから効率よく電力・熱源を取り出すことが可能となれば廃棄物処理問題の解消のみでなくエネルギー消費量の低減が期待される。

バイオマスからのエネルギー変換法には大別して生物化学的(メタン発酵等)と熱化学的(熱分解、液化、ガス化等)の2つの方法がある。生物学的手法は常温常圧下で行うことが可能であるが、処理期間が数日から数ヶ月要する。これに対し熱化学的手法は高温を要するが処理時間が短く、今回対象にするような大量に発生する木質バイオマスのエネルギー変換法として適している。特にガス化は水素、メタン等製造の転換技術として有望視されている。従来のガス化としては、900℃以上の高温で空気/水蒸気を用いた無触媒ガス化¹⁾、ニッケル等の触媒を用いた400~500℃での低温高压ガス化²⁾による水素、合成ガス(主にメタノール、DME等合成原料)製造に関する研究が行われている。しかし、消費エネルギー、設備コスト等の面から常圧/低温化が今後重要になると考えられる。しかし、反応温度の低下はタール、未反応チャー等の生成量増加を引き起こし、生成ガス中のタールによるガスタービン等設備の汚染・閉塞等の問題が懸念される。これらの問題を解決するためには低温でもタール等重質炭化水素を効率よくガス化する触媒の開発が重要となる。

本研究では、600℃以下の低温接触ガス化による高発

* 1 化学繊維研究所

*2 インテリア研究所



図．2 - 1 ガス化実験装置概略図

熱量ガスの製造を目的とし、高効率ガス化、特にタール、チャー等の完全ガス化を目的にガス化触媒の開発を行った。

2 実験

2 - 1 触媒調整

今回ガス化触媒として、 CaCO_3 、 $\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、 CeO_2 、 $\text{K}_2\text{CO}_3/\text{CaCO}_3$ 、 $\text{K}_2\text{CO}_3/\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Fe}/\text{Al}_2\text{O}_3$ を検討した。担持触媒は金属塩として K_2CO_3 、 $\text{Ni}[\text{CH}_3\text{COCH}=\text{C}(\text{O}-)\text{CH}_3]_2$ 、 $\text{Fe}[\text{CH}_3\text{COCH}=\text{C}(\text{O}-)\text{CH}_3]_2$ 、 $\text{Cu}[\text{CH}_3\text{COCH}=\text{C}(\text{O}-)\text{CH}_3]_2$ を用い、水、あるいはメタノール溶液から含浸法により調整した。ここで触媒担持量は K_2CO_3 の場合 $7.25 \times 10^{-4}/\text{g-cat}$ 、 Ni 、 Fe 、 Cu の場合 $2.0 \times 10^{-4}/\text{mol/g-cat}$ とした。得られた触媒前駆体は乾燥、 600°C 、3h焼成処理後ガス化反応に使用した。

2 - 2 ガス化実験

ガス化実験装置は、水蒸気発生装置、ステンレス製ガス化反応炉、フィルター、冷却管から構成される固定床型反応炉(バッチ式)により行った(図2 - 1に装置概略図を示す)。また、バイオマス試料の供給は急速昇温を目的とした可動式ステンレス製試料ホルダーを用いて行った。ガス化反応は木質バイオマスとして家具等に使用されるジョンコン材(150 ~ 300 μm 、元素分析結果表2 - 1参照)を用い、バイオマス、あるいはバイオマスと触媒を物理的に混

表 2 - 1 ジョンコン材の元素分析

C	H	N	O	H ₂ O	Ash
47.29	5.23	0.16	38.97	7.35	1.00

*O:100-(C+H+N+H₂O+ash)

合した物を反応試料をステンレスメッシュ製ポート/可動式試料ホルダーに入れ、ガス化炉入り口(温度: 150°C)で3分間予熱後ガス化炉中央部に移動させ所定温度で所定時間反応を行った。ガス化剤としては $\text{N}_2/\text{O}_2 = 8/2$ 及び水蒸気を使用し、有酸素ガス化反応では $\text{N}_2/\text{O}_2 = 8/2$ 1L/min、及び水蒸気0.5g/min、水蒸気ガス化反応では N_2 0.5L/min、及び水蒸気1.5g/minの条件で反応炉に導入する事により行った。生成ガスはフィルター、冷却管を通した後テトラバックに捕集し、ガスクロマトグラフにより分析を行った。 CO 、 CO_2 、 CH_4 についてはメタンコンバーターを使用しFID-GC(活性炭)、 H_2 についてはTCD-GC(Molecular Sieve 13)により定性・定量を行った。ここではガス化率を以下のように定義した。

ガス化率(C to Gas %) = [生成ガス中のC mol]/[導入したバイオマス中のC mol] × 100

水素転換率(H to Gas %) = [生成ガス中のH mol]/[導入したバイオマス中のH mol] × 100

3 結果及び考察

3 - 1 触媒の影響

反応温度 600°C 、ガス化剤組成 $\text{N}_2/\text{O}_2=8/2$ (1L/min)、反応時間10minにおける無触媒、及び各種触媒を用いた時のガス化実験結果を表3 - 1に示す。反応温度 600°C における触媒担体の影響を調べたところ、無触媒でのガス化率が63%であるのに対し、 $\text{-Al}_2\text{O}_3$ を触媒として用いるとガス化率が大幅に向上し、ガス化率87%を示した。また、 CaCO_3 、 CeO_2 においても10%以上向上し、それぞれガス化率73%、76%を示した。また、反応後の残渣を調べたところ、無触媒反応ではガス化率が低いにも係わらずチャー等の

表3 - 1 木質バイオマスへのガス化反応における触媒種、及び反応温度の影響

	Temp. ()	N ₂ /O ₂ (L/min)	H ₂ O (g/min)	Product Gas(mmol)				ガス化率 C to Gas(%)	水素転換率 H to Gas(%)
				H ₂	CO	CO ₂	CH ₄		
non cat	600	0.8/0.2	0	0.14	3.55	8.71	0.19	63.18	4.07
CaCO ₃	600	0.8/0.2	0	0.29	4.21	10.02	0.26	73.62	6.14
Al ₂ O ₃	600	0.8/0.2	0	0.22	7.12	9.95	0.18	87.56	4.37
CeO ₂	600	0.8/0.2	0	0.40	4.02	10.75	0.29	76.50	7.53
K ₂ CO ₃ /CaCO ₃	600	0.8/0.2	0	0.47	2.17	15.34	0.33	90.61	8.75
K ₂ CO ₃ /Al ₂ O ₃	600	0.8/0.2	0	0.86	2.54	16.55	0.46	99.36	13.71
Ni/Al ₂ O ₃	600	0.8/0.2	0	0.43	7.18	12.16	0.21	99.31	6.47
Fe/Al ₂ O ₃	600	0.8/0.2	0	0.13	4.54	14.50	0.20	97.66	4.06
Cu/Al ₂ O ₃	600	0.8/0.2	0	0.40	2.56	16.84	0.19	99.43	6.07
non cat	500	0.8/0.2	0	0.02	3.52	7.71	0.05	57.21	0.94
K ₂ CO ₃ /CaCO ₃	500	0.8/0.2	0	0.11	1.67	17.08	0.23	96.46	4.40
K ₂ CO ₃ /Al ₂ O ₃	500	0.8/0.2	0	0.52	2.68	17.53	0.35	100.00	9.41
Ni/Al ₂ O ₃	500	0.8/0.2	0	0.16	7.02	10.86	0.08	91.11	2.49
non cat	400	0.8/0.2	0	0.00	1.84	3.58	0.02	27.63	0.27
K ₂ CO ₃ /CaCO ₃	400	0.8/0.2	0	0.05	1.45	13.67	0.11	77.40	2.05
K ₂ CO ₃ /Al ₂ O ₃	400	0.8/0.2	0	0.29	2.21	12.55	0.18	75.84	4.96
Ni/Al ₂ O ₃	400	0.8/0.2	0	0.02	3.84	5.54	0.02	47.82	0.52

炭化物が残存していなかった。この結果は、無触媒反応における生成物がガスとタールのみであり、生成したタールは反応系外に排出されたことを示唆している。これに対し触媒反応では、何れの触媒においても少量の炭化物が残存していた。これは、触媒上に吸着・保持されたタールの熱分解により生成したタール由来の炭化物(コーク)であると考えられ、また触媒反応におけるガス化率の向上は保持されたタール成分のガス化に起因すると考えられる。特に -Al₂O₃は、使用した担体中最も高い比表面積、優れたクラッキング特性を有しているため、タールの吸着及び分解・ガス化反応が効率よく進行し、高いガス化率を示したと推察される。

次に担持触媒の影響を調べたところ、活性金属の担持によりガス化率の向上し、特にAl₂O₃担持系触媒を用いた場合は何れもガス化率95%以上の高ガス化率を達成した。また、それぞれの生成ガス組成を見ると、アルミナ担体にカリウム担持触媒を用いた場合、CO生成量の減少、H₂、CO₂生成量の大幅な増加し、ニッケル担持触媒ではCO生成量は変化せず、少量のH₂及びCO₂生成量の増加が見られた。これは触媒表面上に保持されたタール、チャー等の分解・酸化反応、もしくはH₂O(木材中水分)との反応に起因すると考えられ、カリウム系触媒はニッケル触媒より

も酸化反応に対して高い活性を有していると考えられる。

3 - 2 ガス化温度の影響

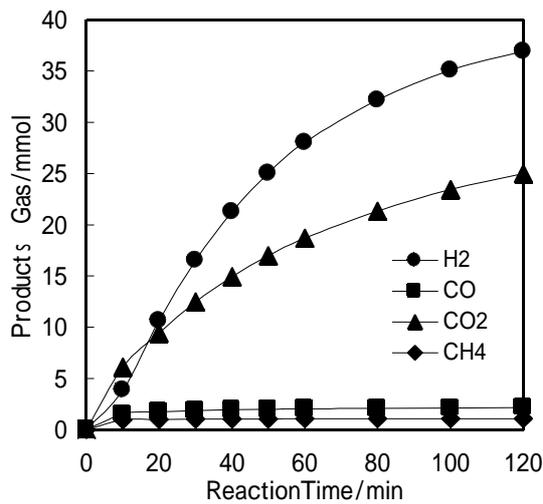
K₂CO₃/CaCO₃、K₂CO₃/Al₂O₃、Ni/Al₂O₃、及び無触媒についてガス化温度の影響を調べたところ(表3 - 1参照)、無触媒反応では温度の低下に伴いガス化率の大幅に減少し、特に400 ではガス化率27%にまで減少した。また、ニッケル担持触媒を用いた場合でも500 では91%の高ガス化率を維持しているが、400 になると急激にガス化率が低下することが明らかとなった。これは、タール生成量が増加すると考えられる低温反応では、ニッケル触媒上へのタールの堆積/コーキングにより活性が低下したものと考えられる。これに対し、カリウム系触媒では500 でガス化率がさらに上昇し、400 でも75%以上の高ガス化率を維持することが明らかとなった。反応温度500 におけるガス化率の上昇は、反応温度の低下により生成したタールが担体上に保持されやすくなるためと考えられる。更に低温(400)においては、Al₂O₃よりもCaCO₃を担体として用いた触媒の方がより高いガス化率を示した。これは、固体酸触媒であるAl₂O₃上ではタール吸着力が強いため、O₂による酸化反応性が低下したと考えられる。

3 - 3 ガス化反応における水蒸気の影響

ガス化温度600 , 反応ガスN₂/O₂=8/2(1L/min)、水蒸

表3 - 2 バイオマス触媒接触ガス化における水蒸気の影響

Catalyst	Temp. ()	N ₂ /O ₂ (L/min)	H ₂ O (g/min)	Product Gas(mmol)				ガス化率 C to Gas(%)	水素転換率 H to Gas(%)
				H ₂	CO	CO ₂	CH ₄		
K ₂ CO ₃ /CaCO ₃	600	0.8/0.2	0.5	1.07	1.71	15.61	0.37	89.80	13.95
K ₂ CO ₃ /Al ₂ O ₃	600	0.8/0.2	0.5	1.65	2.29	16.57	0.59	98.71	21.75



< Reaction Conditions >

600 °C, N₂/O₂=0.5/0 (L/min), H₂O=1.5g/min,
 Biomass/Catalyst=1.0/2.0(g), Catalyst:K₂CO₃/CaCO₃

図3 - 1 K₂CO₃/CaCO₃触媒を用いたバイオマス
 の水蒸気ガス化反応

気0.5g/minでのガス化生成物組成及びガス化率を表3 - 2に示す。水蒸気なしの反応(表3 - 1)と比較すると、ガス化率がわずかに低下する傾向が確認された。これは、H₂Oによる水蒸気ガス化反応(C + H₂O → CO + H₂ ΔH = +31.38kcalmol⁻¹)によりC-O₂反応が阻害されたためと推察される。また、生成物組成を比較すると、H₂生成量は大幅に増加することが明らかとなった。K₂CO₃/CaCO₃触媒を用いた水蒸気ガス化(無酸素反応)を行ったところ(図3 - 1)、K₂CO₃/CaCO₃触媒を用いると反応速度は遅いが無酸素条件下でもガス化反応が進行し、その生成物は主にH₂、CO₂であることが示された。このことより、水蒸気存在下でのガス化における水素生成量の増加は、H₂OとCO、及び触媒上のチャー/コークの反応に起因すると考えられ、残留炭素質物質のガス化に有効であることが明らかとなった。

4 - 4 まとめ

触媒を用いたバイオマスの低温接触ガス化による高発熱量ガスの製造を目的とし、固定床型ガス化装置による高効率ガス化触媒の探索、及び温度等反応条件の影響を調べた。その結果、以下のことが明らかとなった。

今回検討した触媒はガス化率向上に有効で、特に触媒(流動媒体)上への副生するタール成分の吸着/ガス化によるタール生成の抑制が可能。

カリウム触媒は低温でも高いガス化活性を有しており、今回検討したK₂CO₃担持アルミナ触媒では、ガス化温度500 °Cでも約100%の完全ガス化を達成した。

接触ガス化反応における水蒸気の導入はタール及び炭素質成分からの水素生成に有効である。特にカリウム系触媒では無酸素条件下でもタール、チャー等炭素質成分と水蒸気の反応による水素生成反応に対して高い活性を有している事が明らかとなった。

しかし、今回のガス化試験結果では何れも反応生成物中のCO₂濃度が非常に高く、最高でも1200Kcal/m³程度(触媒:Al₂O₃, 600 °C)と十分な発熱量を達成できなかった。これは使用した実験装置が固定床型で試料の供給がバッチ式であるため、流動床反応炉のような急速な熱分解が出来ず、また酸素過剰な条件であるためと考えられる。実際の流動床低温ガス化プロセスではバイオマス試料の連続供給が可能となるため、流動媒体による均一且つ急速な熱分解、空気導入量等を最適化によって過剰な燃焼が抑制されるためCO₂濃度の低減、CO、H₂濃度の向上が期待できる。また、反応ガス中の酸素濃度が著しく低下すると考えられるガス化反応後期においても、カリウム系触媒を用いることによって木材中水分、反応による生成水、あるいは外部からの水蒸気の導入により残留有機成分から水素を製造することが可能となり、高効率ガス化、及び更なる発熱量向上が期待できる。

今回の結果より、従来900 °C前後の高温を必要としていたガス化反応温度を600 °C以下に下げることが可能となり、生成ガス中のCO₂濃度低減による高発熱量化、無触媒反応で問題となる生成ガス中へのタール混入を大幅に抑制できると考えられる。今後、流動床ガス化装置を用いた触媒種、及び反応条件等更なる検討を行う。

5 参考文献

- 1) 坂井 正康:バイオマスが拓く21世紀エネルギー,45(1998)
- 2) Minowa T.他2名:Chem.Lett.,280,285(1995)

快適な寝具の研究開発

最適な通気性・保温性を保つ寝具材の開発

西村博之*1 石川弘之*1 古賀徹*2

Research and Development of Comfortable Bedding

Development of the Bedding Material which Maintains Optimum Breathability and Keeping-warm

Hiroyuki Nishimura, Hiroyuki Ishikawa, Toru Koga

寝具は生活サイクルの中で最も長時間を占有する用具でありながら、現状では重要視されていない。また、統計調査によると、睡眠に関して問題があると回答している人は90%以上にもなる。そこで本研究では快適な睡眠が得られるように、入眠初期は通気性が高く体温を放熱させて寝付きを良くし、時間経過と共に保温性が高くなり睡眠を維持する寝具の開発を目指す。これらの性能を評価するために、就寝時の皮膚温の生体情報と寝床内温湿度を測定し、起床時の主観評価と合わせて解析した。その結果、通気性の高い寝具は寝付きが良く、保温性の高い寝具は睡眠持続性がよいことが解った。

1 はじめに

脳科学の面から見ると、睡眠は脳をもつ生命体に特有の生理機能である。よって、質のよい睡眠があってはじめて、脳は高次の情報処理能力を発揮できるのである。従って、発達した大脳をもつ高等動物ほど睡眠の役割は大きい。

厚生労働省の統計調査によると、睡眠に関して問題があると回答した人は90%以上になっており、「朝起きても熟睡感がない」、「なかなか寝つけない」といった問題点が上位となっている。

こうした事実を踏まえ、睡眠研究の科学的な成果にもとづいて、健康を維持するにはどのような生活パターンを構築すればよいか、どのような睡眠対策を実施すればよいか、という問題が年とともに重みを増している。

本研究においては快適な睡眠を確保するために、寝付きが良く、睡眠持続性がある敷き寝具の開発を目的とする。また、開発した寝具の機能評価を行うことにより、中国産などの安価な寝具との差別化を図り、県内産業の保護に貢献する。

本報告では、睡眠時の寝床内温湿度とOSA睡眠調査票による睡眠感評価から、通気性・保温性の変化による

敷き寝具の寝心地の検討を行い、この寝心地と敷き寝具の物性値との関係について検討を行った。

2 実験方法

2-1 寝具材の物性評価

敷き寝具の物性を数値で評価するために、表-1に示す3種類の敷き寝具について、保温性及び通気性試験、圧縮試験を行った。

表-1 敷き寝具仕様

	寝具1	寝具2	寝具3
名称	羊毛敷き布団	M F - 8	E R - 1
サイズ	100×200×8cm	100×200×4cm	100×200×4cm
素材	巻きわた 2.0kg 羊毛 50% ポリエステル50%	ポリエステル系 ウレタンフォーム	ポリエステル系 ウレタンフォーム
重量	4.0kg	2.4kg	2.8kg

2-1-1 保温性試験

保温性試験は、A.S.T.M.型試験機を用いて行った。これは、人間の体温(36)を標準とした表面温度を保持する試験板上に敷き寝具のサンプルを置き、一定時間内にこの試験片を通過して放散される熱損失(放熱量)を求め、これと試験板上に試験片のないブランクの状態放散される熱損失とを測定し、計算式からその保温性を算出する試験機である。

*1化学繊維研究所

*2みつる株式会社

2-1-2 通気性試験

通気性試験はJIS L 1096に準じてフラジール型試験機を用いて行った。これは、円筒の一端に適当な大きさの敷き寝具のサンプルを取り付けた後、加減抵抗器によって傾斜形気圧計が水柱1.27cmの圧力を示すように吸い込み、吸い込みファンを調整し、そのときの垂直形気圧計の示す圧力と、使用した空気穴の種類とから、試験片を通過する空気量を求める試験機である。

2-1-3 圧縮試験

圧縮試験は下記の条件で行い、その際の加圧量と圧縮量の関係をグラフ化した。

試験条件

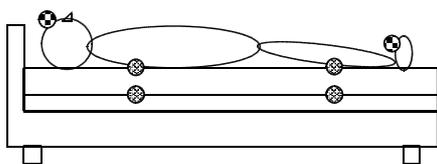
- 室内の温湿度：23±5 60±10%Rh
- 試料サイズ：300×300mm
- 圧縮押圧版：200
- 加圧量：314N
- 圧縮速度：100mm/min
- 加圧時間：30sec

2-2 寝床内温湿度測定

寝具の物性値の違いが睡眠中の寝床内温湿度にどのような影響を及ぼすかを検討するために、6人の被験者に対して表-1の3種類の寝具をそれぞれ使用し、寝床内温湿度測定を下記条件にて行った。

実験条件

- 室内の温湿度：20±5 60±10%Rh
- 被験者：20歳代男性6名
- 属性は表-2に示す。
- 測定項目：寝床内温湿度 4点、表面皮膚温 2点
- 測定個所は図-1に示す。
- 使用掛け寝具：羽毛布団
- 睡眠時間：被験者の通常の睡眠時間
(基本的に24:00～8:00の8時間)



●: 寝床内温湿度 ●: 表面皮膚温

図-1 寝床内温湿度測定位置

表-2 被験者の属性

被験者	性別	年齢	身長	体重	日常の睡眠
A	男	21歳	174cm	63kg	1:00～9:00
B	男	21歳	178cm	63kg	2:00～10:00
C	男	22歳	174cm	60kg	1:00～8:00
D	男	21歳	171cm	57kg	2:00～9:00
E	男	22歳	170cm	55kg	2:30～10:30
F	男	24歳	165cm	66kg	1:00～8:00

2-3 睡眠感評価

睡眠の善し悪しや熟睡感の有無、起床時の体調などの「主観的睡眠感」を評価するために、OSA睡眠調査票を記録した。

この調査票は、我々の日常の生活態度や起床直後の睡眠感を評価する質問紙で、就寝直前に記入する「A.睡眠前調査」（質問項目21問）と目覚めてすぐ記入する「B.起床時調査」（質問項目33問）の二部から構成されている。「A.睡眠前調査」は、日中行動の最低限の把握、一般的な生活態度、就寝前の身体的・精神的状態を把握する内容の質問構成になっている。「B.起床時調査」は、起床時の「主観的睡眠」を問うもので、5つの因子（F1：眠気の因子、F2：睡眠維持の因子、F3：気がかりの因子、F4：統合的睡眠の因子、F5：入眠の因子）として睡眠感プロフィールが示される。¹⁾

3 結果と考察

3-1 寝具材の物性評価

3-1-1 保温性・通気性試験結果

表-1の3種類の寝具について保温性試験、通気性試験を行った結果を表-3に示す。

表-3 保温性・通気性試験結果

	寝具 1	寝具 2	寝具 3
保温性 (clo値)	5.940	3.148	6.256
通気性 (cc/cm ² ·sec)	35.7	154.3	25.4

寝具1と寝具2を比較すると、寝具2は保温性が低く通気性が良い結果になっている。また、寝具2と寝具3を比較すると、通気性は寝具2が良いが保温性は寝具3が良い結果となっている。

3 - 1 - 2 圧縮試験結果

表-1の3種類の寝具材について圧縮試験を行った結果を図-2に示す。

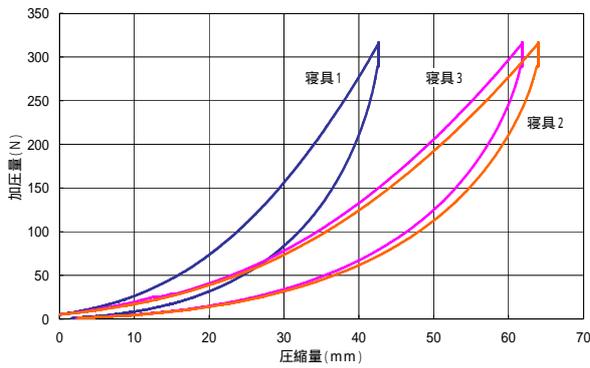


図-2 寝具の圧縮試験結果

この圧縮・加圧曲線においては、曲線の勾配が急であるほど、加圧量が増加しても圧縮量が変化しないため硬い寝具である。逆に、勾配がなだらかであると僅かな加圧量の変化で圧縮量が大きく変化することから軟らかい寝具である。

圧縮試験結果から、314N加圧したときの圧縮量は寝具1が43mm、寝具2が64mm、寝具3が62mmとなっている。寝具1は寝具2・3と比較すると勾配が急で硬い寝具である。寝具2と3は硬さがほぼ等しく、保温性、通気性の異なる寝具である。

また、曲線で囲まれる面積が小さいものは高弾性で反発力が高く、面積が大きいものは低弾性でエネルギー吸収性が良い。

3 - 2 寝床内温湿度測定結果

各被験者にそれぞれの寝具で就寝してもらい、寝床内温湿度を測定した。寝具1～3における各被験者の平均値による背中部の寝床内温度変化を図-3に、同じくふくらはぎ部の寝床内温度変化を図-4に、室内の温度変化を図-5に示す。また、寝具1～3における各被験者の平均値による背中部の寝床内湿度変化を図-6に、同じくふくらはぎ部の寝床内湿度変化を図-7に、室内の湿度変化を図-8に示す。

この結果から、寝具2は寝具3と比較して通気性が良いため、背中部及びふくらはぎ部において寝床内温湿度が共に低くなっている。また、寝具1については羊毛が寝床内の温湿度を調節するために、最適な寝床内環境が得られたと考えられる。

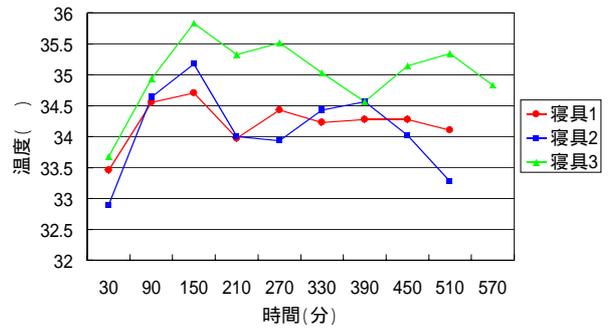


図-3 背中部における寝床内温度

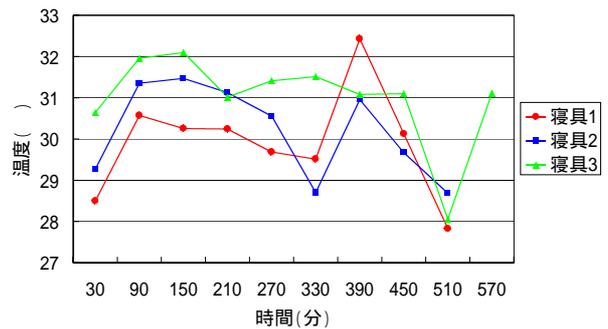


図-4 ふくらはぎ部における寝床内温度

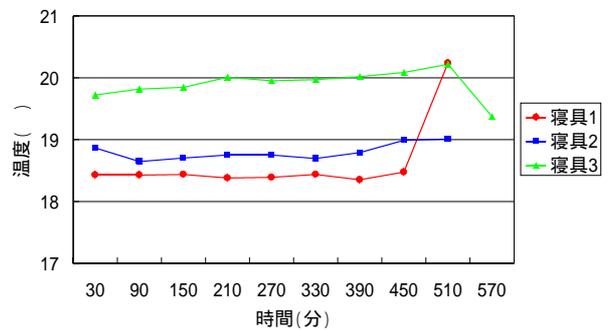


図-5 室内の温度

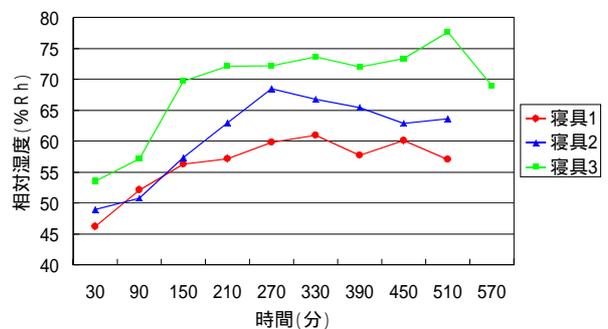


図-6 背中部における寝床内湿度

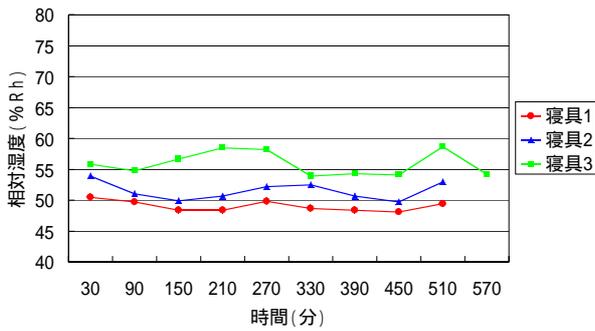


図-7 ふくらはぎ部における寝床内湿度

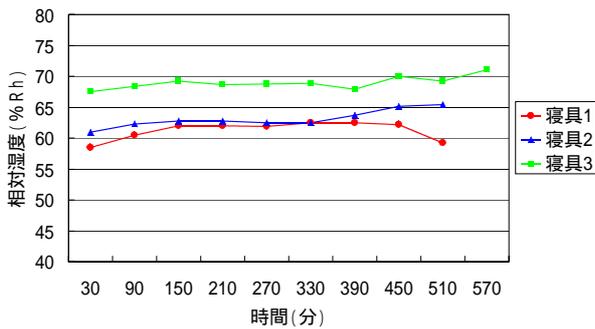


図-8 室内の湿度

3-3 睡眠感評価結果

起床時に記録したOSA睡眠調査票を集計して、寝具1～3に対する睡眠感プロフィールを得点化した。各被験者の睡眠感プロフィールの得点の平均値による寝具1に対する寝具2, 3の得点比を図-9に示す。

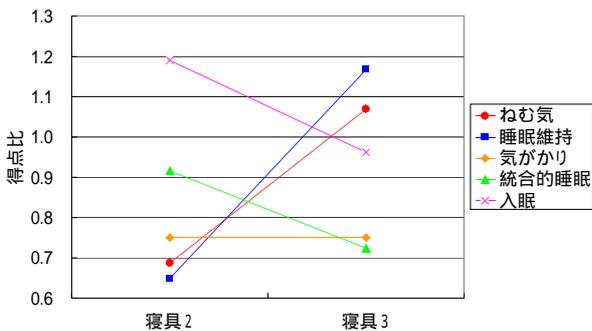


図-9 睡眠感プロフィール得点比

OSA睡眠感プロフィールは、得点が高いほど良い睡眠感が得られたことを意味している。ねむ気の因子については、得点が高くなればなるほど起床時のねむ気が少なく、すっきり目覚められたことになる。睡眠維持の因子については、得点が高いほど中途覚醒が少なく、よく睡眠が維持されたことを意味する。気がかり因子については、得点が高いほど起床時の気分が落ち着いた

ており、気になる心配事やイライラが少ないことを意味する。統合的睡眠の因子については、得点が高いほど長くぐっすり眠れ、全体としても良い睡眠が得られたことを意味する。入眠の因子については、得点が高いほど寝付きがよく、速やかに睡眠状態に入れたことを意味する。この関係を表-4に示す。

表-4 睡眠因子と得点の関係

因子	要素	得点	
		高い	低い
ねむ気	目覚め	すっきり	眠い
睡眠維持	中途覚醒	少ない	多い
気がかり	起床時の気分	落ち着いた ている	イライラ している
統合的睡眠	睡眠の質	良い	悪い
入眠	寝付き	早い	遅い

統合的睡眠の得点をみると、寝具1, 2, 3の順で得点が高くなっている。したがって、寝具1, 2, 3の順でよい睡眠が得られたことを示唆している。

入眠の得点をみると、寝具2の得点が高くなっていることから、寝具2においては寝付きがよいことが推察される。また、睡眠維持の得点においては、寝具3が高くなっていることから、中途覚醒が少なかったことがわかる。

4 まとめ

実験結果より、通気性の良い寝具2は寝付きがよく速やかに睡眠状態に入れるが、全体としてよい睡眠が得られにくい傾向にあることがわかった。寝具3のように保温性が高い寝具については、睡眠維持が良い傾向にあることが再確認できた。また、寝具1に使用されている羊毛は、湿気を吸収する際に吸着熱と呼ばれる熱を放出する吸湿発熱機能により、通気性及び保温性において比較的良好な結果となった。今後は、寝具3以上に通気性及び保温性に優れた寝具の試作を目標とし、試作品において睡眠実験を行う。

5 参考文献

- 1)小栗 貢, 白川 修一郎, 阿住 一雄: OSA睡眠調査票の開発, 精神医学, 27巻(7号), p.791-799(1985)

アメニティ製品に関する評価研究(その1)

い草製品(ござ)の快適性に関する評価研究

友延憲幸*1 本 明子*1 椛嶋 隆*2 河原雅典*3

Evaluation Research on the Amenity Product(Part1)

Evaluation Research on the Amenity of the Product of Igusa(Goza)

Noriyuki Tomonobu, Akiko Moto, Takashi Kabashima, Masanori Kawahara

本研究では、「ござ」についてアメニティ評価を行った。夏季(35℃, 80%RH)・冬季(15℃, 30%RH)を想定した室内環境に「ござ」または「綿製のカーペット(綿)」, 9mm厚の「合板」を敷き, 「ござ」とその他2条件に座った時の生理・心理状態について比較検討した。実験終了後には, 両室内環境とも25℃, 60%RHになるよう温湿度を変化させ, その変化に対する生理・心理状態もまた検討した。夏季室内環境では, 「ござ」は「合板」よりも自律神経活動の亢進を抑制させる傾向があり, 温湿度が変化している最中も同様の結果を得た。冬季室内環境では, 「ござ」は「綿」よりも覚醒水準に良い影響を与えておらず, 温湿度が変化している最中もまた同様の結果を得た。夏は薄手の「ござ」を敷き, 冬は厚手のカーペットなどを敷くといった昔から経験的に知られていることが, 科学的検証によっても示された形となった。

1 はじめに

現代の消費者の欲求・ニーズが多様化する中、製品が与えるアメニティ(快適性)についても関心が向けられるようになった。しかしながら、消費者は実際製品を使用してみないことにはアメニティを実感できず、また企業にとっても製品が有するアメニティを客観的に伝えることは非常に困難であると考え。そこで、本研究では、現行製品についてアメニティに関する科学的検証を行うことにより、その製品の商品価値を判断したり、また製品の改良や新製品開発時の参考となるデータを得ることを目的として評価を実施した。

ここでは、い草製品(ござ)について評価を行った。い草は保温性・通気性に優れ、特にい草を材料とした畳は湿度調整・断熱効果を有することで知られている¹⁾。また、その匂いなどを含め、それらの特性をもつい草がヒトにどのような影響を与えるか、本研究では、夏季・冬季の室内環境を想定した部屋にござを敷き、そこに座位したヒトの生理・心理的影響について検討を行った。

2 方法

2-1 概要

「ござ」もしくは「綿製のカーペット(綿)」, 9mm厚の「合板」を敷いた実験室に夏季[35℃, 80%RH]を想定した室内環境(Room Environment in Summer: RES)と冬季[15℃, 30%RH]を想定した室内環境(in Winter: REW)を作り、これらの部屋に3人の被験者[24歳男性, 25歳男性, 36歳女性]がそれぞれ入室し各敷物に座った状態で、実験を行った。RESとREWは実験開始から7分後に温湿度設定を変更し、その21分後には25℃, 60%RHの室内環境になるように実験タイムスケジュールが組まれた。タイムスケジュールと実際の実験室の環境変化は図-1に示すとおり。

2-2 測定項目

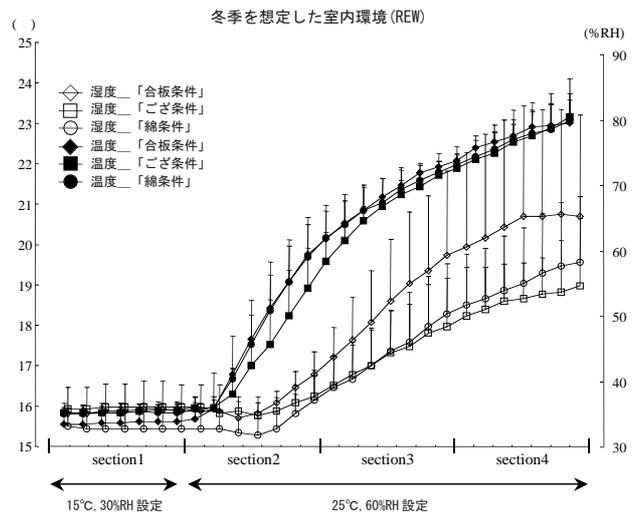
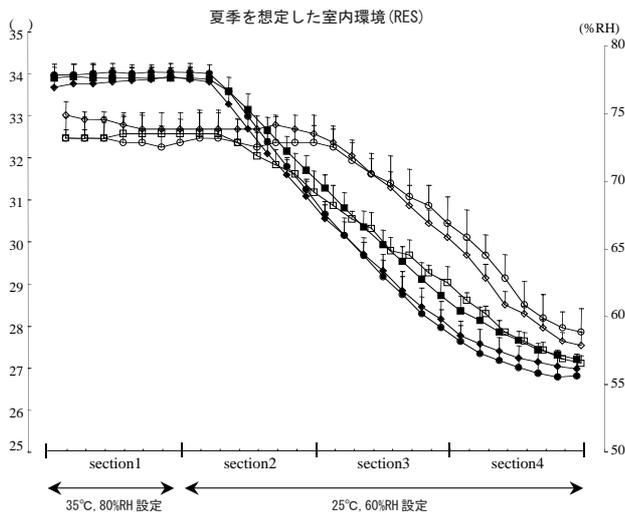
パラメータは脳波、心拍数、心拍変動、皮膚温、主観評価とし、図-1に示すsection(sec.)ごとにデータを算出した。

(1) 脳波

左耳朶皿電極を基準電極とし、国際10-20法に従い頭皮上の(Fz, Cz, Pz)から導出した。その後、サンプリング周波数100HzのデータをA/D変換しパーソナルコンピュータ(NEC, PC-9821)に取り込んだ。閉眼時3分

*1 インテリア研究所 *2 (株)イケヒコ・コーポレーション

*3 大妻女子大学 人間生活科学研究所



※ 1) 1section は 7 分間。その間被験者は統制呼吸を行い、閉眼・開眼を交互に 1 分間ずつ 3 回繰り返す。最後の 1 分間は主観評価を行う。
 ※ 2) 実験開始 5 分前には被験者は実験室に既に入室している。

図-1 実験タイムスケジュール

のデータから 10.24 秒間をサンプリング周波数 100Hz で 17 回サンプリングした。この後、高速フーリエ変換 (FFT) により得られたパワースペクトルから積分値を算出し、 α 1 波 (8 ~ 10Hz)、 α 2 波 (10 ~ 13Hz) の周波数帯域の積分値を得た。

(2) 心拍数

心電図の波形データの R 棘より、1 分間当たりの平均心拍数を得た。

(3) 心拍変動

心電図波形データの R-R 間隔を測定し、測定したデータを時系列化した。時系列データを FFT することにより得られたパワースペクトルから、LF 成分 (0.05 ~ 0.15Hz)、HF 成分 (0.23 ~ 0.43Hz) の周波数帯域において積分値を算出した。また、LF 成分と HF 成分の比 (LF/HF) も算出した。

(4) 皮膚温

測定部位は Hardy and Dubois (1938) の 7 点法に従い、サーミスタを貼り、その 7 部位から得られた皮膚温から平均皮膚温を算出し、実験開始からの変位量をデータとした。

(5) 主観評価

「暑-寒」、 「快-不快」を両極とするスケールにチェックしたものを数値化 (0 ~ 10 点) した。

2-3 統計処理

全て対応のある t 検定を行った。尚、危険率は $p < 0.05$

を有意水準とした。

3 実験結果

3-1 夏季室内想定実験 (RES)

(1) 脳波

「ござ」と他の条件の間に有意な差はなかった。

(2) 心拍数

sec. 1, 2 において、「ござ」は「合板」よりも低い傾向にあり ($p < 0.10$)、sec. 4 では有意に低かった ($p < 0.01$) (図-2)。

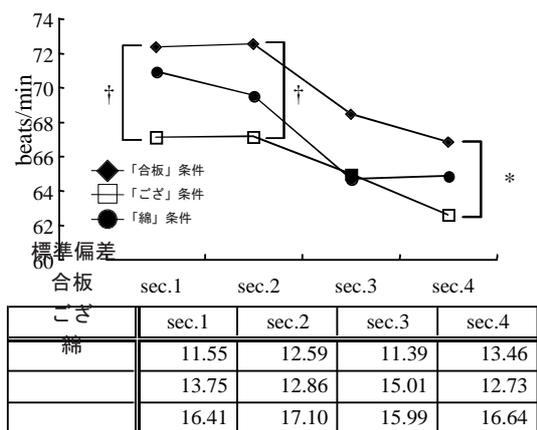


図-2 各 section での心拍数 [平均値, †: $p < 0.10$, *: $p < 0.05$]

(3) 心拍変動

sec. 4 での LF/HF において、「ござ」は「合板」よりも低い傾向にあった ($p < 0.10$) (図-3)。

(4) 皮膚温

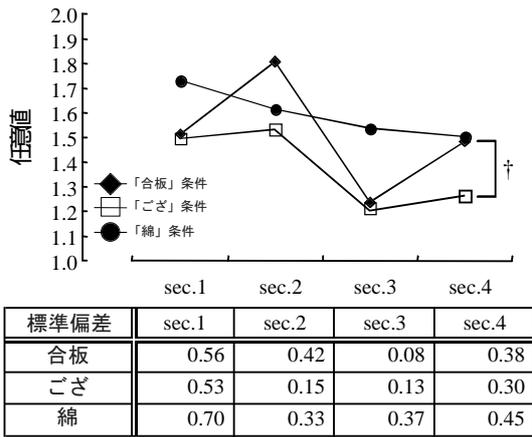


図-3 各 section での心拍変動(LF/HF)[平均値, †:p<0.10]

「ござ」と他の条件の間に有意な差はなかった。

(5) 主観評価

「ござ」と他の条件の間に有意な差はなかった。

3-2 冬季室内想定実験(REW)

(1) 脳波

(1)-a) α 1 波

sec.4において、「ござ」は「綿」よりもFz部位で有意に積分値が低かった(p<0.05)(図-4)。

(1)-b) α 2 波

sec.1において、「ござ」は「綿」よりもPz部位で有意に積分値が低かった(p<0.01)(図-5)。

(1)-c) α 波

sec.1において、「ござ」は「綿」よりもPz部位で有意に積分値が低かった(p<0.05)(図-6)。

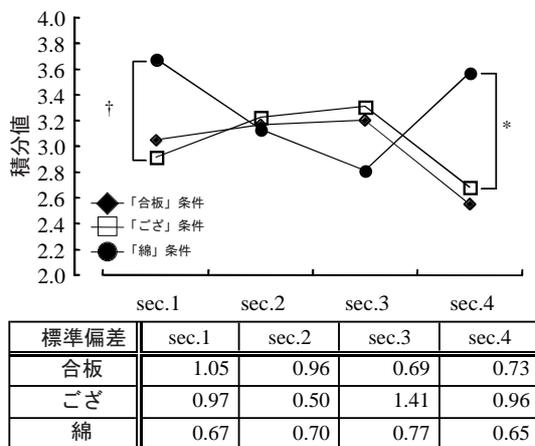


図-4 各 section での α 1 波[平均値, †:p<0.10,*:p<0.05]

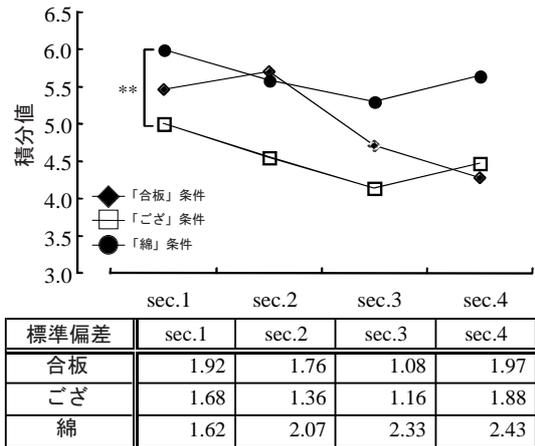


図-5 各 section での α 2 波[平均値, **:p<0.01]

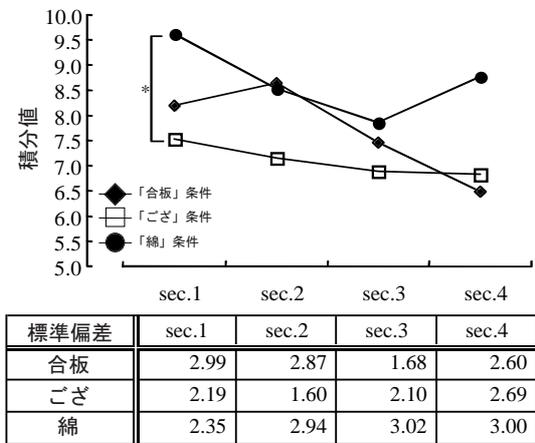


図-6 各 section での α 波[平均値, *:p<0.05]

(2) 心拍数

「ござ」と他の条件の間に有意な差はなかった。

(3) 心拍変動

「ござ」と他の条件の間に有意な差はなかった。

(4) 皮膚温

sec.1の後半(5-7min)の間において平均皮膚温の下降が、「ござ」は「合板」よりも有意に少なかった(p<0.05)(図-7)。

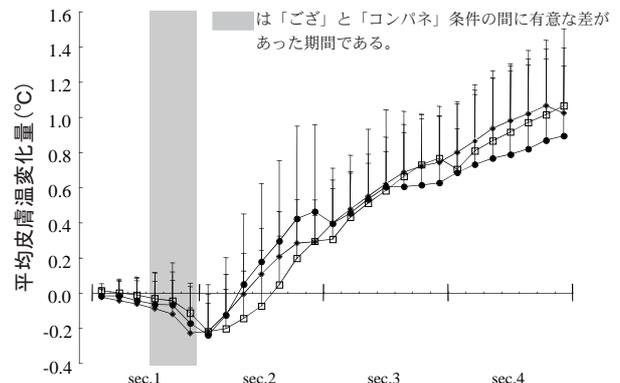


図-7 平均皮膚温の経時変化[平均値+標準偏差]

(5) 主観評価

「ござ」と他の条件の間に有意な差はなかった。

4 考察

4-1 夏季室内想定実験 (RES)

35°C, 80%RHの室内環境 (sec. 1) において、「合板」よりも「ござ」を敷いた上に座る方が心拍数が低い傾向にあった。高温高湿の環境下では温熱ストレスにより、放熱量を増大させるため自律的な神経調節がなされる²⁾。これは、自律神経活動の亢進を意味し、「ござ」の上に座った際に心拍数が低かったことは「合板」の上に座るよりも温熱ストレスが軽減されていると考えられる。また、sec. 2以降の室内環境変化(35°C, 80%RHから25°C, 60%RHへ変化)の過程においても「ござ」に座ることが温熱ストレスを受ける程度を少なくすると考えられる結果(sec. 2, 4の心拍数, sec. 4のLF/HFより)を残した。

4-2 冬季室内想定実験 (REW)

15°C, 30%RHに設定された低温低湿の室内環境では、覚醒水準により差が生じており、「綿」よりも「ござ」に座る方が α 波の出現量が有意に少ない結果となった。 α 波とは、一般的に安静閉眼時に多く出現する周波数帯域である。従って、低温低湿の環境下において「ござ」の上に座った際に α 波の出現量が少ないということは、覚醒状態に良い影響を与えていないと考える。しかしながら、皮膚温の変化において、低下する幅が「合板」よりも「ござ」の上に座る方が有意に少ないということは興味深いところである。

5 まとめ

現在、い草製品の発展を目指す業界関係者の中では、い草製品(特にその中でも畳)が精神的に与える影響、心が安らぐまたは癒されるといった点について関心が大きい¹⁾。特に彼らはい草の匂い・触覚・色が与えるアメニティ効果に期待を寄せている。そのような中、本研究では夏季・冬季を想定した室内環境に「ござ」を敷き、その上に座った時の生理・心理的影響を検討し、評価した。結果的には夏になったら薄手の「ござ」を

敷き、冬は厚手の絨毯を敷くといった経験的に知られていることが、正しかったことを示す形の結果となった。このように主観的に行っていたことが客観的に数値として表されたことは非常に意義のあることと考える。

6 参考文献

- 1) 農林水産省: いぐさ・たたみ文化を考えるフォーラム 21(第2回), (2001)
- 2) 佐藤方彦: 人間工学概論, 光生館, p215-341 (1971)

アメニティ製品に関する評価研究(その2)

背部(背中・腰)をサポートする車用シートに関する評価研究

友延憲幸*¹ 本 明子*¹ 梯 恒三*² 河原雅典*³

Evaluation Research on the Amenity Product(Part2)

Evaluation research on the car seat which supports back and lumbar region

Noriyuki Tomonobu, Akiko Moto, Kozo Kakehashi, Masanori Kawahara

本研究は、背中や腰をサポートする「車用シート」(龍宮(株)社製、製品名:yo-luck)のアメニティについて、2つのアプローチから実験を行った。1つは、公道を運転した時の生体負担に関わる調査を主観評価により実施した。その結果、車用シート取付け時における走行では、身体各部をサポートする座席の支持力が失われるという評価であった。次に座席に振動を与えた時の車用シートの支持力について、体動を指標として評価した。その結果、車用シートを取付けた座席は左右(横)方向の振動に対して、通常の運転座席に座るよりも体動を減少させたが、これは振動の衝撃を緩和させる最善な方法ではなかった。これら2つの実験の結果は、車用シートのデザインがフラットな形状よりも、より座席にフィットし、かつ運転手の身体各部をフィットさせてサポートするような形状を有する必要性を指摘した。

1 はじめに

現代の消費者の欲求・ニーズが多様化する中、製品が与えるアメニティ(快適性)についても関心が向けられるようになった。しかしながら、消費者は実際製品を使用してみないことにはアメニティを実感できず、また企業にとっても製品が有するアメニティを客観的に伝えることは非常に困難であると考えられる。そこで、本研究では、現行製品についてアメニティに関する科学的検証を行うことにより、その製品の商品価値を判断したり、また製品の改良や新製品開発時の参考となるデータを得ることを目的として評価を実施した。

本研究では、背中や腰をサポートする「車用シート」(龍宮(株)社製、製品名:yo-luck)(図-1)について評価した。自動車の運転には、背中・首の痛みや腰痛などを引き起こす要因が多く潜在している。長い時間の座位姿勢、身体に伝わる振動、身体のおねじれ・曲げなどがそれらの主な要因として挙げられる。本研究では、そういった身体的負担に対し、車用シートがどのようなサポートをするのか、2つの実験を通して科学的検証を行った。

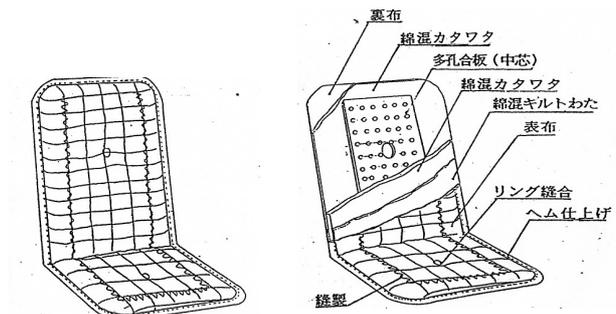


図-1 車用シートとその構成材料

2 方法

2-1 実験1(走行実験)

5人の健常な被験者[男性2人:25歳,41歳,女性3人:36歳×2,38歳]は、各自の自家用車の運転座席に車用シートを取付け、大川・柳川市内の約30kmの公道を約60分間かけて周回した。運転開始から30分後、60分後に車を停止させ、主観評価用紙(図-2)を用いて運転時の生体負担に関わる要因について評価を行った。

生体負担に関わる要因として、本実験で評価対象としたものは、

- 1) 運転の快適性
- 2) 運転のしやすさ
- 3) 座面の蒸れ感
- 4) 運転による疲労感[背中,腰など各身体部位計6箇所]

*1 インテリア研究所 *2 龍宮(株) *3大妻女子大学 人間生活科学研究科

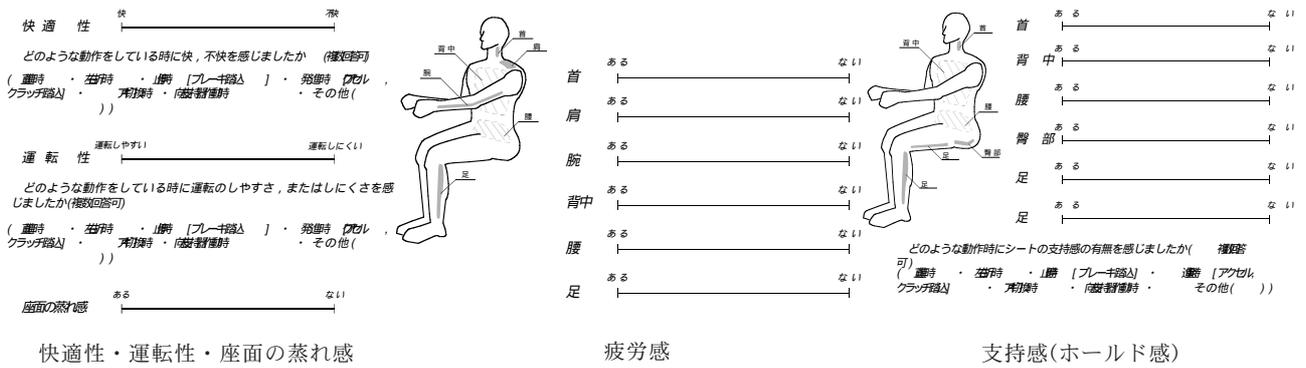


図-2 実験1で使用した主観評価シート

所の疲労感]

5) 運転座席の支持(ホールド)感[背中, 腰など各身体部位計6箇所の支持感]

の5つの項目である。図-2に示す評価用紙のスケールにチェックしたものを数値化(0~10点)した。

また、車用シートを取付けていない、通常の運転座席での運転に対する評価も同様に行い、車用シートを取付けた運転での評価と比較した。

尚、得られた結果は全て対応のあるt検定を行い、危険率は $p < 0.05$ を有意水準とした。

2-2 実験2(振動実験)

自動車運転中に発生する運転座席の振動に共振する身体の揺れの大きさを見るため、被験者が座った(車用シートを取付けた)座席に振動を与える模擬的な実験を行った。振動の与え方は、座席の後部下端を軸として、座席の前部を3.75秒周期(0.27Hz)で高さ10cm程度上げる工程を繰り返し、座席の前後方向に振動させる方法である(図-3)。また、それと同様の方法を用いて座席の左右方向にも振動を与える実験を行った(図-4)。本実験に参加した被験者は10人(男7人:25-

55歳, 女3人:36-38歳)で、被験者の前額部, 胸部に体動センサ(加速度計)を取付け、1分間の振幅の積分値と最大ピーク値を得た。

また、車用シートを取付けていない通常の運転座席に座った状態での実験も同様に行い、車用シートを取付けた状態での結果と比較した。

尚、得られた結果は全て対応のあるt検定を行い、危険率は $p < 0.05$ を有意水準とした。

3 結果

3-1 実験1

(1) 快適性

運転開始から30分後、60分後においてともに、車用シートを取付けた場合、有意に「不快」という評価であった(図-5左)。

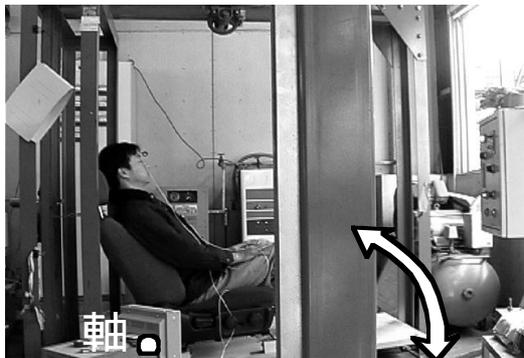
(2) 運転性

2つの条件間に有意な差はなかった(図-5中央)。

(3) 座面の蒸れ感

2つの条件間に有意な差はなかった(図-5右)。

(4) 身体各部の疲労感



※シート後部下端を軸として、シート前部を3.75秒周期(0.27Hz)で高さ10cm程度上げる工程を繰り返し、シートの前後方向に振動を与えた

図-3 前後方向の振動実験(実験2)



※シート右部下端を軸として、シート左部を3.75秒周期(0.27Hz)で高さ10cm程度上げる工程を繰り返し、シートの左右方向に振動を与えた

図-4 左右方向の振動実験(実験2)

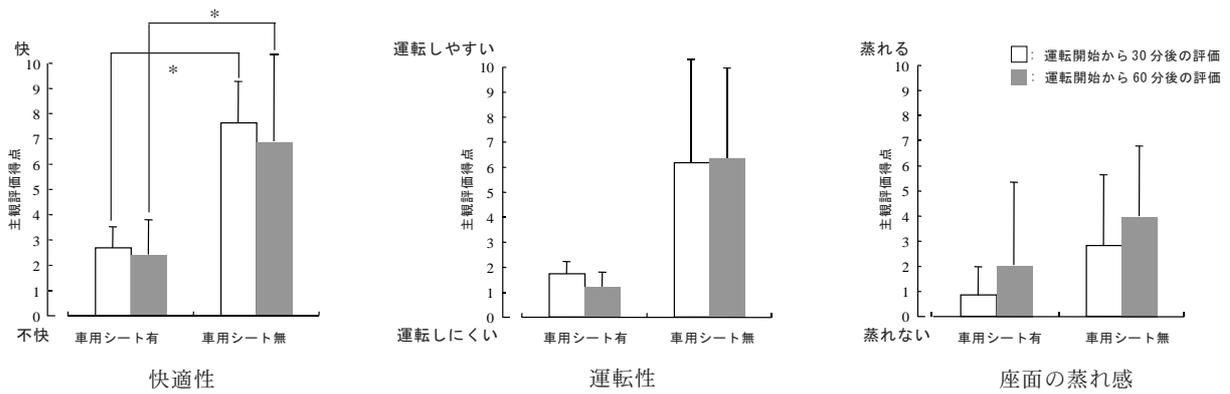


図-5 主観評価結果(快適性, 運転性, 座面の蒸れ感)[平均値+標準偏差, *:p<0.05]

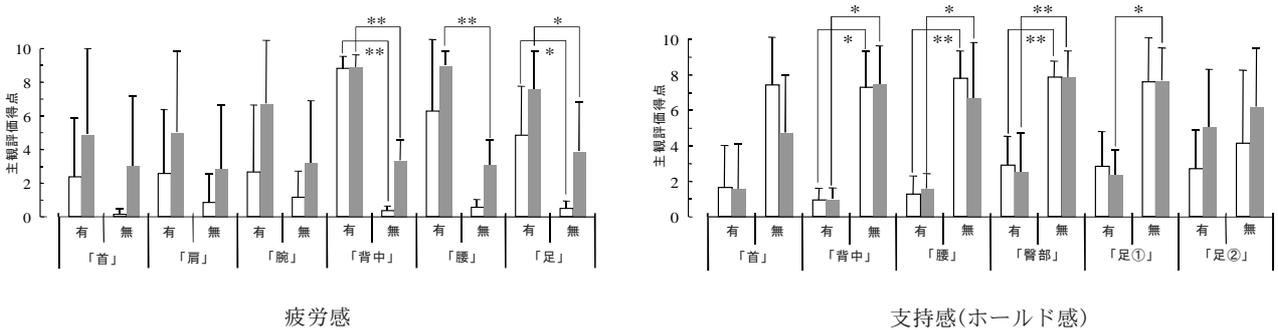


図-6 実験1での主観評価結果(疲労感, 支持感)[平均値+標準偏差, **:p<0.01, *:p<0.05]

運転開始から30分後の評価において、「背中」と「足」、また60分後の評価では「背中」、「腰」、「足」の疲労感が車用シートを取付けた場合、有意に大きかった(図-6左)。

(5) 身体各部の支持感

車用シートを取付けた場合、運転開始から30分後の評価において「背中」、「腰」と「臀部」、60分後の評価では「背中」、「腰」、「臀部」、「足①(大腿)」の部位で有意に支持感がないと評価された(図-6右)。

3-2 実験2

3-2-1 前後方向の振動

(1) 振幅積分値

車用シートの有無で有意な差はなかった(図-7左)。

(2) 振幅最大ピーク値

車用シートを取付けた条件では、胸部において有意に値は高くなった(図-7右)。

3-2-2 左右方向の振動

(1) 振幅積分値

車用シートを取付けた条件では、前額部、胸部いずれの部位においても有意に値は低くなった(図-8左)。

(2) 振幅最大ピーク値

車用シートを取付けた条件では、前額部において有意に値は低くなった(図-8右)。

4 考察

4-1 実験1

本実験により、運転座席に車用シートを取付けた場合、運転時の生体負担は通常の運転座席よりも大きく感じられることが明らかとなった。特に背中、腰の疲労感は大きく感じられ、支持感についても評価は低かった。実際に車用シートを取付けて運転した被験者の中には、評価が低い理由として”身体形状とのフィット感が乏しい”という意見もあった。また、臀部の支持感についても評価は低かった。特に運転中、右折左折を行う際、またブレーキを踏む停止時の支持感にホールド力の無さを5人中4人が感じており、”左右に滑る”といった意見があった。

4-2 実験2

前後方向の振動に対し、車用シートを取付けると胸部の振幅最大ピーク値は、通常の運転座席よりも有意に高かった。ピーク値が高いということは、ここではより鋭い振動を受けていることを意味し、主に腰椎、

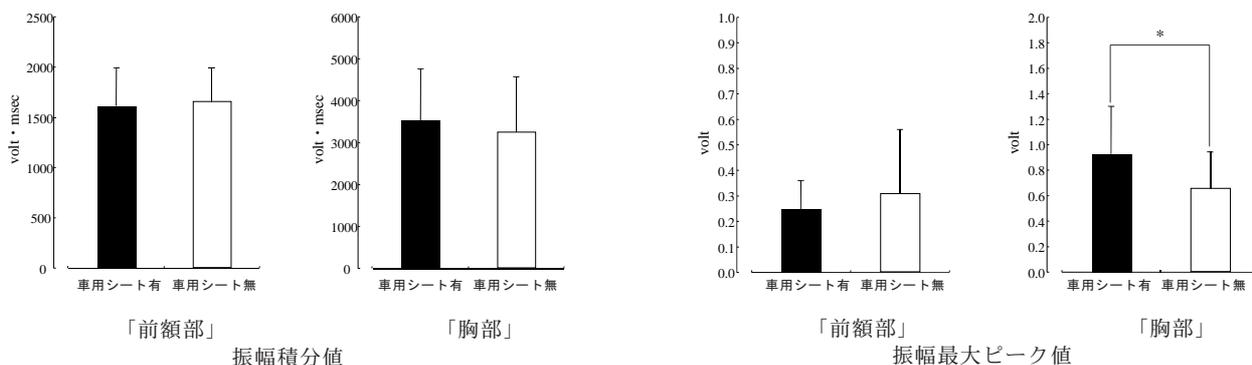


図-7 前後方向の振動に対する体動の振幅積分値と振幅最大ピーク値[平均値+標準偏差, *:P<0.05]

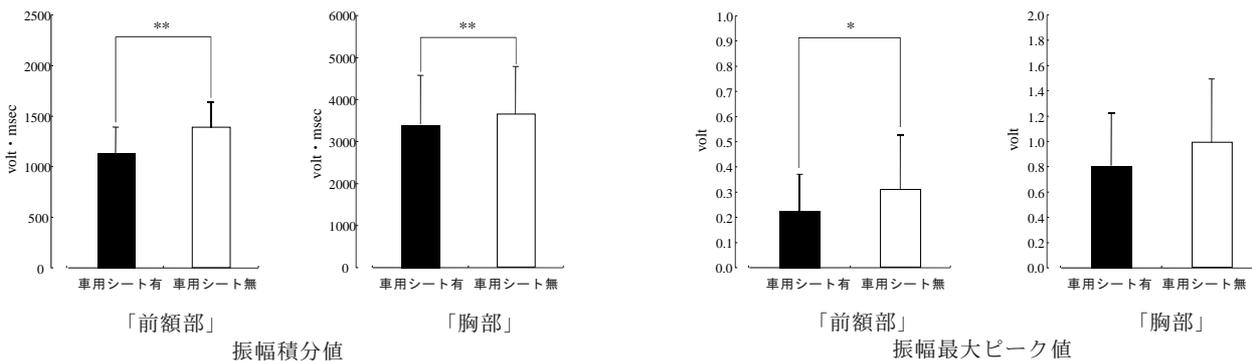


図-8 左右方向の振動に対する体動の振幅積分値と振幅最大ピーク値[平均値+標準偏差, **:p<0.01, *:P<0.05]

脊椎、骨盤など上半身を支える軸となる部位の共振が大きいと考えられる。これに対し左右方向の振動においては、車用シートを取付けると前額部、胸部の振幅積分値および前額部の最大ピーク値は、通常の運転座席よりも有意に低かった。振幅積分値、ピーク値ともに値が低いということは、身体が振動している時間が短く、かつより鋭い振動を受けていないことから、座席の振動に対する上半身の共振は小さいと考える。

このように前後方向と左右方向の座席の振動では全く異なる結果となったが、この2つの結果から振動に対する車用シートの効果について考えてみる。一般的にシートのクッションは柔らかいものよりも硬いものの方が自動車の振動による共振を和らげると考えられている¹⁾。図-1に示す構成材料からも分かるように、車用シートは通常の運転座席のクッションよりも硬い素材の製品である。従って、車用シートを取付けた場合の左右方向の振動に対する上半身の共振が小さかったのはシートのクッション硬さによるものと考えられる。しかしクッションの硬さにより、共振を和らげるのならば、何故、前後方向の振動に対しても同じような結果が得られなかったのか。この結果はクッション

の硬さのみが振動による共振を和らげたのではなく、他の要因があることを教示している。

”左折や右折を行う際、曲がる時の遠心力や車の振動がダイレクトに身体に伝わってこない”

実験1の走行実験に参加した被験者からこのような意見があった。この意見を受け、シートのクッション硬さ以外に振動による共振を緩和させる要因があると考えた場合、運転座席に取付けた車用シートは直接振動を受ける運転座席と比べると、振動を間接的に受けていると考えられる。取付けたとはいえ、運転座席に単に載せただけの車用シートであれば、運転座席が振動を受けると車用シートは浮いた状態となり、それが結果的に”振動を逃がす”ことにつながる。このような振動の逃がし方は、運転時に起こる危険に視覚や身体全体の感覚で対処する必要のある運転手にとって、振動に対する最善な緩和方法ではないと考える。

5 まとめ

自動車の運転手が最も起こしやすい疾病として、背(筋)痛、頸部の痛み、坐骨神経痛、脊柱の関節症・退化・ヘルニアなどが挙げられる。これらの疾病の原因

としては、狭い限られたコックピット内での長い座位姿勢、全身の振動・ねじれ・曲げなどがある¹⁾。その中でも、自動車の運転に限らず、あらゆる環境の中で、振動は上述した疾病を引き起こす最も危険な要因として考えられている²⁾。そこで、本研究では振動からの身体の共振を和らげる硬い材質を有する車用シートについて、運転時の生体負担について検討するため、実際に公道を走行する実験と運転座席に振動を与える実験を通して評価した。

硬い材質を有するシートは特に骨盤や坐骨の姿勢を保持し、外部からの振動による共振を減少させると考えられるが、2つの実験からは好ましい評価は得られなかった。これは、シートが硬いという利点をシートの形状、デザインが打ち消したものと考え。硬いという長所を活かすようなデザイン、例えば身体各部へのフィット感や運転座席にフィットする形状を考慮したデザインが必要となってくる。本研究で評価した車用シートに関していえば、フラットな形状よりもシートの縦方向をアコーディオン状にする、或いは座席の形状に対応して折り曲げられるデザインにすることによって、硬いシートの効果が生きてくるのではないだろうか。

5 参考文献

- 1) Donald D. Harrison et al.: J Manipulative Physiol Ther, 23(1), p37-47 (2000)
- 2) Heliovaara M.: J Chronic Disease, 40, p259-264 (1987)

学校用机・椅子の研究開発

本 明子*1 友延憲幸*1

Development of school furniture

Akiko Moto, Noriyuki Tomonobu

県産材の需要創出に貢献するために、福岡県産杉およびヒノキを主材料とした学校用の机と椅子の開発研究を行った。本研究では、これまで木製の机と椅子を導入した教育現場から課題としてクローズアップされた重量とコストの問題を解決するために、軽量化および低コスト化を目指したデザイン開発を行い、強度・寸法ともに JIS 規格を満たした試作品を製作した。

1 はじめに

福岡県土の約 45%は森林であるが、県内の木材消費量のうち県産材の割合は約 2 割程度という状況にある。福岡県では、県産材の新たな需要創出の一環として、平成 11 年度より県内の小中学校へ県産材の杉やヒノキを活用した木製の机・椅子の導入を実施してきた。その結果、導入した学校の反応は、「落ち着く」「木の方が暖かい」など感覚的な理由からは好評である反面、「重い」「コストがかかりすぎる」など、改善すべき点もクローズアップされた。そこで、本開発では、県産材を利用した学校用机及び椅子について、構造・デザイン面から改良を行い、低コスト化と軽量化を目指した設計と試作を行った。

2 方法

本開発は、以下の手順で設計及び試作を行った。

1) スケールモデルによる検討 (図-1)



図-1 スケールモデル例

2) 試作品による強度などの検討

JIS に準じた強度試験の実施

3) 最終試作

3 結果と考察

-机・椅子の試作及びデザインと強度の検証-

学校において、最も一般的に使用されている大手メーカーのスチール製の重量はセットで約 14～15kg (4号)、価格は定価で 16700 円～19000 円である。これらの製品に対抗できる製品の開発を目指して試作を行った。目標の重量は 11～12kg、価格は 10000 円～12000 円とした。

スケールモデルおよび図面でのデザイン検討を踏まえ、13 タイプの机と椅子の試作を行い、重量の測定、強度試験を実施し、製品化に向けての検討を行った。その結果、以下にあげる 8 タイプが強度的な条件を満たし、製品化への可能性が見出せた。試作は 4 号サイズを標準とした。以下にそれぞれの開発経過と試験結果等について述べる。価格については、参考価格であるため記述を控えた。

3-1 試作品 A



図-2 試作品 A

*1 インテリア研究所

ヒノキを使用したシンプル形状で、強度的にも問題がなく、軽量（10.28kg）で使用しやすいタイプである（図-2）。造りも丁寧で申し分なく、目標価格には至らなかったが、目標に近い価格が設定されている。この品質でこの価格ならば十分であると考えられる。

3-2 試作品 B

A の高さ可動型（図-3）。JIS-3, 4 号の寸法を満たしている。高さについては 2~5 号に対応し、通常小学校では 2~4 号が使用されていることを考慮すると、これ 1 台で 1~6 年生に対応できる可能性がある。A と同じく、軽量（12.56kg）で強度にも問題がない。可動型の場合に発生しがちな金具の緩みについても、二つの金具をプレートにし連結することで対策を講じている。



図-3 試作品 B

3-3 試作品 C

県内で従来使用されていた木製机・椅子の材料の厚さを変更したもの（図-4）。この形は、「重い」との意見がある反面、「あたたかみがあっていい」と好評でもあった。そこで、軽量化を期待し従来 25mm であった側板の厚さを 20mm にした。強度的にも問題はなかったが、重量は期待ほど減少せず、5~10%軽量化に留まり 13.5kg でスチール製と同等程度である。価格については、製作コストが同様のため、低下は見込めなかった。可動型も対応できる。



図-4 試作品 C

3-4 試作品 D

C と同じく従来使用されていたタイプの材料の厚みを抑えたもの（図-5）。強度も条件を満たしている。C と同じく 5~10%程度の軽量化により、約 11.5kg である。形状としては A とほぼ同様であるが、ヒノキを使用した A に対し、杉材がメインで、A に比べ丸みをおびた形状である。C に比べると材料は少ないが、製作コストがかかるため、大きな低減は見込めなかった。可動型も対応できる。



図-5 試作品 D

3-5 試作品 E

金属のパイプと組み合わせたもの（図-6）。強度には問題はない。重量は 13.24kg で A, B, D と比べるとやや重い、重さを感じさせず、木材と異なり「引きずる」ことも躊躇なく行える感があり煩雑な扱いを受ける可能性がある学校には向いているとも考えられる。また、椅子のスタッキング（積み重ね）も可能である。組立方法が明解で製作も簡易である。価格は木製のものと同等であった。



図-6 試作品 E

3-6 試作品 F

机は、杉材を主に使用し、金属の物入れ部分が天板と脚部との接合金物を兼ねる（図-7）。軽量で、シンプルで無駄がないデザインではあるが、金物部分が弱く水平面の側方からの強度に問題があった。そのため、金属プレートを厚くすることと、側方だけの金属部を背板まで連結し強度を増すなどの試作

を繰り返した。その結果、金属プレートを厚くし、背板を広く取ったもの（I型）は、水平強度試験にも耐えることができた。重さは7.50kgになったが、軽い方である。また、背板まで囲む形で金属パーツを製作したタイプ（II型）は、水平強度試験の規定数値内ではあったが、やや不安が残る。また、金属部が増えたため、重量も9.50kgとやや重量が増した。この結果から、デザインは背板が狭いII型がすっきりとしてまとまっているが、背板を広く取ることによって強度の補強を行う方法のI型が、製作コストの面でも重量の面でも12.56kgと妥当であると考えられた。脚部の取り替えも容易であり、脚部パーツの変更により高さを変えることもできる。価格については、目標額に近い設定ができる見込みである。



図-7 試作品 F

3-7 試作品 G

パイプを使用し、従来にないものごとデザインした（図-8）。脚端部のパーツで高さを2種類に変えられる。脚端部に木製パーツを使用したため、試作品 H に比べると個性的である。構成部材が少ないため、他のスチール製のものに比べても軽量である。強度的には問題はないが、実際には、反り防止のためにも棚板の厚みが必要であると考えられる。現状では、金属パイプの曲げ加工にコストがかかり、他の試作品に比べ高額であるため、大量生産時には金



図-8 試作品 G

属部品を安価で加工できる方法を探るか、曲げ加工部分を簡略化する必要がある。重量は10.25kgで非常に軽量である。

3-8 試作品 H

試作品 G と同様に、パイプを使用し、軽量化を目的にデザインした（図-9）。その結果、他のスチール製のものに比べても、重量は10.90kgと軽量である。しかしながら、木製に比べると、特徴がなく温かみに欠ける。強度的には問題はない。G と同様に、他の試作品と比べ高額となったため、金属加工の方法によりコストは下げる必要がある。



図-9 試作品 H

3-9 全試作品に関する検討項目

3-9-1 高さ可変方法の検討について

本開発では、高さ可変型についても考慮するためにいくつかの方法を検討した。高さの可変方法には以下の方法が考えられる。

- 1) 従来型の上部和下部を分けるような形状で一部分のパーツが重なるようにデザインするもの。
- 2) 天板部（椅子の場合は座面部分）を上下できるようにデザインするもの。
- 3) 脚部の取り替えを可能にするもの。

1) は試作品 A と B のような関係である。どのような形状のものでも可能な方法であるが、デザインが煩雑になること、重量が重くなること、金具部分と木部の取り合いが難しく緩みが生じやすいことなどの欠点がある。接合部の緩みについては、B は金具の工夫により解消している。

2) については、試作品で検討した結果、天板と脚部が接着されていないため、天板部を水平に加力する側方荷重に弱いことがわかった（図-10）。また、高さ調整のための穴の部分で材の割れも認められた。これらの結果より、天板部を上下させる方法は学校家具には不相当であると考えられる。



図-10 側方荷重試験による破壊例

3) については、パーツの取り替えの手間は増えるが、傷付いた頃に取り替えると割り切ることができれば、形状もシンプルで重量も重くなることはない。ただし、接合部の面積が小さすぎると側方荷重に耐えることができなかつた。試作品 F もこの方式によるが、接合面積が広く数カ所で留めていることと背板に力を分散させることで、強度的な問題は解決された。また試作品 G についても、脚端部のパーツの組替えにより 2 サイズに対応可能である。

3-9-2 天板表面の硬さについて

天板の軟らかさに対処するためには以下のような方法がある。

- 1) フェノール樹脂等を含浸させる。
- 2) 樹脂含浸単板等の表面材を接着する。
- 3) 熱圧硬化処理をする。
- 4) 塗装をする。

1) の方法は、コストと手間が生じるため、今回の開発には適当でない。

2) について、樹脂含浸単板をホットプレスで表面に接着することを検討した。表面の硬さについて、引っかき硬度試験 (JIS K 5600-5-4) を実施した結果、処理前の表面硬さが 4B であったのに対し、H になり、効果が見込まれた。しかしながら、片側だけに貼った場合、材に反りが生じ、天板としては適さないことがわかった。両面に貼ると反りはある程度解消できると考えられるが、製作側の意見は、工程が増えることでコストがあがり実現は難しいとのことであった。

3) は、板表面を 180℃程度に加熱し、組織を壊すことなく均一に押しつぶして表面硬度を上げる方法である。前項と同様に表面硬度の向上は期待できるが、作業工程が増えることと、数 100 単位での注文となる学校用の机への対応が困難であるとの製作

側の意見から、今回の開発では採用しなかつた。

4) の塗装処理は、家具の製造工程においてももっとも一般的に取り入れられている方法である。本開発においても、ウレタン仕上げと UV 硬化樹脂塗料仕上げの場合の表面硬さについて、前項と同様に引っかき硬度試験を実施した結果、塗装前が 4B であったのに対し、塗装後は H~2H 程度となり、効果が見込まれた。本開発では、この従来方法である塗装により、表面の硬さを向上させることとなった。しかしながら、学校用机においては特に天板は傷がつきやすい部分であり、予算が許せば、作業工程を増やしてでも、塗装と他の処理との併用により、更に硬さを向上させたい部分である。

4 おわりに

開発を進めていく上で、常に問題に上がったのは、集成材の価格であった。本研究において開発した試作品の価格は、約 12000 円から 30000 円であった。金属等の加工のためコストアップとなったものもあるが、主材を木材としたものは、現状では、集成材の価格を下げる以外に、これ以上の製品のコストの低下は見込めない。また、森林組合などで集成してもらえないか、県で一括して入札してもらえないか等の意見もあがっている。今後、流通も含め、検討が必要とされる。

軽量化に対しては、部材や構造の簡素化により、11-12kg 程度まで軽量化した製品ができあがった。しかし、実際に重量を測定すると、重いとされた木製の従来型のものとは、重量に大差はなく、イメージの問題であったのかもしれない。どっしりとした感じは木材の持つ長所の一つとも考えられ、軽くみせることがいいのかという疑問も拭いきれない。

様々な形状の机と椅子を試作し、様々な考え方があることがわかった。どのタイプにも長所と短所があり、どれが一番いいと決めることは出来ないが、今後、これらの試作を基に、ディテールの検討を行うことで、より完成度の高い製品となると思われる。製品化に向け努力したい。

今回の開発の設計および試作に関し協力頂きました各位に厚く御礼申し上げます。

多孔質材料の性状把握に関する研究

古賀賢一

The study of qualitative evaluations of porous materials.

Ken'ichi Koga

本研究は、当課がこれまでに研究してきた無機建材ボード等の材料について、その多孔性に由来する物性(吸着・固定化・環境応答性等)を評価するための一般的な指標を確立する事を目的とする。本年度は、前年度に見出した調湿性能指数・VOC除去性能指数を検討し、より一般性を高めることを目標とした。

1 はじめに

近年の環境に関する関心の高まりにより、既存の材料等にも環境浄化機能や低環境負荷性等が要求されてきた。特に建材関連では、最近の高断熱高気密化を重視した住宅設計・合成樹脂や溶剤を使用した材料等の利用が元となり、室内環境が悪化し社会問題となっている。この問題の要因として、壁・天井・床に合成樹脂や溶剤を含む材料を用いたため、材料による水分呼吸の効果が無くなり、室内が異常に乾燥したり湿気ったりすることと、材料よりVOCが気散することが挙げられる。住宅の高気密化がこれを増長し、シックハウス症候群といわれるまでになった。

このような問題に対し、建材メーカーは、調湿性能・VOC除去性能のある材料を開発・生産することで対処しようとしている。しかしながらその性能の評価は、それぞれが独自の方法で行っており、互いの性能を比べることは困難である。また評価値は測定条件に大きく依存していることが多く、その場合には同様の試験を行っても同じ評価値は得られない。

本年度は、前年度に見出した調湿性能指数¹⁾・VOC除去性能指数を検討し、より一般性を高めることを目標とした。

2 研究, 実験方法

2-1 調湿性能指数の応用1

建材メーカーは、調湿性能を持つ材料の開発に努めているが、調湿性能のある原料を使用しているという程度のもので殆どである。前年度より各種建材の調湿性能をB'v・B'w値法¹⁾によって評価してきたが、調湿性能のある原料を用いても、建材とした場合にその性能

が発揮できていないことが多いという結果を得ている。

この現象は建材とした場合に、材料内部の空隙が潰されて、原料の調湿性能が発揮できていないことによるものと考えられる。調湿建材の設計において、水分保持の為にミクロ孔と水分の移動のためのマクロ孔が重要であるといわれている。²⁾上記の空隙はマクロ孔にあたり、その調湿性能へ与える影響を考察する目的で、原料比は変えずにプレス・養生の条件を変化させ、かさ比重(空隙率と関係)の異なるケイ酸カルシウム系のボードを作成した。原料比・作成条件を以下に挙げる。

表 - 1 原料重量比

高炉水砕スラグ	100
半水石膏	100
新聞古紙	8
消石灰	6

- 古紙をミキサーで1min処理しパルプ化
- 全原料を攪拌機で400rpm10min攪拌 終了1min前にポリアクリル系凝集剤を添加
- ブフナーロートで円盤状に吸引る過
- 固形分を30kgf/cm²で1minプレス
- 60 で24h蒸気養生
- 60 で24h乾燥

上・下線部の過程を除くあるいは程度を弱めることにより、かさ比重が小さく、空隙率の大きなボードとなる。得られたボードはアルキメデス法でかさ比重を測定し、B'w値法で調湿性能を評価した。

2-2 調湿性能指数の応用 2

調湿材料の性能試験において、木材を比較の対象としているケースが多い。吸放湿性試験を性能評価に用いている場合には、木材の吸放湿重量が安定するのに時間がかかるため、測定を1日程度で打ち切り、その時点では目的の材料の方が木材よりも数倍優れた調湿性能を発揮すると宣伝している例がある。また木材の場合には窯業系の建材に比べ、板目・柾目の異方性の効果が非常に大きく影響していると考えられるが、その効果まで考慮して試験している例はあまりない。

この問題に関して、図-1のような形状の窯業系ボードと数種の木材で各面を熱可塑性樹脂で覆った材料を数パターン作成し、B'v 値を測定して面効果を検討した。

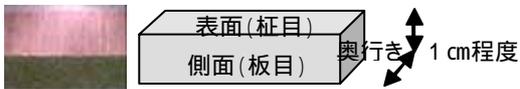


図-1 調湿性能における面効果

2-3 VOC 除去性能指数の測定

前年度の研究で見出した $A'v \cdot A'w$ 値法は、これまで数値化が困難であった VOC 除去性能を定量的に評価できる方法である。密閉容器とガス検知管を用い、VOC の典型であるホルムアルデヒド濃度の経時変化を測定する。具体的な手順は以下の通りである。

材料と内容積 100 l の密閉容器を 20 相対湿度 55% で一昼夜かけて安定させた。

材料を密閉容器に入れ密閉し、20 の雰囲気中でポンプにより対象のホルムアルデヒドを導入した。(図-2)

所定時間毎に密閉容器内部のホルムアルデヒド濃度をガス検知管で測定した。(図-3)



図-2 VOC の導入

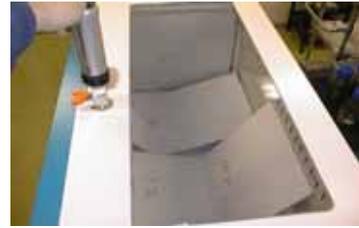


図-3 VOC 濃度の測定

ホルムアルデヒド濃度の時間変化は、ガス導入直後を除き累乗関数で相関でき、(1)式を適用した。(図-4)

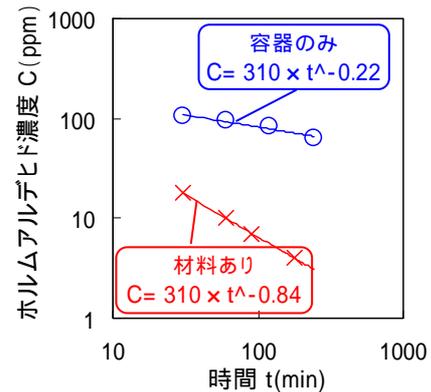


図-4 VOC 除去性能の測定結果

$$C = E \times t^{-A} \quad (1)$$

ここで E はガスの初期濃度に関係する量であり、A はガス濃度の減少の割合に関係する量である。

この A に関しても調湿性能¹⁾の場合と同じく、材料の量と容器の体積との比の関係で扱うことができる。

($A'v \cdot A'w$ 値法 図-5, (2))

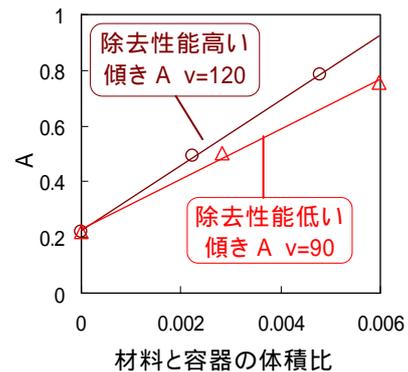


図-5 A と材料 - 容器の体積比の関係

$$A = A'v \times (v/V) + F \quad (2)$$

今年度は測定の自由度となっているホルムアルデヒドの初期濃度の違いに関して調べた。

3 結果と考察

3-1 調湿性能指数の応用 1

2-1の方法によりかさ比重が1.0~1.6のケイ酸カルシウム系ボードを作り分けることができた。図-6はかさ比重が最大と最小のものの断面図であるが、同じ量の原料を用いても厚みが倍近く異なり、空隙率も異なっている。



図-6 試作ケイ酸カルシウム系ボードの断面図

得られたボードのかさ比重とB'w値の関係は図-7のようになった。

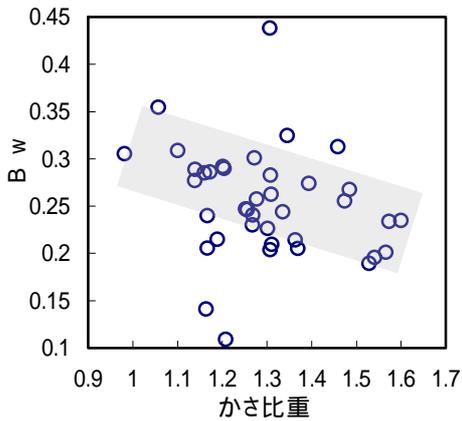


図-7 試作ボードのかさ比重とB'w値の関係

図-7では2-1に述べたような関係が若干現れているようであるが、それほど顕著ではない。(かさ比重が小=粒子間隙が残っている 調湿性能を発揮 図-7の灰色の傾向) この程度の間隙の違いは、調湿性能にあまり反映されないことを示している。今後の調湿材料の開発の為に更なる検討が必要である。

3-2 調湿性能指数の応用 2

2-2のB'v値の測定結果は図-8のようになった。

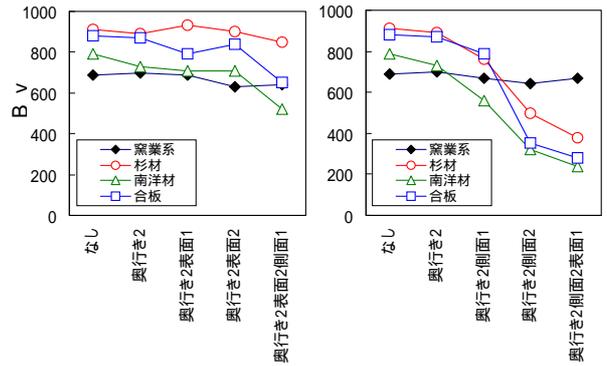


図-8 調湿性能における面効果

なお図-8の横軸は材料の覆った面とその数で整理した。

窯業系のB'v値は変化なく、1 cm程度の厚みの物であれば1面で材料全体への吸放湿ができることを示している。この結果は、前年度の窯業系ボードではB'値は材料の表面積に依存しないという結論を支持するものである。¹⁾

木材では側面(板目)を覆うとB'v値が極端に小さくなっており、側面からの材料への水分の出入りが調湿能力に重要であることが解る。

B'値法は平衡条件での測定で決定するため、2-2の事例とは異なり木材の方が全般的に窯業系ボードよりも大きなB'v値となっているが、壁・天井に使用する場合には表面のみを介して吸放湿しなくてはならない。この場合想定されるB'v値は図-8の右側2つの値であるので、窯業系ボードの方が調湿に優れることになる。

3-3 VOC除去性能の測定

ホルムアルデヒドの初期濃度を、よく用いられる5,20,100ppmとし、代表的な建材ボードを測定すると図-9のようになった。

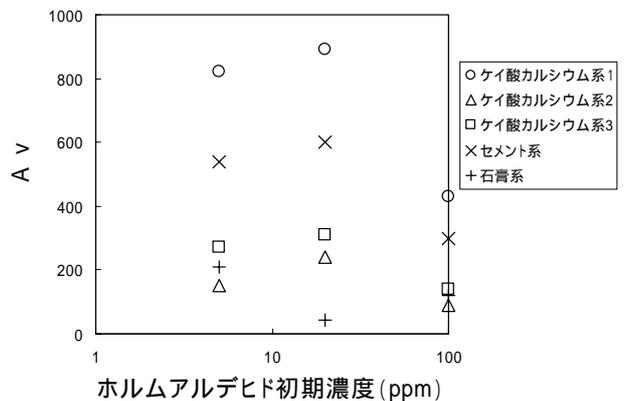


図-9 ホルムアルデヒド初期濃度とA'v値の関係

図 - 9 では、各材料のA'v値に様な傾向は見られない。これはホルムアルデヒドの初期濃度に応じて、材料に吸着される分と、測定容器に吸着あるいは容器からの漏れの分のバランスがずれることが影響している。特に高濃度では容器の寄与が大きく、(2)式のF値がA'v値の半分程度になることもあった。

図 - 9 のように様な傾向は見られない場合、1つの系列を基準に取り、その他のものを規格化すると解析できることがある。図 - 9 において最大のA'v値を取るケイ酸カルシウム系1を基準にし、その他のものを、ケイ酸カルシウム系1との分率で計算し直したものをプロットすると図 - 10 のようになる

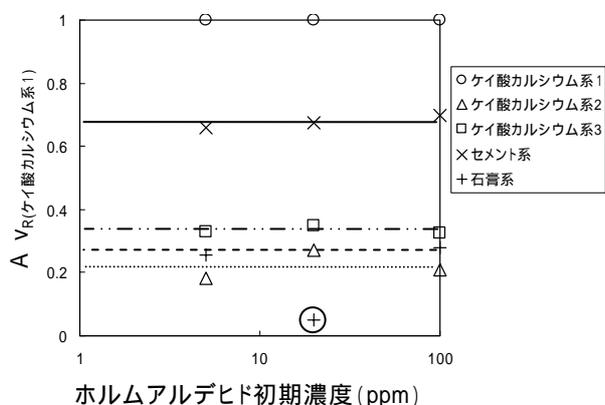


図 - 10 ホルムアルデヒド初期濃度と規格化 A'v 値の関係

図 - 10 では で囲んだ1点を除いて、規格化したA'v値は同じ材料ではほぼ一定となっている。実験で確認できる範囲においては、この規格化したA'v値を材料の相対評価値(A'v_{R(基準)}値)であるとする事ができる。異なる基準で求めたA'v_R値間でも、共通の材料が1つあれば互いの基準での値に変換可能である。しかしながら、図 - 10 の傾向からわかるように、小さなA'v値を取る材料のデータはばらつきが大きいので、できるだけ大きなA'v値を取る材料を基準にすべきである。

4 まとめ

本年度は、前年度研究した建材ボードの調湿性能指数とVOC除去性能指数を更に検討し、より一般性を高めることを目標とした。両指数共に、評価を実施する際の障害となる、測定条件の違いの問題や測定値の比較の問題を克服することができ、目標を達成することができた。

5 参考文献

- 1) 古賀賢一:福岡県工業技術センタ - 平成 13 年度研究報告 p85-87
- 2) セラミックス:37 (2002) No.1 p6-9

住宅の高規格化・性能保証制度に対応可能な低負荷高耐久性 木質部材の開発

樹脂含浸単板の熱圧積層処理による住宅材料開発及び屋外耐久性の研究

脇坂政幸*¹ 樋口光夫*²

Development of the High Enduranced Wood Materials to Corresponding the Law for House.

- Study of Outdoor Durable Conversion and the House Material Development with the Hot Pressing Treatment of the Phenol Formaldehyde Impregnated Lumber -

Masayuki Wakisaka, Mitsuo Higuchi

木製品製造業，住宅関連産業等では「住宅の品質確保の促進等に関する法律」への対策を図っており，当所でもメチロール化フェノール樹脂含浸木材による対策を検討している。前報¹⁾では同木材の耐朽性評価を行い効果を確認した。本報では同樹脂含浸木材のプレス圧密硬化処理が耐蟻性に及ぼす影響，及び樹脂含浸単板を他部材と積層圧密化を行ったボード（IDRI (Interior Design Reseach Institute of Technology) ボードと表記する）について，寸法安定性，表面加工性及びホルムアルデヒド放散特性における内装利用可能性の検討を試みた。その結果，防蟻効果向上が認められると同時に，IDRI ボードは寸法安定性で ASE66% を示し，耐研磨性は 7 ~ 10% の向上が認められた。一方，ホルムアルデヒドは材料作製後の経時減少により，最も単純な樹脂含浸単板と同レベルへの回復が示唆された。

1 はじめに

これまで木材の防腐剤として使用されてきた C C A 系防腐剤（銅・クロム・ヒ素）が人体や環境へ害をおよぼすことから使用が規制される方向にあり，関係業界では新規防腐剤の開発が急務となっている²⁾。

メチロール化フェノール（本稿において“MP”と表記する）は木材に注入後，加熱硬化することで耐久性が付与されることが確認できている。この作用と接着性を利用した材料表面処理方法として，熱プレス圧密を行うことによる耐久性向上を試みた。まず，屋外用材料の評価として防蟻評価を行った。次に，材料の寸法安定性付与を目的に MP 含浸単板をパーティクルボードや合板などの素板に貼り合わせ，素板の寸法制御について検討を行った。また，木質材料は様々な加工工程を経て形あるものに成型されるが，プレカット材を MP 処理した材料や IDRI ボードは，表面層の形を整えるのみでよい。そのためには研磨処理を行うこ

とになる。そこで，その加工性を評価するため当所研磨口ポット³⁾によるトルク応答速度の測定を試みた。さらに，住宅内装用の材料に求められる重要な評価としてホルムアルデヒド放散特性がある。材料としての初期濃度及び経時的な濃度変化について検討を行った。

2 研究，実験方法

2-1 耐蟻性試験

2-1-1 原材料及び試験材作製条件

・含浸用樹脂：MP（松栄化学工業（株）製）

・含浸用材料：スギ木杭（No.2；年輪幅密）

：スギ木杭（No.3；年輪幅粗）

（30 × 30 × 350mm）

・対象蟻：イエシロアリ（*Coptotermes formosanus* Shiraki）

・試験地：沖縄県国頭村

試験材料の作製条件を表 - 1 に示す。

（ホットプレス装置による表面熱圧処理を“HP処理”と表記する。）

*¹ インテリア研究所

*² 九州大学農学研究院

表 - 1 耐蟻試験材作製条件

Sample	注入剤種類	硬化処理	杭 No.
-2	MP のみ	熱風硬化	2
-3	MP のみ	熱風硬化	3
-2	MP + NaF	熱風硬化	2
-3	MP + NaF	熱風硬化	3
-2	MP のみ	HP 処理 + 熱風硬化	2
-3	MP のみ	HP 処理 + 熱風硬化	3
-2	MP + NaF	HP 処理 + 熱風硬化	2
-3	MP + NaF	HP 処理 + 熱風硬化	3

(MP=メチロール化フェノール; N.V.10wt%, NaF; 0.1mol/l)

2 - 1 - 2 耐蟻試験材作製手順

MP樹脂水溶液を濃度 10wt% に希釈し、表 - 1 に示した所定の配合量でNaFを混合する。次に、予め切削加工したスギ木杭試験片 (3 × 3 × 35cm) を樹脂を満たした液槽内に沈め、注入管に挿入したのち約 160Pa × 15min で減圧し、常圧に戻す。続けて約 0.98MPa × 10min で加圧することで液を材内に注入した。そのあと 50 × 15Hr で乾燥後、半数の試験片については、ホットプレスを用いて材料表面を熱圧硬化及び熱風硬化したものを作製する。残り半数は 140 × 6Hr で熱風硬化処理し、比較用試料とした。

2 - 1 - 3 単板積層材及び化粧板の作製について

住宅用の内装材や関連部材を想定し、MPを含浸処理した単板を他の材料 (パーティクルボード (以後PB), 合板) に接合した化粧材料 (IDRI ボードと称す) を作製した。この時の操作フローを図 - 1 に示す。

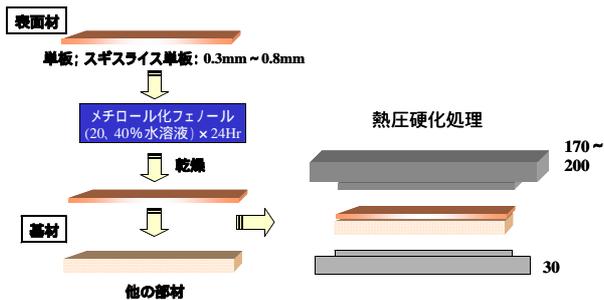


図 - 1 貼り合わせ工程のフロー

予め固形分濃度を 20% 及び 40% に調整した新規 MP 水溶液をバットに準備し、厚さ約 0.3 ~ 0.8mm のスギスライス単板を 24 時間浸漬する。これを自然乾燥した後、PB 或いは合板に積層しホットプレスにて接合する。

2 - 2 耐蟻試験方法

木材保存協会規格の塗布・吹付け・浸せき処理用木

材防蟻剤の防蟻効力試験法 (2) 野外試験法に準拠し行った。表 - 1 にて作製した木杭の地上部 5cm を残してイエシロアリ生息地に埋設する。試験体周囲には対象材として (スギ Cont.) を埋設する。これらを一定期間毎に状況を確認する。

2 - 3 硬さ試験

2 - 3 - 1 材料

処理条件:

- ・樹脂含浸単板: 0.25mm, 0.5mm, 1.0mm
- ・樹脂濃度: 20%, 40%
- ・素板: PB (t=12mm, 比重 0.73)

供試材: これらの組み合わせで成型したボード (100mm × 200mm)。

2 - 3 - 2 試験方法

作製材料の表面硬度は JIS A 2010 木材の試験方法に準拠しブリネル硬度による評価を行った。まず、材料を静置し、表面に直径 10mm の硬球を毎分 0.5mm の速度で深さ 1 / (0.32mm) まで圧入する。この時の荷重から硬さを算出する。

2 - 4 吸湿変化量試験

表面処理が素板の防湿効果に与える効果を調べるために行う。

2 - 4 - 1 材料

処理条件:

- ・樹脂含浸単板: 0.25mm, 0.5mm, 1.0mm
- ・樹脂濃度: 20%, 40%
- ・素板: PB (t=12mm, 比重 0.73)

供試材: これらの組み合わせで成型したボード。

2 - 4 - 2 試験方法

試験材を 4cm 角に木取りし、接合面以外をアルミテープで遮蔽する。作製条件の異なるサンプルを 20 × 45%RH の雰囲気にて 24 時間養生し重量を測定したのち、20 × 90%RH に変えて 2, 4, 6, 24 時間後の吸湿重量を測定する。

2 - 5 吸湿寸法変化量評価

単板接合処理が素板の吸湿寸法変化に与える効果を調べるために行う。

2 - 5 - 1 材料

- ・単板: 0.5mm (樹脂含浸の有無 2 パターン)
- ・紙 (濾紙): 0.3mm (樹脂含浸の有無 2 パターン)
- ・樹脂濃度: 40%
- ・素板: 合板 (300mm × 300mm × 9mm)

これら組み合わせで作製したボードについて、単板面以外の面をアルミテープで遮蔽しサンプルとした。

2-5-2 試験方法

上記材料を 20 × 45%RH で 24 時間以上養生し、サンプルの測定面に付した区間の長さを測定する。その後 20 × 90%RH で 24 時間静置した後の長さを測定する。

2-6 研磨試験

単板貼り合わせ材料の表面加工性における特性として、特に形を整える研磨加工性を評価し、未処理材料との差異を調べる。

2-6-1 材料

PB に 1mm のスギ単板を接着。

PB に 0.3mm のスギ単板を接着。

PB に 0.8mm の MP 処理スギ単板を熱プレス接着。

PB に 0.3mm の MP 処理スギ単板を熱プレス接着。

2-6-2 試験方法

材料表面を研磨紙のついた治具で回転研磨する際、モーターのトルク応答速度を測定する。この時データ採取は当所研磨ロボット用ユニットを用いた。操作は回転面にボードなどの材料を押し当てた時、速度を例えば 50rpm に保つために必要なエネルギーをトルク応答速度として測定する。

2-7 ホルムアルデヒド放散量試験

ホルムアルデヒド放散特性を調べる事を目的に実施した。

2-7-1 材料

- ・単板：0.3mm（樹脂含浸の有）
- ・樹脂濃度：20%
- ・素板：PB（200mm × 225mm × 12mm）
合板（200mm × 225mm × 9mm）

以上の組み合わせで熱プレス接合したボードについて、単板接合面以外をアルミテープで遮蔽したものをサンプルとした。一方、PB板のみ、合板のみ、樹脂を含浸した単板のみ硬化したもの、そしてスギ木材（50 × 150 × 10mm × 10 枚）に樹脂を注入硬化したものを比較した。

2-7-2 試験方法

試験方法は JAS フローリングの試験方法に準拠した。まず、放散面積 450cm² の試験片と 20ml の水を入れたピーカーを既定のプラスチックデシケータに設置し、20 で 24Hr 放置してホルムアルデヒドを水に吸

収させる。これをアセチルアセトン - 酢酸アンモニウムを用いた JAS 既定の方法により定量を行う。

3 結果

3-1 耐蟻試験

イエシロアリによる加害状況を写真に示す。



PFのみ-熱風 -2 地下部

PFのみ-熱風 -3 地下部



+NaF0.1-熱風 -2 地下部

+NaF0.1-熱風 -3 地下部



PFのみ-プレス -2 地下部

PFのみ-プレス -3 地下部



+NaF0.1-プレス -2 地下部

+NaF0.1-プレス -3 地下部

図 - 2 シロアリによる食害試験結果

(サンプル条件は表 - 1を参照)

図 - 2 について食害状況を数値化するにあたり、奈良県森林技術センター伊藤氏⁴⁾による指標を適用し点数化を行った。その指標(目視による評価点)を表 - 2 に示す。また指標より点数化した結果を表 - 3 に示す。

表 - 2 目視による評価点

被害度	被害の状況
0	健全
1	部分的に軽度（表層付近で）の食害

2	全面的に軽度（表層付近で）の食害
3	2の状態に加え、部分的に激しい（内部にまで進行した）食害
4	全面的に激しい食害
5	崩壊

表 - 3 処理工程と評価点の関係

注入処理	硬化工程	杭 No.	評価点	
			検体	Cont.
MPのみ	熱風硬化	No.2	0	3
		No.3	3	5
MP + NaF	熱風硬化	No.2	0	5
		No.3	1	3
MPのみ	熱プレス硬化	No.2	0	5
		No.3	0	5
MP + NaF	熱プレス硬化	No.2	0	4
		No.3	0	3

表 - 3の結果から，Cont.では材の内部にシロアリが侵入し崩壊に至るまでの被害が観察された。

一方，熱風硬化工程の検体では，No.2 と No.3 の木杭の間で被害の有無が確認された。No.2 の木質性状としては年輪幅が小さく木目が密になっているが，No.3 は年輪幅が粗く木目が粗になっている。目が粗い場合柔らかな早材部面積が多いため，本条件ではこれらに樹脂を注入し熱硬化させても材表面に十分な硬さを付与できなかったものと推察される。即ち，シロアリは柔らかい材料を好むため，年輪密度の粗い - No.3， - No.3 の検体が被害を受けたものと考えられる。一方，熱風硬化と熱プレス硬化の比較を行ったところ， - 及び - の間での比較では，明らかにプレス硬化処理を施した検体は被害を受けないことが確認された。このことはプレスによる早材部の圧密化でシロアリに対する効果的な硬さを付与できたためと考えられる。また，シロアリは器官内に共生する原生生物によってセルロースを消化するが⁵⁾，MP注入硬化した木材は消化不可能な形態の材料に変化しているため，シロアリのエサと成り得ず忌避されたことも推察される。

3 - 2 硬さ試験

2 - 3 により作製した IDRI ボードの表面硬さを測定した結果を図 - 3 に示す。

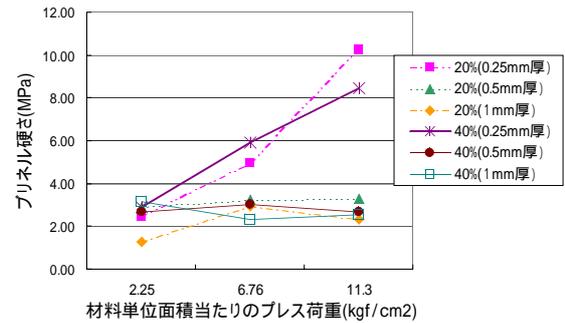


図 - 3 強化木貼付けPBの表面硬さ

ボード成型時における負荷圧力とプリネル硬さの関係について積層用単板の厚さ，並びに樹脂濃度を変えて調べたところ，成型圧力の上昇と共に硬さの向上が見られたのは単板厚が 0.25mm で樹脂濃度 20% と 40% の時であった。樹脂濃度に係らず薄い単板の方が硬さを付与できる事がうかがえる。また，0.5mm 及び 1.0mm において硬さを付与できなかった理由としては，単板が当該成型範囲で応力を吸収したためではないかと考える。材料の形状を保持するためにも低圧での負荷が望ましく，表面を硬く仕上げる場合，単板は薄い方が適していることが確認された。この事はフェノール樹脂を用いたコンプレグの一般的な作製条件⁶⁾に比較し，約 1/10 の圧縮圧でフラットな木製品に十分な硬さを付与できる事がうかがえる。

3 - 3 吸湿重量変化

樹脂濃度，単板厚さ，プレス圧力を変えて作製したボードの吸湿量変化を図 - 4，図 - 5 に示す。なお，図 - 4 及び図 - 5 は樹脂濃度の違いである。

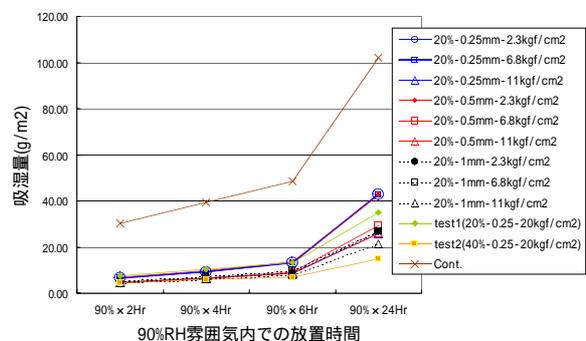


図 - 4 濃度20%で作製したIDRIボードの吸湿量

図 - 4において，単板厚さが同じグループの中で比較した場合，どの厚さにおいても成型圧の上昇と共に

吸湿量の減少が確認された。

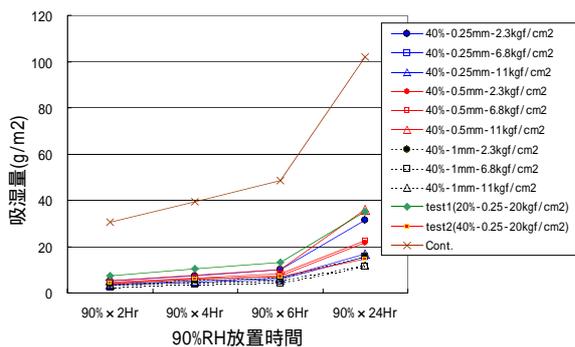


図-5 濃度40%で作製したIDRIボードの吸湿量

一方、同一濃度内での比較では単板厚の増加と共に吸湿量の減少が見られた。図-5において樹脂濃度が異なっても同じ傾向が認められた。このことは、単板厚が増すにつれ、樹脂のバルキング効果による遮蔽能向上が考えられる。

3-4 吸湿寸法変化

合板に樹脂含浸単板及び樹脂含浸紙を貼り合わせたIDRIボード、未処理の単板、未処理の濾紙及び合板のみの吸湿寸法変化を調べた結果を図-6に示す。

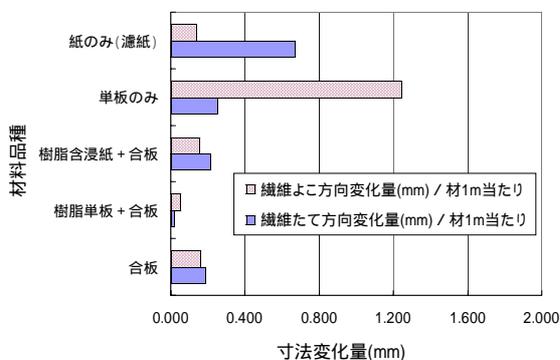


図-6 吸湿による各種材料の寸法変化

図-6より単板及び濾紙の寸法変化量は非常に大きく、単位長さ当たり濾紙は0.7mm/mの変化が、また単板の繊維横方向では1.2mm/mの寸法変化を示し、被接合素材である合板単体は約0.2mm/mの変化を示した。一方、樹脂含浸単板及び樹脂含浸紙を接合した場合、樹脂含浸紙接合系は合板単体の変化量と同レベルを示したが、樹脂含浸単板接合系は合板の寸法変化を抑制し、接線方向のASEが66%、繊維方向のASEが91%を示した。このことから当該手法は合板の装

飾と同時に寸法抑制効果を付与することが可能であることがうかがえる。

3-5 研磨試験

図-7及び図-8各々に、材種と研磨時のトルク応答速度の関係を荷重毎(4.9N, 9.8N)に分けて示す。

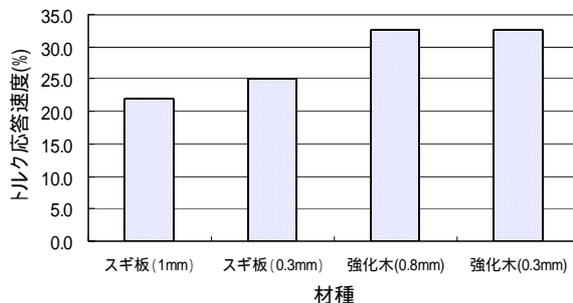


図-7 4.9N負荷時のトルク応答速度(%)

図-7より無垢スギ単板(1mm, 0.3mm)の研磨時におけるトルク応答速度は各々22.5%と25%である。

一方、樹脂含浸単板(0.8mm, 0.3mm)のトルク応答速度は両者共32.5%であった。これより樹脂含浸処理による材料の研磨抵抗性が向上した。

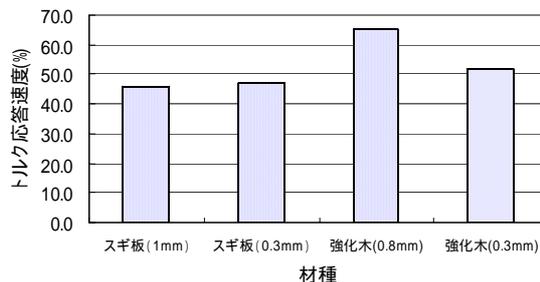


図-8 9.8N負荷時のトルク応答速度(%)

また、樹脂含浸材料の飽かけ特性を調べたところ、微粒粉の発生が確認され、材料の脆さが懸念されたが、本研究結果から研磨抵抗性の向上が確認できた。

3-5 ホルムアルデヒド放散量

図-9にIDRIボード成型後におけるホルムアルデヒド

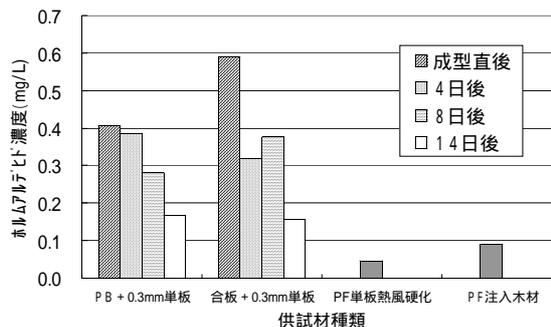


図-9 ホルムアルデヒド放散量の経時変化

ヒド放散量の経時変化を示す。

成型直後のボードはホルムアルデヒドの放散が観察されるものの、時間の経過と共に確実に減少し2週間後では1/2以下に減少した。また樹脂含浸単板をPB素板に接合せず、単体で硬化した単板のホルムアルデヒド放散量は約0.05mg/Lであり、且つPB素板のホルムアルデヒド放散量が0.03mg/Lであることから、IDRIボードの最終的な放散量はそのレベルまで減少する事が推察される。

4 まとめ

耐蟻性試験結果では、エクステリア材料として年輪幅が粗な材料に濃度10%のMPを注入、硬化した木材を利用する場合、材料表面を熱プレス成型することで耐蟻性を大幅に改善する事が確認できた。

MPを含浸した単板を他の材料(素板)に接成型したボードは、素板の寸法変化を抑制する傾向を示す一方、ブリネル硬さの結果や研磨加工性の評価から無垢のスギ素材に比較し研磨耐久性の高さがうかがえた。また、単板を接合したIDRIボードにおけるホルムアルデヒド放散量の評価から、当該手法による成型体は最終的にホルムアルデヒドが素材と同レベルになることが推察された。

5 参考文献

- 1)脇坂ら：住宅の高規格化・性能保証制度に対応可能な低負荷高耐久性 - 木質部材の開発樹脂含浸単板の熱圧積層処理による住宅材料開発及び屋外耐久性の研究 - 平成13年度福岡県工業技術センター研究報告, No.12, p34-39(2001)
- 2)角田邦夫：木材工業, vol.52, No.5, p232(1997)
- 3)永田ら：AIアプローチによる3次元設計と加工工程自動化に関する研究(2) - ロボットサンダーを用いた高付加価値家具の商品開発 - 平成13年度福岡県工業技術センター研究報告, vol.12, P91-96(2001)
- 4)伊藤貴文：中小企業技術開発産学官連携促進事業推進委員会事業資料報告, (2002)
- 5)板倉修司：シロアリ - 微生物共生系における新しい展開, 木材保存, Vol.29-2, p.42-48(2003)
- 6)木材加工技術ハンドブック, 木材加工技術ハンドブック編集委員会, 奈良県森林技術センター, p370(2000)

LSI パッケージの無公害かつ位置制御型開封技術の開発

開封したLSIの観察・分析

古賀義人*¹ 小野幸徳*¹ 西田哲明*² 小林賢一*³

Development of Position Controlled Unsealing Method for LSI Package with No Pollutant

Observation and Analysis of Unsealed LSI Package

Yoshito Koga, Yukinori Ono, Tetuaki Nishida and Ken'ichi Kobayashi

本研究では、樹脂で封止された LSI パッケージの開封技術を評価することを目的として、エネルギー分散型 X 線分析装置 (Energy Dispersive X-ray Spectrometer, 以下 EDS) の付属する走査型電子顕微鏡 (Scanning electron microscope, 以下 SEM) を用い、従来手法と新たに提案した手法 (溶融ガラス法) で開封した LSI 表面を観察し、その開封状態を分析した。この結果、提案した溶融ガラス法により封止樹脂の除去は比較的簡単にできるものの、LSI 表面の保護膜であるポリイミド膜の除去には他の手法を併用する必要があることがわかった。

1 はじめに

近年、LSI パッケージを開封した後、集束イオンビーム (Forced Ion Beam, 以下 FIB) を用いて LSI 表面のパターンを修正することが行われるようになってきている。この方法は、LSI を開発する過程で、設計・仕様の変更が行われた場合や、LSI が設計通りの性能を発揮しない場合の微調整として実施されている。LSI の仕様を変更する場合、FIB を用いずにフォトリソのパターンを修正し、LSI を再生産する方法もある。しかし、この方法では FIB 法と比較し大きなコストを要し、再生産に時間がかかることから軽微な修正では FIB 法が多用されている。

しかし、FIB による修正を実施するためには、封止された LSI の樹脂の一部を完全に除去する必要がある。現在この作業には、熱硫酸、濃硝酸等が使用されており、酸蒸気や廃液の処理が可能な環境でしか LSI の開封が実施できない。また、安全管理の面でも強酸の管理には注意を要することから、各企業においては、熟練した開封の専任者が作業を実施している状況にある。そこでこの LSI 開封に伴う制約を減らし、酸を使用しないで LSI の開封が可能な方法を開発することを目指して、溶融ガラスを利用した開封法の開発を行っ

た。

本報告では、従来手法と溶融ガラスを利用した方法により開封した LSI の表面状態を観察・分析し、溶融ガラス法の特長について評価を行ったので報告する。

2 研究, 実験方法

2-1 試験片

図-1 に今回実験に用いた LSI を示す。(a) は従来法により開封された LSI で、(b) は溶融ガラスを用い開封した LSI である。

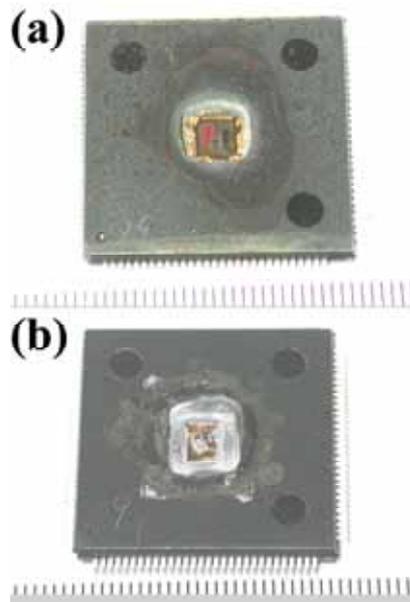


図-1 開封した LSI パッケージ

(a) 従来の手法 (b) 溶融ガラス法

* 1 機械電子研究所

* 2 近畿大学九州工学部

* 3 アートセミコンダクタ株式会社

2-2 観察・分析装置

LSI の観察・分析にはエリオニクス製の SEM (ERA-8800) および日本エダックス製の EDS (Phoenix) を用いて分析を行った。

3 結果と考察

3-1 従来手法により開封されたLSIの表面分析

図-2 に従来手法により開封された SEM 観察の結果を示す。

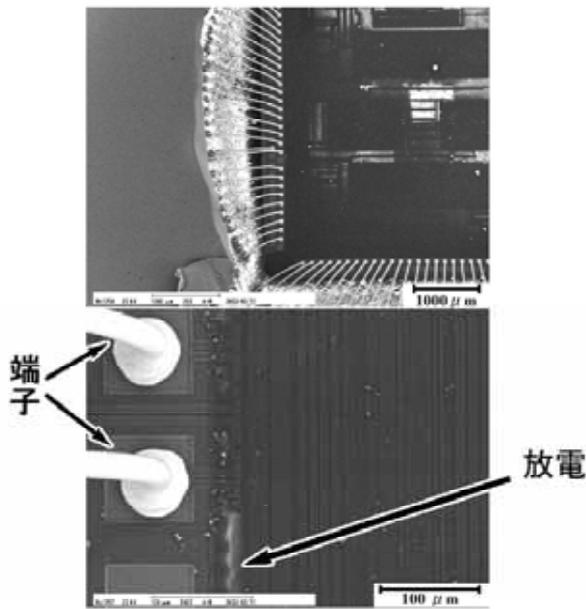


図-2 従来手法により開封された LSI

端子の部分は LSI 上の配線パターン等がはっきりと見えているが、端子から右側、LSI 中心部分では配線パターンははっきりとは見えず、一部放電が生じている。この二つの領域には明確な境界線があり、LSI の中央部分には何らかの保護膜が形成されていることがわかった¹⁾。

この部分について EDS 分析を行った結果を図-3 に示す。Lab1 は 2 次電子線像を、O K, AlK 等は酸素、アルミニウムなど各元素の特性 X 線像を示している。これらの像を見ると、保護膜の部分ではアルミニウム、チタニウム、ケイ素などの像が暗くなっており、この保護膜は有機物もしくは酸化物の可能性が高く^{2),3)}、その後の調査で、この保護膜はポリイミド（有機物のポリマー）の塗布膜であることがわかった。

3-2 熔融ガラスにより開封したLSIの表面分析

図-4 に熔融ガラス法により開封した LSI の SEM 観察の結果を示す。

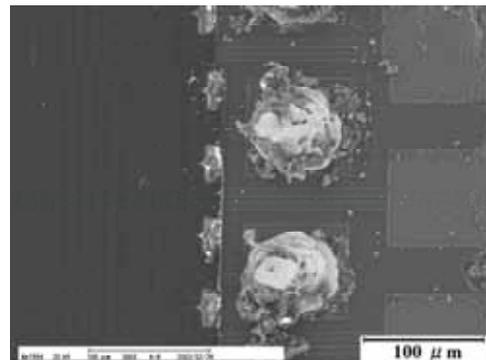


図-4 熔融ガラス法により開封した LSI

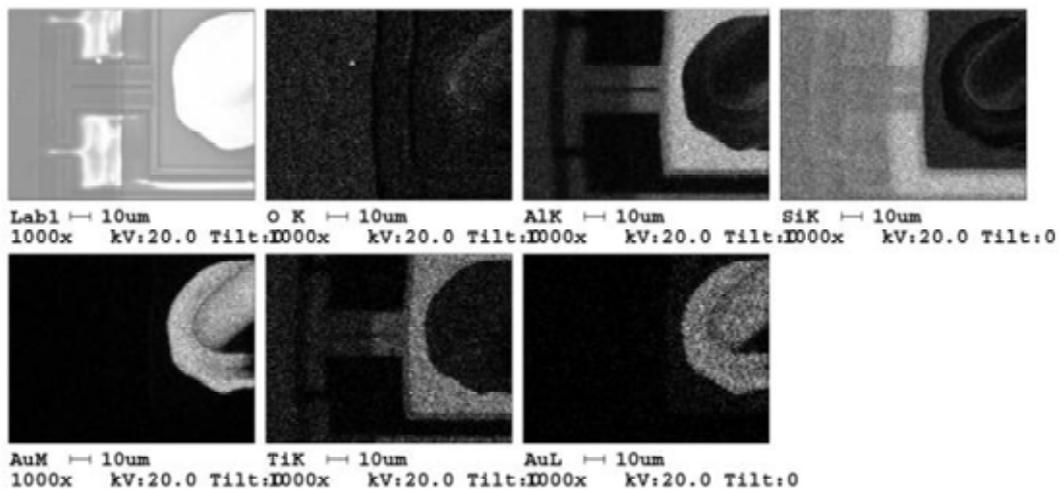


図-3 従来手法により開封した LSI の元素マッピング

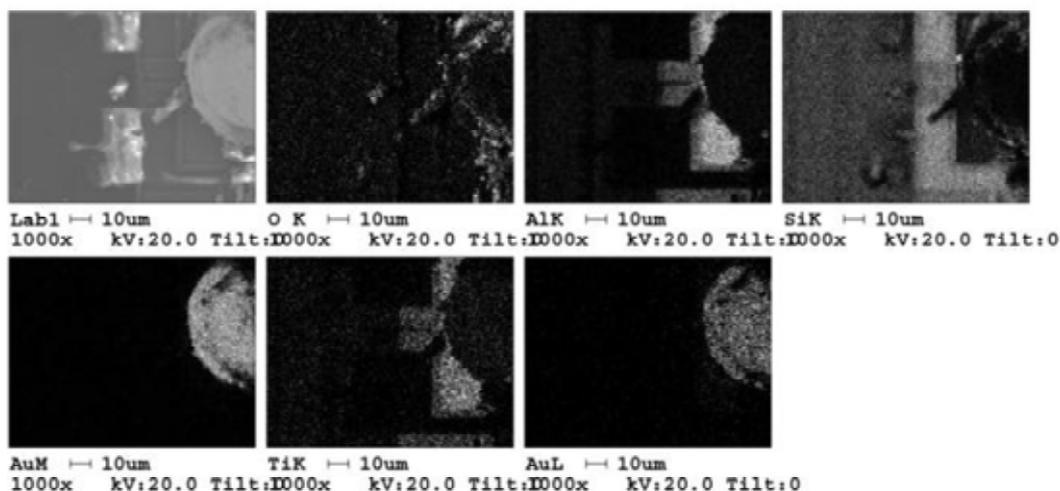


図-5 溶融ガラス法により開封した LSI の元素マッピング

図-4 には図-2 とほぼ同様の配線等が写っており、溶融ガラス法でも、LSI の開封が可能であることがわかった。しかし従来手法により開封された LSI で観察されたのと同様の保護膜が見え、明らかに保護膜が残っていることがわかった。観察数が少ないので今後も検討が必要であるが、溶融ガラス法だけではポリイミドの保護膜を完全に除去することは難しく、保護膜を除去するためには何らかの 2 次的処理が必要と考えられる。

図-5 に EDS による分析の結果を示す。溶融ガラス法により開封した LSI においても、従来法で開封した LSI と同様に保護膜が残っているため、保護膜の部分ではアルミニウム、チタニウム、ケイ素の検出量が減っている。またこの試験片の場合には、LSI 表面に少量の封止用の樹脂が残存しているが、FIB 加工への影響は問題はないレベルと思われる。

4 まとめ

従来手法及び新規に溶融ガラス法により LSI を開封し、その表面状態を観察した結果、以下の結果を得た。

- 1) 溶融ガラスを用いた開封法でも、従来の手法とほぼ同様の開封が可能であることがわかった。
- 2) 溶融ガラスを用いた開封法においてポリイミド膜が残留することがある。この場合溶融ガラスを用いての再除去作業はできないので、他の手法を併用する必要がある。

5 参考文献

- 1) 日本電子顕微鏡学会関東支部編：「走査電子顕微鏡」(2000)
- 2) Joseph I. Goldstein and Dale E. Newbury etc："Scanning Electron Microscopy and X-ray Microanalysis" (1992)
- 3) V. D. Scott, G.Love and S. J. B. Reed："Quantitative Electron-Probe Microanalysis" (1995)

無電解めっき法による導電性微粒子の作製に関する研究

御幡弘明^{*1} 田中知樹^{*2}

Research on the Preparation of Conductive Particles by Using Electroless Plating

Hiroaki Obata and Tomoki Tanaka

無電解めっき法により樹脂微粒子上にめっき皮膜を形成させた導電性微粒子が電子部品実装分野で利用されているが、めっき処理工程が複雑で、製造コストも高く検討すべき課題も多く残されている。そこで本研究では樹脂とめっき皮膜との密着性向上のための樹脂エッチング処理や無電解めっき反応開始のための触媒化前処理を必要とせず、簡便な方法で、密着性に優れためっき皮膜を形成する方法を検討したので報告する。

1 はじめに

近年、電気・電子及び電波等を利用した数多くの電気・電子機器が普及しており、それらの機器から発生する電磁波により人体や他の医療機器などに重大な影響を及ぼすことが問題となっている。そのため、電気・電子機器メーカーや医療機関などではこの対策として電磁波シールド材を使用して電磁波の影響を防止する対策を行っている。電磁波シールド材としては金属板、導電不織布、導電テープや金属微粒子をフィラーとした導電性塗料等が利用されている。導電性塗料の場合は導電性塗料に電磁波が当たると、塗膜中に渦電流が生じ、電磁波を反射してシールドするが、高い電界強度に耐え得る金属並みの電気特性及び体積固有抵抗率： 10^{-3} ・cm以下の良伝導性が要求される¹⁾。導電性塗料中の導電性フィラーとして金属粉を用いる場合には、塗料成分との比重差が大きくなるため、金属粉が沈降し塗膜中に不均一に存在しやすく、導電性不良の原因となる。そこで、金属粉の代わりに樹脂微粉表面にめっき処理を施した導電性微粒子²⁾を使用すれば、塗料成分との比重差が小さくなり、上述のような問題を解消することが可能と考えられる。

一方、一般に樹脂等の非導電体表面に金属皮膜を形成させる方法として無電解めっき法が適用されている。無電解めっき法では素材樹脂とめっき皮膜の密着性を得るための素材エッチング処理及び無電解めっき反応

開始のための触媒化前処理が必須となっている。しかしエッチング処理では環境への負荷の大きいクロム酸や有機溶媒を使用しており、また触媒化前処理では高価なパラジウムを使用するためにめっき処理コストが高く、検討すべき課題も多く残されている。

本研究ではエッチング処理や触媒化前処理を必要としない簡便な方法により樹脂微粉上に密着性に優れた金属導電膜を作製する方法³⁾を検討したので報告する。

2 実験方法

2-1 樹脂微粉の調整

めっき担体樹脂としてダウケミカル製の陽イオン交換樹脂（平均粒径500 μ m、真比重1.28、以後樹脂球体と呼ぶ）及びその機械粉碎品（平均粒径30 μ m、以後粉碎微粉と呼ぶ）を用いた。

2-2 樹脂球体へのめっき処理

硫酸銅 5 水和物 2.5g/100ml の水溶液を調製し、樹脂球体 0.2g を投入後、室温で15分間攪拌処理を行い、イオン交換処理を行った。その後、水溶液を濾過除去し、銅イオン置換樹脂球体を回収した。次いで、この銅イオン置換樹脂球体を、水素化ホウ素ナトリウム 0.095g/50ml の水溶液に投入後、室温で15分間攪拌処理を行い、置換した銅イオンの還元処理を行った。次いで、十分に水洗した後、濾過回収、乾燥し銅めっき樹脂球体を得た。

2-3 粉碎微粉へのめっき処理

硫酸銅 5 水和物 2.5g/100ml の水溶液を調製し、粉碎微粉 0.2g を投入後、室温で15分間攪拌処理を行い、

*1 機械電子研究所

*2 室町ケミカル（株）

イオン交換処理を行った。その後、水溶液を濾過除去し、銅イオン置換粉碎微粉を回収した。次いで、この銅イオン置換粉碎微粉を、水素化ホウ素ナトリウム0.19g/50mlの水溶液に投入後、室温で15分間攪拌処理を行い、置換した銅イオンの還元処理を行った。次いで、十分に水洗した後、100mlの無電解銅めっき液（室町ケミカル製MK-421）に投入し、40℃で1時間攪拌処理を行った。次いで、十分に水洗した後、濾過回収、乾燥し銅めっき微粉を得た。

2-4 めっき処理球体の断面評価

めっき処理球体を常温硬化型エポキシ樹脂中に埋め込み、硬化後に切断し、ペーパー研磨、ダイヤモンド研磨を行い、球体断面評価用試料を作製した。

2-5 めっき皮膜の評価

めっき処理を行った樹脂球体及び粉碎微粉の表面観察を走査型電子顕微鏡で、めっき処理球体断面の銅元素マッピング分析をエネルギー分散型X線分析装置で、めっき皮膜の構造解析をX線回折装置で行った。

3 結果と考察

3-1 樹脂球体へのめっき処理結果

樹脂球体の銅イオン置換及びその還元処理により作製した銅めっき球体の表面写真を図-1に示す。樹脂球体表面に均一かつ平滑に銅めっき皮膜が形成されていることが観察できた。

銅めっき処理球体のX線回折分析結果を図-2に示す。

Cu(111), Cu(200), Cu(220), Cu(311), Cu(222)のピークが観測され、金属銅皮膜が形成できていることが確認できた。さらに銅めっき処理後の樹脂球体断面写真及び銅元素のマッピング分析結果を図-3に示す。マッピング写真中の白色部が銅元素の検出領域を示しており、球体表面にサブミクロン程度の銅皮膜が形成されている。さらに、球体表面から内部に樹枝状模様が観察され、銅元素のマッピング分析結果から、これは金属銅であることが明らかとなった。これは三次元ミクロポア構造を有するイオン交換樹脂表面及びミクロポア内部のスルホン基にイオン交換反応により置換した銅イオンが、化学還元され、樹脂表面から樹脂内部に金属銅として析出していることを示している。この樹枝状金属銅の形成によって、樹脂とめっき皮膜間にアンカー効果が発現され、高い密着性が期待できる。

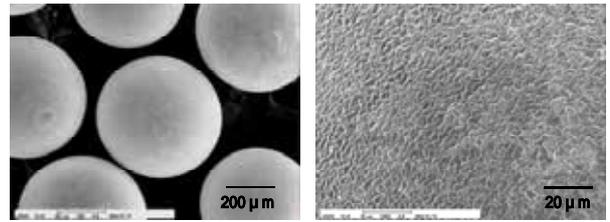


図-1 銅めっき処理後の樹脂球体表面のSEM写真

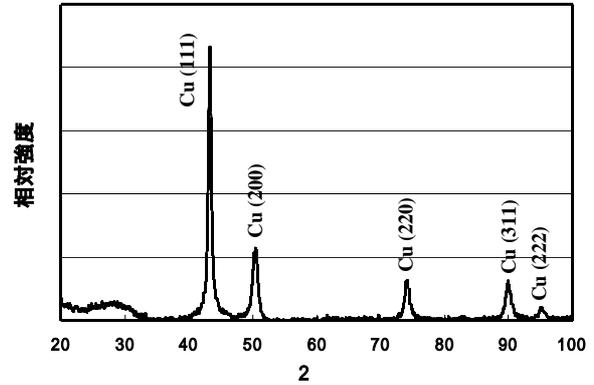


図-2 銅めっき処理後の樹脂球体のX線回折結果

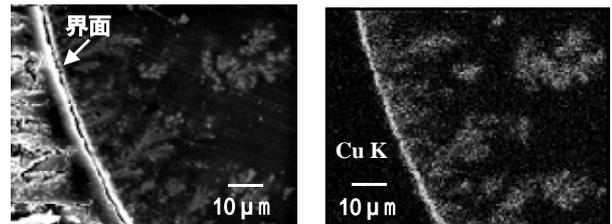


図-3 銅めっき処理樹脂球体断面のSEM写真(左)と銅元素マッピング分析結果(右)

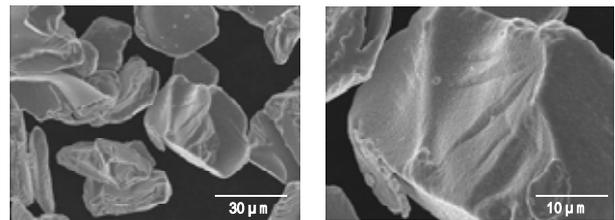


図-4 銅めっき処理後の粉碎微粉表面のSEM写真

3-2 粉碎微粉へのめっき処理結果

平均粒径約30 μmのイオン交換樹脂粉碎微粉上に銅めっき処理を行った後の銅めっき微粉の表面写真を図-4に、X線回折分析結果を図-5に示す。Cu(111), Cu(200), Cu(220), Cu(311), Cu(222)のピークが観測され、微粉表面に平滑に銅めっき皮膜が形成できていることが確認できた。

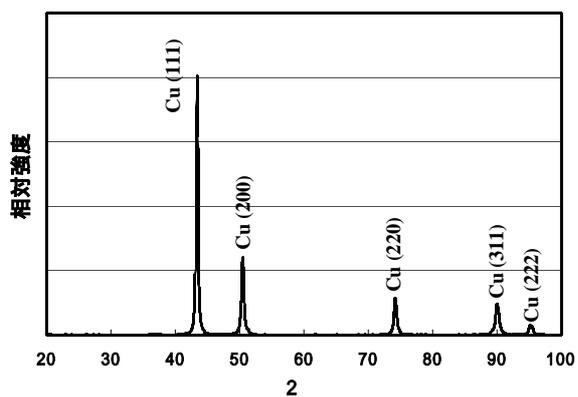


図-5 銅めっき処理後の樹脂微粉のX線回折結果

4 まとめ

イオン交換樹脂のマイクロポーア構造及び陽イオン交換能を利用することにより、エッチング処理及び無電解めっき反応開始のための触媒化前処理を必要とせず、簡便な方法で密着性に優れためっき皮膜を形成することができた。現在、平均粒径 $5\ \mu\text{m}$ の粉砕微粉上へ同様の手法でめっき処理を行い導電性微粒子を作製中であり、本導電性微粒子は導電性接着剤や導電性塗料中の導電性フィラーとして利用できる可能性がある。

5 参考文献

- 1) 板野俊明:表面技術,Vol142,p22-28(1991)
- 2) 本間英夫:回路実装学会誌,Vol10,p148-152(1995)
- 3) 御幡弘明:「導電性微粒子とその製造方法」,特願2002-85079