

Research Reports of Nagoya  
Municipal Industrial Research Institute

ISSN 0369-3333  
CODEN:NASKAR

名古屋市工業研究所  
研究報告  
No.109

2024  
名古屋市工業研究所

# 名古屋市工業研究所

## 研究報告

No. 109(令和6年)

目 次

### 論文

1.	防音性能の評価および予測に関する基礎研究	安藤真、山内健慈、高橋文明	1
2.	AIを用いたチップ部品の位置ずれ検査に関する検討	村瀬真、長坂洋輔、松原和音、水野裕正	7
3.	自動外観検査における機器位置の計測と再現	長坂洋輔、村瀬真、松原和音、後藤真吾、黒宮明	11
4.	ステンレス鋼 SCS5B の共同分析結果	大橋芳明、野々部恵美子、柴田信行、毛利猛	15
5.	教師なし学習による直動システムの異常検知・予防保全手法の研究	間瀬剛、長坂洋輔、松原和音	19

### 技術ノート

1.	$N, N', N''$ -トリノナデシルベンゼン-1,3,5-トリカルボン酸アミドの合成と特性評価	石垣友三、波多野諒、山中基資、萩尾健史、市野良一	23
2.	X線CTを用いた多孔体の圧力損失評価手法の開発	立松昌、松原和音、岩間由希、梶田欣	26
3.	IT技術を活用した溶接品質の維持・向上に関する研究	黒宮明、村瀬真、長坂洋輔、毛利猛、深谷聰、岡東寿明、玉田和寛、加藤喜久	28
4.	変分オートエンコーダを用いた異常検知手法に関する研究	間瀬剛、長坂洋輔、松原和音	32
5.	オーステナイト系ステンレスの圧延集合組織が窒化層の形成に及ぼす影響	玉田和寛	34
6.	金属粉末を利用したCO <sub>2</sub> 還元の研究	岡東寿明	36
7.	蛍光X線分析によるプラスチック複合材中のガラス纖維含有率の測定	林朋子、松村大植、岡本和明、中野万敬	38
8.	ファインパブルと晶析操作による中空高分子粒子の高速生成	安井望、安井智也、山口毅、安田啓司	42

## 既発表論文抄録

1. キトサンナノファイバーの機械的解纖と化学的相互作用がエポキシ樹脂の補強性に与える影響  
..... 波多野諒、富永雄一、今井祐介、中野万敬 ..... 45
2. 二分岐アルキル基を側鎖に有する  $C_3$ -対称なベンゼン-1, 3, 5-トリカルボン酸アミドに基づく室温バルクの超分子ポリマー  
..... 石垣友三、山中基資、萩尾健史、市野良一 ..... 46
3. フェノチアジンのアンモニウム架橋による機能化  
..... 林英樹、小川匡之、妹尾洋、小泉武昭 ..... 47
4. ビス(*N*-Boc型インドロキノキサリン)の合成とその電気化学的挙動及び反応性  
..... 林英樹、小田三都郎、小泉武昭 ..... 48

## 特許抄録

1. 測定対象物の熱伝導に関する物性値の測定方法および測定システム  
..... 立松昌、梶田欣、高橋文明 ..... 49
2. 半金属用吸着剤及び半金属元素除去方法  
..... 松村大植、中野万敬 ..... 50

Research Reports  
of  
Nagoya Municipal  
Industrial Research Institute

No. 109 (2024)

CONTENTS

Papers

1.	Basic Research on Evaluation and Prediction of Soundproofing Performance	.....	Makoto ANDO, Kenji YAMAUCHI and Fumiaki TAKAHASHI .....	1
2.	A Study on AI-based Inspection of Chip Component Misalignment	.....	Makoto MURASE, Yosuke NAGASAKA, Kazune MATSUBARA and Yasutaka MIZUNO .....	7
3.	Measurement and Reconstruction of Equipment Positions for Automated Visual Inspection	.....	Yosuke NAGASAKA, Makoto MURASE, Kazune MATSUBARA, Shingo GOTO and Akira KUROMIYA .....	11
4.	Result of Co-operative Analysis of Stainless Steel SCS5B	.....	Yoshiaki OHASHI, Emiko NONOBE Nobuyuki SHIBATA and Takeshi MOHRI .....	15
5.	A Study on Anomaly Detection and Preventive Maintenance Methods for Linear Motion Systems by Unsupervised Learning	.....	Tsuyoshi MASE, Yosuke NAGASAKA and Kazune MATSUBARA .....	19

Technical Note

1.	Preparation and Evaluation of <i>N,N',N''</i> -trinonadecylbenzene-1, 3, 5-tricarboxamides	.....	Yuzo ISHIGAKI, Ryo HATANO, Motoshi YAMANAKA, Takeshi HAGIO and Ryoichi ICHINO .....	23
2.	Development of Pressure Loss Evaluation Method for Porous Materials using X-ray Computed Tomography	.....	Masashi TATEMATSU, Kazune MATSUBARA, Yuki IWAMA and Yasushi KAJITA .....	26
3.	Research on Maintaining and Improving Welding Quality Using IT Technology	.....	Akira KUROMIYA, Makoto MURASE, Yosuke NAGASAKA Takeshi MOHRI, Satoshi FUKAYA, Kazuaki OKATO, Kazuhiro TAMADA and Yoshihisa KATO .....	28
4.	A Study on Anomaly Detection Methods using Variational Autoencoder	.....	Tsuyoshi MASE, Yosuke NAGASAKA and Kazune MATSUBARA .....	32
5.	Effect of Rolling Texture on Nitrided Layer of Stainless Steel	.....	Kazuhiro TAMADA .....	34
6.	Reduction of CO <sub>2</sub> in the Presence of Reducing Metal Powder	.....	Kazuaki OKATO .....	36
7.	Measurement of Glass Fiber Content in Plastics by X-ray Fluorescence Analyses	.....	Tomoko HAYASHI, Daiki MATSUMURA, Kazuaki OKAMOTO and Kazunori NAKANO .....	38
8.	Rapid Preparation of Hollow Polymer Particles by Fine Bubbles and Antisolvent Crystallization	.....	Nozomu YASUI, Tomoya YASUI, Takeshi YAMAGUCHI and Keiji YASUDA .....	42

## Abstracts of Papers Published in Other Formals

1. Influence of Mechanical Defibration and Chemical Interaction of Chitosan Nanofibers on Epoxy Resin Reinforcement ..... Ryo HATANO, Yuichi TOMINAGA, Yusuke IMAI and Kazunori NAKANO ..... 45
2. Room-Temperature Bulk Supramolecular Polymer Based on  $C_6$ -Symmetrical Benzene-1,3,5-tricarboxamides Having Two-Armed Alkyl Groups as Side Chains ..... Yuzo ISHIGAKI, Motoshi YAMANAKA, Takeshi HAGIO and Ryoichi ICHINO ..... 46
3. Functionalization of Phenothiazine Derivatives by Ammonium Bridge ..... Hideki HAYASHI, Tadashi OGAWA, Hiroshi SENO and Takeaki KOIZUMI ..... 47
4. Preparation, Electrochemical Behavior, and Reactivity of Bis(*N*-Boc type Indroquinoxaline) Derivatives ..... Hideki HAYASHI, Mitsuo ODA and TAKEAKI KOIZUMI ..... 48

## Abstracts of Patents

1. Methods and Systems for Measuring Thermophysical Properties Related to Thermal Conduction ..... Masashi TATEMATSU, Yasushi KAJITA and Fumiaki TAKAHASHI ..... 49
2. Adsorbent for Metalloid and Method for Removing Metalloid in Solutions using the Adsorbent ..... Daiki MATSUMURA and Kazunori NAKANO ..... 50

# 防音性能の評価および予測に関する基礎研究

安藤真、山内健慈、高橋文明

Basic Research on Evaluation and Prediction of Soundproofing Performance

Makoto ANDO, Kenji YAMAUCHI and Fumiaki TAKAHASHI

**Abstract:** Generally, acoustic tubes or a coupled reverberation room and anechoic room are used to evaluate soundproofing performance in new product development. The method using acoustic tubes allows evaluation of a small sample, but does not allow evaluation in a state close to the product. On the other hand, the method using a coupled reverberation room and anechoic room allows evaluation in a state close to the product, but requires a large sample of 10 square meters or more. For this reason, there has been an increasing demand recently for the method using a smaller one of a coupled reverberation room and anechoic room that can measure a small sample of about 1 square meter, but there are still few measurement cases and the characteristics need to be clarified. Therefore, we investigated the characteristics and relations of both measurement methods, including the method using acoustic tubes. Furthermore, we performed simulations and compared the results of numerical calculations with the results of actual measurements.

## 1. 緒言

付加価値の高い製品開発を行うためには、静音化や低振動化は優先度の高い課題となっており、騒音・振動に関する特性評価が重要視されてきている。特に防音を目的とする新製品開発では音響管や残響室・無響室を用いて防音特性評価を行うことが多いが、コストを抑えるために開発段階ではより小さな試料で実製品に近い測定を行うことが求められる。評価にあたって、音響管法では直径 10 cm 程度の小試料で測定を行えるが、特殊形状を有する製品や設置状態の影響を受けやすい材料などは実製品に近い状態での測定に対応ができない。一方、残響室・無響室を用いた方法では実製品に近い状態での測定が可能であるが、測定に必要となるサイズの試料を製作することが困難で試験に踏み切れない企業も多い。したがって、様々なニーズに対応するため、開発段階や試験目的に応じて測定方法を選択できることが求められている。

一般的に、製品の最終評価では残響室・無響室を用いた方法が適しているが、建材を対象として規格化されており、10 m<sup>2</sup> 程度の大きな試料が必要となるため、製品によっては実際の使用状況と大きく異なることが多い<sup>1)</sup>。故に、1 m<sup>2</sup> 程度の試料で測定可能な小型の残響室・無響室を用いた方法（以下、実験室法と呼ぶ）のニーズが高まっている。しかしながら、実験室法による測定事例は未だ少なく、音響管法との関連性を含めて測定手法によ

る特性を明らかにする必要がある。そこで、本研究では防音材の性能指標として用いられる吸音率および音響透過損失の評価技術の確立を目的とし、実験室法と音響管法の両測定手法の特性およびそれとの相関関係を調査した。さらに、実測結果とシミュレーション結果を比較し、防音特性予測に関して考察を行った。

## 2. 実験方法

吸音率測定用試料として多孔質型吸音材料、膜振動型吸音材料、共鳴器型吸音材料、音響透過損失測定用試料として非通気材料、通気材料、非通気材料と通気材料の積層材料を用いて、実験室法と音響管法の特性と相関関係を検討した。さらに、同材料について、シミュレーションソフトを用いて各々の材料物性から防音特性予測を行い、実測結果と比較検証した。

実測では、実験室法において図 1 に示す残響室法吸音率・音響透過損失測定システム AbLoss（日本音響エンジニアリング株式会社製）、音響管法において図 2、図 3 に示す広帯域対応 垂直入射吸音率測定システム WinZac 8（同社製）を用いた。実験室法による吸音率測定では、残響室内の床面に試料を設置し、試料側面からの音の入射を防ぐために試料の周囲に L 字アングルを設置した。実験室法による音響透過損失測定では、残響室-無響室間の開口部に試料を設置し、開口部内に装填した開口枠により試料を固定した。音響管法による吸音率測定では、

試験体ホルダ、またはマイク管と試験体ホルダの間に取り付けた緩支持ホルダに試料を設置した。試料は、試験体ホルダ内に装填して固定、または緩支持ホルダ内に装填したリングにより固定した。音響管法による音響透過損失測定では、緩支持ホルダに試料を設置し、ホルダ内に装填したリングにより試料を固定した。

シミュレーションでは、積層構造音響特性予測ソフトウェア STRATI-ARTZ (同社製) を用いた。試料に対する音の入射条件は、実験室法で音場入射、音響管法で垂直入射とした。ただし、膜振動型吸音材料では、シミュレーションが困難なため、音響管法でのピーク周波数について手計算により理論式から求めた結果と比較を行った。



図1 残響室法吸音率・音響透過損失測定システム  
AbLoss (左:無響室、右:残響室)

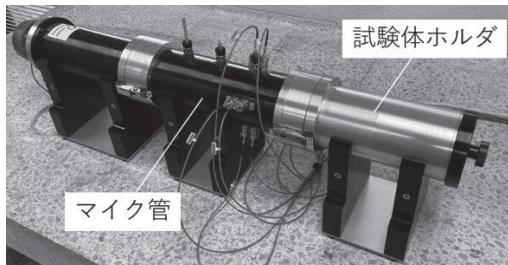


図2 広帯域対応 垂直入射吸音率測定システム  
WinZac 8 (吸音率測定時)

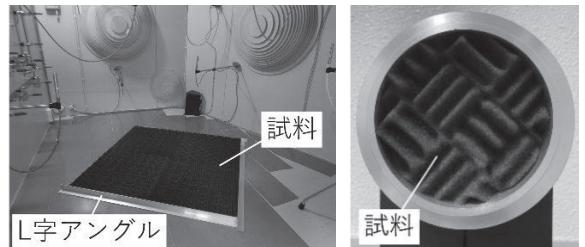


図3 広帯域対応 垂直入射吸音率測定システム  
WinZac 8 (音響透過損失測定時)

## 2.1 各材料の吸音率測定方法

### 2.1.1 多孔質型吸音材料

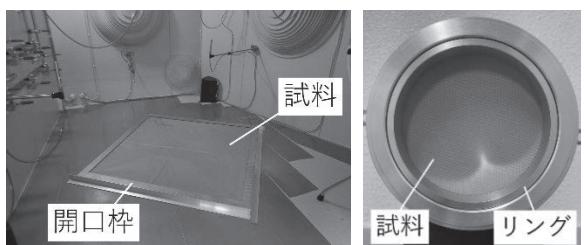
厚さ 35 mm のウレタンフォームを用いて、剛壁密着条件により測定を行った。試料サイズは、実験室法で 1000 mm × 1000 mm、音響管法で直径 100 mm とし、音響管法では試験体ホルダに試料を設置した。試料を残響室内、試験体ホルダ内にそれぞれ設置した様子を図 4 に示す。



(a) 実験室法 (b) 音響管法  
図4 ウレタンフォームの吸音率測定用試料

### 2.1.2 膜振動型吸音材料

面密度 0.23 kg/m<sup>2</sup>、厚さ 0.46 mm の PP を主体とするシートを用いて、背後空気層を 10 mm、20 mm 設けた場合のそれぞれについて測定を行った。試料サイズは、実験室法で 1000 mm × 1000 mm、音響管法で直径 108 mm とし、音響管法では緩支持ホルダに試料を設置した。背後空気層は、実験室法において外寸 1000 mm × 1000 mm、内寸 900 mm × 900 mm の開口枠、音響管法において外径 110 mm、内径 100 mm のリングを試料と試料背後の剛壁との間のスペーサとし、条件設定した。また、試料のたわみを抑えるため、同様の開口枠、リングを音の入射面側に設置し、開口枠と開口枠、またはリングとリングで試料を挟んで固定することにより、試料が張った状態で測定を行った。試料を残響室内、緩支持ホルダ内にそれぞれ設置した様子を図 5 に示す。



(a) 実験室法 (b) 音響管法  
図5 PP を主体とするシートの吸音率測定用試料

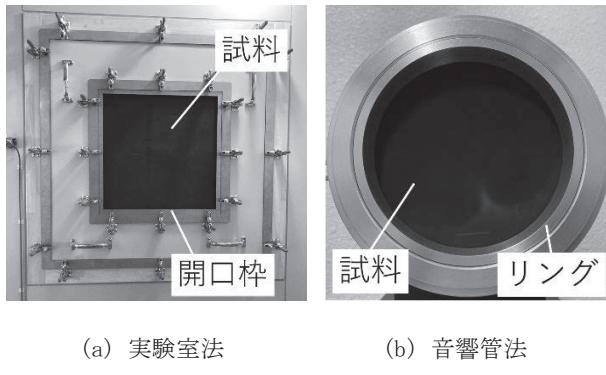
### 2.1.3 共鳴器型吸音材料

開口率 3.14 %、厚さ 5.0 mm のシナ合板有孔板を用いて、背後空気層を 10 mm、20 mm 設けた場合のそれぞれについて測定を行った。試料サイズは、実験室法で 900 mm × 900 mm、音響管法で直径 100 mm とし、音響管法では試験体ホルダに試料を設置した。背後空気層は、実験室法において高さ 10 mm または 20 mm のブロックで試料を支持することで、音響管法において試験体ホルダのピストンにより試料背後の剛壁位置を調節することで条件設定した。

## 2.2 各材料の音響透過損失測定方法

### 2.2.1 非通気材料

面密度 6.94 kg/m<sup>2</sup>、厚さ 5 mm のゴムシートを用いて、測定を行った。試料サイズは、実験室法で 600 mm × 600 mm、音響管法で直径 108 mm とした。試料は、実験室法において外寸 600 mm × 600 mm、内寸 500 mm × 500 mm の開口枠、音響管法において外径 110 mm、内径 100 mm のリングにより試料を挟んで固定した。試料を残響室-無響室間の開口部内、緩支持ホルダ内にそれぞれ設置した状態を図 6 に示す。



(a) 実験室法

(b) 音響管法

図 6 ゴムシートの音響透過損失測定用試料

### 2.2.2 通気材料

厚さ 35 mm のウレタンフォームを用いて、測定を行った。試料サイズは、実験室法で 500 mm × 500 mm、音響管法で直径 102 mm とした。試料は、実験室法において外寸 600 mm × 600 mm、内寸 500 mm × 500 mm の開口枠、音響管法において外径 110 mm、内径 102 mm のリングの内側に装填して固定した。

### 2.2.3 非通気材料と通気材料の積層材料

2.2.1 および 2.2.2 で用いたゴムシートとウレタンフォームを積層し、測定を行った。2.2.1 と同様にゴムシートは開口枠またはリングで挟み、2.2.2 と同様にウレタンフォームは開口枠またはリングの内側に装填し、固定した。

## 3. 結果および考察

### 3.1 吸音率

#### 3.1.1 多孔質型吸音材料

ウレタンフォームの吸音率測定結果およびシミュレーション結果を図 7 に示す。シミュレーションでは Miki モデルを用い、流れ抵抗は文献値<sup>2)</sup>を参考とし、2000 Ns/m<sup>4</sup>として予測を行った。

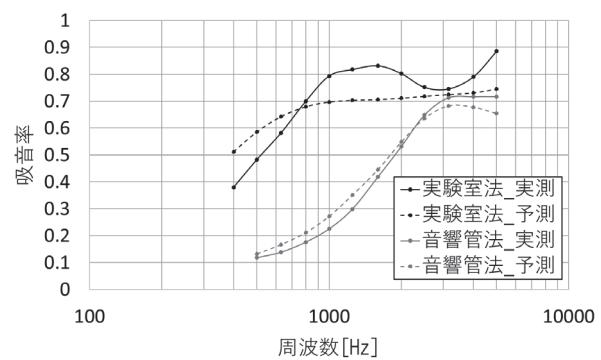


図 7 吸音率測定結果および予測結果（ウレタンフォーム）

実測値では、実験室法において、音響管法に対し吸音率が大きくなり、ピークが低周波側にシフトした。これは、試料への音の入射条件の違いが原因と考えられる。実験室法は試料へ様々な方向から音が入射するランダム入射に近い条件であることに対し、音響管法は試料へ垂直に音が入射する垂直入射条件である。試料内部での音の伝播距離はランダム入射条件では斜め方向に長くなることから低周波での減衰が大きくなり、試料の厚みを増すことと同じような効果が得られたと推察される。実測値と予測値を比較すると、音響管法では概ね一致したが、実験室法では特性が大きく異なった。これは、材料の骨格構造の振動による影響と考えられるため、弾性率などの物性値を考慮した Biot モデルなどを用いることで、実験室法のシミュレーション結果が向上すると推察される。

### 3.1.2 膜振動型吸音材料

PP を主体とするシートの吸音率測定結果を図 8、図 9 に示す。

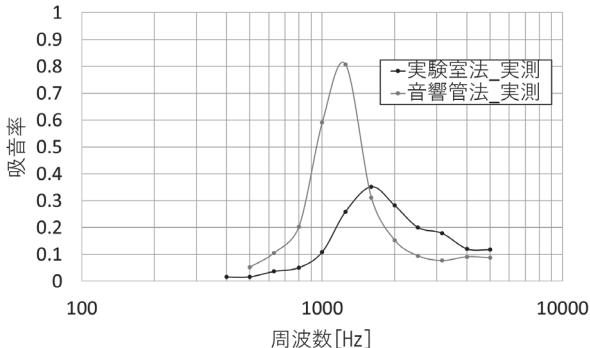


図 8 吸音率測定結果（背後空気層 10 mm における PP を主体とするシート）

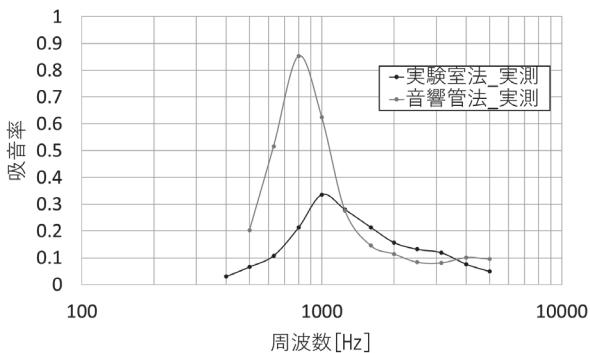


図 9 吸音率測定結果（背後空気層 20 mm における PP を主体とするシート）

実験室法において、音響管法に対し吸音率が小さくなり、ピークが高周波側にシフトした。これは、試料への音の入射条件による試料の振動しやすさの違いや試料のたわみによる背後空気層誤差などが原因と考えられる。

膜振動型吸音材料では、吸音ピークの大きさや鋭さが試料の張り具合に依存すると考えられるため、正確なシミュレーションは困難である。そこで、音響管法でのピーク周波数のみ、式(1)により計算を行った。

$$f = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{\rho c^2}{mL}} \quad (1)$$

ここで、 $\rho$  は空気の密度、 $c$  は音速、 $m$  は試料の面密度、 $L$  は背後空気層厚さである。 $L$  が 10 mm、20 mm において、 $f$  はそれぞれおよそ 1283 Hz、907 Hz となる。実測結果

のピーク周波数と比較すると、背後空気層が 10 mm ではほぼ一致したが、背後空気層が 20 mm では 100 Hz 程度のずれが見られた。これは、実測結果の周波数分解能が粗く、見かけ上、ピーク周波数が低く表示されているためと考えられる。

### 3.1.3 共鳴器型吸音材料

シナ合板有孔板の吸音率測定結果およびシミュレーション結果を図 10、図 11 に示す。

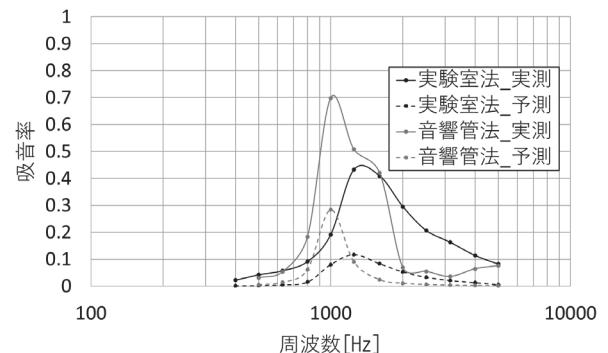


図 10 吸音率測定結果および予測結果（背後空気層 10mm におけるシナ合板有孔板）

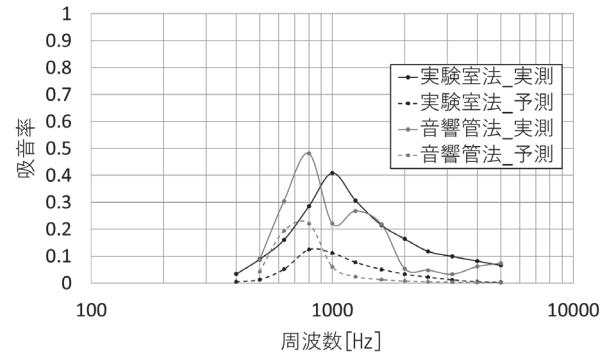


図 11 吸音率測定結果および予測結果（背後空気層 20mm におけるシナ合板有孔板）

実測値では、実験室法において、音響管法に対し吸音率が小さくなり、ピークが高周波側にシフトした。これは、試料への音の入射条件による開口部での共鳴しやすさの違いが原因と考えられる。また、音響管法で 1500 Hz 付近にピークが立ったが、試料が小さいため、試料自体が振動してしまった影響だと考えられる。実測値と予測値を比較すると、実験室法、音響管法ともに吸音ピーク

の周波数は概ね一致したが、吸音率の大きさは0.3~0.4程度のずれが見られた。シミュレーション結果の精度を高めるためには、開口部の滑らかさや開口端の面取りも考慮する必要があると考えられる。

### 3.2 音響透過損失

#### 3.2.1 非通気材料

ゴムシートの音響透過損失測定結果およびシミュレーション結果を図12に示す。

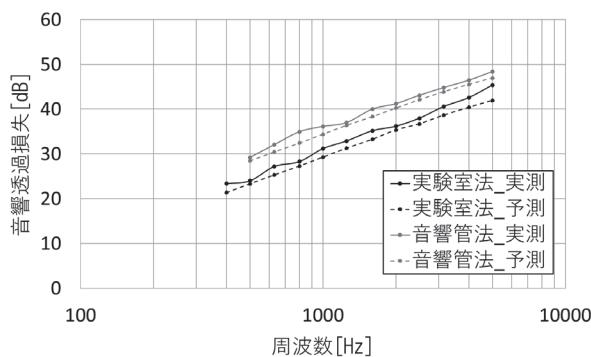


図12 音響透過損失測定結果および予測結果（ゴムシート）

実測値では、実験室法において、音響管法に対し音響透過損失が5dB程小さくなつた。これは、ランダム入射条件の実験室法において、屈曲振動が生じ、音が透過しやすくなつたと考えられる。実測値と予測値を比較すると、結果は概ね一致した。

#### 3.2.2 通気材料

ウレタンフォームの音響透過損失測定結果およびシミュレーション結果を図13に示す。

実測値では、通気性はあるが、両測定手法ともグラフが右上がりとなる傾向が見られ、特に実験室法では顕著であった。これは、材料中の音エネルギー損失が高周波ほど大きいことに起因するものと推察されるが、特に実験室法ではランダム入射による試料の振動の影響や試料周囲の隙間などの測定誤差が原因となり、音響管法に対し著しい特性になったと考えられる。実測値と予測値を比較すると、音響管法ではほぼ一致した。実験室法では、3.1.1と同様に材料の骨格構造の振動による影響を考慮することで、シミュレーション結果が向上する可能性がある。

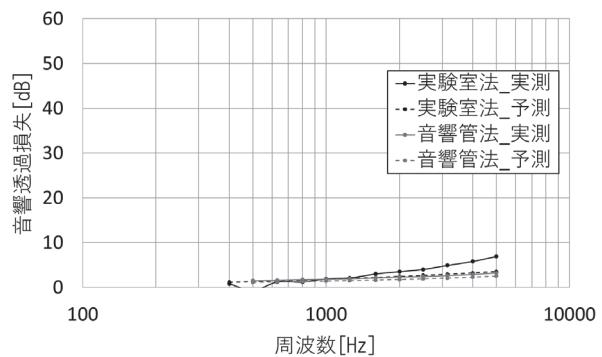


図13 音響透過損失測定および予測結果（ウレタンフォーム）

#### 3.2.3 非通気材料と通気材料の積層材料

ゴムシートとウレタンフォームの積層材料の音響透過損失測定結果を図14、実測とシミュレーションの比較結果を図15、図16に示す。

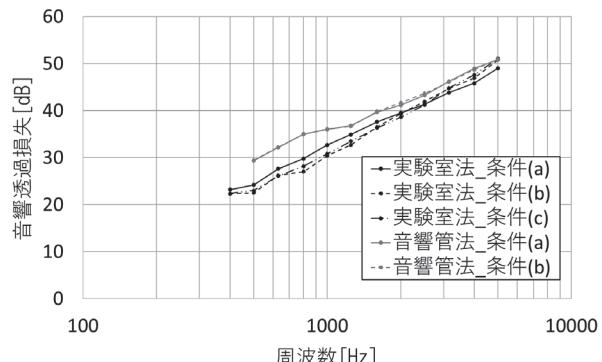


図14 音響透過損失測定結果（積層材料）

(a) ゴムシート側入射面、(b) ウレタンフォーム側入射面、(c) ゴムシートを(b)位置に固定し、ウレタンフォームを透過側に変更（ゴムシート側入射面）

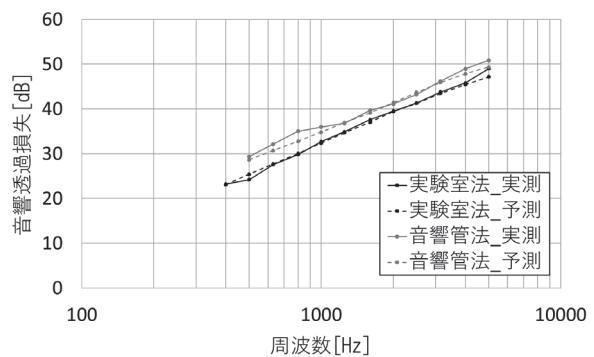


図15 音響透過損失測定結果および予測結果（ゴムシート側を入射面にしたときの積層材料）

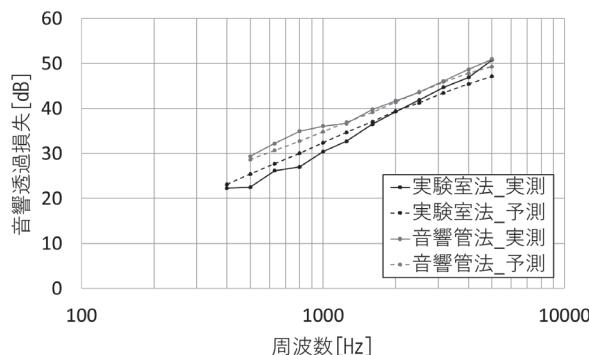


図 16 音響透過損失測定結果および予測結果（ウレタンフォーム側を入射面にしたときの積層材料）

音の入射面がゴムシート側、ウレタンフォーム側の場合のそれぞれで測定を行った。音響管法では入射面により測定結果は変わらなかった。一方、実験室法では、ゴムシートの位置を固定しウレタンフォームのみを入射側または透過側に変えた場合（条件(b)、(c)）には測定結果が変わらなかつたが、表裏の向きを変えゴムシートの位置が開口面からの深さに対して変わる場合（条件(a)、(b)）には異なる測定結果となった。この理由は、垂直入射による音響管法では試料の位置による音の入射条件への影響が小さい一方で、ランダム入射による実験室法では試料の位置によって音の入射条件が大きく異なり、特に非通気材料は影響が大きいことが考えられる。また、図 12、図 13 との比較から、積層材料の音響透過損失は非通気材料の特性が支配的となっており、3.2.1 と同様に、音響管法に対し実験室法の音響透過損失が小さくなつた。実測値と予測値を比較すると、音響管法では入射面に関わらず、結果は概ね一致した。一方、実験室法では、ゴムシート側を入射面にしたときは結果が概ね一致したが、ウレタンフォーム側を入射面にしたときは 3 dB 程度のずれが見られた。これは、シミュレーションにおいて試料が無限平板であると仮定しており、非通気材料であるゴムシートが開口面から深い位置にある影響が考慮されていないことが原因であると考えられる。

## 4. 結 言

本研究では、各種材料について実験室法と音響管法の実測結果、シミュレーション結果を比較検証した。その結果、以下のような知見が得られた。

### 4.1 吸音率

- (1) 多孔質型吸音では、音響管法に対し、実験室法の吸音率が低周波で大きくなる。
- (2) 膜振動型吸音、共鳴器型吸音では、音響管法に対し、実験室法の吸音率が小さく、周波数のピークが高周波側になる。

### 4.2 音響透過損失

- (1) 非通気材料では、音響管法に対し、実験室法の音響透過損失が小さくなる。
- (2) 通気材料では、周波数が高くなるにつれて音響透過損失が大きくなる傾向が見られ、特に実験室法で顕著である。
- (3) 非通気材料と通気材料の積層材料では、非通気材料の特性が支配的であり、音響管法に対し、実験室法の音響透過損失が小さくなる。また、入射面の素材による影響はほとんどないが、実験室法において、非通気材料の位置が開口面の深さに対して変わる場合には異なる結果となる。

### 4.3 実測とシミュレーションとの比較

- (1) 多孔質型吸音では、音響管法で実測結果と概ね結果が一致したが、実験室法においては特性が大きく異なつた。材料の骨格構造の振動による影響を考慮することでシミュレーション結果が向上すると考えられる。
- (2) 膜振動型吸音では、音響管法によるピーク周波数が実測結果と同程度になることが確認できた。
- (3) 共鳴器型吸音では、ピーク周波数は実測結果と概ね一致したが、吸音率の大きさは 0.3~0.4 程度のずれが生じた。シミュレーションの精度を高めるためには、開口部の滑らかさや開口端の面取りも考慮する必要があると考えられる。
- (4) 音響透過損失では、実測結果と概ね良好な関係性が得られた。

### 参考文献

- 1) 関藤大樹、山田大智、津金孝光：NOE 技術ニュース，第 44 号(2017)
- 2) 中川博：NOE 技術ニュース，第 8 号(1994)

# AI を用いたチップ部品の位置ずれ検査に関する検討

村瀬真、長坂洋輔、松原和音、水野裕正\*

A Study on AI-based Inspection of Chip Component Misalignment

Makoto MURASE, Yosuke NAGASAKA, Kazune MATSUBARA and Yasutaka MIZUNO\*

Abstract : The features of the AI were examined using misalignment inspection of chip components mounted on a printed circuit board as a subject. In an AI-based inspection using a data set divided into six classes based on the degree of misalignment of chip components, when the training data and test data were under the same conditions, the AI showed performance comparable to humans. However, when the test data and training data have different conditions, the AI performance dropped significantly. Here, we describe the features of the AI-based inspection that became clear from a study by changing the lighting conditions and the inspection target.

## 1. 緒 言

ディープラーニングは、人の脳の働きを模倣した AI(Artificial Intelligence)技術の 1 つで、AI の性能向上に大きな影響を与えた技術である<sup>1)</sup>。データの学習により複雑な判定処理を実現できる一方、判定基準が「ブラックボックス」であるため意図しない誤判定を行う可能性がある。このような AI を活用するためには、使われている技術の長所や短所を正しく把握する必要がある。ここでは、プリント基板に実装したチップ部品の位置ずれ検査を題材として、ディープラーニングを用いた AI の特徴を検討した結果を記載する。

## 2. プリント基板の外観検査について

プリント基板に実装される部品点数は多く、個々の部品ごとにも実装状態やはんだ不良など検査すべき項目が多岐に渡るため、量産品において今日、プリント基板の自動外観検査システムは重要な役割を担っている。しかし、検査システムの導入は費用面でハードルがあり、また、不良品の流出を防ぐため判定基準を厳しく設定すると、過検出の数が多くなるなど管理面の問題もある。AI 技術により検査性能の向上や、検査条件の柔軟化による検査システムの簡易化およびコストダウンが期待できれば、検査システムはさらに活躍の場が広がる。

プリント基板の外観検査では、様々な検査対象や検査項目が想定されるが、ここでは作業量の点から、検査対象を「基板に実装したチップコンデンサ」に、検査項目

を「部品の位置ずれ」に絞って検討した。AI は複雑な判定処理を実現できることから、照明条件の変化や見た目が同じような検査対象に対する AI の柔軟性に興味を持たれたため、本研究ではこの点に重点を置いて検討した。

## 3. 実験方法

AI を用いたチップ部品の位置ずれ検査は、図 1 のような実装したチップ部品画像のデータセットと、「VGG16<sup>2)</sup>」と呼ばれるネットワーク構造をベースにした AI を用いて行った。なお、当初は図 2 の基準を用いて、【良品】と【不良品】の 2 クラスでの分類を予定していたが、誤判定の考察が難しかった。図 3 は、人が【良品】で AI が【不良品】と判定した画像の例、図 4 は、人が【不良品】で AI が【良品】と判定した画像の例であるが、判定基準付近の画像では、人の誤判定の可能性を排除できなかつたためである。このため、ここでは図 1 のように、位置ずれの程度から 6 クラスに分けて評価することとし、2 クラス以上離れた判定を AI が行った場合に、AI の誤判定とした。各クラスは次の通りで、多少の曖昧さを含む基準である。なお、ここでの JIS は、JIS C 61191-2:2020 レベル C である。

【クラス 1】 ほぼずれが無い画像

【クラス 2】 わずかにずれがある画像

【クラス 3】 JIS の良品判定で、基準付近の画像

【クラス 4】 JIS の不良品判定で、基準付近の画像

【クラス 5】 大きなずれのある画像

【クラス 6】 極端なずれ、又は、パッドのみの画像

\*愛知時計電機株式会社

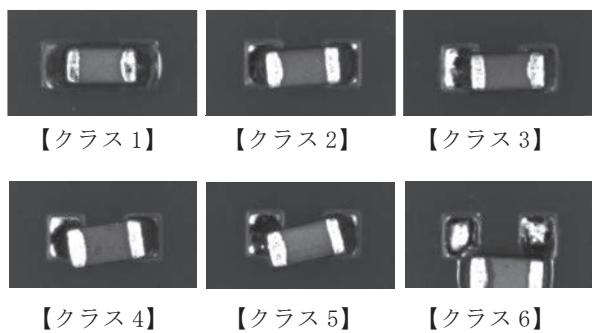


図 1 クラス分けのイメージ

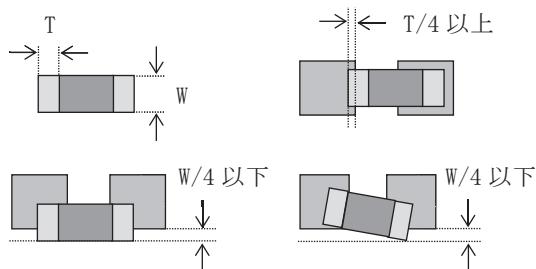


図 2 クラス分類での【良品】の基準

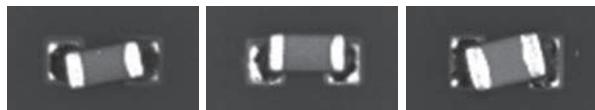


図 3 人【良品】、AI【不良品】判定の例



図 4 人【不良品】、AI【良品】判定の例

また、本研究では次の 3 通りの評価を行った。

- ①AI の基本性能の確認
- ②照明条件に対する AI の柔軟性評価
- ③検査対象に対する AI の柔軟性評価

①では、作成した千枚以上の画像から成るデータセットを、学習用とテスト用に分けた場合の AI 性能を評価した。

②では、撮影時の照明条件(図 5)による AI 性能の変化、及び、学習データとテストデータで照明条件が異なる場

合の AI の柔軟性を評価した。なお、ここでの RGB 照明は面の角度で色が変化する照明条件である<sup>3)</sup>。

③では、学習データとテストデータで、チップ部品サイズやパッド形状が異なる場合の AI の柔軟性を評価した。図 6 では、例えば  $1.6\text{mm} \times 0.8\text{mm}$  サイズの部品を 1608 と表記する。1608 の「パッド中」を学習データに、他をテストデータに用いて評価した。

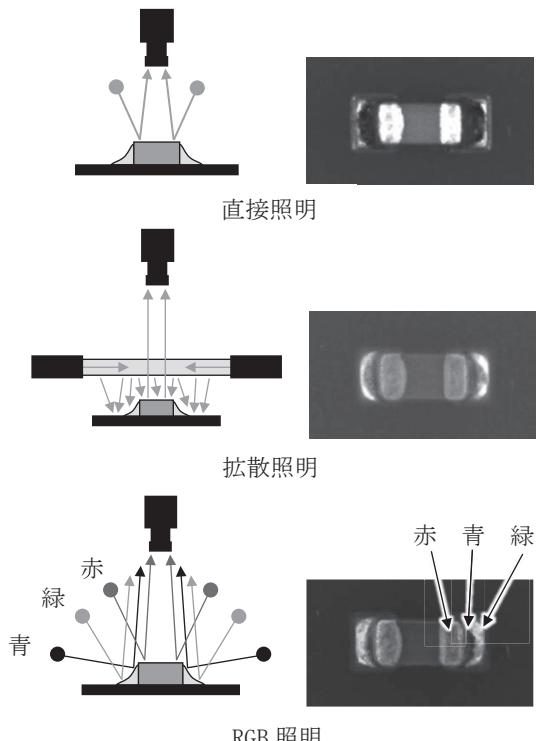
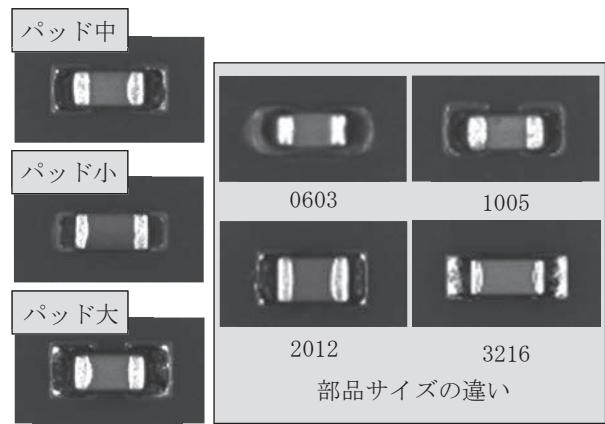


図 5 撮影時の照明条件と写り方



1608

図 6 検査対象

## 4. 実験結果と考察

### 4.1 ①AIの基本性能の確認

①について、結果を表1に示す。薄い色で示した頻度の高いセルが、表の左上から右下の対角線上に集中している。前述の通り、隣接するクラス間の誤判定は考査が難しいため、ここでは人とAIで2クラス以上離れた判定に注目したところ、人が【クラス3】でAIが【クラス5】の判定と、人が【クラス6】でAIが【クラス4】の判定に各1つずつの誤判定がみられた。この2つは、図7に示すように、人でも少々判定しにくいように思われる。ずれ方が似ているため、このような状態の学習データを追加することで、AI性能の改善が期待できる。この2つを除くとAIは、ほぼ期待通りの判定結果であった。

表1 ①の結果

		AIの判定					
		クラス1	クラス2	クラス3	クラス4	クラス5	クラス6
人 の 判 定	クラス1	135	9	0	0	0	0
	クラス2	41	58	6	0	0	0
	クラス3	0	3	7	10	1	0
	クラス4	0	0	2	14	4	0
	クラス5	0	0	0	9	103	17
	クラス6	0	0	0	1	4	69



図7 誤判定画像

〔 左：人【クラス3】、AI【クラス5】判定  
右：人【クラス6】、AI【クラス4】判定 〕

### 4.2 ②照明条件に対するAIの柔軟性評価

②について、図5の3通りの照明条件それぞれで①の検討を行うと同等の結果が得られたことから、AI性能は照明条件に大きく依存しないことが分かった。ただし、細かい傷など照明条件により検査対象が画像に写らない場合は、この限りではないと考えられる。次に、AIの柔軟性を検討するため、テストデータに学習データとは異なる照明条件のデータセットを追加したところ、人とAIの判定結果は大きく異なり、人が【クラス1】と判定した画像をAIは【クラス6】と判定するなど、AIに極端な誤判定がみられた。誤判定した画像のほとんどは、学習データとは異なる照明条件のデータであった。なお、表

2は3通りの照明条件を全て学習データに含めた場合の結果であるが、テストデータで評価する条件全てを、予め学習データに含めることで、AIは3通りの照明条件全てに対応できるようになった。今回用いた3通りの照明条件は、照明により影のでき方やエッジの様子などが大きく変化する条件である。このような場合は、テストデータと同じ条件で撮影した画像を学習データに含む必要があることが分かった。なお、AIの学習では「データ拡張」と呼ばれる技術があり、特定の学習データの色味やコントラストなどを変化させた画像を学習できる。データ拡張技術で検査用照明の経時変化による明るさの変動などを再現できる場合は、柔軟性のあるAIを実現できると考えられる。

表2 3種類の照明条件に対応するAI

		AIの判定					
		クラス1	クラス2	クラス3	クラス4	クラス5	クラス6
人 の 判 定	クラス1	393	39	0	0	0	0
	クラス2	66	242	7	0	0	0
	クラス3	0	10	34	19	0	0
	クラス4	0	0	16	34	10	0
	クラス5	0	0	0	25	323	39
	クラス6	0	0	0	3	22	197

### 4.3 ③検査対象に対するAIの柔軟性評価

③について、次の結果が得られた。

- ・②の結果と同様に、AIは学習データに含まない部品サイズの画像では極端な誤判定がみられた。
- ・部品サイズが同じでも、パッド形状が異なるだけでAIに極端な誤判定がみられた。
- ・今回の検査対象の中では、2012は1608と縦横比が異なるにも関わらず、極端な誤判定が比較的少なかった(表3)。

今回用いたデータでは、チップ部品のサイズごとに異なるパッド形状となっている。同じサイズの部品でも、パッド形状の違いだけでAIの誤判定は増えたため、部品サイズのみが変化する影響は評価できていない。異なる部品サイズにおいて、パッド形状を相似形で設計した場合の評価に興味が持たれる。図6の画像より、2012の画像は、学習に用いた1608の「パッド中」と、チップ部品

とパッドの位置関係やエッジの様子が似ているように思われる。この結果からAIは、学習データとテストデータにおいて、チップ部品とパッドの位置関係やエッジの様子が同じ状態であれば対応でき、異なる場合は対応できないと考えられる。

表3 1608で学習、2012でテストした場合

人 の 判 定	AIの判定					
	クラス1	クラス2	クラス3	クラス4	クラス5	クラス6
クラス1	86	10	1	0	0	0
クラス2	55	48	6	2	1	0
クラス3	0	0	3	14	4	0
クラス4	0	0	0	7	5	0
クラス5	0	0	0	3	94	7
クラス6	0	0	0	0	4	15

## 5. 結 言

本研究では、チップ部品の位置ずれ検査に関する検討を通してAIの特徴を調べた。人がしきい値などを設定するルールベース型の従来技術と比較して、AIは複雑な処理を実現できる有力な技術であり、次の長所がみられた。

- ・今回の①～③の検討は全て、ほぼ同じ構造のAIで行った。若干の誤判定を許容できる用途では、AIは学習データの変更だけで様々な判定処理に対応できた。
- ・②の検討において、3通りの照明条件を全て学習データに含めた場合に、1つのAIで複数の照明条件に対応する判定処理を実現できた。

一方で、次の短所もみられた。

- ・学習データに含まれない条件では、極端な誤判定が多かった。このため、高い正解率が要求される用途では、あらゆる条件を含む学習データを用意する、もしくは、不必要的変動要因を抑え、学習に必要なデータ数をできる限り少なくする工夫が必要である。
- ・今回のAIには、図2のような明示的な基準は示しておらず、③の検討においてAIは、パッド形状の変化に対応できなかった。明示的な基準がある場合は、ルールベース型の従来技術の方が制御しやすい可能性がある。

現在のAIは、あらゆる用途に適する万能な技術というよりも、ルールベース型の従来技術では実現が難しい用途への活用が期待できる、高度な処理技術の1つであるという印象を受けた。例えばAI技術は、画像のノイズ除去などで優れた性能を示している<sup>4)</sup>。AI技術を判定そのものではなく、従来技術で判定しやすい画像への変換処理に用いるなど、AIと従来技術それぞれの長所を活かした使い分けが必要である。AIを用いる場合は、AI技術の特徴を理解した上で用途をよく検討するべきである。適した用途であると判断した場合は、AIで行う処理を具体化させて学習データの入手に目途をつけることで、AIを活用した技術の開発につながると考えられる。

## 謝辞

本研究は、中部エレクトロニクス振興会との共同研究の一環として、2018～2022年度に実施した内容である。中部エレクトロニクス振興会が出版する「報告書第34報」においてより詳細な内容を記載しているため、興味のある方は参照されたい<sup>5)</sup>。

## 参考文献

- 1) A. Krizhevsky, I. Sutskever, G. Hinton, : *Adv. NIPS*, pp. 1097–1105 (2012)
- 2) K. Simonyan, A. Zisserman, ; arXiv:1409.1556(2014)
- 3) 小林・谷村・四ツ谷, 特公平6-1173(1994)
- 4) C. Tian, L. Fei, W. Zheng, Y Xu, W Zuo, C. W. Lin, : arXiv:1912.13171(2019)
- 5) 中部エレクトロニクス振興会, 研究報告書第34報 (2023)

# 自動外観検査における機器位置の計測と再現

長坂洋輔、村瀬真、松原和音、後藤真吾、黒宮明

Measurement and Reconstruction of Equipment Positions for Automated Visual Inspection

Yosuke NAGASAKA, Makoto MURASE, Kazune MATSUBARA, Shingo GOTO and Akira KUROMIYA

**Abstract :**In recent years, automated visual inspection has been improved by artificial intelligence technologies, but the imaging environment is still often constructed manually. If the imaging environment is not quantified, it becomes difficult to compare and reconstruct imaging conditions. In this paper, we added the measurement and reconstruction of the light source position to a system in which the camera position is measured by image processing and a robot arm reconstructs the position. Then, we verified the reproducibility of the light source position reconstructed by the system and the inspection accuracy when the position is reconstructed.

## 1. 緒言

製品の生産現場では、不良品を見つけ出すために外観検査が広く行われている。しかし、全数検査には多大な労力がかかることから、検査の自動化および検査精度の向上は喫緊の課題となっている。検査対象となる製品は多岐にわたるため、製品に合わせて独自の自動外観検査機が設計されることが一般的であり、これまで様々な検査方法が提案されてきた<sup>1)</sup>。自動外観検査を実現するには撮影環境と判定処理の設計が必要となるが、判定処理については近年発展した人工知能(Artificial Intelligence: AI)技術を応用することで、汎用性や精度を向上させる試みが注目されている<sup>2)</sup>。

AI技術は事前に判定処理のパラメータを調整する学習処理を行う必要があり、学習処理ではパラメータを調整する基準となる学習データが必要となる。外観検査では、入力となる画像データとその良否ラベル情報を学習データとして使用することが一般的である。しかし、上述の仕組みは撮影環境のことが考慮されておらず、撮影角度や照明などの影響で欠陥が判別できない画像を学習データに使うと、適切なパラメータを推定できない。また、学習データと検査現場での撮影環境が異なる場合には精度が低下してしまう。したがって、AIによる外観検査では撮影環境が非常に重要である。しかし、撮影環境の構築は手作業であることが多く、撮影環境の影響を比較する際の再現性が問題となる。こうした状況を改善するため、検査対象や撮影環境などの詳細な情報を含めて外観検査の研究用データセットを公開するプロジェクトが進んでいる<sup>3)</sup>。

本研究では撮影環境を構成する機材の位置関係について正確な再現や比較ができるよう、検査用のカメラで撮影した画像からカメラおよび照明の位置関係を計測し、再現するシステムを構築した。そして、システムによる位置の再現性および再現時の検査精度を検証した。

## 2. 機器位置の計測および再現方法

### 2.1 概要

これまでの研究では、基準点となるチェッカーボード柄を貼付したアルミ板について、検査用のカメラにて撮影した画像からカメラと基準点の位置関係を計測し、過去に計測した位置関係をロボットアームにより再現するシステムを構築した<sup>4)</sup>。本研究では、このシステムに照明位置の計測および制御を追加することで、カメラ、照明および基準点の3点の位置関係について記録し、自動で再現できるようにする。

### 2.2 照明位置の計測

本研究では照明の発光部分の位置を、Powellら<sup>5)</sup>の手法と同様に複数の球体上の鏡面反射を利用して計測する。この手法は、カメラで撮影した画像に写り込んだ球体上の鏡面反射箇所について、カメラから光線を逆にたどることで照明の存在する直線が得られる性質を利用していいる。図1のように複数の球体からそれぞれ照明の存在する直線が得られれば、直線の交点が照明位置となる。この手法では球体の三次元座標と画像中で球体の鏡面反射が起きている箇所の座標が必要となる。

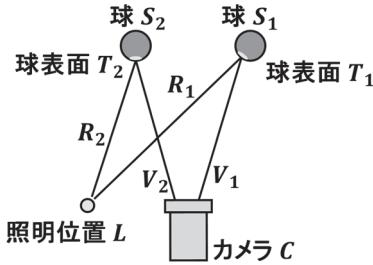


図 1 照明位置計測の概念図

本研究では球体の三次元座標を得るために、基準点となるチェッカーボード柄の周囲を黒く塗り、サイズが既知の白色球体を図2に示す通り4つ貼り付ける。そして、検査の照明とは別の十分に明るい照明を上下から当て、図3に示すような球体とチェッカーボード柄および背景を分離できる画像を撮影する。そして、画像中のチェッカーボード柄からPnP問題を解く<sup>6)</sup>ことでカメラと基準点の位置関係を算出する。最後に、次の式により球体の三次元座標 $S_n$ ( $n = 1, 2, 3, 4$ )を特定する。

$$S_n = \arg \max_{(x,y,z)} f_{ZNCC}(I_{calib}(n), I_{sim}(x, y, z)) \quad (1)$$

ここで、 $x, y, z$ は基準点からの相対位置、 $I_{calib}(n)$ は撮影した画像から球体とその周辺を切り出した画像、 $I_{sim}$ は $x, y, z$ の座標に球体が写り込んだ場合をシミュレートしたCG画像について $I_{calib}$ と同じ個所を切り出した画像、 $f_{ZNCC}$ は画像間の正規化相互相關を表す。式(1)は球体のシミュレート画像を使用して、最も一致する三次元座標を探索する処理である。

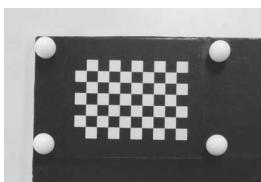


図 2 基準点と球

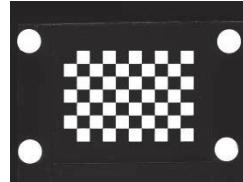


図 3 球体位置計測時の画像

画像中で球体の鏡面反射が起きている箇所について、本研究では検査用の照明で基準点を照らした際に球体上で最も明るい箇所の座標を採用する。この際、誤差を少なくするために次のパラボラフィッティングの式によりサブピクセル単位となる微小変位 $d$ を算出する。

$$d = \frac{I(p-1) - I(p+1)}{2I(p-1) - 4I(p) + 2I(p+1)} \quad (2)$$

ここで、 $I(p+k)$ は球体上で画素値が最大となる点 $p$ の近

傍座標 $k$ ( $k = -1, 0, 1$ )の画素値を表す。実際には画像上の横方向 $i$ と縦方向 $j$ の微小変異( $d_i, d_j$ )をそれぞれ式から求める。また、本研究では複数の球体があるため、すべての球体について最も明るい座標 $i_n, j_n$ を算出する。

カメラから球体の鏡面反射箇所への視線ベクトル $V_n$ はカメラの内部パラメータである画素単位の焦点距離 $f$ および画像中心座標 $c_x, c_y$ から次の式で計算できる。

$$V_n = \left[ \frac{(i_n - c_x)}{f}, \frac{(j_n - c_y)}{f}, 1 \right]^T \quad (3)$$

次に、カメラ座標 $C$ 、球の半径 $r$ とすると、直線化した視線ベクトル $C + tV_n$ と球体表面が交わる点を表す式は次の通りとなる。

$$|C + tV_n - S_n|^2 = r^2 \quad (4)$$

ここで、 $t$ はベクトルの長さを調整する変数である。式(4)は視線が球体のカメラ側とその反対面の2点で交わるため、 $t$ の解は2つとなる。ここではカメラから見える点を算出するために、ベクトルが短くなる $t$ を採用し、視線と球表面の交点 $T_n$ を $T_n = C + tV_n$ により求める。 $T_n$ では鏡面反射が起きていることから、照明の方向ベクトル $R_n$ は次の式により求められる。

$$U_n = \frac{T_n - S_n}{|T_n - S_n|} \quad (5)$$

$$R_n = V_n - 2(V_n \cdot U_n)U_n \quad (6)$$

ここで、 $U_n$ は $T_n$ における単位法線ベクトルであり、 $(\cdot)$ は内積である。以上より、 $T_n$ を通る方向ベクトル $R_n$ の直線として照明が存在する直線が得られる。理論上はこれらの直線が1点で交わるが、一般的には誤差が含まれるため、交点が存在しない可能性が高い。そこで、本研究では各直線から距離の二乗が最も小さくなる座標を照明位置として、最小二乗法により算出する。

### 2.3 照明位置の再現

本研究ではカメラ、照明および基準点の位置関係について、計測した位置を再現するために2台のロボットアームを使用する。ロボットアームを使用して照明位置を再現する際の動作イメージを図4に示す。1台は従来研究と同じくハンドにカメラを取り付け、カメラと基準点の位置関係をこれまでの研究<sup>4)</sup>のPnP問題を解く場合と同じ制御を行う。もう一台は基準点となるアルミ板を持ち、照明の位置に基づいて基準点の位置を制御する。

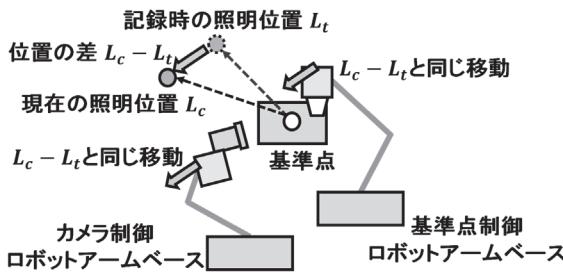


図4 照明位置を再現するための動作

ロボットアームを使用して基準点の位置を正確に制御するためには、基準点を制御するロボットアームのハンドと基準点間の位置関係の情報が必要となる。この情報はカメラを制御するロボットアームのハンドとカメラ間の位置関係を得る hand eye calibration<sup>7)</sup>の応用により導出が可能である。カメラを移動させずに固定した状態で基準点を制御するロボットアームを動かし、ベースから見たハンド位置とカメラから見た基準点の位置の組み合わせを複数用意することで、カメラとベース間の位置関係が得られる。これにより、ベースから見たハンド位置およびカメラから見た基準点の位置から、ハンドと基準点間の位置関係が得られる。

現在の照明位置を  $L_c$  とすると、記録位置  $L_t$  を再現するためには位置の差  $L_c - L_t$  をロボットアームの座標系に変換する必要がある。ベースから見たハンドの位置  $B_{tp2}$  は座標系の変換を含む以下の式で表される。

$$B_{tp2} = B_{cr2}^{-1} H_{r2}^{-1} (L_c - L_t) + B_{cp2} \quad (7)$$

ここで、 $B_{cr2}^{-1}$  は基準点を把持するロボットアームについてハンド基準の座標系をベース基準の座標系に変換する行列、 $H_{r2}^{-1}$  は基準点の座標系をハンド基準の座標系に変換する行列、 $B_{cp2}$  は現在のベースから見たハンドの位置である。また、基準点を移動する際にはカメラも同様に移動させなければならない。カメラを取り付けたロボットアームの移動先  $B_{tp1}$  は次の式で表される。

$$B_{tp1} = B_{cr1}^{-1} H_{r1}^{-1} C_{cr}^{-1} (L_c - L_t) + B_{cp2} \quad (8)$$

ここで、 $B_{cr1}^{-1}$  はカメラを取り付けたロボットアームについてハンド基準の座標系をベース基準の座標系に変換する行列、 $H_{r1}^{-1}$  はカメラ基準の座標系をハンド基準の座標系に変換する行列、 $C_{cr}^{-1}$  は基準点の座標系をカメラ基準の座標系に変換する行列、 $B_{cp2}$  は現在のベースから見たハンドの位置を表す。

## 2.2 節の計測手法は取り除き切れなかったレンズ歪み

等の影響を受けるため、本研究では以下のステップを繰り返すことで再現時の誤差を軽減する。

1. 現在の照明位置  $L_c$  を計測
2. 式(7)を使用して照明-基準点間の位置再現
3. 式(8)を使用してカメラを移動
4. カメラ-基準点間の位置再現

本研究では上記の 1. ~ 4. を 5 回繰り返した結果を再現位置とする。

## 3. 検証実験

### 3.1 実験条件

作製したシステムによる照明位置の再現性および再現時の検査精度を検証する実験を行った。システムのロボットアームにはデンソーウェーブ製 COBOTTA を 2 台使用し、1 台のハンドには Imaging Source 製のカメラ DFK33UP1300 を取り付け、解像度を  $1280 \times 1024$  とした。レンズはミュートロン製 HS1614J を使用した。基準点のチェックカーボード柄は 1 辺  $3.51 \text{ mm}$  とし、半径が  $3.175 \text{ mm}$  の球体を使用した。カメラの焦点距離とレンズ歪みの推定には Zhang の手法<sup>8)</sup>を使用し、照明には白熱電球を使用した。

### 3.2 位置再現性の検証

システムによる位置の再現性を検証するため、初期位置と再現時に基準点となるアルミ板および照明位置の三次元空間位置をノビテック製モーションキャプチャ VENUS3D R で計測した。初期位置はカメラとアルミ板を  $240 \text{ mm}$  程度の距離で正対するよう手動で配置し、照明をアルミ板から見て右前方の  $580 \text{ mm}$  程度の距離に手動で配置した。その後、照明の位置を手動で動かし、作製したシステムによる再現を行った。5 回試行し、基準点と照明の距離および角度の初期配置からの差を計算した。

実験の結果、距離の差は平均  $11.7 \text{ mm}$ 、角度の差は平均  $0.17^\circ$  となった。距離と角度に差が生じる要因のひとつとして、照明位置の計測方法が理想的な点光源を想定していることが考えられる。これについては、実験に使用した電球のサイズが  $\phi 60 \text{ mm}$  程度のシリカ電球であることを考えると、誤差を十分に抑えられていると考えられる。

### 3.3 検査精度への影響

システムを使用して照明位置を再現した際の AI による検査精度を検証するため、VGG16<sup>9)</sup>を使用してチップ部品の実装位置についての良否判定を学習させた。

検証では、照明の位置を手作業で再現した場合と照明の位置をシステムにより再現した場合の判定精度について比較を行った。初期位置のカメラおよび照明の位置関係は 3.2 節と同様とし、初期位置およびそれぞれの再現位置にて、基準点のアルミ板を図 5(a)の基板に持ち替えて撮影した。なお、照明の位置を手作業で再現した場合も、カメラの位置はシステムにて再現した。基板上の各部品については目視にて良否ラベルを与え、学習用と検証用で数量が同じになるようランダムに振り分けた。それぞれの数量を表 1 に示す。また、撮影した画像からは図 5(b)のように部品単体の画像を切り出した。VGG16 の学習処理には初期位置で撮影した学習用の部品画像とそれらの良否ラベルを使用し、300 エポックの学習処理を 5 回行い学習結果のパラメータを 5 個作成した。作成したパラメータを使用して、手作業による再現で撮影した検証用画像およびシステムによる再現で撮影した検証用画像に対する判定精度を検証した。

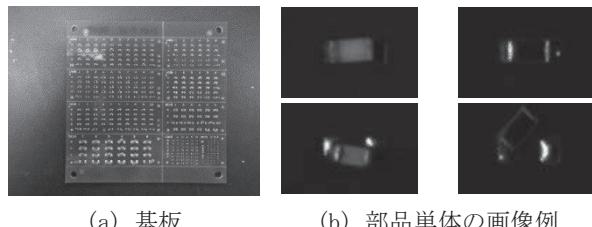


図 5 表面実装基板

表 1 部品使用数

用途	良品	不良品
学習用	644	605
検証用	644	606

実験の結果、手作業で照明位置を再現した場合は正解率が 88.98%、システムにより照明位置を再現した場合は 93.22%となり、作製したシステムにより良否判定精度を向上することができた。照明位置の再現性が向上したことにより、検証用画像の画素値分布が学習用に近づいたことで判定精度が改善したと考えられる。この結果より、

AI 技術による検査精度において照明位置の再現性を向上させることが有効であるといえる。

## 4. 結 言

本研究では外観検査の精度を向上させるため、検査用のカメラで撮影した画像からカメラの位置関係を再現するシステムに、照明の位置を計測および再現する機能を追加した。照明位置の再現性と検査精度を検証する実験を行った結果、位置の再現性が確認でき、AI による検査精度は手作業による再現時よりも精度が改善した。以上の結果より、撮影環境の再現性が改善し、撮影環境の比較や数値化に貢献できるシステムを構築できた。

一方で、作製したシステムによる照明位置の計測は照明が複数ある場合や照明の形状、姿勢を想定していない。汎用的なシステムにするためにこれらへの対処法が必要となる。また、撮影環境の適切さを比較し最適な撮影環境を推定する仕組みの構築も進めていきたい。

## 参考文献

- 電気学会：外観検査の自動化，オーム社（1984）
- 阿部ほか：外観検査の実務と AI 活用最前線～目視検査のコツから自動化のポイント・人工知能の導入まで～，情報機構（2018）
- 浮田・塙田・青木・寺田・野口・輿水：ビジョン技術の実利用ワークショップ ViEW2023 講演論文集，0S3-K1, pp. 316-321 (2023)
- 長坂・村瀬・松原・後藤・黒宮：名古屋市工業研究所研究報告，No. 108, pp. 5-9 (2023)
- M. W. Powell, S. Sarkar, D. Goldgof: *IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell.*, **30**[9], pp. 1022-1027 (2001)
- 出口：計測と制御，**30**[3], pp. 241-246 (1991)
- R. Y. Tsai, R. K. Lenz: *IEEE Trans. Robot.*, **5**[3], pp. 345-358 (1989)
- Z. Zhang: *IEEE Trans. Pattern Anal. Mach. Intell.*, **22**[11], pp. 1330-1334 (2000)
- K. Simonvan, A. Zisserman: *ICLR2015* (2015)

# ステンレス鋼 SCS5B の共同分析結果\*

大橋芳明、野々部恵美子、柴田信行、毛利猛

Results of Co-operative Analysis of Stainless Steel SCS5B

Yoshiaki OHASHI, Emiko NONOBE, Nobuyuki SHIBATA and Takeshi MOHRI

Abstract: Co-operative analysis of stainless steel SCS5B has been carried out. Principal components of alloy were determined by various procedures. As a whole, satisfactory results have been obtained.

## 1. 緒 言

東海無機分析化学研究会の金属部会において、2021年12月から2024年3月まで実施した共同分析のうち、名古屋市工業研究所提供のステンレス鋼SCS5Bの分析結果について報告する。本試料は2013年7月から2015年3月まで6回の検討を行ったステンレス鋼SCS5Aの別ロット製品である<sup>1)</sup>(表1)。

SCS5はマルテンサイト系のステンレス鋼材で、耐酸化性向上タイプであるSCS4に、ニッケルをさらに添加して炭素量を低減させることで、溶接性を向上させたものである<sup>2)</sup>(表2)。

参加機関は、三重県工業研究所金属研究室、(株)矢作分析センター、(株)大同分析リサーチ、日本軽金属(株)、(株)ユニケミー、あいち産業科学技術総合センター産業技術センター、トヨタ自動車(株)、中部鋼鉄(株)および名古屋市工業研究所の9機関である。元素によっては不参加の機関があるため、総データ数が9よりも少ない場合がある。以下、参加機関の名称は任意のアルファベットで示す。

## 2. 結果と考察

### 2.1 概要

クロム(Cr)、ニッケル(Ni)、ケイ素(Si)、マンガン(Mn)、炭素(C)、硫黄(S)、リン(P)、バナジウム(V)、

銅(Cu)、カルシウム(Ca)、マグネシウム(Mg)、ストロンチウム(Sr)の12元素を対象として、2021年12月から2024年3月まで8回の検討が行われた。

これらの測定元素は、事前に東海無機分析化学研究会の事務局において、蛍光X線法およびICP発光法で定性分析を実施し、一定量以上が検出されたものを中心に選定した。そのためJIS G-5121に規定されていない元素も含まれている<sup>2)</sup>。

カルシウム、マグネシウム、ストロンチウムの3元素は、含有量が予測値よりもかなり微量であったため、ばらつきが大きく代表値を決定することができなかつたが、その他の6元素については分析結果が一致を示したため、それらの平均値を代表値として決定した(表3)。

### 2.2 試料分解

本試料は塩酸と硝酸で分解可能であるが、残渣処理方法の違いによって様々な操作が報告された。以下にICP発光法で用いられた酸分解法を中心とし、その主な例を列挙する。なお酸の原液a体積に対して、純水b体積を加えて希釈した希酸の溶液を「(a+b)酸」と記す。

- ① (1+1) 塩酸 + (1+1) 硝酸、加熱分解
- ② (1+1) 塩酸、加熱分解、硝酸、加熱分解
- ③ 王水、加熱分解、混酸(硫酸+リン酸+水)、加熱分解、白煙処理、(1+1) 塩酸、加熱分解
- ④ 王水、加熱分解、混酸(硫酸+リン酸+水)、加熱分解、白煙処理、過酸化水素、加熱分解
- ⑤ 王水、加熱分解、混酸(過塩素酸+リン酸)、加熱分

\*本論文を「数種の試料の共同分析結果(第49報)」とする。

解、白煙処理、(1+1) 塩酸、加熱分解

⑥王水、加熱分解、過塩素酸、加熱分解、白煙処理、

(1+1) 塩酸、加熱分解

⑦ (1+1) 塩酸 + (1+1) 硝酸、加熱分解、ろ過、残渣灰化、炭酸ナトリウム融解、(1+1) 塩酸、加熱分解

### 2.3 分析方法<sup>3)</sup>

#### クロム(Cr)

ICP 発光法が 8 機関あり、測定波長は 267.716 nm が 4 機関、205.618 nm が 1 機関、206.149 nm が 1 機関、206.215 nm が 1 機関、206.550 nm が 1 機関であった。かなり高濃度での測定になるが、高純度金属を溶解して調製した検量線を使用していると報告があった。ペルオキソ二硫酸アンモニウム酸化—過マンガン酸カリウム滴定法が 1 機関あった。平均値は 12.0%、CV (変動係数) 値は 1.44%で、良好な分析結果となった。

なお、分析結果の評価方法は、CV 値が 1%以下の場合は非常に良好、1%より大きく 2%以下の場合は良好、2%より大きく 4%以下の場合はやや良好、4%より大きく 10%以下の場合はややばらつきが大きい、10%より大きい場合はばらつきが大きい、という基準で判断した。

#### ニッケル(Ni)

ICP 発光法が 8 機関あり、測定波長は 231.604 nm が 4 機関、231.675 nm が 2 機関、221.647 nm が 1 機関、221.716 nm が 1 機関であった。ジメチルグリオキシムニッケル重量法が 1 機関あった。平均値は 3.93%、CV 値は 1.13%で、良好な分析結果となった。

#### ケイ素(Si)

ICP 発光法が 6 機関あり、測定波長は 251.611 nm が 3 機関、206.149 nm が 1 機関、251.687 nm が 1 機関、288.242 nm が 1 機関であった。モリブドケイ酸青吸光度法が 2 機関あり、810 nm で測定した。ケイ素の含有量がそれ程高くないにもかかわらず、塩酸・硝酸分解の残渣を炭酸ナトリウムで融解処理しているのは、JIS G-1258-3 に準じたためと報告があった<sup>4)</sup>。再報告を実施した機関から、試料分解において穏やかな加熱条件下で時間をかけて行うと、未分解残渣の量が少なくなると報告があった。二酸化ケイ素重量法が 1 機関あった。平均値

は 0.833%、CV 値は 1.58%で、良好な分析結果となった。

#### マンガン(Mn)

ICP 発光法が 8 機関あり、測定波長は 257.610 nm が 5 機関、257.687 nm が 3 機関であった。過ヨウ素酸ナトリウム酸化—過マンガン酸吸光度法が 1 機関あり、530 nm で測定した。平均値は 0.172%、CV 値は 1.03%で、良好な分析結果となった。

#### 炭素(C)

全 8 機関が燃焼赤外吸収法であった。試料採取量は 0.5 g が 3 機関、1 g が 2 機関、0.7 g が 1 機関、採取量報告なしも 2 機関であった。助燃剤はタンゲステンとスズの併用が 5 機関、タンゲステンと鉄の併用が 1 機関、タンゲステンのみが 1 機関、スズのみが 1 機関であった。不参加が 1 機関あった。平均値は 0.0552%、CV 値は 7.28%で、ややばらつきの大きい分析結果となった。

#### 硫黄(S)

全 8 機関が燃焼赤外吸収法であった。試料採取量は 0.5 g が 3 機関、1 g が 2 機関、0.7 g が 1 機関、採取量報告なしも 2 機関であった。助燃剤はタンゲステンとスズの併用が 5 機関、タンゲステンと鉄の併用が 1 機関、タンゲステンのみが 1 機関、スズのみが 1 機関であった。不参加が 1 機関あった。平均値は 0.00114%、CV 値は 20.8%で、ばらつきの大きい分析結果となった。

#### リン(P)

ICP 発光法が 8 機関あり、測定波長は全機関が 178.287 nm であった。モリブドリン酸青吸光度法が 1 機関あり、825 nm で測定した。平均値は 0.0227%、CV 値は 3.63%で、やや良好な分析結果となった。

#### バナジウム(V)

全 9 機関が ICP 発光法であり、測定波長は 311.071 nm が 7 機関、309.311 nm が 2 機関であった。平均値は 0.0473%、CV 値は 3.10%で、やや良好な分析結果となった。

#### 銅(Cu)

全 9 機関が ICP 発光法であり、測定波長は 327.396 nm であった。平均値は 0.00961%、CV 値は 3.79%で、やや良好な分析結果となった。

#### カルシウム(Ca)

ICP 発光法が 7 機関あり、測定波長は 393.366 nm が 4

機関、396.847 nm が 2 機関、393.477 nm が 1 機関であった。不参加が 2 機関あった。含有量が極微量であるため、当初は CV 値が 50% を超える非常にばらつきの大きい分析結果となった。再報告を実施して代表値の取り扱いについて検討した結果、<0.0001% を参考値として取り扱うことに決定した。

#### マグネシウム(Mg)

ICP 発光法が 7 機関あり、測定波長は 279.533 nm が 3 機関、280.270 nm が 3 機関、279.635 nm が 1 機関であった。不参加が 2 機関あった。含有量が極微量であるため、当初は CV 値が 50% を超える非常にばらつきの大きい分析結果となった。再報告を実施して代表値の取り扱いについて検討した結果、<0.0001% を参考値として取り扱うことに決定した。

#### ストロンチウム(Sr)

ICP 発光法が 7 機関あり、測定波長は 407.771 nm が 6 機関、407.886 nm が 1 機関であった。不参加が 2 機関あった。含有量が極微量であるため、当初は CV 値が 50% を超える非常にばらつきの大きい分析結果となった。再報告を実施して代表値の取り扱いについて検討した結果、<0.0001% を参考値として取り扱うことに決定した。

### 2.4 微量元素の測定における留意点

微量成分のカルシウム、マグネシウム、ストロンチウムの測定については、以下のような報告があった。

- ① 試料を秤量する前に希塩酸と純水で洗浄した。
- ② ホウケイ酸ガラスはカルシウム等の溶出の恐れがあるため、石英ビーカーあるいは PTFE (ポリテトラフルオロエチレン) ビーカーを使用した。
- ③ 定量用ろ紙に代えてメンブランフィルターを、ガラスろ過器に代えて石英ろ過器を使用した。
- ④ 定量用ろ紙であっても微量の灰分を含むため、事前に (1+1) 塩酸で洗浄した後に使用した。また可能な限り面積の小さい物を選択した。
- ⑤ ブランクテストを実施したところ、試薬等の空試験値が無視できなかったため、検量線の原点補正を行った。
- ⑥ マトリックスマッチングを併用して検量線法で測定

した場合、マトリックスとして使用した金属や試薬から不純物が混入する恐れがあったため、無添加を含めて 4 点の標準添加法で測定した。

### 3. 結 言

ステンレス鋼は、合金元素として多量のクロムとニッケルを含んでいるため、滴定法のような湿式分析法で測定されることが望ましい<sup>5)</sup>。当研究会の金属部会で共同分析試料にステンレス鋼を取り上げるのは、2015 年 7 月から 2017 年 7 月まで 7 回の検討を行ったステンレス SUS304 以来であるが、その際の湿式分析法による報告は、クロムが滴定法 4 機関、ニッケルが滴定法 2 機関、重量法 1 機関であった<sup>6)</sup>。今回はクロム、ニッケルとも 1 機関のみに減少しているが、ばらつきの小さい良好な分析結果であった。湿式分析の技術継承が危惧されている昨今においては、ICP 発光法等の機器分析による代替技術を開発することも必要であり、そのためには当研究会の共同分析活動は非常に有益であると考える。

#### 謝辞

試料提供、共同分析、および分析結果検討会にご協力くださいました東海無機分析化学研究会の会員各機関の皆様に、深く感謝の意を表します。また、炭素および硫黄の測定では、表面技術研究室の松村研究員にお世話になりました。併せてお礼を申し上げます。

#### 参考文献

- 1) 野々部恵美子、大橋芳明、柴田信行：名古屋市工業研究所研究報告, **100**, pp. 15–18 (2015)
- 2) 日本産業規格 JIS G-5121 「ステンレス鉄鋼製品」 (2003)
- 3) 日本産業規格 JIS G-1217 「鉄及び鋼—クロム定量方法」 (2003) など
- 4) 日本産業規格 JIS G-1258-3 「鉄及び鋼—ICP 発光分光分析方法—第 3 部：多元素定量分析方法—酸分解・炭酸ナトリウム融解法」 (2014)
- 5) 大橋芳明、野々部恵美子、柴田信行、山口浩一：名古屋市工業研究所研究報告, **104**, pp. 18–23 (2019)
- 6) 野々部恵美子：月刊名工研技術情報, **715**, p. 2 (2011)

表1 ステンレス SCS5A (名古屋市工業研究所提供)

	Cr	Ni	Si	Mn	C	S
平均値	11.91	4.11	0.885	0.156	0.0763	0.0017
標準偏差	0.131	0.059	0.026	0.0051	0.0019	0.000083
C V (%)	1.1	1.4	2.9	3.2	2.5	4.8
	P	V	Cu	Ca	Mg	Sr
平均値	0.0281	0.0550	0.0150	0.00021	0.00004	0.00005
標準偏差	0.0012	0.0012	0.00038	0.00016	0.000012	0.000012
C V (%)	4.4	2.2	2.5	77	27	25

表2 ステンレス SCS5 の化学成分(JIS G-5121:2003)

Cr	Ni	Si	Mn	C	S	P
11.50~14.00	3.50~4.50	≤1.00	≤1.00	≤0.06	≤0.040	≤0.040

表3 ステンレス SCS5B (名古屋市工業研究所提供)

	Cr	Ni	Si	Mn	C	S
A	12.21 I	3.89 I	0.833 I	0.171 I	0.0582 赤	0.00090 赤
B	11.99 I	3.95 I	0.854 重	0.171 I	不参加	不参加
C	12.168 I	3.955 I	0.841 吸	0.1722 I	0.05357 赤	0.00101 赤
D	12.05 I	3.918 I	0.8237 I	0.1723 I	0.05200 赤	0.00096 赤
E	12.01 滴	3.916 重	0.8330 吸	0.1688 吸	0.0509 赤	0.0012 赤
F	11.76 I	3.86 I	0.826 I	0.172 I	0.0517 赤	0.0010 赤
G	11.97 I	4.004 I	0.8434 I	0.1728 I	0.05395 赤	0.00142 赤
H	12.27 I	3.924 I	0.837 I	0.175 I	0.0620 赤	<0.002 赤
I	11.80 I	3.98 I	0.808 I	0.170 I	0.0589 赤	0.0015 赤
平均値	12.025	3.9330	0.8332	0.1717	0.05518	0.00114
標準偏差	0.1734	0.04444	0.01318	0.001770	0.004016	0.0002374
C V (%)	1.442	1.130	1.582	1.031	7.278	20.80
	P	V	Cu	Ca	Mg	Sr
A	0.0231 I	0.0476 I	0.0096 I	<0.0001 I	<0.0001 I	0.00002 I
B	0.0221 I	0.0448 I	0.0101 I	<0.0001 I	<0.0001 I	<0.0001 I
C	0.0220 I	0.0484 I	0.0098 I	<0.0002 I	<0.0002 I	<0.0001 I
D	0.0236 I	0.0480 I	0.0094 I	<0.0001 I	<0.0001 I	<0.0001 I
E	0.0229 吸	0.0488 I	0.00895 I	<0.0001 I	<0.0001 I	<0.0001 I
F	0.0217 I	0.0467 I	0.0098 I	<0.0001 I	<0.0001 I	0.00006 I
G	0.0236 I	0.0478 I	0.0099 I	<0.0001 I	0.0001 I	0.000054 I
H	0.0238 I	0.0485 I	0.00975 I	不参加	不参加	不参加
I	0.0219 I	0.0451 I	0.0092 I	不参加	不参加	不参加
平均値	0.02274	0.04730	0.00961	*<0.0001	*<0.0001	*<0.0001
標準偏差	0.000824	0.00147	0.000365	—	—	—
C V (%)	3.625	3.103	3.794	—	—	—

I : ICP発光法 滴 : 滴定法 重 : 重量法 吸 : 吸光光度法 赤 : 燃焼赤外吸収法

# 教師なし学習による直動システムの異常検知・予防保全手法の研究

間瀬剛、長坂洋輔、松原和音

A Study on Anomaly Detection and Preventive Maintenance Methods  
for Linear Motion Systems by Unsupervised Learning

Tsuyoshi MASE, Yosuke NAGASAKA and Kazune MATSUBARA

**Abstract:** In recent years, there have been increasing expectations for AI-based preventive maintenance and anomaly detection in industrial machinery. In this study, we evaluated the detection capability using an autoencoder, a type of unsupervised learning that can be used even in the absence of abnormality data. The target is a linear motion mechanism consisting of a ball screw and a linear guide. The evaluation of reconstruction errors by acoustic and acceleration sensors showed that the autoencoder has detection capability even for an axial misalignment of 0.1 mm. Non-destructive inspection using an X-ray CT and observation using a microscope did not reveal any damage. It indicates that the system can detect small anomalies. This research is expected to be an effective method for which it has been difficult to introduce AI-based abnormality detection.

## 1. 緒 言

近年は IoT (Internet of Things、モノのインターネット) が一般化し、多くのデータがセンサを使ってネットワーク上に蓄えられるようになっている。得られた多くのデータは、機械の稼働率や製品の歩留まり率等の情報を確認できる「見える化」としての利用等が浸透している<sup>1)</sup>。そして、さらなるデータの活用方法として、製造現場やプラントにおける人工知能 (AI) を用いた製品検査や設備点検の自動化や予防保全に期待が高まっている<sup>2)</sup>。

従来、多くの製造現場においては熟練の技術者が製品の検査や機器の異常状態を経験と勘によって発見するといったことが多く行われていた。しかし、現在では高齢化による熟練技術者の減少や技術職の流動化によってノウハウの継承が難しくなっている。一方で、AI を用いた自動化技術は目覚ましい進歩を続けており、代替手法としてのニーズが高まっている<sup>2)</sup>。

一般的に AI を用いた自動化では正常・異常データの両方を学習することで良否判断を行っている。しかしながら、実際の製造現場では圧倒的多数の正常サンプルに対して、ごく少数の異常データがある、もしくは異常データが存在しない場合が多くある。また、正常状態と比べて異常状態はバリエーションが多く、組み合わせも多種多様に存在する。そこで本研究では、異常データが不足

しているような場合でも対応可能な教師なし学習による異常検知・予防保全手法について研究した。

## 2. 人工知能モデル

人工知能の一種である教師なし学習は、正常データのみで学習が完了するため、異常データが存在しない状態でも学習可能であり、前述のような異常データが不足している製造現場でも導入が容易である。教師なしの異常検知は、特微量  $X$  に対する外れ値検知によって実現可能である。手法としては例えば HMM (Hidden Markov Model, 隠れマルコフモデル)<sup>3)</sup> や k 近傍法<sup>4)</sup> が用いられるこ

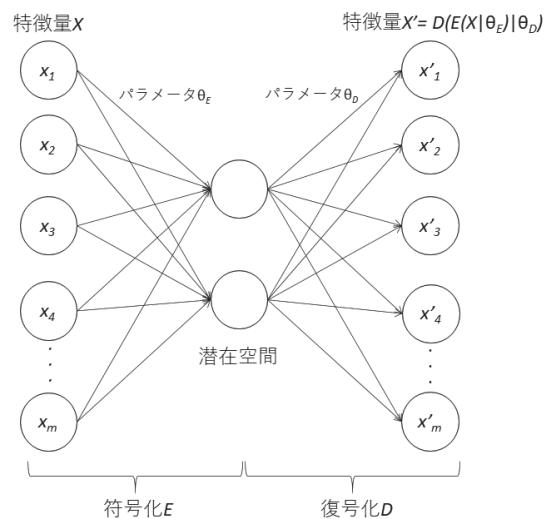


図 1 オートエンコーダのモデル図<sup>6)</sup>

がある。近年ではニューラルネットワークに基づく教師なし学習による異常検知手法が盛んに研究されており、その中で自己符号化器（オートエンコーダ）は効果的な次元削減方法として G. E. Hinton、R. R. Salakhutdinov により提案され注目されている<sup>5)6)</sup>。図 1 にオートエンコーダのモデルを示した。オートエンコーダは特微量  $X$  を低次元の潜在空間に写像する符号化  $E$  と、潜在空間から元の  $X$  を復元する復号化  $D$  からなる AI モデルであり、正常サンプルからなる学習データに対して符号化と復号化をしたあとの再構成誤差の期待値を最小化するようにパラメータ  $\theta$  ( $\theta_E$  および  $\theta_D$ ) を学習する。再構成誤差の異常スコアは(1)式のように示される。

$$A_{\theta_E, \theta_D}(X) = \| X - D(E(X|\theta_E)|\theta_D) \|_2^2 \quad (1)$$

正常サンプルは上記の再構成によるスコアが小さく、それ以外の異常の場合はスコアが大きくなることを利用して正常・異常判定を行うことが可能である。

### 3. 実験装置とデータ取得方法

本研究では、異常を検出するターゲットとしてボールねじとリニアガイドを組み合わせた直動機構を用いた（図 2）。直動機構は加工機や供給装置、検査機などの多くの産業機器に用いられる駆動部品であることから本測定に採用した。

本研究で用いた直動機構および測定装置全体の概略図を図 3 に示す。直動機構は軸ずれによる異常データが取得できるようになっており、サーボモータの反対側に意図的に軸ずれを発生させるための機構が取り付けられている。ハンドルを回すことによってボールねじをリニアガイド側（もしくは反対側）に押し込むことが可能であり、押し込んだ量（軸ずれ量）はマイクロメータによって計測される。本測定では、リニアガイド側への押し込みをプ

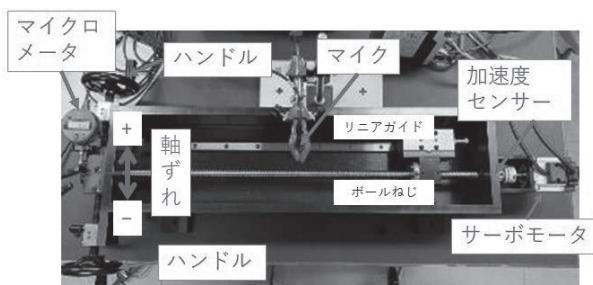


図 2 測定に使用した直動機構

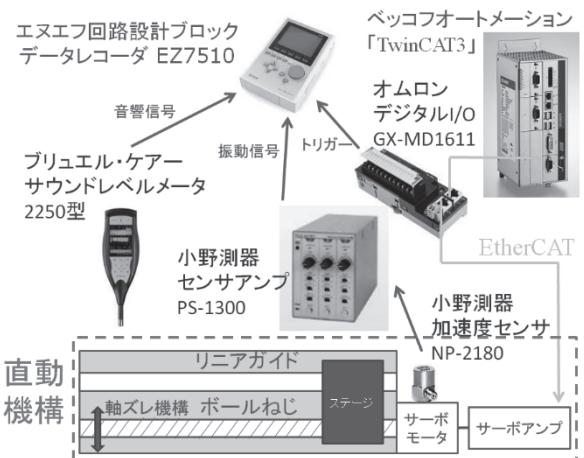


図 3 実験装置概略

ラスで表現する。ボールねじが軸ずれすることで、ボールねじとリニアガイド間に偏荷重による負荷が発生し、異常状態へと遷移させることができある。

状態監視にはブリュエル・ケー製 サウンドレベルメータ 2250 の音響センサと、小野測器製 電荷出力型加速度検出器 NP-2180 の加速度センサを用いた。音響センサはボールねじとリニアガイドの中央上部に設置し、加速度センサはサーボモータ回転軸上部の筐体にマグネットベースを使用してボールねじと水平方向に取り付けた。音響センサは離れた位置から測定が可能であり、設置場所の制約を受けにくくことから既存の装置にも容易に取り付けられるという点が優れている。加速度センサは一般的に広く用いられているセンサであり、貼り付ける位置さえあればデータの取得が可能である。両センサのデータはトリガー信号とともにエヌエフ回路設計プロック製データレコーダ EZ7510 に送られ、駆動時の音響および加速度データが取得可能である。本測定では両方のセンサで同時にデータ取得を行っており、それぞれの検出能力について評価した。

駆動部分はパナソニック製 MINAS A5 サーボモータ MSMD022S1S とサーボアンプ MADHT1507B01 を使用した。モータ駆動の回転量（スピード）や移動量はベッコフォートメーション製 EtherCAT コントローラ TwinCAT3 を使って制御した。

ボールねじの駆動長さ 580 mm に対し、まずは軸ずれしていない状態（正常状態）で 200 mm/s でモータを駆動して 300 往復分のデータ取得を行った。その後、0.1 mm 単位で軸ずれさせ（異常状態）、それぞれの軸ずれ状態で

100 往復分のデータを取得し、軸ずれ量が最大 1 mm になるまで測定を実施した。

#### 4. 解析手法

音響および加速度センサによって得られたデータは、時間周波数解析の一種の短時間フーリエ変換 (STFT) によって 2 次元（時間・周波数）の画像へと変換した。画像サイズは 288×128 ピクセルであり、AI 学習の効率化のためモノクロの画像を入力データとして使用した。図 4 に異常状態と正常状態のそれぞれの STFT 変換の画像例を示した。

まずは正常状態のデータの一部（200 往復分）をオートエンコーダに入力し、図 1 に示した潜在空間への符号化および復号化のパラメータの学習を実施した。学習済みのモデルに対し、学習に用いていない正常データ（100 往復分）および異常データ（各軸ずれ量に対して 100 往復分）を入力し、再構成の異常スコアを計算した。図 5 に音響センサと加速度センサの再構成誤差の変化を示した。エラーバーは 100 往復分の標準偏差で示した。

図 5 より軸ずれ量が増えるにしたがって、再構成誤差が増大することが確認できた。なお、各再構成誤差の標準偏差は小さいため、再構成誤差のしきい値の設定によ

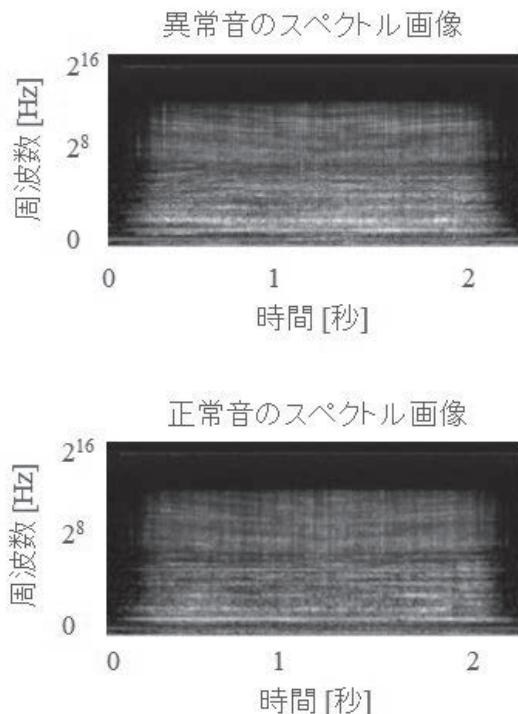


図 4 STFT の解析例 (上)異常状態、(下)正常状態

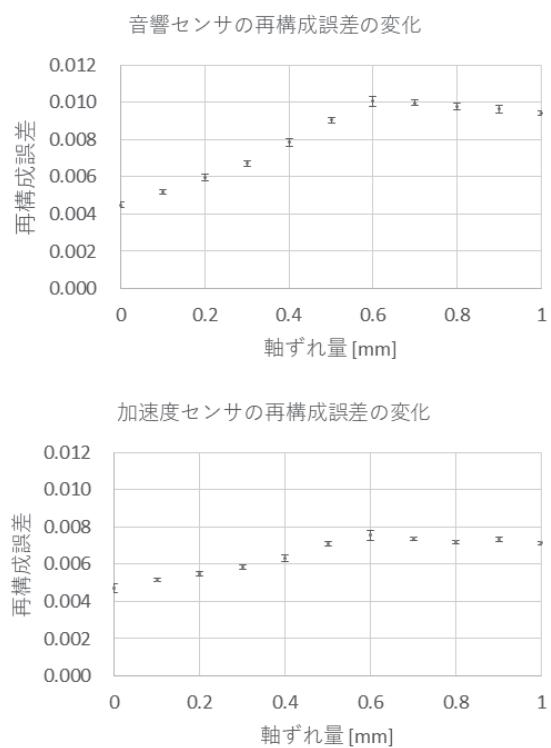


図 5 解析結果

(上) 音響センサ、(下) 加速度センサ

って軸ずれの異常を検出可能であると考えられる。本結果から、オートエンコーダによる音響センサと加速度センサを用いた直動機構の異常検知はどちらも十分な能力を有していることが確認された。

#### 5. 現象的考察

0.1~1 mm の軸ずれを生じさせた後のボールねじおよびリニアガイドを、X 線 CT (東芝 IT コントロールシステム製 TXS-33000FD) を用いて非破壊検査による内部観察を行った。図 6 に結果の一部を示す。X 線 CT の透過画像によって、ボールねじとリニアガイド内部の鋼球の様子を 1 つずつ確認することができる。すべての鋼球に対して観察したが、最大 1 mm の軸ずれを生じさせたにもかかわらず、顕著な損傷は確認できなかった。X 線 CT の解像度には限界があるため、分解して内部鋼球を取り出して目視およびハイロックス製 デジタルマイクロスコープ KH-7700 による観察も実施したが、いずれも損傷は確認できなかった。今回の異常状態では、軸ずれによる偏荷重によって負荷が発生したため、音響センサや加速度センサを用いた AI モデルでは異常を検出できたが、内

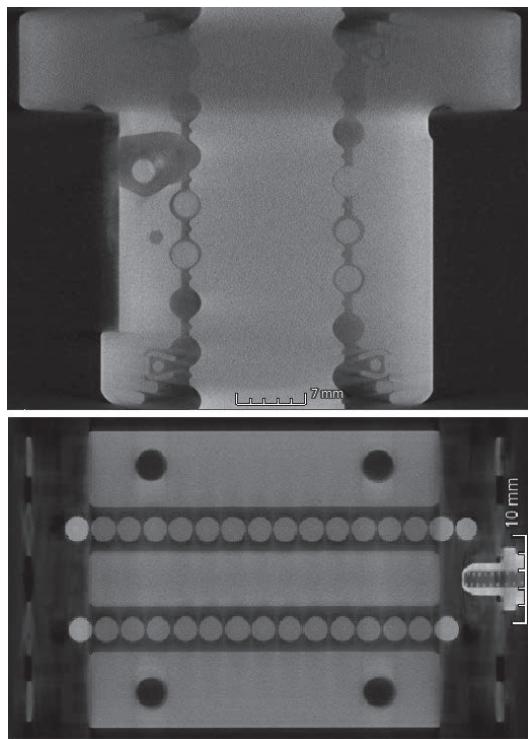


図6 X線CTによる透過画像

(上)ボールねじ、(下)リニアガイド

部鋼球には劣化や損傷は生じてなかつたと考えられる。本研究で構築したAIモデルではこのような大きな損傷がない状態の異常を検出できる能力を有していることを確認することができた。

## 6. 結 言

近年のAIの発展により、産業用機器におけるAIの異常検知や予防保全への活用に期待が集まっている。しかし、AIのモデルによっては異常データが必要となり、活用段階で適切な異常データを持っていない場合にはAIによる学習を実行できず使用できない場合もある。本研究で実施した教師なし学習の一種であるオートエンコーダは正常データのみで学習が可能なため、異常データを十分に持っておらず、これまで導入が難しかった装置に対しても有効な手法として期待されている。

本研究では直動機構を用いて音響センサと加速度センサによる正常データで学習を試みた。検出能力の評価に用いる異常データは直動機構を意図的に軸ずれさせてデータを取得した。学習済みのモデルに対して、正常データおよび異常データのオートエンコーダによる再構成誤差を評価したところ、音響センサ、加速度センサのいずれも軸ずれ量が0.1 mmであっても十分な検出能力を有

していることが示された。

また、最大1 mmの軸ずれによる異常発生後のボールねじとリニアガイドをX線CTおよびデジタルマイクロスコープによって観察した結果、内部の鋼球には割れや傷等の損傷は確認されず、学習済みのモデルは小さな異常を検出できる能力を有していることが確認された。

本研究によってオートエンコーダによる異常検知に対する有効性を示すことができた。実際の活用にあたっては軸ずれ以外の異常状態の確認や製造現場を想定した環境での評価方法等の検証が必要である。

## 謝辞

本研究は公益財団法人中部科学技術センターの第33回令和4年度人工知能研究助成の支援によって実施した。ここに深く感謝の意を表する。

## 参考文献

- 1) 知崎一紘, 地主岳史, 「IoT活用による工場の生産活動最適化」, デジタルプラクティス, Vol.8 No.3, (2017)
- 2) 犬塚博, 「AIによる機械の異常検出」, はかる, Vol.39, No.3, pp.10-13, (2023).
- 3) L. Rabiner and B. Juang, "An introduction to hidden Markov models," in IEEE ASSP Magazine, vol. 3, no. 1, pp. 4-16, Jan 1986.
- 4) T. Cover and P. Hart, "Nearest neighbor pattern classification," in IEEE Transactions on Information Theory, vol. 13, no. 1, pp. 21-27, January 1967.
- 5) K. Geoffrey E. Hinton, R. R. Salakhutdinov, "Reducing the Dimensionality of Data with Neural Networks", Science 313 (5786): 504-507.
- 6) Kramer, Mark A. (1991). "Nonlinear principal component analysis using autoassociative neural networks", AIChE Journal. 37 (2): 233-243.

# *N,N',N''*-トリノナデシルベンゼン-1,3,5-トリカルボン酸アミドの合成と特性評価

石垣友三、波多野諒、山中基資、萩尾健史\*、市野良一\*

Preparation and Evaluation of *N,N',N''*-trinonadecylbenzene-1,3,5-tricarboxamides

Yuzo ISHIGAKI, Ryo HATANO, Motoshi YAMANAKA, Takeshi HAGIO\* and Ryoichi ICHINO\*

## 1. 緒言

ベンゼン-1,3,5-トリカルボン酸アミド (BTA) 誘導体は、①市販されているトリメソイルクロリドと種々の一級アミンの反応によって、目的の置換基を密に有する誘導体を簡便に合成でき、②生成した3つのアミド基による水素結合によって自己組織化し、多くは一次元に集合した超分子ポリマーと呼ばれる分子集合体を形成する、といった特徴を有することが知られている。一次元の分子集合体としての最初の報告は、松永らによるサーモトロピック液晶としてのもので、置換基は種々の直鎖アルキル基であった<sup>1)</sup>。その後、様々な置換基を有するBTA誘導体が合成され、ヘテロ原子を含まないアルキル置換基のものに限っても、結晶性の高さによりポリプロピレンの結晶核剤として機能する環状アルキル基を有するものや、光学活性な置換基を有して溶液中で片巻らせんの超分子ポリマーを与えるもの<sup>2)</sup>などが報告されている。

一方、アミド基直近に対称な二分岐鎖を導入したBTA誘導体についてはほとんど報告がないが、アルキル基間の疎水性相互作用による結晶化を阻害することにより、

これまでとは異なる特性が期待される。そこで本研究では、10-ノナデカナミンと1-ノナデカナミンをトリメソイルクロリドと反応させることでBTA誘導体TA型及びL型(図1)を合成し、その特性の違いについて検討した。

## 2. 実験方法

### 2.1 測定

NMR測定はBruker社製AVANCE III HD 400で行った。溶液測定ではBBFOプローブを用い、18 mg/mLの重水素化クロロホルム溶液を室温で測定した。<sup>13</sup>C固体測定では、4mmCPMASプローブを用い、室温、試料回転速度8 kHz、積算4096回の条件で、CP TOSS法により測定した。精密質量測定はWaters社製Xevo G2-XS QToFを用い、メタノール溶液をESIモードで測定した。GPC測定は島津製作所社製のポンプLC-20AD、カラムオーブンCTO-20A、UV検出器SPD-20Aからなるシステムを用いた。カラムは昭和電工社製のKF-802を2本連結して用い、クロロホルムを溶離液として、カラム温度40°C、流速1 mL/minで測定した。ポリスチレン標準試料を用いた検量線から分子量を算出した。DSC測定はセイコーインスツルメンツ社製DSC-7020を用い、試料量5 mg、昇温速度10°C/minで-50~260°Cの範囲で測定した。

### 2.2 化合物の合成

#### 2.2.1 *N,N',N''*-トリ(10-ノナデシル)ベンゼン-1,3,5-トリカルボン酸アミド(TA型)の合成

窒素雰囲気下、三方コックを取り付けた50 mLのなす形フラスコ中で、0.297 gのトリメソイルクロリド(1.12 mmol)を5 mLのジクロロメタンに溶解した。この溶液を-84°Cで攪拌しているところへ、1.02 gの10-ノナデカ

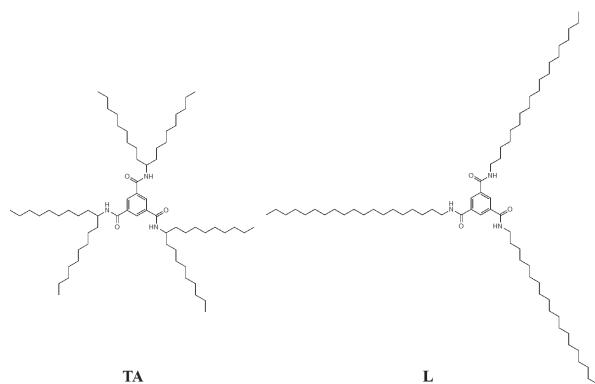


図1 TA型及びL型の分子構造

ナミン (3.59 mmol) と 0.655 mL のトリエチルアミン (4.70 mmol) を 5 mL のジクロロメタンに溶解した溶液を滴下した。一晩室温で攪拌した後、この反応混合物を 100 mL のジクロロメタンに溶解した。この溶液を 100 mL の 0.1 N 塩酸の飽和食塩水で 2 回洗浄の後、硫酸ナトリウムを用いて乾燥、溶媒を減圧留去することにより、粗生成物を得た。これをエタノールに溶解し、再結晶操作することにより、0.823 g の目的物を白色固体として得た (収率 73.1%)。<sup>1</sup>H NMR (400 MHz, CDCl<sub>3</sub>) δ: 8.40 (s, 3H, aromatic), 6.19 (d, 3H, NH), 4.15 (m, 3H, CH), 1.59 (m, 6H, CH-CH<sub>2</sub>H<sub>5</sub>), 1.46 (m, 6H, CH-CH<sub>2</sub>H<sub>5</sub>), 1.37 - 1.18 (m, 84H, CH<sub>2</sub>), 0.86 (t, 18H, CH<sub>3</sub>). <sup>13</sup>C NMR (100 MHz, CDCl<sub>3</sub>) δ: 165.09 (C=O), 135.15 (aromatic C), 127.84 (aromatic CH), 50.45 (CH), 35.40 (CH-CH<sub>2</sub>), 31.88 (CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CH<sub>3</sub>), 29.59-29.29 (other CH<sub>2</sub>), 26.07 (CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CH), 22.67 (CH<sub>2</sub>-CH<sub>3</sub>), 14.11 (CH<sub>3</sub>). HRMS (ESI): m/z calcd for C<sub>66</sub>H<sub>123</sub>N<sub>3</sub>NaO<sub>3</sub>: 1028.9462 [M+Na]<sup>+</sup>; found: 1028.9442.

### 2.2.2 *N,N',N''*-トリ(1-ノナデシル)ベンゼン-1,3,5-トリカルボン酸アミド(L型)の合成

3.04 g の 1-ノナデカナミン (10.7 mmol) を原料として、TA 型と同様の手順で合成し、3.15 g の目的物を白色粉末として得た (収率 91.5%)。<sup>1</sup>H NMR (400 MHz, CDCl<sub>3</sub>) δ: 8.26 (s, 3H, aromatic), 6.76 (d, 3H, NH), 3.43 (td, 3H, CH<sub>2</sub>N), 1.60 (quint, 6H, CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-N), 1.37 - 1.18 (96H, other CH<sub>2</sub>), 0.88 (t, 9H, CH<sub>3</sub>). <sup>13</sup>C NMR (100 MHz, CDCl<sub>3</sub>) δ: 165.90 (C=O), 135.29 (aromatic C), 127.93 (aromatic CH), 40.42 (CH<sub>2</sub>-N), 31.94 (CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CH<sub>3</sub>), 29.73-29.38 (other CH<sub>2</sub>), 27.05 (CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-N), 22.70 (CH<sub>2</sub>-CH<sub>3</sub>), 14.13 (CH<sub>3</sub>). HRMS (ESI): m/z calcd for C<sub>66</sub>H<sub>123</sub>N<sub>3</sub>NaO<sub>3</sub>: 1028.9462 [M+Na]<sup>+</sup>; found: 1028.9434.

## 3. 結果及び考察

TA 型と L 型の収率は 73% と 92% と比較的高かった。L 型は白色粉末なのに対し、TA 型は粘性を有する白色固体であった。L 型の収率の方が高いのは、直鎖アルキル

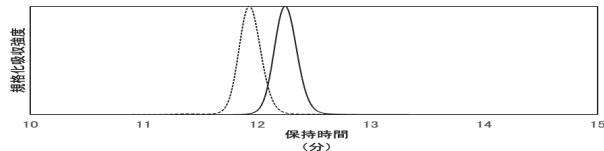


図 2 TA 型(実線)と L 型 (点線)の GPC

基の疎水性相互作用によって TA 型よりも結晶化しやすく、エタノールへの溶解性が低いためと考えられる。

TA 型及び L 型の GPC 測定を行った (図 2)。TA 型は L 型よりも遅く溶出した。TA 型と L 型はアミド窒素のノナデシル基への結合位置が異なるだけの構造異性体であることから、この保持時間の差は、側鎖構造の違いによる推察される。いずれのアルキル基も溶液中で激しく運動しているものの、分子の中心であるベンゼン環からアルキル基が到達できる距離が、置換基が分岐構造の TA 型の方が短いために、クロロホルム中での排除体積が小さくなつたと考えられる。TA 型と L 型のポリスチレン換算のピークトップ分子量はそれぞれ 1.5 kDa と 1.8 kDa であった。

バルクでの物性の違いを可視化するため、DSC 測定を行った (図 3)。L 型では 40~80°C 付近にアルキル基の融解と考えられる吸熱ピーク<sup>3)</sup>が複数観測された。これは結晶化しているアルキル基に多形が存在しているためと考えられる。また、200°C 付近に微小な吸熱ピークが観測された。これは BTA アミド基の三重水素結合が解離することによって等方液体へと相転移したためと考えられる。これに対し、TA 型では測定温度範囲内で 230°C に大きな吸熱ピークが観測されただけであった。L 型で観測されたアルキル基の融解ピークが観測されなかつたことから、TA 型の分岐アルキル基は結晶化していないと推定される。また、等方液体となる相転移ピークが観測された温度が 230°C と L 型と比較して著しく高く、ピーク面積も大きいのは、TA 型ではアミド基の近傍に分岐構造が導入

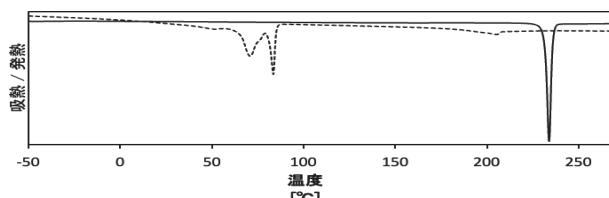


図 3 TA 型(実線)及び L 型 (点線)の DSC  
プロファイル

めと考えられる。

固体状態での結晶多形や分子運動性に関する知見を得るために<sup>13</sup>C 固体 NMR 測定を行った。アルキル領域のスペクトル（図 4）において L 型の末端 CH<sub>3</sub> のピーク（14 ppm）やその隣の CH<sub>2</sub> のピーク（24 ppm）は幅が広く、形状も複数のピークの重ね合わせのように見られる。これは L 型のアルキル基の結晶が多形であるためと考えられ、DSC 測定の結果を支持している。対応する TA 型のピーク（14 ppm, 23 ppm）は、L 型とは対照的に鋭く単峰性で、周辺のベースラインに鋸刃状の sinc ウィグル<sup>4)</sup>が観測され、当該部分がよく運動していることが示唆される。また、アルキル基中程の CH<sub>2</sub> のピークが L 型では 33 ppm 付近に観測されているのに対し、TA 型では 30 ppm 付近に観測されている。これは結晶化したアルキル基がトランシスジグザグの立体配座を取っているのに対し、結晶化していないアルキル基ではゴーシュのコンフォメーションが寄与するために高磁場に観測される γ 効果<sup>5)</sup>と呼ばれる現象で、L 型のアルキル基が結晶化しており、TA 型のアルキル基が非晶であることを支持している。190～110 ppm 付近のスペクトル（図 5）には低磁場側からカルボニル炭素（168 ppm）、ベンゼン環の C（136～135 ppm）

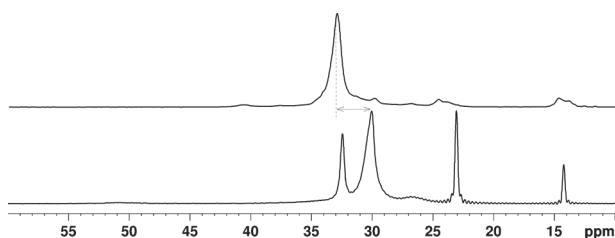


図 4 TA 型（下）及び L 型（上）のアルキル領域の固体<sup>13</sup>C-NMR スペクトル

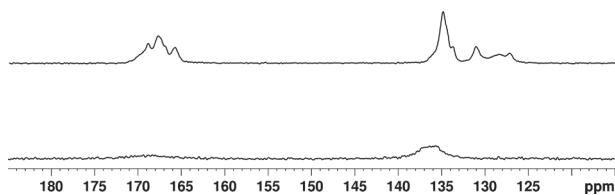


図 5 TA 型（下）及び L 型（上）のカルボニル及び芳香族領域の固体<sup>13</sup>C-NMR スペクトル

と CH（129 ppm）のピークが観測されている。これらのピークが、L 型でアルキル基末端付近と同様に多峰性な

のは、結晶多形の影響と考えられる。一方、TA 型ではアルキル領域とは異なり幅広化しており、特に CH のピークは観測されていない。この幅広化は NMR のデカッピングの周波数と当該部分の運動の周波数が同程度のときに生じる現象<sup>6)</sup>と考えられ、TA 型ではアルキル基だけでなく、中央の BTA 周辺も運動していると推察される。

#### 4. 結 言

置換基に 10-ノナデシル基あるいは 1-ノナデシル基を有する *N,N'*,*N''*-トリノナデシルベンゼン-1,3,5-トリカルボン酸アミド TA 型及び L 型を合成し、種々の評価を行うことで置換基の違いによる物性の差について調査した。DSC や固体 NMR 測定の結果から、L 型と異なり TA 型ではアルキル基が結晶化しておらず、アルキル基だけでなく自己組織化している BTA 部分も運動していることがわかった。その一方、TA 型の方が等方液体への相転移温度が高く、よく運動しているのに耐熱性が高いことを意味している。アミド基直近に分歧構造を導入することで分子集合体の形成を担っているアミド基の水素結合が効果的に保護された結果、運動性と耐熱性という相反する性質を同時に向上させることができたと言える。この分歧構造導入による効果は、分子集合体に基づくソフトマテリアル設計に寄与すると考えられ、現在、この分歧構造による特徴に基づいた応用研究を行っている。

#### 参考文献

- Y. Matsunaga et al, *Mol. Cryst. Liq. Cryst.*, **141**, pp. 327-333 (1986)
- E. W. Meijer et al, *Chem. Lett.*, **29**, 292-293 (2000)
- Y. Matsunaga et al, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **61**, 207-210 (1988)
- T. D. W.クラリッジ：有機化学者のための高分解能 NMR テクニック, pp. 57 (2004)
- 安藤勲：高分子の固体 NMR, pp. 27 (1994)
- 安藤勲：高分子の固体 NMR, pp. 65 (1994)

# X 線 CT を用いた多孔体の圧力損失評価手法の開発

立松昌、松原和音、岩間由希、梶田欣

Development of Pressure Loss Evaluation Method for Porous Materials using X-ray Computed Tomography

Masashi TATEMATSU, Kazune MATSUBARA, Yuki IWAMA and Yasushi KAJITA

## 1. 緒 言

射出成形用の原料となる樹脂ペレットの乾燥機において多孔体状に充填されたペレットを流れる気体の圧力損失評価が十分でなく、過剰な能力のポンプが選定されエネルギー損失に繋がることがある。多孔体のような複雑形状の圧力損失は予測が難しく、フォークハイマー方程式に代表される実験式を用いた適用範囲の検討<sup>1), 2)</sup>や理論的な考察<sup>3)</sup>がなされているが、現状では精度の良い圧力損失評価には実際に実験が必要となる場合がほとんどである。しかし、実験を行うには測定用試料、気体や液体を流す流路、流速可変のポンプなどが必要でコストが大きい。そこで、適用範囲が広く、実験のコストを抑えた圧力損失評価手法として、複雑形状を X 線 CT で測定し、測定した複雑形状データをシミュレーションに用いて圧力損失を求める方法について検討した。

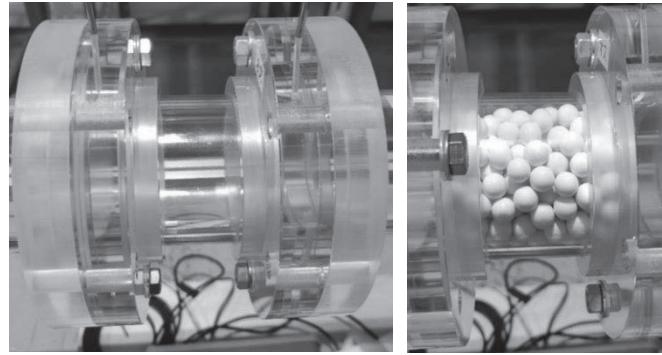
## 2. 実験方法

### 2.1 風洞実験

圧力損失評価には、直径 67 mm、長さ 7 m の流速可変の風洞（図 1）を用いた。流れが十分に発達する風洞の下流側に試料設置個所（図 2）を設け、試料前後の圧力差を測定した。



図 1 実験に用いた風洞



(a) 試料なし

(b) アルミナボール充填

図 2 試料設置個所

まず、試料なしで中心流速 2.5, 10, 15 m/s にポンプで調整し、圧力損失測定を実施した。次に、多孔体を模擬した複雑形状として、試料設置個所に球形試料を充填した。球形試料は寸法精度と調達の簡便さからアルミナボールとした。直径 10 mm のアルミナボールを厚さ 67 mm 分充填した場合について試料なしの中心流速 2.5, 10 m/s と同じポンプの条件で圧力損失測定を実施した。

### 2.2 シミュレーション

2.1 節で用いた風洞と同一の形状を CAD で作製し、シミュレーションの形状モデルとした。シミュレーションソフトには SOLIDWORKS Flow Simulation 2022 (Dassault Systèmes SolidWorks Corporation) を使用した。

また、アルミナボールが充填された試料設置個所の形状を X 線 CT (inspeXio SMX-225CT FPD HR: (株)島津製作所) で測定した。試料設置個所に測定した形状を配置し、試料がある場合の形状モデルとした。

## 3. 結果と考察

### 3.1 試料なしの圧力損失評価

本手法の妥当性を検証するために、試料なしの場合について、実験とシミュレーションの比較を行った。中心

流速と圧力損失の関係を図3に示す。圧力損失は実験よりシミュレーションの方が20%小さくなつたが、ほぼ妥当な結果が得られた。

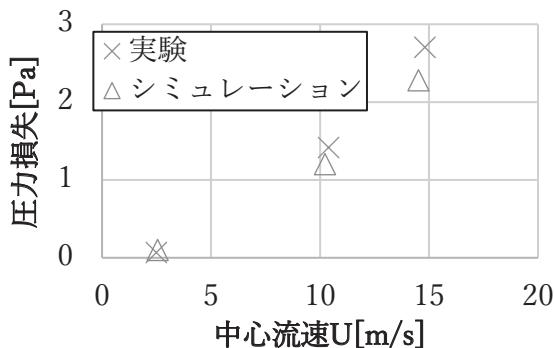


図3 試料なしの流速と圧力損失

### 3.2 試料ありの圧力損失評価

試料としてアルミナボールを充填した場合について、圧力損失の実験とシミュレーションによる評価結果を図4に示す。試料ありの場合、試料なしでは中心流速が10 m/sだった試験条件で2.6 m/sまで低減した。これは流路上のアルミナボールにより圧力損失が大きくなつたことで流速が抑制されたためと考えられる。また、圧力損失は実験よりシミュレーションの方が40%小さく、試料なしの場合より差異が大きくなつた。これはシミュレーションにX線CTで測定した形状をそのまま使用したことがその要因と考えられる。

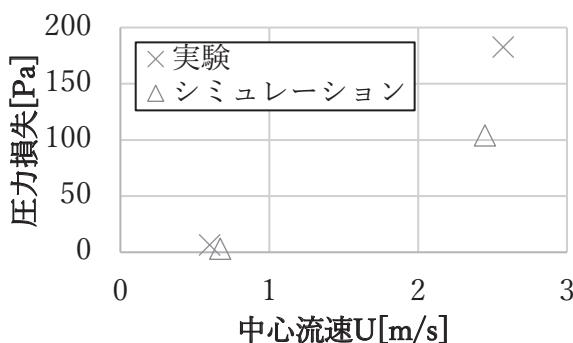


図4 試料ありの流速と圧力損失

### 3.3 X線CTによる形状測定

X線CTで充填したアルミナボールを測定した結果を図5に示す。試料の密度が高く、界面が多いいため散乱が生じ、充填部の中心付近で十分な精度で測定できていない欠損部分が確認できた。この欠損部分などの測定形状が

試料ありの圧力損失評価において、実験とシミュレーションの差異を大きくした原因の一つと考えられる。

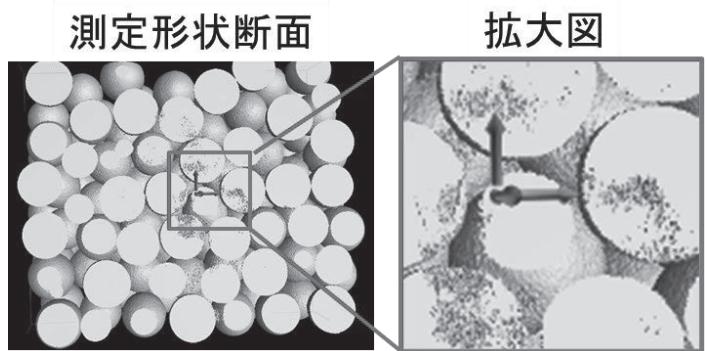


図5 X線CTによる充填部分の測定結果

## 4. 結言

複雑形状をX線CTで測定し、測定した複雑形状データからシミュレーションで圧力損失特性を求める手法について検討した。

圧力損失測定用に風洞に設置する測定部を作製し、試料なしの場合は、実験とシミュレーションの結果が20%の差異に収まつた。

一方、測定部にアルミナボールを充填した場合では、試料なしの場合と比較して圧力損失が大きくなつた。圧力損失は実験よりシミュレーションの結果の方が40%小さくなつた。これはX線CTによる形状測定が十分な精度でできていないことが原因の一つと考えられる。

今後はX線CTの測定精度向上、実験とシミュレーションの比較をしやすい実験系の考案などに取り組んでいく。

## 参考文献

- Zeng, Z., Grigg, R. A Criterion for Non-Darcy Flow in Porous Media. *Transp Porous Med* **63**, 57-69 (2006).
- 小林 拓都 他, 透過率と管摩擦係数を用いた焼結型繊維状多孔質管に関する圧力損失特性の整理, 日本冷凍空調学会論文集, 2021, **38**巻, 2号, p. 155-162
- Zolotukhin, A. B., Gayubov, A. T. Semi-analytical Approach to Modeling Forchheimer Flow in Porous Media at Meso- and Macroscales. *Transp Porous Med* **136**, pp. 715-741 (2021).

# IT 技術を活用した溶接品質の維持・向上に関する研究

黒宮明、村瀬真、長坂洋輔、後藤真吾、毛利猛、深谷聰、

岡東寿明、玉田和寛、加藤喜久\*

## Research on Maintaining and Improving Welding Quality Using IT

Akira KUROMIYA, Makoto MURASE, Yosuke NAGASAKA, Shingo GOTO, Takeshi MOHRI,  
Satoshi FUKAYA, Kazuaki OKATO, Kazuhiro TAMADA and Yoshihisa KATO\*

### 1. 緒 言

中小企業で行う溶接の多くは、多品種・少量生産のため手作業によることが多い。現場では、溶接技能の伝承に時間を要し、技能者育成が課題とされている。課題解決には IT を利用した数値化や画像化などにより溶接過程を考察することが有効であると考えられる。本研究では、薄板接合における半自動アーク溶接の電気特性や溶接部位の画像を詳細に測定・観察し、その結果を元に適切な溶接につながる諸条件について考察した。

### 2. 半自動アーク溶接の概要

#### 2.1 放電負荷の動作点

図 1 に半自動アーク溶接（以降、「半自動溶接」）の概要図を示す。半自動溶接では通常、電源に定電圧源が使われ、溶加材（ワイヤ）自体を電極として、母材との間にアーク放電を発生させ、溶接が行われる。図 2 にアーク放電の負荷曲線を示す。一般に放電負荷の電圧-電流特性（特性曲線）は、図 2 の破線で示すように下に凸の形になる。半自動溶接においては、突き出したワイヤ電極が溶失し、電極間隔が変化する。そのワイヤにおける電圧降下分を考慮すると、トーチの負荷曲線は図 2 の実線の曲線になる。一方、端子から電源側をみたときの電源特性は、図 2 の右下がりの降下直線とみなすことができる。この電源特性と放電負荷曲線との交点を半自動溶接機の動作点と呼び、アーク放電の電圧値と電流値を決定し、加える熱量がここで決定される。

#### 2.2 半自動溶接が継続する条件

半自動溶接では電極をなすワイヤが繰り出され、その先端が溶ける。溶接を継続的に行うには、送給速度の平均と溶融速度の平均とが釣り合う必要がある。半自動溶

接機の電源は一定の電源電圧と送給速度を設定するが、そこで溶接が継続するよう調整が必要となる。そのため溶接機は、送給速度の設定に合わせて溶融速度が釣り合うよう電源電圧を自動的に設定する。

本実験は薄板が対象の溶接であり、供給熱量が比較的小ない。この場合、溶接の過程で放電と短絡を繰り返すことになり、溶融速度が時々刻々と変動する。この場合でも平均的に釣り合いがとれるよう電源が設定されることで継続的な溶接は可能となる。

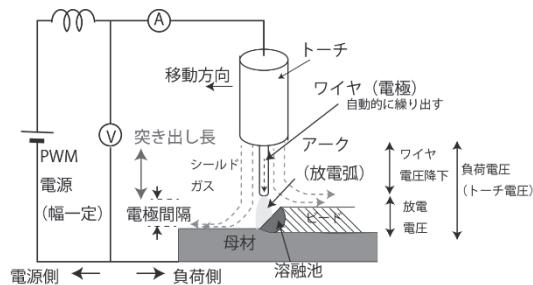


図 1 半自動溶接

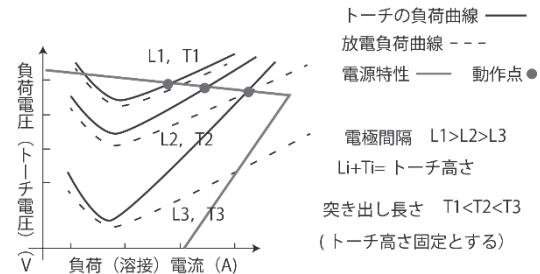


図 2 負荷曲線

### 3. 溶接過程の観察

#### 3.1 計測システムの概要

溶接の過程を観察するため、溶接部位の画像と電流・電圧の変化が同時に記録できる装置を作成した。図 3 に測定装置の概要を示す。トーチは固定、母材が稼働ステージにより一定速で移動する。移動距離（エンコーダー

\*一般社団法人 愛知県溶接協会

パルス) を計測し、所定の位置で溶接アークを ON、OFF する。映像は 150FPS 固定、露光時間も固定とし、画像は全てパソコンに記録される。溶接機のアナログメーター端子(電圧・電流)を記録装置(ロガー)で AD 変換し記録する。この時カメラの露光開始パルス、距離パルス(エンコーダーパルス)も同時に記録する。カメラの露光開始パルスとアーク ON、OFF 信号(トーチレバー信号)は、マイコンで生成され、アーク ON と一緒に露光開始する。

#### 【計測装置の諸元】

##### 記録装置(日置電機 MR8875)

- サンプリングレート 10  $\mu$ sec
- 入力信号 溶接機の電圧 75 V F.S 絶縁入力  
溶接機の電流 400 A/60 mV 絶縁入力  
距離パルス 単相 約 0.0785 mm/P  
カメラ露光開始パルス TTL

##### 撮像装置

最大 1920×1200 @150 FPS モノクロ

外部トリガ撮像 周期 150 FPS 露光時間 20  $\mu$ sec

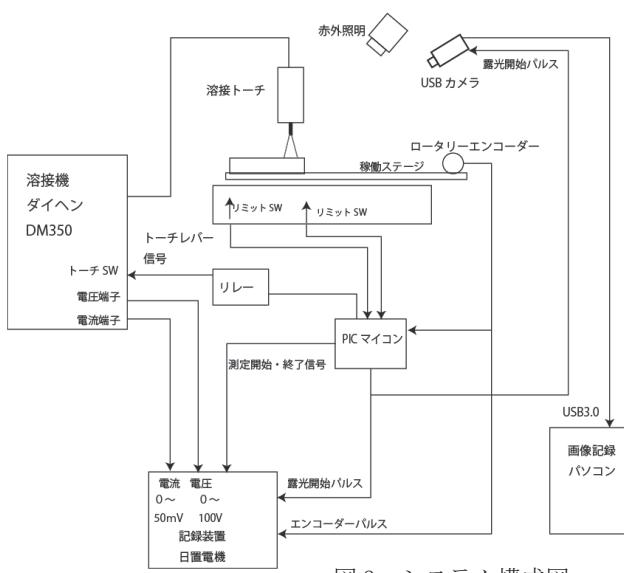


図 3 システム構成図

今回の測定では露光時間 20  $\mu$ sec、母材の移動速度は手動溶接の速度と同程度(120~200 mm/min)とした。図 4 に取得データを示す。また溶融部位の時系列画像の一部を図 5 に示す。

#### 3.2 電気信号と溶融状態との関係

図 4 の電流及び電圧の波形には、ある一定の信号パターン(図 4 の矢印で示される範囲)が繰り返し出現した。

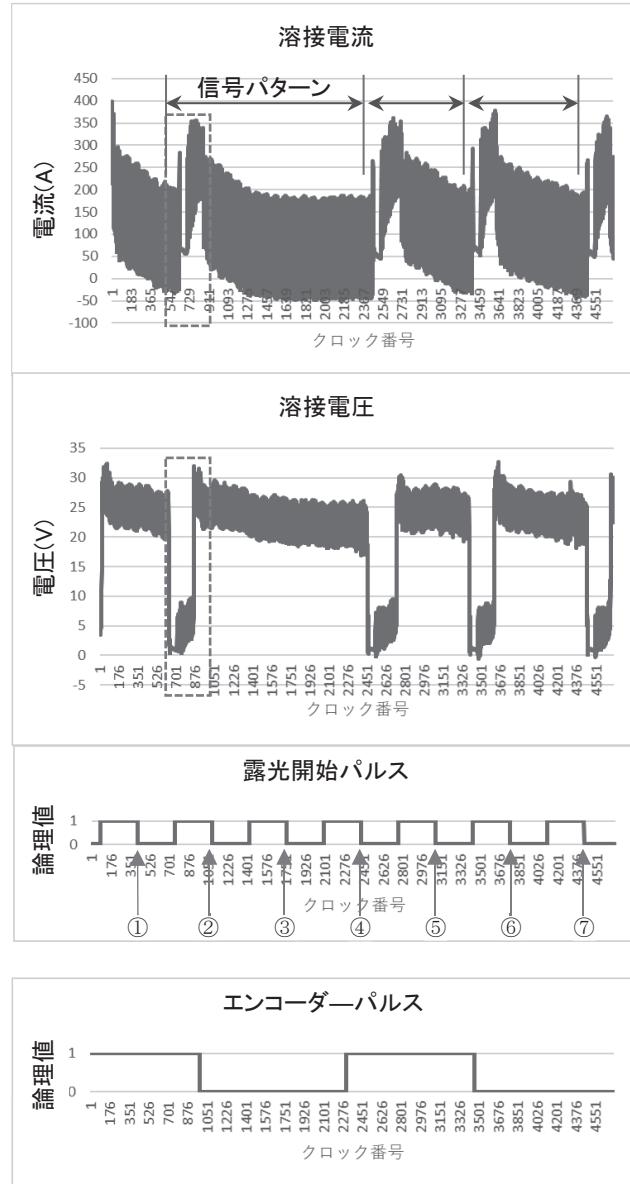


図 4 採取したデータ

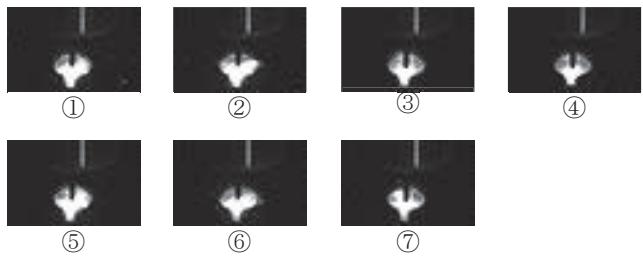


図 5 採取された時系列画像(一部)

そのパターンの中でも特に短時間で大きく変化する部分(図 4 の破線で囲まれる部分)における電流及び電圧波形の詳細を図 6 に示した。また、電流波形パターン全体から振動波を省いて単純に表現したもの図 7 に示す。この場合の測定端は、トーチ部分である。

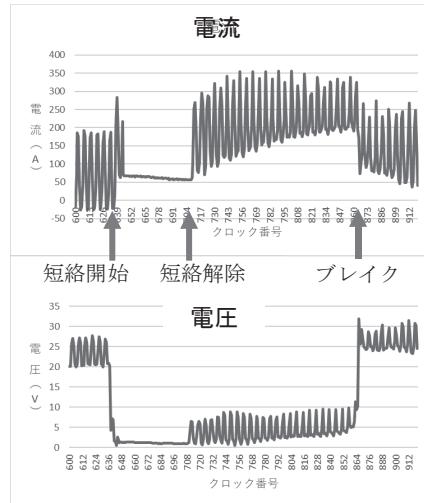


図 6 短絡直後の電流・電圧

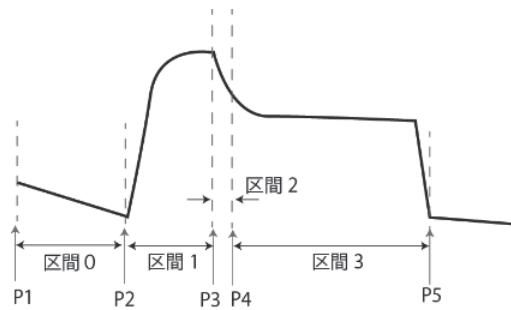
実験に使用した電源設定では、図 7 に示すパターンが繰り返されており、その長さは変化する。一般に放電端を計測すると電流・電圧とも振動波形が現れる。よって、図 6 の波形は放電状態とそうでない状態に分けられる。放電していない部分（図 7 区間 0）の電圧は 0 V に近く、電流は 50 A ほどになっており、短絡状態と思われる。放電部分は、大電流・低電圧の部分（図 7 区間 1）と若干電流が少なく高電圧の部分（図 7 区間 3）とに分けられる。区間 1 から区間 3 は急激に変化し、その境目をここでは「ブレイク」と呼ぶ（図 7 区間 2）。

次に、図 5 で示された一連の時系列画像の中から上記の電気信号パターン内の各区間が出現するタイミングで撮像された画像を選び出すことで、電気信号と溶融状態との対応付けを行った。図 8～11 には、各区間の代表的な溶融画像を示す。ブレイクではワイヤが溶け落ちていることが確認できる（図 10）。

短絡開始からブレイクまでは、ワイヤが長く映り溶融池が小さく（図 8, 9）、区間 3（図 11）では、ワイヤが少し短く溶融池が大きくなっている。

### 3.3 一つのパターン時の電流と電圧の考察

次に図 6 の電気信号を、2.1 節で述べた動作点の変化とみて説明する。トーチ高さ、送給速度は一定である。電源側の特性は、フィードバックにより出力電圧を一定にするものではなく内部インピーダンスの電圧降下をもつたものであること、及び大電流の短絡を許容する垂下特性（電流制限を設け電圧を下げる）を有する。図 6 には、短絡直前のごく短い時間に大きな電流が流れしており



P1: 短絡開始点 P2: 短絡解除点 P3: ブレイク点  
P4: ブレイク点 + 5 クロック P5: 次の短絡開始点

図 7 電流のパターン

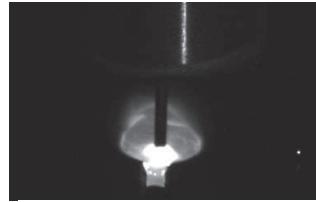


図 8 区間 0 の始まり

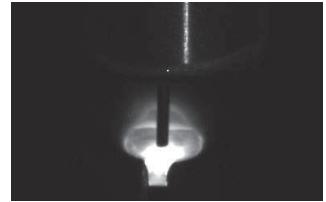


図 9 区間 1 の終わり



図 10 区間 2

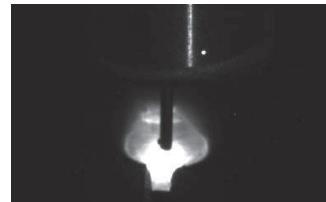


図 11 区間 3 の中間

これ以降が垂下部分と思われる。短絡中には溶融したワイヤを通じて電流が流れるが、電磁力により溶融ワイヤが細くなり、短絡電流が少しずつ減少する。溶融ワイヤが途切れ（短絡解除）ても電極間が短く大電流が流れる放電によりワイヤ先端が脱落し（ブレイク）、極間が開き、定常電圧部分が動作点となる。図 7 の区間 3 に相当する部分は、極間がだんだん小さくなっているが、反面、突き出しが長くなりワイヤの電圧降下が加算される（図 2 の実線）ので、短絡の直前まで動作点は変化せず、測定端の電流・電圧とも下がっていない。

## 4. 溶接の条件と品質

### 4.1 品質と物理現象との関係

溶接の品質は、接合強度と外観で評価される。強度を保つには、十分な熱量によって母材に溶加材が溶け込むことと、溶加材が接合部分を覆うような盛り上がり形状であることが要求される。各点の加熱量は、その点における極間の電力をトーチの移動速度で割ったものである。

極間電力の直接計測は困難ではあるが、トーチと母材間の電力からワイヤのジュール損を減じたものであると推測できる。溶融温度は、この加熱量と放散熱のバランスで定まるため母材の材質や大きさ及びトーチ移動速度と高さにより電源の設定を調節する。盛り量は、その点におけるワイヤ溶融速度をトーチ移動速度で割ったものであり、つまり設定電流をトーチ移動速度で割ったものである。薄板の突合せ溶接の実験において、電源の設定とトーチ高さ・移動速度ごとに品質が適正な範囲を調べた。

#### 4.2 適正な溶接ができる条件と範囲

電源電圧とワイヤ送給速度（設定電流）を固定して同じ長さの溶接を行い、トーチの移動速度及び高さの適正範囲を調べた。電圧値は電流値から自動設定される。速度表記は、 $3.1 \text{ mm/sec}$  を 100% として、可動ステージの調節つまみで変更している。薄板突合せの間隔を変えて、適正品質となるトーチ高さ、速度、設定電流の範囲を表 1 から 4 に示した。

良否の判断は、JIS Z 3841：半自動溶接技術検定に従った（上下とも盛り量が 0～3 mm）。接合個所の形状を開先といい（ルートとも称する）、図 12 に示した。表の丸印が適正であり、それ以外の BO（裏面盛りオーバー）、BU（裏面の盛り不足）、FU（表面盛り不足）、H（穴あき）はすべて不適であることを示す。

H（穴あき）は、溶接が成立しないことを示すが、2.2 節で述べた条件が成り立たない場合の他、開先から溶融金属が脱落し放電できない場合もあった。ルート間隔が狭いときは、脱落が起きにくいため適正範囲が広くなつた。トーチ高さが低いとワイヤのジュール熱による損失が少なくアーケの熱の供給が大きくなるが、適正範囲が狭くなつた。このように電源電圧が自動設定される場合でも溶接可能な範囲は限られ、また条件により変化した。

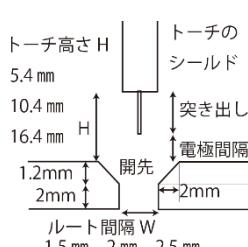


図 12 実験の開先形状

表 1 ルート間隔 2.5 mm 電流 90 A

トーチ高 (mm)	速度 (%)					
	60	70	80	90	100	110
16.4	FU	O	O	O	H	
10.4		H	O	O	O	H
5.4				BO	O	H

表 2 ルート間隔 2.5 mm 電流 100 A

トーチ高 (mm)	速度 (%)					
	70	80	90	100	110	120
16.4	BO	O	O	O	O	H
10.4		FU	O	O	O	H
5.4			H	H	H	H

表 3 ルート間隔 1.5 mm 電流 100 A

トーチ高 (mm)	速度 (%)											
	70	80	90	100	110	120	130	140	150	160	170	180
16.4	BO	O	O	O	O	O	BU					
10.4	BO	O	O	O	O	O	O	O	BU			
5.4		BO	O	O	O	O	O	O	O	O	O	BU

表 4 ルート間隔 2 mm 電流 105 A

トーチ高 (mm)	速度 (%)										
	70	80	90	100	110	120	130	140	150	160	170
16.4	BO	O	O	O	O	O	O	O	O	O	H
10.4		H	O	O	O	O	O	O	O	O	H
5.4					H	O	O	O	O	H	

## 5. 結 言

薄板接合における半自動アーク溶接の過程を詳細に測定・観察を行い、溶接が成立する条件を考察した結果、以下のことが得られた。

- 放電端になるトーチ部の電圧・電流を測定することで、半自動アーク溶接の各変化が確認できた。
- 電圧・電流の変化と、アーク放電及び溶融状態との相関があった。
- 上記の結果、薄板接合の半自動アーク溶接では、ワイヤの溶融とワイヤの自動突き出しとで生じる電極間隔の変化により、アーク放電→短絡→ワイヤ先の脱落による再放電が行われていることが把握できた。
- 上記の結果を踏まえ、電源電圧とワイヤ送給速度を固定して同じ長さの溶接を行い、トーチの移動速度及び高さの異なる条件での実際の溶接の盛り量を評価した結果、それには適正範囲があることが分かった。

## 謝 辞

本報告は、令和 2 年度から 4 年度にかけて実施した（一社）愛知県溶接協会との共同研究「IT 技術を活用した溶接品質の維持・向上に関する研究」の成果をまとめたものである。

# 変分オートエンコーダを用いた異常検知手法に関する研究

間瀬剛、長坂洋輔、松原和音

A Study on Anomaly Detection Methods Using Variational Autoencoder

Tsuyoshi MASE, Yosuke NAGASAKA and Kazune MATSUBARA

## 1. 緒 言

近年、デジタルトランスフォーメーション（DX）やインダストリー4.0 等が産業界で注目され、工場やプラントにおける製品検査や設備点検の自動化、予防保全への人工知能（AI）の活用に期待が高まっている。

AI を用いた異常検知の場合、正常データと異常データの両方を必要とする AI モデルでは適切な異常データを準備する必要がある。産業用機器では異常データがない場合や、異常のパターンが多く、すべての異常状態を再現するのが難しい場合等がある。教師なし学習と呼ばれる手法の場合、正常データのみで学習が可能であるため、前述のような状況でも AI による異常検知が可能となるというメリットがある。そこで本研究では教師なし学習の一種である変分オートエンコーダ<sup>1)</sup>を用いた異常検知について研究を行った。

## 2. 変分オートエンコーダ

教師なし学習の一種としてオートエンコーダがあり、データの符号化による潜在空間への写像と復号化で構成される。オートエンコーダは産業用機器の異常検知等に有効であることが示されている<sup>2)</sup>。

変分オートエンコーダは、オートエンコーダにおける潜在空間を確率分布で記述する方法である。図 1 に変分オートエンコーダのモデル図を示した。潜在空間には平均  $\mu$ 、標準偏差  $\sigma$  の確率分布を使用し、 $\epsilon$  は平均 0、標

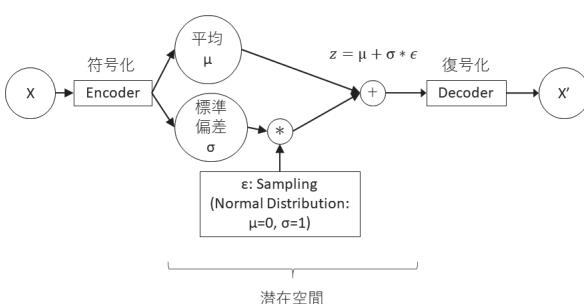


図 1 変分オートエンコーダのモデル図<sup>1)</sup>

準偏差 1 の正規分布からのサンプリングを用いることにより誤差逆伝播が可能となるようになっている。

変分オートエンコーダでは潜在変数に確率分布を使用していることにより、滑らかで連続的な潜在空間を構成することができ、類似性のあるデータに使用可能なモデルが構築される。そのため、画像生成、データ生成、異常検出、データ補間等への応用が期待されている。そこで、本研究では変分オートエンコーダの産業用機器への応用を検討した。

## 3. データセット

本研究では、産業機器の正常・異常の検出能力を評価するためのデータセットとして、DCASE2020 Task2 で提供されたデータを使用した。DCASE (Detection and Classification of Acoustic Scenes and Events) は AI を用いた音響シーン・音響イベントの分類・検出に関する研究コミュニティであり、毎年様々なタスクを用意した DCASE Challenge を主催している<sup>3)</sup>。DCASE2020 Task2 では「Unsupervised Detection of Anomalous Sounds for Machine Condition Monitoring (機械の状態監視のための教師なし異常音検知)」として、全 6 種類 (Toy-car, Toy-conveyor, Valve, Pump, Fan, Slide rail) の音響データが提供されている<sup>4)5)</sup>。

各データはサンプリングレート 16kHz、モノラル音声、長さ約 10 秒で統一されている。すべての音には対象の

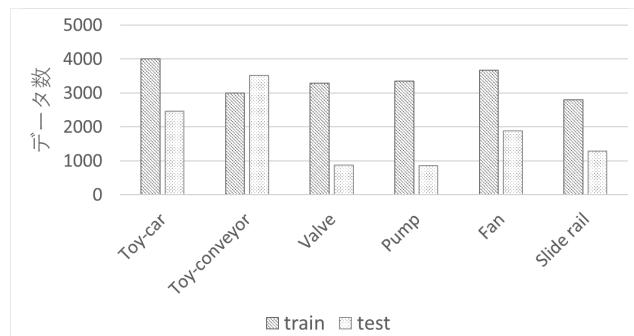


図 2 6 種類のモデルのデータ数

機械音に環境ノイズ音（実際の工場で録音された衝突、穴あけ、ポンピング、エアブラシ等）が混ぜられている。モデルごとにトレーニング用のデータとテスト用のデータが提供されており、それぞれのデータ数は図2に示す通りである。

#### 4. 学習と評価

トレーニングデータセットとして与えられた各モデルの音響データを用いて、短時間フーリエ変換(STFT)によって2次元(時間・周波数)の画像へと変換した。

STFT変換した画像のうち、トレーニングデータセットを用いてモデルごとに変分オートエンコーダのパラメータを学習した。テスト用のデータセットによる評価方法として、AUC(Area Under the Curve)を用いた<sup>6)</sup>。これはROC(Receiver Operating Characteristic、受信者操作特性)の曲線下エリアの面積を指し、1.0に近いほど識別能力が高いことを示している。本研究で学習した変分オートエンコーダを用いたモデルごとのAUCの値および同じTaskに参加した他の40チームの平均値<sup>3)</sup>を表1に示す。

表1 6種類のモデルのAUC値

モデル	AUC	
	本研究	他40チームの平均
Toy-car	0.801	0.819
Toy-conveyor	0.854	0.805
valve	0.574	0.760
pump	0.824	0.818
fan	0.828	0.823
slide rail	0.794	0.845

ほとんどのモデルでAUCが0.8を超える性能を達成しており、AIによる異常検知モデルとして活用可能であることを確認できた。一方、Valveについては開閉のタイミングがランダムであり、トレーニングデータとテストデータで開閉タイミングが異なっている。本研究では全モデルにおいて同一の手法を用いて検討しているため、開閉タイミングが異なってしまうValveについては、正しい判断ができずに性能が上がらなかつた可能性が考えられる。

#### 5. 結 言

本研究では、DCASE2020 Task2で提供されたToy-car, Toy-conveyor, Valve, Pump, Fan, Slide railの6種類の音響データを用いて変分オートエンコーダによる性能を評価し、ほとんどのモデルにおいてAUCの値で0.8を達成した。AUCが0.8を超えたことは、正常・異常状態を検出する2値分類問題に対して十分な性能を有していることを示しており、本研究の手法が様々なモデルにおける異常検知手法として活用できる可能性を十分に示している。

実際の産業用機器の異常検知は高いスキル等を必要として困難な場合があるが、本研究の手法を用いることで、実機でも異常検知の方向性が得られると期待できる。

#### 参考文献

- 1) Diederik P. Kingma, Max Welling, "Auto-Encoding Variational Bayes", arXiv:1312.6114.
- 2) 間瀬剛、長坂洋輔、松原和音：本誌掲載
- 3) <https://dcase.community/>
- 4) Yuma Koizumi, Shoichiro Saito, Hisashi Uematsu, Noboru Harada, and Keisuke Imoto. ToyADMOS: a dataset of miniature-machine operating sounds for anomalous sound detection. In Proceedings of IEEE Workshop on Applications of Signal Processing to Audio and Acoustics (WASPAA), 308-312. November 2019.
- 5) Harsh Purohit, Ryo Tanabe, Takeshi Ichige, Takashi Endo, Yuki Nikaido, Kaori Suefusa, and Yohei Kawaguchi. MIMII Dataset: sound dataset for malfunctioning industrial machine investigation and inspection. In Proceedings of the Detection and Classification of Acoustic Scenes and Events 2019 Workshop (DCASE2019), 209-213. November 2019.
- 6) Hanley JA, McNeil BJ. A method of comparing the areas under receiver operating characteristic curves derived from the same cases. Radiology. 1983 Sep;148(3):839-43.

# オーステナイト系ステンレスの圧延集合組織が 窒化層の形成に及ぼす影響

玉田和寛

Effect of Rolling Texture on Nitrided Layer of Stainless Steel

Kazuhiro TAMADA

## 1. 緒言

オーステナイト系ステンレス圧延鋼板は耐食性に優れた鋼種であり、様々な場所で利用されている。通常はその優れた耐食性から表面処理を施さないが、耐摩耗性と耐食性の両立が求められるような場合、オーステナイト系ステンレス鋼の表面改質が検討される。

オーステナイト系ステンレス鋼の耐摩耗性を向上させる方法の一つとして、プラズマ窒化処理がある。比較的低温でプラズマ窒化処理を施した場合は、窒素の過剰固溶により耐食性が損なわれることなく耐摩耗性が向上するとされている<sup>1)</sup>。窒素の拡散速度は基材初期の配向が{001}の配向において{111}の配向よりも高いことが報告されており<sup>2)</sup>、拡散速度の変化により窒化層の厚さが変化すれば、耐摩耗性にも影響を与えると考えられる。

オーステナイト系ステンレス圧延鋼板は、結晶方位の配向が揃う集合組織を呈するため、圧延条件に依存して窒化層の厚さが異なると想定される。この集合組織の配向が圧延材における窒化層の形成に及ぼす影響を観察するため、図1に示すようにオーステナイト系ステンレス鋼に圧延・熱処理を施した後にプラズマ窒化し、窒化層厚さと結晶方位の関係をSEM-EBSDにより解析した。

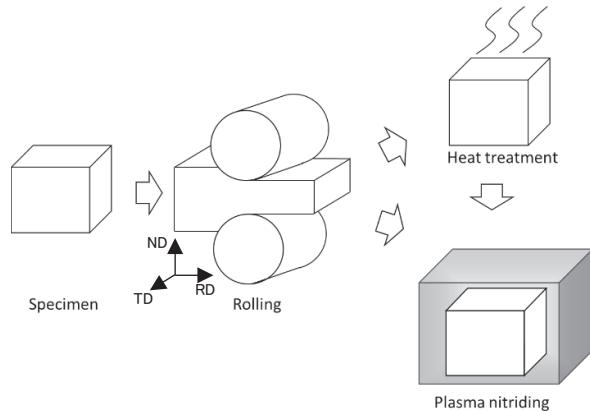


図1 サンプル作製の流れ

## 2. 圧延集合組織の作製

供試材はSUS316Lの押出し丸棒である。丸棒の中心から20 mm角の立方体を切り出し、丸棒の圧延方向に50%の圧延を施した(圧延材)。基材と圧延材のSEM-EBSD解析結果を図2に示す。IPF図は上面が表層部であり、全面での各結晶の配向を示しておりミクロの様相を呈している。極点図はIPF図内のマクロの様相を呈している。

基材のIPF図および極点図より、粒径が均質かつばらついた配向をもつ結晶であることがわかる。圧延材については、極点図より配向の偏り(矢印)が認められた。これは、集合組織が形成されていることを示唆する。圧延材のIPF図では結晶がグラデーションを呈している。これは結晶粒のひずみを示しており、圧延表層部は高ひずみのため、測定不可で無地(ブランク)になっている。

## 3. ひずみ除去焼鈍

圧延材に生じているひずみを取り除き測定ブランクを改善するため、焼鈍処理を施した。焼鈍温度は300°Cおよび600°Cとしてそれぞれ1時間保持後炉冷した。このときの解析結果を図3に示す。IPF図より300°C、600°Cとともにブランクは大幅に減少していることが分かる。

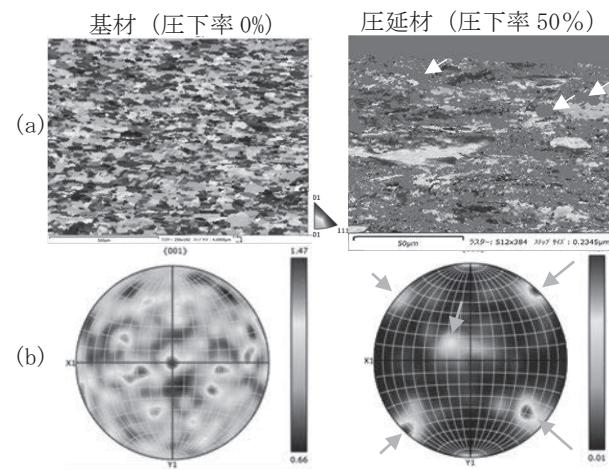


図2 圧延組織のEBSD解析結果(RD)

(a) IPF図 (b) 極点図

焼鈍温度 300°C と 600°C を比較すると、600°C の試料の方がブランクが大きい。600°C 保持により粒界にクロム炭化物が析出したためと思われる。極点図においては、色調の変化が緩やかであることから、いずれも圧延材に比して集合組織の配向が崩れつつある。以降、ひずみ取りは 300°C 1 時間保持の条件とし、これを焼鈍材とした。

#### 4. プラズマ窒化処理

圧延集合組織が窒化処理に及ぼす影響を確認するため、基材および焼鈍材にプラズマ窒化処理を施し、それぞれの窒化層厚さを光学顕微鏡により観察した結果を図 4 に示す。基材において、圧延面と側面における窒化層厚さの差はほとんどなく、それぞれ約 68 μm および 67 μm であった。一方、焼鈍材において、圧延面と側面で窒化層の厚さが異なった。圧延面はおよそ 61 μm であり基材よりも薄く、側面はおよそ 72 μm と基材よりも厚い。

プラズマ窒化を施した圧延面の EBSD 解析の結果を図 5 に示す。基材と焼鈍材のいずれのサンプルにおいても、窒化層はブランクとなっている。窒化層からは菊池線を得られないため、結晶を捉えることができない。検出限界以下の組織微細化または窒素拡散に伴う残留ひずみによって結晶性を捉えられなかったことを示唆する。

一方で、窒化層との境界において局所的に深く窒化されている結晶（矢印）の配向は、基材と焼鈍材のいずれも {001} に近い傾向が認められる。

#### 5.まとめ

耐食性と耐摩耗性の両立を想定して、オーステナイト系ステンレス鋼に圧延集合組織を作製し、プラズマ窒化を施した。圧延後はひずみにより EBSD 解析は困難であったが、低温焼鈍により解析は可能となった。

局所的な窒化層の成長にはそれぞれの結晶の配向が影響しているが、圧延面と側面は全体的に均質な厚さに成長している。圧延集合組織が {001} に配向しやすい RD 方向において、圧延面よりも窒化層が成長したものと思われる。圧延集合組織の配向が窒化層厚さに関係することを示すものである。圧延に伴い窒化層形成に影響する要素は粒径など他にも存在するため、考慮する必要がある。

#### 参考文献

- E. Menthe, A. Bulak, J. Olfe, A. Zimmermann and K. T.

Rie: *Surf. Coat. Technol.* **133–134** (2000) pp. 259–263

- A. Martinavičius, G. Abrasonis, W. Möller, C. Templier, J. P. Rivière, A. Declémey and Y. Chumlyakov: *J. Appl. Phys.* **105**, 093502 (2009)

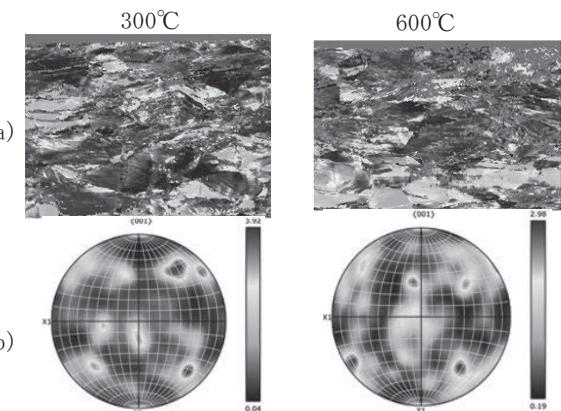


図 3 ひずみ除去後の EBSD 解析結果 (RD)

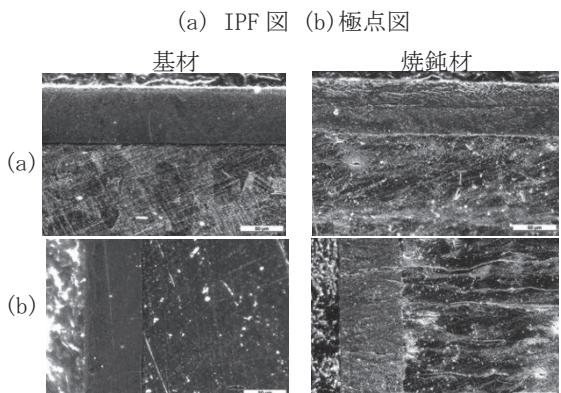


図 4 窒化層厚さ

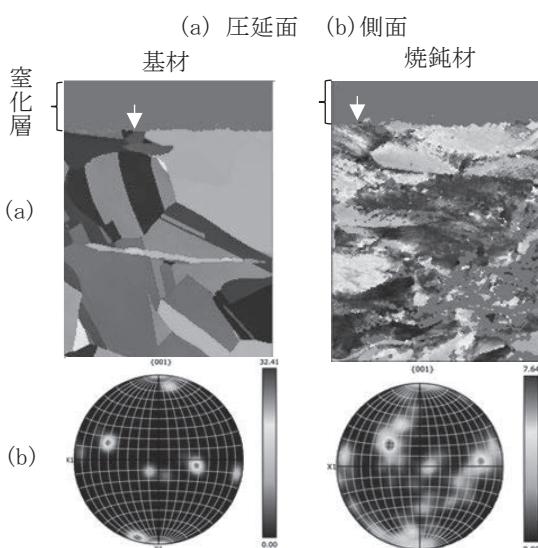


図 5 プラズマ窒化後の圧延面 EBSD 解析結果 (ND)

- (a) IPF 図 (b) 極点図

# 金属粉末を利用した CO<sub>2</sub>還元の研究

岡東寿明

Reduction of CO<sub>2</sub> in the Presence of Metal Powder

Kazuaki OKATO

## 1. 緒言

近年、大気中 CO<sub>2</sub>濃度の上昇に伴う地球温暖化対策として二酸化炭素の回収・有効利用(Carbon dioxide Capture and Utilization: CCU)が注目され<sup>1)</sup>、発電所などでの排出量の削減、大気中からの分離回収など様々な関連技術が精力的に研究されている。特に CO<sub>2</sub>を資源としてとらえ、CO<sub>2</sub>を出発物質としてCO、メタン、メタノールなどの合成原料の製造を目指した研究も多く、実用化間近のプロセスもみられる。しかしながら、CO<sub>2</sub>の還元プロセスは電力や熱など多量のエネルギー投入が必要となる高コストの工程であり、簡便な回収利用技術の開発は引き続き喫緊の課題となっている。

本研究では、CO<sub>2</sub>の固定化材として金属Mgの高い還元性に着目し、金属粉末の酸化反応を用いたCO<sub>2</sub>の還元技術を検討した。CO<sub>2</sub>雰囲気で金属Mgの粉末を加熱し、その反応を評価した。

## 2. 実験方法

Mg粉末試薬(1級、国産化学(株))を用意し、カーボンシート上でCO<sub>2</sub>および大気雰囲気とした管状炉内で加熱した。昇温速度20°C/分、保持時間1時間とし、保持温度は500、600、700°Cで実験を行った。

得られた生成物は外観のマクロ観察、SEM-EDX(JSM-7900F、日本電子(株))、XRD(Empyrean、PANalytical)にて評価した。

## 3. 結果と考察

### 3.1 外観と重量変化

加熱処理後の外観変化を図1に、重量の変化を表1に示す。CO<sub>2</sub>雰囲気下で500、600°Cで加熱したところ、変色が観察されたが、Mg粉末の形状や重量は大きく変化しなかった。一方、700°C、CO<sub>2</sub>雰囲気下では74.1%の重量増加が見られた。粒子形状は変化し、負荷をかけると容易に碎ける粒や塊状で、黒色生成物と白色生成物が混在し

ていた。同様に700°C、大気雰囲気下では66.9%重量が増加した。主に白色生成物が得られ、容易に碎ける粒や塊状であった。

Mgの融点が650°Cであることから、700°Cでの反応では粉末が溶融し、形状が変化したと考えられる。また、MgがすべてMgOに酸化した場合、重量変化の計算値は約66%となるが、CO<sub>2</sub>雰囲気では計算値以上の重量増加があり、MgOの特徴である白色の固体以外にも黒色の生成物も観察された。一方、大気雰囲気の場合は重量増加や色がMgOの特徴と近い生成物が認められた。

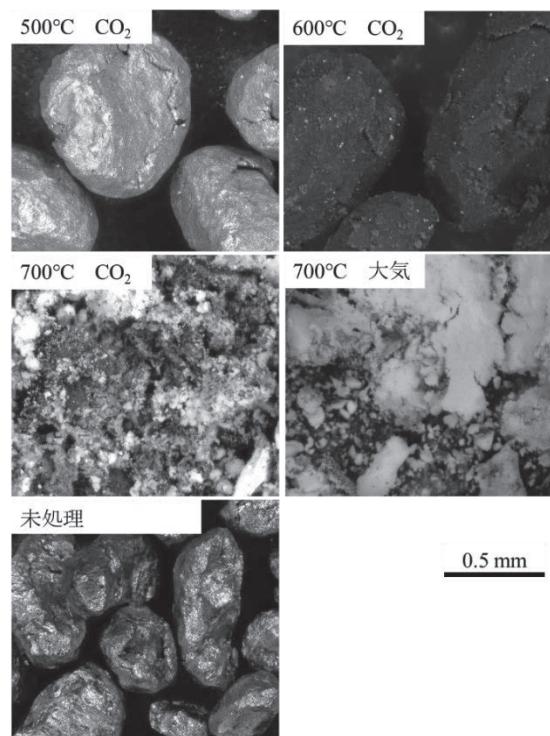


図1 加熱処理後Mg粉末の外観

### 3.2 成分分析

加熱処理後試料の成分分析を加速電圧15 kVの条件でSEM-EDXにて行った。その結果を表2に示す。CやOの測定精度は十分でないため参考に留める必要はあるが、加熱処理前のMg粉末に比べ、どの条件の生成物であって

表 1 加熱処理後の試料重量増加率

雰囲気	CO <sub>2</sub>			大気
温度 / °C	500	600	700	700
重量増加 / %	なし	なし	74.1	66.9

もOは大きく増加したことから、表面が酸化していることが明らかとなった。また、大気雰囲気に比べCO<sub>2</sub>雰囲気ではCの増加量も大きく、雰囲気の違いによる影響が見られる。

加熱処理後の重量や形状変化の小さいCO<sub>2</sub>雰囲気600°Cの生成物でも、C、O濃度の増加が700°Cの場合と近い水準で確認された。融点以下の加熱処理でも固体表面で反応しており、SEM-EDXの分析深さでは違いがあまり検出されなかったと考えられる。

SEM-EDXによる分析深さは元素や加速電圧によって異なる<sup>2)</sup>が、加速電圧15kVでは特性X線の発生領域は数百nm～数μmとなる。

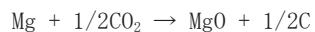
表2 生成物のSEM-EDX分析結果

雰囲気	CO <sub>2</sub>			大気	未処理
温度 / °C	500	600	700	700	Mg粉末
原子濃度 / at %	Mg	63.9	40.6	34.5	45.0
	O	21.5	45.4	50.4	49.2
	C	14.6	14.0	15.1	5.8

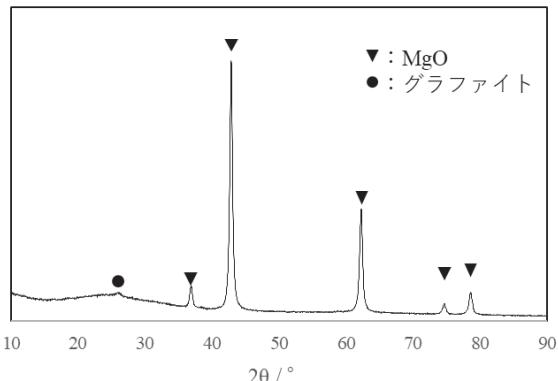
### 3.3 結晶構造解析

XRDパターンを測定した結果、CO<sub>2</sub>雰囲気500、600°Cで作製した試料は32、34、37、69°などにピークがあり、主にMgであることが判明した。また、CO<sub>2</sub>雰囲気700°Cで作製した試料のパターンを図2に示す。500、600°Cの場合と異なりMgのピークは観察されず、37、43、62、75、79°にピークが観察され、主にMgOであることがわかった。また、26°付近にはグラファイトのピーク位置と一致するブロードなピークが観察され、これはCO<sub>2</sub>の還元によりCが生じたと考えられる。一方、大気雰囲気700°Cで作製した試料も同様に、主にMgOであったが、26°付近のピークは観察されなかった。

以上の測定結果から、特にCO<sub>2</sub>雰囲気700°Cの加熱処理時には以下のようない反応が生じていると考えられる。



ただし、MgOを生じた反応がすべて上記のものと仮定した場合は重量増加が90%程度となるため、一部はCまで還元されずCOへの還元に留まつたと推測される。

図2 CO<sub>2</sub>雰囲気700°Cでの生成物のXRDパターン

### 4. 結 言

本研究では大気およびCO<sub>2</sub>雰囲気にてMg粉末を加熱処理することでCO<sub>2</sub>の還元を行った。

CO<sub>2</sub>雰囲気で処理温度がMgの融点以下である500、600°Cの場合、試料重量はほぼ変化せず、XRDパターンもMgであることを示した。SEM-EDXでの成分分析では未処理のMg粉末に比べC、Oの比率が増加していた。

CO<sub>2</sub>雰囲気においてMgの融点以上である700°Cで加熱処理した場合、重量変化とXRDパターンからMgがほぼMgOに酸化されたことに加え、CO<sub>2</sub>をグラファイトに近いCまで還元したと推測される。その際、一部はCOまでの還元に留まっている可能性がある。融点以下でもMgとCO<sub>2</sub>は反応するが、その反応は固体表面に留まっていると考えられる。

以上のことから、Mgの加熱によりCO<sub>2</sub>は還元可能であり、CO<sub>2</sub>固定化の選択肢の一つとしての可能性を示した。しかしながら、トータルのCO<sub>2</sub>排出量の削減に向けては、Mgを再生可能エネルギーにより準備する必要があるなど、いまだ解決すべき課題は大きい。

### 参考文献

- 1) 経済産業省：“カーボンリサイクルマップ”，  
[https://www.meti.go.jp/shingikai/energy\\_environment/carbon\\_recycle\\_rm/pdf/20230623\\_01.pdf](https://www.meti.go.jp/shingikai/energy_environment/carbon_recycle_rm/pdf/20230623_01.pdf),  
(参照2024-07-23)
- 2) 副島啓義：電子線マイクロアナリシス，日刊工業新聞社(1987)

# 蛍光 X 線分析によるプラスチック複合材中のガラス繊維含有率の測定

林朋子、松村大植、岡本和明、中野万敬

Measurement of Glass Fiber Content in Plastics by X-ray Fluorescence Analyses

Tomoko HAYASHI, Daiki MATSUMURA, Kazuaki OKAMOTO and Kazunori NAKANO

## 1. 緒言

ガラス繊維は、引張り強さが大きく、価格が比較的安いなどの特徴があるため、プラスチックの強化材として利用されている。ガラス繊維で強化されたプラスチック複合材の強度は繊維の含有率によって異なるため、不良品発生時や品質確認などの場合にはガラス繊維の含有率の測定が必要になる。通常は、電気炉中でプラスチックを燃焼させた後に残ったガラス繊維の重量を測定して求めるが<sup>1)</sup>、サンプルを破壊しない方法として超音波を使用する方法も報告されている<sup>1)</sup>。いずれにせよ複雑で時間をする測定方法であり、ガラス繊維含有率のより簡便で迅速な測定方法が望まれている。

本研究では、より簡便な測定方法である蛍光 X 線分析を用い、プラスチック複合材中のガラス繊維含有率の定量分析について検討する。

## 2. 実験方法

### 2.1 プラスチック複合材の種類

ペレット形状のプラスチック複合材は以下を用いた(表 1)。なお、ガラス繊維含有率はメーカーの公称値である。

表 1 使用したプラスチック複合材

プラスチック	ポリプロピレン (PP)	ポリアミド (PA)	ABS樹脂 (ABS)
ガラス繊維 含有率(%)	10, 30	20, 30	30, 40
メーカー	A	B	B

### 2.2 測定サンプル作製

ガラス繊維含有率の測定には一定の面積で測定するのに測定面が平面である必要があるため、測定サンプルの

作製は 2.1 のプラスチック複合材を用いて、以下の 2 つの方でペレットを板状に加工して測定サンプルとした(図 1)。

(a) プレス機で押しつぶして作製(対象: PP)

(b) ホットプレート上で加熱しながら、手で押しつぶして作製(対象: PP, PA, ABS)

以下、この方法を手動ホットプレスとする。

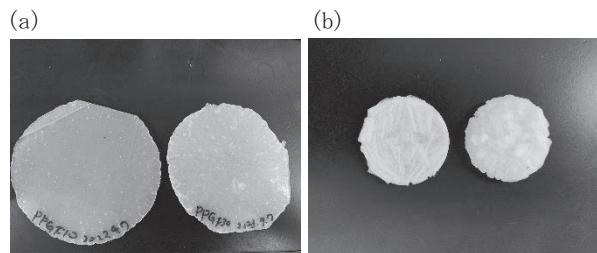


図 1 測定サンプル(Φ30 mm、厚さ 5 mm)

作製方法は(a) プレス、(b) 手動ホットプレス

### 2.3 観察方法

2.2 の(a)の方法で作製した測定サンプルを液体窒素に浸し、凍結させた後、割った断面を電子顕微鏡で観察し、ガラス繊維の分布を確認した。電子顕微鏡は、環境制御型電子顕微鏡(Quanta 200, FEI 社)を用いた。

### 2.4 分析方法

元素分析は波長分散型蛍光 X 線分析装置(WDX)(ZSX Primus IV, リガク(株))を用いて行った。管球は Rh、測定径は  $\phi$  30 mm、測定元素は B~U で測定を行った。ガラス繊維の種類の 1 つである E ガラスは  $\text{SiO}_2$  54%,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  15%,  $\text{CaO}$  17% であるため<sup>2)</sup>、ガラス繊維のメーカーとして Al, Si, Ca の X 線強度を用いた。樹脂のメーカーと

してはCのX線強度を用いた。

### 3. 実験結果

#### 3.1 観察結果

メーカーA製のPPのペレットを用いて、2.3の方法で測定サンプルの断面を観察した結果を図2に示す。ガラス繊維は測定サンプルの表面と平行に均一に配向していることがわかった。

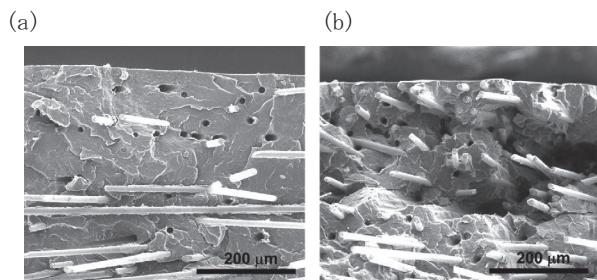


図2 断面観察像

ガラス繊維含有率は (a) 10%, (b) 30%

#### 3.2 分析結果

##### 3.2.1 PPの測定サンプル作製方法による違い

メーカーA製のPPのペレットを用いて、2.2の測定サンプル作製方法（プレスと手動ホットプレス）による違いを調べた。Al, Si, Caの中でガラス繊維中の含有率が高いSiを用いて、横軸を既知のガラス繊維含有率（%）、縦軸を(SiのX線強度)/(CのX線強度)としたグラフを作成した。図3にその結果を示す(N = 3)。直線近似では、サンプル作製方法がプレスの場合は傾き1.613、R<sup>2</sup> =

0.994、手動ホットプレスの場合が傾き1.474、R<sup>2</sup> = 0.989であった。サンプル作製方法による大きな違いは見られなかったため、以後のサンプル作製には、手動ホットプレスを用いた。

##### 3.2.2 PPのメーカーによる違い

メーカーA製とメーカーB製のPPのペレットによる違いを、3.2.1と同様にX線強度比(Si/C)から調べた。図4にその結果を示す(N = 3)。直線近似では、メーカーA製が傾き1.474、R<sup>2</sup> = 0.989、メーカーB製が傾き1.525、R<sup>2</sup> = 0.997であった。少なくともA社、B社については検量線に大きな違いは見られず、ガラス繊維の形状が異なっていても本方法が適用できる可能性がある。

##### 3.2.3 PPのガラス繊維含有率とAl, Si, CaのX線強度比

PPのガラス繊維含有率と各元素のX線強度比について調査した結果を図5に示す(N = 3)。ここでは、ガラス繊維のマーカーとしてAl, Si, Caのどれが適しているかを調べた。直線近似では、X線強度比がAl/C, Si/C, Ca/Cの順にそれぞれ傾き0.404、R<sup>2</sup> = 0.996、傾き1.525、R<sup>2</sup> = 0.997、傾き2.29、R<sup>2</sup> = 0.997であった。検出感度はCaがもっともよいが、R<sup>2</sup>が1に近く精度がよいのはCaとSiであった。

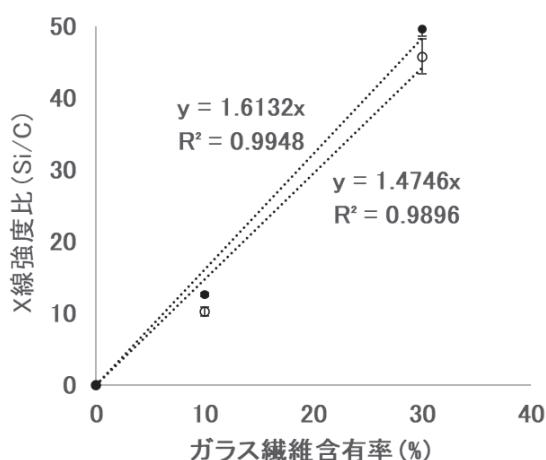


図3 PPのガラス繊維含有率と  
X線強度比(Si/C)の関係  
(●プレス、○手動ホットプレス)

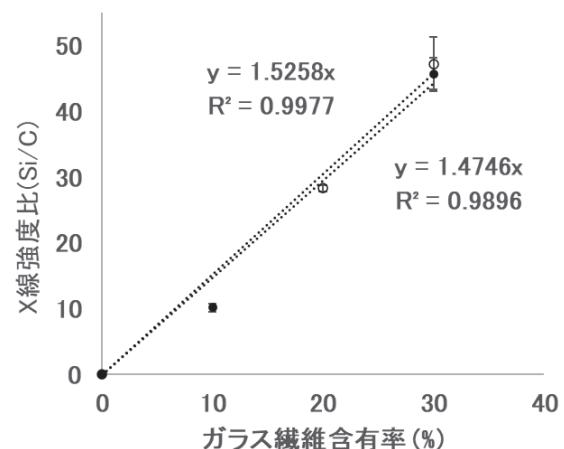


図4 PPのガラス繊維含有率と  
X線強度比(Si/C)の関係  
(●メーカーA、○メーカーB)

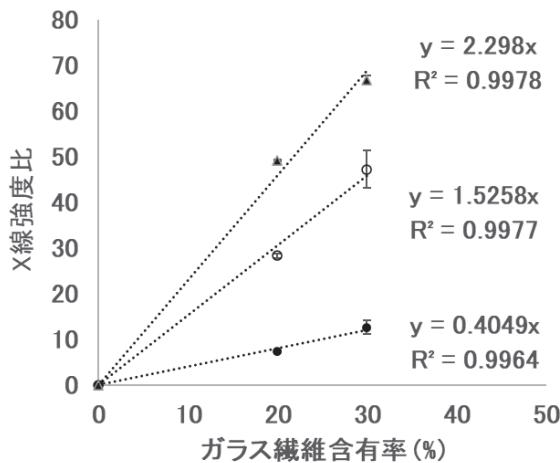


図 5 PP のガラス繊維含有率と各元素の X 線強度比の関係  
(●Al/C、○Si/C、▲Ca/C)

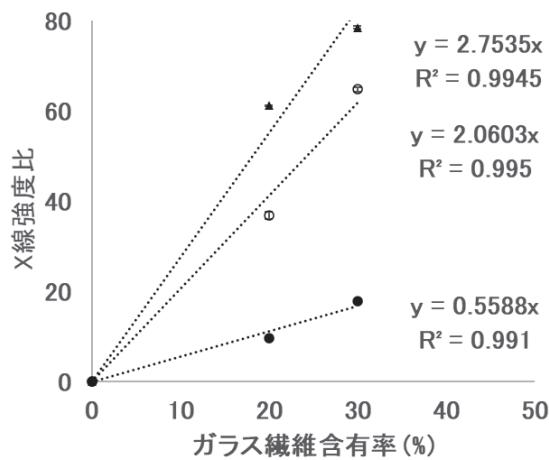


図 6 ABS のガラス繊維含有率と各元素の X 線強度比の関係  
(●Al/C、○Si/C、▲Ca/C)

### 3.2.4 ABS のガラス繊維含有率と Al, Si, Ca の X 線強度比

ABS のガラス繊維含有率と各元素の X 線強度比について調査した結果を図 6 に示す ( $N = 3$ )。3.2.3 と同様にガラス繊維のマーカーとして Al, Si, Ca のどれが適しているかを調べた。直線近似では、X 線強度比が Al/C, Si/C, Ca/C の順に直線の傾きが大きくなっているのは、その順に蛍光 X 線のエネルギーが大きく、軽元素である C に対して感度がよいためと考えられる。一方、 $R^2$  が 1 に近く精度がよいのは Si であった。このため、ガラス繊維含有率を求める際には Si の X 線強度比を測定すればよいことが確認できた。

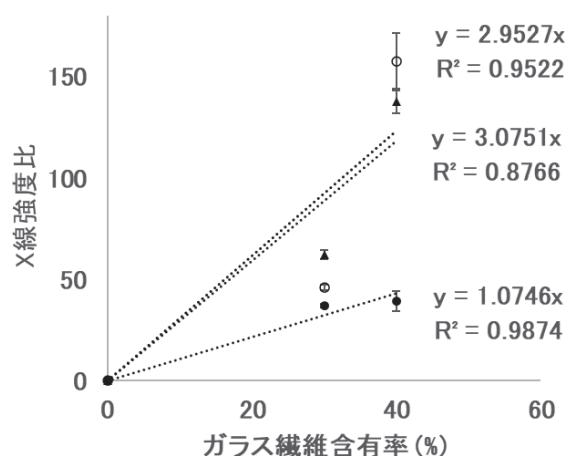


図 7 PA のガラス繊維含有率と各元素の X 線強度比の関係  
(●Al/C、○Si/C、▲Ca/C)

### 3.2.5 PA のガラス繊維含有率と Al, Si, Ca の X 線強度比

PA のガラス繊維含有率と各元素の X 線強度比について調査した結果を図 7 に示す ( $N = 3$ )。3.2.3 と同様にガラス繊維のマーカーとして Al, Si, Ca のどれが適しているかを調べた。直線近似では、X 線強度比が Al/C, Si/C, Ca/C の順にそれぞれ傾き 1.074,  $R^2 = 0.987$ , 傾き 3.075,  $R^2 = 0.876$ , 傾き 2.952,  $R^2 = 0.952$  であった。 $R^2$  が 0.99 を大きく下回っており、今回用いた PA では蛍光 X 線分析によるガラス繊維含有率の定量分析が難しいことがわかった。

## 4. 考 察

蛍光 X 線分析は、サンプルに X 線を照射した際に発生する蛍光 X 線のエネルギーから元素の種類、強度から元素を定量する分析方法である<sup>3)</sup>。軽元素の蛍光 X 線はエネルギーが小さいため、感度が低く精度が悪くなることがある。PP と ABS の場合、縦軸の強度比が Al/C, Si/C, Ca/C の順に直線の傾きが大きくなっているのは、その順に蛍光 X 線のエネルギーが大きく、軽元素である C に対して感度がよいためと考えられる。一方、 $R^2$  が 1 に近く精度がよいのは Si であった。このため、ガラス繊維含有率を求める際には Si の X 線強度比を測定すればよいことが確認できた。

PA で比例関係の直線が得られなかつたのは、軽元素である C に加えて、同じく軽元素である N と O を構成元素とするためであると考えられる。すなわち、蛍光 X 線の

エネルギーK $\alpha$ はCが0.277 keV、Nが0.392 keV、Oが0.525 keVと近く隣同士のピークであるため、CのX線強度が正確に検出できていないと考えられる。ABSも構成元素にNを有するが、構成元素の中のNの割合はPAの半分以下、かつOは有しないため、影響が少なかったと考えられる。PAについてはガラス繊維の含有率は従来通りの燃焼法で求める必要があると考えられる。

## 5. 結 言

蛍光X線分析を用いたプラスチック複合材中のガラス繊維含有率の定量分析に関する可能性をガラス繊維由來のAl, Si, Caとプラスチック由來のCのX線強度比から確認した。PPとABSの場合は含有率と強度比におおよその比例関係が得られたが、PAの場合は両者に相関関係は見られなかった。

今後は、ガラス繊維が不均一に配向したサンプルや成形品を用いて検討を行う予定である。

## 参考文献

- 1) 四方田重昭、小野昌孝、牧広：材料，**23**[255]，pp. 1080-1085(1974)
- 2) (地独) 大阪市立工業研究所他：プラスチック読本
- 3) 中井泉：応用物理，**74**[4]，pp. 454-461(2005)

# ファインバブルと晶析操作による中空高分子粒子の高速生成

安井望、安井智也\*、山口毅\*、安田啓司\*

Rapid Preparation of Hollow Polymer Particles by Fine Bubbles and Antisolvent Crystallization

Nozomu YASUI, Tomoya YASUI\*, Takeshi YAMAGUCHI\* and Keiji YASUDA\*

## 1. 緒言

中空粒子は低密度、低熱伝導率、低屈折率、高比表面積等の性質を有し、低誘電・断熱用フィラー材料、塗料、ドラッグデリバリー等の利用が期待されるが、中空粒子の作製は時間とコストを要する<sup>1)</sup>。加えて、合成高分子粒子はマイクロプラスチックとして環境問題となっており、REACH 規則付属書 XVII の改正などの規制が進められている<sup>2)</sup>。中空粒子作製の難しさと今後の規制強化から、低環境負荷・低コストである高分子粒子とその粒子の作製方法の開発が求められている。

マイクロプラスチックの規制対象に生分解性高分子は含まれていないことから、今後は生分解性高分子粒子の需要が増加すると考えられる。また、代替品としてだけでなく、生分解性高分子はイノベーションを起こす材料としても期待されている<sup>3)</sup>。

この生分解性を有する合成高分子は自然環境で低分子化する必要があることから、加水分解し得る脂肪族ポリエステルが生分解性高分子として開発されている。しかし、ポリエステル作製に必要なエステル化反応とエステル交換反応は可逆反応であることから、反応過程で生成する水やアルコールを除去しながら反応を継続させる必要がある。また、原料として用いる低級のカルボン酸とアルコールは水溶性である。これらのことから、水媒体中で粒子作製を行う乳化重合や懸濁重合でポリエステル粒子の作製を行うことは難しい。

一方、重合法ではなく、相分離を利用してポリエステル粒子を作製することが可能である<sup>4)</sup>。この方法は、良溶媒に溶かしたポリエステル溶液を水中に分散させてエマルションを形成後、高温などにより溶媒を留去することでポリエステルが水中で析出し、粒子が得られる。

著者らはこれまで相分離に基づく新奇な粒子作製方法を考案し、開発してきた<sup>5)</sup>。本方法は気泡を含んだ高分子溶液から簡便・高速・低成本で粒子を形成する方法

であり、生分解性高分子の樹脂ペレット等から中空粒子を作製することが可能である。

また、近年では環境問題への対策から、低環境負荷・低コストである方法の必要性が大きく増している。製造や実験等の過程で排出される薬品・廃液は環境負荷が高いため、この対策として廃液をリサイクルすることができれば低環境負荷・低コスト化が可能となる。本方法は溶液から固相を分離・析出させて粒子形成を行うことから、粒子形成に伴う溶媒の変質は発生しない。そのため、ろ過と蒸留による溶媒の再生が容易であると考えられる。

そこで本研究では、粒子作製方法が及ぼす環境負荷を低減するために、廃液再生の効率と再生品の使用による粒子形成への影響を調査した。

## 2. 粒子作製方法

本研究で行う方法は固相と液相の相分離を行う晶析操作と、気泡の浮力をを利用して有機物を浮上させる浮上分離法を応用したものである。

初めに、図 1 に示すように良溶媒層、水層、貧溶媒層から成る溶液を調製する。良溶媒、貧溶媒は水に対して非混和であり、水が有機溶媒の分離層として機能する。

次に、ファインバブル (FB) を良溶媒層中で発生させると、高分子溶液を吸着した FB が水中を浮上して貧溶媒層に到達し、FB 表面に吸着していた高分子溶液と貧溶媒が混合して高分子が析出する。高分子が気泡を囲んだ状態で析出することで中空部が形成されることから、固体や液体をテンプレートとした時のように、テンプレート除去や精製などの後工程は不要である。

本研究では脂肪族ポリエステルの生分解性高分子であるポリブチレンサクシネート (PBS) の微粒子を作製する。重合法による PBS 微粒子の作製は難しいが、本方法を用いることで図 2 の透過電子顕微鏡像 (TEM) からサブミクロンの中空を有する PBS コロイド粒子の形成を確認できる<sup>5)</sup>。

\*名古屋大学

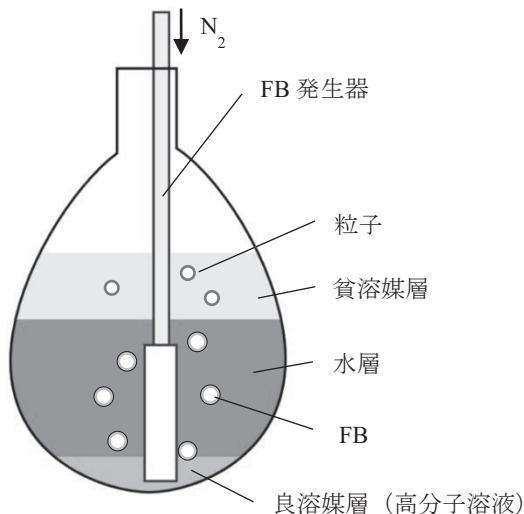


図1 本研究の中空高分子粒子の作製法

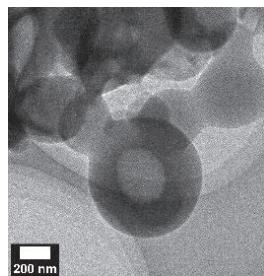
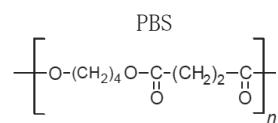


図2 PBS 中空粒子の TEM 像



### 3. 廉液の再生と粒子作製

図1に示す方法でPBS粒子を作製した。20 gのクロロホルムに0.07 gのPBSのペレットを溶かして高分子溶液とした。貧溶媒層はデカンを100 g、水層は純水を350 g用いて、高分子溶液と貧溶媒が混ざらないように注意して3層の溶液を調製した。

次に、FB発生器を高分子溶液中に挿入して窒素ガスを流量50 ml/minで流した。高分子溶液中に発生した気泡は連続気泡または独立気泡の状態で水中を浮上して貧溶媒層中に到達し、貧溶媒と高分子溶液が混合することで粒子が析出した。高分子溶液がすべて浮上するまで粒子作製を行った。

析出した粒子は図3に示すように貧溶媒層中に留まり、水層には拡散しない。粒子作製後は水層と貧溶媒層の2層液になるため、水層と貧溶媒層を分液した。分液した貧溶媒層を孔径0.1 μmのフィルターを用いて吸引濾過し、溶媒と粒子を分離・回収した。

回収した粒子は洗浄後、再度メタノール中に分散させた後に自然乾燥させて粒子回収量を測定した。

フィルターを通して得られたろ液はクロロホルムとデカンの混合物である。エバポレーターを用いて本混合物を分離して溶媒を再生した。バス温度は50 °C、冷却器温度は-50 °Cとした。分留が進行すると受けフラスコ内にクロロホルムを回収できるが、回収したクロロホルムは再蒸発するため凝縮液が発生し続けた。そのため、分留時間は混合物の重量減少が停止した10分とした。

最後に、分液操作によって分離した水と、エバポレーターにより回収したクロロホルムとデカンを再生品として用いて粒子作製を行った。水とデカンは再生したままを使用したが、クロロホルムは減少量が多かったため、再生品と新品を混合して使用した。

本実験では、新品の溶媒を使用して1回、再生品の溶媒を使用して2回粒子作製を行い、溶媒の再生量と粒子形状の変化を測定した。

粒子形状は、PBS粒子を分散させたメタノールをシリコンウェハー上に滴下して乾燥させた。粒子のオスミウムコートを行い、走査電子顕微鏡（日立ハイテクノロジーズ製、S-4800）を用いて粒子形状を観察した。

粒度分布はレーザー回折/散乱計（堀場製作所製、Partica LA-960S2）を用いて測定した。分散液は1 mMのドデシル硫酸ナトリウム水溶液にPBS粒子を0.005wt%分散させて作製した。粒子屈折率はPBSの原料であるコハク酸の1.42を使用し、分散媒の屈折率は1.33とした。

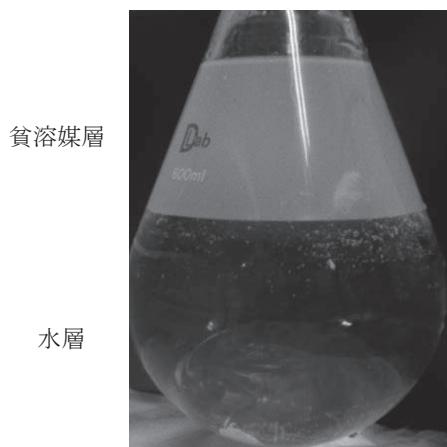


図3 粒子作製後の2層液

### 4. 結果と考察

表1にPBS粒子回収量と溶媒使用量を示す。表中のカッコ内の数字はエバポレーターで回収したクロロホルム量である。水とデカンは98~99%の回収率であった。未

回収分は、溶媒をガラス容器間で移すときに容器に残留した量と考えられる。一方でクロロホルムは回収量にはらつきがあった。クロロホルムは低沸点の VOC であるため、粒子作製中や吸引濾過時に蒸発したと考えられる。

PBS ベレットから粒子として約 8 割回収した。未回収の 2 割はろ過容器等に付着した粒子と考えられる。

表 1 使用溶媒量と粒子回収量

	新品(g)	再生 1 回(g)	再生 2 回(g)
水	350.12	344.03	341.78
デカン	100.13	99.77	97.76
クロロホルム (再生品)	20.00 (0.00)	20.25 (7.42)	19.95 (13.14)
PBS	0.0700	0.0726	0.0706
粒子回収量	0.0573	0.0646	0.0540

図 4 に PBS 粒子の電子顕微鏡 (SEM) 像を示す。粒子形状は球状、粒子径は 0.3~1.2  $\mu\text{m}$  であった。低倍率で観察すると粒子表面は滑らかな状態のように見えるが、高倍率では電子線による損傷で粒子表面に凹凸が発生した。図 5 は個数基準の粒度分布結果である。コハク酸の屈折率を使用して粒子径を求めているが、SEM 像から得られる粒子径と同等の結果が得られたことから、PBS 粒子の屈折率もコハク酸に近いと考えられる。単峰性の粒度分布であり、10  $\mu\text{m}$  以上の粒子が存在しないことから、単独・球状のコロイド粒子として分散液中に存在していると判断できる。

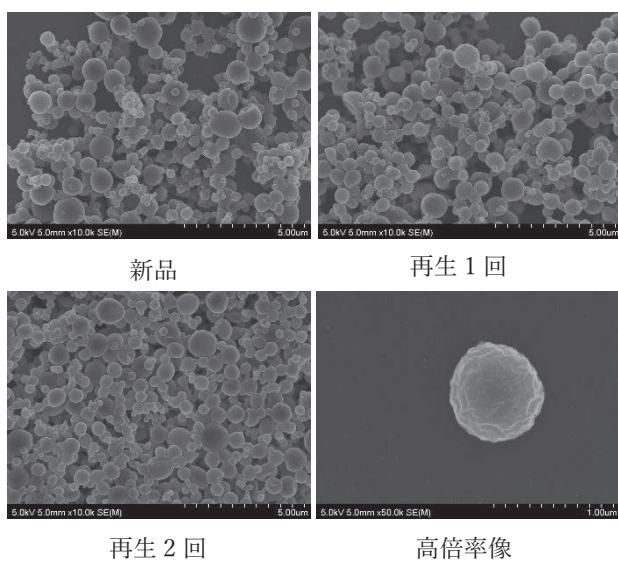


図 4 PBS 粒子の SEM 像

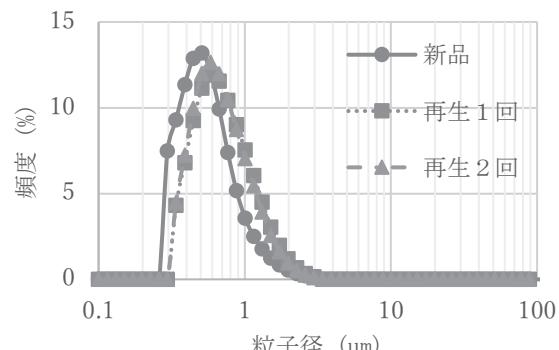


図 5 PBS 粒子の粒度分布

## 5. 結 言

SEM 像と粒度分布の結果から、再生品を使用しても新品使用時と同等の粒子形状が得られることが判明した。

本方法は FB が消滅するまでの短時間で粒子を形成可能である。高速に粒子が形成されることから産業応用に必要な量産化と低コスト化が可能であると考えられる。本結果から、溶媒のリサイクルも可能であり低環境負荷も確認できた。また、工業的に広く用いられている晶析操作と浮上分離法を組み合わせた方法であることから信頼性が高く、本方法の波及も早いことが期待される。

## 謝辞

本研究は、公益財団法人内藤科学技術振興財団 2023 年度研究助成金交付により遂行されたものである。ここに記して謝意を表する。

## 参考文献

- 1) M. Fuji, Y. S. Han and C. Takai, KONA Powder and Particle Journal **30** pp. 47–68 (2013).
- 2) “COMMISSION REGULATION (EU) 2023/2055 of 25 September 2023 ” . EUR-Lex. <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/EN/TXT/?uri=CELEX%3A32023R2055&qid=1722238871662>, (accessed 2024-08-01).
- 3) “バイオプラスチック導入ロードマップ” . 環境省. <https://www.env.go.jp/content/900534511.pdf>, (参照 2024-08-01).
- 4) A. Musyanovych and K. Landfester, Material Matters **7**[3] pp. 30–34, (2012).
- 5) 安井智哉、安井望、安田啓司：日本ソノケミストリー学会誌, **17**[33], pp. 33–36 (2023).

## キトサンナノファイバーの機械的解纖と化学的相互作用がエポキシ樹脂の補強性に与える影響

波多野諒、富永雄一\*、今井祐介\*、中野万敬

キトサンナノファイバー(CsNF)は、甲殻類の外皮の主要成分であるキチンを脱アセチル化し、水中で機械的解纖処理することで得られるバイオマスナノファイバーの一つである。CsNFは、樹脂補強用纖維として注目されているセルロースナノファイバー(CeNF)と類似の構造を持つ一方、CeNFにはないアミノ基を有している。そこで本研究では、アミノ基とエポキシ基の反応性を利用し、CsNFのエポキシ樹脂強化纖維としての適用可能性を調査した。また、CsNFとエポキシ樹脂(エチレングリコールジグリシジルエーテル(EGDG))を複合化する際のディスクミル(DM)処理が、CsNFの解纖挙動、エポキシ樹脂との化学反応、複合材料の機械的特性に及ぼす影響について評価した。

DM装置は、高速回転するディスク間に液体試料を通すことによって試料にせん断力を与える装置であり、試料の高分散化等を図ることができる。図1に本研究におけるCsNF水分散体へのDM処理とEGDGとの化学反応の概念図を示す。CsNF水分散体にDM処理を行うと、粘度の大幅な増加とすり流動化挙動が観察された。また、DM処理したCsNFのアスペクト比は、未処理のCsNFと比べて1.6倍に増加し、プレス脱水して得られたCsNFシートの引張強度も89.8 MPaから104.8 MPaに増加した。これは、DM処理によってCsNFの解纖が進み、CsNF同士の絡み合い構造がより強化されたためと考えられる。さらに、未処理のCsNFのアミノ基の活性水素とエポキシ樹脂の反応率は22.9%であったが、DM処理されたCsNFでは33.9%まで向上した。DM処理による解纖によってCsNFの表面積が増加したことに加え、せん断力によってCsNFとエポキシ樹脂の界面での化学反応が進行したと考えられる。

CsNF水分散体とエポキシ樹脂の混合物を凍結乾燥させ、硬化剤を加えることで透明なCsNF/エポキシ樹脂複合体を作製し、機械的特性を評価した。未処理のCsNFを1%含む複合体の引張強度は26.1 MPaであり、元のエポキシ樹脂の1.6倍となり、CeNFとの複合体よりも高かつ

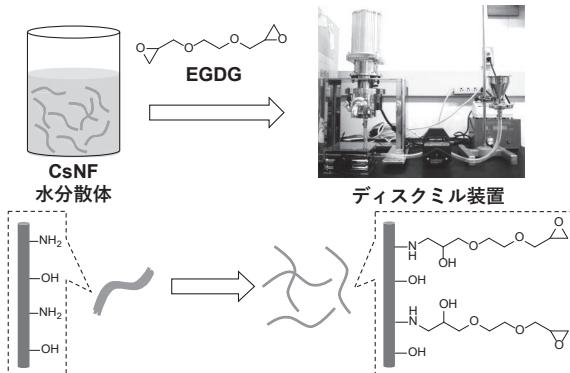


図1 ディスクミル装置によるCsNFの解纖とEGDGとの化学反応の概念図

た。これは、アミノ基とエポキシ基の反応によってCsNFと樹脂の界面接着力が高まったためと考えられる。また、DM処理したCsNF/エポキシ樹脂複合体の引張強度は31.4 MPaまで増加した。DM処理によるCsNFのアスペクト比とエポキシ樹脂との反応率の増加は、複合体の機械的特性を向上させることがわかった。また、DM処理によってエポキシ樹脂中でCsNFのネットワーク構造が効果的に形成されるため、CsNFの含有率が増えても分散性が保たれやすいことがわかった。未処理のCsNFを5%複合化させると凝集によって強度が低下したが、DM処理されたCsNFを5%複合化させた場合はほとんど凝集が見られず、複合体の引張強度は38.5 MPaまで増加した。化学反応と機械的プロセスを組み合わせた本手法により、構造材料や接着剤、塗料等として用いられるエポキシ樹脂材料の機械的特性や機能性を向上させることが期待される。

掲載誌：*Cellulose*, **30**[10], pp. 6333–6347 (2023)  
Influence of mechanical defibration and chemical interaction of chitosan nanofibers on epoxy resin reinforcement.  
Ryo HATANO, Yuichi TOMINAGA, Yusuke IMAI and Kazunori NAKANO

\*産業技術総合研究所

# 二分岐アルキル基を側鎖に有する $C_3$ -対称なベンゼン-1, 3, 5-トリカルボン酸アミドに基づく室温バルクの超分子ポリマー

石垣友三、山中基資、萩尾健史\*、市野良一\*

ベンゼン-1, 3, 5-トリカルボン酸アミド (BTA, 図1左上) 誘導体は、3つのアミド基が分子間で三重の水素結合を形成することにより、分子集合体を形成する。その集合形態はアミド基に結合した置換基に依存するが、多くは一次元に積層した集合体である超分子ポリマーを形成する。例えば、単純な直鎖アルキル基をアミド基に結合させた BTA 誘導体は超分子ポリマーを形成し、炭化水素溶媒中でゲル化剤や増粘剤として機能することが知られている。しかしながらバルクではアルキル基間の疎水性相互作用により低分子の結晶化のように三次元に組織化する。我々はこの側鎖アルキル基に分岐構造を導入し、アルキル基間の疎水性相互作用を阻害することで、BTA 誘導体分子間の主たる相互作用が、BTA の三重の水素結合のみとなり、室温、バルクで超分子ポリマーとなるのではないかと考えた。具体的には、二分岐アルキル基を有する3種類の BTA 誘導体と直鎖アルキル基を有する BTA 誘導体 (図1) を合成、比較評価することで、二分岐アルキル基を有する BTA 誘導体の特性について検討した。

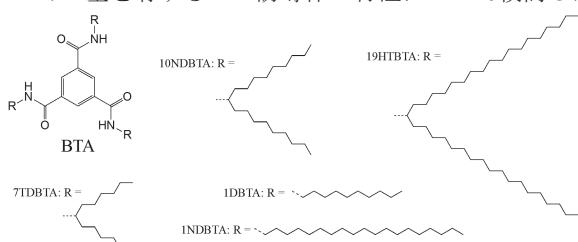


図1 本論文で合成、評価した BTA 誘導体

これらの BTA 誘導体は、購入あるいは合成したアルキルアミンとトリメソイルクロリドの反応により合成した。得られた BTA 誘導体を加熱したメタノールあるいはエタノールに溶解し、冷却して析出したものを単離し、各種測定に供する試料とした。10NDBTA は、粘性のある固体であり、DSC 測定において、-50~260°C の温度範囲でアルキル基の溶融に伴う吸熱ピーク  $T_m$  を示さず、BTA の三重水素結合が解離して等方液体となる清澄点  $T_{c1}$  の吸熱ピークのみを 230°C 付近に示した。10NDBTA 以外の BTA 誘導体は、結晶あるいは微粉末であり、20~95°C に  $T_m$ 、206~240°C に  $T_{c1}$  の両方の吸熱ピークを示した。二分岐アル

\*名古屋大学

キル基を有する BTA 誘導体は直鎖アルキル基を有する BTA 誘導体よりも  $T_{c1}$  が高い傾向を示し、対応するエンタルピー変化  $\Delta H_{c1}$  も大きかった。IR 測定において、いずれの BTA 誘導体もバルクの状態で BTA 誘導体特有の分子間の三重水素結合を形成していることが示唆された。また、XRD 測定において BTA 超分子ポリマー鎖は、二次元六方晶様の束を形成しており、鎖間距離と置換基 R の炭素数に正の相関があることが示された。27°C における  $^{13}\text{C}$  固体 NMR 測定において、7TDBTA、19HTBTA、1NDBTA ではアルキル基の結晶多形によると考えられるピークの分裂が観測されたのに対し、10NDBTA と 1DBTA では、アルキル基由来のピークが単峰性で先鋭であった。また 10NDBTA と 1DBTA では、側鎖アルキル基だけでなくカルボニル基やベンゼン環もよく運動しており、その運動性は 10NDBTA の方が高いことが明らかとなった。

以上の結果から、10NDBTA の  $T_m$  がない、 $T_{c1}$  が高く  $\Delta H_{c1}$  が大きい、固体状態を高温まで維持する、分子レベルでよく運動しているといった特徴は、アミド基直近に分岐が導入されたことによって、アルキル基の結晶化を阻害すると同時に、超分子ポリマーの主鎖を形成するアミド基の水素結合が保護されたことによると考えられる。これらの相反する特徴を同時に実現したことによって、10NDBTA では広い温度範囲で固体状態の中間相維持が実現された。また、10NDBTA では側鎖アルキル基間の疎水性相互作用が無視でき、BTA のアミド基による三重水素結合が唯一の分子間相互作用であることから、室温バルクで超分子ポリマー状態であると言える。アミド基のすぐ隣に分岐構造を導入することで、セグメント運動の低下を抑制しつつ、超分子ポリマーの主鎖を形成するアミド基を効果的に保護・強化するこの手法は、新たなソフトマテリアルの設計に貢献することが期待できる。

掲載誌 : *ChemistrySelect*, **8**, e202300805 (2023)

Room-Temperature Bulk Supramolecular Polymer Based on  $C_3$ -Symmetrical Benzene-1, 3, 5-tricarboxamides Having Two-Armed Alkyl Groups as Side Chains  
Yuzo ISHIGAKI, Motoshi Yamanaka, Takeshi HAGIO, Ryoichi ICHINO

## フェノチアジンのアンモニウム架橋による機能化

林英樹、小川匡之\*、妹尾洋\*、小泉武昭\*\*

架橋ジフェニルアミン化合物は、架橋部位の構造やN原子上の置換基の選択などによる機能化が期待できる。その中で、図1に示すフェノチアジン化合物が、n-型半導体特性をもつジフェニルアミン化合物として機能することを報告している。

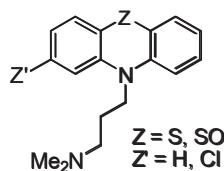
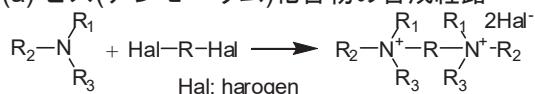


図1 本研究で用いたフェノチアジン化合物

一方、ハロゲン化アルキルとアルキルアミンとの反応によるアンモニウム化合物の合成は広く知られている。図2(a)に示す通り、ハロゲン化物としてアルキレンジハライドを用いると、分子中に二つのアンモニウム部位を持つ化合物が得られるが、Rに機能性ユニットを導入することにより、様々な材料開発への展開が期待できる。そこで、今回は、図2(b)に示したビス(アンモニウム)化合物の合成を行い、特性評価を行った。

### (a) ビス(アンモニウム)化合物の合成経路



### (b) 今回合成した化合物

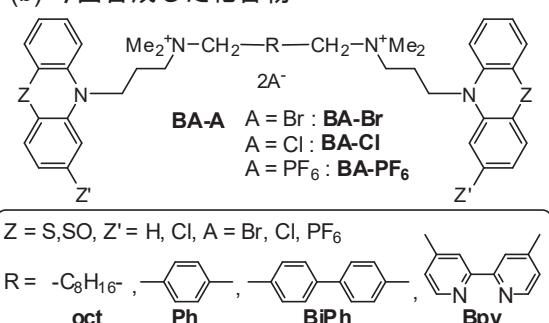


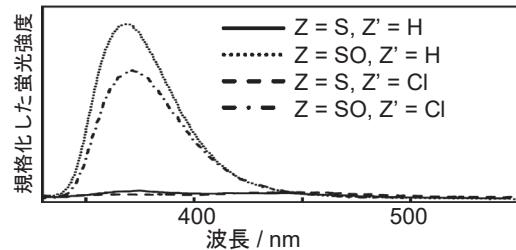
図2 (a) ビス(アンモニウム化合物)の合成および (b) 今回合成した化合物

まず、アルキレンジハライドとフェノチアジン化合物との反応により、12種のBA-Brおよび4種のBA-Clを合成した。さらに、アニオン交換反応により16種のBA-PF<sub>6</sub>を合成した。合成した化合物の同定は、各種NMRスペクトル、マススペクトルおよびX線結晶構造解析により行った。マススペクトルを測定したところ、ジカチオン生

成に由来する特徴的なシグナルが観測された。

**BA-PF<sub>6</sub>**の光学特性および電気化学特性を調べた。吸収スペクトルでは、フェノチアジンユニットおよびRに応じたスペクトルが観測されたことから、アミンとハロゲン化アルキルの両方の特性を有することがわかった。例として図3にR=Bpyの化合物の特性を示す。図3(a)に示したように、ZをSからS-オキシドに変えることにより蛍光強度の増大および蛍光極大波長の短波長シフトが観測されたことから、特にZが分光学的特性に強い影響を与えることがわかった。電気化学特性を調べた結果、図3(b)に示したように、フェノチアジンユニットに由来するピーク(○)およびRに由来するピーク(#)の双方が観測された。

### (a) 蛍光スペクトル (R = Bpy)



### (b) CV (R = Bpy)

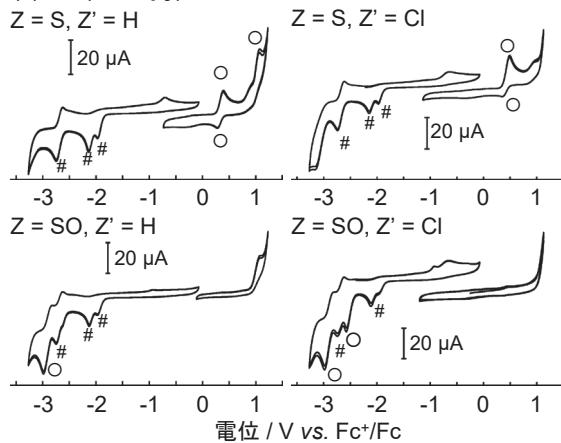


図3 BA-PF<sub>6</sub>の (a) 蛍光スペクトルおよび (b) サイクリックボルタモグラム(CV)

掲載誌：*Heterocycles*, **106** [6], pp. 1003–1021 (2023).

Functionalization of Phenothiazine Derivatives by Ammonium Bridges  
Hideki HAYASHI, Tadashi OGAWA, Hiroshi Seno, Takeaki KOIZUMI

# ビス(*N*-Boc型インドロキノキサリン)の合成とその電気化学的挙動及び反応性

林英樹、小田三都郎、小泉武昭\*

インドロキノキサリン (**IQ**, 図 1) は、化学修飾による機能化が期待できる化合物である。近年、筆者らは、キノキサリン架橋型ジフェニルアミンとして R = Ph である **IQ-Ph** (図 1) の合成および特性評価を行い、R' の置換基により光学特性および電気化学特性のチューニングができる事を報告した。

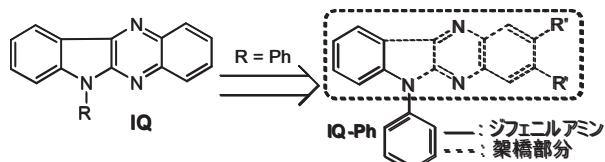


図 1 IQ および IQ-Ph

その一方で、筆者らは、重合度による特性の変化に関する研究も行っている。**IQ** は 2 量体の合成が可能であり、かつ図 2 に示したように様々な結合様式の化合物を得ることができる。そこで、ビス(*N*-Boc 型インドロキノキサリン) (**IQ2-Boc**) の合成を行い、特性評価を行った。

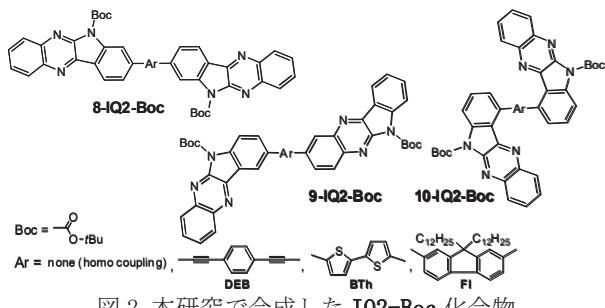


図 2 本研究で合成した IQ2-Boc 化合物

**IQ2-Boc** はプロモインドロキノキサリンを出発物質として、Ni または Pd を用いるカップリング反応により合成した。**IQ2-Boc** の分光特性を表 1 に示す。吸収特性および蛍光特性は結合位置および導入した Ar によって大きく変化した。8-位で結合させた **8-IQ2-Boc** の  $\lambda_{\text{max}}$  は、同じ Ar を有するほかの化合物よりも長波長側に現れた。これは、 $\pi$  共役の広がりによるものと考えられる。

*N*-Boc 化合物は、加熱により Boc が脱離して NH へと変換されることが知られている。そこで、**IQ2-Boc** の熱反応とそれによる特性の変化について調べた。図 3 に **10-IQ2A-Boc** の結果を示す。TG 測定では、200 °C 付近に Boc の脱離と考えられる重量減少が観測された (図 3(a))。

表 1 合成した IQ2-Boc とその分光特性

化合物	Ar <sup>a</sup>	UV $\lambda_{\text{max}}$ / nm	PL $\lambda_{\text{max}}$ / nm <sup>b, c</sup>
<b>8-IQ2A-Boc</b>	—	390, 291, 277	418, 440 (0.376)
<b>9-IQ2A-Boc</b>	—	354, 271	484 (0.083)
<b>10-IQ2A-Boc</b>	—	342, 268	445 (0.017)
<b>8-IQ2B-Boc</b>	DEB	397, 273	431 (0.533)
<b>9-IQ2B-Boc</b>	DEB	360, 269	481 (0.084)
<b>10-IQ2B-Boc</b>	DEB	414, 334, 316	438 (0.363)
<b>8-IQ2C-Boc</b>	BTh	447	517 (0.413)
<b>9-IQ2C-Boc</b>	BTh	369, 255	550 (0.011)
<b>10-IQ2C-Boc</b>	BTh	449, 341	545 (0.304)
<b>8-IQ2D-Boc</b>	FI	395, 267	461 (0.820)
<b>9-IQ2D-Boc</b>	FI	359, 271	412, 506 (0.079)
<b>10-IQ2D-Boc</b>	FI	390, 335, 266	483 (0.087)

<sup>a</sup>図 2 を参照のこと <sup>b</sup>10 mM CHCl<sub>3</sub> 溶液 <sup>c</sup>カッコ内の数字は蛍光量子率

200 °C で加熱した **10-IQ2A-Boc** の IR スペクトルを測定したところ、カルボニル基に基づくシグナルの消失を確認した (図 3(b))。さらに、紫外・可視吸収スペクトルでは、*N*-Boc の NH への変換により、分子内 CT 錯体の形成を示唆するピークが観測された (図 3(c))。加熱後の蛍光スペクトルにおいて、**10-IQ2A-Boc** は加熱により低下したものの蛍光を示した (図 3(d)) のに対し、他の化合物は加熱による蛍光の消失が認められた。

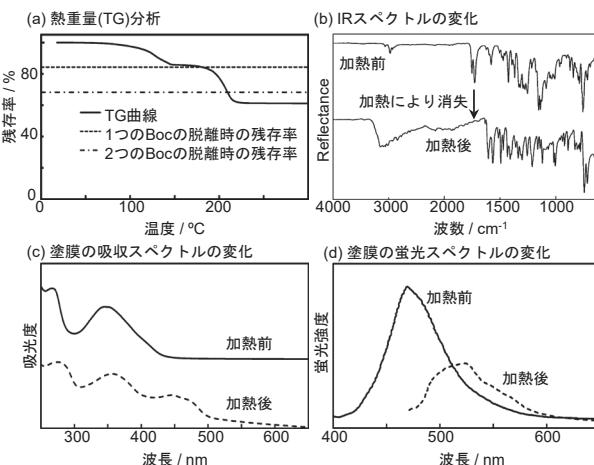


図 3 **10-IQ2A-Boc** の加熱による特性の変化

掲載誌 : *ChemistrySelect*, **8** [39], p. e202302569 (2023).

Preparation, Electrochemical Behavior, and Reactivity of Bis(*N*-Boc type Indroquinoxaline) Derivatives

Hideki HAYASHI, Mitsuo ODA, Takeaki KOIZUMI

# 測定対象物の熱伝導に関する物性値の測定方法 および測定システム

立松昌、梶田欣、高橋文明

## 1. 発明の背景

JIS A 1412などの従来手法を用いて接触熱抵抗の影響をなくした熱伝導率を測定するためには、同じ材料で厚さの異なる試料が複数必要である。一方、企業からの依頼を受けて熱伝導率を測定するとき、研究開発品の試料を複数用意することが難しい場合がある。そこで本発明では、従来手法の測定系に赤外線サーモグラフィを加えた測定系を構築し、1つの試料から接触熱抵抗の影響をなくした熱伝導率を測定する新たな手法を開発した。

## 2. 発明の内容

従来手法の測定系に赤外線サーモグラフィを加えた測定系(図1)を構築した。従来手法(図2(a))では、まず厚さの異なる試料の熱抵抗を式(1)から求める。このとき平均通過熱量 $Q_{ave.}$ は試料の上下に配置した2つの熱流センサの平均値である。次に厚さと熱抵抗の関係を式(2)に示す熱抵抗、接触熱抵抗、熱伝導率及び厚さの関係式と最小二乗法でフィッティングし、得られる回帰直線の傾きから熱伝導率を算出する。

$$R = \frac{T_{hot} - T_{cool}}{Q_{ave.}} \quad (1)$$

$$R = R_c + \frac{t}{\lambda S} \quad (2)$$

 $R$ :熱抵抗(K/W) $T_{hot}$ :試料高温側温度(°C) $T_{cool}$ :試料低温側温度(°C) $Q_{ave.}$ :平均通過熱量(W) $R_c$ :接触熱抵抗(K/W) $t$ :試料厚さ(m) $\lambda$ :試料の熱伝導率(W/m·K) $S$ :試料断面積(m<sup>2</sup>)

開発した手法(図2(b))では、試料側面の温度勾配を赤外線サーモグラフィで測定する。測定した温度勾配を式(3)に代入することで直接熱伝導率を算出する。従来手法では熱伝導率の算出に複数の試料が必要となるが、開発した手法では1つの試料から熱伝導率を算出できる。

$$\lambda = \frac{1}{\frac{1}{Q_{ave.}} \times \frac{dT}{dx} \times S} \quad (3)$$

$\frac{dT}{dx}$ :試料側面の温度勾配(K/m)

## 3. 発明の効果

本発明を用いることで、試料1つで接触熱抵抗の影響をなくした熱伝導率が測定できる。また、従来手法と並行して測定を行うことで、接触熱抵抗が評価できるため、接触熱抵抗を考慮した熱伝導、熱流体の高精度なシミュレーションへの応用が期待される。

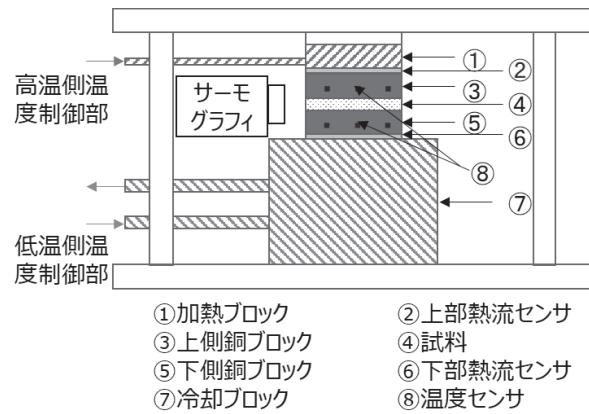
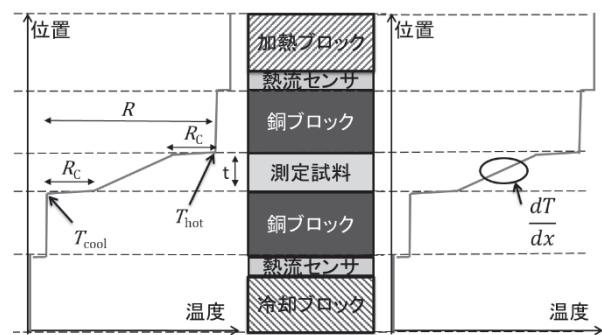


図1 測定系概略図



(a) 従来手法

(b) 開発した手法

図2 温度勾配取得位置

出願番号：2020-89573（出願日：2020年5月22日）

特許番号：7376875（登録日：2023年10月31日）

出願人：名古屋市

# 半金属用吸着材及び半金属元素除去方法

松村大植、中野万敬

金属元素と非金属元素の境界に位置するホウ素やヒ素などの元素は、その両方の性質を示すことが知られており、半金属元素と呼ばれている。半金属元素は、その性質から幅広い分野において使用されているが、人体に有害な元素もあるため、排水中の半金属を効率良く除去する技術が望まれている。半金属除去には、キレート樹脂が一般的によく使用されている。しかし、キレート樹脂は、吸水性が低いため表面のみで吸着が起こり、母材は吸着に関与しないため理論的な吸着量の上限が小さくなるという問題があった。

本発明では、はじめにホウ素がポリビニルアルコールのポリオール構造とキレートを形成することに着目し、ポリオール構造を導入した様々な化合物を調製した。さらに、その化合物を架橋することで水への溶出を防止し、架橋した化合物の半金属に対する吸着性能について調べた。その結果、吸水性が高いが水に溶出し難く、バルク全体で半金属を吸着させることで半金属の吸着効率を高めることが可能な半金属用吸着材及び半金属元素除去方法を見出した。

本発明の吸着材の合成例を図1に示す。ポリエチレンイミン、グルコノラクトンを反応させ、エチレングリコールジグリシジルエーテルで架橋することにより吸着材が得られる。

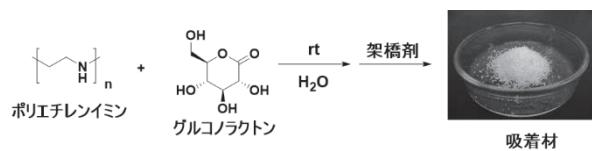


図1 本特許における半金属吸着材

この吸着材は親水性のゲルであり、ゲル内部にも官能基を有するため、母材表面のみで吸着を行う吸着材よりも高い吸着量を示す。また、排液に直接投入した場合でも、ろ過などで容易に取り除くことが可能で、取扱いが簡便である。

合成した吸着材の半金属元素の吸着性能については図2に示す実験方法で評価した。各元素を100 ppmに調整

した試験液を用意し、この試験液 25mL に対して、合成した吸着材を所定量入れて 24 時間攪拌し、その後、吸着材をろ別し、ICP-AES を用いてろ液の分析を行った。各元素の吸着結果を表1に示す。

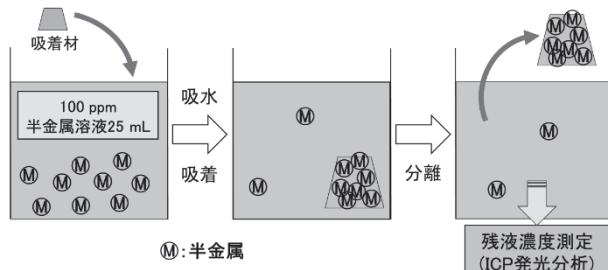


図2 吸着実験方法

表1 各元素における吸着実験結果

元素	吸着材の量 (g)	吸着後残液 半金属濃度 (ppm)	単位重量当たりの 半金属吸着量 (mg-M/g)
B	0.051	76.2	11.7
As	0.301	28.8	5.9
Bi	0.301	2.9	8.1
Ge	0.302	12.0	7.3
Sb	0.299	76.0	2.0
Se	0.300	0.6	8.3
Si	0.303	80.5	1.6
Te	0.301	70.4	2.5
Ca	0.300	97.9	0.2
Ti	0.300	97.3	0.2

この結果から、多くの半金属の吸着効果が確認された。また、半金属ではないカルシウムやチタンについてはほとんど吸着性能がなく、半金属を選択的に吸着していることがわかった。

ホウ素の吸着量における pH の影響を調べたところ、pH が 3 以上 8 以下において良好な吸着が可能であった。また、一度使用した吸着材を再生処理することで繰り返し使用でき、同等の吸着性能が保持された。

出願番号：2019-170427（出願日：2019年9月19日）

特許番号：7352055（登録日：2023年9月20日）

出願人：名古屋市

名古屋市工業研究所研究報告No.109

令和6年1月発行

発行部数 450部

無 料 特定配布

発 行 名 古 屋 市 工 業 研 究 所  
名古屋市熱田区六番三丁目4番41号  
TEL 〈052〉 661-3161（代表）  
編集担当 名古屋市工業研究所支援総括課



