

醤油醸造及び関連微生物に対する希少糖の影響

三好 美玖, 稲津 忠雄, 田村 啓敏*, 何森 健*, 秋光 和也*, 木村 功

希少糖を発酵食品に利用することを目的とし, 醤油醸造工程における希少糖の影響を検討するとともに実用化の可能性を探った. 希少糖含有シロップ (RSS) に含まれる希少糖 (D-allose, D-allulose, D-tagatose 及び D-sorbose) が醤油醸造微生物 (醤油酵母及び醤油乳酸菌) に及ぼす影響を調べたところ, いずれの希少糖にも醸造微生物への阻害効果は認められず, 特に, D-tagatose は醤油乳酸菌の増殖に対して D-glucose と同等の効果を示した. また RSS を用いた醤油醸造試験では醤油酵母により好气的条件で積極的に発酵を行うことで, 希少糖を含み苦味雑味や苦味を抑制した高品質の醤油が醸造できた.

1 緒言

ブドウ糖果糖液糖のアルカリ異性化によって開発された希少糖含有シロップ (RSS) には, allulose (psicose), allose, tagatose, 及び sorbose の希少糖が含まれている¹⁾. RSS は, 食後血糖値の急激な上昇を抑える働きがある機能性表示食品 (E202) として届出が受理されており, 健康を増進する機能性食品素材として幅広い利用が期待されている.

健康増進に効果を発揮するためには, 規定量の機能性成分を含む食品を毎日の食事の一部として継続的に摂取する必要があるが, 少量の機能性成分を様々な食品から摂取することも考えられる. 醤油は「万能調味料」として, 多くの醤油加工品にも広く使用されている^{2) 3)}. 醤油醸造過程において, 糖は微生物の炭素源として利用されるとともにメイラード反応によって醤油に色や風味を与える重要な役割を果たすことが知られている⁴⁾. RSS を醤油醸造原料とした場合, RSS 中の glucose と fructose は醤油の色と風味の形成に関与するだけでなく, 乳酸発酵やアルコール発酵により有機酸とエタノールに変換され, glucose と fructose の量が減少し, RSS を用いたことによる過剰な glucose や fructose の摂取を抑制できると考えられる.

一方, 希少糖は糖として一般的な特性を持つだけでなく, 微生物の増殖を抑制し^{6) 7)}, 味や物理的特性を改善する効果を有している^{8) 9)}. そのため希少糖を使用して食品を発酵させる場合には, 微生物の増殖, 発酵機序, そして最終製品を評価する必要がある. ヨーグルトでは, 希少糖 D-allulose が特定の乳酸菌のプロバイオティクス活性を変えなく酸の生成を阻害する可能性があることが報告⁹⁾されているが, 塩分含量の高い発酵食品の微生物に対する希少糖の影響はまだ解明されていない. そこで本研究では, 希少糖を発酵食品, 特に醤油の発酵に利用することを目的として, RSS に含まれる 4 種類の希少糖が発酵に関与する醸造微生物の増殖に及ぼす影響を調べるとともに, RSS を用いた小規模醤油醸造試験を実施し, 醤油醸造工程における希少糖の影響と商品化の可能性を探った.

2 実験方法

* 香川大学国際希少糖研究教育機構

2. 1 試薬

RSS (固形分あたり glucose 44.3 %, fructose 31.9 %, 希少糖 13.1 % (allulose: sorbose: tagatose: allose, 38:37:14:11))¹⁰⁾ は, 松谷化学工業 (株) から購入した. 希少糖 D-allulose, D-allose, D-tagatose, D-sorbose, L-identol は香川大学国際希少糖研究教育機構から提供を受けた. 他のすべての糖類及び試薬は, 富士フィルム和光純薬 (株) から入手した.

2. 2 微生物の培養条件

醤油醸造試験用微生物として当研究所の保有菌株である醤油酵母菌 *Zygosaccharomyces rouxii* (ZR510) と醤油乳酸菌 *Tetragenococcus halophilus* (No. 1, 3, 6 及び 9) を使用した. 小仕込み試験用の種麹菌は, 醤油醸造種麹スリーダイヤ ((株) 樋口松之助商店) を用いた.

2. 3 希少糖が醸造微生物の増殖と発酵に及ぼす影響

酵母菌 *Z. rouxii* ZR510 の基本培地は, NaCl 14 g, 生醤油 (全窒素 1.72 % (w/v) 及び還元糖 1.70 % (w/v)) 6 mL 及びリン酸二カリウム 0.1 g を蒸留水で 90 mL に定容し 9 mL ずつ試験管に分注後, 121 °C で 15 分間オートクレーブし, 調製した. 醸造微生物の増殖に及ぼす希少糖の影響を検討するため, 20 % (w/v) 希少糖溶液と 20 % (w/v) D-glucose 溶液を 0:5, 1:4, 2:3, 3:2, 4:1, 5:0 の比率で混合した糖溶液を 0.2 µm ディスミックスリンジフィルター 25CS020AS (東洋濾紙 (株)) でろ過した後, 基本培地に糖溶液を 1 mL ずつ無菌的に加えた. 次に, ZR510 (2 % (w/v) glucose を含む基本培地で対数増殖期まで培養した) を 0.1 mL 接種し 30 °C で 7 日間傾斜培養した.

乳酸菌 *T. halophilus* (No. 9) の基本培地は, NaCl 12 g, 生揚醤油 20 mL, リン酸二カリウム 0.5 g 及び酵母エキス 0.3 g を蒸留水で 90 mL に定容し, 培地 pH を 7.2 に調整した後, 9 mL ずつ試験管に分注し 115 °C で 15 分間オートクレーブし, 調製した. 酵母と同様に glucose に対する希少糖を所定の割合に調整した 20 % (w/v) 糖溶液を基本培地に添加した. 次に No. 9 (2 % (w/v) glucose を含む基本培地で対数増殖期まで培養した) 0.1 mL を接種し 30 °C で 10 日間静置培養した.

2. 4 RSS を用いた小規模醤油醸造試験

Luh¹¹⁾ の方法に基づき実施した. 出麹として, 丸大豆 (フクユタカ) を 121 °C で 15 分間オートクレーブした蒸

し大豆 600 g と、小麦(春よ恋)を 250 °C のフライパンで焙煎した割砕小麦 750 g を混合し、27 °C で 3 日間培養した。出麴 1.35 kg を 5.4 L のガラス容器(直径高さ: ϕ 17×24 cm)に入れ、10 °C に冷却した RSS 20 % (w/v) 含む 23 % (w/v) 塩水を 1.8 L 加えてよく混ぜ合わせた(試験ポット B)。また RSS を含まない 23 % (w/v) 塩水のみで調製したものを対照区とした(試験ポット A)。仕込み直後の醤油もろみは麴と塩水の二層に分かれているため、2 週間毎日かき混ぜてもろみを均一にした。

17 日目にもろみ温度を 12 °C に上げ、2 % (w/v) glucose を含む基本培地で 1.0×10^6 CFU/g となるように培養した醤油乳酸菌 *T. halophilus* (No. 1, 3, 6 及び 9 の 4 つの菌株) を添加した。乳酸菌添加後は、もろみ温度を徐々に上げていき、20 日目には 1 % (w/v) glucose を含む基本培地で最終濃度 4.8×10^7 CFU/g となるように培養した醤油酵母菌 *Z. rouxii* ZR510 をもろみに添加した。もろみの温度が 28 °C に達し、発酵が活発になり始める 27 日目までもろみを毎日攪拌し、53 日目まで 28 °C に保ち、その後温度を 20 °C にした。醸造期間中、もろみを定期的に収集し各種成分分析をおこなった。523 日後、もろみをろ過し、ろ液 40 mL を 100 mL の蓋付きガラス容器に入れ蓋をして、恒温槽で 60 °C、1 時間加熱し、続いて 84 °C で 15 分間加熱した。沈殿物を遠心分離(12000 g, 10 分)により除去し、上清を 0.2 μ m Whatman GD/X シリンジフィルター(Cytiva)でろ過したものを醤油 A 及び B とした。

2. 5 各種成分分析

微生物の生菌数(CFU)は衛生試験法注解¹²⁾の培地組成の一部を変更し測定した。醤油酵母菌 *Z. rouxii* は 13 % NaCl (w/v)、10 % 生醤油 (v/v)、1.0 % 寒天 (w/v) を含む PDA(日水製薬(株))培地を使用し、醤油乳酸菌 *T. halophilus* は MRS 寒天(Merck KGaA Darmstadt)に 15 % (w/v) NaCl 及び 0.5 % (w/v) 寒天で pH 7.0 に調製した培地を使用した。

微生物の増殖度は分光光度計 U-2001((株)日立ハイテク)を使用して 600 nm で測定した。培養液ともろみの pH は B-212 Twin pH メーター((株)堀場製作所)を用いた。

培養液及びもろみのエタノール含有量はガスクロマトグラフ GC2014((株)島津製作所)を用い、2-プロパノールを内部標準物質として、Thermon-1000 5 % Sunpak-A(信和化学工業(株))を充填したカラムで測定した。

糖含量はサンプルを電気透析装置 MICRO Acilyzer G1(旭化成(株))で処理した後に定容し、コロナ荷電粒子検出器を搭載した HPLC システムを使用して、Miyoshi ら¹³⁾の方法に基づき分析した。脱塩サンプルの sorbose 含有量は、Kimura ら¹⁴⁾の方法に従って水素化ホウ素ナトリウムで sorbose を還元し、生成した iditol を HPLC で定量することによって算出した。

アミノ酸分析は、サンプルを蒸留水で適宜希釈した後 Amicon Ultra 10k 限外ろ過膜(Merck KGaA)でろ過し、o-フタルアルデヒド(OPA)を反応液とした Shim-pack AMINO-NA カラム(4.0 × 150 mm, (株)島津テクノリサーチ)を用いたポストカラム誘導体化法で分析した。アミノ酸標準液には、アミノ酸混合標準液 H 型(富士フ

ィルム和光純薬(株))を用いた。

有機酸分析では、プロモチモールブルー(BTB)を反応液とし、RSpak KC811 カラム(8.0 × 300 mm, 昭和電工(株))を用いてポストカラム法¹⁵⁾で分析した。

一般成分(全窒素、塩分、エタノール、Brix, pH, 色)は、醤油の日本農林規格¹⁶⁾に基づき分析した。

味の評価は、導電率計 AS650((株)アズワン)を用いて、誘導率を調製したサンプル(醤油 A, 醤油 B, 醤油 A' (醤油 A に醤油 B 中の tagatose 以外の各種糖類(glucose, fructose, allulose, sorbose, allose)が等量になるように糖を添加した)を、味認識装置 SA402B(インテリジェントセンサーテクノロジー(株))で分析した。センサーは、うま味(AAE)、塩味(CTO)、酸味(CAO)、苦味(COO)、渋味(AE1)を使用し、30 mM KCl 溶液と 0.3 mM 酒石酸溶液を参照溶液として用いた。

3 実験結果及び考察

3. 1 希少糖が微生物の発酵に及ぼす影響

図 1 は、glucose と異なる割合で混合した各希少糖が、醤油酵母菌 *Z. rouxii* ZR510 の増殖とエタノール生産性に及ぼす影響を示した。エタノール生産性は、各希少糖の glucose に対する比率の増加とともに直線的に減少した。しかし、D-allose や D-tagatose を炭素源とした場合、glucose を含まない希少糖の存在割合が 100 %

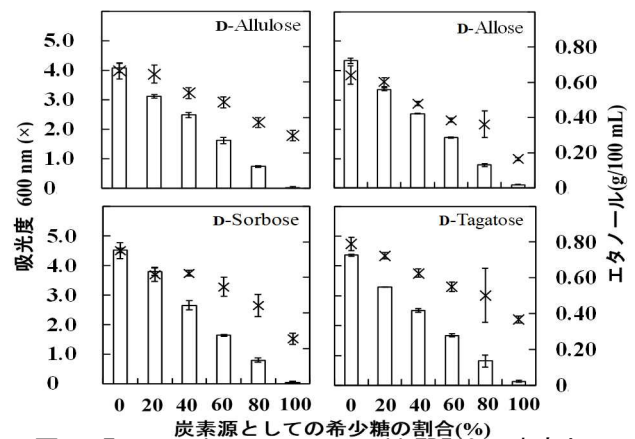


図 1: *Zygosaccharomyces rouxii* ZR510 の生育とアルコール発酵に対する希少糖の影響
×, 吸光度(600 nm); □, エタノール($r=3$)

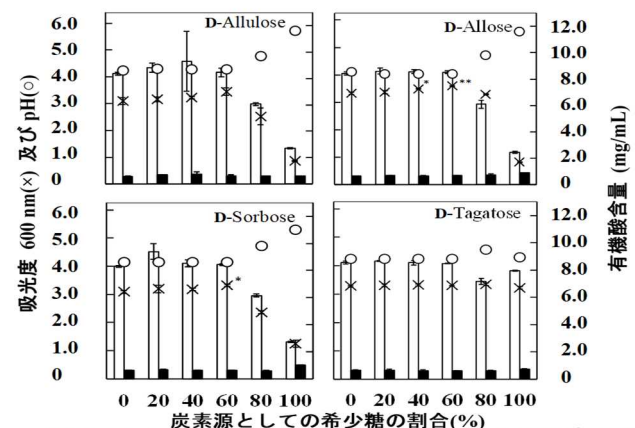


図 2: *Tetragenococcus halophilus* No. 9 の生育と乳酸発酵に及ぼす希少糖の影響

×, 吸光度(600 nm); ○, pH; □, 乳酸; ■, 酢酸
*, $p < 0.05$; **, $p < 0.01$ (0 % 希少糖溶液と比較; $r=3$)

の試験でも微量(0.02%, w/v)のエタノールが検出された。一方、炭素源として D-allulose または D-sorbose のみを用いた場合、エタノールは検出されなかった。RSS に含まれる希少糖 D-allulose, D-sorbose, D-allose 及び D-tagatose は, *Z. rouxii* ZR510 の増殖とエタノール生産に利用されないことが示唆された。

図2は, glucose と異なる割合で混合した希少糖(D-allulose, D-sorbose, D-allose 及び D-tagatose)が, *T. halophilus* No. 9 の増殖と pH に及ぼす影響を示した。D-allose では 40% (危険率 $p < 0.05$) 及び 60% (危険率 $p < 0.01$) において, D-sorbose では 60% (危険率 $p < 0.05$) の希少糖存在下で乳酸菌は有意に増加した。D-tagatose を炭素源とした場合, glucose を含まない場合においても増殖速度は glucose と同等であり, 乳酸量は glucose を炭素源とした場合の約 98% (7.6 mg/mL) だった。また, 炭素源が D-allulose, D-allose または D-sorbose のみの場合においても当該乳酸菌は培地中で増殖し, 乳酸(2.3~2.6 mg/mL)を生産した。一方, 各培地の酢酸量は 100% D-sorbose 培地(1.0 mg/mL)を除いて, すべての培地で 0.7~0.8 mg/mL でほぼ一定であった。希少糖(D-allulose, D-sorbose 及び D-allose) 100%でも菌の増殖や少量の乳酸産生が確認されたのは, 培地に使用した生揚醤油に含まれる 1.70% (w/v) の還元糖(主に glucose)が原因と考えられた。

今回の実験において *T. halophilus* No. 9 は D-tagatose を資化していたため, 本菌株以外の醤油乳酸菌においても希少糖を資化する可能性が考えられる。そのため, 醸造工程で希少糖を安定的に残存させるためには, 醸造中の醤油乳酸菌の増殖を抑える必要が考えられた。稲盛ら¹⁷⁾は, *Pediococcus* (*Tetragenococcus*) *halophilus* は発酵過程で *Saccharomyces* (*Zygosaccharomyces*) *rouxii* と相互作用し, *S. rouxii* が増殖する好氣的条件下(発酵初期段階)において, *P. halophilus* の増殖が阻害されることを報告している。そこで本実験では, 複数の醤油乳酸菌株を使用して, *Z. rouxii* と *T. halophilus* の相互作用による増殖抑制効果を確認するとともに, RSS を用いた醤油醸造試験により *T. halophilus* の増殖が醸造微生物の相互作用によって阻害される可能性を探り, 醸造過程における希少糖の定量化と醸造した醤油の各種成分の解析を行った。

3.2 *Tetragenococcus sp.* の発酵制御による RSS を用いた小規模醤油醸造試験

小仕込み試験における, もろみ中の醤油乳酸菌数とエタノール含有量を図3に示した。もろみ中の醤油乳酸菌数は, 酵母の添加後の攪拌及びエタノール含有量の増加により, 試験ポット A と試験ポット B の両方で $1.1 \sim 1.2 \times 10^6$ CFU/g から 50 日後には 300 CFU/g 未満に減少し, 53 日目にエタノール濃度は 2.8 g/100g と一定値に達したことから, いずれの試験ポットでもエタノールはほぼ同濃度であることが確認された。*Z. rouxii* のエタノール耐性は, 15% 塩分で約 3% であり¹⁸⁾, 本実験の条件下で最大量のエタノールが生成されたと考えられた。

3.3 醸造中のもろみに含まれる単糖含量の推移

醸造中の単糖類の量的変化を図4に示した。主要な単糖類である glucose は, 試験ポット A では 82.76 mg/mL,

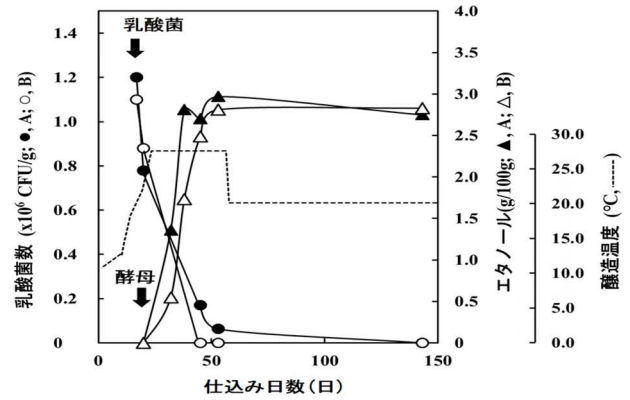


図3: 小仕込み試験の初期発酵における醤油乳酸菌 *Tetragenococcus sp.* の増殖とエタノール含量の推移
●, 試験ポット A (醸造過程で RSS を含まない) の乳酸菌
○, 試験ポット B (醸造過程で RSS を含む) の乳酸菌
▲, 試験ポット A のエタノール含有量
△, 試験ポット B のエタノール含有量
---, 醸造温度; ↓, 乳酸菌と酵母の添加

試験ポット B では 129.17 mg/mL であった(17 日目)。酵母添加後は両試験群とも glucose 含量が急激に減少し, 酵母添加後 26 日目のもろみ中の glucose 含量は試験ポット A で 1.11 mg/mL (81.65 mg/mL 減少), 試験ポット B で 46.28 mg/mL (82.89 mg/mL 減少) であった。

試験ポット A では, 醸造開始時のもろみ中に希少糖は検出されなかったが, *Z. rouxii* ZR510 による発酵が終了した 53 日目に tagatose が 1.64 mg/mL 検出され, 523 日後でも残存していた。一方, 試験ポット B における発酵前(17 日目)の allulose, allose, tagatose 及び sorbose 含量はそれぞれ 5.50, 1.53, 1.10, 6.19 mg/mL であり, 各糖の残存率は, *Z. rouxii* ZR510 による発酵終了時(53 日目)では 89, 31, 60, 及び 83%, 醸造終了時(523 日目)では 95, 34, 68 及び 84% であった。

図4では, 試験ポット A (RSS 添加無) と試験ポット B (RSS 添加有) の醤油原料から遊離する glucose 量に差はないことから, 本実験では RSS の添加が麹の糖分解酵素に影響を与えないことが示唆された。また, 試験ポット B に含まれる希少糖のうち, allulose は醸造中の安定性が高く, 醸造後 523 日も醸造を始めた時期と同程度残存していることが示された。既報¹³⁾において調理

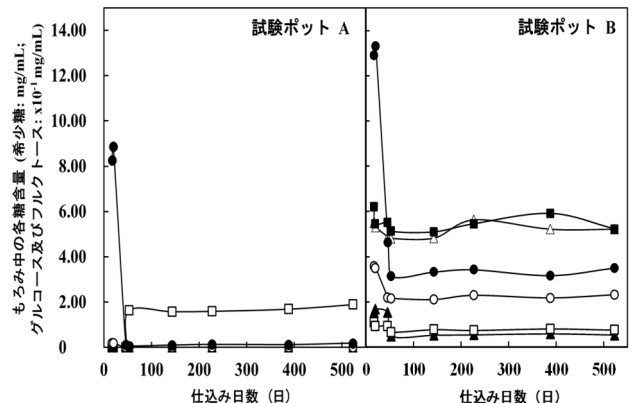


図4: 醤油醸造における各種糖の変化
○, Fructose; ●, Glucose; △, Allulose;
▲, Allose; □, Tagatose; ■, Sorbose

表 1 : JAS 規格による醸造醤油の成分値

	全窒素 (%)	塩分 (%)	エタノール (%)	糖度(Brix) (%)	pH	色
醤油 A	1.59	16.48	3.10	35.3	4.9	15
醤油 B	1.49	16.04	3.03	44.3	4.8	6
本醸造醤油(市販) ^{a)}	1.49	16.20	2.45	36.6	4.9	10

醤油 A は、醸造過程で RSS を含まない試験ポット A のもろみをろ過して得られた醤油。

醤油 B は、醸造過程で RSS を含む試験ポット B のもろみをろ過して得られた醤油。

^{a)}: 吉川ら²⁰⁾の報告より引用した。

条件下で高い割合(86.0~88.5%)で保持されることを報告している。これらの報告に加え本研究により、発酵食品の製造においても RSS に含まれる allulose は高い安定性を有することが確認された。また試験ポット A において確認された tagatose は、原材料の消化¹⁹⁾や麹の酵素による作用ではなく、*Z. rouxii* ZR510 の発酵によって生成したことが示唆された。醤油もろみにおける tagatose の生成は本報告が初めてであり、醤油乳酸菌の増殖を抑制したことが、検出できた原因と考えられた。

3. 4 RSS を配合した醸造醤油の成分

表 1 に醤油 A, B の JAS 規格による分析結果を示した。醤油 A と B の成分値は、色と Brix を除いて市販の醤油と同等であった。醤油 B の全窒素は醤油 A の 94 % であった。エタノール含有量は各試験群で 3 % (w/v) を超えており、市販の醤油と比較しても発酵が優れていたことが示された。醤油 B の糖度は、醤油 A よりも 9 % 高かった。pH は、醤油 A, B とも市販品と同等であった。各醤油の pH に関連する有機酸を分析した結果、醤油 A 中にはクエン酸、乳酸及び酢酸が 7.29, 0.68 及び 1.15 mg/mL、醤油 B ではそれぞれ 6.88, 0.40 及び 1.03 mg/mL 含まれていた。また色度は醤油 B の方が醤油 A よりも低く、顕著に濃いことが分かった。

RSS の添加により炭水化物分解酵素は阻害されなかったが(図 3)、全窒素含有量は醤油 A に比べて醤油 B が低かったため、RSS の添加によりタンパク質分解酵素が阻害されることを確認した(表 1)。醤油の有機酸分析によって、pH に関連する主要な有機酸はクエン酸であった。今回の実験では、発酵初期に *Z. rouxii* が生育させることにより、*T. halophilus* による乳酸発酵が抑制され、主要な有機酸として原料由来のクエン酸が残存したと考えられた。

醤油の色が濃くなる要因として高濃度の糖が影響していることが報告⁴⁾されている。特に RSS を添加した醤油 B は、fructose と glucose の含有量が多いためメイラード反応性が高く、着色したと考えた。

3. 5 味認識装置による味覚比較

醤油 A, B 及び B と同量の糖類を含む醤油 A' を味認識装置で分析した結果を図 5 に示した。醤油 A, A' 及び B をそれぞれ比較すると、うま味、苦味雑味や苦味に有意な差が確認された。特に、醤油 B は醤油 A' よりも苦味雑味や苦味が有意に低かった(危険率 $p < 0.01$)。苦味に関連すると考えられる塩基性アミノ酸を分析した結果、醤油 A ではアルギニン 4.98, ヒスチジン 1.40 mg/mL, リジン 3.97 mg/mL であり、醤油 B ではそれぞれ 3.52, 0.77 及び 2.71 mg/mL であった。醤油 B の塩基性アミノ

酸含量は、醤油 A よりも 30, 45 及び 32 % 低かった。

稲垣ら²¹⁾は、メイラード反応時間の増加に伴い、発酵アルコール飲料製造中の塩基性アミノ酸(リジン, ヒスチジン及びアルギニン)が減少することを報告している。吉田らは、アルギニン, ヒスチジン及びリジンの苦味の閾値はそれぞれ 0.05, 0.02 及び 0.05 g/dL であり²²⁾、醤油 A と醤油 B のアミノ酸含有量の差は、味の閾値よりも高く、醤油の苦味に影響していることが考えられた。

また、醸造工程で添加した RSS 中の allulose は残存率が高く、将来的に健康増進調味料として利用できる可能性が示唆された。醤油情報センター²³⁾の統計データによると、2020 年の 1 人 1 日当たりの醤油消費量は 15.3 mL であり、本研究の試作醤油に換算すると 1 人 1 日当たり希少糖を合計約 184 mg 摂取することになる。山田ら¹⁰⁾は、砂糖の代わりに RSS 由来の希少糖 allulose, sorbose, tagatose 及び allose を合計 0.8g (RSS 換算 8.8 g) 摂取すると、摂取後の血糖反応が低下することを報告している。したがって、本実験で醸造した醤油を日常的に使用すれば、健康増進に必要な量の約 4 分の 1 を摂取できることがわかった。一方、発酵によって 4 つの希少糖の組成が元の RSS の組成と異なっていたため、発酵過程で希少糖を安定に保持するためには、さらなる研究が必要である。今回の研究で、RSS が醤油の味を改善することが明らかとなったため、現在、他の発酵食品の香りや風味特性への影響を検討している。

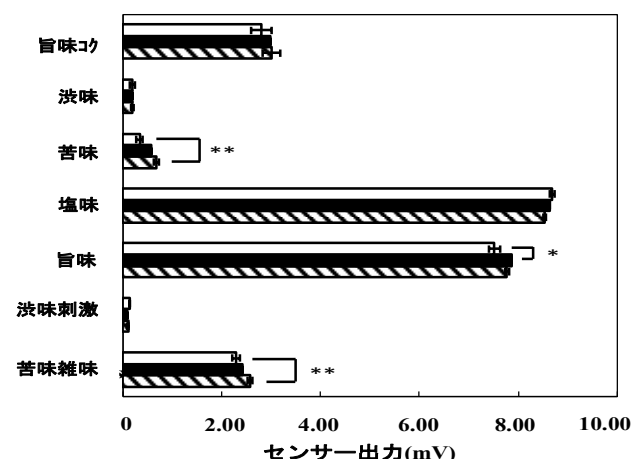


図 5 : 味認識装置を用いた醤油の味覚分析 (醤油 A, 醸造過程で RSS を含まない試験ポット A から調製した醤油; 醤油 B, 醸造過程で RSS を含む試験ポット B から調製した醤油; 醤油 A', 醤油 B と等量の糖類になるよう醤油 A に各種糖を添加した)

■, 醤油 A; □, 醤油 B; ▨, 醤油 A'

*, $p < 0.05$; **, $p < 0.01$. ($r = 3$)

4 結 言

塩分を含む発酵食品に希少糖を利用し、微生物の発酵工程における希少糖の変化を定量化した初めての報告である。RSSに含まれる希少糖(D-allulose, D-allose, D-tagatose及びD-sorbose)は、*Z. rouxii* ZR510または*T. halophilus* No. 9の増殖を抑制しなかった。乳酸発酵を抑えた小規模醤油醸造試験では、RSS無添加でも醸造53日目のもろみにはtagatoseが生成され、また発酵初期にRSSを添加し醤油醸造を行うとallulose 95%, allose 34%, tagatose 68%及びsorbose 84%が醸造終了時まで残存していた。また、JAS規格で評価すると、本醸造醤油と同等(色と糖度を除く)の成分値であることを確認した。さらに、味認識装置を用いて味覚を評価したところ、苦味雑味や苦味が少ないことが明らかとなった。RSSによる小規模醤油醸造試験の結果、RSSは醸造微生物の働きを阻害することがないため、醤油醸造だけでなく、味噌、魚醤、漬物等の塩を含む発酵食品にも幅広く利用できることが明らかとなった。

謝辞

本報告に際して研究補助に携わった香川県産業技術センター元職員 藤井玲子氏、竹歳麻耶氏に心より感謝いたします。

(本報告は *Food Science and Technology Research*, **29**, 15-25 (2023) より抜粋した。)

参考文献

- 1) 高峰啓, 中村雅子, 飯田哲郎, 大隈一裕, 何森健: アルカリ異性化を用いた希少糖含有シロップの製造方法および α -グルコシダーゼの阻害作用, *応用糖質科学*, **5**, 44-49 (2015).
- 2) 奥沢洋平: 醤油の多様化と加工品, *日本醸造協会誌*, **89**, 775-780 (1994).
- 3) 高島正一: 醤油の多様化と周辺調味料について, *日本醸造協会誌*, **86**, 115-119 (1991).
- 4) 茂田井宏: 醤油の褐変, *日本食品工業学会誌*, **23**, 372-384 (1976).
- 5) Zhao, G., Ding, L.-L., Yao, Y., Cao, Y., Pan, Z.-H., and Kong, D.-H: Extracellular proteome analysis and flavor formation during soy sauce fermentation, *Front. Microbiol.*, **9**, 1872 (2018).
- 6) Mochizuki, S., Fukumoto, T., Ohara, T., Ohtani, K., Yoshihara, A., Shigematsu, Y., Tanaka, K., Ebihara, K., Tajima, S., Gomi, K., Ichimura, K., Izumori, K., and Akimitsu, K: The rare sugar D-tagatose protects plants from downy mildews and is a safe fungicidal agrochemical, *Commun. Biol.*, **3**, 423 (2020).
- 7) Sato, M., Ueno, Y., Sawamura, Y., Kajikawa, K., Kimura, Y., Yokoyama, K., and Izumori, K: Growth inhibition of obligately oligotrophic soil bacteria by carbohydrates, amino acids and vitamins, *Tech. bull. Fac. Agr. Kagawa Univ*, **45**, 31-40 (1993).
- 8) Innun, A., Hayakawa, S., Ogawa, M., and Sun, Y: Effect of bovine globin and globin-sugar complexes on rheological properties of dough and bread, *Food Sci. Technol. Res.*, **13**, 332-337 (2007).
- 9) Kimoto-Nira, H., Moriya, N., Hayakawa, S., Kuramatsu, K., Ohmori, H., Yamasaki, S., and Ogawa, M: Effect of rare sugar D-allulose on acid production and probiotic activities of daily lactic acid bacteria, *JJ. Daily Sci.*, **100**, 5936-5944 (2017).
- 10) 山田貴子, 新谷知也, 飯田哲郎, 岸本由香, 大隈一裕: ヒトにおける希少糖含有シロップ摂取による血糖応答に及ぼす影響, *日本栄養・食糧学会誌*, **70**, 271-278 (2017).
- 11) Luh, B.S: Industrial production of soy sauce, *J. Ind. Microbiol.*, **14**, 467-471 (1995).
- 12) 三好伸一, 渡部一任: 1.2 微生物試験法, 「衛生試験法・注解 2010」, 公益社団法人日本薬学会編, 金原出版株式会社, 東京, pp. 55-128 (2010).
- 13) Miyoshi, M., Kimura, I., Inazu, T., Izumori, K: High sensitivity analysis and food processing stability of rare sugars, *Food Sci. Technol. Res.*, **25**, 891-901 (2019).
- 14) Kimura, I., and Tajima, S: The mode of action of two endo-1,4- β -D-xylanase from *Aspergillus sojae* on various xylooligosaccharides, *J. Ferment. Bioeng.*, **85**, 283-288 (1998).
- 15) Shodex: ポストカラム法を用いた有機酸分析 <https://www.shodex.com/ja/dc/03/08/22.html> (2023年4月6日取得)
- 16) 農林水産省: しょうゆ JAS1703, 「日本農林規格」, (2021年1月25日改正).
- 17) 稲森和夫, 宮内謙吉, 内田一生, 吉野宏: 醤油乳酸菌と酵母の相互作用, *日本農芸化学会誌*, **58**, 771-777 (1984).
- 18) 久寿米木一裕: 耐塩性酵母の育種および醤油・味噌醸造への応用, *日本醸造協会誌*, **96**, 33-42 (2001).
- 19) Levin, G.V: Tagatose, the new grass sweetener and health products, *J. Med. Food.*, **5**, 23-36 (2002).
- 20) 吉川茂利, 戸井田仁一, 関崎勝盛, 岡村ゆき子, 近藤君夫: 市販しょうゆの品質(36), *長野県工業技術総合センター研究報告*, **4**, 1-6 (2010).
- 21) 稲垣圭祐, 大久保和也, 松尾壮昌, 石川順也: メイラード反応により色度, 香味を調整した発酵アルコール飲料の製造方法. 特許第 6139883 号, 5月31日 (2017).
- 22) 吉田正昭, 二宮恒彦, 池田真吾, 山口静子, 吉川知子, 小原正美: アミノ酸の呈味に関する研究(第1報), *日本農芸化学会誌*, **40**, 295-299 (1966).
- 23) 醤油情報センター: 2020年実績, 「醤油の統計資料」.

ズイナからの酵母探索

稲津 忠雄, 竹歳 麻耶, 大西 茂彦

酵母はパンや清酒の製造等, 食品製造に広く用いられており, 自然界から新規な酵母を取得する取り組みが盛んに行われている. 今回, 植物で唯一希少糖 D-アルロースを含有することが知られているズイナの花から酵母の分離を試みた. 分離できた2株は *Saccharomyces cerevisiae* と同定された.

1 緒言

国内では特徴あるパンや清酒を作るために, 地域の果実や花から酵母を選抜して特徴ある製品作りの試みが多数報告されている¹⁻⁴⁾. ズイナは, 希少糖であるD-アルロースを多く含むことが確認されている珍しい植物である⁵⁾. 本研究では, まずズイナの花蜜の糖組成を確認するとともに, ズイナ花からの有用酵母 (*Saccharomyces cerevisiae*) の分離を試みた.

2 実験方法

2.1 ズイナ

ズイナ(「希少糖の木®」)は, 香川大学農学部で開発された組織培養法をもとに, 香川県三木町小菘にある松谷化学工業株式会社 希少糖生産技術研究所で生産された苗を譲り受け, 香川県さぬき市内で栽培されたものを使用した.



写真1 ズイナ

2.2 ズイナの糖分析

ズイナは総状花序に, 小花をつけるため, 花軸(茎)から花柄を切り離し60小花をPFA攪拌棒を用い試験管内で磨砕した後, 超音波抽出, No.2ろ紙でろ過を行い10mLに定容した. ズイナの花蜜については, ズイナの各小花の子房と雄蕊の間からマイクロピペットによる吸引により蜜を回収し水で希釈して10mLに定容した. HPLCによる糖分析は既報⁶⁾に基づき行った.



写真2 ズイナの花

矢印: 蜜回収部

2.3 培地の調製

2.3.1 集積培養用培地

清酒醸造法を参考にした方法⁷⁾により調製した. また, 高濃度グルコースを利用した方法⁷⁾のグルコースを希少糖含有シロップ(RSS)に置換した培地も調製した.

2.3.2 トリフェニルテトラゾリウムクロライド(TTC)染色法用 TTC下層培地および上層培地

大西の方法⁸⁾に準じて調製した.

2.4 ズイナからの酵母分離および集積培養

開花したズイナを枝先の総状花序ごとにピンセットとハサミで採取して, 無菌的にラミジップ中(生産日本社, LZ-10)の集積培養用培地に加え, 25°Cでインキュベートした. ラミジップは1日1回培養液を攪拌し, 培養液の状態を観察した.

2.5 TTC染色法による酵母の選別

ラミジップ内の培養液が濁り, ガス発生が起こったものをYPD寒天培地に塗抹し, 単一コロニーを得て, TTC下層培地にディスポールブニードル型を用いて画線した. 画線したTTC下層培地は30°C, 3日間インキュベートし, 培養後のTTC下層培地にTTC上層培地を重ねし, 30°C, 2時間放置後, 濃い赤に着色したコロニーを種の同定に供した.

2.6 rDNA領域の増幅による種の同定

分離した酵母のITS1領域のポリメラーゼ連鎖反応(PCR)はFungal rDNA(ITS1) PCR Kit Fast(タカラバイオ)を用いて行った. ポジティブコントロールとして, 上記キット付属の *S. cerevisiae* DNAもPCR増幅した. PCR増幅産物は, 2%アガロースゲル電気泳動法(x1 TBE緩衝液, エチジウムブロマイド染色)に供し, 泳動距離の比較を行った.

3 結果および考察

3.1 ズイナの各部位の糖分析結果

図1にズイナ小花の糖分析結果を示す. 図1に示すとおり, 今回の試験ではスクロース(Suc), D-グルコース(Glc), D-フルクトース(Fru), D-アルロース(Alu), アリトール(Allitol)の5種類が主要糖として検出された. 一般に花蜜は, 花の種類によって異なるが, 主要な糖としてはSuc, Glc, Fruが知られており⁹⁾, また, ズイナの葉, 茎, 花の主要な成分としてAluとAllitolであるとの報告⁵⁾があり, 図1に示すような5種類の糖が検出されたものと考えられた.

さらに, ズイナ花の蜜部分のHPLC結果(図2)をみ

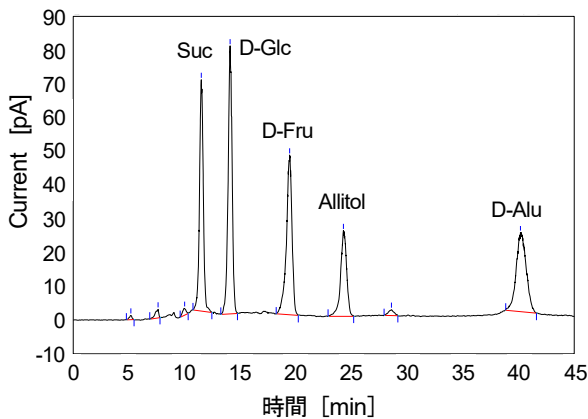


図1 ズイナ小花抽出液の糖分析結果

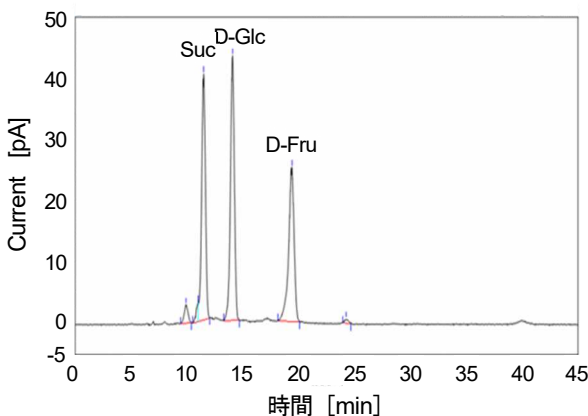
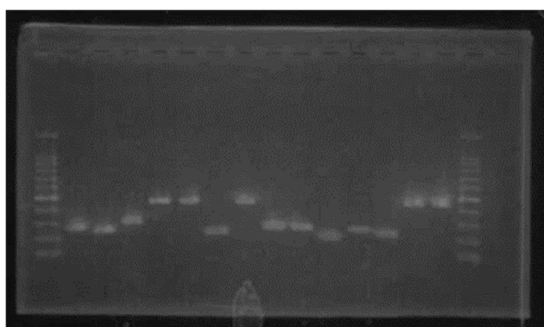


図2 ズイナ小花の蜜の糖分析結果

ると、AluとAllitolのピークは極小となり、一般的な花蜜と同じSuc、Glc、Fruの主要3糖となっていることが分かり、有用酵母検出の可能性が確認できた。

3. 2 ズイナ花からの有用酵母の分離

300個の総状花序を各々採取し、有用酵母の分離を試みた。集積培養用培地のガス発生、濁りを生じた培養液が得られたのでTTC染色に供した。赤に染まった呼吸活性が旺盛な酵母について、PCRによるrDNA ITS領域の増幅を行い、増幅産物を2%アガロースゲル電気泳動に供した(図3)。



レーン 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16

図3 rDNA ITS領域PCR増幅産物の電気泳動例

1: ラダーマーカー(100 bp), 2~5: 分離酵母, 6: *S. cerevisiae*(ポジティブコントロール), 7~14: 分離酵母, 15: *S. cerevisiae*(ポジティブコントロール), 16: ラダーマーカー(100 bp)

電気泳動の結果、ポジティブコントロールである *S. cerevisiae* DNA のPCR増幅産物と同じ約450 kbのバンドを示す4株が得られた。それ以外の株についてはPCR増幅産物の泳動距離から *S. cerevisiae* とは属の異なる

酵母様真菌と推測された。さらにこの4株のPCR増幅産物のシーケンス情報(外部委託)から、これら内2株が *S. cerevisiae* であることが確認された(図4)。



図4 分離酵母の光学顕微鏡写真

今回、清酒醸造法を参考にした方法⁷⁾に基づき調製した集積培養用培地から有用酵母を採取できたが、高濃度RSS培地では採取できなかった。*S. cerevisiae*はアルロースを資化しないこと¹⁰⁾、ズイナの蜜にはアルロースがほとんど含まれていないことから集積培養用培地の糖源としてRSSを配合することは、今回標的にした *S. cerevisiae* の探索には特に有利に働くものではなかった。今後、採取できた *S. cerevisiae* の性質、生地発酵性等の食品への適用可能性を調べていく予定である。

4 結言

植物で唯一D-アルロースを含有するズイナの花から酵母を探索した結果、*S. cerevisiae* 2株を得た。今後は、分離した酵母の食品への適用可能性を確認する。

参考文献

- 1) 間瀬雅子, 瀬見井純, 幅靖志, 小野奈津子, 安田(吉野)庄子, 高村玲子, 中莖秀夫: 花卉などから分離した *Saccharomyces cerevisiae* の製パン適性評価, あいち産業科学技術総合センター研究報告, **2**, 72-75 (2013).
- 2) 横堀正敏, 鶴藺大, 渡辺泰成, 増田こずえ, 橋本麻里: 微生物利用に関する研究(2)-新規酵母の分離と食品への応用-試料の採取と酵母の分離-, 埼玉県産業技術総合センター研究報告, **4**, 59-61 (2006).
- 3) 都築正男, 大橋正孝, 清水浩美: ササユリからの酒造酵母の分離とその醸造特性, 奈良県産業振興総合センター研究報告, **41**, 5-11 (2015).
- 4) 数岡孝幸: 清酒製造用酵母の分離および実用化, 日本醸造協会誌, **110**, 298-305 (2015).
- 5) Hough, L. & Stacey, BE.: The occurrence of D-ribohexulose in *Itea illicifolia*, *Itea virginica*, and *Itea yunnanensis*, *Phytochemistry*, **2**, 315-320 (1963).
- 6) 稲津忠雄, 藤井玲子, 竹内ちひろ: コロナ荷電粒子検出器を用いたD-アロース分析方法の検討, 香川県産業技術センター研究報告, **17**, 1-2 (2016).
- 7) NBRC ニュース No.42 (2016.12.1), https://www.nite.go.jp/nbrc/cultures/others/nbrcnews/news_vol42.html.
- 8) 大西茂彦: 香川県産オリーブからの醸造用酵母の探索, 香川県産業技術センター研究報告, **17**, 63-64

- (2016).
- 9) 渡辺敏幸, 元村佳恵, 麻生清: 蜂蜜および花粉に関する研究 (第4報) 花蜜及び蜜囊中の糖組成について, 日本農芸化学会誌, **35**, 1038-1041 (1961).
- 10) Sawettanun, S. & Ogawa, M. : Influences of rare sugar D-allulose on the fermentation ability of baker's yeast and the physical properties of bread, *Int. J Food Sci. Technol.*, **57**, 6004-6015 (2022).

協働ロボットと自律移動ロボットを組み合わせた モバイルマニピュレータによるドア開け動作の検証

福本 靖彦, 神内 杜夫, 坂東 慎之介, 竹中 慎, 小林 宏明, 長谷見 健太郎, 高原 茂幸

本研究では、協働型のアームロボットを、磁気テープ等のガイドなしに自律走行可能な移動ロボットに搭載して構築したモバイルマニピュレータでドアの押し開け動作を行った。ドアの操作を行う際、協働ロボットと自律移動ロボットが適切に協調しないと、ドアを無理な方向に押ししてしまうことで過大な力が生じ、ロボットが非常停止する場合がある。本研究ではOttらの提案した手法を応用し、ドアの押し開けと引き開け動作を実現した。

1 緒言

本県では、生産年齢人口の減少による人手不足・人材不足の問題に対し、第4次産業革命への対応やロボットの活用等による生産性向上といった対応策を推し進めている¹⁾。ロボットの使われる典型的な場面は、自動車工場などの大量生産現場に据え付けられ、決められた単一動作を行うというものである。ただ、そのような使い方は既に広く普及しており、現在直面している人手不足問題を解消するにはこれまでロボットが使われていなかったような場面でもロボットを活用することが求められている。

このような状況の中、自律移動ロボットに協働ロボットを搭載したモバイルマニピュレータタイプのロボットが多く提案され、注目を集めている²⁾。自律移動ロボットは磁気テープなどのガイドを設置しなくても、地図上で指定した地点へ人や障害物を回避しながら自動で走行する台車型ロボットである。そして、協働ロボットは人や物に衝突すると衝突力を検知して安全に停止できるため安全柵を設置しなくても運用できるアーム型ロボットである。これらを組み合わせることで、ロボットが様々な場所で作業を行うことができるようになる。これまでロボットを設置しても空き時間が長くなって費用が見合わないと思われていた作業についても、そのような作業を複数集めて1台のモバイルマニピュレータでこなせば費用が回収できるようになる場合がある。具体的には、複数の工作機械に加工部材を供給する作業をロボット化した取り組みなどが知られている³⁾。

協働ロボットを自律移動ロボットに搭載したことで、様々な場所で作業を行うことができるようになるが、自律移動ロボットには移動できない場所も存在する。例えばドア、エレベータ、大きな段差がある場所や階段、ガラスの壁などセンシングが容易でない障害物がある場所などが挙げられる。しかし、これらの中でドアとエレベータについては、移動ロボットとアームロボットが適切に協調動作することで克服できると考えられる。本研究ではその二つのうち、ドア開け動作について検討を行った。

ドア開け動作を行うには、まず移動ロボットがドアの前に移動し、続いてドアハンドルを把持し、ドアハンドルをひねってラッチを解除し、そしてドアがヒンジ周り



図1 モバイルマニピュレータによるドアの押し開け

の回転しかできないことを考慮した上でドアを押しやり引いたりしてドアを大きく開ける、という一連の動作を行う必要がある。ドアの把持は、あらかじめドアハンドルの形状が分かっている場合や、ドアハンドルの近くに二次元マーカ等貼りつけることが可能な場合は、ビジョンセンサを用いて容易に実現可能と考えられる。またドアハンドルをひねる動作もアームロボットのみで可能な動作であり比較的容易と思われる。一方、ドアのヒンジ部での拘束を考慮してドアを大きく開くという動作は移動ロボットとアームロボットの両方が適切に動作しないと実現できない複雑な動作である。したがって本研究ではヒンジ部の拘束を考慮してドアを大きく開く動作だけを取り出して検討を行った。

ドアを大きく開く動作について技術調査を行ったところ、多くの研究では、研究用の特別なロボットでは実現可能であるが、市販されている協働ロボットや自律移動ロボットでは実現が困難な手法が用いられていた。そのような中、比較的有望な手法としてOttらによる手法⁴⁾があったが、これもまた完全にそのまま一般的なロボットに実装することは困難であったので、本研究ではその一部を修正して実装を行った。

最終的に、押し開け動作は実現できた(図1)が、成功率には課題が残った。またOttらは行っていなかった引き開け動作についても検討を行ったところ、引き明け動作については問題なく実現ができた。

2 Ottらの手法⁴⁾

アームロボットの運動方程式を

$M(q)\ddot{q} + C(q, \dot{q})\dot{q} + g(q) = \tau_m + \tau_{ext}$ (1)
とする。なお、 q はアームロボットの関節の角度であり、 $M(q)$ 、 $C(q, \dot{q})\dot{q}$ 、 $g(q)$ はそれぞれ慣性項、遠心力とコリオリ力に関する項、重力項である。 τ_m は関節のアクチュエータが発生するトルクであり、 τ_{ext} は手先に作用する外力の等価トルクである。

Ottらの手法は移動ロボットをドアの前に停止させ、アームロボットがドアレバーを把持し、ドアレバーをひねる。そしてアームロボットの関節に以下のトルクを発生させた状態で、移動ロボットを前進させるものである。

$$\tau_m = g(q) - \frac{\partial V(q)}{\partial q}, \quad (2)$$

$$V(q) = \frac{1}{2}k_r(p_r - r_0)^2 + \frac{1}{2}k_z(p_z - z_0). \quad (3)$$

なお、 p_r と p_z は円筒座標系で考えたときのロボットの
手先位置の径方向成分と高さ方向成分である。 k_r 、 k_z 、 r_0 および z_0 は設計者が決めるパラメータであり、 k_r と k_z は剛性係数を表し、 r_0 と z_0 は剛性の基準位置を表す。座標系の原点は移動ロボット上に固定しており、Ottらはその位置を移動ロボットの前方寄りとするを推奨している。

このように関節トルクを発生させると、円筒座標系の径方向と高さ方向はロボットの
手先の位置が初期位置からほぼ一定となり、その他の方向は外力にしたがって自由に動作するようになる。Ottらのドア開け動作の概念図を図2に示す。実線の円は半径 r_0 の円で、ロボットの
手先はほぼこの円上にあると考えられる。破線の円はドアレバーが取りうる位置である。ロボットが
ドアレバーを把持しているため、二つの円の交点付近にロボットの
手先とドアレバーは位置することになる。図2(a)の状態から移動ロボットが前進すると、図2(b)のように交点の位置が移動し、ドアが押し開けられる。

この手法を一般的に産業界で用いられているロボットに実装しようとすると、以下の問題がある。

- ・関節トルクを指令値として動作するアームロボットはKUKA社のLBR iiwaや、Franka Emika社のPandaぐらいであり⁵⁾、一般的ではない。
- ・ $g(q)$ を計算するために動力学パラメータ（リンクの重量や重心位置など）が必要であるが、一般に公開されているデータではない。

3 提案手法

本研究では、Ottらの手法と同様の特性を実現するため、以下のインピーダンス特性をアドミタンス制御（位置制御ベースインピーダンス制御）により実装することとした。

$$\hat{M}\dot{v} + \hat{C}v + \hat{K}(p - p_0) = f_{ext}. \quad (4)$$

ここで、 $p \in R^6$ は直交座標系での手先位置、 $v \in R^6$ は手先速度、 $f_{ext} \in R^6$ は手先に作用する外力である。 $\hat{M} \in R^{6 \times 6}$ と $\hat{C} \in R^{6 \times 6}$ は設計者の決定するパラメータでそれぞれ慣性係数、粘性係数である。 $\hat{K} \in R^{6 \times 6}$ は剛性係数、 $p_0 \in R^6$ は剛性の基準位置であり、

$$\hat{K} = \text{diag}(k_r, k_r, k_z, 0, 0, 0), \quad (5)$$

$$p_0 = [r_0 \cos(\theta), r_0 \sin(\theta), z_0, 0, 0, 0]^T \quad (6)$$

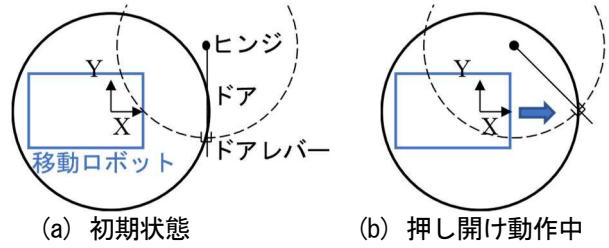


図2 Ottらの手法の概念図

表1 実験に用いた装置

装置	型番（メーカー）
移動ロボット	MiR100 (Mobile Industrial Robots)
アームロボット	UR10 (Universal Robots)
DC/ACコンバータ	FI-S1503A-24VDC (未来舎)
カセンサ	HEX-H (OptoForce/OnRobot)
グリッパ	2F-85 (Robotiq)

である。

式(4)のインピーダンス特性はOttらの手法のインピーダンス特性とは慣性項と粘性項の値が異なる。しかし、円筒座標系の径方向と高さ方向は手先の位置が初期位置からほぼ一定となり、その他の方向は外力にしたがって自由に動作するという特性は同様に実現される。

4 実験

モバイルマニピュレータによるドア開け実験を行った。用いた装置の詳細は表1の通りである。アームロボットは移動ロボットの中央に設置し、座標系原点はアームの根本から前方に0.2 mずらした位置とした。座標系のX軸は移動ロボットの前方とし、Z軸は鉛直上向きとし、Y軸は座標系が右手系となるようにとった。ドアの幅は約0.9 mである。ドアノブは握り玉タイプであったが、市販のタッチメントを取り付けてレバータイプとした。ドアレバーをひねる動作を省くために、ドアのラッチ部は粘着テープで無効化した。

\hat{M} 、 \hat{C} 、 \hat{K} の値はロボットの動作が重くなりすぎず、ドア開け通過動作中に手先位置が不安定にならないよう試行錯誤により調整した。剛性パラメータはOttらと同じ値を採用した。これらの具体的な値を以下に示す。

$$\hat{M} = \text{diag}(0.1, 0.1, 0.1, 0.001, 0.001, 0.001), \quad (7)$$

$$\hat{C} = \text{diag}(2, 2, 2, 0.2, 0.2, 0.2), \quad (8)$$

$$\hat{K} = \text{diag}(1000, 1000, 1000, 0, 0, 0). \quad (9)$$

なお \hat{M} 、 \hat{C} 、 \hat{K} の単位は並進方向が $[N/(m/s^2)]$ 、 $[N/(m/s)]$ 、 $[N/m]$ で、回転方向が $[N m/(rad/s^2)]$ 、 $[N m/(rad/s)]$ 、 $[N m/rad]$ である。また、アームロボットの手先の回転方向の動作において、Z軸周りの動作は手先をドアノブの方向に合わせるために必要であるが、それ以外の方向の回転動作は不要である。また、もし不必要にドアレバー周りに手先を回転させてしまうとZ軸方向の並進動作を生じさせるなど無駄な動作に繋がる。そこでカセンサで取得されたモーメント情報についてはZ軸成分だけを抽出して利用した。式(4)のインピーダンス特性はアドミタンス制御により実現した。この実装についての詳細は付録に示す。

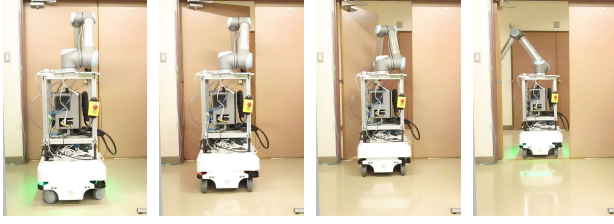


図3 押し開け実験



図4 引き開け実験

移動ロボットの初期状態はドア手前の位置に停止した状態とした。アームロボットの初期状態はドアレバーを把持した状態とした。この状態で移動ロボットを速度0.1 m/s で1.5 mほど前進あるいは後退させた。本研究では押し開け動作と引き開け動作の検証を行った。

実験の結果、押し開けも引き開けも可能であることが分かった。図3、4に動作の様子を示す。ただし、押し開け動作については手先に作用する力が非常に大きくなり、力センサが過負荷エラーで停止してしまう場合も多かった。この改善については今後の課題である。

5 結言

本研究では協働ロボットを自律移動ロボットに搭載して構築したモバイルマニピュレータによりドアの押し開け動作と引き開け動作を行った。特に本研究ではドアハンドルを把持し、ドアハンドルをひねった後の動作である、ドアのヒンジ部の拘束を考慮してドアを大きく開く動作を扱った。既存研究にインピーダンス制御を応用してドアの押し開け動作を行ったOttらの研究があるが⁴⁾、これは一般的な協働ロボットに実装することが困難であった。そこで本研究では、インピーダンス制御をアドミタンス制御に変更するとともに、動力学パラメータに依存する変数を適当な定数で置き換える修正を行った。実験の結果、修正された手法でもドアの押し開け動作が実現可能であることが確認できた。更に、Ottらが行っていなかった引き開け動作についても検証を行い、これも実現可能であることを確認した。なお、押し開け動作については手先に作用する力が非常に大きくなり、力センサに過負荷によるエラーが発生する場合も多かったため、これを改善することが今後の課題である。

参考文献

- 1) 香川県 商工労働部 産業政策課：香川県産業成長戦略～力強く着実に成長していく香川の経済社会を目指して～（平成30年3月改訂）（2018）。
- 2) 自走し始めたロボットアーム、活躍の場は工場の外へ 人との共同空間でピッキングと搬送を1台でこなす、日経ロボティクス, No. 41, pp. 5-13,

(2018)。

- 3) 自律移動し始めた双腕ロボ、工場内を自ら回り作業 日本ピストンリングが部品搬送とピッキングに導入、日経ロボティクス, No. 16, pp. 18-23 (2016)。
- 4) C. Ott, B. Bäuml, C. Borst and Hirzinger: Autonomous Opening of a Door with a Mobile Manipulator: A Case Study, IFAC Proceedings Volumes, Vol. 40, No. 15, pp. 349-354 (2007)。
- 5) 山野辺：マニピュレーションにおける力制御の研究動向、計測と制御, Vol. 56, No. 10, pp. 741-746 (2017)。

付録 アドミタンス制御のUR10への実装

サンプリング周期を T とし、 n サンプル目の手先位置と力を p_n , f_n とする。また

$$p_n = [x_n, y_n, z_n, \theta u_{x,n}, \theta u_{y,n}, \theta u_{z,n}]^T, \quad (A1)$$

$$\omega_n = [\omega_{x,n}, \omega_{y,n}, \omega_{z,n}]^T = [\theta \dot{u}_{x,n}, \theta \dot{u}_{y,n}, \theta \dot{u}_{z,n}]^T, \quad (A2)$$

$$f_n = [f_{x,n}, f_{y,n}, f_{z,n}, f_{rx,n}, f_{ry,n}, f_{rz,n}]^T, \quad (A3)$$

$$\hat{M} = \text{diag}(m_t, m_t, m_t, m_r, m_r, m_r), \quad (A4)$$

$$\hat{D} = \text{diag}(d_t, d_t, d_t, d_r, d_r, d_r), \quad (A5)$$

とする。

式(4)の並進部分について、差分法により加速度項と速度項を離散値で近似して整理すると、

$$x_{n+1} = \frac{(4m_t - 2k_r T^2 \left(1 - \frac{r_0}{r}\right))x_n + (d_t T - 2m_t)x_{n-1} + 2T^2 f_x}{2m_t + d_t T}, \quad (A6)$$

$$y_{n+1} = \frac{(4m_t - 2k_r T^2 \left(1 - \frac{r_0}{r}\right))y_n + (d_t T - 2m_t)y_{n-1} + 2T^2 f_y}{2m_t + d_t T}, \quad (A7)$$

$$z_{n+1} = \frac{(4m_t - 2k_z T^2)z_n + (d_t T - 2m_t)z_{n-1} + 2k_z T^2 z_0 + 2T^2 f_z}{2m_t + d_t T} \quad (A8)$$

が得られる。

式(4)の回転部分について、差分法により加速度項を離散値で近似して整理すると

$$\omega_{x,n} = \frac{m_r \omega_{x,n-1} + T f_{rx,n}}{m_r + d_r T} \quad (A9)$$

$$\omega_{y,n} = \frac{m_r \omega_{y,n-1} + T f_{ry,n}}{m_r + d_r T} \quad (A10)$$

$$\omega_{z,n} = \frac{m_r \omega_{z,n-1} + T f_{rz,n}}{m_r + d_r T} \quad (A11)$$

が得られる。ここで、 $[\theta u_{x,n}, \theta u_{y,n}, \theta u_{z,n}]^T$ を回転行列表現したものを $R_{p,n}$ とし、回転ベクトル $\omega_n T$ を回転行列表現したものを $R_{\Delta,n}$ とすると、

$$R_{p,n} = R_{p,n-1} R_{\Delta,n-1} \quad (A12)$$

と近似できるので、

$$R_{\Delta,n-1} = R_{p,n-1}^T R_{p,n} \quad (A13)$$

が得られる。この $R_{\Delta,n-1}$ から計算した ω_{n-1} を式(A9)～(A11)の計算に用いた。

ω_n が得られると、

$$R_{p,n+1} = R_{p,n} R_{\Delta,n} \quad (A14)$$

より $R_{p,n+1}$ が得られて、 $[\theta u_{x,n+1}, \theta u_{y,n+1}, \theta u_{z,n+1}]^T$ を計

算することができる。

以上で得られた p_{n+1} の値を逆運動学により関節角に変換し、これを目標の関節角として位置制御を行うことでアドミタンス制御を実装した。

以下ではコーディング上の補足を行う。

UR10 では、リアルタイムの位置制御を行う API として `servoj(q, a, v, t, lookahead_time, gain)` 関数が用意されている。 `servoj()` は軌道を平滑化する仕組みが備わっているために遅延が大きいとして、 `speedj()` 関数を使うことを推奨する人もいるが、本研究では単純に `servoj()` 関数を用いた。引数は $a=0$, $v=0$, $t=0.008$, $lookahead=0.1$, $gain=300$ で利用した。

続いて、UR10 では回転ベクトルと回転行列の相互変換は自力で計算する必要がある、以下のようにして計算した。

回転ベクトル $\theta u = [\theta u_x, \theta u_y, \theta u_z]$ から回転行列 R への変換は、

$$s = \sin \theta \quad (A15)$$

$$c = \cos \theta \quad (A16)$$

とすると、

$$R = \begin{bmatrix} c + u_x^2(1-c) & u_x u_y(1-c) - u_z s & u_x u_z(1-c) + u_y s \\ u_x u_y(1-c) + u_z s & c + u_y^2(1-c) & u_y u_z(1-c) - u_x s \\ u_x u_z(1-c) - u_y s & u_y u_z(1-c) + u_x s & c + u_z^2(1-c) \end{bmatrix} \quad (A17)$$

で得られる。また、回転行列

$$R = \begin{bmatrix} R_{11} & R_{12} & R_{13} \\ R_{21} & R_{22} & R_{23} \\ R_{31} & R_{32} & R_{33} \end{bmatrix} \quad (A18)$$

から回転ベクトル $\theta u = [\theta u_x, \theta u_y, \theta u_z]$ への変換は

$$\alpha = R_{32} - R_{23} \quad (A19)$$

$$\beta = R_{13} - R_{31} \quad (A20)$$

$$\gamma = R_{21} - R_{12} \quad (A21)$$

$$\delta = R_{11} + R_{22} + R_{33} \quad (A22)$$

としたとき、まず、

$$\theta = \text{atan2}(\sqrt{\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2}, \delta - 1) \quad (A23)$$

である。ここで $\text{atan2}(\sqrt{\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2}, \delta - 1)$ は $\text{atan}(\sqrt{\alpha^2 + \beta^2 + \gamma^2}/(\delta - 1))$ を拡張したものとする。

なお、UR10 における $\text{atan2}(x, y)$ 関数は x/y に対応する偏角を返すので注意が必要である。そして u は $\theta \neq 0, \pm\pi$ のとき、

$$u = \left[\frac{\alpha}{2 \sin \theta}, \frac{\beta}{2 \sin \theta}, \frac{\gamma}{2 \sin \theta} \right]^T \quad (A24)$$

$\theta = 0$ のとき、

$$u = [0, 0, 1]^T \quad (A25)$$

$\theta = \pm\pi$ のとき、

$$u = \left[\sqrt{\frac{R_{11}+1}{2}}, \sqrt{\frac{R_{22}+1}{2}}, \sqrt{\frac{R_{33}+1}{2}} \right]^T \quad (A26)$$

で得られる。

最後に、式(A14)に相当する計算は `pose_trans()` 関数を応用すれば回転行列に変換しなくても回転ベクトルのままで計算可能である。

ソフトグリップと触覚センサを用いた 把持状態センシングに関する基礎検討

神内 杜夫, 竹中 慎, 小林 宏明, 長谷見 健太郎, 福本 靖彦, 坂東 慎之介, 高原 茂幸

近年, 専用設計や細かな制御条件の調整をせずとも柔らかく壊れやすい物体や不定形な物体を把持することが出来る点から, ソフトグリップと呼ばれる柔軟な材料で構成されたグリップが注目されている. しかし, 周囲物体との接触や把持対象物の触覚情報を取得可能なソフトグリップは市販されていない. 触覚情報をフィードバックすることで, 柔軟物体等のより繊細な把持への応用が期待できる. 本研究では市販のソフトグリップに任意に着脱可能な触覚センサを用いたセンシング技術の開発を目的とし, 把持物体の硬軟感の判別に関する基礎実験を行った内容について報告する.

1 緒言

現在, 我が国では生産年齢人口の減少に伴い, 製造業やサービス業における労働力不足が深刻な問題となっている. このため産業技術センターでは, 香川県産業成長戦略¹⁾にもとづき, ロボットを活用することで人手に依存する作業の効率化や省力化に関する技術導入支援に取り組んでいる.

生産現場を始めとした様々な場面において, 人と同一環境内で作業をすることを目的とした協働ロボットの導入が進みつつある. 協働ロボットは産業用ロボットより定格出力を低く抑えるとともに, アーム部で人を含む周囲の物体との接触を検知し, 自動停止する機能を備えることで安全性を確保している.

ただし, アーム手先のグリップは, 産業用ロボットと同様に高剛性な部品で構成された製品が多い. このため, 協働ロボットにおいても, グリップの動作領域内に人を含む周囲の物体が予期しない位置にある場合, グリップとの接触により周囲物体に損傷を与える恐れがある. また, 高剛性なグリップを用いて, 柔らかく壊れやすい物体や不定形な物体の把持を行うためには, 対象物に応じたグリップの専用設計や制御条件の調整が必要となる.

以上の背景のもと, ロボティクス分野では柔軟な材料で構成されるソフトグリップが注目されている. ソフトグリップは, 従来の高剛性なグリップと比較して, 把持力や位置精度は劣るものの, 周囲の物体と接触してもグリップが柔軟に変形し接触応力を分散させるため, 接触対象を傷つける危険性が低く, また, 把持対象物の形状に沿ってソフトグリップ自身が変形するため, 柔軟物や不定形物を安定的に把持できることに特長がある.

しかし, 市販のソフトグリップには, 周囲物体との接触や, 把持対象物の触覚情報が取得可能な製品は存在しない. 触覚情報を活用すれば, 人とロボットの物の受け渡し等を含めた協働作業の安全性をさらに高められるとともに, 触覚情報をフィードバックすることで, 柔軟物体等の繊細な把持への応用が期待できる.

グリップの接触状態を計測する手法の一つとして触覚センサが挙げられる. 触覚センサとは, 物体に触れた際の触覚情報を取得するセンサであり, 主に接触面の圧力や振動, ひずみなどを計測する^{2), 3)}.

ソフトグリップに触覚センサを適用する先行研究として, グリップ内部に角度センサを内蔵し, グリップの屈曲状態や把持状態をセンシングする手法⁴⁾や, マーカが描かれた透明なエラストマ内に小型カメラを内蔵し, マーカの移動を読み取ることで接触面の変形等をセンシングする手法⁵⁾などが提案されている. しかし, いずれの手法も, グリップの内部にセンサ素子を内蔵する必要があるためハンド形状が限定され, また, 目的とするタスクによっては, 高価かつ過剰仕様なものとなりうる.

そこで, 本研究では市販のソフトグリップに任意に着脱可能な触覚センサを用いたセンシング技術の開発に取り組んでいる. 特に本稿では, ピエゾフィルムを触覚センサ素子として市販ソフトグリップに取り付け, 把持物体の硬軟感の判別に関する基礎実験を行った内容について報告する.

2 実験方法

2.1 装置構成

本研究で用いた協働ロボットおよびソフトグリップを図1に示す. 協働ロボットには UR10 (UNIVERSAL ROBOTS) を用い, その手先にソフトグリップ mGrip P2 (Soft Robotics) を取り付けた. なお, 協働ロボットは, 自動搬送台車 MiR100 (Mobile Industrial Robots) に搭載されており, 全体として自走可能なモバイルマニピュレータとなっている.

使用したソフトグリップは, 柔軟な樹脂材料からなる二指グリップである. ソフトグリップ内部に空気を加圧すると二本の指が内側に屈曲して閉じ, 対象物体を把持できる. また, 空気圧を除圧するとソフトグリ



図1 使用したソフトグリップ

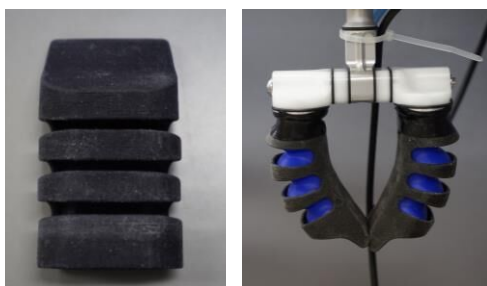
グリップの弾性により二本の指が元の平行な状態になるまで復元するため、空気圧の制御のみでソフトグリップの開閉動作を行える。

本研究では、任意に着脱可能な触覚センサを用いたセンシング技術の開発を目指し、ソフトグリップに装着可能かつ、センサ素子を取り付けたカバーを製作した(図2)。カバーは三次元造形機 Objjet260 Connex1 (Stratasys) によりゴムライク樹脂 TangoBlackPlus で成形したものであり、カバーの伸長側にはスリットを設けることで、ソフトグリップ本来の開閉動作を阻害しないように設計した。

触覚センシングを実現するためのセンサ素子として、 piezofilm MP-2-028 (エルメック) をカバー先端における把持対象物体との接触面に貼り付けた(図3)。今回は把持対象物との接触をセンシングするため、グリップ自身の変形による出力が出来るだけ小さくなる位置に取り付けた。piezofilm から出力される電圧信号は、アンプ Piezo Film Lab Amplifier (Measurement Specialties) を用いて増幅した(ゲイン: 10dB)。このアンプにはローパスフィルタとハイパスフィルタが搭載されており、それぞれ 100Hz と 1Hz に設定した。アンプから出力された信号は USB-6259 (National Instruments) を介して PC に取り込んだ(サンプリング周波数: 10kHz)。

2. 2 触覚サンプルの把持実験

市販の触覚サンプル (12 触 αGEL 見本帖, Taica) の一部を試料として用いた⁶⁾。この触覚見本は 12 段階の硬さ見本であり、本研究では、Strong Hard, Hard



(a) カバー単体 (b) グリップ装着時
図2 作製したカバー



図3 触覚センサ取り付け位置



図4 触覚サンプル

Smooth, Middle Smooth の 3 種類を選択した(図4)。以降本稿では、それぞれ硬質サンプル、中間サンプル、軟質サンプルと呼ぶこととする。いずれの触覚サンプルも形状は 44×44×15mm である。表1に各触覚サンプルの硬さ指標を示す⁶⁾。

図5に示すように、触覚サンプルをバイスで固定し、ソフトグリップで把持動作の開始直前から把持動作終了までの 0.8s 間のセンサ信号を計測した。図6に触覚サンプルを把持した際の出力波形例を示す。図6中の破線で囲んだ区間は、ソフトグリップが動作を開始し触覚サンプルに触れるまでの波形であり、実線で囲んだ区間は触覚サンプルに接触した直後の波形である。残りの区間はソフトグリップの内圧が設定値である 8psi に達して把持動作が終了するまでの波形である。

100ms から 200ms までの区間および、300ms 以降には振動波形が見られた。この振動波形の周波数はソフトグリップの加圧に使用しているコンプレッサの動作周波数と一致しており、コンプレッサの振動によるものである。

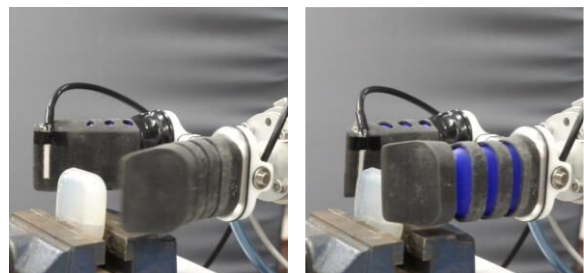
3 種類の触覚サンプルについて、それぞれ 30 回の把持動作を行い、piezofilm から得られる信号を計測した。今回は特に、ソフトグリップが触覚サンプルに接触した直後の波形に注目し、把持対象物の硬さがセンサ出力に与える影響を調べた。

3 結果と考察

図7に硬質サンプルと軟質サンプルを把持した際の

表1 各触覚サンプルの硬さ指標

	硬質サンプル	中間サンプル	軟質サンプル
アスカーC (SRIS0101)	51	20	0
針入度 [1/10mm] (JIS K 2207)	9	31	105
反発弾性率 [%] (JIS K 6255)	70	35	15



(a) 開放状態 (b) 把持状態
図5 触覚サンプルを用いた把持実験

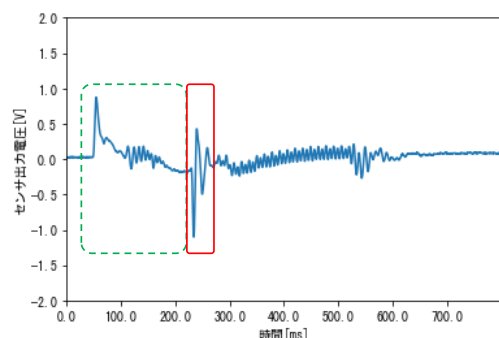
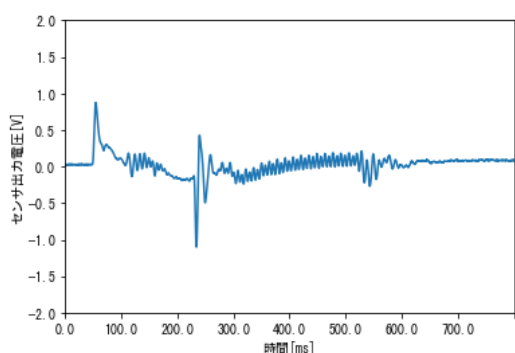


図6 触覚サンプルを幅方向から把持した波形

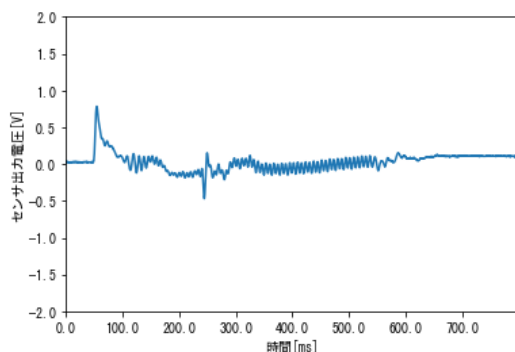
出力波形例を示す。図7より、硬質サンプルは接触時のパルス状波形の振幅がおよそ0.4Vから-1.1V程度と大きく、軟質サンプルはおよそ0.2Vから-0.5V程度と振幅が小さいことが分かる。

これは把持物体の変形量の違いによるものと考えられる。硬質サンプルは変形量が小さいため、グリップが接触した瞬間にセンサに力がかかる。一方、軟質サンプルは変形量が大きいため、グリップが接触してから変形が終了するまで比較的長い時間をかけてセンサに力がかかる。 piezofilmは時間当たりのひずみの変化量に対応した電圧を出力するため、把持力が同じでもより短い時間に力が発生する硬質サンプルの振幅がより大きくなったと考えられる。

図8に、各触覚サンプルにおける、接触時のパルス状波形の peak-to-peak 値（以下、pp 値）の平均を示す。なお、エラーバーは標準偏差である。図8より、柔らかいサンプルほど pp 値が小さくなることが分かる。このように、把持物体への接触によるパルス状波形の



(a) 硬質サンプル



(b) 軟質サンプル

図7 把持物体の硬さによる波形の違い

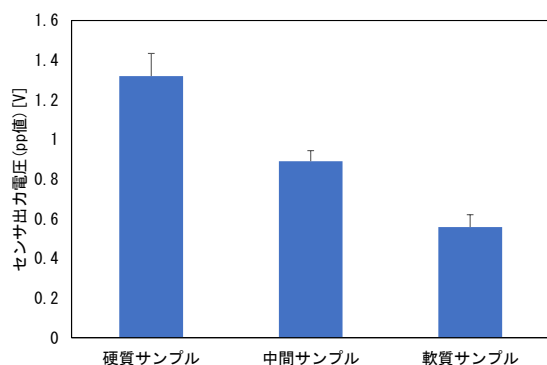


図8 接触時のパルス状波形の平均 pp 値

振幅によって、把持物体の硬さを推測できることが確認された。

本稿と同一の触覚見本を対象として、ソフトグリップと圧電フィルムを用いた把持物体の判別を行った先行研究として渡邊らの研究⁷⁾がある。渡邊らの研究では、7種類のサンプルを用い、センサ信号から得られる特徴量をニューラルネットワークに学習させることで、把持サンプルの判別を実現していた。

本研究では3種類の硬さの違う触覚サンプルの判別が可能であることを確認したが、渡邊らの手法のようにニューラルネットワークを用いることで、硬さの違いによる細かなセンサ信号の違いを学習し、より複数種類の触覚サンプルを判別出来る可能性がある。また、今回は接触直後のパルス状波形の振幅のみに着目したが、パルス状波形の波長や接触直後以外の信号等にも把持物体の判別に重要な情報が含まれている可能性がある。

4 結言

本研究では市販のソフトグリップに任意に着脱可能な触覚センサを用いたセンシング技術の開発を目指し、把持物体の硬軟感の判別に関する基礎実験を行った。その結果、把持物体の硬さによって触覚センサの出力が変化することを確認した。

今後の課題として、センサ信号から硬軟感の判別に重要な特徴量のみを抽出する方法の調査や、より細かなセンサ信号の違いを判別出来るように機械学習モデルを用いた判別実験を行うことなどが挙げられる。また、本研究の内容を発展させ、触覚センサの出力から把持物体を判別し、各物体に適した把持力に制御する手法などを検討していく予定である。

参考文献

- 1) 香川県 商工労働部 産業政策課：香川県産業成長戦略～力強く着実に成長していく香川の経済社会を目指して～（平成30年3月改訂）（2018）。
- 2) 長久保ら：柔軟な触覚センサ～実利用に向けて、日本ロボット学会誌, Vol. 37, No. 5, pp. 401-404 (2019)。
- 3) 郡司ら：触覚センサによる滑り検出に基づく多指ハンドの把持力制御, 日本ロボット学会誌, Vol. 25, No. 6, pp. 970-978 (2007)。
- 4) 平井ら：センサ技術から見たソフトロボティクス, 日本ロボット学会誌, Vol. 37, No. 1, pp. 22-25 (2019)。
- 5) 山口ら：視触覚センサ FingerVision を搭載した高機能ロボットハンド, 第40回日本ロボット学会学術講演会予稿集, 2F2-01 (2022)。
- 6) 株式会社タイカ：HAPTICS OF WONDER 12 触覚 GEL 見本帖, Taica 社ホームページ, 2022-12, <https://taica.co.jp/gel/collection/haptics/>, (参照日 2023-03-23)。
- 7) 渡邊ら：触覚センサ向け圧電フィルムの開発, 第39回日本ロボット学会学術講演会予稿集, 1G3-01 (2021)。

スマート工場環境の活用と導入・現場実証（第4報）

－無線通信システムの整備と活用方法の検討－

小林 宏明, 坂東 慎之介, 竹中 慎, 神内 杜夫

県内の製造業における生産工程の省力化・省人化や高効率化に向けたIoT技術の普及促進のため、無線通信システムを増設した。本稿では、無線通信システムの活用事例のひとつとして、無線振動センサによる屋外設備のモニタリング実験の結果について報告する。さらに、IoT用途における無線通信の有効性ととともに、無線対応機器の選定の際の留意点について考察する。

1 はじめに

当センターでは、平成29年度よりロボット、AI、IoT等の技術を活用した生産工程効率化に関する技術導入支援¹⁾に取り組んでおり、その一環として所内IoT化システム（疑似的スマート工場環境）を構築し、機能拡充を進めている。

これまでに、所内設備のIoT化と集計・監視サーバの設置¹⁾、協働ロボットによる人作業工程の自動化およびデジタル表示器の数値読取システムの開発²⁾、自律移動ロボットによる搬送作業の自動化³⁾、アナログ表示器の数値読取システムの開発⁴⁾を各年度で実施し、県内企業の製造現場における課題解決に向けた新技術開発・技術検証を実施してきたほか、先端技術を導入し、実証実験することで得られた知見を周知することで、導入促進を図る取り組みを進めてきた。

一方、製造現場のIoT導入に関する課題のひとつとして、通信インフラの整備が挙げられる。IoT化を図るうえで通信網の整備は不可欠であり、IoT化が進むにつれ、通信網も増強する必要が生じるが、有線ネットワークの場合、ケーブルの敷設コストや物理的な制約によりケーブルの敷設自体が難しい等の問題が生じる場合がある。そこで、比較的安価かつ物理的な制約を受けづらいネットワーク環境として無線通信が活用されている。

IoT用途の無線通信には様々な方式があり、目的や利用環境に応じて選択する必要がある。例えば、近年注目されているローカル5Gは高速・大容量・低遅延での通信が可能であり、映像によるリアルタイムの監視や遠隔地からのフィードバック制御などが実現できる。しかし、IoT用途においては、多くの場合、一つの端末から送られるデータは少量であることが多く、複数端末から送受信される場合もリアルタイム性が必要となるケースは稀である。そのため、実運用上は性能面よりもコスト面が重視される傾向がある。特にIoT向けの通信に求められるのは低消費電力、広い通信範囲、低価格といった特徴である。

このような特徴を兼ね備える無線通信システムは総称してLPWA(Low Power Wide Area)と呼ばれ、WiFiなどの規格もこれに含まれる⁵⁾。なかでも、LoRaやSIGFOXといった規格は、免許が不要であるにも係



図1 無線振動センサ(横河電機 XS770A)

表1 無線振動センサの主な仕様

サイズ/重量	50×46×97mm/260g(本体のみ)
測定周波数帯域	10Hz～1kHz
測定可能範囲	加速度：0～130m/s ² 速度：0～20mm/s
温度測定範囲	-20～85℃
保護等級	IP66/IP67
データ更新周期	1分～3日
通信規格	LoRaWAN(データ送信用) NFC(本体操作用)

わらず数十km先までの通信が可能であり、遮蔽物や周辺環境の影響を受けにくいことから、多くのIoT機器に利用されている。半面、元々のデータ転送レートが低いうえ、データ転送レートは受信強度に依存するため、リアルタイムでの送受信や大容量のデータ送信には適さない。このことから、目的や利用環境に応じて適切な通信規格を選択する必要がある。

そこで、当センターではIoT用の無線通信ネットワークの構築と運用方法の検証のため、無線振動センサとLoRaWANゲートウェイを導入した。本稿では、導入した無線振動センサの概要を紹介するとともに、LPWAを用いた無線IoTにおける運用上の留意点などをまとめて報告する。

2 無線振動センサの概要

近年、IoT関連機器は急速に数を増やしており、無線通信に対応した製品も数多く販売されている。こ

のうち、センサ機器についても、温度/湿度、電流/電圧、光、流速、圧力など、測定項目に応じた様々な製品群が存在し、センサ機器単体で無線通信機能を有する製品も多数販売されている。

今回、我々は機械設備の状態監視を目的として、単独で無線通信機能を有する振動センサを導入することとした。振動、すなわち加速度/速度の情報は、機械の動作特性・状態を診断するうえで有効な指標であり、異常が発生すると振動特性が変化することから、状態監視や予兆診断に用いられている。

導入した無線振動センサ（横河電機 XS770A）の外観を図1に、主な仕様を表1に示す。本センサは振動（加速度/速度）に加えて温度測定も可能である。屋外で長期運用することを前提として設計されており、バッテリーによる長期駆動が可能なほか、防塵防水性能を有しているため、設置後に長期間メンテナンスフリーで運用できることが利点である。しかし、実際の振動測定は、非常に専門的な知識を問われる分野であり、十分な検討なく設置・運用しても必要な情報が得られない可能性がある。このことについて、運用上の留意点を次章で述べる。

3 運用上の留意点

表1の仕様のとおり、導入した無線振動センサはLoRaWAN (LoRa Wide Area Network) を利用しており、距離や遮蔽物に対して影響を受けづらく、利用環境を考慮しなくてよいことが最大の利点である。一方、LoRaのデータ転送レートが低いことに加え、バッテリーによる長期稼働のため、通信データ量と消費電力の双方を抑えるための設計が施されている。特に注意が必要な点として、本センサは振動の周波数情報を出力しないことが挙げられる。また、測定と送信の周期は最短で1分間隔となっており、消費電力を抑えるため意図的に動作頻度を落とした仕様となっている。なお、1回当たりの振動測定時間は送信周期によらず一定(30秒間)であるため、一般的な振動センサとは異なり断続的な情報しか得ることができない点にも注意が必要である。

このような仕様は、IoT向けのセンサ製品では珍しいものではないが、振動センサとしてみると特徴的な仕様である。そのため、通常の振動センサと同じ利用方法では適切な運用ができないケースがあることから、どのようなケースが適しているか把握しておく必要がある。

具体的には、測定が断続的である点から、瞬間的に発生する過渡応答を見落とす恐れがあることには、十分留意する必要がある。たとえ瞬間的な振動であっても、発生頻度が高く、かつその振動を検出することのみを目的とするならば、問題にならない場合もあるが、そもそも本センサは恒常的に発生している振動を観測する以外の目的では設計されていない。また、たとえ正常状態の機器が発生する振動であっても1秒以下などの短時間のうちに振動レベルが大きく変化する対象の場合（例えば衝撃を与えるような動作を行う機械など）、タイミングによって測定

値が増減するため、むしろ正常状態の把握が困難となる場合がある。特に今回導入したセンサのように、外部と非同期かつ測定タイミングの把握が難しい機器の場合、振動レベルと対象物の状態の因果関係をデータ上から読み解くことは、実質不可能である。そのため、理想的には現場を一度通常の振動センサでモニタリングし、正常時にどのような波形が検出される可能性があるのかを把握したうえで運用するべきである。

さらに、周波数情報が得られないことから、複数の振動源からの振動が検出される恐れのある環境下で利用することは推奨されない。特に本来測定したい対象物よりも大きな振動を発生する振動源が近くにある場合などは、そこからの振動を分離するための工夫を施さなければ、検出したい振動が強い振動に埋もれてしまい検出不可能となる。周波数分解できれば、振動源の動作周波数を基に分離できる可能性があるが、本センサでは不可能なため周辺環境にも十分な配慮が必要である。

4 屋外空調設備の遠隔モニタリング

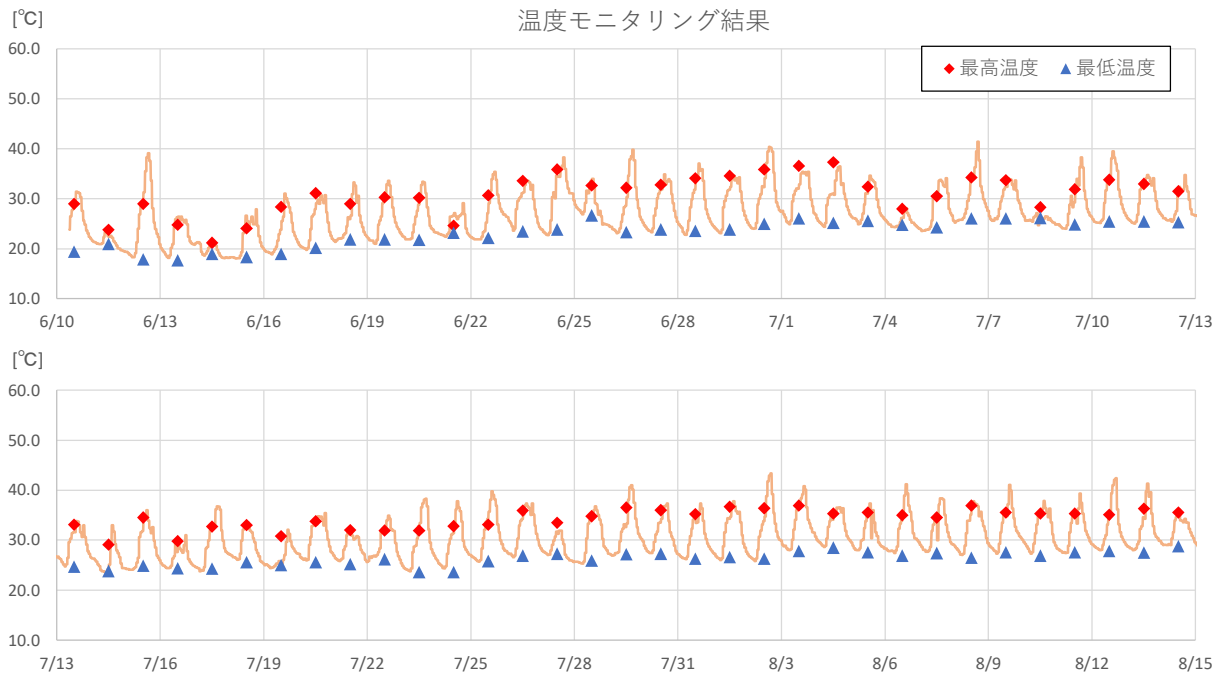
無線振動センサによる遠隔モニタリングの事例として、屋外空調施設の遠隔モニタリング実験を行った。今回対象としたのは、産業技術センター本館屋上に設置された空調設備（冷却塔：図2）である。夏季のみ運転される設備ではあるが、稼働日には決まった時間帯に連続運転するため、本センサの対象として妥当と判断した。また、設備の老朽化による異常停止が問題となっていたことも選定理由のひとつである。なお、冷却塔は2基あり、稼働日毎に交互に稼働する形で運用されているが、今回はこの



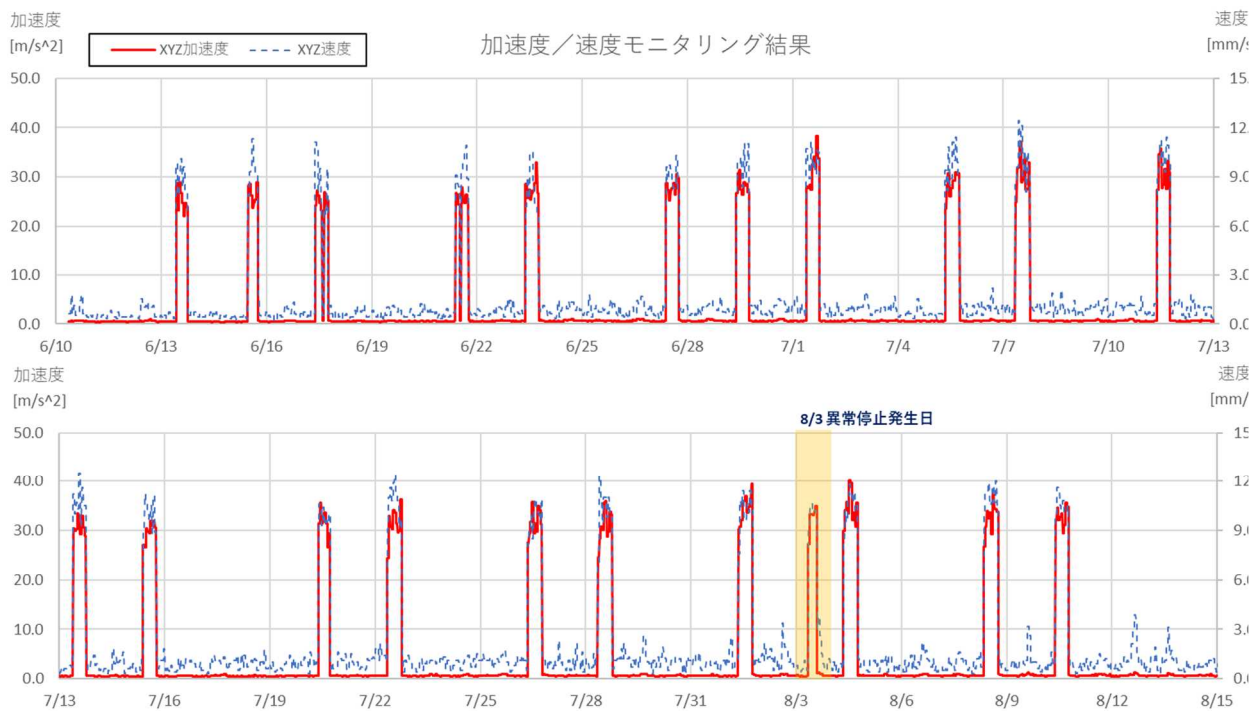
図2 モニタリング対象（冷却塔）外観



図3 センサ取り付け位置



4 温度のモニタリング結果（収集期間 6/10～8/15）



5 加速度および速度のモニタリング結果（収集期間 6/10～8/15）

うちの1基のみを観測した。センサの取り付け位置は、図3のようにファンモータ固定台の裏側とした。6月10日から8月15日の67日間、温度と加速度、速度をそれぞれ10分毎にモニタリングした。

まず、温度のモニタリング結果を図4に示す。参考のため、図中には気象台が観測した高松市の最高温度、最低温度も併せてプロットした。外気温については、概ね正しく測定できていることが確認できた。一部、最高温度を上回る温度が観測されているが、モニタリング対象が屋上の比較の日当たりのよ

い箇所に設置されていることを考慮すれば、特段異常な数値ではないと考えられる。

続いて、加速度と速度のモニタリング結果を図5に示す。いずれの測定値も設備の稼働に合わせて振動レベルが大きく変動することから、単純に閾値を用いて稼働時間や稼働率を算出することが可能である。例えば、8月3日には空調の制御盤が冷却水漏れを検知したことで異常停止し、復旧までに半日程度かかっている。この日の測定値をみると、稼働レベルになっている区間がほかの日と比べて短くなって

いることが、データから読み取れる。

しかし、前述のとおり、今回の異常発生は冷却塔由来のものではないため、観測されている振動データからは、異常発生の予兆を読み取ることはできなかった。なお、予兆診断を行う場合は、正常時の測定データに基づき、なんらかの閾値やAI等を使った推定を行う必要があるが、当該設備は既に劣化が進み異常が発生しやすい状態となっていることから、仮にファンモータ部に異常が発生していたとしても、測定データから予兆を読み取ることは難しかったと考えている。

5 まとめ

IoT技術の普及促進に向けた無線ネットワークの活用方法を検討するため、新たに無線振動センサとLPWA無線通信システムを導入した。現在、本システムを用いて所内設備や製造現場等のモニタリングを実施しており、IoT用途における無線通信の活用方法についてノウハウの蓄積し、かがわ次世代ものづくり研究会ロボット・IoT・AI技術分科会においてノウハウの共有化に努めている。今後は、利用可能な無線式センサの種類を増やし、適用範囲を拡充していくとともに、機械設備の予兆診断に向けた技術検証

を進めていく。また、現状はセキュリティ確保の観点から実現していない所内IoT化システムとの連携も検討していく予定である。

参考文献

- 1) 長谷見ほか：高度要素技術の生産工程効率化システムへの導入・現場実証－所内IoT化システムの構築－，香川県産業技術センター研究報告，No. 19，pp. 11-14(2019)。
- 2) 多田ほか：スマート工場環境の活用と導入・現場実証－所内IoT化システムの整備・拡充－，香川県産業技術センター研究報告，No. 20，pp. 9-12(2020)。
- 3) 福本ほか：スマート工場環境の活用と導入・現場実証（第2報）－所内IoT化システムの整備・拡充－，香川県産業技術センター研究報告，No. 21，pp. 10-13(2021)。
- 4) 小林ほか：スマート工場環境の活用と導入・現場実証（第3報）－所内IoT化システムの整備・拡充－，香川県産業技術センター研究報告，No. 22，pp. 18-21(2022)。
- 5) 総務省：「情報通信白書平成 29 年版」p. 125, 2017年。

光造形式 3D プリンタによる $\text{CaO} \cdot 6\text{Al}_2\text{O}_3$ 粒子分散 Al_2O_3 複合造形体の作製

横田 耕三, 片岡 良孝

3D 積層造形特有の造形欠陥である積層界面や端面段差はセラミックス造形体の界面強度等の機械的特性に悪影響を及ぼす。本研究は 3D セラミックス造形体の組織制御による機械的特性の改善を目的に、モデルとして DLP 光造形式 3D プリンタを用いて、アルミナ焼結体中にカルシウムヘキサアルミネート ($\text{CA6} : \text{CaO} \cdot 6\text{Al}_2\text{O}_3$) を分散させた複合造形体を作製し、その微細構造の制御を検討した。アルミナに CaCO_3 および MgO を少量添加した光硬化性スラリーを光造形後、 1600°C 焼成により造形焼結体を調製した。 CA6 の生成およびその粒子形状に及ぼす添加剤の効果を検討したところ、アスペクト比の高い CA6 板状粒子が約 5~12mass% 分散した自己複合型の緻密な 3D セラミックス造形体が作製可能であることが明らかとなった。

1 緒言

3D 積層造形技術 (Additive manufacturing, AM) は、従来にはない高付加価値な立体複雑形状の造形物を付加加工により創製することが可能な革新的なものづくり技術である。AM は ASTM F42 委員会において 7 つのカテゴリーに分類されており¹⁾、造形する材料、形状、大きさ、精度、造形スピード等により、最適な工法を選択する必要がある。

セラミックスの AM については、光造形法²⁻⁴⁾、粉末床溶融結合法⁵⁻⁶⁾、材料押出法⁷⁻⁹⁾等各種提案されており、我々は、比較的高精細な造形が可能な下面照射型 DLP (Digital light processing) 光造形式 3D プリンタによる緻密なセラミックスの造形焼結体等の作製について報告してきた²⁻⁴⁾。一方、セラミックスは、硬質、脆性材料であるため、積層界面や端面段差など AM 特有の欠陥は、セラミックスの強度等機械的特性に大きく影響を及ぼす。特に積層界面に平行方向の強度低下が大きく、積層ピッチの微小化等造形条件を精査することにより、ある程度の強度改善が期待できることを示した⁴⁾。しかし、積層ピッチの微小化は長時間造形となり、使用する光硬化性セラミックススラリーの安定性が損なわれる可能性がある。

造形物の機械的特性改善の別のアプローチとして、造形素材自体の改質が考えられる。その一つに分散相を添加した粒子複合化がある。分散相として、粒子、ウイスキー、繊維などがあるが、添加により造形時に成形欠陥が生じる恐れがあり、設定する積層ピッチにより添加できる分散相のサイズが制限される。一方、少量の第 2 成分を添加し、焼成中 in-situ に焼結体組織中に異方性粒子を析出させる方法は自己複合材料として知られており、種々分散相について報告されている¹⁰⁻¹¹⁾。本法を活用することで、積層ピッチの制限を受けることなく、造形時の成形欠陥を抑制した複合体の作製が期待できる。

本研究は、セラミックス造形体の機械的特性の向上を目的に、DLP 光造形式 3D プリンタによるアルミナの造形において、分散相としてカルシウムヘキサアルミネート ($\text{CaO} \cdot 6\text{Al}_2\text{O}_3$ 以下 CA6) を焼成中に in-situ に析出させた粒子複合体を有する造形体を作製し、造形体の緻密化と、 CA6 結晶の生成およびその粒子形状に及ぼす CaCO_3 および MgO の添加効果について検討した。

2 実験方法

2. 1 原料および光硬化性スラリーの調製

出発原料には、高純度 Al_2O_3 粉末 (純度 99.99%, 平均粒子径 d_{50} 0.49 μm)、高純度 CaCO_3 粉末 (99.9%, 平均粒子径 d_{50} 1.40 μm)、高純度 MgO 粉末 (純度 99.98%, 平均粒子径 d_{50} 0.05 μm) を使用し、表 1 に示す配合比に混合した。造形用樹脂は、ラジカル重合系アクリルベースモノマー、単官能希釈モノマー、重合開始剤等を適量加えて調製した。これに、分散剤であるカルボキシル基含有の変性ポリマーを粉末に対して 2.5mass% 添加して溶解後、固形分濃度 35vol% となるように、粉末を加え、遊星攪拌装置を用いて混合しスラリーを調製した。

スラリーの粘性特性は、E 型粘度計を用いて評価した。また、スラリーの光硬化特性を評価するため、既報³⁾同様に、光源波長 405nm の光照射による単層硬化試験を行い、照射エネルギーと硬化深さの関係を調べた。

表 1 粉末の配合組成 mass%

	Al_2O_3	CaCO_3	MgO
A	100	0	0
B	100	1	0
C	100	2	0
D	100	3	0
E	100	1	0.2
F	100	2	0.2
G	100	3	0.3

2. 2 造形体の作製および物性評価

造形試験は、光源波長 405nm の下面照射型 DLP 光造形式 3D プリンタ (武藤工業製, ML-48) を用いた。造形体の形状は約 2.5×2.5×30mm の直方体とし、積層ピッチ 25 μm 、照射エネルギー約 10mJ/cm² の条件で、造形体の長辺が積層方向 (z 軸) になるように積層させた。造形体の焼成は、窒素雰囲気中 600 $^\circ\text{C}$ で脱脂後、大気雰囲気にて 1600 $^\circ\text{C}$ 2 時間保持にて行った。

造形焼結体の密度をアルキメデス法にて測定し、X 線回折装置 (パナリティカル, EMPYREAN) を用いて結晶相を同定するとともに、リートベルト解析によりその構成割合を算出した。また、微構造を FE-SEM (日本電子製, JSM-7001F) にて観察し、結晶粒子の EDS 分析を行った。

3 実験結果および考察

3. 1 光硬化セラミックスラリーの特性

調製した光硬化性セラミックスラリーの見かけ粘度は、いずれも 400~900 mPa・s を示し、ずり速度が大きくなるとともに粘度が若干低下するチクソ性を示した。CaCO₃ のおよび MgO の添加量によらず、いずれのスラリーも概ね同程度の粘度であった。

図 1 に、光硬化性セラミックスラリーの照射エネルギーと硬化深さの関係を示す。両者に相関関係が認められ、既報²⁾同様式(1)に示す Beer-Lambert 則¹²⁾に従っている。

$$Cd = Dp \cdot \ln(E \cdot Ec^{-1}) \quad (1)$$

ここで、 Cd 硬化深さ、 E 照射エネルギー、 Ec 臨界照射エネルギー、 Dp 光硬化感度を示す。これにより計算した各スラリーの Ec は 1.9~2.6 mJ/cm²、 Dp は 35~39 μm であり、CaCO₃ の添加量が多くなるにしたがって、 Ec が若干低下傾向を示したが、各スラリー間の差はあまり認められない。図 1 より積層ピッチの設定を 25 μm としたとき、その厚みに相当する必要最低照射エネルギーは約 5mJ/cm² となり、積層造形の際の照射エネルギーはその 2 倍とした⁴⁾。

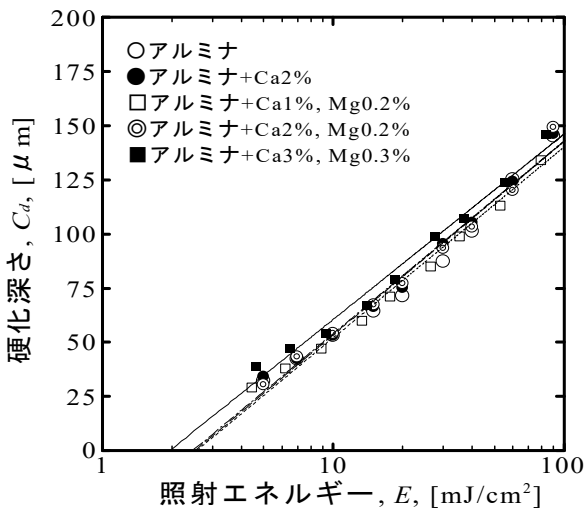


図 1 光硬化性セラミックスラリーの硬化深さと照射エネルギーの関係

3. 2 造形焼結体の特性

3. 2. 1 造形焼結体の結晶相および密度

図 2 に、造形焼結体の XRD プロファイルを示す。CaCO₃ を 1~3mass% 添加した焼結体において CA6 結晶の生成が認められ、添加量が増加するにしたがって CA6 結晶の生成量が増加している。一方、図には示さないが、CaCO₃ 添加に加え、MgO 添加した焼結体の CA6 生成量は、MgO 無添加と比較して大きな差は認められなかった。これらをリートベルト解析により CA6 生成量を求めたところ、CaCO₃ 1, 2, 3mass% の添加において、それぞれ約 5mass%、約 12mass%、約 20mass% であった。

図 3 に、造形焼結体の相対密度を示す。ここで理論密度は XRD のリートベルト解析した結晶相の比率を基に算出した。アルミナ単相の焼結体は相対密度約 98%

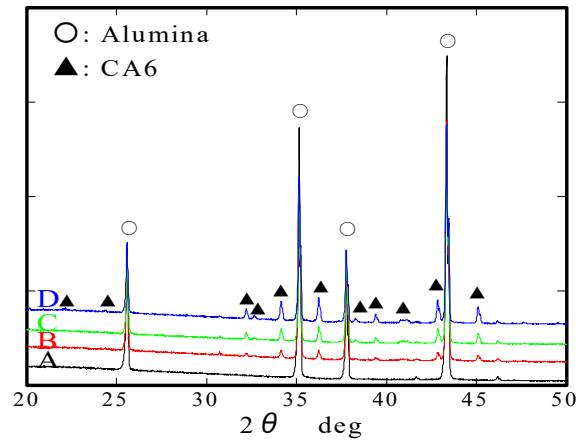


図 2 造形焼結体の XRD プロファイル

A: アルミナ, B: アルミナ+CaCO₃ 1%

C: アルミナ+CaCO₃ 2%, D: アルミナ+CaCO₃ 3%

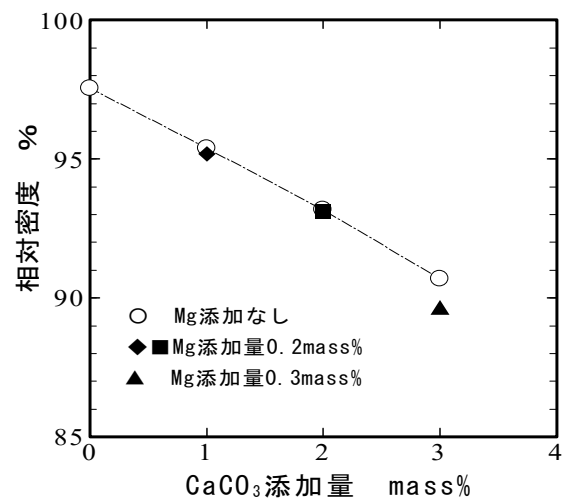


図 3 造形焼結体の相対密度

であるが、CaCO₃ が増加するにしたがって相対密度は低下している。CaCO₃ に加え MgO を添加した焼結体は、CaCO₃ のみを添加した焼結体と比較して、CaCO₃ 添加量が多くなるにしたがってやや低下している。これは後述する微構造の変化に起因するものと考えられる。本研究の範囲においては、アルミナ単相と比較して CA6 含有焼結体は密度の低下が認められるものの、CA6 含有量約 12mass% まで (CaCO₃ 添加量 2mass% まで) は、相対密度約 93% 以上を示し、概ね緻密な焼結体となっている。

3. 2. 2 造形焼結体の微細構造

図 4 に造形焼結体の微細構造を示す。造形時の積層ピッチは 25 μm であり、焼成後は収縮して約 15 μm となったが、いずれの焼結体も積層痕は認められず、積層界面は十分接合しているといえる。(a) は添加剤を加えていないアルミナ焼結体であるが、等軸の粒子形状を示しており、粒子径は約 6~7 μm に粒成長している。(b) は添加剤として CaCO₃ を 2% 添加したものであり、(a) と比較してマトリックス粒子の粒子径が小さくなり、粒子形状も等軸からやや異方性粒子となっている。また一部には板状粒子が認められるが、アスペクト比は 3~4 程度で小さい。一方、(c) は (b) に MgO を 0.2% 添加した焼結体であるが、(b) と比較してマトリックス粒子径が更に小さくなるとともに、白矢印で示す板状粒子

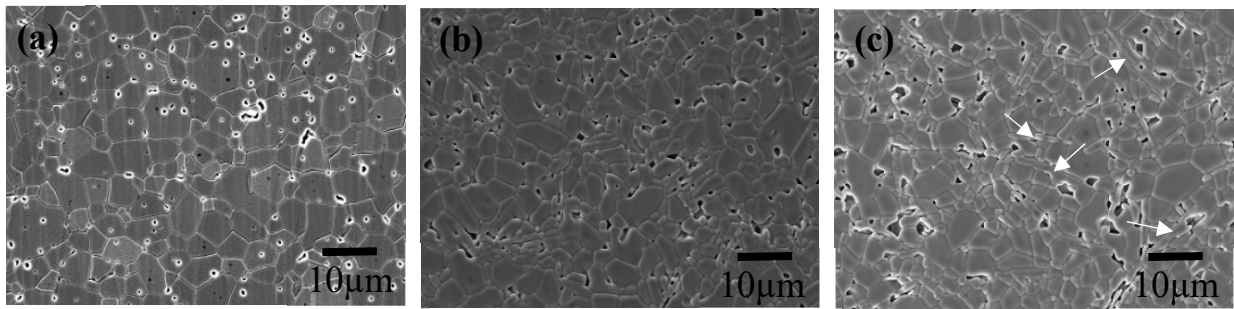


図4 造形焼結体の微細構造 1600°C焼成 (a) アルミナ単相
(b) アルミナ + CaCO₃ 2mass% (c) アルミナ + CaCO₃ 2mass%, MgO 0.2mass%

が多く観察される。この粒子はアスペクト比が5~8程度に高くなり、長軸径も大きいものでは約15µmに粒子成長している。また、図には示さないが、アルミナにCaCO₃ 3%, MgO 0.3%添加した焼結体では、更に板状粒子の長軸が粒成長し、アスペクト比が大きいもので10以上となった。EDSにより板状粒子の元素成分を分析したところ、マトリックス粒子と比較してCa成分が多くなり、同時にMg成分も板状粒子内で多く検出された。これらのことから、アルミナにCaCO₃を添加することでCA6結晶を焼結体中に析出させることが可能であり、アスペクト比の高いCA6結晶とするには、MgOの添加が有効であることが明らかとなった。CA6板状結晶の粒子形状に及ぼすMgの効果については、板状粒子近傍の粒界に生成する液相の影響などが報告されており¹³⁾、本研究においてもその可能性があるものと推察されるが、CA6結晶の板状粒子化は、出発原料であるアルミナの粒子径¹⁴⁾やCaの化合物種¹³⁾の影響なども報告されており、これらのメカニズムも併せて今後詳細に検討する必要がある。

一方、図3において、CA6の生成量が増加し、板状粒子のアスペクト比が増加するにしたがって焼結体の相対密度が低下し、図4(c)の微細構造においても気孔径とその含有量がやや増加している。これは焼結過程において、板状粒子の粒成長が速く、組織の不均一化により粒界に存在する気孔が収縮できず取り残されたためと推察される。したがって、CA6板状粒子の過剰な生成や過度の高アスペクト比化は焼結体密度の低下を招く。これらを適切に調整する必要があり、本研究の範囲においては、CaCO₃ 1~2mass%, MgO 0.2mass%添加が、焼結体密度と微細構造の両者のバランスがとれた焼結体となっている。

以上のことから、板状粒成長メカニズムの詳細な説明は必要ではあるが、いずれにしても、DLP光造形により作製したアルミナ焼結体中に、アスペクト比の高いCA6板状粒子が約5~12mass%分散した自己複合型の緻密な3Dセラミックス造形体が作製可能であることが明らかとなった。これらは焼結体素地の強靱化による3D造形体の機械的特性の改善が期待できるものである。

4 結言

3Dセラミックス造形体の組織制御による機械的特性の改善を目的に、DLP光造形式3Dプリンタを用いて、アルミナ焼結体中にCA6を分散させた複合造形体の作製を検討した。アルミナにCaCO₃およびMgOを少量添

加して調製した光硬化性スラリーは、アルミナ単相スラリーと概ね同等の粘度と光硬化性を示し、光造形が可能であった。焼結体中のCA6の生成量とその粒子形状に及ぼす添加剤の効果を検討したところ、アスペクト比の高いCA6板状粒子が約5~12mass%分散した自己複合型の緻密な3Dセラミックス造形体の作製が可能であり、3D造形体の機械的特性の改善が期待できるものとなった。

謝辞

本研究を遂行するにあたり、アルキメデス法による密度測定にご協力頂いた香川県産業技術センター 技師高橋おしえ氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) 3Dプリンタ用新規材料開発, エヌ・ティー・エス, p11-21 (2021).
- 2) 横田耕三, 高原茂幸: DLP式光造形法によるアルミナ3次元積層造形緻密体の作製, 粉体工学会誌, 53, 492-498 (2016).
- 3) 横田耕三, 片岡良孝: DLP式光造形法による3次元積層造形Al₂O₃-ZrO₂-TiO₂セラミックスの作製, 粉体工学会誌, 56, 261-266 (2019).
- 4) K. Yokota, Y. Kataoka: Influence of Molding Conditions on Characteristics of Alumina Sintered Bodies Fabricated by Digital Light Processing Vat Photopolymerization, J. Soc. Inorg. Mater., Japan, 28, 139-145 (2021).
- 5) Shahzad, K., J. Deckers, Z. Zhang, J.-P. Kruth and J. Vleugels: Additive Manufacturing of Zirconia Parts by Indirect Selective Laser Sintering, J. Euro. Ceram. Soc., 34, 81-89 (2014).
- 6) Liu, F., B. Zhang, C. Yan and Y. Shi: The Effect of Processing Parameters on Characteristics of Selective Laser Sintering Dental Glass-Ceramic Powder, Rapid Prototyping Journal, 16, 138-145 (2010).
- 7) 片岡良孝, 横田耕三: 材料押出法によるジルコニア3次元積層造形体の作製, 粉体工学誌, 57, 520-525 (2020).
- 8) 片岡良孝, 横田耕三: 材料押出法における三次元セラミックス造形に適するサポートの検討, J. Soc. Inorg. Mater., Japan, 29, 217-222 (2022).
- 9) 横田耕三, 片岡良孝: 材料押出法によるセラミックス

- の3次元積層造形体の作製, セラミックス, vol. 56, 11, 722-725 (2021).
- 10) M. Yasuoka, K. Hirao, M. E. Brito, S. Kanzaki: High-Strength and High-Fracture-Toughness Ceramics in the $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{LaAl}_{11}\text{O}_{18}$ Systems, J. Am. Ceram. Soc. 78, 1853-1856 (1995).
 - 11) K. Yokota and Y. Kondo: Influence of Starting Particle Size of Alumina Powder Prepared by Grinding on the Size of Platelike Grain in the Respective Sintered Bodies, J. Ceram. Soc. Japan, 106, 855-859 (1998).
 - 12) P. F. Jacobs: Rapid Prototyping & Manufacturing Fundamentals of Stereolithography, Society of Manufacturing Engineers, pp29-33 (1992).
 - 13) L. AN, H. M. CHAN and K. K. SONI: Control of calcium hexaaluminate grain morphology in in-situ toughened ceramic composites, J. Materials Science, 31, 3223-3229 (1996).
 - 14) F. WANG, X. LI, P. CHEN, G. M. KALE and B. ZHU: The adjustment of CA6 morphology and its effect on the thermos-mechanical properties of high temperature composites, J. Ceram. Soc. Japan, 126, 977-983 (2018).

金属粉末レーザ積層造形法のプロセスを利用した組織制御（第2報） —層状に局部硬化された SKD61 材造形体の硬さと金属組織に及ぼす高温焼戻しの影響—

宮内 創, 松本 洋明*, 横田 耕三

粉末床溶融レーザ積層造形法のプロセスを利用して層状に局部硬化させた SKD61 材造形体に、二次硬化温度域での焼戻しを施し、硬度分布や構成相、金属組織に及ぼされる影響を検討した。その結果、造形されたままの状態にて周囲よりも高硬度であった領域は、熱処理による硬度上昇も比較的大きくなり、造形体は特有の硬度分布を維持したまま全体が高硬度化することが見出された。この主要因として、造形されたままの状態にて硬さの高かった領域は、造形プロセスに起因して最終的なオーステナイト化温度が高く、より多くの炭化物形成元素を固溶されていたため、焼戻しによる二次硬化現象が強く現れたものと考えられた。

1 緒言

金属材料の積層造形技術（AM: Additive Manufacturing）には、材料粉末の溶融と急冷凝固が繰り返されることにより特異的な金属組織および機械的性質が発現され得るという特徴があり、既存工法では得ることのできない高付加価値品を生み出せる製造手法として、活発な研究開発が行われている。我々はこの特徴を利用し、積層造形で製造される部品の機械的性質（強度、硬さ、耐衝撃性など）を、部位毎の要求値に応じて局部的に制御するという高機能化方法を検討している。これまでの研究で、熱間金型鋼である SKD61 合金の粉末床溶融レーザ積層造形（L-PBF: Laser powder bed fusion）において、造形体内部に周辺よりも高硬度の層をインプロセスで形成するという新たな手法を提案した^{1,2)}。具体的には、比較的低入熱の条件での造形の途中で大入熱の条件でのビーム走査を挿入することによって、一時的に厚く形成された焼入硬化層が次層以降の積層の熱影響による焼戻し軟化を完全には生じずに残留し、造形されたままの状態、局部的に高硬度化された領域が意図した位置に中間層として存在する造形体を作製することができた。しかしながら、SKD61 合金は一般に、熱間加工用工具やダイカスト金型などの高温加工用途のため、焼入れ後に高温焼戻しされ、微細な炭化物を析出、硬化（二次硬化）させて使用される。そこで本報告では、L-PBF プロセスを応用して組織制御された SKD61 造形体を、二次硬化温度域である 550℃にて焼戻し処理し、実用的に重要である高温焼戻し後の機械的性質を詳細に検討するとともに、組織形成過程の考察を行った。

2 実験方法

材料粉末として、平均粒径 (D_{50}) 26 μm 、AISI H13 (SKD61 相当組成) の球状ガスアトマイズ粉末 (Carpenter Additive 社製, H13) を使用した。試験片の造形には、ファイバレーザ (最大出力 500W, 波長 1070 μm) を搭載した金属積層造形装置 (赤澤機械株式会社製) を用いた。造形体の設計形状は X10mm×Y10mm の直方体とし、SUS430 製基板上に高さ 7.5mm まで積層させた。ビーム走査パター

ンは矩形とし、1 層毎に走査方向を 90° 回転させた。雰囲気ガスには窒素を用い、造形中のチャンバ内酸素濃度を 0.1%以下に保持した。造形条件は、走査ピッチを 0.15mm、積層ピッチを 0.030mm に固定し、レーザ出力 (P) および走査速度 (v) を変化させた。層状の局部硬化領域を持つ造形体をインプロセスで作製する手順として、P=150W, v=100mm/sec の条件での積層の途中に、50 層 (高さ 1.5mm) 毎に 1 層のみ、P=400W, v=63mm/sec の大エネルギーのビーム走査を周期的に挿入した。作製した造形体を、二次硬化のピーク温度に近いと推定される 550℃に 60min 保持して焼戻し処理した。熱処理は窒素雰囲気電気炉で行い、等温保持後は空冷した。

熱処理前後の造形体をそれぞれ積層方向と平行に切断し、断面における硬さ分布を、ビッカース硬さ計 (HV0.3) で測定した。さらに微小 X 線回折 (XRD) にて、局部的な領域における構成相や転位密度を評価した。金属組織を評価するため、機械研磨した断面を 10%ナイトール溶液にてエッチングし、光学顕微鏡にて観察を行った。また、積層方向と垂直な断面にて円盤状試料を切り出して薄膜に調整し、エネルギー分散型 X 線分析装置 (EDS) を装備した走査型透過電子顕微鏡 (STEM) により観察した。

3 実験結果および考察

造形されたままの状態 (As-built) および熱処理後 (HT) の造形体の断面組織写真を図 1 に、同じ断面における最表層から内部方向への硬さ分布測定結果を図 2 に示す。As-built 材では、大エネルギーでビーム走査された中間硬化層および最表層が生地領域と比較してエッチングされにくく、金属組織的に明瞭なコントラストが、造形条件を変化させた位置に対応して周期的に現れている。既報^{1,2)} に示したとおり、As-built 材の硬さ分布における最表層は、ビーム走査により焼入れされたままの高転位密度マルテンサイト組織であるため最も硬化し、中間硬化層は、焼入れ後の熱影響による軟化が比較的少なく、残留オーステナイト量の差異も影響し、最表層よりは低硬度であるがマトリックス領域よりも高硬度を示す。焼戻し処理すると、いずれの領域も焼戻しマルテンサイト組織主体になると考えられ、金属組織的なコントラストは不明瞭になった。一方、硬さ分布においては、組織制御された領域によって硬度が異なるという傾向が維持され

* 香川大学創造工学部

た。全体的には二次硬化現象を生じ硬度上昇していると考えられ、As-built 材で平均 638HV であった生地領域は平均 685HV へと上昇し、中間硬化層は平均 658HV であったものが、熱処理後の到達硬さは 722HV と生地領域よりも高く、全体として As-built 材と同様の分布を保ったまま高硬度側にシフトするような変化を示した。HT 材の最表層の硬さは、As-built 材よりも低下しているが生地領域よりは高く、中間硬化層と同程度となった。

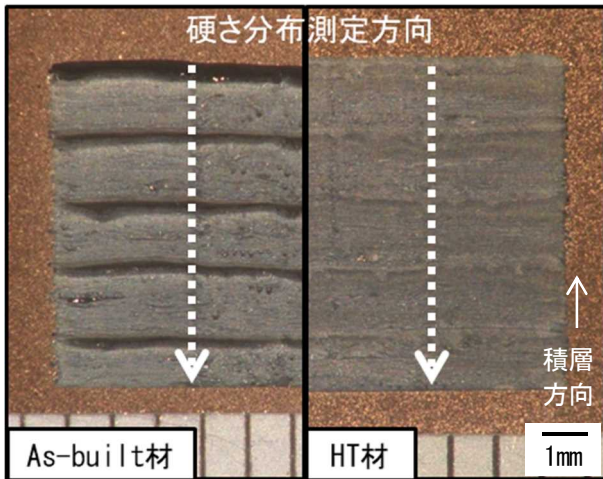


図1 組織制御された造形体の断面光学顕微鏡写真 (造形されたままの状態および、焼戻し処理後)

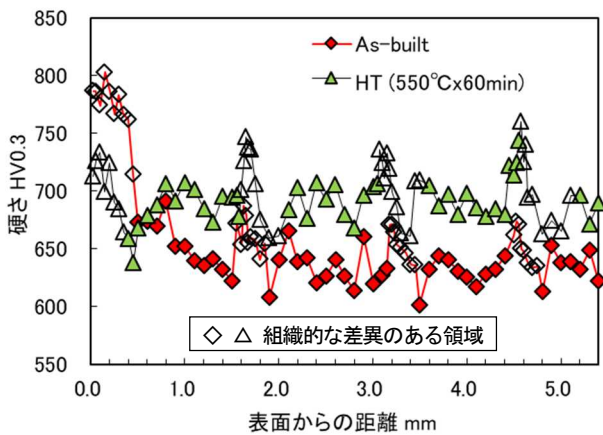


図2 組織制御された造形体の積層方向断面における硬度分布測定結果 (造形されたままの状態および、焼戻し処理後)

熱処理前後の造形体の各領域 (最表層, 中間硬化層, 生地領域) における微小 XRD 解析結果の比較を図 3 に示す。HT 材では、いずれの領域においてもオーステナイト (γ) のピークは認められず、マルテンサイト (α') のピークのみが存在しており、As-built 材にて存在していた残留オーステナイトはほぼ完全に分解したとみられた。HT 材の各領域における α' (110) のピーク半価幅は、それぞれ 0.62deg (最表層), 0.60deg (中間硬化層), 0.50deg (生地領域) であった。このことは、焼戻し処理後も、生地領域よりも高硬度である最表層および中間硬化層には、比較的高密度の転位が蓄積されていることを示唆している。二次硬化温度域への焼戻しにおける硬さ変化の主要因としては、(i) 高転位密度の焼入れマルテンサイト組織

の回復による硬度低下、(ii) 残留オーステナイトが分解しマルテンサイト化することによる硬度上昇、(iii) 二次炭化物の微細析出による硬度上昇があり、これらの影響が複合した結果、焼戻し後の各領域の硬さが決定されると考えられる。最表層および中間層においては、As-built 状態では低温焼戻しを完了していないため、マルテンサイトの回復による軟化の影響 (i) が生地領域よりも大きく、特に最表層ではそれが顕著であるために As-built 材よりも硬度低下したと考えられる。なおかつ、As-built 材の XRD パターンとの差異から、残留オーステナイトの分解による硬化の影響 (ii) は、As-built 状態にて多量の残留オーステナイトを含んでいた生地領域よりも少ないと考えられる。最表層および中間層では、それに関わらず到達硬度値が比較的高いことから、二次炭化物の析出の影響 (iii) が生地領域よりも顕著であると推定される。一般に、SKD61 材を焼入れ後に焼戻して二次硬化させる際、焼入れ温度を高くすると、炭素や合金元素がより過飽和に固溶され、高温焼戻しでの炭化物の析出が顕著となり、二次硬化のピーク硬さが上昇する。本報告で扱う造形体の積層プロセスを考えた場合、最表層および中間層は、マトリックス領域に比べ最終的なオーステナイト化温度が高いと考えられることから¹⁾、焼入れ温度を高くしたのと同様の作用により、高い二次硬化能を有したものと推測される。

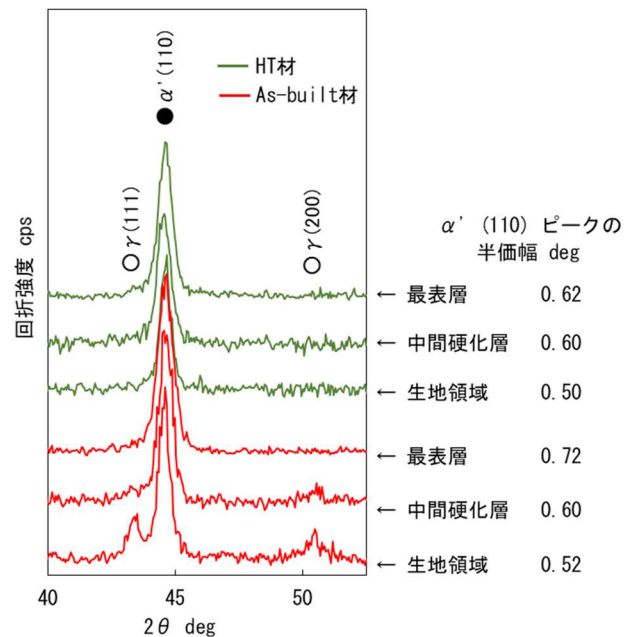


図3 組織制御された造形体の最表層, 中間硬化層および生地領域における X 線回折パターン (造形されたままの状態および、焼戻し処理後)

SKD61 材の二次硬化に寄与する析出炭化物は極めて微細 (平均 5~15nm) であると報告されており、その存在を確認するため、STEM による造形体の生地領域の観察を行った。図 4 は、As-built 材および HT 材の明視野像および EDS マップである。両者とも、生地組織は微細なラスマルテンサイトとみられた。炭化物の優先析出サイトとされるマルテンサイトラス境界において、As-built 材 (a) では、わずかな V 偏析がみられたのみであるのに対し、HT 材 (b)

では、炭素および炭化物形成元素(Cr, V, Mo)が 10nm 以下のサイズで濃化しており、焼戻し処理による合金炭化物の析出が示唆された。ただし、造形体の中間硬化層のみを抽出しての試料調整は困難であったため、組織制御された領域間の炭化物析出状態の差異を直接確認するに至らなかったことが課題として残された。

本研究の結果、L-PBF プロセスを応用して層状に局部硬化されたSKD61材積層造形体に適当な後熟処理を施すと、特有の硬度分布を維持したまま全体が高硬度化することが見出された。この特性は高温加工用途において極めて有効であると考えられ、今後、実部品への応用方法を検討していく予定である。

4 結言

造形条件を周期的に変化させながら L-PBF 造形することで層状に局部硬化させた SKD61 材造形体に対し、二次硬化温度域である 550℃での焼戻しを施し、硬度分布や構成相、金属組織に及ぼされる影響を検討した。その結果、造形されたままの状態にて周囲よりも高硬度であった領域は、熱処理後の到達硬さも比較的高くなり、造形体は特有の硬度分布を維持したまま全体が高硬度化することが見出された。この主要因として、造形されたままの状態にて硬さの高かった領域は、造形プロセスに起因して

最終的なオーステナイト化温度が高く、より多くの炭化物形成元素を固溶されていたため、焼戻しによる二次硬化現象が強く現れたものと考えられた。

(本報告は、他誌に掲載された論文³⁾の内容を抜粋、編集したものである。)

参考文献

- 1) H. Miyauchi, H. Matsumoto, K. Yokota : Selective laser melting with changing input energy periodically for production of partially hardened laminate structure in H13 steel, Journal of Manufacturing Processes, 73, 839-848 (2022).
- 2) 宮内創, 松本洋明, 横田耕三 : 金属粉末レーザ積層造形法のプロセスを利用した組織制御—SKD61 鋼における層状の局部硬化組織形成の試み—, 香川県産業技術センター研究報告, No. 20, 22-24 (2022).
- 3) H. Miyauchi, H. Matsumoto, K. Yokota : Development of a Periodic Laminate Structure in H13 Steel Using Laser Powder Bed Fusion: Effects of Tempering on Hardness Evolution, steel research international, 94, 3, 220622 (2023).

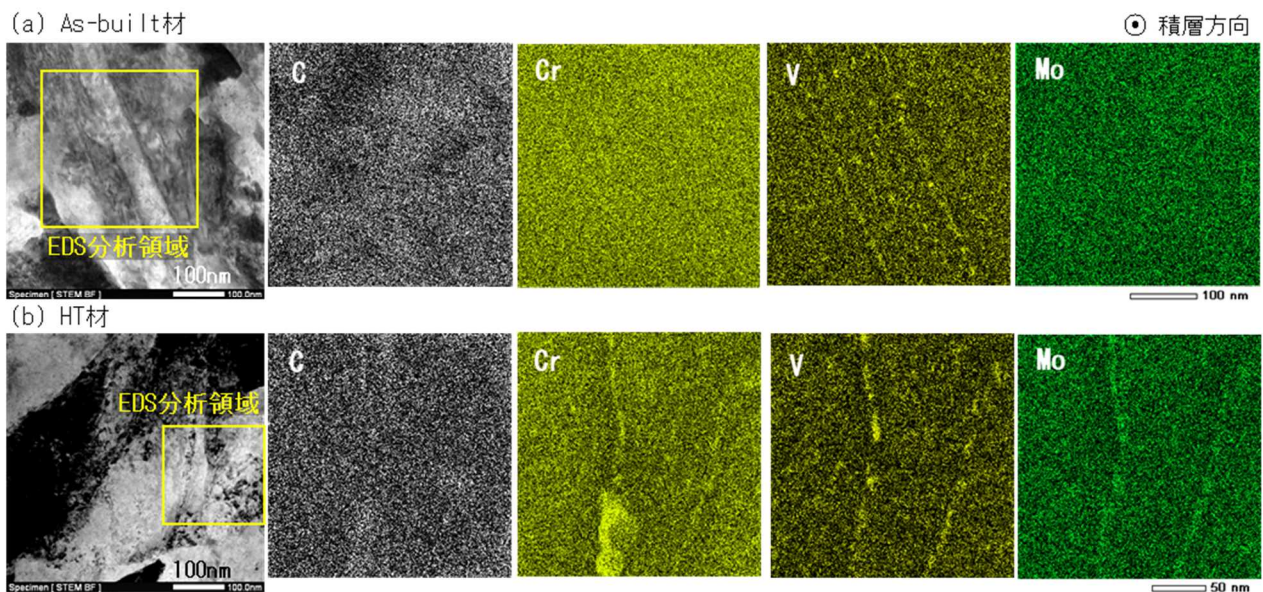


図4 組織制御された造形体の生地領域にて撮影した走査型透過電子顕微鏡 (STEM) 写真および EDS マップ (造形されたままの状態および、焼戻し処理後)

材料押出式 3D プリントによる陶器質粘土の冷間押出造形

片岡 良孝, 横田 耕三

材料押出式 3D プリントによるセラミックスの冷間押出造形では材料の押出性および保形性が重要であり、造形原料の可塑性等の物性の影響を強く受ける。本研究では、陶器質粘土をモデルに、鉱物組成および粒子径の異なる粘土について、固形分濃度を变化させたときの造形原料の流動性の変化および造形品質に及ぼす影響を調査した。原料中に含まれるカオリン鉱物等の可塑成分量に応じて固形分濃度を調整し、せん断速度 1000 s^{-1} における見かけ粘度が $10 \sim 40 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ となるよう造形原料を調製することで安定した造形が可能になった。これら造形体を焼成試験したところ、焼結体に亀裂および変形は認められず、種々の形状の陶器質造形焼結体の作製が可能になるものと示唆された。

1 緒言

近年、革新的なものづくり技術として注目を集める三次元積層造形 (Additive manufacturing) は、三次元データをもとに材料を付加加工し立体物を作製する技術である。難研削材であるセラミックスにおいてもその活用が期待されており、種々の造形方法にて研究開発が行われている^{1)~4)}。その中で材料押出法は、造形可能な材料の制約が少ないという特長を有し、熱可塑性樹脂を利用したファインセラミックス造形^{5)~7)}や冷間押出による陶磁器等窯業製品、コンクリート等建材の造形など多様な研究開発が行われている。この中で窯業製品の造形においては、陶器質粘土を原料として造形が行われるが、天然資源であり産地によって粒子径や鉱物組成が異なり、それぞれの原料に合った水分調整が必要となる。水分量と粘度の関係より適切な水分量を検討した研究⁸⁾はあるが、鉱物組成および粒子径による流動性の変化および造形への影響を詳細に評価した研究は見受けられない。

本研究では、陶器質粘土をモデルとし、鉱物組成および粒子径の異なる粘土について固形分濃度を变化させたときの造形原料の流動性の変化および造形品質に及ぼす影響を調査した。

2 実験方法

香川県近郊で採取された陶器質粘土 A, B, C をそれぞれ乾燥、解砕し、目開き $500 \mu\text{m}$ のふるいを通過したものを原料とした。粒度分布は湿式ふるい法にて目開き 710, 500, $297 \mu\text{m}$ のふるい上に残った試料の重量測定と通過した試料のレーザ回折散乱式粒度分布測定装置 (Microtrac 社製, HRA9320) による測定にて評価した。原料の鉱物組成について、波長分散型蛍光 X 線分析装置 (パナリティカル製, Axios) により成分分析し, X 線回折装置 (パナリティカル製, EMPYREAN) により鉱物解析を行った。また, 1050°C における強熱減量を評価した。これらの結果をもとに, ノルム計算⁹⁾により鉱物組成を推定した。

原料粘土と純水を所定の分量で混合し, 加圧式ニーダ (榊トーション製, TD0.3-3) にて 90 分混練し, その後室温で 1 週間養生したものを造形原料とした。1 週間経過

後の試料について, キャピラリーレオメータ (株島津製作所製, CFT-500) により流動性を評価した。試験条件は, ピストン断面積 100 mm^2 , ダイ直径 $1 \text{ mm} \times$ 長さ 10 mm , 測定温度 27°C とした。

造形機は熱溶解積層方式 3D 造形機 (武藤工業株製, MF-1100) にセラミック 3D 造形機 (CERAMBOT 社製, CERAMBOT Pro Extruder Kit) を取付けたものを使用した。図 1 に造形機模式図を示す。造形条件は, 室温にて押出幅 2 mm , 積層ピッチ 1 mm , ノズル移動速度 10 mm/s とし, 図 2 (a) の六角柱モデルおよび図 2 (b) の棒状モデルを造形した。造形用データはスライスソフトウェア (Ultimaker 社製, Cura version 4.0.0) にて作製した。造形体は自然乾燥したのち, 電気炉を用い大気雰囲気にて 100°C /時間で昇温し, 所定の温度にて 2 時間保持し焼成した。六角柱モデルは外観の評価を行い, 棒状モデルは真空法により開気孔率を評価した。また, 真空押出成形機 (株石川時鐵工所製, Y-05) を用いて幅 35 mm , 厚み 10 mm , 長さ約 110 mm の直方体状に押出成形した試料を同条件で焼成し, 開気孔率を評価し, 材料押出法にて成形した試料と比較した。

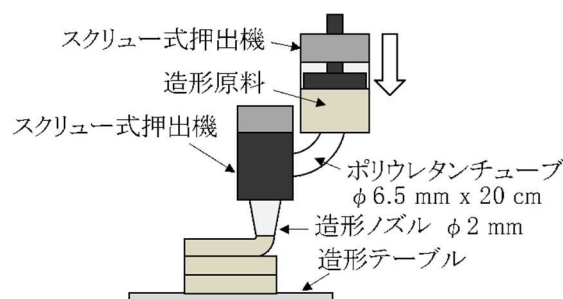


図 1 冷間押出造形模式図。

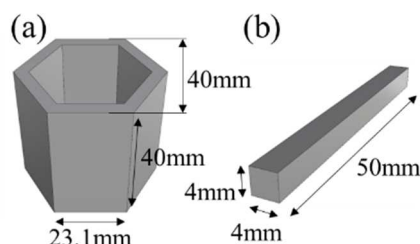


図 2 造形模式図。(a)六角柱モデル, (b)棒状モデル。

3 実験結果および考察

3.1 原料粘土の鉱物組成および粒度分布

表1に蛍光X線分析による各粘土の成分を示し、図3にX線回折による結晶ピークを示す。いずれの粘土もSiO₂が最も多く、石英の大きなピーク(Q)が確認できる。次にAl₂O₃を多く含んでいる。粘土鉱物は風化により非晶質になっておりピーク強度が弱くなる傾向にあるが、12°付近および20°付近のピーク(K)がカオリン鉱物のものと考えられる。CaO, Na₂O, K₂Oの合計量は、A, B, C粘土の順に多くなっており、長石と考えられるピーク(F)の強度はA粘土が大きく、C粘土では小さくなっている。MgOはA粘土には3.11mass%含まれているが、BおよびC粘土にはあまり含まれていない。8.8°, 17.8°付近のピーク(I)および6°付近のピーク(C)は雲母粘土鉱物のイライトおよび緑泥石のものと考えられ、それぞれのMgOの含有量に応じたピーク強度となっている。以上の分析結果をもとにノルム計算を実施した。なお、MgOは蛇紋岩とするところを本稿では緑泥石として計算を行った。

表2に算出した原料粘土の鉱物組成を示す。カオリン鉱物および緑泥石は結晶に層状構造を持ち、層間が水和することで可塑性を発現する。石英および長石等は水を添加しても可塑性を発現しないことから、非可塑性成分に分類した。カオリン鉱物はC粘土が47.32mass%と最も多く、A粘土は28.46mass%と最も少なかった。しかし、A粘土は緑泥石を7.13mass%含んでおり、可塑性成分の合計はA粘土が35.59mass%、B粘土は35.35mass%と同程度であり、C粘土は48.34mass%と最も多いことから、本実験ではC粘土が最も可塑性

表1 各粘土の化学組成

化合物	A粘土	B粘土	C粘土
SiO ₂	59.27	71.10	61.94
Al ₂ O ₃	18.64	17.50	20.67
Fe ₂ O ₃	7.85	2.20	7.50
MgO	3.11	0.66	0.44
CaO	1.49	0.22	0.14
Na ₂ O	1.19	0.62	0.10
K ₂ O	2.53	2.51	1.43
TiO ₂	1.01	0.67	0.92
強熱減量(1050°C)	4.46	4.30	6.53

(mass%)

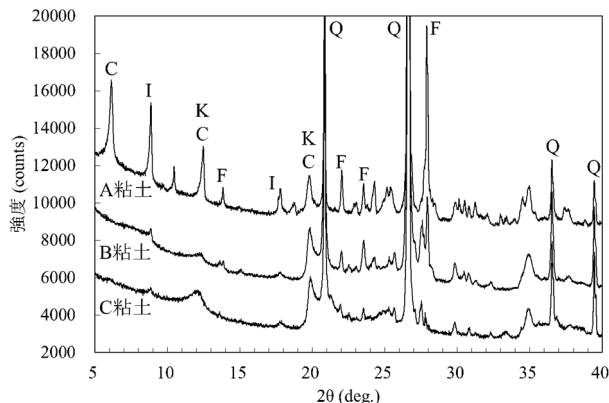


図3 各粘土のX線回折パターン(C: 緑泥石, F: 長石, I: イライト, K: カオリン鉱物, Q: 石英)

に富んだ粘土であり、A粘土とB粘土は同程度の可塑性を有すると推察される。

図4に原料粘土の粒度分布を示す。A, BおよびC粘土の平均粒子径(D₅₀)はそれぞれ10.0 μm, 5.0 μm, 4.8 μmである。B粘土はA粘土に比べ小さな粒子の多い分布となっている。C粘土はB粘土と平均粒子径は同程度であるが、1 μm以下の小さな粒子を含むとともに比較的粗大な粒子も含んでおり、500 μm以上の粒子を0.47%含んでいる。AおよびB粘土の500 μm以上の粒子はどちらも0.06%と少量であった。C粘土について、ノズル径2 mmの場合詰まることはなかったが、ノズル径1 mmでは詰まる場合があった。原料中の最大粒子径がノズル径の2分の1より大きいものを含むと閉塞する可能性がある⁸⁾ため、本実験では造形ノズル径は2 mmとした。

3.2 造形原料粘土の流動性

図5に造形原料粘土のせん断速度と見かけ粘度の関係を示す。いずれもせん断速度が大きくなると見かけ粘度が低下している。A粘土について、固形分濃度が大きい方が同じせん断速度における見かけ粘度が大きくなっている。図には示さないがBおよびC粘土も同様であった。固形分濃度が同程度である73.6~73.8mass%において比較すると、AおよびB粘土は同程度の見かけ粘度を示すのに対し、C粘土は大きな見かけ粘度を示している。これはC粘土が可塑性成分を多く含んでおりAおよびB粘土と同程度の粘性係数を得るのに必要な水分量が多くなっているためと考えられる。せん断速度の増加とともに見かけ粘度が小さくなる現象は、加えられた力が小さいときは粘性が高く、加えられた力が大きくなるにつれ粘性が低下する性質を示しており、適切な粘度範囲においては押出中の粘性低下および押出後の保形性に有効であると推察される。図5中

表2 ノルム計算にて推定した各原料粘土の鉱物組成

可塑性成分	鉱物	A粘土	B粘土	C粘土
		カオリン鉱物	28.46	33.83
非可塑性成分	緑泥石	7.13	1.52	1.02
	石英	23.13	41.01	33.09
	長石	32.41	21.17	10.03
	チタン鉄鉱	1.92	1.28	1.76
	赤鉄鉱	5.83	0.86	5.65

(mass%)

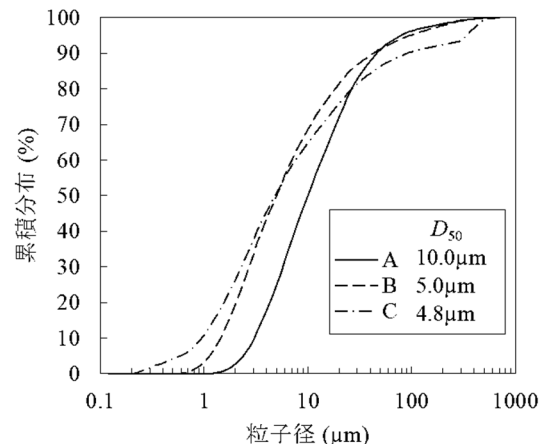


図4 原料粘土の粒度分布および平均粒子径

の近似曲線の式を以下に示す。

$$\eta = x \cdot \gamma^y \quad (1)$$

ここで、 η は見かけ粘度、 γ はせん断速度、 x および y は定数を示す。表 3 に各粘土のそれぞれの固形分濃度における定数を示す。指数 y は近似曲線の傾きを示しており、差はわずかであるが C, A, B 粘土の順に数値が小さく傾きが大きい傾向にある。係数 x はせん断速度ゼロ近傍における見かけ粘度を示しており、C, A, B 粘土の順に数値が大きく、この順に上記の押出性および保形性の性質が現れやすいと推察される。C 粘土の x が大きく y が小さくなっているのは可塑成分を多く含むためと考えられる。また、A 粘土と B 粘土を比較すると、A 粘土の方が大きな粒子を含んでおり、力を加えたときに粒子が流動しやすいため y が小さくなっていると推察される。

図 6 は式 (1) から算出したせん断速度 1000 s^{-1} における見かけ粘度を示している。せん断速度はノズル径や造形速度等の条件によって変化するため、ここではせん断速度 1000 s^{-1} を代表値とし、見かけ粘度を比較した。また、A 粘土固形分濃度 63.7mass% はキャピラリーレオメータの測定範囲外であったため、図 6 中の近似曲線から外挿で算出した値を図示した。いずれの粘土も固形分と見かけ粘度に相関が認められ、固形分濃度が増加するほど見かけ粘度が増加している。A 粘土および B 粘土は今回評価した固形分濃度の範囲では概ね同程度の見かけ粘度を示している。C 粘土は A 粘土および B 粘土と同程度の見かけ粘度を得るために必要な水分量が多く、固形分濃度の変化による見かけ粘度の変化が小さくなっている。これは可塑成分が多いためと推察され、一定の見かけ粘度に調製しやすい粘土と考えられる。

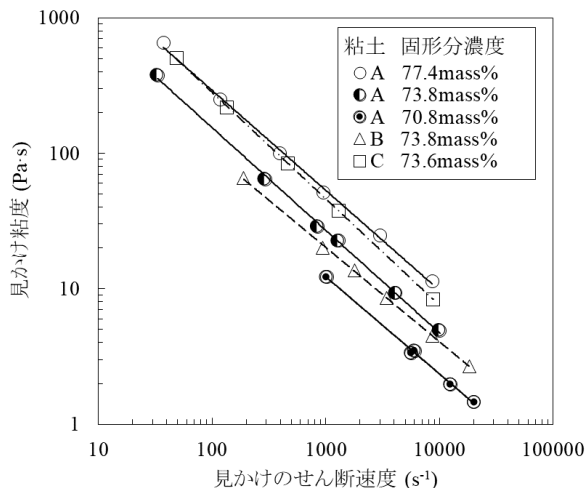


図 5 造形原料粘土のせん断速度と見かけ粘度の関係

表 3 各粘土・各固形分濃度における式 (1) の定数

粘土	固形分濃度 (mass%)	x	y
A	77.4	8750	-0.739
	73.8	5059	-0.757
	70.8	1741	-0.717
B	73.8	2486	-0.697
C	73.6	10236	-0.782

3. 3 造形の挙動と成形体および焼結体の評価

図 7 に造形後自然乾燥させた六角柱モデルの造形体写真を示す。A 粘土は固形分濃度 77.4mass% では押出抵抗が大きく、ウレタンチューブの途中で材料が停止したため造形できなかつたが、75.5~70.8mass% では安定して造形が可能であった (図 7 (a))。しかし、69.2mass% では水分量が多いため除去できなかった気泡が造形中に混じるようになり、造形体に空隙が発生するなど 70.8mass% より状態が劣っていた。63.7mass% ではそれが更に顕著になるとともに、保形性が悪く上部と下部で寸法が異なっていた (図 7 (b))。B 粘土は 76.5mass% でも押出すことはできたが、押出抵抗が大きく材料の供給が不安定で積層端面の凹凸が大きくなり、造形困難と考えられた。C 粘土は 73.6mass% で押出すことが可能であったが、積層界面にて剥離が生じ造形できなかった (図 7 (c))。B 粘土の 74.7~71.8mass% および C 粘土の 70.9~67.8mass% では安定して造形可能であったが、C 粘土 62.8mass% においては A 粘土 69.2mass% と同様に、造形原料中の気泡による空隙が生じやすくなる傾向にあった。以上のことから、冷間押出造形に適する見かけ粘度の範囲があり、せん断速度 1000 s^{-1} における見かけ粘度が $10 \sim 40 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ を示すよう原料調製することで安定して造形可能と考えられる。

図 8 に材料押出法および真空押出成形により作製した試験片焼結体の焼成温度と開気孔率の関係を示す。950°C にて比較すると、いずれも材料押出法の開気孔率の方が大きくなっている。図示しないが、材料押出法において、固形分濃度が小さくなるにつれ開気孔率は大きくなる傾向にあった。本実験においては材料押出法の固形分濃度および成形圧力が小さく、成形密度が

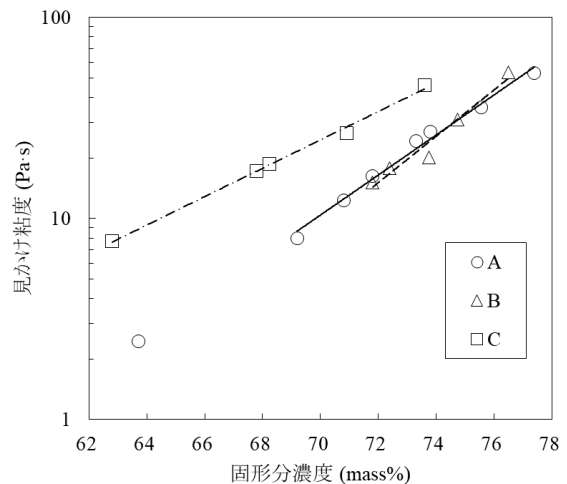


図 6 せん断速度 1000 s^{-1} における造形原料粘土の固形分濃度と見かけ粘度の関係

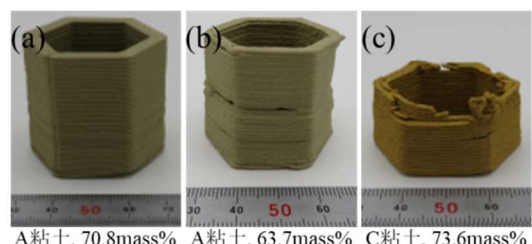


図 7 乾燥後の六角柱モデル造形体写真

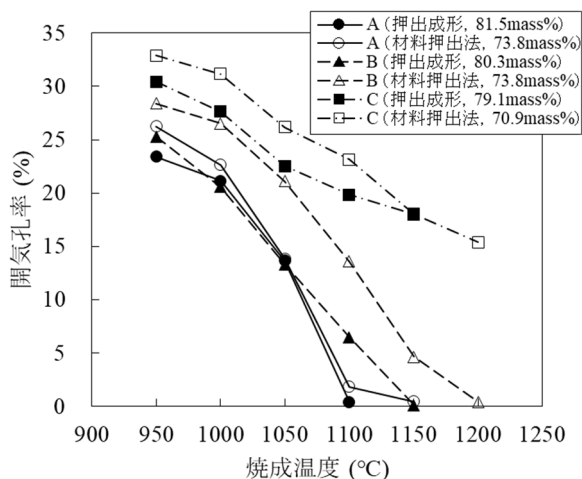


図8 材料押出法および真空押出成形にて作製した焼結体の開気孔率比較

小さくなったことが原因と考えられる。A粘土は1050～1100°Cにおいてほとんど差が無くなっている。表2より、A粘土は長石成分を最も多く含んでいる。長石成分は石英やカオリン鉱物に比べ比較的融点が高い鉱物であり、ある程度成形密度が低い状態でも焼結されたと推察される。

図9に本実験にて作製した焼結体写真を示す。造形原料の固形分濃度は、A粘土が70.8mass%、B粘土が74.7mass%、C粘土が70.9mass%であり、焼成温度は開気孔率20%程度となる1020°C、1060°C、1135°Cとした。AおよびC粘土焼結体が褐色であるのに対しB粘土焼結体が淡黄色であるのは、鉄に由来する鉱物の含有量が少ないことが原因と考えられる。乾燥収縮率および焼成収縮率は十分に評価できていないため一例を示すにとどめるが、A粘土固形分濃度70.8mass%において、それぞれ8.0%および5.3%であり、全収縮率は12.9%であった。いずれの造形体も焼成後に亀裂や変形は認められなかった。また、六角柱以外に壁面を星形や波形状にした焼結体も作製可能であった。

4 結論

陶器質粘土について鉱物組成および粒子径を評価し、固形分濃度を变化させたときの冷間押出造形における造形原料の流動性および造形品質に及ぼす影響を調査した。いずれの造形原料もせん断速度が大きくなると見かけ粘度が低下しており、押出中の粘性低下および押出後の保形性に有効であると推察された。可塑成分の含有量の多い方が同じせん断速度における見かけ粘度は大きくなった。粒子径の差は、せん断速度と見かけ粘度の関係においてわずかに差を示す傾向が見られたが、本実験の範囲においては造形への影響の差は認められなかった。固形分濃度が小さいと空隙の発生頻度の増加および造形体の変形が発生した。一方、固形分濃度が大きいと押出抵抗が大きく、本実験では原料を押出すことが出来ない場合や積層界面の剥離が発生する場合があった。原料中の可塑成分量に応じて固形分濃度を調整し、せん断速度1000 s⁻¹における見かけ粘度が10～40 Pa·sとなるよう造形原料を調製することで安定した造形が可能になると考えられた。いずれ

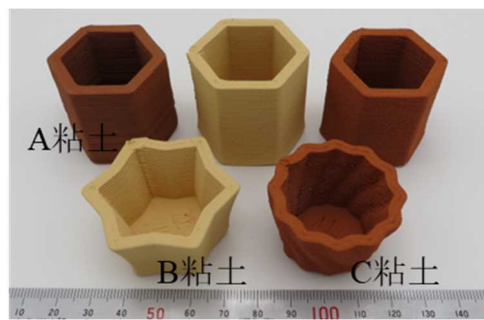


図9 材料押出法により作製した粘土焼結体写真

の造形体も焼成後に亀裂や変形は認められず、六角柱以外に壁面を星形や波形状にした焼結体も作製可能であった。以上のことから、原料粘土の鉱物組成に応じて固形分濃度を調整し、最適な見かけ粘度範囲とすることで材料押出式3Dプリンタによる陶器質粘土の安定した冷間押出造形が可能になり、種々の形状の陶器質造形焼結体の作製が可能になると示唆された。

謝辞

本研究を遂行するにあたり粒度分布測定および焼結体の密度測定にご協力頂いた香川県産業技術センター技師 高橋おしえ氏に感謝いたします。

参考文献

- 1) J. Deckers, J. Vleugels, J.-P. Kruth: Additive Manufacturing of Ceramics: A Review, J. Ceram. Sci. Technol., 05, 245-260 (2014).
- 2) 横田耕三, 高原茂幸: DLP 光造形法によるアルミナ3次元積層造形体及びぼすスラリー特性および造形条件の影響, 粉体工学誌, 53, 492-498 (2016).
- 3) K. Yokota, Y. Kataoka: DLP 式光造形法による3次元積層造形 Al₂O₃-ZrO₂-TiO₂ セラミックスの作製, J. Soc. Powder Technol., Japan, 56, 261-266 (2019).
- 4) K. Yokota, Y. Kataoka: Influence of Molding on Characteristics of Alumina Sintered Bodies Fabricated by Digital Light Processing Vat Photopolymerization, J. Soc. Inorg. Mater., Japan, 28, 139-145 (2021).
- 5) 片岡良孝, 横田耕三: 材料押出法によるジルコニア3次元積層造形体の作製, 粉体工学誌, 57, 520-525 (2020).
- 6) 横田耕三, 片岡良孝: 材料押出法によるセラミックスの3次元積層造形体の作製, セラミックス, vol. 56, 11, 722-725 (2021).
- 7) 片岡良孝, 横田耕三: 材料押出法における三次元セラミックス造形に適するサポートの検討, J. Soc. Inorg. Mater., Japan, 29, 217-222 (2022).
- 8) S. S.L. Chan, R. M. Pennings, L. Edwards, G. V. Franks: 3D printing of clay for decorative architectural applications: Effect of solids volume fraction on rheology and printability, Addit. Manuf., 35, 101335 (2020).
- 9) 日本粘土学会編: 粘土ハンドブック, 技報堂, pp532-533, (1967).

ものづくり基盤技術高度化支援プロジェクト

—令和4年度の活動—

熱田 俊文, 宮内 創, 新名 楓, 山下 雅弘

ものづくり基盤技術関連企業の成長分野等への進出を促進する目的で、「機械加工技術」、「溶接技術」等の基盤技術の高度化を支援するための技術支援・研究開発を実施した。具体的には、ものづくり基盤技術高度化分科会の開催、各専門分野のアドバイザーによる巡回技術指導、分科会のワーキンググループにおける勉強会の実施、溶接技量訓練装置を用いた人材育成支援等の活動を行った。さらに、基盤技術の高度化を支援するための研究開発や個別の技術支援も実施した。

1 緒言

当センターでは、平成29年度から「ものづくり基盤技術高度化支援事業」を開始した^{1)~5)}。この事業は、ものづくり基盤技術関連企業の成長分野等(健康医療分野、航空宇宙分野、自動車関連分野など)への進出を促進するため、各基盤技術における共通課題を抽出し、その解決のための技術支援・研究開発を実施することで、コア技術をより一層強化することを目的としている。

具体的な内容として、平成29年度に基盤技術である「機械加工技術」および「溶接技術」の高度化を支援するための分科会を立ち上げ、2つのワーキンググループ(機械加工技術の高度化WG、溶接人材育成WG)を設置した。今年度も、この分科会での活動を中心として、各WGにおける勉強会・練習会の開催、技術アドバイザー巡回による現場の課題改善、溶接マイスターによる現地実技セミナー、溶接技量訓練装置を用いた人材育成支援等を実施し、県内企業の基盤技術の高度化を支援した。また、機械加工技術・溶接技術の高度化に資する研究開発の実施や個別の高度化支援等も実施した。本報ではこの事業の6年目の活動内容について報告する。

2 ものづくり基盤技術高度化分科会

分科会の構成員は、企業28社(加工15社、溶接19社、重複含む)と業界1団体、当センターである。この分科会において、各WGでの勉強会・練習会の開催、技術アドバイザー(機械加工・溶接等、計3名を委嘱)による巡回指導、加工事例・人材育成・技能伝承等に関する会員相互の情報交換を行った。

2.1 開催

今年度は下記のとおり、2回の分科会を開催した。

○第1回

日時：令和4年5月13日(金)

議事：(1)今年度の実施計画
(2)今年度のアドバイザー紹介

○第2回

日時：令和5年3月20日(月)

議事：(1)情報提供
加工現場の作業時間短縮について
(2)今年度の実施報告

第1回分科会は、新型コロナウイルス感染拡大防止の観点か

ら、電子メールでの書面開催とし、今年度の実施計画やアドバイザー紹介等の報告を行った。第2回分科会はwebで開催し、加工現場の作業時間短縮に関する情報提供や今年度の活動実績の報告などを行った。

2.2 アドバイザー

今年度は各専門分野のアドバイザーとして、機械加工技術分野：香川県職業能力開発協会 佃 昭 氏、溶接技術分野：香川高等専門学校 正箱 信一郎 氏、徳島県鉄骨構造協同組合 奈須 善彦 氏をそれぞれ委嘱した。各アドバイザーは、会員企業を訪問し、現場の課題改善のための指導や情報交換等を行った。図1にアドバイザーの巡回指導の様子を示す。今年度は延べ7社を訪問した。機械加工技術分野では、複合旋盤加工における加工能率の改善、ポンプ部品の加工精度向上、長尺ワークの精密測定、5S、建築内装関係部品の加工方法などについての指導を実施した。溶接技術分野では、大型部材の溶接における歪み対策、ステンレス溶接時の耐腐食性低下の対策、溶接ヒュームの集塵、労働安全衛生法の法改正に伴う対応、パス間温度の管理などについての指導を実施した。



図1 アドバイザーの指導事例

2.3 ワーキンググループ(WG)

今年度のWGは、以下のとおり計10回開催した。

○機械加工技術の高度化WG①

日時：令和4年10月13日(木) 13:30~15:30

場所：web開催

タイトル：「デジタルツールを活用した製造現場の技能伝承」

講師：(株) フォトロン 石田 将司 氏

旭エレクトロニクス(株) 長倉 隆徳 氏

参加者：29名

○機械加工技術の高度化WG②

日時：令和5年3月20日(月) 13:30~15:00

場所：web開催

タイトル：「加工現場 作業時間短縮」

講師：(株)イマオコーポレーション 宮部 一義 氏
参加者：17名

○溶接人材育成WG① (計5回)

日時：令和4年6月26日(日), 9月11日(日),
12月4日(日), 令和5年1月29日(日),
2月19日(日) 各9:00~13:00

場所：産業技術センター実験棟 表面改質試験室
タイトル：「溶接マイスター指導による溶接技量訓練
装置を使った個別練習会」

講師：(株)タダノ 大澤 兼治 氏

参加者：延べ25名

○溶接人材育成WG②

日時：令和4年11月18日(金) 13:30~16:40
場所：web開催

タイトル：「溶接技術講習会~ステンレス鋼の溶接~」

講師：大阪大学接合科学研究所 三上 欣希 氏

大阪大学 小川 和博 氏

日鉄溶接工業(株) 大泉 真吾 氏

参加者：126名

○溶接人材育成WG③

日時：令和5年3月3日(金) 13:15~14:45

場所：web開催 タイトル：「硬さ試験の基礎」

講師：(株)ミツトヨ 横山 秀樹 氏

参加者：54名

○溶接人材育成WG④

日時：令和5年3月11日(土) 8:30~12:40

場所：ポリテクセンター香川(高松市)

タイトル：「溶接技術コンクール事前講習会」

実技講師：7名 参加者：18名

機械加工技術の高度化WG(図2)では、製造現場の技能伝承や加工時間短縮に関する勉強会を開催した。「デジタルツールを活用した製造現場の技能伝承」では、OJTで語るだけでは伝わらないカン・コツを、動画編集ソフトを活用した動画でわかりやすく伝える方法について事例を交えて紹介した。また、溶接訓練の見える化とデジタル化、訓練効率の向上を実現する最新のAR技術を用いた溶接訓練方法について紹介した。「加工現場 作業時間短縮」では、段取りの効率化や無駄時間の削減といった加工現場の作業時間短縮に繋がる改善の事例を多数紹介した。

溶接人材育成WG(図3)では、平成29年度に導入した溶接技量訓練装置を用いて5回の個別練習会を開催した。個別練習会は、日本溶接協会マイスターである(株)タダノの大澤氏を指導者として、各企業ごとに溶接動作や適切な溶接条件などに関する個別指導を行った。溶接の初心者からJIS検定合格や熟練工を目指す参加者などのそれぞれの技量・目的に応じた指導内容で好評であった。「溶接技術講習会~ステンレス鋼の溶接~」では、近年、利用が増えている二相ス

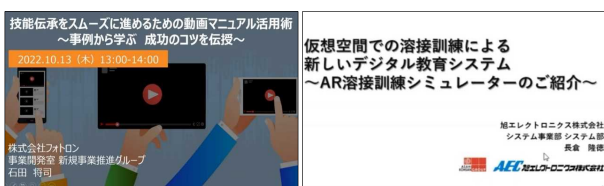


図2 機械加工技術の高度化WG

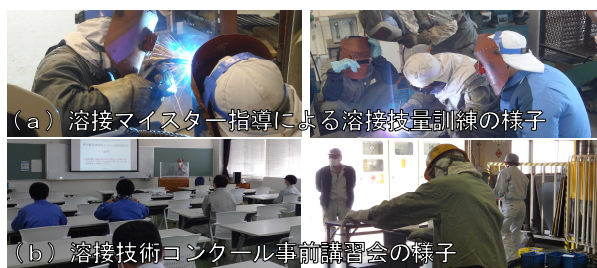


図3 溶接人材育成WG

テンレスの溶接について、低温割れの要因や溶材の選定方法、施工上の注意点などについて説明した。「硬さ試験の基礎」では、各種材料の機械的性質を評価する上で重要な硬さ試験について、測定原理や正確な測定を行うために必要な試験機の管理方法等について詳しく説明した。「溶接技術コンクール事前講習会」では、溶接技術コンクールへの参加予定者向けに課題内容や溶接手順、減点ポイントなどについて説明し、また溶接マイスター四国の認定者や指導経験豊富な溶接技術者を講師として個別に実技指導を行った。

3 高度化支援

基盤技術の高度化を支援するための研究開発や個別支援を実施した。これらについては、別途報告を行う。

4 結言

今年度は、ものづくり基盤技術高度化分科会において、2回の分科会を開催し、7社のアドバイザー巡回指導を実施した。また、各ワーキンググループにおいて、製造現場の技能伝承や加工時間短縮に関する勉強会、ステンレス鋼の溶接、硬さ試験の基礎、溶接技能向上を目的とした練習会などを開催した。併せて、基盤技術の高度化を支援するための研究開発や個別の技術支援も実施した。

今年度が事業の最終年度であるが、今後も引き続き、機械加工技術および溶接技術を中心とした県内企業の基盤技術の高度化を支援していく予定である。

参考文献

- 1) 山下雅弘, 熱田俊文, 松島康晴, 中原理栄: ものづくり基盤技術高度化支援事業, 香川県産業技術センター研究報告, No. 18, pp. 45-47 (2017).
- 2) 山下雅弘, 熱田俊文, 松島康晴, 中原理栄: ものづくり基盤技術高度化支援プロジェクト~平成30年度の活動~, 香川県産業技術センター研究報告, No. 19, pp. 27-29 (2018).
- 3) 山下雅弘, 熱田俊文, 松島康晴, 新名 楓, 中原理栄: ものづくり基盤技術高度化支援プロジェクト~令和元年度の活動~, 香川県産業技術センター研究報告, No. 20, pp. 23-24 (2019).
- 4) 大北一也, 山下雅弘, 熱田俊文, 松島康晴, 新名 楓: ものづくり基盤技術高度化支援プロジェクト~令和2年度の活動~, 香川県産業技術センター研究報告, No. 21, pp. 20-21 (2020).
- 5) 熱田俊文, 宮内 創, 新名 楓, 山下雅弘: ものづくり基盤技術高度化支援プロジェクト~令和3年度の活動~, 香川県産業技術センター研究報告, No. 22, pp. 28-30 (2021).

二つのインサートを用いた旋削加工のびびり振動抑制（第2報）

熱田 俊文, 吉村 英徳*, 松村 隆**

本研究では、工具シャンクに2つのインサートを取り付けて同時に切削することで、再生びびり振動の発生を抑制する旋削手法を検討している。この手法では、送り方向に先行するインサートによって生成された仕上げ面の起伏を、刃先高さの異なるもう一つのインサートで時間遅れを伴いながら切削することで、再生効果により生じる切削厚さ変動の周期性を乱してびびり振動の抑制を図る。この旋削手法について本報では、前報¹⁾で提案したインサートの配置よりも、調整が容易で切りくずの排出性も良好な新たなインサートの配置を提案し、切削実験を行ってその効果を示した結果を報告する。

1 緒言

旋削中に発生する再生びびり振動は、一回転前の加工面の起伏が現在の切削に影響する“再生効果”が原因となって起こる自励振動であり、仕上げ面の悪化や工具寿命の低下を引き起こす。その対策については、従来から多くの研究がなされてきた^{2)~4)}が、長尺物や薄肉円筒物、センタ支持不可能な形状などの剛性の低い被削材を旋削する際には、現在でも再生びびり振動の発生が問題となり、未だ多くの課題が残されている。

この課題に対して本研究では、工具シャンクに2つのインサートを取り付けて同時に切削することで、再生びびり振動の発生を抑制する旋削手法を検討している¹⁾。この手法では、送り方向に先行するインサートによって生成された仕上げ面の起伏を、刃先高さの異なるもう一つのインサートで時間遅れを伴いながら切削することで、再生効果により生じる切削厚さ変動の周期性を乱してびびり振動の抑制を図る。この手法について本報では、前報¹⁾で提案したインサートの配置よりも、調整が容易で切りくずの排出性も良好な新たなインサートの配置を提案する。この新たなインサートの配置について、その手順や効果的にびびり振動を抑制するための切削条件の選定方法などを説明し、実際に切削実験を行ってその効果を示した。

2 提案手法

再生びびり振動については、工具が被削材の同一箇所を相次いで切削する間の振動の波長や位相を乱す操作を加えれば、再生効果が攪乱されて振動が抑制されることが知られている⁵⁾。本研究で検討している加工方法は、この原理を応用したものであり、**図1(a)**に示す通常の旋削（以下、「通常旋削」と記す）に対して、**図1(b)**または**図1(c)**に示すように、工具シャンクに同じインサートを2つ取り付けて旋削を行うことから、本報では2刃旋削と呼ぶ（以下、**図1(b)**、**(c)**の配置をそれぞれ「配置1」、「配置2」と記す）。

2.1 インサートの配置

図1(b)または**図1(c)**に示すように、送り方向で

前方のインサートAと後方のインサートBを、それぞれ高さ方向にオフセットして工具シャンクに取り付ける。**図1(b)**の配置1、**図1(c)**の配置2のいずれも、主に材料除去を行うのは送り方向で前方のインサートAである。このインサートAを被削材の回転中心に対して下に取り付けるか（配置1）、上に取り付けるか（配置2）によって、インサートBを配置すべき位置が変わるが、いずれの配置でもびびり振動抑制の基本的なメカニズムは同じである。ただし、前報¹⁾で提案した配置1では、主に切削を行うインサートAのすくい面から切りくずが排出されるスペースを十分に確保する必要があり、本手法で重要となる2つのインサートの高さオフセットを現実的には大きく調整できないという課題があった。また送り方向では、インサートAとBをおよそ主軸一回転あたりの送り量 f 分だけオフセットして固定するが、この調整は測定顕微鏡などで観察しながら行う必要があり、調整の困難さも課題であった。この課題を改善するために、本報で新たに提案する配置が配置2である。以下では、配置2を対象に2刃旋削の説明を行う。インサートの配置の詳細は次のとおりである。

(1) **図1(c)**の右図に示すように、インサートBを被削材の回転中心より下の高さオフセット $-q$ でシャンク座面に取り付ける。

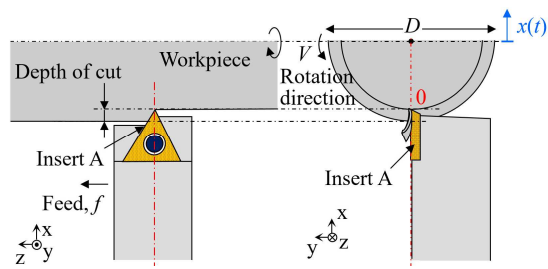
(2) Bの上部に、シムを用いてインサートAを被削材の回転中心より上の高さオフセット $+q$ で取り付ける。インサートAとBの切込み方向の位置は同じである。

(3) 送り方向では、**図1(c)**の左図に示すように、インサートAはBよりも位置オフセット p だけ前方に配置する。

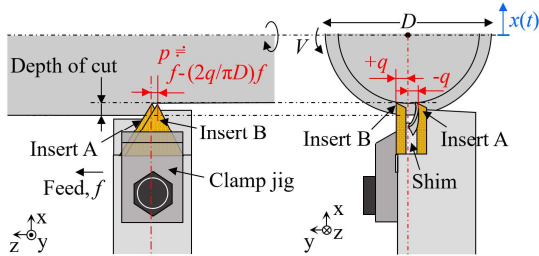
上記のように2つのインサートを配置すると、高さオフセット q に対する位置オフセット p の設定によって、後方インサートBの切削への関与が変わることになるが、2刃旋削（配置2）では、被削材直径を D として、 $p=(2q/\pi D)f$ に調整する。この場合、インサートBの横切れ刃は、インサートAによって生成された仕上げ面の起伏（以下、「外側波」と記す）の一部を、一回転後にインサートAが再び切削するよりも先に削ることができる。この点については、次節で単純化したモデルを用いて説明するが、外側波の一部を位相の異

* 香川大学創造工学部

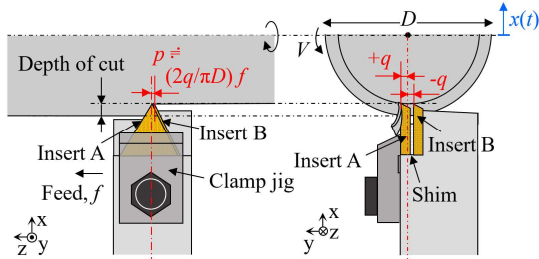
** 東京電機大学工学部



(a) 通常旋削



(b) 2刃旋削 (配置1)



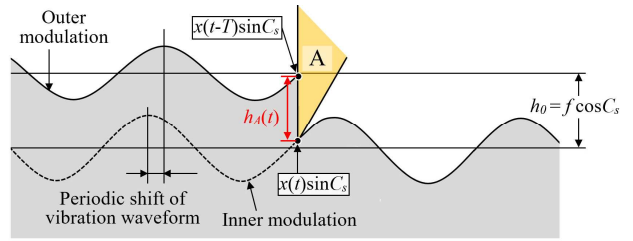
(c) 2刃旋削 (配置2)

図1 通常旋削と2刃旋削

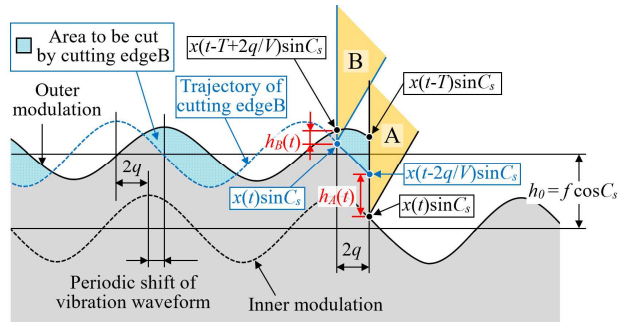
なる位置で先行して除去することで再生効果による切削厚さ変動の周期性が乱れ、再生びり振動の成長が抑制される。また配置2では、主に切削を行うインサートAが上部に配置されているため、配置1のように切りくずの排出が問題となることはない。位置オフセット p の調整の目安である $(2q/\pi D)f$ の項は、一般的な q , D , f の条件では、 μm オーダーと微小な値となる。 p が目安よりも大きくなると、インサートBの横切れ刃は、被削材の振動がある程度成長するまでインサートAが生成した外側波を削らないことになる。一方、既報¹⁾の配置1での解析結果によると、 p が目安よりも小さい場合（インサートBの横切れ刃が切削面に近づく方向）であれば、 p に多少誤差が生じてもびり振動抑制の効果は大きく変わらない。すなわち、インサートBが外側波を確実に削ることが重要であるため、配置2では、位置オフセット p を $p = (2q/\pi D)f \neq 0$ とし、一定のびり振動抑制効果が期待できる。したがって、簡便には、送り方向においてインサートAとBの横切れ刃の位置を揃えればよく、配置1に比べて位置オフセット p の調整が容易となる。

2.2 切削厚さ変動に及ぼす効果

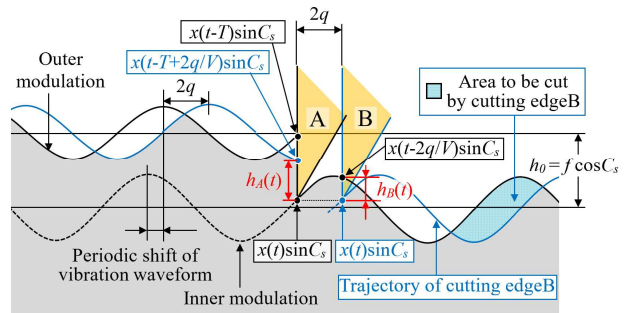
再生びり振動は、現在の振動（内側波）と主軸一回転前までに被削材表面に転写された振動（外側波）によって切削厚さが変動することで生じる。本節では、外周旋削加工を対象に、再生効果を伴うプロセスにおいて2刃旋削（配置2）が切削厚さ変動に及ぼす効果について述べる。なお、再生びり振動は、被削材のみが振動する系で発生するものと仮定し、簡単のため、



(a) 通常旋削



(b) 2刃旋削 (配置1)



(c) 2刃旋削 (配置2)

図2 横切れ刃に垂直な面内における切削モデル

被削材の切込み方向 (x 方向) の振動の自由度のみを考えるものとする。

図2(a)は、インサートを1つだけ用いる通常旋削における切削厚さ変動のモデル図である。図示のとおり、切削状態を横切れ刃に垂直な面内で二次元切削と近似し、主軸回転周期を T 、工具横切れ刃角を C_s とすると、外側波は $x(t-T)\sin C_s$ 、内側波は $x(t)\sin C_s$ で表され、切削厚さの変動分は $\{x(t-T) - x(t)\}\sin C_s$ となる。平均切削厚さは、定常送りを f として $h_0 = f \cos C_s$ であり、時刻 t での切削厚さ $h_A(t)$ は次式で示される。

$$h_A(t) = f \cos C_s + \{x(t-T) - x(t)\} \sin C_s \quad (1)$$

式(1)で示されるように、一回転前の加工面の起伏は切削厚さ変動に影響を及ぼす。切削厚さの変動は切削力の変動を引き起こし、これが再び振動系を加振して切削厚さをさらに変動させる。このような再生効果によって振動系が不安定となることで自励振動が成長する。

一方、2刃旋削（配置2）で、 $p = (2q/\pi D)f$ とした場合、主に切削を行うインサートAの横切れ刃に垂直な面内では、図2(c)の青線で示すようにインサートBの横切れ刃が作用する。 x 方向においてインサートAとBの両切れ刃は同じ位置にあるため、インサートBの切れ刃の軌跡は、 $x(t)\sin C_s$ で与えられるインサートAの内側波と同期する。もしも $q=0$ の場合、インサー

トAとBにおける周期と位相は互いに同じであり、切削厚さおよび切削力の変化は、通常旋削と変わらない。しかし、2刃旋削（配置2）では、インサートAとBがそれぞれ高さオフセット+qと-qに配置されるため、インサートBの方がインサートAよりも切れ刃高さが2qだけ低い。このため、切削速度をVとすると、インサートBはインサートAの内側波よりも $\Delta t=2q/V$ の時間差分だけ位相がずれた位置を削る。すなわち、インサートBはインサートAによって外側波が生成された直後に、その外側波の一部を削る。時間差 Δt において、インサートBの切れ刃の軌跡は $x(t)\sin C_s$ であり、インサートAによる切削の外側波は $x(t-2q/V)\sin C_s$ である。したがって、時刻tにおけるインサートBによる切削の切削厚さ $h_B(t)$ は、次のように表される。

$$h_B(t) = \begin{cases} \{x(t-2q/V) - x(t)\} \sin C_s & \\ : x(t-2q/V) > x(t) \text{ の場合} & (2) \\ 0 & : x(t-2q/V) < x(t) \text{ の場合} \end{cases}$$

なお、式(2)で $h_B(t)=0$ となるときには、インサートBの横切れ刃は切削面から離脱しており切削に関与しない。上記のようにインサートBの横切れ刃が作用することで、インサートAによる切削の切削厚さ $h_A(t)$ は、主軸回転周期Tだけではなく、式(2)の $h_B(t)$ にも依存するようになる。ほぼ前回転でインサートBが切削しなかった場合、インサートAの現在の切削における外側波は $x(t-T)\sin C_s$ である。一方、ほぼ前回転で $x(t-2q/V) > x(t)$ となり、インサートBが切削した場合、インサートAの現在の切削における外側波は $x(t-T+2q/V)$ であり、インサートAはBによって新たに被削材表面に転写された起伏を削る。したがって、時刻tにおけるインサートAによる切削の切削厚さ $h_A(t)$ は、以下のように表される。

$$h_A(t) = \begin{cases} f \cos C_s + \{x(t-T+2q/V) - x(t)\} \sin C_s & \\ : x(t-T) > x(t-T+2q/V) \text{ の場合} & (3) \\ f \cos C_s + \{x(t-T) - x(t)\} \sin C_s & \\ : x(t-T) < x(t-T+2q/V) \text{ の場合} \end{cases}$$

式(2)、(3)から、高さオフセットqが再生効果による切削厚さおよび切削力変動を制御する因子であることがわかる。すなわち、2刃旋削では、刃先高さの異なる2つのインサートによって生成される波の位相差を利用して、再生効果によるびびり振動の成長を抑制する。

位置オフセットpの調整を容易にするために $p=0$ とした場合、図3に切削モデルを示すように、インサートAにおける切削厚さが $(2q/\pi D)f \cdot \cos C_s$ だけ減少し、同じ分だけインサートBにおける切削厚さが増加することになる。したがって、被削材が全く振動しなくても、インサートBは切削面を若干削ることになるが、切削厚さ変動を乱す効果としては、大きく変わらない。

2.3 切削条件の選定方法

既報¹⁾で詳しく解析した結果によれば、前方インサートAの外側波と後方インサートBの内側波との位相差が大きいほど、2刃旋削による再生びびり振動の抑制効果は高くなる。逆に、位相差が小さいとインサートBがインサートAの外側波を削らなくなるばかりではなく、かえって再生びびり振動に対する安定性が低下する場合もある。このため、被削材の振動の周期的特性と高さオフセットqの関係に応じて、切削条件は適切に設定する必要がある。

再生びびり振動は、振動系（本報においては被削材系）のコンプライアンスの大きい固有振動数 f_0 近傍の周波数 f_w で発生する。そして、振動周波数 f_w と切削速度Vに依存して、加工表面に生成されるびびり振動痕の波長 $\lambda (=V/f_w)$ は変わる。図4は、振動の波長 λ に対して、2刃旋削（配置2）における高さオフセットqの値を、 $2q=0 \sim \lambda$ まで変化させた場合の切削状態（横切れ刃に垂直な面内）の模式図である。 $2q=\lambda$ の場合では、インサートAの外側波とインサートBの内側波の位相が互いに同じとなり、切削厚さおよび切削力の変化は、通常旋削と変わらないことになる。（厳密には、 $2q=n\lambda$ ($n=1, 2, 3, \dots$) の場合であるが、qの値が最小となるように、ここでは $n=1$ の場合のみを考える。）一方、 $\lambda/4 < 2q < 3\lambda/4$ 程度の範囲では、インサートBの横切れ刃が外側波を削りやすく、再生効果によるびびり振動の成長を抑制しやすくなると考えられる。したがって、2刃旋削（配置2）が特に有効となる f_w, V, q の条件として、次式が得られる。

$$V/4f_w < 2q < 3V/4f_w \quad (4)$$

上式より、被削材の振動周波数 f_w と切削速度Vを与えると、2刃旋削（配置2）が特に有効となる高さオフセットqの範囲を知ることができる。逆に、高さオフセットqを与えることで、有効な切削速度Vの範囲を求めることができる。また、一般的にびびり振動の周波数 f_w は、振動系のコンプライアンスの大きい固有振動

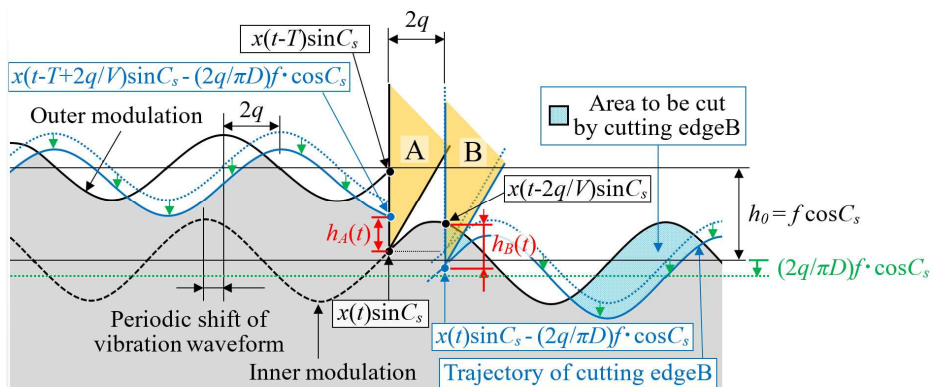


図3 位置オフセットp=0の場合の横切れ刃に垂直な面内における切削モデル

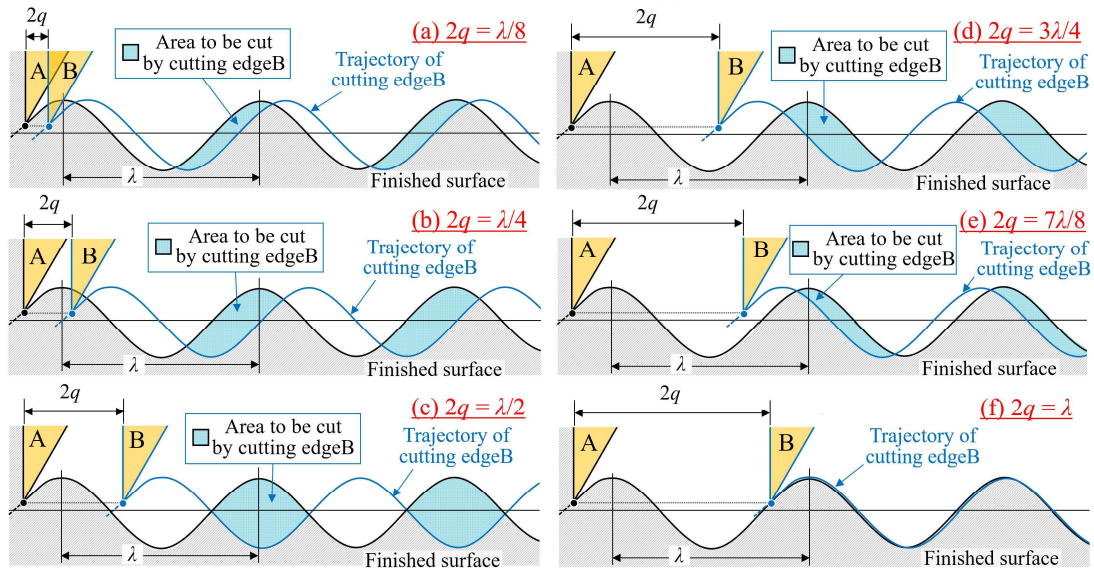


図4 高さオフセット q と被削材の振動の波長 λ の関係

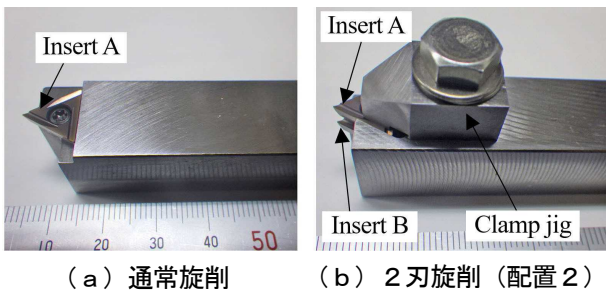


図5 使用工具

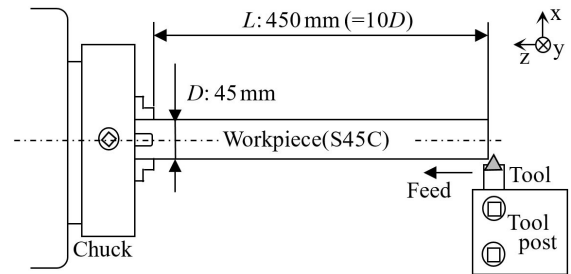


図6 切削実験の模式図

数 f_0 よりも若干高い値となるが、固有振動数 f_0 を調べて、式(4)の f_v に代えて f_0 を用いることで、有効な条件を大まかに推定することができる。

3 切削実験

3.1 実験装置および実験方法

剛性の低い長尺ワークの外周旋削において、2刃旋削(配置2)の有効性を検証するための切削実験を行った。図5(a)は通常旋削で用いた工具であり、実験は、インサート(Aのみ)の刃先高さを被削材中心に合わせた場合と被削材中心から+2.0mmに合わせた場合の2パターンを行った。図5(b)は2刃旋削で用いた工具であり、インサートAとBはシムを使用して被削材中心からそれぞれ±2.0mmの高さオフセット q で固定した。シャンクは炭素鋼 S50C (HRC30) で製作し、インサートにはA、Bともに同じ超硬 P20 種スローアウェイチップ(厚さ2.38mm、ノーズR 0.1mm)を用いた。工具諸元は、刃先高さを被削材中心に合わせた場合ですくい角 18° 、横切れ刃角 30° 、逃げ角 11° である。

切削実験には普通旋盤(株滝澤鉄工所, TAC510-L10)を使用した。びびり振動に対する安定性は、図6に示すように旋盤のチャックに炭素鋼 S45C の磨き丸棒(HBW229, 直径 $D:45\text{mm}$) を突出し長さ $450\text{mm} (=10D)$ で取付け、心押し台を使用せずに片持ち支持にして長手外周旋削する方法で調べた。この被削材の系は、直径に対する突出し長さが非常に大きいため、被削材側で

容易に再生びびり振動を生じる。インパルス応答法で調べた被削材系の固有振動数 f_0 は 120Hz であった。式(4)によると、 $f_v=f_0=120\text{Hz}$ 、 $q=2.0\text{mm}$ の場合、切削速度 V を $640\sim 1,920\text{mm/sec}$ ($38\sim 115\text{m/min}$) の範囲にすると、図4(b)~(d)の切削状態となり、インサートBが外側波を削りやすくなる。そこで切削速度 V は 85m/min に設定した。実験では、通常旋削と2刃旋削(配置2)のそれぞれについて、切削速度 $V=85\text{m/min}$ 、送り量 $f=0.1\text{mm/rev}$ の条件で切込み量 d mmを変えて切削を行い、びびり振動が発生しない最大の切込み量を比較した。びびり振動に関する切削状態は以下のように判別した。

- ・安定：被削材端部から長手方向 20mm の切削を安定して行うことができ、切削面にびびり痕も見られない。
- ・不安定：被削材端部から長手方向 20mm の切削を行うことが可能であるが、切削面にびびり痕が観察される。または、被削材の振動が急速に増大し、加工の継続が困難となる。

2刃旋削(配置2)における位置オフセット p の調整の目安は、送り量 $f=0.1\text{mm/rev}$ の場合では、 $0.003 (= (2q/\pi D)f)$ mm と計算される。実験では、インサートBが外側波を確実に削るように目安よりも p を若干小さくし、かつ調整を容易にするために、インサートAとBの両切れ刃は送り方向で同じ位置 ($p=0$) に配置した。具体的には、シャンクに設けた基準面に、インサートAとBの横切れ刃を送り方向に押し当てながらクランプすることで、両切れ刃の位置を揃えた。すな

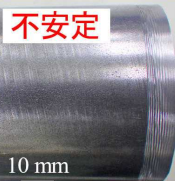
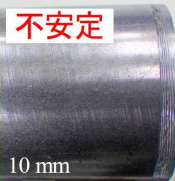
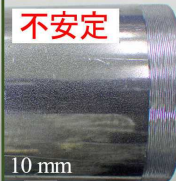
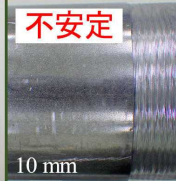
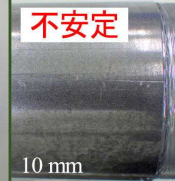
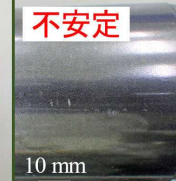
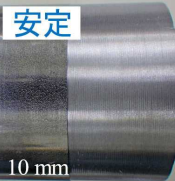
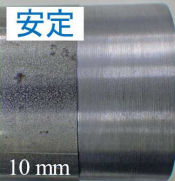
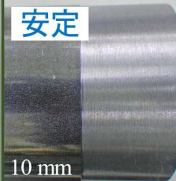
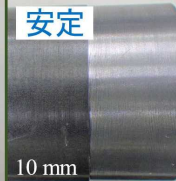
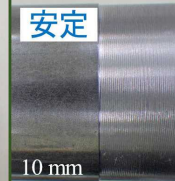
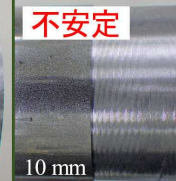
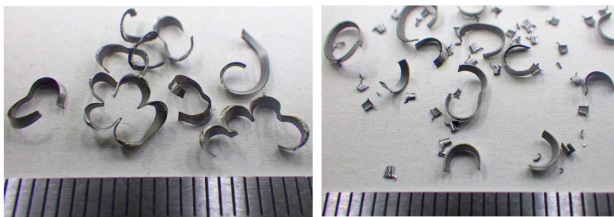
	$d=0.2\text{ mm}$	$d=0.3\text{ mm}$	$d=0.4\text{ mm}$	$d=0.5\text{ mm}$	$d=0.6\text{ mm}$	$d=0.7\text{ mm}$
通常旋削	不安定 	不安定 	不安定 	不安定 	不安定 	不安定 
2刃旋削	安定 	安定 	安定 	安定 	安定 	不安定 

図7 切削状態の実験結果



(a) 通常旋削 (b) 2刃旋削 (配置2)

図8 切りくずの例

わち、インサートBはインサートAの直下に配置した。

3. 2 実験結果

図7に切込み量 d に対する切削状態の実験結果を示す。通常旋削では、いかに軽度な切込み量を与えても切削開始直後から激しいびびり振動が発生し、安定に加工を行うことができなかった。図は、刃先高さを被削材中心から+2.0mmに設定した場合の結果であるが、刃先高さを被削材中心に合わせた場合でも同様であった。一方、2刃旋削（配置2）では $d=0.7\text{mm}$ まで安定に加工ができており、再生びびり振動の抑制に本手法が有効であることを示している。

切削後の切りくずの例として、図8に切込み量 $d=0.7\text{ mm}$ での結果をそれぞれ示す。この条件では、2刃旋削（配置2）においても切削面にびびり痕が観察されて不安定となったが、図8(b)より、インサートBの横切れ刃が関与して微細な切りくずが生じており、意図

した切削状態を実現できていることが確認できる。

4 まとめ

低剛性の被削材の旋削でインサートを2つ用いて再生びびり振動を抑制する方法について、前報とは異なる新たなインサートの配置を提案した。本報ではその配置と切削厚さに及ぼす影響、切削条件の選定方法などについて説明し、実際に旋削実験を行ってその有効性を示した。本報で提案したインサートの配置は、前報で示した配置と比べて、切りくずの排出性が問題とならない、両インサートを上下に配置すればよい調整が容易である、といった利点が挙げられる。

参考文献

- 1) 熱田俊文, 吉村英徳, 松村隆: 二つのインサートを用いた旋削加工のびびり振動抑制, 香川県産業技術センター研究報告, No. 22, pp. 31-36 (2021).
- 2) 星鐵太郎: びびり現象, 工業調査会, (1977).
- 3) 社本英二: 切削加工におけるびびり振動の発生機構と抑制, 電気製鋼, 82, 2, pp. 143-155 (2011).
- 4) 鈴木教和: 切削加工におけるびびり振動 (前編), 精密工学会誌, 76, 3, pp. 280-284 (2010).
- 5) 竹村正, 北村隆, 星鐵太郎: 主軸回転速度変動によるびびり振動の防止, 精密機械, 41, 5, pp. 489-494 (1975).

摩擦攪拌接合の薄板適応についての検討

新名 楓, 熱田 俊文, 吉村 英徳*

これまで、摩擦攪拌接合 (FSW) の薄板適応を目的に、板厚 0.1 mm の薄板 (SUS304) に対する突合せ点接合の適用方法を検討してきた。その結果、接合可能条件や適切なツール材質など、薄板接合における基礎的な知見を得た。本報では、その知見を活かして線接合を試み、接合速度が接合結果に及ぼす影響について検討した。接合速度が遅い場合では、部分的な破断や亀裂が発生し、接合速度が速い場合では、熱量不足で突合せ面の変形が減少して接合が困難であった。一方、接合速度を適切に設定すれば、微細な欠陥は認められるものの、比較的良好な継手が得られた。また、接合部の評価として引張試験を行い、接合速度を適切に設定した場合では、十分な強度が得られることを確認した。

1 緒言

摩擦攪拌接合 (Friction Stir Welding: FSW) は、回転させたツールを材料に押し付け、塑性流動させることで材料同士を接合させる手法である。特徴として、熔融溶接法よりも熱影響による強度低下が小さいこと、ヒューム・スパッタ・紫外線が発生しないことなどが挙げられ、鉄道車両などの分野で実用化されている¹⁾。対象となる材料はアルミニウム合金などが多いが、炭素鋼やステンレス鋼などでも接合の報告例がある。しかし、薄板の接合に関する報告は少なく、特に突合せ接合の報告例はほとんど見当たらない。

そこで既報^{2), 3)}では、FSW による薄板の突合せ接合を対象に、板厚 0.1 mm の薄板 (SUS304) に対する点接合の適用を検討した。その結果、接合可能条件や適切なツール材質など、薄板点接合の基礎的な知見を得た。

本報では、これまでの知見を活かして線接合への応用を試みた。特に、接合速度が接合部に及ぼす影響について検討した。

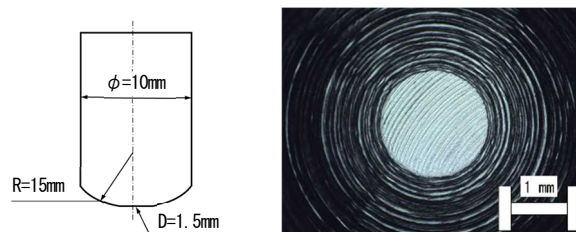


図1 ツール形状および平坦面拡大図

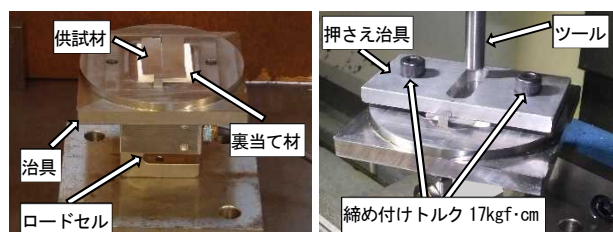


図2 接合実験の方法

2 実験方法

2.1 接合実験

実験に使用したツールの形状および平坦面の拡大図を図1に示す。ツール先端に攪拌による材料の盛り上がりや抑制するため、半径 15 mm の球頭部を設けた。さらに、球頭部先端には攪拌を行うため、直径 1.5 mm の平坦面を設けた。ツールの材質はタングステンとし、直径 10 mm の丸棒から試作した。供試材として、板厚 0.1 mm のオーステナイト系ステンレス鋼 (SUS304) を用いた。

実験の方法は図2に示すとおりである。マシニングセンタ (ヤマザキマザック, VERTICAL CENTER NEXUS 430B-II HS 型) の主軸に試作したツールを取り付け、FSW の接合実験を行った。供試材の継手形状は突合せ形状とし、接合距離は 16 mm とした。裏当て材には供試材との凝着防止のため、アルミナ製のセラミックプレートを使用した。セラミックプレート下部にロードセル (エー・アンド・デイ, LC1205-K100) を設置し、ロードセルで測定される荷重により、ツールと供試材の位置合わせを行った。位置合わせの模式図を図3に示す。接合線の両端のそれ

* 香川大学創造工学部

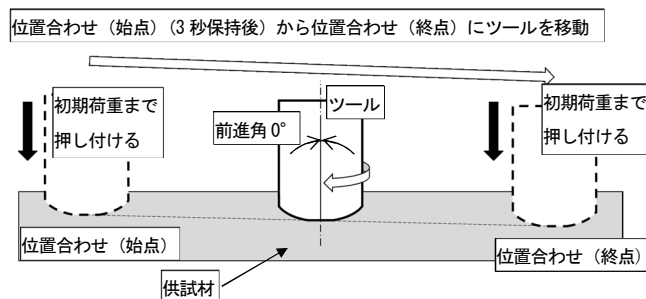


図3 位置合わせ模式図

表1 接合条件

主軸回転数 rpm	6000
初期荷重 N	125
ツール前進角	0°
押し込み速度 mm/min	0.5
接合速度 mm/min	30, 120, 240, 300, 360, 480, 600
締め付けトルク kgf・cm	17
ツール材質	タングステン

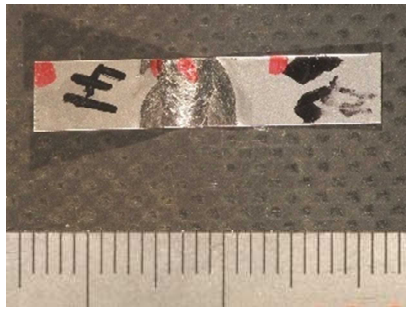


図4 引張試験片形状

それぞれにおいて、静止状態のツールを供試材に押し付け、ロードセルの測定荷重が所定の初期荷重 (125 N) となるツール先端位置を求め、接合の「始点」および「終点」として設定した。そして、ツールを供試材から離れた後、回転させながら始点まで下降し、3 秒間保持した。その後、所定の接合速度で終点までツールを移動させ、線接合を行った。本実験では、このときの接合速度をパラメータとした。接合条件を表1に示す。なお、一般的にFSWでは、欠陥の発生を抑制するため、ツールを進行逆方向に数度傾斜させ、前進角を与える⁴⁾が、本実験では、まずは、この前進角は 0° に設定した。

2. 2 引張試験

接合強度を評価するため、万能材料試験機 (島津製作所, AG-50kND) を用いて引張試験を行った。引張試験片は、比較的良好な継手が得られた接合速度 120, 240, 300, 360, 480 mm/min の条件について、各 1 個作製した。試験片形状は、図4に示すように、接合線に対して垂直に切断した幅 5 mm の短冊状とした。切断位置は欠陥が目視で確認できない位置とし、引張強さは、接合部の板厚が最も薄い位置の断面積から算出した。

3 実験結果と考察

3. 1 接合実験の結果

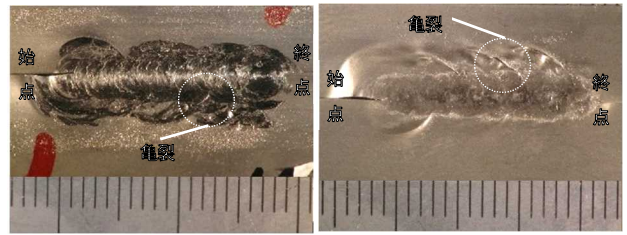
接合速度をパラメータとして線接合を行った結果について述べる。なお、本報では、接合後の供試材において、攪拌が生じた箇所を「接合部」、接合部周辺で攪拌による材料の盛り上がりのために球頭部との接触が生じた箇所を「接合周辺部」と呼ぶ。

設定した接合速度のうち、接合速度の遅い 30, 120 mm/min では、それぞれ図5, 図6に試験片の外観を示すように、接合周辺部に亀裂が発生した。図7は、図5における亀裂の拡大写真である。亀裂を裏側から観察した図7(b)からわかるように、亀裂は、接合周辺部で特に変形量の多い位置で発生している。

一般的に接合速度が遅いと、ツール 1 回転あたりの移動量が減少して入熱量が増加するため、塑性流動が起こりやすい。本報のような板厚 0.1 mm の薄板の場合、接合周辺部の変形も起こりやすくなると考えられる。

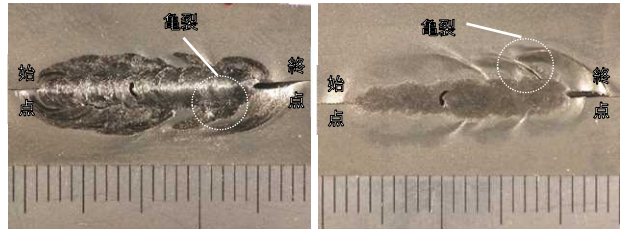
これらのことから、入熱量の過剰により接合周辺部が大きく変形し、亀裂が発生したと考えられる。加えて、接合速度 30 mm/min の場合は、図8に試験片の外観を示すように、接合部が部分的に破断する場合もあった。したがって、30, 120 mm/min では、接合速度が遅すぎて良好な継手が得られないことがわかった。

一方、接合速度の最も速い 600 mm/min では、図9に試



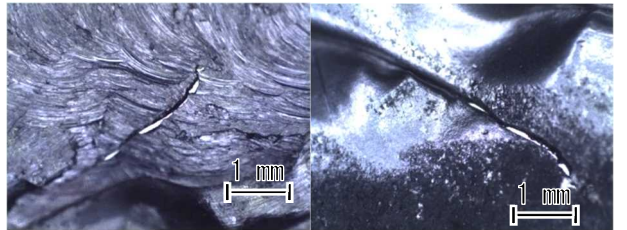
(a) 表側 (b) 裏側

図5 試験片外観 (接合速度 30 mm/min)



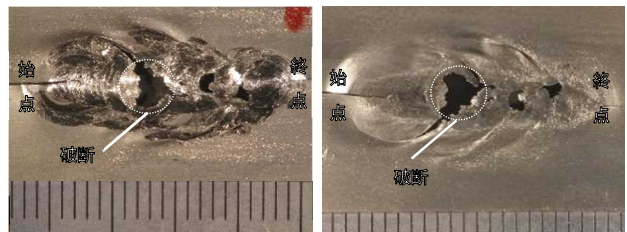
(a) 表側 (b) 裏側

図6 試験片外観 (接合速度 120 mm/min)



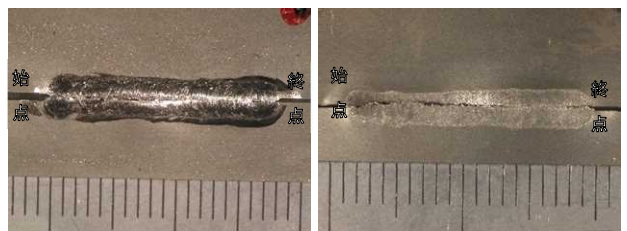
(a) 表側 (b) 裏側

図7 亀裂拡大写真 (接合速度 30mm/min)



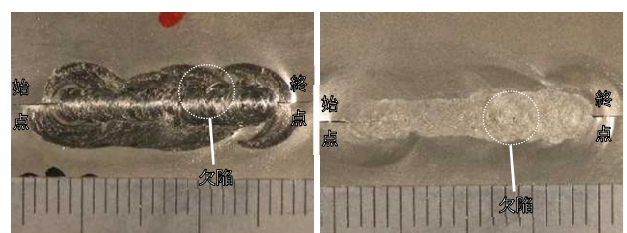
(a) 表側 (b) 裏側

図8 試験片外観 (接合速度 30 mm/min)



(a) 表側 (b) 裏側

図9 試験片外観 (接合速度 600 mm/min)



(a) 表側 (b) 裏側

図10 試験片外観 (接合速度 300 mm/min)

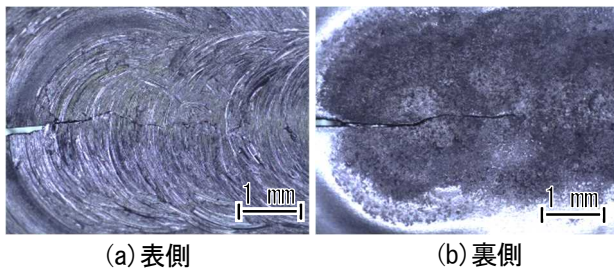


図 1 1 始点拡大 (接合速度 300 mm/min)

試験片の外観を示すように、接合線の大部分において突合せ面がほとんど変形せず、接合されなかった。これは、接合速度が速すぎることにより、入熱量が不足し、十分な塑性流動が得られなかったためと考えられる。

これに対して、接合速度が 240~480 mm/min では、接合周辺部に亀裂を発生させることなく、接合線の大部分を接合できた。特に、240、300 mm/min においては、比較的良好な継手が得られた。したがって、良好な継手を得るためには、接合速度を適切に設定することが重要であることがわかる。代表例として、接合速度 300 mm/min における試験片の外観を図 1 0 に示す。

しかし、図 1 0 に示されるように微細な欠陥が認められた。この微細な欠陥の要因としては、ツール前進角の影響が考えられる。本実験では、前進角を 0° としており、前進角について十分な検討ができていない。

さらに、裏側に開先が残っている場合があった。図 1 0 の始点付近を拡大した図 1 1 に示すように、特に始点付近では、突合せ面に変形が見られるが、接合されていないことが多かった。このことから、始点付近の入熱量が不足していることが予測され、始点付近とその他では接合状況が異なる可能性がある。そのため、均一な接合部を得るためには、始点付近の入熱量に関するツール下降後の保持時間についての検討が必要である。

今後は、前進角およびツール下降後の保持時間についても検討を行っていきたい。

3. 2 引張試験

引張試験の結果を図 1 2 に示す。接合速度が 300 mm/min の条件において、引張強さは、SUS304 の規格値である 520 N/mm^2 以上となり、十分な強度があることが分かった。また、3. 1 節においても述べたが、接合速度 120~480 mm/min では、微細な欠陥が発生する場合や裏側に開先が残っている場合があった。そのため、試験片ごとや試験片採取位置によって、強度のバラつきが大きいことが考えられる。

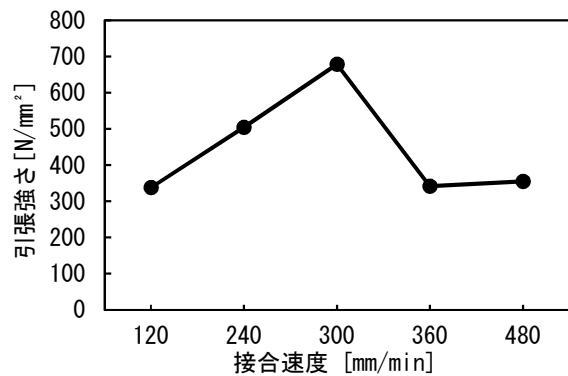


図 1 2 引張試験結果

4 結言

板厚 0.1 mm の薄板 (SUS304) に対し、FSW を試み、接合速度が接合部に及ぼす影響について検討した。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 接合速度が遅い場合、入熱量の過剰により接合周辺部が大きく変形し、亀裂が発生した。さらに、接合部が部分的に破断する場合もあった。
- (2) 接合速度が速い場合、入熱量の不足により、突合せ面がほとんど変形せず、接合が困難になった。
- (3) 接合速度を適切に設定した場合、微細な欠陥が発生したが、比較的良好な継手が得られ、引張強さは、SUS304 の規格値である 520 N/mm^2 以上となり十分な強度が得られた。

参考文献

- 1) 藤井英俊：FSW (摩擦攪拌接合) — 鉄鋼材料を中心に —、溶接学会誌 第 77 巻 第 8 号, pp. 731-744 (2008)。
- 2) 新名楓, 熱田俊文, 吉村英徳：摩擦攪拌点接合の薄板適応についての検討 (第 1 報), 香川県産業技術センター研究報告, No. 21, pp. 36-38 (2020)。
- 3) 新名楓, 熱田俊文, 吉村英徳：摩擦攪拌点接合の薄板適応についての検討 (第 2 報), 香川県産業技術センター研究報告, No. 21, pp. 40-43 (2021)。
- 4) 社団法人 溶接学会編：摩擦攪拌接合—FSW のすべて—、産報出版株式会社 (2006)。

可食原料を利用したフィルムの試作(第二報) —米粉フィルムの厚膜化—

大西 茂彦, 久保 和子, 浅井 貴子, 松原 梓, 西村 冨加

昨年度確立した, 米粉を原料としたフィルムの作製方法を発展させ, フィルムの厚膜化を試みた. 米粉を水に懸濁して 95°C で加熱・糊化させたゲルを, フィルムアプリーケーターを使ってアクリル板上で引き伸ばし, 60~70°C で乾燥させ米粉フィルムを作製した. キャスト厚を 1.8 mm に厚膜化し, D-ソルビトール濃度およびクエン酸によるでんぷんの架橋化を検討することで, 昨年試作した米粉フィルム(キャスト厚 0.6 mm)と比較して, 厚さ 2.3 倍, 突刺し強度 4.6 倍のフィルムを調製することができた.

1 緒言

石油を原料とするプラスチックは, 我々の生活に高い利便性を与えているが, 自然界での分解性が低く海洋等の環境汚染が世界的な問題となっている. 2015 年 9 月 25 日に国連総会で採択された「持続可能な開発目標(SDGs)」の目標 14「海の豊かさを守ろう」においても海洋資源保護のために海洋プラスチックごみ対策が喫緊の課題とされている. この問題を解決するため, 環境負荷の低いプラスチック代替素材の開発が試みられている¹⁾. 研究されている代替素材の中で, 炭素循環に組み込まれ, 再生可能資源である農産物は, 環境上の利点と持続可能性を兼ね備えており, 研究者から注目されている²⁾. 筆者らは, 昨年の研究で, 77%の糖質(大半がでんぷん)と 6%のたんぱく質を含む高分子複合体である米を代替素材として選択し, 米粉フィルムの調製が可能であることを確認している³⁾.

本研究では, より実用性の高いフィルムを調製するために, フィルムの厚膜化およびでんぷんの架橋効果が期待されるクエン酸³⁾を用いた強度の改善を検討した.

2 材料と方法

2.1 材料

米粉の原料として, 香川県産米(平成 30 年度産)を使用した. 米粉の作製は既報⁴⁾に準じ, ふるい(目の開き 100 μm)を通過した米粉を試験に供した.

可塑剤は, D-ソルビトール(試薬一級)を使用した. トランスグルタミナーゼ製剤は, アクティブアコシキープ(STG-M, 味の素)を使用した. クエン酸は試薬特級を用いた.

2.2 米粉の栄養成分

米粉の栄養成分は, たんぱく質はケルダール法, 脂質は酸分解法, 灰分は直接灰化法, 水分は常圧加熱乾燥法を用いて分析した.

2.3 米粉の糊化温度測定

米粉の糊化温度は, 示差走査熱量計(Pyris 1, パーキンエルマー)(以下, DSC と略す)で測定した. パージガスには窒素ガスを用いた. アルミニウム密閉パン(0219-0062, パーキンエルマー)に 5 mg の米粉と蒸留水 10 μL を封入し, 30°C から 90°C の温度範囲を 5°C/min で昇温した.

2.4 フィルム作製

フィルムの作製方法は既報⁴⁾に準じた. 95°C の湯浴中で糊化させた米粉ゲルをアクリル板(250 mm x 250 mm, 5 mm 厚)に乗せ, 0.6 mm から 1.8 mm の厚さに調整した 200 mm 幅の膜圧調整機能付きフィルムアプリーケーター(064-10, オールグッド)で引き伸ばし, 60°C または 70°C のオープンで乾燥させてフィルムを作製した. 試作したフィルムは, 性能試験に供するまで, 飽和臭化ナトリウム水溶液で相対湿度 57%(25°C)に調整したデシケーター内で保管した.

2.5 フィルムの性能評価

フィルムの厚さ測定には, シックネスゲージ(0.001 mm 単位)(SM-1201L, テクロック)を使用した. 5 か所の厚さを測定し, 平均値をフィルム厚さとした.

フィルムの突き刺し試験は既報⁴⁾に準じて測定し, 5 か所からサンプリングしたフィルムを測定し, 平均値を突き刺し強度とした.

フィルムの引張試験は, 日本工業規格 JIS Z 1707:2019 の方法に従い, クリーブメーター(RE-33005, 山電), 平行締付タイプ引張型チャック(TJ-3305-2030, 山電)および破断強度解析ソフトウェア(BAS-3305W, 山電)を使用して測定した. 使用した試料は, 幅 10 mm, チャック間の初期距離 100 mm とし, 引張速度 5 mm/sec で測定した. 測定試料はキャスト方向に平行のもの 5 か所, 垂直のもの 5 か所切り出し, それぞれ平均値を求めた.

3 結果と考察

試験に用いた米粉の栄養成分を分析した(表 1). その結果, 米粉にはトランスグルタミナーゼの基質となるたんぱく質が 6.6% 含まれており, 文献値⁵⁾と大差ないことが確認された.

表 1 米粉の栄養成分

	米粉	文献値 ⁵⁾
水分	10.0	14.9
たんぱく質	6.6	6.1
脂質	0.7	0.9
炭水化物	82.5	77.6
灰分	0.2	0.4

次に, 米粉の糊化温度を DSC で測定した(表 2). そ

の結果、米粉の糊化ピーク温度は64.6℃、糊化終了温度は71.5℃であった。この値は、文献値⁶⁾とほぼ同じであった。また、本研究では米粉のゲル化条件として95℃湯浴中、1時間加熱を採用しているが、米粉の糊化温度より十分高温で問題ないことが確認された。

表2 米粉でんぷんの糊化温度(℃)

	糊化開始温度	糊化ピーク温度	糊化終了温度
米粉	59.3	64.6	71.5
文献値 ⁶⁾	59.5	65.7	73.1

昨年度、米粉5%(w/w)およびD-ソルビトール1.5%(w/w)を蒸留水に懸濁して加熱・糊化し、トランスグルタミナーゼ製剤0.1%を添加後45℃、1時間たんぱく質の架橋反応を行い、0.6mm厚でキャストして60℃で乾燥することで(以下、従来法とする)、厚さ0.072mm、突刺し強度0.636Nの米粉フィルムを調製可能であることを確認している⁴⁾。

一方、市販食品のトレーとして使われているプラスチックシートの厚さを知らべたところ、0.096~0.186mmと、いずれも試作した米粉フィルムより厚かった(表3)。そこで、市販食品のトレーと同等以上の厚さの米粉フィルムを得るため、フィルムの厚膜化を検討した。

表3 市販食品のプラスチックトレーの厚さ

製品名	膜厚(mm) (±標準偏差)
ロッテカスタードケーキ9個入	0.186 (±0.025)
三幸製菓ミックスかりんとう	0.096 (±0.005)
ブルボンガトーレーズン ファミリーサイズ	0.114 (±0.012)
こんぴら堂灸まん	0.180 (±0.048)
米粉フィルム(従来法) ⁴⁾	0.072 (±0.003)

従来法と同じ条件で、キャスト厚のみ0.6、1.2および1.8mmと変化させた米粉フィルムを調製したところ(表4, 1-A~C)、キャスト厚0.6mm(1-A)では平滑なフィルムを形成するが、キャスト厚を増加させると(1-B, C)、乾燥に伴いフィルムに割れが発生した(図1)。これは、ゲル乾燥時の収縮によりフィルム表面に発生した応力によるものと考えた。

表4 米粉フィルム試作条件(1)

	1-A	1-B	1-C
米粉(g)	5		
D-ソルビトール(g)	1.5		
トランスグルタミナーゼ製剤(g)	0.1		
蒸留水(g)	93		
キャスト厚(mm)	0.6	1.2	1.8
乾燥温度(℃)	6		
乾燥時の割れ	無	発生	発生

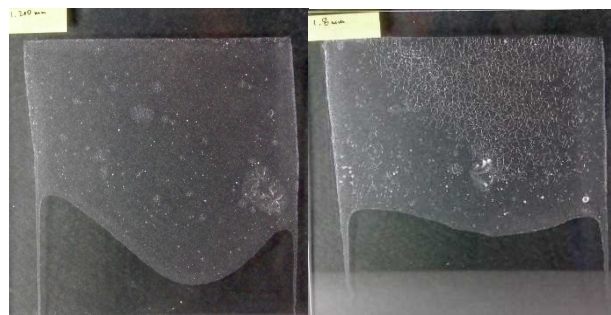


図1 従来法で調製した米粉フィルム
(キャスト厚: 左1.2mm(1-B), 右1.8mm(1-C))

乾燥時の割れを解消するため、可塑剤の添加量を増やし、米粉フィルムの柔軟性を向上させることにした。

D-ソルビトールの添加量を2.0、3.0%に増やし、キャスト厚1.8mmで米粉フィルムを作製したところ(表5, 2-A, B)、乾燥後に割れが生じなくなった。しかし、D-ソルビトール3.0%添加したフィルム(2-B)は粘性が高くなりアクリル板からの剥離性が悪かったので、容易に剥離できた2.0%添加(2-A)を以後の試作に採用した。

表5 米粉フィルム試作条件(2)

	2-A	2-B
米粉(g)	5	
D-ソルビトール(g)	2.0	3.0
トランスグルタミナーゼ製剤(g)	0.1	
蒸留水(g)	92	91
キャスト厚(mm)	1.8	
乾燥温度(℃)	60	
乾燥時の割れ	無	無
アクリル板からの剥離性	良好	不良

試作条件2-Aで調製した米粉フィルムは、従来法(キャスト厚0.6mm)と比較して、膜厚が2倍と厚膜化に成功しており、突刺し強度は3.4倍と大幅に性能が向上していた(表7)。

米粉フィルムのさらなる厚膜化と強度改良を図るために、クエン酸の添加を検討した。クエン酸は、分子内に2つのカルボキシ基(-COOH)を持ち、糖など分子内に多数のヒドロキシ基(-OH)を持つ化合物と共に加熱すると、酸触媒によるエステル化反応により架橋構造を形成することから、でんぷんフィルムの強度改良について研究されている³⁾。乾燥温度は、糖質とクエン酸の架橋反応で報告³⁾されている70℃とした。試作条件2-Aの条件に、クエン酸1%を加えた条件3-Aで米粉フィルムを調製したところ、D-ソルビトールを3%添加した試作条件2-Bフィルムの粘性が高くなりアクリル板からの剥離性が悪かった。これは、クエン酸がでんぷんの架橋効果だけでなく可塑剤としても作用していることが原因と考えられた。そこで、D-ソルビトールを1%に減らした条件(3-B)で調製したところ(表6)、剥離性が改善された。

試作条件3-Bで調製した米粉フィルムの膜厚、突刺し強度および引張強度(図2)を測定し、クエン酸無添加で

調製した 2-A と比較した(表 7)。その結果、クエン酸を添加した米粉フィルムは無添加のものと比較して、厚さ 1.1 倍、突刺し強度 1.4 倍および引張強度 1.1 倍となり、クエン酸の添加効果が確認された。

表 6 米粉フィルム試作条件 (3)

材料名	3-A	3-B
米粉(g)	5	
D-ソルビトール(g)	2	1
トランスグルタミンナーゼ製剤(g)	0.1	
クエン酸(g)	1	
蒸留水(g)	92	93
キャスト厚(mm)	1.8	
乾燥温度(°C)	70	
アクリル板からの剥離性	不良	良好



図 2 米粉フィルムの引張強度試験

表 7 米粉フィルムの物性

	厚さ(mm) (±標準偏差)	突刺し強度(gf) (±標準偏差)	引張強度(gf) (±標準偏差)
従来法 ⁴⁾ (1-A)	0.072 (±0.003)	0.636 (±0.036)	N.T.*
試作条件 (2-A)	0.147 (±0.007)	2.156 (±0.107)	6.370 (±0.390)
試作条件 (3-B)	0.163 (±0.005)	2.940 (±0.608)	7.144 (±1.976)

*:未測定

以上の研究により、試作条件 3-B により市販食品のプラスチックトレイと同程度の厚みを有する米粉フィルム(図 3)を調製することができた。

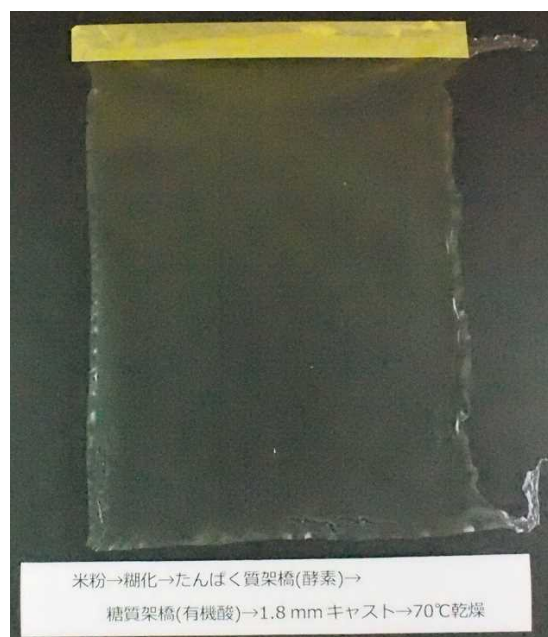


図 3 試作条件(3-B)で調製した米粉フィルム
(アクリル板からの剥離直後)

4 結言

昨年度確立した米粉フィルムの性能向上を試みた。フィルムの厚膜化のために、キャスト厚を増加させるとともに、可塑剤使用量および、糖質の架橋効果が期待されるクエン酸の添加を検討したところ、昨年試作した米粉フィルム(キャスト厚 0.6 mm)と比較して、厚さ 2.3 倍、突刺し強度 4.6 倍のフィルムを調製することができた。また、クエン酸の添加によるフィルム強度の向上も確認できた。

参考文献

- 1) A. D. Bartolo, G. Infurna, N. T. Dintcheva: A Review of Bioplastics and Their Adoption in the Circular Economy, *Polymers*, **13**, 1229-1254 (2021).
- 2) R. Thakur, P. Pristijono, C. J. Scarlett, M. Bowyer, S. P. Singh and Q. V. Vuong: Starch-based films: Major factors affecting their properties, *Int. J. Biol. Macromol.*, **132**, 1079-1089 (2019).
- 3) C. Menzel, E. Olsson, T. S. Plivelic, R. Andersson, C. Johansson, R. Kuktaite, L. Järnström, K. Koch: Molecular structure of citric acid cross-linked starch films, *Carbohydr. Polym.*, **96**, 270-276 (2013).
- 4) 大西茂彦: 可食原料を利用したフィルムの試作(第一報)-米粉フィルム作製方法の確立とその性能評価-, 令和 3 年度香川県産業技術センター研究報告, 44-45 (2021).
- 5) 日本食品標準成分表 2020 年版(八訂), 文部科学省 科学技術・学術審議会, pp. 70, (2020).
- 6) 児島雅博, 伊藤雅子: 米粉の糊化特性における酵素添加の影響, 愛知県産業技術研究所研究報告, 122-123 (2007).

プラスチックの生分解度評価手法に関する検討

—圧力センサー式閉鎖呼吸計を用いた酸素消費量の測定による生分解度の評価—

藤本啓資, 白川寛

プラスチックが引き起こす環境汚染の解決は喫緊の課題であり、自然界へ残留するごみの削減を目的とした生分解性プラスチックの開発は重要な取り組みの1つである。本研究では、生分解性プラスチック開発支援の1つとして、圧力センサー式閉鎖呼吸系を用いた酸素消費量の測定による生分解試験手法の確立を目的として実験を行った。その結果、試料形状を0.1~1mmの微粉末状に加工し、植種源として活性汚泥を用いると、1か月で試料の生分解性を測定できることが分かった。

1 緒言

プラスチックは軽量で加工性が良く、安価であることから、食品のパッケージや衣服、化粧品など様々な分野で活用されており、私たちの生活に欠かせないものとなっている。その一方で、近年ゴミとして排出されたプラスチックが、環境に与える影響が大きいとして強く問題視されるようになってきた¹⁾。2019年に大阪で開催されたG20サミットでは海洋プラスチックごみ問題が議題として取り上げられ、2050年までに海洋プラスチックごみによる追加的な汚染をゼロにまで削減することを目指す“大阪ブルー・オーシャン・ビジョン”に各国の首脳が同意した。これを実現するために、経産省では海洋生分解性プラスチック開発・導入普及ロードマップを策定した²⁾。

生分解性を定量的に評価する方法を“生分解試験”と呼び、複数の試験方法がJISやISO、OECDで規格化されている。本研究では生分解性プラスチックの開発・導入支援の一環として、圧力センサー式呼吸活性測定器を用いた水系での生分解性試験について検討を行った。特に、試料の大きさや素材、植種源を変えた際の生分解度の変化について着目して実験を行ったので、その結果を報告する。

2 生分解試験について

2.1 生分解試験の概要

生分解(biodegradation)とは、ある物質が、細菌やカビなどの微生物の働きによって、二酸化炭素や水などの無機物にまで分解されることを指す³⁾。このような、ある物質の生分解の度合いを定量的に評価するための手法が生分解試験である。その中でも、プラスチックに関する主だった試験規格を表1に示した。記載した3つの規格は、それぞれプラスチックが異なる環境にさらされた状況を

想定した試験規格である。即ち①JIS K 6950⁴⁾では、プラスチックが河川や湖のような水系環境にさらされた場合であり、②JIS K 6953-1⁵⁾では高温のコンポスト(堆肥)にさらされた場合であり、③JIS K 6955⁶⁾では土中にさらされた場合を想定したものである。国内の認定機関では、これらの試験において一定期間内に60%以上の分解度を示したプラスチックを生分解性プラスチックと認定している^{7), 8)}。

2.2 生分解試験の原理

JISで規定される生分解試験では、好氣的条件下での試料の分解度を測定する。試験の概略図を図1に示した。

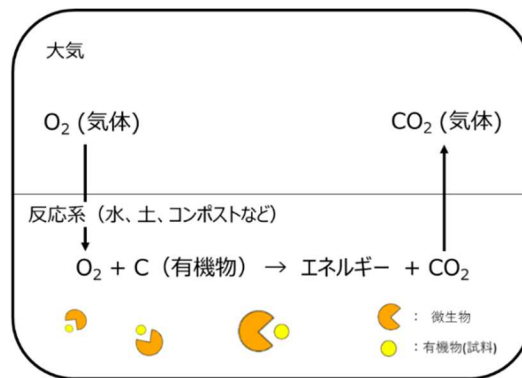


図1 生分解試験の概略図

微生物は酸素を消費して試料(有機物)を分解することでエネルギーを獲得する(これを呼吸と呼ぶ)。呼吸によって消費された酸素と分解された試料の炭素は、二酸化炭素に変換される。この時に生成した二酸化炭素の物質量は、消費された酸素量と分解された試料の炭素量に等しい。生分解試験では、変化した炭素、酸素、二酸化炭素量のいずれかを測定することで試料の生分解度を評価する。

表1 プラスチックの主な生分解性試験規格^{4)~6)}

規格番号	JIS K 6950 ISO 14851	JIS K 6953-1 ISO 14855-1	JIS K 6955 ISO 17556
規格名称	プラスチック水系培養液中の好氣的究極生分解度の求め方 閉鎖呼吸計を用いる酸素消費量の測定による方法	プラスチック制御されたコンポスト条件下の好氣的究極生分解度の求め方 発生二酸化炭素量の測定による方法	プラスチック呼吸計を用いた酸素消費量又は発生した二酸化炭素量の測定による土壌中でのプラスチックの好氣的究極生分解度の求め方
試験環境	水中	コンポスト(堆肥)中	土壌中
植種源	下水処理場等から採取した活性汚泥など	好氣的コンポスト工場から採取したコンポストなど	畑地、森林などの表層から採集した天然の土壌など
試験期間	最大で6カ月	最大で6カ月	最大で2年間
生分解性評価方法	試料の分解に伴って微生物が消費した酸素量、もしくは生成した二酸化炭素量の測定による		

3 実験方法

本研究では JIS K 6950⁴⁾ の試験規格に従い、閉鎖呼吸計を用いた酸素消費量の測定による水系培養液中での好氣的究極生分解度を測定した。実験は以下の手順で行った。

3. 1 培養液・植種希釈水の調製

培養液：1時間 Air でバブリングした蒸留水 2L に対して、関東化学社 BOD 測定用 A 液(緩衝液 pH7.2)、B 液(硫酸マグネシウム aq.)、C 液(塩化カルシウム aq.)、D 液(塩化鉄(III) aq.) を、それぞれ 2ml 加えて攪拌した。

植種希釈水 A: 高松市香東川浄化センターの反応槽から採取した活性汚泥を含む一次処理水(以下、活性汚泥と呼ぶ)について、活性汚泥中の懸濁物の濃度を測定した。濃度の測定は、JIS K 0102 14(懸濁物質及び蒸発残留物)⁹⁾の方法によって、ろ取後乾燥させた懸濁物の重量を測定することで行った。懸濁物の濃度が 30mg/L となるように、活性汚泥を培養液で希釈した。希釈した活性汚泥は、当日のうちに試験に使用した。

植種希釈水 B: Novozymes Biologicals BI-CHEMTM BOD シード(以下、BOD シードと呼ぶ) 1 カプセルの内容物を培養液 500ml に加えて 1 時間曝気・攪拌した。この溶液 5ml を、培養液で 1000ml に希釈した。希釈した BOD シードは、1 時間以内に試験に使用した。

3. 2 生分解試験に用いた試料

以下の試料を試験に用いた。

- ①セロハンフィルム片 20mg (1×2cm の小片 1 つ)
- ②セロハン粉末 20mg
(セロハンフィルムを粉砕したもの。0.1~1mm の粉末)
- ③ポリプロピレン不織布 20mg
- ④抗菌セロハン粉末 20mg
(抗菌剤を塗工したセロハンフィルムを粉砕したもの。0.1~1mm の粉末)
- ⑤アミロースフィルム粉末 20mg
(アミロースフィルムを粉砕したもの。0.1~1mm の粉末)
- ⑥ポリ乳酸不織布 20mg

また、試験の正当性を評価するための対照試料として、結晶セルロース粉末 20mg を用いた。ブランク測定として、試料を加えていない植種希釈水を空試料として用いた。

3. 3 BOD 値の測定

WTW 社製 圧力センサー式閉鎖呼吸計 Oxitop を用いて、BOD 値の測定を行った。ここで BOD 値とは、有機物が微生物によって分解された際に消費された、酸素の質量濃度である。

測定は次の手順で行った。植種希釈水 200ml を、510ml の試験用褐色瓶に測り取り、試料 20mg を加えて攪拌した。試験瓶の口に、顆粒の水酸化ナトリウム 3 粒を加えたゴムスリーブを取り付け、その上から閉鎖呼吸計を取り付けて試験瓶を密栓した。試験瓶を 22℃ に設定した恒温機の中で攪拌し、30 日間 BOD 値の測定を行った。

3. 4 生分解度の算出

試料の生分解度は式(1)から算出した⁴⁾。

$$\text{生分解度 (\%)} = \frac{(\text{試料の BOD 値} - \text{空試料の BOD 値}) \times \text{試験溶液の容量(L)}}{\text{試料の ThOD} \times \text{添加した試料の質量(mg)}} \quad (1)$$

ここで ThOD とは、有機物 1mg が微生物によって 100% 分解されるために必要な酸素量(mg)の理論値であり、式(2)で表される⁴⁾。化学式 $C_cH_hCl_{cl}N_nS_sP_pNa_{na}O_o$ で表される分子量 $M(\text{g/mol})$ の物質について、

$$\text{ThOD(mg/mg)} = \frac{32(\text{g/mol}) \times 0.5[2c+0.5(h-cl-3n)+3s+2.5p+0.5na-o] \times 1000}{M(\text{g/mol}) \times 1\text{mol} \times 1000} \quad (2)$$

表 2 に、本研究で使用した試料の ThOD を示す。

表 2 各試料の ThOD 値

試料名	分子式	C	H	O	ThOD
セロハン	C ₆ H ₁₀ O ₅	6	10	5	1.185
ポリプロピレン	C ₃ H ₆	3	6	0	3.429
アミロース	C ₆ H ₁₀ O ₅	6	10	5	1.185
ポリ乳酸	C ₃ H ₄ O ₂	3	4	2	1.333

4 結果と考察

4. 1 植種源による分解性の違いについて

本試験では、植種源による生分解度の違いを確認した。それぞれの植種源を用いた場合の BOD 値測定結果を図 2、式(1)より算出した生分解度を図 3 に示す。

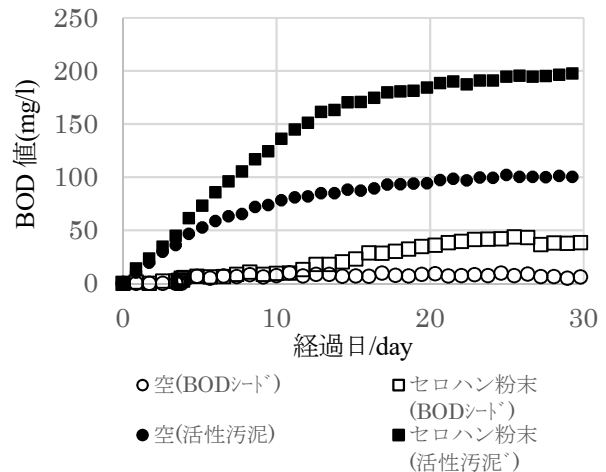


図 2 BOD 値の経時変化

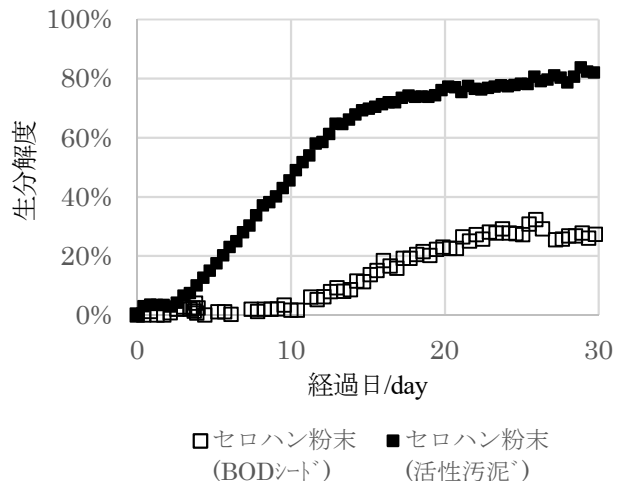


図 3 生分解度の経時変化

図2, 3のグラフから, 試験終了時の生分解度がBODシードを用いた試験では27%, 活性汚泥を用いた試験では82%であり, 3倍近い差異がある。また, これらの試験の対照試料の生分解度は, BODシードが32%, 活性汚泥が86%である。JISでは, 試験終了時の対照試料の生分解度が60%以上であるとき, その試験は正当であるものと規定しており, BODシードを用いた本試験には不備があったものと考えられる。このことは, BODシードに含まれる微生物の活性が充分ではなかったことによるものと推察される。日暮らの調査¹⁰⁾より, BODシードに含まれる主な微生物は *Bacillus amyloliq uefaciens* や *Bacillus pumilus* であることが分かっている。これらの菌は, 栄養源が不足した環境では芽胞を形成して休眠状態になる。BODシードでは, 菌がまぬかに担持された状態でカプセル内に内包されているため, 菌が芽胞状態にあるものと推察される。一般的には, 菌が生育するのに適した状況に置かれると, 芽胞状態から活性化状態に移行するが, 今回用いたBODシードの最適な条件は明らかではない。そこで本研究では, 活性汚泥を主な植種源として用いることとした。

4. 2 試料のサイズによる分解性の違いについて

試料サイズが異なるセロハンのBOD値測定結果を図4, 式(1)より算出した生分解度を図5に示す。

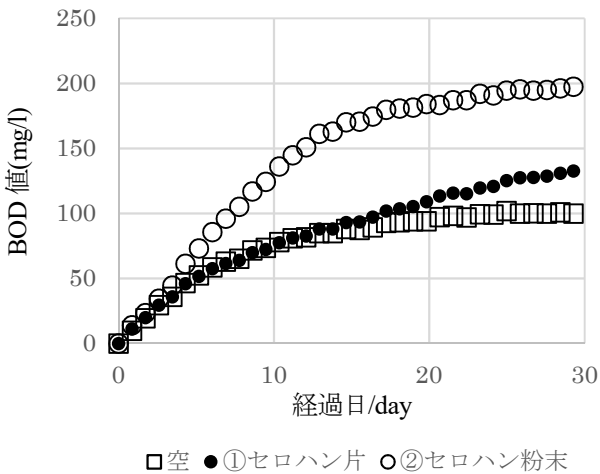


図4 BOD値の経時変化

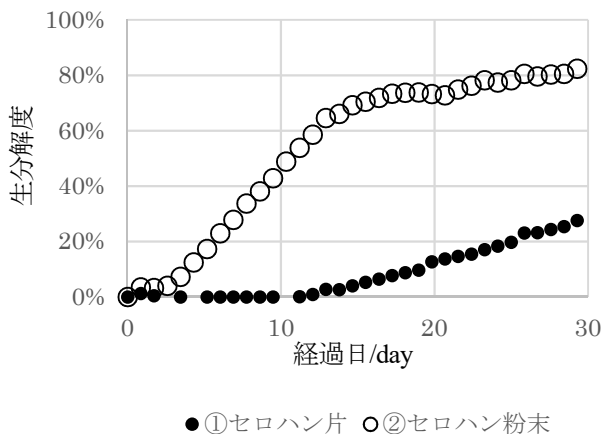


図5 生分解度の経時変化

試験終了時のセロハン片の生分解度は27%であり, セロハン粉末の生分解度80%と比較して1/3程度の分解度である。また, 試験終了時にも生分解度が増加し続けていることから, 試料の分解が完了していないことが分かる。一般的には, セルロースの分解反応は, セルロース鎖末端のグルコース残基に微生物の分解酵素が作用することで進行することが知られている。セロハン粉末は, 試料が微細化されることで末端のグルコース残基が増加し, セロハン片に対して速い生分解を示したものと考えられる。

また, セロハン粉末の生分解度は, 試験開始から12日まで急激に増加するが, それ以降の増加は緩やかである。本実験で使用したセロハン粉末は0.1~1mmであり, サイズ分布が広く, 粉末サイズによって分解速度が異なると考えられる。即ち, 試験開始時はサイズの小さい粉末が速く分解され, 12日以降は残った大きい粉末が遅く分解される。このことによって, 2段階の増加傾向を示していると考えられる。

4. 3 素材による分解性の違いについて

素材の違いによる生分解度の違いを確認するために, 4種類のプラスチックについて試験を行った結果について, BOD値測定結果を図6, 式(1)より算出した生分解度を図7に示す。

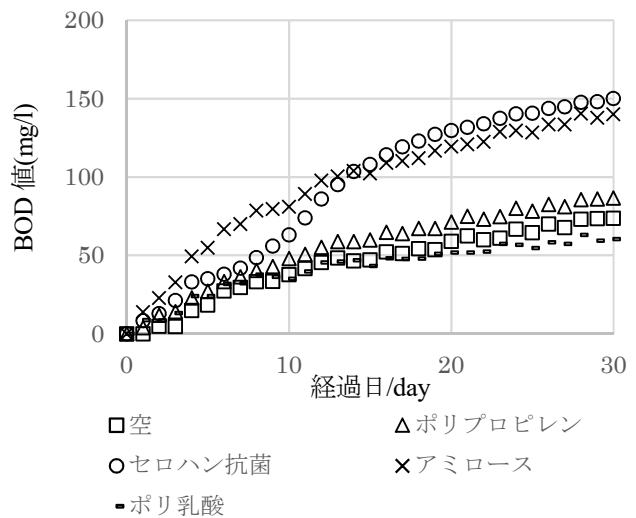


図6 BOD値の経時変化

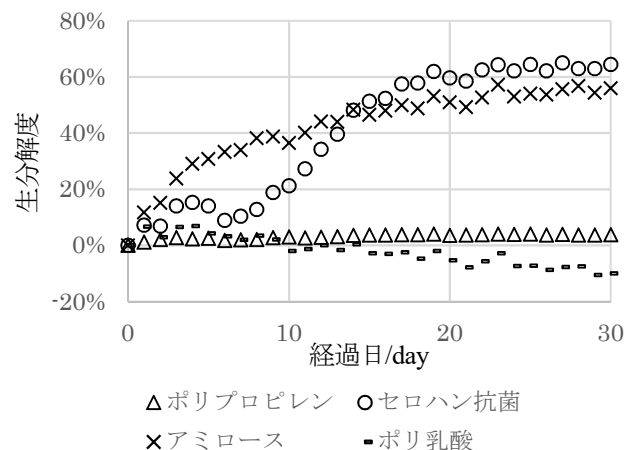


図7 生分解度の経時変化

ポリプロピレンの試験終了時の生分解度は4%であり、ほとんど分解していない。

抗菌剤を塗布したセロハン粉末について、試験終了時の生分解度は62%である。前述の結果では、抗菌剤を塗布していないセロハン粉末の生分解度が約80%であった。その結果と比較すると生分解度が20%程度低く、また分解度の増加傾向が異なる。このことについて、セロハンに塗布された抗菌成分が微生物に作用したことによるものと考えられる。

アミロースはセルロースと同じ化学式 $(C_6H_{10}O_5)_n$ で表される物質である。しかし、アミロースの最終的な分解度は57%であり、セルロースの生分解度82%よりも低い結果を示していることから、成分が同じ物質でも異なる生分解性を示すことが分かった。

ポリ乳酸は生分解性プラスチックの1つだが、試験終了時の生分解度は-13%であり、負の分解性を示している。生分解度は試料のBOD値と空試料のBOD値の差をThODで除算したもので表されるため、負の生分解性は試料のBOD値が空試料のBOD値よりも低いことを示している。

図7を見ると、最終的なポリ乳酸のBOD値が61mg/Lであるのに対し、空試料のBOD値は74mg/Lである。これはポリ乳酸の2つの性質によるものと考えられる。1つは、ポリ乳酸の生分解性はコンポスト中でのみ発揮されるという点にある。ポリ乳酸の生分解は2段階の反応により進行する。1段階目の反応ではポリ乳酸の加水分解反応が起こり、ポリ乳酸高分子が低分子化する。2段階目の反応で微生物と低分子化したポリ乳酸分子が反応し、水と二酸化炭素に変換される。しかし、1段階目の加水分解反応は約60℃以上の温度で顕著に進行するため¹¹⁾、¹²⁾、今回のような常温の生分解試験では、ポリ乳酸の分解反応がほとんど起こりえず、その生分解度は0に近くなるものと考えられる。もう1つはポリ乳酸が持つ抗菌性によるものである。過去の研究において、ポリ乳酸繊維が、黄色ドウ球菌に対する抗菌性を示すことが見出されている¹³⁾~¹⁵⁾。抗菌作用のメカニズムは明らかになっていないが、本試験において空試料よりもポリ乳酸のBOD値が低くなったことは、ポリ乳酸が活性汚泥中の微生物を一部殺菌し、総菌数が減少したことを示唆している。この2つの理由によって、ポリ乳酸は負の生分解度を示したことが推察される。

5 結言

本研究では、海洋プラスチックごみ削減のための生分解性プラスチック開発支援を目的とした、圧力センサー式呼吸活性測定器を用いた水系での生分解性試験の手法について検討を行った。その結果、以下の知見が得られた。

①試験に使用する植種源によって、試料の生分解度や生分解の速度は異なる。特に下水処理場から採取した活性汚泥は、1ヶ月程度で試料の分解が完了するため、短期間で試験に適している。BODシードについては、菌を十分に活性化させた状態で試験に使用する必要がある。

②セロハンについて、試料を微細化すると生分解速度が

増加し、0.1~1mmの粉末に加工することで、1か月で約80%の生分解度を示す。より詳細な試料サイズ効果の影響に関しては、さらなる検討が必要である。

③コンポストでは生分解性を示すが、水培養液中ではほとんど生分解が進まない試料があった。試料の適切な生分解性評価のためには、複数の方式で試験を行う必要がある。

これらの知見を基にして、閉鎖呼吸計を用いた生分解試験の手法についてある程度確立できたと考える。今後の課題は、硝化反応による生分解反応の妨害についての検討である。採取した活性汚泥の中には、硝化反応を行う微生物も含まれている。硝化反応では通常生分解と同じように系中の酸素を消費するので、硝化によって見かけの生分解度が大きくなる¹⁶⁾。今回実験に使用した試料はすべて窒素を含まないものであったため、硝化に関する知見が得られていない。より幅広い試料の生分解試験に対応するために、今後検討を続けていく予定である。

参考文献

- 1) 環境省, 海洋プラスチックごみに関する既往研究と今後の重点課題 (生物・生態系影響と実態), pp. 1-71 (2020)
- 2) 経済産業省, 海洋生分解性プラスチック開発・導入普及ロードマップ(2019)
- 3) Michel vert, et al. Terminology for biorelated polymers and applications. Pure and Applied Chemistry 84 (2): 377-410 (2012).
- 4) 日本工業規格 JIS K 6950 (2019)
- 5) 日本工業規格 JIS K 6953-1 (2019)
- 6) 日本工業規格 JIS K 6955 (2019)
- 7) 日本工業規格 JIS K 0102 (2019)
- 8) 日本バイオプラスチック協会 HP: 識別表示制度 <http://www.jbpaweb.net/identification/> (検索日:2023. 3. 24)
- 9) 日本環境協会 HP: 商品の認定基準, <https://www.ecomark.jp/nintei/141.html> (検索日:2023. 3. 24)
- 10) 日暮久敬他, 高精度 BOD 測定のための希積水の物質及び植種の活性向上の検討, 分析化学 V01. 63 No. 4, 331-337 (2014)
- 11) 木村俊範他, 生分解性プラスチック(ポリ乳酸)の加水分解特性, Nippon Shokuhin Kagaku Kogaku Kaishi, Vol. 49 No. 9, 598~604 (2002)
- 12) 辻 秀人, 植物由来ポリ乳酸の分解機構および速度, 色材協会誌 81 (2), 54-60 (2008)
- 13) 望月政嗣, 地球を救う環境マニュアル, 繊維社, p427 (1999)
- 14) 望月政嗣, 生分解性ケミカルとプラスチック, シーエムシー, p128 (2000)
- 15) 望月政嗣, 科学と工業, 76(6), 278(2002)
- 16) 硝化反応のBODに及ぼす影響の実験による評価検討, 環境工学研究論文集 第40巻(2003)