

工 学 部 Vol.60, No.1 2020

目次

論文
シリカゲル表面のアミノプロピルシリカ化反応における品質管理
蟹江善美・清水康太郎・島岡茉奈・嶋崎 花・内田 司
藤原 真・中村彩乃・野島瑞希・南 達也・小倉 正・樋口昌史・蟹江 治 1
イリジウムないしロジウム錯体触媒を用いる 3,5-ジアリール安息香酸類および 5-アリールイソフタル酸類の合成
毛塚智子・塩井達朗・成田生駒・森田智之 9
コンパクトかつ便利な教育・訓練用の中性子拡散計算コード S-Dif の開発
松村哲夫・亀山高範17
教育用のモンテカルロ法光子中性子輸送計算コード S-Monte の開発
松村哲夫・亀山高範25
機械学習による揚水発電所週間運用手法の開発
·····田中貴裕・石丸将愛33
収縮ひずみ低減対策を施した高流動高靭性コンクリートの強度特性と拘束膨張ひずみの関係
安西拓巳・渡部 憲・佐藤英和・岩崎史英39
高靭性繊維補強セメントミルクの埋込み杭工法への適用性と補強効果
······新名正英・渡部憲・岩崎史英47
高精度 X 線 CT によるペースト中のセメント粒子結合の検討
反発硬度法によるコンクリート強度推定の理論的考察
······久保元樹・笠井哲郎59
小規模水力発電と波力発電を普及させるための提案
······小笠原悠・山本吉道67
大キャンバ角を持った車両の運動に関する研究(操舵軸角と車両運動の関係)
荻野弘彦75
放射音抑制のための空洞内吸音材配置
金子寛幸・森下達哉83
固体高分子形燃料電池における電気化学測定に対する電位掃引速度の影響
温 君寧・顧 雲鵬・曹 満・陳 之立89
燃料過多推進薬を用いたハイブリッドロケットの酸燃比の時間履歴を推定するための再現法
突沸を伴う低融点燃料の振動燃焼に関する考察
······阿部宗生・森田貴和・伊田拓未105

2020年度 新任教員研究紹介

建築学科	1也113
建築学科	純115

PROCEEDINGS OF THE SCHOOL OF ENGINEERING OF TOKAI UNIVERSITY

CONTENTS

VOL.60, No.1 2020

Technical Papers

Quality Control of Aminopropylsilylation Reaction of Silica Gel Surface
Makoto FUJIWARA, Ayano NAKAMURA, Mizuki NOJIMA, Tatsuya MINAMI,
Masashi OGURA, Masashi HIGUCHI and Osamu KANIE 1
Synthesis of Symmetrical 3,5-Diarylbenzoate and 5-Arylisophthalate Derivatives Catalyzed by Ir or Rh Complexes
Satoko KEZUKA, Tatsuro SHIOI, Ikoma NARITA and Tomoyuki MORITA 9
Development of a Compact and Convenient Neutron Diffusion Calculation Code "S-Dif" for Education and Training
Development of an Educational Monte Carlo Method Code "S-Monte" for Photon and Neutron Transport Calculation
Tetsuo MATSUMURA and Takanori KAMEYAMA25
Development of Weekly Operation Method for a Pumped Storage Hydropower Plant by Machine Learning
Takahiro TANAKA and Masachika ISHIMARU33
Relationship between Strength Properties and Restrained Expansion Strain of High-fluidity Ductile-fiber-reinforced Concrete with Shrinkage
Strain Reduction
Applicability and the Reinforcement Effect of Ductile-fiber-reinforced Cement Milk to the Bored Precast Pile Method
Masahide NIINA, Ken WATANABE and Fumihide IWASAKI 47
A Study on the Combination of Cement Particles in Cement Paste by High precision X-ray Computed Tomography
Theoretical Study on Estimation of Compressive Strength of Concrete by Rebound Number Method
Genki KUBO and Tetsuro KASAL 59
Proposal for Popularizing Hydronower and Wave Power
VI OGASAWARA and Vochimichi VAMAMOTO 67
A Study on the Dynamics of a Large Chamber Angle Vehicle (Beletion of Driving-steering Axis Angle and Vehicle Dynamics)
Hisobile OCINO 75
Pasitioning of Absorbing Material for Paducing Padiated Noise from on Enclosure Aparture
Ilinomia of Absorbing Material for Reducing Radiated Noise from an Enclosure Aperture
Effect of Detection Street on Floring Macanetrical Macanetrical Macanetrical Macanetrical Street Street Colle
Linect of Folential Sweep Rate on Electrochemical Measurements in Folymer Electrolyte Fuel Cens
Deconstruction Table in the Estimation of Onition to Eval March Back of United Matters Using a Eval with Solid Deconstruct
Reconstruction Technique for Estimating Time Histories of Oxidizer-to-rule Mass Ratio of Hybrid Rocket Motors Using a Fuel-rich Solid Propenant
HITOKI ABE, Takakazu MORTIA and Daisuke EBIHARA97
A Consideration on the Oscillatory Combustion of Low-melting-point Fuels with Bumping
Hiroki ABE, Takakazu MORITA and Takumi IDA105

Introduction of research activities of new faculty members (2020)	
Dept. of Architecture and Building Engineering ·······Katsuy	a IWASAKI 113
Dept. of Architecture and Building Engineering	··Jun GOTO 115

シリカゲル表面のアミノプロピルシリル化反応における品質管理 蟹江 善美^{*1} 清水 康太郎^{*2} 島岡 茉奈^{*2} 嶋崎 花^{*2} 内田 司^{*3} 藤原 真^{*3} 中村 彩乃^{*2} 野島 瑞希^{*2} 南 達也^{*2} 小倉 正^{*3} 樋口 昌史^{*4} 蟹江 治^{*5}

Quality Control of Aminopropylsilylation Reaction of Silica Gel Surface

by

Yoshimi KANIE^{*1}, Kotaro SHIMIZU^{*2}, Mana SHIMAOKA^{*2}, Hannah SHIMAZAKI^{*2}, Tsukasa UCHIDA^{*3}, Makoto FUJIWARA^{*3}, Ayano NAKAMURA^{*2}, Mizuki NOJIMA^{*2}, Tatsuya MINAMI^{*2}, Masashi OGURA^{*3}, Masashi HIGUCHI^{*4} and Osamu KANIE^{*5} (Received on Mar. 20, 2020 and accepted on Jun. 19, 2020)

Abstract

Silica gel is used in various fields and has a simple chemical structure generally described as SiO_2 , the surface area of which is hydrated. Surface modification of silica gel makes it more useful as a stationary support material in purification, reaction catalysts, and also chemical sensing materials. In our efforts to develop new surface modified silica materials, we investigated the initial step, aminopropylsilylation reaction, for surface modification of the silica gel using Iatrobeads. Iatrobeads have a spherical porous structure with large surface area, and have been used in the purification of hydrophilic compounds since the beads can withstand aqueous conditions. We anticipated various problems such as polysiloxane formation and its adsorption, as well as salt formation for the introduced aminopropyl group. We addressed these issues by acid washing and base treatment, respectively, and achieved successful results. In addition, mechanical stirring eliminated the ambiguity of the silylation reaction.

Keywords: Aminopropylsilylation, Silica gel, Surface modification, Chemical structure

1. 緒論

球状シリカゲルは mSiO₂・nH₂O の組成式をもつ非結晶 性の化学的に安定な物質である.一般的にケイ酸ソーダ と酸の中和反応によってゾル-ゲル法で調製される.また, 球状シリカゲルの中でもサブミクロンからナノサイズの シリカ粒子の製造はテトラメトキシシラン(TEOS)をア ルコール溶媒中に溶かし,アンモニアや水と接触させ, TEOS の加水分解による脱水縮合で高分子化させる方法 (J. Stöber 法¹)あるいはその改変法が主流である.シリカ ゲルの構造は SiO₂ が連続的に繋がった網目構造で微細 な孔を形成しており,合成方法によって多様な粒子径が 形成可能である.したがって,合成シリカゲルの比表面 積は 200~1000 m²/g に及ぶという特徴がある.

シリカゲル表面には部分的にシラノール基が露出して おり、構造的特徴によって高い水分子の吸着力をもつ. このシリカゲルの細孔径の調整や表面修飾によってさら に特性を変化させることが可能である.現在球状シリカ ゲルは乾燥剤や吸着剤,食品や化粧品の添加物,建材や 塗料,タイヤなどのゴム製品への添加物,カラム精製担体など,各種工業,食品,医療分野で用いられている. また,近年開発されたメソポーラスシリカは反応触媒担体としての応用研究が盛んである^{2,3)}.さらに粒子径がナノサイズのシリカゲルはバイオイメージング³⁻⁷⁾,バイオセンサー⁸⁻¹¹⁾, DDS(ドラッグディバリーシステム)^{3,8,12-16)}, がん治療¹⁷⁻²¹⁾のツールとして注目されている.

シリカゲル表面の修飾には有機材と無機材の両者と反応するシランカップリング剤,例えばクロロシランある いはアルコキシシランを介して有機官能基をシリカゲル に導入する.有機官能基にはビニル基,エポキシ基,メ タクリル基,アミノ基,メルカプト基などが用いられる ²²⁻²⁴⁾.我々は機能性の官能基を導入したシリカゲルの触 媒や分離精製担体,化学センサーへの応用を期待してい る.したがって様々な官能基修飾をしたシリカゲルを調 製するための基盤官能基としてアミノ基に着目した.ア ミノ基はカルボキシル基とアミドカップリングすること でシリカゲル表面を多様な有機官能基へと変換させられ るという利点をもつ²⁵⁻³¹⁾.

シリカゲルへのアミノ基の導入においてはこれまでに アミノプロピルトリエトキシシラン(APTES)を用いた方 法が盛んに研究されてきた³²⁻⁴⁰⁾.この方法ではシリカゲ ルと試薬を混ぜトルエン中で数時間から一晩還流するが,

^{*1} 研究推進部技術共同管理室研究補助員

^{*2} 工学部生命化学科学部生

^{*3} 工学研究科応用理化学専攻修士課程

^{*4} 工学部応用化学科教授

^{*5} 工学部生命化学科教授

反応時間が延びるに従いシリカゲル表面のオリゴマー層 が成長していくことが知られている41). 触媒や分離精製 担体、化学センサーへの応用ではアミノ基の導入後様々 な修飾を施す必要があるので、比較的単層の均一な修飾 シリカゲルを必要とする. そこで温度をかけず短時間で 表面修飾するために酸触媒を用いて APTES より反応性 の高いアミノプロピルトリメトキシシラン(APTMS)を用 いることとした⁴²⁾. APTMS を用いてシリカゲルにアミ ノ基を導入するには酢酸を用いた(Scheme 1). このカッ プリング反応では APTES と同様にシリカ基材への共有 結合に加え、ポリマー、あるいは、オリゴマーの生成が 予想される.これは、反応系内の水の存在、例えば不十 分な乾燥状態のシリカゲル中の水分子により, APTMSの メトキシ基が一部加水分解することで重合反応がおこる ことによる 43,44). また, シリカゲル基材への共有結合で は単結合あるいは2結合が優位であることが計算科学か ら示唆されている⁴⁴⁾.したがって、このアミノプロピル



Scheme 1 Surface modification of silica gel.

シリル化反応において問題となるのはアミノ基の修飾率 と再現性である.

APTMS は酸触媒を用いて温和な条件で反応が進行す るが、固液反応であるため試薬や溶媒などの反応条件の みならず撹拌操作などの影響によってシリル化反応で形 成される共有結合の数やオリゴマー化により反応収率が 左右されることが予想される.

そこで、実験室レベルでの表面修飾シリカゲルの品質 の再現性の向上が必要であると考え、本研究では、シリ カゲルのアミノプロピルシリル化反応における反応条件、 および、操作手法の確立を目指した.具体的な目標は次 の3項目である.1)APTMSのオリゴマー化が一部進行す ることが懸念されるため、この加水分解、および、洗浄、 2)導入されたアミノ基が一部酢酸アンモニウム塩となる ため、この洗浄、および、3)実験者による撹拌操作の際 による影響をなくすため機械的撹拌の導入である.

2. 実験

2.1 試料と試薬

イアトロビーズ(平均粒径: 60 μm, 平均細孔径: 80 Å, 比表面積, 521 m²/g)は三菱化学ヤトロン(現株式会社 LSI メディエンス)で購入した. 3-アミノプロピルトリメトキ シシランはメルク株式会社より購入した. 使用した試薬 および溶媒は全て特級のものである.水は蒸留水を用い た.

2.2 分析機器および測定条件

比表面積測定は窒素吸着装置 BELSORP-miniⅡ (日本

BEL 株式会社)で BELSORP 解析ソフトウエアを用いた. 有機元素分析は元素分析装置 J11(株式会社ジェイ・サイ エンス・ラボ)を用いた. ラマンスペクトル測定はラマン 顕微鏡 XploRA, 解析には LabSpec6(株式会社堀場製作 所)を用いた. ラマン顕微鏡のレーザー波長: 523 nm, レ ーザー出力: 10 mW, グレーディング: 600 で測定した. データはレーザー光 1 秒照射で測定し 3 回積算した. 走 査電子顕微鏡は S4800(日立ハイテクノロジー株式会社) を用いた.

2.3 シリカゲルモデルの作成

シリカゲルモデルは Avogadro ver. 1.2.0 (Avogadro Chemistry)で作成し, Universal Force Field, 次いで MMFF94 の力場を用いて安定構造を得た.

2.4 シリカゲルのアミノプロピル化

イアトロビーズ 1-10 gを Table 1 に示した量の THF に 懸濁し APTMS を添加した.この時の THF:APTMS は 10:1(v/v)であった.さらに酢酸をイアトロビーズ量に対 して 0.33 mL/g 添加した.室温で Table 1 に示した時間撹 拌した.撹拌機を用いた場合,よく乾燥したイアトロビ ーズ 10 gを 200 mL(径 6.7 cm)のビーカーに入れ,100 mL の THF に懸濁し,撹拌機(羽根の直径 4.4 cm,回転数 200 rpm)で撹拌しながら APTMS 10 mL を添加し,さらに酢 酸 3.3 mL を滴下した.室温で 1 時間撹拌した後,シリカ ゲルはメタノールでろ過し,溶媒による洗浄(3.2 参照) の後に 60 ℃で 30 分減圧乾燥した.

3. 結果と考察

3.1 シリカゲル(イアトロビーズ)の分子構造

イアトロビーズは 1970 年代から両親媒性の糖脂質の 分離精製に用いられており,水混合溶媒でも使用可能な 球状シリカゲルとして知られている⁴⁵⁾. イアトロビーズ の比表面積は,BET(N₂吸着)法から 521 m²/g であった. また,元素分析結果から水素の重量パーセントは 1.24% で,これを満たすシリカゲルの組成は H₂O₉Si₄ と想定さ れ,一般式は (4SiO₂+H₂O)_n となった.本実験に用いたシ リカゲルは,この単位の繰り返し構造として理解できる が,電子配置を考慮すると $n \ge 10$ と考えられる. さら にゾルーゲル法初期に形成されたナノ粒子同士が結合し 直径数 nm の柱構造が連なった構造で,その表面 1 nm² あたり約 5.8 個の水酸基を有するモデルが考えられた



Fig. 1 Silica gel structure. A: Elemental analysis showed H: 1.24 %. The estimated formula fulfilling the requirement is $(4SiO_2+H_2O)_n$ of which model structure is shown. B: Scanning electron microscopy (SEM) surface image of the Iatrobeads.

ontri		Reaction co	onditions		Elemer	ntal analy	′sis (%)	Mole	content (n	nmol/g)	
entry ·	silica gel (g)	THF (mL)	APTMS (mL)	time (h)	С	Н	Ν	С	Н	Ν	– C/N
1	1	5	1	0.5	8.18	2.44	2.36	6.81	24.40	1.69	4.04
2	1	5	1	0.5	6.91	2.35	2.03	5.76	23.50	1.45	3.97
3	1	5	1	0.5	5.60	1.60	1.43	4.67	16.00	1.02	4.57
4	1	10	1	0.5	9.21	2.57	2.73	7.68	25.70	1.95	3.94
5	1	10	1	0.5	11.12	3.26	2.63	9.27	32.60	1.88	4.93
6	1	10	1	1.0	9.06	2.25	2.59	7.55	22.50	1.85	4.08
7	1	10	1	0.5	9.16	2.60	2.52	7.63	26.00	1.80	4.24
8	1	10	1	0.5	7.84	2.28	2.41	6.53	22.82	1.72	3.79
9	1	10	1	1.0	9.80	2.68	2.41	8.17	26.80	1.72	4.74
10	1	10	1	0.5	8.52	2.38	2.36	7.10	23.80	1.69	4.21
11	1	10	1	0.5	8.30	2.30	2.09	6.92	23.00	1.49	4.63
12	1	10	1	0.5	8.04	2.23	2.05	6.70	22.30	1.46	4.58
13	1	10	1	0.5	6.17	2.03	1.95	5.14	20.28	1.39	3.69
14	1	10	1	0.5	6.20	2.12	1.89	5.16	21.23	1.35	3.82
15	1	10	1	0.5	5.92	1.98	1.77	4.93	19.75	1.27	3.89
16	1	10	1	0.5	5.45	1.88	1.73	4.54	18.80	1.24	3.68
17	1	10	1	0.5	6.10	2.06	1.66	5.09	20.60	1.19	4.28
18	1	10	1	0.5	5.99	1.70	1.49	4.99	17.00	1.06	4.69
19	1	10	1	0.5	5.97	1.81	1.44	4.98	18.10	1.03	4.84
20	1	10	1	0.5	4.61	1.55	1.21	3.84	15.50	0.86	4.44
21	1	10	1	0.5	4.79	1.42	1.20	3.99	14.20	0.86	4.66
22	10	50	5	0.5	7.14	2.14	1.83	5.95	21.40	1.31	4.55
23	10	50	5	2.0	8.55	2.26	1.81	7.13	22.60	1.29	5.51

Table 1 Reaction conditions and elemental analysis data for aminopropylsilylation of silica gel.

Acetic acid (0.33 mL/g silica gel) was used as catalyst in all aminopropylsilylation reactions using APTMS.

(Fig. 1A). これは電子顕微鏡観察における本シリカゲル 表面の微細構造像からも支持された(Fig. 1B).

3.2 シリカゲル表面アミノプロピルシリル化修飾反応

イアトロビーズを APTMS によりアミノプロピルシリ ル化する時,反応のプロモーターに酢酸を用いた.酸触 媒を用いる際の問題はシリカゲル表面に水があると加水 分解が進むことである.シリカゲルとの共有結合形成に 関与しなかったメトキシ基の加水分解のみならず,反応 初期段階に一部のメトキシ基が加水分解すると,試薬の オリゴマー化が進行し,シリカゲル上にポリシロキサン が析出,吸着する.野村らによると直径 63-200 µm で細 孔径 40,60,および 100 Å のシリカゲルでは,アミノ基 の導入量は 1.18,1.09,および 0.80 mmol/g であり,C/N 比は 4.65,4.19,4.23 であると報告されている⁴⁶⁾.これ らは APTES を用いた反応である.

我々は平均粒径 60 μm のイアトロビーズ(細孔径 80 Å) の1gから10gを用い、APTMS によるアミノプロピル シリル化反応を THF 中で酢酸の存在下おこなって得ら れたアミノプロピルシリル化シリカゲル (SiO₂-AP)の元 素組成について元素分析法を用いて解析したところ、ア ミノ基の導入量は0.86-1.95 mmol/g (n = 23)であり、C/N 比は 3.68~5.51 に分散(平均 C/N 比:4.34、標準偏差: 0.45)していた(Table 1).また、この時窒素と炭素の導入 量には正の相関があるものの分散の指標となる R² は 0.799 であった(Fig. 2). C/N 比が4未満の場合にはアミ ノプロピルシリル基が2残基の酸素を介してシリカゲル 表面に共有結合しており,一部のメトキシ基が加水分解 でヒドロキシ基になっており, C/N 比 4 以上 5 未満の場 合にはアミノプロピルシリル基が一残基の酸素を介して シリカゲル表面に共有結合して結合していると推測され る. C/N 比 5 以上の場合にはポリシロキサンの影響が予 想される.

まず、ポリシロキサンの除去に適する溶媒を調べた. 反応に用いた撹拌機のステンレス製の羽根に付着した反応液を一晩放置、乾固した.これに対してアセトン、メ タノール、水での洗浄をおこなったところ、水において わずかに分解した.さらに酢酸を添加したところ改善が 見られたので、アミノプロピルシリル化シリカゲルを酢 酸ー水混合溶媒で洗浄することとした.酢酸ー水 1:1(pH 1.8)、および 4:1(pH 1.0)、酢酸-水-メタノール 1:1:2(pH 1.8)で比較したところ、元素分析で得られた結果に差が



Fig. 2 Effects of acid and base wash on prepared SiO₂-AP.
Black: unwashed SiO₂-AP, dark gray: SiO₂-AP washed by 50 % acetic acid, light gray: SiO₂-AP treated by 1 % Et₃N/THF. A: N content in mmol/g. B: C/N.

Before wash					After wash				
Elemer	ntal analy	′sis (%)	Mole content (mmol/g)	C/N	Elemer	Elemental analysis (%) Mo		Mole content (mmol/g)	C/N
С	Н	Ν	N	0/1	С	Н	Ν	N	0/11
7.29	1.91	1.83	1.31	4.65	6.71	1.77	1.85	1.32	4.23
7.33	2.01	1.84	1.31	4.65	6.50	1.75	1.81	1.29	4.19
6.96	1.84	1.77	1.26	4.59	6.23	1.66	1.75	1.25	4.15
7.10	1.86	1.78	1.27	4.65	6.20	1.66	1.71	1.22	4.23

Table 2 Results of mechanical stirring for aminopropylsilylation of silica gel.

なかったため、以後の洗浄には 50 %酢酸水(pH 1.8)を用いた.

また、シリカゲルのアミノプロピルシリル化反応において、酸触媒を用いると導入されたアミノ基が酸のアン モニウム塩となる.アンモニウム塩として修飾シリカゲ ルを保存することは、アミノ基に吸着しやすい二酸化炭 素による炭酸アンモニウム塩の生成⁴⁷⁻⁵⁰⁾から保護できる が、次のアミノ基のカップリング反応の障害となるため 事前の洗浄が必要となる.そこでアンモニウム塩となっ たアミノ基は1%トリエチルアミン(Et₃N)を含む THF で 洗浄し、洗浄後はメタノール、次いでクロロホルムでさ らに洗浄し、その後減圧乾燥することとした.各々の洗 浄液量はシリカゲルの膨潤体積の十倍量とした.

上記の 50%酢酸水洗浄,1%トリエチルアミン-THF洗 浄操作をアミノプロピル基の導入率が異なる任意の4つ の修飾シリカゲル(アミノ基0.86-1.95 mmol/g)試料を選び おこなった(Fig. 3). その結果,試料1は50%酢酸水洗 浄,1% Et₃N/THF洗浄後,グラムあたりのアミノ基の量 は変化しなかったが,50%酢酸水洗浄後,C/N比が上昇 していた.これは,アミノ基が酢酸アンモニウム塩にな ったためと考えられる.試料3の各洗浄後のC/N比の変 化は試料1と類似していた.試料2,試料4は50%酢酸



Fig. 3 A scatter plot of N vs. C amounts in aminopropylsilylation reaction of silica gel.
Open circle: Data obtained for various reaction conditions (23 conditions). See Table 1 for detail. Sky blue circle: Four samples were randomly selected (numbered 1-4), which were washed by acid and base, and then subjected to elemental analysis (1'-4').

水洗浄後, C/N 比が減少した. これはアミノプロピル基 の一部がポリシロキサンになっていたと推測される. ま た,1% Et₃N/THF 洗浄後の4 試料の平均 C/N 比は 4.11 であり,標準偏差 0.19 であった. C と N のモル比を直線 近似すると R² は 0.961 となった.

最後に、人為的な実験誤差を排除し再現性を高めるために反応に撹拌機を使用した.シリカゲルは反応後前述の洗浄操作を行った後、元素分析した.4回の実験の結果、シリカゲルの洗浄後のアミノ基の導入量は1.27 mmol/g で標準偏差0.04、C/N 比は4.20 であり、標準偏差0.03 であった.以上の結果から、人為的な操作による不確実性の明らかな改善が認められ(Table 2, Fig. 3, red open circle)、さらに上述の二段階の洗浄操作後のC/N 比 は他の洗浄した試料のC/N 比データと良い一致を示した(Fig. 3, red closed circle).このことから化学的な洗浄がアミノプロピルシリル化シリカゲルの質の向上に重要であることが示された.

3.3 SiO2-AP の構造

アミノプロピル化シリカゲルの洗浄前後の顕微ラマン スペクトルについて比較検討したが、スペクトル上の明 確な差異は認められなかった(Fig. 4A). アミノプロピル シリル化シリカゲルでは 2920 cm⁻¹付近に顕著な C-H 結 合によるシグナルが観測できる. 1000-2000 cm⁻¹付近は 指紋領域であり、920、1040、1410、および、1450 cm⁻¹に 比較的シャープなシグナル、1300 cm⁻¹付近に二つのシグ ナルの重りが確認できた ^{51, 52)}.

APTMS でアミノプロピル化したシリカゲル(1.2 mmol/g)の比表面積は 359 m²/g であり,その密度は 3.34 μ mol/m²と算出された.これから,約4個/nm²の水酸基がアミノプロピル化反応に寄与したと予想された(Fig. 4B).

4. 結論

APTMS と酢酸を用いてシリカゲルをアミノプロピル シリル化した後,50%酢酸水による洗浄によりポリシロ キサンが除去可能であること示された.また,アミノプ ロピルシリル化シリカゲルは 50%酢酸水洗浄後,1% Et₃N/THF 洗浄してもラマンスペクトルには顕著な差は 見られなかったが,元素分析において著しい C/N 比の改 善が見られた.また,シリカゲルのアミノプロピルシリ ル化では,よく乾燥(60 ℃減圧乾燥)したシリカゲルを用 い,機械的に撹拌することで,個々の手で行うアミノプ ロピル化のアミノ基の中間的な修飾率で再現性よく修飾



Fig. 4 Structure of SiO₂-AP. A: Raman spectrum of SiO₂-AP. B: A model surface unit structure of aminopropylsilylated silica gel.

できることが示された. さらに,本研究を通じて元素分 析法と BET 法によりシリカゲルの分子構造の推定が可 能となり,モデリングと電子顕微鏡の結果はこれを強く 支持した. これによれば本研究で用いたシリカゲルは直 径数ナノメートルの柱構造のネットワークからなり,そ の一般式は(4SiO₂+H₂O)_n として表すことができた. アミ ノプロピル化シリカゲルにおけるアミノ基密度は 3.34 µmol/m² と算出され,以降の反応による官能基の表面密 度,すなわち,官能基間距離を正確に見積ることにつな がりセンサーや分離担体の性能向上に貢献することが期 待される.

謝辞

SEM 測定においてご指導いただきました森川真紀技術員(東海大学技術共同管理室)に感謝いたします. 元素分析,ならびに顕微ラマンスペクトル測定は東海大学技術共同管理室にておこなった.

参考文献

- J. Stöber, A. Fink and E. Bohn: Controlled growth of monodisperse silica spheres in the micron size range, J. Colloid Inter. Sci. Vol. 26, pp.62–69 (1968).
- S. Singh, R. Kumar, H. D. Setiabudi, S. Nanda and D.-V. N. Vo: Advanced synthesis strategies of mesoporous SBA-15 supported catalysts for catalytic reforming applications: A state-of-the-art review, Appl. Catal. A, General Vol. 559, pp.57–74 (2018).
- 3) S.-H. Wu, C.-Y. Mou, and H.-P. Lin: Synthesis of

mesoporos silica nanoparticles, Chem. Soc. Rev. Vol. 42, pp.3862–3875 (2013).

- T. Ribeiro, S. Raja, A. S. Rodrigues, F. Fernandes, C. Baleizão, J. P. S. Farinha: NIR and visible perylenediimide-silica nanoparticles for laser scanning bioimaging, Dyes Pigments, Vol. 110, pp.227–234 (2014).
- S. V. Fedorenko, A. R. Mustafina, A. R. Mukhametshina, M. E. Jilkin, T. A. Mukhametzyanov, A. O. Solovieva, T. N. Pozmogova, L. V. Shestopalova, M. A. Shestopalov, K. V. Kholin, Y. N. Osin and O. G. Sinyashin: Cellular imaging by green luminescence of Tb(III)-doped aminomodified silica nanoparticles, Mater. Sci. Eng. C Vol. 76, pp.551–558 (2017).
- 6) L. Mao, X. Liu, M. Liu, L. Huang, D. Xu, R. Jiang, Q. Huang, Y. Wen, X. Zhang and Y. Wei: Surface grafting of zwitterionic polymers onto dye doped AIE-active luminescent silica nanoparticles through surface-initiated ATRP for biological imaging applications, Appl. Surf. Sci. Vol. 419, pp.188–196 (2017).
- F. Chen, G. Hableel, E. R. Zhao and J. V. Jokerst: Multifunctional nanomedicine with silica: Role of silica in nanoparticles for theranostic, imaging, and drug monitoring, J. Colloid Inter. Sci. Vol. 521, pp. 261–279 (2018).
- B. G. Trewyn, S. Giri, I. I. Slowing and V. S.-Y. Lin: Mesoporous silica nanoparticle based controlled release, drug delivery, and biosensor systems, Chem. Comm. pp.3236–3245 (2007).
- 9) W. Zhao, Y. Fang, Q. Zhu, K. Wang, M. Liu, X. Huang and J. Shen: A novel glucose biosensor based on phosphonic acid-functionalized silica nanoparticles for sensitive detection of glucose in real samples, Electrochim. Acta Vol. 89, pp.278–283 (2013).
- 10) K. Wang, P. Liu, Y. Ye, J. Li, W. Zhao, X. Huang: Fabrication of a novel laccase biosensor based on silica nanoparticles modified with phytic acid for sensitive detection of dopamine, Sens. Actuators B: Chim. Vol. 197, pp.292–299 (2014).
- M. Holzinger, A. L. Goff and S. Cosnier: Nanomaterials for biosensing applications: a review, Front. Chem. Vol. 2, Article 63(10pp) (2014).
- 12) M. Vallet-Regi, A. Rámila, R. P. del Real, and J. Pérez-Pariente: A new property of MCM-41: Drug delivery system, Chem. Mater. Vol. 13, pp.308–311(2001).
- 13) Y.-C. Chen, X.-C. Huang, Y.-L. Luo, Y.-C. Chang, Y.-Z. Hsieh and H.-Y. Hsu: Non-metallic nanomaterials in cancer theranostics: a review of silica- and carbon-based drug delivery system, Sci. Technol. Adv. Mater. Vol. 14, 044407(23pp) (2013).
- 14) Y. Song, Y. Li, Q. Xu and Z. Liu: Mesoporous silica nanoparticles for stimuliresponsive controlled drug delivery: advances, challenges, and outlook, Int. J. Nanomed. Vol. 12, pp.87–110 (2017).
- 15) J. Jacob, J. T. Haponiuk, S. Thomas and S. Gopi:

Biopolymer based nanomaterials in drug delivery systems: A review, Mater. Today Chem. Vol. 9, pp. 43–55 (2018).

- 16) B. Q. Bao, N. H. Le, D. H. T. Nguyen, T. V. Tran, L. P. T. Pham, L. G. Bach, H. M. Ho, T. H. Nguyen and D. H. Nguyen: Evolution and present scenario of multifunctionalized mesoporous nanosilica platform: A mini review, Mater. Sci. Eng. C Vol. 91, pp.912–928 (2018).
- 17) T. Y. Ohulchanskyy, I. Roy, L. N. Goswami, Y. Chen, E. J. Bergey, R. K. Pandey, A. R. Oseroff and P. N. Prasad: Organically modified silica nanoparticles with covalently incorporated photosensitizer for photodynamic therapy of cancer, Nano Lett. Vol. 7, pp.2835–2842 (2007).
- 18) L. Pasqua, A. Leggio, D. Sisci, S. Ando and C. Morelli: Mesoporous silica nanoparticles in cancer therapy: Relevance of the targeting function, Med. Chem. Vol. 16, pp.743–753 (2016).
- 19) I. Brezániová, K. Záruba, J. Králová, A. Sinica, H. Adámková, P. Ulbrich, P. Poučková, M. Hrubý, P. Štěpánek and V. Král: Silica-based nanoparticles are efficient delivery systems for temoporfin, Photodiagn. Photodyn. Ther. Vol. 21, pp.275–284 (2017).
- 20) Y. He, S. Liang, M. Long and H. Xu: Mesoporous silica nanoparticles as potential carriers for enhanced drug solubility of paclitaxel, Mater. Sci. Eng. C Vol. 78, pp.12–17 (2017).
- 21) A. Rahikkala, S. A. P. Pereira, P. Figueiredo, M. L. C. Passos, A. R. T. S. Araújo, M. L. M. F. S. Saraiva and H. A. Santos: Mesoporous silica nanoparticles for targeted and stimuli-responsive delivery of chemotherapeutics: A review, Adv. Biosys. Vol. 2, 1800020(33pp) (2018).
- 22) T. Jesionowski and A. Krysztafkiewicz: Influence of silane coupling agent on surface properties of precipitated silicas, Appl. Surf. Sci. Vol. 172, pp.18–32 (2001).
- 23) T. Ichino: Silane coupling agent for rubber usage, 日本 ゴム協会誌 Vol. 82, No. 2, pp.67-72 (2009).
- M. Kudo: Silane coupling agents and alkoxy oligomers which have organic group, 日本接着学会誌 Vol. 45, No. 6, pp.236-241 (2009).
- D. Brunel: Functionalized micelle-templated silicas (MTS) and their use as catalysts for fine chemicals, Micropor. Mesopor. Mater. Vol. 27, pp.329–344 (1999).
- 26) B. M. Choudary, M. L. Kantam, B. Bharathi, P. Sreekanth and F. Figueras: Epoxidations of olefins catalysed by new Mn (II) salen / immobilized mesoporous materials, J. Mol. Catal. A: Chem. Vol. 159, pp.417–421 (2000).
- 27) G.-J. Kim and D.-W. Park: The catalytic activity of new chiral salen complexes immobilized on MCM-41 in the asymmetric hydrolysis of epoxides to diols, Catal. Today, Vol. 63, pp.537–547 (2000).
- M. J. Alcón, A. Corma, M. Iglesias and F. Sánchez: New Mn(II) and Cu(II) chiral C₂-multidentate complexes

immobilised in zeolites (USY, MCM41) Reusable catalysts for selective oxidation reactions, J. Mol. Catal. A: Chem. Vol. 194, pp.135–152 (2003).

- 29) C. Pérez, S. Pérez, G. A. Fuentes and A. Corma: Preparation and use of a chiral amine ruthenium hydrogenation catalyst supported on mesoporous silica, J. Mol. Catal. A: Chem. Vol. 197, pp.275–281 (2003).
- 30) J. S. Choi, D. J. Kim, S. H. Chang and W. S. Ahn: Catalytic applications of MCM-41 with different pore sizes in selected liquid phase reactions, Appl. Catal. A: Gen. Vol. 254, pp.225–237 (2003).
- H. Hagiwara: Environmentally benign organic synthesisby the catalysts immobilized on silicagel, The Chemical Times Vol. 196, pp.2–8 (2005).
- 32) C.-H. Chiang, N.-I. Liu and J. L. Koenig: Magic-Angle cross-polarization carbon 13 NMR study of aminosilane coupling agents on silica surfaces, J. Colloid Inter. Sci. Vol. 86, pp.26–34 (1982).
- 33) E. T. Vandenberg, L. Bertilsson, B. Liedberg, K. Uvdal, R. Erlandsson, H. Elwing and I. Lundström: Structure of 3-aminopropyl triethoxy silane on silicon oxide, J. Colloid Inter. Sci. Vol. 147, pp.103–118 (1991).
- 34) G. S. Caravajal, D. E. Leyden, G. R. Quinting and G. E. Maciel: Structural characterization of (3-aminopropyl)triethoxysilane-modified silicas by silicon-29 and carbon-13 nuclear magnetic resonance, Anal. Chem. Vol. 60, pp.1776–1786 (1988).
- 35) K. C. Vrancken, P. van der Voort, I. Gillis-D'Hamers, E. F. Vansant and P. Grobet: Influence of water in the reaction of γ-aminopropyltriethoxysilane with silica gel. A Fourier-transform infrared and cross-polarisation magic-angle-spinning nuclear magnetic resonance study, J. Chem. Soc. Faraday Trans. Vol. 88, pp.3197–3200 (1992).
- 36) P. Trens and R. Denoyel: Adsorption of (γaminopropyl)triethoxysilane and related molecules at the silica/heptane interface, Langmuir Vol. 12, pp.2781–2784 (1996).
- 37) M. Etienne and A. Walcerius: Analytical investigation of the chemical reactivity and stability of aminopropylgrafted silica in aqueous medium, Talanta Vol. 59, pp.1173–1188 (2003).
- 38) A. C. C. Chang, S. S. C. Chuang, M. Gray and Y. Soong: In-situ infrared study of CO₂ adsorption on SBA-15 grafted with γ-(Aminopropyl)triethoxysilane, Energy Fuels Vol. 17, pp.468–473 (2003).
- 39) E. A. Smith and W. Chen: How to prevent the loss of surface functionality derived from aminosilanes, Langmuir Vol. 24, pp.12405–12409 (2008).
- 40) Y. Nakamura, H. Honda and K. Nagata: Characterization of treated-layer with silane coupling agent and mechanical properties of filled composite, 日本接着学 会誌 Vol. 45, No. 6, pp.229–235 (2009).
- 41) Y. Nakamura, N. Karyu, M. Noda and S. Fujii: Control of hydrolysis and condensation reactions of silane coupling

agent, 日本接着学会誌 Vol. 52, No. 1, pp.9-15 (2016).

- 42) M. Zhu, M. Z. Lerum and W. Chen: How to prepare reproducible, homogeneous, and hydrolytically stable aminosilane-derived layers on silica, Langmuir Vol. 28, pp.416–423 (2012).
- 43) A. S. Piers and C. H. Rochester: Infrared study of the adsorption of 1-aminopropyltrialkoxysilanes on silica at the solid/liquid interface, J Colloid Interface Sci. Vol. 174, pp.97–103 (1995).
- 44) K. Okada, H. Kimizuka and S. Ogata: First-principles analysis on adsorption and bonding of 3aminopropyltrimethoxysilane on silica substrate, J. Soc. Mater. Sci. Japan Vol. 67, No. 2, pp.229–234 (2018).
- 45) S. Ando, M. Isobe and Y. Nagai: High performance preparative column chromatography of lipids using a new porous silica, iatrobeads[®] I. Separation of molecular species of sphingoglycolipids, Biochim. Biophys. Acta: Lip. Lip. Met. Vol. 424, pp.98–105 (1976).
- 46) A. Nomura, J. Yamada and K. Tsunoda: Acylation of aminopropyl-bonded silica gel for liquid chromatography, Anal. Sci. Energy Fuels Energy Fuels Vol. 3, pp.209–212

(1987).

- 47) O. Leal, C. Bolívar, C. Ovalles, J. J. García and Y. Espidel: Reversible adsorption of carbon dioxide on amine surface-bonded silica gel, Inorg. Chim. Acta Vol. 240, pp.183–189 (1995).
- 48) G. P. Knowles, J. V. Graham, S. W. Delaney and A. L. Chaffee: Aminopropyl-functionalized mesoporous silicas as CO₂ adsorbents, Fuel Proc. Tech. Vol. 86, pp.1435– 1448 (2005).
- 49) S. Araki, H. Doi, Y. Sano, S. Tanaka and Y. Miyake: Preparation and CO₂ adsorption properties of aminopropyl-functionalized mesoporous silica microspheres, J. Colloid Inter. Sci. Vol. 339, pp.382–389 (2009).
- 50) H. Ishida, C. Chiang and J. L.Koenig: The structure of aminofunctional silane coupling agents: 1. γ-Aminopropyltriethoxysilane and its analogues, Polymer, Vol. 23, pp.251–257 (1982).
- 51) 清水一郎: アミノプロピルトリエトキシシラン修飾 シリカゲルの表面構造に関する研究, 名古屋工業大 学, 博士論文, DOI: 10.11501/3124684 (1997).

イリジウムないしロジウム錯体触媒を用いる 3,5-ジアリール安息香酸類および 5-アリールイソフタル酸類の合成 _{毛塚 智子*1} 塩井 達朗*2 成田 生駒*2 森田 智之*2

Synthesis of Symmetrical 3,5-Diarylbenzoate and 5-Arylisophthalate Derivatives Catalyzed by Ir or Rh Complexes

by

Satoko KEZUKA^{*1}, Tatsuro SHIOI^{*2}, Ikoma NARITA^{*2} and Tomoyuki MORITA^{*2} (Received on Mar. 27, 2020 and accepted on Jul. 24, 2020)

Abstract

Various biphenyl and terphenyl derivatives were prepared by the $[Rh(cod)Cl]_2/F$ -dppm or $[Ir(cod)Cl]_2/F$ -dppe catalyzed trimerization of the corresponding arylacetylenes and methyl propiolate. The reactions proceeded at moderate temperature to afford symmetrical 3,5-diarylbenzoate and 5-arylisophthalate derivatives in high yields and with good to high chemo- and regioselectivities.

Keywords: Symmetrical, 3,5-Diarylbenzoate, 5-Arylisophthalate, Transition metal, Trimerization

1. 緒言

近年、遷移金属錯体触媒を用いた反応が、有機合成化 学分野において重要な位置を占めている. 遷移金属には, 5類の軌道が縮重する d 軌道に属する電子が最外殻電子 として存在する.それゆえ,触媒反応に用いた場合には, これらが結合の形成や切断において主役として振る舞う ことで、典型金属を用いた場合には見られないバラエテ ィーに富んだ特異的な反応が実現する.このような遷移 金属錯体を活用した触媒反応の中でも、炭素ー炭素結合 形成反応が注目を集めている.炭素-炭素結合は有機化 合物の骨格をなすものであり,この結合を形成する反応 は有機化学においてもっとも重要なものとして位置づけ られている. 2010 年のノーベル化学賞で話題となった Heck 反応¹⁾,根岸反応²⁾,鈴木-宮浦反応³⁾を含むクロス カップリングも、遷移金属であるパラジウムなどを触媒 とした炭素-炭素結合形成反応であり、これまで困難と されてきた sp² 炭素を反応点とする基質を用いる反応を 可能とした.

一方,この触媒変換と異なる炭素-炭素結合形成反応の 様式に、メタラサイクル中間体を経由する付加環化反応 がある.この反応は、遷移金属への配位を起点として安 定な不飽和分子から複数の結合を一挙に構築でき、環状 分子骨格を容易に構築することが可能である.また、原 子効率が高く、かつ信頼性の高い炭素骨格形成法のひと つである.特に、不飽和分子にアルキンを用いた場合、 ベンゼン誘導体の合成も可能である.遷移金属触媒を用

*1 工学部応用化学科准教授

*2 工学研究科工業化学専攻修士課程

いたアルキンの付加環化反応は, 1948年に Reppe らによ り初めて報告された⁴⁾.彼らは,ニッケル錯体触媒存在 下でアセチレンを反応させると容易にオリゴメリゼーシ ョンが進行し,ベンゼンなどが得られることを見出した. この報告以降,様々な金属触媒を用いた[2+2+2]付加環化 反応によるベンゼン誘導体の合成研究が活発におこなわ れるようになった⁵⁾.

Collman らは 1968 年に、ロジウムやイリジウム錯体-分子とジメチルアセチレンジカルボン酸 (DMAD)二分 子からロダシクロペンタジエンーヒ素錯体やイリダシク ロペンタジエンーリン錯体が得られることを初めて見出 し、さらに、これらのメタラシクロペンタジエンが DMAD の環化三量化の触媒として作用することを見出 した (Fig. 1)⁶⁾. この報告を契機に、対称な内部アルキン 3分子の[2+2+2]付加環化反応に利用可能な様々なロジ ウム錯体が見出されたが、イリジウム触媒は同族のコバ ルトやロジウムの錯体と比べると安定で反応性に乏しい ために研究の進展はほとんどみられなかった.

末端アルキンの環化三量化は,遷移金属存在下での末 端アルキンの反応性が内部アルキンと比べて高いことや



Fig. 1 Rh Complex-catalyzed intermolecular cyclotrimerization of DMAD (Callman, 1968).

位置選択性の問題が生じることから、内部アルキンの環 化三量化と比べると困難である.しかし、Green らは 1980 年に、ビス(エチレン)(η⁵-インデニル)-ロジウム錯体を用 いる 3,3-ジメチル-1-ブチンの位置選択的な環化付加反応 を行い、1,2,4-トリフェニルベンゼンを高位置選択的に得 たことを初めて報告し (Fig. 2)⁷⁷、様々なロジウム錯体を 用いる同様の反応の報告に繋がった.また、Farnetti らは、 [IrH(cod)(dppm)] 触媒を用いるフェニルアセチレンの位 置選択的な環化付加反応を行い、1,2,4-トリフェニルベン ゼンを収率 89%、位置選択性 99%で得た (Fig. 3)⁸⁾.し かし、複数の異なる末端アルキンの環化三量化の報告例 は極めて限られている.Fehlner らのジロダボラン錯体を 用いるフェニルアセチレン1 分子とメチルプロピオレー ト 2 分子の環化三量化の報告では位置選択性が低かった (Fig. 4)⁹⁾ が、武内らは 1,2-ビス(ジペンタフルオロフェニ



Fig. 2 Rh complex-catalyzed intermolecular cyclotrimerization of terminal alkynes (Green, 1980).



Fig. 3 Ir complex-catalyzed intermolecular cyclotrimerization of terminal alkynes (Farnetti, 2004).









ルホスフィノ)エタン (F-dppe, 1a) を配位子として用い る1-ヘキシンとメチルプロピオレートの環化三量化をお こない,1-ヘキシン2分子とメチルプロピオレート1分 子からなるベンゼン誘導体が高収率かつ高選択的に得ら れることを明らかにした (Fig. 5)¹⁰⁾.この反応で用いた配 位子は4つのフェニル基上がすべてフッ素に置換されて いるため,対応する1,2-ビス(ジフェニルホスフィノ)エ タン (dppe) と比べてリン原子の金属に対する配位が弱 く,電子豊富なアルキンである1-ヘキシンが容易にイリ ジウムに配位することでこの特徴的な選択性が発現した ものと考えている.

一方,2 つ以上のフェニル基が単結合で共有結合した 構造を基本骨格とする化合物は剛直で耐熱性も高いため, エンジニアリングプラスチックへの応用が期待できる. さらに,ポリマー内に変換可能な官能基を導入できれば 機能を有する頑丈なポリマーを合成できると考えた.そ こで筆者らは,武内らの報告をもとに様々な官能基をパ ラ位に有するフェニルアセチレン類とメチルプロピオレ ートの環化三量化をおこない,高分子材料のモノマーと して利用可能な3,5-ジアリール安息香酸類および5-アリ ールイソフタル酸類の合成を試みた.

2. 実験

2.1 試薬および一般的測定方法

1,4-ジオキサン, テトラヒドロフラン, ベンゼン, ト ルエン, クロロベンゼンは, 市販の溶媒に脱水剤として 金属ナトリウムを加え, 2時間還流後蒸留することによ り得た.また, 1,2-ジメトキシエタンは, 市販の溶媒に 脱水剤として水素化カルシウムを加え, 同様の方法によ り得た.他の試薬は, 市販品をそのまま用いた.TLC は メルク株式会社から購入したシリカゲル 60 F254, アルミ ニウムシートを, カラムクロマトグラフィーは関東化学 株式会社から購入したシリカゲル (シリカゲル 60N (球 状,中性), 63-270 μm)を用いた.¹H NMR の測定には 日本電子株式会社製 JNM-AL 400 (400 MHz) ないしブル カー社製 DRX-500 (500 MHz) を使用し, テトラメチルシ ランを内部標準物質とした.

2.2 金属錯体の合成

[Ir(cod)Cl]²¹¹, [Rh(cod)Cl]²¹², [Rh(cod)OH]²¹³, [Rh(cod)OMe]²¹⁴, [Rh(cod)OPh]²¹⁵, [Rh(cod)₂]BF⁴¹⁶, [Rh(cod)₂]SbF⁶¹⁶は, 文献に記載の方法により合成した.

2.3 含フッ素リン配位子の合成

1,2-[ビス(4-フルオロフェニル)ホスフィノ)エタン (1b)¹⁷⁾, 1,2-{ビス[3,5-ビス(トリフルオロメチル)フェニ ル]ホスフィノ}エタン (1c)¹⁸⁾, 1,2-ビス[ビス(4-ヘプタフ ルオロトリル)ホスフィノ]エタン (1d)¹⁷⁾, トリス(ペンタ フルオロフェニル)ホスフィン (F-tpp, 1e)¹⁹⁾, ビス(ジペン タフルオロフェニルホスフィノ)メタン (F-dppm, 1f)²⁰⁾は, 文献に記載の方法により合成した. 1,2-ビス(ジペンタフ ルオロフェニルホスフィノ)エタン(F-dppe, 1a), 1,2-ビス (ジフェニルホスフィノ)エタン(dppe, 1g)は, 市販品をそ のまま用いた. 配位子の構造式を Fig. 6 に示す.

```
\begin{array}{c|c} \mbox{Ar}_2 \mbox{PAr}_2 & \mbox{P(C}_6 \mbox{F}_5)_3 \\ \hline \mbox{1a: } \mbox{Ar} = \mbox{C}_6 \mbox{F}_5 \mbox{(F-dppe)} \\ \mbox{1b: } \mbox{Ar} = \mbox{4-FC}_6 \mbox{H}_4 \\ \mbox{1c: } \mbox{Ar} = \mbox{3-5-CF}_3 \mbox{C}_6 \mbox{H}_3 \\ \mbox{1d: } \mbox{Ar} = \mbox{4-CF}_3 \mbox{C}_6 \mbox{H}_3 \\ \mbox{1d: } \mbox{Ar} = \mbox{4-CF}_3 \mbox{C}_6 \mbox{H}_3 \\ \mbox{1g: } \mbox{Ar} = \mbox{C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{2pt} \mbox{P(C}_6 \mbox{F}_5)_2 \\ \mbox{1g: } \mbox{Ar} = \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{H}_5 \mbox{1f} \\ \hline \mbox{1d: } \mbox{Ar} = \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{1f} \\ \mbox{1d: } \mbox{Ar} = \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{1f} \\ \hline \mbox{1d: } \mbox{Ar} = \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{1f} \\ \hline \mbox{1d: } \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{1f} \\ \hline \mbox{1d: } \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{4-C}_6 \mbox{H}_5 \mbox{4-C}_6 \mbox{4
```

Fig. 6 Structure of fluoro-phosphine ligands.

2.4 フェニルアセチレン類の合成

4-ニトロフェニルアセチレン (2a)²¹⁾, 4-メトキシフェ
ニルアセチレン (2b)²²⁾, 4-ベンジロキシフェニルアセチレン (2c)²³⁾, 4-ビニルフェニルアセチレン (2d)²⁴⁾, 4-ア
ミノフェニルアセチレン (2e)^{23,25)}, 4-ヒドロキシフェニ
ルアセチレン (2f)^{23,26)}, 4-シアノフェニルアセチレン
(2g)²²⁾は、文献に記載の方法により合成した.フェニル
アセチレン(2h)は、市販品をそのまま用いた.フェニル
アセチレン類の構造式を Fig. 7 に示す.



Fig. 7 Structure of phenylacetylene derivatives.

2.5 [2+2+2]付加環化反応

2.5.1 3,5-ビス(4-アミノフェニル)安息香酸メチル (**3e**)の合成

10 mL遠沈管に[Ir(cod)Cl]₂ (13.9 mg, 0.02 mmol), F-dppe (1a, 32.9 mg, 0.04 mmol), 4-アミノフェニルアセチレン (2e, 176 mg, 1.5 mmol)を入れ, 窒素置換した後, THF (5 mL), メチルプロピオレート (42.8 mg, 0.5 mmol)を加えた. 60℃に温めた油浴にて 72 時間撹拌した後, 室温まで 冷やした. 溶媒を除去した後, シリカゲルクロマトグラフィー (Hexane: EtOAc = 1:1)にて精製し, 赤褐色液体 (179 mg, 収率 75%)を得た. なお, 目的物は 5-(4-アミノフェニル)イソフタル酸ジメチル (4e)との混合物として 得られ, 収率は ¹H NMR の積分値より相対定量法にて算 出した.

¹H NMR (500 MHz, CDCl₃) δ (ppm) 3.79 (brs, 4H), 3.95 (s, 3H), 6.78 (d, J = 8.6 Hz, 4H), 7.49 (d, J = 8.6 Hz, 4H), 7.87 (s, 1H), 8.11 (s, 2H).

3,5-ビス(4-ニトロフェニル)安息香酸メチル(3a), 3,5-ビス(4-メトキシフェニル)安息香酸メチル(3b), 3,5-ビ ス(4-ベンジロキシフェニル)安息香酸メチル(3c), 3,5-ビス(4-ビニルフェニル)安息香酸メチル(3d)は, 化合物 3e と同様に合成した.

3,5-ビス(4-ニトロフェニル)安息香酸メチル (**3a**): ¹H NMR (500 MHz, CDCl₃) δ (ppm) 4.00 (s, 3H), 7.84-7.86 (m, 4H), 8.04 (s, 1H), 8.15 (s, 2H), 8.36-8.37 (m, 4H).

3,5-ビス(4-メトキシフェニル)安息香酸メチル (3b):

¹H NMR (500 MHz, CDCl₃) δ (ppm) 3.87 (s, 6H), 3.96 (s, 3H), 7.01 (d, J = 8.8 Hz, 4H), 7.61 (d, J = 8.8 Hz, 4H), 7.90 (s, 1H), 8.16 (s, 2H).

3,5-ビス(4-ベンジロキシフェニル)安息香酸メチル (3c): ¹H NMR (500 MHz, CDCl₃) δ (ppm) 3.86 (s, 3H), 5.02 (s, 4H), 6.98 (d, *J* = 8.3 Hz, 4H), 7.23-7.37 (m, 10H), 7.50 (d, *J* = 8.3 Hz, 4H), 7.81 (s, 1H), 8.07 (s, 2H).

3,5-ビス(4-ビニルフェニル)安息香酸メチル (3d):

¹H NMR (500 MHz, CDCl₃) δ (ppm) 3.97 (s, 3H), 5.30 (dd, J = 0.5, 17.6 Hz, 1H), 5.82 (dd, J = 0.5, 10.9 Hz, 1H), 6.77 (dd, J = 10.9, 17.6 Hz, 1H), 7.52 (d, J = 8.3 Hz, 4H), 7.63 (d, J = 8.3 Hz, 4H), 7.98 (s, 1H), 8.24 (s, 2H).

2.5.2 5-(4-ニトロフェニル)イソフタル酸ジメチル (4a)の合成

10 mL 遠沈管に[Rh(cod)Cl]₂ (12.0 mg, 0.024 mmol), F-dppm (1f, 32.2 mg, 0.043 mmol), 4-ニトロフェニルアセ チレン (2a, 147 mg, 1.0 mmol)を入れ, 窒素置換した後, ベンゼン (5 mL), メチルプロピオレート (41.1 mg, 4.9 mmol)を加えた. 60℃に温めた油浴にて 48 時間撹拌した 後, 室温まで冷やした. 溶媒を除去した後, シリカゲル クロマトグラフィー (Hexane: EtOAc = 9:1)にて精製し, 黄色固体 (600 mg, 収率 70%)を得た. なお, 目的物は 2-(4-ニトロフェニル)テレフタル酸ジメチル (5a)との混 合物として得られ, 収率は ¹H NMR の積分値より相対定 量法にて算出した.

¹H NMR (400 MHz, CDCl₃) δ (ppm) 4.01 (s, 6H), 7.82 (d, *J* = 8.3 Hz, 2H), 8.34 (d, *J* = 8.3 Hz, 2H), 8.49 (s, 2H), 8.74 (s, 1H).

5-(4-シアノフェニル)イソフタル酸ジメチル (4g)は, 化合物 4a と同様に合成した.

5-(4-シアノフェニル)イソフタル酸ジメチル (4g): ¹H NMR (400 MHz, CDCl₃) δ (ppm) 4.00 (s, 6H), 7.21 (d, *J* = 8.1 Hz, 2H), 7.78 (d, *J* = 8.1 Hz, 2H), 8.46 (s, 2H), 8.72 (s, 1H).

結果及び考察

3.1 イリジウム錯体触媒を用いる 3,5-ジアリール安 息香酸類の合成

3.1.1 溶媒の検討

有機合成では,複数の反応基質が溶媒中で衝突することにより新たな結合が生成する.すなわち,溶媒の配位を含む,中心金属と溶媒の相互作用を考慮することは重要である.実際に,溶媒選択が収率や選択性に大きく影響することも多い.そのため,[Ir(cod)Cl]₂/F-dppe 錯体触媒を用いる 4-ニトロフェニルアセチレン (2a)ないし 4-メトキシフェニルアセチレン (2b)とメチルプロピオレートの反応における溶媒を検討した (Table 1).

武内らの報告¹⁰⁾を参考に,様々な溶媒を用いて4-ニト ロフェニルアセチレン (2a)とメチルプロピオレートの 反応を検討したが,低収率に留まった (Entries 1-6). そ のため,電子求引基であるニトロ基を電子供与基のメト キシ基に代えて同様の検討をしたところ,良い収率と選 択性で目的物 3b が得られた (Entries 7-11). 特に,THF を用いた場合の収率は75%まで向上した (Entry 11). 芳 香族系溶媒と比較して THF の嵩が小さいためフェニル アセチレン類の配位が容易に進行することや,THF の溶 媒和により1,4-シクロオクタジエン (cod)の解離やアセ チレン類の酸化的付加が促進することが収率向上の要因 と考えている.

Table 1^{a)} Effect of solvents on cotrimerization.

CO₂Me + #	$ \begin{array}{c} \text{Ar} & [\text{Ir(cod)}C \\ \hline \\ \text{solve} \\ \text{Ar} = 4\text{-}\text{NO}_2\text{C}_6\text{H} \\ \text{Ar} = 4\text{-}\text{CH}_3\text{OC}_6 \end{array} $	$\begin{array}{c} CO_2Me \\ \hline CO_2$	r Ar	CO ₂ Me
Entry	Allauno	Solvent	NMR y	ield (%)
Entry	Alkyne	Solvent	3	4
1	2a	1,2-Dichloroethane	11	6
2	2a	Benzene	14	10
3	2a	Toluene	5	2
4	2a	Chlorobenzene	14	5
5	2a	1,4-Dioxane	10	4
6	2a	THF	3	1
7	2b	1,2-Dichloroethane	70	6
8	2b	Benzene	63	7
9	2b	Chlorobenzene	59	6
10	2b	1,4-Dioxane	70	6
11	2b	THF	75	2

a) [Ir(cod)Cl]2 (0.02 mmol), F-dppe (0.04 mmol), phenylacetylene derivatives (1.5 mmol), methyl propiolate (0.5 mmol), solvent (5 mL), 60 °C, 72 h.

3.1.2 様々なフェニルアセチレン類との反応

THF 溶媒中, 電子供与基のメトキシ基を持つ 4-メトキ シフェニルアセチレン (2b)とメチルプロピオレートの 環化三量化により、化合物 3b を良好な収率かつ高選択 的に得た. そこで、様々なパラ置換フェニルアセチレン 類を用いるメチルプロピオレートとの環化三量化をおこ なった (Table 2). その結果, メトキシ基と同様に電子供 与基に分類されるベンジロキシ基, ビニル基, アミノ基 を持つフェニルアセチレン類を用いた場合、良好な収率 で目的物 3c-e が得られた (Entries 2-4). 4-アミノフェニ ルアセチレン (2e)を用いた反応は、スケールを3倍にし ても同程度の収率で目的物 3e が得られることを確認し た (Entry 5). 一方, パラ位にヒドロキシ基を持つ場合に は、原料が不安定であることやプロトンが脱離しやすく 配位子交換などの副反応が起こる可能性があることから 目的物はほとんど得られず (Entry 6), 電子求引基を有す るフェニルアセチレン類を用いた場合には、メチルプロ ピオレートの三量体が多く生成した (Entries 7 and 8).

Table 2^{a)} Cotrimerization of various phenylacetylenes.

$_{2}$ Me Ar + \parallel Ar = 4	[lr(cod)Cl] ₂ / F THF, 60 ^o -RC ₆ H ₄ (2)	C Ar	CO ₂ Me	CO ₂ Me CO ₂ Me	Иe
Enters	A llarma	D	NMR y	ield (%)	
Entry	Alkyne	ĸ	3	4	
1	2b	OMe	75	2	
2	2c	OBn	58	5	
3	2d	CH=CH ₂	53	7	
4	2e	NH_2	75	7	
5 ^{b)}	2e	NH_2	70	2	
6	2f	OH	trace	trace	
7	2a	NO_2	3	1	
8	2g	CN	n.d. ^{c)}	8	

a) [Ir(cod)Cl]₂ (0.02 mmol), F-dppe (0.04 mmol), phenylacetylene derivatives (1.5 mmol), methyl propiolate (0.5 mmol), THF (5 mL), 60 °C, 72 h. b) [Ir(cod)Cl]₂ (0.06 mmol), F-dppe (0.12 mmol), phenylacetylene derivatives (4.5 mmol), methyl propiolate (1.5 mmol), THF (15 mL), 60 °C, 72 h. c) n.d. = not detected.

3.2 ロジウム錯体触媒を用いる 5-アリールイソフタ ル酸類の合成

3.2.1 ロジウム錯体およびリン配位子の検討

ロジウム錯体を用いる環化三量化の研究は数多く報告 されている.それらの中には、中性のロジウム錯体より もカチオン性ロジウム錯体が適しているものも多い.ま た、配位子と同様に、金属上の置換基の種類が反応性や 選択性に大きく影響することが分かっている.そのため、 2.2 で合成した様々なロジウム錯体を用いて検討した (Table 3).

その結果、イリジウム錯体の場合と同様、塩素が架橋 した[Rh(cod)Cl]2を用いた場合に最も良い結果を与えた.

Table 3^{a)} Effect of Rh complexes on cotrimerization.

			CO ₂ Me	CO2Me
	2 ^{Me} Ar <u>Rr</u>	benzene, 60°C	CO ₂ M	e Ar
	Ar = 4-N	NO ₂ C ₆ H ₄ (2a)	4a	СО ₂ Ме 5а
	E t a	D1 1	NMR y	ield (%)
	Entry	Rh complex	4 a	5a
-	1	[Rh(cod)Cl] ₂	68	24
	2	$[Rh(cod)OH]_2$	trace	trace
	3	[Rh(cod)OMe] ₂	trace	trace
	4	$[Rh(cod)OPh]_2$	trace	trace
	5	$[Rh(cod)_2]BF_4$	20	6
	6	$[Rh(cod)_2]SbF_6$	22	10

a) Rh atom (Rh complex) (0.04 mmol), F-dppe (0.04 mmol), 4-nitrophenylacetylene (1.0 mmol), methyl propiolate (5.0 mmol), benzene (5 mL), 60 °C, 72 h.

そこで, [Rh(cod)Cl]₂を用いる本反応に適したリン配位子 を検討した (Table 4). 1,2-ビス(ジフェニルホスフィノ)エタン(dppe, 1g)のフ ェニル基上の水素をフッ素に置換した場合に反応性が向 上し, 1a 及び 1d を用いた場合に良い収率で目的物 4a を 得た (Entries 1-5). さらに,ホスフィン配位子のリン原 子間の架橋を変えたところ, 1f を用いた場合の収率は 70%まで向上した (Entry 7).

Table 4^{a)} Effect of phosphine ligands on cotrimerization.

			CO2Me		CO ₂ Me
CO₂Me	e Ar [Ri + ∥	n(cod)Cl] ₂ / Ligand solvent, 60°C	Ar	O₂Me Ar	
	Ar = 4-N	IO ₂ C ₆ H ₄ (2a)	4a		ĊO ₂ Me 5a
			NMR	yield (%)	_
	Entry	Ligand	4 a	5a	_
	1	1a (F-dppe)	68	24	_
	2	1g (dppe)	trace	trace	
	3	1b	trace	trace	
	4	1c	47	29	
	5	1d	60	27	
	6	1e (F-tpp)	trace	trace	
	7	1f (F-dppm)	70	30	

a) [Rh(cod)Cl]₂ (0.02 mmol), P atom (Ligand) (0.08 mmol), 4-nitrophenylacetylene (1.0 mmol), methyl propiolate (5.0 mmol), benzene (5 mL), 60 °C, 72 h.

3.2.2 溶媒の検討

3.1.1 でも述べたように, 溶媒選択が収率や選択性に大きく影響する. そのため, ロジウム錯体を用いる本反応でも溶媒が反応性や選択性に与える影響を確認した(Table 5).

その結果,イリジウム錯体を用いた反応でよい結果を もたらしたエーテル系溶媒では,反応性や選択性は低か った (Entries 1 and 2)が,芳香族系溶媒を用いた場合の選 択性は良好であった (Entries 3-5).特に,ベンゼンを用 いた場合,収率70%で目的物を得た (Entry 3).

Table 5^{a)} Effect of solvent on cotrimerization.

cc	⁰ 2 ^{Me} + Ar [R + ∭	h(cod)Cl] ₂ / F-dppm solvent, 60°C Ar	CO ₂ Me	
	Ar = 4-	NO ₂ C ₆ H ₄ (2a)	4a	СО ₂ ме 5а
	Entry Solvent		NMR yiel	ld (%)
			4 a	5a
	1	THF	44	23
	2 1,4-Dioxane		47	16
	3 Benzene		70	30
	4 Toluene		63	31
	5 Chlorobenzene		57	43
	6	Dichloromethane	65	29
	5 6	Chlorobenzene Dichloromethane	57 65	43 29

a) [Rh(cod)Cl]2 (0.02 mmol), F-dppe (0.04 mmol),

4-nitrophenylacetylene (1.0 mmol), methyl propiolate (5.0 mmol), solvent (5 mL), 60 °C, 72 h.

3.2.3 様々なフェニルアセチレン類との反応

最適条件下,様々なフェニルアセチレン類とメチルプ ロピオレートの環化三量化をおこなった (Table 6).

その結果,4-ニトロフェニルアセチレンや4-シアノフ ェニルアセチレンを用いた場合には5-アリールイソフタ ル酸類が得られ,位置異性体も含めるとその収率は高か った(Entries 1 and 2). 一方,パラ位に置換基を持たない フェニルアセチレンを用いた場合には同一アルキンのホ モカップリング体が生成し,収率が低下した(Entry 3). この原因として,4-ニトロフェニルアセチレンと比べて フェニルアセチレンのベンゼン環上の電子密度が高く, 優先的に中心金属へ配位することが考えられる.そのた め,本反応は強い電子求引性基を備えたフェニルアセチ レン類に対して有効と考えている.

Table 6^{a)} Cotrimerization of various phenylacetylenes.

				CO ₂ Me	CO ₂ Me
	O₂Me Ar [+	Rh(cod)Cl] ₂ / F-c THF, 60°C	Ar	CO ₂ Me	Ar
	Ar = 4	4-RC ₆ H ₄ (2)		4	ĊО ₂ Ме 5
_	Entres	A 11	п	NMR y	ield (%)
	Entry	Alkyne	ĸ	4	5
	1	2a	NO_2	70	30
	2	2g	CN	53	34
	3	2h	Н	trace	trace

 a) [Rh(cod)Cl]² (0.02 mmol), F-dppe (0.04 mmol), phenylacetylene derivatives (1.0 mmol), methyl propiolate (5.0 mmol), solvent (5 mL), 60 °C, 72 h.

4. 結論

本論文では、ロジウムないしイリジウム錯体触媒を用いる末端アルキンの交差[2+2+2]付加環化反応について反応条件を検討し、メチルプロピオレートと様々な芳香族アセチレンの反応により 3,5-ジアリール安息香酸類および 5-アリールイソフタル酸類を得た.

得られた化合物には2種類の反応性置換基が3箇所存 在するため、それらの官能基を起点とした特徴的な高分 子化合物の合成に応用できると考え,現在検討中である.

参考文献

- T. Mizoroki, K. Mori, A. Ozaki: Arylation of olefin with aryl iodide catalyzed by palladium, Bull. Chem. Soc. Jpn., Vol.44, pp.581 (1971); R. F. Heck, J. P. Nolley Jr.: Palladium-catalyzed vinylic hydrogen substitution reactions with aryl, benzyl, and styryl halides, J. Org. Chem. Vol.37, pp.2320-2322 (1972).
- A. O. King, N. Okukado, E. Negishi: Highly general stereo-, regio-, and chemo-selective synthesis of terminal and internal conjugated enynes by the Pd-catalysed reaction of alkynylzinc reagents with alkenyl halides, J. Chem. Soc., Chem. Commun.,

pp.683-684 (1977); E. Negishi, A. O. King, N. Okukado: Selective carbon-carbon bond formation via transition metal catalysis. 3. A highly selective synthesis of unsymmetrical biaryls and diarylmethanes by the nickelor palladium-catalyzed reaction of aryl- and benzylzinc derivatives with aryl halides, J. Org. Chem. Vol.42, pp.1821-1823 (1977).

- 3) N. Miyaura, A. Suzuki: Stereoselective synthesis of arylated (E)-alkenes by the reaction of alk-1-enylboranes with aryl halides in the presence of palladium catalyst, J. Chem. Soc., Chem. Commun., pp.866-867 (1979); N. Miyaura, K. Yamada, A. Suzuki: new stereospecific cross-coupling by the A palladium-catalyzed reaction of 1-alkenylboranes with 1-alkenyl or 1-alkynyl halides, Tetrahedron Lett. Vol.20, pp.3437-3440 (1979).
- W. Reppe, W. J. Schweckendiek: Cyclisierende polymerisation von acetylen. III benzol, benzolderivate und hydroaromatische verbindungen, Justus Liebigs Ann. Chem. Vol.560, pp.104-116 (1948).
- For reviews on cyclotrimerization reactions of alkynes, 5) see: D. L. J. Broere, E. Ruijter: Recent advances in transition-metal-catalyzed [2+2+2] cyclo(co)trimerization reactions, Synthesis Vol.44, pp.2639-2672 (2012); G. Domínguez, J. Pérez-Castells: Recent advances in [2+2+2] cycloaddition reactions, Chem. Soc. Rev. Vol.40, pp.3430-3444 (2011); S. Saito, Y. Yamamoto: Recent advances in the transition-metal-catalyzed regioselective approaches to polysubstituted benzene derivatives, Chem. Rev. Vol.100, pp.2901-2916 (2000); M. Lautens, W. Klute, W. Tam: Transition metal-mediated cycloaddition reactions, Chem. Rev. Vol.96, pp.49-92 (1996); N. E. Shore: Transition metal-mediated cycloaddition reactions of alkynes in organic synthesis, Chem. Rev. Vol.88, pp.1081-1119 (1988); Κ. P. C. Vollhardt: Cobalt-mediated [2+2+2]-cycloadditions: A maturing synthetic strategy [new synthetic methods (43)], Angew. Chem. Int. Ed. Engl. Vol.23, pp.539-556 (1984).
- 6) J. P. Collman, J. W. Kang, W. F. Little, M. F. Sullivan: Metallocyclopentadiene complexes of iridium and rhodium and their role in the catalytic cyclotrimerization of disubstituted acetylenes, Inorg. Chem. Vol.7, pp.1298-1303 (1968).
- P. Caddy, M. Green, E. O'Brien, L. E. Smart, P. Woodward: Reactions of co-ordinated ligands. Part 22. The reactivity of bis-(ethylene)(η⁵-indenyl)rhodium in displacement reactions with olefins, dienes, and acetylenes; crystal structure of η⁵-indenyl{1-2:3-4-η⁴-[6-endo-propen-2-yl-1,2,3,4-tetrak is(trifluoromethyl)cyclohexa-1,3-diene]}rhodium formed in a cyclo-cotrimerisation reaction, J. Chem. Soc., Dalton Trans., pp.962-972 (1980).
- 8) M. Fabbian, N. Marsich, E. Farnetti: Organoiridium

compounds with bidentate phosphines as highly regioselective catalysts for alkynes cyclotrimerization, Inorg. Chim. Acta Vol.357, pp.2881-2888 (2004).

- 9) H. Yan, A. M. Beatty, T. P. Fehlner: Metallaborane reaction chemistry. nido-dirhodapentaborane isomer structures and stabilities and utilization of for dirhodaboranes catalysts alkyne as cyclotrimerization, Organomet. Vol.21, pp.5029-5037 (2002).
- G. Onodera, M. Matsuzawa, T. Aizawa, T. Kitahara, Y. Shimizu, S. Kezuka, R. Takeuchi: [Ir(cod)Cl]₂/FDPPE-catalyzed chemo- and regioselective cyclotrimerization of two different terminal alkynes to give 1,3,5-trisubstituted benzenes, Synlett, p.755 (2008).
- 11) L. Jurgensen, F. Miochael, P. Myeongwhun, C. Lisa, S. Mathur: Subvalent iridium precursors for atom-efficient chemical vapor deposition of Ir and IrO2 thin films, Organomet. Vol.36, pp.2331-2337 (2017).
- 12) G. Paiaro, A. Musco, G. G. Diana: Chemical and structural characterization of some π -allylic derivatives of rhodium(III), J. Organomet. Chem. Vol.4, pp.466-474 (1965).
- L. Green, D. Meek: Synthesis, characterization and reactivity of alkoxide and hydroxide complexes of rhodium(I) and iridium(I), Organomet. Vol.8, pp.659-666 (1989).
- M. Marigo, N. Marsich, E. Farnetti: Polymerization of phenylacetylene catalyzed by organoiridium compounds, J. Mol. Catal. A: Chemical Vol.187, pp.169-177 (2002).
- 15) F. Sakurai, H. Suzuki, Y. Morooka, T. Ikawa: Preparation and reactions of new dioxygen complexes of rhodium, J. Am. Chem. Soc. Vol.102, pp.1749-1751 (1980).
- 16) T. G. Shenck, J. M. Downs, C. R. C. Milne, P. B. Mackenzie, H. Boucher, J. Whealan, B. Bosnich: Bimetallic reactivity. Synthesis of bimetallic complexes containing a bis(phosphino)pyrazole ligand, Inorg. Chem. Vol.24, pp.2334-2337 (1985).
- 17) T. Korenaga, K. Abe, A. Ko, R. Maenishi, T. Sakai: Ligand electronic effect on reductive elimination of biphenyl from cis-[Pt(Ph)2(diphosphine)] complexes bearing electron-poor diphosphine: Correlation study between experimental and theoretical results, Organomet. Vol.29, pp.4025-4035 (2010).
- 18) R. Wursche, T. Debaerdemaeker, M. Klinga, B. Rieger: Electron-poor olefin polymerization catalysts based on semi-fluorinated bis(phosphane)s, Eur. J. Inorg. Chem., pp.2063-2070 (2000).
- 19) 池野育代, 三井均: フッ化アリール基含有化合物の 製造方法, 特開 2004-10486, 2004-1-15.
- 20) A. C. Marr, M. Nieuwenhuyzen, C. L. Pollock, G. C. Saunders: Synthesis of piano stool complexes employing the pentafluorophenyl-substituted diphosphine (C₆F₅)₂PCH₂P(C₆F₅)₂ and the effect of phosphine

modifiers on hydrogen transfer catalysis, Organomet. Vol.26, pp.2659-2671 (2007).

- 21) P. Nguyen, Z. Yuan, L. Agocs, G. Lesley, T. B. Marder: Synthesis of symmetric and unsymmetric 1,4-bis(p-R-phenylethynyl)benzenes via palladium/copper catalyzed cross-coupling and comments on the coupling of aryl halides with terminal alkynes, Inorg. Chim. Acta Vol.220, pp.289-296 (1994).
- 22) Y. Si, C.-Q. Xie, W.-L. Qiao, H.-J. Xu: Palladium-catalyzed trifluoroethylation of terminal alkynes with 1,1,1-trifluoro-2-iodoethane, Org. Lett. Vol.15, pp.936-939 (2013).
- 23) C. Xu, W. Du, Y. Zeng, B. Dai, H. Guo: Reactivity switch enabled by counterion: highly chemoselective dimerization and hydration of terminal alkynes, Org. Lett. Vol.16, pp.948-951 (2014).

- 24) M. Malkoch, R. J. Thibault, E. Drockenmuller, M. Messerschmidt, B. Voit, T. P. Russell, C. J. Hawker: Orthogonal approaches to the simultaneous and cascade functionalization of macromolecules using click chemistry, J. Am. Chem. Soc. Vol.127, pp.14942-14949 (2005).
- 25) Z. Li, W. Zhao, Y. Zhang, L. Zhang, M. Yu, J. Liu, H. Zhang: An 'off-on' fluorescent chemosensor of selectivity to Cr³⁺ and its application to MCF-7 cells, Tetrahedron Vol.67, pp.7096-7100 (2011).
- 26) S. A. Hudson, K. J. McLean, S. Surade, Y.-Q. Yang, D. Leys, A. Ciulli, A. W. Munro, C. Abel: Application of fragment screening and merging to the discovery of inhibitors of the *Mycobacterium tuberculosis* cytochrome P450 CYP121, Angew. Chem. Int. Ed. Vol.51, pp.9311-9316 (2012).

コンパクトかつ便利な教育・訓練用の中性子拡散計算コード

S-Difの開発

松村 哲夫*1 亀山 高範*2

Development of a Compact and Convenient Neutron Diffusion Calculation Code "S-Dif" for Education and Training

by

Tetsuo MATSUMURA^{*1} and Takanori KAMEYAMA^{*2} (Received on Mar. 31, 2020 and accepted on June 19, 2020)

Abstract

We developed a compact and convenient neutron diffusion calculation code, "S-Dif" for education and training to learn and research reactor core analyses. By using Microsoft Excel VBA and limiting calculation functions, the code is intuitive to use and has a user-friendly interface. We conducted International Atomic Energy Agency (IAEA) 2D and 3D benchmark problems to verify the code performance. The code is open for the public and is beneficial for both students in universities and trainees in reactor physics.

Keywords: Reactor core analysis, Diffusion calculation, User-friendly, Excel VBA

1. まえがき

軽水炉や高速炉の炉心計算などに中性子の拡散計算手 法は広く利用されている. CITATION¹, MOSRA-light²⁾を 始め拡散計算手法を用いた拡散コードは多数開発され, 燃料設計や炉心管理などの実用に供されている.

しかし,これらの拡散コードは総合的で多機能な炉心 管理システムの一部であったり,コンピュータサーバー で稼働する様に複雑化し,学生などの初学者が学習や研 究などに簡便に使えるコードは少ない.

このため、Microsoftの Excel VBA を用いたコンパクト かつ便利な中性子拡散計算コード「S-Dif」を開発した. S-Dif コード自身のインストール作業は不要である. S-Dif は 1,2,3 次元体系の拡散計算が可能であるが、計算機 能を限定している. 拡散計算の手法に簡便なメッシュ中 心差分法を用い, 交互方向陰解法(ADI: Alternating Direction Implicit method)と呼ばれる繰り返し計算法を用 いている.本論文では、炉心計算の概要, S-Difの拡散計 算手法,計算結果の検証を記述する.

2. 炉心計算の概要

2.1 炉心計算の流れ

軽水炉の炉心は Fig. 1 (a)の様に多数の燃料集合体で構成されている.国内の PWR プラント(4 ループ, 1.2GWe) では 193 体の燃料集合体があり,燃料濃縮度(enrichment)

*1 工学部原子力工学科非常勤講師

(a) Reactor core (first loading core) (b) Fuel assembly (c) Fuel pin cell Fig. 1 Reactor core, fuel assembly and fuel pin cell.

など種類の異なる燃料集合体が適切に配置されている 3.

PWR 燃料集合体(fuel assembly)には 264 本の燃料棒 (fuel pin)が 17×17 の配置で束ねられ,その寸法は 214mm×214mmである.燃料集合体には燃料棒の他に 24 本の制御棒案内シンブルと燃料集合体の中心に 1 本の炉 内計装用案内シンブルがあり,これで合計 289(17×17)本 になる. Fig. 1 (b)で,制御棒案内シンブルと炉内計装用

— 17 —

^{*2} 工学部原子力工学科教授

案内シンブルは黄色で示す. 典型例として, PWR 燃料棒 は直径 9.5mm, 有効長 3.6m である.燃料棒は内径 8.3mm, 肉厚 0.6mm の Zr 合金の被覆管と, 直径 8.2mm の UO₂の 燃料ペレットで構成される. 被覆管と燃料ペレット間 0.05mm のギャップには He が充填される.

軽水炉の炉心計算では,最初に燃料棒と周囲の冷却材 (水)から構成される燃料棒セル(fuel pin cell)について 計算を行い,²³⁵Uなどの核種毎のミクロ断面積を求める. 燃料棒セルの1辺の長さ(*D*)は燃料棒ピッチの12.6mm ではなく,燃料集合体内の燃料ペレットと水の構成比を 考え, $D = \sqrt{(214 \times 214)/264} = 13.17$ mmとする.軽水炉 では冷却材(減速材)中のHと燃料ペレット内のUの原 子数比が炉心計算に非常に重要なためである.

炉心計算(nuclear reactor core analysis)の流れを Fig. 2 に 示す.²³⁵Uなどの炉心を構成する原子の核データは核デ ータライブリ(nuclear data library)の形で公開されている. 我が国では JAEA が整備している JENDL-44)が最新のラ イブリである.これを用いて連続エネルギーライブラリ (continuous energy library)あるいは多群エネルギーライブ ラリ(multi-group energy library)を作成する. 作成した多群 エネルギーライブラリを用いて燃料棒セル計算(fuel pin cell calculation)を行い、続いて燃料集合体計算(fuel assembly calculation)を行う場合と,直接に燃料集合体計 算を行う場合がある.燃料集合体計算で得られた平均の マクロ断面積をもとに炉心計算(reactor core calculation) が行われる. 炉心計算には計算時間の短い拡散計算手法 が用いられるのが一般的である.開発した拡散コード S-Dif はマクロ断面積を用いた炉心計算に適用できる. ま た、実機の軽水炉の炉心以外にも小型の実験炉や臨界実 験装置などの解析にも適用可能である.

燃料棒セルおよび燃料集合体の計算については多くの 計算コードが開発され実用化されているが、国内では MOSRA-SRAC⁵⁾, SWAT⁶⁾などが公開され利用されている. 発電炉の炉心計算コードシステムとしては、非公開では あるが CASMO-SIMULATE⁷⁾, GALAXY-COSMO⁸⁾などが 実務で活用されている.

ここでは、燃料棒セル計算で得られた主要な核種の高 速群(fast)と熱群(thermal)の2群ミクロ断面積(microscopic cross section)を Table1に示す.輸送(transport)断面積は吸 収(absorption)断面積と散乱(scatter)断面積を合計した全 (total)断面積に非等方散乱(主に前方散乱)効果を加味し た値であり、全断面積より小さくなる.これは後述の拡 散係数を計算する際に使用される.除去(removal)断面積 は高速群から熱群への散乱断面積である.

2.2 高速群・熱群の断面積と増倍率

核分裂で発生する中性子(平均エネルギー2 MeV)は高 速群であり,軽水炉では主に冷却材中の Hにより leV 未 満の熱群にまで減速される.軽水炉での中性子スペクト ルを重みにして,1.855eV 以上の断面積の平均値を高速 群断面積,1.855eV 未満の断面積の平均値を熱群断面積 とする.



Fig. 2 Flow of nuclear reactor core analyses.

²³⁵U などの原子 Xの核分裂,吸収などの反応 p のミク ロ断面積 σ_p^X ,各原子の数密度 N^x および燃料ペレット, 被覆管,冷却材の体積比 V_i の積を Xについて合算する式 (1)で反応 p の燃料棒セル平均のマクロ断面積 Σ_p が計算 される.

$$\Sigma_p = \sum_X (\sigma_p^X \cdot N^X \cdot V_i).$$
(1)

D = 13.17mmの場合に、燃料ペレット、被覆管、冷却 材の体積比は各々0.304,0.092,0.591となる.合計が1 にならないのは燃料ペレットと被覆管の間の狭いギャッ プのためである.原子数密度は(物質の密度)/(原子量) ×(アボカドロ定数)で計算されるが、(Uの平均原子量) = 1/[濃縮度/²³⁵U原子量+(1-濃縮度)/²³⁸U原子量]であるこ とに注意を払う必要がある.Table 1のミクロ断面積を用 いて、燃料ペレット UO₂の焼結密度95%T.D.(U密度= 9.186g/cm³)、燃料濃縮度4wt.%の場合、燃料棒セルのマ クロ断面積は式(1)を用いてTable 2となる.尚、燃料棒 セル計算で燃料ペレットと冷却材領域で中性子束¢が異 なるが、Table 1のミクロ断面積はこの効果を考慮した値 であり、単位(unit)はbarn = 10^{-24} cm²である.

Table 2 に示す燃料棒セルのマクロ断面積(単位 $1/cm = 10^{2}/m$)を用いて、燃料棒セルの無限増倍率 k_{∞} (infinite multiplication factor)を式(2)で計算する.

$$k_{\infty} = \frac{\nu \Sigma_{f}^{F}}{\Sigma_{a}^{F} + \Sigma_{r}} + \frac{\Sigma_{r}}{\Sigma_{a}^{F} + \Sigma_{r}} \frac{\nu \Sigma_{f}^{T}}{\Sigma_{a}^{T}}.$$
 (2)

右辺の第1項は高速群による k_{∞} への寄与,第2項は中 性子が高速群から熱群に減速する割合 $\Sigma_r/(\Sigma_a^r + \Sigma_r)$ と熱 群による k_{∞} への寄与 $\nu \Sigma_{f}^{T} / \Sigma_{a}^{T}$ の積であり、両項の合計は $k_{\infty} = 1.3690$ となる.

Reactions	Fast (F)	Thermal (T)
²³⁵ U		
Transport (σ_{tr})	1.8387E+01	2.6466E+02
Fission ($\sigma_{\rm f}$)	7.1225E+00	2.1281E+02
$v \cdot fission (v\sigma_f)$	1.7369E+01	5.1474E+02
Absorption (σ_a)	1.0852E+01	2.5111E+02
Removal (σ_r)	2.9885E-03	-
²³⁸ U		
Transport (σ_{tr})	9.6215E+00	9.4564E+00
Fission ($\sigma_{\rm f}$)	1.1851E-01	1.4943E-08
$v \cdot fission (v\sigma_f)$	3.3378E-01	1.6483E-08
Absorption (σ_a)	9.8775E-01	1.1513E+00
Removal (σ_r)	2.1130E-03	-
²³⁹ Pu		
Transport (σ_{tr})	6.4269E+00	2.9499E+02
Fission ($\sigma_{\rm f}$)	2.4508E+00	1.8620E+02
$v \cdot fission (v\sigma_f)$	7.1128E+00	5.3501E+02
Absorption (σ_a)	4.0746E+00	2.9242E+02
Removal (σ_r)	7.2887E-04	-
²⁴⁰ Pu		
Transport (σ_{tr})	5.4127E+00	4.7305E+02
Fission ($\sigma_{\rm f}$)	2.0896E-01	8.4332E-02
$v \cdot fission (v\sigma_f)$	6.5827E-01	2.4202E-01
Absorption (σ_a)	1.8386E+00	4.3994E+02
Removal (σ_r)	2.1444E-03	-
²⁴¹ Pu		
Transport (σ_{tr})	8.6655E+00	2.4347E+02
Fission ($\sigma_{\rm f}$)	5.2317E+00	1.7811E+02
$v \cdot fission (v\sigma_f)$	1.5405E+01	5.2226E+02
Absorption (σ_a)	6.3485E+00	2.4034E+02
Removal (σ_r)	6.4419E-04	-
Н		
Transport (σ_{tr})	3.7563E+00	2.2673E+01
Absorption (σ_a)	2.4550E-03	1.5955E-01
Removal (σ_r)	6.0685E-01	-
0		
Transport (σ_{tr})	3.1839E+00	3.6201E+00
Absorption (σ_a)	3.5574E-03	7.9317E-05
Removal (σ_r)	1.3185E-02	-
Zr	1	•
Transport (σ_{tr})	5.4946E+00	6.1875E+00
Absorption (σ_a)	2.1360E-02	9.3222E-02
Removal (σ_r)	3.9472E-03	-
$^{10}\mathrm{B}$		
Transport (σ_{tr})	9.0596E+00	4.8593E+02
Absorption (σ_a)	8.4019E+00	4.8536E+02
Removal (σ_r)	3.5214E-03	-
¹³⁵ Xe	A 25 00 F 00	4.000 57 .05
Iransport (σ_{tr})	7.2709E+00	4.0905E+05
Absorption (σ_a)	2.1433E+00	3.4366E+05
Kemoval (σ_r)	9.1670E-02	-
T Sm	1.55075.01	1.05055+0.4
I ransport ($\sigma_{\rm tr}$)	1.5507E+01	1.0505E+04
Absorption (σ_a)	8.6553E+00	1.0422E+04
Kemoval (σ_r)	1.3098E-03	-

Table 1 Microscopic cross sections of fuel (barn).

Table 2 Macroscopic cross section of fuel pin cell (1/cm).

		· · · ·
Reactions	Fast (F)	Thermal (T)
Transport (Σ_{tr})	2.876E-01	9.042E-01
Fission (Σ_f)	2.839E-03	6.084E-02
$v \cdot \text{fission}(v\Sigma_f)$	7.227E-03	1.472E-01
Absorption (Σ_a)	1.005E-02	8.446E-02
Removal (Σ_r)	1.748E-02	-

この様にミクロ断面積を用いて、燃料濃縮度やHとUの原子数密度の比による燃料棒セルの k_∞の変化を計算 することができる.

H/Uの原子数密度比と k_∞との関係を Fig. 3 に示す.式 (2)で求めた値は離散座標(Sn)法輸送計算による燃料棒セ ル計算の結果と一致している.燃料棒セル計算との違い は、形状の変化とともに Table 1 に示したミクロ断面積 が変化するためである.また、PWR では H/U 比が k_∞の 最大値となる値より小さな条件で設計されている.これ により原子炉の出力上昇とともに、冷却材温度が上昇し、 H 密度が減少する場合、k_∞は低下する.この効果は炉心 の固有の安全性と呼ばれる.



Fig. 3 Infinite neutron multiplication factor (k_{∞}) vs H/U atomic density ratio.

3. 拡散計算手法

3.1 無限平板の一次元問題

拡散計算手法では,式(3)の様に中性子の流れJは中性 子束φの勾配の負値に比例すると近似する⁹.

$$\mathbf{J} = -D\nabla\phi.$$
 (3)

ここで、Dは拡散係数であり、 $1/(3\Sigma_n)$ で近似される. Fig. 4 に示す様な x 方向の無限平板の一次元問題を考える. メッシュ中心差分法では、平板をN個のメッシュに分割し、各メッシュの中央の中性子束をメッシュの代表 値とする.メッシュ n の中性子束を ϕ_n 、メッシュ n の幅 を Δx_n とし、メッシュ n からメッシュ n+1 への中性子流 J_n を式(4)の様に近似する.これは、式(3)に示す中性子束 の傾きをメッシュ間の差分で表現している.

$$J_n = -D \frac{\phi_{n+1} - \phi_n}{(\Delta x_n + \Delta x_{n+1})/2}.$$
 (4)



Fig. 4 One-dimensional diagram of slab reactor.

ここで、以下の流れ係数 Cnを導入し、式(5)とする.

$$C_n = 2D/(\Delta x_n + \Delta x_{n+1}), J_n = C_n(\phi_n - \phi_{n+1}).$$
(5)

同様に,メッシュ *n*-1 からメッシュ *n* への中性子流 *J*_{*n*-1} も式(6)の様に近似する.

$$J_{n-1} = C_{n-1}(\phi_{n-1} - \phi_n).$$
(6)

メッシュnの中性子の線源 S_n と吸収反応率 $\phi_n \cdot \Sigma_a \cdot \Delta x_n$ からメッシュnでの中性子の入出力(バランス)を式(7)で表現する.

$$\phi_n \Sigma_a \Delta x_n + J_n = S_n + J_{n-1}. \tag{7}$$

これに式(5), (6)を代入し, 整理すると式(8)となる.

$$\phi_n \Sigma_a \Delta x_n + C_n (\phi_n - \phi_{n+1}) = S_n + C_{n-1} (\phi_{n-1} - \phi_n), (C_{n-1} + C_n + \Sigma_a \Delta x_n) \phi_n - C_{n-1} \phi_{n-1} - C_n \phi_{n+1} = S_n.$$
(8)

尚, メッシュ n, n+1 の拡散係数 D_n, D_{n+1} が異なる場 合, 流れ係数 C_n は式(9)とする.

$$C_n = \frac{2D_n D_{n+1}}{D_n \Delta x_{n+1} + D_{n+1} \Delta x_n}.$$
(9)

平板体系では左右の境界条件を考える必要がある.メ ッシュ1の左側境界の中性子束 ϕ_0 の傾き(J_0/ϕ_0)を式(10) の様に a_L とする.境界が反射条件($J_0=0$)の場合には $a_L=$ 0,境界が中性子束零条件($\phi_0=0$)の場合には $a_L=10000$ などの大きな数とする.境界が中性子反射のない真空境 界条件の場合には, $a_L=0.4692$ が良い近似であることが 知られている ⁹.

$$J_0 = \alpha_L \phi_0. \tag{10}$$

左側境界の中性子流 J₀を差分法で表現すると式(11)と なる.

$$J_0 = D \frac{\phi_1 - \phi_0}{\Delta x_1/2}.$$
 (11)

式(10)を用いて φ ₀ を消去すれば式(12)となる.

$$J_0 = \frac{2D}{\Delta x_1 + 2D/\alpha_L} \phi_{1.} \tag{12}$$

左側境界の流れ係数 Coを次式の様に定義すると、メッシュ1の中性子バランスは式(13)となる.

$$C_{0} = 2 D\alpha_{L} / (\Delta x_{1}\alpha_{L} + 2D),$$

$$(C_{0} + C_{1} + \Sigma_{\alpha} \Delta x_{1})\phi_{1} - C_{1}\phi_{2} = S_{1}.$$
(13)

同様に、右側境界の中性子束 ϕ_N の傾きを a_R とし、流 れ係数 C_N を次式の様に定義すると、メッシュNの中性 子バランスは式(14)となる.

$$C_N = 2 D\alpha_R / (\Delta x_N \alpha_R + 2D),$$

$$(C_{N-1} + C_N + \Sigma_a \Delta x_N) \phi_N - C_{N-1} \phi_{N-1} = S_N.$$
(14)

式(8), (13), (14)から中性子束 $\phi_n \circ N$ 個の連立一次方 程式が構築でき,これを解くことにより中性子束 ϕ_n が計 算される.中性子束を中性子束ベクトル Φ ,線源を線源 ベクトル \mathbf{S} ,流れ係数などをマトリックスMと以下の様 に表現すると,連立一次方程式は式(15)となる.

$$\Phi = \left[\phi_n\right], \quad \mathbb{S} = \left[S_n\right],$$

$$M =$$

$$\begin{bmatrix} C_0 + C_1 + \Sigma_a \Delta x_n & \cdots & 0 \\ \vdots & C_{n-1} + C_n + \Sigma_a \Delta x_n & \vdots \\ 0 & \cdots & C_{N-1} + C_N + \Sigma_a \Delta x_N \end{bmatrix},$$

$$\mathbb{M} \cdot \Phi = \mathbb{S}. \tag{15}$$

連立一次方程式は、ガウスの消去法 ¹⁰などで解くこと ができるが、一次元問題の場合は、マトリックスの要素 が対角要素以外はメッシュ n 前後の流れ係数 C_{n-1} , C_{n+1} だけになるため簡単に解くことができる.式(16)、(17)の 様に Q, R を定義し、 $n = 1 \sim N$ まで計算する.次に、逆 順に $n = N \sim 1$ まで式(18)の様に計算することで中性子束 ϕ_n が得られる.

$$Q(1) = C_0 + C_1 + \Sigma_a \Delta x_1,$$

$$Q(n) = (C_{n-1} + C_n + \Sigma_a \Delta x_n) - C_{n-1}C_n/Q(n-1).$$
 (16)

$$R(1) = S_1,$$

$$R(n) = S_n - S_{n-1}C_n/Q(n-1).$$
(17)

$$\phi_N = R(N)/Q(N), \phi_n = (R(n) + C_n \phi_{n+1})/Q(n).$$
(18)

3.2 核分裂の取り扱い

S-Dif は高速群, 熱群の 2 群などの少数群の計算を想 定しているため,

(a) 核分裂により発生する高速群の中性子源を S_n^F として高速群の中性子束 ϕ_n^F を計算する.高速群から減速される熱群の中性子源 S_n^T は,式(19)の様に高速群の中性子束 ϕ_n^F に除去断面積 Σ_r とメッシュ幅を掛算した値となる.

$$S_n^T = \phi_n^F \cdot \Sigma_r \cdot \Delta x_n. \tag{19}$$

- (b) 熱群の中性子線源 S^{n^T}から熱群の中性子束 φ^{n^T}を計算する.
- (c) 核分裂により発生する中性子源分布は高速群と熱群 の中性子束から式(20)で計算される.

$$S_n^F = (\phi_n^F \cdot \nu \Sigma_f^F + \phi_n^T \cdot \nu \Sigma_f^T) \Delta x_n.$$
⁽²⁰⁾

対象とする体系内に核分裂がある場合は,最初に核分 裂率布を一様などと仮定し,(a),(b),(c)の計算から求めた 核分裂率布が収束するまで繰り返す.これを中性子源収 束計算(source iteration)と呼ぶ.

臨界状態を計算する増倍計算では、体系全体の核分裂 線源の合計値を1に規格化し、高速群と熱群の中性子束 を計算する.式(20)で得られる核分裂線源の値の全体系 の合計値が実効増倍率 keff となる.式(20)で得られた Sn^F を keff で割算して1に規格化し、再度計算して核分裂率 分布が一定値に収束するまで(a),(b),(c)の計算を繰り返 す.これにより、核分裂率分布、高速群と熱群の中性子 束および keff が得られる.2章で述べた k∞との違いは、 keff は体系全体の増倍率であり、keff では体系境界からの 中性子の漏れなども考慮している点である.

3.3 無限円筒・球体系の1次元問題

Fig. 5 に示す様な円筒体系の1次元問題の場合,メッシュ nからメッシュ n+1 への中性子流 J_n をメッシュ間の 差分で近似する点は平板1次元問題と同じであるが,式 (21)の様に円周の長さ $2\pi r_n$ の違いを考慮する必要がある.

$$J_n = D \frac{(\phi_n - \phi_{n+1}) 2\pi r_n}{(\Delta r_n + \Delta r_{n+1})/2}.$$
 (21)

このため,メッシュ *n* の流れ係数は次式となる.但し, 2π は各項で共通になるため省略している.

$$C_n = 2 Dr_n / (\Delta r_n + \Delta r_{n+1}). \tag{22}$$

中性子バランス式もメッシュ半径の平均値(rn-1+rn)/2 を考慮して,式(23)となる.

$$(C_{n-1} + C_n + \Sigma_a \Delta r_n (r_{n-1} + r_n)/2)\phi_n -C_{n-1}\phi_{n-1} - C_n \phi_{n+1} = S_n (r_{n-1} + r_n)/2.$$
(23)

球体系の場合, 球の表面積 4πrn²を考慮し, 共通項の 4π を省略して流れ係数は次式となる.

$$C_n = 2 D r_n^2 / (\Delta r_n + \Delta r_{n+1}).$$
⁽²⁴⁾

中性子バランス式もメッシュ半径の平均値(r_{n-1}+r_n)/2 を考慮して,式(25)となる.

$$(C_{n-1} + C_n + \Sigma_a \Delta r_n \{(r_{n-1} + r_n)/2\}^2)\phi_n - C_{n-1}\phi_{n-1} - C_n\phi_{n+1} = S_n \{(r_{n-1} + r_n)/2\}^2.$$
(25)

尚,円筒,球体系の場合のメッシュ体積は式(23),(25) などと整合させるため, πr_n^2 または $4/3\pi r_n^3$ ではなく, $2\pi\{(r_{n-1}+r_n)/2\}\Delta r_n$ または $4\pi\{(r_{n-1}+r_n)/2\}^2\Delta r_n$ で計算す る点に注意が必要である.



Fig. 5 One-dimensional diagram of infinite cylindrical reactor.

3.4 直交座標系の2次元問題

Fig. 6 に示す直交座標系の 2 次元問題では, x 方向のメ ッシュ番号を n, y 方向のメッシュ番号を m とし, メッ シュ(n, m)に x 方向から流入する中性子流 $J_{n-1,m}^{x}$, y 方向 から流入する中性子流 $J_{n,m-1}^{y}$, x 方向に流出する中性子流 $J_{n,m}^{x}$, y 方向に流出する中性子流 $J_{n,m}^{y}$, メッシュ(n, m)の中 性子の線源 $S_{n,m}$ と吸収反応率 $\phi_{n,m} \cdot \Sigma_a \cdot \Delta x_n \cdot \Delta y_n$ からメッ シュ(n, m)での中性子バランスを式(26)で表現する.

$$\phi_{n,m} \Sigma_a \Delta x_n \Delta y_m + J_{n,m}^x + J_{n,m}^y = S_{n,m} + J_{n-1,m}^x + J_{n,m-1}^y.$$
(26)

ー次元問題を拡張し, x 方向の流れ係数*C^x_{n,m}*, y 方向の 流れ係数*C^y_{n,m}*を, それぞれ式(27), (28)で定義すると, x 方 向と y 方向の中性子流は式(29), (30)で表現される.

$$C_{n,m}^{x} = 2 D\Delta y_m / (\Delta x_n + \Delta x_{n+1}).$$
⁽²⁷⁾

$$C_{n,m}^{y} = 2 D\Delta x_n / (\Delta y_m + \Delta y_{m+1}).$$
⁽²⁸⁾

$$J_{n,m}^{x} = C_{n,m}^{x} (\phi_{n,m} - \phi_{n+1,m}).$$
⁽²⁹⁾

$$J_{n,m}^{y} = C_{n,m}^{y} (\phi_{n,m} - \phi_{n,m+1}).$$
(30)

$$\phi_{n,m} \Sigma_a \Delta x_n \Delta y_m + C_{n,m}^x (\phi_{n,m} - \phi_{n+1,m}) + C_{n,m}^y (\phi_{n,m} - \phi_{n,m+1}) = S_{n,m} + C_{n-1,m}^x (\phi_{n-1,m} - \phi_{n,m}) + C_{n,m-1}^y (\phi_{n,m-1} - \phi_{n,m}).$$

$$(31)$$

これを整理すると式(32)となる.

$$(C_{n-1,m}^{x} + C_{n,m}^{y} + C_{n,m-1}^{y} + C_{n,m}^{y} + \Sigma_{a}\Delta x_{n}\Delta y_{m})\phi_{n,m} - C_{n-1,m}^{x}\phi_{n-1,m} - C_{n,m}^{x}\phi_{n+1,m} - C_{n,m-1}^{y}\phi_{n,m-1} - C_{n,m}^{y}\phi_{n,m+1} = S_{n,m}.$$
 (32)

ー次元問題と同様に、次式の様に左側の境界条件 aLから流れ係数C^{*}₀mを求めれば、差分式は式(33)となる.右側、上下の境界条件についても同様である.これらから連立 一次方程式が成立し、各メッシュの線源条件が与えられれば、中性子束 φ_{nm}が計算される.

$$C_{0,m}^{x} = 2 D \Delta y_{m} \alpha_{L} / (\Delta x_{1} \alpha_{L} + 2D),$$

$$\left(C_{0,m}^{x} + C_{1,m}^{x} + C_{1,m-1}^{y} + C_{1,m}^{y} + \Sigma_{a} \Delta x_{1} \Delta y_{m}\right) \phi_{1,m} - C_{1,m}^{x} \phi_{2,m} - C_{1,m-1}^{y} \phi_{1,m-1} - C_{1,m}^{y} \phi_{1,m+1} = S_{1,m}.$$
(33)

連立一次程式から式(15)の様なマトリックスを作り, ガウスの消去法などで解くことができるが, S-Difでは一 次元計算の積み重ねで中性子束を計算する.

式(32)でy方向の中性子束 $\bar{\phi}_{n,m-1}$, $\bar{\phi}_{n,m+1}$ を仮定すれば, 式(34)となり,x方向の中性子束分布 $\phi_{n-1,m}$, $\phi_{n,m}$, $\phi_{n+1,m}$ だけの式となる.これを式(16),(17),(18)と同様に解け ば,x方向の中性子束分布が得られる.

$$\begin{pmatrix} C_{n-1,m}^{x} + C_{n,m}^{x} + C_{n,m-1}^{y} + C_{n,m}^{y} + \Sigma_{a} \Delta x_{n} \Delta y_{m} \end{pmatrix} \phi_{n,m} - C_{n-1,m}^{x} \phi_{n-1,m} - C_{n,m}^{x} \phi_{n+1,m} = S_{n,m} + C_{n,m-1}^{y} \overline{\phi}_{n,m-1} + C_{n,m}^{y} \overline{\phi}_{n,m+1}.$$
 (34)



Fig. 6 Two-dimensional diagram of XY geometry reactor.

S-Dif では Fig. 7 に示す様に(1), (2), (3)・・などの順 に x 方向に一次元問題を解き,続いて(6), (7), (8)・・の 様に y 方向に一次元問題を解く.この際,仮定した中性 子束 $\bar{\phi}_{n,m-1}$, $\bar{\phi}_{n,m+1}$ などを一次元計算で新たに得られた 中性子束に次々置き換えていく. x, y方向の一次元計算を中性子束が収束するまで繰り 返す.この計算手法は ADI (Alternating Direction Implicit method, 交互方向陰解法)と呼ばれる.この手法は,大 きなマトリックスをガウスの消去法などで解くより計算 メモリーを節約し、計算速度も向上する.

直交座標系の3次元問題についても上記と同様の考え 方が適用される.



Fig. 7 Calculation order of ADI method.

3.5 領域バランスによる加速手法

S-Dif では領域単位の中性子バランスを用いた加速手 法の利用が可能である. 差分法の計算ではメッシュ幅 *Ax* を十分小さくする必要があり,燃料集合体を領域として, その領域を幾つかに分割したメッシュ毎に中性子束の計 算を行う. 中性子束を計算した後,領域平均の中性子束 および拡散係数,マクロ断面積を計算する. 但し, 拡散 係数についてはメッシュ毎の中性子束による補正が必要 である.

この領域平均のマクロ断面積を用いて,領域単位で大 まかに中性子束計算,中性子源収束計算を行う.得られ た領域単位の平均中性束および核分裂率をメッシュ単位 の中性子束および核分裂率に反映する.この様な計算を 繰り返すことで領域単位の中性子バランスを反映した差 分計算の加速が可能である.4章では本コードの全ての 計算に加速手法を適用している.加速により中性子源収 束計算の繰り返し回数が減るため3倍以上の加速性能が 得られる.

4. 計算結果の検証

S-Dif を用いて Fig. 8 に示す IAEA (International Atomic Energy Agency)の軽水炉の炉心ベンチマーク問題を解析 した¹¹⁾. 問題は炉心の 1/4 を模擬した 3 次元体系であり, 各燃料集合体の寸法は 0.2m×0.2m, 高さは 3.4m である. Fig.8 (a)に 1/4 炉心の水平断面を示し, 炉心図の左端と下端が対称面である.

燃料は濃縮度の異なる2種類で(fuel1,2),水平方向お よび鉛直方向に冷却材(減速材)で囲まれている.5体の 制御棒(control rod: CR)が配置され,1体(Fig.8 (a)の(2))は 途中まで挿入されている.これらの各領域の2群のマク ロ断面積が Table 3 の様に与えられ, 燃料の配置を色別に 示す. Fig.8 (a)の左端と下端が対称面であり *J* = 0 の反射 境界となる.水平方向および鉛直方向ともに冷却材の外 側は真空境界条件(α = 0.4692)である.

2 次元問題では、炉心の 鉛直方向の中心位置の断 面(midplate)を対称とし、制 御棒 1 体(Fig.8 (a)-(2)) は抜 けている、鉛直方向の中性 子の漏れについてはバッ クリング $B^2 = 8 \times 10^{-5}$ (cm⁻²) が与えられている.この効 果は高速群,熱群の吸収断 面積 Σ_a に拡散係数 $D \times B^2$ を 加算することにより反映 される.

S-Dif の取り扱いは単純 な XYZ 形状に限られるた め, Fig.8 (a)-(1)の境界を真 空境界条件に取り扱えな い. このため,冷却材の外 側に真空境界条件を持つ 仮想的な領域(茶色)を設 定し,吸収断面積を Σ_a = 10^5 などと大きくし,拡散 係数 $D = 0.4692/2 \times \Delta x$ とメ ッシュ幅の 0.2346 倍にす ることで真空境界条件を 模擬する.





Fig. 8 Geometry of IAEA benchmark problem.

Table 3 Two-group cross sections of IAEA benchmark $[D(cm), \Sigma(1/cm)]$

						(); =(
Reg.	D^F	D^T	Σ_r	$\Sigma_a{}^F$	$\Sigma_a{}^T$	$v \Sigma_f^T$	Mat.
1	1.5	0.4	0.02	0.01	0.08	0.135	Fuel 1
2	1.5	0.4	0.02	0.01	0.085	0.135	Fuel 2
3	1.5	0.4	0.02	0.01	0.13	0.135	CR
4	2.0	0.3	0.04	0	0.01	0	Water
5	2.0	0.3	0.04	0	0.055	0	CR+ Water

XY 形状の 2 次元問題に対する計算結果を Table 4 と Table 5 に示す. Table 4 に, *k*eff および 2 領域(炉心中心 power c と炉心外周 power s)の燃料集合体の相対出力比 =(局所出力)/(平均出力)を領域内の分割メッシュ数に対応 して示す.メッシュ分割数の増加とともに参照解に近づ き,32×32 (0.625cm×0.625cm)時の *k*eff および相対出力比 は参照解とよく一致した. Table 5 にはメッシュ数 32×32 の場合,原子炉内の燃料集合体の相対出力分布を示し,全 ての集合体で相対誤差 1%以内で参照解と一致した.

Table 4 Dependence of results on mesh numbers (XY).

Number of meshes	keff	Power c	Power s	Time (s)
4×4	1.02926 (-0.032)	0.7644 (2.700)	0.6856 (-9.84)	1.03
8×8	1.02946 (-0.013)	0.7528 (1.139)	0.7308 (-3.517)	5.73
16×16	1.02957 (-0.002)	0.7466 (0.312)	0.7498 (-1.001)	58.60
32×32	1.02960 (0.001)	0.7447 (-0.058)	0.7555 (-0.249)	804.93
Ref.	1.02959	0.7443	0.7574	-

(*): error(%)

Table 5 Verification of power distribution (mesh:32×32).

					· · ·		
0.7555	0.7362	0.6919					S-Dif
0.7571	0.7379	0.6952					Ref.
-0.2094	-0.2236	-0.4774					Error(%)
0.9348	0.9507	0.9754	0.8456	0.5959			
0.9350	0.9512	0.9761	0.8485	0.5997			
-0.0196	-0.0491	-0.0733	-0.3397	-0.6299			
0.9357	1.0364	1.0706	0.9064	0.6857	0.5842		
0.9340	1.0359	1.0760	0.9068	0.6859	0.5874		
0.1797	0.0519	-0.5041	-0.0415	-0.0275	-0.5511		
0.6095	1.0701	1.1793	0.9673	0.4701	0.6857	0.5959	
0.6099	1.0684	1.1780	0.9661	0.4712	0.6860	0.5998	
-0.0698	0.1606	0.1085	0.1252	-0.2371	-0.0423	-0.6469	
1.2111	1.3149	1.3450	1.1929	0.9673	0.9064	0.8456	
1.2083	1.3128	1.3433	1.1916	0.9662	0.9070	0.8487	
0.2282	0.1611	0.1263	0.1061	0.1146	-0.0640	-0.3638	
1.4536	1.4797	1.4692	1.3450	1.1793	1.0706	0.9754	0.6919
1.4509	1.4772	1.4671	1.3434	1.1785	1.0708	0.9764	0.6954
0.1840	0.1687	0.1454	0.1187	0.0658	-0.0215	-0.1046	-0.5068
1.3099	1.4350	1.4797	1.3149	1.0701	1.0364	0.9507	0.7362
1.3068	1.4323	1.4773	1.3130	1.0686	1.0362	0.9516	0.7382
0.2405	0.1891	0.1619	0.1457	0.1415	0.0224	-0.0918	-0.2650
0.7447	1.3099	1.4536	1.2111	0.6095	0.9357	0.9348	0.7555
0.7443	1.3068	1.4510	1.2084	0.6100	0.9348	0.9354	0.7574
0.0583	0.2404	0.1768	0.2197	-0.0866	0.0934	-0.0630	-0.2496
	Pov	wer c			Pow	er s	

XYZ 形状の 3 次元問題に対する実効増倍率および,制 御棒が部分挿入された燃料集合体(Fig. 8 (a)-(2))の炉心の 鉛直方向の中心位置の断面(midplate)での高速群と熱群 の中性子束の計算結果を Table 6 に示す.メッシュ数に よる keff の変化は小さいが,メッシュ数を大きくすれば 中性子束は参照解に近づき,メッシュ数 8×8×8 の場合に 0.1%未満の差で一致した.

Table 6 Dependence of results on mesh numbers (XYZ).

Number of meshes	<i>k_{eff}</i>	Fast flux (1/cm ² /s)	Thermal flux (1/cm ² /s)	Time (s)
2×2×2	1.02905 (0.002)	77.78 (9.132)	18.26 (9.132)	23.56
4×4×4	1.02865 (-0.037)	74.33 (4.288)	17.44 (4.285)	218.81
8×8×8	1.02888 (-0.014)	71.34 (0.093)	16.74 (0.092)	4069.20
Ref.	1.02903	71.27	16.73	-

(*): error(%)



Fig. 9 Verification of neutron flux distribution in fast and thermal groups.

また、メッシュ数 8×8×8 の場合、制御棒が部分挿入された燃料集合体内の炉心鉛直方向の中性子束分布を高速 群と熱群で Fig.9 に示す。S-Dif の結果は参照解と両群と もに相対誤差 3%未満で一致した.

IAEAの2次元および3次元の軽水炉の炉心ベンチマ ーク問題を通じてS-Difの解析性能が検証された.

5. まとめ

学生などの初学者が学習や研究などに簡便に使えるコ ンパクトな中性子拡散計算コード S-Dif を開発した.本 コードは Microsoft の Excel VBA を用い,コード自体の インストール作業なく利用できる.S-Dif は,計算機能を 限定しているが,平板,無限円筒,球の1次元体系,直 交座標 XY と円筒座標 RZ の2 次元体系,および直交座標 XYZ の3 次元体系の拡散計算が可能である.IAEA の2 次元および3 次元の炉心ベンチマーク問題を解析し,S-Dif の計算性能を検証した.

現在,本コードは本学工学部原子力工学科生を対象とした授業でも利用されている (Fig. 10 を参照). 履修学生は IAEA の 2 次元問題に取り組み,燃料集合体の配置を変えることで炉心の出力分布が変化することを自ら計算し,理解を深めている.

数値計算>>径方向計算 燃料集合体配置の影響 ・ 炉心周囲の物質1(高濃縮度燃料)を物質2(低濃縮度燃料)

 ・ 炉心周囲の物質1(高濃縮度燃料)を物質2(低濃縮度燃料) に変えて計算した結果です。出力分布のピークが1.5から2.0 に増加している事が判ります。
 IAEAのベンチマーク問題

Power Distribution Ave.=1	1	2	3	4	5	0	/	8	9
1	0.7574466	1.3653009	1.5027135	1.2523728	0.6077242	0.9417577	0.9195779	0.715346	0
2	1.365301	1.4881295	1.5276771	1.3521181	1.0932629	1.0383219	0.9332519	0.6957333	0
3	1.5027136	1.5276771	1.5115551	1.3762406	1.1945861	1.0666061	0.9530579	0.6372033	0
4	1.2523728	1.352118	1.3762405	1.2157948	0.9797073	0.8972723	0.8026565	0	0
5	0.6077241	1.0932629	1.1945861	0.9797073	0.4584274	0.6735209	0.549426	0	0
6	0.9417576	1.0383219	1.0666061	0.8972723	0.6735209	0.5406545	0	0	0
7	0.9195779	0.9332518	0.9530578	0.8026565	0.549426	0	0	0	0
8	0.7153459	0.6957333	0.6372033	0	0	0	0	0	0
-	0	0	0	0	0	0	0	0	0
炉心周囲の燃料	料を低濃	にに	変えた	場合の	結果				
炉心周囲の燃料	料を低濃	にに	変えた	場合の	結果	-	_	-	
9 炉心周囲の燃料 Power Distribution Ave.=1	料を低濃	と 総度に 2	·変えた 3	場合の 4	結果	6	7	8	9
9 炉心周囲の燃料 Power Distribution Ave.=1	料を低濃 1 1.0194847	と 編度に 1.8254452	変えた 3 1.9664761	場合の 4 1.5696351	結果 5 0.6849896	6 0.8998054	7	8	9
ッ 炉心周囲の燃料 Power Distribution Ave.=1 1 2	料を低濃 1 1.0194847 1.8254452	と 縮度に 2 1.8254452 1.9752756	変えた 3 1.9664761 1.9803213	場合の 4 1.5696351 1.6691937	結果 5 0.6849896 1.2184499	6 0.8998054 0.9845557	7 0.7393176 0.7272186	8 0.4424781 0.4205416	5 0 0
9 炉心周囲の燃料 Power Distribution Ave.=1 1 2 3	斗を低濃 1.0194847 1.8254452 1.9664761	と 編度に 2 1.8254452 1.9752756 1.9803212	変えた 3 1.9664761 1.9803213 1.9063572	場合の 4 1.5696351 1.6691937 1.6467848	結果 5 0.6849896 1.2184499 1.2919029	6 0.8998054 0.9845557 0.9662106	7 0.7393176 0.7272186 0.6476242	8 0.4424781 0.4205416 0.3659425	9 0 0
9 炉心周囲の燃料 Power Distribution Ave.=1 1 2 3 4	料を低濃 1.0194847 1.8254452 1.9664761 1.5696351	と 能度に 2 1.8254452 1.9752756 1.9803212 1.6691937	変えた 3 1.9664761 1.9803213 1.9063572 1.6467848	場合の 4 1.5696351 1.6691937 1.6467848 1.382704	結果 0.6849896 1.2184499 1.2919029 1.0021881	6 0.8998054 0.9845557 0.9662106 0.748757	7 0.7393176 0.7272186 0.6476242 0.5062015	8 0.4424781 0.4205416 0.3659425 0	
9 炉心周囲の燃料 Power Distribution Ave.=1 2 3 4 4	斗を低濃 1.0194847 1.8254452 1.9664761 1.5696351 0.6849896	と 縮度に 1.8254452 1.9752756 1.9803212 1.6691937 1.2184498	変えた 3 1.9664761 1.9803213 1.9063572 1.6467848 1.2919029	場合の 4 1.5696351 1.6691937 1.6467848 1.382704 1.0021881	結果 <u>0.6849896</u> 1.2184499 1.2919029 1.0021881 <u>0.4050975</u>	6 0.8998054 0.9845557 0.9662106 0.748757 0.4500893	7 0.7393176 0.7272186 0.6476242 0.5062015 0.3171944	8 0.4424781 0.4205416 0.3659425 0 0	
9 炉心周囲の燃料 Power Distribution Ave.=1 2 3 4 5 6	半を低濃 1 1.0194847 1.8254452 1.9664761 1.5696351 0.6849896 0.8998053	2 1.8254452 1.9752756 1.9803212 1.6691937 1.2184498 0.9845556	変えた 3 1.9664761 1.9803213 1.9063572 1.6467848 1.2919029 0.9662105	場合の 4 1.5696351 1.6691937 1.6467848 1.382704 1.0021881 0.748757	5 0.6849896 1.2184499 1.2919029 1.0021881 0.4050975 0.4500893	6 0.8998054 0.9845557 0.9662106 0.748757 0.4500893 0.3111957	7 0.7393176 0.7272186 0.6476242 0.5062015 0.3171944 0	8 0.4424781 0.4205416 0.3659425 0 0 0	
9 炉心周囲の燃料 Power Distribution Ave=1 2 3 4 5 6 7	1 1.0194847 1.8254452 1.9664761 1.5696351 0.6849896 0.8998053 0.7393174	と 総 に 1.8254452 1.9752756 1.9803212 1.6691937 1.2184498 0.98455556 0.7272185	変えた 3 1.9664761 1.9803213 1.9063572 1.6467848 1.2919029 0.9662105 0.6476242	場合の 4 1.5696351 1.6691937 1.6467848 1.382704 1.0021881 0.748757 0.5062015	結果 0.6849896 1.2184499 1.2919029 1.0021881 0.4050975 0.4500893 0.3171944	6 0.8998054 0.9845557 0.9662106 0.748757 0.4500893 0.3111957 0	7 0.7393176 0.7272186 0.6476242 0.5062015 0.3171944 0 0	8 0.4424781 0.4205416 0.3659425 0 0 0 0 0	
9 炉心周囲の燃料 Power Distribution Ave.=1 2 3 4 5 6 7 8	料を低濃 1 1.0194847 1.8254452 1.9664761 1.5696351 0.6849896 0.8998053 0.7393174 0.442478	総定していた。 2 1.8254452 1.9752756 1.9803212 1.6691937 1.2184498 0.9845556 0.7272185 0.4205416	変えた 3 1.9664761 1.9803213 1.9063572 1.6467848 1.2919029 0.9662105 0.6476242 0.3659425	場合の 4 1.5696351 1.6691937 1.6467848 1.382704 1.0021881 0.748757 0.5062015 0	5 0.6849896 1.2184499 1.2919029 1.0021881 0.4050975 0.4500893 0.3171944 0	6 0.8998054 0.9845557 0.9662106 0.748757 0.4500893 0.3111957 0 0	7 0.7393176 0.7272186 0.6476242 0.5062015 0.3171944 0 0 0	8 0.4424781 0.4205416 0.3659425 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0 0	



Modified power profile by replacing fuels in the peripheral region

Fig. 10 Examples of teaching materials.

Power profile of

IAEA benchmark

problem

今後も本学の教育活動に活用するとともに,S-Dif を 公開・配布し,広く学生などの初学者の教育・人材育成, 原子炉の研究にS-Difの利用を進める計画である.

参考文献

- 1) T. B. Fowler, and D. R. Vondi : Nuclear core analysis code CITATION, ORNL-TM-2496 (1969).
- 奥村啓介: MOSRA-light;ベクトル計算機のための高速3次元中性子拡散ノード法コード, JAERI-Data / Code 98-025 (1998).
- 原子力安全研究協会:軽水炉発電所のあらまし 実務 テキストシリーズ No.1 (改訂版) (1992).
- K. SHIBATA, et al. : JENDL-4.0: A new library for nuclear science and engineering, Journal of Nuclear Science and Technology 48, 1, pp 1-30 (2011).
- K. OKUMURA : MOSRA-SRAC : Lattice calculation module of the modular code system for nuclear reactor analyses MOSRA, JAEA-Data / Code 2015-015 (2015).
- 須山賢也, 岩崎智彦, 平川直弘: 統合化燃焼計算シ ステム SWAT, JAERI-Data / Code 97-047 (1997).
- 7) A. Vasiliev, H. Ferroukhi, M. A. Zimmermann, R. Chawla : Development of a CASMO-4 / SIMULATE-3 / MCNPX calculation scheme for PWR fast neutron fluence analysis and validation against RPV scraping test data, Annals of Nuclear Energy, 34, 8, pp. 615-627 (2007).
- 三菱新核設計コードシステム GALAXY / COSMO-S の開発, 三菱重工技報 Vol.48 No.1 (2011).
- 9) 小林啓祐:原子炉物理, コロナ社 (1996).
- 10) 渡部力,他:Fortran77による数値計算ソフトウエア, 丸善(1989).
- 11) Technical Report ANL-7416 Supplement 2 : Benchmark problem book : American Nuclear Society, Argonne Code Center, Argonne National Laboratory (1977).

教育用のモンテカルロ法光子中性子輸送計算コード S-Monte の開発 ^{松村 哲夫*1} 亀山 高範^{*2}

Development of an Educational Monte Carlo Method Code "S-Monte" for Photon and Neutron Transport Calculation

by

Tetsuo MATSUMURA^{*1} and Takanori KAMEYAMA^{*2} (Received on Mar. 31, 2020 and accepted on Jul. 24, 2020)

Abstract

We developed an educational Monte Carlo method code, "S-Monte" for photon and neutron transport calculation. By using Microsoft Excel VBA, the code is compact, intuitive to use, and has a user-friendly interface. Verification calculations were performed for dose evaluation and radiation shielding problems of gamma rays by comparing with the PHITS code. Benchmark calculations were also done for neutron multiplication factors of nuclear reactor cores. The S-Monte code has an auxiliary function to estimate the positions and intensities of environmental radiation sources. The code is open for the public, and is useful for both students and trainees.

Keywords: Radiation dose evaluation, Source estimation, Monte Carlo method, User-friendly, Excel VBA

1. まえがき

環境中に放出された放射性核種あるいは放射線施設な どの放射線源による放射線の空間線量は住民および従事 者の被ばく線量評価に必須な情報である.このため,γ 線(光子)・中性子の遮蔽・線量の各種の計算法と計算コ ードが開発されている.計算法としてはモンテカルロ法 が代表的であり、PHITS¹, MCNP², MVP/GMVP³) など のコードが開発され、実務で使われている.モンテカル ロ法コードは精度の高い遮蔽・線量計算が可能であるが、 利用に当たっては専門的な知識と訓練が必要である.

モンテカルロ法の理解のため,初学者にも理解し易い 教育用モンテカルロ法コード「S-Monte」を開発した.S-Monte は放射線の線量評価および線源推定(位置・強度) の機能を持つとともに,計算体系の入力を*XYZ*座標に限 定するなど一部を直感的にし,Microsoft の Excel VBA を 用いることで初心者でも簡便に利用できる.また,本コ ードでモンテカルロ法の基礎,使用法を学習することに より,実務で使われるモンテカルロ法の理解と利用が容 易になると考えられる.

本コードは多群の3次元輸送計算を行うため,γ線(光 子)・中性子の多群計算ライブラリを用意すれば,各種の 遮蔽・線量計算,中性子の増倍率計算が可能である.既 に,本コードで利用可能なγ線線量評価用の計算ライブ ラリを装備しているため,環境中のγ線源による建屋内 外の空間線量など,実務的な線量評価を実施できる.

- *1 工学部原子力工学科非常勤講師
- *2 工学部原子力工学科教授

2. 計算方法

S-Monte には標準的な多群のアナログモンテカルロ計 算手法を用いている⁴⁻⁰.本章では利用したアナログモン テカルロ計算手法の概要を説明する.

2.1 粒子の発生·移動

粒子が Fig. 1 に示す様に領域(region) R 内の位置配で発 生,単位方向(direction)ベクトル Ω に沿って運動,領域 R の全断面積(線減衰係数)は Σ とする場合,粒子が Ω 方 向に距離(distance) rを移動する間に物質と反応する割合 (reaction rate: p)は式(1)及び Fig. 2 の様に示される.



Fig. 1 Geometry of analog Monte Carlo calculation.

モンテカルロ法では、乱数を用いて粒子が反応までに 移動する距離 *rp*を求める.このため、Fig.2の反応割合 pから移動距離 r_p を計算する. p値に 0~1 の範囲の乱数 ξ を適用し,幅の同じ(a)と(b)の範囲に乱数が発生した場 合,これに対応した距離 rの幅(c)と(d)を比べると,(c)が (d)より狭くなる.幅が狭いため,特定の距離 r(微小な δr の範囲)に移動する粒子数は,(c)の数が(d)の数より 多くなり,この分布も exp($-r\Sigma_i$)に従う.このため,p値か ら逆関数(inverse function)で距離 rを求めれば,粒子の移 動距離が求められる.距離 rと反応割合pの逆関数は式 (2)であり,乱数(ζ)から式(3)で粒子の反応までの移動距離 r_p が求められる.

$$r(p) = -1/\Sigma_t \ln(p). \tag{2}$$



Fig. 2 Calculation method of particle moving distance in Monte Carlo method.

粒子が領域 R 内で一様に発生する場合,発生位置∞の 3 次元直交座標(x₀, y₀, z₀)は領域 R の各辺の長さ(x₁, y₁, z₁) から 0~1の範囲の 3 つの乱数(ζ₁, ζ₂, ζ₃)を用いて式(4)で 求められる.

$$x_0 = \xi_1 x_1, \ y_0 = \xi_2 y_1, \ z_0 = \xi_3 z_1. \tag{4}$$

粒子の発生位置が(x_0, y_0, z_0)で,立体角 Ω の z 軸への仰角が θ , xy 面での x 軸との夾角(方位角)が ψ の場合, 直方体の x_1 面(s 点)への距離 r_1 は式(5)で計算できる.

$$r_1 = (x_1 - x_0)/\cos\theta/\cos\psi.$$
⁽⁵⁾

粒子の方向 Ω が立体角 4π 方向に均等である場合, θ と ψ は乱数(ξ_4 , ξ_5)を用いて式(6), (7)で計算できる.

$$\psi = 2\pi\xi_4.$$
(6)
 $\sin\theta = 2\xi_5 - 1.$
(7)

立体角の構造から z 軸への仰角 θ が± $\pi/2$ 方向近傍に 発生する粒子数 $p(\theta)$ は、0 方向より少なく、 $\cos\theta$ の分布 確率となる. $\sin\theta$ の微分値は $d\sin\theta/d\theta = \cos\theta$ であり、 $\sin\theta$ を式(7)の様に乱数 ξ から計算することで、発生分布 $p(\theta)$ が $\cos\theta$ となる.

式(3)で計算される移動距離 rp が直方体表面の s 点へ

の距離 r_1 より大きい場合, 粒子は領域 R から出て隣の領 域 R⁺に移動することになる. 隣の領域 R⁺にて, 領域の境 界点 s を起点として, Ω 方向の粒子について, 再度, 式 (3)を用いて粒子の移動距離を計算する.

2.2 粒子の反応

 r_p が r_1 より小さい場合,領域 R 内で粒子が反応を起こ すことになる.粒子の反応断面積には,捕獲断面積 Σ_c と 核分裂反応断面積 Σ_f の合計である吸収反応断面積 Σ_a お よび散乱断面積 Σ_s がある.これらの反応断面積の合計(Σ_a + Σ_s)が全断面積 Σ_t であるが,散乱反応には中性子の(n, 2n)反応や γ 線の電子対生成反応などが含まれ,散乱を起 こす粒子の数より散乱で生成される粒子の数が多くなる 場合がある.エネルギー群 g から g に散乱される粒子の 断面積の総和 $\Sigma'_s(g)$ は $\Sigma_s(g)$ より大きくなり,式(8)で計算 される.

$$\Sigma'_{s}(g) = \sum_{g'} \Sigma_{s}(g \to g'). \tag{8}$$

粒子が領域 R内で反応を起す場合,どの反応を起こし, 散乱反応の場合,どのエネルギー群に散乱するかを乱数 ζ を用いて決める.この場合,全断面積 Σ_i ではなく,式 (9)で定義される修正全断面積 $\Sigma_i'(g)$ を用いる点に注意が 必要である.

$$\Sigma'_t(g) = \Sigma_a(g) + \Sigma'_s(g). \tag{9}$$

例えば、乱数 ξ が $\Sigma_a(g)/\Sigma_i(g)$ より小さい場合、吸収反応を起こすと判断する. 粒子には予め発生時に重み W=1を与え、 $\Sigma_i(g)$ と $\Sigma_i(g)$ が異なる場合には粒子が持つ重みに $\Sigma_i(g)/\Sigma_i(g)$ を掛算して粒子数のバランスを調整する.

粒子は発生,領域・位置の移動,反応などを繰り返す. 粒子が計算体系の外側に出た場合に粒子の追跡を終了し, 新しい粒子を発生する.粒子が吸収反応を起こし,その 一部が核分裂反応となる場合,粒子の持つエネルギーを 核分裂スペクトルのエネルギーに変更し,粒子の追跡を 継続する.その際,粒子の持つ重み Wを式(10)で修正す る.

$$W' = W \cdot \nu \Sigma_f / \Sigma_a. \tag{10}$$

ここで、v は核分裂の際の中性子発生数である. 核分 裂反応が無い場合, 粒子は捕獲反応を起こし, 後て述べ る非アナログ吸収オプションを利用しない場合, 粒子の 追跡を終了し, 新しい粒子を発生する.

2.3 粒子の散乱反応

粒子が散乱する場合,エネルギー群gからg'に散乱された後,角度依存の散乱断面積を考慮して散乱方向を計算する必要がある.粒子の散乱前後の単位方向ベクトル $\Omega \geq \Omega'$ の夾角 η の cos $\eta = \mu$ は散乱前後(b, a)の単位方向 ベクトルの内積の式(11)で計算される.

$$\mu = \cos \eta = x_b x_a + y_b y_a + z_b z_a. \tag{11}$$

ここで、散乱前: $(x_b, y_b, z_b) = (\cos\theta \cos\psi, \cos\theta \sin\psi, \sin\theta)$, 散乱後: (x_a, y_a, z_a) の単位方向ベクトルである.

非等方で角度依存の散乱断面積 $\Sigma_s(\mu)$ は, μ を変数とする P_n (n 次のルジャンドル多項式)と P_n 成分の断面積 (Σ_s^n)で与えられ,式(12)で計算される.

$$\Sigma_s(\mu) = \sum_n (2n+1)\Sigma_s^n P_n(\mu).$$
(12)

ここで、 P_n は、 $P_0=1$, $P_1=\mu$, $P_2=(3\mu^2-1)/2$, $P_3=(5\mu^3-3\mu)/2$ な どである。例として ⁶⁰Coから放出される γ 線エネルギー (1.17MeV と 1.33MeV のうち 1.33MeV)に対応する第 22 群(Table 2 参照) での鉛の自群散乱断面積の μ 依存性を Fig. 3 に示す。散乱は前方散乱が大きく、3 次のルジャン ドル多項式の近似では散乱角度 μ によっては負の値にな る。これはルジャンドル多項式の次数が少なく、散乱断 面積の μ 依存を細かく表現できないためである。

S-Monte では、粒子の散乱角度分布を Fig. 3 の様にするため、乱数の棄却法を用いている. その手順は次の通りである.

- 粒子の方向 Ω'を式(6), (7)で発生し, 散乱角度 μ 及び 散乱断面積 Σ_s(μ)を式(11), (12)で得る.
- 散乱断面積 Σ_s(μ)の最大値 Σ_s^M (Fig. 3 では約 8 barn) との比 Σ_s(μ)/Σ_s^M と新たな乱数 ζ と比較する.
- 乱数 ζ が Σ_s(μ)/Σ^M比より大きければ,求めた散乱後 の粒子の方向 Ω'を棄却し,1)に戻り粒子の方向 Ω'を 再計算する.

この乱数の棄却法で,散乱後の粒子の方向 Ω'の散乱角 μの分布を Fig. 3 の様な形にすることができる(但し, 負の散乱断面積となる角度には粒子を発生しない).



Tig. 5 migie dependent seattering cross see

2.4 γ線計算ライブラリ

S-Monte では、核データライブラリ JENDL-4.0⁷⁾をベースにした多群ライブラリ MATXSLIB-J4⁸⁾から本コードでγ線線量評価に用いる 42 群の計算ライブラリを装備している. Table 1 にこの計算ライブラリに納めた 25 個の元素と同位体を、Table 2 に計算ライブラリの群構造と

後述の線量換算係数(dose conversion factor)を示す. この エネルギー群構造は、 60 Co、 137 Cs から放出される γ 線エ ネルギーなど、計算対象となる γ 線のエネルギー範囲を 考慮して設定されている.

S-Monte は P5まで対応可能であるが,後述の検証計算の結果などから,現在の計算ライブラリでは,短い計算時間で充分な計算精度が得られる P3 近似としている.

Table 1 Elements and isotopes in library.

H, C, N, O, Na, Mg, Al, Si, S, Cl, Ar, K, Ca, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zr, Mo, W, Pb, ²³⁵U, ²³⁸U

Table 2 Group structure and dose conversion factors.

	Upper energy	Lower energy	Dose conversion
Gr.	(eV)	Lower energy	factor
	(0)	(0)	$(\mu Sv/h vs 1/cm^2/s)$
1	5.00E+07	3.00E+07	0.1715
2	3.00E+07	2.00E+07	0.1370
3	2.00E+07	1.40E+07	0.1110
4	1.40E+07	1.20E+07	0.0922
5	1.20E+07	1.00E+07	0.0818
6	1.00E+07	8.00E+06	0.0701
7	8.00E+06	7.50E+06	0.0644
8	7.50E+06	7.00E+06	0.0623
9	7.00E+06	6.50E+06	0.0597
10	6.50E+06	6.00E+06	0.0560
11	6.00E+06	5.50E+06	0.0530
12	5.50E+06	5.00E+06	0.0503
13	5.00E+06	4.50E+06	0.0476
14	4.50E+06	4.00E+06	0.0447
15	4.00E+06	3.50E+06	0.0415
16	3.50E+06	3.00E+06	0.0376
17	3.00E+06	2.50E+06	0.0335
18	2.50E+06	2.00E+06	0.0292
19	2.00E+06	1.66E+06	0.0253
20	1.66E+06	1.50E+06	0.0228
21	1.50E+06	1.34E+06	0.0211
22	1.34E+06	1.33E+06	0.0201
23	1.33E+06	1.00E+06	0.0181
24	1.00E+06	8.00E+05	0.0148
25	8.00E+05	7.00E+05	0.0127
26	7.00E+05	6.00E+05	0.0112
27	6.00E+05	5.12E+05	0.00979
28	5.12E+05	5.10E+05	0.00907
29	5.10E+05	4.50E+05	0.00856
30	4.50E+05	4.00E+05	0.00763
31	4.00E+05	3.00E+05	0.00632
32	3.00E+05	2.00E+05	0.00452
33	2.00E+05	1.50E+05	0.00315
34	1.50E+05	1.00E+05	0.00228
35	1.00E+05	7.50E+04	0.00168
36	7.50E+04	7.00E+04	0.00149
37	7.00E+04	6.00E+04	0.00141
38	6.00E+04	4.50E+04	0.00130
39	4.50E+04	3.00E+04	0.001195
40	3.00E+04	2.00E+04	0.000940
41	2.00E+04	1.00E+04	0.000453
42	1.00E+04	1.00E+03	4.22E-05

2.5 分散および標準偏差

モンテカルロ法では、粒子の追跡を1万回程度(デフ オルト値であり、任意に指定できる=ヒストリー)繰り 返す.領域毎に粒子のフラックス、反応量などの集計を 行い、更に、これらの粒子の追跡および集計を100回程 度(デフォルト値であり、任意に指定できる=バッチ) 繰り返す.つまり、粒子の追跡回数は1万ヒストリー ×100 バッチの100万回程度となる.

領域毎の粒子のフラックス,反応量などのバッチ *i* での値 *A*_iの分散 *V* を式(13)で計算する.

$$V = \frac{1}{n-1} \left[\sum_{i} (A_i - A_{av})^2 \right].$$
 (13)

$$A_{av} = \frac{1}{n} \sum_{i} A_i. \tag{14}$$

ここで、n はバッチ数、 A_{av} は式(14)で示される A_i の平 均値である.また、式(13)の中でnではなく(n-1)で割算 するのは「分散の不偏推定値」にするためである.さら に、式(13)を変形して、式(15)とする.

$$V = \frac{1}{n-1} \sum_{i} (A_{i}^{2} - 2A_{i}A_{av} + A_{av}^{2}),$$

$$V = \frac{n}{n-1} \left[\frac{1}{n} \sum_{i} A_{i}^{2} - 2A_{av} \frac{1}{n} \sum_{i} A_{i} + A_{av}^{2} \right],$$

$$V = \frac{n}{n-1} \left[\frac{1}{n} \sum_{i} A_{i}^{2} - A_{av}^{2} \right].$$
(15)

2.6 粒子のフラックス、反応量及び線量評価

S-Monte では領域毎に粒子のフラックス,反応量を集計し,放射線の線量評価などを行う.この集計方法として以下の3種類の集計を行う.

(1) 粒子の飛行距離評価法(track length estimator)

(2) 衝突評価法(collision estimator)

(3) 面検出器評価法 (surface crossing estimator)

飛行距離評価法では粒子の飛行距離を集計し, Fig. 1 での領域内の移動距離 r_{ρ} を合計し, ヒストリー数で割算して, 領域平均のフラックス ϕ が得られる.

衝突評価法では領域内の吸収反応を集計し,各領域で の反応量を(吸収断面積 Σ_a×領域体積)で割算して領域 平均のフラックスφが得られる.

面検出器評価法では領域を移動する際に,移動する粒 子の数を集計し,領域間の粒子の流れJが得られる.Fig. 1の体系では,粒子の方向からJ/cosθ/cosψで粒子の領域 境界でのフラックスφが得られる.この際,領域の正と 負方向の流れから得られたフラックスφ*及びφ*を合計 する必要がある.

こうして得られた領域毎のエネルギー群gの粒子フラックス $\phi(g)$ から領域毎の線量率Hは式(16)により求められる.

$$H = \sum_{g} \phi(g) E_g. \tag{16}$$

ここで Hは実効線量率(μ Sv/h)、 ϕ (g)はエネルギー群gの粒子フラックス(1/cm²/s)、 E_g は線量換算係数(μ Sv/h vs 1/cm²/s)である.線量換算係数は日本原子力学会標準の「放射線遮へい計算のための線量換算係数:2010」⁹に準拠している.

S-Monte では、 γ 線線量評価用の 42 群のファイルに、 日本原子力学会標準の線量換算係数の附属書 B 表 B.4 VITAMIN-B6 群構造に対応した γ 線の線量換算係数を収 めている. 但し、MATXSLIB-J4 の第1 群のエネルギー範 囲が 30~50MeV であり、VITAMIN-B6 群構造の上限エ ネルギー30MeV と異なるため、附属書 A 表 A.1 人体に 入射する光子のエネルギー別線量換算係数を基に第1 群 の線量換算係数を計算した.計算から得られた γ 線の線 量換算係数を Table 2 に示す.

2.7 S-Monteの計算の流れ

ここまで, S-Monte の計算方法を順次説明してきた計 算の流れを Fig. 4 にまとめ,全体像を紹介する.



Fig. 4 Calculation flow of S-Monte.

式(4)で領域 R 内の粒子発生(particle generation)の位置 を,式(6),(7)で粒子運動の方向をそれぞれ求める.エネ ルギー群は線源により決まる.例えば,¹³⁷Csのγ線エネ ルギーは 0.662MeV であり, Table 2 の第 26 群のエネル ギー範囲(0.6~0.7MeV)に相当するため,¹³⁷Cs は第 26 群 の線源となる.

粒子の領域 R 内の移動距離を式(3)で求め, 粒子は領域

R内で反応を起こすか否かを式(5)などを用いて判定する. 反応を起こさない場合,粒子は領域 Rを出る.これが計 算体系の外になれば,粒子の追跡を終了する.隣の領域 R⁺に移動した場合,領域 R⁺内での移動距離を式(3)で求 め,粒子の追跡を継続する.

領域 R 内で反応を起こした場合,その反応が散乱 (scattering)あるいは核分裂(fission)の場合と捕獲(capture) の場合で取り扱いが異なる.捕獲反応の場合,粒子の追 跡を終了する.散乱の場合,新しい粒子の方向とエネル ギー群を求めて粒子の追跡を継続する.散乱に非等方性 がある場合は 2.3 節で述べた手順で計算する.核分裂反 応の場合,核分裂スペクトルからエネルギー群を求め, 粒子の方向は立体角4π方向に均等であると考え,式(6), (7)で粒子の方向を求める.

粒子の追跡をヒストリー回繰り返した後,粒子のフラ ックス,反応量などを集計・保存(aggregation)し,さらに これをバッチ回繰り返して,式(14),(15)から平均値と分 散値を求める.

2.8 中性子增倍率計算

中性子増倍率の計算では、核分裂の際の中性子発生数 vを調整して臨界状態を実現し、そのvの調整値を中性 子増倍率kとする.このため、元の断面積 $v\Sigma_f$ から計算 バッチで得られた $v\Sigma_f$ 反応量を集計し、kを求め、v'=v/kとv値を調整した上で次のバッチ計算を行う.これを繰 り返すことで安定したkを求める.S-Monteでは、計算 の簡素化のため、個々の $v\Sigma_f$ 反応を記録せず、 $v\Sigma_f$ 反応量 を領域毎で集計し、次の計算バッチの線源としている. このため、領域体積を過度に大きく設定すると、kの計 算に誤差が生じる可能性がある.

中性子増倍率計算では、中性子の追跡中に核分裂反応 を起こした場合,粒子の重み Wの調整を式(10)ではなく, 式(17)の様に直前の計算バッチまでに得られた増倍率の 平均値 kavを反映する.

$$W' = W \cdot \nu \Sigma_f / \Sigma_a / k_{a\nu}.$$
 (17)

また,増倍率計算は計算開始後10バッチ程度(デフォルト値であり,任意に指定できる)までは中性子の核分裂 分布が安定しないため,この10バッチを除き,以後のバッ チの中性子の核分裂の発生量と分布を用いる.

2.9 線源位置強度推定機能

モンテカルロ法では線源から粒子の発生,移動,反応 を追跡して検出器位置の線量を計算する.随伴計算は, この追跡を逆に行うことで,検出器から見た線源の影響 (インポータンス)を計算できる.検出器を点線源と考 え,g群からg群への散乱断面積をg群からg群への散 乱と見なすことで随伴計算が可能となる.

随伴計算を行うことで、複数の検出器(これらを*i*と する)があれば、検出器*i*の線量から線源の位置と強度 を推定できる.検出器*i*で線量率 $D_i(\mu Sv/h)$ を与える位置 \mathbb{R} の線源強度 $S_i(\mathbb{R})$ は式(18)で計算される.言い換えれば、 位置 \mathbb{R} に強度 $S_i(\mathbb{R})$ の線源があれば、検出器*i*で線量率 D_i を示すことを意味している.

$$S_i(\mathbb{R}) = \phi_i^r(\mathbb{R})D_i.$$
⁽¹⁸⁾

ここで、 $\phi_i^r(\mathbb{R})$ は検出器 i の \mathbb{R} 位置の随伴線束である. 複数の検出器 i からそれぞれ求められる S_i(R)が一致すれ ば、線源がRの位置にあると推定できる.このため、Si(R) の分散を計算し、これが最小となる位置を線源位置と推 定する. Fig. 5 に示す幅 10m 四方, 高さ 3m の建屋の中 心および建屋の外側 9 カ所に検出器を高さ 1m と 0.25m の位置に置き(図中の9カ所の点),検出器の線量から建 屋の周囲の土壌に含まれる¹³⁷Csの位置と強度を推定し た. 線源が①あるいは②の位置(セル)の土壌に 1Bq/cm3 ある場合の標準偏差の分布を Fig. 5 (a)に示す.緑色(最 小の標準偏差の2倍以内)および薄緑色(最小の標準偏 差の3倍以内)のセルにて分散が小さいことを表す.こ の様に本手法で線源位置がある確度で推定できる.但し, 検出器から推定される線源強度の平均値は1.5および9.0 Bq/cm³となり本来の1Bq/cm³との差異が見られ、分散マ ップも曖昧である.これらは随伴線束の計算精度が不足 しているためであり,随伴計算に必要な長い計算時間が 課題である.

線源が複数の位置に分布している場合も考えられる. 本手法では,複数の線源分布のマッピングはできないが, 線源の分布を仮定すれば,検出器の線量率 Diから分布の 妥当性と線源強度を推定可能である.線源が③の様に線 状に7セルに亘って分布している場合,線源推定の相対 的な分散の標準偏差は0.58であり,例えば②のセルにあ ると仮定した場合の値(0.87)および④の様に3 セルに分 布していると仮定した場合の値(0.90)より小さくなった.

検出器を点線源と考える随伴計算では 2.6 節で示した 線量換算係数を点線源のエネルギー分布として計算する.



(a) Distribution of variance(b) Calculation geometryFig. 5 Estimation map of radiation source position.

2.10 分散低減のための計算オプション

モンテカルロ法は粒子を1個ずつ計算するため,線源 から遠い領域,粒子を強く吸収する物質に近い領域では, 粒子がその領域に到達しないあるいは到達する粒子数が 少ない場合がある.このためモンテカルロ法では粒子を 強く吸収する物質があっても粒子数の減少を防ぎ,計算 の分散を減らす工夫の機能が考えられている.S-Monte は分散の低減化のため,次の3種類の機能を用意する.

- (1) 指数変換(pass stretching)
- (2) $\square \forall \mathcal{T} \vee \mathcal{V} \mathcal{V} \vee \mathcal{V}$ (Russian roulette)
- (3) 非アナログ吸収(non-absorption option)

指数変換では、入力する指数変換係数 β をもとに、全 断面積に(1- β)を掛算して、全断面積が大きい領域を通過 するときの反応を減らし、線源から遠い領域に到達する 粒子数を増やす.一方、粒子の重みWを調整する.粒子 が領域を通過する場合に式(19)で、領域内で反応する場 合に反応断面積も(1- β)倍になっているため式(20)で補正 する.

$$W' = W \exp(-\beta \Sigma_t t_p).$$
(19)
$$W' = W \exp(-\beta \Sigma_t t_p) / (1 - \beta).$$
(20)

ロシアンルーレットでは、粒子の重みWが一定値 W_1 以下(デフォルト値は 10⁻⁵. 任意に変更できる)になっ た場合にその粒子の追跡を継続するか終了するかを乱数 *č*を用いて決める方法である. W/W_1 と*č*を比較し、*č* \geq W/W_1 の場合に追跡を終了する.*č* < W/W_1 の場合に粒 子の追跡を継続し、その粒子の重みWを W_1 に戻す.

非アナログ吸収では、核分裂反応が無い場合、粒子が 吸収反応を起こしても、粒子の追跡を終了せず、散乱さ れたと見なし、粒子の追跡を継続する.この際、粒子の 重みWに $\Sigma_{s'}/\Sigma_{t'}$ を掛算してバランスを調整する.

3. 検証計算

S-Monte は多群の 3 次元輸送計算を行うため, γ 線およ び中性子の遮蔽・線量(radiation・dose)計算,随伴(adjoint) 計算,中性子の増倍(multiplication)計算が可能である. S-Monte の計算機能を Table 3 にまとめる.本コードで利用 可能な γ 線線量評価用の計算ライブラリを装備している ため,環境中の γ 線源による建屋内外の空間線量などの 実務的な線量評価が実施できる.中性子あるいは中性子 と γ 線結合の多群データまたは計算ライブラリを用意す れば,これらの計算も可能である.

Table 3 Calculation functions of S-Monte
--

Calculation function	Gamma ray	Neutron	Neutron+ Gamma ray
Radiation · dose	O	0	0
Adjoint	0	0	0
Multiplication	-	0	0

◎: Feasible. Library is available.

 \bigcirc : Can be carried out with macro cross section data or library.

S-Monte の計算性能を検証するため、多群ライブラリ MATXSLIB-J4 から作成した γ 線線量評価用の計算ライ ブラリを用いて、環境放射線源による線量計算および鉛、 鉄体系での遮蔽計算を行い、粒子・重イオン輸送計算コ ード PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) の計算結果と比較した.また,中性子増倍率計算の検証 のため,マクロ断面積が与えられている小型軽水炉の臨 界ベンチマーク問題を計算した.

3.1 線量評価

地表に堆積した¹³⁷Csによる建屋内の空間線量率を評価した(Fig. 6). 問題の簡素化のため,Fig. 6 (a)に示す様に¹³⁷Csを地表から1mm深さ,建屋表面から0.4m離れた点線源として,建屋内の1m毎の高さ平均の線量率を固定線源計算により評価した.建屋は10m四方,高さ3mとして,壁および天井は厚さ0.1mの木材および瓦とした.土壌,木材,瓦の元素組成にはJAEA報告書「環境に沈着した事故由来の放射線セシウムからのγ線に対する建物内の遮蔽効果および線量低減効果の解析」^{10)を}参照した.Fig. 6 (b)は計算体系の水平断面であり,S-MonteのMAP表示機能を利用して計算領域を示す.線量率分布をS-MonteとPHITSで計算した値は,Fig. 6 (c)に示す様に相対誤差 5%以内でよく一致した.



(a) Calculation geometry of dose evaluation (vertical)



(b) Calculation geometry of dose evaluation (horizontal)





高さ 2~3mの線源に近い位置(Fig. 6 (c)-①)で線源により近い方の線量率が低下する理由を分析した.Table 4 は ①の高さ 2~3mの4つの位置(location)で第26群(¹³⁷Csの線源のエネルギー相当群)の γ 線の流れを示す.線量率への寄与は線源から上方への流れ(upward)が中心であり, γ 線が壁を透過する長さは壁に近い方で大きくなるため, γ 線の流れが小さくなる効果が見られる.一方,天井などからの γ 線の散乱による下方への流れ(downward)は小さい.このため,線源に近い方の線量率が低下する理由は,壁の遮蔽効果が中心であると考えられる.S-Monte は粒子の流れを検出する面検出器評価機能を有しているため,この様な分析が容易に実施できる.

Table 4 Gam	ima ray curi	ent into regions	[unit:]	$1/cm^2/s$].

Location in building	0.0~0.5m	0.5~1.0m	1.0~1.5m	1.5~2.0m
Upward	4.50E-07	5.51E-07	4.39E-07	3.25E-07
Downward	1.80E-09	0.00E+00	1.80E-09	9.00E-10
Rightward	4.02E-08	1.44E-07	2.33E-07	2.42E-07

3.2 遮蔽計算

一辺 0.2m の Pb または Fe の立方体の中心に設置する ⁶⁰Co 点線源(8Bq)からの距離に対する線量率分布を固定 線源計算により評価した. S-Monte と PHITS を比較し, Fig. 7 に示す様に両計算値は相対誤差 30%以内で一致し た. 但し,線源から離れた位置では差が拡大した. これ は,減衰が 10⁴以上と大きい場合, S-Monte では粒子の到 達が少ないためと考えられ,出力される計算結果の標準 偏差(deviation)にも注意を払う必要がある.また,放射線 施設の遮蔽計算実務(放射線)データ集(R.S. Manual)¹¹)に 収録されている光子の実効線量透過率のデータと Fig. 7 中に比較し,これとも一致した.





3.3 臨界計算

OECD/NEAによって 1991 年に3次元輸送計算に関す るベンチマーク(計算結果を持ち寄り比較検討する活動) が実施され,その結果が報告されている¹²⁾.その中の小 型軽水炉の臨界ベンチマーク問題(model 1)を中性子増倍 率計算により解析した.この問題の計算体系を Fig.8 に 示す.この問題では,炉心(core)の横に制御棒(control rod: CR)が設置され, CR が引抜かれた場合(case 1)と挿入され た場合(case 2)がある.この問題には、計算に使用される 2 群の巨視的断面積が Table 5 の様に与えられている.

Table 6 に計算した中性子増倍率と報告書に記された参照 値を示す.この参照値はベンチマークに提出されたモンテ カルロ法による計算値の平均と分散であり,制御棒の有 無の場合(case 1, 2)ともに, S-Monteの計算値は参照値と分 散の範囲内で一致した.本計算値は妥当と考えられる.



Fig. 8 Core configuration of model 1.

Table 5 Cross sections for model 1 [unit:1/cm	1]	
---	----	--

g	$\Sigma_{tr}(g)$	$\Sigma_a(g)$	$v\Sigma_f(g)$	$\Sigma_s(1 \rightarrow g)$	$\Sigma_s(2 \rightarrow g)$
	Core region				
1	2.24E-01	8.53E-03	9.09E-03	1.92E-01	0.00E+00
2	1.04E-01	1.58E-01	2.90E-01	2.28E-02	8.80E-01
	Reflector region				
1	2.50E-01	4.17E-04	0.00E+00	1.93E-01	0.00E+00
2	1.64E+00	2.03E-02	0.00E+00	5.65E-02	1.62E+00
	Control rod region (withdrawn)				
1	1.28E-02	4.66E-05	0.00E+00	1.28E-02	0.00E+00
2	1.21E-02	1.33E-03	0.00E+00	2.41E-05	1.07E-02
Control rod region (inserted)					
1	8.52E-02	1.74E-02	0.00E+00	6.77E-02	0.00E+00
2	2.17E-01	1.82E-01	0.00E+00	6.45E-05	3.52E-02

Table 6 k_{eff} of the benchmark calculations (model	1)	١.
--	---	---	----

	Reference	S-Monte
Case 1	0.9780	0.9774
(Void)	∓0.0006	∓0.0012
Case 2	0.9624	0.9611
(CR)	∓0.0006	∓0.0008

4. 教育での活用

現在,本学工学部原子力工学科生を対象とする授業で も本コードを利用している¹³⁻¹⁵⁾.建屋(building)周辺の土 壌表面に¹³⁷Cs が分布した場合,建屋内の空間線量率は Fig. 9 に示す様に建屋の壁のγ線遮蔽効果により減衰す る. 学生は建屋の壁(木材とコンクリート)による遮蔽 効果の差異を自ら計算し,理解を深めている(Fig. 10 参 照). さらに大学生・院生が本コードを積極的に利用し, モンテカルロ法の計算に習熟することも期待される.



Fig. 9 Gamma ray shielding effect of building.

線量評価>>線量評価の実務 線量評価の実務

- 建屋が木材の場合とコンクリートの場合を比較すると、屋内の 線量がコンクリートの場合1/4程度に低減します。
- これはコンクリートの密度が木材より高く、鉄やSiなどによるγ線の遮蔽効果によるものです。
 物質番号を木材(3)からコンクリート(4)に変化させる

(単位:µSv/h)

29

条件 位置	壁が木材の場合	壁がコンクリートの 場合
屋外(0~1m高さ)	0.345	0.341
屋外(1m~3m高さ)	0.215	0.209
屋内(0~1m高さ)	0.091	0.035
屋内(1m~3m高さ)	0.121	0.040

Fig. 10 Examples of teaching materials.

5. まとめ

環境中に放出された放射性核種あるいは放射線施設な どの放射線源による放射線の空間線量の評価を目的とし て, 簡便に利用できる教育用モンテカルロ法コード S-Monte を開発した.

Microsoft の Excel VBA を用いることで, Excel を利用 している個人の計算機などでインストール作業なく, S-Monte の動作が可能である. S-Monte は検出器の線量率 から線源の位置と強度を推定する機能も有している. ま た,計算体系の入力を XYZ 座標に限定するなど一部を直 感的にし, さらに, Excel VBA の機能を用いて計算体系 および計算結果を可視化する機能も装備している(Fig. 5 (b), Fig. 6 (b) 参照).

MATXSLIB-J4 ライブラリから本コードで利用可能な

γ線線量評価用の計算ファイルを作成し、地表の¹³⁷Csによる建屋内の空間線量の計算,PbまたはFe立方体の遮蔽計算を行い、それぞれPHITSと比較して妥当な線量評価の結果を得た.また、小型原子炉の臨界ベンチマーク問題を解析し、中性子増倍率の計算について妥当な計算を行えることも確認した.

今後,大学などの教育に活用するとともに,S-Monteを 公開・配布し,環境中の放射性核種による空間線量の評 価の実務などにも適用する計画である.

参考文献

- Y. IWAMOTO, et al. : Benchmark study of the recent version of the PHITS code, Journal of Nuclear Science and Technology 54, 5, 617-635 (2017).
- X-5 Monte Carlo Team: MCNP A general Monte Carlo n-particle transport code, version 5, LA-UR-03-1987 (2003).
- 長家康展,奥村啓介,櫻井健,森貴正:MVP/GMVP 第3版:連続エネルギー法及び多群法に基づく汎用 中性子・光子輸送計算モンテカルロコード(翻訳資料),JAEA-Data/Code 2016-019 (2017).
- 4) 小林啓祐:原子炉物理, コロナ社 (1996).
- 5) 中村尚司:放射線物理と加速器安全の工学,地人書 館 (2001).
- 6) 日本原子力学会:「遮蔽ハンドブック」研究専門委員会:放射線遮蔽ハンドブック-基礎編-(2015).
- K. SHIBATA, et al. : JENDL-4.0 : A new library for nuclear science and engineering, Journal of Nuclear Science and Technology 48, 1, pp 1-30 (2011).
- K. OKUMURA : Nuclear data for prediction of isotope generation and depletion, JAEA-Conf 2012-001, pp.39-44 (2012).
- 日本原子力学会標準:放射線遮へい計算のための線 量換算係数:2010, AESJ-SC-R002 -2010 (2010).
- 10) 吉田琢哉, 高橋史明:環境に沈着した事故由来の放 射線セシウムからのガンマ線に対する建物内の遮蔽 効果および線量低減効果の解析, JAEA-Research 2014-003 (2014).
- 原子力安全技術センター: 放射線施設の遮蔽計算実務(放射線)データ集(2015).
- 12) T. TAKEDA, H. IKEDA : 3-D neutron transport benchmarks (NEACRP-L-330) (1991).
- 13) 松村哲夫, 亀山高範:教育や現場で使い勝手の良い 放射線量評価モンテカルロ法コード, 原子力学会 2019 年春の年会 2J13 (2019).
- 14) 松村哲夫, 亀山高範:教育や現場で使い勝手の良い 放射線量評価モンテカルロ法コード(2) PHITS との 比較および教育での利用, 原子力学会 2019 年秋の大 会 1H15 (2019).
- 15) 松村哲夫, 亀山高範:教育や現場で使い勝手の良い 放射線量評価モンテカルロ法コード(3) 放射線源の 位置・強度推定機能の評価,原子力学会 2020 年春の 年会 1N10 (2020).

機械学習による揚水発電所週間運用手法の開発 田中 貴裕^{*1} 石丸 将愛^{*2}

Development of Weekly Operation Method for a Pumped Storage Hydropower Plant by Machine Learning

by

Takahiro TANAKA^{*1} and Masachika ISHIMARU^{*2} (Received on Mar. 31, 2020 and accepted on Jun. 19, 2020)

Abstract

"The Act on Special Measures Concerning Procurement of Electricity from Renewable Energy Sources by Electricity Utilities" was enacted in August 2011 in part to accelerate the interconnection of photovoltaic power generation. Some electric power companies have performed trial calculations showing that photovoltaic power generation output will exceed the total demand for power. In such cases, pumped storage hydropower plants have been used to pump up water to an upper reservoir during the daytime.

In recent years, artificial intelligence has been used in various fields, including machine learning. The support vector machine and linear regression described in this paper are kinds of machine learning, and are used to understand regularity and patterns from various data, and to clarify and predict the current situation.

In this study, we used weekly operation data of a pumped storage hydropower plant, which was calculated by fuzzy reasoning, as training data and learned it using a machine learning algorithm to create a prediction model. When new data was input to the prediction model, we verified how close it was to the operational data of fuzzy reasoning.

Keywords: Renewable energy, Pumped storage hydropower plant, Weekly operation, Machine Learning, Photovoltaic(PV) power generation

1. はじめに

日本の電力供給は、化石燃料による発電が主となって いる¹⁾.しかしながら、CO₂排出規制を考慮すると、化 石燃料による発電に頼ることは避けなければならない. このような状況のなか、クリーンな再生可能エネルギー (Renewable energy)を利用した発電が注目されている.再 生可能エネルギーとは、自然界で繰り返し起こる現象か ら永続的に利用できるエネルギー源であり、その代表例 に太陽光発電や風力発電、地熱発電等がある.現在では、 2011年に制定された「電気事業者による再生可能エネル ギー電気の調達に関する特別措置法」により、再生可能 エネルギーの普及が進んでいる.

太陽光発電や風力発電からの出力は, 天候により大き く変動するため, これらの変動電源が電力系統に大量連 系された場合, 電力の安定供給に影響が生じることが懸 念されている.また, 需要の低い時間帯に大量に発電す ると, 供給力過多となるため太陽光発電の出力抑制が必 要である. その対策として, 揚水発電所の昼間揚水が実

*1 工学部電気電子工学科学部生

施されている²⁾. Fig. 1 に太陽光発電大量連系時の需給バランスの概要を示した.

揚水発電所の運用は,週間単位で行われることが多く, 需要量と揚水発電所の上池の貯水量を考慮しながら,出 力値を決定している.昼間揚水を行う場合は,需要量と 揚水発電所の上池の貯水量に加えて,太陽光発電の出力 を考慮し,出力値を決定することとなる.



Fig. 1 Load curve & generation types.

^{*2} 工学部電気電子工学科講師

近年我々にとって、人工知能はより身近な存在となっ ている.世界中の様々な企業が人工知能の研究を行って いる.メールのスパムフィルタなどがその代表であり³), 注目度は非常に高い.人工知能の一分野として発展した 機械学習は、数値・文字・画像・音声など多種多様なデ ータの中から、規則性・パターンを発見し、現状の把握 や将来の予測を行うことを目的として広く使用されてい る.機械学習の学習手法は大きく分けて、「教師あり学習」 と「教師なし学習」の2つに分類される.

本研究では、ファジィ推論 %によって作成された、週 間運用データを訓練データとして機械学習アルゴリズム に学習させ、予測モデルを作成した.検証として、テス トデータが入力された場合、予測モデルが出力する値が、 ファジィ推論モデルにどの程度近似するか確認した.

2. 機械学習

2.1 教師あり学習

教師あり学習とは、入力データが与えられたとき、こ れに対する出力を正しく予測することが目的の学習方法 である.訓練データと呼ばれる入出力のペアの事例を与 え、これをもとに、新しい入力データが来た時にそれに 対する正しい出力をするようなモデルを構築する.訓練 データでは、入力を説明変数(特徴量)、出力を目的変数と 呼ぶ.学習の出力が質的データであれば分類、量的デー タであれば回帰と呼ばれる.

2.2 分類

分類は教師あり学習の1つである.過去の観測に基づき、新しいデータが、どの部類に分けられるかを予測することが目的となる.メールのスパムフィルタは、二値分類の典型的な例である.訓練データによっては、複数に分類することも可能である.このような複数に分類するものを多値分類という.本研究においては、揚水発電所の運用を検証するため、発電、揚水、待機の3つに分類する必要がある.二値分類の概念をFig.2に示した.

この二値分離の概念では、入力が2つであり、X₁とX₂ として関連付けられる.ここで、教師あり学習のアルゴ リズムを使い、分類境界(Decision Boundary)を学習する ことで、新しいデータを2つに分類することができる.





分類のアルゴリズムの1つとしてサポートベクトルマシ ーン(Support Vector Machin: SVM)がある⁵⁾. SVMは, マージンを最大化することにより分類を行う分類器であ る.マージンとは,分類境界とこの分類境界に最も近い データとの間のマハラノビス距離として定義される.マ ハラノビス距離とは,ユークリッド距離を標準偏差で除 して標準化した距離である.分類境界と最も近いデータ は、サポートベクトルと呼ばれる.

Fig. 3 に SVM の分類境界とマージンについて示した. 分類境界のマージンを大きくすると,汎化誤差が小さく なる.これに対して,マージンの小さいモデルは過学習 に陥りがちである.



Fig. 3 Classification boundaries and margins of SVM.

2.3 回帰

回帰は教師あり学習のもう1つのサブフィールドであ る.回帰モデルは,連続値をとる目的変数を予測するた めに使用される.このため、変数間の関係を理解や、予 報を作成するなどの形で応用されたり、科学の様々な問 題に取り組んだりするのに適している.例としては、企 業の今後数か月後の売り上げを予測することなどが挙げ られる^の.

単変量の線形回帰(Linear Regression)の目的は、単一の 特徴量(説明変数 x)と連続値の応答(目的変数 y)との関係 をモデルとして表現することである.説明変数が1つだ けの線形モデルの方程式は以下のように定義される.

$$y = w_0 + w_1 x$$

(1)

ここで、 w_0 は y 軸の切片を表し、 w_1 は説明変数の係数を表す.ここでの目標は、説明変数と目的変数の関係を表す1次式の重みを学習することである.この重みを利用すれば、訓練データに含まれていなかった説明変数に対して応答が予測できる.

先に定義した1次式を前提とすると、線形回帰については、「サンプル点を通過する直線のうち最も適合するものを見つけ出すこと」として理解することができる. Fig.4 に線形回帰の概要について示した.

この最も適合する直線は、回帰直線(Regression line)と も呼ばれる.回帰直線からサンプル点への直線は残差 (Residual)と呼ばれ、予測の誤差を表す.



Fig. 4 Concept of linear regression.

説明変数が、1 つだけの線形回帰モデルは、単回帰 (simple linear regression)という特殊なケースもある.また、 線形回帰モデルを複数の説明変数に合わせて一般化する ことも可能であり、これは重回帰と呼ばれる.

$$\hat{y} = w_0 x_0 + w_1 x_1 + \dots + w_m x_m = \sum_{i=0}^m w_i x_i = \boldsymbol{w}^T \boldsymbol{x}$$
(2)

ここで w_0 は、 $x_0 = 1$ として y 軸の切片を表している.

サンプルに近似直線となるような係数を求める手法と して,最小二乗法がある.最小二乗法は,サンプル点と 直線との差(残差)の2乗の和を最小化とする係数を求め ることができる.

$$J(\boldsymbol{w}) = \frac{1}{2} \sum_{i=0}^{n} \left(y^{i} - \hat{y}^{(i)} \right)^2$$
(3)

ここまでは,説明変数と目的変数の関係が線形である ことを前提としていた.この前提が外れる場合は,多項 式の項が追加された,「多項式回帰モデル」を使用する方 法がある.

$$\hat{\mathbf{y}} = w_0 + w_1 x + w_2 x^2 \dots + w_d x^d \tag{4}$$

ここで、d は多項式の次数を表す. 多項式回帰を使っ て非線形関係をモデリングすることは可能だが、線形回 帰の係数 w については、線形であるため、重回帰モデル とみなされる.

2.4 学習モデル構築

Fig. 5 に、予測モデルに機械学習を使用する場合の一 般的なワークフローを示した.



Fig. 5 Machine learning workflow.

2.5 訓練データの前処理

生のデータが、機械学習アルゴリズムの性能を最適化 するのに適した形式で提供されることは、滅多にない. 機械学習を適用する際、常にデータの前処理が最も重要 なステップの1つとなる.多くの機械学習アルゴリズム では、最適な性能を得るために、データ値の大きさの水 準を意味する特徴量の尺度が同じであることが要求され る.

抽出された特徴量によっては,相関関係が高いために 一定の重複がみられることもある.このような場合には, 特徴量を低次元の部分空間に圧縮するのに次元削減の手 法が役に立つ.特徴空間の次元を減らせば,必要となる 記憶域が少なくなり,機械学習アルゴリズムの処理を大 幅に高速化することが可能である.

2.6 モデルの学習

モデルの汎化性能を推定するために、訓練データをさ らに訓練用とテスト用に分割し、様々な交差検証の手法 を適用する方法がある.交差検証の手法として、k分割 交差検証(k-Fold Cross-Validation)などがある.Fig.6にk 分割交差検証の概念を示した.k分割交差検証では、非 復元抽出を用いて、訓練データをランダムにk個に分割 する.そのうちのk-1個をモデルの学習に使用し、1個 をテストに使用する.この手順をk回繰り返すことで、 k個のモデルと性能評価を取得する.また、サブセット ごとに評価された性能E_iを使って、モデルの推定平均性 能Eが計算され、以下の式で表される.E_iは、正解率や 誤分類率などを表す.

$$E = \frac{1}{k} \sum_{i=1}^{k} E_i \tag{5}$$



Fig. 6 Concept of k-fold cross-validation.

2.7 モデルの評価

分類モデルの性能指標として,正解率(accuracy)がある. 正解率は,モデルの全体的な性能を数値化するのに便利 な指標である.この他にも,適合率(precision),再現率 (recall),F1スコア(F1-score)などの性能指標により,モデ ルの妥当性を数値化することができる.

線形モデルの性能を数値化する手法の1つとして,平 均二乗誤差(Mean Squared Error: MSE)がある.平均二乗 誤差は,線形回帰モデルを学習させるために最小化した, 誤差平方和の平均値であり,様々な回帰モデルの比較や, グリッドサーチと交差検定を通じたパラメータのチュー ニングに役立つ.

$$MSE = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^{n} (y^{i}) - \hat{y}^{(i)})^2$$
(6)

また,標準化された平均二乗誤差として,モデルの性能をより効果的に解釈することができる決定係数(R²)を求めることもできる.

$$R^2 = 1 - \frac{SSE}{SST} \tag{7}$$

ここで, SSE は誤差平方和であり, SST(Sum of Squared Total)は以下の式によって表される.

$$SST = \sum_{i=1}^{n} (y^{i}) - \mu_{y})^{2}$$
(8)

 R^2 の範囲は $0 \sim 1$ をとる. $R^2 = 1$ の場合, MSE = 0とな り回帰モデルは完全に適合することを意味する.

3. 揚水発電所週間運用への機械学習の適用

3.1 訓練データ

Fig. 7 に訓練データの概要を示した.一般送配電事業 者の運用データは入手できないため、ファジィ推論を適 用することで作成した.



3.2 検証方法

検証方法を Fig. 8 に示した.本研究では,機械学習の 予測モデルが,ファジィ推論の週間運用モデルにどれく らい近似するか検証した.





3.3 モデルの構成

予測モデルの構成を Fig. 9 に示した.予測モデルは, SVM を用いて,発電運転,揚水運転,待機状態の3クラ スに分類し,その後クラスごとに線形回帰を行い,出力 を予測するものを構成した.





3.4 開発環境の準備

機械学習を行うにあたり開発環境は、プログラミング 言語は Python を使用した.本研究では機械学習のプログ ラミングに使用される scikit-learn ライブラリを使用した.

4. 揚水発電所の週間運用シミュレーション

4.1 シミュレーション条件

本研究では,機械学習アルゴリズムに学習させる訓練 データは,電力需要,太陽光発電出力,揚水発電所の上 池貯水量,揚水発電出力である.需要は,2014年東北電 力株式会社の需要実績データを1年分使用した⁷⁾.揚水 発電所も東北電力㈱の揚水発電所である第二沼沢発電所 (定格出力 460.0[MW])を対象とした.

太陽光発電の定格出力[MW]は,東北電力㈱が試算した 太陽光接続可能量である5,050[MW]を想定した⁸⁾.し かし,需要実績データのように太陽光発電の出力値の実 測データはないため,2014年東海大学18号館屋上太陽 光発電の出力データを取得し,使用することとした.18 号館屋上太陽光発電の定格出力は5.5[kW]であるため, 太陽光発電出力の時系列データを,定格出力で除した発 電比率として設定した.同時刻の東北電力管内での太陽 光発電は,定格出力を接続可能量とみなし,この比率で 発電するものとみなして使用した.

揚水発電出力,上池貯水量は実測データがないため, ファジィ推論モデルを適用し,需要の高低,太陽光出力 の高低に基づき,揚水発電出力を作成した⁴⁾.上池貯水 量は,シミュレーション中の揚水発電出力によって変化 する.発電では貯水量は減少し、揚水では増加する.

テストデータは取得できた,2017 年 7 月 10 日の午前 8 時から 7 月 17 日の午前 7 時までの需要及び太陽光出力 データを使用した. Table 1 に訓練データとテストデータ の種別を示した.また,Fig.10 に需要と太陽光出力を示 した.横軸は,2017 年 7 月 10 日の午前 8 時から 7 月 17 日の午前 7 時までの,時刻を示している.平日の日中帯
の需要が高く、休日需要が全体的に低いという週間パタ ーンである.

ファジィ推論モデル,機械学習モデルともに,初期水 位をパラメータとして設定する必要がある.本研究では, テストデータの初期水位をそれぞれ,20[%],50[%],80 [%]とした際の,貯水量の変化を確認した.

Tuble i Dulu type of training dulu and test dulu.								
Data Type	Demand	PV						
Training Data	Tohoku Area, 2014	Tokai University Building No.18 Rooftop, 2014						
Test Data	Tohoku Area, 2017	Tokai University Building No.18 Rooftop, 2014						





Fig. 10 Weekly demand & photovoltaic power generation on July 7, 2017.

4.2 機械学習によるシミュレーション結果

上池の初期水位を 50 [%]とした際の揚水発電所出力と 貯水量の変化を Fig. 11 に示した. 揚水発電所出力(左側 縦軸)の 0[MW]を境に,上側(出力:正)で発電運転,下 側(出力:負)で揚水運転である.





シミュレーションでは、木曜が太陽光の出力が低いため、積極的に発電を行っている.木曜日以降は、水位が低くなったものの、翌月曜には初期水位の 50 [%]近くまで水位が上がっている.

4.3 ファジィ推論モデルとの比較(初期水位 50 [%])

機械学習モデルとファジィ推論モデルの出力と上池貯 水量を併せて Fig. 12 に示した.平日の運転は,機械学習 モデルが積極的に揚水を行う傾向にあったものの,太陽 光出力が小さかった木曜に積極的に発電を行い,週末に はほぼ同じ水位となった.

日曜にファジィ推論モデルでは昼間に発電していない のに対し,機械学習モデルでは発電を行っている.この 結果,翌月曜日における水位に差が生じたものの,水位 を保つために揚水するファジィ推論モデルと同様の傾向 が確認できた.休日に積極的な発電を行った理由として, 休日ではあるものの,夏季のため年間を通して需要が高 く,水位もそれほど低くないことから,SVMによる分類 を行った際,発電に分類されたと考えられる.



Fig. 12 Pumped storage hydro power operation on July 10, 2017 (upper reservoir 50 [%]).

4.4 ファジィ推論モデルとの比較(初期水位 20 [%])

初期水位を 20 [%]とした際の出力結果を Fig. 13 とし て示した.ファジィ推論モデルは木曜日まで水位があま り変化しなかったのに対し,機械学習モデルは木曜日ま で揚水を行っていた.木曜日以降は水位や出力に差はあ るものの,ファジィ推論モデルと機械学習モデルが,ほ ぼ同じタイミングで発電と揚水を行っていた.翌月曜日 ではほぼ同じ水位になった.

4.5 ファジィ推論モデルとの比較(初期水位 80 [%]) 初期水位を 80 [%]とした際の出力結果を Fig. 14 として 示した.木曜日までは、ファジィ推論モデルと機械学習 モデルともに、積極的に発電を行いながら水位は低下し ている.機械学習モデルの特徴として、待機状態が少な いことが確認された.前述したように SVM の分類はマー ジンによって分類境界を設定している.このマージンに よって、揚水または発電に分類されやすくなったと考えられる.しかし、総じて水位はファジィ推論モデルとほぼ同じ値に落ち着いていることから、SVM のマージンの設定は適切であると判断できる.



Fig. 13 Pumped storage hydro power operation on July 10, 2017 (upper reservoir 20 [%]).





5. まとめ

本研究では、揚水発電所の週間運用について機械学習 を適用することを提案し、その性能を検証した.初期水 位が50[%],80[%]の際は、概ねファジィ推論モデルと 一致した.20[%]の場合は水位、出力に差がでたものの、 最終的な水位はほぼ同じ値となった.したがって、機械 学習による本モデルの性能は適切であると判断できる.

本研究で提案した機械学習では, SVM のパラメータ調 整や線形回帰の係数は訓練データを用いて決定している ため,訓練データの数を増やすほど,揚水発電所の運用 決定の精度がさらに向上するものと考えられる.

本研究では一般送配電事業者が実際に運用している実 績データを入手することができなかったため、ファジィ 推論により作成した運用データを訓練データとして使用 した. 今後一般送配電事業者からの実績データを入手す ることができれば、より現実的な結果が得られると考え られる.

参考文献

- 1) エネルギー白書 2016, 資源エネルギー庁.
- 2) 九州本土における再生可能エネルギーの出力制御について,経済産業省第17回総合資源エネルギー調査会,2018年10月10日,資料2,参考資料1.
- Sebastian Raschka:「Python 機械学習プログラム 達人 データサイエンティストによる理論と実践」インプ レス (2016).
- 石丸将愛,平子修二:ファジィ推論を適用した揚水 発電所の週間運用策定手法の開発,東海大学工学部 紀要, Vol.55, No.2, pp.15-22 (2015).
- 5) 奥村学: 言語処理のための機械学習入門, コロナ社 (2015).
- 6) 中井悦司: IT エンジニアのための機械学習理論入門, 技術評論社 (2016).
- 東北電力 HP:東北電力需要実績データ. http://setsuden.tohoku-epco.co.jp/download.html
- 8) 各社接続可能量(2015 年度算定値)の算定結果, 総合資源エネルギー調査会 省エネルギー・新エネ ルギー分科会 新エネルギー小委員会 系統ワーキ ンググループ(第7回)配布資料 10-1.

収縮ひずみ低減対策を施した高流動高靭性コンクリートの

強度特性と拘束膨張ひずみの関係

安西 拓巳*1 渡部 憲*2 佐藤 英和*3 岩﨑 史英*3

Relationship between Strength Properties and Restrained Expansion Strain of Highfluidity Ductile-fiber-reinforced Concrete with Shrinkage Strain Reduction Measures

Takumi ANZAI^{*1}, Ken WATANABE^{*2}, Hidekazu SATO^{*3} and Fumihide IWASAKI^{*3} (Received on Mar. 31, 2020 and accepted on Jul. 24, 2020)

Abstract

Research on recycled aggregate is actively being carried out in the concrete industry. To promote the recycling of concrete more extensively, it is necessary to develop new technologies for effectively using recycled aggregate. As an example, research on ductile-fiber-reinforced cementitious composite (DFRCC) using recycled fine aggregate has been reported. DFRCC has multiple cracking characteristics and much improved toughness during bending, tension and compression fracture. However, due to large shrinkage strain, there are few examples of construction using DFRCC. A conceivable method for controlling the shrinkage strain is to add an expansive additive and a shrinkage-reducing admixture. To evaluate the relationship between strength properties and expansion strain of high-fluidity ductile fiber-reinforced concrete using recycled aggregate (R-HFDFRC), we conducted a restrained expansion test, compressive test and trisecting-point bending test on the R-HFDFRC. As a result, within the range that shows about the same strength properties as R-HFDFRC of the same mix proportion without using expansive additive or shrinkage-reducing admixture, when lime-based expansive additive is used alone, the amount of shrinkage strain reduction is expected to be about 700 μ . When calcium sulfoaluminate type expansive additive is used alone, the amount of shrinkage strain reduction is expected to be about 900 μ .

Keywords: Recycled aggregate, DFRCC, Expansive additive, Restrained expansion strain

1. はじめに

近年,既存の繊維補強コンクリートをはるかに上回る 性能を有する高靱性セメント複合材料(以下,DFRCC と 略記)が開発されている¹⁾.DFRCC とは,セメント系材 料を繊維で補強した複合材料で,曲げ応力下において複 数ひび割れ特性を示し,曲げ,引張,圧縮破壊時の靱性 が大幅に向上した材料である¹⁾.この材料は,一般的な コンクリートの脆性的な性質を克服していることから, コンクリート系構造要素の力学特性や耐久性の大幅な向 上が見込めるほか従来のセメント系材料に代わる高性能 な補修用材料,衝撃緩衝材料など,新しい各種の用途が 期待されている.しかし,実際にDFRCCを使用した施 工例は報告されているものの²⁾,その数は未だに少ない のが現状である.その理由として,施工性の問題や,他 の材料と比較してコストが高い,マトリックスとして主

*3 工学部建築学科学部生

にモルタルやセメントペーストを使用しているため,一 般的なコンクリートと比較して水和熱や乾燥収縮による 影響が大きい等の問題が挙げられる.今後,DFRCCの利 用を推進していくためには,既存の材料の改良を含む, 新しい材料の開発が必要であると考えている.

ところで現在,生産活動を実施するにあたり,地球環 境問題に対する取り組みは重要な課題である. コンクリ ートの分野においても,解体コンクリート塊から取り出 した再生骨材を使用して再びコンクリートを製造する, 再生骨材コンクリートの研究が活発に実施されている. 今後,コンクリートのリサイクルを更に積極的に推し進 めるためにも,再生骨材の新たな有効利用技術を開発し ておく必要がある.

以上のような背景から、地球環境に配慮した、高性能 なコンクリートの実現を目指して、筆者の一人らは、混 和材としてフライアッシュ、骨材として再生骨材を使用 した高流動高靭性コンクリートを開発した³⁾.以下、高 流動高靭性コンクリート(High-fluidity Ductile-fiber-

^{*1} 工学研究科建築土木工学専攻修士課程

^{*2} 工学部建築学科教授

reinforced Concrete)を HFDFRC, 再生骨材を使用した HFDFRCをR-HFDFRCと略記する.既往の研究では,水 結合材比を 50%とした R-HFDFRCの乾燥収縮ひずみは, 乾燥材齢 6 γ 月において 2500 μ 以上となることがわかっ ている⁴⁾. JASS 5 によれば,一般的なコンクリート(計画 供用期間の級が長期および超長期)の乾燥収縮ひずみは, 乾燥材齢 6 γ 月において 800 μ 以下と規定されている⁵⁾. したがって,次の段階として, R-HFDFRCの収縮ひずみ 低減に関する検討が必要である.

一般的なコンクリートの収縮ひずみ低減手法として, 膨張材や収縮低減剤の使用が挙げられる. 文献⁶によれ ば、膨張材による拘束膨張ひずみ{原文では膨張ひずみ, JIS A 6202 附属書 2(参考)によって測定した値}について は、供給メーカーによる試験データの実績等から、150μ 以上を確実に発揮される効果と見なすことが可能である とし、この初期の膨張ひずみ分(少なくとも150μ)を乾燥 収縮ひずみの低減分として置き換えることができるとし ている. それを踏まえ, 文献 ⁷では, 膨張材による収縮 ひずみ低減量の標準値を150μと規定している.ただし、 膨張材により生じる拘束膨張ひずみが過大となると、コ ンクリートの圧縮強度は,膨張材不使用の場合と比較し て低下することが知られており^{例えば8)}, 文献⁹⁾では, 強度 低下の影響が生じない範囲で膨張材を使用した、収縮補 償コンクリートの拘束膨張ひずみ{原文では膨張率,JIS A 6202 附属書 2(参考)によって測定した値}の標準を, 150~250µの範囲と規定している.

膨張材を使用して R-HFDFRC の収縮ひずみを低減し ようとする場合,文献 ⁹に示されている標準値を超える 拘束膨張ひずみが必要と思われるが,圧縮強度等の低下 が懸念される.そのため,膨張材を使用した際の R-HFDFRCの強度特性と拘束膨張ひずみの関係について明 確にしておく必要がある.また,R-HFDFRCの強度特性 や拘束膨張ひずみに及ぼす収縮低減剤の影響についても 確認しておく必要がある.

以上より、本研究では、R-HFDFRCの収縮ひずみ低減 および強度特性を損なわない膨張材の使用量の範囲を明 らかにすることを目的に、強度試験および拘束膨張試験 を行った.また、比較用として、天然骨材を使用した HFDFRC(以下、N-HFDFRCと略記)についても検討を行 った.

2. 実験概要

2.1 試験体概要

(1) 使用材料

Table 1 に、本研究で使用した再生骨材(R)および天然 骨材(N)の物性一覧を示す.再生粗骨材の品質は M 相当 (JIS A 5021:2018 および JIS A 5022:2018 附属書 A により 判断)のものを使用した.また、再生細骨材の中目と細目 の混合割合(質量比)は、4:6(混合砂の絶乾密度:2.44g/cm³、 吸水率:4.16%)であり、品質は M 相当(前述と同様に判 断)である.天然細骨材の砕砂と山砂の混合割合は、再生 細骨材と同様である.

Table 2 に、本研究で使用した材料の物性一覧を示す.

Aggregate		Maximum size (mm)	Density in saturated surface-dry condition (g/cm ³)	Density in oven-dry condition (g/cm ³)	Percentage of absorption (%)	Finess modulus	
		Coarse	10	2.53	2.44	3.68	6.02
R	Recycled	Medium fine	2.5	2.55	2.46	3.75	2.34
		Very fine	0.6	2.53	2.43	4.43	1.17
		Crushed stone	10	2.62	2.58	1.49	5.94
N Natural	Crushed sand	5	2.63	2.60	1.32	3.00	
		Pit sand	1.2	2.59	2.53	2.16	1.61

Table 1 Physical properies of aggregate.

Table 2 Physical properies of materials.

Material	Si	gn	Physical properties
Cement		-	Ordinary portland cement (Density: 3.16g/cm ³)
Files	١	V	Polyvinyl alcohol fiber (Diameter : 0.2 mm, Length : 18 mm, Elastic modulus : 27 kN/mm ² , Tensile strength : 975 N/mm ²)
FIDEI	ŝ	S	Steel fiber (Diameter : 0.55 mm, Length : 30 mm, Elastic modulus : 210 kN/mm ² , Tensile strength : 1145 N/mm ²)
		-	Air-entraining and high-range water-reducing admixture
Chemical		-	Separation reducing agent (Density : 1.37 g/cm ³)
admixture	SF	RA	Polyoxyethylene alkyl ether-based shrinkage reducing admixture (Density: 1.01 g/cm ³)
NC 1			Fly ash (Density : 2.29 g/cm ³)
Mineral LB			Lime-based expansive additive (Density : 3.14 g/cm ³)
adminiture	LA	CSA	Calcium sulfoaluminate type expansive additive (Density : 2.93 g/cm^3)

Table 3 Outline of specimens.

_								
No.	Specimen	Aggre- gate	Water- binder ratio (W/B) (%)	Sand- binder ratio (S/B) (%)	sand-total aggregate ratio (s/a) (%)	Unit expansive additive amount (kg/m ³)	Expansive additive type	Addition amount of shrinkage reducing admixture (Bwt.×%)
1	R-Plain					0		0
2	R-SRA2					0	-	2
3	R-LB40					40	LB	
4	R-CSA40					40	CSA	
5	R-LB80						LB	0
6	R-CSA80	R					CSA	
7	R-LB+CSA80		50	65	85	80	LB+CSA	
8	R-LB80-SRA2		50	05	05		LB	2
9	R-CSA80-SRA2						CSA	2
10	R-LB120					120	LB	
11	R-CSA120					120	CSA	
12	N-Plain					0	-	0
13	N-LB80	N				80	LB	
14	N-CSA80					50	CSA	

セメントは、普通ポルトランドセメントを使用し、繊維 は、PVA 繊維(V)および鋼繊維(S)を使用した. 混和材料 は、高性能 AE 減水剤、分離低減剤、フライアッシュ II 種、膨張材(EX)および収縮低減剤(SRA)を使用した. EX は、コンクリートに一般的に使用されている¹⁰⁾石灰系 (LB)およびカルシウム・サルフォ・アルミネート系(CSA) の 2 種類を単独または混合使用{質量混合比(LB:CSA)は 5:5}した. SRA は、ポリオキシエチレンアルキルエーテ ル系を使用した.

(2) 調合

Table 3 に, 各種 HFDFRC の概要を示す.本研究では, 各種 HFDFRC の水結合材比(W/B)を 50%, 細骨材率を 85%とした.また,同一骨材で単位水量が概ね同じとな るような調合とし,目標スランプフローは,65cm とした.

繊維は、VとSを混合使用し、繊維体積混入率を3%、 VとSの繊維体積混合比(V:S)を7:3とした.フライアッ シュのセメント(EXを使用した場合はEX量を加える)置 換率は、20%とした.EXは単位量で使用し、単位EX量 は0,40,80および120kg/m³とした.また、SRAは、結 合材質量に対して0および2%を水置換で使用した.

なお、N-HFDFRC は比較用であり、単位 EX 量は0 お よび 80kg/m³とし,LB と CSA をそれぞれ単独使用した.

また,全ての要因について,練上がり後にフレッシュ 試験を行った.計測項目は,空気量およびスランプフロ ーとし,それぞれ JIS A 1128:2014 および JIS A 1150:2014 に準じて行った.

2.2 強度試験概要

(1) 1 軸圧縮試験

Fig.1に,1軸圧縮試験の概要を示す.載荷は,2000kN 耐圧試験機を使用して行った.試験体は100φ×200mmの 円柱試験体とし,鋼製型枠を使用して各要因6体製作し た.計測項目は,荷重,コンプレッソメータによる試験 体中央部の縦ひずみおよび載荷盤間変位とした.各デー タは,データロガーを使用して取り込んだ.試験体は打 込み後2日(湿布養生)で脱型し,試験時(材齢28日)まで 標準養生とした.

圧縮強度(*F*_c)は,荷重および試験体寸法から算出した. Fig. 2 に,圧縮破壊エネルギー(*G*_{Fc})の評価方法につい て示す.評価方法は,文献^{11,12})に示す以下の手法により 算出した.

まず,実験により得られた圧縮荷重(P_c)-載荷盤間変 位(δ_c)関係 {Fig. 2(a)}を圧縮応力(σ_c)-塑性変形(δ_c ')関係 {Fig. 2(b)}に変換する.次に, $\sigma_c - \delta_c$ '関係から, δ_c '=3.0mm までの微小 δ_c '増分量とその時点の σ_c との積の総和{Fig. 2(b)}中の着色部を求める.本研究ではこれを G_{Fc} として 評価した.

(2) 3 等分点曲げ試験

Fig. 3 に, 3 等分点曲げ試験の概要を示す.載荷は, 100kN AUTOGRAPH 型精密万能試験機を使用して行い, クロスヘッド速度を 0.2mm/min に制御した.試験体は 100×100×400mmの角柱試験体とし,鋼製型枠を使用して 各要因 6 体製作した.3 等分点曲げ試験は,文献¹³)付属 書(参考)に準じて行い,計測項目は,荷重およびスパン中 央部のたわみとした.各データは,データロガーを使用 して取り込んだ.また,試験後に純曲げ区間内に発生し たひび割れ本数を目視により確認し,本研究ではこれを ひび割れ本数とした.試験体は打込み後2日(湿布養生) で脱型し,試験時(材齢28日)まで標準養生とした.

曲げ強度および曲げタフネスは、繊維補強コンクリートの曲げ強度および曲げタフネス試験方法¹⁴⁾を参考にして評価した.

まず,曲げ強度は式(1)により求めた.

$$f1_b = \frac{P \cdot l}{b \cdot h^2} \tag{1}$$

ここに, *f*1_{*b*} : 曲げ強度(N/mm²), *P* : 荷重(N), *l* : スパン(mm), *b* : 破壊断面の幅(mm), *h* : 破壊断面の高さ(mm) である.

次に,曲げタフネスは曲げ靱性係数で表され,式(2)に より求めた.







(b) Compressive stress-plastic deformation relationship

Fig. 2 Estimation procedure of compression softening curve.



Fig. 3 Trisecting-point loading system.

$$f2_b = \frac{T_b}{\delta_{bb}} \times \frac{l}{b^{\bullet} h^2}$$
(2)

ここに, f_{2b} :曲げ靱性係数(N/mm²), T_b :原点から δ_{tb} までの曲線下の面積(N・mm), δ_{tb} :スパン中央部のたわ み(mm), l:スパン(mm), b:破壊断面の幅(mm), h:破 壊断面の高さ(mm)である.

なお,本研究では, $f_{2_b} \delta_{tb}$ が7.5mmとなる時点での 値とした.

2.3 拘束膨張試験概要

Fig.4に,拘束膨張試験¹⁵⁾の概要を示す.試験体は1000 ×200mmの円柱試験体とし,ブリキ製円筒型枠を使用し て各要因3体製作した.計測項目は,ひずみゲージによ る型枠円周方向の拘束膨張ひずみとした.試験体は,打 込み後,恒温恒湿室内(20℃,60%RH)での封緘養生とし た.なお,計測は材齢7日までとした.

3. 結果

Table 4 に,実験により得られた各種 HFDFRC のフレ ッシュ試験結果一覧を示す.各種 HFDFRC のスランプフ ローは,62.5~69.5cm となっており,EX 使用量,EX 種 類の相違,EX 混合使用,SRA の有無および骨材種類の 相違に係らず,材料分離を生じることなく,目標スラン プフロー65cm を,概ね,達成できた.

3.1 強度試験結果

Table 4 に, 実験により得られた各種 HFDFRC の強度



Fig. 4 Restrained expansion test.

試験結果一覧を示す.各種 HFDFRC の強度特性には,EX 使用量,EX 種類の相違,EX 混合使用,SRA の有無およ び骨材種類の相違が影響を及ぼすが,いずれの場合にお いても各種 HFDFRC は,優れた曲げタフネスおよびひび 割れ分散性を有していることが確認できた.

3.2 拘束膨張試験結果

Table 4 に, 拘束膨張試験により得られた各種 HFDFRC の材齢 7 日における拘束膨張ひずみ, Fig. 5 に, 単位 EX 量を変化させた場合の R-HFDFRC の材齢 7 日における 拘束膨張ひずみ-単位 EX 量関係を示す.

まず, EX 種類の影響(Table 4, 比較対象は No.1,3~ 7,10,11)について注目すると, 材齢 7 日における拘束膨張 ひずみは, 単位 EX 量を 80kg/m³ とした場合, CSA> LB+CSA>LB, 単位 EX 量を 40 および 120kg/m³ とした場 合, CSA>LB となっている. 今回使用した EX(同一使用 量)の場合, CSA 単独使用の拘束膨張ひずみが LB 単独使 用と比較して大きくなることがわかった.

次に、単位 EX 量の影響(Fig. 5,比較対象は No.1,3~ 6,10,11)について注目すると、材齢7日における拘束膨張 ひずみは、単位 EX 量の増加に伴い、増加している.ま た、LB を単独使用した場合の材齢7日における拘束膨 張ひずみ(図中の R-LB)は、単位 LB 量を 40kg/m³から 80kg/m³に2倍とすることで約2.2倍、40kg/m³から 120kg/m³に3倍とすることで約4.2倍に増加している. CSA を単独使用した場合の材齢7日における拘束膨張ひ ずみ(図中の R-CSA)は、単位 CSA 量を 40kg/m³から 80kg/m³に2倍とすることで約2.9倍、40kg/m³から



Fig. 5 Restrained expansion strain-unit expansive additive amount relasionship.

Table 4	Mechanical	properties.
		1 1

		Fres	h test		Compression test			Bending test		Expansion test
					Compressive	Compressive	El	Flexural		Restrained expansion
No.	Specimen	Air content	Slump flow	Density	strength	fracture energy	Flexural strength	toughness	Number of	strain
					(F_c)	(G_{Fc})	$(f 1_b)$	$(f2_b)$	cracks	(μ)
		(%)	(cm)	(g/cm^3)	(N/mm^2)	(N/mm)	(N/mm^2)	(N/mm^2)		7days
1	R-Plain	1.1	67.5	2.05	28.8	41.8	7.02	4.52	4	-20
2	R-SRA2	1.1	67.5	2.05	27.6	39.8	6.45	4.26	5	-5
3	R-LB40	1.4	66.0	2.05	29.1	43.2	6.43	3.95	3	243
4	R-CSA40	0.5	62.5	2.06	30.6	42.1	7.14	4.94	5	284
5	R-LB80	0.6	67.5	2.06	30.1	46.3	6.85	4.70	6	536
6	R-CSA80	0.9	67.0	2.05	29.8	43.3	7.00	4.84	6	834
7	R-LB+CSA80	1.0	67.5	2.04	29.3	44.8	6.80	4.77	5	745
8	R-LB80-SRA2	1.5	66.0	2.05	26.5	38.7	6.36	4.28	4	487
9	R-CSA80-SRA2	1.4	66.0	2.04	24.9	40.7	6.81	4.19	4	874
10	R-LB120	0.8	68.5	2.05	27.3	42.1	6.73	4.45	4	1032
11	R-CSA120	1.2	65.0	2.01	23.4	41.5	6.11	3.69	4	2017
12	N-Plain	0.7	69.5	2.08	30.1	48.3	6.83	4.25	5	-41
13	N-LB80	0.7	66.5	2.08	30.8	50.0	6.64	4.29	4	601
14	N-CSA80	1.8	66.5	2.06	31.1	49.0	6.63	4.33	5	616



Fig. 6 Strength properties – restrained expansion strain relationship.

120kg/m³に3倍とすることで約7.1倍に増加している. なお,型枠に使用されているブリキの線形弾性限度が 600µ程度であるため,文献¹⁵)による拘束膨張試験方法 で評価できる拘束膨張ひずみは,600µまでと定められて いる.単位 EX 量を120kg/m³とした場合の拘束膨張ひず みが大きくなったのは,このようなことが原因である.

続いて、SRA の影響(Table 4, 比較対象は No.1,2,8,9)に ついて注目すると,材齢7日における拘束膨張ひずみは, R-CSA80-SRA2(874µ)>R-CSA80(834µ)>R-LB80(536µ)>R-LB80-SRA2(487µ)となっている. EX を使用した R-HFDFRC の拘束膨張ひずみに及ぼす SRA の影響は小さ いことがわかった.

さらに、骨材種類の影響(Table 4, 比較対象は No.1,5,6, 12~14)について注目すると、材齢7日における拘束膨張 ひずみは, R-CSA80(834µ)>N-CSA80(616µ)>N-LB80 (601µ)>R-LB80(536µ)となっている.R-CSA80の拘束膨張 ひずみのみ、他の場合と比較して大きくなっている.再 生骨材を使用したことによる影響であると思われるが、 今後、詳細に検討する必要がある.

4. 強度特性と拘束膨張ひずみの関係の考察

4.1 強度特性-拘束膨張ひずみ関係

Fig. 6(a)~(d)に,各種 HFDFRC の R-Plain, R-SRA2 ま たは N-Plain に対する F_c , G_{F_c} , fl_b および $f2_b$ の比率(F_c 比, G_{F_c} 比, fl_b 比および $f2_b$ 比) – 材齢 7 日における拘束 膨張ひずみ関係を示す.図中に、単位 EX 量を変化させ た場合の R-HFDFRC の結果に対し、EX 種類別の対応す る傾向を示す曲線または直線(図中の赤線および青線, R-Plain を通るように作図)も併せて示す. まず, Fig. 6(a)によれば, 各種 HFDFRC の F_c 比は, EX のみを使用した場合(図中の R-LB, R-CSA, R-LB+CSA お よび N), 拘束膨張ひずみ 500~1000µ 程度では 100%を上 回っているが, それ以降は, 100%を下回っている. SRA を使用した場合(図中の R-SRA2), EX を使用して拘束膨 張ひずみが生じると, F_c 比が低下し, 100%を上回ること はなかった. ここで, 単位 EX 量を変化させた場合の R-HFDFRC の結果および対応する傾向を示す曲線について 注目すると, LB を単独使用した場合の R-HFDFRC の F_c 比(図中の R-LB)は, 拘束膨張ひずみ 800µ 付近を限度に, 100%を下回ることが確認できた. また, CSA を単独使用 した場合の R-HFDFRC の F_c 比(図中の R-CSA)は, 拘束 膨張ひずみ 1300µ 付近を限度に, 100%を下回ることが確 認できた.

次に、Fig. 6(b)によれば、EX や SRA を使用した場合の 各種 HFDFRC の G_{Fc} 比に、大きな低下は確認できない. ここで、単位 EX 量を変化させた場合の R-HFDFRC の結 果および対応する傾向を示す曲線について注目すると、 LB を単独使用した場合の R-HFDFRC の G_{Fc} 比(図中の R-LB)は、拘束膨張ひずみ 1050 μ 付近を限度に、100%を下 回ることが確認できた.また、CSA を単独使用した場合 の R-HFDFRC の G_{Fc} 比(図中の R-CSA)は、拘束膨張ひず み 1950 μ 付近を限度に、100%を下回ることが確認でき た.

続いて、Fig. 6(c)によれば、EX や SRA を使用した場合 の各種 HFDFRC の fl_b 比は、R-CSA80-SRA2 を除き、100% 程度以下となっている. ここで、単位 EX 量を変化させ た場合の R-HFDFRC の結果および対応する傾向を示す 曲線または直線について注目すると、CSA を単独使用し た場合の R-HFDFRC の fl_b 比(図中の R-CSA)は、拘束膨 張ひずみ 850μ 付近を限度に, 100%を下回ることが確認 できた.なお,LBを単独使用した場合について,*F*_c比が 100%を下回る限度となる拘束膨張ひずみ 800μ 付近の*f*1_b 比を確認すると,95%程度以上となっている(ただし,拘 束膨張ひずみ 500μ 以下の範囲では注意が必要).また, CSA を単独使用した場合について,*F*_c比が 100%を下回 る限度となる 1300μ 付近の*f*1_b比を確認すると,95%程度 以上となっている.

さらに、Fig. 6(d)によれば、EX や SRA を使用した場合 の各種 HFDFRC の f_{2b} 比は、R-LB40 を除き、拘束膨張ひ ずみ 500~1000µ程度では 100%程度以上となっているが、 それ以降は、100%を下回っている. ここで、単位 EX 量 を変化させた場合の R-HFDFRC の結果および対応する 傾向を示す曲線または直線について注目すると、CSA を 単独使用した場合の R-HFDFRC の f_{2b} 比(図中の R-CSA) は、拘束膨張ひずみ 1450µ 付近を限度に、100%を下回る ことが確認できた. なお、LB を単独使用した場合につい て、 F_c 比が 100%を下回る限度となる拘束膨張ひずみ 800µ 付近の f_{2b} 比を確認すると、95%程度以上となって いる(ただし、拘束膨張ひずみ 500µ 以下の範囲では注意 が必要).

4.2 収縮ひずみ低減量

前述の通り,型枠に使用されているブリキの線形弾性 限度が 600µ 程度であるため,文献¹⁵)による拘束膨張試 験方法で評価できる拘束膨張ひずみは,600µ までと定め られている.そこで,600µ を超える拘束膨張ひずみを, 文献¹⁵)中の解図 3 を用いて補正した.

単位 EX 量を変化させた場合の R-HFDFRC の結果につ いてまとめると,以下の通りとなる.LB を単独使用した 場合,拘束膨張ひずみ 700µ 程度であれば, R-Plain と比 較して F_c および G_{Fc} は低下することなく, fl_b および $f2_b$ は 5%程度の低下に留まる.ただし,拘束膨張ひずみ 500µ 以下の範囲では,曲げ特性の低下量が他の場合(EX 使用) と比較して大きいため,今後,詳細な検討を要する.一 方,CSA を単独使用した場合,拘束膨張ひずみ 900µ 程 度であれば, R-Plain と比較して, F_c , G_{Fc} および $f2_b$ は低 下することなく, $f1_b$ は 5%程度の低下に留まる.なお, 文献¹⁵)によれば,本研究で採用した拘束膨張試験方法に よる結果と JIS A 6202 附属書 2(参考)に示される拘束膨 張試験方法(A 法)による結果の間には高い相関が認めら れ,ほぼ同値となるとされている.

即ち, R-Plain と同程度の強度特性を示す範囲において, R-HFDFRC に LB を単独使用した場合は,収縮ひずみ低 減量として 700µ 程度(文献¹⁵⁾中の解図 3 により補正)見 込める可能性がある.また, R-HFDFRC に CSA を単独使 用した場合は,収縮ひずみ低減量として 900µ 程度(文 献¹⁵⁾中の解図 3 により補正)見込める可能性がある.

5. まとめ

本研究の範囲において得られた知見を,以下に示す.

 石灰系膨張材を単独使用した場合,拘束膨張ひずみ 700μ 程度(文献¹⁵⁾中の解図 3 により補正)であれば, 膨張材および収縮低減剤不使用の場合と比較して, 圧縮強度および圧縮破壊エネルギーは低下すること なく,曲げ強度および曲げ靱性係数の低下量は 5%程 度である.

- 2) カルシウム・サルフォ・アルミネート系膨張材を単 独使用した場合,拘束膨張ひずみ900µ程度(文献¹⁵⁾ 中の解図3により補正)であれば,膨張材および収縮 低減剤不使用の場合と比較して,圧縮強度,圧縮破 壊エネルギーおよび曲げ靭性係数は低下することな く,曲げ強度の低下量は5%程度である.
- 3) 膨張材や収縮低減剤を使用していない同一調合の R-HFDFRC と同程度の強度特性を示す範囲において、 石灰系膨張材を単独使用した場合は収縮ひずみ低減 量として 700µ 程度(文献¹⁵⁾中の解図 3 により補正)、 カルシウム・サルフォ・アルミネート系膨張材を単 独使用した場合は収縮ひずみ低減量として 900µ 程 度(文献¹⁵⁾中の解図 3 により補正)見込める可能性が ある.

謝辞

試験体製作に際し材料を提供して頂いた,太平洋マテ リアル(株)に謝意を表します.また,本研究を行うにあた り助力を得た,東海大学工学部建築学科渡部憲研究室の 4年生に謝意を表します.なお,本研究の一部はJSPS 科 研費(課題番号:18K04442,代表者:渡部憲)の助成を受 けて行われたものである.

参考文献

- 高靱性セメント複合材料の性能評価と構造利用研究 委員会:高靱性セメント複合材料を知る・作る・使 う,高靱性セメント複合材料の性能評価と構造利用 研究委員会報告書,日本コンクリート工学協会,pp.1-10 (2002.1).
- 高強度・高靱性コンクリート利用研究委員会:高強 度・高靱性コンクリート利用研究委員会報告書,日 本コンクリート工学協会,pp.74-85 (2009.3).
- 渡辺健,渡部憲:再生骨材を使用した高流動繊維補 強コンクリートの力学特性、コンクリート工学年次 論文集, Vol.39, No.1, pp.271-276 (2017.7).
- 丸山裕生,渡部憲,飯島友貴,大瀧諄:再生骨材を 使用した高流動高靱性コンクリートの強度発現およ び収縮特性,東海大学紀要工学部, Vol.57, No.2, pp.9-16 (2018.3).
- 5) 日本建築学会:建築工事標準仕様書・同解説 JASS 5 鉄筋コンクリート工事, pp.12,194,372 (2018).
- 6) 日本建築学会:鉄筋コンクリート造建築物の収縮ひび割れ制御設計・施工指針(案)・同解説, pp.110-117 (2006.2).
- 7) 日本建築学会:膨張材・収縮低減剤を使用したコン クリートに関する技術の現状, pp.51-53,111-129, 196-235 (2013.7).

- 8) 国分正胤,小林正几,長滝重義,岡村甫,町田篤彦: 膨張性セメント混和材を用いたコンクリートの標準 試験方法に関する研究,土木学会論文報告集,第225 号,pp.93-99 (1974.5).
- 9) 土木学会: 2012 年制定 コンクリート標準示方書 [施 工編], pp.247-255 (2012).
- 10) 日本建築学会:膨張材・収縮低減剤を使用するコン クリートの調合設計・製造・施工指針(案)・同解説, pp.40-44, 54-57 (2017.2).
- 渡部憲,大岡督尚,白都滋,加藤雄介:再生細骨材 を使用した高靱性セメント複合材料の圧縮破壊挙動, コンクリート工学年次論文集,Vol.28, No.1, pp.485-490 (2006.7).
- 12) 渡部憲,大岡督尚,白井伸明,森泉和人:各種コン クリートの圧縮軟化挙動,コンクリート工学年次論 文集, Vol.22, No.2, pp.493-498 (2000.6).
- 13) JCI 規準:繊維補強セメント複合材料の曲げモーメン トー曲率曲線試験方法(JCI-S-003-2007), コンクリー ト工学協会, pp.1-8 (2007).
- 14) 土木学会:平成 11 年制定 コンクリート標準示方書 [規準編], JSCE-G552-1999 鋼繊維補強コンクリー トの曲げ強度および曲げタフネス試験方法, pp.452-454 (1999.11).
- 15) JCI 規準:円筒型枠を用いた膨張コンクリートの拘束 膨張試験方法(JCI-S-009-2012), コンクリート工学協 会, pp.1-8 (2012).

高靭性繊維補強セメントミルクの埋込み杭工法への

適用性と補強効果

新名 正英*1 渡部 憲*2 岩崎 史英*3

Applicability and the Reinforcement Effect of Ductile-fiber-reinforced Cement Milk to the Bored Precast Pile Method

by

Masahide NIINA^{*1}, Ken WATANABE^{*2} and Fumihide IWASAKI^{*3} (Received on Mar. 31, 2020 and accepted on Jul. 24, 2020)

Abstract

With the recent achievement of high bearing capacity in the embedded pile method, the importance of ensuring the quality and performance of the foot protection part has increased. Although the bearing capacity has been increasing, the construction machines and materials used for the embedded pile method have not changed significantly. Especially, there is concern about damage due to cracking because of the lack of reinforcement in the foot protection part. Therefore, we tried to improve the toughness of the foot protection part using ductile-fiber-reinforced cement milk (FCM). In this study, we evaluate the workability using FCM by a mortar flow and pumping test. In addition, we verified the reinforcing effect by conducting a pile model experiment. As a result, it was found that FCM can be pumped sufficiently and is likely to be used at site. Furthermore, the pile model experiment showed that FCM offers significantly improved resistance to cracking and toughness compared with conventional cement milk.

Keywords: FCM, Foot protection part, Workability, Compressive strength, Bearing strength

1. はじめに

既製コンクリート杭工法は,近年,従来工法よりも杭 先端付近の鉛直支持力を飛躍的に増加させた高支持力杭 工法が開発され、既製コンクリート杭自体の高強度化も 併せて進んでいる. 高支持力杭工法とは, 杭先端付近の 杭形状を従来のストレート杭から異形杭に変えること, 杭先端付近の地盤を拡大掘削することで拡大根固め部を 築造することおよびこれらを併用することで大きな杭先 端支持力を得ることができる工法である. 高支持力杭工 法の開発により, 適切な施工管理を行えば, 高支持力化 により低コストを実現でき,設計の自由度も高くなった. しかしながら、高支持力化が進む一方で、施工機械や使 用材料については,従来工法から大きく変化していない. 根固め部においても,特別に補強がされている訳ではな いため、根固め部にひび割れが発生した場合、脆性的な 破壊モードに直結することが懸念される.また,近年の 高支持力化により, 杭基礎は, 経済性を重視した柱1本 に対して杭1本で支持する1杭/1柱方式が採用されるこ とが多くなっており、これらのリスクはさらに高まって いるといえる.

*3 工学研究科建築土木工学専攻修士課程

一方,近年においては,既存の繊維補強コンクリート に比べ,曲げ,引張,圧縮破壊時の靭性が大幅に向上し た高靭性セメント複合材料(以下,DFRCCと略記)が開発 されている¹⁾. DFRCCについては,既往の研究²⁾にお いて,PVA 繊維および鋼繊維を混合使用した実績が 報告されており,材料分離をさせることなく繊維の 分散性を確保した上で,ひび割れ発生時の変形に対 して,剛性の高い鋼繊維と PVA 繊維の架橋による 相乗効果による靭性の改善効果が確認されている. したがって,埋込み杭工法において使用されるセメ ントミルクについても,繊維を混入させることで, 杭根固め部に靭性を付与することが可能であると 考えられる.しかしながら,繊維混入による作業性 の低下は否めず,この問題を解決しなければ現場適 用は困難であると言える.

本研究では,高靭性化した繊維補強セメントミルク(以下,FCM と略記)を埋込み杭工法の根固め部に適用する ことを見据え,その作業性および補強効果に関する基礎 実験を実施している.本稿においては,現場適用時の作 業性の評価のため,モルタルフローおよびポンプ圧送試 験を行った.また,補強効果を確認するため,実寸の杭 および根固め部の縮小モデルを用いた根固め部支圧試験 を行ったので,その結果について報告する.

^{*1} 総合理工学研究科総合理工学専攻博士課程

^{*2} 工学部建築学科教授

2. 埋込み杭工法への適用性

筆者らは、これまでの検討において、繊維混入時の セメントミルクの作業性を改善した材料開発を行 ってきた.その結果、繊維体積混入率(以下、V_fと略記) が同じ場合、繊維径および繊維長が大きいものを使用し た方が繊維径および繊維長が小さいものを使用した場合 に比べ、流動性の評価指標であるフロー値の低下する割 合が小さくなることに加え、PVA 繊維を単体混入する場 合は、アスペクト比のより小さい繊維のみを用いた場合 の方が流動性を確保しやすく、アスペクト比のさらに小 さい鋼繊維を混合使用することで更なる流動性改善効果 を期待できることを確認している³⁾.そこで、本稿にお いては、更なる流動性改善のため、モルタルフロー試験 を実施し、従来に比べ V_fを小さくした水準の流動性の確 認を行った.それに加え、現場適用を想定した試料のポ ンプ圧送試験を実施し、作業性の評価を行った.

2.1 モルタルフロー試験

モルタルフロー試験の使用材料は,普通ポルトランド セメント(密度:3.16g/cm³),繊維 L(PVA 繊維,径:0.2mm, 長さ:18mm,アスペクト比:90,密度:1.30 g/cm³,引張強 度:975N/mm²)および繊維 S_m(鋼繊維,径:0.2mm,長 さ:13mm,アスペクト比:65,密度:7.85 g/cm³,引張強 度:2000N/mm²)とし,混和材料は分離低減剤(以下,SRA と略記)を使用した。なお,水セメント比は 60%とした. 繊維混入については,繊維 L のみを使用する水準に加 え,繊維 L と S_mを 7:3 の比率で混合使用した 2 水準を,

2, 繊維L2Smを7:30比率で配合使用した2が単を, Vf=2%および Vf=3%とした計4水準とした. 試験水準を Table 1 に示す.

練り混ぜは Fig.1 に示す手順で行い,練り混ぜ終了後,

	Specimen	Water- cement ratio (W/C)	Fiber volume fraction (Vf)	Fiber volume mixing ratio (Vm)				
		(wt.%)	(Vol.%)	(L:Sm)				
2FCM	160-L-10		2.0	10:0				
2FCM	160-L:Sm-7:3	60		7:3				
3FCM60-L-10		00	3.0	10:0				
3FCM60-L:Sm-7:3			510	7:3				
Measurement(Cement,Water,Fiber and SRA)								
	Input(Ce	ement,Water	and SRA)					
		➡	Mixing((3min)				
	Scraping off and Input(Residual water)							
	Mixing(1min)							
		Input(Fibe	r)					
Mixing(2min)								
	Mortal flow test							

Table 1 Outline of specimens.

Fig. 1 Mixing method.

JIS R 5201 に準じてモルタルフロー試験を実施した.フ ロー値は、フローコーンを垂直方向に取り去った後、15 秒間に15回の落下運動を与え、モルタルが広がった後の 径を最大と認める方向と、それに直交する径を測定した ものの平均値とした.また、フロー値の測定に加え、測 定後の試料の状態を目視にて観察し、材料分離の有無を 確認した.なお、SRA 添加率は、セメント質量の2.5~ 4.0%の範囲において、0.5%ずつ添加量を変化させ試験を 実施した.

2.2 ポンプ圧送試験

ポンプ圧送試験は、スクイズ式ポンプ(最大吐出圧: 1.5MPa)を用いて、10mのグラウトホース(内径:38.1mm) に試料を圧送することで実施し、圧送開始からグラウト ホース吐出口から試料が排出されなくなるまでの時間を 測定した.なお、試験に用いた水準は、2FCM60-L:Sm-7:3、 3 FCM60-L:Sm-7:3の2水準に加え、水およびセメントミ ルク(以下、CMと略記)について実施した.試験概要を Fig. 2 に示す.また、力学特性把握のため、圧送前後の 試料を採取し、Fig. 3 に示す1軸圧縮試験を行った.1軸 圧縮試験に用いた供試体は、 ϕ 100×200mmの円柱供試体 とし、試験時(材齢 28 日)まで標準養生を行った.



(a) Squeeze pump

(b) Overall view



Fig. 3 Uniaxial compression test.

2.3 試験結果

(1) モルタルフロー試験

モルタルフロー試験によって得られたフロー値と SRA 添加率の関係を Fig. 4 に,フロー値と分離評価を Table 2 にそれぞれ示す. Fig. 4 および Table 2 によると, 2FCM60-L-10 および 2FCM60-L:Sm-7:3 は, SRA 添加率 が 3.0%の場合,ペースト分と繊維の材料分離が生じてお り,3.5 および 4.0%の添加率においては,材料分離は確 認されなかった {Fig. 5 (a),(b)}. 3FCM60-L-10 および



Table 2 Mortar flow and Separation evaluation.

Specimen	Water- cement ratio (W/C)	Fiber volume fraction (Vf)	Separation reducing agent addition (Sra)	Flow	Separation evaluation ^{**}
	(wt.%)	(Vol.%)	(Cwt.×%)	(mm)	
			3.0	293	\times
2FCM60-L-10		2.0	3.5	270	0
			4.0	258	0
			3.0	290	×
2FCM60-L:Sm-7:3			3.5	276	0
			4.0	251	0
	00		2.5	283	×
3FCM60-L-10			3.0	259	0
		2.0	3.5	242	0
		5.0	2.5	285	×
3FCM60-L:Sm-7:3			3.0	262	0
			3.5	246	0

: \bigcirc : No separation \times : Separation

3FCM60-L:Sm-7:3 については, SRA 添加率が 2.5%の場合, ペースト分と繊維の材料分離が生じており、3.0 および 3.5%の添加率においては、材料分離は確認されなかった {Fig. 5 (c),(d)}. これより, 試験を実施した水準の範囲に おいては、繊維体積混合比(以下、Vmと略記)によらず、 Vf=2%の場合の材料分離を生じないSRAの最小添加率は 3.0~3.5%の範囲内にあることがわかった。また、Vf=3% の場合は、2.5~3.0%の範囲内であり、Vfを小さくすると 材料分離を抑制するために SRA を多く添加する必要が あることがわかった.

モルタルフロー値に着目すると, SRA 添加率が 3.5% の場合, 2FCM60-L-10 が 270mm, 2FCM60-L:S_m-7:3 が 276mm, 3FCM60-L-10 が 242mm, 2FCM60-L:Sm-7:3 が 246mm となっており、Vf=2%の水準が Vf=3%の水準に対 し、おおよそ 12%程度大きい値を示している.また、Vm の相違により、フロー値には明確な差は確認されなかっ たものの,繊維 Smを混合した水準の方が若干の増加傾向 にも見てとれる.以上より, FCMの流動性改善には,ア スペクト比の小さい繊維を使用するというこれまでの知 見に加え^{3),4)}, V_fの低減が効果的であることを確認した.

(2) ポンプ圧送試験

ポンプ圧送試験結果を Table 3 に, 圧送後の試料の状況 を Fig.6 に示す. なお, 各水準における SRA 添加率は,









(b) 2FCM60-L:S_m-7:3 (SRA=3.5%) (d) 3FCM60-L:S_m-7:3 (SRA=3.0%) Fig. 5 Mortar flow. (Left Fig : general view, Right Fig : enlarged view)

Table 3 Pumping test results.

Specimen	Pumping	Separation reducing agent addition rate	Flow	Sample volume	Time	Discharge amount	Comp- ressive strength	Young's modulus
		(SKA) (Cwt.×%)	(mm)	Ф	(sec)	(1/min)	σ_B (N/mm ²)	E (kN/mm ²)
		· /	()	0	()	()	()	(111 0 11211)
Water	—	—	_	100	48.6	123.5	—	—
CM60	Before	2.0	_	100	49.6	121.0	_	
CINO	After	2.0		100	47.0	121.0		
2000 1 0 2 2	Before	2.4	292	(0)	20.0	04.5	28.2	9.88
2FCM60-L:Sm-7:3	After	3.4	300	60	38.0	94.7	25.4	9.17
2001/01/0 72	Before	2.7	261	(0)	20.7	00.7	26.9	9.86
3FCM60-L:Sm-7:3	After	2.7	269	60	39.7	90.7	28.7	10.06





Fig. 6 Sample after pumping.

(b) 3FCM60-L:Sm-7:3



Fig. 4 の結果を参考に、試験前にフロー試験を行って 調整を行った. また, セメントミルクにおいても SRA を2%添加した試料を用いた.

Table 3 より,水とセメントミルクの吐出量について は、大きな差異は確認されず、ほぼ同等であると考え られる. 2FCM60-L:S_m-7:3 と 3FCM60-L:S_m-7:3 の吐出 量に注目すると, セメントミルクの吐出量に比べ, 2FCM60-L:S_m-7:3 が 88%、3FCM60-L:S_m-7:3 が 78%の 値となった. これより, 試験を実施した両水準とも、 セメントミルクに比べると作業性が低下していると いえるが, グラウトホース内で繊維が詰まり圧送不可 能となるような現象は発生せず, 圧送可能であること が確認できた. また, V_{f} を低減し, フロー値が大きく なることにより、圧送時間が短くなることがわかった。

しかしながら, Fig. 6 より, 3FCM60-L:Sm-7:3 の試料が圧送後においても材料分離を生じていないのに対し, 2FCM60-L:Sm-7:3 の試料は, ペースト分と繊維が分離傾向であることが確認された. これは, SRA 添加率が大きい水準は, 試料の粘性が大きく, グラウトホース内での摩擦の影響を大きく受けたことが原因であると考えられる.

各試料の1軸圧縮試験結果を Fig. 7 に示す. なお, 比 較のため、既往の研究 5において実施したセメントミル クの圧縮試験結果を合わせて図中に示した. Table 3 およ び Fig. 7 によると、圧送前の圧縮強度は、セメントミル クが 27.4(N/mm²), 2FCM60-L:S_m-7:3 が 28.2(N/mm²), 3FCM60-L:S_m-7:3 が 26.9(N/mm²)であった. それに対し, 圧送後の圧縮強度は、2FCM60-L:Sm-7:3 が 25.4(N/mm²)、 3FCM60-L:Sm-7:3 が 28.7(N/mm²)であり、Vfの相違によ り,圧送前後の強度増減が異なる結果となった.ここで, V=2%の試料は、前述のとおり、圧送後の材料分離が確 認されている. したがって、Vf=2%の試料は、Vf=3%の 試料に比べ SRA の添加率が大きく粘性が高いため, グラ ウトホース内にセメントペーストがより多く付着してし まったことが強度低下に繋がったものと推測される.し かしながら、一般的な高支持力杭工法の根固め部に必要 とされる 15~20(N/mm²)程度の強度 %は満足しているの に加え, セメントミルク場合, 圧縮強度に達した直後に 脆性破壊しているのに対し, FCM では圧縮強度到達以降 も脆性破壊せず、圧縮応力を保持しながらひずみが増大 しており, 圧縮靭性の改善効果が確認できた.

以上より, FCM の流動性改善には、V_fを小さくするこ とやアスペクト比の小さい繊維を使用することが有効で あり、V_fの低減が最も効果的であることがわかった.し かしながら、V_f=2%とした水準においては、圧送性の向 上が確認されたものの、圧送後の試料については材料分 離と圧縮強度の低下が確認された.本実験では、圧送時 のグラウトホース長は 10m としているが、現場適用時は 5~10 倍程度の長さとなる可能性も想定されるため、圧 送距離を更に長くした際の検討が今後の課題である.

3. FCM の補強効果

杭の鉛直支持力は、杭体の強度、地盤の強度、根固め 部の強度のうち、最も小さいもので決定される.本研究 においては、FCMの根固め部適用時の補強効果の検証の ため、杭根固め部が破壊することで杭の鉛直支持力が決 定するケースを想定し、実寸の縮小モデルを用いた根固 め部の支圧試験により評価を行った.

3.1 試験概要

根固め部支圧試験は、Fig. 8 に示す実寸の 1/10 縮小モ デルで実施した.ここで,支圧試験に用いた杭モデルは、 杭径 φ 1000mm の既製杭を想定し、鋼製の中空型の円柱 (φ 100×50mm、板厚:13mm)とした.また,根固め部モデ ルは、既存の埋込み杭工法³⁾を参考に、根固め部径(D2) が杭径(D1)の 1.25~2.0 倍となる範囲で、根固め部径を φ 125、150 および 200mm の 3 水準に設定した.根固め部 高さは、既往の研究⁷⁾を参考に D1 の 1.5 倍の 150mm に 設定した.根固め部モデル試験体は、セメントミルクの み(以下,CM と略記)、PVA 繊維(L)を混入させた FCM お よび PVA 繊維と鋼繊維(Sm)を 7:3 で混入させた FCM の計 3 水準を各 3 体ずつ作製し、試験時まで標準養生(材齢 28 日)とした.なお、杭モデルの中空部は、載荷時も充填す ることはなく、杭先端を開放した状態で試験を行った.

計測項目は、荷重、杭頭および根固め部変位に加え、 Fig.9に示す埋め込みゲージ(根固め部モデル中央1箇所 配置)により測定する根固め部の内部ひずみとした.また、 強度管理用試験体として、1軸圧縮試験用に100φ×200mm の円柱供試体を6体作製した.作製した試験体の材料特 性をTable4に示す.



Fig. 8 Foot protection part bearing test.



Fig. 9 Specimen overvie

Table 4 Material test results.

Specimen	Water- cement ratio	Fiber volume fraction	Fiber volume mixing ratio	Comp- ressive strength	Young's modulus
	(W/C) (Vf)		(Vm)	Fc	Е
	(wt.%)	(Vol.%)	(L:Sm)	(N/mm^2)	(kN/mm ²)
СМ		_	_	26.9	9.17
FCM-L-10	60	2.0	10:0	23.6	8.50
FCM-L:Sm-7:3		3.0	7:3	24.3	9.28

3.2 試験結果

(1) 荷重-杭頭変位および内部ひずみ関係

根固め部支圧試験結果を Table 5 に示す. ここで,支圧 強度 F_Bは,最大荷重を支圧面積(杭モデル外径から算出 した面積-中空部面積)で除して算出した.また,実験結 果に加え,六車・岡本らのコンクリートを対象とした実 験式 ⁸⁾を杭径(D1)と根固め部径(D2)に改めた式{式(1)}お よびプレストレストコンクリート造建築物の性能評価型 設計施工指針(案)・同解説⁹⁾の PC 基準における既往の実 験結果を基にした算定式{式(2)}による計算結果を合わ せて示した.

Table 5 によると、支圧強度は根固め部径が大きくな ると共に増加し、CM に比べ PVA 繊維を混入した水準が 大きい値となり、鋼繊維を混入した水準は更に大きい値 を示している.また、式(1)および式(2)の計算結果が CM の実験結果を良好に評価しているのに対し、FCM の実験 結果については過小評価する結果となった.

Spacemen		Maximum load	Pile head displacement at Pmax	Bearing strength experiment result	Muguruma Okamoto formula	AIJ formula
		P _{max} (kN)	δ (mm)	$F_B (N/mm^2)$	F_{B1} (N/mm ²)	F_{B2} (N/mm ²)
	φ125	133	0.64	37.0	32.6	33.6
CM	φ150	162	0.64	46.0	38.1	40.3
	φ200	188	0.75	53.0	48.8	47.2
	φ125	151	2.11	42.0	28.6	29.5
FCM-L-10	φ150	182	2.54	51.0	33.4	35.4
	φ200	253	4.59	71.0	42.8	47.2
	φ125	180	2.49	51.0	29.4	30.4
FCM-L:Sm-7:3	φ150	219	3.08	62.0	34.4	36.4
	φ200	326	7.57	92.0	44.1	48.6

Table 5 Bearing test results.

$$---F_{R1} = F_c \cdot (D2/D1)^{0.86}$$
 (1)

F_{B1} :式(1)より得たコンクリートの支圧強度(N/mm²)

F_c : コンクリートの圧縮強度(N/mm²)

D1 : 杭径(D1)

D2 : 根固め部径(D2)

$$-F_{R2} = F_c \cdot \sqrt{A_c / A_I} - (2)$$

ここに,

FB2 : 式(2)より得たコンクリートの支圧強度(N/mm²)

- F_c : コンクリートの圧縮強度(N/mm²)
- Ac : コンクリートの支承面積(mm²) (杭モデルの断面積)
- A₁:コンクリートの支圧面積(mm²) (根固め部モデルの断面積)

Fig 10 に支圧試験で得られた荷重-杭頭変位関係, Fig.11 に荷重-内部ひずみ関係を示す.Fig.10 より,CM は根固め部径によらず杭頭変位が 0.6~0.7mm 程度で最 大荷重となり,急激に荷重が低下したのに対し,FCM は 杭頭変位が 0.6~0.7mm 程度で P-δ曲線の勾配が緩やか になった後も荷重が増加し,最大荷重到達以降も緩やか に荷重が低下していることが確認できる.また,Fig.11 においても,CMに比べ,FCM がより大きな荷重を下方 へ伝達していることが読み取れる.これは,CM が Fig. 12(a)のように,載荷板底面からの斜めひび割れ発生と同



時に支圧破壊したのに対し, FCM は Fig. 12(b)および Fig. 12(c)から確認できるように, ひび割れに対して繊維が抵抗したことで, 斜め方向押し抜きせん断破壊となったためであると考えられる^の, これより, CM に繊維を混入することで, 杭先端支持力の向上が期待できるだけでなく, 根固め部の破壊靭性改善が確認できた.



(b) FCM-L-10 (c) FCM-L:S_m-7:3 Fig. 12 Specimens after test.

(2) 支圧強度比-根固め部径関係

Fig. 13 に支圧強度比(F_B/F_c) – 根固め部径関係を示す. これより,根固め部径を ϕ 125mmから ϕ 200まで大きく すると,支圧強度比は CM で 1.4 から 2.0, FCM-L-10 は 1.8 から 3.0, FCM-L:Sm-7:3 は 2.1 から 3.8 に増加した. これは,根固め部径を拡大して築造することで,より大 きな杭先端支持力を確保する高支持力杭工法において, FCM の適用は,根固め部径の拡大効果をより効率的に得 ることが可能であることを示している.

以上より,根固め部に FCM を適用することで,CM よ りも優れた杭先端支持力と破壊靭性を確保できることが 確認でき,その補強効果は,CM に PVA 繊維のみを混入 するより,PVA 繊維と鋼繊維を混合使用した方がより大 きいことが確認できた.また,FCM を用いることで,従 来工法より根固め部径を小さくしても同様の杭先端支持 力を得ることが可能であることを示した.



Fig. 13 Bearing strength ratio - foot protection part diameter relationship.

4. まとめ

本稿においては、埋込み杭工法への FCM の適用を目 的とし、その作業性と補強効果を評価する基礎実験を行 った.以下に,これらの検討により得られた知見を示す.

- FCMの流動性改善には、V_fを小さくすることやアスペクト比の小さい繊維を使用することが有効であり、V_fの低減が最も効果的である。
- 2) V_f=2%とした水準においては、圧送性の向上が確認 されたものの、圧送後の試料については材料分離と 圧縮強度の低下が確認された。
- 3) 根固め部に FCM を適用することで, CM よりも優れ た杭先端支持力と破壊靭性を確保できることが確 認でき,その補強効果は, CM に PVA 繊維のみを混 入するより, PVA 繊維と鋼繊維を混合使用した方が より大きいことが確認できた.
- 4) FCMの適用は、根固め部径の拡大効果をより効率的に得ることが可能であり、従来工法より根固め部径を小さくしても同様の杭先端支持力を得ることが可能であることを示した。

FCM の作業性は $V_{f=2\%}$ とすることで向上したが, 圧送時の摩擦の影響による強度低下を生じた可能性があるため, 今後は圧送距離がより長い場合の検証を行うのに加え, $V_{f=3\%}$ と同様の根固め部支圧試験を行っていく予定である.

参考文献

- 社団法人日本コンクリート協会:高靱性セメント複 合材料を知る・作る・使う, p.3 (2002.1).
- 中村允哉,渡部憲:再生骨材を使用した高靭性コンク リートの材料特性、コンクリート工学年次論文集, Vol.33, No.1, pp.335-340 (2011).
- Niina, M, Watanabe, K, Mamoru, F, Kajiwara, D and Kodera, M, "Study on Fluidity and Mechanical Characteristics of Fiber-Reinforced Cement Milk", Proc 29th Int Offshore and Polar Eng Conf, Honolulu, Hawai, USA, ISOPE, pp.2402–2408 (2019).
- 4) 浦野登志雄,山口信,村上聖,武田浩二:高流動コンク リートマトリックスを適用した繊維補強コンクリ ートの力学特性,コンクリート工学年次論文集, Vol.30, No.1, p.249 (2008).
- 新名正英,渡部憲,藤井衛:繊維補強セメントミル クの流動性と力学特性,日本建築学会大会学術講演 梗概集(北陸), pp.161-162 (2019.9).
- 高支持力杭の根固め部品質管理研究会:根固め部の 未固結資料採取・調査・試験マニュアル(Ver.2.0), pp.45-59 (2014.10).
- 浅井陽一,渡部憲,冨田健太郎:高靭性セメント複合 材料の既製杭根固め部への適用性に関する基礎的 研究,コンクリート工学年次論文集, Vol.29, No.1, p.537, (2007).
- 8) 近藤泰夫,板静雄:コンクリート工学ハンドブック, 朝倉書店, pp.300-301, (1963.10).
- 日本建築学会:プレストレストコンクリート造建築 物の性能評価型設計施工指針(案)・同解説, (2015).

高精度 X線 CT によるペースト中のセメント粒子結合の検討 山本 光彦^{*1} 外山 友貴^{*2} 伊藤 祐二^{*3} 笠井 哲郎^{*4}

A Study on the Combination of Cement Particles in Cement Paste by High precision X-ray Computed Tomography

by

Teruhiko YAMAMOTO^{*1}, Tomoki TOYAMA^{*2}, Yuji ITO^{*1} and Tetsuro KASAI^{*3} (Received on Feb. 5, 2020 and accepted on June 19, 2020)

Abstract

The SEC concrete method, which is a type of two-stage-mixing, has excellent features such as reduced bleeding, improved vibrating compaction performance, and improved properties after hardening. The reason why these characteristics are exhibited is that the cement paste produced by two-stage-mixing significantly changes the dispersed-/-agglomerated structure of cement particles compared to normal mixing. However, there is no example in which the dispersed-/-agglomerated structure of cement particles in fresh paste of actual concentration could be clearly observed. Therefore, the authors tried to evaluate the dispersed / agglomerated structure of cement particles in paste that had changed due to different mixing methods, using a high-precision X-ray CT scanner at SPring-8.

Keywords: SEC concrete, X-ray CT, Cement particles, Dispersed / Agglomerated Structure

1. まえがき

通常,コンクリートはセメント,水,骨材および混和 材料をほぼ同時にミキサに投入し,練り混ぜることによ り製造される.材料や配合が同じでも練混ぜ方法,材料 投入順序を工夫することで,フレッシュコンクリートや 硬化コンクリートの諸物性を改善できることは古くから 知られていた¹⁾.

練混ぜ水を分割して(一次水と二次水) コンクリート を練り混ぜる分割練混ぜ工法において,骨材に最適一次 水量を加えて練り混ぜて骨材表面水率を調整した(調整 練混ぜ)後,セメント(結合材)を加えて一次練混ぜを 行い,その後二次水を加えて練り混ぜる方法を SEC 練混 ぜと言う²⁾. Fig. 1 に SEC 練混ぜの手順を示す.

SEC 練混ぜで製造されたコンクリート(以降, SEC コ ンクリートと記す)は、ブリーディングの低減,降伏値 や粘着力の増加,振動締固め性の向上、セメントの初期 水和の向上など、大幅な改善効果を示すことが報告され ている²⁾⁻⁵⁾.本工法は吹付けコンクリートやプレキャス トコンクリートの製造などに広く適用されている⁶⁾⁻⁸⁾. また、SEC コンクリートは硬化後の強度特性や耐久性の 向上が図られることも報告されている^{9),10)}.

これらの品質向上に関しては様々な検討が行われ,有 力な説の一つは,セメントと水の練混ぜにおいてセメン

- *1 リブコンエンジニアリング株式会社課長
- *2 工学研究科建築・土木工学専攻修士課程
- *3 リブコンエンジニアリング株式会社顧問
- *4 工学部土木工学科教授

トと一次水をキャピラリー状態¹¹⁾となる量で練り混ぜ た後(一次練り),残りの水(二次水)を加え練り混ぜて 製造したセメントペーストでは,従来の練混ぜに比べ, セメント粒子の分散・凝集構造が大幅に変化し,水を保 水しやすい構造となりブリーディングを大幅に低減する としている^{3),12)}.また,このブリーディング低減効果は, 硬化コンクリートのペーストー骨材間のミクロ領域に形 成される脆弱層(遷移帯)を低減または改質するために, SEC コンクリートが優れた硬化後特性を発揮するとされ ている¹³⁾.

しかしながら,フレッシュセメントペースト中のセメ ント粒子の分散・凝集構造の検討は種々行われ,光学顕 微鏡やレーザー顕微鏡などによる観察が行われているが, いずれもセメントペーストを高倍率で薄めた物である.





実濃度の場合を明確に捉えた観察結果はなく,前述の分 散・凝集構造の変化に伴う効果発現の説も想像の域を脱 し得ない.そこで SPring-8(施設者:国立研究開発法人 理化学研究所(理研),利用促進業務:公益財団法人高輝 度光科学研究センター)所有の中尺ビームライン (BL20XU)を用いて,練混ぜ方法の相違によりペース ト中のセメント粒子の分散・凝集構造がどのように変化 しているかをX線CTスキャンによって視覚的,また定 量的(粒子の体積や個数など)に評価しようと試みた.

2. 試験概要

2.1 使用材料および練混ぜ方法

使用材料は普通ポルトランドセメント(以降, NC と 記す,密度: 3.16 g/cm³,比表面積: 3280 cm²/g),水道水 で,高性能減水剤(以降, Ad と記す)にはナフタレン系 (以降, AdN と記す)とポリカルボン酸塩系(以降, AdP と記す)を用いた.水セメント比 60%のセメントペース ト(以降, CP と記す)またはモルタルを練り混ぜ,セメ ントペースト部分を試料とした.

練混ぜは容量 5ℓのホバート型ミキサを用い,1バッチ 1.5ℓ練混ぜとした.また,SEC または分割練混ぜ(ダブ ルミキシング,以降,DM と記す)の場合は一次練混ぜ 120 秒,二次練混ぜ 60 秒とし,通常練混ぜ(以降,SM と記す)の場合は全材料投入後 60 秒とした.Fig.2 に練 混ぜ手順を示す.練混ぜ方法によって練混ぜ時間が異な るが,同じ練混ぜ時間であっても SM と DM ではセメン トペーストのブリーディングには大きな差がある⁴.

なお, モルタルの細骨材には珪砂 3 号の 2.5mm 篩いに 留まる粒度のものを洗浄して使用し, S/C=2.0 として練 り混ぜ, その後細骨材を除去して CP とした. 細骨材物 性は, 密度 2.62 g/cm³, 吸水率 0.0%, 拘束水率 0.4%で, 粒径は 2.5~3.3mm 範囲であり,表面水率 0%で使用した.

2.2 試験装置

X線 CT¹⁴は、対象物を X線が透過する際の「透過し やすさ」や「吸収されやすさ」の違いを利用して、材質 や構造を調べる装置である. CT とは、Computed Tomography の略称で、コンピュータ断層撮影法と呼ば れており、物体を走査(スキャン)することから X線 CT スキャンと呼ばれている.物体をさまざまな方向か らX線で撮影し、再構成処理を行うことにより、物体の 内部構造を得ることができる.異なる材料で構成された 場合だけでなく、同じ物質であっても密度が異なると X 線の吸収係数に違いが生じるため、その差を計測するこ とができる.材料内部の破壊や劣化を、非破壊で評価す ることが可能な非常に強力な分析装置である.実際に使 用した X線 CT スキャン装置の照射部および計測制御装 置を Phot.1 に示す.

2.3 試験に用いた試料

試験は下記試料について実施した. 1) 粒度分布が明らかな NC. 2) 練混ぜを DM および SM とした CP.

- 3) 練混ぜを SEC および SM としたモルタルの CP.
- 4) 練混ぜを DM および SM とし, AdN を添加した CP.
- 5) 練混ぜを DM および SM とし, AdP を添加した CP.

2.4 試験手順

CT スキャンは以下の手順で実施した.

試料の形状

内径 1mm のポリイミド管に試料(セメントまたは セメントペースト)を 3~5cm 入れ,管を立てた状態で X線照射部の回転台に設置した(Photo.1参照).

2) X 線照射

X 線は 30 keV の出力とし,照射は試料底から 1mm 程度上の気泡のない部分とした. CP 練上り後 10 分で CT スキャンを行った.

3) CT スキャン詳細

CT スキャンは回転角 0~180deg を 90000pulse, 測定 時間 5 秒で行った(0.002deg/ pulse). なお, 市販の X 線 CT 装置の場合, 白色 X 線が試料の外縁部を通る際



Photo 1 X-ray irradiation unit







Fig. 3 Definition of section image.

に発生するノイズを抑制するために,吸収剤としてフ ィルターを使うことがあるが,本装置のX線は単色性 が非常に高く,このようなノイズが発生しないので, フィルターは使用していない.

4) 解析ソフト

CT スキャンデータは画像構成ソフト:「myVGL3.2」 (VolumeGraphics 社製) で閾値を 112^{*it} として, 試料 の中心部を1辺が 200μ m の立方体の画像として再構 成した. その後,得られた画像より粒度分布を算出し, CT スキャン像は幅 $200 \times 高さ 100 \times 奥行き 5 \mu$ m の切 断画像として求めた. Fig. 3 に切断画像の定義を示す. (*注) 水セメント比 60(%)の CP に気泡が無いと仮定 した場合, 200μ m 立方体中にセメント粒子が占める 理論上の体積は 2763×10^3 (μ m³) である. そこで,通 常練混ぜのプレーン CP のセメント粒子体積が,ほぼ 前述の値となる閾値の 112 を選択した.

試験結果および検討

3.1 セメント粉体

Fig. 4 に使用した NC のレーザー回折散乱法による粒 度分布を示す.この図より, NC 粒子の体積の中間値(体 積比 50%)における平均粒径は 15μ m 程度であるにも拘 わらず, 粒子個数の 95%以上が 3μ m 未満の粒子径であ ることが分かる.

Fig. 5 に NC の CT スキャン像を示す. この図より,大 多数を占めているはずの 3μ m 未満の粒子がほとんど認 められないこと,直径 $10 \sim 50\mu$ m の塊が多数あり,これ ら塊の表面形状や断面の空隙状態などから、 3μ m 以下 の粒子は集合体(以降,凝集体と記す)を形成している ものと推察される. 従って,セメント粒子は水と練り混 ぜられる前からその結合力の強さは不明ながら,凝集構 造を成しているものと考えられる.

3.2 練混ぜ方法が相違した CP

Fig. 6に練混ぜ方法を DM および SM とした CP の CT スキャン像を示す. CT スキャン像の寸法は Fig. 5 と同一である. この図より, CP にも練混ぜ方法によらず, セメント粒子の集合体が存在していることが分かる. Fig. 6 の集合体の表面形状や内部空隙の状態を Fig. 5 と比較すると, ほぼ同様であって元々セメント粉体に存在していた凝集体が, CP になっても残存しているものと考えられる. このことはセメント粉体中の凝集体が CP の練混ぜ

時のエネルギーでも壊されにくい強い結合力で凝集して いることを示唆している.

また, DM と SM の場合を比較すると DM の場合の方 が凝集体が小さめとなっているが, DM の一次練混ぜ時 に大きな剪断力で CP が練り混ぜられることによって, セメント凝集体の分解や表層部の破壊が生じるためと考 えられる.

Fig. 7に練混ぜ方法を DM および SM とした CP のセメ ント粒子の粒度分布を示す. この図は 200 µ m 立方体の CP に含まれる,セメント粒子の結果を示しており,以後 CP 中のセメント粒子の粒度分布は全て同一体積の CP を 対象としている. この図では DM と SM の場合の粒子体 積はほぼ等しいが,粒子数は DM の場合が SM に比べて 小さい.粒度分布では粒径で 9~15 µ m の粒度部分が DM の場合に減少しているが,粒径で 33~36 µ m の粒度部分 が DM の場合に多いため,このような結果となっている.







Fig. 5 CT scan image of NC (depth: 5μ m).



Fig. 6 CT scan image of CP (DM and SM).

3.2 モルタルとして練混ぜた CP

Fig. 8 に練混ぜ方法を SEC および SM としたモルタル 中の CP の CT スキャン像を示す. この図より, CP の場 合と同様にモルタルとした場合であっても,練混ぜ方法 にかかわらず初期のセメント凝集体が残っていることが 分かる.また, SEC および SM 各々の画像からは,凝集 体の大きさに大きな差は見られない.

Fig. 9に Fig. 8に示した CP のセメント粒子の粒度分布 を示す. この図より, SEC の場合に粒子数と粒子体積が SM と比べて僅かに大きくなっていることが分かる.ま た,この図よりセメント粒子平均粒径を求めると,SEC の場合に 0.95 (×10³ μ m³/個),SM の場合に 0.92 (×10³ μ m³/個)であり,平均としては SEC の場合に大きな粒径 にシフトしていることが分かる.

Fig. 7 と Fig. 9 の粒度分布の結果を比較すると、モル タルで練り混ぜることでセメント粒子数は約 1.5 倍に増 えているが、体積は 1.05 倍程度であり、粒径が小さい側 にシフトしていることになる.これは、細骨材と練り混 ぜることで、セメント凝集体表面の破壊や表面の削り取 りが起きていることを示唆しており、その効果は SEC の 場合の方が SM より大きい.

また, Fig. 9 でも Fig. 4 で示した 95 %以上の数を占める 3μm 以下の粒子数がやや少ない. このような小さな粒子(コロイド粒子レベル)が,全て凝集体になっていることは考えにくく,今回使用した高精度な CT スキャン装置であっても、3μm 未満の粒子を完全には撮影できていないものと考えられる.

3.3 高性能減水剤を用いた CP

高性能減水剤を用いた CP を検討するにあたって,対象とした Ad を 2 種類としたのは,それぞれ分散作用の機構が異なっており, AdN は静電的反発力により, AdP



Fig. 7 Size distribution of cement particles in CP (DM and SM).



Fig. 8 CT scan image of CP in mortar (SEC and SM).



Fig. 9 Size distribution of cement particles in CP of mortar (SEC and SM).

は吸着した高分子の立体障害効果によりセメント粒子を 分散させるとされているからである.

Fig. 10 に AdN を, Fig. 11 に AdP を用いた CP を, DM および SM で練り混ぜた場合の CT スキャン像を示す.

これらの図によると, Ad が異なっても練混ぜ方法ごとに, ほぼ同様な画像が観察される.また, Ad の種類によらず, DM の場合と比べて SM の場合には 10μm の以下粒子が 僅かに多く観察される.







Fig. 11 CT scan image of CP used polycarboxylic acid-based superplasticizer (DM and SM).



Fig. 12 Size distribution of cement particles in CP used naphthalene-based superplasticizer (DM and SM).



Fig. 13 Size distribution of cement particles in CP used polycarboxylic acid-based superplasticizer (DM and SM).

しかしながら、Ad ごとの CP のセメント粒子の粒度分 布には大きな相違があった. Fig. 12 に AdN を用いた CP のセメント粒子の粒度分布を, Fig. 13 に AdP を用いた場 合のそれを示す。これらの図より、AdN と AdP の場合を 比べると AdN の場合には、練混ぜ方法にかかわらず 12 μ m 以下の粒子数が、明らかに多くなっている. 一方、 AdP の場合の粒度分布では 6μ m 以下の粒子が認められ ない. セメント粉体の粒度分布を考慮すると、粒子数の 95%以上を占める、 3μ m 以下の粒子はいずれの場合も観 察できていない部分が大きい.

また,体積はいずれの場合も 2600(×10³μm³)程度であ るにもかかわらず,AdN の場合の粒子数と比べて AdP の場合には約 57%となっており,平均粒径が 2 倍近くに なっている.これは Ad のセメント粒子分散機構の相違 が関係していると考えられるが,これについてはなお検 討が必要である.

4. まとめ

分割練混ぜ工法の一種類である SEC コンクリートエ 法は,ブリーディングの低減や振動締固め性の向上,硬 化後特性の向上など,優れた特徴を有している.これら の特徴を発揮する理由としては、分割練混ぜによって製 造されたセメントペーストでは、従来の練混ぜに比べ、 セメント粒子の分散・凝集構造が大幅に変化することに よると言われている.しかしながら、実濃度のフレッシ ュセメントペースト中のセメント粒子の分散・凝集構造 を明確に観察できた例は無い. そこで, SPring-8 所有の 中尺ビームライン(20XU)を用いて、練混ぜ方法の相違 によりペースト中セメント粒子の分散・凝集構造がどの ように変化しているかを, X線 CT スキャンによって視 覚的、また定量的(粒子の体積や個数など)に評価しよ うと試みた.本検討の範囲内で,以下の結論が得られた. (1) レーザー回折散乱法によって測定したセメント粉体 の粒度分布と、そのX線CTスキャン像とを比較すると、 セメント粒子は気中で集合体(凝集体)を形成している ことが観察された.

(2) 練混ぜ方法を変えたセメントペーストの CT スキャン像および粒度分布図より,練混ぜを行っても多数のセメント凝集体がそのまま残存していた.このことはセメント粉体中の凝集体が,練混ぜでも壊れにくい強い結合力で凝集していることを示唆している.

(3) モルタルからスクリーニングしたセメントペースト の場合であっても,セメント凝集体が多数認められ,SEC 練混ぜのような練混ぜエネルギーが非常に大きい場合で も壊れにくいことが分かった.

(4) セメント分散機構の異なる高性能減水剤を用いたセ メントペーストの, CT スキャン像とセメント粒度分布 図より,ポリカルボン酸系高性能減水剤を用いた場合に はナフタレン系の場合と比べて,観察されたセメント粒 子の平均径が2倍程度となった.これは高性能減水剤の セメント粒子分散機構の相違が関係していると考えられ るが,これについてはなお検討が必要である.

(5) セメント粉体粒子数の 95%以上を占める 3µm 以下

の粒子は、高精度 X 線 CT スキャンによっても観察でき ていない部分が大きいと考えられた.

参考文献

- 1) 吉田徳次郎: コンクリート材料を混合機に投入すべき 順序に就いて,九州大学工学彙報, pp.3-6 (1931).
- 2) 一般財団法人土木研究センター,建設技術審査証明 報告書:性能向上のために分割練混ぜをしたコンクリ ート「SEC コンクリート」,(建技審証 第 0309 号), p.2 (2018).
- 3) 田澤榮一, 松岡康訓, 金子誠二, 伊東靖郎: ダブルミ キシングで作製したセメントペーストの諸性質につ いて、コンクリート工学年次講演会講演論文集, Vol.4, pp.125-128 (1982).
- 4)田澤榮一,笠井哲郎:フレッシュセメントペーストの ダブルミキシング効果,土木学会論文集,Vol.9, No.396, pp.135-142 (1988).
- 5) 中川好正,藤井真二郎,吉岡一弘,田澤榮一:ダブル ミキシングがセメントの初期水和反応に及ぼす影響, コンクリート工学年次論文集, Vol.29, No.1, pp.51-56 (2007).
- 伊藤祐二,登坂敏雄,櫻井清一,末永充弘,朝倉俊 弘:高品質吹付けコンクリートの施工特性に関する研 究,土木学会論文集 E, Vol.65, No.4, pp. 419-430(2009).
- 7) 笠井哲郎,田澤榮一,磯貝寛幸:常圧蒸気養生で製造 するコンクリート製品へのダブルミキシングの適用に 関する研究,コンクリート工学年次論文集,Vol.31, No.1, pp.2185-2190 (2009).
- 8) 鈴木翔太,田澤榮一, J. Paweena,笠井哲郎:ダブルミ キシングで製造したプレキャストコンクリートの耐 凍害性と細孔構造に関する研究,コンクリート工学 年次論文集, Vol.36, No.2, pp.355-360 (2014).
- 加賀秀治、山本康弘、黒羽健嗣、早川光敬、伊東靖郎:S.E.C.コンクリートの研究(特性と強度)、日本 建築学会大会学術講演概要集, pp.57-58 (1980).
- 10) 岸谷孝一, 伊東靖郎, 加賀秀治, 山本康弘: S.E.
 C.コンクリート工法 -基礎理論と特性, 実用化-,
 建築技術, No.380 (1983).
- 11) 三輪茂雄:粉体工学通論,日刊工業新聞社,p.43 (1981).
- 12) 吉岡一弘:セメント粒子の凝集構造に及ぼす鉱物組成ならびに練混ぜ方法の影響,博士論文, pp.56-67 (1999).
- 13) 塩永亮介,戸田勝哉,伊藤祐二,高橋晴香:練混ぜ工 法を変えたコンクリートの微細構造の分析と評価, コンクリート工学年次論文集, Vol.37, No.1, pp.541-546 (2015).
- 14) 国立研究開発法人物質·材料研究機構 HP 参照: https://www.nims.go.jp/personal/XrayCT/about/index.ht ml. 参照日 2019/06/12

反発硬度法によるコンクリート強度推定の理論的考察 久保 元樹^{*1} 笠井 哲郎^{*2}

Theoretical Study on Estimation of Compressive Strength of Concrete by Rebound Number Method

by

Genki KUBO^{*1} and Tetsuro KASAI^{*2} (Received on Mar. 27, 2020 and accepted on June 19, 2020)

Abstract

The test method for rebound number was established in the 1940s, and it assumes that the hammer strikes the concrete surface directly. However, in equipment commonly used for the method, the plunger strikes the concrete surface indirectly, causing an inconsistency between theory and reality. In Japan, some correction methods have been proposed to increase the measurement accuracy, but most of these methods are based on the original theory, and the original theory itself has not been adequately examined. This study reinvestigated the original theory of the method for rebound number, and examined the feasibility of the mechanism of equipment with a plunger in terms of wave theory. The result showed that the measured value depends on the specifications of the equipment such as the mass of the hammer or the length of the plunger, and an unreasonable dynamic model is necessary in order to satisfy the original theory

Keywords: Rebound Number, Coefficient of Restitution, Rebound Hammer, Mechanical Impedance

1. まえがき

反発硬度法は, 1940年代にスイスの Schmidt ら¹⁾ によ って開発され、コンクリート強度推定装置として位置づ けられている.日本国内には、1950年代に導入され、今 日では、広く普及するに至っている.また、その測定精 度, すなわち, コンクリートの圧縮強度の推定誤差につ いては多くの議論があり、推定精度向上を目的とした 種々の補正方法^{2)~5)}が導入されている.しかし,その基 本原理は、Schmidtらの理論がそのまま踏襲されており、 理論的背景に対する根本的な議論は少ない. また, 反発 硬度法は、コンクリートの反発度を測定するとされてい るが ^の,この反発度がコンクリートの固有値であるか検 討の余地が残されているように思われる.もし,コンク リートの固有値でないとした場合,その装置はコンクリ ートのどのような特性値を計測し、どのような影響を受 けた値であるか,その原理的背景を把握した上でないと, 反発度からコンクリートの圧縮強度を推定すること、ま た測定値の補正の妥当性を検証することができない.

著者らは、反発硬度法によるコンクリートの圧縮強度 測定原理に関し、以下の理論的に不確実な事項が含まれ ていることを報告した⁷⁾.その第一の点は、JIS⁶に規定 されるとともに一般的に使用されているリバウンドハン マでは、ハンマをプランジャーと呼ばれる棒に衝突させ、

*1 総合理工学研究科総合理工学専攻建築・土木工学

*2 工学部土木工学科教授

コンクリート面を直接打撃するわけではないにもかかわ らず,理論では,ハンマが直接コンクリート面を打撃す ることを前提として体系付けられている点である.第二 の点は,本理論はエネルギー収支を基本として組み立て られているが,実際には打撃時間が非常に短いこと,ま た,ハンマ,プランジャー,コンクリートは結合された 状態ではないことを考慮すると,ハンマ側から見たエネ ルギー収支が成立するのか疑問である.

本論文では、プランジャーを持つ構造のリバウンドハ ンマについて、その測定理論を再検討するとともに、波 動理論の立場から測定量である反発度の発生機構につい て考察し、反発硬度法の問題点を明らかにしようとする ものである.

2. 反発硬度法の測定原理と実践

2.1 エネルギーの釣り合い

Fig. 1 は反発硬度法において, コンクリートを打撃す る場合の模式図を簡潔に示したものである. 基本的に, ハンマとプランジャーから構成されている. ハンマはプ ランジャーの頭部に衝突し反発するが,反発硬度法では, この反発距離を測定する. すなわち反発度 *R* は, 式(1) として定義される.

$$R = \frac{H_R}{H_0} \tag{1}$$



Fig. 1 Impact mechanism of rebound hammer.

ここに, *H*₀:ハンマの静止状態でのプランジャーヘッドからの距離, *H*_R:ハンマの反発後のプランジャーヘッドからの距離.

ハンマは,駆動用のばねによってプランジャーヘッド の方向に運動する.この時のハンマが持つ初期ポテンシ ャルエネルギー E_0 は,式(2)となる.また,反発によって H_R の位置までハンマが戻ったとすれば,その時のエネル ギー E_R (反発エネルギー)は式(3)となる.

$$E_0 = \frac{1}{2} K_0 H_0^2 \tag{2}$$

$$E_R = \frac{1}{2} K_0 H_R^2 \tag{3}$$

ここに, K₀:ハンマ駆動用ばねのばね定数. 式(1)~式(3)より反発度は,式(4)となる.

$$R = \sqrt{\frac{E_R}{E_0}} \tag{4}$$

Schmidt らの提唱するリバウンドハンマの測定理論では、エネルギーの釣り合いを考慮し、式(5)が示されている.

$$E_0 = E_P + E_R \tag{5}$$

ここに、 E_P :入力された打撃エネルギーのうちコンク リート表面の塑性変形によって費やされるエネルギー、 E_R :ハンマの反発エネルギー.

実際の理論展開では、プランジャーの弾性変形による エネルギー吸収、機械系でのエネルギーロスなどが考慮 されているが、本質的ではないので、ここでは省略する. 以上の式をまとめ、*E*_Pについて解くと、式(6)となり、塑 性変形に消費されるエネルギーが求められる.

$$E_P = E_0 \left(1 - R^2 \right) \tag{6}$$

 E_0 は,式(2)により,リバウンドハンマの設計値から算 出することが可能であり,反発度が測定されれば,コン クリート表面の塑性変形エネルギー量が得られることに なる. Schmidt らは,リバウンドハンマを動的なブリネ



Fig. 2 Schematic diagram of Brinell hardness measurement.

ル硬度測定装置として位置付けた.そのモデルは,Fig.2 に示すように先端に球冠を持つハンマがコンクリート表 面を直接打撃することが前提となっている.ブリネル硬 度 H_Bは,球体を任意の力で測定面に押し付けて塑性変 形させ,この時の球体の貫入量,あるいは圧痕の半径か ら被測定体の硬度を求めようとする方法であり,式(7) となる.

$$H_B = \frac{F}{2\pi r x} \tag{7}$$

ここに, *F*: 球体を測定面に押し付ける荷重, *r*: 球体の半径, *x*: 球体の貫入量.

式(7)を変形すると、F=2πrH_Bx となり、[2πrH_B]をばね 定数と仮定すると、式(7)は変位-反力関係を示している ものと考えることができる.式(7)から、被測定体表面の 塑性変形エネルギーは、式(8)の通りとなる.

$$E_P = \frac{1}{2} \frac{F^2}{2\pi r H_B} \tag{8}$$

動的な載荷によっても荷重Fが貫入量に比例している とすれば,式(6),(8)から,式(9)によってブリネル硬度 が求められる.

$$H_{B} = \frac{F^{2}}{4\pi r E_{0} \left(1 - R^{2}\right)}$$
(9)

式(9)において、この段階で荷重 F は決定出来ないが、 E₀ は、リバウンドハンマの機械系の諸元から算出され、 また反発度 R は測定から得られる値である.ここで、谷 口⁸⁾は、コンクリート表面のばね定数を k としたとき、 弾性変形エネルギーが、式(10)となることに着目し、式 (10)を式(9)に代入し、式(11)を得ている.

$$E_{R} = \frac{1}{2}Fk = \frac{1}{2}\frac{F^{2}}{k}$$
(10)

$$H_B = \frac{kR^2}{2\pi r (1 - R^2)} \tag{11}$$

ただし、谷口は、ばね定数ではなく、「単位荷重当たり の全弾性変形」として、ばね定数の逆数を用いている. また、ハンマ効率等についても考慮しているので、谷口 が提案している式は、式(11)とは若干異なる.式(11)では、 ブリネル硬度を決定するために、反発度のみではなく、 コンクリート表面のばね定数を測定する必要がある.つ まり、リバウンドハンマ測定でのブリネル硬度値は、コ ンクリートの反発度のみでは決定できないことを意味し ている.これに対し、谷口は、コンクリート表面のばね 定数の逆数の実際的な推定値が±15%以内の変動に留ま るとして,これを一定値とすれば,反発度のみによって ブリネル硬度が推定できるとしている.しかし、コンク リート表面のばね定数とコンクリートの縦弾性係数は密 接な関係にあり、その関係が正比例に近いものであると すれば、±15%のばね定数の変動は、縦弾性波速度の±7.5% の変動に匹敵する. 仮に、コンクリートの縦弾性波速度 を 4000m/s とすると、縦弾性波速度の変動範囲は、 3700m/s から 4300m/s となる. この範囲には、比較的低 強度のコンクリートから高強度のコンクリートまでが含 まれることが知られていること、また縦弾性波速度をも とにコンクリート強度を推定する技術が確立されている こと ⁹を合わせて考慮すると、この変動幅を一定値とみ なすことには、再考の余地があるように思われる.

リバウンドハンマの理論展開の中でもう一つ注目すべ きは、ハンマの反発がどのような原理、あるいはメカニ ズムによってもたらされるか、論及がない点である.基 本的には、塑性変形に消費されたエネルギー以外のすべ てのエネルギーがハンマの反発に寄与するとする考え方 であるが、プランジャーやコンクリート表面の弾性変形 エネルギーのすべてが、ハンマの反発過程の時間内でハ ンマに伝達され、ハンマに対して有効な反発速度を与え るものであるかどうか、理論的、現象論的検討はなされ ていない.

2.2 リバウンドハンマの打撃機構とブリネル硬度の 算出

リバウンドハンマでは、ハンマがプランジャーに衝突 することによって打撃力が発生する.ハンマとプランジ ャーの間にクッション等の緩衝材がなく、ハンマが直接 プランジャーヘッドを打撃する場合について理論的に考 察する.ハンマとプランジャーの衝突速度を Voとし、ハ ンマ及びプランジャーを1次元の棒とみなせば、ハンマ とプランジャーが接する境界では、運動速度は等しく、 かつ力が釣合うため、式(12)に示す通りとなる.

$$\begin{bmatrix}
 V_0 + V_H = V_P \\
 Z_H V_H + Z_P V_P = 0
 \end{bmatrix}$$
(12)

ここに、 V_H : 打撃によってハンマに発生する粒子速度 (振動速度)、 V_P : 打撃によってプランジャーに発生す る粒子速度(振動速度)、 Z_H : ハンマの機械インピーダン ス、 Z_P : プランジャーの機械インピーダンス.

Zは機械インピーダンスであり,断面積,縦弾性係数, 縦弾性波速度とは,式(13)の関係がある.

$$Z = \frac{AE}{c} \tag{13}$$

ここに, *A*:断面積, *E*:縦弾性係数, *c*:縦弾性波速 度.

波動が平面波の場合,機械インピーダンスと粒子速度 の積は力に相当する.インピーダンスの比率 η を式(14) とおき,式(12)を解くと式(15)が得られる.

$$\eta = \frac{Z_P}{Z_H} \tag{14}$$

$$V_P = \frac{1}{1+\eta} V_0$$

$$V_H = -\frac{\eta}{1+\eta} V_0$$
(15)

すなわち,打撃によってプランジャーに発生する力は,式(16)となる.

$$F_P = \frac{1}{1+\eta} Z_P V_0 \tag{16}$$

この打撃力の継続時間 T_0 は、波動がハンマを一往復する時間であり、式(17)となる.

$$T_0 = \frac{2L_H}{c_H} \tag{17}$$

ここに, L_H : ハンマの長さ, c_H : ハンマ内の縦弾性波 速度.

ハンマの機械インピーダンスの方がプランジャーの機 械インピーダンスよりも大きい場合,衝突によって発生 した打撃波動がハンマ内を一往復して再びプランジャー との接触面に戻ってきたとき,ハンマは再度プランジャ ーを押し,これによって打撃力が更に継続する.この時, ハンマの速度は,式(18)となる.

$$V_{H2} = V_0 - \frac{2\eta}{1+\eta} V_0 = \frac{1-\eta}{1+\eta} V_0$$
(18)

よってプランジャーの粒子速度は,式(19)となる.

$$V_{p2} = \frac{1 - \eta}{1 + \eta} \frac{1}{1 + \eta} V_0 \tag{19}$$

ハンマ内での波動の多重反射が N 回継続する間,打撃 力も継続するとすれば,このとき,プランジャーに発生 する粒子速度は,式(20)となる.

$$V_{pN} = \left(\frac{1-\eta}{1+\eta}\right)^{N-1} \frac{1}{1+\eta} V_0$$
 (20)

η は、正の値であるから、反射回数の増加とともに、 発生する粒子速度は低減し、衝突直後に発生する粒子速 度を越えることはない. 打撃力は、プランジャーの粒子 速度にプランジャーの機械インピーダンスを乗じて式 (21)となる.

-61 -

$$F_{pN} = Z_p V_{pN} \tag{21}$$

プランジャーに作用する打撃力の値は、このようにし てリバウンドハンマの諸元を元に算出することが出来る. 打撃力が算出できるとすれば、式(9)にその力を代入し て、ブリネル硬度測定時の不確定要素を減らすことがで きると考えられる.実際、最初の打撃力によって塑性変 形が終了すると仮定して、式(9)に式(16)を代入すると、 式(22)が得られる.

$$H_{B} = \frac{\left(\frac{1}{1+\eta}Z_{P}V_{0}\right)^{2}}{4\pi r \frac{MV_{0}^{2}}{2}\left(1-R^{2}\right)} = \frac{1}{2\pi rM}\left(\frac{Z_{P}}{1+\eta}\right)^{2}\frac{1}{1-R^{2}}$$
(22)

式(22)による反発度とブリネル硬度の関係を Fig. 3 に 示す.なお,計算に使用したリバウンドハンマの諸元は, Table 1 のとおりである. 反発度 R 以外は, すべてリバウ ンドハンマの諸元で決定される.ところが,式(22)では 反発度が0の場合であっても、ブリネル硬度値がリバウ ンドハンマの諸元によって決定される具体的な値を持つ ことになるが,これは現実的ではない.ブリネル硬度は, コンクリートの性質であって、リバウンドハンマの諸元 によって決定される値ではないからである.また、反発 度が0という状況は、リバウンドハンマの打撃エネルギ 一全てがコンクリート表面の塑性変形に消費されること を意味しており、ブリネル硬度を測定するという視点で は、最も理想的な状況であると言えるが、式(22)には、 その状況は反映されない.この原因は、少なくとも式(9) までの式の導出過程では、打撃力がコンクリートの特性 に依存するものとして取り扱われているにも関わらず, 実際上の打撃力を式(16)のように波動論から導出し、こ れを式(9)に代入したためである.式(16)での打撃力は, プランジャーヘッドに発生する力であるが、実際にコン クリート表面の塑性および弾性変形によって発生する力 は、式(16)の打撃力がプランジャーを介してコンクリー ト表面に伝達された時、その境界条件によって決定され る反力である.この反力を解くためには、コンクリート 表面を力学的なモデルで記述する必要があり,本論では, コンクリート表面を弾性体とし、プランジャー先端にお けるコンクリート表面がばねとしてモデル化できるもの としている.

3. 波動理論による反発係数の検証

3.1 コンクリート表面のばね係定数と反発度の関係 現在一般的に使用されているリバウンドハンマの打撃 機構を Fig. 1 に簡略化して示している.ハンマは,プラ ンジャーの頂部に衝突し,そこで打撃力が発生する.こ の打撃力は,プランジャー内を先端方向に波動(進行波) として伝搬する.プランジャー先端では,接触するコン クリート表面の抵抗と進行波の力の釣り合いによって, 反射波(後退波)が発生する.後退波が圧縮方向の力を持



Fig. 3 Relation between rebound number and brinell hardness by equation (22).

Table 1 Specification of rebound hammer.

	-			
Mass of	Distance	Spherical	Spring	Impact
hammer	of	radius of	constant	energy
M	hammer	plunger	K	Ε
(g)	L	(mm)	(N/m)	(N-m)
	(mm)			
$360\sim$	$72.0\sim$	$24.0\sim$	$700\sim$	$2.10\sim$
380	78.0	25.0	840	2.30

つ場合,その波動がプランジャー頂部に達すると,その 力でハンマを押し戻すことになる.

計算を簡単とするため、ハンマとプランジャーの機械 インピーダンスを等しいとおく. ハンマとプランジャー が同一材質であれば、両者の断面積を等しくすることと 同義である. すなわち、 $\eta=1$ である. このとき、打撃力 は矩形波となり、式(15)から、式(23)の通りとなり、その 継続時間は式(24)に示す通りとなる.

$$F_{\rm P} = \frac{1}{2} Z V_0 \tag{23}$$

$$T_0 = \frac{2L}{c} = \frac{2M}{Z} \tag{24}$$

プランジャー先端に接するコンクリートがばね定数 *K* のばねとして作用するとすれば,プランジャー先端での 運動方程式は,式(25)となる.

$$Z\left(v_{\rm F}+v_{\rm B}\left(t\right)\right)+K\int\left(v_{\rm F}\left(t\right)+v_{\rm B}\left(t\right)\right)dt=0$$
(25)

ここに *v*_F: プランジャーの頂部から先端方向に進む波 (進行波), *v*_B: プランジャー先端から頂部へ進む波(後 退波).

左辺第1項は、プランジャー内の力、第2項は、コン クリート表面の弾性変形による反力である.また、左辺 第1項で v_F を定数として取り扱っているが、これは、式 (23)および式(24)に示されるように、進行波は矩形波であ るから、着目時間内では一定値であって時間の関数とは ならないからである. v_B はプランジャー先端からの反射 波であり、反射波がプランジャーを圧縮する方向の力成 分を持っている場合,ハンマはプランジャーを伝搬した この反射波によって反発する.式(25)を微分して,式(26) が得られる.

$$Z\frac{\mathrm{d}v_{\mathrm{B}}}{\mathrm{d}t} + K\left(v_{\mathrm{F}} + v_{\mathrm{B}}\right) = 0 \tag{26}$$

式(26)を,式(27),式(28)とおくと,V_Fは定数であるため 式(29)となる.

$$v_{R}(t) = c \exp(-\lambda t) \tag{27}$$

$$\frac{\mathrm{d}v_{\mathrm{B}}}{\mathrm{d}t} = -\lambda c \exp\left(-\lambda t\right) \tag{28}$$

$$-Z\lambda c\exp(-\lambda t) + Kc\exp(-\lambda t) = 0$$
⁽²⁹⁾

よって, $\lambda=K/Z$ となり, 式(30)が得られる.

$$v_B(t) = c_1 + c_2 \exp\left(-\frac{K}{Z}t\right)$$
(30)

時刻0では、プランジャー先端の速度は0であるため、 式(30)を $v_{\rm B} = -v_{\rm F}\Big|_{r=0}$ の初期条件の下で解く.式(30)を微 分し、式(31)を得る.

$$\frac{dv_B(t)}{dt} = -c_2 \frac{K}{Z} \exp\left(-\frac{K}{Z}t\right)$$
(31)

式(31)を式(26)に代入し, *t*=0 とおいて *C*₂を求め, さらに *C*₂を式(30)に代入し, 同じく *t*=0 とおいて *C*₁を求める. *C*₁と *C*₂を式(30)に代入すると式(32)が得られる.

$$v_{\rm B}(t) = v_{\rm F}\left(1 - 2\exp\left(-\frac{K}{Z}t\right)\right) \tag{32}$$

式(32)は、打撃力が一定の場合に、プランジャー先端 に発生する反射波を示している.

ハンマがプランジャー頂部に衝突するときの速度(初 速度)と反発するときの速度の比は反発係数であり、リバ ウンドハンマでいう反発度と定義は異なるが、類似の概 念である.反発係数は、進行波の力積と圧縮応力を持つ 後退波の力積の比で表すことができる、すなわち、式(33) となる.式(32)を式(33)に代入して積分すると、式(34)と なり、反発係数は、リバウンドハンマの装置の諸元とコ ンクリート表面のばね定数に支配されることがわかる.

$$R = \frac{\int_{0}^{T_{0}} v_{\rm B}(t) dt}{v_{\rm F} T_{0}}$$
(33)

$$R = \left\{ 1 - 2\frac{Z}{KT_0} \left(\exp\left(-\frac{K}{Z}T_0\right) - 1 \right) \right\}$$
(34)





Fig. 4 Relation between spring coefficient and coefficient of restitution of concrete surface.

し、ハンマをプランジャーと同断面積の弾性棒としてい る)をもとに計算した、コンクリート表面のばね定数と反 発係数の関係を示す.反発係数は、コンクリート表面の ばね定数に対して線形関係ではないが、単調増加関係に あり,反発係数を測定することによって,コンクリート 表面のばね定数を計測することが可能であることが示さ れる. リバウンドハンマで測定される反発度は、従来の 理論ではコンクリート表面の塑性変形と関係づけられて いたが,解析結果から,反発度は,コンクリート表面の ばね定数, すなわち, コンクリートの弾性的な物性を指 標化する値とすることが可能であることがわかった. し かしながら、ばね定数が小さいコンクリート(300MN/m 以下)では、反発度の測定ができないこと、ばね定数の 高いコンクリートでは、反発度の変化が小さくなること が示されている.つまり、反発度はばね定数が大きい領域 では、感度(分解能)が低下することがわかった.

3.2 プランジャーの長さの影響

前節では、ハンマとプランジャーの断面の機械インピ ーダンスが等しいことを前提として解析解を導いたが、 実際のリバウンドハンマでは、ハンマはマッシブであり、 質点として取り扱った方がより現実的と思われる.ここ では、質点と見なしえる質量 Mのハンマが1次元の弾性 棒であるプランジャーに衝突するとして運動方程式を導 き、その解析解、数値解を用いて反発係数の測定値につ いて考察する.

質量Mの質点が機械インピーダンスZの1次元弾性棒の一端に速度 V_0 で衝突するとき、力の釣り合いから、式(35)が成立する.式(35)に示す微分方程式の一般解は、積分定数をCとして、式(36)となる.

$$M\frac{dV}{dt} + ZV = 0 \tag{35}$$

$$\frac{M}{Z}\ln V + C = -t \tag{36}$$

— 63 —

時刻0における速度を V_0 として式(36)を解くと,式(37) が得られる.これは、ハンマの衝突によってプランジャ 一頂部に発生する粒子速度である.

$$V = V_0 \exp\left(-\frac{Z}{M}t\right)$$
(37)

式(37)による粒子速度は、進行波としてプランジャー 先端部に伝搬する.プランジャー先端はコンクリートの 表面に接し、またコンクリート表面が疑似的なばねとし て挙動するとする.プランジャー先端での力の釣り合い は、式(38)となる.

$$F_{\rm E} + F_{\rm B} = Kx \tag{38}$$

ここに、 $F_{\rm F}$: プランジャーの頂部から先端方向に進む 力、 $F_{\rm B}$: プランジャー先端から頂部へ進む力、x: コンク リート表面の変位量、K: コンクリートのばね定数.

カと粒子速度の関係は,進行波,後退波についてそれ ぞれ式(39)の関係があり,コンクリート表面の変位量 *x* は,式(40)となる.

$$F_{\rm F} = ZV_{\rm F}$$

$$F_{\rm B} = -ZV_{\rm B}$$

$$x(t) = \int_{0}^{t} \left(2V_{\rm F}(\tau) - \frac{K}{Z}x(\tau)\right) d\tau \qquad (40)$$

式(38)に式(40)を代入し、また式(39)の関係を考慮して 後退波の粒子速度を求めると、式(41)となる.

$$V_{\rm B}(t) = V_{\rm F}(t) - \frac{K}{Z} \int_{0}^{t} \left(2V_{\rm F}(\tau) - \frac{K}{Z} x(\tau) \right) d\tau \quad (41)$$

式(41)から直接的に解析解を求めることは難しいため 有限差分法による数値解によってこれを解く.式(40)を 時間 7 で微分し,式(42)を得る.

$$\frac{dx}{d\tau} = 2V_{\rm F}(\tau) - \frac{K}{Z}x(\tau) \tag{42}$$

時間差分間隔を Δt として,着目する時刻を $t=i\Delta t$ として離散化する.

$$\frac{1}{\Delta t} (x_i - x_{i-1}) = 2V_{\mathrm{F}i} - \frac{K}{Z} x_{i-1}$$
(43)

これから,

$$x_{i} = x_{i-1} + \left(2V_{\mathrm{F}i} - \frac{K}{Z}x_{i-1}\right)\Delta t$$
 (44)

となる.したがって,式(45)となる.

$$V_{\rm B}(t) = V_{\rm F}(t) - \frac{K}{Z} x_i \tag{45}$$

ここに,式(45)で示されるプランジャー内の後退波の 全てがハンマの反発に使われるわけではないことに注意 する必要がある. すなわち, ハンマの反発過程での速度 よりもプランジャー内の後退波の粒子速度が大きい場合 にはハンマは加速されるものの, ハンマの速度がプラン ジャー内の後退波の粒子速度を上回ると, ハンマはプラ ンジャーを離れるため, プランジャー内の後退波の粒子 速度はハンマの反発には寄与しない. また, プランジャ ー内の後退波がプランジャー頂部に達した時, ハンマの 速度が0でない場合には, ハンマの進行速度(プランジャ ー内の進行波の速度)を考慮する必要がある. ハンマの反 発速度は, 式(46)となる.

$$V_{\rm R} = -\frac{1}{M} \int_{0}^{T} \left\{ V_{\rm F}\left(t\right) + V_{\rm B}\left(t + \frac{2L}{c}\right) \right\} dt \qquad (46)$$

ここに,*L*:プランジャーの長さ.

積分区間は,積分した値が VRを越える時間である.このようになるのは,式(45)までの計算での進行波は,波動がプランジャー先端に到達した時刻を0として計算しているが,ハンマの反発を考慮する場合には,プランジャー頂部での進行波とプランジャー先端で反射して戻ってきた後退波の重畳を考慮する必要があるためである.

Fig. 5 にプランジャーの長さを 100mm, 150mm 及び 200mm として計算したコンクリート表面のばね定数と 反発係数の測定値の関係を示す. 図に示されるとおり, プランジャーの長さによって, ばね定数と測定された反 発係数の関係は異なる. プランジャーが短い程, コンク リート表面のばね定数が同じでも測定される反発係数の 値は小さくなるが, これはプランジャー内での進行波と 後退波の干渉によるものである. 以上のことより, プラ



Fig. 5 Relation between spring coefficient and coefficient of restitution of concrete surface by plunger length.

ンジャー長さは JIS には規定されていないが,反発度の 測定値に影響を与える要因のひとつであることが示された.

3.3 ハンマ質量の影響

JIS では、ハンマ質量が規定されているが、ハンマ質量が JIS の規定とは異なるリバウンドハンマも製造されている¹⁰). Fig. 6は、ハンマ質量が異なる場合のばね定数と反発係数の測定値の関係をもとめたものである.ハンマ質量が大きい程、反発係数の計算値が小さくなる傾

向を示すが、これはハンマによる打撃力の継続時間が長 くなり、それに伴い、プランジャー頂部での進行波とプ ランジャー先端で反射した後退波の干渉度合いが大きく なるためである.

波動論から,反発係数はプランジャーの長さやハンマ の質量に影響を受けることが明らかとなった.これは, リバウンドハンマの構造を厳密に定めない限り,反発係 数自体がコンクリート表面の力学的特性のみならず装置 の構造の影響を受けた値であることを示している.

5. 反発硬度法の力学モデルの問題点と新手法の提案

従来から提唱されている反発硬度法の理論では,式(5) のように,塑性変形で消費されるエネルギー以外はすべ てハンマのリバウンドに費やされることを前提としてい る.しかし,波動理論からの考察において,コンクリー ト表面やプランジャーの弾性変形エネルギーの全てがハ ンマのリバウンドに費やされるわけではないことがわか った.ここでは,式(5)のようなエネルギーの釣り合いが 成立する条件について考察する.

リバウンドハンマがプランジャーを持ち, ハンマはコ ンクリート面ではなくプランジャー頂部に衝突して打撃 力が生成される機構を解析するには、波動論的考察が必 要である.後退波(圧縮波)が進行波(圧縮波)と同じ大きさ で反射する条件は、先端固定点である. つまり、プラン ジャー先端が接するコンクリート面は、塑性変形が終了 した後は剛体としての挙動を示す構造でなければならな いことを意味する.また、剛体である材料には塑性変形 は発生しないことを考慮すると、コンクリートは、Fig.7 に示すように、剛体部分と塑性体の2層構造となってい る必要があるが、Fig. 7 の構造は、コンクリート表面の 力学モデルとして適当ではなく,現実的でもない.また, Fig. 7 での塑性変形エネルギーは、塑性体の強度のみで はなく, 塑性層の層厚の影響を受けることになる. した がって、式(5)をもとにコンクリートのブリネル硬度を測 定しようとする場合, 塑性層の厚さはあらかじめ既知で あることも要求される.以上のことより,現行の反発硬 度法は、プランジャーを介してコンクリート表面に間接 的に打撃力を与えているのに対し、理論展開ではハンマ で直接コンクリートを打撃していることが前提となって いるため、これを再現するモデルとして非現実的な力学 モデルを適応せざるを得ないという問題点を有している. これに対し、著者らは、ハンマで直接的にコンクリート を打撃してコンクリート表面の弾性係数に相当する値で ある機械インピーダンスを測定する手法を提案している 7,11). この方法は、加速度計を内蔵したハンマで直接的 にコンクリート表面を打撃することで得られる打撃力波 形を測定・解析することでコンクリートの機械インピー ダンスを測定する方法であり,その測定方法は, NDIS3434-3: 機械インピーダンス試験方法¹²⁾として日本



Fig. 6 Relation between spring coefficient and coefficient of restitution of concrete surface by hammer mass.



Fig. 7 Dynamic model of concrete in the theory of rebound hammer.

非破壊検査協会規格が制定されている. 直接打撃である ことから,ハンマの持つ運動エネルギーとコンクリート 表面の弾性変形エネルギーの関係が単純・明瞭であるこ と,また,ハンマに生じた打撃力とコンクリート表面に 発生した反力が等しいことから,エネルギー収支を基本 に理論展開が可能であり,理論と実際で齟齬が発生しな い.このため,反発硬度法に比較して,理論的に単純化・ 明瞭化された方法と言える.

5. まとめ

本論文では、リバウンドハンマによって測定される反 発度について、波動論の視点から考察した.以下に得ら れた知見をまとめる.

1) リバウンドハンマは、動的なブリネル硬度計として位置付けられ、その理論はエネルギー収支を基本に組み立てられている.リバウンドハンマによってブリネル 硬度を決定するには、反発度とコンクリート表面のばね 定数が必要である.既往の研究では、ばね定数の推定値が±15%の範囲に収まることから、これを一定値として 取り扱うことでブリネル硬度の推定が可能であると論じ ている.しかしながら、この変動幅の範囲には比較的低 強度から高強度コンクリートまでが含まれるため、ばね 定数を一定値として取り扱うには再考の余地がある.

2) リバウンドハンマの打撃機構は、ハンマで直接コ

ンクリート表面を打撃する機構ではなく、プランジャー を介して間接的に打撃力をコンクリート表面に伝える機 構となっている.この場合、打撃力はハンマとプランジ ャーの質量や形状など、リバウンドハンマの諸元によっ て支配され、コンクリート表面の力学的特性の影響を受 けない.一方、リバウンドハンマの測定理論では、発生 する打撃力はコンクリート表面の力学的特性を反映した 値であることを前提としており、理論と実際で相違が発 生している.プランジャーを介する間接打撃によって、 従来からのリバウンドハンマの測定理論を成立させるに は、塑性層と剛体という2層の力学モデルの構築が必要 で、この力学モデルは現実のコンクリートにそぐわない.

3) 波動理論を用いた反発係数の検証から,リバウン ドハンマの反発度は,従来からの理論とは異なり,塑性 変形に伴うエネルギー吸収量を示した指標ではなく,弾 性的な指標を示した値であることが示された.しかしな がら,ばね定数が小さい範囲では反発度の測定が難しく, ばね定数が大きい範囲ではその感度が低下することも明 らかとなった.

4) 現実的なリバウンドハンマをモデルとして反発係 数を検証した結果,プランジャーの長さやハンマ質量, またプランジャーやハンマの形状など,装置の諸元が反 発係数に影響を及ぼすことが明らかとなった.これは, プランジャー内の進行波と後退波の干渉が原因である. この結果は,リバウンドハンマの構造を厳密に定めない 限り,反発係数自体がコンクリート表面の力学的特性の みならず装置の構造の影響を受けた値であることを示し ている.

参考文献

- K.Gaede, E. Schmidt., Ruckprallprung von Betton mit dichtem Gefuge (1960).
- 実施コンクリート強度判定委員会:シュミットハン マーによる実施コンクリートの圧縮強度判定方法指

針 (案), 日本材料学会材料試験第 7 巻, 第 59 号, pp.426-430 (1958).

- JSCE-G504-2007:硬化コンクリートのテストハンマ 一強度の試験方法,土木学会基準.
- 岡田清,六車熙編:コンクリート工学ハンドブック, 朝倉書店, p.509 (1981).
- 5) 明石外世樹:コンクリートの非破壊試験に関する研 究,土木学会論文集, No.390 V-8, pp.1-22 (1988).
- JIS A 1155-2003:コンクリートの反発度の測定方法, 日本工業規格.
- T.Sakai, G.Kubo, H.Kubo : Applicability of Mechanical Impedance Method and Rebound Hammer Method for Determining Compressive Strength of Structural Concrete, STRUCTURAL FAULTS & REPAIR-2012, Proc. CD-ROM Edition (2012).
- 8) 谷口秀明: テストハンマーによる構造体コンクリートの強度推定法に関する研究, 三井住友建設技術研究所報告第5号, pp.39-50 (2007).
- 9) (独)土木研究所,(社)非破壊検査協会,他:非破壊・局部破壊試験によるコンクリート構造物の品質検査に関する共同研究報告書(7),土木研究所共同研究報告整理番号第355号(2006).
- 10) 萩原直樹,飛田一彬,谷倉泉,渡邉晋也:反発速度比を用いたコンクリートの強度推定に関する検討,第71回土木学会年次学術講演会講演概要集, pp.V469-V470 (2016).
- 11) 久保元樹,市村千佳,八木光,笠井哲郎:機械インピ ーダンス法による圧縮強度推定に関する誤差の発生 要因と超高強度コンクリートへの適用性に関する実 験的検討,コンクリート工学何時論文集第 41 巻, pp.1823-1828 (2019).
- 12) NDIS3434-3:コンクリートの非破壊試験―打撃試験 方法 第3部機械インピーダンス試験方法,日本非破 壊検査協会規格(2015).

小規模水力発電と波力発電を普及させるための提案 小笠原 悠*¹ 山本 吉道*²

Proposal for Popularizing Hydropower and Wave Power

by

Yu OGASAWARA*1 and Yoshimichi YAMAMOTO*2

(Received on Mar. 30, 2020 and accepted on June.19, 2020)

Abstract

Since the Fukushima nuclear accident in 2011, the expansion of renewable energy has become an important issue. By promoting renewable energy, it is possible to generate eco-friendly power without resorting to importing fossil fuels or nuclear power. Therefore, we have focused on hydropower and wave power as renewable energies, and have researched the current situation and potential. Moreover, as coastal erosion has worsened around the world, we have examined the use of renewable energy for transporting sediment from depositing areas to eroding areas at a river and at a coast.

This paper summarizes the current situation and potential of micro-hydropower and wave power, and proposes a concrete plan for these power generation facilities for the comprehensive management of sediment from rivers to the coast using sand bypasses, which will enable renewable energy to expand naturally.

Keywords: Renewable energy, Micro-hydropower, Wave power, Comprehensive sediment management, Sand bypass

1. はじめに

2011 年福島原発事故以降,国民の多くが原子力発電を 否定した結果,火力発電のウェートが著しく高まった. そして,大量に石炭・石油を輸入しているが,これは我 が国の貿易収支を 2011 年以前の黒字から赤字へ転落さ せ,温暖化ガスの増加に繋がった.さらに,化石燃料は 近い将来涸渇する可能性が高いことも考えるならば,再 生可能エネルギーの拡大が重要な課題となってくる.我 が国は,今後のエネルギー政策の中心基軸として,再生 可能エネルギーの大幅な普及を目指すべきであろう.

経済産業省資源エネルギー庁データ「電力調査統計¹⁾」 によれば、2018 年度の国内発電電力量に占める再生可能 エネルギー比率は 17.5%. そのうち、7.5%は水力発電に よるもので、太陽光発電が 6.7%、風力発電が 0.7%、バ イオマスが 2.4%、地熱発電が 0.2%となっており、これ らの中では、水力発電と太陽光発電が主力となっている ことが分かる.

太陽光発電は、太陽電池の大量生産によるコスト低下 に基づく売電収益増が見込めるなどのメリットがあるが、 天候(曇りや雨)により発電量がばら付く、また夜間に 発電が出来ないなどのデメリットがある.風力発電もま た天候により左右される.風力発電は大きな風車を風の 力で回転させ、その運動エネルギーを電気に変換するた め、発電量は風速に左右され、設置する適地も限られて

*1 東海大学,大学院工学研究科,建築土木工学専攻 *2 工学部,土木工学科 くる. バイオマス発電は,輸入資源に直接的に頼ること なく,発電用資源の安定供給が可能であるが,一般的に 発電コストが高くなり易く,エネルギー変換効率が低い. 地熱発電は調査と建設のコストが高い. 加えて,開発候 補地が法規制の対象となっている可能性が高く,火山の ある地域は危険も多い. さらに有毒ガスを無毒化する必 要があるため,他の再生可能エネルギーに比べコストが 高くなる.

ダムによる水力発電は他の再生可能エネルギーに比べ, 維持コストが低く, CO2 排出のない自然エネルギーであ ること,エネルギー変換効率が高く,しかも天候に左右 されにくいことから,安定した電力供給が可能であるな どのメリットから,主力の再生可能エネルギーとなって いる.ただし,ダムの建設適地が無くなってきたので, 河川の流れを利用した水車発電を普及させることで今後 さらなる発電量増加を目指したい.

波力発電は波エネルギーを電力に変換するもので、島 国である日本では波エネルギーを得やすいというメリッ トがある.太平洋側ではほぼ一年間通して波が打ち寄せ、 日本海でも夏場を除けば波が発生し続けている.しかし 巨大な波から小さな波まで安定して発電させることは困 難であるなどの問題を解決する必要がある.

全国各地で再生可能エネルギーの取り組みが盛んとなっているが、本研究では、このうち水力発電の中でも小規模水力発電(ここでは、出力 1,000 kW以下の水力発電)、および波力発電に焦点を当て、現状と今後の可能性について考察する.

さらに、再生可能エネルギーが普及しにくい共通の理 由は、新しい技術開発が必要になる場合が多いことと、 大量発注がない限り生産コストが高くなることなどがあ る.それゆえ、水力発電と波力発電を普及させるための 起爆剤として、これらの発電力を全国の河川から海岸に かけての総合土砂管理のために、堆積域から侵食域(自 然に生じた場合は"浸食"、人工的に生じた場合は"侵食" を使う)への土砂輸送に使うことを企画・検討する.

先進国では、社会・経済活動を高める為、ダムや港を 形成する防波堤を各所に建設したが、これらは土砂の下 流への移動を阻害し、下流側の深刻な侵食(国土交通省 によると毎年160haの砂浜が消失²⁾)を招いてしまった. ダム湖や港への土砂堆積を放置すれば、土砂がやがて溢 れ出し、下手側へ供給されるようになるが、現実には、 ダムや港の機能を維持するために、土砂浚渫を実施する ので、この侵食問題は永遠に続くことになる.それゆえ、 溜まると困る場所に溜まった土砂を下手侵食部へ人工的 に移動させて、河川から海への総合土砂管理することが 望まれる.この土砂輸送の動力源として、水力発電と波 力発電を積極的に活用することで、これらの普及につな げることを提案する.

2. 小規模水力発電の現状と可能性

2.1 小規模水力発電の現状

小規模水力発電の定義は、厳密には統一されておらず、 新エネルギー・産業技術総合開発機構の「マイクロ水力 発電導入ガイドブック」³⁾では出力 10,000 W~1,000 Wを 小水力、出力 1,000 W~100 Wをミニ水力、出力 100 W 以下をマイクロ水力と分類している.しかし、本研究で は、出力 1000 W以下の場合を小規模水力発電と呼ぶこと にする.

小規模水力発電では、ダム建設を前提とせず、自然環 境と調和した持続可能な循環型の電源を目指す.経済産 業省資源エネルギー庁の平成 30 年のデータ⁴⁾によれば、 日本には 1,000kW 以下の小規模水力発電所が 579 地点、 1 時間当たり総電力量で約 1,460GW あり、その中には農 協や土地改良区が運営しているものもある.小規模水力 発電の設備が FIT 制度(再生可能エネルギーの固定買取 制度:平成 24 年 7 月~)の対象となり、中小規模の水力 発電の導入が徐々に進み、今後新しい産業分野として成 長していく見込みである.しかし、小規模水力発電を設 置する際に水利権の問題を解決する必要があり、最大出 力 20kW 以上では電気事業法による規制も受ける.これ らの規制は大きな負担になっており、小規模水力発電の 普及によって、外国からの燃料輸入依存度を低下させる ためにも、制度の簡素化や一層の規制緩和が必要である.

2.2 水車による発電可能量

水車による発電量 P[W]は式(1)から,管水路の流速 v[m/s]は式(2)から求まる.

$$P = gQh_e \times \eta \tag{1}$$

$$v = \sqrt{2gh/\left\{1 + f\left(l/d\right)\right\}}$$
(2)

ここに, g は重力加速度 $[m/s^2]$, Q は給水の流量 $[m^3/s]$, h_e は損失を考慮した有効落差[m], η は効率, hは落差, fは摩擦損失係数, lは管水路の長さ, dは管水路の内径で ある.

式(1)から,給水の流量と有効落差が大きいほど,水力 発電量は大きくなるが,この様な観点から発電効率の良 いダムを新たに造れる適地がほぼ無くなったので,Fig.1 に示すように,渇水期でも安定的な流量(1m³/s 程度以 上)を期待できる1級河川と大規模な2級河川で,平均 地盤勾配が1/25~1/20(水平距離100m間で4m~5mの 高低差を想定)を容易に確保できる扇状地帯を主な建設 地と考え,河川の両側に一か所ずつ,2か所に小規模発 電(水車発電)施設を設置することを考える.また,河 川の横断面積を低減させないために,管水路で給水を 100m程度引き込み,4~5mの落差を確保して水車に作 用させる.この給水は水車に作用させた後,利水権上の 問題を避けるために,管水路で河川まで戻す(排水路長 50m程度)ことを考える.

今,流量 1m³/s 以上,落差 4~5m,河川から水車まで の給水距離 100m,管水路内径 0.6m,流速 4m/s 以上(管 の摩擦損失係数を 0.02 と仮定して,式(2)から算出),効 率 0.7 と設定し,式(1)へ代入すれば,水車発電 2 か所の 発電量は 15 kW以上になる.1 時間当りの発電量は 54,000 W以上,1 年間の有効稼働日数を 300 日と仮定すれば,1 年間当りの発電量は約 390GW(=54,000 kW×24h×300day) 以上となる.なお,第4章で詳しく述べるが,この発電 量で 18 万 m³以上の土砂を輸送できる.

因みに,一つの大河川で堆積・浸食問題になっている 一年間の土砂量は5万 m³~30万 m³である.

さらに、この程度の大河川は全国で 100 か所以上あ るので、全国で可能な水車発電量としては、年間で 39,000GW 以上を期待できる.



Fig. 1 Illustration of how to supply water from a river to a hydroelectric power plant with a water wheel.

— 68 —

2.3 発電施設の建設費と運営修繕費

前節の条件下で建設費と 50 年間の運営修繕費を求め ると以下のようになる.

管水路,支保工,電線,架台については,メーカーの ホームページにある単価を参考値とし,工事費について は建設物価の数字を用いた.発電装置については、発電 量が同程度の山梨県都留市,家中川小水力発電所「元気 くん2号⁵⁾」の費用を参考とした.

- (1) 水車発電2か所の建設費(単位万円)①水車代:1,500(一か所)
- ②発電機代:4,000(")
- ③上屋等施設費:2,000 (〃)
- ④ 2か所の建設費:15,000 {= (①+②+③) ×2}

(2)給水・排水管と送電線の建設費(単位万円)
⑤管設置費単価:40(万円/m)
⑥延長150mでの管建設費:12,000 {(⑤×150m)×2}
⑦電線設置費単価:2.5(万円/m)
⑧延長1,000mでの管建設費:5,000 {(⑦×1000m)×2}

- (3) 50年間の運営修繕費(単位万円)
- ⑨人件・光熱雑費:800(一か所)
- ⑩修繕費:760(一か所,耐久材は建設費の2%,水車 と発電機は購入費の10%)

以上の(1)~(3)より,2か所の建設費と50年間の 運営修繕費は,約18.8億円と見積もられる.

3. 波力発電の現状と可能性

3.1 波力発電の現状

波力発電とは、波による運動エネルギーを発電機によって電気エネルギーに変換する発電法の総称であり、波 による海水運動(上下,前後,および,回転)を直接的 にタービンやクランク軸に作用させて運動エネルギーを 取り込む直接駆動式発電法と、波の運動エネルギーで起 こした風や海水の流れでタービンを回す間接駆動式発電 法がある.

波エネルギーは、場所や時間によって変動するため、 地形や水深などの条件から最適な発電方式を採用するこ とが大切である.太陽光発電や風力発電などの再生可能 エネルギーに比べ、天候に左右されにくい特徴があり、 空気よりも比重の重い水の運動エネルギーを利用するた め、効率よくエネルギーを変換できれば、これまで以上 の発電量が見込める.

2019年にドイツの NEMOS 社が開発した波による浮体 の動揺を利用した新たな波力発電機⁹が注目されている. 従来の方式と異なり設置が容易で費用が安く,工期も短 縮可能である.また,環境に合わせてサイズの調整がで きるため,無駄を最小限に抑え,効率を最大化できる. 現在も研究が進められており,エネルギー変換効率を 70%まで上げることを目標に開発が進められている.こ のような優れた発電機の開発がさらに進み普及すれば, 大電力の低コスト発電が可能となる.

3.2 波力による発電可能量

波力による幅 1m 当りの発電量 Po[kW/m]の定義は,式(3)で示される.

$$P_o = \left(\frac{1}{8}\rho g H^2\right) \times c_g \times \eta \tag{3}$$

ここで、 ρ は海水の密度、H は入射波高、 c_g は波群の速度、 η は効率である.

そして,入射波高と波群速度に沖波のそれらを用い, 効率に η≈0.5 を用いると,次の沖波用の算定式を得る.

$$P_{a} \approx 0.5 \times H_{a}^{2} \times T \tag{4}$$

ここで、Hoは沖波波高、Tは波の周期である.

さらに、入射波高と波群速度に砕波地点でのそれらを 用い、砕波の波高水深比に 0.6 を用いると、次の砕波用 の算定式を得る.

$$P_{o} \approx 0.161 \rho g^{1.5} \times H_{b}^{2.5} \times \eta \tag{5}$$

ここで, Hbは砕波波高である.

国立技術開発法人港湾空港技術研究所の高橋・安達⁷⁾ や片山ら⁸⁾などが,式(4)を用いて日本全域の沖波による 波パワーを見積もっているが,本研究では日本全域での 現実的な発電可能量を見積もるため,2018年度の同研究 所の年間平均の砕波波高データを用いて,国土交通省港 湾局の波浪観測所のある全ての海岸での発電量を式(5) から求めると,Table 1 のようになった.

本研究で沖の波高を使わなかった理由は,波が沖から 岸へ近づくにつれ,その波高は地形の影響を受けて変化 するため,発電施設の有る場所での波高は沖波波高とは 違っており,実際の発電量も沖波のそれとは異なる.一 般に,水深が浅くなるほど波高は大きくなり,砕波する 時の波高が最大であり,それより浅くなると波力は一気 に弱まる.したがって,砕波位置に発電施設を置くのが 効率的である.しかし,実際の波は不規則波であるため, 大きすぎる波が作用すると,発電施設は壊れる可能性が ある.それゆえ,施設の強度よりも強い全ての波が砕波 する水深に,発電施設を設置すべきである.そして,発 電量の評価には,平均波高を使って計算すれば,エネル ギー平均波高の場合より小さくなるので,発電量を実際 より過小評価する.ゆえに,実際の発電量より少なくて 当てが外れる事態にはならないと考えられる.

対象海岸の総延長 3,370km 間で1時間当りの発電量は 約 84,879GW になった.ここで躯体や受波板による波エ ネルギーの吸収ロス,発電機のエネルギーの変換ロス等 を考えて,効率として 40%を掛けると,約 33,952GW と なる.さらに,1年間の有効稼働日数を 300 日と仮定す れば,1年間当りの発電量は約 2.44×10⁸GW (=33,952GW ×24h×300day) となる.

さらに、我が国で実際に稼働している発電効率の良い

波力発電施設の一例として, Fig.2 に示す振り子式発電施 設を取り上げ,設置水深 4.0m,振り子幅 3.0m,平均砕 波波高 1.2m,さらに,効率 0.4 を設定して,式(5)から波 力発電 1 か所の発電量を求めると,13.7 kWとなる.1時 間当りの発電量は 13.7 kW×3600s=49,320 kW,1年間の稼 働日数を 300 日と仮定し,1年間の発電量を計算すると,約 355GW (=49,320 kW×24h×300day)となる.

3.3 発電施設の建設費と運営修繕費

上記の振り子式波力発電1か所の建設費と50年間の運 営修繕費を求めると以下のようになる.

工事費については建設物価の数字を用いた.

(1) 波力発電1か所の建設費(単位万円)	
①振り子代:1,200	
②発電機代:4,000	
③基礎上屋費:10,000	
④1 か所の建設費:15,200 (=①+②+③))

(2) 50年間の運営修繕費(単位万円)

⑤人件・設備費:800
⑥修繕費:720(耐久材は建設費の2%,振り子と発電機は購入費の10%)

⑦50年間の運営修繕費:76,000 {= (⑤+⑥) ×50}

以上の(1)~(2)より,1か所の建設費と50年間の 運営修繕費は,約9.1億円と見積もられる.



Fig. 2 Illustration of a pendulum style power plant using wave energy

4. 経済的な総合土砂管理の提案

4.1 総合土砂管理の必要性

国土交通省は、山地、扇状地、平野、河口・海岸の各 領域で発生している土砂移動に関する問題に対して、砂 防・ダム・河川・海岸の個別領域の問題として対策を行 うだけでは解決できない場合に、各領域の個別の対策に 留まらず、山地~海岸までの土砂移動場の全体を「流砂 系」という概念で捉え、流砂系一貫として、総合的に土 砂移動を把握し、土砂移動に関する問題に対して、必要

地 名	砕破波 高(m)	発電量 (kW xhr)	距離 (km)	総発電量 (GWxhr)
北海道	[H] (III)	(10) A11)	(RIII)	(0,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1,1
留萌	1.232	30,927	400	12,371
瀬棚	1.276	33,763	222	7,495
紋別(南)	_			
苫小牧	0.836	11,731	310	3,637
小計			932	23,503
日本海側				
深浦	_			
酒田	1.298	35,237	310	10,923
新潟沖	1.023	19,431	150	2,915
輪島	1.232	30,927	60	1,856
金沢	1.144	25,697	130	3,341
鳥取	1.078	22,149	170	3,765
浜田	1.177	27,590	175	4,828
藍島(九州)	0.682	7,051	95	670
小計			1090	28,298
太平洋側				
志布志湾 (九州)	0.682	7,051	50	353
室津(四国)	0.847	12,121	130	1,576
神戸	0.308	966	33	32
潮岬	1.276	33,763	215	7,259
波浮	—			
鹿島	1.397	42,345	95	4,023
小名浜	1.232	30,927	180	5,567
仙台新港	0.935	15,518	190	2,948
釜石	0.88	13,336	120	1,600
八戸	1.21	29,565	160	4,730
小計			1173	28,088
本州+四国 +九州の合 計				79,889
沖縄				
名瀬	1.221	30,241	100	3,024
那覇	0.946	15,979	30	479
中城湾	1.265	33,040	45	1,487
小計			175	4,990
総合計				84,879

Table 1 Power generation per hour at each coast.

な対策を講じるように努めている⁹⁾.

ダム湖における堆砂は,貯水有効容量の減少や放流に 伴う濁水期間の長期化につながり,ダムとしての機能を 妨げるだけでなく,結果として海岸侵食を加速させる原 因となるため,人工的に排出すべきであろう.

また. 扇状地では,河川の流速が急に弱まり,河床が 高くなる. 蛇行流路の外湾部では,流速が速まり,河床 が低くなる. 例えば,昭和57年8月の台風10号の影響 で,早川町稲又谷地区(富士川水系早川)では,河床が 5~6m上昇し橋梁が埋没した⁹⁾. それゆえ,これらの河 床変動は洪水災害低減の観点から抑制することが望まし い.

さらに,海岸の砂浜は,天然の消波施設であり,海岸 災害から陸域の人命や財産を守る機能を有するので,海 岸侵食が起きると安全性を大幅に損なうことになる.

したがって,総合的な土砂管理を行うことが必要不可 欠である.国土交通省では,現在,国土形成計画,海岸 基本計画等の各種計画において,総合土砂管理が重要な 施策として位置付けられており,各所で関係機関と連携 し取り組んでいる.

4.2 水車発電を利用した土砂管理

河川に設置した水車発電を,河川の土砂管理に利用す る場合の検討結果を以下に記す.

1 河川に於いて, 堆積域の土砂を浸食域へ移動させる べき場所は複数個所あるのが普通で,ここでは平均的な 3 か所を想定する.そして,水車発電の電力を用いて, 堆積部の土砂を水も含めたスラリー状で,水中ポンプを 用いて吸引し,浸食域にて排出する.吸引・排出には, 複数の可動装置付きポンプを用い,これの3か所分を1 ユニットと考える.

無理なく達成できる揚程として 5m, 土砂移動距離に は標準的な 700m, 輸送管の内径には入手しやすい上限 値の 0.6m, 摩擦損失係数には標準的な 0.02, スラリー比 重には無理のない 1.2, そして, 効率には標準的な 0.7 を 設定すれば, 流速 1.27m/s, 流量 0.36m³/s となり, 1ユニ ットの1時間当りの吸引・排出電力は 343,230 kWとなる.

1 か所当りの移動させるべき土砂量を 6 万 m³ と設定 すれば、1 河川での移動土砂量は 18 万 m³ (1 河川で問 題となる土砂量 5 万 m³~30 万 m³の平均値を想定)であ り、上記の吸引・排出条件の場合、18 万 m³の土砂を全 て移動させるために要する日数は約 29 日となる.

それゆえ,この29日分の吸引・排出用電力は238.9GW (≒343,230 kW×24h×29day)となり,これは前出の水車 発電2か所の年間発電可能量"約390GW 以上"に比べ て少ないので、十分に賄えることが分かる.

次に, Fig. 3 を参考に, ポンプ吸引・排出 1 ユニット の建設費と 50 年間の運営・修繕費の費用計算を行うと, 以下のようになる.

(1)吸引・排出1ユニットの建設費(単位万円)
①距離:700m(一か所)
②管設置費単価:50(")
③吸引・排出ポンプ代(6台程度):1,500(")

④吸引·排出可動装置代(二組):4,000(")

吸引・排出ポンプを固定すると,吸引箇所で大きな 穴が,排出箇所で山が出来る.これを防ぐため,Fig. 4 に示すように,電気モーターで移動可能な装置を 設置する.

⑤管理小屋等建設費:2,000 (〃)

⑥吸引・排出1ユニットの建設費:127,500 {=(①×②+③+④+⑤)×3}

(2) 50年間の運営修繕費(単位万円)

⑦人件·設備費:800(一か所)

⑧修繕費:1,290(一か所,耐久材は建設費の2%,ポ ンプと可動装置は設置費の10%)

⑨50年間の運営修繕費:313,500 {(⑦+⑧) ×50×3}

(1) ~ (2) より, 50 年間でポンプ吸引・排出 1 ユニットにかかる費用は,約 44.1 億円と見積もられる.

一方, 土砂の移動を従来の方式(バックホーで土砂を 削り取り, ダンプに積み込み, 浸食域へ運ぶ)で行う場 合, 工費は次のようになる.

1 河川での土砂量 18 万 m³を 10t ダンプで運ぶ場合,お よそ1 万回の往復が必要となる.1日に8時間稼働で移 動距離 700m に対して8往復できると仮定し,ダンプト ラック+運転手+バックホー+操縦士の工費を13万円/ 日として計算すると,1年間にかかる費用は16,250万円 (=10000÷8×13万円)となる.50年間では,約81.3億 円(=16250万円/年×50年)となる.

この工費を,水車発電施設2か所とポンプ吸引・排出 1ユニットの建設・運営修繕費約62.9億円(=18.8億円 +44.1億円)と比較すれば,水車発電を利用した土砂管 理の方が,十分に安く,かつ,環境保全上も有利である.



Fig. 3 Illustration of a sand bypass system in a river.



Fig. 4 Image of a movable facility with three pumps.

4.3 波力発電を利用した土砂管理

海岸に設置した波力発電を,海岸の土砂管理に利用す る場合の検討結果を以下に記す.

1 海岸に於いて、堆積域の土砂を侵食域へ移動させる べき箇所が1か所とは限らないので、2か所想定する. そして、波力発電の電力を用いて、堆積部の土砂を水も 含めたスラリー状で、水中ポンプを用いて吸引し、侵食 域にて排出する.吸引・排出には、複数の可動装置付き ポンプを用い、これの2か所分を1ユニットと考える.

無理のない落差として 2m, 標準的な輸送距離として 400m, 輸送管の内径には入手しやすい上限値の 0.6m, 摩擦損失係数には標準的な 0.02, スラリー比重には無理 のない 1.2, そして, 効率には標準的な 0.7 を設定すれば, 流速 1.27m/s, 流量 0.36m³/s となり, 1ユニットの 1時間 当りの吸引・排出電力は, 228,820 kWとなる.

1 か所当りの移動させるべき土砂量を 9 万 m³ と設定 すれば、1 海岸での移動土砂量は 18 万 m³ (1 海岸で問 題となる土砂量も 5 万 m³~30 万 m³) であり、上記の吸 引・排出条件の場合、18 万 m³の土砂を全て移動させる ために要する日数は約 29 日となる.

それゆえ,この 29 日分の吸引・排出用電力は 159.3GW (≒228,820 kW×24h×29day) となり,これは前出の波力 発電 1 か所の年間発電可能量約 355GW 以下なので,十 分に賄えることが分かる.

次に, Fig. 5 を参考に, ポンプ吸引・排出 1 ユニット の建設費と 50 年間の運営・修繕費の費用計算を行うと, 以下のようになる.

(1)吸引・排出1ユニットの建設費(単位万円)
①距離:400m(一か所)
②管路工事単価:50(")
③吸引・排出ポンプ代(6台程度):1,500(")
④吸引・排出可動装置代(二組):4,000(")
⑤上屋等建設費:2000(")
⑥吸引・排出1ユニットの建設費:55,000 {=(①×②+③+④+⑤)×2}

(2) 50年間の運営修繕費(単位万円)

⑦人件·設備費:800 (一か所)

⑧修繕費:990(一か所,耐久材は建設費の2%,ポンプと可動装置は設置費の10%)

⑨50年間の運営修繕費:179,000 {(⑦+⑧)×50×2}

(1) ~ (2) より, 50 年間でポンプ吸引・排出 1 ユニットにかかる費用は,約 23.4 億円と見積もられる.

一方, 土砂の移動を従来の方式(バックホーで土砂を 削り取り, ダンプに積み込み, 侵食域へ運ぶ)で行う場 合, 工費は次のようになる.

1 海岸での土砂量 18 万 m³を 10t ダンプで運ぶ場合,お よそ1 万回の往復が必要となる.1 日に 8 時間稼働で移 動距離 400m に対して 10 往復できると仮定し,ダンプト ラック+運転手+バックホー+操縦士の工費を 13 万円/ 日として計算すると,1 年間にかかる費用は,13,000 万 円(=10,000÷10×13 万円)となる.50 年間では,約 65.0 億円(=13,000 万円×50 年)となる.

また,海岸侵食対策工法として有名な離岸堤群工法で 対応する場合を考える.対策の必要な海岸延長と離岸堤 一基の長さに,標準的な 2,000m と 100m を考えれば,離 岸堤の設置数は,一基ごとに 50m の開口部を設けて 13 基となる.1 基当たりの建設費と修繕比率を,日本国で 平均的な 45,000 万円と 3%とすれば,50 年間の総費用は,約 146.3 億円 {= (45,000 万円×(1+0.03×50 年)×13 基} となる.

これらの工費を,振り子式波力発電1か所とポンプ吸引・排出1ユニットの建設・運営修繕費約32.5億円(=9.1 億円+23.4億円)と比較すれば,波力発電を利用した土 砂管理の方が,圧倒的に安く,かつ,環境保全上も有利 である.



Fig. 5 Illustration of a sand bypass system in a coast.

5. まとめ

主要な成果を以下にまとめる.

① 扇状地に設置したコンパクトな水車発電で無理なく 1年間当り約 390GW 以上の発電量を期待でき、これは 1 河川で 18 万 m³の土砂を管によるスラリー輸送で運ぶた めに必要な総電力 238.9GW を超えており、河川の土砂管 理に必要な電力を十分に賄えることを明らかにした. さらに、水車発電施設2か所とポンプ吸引・排出1ユニットの建設費と50年間の運営修繕費約62.9億円は、ダンプによる土砂輸送の工費約81.3億円と比較して、十分に安く、かつ、環境保全上も有利である.また、全国の河川の扇状地に於いて100か所以上で水車発電施設を設置できると考えられるので、1年間当りの総発電量として39,000GW以上を期待できる.

② 海岸に設置した波力発電では、無理なく1年間当り約355GW以上の発電量を期待でき、これは1海岸で土砂輸送に必要な159.3GWを余裕で賄えるほどの電力が見込めることを明らかにした.さらに、振り子式波力発電1か所とポンプ吸引・排出1ユニットの建設費と50年間の運営修繕費約32.5億円は、ダンプによる土砂輸送の工費約65.0億円や離岸堤群工法での総費用約146.3億円と比較して、圧倒的に安く、かつ、環境保全上も有利である。また、全国の延長3,370km間の海岸に波力発電施設を設置した場合、1年間当りの総発電量として2.44×10⁸GW以上を期待でき、今後さらに普及させることで、再生可能エネルギーの拡大に一層貢献できる。

参考文献

 経済産業省資源エネルギー庁,電力調査統計,2018 年度のデータ,http://www.enecho.meti.go.jp/statistics/ electric_power/ep002/,2020年3月時点で確認.

- 田中茂信,小荒井衛,深沢満,地形図の比較による 全国の海岸線変化,海岸工学論文集第 40 巻, pp.416-420 (1993).
- 新エネルギー・産業技術総合開発機構、マイクロ水 力発電導入ガイドブック(2003).
- 経済産業省資源エネルギー庁,平成 30 年のデータ, https://www.enecho.meti.go.jp/category/electricity_and_ gas/electric/hydroelectric/database/energy_japan006/, 2020 年 3 月時点で確認.
- 5) 都留市 HP, 家中川小水力市民発電所, 建設事業費内訳, https://www.city.tsuru.yamanashi.jp/soshiki/ chiikikankyou/kankyouseisaku_t/genkikun/1304.html, 2020 年 7 月時点で確認.
- EMIRA,世界が注目する最新波力発電技術の秘密!, https://emira-t.jp/topics/13287/,2020 年 3 月時点で確認.
- 高橋重雄・安達崇,日本周辺における波パワーの特 性と波力発電,港湾技研資料 No.654, p.18 (1989).
- 片山裕之,米山治男,下迫健一郎,波力発電適地選定のための日本沿岸における波パワーの評価,土木学会論文集 B3(海洋開発),第70巻2号,I_73-I_78 (2014).
- 国土交通省,ダム水源地土砂対策技術研究会,技術 講演会資料,総合的な土砂管理について, http://www.doshaken.com/event/images/pdf/H26_presen 5.pdf, 2020年3月時点で確認.
大キャンバ角を持った車両の運動に関する研究 (操舵軸角と車両運動の関係) _{荻野 弘彦*1}

A Study on the Dynamics of a Large Chamber Angle Vehicle (Relation of Driving-steering Axis Angle and Vehicle Dynamics)

by

Hirohiko OGINO^{*1} (Received on Mar. 24, 2020 and accepted on Jul. 24, 2020)

Abstract

In recent years, personal mobility using small electric vehicles in urban areas has spread. Many of these personal mobility vehicles are miniature versions of an ordinary vehicle, and so their turning radius is relatively large for the roads in urban areas. We propose a large camber angle vehicle (LCV) that can turn with zero radius or move sideways without turning. The LCV has two driving-steering axes that are located at the front and rear positions on the longitudinal axis of the vehicle. The driving tires are mounted on the driving-steering axis and have a large camber angle. Then, rotation of the driving-steering axis performs circumferential movement of the contact plane of the tires and ground. Thus, the direction of the resultant force vectors of the front and rear tires can be controlled. An analytical model of this vehicle was constructed. The static relationship of the driving-steering axis angle and the vehicle dynamics is presented in this report.

Keywords: Small mobility, Zero radius turn, Large camber angle

1. まえがき

現在,都市部における渋滞解消や狭窄路を安全に走行 するために、電動モータを駆動源に使用した一人乗り, もしくは二人乗りの小型モビリティの開発が盛んに行 われている¹⁾. これらの小型モビリティは基本的に3輪 ないしは4輪車を小型化したものであり2-4),その駆動機 構,操舵機構は従来の車両の延長線上にある.このため, 従来の車両に比較すれば、より小さな半径で旋回するこ とはできるが、旋回半径を零にするような運動はできて いないのが現状である.一方,小型モビリティ開発の狙 いの一つである狭窄路には,堤防上の小道や自動車道脇 の軽車両専用道のように自転車や小型スクータのホイ ールベースよりも狭かったり,多少広い程度の道幅であ ったりするため、これらの車両でも180度の旋回は不可 能なほど狭い道も数多く存在している. このような狭窄 路で方向転換するためには,下車し,人力で転回させな くてはならない.小型モビリティがこのような道路を通 過するという場面は想定しにくいが、比較的狭いために 歩道がなく、歩行者や車両が混在しているような道路を 走行する場合には、上記と同様な困難な状況が発生する と予想できる.また、工場や食品市場で使用されるフォ

*1 工学部動力機械工学科教授

ークリフトや、ターレットトラックなどには可能な限り 小さな旋回半径を要求されるが、現状では半径を零にす ることは実現できていない.このような現状から、旋回 半径を零にできるような小型モビリティの開発が必要 な状況にあると筆者は考えている.

これまで、旋回半径を零にすることができる車両開発 の試みは少数ではあるが行われてきた.代表的なものに 日産自動車が 2007 年の第 40 回東京モーターショーで発 表した PIVO がある ⁵. この車両は駆動用インホイール モータ 4 台,操舵用インホイールモータ 4 台を搭載し、 駆動輪の向きを変更することにより旋回半径を零にす ることを実現していたが、現在は開発を終了している. このため、旋回半径を零にするような車両に関する研究 開発は筆者の知る限りないのが現状である.

そこで、このような問題点を解決するために旋回半径 を零にできる小型モビリティの開発を目標として、操舵 機構を持たず、駆動輪の駆動トルク差のみで旋回を行う 車両 ^{6,7)}や大キャンバ角を持つ車両の設置位置を変化さ せることで旋回をさせる車両^{8,9)}の研究を行ってきた.こ のうち、大キャンバ角を持つ車両はホイールベースを小 さくすることが可能であり、小型モビリティに適すると 考えている.

本研究で対象とする大キャンバ角を持つ車両(Large Camber Angle Vehicle, 以降 LCV)では駆動輪軸へ与える

駆動トルクの大きさ,キャンバ角の大きさ,駆動輪軸の 旋回角が入力となり運動状態に影響を与える.本報告は これらの入力が運動に与える影響を明らかにし,運転者 の意図するような運動をさせるためにはどのような入 力が必要であるかをシミュレーションにより検討した ものである.

2. 主な記号

a:加速度,b:接地面幅,cr:キャンバスラスト係数,F: 力,f:摩擦力,g:重力加速度,I:慣性モーメント,K: コーナリング剛性,l:距離,m:質量,M:ヨーモーメ ント,R:半径,r:ヨー角速度,T:駆動トルク,t:時間, u:x軸方向速度,v:y軸方向速度,W:輪荷重,X:地面 に固定した座標,x:車両前後方向座標,Y:地面に固定 した座標,y:車両横方向座標,z:地面に直角方向座標, β:横滑り角,ζ:キャンバ角,θ:駆動操舵軸のz軸まわ りの回転角(ステア角),ρ:スリップ率,ψ:駆動操舵軸 のz軸となす角度(駆動操舵軸角),ω:駆動輪角速度 添字

c:接地面, f:前輪, g:重力加速度, h:高さ, n:法線 方向, r:後輪, s:駆動操舵軸, t:接線方向, x:車両 の前後方向座標, y:車両の横方向座標

3. LCV の運動メカニズム

Fig. 1 に駆動輪部の構成を示す.車体重心を通り,車 体前後方向へx軸,横方向へy軸,地面に直角方向へz軸をとる.駆動部はx軸上の前後 2 輪とする.なお,煩 雑になるため,図示を省いたが,y 軸上の左右に車体を 支えるための補助輪を設ける.駆動軸にはそれぞれ駆動 モータが同軸上に設けられている.前後駆動軸は車体の 運動方向と旋回方向を制御する操舵軸を兼ねており,以 降駆動操舵軸と呼ぶ.駆動操舵軸とx軸の交点を原点と し,横方向へ y_{f} , y_{r} 軸,地面に直角方向へ z_{f} , z_{r} 軸をとる. x軸と前後駆動操舵軸の交点,すなわち, $x-y_{f}-z_{f}$ 軸の原 点,ならびに, $x-y_{r}-z_{r}$ 軸の原点には球面軸受けを設け, 前後駆動操舵軸は z_{f} 軸, z_{r} 軸に対してそれぞれ ψ_{f} , ψ_{r} の 角度を持って回転することができる.これらを前後輪の 駆動操舵軸角と呼ぶ.前後輪の地面とタイヤ回転面のな



Fig.1 Construction of driving and Steering part

す角, すなわち, 前後輪のキャンバ角を *ζ_n, ζ*, とすれば, 幾何学的関係から

$$\zeta_f = \pi/2 - \psi_f \quad , \quad \zeta_r = \pi/2 - \psi_r \tag{1}$$

となる. 通常の車両ではキャンバ角を3度~8度程度に するが,提案する LCV では70度~80度を想定してい る.

前輪を例として、LCV の運動メカニズムを説明する. Fig. 2 に z_f 軸 A 方向から見た駆動操舵軸,前輪接地面の 関係を示す.わかりやすくするために駆動モータは省い た. z_f 軸を中心にして駆動操舵軸を半径 R_{sf} で回転させる 時,接地面は z_f 軸を中心にして半径 R_{cf} で円旋回する. なお、半径 R_{cf} の円は接地面の旋回軌跡であって,前輪の 外形ではないことに注意されたい.この時,x軸から駆 動操舵軸のまでの回転角を θ_f (以降ステア角)とする. 駆動操舵軸の軌跡円を操舵円,接地面の軌跡円を接地円 と呼ぶ.駆動操舵軸角 ψ_f を変化させれば、キャンバ角 G_f が変化し、接地円半径 R_{cf} が変化する.また、ステア角 θ_f を変化させれば、接地面の位置が接地円周上で変化する.

電動モータにより駆動トルク *T_f*を加える.この駆動ト ルク *T_f*は接地円に接する方向の力 *F_{tf}*と駆動操舵軸中心 に発生する *F_{tf}*と平行で逆向きの偶力に変換することが できる.

$$T_f = R_{cf} F_{tf} \tag{2}$$

一方,接地面には F_{tf} と逆向きの摩擦力 f_{tf} と横力 F_{nf} が発生する.したがって,接地面には接線方向に,

$$\Delta F = F_{tf} - f_{tf} \tag{3}$$

が生じる. すなわち, 接地面には接線方向へ $\Delta F \geq F_{nf}$ が 発生し, 駆動操舵軸中心に作用している力は式(3)より,

$$F_{tf} = \Delta F + f_{tf} \tag{4}$$

と解釈することができる. 接地面に作用する ΔF と駆動 操舵軸中心に作用する ΔF は同じ大きさで逆向きの力で あるから,偶力を形成し,これにより前輪は回転する. 結局前輪駆動操舵軸中心に f_{tf} ,前輪接地面に横力 F_{nf} が 発生する. 後輪も同様に後輪駆動操舵軸中心に f_{tr} ,後輪 接地面に横力 F_{nr} が生じ,これらが並進力とヨーモーメ



Fig.2 Top view from z_f axis (View A)

ントを発生させる.

さらに,前後駆動操舵軸角 ψ_f, ψ_r ならびにステア角 θ_f , θ_r を変化させることにより前後接地面の位置を変化させ ることができるので, 並進力とヨーモーメントの向き, 大きさを任意に変化させることできる. 駆動操舵軸が高 速で回転した状態で回転させると、ジャイロ効果により 重心点まわりにヨーモーメントを生ずる.一方,前後駆 動操舵軸に接続されたタイヤの接地面速度の大きさは 機構上車体速に近くなる.本解析においては比較的低速 で走行する場合を想定しているため、前後駆動操舵軸の 回転数は小さく、ジャイロ効果は無視できるものと仮定 した.この仮定のもとで、LCVの運動を制御するための 入力は前後駆動操舵軸に与える駆動トルク T_f, T_r, 前後 駆動操舵軸角 ψ_f , ψ_r , ステア角 θ_f , θ_r になる. そこで, 本報告では重心から前後駆動操舵軸回転中心までの距 離 $l_f = l_r$, 駆動トルク T_f , T_r , 駆動操舵軸角 ψ_f , ψ_r を一定 とし、ステア角 θ_f , θ_r と駆動操舵軸の回転方向が運動に 対してどのような影響を与えるかをシミュレーション により検討した.

4. 解析

4.1 解析モデル

以下を仮定した.

 (1) 車体を支えるためにy軸上に設ける補助輪は抵抗を 与えず,運動に影響を与えることはない.

(2) サスペンションは設けず z 軸方向の運動はしない. (3) x 軸まわりのロール回転, y 軸まわりのピッチ回転 はしない.

Fig. 3 に解析モデルを示す. ここで O は重心を示し, **O**_fと**O**_rは前後駆動操舵軸の x 軸, y 軸の交点でそれぞれ の軸が回転する中心を示している. yf 軸, yr 軸はそれぞ れ O₆, O_rを通り y 軸に平行な軸である. 煩雑になるため 図示していないが Fig. 1 に示したように Of, Or を通り x 軸 v 軸が張る平面に対して直角方向で地面に対して上方 を正とする zf 軸, zr 軸を考える. Af, Ar は前後駆動操舵 軸の先端を表している.これらが x 軸となす角がステア 角 θ_f , θ_r となる. また, やはり Fig. 1 に示したように, z_f 軸, z_r 軸となす角を ψ_f , ψ_r とし, z_f 軸, z_r 軸を中心とする 半径を R_{sf} , R_{sr} とする. 横力 F_{nf} , F_{nr} の作用点 C_f , C_r は 前後輪と地面の接地点であり、半径 R_{cf}, R_{cr}の接地円周 上の点である.

ここで, Fig.1 に示したように, 前後駆動操舵軸先端の 回転中心高さを z_{hf} , z_{hr} とし, 前輪を例として, 3 点 A_fO_f



Fig.3 Analysis model

Crで張られる平面に直角な方向から見た図を Fig. 4 に示 す. Rfは前輪半径である. なお, 前輪の厚みを無視して いる.幾何学的関係より接地点 Cr は以下のように決めら れる.まず, x 軸からの駆動操舵角の回転角は θf と等し くなる. z_f 軸からの半径 R_{cf}

$$R_{cf} = R_f \sin \zeta_f = R_f \sin \left(\pi/2 - \psi_f \right)$$
(5)

前後駆動操舵軸には駆動モータが取り付けられてい るが,回転する駆動操舵軸の慣性モーメント If, Irを大き くすることによりモデル化をした.

4.2 基礎方程式

dr

x 軸方向速度 u, y 軸方向速度 v は以下の並進運動方程 式より求めた.

$$m\left(\frac{du}{dt} - rv\right) = F_x \quad (6)$$
$$m\left(\frac{dv}{dt} + ru\right) = F_y \quad (7)$$

また,重心点まわりのヨー角速度 r は以下の角運動方 程式より求めた.

$$I\frac{dt}{dt} = M \quad (8)$$

$$\Box \equiv \Box \bigtriangledown + \forall \forall h \ dt$$

$$M_f = -l_f f_{tf} \cos \theta_f$$

$$+ (l_f + R_{cf} \cos \theta_f) F_{nf} \sin \theta_f \quad (9)$$

$$-R_{cf} F_{nf} \sin \theta_f \cos \theta_f$$

$$M_r = l_r f_{tr} \cos \theta_r$$

$$- (l_r - R_{cr} \cos \theta_r) F_{nr} \sin \theta_r \quad (10)$$

$$-R_{cr} F_{nr} \sin \theta_r \cos \theta_r$$

$$M = M_f + M_r \quad (11)$$

となる.

4.3 駆動輪モデル

接地点で発生する力と重心点に発生する力の関係は 以下のようになる.

$$F_{x} = F_{nf} \cos \theta_{f} + f_{tf} \sin \theta_{f}$$
(12)
+ $F_{nr} \cos \theta_{r} + f_{tr} \sin \theta_{r}$ (13)
$$F_{y} = F_{nf} \sin \theta_{f} - f_{tf} \cos \theta_{f}$$
(13)

ここで、接地点並びに回転中心に発生する力は駆動輪



Fig.4 Side view of front tire

モデルにより計算しなくてはならない.本研究で対象と する車両ではキャンバ角が非常に大きく,複雑なタイヤ モデルを使用できるかどうかの基礎検討が必要となる ため,今回は簡易なクーロンモデルを使用した.前後輪 の添字を省略すると、以下のようになる.

$$f_t = \mu W \qquad (14)$$

$$F_n = -K\beta - c_T \zeta \quad (15)$$

ここで,横滑り角βは駆動輪の接線方向速度と進行方 向速度のなす角より求めた.また,駆動輪の角速度は以 下の角運動方程式により求めた.

$$\begin{cases} I_f \frac{d\omega_f}{dt} = T_f - R_f f_{tf} \\ I_r \frac{d\omega_r}{dt} = T_r - R_r f_{tr} \end{cases}$$
(16)

なお,摩擦係数 μ は広く一般に使用されている¹⁰⁻¹²⁾マジックフォーミュラ¹³⁾を使用した.

 $\mu = -1.1c(e^{-35\rho} - e^{-0.35\rho}) \tag{17}$

ここで,スリップ率ρは駆動輪接線方向の路面速度と 駆動輪周速度より求めた¹⁴⁾.

4.4 解析条件

基本的な車両諸元はトヨタ車体製小型電気自動車 AK10E-PC を参考にした.車体の条件¹⁴⁾はヨー慣性モー メント *I*=1470 [kgm²],コーナリング剛性 *K*=3.333×10⁶ [N/rad],車体質量 *m*=422 [kg],タイヤ半径 $R_f=R_r=0.23$ [m] となる.また,駆動輪の駆動軸まわり慣性モーメントは $I_f=I_r=2.43$ [kgm²]とした.前後輪の駆動トルクは T_f = $T_r=100$ [Nm]とした.本解析では $I_f=I_r=0.64$ [m]とし,重 心から見て前後対称に駆動軸を配置とした.キャンバ推 力係数は $c_f=1123$ [N/rad]とした¹⁵⁾.また,駆動操舵軸の







角度 $\psi_f = \psi_r = 5$ [deg]とした.

計算は前後輪を反時計回りに回転させた場合と前輪 を時計回り、後輪を反時計回りに回転させた場合につい て行った.また、走行を開始した後、車体が 180 [deg]旋 回したときに計算を終了した.駆動操舵軸角 ψ_f , ψ_r は 5 [deg]の場合を検討した.ステア角 θ_f , θ_r は-180 [deg]~180 [deg]まで 90 [deg]ずつ変化させた.

なお、計算時間刻みは10-6[秒]で行った。

5. 結果及び考察

5.1 ステア角による走行軌跡の変化

Fig. 5 に前後駆動操舵軸の回転方向を両方とも反時計 回り (CCW)とし、ステア角 θ_f , θ_r を変化させたときの走 行軌跡の変化を示す.また,Table 1 に運動をまとめた. 前述のように原点において車両は+X方向を向いており, 旋回軌跡を描いているものについては-Y 方向を向いた ときに計算を終了している.なお,X軸,Y軸に沿う走行 しているものは車両の向きが変化しなかった. すなわち, X軸上を走行した場合のうち,+X方向へ走行した場合は 前進,-X 方向へ走行した場合は車両が+X 方向を向いた ままの後退, Y軸上を走行した場合のうち, +Y方向へ走 行した場合,車両は+X方向を向いたままの横方向移動, -Y 方向へ走行した場合も同様に車両は+X 方向を向いた ままの横方向移動であった. Fig. 5 に記載のないステア 角の組み合わせの場合は、旋回半径が 10-10 [m]程度であ ったので、原点における回転運動と見なし、Table1にお いては0の表記を行った.

旋回半径が零になっている場合の例として Fig. 6 に θ_f = 0 [deg], θ_r = 180 [deg]で前後輪に発生している地面に固定した X 軸, Y 軸方向の力の時間変化を示す.前後輪ともに力が打ち消しあっており,重心点まわりのヨーモーメントのみが発生していることがわかる.

ー方並進運動を行っている場合はすべて $\theta_f = \theta_r$ の場合 である.これは前後の接地面が両方ともx軸上,x軸に 平行な軸上,もしくはy軸上,y軸に平行な y_f , y_r 軸上に あることを意味している.例えば, $\theta_f = \theta_r = 90$ [deg]の場 合,前輪接地面は y_f 軸上で O_f 点から距離 R_{ef} の位置にあ

Table 1 Moving directions

		5.71.3		
θ_r	-90[deg]	0[deg]	90[deg]	180[deg]
180 [deg]	$\langle $	0	\mathbf{i}	1
90 [deg]	0	ک	^	5
0 [deg]	Ś	↓	>	0
-90 [deg]	←	Č	0	5

Front rotation direction = Rear rotaton direction = CCW, $\Psi_f = \Psi_r = 5$ [deg], $l_r = l_r = 0.64$ [m], $T_r = T_r = 100$ [Nm] り、後輪接地面は y, 軸上で O, 点から距離 R_{cr} の位置にある. ところで、本解析条件では前後駆動輪半径は同じであり、また、 $l_f = l_r$ になっているので、 $R_{cf} = R_{cr}$ である. したがって、キャンバ推力ならびに横力はいずれも車体中心方向を向いているはずであるが、Y 軸方向の並進運動を発生していない. Fig. 7 に前後駆動輪が発生している地面に固定した Y 座標方向の力の時間変化を示す. 見やすくするために運動開始後 1 秒間を拡大している. 前後いずれの接地面も同じ力変化を示し、短い周期での変動をしていることがわかる. 最小値が最大値よりも小さいのはキャンバ推力が-Y 方向にある O_f , O_r 点方向へ作用



Fig.6 Change of tire forces generated at $\theta_f = 0$ [deg], $\theta_r = 180$ [deg] Front rotation direction = Rear rotaton direction = CCW, $\Psi_f = \Psi_r = 5$ [deg], $l_r = l_r = 0.64$ [m], $T_r = T_r = 100$ [Nm]



 $\Psi_f = \Psi_r = 5[\text{deg}], l_f = l_r = 0.64[\text{m}], T_f = T_r = 100[\text{Nm}]$

しているためと考えられる.

Y 軸方向の力は横滑り角の影響を受けるため, Fig.8 に 前後駆動輪横滑り角 β_f, β_rの時間変化を示す.力の変動 と同様に変動をしている.力の変動に伴い接地面速度が 変動していた。このため、接地面の横滑り角が変化する と横滑り角の符号が反転して反対方向への力が生じて いることを意味している.このため、横方向の力が打ち 消しあって直線運動を行っているものと思われる.とこ ろが, Fig.7 よりキャンバ推力が打ち消されずに残るよ うに考えられる.そこで, Fig.9 に重心点の地面に固定し Y 軸方向速度の時間変化を示す.これより、力の変動に



Front rotation direction = Rear rotaton direction = CCW, $\Psi_f = \Psi_r = 5$ [deg], $l_r = l_r = 0.64$ [m], $T_r = T_r = 100$ [Nm]



Front rotation direction = Rear rotaton direction = CCW, $\Psi_f = \Psi_r = 5$ [deg], $l_f = l_r = 0.64$ [m], $T_f = T_r = 100$ [Nm]

対応して速度も変動しており,速度の最小値のほうが最 大値よりも小さくなっていることが確認できる.しかし, その絶対値の差は非常に小さいため,X軸方向に並進運 動しているように見えていると考えられる.一方,Fig.7 より,力が大きな変動をしているということは進行方向 に対して直角方向の振動が発生することを示唆してい るが,これについては今後の課題としたい.以上より, ステア角を変化させることにより,直線運動,旋回運動, さらに,旋回半径が零の旋回運動をさせることができる ことがわかった.したがって,これらの運動を組み合わ



Fig.10 Effect of front and rear steer angle

Front rotation direction = CW,Rear rotaton direction = CCW, $\Psi_f = \Psi_r = 5$ [deg], $l_f = l_r = 0.64$ [m], $T_f = T_r = 100$ [Nm]



Front rotation direction = CW,Rear rotaton direction = CCW, $\Psi_f = \Psi_r = 5$ [deg], $l_f = l_r = 0.64$ [m], $T_f = T_r = 100$ [Nm]

せれば、任意の方向の運動を行うことができると考えられる.

5.2 駆動操舵軸の回転方向による走行軌跡の変化

Fig. 10, Fig. 11 に前駆動操舵軸を時計回り (CW),後 駆動操舵軸を反時計回り (CCW)に回転させ、ステア角 θ_f 、 θ_r を変化させたときの走行軌跡の変化を示す.また、 Table 2 に運動をまとめた.前駆動操舵軸時計回りに回転 させた場合、-X軸に沿う方向の直線運動をしない結果と なった.また、Fig. 11 に示すステア角の組み合わせの場 合、旋回半径が大きくなった.

Fig.12 に $\theta_f = \theta_r = -90$ [deg]の場合で前後輪に発生している地面に固定した X 軸, Y 軸方向の力の時間変化を示す. Y 軸方向の力はほぼ同じ値を示している.一方, X 軸方向の力の絶対値はほぼ同じで符号が反転している.このために-X 軸方向の並進運動を行っていないことがわかる.以上から,前後操舵軸の回転方向を変えた場合,直

θ_r	-90[deg]	0[deg]	90[deg]	180[deg]
180 [deg]	$\langle $	1	0	$\langle \rangle$
90 [deg]	1	0	1	Ş
0 [deg]	0	Ś		↓
-90 [deg]	↓	Ś	Č	0

Table 2 Moving directions

Front rotation direction = CW,Rear rotaton direction = CCW, $\Psi_f = \Psi_r = 5$ [deg], $l_f = l_r = 0.64$ [m], $T_f = T_r = 100$ [Nm]



Fig.12 Change of tire forces generated at $\theta_f = -90[\text{deg}], \theta_r = -90[\text{deg}]$ Front rotation direction = CW, Rear rotaton direction = CCW, $\Psi_f = \Psi_r = 5[\text{deg}], l_r = l_r = 0.64[\text{m}], T_r = T_r = 100[\text{Nm}]$

線運動をしない方向が存在することになる.したがって, 前後操舵軸の回転方向を同じにするほうが運動の自由 度を高くすることができると考えられる.

6. 結論

旋回半径を零にすることができる小型モビリティの 開発を目標として,大キャンバ角を前後に持つ車両の運 動に対して駆動操舵軸に与えるステア角と回転方向が 車両運動に与える影響を解析した.その結果,以下の結 論が得られた.

(1) 前後操舵駆動軸が同一方向へ回転している場合は 直線運動,旋回運動,旋回半径が零の旋回運動を行うこ とができる.

(2) 前後操舵軸の回転方向が異なる場合,直線運動できない方向が発生してしまう.

(3) このため,前後操舵軸の回転方向を同じにしたほう が旋回運動の自由度を高くすることができると考えら れる.

(4) 前後操舵軸の回転方向を同じにして直線運動をさせた場合,進行方向に対して直角方向の振動が発生する可能性がある.

参考文献

- 国土交通省都市局・自動車局:超小型モビリティ導入に向けたガイドライン,国土交通省 (2012).
- トヨタ車体 COMS: http://coms.toyotabody.jp/(2020 年 3月 20 日参照).
- i-Road: https://global.toyota/jp/download/13188638 / (2020年3月20日参照).
- 4) 日 産 自 動 車 NMC : https://www.nissan-global.com/JP/ZEROEMISSION/APPROACH/NEWMO BILITYCONCEPT/ (2020 年 3 月 20 日参照).
- 5) PIVO: https://ja.wikipedia.org/wiki/日産 PIVO (2020 年

3月20日参照).

- 6) 下田平, 荻野:後輪操舵小型電気自動車運動に関す る研究,第25回「電磁力関連のダイナミクス」シン ポジウム講演論文集 pp.32-33 (2013).
- Z.A.Habshee, H.Ogino : Research on Rear Wheel Steering for a Small Electric Vehicle(Effect of Torque Balance), Proceeding of School of Engineers, Ser.E, Vol.40, pp.55-61 (2015).
- 武木,荻野,大キャンバ角を持った二輪車の運動に 関する研究,日本機械学会 2017 年度年次大会講演論 文集,CD-ROM(2017),日本機械学会.
- 武木,荻野:大キャンバ角を持った二輪車の運動に 関する研究,東海大学紀要工学部, Vol.57, No.2, pp.35-40 (2017).
- Sho Sakaino, Hiroyuki Kawajiri, Toshiaki TSUJI : Determination of Torque Distribution Ratio for Electric Bicyle with Independently Driven Front and Rear Wheels, IEEJ journal of Industry Applications, Vol.6, No.3, pp.223-230 (2017).
- 田中:タイヤと繊維強化ゴムの力学的特性が車両運 動性能と運転者に与える影響、日本ゴム協会誌、 Vol.87, No.2 (2014).
- 12) 前田,藤本,堀:瞬間低µ路での駆動力維持を目的としたインホイールモータ搭載電気自動車の前後輪駆動力配分法,日本機械学会論文集(C編), Vol.78, No.794, pp.3383-3392 (2012).
- H.B.Pacejka, E.Bakker, The Magic Formula Tyre Model, Vehicle System Dynamics, Vol.21, pp.1-18 (1991).
- 14) M.Izhar Ishak, H.Ogino, Y.Yamamoto, Improvement of Mobility for In-Wheel Small Electric Vehicle with Integrated Four Wheel Drive and Independent Steering: A Numerical Simulation Analysis, Int. J. of Multidisciplinary and Current Research, Vol.4, pp.308-316 (2016).
- 15) 安部:自動車の運動と制御,山海堂(2003).

放射音抑制のための空洞内吸音材配置

金子 寛幸*1 森下 達哉*2

Positioning of Absorbing Material for Reducing Radiated Noise from an Enclosure Aperture

by

Hiroyuki KANEKO^{*1} and Tatsuya MORISHITA^{*2} (Received on Apr. 9, 2020 and accepted on Jul. 24, 2020)

Abstract

This paper describes a method of controlling the noise emitted from the aperture of a non-rectangular enclosure by appropriately arranging sound absorbing material patches. There are two steps in the method. First, the sound pressure and acoustic particle velocity in the enclosure are calculated by numerical simulation. Next, the arrangement of the patches is examined to decrease the acoustic power of the sound emitted from the opening based on the numerical results. The boundary between a sound field with a standing wave where this method works effectively and a diffuse sound field is clarified using modal density. Numerical results show that it is possible to effectively suppress noise by arranging the sound absorbing material at the position where the particle velocity has a large amplitude. Experimental results also show the same tendency. In the low frequency range where the modal density is low, the proposed method effectively reduced noise.

Keywords: Noise reduction, Absorbing material, Particle velocity, Enclosure

1. まえがき

固い壁などで囲われた空間(以下では,空洞と称する) 内にある発生源から生じた音が,空間の外側に放射され るのを防ぐことは重要な検討課題である.これに該当す る例としては,自動車のエンジンルームやサイレンサー, ヒートポンプを使用した電気給湯器,建設現場での発電 機,工場設備から発生する騒音など多様なものが挙げら れる.以上のような空洞から発生する騒音の抑制には, 吸音材や遮音性材料の活用が有効な手段となっている¹⁾.

空洞内で発生する騒音を吸音材によって抑制するには, 騒音抑制効果を最大にするという意味では空洞内全域に 吸音材を配置するのが望ましい.しかし,空洞内全域に 吸音材を配置するということは,流体の流路確保やコス ト抑制の観点から現実的ではない.また,空洞は可能な 限りコンパクトに作られることが多いことから,吸音材 の設置スペースが十分確保できない場合が多い.そのた め,空洞内に設置された機械類の機能を損なわずに,限 られた空間内で,優れた騒音抑制効果が得られる吸音材 の配置方法の確立が求められている.

ー般に,吸音材は音響的粒子速度を低減させることで 音響エネルギーを減少させるものと考えられている²⁾.

- *1 工学部動力機械工学科学部生
- *2 工学部動力機械工学科教授

ある空間内において粒子速度のより大きい位置に吸音材 を配置するほど,騒音を効果的に抑制できるとされてい る.これまでの閉空間内での吸音材の配置設計法に関す る検討では,吸音材の設計位置のモード減衰に対する寄 与度をもとに最適配置を行う方法³⁾,吸音材をBiot⁴⁾モ デルで模擬し,トポロジー最適化手法を適用した方法⁵⁾, 空洞内を一定の大きさの吸音材要素で区切り,吸音材要 素を設置することによる騒音抑制効果への感度をもとに 吸音材を配置する方法⁶⁾などが提案されている.しかし, 音場の粒子速度特性を配置設計に対して直接活用した検 討は行われていなかった.

以上をふまえて著者を含む研究グループでは、数値計 算を用いて筺体内音場の粒子速度振幅の大きさを調べ、 それに基づいて吸音材を適切に配置する方法を提案して いる⁷⁾. 比較的簡易な方法で粒子速度振幅に応じて吸音 材を配置することによって騒音抑制効果を改善できるこ とが明らかになっている.ただし、直方体状ではない空 間への適用や吸音材の配置の簡易化についての検討が課 題として残されていた.

そこで本論文では,直方体状ではない形状の空洞を用 いた場合の吸音材による騒音抑制効果を検討する.その 際,定形の吸音材要素を複数配置することで配置を簡易 化する.

2. 吸音材配置位置の検討

2.1 空洞内音場

開口部を有する閉空間内の音圧 p(r) は,

$$p(r) = \sum_{n=0}^{\infty} \left[\frac{-j\rho\omega\Psi_n(r)}{\Lambda(k^2 - k_n^2) - jkD_{nn} - jkD'_{nn}} \int_V q_m\Psi_n(r_0)dV \right]$$
(1)

で与えられる⁸⁾. ここで, $n: モードのインデックス, \rho$: 媒質の密度, ω :角周波数,k:波数, k_n :モード波数, $j: 虚数単位, q_m$:音源 m の速度振幅, Ψ_n :モード n の 固有関数の値,V:空洞の容積,r:空洞内部の位置, r_0 : 音源位置,をそれぞれ表す.また,

$$D_{nn} = \int_{S_1} Y(r_{s1}) \Psi_n^2(r) dS_1, \tag{2}$$

$$D'_{nn} = \int_{S_a} Y_a(r_{sa}) \Psi_n^2(r) dS_a,$$
 (3)

$$\Lambda = \int_V \ \Psi_m(r) \Psi_n(r) dV \tag{4}$$

である. Y は境界壁表面における音響アドミタンス, S_1 は空洞内壁の表面積, Y_a は空洞に設けられる開口部の放 射アドミタンス, S_a は開口部面積を, それぞれ表す. r_{s1}, r_{sa} は, それぞれ境界壁面,開口面,空洞内部におけ る位置を表す.

式(1)で示されるように,空洞内音場はモードの重ね合 わせで表すことができる.本研究で用いる境界壁近傍に おいて吸音材を配置する方法は,モードごとに音圧ある いは粒子速度を調整し,空洞境界壁面上の音響アドミタ ンスを変化させることにより開口部から放射される音響 エネルギーを減少させる方法と考えることもできる.な お,以上で述べた式は,直方体状の空間のみでなく,空 洞形状が直方体形状でない場合にも成り立つ?.

2.2 音場内粒子速度分布に基づく配置位置の決定

吸音材は,音響的粒子速度を低減させることで音響エ ネルギーを減少させるものと考えられている²⁾.本研究 では,境界壁面上の音響アドミタンスの調整を,粒子速 度を通じて行う.空間内の粒子速度振幅が大きい位置に 吸音材を設置することで,開口部からの放射音の音響パ ワーレベルの抑制量が増加することが確認されている⁷⁾. 具体的には,騒音抑制対象の空洞内音場において粒子速 度を算出する.その結果をもとに,空洞内の粒子速度振 幅が大きい位置から吸音材を配置する.続いて,吸音材 配置後の空洞放射音特性から騒音抑制効果を確認する. その結果,騒音抑制効果が所望の量に達していない場合 には,吸音材配置後の空洞内音場について粒子速度を算 出し,より好適な配置量や配置場所があるかを調べる.

3. 具体例

3.1 設計対象のモデル

他の配置設計法との騒音抑制効果の比較を容易にする ため、Fig.1に示すような形状のモデルを用いる.このモ デルは、直方体ではない空洞から放射される騒音の抑制 の検討で用いられた^の.

モデル底面の寸法は,長さ0.86m,幅0.66mである. 音源が設置される面の高さは0.4m,開口部がある面の 高さが0.6mである.開口部形状は,一辺が0.26mの正 方形である.境界壁は剛体とし,開口部以外から空洞外 側への音響エネルギーの伝搬はないものとする.騒音源 は,Fig.1に示すように開口部のある面と対向する面上 に設置する.騒音源形状は,一辺が0.04mの正方形とし ている.以上のモデル形状,騒音源位置は,Totaroらの が用いたものとほぼ同様である.

3.2 音響特性の計算

音場を記述する連続の式と運動方程式に基づいて,差 分法を用いて音圧と粒子速度を計算する.3 次元空間内 音場において音圧 p,粒子速度ベクトルを q = [qx, qy, qz] と表すことにする.多孔質吸音材を含む空間内の音場に ついての連続の式および運動方程式が以下の式で表され るものとする.

$$\frac{\sigma}{\rho c} \frac{\partial p}{\partial t} + \nabla \cdot \boldsymbol{q} = 0, \tag{5}$$

$$\frac{\rho}{\sigma}\frac{\partial \boldsymbol{q}}{\partial t} + R_f \boldsymbol{q} + \nabla p = 0.$$
(6)

ここでcは音速を表す. σ (0 < $\sigma \leq 1$) は媒質の多孔度を 表す係数であり, σ が1に近いほど, 媒質中での空気の 割合が高く, 多孔質材料の充填率が小さいことを表す. R_f は多孔質材料の単位厚さあたりの流れ抵抗を表す. 多孔質材料は一般には不均質であるものの簡単のため, σ , R_f は空間的に均一であり,時間的には変化しない ものとする. なお, 媒質が空気の場合には $\sigma=1$, $R_f = 0$



Fig. 1 Rigid-walled enclosure model with an aperture.

である.音圧,粒子速度についての時間領域差分法 (Finite Difference Time Domain, FDTD 法)のための更新式 は式(5),(6)を中心差分近似することで導かれる¹⁰⁾.以 上の更新式を用いて,空洞内外の音圧および粒子速度を 計算して,空洞開口部からの放射音を調べる.

3.3 設計対象周波数の上限についての検討

Fig. 1 に示す空洞内の音場のモード数 N を周波数で微分することによってモード密度が求められる¹¹⁾.

$$\frac{dN}{df} = 4\pi \frac{V}{c^3} f^2 + \pi \frac{S}{2c^2} f + \frac{L}{8c}$$
(7)

ここで, f は周波数, S は空洞内表面積, L は空洞エ ッジ部長さの合計をそれぞれ表す.

空間の大きさが扱う波長に対して大きくなると,音波 が様々な方向に伝搬し得る拡散音場となる.拡散音場で は,音場のモード数がかなり多くなるとともに,モード 密度も大きくなり,本研究のように,制御対象モードを 選択することが不可能になる. Fig. 1 のモデルを用いた 場合のモード密度の計算結果を Fig. 2 に示す. Fig. 2 に おける破線は拡散音場と見なされる周波数の目安¹²⁾と なる, f = Sc/V = 3181 Hz を表す.モード密度の観点 からは, 3000 Hz 程度がモードごとの粒子速度振幅に基 づく吸音材配置法の上限と考えられる.さらに,配置す る吸音材の大きさで決まる空間分解能を考慮すると本研 究での吸音材配置法が有効に機能する周波数の上限は低 周波数側に移動するものと考えられる.本論文では, Totaroらのによって検討された周波数を参考に上限周波 数を 600 Hz に設定することにする.

3.4 結果

まず,空洞開口部からの放射音および空洞内音場の粒 子速度振幅を計算する.数値シミュレーションでは,空 洞境界壁を剛体とする.吸音材については,一般的な繊 維系吸音材の特性と合致する流れ抵抗と多孔率の値を用



Fig. 2 Calculated results of modal densities of the model (Solid line). Broken line denotes lower limit frequency of diffuse sound field.

いる. 解析領域外周については PML とする. 騒音源と しては, Fig. 3(a) に示す時間波形のパルス信号とし, Fig. 3(b) に示す周波数特性を有している. Fig. 4 に,空 洞開口部正面 0.3 m の位置における放射音圧レベル L_p の周波数特性の計算結果を示す. L_p のピーク周波数が 各モードの固有周波数と考えられる.

騒音対策の際には、低周波領域での音の抑制が重要と なるため、Fig. 4 から、低い周波数から順に、196 Hz, 264 Hz, 325 Hz, 412 Hz におけるL_pを低減させるよう吸 音材を配置することにする.空洞内各位置への設置を容 易とするために、厚さ 40 mm、一辺 100 mm の正方形の 板状吸音材を使用する.なお、吸音材については、空洞 壁面にのみ設置できるものとする.さらに、空洞内表面 積合計の約 10 %の表面積となるまで使用可とする制約 を設ける.以上より、26 枚の板状吸音材が使用可とな る.従来は、設置する吸音材形状が粒子速度分布を近似す るように成形していたが、粒子速度分布を近似す るように定形の吸音材要素を配置することによって、吸 音材配置の手順を簡素化できる.



Fig. 3 Vibration characteristics of noise source ((a) waveform, (b) frequency response).



Fig. 4 Calculated results of radiated sound pressure levels from the aperture of the enclosure without absorbing materials.

Fig. 5(a)~(d) に上記周波数における空洞境界壁近傍の粒子速度振幅の計算結果を示す. 単純な直方体形状ではないため明確ではないものの,各エッジに対して平行な粒子速度振幅の腹が見られるため,低周波数域では軸方向モードが主となっている.計算結果に基づいて,粒子速度振幅の大きい場所の内,図中の口で表示する位置に板状吸音材を配置する.抑制対象周波数を f_c とすると,それぞれ, f_c = 196 Hz を対象とする吸音材配置をCase 1 (Fig. 5(a)), f_c = 325 Hz を対象とする吸音材配置をCase 2 (Fig. 5(b)), f_c = 412 Hz を対象とする吸音材配置をCase 3 (Fig. 5(c)), f_c = 412 Hz を対象とする吸音材配置をCase 4 (Fig. 5(d))とおく.

Fig. 5(a)~(d)に示す吸音材配置を用いた場合の,開口 部放射音の音圧レベル L_p 周波数特性を Fig. 6(a)~(d) に示す.いずれの結果においても,吸音材配置の対象と する周波数において, L_p の減少が認められる.モード 密度の大きい高周波数域では,吸音材の配置位置に関わ らず L_p が大幅に減少する.

騒音抑制効果を定量的に評価するために,吸音材なしの場合と吸音材設置後における音圧レベル差を減音量 R として定義する. Fig. 7 に,減音量 R を求めた結果を示 す. Case 1, 3, 4 において,吸音材配置を行う際の対象周



(a) Case 1 (196 Hz)

(b) Case 2 (264 Hz)



(c) Case 3 (325 Hz)

(d) Case 4 (412 Hz)

Fig. 5 Distributions of amplitudes of acoustic particle velocities in the enclosure model. Squares indicated on the map of the amplitudes denote the locations of absorbing material patches.

波数において,他の周波数よりもRが大きくなった.

Case 2 については, y 軸方向の軸方向モードが主成分 と考えられる.空洞開口部は, y 軸方向モードの音圧の 節に位置しており,開口部位置によるモード抑制効果が



Fig. 6 Characteristics of sound pressure levels radiated from the aperture of the enclosure model (Solid line: SPLs with sound absorber. Broken line: without absorber).



Fig. 7 Calculated results of noise reduction levels using suitable positioned absorbing materials. Triangle symbol shows target frequency for each case.

支配的で, R は最大でも 15 dB 未満である. 相対的に吸 音材による減音効果が限定的であるため, 配置による効 果が表れにくい状況であったと考えている.

3.5 実験による検証

数値計算結果の妥当性を検証するための実験を行う. Fig. 1 の数値計算モデルと同様の寸法を有する空洞を無響室内に設置し、開口部放射音の測定を行う.空洞外壁 は厚さ 25 mm のベニヤ合板製で、接合部に隙間が生じな いように組み立てる.開口部と対抗する境界壁に設置し たスピーカを、白色雑音を遮断周波数 500 Hz のローパス フィルタ(-24 dB/oct.)で帯域制限した信号で駆動する.開 口面に対して直交する中心軸方向外側に空洞から 0.3 m 離れた位置にマイクロホンを設置して音圧を測定し、 FFT アナライザを用いて音圧レベル L_p および周波数特 性を算出する.吸音材としては、1 辺 100 mm の正方形、 厚さ 35 mm,密度 40 kg/m³ のポリエステル繊維製のもの を使用する.Fig. 8 に示す空洞の開口部からの放射音圧 レベル L_p の測定結果を Fig. 9 に、減音量 R の算出結果 を Fig. 10 にそれぞれ示す.





(a) Aperture side

(b) Noise source side



Fig. 8 The enclosure model for experiment.

(b) Case 4 (424 Hz)

Fig. 9 Experimental results of sound pressure levels radiated from the aperture of the enclosure model (Solid line: SPLs with sound absorber. Broken line: without absorbering).

まず, Fig. 9 の開口部放射音の L_p 周波数特性では, モード固有周波数に起因するピークにおける最大値は異 なるものの,対象としている帯域内でのピークの数やピ ーク周波数の値は,計算結果とおおよそ同様の傾向とな ることを確認できた.次に,Fig.10の減音量の周波数特 性では,抑制対象周波数において減音量が大きくなる点 では,実験結果は計算結果と同様の傾向を示した.一方 で,減音量の大きさについては,計算結果と実験結果と で乖離がある. L_p の各ピークは,Fig.9を見る限り,計 算結果の方がはるかに急峻である.この差異の原因とし ては,計算モデルでは,空洞境界壁を剛体として扱うと ともに,空洞における音波の減衰を模擬していないこと が考えられる.この点についての検証は,空洞内粒子速 度分布の計算結果の妥当性の検証とともに今後の課題で ある.

3.6 他の配置との性能比較

前節では、特定の帯域における減音量を評価した.騒音対策では、より広い帯域での減音効果が求められるため騒音抑制対象を広帯域化した場合について検討する. Fig. 11(a)は、周波数 440 Hz~560 Hz の範囲で Patch Transfer function 法と呼ばれる方法のを用いた場合の結果を参考にした吸音材配置である. なお、この場合の吸



Fig. 10 Experimental results of noise reduction levels using suitable positioned absorbing materials.



Fig. 11 Configurations of absorbing material patches for noise reduction from 440 Hz to 560 Hz.

音材配置面積の割合は,空洞表面積に対して約 16 %で あった.この配置を Case 5 とする.これに対して, Fig, 11(b) は本論文で提案する配置法に基づき, Fig. 11(a)の 配置と使用吸音材量を等しくした吸音材配置である.こ の配置を Case 6 とする.

Fig. 11 の吸音材配置を用いた場合の空洞開口部放射音の音圧レベル L_p 周波数特性の計算結果を Fig. 12 に示す. Fig. 13 に減音量 R の算出結果を示す.以上の結果では、各モードのピーク周波数における減音量、対象周波数における L_p の合計値のいずれにおいても、提案する配置法を用いた場合に R が大きくなっており、Case 6 として示す、本論文で提案する吸音材配置法の有効性を示す結果となった.

4. まとめ

本論文では,直方体状ではない形状の空洞を用いた場 合の吸音材による騒音抑制効果を検討した.その際,空 洞内音場の粒子速度分布の形状を忠実に模擬するのでは なく,定形の吸音材要素を近似的に複数配置することで 手順を簡素化した.

以上の結果,音場の粒子速度分布に基づいて吸音材配 置を行うことによって,直方体状空洞を用いた場合と同 様に騒音抑制効果が得られることが計算および実験の両 面から確認できた.ただし,計算結果と実験結果は,定 性的には同様の傾向を示したものの,減音量については 計算結果と実験結果とでは差が大きい傾向があった.空 洞壁を非剛体として扱うなどモデルの精緻化を進めるこ とで計算と実験との差を小さくすることが今後の課題で ある.



Fig. 12 Numerical results of sound pressure levels radiated from the aperture of the enclosure model using configurations case 5 and case 6.



Fig. 13 Calculated results of noise reduction levels using suitable positioned absorbing materials.

参考文献

- Istvan L. V. and L. L. Beranek: Noise and vibration control engineering, John Wiley & Sons, inc., Chapter 8, (2006).
- 2) 萬菜穂子,福原千絵,加村孝信:ロードノイズ吸音 技術 内装部材を用いた粒子速度低減,自動車技術 会論文集,pp.23-28 (2008).
- 山口誉夫,津川純一,榎本秀喜,黒沢良夫:固有ベクトルを重み係数とした減衰寄与度を用いた三次元室空間内への吸音材の配置,日本機械学会論文集(C編), Vol.74, No.747, pp.30-36 (2008).
- M. A. Biot : Theory of propagation of elastic wavesin a fluid-saturated porous solid. I. Low-frequency range, Journal of acoustical society of America, Vol.28, No.2, pp.168-178 (1956).
- 山本崇史,丸山新一,西脇眞二,吉村允孝:閉空間 における音圧応答最小化を目的とした吸音材のト ポロジー最適化,日本機械学会論文集(C編), Vol.75, No.754, pp.113-121 (2009).
- 6) N. Totaro and J. L. Guyader: Efficient positioning of absorbing material in complex systems by using the patch transfer function method, Journal of sound and vibration, Vol. 331, pp.3130-3143 (2012).
- 伊藤尚文,森下達哉:筐体開口部放射騒音抑制の ための吸音材配置設計,東海大学紀要工学部, Vol. 54, No.2, pp.67-72 (2014).
- T. Pamies, J. Romeu, M. Genesca and A. Balastegui: Sound radiation from an aperture in a rectangular enclosure under low modal conditions, Jounal of acoustical society of America, Vol. 130, No.1, pp.239-248 (2011).
- P. M. Morse and K. U. Ingard: Theoretical acoustics, Princeton University Press, Chapter 9 (1986).
- 森下達哉,青木琢哉,多氣昌生:時間領域差分法を 用いた多孔質材料の音響特性解析,日本音響学会誌 ,Vol.59, No.2, pp.63-69 (2003).
- D. A. Bies and C. H. Hansen: Engineering noise control, CRC Press, Chapter 7 (2009).
- 12) 吉川茂,藤田肇:基礎音響学,講談社サイエンティ フィク,13章 (2002).

固体高分子形燃料電池における電気化学測定に対する 電位掃引速度の影響

温 君寧^{*1} 顧 雲鵬^{*2} 曹 満^{*2} 陳 之立^{*3}

Effect of Potential Sweep Rate on Electrochemical Measurements in Polymer Electrolyte Fuel Cells

by

Junning WEN^{*1}, Yunpeng GU^{*2}, Man CAO^{*2}, and Zhili CHEN^{*3} (Received on May 11, 2020 and accepted on Jul. 24, 2020)

Abstract

There is a problem that the sweep speeds do not match among the electrochemical parameters of hydrogen crossover current (i_{cross}), electrochemical area (ECA), electric double layer charging current ($i_{dl charging}$), exchange current density (i_0), and oxygen reaction reduction specific activity (ORR activity), which causes measurement errors with the conventional method. In this paper, we first investigate the correlation between i_{cross} and ECA over a wide range of sweep speed, and examine the influencing factors. Then, while quantitatively evaluating the measurement error of the conventional method, an appropriate sweep rate for the measuring electrochemical parameters is shown. As a result, the sweep speed dependence of i_{cross} , ECA, $i_{dl charging}$, i_0 , and ORR activity is confirmed. The measurement accuracy of these parameters could be improved significantly by reducing the sweep speed.

Keywords: Potential sweep rate, Hydrogen crossover current, ECA, Exchange current density, Oxygen reaction reduction activity, Polymer electrolyte fuel cell

1. まえがき

燃料電池は従来の熱機関などに比べて環境負荷が低く てエネルギー効率が高いため、次世代のパワーソースと して注目されている¹⁾. その中での固体高分子形燃料電 池 (Polymer Electrolyte Fuel Cells,以下 PEFC)は作動温 度が低く,軽量化・小型化が可能なので、燃料電池自動 車の主力的な動力源として期待されている²⁾. しかし, PEFC の本格的な普及/商用化に際して,耐久性の確保, 出力性能の向上など,様々な難問に直面している^{3,4)}.

耐久性に関して、Weber ら、Inaba ら、Cooper らによる と、カソード側のクロスオーバー由来の水素が酸素と反応し、局所的な過熱は膜にピンホールを発生させ、膜の 劣化につながることがわかった^{5~7)}.また、Uchida らと Ito らは燃料電池の起動停止サイクルにおけるカーボン 腐食に伴った Pt の凝集や脱落が電気化学面積 (Electrochemical area,以下 ECA)によって評価できる と示した^{8,9)}.そのため、燃料電池実用化推進協議会が膜 電極接合体の耐久性評価項目として水素クロスオーバー と ECA の測定を推奨している¹⁰⁾.

出力性能について、Weber ら, J. J. Giner-Sanz らは水素 クロスオーバーが酸化電流を発生させるので、開放電圧 と出力性能の低下を引き起こすと報告している^{5,11)}. Kim らと Hidaka らは高加湿と低加湿における ECA と出力性 能の相関について、高加湿の場合は相関が強く、低加湿 の場合は相関が弱いと報告している^{12,13)}. Murase ら、 Tsushima ら、Nakajima ら、Kocha らは交換電流密度 (Exchange current density,以下は i₀)と酸素還元反応面 積比活性 (Oxygen Reaction Reduction Specific Activity,以 下 ORR 活性)は PEFC 電極反応速度に反映する指標であ り、それらの値が大きいほど、電極反応速度が高く、取 り出せる電流密度が大きく、出力性能が高いと報告して いる¹⁴⁻¹⁷⁾. Xie らと Soboleva らは電気二重層充電電流 (Electric double layer charging current,以下 i_{dl charging})に よって算出する触媒のアイオノマー被覆率の増加は出力 性能の向上に寄与すると報告している^{18,19}.

一方で, ORR 活性が式(1)で示されたように電流と電圧の分極特性(IV curves,以下 IV)における 0.9V での電流値と ECA によって計算される^{17,20)}.

$ORR \ activity = \frac{i_{0.9V \ on \ IV \ curve}}{ECA} \qquad (1)$

IVにおける 0.9V での電流値と ECA がそれぞれクロノ アンペロメトリー (Chronoamperometry,以下 CA)とサ イクリックボルタンメトリー (Cyclic voltammetry,以下 CV)によって計測される.しかし,CA の掃引速度が 0mV/s 相当に対して ECA に掃引速度 10~100mV/s が使 われている.すなわち,測定パラメーターの間に掃引速

^{*1} 総合理工学研究科総合理工学専攻博士後期課程

^{*2} 工学研究科機械工学専攻修士課程

^{*3} 工学部動力機械工学科教授

度が一致しないという問題が存在する. 掃引速度が 0mV/sの ECA についての研究報告は見当たらず, Kim ら は ECA と掃引速度の相関を検討したが, 検討範囲は狭 い. また, 外挿法で掃引速度 0mV/sの ECA を求めたが, 信頼性が低い¹²⁾.

Table1 に PEFC 関連の電気化学パラメーター i_{cross} , ECA, $i_{dl charging}$, i_0 , ORR 活性の測定に用いられる掃引速度を挙 げた $^{6,10,17,19,20-23)}$. Table1 に示されたように、上述以外に も同じ問題が存在し、例えば、IV に i_{cross} の計測結果を使 われているが、この 2 つのパラメーターの掃引速度が一 致していない ²⁰⁾.

Table 1 Effect of various potential sweep rate on electrochemical measurement.

Electrochemical parameter	Measurement item and potential sweep rate used in the electrochemical measurement (mV/s)			
i _{cross}	$\frac{i_{cross}}{(0.5\sim4)^{6,10,17,20,21,23)}}$			
ECA	ECA (10~100) ^{10,17,19,20,22})			
i ₀ and	IV curves	icross	ECA	
ORR activity	$(0)^{10,20)}$	(0.5~4)	(10~100)	
idl charging	i_{cross} (0.5~4)	$i_{cell(p)}$ (10~100) ¹⁹⁾	-	

ここで, i_{cell(p)}は CV 正方向掃引時 0.4V でのセル電流 である.

そこで、本研究では、まず掃引速度が icross と ECA との相関を広範囲で調査し、その影響要素を検討した。それから、従来法の測定誤差を定量評価しながら、電気化 学パラメーター(icross, ECA, idl charging, io, ORR 活性) の測定における適正な掃引速度を示した。

2. 実験方法

2.1. 燃料電池単セルの仕様

本研究に用いられた試験用燃料電池単セルは日本自動 車研究所の標準単セルに参考して自作したもので,ただ し,電極面積は 5cm²geo に変更した.エンドプレートの厚 みは 12mm,ステンレス製で,集電板の厚みは 3mm,銅 プレート製金メッキである.セパレーターは樹脂含浸グ ラファイトプレートを使用し,流路は幅 1mm×深さ 1mm の1本サーペンタイン形である.ガス拡散層にマイクロ ポーラス層付きカーボンペーパー(22BB, SGL 社製)を 用いた.

MEA は転写法で作製した. 触媒インクは白金担持カー ボン TEC10E50E (46.6wt.%,田中貴金属社製), Nafion 分散溶液 Nafion DE521 (equivalent weight (EW) = 1100 g/eq, Du Pont 社製),表面活性剤 (99.9% IPA),および蒸留水 で調合し,超音波攪拌機とマグネチックスターラー攪拌 機によって攪拌した.アイオノマーの含有量 (Nafion/(Nafion+Pt+KB))は 20wt.%とした.アノードと

カソードの塗布量はそれぞれ 0.5±0.01mgPt/cm²geo と 0.4

±0.01mgPt/cm²geo である. 電解質膜は NRE 212 (50µm thickness, Dupont 社製)を使用した. ホットプレス条件は 1.0MPa, 140°C, 10min である.

2.2. 燃料電池評価システム

Fig. 1 に燃料電池評価システムを示す.ガス流量制御 はマスフローコントローラー3660(Kofloc 社製)を使用 した.温度制御は単セルと加湿用バブラーに別々の恒温 槽 DSR-115(いすゞ社製)を使用した.セル温度は 80± 0.2℃に制御し,セルの出口ガス湿度が 100%RH になるよ うにバブラーの恒温槽温度を制御した.リニアスイープ ボルタンメトリー(Linear sweep voltammetry,以下 LSV), CV および CA にポテンショスタット HAL3001と関数発 生器 HB-305(北斗電工社製)を用いた.温度以外のデー タが高速データロガーGL7000(Graphtec 社製),温度は GL220(Graphtec 社製)で収録した.内部抵抗(HFR)は 1kHz の交流インピーダンス計 3660(横河電機社製)で 計測した.



Fig. 1 The diagram of homemade PEFC test system.

2.3.任意の掃引速度における icrossの測定方法

従来のLSVでは掃引速度が高くなると、Fig.2(A)に示 したように idl charging の影響が顕著になる^{19,21)}. そのため, icross の計測結果の中に idl charging が含まれ, 過小評価され る.本研究では,まず Fig.2(B)に示したように, CAで3 点以上の定電位の応答電流を計測し, ishort を得る. その 次,任意の掃引速度において Fig.2(C)に示した CV 測定 から式(2)によって idl charging を得る. Fig.2(C) において, プロトンの吸着/脱離電流と白金の酸化/還元電流のない 範囲では,例えば 0.4V 付近においた正掃引時の電流値 (icell(p))には icross, idl charging および ishort しか含まない ので,式(3)によって icross が求まる.

また, 掃引速度がゼロの i_{cross} 測定は CA を利用した. この場合, $i_{dl charging}$ の影響を受けないので, i_{cross} をより精確に計測できる.

$dl_{dl charging} = i_{dl discharging} =$	$(i_{cell(p)} - i_{cell(n)}) / 2$	(2)
$i_{cross} = i_{cell(p)} - i_{dl charging} - $	· i _{short}	(3)



Fig. 2 Calculation method of hydrogen crossover current at various potential sweep rates.

3. 結果および考察

3.1. i_{cross}の掃引速度依存性

まず, CA 測定(掃引速度が 0mV/s) を行い, その結果 を Fig. 3 に示す.印加電位 0.40, 0.45 および 0.50V におい て、いずれも 10 分間を保持し、idl charging の影響を完全に なくした上,電流を読み取り,その結果を Fig. 4 にプロ ットし、回帰直線 (y=0.067x+1.539) によって icross と ishort@0.40V を算出した.次に, CV 測定(掃引速度が 2, 20, 50, 100mV/s) を行い, その結果を Fig. 5 に示す. 式 (2)と式(3)を利用して icross@0.40V を算出した. 上記によ る得られたすべての icross を Fig. 6 にプロットし、icross と 掃引速度の相関を求めた (y=-0.0041x+1.510). Fig.6 に示 すように、icross と掃引速度の関係は線形である.これは 0.40V~0.50V での水素反応速度が十分なので、反応速度 の影響が無視でき、icross は水素拡散速度だけに律速され るため、線形だと判断した²⁴⁾. ただし、掃引速度 0mV/s の icross 測定値は近似線から大きくずれており、これは Fig.3 でもわかるように計測装置の分解能の限界に達し ているため、ノイズの影響が大きいことが起因である. Fig.6から掃引速度が100mV/sから0mV/sまで低下させ る時, icross は最大 9.27% 増加した (Table3 参照). また, 参考のために、上記 CAと CV の測定値を Table2 に示す. なお、CA と CV の測定は複数回実験によって再現性を 確認しており, CV 測定において, すべての掃引速度につ

いて3サイクル目のデータを使用した.



Fig. 3 Chronoamperograms with various applied potentials (80°C, RH100%; 10min at every potential).



Fig. 5 Cyclic voltammograms with various potential sweep rates (H₂:N₂=200cc/min:200cc/min; 0.05V~0.9V; 80°C, RH100%).

Table 2 Calculation results of current density at 0.40V based on Fig. 4 and Fig. 5.

v (V/)	$i_{@0.40V}$ (mA/cm ² _{geo})					
(mv/s)	icell(p)	i _{cell(n)}	idl charing	i _{cross}		
0	-	-	-	1.539		
2	1.575	1.480	0.048	1.500		
20	2.421	0.586	0.918	1.476		
50	3.738	-0.790	2.264	1.446		
100	5.918	-3.119	4.519	1.372		



Fig. 6 Relationship between hydrogen crossover currents and potential sweep rates based on based on Fig. 5 and Table 1.

1	labl	e :	3	Calc	ulati	on	result	s of	1cross@	0.40V	based	on.	F1g.6).
													_	

ν	icross@0.40V	Decrease
(mV/s)	(mA/ cm_{geo}^2)	rate (%)
0	1.510	-
2	1.507	0.19
4	1.504	0.40
20	1.482	1.85
50	1.440	4.64
100	1.370	9.27

3.2. ECA の掃引速度依存性

ECA の算出方法は NEDO のセル評価解析プロトコル²⁰⁾と Kocha ら¹⁷⁾に参考し,式(4)によって算出した.

$$ECA = \frac{Q_H}{210\mu C/cm_{Pt}^2 \times L_{Pt}} \qquad (4)$$

ここで、 Q_H (mC/cm²geo) はサイクリックボルタモグラ ムの還元吸着波 (H⁺+e⁻→H_{ad}) によって計算された吸着電 気量で、210µC/cm²Pt は平滑多結晶 Pt 上の単一層電荷容 量で²²⁾, LPt (*gPt*/cm²Pt</sub>) はカソード Pt の塗布量である. Fig.7 と Fig.8 に掃引速度が低下時のサイクリックボル タモグラムおよび ECA の算出値を示す. Q_H の積分範囲 は NEDO のセル評価解析プロトコルに参考して、 0.05~0.4V とした. 掃引速度が低下すると、ECA が増加 した. これはプロトン移動速度の律速による結果だと考 えられている.本研究の実験条件では,ECA が最大 32.87%変化する(文献 19 とオーダー的に一致している). 後述するが,これは ORR 活性と i₀ の過大評価をもたら す.



Fig. 7 Cyclic voltammograms with various potential sweep rates ($H_2:N_2=200cc/min:0cc/min; 0.05V\sim0.9V; 80^{\circ}C, RH100\%$).



Fig. 8 ECA at various potential sweep rates based on Fig. 7.

3.3. 従来 LSV の測定誤差の定量化評価

従来 LSV の掃引速度は研究者によっておおむね 0.5~4mV/s を使われている ^{6,10,17,20,21,23}). Fig.6 および Table3 から LSV を CA に変えても生じた誤差は最大で 0.40%である. すなわち, この掃引速度範囲ならば ial charging が十分に小さく, また水素拡散速度の影響もほぼ 無視できると示唆する.

3.4. 従来 idl charging の測定誤差の定量化評価

i_{dl charging}の測定は通常 CV 測定のみで計算できるが(式
 (1)),研究者によって CA または LSV で計測した i_{cross} と
 CV で読み取った i_{cell(p)}を利用して計算する場合もある
 (式(5)または式(6))¹⁹. この場合, CA または LSV と CV
 の掃引速度の乖離が計測誤差を引き起こす.

$$i_{dl charging} = i_{cell(p)} - i_{cross}$$
(5)
$$i_{dl charging} = i_{cell(p)} - i_{cross} - i_{short}$$
(6)

誤差の大きさは CV (掃引速度=2mV/s) と CV (掃引速 度=50mV/s) の場合を例にして試算してみた. その結果を Table 4 に示す.本研究の実験条件では 2.83%の誤差が生 じた.すなわち, idl charging の測定に用いられた複数の電気 化学パラメーターの掃引速度を統一することが必要であ る.

Table 4 Comparison of $i_{dl \ charging}$ calculation results based on Equation 2 and Equation 6 (The data are read from Table 2 and Table 3).

i _{dl charging} calcu	lated based	idl charging calculated based		
on Equat	tion 2	on Equation 6		
(mA/ cm	n ² geo)	(mA/cm^2_{geo})		
i _{cell(p)} (50mV/s)	3.738	i _{short} (0mV/s)	0.028	
i _{cell(n)} (50mV/s)	-0.790	i _{cross} (2mV/s)	1.507	
idl charging	2.264	idl charging	2.200	
Error	-	-	2.83%	

3.5. i₀と ORR 活性に対する掃引速度の影響

 i_0 と ORR 活性の算出に IV 測定, i_{cross} 測定および ECA 測定が必要である ^{17,20}. IV において,各測定点の電流ま たは電圧の保持時間は 2min~15min で,すなわち,掃引 速度は 0mV/s に相当する.前述のように, i_{cross} は 0.5~4mV/s で, CV は 10~100mV/s なので,掃引速度の乖 離による誤差が生じる.一方で, i_0 と ORR 活性は反応速 度を反映した指標であるので ¹⁴⁻¹⁷,その議論を行うため には物質輸送速度の影響を排除する必要があると考察し た.それで, i_{cross} 測定および ECA 測定に用いられる掃引 速度は 0mV/s あるいはそれに近くまで遅らせること必要 がある.本研究は従来の手法(i_{cross} は 2 mV/s, ECA は 50 mV/s)を例にして,その掃引速度の乖離をほぼ解消した 手法(i_{cross} は 0mV/s, ECA は 2mV/s)の結果と比べた.

 i_0 と ORR 活性の算出方法は NEDO のセル評価解析プ ロトコルと Kocha らに参考した^{17,20)}.まず, Fig. 9(A)に 示している IV で得たセル電圧 E_{cell} (mV) と幾何面積電 流密度 i_{cell} (mA/cm²_{geo})を抵抗分極 (η_{ohmic} , mV), 拡散 分極 (η_{dif} , mV) および i_{cross} で補正を行い,その結果を Fig. 9(B)に示す.次に,補正後の $i_{cell}+i_{cross}$ の単位を幾何 面積電流密度 (mA/cm²_{geo})から ECA 面積電流密度 (mA/cm²_{ECA}) に変換する (式(7)).さらに,横軸を対数 軸に変換し,その結果を Fig. 9(C)に示した.

$$[mA/cm_{ECA}^{2}] = \frac{[mA/cm_{geo}^{2}]}{[mg_{Pt}/cm_{geo}^{2}] \times [m_{ECA}^{2}/mg_{Pt}]}$$
(7)

i₀ (mA/cm²_{ECA}) はターフェルプロット勾配の延長線と 理論起電力 E_{rev} (水素と酸素の雰囲気,温度 80℃,圧力 latm, E_{rev}=1167mV) の交点で,ORR 活性 (µA/cm²_{ECA}) はターフェルプロットの 0.9V における電流値である.計 算結果を Table5 に示す. 掃引速度の乖離による i₀ および ORR 活性の誤差は約 29%である. この誤差はほとんど掃 引速度の乖離によって生じた ECA の変化に由来するも ので(ECA の変化は 29.11%), i_{cross}の誤差による寄与が わずかである. これは ECA 測定に掃引速度をできるだけ OmV/s まで遅らせる必要があることを意味する.



(A). Hydrogen/oxygen performance curve of a PEFC single cell at 80°C and 100%RH(Uf:8.7%,Uox:4.4%@200mA/cm²geo)



(B). Correction of E_{cell} and i_{cell} based on $\eta_{ohmic},\,\eta_{dif}$ and i_{cross}



(C). Area unit conversion and logarithmic conversion for the x-axis

Fig. 9 Calculation results of i₀ and ORR activity at various potential sweep rates.

Table 5 Calculation results of i_0 and ORR activity based on Fig. 9.

v (mV/s)		i ₀ (mA/cm ² _{ECA})		ORR activity @0.90V (µA/cm ² _{ECA})	
i _{cross}	ECA	i ₀	Decrease rate (%)	ORR specific activity	Decrease rate (%)
2	50	2.806×10-6	-	37.467	-
0	2	1.987×10-6	29.19	26.441	29.43

4. 結論

- (1). icross と ECA の掃引速度依存性が確認された.本研究の実験条件において,掃引速度を 100mV/s から 2mV/s に低下させた時, icross と ECA はそれぞれ 9.08%と 32.87%増加した.これらは物質輸送の律速によるものである.
- (2). 従来 LSV による icross 測定に使われている掃引速度 は idl charging を十分に小さく抑えることができ,計測誤 差はほぼ無視できる.
- (3). CA または LSV で計測した icross と CV で読み取った icell(p)を利用して idl charging を計算する場合は CV の掃 引速度が 50mV/s とすると、2.83%の誤差が生じる.
- (4). i₀ と ORR 活性を算出するための IV 測定, i_{cross} 測定 および ECA 測定において掃引速度の乖離による i₀ お よび ORR 活性の誤差は約 29%である.この誤差はほ とんど ECA の変化に由来するものである.
- (5). icross, ECA, idl charging, i0, ORR 活性の測定は複数の パラメーターの掃引速度を統一する必要がある.本 研究の検討範囲において,掃引速度を 2mV/s まで低 下させれば測定精度が従来の掃引速度より顕著に改 善できることがわかった.掃引速度が 2mV/s から 0mV/s までの検討は今後の課題とする.

謝辞

本研究の遂行にご協力を頂いた東海大学工学部動力機 械工学科陳之立研究室に所属した鄭一氏,岡嶋哉氏,宇 帥氏,龐子健氏,趙旭旭氏,および張宇豪氏に感謝の意 を記します.

参考文献

- Wang, Yun, et al: A review of polymer electrolyte membrane fuel cells: Technology, applications, and needs on fundamental research, Applied Energy, Vol.88, No.4, pp.981-1007 (2011).
- 西川尚男:資源の枯渇と地球温暖化問題,燃料電池の技術 固体高分子形の課題と対策,東京電機大学 出版局, pp.14,20,31,74,75,133,134, 135,143 (2010).
- Debe, Mark K: Electrocatalyst approaches and challenges for automotive fuel cells, Nature, Vol.486, No.7401, pp.43-51 (2012).
- Yoshida, Toshihiko, and Koichi Kojima: Toyota MIRAI fuel cell vehicle and progress toward a future hydrogen

society, Electrochemical Society Interface, Vol.24, No.2, pp.45-49 (2015).

- 5) Weber, Adam Z: Gas-crossover and membrane-pinhole effects in polymer-electrolyte fuel cells, Journal of The Electrochemical Society, Vol.155, No.6, pp.B521- B531 (2008).
- Inaba, Minoru, et al: Gas crossover and membrane degradation in polymer electrolyte fuel cells, Electrochimica Acta, Vol.51, No.26, pp.5746-5753 (2006).
- Cooper, Kevin R: In situ PEMFC fuel crossover & electrical short circuit measurement, Fuel Cell Mag Aug/Sep (2008).
- 内田誠,柿沼克良,渡辺政廣:固体高分子形燃料電 池の触媒層の Pt 削減と耐久性向上のための開発 の歴史と将来設計,粉砕, Vol.56, pp.3-11 (2012).
- 伊藤仁,内村允宣,大間敦史:固体高分子形燃料電 池における触媒層劣化現象とその電気化学的評価 法,炭素, Vol.266, pp.21-30 (2015).
- 10) 吉田利彦,大丸明正,大間敦史,篠原和彦,飯山明 裕:固体高分子形燃料電池の目標・研究開発課題と 評価方法の提案,燃料電池実用化推進協議会(FCCJ), p.16 (2011).
- Giner-Sanz, Juan José, E. M. Ortega, and Valentín Pérez-Herranz: Hydrogen crossover and internal short-circuit currents experimental characterization and modelling in a proton exchange membrane fuel cell,International journal of hydrogen energy, Vol.39, No.25, pp.13206~13216 (2014).
- 12) Kim, Hee-Tak, et al: Electrochemical analysis of polymer electrolyte membrane fuel cell operated with dry-air feed, Journal of Power Sources, Vol.193, No.2, pp.515-522 (2009).
- 日高啓昭,坂口裕二郎,末永寛,田島大輔,大坪昌 久:白金使用量の低減を目的とした固体高分子形燃 料電池用 MEA 作製技術の検討,電気学会論文誌 A (基礎・材料・共通部門誌), Vol.131, No.2, pp.102-108 (2011).
- 14) 邑瀬邦明:電気化学の基礎,第45回電気化学講習会 ~電気化学測定の基礎から応用まで~,電気化学会 関西支部 (2015)
- 津島将司,平井秀一郎:燃料電池の原理と特徴,高 温学会誌, Vol.35, No.5, pp.224-230 (2009).
- 16) 中島達哉:固体高分子形燃料電池電極の電解質特性 に基づいた設計・開発,東京工業大学大学院総合理 工学研究科化学環境学専攻博士論文 (2013).
- 17) Kocha, S. S.: Principles of MEA preparation, Handbook of fuel cells, Vol.3, Chaper.37, pp.538-565 (2003).
- Xie, Jian, et al: Influence of ionomer content on the structure and performance of PEFC membrane electrode assemblies, Electrochimica Acta, Vol.55, No.24, pp. 7404-7412 (2010).
- 19) Soboleva, Tatyana, et al: PEMFC catalyst layers: the role of micropores and mesopores on water sorption and fuel

cell activity, ACS applied materials & interfaces, Vol.3, No.6, pp.1827-1837 (2011).

- 20) 大丸明正:セル評価解析プロトコル, 新エネルギー・ 産業技術総合開発機構(NEDO), p.16 (2012).
- 21) Jiang, Ruichun, H. Russell Kunz, and James M. Fenton: Investigation of membrane property and fuel cell behavior with sulfonated poly (ether ether ketone) electrolyte: Temperature and relative humidity effects, Journal of Power Sources, Vol.150, pp.120-128 (2005).
- 22) 中島裕典, 許斐敏明, 北原辰巳, 池田丈典:サイクリ ックボルタンメトリー法による固体高分子形燃料

電池の発電状態カソード有効電極触媒面積の解析, 日本機械学会論文集 B 編, Vol.75, No.758, pp.2068-2075 (2009).

- 23) DoE, U. S.: DOE cell component accelerated stress test protocols for PEM fuel cells, US DoE, USA, Vol. 3, Chaper.37, pp.2-3 (2011).
- 24) Kocha, Shyam S., J. Deliang Yang, and Jung S. Yi: Characterization of gas crossover and its implications in PEM fuel cells, AIChE Journal, Vol.52, No.5, p. 1916-1925 (2006), doi: 10.1002/aic.10780

燃料過多推進薬を用いたハイブリッドロケットの

酸燃比の時間履歴を推定するための再現法

阿部 宗生*1 森田 貴和*2 海老原 大祐*3

Reconstruction Technique for Estimating Time Histories of Oxidizer-to-Fuel Mass Ratio of Hybrid Rocket Motors Using a Fuel-rich Solid Propellant

by

Hiroki ABE^{*1}, Takakazu MORITA^{*2} and Daisuke EBIHARA^{*3} (Received on Mar. 31, 2020 and accepted on Jul. 24, 2020)

Abstract

The oxidizer-to-fuel mass ratio (O/F) of a hybrid rocket motor changes over time as the cross-sectional area of the fuel port increases. This is called O/F shift, which reduces the engine performance of hybrid rockets. To reduce the O/F shift, one of the authors proposed using multi-layered propellant grains with a different fuel regression rate for each layer. In order to evaluate the improvement of O/F shift, it is necessary to obtain the time history of O/F. We developed a new reconstruction technique applicable to fuel-rich solid propellants to determine the time history of O/F.

Keywords: Hybrid rocket, Oxidizer-to-fuel mass ratio, Reconstruction technique, Fuel-rich solid propellant

記号一覧

- A_b: 燃焼面積, m²
- *A_p*: グレインポート断面積, m²
- A_t : ノズルスロート面積, m²
- a: 燃料後退速度の係数
- c*: 特性排気速度, m/s
- c_{th}^* : 理論特性排気速度, m/s
- *D_i*: インジェクター・オリフィス径, mm
- D_p : グレインポート径, mm
- D_t : ノズルスロート径, mm
- G: 質量流束, kg/(m²·s)
- L: 燃料長さ, mm
- *M*: 質量流量, kg/s
- m: 質量流束指数 (mass flux exponent)
- n: 圧力指数 (pressure exponent)
- 0/F: 酸燃比
 - p: 圧力, MPa
 - r: グレインポート半径, mm
 - *r*: 燃料後退速度, mm/s
- rexp: 燃焼時間で平均化した燃料後退速度, mm/s
- T_{fl}: 断熱火炎温度, K
- *1 工学研究科機械工学専攻修士課程
- *2 工学部航空宇宙学科准教授
- *3 工学部航空宇宙学科航空宇宙学専攻学部生

- t_a: 全燃焼時間, s
- *t_b*: 燃焼時間, s
- ΔM: 消費質量,g
- η_{c^*} : c^* 効率
- ρ : 密度, kg/m³
- φ : 燃料過多推進薬内の AP の割合(= $\Delta M_{AP}/\Delta M_P$)

添字

- AP: 過塩素酸アンモニウム
- c: 燃焼器
- F: 燃料
- i: 燃焼前, または燃焼開始時
- OX: 酸化剤
 - P: 燃料過多推進薬

1. 緒言

昨今多くの大学や研究機関でハイブリッドロケットの燃 焼特性に関する基礎研究やその実現へ向けての性能向上が 行われてきた.しかしながら,ハイブリッドロケットが実用 化された例は他と比べて非常に少ない.その理由は,ハイブ リッドロケットにいくつかのデメリットが存在しているた めである.例を挙げると低燃料後退速度や O/F シフト,低 燃焼効率,振動燃焼,機軸方向の燃料後退速度の変化がある. 機軸方向に燃料後退速度が変化する要因として,輻射熱伝 熱が対流熱伝達の効果より十分小さいとすると、Marxman らの境界層燃焼モデルより燃料後退速度は次式で表すこと ができる¹⁾.

$$\dot{r} = aG^m x^{-0.2} \tag{1}$$

このような機軸方向の燃料後退速度の非一様性により、燃 焼末期のスライバ燃焼域での内圧変化および推力変動が大 きくなる傾向がある.そこで,この問題を改善するために固 体酸化剤を量論混合比よりも低い割合で含有させた燃料過 多推進薬を用いて, 自立燃焼の度合いを高めることで境界 層燃焼の影響を低下させる研究が行われてきた²⁾.一方,著 者らは燃料後退速度の異なる固体燃料や燃料過多推進薬で グレインを多層化し、ハイブリッドロケットの O/F シフト を低減させる取り組みを行ってきた 3,4). この O/F シフトの 改善を評価するためには O/F 値の時間履歴を求めなければ ならないが、これを簡単に評価するために再現法の利用を 考えた.しかし、従来の再現法は固体酸化剤の使用を前提に しておらず、燃料過多推進薬に直接適用できなかった. そこ で、本研究では従来の再現法を拡張して燃料過多推進薬を 用いたハイブリッドロケットの O/F の時間履歴について計 算できるようにした.

2. 実験装置

2.1 燃焼器と燃料過多推進薬

実験で用いた燃焼器を Fig. 1,およびその概略図を Fig. 2 に示す.この燃焼器では円筒型の燃料を使用する(Fig. 3). 酸化剤としては、気体酸素(GOX)と過塩素酸アンモニウム (AP,カーリットホールディング株式会社)を用いた.燃 料過多推進薬は平均粒径 200 µmと50 µmのAPを1:1 の割合で混合し、燃料兼バインダーとして不飽和ポリエス テル樹脂(UP)を用いて成型した.同製品はリファインテ ック株式会社製で、主剤が品番 27-751 で、主成分として不 飽和ポリエステル約65%、スチレンモノマー(SM)約35% で構成されている.硬化剤は同社の製品で、主にメチルエチ ルケトンパーオキサイド、ジメチルフタレートで構成され ている.品番は 27-752 である.燃料カートリッジにはアク リルパイプを用い、UP に AP を含有した燃料過多推進薬 (AP/UP=10/90 および AP/UP=20/80)を製作した.



Fig. 1 Experimental setup.

酸化剤供給系および点火系は、プログラマブルロジックコントローラ(PLC)により制御し、燃焼実験を行った.







Fig. 3 Fuel-rich solid propellant.

Table 1 Experimental condition.				
Fuel	Unsaturated Polyester resin (UP)			
Ovidinan	Gaseous Oxygen (GOX)			
Oxidizei	Ammonium Perchlorate (AP)			
D_p	19, 25			
D_j	2.286			
D_t	8, 10			
L	60 70			

2.2 燃料過多推進薬の役割

式(1)より,ハイブリッドロケットは軸方向に対して燃料 後退速度が変化するため,機軸方向に一様に燃料を燃やす ことが困難であり,燃え残りやスライバ燃焼による燃焼末 期の圧力変化が大きくなるような問題が生じる.これを解 決する方法として,燃料が自立燃焼することで燃料後退速 度の境界層拡散燃焼への依存度を低下できると考えられる.



Fig. 4 Combustion model of a fuel-rich solid propellant.

3. 燃料過多推進薬への再現法の応用

3.1 再現法の原理

再現法 (Reconstruction Technique) は、 $\dot{M}_{ox} \ge p_c$ から燃料の 質量流量をはじめとして様々な諸量を推定する手法である. 国外では Osmon⁵⁾や Carmicino⁶らの研究があり、国内では CAMUI ロケットの開発に関連して永田らの研究 ⁷や未燃ワ ックス燃料の排出量およびその η_{c^*} への影響を調べた例 3や ノズルエロージョン⁸, ノズル壁面温度の推定⁹などの研究 がある.次に,再現法の原理について簡単に説明する.まず, c_{th} は *O/F* と p_c の関数で表され,化学平衡計算を用いて求め ることができる. c^* はこの $c_{th}^* と \eta_{c^*}$ から次のようになる.

$$c^* = \eta_{c^*} c_{th}^* (O/F, p_c)$$
⁽²⁾



Fig. 5 Mass conservation in a combustion chamber.

一方, 燃焼室全体についての連続の式は次式で表される.

$$\dot{M}_{\rm OX} + \dot{M}_{\rm P} = \dot{M}_{\rm OX} + \dot{M}_{\rm AP} + \dot{M}_{\rm F} = \frac{A_t p_c}{c^*}$$
(3)

O/F と燃料過多推進薬の混合比φを以下のように定義する.

$$\varphi = \frac{\dot{M}_{AP}}{\dot{M}_{P}} = \frac{\dot{M}_{AP}}{\dot{M}_{AP} + \dot{M}_{F}}$$

$$O/F = \frac{\dot{M}_{OX} + \dot{M}_{AP}}{\dot{M}_{F}} = \frac{\dot{M}_{OX}}{\dot{M}_{F}} + \frac{\varphi}{1 - \varphi}$$

$$= \frac{\varphi}{1 - \varphi} \left(\frac{\dot{M}_{OX}}{\dot{M}_{AP}} + 1\right)$$
(5)

従来の再現法では、燃料に固体酸化剤が含まれていない場合を対象としていたため、固体酸化剤を含む燃料過多推進 薬では、式(5)に示すようにその効果を O/F に含める必要が ある.以上より式(2),(4),(5)を式(3)に適用して変形すると、 次式を得る.

$$\dot{M}_{\rm OX} \left(1 + \frac{\dot{M}_{\rm AP} + \dot{M}_{\rm F}}{\dot{M}_{\rm OX}} \right) - \frac{A_t p_c}{\eta_{c^*} c_{th}^*} = 0$$
$$\dot{M}_{\rm OX} \left[1 + \frac{1}{(1 - \varphi) O/F - \varphi} \right] - \frac{A_t p_c}{\eta_{c^*} c_{th}^*} = 0$$
(6)

式(6)において \dot{M}_{OX} と p_c は測定値を使用し、 η_{c^*} の値は燃焼時間を通じて一定と仮定した上でニュートン・ラプソン法を用いて O/F の時間履歴を計算することができる.ただし、 η_{c^*} が適切な値でないと、式(7)の計算で得られた質量流量についての時間積分 ΔM_P と実験で得られた消費燃料の質量 ΔM_P が一致しない.そこで、一致するまで η_{c^*} の値を逐次調節して、解が収束するまで式(6)について繰り返し計算を行うことで正しい O/F の時間履歴が得られる.

$$\dot{M}_{\rm P} = \dot{M}_{\rm F} + \dot{M}_{\rm AP} = \frac{\dot{M}_{\rm OX}}{1 - \varphi} \left(\frac{\dot{M}_{\rm F}}{\dot{M}_{\rm OX}} \right) = \frac{\dot{M}_{\rm OX}}{(1 - \varphi) \, O/F - \varphi}$$
(7)
$$\Delta M_{\rm P} = \int_{0}^{t_a} \dot{M}_{\rm P} dt$$
(8)

3.2 化学平衡計算プログラムによる計算結果

計算の簡略化の為に、離散的な *O/F* と p_c の値に対する c_{th}^* の一連のデータ (ルックアップテーブル)から、個々のケースの c_{th}^* 値を読み込んで再現法の計算を行った. 燃料過多推進薬の場合、固体酸化剤が加わるため、その分を考慮しなければならず、従来型ハイブリッドロケットにおける再現法の取り扱い方とは一部異なる.まず、酸化剤全体に対するGOX の質量分率を $\chi_{OX} = \dot{M}_{OX}/(\dot{M}_{OX} + \dot{M}_{AP})$ 、同じく AP の質量分率を $\chi_{AP} = \dot{M}_{AP}/(\dot{M}_{OX} + \dot{M}_{AP})$ とおくと、式(5)より

$$\frac{\chi_{\rm OX}}{\chi_{\rm AP}} = \frac{1-\varphi}{\varphi}O/F - 1 \tag{9}$$

が得られる. $\chi_{AP} = 1 - \chi_{OX}$ の関係があるので,これと上式を 用いて $\varphi = 10$ %と $\varphi = 20$ %の時の酸化剤全体に対する GOX と AP の質量分率を Table 2 に示す.また,その結果を 用いて化学平衡計算 (NASA CEA) を行った結果を Fig. 6, Fig. 7 に示す.

Table 2 Mass fractions of GOX and AP.

	$\varphi = 10 \%$		$\varphi = 20 \%$	
<i>O</i> / <i>F</i>	GOX, wt%	AP, wt%	GOX, wt%	AP, wt%
0.6	81.48	18.52	58.33	41.67
0.8	86.11	13.89	68.75	31.25
1.0	88.89	11.11	75.00	25.00
1.2	90.74	9.26	79.17	20.83
1.4	92.06	7.94	82.14	17.86
1.6	93.06	6.94	84.38	15.63
1.8	93.83	6.17	86.11	13.89
2.0	94.44	5.56	87.50	12.50
2.2	94.95	5.05	88.64	11.36
2.4	95.37	4.63	89.58	10.42
2.6	95.73	4.27	90.38	9.62
2.8	96.03	3.97	91.07	8.93
3.0	96.30	3.70	91.67	8.33
3.2	96.53	3.47	92.19	7.81
3.4	96.73	3.27	92.65	7.35
3.6	96.91	3.09	93.06	6.94
3.8	97.08	2.92	93.42	6.58
4.0	97.22	2.78	93.75	6.25









以上の結果を用いて、本再現法はFig.8に示す一連の手順で 計算を進める.



Fig. 8 Calculation of internal ballistic parameters using the reconstruction technique.

固体燃料,または燃料過多推進薬を用いたハイブリッドロケットの燃焼実験と NASA CEA の化学平衡計算による結果を Table 3 に示す.

Table 3 Experimental and calculated results of the GOX/UP and GOX/AP /UP hybrids.

		2	
AP/UP	0/100	10/90	20/80
С*	1417.0	1292.2	1399.1
c_{th}^{*}	1491.7	1363.5	1506.4
$D_{p,i}$	19.5	25.3	19.7
D_t	8	10	8
$G_{\rm OX}$	25.1	25.3	20.9
L	70.1	58.9	60.0
O/F	3.58	5.19	3.39
p_c	0.31	0.27	0.28
\dot{r}_{exp}	0.43	0.48	0.55
η_{c^*}	95.0	94.8	92.9
$ ho_{ m P}$	1280.0	1325.5	1374.4

3.3 再現法による計算結果

固体燃料(AP/UP=0/100)の燃焼実験により得られた燃焼 圧とインジェクター上流圧の履歴を各々Fig. 9, Fig. 10 に, 再現法を適用して得られた *O/F*の時間履歴をFig. 11 に示す.



Fig. 9 Time history of the chamber pressure (AP/UP=0/100).



Fig. 10 Time history of the injector pressure (AP/UP=0/100).



一方,同燃料の定常燃焼実験の結果より得られた \dot{r}_{exp} と G_{OX} の両対数グラフを Fig. 12 に示し,それから求められた実験式を式(10)に示す.



Fig. 12 Effect of oxidizer mass flux on the fuel regression rate (AP/UP=0/100).

$$\dot{r}_{\rm exp} = aG_{\rm OX}^m = 0.0493G_{\rm OX}^{0.671} \tag{10}$$

式(10)の結果を用いて,燃料流量の時間履歴を計算した.定 常燃焼実験の結果を用いて燃料流量を求める際に,G_{OX}は次 式で求めることができる.

$$G_{\rm OX} = \frac{\dot{M}_{\rm OX}}{A_p} = \frac{4\dot{M}_{\rm OX}}{\pi D_p^2} \tag{11}$$

式(10)に式(11)を代入して積分すると、次式が得られる.

$$r(t) = r_i \left[1 + (2m+1)\frac{\dot{r}_i t}{r_i} \right]^{\frac{1}{2m+1}}$$
(12)

さらに式(12)をtで微分すると、r(t)を求めることができる.

$$\dot{r}(t) = \dot{r}_i \left[1 + (2m+1)\frac{\dot{r}_i t}{r_i} \right]^{-\frac{2m}{2m+1}}$$
(13)

ここで, $\dot{r}_i = a \left(\dot{M}_{OX} / \pi r_i^2 \right)^m$ である.式(12),(13)の結果を用いると,直ちに燃料流量の時間履歴を求めることができる.

$$\dot{M}_{\rm P}(t) = \rho_{\rm P} A_b(t) \dot{r}(t) = \rho_{\rm P} 2\pi r_i L \dot{r}_i \left[1 + (2m+1) \frac{\dot{r}_i t}{r_i} \right]^{-\frac{2m-1}{2m+1}}$$
(14)

なお式(12)から式(14)まで導出する際に,酸化剤質量流量は 時間的に一定と仮定した.式(14)で求めたM_pの時間履歴と 再現法で得られたM_pの時間履歴の比較をFig.13に示す.Fig. 13 の赤い実線は,定常燃焼実験により得られた燃料後退速 度式を用いて計算された燃料流量の時間履歴を,青い実線 は再現法で得られたものを表している.



以上の結果より,燃料流量の誤差評価を行ったところ,誤差 が 2.86%であった.前出した通り,赤い実線のケースは酸 化剤質量流量を一定と仮定しているので,その分を考慮し ても誤差は比較的少なかった.なお誤差評価は,再現法によ る燃料流量と定常燃焼実験で得られた燃料流量の差の絶対 値の時間積分を燃料消費量で割ったものとした.

次に, 燃料過多推進薬について調べた. 燃料過多推進薬の rは, 次式のような実験式で与えられることが多い. ただし, 今回 AP の質量分率が低いため, 燃料過多推進薬の燃料後退 速度は圧力に対してほぼ不感であると仮定した.

$$\dot{r} = aG_{\rm OX}^m p_c^n \approx aG_{\rm OX}^m \tag{15}$$

AP/UP=10/90 の場合について, p_c , インジェクター上流圧, O/F の時間履歴をそれぞれ Fig. 14, Fig. 15, Fig. 16 に示す. また G_{OX} を色々変えて行った定常燃焼実験の結果を Fig. 17 に示す. その時の燃料後退速度式を式(16)に示す.

$$\dot{r}_{exp} = aG_{OX}^m = 0.1124G_{OX}^{0.458} \text{ (AP/UP=10/90)}$$
 (16)

式(16)で求めた*İ*_pの時間履歴と再現法で得られた*İ*_pの時間 履歴の比較を Fig. 18 に示す. 燃料流量の誤差評価を行った 所, 誤差が 3.66 %と少なく, 今回拡張した再現法の有効性 を示している.



Fig. 14 Time history of the chamber pressure (AP/UP=10/90).



Fig. 15 Time history of the injector pressure (AP/UP=10/90).



Fig. 16 Time history of the O/F (AP/UP=10/90).





AP/UP=20/80 の場合, *p_c*, インジェクター上流圧, *O/F*, *M_P*の時間履歴をそれぞれ Fig. 19, Fig. 20, Fig. 21, Fig. 22 に示す.













次に、燃料過多推進薬の混合比 φ を横軸に取り、指数 m を 縦軸に取ったグラフを Fig. 23 に示す.ここで、他の燃料を 使った研究や理論により得られた指数mについても合わせ て記載した ^{1,10}. Fig. 23 より、 φ が増加するにつれ指数mが 減少することが見られ、従来の知見との一致を確認した.こ れは、主流の酸化剤質量流束に対して不感となる傾向が強 くなったことによる.



指数 m については本再現法からも算出したが、複数回の 定常燃焼実験から求める従来の方法との差がまだ無視で きないため、その原因と解析法の改良を進めているが、 それらに関しては別の機会に譲る.

4. 結言

燃料過多推進薬を用いたハイブリッドロケットの燃焼に 適用できるように従来の再現法を拡張した.実験室規模の 燃焼実験を行い,上記の再現法を用いて O/F の時間履歴お よび固体燃料,または燃料過多推進薬の質量流量を求め,有 効性を確認した.また,定常燃焼実験で得られた指数mにつ いては, φが増大するにつれてmの値が減少するという従来 の知見と一致することが確認された.また,過塩素酸アンモ ニウムの含有率が高い場合には,燃料後退速度の圧力依存 性が無視できなくなるが,このような場合に対しても本研 究で検討した内容を拡張する予定である.

謝辞

過塩素酸アンモニウムは,カーリットホールディング株式 会社より提供して頂いた.ここに謝意を表します.

参考文献

- G. A. Marxman, C. E. Wooldridge and R. J. Muzzy, Fundamentals of Hybrid Boundary Layer Combustion, Heterogeneous Combustion, Progress in Astronautics and Aeronautics, Vol. 15, AIAA, Reston, VA, pp.485-521 (1964).
- 福田浩一, 矢野裕, 燃料過多推進薬の燃焼についての 研究, 防衛庁技術研究本部技報, 第 6677 号, ISSN0916-2852 (1998).
- 3) 松木彩,川井寛量,藤原桂,土田達也,近藤泰介,高橋 拓巳,山口滋,森田貴和,ワックス系燃料ハイブリッド ロケットの定常燃焼に関する実験的研究,平成23年度 宇宙輸送シンポジウム,STCP-2013-043 (2014).
- 4) 阿部宗生,森田貴和,多層化したグレインを持つ実験 室規模のハイブリッドロケットモータの燃焼特性と再 使用型固体ロケットの概念,東海大学紀要工学部, Vol.59, No.1, pp.31-38 (2019).
- R. V. Osmon, An Experimental Investigation of Lithium Aluminum Hydride-Hydrogen Peroxide Hybrid Rocket, Journal of Aerospace Engineering, Vol.62, No.61, pp.92-102 (1966).
- C. Carmicino and A. R. Sorge, Influence of a conical axial injector on hybrid rocket performance, Journal of Propulsion and Power, Vol.22, pp.984-995 (2006).
- H. Nagata, M. Ito, T. Maeda, M. Watanabe, T. Uematsu, T. Totani and I. Kudo, Development of CAMUI Hybrid Rocket to Create a Market for Small Rocket Experiments, Acta Astronautica, Vol.59, pp.253-258 (2006).
- Y. Saito, T. Uematsu, H. Isochi, M. Wakita, T. Totani and H. Nagata, Estimation of Hybrid Rocket Nozzle Throat Erosion History, Transactions of the Japan Society for Aeronautical and Space Sciences, Vol.14, pp.145-151 (2015).
- 9) L. Kamps and H. Nagata, Estimation of Nozzle Throat Wall

Temperature History in Hybrid Rockets, 第1回ハイブリ ッドロケットシンポジウム講演集, HR-2018-019 (2018).

- G. Zilliac and M. A. Karabeyoglu, Hybrid Rocket Fuel Regression Rate Data and Modeling, 42nd AIAA/ASME/ SAE/ASEE Joint Propulsion Conference & Exhibit, AIAA 2006-4504 (2006).
- N. Cohen, Revised Group Additivity Values for Enthalpies of Formation (at 298 K) of Carbon-Hydrogen and Carbon-Hydrogen-Oxygen Compounds, Thermochemical Kinetics Research, Vol. 25, No. 6, pp. 1411-1481 (1996).
- 12) 津田健, FRP 構成素材入門第1章 FRP とその構成素材, 日本複合材料学会誌, 第33巻, 第4号, pp.11-20 (2007).
- 下影卓二,奥本佐登志,日高優,中川尚治,不飽和ポリ エステル樹脂の硬化構造解析法と架橋度評価法,パナ ソニック電子技法, Vol.58, No.1, pp.10-15 (2010).

付録

標準生成エンタルピー

標準生成エンタルピーとは、標準状態で安定な単体の物 質が化学反応または化学変化することで、標準状態から 1 mol の化合物を生成する際に生じる反応熱を表したもので ある.また、Hess により反応熱は反応前後の状態のみによ り決まり経路によらず一定であることが実験的に確認され ている (ヘスの法則).これは一般的に次のように表される.



Fig. A.1 Estimation of enulapy.

ここで、 H_{f} は生成エンタルピーを表しており、各径路の差から反応物から生成するためのエンタルピー $\Delta H_{f}^{\circ} = H_{f,2}^{\circ} - H_{f,1}^{\circ}$ が推定できる.

NASA-CEA を用いて化学平衡計算を行うに際し,燃料の 標準生成エンタルピーの値が必須となってくるが,一部の 高分子材料以外の標準生成エンタルピーは必ずしも明らか ではない.本研究では標準生成エンタルピーに構造的な加 成性が成り立つと仮定した Benson の提案した手法を用いて 計算を行った.この手法では,燃料分子の構造式内にある原 子をグループ化し,そのグループに応じた標準生成エンタ ルピーを用いて計算する手法である(Group Additivity Values of Enthalpy of Formation=GAV)¹¹⁾.初めに,実験で使用した 燃料(不飽和ポリエステル:65%,スチレンモノマー:65%) の構造式を以下に示す¹²⁾.ここで,SM はスチレンモノマー の略とする.



Fig. A.2 Structural formula of unsaturated polyester resin.



ここで、不飽和ポリエステルの数平均分子量は1.3× 10⁴ g/molとして計算を行った¹³⁾.また、末端基はカルボキ シル基と脱水縮合反応していると仮定した.繰り返し単位 の分子量が346、末端の分子量が174なので、重合度(重合 している分子の数)Nは次式から求めることができる.

$1.3 \times 10^4 = 174 + 346N$	
$N = 37.06 \dots \rightleftharpoons 37$	(A.1)

Table A.1 Group additivity values of unsaturated polyester resin.

	Solid GAV, kJ/mol
C-(C)(H)3	-42.3
C-(C)(H)2(O)	-20.9
C-(C)(H)2(CO)	-61.1
C-(C)2(H)(O)	4.2
CO-(Cd)(O)	-163.2
CO-(O)(Cb)	-170.7

Cb-(CO)	18.8
Cb-(H)	6.3
Cd-(C)(H)	25.5
Cd-(H)(CO)	25.1
O-(C)(CO)	-184.1
O-(C)(H)	-209.2
O-(H)(CO)	-256.9

Table A.1 から不飽和ポリエステルの重合部分の標準生成エ ンタルピーは -1259.9 kJ/mol となった.また,末端基の標 準生成エンタルピーは重合度 N で割った値を用いて計算を 行うと,不飽和ポリエステルの標準生成エンタルピーは次 のように計算することができる.

$$\Delta H_f^\circ = -1259.9 + \frac{-985.4}{37} = -1286.5 \text{ kJ/mol}$$
(A.2)

不飽和ポリエステルと同様にスチレンモノマーを構成する 各原子団の標準生成エンタルピーは以下のように与えられ ている.

_	
	Solid GAV, kJ/mol
Cb-(Cd)	24.3
Cb-(H)	6.3
Cd-(H)2	25.1
Cd-(Cb)(H)	12.6

Table A.2 Group additivity values of styrene monomer.

したがって、スチレンモノマーの標準生成エンタルピーは 以下のようになる.

$$\Delta H_f^{\circ} = 93.5 \text{ kJ/mol}$$
(A.3)

突沸を伴う低融点燃料の振動燃焼に関する考察 阿部 宗生^{*1} 森田 貴和^{*2} 伊田 拓未^{*3}

A Consideration on the Oscillatory Combustion of Low-melting-point Fuels with Bumping

by

Hiroki ABE^{*1}, Takakazu MORITA^{*2} and Takumi IDA^{*3}

(Received on Mar. 31, 2020 and accepted on Jul. 24, 2020)

Abstract

Oscillatory combustion with bumping was often observed with low-melting-point fuels such as wax fuels in laboratoryscale hybrid rocket motors. The pressure oscillations were primarily caused by flames oscillating back and forth along the free stream. Visualization experiments confirmed that bumping of liquefied wax fuel often occurred during the flame oscillation, and it was found that the flame oscillation and bumping are strongly related. The bumping temporarily supplies a large number of droplets to the gas phase, which can cause pulse combustion in practical hybrid rocket motors. In addition, we investigated the relation between the liquid layer thickness on the wax fuel and the combustion instability caused by the flames oscillating back and forth along the free stream.

Keywords: Hybrid rocket, Wax fuel, Oscillatory combustion, Bumping, Liquid layer

記号一覧

A_n :	ポート断面積
B_a^{ν} :	吹き出し係数
	Marxman のc _f の式を近似する2式の適用範囲を
B^* :	, 分割する B a値
C_d :	主ノズルの流量係数
<i>c</i> *:	特性排気速度, m/s
C_{th}^* :	理論特性排気速度,m/s
D_{cvl} :	円柱直径, mm
D_i :	インジェクター・オリフィス径, mm
D_t :	ノズルスロート径, mm
G_{OX} :	酸化剂質量流束, kg/(m ² · s)
h:	ポート高さ, mm
L:	燃料長さ,m
n_C :	炭素数
O/F:	酸燃比
p_c :	燃焼圧, MPa
p_j :	インジェクター上流圧, MPa
RT_{av} :	気体定数と燃焼ガス温度の積の空間平均
\dot{r} :	燃料後退速度, mm/s
\dot{r}_v :	固体燃料の蒸発速度, mm/s
T_{fl} :	断熱火炎温度,K
T_l :	液層温度, K
T_m, T_v :	融点, 沸点, K
t_a :	全燃焼時間, s
U:	燃焼器内の酸化剤ガスの流速, m/s
W_m :	燃焼ガスの平均分子量,g/mol

- *1 工学研究科機械工学専攻修士課程
- *2 工学部航空宇宙学科准教授

*3 工学部航空宇宙学科航空宇宙学専攻学部生

<i>w</i> :	ポート幅, mm
γ:	燃焼ガスの平均比熱比
$\Delta M_{F,a}$:	消費燃料から残渣燃料を引いた質量,g
$\Delta M_{OX,a}$:	全燃焼時間t _a で消費した酸化剤質量,g
ΔM_r :	残渣燃料の質量,g
δ_l :	溶融した燃料の液層厚さ,mm
μ:	燃焼ガスの粘性係数, mPa・s
μ_l :	溶融ワックスの粘性係数, mPa・s
η_{c^*} :	<i>c</i> *効率
ρ :	燃焼ガスの密度, kg/m ³
ρ_l :	液層の密度, kg/m ³

1. 緒言

ハイブリッドロケットでは、大なり小なり火炎により加熱 された固体燃料が溶融して固相表面上に液層を形成するケ ースが多い.特に、低融点燃料では液層が比較的厚く、主流 の流れにより液層から分離した液滴がエントレインメント を生じて燃料後退速度を高めるため、特にワックス燃料に対 して Karabeyoglu ら¹⁾や Nakagawa ら²⁾によって理論および実 験的な研究がなされてきた.一方で、著者の一人とその共同 研究者は、燃焼中のワックス燃料に対して燃焼室上流側に設 置した円柱により生じたカルマン渦を使って速度振動を加 えた所、間欠的に多量の液滴が飛散することを実験的にしば しば確認した³⁻⁵⁾.これは連続的に液滴が気相に供給される 上述のエントレインメントとメカニズムが異なり、固相表面 上に形成される液層内で生じた液体ワックスの突沸である と考察した.ただし、撮影スピードのために突沸する瞬間の 様子が必ずしも明瞭に捉えられていなかった. そこで本研究では、低融点燃料の1つである合成ワックス (日本精蝋株式会社:FT0070)に対し、固相表面上に形成さ れる液層で突沸が生じる所を側面に観測窓を設けた燃焼器 とハイスピードカメラ(FASTCAM Mini AX200:株式会社フ ォトロン製)を用いて観測を行った。同時に、固相表面上で 前後に振動する火炎の挙動についても観測した。その結果、 火炎の前後振動と突沸に対する液層の厚さ、速度振動、平均 燃焼圧の関係性を実験的に得た。

2. 実験装置

実験で使用した燃焼器とハイスピードカメラを用いた際の観測配置図をそれぞれ Fig. 1, Fig. 2 に示し,実験・撮影条件を Table 1 に示す.点火薬量は 0.05 g で一定とした.



Fig. 1 Schematic of the 2-D combustor.



Fig. 2 Schematic of the experimental setup.

Table 1 Experimental condition.				
A_p	675 [mm ²]			
D _{cyl}	4 [mm]			
D_j	2.54 [mm]			
D_t	8 [mm]			
h	27 [mm]			
L	80 [mm]			
W	25 [mm]			

観測窓には石英ガラスを用いており,撮影の際に高速撮影 (フレームレート 5000,シャッタースピード 1/10000)を行 う都合上,外部光を設けて燃焼中の液層の観測できるように 工夫して実験を行った.実験方法としては,燃料の前端から さらに上流側 30 mmの位置に燃料表面から高さ1 mm離した 円柱(D_{cyl} = 4 mm)を設置し,円柱の後方にカルマン渦を発 生させる.このカルマン渦の発生に伴い速度振動を引き起こ し,燃焼振動を励起させた.円柱を選択した理由として,一 般的に渦の発生周波数などが明らかにされており,発生した カルマン渦と低周波燃焼不安定が何らかの相関関係があった場合に、考察が比較的容易になると考えたためである.燃料には合成ワックス(FT0070:日本精蝋株式会社製)、酸化剤にGO2を用いた.

3. 解析方法

3.1 溶融ワックスの液層厚さ

突沸を含んだ振動燃焼の安定性に影響を及ぼすパラメー タとして低融点燃料の表面上に形成される液層の厚さがあ る.この液層の厚さを厳密に評価することは難しいため、こ こではいくつかの近似を導入し、簡単化して求めた.主な近 似としては、液層は非圧縮性流体と仮定し、液層中の圧力勾 配を無視した.低融点燃料の場合、液層内では固相表面に対 して水平方向の流速成分が大きく、垂直方向の流速成分が小 さいのでそれを無視した.燃料が融解して液層に供給される ワックスの量と液体ワックスが気化して液層から失われて いく量が同量とみなし、液層の厚さは流れ方向に対して一定 とみなした.このことは実際の燃焼の観測からもほぼ一様で あると確認された.また、固体燃料表面から流下したワック スは燃焼器後部では燃焼せずにすべて残差になると仮定し た.これらの近似を2次元ナビエ・ストークス式に適用する と、まず次式が得られる.

$$\mu_l \frac{d^2 u}{dy^2} = 0 \tag{1}$$

上式を2回積分すると次式が得られる.

$$\mu_l u = C_1 y + C_2 \tag{2}$$

上式に対する境界条件として、固相表面 (y = 0) でu = 0が 成り立つ. さらに、液相と気相の界面 ($y = \delta_l$) では次式が成 り立つと仮定する.

$$\mu_l \frac{du}{dy} = \frac{1}{2} \rho U^2 c_f \tag{3}$$

上記の境界条件を適用すると、式(2)は以下のようになる.

$$u = \frac{1}{2\mu_l} \rho U^2 c_f y \tag{4}$$

次に上式を δ_l で積分する.溶融ワックスが固体燃料下流端から燃焼室後部に流入し、その後燃焼しないで残留すると仮定すると、全燃焼時間 t_a の間に燃焼室後部に流れて残留物となったワックスの質量 ΔM_r は次式となる.

$$\Delta M_r = t_a w \rho_l \int_0^{\delta_l} u \, dy = \frac{t_a w \rho_l}{4\mu_L} \rho U^2 c_f \delta_l^2$$

$$= \frac{t_a w \rho_l G^2 c_f}{4\mu_l \rho} \delta_l^2$$
(5)

上式を溶融ワックスの液層厚さδ,について整理すると、以下

のように表される.

$$\delta_{l} = \sqrt{\frac{2\mu_{l}\rho\Delta M_{r}}{t_{a}w\rho_{l}G^{2}(c_{f}/2)}} = \frac{1}{G}\sqrt{\frac{2\mu_{l}p_{c}\Delta M_{r}}{t_{a}w\rho_{l}RT_{av}(c_{f}/2)}}$$
$$= \frac{1}{G}\sqrt{\frac{2\mu_{l}p_{c}W_{m}\Delta M_{r}}{t_{a}w\rho_{l}\eta_{c}^{2}\cdot R_{u}T_{fl}(c_{f}/2)}}$$
(6)

ここで, $RT_{av} \approx \eta_{c^*}^2 (R_u/W_m)T_{fl}$ の関係を使った.上式中の表面摩擦係数 c_f は, Marxman により以下のように求められている^の.

$$\frac{c_f/2}{c_{f0}/2} = \left[\frac{\ln(1+B_a)}{B_a}\right]^{0.8} \left[\frac{1+13B_a/10+4B_a^2/11}{(1+B_a)(1+B_a/2)^2}\right]^{0.2}$$
(7)

ここで、 B_a は吹き出し係数である. c_f の計算を正確に行うに は上式を用いる必要があるが、ここでは簡単に計算を行うた めに、 B_a の範囲に応じて以下の近似式を用いた^{6.7)}.

$$B_{a} > B^{*} \mathcal{O} \oplus$$

$$\frac{c_{f}/2}{c_{f0}/2} = q B_{a}^{-k}$$

$$B_{a} \leq B^{*} \mathcal{O} \oplus$$

$$\frac{c_{f}/2}{c_{f0}/2} = \frac{1}{1 + 0.4B_{a}}$$
(8)
(9)

ここで, k = 0.68とした⁸⁾. $c_{f0}/2$ については平板上の境界層 に関するブラジウスの式を使った.

$$\frac{c_{f0}}{2} = 0.03 \left(\frac{Gx}{\mu}\right)^{-0.2}$$
(10)

B*とqについては、式(8)と式(9)の値が滑らかに接続できるように決定した⁹.

$$B^* = 2.5 \frac{k}{1-k} = 5.313 \tag{11}$$

$$q = (B^*)^k (1-k) = 0.996 \tag{12}$$

Fig. 3 は、 B_a に対する $(c_f/2)/(c_{f0}/2)$ の値の比較を示しており、黒線が式(7)、その近似式の式(8)が青線、同じく式(9) が赤線となっている.さて、吹き出し係数の定義は以下のように与えられる.

$$B_a = \frac{\rho_l \dot{r}_v}{G(c_f/2)} \tag{13}$$

上式に式(8), (9)を適用し, *B*_aについて整理すると, それぞれ 次式のように表せる.

$$B_{a} > B^{*} \mathcal{O}$$
時

$$B_{a} = \left(\frac{\rho_{l}\dot{r}_{v}}{qG c_{f0}/2}\right)^{\frac{1}{1-k}}$$

$$B_{a} \leq B^{*} \mathcal{O}$$
時
$$(14)$$



溶融したワックス (FT0070) の粘性係数については,実験デ ータ¹⁰⁾に対して Andrade の粘度式で補間し,液体温度に対す る粘性係数の近似式を求めた.その結果を式(16)に,補間し た様子を Fig. 4 に示す. また,液体ワックスの温度は,式 (17)で示すように融点 T_m と沸点 T_v の平均値を用いた.



g. 4 Temperature dependence of the viscosity coefficient of the liquid wax.

$$\mu_l = A \exp\left(\frac{E_a}{RT}\right) \approx 0.01 \exp\left(\frac{2348.8}{T_l}\right) \tag{16}$$

$$T_l = \frac{T_m + T_v}{2} \tag{17}$$

直鎖パラフィンワックスの沸点は炭素数と雰囲気圧力を用いて式(20)および Fig. 5 のように表すことができる. なお,式(20)は雰囲気圧力が2 atm 以下の条件でのみ有効である¹¹⁾.



-107-

$$C_{bp0} = 16.09657 - 1.14886 \log_{10} p_c - 0.1 (\log_{10} p_c)^2 \quad (18)$$

$$C_{bp1} = 0.8064628 - 0.011 \log_{10} p_c \tag{19}$$

$$T_{\nu} = \frac{1000h_{C}^{3}}{C_{bp0} + C_{bp1}n_{C}^{\frac{2}{3}}}$$
(20)

液層の厚さを計算するには、加えて c*効率の値が必要となる. ただし、本研究では可視化実験を行うために燃焼圧を低めに 設定しており、ノズルがチョークしていない.このような場 合は亜音速ノズルの特性排気速度について考えなくてはな らず、その詳細について以下で説明する.

3.2 亜音速ノズルにおける c*効率

 c^* 効率は、次式に示すように理論特性排気速度 c_{th}^* に対する 実際の特性排気速度 c^* の比で定義され、しばしばロケットの 燃焼効率の指標として用いられる.

$$\eta_{c^*} = \frac{c^*}{c_{th}^*}$$
(18)

1 次元ノズル理論により,超音速ノズルについては以下の結 果が得られている.

$$c^{*} = \sqrt{\frac{R_{u}T}{\gamma W_{m}} \left(\frac{\gamma + 1}{2}\right)^{\frac{\gamma + 1}{\gamma - 1}}}$$
(19)

上式中の物理量を見るとわかるように、*c**は燃焼室内の燃焼 あるいは熱損失に関連した量で表されている.燃焼ガスの平 均比熱比や平均分子量が変化しないという制限はあるが、*c** の中にはノズル部分の寄与が含まれていない.したがって、 亜音速ノズルにおいても*c**効率を燃焼効率の指標として使 用できるようにするには、超音速ノズルで得られた式(19)を その特性排気速度として定義するとよい.そうすることで、 ノズルがチョークした状態からアンチョークの状態まで*c** をシームレスに扱うことができる.上記の方針を基に、特性 排気速度を亜音速ノズルでも使えるように拡張を行った.初 めに、エネルギー保存式をノズルスロート部とノズル入口部 の2点に適用すると、次式のように表される.

$$\frac{1}{2}u_t^2 + c_p T_t = \frac{1}{2}u^2 + c_p T \tag{20}$$

また、連続の式と断熱変化の式はそれぞれ次式となる.

$$\begin{array}{ll}
\rho_t u_t A_t = \rho u A_p & (21) \\
p_t \rho_t^{-\gamma} = p \rho^{-\gamma} & (22)
\end{array}$$

式(21), (22)を用いて式(20)を変形すると,次式が得られる.

$$u_t = \frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{A_t}{A_p}\right)^2 \left(\frac{p_t}{p}\right)^{\frac{2}{\gamma}}}} \sqrt{\frac{2\gamma}{\gamma - 1} \left(\frac{p}{\rho} - \frac{p_t}{\rho_t}\right)}$$
(23)

上式より、ノズルスロート部を通過するガスの質量流量は次 式で表される.

$$\begin{split} \dot{M}_{N} &= \frac{c_{d}\rho_{t}A_{t}}{\sqrt{1 - \left(\frac{A_{t}}{A_{p}}\right)^{2}\left(\frac{p_{t}}{p}\right)^{\frac{2}{\gamma}}}}\sqrt{\frac{2\gamma}{\gamma - 1}\left(\frac{p}{\rho} - \frac{p_{t}}{\rho_{t}}\right)} \\ &= \frac{c_{d}A_{t}p}{\sqrt{1 - \left(\frac{A_{t}}{A_{p}}\right)^{2}\left(\frac{p_{t}}{p}\right)^{\frac{2}{\gamma}}}}\sqrt{\frac{2\gamma}{\gamma - 1}\frac{W_{m}}{R_{u}T}\left(\frac{p_{t}}{p}\right)^{\frac{2}{\gamma}}\left[1 - \left(\frac{p_{t}}{p}\right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}}\right]} \tag{24}$$

ここで, 亜音速ノズルにおいても式(19)と同じ関係が成立す ると仮定すると次式が得られる.

$$\dot{M}_{N} = \frac{c_{d}A_{t}p}{c^{*}}\psi_{\gamma}\frac{\sqrt{\left(\frac{p_{t}}{p}\right)^{\frac{\gamma}{\gamma}}\left[1-\left(\frac{p_{t}}{p}\right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}}\right]}}{\sqrt{1-\left(\frac{A_{t}}{A_{p}}\right)^{2}\left(\frac{p_{t}}{p}\right)^{\frac{2}{\gamma}}}}$$
(25)

ここで、 ψ_{γ} を次式のように定義した.

$$\psi_{\gamma} = \sqrt{\frac{2}{\gamma - 1} \left(\frac{\gamma + 1}{2}\right)^{\frac{\gamma + 1}{\gamma - 1}}}$$
(26)

式(25)を全燃焼時間t_aで積分すると、以下のようになる.

$$\Delta M_{OX,a} + \Delta M_{F,a} = \frac{c_d A_t \psi_{\gamma}}{c^*} \int_0^{t_a} p_c \frac{\sqrt{\frac{p_a}{p_c}}^{\frac{\gamma}{\gamma}} \left[1 - \left(\frac{p_a}{p_c}\right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}}\right]}{\sqrt{1 - \left(\frac{A_t}{A_p}\right)^2 \left(\frac{p_a}{p_c}\right)^{\frac{\gamma}{\gamma}}}} dt$$
(27)

ここで, $p_t = p_a$, $p = p_c$ とおいた. これより, 亜音速ノズル の特性排気速度は次式で表すことができる.

$$c^* = \frac{c_d A_t \psi_{\gamma}}{\Delta M_{OX,a} + \Delta M_{F,a}} \int_0^{t_a} p_c \frac{\sqrt{\left[\frac{p_a}{p_c}\right]^{\gamma}} \left[1 - \left(\frac{p_a}{p_c}\right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}}\right]}{\sqrt{1 - \left(\frac{A_t}{A_p}\right)^2 \left(\frac{p_a}{p_c}\right)^{\frac{\gamma}{\gamma}}}} dt$$
(28)

亜音速ノズルでは p_c が p_a と比べて十分大きくないので、ノイズ等により、 $p_c < p_a$ となり、実験データを解析する際に上式の根号の中が負になる可能性がある.これを防ぐために

$$\pi_p = \min\left(1, \frac{p_a}{p_c}\right) \tag{29}$$

とおいて, p_a/p_c の代わりにこれを使って式(28)を書き直す と,

$$c^{*} = \frac{c_{d}A_{t}p_{a}\psi_{\gamma}}{\Delta M_{OX,a} + \Delta M_{F,a}} \int_{0}^{t_{a}} \pi_{p} \frac{\gamma-1}{\gamma} \frac{\sqrt{1 - \pi_{p} \frac{\gamma-1}{\gamma}}}{\sqrt{1 - \left(\frac{A_{t}}{A_{p}}\right)^{2} \pi_{p} \frac{2}{\gamma}}} dt$$
(30)

となる. ここで, 燃焼ガスの平均比熱比は化学平衡計算プロ グラム (NASA-CEA) により求めた. さらに, c^* 効率につい ても同様に, NASA-CEA により理論特性排気速度を求めて式 (30)で得られた c^* を割れば求められる.

3.3 圧力振動の分散

燃焼不安定性を評価するために,移動平均法で平滑化して 得られた燃焼圧の定常成分を $p_{c,av}$ とし,それを基準とした圧 力変動成分を Δp_c と定義する.

$$\Delta p_c = p_c - p_{c,av} \tag{31}$$

ここで、 $p_{c,av}$ の平均値と Δp_c の分散は次式で求めることができる. ただし、Nはデータ点数である.

$$\bar{p}_{c,av} = \frac{1}{N} \sum p_{c,av}$$
(32)

$$\sigma = \frac{1}{N} \sum \Delta p_c^2 \tag{33}$$

式(32)を用いて、σを無次元化すると次式のように表せる.

$$\sigma^* = \frac{\sigma}{\left(\bar{p}_{c,av}\right)^2} \tag{34}$$

この σ *の大小により、燃焼安定性を評価する.一般的な線形 安定性解析では、圧力振幅が時間と共に指数関数的に変化す ると考え、その増幅または減衰係数で安定性を判断するが、 今回取り扱った振動波形は線形的な挙動を示していなかっ たため、上述の指標で燃焼安定性を評価することにした.

4. 燃焼実験

4.1 実験·解析結果

以下,実験データおよびその解析結果とその時の圧力履歴 をそれぞれ以下に示す.

Table 2 Experimental results of the 2-D combustion chamber (with cylinder).

No.	1	2	3	4	5	6	7
B _a	2.36	2.53	3.39	12.06	17.96	27.17	10.58
$c_f \times 10^3$	5.13	5.08	4.27	1.90	1.37	1.05	2.08
с*	533	559	563	525	631	663	576
c_{th}^*	745	768	797	934	959	1012	921
$G_{\rm OX}$	9.49	8.92	10.1	10.5	14.7	14.3	10.3
O/F	61.0	57.4	51.0	32.4	30.1	25.8	33.6
$\bar{p_c}$	0.12	0.12	0.12	0.12	0.16	0.16	0.12
ŕ	0.26	0.28	0.32	0.30	0.48	0.49	0.39
\dot{r}_v	0.074	0.072	0.093	0.152	0.228	0.258	0.143
T_l	562.3	561.6	562.7	562.4	570.2	571.1	563.2
t_a	3.12	3.13	3.12	3.13	3.16	3.15	3.14
U	10.1	10.68	11.8	10.6	16.5	17.0	12.2
γ	1.31	1.30	1.30	1.27	1.27	1.26	1.28
ΔM_F	0.40	0.39	0.50	0.80	1.21	1.39	0.77
δ_l	0.189	0.192	0.211	0.418	0.397	0.481	0.366
η_{c^*}	71.5	72.8	70.6	56.2	65.8	65.5	62.5

μ	0.047	0.049	0.052	0.063	0.065	0.069	0.062
μ_l	0.659	0.663	0.658	0.659	0.623	0.619	0.655
ρ	0.946	0.834	0.859	0.990	0.895	0.839	0.846
σ^{*}	0.088	0.104	0.189	0.149	0.209	0.205	0.146

Table 3 Experimental results of the 2-D combustion chamber (without cylinder).

No.	8	9	10	11
B _a	3.11	17.65	7.96	4.69
$c_f \times 10^3$	4.46	1.39	2.49	3.53
<i>c</i> *	557	649	579	535
c_{th}^*	791	967	888	830
G _{OX}	10.2	14.2	10.6	10.4
O/F	52.5	29.3	27.5	45.3
\bar{p}_c	0.12	0.16	0.13	0.12
ŕ	0.34	0.45	0.37	0.34
\dot{r}_{v}	0.089	0.220	0.132	0.107
T_l	562.6	570	563.5	562.5
t_a	3.10	3.14	3.16	3.20
U	11.7	17.0	12.5	11.0
γ	1.30	1.27	1.28	1.29
ΔM_F	0.48	1.19	0.71	0.58
δ_l	0.204	0.390	0.310	0.258
η_{c^*}	70.4	67.1	65.2	64.3
μ	0.051	0.065	0.059	0.054
μ_l	0.658	0.624	0.654	0.659
ρ	0.873	0.838	0.836	0.948
σ^*	0.156	0.169	0.149	0.119



Fig. 5 Time history of the chamber pressure (No. 1).



Fig. 6 Time history of the chamber pressure (No. 2).





Fig. 14 Time history of the chamber pressure (No. 10).



以上の結果から、溶融ワックスが形成する燃料表面上の液層 の厚さと燃焼器内の流速が燃焼振動の大きさに及ぼす影響 について調べたところ以下のグラフが得られた.



Fig. 16 Stability map on the δ_l -U plane for pressure oscillations caused by a flame oscillating back and forth along the free stream (with cylinder).



Fig. 17 Stability map on the δ_l -U plane for pressure oscillations caused by a flame oscillating back and forth along the free stream (without cylinder).

この結果より,液層厚さと燃焼器内の流速が増加するととも に燃焼不安定性が増加する傾向にあると考えられる.また, 円柱がある時,つまり燃焼器内に発生する速度振動が強くな ると不安定になることがわかる.また,縦軸に平均燃焼圧, 横軸に流速を取り,同様にグラフ化するとFig.18とFig.19 を得る.



Fig. 18 Stability map on the p_c -U plane for pressure oscillations caused by a flame oscillating back and forth along the free stream (with cylinder).



Fig. 19 Stability map on the p_c -U plane for pressure oscillations caused by a flame oscillating back and forth along the free stream (without cylinder).

一般的に、突沸は液層の厚さだけでなく、圧力が高いことに よっても生じやすくなる.上図においても燃焼圧が高いほど 燃焼振動が強くなっており、突沸の発生頻度が増えているこ とが推定される.

4.2 ハイスピード撮影

ハイスピードカメラを用いて撮影した映像の一部を切り 出したものを Fig. 20 に示す.これらの画像は時間進行順に 並んでいる.酸素ガスは画像の左側から右側へ流れており, 燃焼器は水平に設置されている.使用したハイスピトードカ メラは,株式会社フォトロン製の FASTCAM Mini AX200 で, フレームレートは 5000 fps である.

撮影した画像から,燃料表面で突沸(Fig.20の2段目の黄 色の丸枠)とそれから生じた液滴およびガス化したワックス に引火する様子(Fig.20の3段目の黄色の丸枠)が見られた. なお画像中の上面から下方に伸びている2本のワイヤーは, 切断された点火用のニクロム線ワイヤーである.ここで,Fig. 21の圧力履歴の時刻とFig.20の映像のカレントタイムは同 期している.Fig.20と比較すると,Fig.21の赤い丸枠で囲ん だ周辺の圧力上昇時と,突沸が発生して直ちにガス化した燃 料に引火する時刻がほぼ同時であることが確認できた.次 に,燃焼の映像から,流れ方向に沿った持続的な火炎の前後 振動が一連の実験で確認された.この火炎の前後振動は,燃 料表面上でのみ前後振動する場合と燃料が設置されていな い燃焼室前方にまで広く伝播する場合とがあった.この原因 の一つとして,液化したワックスが燃焼室前方に逆流して気 化したワックスが引火したことが考えられるが,それだけで は説明がつかない程上流側に火炎が伝播することも多く,他 の要因についても引き続き調査する必要がある.



Fig. 20 High-speed camera image of the burning solid fuel (No. 7).



Fig. 21 Chamber pressure history synchronized with the highspeed camera image (No. 7).

5. 結言

ワックス等の低融点燃料特有の燃焼不安定性の解明する ために,圧力振動の計測と同時に側方からの燃焼現象の可視 化実験を行い,火炎の前後振動とそれに伴う突沸現象を確認 した.ハイスピードカメラによる撮影により,火炎の前後振 動は,液化したワックスが燃焼室前方に流れ込み,ある一定 の液層厚さまでに発達し,気化したワックスに引火すること により発生することが確認された.ただし,火炎の前後振動 が大きくなるにつれ,それだけでは説明がつかない程上流側 に火炎が伝播するようになり,他の要因についても引き続き 調べる必要がある.

さらに,液層の厚さ,速度振動(主流の流速),平均燃焼圧 が大きくなると,火炎の前後振動による圧力振動も大きくな る傾向があることがわかった.これは,液層の厚さや平均燃 焼圧が大きくなると,液層の中で沸騰しにくくなり突沸が起 きやすくなることと,強い速度振動が突沸を起こす刺激とな るためと考えられ,突沸と火炎の前後振動に強い相関がある ことがわかった.

謝辞

本研究で使用したハイスピードカメラおよびその周辺機器 は、株式会社フォトロンより提供して頂いた.ここに謝意を 表します.

参考文献

- A. Karabeyoglu, Combustion Instability and Transient Behavior in Hybrid Rocket Motors, Fundamentals of Hybrid Rocket Combustion and Propulsion, Progress in Astronautics and Aeronautics, Vol. 218, Chapter 9, pp. 351-411 (2006).
- I. Nakagawa and S. Hikone, Study on the Regression Rate of Paraffin-Based Hybrid Rocket Fuels, Journal of Propulsion and Power, Vol. 27, No. 6, pp. 1276-1279 (2011).
- S. Lim, Y. Deguchi, Y. Kurosawa, T. Morita and J. Lee, Preliminary Study on the Interaction Between Vortex Shedding and Acoustic Oscillations in Hybrid Rockets, Proceedings of the 31st International Symposium on Space Technology and Science (31st ISTS), 2017-o-5-12 (2017).
- S. Imafuku, S. Lim, Y. Deguchi, Y. Kurosawa and T. Morita, Experimental Study on Combustion Instabilities in Hybrid Rockets, The 6th International Symposium on Energetic Materials and their applications (ISEM 2017), P-23 (2017).
- 5) 今福成徳,小島亮太,三津田椎太,森田貴和,ハイブリ ッドロケットモータ内の速度振動に起因する低周波燃 焼不安定,日本機械学会関東支部第24期総会・講演会 講演論文集,GS0508 (2018).
- G. A. Marxman, Combustion in the Turbulent Boundary Layer on a Vaporizing Surface, Tenth Symposium (International) on Combustion, pp. 1337-1349 (1965).
- F. Barato, N. Bellomo, M. Faenza, M. Lazzarin, A. Bettella and D. Pavarin, Numerical Model to Analyze Transient Behavior and Instabilities on Hybrid Rocket Motors, Journal of Propulsion and Power, Vol. 31, No. 2, pp. 643–653 (2015).
- D. Altman and R. Humble, Hybrid Rocket Propulsion Systems, Space Propulsion Analysis and Design, Rev. 1st ed., McGraw– Hill, New York, pp. 372–383 (1995).
- C. Carmicino, Acoustic Excitation as Triggering Mechanism of the "DC Shift" in Hybrid Rockets, AIAA Journal, Vol. 57, No. 11, pp. 351-411 (2019).
- 10) 彦根智, 那賀川一郎, ハイブリッドロケット用パラフィン燃料の後退速度と燃焼メカニズムに関する研究, 東海大学工学部紀要, Vol.50, No.2, pp.169-174 (2010).
- 11) 倉田道夫,中西浩一郎,鎖状分子液体の物性定数,化学 工学, Vol.22, No.6, pp.394-401 (1958).
新任教員紹介

建築学科・専任教授 岩崎克也

略歴

1964.3	千葉県生まれ
1982.3	千葉県立船橋西高校卒業
1986.3	東海大学工学部建築学科 卒業
1991.3	東海大学大学院工学研究科建築学専攻
	博士課程前期(修士)課程 修了
1991.4-2020.3	株)日建設計.設計部門
2007.9-2013.3	東海大学工学部建築学科非常勤講師
2009.4-2013.9	東京電機大学未来科学部非常勤講師
2020.4-	(現在に至る)



担当科目

建築デザイン演習1,建築デザイン演習4,建築デザイン演習5,建築法規,ランドスケープ,デジタルデザイン演習,入門 ゼミナール,卒業研究,卒業論文・卒業設計

研究活動内容

「キャンパス建築の公開性」に関する研究と実践

1. はじめに

現在,都心のキャンパスは次の時代を見据えた変革が求 められている.その理由は大きく二つあるが,一つは「キャ ンパスの都心への回帰」である.2002年以降,国の施策と して「高等教育分野における規制改革」が加速すると,大 学はそれまで厳しく規制されてきた学部の教育課程の大幅 な編成の自由を認められ,その結果,新しい名称や教育課 程をもつ学部が新設できるようになった.

また,1960年頃に成立した「工業(場)等制限法」によって都心で大規模キャンパスの開設が制限されるなか,規 模拡大を目指した大学は郊外へと移転してきたが,2002年 にこの法律が廃止されると,大学は学生確保の観点から都 心へ回帰するようになった.こうした政治的改革をきっか けとして、長年、狭隘な敷地の中で硬直化していた都心キ ャンパスを再編しようという動きが進んでいる.

もう一つの理由は「2018年問題」である.2018年以降, 18歳人口の減少期と連動して大学進学者の減少が予想されている.この「2018年問題」は国公立・私立を問わず, 経営と学力維持の両面で大学の深刻な課題となっている. このような時代背景のなか,新しい都市型に大きな期待を 寄せているのが実情である.これらを受けて、本研究は今 後のキャンパスと都市への公開性と,学修環境「コモンズ」 の空間配置との関連性を主なテーマとしている.

研究の概要

2-1地域との新しい関係:キャンパスを都市に開く

1960年代半ばの大学紛争の結果,日本の大学キャンパス は都市の中で塀によって閉ざされていたが,近年、都市と 大学の関係が変化するなかで「キャンパスを都市に開く」 というあり方に変わりつつある.この新しい都市型キャン パスの大きな魅力は、学生時代から社会と連携する意識を 育む環境にあるが,そのメリットは次の3点に整理するこ とができる.

一つ目は「教育研究」の観点.近年の学術は専門分野に 特化するだけでなく領域横断型の知恵が求められるように なり,座学にとどまらず実学フィールドワークや産学官民・ 地域連携が重視されている.こうしたなかで,大学は市民・ 企業・自治体との連携を現場レベルでより深める必要性が 高まっている.

二つ目は「学生生活と都市の賑わい」という観点. 街に 学生が増えることで、学生生活の延長の場として都市が活 気づくといえる.また学生の働く環境としても有用である. 加えて学生や教員は、高密度化した利便性の高い都市のメ リットを活かして、自らのネットワークや知見を広げるこ ともできる.こうしたことは他大学との交流や就職活動に も寄与している.

三つ目は「大学経営」の観点.都市の魅力とキャンパス の立地そのものが,優秀な学生・教員・非常勤教員を集め る要因になると考えられる.この傾向は実験・研究機能を もつために広い面積を必要とする理工系学部よりも,文科 系学部に強い傾向にある.

2-2実践:コモンズ空間の配置による建築への展開

基礎的な研究を基にキャンパスコモンズ空間の連結配置 を行ない,実際の建築設計への展開を試行している.



Fig.1回遊動線を持った明治大学・駿河台キャンパス

「明治大学・駿河台キャンパス群」は、敷地の高低差を建 物の内部にも取り込んだ.隣接する大学施設「リバティタ ワー」の屋上の庭と「アカデミーコモン」の明大スクエア と呼ばれる広場、それに今回新たに計画をした「グローバ ルフロント」の足元のステップコートという三つの空間を 回遊することをテーマとした.前面道路の明治道路をキャ ンパスと見立て、回遊動線に沿ってロビーや図書館、カフ ェなどを配置することで、キャンパスのコモンズ・スペー スが街に滲み出るように計画した.雑居ビルで埋め尽くさ れてしまう通り沿いのこの場所に奥行と広がりを与え、拡 張しながらネットワークを構築する都市のパブリックスペ ースを生み出した.



Fig.2東京理科大学・葛飾キャンパス行動軌跡調査 「東京理科大学・葛飾キャンパス」の南側と北側にそれぞ れ葛飾区の公園が隣接するこの敷地は,葛飾区と連携を図 りマスタープランを作成することによって,公園と一体化 した開放的なキャンパスを実現した.キャンパス内には図 書館,研究室,講義室,管理棟,実験棟,体育館という六 つの建築群を計画した.

図書館は、葛飾区民も利用できるようになっており,さ らに1階の科学教育センターという施設を葛飾区が運営す ることで,行政と大学の関係をより密接なものにしている.

キャンパス全体としては南北の公園を結ぶ「ガーデンパ ス」という小径をつくり、これに直交するかたちで長さ約 250m,幅 30mの「キャンパスモール」という軸を設けてい る.このガーデンパスとキャンパスモールに沿って、食堂・ 売店・ロビーといった交流のためのスペースを配置した.

このキャンパスでは、平日・休日の時間ごとの「人の行 動軌跡」を調査し、それら結果を次なる計画にフィードバ ックを行うことで、デザインの質の向上を図っている.



Fig.3上智大学・四谷キャンパスソフィアタワー

「上智大学・四谷キャンパスソフィアタワー」は、低層部 を学生のための大学、高層部は眺望を求めるオフィスにす ることで、お互いのメリットを引き出す関係を成立させた. 1 階には 800 名の大教室や大学の研究内容を発信するギャ ラリー、カフェ、留学生ラウンジ、3-5 階の吹き抜け回り には、学修コモンズを配置しキャンパスの公開性を高めた.

3. 今後の展開

今後は、これまで継続的に調査・研究を行ってきた国内 外 50 以上の教育施設の考察を深め、より具体的なキャンパ スの公開性とコモンズ空間の配置による関連を分析するこ とで、これら空間のキャンパス内での位置づけや、建物全 体の重要性を示していることを明確にして行きたいと考え る.

参考文献

- 1) 岩崎克也 編著:未来を拓くキャンパスのデザイン, 彰国社, pp.12-145, (2018).
- 2) 二宮彩, 郷田桃代, 諸田政彦, 一色千暁, 岩崎克也, 櫻 井雄大:地域に開かれた大学キャンパスの人の行動軌 跡に関する研究,日本建築学会大会(北陸), (2019).

新任教員紹介

建築学科・特任准教授・後藤純

略歴

 2006.03
 東京理科大学大学院理工学研究科建築学専攻修了

 2006.04-2010.03
 東京大学大学院工学系研究科都市工学専攻博士課程・博士(工学)

 2010.04-2014.03
 東京大学高齢社会総合研究機構 特任研究員

 2014.04-2015.03
 東京大学高齢社会総合研究機構 特任助教

 2015.04-2020.03
 東京大学高齢社会総合研究機構 特任講師

 2020.04
 (現在に至る)

担当科目

まちづくり, 建築法規, 都市計画

研究活動内容

1. はじめに

都市地域空間計画学は、一般的には、都市計画(行政セ クター)、まちづくり(市民社会セクター)、都市開発(民 間セクター)などと称される領域である.世界標準では都 市地域空間計画学と呼ばれており、社会的公正から環境問 題への配慮や最新のテクノロジーの活用なども含め、広い 視野と明晰な論理、様々な学問分野の知見、高度な情報技 術なども駆使して科学的に都市づくり、地域空間づくりを 考える学術である.都市地域空間計画は、都市も農山漁村 も含め、人間の生活空間のあり方を皆で構想し、創り、育 て、マネジメントしていく総合的な学術である.

"世界標準"としたのは、日本が遅れているという意味 ではない.世界の都市計画では、たとえば、スラム化した 地区を再生させるには、住民の住宅問題(じゅう)だけで なく、労働=仕事をつくり(しょく)、子どもには保育や公 教育を成人には健康・医療・福祉サービスを(ケア=い)、 すなわち、い・しょく・じゅう(Fig.1)を総合的に、官民 連携のもとに創り出す.この点、日本は、素晴らしいこと に、国民皆保険・国民皆教育といったケアの環境が稚内か ら石垣島まで同一水準で整っており、都市計画、まちづく りといった"じゅう"は、個別に展開されている.

いま近代化(合理化)の徹底によって,性的役割の変化, 非正規雇用,シングル世帯の増加といったライフタイルの 変化が生じ,都市地域空間に課題として登場している.ラ イフスタイルの変化は,一概に社会課題と言い切れないと ころに難しさがある.たとえば,離婚を自由に決意し,シ ングル世帯でも自分らしく子供を育てて生きていける時代 は,一世代前からすれば課題だが,他方で近代化の到達点 ともみなせる. もちろん, シングル世帯がおかれている環 境は未熟であり, 安心して暮らせる住宅と保育園他, 子育 てと仕事が両立できる環境などの充実が求められる. 新し いライフスタイルに対応し, 皆がライフチャンスを平等に 受け止められる都市地域空間を創出していくには, 当事者 のニーズを踏まえて, コミュニティ生活環境の3領域を, 行政, 住民, 企業の協働で実現することが重要となる.



Fig.1 Three Areas of Community Living Environment

2. 協働型まちづくり

私は、協働を、「ある目的を達成するために、限定的に、 相手の価値観を、対話をとおして理解し、お互いの資源を 協調させ、課題解決に取り組むこと」と定義している. 2000 年代に、自治基本条例や市民参加条例が整備され、条例の 理想を実現する主要な施策として、市民社会組織が地域社 会の中で、主導的に課題解決に取り組むまちづくり事業に 対して、「協働」と称して、行政が様々な支援を行うための 制度が登場した. このような先進自治体では、市民社会組 織による生活者の視点による発意を基に、多様なまちづくりが行われる.たとえばファミリーサポートやコミュニティケアなど、この時点では身近な生活の課題だったものを、公的な議論の俎板にのせ、行政から支援を引きだし、社会サービスを生産・提供してきた.いまではいずれも公的政策に昇華され、子育て世代や介護保険の現場で欠かせないサービスである.このような市民社会組織の発意を育てつつ、公的政策を更新し、新しいニーズに応えていくことが、現代社会では重要なテーマになると考えている.内外に様々なリスクがある時代のなかで、安心して暮らせる環境は、自らが創り出す時代しかない.協働型まちづくりは、多様な主体が、対話を通じて生活空間の在り方を構想し、形成し、維持管理(マネジメント)するものである.

3. 超高齢社会のまちづくり

3.1 地域包括ケアシステムと協働型まちづくり

現代日本における目下最大のリスクは、超高齢社会では ないか. 超高齢社会のリスクは、福祉需要の増大といった わかりやすい課題と対応では解決できない. 一言でいえば, 予期せぬ長寿命化の問題であり、人生100年時代を目の前 にして,過去の伝統的な家族介護を当てにできない,いわ ば新しい生活様式が求められる課題である.新型コロナと 同様に、長寿社会という人類が未だ経験したことのない社 会のなかで、どのように暮らしていけばよいか、まさにみ なが手探りの状態である.手厚い福祉が必要なのではない. なぜならば高齢当事者自身も,自分は身体・認知機能が多 少衰えたとの実感はあるが,高齢者であるとの自覚も薄く, 「福祉」の枠で扱われたくないと思っているからである. このような国民の志向に沿って、わが国では地域包括ケア システムの整備が進められている.政府による用語として ではなく、協働型まちづくりの用語として理解すれば、高 齢者自身が、介護予防の一環として、自らが安心して 100 歳まで自分らしく暮らせるまちを,様々な主体と話し合い ながら創り出していくことである.神奈川県内では、川崎 市や厚木市などにて、実証的研究に取り組んでいる.

3.2 大規模災害と超高齢社会

超高齢社会への対応だけでも難しいが,さらにわが国は 災害大国でもある.2011年の東日本大震災の津波被災地, 2016年の熊本地震における仮設まちづくり支援や復興支 援活動の実践を踏まえた,超高齢社会に対応したコミュニ ティの生活環境基盤形成に関する研究を進めている.直接 被災した都市・住宅基盤の復興とあわせて,地域包括ケア システムや高齢者の健康自立寿命延伸とを統合した超高齢 社会対応の復興まちづくりについて実証的研究を実施して いる.東日本大震災の復興事業における論点は大きく2点 ある.1つは減災という視点である.三陸地方はこれまで も度重なる津波被害があり,今後も津波発生が予見できる. 津波災害をレベル1とレベル2に分けた基盤整備が行われ, そして高台への移転や復興住宅地の整備などが進められた. もう1つは、人口減少への対応である.人口増、特に若年 層の定住や呼び込みを通じて、地域社会の活性化を目指す る.その中核となる事業としては、地域資源を活かした生 業・産業・雇用の復興や自然エネルギーの活用や技術革新 等を担う次世代産業の育成事業などが進められた.2020年 で復興期間が終了し、確かに基盤整備事業、災害公営住宅 の整備は完了しつつあるが、産業再生は道半ばである.人 口減少、経済の低迷、高齢化、長寿命化が進む東北地方に おいて、基盤が整備され災害公営住宅が建てば、あとは居 住者の手によって自然にコミュニティ環境が再生・形成さ れるわけではなく、復興後のまちづくりとして継続的に介 入していく必要があると考え研究している.

3.3 エイジフレンドリーシティ (活力ある超高齢社会)

3つめの研究テーマは、「エイジフレンドリーシティ(以 下「AFC」という.)」である.AFCは世界的な高齢化と都 市化に対応するため、2007年に世界保健機関(WHO)が提 唱した概念である. 日本でも高齢化が進む都市である秋田 県秋田市は、2009年より、こうした状況をマイナスと捉え るのではなく、長寿社会は成熟した社会であり、高齢化の 問題に的確に備えていくことで強みに変えること、そして 生涯を通じていきいきと活動できるまちをつくることが必 要と考えた.秋田市は、WHOが AFC に賛同する都市間の 交流を目的に設立した「WHO AFC グローバルネットワー ク」に、2011年に日本の自治体第一号として参加し、2013 年には第1次秋田市 AFC 行動計画を策定し、「エイジフレ ンドリーシティ(高齢者にやさしい都市)」の実現を掲げて, 現在, 第2次行動計画に取り組んでいる. 日本の一般的な 都市計画や総合計画策定手法と本行動計画との違いは、日 本の都市計画は計画の対象が、もっぱら土地利用や施設配 置など物的空間的な(有形の)対象であるのに対し、本計 画対象は、土地利用や施設配置だけでなく、社会的サービ スの拡充やコミュニティ活動のプロモーション、高齢者の 社会的参加の促進など,社会的な(無形の)対象を含むも のであり、また土地利用や施設配置の望ましさについてエ イジフレンドリー性指標によって、その性能を評価しよう とする点に特徴と優れた点がある.

以上のとおり、東海大においても、新しい時代の新しい 課題に取り組むフィールドにおいて、多様な専門家や住民 らとともにアクションリサーチに取り組みたい。

参考文献

 後藤純:生活支援体制整備事業を活用した居住環境実態 調査の可能性,都市計画論文集,54 (3), pp.856-863, (2019).

- 2)後藤純:被災地におけるコミュニティ・デザイン,介護福 祉:介護専門職情報誌 (111), pp.27-36 (2018).
- 3)後藤純他:エイジフレンドリーシティ行動計画の特徴と 意義,都市計画論文集, 52 (3), pp.975-982 (2017).

東海大学工学部紀要委員会							
委員長委員	 高橋哲夫 苫米地祐輔 若杉圭一郎 ブンダリッヒビルフリド 笠井哲郎 落合成行 中篠恭一 菊川久夫 	竹 下 秀 形 村 田 谷 末 川 裕 本 川 淳 雄					

EDITORIAL COMMITTEE OF PROCEEDINGS OF THE SCHOOL OF ENGINEERING OF TOKAI UNIVERSITY

Chairman	Tetsuo TAKAHASHI	
Members	Yusuke TOMABECHI	Shu TAKESHITA
	Keiichiro WAKASUGI	Masao ISOMURA
	Wilfried WUNDERLICH	Yuji TSUBOTA
	Tetsuro KASAI	Kazuyoshi TSUCHIYA
	Masayuki OCHIAI	Toshiyuki SAKAMOTO
	Kyoichi NAKASHINO	Atsuo NAKAGAWA
	Hisao KIKUGAWA	

本紀要は、学術刊行誌である。掲載可と判定 された原著論文で工学部紀要委員会で査読・ 審査を受けている。

東 海	大	学	紀	要	工学部	
Vol. 60.	No. 1 2	2020				
2020年9月30日						
発行者 東海大学工学部						
〒259-1292 神奈川県平塚市北金目4丁目1番1号						
School of Engineering Tokai University						
4-1-1 Kitakaname, Hiratsuka-shi, Kanagawa-ken.						
Ja	pan					