

宮崎大学 工学部
紀 要

MEMOIRS
OF FACULTY OF ENGINEERING
UNIVERSITY OF MIYAZAKI

No. 54 November, 2025

FACULTY OF ENGINEERING
UNIVERSITY OF MIYAZAKI, JAPAN

宮崎大学 工学部

Editorial Committee
Chairman : Hiroki TAMURA

Kensuke NISHIOKA
Go SAKAI
Chihiro MORITA
Yukie MAEDA
Kenji YOSHINO
Suguru MIYAUCHI
Akira DATE
Makoto SAKAMOTO

Original articles are can be seen at the University of Miyazaki Academic Repository.
(<https://miyazaki-u.repo.nii.ac.jp/>)

These memoirs are issued annually.

All communications are to be addressed to the chairman of the committee, Faculty of Engineering, University of Miyazaki, Gakuen Kibanadai Nishi 1-1 889-2192, Japan.
(Tel. 0985-58-2871)

**MEMOIRS OF FACULTY OF ENGINEERING
UNIVERSITY OF MIYAZAKI
No. 54, November 2025
CONTENTS**

Original Articles

Naoki MATSUNAGA, Kousei WASEDA, Masato KUROKI, Kouki NOMURA, Go SAKAI Preparation of electrocatalyst suspension for forming electrochemically measurable electrode in alkaline media	1
Yutaka DOTE, Tomoo SEKITO Validation of a model for predicting salt leaching from chelatetreated fly ash.....	7
Yutaka DOTE, Tomoo SEKITO Prediction of Temporal Change in Calcium Concentration in Leachate Using Calcium Leaching Scenarios	13
Yutaka DOTE, Tomoo SEKITO Characteristics of Static Dissolution of Calcium from Bottom Ash and Chelate-treated Fly ash treated with Calcium Neutralizer	21
Ayame MORIMOTO, Chihiro MORITA, Atsuhi NAKANO, Eitaro HORISAWA Fundamental Study on Corrosion Characteristics of Functional Anti-Corrosion Coatings Using a Combined Cycle Tester.....	29
Takahiro IWAKIRI, Tomoki HARADA, Tetsuo IKARI, Atsuhiko FUKUYAMA Defect distribution mapping due to bulk micro defect in p-type Si.....	35
Takahiro IWAKIRI, Tomoki HARADA, Satoshi ISHII, Tetsuo IKARI, Atsuhiko FUKUYAMA Evaluation of Thermophysical Properties of Micro-Holes and Micro- Pillars by Laser Heterodyne Photothermal Displacement Method	41
Yoshito UNO, Tomoki HARADA, Daisuke OHORI, Kazuhiko ENDO, Seiji SAMUKAWA, Tetsuo IKARI, Atsuhiko FUKUYAMA Carrier Recombination in Si-Nanopillar/SiGe Composite Films by Laser Heterodyne Photothermal Displacement Measurements under Applied Voltage.....	47
Nana TAKETA, Meita ASAMI, Masakazu SUGIYAMA, Tomoki HARADA, Tetsuo IKARI, Atsuhiko FUKUYAMA Simulation Analysis of Carrier Recombination Processes in InGaAs/GaAs/GaAsP Compressively Strained Superlattice Inserted in Quantum Well Solar Cell Absorbing Layer	53
Yuto HARAGUCHI, Shun SASAKI, Noritomo MITSUGI, Tomoki HARADA, Tetsuo IKARI, Atsuhiko FUKUYAMA Photoluminescence analysis of deep defect levels induced by electron-beam irradiation and subsequent thermal annealing in n-Si substrate	59
Raditya Helmi Fakhruddin, Mochamad Bagus Hermanto, La Choviyahawa, Yoshinori Nagase, Osamu Ohnishi, Ken Masuya, Ryuusuke Kawamura Investigation of Introducing Thermal Energy Storage into Food Drying Chamber	65

Naoki ARIDOME, Tetsuro KATAYAMA Implementation of MixVRT Which Is a Visual Regression Testing Tool That Highlights Layout Defects in Web Pages	71
Yuya KIMURA, Tetsuro KATAYAMA Implementation of a Tool for Automatic Fill-in Fields Detection and for Labels Assignment to Generate Electronic Forms	77
Masatomo IDE, Makoto SAKAMOTO Development of a Shrine Festival Support Application with Editing Function for Non-Technical Users	85
Hyuma KAI, Makoto SAKAMOTO Prediction of cryptocurrency prices using Bi-LSTM	91
Noriko KAWASAKI A Study on an Autonomous English Learning Support System through Collaboration of Engineering Universities Focusing on the Development of a Student Group	97
Leona KIMURA, Makoto SAKAMOTO Proposed Method for Developing an Automated Shiitake Mushroom Identification System	105
Leona KIMURA, Makoto SAKAMOTO Visualization of 3DCG Hula Dancer for the Development of Hula Costume Design CAD	109
Shizuki NOKURA, Makoto SAKAMOTO Description of the Character by the Inbetweening Algorithm for Animation IV	117
Ota HAMASUNA, Leona KIMURA, Makoto SAKAMOTO Simplification of Rip Current Detection by Image Averaging Based on the Number of Wave Breaks	121
Masatoshi BEPPU, Makoto SAKAMOTO Development of a VR-Based Plant Growing Experience Application for Physically Challenged Children	127
List of Master's Thesis	131
Others	135

目 次

研究報告論文

松永 直樹	：アルカリ溶液中で測定可能な電極形成のための懸濁液の調製	1
早稲田 耕生		
黒木 雅人		
野村 航揮		
酒井 剛		
土手 裕	：キレート処理飛灰からの塩類溶出量予測モデルの検証	7
関戸 知雄		
土手 裕	：Ca溶出シナリオを用いた浸出水中のCa濃度の経年変化予測	13
関戸 知雄		
土手 裕	：焼却主灰とCa系中和剤を用いたキレート処理飛灰の静的Ca溶出特性に関する研究	21
関戸 知雄		
森本 菖	：複合サイクル試験機を用いた機能性防錆塗装の腐食特性に関する基礎的研究	29
森田 千尋		
中野 敦		
堀澤 英太郎		
岩切 孝洋	：p型Siにおける酸素析出物起因の欠陥分布マッピング	35
原田 知季		
碇 哲雄		
福山 敦彦		
岩切 孝洋	：光ヘテロダイン光熱変位法を用いたマイクロホールおよびピラーの熱物性評価	41
原田 知季		
石井 智		
碇 哲雄		
福山 敦彦		
宇野 巧人	：電圧印加下での光ヘテロダイン光熱変位測定による	
原田 知季	Siナノピラー/SiGe複合膜のキャリア再結合	47
大堀 大介		
遠藤 和彦		
寒川 誠二		
碇 哲雄		
福山 敦彦		
武田 奈々	：量子井戸太陽電池吸収層に挿入されたInGaAs/GaAs/GaAsP圧縮歪超格子における	
浅見 明太	キャリア吸収および取り出し過程のシミュレーション解析	53
杉山 正和		
原田 知季		
碇 哲雄		
福山 敦彦		

原 口 佑 斗：電子線照射とその後の回復熱処理により Si に形成された欠陥準位の PL 解析	59
佐 々 木 駿	
三 次 伯 知	
原 田 知 季	
碇 哲 雄	
福 山 敦 彦	

Raditya Helmi : Investigation of Introducing Thermal Energy Storage into Food Drying Chamber	65
F a k h r u d d i n	
M o c h a m a d	
Bagus Hermanto	
La Choviya Hawa	
Yoshinori Nagase	
Osamu Ohnishi	
Ken Masuya	
Ryuusuke Kawamura	

有 留 直 希：Web ページのレイアウト不具合を強調表示する	
片 山 徹 郎 視覚的回帰テストツール MixVRT の実装	71

木 村 優 哉：電子フォーム作成を目的とした	
片 山 徹 郎 記入欄自動検出およびラベル割付機能を持つツールの実装	77

井 手 理 智：非技術者向け編集機能を備えた神社祭事支援 Web アプリケーションの開発	85
坂 本 真 人	

甲 斐 飛 雄 馬：Bi-LSTM を用いた暗号資産価格の予測	91
坂 本 真 人	

川 崎 典 子：学生グループの育成に焦点化した工学系大学の協働による	
自律的英語学習支援の仕組みづくりに関する考察	97

木 村 恵 生 菜：椎茸自動識別システムの開発の提案手法	105
坂 本 真 人	

木 村 恵 生 菜：フラ衣装デザイン CAD 開発に向けた 3DCG フラダンサーの描写	109
坂 本 真 人	

野 倉 玄 稔：アニメーションの中割りアルゴリズムによるキャラクターの描写Ⅳ	117
坂 本 真 人	

濱 砂 桜 太：碎波回数に基づく画像平均化を用いた離岸流検出手法の効率化	121
木 村 恵 生 菜	
坂 本 真 人	

別 府 雅 敏：VR を利用した肢体不自由児に対しての植物育成体験アプリの開発	127
坂 本 真 人	

修士論文題目一覧	131
そ の 他	135

アルカリ溶液中で測定可能な電極形成のための懸濁液の調製

松永 直樹^{a)}・早稲田 耕生^{b)}・黒木 雅人^{b)}・野村 航揮^{c)}・酒井 剛^{d)}

Preparation of electrocatalyst suspension for forming electrochemically measurable electrode in alkaline media

Naoki MATSUNAGA, Kousei WASEDA, Masato KUROKI, Kouki NOMURA, Go SAKAI

Abstract

Preparation of electrocatalyst (Pt/C) suspension was conducted for forming electrode which is measureable in alkaline media. A well dispersed Pt/C suspension was obtained by mixing Pt/C powder with anionic polyelectrolyte AS-4 in advance, and then poured into a mixed solution of 1-propanol and ultrapure water. A mixed solution of 90 vol% 1-propanol and 10 vol% ultrapure water was suitable for preparation of Pt/C suspension and forming of Pt/C electrode on glassy carbon. Benzyltrimethylammonium hydroxide was also examined as an alternative polyelectrolyte material for AS-4.

Keywords: Suspension, Electrocatalyst, Pt/C, Alkaline media

1. はじめに

本研究グループでは、アルカリ形燃料電池用電極触媒の特性評価を目的として、白金担持カーボン(Pt/C)粉末のインク調製と電極化、および電極化した Pt/C の電気化学測定条件について検討してきた。これまで、Pt/C 粉末の電極化がキープロセスであることが一般的に知られており、様々な検討が行われてきた。例えば、プロトン伝導性高分子膜を用いた燃料電池では、酸性溶液中の評価として、燃料電池実用化推進協議会(FCCJ)¹⁾が報告している方法等が、一般に広く知られている。一方、アルカリ形では高分子膜の種類が確定的ではないため、インク調製条件等も含めて一般的なプロセスとして確立されていない。これまで、本研究グループでは、ディップコート法やドロップキャスト法を検討してきたが、インクの分散性や塗布膜の均一性および膜厚が課題になり、Pt 本来の電気化学特性を反映した結果を安定して得ることが難しい状況であった。そこで本研究では、Pt/C のアルカリ溶液中の電気化学特性を適切に評価できる電極形成条件の確立を目的として、Pt/C と高分子電解質の混合方法および分散媒を検討することによって、分散性が高く電極化が容易なインクの調製を行った。

2. 実験

2.1 白金の電気化学特性評価

Pt は、その安定性と過電圧の低さから様々な電気化学測定の基準等に用いられる。本研究では幅 1 cm × 長さ 2 cm の Pt 板を用い基準試料とした。Pt 板は、電気化学測定前に一晩濃硫酸に浸した後、測定前に蒸留水で 10 分間の超音波洗浄を行った。Pt 板を作作用極および対極とし、可逆水素電極(RHE)を参照極とした 3 極式の電気化学測定系を組み立て、0.1 M または 1.0 M の水酸化カリウム (KOH) 水溶液中で電気化学測定を行った。

2.2 白金担持カーボン粉末のインク調製、電極化および電気化学特性評価

一般に、粉末試料をカーボンロッド上に均一に塗布するためには、分散性の高いインクが必要である。粉末試料として Pt/C を考えた場合、カーボンが疎水性である一方、Pt は比較的親水性であり、それらが複合化した Pt/C を分散媒に高分散させるには、親水性、疎水性いずれの性質も有する媒体が必要となる。そこで、分散媒として 1-プロパンノールと超純水の混合溶液を用いた。また、燃料電池用電極触媒として評価するためには、膜電極接合体が形成されることを踏まえると、高分子電解質を混合することが必要である。そこで、アニオン交換樹脂溶液(1-プロパンノール溶媒、トクヤマ社製 AS-4)²⁾と 40%ベンジルトリメチルアンモニウムヒドロキシド溶液 ($C_6H_5CH_2N(OH)(CH_3)_3$ 、水溶媒、分子量 167.25 g/mol) を用いた。

図 1 に Pt/C インクの調製フローチャートを示す。従来

a)化学生命プログラム准教授

b)工学専攻機械・情報系コース大学院生

c)応用物質化学プログラム学部生

d)化学生命プログラム教授

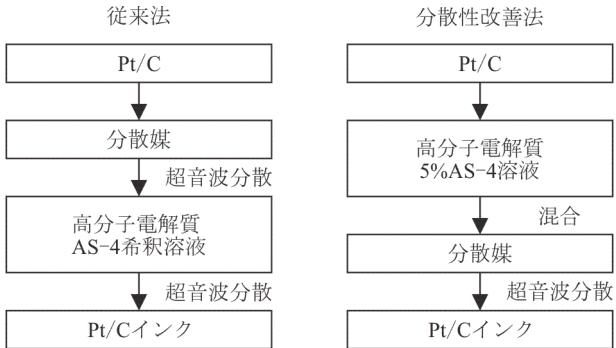


図1. Pt/Cインクの調製フローチャート。

法(図1左)では、Pt/C粉末を、まず多量の分散媒に分散させることを意図して、分散媒にPt/Cを投入し、その後、高分子電解質を添加していた。しかしながら、Pt/C量、分散媒の種類、超音波分散の回数を検討しても、十分な分散性が得られなかった。本研究では、体積比としては、分散状態とはいえないが、疎水性と親水性を合わせ持つ少量の高分子電解質とPt/Cを前もって混合してペースト状とし、ペースト内の疎水部と、親水部の混和性を高めた。次いで、分散媒に展開することにより高分散Pt/Cを調製した。このとき、分散媒の種類や混合比を検討することによってインク調製の最適化を行った(図1右)。表1に、本研究で検討した調製インクのPt/C量、分散媒、高分子電解質の種類と量および混合方法を示した。

調製したインクは、適量(10または20 μL)をグラッシャーカーボンロッドの底面または回転ディスク電極のグラッシャーカーボン上に滴下し、24時間乾燥させて電極化した。電気化学測定は、対極にPt板、参照極に水銀/酸化水銀(Hg/HgO)電極または可逆水素電極(RHE)を用いて、

表1. 調製インクのPt/C濃度(使用量)、分散媒、高分子電解質およびPt/Cと高分子電解質の混合方法。

インク	Pt/C濃度 (使用量)	分散媒	高分子 電解質	Pt/Cと 高分子電解質 の混合方法
1	1.66 g/L (8.3 mg)	1-ブロハノール 2.5 mL	5% AS-4溶液 500倍希釈溶液 2.5 mL	従来法 (超音波分散)
2	3.32 g/L (16.6 mg)	1-ブロハノール 2.5 mL	5% AS-4溶液 500倍希釈溶液 2.5 mL	従来法 (超音波分散)
3	3.30 g/L (8.3 mg)	1-ブロハノール 2.5 mL	5% AS-4溶液 20 μL	改善法
4	3.30 g/L (8.3 mg)	超純水 2.5 mL	5% AS-4溶液 20 μL	改善法
5	3.30 g/L (8.3 mg)	90%1-ブロハノール -10%超純水 2.5 mL	5% AS-4溶液 20 μL	改善法
6	3.30 g/L (8.3 mg)	99%1-ブロハノール -1%超純水 2.5 mL	5% AS-4溶液 20 μL	改善法
7	1.65 g/L (8.3 mg)	90%1-ブロハノール -10%超純水 5.0 mL	5% AS-4溶液 20 μL	改善法
8	3.30 g/L (8.3 mg)	10%1-ブロハノール -90%超純水 2.5 mL	ヘンジルトリメチル アンモニウムヒドロキシド 20 μL	改善法

0.1 M または 1.0 M の KOH 水溶液中で行った。

3. 実験結果および考察

3.1 白金バルク(白金板)の電気化学特性

図2にKOH水溶液中でのPt板のサイクリックボルタモグラム(CV曲線)を示す。0.1 Mと1.0 MのどちらのKOH濃度においても、Ptの結晶面に起因する3つの水素吸脱着ピークが0.0-0.4 V vs RHEに認められた。またPt表面の酸化による皮膜(PtO)の形成が0.7 V以上の電位に認められるとともに、その還元によるピークが0.75 V付近に観察された。特に、1.0 M KOHを用いた場合に各ピークがシャープになることがわかった。ここで、図2の斜線部で示した0.05-0.40 V範囲での水素脱離に起因する電気量を積算して、白金単結晶の既報値である210 μC/cm²を適用すると³⁾、有効白金表面積(ECSA)は5.0 cm²と算出された。一方、酸性溶液である硫酸(H₂SO₄)水溶液中で得られたCV曲線からはECSAは6.8 cm²と算出され、KOH水溶液中でのECSAは、H₂SO₄水溶液中のECSAの73%と低く見積もられる結果となった。W. Shengらは、ECSAと幾何学的な電極面積の比から算出されるラフネスファクターは1.6 ± 0.2 cm²/cm²であると報告している⁴⁾。さらに、L. Strandbergらは、KOH水溶液中でのECSAがH₂SO₄水溶液中のECSAの74-79%で、再現性があることを報告している⁵⁾。これらの報告は、酸性とアルカリ性の水溶液における水素吸脱着反応(酸性: Pt + H⁺ + e⁻ ⇌ Pt-H、アルカリ性: Pt + H₂O + e⁻ ⇌ Pt-H + OH⁻)のH⁺とH₂Oのサイズ差に起因した吸着占有面積の違いによるものと考えられる。したがって、ラフネスファクターおよび酸性よりもアルカリ性の雰囲気下でECSAが低く見積もられることから、本研究の測定方法で得られた値は、ほぼ適正值であると考えられる。

しかしながら、0.1 M KOHを用いた場合には、ECSAは4.8 cm²と算出され、より小さく見積もられることがわかった。これは、0.1 Mでは水素脱離反応の反応物質OH⁻の供給不足に伴う反応遅れが生じたためと考えられる。

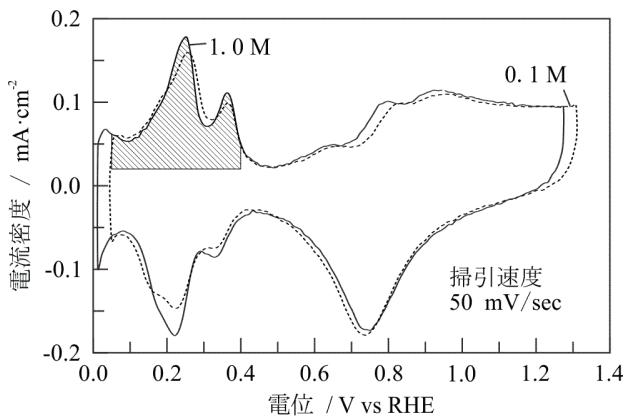


図2. KOH水溶液中におけるPt板のサイクリックボルタモグラム。

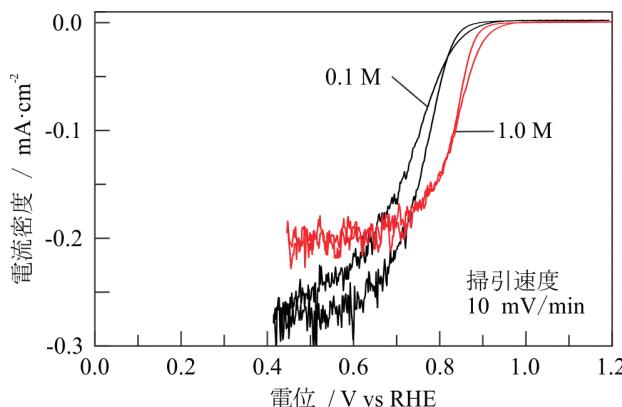


図3. KOH水溶液中のPtの酸素還元ボルタモグラム。

図3に、酸素ガスをバブリングしながら、KOH水溶液中でゆっくり電位掃引することによって得られる酸素還元(Oxygen Reduction Reaction; ORR)ボルタモグラムを示す。酸素還元反応の限界電流における電流密度はKOH濃度によって大きな違いは見られなかったが、酸素還元反応の開始電位が0.1 M KOHと比較して、1.0 M KOHの場合にわずかに高くなった。さらに、ORR曲線が急峻でヒステリシスもほとんど見られないことから、1.0 Mの方が、より適切な評価が可能であると考えられる。これは、0.1 Mでは反応物質の供給不足に伴う反応遅れが認められやすいのに対し、1.0 Mでは十分に供給されているためだと考えられる。したがって、CV特性およびORR特性共に、より精度の高い評価を行うには1.0 M KOHが適していると判断した。

3.2 白金担持カーボン粉末のインク分散性、電極化および電気化学特性

3.2.1 AS-4とPt/Cの添加量の検討

図4に、表1で示したインクのうち従来法で調製したインク1と2について、調製直後と1日静置後の状態と塗布した際の状態写真を示す。調製直後は、インク1と2

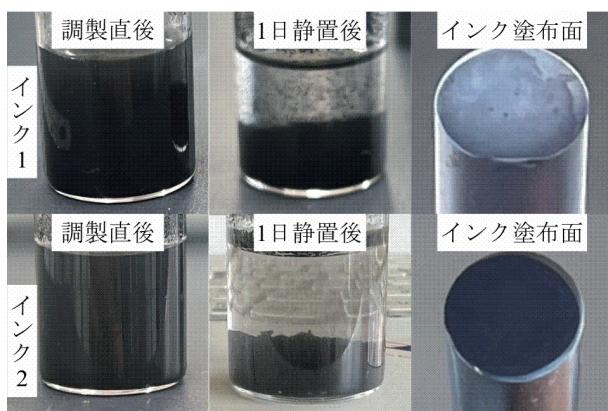


図4. 調製直後と1日静置後のインク1と2および調製直後のインクを用いてカーボンロッド上に塗布した状態の写真。

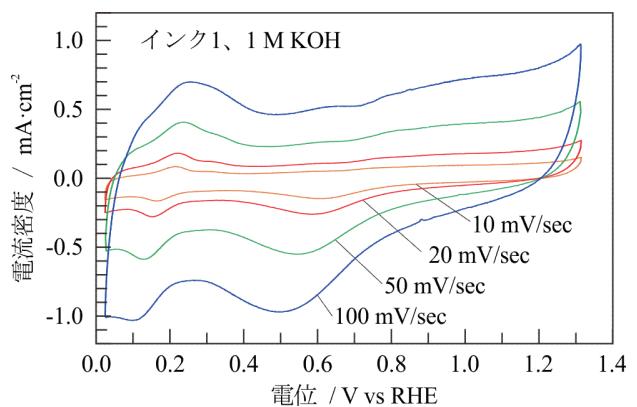


図5. インク1を用いて電極化したPt/CのKOH水溶液中でのサイクリックボルタモグラム。

が分散していることが目視で確認できた。一方、1日静置するとPt/Cと分散媒が分離し、分散性が著しく低下することがわかった。この結果から、超音波分散によってPt/Cを分散媒や高分子电解質AS-4希釈溶液中に強制的に分散させても、Pt/C粒子の表面にAS-4が隣接しておらず、時間経過とともにPt/Cが凝集して分離沈澱したものと考えられる。塗布後の状態としては、調製直後のインク1を用いて塗布した場合、若干のムラが生じるもの、インク2を用いた場合は、見かけ上均一に塗布できていた。

図5にインク1を用いて電極化したPt/CのCV曲線を示す。掃引速度を変化させても、Pt板のCV曲線(図2)で認められた水素吸脱着やPt-PtOの酸化還元に起因するピークがブロードになり、ピークの判別が困難になることがわかった。インク2を用いて電極化したPt/CのCV曲線でも同様の挙動を示した。

図6にインク1と2を用いて電極化したPt/CのKOH水溶液中の酸素還元ボルタモグラムを示す。分散媒中のPt/C濃度1.66 g/L(使用量8.3 mg)のインク1を用いた場合、酸素還元反応に対する反応が鈍く、电解液1.0 M KOHの条件下でも酸素還元反応がほとんど認められなかった。一方、分散媒中のPt/C濃度3.32 g/L(使用量16.6 mg)のインク2を用いた場合、酸素還元反応に伴う電流値が増加した。しかしながら、いずれの場合も限界電流に達しておら

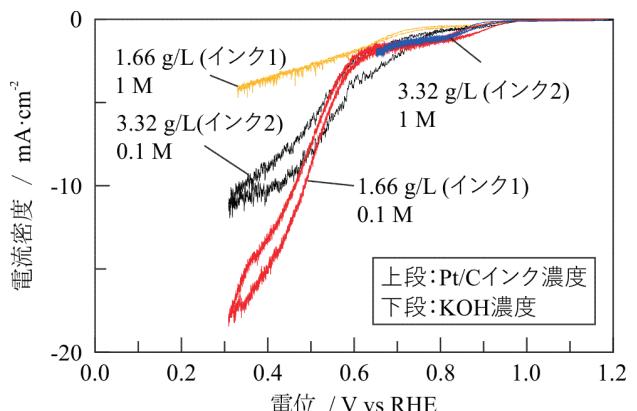


図6. インク1と2を用いて電極化したPt/CのKOH水溶液中での酸素還元ボルタモグラム。

ず、Ptの特性を適切に評価できていないことがわかった。

これらの結果から、インク1と2ではPt/Cが凝集して電極化したPt/C薄膜内でPtが埋没し、電解液に接しているPtが少ない状態と考えられる。高分子電解質AS-4の添加量についても検討したが、インク中のPt/C分散性や電気化学特性に改善が認められなかった。そこで、これ以降はPt/C粒子と高分子電解質AS-4の混合方法を改善した図1右のプロセスについて検討した。

3.2.2 混合方法と分散媒の検討

図7に改善法で調製したインク3(1-プロパノール分散媒)とインク4(超純水分散媒)の24h静置後の写真を示す。

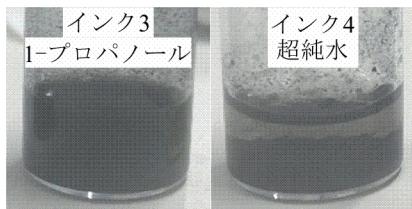


図7. 1日静置後のインク3と4の写真。1-プロパノール分散媒を用いたインク3のPt/C分散性は改善され、1日静置後もPt/Cがインク中に分散していた(図7左)。また、インク3を用いたPt/Cの電極化は、グラッシーカーボン面でのインクのぬれ性が高いため、インクの広がりを考慮した塗布量の調整が必要であることがわかった。加えて、1-プロパノールを十分に揮発させないと電気化学特性にノイズが入ることがわかった。一方、超純水分散媒を用いたインク4では、図7右に示すように、1日静置後にPt/Cが凝集沈殿した。ただし、グラッシーカーボン面での超純水のぬれ性が低いため、インクの広がりが抑えられることがわかった。よって、塗布面でのインクの広がりを考慮して、1-プロパノールと超純水の混合分散媒の検討を行った。

3.2.3 混合分散媒の検討

図8に1-プロパノールと超純水を種々の混合比で調製したインク5と6の調製直後と1日静置後およびインク塗布面の写真を示す。インク5(90%1-プロパノール-10%超純水)

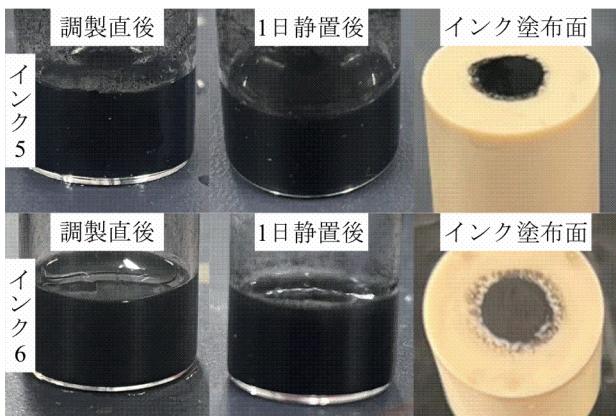


図8. 調製直後と1日静置後のインク5と6およびインク塗布面の写真。

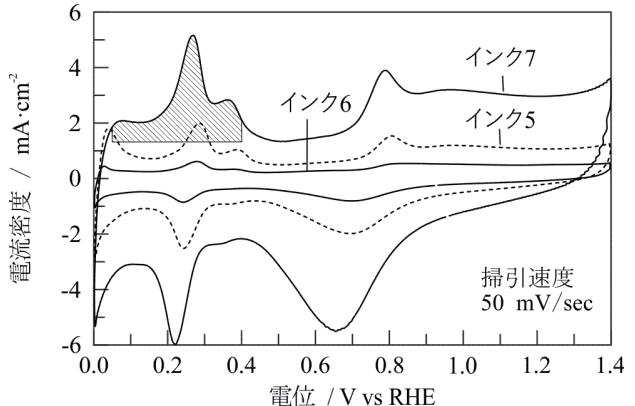


図9. インク5, 6, 7を用いて電極化したPt/Cの1.0M KOH水溶液中のサイクリックボルタモグラム。

とインク6(99%1-プロパノール-1%超純水)のどちらも調製直後から良好なPt/Cの分散性を示し、1日静置後も分散していた。したがって、Pt/CとAS-4を十分に混合した後に分散媒に展開する方法は、長期間安定なPt/Cインクの調製法として有効な手段であると考えられる。また、滴下したインク量が多かったため、塗布したグラッシーカーボン面からはみ出しているが、インク5は、ほぼ均一塗布できていることがわかった。一方、インク6では、Pt/Cの塗布ムラが認められた。

図9にインク5, 6, 7を用いて電極化したPt/Cのサイクリックボルタモグラム(CV曲線)を示す。改善法で電極化したPt/Cは、いずれの場合も従来法で電極化したPt/C(図5)に比べて明確な水素吸脱着やPt-PtOの酸化還元ピークを示すことがわかった。インク5(90%1-プロパノール-10%超純水)を用いて電極化したPt/Cは、掃引速度50mV/secで0.05-0.4VvsRHEでのECSAが 4.0 cm^2 ($26.7\text{ m}^2/\text{g-Pt}$)と算出され、さらにPt/C濃度を 1.66 g/L にしたインク7を用いることでECSAが 9.8 cm^2 ($129.6\text{ m}^2/\text{g-Pt}$)を示す電極が作製できた。H. A. Gasteigerらは、 0.1 M HClO_4 水溶液中で46%Pt担持カーボンのCV曲線から算出されるECSAが $79-82\text{ m}^2/\text{g-Pt}$ と報告している⁶⁾。したがって、インク7を用いて電極化したPt/Cは、報告よりも高い値を示すが、およそ適正值を示していると考えられる。一方、インク6(99%1-プロパノール-1%超純水)を用いて電極化したPt/Cは、電流密度が小さく、測定途中でグラッシーカーボン電極からPt/Cが剥離したと考えられる電気化学挙動の変化が確認された。このことから、インク6を用いて電極化したPt/Cは、インク5, 7と比較してPt/Cの分散性や密着性が低く、ムラも生じやすいと考えられる。以上より、CV曲線から判断して、インク7が電極化に適しているインクと結論づけた。

図10に1.0M KOH中におけるPt板とインク7から電極化したPt/Cの酸素還元ボルタモグラム(ORR曲線)を比較して示す。電極化したPt/Cは、Pt板よりも高電位域から酸素の4電子還元反応に伴う還元電流を示し、Pt板と同様に0.7~0.8VvsRHEで、ほぼ限界電流に達すること

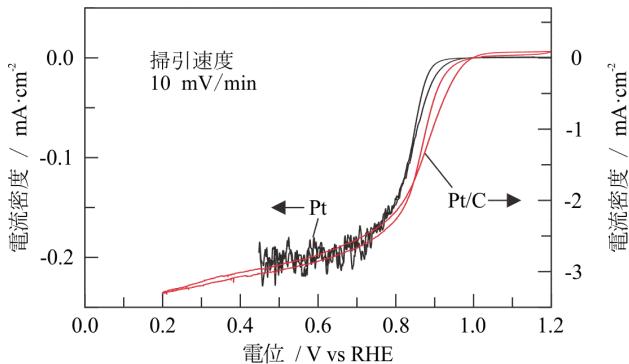


図 10. インク 7 を用いて電極化した Pt/C の酸素還元ボルタモグラム (Pt バルクとの比較) .

がわかった。

以上のように、CV および ORR 共に Pt/C の特性がほぼ Pt 板と一致することから、アルカリ水溶液中での評価に適したインクの調製法と電極化の条件を確立できた。

3.2.4 高分子電解質の検討

前節まで、アニオン交換樹脂 AS-4 を高分子電解質として用いて Pt/C インク調製を行ってきた。ただし、AS-4 は研究開発品であり、今後の入手が困難、かつ、高分子電解質の構造が開示されていないことから、代替材料の検討を行った。代替材料として陰イオン交換樹脂に使用されている 4 級アンモニウム塩のベンジルトリメチルアンモニウムヒドロキシド ($C_6H_5CH_2N(OH)(CH_3)_3$ 、分子量 167.25 g/mol) を選択した。このとき、ベンジルトリメチルアンモニウムヒドロキシドが水溶媒であることから、90% 超純水 -10% 1-プロパノールの混合分散媒を用い、インク 8 を調製した。

図 11 に、調製したインク 8 の写真を示す。インクは、調製

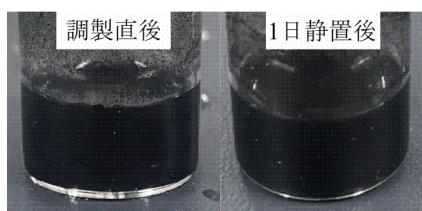


図 11. 調製直後と 1 日静置後のインク 8 の写真.

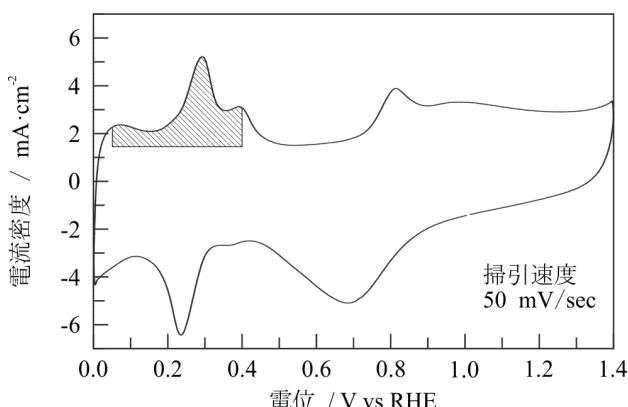


図 12. インク 8 を用いて電極化した Pt/C のサイクリックボルタモグラム.

直後から 24h 静置後まで安定した Pt/C 分散性を維持した。

図 12 にインク 8 を用いて電極化した Pt/C のサイクリックボルタモグラム (CV 曲線) を示す。水素吸脱着や Pt-PtO の酸化還元サイクルが確認でき、掃引速度 50 mV/sec で電位範囲 0.05-0.4 V vs RHE の電気量から算出した ECSA は 9.6 cm^2 ($64.1 \text{ m}^2/\text{g-Pt}$) となった。今後、詳細な検討が必要であるが、ベンジルトリメチルアンモニウムヒドロキシドは AS-4 の代替材料として使用できる可能性がある。

4. 結論

本研究では、アルカリ水溶液中での Pt/C の電気化学特性を精度良く測定評価するために、Pt/C インクの調製と電極化の条件について検討した。Pt/C は疎水性と親水性のどちらも有することから、高分子電解質 AS-4 をあらかじめ十分に混合して、疎水部と親水部に高分子を導入し、その後、1-プロパノール-超純水混合分散媒に展開することで、高い分散性を有するインクを調製できることがわかった。また、インクを用いた電極化には、90% 1-プロパノール -10% 超純水の混合分散媒を用いれば、ムラのない Pt/C 薄膜を形成でき、Pt 板と同様な電気化学特性が得られることを明らかにした。さらに、研究開発品の AS-4 の代替材料として、ベンジルトリメチルアンモニウムヒドロキシドが有力な候補であることを明らかにした。

参考文献

- 1) 燃料電池実用化推進協議会(FCCJ) 編: 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, 30 pages, 2011.
- 2) H. Yanagi and K. Fukuta : Anion Exchange Membrane and Ionomer for Alkaline Membrane Fuel Cells (AMFCs), ECS Trans., Vol.16, pp.257-262, 2008.
- 3) 高須 芳雄, 吉武 優, 石原 達巳 編: 燃料電池の解析手法, 化学同人, 2005.
- 4) W. Sheng, H. A. Gasteiger, and Y. Shao-Horn : Hydrogen Oxidation and Evolution Reaction Kinetics on Platinum: Acid vs Alkaline Electrolytes, J. Electrochem. Soc., Vol.157, pp.B1529-B1536, 2010.
- 5) L. Strandberg, V. Shokhen, M. Luneau, G. Lindbergh, C. Lagergren, and B. Wickman : Comparison of Oxygen Adsorption and Platinum Dissolution in Acid and Alkaline Solutions Using Electrochemical Quartz Crystal Microbalance, ChemElectroChem, Vol.9, e202200591, 2022.
- 6) H. A. Gasteiger, S. S. Kocha, B. Sompalli, and F. T. Wagner : Activity benchmarks and requirements for Pt, Pt-alloy, and non-Pt oxygen reduction catalysts for PEMMCs, Appl. Catal. B: Environ., Vol.56, pp.9-35, 2005.

キレート処理飛灰からの塩類溶出量予測モデルの検証

土手 裕^{a)}・関戸 知雄^{b)}

Validation of a model for predicting salt leaching from chelate-treated fly ash

Yutaka DOTE^{a)}, Tomoo SEKITO^{b)}

Abstract

To verify the applicability of the one-dimensional model to chelate-treated fly, tank leaching tests and serial batch leaching tests were conducted. Regarding the parameter search, the R^2 values between observed and calculated fractional leaching amounts were greater than 0.98 for both Na and K, and the good agreement, indicating that the model would be applicable to the prediction of leaching of salts from chelated specimens. Comparing the parameters for Na and K, $\delta(m)$ and $D(m^2/s)$ for Na was greater than those for K, and $k(1/s)$ for K was greater than those for Na. Compared to the cement solidified specimens, $\delta(m)$ and $D(m^2/s)$ for the chelated specimens were smaller, and $k(1/s)$ for the chelated specimens was larger than for the cement solidified specimens.

Keywords: Chelate-treated fly ash solidification, Cement solidification, Model parameters validation for leaching of salts, Tank leaching

1. はじめに

令和3年での最終処分量は342万トンとなっており、そのうち焼却残渣量は267万トンに達し、最終処分量に占める焼却残渣の割合は78%にも及んでいる¹⁾。特に、焼却残渣中の排ガス処理飛灰には易溶解性物質が多く含まれ、Naは19~40g/kg-wet、Kは24~48g/kg-wet、Caは170~280g/kg-wet、Clは130~170g/kg-wet、SO₄は35~87g/kg-wetが報告されており²⁾、浸出水中の塩類の高濃度化が進行している。塩濃度が高い浸出水処理水を放流すると、放流先での稻枯れの塩害が報告されているため³⁾、必要に応じて脱塩処理が実施されている。しかし、脱塩処理によって生成される副生塩の再利用方法が確立していないために、最終処分場に保管または産廃処理されているのが現状である⁴⁾。これらのことから浸出水の塩類の高濃度化に対する脱塩処理以外の対策が必要である。

脱塩処理以外の対策として、浸出水に溶けだす塩類の濃度を抑制する方法があり、埋め立てられる安定化処理飛灰の体積を大きくすることで可能と考えられる。浸出水中の易溶解性物質濃度を脱塩処理が必要な濃度以下に抑えるための安定化処理飛灰の大きさや、埋め立て方法を検討しなければならない。そのためには、安定化処理飛灰からの易溶解性物質溶出量を予測する必要がある。セメント固化

飛灰からの塩類溶出モデルについては、安田⁵⁾が1次元について、表面溶解溶出量は表面溶解領域中の含有量に比例するとし、拡散溶出量については、表面溶解領域での拡散による溶出を無視するものとした。これらの合計で溶出量を表すモデルを提案し、大きさが異なる供試体でも適用できることを証明した。一方、安定化処理の78%を占める⁶⁾キレート処理飛灰については研究が行われていない。

そこで、本研究では安田⁵⁾が提案した一次元モデルのキレート処理飛灰への適用性の検証を目的とした。モデル適用性を評価するために、上面以外防水作業を行った直径5cmの円柱供試体のタンクリーチング試験を行った。また、セメント固化体との固定化能力の違いを明らかにするために、キレート処理飛灰の溶出試験、シリアルバッチ試験および、立方供試体を用いたタンクリーチング試験を行った。

2. 実験方法

2.1 用いた飛灰

実験には宮崎県A市の一般廃棄物焼却施設から2023年5月31日に採取した排ガス処理飛灰を用いた。この施設では排ガス処理に活性炭と消石灰を使用している。採取した飛灰は、排ガス処理後で安定化処理前の飛灰である。

2.2 供試体作成

供試体はW/A比が50%になるように、表1に示す配合に

a) 土木環境プログラム教授

c) 土木環境プログラム准教授

よって作成した。配合条件の値は1辺4cmの立方供試体がモールド4個分、円柱供試体がモールド2個分、1辺8cmの立方供試体がモールド1個分の値である。円柱供試体作成には直径5cm、高さ10cmの円柱モールドを用い、立方供試体作成には一辺が4cm、8cmの立方体のアクリル製モールドを用いた。1条件につき供試体を4個（タンクリーチング試験用に3個、分析用に1個）作成した。配合条件に従って混練り用の容器にキレート剤（（株）栗田工業、アッシュナイトS-803）と飛灰と水道水を取り、自動混練り機（（株）マルイ、MIC-362-1）を用いて2分間の混合を3回行い、ペースト試料を作成した。モールドの高さの1/3程度までペースト試料を詰めて床に小刻みに叩きつけて気泡を上昇させて抜き、これを合計3回繰り返し、最後に上部が平らになるように整えた。ペースト試料を充填したモールドにラップをかけ、室温25°Cで1週間養生した後、脱型した。

養生完了後に円柱供試体を脱型・重量測定後、表面に大きな空隙がない供試体を2つ選び、タンクリーチング試験用の供試体とした。タンクリーチング試験に使用する供試体は、上面のみを暴露面として使用するため、供試体の上面にマスキングテープ（安岡製作所、No.8370）を貼り、それ以外の底面と側面は变成シリコーンシーラント（セメダイイン株式会社、SM-451）を塗って防水作業を行った。变成シリコンシーラントが乾燥したことを確認して、供試体は、脱型後3日目にタンクリーチング試験用に用い、暴露面のマスキングテープはタンクリーチング試験開始直前に剥がした。

脱型した円柱、立方体供試体ともに分析用試料をジョークラッシャー（（株）マルイ、MIC-198-0-02型）で粗粉碎し、500mLのポリ瓶に約350g程度保存し、105°Cの乾燥機に入れ、2日に1回全体の重量を測定し、前回の重量からの減少率が0.5%以下になるまで7日間乾燥して含水率を測定した。乾燥後の粗粉碎した試料の一部（約1g程度）を空隙率測定用試料として保存し、残りの試料をブラウン横型粉碎機（（株）マルイ、MIC-189-0-11型）で微粉碎し、含有量試験、13号溶出試験、シリアルバッチ溶出試験に用いた。

2.3 試験方法

試料1g、蒸留水25ml、濃硝酸5mlをコニカルビーカーに加え、時計皿で蓋をして240°Cに設定したホットプレートで5分間煮沸し、冷却した。その後、ガラス纖維織紙（GF/B）を用いて全量吸引ろ過し、100mlにメスアップし、ポリ瓶に保存した。含有量試験の反復回数は3回とした。

環境庁告示13号に準拠して溶出試験を行った。ただし、試料は30gとし、蒸留水300mlを500mLの遠心分離管に入れて行った。200rpmで6時間振とう後に約5分間静置し、上澄みを0.45μmのメンブレンフィルターを用いてろ過し、分析試料を得た。残った上澄みのpHとECを測定した。溶出試験で得られたろ液を50ml採取してポリ瓶に入

表1. 供試体作成条件.

	C/A (%)	W/A (%)	A:飛灰 (g)	C:キレート (g)	W:水 (mL)
円柱供試体	4	50	500	20	250
立方体供試体 (1辺4cm)			350	14	175
立方体供試体 (1辺8cm)			700	28	350

れ、濃硝酸0.25mlを加えて保存した。溶出試験の反復回数は3回とした。

500mLの遠心分離管に試料を10g取り、蒸留水300mLを加え、200rpmで6時間振とう後、5000Gで10分間遠心分離を行った。遠心管の上澄み液をメスシリンダーに移して容量を測定し、よく混合した後に溶液を0.45μmメンブレンフィルターを用いてろ過して分析用試料を得た後、残った溶液のpHおよびECを測定した。翌日、蒸留水300mLを遠心管に加え、上記と同様の操作を行った。これを繰り返して合計4回の溶出操作を行った。シリアルバッチ溶出試験の反復回数は3回とした。

円柱供試体では、2Lのポリ瓶に蒸留水を1.75L、1辺4cm立方供試体では、0.9Lのハイパックに蒸留水を0.6L、1辺8cmの立方供試体では、3Lのハイパックに蒸留水2.3Lを加えた。円柱供試体のみ防水処理をし、静置した。静置後、所定の時間が経過したら、新しい蒸留水を入れたポリ瓶に供試体を移した。蒸留水の交換時間は0.0417（1時間）、0.0833（2時間）、0.125（3時間）、0.25（6時間）、0.5（12時間）、1（4cm及び8cm立方供試体のみ）、2（4cm立方供試体のみ）日目とした。供試体を取り出した後の溶液の一部を0.45μmメンブレンフィルターでろ過した後、得られたろ液は陽イオン分析用に100ml採取してポリ瓶に入れ、濃硝酸0.5mlを加えて保存した。その後、残っている溶液のpHとECを測定した。

3. モデル

一次元の条件で、表面溶解支配部分となる供試体の表面近傍において溶出速度がその領域での含有量に比例する表面溶解モデルと通常の拡散モデルを組み合わせた安田のモデル⁵⁾を用いた。表面溶解モデル式は式(1)で表される。ここで、 M_s (mg/kg) は供試体重量あたりの累積表面溶解溶出量、 δ は表面溶解領域厚さ (m)、 ρ は供試体密度 (kg/m³)、A は供試体暴露面積 (m²)、W は供試体重量 (kg)、S (m²/kg) は供試体暴露面積を供試体重量で割ったものであり、 Q_0 は可溶性含有量 (mg/kg) を表し、シリアルバッチ溶出試験の溶出量の平均値を用いた。

$$M_s = \frac{\rho \delta A Q_0}{W} (1 - e^{-kt}) = \rho \delta S Q_0 (1 - e^{-kt}) \quad (1)$$

拡散モデルによる累積拡散溶出量 M_d (mg/kg) は式(2)を以下の初期条件、境界条件で解いた。ここで C_0 は初期含有量 (mg/kg) を表し、可溶性含有量に供試体密度を乗

じて空隙率で割った値である。

$$\text{初期条件: } t = 0, 0 \leq x \leq L - \delta; C = C_0$$

$$t = 0, L - \delta \leq x \leq L; C = 0$$

$$\text{境界条件: } t > 0, x = L; C = 0$$

$$t > 0, x = 0; J = 0 \quad (\text{すなわち} \frac{dc}{dx} = 0)$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} \quad (2)$$

ただし、この場合は解析解は得られないので、安田と同様の数値解法⁵⁾を用いて濃度 C (mg/kg) を求めた。長さ L を n 分割したときの i 番目空間座標を i、時間を微小時間 Δt を用いて j 番目の時間 $t_j = j \times \Delta t$ の座標を j で表現し、C (x, t) を $C_{i,j}$ とする。また、空間分割幅 Δx を h、時間分割幅 Δt を u で表す。時間微分を前進差分近似で、空間の二階微分を j の値と j+1 の値の平均で表現して差分方程式が得られ、累積拡散溶出量のモデル式は式 (3) で表すことができる。

$$M_{D(t_j)} = -\frac{D_e}{\Delta x} \times \frac{A \Delta t}{W} \sum_{j=0}^J (C_{n,j} - C_{n-1,j}) \quad (3)$$

累積溶出量 M_T (mg/kg) は表面溶解溶出量 M_S と拡散溶出量 M_D の合計で表される。また、時刻 t_{j-1} から t_j までの間の溶出量を画分溶出量 m_T とし、式 (4) で表す。

$$m_T = (M_{S(t_j)} - M_{S(t_{j-1})}) + (M_{D(t_j)} - M_{D(t_{j-1})}) \quad (4)$$

空間分割幅 Δx は安田の卒論⁵⁾と同じ $\Delta x = 0.0001$ (m) とした。時間分割幅 Δt も同様に $\Delta t = 360$ (s) としたが、パラメータ探索やモデル検証する際に数値解を計算する時間を短縮するために、 $t = 0 \sim 43200$ (s) (0.5day) までを $\Delta t_1 = 360$ (s)、 $t = 43200 \sim 2764800$ (s) (32day) までを $\Delta t_2 = 8640$ (s) と設定した。本研究では δ を手動で変えながら画分溶出量の残差自乗和が最小となる k と D_e を SIMPLEX 法により同時に求めた。

4. 結果と考察

4.1 用いた飛灰・供試体の性状

飛灰特性を表 2 に示す。Na、K の含有量は大きく、13 号溶出率も高かった。一方、Ca は含有量は大きいが、13 号

表 2. 飛灰の化学特性。

	Na	K	Ca	Mg
含有量(mg/kg)	52,900	51,500	136,000	10,140
13 号溶出量(mg/kg)	44,900	49,500	54,900	0
13 号溶出率(%)	85	96	40	0.004

溶出率は小さかった。

供試体の化学特性を表 3 に示す。立方体供試体 (4cm、8cm) の含有量について、Na と Ca は円柱供試体と比べて、0.96 倍～1.2 倍と同程度であった。Ca は、円柱供試体の含有量が立方体供試体の 1/3 と低かった。Ca の 13 号溶出量、シリアルバッチ溶出量とも 3 供試体間の差は小さいので、円柱供試体の Ca 含有量は分析に問題があったと考えられた。13 号溶出量、シリアルバッチ溶出量は 0.87～1.2 倍と同程度であった。Na、K の 13 号溶出率は 70% 以上であり、易溶解性物質と言えた。Ca の溶出率は円柱供試体と比べて、立方体供試体の値は小さかった。Na、K のシリアルバッチ溶出率は 70% 以上でありキレート処理による易溶解性物質の溶出抑制効果が低いことが示された。

キレート処理との比較のためのセメント固化体供試体として、名富⁷⁾の研究で報告された円柱供試体と安田の研究で報告された立方体供試体の化学特性を表 4 に示す。立方体供試体の含有量について、セメント固化体と比較してキレート処理供試体の方が Na で 1.4～1.8 倍、K で 1.5～1.6 倍多かった。13 号溶出量について、セメント固化体と比較してキレート処理供試体の方が Na、K で 1.2～1.5 倍位大きかった。シリアルバッチ溶出量は、Na で 1.4 倍、K で 1.2 倍大きかった。

供試体の物理特性を表 5 に示す。キレート処理供試体の円柱供試体と立方供試体の養生後密度は同程度であった。セメント固化供試体とキレート処理供試体の養生後密度も同程度であった。空隙率についてはセメント固化供試体と比較して、キレート処理供試体の空隙率は小さくなった。

4.2 立方体供試体によるタンクリーチング試験結果のコンクリート供試体との比較

本研究で作成した立方体供試体とコンクリート供試体のタンクリーチング結果の比較を図 1、図 2 に示す。Na、K ともキレート処理供試体の方が画分溶出量が多かった。4cm 供試体では実験開始初期の 0.083d (2 時間) まで特に

表 3. キレート処理供試体の化学特性。

	円柱供試体			立方体供試体(1 辺 4cm)			立方体供試体(1 辺 8cm)		
	Na	K	Ca	Na	K	Ca	Na	K	Ca
含有量(mg/kg)	40,600	44,300	47,100	39,000	43,800	146,000	48,500	45,800	127,000
13 号溶出量(mg/kg)	32,900	34,500	40,600	28,800	30,900	34,800	34,100	39,700	48,400
シリアルバッチ溶出量(mg/kg)	35,400	36,000	65,500	33,800	35,400	67,000	33,800	36,300	67,200
13 号溶出率(%)	81	78	86	74	70	24	70	87	38
シリアルバッチ溶出率(%)	87	81	139	87	81	46	70	79	53

表4. セメント固化供試体の化学特性.

	円柱供試体			立方体供試体		
	Na	K	Ca	Na	K	Ca
含有量(mg/kg)	27,500	28,600	203,000	27,600	29,300	207,000
13号溶出量(mg/kg)	23,700	26,400	30,700	23,200	26,700	35,000
シリアルバッチ溶出量(mg/kg)	24,000	28,500	55,800	23,900	28,700	60,000
13号溶出率(%)	86	93	15	84	91	17
シリアルバッチ溶出率(%)	87	100	28	87	98	29

表5. 供試体の物理特性.

	キレート処理飛灰			セメント固化供試体		
	円柱供試体	立方体供試体		円柱供試体	立方体供試体	
		1辺4cm	1辺8cm		1辺4cm	1辺8cm
養生後密度(g-wet/cm ³)	1.61	1.57	1.61	1.67	1.77	1.78
空隙率(%)		30			41	

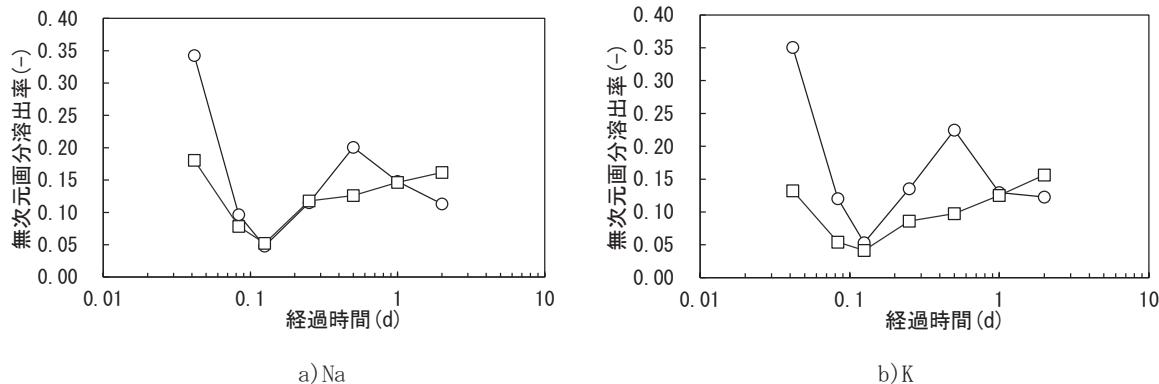


図1. 1辺4cmのキレート処理供試体とコンクリート供試体のタンクリーチング試験結果の比較 (○: キレート処理、□: セメント固化).

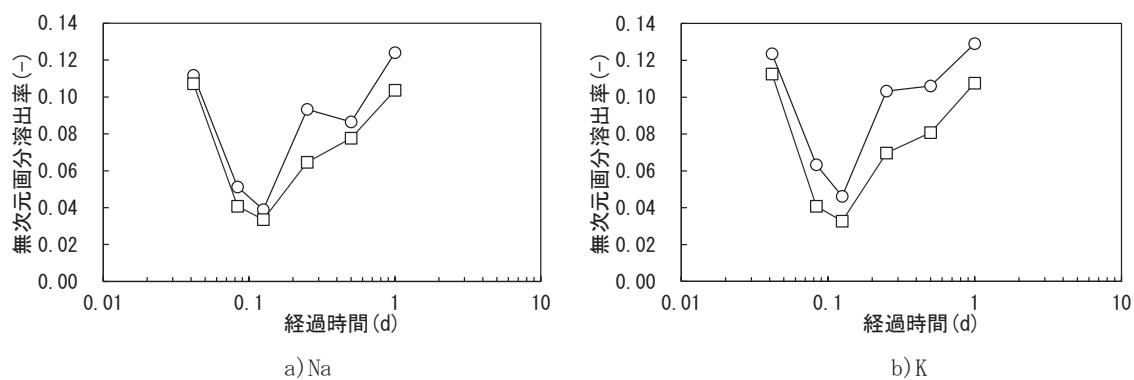


図2. 1辺8cmのキレート処理供試体とコンクリート供試体のタンクリーチング試験結果の比較 (○: キレート処理、□: セメント固化).

大きく、それ以降の違いはほとんどなかった。8cm供試体では、実験の全期間に渡って、キレート処理供試体の方が高くなかった。

4.3 パラメータ探索結果

探索より得られたパラメータおよび、画分溶出量の実測

値と計算値の決定係数 (R^2) を表6に示す。また、キレート処理供試体とセメント固化体のNa、Kの画分溶出量の実測値と計算値を図3に示す。Na、Kは R^2 が 0.98 以上であり、図3からも実測値と計算値が良い一致を示していることから、得られたパラメータを用いて実測値を再現できたと言えた。用いたモデルは、キレート処理供試体からの塩

表6. 得られたパラメータの値および実測値と計算値の決定係数 R^2 の比較。

	Na				K			
	δ (m)	k (1/s)	D (m^2/s)	R^2	δ (m)	k (1/s)	D (m^2/s)	R^2
キレート処理供試体	1.5E-03	5.4E-04	7.0E-11	0.9863	1.4E-03	6.2E-04	6.7E-11	0.9864
セメント固化供試体	3.5E-03	1.1E-04	9.9E-11	0.9819	1.7E-03	6.1E-04	8.1E-11	0.9982

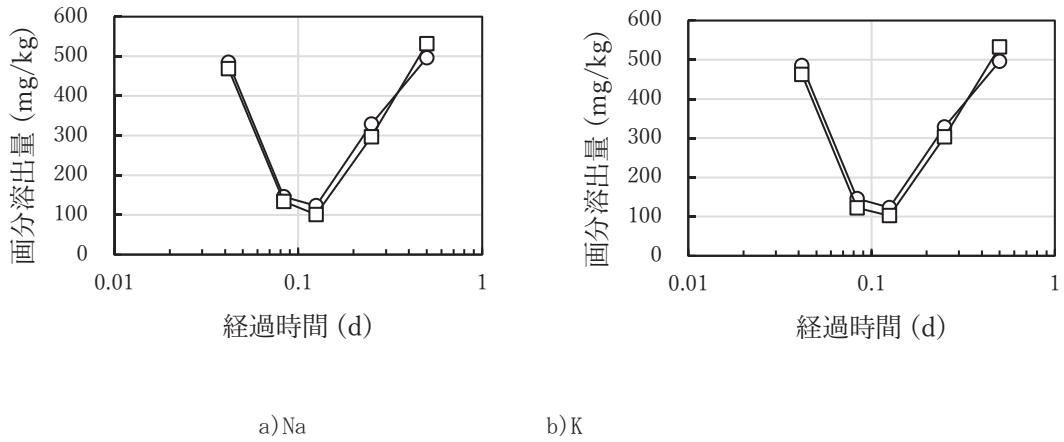


図3. 画分溶出量の実測値と計算値の比較 (○: 実測値 □: 計算値).

類溶出についても適用できることが分かった。

Na と K でのパラメータを比較すると、 δ (m) と D (m^2/s) は K よりも Na の方が大きかった。k (1/s) は、Na よりも K のほうが大きかった。表 6 には比較のためにセメント固化供試体で得られたパラメータ⁵⁾も示すが、キレート処理供試体の δ (m) と D (m^2/s) はセメント固化供試体と比べて、小さかった。k (1/s) は、セメント固化供試体と比較して、キレート処理供試体の方が大きかった。

5. まとめ

本研究では、一次元モデルのキレート処理飛灰への適用性の検証と化学的固定能力の違いを明らかにすることを目的としてタンクリーチング試験を行った。得られた主な知見を以下に示す。

- (1) パラメータ探索について、Na と K とともに画分溶出量の実測値と計算値の R^2 が 0.98 以上であり実測値と計算値が良い一致を示していることから、キレート処理供試体からの塩類溶出についても適用できることが分かった。
- (2) Na と K でのパラメータを比較すると、 δ (m) と D (m^2/s) は K よりも Na の方が大きく、k (1/s) は、Na よりも K のほうが大きかった。
- (3) セメント固化供試体と比べて、 δ (m) と D (m^2/s) はキレート処理供試体の方が小さく、k (1/s) は、キレート処理供試体の方が大きかった。

謝辞

本研究を進めるにあたり、社会環境システム工学科学の大塚恒輝君の協力を得た。

参考文献

- 1) 環境省: 日本の廃棄物処理 令和 3 年度版, 2021.
- 2) 野馬幸生, 貴田晶子: カルシウムスケールの生成におけるばず埋立焼却残渣の影響, 廃棄物学会論文誌, Vol. 9, pp. 287-295, 1998.
- 3) 柳茂, 菅原隆一, 高橋紀世子, 葛岡勝悦, 岩澤理奈, 斎藤善則: 一般廃棄物最終処分場浸出水及び一般廃棄物焼却灰の塩類調査(第 2 報), 宮城県保健環境センター年報第 25 号, pp. 66-71, 2007.
- 4) 劉佳星, 重松幹二, 為田一雄, 韓佳江, 橋口壯太朗: バイポーラ膜電気透析装置による副生塩のリサイクルに関する研究, 廃棄物資源循環学会論文誌, Vol. 32, pp. 43-50, 2021.
- 5) 安田匠悟: セメント固化体からの易溶解性物質の溶出量予測のための 1 次元モデルの検証, 宮崎大学工学部社会環境システム工学科卒業論文, 2023.
- 6) 為田一雄, 東海林俊吉, 橋口壯太郎: 焼却施設の動態調査(焼却残渣編), 廃棄物資源循環学会研究発表会, Vol. 31, pp. 303-304, 2020.
- 7) 名富大嶺: セメント固化体からの易溶解性物質溶出量予測モデルの開発, 宮崎大学工学部社会環境システム工学科卒業論文, 2022.

Ca 溶出シナリオを用いた浸出水中の Ca 濃度の経年変化予測

土手 裕^{a)}・関戸 知雄^{b)}

Prediction of Temporal Change in Calcium Concentration in Leachate Using Calcium Leaching Scenarios

Yutaka DOTE^{a)}, Tomoo SEKITO^{b)}

Abstract

The objective was to predict changes in Ca concentration in leachate over time based on the amount of Ca leached from incineration residue and the volume of leachate. Different leaching tests were performed on bottom ash and chelate-treated fly ash. Scenarios for predicting changes in Ca concentration in leachate over time were developed using data from existing final disposal sites. The results showed that the measured and calculated Ca concentrations in the leachate from 2005 to 2022 showed relatively good agreement (R^2 , 0.731). The leaching scenarios developed in this study would have the possibility to predict Ca concentrations in leachate. Assuming that the landfill is completed in the year 2023, the Ca concentration in the leachate was calculated using this leaching scenario, and the obtained result showed that it would take 29 years until the Ca concentration in the leachate reduced to the level where no Ca removal treatment is required.

Keywords: Bottom ash, Chelate-treated fly ash, Calcium leaching scenario, Ca concentration prediction, Leachate

1. はじめに

一般廃棄物の最終処分場において、焼却処理により発生する焼却残渣は最終処分量の約 8 割である¹⁾。焼却残渣中には多くの Ca が含有されており、主灰中には 32,000～150,000mg/kg-wet、排ガス処理飛灰には 54,000～280,000mg/kg-wet、キレート処理飛灰中には 160,000mg/kg-wet、セメント固化処理飛灰には 83,000～200,000mg/kg-wet の含有量が報告されている²⁾。主灰と比較して排ガス処理飛灰の Ca 含有量が多い理由は、焼却施設での塩化水素対策に用いられる薬剤に Ca 化合物が含まれる石灰系を多く使用しているからである。樋口らの大坂地区での排ガス処理剤の種類と使用施設割合調査結果によると、排ガス処理の種類は高反応石灰、特号石灰、重曹、苛性ソーダであり、使用されている割合はそれぞれ 43%、22%、5%、25% と、排ガス処理の約 65% に石灰系薬剤が用いられていた³⁾。以上より排ガス処理に石灰系を用いる場合が多いので、主灰と比較して排ガス処理飛灰の Ca 含有量が多くなっている。

焼却残渣に Ca が多く含まれているため、浸出水中の Ca 濃度も高く、54～1,900mg/L の濃度が報告されている⁴⁾。浸出水中の高 Ca 濃度の弊害としては、カルシウムスケ

ル発生による浸出水の原水圧送管・移送管などの配管閉塞や回転円板体表面へのスケールの付着による生物処理性能の低下が挙げられる⁵⁾。そのため、スケール発生防止のために、スケール分散剤、pH 調整法、脱炭酸法、炭酸ソーダを添加する晶析法が浸出水処理施設で用いられている。これらの対策をより効率よく行うためには、浸出水中 Ca 濃度を予測する必要がある。しかし、浸出水中の Ca 濃度を予測した研究は見当たらない。

本研究では、対象とする焼却残渣として、主灰および中間処理のうちキレート剤による処理が主流となっていることから⁶⁾キレート処理飛灰を対象とした。表 1 に主灰、排ガス処理飛灰、キレート安定化処理飛灰中の Ca 化合物を示す。このように、各灰中の Ca 化合物についての報告は多いが、易溶解性および難溶解性 Ca の含有量割合や溶出濃度に関する研究は少なく、浸出水中の Ca 濃度予測に関する研究は見当たらない。

石川の研究⁷⁾では、主灰とキレート処理飛灰を対象に、易溶解性および難溶解性 Ca の割合について主灰中の Ca の 25% は易溶解性物質であり、キレート処理飛灰は約 50% が易溶解性物質であることを示した。また、Ca 化合物については、主灰中の Ca は主に CaCO_3 として存在し、キレート処理飛灰中の Ca は主に CaCO_3 、 CaSO_4 、 Ca(OH)_2 として存在することが示された。しかしながら、焼却残渣埋立後の浸出水の Ca 濃度予測は行われていない。

そこで本研究では、主灰とキレート処理飛灰を対象に、

a) 土木環境プログラム教授

c) 土木環境プログラム准教授

表1. 焼却残渣中のCa化合物.

	Ca化合物
主灰	$\text{CaCO}_3^{7, 8, 9)} \cdot \text{Ca(OH)}_2^{9)} \cdot \text{Ca}_8\text{Al}_2\text{Fe}_2\text{O}_{12}\text{CO}_3(\text{OH})_2 \cdot 22\text{H}_2\text{O}^{9)}$ $\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Cl}_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}^{9)} \cdot \text{Ca}_2\text{Al}(\text{AlSiO}_7)^{8)}$ $\text{Ca}_2(\text{Al}_{0.92}\text{Mg}_{0.08})(\text{Al}_{0.92}\text{Si}_{1.08})\text{O}_7^{9)} \cdot \text{Ca}_2\text{Al}(\text{OH})_6(\text{Cl}, \text{OH}) \cdot 2\text{H}_2\text{O}^{8)}$
排ガス処理飛灰	$\text{Ca}_2(\text{SiO}_3)(\text{OH})_2^{10)} \cdot \text{CaCO}_3^{10, 11, 12)} \cdot \text{Ca}(\text{OH})_2^{10, 11)} \cdot \text{CaSO}_4^{10, 11, 12)} \cdot \text{CaSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}^{12)} \cdot \text{CaO}^{11)} \cdot \text{CaClOH}^{11)} \cdot \text{Ca}_{12}\text{Al}_{14}\text{O}_{33}^{11)}$
キレート安定化処理飛灰	$\text{CaCO}^{7, 12, 13)} \cdot \text{CaSO}_4^{7, 12, 13)} \cdot \text{CaSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}^{12, 13)} \cdot \text{Ca}(\text{OH})_2^{7)} \cdot \text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}^{12, 13)} \cdot 3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{CaSO}_4 \cdot 32\text{H}_2\text{O}^{12)}$

浸出水のCa濃度の経年変化を焼却残渣のCa溶出量と浸出水量から予測することを目的とした。そのために、易溶解性成分の溶出量を求めるためにL/Sを変えて溶出試験を行った。また、難溶解性成分のCa溶出量を求めるために、易溶解性成分を洗浄除去した試料に対してpHとL/Sを変えて溶出試験を行った。さらに、既存の最終処分場から得られた焼却残渣埋立量、浸出水pH、浸出水量をもとに浸出水Ca濃度の経時変化を求め実際の浸出水Ca濃度と比較し、最終処分場の埋立終了後から浸出水処理不要となるまでの年数についても検討した。

2. 実験方法

2.1 用いた飛灰

実験には宮崎県宮崎市的一般廃棄物焼却施設から2023年5月29日に採取した焼却主灰および排ガス処理飛灰にキレート剤を用いて安定化処理を行ったキレート処理飛灰（以後、処理飛灰と呼ぶ）を用いた。宮崎市からの聞き取りから排ガス処理に使用された中和剤には水酸化カルシウムと活性炭を混合したもの、キレート剤はアッシュナイトS803（栗田工業株式会社）がそれぞれ使用されていた。用いたキレートはジエチルジチオカルバミン系キレート剤であり、K濃度が121,000mg/Lと高いことからK塩として溶解していると考えられた。陰イオンについては硫酸イオンが45,800mg/Lと多く含まれていたが、Clは含まれていないことがわかっている⁷⁾。主灰についてはブラウン横型粉碎機（㈱マルイ MIC-189-0-11）で微粉碎を行った。処理飛灰についてはジョークラッシャー（㈱マルイ MIC-198-0-02型）で粗粉碎後、2日乾燥させた後で主灰と同様に微粉碎した。なお、微粉碎後の試料は主灰については2mm以下、飛灰については1mm以下であった。

2.2 試験方法

2.2.1 含有量試験

試料1g、蒸留水25ml、濃硝酸5mlをこの順番でコニカルビーカーに加え、時計皿で蓋をして240°Cに設定したホットプレートで5分間煮沸し、冷却した。その後、ガラス織維織紙（Whatman、GF/B、47mm、ポアサイズ1μm）を用いて全量吸引ろ過し、100mlにメスアップした。ろ液はポリ瓶に保存した。含有量試験の反復回数は3回とした。

表2. 易溶解性成分溶出予測実験のための試料重量、蒸留水量。

L/S	試料重量(g)	蒸留水量(mL)
10	30	300
5	40	200
3	70	210

表3. 難溶解性溶出実験に用いる溶媒の硝酸濃度(mol/L)。

溶出液の目標pH	主灰			処理飛灰		
	L/S 3	L/S 5	L/S 10	L/S 3	L/S 5	L/S 10
7	0.8	0.5	0.2	2	1.5	0.5
9	0.5	0.35	0.25	1.5	0.7	0.08
11	0.1	0.1	0.05	0.1	0.05	0.05

2.2.2 易溶解性成分の溶出予測実験

2.1で前処理した主灰および処理飛灰と蒸留水を用いてL/S=10、5、3の3条件で溶出試験を行った。用いた試料重量と蒸留水量を表2に示す。所定量の試料と蒸留水を500mlの遠心管に入れて、200rpmで6時間振とう後に、5000Gで10分間遠心分離を行った。その後、上澄みを0.45μmのメンブランフィルターを用いてろ過し、分析試料を得た。残った上澄みのpHとECを測定した。溶出試験の反復回数は3回とした。

2.2.3 難溶解性成分の溶出予測実験

難溶解性成分の溶出予測実験に用いるために主灰および処理飛灰の易溶解性成分の洗浄を行った。洗浄は500mLの遠心管に試料10g、蒸留水300mLを取り、200rpmで2時間振とうを行った、5000Gで10分間遠心分離を行い、上澄み液を捨てた後再度蒸留水300mLを遠心管に入れ、200rpmで2時間振とうを行い、5000Gで10分間遠心分離を行い、残った残渣を0.45μmのメンブランフィルターを用いてろ過し、回収した残渣を100mLポリ容器で回収し、105°Cで一晩乾燥した。乾燥は、1日の重量変化が0.5%以下になるまで継続した。乾燥終了後、残渣を乳鉢に全て移し軽く粉碎したものを洗浄残渣とした。

洗浄残渣を用いて、L/Sを10、5、3とし、溶出後の溶出液pHが7、9、11となるように、表3に示す硝酸濃度の溶媒を用いて、2.2.2と同様の条件で同様の溶出試験を行った。参考に蒸留水も溶出試験に用いた。また、溶出液pHが目標pH±0.1となった試料を対象としXRD分析を行うため、該当試料の遠心管に蒸留水300mLを加え、200rpmで

表4. 用いた試料の含有量(mg/kg).

	Na	K	Ca	Mg	SO ₄ -S	Cl
主灰	29,300	12,600	110,000	12,000	1,700	22,000
処理飛灰	39,100	37,900	134,000	9,200	18,100	142,000
洗浄主灰	16,300	6,900	89,200	13,000	1,600	1,100
洗浄飛灰	9,600	4,900	121,000	14,300	20,700	6,700

1分間振とう後、5000Gで10分間遠心分離を行い、上澄みを捨てこれを2回繰り返し、遠心管の残渣を100mLポリ容器に移し、105°Cで乾燥し、直近の重量との減少率が0.5%になったものをポリ瓶に保存した。

2.3 分析方法

Na、K、Ca、Mgの濃度はフレーム原子吸光光度法(株日立ハイテク、Z-2000型)を用いて分析を行った。またCl、SO₄-Sはイオンクロマトグラフ(日本ダイオネクス(株)ICS-1100、カラムAS4A-SC、溶離液Na₂CO₃1.8mmol/L/NaHCO₃1.7mmol/L)により分析した。また各pHで回収した残渣の化合物については、X線回折装置(PANalytical、X'Pert-Pro MRD)で分析した。

3. 結果と考察

3.1 用いた試料の含有量

表4に用いた試料の含有量について示す。主灰中ではCaが110,000mg/kgと最も多く、次にNaがCaの1/4程度、Clが1/5、K、Mgが1/9、SO₄-Sが1/64となった。処理飛灰ではClが142,000mg/kgと最も多く、次いでCaが134,000mg/kgとなった。Na、KはCaの1/3程度、SO₄-Sが1/7、Mgは1/14となった。処理飛灰のClが高い理由として、排ガス中のHClが中和剤であるCa(OH)₂と反応してCaCl₂等の塩化物として排ガス処理飛灰に含まれたためと考えられた。また、Kが増加した理由としてキレート剤にK塩が含まれているためと考えられた。洗浄主灰は洗浄前と比べNa、K、Clが1/2、1/2、1/20と大幅に減少し、Caは4/5に減少、SO₄-SとMgはほとんど変化しなかった。洗浄飛灰も洗浄前と比べNa、K、Clが1/4、1/3、1/20と大幅に減少し、Caは9/10に減少、SO₄-SとMgは増加した。このことから主灰、処理飛灰ともに易溶解性成分としてNaCl、KClが含まれていると考えられた。

3.2 未洗浄試料のCa溶出量

図1に未洗浄試料でのL/Sと溶出液のpHの関係を示す。主灰はL/S3でpH13.65だったのに対しL/S20でpH13.19となっており、L/Sの増加とともにpHが減少することがわかった。処理飛灰についてはL/Sが増加してもpH12.40程度でほぼ一定となった。

図2に処理飛灰についてのL/SとNa、Caの溶出量、溶出濃度の関係を示す。処理飛灰のCaは易溶解性成分のNaと同様L/Sによらず溶出量が一定であり、Ca溶出濃度もNaと同様にL/Sの増加とともに減少しており、処理飛灰

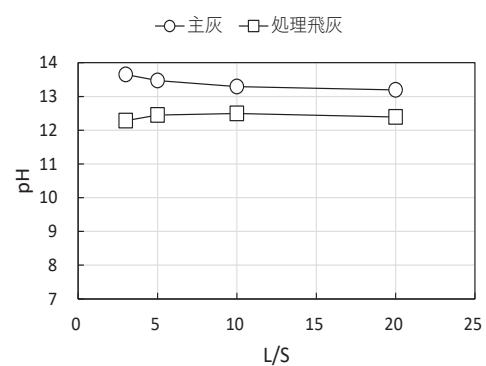


図1. 未洗浄試料のL/Sと溶出液pHの関係。

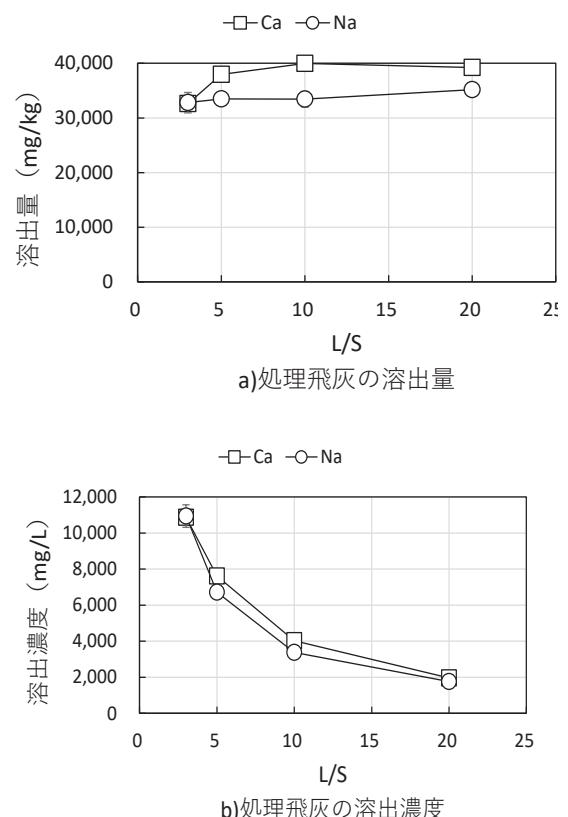


図2. 処理飛灰のL/SとNa、Ca溶出量、溶出濃度の関係。

から溶出するCaは易溶解性のCa成分の溶解によるものと考えられた。

図3に主灰についてのL/SとNa、Caの溶出量、溶出濃度の関係を示す。主灰のNaは処理飛灰と同様に溶出量はL/Sによらず一定であり溶出濃度はL/Sの増加とともに減

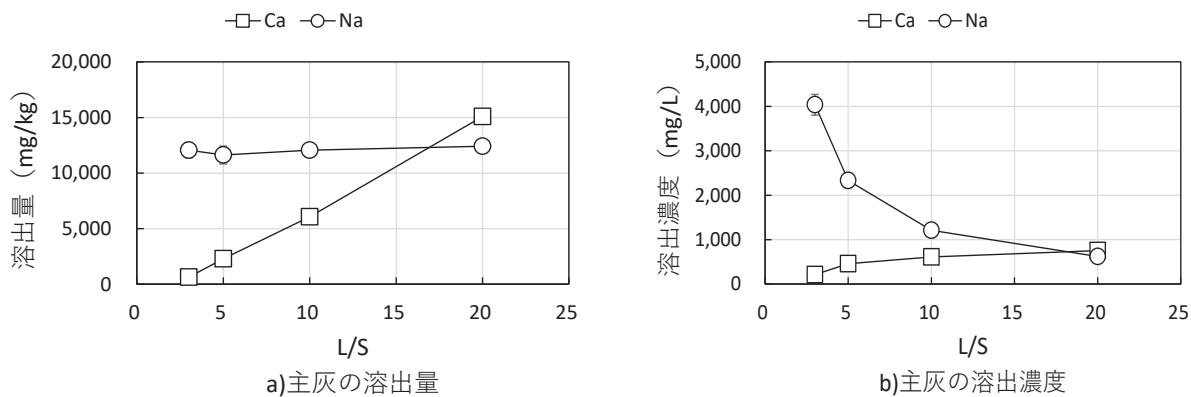


図3. 主灰のL/SとNa, Ca溶出量, 溶出濃度の関係.

表5. 洗浄試料のL/Sと溶出液のpH.

L/S	洗浄主灰			洗浄飛灰		
	目標pH7	目標pH9	目標pH11	目標pH7	目標pH9	目標pH11
3	6.85	9.00	11.22	6.96	8.71	11.00
5	6.92	8.92	11.08	6.93	9.09	11.19
10	7.80	7.43	11.31	7.29	9.58	10.91

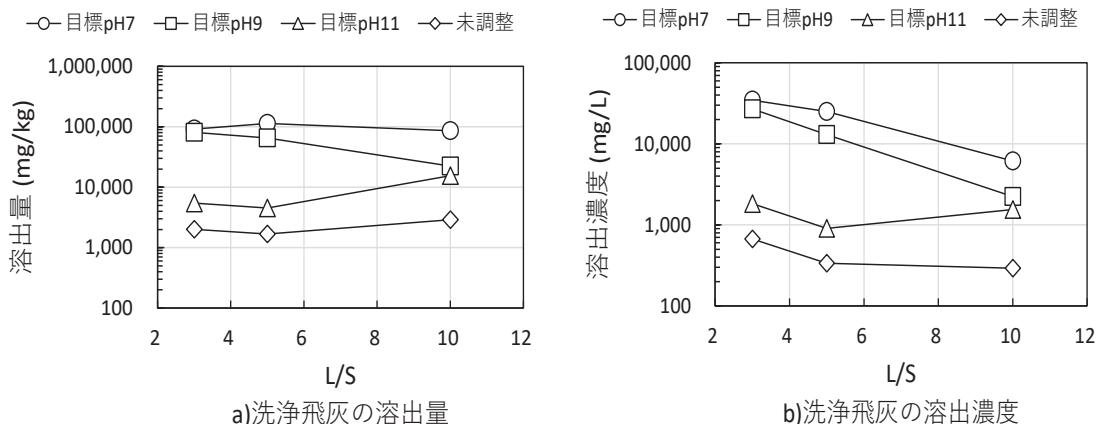


図4. 洗浄飛灰のCa溶出特性.

少した。一方でCaはL/Sの増加とともにCa溶出量も増加しており、Ca溶出濃度もL/Sの増加とともに増加した。これは、pHがL/Sの増加とともに低くなっていることから、一度溶解したCaが高pHのために $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 沈殿物等を生成したと考えられ、pHの低下とともに見かけ上溶出濃度が増加したと考えられた。

3.3 洗浄試料のCa溶出量

表5に洗浄試料の溶出実験のL/SとpHを示す。ほとんどの試料で溶出液のpH目標としたpHにすることができた。図4と図5にそれぞれ洗浄飛灰と洗浄主灰のL/SとCaの溶出量、溶出濃度の関係を示し、表6に各目標pHでの溶出量、溶出濃度の変動係数を示す。洗浄飛灰では、目標pH7で溶出量は一定であり、目標pHが大きくなるにつ

れて溶出量は低下し、同一目標pHでの変動も大きくなつた。溶出濃度はどの目標pHでもL/Sが大きくなるにつれて減少し、目標pH9以下では、L/S5とL/S10での溶出濃度の違いは小さくなつた。目標pHの低下とともに溶出濃度は増加した。溶出濃度の同一目標pHでの変動係数は大きく、目標pHの低下とともに変動係数は大きくなつた。

洗浄主灰も、目標pH7、9で溶出量は一定であり、目標pHが大きくなるにつれて溶出量は低下し、同一目標pHでの変動も大きくなつた。溶出濃度はどの目標pHでもL/Sが大きくなるにつれて減少し、目標pH9以下では、L/S3とL/S10での溶出濃度の違いは小さくなつた。目標pHの低下とともに溶出濃度は増加した。溶出濃度の同一目標pHでの変動係数は大きく、目標pHの低下とともに変動係数は大きくなつた

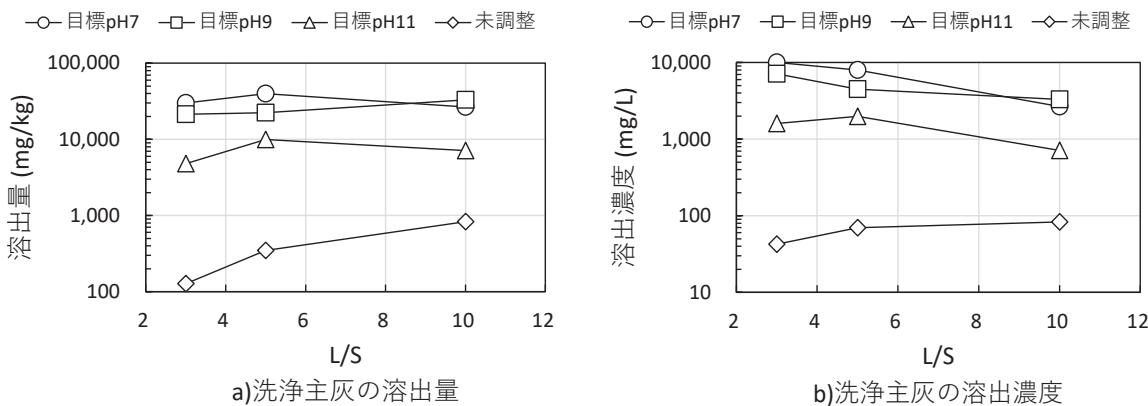


図 5. 洗浄主灰の Ca 溶出特性.

表 6. 洗浄試料の各 pH での溶出量、溶出濃度の変動係数.

		洗浄主灰				洗浄飛灰			
目標 pH		pH7	pH9	pH11	未調整	pH7	pH9	pH11	未調整
溶出量 (mg/kg)	平均	32,100	25,500	7,280	434	97,200	56,000	8,490	2,200
	変動係数 (%)	17	21	29	67	12	44	58	24
溶出濃度 (mg/L)	平均	6,870	4,960	1,430	65	21,900	14,100	1,430	433
	変動係数 (%)	45	32	37	26	54	72	27	39

3.4 Ca 溶出シナリオと Ca 溶出濃度予測結果

3.4.1 当該処分場の概要

本研究で Ca 溶出濃度予測を行った処分場では H17 年度の 4 月から埋立を開始しており、埋立地は A、B、C、D の 4 区画に分かれ区画面積はそれぞれ 9,000m²、12,500m²、8,000m²、11,500m² である。焼却残渣については H24 年度まで処理飛灰と、主灰を溶融した溶融固化物。H25 年度から溶融処理をやめたことにより、溶融固化物の代わりに主灰の埋立が開始された。埋立地表面の状況として中間覆土の他に、浸出水量を抑えるために、ブルーシートや UV シート（以後これらシートと呼ぶ）などで埋立作業の行われていない区画を覆っていた。埋立中の区画でも埋立作業を行っていない部分をシートで覆っていたことがあった。

3.4.2 浸出水量発生および埋立シナリオ

浸出水発生係数は、宮崎市から提供された令和 4 年 4 月から 9 月の全区画の降水量に対する浸出水量の比として算出した 0.39 とした。これは、一部の区画ではシートによる被覆が行われていたため、不確実性の大きい数値である。宮崎市から提供されたデータは月ごとの降水量、埋立量（主灰、処理飛灰ごと）、埋立作業区画、シートによる被覆状況である。埋立作業の行われていない区画については、シートによる被覆が行われていれば浸出水発生係数を 0 とし、被覆が行われていない場合は 1 とした。埋立作業が行われている区画で一部シートによる被覆が行われている場合であっても浸出水発生係数は 1 とした。1 年間の

浸出水量は月ごと、区画ごとに降水量に埋立作業区画面積、浸出水発生係数を乗じて発生量を求め、合算した。月ごとの埋立量は処理飛灰、主灰の埋立作業を行っている区画数で除して各区画に割り振った。例えば三つの区画で埋立作業をしている場合は埋立量を 1/3 ずつ各区画に埋め立てられたとした。溶融固化物からの Ca 溶出は生じないとした。

3.4.3 Ca 溶出シナリオ

未洗浄試料の処理飛灰から溶出する Ca は易溶解性 Ca と考えられることから、埋め立てられると直ちに一定量で溶出すると仮定してその溶出量は未洗浄試料の溶出試験における平均溶出量とした。未洗浄の主灰については、埋め立てられてすぐの pH は高いと考えられることから、主灰から未洗浄溶出試験で最も pH の高かった未洗浄主灰の溶出量を易溶解性 Ca の溶出量とした。

実浸出水の pH が 7 程度であるので、洗浄試料の pH 7 で溶出しなかったものを不溶性 Ca と呼び、洗浄試料中含有 Ca から pH 7 での溶出量を引くことで洗浄試料中の不溶性 Ca 含有量を求めた。洗浄試料中の不溶性 Ca 含有量に未洗浄試料中 Ca に対する洗浄試料中 Ca 割合（洗浄試料中 Ca 含有量 * 洗浄試料回収率 / 未洗浄試料中 Ca 含有量）を乗じることで未洗浄試料中の不溶性 Ca 含有量を求めた。洗浄試料回収率は、洗浄実験結果から主灰で 95.6%、飛灰で 64.7% とした。未洗浄試料中の難溶解性 Ca 含有量は全含有量から洗浄試料中の不溶性 Ca 含有量を差し引くことで得た。表 7 に各種成分含有量の値を示す。易溶解性 Ca の 1 年間

表7. 未洗浄試料中の各成分Ca含有量(mg/kg).

	易溶解性成分含有量	難溶解性成分含有量	不溶解性成分含有量	全含有量
主灰	6,020	59,000	44,500	111,000
処理飛灰	37,400	82,500	14,100	134,000

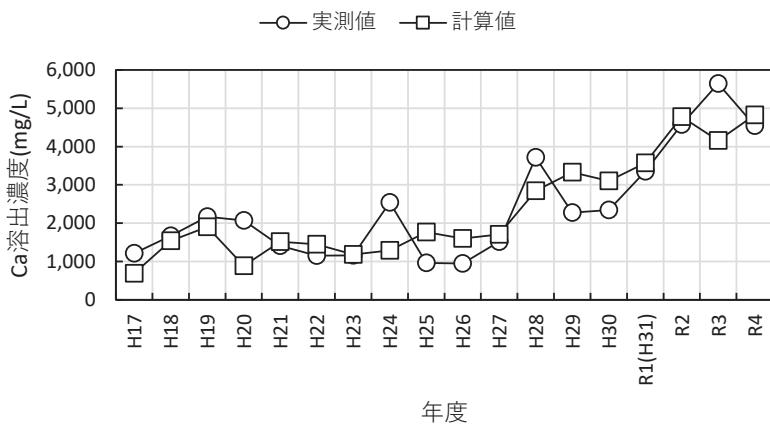


図6. 浸出水のCa濃度の計算値と実測値.

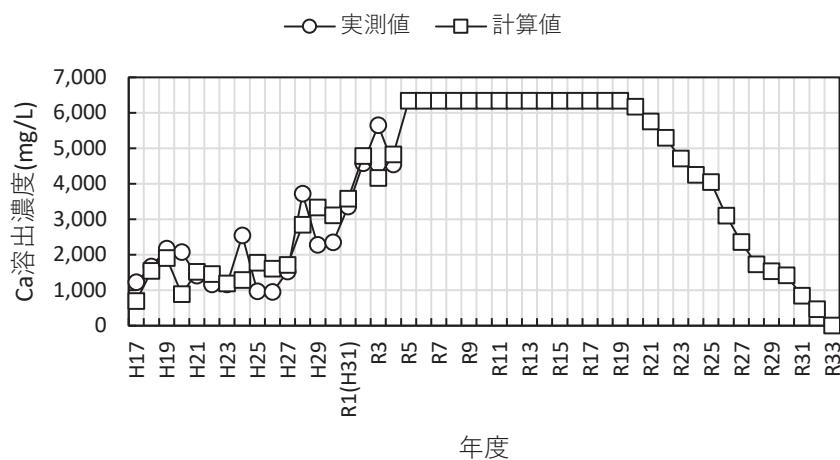


図7. R5年度で埋立を終了した場合のCaの予測濃度.

の溶出率を α 、難溶解性Caの1年間の溶出率を β とした。1年間の平均Ca濃度は4区画の1年間の総Ca溶出量の合計を1年間の総浸出水量で割った値で求めた。浸出水濃度実測値と計算値の残差自乗和が最小となるようにエクセルのソルバーで α と β を決定した。1年間の溶出量は区画ごとに求め、4区画の溶出量を合算して求めた。各区画の溶出量は、易溶解性Ca、難溶解性Caともに、それぞれの含有量に溶出率とその区画の年間暴露割合(1年間のうちシートによる被覆が行われていない月数の割合)を乗じることで求めた。易溶解性Ca、難溶解性Caともに、それぞれの累積溶出量が0になった時点で溶出終了とした。

3.4.4 予測結果

浸出水中Ca濃度の実測値と計算値の残差自乗和が最小

になる α と β をエクセルのソルバーで探索したところ、 $\alpha=0.0365$ 、 $\beta=0$ が得られた。このことは浸出水中のCa濃度がすべて焼却残渣中の易溶解性成分の溶出によるものであることを意味している。

図6に今回の計算によるCa濃度予測結果と実際の浸出水でのCa濃度を示す。実測値と計算値の決定係数を計算したところ0.731となった。図および決定係数から今回作成した溶出シナリオで求められた計算値は実測値に対しある程度一致していると考えられた。図の中で平成20年度、平成24年度、平成28年度、令和3年度で計算値と実測値が大きく異なるが、これは焼却残渣のCa溶出特性についてまだ明らかになっていない要因があることが原因である可能性が示唆された。実用的にするための改善点として、攪拌溶出試験などを行い焼却残渣のCa溶出量の経

時的变化について検討することなどが挙げられる。

図7に今回の溶出シナリオを用い、R5年度に埋立を終了したとした場合のCaの予測濃度を示す。処分場の条件として、全ての区画を暴露し、降雨量は直近5年の平均降雨量を使用した。その結果、29年後の令和33に浸出水処理が必要なくなる浸出水のCa濃度である500mg/Lに減少すると予想された。通常の管理型最終処分場の水処理期間は平均18年と言われており、水処理を行っている間はCa除去処理も行う必要があることが分かった。

4.まとめ

本研究では、主灰とキレート処理飛灰を対象に、浸出水のCa濃度の経年変化を焼却残渣のCa溶出量と浸出水量から予測することを目的とした。各種溶出試験を行うとともに、既存の最終処分場から得られたデータをもとに浸出水Ca濃度の経時変化を求め実際の浸出水Ca濃度と比較した。得られた主な知見を以下に示す。

- (1) 処理飛灰のCaはL/Sによらず溶出量が一定であり、溶出するCaは易溶解性のCa成分の溶解によるものと考えられた。主灰のCaはL/Sの増加とともに溶出濃度も増加した。一度溶解したCaが高pHのためにCa(OH)₂沈殿物等を生成したと考えられ、pHの低下とともに見かけ上溶出濃度が増加したと考えられた。
- (2) 洗浄飛灰および洗浄主灰は、実浸出水のpHである目標pH7で溶出量は一定であり、目標pHが大きくなるにつれて溶出量は低下した。
- (3) 浸出水中におけるCa濃度の実測値と計算値の決定係数が0.731であり、実測値と計算値は比較的良好一致を示したことから、今回作成した溶出シナリオにより、浸出水中Ca濃度を予測できる可能性が示された。
- (4) 今回の溶出シナリオを用い、R5年度に埋立を終了したとした場合のCa濃度を予測した結果、浸出水処理におけるCa除去処理が必要なくなる濃度に達するまでに29年を要することが予想された。

謝辞

本研究を進めるにあたり、社会環境システム工学科学の管谷海太君の協力を得た。

参考文献

- 1) 環境省：日本の廃棄物処理（令和3年度版），2023.
- 2) 野馬幸生，貴田晶子：カルシウムスケールの生成における埋立焼却残渣の影響，廃棄物学会論文誌，Vol. 9, pp. 287-295, 1998.
- 3) 樋口壯太郎，東海林俊吉，為，田一雄：焼却施設の稼働実態調査（排ガス編），第31回廃棄物資源循環学会研究発表，pp. 279-280, 2020.
- 4) 野馬幸生，貴田晶子：最終処分場におけるカルシウムスケール生成の予測，廃棄物学会論文誌，Vol. 9, pp. 215-223, 1998.
- 5) 堀井安雄，樋口壯太郎，島岡隆行，花嶋正孝：高塩類浸出水の処理技術，廃棄物学会誌，Vol. 8, pp. 529-539, 1997.
- 6) 内田 正信，陳 睿明，樋口 壮太郎，為，田 一雄，宋雨霖：キレート処理飛灰中に含まれる残存キレート成分等の長期挙動，第26回廃棄物資源循環学会研究発表会，pp. 421-422, 2015.
- 7) 石川涼矢：焼却主灰とCa系中和剤を用いたキレート処理飛灰の静的Ca溶出特性に関する研究，宮崎大学工学部 社会環境システム工学科卒業論文，2023.
- 8) 白石直輝，SHARMA, S. M., 小宮哲平，島岡隆行：一般廃棄物焼却灰の脱塩における炭酸化処理の最適条件，土木学会論文集G(環境)，Vol. 74, pp. III_317-III_323, 2018.
- 9) 久保田洋，繁泉恒河，山田裕己，野口俊太郎，佐藤研一：散水・通気処理が焼却主灰の溶出性に与える影響，廃棄物資源循環学会論文誌，Vol. 28, pp. 199-212, 2017.
- 10) Li, H., Sun, J., Gui, H., Xia, D. and Wang, Y.: Physiochemical properties, heavy metal leaching characteristics and reutilization evaluations of solid ashes from municipal solid waste incinerator plants, Waste Management, Vol.38, pp. 49-58, 2023.
- 11) Nag, M. and Shimaoka, T.: A novel and sustainable technique to immobilize lead and zinc in MSW incineration fly ash by using pozzolanic bottom ash, Journal of Environmental Management, 329, 117036, 2023.
- 12) Kitamura, H., Sawada, T., Shimaoka, T. and Takahashi, F.: Geochemically structural characteristics of municipal solid waste incineration fly ash particles and mineralogical surface conversions by chelate treatment, Environmental Science and Pollution Research, Vol. 23, pp. 734-743, 2016.
- 13) 北村洋樹，Dahlan, A. V., 田宇，島岡隆行，山本貴士，高橋史武：キレート処理済み一般廃棄物焼却飛灰粒子の元素分布の相関分析によるTiの化学形態分析，土木学会論文集G(環境), Vol. 73, pp. III287-III295, 2017.

焼却主灰と Ca 系中和剤を用いたキレート処理飛灰の静的 Ca 溶出特性に関する研究

土手 裕^{a)}・関戸 知雄^{b)}

Characteristics of Static Dissolution of Calcium from Bottom Ash and Chelate-treated Fly ash treated with Calcium Neutralizer

Yutaka DOTE^{a)}, Tomoo SEKITO^{b)}

Abstract

To clarify the characteristics of static dissolution of calcium from bottom ash and chelate-treated fly ash, various leaching tests and XRD analysis of samples were conducted. Twenty-five percent of calcium in the bottom ash and fifty percent of calcium in the chelate-treated fly ash were easily soluble substances. Contribution ratio to landfilled calcium by bottom ash and chelate-treated fly ash at pH 6-8, which were similar to the pH of the actual leachate, was approximately fifty percent. This result suggested that the calcium dissolution potential of the bottom ash into leachate was almost equivalent to that of the chelate-treated fly ash. Contribution ratio to landfilled calcium by chelate-treated fly ash based on the Japanese Leaching Test (JLT13) was eighty-one percent, suggesting that calcium concentration in leachate would be affected by dissolution of calcium of chelate-treated fly ash while landfilling operation continues. The results of XRD analysis indicated that calcium existed as CaCO_3 in bottom ash, and as CaCO_3 , CaSO_4 , and $\text{Ca}(\text{OH})_2$ in chelate-treated fly ash.

Keywords: Bottom ash, Chelate-treated fly ash, Calcium, Dissolution, Leachate

1. はじめに

一般廃棄物の最終処分場において、焼却処理により発生する焼却残渣は最終処分量の約 7 割である¹⁾。焼却残渣中には多くの Ca が含有されており、主灰中には平均 160,000mg/kg²⁾、排ガス処理飛灰には 280,000mg/kg³⁾、キレート処理飛灰中には 160,000mg/kg³⁾、270,000mg/kg⁴⁾、セメント固化処理飛灰には 83,000~200,000mg/kg³⁾ 程の含有量が報告されている。主灰と比較して排ガス処理飛灰の Ca 含有量が多い理由は、焼却施設での塩化水素対策に用いられる薬剤に Ca 化合物が含まれているからである。樋口らの大坂地区での排ガス処理剤の種類と使用施設割合調査結果によると、排ガス処理の種類は高反応石灰、特号石灰、重曹、苛性ソーダであり、使用されている割合はそれぞれ 43%、22%、5%、25% と、排ガス処理の約 65% に石灰系薬剤が用いられていた⁵⁾。以上より排ガス処理に石灰系を用いる場合が多いので、主灰と比較して排ガス処理飛灰の Ca 含有量が多くなっている。

焼却残渣に Ca が多く含まれているため、浸出水中の Ca 濃度も高く、最大で 1,900mg/L⁶⁾ から 3,000mg/L 程度⁷⁾ の濃度が報告されている。浸出水中の高 Ca 濃度の弊害としては、カルシウムスケール発生による浸出水の原水圧送

管・移送管などの配管閉塞、スケールの付着により回転円板体重量が過大となり軸破損、回転トルクが増加し過負荷により停止などの障害が挙げられる⁸⁾。そのため、スケール発生防止のために、スケール分散剤、pH 調整、脱炭酸、炭酸ソーダを添加する晶析法や⁹⁾、イオン交換樹脂¹⁰⁾が用いられている。これらの対策をより効率よく行うためには、浸出水中 Ca 濃度を予測する必要があるが、浸出水中の Ca 濃度を予測した研究は見当たらない。

表 1 に主灰、排ガス処理飛灰、キレート安定化処理飛灰中の Ca 化合物、表 2 に Ca 化合物の溶解度を示す。なお、この表では溶解度 1g/100g 以上を易溶解性化合物としている。排ガス処理飛灰には、易溶解性として CaCl_2 (二水和物) が報告されており、難溶解性では CaCO_3 が全ての灰に共通して報告されている。また、主灰と排ガス処理飛灰には $\text{Ca}(\text{OH})_2$ が、排ガス処理飛灰とキレート安定化処理飛灰には CaSO_4 (無水和物、一水和物、二水和物) が含まれていることが報告されている。また、主灰には $\text{Ca}_8\text{Al}_2\text{Fe}_2\text{O}_{12}\text{CO}_3(\text{OH})_2 \cdot 22\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Cl}_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Ca}_2\text{Al}(\text{AlSiO}_7)$ 、 $\text{Ca}_2(\text{Al}_{0.92}\text{Mg}_{0.08})(\text{Al}_{0.92}\text{Si}_{1.08})\text{O}_7$ 、 $\text{Ca}_2\text{Al}(\text{OH})_6(\text{Cl}, \text{OH}) \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ が、排ガス処理飛灰には、 CaO 、 CaClO_2 が含まれている。 CaClO_2 は、飛灰中の $\text{Ca}(\text{OH})_2$ と HCl が反応して、 CaOHC_2 を生成する可能性が最も高いと考えられる¹³⁾。キレート安定化処理飛灰には $3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{CaSO}_4 \cdot 32\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7$ が含まれていることが報告されている。このように、各灰中の Ca 化合物についての報告

a) 土木環境プログラム教授

c) 土木環境プログラム准教授

表1. 焼却残渣中のCa化合物.

	易溶解性化合物	難溶解性化合物	溶解性不明物質
主灰		<ul style="list-style-type: none"> • $\text{CaCO}_3^{11), 12)}$ • $\text{Ca(OH)}_2^{12)}$ 	<ul style="list-style-type: none"> • $\text{Ca}_8\text{Al}_2\text{Fe}_2\text{O}_{12}\text{CO}_3(\text{OH})_2 \cdot 22\text{H}_2\text{O}^{12)}$ • $\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Cl}_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}^{12)}$ • $\text{Ca}_2\text{Al}(\text{AlSiO}_7)^{11)}$ • $\text{Ca}_2(\text{Al}_{0.92}\text{Mg}_{0.08})(\text{Al}_{0.92}\text{Si}_{1.08})\text{O}_7^{12)}$ • $\text{Ca}_2\text{Al}(\text{OH})_6(\text{Cl}, \text{OH}) \cdot 2\text{H}_2\text{O}^{11)}$
排ガス処理飛灰	• $\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}^{13), 14)}$	<ul style="list-style-type: none"> • $\text{CaCO}_3^{14), 15)}$ • $\text{Ca(OH)}_2^{14), 15)}$ • $\text{CaSO}_4^{15), 16)}$ • $\text{CaSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}^{16)}$ • $\text{CaO}^{14)}$ • $\text{CaClOH}^{14), 15)}$ 	
キレート安定化処理飛灰		<ul style="list-style-type: none"> • $\text{CaCO}_3^{16), 17)}$ • $\text{CaSO}_4^{16), 18)}$ • $\text{CaSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}^{16)}$ • $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}^{18)}$ 	<ul style="list-style-type: none"> • $3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{CaSO}_4 \cdot 32\text{H}_2\text{O}^{16), 17)}$ • $\text{Ca}_2\text{Al}_2\text{SiO}_7^{17)}$

は多いが、易溶解性Caと難溶解性Caの割合に関する報告は見当たらない。また、難溶解性Caの溶解度のpH依存性についても報告は見当たらない。

そこで本研究では、浸出水中のCa濃度予測を行うために、主灰とCa系中和剤を用いたキレート処理飛灰の静的Ca溶出特性を明らかにした。そのため、各種溶出試験および、pH依存性試験を行うとともに試料のXRD分析を行った。加えて、最終処分場へのCa供給源としての主灰およびキレート処理飛灰の寄与も明らかにした。

2. 実験方法

2.1 用いた飛灰

実験には宮崎県宮崎市的一般廃棄物焼却施設から2022年5月31日に採取した焼却主灰、飛灰、飛灰に活性炭と中和剤として消石灰を吹き込んで処理した排ガス処理飛灰、排ガス処理飛灰にキレート剤を用いて安定化処理を行ったキレート処理飛灰(キレート添加率4wt%)、中和剤(タマカルクーNC、奥多摩工業株式会社)を用いた。宮崎市からの聞き取りから中和剤には水酸化カルシウムと活性炭を混合したものが含まれている。キレート剤はアッシュナイトS803(栗田工業株式会社)を使用した。

2.2 試験方法

2.2.1 含有量試験

試料1g(キレート剤は1ml)、蒸留水25ml、濃硝酸5ml(C1分析用は濃硫酸2.5ml)をこの順番でコニカルビーカーに加え、時計皿で蓋をして240°Cに設定したホットプレートで5分間煮沸し、冷却した。その後、ガラス纖維織紙(Whatman、GF/B)を用いて全量吸引ろ過し、100mlにメスアップした。ろ液はポリ瓶に保存した。含有量試験の反復回数は3回とした。

2.2.2 13号溶出試験

環境庁告示13号に準拠して溶出試験を行った。ただし、

表2. Ca化合物の溶解度。

化学式	溶解度	引用文献
Ca(OH)_2	0.16g/100g (20°C)	19, 20
CaSO_4	0.205g/100g (20°C)	19
$\text{CaSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$	—	
$\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	0.21 g/100g (30°C)	20
CaClOH	—	
$\text{Ca}_8\text{Al}_2\text{Fe}_2\text{O}_{12}\text{CO}_3(\text{OH})_2 \cdot 22\text{H}_2\text{O}$	—	
$\text{Ca}_4\text{Al}_2\text{O}_6\text{Cl}_2 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$	—	
$\text{Ca}_2(\text{Al}_{0.92}\text{Mg}_{0.08})(\text{Al}_{0.92}\text{Si}_{1.08})\text{O}_7$	—	
CaCO_3	0.91g/100g (20°C)	19
$\text{CaCl}_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	—	
$3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{CaSO}_4 \cdot 32\text{H}_2\text{O}$	—	
$\text{Ca}_2\text{Al}(\text{AlSiO}_7)$	—	
$\text{Ca}_2\text{Al}(\text{OH})_6(\text{Cl}, \text{OH}) \cdot 2\text{H}_2\text{O}$	—	

試料は40gとし、蒸留水400mlを1Lのポリ瓶に入れて行った。キレート剤については、キレート剤10mlを100mlにメスアップしたものを用いた。200rpmで6時間振とう後に約5分間静置し、上澄みを0.45μmのメンブランフィルターを用いてろ過し、分析試料を得た。残った上澄みのpHとECを測定した。溶出試験で得られたろ液は原子吸光、硫酸分析用に50ml採取してポリ瓶に入れ、濃硝酸0.25mlを加えて保存し、C1分析用に25ml採取し、何も加えずに保存した。溶出試験の反復回数は3回とした。キレート剤については、濃硝酸を加えると白濁したので、pH、ECを分析した。

2.2.3 シリアルバッチ溶出試験

試料10g、蒸留水300mlを500mlの遠心管に入れて、200rpmで6時間振とう後に、5000Gで10分間遠心分離を行った。その後、メスシリンダーに上澄みを移して体積を測定後に良く混合してから、0.45μmのメンブランフィルターを用いてろ過し、分析試料を得た。残った上澄みのpH

表 3. 中和剤の化学特性.

	Na	K	Ca	Mg	SO ₄ -S	Cl
含有量(mg/kg)	1,770	98	477,000	2,500	966	0
13号溶出率(%)	87	21	1	0	51	0
シリアルバッチ溶出率(%)	91	43	17	0	81	0

と EC を測定した。ろ液は原子吸光、硫酸分析用に 50ml 採取してポリ瓶に入れ、濃硝酸 0.25ml を加えて保存し、Cl 分析用に 25ml 採取し、何も加えずに保存した。2 日目以降は、残渣が入った遠心管に蒸留水 300ml を加え、同様の手順で行った。この工程を 4 日間行い、最終日のみ遠心管内の残渣を全て上澄み液として採取した。シリアルバッチ溶出試験の反復回数は 3 回とした。

2.2.4 pH 依存性試験

試料を 1g (中和剤の場合は 10g) と蒸留水 100ml をビーカーに加え、滴定機 (Metrohm) で 6M 硝酸もしくは 0.6M 硝酸を加え pH を所定の値で一定にしたまま 3 時間攪拌した後、5 分間静置し、上澄みを 0.45 μm のメンブランフィルターを用いてろ過し、分析試料を得た。ろ液は原子吸光、硫酸分析用に 50ml 採取してポリ瓶に入れ、濃硝酸 0.25ml を加えて保存し、Cl 分析用に 25ml 採取し、何も加えずに保存した。

2.2.5 易溶解性、難溶解性分離試験

焼却主灰、キレート処理飛灰について、試料 10g、蒸留水 300ml を加えた 500ml の遠心管を 3 本準備し、2.2.3 のシリアルバッチ溶出操作を行った。ただし、溶出回数は 2 回とした。2 回目の溶出操作で上澄み液を回収した後、遠心管内の残渣を蒸留水で洗い流し、GF/B の濾紙を用いて吸引ろ過を行い、遠心管内の残渣を全量回収した。回収後 105°C で一晩乾燥させ冷却後重量を測定し、重量変化が 0.5% 以下ではなかった場合は乾燥の手順を繰返し、直近の重量と比べて重量変化が 0.5% 以下になるまで乾燥した。重量変化が 0.5% 以下になったら、粉碎し残渣を回収した。2 回の溶出操作で溶出した量を易溶解性物質量、それ以外を難溶解性物質量とした。

2.3 分析方法

Na、K、Ca、Mg の濃度はフレーム原子吸光光度法 (HITACHI、Z-2000 型) を用いて分析を行った。また Cl、SO₄-S はイオンクロマトグラフ (日本ダイオネクス(株)製 ICS-1100、カラム AS4A-SC、溶離液 Na₂CO₃ 1.8mmol/L/ NaHCO₃ 1.7mmol/L) により分析した。固体試料の XRD 分析は X 線回折装置 (PANalytical、X'Pert-Pro MRD) で行った。2.2.4 で作成した Cl 分析用の試料には硝酸が含まれているため、これらの試料については、チオシアン酸水銀溶液で発色操作を行った後、吸光度計 (HITACHI) で Cl を分析した。

3. 結果と考察

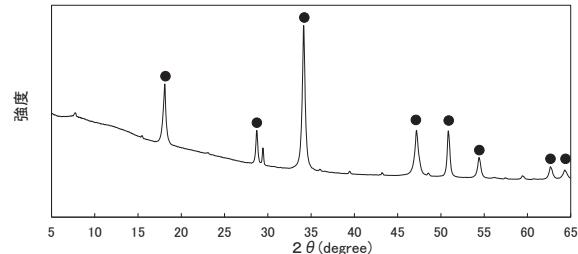
図 1. 中和剤の XRD 結果 (● : Ca(OH)₂) .

表 4. キレート剤の元素濃度 (mg/L).

Na	K	Ca	Mg	SO ₄ -S	Cl
797	121,000	39	2	45,800	0

3.1 用いた試料の化学特性

3.1.1 中和剤

表 3 に中和剤の化学特性について示す。13 号法溶出試験での pH は 13.03、シリアルバッチ溶出試験の 1 回目の溶出液の pH は 13.10、4 回目の溶出液の pH は 13.00 であった。含有量から中和剤の大部分を Ca が占めていた。Cl は存在せず、SO₄-S の含有量は Na と同程度であった。図 1 に中和剤の XRD 分析結果について示すが、ほとんどが Ca(OH)₂ のピークであり、中和剤の主成分が消石灰 (Ca(OH)₂) であることが確認された。また、Ca 含有量から Ca(OH)₂ の含有量は 88% であった。

3.1.2 キレート剤

表 4 にキレート剤の元素濃度について示すが、Ca はほとんど含まれていなかった。用いたキレートはジエチルジチオカルバミン系キレート剤であり、K 濃度が高いことから K 塩として溶解していると考えられた。陰イオンについて、硫酸イオンが多く含まれていたが、Cl は含まれていなかった。また、キレート剤の pH は 10.00 であった。

3.1.3 主灰

表 5 に主灰の化学特性について示す。13 号法溶出試験での pH は 13.00、シリアルバッチ溶出試験の 1 回目の溶出液の pH は 13.00、4 回目の溶出液の pH は 11.90 であった。Ca の含有量が最も多く、Na、K、Mg、Cl の含有量は Ca の 1/4 から 1/10 であった。王水分解による主灰の Ca 含有量は 160,000mg/kg²⁾、220,000mg/kg²¹⁾ の報告があり、本研

表5. 主灰の化学特性.

	Na	K	Ca	Mg	SO ₄ -S	Cl
含有量(mg/kg)	25,100	10,200	109,000	10,600	842	8,240
13号溶出濃度(mg/L)	1,070	359	540	0.02	0	752
13号溶出率(%)	43	35	5	0.002	0	91
シリアルバッチ溶出率(%)	50	38	25	-	53	98

表6. 各飛灰の含有量(mg/kg).

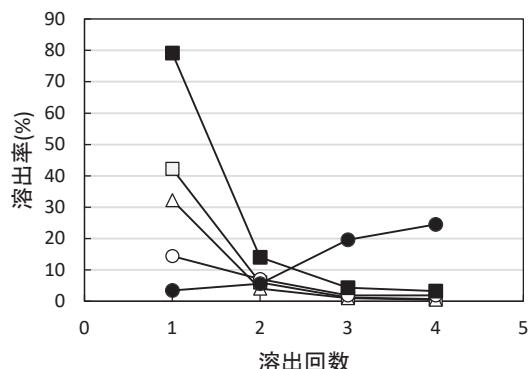
	Na	K	Ca	Mg	SO ₄ -S	Cl
飛灰	24,100	19,800	94,800	14,100	7,550	43,800
排ガス処理飛灰	43,700	49,500	160,000	7,690	7,800	238,000
キレート処理飛灰	39,100	47,000	154,000	8,200	8,890	206,000

究で用いた主灰の Ca 含有量はこれらの 1/2~2/3 ほどの値だが、本研究での分解が硝酸によるものである事を考慮すると概ね同程度の含有量であった。SO₄-S は Ca と比べて 1/100 であった。Na と K の 13 号溶出率は約 40% であり、シリアルバッチ溶出率は 13 号溶出率よりやや大きくなつた。Mg、SO₄-S の 13 号溶出率はほとんど 0 であったが、SO₄-S のシリアルバッチ溶出率は約 50% に増加した。Cl の 13 号溶出率とシリアルバッチ溶出率は 90% 以上で、Na や K と同様 13 号溶出率よりもシリアルバッチ溶出量がやや大きくなつた。一方、Ca は、13 号溶出率は 5% であり Na や K と比べて低いが、シリアルバッチ溶出率は 13 号溶出率の 5 倍となつた。

図 2 にシリアルバッチ溶出試験での溶出回数と溶出率の関係を示すが、Na、K の 1 回目の溶出率は 13 号溶出率とほぼ同程度で、2 回目の溶出率は 1 回目の溶出率の 1/7 に減少し、3、4 回目の溶出率は 1 回目の溶出率の 1/30 以下で溶出回数 3 回目以降ではほとんど溶出しなかつた。これらから、水溶性 Na および K 化合物のほとんどが 2 回の溶出操作までに溶出する易溶解性の化合物であると考えられた。一方、Ca の 1 回目の溶出率は 14% で 13 号溶出率の約 3 倍であった。2 回目の溶出率は 1 回目の溶出率の 1/2 であり、1 回目の溶出率よりも低下するが、Na、K よりは低下しなかつた。3 回目、4 回目の溶出率はいずれも 1 回目の溶出率の 1/7 程度であり、Na、K とは異なり低濃度ではあるが継続的な溶出が認められた。Ca の 1 回目の溶出濃度は 581mg/L であり 13 号溶出濃度とほぼ同じであった。シリアルバッチ溶出試験の L/S は 30 で 13 号法溶出試験の L/S=10 よりも高いにも関わらず溶出濃度が同程度であった。この結果から Ca については 13 号溶出試験およびシリアルバッチ溶出試験の 1 回目の溶出濃度は飽和状態にあり、主灰中の水溶性 Ca 化合物には溶解度の低い低溶解性の化合物も含まれると考えられた。SO₄-S は溶出回数が増えるに従い溶出率は増加し 4 回目の溶出率は 24% であった。Cl は、2 回目まで約 90% 溶出し、3 回目以降は 5% 以下の溶出率であった。

3.1.4 飛灰、排ガス処理飛灰、キレート処理飛灰

表 6 に各飛灰の含有量を示す。飛灰中では Ca が

図2. 主灰のシリアルバッチ溶出試験での溶出回数と溶出率 (□: Na, △: K, ○: Ca, ■: SO₄-S, ●: Cl).

94,800mg/kg と最も多く、次に Cl が Ca の 1/2、Na、K、Mg が Ca の 1/5、SO₄-S は Ca の 1/10 であった。中和剤を吹き込んだ排ガス処理飛灰では Ca 含有量は飛灰の 1.5 倍に増加したが、これは中和剤の Ca(OH)₂ が排ガス中の HCl を中和して生成する CaCl₂ や未反応の中和剤が含まれているためと考えられた。一方、Na、K の含有量は飛灰の含有量の約 2 倍になり、Cl の含有量は約 5 倍となった。SO₄-S の含有量はほとんど変化しなかつた。Cl が増加した理由として、排ガス中の HCl が中和剤である Ca(OH)₂ と反応して CaCl₂ 等の塩化物として排ガス処理飛灰に含まれたためと考えられた。キレート処理飛灰の含有量はどの元素も排ガス処理飛灰と同程度であり、キレート処理の影響は見られなかつた。なお、飛灰の Ca 含有量は 75,000mg/kg²²⁾ や 170,000mg/kg²¹⁾、排ガス処理飛灰の Ca 含有量は 130,000mg/kg²³⁾ や 170,000mg/kg²⁴⁾、キレート処理飛灰の Ca 含有量は 170,000mg/kg³⁾ との報告があり、本研究で用いた試料の Ca 含有量はこれらと概ね同等であった。

表 7 に各飛灰の 13 号溶出率を示す。飛灰、排ガス処理飛灰、キレート処理飛灰の pH はそれぞれ、12.51、12.52、12.01 であった。排ガス処理飛灰の pH よりキレート処理飛灰の pH が低下した理由は、キレート剤の pH が 10.00 であったためと考えられた。飛灰では Na、K の溶出率と比べ

表 7. 各飛灰の 13 号溶出率(%)。

	Na	K	Ca	Mg	SO ₄ -S	Cl
飛灰	55	77	6	0.005	32	26
排ガス処理飛灰	92	92	39	0.01	30	32
キレート処理飛灰	85	92	32	0.02	14	41

表 8. 各飛灰のシリアルバッチ溶出率。

	Na	K	Ca	Mg	SO ₄ -S	Cl
飛灰	59	77	8	-	81	35
排ガス処理飛灰	91	96	60	-	79	33
キレート処理飛灰	88	95	48	-	51	48

表 9. Ca の埋立寄与率(%)。

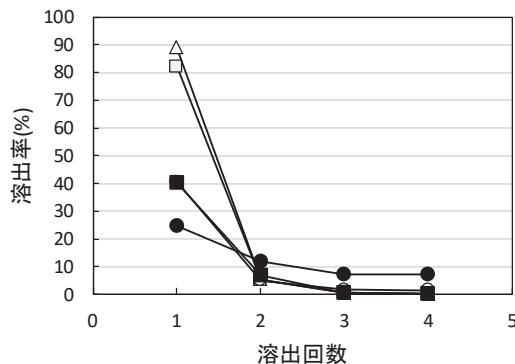
	含有量基準	13 号法溶出量基準	シリアルバッチ溶出量基準	pH4 溶出量基準	pH6 溶出量基準	pH8 溶出量基準	pH10 溶出量基準
主灰	61	19	45	59	52	48	50
キレート処理飛灰	39	81	55	41	48	52	50

て Ca 溶出率は 6% と低く、Mg はほとんど溶出しなかった。SO₄-S、Cl の溶出率は約 30% で Na、K ほどは高くなかった。排ガス処理飛灰では、Na、K の溶出率は 92% であり、排ガス処理飛灰中では易溶解性化合物で存在すると言えた。SO₄-S、Cl の溶出率は飛灰の溶出率とほとんど同じであった。一方、Ca の溶出率は 39% で飛灰の溶出率と比べて 6 倍程度増加したが、Na や K の溶出率の約 1/2 に留まった。キレート処理飛灰では K の溶出率は排ガス処理飛灰と同じで、Na の溶出率は約 10% 減少した。Ca の溶出率は排ガス処理飛灰の 80% に減少した。SO₄-S の溶出率は排ガス処理飛灰の 1/2 に減少した。Cl の溶出率は Na の 1/2 程度に増加した。

表 8 に各飛灰のシリアルバッチ溶出率を示す。飛灰、排ガス処理飛灰、キレート処理飛灰の 4 回目の溶出液の pH はそれぞれ 11.30、11.73、12.00 であった。飛灰では Na、K、Ca の溶出率は 13 号溶出率とほぼ同じであった。SO₄-S は 13 号溶出率の約 2.5 倍になり、Cl は 1.5 倍に増加した。排ガス処理飛灰では Na、K の溶出率は 13 号溶出率と同程度であったが、Cl、Ca の溶出率は 13 号溶出率の 1.5 倍に増加し、SO₄-S は 2.5 倍に増加した。キレート処理飛灰では Na、K の溶出率は 13 号溶出率と同程度であった。Cl の溶出率は 13 号溶出率より 1.2 倍、排ガス処理飛灰のシリアルバッチ溶出率の 1.5 倍増加した。Ca と SO₄-S の溶出率は 13 号溶出率よりも増えたが、排ガス処理飛灰と比べると溶出率は低下した。この理由として、キレート剤を加えたことで排ガス処理飛灰中の 2 倍の陽イオンである Ca とキレートが反応して Ca の一部が不溶化した可能性が考えられた。また、シリアルバッチ溶出試験において排ガス処理飛灰に比べてキレート処理飛灰の方が pH が高かったことから Ca(OH)₂ の Ca 化合物が溶出しなくなった可能性も考えられた。

図 3 にキレート処理飛灰についてのシリアルバッチ溶出試験での溶出回数と溶出率を示す。Na、K、は 1 回目で含有量の 80% 以上が溶出し、2 回目は 1 回目の溶出率の 1/15 程度溶出した。3、4 回目は溶出量がほとんど 0 であった。SO₄-S は 1 回目に約 25% 溶出し、溶出回数とともに溶出率は減少するが、3、4 回目の溶出率は 7% で一定となった。Ca と Cl はほぼ一致し、1 回目に約 40% 溶出し、2 回目は 1 回目の 1/8、3 回目以降は 2% 以下であった。これら

表 9. Ca の埋立寄与率(%)。

図 3. キレート処理飛灰のシリアルバッチ溶出試験での溶出回数と溶出率 (□ : Na, △ : K, ○ : Ca, ● : SO₄-S, ■ : Cl)。

より、キレート処理飛灰中の水溶性 Na、K は易溶解性物質として存在しており、水溶性 Ca、SO₄-S、Cl は易溶解性物質と 3 回目以降も溶出する低溶解性物質として存在していると考えられた。

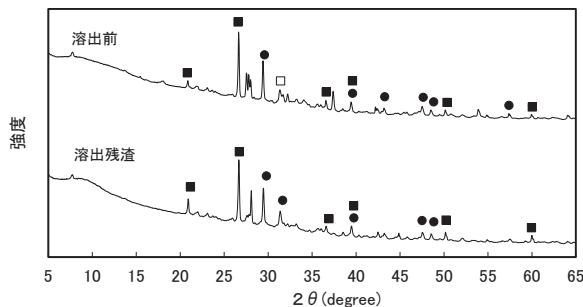
3.2 埋め立てられる Ca の主灰とキレート処理飛灰の寄与率

表 9 に実際に埋めて立てられる主灰とキレート処理飛灰の Ca の埋立寄与率を示す。Ca 寄与率は年間埋立量に対する主灰とキレート処理飛灰各々の割合（主灰 69%、キレート処理飛灰 31%）にそれぞれの Ca 含有量あるいは溶出量を乗じて年間に埋め立てられる主灰およびキレート処理飛灰由来の Ca 重量を求めて、その割合とした。含有量基準で主灰が約 60%、キレート処理飛灰が約 40% を占めた。13 号法溶出量基準では主灰が約 20%、キレート処理飛灰約 80% を占めた。pH 依存試験の結果より、pH6～10 までは主灰の寄与率 50%、キレート処理飛灰 50% で変わらないが、pH4 では主灰が約 60%、キレート処理飛灰約 40% を占め、含有量基準と同程度の寄与率となった。シリアルバッチ溶出量基準では主灰が 45%、キレート処理飛灰が 55% で、pH6～10 基準溶出量と比べてキレート処理飛灰の寄与率がやや大きかった。

実際の埋立地での浸出水は pH6 から 9 の範囲にある⁶⁾（ただし、焼却残渣埋立率 20% 以上の埋立地の値を引用）

表 10. 主灰、キレート処理飛灰の易溶解性、難溶解性割合。

	主灰					キレート処理飛灰				
	Na	K	Ca	SO ₄ -S	Cl	Na	K	Ca	SO ₄ -S	Cl
易溶解物質含有割合(%)	42	36	25	5	83	87	92	48	56	50
難溶解性物質含有割合(%)	58	64	75	95	17	13	8	52	44	50

図 4. 主灰の XRD 分析結果 (● : CaCO₃, ■ : SiO₂, □ : NaCl) .

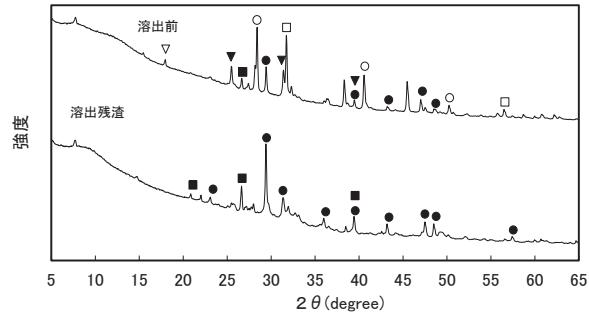
ので、浸出水への Ca 溶出ポテンシャルはほぼ同等と考えられた。ただし、13 号法溶出量基準の寄与率は溶出しやすい Ca の寄与率を表しているので、主灰やキレート処理飛灰の埋立が継続している間は、浸出水へ溶け出す Ca はキレート処理飛灰由来のものが多く、浸出水の Ca 濃度もキレート処理飛灰 Ca 溶出量の影響を受けると考えられた。

4.3 易溶解性 Ca と難溶解性 Ca

表 10 に主灰およびキレート処理飛灰の易溶解性、難溶解性割合を示す。易溶解性の割合は、2 回のシリアルバッチ溶出試験での溶出率とし、難溶解性の割合は 100 から易溶解性の割合を差し引いて求めた。主灰中の Ca の 25% は易溶解性物質であり、キレート処理飛灰は約 50% が易溶解性物質であった。

図 4 に主灰のシリアルバッチ溶出試験前と 2 回目のシリアルバッチ溶出試験後の溶出残渣の XRD 分析結果を示す。シリアルバッチ溶出試験前の試料には CaCO₃、NaCl が認められたが、表 1 に示す Ca(OH)₂ 等の Ca 化合物は認められなかった。溶出残渣中には CaCO₃ は認められたが、NaCl は認められなかった。以上より、主灰に Ca は主に CaCO₃ として存在し、これが 2 回の溶出操作により一部溶出したと考えられた。

図 5 にキレート処理飛灰のシリアルバッチ溶出試験前と 2 回目のシリアルバッチ溶出試験後の溶出残渣の XRD 分析結果を示す。シリアルバッチ溶出試験前の試料には未反応の Ca(OH)₂ に加えて、CaCO₃、NaCl、CaSO₄、KCl が認められ、検出された Ca については、表 1 に記載される化合物と一致した。しかし、表 1 に記載されている CaCl₂ や CaClOH 等の Ca 塩化物は認められなかった。溶出残渣中には CaCO₃ は認められたが、Ca(OH)₂、NaCl、CaSO₄、KCl は消失した。また、Ca については CaClOH 等の Ca 塩化物は認

図 5. キレート処理飛灰の XRD 分析結果 (● : CaCO₃, ■ : SiO₂, ▼ : CaSO₄, ○ : KCl, □ : NaCl, ▽ : Ca(OH)₂) .

められなかった。

以上より、キレート処理飛灰中に Ca は主に CaCO₃、CaSO₄、Ca(OH)₂ として存在し、2 回の溶出操作により CaSO₄ と Ca(OH)₂ の全量と CaCO₃ の一部が溶解し、CaCO₃ の多くが残存したと考えられた。

5.まとめ

本研究では、主灰とキレート処理飛灰の静的 Ca 溶出特性と最終処分場への Ca 供給源としての主灰およびキレート処理飛灰の寄与を明らかにすることを目的として、各種溶出試験および pH 依存性試験を行うとともに試料の XRD 分析を行った。得られた主な知見を以下に示す。

- (1) キレート処理飛灰より排ガス処理飛灰の Ca のシリアルバッチ溶出試験の溶出率が高く、キレート剤を加えたことで排ガス処理飛灰中の Ca とキレートが反応して Ca の一部が不溶化した可能性が考えられた。または排ガス処理飛灰に比べてキレート処理飛灰の方がシリアルバッチ溶出試験 4 回目の溶出液の pH が高かったことから Ca(OH)₂ の Ca 化合物が溶出しなくなった可能性も考えられた。
- (2) 実際の埋立地の浸出水の pH に近い pH 6 ~ 8 溶出量基準で主灰、キレート処理飛灰共に Ca 埋立寄与率は約 50% であり、浸出水への Ca 溶出ポテンシャルはほぼ同等と考えられた。
- (3) 溶出しやすい Ca の埋立寄与率を表している 13 号法溶出量基準の埋立寄与率がキレート処理飛灰で 81% であるので、主灰やキレート処理飛灰の埋立が継続している間は、浸出水の Ca 濃度はキレート処理飛灰 Ca 溶出量の影響を受けると考えられた。

- (4) 主灰中のCaは易溶解性物質が25%を占めており、その中でも主灰中のCaは主にCaCO₃として存在し、これが2回の溶出操作により一部溶出したと考えられた。
- (5) キレート処理飛灰中のCaは易溶解性物質が50%を占めしており、キレート処理飛灰中のCaは主にCaCO₃、CaSO₄、Ca(OH)₂として存在し、2回の溶出操作によりCaSO₄とCa(OH)₂の全量とCaCO₃の一部が溶解し、CaCO₃の多くが残存したと考えられた。

謝辞

本研究を進めるにあたり、社会環境システム工学科学の石川涼矢君の協力を得た。

参考文献

- 1) 環境省:日本の廃棄物処理(令和元年度版), pp. 1-66, 2021.
- 2) 飯野成憲, 辰市祐久, 看倉宏史:エアテーブル選別における都市ごみ焼却主灰中の金属の選別特性, 廃棄物資源循環学会論文誌, Vol. 31, pp. 98-107, 2020.
- 3) 野馬幸生, 貴田晶子:カルシウムスケールの生成におよぼす埋立焼却残渣の影響, 廃棄物学会論文誌, Vol. 9, pp. 287-295, 1998.
- 4) 田久保圭祐, 水谷聰, 年見寛和, 貫上佳則:薬剤処理飛灰からの有機キレート薬剤と金属類の経時的な溶出挙動, 第32回廃棄物資源循環学会研究発表会, pp. 373-374, 2021.
- 5) 樋口壯太郎, 東海林俊吉, 為田一雄:焼却施設の稼働実態調査(排ガス編), 第31回廃棄物資源循環学会研究発表, pp. 279-280, 2020.
- 6) 野馬幸生, 貴田晶子:最終処分場におけるカルシウムスケール生成の予測, 廃棄物学会論文誌, Vol. 9, pp. 215-223, 1998.
- 7) Luo, J. and Qian, G. and Liu, J. and Xu, Z. P.: Anaerobic methanogenesis of fresh leachate from municipal solid waste: a brief review on current progress, *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, Vol. 49, pp. 21-28, 2015.
- 8) 堀井安雄, 樋口壯太郎, 島岡隆行, 花嶋正孝:高塩類浸出水の処理技術, 廃棄物学会誌, Vol. 8, pp. 529-539, 1997.
- 9) 堀井安雄:高度浸出水処理技術の現状と課題, 廃棄物資源循環学会誌, Vol. 26, pp. 35-46, 2015.
- 10) 田村典敏, 野村幸治, 石田泰之:イオン交換樹脂法によるカルシウム除去技術, 廃棄物資源循環学会誌 Vol. 26, pp. 53-58, 2015.
- 11) 白石直輝, Sonia Muradia SHARMA, 小宮哲平, 島岡隆行:一般廃棄物焼却灰の脱塩における炭酸化処理の最適条件, 土木学会論文集G(環境), Vol. 74, pp. III-317-III-323, 2018.
- 12) 久保田洋, 繁泉恒河, 山田裕己, 野口俊太郎, 佐藤研一:散水・通気処理が焼却主灰の溶出性に与える影響, 廃棄物資源循環学会論文誌, Vol. 28, pp. 199-212, 2017.
- 13) Li, J., Xue, Q., Wang, P., Wang, H. and Zhang, T.: Leaching characteristics of chlorine from municipal solid waste incineration fly ash by up-flow percolation column tests, *Environmental Earth Sciences*, Vol. 75, pp. 1-7, 2016.
- 14) Chen, W. S. and Chang, F. C. and Shen, Y. H. and Tsai, M. S. and Ko, C. H.: Removal of chloride from MSWI fly ash, *Journal of Hazardous Materials*, Vol. 237-238, pp. 116-120, 2012.
- 15) Zhao, H., Tian, Y., Wang, R., Wang, R., Zeng, X., Yang, F., Wang, Z., Chen, M. and Shu, J.: Seasonal variation of the mobility and toxicity of metals in Beijing's municipal solid waste incineration fly ash, *Sustainability*, Vol. 13, pp. 1-13, 2021.
- 16) Kitamura, H., Sawada, T., Shimaoka, T. and Takahashi, F.: Geochemically structural characteristics of municipal solid waste incineration fly ash particles and mineralogical surface conversions by chelate treatment, *Environmental Science and Pollution Research*, Vol. 23, pp. 734-743, 2016.
- 17) Dahlan, A. V., Kitamura, H., Tian, Y., Sakanakura, H., Shimaoka, T., Yamamoto, T. and Takahashi, F.: Heterogeneities of fly ash particles generated from a fluidized bed combustor of municipal solid waste incineration, *Journal of Material Cycles and Waste Management*, Vol. 22, pp. 836-850, 2020.
- 18) 北村洋樹, Dahlan, A. V., 田宇, 島岡隆行, 山本貴士, 高橋史武:キレート処理済み一般廃棄物焼却飛灰粒子の元素分布の相関分析によるTiの化学形態分析, 土木学会論文集G(環境), Vol. 73, pp. III-287-III-295, 2017.
- 19) 日本化学会編:改訂4版化学便覧基礎編II, 丸善, p. II-162, 1993.
- 20) 長倉三郎他編:理化学辞典第5版, 岩波書店, p. 684-814, 1998.
- 21) 山下泰志, 水谷聰, 貫上佳則:焼却灰の洗浄処理と金属類の挙動, 環境工学研究論文集, Vol. 45, pp. 251-257, 2008.
- 22) 貴田晶子, 野馬幸生:焼却残渣中の易溶性元素の溶出特性, 廃棄物学会誌, Vol. 8, pp. 500-509, 1997.
- 23) 江藤次郎, 津留真哉, 崎田省吾, 張瑞娜, 島岡隆行:一般廃棄物焼却残渣埋立地における不溶性塩素の挙動と生成メカニズム, 廃棄物学会論文誌, Vol. 19, pp. 131-140, 2008.
- 24) 野馬幸生, 貴田晶子:高アルカリ飛灰の炭酸化と処理飛灰の溶出特性, 廃棄物学会論文誌, Vol. 8, pp. 129-137, 1997.

複合サイクル試験機を用いた機能性防錆塗装の腐食特性に関する基礎的研究

森本 菖^{a)}・森田 千尋^{b)}・中野 敦^{c)}・堀澤 英太郎^{d)}

Fundamental Study on Corrosion Characteristics of Functional Anti-Corrosion Coatings Using a Combined Cycle Tester

Ayame MORIMOTO, Chihiro MORITA, Atsuhi NAKANO, Eitaro HORISAWA

Abstract

The purpose of this study was to evaluate the corrosion characteristics of various coating systems. To investigate the durability of the coating systems after application in repainting using the equivalent of three types of cleanings, we focused on the rust thickness of black rust formed on the steel surface and the salinity of the black rust adhered to the surface. Test specimens were subjected to accelerated corrosion tests using five different functional anti-corrosion coating systems and the conventional coating Rc-I, and the corrosion characteristics of each coating system were evaluated. As a result, blistering and spot rusting were observed on the test specimens except for the thick-film fluoropolymer paint and Rc-I. It was also found that point rusting and swelling were more likely to occur in the weakly soluble fluorine paint, where the residual rust thickness was greater and the adhered salt concentration was higher. The coating thickness measurement results showed that the weakly soluble fluorine paint, organic-inorganic composite coatings, and thick-film fluoropolymer paint showed a decrease in coating thickness when the residual rust thickness was large and the adhered salinity was high, while the Rc-I method showed a decrease in coating thickness only when the residual rust thickness was large and the adhered salinity was moderate. The cross-sectional analysis results showed the presence of black rust Fe_3O_4 and an increase in residual rust thickness after the accelerated corrosion test.

Keywords: Functional anti-corrosion coating, corrosion, XRD, SEM, EDX

1. はじめに

1.1 研究背景

現在、日本には橋梁が約73万橋あり、それらの多くは高度経済成長期に建設されている。建設後50年を経過した橋梁の割合は、2024年は39%であるのに対し、2034年では約70%となる。そのため、鋼構造物の老朽化による腐食現象を防止する必要がある。現在、鋼構造物の主な防食方法として塗装が挙げられている。塗装の利点として、施工技術が容易であり、施工コストも安価で補修も容易に実施できることが挙げられる。しかしながら、図1に示すようにライフサイクルコスト(LCC)はめっき皮膜や金属溶射と比較すると高価になる傾向にあり、現状の課題としてLCCの削減が求められている¹⁾。

近年では、鋼素地上に生成した赤錆を黒錆に転換する機能性防錆塗装システム（以下、「塗装システム」と称する）

が注目されている。防食塗装は、鋼道路橋防食便覧²⁾に示される標準的な塗替え塗装系であるRc-I塗装系を採用する際、素地調整として1種ケレン程度（プラスト工法）を行う必要があるが、素地調整の程度は塗膜の寿命に与える

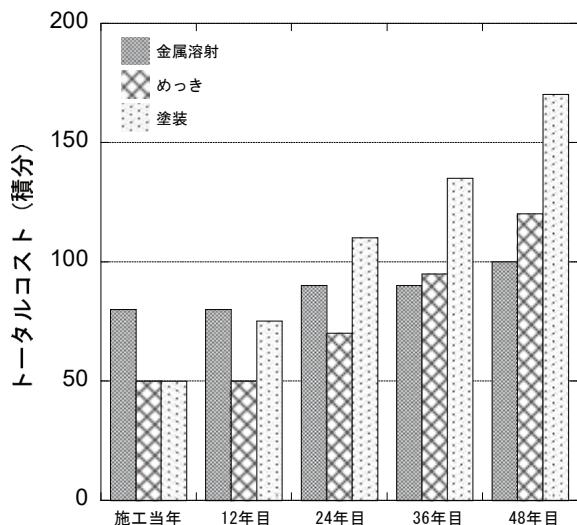


図1. LCC の比較.

a) 工学研究科 工学専攻 大学院生

b) 工学教育研究部 教授

c) 地域資源創生学部 准教授

d) 工学教育研究部 特別助教

表1. 各塗装システムおよび従来塗装の塗料。

塗装システム	下塗り	中塗り	上塗り
工法A	転換鉄型 特殊エポキシ樹脂系プライマー	弱溶剤形ふつ素樹脂塗料	弱溶剤形ふつ素樹脂塗料
工法B	変成エポキシ樹脂系特殊塗料	弱溶剤形ふつ素樹脂塗料	弱溶剤形ふつ素樹脂塗料
工法C	特殊キレート樹脂	有機無機複合型コーティング剤	有機無機複合型コーティング剤
工法D	鉄転換型 特殊エポキシ樹脂系塗料	弱溶剤形ふつ素樹脂塗料	弱溶剤形ふつ素樹脂塗料
工法E	エポキシ樹脂系反応性塗料	厚膜形変形エポキシ樹脂塗料	厚膜形ふつ素樹脂塗料
Rc-I塗装系	ジンクリッヂペイント 弱溶剤形変成エポキシ樹脂塗料	弱溶剤形ふつ素樹脂塗料	弱溶剤形ふつ素樹脂塗料

A工法	B工法	C工法	D工法	E工法	Rc-I
					

図2. 初期材の外観について。

影響が最も大きいとされている³⁾。しかし、塗装システムの素地調整は3種ケレン程度の動力工具や手工具による作業であるため、ブラスト工法を行う際に発生するケレンダストの発生ではなく、LCCの削減や騒音などの環境負荷の低減に繋がる。また、塗装システムは3種ケレン層での塗装でも、鋼材表面や構造物の狭隘部などに発生している赤錆を安定した黒錆に転換することで、長期防食が期待できることが大きな利点である。

塗装システムに関する研究は多数行われており^{4)~16)}、伊藤ら¹⁷⁾は4種類の素地調整が異なる塗装鋼板を用いて251日間の腐食促進実験を行った。その結果、素地調整程度に関わらず塗装鋼板の寿命はほぼ同程度であることが報告されている。また、坂本ら¹⁸⁾は塩水噴霧試験によって作成した錆鋼板の錆状態を調べるとともに、錆を残した状態で塗装した場合の塗膜耐久性について評価した。塩水噴霧後、素地調整を行った試験片の外観は、明るい色相の錆の領域、暗い色相の錆の領域、鋼素地が露出した領域に区分される。塗装後に行った腐食試験の結果、塗膜剥れは暗い領域およびその近傍で生じることがわかった。しかしながら、使用する様々な環境下における黒錆の安定期間や塗装

システムの工法の違いによる腐食特性の違いなど、不明点は多くみられる。

1.2 研究目的

本研究では各種塗装システムの腐食特性を評価することを目的とし、3種ケレン相当を用いた再塗装における塗装システム施工後の耐久性を調べるために、鋼材表面上に生成した黒錆の錆厚と黒錆の付着塩分濃度に着目した。試験片は、赤錆の残存錆厚と付着塩分濃度を変化させた鋼板上に、5種類の塗装システムおよび比較のためにRc-I塗装系を塗布し作製した。これらの試験片を用いて腐食促進試験を実施し、塗装システムの腐食特性を評価する。

2. 試験方法

2.1 塗装システムの概要

本研究で用いた塗装システムの塗料を表1に示す。Rc-I塗装系を除く塗装システムA~Eの素地調整は3種ケレン程度で動力工具や手工具での塗装が可能である。また、図2に各塗装システム試験片の初期材の外観観察を示す。



図3. 塗装システムの施工フロー。

表2. 試験片の初期条件。

初期条件	残存錆厚 (μm)	付着塩分濃度 (mg/m ²)
ケース1	20	50
ケース2	20	100
ケース3	100	50
ケース4	100	100

Rc-Iの試験片表面はクリーム色、塗装システムA、BおよびDは黄色、塗装システムCは灰色、塗装システムEは緑色であり、光沢がみられた。次に、各塗装システム及びRc-I塗装系の概要を以下にまとめる。

2.1.1 塗装システムA（工法A）

高浸透性の下地処理剤と特殊変性エポキシ樹脂プライマーが鉄素地まで浸透し、錆を固着化させ、緻密で安定な黒錆を形成するため、防食性を確保することができる。

2.1.2 塗装システムB（工法B）

鋼材表面に防錆皮膜を作り、錆面は錆転換（固定化）することで防錆力を発揮する。塗装後の皮膜は高い光沢保持率を保ち、対汚染性に優れた皮膜を形成する。表面処理剤（防錆前処理剤）は素地調整後の脱脂処理なしでも鋼材面とよく反応して防錆皮膜を作り、その後に塗装する防錆塗料との密着性及び防錆性能を向上させる。

2.1.3 塗装システムC（工法C）

水性錆安定化処理剤と有機無機コーティング剤を鋼構造物へ塗布することで安定化した塗膜を鋼材表面に形成し、鋼材を錆から長期的に守る防錆工法である。表面処理は錆面に防錆皮膜を作り、錆面は錆転換（固定化）することで防錆力を発揮する。さらに素地と防錆塗料の間にあつ



図4. 腐食促進試験機。

て密着性を向上させる。また、防錆塗装は防錆皮膜近傍をアルカリ性環境に保持するので防錆効果が高くなる。

2.1.4 塗装システムD（工法D）

鋼材に工法Dの下塗り剤を塗布することで、塗料中に含まれるタンニン酸により、残存してしまう赤錆の進行を止めるとともに、還元作用により黒錆へ転換することで鋼材の長寿命化が可能になる。

2.1.5 塗装システムE（工法E）

鋼材表面に緻密で安定な錆層を形成することで、鋼材の長期防食性を確保できる。塗装仕様をRc-I塗装系の5層から3層にしたことにより、コスト縮減および工程の短縮が可能となった。

2.1.6 Rc-I塗装系（従来塗装Rc）

プラスト工法（1種ケレン）により、劣化した旧塗膜、付着塩分、残存錆の完全除去が可能となり、塗膜の耐久性を確保できる。ケレンの際には研削材や旧塗膜のケレンダストが飛散するため、飛散防止ネットや板張防護の取り付けが必要である。塗装仕様は5層で、再塗装時は素地調整からやり直さなければならない。

2.2 試験片の概要

図3に試験体の試験片作製のフロー図を示し、表2に試験片の初期条件を示す。試験片の寸法は、JIS K 5600-1-4、7-6に基づき、150×70×2.3mmのSS400鋼材を用いた。各試験片について、裏面および端面にJIS K 5551に基づく防錆塗料による保護塗装をしており、暴露面積は115×59mmとなっている。付着塩分量の値は、鋼道路橋防食便覧²⁾や富山らの研究¹⁹⁾を参考に、残存錆厚20μmおよび100μm、付着塩分濃度50mg/m²および100mg/m²をそれぞれ組み合わせ、4つの初期条件を設定した。また、試験片名については「塗装システム名-ケース名」と表記する（例：A-1、Rc-2など）。

2.3 腐食促進試験

腐食促進試験は、図4のVISION TEC社のCASS試験機（VT-ST200CASS）により、JIS Z 2371に規定される連続

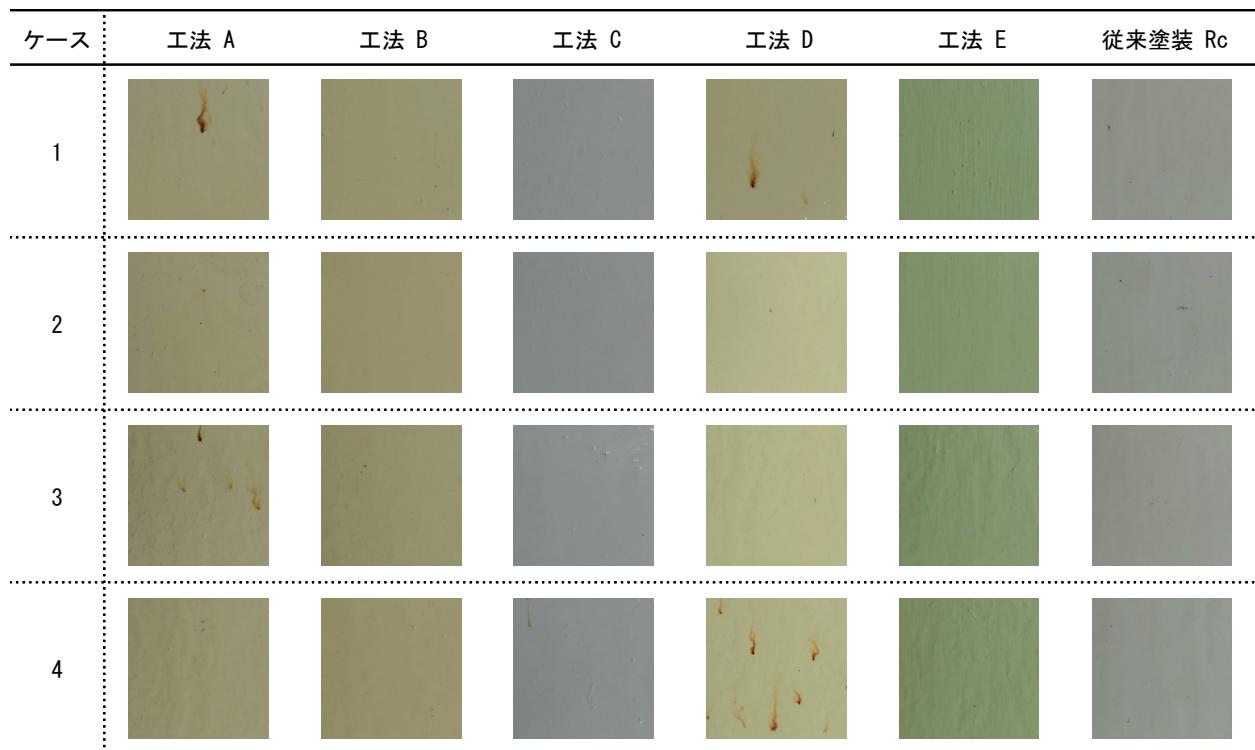


図5. 外観観察。

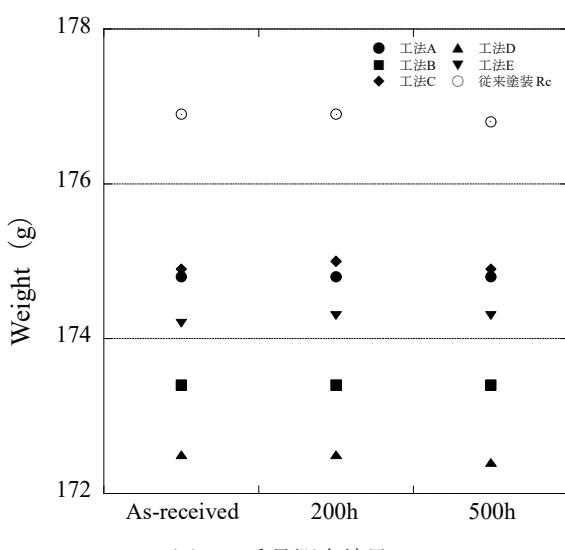


図6. 重量測定結果。

塩水噴霧試験（噴霧溶液 5%NaCl、pH7、サイクル条件：35°C、100%RH）を実施した。試験時間は 500 時間とした。

2.4 塗膜表面および断面の評価

本研究で用いた評価項目および試験内容を以下にまとめる。

2.4.1 外観観察

塗装一般部に対する目視観察および写真撮影による塗膜の表面性状の変化を調べた。塗膜が劣化すると、塗膜表面からの酸素や水の遮断能力が低下し、時間の経過とともに

に塗膜下の錆発生に至ると考えられている。つまり、塗膜表面から水や酸素が塗膜を透過すると浸透圧による塗膜の膨れが生成される。

2.4.2 重量測定

電子天秤を用いて、促進試験前後の試験片の重量変化を一定期間ごとに測定した。

2.4.3 塗膜厚の測定

試験片の大きさに合わせた測定用マグネットシートを作製し、電磁式／渦電流式両用膜厚計を用いて測定箇所を 5 か所設定し、測定した。測定のばらつきを考慮して、試験面の 5 測点に対して各点 11 回測定した後、測定値から最大値と最小値を除いた各点の平均値（計 45 測点）を算出し、全体の平均値を塗膜厚とした。

2.4.4 断面解析

腐食試験前後の塗膜構造および構成元素を調べるために、塗膜断面の SEM 観察と元素分布について EDX（日立ハイテク SU-3500）により解析した。加速電圧は 20kV、倍率は 200 倍、調べた元素は Fe (K α)、O (K α)、Cl (K α)、Ti (K α)、Si (K α) および Zn (K α) である。

3. 実験結果および考察

3.1 外観観察

図5に腐食促進試験を 500 時間実施した各ケースの試験

片表面を拡大したものを示す。

A 工法について、すべてのケースにおいて点錆およびふくれがみられ、B 工法ではすべてのケースにおいてふくれがみられたが、点錆は確認されなかった。C 工法について、C-1、C-2 および C-4 ではふくれがみられ、C-3 および C-4 では点錆がみられた。D 工法について、D-3 では点錆のみ確認されたが、他 3 ケースについては点錆およびふくれがみられた。特に D-4 ではすべての工法と比較すると最も多く点錆が発生していた。E 工法および従来塗装 Rc については、すべてのケースにおいて点錆やふくれはみられず、良好な状態を維持していた。

以上の結果より、残存錆厚が大きく、付着塩分濃度が高いほど点錆やふくれが発生しやすいことが確認された。

3.2 重量測定

図 6 にケース 1 における初期材から腐食促進試験 500

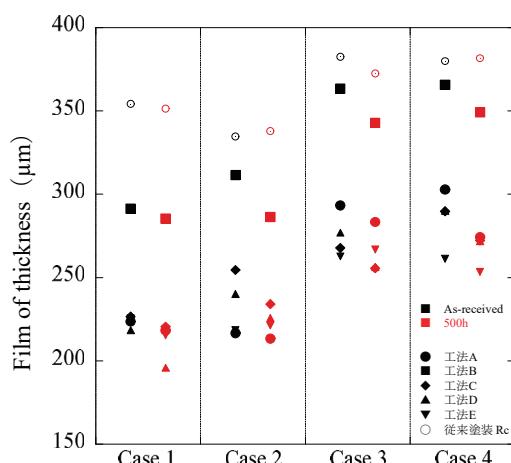


図 7. 塗膜厚測定結果。

時間後の重量変化を示す。A～E 工法および従来塗装 Rc において重量に変化はみられなかった。ケース 2～4 についても同様の結果が得られた。

3.3 塗膜厚測定

図 7 に初期材から腐食促進試験 500 時間後の各塗装システムおよびケース 1～4 の塗膜厚測定結果を示す。

A 工法について、ケース 1 および 2 では大きな変化はみられなかつたが、ケース 3 および 4 では塗膜厚が減少していた。C 工法および E 工法でも同様の結果が得られた。B 工法について、ケース 1 では変化はみられなかつたが、ケース 2～4 では塗膜厚の減少がみられた。D 工法でも同様の結果が得られている。従来塗装 Rc について、ケース 3 では塗膜厚の減少がみられたが、ケース 1、2 および 4 では変化がみられなかつた。

3.4 断面解析

図 8 に初期材および腐食促進試験 500 時間後の D 工法（ケース 4）の断面解析結果を示す。断面は大きく 3 層に分類することができ、下層は基材、中層は残存錆、上層は塗膜である。中層の残存錆層に注目すると、500 時間経過後は層が大きくなっている。外観観察においてふくれが発生した要因としては中層の増大が原因と考えられる。また、中層において Fe、O および Cl の分布が一致している部分については赤錆から転換した黒錆 Fe_3O_4 （マグнетタイト）であると考えられる。A 工法、B 工法、C 工法および E 工法においても同様の結果が得られ、工法別での大きな差はみられない。錆厚の大きさについては、残存錆が厚いほど酸化物の層も大きくなることが確認された。

図 9 に初期材および腐食促進試験 500 時間後の従来塗装

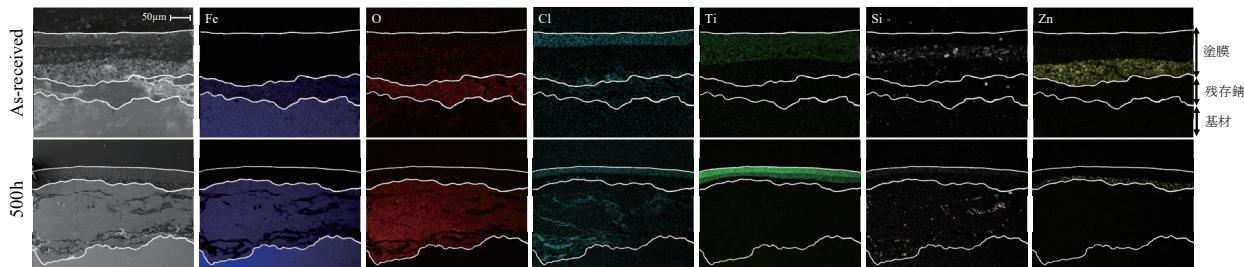


図 8. D 工法（ケース 4）の SEM・EDX 分析結果。

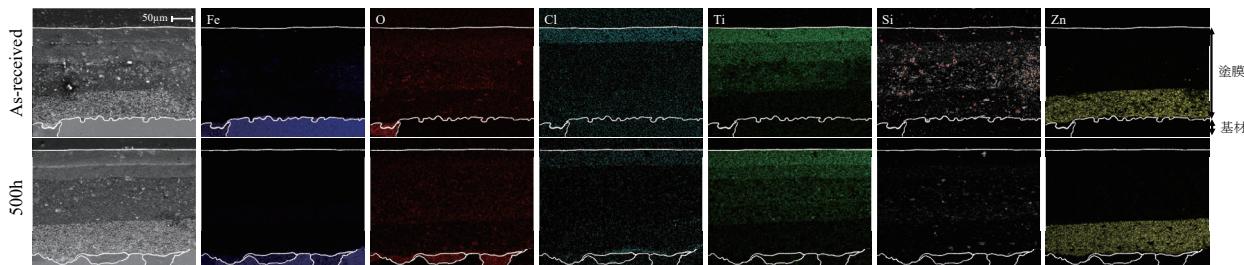


図 9. 従来塗装 Rc（ケース 4）の SEM・EDX 分析結果。

Rc (ケース 4) の断面解析結果を示す。塗装システムの断面とは大きく異なり、残存鉄の除去を行っているため基材付近の O は一部のみである。腐食促進試験 500 時間経過後をみると基材付近で O の分布が多くなっているが、塗装システムと比較すると少なく、良好な断面を維持できていると考えられる。ケース 1~3 でも同様の結果が得られた。

4. 結論

本研究では各種塗装システムの腐食特性を評価することを目的とし、腐食促進試験を 500 時間実施した。以下に本研究で得られた結果と今後の展望をまとめる。

- (1) 外観観察にて、E 工法および従来塗装 Rc を除く試験片ではふくれや点錆の発生が確認された。また、残存錆厚が大きく、付着塩分濃度が高い D 工法 (ケース 4) では、点錆やふくれが発生しやすいことがわかった。
- (2) 塗膜厚測定結果より、A、C および E 工法では残存錆厚が大きく付着塩分濃度が高いと塗膜厚の減少が確認された。ケース 1 および 2 では大きな変化はみられなかった。従来塗装 Rc では残存錆厚が大きく付着塩分濃度が中程度でのみ塗膜厚の減少がみられた。
- (3) 断面解析結果より、D 工法 (ケース 4) では腐食促進試験 500 時間後に中層の残存錆が増大し、Cl の内部への侵入が確認された。この層の増加はふくれの発生要因であると考えられる。また、Fe、O および Cl の分布の一一致箇所については黒錆 Fe₃O₄ (マグネットイト) であると推定される。A、B、C および E 工法でも同様の結果が得られており、初期の残存錆が厚いほど酸化物層も大きくなる傾向がみられた。従来塗装 Rc (ケース 4) では、初期の残存錆が除去されているため、基材付近の酸化物は少なく、腐食促進試験 500 時間後でも良好な断面が維持されていた。

以上の結果より、塗装システムの中で工法 E は最も耐食性があることが確認された。また、A~D 工法については、大きな差異はみられず、従来塗装 Rc よりも腐食が進行していることが確認された。今回の研究では、屋内での腐食促進試験であるため、今後は実環境での適用を想定した屋外での大気暴露試験を実施し、各塗装システムの腐食特性を評価していきたい。

参考文献

- 1) 内田雅信、辻井元、大繩登史男：防錆溶射技術の現場適用、溶接学会誌、Vol. 75、pp. 147-151、2006.
- 2) (公社) 日本道路協会：鋼道路橋防食便覧、第II編塗装編、p. 145、2014.
- 3) 関西鋼構造物塗装研究会：最新 わかりやすい塗装のはなし 塗る、pp. 115-117、2001.
- 4) 小林弘明、森田晃一、山下勝也、片岡泰弘：鋼板表面に付着した金属成分による塗膜欠陥部の耐食改善効果、材料と環境、Vol. 69、No. 10、pp. 262-270、2020.
- 5) 松田英樹、太田伶美、土岡育朗、佐野真：錆残存表面の特性が塗装防食性に与える影響、材料と環境、Vol. 67、No. 1、pp. 27-32、2018.
- 6) 貝沼重信、小林淳二、宇都宮一浩、坂本達朗：塗膜欠陥の寸法・近接度が鋼材の腐食挙動に及ぼす影響に関する基礎的研究、土木学会論文集、Vol. 73、No. 1、pp. 84-97、2017.
- 7) T. Sakamoto and S. Kainuma : Fundamental Research on Factors Affecting the Under-Film Corrosion Behaviour of Coated Steel Members, International Scholarly and Scientific Research & Innovation, Vol. 10, No. 2, pp. 232-237, 2016.
- 8) Y. Lei, W. Xiao, H. Peng, P. Yu, X. Cai, Z. Luan, S. Deng, and S. Wang : An integrated epoxy rust conversion coating: Its anticorrosion properties and rust conversion mechanism, Journal of Alloys and Compounds, Vol. 853, pp. 1-9, 2021.
- 9) W. Li, Z. Fan, X. Li, B. Jiang, F. Yan, Z. Zhang, and X. Wang : Improved anti-corrosion performance of epoxy zinc rich coating on rusted steel surface with aluminum triphosphate as rust converter, Progress in Organic Coatings, Vol. 135, pp. 483-489, 2019
- 10) H. Tamura : The role of rusts in corrosion and corrosion protection of iron and steel, Corrosion Science, Vol. 50, pp. 1872-1883, 2008.
- 11) G. Lazorenko, A. Kasprzhitskii, and T. Nazdracheva : Anti-corrosion coatings for protection of steel railway structures exposed to atmospheric environments: A review, Construction and Building Materials, Vol. 288, pp. 1-19, 2021.
- 12) J. Gao, W. Hu, R. Wang, and X. Li : Study on a multifactor coupling accelerated test method for anticorrosive coatings in marine atmospheric environments, Polymer Testing, Vol. 100, pp. 1-8, 2021.
- 13) 山下正人、花木宏修、野村豊和、寺谷亨、宇木則倫：さびを抑制し防食する反応性塗料の研究開発、材料と環境、Vol. 66、No.1、pp. 21-24、2017.
- 14) 永井昌憲：塗膜の防食機能、色材協会誌、Vol. 84、No. 6、pp. 219-227、2011.
- 15) 河内尚、谷本善凡、荒木直行：ケイ素ポリマー系セルフポリッシング形防汚塗料と油性系防汚塗料との性能比較実験についての一考察：第 1 報、日本航海学会誌 NAVIGATION、Vol. 131、pp. 7-19、1997.
- 16) 小林弘明、森田晃一、山下勝也、片岡泰弘：塗装前処理としての大気圧プラズマ処理が金属材料表面に及ぼす影響、色材協会誌、Vol. 91、No. 8、pp. 260-267、2018.
- 17) 伊藤義人、金仁泰、貝沼重信、門田佳久：素地調整が異なる塗装鋼板の腐食劣化に関する基礎的研究、土木学会論文集、2004 卷、766 号、pp. 291-307、2004.
- 18) 坂本達朗、貝沼重信、小林淳二：塗装前の炭素鋼基材のさび性状と塗膜耐久性の関係に関する基礎検討、材料と環境、64 卷、7 号、pp. 307-310、2015.
- 19) 富山禎仁、西崎到：現場塗装時の塩分が鋼道路橋の塗膜性能に及ぼす影響に関する検討、構造工学論文集、61A 卷、pp. 552-561、2015.

p型Siにおける酸素析出物起因の欠陥分布マッピング

岩切 孝洋^{a)}・原田 知季^{b)}・碇 哲雄^{c)}・福山 敦彦^{d)}

Defect distribution mapping due to bulk micro defect in p-type Si

Takahiro IWAKIRI, Tomoki HARADA, Tetsuo IKARI, Atsuhiro FUKUYAMA

Abstract

The purpose of this study is to confirm the usefulness of laser heterodyne photothermal displacement (LH-PD) mapping measurements for investigating bulk micro defects (BMD) and the cracks formed by these defects. It was found that the larger BMD density resulted in the larger LH-PD displacement. This is due to the smaller thermal conductivity of SiO_2 in the BMD and the formation of interface levels between SiO_2 and Si, enhancing non-radiative recombination. Three mapping measurements were carried out and compared to study the formation of cracks. They are LH-PD, Raman, and photoluminescence (PL) mapping. Although the Raman mapping could not observe signals from the cracks, the LH-PD and the PL mapping revealed clear images. A comparison of the PL and the LH-PD mapping shows a trade-off relationship. Although the observed PL integrated intensity at the cracks was larger than the matrix areas, the LH-PD displacement was smaller. It was also found that the time required for the LH-PD measurements was about one-fifth shorter than that for the PL mapping measurements. The results are understood by considering that the non-radiative recombination was enhanced in the BMD area. We found that the LH-PD mapping measurement can observe the BMD density faster than the PL mapping.

Keywords: bulk micro defect, silicon, PL mapping, LH-PD mapping

1. はじめに

半導体は、5G・ビックデータ・AI・IOT・自動運転・ロボティクス・スマートシティ・DX等のデジタル社会を支える重要な基盤として注目されている¹⁾。さらに半導体は微細化することでデバイスの高機能化・高速化を実現できることが知られている。しかし、放熱領域の減少により半導体のデバイス性能や寿命に大きな影響を与える熱が問題視されており、熱の制御の重要性が増している^{2,3)}。よって、発熱のメカニズムを理解し、抑制することが重要である。

我々は、発熱の要因の1つである非発光再結合を高感度に検出可能な圧電素子光熱変換分光(PPT)法⁴⁾を開発した。同法は、励起光照射により発生するキャリアの非発光再結合による熱波及び熱弾性波を圧電素子により検出する手法である。圧電素子を試料に直接貼り付けることにより高感度かつ試料の温度を変化させながらの測定が可能になったが、発熱した熱を圧電素子により電気信号に変換する必要があり、絶対値の測定が難しいことから、定量的な評価が困難であった。さらに検出信号の空間分布が圧電素子の大きさで制約されるため、マッピング測定も困難である。マッピング測定は、非発光再結合

中心として働く可能性がある結晶欠陥の位置を計測可能なため、マッピング測定は有益な手法である。そこで、我々はマッピング測定が可能な新たな評価手法として光ヘテロダイン光熱変位(Laser heterodyne photothermal displacement: LH-PD)法⁵⁾を開発した。同法は、非破壊・非接触で、断続化した励起光照射によって生じたキャリアの非発光再結合による試料表面の熱膨張変位を測定する手法である。検出された表面変位量には、キャリアの生成と拡散、再結合や熱の拡散などの物理的現象の情報が含まれる。また、ステージを走査することでマッピング測定が可能であり、半導体の非発光再結合準位の空間分布を測定することができる。そこで、LH-PD法の有用性の確認に蛍光分光法(photoluminescence: PL)法とラマン分光法を用いた。PL法では、励起光照射によって生じたキャリアの発光再結合による光を測定する手法である。発光再結合はPL法で、非発光再結合はLH-PD法で評価でき、これらの物理過程はトレードオフの関係であることが知られているものの、PL法とLH-PD法のマッピング測定結果はこれまで比較されたことがない。さらに、ラマン分光法は格子欠陥などによる歪みを検出できる手法であるため、信号発生の原因考察に有効である。本研究では、我々が開発したLH-PDマッピング手法をCZシリコン(Si)結晶に熱処理することで析出する酸素析出物(bulk micro defect: BMD)⁶⁾に対して適用し、その有用性についてPLマッピング手法及びラマンマッピング手法と比較して議論することを目的とする。

a) 工学専攻 エネルギー系コース 大学院生

b) 応用物理工学プログラム 特別助教

c) 応用物理工学プログラム担当 特任教授

d) 応用物理工学プログラム担当 教授

2. 試料詳細および実験方法

2.1 試料詳細

本研究で用いた試料詳細を表1に示す。*p*型Siに2段階アニールを行い、BMDを形成した3種類の試料を準備した。BMD密度は赤外トモグラフ法を用いて測定した。BMD密度が大きい試料はHOP1、小さい試料はLOP1とLOP2とする。LOP2試料はLOP1と同じウェーハから切り出したもので、クラックと推定される欠陥が形成されている。

表1. 試料詳細

BMD密度	HOP1	$1 \times 10^6 \text{ cm}^{-2}$
	LOP1,2	$1 \times 10^4 \text{ cm}^{-2}$
抵抗率		$20 \Omega \text{cm}$
膜厚		725 μm
初期酸素濃度		$1.3 \times 10^{18} \text{ atom/cm}^3$

図1にLH-PD法の実験装置概略図を示す。同法は、以下に説明するヘテロダイン干渉計を用いて光照射によって引き起こされる変位量を測定する。干渉計の検出光にHe-Neレーザー(632.8 nm)を用い、無偏光ビームスプリッタ(NBS)によって2つに分割し、音響光学素子(AOM)によってそれぞれの周波数をシフトさせた。片方は周波数 f_1 の参照光として検出器前の偏光ビームスプリッタ(PBS)に直接入射する。もう一方は周波数 f_2 のプローブ光として試料表面で反射した後にPBSに入射する。参照光とプローブ光が合流して周波数 f_b (=| $f_1 - f_2$ |)のビート波を形成し、検出器である光電子増倍管(PMT)で電気信号に変換される。励起光には半導体レーザー(808 nm)を用い、断続化させて試料表面に照射した。そして、このことによって試料表面が膨張と収縮を繰り返すため、検出光の光路差が変化し、その結果ビート波の位相が変

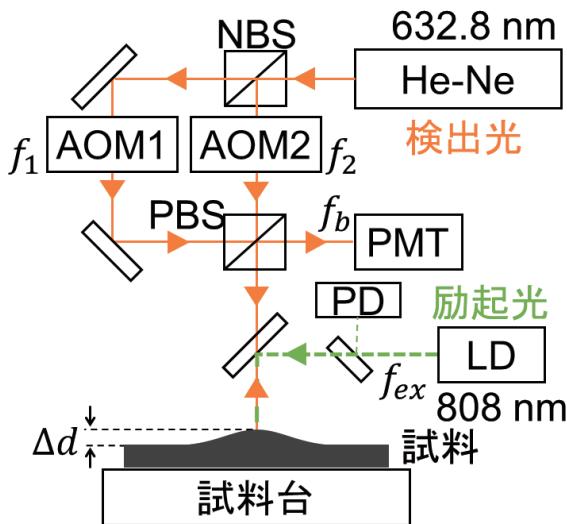


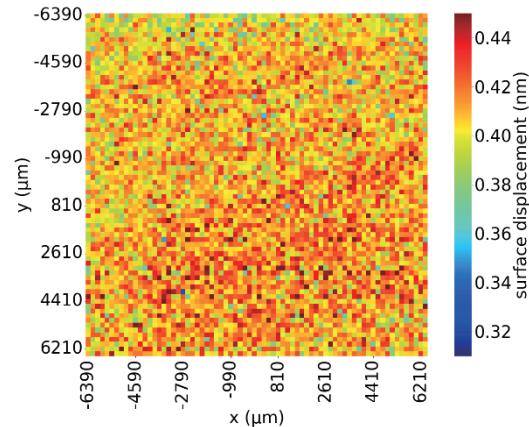
図1. 実験装置概略図

化する。このビート波の位相変化から表面変位量を算出した。

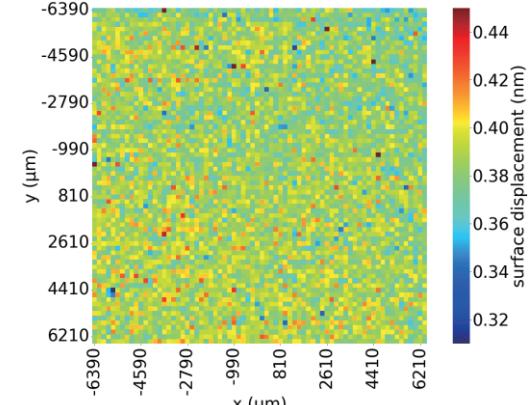
LH-PD法は、ステージを制御することでマッピング測定が可能であり、最小10 nmで制御できる。励起光の直径は、約8 μm である。また、励起光の変調周波数を変えることで熱拡散長が制御できるため、実験状況に応じて5000 Hz、500 Hzとし、測定間隔も180 μm 、100 μm とした。測定はすべて室温で行った。

PLマッピング測定とラマンマッピング測定では、レーザー(532 nm)を試料に照射することにより生じる光をグレーティングで分光し、検出器で検出した。PLマッピングではバンド端付近の発光エネルギーにおける強度をInGaAs検出器で、ラマンマッピング測定では、Si固有のラマンピーク近傍における散乱強度をCCD検出器で、それぞれ検出した。ラマンマッピングでは、得られたピークをローレンツ関数でフィッティングし、Si固有のピーク位置との差(ラマンシフト)を算出した。PLマッピング及びラマンマッピングとともに、励起光の直径は約20 μm 、測定間隔は100 μm であり、室温で測定した。

3. 実験結果・考察



(a) HOP1



(b) LOP1

図2. (a) HOP1、(b) LOP1の
LH-PDマッピング測定結果

3.1 BMD 密度の異なる LH-PD マッピング測定

図 2 に (a) 及び (b) にそれぞれ HOP1、LOP1 試料の LH-PD マッピング測定結果を示す。励起光周波数を 5000 Hz、測定間隔を 180 μm とした。青色に近いほど変位量が小さく、赤色に近いほど変位量が大きいことを表している。それぞれの平均の変位量は、HOP1 は 0.410 nm、LOP1 は 0.386 nm となった。BMD 密度の大きい HOP1 の方が平均の変位量が大きくなつた原因として BMD 構成要素の一つである SiO_2 などの析出物の熱伝導率が関係していると考えられる。 SiO_2 の熱伝導率⁷⁾は 0.014 W/cm · K と Si の熱伝導率⁸⁾は 1.31 W/cm · K に比べて二桁程度小さい。このため、BMD 密度が大きいほど励起光が照射された狭い領域での熱放出が小さくなり温度が高くなることで変位量が大きくなつたと考えられる。さらに、 SiO_2 と Si の界面準位の形成⁹⁾により、キャリアの非発光再結合が増加して発熱量が増えるために、大きい変位量が得られたことも考えられる。

3.2 クラックを持つ試料の LH-PD マッピング測定

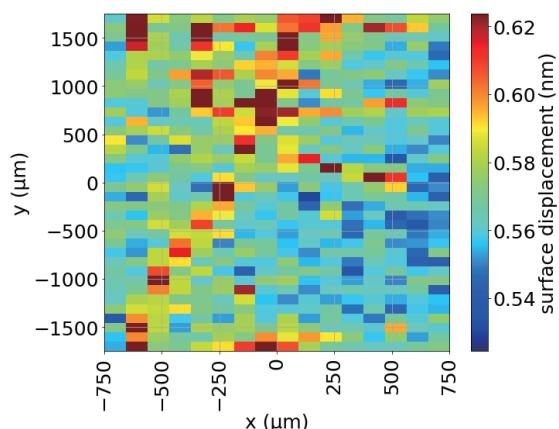


図 3. LOP2 の LH-PD マッピング測定結果

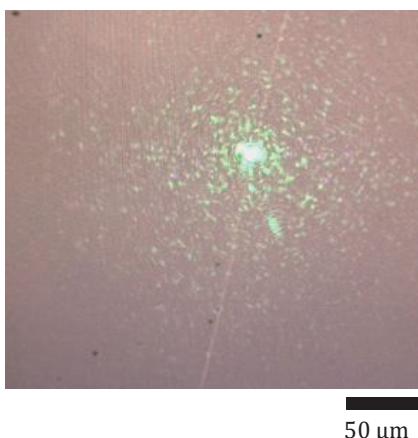


図 4. 光学顕微鏡で見られた試料表面の画像

ここまで、BMD 密度の異なる試料での LH-PD 信号の違いを比較したが、ここでは、クラックの影響について議論する。測定間隔はクラックについて詳しく調べる為、100 μm とした。図 3 にクラックが存在することが期待される試料 LOP2 の LH-PD マッピング測定結果を示す。励起光の変調周波数は 500 Hz とした。これは、変調周波数を小さくすることで熱拡散長を大きくし、クラックをマッピング結果からより分かりやすいようにするためにある。LOP2 では、LOP1 では見られなかつた線状に変位量が大きい部分が観測された。そこで、図 4 に線状に大きい変位量が得られた部分の試料表面の光学顕微鏡画像を示す。変位量が大きい部分では試料表面に白い線が観測された。結晶欠陥の一種であるクラックは、光学顕微鏡で観察する事が可能なため¹⁰⁾、LH-PD マッピングで見られる線状に変位量が大きい部分はクラックの可能性が高いと考えられる。また、クラックの表面では非発光再結合が増加するため¹¹⁾、大きい変位量が得られたと考えられる。

図 5 にラマンマッピング測定結果を示す。基準を Si のラマンピークエネルギーである 520 cm^{-1} のピーク強度とし、ラマンシフトが青色に近いほど低波数側、赤色に近いほど高波数側であることを表している。しかしながら、ラマンマッピング測定結果では、LH-PD マッピング測定

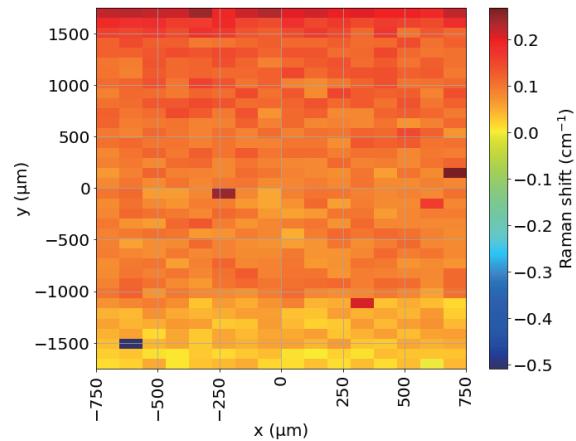


図 5. ラマンマッピング測定結果

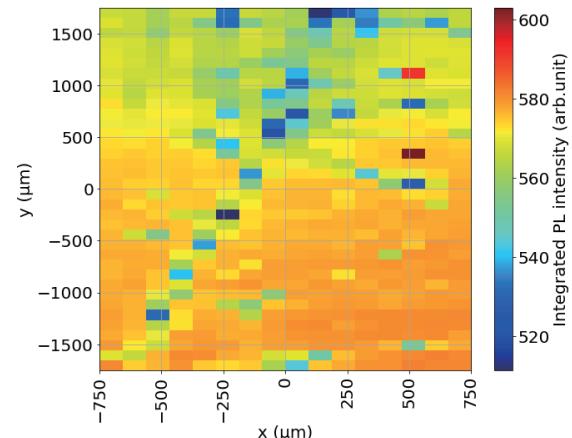


図 6. PL マッピング測定結果

結果に似た模様は得られなかつた。これは、クラック付近の歪み量が小さいため¹²⁾、ラマン散乱の信号としては観測できなかつたと考えられる。

図6にPLマッピング測定結果を示す。バンド端付近のPLスペクトルの積分強度を算出し、強度の強弱を赤色から青色でそれぞれ示した。赤色がPL信号強度の大きい部分である。PLマッピング測定結果では、LH-PDマッピング測定結果と似た模様が得られ、クラック付近ではPL積分強度が小さいことがわかる。これは、クラックの表面では、非発光再結合が増加するため¹¹⁾、発光再結合が減少し、小さいPL積分強度が得られたと考えられる。

図7(a)及び(b)にそれぞれPL及びLH-PDマッピング測定結果のヒストグラムを示す。クラックが含まれていない領域(54点)の平均値は、PLが任意強度ではあるが578、LH-PDでは変位量が0.557 nmとなった。また、PLマッピングでは平均値より小さいPL積分強度の頻度が多く、一方のLH-PDマッピングでは平均値より大きい

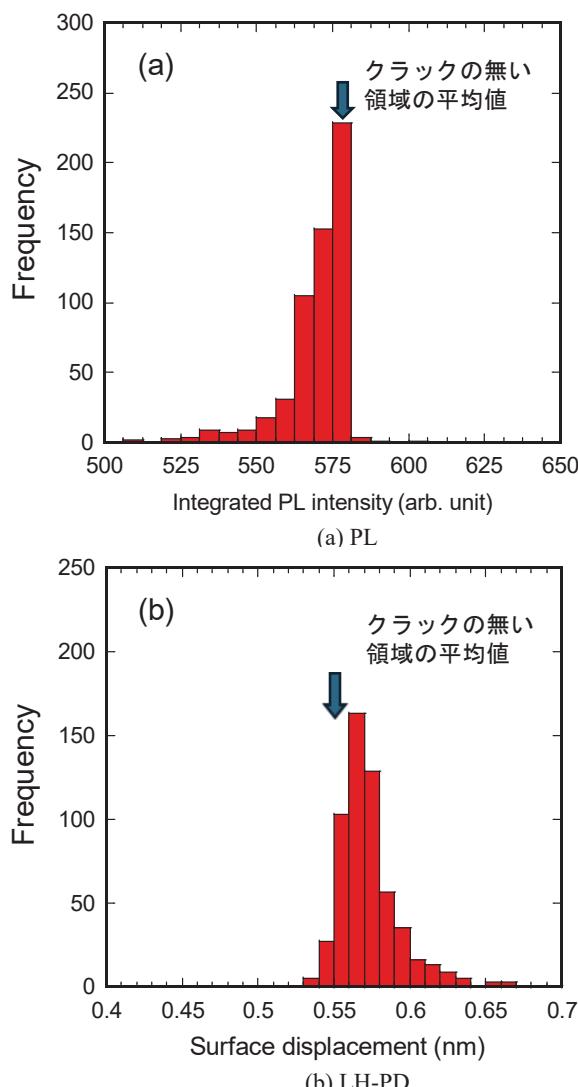


図7.(a) PL、(b) LH-PD マッピング
測定結果のヒストグラム

変位量の頻度が多いことが分かる。このようにPLマッピングの積分強度の分布とLH-PDマッピングの変位量の分布は逆の関係を表しており、PL測定結果とLH-PD測定結果はトレードオフの関係であることがわかる。また、マッピング測定に要した時間は、PLマッピング測定が約7時間、LH-PDマッピング測定が約1時間半であった。以上のことから、LH-PDマッピング測定では、PLマッピング測定よりも短時間で、クラックの関与した非発光再結合に関する情報を得られることがわかつた。

4. 結論

本研究では、LH-PDマッピング測定の有用性を明らかにした。BMD密度の異なるLH-PDマッピング測定では、BMD密度が大きいほど変位量が大きくなつた。これは、SiよりSiO₂の熱伝導率が小さいことやSiO₂とSiの界面準位の形成により、非発光再結合が増加したことが影響したと考えられる。

クラックを持つ試料のLH-PDマッピング測定では、線状に変位量が大きい領域が観測された。光学顕微鏡により試料表面に白い線が見られたことやクラック表面では非発光再結合が増加することから、線状の模様はクラックの可能性を検討した。ラマンマッピング測定では、LH-PDマッピング測定結果のような模様は得られなかつた。これはクラック付近の歪み量が小さいためだと考えられる。PLマッピング測定では、LH-PDマッピング測定結果に似た模様が得られ、クラック付近では発光再結合が減少し、小さい積分強度が得られた。

PLマッピングとLH-PDマッピングの比較では、PL積分強度の分布と変位量の分布は逆の関係であることがわかり、PL測定結果とLH-PD測定結果はトレードオフの関係であることが分かつた。それに加えて、測定に要した時間はPLマッピング測定よりLH-PDマッピング測定の方が短時間であることがわかつた。よって、LH-PDマッピング測定ではPLマッピング測定より短時間で同様のマッピング測定結果を得られることがわかつた。

Siは間接遷移半導体であり、発光強度が小さくPL測定が容易ではないために時間を要する。LH-PD法は、発光を観測しにくい間接遷移半導体の計測に特に有用だと考えられる。

参考文献

- 1) 経済産業省: 半導体戦略 ,
<https://www.meti.go.jp/press/2021/06/20210604008/20210603008-4.pdf> (2025/01/14閲覧).
- 2) ルネサスエレクトロニクス株式会社,
<https://www.renesas.com/ja/support/technical-resources/packaging/characteristic/heat-dissipation> (2025/01/14閲覧).

- 3) DNP 大日本印刷株式会社,
https://www.dnp.co.jp/biz/column/detail/20172315_4969.html (2025/01/14 閲覧).
- 4) T. Ikari and A. Fukuyama: Progress in Photothermal and Photoacoustic Science and Technology, Semiconductors and Electronic Materials, edited by A. Mandelis, (SPIE, Bellingham, WA, 2000), p.145.
- 5) T. Harada, T. Ikari and A. Fukuyama: Development of laser heterodyne photothermal displacement method for mapping carrier nonradiative recombination centers in semiconductors., J. Appl. Phys. Vol. 131, 195701, 2022.
- 6) 栗田 一成: シリコンウェーハのゲッタリング技術の進展, 応用物理. 第 84 卷, 第 7 号, pp.628-633, 2015.
- 7) S.M. Sze: Physics of Semiconductor Devices, 2nd Edition. (John Wiley & Sons, 1981), p852.
- 8) S.M. Sze: Semiconductor devices physics and technology, 2nd Edition. (John Wiley & Sons, 2002), p538.
- 9) S. Binetti, S. Pizzini, E. Leoni, R. Somaschini, A. Castaldini and A. Cavallini: Optical properties of oxygen precipitates and dislocations in silicon., J. Appl. Phys. Vol. 92,2437, 2002.
- 10) R. F. COOK: Strength and sharp contact fracture of silicon., J. Mater Sci. Vol. 41, pp.841-872, 2006.
- 11) M. Abdelhamid and M. Omar: Review of Microcrack Detection Techniques for Silicon Solar Cells., IEEE Journal of photovoltaics. Vol. 4, pp.514-524,2014.
- 12) P. K. Kulshreshtha, Y. Yoon, K. M. Youssef, E. A. Good and G. Rozgonyi: Oxygen Precipitation Related Stress-Modified Crack Propagation in High Growth Rate Czochralski Silicon Wafers., Journal of The Electrochemical Society. Vol. 159(2), pp. H125-H129, 2012.

光ヘテロダイン光熱変位法を用いた マイクロホールおよびピラーの熱物性評価

岩切 孝洋^{a)}・原田 知季^{b)}・石井 智^{c)}・碇 哲雄^{d)}・福山 敦彦^{e)}

Evaluation of Thermophysical Properties of Micro-Holes and Micro-Pillars by Laser Heterodyne Photothermal Displacement Method

Takahiro IWAKIRI, Tomoki HARADA, Satoshi ISHII, Tetsuo IKARI, Atsuhiro FUKUYAMA

Abstract

Fabricating high photothermal heating efficiency microstructures will contribute significantly to solving energy problems. The temperature increase due to photothermal heating depends on the optical absorption and thermal conductivity of the material. Our previous studies have focused on increasing optical absorption using microstructures, but it is also important to reduce thermal conductivity to increase photothermal heating efficiency. In this study, hole-array (Holes) and pillar-array (Pillars) were fabricated to control optical absorption and thermal conductivity simultaneously, and their structural effects on photothermal heating efficiency were investigated using a laser heterodyne photothermal displacement (LH-PD) method. The observed displacements of the Holes and the Pillars were larger than that of Si. Furthermore, the maximum displacement of the Holes was larger than that of the Pillars. This is because the effective thermal conductivity and the effective optical absorption are larger for the Holes. The fabrication of our proposed microstructures can provide higher photothermal heating performance.

Keywords: photothermal heating, silicon, microstructure, LH-PD method

1. はじめに

太陽光は再生可能エネルギーの中でも地域を選ばず利用可能で枯渇することのない有望なエネルギー源として注目されており、太陽光のエネルギーを電気エネルギーに変換する太陽光発電が盛んに行われている。一方、図1に示す2022年度の世帯当たりの用途別エネルギー消費¹⁾から、暖房や給湯などの熱を用いたエネルギー消費が半分以上を占めていることが分かる。太陽光発電で多く用いられている単接合Si太陽電池の最大変換効率は理論上26.1%²⁾であるが、市販されている太陽電池の変換効率は15%程度しかなく、エネルギー供給が不足する。そこで、太陽光のエネルギーを直接熱エネルギーに変換する光熱変換が注目されている。古くから市販されている太陽熱温水器では、変換効率約50%³⁾を達成しており、太陽光のエネルギーを効率よく熱エネルギーに変換することが可能である。このように光加熱効率の向上はエネルギー問題の解決に大きく貢献する。我々は、光加熱効率の高い材料を微細構造により実現させることを目指している。ここで、光加熱による温度上昇はその物質の光吸収率と熱伝導率に依存する。具体的にはより高い光吸収率とよ

a) 工学専攻 エネルギー系コース 大学院生

b) 応用物理工学プログラム 特別助教

c) NIMS ナノアーキテクトニクス材料研究 チームリーダー

d) 応用物理工学プログラム担当 特任教授

e) 応用物理工学プログラム担当 教授

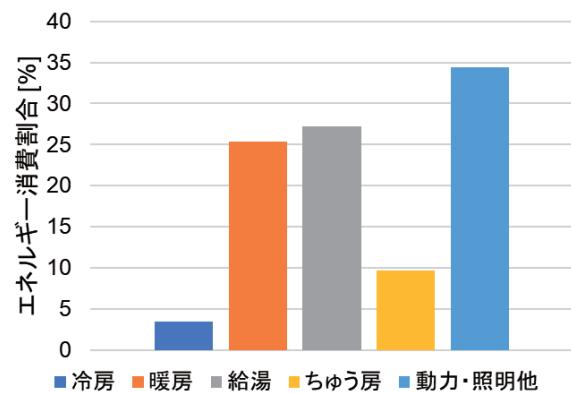


図1. 2022年度の世帯当たりの用途別エネルギー消費¹⁾

り小さい熱伝導率をもつ材料が望ましい。これまでの研究では光吸収率を高めることに注目されてきたが、小さい熱伝導率を実現することも重要である。近年我々は、Si基板上に微細構造として穴状(hole)を周期的に並べたhole arrayと柱状(pillar)を周期的に並べたpillar arrayを作製し、holeやpillarの幅や作製周期を制御することで、光吸収率と熱伝導率を同時に制御しうることを明らかにした⁴⁾。我々はまた、半導体材料の新たな光学的・熱的評価手法として光ヘテロダイン光熱変位(Laser heterodyne photothermal displacement: LH-PD)法⁵⁾を開発した。同法は、断続化した励起光照射によって生じたキャリアの非発光再結合による試料表面の熱膨張変位を高感度に測定

する手法である。検出された表面変位量には、キャリアの生成と拡散および再結合、非発光再結合によって放出された熱の拡散などの物理的現象の情報が含まれる。また検出光と励起光の照射位置を個別に変化させることで熱の面内方向の拡散の評価も可能である。本研究では、hole と pillar の光加熱効率を LH-PD 法により明らかにすることを目的とする。

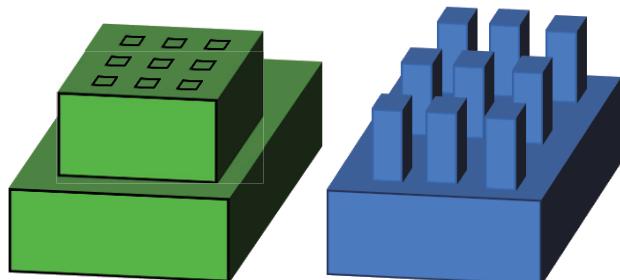
2. 試料詳細および実験方法

2.1 試料詳細

本研究では、Si 基板上にマイクロメートルオーダーの微細構造を、電子ビームリソグラフィーとドライエッチングにより周期や高さを変化させて作製した⁴⁾。図 2 に試料の概略図を示す。ここで、 $w(\text{hole})$ や $w(\text{pillar})$ は hole や pillar の幅、 p はそれらが作製される周期、 h は高さである。表 1 にそれぞれの大きさを示す。

表 1. hole と pillar の寸法

	p [μm]	$w(\text{hole}), w(\text{pillar})$ [μm]	h [μm]
hole	1.0	0.70	3.6
pillar	0.6	0.32	0.15, 3.6
	1.0	0.51	3.6



(a) hole

(b) pillar

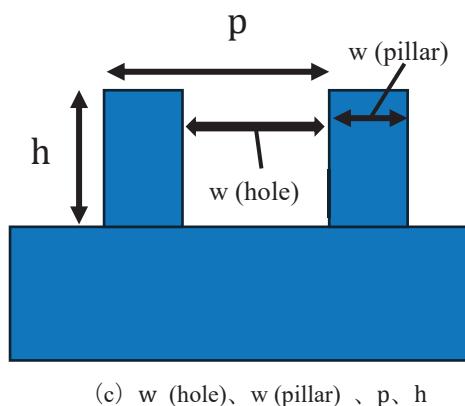


図 2. (a) hole と (b) pillar の鳥瞰図と (c) 断面図

2.2 実験方法

図 3 に LH-PD 法の実験装置概略図を示す。同法では、検出光に He-Ne レーザー (632.8 nm) を用い、無偏光ビームスプリッタ (NBS) によって 2 つに分割し、音響光学素子 (AOM) によって周波数をシフトさせた。片方は周波数 f_1 の参照光として検出器前の偏光ビームスプリッタ (PBS) に直接入射する。もう一方は周波数 f_2 のプローブ光として試料表面で反射した後に PBS に入射する。参照光とプローブ光が合流して周波数 $f_b (= |f_1 - f_2|)$ のビート波を形成し、検出器である光電子増倍管 (PMT) で電気信号に変換される。励起光には半導体レーザー (808 nm) を用い、断続化させて試料表面に照射した。断続化した励起光照射によって試料表面が膨張と収縮を繰り返すため、検出光の光路差が変化し、その結果ビート波の位相が変化する。このビート波の位相変化から表面変位量を算出した。

図 4 に励起光と検出光の照射位置を示す。励起光を微細構造 (hole array および pillar array) の中心に、検出光を微細構造の外側である Si 基板に照射した。検出光と励起光の照射位置は 80 μm 離して測定した。また、比較のために Si 基板上で検出光と励起光を 80 μm 離した測定も行った。測定は全て室温で行った。

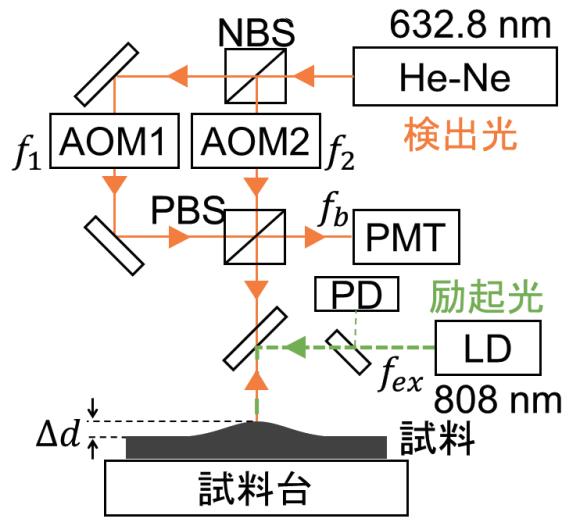


図 3. 実験装置概略図

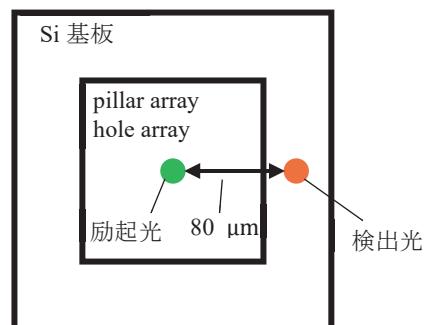


図 4. 励起光と検出光の照射位置

3. 理論計算

本研究では、Comsol Multiphysics を用いた直交座標での理論計算を行い、実験を再現した。まず、以下の式(1)のキャリア(電子)の連続の方程式⁶⁾を解くことで励起光照射によるキャリアの分布を再現した。

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D \left(\frac{\partial^2 n}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 n}{\partial z^2} \right) - v_{SR} n - \frac{n}{\tau} \quad (1)$$

$$+ \frac{\alpha I_0(x, y, t)}{hv} \exp(-\alpha z)$$

ここで D : 電子の拡散定数、 n : 電子濃度、 n_0 : 初期の電子濃度、 τ : 電子寿命、 α : 光吸収係数、 $I_0(x, y, t)$: 時間変化とガウス分布を含む試料表面に照射される励起光強度、 h : プランク定数、 v : 光子の振動数、 v_{SR} : 表面再結合速度である。 n は $n(x, y, z, t)$ を表している。また、右辺の第1項は電子の拡散、第2項は表面再結合、第3項は電子の再結合、第4項は電子の生成を表している。なお、第2項の表面再結合は pillar や hole を構成する Si と大気との境界面に於ける再結合であり、今回は試料表面の境界条件として計算した。

次に、得られた電子の分布から以下の式(2)で表される熱源 Q を算出した。

$$Q = Q_D + Q_{NRR} + Q_{SR} \quad (2)$$

ここで、 Q_D は伝導帯に励起された電子が瞬間にバンド内緩和するときの発熱で、以下の式(3)で表される。

$$Q_D = \frac{\alpha(hv - E_g)}{hv} I_0(x, y, t) \exp(-\alpha z) \quad (3)$$

E_g はバンドギャップを表しており、 E_g より高いエネルギー状態に励起された光励起電子が伝導帯下端まで緩和する際に発生する熱源である。右辺の第2項 Q_{NRR} はバルクの非発光再結合による発熱で、以下の式(4)で表される。

$$Q_{NRR} = \frac{E_g}{\tau} n \quad (4)$$

これは、伝導帯下端へ緩和した電子が拡散し、価電子帶中の正孔と非発光再結合する際に発生する熱源である。なお、本研究では電子と正孔の再結合は全て非発光的に生じるとして計算した。右辺の第3項の Q_{SR} は表面再結合による発熱で、以下の式(5)で表される。

$$Q_{SR} = E_g v_{SR} n \quad (5)$$

これは、表面準位を介して再結合する際に発生する熱源であり、今回の計算では境界条件として試料表面(構成材料である Si と大気との境界面)でのみ生じるとして計算した。

次に、以下の式(6)の熱伝導方程式を解くことで温度分布を再現した。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\kappa}{\rho c} \left(\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} \right) + \frac{Q}{\rho c} \quad (6)$$

ここで、 ρ : 密度、 c : 比熱、 κ : 热伝導率、 T : 温度である。 T と Q は共に四次元変数であり、それぞれ $T(x, y, z, t)$ 、 $Q(x, y, z, t)$ で表せる。温度分布を算出後、弾性方程式を解くことで変位量を算出した。

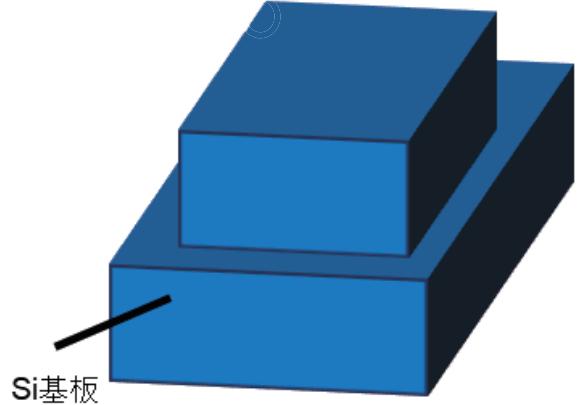


図 5. 計算モデル

図 5 に計算のモデルを示す。実際の pillar や hole の構造を用いて理論計算を実施すると、計算量が膨大になり、多くの時間を要するため、Si 基板上の hole array や pillar array を一様な物体と仮定して計算を行った。その際、実効的熱伝導率や光吸収率を変化させて hole や pillar の特性を再現した。hole の実効的熱伝導率⁴⁾は式(7)、pillar の実効的熱伝導率⁴⁾は式(8)で表される。

$$K_{xy} = \frac{1 - \left(\frac{w(\text{hole})}{p} \right)^2}{1 + \left(\frac{w(\text{hole})}{p} \right)^2} K_{Si} \quad (7)$$

$$K_z = \left(1 - \left(\frac{w(\text{hole})}{p} \right)^2 \right) K_{Si}$$

$$K_{xy} = \frac{1 + \left(\frac{w(\text{pillar})}{p} \right)^2}{1 - \left(\frac{w(\text{pillar})}{p} \right)^2} K_{air} \quad (8)$$

$$K_z = \left(\frac{w(\text{pillar})}{p} \right)^2 K_{Si}$$

ここで、 K_{xy} は x 方向と y 方向の実効的熱伝導率、 K_z は z 方向の実効的熱伝導率を表している。また、光吸収率は電磁波シミュレーション結果⁴⁾から hole や pillar の p、w(hole)、w(pillar) を用いて算出した。このシミュレーションでは本研究の励起光波長などが異なるが、励起光波長を変化させた実験を実施しており、その結果どの波長でも非常に高い光吸収率を示した⁴⁾。よって、光吸収率はシミュレーション結果とほとんど変わらないと仮定し、今回の計算を行った。

4. 実験結果・考察

図6に微細構造間隔 $p = 1.0 \mu\text{m}$ の hole (○) と pillar (□) に励起光を照射した場合、Si 基板に励起光を照射した場合 (×) の表面変位量の時間変化を示す。励起光照射開始に伴い変位量が増加し、励起光照射終了とともに変位量が減少した。図から、微細構造に励起光を照射した場合は Si 基板に照射した場合より、どの時間でも変位量が大きく、また hole の方が、変位量が大きいことが分かった。全ての場合において検出光を Si 基板上に照射していることから、微細構造の光学的および熱的特性の変化が関係していると考えられる。表2に hole と pillar、Si 基板の実効的熱伝導率と光吸収率^{4,7,8)}を示す。

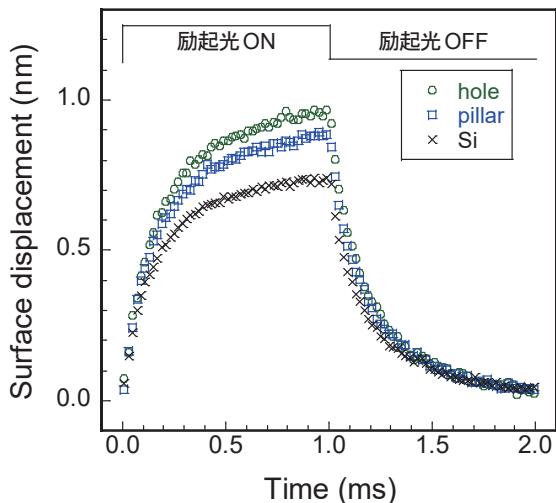


図6. hole と pillar の表面変位量の時間変化図

表2. hole と pillar、Si 基板の
実効的熱伝導率と光吸収率^{4,7,8)}

	(K_{xy}, K_z) [W/m · K]	光吸収率 [%]
hole	(43.1, 65.5)	97
pillar	(0.045, 34.5)	95
Si 基板	(131, 131)	68

図7に表2の値と実験で得られた変位量最大値 (D_{\max} , $t = 1.0 \text{ ms}$ における変位量) の相関関係を示す。図7(a)から、 D_{\max} は光吸収率と相関があることが確認された。一方、図7(b)と7(c)から、実効的熱伝導率と D_{\max} との間に相関がないことが分かった。実効的熱伝導率は微細構造の形に依存する。つまり、hole と hole、pillar と pillar の間には大気が存在するためこれが断熱層として働く結果、例えば pillar の xy 方向の値 ($K_{xy} = 0.045$) のように隣接する pillar への熱伝播がほとんど無い。それにも関わらず図6のように大きな変位量を示したのは、pillar の励起光照射面付近で生じた熱のほとんどが pillar 内を z 軸方向に伝搬し、下部にある Si 基板へ伝わったためと考えられる。実際、pillar の z 方向の実効的熱伝導率は Si の値の半

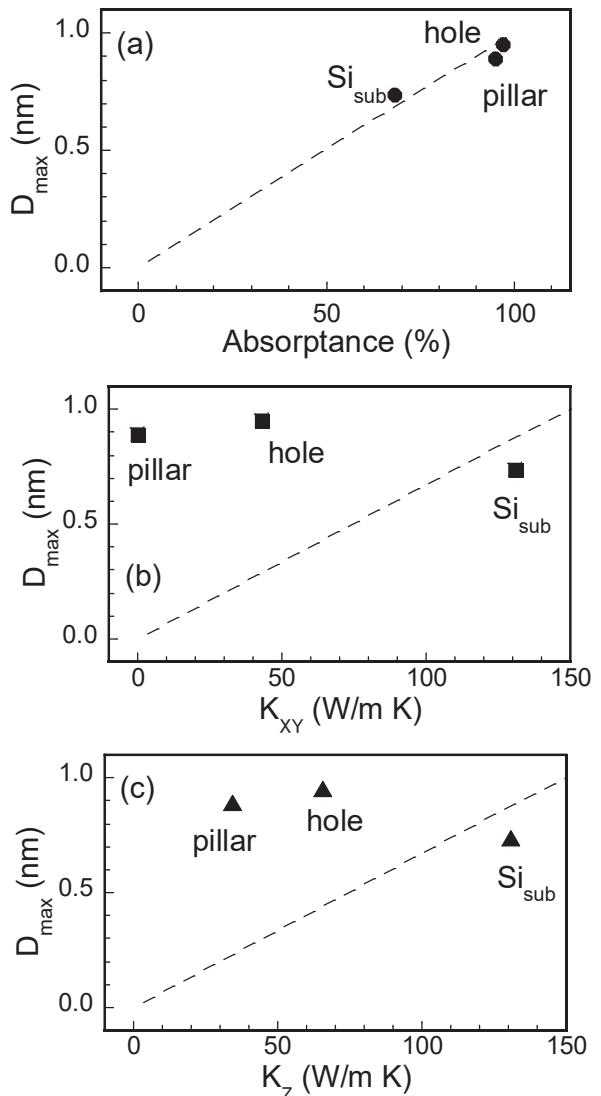


図7.(a) 光吸収率、(b) K_{xy} 、(c) K_z と実験で得られた変位量最大値 (D_{\max}) の相関関係

分以下であったが、本測定条件から算出される熱拡散長 ($\mu = \text{約 } 116 \mu\text{m}$) は pillar の高さ ($h = 3.6 \mu\text{m}$) より十分長い。その結果、試料の K_z の変化に影響を受けることなく、ほぼ同程度の変位量最大値を示したと理解できる。また、hole の変位量最大値が最も大きかったのは、表2に示したように光吸収率が最も大きく且つ実効的熱伝導率 (K_{xy} と K_z) も最も大きかったために、Si 基板の膨張が最大になったためである。

図8に pillar の高さ h のみを変化させた試料の変位量の時間変化を示す。比較として励起光と検出光の両方に Si 基板上に照射した場合の時間変化も示した。図から明らかのように、 h が大きい試料の方が大きな変位量最大値を示した。 h が大きいと pillar 上部の励起光照射面付近で発生した熱が pillar 下方へ伝搬する距離が長くなるため、Si 基板へ伝わる熱量が減ると予想した。しかしながら本実験結果は逆の結果であった。この原因として、光照射で形成されたキャリアが再結合する場所が関係して

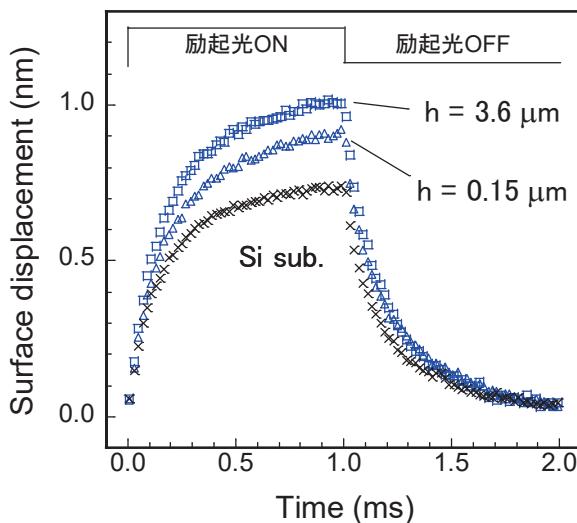


図 8. pillar の高さを変化させた試料の時間変化

いると考えられる。つまり光形成キャリアは pillar 表面 (Si と大気の境界面) に於ける表面再結合によって熱を放出するか、再結合せずに Si 基板まで拡散して基板内で非発光再結合すると考えられる。この場合、 h が大きい構造では大気と接している試料表面が多くなるため、光形成キャリアの多くが表面再結合で消失する。結果的に発熱量が増加する結果、変位量最大値が大きくなつたと解釈できる。そこで h がどの程度光加熱効率に影響を与えるのか理論計算により検証した。

図 9 に理論計算結果を示す。この計算は図 5 に示した Si 基板上の物体の高さ h を変化させて計算した結果である。この時、物体の熱伝導率と光吸収率は Si あるいは pillar の数値をそれぞれ用いた。pillar と Si の両方の場合で h が大きいほど変位量最大値が大きくなつた。今回の計算で大きく変化した物性パラメータは物体の表面積のみであり、光形成キャリアの拡散も考慮されている。従つて、光形成キャリアが表面再結合で消失する際に放出する熱量が多くなつたことで、図 8 のように pillar の h が大きい構造の方が、変位量が大きくなつたと結論付けた。

5. 結論

本研究では、Si 基板上に作製した微細構造 (hole array と pillar array) の光加熱効率を、非発光再結合で放出される熱で引き起こされる表面変位量を LH-PD 法により高感度検出することで議論した。

hole array と pillar array の変位量を比較したところ、変位量最大値 (D_{max}) は試料の光吸収率と相関があったが、実効的熱伝導率とは相関がないことが分かった。これは本測定条件から推測される熱拡散長が hole や pillar の高さより十分長かったため、試料の Z 軸方向の実効的熱伝導率 (K_z) の変化に影響を受けることなく、ほぼ同程度

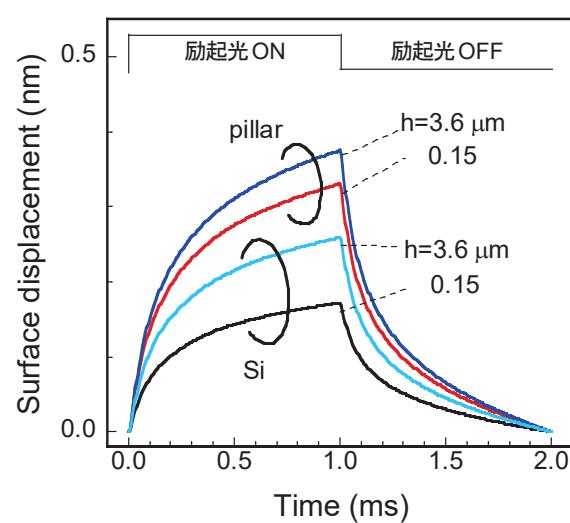


図 9. pillar の高さを変化させた時の理論計算結果

の変位量最大値になったと考えられる。また、hole array の変位量最大値が最も大きくなつた。これは、光吸収率が最も大きく、且つ実効的熱伝導率 (K_{xy} と K_z) も最も大きかつたために Si 基板の加熱が最大になつたためだと考えられる。

pillar array の高さ h を変化させた実験では、pillar の h が大きいほど変位量最大値が大きくなつた。これは光照射で形成されたキャリアが拡散し、非発光再結合する場所が関係していた。つまり h が大きいほど大気と pillar が接している表面積が多くなり、結果として表面再結合による発熱量が増加したためだと考えられる。Si 基板上の物体の高さ h を変化させた理論計算からも h が大きいほど変位量最大値が大きくなることが分かった。ただし、 $h = 0.15 \mu m$ の pillar の方が $h = 3.6 \mu m$ の Si よりも変位量最大値が大きくなつたことから、微細構造の高さよりも、その光吸収率や実効的熱伝導率の方が光加熱効率に大きな影響を与えることがわかつた。

参考文献

- 1) 経済産業省: エネルギー白書 2023 , https://www.enecho.meti.go.jp/about/whitepaper/2023/pdf/2_1.pdf (2024/12/03 閲覧).
- 2) NREL, Best Research-Cell Efficiencies. <https://www.nrel.gov/pv/cell-efficiency.html/> (2024/12/03 閲覧).
- 3) 国立研究開発法人科学技術振興機構, <https://www.jst.go.jp/pr/announce/20160125/index.html> (2024/12/03 閲覧).
- 4) S. Ishii, N. K. Tanjaya, E. Shkondin, S. Murai and O. Takayama: Optical absorption and heat conduction control in high aspect ratio silicon nanostructures for photothermal heating applications., Applied Materials Today. Vol. 32, 101824, 2023.

- 5) T. Harada, T. Ikari and A. Fukuyama: Development of laser heterodyne photothermal displacement method for mapping carrier nonradiative recombination centers in semiconductors., *J. Appl. Phys.* Vol. 131, 195701, 2022.
- 6) A. P. Neto, H. Vargas, N. F. Leite and L. C. M. Miranda: Photoacoustic investigation of semiconductors: Influence of carrier diffusion and recombination in PbTe and Si., *Phys. Rev. B*. Vol. 40, 3924, 1989.
- 7) S.M. Sze: *Semiconductor devices physics and technology*, 2nd Edition. (John Wiley & Sons, 2002), p538.
- 8) C. Wu, C. H. Crouch, J. E. Carey, R. Younkin, J. A. Levinson, E. Mazur, R. M. Farrell, P. Gothskar and A. Karger: Near-unity below-band-gap absorption by microstructured silicon, *Appl. Phys. Lett.* Vol 78, pp 1850-1852, 2001.

電圧印加下での光ヘテロダイン光熱変位測定による Si ナノピラー /SiGe 複合膜のキャリア再結合

宇野 巧人^{a)}・原田 知季^{b)}・大堀 大介^{c)}・遠藤 和彦^{d)}・寒川 誠二^{e, f)}・
碇 哲雄^{g)}・福山 敦彦^{h)}

Carrier Recombination in Si-Nanopillar/SiGe Composite Films by Laser Heterodyne Photothermal Displacement Measurements under Applied Voltage

Yoshito UNO, Tomoki HARADA, Daisuke OHORI, Kazuhiko ENDO, Seiji SAMUKAWA, Tetsuo IKARI,
Atsuhiko FUKUYAMA

Abstract

Thermal control of semiconductor devices is becoming more important as the number of integrated elements increases. Temperature rise in the channel region of metal-oxide-semiconductor field-effect transistor (MOSFET) reduces the electron mobility (μ) and adversely affects the reliability of semiconductor devices. The silicon-nanopillar (Si-NP) array structure can suppress phonon diffusion without hindering electron transport because of its nano-structural peculiarity. However, carrier mobility in Si-NP/SiGe composite films was difficult to measure using conventional electrical. We established a laser heterodyne photothermal displacement (LH-PD) method and observed the effect of carrier behavior on the LH-PD signals with the applied voltage. The amount of displacement increased when voltage was applied, and the ratio of increase was smaller for the distance between the sidewalls of each NP (NP spacing) was of 27, 13, and 47 nm in that order. The reason for the smallest rate of displacement increases when the NP spacing of the Si-NP/SiGe composite film is 27 was presumed to be due to the low frequency of recombination, due to the long carrier lifetime, which causes carriers to move more easily and contribute less to nonradiative recombination.

Keywords: Carrier Recombination, Si-nanopillar, Non-contact method, Non-destructive method

1. はじめに

2016 年 4 月に政府が策定した Society 5.0¹⁾ で実現する社会は、モノのインターネット化 (Internet of Things: IoT) で全ての人とモノがつながり、様々な知識や情報が共有され、人工知能 (AI) により必要な情報が必要な時に提供されるスマート社会である。このような IoT 社会の発展の重要な基幹を構成しているのが半導体であり、今や身の回りにある多くの電子機器に用いられている。さらに、近年の新型コロナウイルスの流行を契機としたデジタル化やそれに伴うインフラ整備の加速によって、半導体関連の需要が高まっている²⁾。特に、半導体の微細化が進むことで、処理能力やエネルギー効率が飛躍的に向上しており、Society 5.0 を支える基盤技術として、その重要性はますます増加している。

半導体の微細化技術の進歩により集積度が増加することに伴い、半導体デバイスの熱制御の重要性が高まっている。例えば、スイッチング動作や信号增幅の役割を担う金属-酸化膜-半導体構造を利用した電界効果トランジスタ (MOS-FET) では、チャネル領域を通過する電子はチャネル-ドレイン界面付近でジュール熱を引き起こす (図 1(a))。この結果としてチャネル領域の温度が上昇し電子移動度が低下、更には半導体デバイスの信頼性も低下させる。これらの発熱と電子移動度の低下の問題は、フォノンと電子の平均自由行程の差に着目したナノ構造によって解決できる可能性がある。

フォノンと電子の平均自由行程はそれぞれ 100 nm 以上と 20 nm 以下である。すなわち、数 10 nm のサイズのナノ構造は、電子の移動には影響を及ぼさず（電子移動度を維持したまま）フォノンの伝搬のみを妨げられる可能性がある。具体的には、図 1(b)のように MOS-FET のチャネル領域にナノ構造を挿入することで、チャネルとドレインの境界付近で生じたフォノンがチャネル領域に伝搬せず、チャネル領域での温度上昇を抑制しつつ高い移動度を維持できる可能性がある。そこでこのような性質を持つ事が期待される材料として、Si ナノピラー (Si-NP) /SiGe 複合膜を作成した。この複合膜の MOS-FET の応用

a) 工学専攻 エネルギー系コース 大学院生

b) 応用物理工学プログラム担当 特別助教

c) 東北大学 流体科学研究所 助教

d) 東北大学 流体科学研究所 教授

e) 台湾陽明交通大学 教授

f) 東北大学 特任教授

g) 応用物理工学プログラム担当 特任教授

h) 応用物理工学プログラム担当 教授

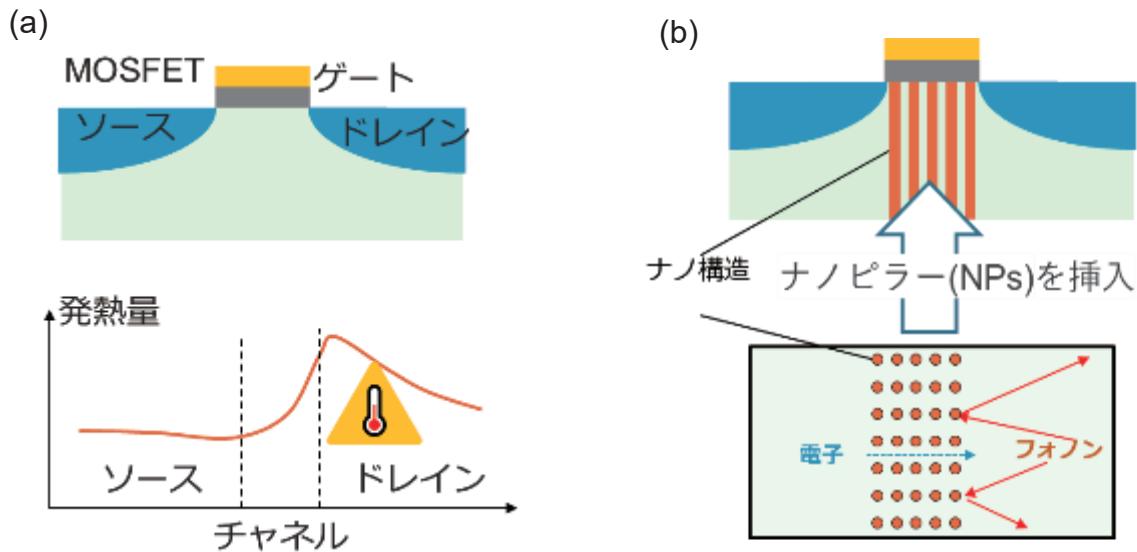


図1 (a) MOS-FETに於ける熱の発生場所と(b)ナノ構造による熱制御

には熱伝導率と電気伝導率に関わるキャリア移動度やキャリア寿命が重要である。このうちNP間隔（各NPの側壁間の距離）と熱伝導率の異方性の関係は 3ω 法を用いて議論した³⁾。その結果、NPがフォノンの伝搬を妨げるため、NP間隔を狭くすると熱伝導率が低下することが確認された。しかし、Si-NP/SiGe複合膜は不純物を添加していないために高い比抵抗を持ち、キャリア移動度やキャリア寿命といったキャリア物性については適切な評価が難しく、これまでにこの様な方法は存在しない。

我々は、非破壊・非接触で発熱による熱膨張変位を測定可能な光ヘテロダイン光熱変位（Laser heterodyne photothermal displacement: LH-PD）法を新たに開発した⁴⁾。検出される変位量には、キャリアの生成と拡散、再結合や熱の拡散などの物理的現象の情報が含まれる。したがって、これらの物理パラメータは、実験と理論計算を比較して議論することができる。これまでの研究では、NP間隔による変位量の時間変化と理論計算とのフィッティングから、Si-NP/SiGe複合膜のNP間隔が27 nmの場合にキャリア寿命が最も長いことを報告した⁵⁾。しかしながら、電子移動度については得られた実験データおよび

理論計算から算出するまでには至らなかった。そこで電子移動度を算出するために、新たにキャリアの拡散方向に沿って試料に電圧を印加しながら LH-PD 測定を実施した。光励起されたキャリアは電界により電極に向かってドリフトするため、電子移動度に応じて観測される変位量に影響を与える可能性があり、理論計算との比較から電子移動度を算出できる可能性が高い。そこで本研究では、電圧印加した LH-PD 測定により Si-NP/SiGe 複合膜の NP 間隔によるキャリアの振る舞いを評価することを目的とする。

2. 試料詳細および実験方法

2.1 試料詳細

Si-NP/SiGe複合膜を、SOI基板に対して以下に記述するバイオテンプレート極限加工技術を用いて Si-NP を作製した。用意した SOI 基板は Si/SiO₂/Si 層それぞれの厚さが 0.1、0.14、725 μm であった。初めに、SOI 基板の Si 表面の酸化膜を、弗酸を用いて除去した後に中性子ビーム酸化を用いて SiO₂薄膜を形成した。次に、ポリエチレ

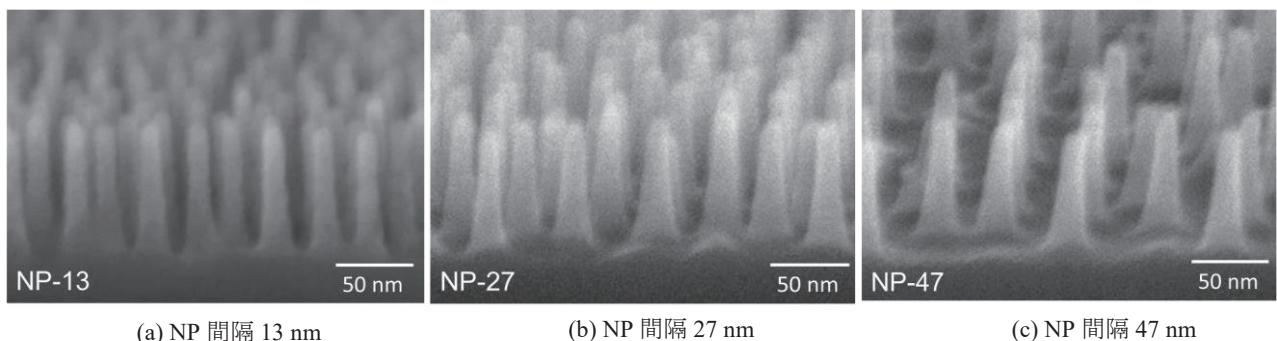


図2. SiGeで埋め込む前のSi-NPの電子顕微鏡像

ングリコール (PEG) によって修飾されたフェリチンを SiO_2 薄膜上にスピンドルコートによって均一に塗布した。フェリチンは直径 10 nm 程度の鉄を内包するタンパク質であり、修飾した PEG によりフェリチン同士の間隔は均一になる。熱処理によってフェリチンを除去することで規則正しく配列した鉄のみが残る。これをマスクとして用い、中性粒子ビームエッティングによって NP を作製した。PEG の分子量によってフェリチン間の距離が変化するため、NP 間隔を制御して作製できる。PEG の分子量が 2000、10000、および 20000 の場合、NP 側の障壁間隔の距離は 13、27、および 47 nm であり、NP 同士の中心間距離は 25、40 及び 60 nm であった。その後、マスクとして用いた鉄は塩酸によって除去した。本研究では、直径 13 nm で NP 間隔が 13、27、および 47 nm の NP 試料を作製した。図 2 に走査電子顕微鏡によって観測された NP の鳥瞰図を示す。最後に NP 間を低圧化学気相成長法によって SiGe で埋め込むことで Si-NP/SiGe 複合膜を作成した。複合膜の厚さは 100 nm であった。以下、これらの複合膜を NP-13、27、および 47 とする。

2.2 実験方法

LH-PD 測定装置の概略図を図 3 に示す。干渉計用の検出光に He-Ne レーザー (632.8 nm) を用いた。無偏光ビームスプリッタで検出光を 2 つに分割した後に音響光学素子によって周波数をそれぞれシフトさせた。片方は周波数 f_1 の参照光であり、もう一方は周波数 f_2 の測定光として試料表面で反射させる。参照光と測定光が重なり合うことで周波数 $f_b (= |f_1 - f_2|)$ のビート波を形成し、検出器である光電子増倍管で電気信号に変換される。励起光には半導体レーザー (808 nm) を用い、断続化させて試料に照射した。励起光照射によって試料表面が膨張と収縮を繰り返すため、検出光の光路差が変化し、その結果ビート波の位相が変化する。このビート波の位相変

化から変位量を算出した。励起光と検出光の直径はそれぞれ 7.8 と 5.4 μm であった。全ての測定は室温で行った。

実験条件の概略図を図 4 に示す。キャリア物性について解析するために、Al を電極として試料表面の両端に蒸着し、0~5 V の電圧を印加した。光励起キャリアは電界によってドリフトする。ドリフトしたキャリアの非発光再結合により発生する熱源の分布は、印加電界の大きさに依存する。したがって、電圧印加によって観測される変位が変化する可能性がある。本研究では電界が印加された状況下でのキャリアの振る舞いに関する情報を得ることを目的として、励起光照射位置を試料中心に固定し、検出光照射位置をアノード電極側に 15 μm 移動させた。また前述したように、Si-NP/SiGe 複合膜の厚さは SiO_2 、Si と比べて薄い。そのため、Si-NP/SiGe 複合膜の物性の情報を得るために、励起光の断続周波数 f_{ex} は 7000 Hz に設定し熱拡散長は 8 μm 程度と予測した。断面 SEM によって観察された Al 電極の厚さは 150 μm であった。

3. 理論計算

前述した LH-PD 法によって観測される変位量を再現するために、以下の電界、キャリアの連続方程式、熱伝導方程式、および熱弾性方程式を用いた。

(1)式に電圧印加によって形成される電界の強さを示す。

$$\mathbf{E} = \nabla V \quad (2)$$

ここで、ベクトル \mathbf{E} は電界の強さ、 V は印加電圧である。この電界の分布は、後述するキャリアの連続の方程式に直接的な影響を与える。

キャリアの連続方程式を(2)式に示す。

$$\frac{\partial n}{\partial t} = D(\nabla^2 n) - \frac{n}{\tau} - v_{SR}n + \mu \mathbf{E} \cdot \nabla n + \frac{\alpha I_0(x, y, t)}{hv} \exp(-\alpha z) \quad (2)$$

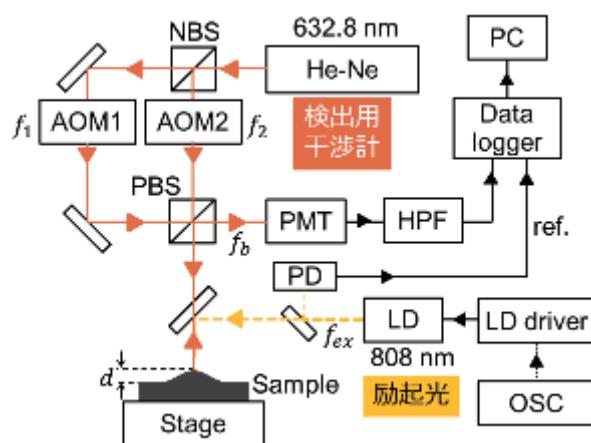


図 3. LH-PD 測定装置概略図

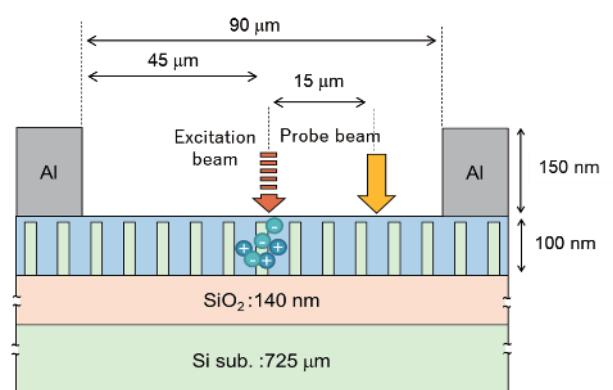


図 4. 測定条件概略図

ここで、 n はキャリア密度、 D はキャリアの拡散定数、 τ はキャリア寿命、 α は光吸収係数、 $I_0(x, y, t)$ は時間変化とガウス分布を含む試料表面に照射される励起光強度、 h はプランク定数、 ν は光子の振動数、 v_{SR} は表面再結合速度、 μ はキャリア移動度である。なお、 n は $n(x, y, z, t)$ を省略して表記したものである。右辺第1項はキャリアの拡散、第2項はキャリアの再結合、第3項は、表面再結合、第4項は電界によるキャリアのドリフト、第5項は光吸収による励起キャリアの生成を意味する。電子と正孔についてキャリアの連続方程式を解くことでそれぞれのキャリア密度の分布を得た。

熱伝導方程式は、キャリアの連続の方程式で算出されたキャリア密度の分布に基づく発熱量 Q を熱源として解いた。熱伝導方程式を(3)式に示す。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\kappa}{\rho c} \nabla^2 T + \frac{Q}{\rho c} \quad (3)$$

ここで、 T は温度、 κ は熱伝導率、 ρ は密度、 c は比熱である。なお、 T と Q はそれぞれ $T(x, y, z, t)$ と $Q(x, y, z, t)$ を省略して表記したものである。 Q には、以下のバンド内再結合による発熱 Q_D 、バンド間の非発光再結合による発熱 Q_{NRR} 、及び表面再結合による発熱 Q_{SR} の3つが含まれる。 Q_{NRR} 及び Q_{SR} は電子と正孔それぞれの寄与を考慮し発熱量を計算した。また、計算し Q_D を含めたすべての熱源の和を発熱量 Q として熱伝導方程式を解いた。

$$Q = Q_D + Q_{NRR} + Q_{SR} \quad (4)$$

Q_D 、 Q_{NRR} 及び Q_{SR} は以下の式で表される。

$$Q_D = \frac{\alpha(h\nu - E_g)}{h\nu} I_0(x, y, t) \exp(-\alpha z) \quad (5)$$

ここで、 E_g はバンドギャップである。 Q_D は、 E_g より高いエネルギー状態に励起された光励起電子が伝導帯下端へバンド内緩和する際に発生する熱源である。

$$Q_{NRR} = \frac{E_g}{\tau} n \quad (6)$$

Q_{NRR} は、電子が拡散した後に価電子帯中の正孔と非発光再結合する際に発生する熱源である。なお、本研究では電子と正孔の再結合は全て非発光再結合であるとして計算した。

$$Q_{SR} = E_g v_{SR} n \quad (7)$$

Q_{SR} は、表面準位を介して再結合する際に発生する熱源であり、境界条件として試料の表面でのみ計算した。温度分布を算出後、弾性方程式を解くことで変位量を算出した。理論計算は COMSOL Multiphysics®^⑥を用いて3次元直交座標系で計算した。複合膜内に存在するNPの形状を全て考慮した計算は膨大な時間が予想されるため平均化された物性値を持つ1つの複合膜として扱った。Si-

NP/SiGe複合膜の物性値はSiGeの文献値^⑦を用いた。これは、複合膜の体積のほとんどがSiGeのためである。

3. 実験結果および考察

図5に電界印加下で行ったLH-PD測定結果をプロットで示す。縦軸は観測された変位量、横軸は時間を示す。青がNP-13、赤がNP-27、緑がNP-47の変位量を表している。全てのNP試料において、電圧を印加した場合の変位は、電界を印加しない場合の変位よりも大きくなった。電界の有無による変位の増加割合は、NP-47、NP-13、NP-27の順に大きくなかった。

図6に電界の有無による電子密度分布の計算結果を示す。電界が無い場合、電子は励起光照射位置から対称的に分布している(図6(a))。一方で、電圧を1V印加した場合、電子が電極方向へ移動する様子が確認された(図6(b))。これは、電界によりキャリアがドリフトするためである。電界が大きいほど多くの光励起キャリアが検出光照射位置まで移動する。図5の電界印加による変位量の増加は、電界により検出光照射位置付近まで移動した光励起キャリアの非発光再結合による発熱が寄与していることが推察される。

図5に、実験結果の変位量最大値($t = 27.5 \mu s$)が一致するように理論計算結果をフィッティングさせた結果を実線と点線で示す。実験結果と同様に印加電圧を大きくするほど変位は増加することが確認された。電界印加による変位の増加割合はNP-13、NP-27、NP-47でそれぞれ2.1、0.2、7.2%であった。しかし、これらの結果からキャリア移動度を推定することは困難であった。図7に示すようにAl電極を蒸着したNP試料はそれぞれI-V特性が異なるため、試料ごとに電気伝導率が異なることが予想される。これは、蒸着によって形成されたAl電極とSi-NP/SiGe複合膜間の接触部において発生する抵抗が不明であることによる影響も含まれる。そのため、実際にSi-

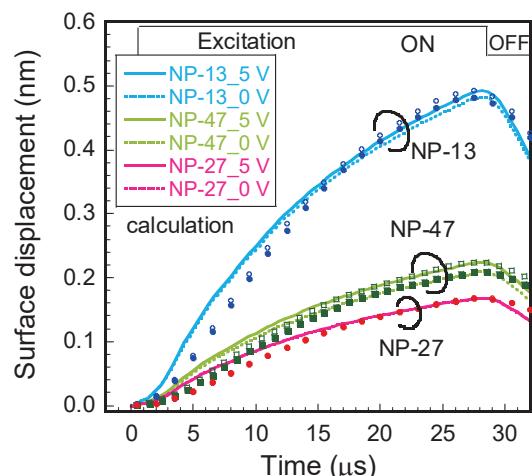


図5. 電界印加の有無による変位量の時間変化

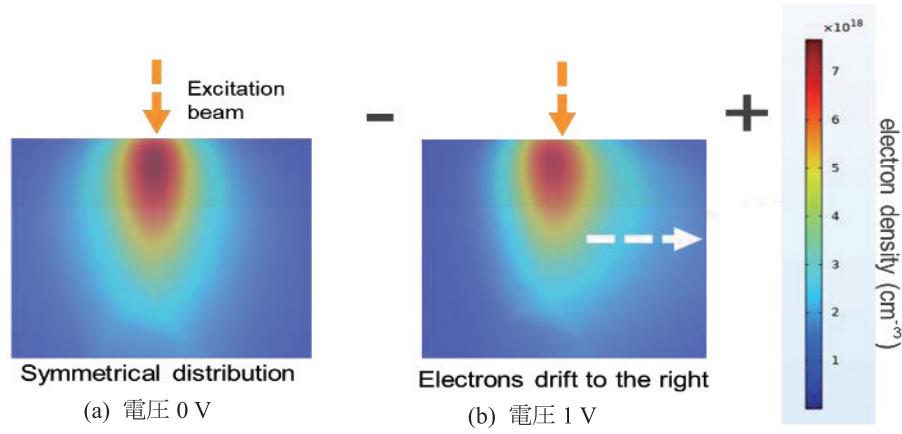


図 6. 電界の有無による電子分布

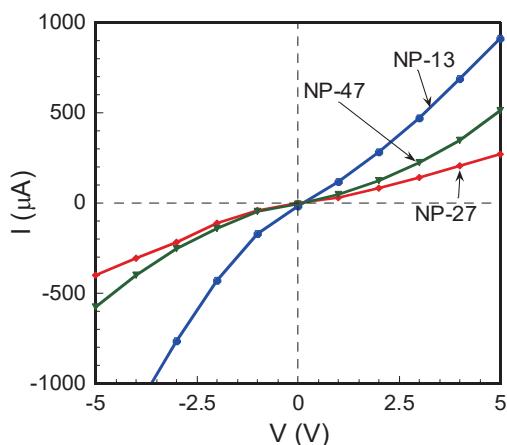


図 7. 各 NP 試料における I-V 特性

NP/SiGe 複合膜に形成される電界の強さが不明であるため、キャリア移動度の推定は困難であった。

これまでの研究で NP-27 は、キャリア寿命が最も長いと報告している⁵⁾。NP-27 が長いキャリア寿命を示す理由は 2 つある。1 つ目は、電子の伝搬は電子の平均自由行程よりも短い間隔で配置された NP によって妨げられることである。2 つ目は、Si と SiGe の格子定数の違いによる歪の存在である。SiGe は埋め込み成長時に Si-NP の側面から成長する。NP 間隔が広いほど、複合膜に歪エネルギーが蓄積し、キャリア寿命が短くなったと考えられる。また、SiGe は多結晶に近い結晶性であり、間隔が広いほど結晶性が多結晶に近く、キャリア寿命が短くなった可能性がある。NP-27 は、電子の平均自由行程より長い NP 間隔でありながらも歪エネルギーの蓄積も NP-47 より小さいため、キャリア寿命が長かったと考えられる。本研究では、電圧印加による変位量の増加割合は NP-27 で最も小さかった。前述のように NP-27 はキャリア寿命が最も長い。キャリア寿命が長いと、キャリアの拡散長が長く、再結合頻度が低いことを示す。よって NP-27 は非発光再結合に寄与するキャリアが少ない。したがって、LH-

PD 測定で観測された NP-27 の電圧印加による変位量の增加割合は最も小さくなつたと考察される。

4. 結論

本研究では、電子移動度を高く維持したまま熱の伝搬を抑制する材料を実現するために製作された Si-NP/SiGe複合膜に電圧を印加しながら LH-PD 法を用いて複合膜中のキャリアの振る舞いを評価した。印加する電圧を大きくすると、LH-PD 法で観測される変位量は大きくなつた。これは、電界によるキャリアのドリフトが移動度と電界によるため、電界が大きいほど多くの光励起キャリアが検出部まで移動し発熱に寄与したことで、観測される変位が増加したと考えた。

本研究では、電圧印加による変位量の増加割合は NP-27 で最も小さかった。電子の平均自由行程と NP 間隔の関係、Si と SiGe の格子定数の違いによる歪の蓄積から NP-27 はキャリア寿命が長いことが予想される。したがって、NP-27 の変位量の増加割合が小さい理由は、NP-27 は長いキャリア寿命によりキャリアが移動しやすく再結合頻度が低いため、非発光再結合に寄与するキャリアが少ないと想定されると推察される。

謝辞

本研究は JSPS 科研費 JP20H05649 と JP21J22312 の助成を受けたものである。

参考文献

- 1) 内閣府, “Society 5.0 とは”,
https://www8.cao.go.jp/cstp/society5_0/ (2024/12/16 閲覧)
 - 2) 日本貿易復興機構,
<https://www.jetro.go.jp/biz/areareports/special/2021/0902/1374a3f53e6e56c0.html> (2024/12/16 閲覧)
 - 3) D. Ohori, M.-H. Chuang, A. Sato, S. Takeuchi, M. Murata, A. Yamamoto, M.-Y. Lee, K. Endo, Y. Li, J.-H. Tarng, Y.-J.

- Lee, and S. Samukawa: High Electron Mobility Germanium FinFET Fabricated by Atomic Layer Defect-Free and Roughness-Free Etching., *IEEE Open J. Nanotechnol.* **2**, 148 (2021).
- 4) T. Harada, T. Ikari and A. Fukuyama: Development of laser heterodyne photothermal displacement method for mapping carrier nonradiative recombination centers in semiconductors., *J. Appl. Phys.* **31**, 195701 (2022).
- 5) T. Harada, D. Ohori, K. Endo, S. Samukawa, T. Ikari and A. Fukuyama: Lifetime of photoexcited carriers in space-controlled Si nanopillar/SiGe composite films investigated by a laser heterodyne photothermal displacement method., *J. Appl. Phys.* **133**, 125703 (2023).
- 6) COMSOL AB, COMSOL Multiphysics® v. 5.6
www.comsol.com. Stockholm, Sweden.
- 7) M. E. Levinshtein, S. L. Rumyantsev, and M. S. Shur: *Properties of Advanced Semiconductor Materials: GaN, AlN, InN, BN, SiC, SiGe.*, New York: Wiley, 2001.

量子井戸太陽電池吸収層に挿入された InGaAs/GaAs/GaAsP 圧縮歪超格子における キャリア吸収および取り出し過程のシミュレーション解析

武田 奈々^{a)}・浅見 明太^{b)}・杉山 正和^{c)}・原田 知季^{d)}・碇 哲雄^{e)}・福山 敦彦^{f)}

Simulation Analysis of Carrier Recombination Processes in InGaAs/GaAs/GaAsP Compressively Strained Superlattice Inserted in Quantum Well Solar Cell Absorbing Layer

Nana TAKETA, Meita ASAMI, Masakazu SUGIYAMA,
Tomoki HARADA, Tetsuo IKARI, Atsuhiko FUKUYAMA

Abstract

InGaAs/GaAs/GaAsP strain-balanced superlattice (SB-SL) is a superlattice structure with high CCE (carrier collection efficiency) due to the relaxation of lattice mismatch. Based on this structure, InGaAs/GaAs/GaAsP compressively strained superlattice (CS-SL) was fabricated by combining the concepts of strain relaxation and compressive strain. This structure has three InGaAs well layers per period, resulting in a high density per unit length. In addition, the structure can maintain sufficient optical absorption even with a thin SL layer thickness, while minimizing the effect of compressive strain on crystal quality. In this study, we calculated the band structure of the CS-SL sample using nextnano, a software program that can simulate samples with quantum structures. As a result, different transition energies were calculated for each of the three wells. The distribution of electrons in the three quantum wells was also biased. Photoluminescence (PL) measurements were also performed on the CS-SL sample to calculate the transition energies. Two different peaks were identified and attributed to the transition energies calculated by theoretical calculations. In addition, the distributions of electrons and holes in the quantum wells were calculated for different numbers of wells in a period, and the validity of the number of wells in the CS-SL structure was discussed.

Keywords: superlattice, quantum-well solar cells, compressively strain

1. はじめに

多接合太陽電池は高効率な太陽電池であることが知られている。特に InGaP/GaAs/Ge 3 接合太陽電池は約 364 倍集光動作時に変換効率 41.6% を達成しており¹⁾、人工衛星等の宇宙用太陽電池として実用化されている。この太陽電池の課題として、電流不整合損失がある。InGaP/GaAs/Ge 3 接合太陽電池の場合、GaAs ミドルセルの光吸収波長領域が他のセルよりも狭いため、デバイス全体の出力電流が最も小さいセルに律速されその出力電流も小さくなる。これを改善するには GaAs ミドルセルの光吸収領域を拡張し、すべてのセルから同じ出力電流を得る必要があり、その方法として GaAs ミドルセルへの InGaAs/GaAsP 多重量子井戸 (multiple quantum well: MQW) 構造の挿入が提案されている²⁾。これにより光吸収領域の拡張が可能となる。一方で、接合界面での欠陥や量子井戸内の光励起キャリア

の再結合によって、キャリア収集効率 (carrier collection efficiency: CCE) が低下してしまうという課題がある。

その解決策として、障壁層を数 nm 程度まで薄くし、超格子 (superlattice: SL) 化する方法がある³⁾。この構造では、波動関数の染み出しにより形成されたミニバンド内を励起されたキャリアがトンネル効果により輸送されることで、SL 内での再結合が減少し CCE が改善される。しかし、障壁層を極めて薄くすると各層の格子定数差に起因する歪の蓄積により、太陽電池に必要な多層化が困難となる。

そこで GaAsP 障壁層と InGaAs 井戸層の間に GaAs 歪緩和層を挿入した SL (strained balanced superlattice: SB-SL) 構造が考案された⁴⁾。この構造では高効率なキャリア輸送と良好な結晶品質の両立が期待できる。歪緩和層とは障壁層と井戸層の間の格子定数をもつ材料を成長させた層であり、転位の形成を抑制することで太陽電池に必要な 100 層以上の積層が可能となった。さらに歪緩和層の挿入により階段状の量子井戸が形成され、ミニバンドがより高いエネルギー位置に形成されるため、光励起キャリアは井戸へ脱出しやすくなる。歪緩和層を挿入した SL では MQW や従来の SL に比べて CCE の向上が確認されてい

a) 工学専攻エネルギー系コース大学院生

b) 東京大学先端科学技術研究センター助教

c) 東京大学先端科学技術研究センター教授

d) 応用物理工学プログラム特任教授

e) 応用物理工学プログラム教授

f) 応用物理工学プログラム 教授

る。しかし、量子閉じ込め効果の影響により依然としてCCEが低い。

量子閉じ込め効果の影響はSLの厚さを薄くすることで抑制でき、キャリア輸送効率の向上が期待できる。一方で、SL層厚が薄いと十分な光吸収量が得られない。そこで、単位長さあたりのInGaAs井戸密度を高めることで、光吸収を十分に確保できる。しかし、InGaAs/GaAsの圧縮歪の蓄積による晶品質への影響が懸念されるため、歪を緩和する必要がある。

そこで作製されたのが、圧縮歪超格子 (compressively strained superlattice: CS-CL) である⁵⁾。超格子全体で見たときに、圧縮歪みがかっているためCS-SLと呼んでいるが、この超格子はSB-SLと純粋な圧縮歪超格子を組み合わせた構造である。前述のように、SLの厚みを薄くしても十分な光吸収を確保できるような構造が必要である。SLを含む量子構造での光吸収は、InGaAs井戸層の数や幅によって決まる。そのため、SB-SLのGaAsP障壁層の数を減らすことで単位長さあたりの量子井戸密度を高めることができ、より多くの光を吸収することが期待される。一方で、InGaAs層の圧縮歪の影響が懸念される。そこで圧縮歪超格子の歪みを緩和するためにSB-SLを歪緩和層として挿入する。このように2つの超格子を組み合わせて単位長さあたりのInGaAs井戸密度を高めることで、SL厚に制限がある中でも、十分な光吸収量を保つつつ、結晶品質への影響を最小限に抑えることができる。

本研究では、CS-SLと参照試料としてSB-SLに対してフォトルミネッセンス (photoluminescence: PL) 測定を実施し、試料構造の差により現れる遷移エネルギーの違いを調べた。また、半導体ナノ構造のバンド構造計算が可能なシミュレーションソフトウェア nextnano⁶⁾を用いて、試料のバンド構造や形成されている量子準位を算出し、SL由来のPLピークの起因を同定した。さらに、量子井戸内の電子と正孔の分布を算出し、本研究で用いたCS-SL構造の太陽光吸収層としての妥当性について考察した。

2. 実験

本研究では、*p*型GaAs基板上に有機金属気相成長法で成長させた*i*-GaAs層内にSL構造を挿入し*n*型GaAs層を積層した試料⁷⁾を用意した。SLを構成する材料は、2.0 nmのInGaAs井戸層と1.5 nmのGaAsP障壁層、2.8 nmのGaAs歪緩和層である。SB-SLとCS-Sの1周期はそれぞれ図1のように薄膜を積層した構造であり、SB-SLは20組、CS-SLは10組積層している。厳密には、SB-SLは212 nmのSL中に20個の井戸、CS-SLは212 nmのSL中に32個の井戸をもつ。このように積層することで、CS-SLの井戸密度は0.149 well/nmとなり、SB-SLの井戸密度0.094 well/nmよりも高くなる。

PL測定では、励起光源として半導体励起固体レーザー(532 nm、30 mW)を用いた。チョッパーで断続化した励起

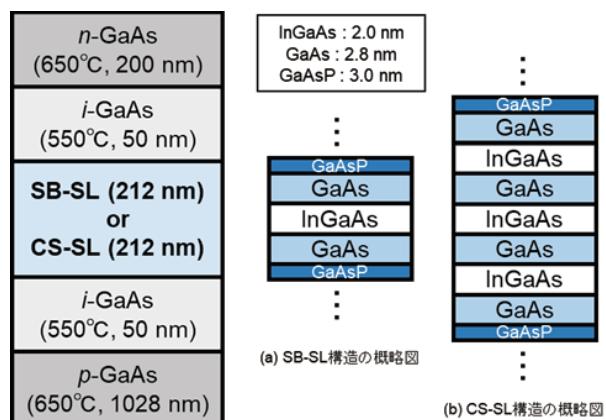


図1. PL測定に用いた試料構造の概念図

光を試料表面に照射したときに生じる発光成分をSiフォトダイオードで検出した。測定波長は1050–750 nmで、測定温度は300 Kであった。

3. 理論計算

本研究では、バンド構造と遷移エネルギーの計算のために、3Dナノデバイスシミュレーションソフトnextnanoを使用した。nextnanoは半導体ナノ構造における電子・光学特性を演算し、理論上の物性値を導出できるシミュレーションソフトである。基礎物性値を用いて、境界条件等の物性パラメータをモデルに組み込み、1次元から3次元シミュレーディング方程式の固有値を有限差分法によって求めることによって量子構造中の量子準位を計算することができる。

CS-SLのバンド構造について説明する。図2にCS-SLの計算結果、図3に計算から得られたバンド構造を示す。3つのInGaAs井戸層を左からそれぞれQW_L、QW_C、QW_Rと表記する。まず図2に示すように、伝導帯においてe1は3つのInGaAs井戸層を貫くように形成されており、1周期分の3つの井戸の外への波動関数の染み出しが確認されなかった。e2には、隣の周期への波動関数の染み出しがあり、ミニバンドが形成されていた。また、電子の存在確率を計算したところ、ポテンシャルと内部電界の影響により、QW_RとQW_C付近に分布が偏っていた。価電子帯においては、hh1の波動関数は3つの各井戸において異なるエネルギー準位を形成していた。つまり、CS-SLでは3つの井戸で異なるe1-hh1間遷移エネルギーが算出された。そこで、図3に示すようにQW_L、QW_C、QW_Rのe1-hh1間遷移エネルギーをそれぞれe1-hh1_L、e1-hh1_C、e1-hh1_Rと定義する。hh2は隣の周期への波動関数の染み出しがあり、ミニバンドが形成されている。また正孔の分布については、前述のとおり各井戸で異なるhh1準位が算出されたため、それぞれの井戸に局在して分布していると考えている。加えて、SB-SLにもe1やhh1準位、e2ミニ

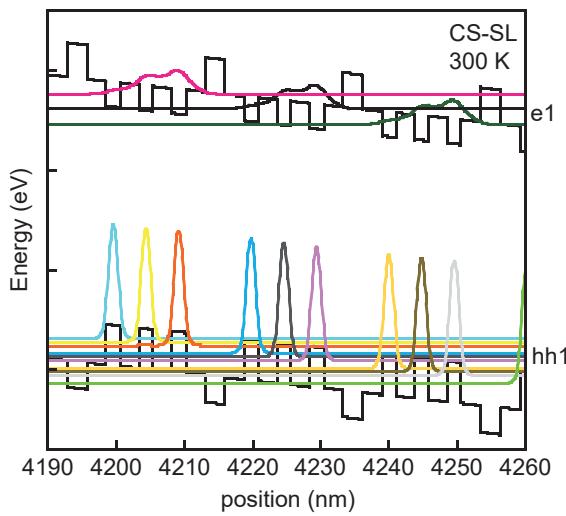


図 2. 300 K における CS-SL のバンド構造 (第一準位)

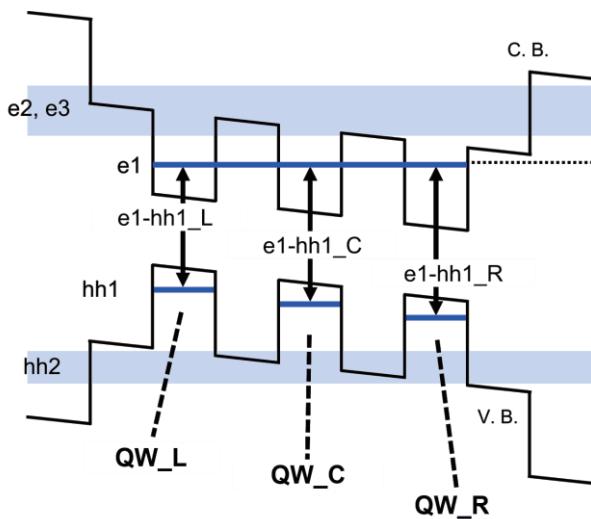


図 3. CS-SL のバンド構造の概念図

バンドが形成されており、CS-SL を比較したところ、CS-SL のエネルギー準位とミニバンドは SB-SL よりも低準位に形成されていたため、CS-SL ではより長波長の光を吸収できることが理論計算から予想される。

4. 測定結果と考察

PL 測定結果について説明する。図 4 に両試料の 300 K における PL スペクトルを示す。CS-SL では 1.28 eV (Peak A) と 1.31 eV (Peak B) に、SB-SL では 1.32 eV (Peak D) に SL 由来のピークが観測された。図から明らかなように CS-SL のピークは SB-SL よりも低エネルギー側に現れており、理論計算から予想されるように CS-SL は従来の SB-SL よりも長波長領域の光を吸収できることが分かった。実験で得られた PL ピークエネルギーと理論計算から得られた e1-hh1 間のエネルギー値との比較の結果を表 1 に示す。実

験値と理論計算値の完全な一致は得られなかつたが、Peak D を e1-hh1 間遷移、Peak A を e1-hh1_C 間遷移、Peak B を e1-hh1_R 間遷移起因であると判断した。

表 1. PL ピークエネルギーと理論値の比較

Peak	CS-SL		SB-SL
	A	B	D
PL	1.275	1.314	1.322
理論値	1.242	1.260	1.281
起因	e1-hh1_C	e1-hh1_R	e1-hh1

単位はすべて (eV)

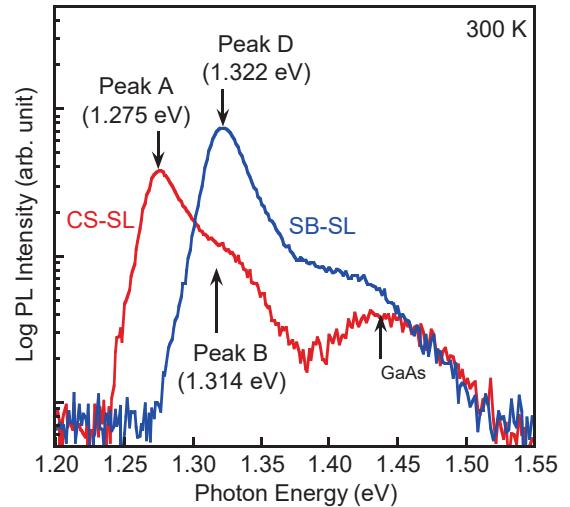


図 4. 300 K における PL スペクトル

次に、GaAsP 障壁層から次の障壁層までの InGaAs 井戸層数の妥当性を確かめるために、1 周期に挿入する井戸層を 2 層と 5 層にした場合の空間的なキャリアの分布を計算した。井戸層を 5 層に場合のバンド構造を図 5 に示す。キャリアの分布が多い位置では、多くの吸収が起こっていることが期待できる。電子の第一量子準位に対応する波動関数の二乗と、正孔の第一量子準位に対する波動関数の二乗をかけて、以下の (3.1) 式により電子と正孔の空間的な分布 D を求めた。

$$D = \psi_e^2(x)\psi_h^2(x) \quad (3.1)$$

ここで、計算に用いた電子と正孔の波動関数の二乗、つまり存在確率は nextnano で計算したもので、データはすべて実数である。キャリアの空間分布を求めた結果を図 6 に示す。加えて、図 6 の 2 層、3 層、5 層の構造それぞれの空間分布の積分をとり面積 S を求めた。まず 3 層の場合、QW_3-1 と QW_3-2 と QW_3-3 の分布は 0.021, 0.089, 0.112 であり、QW_3-1 の分布は QW_3-2 と QW_3-3 に比べて小

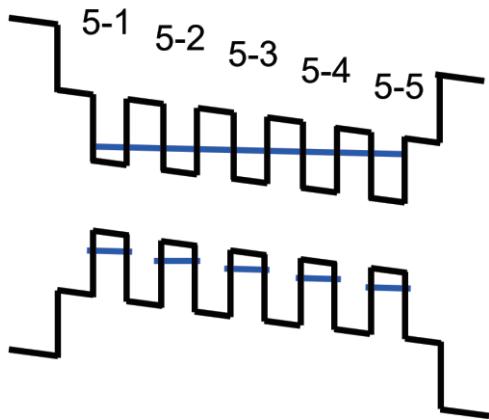


図 5. InGaAs 井戸層を 5 層にした場合のバンド構造

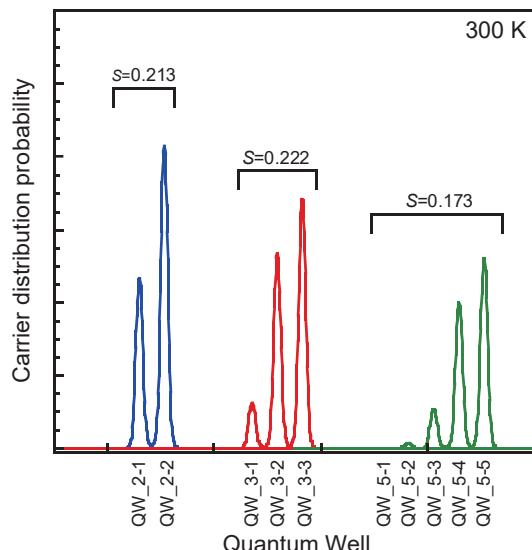


図 6. CS-SL 構造の井戸数を変化させた場合の空間的なキャリアの分布

さかった。そのため、PL 測定において $e1-hh1_C$ と $e1-hh1_R$ に起因するピークが観測され、 $e1-hh1_L$ に起因するピークが得られなかったと考えられる。次に 2 層の場合、 QW_2-1 と QW_2-2 の分布は 0.078、0.136 であり、両方の井戸で吸収が起こると考えられる。井戸が 5 層の場合、右の 2 つの QW_5-4 と QW_5-5 での分布は 0.067 と 0.086 で、2 層や 3 層の構造よりも低い。また QW_5-1 と QW_5-2 には電子と正孔の分布はほとんどないため、吸収はほとんど起こらないと考えられる。さらに、それぞれの構造における各井戸でのキャリアの分布の和 S を求めた結果、0.213、0.222、0.173 であり、3 層の構造で一番面積が大きかった。

このことから、3 層の構造で光の吸収が最も多くなると考えられる一方で、再結合が起こりやすくキャリアを取り出しにくい構造もあるといえる。ここで、2 層構造と 3 層構造の $e1$ から $e2$ ミニバンドまでのエネルギー差はそれぞれ 76 meV と 41 meV である。以上のことから、1 周期あたりに 3 層の InGaAs 井戸層を挿入した構造が、単位長

さあたりの井戸数を増やしつつ十分に光吸収量を確保するのに最も適切な構造であり、キャリアを取り出しやすい構造であると結論付けた。

5. 結論

本研究では、InGaAs 井戸層と GaAsP 障壁層の間に GaAs 歪緩和層を挿入した SB-SL と、圧縮歪と歪緩和の概念を組み合わせた CS-SL に対して、PL 測定と nextnano を用いた理論計算を実施した。

nextnano を用いた理論計算では、CS-SLにおいて、伝導帶では 3 つの InGaAs 井戸層を貫くように電子の第一量子準位が形成され、価電子帯では 3 つの井戸それぞれに重い正孔の第一量子準位が形成されていた。つまり、3 つの井戸で異なる $e1-hh1$ 間遷移エネルギーの値が算出された。また、価電子帯と伝導帯とともに、第二量子準位の波動関数の染み出しが確認されたため、ミニバンドが形成されたと判断された。さらに、電子は QW_R 付近に分布が偏っており、一方の重い正孔の分布は局在化していた。加えて、CS-SLにおいては SB-SL よりも低エネルギー側にエネルギー準位とミニバンドが形成されていることがわかつたため、CS-SL ではより長波長側に光吸収領域を拡大できると予想できる。

PL 測定では、CS-SLにおいて GaAs のバンドギャップ以下の 1.28 と 1.31 eV に異なる 2 つのピークが観測された。理論計算結果との比較から、低エネルギー側のピークは $e1-hh1_C$ 起因、高エネルギー側のピークは $e1-hh1_R$ 起因のピークであると判断した。さらに、CS-SLの方が SB-SL よりも低エネルギー側にピークが得られたため、理論計算で予想されたように長波長領域の光を吸収可能であり、従来の構造における課題であった、光の吸収波長領域を長波長側に拡大できることが分かった。更に、1 周期に挿入する InGaAs 井戸層の数を 2 層および 5 層とした場合の、量子井戸内の電子と正孔の空間分布を計算し、量子井戸太陽電池の光吸収層としての妥当性について考察した。その結果、1 周期に 3 層の井戸層を挿入した構造は量子井戸における電子と正孔の分布が多く、最も大きな光吸収が期待される構造である一方、キャリアの再結合損失も起こりやすいと結論付けられた。ただし、 $e1$ から $e2$ ミニバンドから下端までのエネルギー差が小さいため、光励起されたキャリアを取り出しやすい可能性がある。

参考文献

- R. R. King, A. Boca, W. Hong, X.-Q. Liu, D. Bhusari, D. Larrabee, K. M. Edmondson, D. C. Law, C. M. Fetzer, S. Mesropian, and N. H. Karam: "Band-Gap-Engineered Architectures for High-Efficiency Multijunction Concentrator Solar Cells", Proc. 24th European Photovoltaic Solar Energy Conference, pp.55-61, 2009.
- K. W. J. Barnham, G. Duggan: "A new approach to high-efficiency multi-band-gap solar cell", J. Appl. Phys., Vol.67,

- pp.3490-3493, 1990.
- 3) K. Toprasertpong, H. Fujii, Y. Wang, K. Watanabe, M. Sugiyama, and Y. Nakano: "Carrier Escape Time and Temperature- Dependent Carrier Collection Efficiency of Tunneling-Enhanced Multiple Quantum Well Solar Cells", IEEE J. Photovoltaics, Vol.4, pp.607-613, 2014.
 - 4) H. Fujii, K. Toprasertpong, Y. Wang, K. Watanabe, M. Sugiyama and Y. Nakano: "100-period, 1.23-eV bandgap InGaAs/GaAsP quantum wells for high-efficiency GaAs solar cells: toward current-matched Ge-based tandem cells", Prog Photovolt Res Appl, Vol.22, pp.784-795, 2014.
 - 5) M. Asami, K. Watanabe, Y. Nakano and M. Sugiyama: "Boosting quantum-structured solar cell light absorption through compressively strained superlattices", Jpn. J. Appl. Phys. Vol.63, p.071003, 2024.
 - 6) <https://www.nextnano.com/products/overview.php>.
(2024/12/12 閲覧)

電子線照射とその後の回復熱処理により Si に形成された欠陥準位の PL 解析

原口 佑斗^{a)}・佐々木 駿^{b)}・三次 伯知^{b)}・原田 知季^{c)}・
碇 哲雄^{d)}・福山 敏彦^{e)}

Photoluminescence analysis of deep defect levels induced by electron-beam irradiation and subsequent thermal annealing in *n*-Si substrate

Yuto HARAGUCHI, Shun SASAKI, Noritomo MITSUGI, Tomoki HARADA,
Tetsuo IKARI, Atsuhiko FUKUYAMA

Abstract

Defects induced by electron-beam irradiation and subsequent thermal annealing are used to improve the switching performance of silicon power devices. However, the properties of the defects formed by the irradiation have never been fully clarified. Furthermore, it is believed that defects originating from interstitial carbon generated by irradiation reduce the carrier lifetime, but its carrier transition mechanism is still under discussion. In this study, the relationship between defects induced in *n*-Si substrates after electron-beam irradiation and subsequent thermal annealing and the interstitial carbon was investigated using photoluminescence method. Emission from Si can be detected with high sensitivity by cooling the sample chamber down to 4.3 K. A new peak was detected at 0.761 eV, which is even lower energy than the P-line (0.767 eV), the sample annealed at 550°C and 600°C for 20 minutes after electron irradiation. We defined this peak as S-line. From the measurement results of samples with different carbon concentrations, it was found that the S-line is correlated with the carbon concentration. In the C-line (0.789 eV), P-line, and S-line observed near energy, they appeared with increasing annealing temperature in the order of higher energy. This trend predicts that the S-line has the same origin as the C-line and P-line. Carbon and oxygen complexes are involved in the C-line and P-line. The newly discovered S-lines in the heat treatments at 550°C and 600°C after electron irradiation may be attributed to carbon and oxygen complex.

Keywords: Si, Power devices, Electron irradiation, Defects, Anneal, Photoluminescence

1. はじめに

近年、温室効果ガス排出量増加に伴い地球温暖化が世界的な問題となっている。そこで、地球温暖化の抑制に向けて温室効果ガスである二酸化炭素 (CO₂) の排出量削減が世界的に強く求められている。我が国においても「カーボンニュートラル」のスローガンの元に「2050年までに温室効果ガスの排出を全体としてゼロにする」という目標が掲げられており、その達成に向けたあらゆる施策が行われている。目標達成への効果的な手段として、限りあるエネルギーを効率よく利用できるパワーデバイスが注目されている。これは直流を交流に変換するインバータ、交流を直流に変換するコンバータ、周波数変換などの機能を持つ電力変換器を構成する重要な半導体デバイスの総称である¹⁾。パワーデバイスはオンとオフのスイッチング動作を繰り返すことで電力変換を行ってい

これによって従来の抵抗器を用いた電力変換方式よりもエネルギーの損失が少ないとから自動車や家電製品など様々な場面でパワーデバイスが用いられる。

これまでパワーデバイスの材料には Si が多く用いられてきた²⁾。しかし、近年は Si パワーデバイスの変換効率といった性能の向上が限界に近づいており、より高出力容量・高動作周波数・高耐圧・高温動作等に優れた特性を求めて代替材料の研究が行われている。そのためワイドバンドギャップ半導体である SiC や GaN が次世代パワーデバイス用材料として注目されている。実際、それらを用いたパワーデバイスは鉄道や自動車、USB 充電器などの部品に使われ徐々に普及しつつある。しかし、SiC や GaN は高品質な結晶の安定的な製造が困難で、材料や製造プロセスの再構築に多くのコストがかかる³⁾。そのため、供給と価格の安定性を持つ従来の Si パワーデバイスの性能を向上させる研究も引き続き行われている。

Si を用いた絶縁ゲート型バイポーラトランジスタ (IGBT) などの Si パワーデバイスの作製において、

a) 工学専攻 エネルギー系コース 大学院生

b) 株式会社 SUMCO

c) 応用物理工学プログラム 特別助教

d) 応用物理工学プログラム 特任教授

e) 応用物理工学プログラム 教授

電子線照射とその後の回復熱処理によるライフタイム制御が行われる⁴⁾。これは電子線照射によって禁制帯中深い位置に形成される欠陥準位を再結合中心として利用することで、素子のスイッチオン状態からオフ状態へのターンオフ時間の短縮を可能にする。これによってスイッチング速度の向上やスイッチング損失の抑制が可能である。しかし、炭素等に起因した欠陥がデバイス特性を低下させるデメリットも存在し⁵⁾、これらをバランスさせることが重要である。欠陥準位制御のための最適な熱処理条件を見つける必要があるが、電子線照射とその後の回復熱処理によって形成される欠陥準位の微視的構造や発生原理などは明らかになっていない。

これまで我々は、圧電素子光熱変換分光（PPT）法と過渡容量分光（DLTS）法を用いて、電子線照射とその後の回復熱処理を行ったSiの評価を行ってきた⁶⁾。その結果、電子線照射を行うことでSiの結晶構造が乱れること、電子線照射後に回復熱処理を行うことで結晶構造の乱れが改善することが分かった。加えて、250°C、400°Cの回復熱処理では禁制帯中の深いエネルギー位置に格子間の炭素と酸素が関連した欠陥準位が生じたことが分かった。より詳細な議論を行うためには多面的に欠陥の評価を行う必要がある。

そこで本研究では電子線照射とその後に異なる温度で回復熱処理を行ったn-Si基板に対して、光励起キャリアの発光再結合で放出される光を測定するPhotoluminescence（PL）測定を用いて発光再結合の観点から電子線照射とその後の回復熱処理によって形成される欠陥準位を評価した。

2. 実験

2.1 試料詳細

本研究ではCzochralski法で作製されたn型Si基板（試料厚さ720μm）に電子線照射とその後の回復熱処理を行った試料を用意した。試料詳細を表1に示す。炭素濃度には $5.0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ と $4.0 \times 10^{14} \text{ cm}^{-3}$ の2種類があり、以後、それぞれ炭素高、炭素低と呼称する。炭素濃度は二次イオン質量分析法（SIMS）で評価した。電子線照射の条件は加速エネルギーが800keV、吸収線量が2MGyであり、試料全体に均一に照射されている。電子線照射後の回復熱処理を窒素雰囲気中でそれぞれ250、400、500、550、600°Cで20分間行った試料を用意し、以後、IR250、IR400、IR500、IR550、IR600と呼称する。また、電子線照射を行っていない試料をnoIR、電子線照射後に回復熱処理を行っていない試料をIR0とする。炭素濃度が異なる2種類の試料群それぞれに対して電子線照射と回復熱処理の条件を7種類設定し、結果として合計14種類の試料を用意した。なお、すべての試料において、含有酸素濃度はFT-IR法にて $1.3 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ と見積もられた。比抵抗は25Ωcmであり、キャリアの表面再結合を抑制するために、熱処理により表面酸化膜が形成されている。

表1. 試料詳細

試料名	回復熱処理	電子線照射	炭素濃度
noIR	なし	なし	800 keV 2 MGy
IR0	なし		
IR250	250°C		
IR400	400°C		
IR500	500°C		
IR550	550°C		
IR600	600°C		

2.2 実験方法

本研究で用いたPL法は、レーザー照射によって励起された電子と正孔の発光再結合によって生じた光を分光器で分光し検出器で検出する。本装置では試料を4.3Kまで冷却することによって高感度に欠陥準位が関連した発光を検出することが可能である。図1にPL実験装置図を示す。試料はクライオスタット内の試料台に取り付け1.0×10⁻²Pa以下の真空度に保たれた。励起光源には波長473nm、強度78.9mWの半導体レーザー励起固体レーザーを用いた。検出器にはInGaAs検出器を用いた。測定範囲は900~1800nmを行った。検出器の信号飽和を避けるために、発光強度が強い場合には10%のNDフィルターを用いて励起光強度を調節した。分光器前にはレーザーの反射光が入射するのを防ぐためにロングパスフィルターを設置した。分光器のスリット幅は300μm、回折格子は600 grooves/1500 nm、露光時間は1sに設定した。

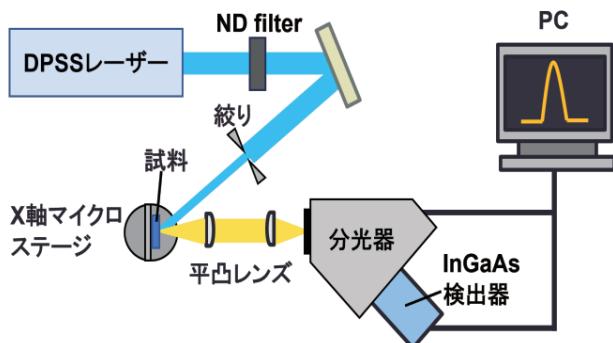


図1. PL測定装置図

電子線照射や回復熱処理による結晶性の評価を目的として顕微ラマン分光測定も実施した。ラマン分光法は光を物質に照射した際のラマン散乱光を検出する手法で、ラマン散乱光のピークの強度や位置、半値幅から物質の組成、結晶性、歪みなど様々な構造評価が可能である。励起光には532nmのレーザー光を用い、検出器にはCCD検出器を用いた。測定範囲は450~2000cm⁻¹、露光時間は60s、回折格子は1800 grooves/mmである。

3. 実験結果および考察

図 2 に炭素高試料の中から電子線照射前後の noIR と IR0 の PL スペクトルを示す。電子線照射を行うことでバンド端（約 1.12 eV）付近の自由励起子発光（Peak A=1.097 eV⁷⁾）を中心にいくつかの Si 起因の発光ピークの信号強度が大きく減少した。それに伴い、低エネルギー側に noIR では観測されなかったピークが出現した。その中には格子間炭素と格子間酸素の複合欠陥である C-line⁸⁾ (0.789 eV) や格子間炭素-置換型炭素が起因した G-line⁸⁾ (0.969 eV) が確認された。バンド端付近の発光強度が大きく減少した原因は結晶構造の乱れが考えられる。つまり、これまで我々が報告した PPT スペクトル測定結果⁶⁾と同様に、今回の PL スペクトル測定結果からも、電子線照射による結晶構造乱れが生じていることが示唆された。そこで、noIR と IR0 のラマンスペクトルを図 3 に示し、比較した。結晶構造の乱れによって単結晶 Si 由来の 521 cm⁻¹ ピークの半値幅やピーク位置に変化が生じていると予測したが、スペクトルに変化は見られなかった。

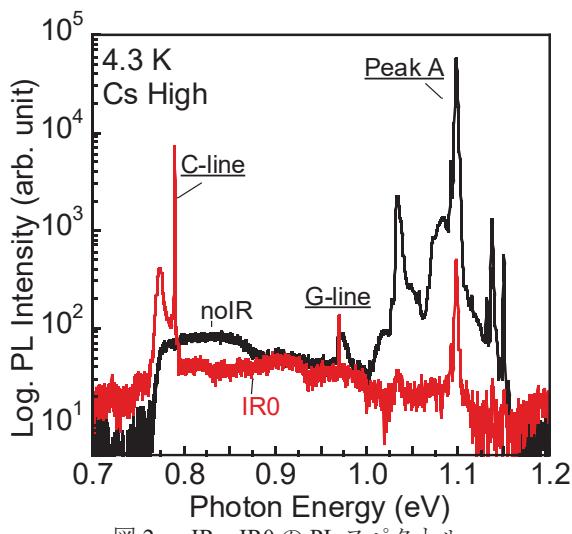


図 2. noIR、IR0 の PL スペクトル

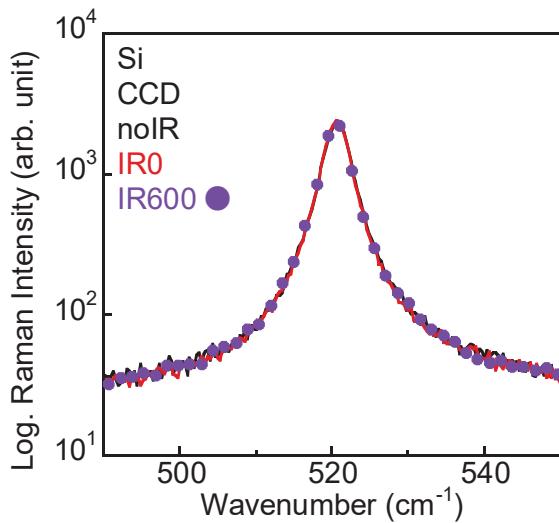


図 3. 顕微ラマン分光測定結果

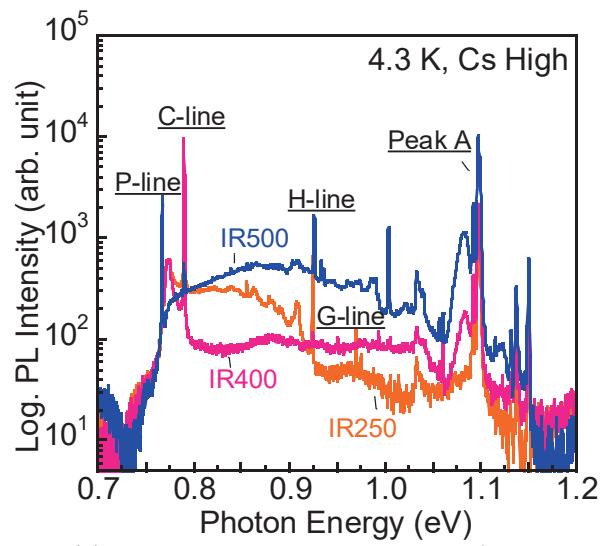


図 4. IR250, IR400, IR500 の PL スペクトル

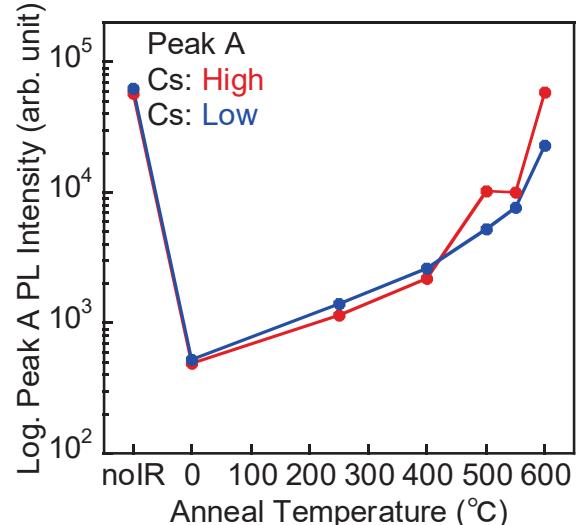


図 5. Peak A の熱処理温度依存性

ラマンスペクトルに変化が現れなかった原因是現時点で明確になっていないが、これまでの PPT および PL スペクトル測定結果から電子線照射によって結晶構造乱れが生じていると判断して議論を進める。

図 4 に、電子線照射後にそれぞれの温度で回復熱処理を行った試料の PL スペクトルを示す。また、図 5 にはバンド端付近の Peak A に注目しその発光強度の熱処理温度依存性をプロットした。電子線照射によって発光強度が大きく減少したが、その後の回復熱処理温度の増加とともに強度が増加し、600°C の回復熱処理では照射前 (noIR) の発光強度と同程度まで回復した。この結果から回復熱処理温度が増加するほど電子線照射による結晶構造の乱れが回復していることが示唆された。また、Peak A 以外の低エネルギー領域の発光信号にも変化が生じた。IR0 では C-line と G-line が検出され、IR400 と IR500 では炭素と酸素の複合体起因である P-line⁸⁾、IR500 と IR550 では H-line⁹⁾が検出された。C-line や G-line も含めたこれらのピークについては過去の文献でも議論が多く行われている。

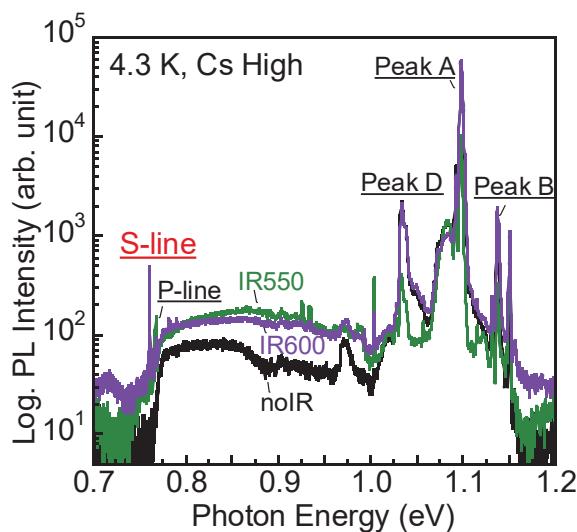


図 6. noIR, IR550, IR600 の PL スペクトル

次に、図 6 に IR550 と IR600 の PL スペクトルを示す。600°Cまで熱処理温度を上げることで Peak A を含むバンド端近傍の Si 起因発光ピークの信号強度が noIR の信号強度に近づいた。一方、低エネルギー側に着目すると、P-line が観測された 0.767 eV よりさらに低エネルギー側の 0.761 eV の位置に新たなピークが観測された。このピークについて文献で調査を行ったが、過去の研究結果は見つからなかった。そこでこの新たなピークを S-line と呼称し、起因を議論する。

3.2 S-line の起因に関する考察

IR550 と IR600 で得られた新たな信号である S-line の起因について調べるために、550°C以上の熱処理で生じる欠陥準位に関する文献調査を行い議論した。そこでまずは窒素雰囲気中の熱処理によって Si 結晶に窒素が混入した可能性を考えた。窒素を意図的に混入させた Si では 550°Cで 1 h の熱処理によって窒素関連の発光信号と考えられる N3 ピークが極大になることが報告されている¹⁰⁾。この N3 ピークが観測されたフォトンエネルギーは 0.761 eV であり本研究で新たに得られた S-line と一致した。これらのことから S-line ピークの起因として炭素-酸素-窒素の複合体起因である可能性がある。そこで Si 中に含まれる不純物について、図 3 のラマン分光測定の結果を元に考察した。図 3 には Si 起因のラマンピーク (521 cm^{-1}) のみを示したが、窒素に関連するラマンピーク ($820, 1015 \text{ cm}^{-1}$)¹¹⁾は観測されなかった。窒素が関連する発光ピークは Si を 1300°C、100 h という高温且つ長時間で熱処理することで出現すると報告¹²⁾されている。本研究で用いた試料は 250°C~600°C、20 min の熱処理であり、報告されている熱処理条件を満たしておらず窒素が混入している可能性は低いと考えた。

次に、炭素濃度が異なる試料における PL スペクトルから、各欠陥準位に起因したピークの炭素濃度依存性を調べた。熱処理温度や炭素濃度といった試料条件によっ

てスペクトル全体の強度が変化したため比較が困難であった。そこで、図 5 に示した Peak B (1.136) と Peak D (1.032 eV) の Si 起因の発光ピーク（それぞれ FE-TA と FE-TO-O⁺ の発光遷移⁷⁾ の強度を基準とし、欠陥準位に起因したピーク強度を規格化して強度比を算出した。図 7 に S-line の結果を示した。横軸が炭素濃度、縦軸が算出した強度比である。図から明らかなように、炭素濃度と S-line のピーク強度に相関がみられた。他の発光ピークも同様に炭素濃度依存性を解析した結果、今回取り上げたすべてのピーク (S-line, C-line, P-line, G-line, H-line) でそれらの強度比と炭素濃度との間に相関関係が観測された。よって起因不明の S-line には炭素関連の欠陥準位が起因していることが分かった。しかし、炭素濃度に対して全てのピーク (S-line, C-line, P-line, G-line, H-line) における強度比の増加係数の平均が 1.79 倍になった。

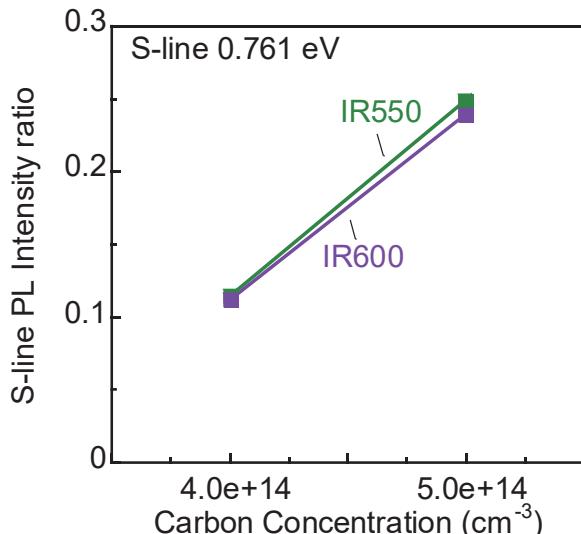


図 7. S-line の炭素濃度依存性

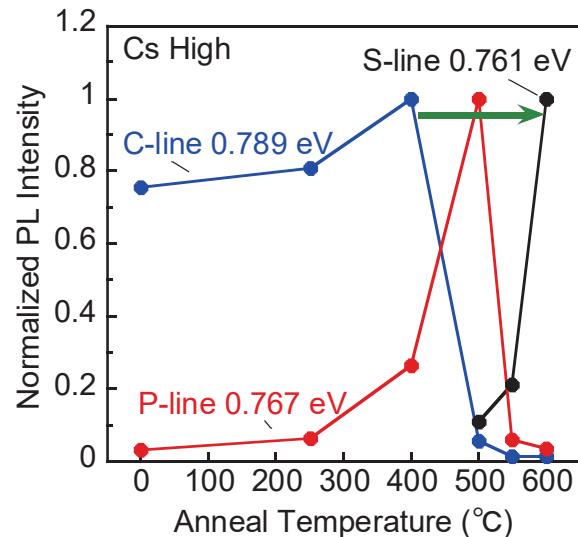


図 8. C, P, S-line の熱処理温度依存性

本研究では禁制帯中深い位置の欠陥準位が関与していない自由励起子発光 (Peak B、Peak D) を規格化に用いたが、炭素濃度と熱処理温度の違いによって Peak B と Peak D における強度の大小関係にばらつきが生じていたため增加係数が同じにならなかったと考えた。

図 8 に低エネルギー側 (0.76~0.79 eV) に観測された C-line、P-line、S-line の発光ピーク強度の熱処理温度依存性をプロットした。縦軸はピーク強度をそれぞれの最大値で規格化したものである。熱処理温度 400°C 以上の範囲で熱処理温度上昇に伴い C-line→P-line→S-line とピークのエネルギーが低い順にピーク強度が極大を示す結果を示した。C-line、P-line の起因については結晶中の炭素と酸素の複合体が関連しているとされており、新たなピークである S-line に関しては CZ 法による試料作製時に混入した炭素と酸素の複合体が起因していると結論付けた。

4. 結論

本研究では電子線照射とその後の回復熱処理を行った *n* 型 Si 基板の欠陥準位について PL 法を用いて発光再結合の観点から評価を行った。バンド端付近に観測されたいくつかの Si 起因発光ピークの信号強度が大きく減少したことから、電子線照射により結晶構造の乱れが生じたと結論付けた。回復熱処理を行うことでバンド端付近の発光強度は回復し、熱処理温度が 600°C になるとバンド端付近の発光強度は電子線照射前の強度とほぼ等しくなった。また、低エネルギー側に出現した C-line や P-line といった欠陥準位が関連したピークは、ある熱処理温度で極大を示し、その後消失するといった傾向を示した。特に、IR550 と IR600 の試料にのみ P-line よりもさらに低エネルギー側に S-line という新たなピークが確認された。S-line の強度は炭素濃度との相関関係を示した。また、熱処理温度が 400°C 以上になると、熱処理温度の上昇に伴い C-line→P-line→S-line とピークのエネルギーが低い順にピーク強度が極大を示した。これらの実験結果から S-line の起因は C-line や P-line と同様に、炭素と酸素の複合体である可能性が示された。

参考文献

- 1) 国立研究開発法人産業技術総合研究所,
https://www.aist.go.jp/aist_j/magazine/20230517.html
(2025/01/14 閲覧).
- 2) 山本 秀和, パワーエレクトロニクス産業の動向とパワーデバイス実装への要求, 第 27 回マイクロエレクトロニクスシンポジウム, 2017.
- 3) 沖電気工業株式会社,
<https://www.oki.com/jp/showroom/virtual/column/c-20.html> (2025/01/14 閲覧).
- 4) 田澤 修一, 軽イオン照射による半導体ワーデバイスの電気特性の改良, RADIOISOTOPES, **43**, No.4, 224-227 (1994).
- 5) 中川 聰子: パワーデバイス用 MCZ-Si ウェーハ, 応用物理, **84**, No.11, 2015.
- 6) 矢田部 龍彦, 福山 敦彦 他, 電子線照射とその後の回復熱処理により Si に形成された欠陥準位の非発光再結合評価, 宮崎大学工学部紀要, No. 53, 65-70 (2024).
- 7) S. Nihonyanagi, Y. Kanemitsu: Enhanced luminescence from electron-hole droplets in silicon nanolayers, Appl. Phys. Lett, **85**, 5722 (2004).
- 8) S. Binetti, A. Le Donne, A. Sassella: Photoluminescence and infrared spectroscopy for the study of defects in silicon for photovoltaic applications, Solar Energy Materials & Solar Cells **130**, 696–703 (2014).
- 9) S. Binetti, J. Libala, M. Acciarri: Study of defects and impurities in multi crystalline silicon grown from metallurgical silicon feedstock, Materials Science and Engineering B 159-160, 274-277 (2009).
- 10) A. Dornen, R. Sauer, G. Pensl: Complexing of Nitrogen with Carbon and Oxygen in Silicon, Photoluminescence Studies, Journal of Electronic Materials. **17**, 121-125 (1988).
- 11) J. Bandet, B. Despax, M. Caumont: Nitrogen bonding environments and local order in hydrogenated amorphous silicon nitride films studied by Raman spectroscopy, J. Appl. Phys. **85**, 7899–7904 (1999).
- 12) 村松 徹 他, 第 75 回応用物理学会秋季学術講演会講演予稿集, 20a-A20-10 (2014).

Investigation of Introducing Thermal Energy Storage into Food Drying Chamber

Raditya Helmi Fakhruddin^{a)}, Mochamad Bagus Hermanto^{b)}, La Choviya Hawa^{c)}, Yoshinori Nagase^{d)}, Osamu Ohnishi^{e)}, Ken Masuya^{e)}, Ryuusuke Kawamura^{d)}

Abstract

The food and agriculture section is one of the most significant sectors in all countries including Indonesia and Japan. But this sector faces several challenges such as uncertain demands, food production decreases, and distribution issue. Despite these challenges, the food sector has to make some efforts to improve and ensure quality of food production. One of the most advanced technologies in this sector is drying. Drying is food preservation process to remove the moisture from a food and inhibit the growth of bacteria and extend shelf life. Thermal energy storage (TES) is a new innovation for maintaining the heat of a drying process. Phase change materials (PCMs) as energy storage medium of TES in dryers enables the efficient drying of food products as it enables the efficient use of energy. Recent research has continued to explore the use of PCMs in solar dryers, with a focus on optimizing their performance and efficiency, development of new PCMs materials, and the design of more efficient thermal storage systems. The main focus in this research is to observe the effect of three different melting temperatures of the PCMs in the drying chamber. This allows us to obtain physical properties of the drying chamber to optimize the drying process on food products. Currently, this research is at the design stage for the drying chamber. Furthermore, the machine will be made according to the design and the material in the form of PCM with three different temperatures will be studied, and the food ingredients will be dried for research.

Keywords: Food Drying, Thermal Energy Storage, Phase Change Material (PCM)

1. INTRODUCTION

Drying is the oldest method of food preservation and has been proven to extend the shelf life of many types of food. This is closely related to world food security so that many of the best drying methods are developed over time. Drying using natural energy sources is a cheap and easy choice of drying methods and meets the green energy targets that are being carried out throughout the world. Solar dryer is one type of drying with natural energy that is widely used and continues to be developed to meet the specific needs of each type of food. However, solar drying has the disadvantage that it can only run during the day. Therefore, an energy storage system was developed that can take excess energy to be used when energy is lacking, namely the Thermal Energy Storage (TES) system.

TES can increase the efficiency of using solar dryers as well as energy. One type of TES that is developing is Phase Change Material (PCM), which is a type of latent heat storage that can store heat energy by changing the phase of the material. The development of PCM in solar dryers continues

to grow, including the type of PCM that is most suitable for use depending on the type of chamber in the solar dryer, so further research is needed regarding chamber design and various types of PCM for drying food ingredients.

2. LITERATURE REVIEW

2.1 Food drying

Drying food is an effort to extend the shelf life of the material by providing heat to the food so that the water content in the food comes out to the surrounding environment. This will cause the water in the material to decrease so that it can inhibit physical and biochemical activities and inhibit the growth of bacteria that can damage the structure of the material¹⁾. The process of drying food is mostly done by convection, where heat from the heat source flows to the food, causing evaporation of water in the material by conduction and diffusion. However, this drying process can reduce the quality of food ingredients characterized by loss of nutrients, discoloration. Loss of flavor, vitamin damage, and so on²⁾. The drying rate is influenced by several factors such as airflow velocity, temperature, type of material being dried, thickness, material moisture content, material diffusivity, porosity, surface area, and humidity³⁾⁴⁾. The choice of dryer type can affect the quality of the dried product, because each type of dryer has certain characteristics depending on the type of

a) Graduate Student, Graduate School of Engineering, Mechanical Systems Course

b) Lecturer, Department of Biosystems Engineering, Universitas Brawijaya

c) Professor, Department of Biosystems Engineering, Universitas Brawijaya

d) Professor, Mechanical Engineering Program

e) Associate Professor, Mechanical Engineering Program

product⁵⁾. Uniform airflow and thorough temperature distribution are crucial factors that determine the quality of the dried product, while the main parameters of a dryer are that it can regulate airflow speed, temperature, drying rate, drying time, and humidity⁶⁾. In food drying, another challenge is to regulate energy consumption so as to keep the nutrients in the food from being lost, which is caused by non-uniform airflow and drying parameters not matching the optimal drying conditions⁷⁾. Current food dryers have many advantages and disadvantages. Some types of conventional food dryers are solar dryers that are environmentally friendly and cheap but weather-dependent so that drying is slow, and cabinet dryers that can regulate temperature, performance, and can dry quickly and uniformly but have the potential to damage the nutritional content of the material because the temperature used is quite high⁸⁾.

2.2 Solar dryer

Solar dryer is a technology used to dry many types of materials including food. This dryer is an environmentally friendly dryer because it uses energy from the sun so it does not leave waste that harms the surrounding⁹⁾. The use of solar dryers can reduce food waste, extend product shelf life, and maintain product quality characterized by the preservation of nutrients in the ingredients. This drying is also a very potential use of renewable energy because it can maximize storage, reduce costs, and facilitate distribution by utilizing energy available from nature¹⁰⁾. Drying food is usually carried out at temperatures between 45°C - 60°C so that drying is efficient and maintains the content in the material, and in this temperature range solar dryer is the most suitable type of dryer for drying food¹¹⁾.

Solar dryer has several types. The first is a direct solar dryer (DSD), where the product is arrayed on a tray with a transparent cover that solar energy is directly transferred to products. The second is Indirect Solar Dryer (ISD), where the product is set on trays in a drying cabinet, which is attached to a solar air collector that heats the air. Moisture removal is facilitated by a chimney situated at the summit. Third is the Mixed Solar Dryer (MSD) which integrates DSD and ISD into a system composed of a solar air collector, drying cabinet with translucent coverings, and chimney. Direct solar radiation and heated air from solar air collectors evaporate the moisture of the food products. The fourth is the Hybrid Solar Dryer (HSD) which utilizes auxiliary energy sources, including biomass, electricity, and residual heat, in addition to solar energy, to dissipate the moisture of food products. Each type of solar dryer is divided into forced drying and non-forced drying, where forced drying usually uses the help of other

tools such as blowers to accelerate the flow of hot air¹²⁾.

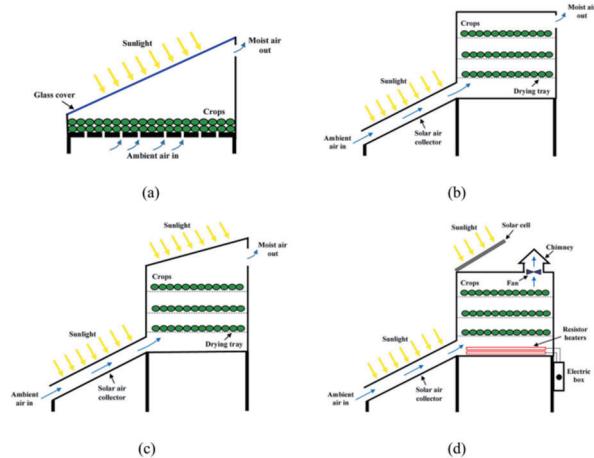


Fig. 1. Solar dryer type (a) DSD, (b) ISD, (c) MSD, (d) HSD

Solar dryers use a solar collector to extract energy from sunlight. This part is designed to take as much heat energy as possible and then flow it into the chamber where the material to be dried is placed. The solar collector is made of double-glazing glass, collector chamber, and absorber that will take as much heat as possible while the sun is shining. The collector chamber is an empty part so that heat will be stored and not lost or absorbed by other materials¹³⁾.

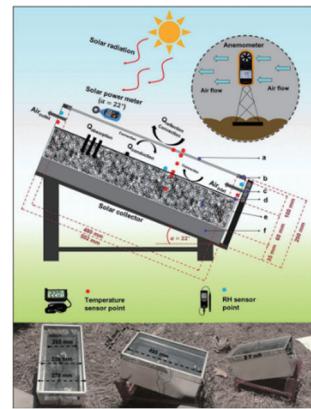


Fig. 2. Schematic representation of collector with sensor points

The most obvious weakness in the use of solar dryers is that solar energy is only available during the day, so drying will stop at night which causes drying time using solar dryers to be relatively long and potentially damaging to the dried material, especially food ingredients that cannot withstand sudden and significant temperature changes. The solution that is being developed as a solution to this weakness is to add energy storage in the solar dryer so that the excess

heat obtained during the day can be stored and used at night¹⁴⁾.

2.3 Thermal energy storage

Thermal Energy Storage (TES) is a technology developed to store thermal energy from heat sources for use when heat demand increases but heat availability decreases. The working principle of TES is the absorption and release of heat through temperature or phase changes. TES can store energy as well as distribute energy so as to increase the efficiency of energy use in a system. In storing energy, TES uses certain materials as heat storage media such as water, salt, sand, or paraffin. The use of TES is currently being developed rapidly because it can reduce carbon emissions so as to create environmentally friendly energy that is more effective in its use¹⁵⁾. TES is divided into three types based on its heat storage method. The first is Sensible Heat Storage (SHS) which stores heat by increasing the temperature of the material without changing the phase of the material. Energy will be stored when the media temperature increases and released when the media temperature decreases. The advantage of SHS is that it is simple and inexpensive, but it requires a very large volume of material to store large amounts of energy. Some materials that are widely used for SHS are water, rocks, or sand. The second is Latent Heat Storage (LHS) which stores energy through the phase change of a material. When the material melts, energy is absorbed and when it freezes, energy is released. The advantage of LHS is that a small volume of material can store large energy with a relatively stable temperature. Some LHS materials are wax, paraffin, or salt hydrate. Third is Thermo Chemical Storage (TCS) which stores energy through reversible chemical reactions. Energy will be stored during an endothermic reaction and will be released during an exothermic reaction. The advantage of TCS is that the energy stored is very high and suitable for long-term storage, but the disadvantage is that the technology is still complex so the price is expensive. An example of a chemical reaction in TCS is the reaction of hydrated salt and water vapor¹⁶⁾. One type of LHS that is widely used is PCM or Phase Change Material, which can provide a wide temperature range, relatively low cost, and easily available¹⁷⁾.

2.4 Phase change material

Phase Change Material (PCM) is one type of TES usage in LHS. PCM is a material that is capable of storing and releasing heat energy through a phase change process. PCM stores energy when the material is in a gel or liquid phase and releases energy when the material is in a solid phase. This process takes place at a relatively constant temperature, so the use of PCM is

effective for processes that require specific temperatures. According to phase transition that takes place during thermal energy storage (TES) and discharged, PCM can be classified as Solid-Liquid (SL-PCM) and Solid-Solid (SS-PCM). SL-PCM state commonly act as latent heat storage materials which occurs during phase solid to liquid. SS-PCM state commonly act as stored energy process, which a transition from a crystalline state semi-solid polycrystalline structure to amorphous state. The effective thermal conductivity of PCM can be improved by using metal foams and heat pipe's capacity to transport the heat to the PCM, which has low thermal conductivity¹⁸⁾. PCMs exhibit high volumetric heat storage density and their ability to supply heat at near-isothermal operation is attributed to the fact that the phase transition occurs at a specified temperature.

Additionally, a wide range of PCMs available with different phase change temperatures, makes them suitable for numerous applications including, domestic water heating, thermal management of electrical components, steam generation, power generation, etc¹⁹⁾. One type of PCM that is widely used is paraffin. Development of the use of paraffin as a PCM is being carried out, one of which is the microencapsulation technique. PCM will be encapsulated using micro capsules made of polymer or silicon. Microencapsulation of PCM can improve thermal stability, expand the surface area of heat transfer, and facilitate the placement of PCM in various places, as well as prevent leakage and chemical degradation²⁰⁾.

2.5 Drying chamber

This research is conducted to acquire some difference between using PCM and non-PCM. Then experimenting on food products that need to be dried. Therefore, drying chamber is necessary for any type of drying to be succeed. Drying as a post-harvest activity is the most attractive method for conditioning food grains by removing moisture to a safe moisture level. This is because the drying process has proven reliable and flexible for removing moisture from food grains.

3. EVALUATION METHOD

This research would need three main steps to begin with, which is literature review, Designing and material testing. Before making a design, a literature studying needs to be conducted. This stage, required the researcher to look some source of information about Thermal Energy Storage, Phase Change Materials, Food Drying Process or anything that is related to acquire the purpose of this study.

In order to make this PCM as a Thermal Energy Storage in drying process functional, it would need a space and circulation so that the heat

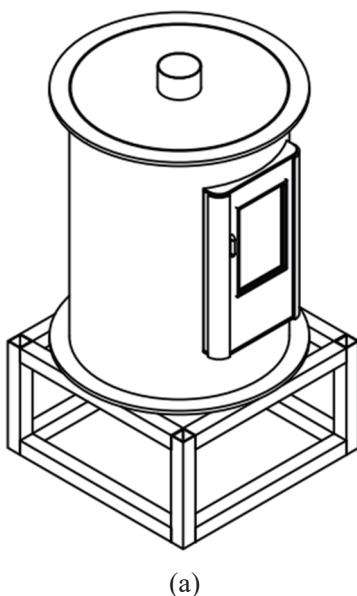
from the blower or inlet could spread around the food products. The circular drying chamber was designed. After consider some reference, we decided to make this as a conventional dryer as it could applied to all kind of drying technology.

After designing the chamber, the next step would be designing the heater model and determine the parameter for the experiment. The parameters for this step are time and the PCMs. In this study, we calibrate 2 types of thermocouples which is K-Type and T-Type with data logger as it would detects the temperature changes within the chamber. Then, the materials for the PCMs were already prepared. Three types of melting temperature (40 , 58 and 70°C) Paraffin-wax is used as a PCMs material in this step. These materials are required to distinguish which one is the most suitable for food drying. This step would take approximately 2 weeks including if there is any error.

After the drying machine was set, the drying process of food ingredient sample is held. This step is supposed to acquire some data about food color and water content as it holds the parameter for this step. Generally, water content can be obtained by weighing the food product before and after the drying process.

4. RESULTS

In the meantime, this research has reached for a designing process. The design of the drying chamber has been made using AutoCAD. The current design is a cylindrical drying chamber with a diameter of 59.7 cm and a height of 70.9 cm with a chamber wall thickness of 0.6 cm . The chamber has several parts, namely a drying tray with a diameter of 50 cm and inlet and outlet parts with a diameter of 10 cm .



(a)

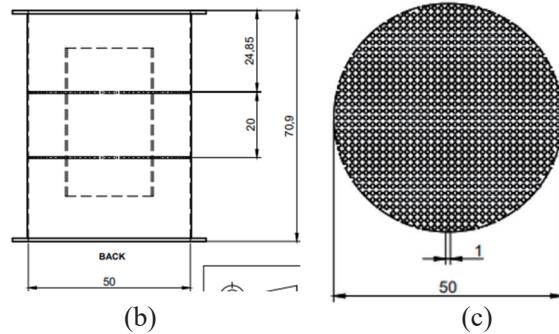


Fig. 3. Cylindrical drying chamber design (a)
Full design, (b) Inside rear view, (c)
Drying tray design

This chamber heater uses an electric blower engine with a PHS09 type heater which is used as a source of hot air flow. This heater is connected to the inlet and the hot air will be flowed through the PCM at the bottom of the chamber. Then proceed through the food that is dried on the drying tray. After that, it is flowed towards the outlet.

The design process will be followed by the design of the entire drying machine, including the connection of the hot air flow pipe and the dryer heater. This stage will still be investigated further before the construction of the dryer. Three PCMs with the melting point at a different temperature will be observed after the dryer is constructed. After these steps are completed, the food ingredients will be dried to be investigated and observed for differences in the sample with the parameters of moisture content and food color.

5. CONCLUSION

This research is conducted to obtain the effect of three different kinds of melting temp from PCMs as it holds the most suitable material in TES in food drying. The research contains three different main steps to begin with. First, by studying some literature about anything that related to this study. Secondly after doing some review, it will be a designing process about the drying machine. Currently, the design has reached a depiction of the drying chamber that has shaped in the form of a cylinder which has a height of 70.9 cm and a diameter of 59.7 cm with a chamber wall thickness of 0.6 cm . Finally after the drying machine was constructed, the study about PCMs and dried food ingredients was going to be held.

REFERENCES

- 1) Fernandes L and Tavares PB. 2024. A Review on Solar Drying Devices: Heat Transfer, Air Movement and Type of Chamber. *Solar Journal*, 1-10
- 2) Zheng Z, Wang S, Zhang C, Wu M, Cui D, Fu X, Gao L, Li A, Wei Q, and Liu Z. 2023. Hot Air Impingement Drying Enhanced Drying Characteristic and Quality Attributes of *Ophiopogonis radix*. *Foods*, 12(7): 1-14.

- 3) Homayoonfal M, Malekjani N, Baeghbali V, Ansarifar E, Hedayati S, and Jafari SM. 2024. Optimization of Spray Drying Process Parameters for the Food Bioactive Ingredients. *Critical Reviews in Food Science and Nutrition*, 64(17): Guo W, Tong L, Yang L, Zhao S, Yin S, Liu C, and Wang L. 2023. A Thick Layer Drying Kinetic Model and Drying Characteristic of Moisture Containing Porous Materials. *International Communication in Heat and Mass Transfer*. Article 107133.
- 4) Guo W, Tong L, Yang L, Zhao S, Yin S, Liu C, and Wang L. 2023. A Thick Layer Drying Kinetic Model and Drying Characteristic of Moisture Containing Porous Materials. *International Communication in Heat and Mass Transfer*. Article 107133
- 5) Jimoh KA, Hashim N, Shamsudin R, Man HC, Jahari M, and Onwude DI. 2023. Recent Advances in the Drying Process of Grains. *Food Engineering Reviews*, 15(3): 548-576.
- 6) Wu W, Li H, Chen Y, Luo Y, Zeng J, Huang J, and Gao T. 2024. Recent Advances in Drying Processing Technologies for Aquatic Product. *Processes*, 12(5): 940-947.
- 7) Liu L, Dai X, Kang H, Xu Y, and Hao W. 2020. Structural and Functional Properties of Hydrolyzed/Glycosylated Ovalbumin Under Spray Drying and Microwave Freeze Drying. *Food Science and Human Wellness*, 9(1): 80-87.
- 8) Bhat IM, Wani SM, Mir SA, and Naseem Z. 2023. Effect of Microwave Assisted Vacuum and Hot Air Oven Drying Methods on Quality Characteristic of Apple Pomace Powder. *Food Production, Processing and Nutrition*, 5(1): 24-31.
- 9) Rathore N, Kothari S, and Panwar NL. 2018. Analysis of Monocrystalline Panel and Polycrystalline Panel. *Green Farm*, 9(3): 575-578.
- 10) Vijayaventaraman S, Iniyan S, and Goic R. 2012. A Review of Solar Drying Technologies. *Renewable Sustainable Energy Review*, 16: 2652-2670.
- 11) Sharma K, Paul A, and Rathore N. 2018. Clean Energy Farmong – A Step Towards Sustainable Development. *Energy Future*, 6(4): 30-35.
- 12) Atia A, Teggar M, and Laouer A. 2024. Performance of Various Solar Dryer Types Integrating Latent Heat Storage for Drying Agricultural Products: An Up-to-date Review. *Journal on Energy Storage*, 102: 1-9.
- 13) Efendi M, Hendrawan Y, Hawa LC, and Argo BD. 2024. Employing a Combination of a Double-glazed Flat Solar Collector and Sensible Heat Storage for Drying Agricultural Product. *Ecological Engineering and Environmental Technology*, 25(5): 106-118.
- 14) Kamarulzaman A, Hasanuzzaman M, and Rahim NA. 2021. Global Advancement of Solar Drying Technologies and its Future Prospects: A Review. *Solar Energy*, 221: 559-589.
- 15) Abdellatif HE, Belaadi A, Arshad A, and Bourchak M. 2025. Modeling and Performance Analysis of Phase Change Materials in Advanced Thermal Energy Storage Systems: A Comprehensive Review. *Journal of Energy Storage*, 121: 1-48.
- 16) Barbosa EG, Araújo MEV, Oliveira ACL, and Martins MA. 2023. Thermal energy storage systems applied to solar dryers: Classification, performance, and numerical modeling: An updated review. *Case Studies in Thermal Engineering*, 45: 1-8
- 17) Huang X. 2022. Investigation and Optimization of Solidification Performance of a Triplex-Tube Latent Heat Storage System by Rotational Mechanism. *Applied Energy*, 331: 12-20.
- 18) Krishnan A, Suresh S, Midhun VC, Kalidoss P, Shelton J, Dharun S, and Gavaskar PS. 2025. Experimental and Numerical Investigation on the Performance of Binary Solid-Solid Phase Change Materials with Integrated Heat Pipe and Aluminum Foam Based Heat Sink for Thermal Management of Electronic Systems. *International Journal of Thermal Science*, 10949: 1-21.
- 19) Arun S and Muthukumar P. 2025. Development of a Lab-Scale Combined Sensible and Latent Heat Storage System: A Numerical and Experimental Study. *International Journal of Thermal Science*, 109387: 1-17.
- 20) Pomianowski M, Heiselberg P, Jensen RL, Cheng R, and Zhang Y. 2024. A New Experimental Method to Determine Specific Heat Capacity of Inhomogenous Concrete Material with Incorporated Microencapsulated PCM. *Cement and Concrete Research*, 55: 22-34.

Web ページのレイアウト不具合を強調表示する 視覚的回帰テストツール MixVRT の実装

有留 直希^{a)}・片山 徹郎^{b)}

Implementation of MixVRT Which Is a Visual Regression Testing Tool That Highlights Layout Defects in Web Pages

Naoki ARIDOME, Tetsuro KATAYAMA

Abstract

As a method for detecting layout defects in web pages, image-based visual regression testing is proposed. It makes it easier to spot differences in layout by displaying web pages before and after any changes side by side and highlighting the differences in layout. However, it has the problem that it takes time to find unintended differences in layout that are not based on HTML code. Therefore, this paper implements MixVRT which is a visual regression testing tool that highlights layout defects in web pages. It detects differences by comparing images and detects changes due to HTML codes changes on the web pages before and after changes and compares them to detect layout defects. From evaluation experiments, the time find to layout defects can be reduced.

Keywords: MixVRT, web page, layout defects, visual regression testing, HTML code

1. はじめに

インターネットの利用率は年々増加している¹⁾。それに伴い、Web サイトや Web アプリケーションといった Web ページの需要が高まっている。

近年、Web ページは、ユーザ体験(UX)や検索エンジン最適化(SEO)の観点から、高い更新頻度が求められている²⁾。しかし、Web ページ更新のための変更には、HTML コードの変更による意図したレイアウトの差分と、HTML コードの変更によらない意図しないレイアウトの差分が紛れ込んでしまい、その 2 つの差分を区別するのに時間がかかるという問題がある。本研究では、開発者が意図しないレイアウトの差分を、レイアウト不具合と呼ぶ。

この問題を解決するために、視覚的回帰テスト(Visual Regression Test)³⁾がある。Web ページを対象とした視覚的回帰テストでは、変更前後の Web ページを並べて、レイアウトの差分を強調表示することで、レイアウトの差分を発見しやすくなる。既存の視覚的回帰テストを対象とした研究には、変更前後の画像のみを比較し、開発者の意図したレイアウトの差分を含む、すべてのレイアウトの差分を強調表示するものが多い^{4,5)}。

しかし、レイアウト不具合を発見するためには、表示されたすべてのレイアウトの差分と HTML コードを照らし合わせながら、その差分が開発者の意図に沿っているかど

うかを判断する必要があり、時間がかかる。そこで本研究では、Web ページのレイアウト不具合の発見にかかる時間の削減を目的として、Web ページのレイアウト不具合を強調表示する視覚的回帰テストツール MixVRT の実装を行う。

2. MixVRT の機能

本章では、MixVRT の機能について説明する。MixVRT は、変更前後の Web ページに対して、画像比較による差分箇所の検出と HTML コードの変更による変更箇所の検出を行い、それらを比較することで、レイアウト不具合箇所を検出する。また、検出した箇所を示すために、差分箇所、変更箇所、レイアウト不具合箇所の 3 つを赤枠または緑枠で囲むことで強調表示する。

● 差分箇所

変更前後の Web ページの画像を比較して、変更前の Web ページから削除された範囲と、変更後の Web ページに追加された範囲。

● 変更箇所

変更前後の Web ページの HTML コードを比較して、HTML コードにおける body 要素内の変更と style 要素内の変更のどちらか、または両方が適用された画面要素の範囲。本研究では、変更箇所を意図したレイアウトの差分の範囲とみなす。

a)工学専攻先端情報コース大学院生

b)工学科情報通信プログラム教授



図 1. 変更前の Web ページの画像例（左）と変更後の Web ページの画像例（右）の一部



図 3. HTML コード比較による変更箇所を検出した画像



図 2. 画像比較による差分箇所を検出した画像



図 4. レイアウト不具合箇所を検出した画像

● レイアウト不具合箇所

差分箇所から、意図したレイアウトの差分の範囲である変更箇所を除いた、レイアウトの差分の範囲。本研究では、レイアウト不具合箇所を意図しないレイアウトの差分の範囲とみなす。また、レイアウト不具合箇所は、レイアウト不具合を含む可能性がある箇所である。

MixVRT の検出対象とする変更前の Web ページの画像例と変更後の Web ページの画像例の一部を、図 1 に示す。なお、変更前の Web ページに対して、以下の 2 つの変更を行った。

- 変更 1. ログインフォームのロゴを追加
- 変更 2. パスワード欄とログインボタンの間に「ログアウト必須！」のテキストを追加

図 1 の変更前後の Web ページの画像に対して、画像比較による差分箇所を検出した画像を、図 2 に示す。削除された範囲は変更前画像上に赤枠で囲むことで強調表示し、追加された範囲は変更後画像上に緑枠で囲むことで強調表示する。変更前後の Web ページでレイアウトの差分箇所が生じた範囲を確認できる。

次に、図 1 の変更前後の Web ページの画像に対して、HTML コード比較による変更箇所を検出した画像を、図 3 に示す。削除された画面要素の範囲は変更前画像上に赤枠で囲むことで強調表示し、追加された画面要素の範囲は変更後画像上に緑枠で囲むことで強調表示する。図 2 における差分箇所から、開発者が変更した HTML コードに基づく変更箇所のみを確認できる。

最後に、図 1 の変更前後の Web ページの画像に対して、

レイアウト不具合箇所を検出した画像を、図 4 に示す。図 2 における差分箇所と図 3 における変更箇所の両方を用いて特定したレイアウト不具合箇所のみを確認できる。

3. MixVRT の外観と構造

本章では、MixVRT の外観と構造について説明する。MixVRT は、変更前の Web ページの URL と変更後の Web ページの URL を入力とする。そして、MixVRT の外観を構成する以下に示す 4 つのビューに、各ビューに対応する PNG 形式の画像を生成し、ローカルサーバ上で動作する Web ページに出力して表示する。

● オリジナルビュー

Web ページの変更前画像と変更後画像を左右に並べて表示する。オリジナルビューの外観を、図 5 に示す。

● 差分箇所ビュー

差分箇所を赤枠または緑枠で強調表示した、Web ページの変更前画像と Web ページの変更後画像を表示する。画像比較に基づく差分箇所ビューの外観を、図 6 に示す。

● 変更箇所ビュー

変更箇所を赤枠または緑枠で強調表示した、Web ページの変更前画像と Web ページの変更後画像を表示する。HTML コード比較に基づく変更箇所ビューの外観を、図 7 に示す。

● レイアウト不具合箇所ビュー

レイアウト不具合箇所を赤枠または緑枠で強調表示した、Web ページの変更前画像と Web ページの変更後画像を表示する。レイアウト不具合箇所ビューの外観を、図 8 に示す。

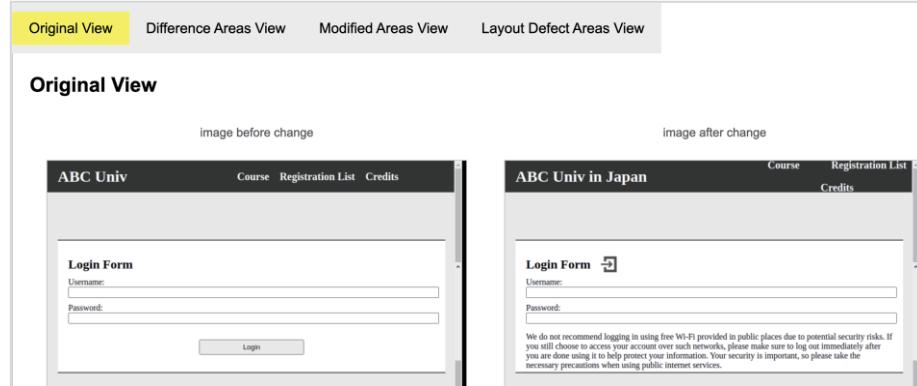


図 5. オリジナルレビューの外観

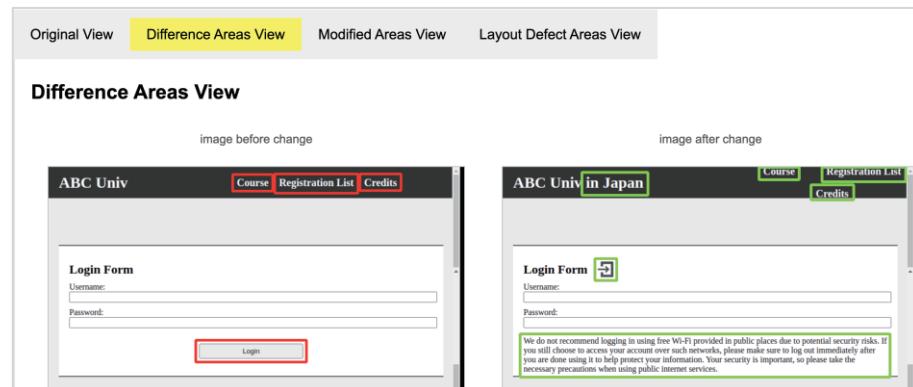


図 6. 差分箇所ビューの外観

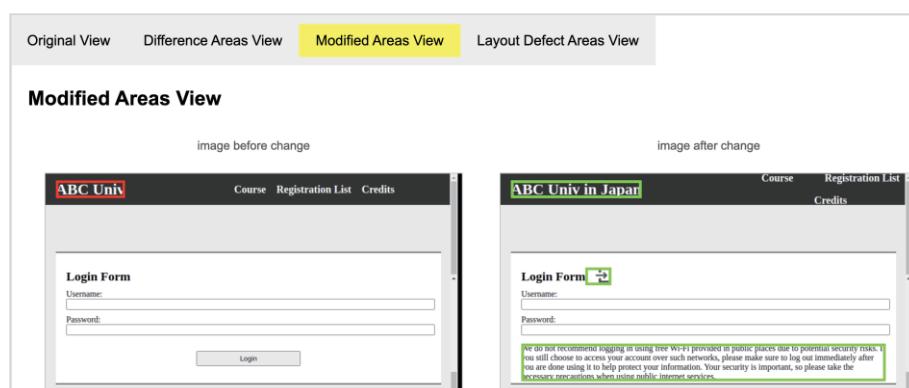


図 7. 変更箇所ビューの外観

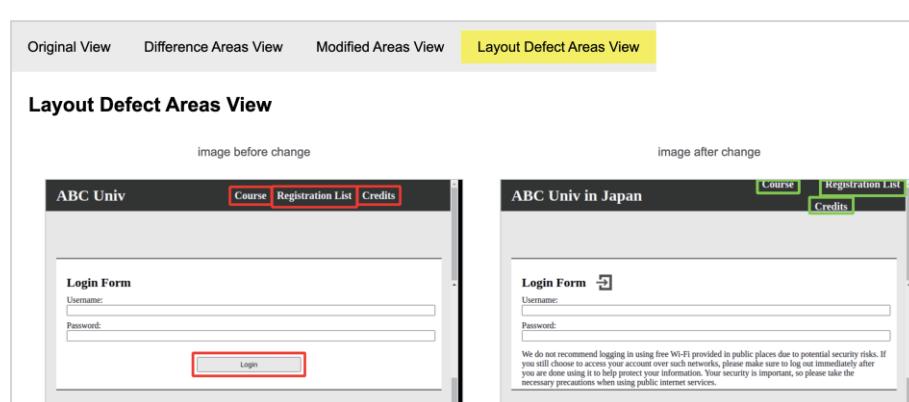


図 8. レイアウト不具合箇所ビューの外観

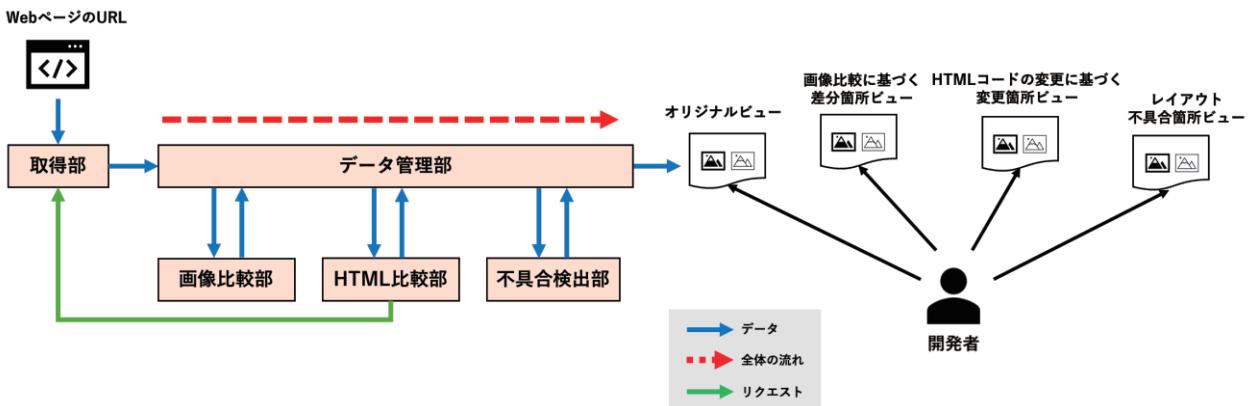


図 9. MixVRT の構造

MixVRTの構成を、図9に示す。MixVRTは以下の5つの処理部から構成されている。

● データ管理部

データ管理部は、各処理部間におけるデータの伝達を担い、他の処理部とのデータのやり取りとデータの保持を行う。なお、本論文におけるデータとは、処理前後のWebページの画像やHTMLコードを指す。

● 取得部

取得部は、入力として受け取ったWebページのURLに対して、Selenium WebDriver⁶⁾を用いてWebページ全体の画像を取得し、Requests⁷⁾を用いてWebページのHTMLコードを取得する。なお、Webページ全体の画像とは、スクロール可能な領域も含むWebページ全体のスクリーンショットであり、Webページのbody要素のスクロールの幅と高さを、Selenium WebDriverで設定するブラウザのウィンドウの幅と高さとして適用することで実現している。これらの処理を、変更前のWebページのURLと変更後のWebページのURLの両方に対して行うことで、Webページの変更前画像と変更後画像、Webページの変更前HTMLコードと変更後HTMLコードをそれぞれ取得する。取得したデータは、データ管理部に出力する。

● 画像比較部

画像比較部は、データ管理部から受け取ったWebページの変更前画像と変更後画像に対して、適応的閾値処理による二値化⁸⁾を行う。その後、二値化処理を施した変更前画像と変更後画像、さらにそれらを入れ替えた組み合わせについて、それぞれ対応するピクセル値を比較し、差分を検出す。検出した差分のうち、変更前画像から削除された範囲を赤枠で囲み、変更後画像から追加された範囲を緑枠で囲むことで、差分箇所を強調表示したWebページの変更前画像と変更後画像を生成する。生成した画像は、データ管理部に出力する。

● HTML比較部

HTML比較部は、データ管理部から受け取ったWebページの変更前HTMLコードと変更後HTMLコー

ドに対して、difflib⁹⁾を用いた行単位の比較を行い、差分コードを生成する。そして、差分コードから、変更があったHTML要素を赤枠または緑枠で囲むHTMLコードを、変更前HTMLコードと変更後HTMLコードにそれぞれ追記する。追記した変更前HTMLコードと変更後HTMLコードをそれぞれWebページとしてレンダリングし、レンダリング後のWebページの画像を取得することで、変更箇所を強調表示したWebページの変更前画像とWebページの変更後画像を得る。得た画像は、データ管理部に出力する。

● 不具合検出部

不具合検出部は、差分箇所を強調表示した画像と変更箇所を強調表示した画像を比較することで、レイアウト不具合箇所を検出し、レイアウト不具合箇所を強調表示したWebページの変更前画像とWebページの変更後画像を生成する。生成した画像はデータ管理部に出力する。レイアウト不具合箇所を検出するためのアルゴリズムは、差分箇所と変更箇所の赤枠、または、緑枠をそれぞれ比較し、枠同士が重なった部分の面積が50%未満であればレイアウト不具合箇所として判定する。差分箇所と変更箇所の赤枠同士の比較によってレイアウト不具合箇所を判定する例を、図10に示す。また、差分箇所と変更箇所の緑枠同士の比較によって、レイアウト不具合箇所を判定する例を、図11に示す。

4. MixVRT の評価

本章では、MixVRTの有用性を評価するために、MixVRTを使用した場合と、従来の画像ベースの視覚的回帰テストを使用した場合とで、レイアウト不具合箇所の発見にかかる時間と検出精度を比較する実験を行う。被験者は、宮崎大学で情報工学を専攻する4人の学生（以降、被験者A～Dと呼ぶ）である。

4.1. 実験準備

実験準備として、まず、実験用の2つのWebページを



図 10. 赤枠同士の比較によってレイアウト不具合箇所を判定する例（左: 差分箇所を強調表示した変更前画像の例、右: 変更箇所を強調表示した変更前画像の例）



図 11. 緑枠同士の比較によってレイアウト不具合箇所を判定する例（左: 差分箇所を強調表示した変更後画像の例、右: 変更箇所を強調表示した変更後画像の例）

準備する。これらを、それぞれ変更前の Web ページ α と Web ページ β とする。変更前の Web ページ α は 261 行のコードと 17 個の CSS クラスで構成され、変更前の Web ページ β は 472 行のコードと 28 個の CSS クラスで構成されている。次に、これらの 2 つの Web ページそれぞれに対して、レイアウト不具合が存在するレイアウト不具合箇所を 3 箇所含むよう変更した。変更後、Web ページ α は 275 行のコードと 20 個の CSS クラスで構成され、Web ページ β は 489 行のコードと 31 個の CSS クラスで構成される。これらを、それぞれ変更後の Web ページ α と Web ページ β とする。また、被験者がレイアウト不具合箇所を見つけた際に、その箇所の位置を記録しておくための実験用ファイルも作成した。

4.2. 実験方法

被験者は、変更前の Web ページ α と変更後の Web ページ α 、および、変更前の Web ページ β と変更後の Web ページ β を用いて、以下の 2 つのケースで実験を行う。

以下に、2 つのケースを示す。

● ケース A

MixVRT を使用する。被験者がレイアウト不具合箇所ビューを見てから、すべてのレイアウト不具合箇所を見つけるまでにかかった時間を発見時間として計測する。

● ケース B

従来手法を使用する。被験者が差分箇所ビューを見てから、すべてのレイアウト不具合箇所を見つけるまでにかかった時間を発見時間として計測する。

なお、実験を行う際には、実験用 Web ページの変更前 HTML コードと変更後 HTML コードを見ることができる。

4.3. レイアウト不具合箇所の発見時間に関する評価

2 つのケースにおいて、レイアウト不具合箇所を発見する際にかかった時間を、表 1 に示す。表 1 より、Web ページ α では 12 分 59.5 秒（約 91.8%）の時間短縮、Web ページ β では 33 分 36.5 秒（約 97.7%）の時間短縮となった。

ここで、Web ページ α よりも Web ページ β の方が、削減率が高い理由を考察する。Web ページ β は、Web ページ α と比較して、コード行数や CSS クラス数が多い（4.1 節を参照）ため、HTML コードの確認により多くの時間を要した。その結果、従来手法では、MixVRT と比較して、レイアウト不具合箇所の発見に多くの時間を要したと考える。以上より、MixVRT を用いることで、レイアウトの差分が生じた箇所に対して、HTML コードを確認してレイアウト不具合であるかどうかを確認する時間を削減できたといえる。

4.4. レイアウト不具合箇所の検出精度に関する評価

ケース B の従来手法を用いた場合のレイアウト不具合箇所の過剰検出数と過小検出数を、表 2 に示す。評価実験において、従来手法では、被験者がレイアウト不具合箇所を過剰に検出することや、検出が不足することがあった。それに対して、ケース A の MixVRT を用いた場合は、レイアウトを過不足なく検出できた。以上のことから、MixVRT は、従来の画像ベースの視覚的回帰テストを用いた手法と比較して、レイアウト不具合の発見に有用である。

5. おわりに

本論文では、Web ページのレイアウト不具合の発見にかかる時間の削減を目的として、Web ページのレイアウト不具合を強調表示するツール MixVRT の実装を行った。

2 つの Web ページに関して実験を行った。結果として、MixVRT は、レイアウト不具合箇所の発見にかかる時間を Web ページ α において 91.8%、Web ページ β において 97.7% 削減できた。また、MixVRT は、すべてのレイアウト不具合箇所を過不足なく検出することを確認した。一方、従来手法では、レイアウト不具合箇所を過剰に検出することや、検出が不足することを確認した。これらの結果から、MixVRT は、従来手法と比較してレイアウト不具合の発見にかかる時間の削減に有用であることを示した。

表1. レイアウト不具合箇所の発見時間

被験者	Web ページ α		Web ページ β	
	ケース A	ケース B	ケース A	ケース B
A	-	18m 41s	52s	-
B	-	9m 38s	45s	-
C	1m 36s	-	-	32m 43s
D	44s	-	-	36m 7s
平均	1m 10s	14m 9.5s	48.5s	34m 25s
差	12m 59.5s		33m 36.5s	

以下に、本論文における今後の課題を示す。

● マルチブラウザへの対応

現在、MixVRT は、Chrome ブラウザで開いた Web ページの画像を取得する。しかし、Chrome 以外にも主要なブラウザとして、Edge や Firefox、Safari などのブラウザが存在する。また、ブラウザのエンジンによって、フォントのレンダリングや CSS の解釈が異なる。そのため、同じウィンドウサイズで同じ Web ページであっても、レイアウト不具合が発生する可能性があるため、複数のブラウザで視覚的回帰テストを行う必要がある。

● 複数のビューポート幅への対応

MixVRT は、Web ページの body 要素のスクロールの幅を取得し、それを Selenium WebDriver で設定するブラウザのウィンドウの幅として適用して Web ページの画像を取得している。そのため、狭いビューポート幅でのみ発生するレイアウト不具合を検出することができない。この問題に対応するために、複数のビューポート幅ごとに画像比較を行う必要があると考える。

● 変更前後で Web ページ全体の高さが異なるケースへの対応

変更前後の Web ページにおいて、Web ページの body 要素のスクロールの高さが異なる場合は、取得する Web ページの画像サイズも変更前後で異なり、単純なピクセル単位での画像比較が行えない。そのため、レイアウト不具合を検出できない。この問題に対応するために、画面要素ごとに画像比較を行う必要があると考える。

参考文献

- 1) 総務省：令和6年度情報通信白書，
<https://www.soumu.go.jp/johotsusintokei/whitepaper/ja/r06/htm/nd21b120.html#f00310>, (accessed 2025/5/13)
- 2) CAES Office of Information Technology: Why is web content so important,
<https://oit.caes.uga.edu/why-is-web-content-so-important/>, (accessed 2025/5/13)
- 3) Visual regression testing: “awesome-regression-testing”,
<https://github.com/mojoxel/awesome-regression-testing>, (accessed 2025/5/13)
- 4) Haruto Tanno, Yu Adachi, Yu Yoshimura, et al.:

表2. ケース B の従来手法を用いた場合の

レイアウト不具合箇所の過剰検出数と過少検出数

Web ページ	レイアウト不具合箇所	被験者	過剰検出	過少検出
α	3	A	1	1
		B	0	1
β	3	C	0	0
		D	0	1

Region-based Detection of Essential Differences in Image-based Visual Regression Testing, Journal of Information Processing, Vol.28, pp.268-278, 2020.

- 5) 塚越章弘: GUI 要素の階層構造構築・比較による視覚的回帰テスト差分検出方法の実証評価, Software Quality Profession, Vol.5, pp.207-214, 2020.
- 6) Selenium Project: “WebDriver”, Selenium Documentation, <https://www.selenium.dev/ja/documentation/webdriver/>, (accessed 2025/5/13)
- 7) PyPI: “Requests”, <https://pypi.org/project/requests/>, (accessed 2025/5/13)
- 8) OpenCV: “適応的閾値処理による二値化”, OpenCV Documentation, https://docs.opencv.org/4.x/d7/d4d/tutorial_py_thresholding.html, (accessed 2025/5/13)
- 9) Python Software Foundation: “difflib – Helper for computing deltas”, Python 3.13.1 Documentation, <https://docs.python.org/ja/3/library/difflib.html>, (accessed 2025/5/13)

電子フォーム作成を目的とした 記入欄自動検出およびラベル割付機能を持つツールの実装

木村 優哉^{a)}・片山 徹郎^{b)}

Implementation of a Tool for Automatic Fill-in Fields Detection and for Labels Assignment to Generate Electronic Forms

Yuya KIMURA, Tetsuro KATAYAMA

Abstract

The digitalization of forms is being promoted, but approximately half of companies still rely on paper-based management systems. The digitalization of forms can be achieved by capturing them using a scanner or camera. While this method offers the advantage of easy digitization, it also has the drawback that the contents filled in on the forms must be manually checked by a person. One of the effective ways to manage contents filled in fields is using electronic forms. Several tools have been developed to generate them automatically. However, when you use a paper form, the layout of the original form may change, and it takes time to generate electronic one because it is necessary to place fill-in fields on an electronic form by dragging with a mouse. This paper implements a tool for automatic fill-in fields detection and labels assignment to reduce time required to place fill-in fields without changing the layout. The tool can reduce the time to place fill-in fields.

Keywords: image processing, electronic form, fill-in fields, area obtainment, label assignment.

1. はじめに

2019年4月に電子帳簿保存法が改正され、帳票のデータ保存が義務付けられたことにより、帳票の電子化が推進されている¹⁾。帳票を電子化する動きがある一方で、約半数の企業は管理形式に紙を採用している現状がある^{2,3)}。

帳票の電子化は、スキャナやカメラで帳票を撮影することによって実現できる。簡単に電子化できるというメリットがある一方で、帳票に記入した内容は、人が目視で確認する必要があるというデメリットがある。効率的に記入内容を管理するためには、その記入内容をデータとして保存する必要がある。その方法の1つとして、電子フォームを用いる方法がある。電子フォームとは、従来、紙の帳票で行っていた申請などの業務に用いる帳票を電子化し、アプリケーションを介して入力した項目をそのまま業務用のデータとして利用するための仕組みである⁴⁾。

電子フォームを自動で作成するために、複数のツールが開発されている^{5,6)}。既存の電子フォーム作成ツールは、帳票をExcelファイルとして管理している場合、Excelファイルのレイアウトとセル書式を保ったまま電子フォームを簡単に作成できる。一方、帳票を紙媒体で管理してい

る場合は、既存の電子フォーム作成ツールを使用するためには、帳票をExcelファイルとして作成し、入力とするか、紙媒体の帳票を撮影した画像ファイルを入力として、電子フォームを手作業で作成する必要がある。しかし、使い慣れた既存の帳票のレイアウトが変わることがある、マウスのドラッグ操作で記入欄を配置する必要があるため、電子フォームの作成に時間がかかるという2つの課題がある。

そこで本研究は、帳票のレイアウトを保持したまま、電子フォーム作成にかかる時間を削減することを目的として、記入欄自動検出およびラベル割付機能を持つツールを実装する。なお、帳票は帳簿と伝票の総称であり、電子文書はWordやテキストファイルなど、デジタル情報として作成した文書を指し、電子化文書は紙媒体の書類をスキャンした、PDFファイルや画像の形式で保存した文書を指す⁷⁾。また、画像内にある、記入内容を示す文字とその位置から推測する、記入内容のデータ型をラベルと定義する。

2. 実装するツールの機能

本章では、実装するツールの機能について説明する。実装するツールの構造を、図1に示す。実装するツールは、帳票の画像を入力とする。出力は、記入欄の座標とそれに対応するラベルを組とするJSON(JavaScript Object Notation)形式のファイルと、記入欄の座標を帳票画像に描

a)工学専攻先端情報コース大学院生

b)工学科情報通信プログラム教授

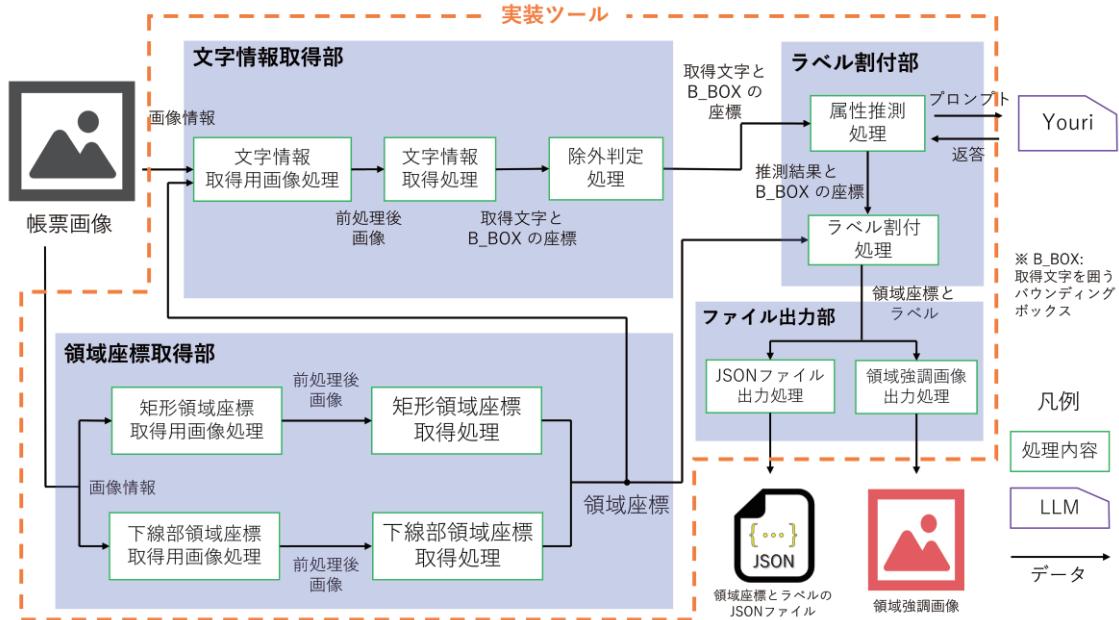


図 1. 実装するツールの構造

画した PNG(Portable Network Graphics)形式の画像である。出力する画像は、矩形の領域を描画した画像と、下線部の領域を描画した画像の 2 枚に分けていている。これは、領域を誤検出した際に、2 つの領域が重なることで視認性が低下することを防ぐためである。以降、矩形で示された記入欄を矩形領域と呼び、下線部で示された記入欄を下線部領域と呼ぶ。また、矩形領域であれば各頂点の 4 つの xy 座標を、下線部領域であれば両端点の 2 つの xy 座標を、それぞれの領域座標と定義する。さらに、帳票画像にある記入欄を帳票画像内記入欄と呼び、したツールによって取得する領域座標で示す記入欄を電子フォーム内記入欄と呼ぶ。

2.1 領域座標自動取得およびラベル割付機能

領域座標自動取得およびラベル割付機能は、帳票画像中の矩形領域および下線部領域について、それらの領域座標を電子フォーム内記入欄として取得し、それぞれにラベルを割り付ける機能である。ラベルを割り付けることで、バリデーションチェックに必要な情報を付与できる。

まず、帳票画像内にある矩形と水平な直線を検知し、各頂点の 4 つの xy 座標と、両端点の 2 つの xy 座標を、それぞれ矩形領域座標、下線部領域座標として取得する。次に、帳票画像内の帳票画像に対して光学文字認識⁸⁾を行い、検出した文字を取得文字とし、検出した文字を囲むバウンディングボックスの各頂点の座標を文字位置として、それぞれ取得する。最後に、取得文字に対して、大規模言語モデル Youri⁹⁾による属性の推測を行い、文字位置の近傍に存在する領域座標を対象に属性を割り付け、ラベルを取得する。

矩形領域座標の取得について、矩形領域の検出精度を高めるため、二値化や膨張処理¹⁰⁾などの複数の画像処理を

行う。本研究において、大津の二値化¹¹⁾を用いることによって、画像に適する閾値を自動で決定する。その後、処理後画像内のすべての輪郭を検出し、それを囲む最小の外接矩形について各頂点の xy 座標を矩形領域座標として取得する。

同様に下線部領域座標の取得について、矩形領域の検出精度を高めるため、二値化やエッジ検出¹²⁾などの複数の画像処理を行う。その後、ハフ変換¹³⁾を用いて検出した水平な直線について両端点の 2 つの xy 座標を下線部領域座標として取得する。

取得文字と文字位置の取得について、光学文字認識ソフト Tesseract-OCR¹⁴⁾を用いる。バウンディングボックスの左上頂点の y 座標について昇順にソートし、各取得文字に対して番号を 0 から順に割り振る。y 座標が同じ場合は、さらに x 座標について、昇順にソートする。本来は、y 座標が同じ場合は、x 座標を昇順にソートするため、左から右へ番号が大きくなる。しかし、人間の目視で複数の文字が同じ行に存在すると認識するとき、割り振った番号を参照すると、昇順にならない不具合が発生する場合がある。これは、Tesseract-OCR が文字を認識する順番を、y 座標についてピクセル単位で昇順にソートするため、人間の目視で認識する順番とソート後の順番に違いが生じるためである。この不具合の発生を防ぐため、バウンディングボックスの左上頂点の y 座標を基準に、下 10 ピクセル以内に別のバウンディングボックスの左上頂点がある場合は、各頂点の x 座標を比較して再ソートを行う。この再ソートは、ラベル割付の順番に影響するため、正しくソートする必要がある。

属性の推測について、各取得文字の属性を日付(date)、文字列(string)、数値(number)の中から推測する。属性の推測には、大規模言語モデル Youri を用いる。

単価	合計

図 2. 帳票画像にある矩形の記入欄



図 3. 図 2 の矩形から取得した矩形領域の描画

属性推測後、バウンディングボックスの中心点の xy 座標を計算して参照し、属性を各領域座標にラベルとして割り付ける。取得した領域座標のうち、矩形領域は右下頂点の xy 座標、下線部領域は右端点の xy 座標と、計算した中心点の xy 座標を比較する。中心点の x 座標と y 座標が共に大きい全ての領域座標をラベル割付の対象として、文字位置に対応する取得文字の属性をラベルとして割り付ける。このラベル割付処理において、既にラベルを割り付けた領域座標がラベル割付の対象となった場合は、後の処理で割り付けるラベルに更新する。これによって、日本語の帳票を書き進める順番に対応して、別の領域座標のラベルを割り付けることを防ぐ。

2.2 領域強調画像出力機能

領域強調画像出力機能は、入力である帳票画像に対して取得した領域とラベルを描画することによって、取得した領域を強調表示した PNG 画像を出力する機能である。これによって、2.1 節で述べた、領域座標自動取得およびラベル割付機能で出力した JSON ファイルの内容を、目視で確認しやすくなる。本機能で出力する画像は、矩形領域を強調した矩形領域強調画像と、下線部領域を強調した下線部領域強調画像の計 2 枚である。矩形領域強調画像は、ランダムな色で矩形を描画し、下線部領域強調画像は、緑色で直線を描画する。

同様に、別の帳票画像を入力として、矩形の記入欄の一部を切り取った画像を、図 2 に示す。また、図 2 の画像に對し矩形領域座標とラベルを取得し描画した画像を、図 3 に示す。図 3 に示すように、矩形領域に對してランダムな色で矩形を描画し、同色で矩形左上に番号と文字列を描画する。図 3 の矩形に表示する番号は、JSON ファイル内の矩形領域座標を格納する配列における番号を示す id キーの値と一致する。

同様にある帳票画像を入力として、下線部の記入欄の一

御中	
下記の通り、ご請求申し上げます。	
ご請求金額	(税込)

図 4. 帳票画像にある下線部の記入欄

御中	
下記の通り、ご請求申し上げます。	
ご請求金額	(税込)

図 5. 図 4 の下線部から取得した下線部領域の描画

部を切り取った画像を、図 4 に示す。また、図 4 の画像に對し下線部領域座標とラベルを取得し描画した画像を、図 5 に示す。図 5 に示すように、下線部領域に對して緑色で直線を描画し、同色で直線の左端点に番号と文字列を表示する。図 5 の下線部に表示する番号は、JSON ファイル内の下線部領域座標を格納する配列における番号を示すキーの値と一致する。

3. 適用例

本章では、本研究で実装したツールが正しく動作することを、適用例を用いて確認する。実装したツールに適用する帳票画像を、図 6 に示す。

3.1 矩形領域についての出力結果

図 6 の帳票画像に対して、実装したツールを適用し、出力した JSON ファイルのうち、矩形領域座標を格納した配列の一部を、図 7 に示す。また、JSON ファイルと同時に出力した 2 枚の領域強調画像のうち、矩形領域強調画像の一部を、図 8 に示す。

矩形領域座標について、IoU¹⁵⁾を用いて JSON ファイルの出力が正しいことを確認する。IoU は、物体検出において、2 つの領域の重なり度合いを表す指標であり、1.0 で完全一致、0.0 で重なりがないことを示す。なお、一般に、IoU は 0.5 を閾値として、閾値以上である場合は 2 つの領域が一致しているとみなす。

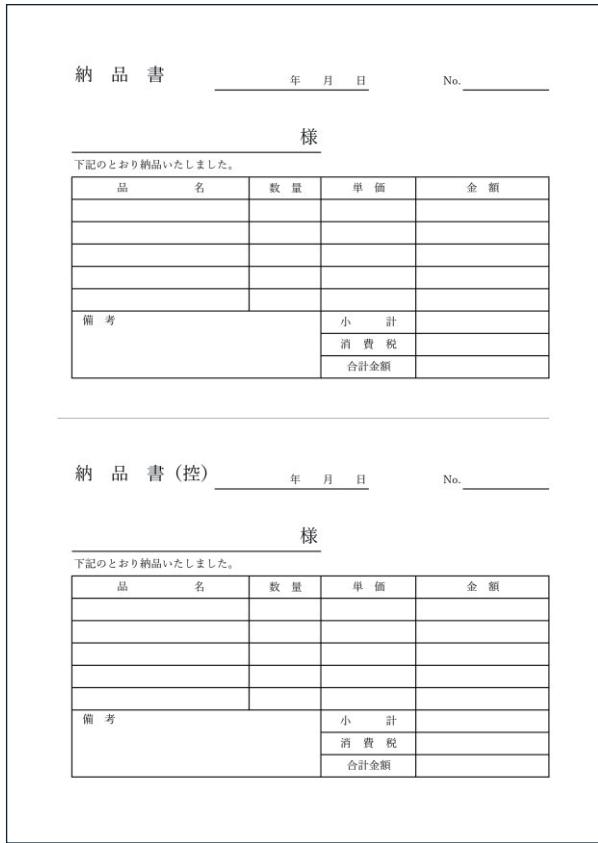


図 6. 実装したツールを適用する帳票画像

測定した矩形領域座標と、出力する JSON ファイルの矩形領域座標を確認し、IoU を算出する。図 7 より、各領域座標で一意な id キーの値が 4 である矩形領域座標は、左上頂点の xy 座標が(275, 817)であり、右下頂点の xy 座標が(1008, 903)である。図 8 にある 4 番の矩形領域について、図 6 の画像では、左上頂点の xy 座標が(273, 816)であり、右下頂点の xy 座標が(1009, 905)であった。よって、IoU を算出すると、0.96 となる。IoU が閾値である 0.5 以上であるため、この矩形領域座標は正しく取得できたと言える。他の矩形領域に対しても、矩形領域座標を正しく取得していることを確認した。

ラベルについて、人間が判断したラベルと、ツールが output したラベルが一致するかを確認する。図 7 より、id キーの値が 4 と 5 である矩形領域について、それぞれラベルは string、number である。図 8 より、画像内に描画した矩形領域の番号のうち、4 番の矩形領域は「品名」を記入する欄であり、5 番の矩形領域は「数量」を記入する欄であることがわかる。各矩形領域のラベルについて、「品名」は文字列(string)、「数量」は数値(number)がそれぞれ正しいラベルであるため、これら 2 つの矩形領域について、正しいラベルを割り付けていることを確認できた。他の矩形領域に対しても、一部を除き、正しいラベルを割り付けていることを確認した。

また、矩形領域について、JSON ファイルと領域強調画像の出力が対応することから、帳票画像のレイアウトを保

```
{
  "id": 4,
  "label": "string",
  "coords": {
    "top_left": {
      "x": 275,
      "y": 817
    },
    "bottom_left": {
      "x": 275,
      "y": 903
    },
    "bottom_right": {
      "x": 1008,
      "y": 903
    },
    "top_right": {
      "x": 1008,
      "y": 817
    }
  },
  {
    "id": 5,
    "label": "number",
    "coords": {
      "top_left": {
        "x": 1016,
        "y": 817
      },
      "bottom_left": {
        "x": 1016,
        "y": 903
      },
      "bottom_right": {
        "x": 1308,
        "y": 903
      },
      "top_right": {
        "x": 1308,
        "y": 817
      }
    }
  }
}
```

図 7. 矩形領域についての JSON ファイルの一部

品名	数量
品名	数量
品名	数量

図 8. 図 7 の矩形領域を描画した矩形領域強調画像

```
{
  "id": 0,
  "label": "date",
  "coords": {
    "left": {
      "x": 869,
      "y": 354
    },
    "right": {
      "x": 1512,
      "y": 354
    }
  },
  {
    "id": 1,
    "label": "number",
    "coords": {
      "left": {
        "x": 1908,
        "y": 355
      },
      "right": {
        "x": 2265,
        "y": 355
      }
    }
  }
},
```

図 9. 下線部領域についての JSON ファイルの一部



図 10. 図 9 の下線部領域を描画した下線部領域強調画像

持したまま、矩形領域の領域座標とラベルを出力できたことがわかる。

3.2 下線部領域についての出力結果

図 6 の帳票画像に対して、実装したツールを適用し、出力した JSON ファイルのうち、下線部領域座標を格納した配列の一部を、図 9 に示す。また、JSON ファイルと同時に output した 2 枚の領域強調画像のうち、下線部領域強調画像の一部を、図 10 に示す。下線部領域座標について、矩形領域座標と同様に、IoU を用いて JSON ファイルの出力が正しいことを確認する。なお、下線部領域については、高さを 3 ピクセルとして IoU を計算する。測定した下線部領域座標と、出力する JSON ファイルの下線部領域座標を確認し、IoU を算出する。図 9 より、id キーの値が 0 である下線部領域座標は、左端点の xy 座標が(869, 354)であり、右端点の xy 座標が(1512, 354)である。図 10 にある 0 番の下線部領域について、図 6 の画像では、左端点の xy 座標が(869, 354)であり、右端点の xy 座標が(1511, 354)であつ

た。よって、IoU を算出すると、0.99 となる。IoU が閾値である 0.5 以上であるため、この下線部領域座標は正しく取得できたと言える。他の下線部領域に対しても、下線部領域座標を正しく取得していることを確認した。

下線部領域のラベルについて、人間が判断したラベルと、ツールが output したラベルが一致するかを確認する。図 9 より、id キーの値は 0 と 1 であり、それぞれラベルは date、number である。図 10 より、画像内に描画した矩形領域の番号のうち、0 番の下線部領域は「年月日」を記入する欄であり、1 番の下線部領域は番号である「No.」を記入する欄であることがわかる。「年月日」は日付(date)、「No.」は数値(number)がそれぞれ正しいラベルであるため、これら 2 つの下線部領域について、正しいラベルを割り付けていることを確認できた。他の下線部領域に対しても、一部を除き、正しいラベルを割り付けていることを確認した。

また、下線部領域について、JSON ファイルと領域強調画像の出力が対応することから、帳票画像のレイアウトを保持したまま変更せず、下線部領域の領域座標とラベルを出力できたことがわかる。

4. 考察

本章では、評価実験を行い、実装したツールの有用性を評価する。また、実装したツールと関連ツールを比較する。最後に、実装したツールの問題点について述べる。

実験は、宮崎大学の学生 6 名を対象として行う。実験にあたり、実装したツールを、電子フォーム作成ツールである Web アプリケーションに適用する。適用する Web アプリケーションは、マウスのドラッグ操作で電子フォーム内記入欄を配置する。実装したツールを適用することで、領域座標とラベルをまとめた JSON ファイルを参照し、電子フォーム内記入欄を自動で配置する。これによって、電子フォーム内記入欄の配置にかかる時間を削減できる。

実験の対象とした 2 つの帳票の画像を、図 11 と図 12 に示す。図 11 は電子文書の画像であり、図 12 は、電子化文書の画像である。以降、図 11 の画像を、帳票画像 A、図 12 の画像を、帳票画像 B と呼ぶ。なお、帳票画像内記入欄の数は、それぞれ帳票画像 A が 54 個、帳票画像 B が 48 個である。

実験は、被験者をグループ α とグループ β の 2 つに分けて行う。グループ α は、帳票画像 A について、実装したツールを適用せず、既存ツールのみを用いて電子フォーム内記入欄を配置する。次に、帳票画像 B について、実装したツールを適用した後に既存ツールを用いて、必要に応じて電子フォーム内記入欄を再配置する。グループ β は、帳票画像 A について、実装したツールを適用した後に既存ツールを用いて、必要に応じて電子フォーム内記入欄を再配置する。次に、帳票画像 B について、実装したツールを適用せず、既存ツールのみを用いて電子フォーム内記入欄を配置する。なお、既存ツールはマウスのドラッグ操

図 11. 実験対象である電子文書の帳票画像 A

図 12. 実験対象である電子化文書の帳票画像 B

作によって電子フォーム内記入欄を配置し、電子フォームを作成する。

4.1 領域座標の精度についての評価

表 1. 領域座標取得についての再現率と適合率(%)

適合率		再現率	
帳票画像A	帳票画像B	帳票画像A	帳票画像B
91.49	81.82	93.48	100.00

表 2. ラベル割付についての再現率と適合率(%)

適合率		再現率	
帳票画像A	帳票画像B	帳票画像A	帳票画像B
72.22	73.13	81.25	90.74

本節では、実装したツールが出力した領域座標の精度について、適合率と再現率を算出し、考察する。

領域座標の適合率、および、再現率を算出する式を、以下に示す。

$$\text{領域座標の適合率} = \frac{\text{正しく配置した電子フォーム内記入欄の数}}{\text{出力した領域座標の数}} \quad (1)$$

$$\text{領域座標の再現率} = \frac{\text{正しく配置した電子フォーム内記入欄の数}}{\text{帳票画像内記入欄の数}} \quad (2)$$

取得した領域座標についての適合率と再現率を、表 1 に示す。帳票画像 A の再現率が帳票画像 B よりも低い理由は、矩形でも下線部でも示されていない記入欄が 6 つあり、それらを検出できなかったためだと考察する。

4.2 ラベルの精度についての評価

本節では、実装したツールが出力したラベルの精度について、適合率と再現率を算出し、考察する。

ラベルの適合率、および、再現率を算出する式を、以下に示す。なお、正しくラベルを割り付けた電子フォーム内記入欄は、配置した電子フォーム内記入欄の領域座標が正しいことを前提とする。

$$\text{ラベルの適合率} = \frac{\text{正しくラベルを割り付けた電子フォーム内記入欄の数}}{\text{出力した領域座標の数}} \quad (3)$$

$$\text{ラベルの再現率} = \frac{\text{正しくラベルを割り付けた電子フォーム内記入欄の数}}{\text{帳票画像内記入欄の数}} \quad (4)$$

割り付けたラベルについての適合率と再現率を、表 2 に示す。帳票画像 A の 2 つの評価指標が帳票画像 B よりも値が低い理由は、文字を認識できず、別の文字の属性を誤ってラベルとして割り付けたためであると考察する。

4.3 GUI ツールを用いた電子フォーム内記入欄配置にかかる時間についての評価

実験で計測する時間について、既存ツールに実装したツールを適用し、JSON ファイルと 2 枚の領域強調画像を

表 3. 各帳票画像における各計測時間の平均(分:秒)

計算時間の平均	帳票画像A		帳票画像B	
	グループα	グループβ	グループα	グループβ
実行時間	-	2:54	2:28	-
配置時間	12:26	5:37	3:40	8:25
合計時間	12:26	8:31	6:08	8:25

出力するまでの時間を、実行時間と呼ぶ。また、電子フォーム内記入欄の配置が完了するまでの時間を、配置時間と呼ぶ。各計測時間の平均の合計時間を、電子フォーム内記入欄の配置にかかる時間として比較し、評価する。各帳票画像における各計測時間の平均を、表 3 に示す。

表 3 より、帳票画像 A に関する合計時間は、実装したツールを適用した後に既存ツールを用いたグループ β が、既存ツールのみを用いたグループ α よりも平均で 3 分 54 秒(約 31.4%)短い。同様に、表 3 より、帳票画像 B に関する合計時間は、実装したツールを適用した後に既存ツールを用いたグループ α が、既存ツールのみを用いたグループ β よりも平均で 2 分 17 秒(約 27.0%)短い。以上の結果から、実装したツールは、電子フォーム内記入欄を配置する時間の削減について、有用であることがわかった。

5. 結論

帳票のレイアウトを保持したまま、電子フォーム作成にかかる時間を削減することを目的として、記入欄自動検出およびラベル割付機能を持つツールを実装した。評価実験から、電子フォーム内記入欄を配置する時間を削減できることを確認した。以上のことから、本研究で作成したツールは、電子フォーム作成にかかる時間の削減に有用であると言える。

以下に、本論文における今後の課題を示す。

- 帳票画像内の記入欄と記入内容を示す欄の区別
- 色がついた帳票を用いた際の記入欄および文字認識制度の向上
- レイアウトによる精度の向上
- 撮影環境による精度の向上

参考文献

- 1) 国税庁: ”電子帳簿保存制度特設サイト” , https://www.nta.go.jp/law/joho-zeikaishaku/sonota/jirei/toku_setsu/index.htm, (accessed 2025/05/13)
- 2) 総務省: ”令和 2 年版情報通信白書” , <https://www.soumu.go.jp/johotsusintokei/whitepaper/ja/r02/html/nd132110.html>, (accessed 2025/05/13)
- 3) キーマンズネット: ”帳票類のデジタル化の状況（2022 年）/前編” , <https://kn.itmedia.co.jp/kn/articles/2203/03/news037.html>, (accessed 2025/05/13)
- 4) 曽根直人, 林秀彦, 菊地章: ”電子フォームを用いた申請書処理の効率化”, 鳴門教育大学情報教育ジャーナル Vol.5, pp.29-34, 2008.
- 5) i-reporter.jp: ”[i-Reporter] シェア No.1 の現場帳票電子化システム- 多彩な機能の現場帳票システム” , <https://i-reporter.jp/>, (accessed 2025/05/13)
- 6) Create!Form: ”帳票ツールの Create!Form - インフォテック 株式会社” , <https://www.createform.jp/>, (accessed 2025/05/13)
- 7) 株式会社マネーフォワード: ”電子文書とは？電子化文書の比較とメリット、注意点を解説！” , <https://biz.moneyforward.com/contract/basic/2035/>, (accessed 2025/05/13)
- 8) Amazon Web Services: ”OCR (光学文字認識) とは” , <https://aws.amazon.com/jp/what-is/ocr/>, (accessed 2025/05/13)
- 9) rinna: ”rinna, Llama 2 の日本語継続事前学習モデル「Youri 7B」を公開” , <https://rinna.co.jp/news/2023/10/20231031.html>, (accessed 2025/05/13)
- 10) MathWorks: ”モルフォロジー演算のタイプ” , <https://jp.mathworks.com/help/images/morphological-dilation-and-erosion.html>, (accessed 2025/05/13)
- 11) 大津展之: ”認識問題としての二値化と各種方法の検討” , 1980 年電子情報通信学会論文誌, Vol.J63-D, pp.349-356, 1980.
- 12) LearnOpenCV: ”Edge Detection Using OpenCV” , <https://learnopencv.com/edge-detection-using-opencv/>, (accessed 2025/05/13)
- 13) MathWorks: ”ハフ変換” , <https://jp.mathworks.com/discovery/image-transform.html>, (accessed 2025/05/13)
- 14) Tesseract-OCR: ”tesseract” , <https://github.com/tesseract-ocr/tesseract>, (accessed 2025/05/13)
- 15) 井筒竜宇, 矢吹信喜, 福田知弘: ”深層学習を用いた鋼骨組構造における出来形検出に関する基礎的検討” , 土木学会論文集 F3(土木情報学), Vol.75, No.2, pp.94-105, 2019.

非技術者向け編集機能を備えた 神社祭事支援 Web アプリケーションの開発

井手 理智^{a)}・坂本 真人^{b)}

Development of a Shrine Festival Support Application with Editing Function for Non-Technical Users

Masatomo IDE, Makoto SAKAMOTO

Abstracts

Festivals and events held in a region bring various benefits, such as stimulating the flow of people and the economy, creating opportunities for interaction among local residents, and passing on traditional culture rooted in that region or spot. Therefore, it is important and significant to increase the level of interest and tourism value in festivals. However, local area festivals face challenges in that it is difficult to raise awareness and interest in them due to their small population and low name recognition. To solve this issue, previous studies and case studies such as Nagao et al.'s tourism support system development [1] and red seal AR [2] have been undertaken. In this study, we targeted local shrines and festivals, which face similar issues, in order to increase the level of interest and improve their value as tourism resources. The means of realization was the development and release of an official website and explanatory videos using original characters. In addition to achieving the objectives of the previous study, we also focused on the development of a succession function for non-technical personnel in anticipation of the long-term operation of the support contents. As a result, the number of festival participants increased approximately 2.5 times compared to last year, when there was no official website, and it is believed that this helped to attract many new participants. Video content contributed particularly to the increase in awareness of and interest in mythology, and the results are expected to continue to increase the value of the site as a tourism resource. Furthermore, the inclusion of a editing function made it possible for local residents without programming knowledge to easily update information, suggesting the possibility of carrying on this initiative and developing it into sustainable support content.

Keywords : Contents, Shrine, Sightseeing, Tourism support system, Website

1. はじめに

本研究は、神社祭事支援を目的とする。主な支援対象は、宮崎県西都市宮ノ下地区に位置する矢久度神社である。そこで毎年12月上旬に開催される三納ちびっ子相撲大会、隣接2地区の三財へそ祭り、都於郡城址祭りと合同開催された三地区合同スタンプラリー等の支援を行った。本研究を通して、神社にまつわる神話や祭事の認知度や興味関心度の向上を目指す。

2. 各支援方法の概要

神社祭事支援目的で開発を行った2つのコンテンツについて記載する。

a) 工学専攻機械・情報系コース大学院生

b) 工学基礎教育センター教授

まず、支援対象の認知度・興味関心度の向上において、幅広い世代、地域外への情報閲覧機会の創出・多大な情報量の正確かつ最適な伝達方法として、公式Webサイトを選択した。スタンプラリーの概要と相撲大会を含む、各地区の祭りに関する紹介を記載。同時に広告手段として配布したチラシに、サイトへアクセスできるQRコードを掲載したり、観光協会や市役所SNSによるQRやリンク共有の協力を得ながら、目的達成を図った。

次に、矢久度神社の神話や相撲大会と神話つながりの認知度・興味関心向上と観光資源的価値の向上も目指し、地元の運営スタッフと共にオリジナルキャラクターを制作し、それらを活用した解説動画を作成した。また長期的に少しづつ効果を得ていくため、2025年現在も動画にアクセスするためのQRを載せたパネルを神社内に常設している。

3. 公式Webサイトの開発と公開

本研究で開発した公式 Web サイトは、表 1 の開発環境で実装し、公開した[3]。

表 1. 公式サイト開発環境

OS	macOS Sonoma14.6.1
ソフトウェア・ツール	Visual Studio Code, Firebase
開発言語・ライブラリ	Next.js, TypeScript, tailwind.css
公開用サーバ	Xserver

Visual Studio Code ··· ほぼすべての言語で動作し、任意の OS で実行される強力なコードエディタ。

Firebase ··· アプリケーションの開発や運用で必要となるバックエンド機能を、まとめて提供するプラットフォーム（本研究ではデータベース機能を使用。Cloud Firestore）

Next.js ··· Next.js とは、React をベースに開発された、フロントエンドフレームワークで、サーバ機能も持つ。

TypeScript ··· JavaScript の拡張言語で、変数のデータ型をあらかじめ決めるこことできる静的型付け言語。

tailwind.css ··· CSS フレームワークの 1 つで、決められたクラス名によりスタイルを設定できる。

Xserver ··· レンタルサーバサービスの 1 つ。開発した公式 Web サイトは、全 7 ページから成り、構造を図 1 に示す。

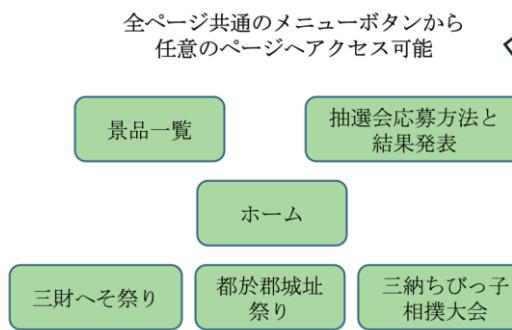


図 1. Web サイト簡易構造図

開発した公式サイトは表 2 の順で更新を行い、時期に合わせたコンテンツの最適化を実施している。

表 2. 公式サイト更新タイムテーブル

2024 年 10 月 16 日	ページ公開（三財へそ祭り情報のみ公開）
2024 年 10 月 22 日	参加賞詳細の公開・景品詳細の公開・
2024 年 10 月 26 日	トップページに参加方法スライドコンテンツ追加
2024 年 11 月 9 日	都於郡城址祭りの詳細公開・景品追加分の更新
2024 年 12 月 31 日	お正月抽選会結果発表動画埋め込み、パーフェクト抽選会終了アナウンス
2025 年 1 月 1 日	トップページ抽選結果遷移の容易化

4. 動画コンテンツ制作と公開

本研究で制作した動画コンテンツは表 3 の環境で制作した。

表 3. 動画制作環境

OS	macOS Sonoma14.6.1
ソフトウェア・ツール	PowerDirector, VOICEVOX

PowerDirector ··· 動画編集ソフトの 1 つ。

VOICEVOX ··· 音声生成ソフトウェア。キャラクターを選択してテキストを入力することで指定したキャラクターの読み上げ音声データを生成できる。イントネーションや抑揚も編集可能。この動画によって、矢久度神社の神話や、相撲大会が地元民の有志によって運営されていることや祭りのコンテンツの紹介を行い、それぞれの認知度・興味関心度を高める。制作した動画コンテンツは、ちびっ子相撲大会当日の 2024 年 12 月 8 日より YouTube で公開[4]し、矢久度神社には動画へのリンク情報をもつ QR をのせた大型パネルを設置して、訪れた人への神話解説板のデジタル版の役割も持たせている（図 2）。



図 2. 神社内設置の QR パネル

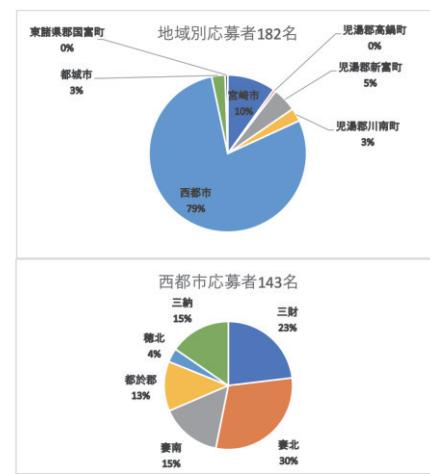


図 5. 相撲大会参加者区内外内訳

5. 支援結果

公式サイトの支援効果（認知度・興味関心度向上）は、イベント参加者数推移より考察した。

図 3,4,5 から、市外、三納地区外からの参加者が昨年までと比べ大きく上昇していることから、ちびっ子相撲大会とスタンプラリーの認知度や興味関心度向上の力になったと考えられる。

今後はもっと確かに定量的なデータを取るために、GoogleAnalyticsなどの外部分析ツールとサイトの紐付けを事前にい、サイトへのアクセス数や掲載コンテンツごとの閲覧数比較等も行っていきたい。

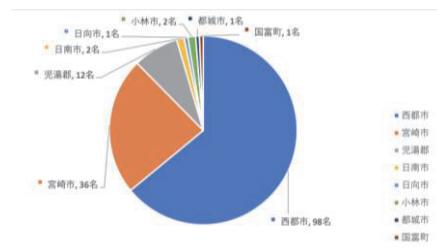


図 3. 相撲大会参加者市内外内訳

動画コンテンツによる神社の神話と祭事の紹介でそれらの認知度・興味関心度向上ができたかを視聴アンケートから考察する。論文執筆時点で動画の総再生数は 57 回、アンケート回答数は 10 件あった。図 6 と表 4 から、視聴回数の少なさは否めないが、コンテンツへの認知度向上と興味関心度を高めることができたと考えられる。特に、タケミカヅチノミコト神話において、それが顕著に現れており、観光資源的価値の向上も見込める。

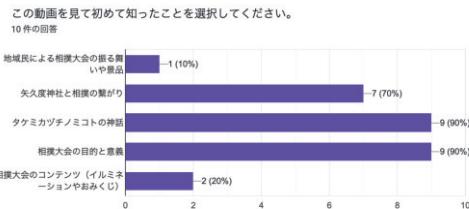


図 6. 動画を見て初めて知った内容

表 4. 紹介内容への興味関心度向上度合い

	1点の人数	2点の人数	3点の人数	4点の人数	5点の人数	総合評価
地域民による相撲大会の振る舞いや景品	1	2	3	4	4	36
矢久度神社と相撲の繋がり	0	2	4	0	4	39
タケミカヅチノミコトの神話	0	0	4	3	3	43
相撲大会の目的と意義	0	1	5	0	4	37
相撲大会のコンテンツ（イルミネーションやおみくじ）	0	2	4	1	3	35

6. 公式 Web サイトの編集機能開発

この機能は、Web サイト開発の知識を持たない地元の祭事運営者でも来年度以降のサイト更新を簡単に行えるために開発した。非技術者でも編集できることで、保守・運用の負担を減らし、興味・関心度向上をサポートする公式サイトの長

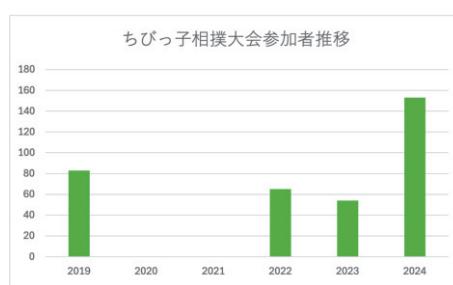


図 4. 相撲大会参加者年推移

期的な活用を目指す。この機能の実装には、ページの掲載するデータを保存、呼び出しや編集できることが必須であるため、Firebase Cloud Firestoreを使用した。また、編集機能を運営側だけが使えるように、編集ページへのリンクの非公開と Firebase によるメールアドレスパスワード認証を使用条件とした。表 5 に示す掲載要素が編集可能である。

表 5. 編集可能な情報一覧

トップページ	協賛先の追加・削除・更新 (名前、SNS 等のリンク先)
抽選会応募方法と結果発表	応募方法のテキスト・結果発表の動画リンクの更新
各祭りの詳細ページ	開催日時などの基本情報の更新 祭りのコンテンツの追加・削除・更新 (名前)

図 7 のように編集したい項目を選択し、編集内容を入力。図 8 に示すダイアログを確認後、確定ボタンを押すことで変更内容がデータベースに送られ、ページの内容が更新される。また、同時に更新のフローの短縮化も兼ねている。

図 7. データベースサンプル画像

図 8. 認証機能の追加状況

7. 編集機能のテスト結果

正しくデータ入力が行えているか、変更内容が反映されるか、エラーとなるような値に対して適切なエラー処理ができているかを実際生じた事例といいくつかのシナリオを作成している。テストは、開発者自身の操作検証実験と被験者 1 名（祭事運営者）のユーザ実験の 2 段階で行った。開発者検証テストは、<http://localhost:3000/> 下のローカル環境で行った。

- (1)協賛先の公式 SNS リンクを変更してほしい
(2024 年度の実例)
- (2)3 つの祭りの開催日時を 2025 年度に更新
(来年想定される事例)
- (3)協賛先の追加と削除・更新（来年想定される事例）全てのテストケースにおいて正しい動作を確認できた。

ユーザ実験では、編集機能の動作確認に加えて、機能を使う場合と使わない場合の更新にかかる時間の比較を行い、実装した機能の有用性を検証した。テストのフローと結果を以下図 9 と表 6 に示す。

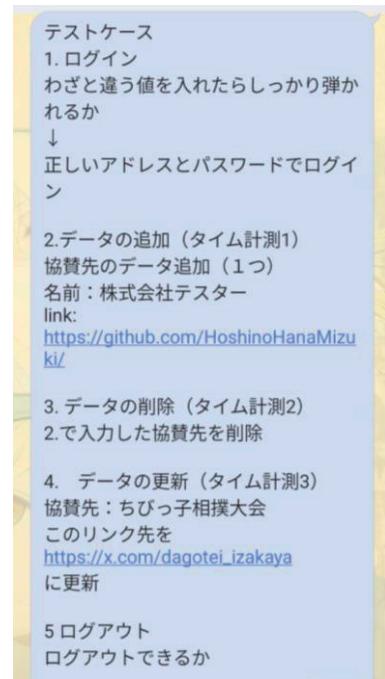


図 9. ユーザテストフロー

表 6. サイト編集処理時間比較表

	編集機能なし での処理時間 (min:s:ms)	編集機能あり での処理時間 (min:s:ms)
データ追加	2:21:41	53:96
データ削除	1:0174	19:46
データ更新	1:42:27	53:81

8. おわりに

本研究では、宮崎県西都市三納宮ノ下地区にある「矢久度神社」「三納ちびっ子相撲大会」および、同時開催の「三地区合同スタンプラリー」における認知度・興味関心度向上や観光資源的価値の向上を主として支援を行った。相撲大会の参加人数が前年比約2.5倍に上昇したことと、スタンプラリーの参加者・応募者も100名を大きく超える数値であったため、公式サイトの開発が最も効果を得られたと考えられる。また、動画コンテンツにおいては特にタケミカヅチノミコト神話への認知度・興味関心度向上や観光資源的価値の向上の効果があり、今後の活躍が期待できる。編集機能も今年度行ってきた更新のフローの短縮簡易化ができ、次世代への継承において役立つ機能として期待できると考える。

最後に、支援コンテンツ開発において貴重な助言を頂き、データ提供のご協力を頂いた伊藤康孝主催をはじめ、三納ちびっ子相撲大会運営スタッフの皆様、ならびに三地区合同スタンプラリー実行委員会の皆様に心より感謝申し上げる。

参考資料

- [1] 長尾 聰輝 加藤 福己 浦田 真由 安田 孝美、スマートフォンを用いた観光支援システムの開発、2013 PC Conference[Online].
<https://conference.ciec.or.jp/themes/root@pcc/2013pcc/papers/pdf/pcc070.pdf>
- [2] 御朱印 AR [Online].
<https://momijihachimangu.or.jp/goshuinar/>
- [3] 公式サイト [Online].
<https://saito-3chiku.com>
- [4] 解説動画[Online].
<https://youtu.be/czIJxRYNqfs?si=urD3pSgsNmJ9gcSR>

Bi-LSTM を用いた暗号資産価格の予測

甲斐 飛雄馬^{a)}・坂本 真人^{b)}

Prediction of cryptocurrency prices using Bi-LSTM

Hyuma KAI, Makoto SAKAMOTO

Abstract

The term cryptocurrency is now a familiar word, but the reality is that it is still something that the general public cannot easily access. While it is possible to make profits if things go well, the risks of significant losses are also high, and the media's reporting of such information is likely one of the causes. Cryptocurrencies exhibit high price volatility and show characteristics that differ from traditional financial markets. Therefore, accurately predicting price fluctuation patterns is an important challenge for investors and traders. Currently, many researchers are conducting studies on price prediction systems using deep learning. However, a perfect prediction system has yet to be completed. The question remains whether to use algorithms such as the traditionally used LSTM or RNN, or the recently announced and popular Transformer. Is there an optimal combination of program parameters? How to handle the CPU is still largely unknown in the research of price prediction systems. If risks can be mitigated and more profits sought through price prediction, even more people will likely come into contact with cryptocurrencies. This research aims to continue the theme of Mr. Koudai Hasebe, who graduated in the 5th year of Reiwa, and to deepen the research further[1].

Keywords: ADA, Bi-LSTM, BTC, ETH, LTC, MAPE, RMSE

1. 研究背景

暗号資産は、まだ日本では馴染みの薄い存在であり、多くの人にとっては遠い世界の話に感じられるかもしれない。しかし、暗号資産は近い将来、私たちの日常生活に深く関わる可能性を秘めている。その中で最も広く知られているのがビットコインであり、世界初のデジタル通貨として誕生した[2]。

主に暗号資産には、決済手段、送金手段、投資・投機運用の3つの利用方法が存在する。今回は価格変動の予測システムということで投資・投機運用のことについて触れる。

もともと暗号資産は小規模なオンラインコミュニティで使われるニッチな製品としてスタートしたが、現在では市場規模が拡大し、時価総額が数十億ドルに達するなど、一般投資家や金融専門家の注目を集め分野に成長している[3]。一方で、暗号資産は本質的価値の不透明さや規制の未整備、機関投資家の関与不足、取引板の薄さ、短期志向の投資手法、そして投資家心理による影響な

どの要因から、非常に高いボラティリティを持っている[4]。このような性質を持つ暗号資産市場では、テクニカルトレーディングが有効とされ、正しく取引を行うことで大きな利益を得ることが可能である。しかしながら、リスクが高い投資であるため、大きな損失を被る危険性も無視できない[5]。

こうした背景を踏まえ、本研究では、ディープニューラルネットワーク (DNN) を活用して暗号資産の価格を予測する手法を検討する。具体的には、長谷部氏のテーマを継続し、さらに研究を深めることを目標とする。

2. 先行研究

2.1. 長谷部氏による先行研究

長谷部氏の先行研究[1]では LSTM、GRU、Bi-LSTM の3つのアルゴリズムモデルを作成し、ビットコイン (BTC)、イーサリアム (ETH)、ライトコイン (LTC)、カルダノ (ADA) の4種類の暗号資産の価格予測を行っている。結果として、Bi-LSTM は LSTM、GRU、Bi-GRU よりもすべての暗号資産において高い精度を示した。

a) 工学専攻先端情報コース大学院生

b) 工学基礎教育センター教授

長谷部幸大氏の先行研究結果を表1に示す。

表1. 長谷部幸大氏の先行研究結果

通貨 ^①	モデル ^②	RMSE ^③	MAPE ^④
BTC ^⑤	LSTM ^⑥	807.7135 ^⑦	0.0332 ^⑧
	GRU ^⑨	873.7594 ^⑩	0.0362 ^⑪
	Bi-LSTM ^⑫	770.3047 ^⑬	0.0314 ^⑭
ETH ^⑮	LSTM ^⑯	21.0737 ^⑰	0.0123 ^⑱
	GRU ^⑲	33.0912 ^⑳	0.0192 ^㉑
	Bi-LSTM ^㉒	15.1817 ^㉓	0.0092 ^㉔
LTC ^㉕	LSTM ^㉖	1.5991 ^㉗	0.0188 ^㉘
	GRU ^㉙	1.7605 ^㉚	0.0207 ^㉛
	Bi-LSTM ^㉜	1.1928 ^㉝	0.0130 ^㉞
ADA ^㉟	LSTM ^㉟	0.0203 ^㉟	0.0578 ^㉟
	GRU ^㉟	0.0236 ^㉟	0.0695 ^㉟
	Bi-LSTM ^㉟	0.0172 ^㉟	0.0526 ^㉟

3. 手法

3.1. 暗号資産について

3.1.1. ビットコイン (BTC)

ビットコインは「Satoshi Nakamoto」と名乗る実在性が未確認の人物の論文が原点となっており、P2P(ピアツーピア：すべての参加者がネットワークの一部としてサーバにもクライアントにもなる方式)型で構成される電子的に取引される暗号資産である[7]。ビットコインの特徴の1つは、中央に管理者がいないことである。プログラムが通貨の発行を制御しており、中央の管理者によるガバナンスは行われていない。2つ目に独自の通貨単位を持っていることである。ビットコインの通貨単位はBTCで、円やドルとの交換レートが発生し、それが上がったり下がったりする。3つ目に取引の確定までに時間がかかることがある。一つのブロックを作るのに、概ね10分かかる。実際には全世界の一秒钟の取引件数は7件が限界といわれている。比較のためにVISAのネットワークであれば、全世界で一秒間に56000件の取引が可能である。これと対比すると一秒間に7件はというビットコインのネットワークは軟弱と言わざるを得ない[8]。2024年時点でのビットコインの時価総額は304兆円に達し、暗号資産の中で最高額になる[9]。

3.1.2. イーサリアム (ETH)

イーサリアムは、2013年ロシア生まれでカナダ移民Vitalik Buterin氏によって構想が示され、2014年から運用が始まり、2015年に正式に立ち上げられた。その大きな特徴は、ビットコインでは取引記録の管理だけが行われるのに対し、イーサ

リアムでは様々な情報を書き込んだプログラムをブロックチェーン上で自動的に作動させたり、プログラムを含む様々なアプリケーション（ソフトウェア）を作動させたりできることである[6]。2024年時点でのイーサリアムの時価総額はビットコインに次いで第2位で71兆円に達する[9]。

3.1.3. ライトコイン (LTC)

ライトコインは、元Googleのエンジニアである「チャーリー・リー」氏によって作られた仮想通貨である。ビットコインのソースコードが基になっているのが特徴で、開発時期は2011年とかなり早い段階で行われている。より日常のなかで使いやすい少額決済で使われることを前提にしており、発行上限もビットコインの4倍となる8400万枚に設定されている[10]。2024年時点でのライトコインの時価総額は1兆5000億円に達する[9]。

3.1.4. エイダコイン (ADA)

カルダノはCardanoというオンラインカジノプラットフォームで用いられる仮想通貨である。オンラインカジノでは、運営側に有利なプログラムによってゲームが操作されていてもそれを見抜くことが難しく、参加者にとってのリスクが高いという問題点がある。そこでCardanoでは、スマートコントラクトを実装して、公平なカジノ運営を実現している。さらに重要なことに、Cardanoはその性能のポテンシャルの高さから、現在ではより汎用性の高いブロックチェーンプラットフォームとしての開発を進めていることが発表されている[11]。2024年時点でのカルダノの時価総額は6兆4000億円に達する[9]。

3.2. アルゴリズムについて (Bi-LSTM)

Bi-LSTM(Bidirectional LSTM)は、順方向のLSTMと逆方向のLSTMを持った構造をしている。図1はBi-LSTMの全体像である。LSTMは順方向にしか流さないが、Bi-LSTMはデータを予測する時に、例えば予測したい信号を x_n とすると、順方向のForward Layerである $x_0 \sim x_{n-1}$ と逆方向のBackward Layerである $x_{END} \sim x_{n+1}$ を用いて予測を行うといった特徴がある。これにより同じデータの量を学習に用いた場合LSTMよりも多くの

データ量を扱うことが可能である。しかし、多くのデータ量を扱うため LSTM よりも処理に時間を要する[12]。

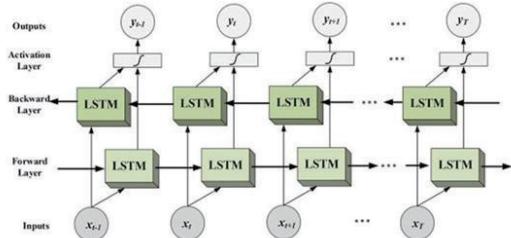


図 1. Bi-LSTM の構造[13]

3.3. 実験内容

3.3.1. 開発環境

開発環境を表 2 に示す。

表 2. 開発環境

プラットフォーム	Google Colab
プログラミング言語	Python 3.11.11
主なライブラリ	NumPy
	Pandas
	Math
	Datetime
	Sklearn
	Keras
	TensorFlow

なお、CPU のコア数は 4、スレッド数は 8、RAM は 12.7GB、ディスクは 239GB である。

3.3.2. データ

- データは以下の要領で収集した。
- Yahoo Finance(<https://finance.yahoo.com/>)から暗号資産 BTC,ETH,LTC,ADA の終値を 1 日単位で収集した。
 - 収集期間は、2018 年 1 月 1 日から 2024 年 11 月 30 日までである。
 - 割合は、学習用：テスト用 = 8 : 2 に設定した。

3.2.3. 評価指標

評価指標としては、RMSE(二乗平均平方根誤差)

と MAPE (平均絶対パーセント誤差) を用いた。なお、MAPE は%表示ではなく、小数点表示である。また、RMSE と MAPE はどちらも数字が低いほど精度が高いことを示す。

3.2.4. 改良点

主に追加した機能を以下に示す。

<ウインドウサイズ (Window Size) >

急変動する暗号資産の市場において過去のデータ期間を設定し次の出力をすることにより最新の市場状況を正しく反映させる。

<Early Stopping>

各エポックで検証データのチェックを行う。一定のエポック改善がなかったら学習を停止させる。

<ハイパーパラメータの設定>

- LSTM 層 2 層 (128/64)
 - Dropout (0.2/0.2)
 - 学習率 0.0005
 - Epoch 数 100
 - バッチサイズ 16
 - Early Stopping(patience 24)
- 長谷部幸大氏の先行研究モデルより数値の低いハイパーパラメータの設定（安定した結果を求める）

4. 実験結果

実験結果を表 3 に示す。

表 3. 実験結果

通貨	モデル	RMSE	MAPE
BTC	Bi-LSTM 改良版	1906.158	0.021
ETH	Bi-LSTM 改良版	91.229	0.022
LTC	Bi-LSTM 改良版	3.232	0.034
ADA	Bi-LSTM 改良版	0.028	0.033

以下の図 2 から図 5 に予測結果の価格のグラフを示す。

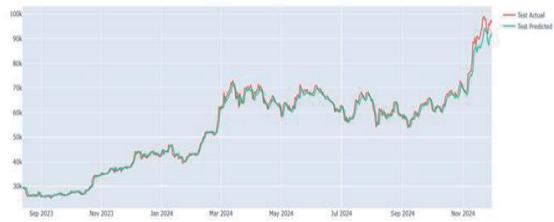


図2. BTC予測結果グラフ

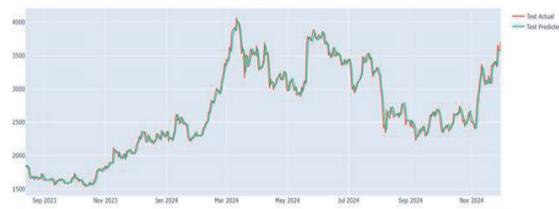


図3. ETH予測結果グラフ



図4. LTC予測結果グラフ



図5. ADA予測結果グラフ

5. 比較検証

長谷部氏の先行研究と本研究の比較検証を以下の条件で行い、表4に比較検証結果を示す。

- ・アルゴリズム：Bi-LSTM
- ・期間：2018/1/1~2023/11/30
- ・暗号資産：BTC、ETH、LTC、ADA
- ・割合：学習用：テスト用 = 8: 2

表4. 比較検証結果

通貨	研究	モデル	RMSE	MAPE
BTC	本研究	Bi-LSTM 改良版	752.907	0.021
	長谷部幸大 先行研究結果	Bi-LSTM	770.304	0.031
ETH	本研究	Bi-LSTM 改良版	52.797	0.022
	長谷部幸大 先行研究結果	Bi-LSTM	15.181	0.009
LTC	本研究	Bi-LSTM 改良版	3.300	0.026
	長谷部幸大 先行研究結果	Bi-LSTM	1.192	0.013
ADA	本研究	Bi-LSTM 改良版	0.013	0.029
	長谷部幸大 先行研究結果	Bi-LSTM	0.017	0.053

6. 考察および結論

4つの暗号資産を全て本研究のモデルと長谷幸大氏の先行研究モデルを比較した結果、BTC、ADAにおいては本研究の Bi-LSTM 改良版モデルの方の精度が高く、ETH と LTC においては先行研究の方の精度が高いことが示された。この主な要因として、市場規模・流動性、トレンドの違い、モデルのハイパーパラメータがコイン特性に合っているなどの要因が考えられる。1番の要因はハイパーパラメータの相性によるところだと考えている。コインの特徴に関して考察した結果、ビットコイン、エイダコインにおいては長期的な価格変動が ETH、LTC よりも安定していることに対し、ETH、LTC は送金時間が短いという特徴も考慮すると、より細かな価格変動が多いため価格変動がより激しいことがわかった。

以上により、価格変動が他の暗号資産に比べて、安定しているものは本研究のモデル、他の暗号資産に比べて価格変動が激しいものは長谷部幸大氏の先行研究モデルの方が優れていることが考察できる。本研究のハイパーパラメータの設定は、長谷部氏の先行研究のモデルよりもより安定性を強化したモデルとなっているためだろう。

今後の課題としては、今回の研究結果をさらに追求し、同時に今回行ったテクニカル分析だけでなく、政治的な要素や環境的要素を考慮したファンダメンタル分析も含めた予測システムも研究していく必要がある。

参考文献

- [1] 長谷部幸大, “深層学習を用いたボラティリティの高い暗号資産価格の予測”, 和年度宮崎大学大学院 工学研究科修士論文、2024.
- [2] 中島真志, “お金の進化 自然貨幣から仮想通貨、デジタル通貨へ,” 麗澤大学, 2022 [Online].
<https://www.reitakuu.ac.jp/region/cooperation/cooperation08.pdf>(参照 2024-12-5)
- [3] Bergsli,L. et al. “Forecasting volatility of Bitcoin,” Research in International Business and Finance, vol.59, pp.1-30, 2022 [Online].
<https://doi.org/10.1016/j.ribaf.2021.101540>(参照 2024-12-5)
- [4] S, Ninomiya, “専門的見解：なぜ仮想通貨市場はボラティリティが高いのか,” CoinPost, 2018 [Online].
<https://onl.bz/NG4XarY,>(参照 2024-12-5)
- [5] 長澤秀紀, “強化学習を利用した暗号資産の価格予測,” 滋賀大学大学院データサイエンス研究科 データサイエンス 専攻修士論文, 2022 [Online].
<https://shigau.repo.nii.ac.jp/record/14567/files/%E4%BF%AE%E5%A3%AB%E8%AB%96%E6%96%87%E5%85%A8%E6%96%87R4nagasawa.pdf>(参照 2024-12-5)
- [6] 小野伸一, “通貨の将来と仮想通貨の意義,” 経済のプリズム, no.161, pp.1-41. 2017 [Online].
https://www.sangiin.go.jp/japanese/annai/chousa/keizai_prism/backnumber/h29pdf/201716102.pdf. (参照 2024-12-5)
- [7] 岡田仁志, “仮想通貨の技術の課題,” 国立情報学研究所ニュース, 第 69 号, pp.1-12, 2015 [Online].
https://www.nii.ac.jp/today/upload/NIIToday_69.pdf(参照 2024-12-5)
- [8] 中島真志, “仮想通貨の現状と将来性,” 証券レビュー, vol.59, no.5, pp.1-33. 2019 [Online].
<https://cir.nii.ac.jp/crid/1520010379980826624>. (参照 2024-12-5)
- [9] 暗号資産価格, チャート, 時価総額 CoinMarketCap [Online].
<https://coinmarketcap.com/ja/> (参照 2024-12-5)
- [10] Bitpoint, “ライトコインとは?特徴・仕組み・歴史(LTC)” [Online].
<https://www.bitpoint.co.jp/column/tips14/>(参照 2024-12-5)

学生グループの育成に焦点化した工学系大学の協働による 自律的英語学習支援の仕組みづくりに関する考察

川崎 典子^{a)}

A Study on an Autonomous English Learning Support System through Collaboration of Engineering Universities Focusing on the Development of a Student Group

Noriko KAWASAKI

Abstract

For engineering universities in rural areas in Japan that do not have a solid organizational support for autonomous English language learners like self-access learning centers, producing engineers with both English language skills and international mindset is extremely challenging. However, it is true that development of global engineers who can work in both Japan and abroad are in high demand these days. From FY 2022 to FY 2024, an attempt was made to create a system to support autonomous English language learners in the Faculty of Engineering of the University of Miyazaki in cooperation with two other engineering universities in Hokkaido. This study describes the process to create the system and discusses the results obtained in the process focusing on the development of a student group to lead English activities.

Keywords: Autonomous English learning, Learning support, Engineering universities, Self-access learning center, Student group

1. はじめに

TOEIC を運営する国際ビジネスコミュニケーション協会が 2022 年 1 月～5 月に調査した国内企業 220 社からの回答によれば、社員・職員に不足している知識やスキルの筆頭に英語が挙げられ、今後のビジネスパーソンに必要な知識やスキルとして、リーダーシップ・組織のマネジメント能力、コミュニケーションスキル、問題解決力・実行力、IT スキルといった現代の社会人の必須アイテム以上に、英語が 74.5% もの企業から支持されている¹⁾。一段と加速する世界のグローバル化の中で、英語力が左右する日本の経済効果について考察した佐藤（2020）は、複数の文献から「英語は最も影響力のある言語であると評価されている」点と「英語力を高めることには、経済上、教育上、外交上の 3 つの利益がある」点を指摘し、日本の経済的効果を高める上でビジネスにおけるコミュニケーションツールとしての英語の重要性を主張している²⁾。

少子化による人口減少が見込まれる日本の将来を見据えた高等教育のグランドデザインでは、留学生の受入れに特化した教育プログラムから脱却し、日本人学生・留学生・社会人学生等が共に学べる教育プログラムを提供していくことで、言語の壁を越えて、多様な価値観や異文化を持つ学生が相互に刺激を与えながら切磋琢磨するキャン

パスを実現していく必要があると指摘されている³⁾。しかしながら、いまだ日本では、第 2 言語としてではなく、外国语の一つとして英語を学ぶ教育環境にある。そこで、自律学習支援機関（Self-Access Learning Center、以下 SALC）が学生の自律的英語学習の支援・推進だけでなく、日本人学生と留学生が集う国際交流の機会の提供など、大学の国際化において重要な役割を担う⁴⁾。

SALC は語学支援のための学習環境を提供するだけでなく、様々な言語や文化に関心を持つ人々が自由に交流し、学び合う場として機能することに大きな意義を持つ。日本の大学に設置された SALC の研究を推進する The Japan Association for Self-Access Learning（日本自律学習学会）は、独自の調査に基づき、SALC を置く日本の大学が 2025 年 4 月 1 日時点で 61 カ所あることを明らかにしている⁵⁾。Mynard (2022) によれば、表 1 に示すように、日本の SALC は 3 タイプに大別され、①で定義する本格的な組織を備えた大学が中心となって SALC の向上や拡充が進んできている⁶⁾。最近では、学生の自律学習支援のための開放的な学習スペースを指す「ラーニングコモンズ」とは異なり、SALC がスペースに集まった者たちで学び合う機能を有した上で、各学生にとって居心地の良い空間デザインになっているかを検証する大学まで現れている^{7) 8)}。日本の大学の中で先駆的に SALC を運営してきた神田外語大学は、SALC に集まる学生がラーニングコミュニティとなる

a) 工学部工学基礎教育センター准教授

ように支援しつつ、コミュニティを先導する学生を戦略的にリーダーとして育成し、さらには SALC スペースにおける利用者のアイデンティティの尊重とインクルージョンにまで踏み込んだ研究を進めている^{9) 10)}。工学系大学であっても、大阪工業大学では、2012 年から神田外語大学との連携協定の下で SALC を開設し、複数名の外国人教員と 1 名の日本人教員による運営体制で、教員と 1 対 1 の英会話や語学相談が受けられる正課外学習活動を設定するなど、学生のニーズや語学レベルに応じたサービスを提供している¹¹⁾。

表 1. 日本における SALC の分類

(Mynard (2022) を基に著書が日本語訳)

①Social-Supportive SALC
組織的な社会的支援提供型の SALC を指す。学習者が自由に集まる専用空間と必要な教材や機材があり、学習相談に乗る専門スタッフ（多くの場合に専門教員）を配置する。さらに学生を中心とした運営スタッフも配置する。
②Developing SALC
学習者中心の自主的支援提供型の SALC を指す。①のように組織的な環境整備をされていないが、学習空間や教材・機材を設置し、学生を中心とした運営スタッフ（多くの場合に支援教員）を配置する。
③Administrative Centre
組織的な事務優先型の機関を指す。留学等の海外渡航や学内での国際交流の企画・運営に特化した専門スタッフ（場合に応じて支援教員）を配置するが、自律学習を促進する組織的な仕組みを持たない。

大学 1~2 年生の授業出席時間の平均が 1 週間当たり約 20 時間に對し、予習・復習時間の平均は約 5 時間と授業以外の学修時間が非常に短いという指摘がある¹²⁾。現行の日本の大学教育における英語科目を見てみると、英語専攻や国際系コースを除いて、一般的に週に 1 科目程度の提供に留まり、大学での英語学習時間は中学・高校に比べて圧倒的に不足していると言わざるを得ない。大学教育においては、授業外で英語に触れ、英語を使う機會を与えられるか否かが英語力の育成を左右し、学生の自律的英語学習を組織的かつ継続的に支援できる SALC の重要性は高い。しかしながら、国際化が遅れた地方の大学では、表 1 の③に相当する事務優先型の機関を設けて留学支援や国際交流に対応していても、SALC を設置できていない大学が多い。実際、宮崎大学はその状況にある。

日本の未来をけん引する大学等と社会の在り方を議論した「未来を創造する若者の留学促進イニシアティブ（第二次提言）」では、日本の大学に対して、大学の国際化のために留学生の国内受入の増加と共に学生の海外派遣に注力することを求めている¹³⁾。一方で、国際線が運航する便利な空港を備えた地方都市からも離れた地方にある大学は、海外大学との協定締結や派遣に係る渡航資金の援助という形で学生の海外派遣の環境を整備しても、国際的雰囲気に乏しい大学生活を送る学生の多くは異文化への関心が低く、学生の海外渡航の実数には結びつきにくい。海外派遣者数の増加の点からも、恒常的な留学生との交流を通して異文化理解を醸成しながら学生の国際意識を高めることができる SALC の存在に左右される。

国際社会に対応できる英語力と異文化対応力を備えたグローバルエンジニアの育成は日本の喫緊の命題であり、宮崎大学工学部においてもグローバルエンジニアを育成する英語学習支援の仕組みを検討する必要がある。そこで SALC を持たない工学系地方大学である宮崎大学、北見工業大学、室蘭工業大学の 3 大学が協働し、自律的英語学習を通してグローバルな視座を持ちたいと考える日本人学生を集め、3 大学の学生・教員の連携で自律的学習者を支援する仕組みづくりに取り組むことにした。

本稿では、2022 年 4 月から 2025 年 3 月までの研究で実施した活動の検証を通して、工学系 3 大学の協働による自律的英語学習支援の仕組みづくりの成果と課題について考察し、SALC のない大学における自律的英語学習支援の在り方を検討する。

2. 活動をリードする学生グループ

2.1 学生グループについて

2022 年 4~5 月、宮崎大学の教員である筆者が自律的英語学習に前向きに取り組む学生と共に、SALC の仕組みとその役割、そして研究構想について意見交換した。その際、自律的英語学習を通してグローバルな視座を持つとうと考える日本人学生が学内に点在する実態を踏まえ、宮崎大学工学部で自律的英語学習に取り組む学生が集まる場を維持し、正課外英語学習活動を主体的にけん引する学生グループを必要とする教員側の考えを伝えた。2022 年 7 月になり、その考えに賛同した学生 4 名から成る学生グループが編成された。その内訳は、工学部 1 年女性 1 名、工学部 2 年女性 1 名、工学部 2 年男性 3 名であった。学生グループが大学生活の経験の浅い学部学生のみで構成されたため、複数回の海外旅行と約 1 年の留学の実践経験と高度な英語力を有する大学院修士課程 1 年に在籍する男性 1 名にメンターを依頼し、グループに加わってもらった。

学生グループは 2.3 で後述する「ランチタイム英語」に参加しながら、ミーティングを設けて教員とメンターの助言を受け、徐々に学生独自の企画を立てた。企画後には助け合いながら活動を運営し、活動によって得た結果を検証

して改良するようにした。なお、学生グループは 2024 年 4 月の解散までに表 2 のように変化してきた。

表 2. 学生グループの構成

時期 (年/月)	構成員 (学年は事象発生当時に表記)	事象
2022/7	学部学生 4 名 (1 年 1 名、2 年 3 名) 修士学生 1 名	加入 加入
2022/11	学部学生 1 名 (1 年 1 名)	加入
2023/11	学部学生 2 名 (1 年 1 名、2 年 1 名)	加入
2024/1	学部学生 1 名 (2 年 1 名)	脱退
2024/3	修士学生 1 名	卒業
2024/4	学部学生 6 名 (2 年 1 名、3 年 2 名、4 年 3 名)	解散
2024/6	学部学生 6 名 (2 年 1 名、3 年 2 名、4 年 3 名)	学生サークル設立

2022 年 8 月 9 日、結成当初の学部学生 4 名と共に経済産業省の社会人基礎力に関する指標について確認した上で、各自で自己点検シート（図 1）を記入しながら自己分析に取り組んでもらうミーティングを開いた。ミーティングの目的は自己分析と自己開示による相互理解とした。

～工学部生のための英語課外学習活動の探究～

社会人基礎力自己点検シート

記入日： 年 月 日

工学部生のための英語課外学習活動の探究（研究活動）に協力してください、ありがとうございます。英語課外学習コアメンバー（学内の共同体）として活動するにあたり、あなたの社会人基礎力、強みと課題を自己点検してみましょう。ここで作成した内容を基に、都合のよい日に簡単なインタビューに答えてもらう予定です。どうぞよろしくお願いします。

○学生情報

ニックネーム（例：のりこ）	学年
学部／修士（どちらかに） 年	

○自己点検（※該当を●、1 個以上ある場合は複数選択可）

能力評価	評価	自己評価の説明（評価の根拠となる具体例）
前に踏み出す力	主体性	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
	働きかけ力	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
	実行力	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
考え方	課題発見力	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
	計画力	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
	創造力	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
チームで働く力	発信力	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
	傾聴力	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
	柔軟性	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
	状況把握力	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
	規律性	○1 ○2 ○3 ○4 ○5
	ストレッカブル	○1 ○2 ○3 ○4 ○5

○「学びの共同体」における自分の強み・課題

強み／長所と考えられる点
課題／今後努力を要すると考えられる点

○工学部生のための英語課外学習活動とは（あなたの視点）

工学部生のあなたは何を学びたいと思っていますか？
工学部生のあなたはどのように学びたいと思っていますか？
工学部生のあなたは社会でどう活躍したいと思っていますか？

図 1. 自己点検シート

社会人基礎力で定義する「前に踏み出す力」「考え方」「チームで働く力」の各細目に 5 件法で評価を付けてもらったところ、平均的に「チームで働く力」が高い結果となった。この点については、後述する PROG テストの結果と比較した時に齟齬が生じており、学生グループの一員としてミーティングに参加しているという意識が「チームで働く力」に傾いてしまった可能性を付言しておく。自己点検シートでは、学生グループを編成するまでの自分の長所と課題に加え、工学部学生のための正課外英語学習活動についても各自の考えをまとめてもらった。自己点検シートの記入後には、学生同士で点検シートを見せ合いながら意見交換する時間を設けた。学生グループの編成から 1 カ月後のミーティングでは、自己開示に至らずに終わった感があるが、自己分析をして他者に伝え、自分と比較しながら他者を知り、正課外英語学習活動の方向性を考える機会となり、チームビルディングの第一歩として機能した。

その後、2022 年 8 月 16 日、8 月 18 日、9 月 5 日の 3 日間で、共同研究者である北見工業大学の教員 1 名と室蘭工業大学の教員 1 名がそれぞれ宮崎大学の学生 2 名ずつを受け持つ形で、学生の記入した自己点検シートに基づいた個別インタビューを実施した。他大学の教員に学生に対するバイアスを持たずにインタビューしてもらうことで、学生の発言内容を客観的に判断しながら問い合わせ、学生が聞き手に誘導されることなく自由に発言できるように工夫した。当時の学生グループにいた学生 4 名はいずれも学部 1 ~2 年生で、学生経験が浅く、さらにはコロナ禍によって活動制限の多い時期にあったが、学生生活での希望と共に、工学部学生のための正課外英語学習活動に対する希望を語っている（表 3）。

表 3. 正課外英語学習活動に対する希望

- 仕事に役立つ英語力、技術分野でのコミュニケーション力となる英語力を身に付ける。
- （将来希望する仕事につながるように）色々な人とコミュニケーションをとる練習をする。
- （将来希望する仕事につながるように）英語が苦手であっても積極的に学んで実力をつける。
- （将来の展望は具体化していないが、）今後は外国との交流が増えていくと考えられるため、外国人の人と話す時の解釈にずれがないように、日常的に継続して英語を使う訓練の場が必要である。
- 座学だけでなく、アクティビティに英語を使いながらアウトプットで英語を学びたい。
- （英会話活動で）毎回違う人と話すことで興味を持って楽しみながら英語力をつけたい。
- 英会話をはじめ、留学生と仲良くなり一緒に活動したい。
- 外国人の人と関わる行動に参加することで英語力の全般を上げたい。
- 外国人の人と価値観や多文化を共有したい。

自己分析とインタビューからあまり時を経ずに、2022年9月28日にはPROGテストを実施することにした。PROGテストは、河合塾とリアセックが共同開発したジェネリックスキルの成長を支援するアセスメントプログラムで、社会で求められる汎用的な能力・態度・志向といったジェネリックスキルを、実践的に問題を解決に導く力と定義されたリテラシー、周囲の環境と良い関係を築く力と定義されたコンピテンシーの2つに分けて測定する評価ツールである¹⁴⁾。PROGテストの結果、先述した自己分析とは異なる結果となった。リテラシーの総合は全体的に7点中4点以上と高い反面、コンピテンシーの総合が7点中2~3点と低く評価された者が2名おり、コンピテンシーの中でも「チームで働く力」につながる「対人基礎力」が非常に低く出る結果となった。この結果を受け、周囲の環境と良い関係を築くコンピテンシーの向上を学生グループに意識させるような指導が必要であると判断された。

2.2 SALC 先行事例の情報収集

学生グループにSALCをきちんと理解してもらうため、SALCで積極的な自律学習支援を行う他大学の取り組みを視察させた。視察にあたり、宮崎大学と比較しながらSALCの学習環境と正課外英語学習活動の具体例について考察するように指示した。SALCを有して先進的な国際教育に取り組む国際教養大学、立命館アジア太平洋大学、崇城大学を視察先に選び、表4の通り、視察研修を実施した。国際教養大学は国際教養学部のみを有する公立大学で、900名強の学生が在籍し、学内の全科目を英語で実施する体制にある。立命館アジア太平洋大学はアジア太平洋学部など3つの学部を有する私立大学で、6,200名強の学生が在籍し、全学生に占める国際学生の割合を約50%とする国際色豊かな大学である。崇城大学は工学部を含めた5つの学部を有する私立大学で、3,500名強の学生が在籍し、複合型の英語総合教育施設 Sojo International LearningCenterを併設している。

表4. SALC 視察研修

実施日	視察先	所在地	参加者(学年は実施当時に表記)
2022年10月22日	国際教養大学	秋田県	学部2年2名
2023年1月13日	立命館アジア太平洋大学	大分県	学部2年1名
2023年2月18日	崇城大学	熊本県	学部1年2名

視察研修では、各大学のSALCを実際に見学し、各大学の日本人学生や留学生と意見交換する機会を持った。各大学の充実した施設を内覧し、組織的な支援体制を知った学生グループは、大学として取り組む英語学習支援に対する

人的・物的環境の違いを目の当たりにし、驚きを見せた。都市部から離れた立地条件でも集中的に英語に取り組む環境を整備していたり、様々な語学を取り上げる多文化共生の風土があったり、学生が国籍に関係なく自由に交流できる場所があつたりする他大学の実態に気づき、学生グループからは表5のような感想が出された。研修後には、参加者各自がPPTスライドを作って報告し、全員でSALCに関する理解を深める時間を設けた。

表5. 視察研修後の参加者の感想

- ・授業中に教員に勧められてSALCに来る人が多い。また、多くの留学先があり、SALCが作成した留学に関する資料を授業中に配布される。(視察当日に)話してくれた人は留学がしたくてSALCに来ていた。
- ・(視察先の)学生が英語で図書館やSALC施設を案内してくれた。SALCを使って学生間で分からぬ科目を教えあえるようなシステムができていた。宮崎大学工学部との共通点は学内でのコミュニティが狭いことで、相違点は英語学習に取り組めるような施設や環境が整っていることである。
- ・(視察先の)学生と普段の生活や大学進学の理由について話した。「工学部です。」「英語が専門ではありません。」と言うたびにびっくりされることが多かった。工学部生が英語の学習をするメリットが大きいことや付加価値になることを改めて感じた。
- ・英語の上達を今まで目的としていたが、それは(自分本来の目標に向かう)上の段階に行くための一つのツール・手段に過ぎないと意識するようになった。
- ・今まで国際交流について重く考えすぎていた気がする。簡単に楽しく国際交流を行おうと今回の研修を通して感じた。
- ・勇気を出して留学生に話しかけることができたのは自分の成長を感じる。私は正直あまり自信がなかったが、この研修でうまくいって驚いた。

2.3 学生グループが集まる場と仕組みづくり

宮崎大学工学部では、2015年以降、昼休みを使って正課外英語学習活動に取り組む「ランチタイム英語」が続けていた。活動の大半は集まつた学生同士がペアや小グループで行う英会話で構成され、ディスカッション・クイックディベートや日本人学生による英語プレゼン発表などを不定期に実施するなど、著者である宮崎大学工学部の教員による企画・運営で維持されてきた。例外的に、短期の外国人訪問者を招いて大学紹介や日本文化交流を提供したり、留学生を囲んでの交流会も開催してきた。「ランチタイム英語」について調査してきた川崎(2021)によれば、2017年から2019年まで平日毎日の開催であっても1回あたりの平均参加人数を5名以上としてきた「ランチタイム英語」は、コロナ感染症による制限下の2020年からオンライン活動に移行する中で参加者を激減させた¹⁵⁾。その

背景には、様々なオンライン英会話の広まりの中で招いた差別化の失敗や大学授業の一斉遠隔提供によるオンライン化そのものに対する疲弊感などが考えられたが、オンライン開催以外の打開策を講じられぬまま「ランチタイム英語」は停滞していった。その後、コロナ感染症による制限が緩和され、2022年10月から集合対面の活動に戻り、週2回のペースで所定の場所に集まる形で実施されるようになり、次第に参加者数を取り戻していった。

「ランチタイム英語」は、これまで英語コミュニケーションの機会を提供するだけでなく、所属・学年を越えた日本人学生や留学生が集まって関係性を築く場となるなど、英語学習を目的に集まった者でコミュニティを形成しやすいSALCに近い機能も担ってきた¹⁶⁾。そこで、「ランチタイム英語」に自律的英語学習に励む学生を集める場としての役割を持たせ、従来通りの英会話に加え、学生グループが企画した英語学習活動や他大学との交流へと発展させることにした。本研究では、学生グループの積極的な英会話への参加と学生らしい発想の企画・運営を求めた結果、学生グループを中心となって、大学内外で他の日本人学生や留学生を英語学習活動に巻き込む動きが生まれてきた。

3. 工学系大学の協働による英語学習支援

3.1 各大学について

宮崎大学は、宮崎市中心部から車で約30分の距離にある国立大学で、工学部を始めとする5つの学部を有し、学部から大学院までを含めて5,400名強の学生（2024年5月1日現在）が在籍する総合大学である。工学部は2021年度の改組以降1学科6プログラムで編成されている。

北見工業大学は、北海道北見市中心部から車で10分程の距離にある国立大学で、工学部のみを有し、学部から大学院までを含めて2,100名強の学生（2024年5月1日現在）が在籍する単科大学である。工学部は2021年度の改組後2学科8コースで編成されている。

室蘭工業大学は、北海道室蘭市中心部から車で10分程の距離にある国立大学で、理工学部のみを有し、学部から大学院までを含めて3,100名強の学生（2023年5月1日現在）が存在する単科大学である。2019年度の改組前には工学部も存在していたが、改組後の現在は理工学部に集約され、2学科で編成されている。

3つの大学はいずれも図1の③に相当する組織を有するが、週1回程度の基礎教育科目・専門科目の英語授業を除けば、小規模の英語関連活動や不定期の国際交流活動の提供に限られた英語学習環境にある。

3.2 自律的英語学習の支援・推進における課題

上述した3大学に在籍する教員3名が共同研究に取り組み、オンライン会議とメール会議を重ねた。最初の協議では、各大学の課題を共有し、自律的英語学習支援の共通課題（表6）として整理した。

学年進行につれて専門教科や研究活動に傾注しがちな工学系学生が取り組みやすい正課外活動には、事前準備なしで参加できる気楽さが求められる一方で、授業のない時間にわざわざ参加したくなる魅力的な内容が必要とされる。また、工学系学生の多くがシャイで表現する内向性、大学入学前から抱く英語への苦手意識、外国人との交流機会の少なさ、海外渡航経験の乏しさなどの要因も勘案した時、それらの負の要因を乗り越えてグローバル人材となつたロールモデルの工学部学生の存在も必要となる。

大学間の協働事業によって自律的英語学習者が所属大学に関係なく集まれる正課外学習活動や、3大学で共に学習者を支えるための「学習プラットフォーム」を検討した結果、宮崎大学工学部で先行していた正課外学習活動を軸に、月1回程度の頻度でオンライン交流の方法で学習者を集めしていくことになった。2.3で述べた宮崎大学工学部の「ランチタイム英語」を基盤にして、研究開始当初は教員主導で企画した活動に学習者を集め、教員が活動を進行させる形で互いの自己紹介などの英会話に取り組んだ。以下に宮崎大学工学部が室蘭工業大学と北見工業大学との共同事業で実施した正課外学習活動について述べる。

表6. 自律的英語学習支援の共通課題

- 大学で自律学習支援センター（Self Access Learning Center: SALC）を持たない。
- 自律的英語学習に取り組む学生を支援する体制が脆弱である。
- 留学生・外国人教員の割合が低い。
- 日常的に外国の方に出会うことが希少である。
- 大都市圏や国際的な中核都市から離れている。
- 工学系学生は国際化的現実を認識しているが、英語への苦手意識を持っている。
- 学生の中には留学等で海外渡航する者が毎年存在するが、その人数は少ない。
- 大学卒業後の進路選択においてTOEIC L&Rのスコアが必要不可欠になり、TOEIC対策の学習に傾倒しやすい反面、英会話等のアウトプット活動を敬遠しがちである。

3.3 大学間協働事業で実施したVR英会話

ここで述べるVR英会話は、VRヘッドセットを付けた学生がVR空間でアバターになって英会話に取り組む正課外学習活動を指している。2021年10月から宮崎大学の工学部でパイロットスタディとして実施していたVR英会話では、アバターになってロールプレイの中で英語を話すことで、工学系の学生が英会話に対する心理的ハードルを下げ、英語学習における不安感の軽減や学習への動機づけといった情意的側面の効果が見出されていた¹⁷⁾。2022年4月から宮崎大学工学部では、日本人学生だけで冗長的な英会話にならないように、留学生をVR英会話のファシリテーターに指名し、学生同士の英会話が円滑になるように工夫して実施していた。室蘭工業大学には当時定期的な正課外英語学習活動がなく、英会話の機会を求める室蘭工

業大学の学生が宮崎大学工学部の学生グループと交流する場として、大学間共同事業としてVR英会話を実施することにした。2022年6月13日、6月15日、7月4日の3日間の昼休みを使って、両大学の学生がVR英会話に取り組み、のべ12名の日本人学生が参加した。その結果、2つの成果が見い出せた。一つ目に、学生グループにとっては、初対面で英語を話す場面に起こりやすい緊張感がゲーム感覚のVR空間で軽減され、英会話を円滑に行うことができた。二つ目に、同じ大学に所属する学生同士の会話で生じるマンネリ感がなく、真剣に英会話に取り組むことにつながった。

室蘭工業大学の学生がその後継続して参加することではなく、当初予定していた北見工業大学の参加が技術的問題から実現できずに終わったことから、大学間協働事業のVR英会話は上記3日間での実施にとどまった。ただし、宮崎大学工学部の学生グループはVRアプリの提供会社との契約が有効であった2022年度末までVR英会話に取り組んだことを付言しておく。

3.4 大学間協働事業で実施したオンライン交流

北見工業大学からは、VR英会話の代わりに、平日昼休みを使ってオンラインでつなぐ学生交流の可能性を検討した。2022年11月15日に宮崎大学の学生8名と北見工業大学の学生4名が参加した第1回の交流では、両大学の教員同士が日程と内容を決め、宮崎大学工学部の学生グループが大学紹介を行った。第2回の交流は2023年1月25日に実施され、北見工業大学からは4名の留学生を含めた7名が参加し、学生グループと併せて合計12名の学生が参加した。学生グループが各自の冬休みの過ごし方をスライドを用いて紹介し、北見工業大学の学生に対して冬休みの過ごし方を尋ねた。2023年度からは企画と日程調整を学生グループの主体性に委ねる方向に変え、2023年12月までに6回のオンライン交流を開催した。各大学ではどの交流においても参加者が同じ会場に集まるようにし、オンライン通信後には学生集団で対面の会話ができるようにすることで、チーム力の向上を図った。

毎回1時間弱の短時間のスクリーン上での英語交流だったが、学生グループによるスライドを用いた発表を興味深く視聴する北見工業大学の学生の姿が見られた。宮崎の風景や食文化の独自性に新鮮な驚きを持って質問してくれた際など、自分たちには日常と思えた異文化に気づく宮崎大学工学部の学生グループの姿が観察された。

3.5 大学間協働事業で実施した対面交流

上述のVR英会話やオンライン交流といった、約2年間の遠隔での活動を通して、学生グループは室蘭工業大学と北見工業大学の学生と親交を深めた。そのような中、学生グループは、2024年3月に室蘭工業大学と北見工業大学の学生と対面で交流する機会を持つことになった。学生グループの学生5名は2024年3月26日に北見工業大学を訪

問し、翌日までの2日間をかけて室蘭工業大学の日本人学生2名・留学生1名・教員1名および北見工業大学の日本人学生3名・留学生3名・教員1名と交流した。

学生グループはこれまで主体的に取り組んできた正課外学習活動に関する実践報告を英語で行い、多くの学生・教員と意見交換した。意見交換後には、室蘭工業大学の学生による正課外学習活動の報告と北見工業大学の学生による国際的な研究活動の紹介を取り入れ、工学系他大学の英語学習や研究活動の実態を知る機会を持った。さらには、集合対面型交流の利点を活かし、北見工業大学内の施設見学に加え、日本の南北の違いを知る異文化理解を目的とした学生同士の北見市散策とカーリング体験に取り組んだ。これらの異文化理解を目的とした活動には北見工業大学が室蘭工業大学と先行的に実施した「国内留学」という知見が生かされている¹⁸⁾。また、室蘭工業大学と北見工業大学の留学生の参加により、質疑応答で英語コミュニケーションを積極的に取り入れることができた。

宮崎大学工学部の学生グループは、2日間で所属大学を超えた学生同士で交流し、これまでの互いの活動について情報交換しただけでなく、今後の接点を求めてSNSを交換し合った。表7に示す感想から分かるように、共通課題を有する他大学の学生との対面での交流は、学生グループにとって発奮材料となる多くの気づきをもたらした。

表7. 対面交流後に出了した学生の感想

- 自分がいかに英語について向き合ってこなかったかが良く分かった。北見と室蘭の学生は、留学生と行動したり、アプリを駆使したりして英語に向き合っていたが、自分はそれらを全然してこなかった。
- (今回のよう)に他大学の学生と知り合える機会は少ないため、今後の英語学習において、ライバルであり協力者になると思う。
- まずは海外に一度行ってみようと思った。(他大学の学生は)一度行くだけで留学生と話す際に自信が出ると話していたので、英語が話せるか話せないかに限らず挑戦する事が大事なのだと考えた。
- (同じ大学の)メンバーや他大学の人と話したこと、学生の活動のキーワードに楽しむという言葉が出てきたことから、SALCよりも幅広い活動が行えることと義務感が少なくハードルが下がるという点でサークルを作ることを前向きに考えてもいいのかもしれない。
- 今回「完璧を目指さなくて良い、シャイになるな」ということを学んだ。特に工学部生は、シャイだから挑戦する姿勢を持つべきなんだと思った。そういう姿勢で英語に臨んでいる成果が、原稿を見ることなくプレゼンができる室蘭の学生発表に現われているように感じた。
- これをいい機会に、一緒に英語を学んでいけたら面白いと思う。たくさんの方々に会えてよかったです。

4. 学生グループの挑戦と彼らの変化

学生グループは、解散するまでに何度も協議を重ね、解散後も正課外英語学習活動を企画・運営する学生サークルを立ち上げることに決めた。2024年6月に正式に学生サークルの設立を受理されて今まで継続している。学生グループから学生サークルへと移行する期間には、いくつかの国際交流活動にも挑戦してきた。

まず、2022年12月16日に11名のミャンマ一人を対象とした大学紹介のプレゼン発表と日本文化体験のアクティビティを企画・運営した。宮崎大学を訪問する協定大学の学生・教員集団に向けた歓迎会を依頼された学生グループにとっては、初めての大掛かりな国際交流活動であったと言える。英語でのスライド作成やおりがみの練習に十分な準備時間をかけたものの、当日の説明や質疑応答の場面で英語が出て来ずに戸惑う姿はあったが、訪問団が喜ぶ様子に触れたことで学生グループには笑顔が見られた。次に、休日を利用した留学生との交流イベントが挙げられる。学生グループは、2023年12月16日に、年末年始の特別感が漂う冬休みに非日常の楽しみを求める留学生と交流するパーティーを企画した。会場となる公民館の予約や食材の買い出しといった準備に加え、留学生への案内を出して彼らと連絡調整し、当日は英語での進行を行うなど、自主的に全てをやり遂げた。パーティーは、Scrabble ボードゲームやたこ焼き料理といったアットホームな形式で、学生グループの学部学生6名に対して、中国・インドネシア・マレーシア・ミャンマー・バングラデシュ・アフガニスタン・ニカラグア・オランダ出身の10名もの留学生が参加した。終始賑やかな声と笑いが飛び交う楽しいイベントに対する留学生からの感謝の言葉をもらい、学生グループは達成感と自信を得た様子が見られた。最後に、工学部で受け入れた留学生の帰国時に開催した送別会が挙げられる。2024年5月16日に「ランチタイム英語」の中で送別会を実施することになり、学生グループが自主的に企画・広報・運営を担い、総勢13名が日本文化体験のアクティビティを中心とした活動に参加した。送別会の主賓となった留学生は、後日2024年6月11日に実施した半構造化インタビューの中で、母国で興味を持った日本文化を身近に感じたいと自分で飛び込んだとは言え、学部課程の最終研究を目的とした短期間の宮崎大学での滞在では言語の壁によって難しいと思っていた日本人学生と親しく交流する場を持てて感謝していると回答した。

これまで述べてきた、室蘭工業大学と北見工業大学の学生との様々な遠隔の活動を経て対面交流に至る過程で、宮崎大学工学部の学生グループが他大学から得た影響は大きい。留学生を巻き込んだ活動を気負わずにやってのけたり、留学・海外研修や英語プレゼン大会に積極的に参加したりする室蘭工業大学と北見工業大学の学生に触発されたことで、学生グループは、「ランチタイム英語」を通して宮崎大学の学生に働きかけるようになった。さらには、留学生も巻き込みながら、個人的にLINEでつながってメッセージを送り合ったり、大学内外で食事を共にしたりするようになっていった。学生グループに所属した学生は、上述の国際交流活動だけでなく、自ら選択して長期休業を利用した海外渡航を実現させたりするまでに変化し、自律的英語学習に取り組む学生のための学生サークルを設立するまでに成長した。彼らが学生サークルに変化してから今に至るまで室蘭工業大学と北見工業大学の学生とつな

がっていることから、グローバルエンジニアを目指す同志でありライバルとなれたのかもしれない。

さらに顕著な変化を見せた学生の姿について補足する。学生グループに所属して集団を率いた学生は、2024年7月21日に、グローバル人材の育成をテーマとした研究者が集まる学会で、堂々と学生グループの歩みについて説明し、学生たちが考える「楽習（楽しく取り組む学習）」は意欲をもって取り組む能動的なものだと述べた¹⁹⁾。また、学生サークルを立ち上げて部長となった学生は、室蘭工業大学と北見工業大学の学生・教員も同席する30名以上の聴衆を前に、ポスター発表を行った。その発表の中で、学生グループからサークルに移行して活動する学生たちがそれぞれに目標や希望を持って定期的な活動に取り組み、月1回程度のミーティングで互いのアイデアを共有して意見交換する様子を詳細に説明し、学生グループで取り組んだ他大学とのオンライン交流やVRなどデジタル技術を用いたこれからの英語学習活動を模索していると述べた²⁰⁾。

5. おわりに

2022年度から2024年度にかけて、地方にある工学系の3大学による協働で、SALCのない大学における自律的英語学習支援の仕組みづくりに取り組んだ。遠隔の活動で実施したVR英会話とオンライン交流は、本来のSALCが実施しているように、授業や研究活動の合間に自由に参加できる英会話を増やすことを目的として実施された。結果的に、VR英会話は室蘭工業大学にとって非日常的な英会話を体験する機会となり、オンライン交流は両大学にとって宮崎と北海道の異文化の共有を通じた国内理解の機会となった。宮崎大学工学部の正課外英語学習活動で続けてきた「ランチタイム英語」の大学間共同利用によって、宮崎大学工学部の学生グループと共に正課外英語学習活動の機会の創出と方法の開発に挑戦し、数々の取り組みの中で学習活動の精査にも取り組んだ。それにより、コロナ禍で停滞した「ランチタイム英語」の活性化につながっただけでなく、SALCのない工学系大学の学生が集まる学習プラットフォームとなる大学間協働での自律的英語学習者のサポートの仕組みづくりに発展した。さらには、正課外英語学習活動に深く関わり、既存の活動を学生のニーズに合う形に変え、新しい活動までも生み出した宮崎大学工学部の学生グループや他大学の学生集団を輩出した。各大学の教員が自律的学習者の支援という目的で研究の方向性を一つにし、各大学に点在していた、自律的英語学習を通してグローバルな視座を持ちたいと考える学生を集め続けた結果が実った。

しかしながら、本研究で試行した大学間協働での自律的英語学習者をサポートする仕組みづくりは、層の厚い人員体制で戦略的な学習指導・学習活動や継続的な専門的助言を与えるSALCにまで到達したとは言いがたい。SALC

のない宮崎大学工学部において、正課外英語学習活動を継続・拡充させるためには、先述の学生グループのように、学習活動を担当する教員とアイデアや経験を分け合いながら積極的に活動に関わろうとする学生の存在が大きな鍵と言えるだろう。「ランチタイム英語」が学生主導の活動であるにはどうすべきか、地方大学で貴重な国際理解の先導者となる留学生とどう連携したらよいのか、他大学の学生とつながる学習プラットフォームとして何ができるのか、学生グループから生まれた学生サークルと意見交換を続け、今後も検証していくつもりである。

謝辞

本研究は科学研究費助成事業基盤研究(C)「工学系地方大学の協働による自律英語学習を支援する学習プラットホームの構築（課題番号：22K00765）」を受けて実施した。3年間の研究活動にご協力いただいた室蘭工業大学大学院工学研究科・小野真嗣准教授と北見工業大学工学部・久保比呂美講師に感謝の意を表す。

参考文献

- 1) 國際ビジネスコミュニケーション協会: 英語活用実態調査 2022～企業・団体、ビジネスパーソン, 2022.
- 2) 佐藤栄一郎: 英語力がもたらす経済効果, 財務総研スタッフレポート No.20, 財務総合政策研究所, pp.1-8. 2020.
- 3) 文部科学省: 2040 年に向けた高等教育のグランドデザイン（答申）, 2018. https://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/chukyo/chukyo0/toushin/1411360.htm (2025/3/31 閲覧)
- 4) 坂田浩: Self-Access Learning Center (SALC) における英語学習プロセス再考～『異文化感受性発達モデル』を取り入れた新しいモデルの提案. 徳島大学国際センター紀要 年報 2017, pp. 20-31, 2017.
- 5) Japan Association for Self-Access Learning. The Japan Language Learning Spaces Registry. <https://jasalorg.com/lls-registry/> (2025/3/31 閲覧)
- 6) J. Mynard: Perspectives on Self-Access in Japan Based on a Typology and a Thematic Analysis of the Literature, JASAL Journal Vol.3 No.2, pp. 4-21, 2022.
- 7) 瀬井陽子: これからの SALC (Self-Access Learning Center) の意義と課題. 大阪大学国際教育交流センター研究論集 多文化社会と留学生交流 第24号, pp. 19-25, 2020.
- 8) 山本貴恵: 主体的な外国語学習環境作りへの提言～国内外の外国語自律学習施設における取り組み. 和洋女子大学紀要 第62集, pp. 123–131, 2021.
- 9) S. Watkins: Becoming Autonomous and Autonomy-Supportive of Others - Student Community Leaders' Reflective Learning Experiences in a Leadership Training Course, JASAL Journal Vol.2 No.1, pp. 4-25, 2021.
- 10) C. Pemberton et al: Evaluation of SALC Inclusiveness - What Do Our Users Think?, JASAL Journal Vol.4 No.1, pp. 5-31, 2021.
- 11) 橘未都: 学生の LLC 利用状況と自律学習者育成に向けた開室 10 年の取り組み, 大阪工業大学紀要 Vol.67 No. 2, pp. 103-112, 2023.
- 12) 国立教育政策研究所: 大学生の学習実態に関する調査研究について（概要）, 2016. https://www.nier.go.jp/05_kenkyu_seika/seika_digest_h27a.html (2025/3/31 閲覧)
- 13) 内閣官房教育未来創造会議: 未来を創造する若者の留学促進イニシアティブ（第二次提言）, 2023. <http://www.cas.go.jp/jp/seisaku/kyouikumirai/teigen.html> (2025/3/31 閲覧)
- 14) リアセック: PROG テストについて, <https://www.riasec.co.jp/prog/test.html> (2025/3/31 閲覧)
- 15) 川崎典子: 地方大学工学部の日本人学生のための自律的な英語学習に向けた足場かけの一例, JASAL 2021 National Conference Online, オンライン, 2021/10/23 口頭発表.
- 16) 川崎典子: 昼休みの英会話活動に集まる日本人学生の学習動機と意識・態度の変容について, JASAL 2019 National Conference, 追手門学院大学, 2019/12/1 口頭発表.
- 17) 川崎 典子: 「VR 英会話プログラム」パイロットスタディの実践報告, 宮崎大学工学部紀要 No.51, pp. 147-152, 2022.
- 18) 小野真嗣, 久保比呂美: 道南および道北の地域資源を活用した教育実践報告, オンラインとオンラインの併用による海外派遣代替プログラムの検討に関する研究集会, 2021/11/19 オンライン口頭発表.
- 19) 川邊晴香: 工学部学生として考える正課外英語学習活動～楽習を目指して, グローバル人材育成教育学会 第 10 回北海道支部大会, オンライン, 2024/7/21 口頭発表.
- 20) 若松倫妃ほか 3 名: 国際体験を活かしたサークル活動を通して成長する学生集団について～学生各自の海外渡航経験を紹介するグループ活動, グローバル人材育成教育学会 第 12 回全国大会, 中村学園大学, 2025/2/9 ポスター発表.

椎茸自動識別システムの開発の提案手法

木村 恵生菜^{a)}・坂本 真人^{b)}

Proposed Method for Developing an Automated Shiitake Mushroom Identification System

Leona KIMURA, Makoto SAKAMOTO

Abstract

This study proposes an image-based anomaly detection method for automatic sorting of dried shiitake mushrooms. A Variational Autoencoder (VAE) was trained using only normal images to detect defects based on reconstruction errors and image blur metrics. Although data augmentation and training adjustments were applied, the model showed limited accuracy—35% for normal and 73% for defective samples. Results suggest that VAE alone cannot capture subtle patterns in shiitake surfaces. Future work will explore combining VAE with CNN or One-Class SVM to improve detection performance.

Keywords : Anomaly detection, Automatic sorting, CNN, Dried shiitake mushroom, SVM, VAE

1. はじめに

宮崎県では椎茸の生産が盛んに行われており、地域の農業において重要な産品となっている。中でも、収穫後の椎茸の選別作業は、品質の安定と流通の円滑化のために欠かせない工程である。しかし、この選別作業は人手に依存しており、個々の熟練度により判断基準が異なるなど、属人的な要素が大きい。加えて、生産現場では人手不足が深刻化しており、選別作業の効率化と品質の均一化が求められている。このような背景から、椎茸の画像を用いた選別作業の自動化が注目されている。画像分類モデルとしては、畳み込みニューラルネットワーク（CNN）が広く用いられているが、選別の対象となるデータは良品に偏っており、不良品のデータが非常に少ないという問題がある。実際、長谷部幸大氏の研究[1]においても良品と不良品のデータに大きな偏りが見られ、CNNを用いた二値分類での判定が困難であった。そこで本研究では、比較的集めやすい良品データのみを用いたモデル構築を行い、未知の不良品に対して異常性を検出する手法として、変分オートエンコーダ（VAE）を用いたアプローチを提案する。VAEは、正常なデータの特徴を学習することで、再構成誤差などを通じて異常を検出できるため、本研究のようにデータが偏った状況下で有効である。

2. 関連研究

この章では VAE を用いた研究を紹介する。

・ **Variational Autoencoder を用いた臓器の統計モデルの構築**：VAE を使用して臓器の統計的特徴を学習し、その後、異常な構造を検出する手法が提案されている。VAE は健康な臓器の特徴を学習し、疾患などによる異常な構造を再構成誤差や潜在空間で検出する方法として機能する。再構成誤差を基に異常を検出するため、医療分野における異常診断において有用であることが示されており、VAE が異常検出の一手段として有効であることが確認されている[2]。

・ **Device Image-IV Mapping using Variational Autoencoder for Inverse Design and Forward Prediction**：VAE を使用してデバイスの画像とその IV (電圧-電流) 特性をマッピングする手法が提案されている。VAE によってデバイスの構造から特徴が抽出され、その特徴が IV 特性空間にマッピングされる。この方法は、デバイス設計や予測において異常な特性を検出するために利用される可能性があり、VAE が異常を検出するために有効なツールであることを示唆している[3]。

・ **VAE を特徴抽出器とした 1 クラス SVM の提案**と欠

a) 工学専攻先端情報コース大学院生
b) 工学基礎教育センター教授

陥検出への応用：VAE を特徴抽出器として用い、その後 1 クラス SVM を使用して欠陥検出を行う手法が提案されている。VAE はデータの潜在的な特徴を抽出し、これを基に 1 クラス SVM で異常を検出する。この手法は、欠陥検出タスクにおいて VAE の特徴抽出能力を活用し、異常を高精度で検出できることを示しており、工業製品や他の異常検出タスクに応用可能である[4]。

3. 手法

本研究では、はじめに CNN を用いた良品・不良品の二値分類を試みたが、データの不均衡により精度が安定せず、実用には不十分であった。そこで、良品のデータのみを用いて学習可能な変分オートエンコーダ（VAE）を用いた異常検知手法に着目した。本章では、各手法の概要について述べる。

3.1. CNN による画像分類

まず、良品および不良品の画像を用いて、畳み込みニューラルネットワーク（CNN）による分類を行った。CNN は、画像から局所的な特徴を抽出し、分類するための強力な手法であり、多層の畳み込み層とプーリング層を重ねることで高次の特徴量を得ることができる。

[1]では、入力画像に対し数層の畳み込み層を通じて特徴マップを抽出し、最終的に全結合層によって良品・不良品を判別する構成とした。しかし、データセットにおける不良品の割合が非常に少なく、学習が良品に偏ることで、不良品の分類精度が大きく低下した。このようなデータ不均衡の課題から、良品データのみを用いた異常検知手法への転換を行った。

3.2. VAE による異常検知

変分オートエンコーダ（VAE）は、入力データの確率分布を潜在空間に写像し、そこから再構成を行う生成モデルである。VAE では、エンコーダにより画像を低次元の潜在変数に変換し、その分布に従ってサンプリングを行った後、デコーダによって元の画像を再構成する。

本研究では、良品画像のみを用いて VAE を学習させることで、正常なデータの特徴分布を捉えることを目的とした。学習後、不良品画像に対しては再構成誤差が大きくなると予想され、これをもとに異常の有無を判定する。VAE の損失関数は、入力画像と再構成画像の差異を示す再構成誤差と、潜在変数の分布を正規分布に近づけるための KL ダイバージェンスの和として定義される。これにより、潜在空間が滑らかに保たれつつ、入力画像の情報が保持されるよう学習が進む。

4. 開発環境

本研究における開発環境は表 1 の通りである。

表 1. 開発環境

プログラミング言語と ライブラリ	Python
実行環境	Google Colabatory

5. データ拡張による学習データの増強

5.1. データの概要

本研究では、杉本商店にて取り扱っている乾し椎茸の表側のみの画像データを対象とした。画像は様々な撮影条件および撮影機器によって収集されており、照明や解像度、構図には一貫性がない。これは、現場における実運用を想定したデータとして、より現実的な環境に近いものとなっている。使用したデータのうち、良品は 3,535 枚、不良品は 287 枚である。画像サイズについては、事前に OpenCV を用いて背景のみの削除を行い、統一感はない。

5.2 データ拡張の手法

学習に使用する画像が 3,535 枚と限られていたため、VAE のような生成モデルにとっては十分な学習が困難であった。そこで、以下のデータ拡張を行い、同一ラベルでの多様性を人工的に確保した。

- 左右反転
- ± 30 度のランダム回転
- クロップ・リサイズ
- 明るさ・コントラスト・彩度・色相の変化

これらの手法を組み合わせることで、1 枚の画像から複数のバリエーションを生成し、最終的には図 1 のように約 17,675 枚に拡張された。



図 1. 一枚の画像の拡大

6. 結果

良品と不良品の画像データに関する詳細は第 5 章に記載しているが、本章ではそれらを用いた VAE による処理結果について述べる。

6.1. 初回実行の結果

初めの実エポック数を 100 回として実行した。結果としては、学習されたモデルは画像の再構成が不十分であり、再構成誤差による異常検出もうまく機能しなかった(図 2)。これは、学習データ数が少なく、また画像のばらつきも大きかったことが原因と考えられる。

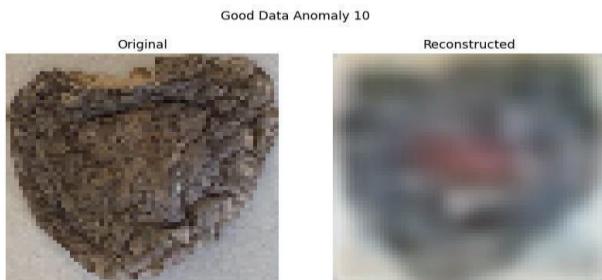


図 2. 実行結果

6.2. データ量の増加による結果の変化

この節では、生成精度を上げるために同じ画像を複製して良品のデータを 7,070 枚に拡張し、更に 5 章 2 節のように拡大した後にエポック数を 100 回で行った。実行結果は、図 3 から図 6 の通りである。

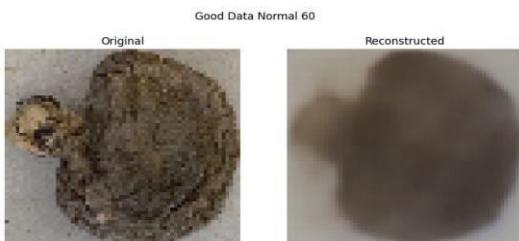


図 3. 良品の正常判定



図 4. 不良品の誤判定

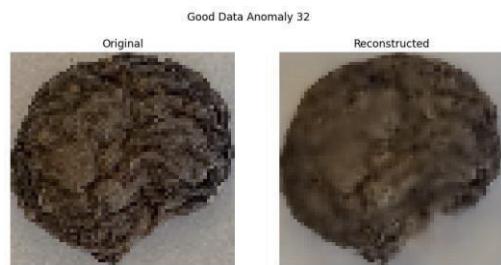


図 5. 良品の誤判定



図 6. 不良品の正常判定

正常と判別された良品データ（図 3）は、異常と判別された良品データ（図 5）よりも生成精度が低いものの、輪郭などの主要な特徴はしっかりと表現されている。一方で、異常と判別されたデータは、正常よりも主観的にきれいに見える。これは、再構成誤差が微細な模様や特徴に十分に対応できていないためである。このような誤判定が生じる原因として、訓練データの不足が挙げられ、異常検出の精度が低下していると考えられる。

6.3. データ量の増加による更なる影響

この節では、6 章 2 節から更に生成精度を向上するために良品のデータを 27893 枚に拡張した後に 5 章 2 節のように 139,465 枚に拡大した。また、エポック数としてデータ数の増加を考慮して 1000 回と実行した。実行結果は、図 7 から図 10 の通りである。



図 7. 良品の正常判定



図 8. 不良品の誤判定

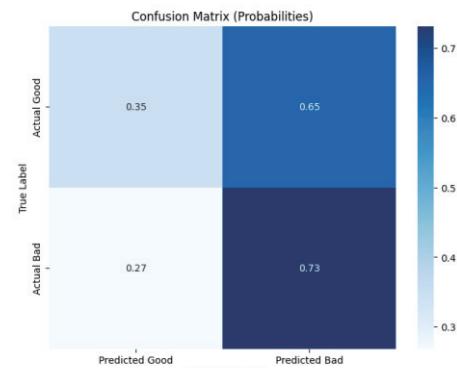


図 12. 正答率

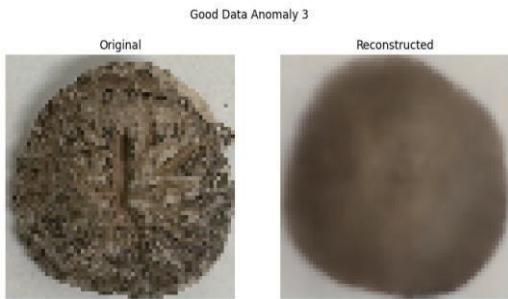


図 9. 良品の誤判定

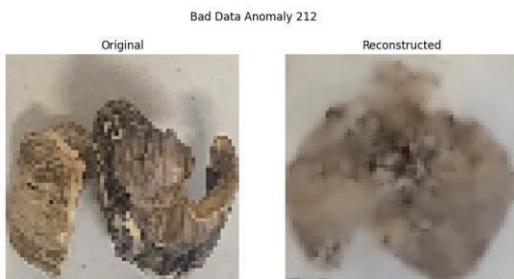


図 10. 不良品の正常判定

また、全体的な正答数と正当率としては図 11 と図 12 の通りであり、良品 35%、不良品 73% と極めて低い結果となった。

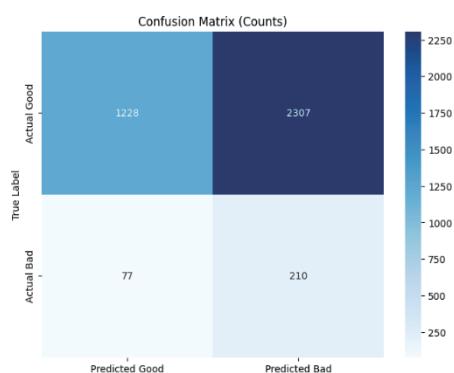


図 11. 正答数

7. おわりに

実験結果から、椎茸のような自然由来の物体において、VAE は自動選別の手法として十分な性能を発揮しないことが示唆された。その原因として、椎茸表面の模様の複雑さや、正規品と廃棄品の一部における輪郭や形状の特徴の類似性が挙げられる。これにより、VAE 単体では再構成誤差の特徴量が明確に分離されないことが確認された。今後の研究では、[4] のように VAE を特徴抽出の段階で活用し、One-Class SVM や CNN といった手法を組み合わせるアプローチを試みる予定である。この手法により、分類精度の向上が期待される。また、椎茸の不良品特性は熟練者の経験に依存する部分が大きく、不良品に対するアナセシジョン作業が十分に進められていない。そのため、データセットのラベリングが不十分であり、適用可能な手法が限られている点が課題として挙げられる。

参考文献

- [1] Ota Hamasuna, Kakeru Takemura, Kodai Hasebe, Fumito Hamakawa, Bidesh Biswas Biki, Satoshi Ikeda, Kaoru Ohe, Amane Takei, Makoto Sakamoto, Kazuhide Sugimoto “Automatic Selection of High-Grade Dried Shiitake Mushrooms using Machine Learning,” The 2024 International Conference on Artificial Life and Robotics (ICAROB2024), J:COM HorutoHall, Oita, Japan, pp.687-690, 2024.
- [2] X. Zhang, Y. Li, and Z. Wang, "Variational Autoencoder を用いた臓器の統計モデルの構築," *Journal of Medical Imaging*, vol. 25, no. 3, pp.123-132, 2020.
- [3] H. Kim and J. Lee, "Device Image-IV Mapping using Variational Autoencoder for Inverse Design and Forward Prediction," *IEEE Transactions on Industrial Electronics*, vol. 68, no. 5, pp.1125-1135, 2022.
- [4] T. Yoshida, M. Tanaka, and K. Sato, "VAE を特徴抽出器とした 1 クラス SVM の提案と欠陥検出への応用," *Journal of Machine Learning Research*, vol. 18, pp.200-210, 2019.

フラ衣装デザイン CAD 開発に向けた 3DCG フラダンサーの描写

木村 恵生菜^{a)}・坂本 真人^{b)}

Visualization of 3DCG Hula Dancer for the Development of Hula Costume Design CAD

Leona KIMURA, Makoto SAKAMOTO

Abstract

This study presents the enhancement of a 3DCG-based design support tool for Hula costumes, aiming to aid efficient and creative costume creation rooted in Miyazaki Prefecture's local culture. Building upon previous tools for 2D and 3D costume visualization, this research introduces two key additions: (1) dynamic environmental lighting to simulate various times of day and performance venues, and (2) implementation of upper-body clothing such as T-shirts using real-time cloth simulation in Unity. These improvements provide a more realistic visualization of Hula performances, allowing users to better evaluate design and movement. Future work will focus on refining model scaling based on body measurements, expanding costume types, and improving simulation accuracy and performance.

Keywords : 3DCG, Blender, CAD, Cloth simulation, C#, Hula costume design, Unity

1. はじめに

宮崎県のフラ文化を基盤として、3DCG 技術を活用したフラ衣装専用コンピュータ支援設計（CAD）の開発を目指している。本研究は、地域特有の文化と技術の融合を実現する試みであり、フラ衣装のデザインにおける効率化や創造性向上を目的としている。宮崎県は、神話や気候がハワイに類似しているためフラダンスが盛んである。しかし、手作り衣装が高額であり、デザインの失敗を防ぐ効率的な方法が必要とされていた。本研究では、3DCG を活用し、ユーザーが衣装のデザインや仕上がりを視覚的に確認できるようにすることで、製作の失敗を削減し、コスト低減を図る。また、地域の神話や自然との結びつきを重視したデザインを可能にし、観光振興や地域活性化にも貢献することを目指す。

2. 既存ツールの機能

この章では、既存研究[1]および[2]で作成された成果物について解説する。

2.1. 2D デザインツール

成果物の一つとして、2DCG (2-Dimensional Computer Graphics) の実行結果（図 1）を出力する図 2 の 2DCG フラ衣装デザインツールを行えるよう開発を行っている。



図 1. 2D デザインツールの実行結果

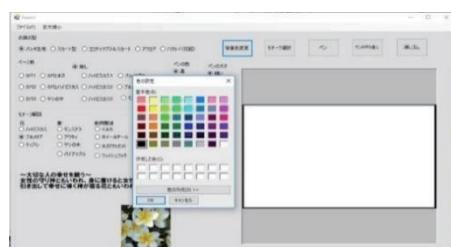


図 2. 2D デザインツール

a) 工学専攻先端情報コース大学院生

b) 工学基礎教育センター教授

2.2. 3D デザインツール

本節では、3D デザインツールの機能について解説する。

2.2.1. 開発環境

開発環境は表 1 の通りである。

表 1. シミュレーションの開発環境

OS	Windows 11
メモリ	16GB
プロセッサ	Intel® Core™ i7-11800H 2.3GHz
GPU	RTX3050 Ti
プログラミング言語	C#
ツール開発	Unity
CG モデリングソフト	Blender

2.2.2. 人体モデルの変形

既存研究では、身体の測定値を入力することで、入力値に基づき人体モデルの各部位がスケーリングされるよう開発を行っている。例えば、N. Metaaphanon や P. Kanongchaiyos[3]は、身体の測定値に基づいて等高線を生成し、生成した等高線を曲線で補間することで、人体モデルを生成しているが、本論文では 4 つの部位の長さの測定と 7 つの部位の周囲の長さの測定をし、測定値を図 3 の入力フォームに入力することで、測定した本人と同じ体型に人体モデルを変形するようにしている。

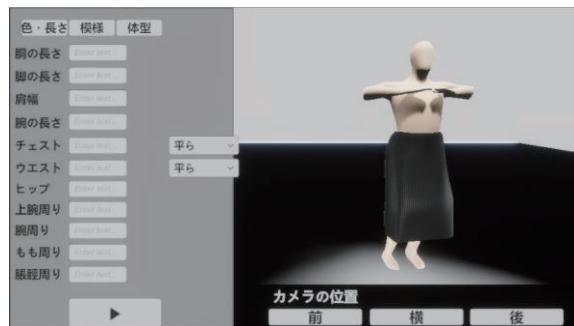


図 3. 測定値の入力フォーム

2.2.3. スカートの柄変更

スカートの柄の変更は図 4 の各柄のボタンをクリックすることにより、変更される。

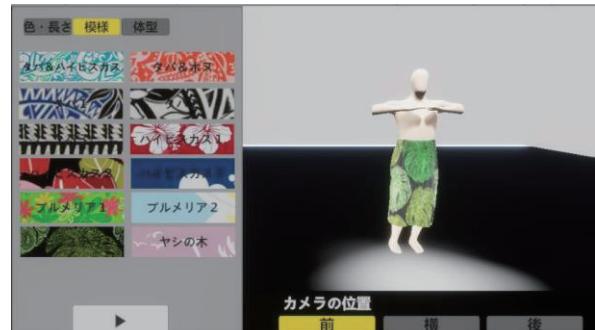


図 4. 模様変更の画面

2.2.4. スカートの長さの変更

スカートの長さの変更は、身体の測定値の入力後に、「おすすめ丈」をクリックすると、床からスカートの裾の長さが 25cm になるように、スケーリングされる。フラでは、床からスカートの裾の長さが 20cm から 25cm がもっとも綺麗に見えるスカート丈である[4]ということで 25cm をおすすめ丈とした（図 5）。



図 5. 長さの変更

3. 機能の追加

本章では、本論文で追加した機能について解説する。第 2 章 2 節で述べた 3D アニメーションで実行結果をリアルタイムで出力できるツールに図 6 と図 7 のように背景と上着として T シャツを追加した。背景と T シャツを追加することによって、実際のフラの練習やステージの様子に近い環境を反映させることができる。なお、本章の実行環境は表 1 と同一である。

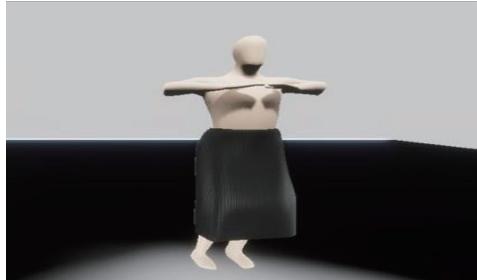


図 6. 3D デザインツールの実行結果



図 7. 3D デザインツールの実行結果

3.1. 背景の実装

フラは一般的に特定の時間帯や場所に制約されることはなく、催しやイベント、レッスン、パフォーマンスなどで踊られる。そのため、フラで踊られる時間帯や場所はイベントおよび活動のスケジュールに依存する。また、一般的にフラのパフォーマンスや公開のレッスンは昼間や夕方に行われることが多いが、夜間にも特別なイベントショーの一環として踊られることがある。そして、場所はホールで行われることが多く、祭りやフェスティバル会場、海辺等で行われることが多い。そこで、より実際のフラの現場を表現するために朝と夕方、ホールでの表現を可能にした。

3.1.1. 準備

オブジェクト追加から Unity 上で地球の物理空間を設定する Global Volume と朝と夕方を表現する Directional Light を 2 つ用意する(図 8)。Directional Light (1)は朝、Directional Light (2)は夕方とする[5]。

Global Volume に Unity 上に地球の空表現をする Physically Based Sky を追加し(図 9)、地球と同条件にするため海拔 0m を表現するために地球の半径 -6378100m を y 軸に入力する(図 10)。

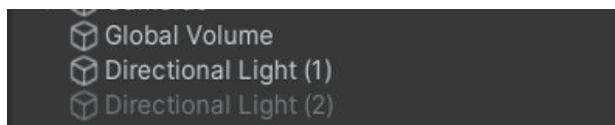


図 8. Global Volume Directional Light

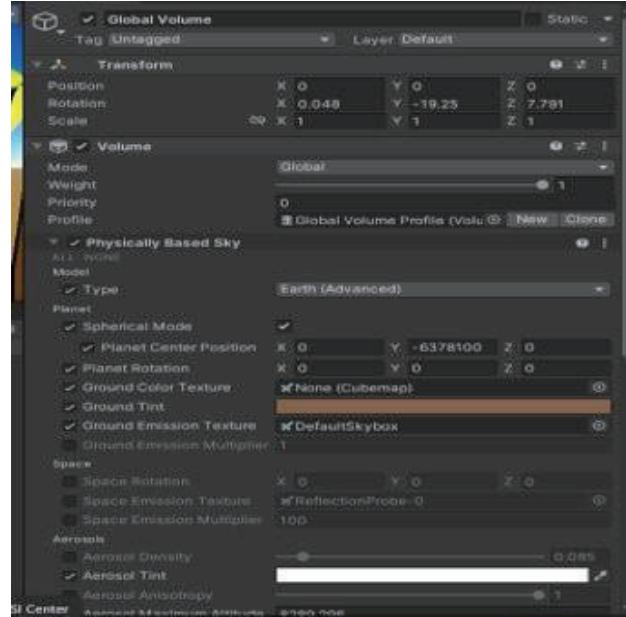


図 9. Physically Based Sky を実装したときの表示



図 10. -6378100m を y 軸に入力

3.1.2. 太陽の角度調整

3.1.2.1. 太陽を実装する上で必要な設定

太陽を実装するために下記の手順を行った。

1. Unity 上での太陽の座標表現は、x は太陽高度として北→南、図 11 のように y を東→南→西、z を東→西と表現する。
2. 計算のしやすさの都合上、6 時を日の出、18 時を日の入りとする。
3. 朝の時間帯を 10 時、夕方の時間帯を 17 時にする。
4. 場所は宮崎県とする。
5. 季節は夏である。

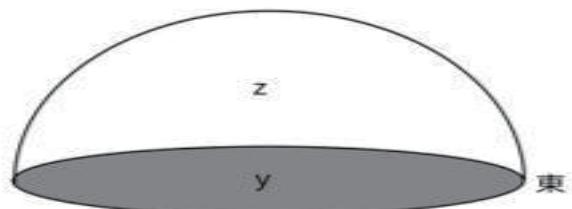


図 11. y 軸と z 軸の unity 上での表現

3.1.2.2. 座標の角度設定

座標の角度設定を下記の手順を行った。

1. x 軸の角度は、朝は 49.6 度、夕方は 30.9 度である。
2. y 軸の角度は、図 12 の通りである。図 12 で 12:00 を 0 度と表現すると、日の出から北は正の表現、北から日の入りは負の表現になり、1 時間当たりの角度の動きは $90/6=15$ 度となる。よって、朝は $15 \times (10-6)=60$ 度、夕方は $-15 \times (17-12)=-75$ 度となる。

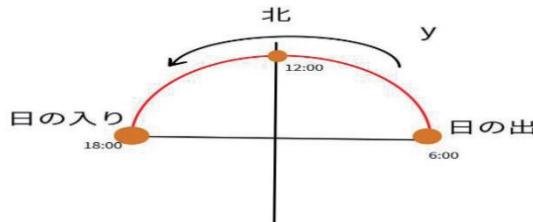


図 12. y 軸の動き

3. z の角度は、地面から観測した動きをしている(図 13)。y 軸と同様に縦方向の軸(12:00)を 0 度として表現しているため、y 軸と計算は同じである。

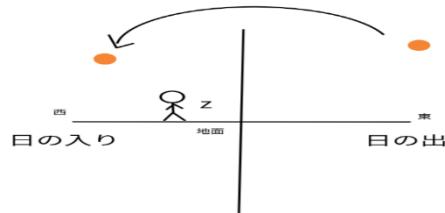


図 13. Z 軸の動き

4. 以上の計算を踏まえると、朝は $x=49.6$ 、 $y=60$ 、 $z=60$ 、夕方は $x=18.4$ 、 $y=-75$ 、 $z=-75$ となる。
5. 設定した値を図 14 と図 15 のように Rotation に代入する。

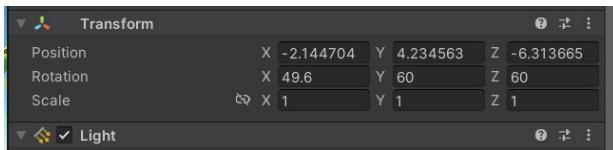


図 14. 朝の太陽の設定画面

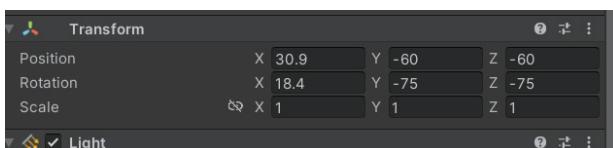


図 15. 夕方の太陽の設定画面

3.1.3. 実行結果

実行結果を図 16 から図 18 に示す。



図 16. 朝ボタンの実行結果



図 17. 夕方の実行結果



図 18. 室内の実行結果

3.2 上着の実装

本節では、上半身の衣装の実装を目指した。既存研究で作成されたパウスカートでは、ブラウスや T シャツとの組み合わせで使われることが多いが、入手しやすさや入手する際でコストを考え今回 T シャツの実装を目指した。

3.2.1. T シャツのモデリング

T シャツは Blender で作成し、デザインを適応させるため UV 展開を行った(図 19)。

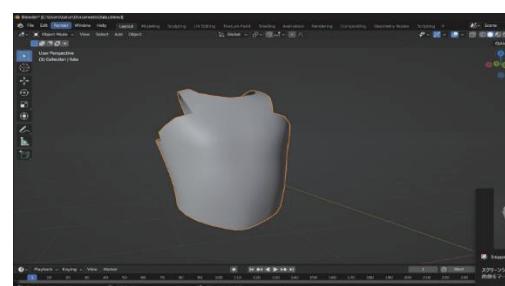


図 19. Blender 上でのモデリング

3.2.2. 服の布表現

服の布表現では、Unity の“Cloth”を用いた。Unity 服のオブジェクトで布表現を適応するため、以下の手順を行った。

1. 服のオブジェクトのコンポーネントから Cloth を追加(図 20)。こちらを行うことで、服のオブジェクトがスキンメッシュレンダラーと連動して機能し、物理演算を用いたクロス(布)のシミュレーションを行い、Unity 上で服のオブジェクトを初めて布として表現することが可能になる。

2. 続いて服の布の揺れを表現する。Cloth の追加時にはシーン内のすべての衝突に反応するわけではなく、ゲームオブジェクトへ力を跳ね返すわけでもない。Cloth では重力の方向に力加えられているだけであり、その他のリジッドボディ(オブジェクトに物理挙動を可能にするためのメインコンポーネント)に対して反応せず、影響を与えることがない。したがって、手動でゲームオブジェクトの Cloth に対し、布を固定し、衝突を加えるまでは、互いに影響する事がない、布が下に落ちていく。また、Cloth に使用できる衝突判定は 3 種類のみで、Capsule Collider、Sphere Collider、また 2 つの Sphere Collider で構成される円錐形カプセルコライダーである。以上の制限はすべて、Unity 上のパフォーマンス強化のために設けられている。

以上により、重力に影響しないように cloth edit constraints で布の固定位置を設定する。赤色にマークされているものが固定位置である(図 21)。

布と衝突判定をさせる Capsule Collider と Sphere Collider を配置し(図 22)、body bone のオブジェクトにまとめる。なお、Capsule Collider と Sphere Collider のみではアニメーションに反映されないため 2 点を人のモデルである Hula_dancer に従属させる(図 23)。また、仕組みとしては体の部分に合わせた衝突判定と布のメッシュの衝突点に力を加えている[6]。

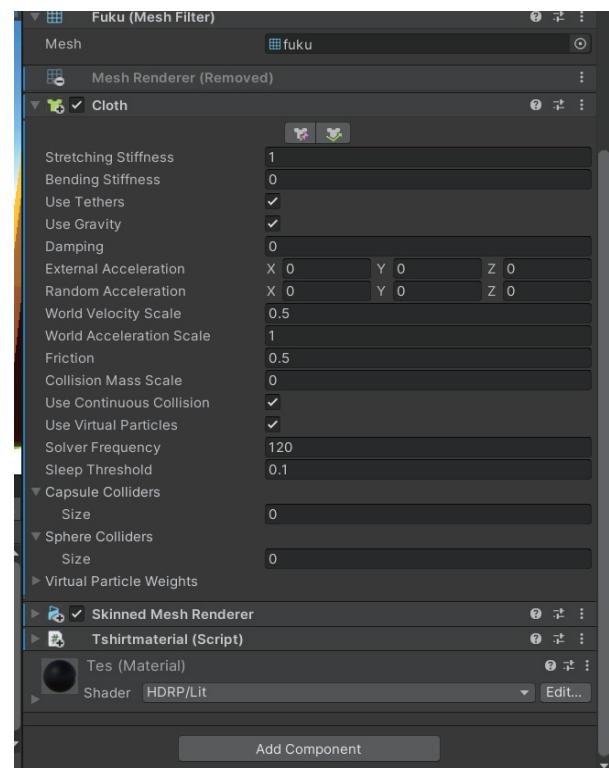


図 20. cloth 機能追加後の服のオブジェクトプロパティ



図 21. cloth edit constraints の固定位置

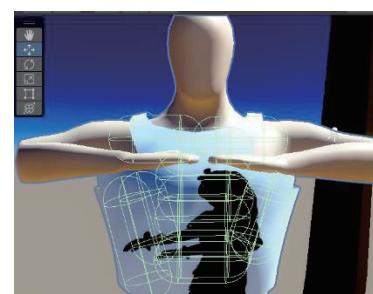


図 22. Capsule Collider・Sphere Collider を用いた結果

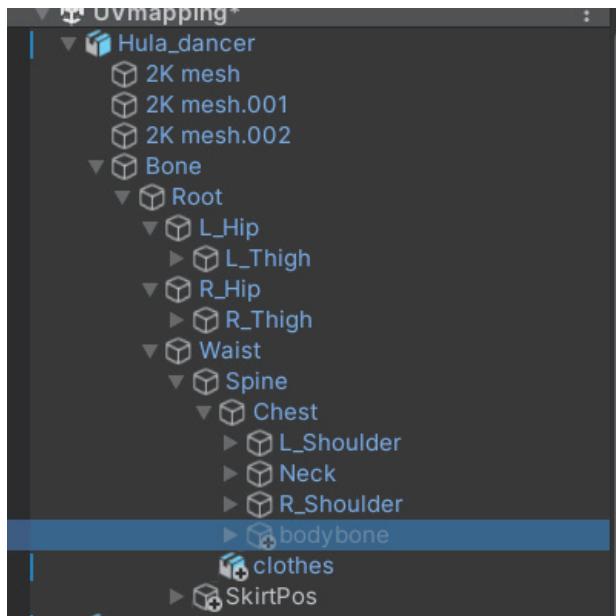


図 23. Hula_dancer

3.2.3. T シャツの柄変更

本研究では、T シャツのモデルを Blender で作成し、UV 展開の情報（図 24）を用いて柄を作成した。T シャツのデザインは無地のものからワンポイントのものがある[6]。今回は、出力を確認するためにフラを踊っている女性 1 点を用いることにした（図 25）。

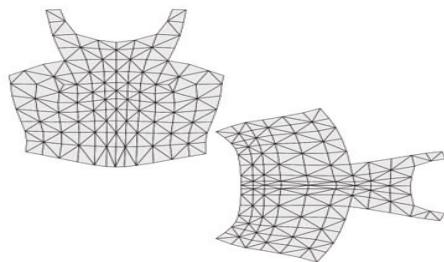


図 24. 服の UV 展開



図 25. 模様

3.2.4. 実行結果

実行結果は以下の通りである。T シャツの柄の変更（図 26）および色の変更（図 27 から図 29）の様子である。なお、色の変更は前章の技術を使用している。



図 26. 柄ありシャツの実行結果



図 27. 無地の色変更



図 28. 柄の色変更



図 29. 柄の色変更

4. おわりに

本研究では、既存のフラダンスツールに太陽の軌道の計算を用いた背景の実装と上着の追加を行った。

今後の課題としては、肩幅の入力値が大きい人体モデルだと脇腹から脇にかけて扇状に広がるような形に変形を行うなど、ケイキを想定した 4 歳児の平均体型を入力した時に臀部が尖った形になったことなどから、滑らかな形に

スケーリングできるような手法を検討する必要がある。また、パウスカートと T シャツの練習着だけでなく、本格的なステージ衣装でのリアルな動き、3 次元キャラクタへの衣服の着付けや布の素材の違いの表現、より精度の高い衝突判定の方法、計算量がより少ないアルゴリズムの開発などにも着目していきたい。さらに、今回は衣装に重点を置いたが、レイなど小物の表現も加えることで、より実践的なフラ衣装 CAD が可能になるであろう。

参考文献

[1] 石津貴弘, 石躍ゆい, 坂本真人, “タヒチアンダンスで使用される衣装用パレオデザインプログラムの試作,” 宮崎大学工学部紀要第 48 号, 2019, pp.155-158

[2] 釜坂岳人, 宮本滉大, 坂本真人, “3DCG によるパウスカートを身に着けたフラガールの動きの表現,” 電子情報通信学会大会ソサイエティ大会講演論文集(CD-ROM), No.A-15-3, 2021.

[3] Napaporn Metaaphanon, Pizzanu Kanongchaiyos. “Real-time Cloth Simulation for Garment CAD,” GRAPHITE ‘05: Proceedings of the 3rd international conference on Computer graphics and interactive techniques in Australasia and South East Asia, pp.83-89, 2005.

[4] パウスカート通販フラダンス衣装 H u l a パウショップ【M o a n i】，“どんなパウスカートを選んだらいいの？” [Online].

<http://pau-moani.com/?mode=f7>

[5] Unity Learning Materials, “physicallyBasedSky を使った物理ベースの空 - HDRP Tips #3” [Online].
<https://www.google.com/url?sa=t&rct=j&q=&esrc=s&source=w eb&cd=&cad=rja&uact=8&ved=2ahUKEwi-4K3-pyCAxUSVN4KHVsZBmoQwqsBegQICBAB&url=https%3A%2F%2Fwww.youtube.com%2Fwatch%3Fv%3DOpcMTDAOOn0M&usg=AOvVaw28NoJNJNiPLQGe-yBgDAzu&opi=89978449>

[6] Unity マニュアル, “Cloth” [Online].
<https://docs.unity3d.com/ja/2021.3/Manual/class-Cloth.html>

アニメーションの中割りアルゴリズムによるキャラクターの描写IV

野倉 玄稀^{a)}・坂本 真人^{b)}

Description of the Character by the Inbetweening Algorithm for Animation IV

Shizuki NOKURA, Makoto SAKAMOTO

Abstract

Japanese manga and animations are diverse in genre, with high quality pictures and background music, and can be enjoyed by people of all ages. Some manga have educational benefits, such as incorporating manga into difficult specialized books to deepen understanding of the content. In addition, pilgrimages to sacred sites of manga and animations, comic markets, costume plays, and other events are being introduced one after another, mainly on the Internet, and the number of foreign tourists who love Japanese manga and animation and visit Japan also continues to increase year by year. Therefore, each local government is making various efforts to revive it as a tourist destination. As part of this, animations such as tourist characters are being produced, but this requires a lot of time and effort. Therefore, in this study, we conducted basic research on themes that were unresolved in previous research using an algorithm created based on Miura's algorithm, a representative mid-sectioning algorithm.

Keywords : Hula costume design, 3DCG, Unity, CAD, cloth simulation, Miyazaki, cultural computing

1. はじめに

訪日外国人旅行者数は近年増加傾向にあり、2024年には過去最高の3,687万人を記録した。この増加の背景には、観光庁が策定した「観光立国実現に向けたアクション・プログラム」などの施策が寄与している。しかし、2020年初頭からの新型コロナウイルス感染症(COVID-19)の世界的流行により、渡航制限が実施され、観光産業は深刻な打撃を受けた。日本における訪日客数は激減し、インバウンド宿泊者数は前年比90%以上の減少が続いた。国内旅行者数も緊急事態宣言や移動自粛の影響で大幅に減少した。例えば、2019年の国内延べ旅行者数は約3億1,162万人であったが、2020年には約2億9,341万人と約50%減少した。その後、2022年10月から入国制限が緩和され、訪日外国人旅行者数は急激に増加し、2024年には過去最高を更新した[1]。

そこで、コンピュータを用いた中割り法を利用し、観光支援の一環としてキャラクターアニメーションの制作に関する研究を行った。中割り法は、アニメーション制作において、原画間の「つなぎの絵」を生成する工程である。従来の手書きアニメーションでは、熟練した補助アニメーターが多数の中割りを描く必要があり、多くの時間と労力を要していた。一方で、コンピュータを利用した中割り法

は、(1) 高速なモニタリング、(2) 彩色作業の効率化、(3) 精密な動きの生成、(4) 3次元的な動きの表現を可能にするという利点を有する。

本研究では、代表的な中割りアルゴリズムであるMiuraアルゴリズムを基に改良を加えた手法を通じて、観光支援の基盤としてコンピュータアニメーションの技術的可能性を探った。

2. 中割り法

従来の手書きアニメーションにおける中割り手法(in-between)としては、大量の絵を多人数の協同作業者が描く“キーフレーム法”が採用されてきた。すなわち、アニメーションの流れの中で動作の主要な変化点の絵を1人のキーライターが描き、これらの絵を参考にしながら中間フレームの多数の絵を複数の補助アーティストが描き、全体を統合して1本のアニメーションを効果的に完成していく。キーライターの描く絵をキーフレームと呼ぶ。図1にキーフレームアニメーション制作の概略を示す。

a) 工学研究科先端情報コース大学院生

b) 工学基礎教育センター教授

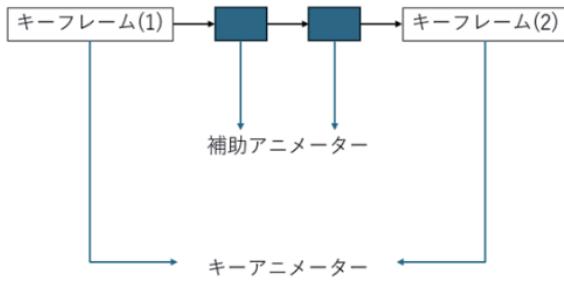


図1. キーフレームアニメーションの概略図[2]

中割作業は経験を必要とする作業であり、キーアニメーターの描いた絵から指示に従って多数の絵を描いていく。キーアニメーター独自の個性表現やなめらかな動きやキャラクターの表情を描くのには様々な技法が要求されるため、多数の補助アニメーターと時間が必要になっていた。しかし、近年ではコンピュータを用いた中割法が一般的になってきている。いわゆるコンピュータキーフレーム法である。

3. 修正版アルゴリズム

Miura アルゴリズム[3]では、一方のキーフレームが他方のキーフレームに依存してしまうため、今回の研究では Miura アルゴリズムをもとに作成された中割りアルゴリズムを使用する。修正版アルゴリズムは 2 枚のキーフレームの関連性が弱い場合やデータが不連続に入力された場合でも中間画像を生成することができる。このアルゴリズムについて説明する。

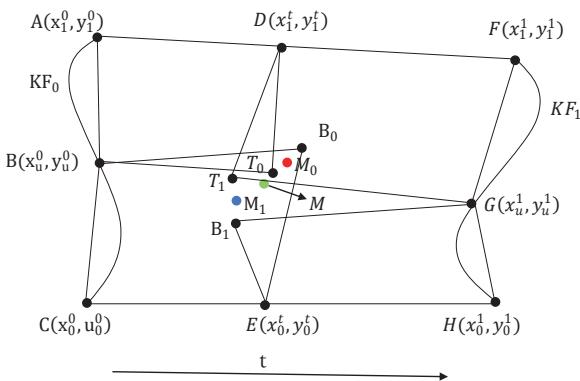


図2. 修正版アルゴリズム

図2における中間画像の端点 D,E について、Miura アルゴリズムの式(1)で計算する。

次に KF_0 基準と考え、AD、AB を二辺とする平行四辺形を考える。これによって得られる第4点を $T_0(x_{T0}, y_{T0})$ とする。また、CB、CE を二辺とし同様に $B_0(x_{B0}, y_{B0})$ を求める。

この 2 点を用いて次式より $M_0(x_{M0}, y_{M0})$ を求める。

$$\begin{aligned} x_{M0} &= (1 - K_0)x_{T0} + K_0x_{B0} \\ y_{M0} &= (1 - K_0)y_{T0} + K_0y_{B0} \end{aligned} \quad (1)$$

ただし、

$$K_0 = \frac{\sqrt{(x_u^0 - x_1^0)^2 + (y_u^0 - y_1^0)^2}}{\sqrt{(x_0^0 - x_1^0)^2 + (y_0^0 - y_1^0)^2}}$$

次に KF_1 基準とし、同様に DF、FG より $T_1(x_{T1}, y_{T1})$ を、GH、HE より $B_1(x_{B1}, y_{B1})$ を求め、式(4)より、 $M_1(x_{M1}, y_{M1})$ を求める。

$$\begin{aligned} x_{M1} &= (1 - K_1)x_{T1} + K_1x_{B1} \\ y_{M1} &= (1 - K_1)y_{T1} + K_1y_{B1} \end{aligned} \quad (2)$$

$$\text{ただし、 } K_1 = \frac{\sqrt{(x_u^1 - x_1^1)^2 + (y_u^1 - y_1^1)^2}}{\sqrt{(x_0^1 - x_1^1)^2 + (y_0^1 - y_1^1)^2}}$$

式(1)と(2)より求めた M_0, M_1 より中間画像の座標 $M(x_M, y_M)$ を式(3)より求める。

$$\begin{aligned} x_M &= (1 - L)x_{M0} + Lx_{M1} \\ y_M &= (1 - L)y_{M0} + Ly_{M1} \end{aligned} \quad (3)$$

$$\text{ただし、 } L = \frac{\sqrt{(x_1^t - x_1^0)^2 + (y_1^t - y_1^0)^2}}{\sqrt{(x_1^1 - x_1^0)^2 + (y_1^1 - y_1^0)^2}}$$

式(3)を用いて、時間パラメータ t を一定にしたときの座標 M を直線で接続することにより、時間 t における中間画像が得られる。ここで、実際の L の値は、 t の値と等しくなる。

4. シミュレーション結果

修正版アルゴリズムを用いてシミュレーションを行った。人の手の中割り（図3）、イラストから漢字へのアニメーションの中割り（図4）、この 2 つの出力する中間画像はどちらも 4 枚である。また、キーフレーム 3 つでの蝶のアニメーションの中割りで出力する中間画像は、1 つ目のキーフレームから 2 つ目のキーフレームの間で 3 枚、2 つ目のキーフレームから 3 つ目のキーフレームの間で 1 枚である（図5）。

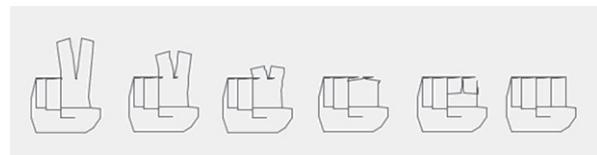


図3. チョキからグー



図4. 「木のイラスト」から「漢字の『木』」



図 5. 羽ばたく蝶の様子

図 5 については、一連の流れがループ再生されるようになっている。キーフレームと中間画像を表示する時間をみじかくすることによって滑らかなアニメーションとなるように調整した。

5. 考察

チョキからグーへの中割りは先行研究[4]と同じキーフレームを使用しているにも関わらず、図 3 の画像で分かるように先行研究と比較して歪みが少なく滑らかに中割りされていることが確認できた。改善したプログラムの出力が先行研究のものより滑らかに感じられる理由として、まず補間計算の違いが挙げられる。先行研究のプログラムでは補間方法が単純であった可能性があるのに対し、新しいプログラムでは $(1 - t)$ と t を用いた線形補間を明確に行うことで、フレームごとの変化を均等にし、より自然な中割りを実現している。

また、コンポーネントが画面に描画される際に内部的に呼び出されるメソッドである `paintComponent` 内で `Graphics2D` の `RenderingHints.KEY_ANTIALIASING` を `VALUE_ANTIALIAS_ON` に設定し、アンチエイリアス処理を適用しているため、線のジャギーが軽減され、視覚的な滑らかさが向上していることも影響していると考えられる。さらに、ループ内で $i = 1$ から $X[1].length - 1$ まで処理することで線の接続方法が一貫性を持つようになり、フレーム間のつながりが自然になった点も滑らかさの向上に寄与していると考えられる。

次に、図 4 の「木のイラスト」から「漢字の『木』」への中割りは、二つのキーフレームの関連性は低いがどちらともシンプルであるため許容できる中間画像を生成できた。しかし、生成された中間画像が左右対称にならず、少し歪んで見える。その理由として、以下の点が考えられる。まず、元の図形の構造において、曲線的な形状（イラストの木）から直線的な形状（漢字の「木」）へと変化するため、各点の動きに差異が生じやすい。特に、木の枝や葉のような細部が、直線的な構造へと変形する際に、期待通りの対称性を維持するのが難しくなることが考えられる。

また、座標の配置において、各キーフレームの対応する点が完全に対応していない可能性も考えられる。配列内の点の順番が厳密に左右対称でなければ、補間結果も非対称になってしまう。この点について、座標データの順序を確認し、左右対称になるように対応関係を調整すると、より自然な補間結果が得られる可能性がある。この問題を解決するためには、単純な線形補間ではなく、例えば対称性を考慮した補間方法の導入、補間前に点の対応関係を厳密に整理するなどの工夫が必要である。例えば、木の各部分（幹、左右の枝など）ごとにグループ分けを行い、それぞれ適切な対応関係を持つ点同

士を補間することで、より左右対称な変形が実現できる可能性がある。

最後に、図 5 の蝶の羽ばたく様子の中割りは複雑であるのにも関わらず全体的に滑らかな中間画像が生成された。これは、1つ目のキーフレームと2つ目のキーフレームの中間画像を3つ、2つ目のキーフレームから3つ目のキーフレームの中間画像を1枚としたためだと考えられる。理由としては、まず1つ目と2つ目のキーフレームは関連性が高いため中間画像を多くすることによってより滑らかになる。そして、それに比べて2つ目と3つ目のキーフレームは関連性が低いため中間画像を多くすると無理に補間を行おうとして歪な中間画像が生成されてしまう。そのため、2つ目と3つ目のキーフレームでは中間画像を少なくすることによって無理な補間がなく比較的滑らかな中間画像が生成される。

6. おわりに

本研究では、コンピュータによる中割り法を用いた中間画像の生成および先行研究の改善、スムーズなアニメーションにするための新しい手法の導入を行った。蝶の羽ばたく中間画像では、キーフレームは比較的複雑であるのに滑らかな中間画像が生成された。そのため、アニメーションのスピードやループなどを調整することによってかなりスムーズなアニメーションになった。また、キーフレームでの対応する座標がそろっていない場合、無理な補間を行おうとして歪な中間画像が生成されてしまった。

本研究では複雑なアニメーションは作成できなかったが、今回の手法に適しているアニメーションを作成することができていると感じている。

今後の課題として、キーフレームの作成に非常に時間がかかるので、新しい多くの中間画像を作成するためにもキーフレームを容易に作成する方法を検討する必要である。また、今回の研究では補間を行うという都合により非現実で予想外の中間画像が生成されてしまうことが何度もあったので、三次元的にとらえるようにしてキーフレームの設定やプログラムの改善を行う必要がある。

参考文献

- [1] 日本の観光統計データ、訪日外客数の推移、日本政府観光局(JNTO)[Online].
<https://statistics.jnto.go.jp/>
<https://www.jnto.go.jp/statistics/data/visitors-statistics/>
- [2] 自治体・公共 Week[Online].
https://www.publicweek.jp/ja-jp/blog/article_29.html
<https://www.jnto.go.jp/>
- [3] 安居院猛、中嶋正之、大江茂、コンピュータアニメーション、産報出版、1983.

- [4] 那須航、中割り法を用いた観光キャラクターのアニメーションに関する研究、平成30年度卒業論文、宮崎大学工学部情報システム工学科、2019.

碎波回数に基づく画像平均化を用いた離岸流検出手法の効率化

瀬砂 桜太^{a)}・木村 怜生菜^{b)}・坂本 真人^{c)}

Simplification of Rip Current Detection by Image Averaging Based on the Number of Wave Breaks

Ota HAMASUNA, Leona KIMURA, Makoto SAKAMOTO

Abstract

This study proposes a method to detect rip currents using image averaging based on the number of wave breaks in smartphone videos. By analyzing videos recorded at Hitotsuba Surf Point, it was confirmed that rip currents could be detected even from hand-held footage. The optimal duration for image averaging was found to be around 23 seconds, determined by SSIM and MSE values. This reduces the conventional analysis time from 1 minute. Future challenges include developing an automatic system to detect wave breaks and generate analysis-ready videos, ultimately aiming for fully automated rip current detection with AR visualization.

Keywords : Image averaging, Image processing, MSE, Rip current, SSIM, Wave breaks

1. 緒言

1.1. 研究背景

警察庁の「令和5年における水難の概況等」[1]によると、令和5年に発生した水難事故の件数は1,392件で、死者・行方不明者は743人に上る。そのうち368人が海での水難事故によるもので、主な原因として離岸流が挙げられている。実際に、著者の地元である宮崎県においても、令和6年2月8日に加江田川河口で高校生が砂浜から約10メートル沖合まで流され、死亡する水難事故（図1）が発生している。このような背景から、離岸流を検出するシステムの開発が必要であると考えられる。



図1. 加江田河川口

1.2. 先行研究

離岸流を検出する研究は多数存在し、特に土木学会において盛んに行われている。その中でも、離岸流を検出する

ための手法として広く用いられているのが「画像平均化」である。これは、海岸の動画を撮影し、それを連続画像へと変換した後、それらを1枚の画像に平均化することで離岸流を可視化する手法である（詳しくは2.1を参照されたい）。しかし、先行研究の多くでは、定点カメラを使用したものや解析に長時間を要するものがほとんどである。そこで、2020年に島田良らは「離岸流検出のための画像平均化の適切な解析時間の検討」[2]において、離岸流を検出するのに何分間の動画を平均化するのが適切かを明らかにした。結論としては、突発的に発生する離岸流を検出する際は1, 2, 3, 4分、定常的な離岸流を検出する際は15, 25, 30, 40, 80分の解析時間が適切であるとしていた。

1.3. 研究目的

本研究では、突発的な離岸流を観測対象とし、島田らの結論である1分間の動画時間をさらに短縮することで、スマートフォンの手撮り動画でも離岸流を検出可能とする効率化を目指す。

1.4. 離岸流

そもそも、離岸流とは岸から沖へ向かって流れる海水の流れのことである（図2）。第九管区海上保安本部海洋情報部[3]によれば、離岸流の速さは最大で秒速2メートルに達することがあり、その長さは数十メートルから数百メートルに及ぶが、岸から離れると流速は弱まるとされている。このことから、離岸流を検出する際の解析時間は短いことが望ましい。また、離岸流の幅は10~30メートル程度と比較的狭いため、離岸流に流された場合は海岸と平行に移動することで脱出が可能である。離岸流には危険性がある一方で、その恩恵を受ける場合もある。例えば、著者のような釣り人にとっては、離岸流は魚が集まる良好

a) 工学専攻機械・情報系コース大学院生

b) 工学専攻先端情報コース大学院生

c) 工学基礎教育センター教授

なキャストポイントとなり得る。離岸流発生域ではベイトフィッシュが集まりやすく、水深が深くなっていることが多いためである。これらの特徴から、大物のフィッシュイーターを狙う際には重要なポイントとなる。その他においても、サーファーにとっては、離岸流を利用してすることで楽にゲッティングアウトができるといった恩恵も挙げられる。

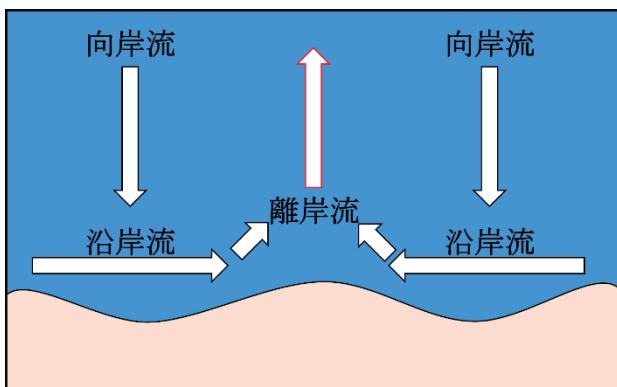


図2. 離岸流の模式図

2. 提案手法

本研究では、島田らの研究を参考に突発的な離岸流を観測対象とし、画像平均化に用いる動画時間を短縮するため、動画時間を単なる経過時間ではなく碎波回数を基準とする手法を提案する。この手法は、画像平均化によって離岸流を検出できる原理に基づいた提案である。

2.1. 画像平均化

画像平均化は、海岸の動画を撮影し、それを連続画像へと変換した後、それらを1枚の画像に平均化することで離岸流を可視化する手法である(図3)。離岸流発生域では、碎波が起きたときにくいため、画像平均化の処理を行うと、その離岸流発生域の画素値が小さくなり、縦方向に黒い筋が現れる(図4)。これにより、離岸流を検出できるという原理である。したがって、画像平均化に大きな影響を与えるのは、碎波による白さである。そこで本研究では、画像平均化に用いる動画の時間を、この碎波の回数を基準として設定することで、解析時間の短縮が可能であると考え、提案する。



図 3. 画像平均化



図 4. 離岸流あり（左）と離岸流なし（右）

3. 実験

3.1. 実験

島田らの研究により離岸流の検出が可能であることが明らかになっている 1 分間の解析結果と碎波回数ごとの解析結果をそれぞれ比較する。

3.2. 実験手順

実験は以下の手順で行う。

- スマートフォンの手撮りで1分間の動画を撮影
 - 1分間の動画を碎波回数ごとに切り取る
 - 1分間の動画と碎波回数ごとに切り取った動画に画像平均化の処理
 - 1分間の結果と碎波回数ごとの結果をそれぞれ比較

3.3. 評価

1 分間の結果と碎波回数ごとの結果の比較は、SSIM (Structural Similarity Index Measure) および MSE (Mean Squared Error) の評価手法で行う。

3.3.1. SSIM(Structural Similarity Index Measure)

SSIM (Structural Similarity Index Measure) は 2004 年に Zhou Wang らの「Image Quality Assessment : From Error Visibility to Structural Similarity」[4]で提案された、2 つの画像を比較する場合などに有効な評価手法である。SSIM は、画像の輝度(平均値), コントラスト(標準偏差), 構造(共分散)の積から算出される(図 5)。最終形が式 1 である。

輝度	コントラスト	構造
$\frac{2\mu_x\mu_y + C_1}{\mu_x^2 + \mu_y^2 + C_1}$ 平均	$\frac{2\sigma_x\sigma_y + C_2}{\sigma_x^2 + \sigma_y^2 + C_2}$ 標準偏差	$\frac{\sigma_{xy} + C_2/2}{\sigma_x\sigma_y + C_2/2}$ 共分散

図 5. SSIM

$$\text{SSIM}(x, y) = \frac{(2\mu_x\mu_y + C_1)(2\sigma_{xy} + C_2)}{(\mu_x^2 + \mu_y^2 + C_1)(\sigma_x^2 + \sigma_y^2 + C_2)}$$

式 1

SSIM は、-1 から 1 の範囲の値を取り、JIMA (Japan Internet Media Association) [5] によってその目安(表 1)が示されている。

表 1 SSIM の数値目安

表1. SSIMの数値目安	
SSIM	主観評価
0.98 以上	元の画像と圧縮画像の区別がつかない
0.90~0.98	拡大すれば劣化がわかるレベル
0.90 以下	明らかに劣化が分かる

本研究では、SSIM の値が 0.97~0.98 に近づく碎波回数を結論とした。

3.3.2. MSE

MSE (Mean Squared Error) は、シンプルに 2 つの画像間の RGB 値を比較する評価手法である。本研究では、画像のピクセル値が 0~255 の範囲であるため、0 から 65025 の範囲の値を取る。0 に近いほど、2 つの画像間の差異が小さいことを示す。

本研究では、MSE の値が 100 に近づく碎波回数を結論したい。

3.4. 観測値

観測は、宮崎県宮崎市に位置する一つ葉サーフポイントにて実施した。このポイントは離岸流の発生が確認されやすく（図 6），観測データの収集に適していると判断したためである。

図 7 に示した赤丸で囲んだ箇所が観測地 [6] であり、その範囲は約 550m である。この範囲内で、図 8 に示すような看板を目安に計 27 箇所で観測を実施した。



図 6. 一つ葉サーフポイントの看板

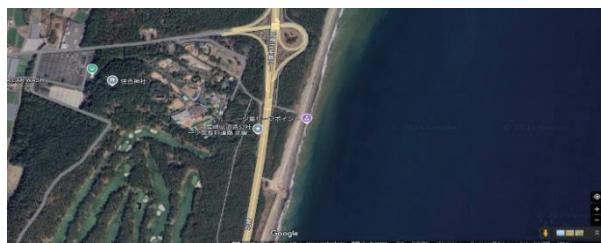


図 7. 一つ葉サーフポイント



図 8. 観測値の目印

3.5. 観測日時と観測回数

観測は、表 2 に示す 4 日間で、計 108 回実施した。

表 2. 観測日時

日	時間
2024 年 11 月 1 日	12:00~13:00
2024 年 11 月 3 日	10:00~11:00
2024 年 11 月 5 日	7:00~8:00
2024 年 11 月 9 日	13:00~14:00

3.6. 実験環境

実験環境を表 3 に示す。

表 3. 実験環境

スマートフォン	Redmi Note 10T
手撮り動画	width:1280px height:720px fps:30
プログラミング言語	Python
ライブラリ	OpenCV
プログラム	convert py:動画から連続画像へ avg.py:画像平均化 eva.py:SSIM 及び MSE の評価
プログラム動作環境	デバイス： LAPTOP-LRONCBM2 OS:Windows 10

4. 観察結果と考察

4.1. 2024 年 11 月 1 日

SSIM と MSE の結果をそれぞれ図 9 と図 10 に示す。

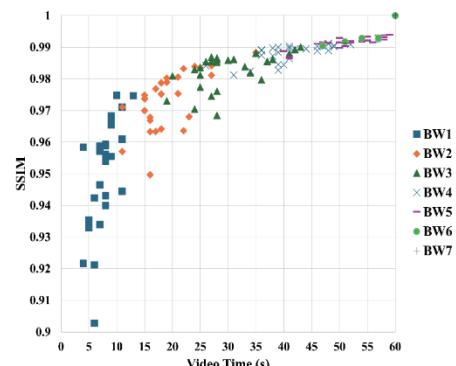


図 9. 2024/11/1 SSIM 結果

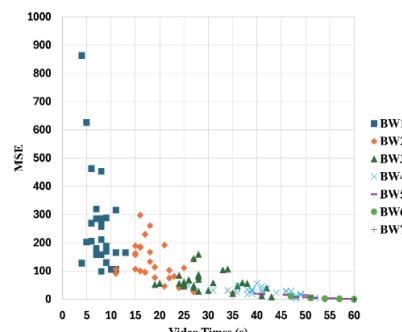


図 10. 2024/11/1 MSE 結果

SSIMの結果(図9)およびMSEの結果(図10)から、SSIMの値が0.97~0.98に最も近く、MSEの値が100に最も近づいたのは、碎波回数が4回のときであることが分かる。

4.2. 2024年11月3日

SSIMとMSEの結果をそれぞれ図11と図12に示す。

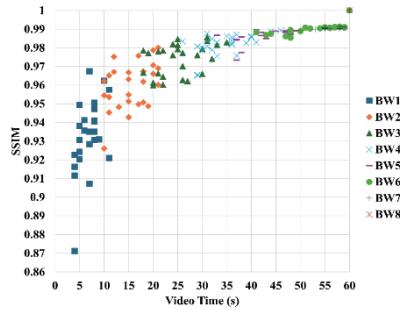


図 11. 2024/11/3 SSIM 結果

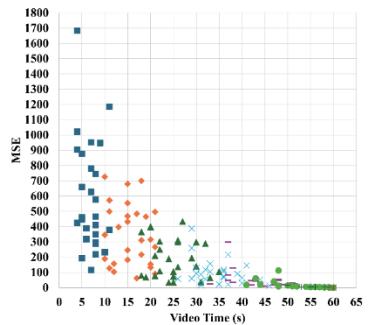


図 12. 2024/11/3 MSE 結果

SSIMの結果(図11)およびMSEの結果(図12)から、SSIMの値が0.97~0.98に最も近く、MSEの値が100に最も近づいたのは、碎波回数が5回のときであることが分かる。しかし、SSIMの結果のみを見ると、碎波回数4回でも十分に良好な結果が得られていると考えられる。

4.3. 2024年11月5日

SSIMとMSEの結果をそれぞれ図13と図14に示す。

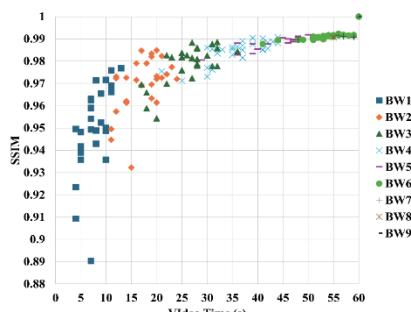


図 13. 2024/11/5 SSIM 結果

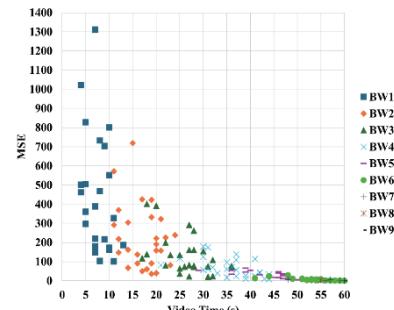


図 14. 2024/11/5 MSE 結果

SSIMの結果(図13)およびMSEの結果(図14)から、SSIMの値が0.97~0.98に最も近く、MSEの値が100に最も近づいたのは、碎波回数が5回のときであることが分かる。しかし、SSIMの結果のみを見ると、碎波回数4回でも十分に良好な結果が得られていると考えられる。

4.4. 2024年11月9日

SSIMとMSEの結果をそれぞれ図15と図16に示す。

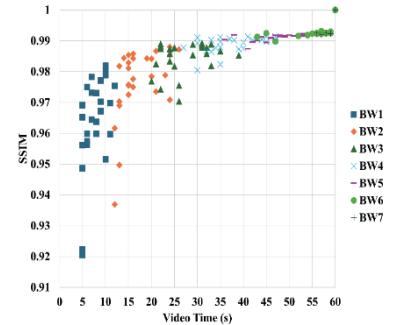


図 15. 2024/11/9 SSIM 結果

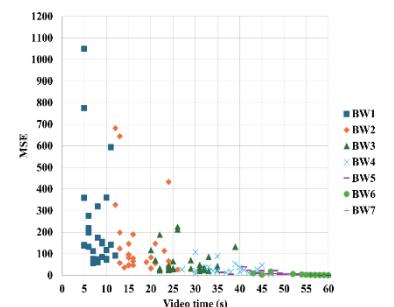


図 16. 2024/11/9 MSE 結果

4.5. 離岸流のみの結果

108回の観測のうち、画像平均化によって離岸流の結果を示したのは31回であった。その離岸流のみのSSIMとMSEの結果を図17と図18に示す。

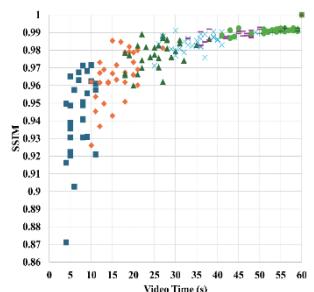


図 17. 離岸流のみの SSIM 結果

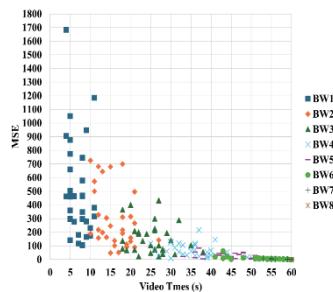


図 18. 離岸流のみの MSE 結果

SSIM の結果(図 17)およびMSE の結果(図 18)から、SSIM の値が 0.97~0.98 に最も近く、MSE の値が 100 に最も近づいたのは、碎波回数が 4 回のときであることが分かる。

4.6. 考察

図 19 の結果より、SSIM が 0.97~0.98、MSE が 100 に近づいたのは碎波回数が 4 回のときであることが分かった。そして、碎波回数 4 回のときの動画時間を図 19 に示す。

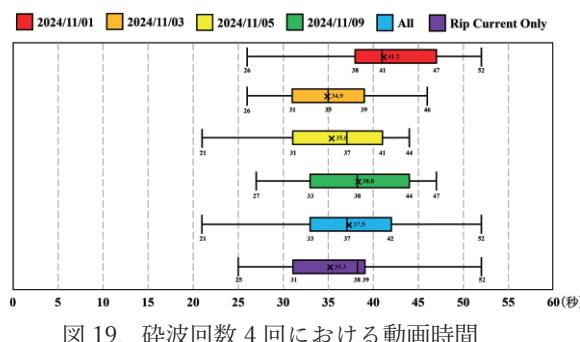


図 19. 碎波回数 4 回における動画時間

図 19 に示すように、All (観測 108 回の結果) の中央値は 37 秒、平均値は 37.5 秒であるため、従来の 1 分間の手法と比較して、約 23 秒の短縮が見込まれることが分かる。また、離岸流のみの結果についても、中央値および平均値は、All の結果とほぼ ±2 秒の範囲内であるため、同様の傾向が得られたと考えられる。

5. 結論

本研究では、解析に使用する動画の時間を単なる経過時間ではなく碎波回数を基準として解析時間の短縮を図り、さらにスマートフォンの手撮り動画でも離岸流の検出が可能であるかを検証した。

一つ葉サーフポイントで実験を行った結果、スマートフォンの手撮りでも離岸流を検出できることが確認され、SSIM と MSE により碎波回数 4 回で 1 分間と同等の結果を得られることが分かった。また、碎波回数 4 回を基準として、従来の 1 分間の手法と比較して、約 23 秒の短縮が見込まれることが分かった。約 37 秒間であれば、スマートフォンの手撮りでも安定した動画を撮影することができ、さらに離岸流を早期に発見することができる。

今後の展望としては、碎波を自動的にカウントするシステムを開発し、より多くの観測データで検証することが挙げられる。本研究では、1 分間の動画を碎波回数ごとに切り取る作業を手作業で行っており、多くの観測データを処理することができなかった。碎波を自動的にカウントし画像平均化の処理まで行うシステムを開発することで、より多くの観測データを扱うことができるようと考える。

将来的には、全ての処理を自動化し、離岸流の発生域を AR(拡張現実)表示できるようなシステムを開発したい。AR グラス(スマートグラス)が進歩し、誰もが入手できる状態になった際に、AR グラスを装着して海を眺めただけで離岸流の発生域が AR 表示されるようになれば、水難事故防止につながると考える。

参考文献

- [1] 警察庁，“令和 5 年における水難の概況等，” https://www.npa.go.jp/publications/statistics/safetylife/chiiki/r05_suinan_gaikyou.pdf, [online](参照 2025/01/21).
- [2] 島田良、石川仁憲、小峯力，“離岸流検出のための画像平均化の適切な解析時間の検討,” 土木学会論文集 B2 (海岸工学), vol.76, no.2 pp.I-1399-I-1344, 2020.
- [3] 第九管区海上保安本部海洋情報部，“海水浴シーズン到来！！離岸流に注意しましょう！,” <https://www1.kaiho.mlit.go.jp/KAN9/ripcurrent/ripcurrent.htm>, [online](参照 2025/01/21).
- [4] Zhou Wang, A. C. Bovik, H. R. Sheikh and E. P. Simoncelli, "Image quality assessment: from error visibility to structural similarity," in IEEE Transactions on Image Processing, vol. 13, no. 4, pp. 600-612, April 2004.
- [5] 日本文書情報マネジメント協会，“電子化文書の画像圧縮ガイドライン,” https://www.jiima.or.jp/pdf/5_JIIMA_guideline.pdf, [online](参照 2025/01/21).
- [6] Google Map (グーグルマップ) .

VR を利用した肢体不自由児に対しての植物育成体験アプリの開発

別府 雅敏^{a)}・坂本 真人^{b)}

Development of a VR-Based Plant Growing Experience Application for Physically Challenged Children

Masatoshi BEPPU, Makoto SAKAMOTO

Abstract

This study will focus on limb-challenged children and develop a VR application that allows them to experience plant growing. We believe that this will solve the problems that have been a concern for children with physical disabilities, such as the inability to perform exercises using soil and the lack of opportunities for trial-and-error. In this study, we also asked men and women in their teens to 40s to experience the apps we developed and obtained their evaluations through questionnaires. Within the survey, we received certain evaluations in areas such as trial and error. As for future issues, the application will be improved based on the feedback received from the survey. In addition, we believe it is necessary to evaluate the long-term effects of the application by having children with physical disabilities use it.

Keywords : CG, ICT, Physically challenged children, Unity, VR

1. はじめに

1.1. 研究背景

VR 元年と言われた 2016 年から VR 技術は一般的に入手しやすくなりより身近なものとなっている。そのため、様々な技術と融合し数多くの分野での活用が期待されている。その中でも教育分野への応用は、ICT 技術を教育分野に取り入れる一環として導入が検討されている。

ICT を利用した教育への効果は、長岡ら（2018）[1]の研究によって、条件によっては教育に負の効果があることが示されている。しかし、条件を整え学習に利用する技術を活用する教員側の理解が進めば正の影響がある可能性が示唆されている。また、対象とする学生を限定することによって効果が得られることも示唆されている。そのため、本研究では VR を利用した教育支援の対象を肢体不自由児とする。

1.2. 肢体不自由児

肢体不自由児とは、「生まれつき又は出産時の障害、あるいは幼い時の病気や事故などによって手や足、背骨など運動機能に不自由がある子供たち」（日本肢体不自由協会）[2]のことである。

厚生労働省の調べによると平成 18 年度では全国で 50,100 人の肢体不自由児が存在している[3]。

文部科学省が制定した児童憲章の中では、「すべての児童は、身体が不自由な場合または、精神の機能が不充分な場合に、適切な治療と教育の保護が与えられる」とされている。

1.3. VR

VR とは Virtual Reality の頭文字をとったもので、コンピューター上に仮想環境を作り出し、実際に体験しているように錯覚させる技術である。2016 年に一般的にも VR 機器が手に入りやすくようになり「VR 元年」と言われるようになった[4]。

2. 準備

2.1 研究背景

開発環境は以下の表 1 の通りである。

表 1. 開発環境

OS	Windows 10 Pro
Unity	2021.3.0f1
VR 機器	Meta Quest 2
CG モデル作成	Blender 3.1.2

2.2 事前調査

開発を進めるにあたり実際に必要とされている機能を把握するため、清武せいりゅう支援学校で事前調査を行った。その結果、以下の問題点が見出された。

- ・病院内で過ごす時間が長いため土などを使った実習が行えない。
- ・実習中は手助けが多く入り、本人が試行錯誤する経験ができない。
- ・長期間の実習を行うことが困難。

a) 工学専攻機械・情報系コース大学院生

b) 工学基礎教育センター教授

2.3 事前実験

事前調査で判明した問題点の他に、対象としている生徒が使用する際の問題点を確認するために清武せいりゅう支援学校に在籍する生徒に事前実験としてVR体験会を開催した。この体験会では、実際の研究で利用するMeta Quest2を利用してVRの映像を体験して頂いた。その結果、以下の問題点が判明した。

- ・複雑な操作を行うのが難しい。
- ・VR機器を固定するのが困難である。

2.4 開発目標

本研究で開発するアプリケーションは事前調査と事前実験で判明した問題点を解決するために以下の機能を実装する。

- ・体験者の行動によって植物の育成の状況が変化する。
- ・短時間で体験することができ、すぐに次の体験に移行できる。
- ・簡易的な操作で、大きく体を動かす必要がない。

3. アプリ開発

3.1 VRアプリ

今回開発したVRアプリでは、バーチャル上でミニトマトの育成体験を行うことができる。育成段階を4段階に分けて体験でき、行動によって育成段階が変化するようになっている。以下の3.2でそれぞれの育成段階と可能な行動についてまとめる。なお、すべての段階において、水を1～2回やるという条件が課されている。この他にもそれぞれの段階に応じた条件が存在する。開始時に開始画面が表示され、育成に失敗したときには失敗画面が表示される。

3.2 育成段階

3.2.1 種まき期

ミニトマトの種を蒔く段階（図1）。条件を達成できていない場合失敗となる。追加の条件として種を蒔く必要がある

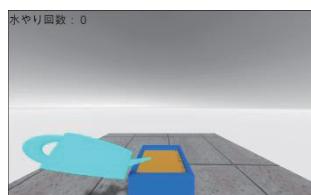


図1. 種まき期のバーチャル映像

3.2.2 発芽期

ミニトマトが発芽した段階（図2）。条件を達成できていない場合失敗となる。雑草の残っている割合によって移行する成長段階が変化する（表2）。

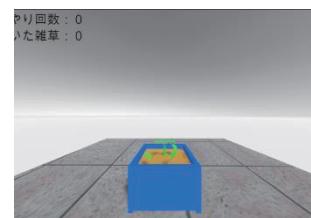


図2. 発芽期のバーチャル映像

表2. 発芽期の遷移条件

水やり	雑草抜き	遷移先
1～2	すべて抜く	収穫期大
1～2	少し抜く	収穫期中
1～2	抜かない	収穫期小
0, 3～	すべての条件	失敗

3.2.3 成長期

ミニトマトが成長して花をつけた段階。発芽期での行動によって3段階に分かれている。

<大>

成長期の中で一番大きく成長している段階（図3）。条件を達成できていない場合は失敗となる。雑草の残っている割合によって移行する成長段階が変化する（表3）。

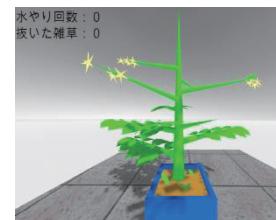


図3. 成長期大のバーチャル映像

表3. 成長期大の遷移条件

水やり	雑草抜き	遷移先
1～2	すべて抜く	成長期大
1～2	少し抜く	成長期中
1～2	抜かない	成長期小
0, 3～	すべての条件	失敗

<中>

成長期の中で二番目に大きく成長している段階（図4）。条件を達成できていない、または雑草がすべて抜かれずに残っている場合失敗となる。雑草の残っている割合で移行する成長段階が変化する（表4）。



図4. 成長期中のバーチャル映像

表4. 成長期中の遷移条件

水やり	雑草抜き	遷移先
1～2	すべて抜く	成長期中
1～2	少し抜く	成長期小
1～2	抜かない	失敗
0、3～	すべての条件	失敗

<小>

成長期の中で最も小さく成長している段階（図5）。条件が達成できていない、または雑草が残っている場合失敗となる（表5）。



図5. 成長期小のバーチャル映像

表5. 成長期小の遷移条件

水やり	雑草抜き	遷移先
1～2	すべて抜く	収穫期小
1～2	少し抜く・抜かない	失敗
0、3～	すべての条件	失敗

3.2.4 収穫期

ミニトマトの実があり、収穫ができるようになった段階（図6）。成長段階によって収穫できるミニトマトの数が変化する

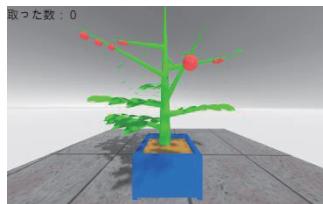


図6. 収穫期のバーチャル映像

4. 評価

4.1 評価実験

今回開発したアプリケーションの効果を確認するため、10代から40代の男女を対象に評価実験を行った。評価実験をするにあたり被験者に合計2回アプリケーションを体験し、それぞれでの育成結果を記憶して頂く。そして、2回の体験終了後アンケートに回答して頂き、アプリケーションの効果について評価を行った。

4.2 アンケート内容

アンケートは8項目あり、年齢、性別の他に操作感、楽しかったか、ミニトマトの育成体験の代替となると考えられるか、画面酔いをしたかについて5段階で回答して頂いた。また、一回目の育成結果と二回目の育成結果も回答して頂いた。

4.3 アンケート結果

実際に行ったアンケート結果は以下の表6のようになつた。操作は数値が5に近いほど操作しやすく、楽しさは数値が5に近いほど楽しさを感じる。代替では5に近いほど代替になると考えられる。画面酔いでは5に近いほどVR酔いをしなかつたことを表している。また、1回目と2回目はそれぞれ1回目と2回目の体験で収穫することのできたミニトマトの数であり、0は失敗したことを表している。

表6. アンケート結果

年齢	性別	操作	楽しさ	代替	酔い	1回目	2回目
20	男	4	4	5	2	0	10
10	男	3	3	2	5	0	0
40	男	2	2	2	5	0	3
20	男	2	4	2	5	0	5
20	男	5	2	3	4	0	0
20	男	4	4	4	5	0	0
~9	女	5	5	5	3	0	10
10	男	3	5	5	5	0	3
~9	男	2	5	5	5	5	10
10	女	2	5	5	5	5	10
10	女	5	5	5	5	0	10
10	男	4	5	3	5	0	3
~9	女	5	5	5	3	0	3
20	男	5	5	5	5	10	10
10	男	2	4	1	4	0	10
10	男	4	5	2	5	0	10
10	男	4	5	5	5	0	10
20	男	3	4	3	5	0	10

4.4 肢体不自由児による体験

完成したアプリケーションを実際に清武せいりゅう支援学校に在籍する生徒1名にお願いし、実際に開発したアプリケーションを体験して頂いた。予定では数名であったが、当日になって体調不良になるなど難しい面があった。結果は1回目が3個、2回目が5個といった結果になつた。

5. おわりに

5.1 考察

アンケートのそれぞれの項目における評価の平均は、操作感は3.63、楽しさは4.31、代替になるかは3.79、VR酔い

いは 4.52 であった。1 回目の体験での収穫量が平均 1.05 個であったのに対し、2 回目では平均 6.31 個となった。1 回目の体験と 2 回目の体験の収穫量の差は 5 個となり有意に増加していることが確認できる。

また、本研究の対象者である肢体不自由児と同年齢の 10 代と 10 代未満の評価のみに絞って平均値を計算した。操作感は 3.66、楽しさは 4.75、代替になるかは 4、VR 酔いは 4.58 となった。1 回目の収穫量は平均 0.83 個だったのに対し、2 回目の収穫量は平均 6.83 個となった。

10 代以下の結果と体験者全体の結果を比較すると操作感と VR 酔いの項目は大きな差は無く、楽しさと代替になるかの項目は 10 代以下のものが高い評価となった。

また、収穫量の増加量は体験者全体では 5.26 個であったが、10 代以下では 6 個と 10 代以下の方が多くなっている。

以上より試行錯誤を行うことが可能で植物育成体験の代替となる VR アプリケーションを開発することが可能だと考える。また、実際の肢体不自由児が体験した場合でも問題なく体験を終えることができ、実施結果もほかの被験者と大きな差が見られないことから肢体不自由児に対して也有効であると考えられる。

また、すべての体験において準備時間も含めて 20 分以内で 2 回の体験が終了した。このことから短時間の間に複数回育成体験が行え、試行錯誤することが可能である。

5.2 結果

本研究では、VR 技術の教育分野への応用として肢体不自由児を対象とした植物育成アプリケーションの開発を行った。結果としては、目標としていた条件を満たすことができるアプリケーションを開発することに成功した。

しかし、アンケートの自由記述欄にあった意見である操作方法の問題やより複雑な育成条件の分岐など問題点も存在している。そのため、今後の課題として直感的でどのような状態でも行うことのできる操作方法の開発、植物の育成条件の追加ならびに複雑化、長期間このアプリケーションで学習した場合の学習意欲向上効果の観察と学力への影響の観察があげられる。

参考文献

- [1] 長岡真紘、田宮英宜、塙本亞門、林遙香、丸山夏基、水野一穂，“ICT を活用した教育効果について，” ISFJ2018 政策フォーラム発表論文, 2018.
- [2] 日本肢体不自由児協会，“協会について” [Online].
<https://www.nishikyo.or.jp/about/index.html>
- [3] 内閣府，“平成 25 年版障害者白書（全体版）付録 8 障害児・者数の状況，” 2013.
- [4] 宮本滉大、坂本眞人、“バーチャル技術による小学生向け教育支援に関する基礎研究、” 宮崎工学部紀要、第 51 号、pp.169-175、2022.

修士論文題目一覧

- 甲斐 隆 寛環境系コース (A) ミカン搾汁残渣からの β -クリプトキサンチンの回収と製剤化による水分散性向上
- 生島 優環境系コース (A) ピラー [6] アレーン酢酸誘導体によるアミノ酸・タンパク質の認識とその応用研究
- 池田 浩大環境系コース (A) 光診断・治療ハイブリッド型光増感剤の開発を指向した非対称グルコースーリンポルフィリン複合体の開発
- 池水 廉環境系コース (A) 薬剤内包ナノカプセルの開発と新規環境応答性機構の付与に関する研究
- 一宮 大起環境系コース (A) ゲルマニウムポルフィリン・酸化チタン複合電極を用いたメタノールの光触媒的酸化反応
- 門川 雄大環境系コース (A) 酸性抽出剤による金属抽出分離における中性配位子共存の影響検討
- 河野 晃大環境系コース (A) 酸性抽出剤を用いたアミンのイオン交換抽出に基づく二酸化炭素の固体化法の検討
- 北島 義士環境系コース (A) アオモジ葉の成分の分離・分析と生物活性評価
- 黒田 葉月環境系コース (A) アミノ軸配位子を有するリンポルフィリン錯体の低pH活性化と細胞内酸塩基平衡の解析
- 古賀 咲也香環境系コース (A) Mn存在下におけるNiおよびCoの高選択的分離のための新規抽出剤の開発
- 神川 直也環境系コース (A) フェルギノールから5,6-デヒドロ-6-ヒドロキシ-7-オキソアビエタンジテルペン類への変換
- 柴田 侃太環境系コース (A) 分子集合体により構造制御された新規銀ナノワイヤーの調製法
- 末永 ひな乃環境系コース (A) フッ素系極性溶液中におけるポリペプチド鎖の立体構造安定性
- 杉井 秀彰環境系コース (A) ヒュウガトウキ地上部に含まれる成分の分離・変換・分析と生物活性評価
- 須本 啓明環境系コース (A) 深共晶溶媒の創出と新規抽出剤によるレアメタルの抽出分離
- 竹田 ひかり環境系コース (A) ゲルマニウム-N-混乱ポルフィリン錯体を増感剤とする一重項酸素生成反応の高効率化
- 谷口 愛里沙環境系コース (A) 難水溶性生理活性物質の経口吸収性を改善する脂質分散体の開発と評価
- 西田 龍矢環境系コース (A) キレート形成能を有する層状複水酸化物の開発と金属分離特性評価
- 橋本 協環境系コース (A) タンパク質マイクロカプセルの界面活性剤被膜による徐放抑制に関する研究
- 日高 直哉環境系コース (A) 疎水性クライオゲルに担持したリン脂質膜の構造制御による分子認識分離への応用
- 福吉 晃大環境系コース (A) シュードモナス属細菌による α -トルイル酸の分解に関する研究
- 星原 尚斗環境系コース (A) 金属イオンとペプチド間の錯体形成に基づくナノ粒子の開発と構造制御
- 前田 元環境系コース (A) 脂溶性ポルフィリン固定化リポソームによる光増感酸素化反応
- 宮本 大靖環境系コース (A) ナノスクロール反応場を利用した金ナノ構造体の作製
- 本村 章環境系コース (A) 金属イオン誘起型ペプチドハイドロゲルの開発と物性評価
- 森井 薫環境系コース (A) 末端にアルコキシ基をもつアズベンゼンとニオブ酸ナノシートの複合体開発
- 米倉 健太環境系コース (A) セルロース結晶における非晶化およびゲスト分子拡散の熱力学的評価
- 生森 悠太環境系コース (B) 複合リサイクル材料を用いた高性能コンクリートの開発および性能評価
- 井上 優希環境系コース (B) 分布型流出モデルを用いた異なる気候帯に及ぶ流域間における流況変化の比較・評価
- 緒方 天斗環境系コース (B) 貯水池底泥を有効活用した集水域土砂生産量抑制の検討
- 川野 純也環境系コース (B) 3次元浸透流を考慮したため池堤体の崩壊メカニズム解明に関する模型実験
- 清瀬 啓文環境系コース (B) 耐候性鋼橋梁の経年変化とさび外観評価に関する研究
- 河野 哲也環境系コース (B) 鉄筋コンクリート構造物の欠陥推定に関する研究
- 小島 大翔環境系コース (B) 材齢極初期の熱履歴が境界コンクリートの品質に及ぼす影響に関する研究
- 津田 康平環境系コース (B) 下水処理水に生残する薬剤耐性大腸菌群から放流域の大腸菌への薬剤耐性の伝播
- 中島 悠樹環境系コース (B) HYDRUS-1Dを用いた廃棄物熱処理残渣からの成分溶出挙動予測とパラメータ推定
- 中島 洪希環境系コース (B) 電気自動車の充電施設および電力供給制約を考慮した車種・経路選択行動選択モデル
- 中村 龍海環境系コース (B) 河川に存在する志賀毒素産生大腸菌ファージの検出・定量と感染の可能性
- 濱野 光樹環境系コース (B) 異なる亜硝酸リチウム添加量におけるASR抑制効果の検討
- 福田 理人環境系コース (B) 溶融分離技術による各種廃棄物に含まれる有用元素回収ポテンシャルの推定
- 松山 龍太郎環境系コース (B) 大淀川の大腸菌汚染流域における志賀毒素産生大腸菌の検出率と薬剤耐性の保有実態
- XU C H E N 環境系コース (B) 降雨時に流出する環境DNAの分析に基づく水・陸生種の検出条件の検討
- A D R I S T I 環境系コース (B) Reproduction and characterization of sedimentation phenomena in Tanjung Perak Port through numerical simulation using Delft3D
- NUR CAMILA 環境系コース (B) Evaluating the efficacy of alkali activated coal ash adsorbents for ammonium adsorption and environmental safety
- SANG AJI ARIF 環境系コース (B) Evaluating the efficacy of alkali activated coal ash adsorbents for ammonium adsorption and environmental safety
- SET YAWAN 環境系コース (B)

- SARWARY MANIZHA 環境系コース(B) Flood control on alluvial fans with discontinuous levees for effective groundwater recharge
- 石山 裕也 エネルギー系コース(C) Be/X線連星の観測に向けた分光器の開発
- 市川 雄大 エネルギー系コース(C) X線分光撮像衛星 XRISM を用いた超新星残骸 Cassiopeia A における鉄族元素量の空間分布測定
- 岩切 孝洋 エネルギー系コース(C) p型 Si における酸素析出物起因の欠陥準位マッピング
- 臼井 一旗 エネルギー系コース(C) 格子緩和バッファと Type-II 量子井戸を組み合わせた光通信波長帯レーザ
- 宇野 巧人 エネルギー系コース(C) 電圧印加した光ヘテロダイン光熱変位測定による Si ナノピラー /SiGe 複合膜のキャリア再結合
- 大槻 祐士 エネルギー系コース(C) Be/X線連星 4U0115+63 の星周円盤密度の推定
- 川手 風真 エネルギー系コース(C) 車載太陽電池を用いたレジリエンスの検討
- 木村 明愉 エネルギー系コース(C) PDD 構造を有する X線 SOI-CMOS 検出器 XRPIX における検出効率の測定
- 栗崎 順成 エネルギー系コース(C) 逆積み式 InGaAs 太陽電池におけるバッファー層傾斜不均一の発生位置の放射光を用いた評価
- 塩川 朝日 エネルギー系コース(C) パルス中性子イメージングの高解像度化に向けた SOI-CMOS 検出器の応答評価
- 関根 涼太 エネルギー系コース(C) レーザー脱離質量分析装置用プローブとしてのレーザー照射装置の開発
- 武田 奈々 エネルギー系コース(C) 量子井戸太陽電池吸収層に挿入された InGaAs/GaAs/GaAsP 圧縮歪超格子におけるキャリア再結合過程
- 中島 康貴 エネルギー系コース(C) II - IV - V 2族カルコパイライト化合物 ZnSnAs₂ の組成制御による熱電特性の向上
- 中野 瑛子 エネルギー系コース(C) X線分光撮像衛星 XRISM に搭載した軟X線撮像検出器 SXI の軌道上エネルギー較正と分光性能の評価
- 新名 大洋 エネルギー系コース(C) 太陽電池搭載商用車におけるエネルギー需給の素過程の解析
- 長谷川 隆郁 エネルギー系コース(C) 低質量 X線連星 1A 1744-361 のアウトバースト時における X線スペクトル
- 原口 佑斗 エネルギー系コース(C) 電子線照射とその後の回復熱処理により Si 中に形成される欠陥準位の PL 解析
- 疋田 賢史郎 エネルギー系コース(C) MOVPE 法で作製した InAs 基板上の歪補償 InAsSb/InAsP 超格子の光学的評価
- 松下 将太 エネルギー系コース(C) 車載太陽電池における CAD データを用いた入射光強度特性評価
- 三谷 美輝 エネルギー系コース(C) 素粒子実験用 SOI-CMOS 検出器におけるビーム飛跡再構成システムへの適用性確認および初期検討
- 村上 拓海 エネルギー系コース(C) 真空紫外プロセスによる脆弱光学薄膜のオーバーコート技術の開発
- 村上 達也 エネルギー系コース(C) Si(111) 清浄表面上への極薄 Au 薄膜作製のための基礎研究
- 山下 匡祐 エネルギー系コース(C) 原子層エピタキシー成長 GaAsN 薄膜の窒素分布が局在準位に与える影響
- 吉岡 ひかり エネルギー系コース(C) ハイパースペクトルイメージングと回帰分析による農作物の病害の早期検出
- PYAE PYAE SHWE SIN エネルギー系コース(C) 低純度水供給により劣化した水電解電気化学セルの性能回復
- 荒木 混天 エネルギー系コース(D) 電磁波散乱応答を用いたニューラルネットワークによる導体円柱パラメータ予測
- 安藤 龍之介 エネルギー系コース(D) 誘電体バリア放電によるマンゴー軸腐病菌の殺菌処理時間の短時間化
- 岩下 大倭 エネルギー系コース(D) 深紫外 LED 光を照射した液晶ポリマー表面の親水性評価
- 大谷 宙 エネルギー系コース(D) ポリマー材料の経年劣化要因の解明に関する研究
- 川原 康暉 エネルギー系コース(D) 共振器を用いたプラズモニック導波路光分波器の基礎特性
- 河村 昂大 エネルギー系コース(D) ナノミスト噴霧器を用いたトマト用ホルモン剤の自動噴霧に関する研究
- 北畠 海登 エネルギー系コース(D) デジタル回路を用いたデルタ・シグマ変調器の設計と考察
- 古賀 健太郎 エネルギー系コース(D) 非線形音響現象の解明に向けた音響 - 流体連成解析手法の検討
- 近藤 卓矢 エネルギー系コース(D) モールド変圧器模擬試料中の部分放電及び電気トリー進展特性
- 玉田 敬也 エネルギー系コース(D) 走行時における車載太陽電池モジュール発電量の最大化
- 丹野 龍晟 エネルギー系コース(D) 歩行情報による歩行状態の解析と分類に関する研究
- 筑波 真矢 エネルギー系コース(D) 歩行中の乳牛に対する BCS 評価の自動化に関する研究
- 西嶋 幹太 エネルギー系コース(D) 励磁突入電流抑制装置の最適動作制御と低周波電源を用いた抑制手法の研究
- 西山 孟人 エネルギー系コース(D) 画像処理技術を用いた子牛の行動解析に関する研究
- 野崎 将広 エネルギー系コース(D) ニューラルネットワークを用いたプラズモニック分岐導波路の最適化
- 平井 優一 エネルギー系コース(D) 熱電材料 Bi₂Te₃ の結晶成長とデバイス応用
- 平田 祥稀 エネルギー系コース(D) 車載太陽電池モジュールにおける走行時の部分日影の評価

- 溝口 奈七子 エネルギー系コース(D) 医療現場の電磁気現象解明に向けた大規模電磁界解析手法に関する研究
- 守部 虎楠 エネルギー系コース(D) 伝送線路回路モデルを用いたスタブ構造を有するプラズモニック分岐導波路の最適化
- 安田 大翔 エネルギー系コース(D) ストロングアーム型コンパレータにおけるキックバックノイズの抑制に関する研究
- 渡部 功樹 エネルギー系コース(D) XLPE ケーブルの水トリー劣化区間標定技術の高度化に関する研究
- B0 B0 MYINT エネルギー系コース(D) Cattle Lameness Detection System by using Side-View Camera
- 今井 康太 機械・情報系コース (E) 複数送電コイルによる無線電力伝送の送電電力向上
- 魚住 龍太郎 機械・情報系コース (E) インフラ構造物の内部欠陥における反射波信号の位相差を用いた欠陥方向推定手法
- 大岐 建太 機械・情報系コース (E) 無線電力伝送における目的に応じた回路トポロジーの選択について
- 大坪 誉 機械・情報系コース (E) 無線電力伝送における複数ターゲットへの送電電力の制御
- 木村 友佳 機械・情報系コース (E) リフティング動作における姿勢と環境が腰部負担に与える影響の調査
- 黒岩 洸斗 機械・情報系コース (E) 深層学習を利用したセグメンテーションによる鶏胸部のサイズ推定
- 佐藤 瑠星 機械・情報系コース (E) 水酸化ニッケル正極特性に及ぼすMn置換およびMn酸化物添加効果
- 志岐 駆琉 機械・情報系コース (E) かもめの蹠足を模倣した水上推進機構の開発と制御手法
- 重永 蓮 機械・情報系コース (E) LiDAR-SLAMと強化学習による深度カメラを搭載したドローンの障害物回避
- 東雲 遥香 機械・情報系コース (E) 機械学習を用いたプロトン性セラミック燃料電池カソード材料探索と予測精度の検証
- 高橋 風舞輝 機械・情報系コース (E) 安定度が指定された離散時間システムのギャランティードコスト制御
- 竹口 広武 機械・情報系コース (E) 上肢挙上法のシャント音を用いた血管狭窄検出の精度向上
- 武田 莞平 機械・情報系コース (E) プロトン伝導性セラミック燃料電池におけるカソードCo成分の電解質への拡散挙動
- 千葉 雅弘 機械・情報系コース (E) 睡眠時無呼吸症候群判定を目的としたベッドセンサに関する研究
- ロバスト性の高い判定アルゴリズムとプラットフォーム開発 -
- 辻田 航 機械・情報系コース (E) 無線電力伝送の性能向上のための相互インダクタンスの推定
- 西尾 太一 機械・情報系コース (E) 無線電力伝送の送電電力最大化のための動作周波数チューニング
- 西屋 智皓 機械・情報系コース (E) CoとYbを同時置換したジルコン酸バリウムを用いたPCFC燃料電池カソード電極反応機構の解明
- 早川 祐輔 機械・情報系コース (E) 植物の葉における状態可視化を目的とした動的重みを活用した波紋グラフ手法
- 平江 海人 機械・情報系コース (E) インフラ構造物の無人検査を目的とした自律打音検査ロボットの開発と制御手法
- 村上 良太 機械・情報系コース (E) 粒子フィルタを用いた一步先予測で形成される四面体型歩行認知手法
- 若林 孝大 機械・情報系コース (E) スパッタ法により成膜したプロトン伝導性セラミック中間層を伴った燃料電池の出力・耐久特性
- 早稻田 耕生 機械・情報系コース (E) アルカリ型燃料電池用電極触媒の電極特性評価のためのインク調製法の確立と電極化
- 渡邊 悠太 機械・情報系コース (E) 高比表面積酸化チタンの特異的結晶成長挙動およびアナターゼ・ルチル相の選択合成法の開発
- JAMIL M.D. 機械・情報系コース (E) A Study on Classification of Faulty Motor Sound Using Convolutional Neural Networks
S H A F A Y E T
- 荒井 貴一郎 機械・情報系コース (F) ドライ環境下におけるキャンドモータ用滑り軸受の摺動面挙動に関する研究
- 荒井 レン 機械・情報系コース (F) 正方形断面形状物体のアスペクト比が流体力に及ぼす影響に関する研究
- 池山 貴大 機械・情報系コース (F) パワーアシストスツーツ装着箇所の接触力分布制御機構の開発
- 内海 光稀 機械・情報系コース (F) 豚膝関節を用いた半月板インプラントの接触圧力分散評価
- 宇戸 明斗 機械・情報系コース (F) 廃FRPの低温還元加熱と粉碎による減容化に関する研究
- 奥野 智也 機械・情報系コース (F) 筋緊張測定装置の改良と特微量抽出方法の検討
- 加納 卓弥 機械・情報系コース (F) 曲げ疲労試験における降伏と降伏域の確認に関する研究
- 姜 泰圭 機械・情報系コース (E) フロートリング半月板インプラントの耐久性評価
- 上橋 海正 機械・情報系コース (F) 視線で操作するロボット操作システムの開発
- 小林 恵士 機械・情報系コース (F) GFRPを再利用した多孔質セラミックスによる化石燃料燃焼ガス中の有害ガス低減とCO₂の低減化に関する研究
- 茂 零音 機械・情報系コース (F) 数値実験における血管透過性推定手法に関する研究
- 島袋 拓己 機械・情報系コース (F) 拡張有限要素法による薄膜間を通過する流れの解析精度向上に関する研究
- 白數 煙亮 機械・情報系コース (F) ロコモ年齢自動測定システムの開発
- 杉村 綾斗 機械・情報系コース (F) 太陽光発電パネルの風荷重低減に関する研究

- 中野 駿 輔 機械・情報系コース (F) 電動サンダーに生じる摩擦振動を抑制するための動吸振器の開発
- 貫辰徳 機械・情報系コース (F) 曲げ疲労強度と引張疲労強度の関連性の検討
- 廣崎 海 平 機械・情報系コース (F) Ni-W 電着工具の製作に関する研究—めっき膜の付着強さの検証—
- 田一隼 機械・情報系コース (F) 運動強度が脳動脈瘤内の血行動態に与える影響に関する研究
- 古野 玖 機械・情報系コース (F) 対向分布圧縮荷重を受ける弹性中空円筒のひずみエネルギー貯蔵特性
- 洞口 遼 機械・情報系コース (F) 飼料タンク用洗浄・遮熱塗装ロボットの開発—ToF式測距センサのスプレー塗装への利用
- 松尾理央 機械・情報系コース (F) フレキシブル継手の2段設置によるポンプ配管系固体伝搬音の抑制対策
- 鎌水浩 平 機械・情報系コース (F) 人工股関節置換術後の骨量変化解析
- 弓掛 匠 機械・情報系コース (F) 三つの平行リンク機構を持つ股関節用外骨格のリンク長さと取り付け角の最適化
- 由迫 優作 機械・情報系コース (F) 基盤励振を受ける振動発電素子の減衰振動数理解析
- 吉松爽杜 機械・情報系コース (F) 円錐振り子を利用した3成分速度型ボアホール地震計の開発
- 吉本貴哉 機械・情報系コース (F) 抵抗値と光ファイバアクチュエータの温度・変位推定
- 渡邊悠馬 機械・情報系コース (F) クラウニング円弧ノッチ付き三点曲げ疲労試験片の応力拡大係数の解析手法に関する研究
- ARINI ROBBIL
IZZATI 機械・情報系コース (F) Utilizing Long Short-Term Memory for Forecasting Mango Production in Miyazaki,
ULINNUHA Japan and East Java, Indonesia
- 井手理智 機械・情報系コース (G) 非技術者向け編集機能を備えた神社祭事支援 WebAR アプリケーションの開発
- 岩佐康正 機械・情報系コース (G) 確率的データ構造を用いた通信フローの過集中検知における計測精度改善に関する研究
- 翁長春樹 機械・情報系コース (G) iOS アプリ開発支援を目的としたソフトウェア可視化ツール RAGESS の実装と評価
- 柿木幹太 機械・情報系コース (G) 深層学習による文書画像の領域分割およびラベル生成ツール ASLA の実用性向上を目的とした領域分割機能の拡張
- 河村航希 機械・情報系コース (G) XISM 衛星搭載軟X線撮像装置 (Xtend) への太陽フレア X線の影響
- 倉永将宏 機械・情報系コース (G) 三次元医療データ超解像への3D-SRCGAN の応用
- 高倉翔太 機械・情報系コース (G) 画面遷移システムの高信頼化を目的とした VDM++ 仕様記述作成ツールの試作とテストケースの生成
- 戸簾武 機械・情報系コース (G) 経時的な生体分子の反応プロセスを表す可視化アプリケーションの開発
- 長友祐磨 機械・情報系コース (G) 深層学習による複数種類の動物に対する顔個体識別の特性比較
- 中根勇樹 機械・情報系コース (G) 深層学習による手の姿勢推定を用いた三次元モデリングシステムの試作
- 西川創士郎 機械・情報系コース (G) 画像認識攻撃に耐性を持つ画像型 CAPTCHA の研究
- 西山秀 機械・情報系コース (G) 胸骨圧迫判定システムの検証と確認機能の拡張
- 濱砂桜太 機械・情報系コース (G) 碎波回数に基づく画像平均化を用いた離岸流検出手法の効率化
- 林田雄成 機械・情報系コース (G) 無線 LAN のセッションログによるデバイス移動情報の可視化
- 別府雅敏 機械・情報系コース (G) VR を利用した肢体不自由児に対しての植物育成体験アプリの開発
- 梁池英明 機械・情報系コース (G) 治療効果と画像特徴量の因果構造の探索
- 山村彗心 機械・情報系コース (G) GrabCut と LAMA を用いた高環境適応型インテリアシミュレータの実現
- ADAM MANATO
MAEDA BIN 機械・情報系コース (G) 3D-SRCGAN を用いた低解像度三次元ボクセルモデルからサーフェイスモデルへの変換
AMI ZAN
- BIKI BIDESH 機械・情報系コース (G) Optimizing English to Japanese Translation: A Comparative BLEU Score Analysis of Helsinki and FuguMT Models of NLP

宮崎大学工学教育研究部学術刊行物規程

平成 24 年 4 月 1 日
制 定

改正 平成 29 年 10 月 17 日 令和 3 年 10 月 19 日

(趣旨)

第1条 この規程は、宮崎大学工学教育研究部が学術刊行物として刊行する宮崎大学工学部紀要（以下「紀要」という。）の投稿及び編集・刊行に関して、必要な事項を定める。

(目的)

第2条 紀要は、工学部における学術研究の成果並びに活動状況を発表し、学内外との学術交流を果たすことを目的とする。

(投稿資格)

第3条 投稿代表者は、工学教育研究部の教員とする。

(編集)

第4条 紀要の編集は、宮崎大学工学教育研究部広報・地域連携委員会（以下「広報・地域連携委員会」という。）が行う。

(刊行)

第5条 紀要は、電子媒体で年1回刊行する。

2 投稿締切日、電子化経費、その他紀要の刊行に関する必要事項は、広報・地域連携委員会で決定するものとする。

(書式等)

第6条 紀要の原稿は、広報・地域連携委員会の指定する様式によるものとする。

(掲載の区分等)

第7条 紀要への投稿物の掲載に当たっては、次に掲げる区分を設ける。

- (1) 紀要論文
- (2) 資料

2 前項第1号への投稿は、和文又は英文を原則とし、未発表論文であるものとする。その掲載に当たっては、関係教員了承済みのものを原則とする。

3 第1項第2号への投稿は、調査・実験などで得られた有益な資料などを対象とし、その採否は広報・地域連携委員会が行う。

(著作権の帰属)

第8条 紀要に掲載された投稿物の著作権は、原則として工学教育研究部に帰属し、工学教育研究部はそれらの投稿物を「宮崎大学学術情報リポジトリ」に登録できるものとする。

(雑則)

第9条 この規程に定めるもののほか、紀要の投稿及び編集・刊行に関する必要事項は別に定める。

附 則

- 1 この規程は、平成 24 年 4 月 1 日から施行する。
- 2 宮崎大学工学部学術刊行物規程は廃止する。

附 則

この規程は、平成 29 年 10 月 17 日から施行し、平成 29 年 4 月 1 日から適用する。

附 則

この規程は、令和 4 年 4 月 1 日から施行する。

編集委員長 田 村 宏 樹
編集委員 西 岡 賢 祐
酒 井 剛
森 田 千 尋
前 田 幸 重
吉 野 賢 二
宮 内 優
伊 達 章
坂 本 眞 人

研究報告論文は、宮崎大学学術情報リポジトリに
掲載されています。

(<https://miyazaki-u.repo.nii.ac.jp/>)

MEMOIRS OF FACULTY OF ENGINEERING
UNIVERSITY OF MIYAZAKI
No.54

(宮崎大学工学部紀要 第54号)

令和 7 年 10 月 29 日 発行

編集兼発行者 宮 崎 大 学 工 学 部
宮崎市学園木花台西 1 丁目 1 番地
電話 0985 (58) 2871

