

セメントペーストの電気化学的な含水率推定における lasso の適用

Application of lasso to water-content estimation modeling of cement paste

○藤本 郷史^{*1}, 小口 峻平^{*2}
Satoshi Fujimoto^{*1} and Ryohei Koguchi^{*2}

*1 宇都宮大学 地域デザイン科学部 建築都市デザイン学科 准教授 博士 (工学)

Associate Professor, Department of Architecture and Urban Design, Utsunomiya University, Dr. Eng.

*2 宇都宮大学 大学院 社会デザイン科学専攻 大学院生

Graduate Student, Division of Social Design, Utsunomiya University

Summary: Water-content of concrete is one of the most important factors in the durability of concrete. For example, the speed of corrosion of rebars or the carbonation of concrete significantly influenced by the water content. This paper develops the estimation model of water content of cement paste from A.C. impedance measurement. While the A.C impedance measurement is frequently applied to the estimation of several material properties such as water content or the strength, it is essentially difficult to estimate multiple properties from a single electro-chemical value such as resistance or capacitance. Therefore, measurement and induction of multiple parameters is essential in material properties estimation from electro-chemical measurement. Typical approach in this respect is to use equivalent circuit model. However, this study proposes a totally different approach to use raw data of impedance measurement values over 4 Hz to 5MHz. Least absolute shrinkage and selection operator was applied to select optimal factors to explain water content of cement paste. The water-content estimation model was successfully developed and was verified through comparison with the previous studies.

キーワード: セメントペースト; 電気化学分析; 含水率; スパース正則化

Keywords: Cement paste; electro-chemical analysis; water content; sparse regularization.

1. はじめに

コンクリートの耐久性において、含水率は耐久性に影響を与える重要な因子の一つである。例えば、鉄筋の腐食、中性化などの現象は、含水率によってその速度が異なる^{1,2)}ことが知られている。本報では、耐久性の観点から既存建築物の非破壊な含水率計測を最終目標とし、その第1段階としてセメントペーストを対象とした。

さて、電気化学計測は、含水率や水和組織の緻密さなどの特性の推定において多用される手法の一つである。例えば、直流抵抗から乾燥過程や水和の進展を評価した例³⁾、特定の周波数における抵抗成分や容量成分から含水率⁴⁾や水和の進展⁵⁾、空隙特性⁶⁾を評価した例などがある。これらの研究例の多くは、単一の指標（電気抵抗、静電容量）から特性（含水率や強度等）の推定を行っている。このように単一の評価指標を用いて物性の推定を行う場合、要因を切り分ける（例えば含水率推定においては水和組織の緻密さの影響を取り除く）必要があるところに本質的な困難さがある。そこで、著者らは、交流インピーダンス計測において周波数掃引を行って等価回路モデルによって非線形回帰し、複数の回路素子パラメ

ータを同定することで、複数の要因を切り分けて評価できないか検討を行ってきた⁷⁾。これまでに、これらの回路素子の各物性への寄与の度合いを定性的に明らかにしたが、各回路素子を複合した定量的な含水率推定モデルの構築には至っていなかった。

本報は、既報⁷⁾と同じように、複数の指標を得ることによって複数の要因を切り分ける、というアプローチをとる。しかし、本報では、等価回路モデルによる非線形回帰の難しさ、および推定された回路素子に影響する要因の切り分けの難しさを解決するために、周波数掃引された交流インピーダンス計測値そのものから、含水率推定モデルを構築することを目的とした。モデル構築においては、lasso⁸⁾(least absolute shrinkage and selection operator)によるスパース推定を適用し、含水率に寄与する疎構造を表すモデルの構築を試みた。さらに、計測値との対応から、構築したモデルの解釈について考察した。

2. 本研究の基本的な着想

2.1 本報で解決しようとする既存手法の困難さ

周波数掃引した交流インピーダンス計測値を等価回路

によってモデル化する場合、現実の計測値がデバイモデルによる理論的な真半円とならないために、便宜的なモデルを導入することが良く行われる。Table 1 にモデル化の典型的な選択肢の例を示す。例えば、セラミック等の焼結体では半円が複数表れるので、RC回路が並列化されることが多い。また、半円がつぶれている場合には、Constant Phase Element (CPE)⁹⁾と呼ばれる回路要素が便宜的に用いられることがある。

Figure 1 にセメントペーストの交流インピーダンス計測値のナイキストプロットの例を示す。材齢 1 日の場合 (Figure 1 左) には、半円が小さすぎて等価回路モデルによる非線形帰帰がうまく収束しない場合がある⁷⁾。また、計測条件によっては、理想条件では直線となる材料・電極界面に対応する計測値がゆがんだ場合もあった。

以上のように、交流インピーダンス計測値を等価回路によってモデル化する場合、モデルの選択や非線形帰帰が必要である。また、等価回路モデル化をした場合、上述のような「ゆがんだ」計測値は、単なるばらつきとみなされ、モデル化によって情報が抜け落ちてしまうことも意味している。例えば、仮に上述のような「ゆがみ」に含水率等の物性情報が含まれていたとすると、モデル化によって有用な情報を切り捨てている可能性もある。

Table 1 Typical options in equivalent circuit modeling

Characteristics observed in Nyquist plot	Equivalent circuit modeling
Multiple circles	Parallel circuit ¹⁰⁾
Distortion of circle	Constant phase element ⁹⁾
Angled line in right side	Warburg element ¹¹⁾

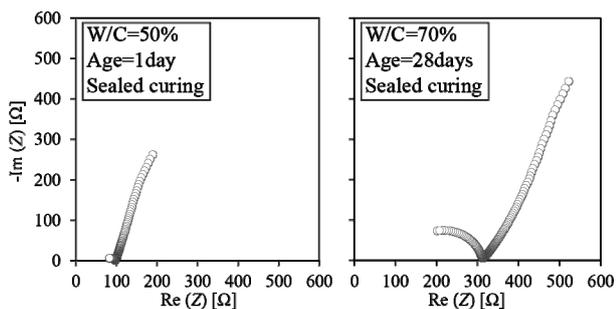


Figure 1 Example of “distorted” Nyquist plot in real measurement data

2.2 本報のアプローチ

以上のことから、本報では、周波数掃引された交流インピーダンス計測値に潜在的に含まれる情報までも汲み取ることを企図し、計測値そのものを説明変数として、含水率推定モデルを構築することとした。

3. 実験および等価回路モデリングの概要

本報における交流インピーダンス計測値および等価回

路モデルは、既報⁷⁾から一部抜粋した。詳細は既報を参照されたいが、概略は 3.1~3.3 の通りである。

3.1 実験の手順

Figure 2 に実験の手順を示す。所定の材齢 d ごとに交流インピーダンス計測を行った。Table 2 に実験の因子と水準を示す。水和組織の緻密さが異なるように水セメント比および材齢を水準として設定した。また、20°C一定の封かん養生試験体 X1 を、材齢 d において 24 時間水中浸漬して試験体 X2 とし、水和組織の緻密さがほぼ同じであるが含水率の異なるように調製した。Figure 3 に交流インピーダンス計測の概念図を示す。室温 20°C、印加電圧 1 V で周波数 4Hz から 5MHz を掃引して計測した。接続方法は、4 端子対法⁷⁾に基づいた 4 端子プローブを用いた。含水率は、式(1)より算出した。

3.2 試験体の概要

試験体は、40×40×40mm の立方体のセメントペーストとした。打込み時に電極としてステンレス板 (30×40×0.3mm) を 30mm 間隔で埋め込んだ。試験体は材齢ごとに 2 体とした。

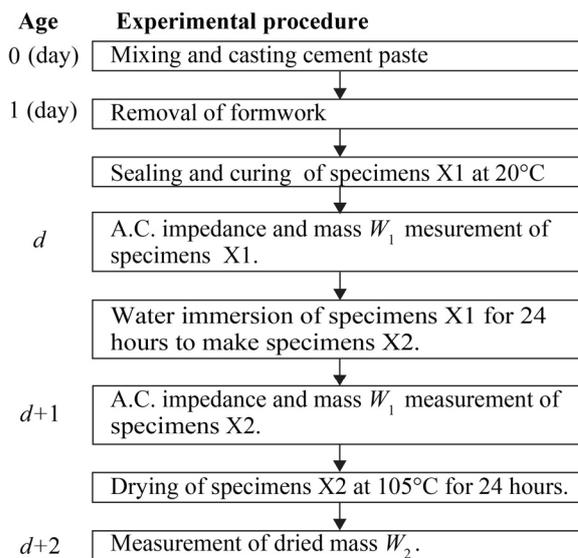


Figure 2 Experimental procedure

Table 2 Experimental factors

Factors	Levels
Water-to-cement ratio(W/C) (%)	30, 50, 70
Age d (days)	1, 3, 7, 14, 28
Curing condition	Sealed (X1) Sealed and water immersed (X2)

$$\text{Water content } u = \frac{W_1 - W_2}{W_2} \times 100 \quad (1)$$

ここで W_1 : 乾燥前質量(g), W_2 : 105°C乾燥後質量(g)

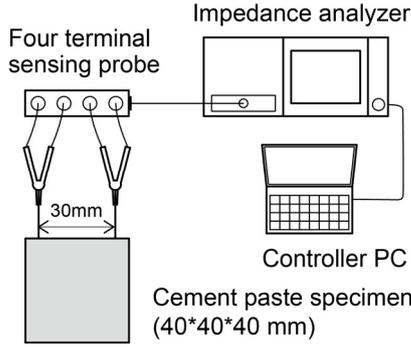


Figure 3 Schematic diagram of measurement

3.3 等価回路モデルによる回帰

Figure 4 に本報で用いた等価回路モデルおよび等価回路モデルと実験値の対応の概念図を示す。半円のつぶれを便宜的に表現する CPE を導入し、電極の界面特性を表す領域の実験値は除いてモデル化し、非線形回帰により係数 R_{hi} , R_b , n , P を導出した。なお、式(2)⁹⁾のように、 n , P は見かけの静電容量 C_a に対応する係数である。

$$\text{Apparent capacitance } C_a = P^n \times R_{hi}^{n-1} \quad (2)$$

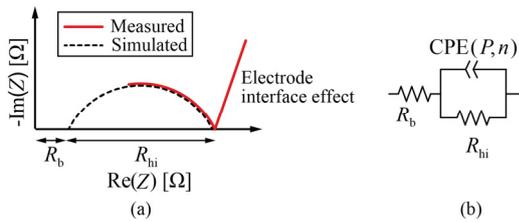


Figure 4 (a) Relationship between simulation and measured values (b) Equivalent circuit model used in this study

4. 分析の方法

4.1 lasso の概要

lasso (least absolute shrinkage and selection operator)は、Tibshirani によって提案された手法⁸⁾であり、データ発生の際の疎構造を表すモデルを推定する手法として広く知られている。手法の詳細は成書¹²⁾に譲るが、簡単には、式(3)で表される線形回帰モデルに対して、最小二乗法では式(4)で表される誤差 2 乗和を最小化するのに対して、lasso では、式(5)に示す制約項が導入されている。これによって、パラメータの値を 0 に縮小することができ、変数選択された線形回帰モデルを構築できる特徴がある。なお、実際は、式(5)にラグランジュの未定乗数法を適用し、式(6)を最小化することになる。

$$\mathbf{y} = \mathbf{X}\boldsymbol{\beta} + \boldsymbol{\varepsilon} \quad (3)$$

$$S(\boldsymbol{\beta}) = \|\boldsymbol{\varepsilon}\|_2^2 = \|\mathbf{y} - \mathbf{X}\boldsymbol{\beta}\|_2^2 \quad (4)$$

$$\min_{\boldsymbol{\beta}} \frac{1}{2n} \|\mathbf{y} - \mathbf{X}\boldsymbol{\beta}\|_2^2 \quad \text{subject to } \|\boldsymbol{\beta}\|_1 \leq s \quad (5)$$

$$S_{\lambda}(\boldsymbol{\beta}) = \|\boldsymbol{\varepsilon}\|_2^2 = \|\mathbf{y} - \mathbf{X}\boldsymbol{\beta}\|_2^2 + \lambda \|\boldsymbol{\beta}\|_1 \quad (6)$$

ここで、 \mathbf{y} : 目的変数のベクトル、 \mathbf{X} : p 次元説明変数 x に関して n 個の観測値からなる計画行列、 $\boldsymbol{\beta}$: 回帰係数、 λ : 正則化パラメータであり、 $s > 0$ とする。 $\|\cdot\|_1$ はベクトルの L_1 ノルム、 $\|\cdot\|_2$ は L_2 ノルムである。

4.2 lasso による線形回帰モデルの係数推定の手順

Table 3 に lasso による線形回帰モデルの構築において検討した因子と水準を示す。本研究の最終目標であるコンクリートの適用への展開を見据えると、調合が無数にある点、養生条件などは実際の構造物では同定できないことがある点などから、交流インピーダンス計測値以外の情報なしで含水率を推定できるのが最も有用性が高い。このような観点から、説明変数は、4Hz から 5MHz までの周波数掃引した交流インピーダンス計測値の $|Z|$ と θ とし、これに材齢を加えた場合と比較した。また、3.3 節に示す等価回路へ回帰した場合の各回路素子の推定値を説明変数とする場合も比較した。

説明変数は、lasso の特性を考慮して、予め中心化してから lasso を適用し、標本平均で割り戻すことによって実スケールによる推定値を求めた。10 分割交差検証法によってモデルを選択し、誤差 2 乗和が最小となる正則化パラメータ λ のときの係数 $\boldsymbol{\beta}$ を求めた。目的変数は、各試験体の含水率 (式 1 参照) とし、解析では中心化した。

Table 3 Factors for comparing water-content estimation models

Factors	Levels
Explanatory variables	1) 4Hz-5MHz impedance $ Z $ and θ 2) Age, 4Hz-5MHz impedance $ Z $ and θ 3) Equivalent circuit elements (R_b , R_{hi} , n , P) see 7) for details.
Model selection	1) 10 folds cross validation 2) One standard error rule

5. 結果と考察

5.1 回帰係数の推定における傾向

本報で用いた lasso は、いわゆる正則化法 (regularization) の一種であり、説明変数間の相関が高いと逆行列を計算できなくなるといった最小二乗法の課題を解決する特長を有する。このような特長に着眼して明らかに変数間の相関が大きい遺伝子データなどに多用されてきた¹³⁾。しかし一方で、変数間の相関が非常に高い場合には lasso が機能しない傾向となるとの報告¹³⁾もある。本分析に用い

た交流インピーダンス計測値は、対数の間隔で互いに隣り合う周波数 $p=201$ 次元の計測値列である。したがって、互いに隣り合うデータ列間の相関は高く、含水率に対しても類似の寄与度を持つと考えられる。また、分析結果を観察すると、lasso による変数選択において、特定の変数に様に選択が進むわけではなかった。そこで、後述の 5.6 節では本報の分析が妥当であるかどうか工学的な観点から検証した。そこでは高周波・低周波といったある領域への一貫した選択がみられており、その傾向が既報の知見と合致していることから工学的妥当性があると考えられた。そこで本報では、特段の手段を講じずに lasso を適用し、10 分割交差検証法によって誤差 2 乗和 (sum of squared error) が最小となるときの係数を機械的に選択することとした。Figure 5 は、正則化パラメータの選択結果の一例である。なお、正則化パラメータは、対数値を等間隔で網羅的に探索している。

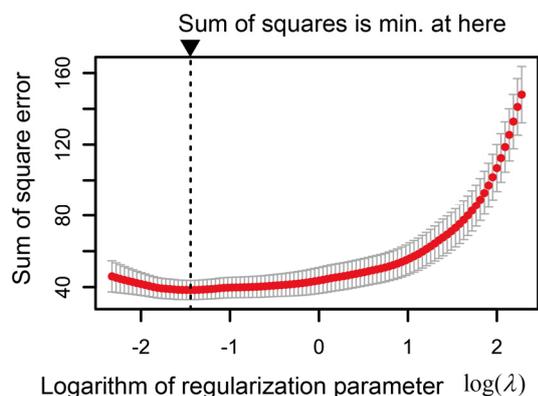


Figure 5 Result of 10-fold cross validation (Explanatory variable level 1), see Table 3)

5.2 周波数掃引された交流インピーダンス計測値のみから構築した lasso 含水率推定モデル

交流インピーダンス計測値のみを説明変数とするモデルによって推定された含水率を実測値と対応させて、Figure 6 (中心化されたまま)、Figure 7 (実スケールに割り戻した結果) に示す。水セメント比ごとに異なる水和組織の差異の影響を除去できておらず、プロットがグループに分かれている。しかしながら、単なる計測値の重みづけ線形和にしては実測の含水率と対応する傾向にあり、5.4 節 (Figure 9) に示す単一指標 (電気抵抗, 静電容量等) から含水率を推定する場合よりもよい対応を示した。なお、このモデルでは、10 変数 (10 周波数) が選択された。

5.3 周波数掃引された交流インピーダンス計測値に加えて材齢も既知の場合の lasso 含水率推定モデル

実際のコンクリート工事・構造物において、材齢は既

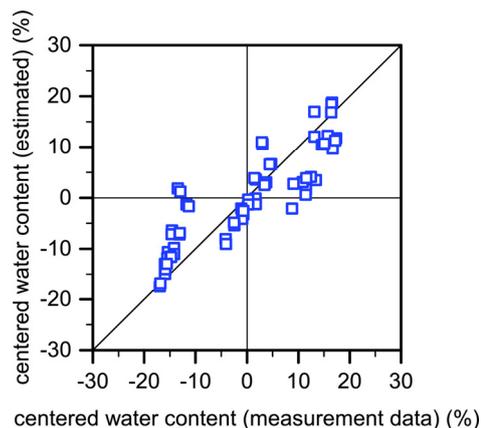


Figure 6 Accuracy of estimation (centered) (Explanatory variable level 1), see Table 3)

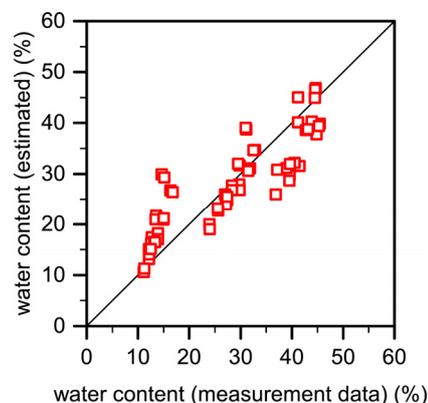


Figure 7 Accuracy of estimation (actual scale) (Explanatory variable level 1), see Table 3)

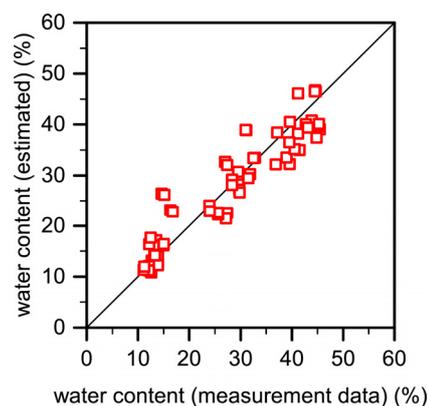


Figure 8 Accuracy of estimation (actual scale) (Explanatory variable level 2), see Table 3)

知であることが多い。そこで、5.2 節の全周波数域の交流インピーダンス計測値に加えて、材齢を説明変数に加えて、lasso による線形回帰モデルの構築を行った。

構築したモデルによる含水率推定結果を実測値と対応させて、Figure 8 に示す。本モデルは、計測値の単なる重みづけ線形和に過ぎないにも関わらず、含水率とよい対

応にあった。本分析においては、既報では電極の不具合によって分析を除外したデータも入力値として含んだまま解析している点、計測値そのものを入力しており、等価回路モデルの選択や非線形回帰を要さない点を考慮すると、既存手法に対する優位性があると考えられる。

5.4 等価回路モデルによる含水率予測との比較

比較のために、既報⁷⁾には一部しか示すことのできなかった等価回路モデルの各回路素子と含水率の対応を Figure 9 に示す。いずれの回路素子推定値も、水セメント比 (W/C) ごとに含水率との一定の相関はあるものの、水和組織の緻密さと対応する水セメント比の影響が明確であり、水セメント比が既知でないと、どの指標からも単一では含水率を一意に推定できないことが分かる。一方で、5.3 節 (Figure 8) に述べた通り、本報で提案する lasso による方法では、水セメント比を既知としなくとも、交流インピーダンス計測値と材齢のみから推定した含水率の推定値が実測の含水率とよい対応を示した。

コンクリートの調査設計では水セメント比を含む調査因子は無数に設定可能であるので、実際の既存建築物では水セメント比が既知であると想定できない場合が多い。したがって、5.3 節で構築した lasso による含水率モデルは、静電容量や電気抵抗といった単一指標による含水率推定法に対して優位性があるといえる。

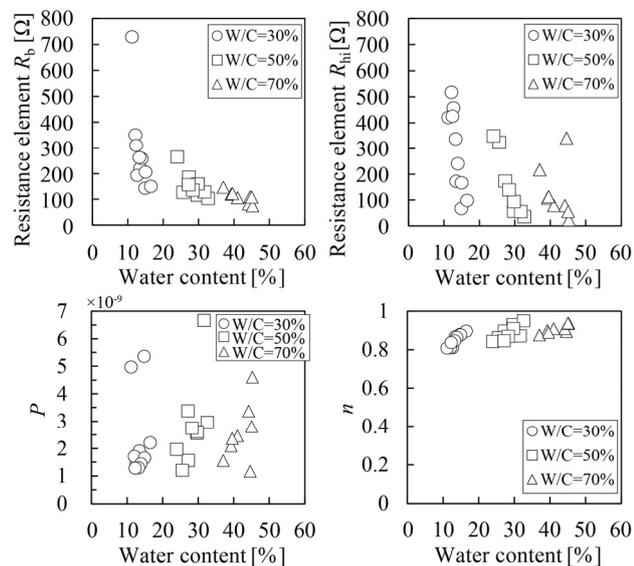


Figure 9 Relationship between water-content of cement paste and each element value of equivalent circuit model⁷⁾

5.5 等価回路モデルのパラメータから構築した lasso 含水率推定モデル

5.4 節では各回路素子の単一指標に基づく含水率推定について議論したが、各回路素子の推定値を説明変数とする含水率スパース推定モデルも考えられる。構築した

モデルによる含水率推定結果を実測値と対応させて Figure 10 に示す。予測された含水率は、実測値とよい対応を示さず、水セメント比ごとにプロットがグループに分かれていて水和組織の差異の影響を除去できてない。このことから、交流インピーダンスの計測値をそのまま説明変数として用いるほうが、等価回路モデルで回帰してから説明変数とするよりもモデル構築の観点から良い方法であるといえる。なお、この傾向は、等価回路モデルの各回路要素を推定するアプローチが不適切というより、lasso によるモデルが線形であるために含水率に寄与する複雑な現象の説明に回路素子の数 (5 変数) よりも多くの変数を必要としたためであると考えられる。

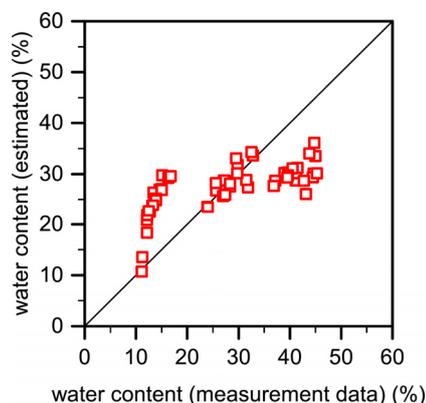


Figure 10 Accuracy of estimation (actual scale) (Explanatory variable level 3), see Table 3)

5.6 交流インピーダンス計測値から構築した含水率モデルの解釈

5.2 節および 5.3 節では、周波数掃引した交流インピーダンス計測値をそのまま変数とし、lasso による変数選択から線形の含水率推定モデルを構築した。このようなアプローチにおいては、変数選択が工学的に妥当であるかどうかは保証されず、単に推定精度の良いモデルが選択されたにすぎない。そこで、既往研究等から知られている含水率等の物性とナイキストプロットの対応から、構築されたモデルの妥当性を分析した。

Figure 11 および Figure 12 に、同一試験体における 24 時間の水に浸漬した前後のナイキストプロットを比較して示す。ここで、赤プロットは、インピーダンス計測値の $|Z|$ あるいは θ が変数選択された周波数の計測値の一部を示している。いずれの図においても、半円の頂点、半円と x 軸の交点近傍、右上の直線の頂点の 3 か所の変数が選択されていることが読み取れる。

一般に、セメントペースト等の含水率を推定する場合、静電容量 (簡単には半円の頂点と対応) もしくは電気抵抗 (簡単にはグラフの x 軸と対応) との相関を分析することが多い。さらに、著者らの分析 (Figure 9 参照)

との対応をみると、含水率と相関が高いようにみえる R_{hi} は x 軸との交点 (Figure 11 では 100Hz 前後) と対応すると考えて良く、見かけの静電容量に関する係数 n は、半円のつぶれの程度 (つまり Figure 11 の 3~4MHz の高周波域) と対応すると考えてよい。

以上のように、変数選択された周波数 (赤点) は、これまでの既報および著者らの知見から判断される、含水率と対応するナイキストプロットの特徴点と良く対応しており、工学的に妥当と判断された。

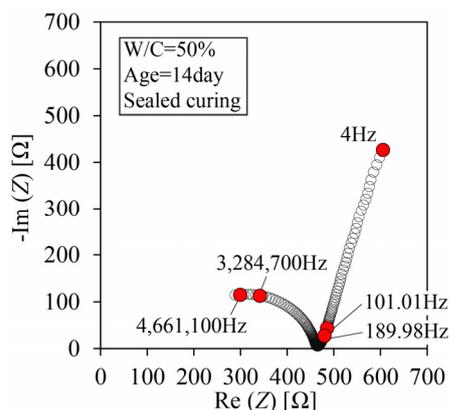


Figure 11 Nyquist plot before water immersion

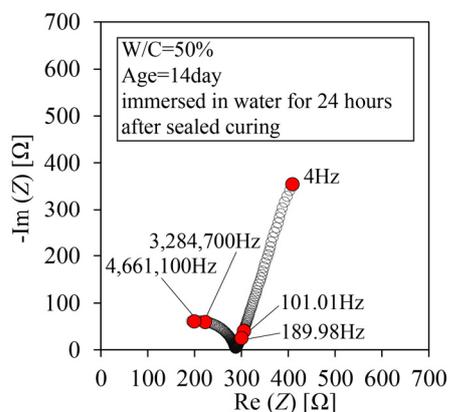


Figure 12 Nyquist plot after water immersion

6. まとめ

本報では以下の成果を得た。

- 1) lasso によるスパース推定を適用し、セメントペーストの含水率推定モデルを構築した。
- 2) 説明変数にセメントペーストの周波数掃引交流インピーダンス計測値をそのまま用いた場合、等価回路モデルによって推定された回路素子推定値を説明変数とする場合よりも精度よく含水率を推定できた。
- 3) 説明変数にセメントペーストの周波数掃引交流インピーダンス計測値に加えて (比較的、容易に入手できるとと思われる) 材齢を変数として加えると、含水率の予測精度が定性的に向上した。

- 4) 構築された含水率推定モデルにおいて選択された変数 (周波数) は、ナイキストプロットの特徴点と良く対応しており、工学的に妥当と判断された。

謝辞

本報の実験は、科学研究費 (15K14062) の助成を、本報の解析は、旭硝子財団助成を受けて実施したものです。関係各位に感謝申し上げます。

[参考文献]

- 1) 木野瀬透, 今本啓一, 田沼毅彦, 清原千鶴: コンクリート中の水分を考慮した中性化後における鉄筋腐食予測に向けた基礎的研究, コンクリート工学年次論文集, Vol.37, No.1, pp.601-606, 2015
- 2) 酒井正樹, 神代泰道, 小林利充, 植松俊幸: 長期間供用した RC 造建築物の含水状態と耐久性に関する考察, コンクリート工学年次論文集, vol.38, No.1, pp.801-806, 2016
- 3) 豊村恵理, 上原菜津葵, 伊代田岳史: 直流比抵抗を用いたコンクリートの養生終了タイミング判断手法に関する基礎的研究, コンクリート工学年次論文集, Vol.34, No.1, pp.1348-1353, 2012
- 4) 笠井芳夫, 松井勇, 湯浅昇, 佐藤弘和: 小ステンレス電極を用いたコンクリートの含水率測定, コンクリート工学年次論文報告集, vol.17, No.1, pp.671-676, 1995
- 5) 岡倉洋平, 五十嵐心一: 若材齢におけるセメントの水和反応の進行と電気抵抗率の対応, コンクリート工学年次論文集, Vol.36, No.1, pp.58-63, 2014
- 6) 福山智子, 野田貴之, 長谷川拓哉, 千歩修: コンクリートの空隙特性と高周波静電容量の相関に関する検討, コンクリート工学年次論文集, Vol.37, No.1, pp.1669-1674, 2015
- 7) 小口峻平, 藤本郷史: CPE を含む等価回路モデルを用いたセメントペーストの電気化学的特性の分析, コンクリート工学年次論文集, Vol.42, No.1, pp.377-382, 2020
- 8) Robert Tibshirani: "Regression Shrinkage and Selection via the Lasso," Journal of the Royal Statistical Society, vol.58, No.1, pp.267-288, 1996
- 9) 板垣昌幸: 電気化学インピーダンス法 原理・測定・解析, 丸善出版, pp.35-36, pp.79-80, pp.82-85, 2012
- 10) 生田博将: はじめての電気化学計測—まず測定してみよう 交流インピーダンス法(固体電解質系), Electrochemistry, vol.68, No.5, pp.356-360, 2000
- 11) 板垣昌幸, 猿渡麗子, 渡辺邦洋, 拡散と電荷移動混合支配系における電気化学インピーダンスと反応速度の関係, 材料と環境, vol.51, No.9, pp.419-417, 2002
- 12) 川野秀一, 松井秀俊, 廣瀬慧: スパースモデリング推定法による統計モデリング, 共立出版, 2018
- 13) 廣瀬慧: スパースモデリングとモデル選択, 電子情報通信学会, Vol.99, No.5, pp.392-299, 2016
- 14) 野田一弘, 河野広隆, 久田真, 森濱和正: 交流作用時の硬化コンクリートの電気的性質に関する基礎的研究, コンクリート工学年次論文集, Vol.25, No.1, pp.575-580, 2003
- 15) Friedman J, Hastie T, Tibshirani R (2010). "Regularization Paths for Generalized Linear Models via Coordinate Descent." Journal of Statistical Software, 33(1), 1–22. <http://www.jstatsoft.org/v33/i01/>.