

学位論文審査報告

高橋, 純

中島, 政吉

山越, 英男

上田, 洋子

他

<https://doi.org/10.15017/16578>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 21 (4), pp.349-361, 2000-03. Interdisciplinary Graduate School of Engineering Sciences, Kyushu University

バージョン :

権利関係 :

学位論文審査報告

氏名(本籍) 高橋 純(岩手県)
 学位記番号 総理工博甲第325号
 学位授与の日附 平成11年9月30日
 学位論文題目 地中海流出水の定常・非定常流動
 に対する擬地形性ベータ効果

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 増田 章
 (副査) 〃 〃 柳 哲雄
 〃 〃 〃 尹 宗煥
 〃 〃 〃 鶴野 伊津志

論文内容の要旨

近年、気候変動における海洋の役割の重要性が認識されるにつれて海洋大循環の研究が活発に行われるようになってきた。その海洋大循環は大まかに表層風成循環、中層循環、深層熱塩循環の3つに分けられるが、中層循環の理解が最も遅れている。本論文では、高温・高塩分という特異な信号を持つ地中海流出水に焦点を当て中層の力学を考察する。

地中海流出水は北大西洋中層に広がる印象的な高塩分舌を形成している。塩分舌は一部が欧州沿いに北東に延びるが、主に南西方向に張り出すことが古くから知られていた。また最近の観測により Meddy と呼ばれる奇妙な渦が地中海流出水中に頻繁に発生していることが明らかになってきた。この渦は高気圧性で中層に地中海流出水起源の高温高塩分水を核としてもつ。とくに不思議なことは殆ど南向きに 1.3cm s^{-1} という異常に大きな平均速度で移動していくことである。定常流動としての塩分舌と非定常流動としての Meddy は、いずれも、その担う塩分・熱輸送を通じて大西洋のみならず世界中の海に影響を与えていると考えられる。しかしながら、Meddy の南進機構、地中海流出水塩分舌形成維持機構のいずれにも諸説が提案されてきたが納得のいく説明はなく力学的な理解は殆ど進んでいない。

本論文ではこの地中海流出水の定常・非定常挙動に大きな影響を与えると考えられる機構を新たに提案する。これが(海流起源)擬地形性ベータ効果である。地中海流出水や Meddy の存在する東部北大西洋は亜熱帯循環の東部海域に当たり表層に南下する平均流を持つ。表層流に伴う東西圧力傾度を深層で打ち消す形で、中層は西側で薄く東側で厚くなっている。層厚のこの東西変化が中層の渦位の分布に大きく影響する。流れが弱い場合には惑星ベータ効果のために背景渦位の等値線は東西に沿う。しかし、地中海流出水の存在

する海域では、上に述べた中層厚みの変化により、中層の背景渦位の等値線が南西向きとなる。そのため、地中海流出水が南西へ張り出すし、Meddy はより南向きに移動すると期待されるのである。この海流起源擬地形性ベータ効果が地中海流出水の定常・非定常流動に及ぼす影響を詳しく調べるために、擬地形性ベータ効果がある場合とない場合について数値実験を行い両者を比較した。その結果、Meddy の南進を擬地形性ベータ効果が加速することが分かった。また地中海流出水塩分舌の特徴的な分布、とくに南西方向への張り出しは、擬地形性ベータ効果によって説明できることが示された。

本論文はこれらの成果をまとめたものであり4章で構成される。

最初の第1章では研究の背景と目的を述べ論文の構成を概観する。

第2章は非定常流動として Meddy を取り上げる。まず弱い渦の移動速度を調べた。線形解析を行うと、中層のみの微小渦運動という極く単純な場合でも擬地形性ベータ効果だけで表層平均流の1/4(観測値の1/5)程度の南下速度を生み出すことが示される。また、数値実験で得られた渦の移動速度は、線形分散関係式を用いた解析に基づく移動速度とほぼ一致した。すなわち、線形論によれば擬地形性ベータ効果だけで、観測される Meddy の南方移動速度の1/4または1/5程度を説明し得る。

次に三層準地衡数値模型を用いて非線形度および渦鉛直構造に対する感度を擬地形性 β 効果の有無に加えて調べた。実験によれば主渦が生み出す二次渦の非線形効果によって主渦の南進が生じる。これにより観測される南向き移動速度がある程度説明される。この場合、渦の鉛直分布の影響が大きく、一般に順圧度が高いほど南進速度が大きくなる。逆に中層にのみ渦流があり傾圧性が強い場合には南進速度が小さい。また、非線形効果がある場合でも、擬地形性ベータ効果が、観測される南向き移動速度の1/4程度を生み出すことが示された。すなわち、順圧性の高い渦に働く二次渦の非線形効果による南進を擬地形性ベータ効果が加速すると考えれば Meddy の急速な南進を説明することができる。

また擬地形性 β 効果の観点から従来の概念模型を吟味すると、その殆どが現実の Meddy との対応が付けにくい力学的一貫性を欠くという難点があることが明らかになった。従ってここで検討した中では、二次渦非線形効果と海流起源擬地形性ベータ効果を組み合わせたものが Meddy の急速な南進を説明する機構として最も尤もらしいと結論される。

第3章では、定常流動として地中海流出水塩分舌を

取り上げ、その形成機構を数値実験により調べた。前半では、擬地形性ベータ効果を吟味するための最も単純化したモデルとして、拡散型換算重力モデル (diffusive reduced-gravity model) を用いた。ここでは、海流起源の擬地形性ベータ効果の中層に生み出す平均流が表層にあることを除き、中層のみが運動すると仮定している。最初に、表層の海流がなくモデル海洋中層の層厚の変化が無い場合、すなわち擬地形性ベータ効果が組み込まれていない場合の実験を行った。海洋の東岸の中央部から流入してきた中層の水は、惑星ベータ効果により西進する。西進しながら少しづつ反転して北上し、やがて上下層へと抜けていく。また、海洋の東岸から流入させたトレーサーを高塩分水に想定し、その密度分布を見ると、一部東岸沿いに北向きに広がるが、殆どは真西に広がるのが分かる。一方、表層に亜熱帯の風成循環がある場合には、擬地形性ベータ効果が生じる。東岸から流入した中層水は西でなくやや南西向きに流れる。またトレーサーの分布は、実際の地中海流出水塩分舌分布に近い結果が得られた。すなわち、塩分舌自体も南西へ張り出し、しかも西岸に近づくに従って西向きに変化する結果となった。

後半では、確認のため海洋大循環モデルを用いた数値実験を行った。拡散型換算重力モデルでは、鉛直構造を単純化し過ぎる嫌いがあるので、三次元場を大循環モデルで見ためである。大西洋の表層循環が無い場合、地中海から大西洋中層に流れ出した水は殆ど真西に流れその後少しづつ反転して北上する。一方、亜熱帯風成循環が表層に存在する場合、地中海流出水は中層を真西でなく南西方向へ流れ出す。すなわち、擬地形性ベータ効果の有無による地中海流出水塩分舌の張り出し方向の違いを良く再現するものとなった。

以上のように拡散型換算重力モデルおよび大循環モデルを用いた数値実験の結果はいずれもほぼ同様であった。これらは、地中海流出水塩分舌の形成に擬地形性ベータ効果が大きな影響を与えていることを強く示唆するものである。

最後に第4章で結果を要約し全体を総括した。

論文調査の要旨

気候の変動や地球環境の維持に果たす海洋の役割の大きさが認識されるにつれて海洋大循環の研究が活発に行われるようになってきた。海洋大循環は大まかに表層風成循環、中層循環、深層熱塩循環の三つに分けられるが、中層循環の理解が最も遅れている。他方、地球温暖化と関わりの深い海中二酸化炭素の数十年規模の挙動を支配するのは中層循環と考えられている。このため中層循環の解明が極めて重要な課題となっている。

本論文では、高温・高塩分という中層としては特異な海水特性を持ち、また観測例の多い地中海流出水に焦点を当て、中層の力学を考察している。地中海流出水は北大西洋中層に広がる顕著な高塩分舌を形成し、その一部が欧州沿いに北東に延び大部分は南西方向に張り出すことが古くから知られていた。また最近の観測により Meddy と呼ばれる奇妙な渦が地中海流出水中に頻繁に発生していることが明らかになってきた。これは時計回りの渦で中層に地中海流出水起源の高温高塩分水を核としてもつ。とくに不思議なことは殆ど南向きに 1.3cm/s という中層の渦としては大きな平均速度で移動していくことである。

定常流動としての塩分舌と非定常流動としての Meddy は、それらが担う塩分・熱輸送を通じて大西洋のみならず世界中の海に影響を与えていると考えられる。この Meddy の南進機構、地中海流出水塩分舌の形成維持機構のいずれに対しても諸々の説が提出されてきたけれども納得のいく説明はなく力学的な理解は殆ど進んでいない。

そこで本論文は、中層海流の挙動に大きな影響を与えると考えられる(海流起源の)擬地形性ベータ効果という概念を提出し、更にその効果を、Meddy の南進ならびに高塩分舌の形成という、地中海流出水で最もよく知られた二つの現象を対象にして調べたものであり、以下の成果を得ている。

(1) 地中海流出水や Meddy の存在する東部北大西洋は亜熱帯循環の東部海域に当たり表層に南下する平均流を持つ。この表層流に伴う東西圧力傾度を打ち消す形で、中層が西側で薄く東側で厚くなっている。このため中層背景渦位の等値線が西向きでなく、南西向きとなる。これが中層の流れに対する擬地形性ベータ効果の起源であることを明らかにし、中層を伝わる惑星長波が南西向きに伝播することを示している。

(2) 中層の渦としては大きな Meddy 南進速度を生み出す仕組みを三層準地衡数値モデルを用いた数値実験によって調べ、主渦が生み出す二次渦の非線形効果によって主渦の大きな南進が生じること、順圧度が高いほど南進速度が大きくなること(逆に中層にのみ渦流があり傾圧性が強い場合には南進速度が小さいこと)、擬地形性ベータ効果が表層平均流の $1/4$ (観測値の $1/5$) 程度の南進速度を生み出し、二次渦の非線形効果による南進を擬地形性ベータ効果が加速していることなどを解析的な議論を併用して示している。

更に、これまでに提案されてきたいくつかの Meddy の南進機構を擬地形性ベータ効果の存在という観点から再吟味し、その多くが、力学的一貫性を欠いたり、あるいは現実の Meddy との対応がつけにくいという難点をもつことを明らかにしている。

(3) 拡散型換算重力模型と三次元海洋大循環模型という二種類の数値実験により、擬地形性ベータ効果が塩分舌の形成に及ぼす影響を調べている。表層の海流がなく擬地形性ベータ効果がない場合、海洋の東岸の中央部から流入してきた中層の水は、惑星ベータ効果により西進し少しづつ反転して北上しやがて上下層へと抜けていく。また海洋の東岸から流入させたトレーサーを高塩分水に想定し、その密度分布を見ると、一部東岸沿いに北向きに広がるが殆どは真西に広がる。一方、表層に亜熱帯の風成循環があり中層に擬地形性ベータ効果が働く場合には、東岸から流入した中層水は西でなくやや南西向きに流れる。また西岸に近づくにつれて向きを変えて西向きに張り出していくという結果となった。すなわち、擬地形性効果を導入することにより、トレーサーの分布が、実際に観測される地中海流出水塩分舌の分布に近いものになることを、擬地形性ベータ効果の存在しない場合との対比によって明瞭に示している。

以上要するに、本論文は、理解の遅れている海洋中層の力学を解明するために、海洋中層の流れを大きく制御する機構として擬地形性ベータ効果という概念を提出するとともに、その概念の有効性を、塩分舌の張り出しおよび Meddy の南進という地中海流出水の定常・非定常現象に対する数値実験によって明らかにしたもので、海洋物理学に寄与するところが大きい。よって本論文は博士(理学)の学位論文に値するものと認める。

氏名(本籍) 中島政吉(長崎県)
 学位記番号 総理工博乙第292号
 学位授与の日付 平成11年9月28日
 学位論文題目 重質油を燃料とするディーゼル機関の燃焼の制御に関する研究
 論文調査委員
 (主査) 九州大学 教授 高崎 講二
 (副査) " " 松尾 一泰
 " " 小野 信輔
 " " 平山 義則

論文内容の要旨

ディーゼル機関は、高効率に加えて低質で安価な燃料が使えるという高い経済性、度重なる経験と改良により培われた高い信頼性により、重車両を始め船舶の原動機を独占し、さらに自家発電プラントの原動機として我々の豊かな社会生活を支えている。

この豊かな人類の生活も、CO₂による温暖化などの

地球環境問題さらにエネルギー問題に直面している。熱機関にとってCO₂の削減はすなわち熱効率の改善を必要とし、ディーゼル機関では、その特徴である液体燃料の間欠非定常噴霧燃焼の制御によるサイクル効率の改善が必要である。

エネルギー問題に目を向けてみると、約40年後には原油の枯渇や価格の高騰も考えられ、本来石油精製の残り物とも言える重質油を利用していた中・大型ディーゼル機関には、さらに重・低質な残渣成分しか回って来なくなることも予想される。また将来的に石油に代わる燃料として期待されるオリノコータルなど、超重質な燃料の出現も予想されその利用にも対処せねばならない。

本研究はこれらの状況を踏まえ、バンカー油あるいはC重油と呼ばれる重質油を使用できる中・大型ディーゼル機関に的を絞り、噴霧燃焼特性を解明するとともに燃焼制御技術を確認して、その高効率化、低公害化の指針を求めたもので、以下の6章からなっている。

第1章は序論であり、本研究の背景と特徴について述べた。

第2章では、従来の研究を概観して本研究の意義について述べた。

第3章では、原油精製残渣を基油とする重質油噴霧の燃焼制御技術を開発する基礎研究として、その噴霧特性、着火・燃焼特性を軽質油と比較しながら明らかにした。ここでは始めに、シリンダ径200mmの実機の運転データからバンカー油使用時の排気エミッション上の問題点を解明した。それによると、バンカー油では軽油に比べて排気微粒子が激増する傾向にあり、それは特にSOF(可溶有機成分)の排出の増加による。

次に急速圧縮装置を使って単一噴霧の光学的観察を行った結果、バンカー油噴霧中には非蒸発部の大きなコアが存在し、ピストン上面への到達に要する時間と着火遅れ時間との兼ね合いによっては、その非蒸発部が未燃のままピストンへ衝突することもあることが明らかとなった。

また燃焼室全体の可視化観察を行った結果、バンカー油の燃焼上の問題点はその低い蒸発性に起因するものが多いこと、小噴口径と高噴射圧力を組み合わせることは、バンカー油の燃焼改善の一策となることが明らかとなった。

さらに燃料噴霧の数値解析を行い、噴射された燃料は、噴霧前面の空気の抗力と後続噴霧の運動量の作用で、噴霧の中心部から先端部さらに周辺部へ拡散される。しかし終わりの方に噴射された燃料は後続の噴霧がないためその効果を得られず、空気の少ない噴霧中心部に停滞してしまうことを明らかにした。

第4章では、重質油の性状と噴霧燃焼特性との関係に焦点を当てる研究を行った。特に留点分布が偏ったバンカー油について燃焼可視化研究を行った。これは従来のものより重質な浅渣分を基油に使い、粘度調整のため低沸点の留分を多く調合し、その結果それらの中間である高温側の留分が少ない留点分布となった燃料で、両端に偏った留点分布の形からダンベル燃料と呼ばれている。結果として、高温留分はバンカー油の着火性に大きく寄与しており、ダンベル燃料はこの高温留分が少ないことで着火性が悪くなっていることが明らかとなった。またダンベル燃料に高温留分を添加することで、着火性のみならず火炎中のスートの生成や後燃えなどの燃焼特性も改善されることも明らかにした。

第5章では、重質油のための燃焼制御システムの開発について検討した。ここでは機関側の条件変化に応じて最適な燃焼状態を実現する電子制御燃料噴射システムの開発を行い、噴射圧力 120MPa でほぼ矩形に近い噴射モードを達成した。

次にダンベル燃料のような燃焼制御のきわめて困難な燃料にも対応するため、層状噴射システムと名付ける重質油専用の新しい燃料噴射システムの開発と実験を行った。これは重質油の着火と後燃えの問題を解決するため、時間的に重質油をはさんで噴射初期と終期に MDO (A重油) のような軽質油を噴射するシステムである。このシステムを使用しバンカー油噴射の前後に10%だけ MDO を噴射することで、全体の燃焼を MDO なみにすることを可能とした。

第6章は総括で、以上の研究成果を取りまとめたものである。

論文調査の要旨

今日、世界の貨物輸送の大半は、中・大型ディーゼル機関を原動機とする船舶によって行われており、また中・大型ディーゼル機関による自家発電プラントも増加の一途をたどっている。このように、中・大型ディーゼル機関の社会への貢献度は大きなものがあるが、さらに、これらの機関は原油精製の残り物を処分する役目も背負っている。即ちこれらの機関は、原油精製後の残渣分を主成分とするバンカー油と呼ばれる重質油を燃料としており、高い熱効率のみならず、安価な燃料を使えるという二重の経済性を誇って来た。

ところが近年、バンカー油はさらに重・低質化し、さしもの中・大型ディーゼル機関も対応できなくなる可能性が出てきた。これはそれら機関の数の多さから考えて、世界的なエネルギー問題となり得る。本論文は、この問題の正確な把握とその効果的な解決法を見出すために一連の実験的研究を行い、その成果を取り

まとめたものである。

著者はまず、バンカー油噴霧の蒸発特性、着火・燃焼特性について、軽油などの軽質油と比較を行うところから研究を開始している。ここではシリンダ径 200mmのクラスの機関を対象とし、実機による運転実験、急速圧縮装置による噴霧燃焼の高速度観察、可視化実験機関による燃焼室内観察などを行って、多くのデータからバンカー油の燃焼上の問題点とその改善方法を明らかにしている。それによると、バンカー油の低い蒸発性と長い着火遅れは、特に低負荷で重大な燃焼悪化を引き起こす可能性があること、小噴口径の噴射ノズルと高噴射圧力の組み合わせが、バンカー油の燃焼改善に効果的であることを明らかにしている。さらにここでは燃料噴霧挙動について数値計算を行い、噴射期間の最後に噴射される燃料について、その空気利用に困難があることを明確にしている。

次に著者は、留点分布が偏って燃焼上きわめて問題の多いバンカー油について詳細な研究を行っている。実際に燃焼に起因する潤滑上の問題を起こした燃料を入手し、実機による運転実験、燃焼の可視化観察などを行った結果、劣悪な着火性と燃料噴射終了後の燃焼（後燃え）の延びという問題点があることを明確にしている。

さらに著者は、実際にこういったバンカー油の燃焼上の問題点を解決し良好な燃焼制御を行うため、2種類の燃料噴射システムを考案している。上述したように、低負荷で高い噴射圧力を確保することがバンカー油の燃焼改善に有効であることから、作動油を蓄圧管制し油圧で燃料噴射ポンプを駆動するシステムを開発している。これはエンジンの回転数、負荷に関係なく高い噴射圧力が実現でき、作動油の管制を電子制御とすることで、各種条件に合わせた最適な燃焼制御が可能となる。

機関に燃焼上の問題を与えるような、燃焼制御がきわめて困難なバンカー油に対しては、著者は層状噴射系という画期的なシステムを考案している。つまり、そのような燃料の燃焼上の問題点が、着火性と後燃え、つまり噴射期間の最初と最後に噴射された燃料に起因することから、時間的にバンカー油をはさんで前後に軽質油を噴射するシステムを開発し、これによって、わずか10%の軽質油でバンカー油の燃焼上の問題点をほとんど解決できることを確かめている。

以上要するに、本論文は、重質油の燃焼制御について、軽質油燃焼との比較による問題点の明確化に始まり、実際に問題を起こした燃料の燃焼特性を可視化研究を採り入れて詳細に解明し、最後にその成果として、バンカー油の重・低質化に対応できる新しい燃焼制御システムの開発まで行ったもので、熱機関工学上寄与

するところが大きい。

よって本論文は博士（工学）の学位論文に値するものと認める。

氏 名 (本籍) 山 越 英 男 (神奈川県)
 学 位 記 番 号 総理工博乙第293号
 学位授与の日附 平成11年10月21日
 学位論文題目 産業用気体レーザーの高効率化に
 関する研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 村 岡 克 紀
 (副 査) 〃 〃 笹 田 一 郎
 〃 〃 内 野 喜 一 郎
 〃 〃 前 田 三 男

論文内容の要旨

単一波長、高エネルギー密度、高集光性などの特徴を持つ気体レーザーを用いたプロセスは、近年各種産業分野で求められているプロセスの微細化、高選択化、柔軟性などに応えられる有力な技術であり、微細加工、光化学反応、表面改質などで利用され始めている。しかし、現状では気体レーザーのランニングコストが高い事が大きな障害となって適用範囲が限られており、その改善に必要な気体レーザーの高効率化が急務となっている。そこで本研究では、気体レーザーのうち、産業応用上適用範囲が広いため高効率化のインパクトが大きい短波長または大出力の気体レーザーを対象とし、その主な励起方法である電子衝突励起、化学励起、光励起について、それぞれの励起方式で高効率化を支配している重要な要素を抽出して高効率化のための指針を示すことを目的として研究を行った。すなわち、

(1) 電子衝突励起では電気エネルギーのレーザー媒質への移乗高効率化のための解析コードの高度化と実験による検証、(2) 化学励起では化学反応エネルギーの気体への移乗高効率化および失活低減のための励起分子発生器の開発、(3) 光励起では光源の高度化、高効率化を行った。本論文はこれらの研究成果をまとめたものである。

第 1 章では、産業用気体レーザーの現状について概論し、本研究の目的と概要を述べた。

第 2 章では、産業用気体レーザー高効率化の必要性とその方法について論じた。

第 3 章では、電子衝突励起を対象に、産業的にも広く用いられて今後の発展の可能性の大きな放電励起エキシマレーザーを検討した。本励起法では、電気エネルギーの放電を通じたレーザー媒質への移乗の適正化

が最も重要である。まず、大体積の放電による高効率励起を検討するために、2 次元解析コードを初めて開発した。これにより、従来は入力として与えていた放電幅が自動的に計算され、電子エネルギー分布関数、電子・励起粒子密度などの分布からレーザー出力パワー分布を計算できるようになった。また、予備電離分布の主放電分布への影響、放電部構造の放電分布への影響、プラズマ状態の変化にともなう電界分布の変化、放電部に設置した絶縁物の電界分布への影響などを明らかにした。

一方、高効率化の指針を得るために開発されてきた従来の解析コードの解析結果検証のために、エネルギー移乗過程で最も重要な役割を果たす電子の状態（電子密度と電子温度、さらに電子エネルギー分布関数）をトムソン散乱法を用いて実験的に初めて計測した（計測対象ガス組成：Kr/F₂/Ne=30Torr/1.5Torr/3atm, Kr/Ne=30Torr/3atm, Kr/He=30Torr/3atm）。その結果、電子エネルギー分布関数が 0-6eV の低電子エネルギー範囲でマクスウェル分布に十分緩和しており、従来コードで予測されている非マクスウェル分布とは異なることを見いだした。これに対し、従来コードで無視されていた電子-電子衝突過程が影響している可能性を指摘し、本過程を取入れたコードが実験結果に近い計算結果を与えることを示し、本過程の重要性を明らかにした。

第 4 章では、化学励起を対象に、将来加工用などへの応用が期待されるヨウ素レーザーを検討した。この種のレーザーの高効率化のためには、化学反応で生じた励起分子の失活を防ぎ、レーザー発振媒質へのエネルギー移乗効率を向上させる工夫が必要である。本研究では、化学反応エネルギーの気体への移乗を高効率化し、移乗されたエネルギーの失活を防ぐ新型の励起酸素発生器を提案し、大流量下（210mmole/min）で高酸素発生効率（80%）が得られることを実験的に検証した。

第 5 章では、光励起を対象に、将来半導体リソグラフィなどへの応用が期待される軟 X 線励起レーザーの 1 つであるキセノンオージェレーザーを検討し、励起・失活・発振過程高効率化のために最も重要なレーザー誘起プラズマ光源の高度化、高効率化を図った。まず、長時間安定に、再現性良く、高効率で軟 X 線を輻射することができるプラズマ光源として、高精度研磨水銀ターゲットを初めて開発した。また、高効率プラズマ光源開発として、プリパルスを用いたプラズマ光源を検討し、1ps~300ps のメインパルスにおける光源の特性を初めて実験的に調べた。特に、光励起レーザーを対象としたプリパルス効果の検討は従来 80ps 以上しか行われていなかったが、本研究では

1.4ps, 32ps での効果を確認した。その結果、メインパルス幅32ps において、プリパルス（エネルギー：全エネルギーの20%、パルス幅：300ps、メインパルス照射との時間差：1.3ns）の照射により、プリパルス無しに比べて約40倍のレーザー出力増大を得た。1.4ps においてはプリパルス無しでは得られなかったレーザー発振がプリパルス有で得られるようになり、レーザー発振閾値を少なくとも1/2以下にすることができた。従来の80ps 以上のメインパルス幅範囲では、プリパルス有の場合、メインパルス幅が短いほどレーザー特性が向上していたが、今回の1.4ps, 32ps の範囲では、短メインパルスでレーザー特性が悪化した。これは、低エネルギー軟X線による光電離や電子との衝突による失活が影響していると考えられる。

第6章では、本論文の総括を行い、本研究を通じて得られた主要な成果をまとめるとともに、将来の展望について述べた。

論文調査の要旨

気体レーザーは、大型化が容易であるために大出力を得やすいこと、媒質の密度が低いために回折限界に近いガウシアンビームを得やすいこと、また強励起しやすいために短波長発振に向いているなどの長所を持っている。そこで、大出力や短波長が必要な応用、すなわち光化学、微細加工、熱加工などの多くの産業分野で気体レーザーが利用されている。このような長所を持つ気体レーザーも、コスト面を考えた場合、初期投資（設備費）、ランニングコスト、メンテナンス費用などが同じ目的で用いられる従来法と比べて高くなってしまふことが多いため、広い産業分野での適用が大きくは進まない原因となっている。コストの中でランニングコストの改善には、運転条件の原理的な適正化による発振高効率化が必要である。

本研究は、気体レーザーのうち産業応用上インパクトの大きい短波長または大出力の気体レーザーを対象とし、気体レーザーの主な励起法である電子衝突励起、化学励起、光励起の全てについて、それぞれ具体例において励起・失活過程に関する基礎的な研究を行い、次のような高効率化のための指針を示す成果を得ている。

(1) リソグラフィ用光源など、最近の応用の広がり大きな放電励起エキシマレーザーの主放電により得られるプラズマについて、トムソン散乱法を用いての電子密度・電子エネルギー分布関数計測とその結果の解析との比較を行い、以下の結果を得ている。①希ガス（Kr/Ne, Kr/He）において高精度・高時間分解でのトムソン散乱データを取得するとともに、ハロゲンを含む実ガス（Kr/F₂/Ne）での計測にも初めて成

功している。②電子エネルギー分布関数は、計測した0~6eV の範囲でマクスウェル分布であることを示している。③従来の電子・電子衝突を考慮していない解析では、非マクスウェルの電子エネルギー分布関数が得られていた。これに対し、電子・電子衝突を考慮することによって、計測結果と同様に0~6eV の範囲でマクスウェル分布を得ている。このことから、電子・電子衝突の考慮が必要であることを指摘している。④電子・電子衝突を考慮した解析でも、10eV 以上の電子エネルギー範囲では非マクスウェル分布を得ている。低エネルギー部分にある大部分の電子がマクスウェル分布に緩和していても、この高エネルギー電子が放電特性に大きな影響を与えている可能性があることを指摘している。⑤電子温度および電子密度の時間変化も、解析と計測で良い一致を得ている。⑥電気エネルギーの効率的利用のために重要な放電体積適正化に用いる2次元解析コードを開発し、従来入力として与えていた放電幅を電極形状を与えることで自動的に計算し、高効率化のための電極形状を検討できるようにしている。

(2) 将来の加工用光源としての発展が期待されるヨウ素レーザーについて、化学反応過程で生じた励起分子の失活防止のために初めて衝突ノズル式霧化型励起酸素発生器を提案し、それが実験的に次の長所を持つことを示している。①励起酸素 O₂ (1D) 発生効率が80%と非常に高いこと、②大流量でも安定して酸素が発生されること。これら成果は他グループの研究も刺激し、その後の研究の活発化の礎となっている。

(3) 将来のリソグラフィ光源の可能性などが期待されている短波長（109nm）キセノンオージェレーザーについて、超短パルスレーザーにより生ずるプラズマから輻射される軟X線による光励起レーザーの高効率化を目指して実験を行い、以下の結果を得ている。①高効率新ターゲットとして、精密加工水銀ターゲットを初めて開発している。このターゲットは長寿命であり、従来から使用されてきた金ターゲットと同等の高発生効率でしかも均一で安定な軟X線発生が可能であることを示している。②メインパルスの前にプリパルスを加える方法により特性改善を試み、特にメインパルス幅を1.4ps~300ps の範囲で変化し、プリパルスのレーザー出力への効果を初めて確認している。これによりメインパルス幅32ps においては、プリパルスによって約40倍の出力増大を得ている。また1.4ps においては、プリパルス無しでは得られなかったレーザー発振がプリパルス有りで得られるようになり、レーザー発振閾値を少なくとも1/2以下にすることに成功している。

以上要するに、本研究は放電励起、化学励起、光励

起の気体レーザー発振の効率を制限している因子をそれぞれの励起、失活の基礎過程に基づいて明らかにし、それを通じて発振の高効率化の指針を与えたものとして工学上価値ある業績であるので、博士（工学）に値すると認められる。

氏名(本籍) 上田 洋子(福岡県)
 学位記番号 総理工博乙第294号
 学位授与の日附 平成11年10月21日
 学位論文題目 Roles of Electromagnetic Waves on Plasma Uniformity in Electron Cyclotron Resonance Sources for Plasma Processing
 (プラズマプロセス用電子サイクロトロン共鳴プラズマ源のプラズマ一様性における電磁波動の役割)

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 河合 良信
 (副査) 〃 〃 伊藤 智之
 〃 〃 村岡 克紀

論文内容の要旨

近年プラズマ CVD (chemical vapor deposition) やプラズマエッチング技術は半導体の分野を中心に積極的に開発・実用化されている。プロセスの高効率及び高性能化を実現しデバイス素子の加工コストを低減するためにプロセス用プラズマ源として必要とされるのは大口径、一様、高密度であるプラズマであり、またこれを制御性よく生成することが重要となる。これまでプラズマ源はその装置の簡易さから平行平板型 RF プラズマ (周波数: 13.56MHz) 装置が主に使用されていたが、電子サイクロトロン共鳴 (ECR) を用いると低ガス圧力で高電子密度、高活性なプラズマが生成可能であることから、RF 生成プラズマでは不可能であったプロセスを ECR プラズマで行う可能性が提案された。それは動作圧力が低い為エッチングの際に生成される不要な 2 次生成物の除去が効率よく行えること、電子温度が比較的高い為 RF プラズマとは異種の加工に適するイオンやラジカルが高濃度に生成されること、さらにイオンの適度なエネルギーにより表面化学反応が促進されるため SiO₂, SiN 膜形成においては低温でも良質膜が形成されることである。実際、ECR プラズマを用いることでより高性能なプロセスが実現している。また高効率という点からも ECR プラズマは数 100 W から数 kW の入力パワーで

10¹⁷-10¹⁸m⁻³ の高電子密度が容易に得られる為、プロセス用プラズマ源として ECR プラズマの大口径化及び一様化に関する研究が盛んに行われてきた。ECR プラズマを生成する場合の制御可能な外部パラメータとしては入射パワー、ガス圧力、磁場配位、マイクロ波入射モードがある。マイクロ波入射モードを変えることで、石英窓における電場強度分布を変化させ、プラズマの一様化をはかることが提案されたが、入射モードを変化させても必ずしもその効果は電子密度の径方向分布に反映されないことも報告されており、一様な ECR プラズマを得るには試行錯誤的な手法に頼っているのが現状である。これではさらなるウエハーの大口径化に対応することは困難である。本研究ではこのような現状認識に立ち、プラズマの一様性を求める指針を得ることを目的としている。即ち、(1) ECR プラズマにおけるプラズマの一様性及びプラズマパラメータの外部条件依存性 (2) プラズマ中の電磁波動測定とその波動モード同定による波動のプラズマ一様性への影響 (3) 外部条件を変化させた場合のプラズマ一様性への影響の物理的機構を調べることに、初めてプラズマプロセスに用いる際重要となる ECR プラズマの一様性への指針を明らかにした。本論文はこれらの研究成果をまとめたものである。

第 1 章では ECR プラズマのプロセス用プラズマ源としての利点と重要性、及び大口径一様化を目指し行われたこれまでの研究背景を述べる。そして本研究の目的と概要、及びこれまで行われてきた ECR プラズマの一様化を目的とした研究分野における位置づけを述べる。

第 2 章では外部パラメータのうち特にこれまで調べられていない磁場配位のプラズマ径方向分布への効果を報告する。ECR プラズマの一様性は外部パラメータに依存して変化するので外部パラメータの最適化が必要とされ、その為 ECR プラズマ一様性の外部依存性を調べることは重要である。マイクロ波の入射は同軸モード使用のマルチスロットアンテナ (MSA)、及び円筒基本モード TE₁₁ の 2 通りで行った。MSA 入射の場合同軸モードでパワー供給を行う為プラズマの大口径化に伴う石英窓のコスト上昇等の問題が解決され、また周波数に関係なくアンテナが大口径化できる利点がある。プロセス用プラズマに要求されるプラズマ一様性は ± 5 % であるので MSA 入射の場合どの程度の一様性が得られるかも調べた。

第 3 章では電磁波によるプラズマ一様性への影響を明らかにすることを目的に行ったプラズマ中での電磁波の伝播測定及びモードの同定について述べる。プラズマの一様性にはプラズマ中を伝播する電磁波が影響していると考えられる為右廻り円偏波 (R 波) の ray

tracing を始めとするプラズマ中の波動に関する研究が行われ、R波のみが生成に寄与する波動として研究対象とされていたが、それまでの研究で物理的な原因は明らかにならなかった。本研究におけるプラズマ中の電磁波測定の結果、電子密度 10^{17}m^{-3} の非常に一様な（直径0.2mで±3%以下）プラズマにはR波だけでなくプラズマ中を磁場に垂直に伝播する異常波（X波）がプラズマ分布に寄与していることが示された。一様プラズマの径方向にX波は半波長励起しており、電子密度が減少するプラズマ周辺領域ではそのX波は短波長化し、高域混成共鳴がプラズマ周辺で生じている。この様に非常に一様なプラズマがX波のカットオフ条件近傍であることが分かった為、負イオンを含むような反応性プラズマにおいても電子密度から分布の最適化における指針を得ることができる。またこの条件下では磁場に平行な方向にはR波、及び左廻り偏波（L波）がECRポイントまで伝播し、ECRポイント後の領域はL波のみが伝播している。さらに入射パワーを増加させると、電子密度ジャンプが生じ、中心での電子密度は 10^{18}m^{-3} 、パラボリック型径方向分布となる。この条件下での電磁波の測定よりECRポイントまでの領域をR波のみが伝播していることを確認した。この条件下では入射モード変化（ TE_{11} 、 TE_{01} 、 TM_{01} ）によるプラズマ一様性への効果がみられると考えられる。本研究により初めて、入射モードに依存せず非常に一様なECRプラズマが得られる理由と、R波以外の励起モードの影響が明らかになった。

第4章では実験及び計算により調べたプラズマ周辺領域での電磁波の振る舞いとパワー吸収について述べる。磁場配位は、プラズマ一様性の外部制御パラメータの一つでマイクロ波導入の真空窓において磁場強度を高くすることで一様性の改善を図ることが報告されていたが、第3章の結果より磁場強度が強くなることでL波がプラズマ中に励起されやすい条件となることが一つの理由であると考えられる。その他第3章においてプラズマ周辺でのパワー吸収がプラズマの一様性に寄与していることが分かった。4章で示す結果から磁場配位変化によるプラズマ一様性へ効果の物理的機構を考察する。真空層の有無、形状を変化させ、波動解析コード TASK/WF を用いて電磁波伝播と吸収の変化を調べた結果、真空層の形状に依存してECRポイント後の領域においてプラズマ周辺にてパワー吸収が生じ、プラズマ一様性への影響を及ぼすことが示された。また磁場配位に依存して生じるプラズマ周辺の真空層はR波へのモード変換の位置とチャンバ壁が境界となる導波管の役割をすることが分かった。真空層の形状は磁場勾配により制御可能な為、波動伝播解析を行うことで装置の設計の際磁場配位に関する最

適化が可能になると考えられる。またR波に比べ明らかにされていないL波のプラズマ生成への寄与はMusilらにより1970年頃に調べられていたがL波及びプラズマ周辺における波動のモード変換はプラズマ研究の応用分野のみならず、基礎分野においても興味深い対象である。

第5章では、本論文の総括を行い、本研究を通じて得られた主要な成果と今後の展望について述べる。

論文調査の要旨

現在プラズマプロセスにおいて、低圧力で大口径・高密度プラズマの生成法が重要な課題となっている。なかでも、電子サイクロトロン共鳴効果を利用して生成されるプラズマ（ECRプラズマ）は低圧力で高密度であるために、半導体プロセスに広く用いられている。通常ECRプラズマは外部磁場に平行に円筒導波管の基本モードである TE_{11} のマイクロ波（周波数2.45GHz）を真空容器に入射して、電子サイクロトロン波（R波）の電子サイクロトロン共鳴（共鳴磁場強度875 Gauss）により生成される。この場合、 TE_{11} のマイクロ波の電場強度が放物線型分布であるために、プラズマ密度分布が山型分布となる。またマイクロ波と真空容器との間のインピーダンス不整合から、真空容器内に多くの電磁波の高次モードが励起されていることが予想される。さらにECRプラズマの密度の径方向分布はマイクロ波電力、ガス圧力、磁場配位などの外部条件に非常に敏感である。すなわち、プラズマ密度が約 $1 \times 10^{11}\text{cm}^{-3}$ 近傍で僅かなマイクロ波電力の上昇により、イオン飽和電流（密度に比例する量）分布がホロー型分布から一様分布を経て山型分布に遷移することが報告されている。以上のようにECRプラズマの一様性の物理機構が不明であるために、試行錯誤によりECRプラズマの大口径化をはかっている。

本論文は、大口径ECRプラズマの一様性に対する電磁波の役割に着目し、磁場に平行方向のみならず直角方向に伝播する電磁波を測定することにより、ECRプラズマの一様性に関する物理機構を詳細に研究したもので、以下の成果を得ている。

(1) マルチスロットアンテナで生成されるプラズマの直径がマイクロ波周波数によらないことに着目し、直径280mmのマルチスロットアンテナを試作して直径200mmの大口径ECRプラズマ（イオン飽和電流の均一性±3%）の生成に成功している。この場合、イオン飽和電流の径方向分布がマイクロ波電力、ガス圧力、磁場配位に敏感であることを確認している。次に、ループアンテナを用いて干渉法によりプラズマ中の電磁波を測定した結果、(i) 磁場に平行方向にはR波（右回り円偏波）とL波（左回り円偏波）が共鳴領域

まで伝播し、共鳴領域より下流ではL波のみが伝播していること、(ii) 磁場に直角方向にはX波（異常波）が伝播していることを見出している。

(2) 円筒導波管の基本モードである TE_{11} のマイクロ波を用いて、直径200mmに亘って均一な ECR プラズマ（均一性が $\pm 5\%$ ）の生成に成功している。さらにプラズマ中の電磁波の測定を行った結果、(i) プラズマ密度が 10^{11}cm^{-3} より低い時はR波とL波が共鳴領域まで伝播し、共鳴領域より下流ではL波のみが伝播していること、(ii) プラズマ密度が 10^{11}cm^{-3} より高い時はR波のみが共鳴領域まで伝播し、共鳴領域より下流では電磁波が存在しないことを明らかにしている。

(3) 磁場に直角方向の電磁波測定を行い、得られた波形の分散関係からX波が伝播していることを初めて見出している。また、(i) 共鳴領域より下流ではX波の波長が周辺部に行くに従って短くなること、(ii) 電磁波の電場強度が周辺部で強いことから、一様分布の時に得られるイオン飽和電流の周辺部におけるピークはX波の高域混成波共鳴によるものであることを指摘している。

(4) 二次元モータ駆動装置を用いて、中心領域のみならず周辺領域においても詳細な電磁波測定を行っている。その結果、中心領域でR波のみが伝播している条件下でも周辺領域で短波長のR波の他に長波長の電磁波が伝播していること、すなわち ECR プラズマ周辺領域でモード変換が起きていることを見出している。

以上要するに、本論文は電子サイクロトロン共鳴プラズマの一様性の物理機構を解明するために電磁波動の詳細な測定を行い、磁場に直角に伝播する異常波の高域混成波共鳴効果がプラズマの一様性に重要な役割を果たしていることを初めて明らかにしたもので、プラズマ物理学に寄与するところが大きい。

よって、本論文は博士（理学）の学位論文に値すると認められる。



氏 名（本籍） 香 川 治 美（山口県）
 学 位 記 番 号 総理工博甲第326号
 学位授与の日附 平成11年10月21日
 学位論文題目 自然地被面における蒸発散量の簡易予測法に関する研究

論文調査委員

（主 査） 九州大学 教 授 片 山 忠 久
 （副 査） 〃 〃 今 石 宣 之
 〃 〃 太 田 正 之 輔

論文内容の要旨

深刻化しつつある都市高温化の一因は、人工被覆面の急増である。都市域に広がる人工被覆面（コンクリートやアスファルト舗装等）は、自然地被面（芝地、草地や裸地等）よりも日射を多量に吸収し、また、自然地被面には有る顕熱を潜熱に置き換える効果を無効にする。そのため、人工被覆の表面温度は日射量に対応して激しく上昇し、温度上昇した地表面は大気を暖め、暖められた大気はさらに地表面温度を上昇させる。この悪循環により、ヒートアイランド強度は増大する。

そこで、都市高温化への対応策として緑化技術が注目される。緑で都市を効果的に彩り、本来の熱や水分の流れを再生することで、都市微気候調整効果を期待する技術である。しかしながら、現時点では、緑の都市微気候調整効果の定量的把握に関する知見が未だ希薄であることは否めない。特に、自然地被面の蒸発散特性に関する資料に、問題点および疑問点が指摘される段階である。自然地被面の蒸発散特性に関する基礎資料は、緑が都市微気候に及ぼす効果を定量的に評価するための手がかりとなるだけでなく、緑を合理的に用いた都市高温化の制御および抑制や、快適な住環境設計のためのデータベースとしても貴重なものとなる。

本論文は、これらの状況を踏まえ、自然地被面からの蒸発散量簡易推定方法の提案を目的としたものである。そのために、本研究では自然地被として芝生植栽および土壌に着目し、それらの蒸発散特性および蒸発散特性に関連した実験を行った。その実験結果に基づき、先ず芝生植栽からの蒸発散量簡易推定モデルを構築した。次に、蒸発散量および土壌からの蒸発量推定の際に重要であるにも関わらず、定常実験で得ることが非常に困難な土壌内水分移動特性に関するパラメータを、ある単一の値のみではなくすべて同時に決定する方法も提案した。次に、この方法により決定されたパラメータを用いて、葉群層下土壌の含水状態を考慮に入れた上記の提案モデルが、気象要素のみを考慮した既往のモデルよりも精度よく芝生植栽からの蒸発散量を推定できることを示した。さらに、薄い土壌の小型試験体ではなく、実在する自然の裸地面からの蒸発量および草地からの蒸発散量も、提案方法が、既往の簡易予測モデルよりも精度よく推定しうることを示した。

本論文は、これらの成果をまとめたものであり、全7章で構成される。

第1章では、既往の研究を概観し、本研究の目的、基本的理念および必要性について述べた。芝生植栽に関しては、気象要素のみを考慮した既往の簡易計算方法の持つ基本的概念を指向しつつも葉群層下土壌の含水状態を考慮に入れることで、より合理的に蒸発散量

を推定できるモデルを構築する必要があること、土壤に関しては、蒸発散量および蒸発量を精度よく推定する際に重要となる土壤内の水分移動特性を表す物性値の決定方法を提案する必要があることを指摘した。

第2章では、芝生植栽および土壤の小型試験体を用いた屋上暴露実験の方法と結果について述べた。実験方法の最大の特徴は、芝生植栽および土壤の表面熱収支に関わる全ての熱量を測定したことである。特に芝生植栽の対流熱伝達率を、表面形状を模擬すべく試作した人工芝 SAT 計により逐次推定した。また重量変化量から算出される芝生植栽試験体の蒸発散量を、表面熱収支式におけるその他の成分熱量の和と比較し、芝生植栽における蒸発散は、常に仮想された表面で生じると仮定できることを明らかにした。さらに、芝生植栽の蒸発散特性を表すチャートとして、[(芝生植栽の蒸発散量)/(土壤の蒸発量)]と(土壤表層部の体積含水率)との関係を示す図を提示した。

第3章では、第2章で得られたチャートをもとに、まず、土壤の含水状態を考慮に入れた芝生植栽試験体における蒸発散量の簡易推定法を提案した。次に、その推定に必要な試験体土壤からの蒸発量および体積含水率を計算するための、土壤内で生じる蒸発および間隙内の水蒸気拡散現象を考慮した蒸発量解析モデルを構築した。さらに、芝生植栽試験体の表面温度、葉群層下土壤内の鉛直方向温度分布および体積含水率を計算するため、熱水分同時移動現象解析モデルを構築し、その基本的なアルゴリズムを整理した。

第4章では、芝生植栽からの蒸発散量および土壤からの蒸発量を解析する際に必要な、土壤内の水分移動特性を表すパラメータの決定に関する実験について記述した。パラメータの決定は、試験体土壤からの蒸発量および体積含水率について、非定常実験による測定値と、第3章で構築された蒸発量解析モデルによる計算結果との誤差二乗和が最小になるように行った。

第5章では、小型試験体を用いた実験結果に基づいて提案された土壤パラメータの決定法および芝生植栽からの蒸発散量推定法が、在るがままの状態の裸地および草地に対して適用可能であるか否かを検証した。表面温度、蒸発量および蒸発散量の計算結果を実験値と比較し、提案方法を自然の裸地および草地に対しても適用できること、気象要素のみを考慮する既往のモデルよりも精度よく再現できることを示した。

第6章では、前章までの結果に即して作成された計算プログラムに、降水量を含む標準気象データを入力し、芝地、裸地およびアスファルト舗装における表面温度、表面の成分別熱量等の年間変動を計算した。それにより、裸地、芝地およびアスファルト舗装の各地表面温度は、長期的な気温変動と連動すること、また、

それぞれの表面温度の差が各成分熱量の流れ方向の相違に起因することを示し、この相違が、人工地表面の広がる都市域と自然地被面が多く残存する郊外域との気温差を誘因することを示唆した。

第7章では、以上の研究成果を要約し、今後の課題も述べつつ全体を総括した。

論文調査の要旨

深刻化しつつある都市高温化の一因は、自然地被面(草地や裸地等)が人工被覆(コンクリートやアスファルト舗装等)に取って換えられる所謂地表面改変にある。都市域に広がる人工被覆面は、日射反射率が小さくまた蒸発潜熱量が少ないため、表面温度は日射量に対応して激しく上昇し、その地表面は大気を暖める。これにより、都市では人工被覆率の大きい地点を中心としてヒートアイランドが発達する。現在、この都市高温化への対応策として緑化技術、すなわち緑の適正な配置によって本来の熱や水分の流れを再生し、都市の微気候を調整する技術が注目されている。しかしながら、自然地被面からの蒸発散量予測に関する基礎資料は未だ希薄の感が否めない。まず、土壤内の水分移動特性を表す物性値は、定常実験による測定の難しさに加え測定値の定式化が困難であるため、僅かの土壤種についてのみしか整備されていない。また、草地や裸地からの蒸発散量を予測する既往のモデルとして、外界気象条件のみを考慮する簡易モデルや植物生理学に基づく物理モデルの構築がなされつつあるものの、前者は土壤の含水率を考慮していないためその精度の点で、後者は、対象とする空間のスケールが大きい都市気候モデルへの連結を前提とした場合の計算負荷や複雑に積層する実在の葉群に対する適用性の点で、それぞれ疑問が残る。

本論文は、以上の観点から、自然地被面における蒸発散量を精度良くかつ簡易に予測する方法を開発することを目的としている。芝生植栽の蒸発散特性および土壤の蒸発特性に関する実験を行い、まず土壤含水率を考慮に入れた芝生植栽からの蒸発散量簡易予測モデルを構築し、次に、既往のモデルを展開して本実験に用いた試験体への適用が可能な土壤内熱水分移動解析モデルを作成し、それらモデルの有効性を検証している。その成果は、以下の5点に要約される。

(1) 芝生植栽および土壤の小型試験体を用いた長期屋外暴露実験により、土壤における蒸発は、乾燥が進むにつれ深奥で生じるようになり、それは、必ずしも表面の潜熱として寄与しなくなるのに対し、芝生植栽における蒸発散は、常に葉群層表面の潜熱とみなせることを明らかにしている。

(2) (1)の実験により、芝生植栽の蒸発散量は、

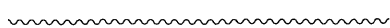
葉群層下の土壌の含水率に大きく左右されることを明らかにし、その蒸発散特性を、[(芝生植栽の蒸発散量)/(土壌の蒸発量)] と (土壌表層部の体積含水率) の関係により示している。

(3) 人工芝を用いて、芝生植栽の対流熱伝達率を逐次算出する測器を試作し、屋外暴露実験における芝生植栽の表面熱収支に関わる全ての成分別熱量の測定を可能にしている。

(4) 小型試験体を用いた実験による上記 (2) の結果を、実在する自然の裸地面および草地からの蒸発散量の計算に適用し、気象要素の重回帰式に基づく既往の簡易モデルよりも精度よく予測しうることを明らかにしている。

(5) 降水量を含む標準気象データを入力し、本研究の提案モデルによる数値計算を行った結果、芝地における蒸発潜熱量の日射吸収量に対する割合は、夏季約 65 [%]、冬季約 25 [%] に達すること、芝地の表面温度は、年間を通してアスファルト舗装面より低く、特に夜間から早朝にかけて気温以下となり対流によって大気を冷却することを明らかにしている。

以上要するに、本論文は、小型試験体を用いた長期に亘る屋外暴露実験の結果に基づき、裸地面からの蒸発量および葉群層下土壌の含水状態を考慮に入れた芝生植栽からの蒸発散量を簡易に予測するモデルを構築し、また、そのモデルの有効性を実在する自然地被面に適用することによって検証したものであり、都市熱環境工学上寄与するところが大きい。よって、本論文は、博士 (工学) の学位論文に値するものと認める。



氏 名 (本籍) 郭 其 鵬 (Guo Qipeng)
(中国)

学 位 記 番 号 総理工博乙第 295 号

学位授与の日附 平成 11 年 11 月 25 日

学位論文題目 Phase Behavior and Fracture
Mechanics of Thermoplastic-Mod-
ified Epoxy Resins
(熱可塑性ポリマー充填エポキシ
樹脂の相挙動と破壊力学)

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教 授 高 橋 清
(副 査) 〃 〃 蔵 元 英 一
〃 〃 〃 根 本 紀 夫
〃 〃 〃 梶 山 千 里

論文内容の要旨

エポキシ樹脂は代表的な熱硬化性樹脂の一つで、こ

の種の樹脂の中では最も強度が高い。現在、航空宇宙産業などで、成形材料、積層材、構造用接着剤あるいは繊維強化複合材料用マトリックスなどの様々な用途に用いられている。しかし、強度は高いが破壊靱性は低いことが欠点で、そのために、近年、高性能熱可塑性樹脂を充填してその靱性を向上させる試みがなされている。この場合の熱可塑性樹脂には高弾性率、高ガラス転移温度を有するものを選び、熱可塑性変性エポキシ樹脂の弾性率とガラス転移温度はエポキシ樹脂単体のそれらと同等ないしはそれ以上となることが望まれる。ブレンド中のモルフォロジーや相分離の広がり、硬化した樹脂の機械的特性を支配することが知られている。

本論文の目的は、熱可塑性ポリマー充填エポキシ樹脂の相挙動と破壊力学的特性の研究にある。ビスフェノール A 型エポキシ樹脂と数種類の熱可塑性樹脂のブレンドを研究の対象とした。

第一章では総論と本論文の目的について述べた。以下、第八章までにわたるが内容的にこれらを三部に分けることができる。

本論文の第一部では、熱可塑性樹脂で変性した様々な硬化エポキシ樹脂の相挙動を動的粘弾性分析 (DMA) と走査型電子顕微鏡観察 (SEM) により調べた。以降、相挙動の観察はすべてこの方法によっている。未硬化ビスフェノール A 型エポキシ樹脂 (DGEBA) がビスフェノール A ポリヒドロキシエーテル (フェノキシ)、フェノールフタレインポリエーテルエーテルサルフォン (PES-C)、フェノールフタレインポリエーテルエーテルケトン (PEK-C) などの熱可塑性樹脂と相溶であることを示した。また、硬化ブレンドの相挙動とモルフォロジーは使用する硬化剤の影響を受けること、これは硬化剤の化学的性質の差異に基づくものであることを明らかにしている。

本論文の第二部では、相溶性エポキシ/熱可塑性樹脂系ブレンドの破壊力学的研究を行った。熱硬化性エポキシである 4,4' ジアミノフェニルメタン (DDM) に着目し、均質な DDM 硬化エポキシ/PEK-C ブレンドと、均質な DDM 硬化エポキシ/ポリサルフォン (PSF) ブレンドの生成に成功した。そのために、これまであまり注意が払われてこなかった均質で相溶性エポキシ/熱可塑性樹脂ブレンドの破壊力学的研究が可能となった。これらの材料のき裂材を用いて三点曲げによる評価の結果、破壊靱性および曲げ剛性に対して、ブレンドの均質性、相溶性が有効な効果をおよぼさないことがわかった。この理由として、ブレンドの過程でエポキシの網目状構造の架橋密度が減少するためとするモデルを提案している。

本論文の第三部では非相溶性エポキシ/熱可塑性樹

脂ブレンドの相構造と破壊力学について研究した。ポリスチレン-アクリロニトリル (SAN) とポリビニルアセタール (PVAc) は共に未硬化エポキシ樹脂と相溶であるが、DDM 硬化エポキシ樹脂とは非相溶であることを明らかにした。微細な相分離構造を持つ DDM 硬化エポキシ/SAN ブレンドと DDM 硬化エポキシ/PVAc ブレンドを、初期は相溶な未硬化ブレンドから生成した。破壊力学的研究から、DDM 硬化エポキシ/SAN ブレンドは破壊靱性の著しい向上を示すことを明らかにした。この場合 SAN の含有率が 10wt% で破壊靱性が最大になることを示し、そのときの相構造は入り組んだ構造を有していることを明らかにしている。一方、DDM 硬化エポキシ/PVAc ブレンドの破壊力学的特性は、同様に、DDM 硬化エポキシ単体に比べて向上し、PVAc が 15wt% のとき最大となり、それは 150% にものぼることを示した。この場合、PVAc 変性エポキシ樹脂における高靱化は、連続構造の相に起因して生じ、PVAc の延性的な変形に依って発現していることを明らかにしている。

終章において論文全体を総括した。

論文調査の要旨

接着剤でよく知られているエポキシ樹脂は架橋された高分子からなり、いわゆる熱硬化性樹脂である。熱的に安定で、強度、剛性が高いためにこの樹脂は航空機産業をはじめ、多くの産業で構造物の軽量化のために利用される複合材料のマトリックス材として欠かせない存在となっている。しかし、強度は高いが破壊靱性が低いことがこの樹脂の欠点である。分子の架橋が変形を抑えることになるので高剛性が実現されることと引き替えに必然的に破壊靱性が低くなるのである。高強度、高剛性の利点を残したまま靱性をいかに向上させるかについてこれまで多くの研究がなされてきた。ゴム微粒子の充填は靱性を向上させても剛性を低下させてしまう。熱可塑性樹脂を充填してエポキシ樹脂とのブレンドをつくることも有力な手法の一つである。著者の研究は後者に属するものである。

エポキシ樹脂として未架橋及び架橋ビスフェノール A タイプエポキシ樹脂をとり上げ、著者はまず次のような熱可塑性樹脂が前者と相溶することを明らかにしている。すなわち、ポリヒドロキシエーテルビスフェノール A (フェノキシ樹脂)、フェノールフタレインポリエーテルエーテルスルホン (PES-C)、フェノールフタレインポリエーテルエーテルケトン (PEK-C) である。また、相溶したこれらブレンドをその後に架橋させた場合には未架橋のものとは著しく異なる相挙動を示すこと、この相挙動とブレンドの組織は硬化剤により影響をうけることを明らかにして

いる。

相分離問題との関連で著者は、4,4'-ジアミノジフェニルメタン (DDM) により架橋されたエポキシ樹脂/フェノキシ樹脂ブレンドは相分離が生じないこと、しかし、4,4'-ジアミノジフェニルスルホン (DDS) 及び無水フタル酸 (PA) により架橋された場合には相分離が生じることを明らかにした。そして、フェノキシ樹脂は PES-C や PEK-C に比べて、無水物で架橋されたエポキシ樹脂とより高い相溶性を持つことを示し、このことはフェノキシ樹脂中のヒドロキシルグループの存在によることを示唆している。

著者は、これら相溶系の熱可塑性樹脂/エポキシ樹脂ブレンドのき裂材を用いて、曲げ負荷下の破壊挙動を破壊力学的式にもとづき評価した。その結果は破壊靱性、曲げ剛性のいずれについても、改善がなされないことが明らかにされている。著者はその原因として熱可塑性樹脂の分子レベルでのブレンドにより、エポキシ樹脂中の架橋数密度が減少してしまうというモデルを提案している。工学的な意味での材料の改善はこれら相溶系ブレンドにおいては見い出されなかったものの、熱可塑性樹脂/熱硬化系樹脂で相溶系のブレンドを見出し、その破壊力学的評価をきちんと行った点で学術的に高く評価できる。ちなみに、二種の熱可塑性樹脂のブレンドにおいては相溶系のものが破壊靱性値を向上させるという結果が多くの研究者により報告されている。

さらに、著者は非相溶系の熱可塑性樹脂/エポキシ樹脂ブレンドの相挙動と破壊力学的研究を行っているすなわち、熱可塑性樹脂としてスチレンアクリロニトリルコポリマー (SAN) 及びポリビニルアセタール (PVAc) をとり上げ、これらは未架橋のエポキシ樹脂とは相溶であるものの、DDM で架橋された場合には非相溶な樹脂となることを示し、ついでき裂材の曲げ負荷により破壊挙動を研究している。その結果、SAN/エポキシ樹脂の場合には、破壊靱性値が SAN が 10wt% のとき極大となり、もとの 1.05MNm^{-3/2} から約 50% 近く増加することを示した。また、PVAc/エポキシ樹脂の場合には少なくとも PVAc が 15wt% までは破壊靱性値が単調に増大し、1.07MNm^{-3/2} から 15wt% において約 30% の増加をみることを明らかにした。そして SEM による観察の結果、これらの増加の原因として非相溶な微細な連続的層状組織の存在がブレンド樹脂の変形を助け、その結果破壊靱性の向上をもたらしていることを明らかにしている。

以上要するに本論文は、熱硬化性ビスフェノール A タイプエポキシ樹脂に相溶する熱可塑性樹脂を見出し、相溶後架橋した樹脂においては相溶することが破壊靱性の向上には結び付かないことを示すと共に、エ

ポキシ樹脂と非相溶な熱可塑性樹脂であるスチレンアクリロニトリルコポリマーないしポリビニルアセテートとのブレンドにおいて、微細な入り組んだ組織の形成により著しい破壊靱性向上がもたらされることを明

らかにしたもので、材料工学上価値ある業績と認める。よって、本論文は博士（工学）の学位論文に値するものと認められる。

