

学位論文審査報告

北尾, 幸一

相澤, 正信

上瀧, 恵里子

<https://doi.org/10.15017/17451>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 19 (3), pp.339-345, 1997-12-01. 九州大学大学院総合理工学研究科

バージョン :

権利関係 :

学位論文審査報告

氏名(本籍) 北尾幸市(京都府)
学位記番号 総理工博乙第261号
学位授与の日附 平成9年6月20日
学位論文題目 ポリエチレンの脆性破壊に関する研究

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 高橋 清
(副査) 〃 〃 蔵元 英一
〃 〃 〃 高雄 善裕

論文内容の要旨

近年ガス配管は1 bar以下の低圧管の分野で金属管からポリエチレン管に代替が進められている。これは耐食性、軽量性による良好な施工性、継手部の信頼性さらには耐震性に関してポリエチレン管の優位性が確認されたためである。欧州ではガス管としてのポリエチレン管の採用が早く、フランスでは4 barの高圧で使用されている。

しかし、低温でかつ高圧使用に際しては、脆性破壊による急速きれつ伝播(Rapid Crack Propagation:以下RCPと略す)の評価が重要になる。鋼製ラインパイプでは脆性破壊ならびに不安定延性破壊による数百メートルに及ぶ管軸方向のRCPによる破壊現象は良く知られている。ガス用ポリエチレン管においても、ハンガリーでの700メートルに及ぶ破壊事故が報告されている。RCPは一度発生すると重大な損害をもたらすため、RCPの防止はガス用ポリエチレン管の高圧化において重要な問題であり、多くの研究が行われてきている。その成果として、RCPを小型試験(全長が管外径の約7倍)で再現でき、伝播の限界圧力を評価するS4試験(Small Scale Steady State)法が開発され、全長15m以上の実埋設管によるフルスケール試験と共にISO規格に導入された。しかし、S4試験により得られた限界圧力はフルスケール試験のそれと一致せず、相関係数について議論されているところであり、RCPについての解析方法が未だ確立していないことを示すものである。また、品質管理に使用する試験としてはS4試験よりも簡便で汎用的な試験方法の確立が必要である。さらにポリエチレン管のRCP抵抗性に関して密度依存性およびアニーリングの影響が認められ、その原因の究明ならびにその成果を製造条件に反映させることが望まれている。

上記現状に鑑みて、著者は(a)RCPの現象の正確な把握、評価および解析手法の確立(b)簡便な評価試験方法の確立(c)ポリエチレン管の製造の上で

RCPに対して抵抗性の高い高次構造の究明を行った。本論文はこれらの研究成果をまとめたものである。

第1章は序論であり、RCP評価の現状を概観すると共に、本研究の目的について述べた。

第2章ではRCPの挙動を検討し、きれつ速度とガスの減圧波速度との競合関係に基づいて新しいRCPの解析・評価方法を提案し、その妥当性をS4試験等により検証した。この解析方法により、ポリエチレン管の複雑なRCPの挙動を簡便にかつ統一的に評価できることを明らかにした。すなわち、ポリエチレン管のRCPはきれつ速度がガスの減圧波速度に匹敵する脆性破壊モードでのみ生じ、延性破壊モードではきれつ速度が減圧波速度に比べ著しく小さいためきれつはアレストされると結論付けられる。これより、管の脆性-延性遷移温度(brittle-ductile transition temperature:以下BDTTと略す)を評価し、このBDTTが使用温度以下であれば、当該管はRCPに関して安全であると判定できる。これにより、品質管理法として簡便な方法の根拠を指摘できた。しかし、BDTT以下の温度においても、鋼管の脆性破壊伝播と異なって初期圧力が低い時にはきれつは減速しアレストされるので、この限界圧力に基づく設計方法がより合理的である。この限界初期圧力を、きれつ速度とガスの減圧波速度との競合関係に基づいた図式解析により定量的に評価できることを明らかにし、フルスケール試験での限界圧力がS4試験の限界圧力より大きいことを初めて解析的に導くことができた。

第3章ではRCPに対する品質管理試験に使う簡単な試験として、落錘衝撃試験DWTT(drop weight tear test)を検討し、ポリエチレン管のBDTTの評価基準を明らかにした。まず、DWTTによる脆性的破壊において、S4試験によるRCPでのきれつ速度に匹敵する高速のきれつ伝播を再現できた。また、試験温度の上昇による延性破面率の増加と共にきれつ速度は低下することを明らかにした。脆性-延性遷移温度域が存在するので、伝播限界温度を定めるためにはBDTTの適切な定義が必要である。そこで、RCPが生じる限界のきれつ速度から限界の延性破面率を定め、この破面率を示す温度をBDTTとして採用し得る。この基準となる延性破面率は30%以下と推定できた。実際にS4試験での伝播限界温度におけるDWTTの延性破面率は10%以下でありこの結果を裏付けた。また、高密度の樹脂ではBDTTは低く、またアニーリングは従来考えられていた残留応力の除去でなく高次構造の変化によりBDTTを低下させることを見出し、品質管理の重要性を指摘すると共にポリエチレンの靱性を向上させる可能性を得た。

第4章ではポリエチレンのBDTTについて検討し、

引張変形においてボイドによる顕著な白化を示す高密度の樹脂では、シャルピー試験のような高速破壊試験において、きれつ先端にマイクロボイドが容易に生成し、これが靱性を高めることを見出した。まず、シャルピー試験での吸収エネルギーに基づく遷移温度に関しては、高密度の樹脂の方が低密度の樹脂より低いことを明らかにした。フィブリル強度が靱性を支配するとの従来よりの考えでは、低密度の樹脂の方が高密度の樹脂より分子鎖の絡み合いが大きいため、高密度の樹脂の遷移温度の低下を説明できない。破面観察の結果、高密度の樹脂ではマイクロボイドに基づく破壊が脆性破壊に先行して生じており、マイクロボイドがきれつ遮蔽効果をもたらすことを見出した。さらに、ノッチ引張において、ノッチ先端部でマイクロボイドを伴ったクレイズ状破壊およびこれを起点とした脆性的破壊が生じる破壊モードから全面降伏になる破面の温度遷移に関して、高密度の樹脂ほど遷移温度は高く、クレイズ状破壊を生じ易いことを明らかにした。この結果は平滑試験片の引張試験において高密度の樹脂ほど白化-透明化の遷移温度が高く、ボイドによる白化を生じ易いことに対応することを見出した。そこで、高密度の樹脂のシャルピー試験での遷移温度の低下は、高密度の樹脂ほどマイクロボイドの生成が容易であることによると結論づけられる。

第5章では冷却条件およびアニーリング条件による高靱性化の最適条件をシャルピー試験により検討し、中密度および高密度の樹脂では、冷却速度を小さくするまたはアニーリングにより靱性を向上させることが可能であることを明らかにした。特に中密度の樹脂では、プロセス条件を適切に選択すれば、長期強度も靱性も同時に改善できることを見出した。フィブリル強度に基づく従来の考えではかかるプロセスは靱性を低下させるとされていた。実際、高密度の樹脂では靱性が向上する一方で伸びの低下、疲労強度の低下を生じることがわかった。その結果、フィブリル強度の低下にもかかわらず靱性が向上したことは、マイクロボイドの生成による高靱化機構の有効性を検証すると共に、これらプロセスがマイクロボイドの生成を促進していることを明らかにできた。またプロセス条件の影響は、高密度の樹脂ほど大きくなることを見出した。これは高密度の樹脂では分岐密度が少なく、結晶化における分子鎖の取込に対して分子の絡み合いの抜け抵抗が小さいためであることを明らかにした。

第6章は総括であり、本研究の成果をまとめるとともに今後の展望を示した。

論文調査の要旨

都市ガス用配管では従来の金属管に代わってポリエ

チレン管の利用が進みつつある。わが国では、まだ1バル以下での圧力でしかも比較的小径の管への応用に限られているが、ガス管に対するこの材料のもつ優れた性質が認識されるにともない圧力および管径の両面でその利用の幅が広がりつつある。この場合、高分子材料に共通な問題である延性-脆性遷移と、その結果起こりうる危険な急速亀裂伝播の問題は安全確保の上で極めて重要な研究課題となっている。

本論文は、ポリエチレンの急速亀裂伝播現象の評価・解析手法、この材料の脆性に関する簡易な評価法、ならびに材料の高次構造と脆性との関係について研究し、材料設計上有用な指針を与えることを目指したもので、次のような成果を得ている。

1. ポリエチレン管の急速亀裂伝播は、亀裂速度がガスの減圧波速度に匹敵する条件を持つ脆性破壊モードで生じ、脆性破壊でも亀裂速度がそれ以下にとどまる場合ならびに延性破壊モードにおいては亀裂は停止にむかうことを明らかにしている。

2. 管の延性-脆性遷移温度がその使用温度以下であれば安全であること、使用温度がこの遷移温度以下にあってもガス圧が低い場合には上述の亀裂停止条件を満たすことができることを示し、さらに、この限界ガス圧力を図式解析により容易に評価する方法を提案している。

3. 延性-脆性遷移温度を評価する簡便な方法として落錘衝撃試験を取り上げ、試験後の破壊面の延性破壊面率を定め、この数値が30%以下となる温度を延性-脆性遷移温度と定義することが妥当であることを明らかにしている。

4. シャルピー試験によって延性-脆性遷移温度を求め、この温度とポリエチレンの密度との関係を調べ、その結果この遷移温度は高密度のポリエチレンの場合に低密度の場合より低く、また、低速引張り試験時においてはこの関係は逆転して後者がより低い遷移温度を持つことを示した。この理由として、破壊面の形態、応力白化の様相ならびに電子顕微鏡による高次構造等の観察結果に基づき、高密度のポリエチレンにおいては衝撃下でマイクロクラックが高密度で発生し、クラックシールド効果が発現して、脆性破壊の発生が抑えられることを明らかにしている。

5. 中密度および高密度のポリエチレンでは、特定のアニール温度を選ぶことによりアニーリングによって上述のマイクロクラックの発生が有効に促進され、その結果、これまでの定説に反して耐衝撃性を向上させることができることを明らかにしている。

以上要するに、本論文はポリエチレン中の急速亀裂伝播の問題を扱い、亀裂速度とガス減圧波速度との競合関係の解析から急速亀裂を生じさせるガス限界圧力

を求め、また、延性-脆性遷移温度の簡便な定義法を提案すると共に密度ならびに熱処理条件と耐衝撃性発現の関係について新しい知見を提示しており、材料工学に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られる。

試験の結果の要旨

本論文に関し調査委員から、(1) 管中の減圧波速度と初期圧力の関係、(2) 大規模な実地テストと実験室規模のテストにおける脆性破壊挙動の違いの問題、(3) 管材中で亀裂が蛇行しながら進む理由、(4) ノッチ付試片の強度に対する密度の影響が静的及び動的負荷のもとで異なること理由などについて質問がなされたが、いずれも著者により適切な回答がなされた。

公聴会においては多数の出席者があり、多くの質問がなされたが、著者の説明によって、質問者の理解が得られた。

学力試験の結果の要旨

口頭により試問を行った。衝撃試験法、破壊力学、高分子力学物性などについて試問した結果、十分な学力を有することが確認された。また、研究者として自立して研究活動するに必要な能力を有することも認められた。

外国語の学力判定に関しては、本論文に関連する独語論文の和訳を提出させて試問を行った結果及び本人が発表した英語論文から十分な学力があるものと判定した。

氏名(本籍) 相澤正信(福岡県)
 学位記番号 総理工博乙第262号
 学位授与の日附 平成9年8月6日
 学位論文題目 円筒状固体電解質型燃料電池構成材料の高性能化に関する研究
 論文調査委員
 (主査) 九州大学 教授 森永健次
 (副査) 〃 〃 山添昇
 〃 〃 〃 持田勲
 〃 〃 〃 助教授 江口浩一

論文内容の要旨

本研究は、21世紀のクリーンエネルギーとしてその実用化に高い期待が寄せられている固体電解質型燃料電池の高性能化を目標とし、その主要構成材料である酸化セラムクスについて電極、インターコネクタお

よび電解質としての材料開発の設計指針を得ることを目的に行ったものである。

第1章では、燃料電池の原理と種類について概要を述べ、とくに固体電解質型燃料電池の特徴について示した。また、固体電解質型燃料電池を構成する材料やそのデザインについて現状の問題点を明らかにし、電池性能(出力や耐久性など)を向上するための課題を示した。そして本研究の目的が、優れた電気化学的な特性と高い耐久性を有する酸化物セラミックスを開発することであり、これによって固体電解質型燃料電池の早期実用化に貢献できることに本研究の意義があることを述べた。

第2章では、空気極やインターコネクタに適用が考えられる種々のLa系ペロブスカイト型酸化物である $(La_{1-x}A_x)MO_{3-\delta}$ ($\alpha = Sr, Ca, M = Mn, Co$)についてその焼結性や線膨張係数および導電率などの物性について評価した。その結果、これらの酸化物の焼結性は粉末の比表面積やX値およびAサイト欠損量に依存することを示した。導電率や線膨張係数もまた組成に著しく依存し、とくにBサイトにMnにCoを適量複合することで線膨張係数がYSZと同程度で、導電率を例えば1000℃で約2倍に向上できることを示した。

$(La_{1-x}Ca_x)CrO_3$ の合成に際し、出発物質や調製法を適正にすることで定比組成で緻密な焼結体の作製が可能であることを明らかにした。また、導電率と温度の積のアレニウスプロットにおいて良い直線関係が得られ、これらの酸化物の導電機構がスモールポーラロンホッピング機構であることが考えられた。

第3章では、 $(La_{1-x}Sr_x)_{1-z}(Co_{1-w}Mn_w)_{1-y_1-y_2}Al_{y_1}Ni_{y_2}O_3$ の化学式で与えられるペロブスカイト型酸化物に対し、電解質にYSZを用いた場合の空気極としての特性について評価した。その結果、カレントインタラクション法や交流インピーダンス法により求まるオーミックな抵抗成分は、電極組成のみならず電極焼成温度にも大きく依存した。このオーミック抵抗成分は電解質/電極積層素子のイオン導電性を示すものと考えられ、したがって電池の出力向上を目的として、電解質のイオン導電性の向上を図る場合、電解質材料のみならず電極材料との化学的な安定性を考慮する必要があることが明らかとなった。交流インピーダンス法より求めた分極導電率も電極組成や焼成温度に依存することが明らかとなった。とくに焼成温度が高い場合、酸化物組成が $X = 0.25, Y_1 = 0.015, Y_2 = 0.09, W = 1$ の電極で最も高い分極導電率が得られた。 $X > 0.25$ や $X < 0.25$ の酸化物ではYSZと反応して低イオン導電性の $SrZrO_3$ や $La_2Zr_2O_7$ が生成する傾向にあることを確認した。このような反応による新しい相の生成が、電池のイオン導電率および分極導電率に大きく

影響をおよぼすことが考えられた。またBサイトにCoが複合された($W = 0.75$)電極の性能はMn系の酸化物($W = 1$)に比べて著しく低下した。この酸化物では $\text{La}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ の反応相の生成が助長され、これが電極反応速度の低下の主要因と考えられた。交流インピーダンス法により求めたコールコールプロットにおいて観察された第2円弧の出現は、電極焼成温度(電極の多孔度)や電極の厚み、分極値(印加電流)にも依存することから、この円弧成分は電極内あるいは電極表面の酸化種の拡散や移動に起因する抵抗成分と考えられた。 $X = 0.25$, $Y1 = 0.015$, $Y2 = 0.09$, $W = 1$ の電極の分極導電率が最も高かった要因の一つとして、この電極では電極内に適度な多孔度が存在し、その細孔を経由することで、酸化種の電極内あるいは電極表面の拡散や移動に起因する抵抗が小さくなることが考えられた。作動温度が $800^\circ\text{C} \sim 1000^\circ\text{C}$ の範囲で、酸素分圧(P_{O_2})の電極反応速度におよぼす効果について検討した。 $P_{\text{O}_2} \leq 10^{4.33}\text{Pa}$ の範囲では、交換電流密度および分極導電率の対数と P_{O_2} の対数の間に、傾きが $1/2$ の直線関係が得られた。これらのことから、 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_{1-z}(\text{Co}_{1-w}\text{Mn}_w)_{1-y1-y2}\text{Al}_{y1}\text{Ni}_{y2}\text{O}_3$ の電極反応において、酸素原子の電極表面への吸着あるいは酸化物イオンの拡散が律速段階であることが考えられた。

第4章では、 β -ジケトン金属錯体を原料に用いた ZrO_2 膜のCVDにおいて、まず高温合成を目的に酸化ガス種(O_2 , $\text{H}_2\text{-CO}_2$)および炉内全ガス圧力の効果について検討し、次に $\text{ZrO}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$ 膜の合成を目的として、原料気化量や析出温度の効果について検討した。その結果、酸化ガスに $\text{H}_2\text{-CO}_2$ を用い、炉内全ガス圧力を低減することで、 1000°C 程度の高温での薄膜合成が可能であることを確認した。また ZrO_2 膜の合成において、析出温度が $850^\circ\text{C} \sim 1000^\circ\text{C}$ の範囲では、成膜速度の活性化エネルギーは約 47kJ/mol であった。酸化ガスに O_2 を用いた $\text{ZrO}_2\text{-Y}_2\text{O}_3$ の合成において、 Zr(DPM)_4 および Y(DPM)_3 のそれぞれの気化量を制御することで、膜中の Y_2O_3 含有量を制御できることが明らかになった。析出温度が $600^\circ\text{C} \sim 650^\circ\text{C}$ の範囲では、成膜速度の活性化エネルギーは約 127kJ/mol であり、CVD合成過程において化学反応が律速段階と推察された。

第5章では、 $(\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x)\text{CrO}_3$ ($0.15 \leq X \leq 0.3$)に対し、インターコネクタとしての特性を検討した。大気中あるいは加湿水素中でアニール試験を行い、導電率の測定および結晶相の同定を行った。次に $(\text{La}_{0.75}\text{Ca}_{0.25})\text{CrO}_3$ (LCC)のディスクと空気極材料である緻密または多孔質な $(\text{La}_{0.75}\text{Sr}_{0.25})_{1-z}\text{Mn}_{1-y1-y2}\text{Al}_{y1}\text{Ni}_{y2}\text{O}_3$ (LSMN)ディスクの積層サンプルに対し、インターコ

ネクタを模擬した条件下で耐久試験を行い、同様に評価した。その結果、大気中のアニール処理において導電率およびその活性化エネルギーに変化は観察されず、電気的特性の耐久性は良好であった。XRD法およびSEM/EDXを用いた分析結果から、 $X \geq 0.2$ の酸化物でアニール時間に伴い表面に $\text{Ca}_5(\text{CrO}_4)\text{O}_{0.5}$ が生成することが確認され、この折出には大気中の酸素が関与することが推測された。

インターコネクタの作動条件を模擬した条件下で300hの耐久試験を行い、その結果空気極の性状によらず大気中でのアニール試験と同様にLCC/LSMN積層サンプルの導電率に変化は観察されず良好であった。

しかしLCC/LSMN界面には、とくに空気極の組織(多孔度)に依存して様々な元素の相互拡散あるいは反応生成物が観察された。熱力学的な検討の結果から、これらの反応には主に空気極の多孔度に起因して生じる酸化物内部および界面の酸素ポテンシャル分布が関与することが推察され、LCCおよびその基板であるLSMN(空気極)の組成や組織を適正にすることで、耐久性に優れたインターコネクタを作製可能であることが示唆された。

第6章では、これまでに得られた知見をもとに、円筒状固体電解質型燃料電池を作製し、集電方式、空気極支持管の特性および酸化剤中の酸素濃度などのセル性能におよぼす効果について検討した。平板型集電セルにおいて、 1000°C で酸化剤に O_2 を用いて得られる最大出力密度は約 4Wcm^{-2} と高く、電解質に起因するIR損を考慮すると、本研究で開発された空気極と電解質間の分極導電率は実用上十分な性能であることが示された。円筒型集電セルにおいて、酸化剤に空気をを用いた場合、出力は空気極支持管の気孔率や厚みに大きく依存し、これらの特性にたいし適正な値が存在することがわかった。例えば、気孔率が約36%で、1.7mmの厚みの空気極支持管を用いたセルで、最大出力密度が約 0.46Wcm^{-2} と実用上十分に高い値が得られた。

交流インピーダンス法を用いて求めたコールコールプロットにおいて、酸化剤の酸素濃度が低下するにつれ、また空気極支持管の厚みが増大するにつれ第2円弧に起因するインピーダンス成分が増加することを確認した。燃料流量を低減しても第2円弧に変化は生じないことから、この円弧はおもに空気電極内の酸化物イオンあるいは酸素ガスの拡散によることが明らかとなった。したがって酸化剤に空気をを用いて発電する場合、酸化種の拡散が高い空気極支持管の開発がセル性能の向上を図る上で重要な課題であることが明らかとなった。

第7章では、本研究の成果を総括した。

論文調査の要旨

ZrO₂-Y₂O₃ (YSZ) を電解質に用いる固体電解質燃料電池 (SOFC) は、原理的に高い発電効率と高品位な熱エネルギーの両方が期待できる一方、その実用化のためには高い温度で作動する電池材料の耐久性が確立される必要がある。本研究は、高出力、高耐久性 SOFC の実用化を目指して、円筒状 SOFC 構成材料の高性能化を究明したものであり、以下に示す成果を得ている。

(1) (La_{1-x}Sr_x)_{1-z}(Co_{1-w}Mn_w)_{1-y₁-y₂}Al_{y₁}Ni_{y₂}O₃ の化学式で与えられるペロブスカイト型酸化物を空気極としての評価を行った結果、オーミックな抵抗成分や分極導電率は、組成のみならず、焼成温度にも大きく依存すること、X = 0.25 のみの酸化物において YSZ との反応が抑制されることを見出し、オーミックな抵抗成分が小さく、分極導電率が高い空気極の作製に成功している。

(2) 上記 La 系ペロブスカイト型酸化物を詳細に検討した結果、酸化物組成が X = 0.25, Y₁ = 0.015, Y₂ = 0.09, W = 1 で最も高いイオン導電性と分極導電率が得られることを示し、高性能 SOFC のための空気極の最適組成を決定している。さらにこの組成の酸化物が高い電極性能を示す理由として、電極内部に適度な多孔度が存在し、その細孔を經由した酸化種の拡散や移動が容易になることを挙げ、その解析と実証に成功している。

(3) β-ジケトン金属錯体を原料に用いた CVD による ZrO₂ 膜の作製を検討している。その結果、酸化ガスに H₂-CO₂ を用い、炉内全ガス圧力を低減することで、1000℃ 程度の高温で薄膜合成が可能であることを見出している。さらに ZrO₂-Y₂O₃ 膜の合成においては、Zr および Y のそれぞれの錯体の気化量を制御することで膜中の Y₂O₃ 含有量を制御することに成功している。

(4) (La_{1-x}Ca_x)CrO₃ (0.15 ≤ X ≤ 0.3) に対し、インターコネクタとしての特性を評価するためアニール試験を行い、X ≥ 0.2 の酸化物では大気中のアニールに伴い表面に Ca₅(CrO₄)O_{0.5} が生成すること、この生成は大気中の酸素が関与することを明らかにしている。次に (La_{0.75}Ca_{0.25})CrO₃ (LCC) と空気極材料である (La_{0.75}Sr_{0.25})_{1-z}Mn_{1-y₁-y₂}Al_{y₁}Ni_{y₂}O₃ (LSMN) の界面には、特に空気極の多孔度により元素の相互拡散が助長され、反応相が生成することを明らかにした。これらの現象に対し、熱力学的な検討の結果から、これらの反応は LCC および LSMN の組成や組織を適正にすることで、抑制が可能であることを見出し、耐久性に優れたインターコネクタ作製が可能であることを実証

している。

(5) 以上の結果を基に、円筒状固体電解質型燃料電池を作製し、発電性能に及ぼす種々の因子を検討している。その結果本研究で達成された空気極と電解質間の分極導電率は実用上十分な性能であることを実証している。すなわち気孔率が約 36% で、1.7mm の厚みの空気極支持管を用い、最大出力密度が約 0.46 Wcm⁻² の高性能セルの開発に成功している。また、酸化剤に空気を用いて発電する場合、酸化種の拡散が容易な空気極支持管の開発がセル性能の向上を図る上で重要な課題であることをも明らかにしている。

以上要するに、本研究は円筒状固体電解質型燃料電池の実用化に不可欠である電池の高出力化および耐久性の向上に対し、種々の電池構成材料である酸化物セラミックスの組成を決定し、その作製に成功したものである。とくに電池の高出力化の目的に対しては、実用値に十分達しており、これらの研究内容は、セラミックス工学、化学工学および電気化学上価値ある業績である。よって本論文が、博士 (工学) の学位論文に値するものと認める。

試験の結果の要旨

本論文に関し調査委員から、(1) La 系ペロブスカイトの A サイト、B サイト置換と物性の関係、(2) 固体電解質と空気極の界面反応機構、(3) 支持体の多孔質の形状と物性の関係、(4) SFOC の今後の課題、などについて質問がなされたが、いずれも著者からの確かな回答がなされた。

また、公聴会においては、学内外より多数の出席者があり活発な質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上の結果により、著者は試験に合格したものと認めた。

学力確認の結果の要旨

口頭により試験を行った。無機材料化学、電気化学、材料プロセス工学などに関して試問した結果、十分な学力があり、かつ研究者として自立して研究活動を行うに必要な能力を持つものと認めた。

外国語の学力に関しては、本論文に関係のある独語論文の和訳を提出させ試問した結果及び本人が発表した英語論文から判断して、十分な学力をもつものと判断した。

氏名 (本籍) 上 瀧 恵里子 (福岡県)
学位記番号 総理工博乙第263号

学位授与の日附 平成9年8月6日
 学位論文題目 トカマク装置の長時間運転における
 データ処理法の研究

論文調査委員

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

論文内容の要旨

核融合炉の実現を目指し、トカマク装置における長時間運転の実験研究が国際熱核融合実験炉 ITER あるいは日本原子力研究所の臨界プラズマ試験装置 JT-60SU で本格的に着手されようとしている。生成されるプラズマの診断に不可欠な計算機を用いたデータ処理システムでは、放電終了を待って動作を開始する従来のパルス運転用のデータ収集、解析法をそのまま長時間あるいは連続運転に適用させることは不可能であり、何らかの新しいデータ処理法の開発が必要となった。

長時間に及ぶ放電をより良い状態で持続させるためにも、放電の終了を待つことなく放電中に放電と並行してプラズマの状態を診断・監視し、運転条件改善のための情報を提供するデータ処理法が不可欠である。また放電の全体像を把握するために部分的なデータ収集の繰り返しではなく、連続性を保ったままのデータ収集法の確立も必要である。

またこれまでの研究により長時間運転のプラズマは安定に維持し得る事が確認されているが、安定した定常状態に近いプラズマであっても何らかの要因で未解明の事象が起こり放電に影響を与える可能性もある。放電中に何らかの要因でそのような事象が発生した場合に備え、その部分だけを詳細にデータ収集・解析する事も長時間放電の全体の情報を得ることと併せて重要である。

本研究はトカマク装置における長時間運転の実現に伴い、従来のパルス運転のための手法では対応できなくなった長時間運転のために必要な新しいデータ処理法を開発研究することを目的としている。

長時間運転のためのデータ処理法についてはフランスの超伝導トカマク装置 Tore Supra あるいはヨーロッパ連合トラス装置 JET などにおいて検討されているが、実際に数分以上の長時間にわたりトカマクプラズマを生成しているのは、九州大学応用力学研究所の超伝導トカマク装置 TRIAM-1M のみである。新しいデータ処理法を実機において適用し、その有効性を検証しつつ開発研究しているのは唯一本研究のみであり、本研究による成果は今後の長時間運転のためのデータ処理法の開発に指針を示すものである。

以下に本論文の概要を示す。

第1章では核融合炉開発におけるトカマク装置の長時間放電の現状とそのプラズマ診断におけるデータ処理システムの課題をまとめる。

第2章ではトカマク装置のためのデータ処理システムの概要を示すため、その一例として著者が整備を行った TRIAM-1M のデータ処理システムについて、プラズマ診断のための主要な計測機器、データ処理システムのハードウェア、ソフトウェアについて説明する。更に実機による実験で経験した従来のパルス運転のためのデータ処理法を長時間放電へ対応させた場合の問題点を示す。

第3章では、トカマク装置の連続運転を意識した長時間運転のために新たに開発したサイクリック処理について述べる。この処理法は、長時間放電のプラズマに対し、放電中に一定間隔毎にデータ収集・解析を繰返し交互に行なうとともに、プラズマの監視を行なうために開発した。この方法を TRIAM-1M の長時間放電に適用し、放電時間全体のデータを中断することなく連続して収集・解析し、なおかつ1時間及び2時間の放電に充分対応できることを確認した。また TRIAM-1M の長時間放電の経験から、安定した定常状態のプラズマにはある程度粗いサンプリングレートであっても支障が無いことを確認した。

第4章では第3章のサイクリック処理を補完する目的で開発した長時間放電中の発生時期を予測できない急激な変化 (event) に対応するデータ処理法について述べる。第3章では安定な定常プラズマを対象としたが、実験では急激なプラズマ諸量の変化を伴う未解明の事象が予期せず起こる可能性もある。そこで何らかの変化が生じた時にその部分だけを詳細にデータ収集・解析する手法を確立した。その処理方法について説明し、実際に長時間放電に適用した結果について示し、長時間放電中の変化に対応できることを確認した。

第5章では本研究の総括を行い、併せて長時間放電のプラズマ診断・データ処理に関する今後の課題について考察する。

論文調査の要旨

核融合炉の開発研究は近来トカマク型装置を中心として大きく進展し、一部の大型トカマク装置で1秒程度の短時間ではあるが、D-T バーニングによる約10MWの熱核融合出力を実現するに至っている。一方将来の核融合炉として必要とされる連続運転の研究においても超伝導トカマク装置の Tore Supra で2分、あるいは TRIAM-1M で2時間を越える運転時間を実現し、現在計画中の国際熱核融合実験炉 (ITER) でも1000秒の長時間運転が予定されている。

トカマク装置で得られるプラズマの計測データを解析するデータ処理については、トカマク装置がもともとパルス運転から出発した装置であるため、全てのデータ処理システムはパルス運転に対応するものであり、放電終了を待ってデータ解析を行う手法を採ってきた。しかし、運転時間が長くなると放電終了後に解析を行う方法では不十分であり、運転中にプラズマ状態を知ることが出来ない。さらに連続運転となった場合には全く使用できない。したがって、運転と並行して放電中のプラズマの計測データを解析し、プラズマの監視が可能となる長時間あるいは連続運転のための新しいデータ処理法が必要となった。

本論文ではこの目的のため、トカマク装置の長時間運転において有効に動作する新しいデータ処理法を開発し、超伝導トカマク装置 TRIAM-1M の長時間運転の実験に適用し、その有効性を確認したもので、以下の成果を得ている。

1. 長時間運転のデータ処理法として、データ収集・解析・出力・保存の一連の処理系統を完全に二系統に分岐させ、放電と並行して二つの系統が独立して一定の時間間隔毎に交互に動作を繰り返す方法を開発し、サイクリック処理法と命名した。この処理法を TRIAM-1M の長時間運転に適用してその有効性を実証した。

2. サイクリック処理法においては、切換時点で200ワード程度オーバーラップさせてデータを収集することにより、切換えによるデータの読取り誤差のないことを確認し、解析処理に支障がないことを明らかにした。

3. 運転中に何らかの要因で突然プラズマの物理量に急激な変化が生じる事象が発生した場合、従来の粗いサンプリングレイトのデータ収集では、データを読み落とす可能性がある。事象の発生を予め想定し常時速いサンプリングレイトでデータ収集することは効率的ではなく、またメモリ容量の点からも限界がある。運転中に事象が発生した時にその部分のみを詳細にデータ収集・解析することが望ましい。そこで従来から CAMAC 機器が持っていた性能を応用し、放電中に事象が発生した時のみデータ収集動作を行う新手法（イベントトリガー法）を開発した。この手法を

TRIAM-1M の実験に適用し、発生を予測できない事象のデータ収集・解析に有効であることを確認した。

4. このイベントトリガー法は、事象発生を検知するためのモニター信号の選択次第で放電中の諸事象に対応することが可能であり、またサイクリック処理法との組み合わせにより運転中に複数回事象が発生する場合にも十分対応可能であることを明らかにしている。

以上、要するに本論文はトカマク装置の長時間運転において従来のデータ処理法に代わる長時間放電のための新しいデータ処理法を開発し、実機に応用しその有効性を実証したものであり、長時間運転に向けての課題の一つとされていたデータ処理の問題を解決したもので、核融合学及び情報科学に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られる。

試験の結果の要旨

本論文について調査委員から（1）フィードバック制御への応用手法、（2）他のトカマク装置のデータ処理法、（3）放電中に事象が複数回発生した場合の対処法、（4）外部トリガーと CAMAC メモリの関係、（5）従来の手法と新手法で得た事象の解析結果の間の整合性、などについて質問がなされたが、いずれに対しても著者より満足な回答が得られた。また公聴会においては、学内外から多数の出席者があり、種々の質問がなされたが、いずれも著者の説明によって質問者の理解が得られた。

以上の結果から、著者は試験に合格したものと認められた。

学力確認の結果の要旨

口頭により試問を行った。核融合学、プラズマ理工学、情報科学などについて試問した結果、十分な学力があり、かつ研究者として自立して研究活動を行うのに必要な能力を有するものと認めた。外国語の学力に関しては、英語については本人が発表した英文論文からみて、また独語については本論文に関係のある独語論文の和訳を提出させて試問を行った結果から判断して、十分な学力を持つものと判定した。

