

学位論文審査報告

八木, 秀明

中川, 幸二

<https://doi.org/10.15017/17481>

出版情報 : 九州大学大学院総合理工学報告. 20 (4), pp.341-345, 1999-03-01. 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) 八木 秀明 (愛知県)
 学位記番号 総理工博乙第282号
 学位授与の日附 平成10年9月30日
 学位論文題目 産業用セラミック湿度センサの研究

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 山 添 昇
 (副査) 〃 〃 阿 部 弘
 〃 〃 持 田 勲

論文内容の要旨

従来、生産管理、品質向上や快適空間を求めめるための環境制御は、湿度管理を中心に行われてきた。これに比べて、湿度計測は、歴史は古いが精度、耐久性、計測原理などに問題があったため、大きく立ち遅れていた。近年、セラミックスや高分子を用いた電気抵抗式あるいは電気容量式の湿度センサが開発され、研究が活発となったが、まだ経時安定性などの問題をかかえていた。また、繊維や木材の乾燥、食品化工、燃焼といった産業プロセスの管理では、高温雰囲気下での湿度計測が求められるが、これに対応できる湿度センサは皆無であった。本研究は、このような現状認識に立って、経時安定性に優れた電気抵抗式セラミック湿度センサや、高温雰囲気下での水蒸気(絶対湿度)を測る新しい方式のセラミックセンサなどについて検討を加えたもので、それぞれ従来にない高信頼、高精度の実用湿度センサを開発するに至った。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、湿度センサへの開発市場要求、湿度センサの現状、セラミック湿度センサの研究開発状況および問題点を整理するとともに、研究の目的および概要を述べた。

第2章では、経時安定性に優れたセラミック湿度センサについて検討した。従来のセラミック湿度センサでは、化学吸着水の形成により素子抵抗が増大するため、約10分間隔での頻繁な加熱クリーニングにより化学吸着水を除去する必要があるのが問題であった。このような経時変化が、センサの微細構造に関係しているとの観点からゾルゲル法微粒子を用いた Al_2O_3 - TiO_2 - SnO_2 混合物を材料とするセンサ系について組成および焼成温度の最適化を行い、セラミックヒーターによる1日1回の加熱クリーニングで十分という安定性に優れた湿度センサを達成した。このセンサは、 $-20\sim 100^\circ\text{C}$ という広い温度域で、 $10\sim 95\% \text{RH}$ の湿度を信頼性よく計測できることを確認した。このセンサ

では、セラミック粒子の粒径が $0.1\sim 0.2\mu\text{m}$ と従来センサにくらべて $1\sim 2$ 桁小さく、微細孔が発達していることが、経時安定性の増大に寄与していること、および素子経時変化が物理吸着水層を通しての Grothus 型プロトン移動によるものであることを推論した。

第3章では、センサの寿命は信頼性にあることから上記の湿度センサについて実用化に向けての環境評価を行った。結露サイクル、煙草のタールや油などによる汚れ、有機溶剤ガスなどへの暴露など様々な環境下で耐久試験を行った結果、センサがこれらの妨害を受けないことが確認された。また、塩水飛沫の付着は有害であるが、撥水性膜コートが有効な塩害対策になりうることを示した。さらに CO_2 の影響調査、実際の空調制御に近い煙草粉塵試験による寿命推定に関する検討も併せ行い、高信頼で耐久性ある感湿特性が得られたことを確認した。

第4章では、さらに経時安定性が高く、加熱クリーニングを要しないセラミック湿度センサについて検討した。通常セラミックスでは、低湿度域での高抵抗が避けがたいことから Na イオン電導性を示す NASICON 系に着目し、これを材料とする湿度センサの特性を詳細に調べた結果、P を含まない組成 ($\text{Na}_4\text{Zr}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$) を用いたもので最も良好な感湿特性が得られ、エージング処理を行えば、1年間以上の経時安定性を保証することができることを見出した。この湿度センサは、上記加熱クリーニング型センサにくらべて若干劣るものの、通常目的には十分な計測精度を持っている。厚膜印刷法により安価に生産できるので、1年で素子交換するタイプの湿度センサとして有用であることを示した。

第5章では、高温雰囲気中の水蒸気分圧を計測するセンサ(絶対湿度センサ)の開発について検討した。従来、ジルコニア固体電解質を用いて酸素ポンプを作り、限界電流によって酸素濃度を計測する酸素センサが知られているが、この原理を拡張したものとして、 1.4V 以上の印加電圧下で水蒸気を電気分解し、その際の限界電流を用いる方式の水蒸気センサを開発した。陰・陽電極(多孔質)をジルコニア固体電解質の同一平面内に配置し、これをガス拡散層としても働かせるという、新規で製造容易な平面積層型のセンサ構造を設計開発した。このセンサは、印加電圧 (E) によって、酸素のみに起因する第1限界電流 (I_{L1} , $E=0.5\sim 1.0\text{V}$) と、酸素および水蒸気に起因する第2限界電流 (I_{L2} , $E=1.5\sim 2.0\text{V}$) を示すので、全圧一定であれば、 I_{L2} から水蒸気分圧を知ることができる。このセンサにより、 $20\sim 200^\circ\text{C}$ の温度雰囲気下で $0\sim 450\text{mmHg}$ の水蒸気が高精度で計測することができることを確認した。また、 (I_{L2}/I_{L1}) 比が、水蒸気と一定

の関係にあることを見だし、これがセンサの校正など正確な湿度検出に役立つことを見だした。

第6章では、前章のセンサは、直火による直接加熱および燃焼系では、水蒸気濃度と共に酸素、 CO_2 、 CO 、 NO_x 濃度が同時に変化するため、正確な水蒸気測定ができないことから、ジルコニア固体電解質の同一表面上に3つの多孔質電極を設け、一つの電極を共通電極として二つの陰電極に異なる電圧を印加することにより、水蒸気と酸素を同時に計測するマルチセンサを開発した。直火および燃焼系でこのセンサの感湿特性を検討した結果、酸素変動の影響を一番大きく、他ガスの影響は小さいこと、従って酸素濃度の補正をすれば、ほぼ正確に水蒸気の測定ができることを明らかにした。

第7章では、Pn接合型セラミック湿度センサについて検討した。このセンサはP型酸化物焼結体とn型酸化物焼結体を機械的に接触させ、この両側から順方向に直流電圧を印加し、流れる電流によって湿度を計測するタイプのものである。P型酸化物としてCuOあるいはCoO、n型酸化物としてZnOを用いた湿度センサについて感湿特性や検出機構を検討し、P型酸化物が安定化できれば、新しいタイプの湿度センサとして、実用化できる可能性があることを指摘した。

第8章では、本論文の総括を述べた。

論文調査の要旨

近年、生産管理や品質管理の上から環境湿度の制御が重要になってきている。このため、常温近傍での湿度計測については、セラミックスや高分子を用いた湿度センサが用いられているが、まだ経時安定性などに問題をかかえている。一方、乾燥、食品加工などといった高温雰囲気での湿度計測に対応できるセンサの開発も待たれている。本研究は、このような状況に鑑み、常温近傍で作動し、経時安定性に優れた電気抵抗式セラミック湿度センサや、高温雰囲気下での水蒸気分圧（絶対湿度）を計測する限界電流式セラミック湿度センサなどについて検討を加え、それぞれについて信頼性の高い湿度センサの開発に成功したものである。本論文で得られた主な成果は以下の通りである。

1) 通常セラミック湿度センサは、細孔内への水の物理吸着層を通してのプロトン移動による素子の電気抵抗減少を利用して湿度を計測する。しかし、従来のセンサでは、多くの場合、水の化学吸着による素子抵抗の経時的な増大がおこるため、加熱クリーニング処理を頻繁に（極端な場合は10分間隔で）繰り返す必要があった。本研究では、このような経時変化が素子の微細構造に関係しているとの想定のもとに、ゾルゲル法微粒子からなる Al_2O_3 - TiO_2 - SnO_2 3元酸化物セ

ンサ系について、組成および焼成温度と感湿特性の関係を詳細に検討し、組成を Al_2O_3 :60モル%、 TiO_2 :20モル%、 SnO_2 :20モル%とし、1150℃で2時間焼成して得た焼結体素子が、1日1回のクリーニングで十分という格段に優れた経時安定性を示すとともに、-20~100℃の温度域で、10~95%の相対湿度を信頼性よく計測できることを明らかにしている。さらにこの素子のセラミック粒子径が0.1~0.2 μm と従来センサに比べて1~2桁小さく、適度な大きさの微細孔が発達していることが経時安定性の増大に寄与していることを指摘している。

2) 経時安定性をさらに高める観点から、Naイオン導電性のNASICON系材料を用いた湿度センサについて詳細に検討し、特にPを含まない組成($\text{Na}_4\text{Zr}_2\text{Si}_3\text{O}_{12}$)のものを用いれば、良好な感湿特性とともに、加熱クリーニングなしに1年以上の安定動作を保証できる湿度センサを得られることを明らかにしている。そして、プロトン電導に加えて、Naイオン電導がおこることが、このような経時安定性の増大に寄与していることを指摘している。さらに、スクリーン印刷法を用いた厚膜素子の量産法を確立し、計測精度 $\pm 3\%$ を1年間保証する素子交換タイプの非加熱クリーニング型簡易湿度センサの実用化に成功している。

3) 高温雰囲気中の水蒸気分圧測定用として、限界電流式水蒸気センサの開発にはじめて成功している。すなわち、2枚のジルコニア固体電解質板の間に陰・陽両電極（多孔質白金）を配置し、電極層をガス拡散層としても働かせるという新規で製造容易な平面積層型構造の素子を開発するとともに、この素子（500℃で動作）が、印加電圧によって酸素に起因する第1限界電流(I_{L1} , $E=0.5\sim 1.0\text{V}$)と、酸素および水蒸気に起因する第2限界電流(I_{L2} , $E=1.5\sim 2.0\text{V}$)を示すこと、したがって大気圧下の通常条件では I_{L2} から水蒸気分圧を知ることができることを明らかにしている。そして、このセンサにより温度20~200℃の雰囲気中に含まれる0~450mmHgの水蒸気分圧を高精度で計測できることを実証している。さらに、 I_{L2}/I_{L1} 比が電極活性によらず水蒸気分圧のみの関数となることを理論、実験両面から明らかにし、これを用いてセンサ較正が容易に行えることを指摘している。

4) 酸素分圧や CO_2 分圧などが変動する直火型乾燥機などへの応用を可能とするため、上記の素子を3電極構造に拡張し、 I_{L1} と I_{L2} を同時に計測するマルチセンサを開発している。そして、 I_{L1} から酸素分圧を知り、これを用いて I_{L2} を補正すれば、このような系でもほぼ正確に水蒸気分圧が計測できることを実証している。

以上要するに、本論文は、電気抵抗式セラミック湿

度センサにおいて従来問題とされて来た水の化学吸着に起因する経時変化が、セラミックス粒子径の制御あるいは Na イオン導電性セラミックス材料の採用によって抑制され、それぞれ 1 日あるいは 1 年にわたり連続使用可能な産業用湿度センサが得られることを実証するとともに、従来未開発であった高温用湿度センサとして、限界電流式水蒸気センサを提案実証したもので、センサ工学およびセラミックス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る。

試験の結果の要旨

本論文に関して調査委員から、1) Al_2O_3 - TiO_2 - SnO_2 3 成分系セラミック粒子の混合状態、2) 粒子径の微細化によって経時安定性が向上する理由、3) Na イオン導電体材料を用いたセンサの感湿機構、4) 同センサが経時安定性に優れる理由、5) 限界電流式水蒸気センサの経時安定性と湿度較正法、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。表面科学、無機材料化学、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、本論文に関係した独語論文の和訳を提出させ試問した結果および本人が発表した論文の英語および試問の結果から判断して、十分な学力を持つものと判断した。

氏名(本籍) 中川 幸二 (千葉県)
 学位記番号 総理工博乙第283号
 学位授与の日附 平成10年11月24日
 学位論文題目 ターボ冷凍機用翼付ディフューザの開発研究
 論文調査委員
 (主査) 九州大学 教授 速水 洋
 (副査) " " 松尾 一 泰
 " " " 小山 繁
 " " " 井上 雅 弘

論文内容の要旨

ターボ冷凍機用圧縮機ではオゾン層破壊防止のため塩素原子を含まない代替冷媒への移行が実施され、代替冷媒の物性による単位冷凍能力当たりエネルギー消費の増加の対策と、地球温暖化防止のための炭酸ガス排出量低減の要請から、効率は従前にまして重要な指標である。本開発研究はこうした要請に応えるべく、広く採用されていた羽根なしディフューザに代えて翼付ディフューザを実用化するため実施したものである。

ターボ冷凍機は主に空気調和の熱源として使用されるため、冷凍能力を全負荷時の10ないし20%まで制御する必要がある。エネルギー消費低減のため、バイパス制御は必要最小限に止めなければならず、作動範囲が広い羽根なしディフューザが使用されてきた。ターボ冷凍機用圧縮機は段当たり圧力比が2ないし4に達するため、高亜音速から遷音速で作動し、かつ羽根なしディフューザと同等の作動範囲を持つ翼付ディフューザを実現することが本開発研究の課題であった。初めに遷音速翼付ディフューザの作動範囲に対する全のど部面積(翼間流路のど部断面面積の合計)の影響、翼断面形の影響を調べたが、翼断面形の改良によってディフューザの作動範囲を拡大することは大流量、小流量いずれの側にも困難であることが判明した。ディフューザ流入流れが亜音速の場合は特性曲線の大流量側のヘッド、効率の低下が急激でなく、比較的作動範囲が広い点に注目して、流入流れのマッハ数が低い翼付ディフューザについて翼前縁のシュラウド側延長の小流量側の作動範囲拡大効果を調べた。シュラウド側前縁延長の効果により、入口案内羽根開度100%では実用上のサージ限界が最大20%小流量側に移動した。また入口案内羽根開度40%の状態では、旋回失速限界が最大17%小流量側に移動するとともに旋回失速状態の騒音レベルが1~5 dB(A)低下して実用上の作動範囲が拡大した。

遷音速域における作動範囲拡大のため、前縁の延長部分を翼から切り離れた小翼として配置し、翼負荷低減を図った翼付ディフューザ(小翼付ディフューザと呼ぶ)の効果を調べた。ダンパ開度100%ではサージ限界流量は約14パーセント小流量側に移動した。ダンパ開度40%では、小翼の作用により失速状態にある翼付ディフューザの圧力回復が改善されたこととダンパの抵抗特性の組み合わせの効果によってサージ限界流量は約35パーセント減少し、サージヘッドは15%増加した。

翼回りの圧力分布の測定と有限体積法を用いた流れの数値解析により小翼の作用を調べたところ、小翼が流れをディフューザ翼負圧面に沿う方向にガイドする

ためはく離に近い状態の流れ領域に運動エネルギーが注入されて逆流が抑制され、圧力回復が改善されることが判明した。また小翼付ディフューザを作動範囲が広い小弦節比円形翼列ディフューザと比較実験したところダンパ開度100%では、ほぼ同等の効果がありダンパ開度40%では小弦節比円形翼列ディフューザの方が圧力回復、安定性ともに優れていることが判明した。さらに、入射角が大きい場合、小弦節比円形翼列ディフューザの負圧面シュラウド側壁面近くに内周側に向かう2次流れが生ずることを有限体積法を用いた流れの数値解析を用いたシミュレーションにより確認できた。

なおシュラウド側前縁を延長した翼付ディフューザを備えた1台の冷凍能力10,000冷凍トンの世界最大級2段圧縮ターボ冷凍機の実用化に成功した。また1台あたりの冷凍能力386.1kW(110冷凍トン)から4387.5kW(1250冷凍トン)までの空気調和用の機種を中心に、ブライン冷却などの工業用の中小容量用途には、小翼付ディフューザを備えた単段圧縮あるいは2段圧縮のターボ冷凍機の実用化に成功した。

論文調査の要旨

ビル空調用に広く利用されているターボ冷凍機では、冷凍能力を全負荷時の10ないし20%まで制御する必要性から、効率は低いものの負荷変動に応じて作動範囲が広い羽根なしディフューザがもっぱら用いられている。近年の地球規模環境問題から、例えば、オゾン層破壊防止のため塩素原子を含まない代替冷媒への移行が実施され、代替冷媒の物性に起因する単位冷凍能力当たりエネルギー消費量増加に対する対策の要請、あるいは地球温暖化防止のための炭酸ガス排出量低減の要請から、高効率化は従前にまして重要な指標である。ターボ冷凍機の一つの要素である遠心圧縮機において、羽根車出口の運動エネルギーを圧力に変換するディフューザの役割が重要であり、このディフューザの効率を上げるには、流れを制御するための翼を円周方向に配置した翼付ディフューザの使用が不可欠である。

本論文は、ターボ冷凍機の性能向上に関して、翼付ディフューザの開発研究をまとめたもので、本研究で示された特色ある結果ならびに知見は以下の通りである。

1) 翼形とくさび形の2種類の翼付ディフューザの作動範囲について、全のど部面積および翼断面形状の影響を調べ、ディフューザ作動範囲拡大のためには新しい翼形状の開発が必要であることを明確にしている。

2) ディフューザ流入流れが亜音速の場合について、ディフューザ翼の前縁のシュラウド側を一部延長した翼(いわゆる前縁小翼)を用いることにより、以下の

ように実用上の作動範囲拡大に成功している。すなわち、入口案内羽根開度100%では実用上のサージ限界が最大20%小流量側に、また入口案内羽根開度40%の状態でも旋回失速限界が最大17%小流量側に移動するとともに旋回失速状態の騒音レベルが1~5dB(A)低下している。

3) ディフューザ流入流れが遷音速の場合について、小翼を翼から切り離し、これを周方向にオフセットすることにより、著しい性能改善が得られている。すなわち、作動流体がHCFC22の場合について、入口案内羽根開度100%ではサージ限界流量は約14%小流量側に移動し、入口案内羽根開度40%では、小翼の作用により失速状態にある翼付ディフューザの圧力回復が改善されることと入口案内羽根の抵抗特性の組み合わせの効果によってサージ限界流量が約35%減少し、かつサージヘッドが15%増加している。

4) 翼回りの圧力分布の測定と有限体積法を用いた流れの数値解析により小翼の作用を調べている。その結果、小翼が流れをディフューザ翼負圧面に沿う方向にガイドして、はく離に近い状態の流れ領域に運動エネルギーが注入されて逆流が抑制され、圧力回復が改善されることを明らかにしている。

5) 圧縮機初段にシュラウド側前縁を延長した翼付ディフューザを採用することにより、地域冷暖房用10,000冷凍トンの世界最大級2段圧縮ターボ冷凍機の実用化に成功している。さらに、110冷凍トンから1,250冷凍トン程度までの空気調和用および工業用の用途として、小翼付ディフューザを備えた単段あるいは2段圧縮のHFC134a対応ターボ冷凍機の実用化に成功している。

以上要するに本論文は、ターボ冷凍機用遠心圧縮機に前縁小翼あるいは小翼付翼列ディフューザを採用することにより高効率化ならびに広流量域化に成功するとともに、その効果を空力的に明らかにし、かつ実用化例を示したもので、環境エネルギー工学およびターボ機械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る。

試験の結果の要旨

本論文に関して調査委員から、従来の翼形と前縁小翼あるいは小翼付翼形との関連、前縁小翼あるいは小翼付翼列の最適設計法、小翼の有無による翼負荷の違い、サージにおける圧力変動振幅の大小、冷媒の取扱法と冷凍機としての特殊事情、減速損失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あった。

また、公聴会においては、学内外から多数の出席者があり様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た。

学力確認の結果の要旨

口頭により試験を行った。流体工学，気体力学，熱工学などに関して試問を行った結果，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文論文の和訳を提出されて試問を行った結果から判断して，十分な学力を有するものと判定した。

