

学位論文審査報告

<https://doi.org/10.15017/17661>

出版情報：九州大学大学院総合理工学報告．8（1），pp.85-121，1986-07-25．九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) 吉武春光(福岡県)
学位記番号 総理工博甲第27号
学位授与の日附 昭和61年1月25日
学位論文題目 機械翻訳の方式に関する基礎的研究

論文調査委員

(主査) 九州大学 教授 田町常夫
(副査) 〃 〃 駒宮安男
 〃 〃 吉田 将
 〃 〃 相良節夫

論文内容の要旨

計算機による自然言語処理の研究は、ハードウェアの発達により、機械翻訳や自然語によるデータベース検索、エキスパートシステムなどの形で、ここ数十年盛んに行われている。特に最近数年は、第5世代計算機の研究との関連で、国内外ともに非常に活発に研究が行われている。これにより Prolog などの自然言語処理に適したプログラミング言語や高速で安価な処理機械が利用できるようになった。従来より、機械翻訳の方式については意味処理、談話処理の導入の必要性は認められているが、本格的な研究はまだ始まったばかりであり、どのような処理をどの程度導入すれば最も効率的かについては、まだ明らかでない。本研究は、機械翻訳の方式としての意味処理を基礎とした翻訳を最終目標とし、その基礎資料を得るため、種々な方式について基礎的研究を行ったものである。

本論文は6章からなる。

第1章では、本研究の目的、歴史的背景および本論文の概要を述べている。

第2章では、筆者が開発したトランスファ方式による日英双方向機械翻訳システム BIJET について述べている。BIJET はプログラム言語 Prolog によって構文処理部を記述しており、解析部をそのまま生成部として用いることができる。他の処理部は Lisp と Prolog によって記述しており、構文処理部と共に比較的少ない数のモジュールによって双方向システムを構成している。BIJET は中間表現として英語と日本語の D-tree を設計し使用している。英語処理では、辞

書への単語登録の容易さを考えた形態素処理部を設計した。日本語の入出力文はべた書きの漢字平仮名混じり文である。構文解析は依存文法に基づくものであるが、日本語処理では接続の考え方を新たに取り入れている。BIJET の開発により英語、日本語における構文処理、両国語間のトランスファ処理の基本的手法を確立した。

第3章では、横田等の提案による意味表現を用いた中間言語方式の日英機械翻訳システムについて述べている。このシステムは気象情報理解システム (ISOBAR) において実現されている言語処理部の機能を拡張・改善したものであり、構文処理および意味処理を厳密に区別し、それぞれについて独立した処理を行っている。入力文は日本語構文解析部において依存構造解析を行い、意味構造生成部によって中間言語に変換している。日本語については、基礎実験であるため、簡易的な形態素処理を行っているが、このシステムの開発により、中間言語方式による機械翻訳の種々の問題点が明確になった。

第4章および第5章では、機械翻訳において必要な意味処理、談話処理の基礎を固めるために開発した。自然言語理解システム IMAGES について述べている。意味処理導入の問題を解決するには、構文および意味処理過程のそれぞれを定性的および定量的に分析することが必要であると考え、それぞれが完全に独立して機能するように設計した。IMAGES は意味表現に横田らの軌跡式表現を用いており、処理対象は外界事象に関する英文である。現在までに英語の単文を処理対象とする解釈システム IMAGES-I と、英語の談話を処理対象とする質問・応答システム IMAGES-II を作成している。第4章では、IMAGES の構文処理について述べている。構文解析過程は基本的には第3章までに述べたシステムと同様に依存構造解析を行っているが、最小構文単位を単語にとり、更に表層格を採用しない等、以後の意味処理の要求に応じた処理を行う。次に第5章において、IMAGES-II の意味処理について述べている。意味処理は、まず、構文解析の出力の依存構造に従って単語の意味を組み合わせ文の意味を生成する。更に、代名詞処理や定冠詞処理を行いながら入力文の意味を組み合わせることで談話の意味を作り出している。IMAGES-II は、質問・応答により機械が理解した内容を確認するシステムである。入力談話は短期記憶として保存され、理解のために必要な外界

の知識は長期記憶に保存されている。この研究により談話処理と知識の導入についての手掛かりが得られた。

最後に第6章では結論として、本研究をまとめ、更に将来の展望を述べている。

論文調査の要旨

機械翻訳の研究は、国際的、社会的な要請の高まりとともに、処理機械、ソフトウェア、知識工学などの進歩による技術的背景のもとに、最近著しく活発になっている。しかしまだ完全な実用化までには至っていない。

機械翻訳に意味処理の必要なことは最近特に強調されているが、あいまい性の解決を目的とする翻訳と、意味理解を目的にした知能システムとは意味利用の必要性は異なると考えられ、翻訳に必要な意味の深さ、種類、処理段階、利用方法などについて明確に指摘し得る段階には至っていない。

この論文は機械翻訳への意味の導入にあたって、方法や導入段階、必要な知識の種類などの手がかりを得ることを目的として行った研究の結果をまとめている。

現在機械翻訳の方式にはトランスファ方式と中間言語方式(理解システム)の2つの考え方がある。著者はこのそれぞれの方式の基本的特徴を明確にしたシステムの設計から出発して、導入すべき意味のレベルを明確にすることを考慮し、種々の検討を行っている。

著者はまず構文処理の段階で意味情報を排除した表層構造のトランスファによる日英双方向の翻訳システム(BIJET)を試作した。この特色は構文解析部および構文生成部を1つのPrologプログラムを用いて作成し、解析と生成の双方向に使用できるようにしたこと、依存構造の解析を行ってこの構造を変換するものであること、トランスファ部に規則のほかに手続きを組入れ質の向上をはかっていることなどである。

つぎに言語・画像間の翻訳のための言語独立な中間言語をもつ気象情報理解システム(ISOBAR)を利用し、この中間言語を経由する日英機械翻訳システムの実験を行っている。これによりGrenoble大学のCETA方式で指摘されていた中間言語方式の問題点を明確にし、その解決の可能性を示唆する幾つかの知見を得ている。

さらに著者は横田等の提案による意味表現を用いた自然言語理解システム(IMAGES)を具体化し、意味処理導入の問題を明確にするため、構文および意味処

理過程を独立して機能するよう設計した。意味処理の手法はR. C. Schankの概念依存表現のような概念間の関係で文の意味を表現するのではなく、文の概念そのものを表現する点に特色がある。したがって談話の処理についてはM. MinskyのフレームやSchankのスキプトのような限られた状況下での意味の記述ではなく、知識構成として開世界の考え方をを用いている。このシステムにより英語文の意味処理(文内)、文脈処理(文間)、談話処理(質問応答)の実験を行いシステムの有効性を確かめているが、外界に関する談話の意味をこのように詳しく記述した実現例は他に例を見ない新規なものであると言える。

以上の各種の方法による翻訳および理解システムはそれら自身としても特色ある方式であると言えるが、著者はトランスファ方式、中間言語方式、意味理解システムのそれぞれについて翻訳システムへの意味導入、理解システムでの表層形式の考慮等に対し多くの知見を得ている。

以上要するに、本論文は機械翻訳に意味を導入する問題に関し、意味処理の利用段階、利用方法、利用の程度、必要な知識の種類、そのための方式の改善策等について実用化のための手掛かりを与えたもので、情報システム工学上寄与する所が大きい。よって本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

氏 名(本籍) 酒 勾 博 彦(鹿児島県)
学 位 記 番 号 総理工博甲第28号
学位授与の日附 昭和61年3月27日
学位論文題目 交差共役トリエン類を用いるくりかえしDiels-Alder反応に関する研究

論文調査委員

(主 査)	九州大学	教 授	柘 植 乙 彦
(副 査)	〃	〃	竹 下 齋
〃	〃	〃	田 代 昌 士
〃	〃	〃	荒 井 弘 通

論文内容の要旨

周知のように、Diels-Alder反応は[4+2]環状付加反応の代表的なもので、6員環化合物合成の最も重要な方法である。Diels-Alder反応については、この半世紀の間に数多くの研究がなされ、天然物の合成へ

の応用と共に新しいジエン、親ジエンの開発に関する研究が活発に行われている。一方、Diels-Alder 反応を連続して行いうる系は、一気に多環化合物が合成できるために有機合成化学上有用であり、そのような系の開発は魅力ある重要な研究分野である。

近年、このような観点からの研究が活発に行われ、二、三の連続的に Diels-Alder 反応を行う系が開発されている。しかし、いずれの場合にも出発物質の合成や安定性、さらに反応性などに問題点があり、必ずしも一般性の高い有用な合成法とは言えない。

そこで著者は、交差共役トリエンおよびその等価体がくりかえし Diels-Alder 反応に適した系であること着目し、比較的安定で、合成容易な交差共役トリエンおよび交差共役トリエン等価体の一般的合成法を開発し、それらの Diels-Alder 反応の特性 (立体選択性、配向選択性、モノ選択性など) を明らかにし、“くりかえし Diels-Alder 反応” による多環化合物の合成法を確立することを目的とした。本論文は、適当な位置に置換基を有する新しいタイプの交差共役トリエンおよび交差共役トリエン等価体を合成し、それらの連続的くりかえし Diels-Alder 反応あるいは段階的くりかえし Diels-Alder 反応を検討した結果をまとめたもので6章からなっている。

第1章は緒論で、“くりかえし Diels-Alder 反応” に関する従来の研究の概要と本研究の背景、目的および意義などを述べた。

第2章では、官能化された新しいビス (シリルオキシ) 交差共役トリエン体である 3-ベンジリデン-2, 4-ビス (トリメチルシリルオキシ)-1, 4-ペンタジエンを合成し、このトリエン体と種々の親ジエン類との反応を検討し、その結果、期待通りに“くりかえし Diels-Alder 反応” により 1:2 付加体を生成することを明らかにし、この反応を“ジエン伝達 Diels-Alder 反応” と命名することを提唱した。また、その反応の配向選択性、立体選択性などについても論じた。

第3章では、活性化置換基としてメトキシ基を導入した活性交差共役トリエン体、3-メトキシメチレン-2, 4-ビス (トリメチルシリルオキシ)-1, 4-ペンタジエンを合成し、このトリエン体および第2章で合成した 3-ベンジリデン-2, 4-ビス (トリメチルシリルオキシ)-1, 4-ペンタジエンを用いて、交差型ジエン伝達 Diels-Alder 反応について検討した。3-メトキシメチレン-2, 4-ビス (トリメチルシリルオキシ)-1, 4-

ペンタジエンは、3-ベンジリデン-2, 4-ビス (トリメチルシリルオキシ)-1, 4-ペンタジエンよりも最初の Diels-Alder 反応性が高く、環状オレフィン類との反応では、1:1 付加体を選択的に与えることを明らかにし、その結果、環状オレフィン類を用いた交差型 1:2 付加体の合成に成功した。さらに非対称オレフィン類を用いた交差型 1:2 付加体の合成の可能性についても述べた。

第4章では、交差反応を自由に制御できる新しい交差共役トリエンの開発を目的として、2-エトキシ-3-メチレン-1, 4-ペンタジエンと 3-メチレン-1, 4-ヘキサジエンを合成し、それぞれのジエン伝達 Diels-Alder 反応性を検討した。2-エトキシ-3-メチレン-1, 4-ペンタジエンは、モノ置換ジエン部側から位置選択的に反応が進行することを明らかにした。3-メチレン-1, 4-ヘキサジエンは、ジ置換ジエン部からの反応が優先し、高い反応性を有することを明らかにした。しかし、当初目的とした交差反応は達成されなかった。

第5章では、交差反応を自由に行える新しい系として、交差共役トリエン等価体の開発を行った。すなわち、クロロブレンから出発して、1, 3-ブタジエニル基を有する 2-(2-ブロモ-1-エトキシエチル)-, 2-(2-トリルオキシプロピル)-1, 3-ブタジエンおよび 2-メチル-3-メチレン-4-ペンテン-2-オールを合成し、これら各々のジエン体は交差共役トリエン等価体として機能し、種々の交差型 1:2 付加体を与えることを明らかにした。また、各反応の配向選択性、立体選択性についても論じた。さらに環状ケトン類とクロロブレンの Grignard 試薬から得られる 2-(1, 3-ブタジエニル) アルコール体を用いたテトラヒドロナフトアヌレーションおよびナフトアヌレーション反応をも開発した。

第6章は第2章から第5章までの総括である。

論文調査の要旨

代表的な [4+2] 環状付加反応である Diels-Alder 反応 (以下 D-A 反応と略す) は、最も重要な合成反応の1つであり、近年における D-A 反応の合成化学への応用には顕著なものがある。一方、多環型化合物の合成は重要な合成化学の分野であり、その有効な合成法の開発が強く望まれている。D-A 反応は 6 員環形成反応であるので、連続的に D-A 反応を行う系が開発できれば多環型 6 員環化合物が一挙に合成できることになる。

本論文は、このような観点からくりかえし D-A 反応に適した新しい交差共役トリエンを開発してその D-A 反応に対する反応性を明らかにすると共に、更に交差共役トリエン等価体の開発へと展開した結果をまとめたものである。

従来、くりかえし D-A 反応を行う系の例は若干報告されているが、本研究で開発した反応系は汎用性が高く、交差型 D-A 反応にも応用できることを明らかにしている。

以下、本論文の主な成果について述べる。

1) 反応活性および付加配向の制御などを考慮して、比較的安定な 2, 4-ビス (シリルオキシ) 交差共役トリエン類および 1-または 2-位に電子供与性基をもつ交差共役トリエンの合成法を確立している。

2) 2, 4-ビス (シリルオキシ) 交差共役トリエンとオレフィンおよびアセチレン類との反応を研究し、one-pot で 2 個の 6 員環が縮環した化合物が合成できることを明らかにし、この新しいくりかえし D-A 反応型式に“ジエン伝達 D-A 反応”と命名することを提唱している。

3) 上記の交差共役トリエンの 3-メチレン部の置換基および親ジエンの性質がジエン伝達 D-A 反応の反応活性と立体化学に及ぼす効果を明らかにすると共に、交差型ジエン伝達 D-A 反応へと展開している。

4) 1-および 2-置換交差共役トリエンのジエン伝達 D-A 反応を研究し、交差共役トリエンの置換基が付加配向の選択性に及ぼす効果を明らかにしている。

5) 更に、一般性の高い交差型のくりかえし D-A 反応を行う系として、新しい 4 種の交差型トリエン等価体を合成し、各等価体の段階的くりかえし D-A 反応の特徴を明らかにしている。特にクロロブレンを経て容易に合成できる各種の 2-(1, 3-ブタジエニル) 置換アルコール体を用いる段階的くりかえし D-A 反応は、第 1 の D-A 反応、脱水、第 2 の D-A 反応を one-pot で行うことができ、かつ種々の交差型付加体が合成でき、多環型化合物の合成に極めて有用であって、特筆すべき成果である。

以上要するに、本論文は新しい交差共役トリエンの D-A 反応によってジエン伝達 D-A 反応という新しいくりかえし D-A 反応を見出し、本反応の立体化学、レギオ化学および反応活性に及ぼす諸因子を明らかにし、更に交差型のくりかえし D-A 反応に適した交差共役トリエン等価体を開発して多環型化合物の新しい

合成法を確立した。これらの成果は有機合成化学の分野に寄与するところが大きい。よって、本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

氏 名 (本籍) 松 田 光 陽 (鹿児島県)

学 位 記 番 号 総理工博甲第 29 号

学位授与の日附 昭和 61 年 3 月 37 日

学位論文題目 トリメチルシリルメチル置換試剤
の合成及び複素環合成への展開

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 柘 植 乙 彦

(副 査) “ “ 斎 藤 省 吾

“ “ “ 竹 下 齋

“ “ “ 田 代 昌 士

論文内容の要旨

有機金属化合物で代表されるように、新しい合成試剤の開発は、有機合成化学の分野に計り知れないほどの発展をもたらした。有機ケイ素化合物の開発もその 1 つであり、近年ケイ素の特性を活かした合成反応の進展には著しいものがある。しかし、複素環合成は合成化学の重要な分野であるにもかかわらず、複素環合成試剤としての有機ケイ素化合物の開発に関する研究は少ない。

有機ケイ素試剤の特性の 1 つは、ケイ素-炭素結合開裂の際に最もよく発揮されるので、ヘテロ原子にシリルメチル基が隣接した試剤は、複素環合成に有用であろう。そこで、本研究では N-シリルメチル置換試剤として、シリルメチルイミン及びヘテロクムレン類の新しい合成法の開発、並びに各試剤の含窒素複素環合成の試剤としての有用性を確立することを目的とした。

第 1 章では、シリルメチル置換試剤の特性と本研究の背景、目的及び意義について述べた。

第 2 章では、シリルメチル置換試剤の合成について検討した。まず、文献未知のシリルメチルアジドを合成し、このアジド体とトリフェニルホスフィンとの反応で生成したイミノホスホラン体を経由する種々のシリルメチルイミン、イソシアナート、イソチオシアナート、カルボジイミド及びケテンイミン体の新しい one-pot 合成法を確立した。

第 3 章では、シリルメチルアジドを用いた環状付

加と脱シリル化反応を組み合わせた反応を検討した。アセチレン及びオレフィン類との環状付加反応により、シリルメチル基を有するトリアゾール、トリアゾリン及びアジリジン体の合成並びに各生成物の脱シリル化反応を検討し、トリアゾール体の1位の化学修飾が可能であって、シリルメチルアジドが α 位が官能化されたメチルアジドとして有用なこと、及びフッ素アニオンによる新しいアジリジン環の開裂反応を見出した。

第4章では、シリルメチルカルボジイミド及びケテンイミン体の脱シリル化反応を検討した。脱シリル化反応によって生じた α -ヘテロクムレニルカルボアニオンは、アンビデントなカルボアニオンとしてアルデヒド類と反応して、2種のオキサゾリジン体が生成することを見出した。特に、ヘテロクムレン部の中央炭素の求核攻撃によるオキサゾリジン体の生成は、従来のヘテロクムレンの反応には見られない特異な現象である。

第5章は、シリルメチルイミン体を用いる反応について述べた。シリルメチルイミン体から、アゾメチンイリド及びアザアリルアニオンをそれぞれ選択的に生成する条件を見出した。すなわち、水の作用により非安定化型アゾメチンイリドが生成することを確認し、電子不足オレフィンとの環状付加反応によって1位が無置換のピロリジン体を合成できることを確立した。他方、フッ素アニオンの作用ではアザアリルアニオンが生成し、カルボニル化合物及び Michael 受容体と求核付加反応することを示した。更に、付加体からのアミノアルコール体、 γ -ブチロラクトム体の合成へと展開した。

第6章では、第5章の知見を基にして、非安定化型ニトリルイリド等価体としての脱離基を有する非安定化型アゾメチンイリドの生成と環状付加反応について検討した。シリルメチルイソチオシアナートからシリルメチルチオイミデート、及びチオアミド、またシリルメチルカルボジイミドからシリルメチルアミジン体をそれぞれ合成し、各化合物から脱離基をもつN-プロトン化アゾメチンイリドの生成法を確立した。そして、各環状付加反応において各アゾメチンイリドが、非安定化型ニトリルイリド等価体として機能することを明らかにし、ピロリン、ピロール及びオキサゾリン体の新規合成法を開発すると共に、各非安定化型ニトリルイリド等価体の反応性の相違についても論じた。なお、この結果は、非安定化型ニトリルイリド等価体生成の最初の例である。

第7章では、前章までの結果を総括したものである。

論文調査の要旨

金属のもつ特性を活かした有機金属試剤の開発は合成化学の分野の発展に大きく貢献した。有機ケイ素試剤の開発もその1つである。一方、複素環合成は合成化学の重要な分野であるが、複素環合成試剤としての有機ケイ素化合物は少なく、有用な試剤の開発が強く望まれている。このような試剤の開発に当たってはヘテロ原子を含む有機ケイ素化合物で、合成が容易でかつ安定であること、更に1, 3-双極子またはその前駆体となり得ることが望ましい。

このような観点から、本論文では含窒素複素環合成の有機ケイ素試剤として種々のN-シリルメチル置換化合物をとりあげ、新規なN-シリルメチル試剤を含む種々の試剤の合成法を確立し、各試剤が含窒素複素環の合成に有用であることを明らかにしている。

以下、本論文の主な成果について述べる。

1) 文献未知のシリルメチルアジドを合成し、アセチレン及びオレフィン類への1, 3-双極性環状付加と脱シリル化とを組み合わせた反応を検討し、シリルメチルアジドは α 位が官能化されたメチルアジドとして有用であることを明らかにしている。

2) シリルメチルアジドから同一のイミノホスホラン中間体を經由する種々のシリルメチルイミン、イソシアナート、イソチオシアナート、カルボジイミド及びケテンイミン体の one-pot 合成法を確立している。各種のN-シリルメチル試剤が同一の原料から容易に合成できるので、価値ある成果といえる。

3) シリルメチルカルボジイミド及びケテンイミン体の脱シリル化反応によって生じる α -ヘテロクムレニルカルボアニオンはアルデヒド類へ環化して2種のオキサゾリジン異性体を生成することを見出し、ヘテロクムレニルカルボアニオンがアンビデントなカルボアニオンとして反応した最初の例を示している。

4) シリルメチルイミン体から非安定化型アゾメチンイリドとアザアリルアニオンとを選択的に生成させる条件を確立し、これら2種の化学種を用いて含窒素複素環の合成へと展開している。特に、シリルメチルイミン体から水の作用によってN-プロトン化アゾメチンイリドが生成することを明らかにした成果は特筆すべきことである。

5) 上記の結果に基づき、シリルメチルイソチオシアナートからシリルメチルチオイミデート及びチオアミド、またシリルメチルカルボジイミドからシリルメチルアミジン体をそれぞれ合成し、各化合物から脱離基をもつ N-プロトン化アゾメチンイリドの生成法を確立し、各アゾメチンイリドは環状付加において非安定化型ニトリルイリド等価体として機能することを明らかにしている。この成果はピロリン体、ピロール体及びオキサゾリン体の新規な合成法の開発のみならず、非安定化型ニトリルイリド等価体の生成の最初の例を示したものととして注目されるものである。

以上要するに、本論文は含窒素複素環合成に有用な各種の N-シリルメチル置換試剤の簡便な合成法を確立し、種々の複素環合成における各試剤の有用性と特徴とを明らかにしたもので、有機合成化学の分野に寄与するところが大きい。よって、本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

氏 名 (本籍) 岩 本 英 壽 (福岡県)
学 位 記 番 号 総理工博甲第 30 号
学位授与の日附 昭和 61 年 3 月 27 日
学 位 論 文 題 目 テトラキス [3, 5-ビス (トリフルオロメチル) フェニル] ホウ酸イオンを触媒とするアニオン型相間移動触媒反応の研究

論文調査委員

(主 査)	九州大学 教 授	小 林 宏
(副 査)	〃	〃 竹 下 齋
〃	〃	〃 田 代 昌 士
〃	〃	〃 荒 井 弘 通

論文内容の要旨

相間移動触媒反応はその有用性によって、工業的にも又、実験室的にも広く利用されているが、その殆ど総ては四級アンモニウム塩やクラウンエーテル金属錯体等のカチオン種を触媒に使用する、いわゆるカチオン型相間移動触媒反応であり、従って、その応用範囲は求核置換反応や塩基触媒反応等のアニオン性試剤の関与する反応に限られている。一方、求電子反応や酸触媒反応等のカチオン性試剤の反応に応用できるアニオン型相間移動触媒反応については相間移動触媒として使用可能な脂溶性有機アニオン種が開発されな

ったために、一、二の試行的研究例が行われたに過ぎず、その有用性を実証する体系的な研究は見られなかった。

本論文は脂溶性並びに耐酸性に優れたテトラキス [3,5-ビス (トリフルオロメチル) フェニル] ホウ酸イオン (TFPB⁻) を相間移動触媒物質に使用してアニオン型相間移動触媒反応系を構成し、合成化学的応用並びにこの反応系における触媒の作用機構について研究した成果をまとめたものである。

本論文は序論及び結論を含めて 7 章から成っている。

序論では従来の均一反応系との対比において二相系を用いる相間移動触媒反応系の特色を述べ、アニオン型触媒を用いる場合の特徴を考察した。又、本反応系に関連する従来の研究並びに用いられている相間移動触媒物質の問題点を概説して、本研究の目的とその意義を述べた。

第 1 章では明確なカチオン性試剤であるベンゼンジアゾニウムイオンを求電子試剤に選び、固-液及び液-液二相系に於けるジアゾカップリング反応を用いて TFPB⁻ の触媒機能を実証した。更に、液-液二相系におけるジアゾカップリング反応をモデル反応系に用いて速度論的解析を行い、アニオン型相間移動触媒反応系の触媒反応サイクルを明らかにした。

第 2 章では希硫酸との液-液二相系において有機溶媒相中に H₃O⁺-TFPB⁻ の形で取り込まれたオキソニウムイオンを用いてアリアル置換メタノールから炭素カチオンまたはその等価体が生成することを見出し、その炭素カチオン試剤の関与する反応例として各種芳香族化合物に対する Friedel-Crafts アルキル化反応が二相系において効率良く進行することを示した。更に、水相の硫酸濃度を増加すると有機溶媒相中の水濃度が減少し、同時に Friedel-Crafts アルキル化反応が大きく加速することを明らかにして、有機溶媒相中のオキソニウムイオンの水和が反応速度を支配する重要な因子であることを指摘した。

第 3 章では同じく希硫酸との液-液二相系の有機溶媒相中において H₃O⁺-TFPB⁻ が亜硝酸から酸触媒的にニトロソニウムイオンまたはその等価体を生成することを見出し、系内で芳香族化合物の C-ニトロソ化、芳香族二級アミンの N-ニトロソ化、及び芳香族一級アミンのジアゾ化を行って、TFPB⁻ の相間移動触媒効果並びに二相系ニトロソ化反応の触媒反応サイクル

を明らかにした。

第4章では従来法で困難であった2, 4-ジニトロアニリン, ペンタフルオロアニリン, 4-アミノテトラフルオロピリジン等の弱塩基性アミンのジアゾ化に前章で述べた二相系ニトロソ化反応を応用し, 系内でのジアゾカップリング反応及びジアゾニオ基の置換反応がアニオン型相間移動触媒反応条件下に効率良く進行することを明らかにして, 新規合成法としての本触媒反応系の有用性を例示した。

第5章では置換ベンゼンジアゾニウムイオンとN, N-ジメチルアニリン(DMA)とのジアゾカップリング反応をモデル系に用いて詳細な速度論的検討を行い, 極性溶媒均一反応系に比べて相間移動触媒反応条件下での液-液二相系, 及び固-液二相反応系においては順次大きな加速効果のあることを明らかにした。極性溶媒としてアセトニトリル-水1:1混合溶媒, 疎水性溶媒として塩化メチレン, 更に極性の低い1, 2-ジブロモテトラフルオロエタン(フレオン114B2)を用いてジアゾニウムイオンの反応性に及ぼす溶媒の極性効果をHammettの反応定数(ρ 値)により評価することを試み, 極性溶媒中での反応に比べて疎水性溶媒中での反応では ρ 値の著しい増大が認められ, 疎水性溶媒中におけるジアゾニウムイオンの脱溶媒和がその反応性を増大させることを明らかにした。又, フレオン114B2のような塩化メチレンに比べて極性の更に低い溶媒中での反応では低い ρ 値が得られることを見だし, この異常性はジアゾニウムイオンに対するDMAの局所的な溶媒和によることを示した。

結論の章では求電子反応への相間移動触媒反応系の応用並びにTFPB⁻の触媒特性について本論文で述べた研究成果を総括した。

論文調査の要旨

有機反応は多くの場合, 反応物質を有機溶媒に溶解した均一溶液系で行われるが, イオン性物質の関与する反応においては使用できる溶媒の種類は限定される。本論文で取り上げている相間移動触媒反応はイオン性有機物質を触媒に用いて水と有機溶媒との二相混合系で有機反応を行うことを可能にした新しい合成反応方法であり, 溶媒や試剤類の経済性の点, あるいは反応操作の簡便性等の特長からその有用性が認識されて, 近時広く実用に供され, また多くの研究が行われている。しかし, その殆ど総ては四級アンモニウムイオン,

クラウンエーテルアルカリ金属錯体等の陽イオン種を触媒に用いる, いわゆる, カチオン型相間移動触媒反応である。一方, 陰イオン種を触媒に用いるアニオン型相間移動触媒反応については, 有効な触媒物質が見出されなかったためにその有用性を実証する体系的な研究は見られなかった。

本論文で著者はイオン対抽出試剤として開発されたテトラキス[3, 5-ビス(トリフルオロメチル)フェニル]ホウ酸イオン(以下, TFPBと略称)の脂溶性並びに耐酸・耐酸化性に着目し, この有機陰イオン種を触媒に用いて疎水性有機溶媒と水相との二相系でアニオン型相間移動触媒反応系を構成すること及びこの反応系における触媒の作用機構並びに合成化学的应用についての研究の成果を述べており, 次のような注目すべき知見を得ている。

1. 典型的な陽イオン型試剤として種々のジアゾニウムイオンを取り上げ, TFPB触媒を用いる液・液二相反応系においてはそれらのジアゾカップリング反応が均一溶液系で行われる従来法に比べて著しく加速されることを一連のカップラー成分との反応により証明している。これらの知見は実験室的合成法のみならず染料合成等の工業化学の分野でも重要なアゾカップリング反応に新規の方法を開拓したものである。

2. 上記の二相系ジアゾカップリング反応において反応速度に対する攪はん効果の検討並びに各成分物質の反応次数の解析によりジアゾカップリング反応が陰イオン種を触媒とする相間移動触媒反応機構で進行していることを証明している。この成果はアニオン型相間移動触媒反応系の成立を初めて実証した評価すべき知見である。

3. 同じく二相系ジアゾカップリング反応において反応速度に対するジアゾニウムイオンの置換基効果及び反応溶媒の極性効果の解析を行い, アニオン型相間移動触媒反応における加速効果が陽イオン性試剤に対する溶媒和によって支配されること, また, この反応系においてTFPB触媒は陽イオン性試剤を脱溶媒和的環境に取り込み, 試剤を有効に活性化していることを示して触媒の作用機構を明らかにしている。

4. 水相に硫酸を含む液・液二相系においてTFPB触媒がオキシニウムイオンを疎水性有機溶媒中に可溶化することを見出し, この触媒反応系においてポリアリールメタノールからはベンジルカチオン型炭素陽イオン種, また亜硝酸, 三酸化二窒素等からはニトロソ

ニウム型窒素陽イオン種、あるいはこれらの等価体が酸触媒的に生成することを示すと共に、これらの陽イオン型反応種の二相反応における触媒反応サイクルを解明している。

5. 上記の二相反応系において生成させたニトロソニウムイオンを用いて、芳香族第一アミンをジアソニウムイオンに変換し、単離することなしにそのまま同じ反応器中で各種の後続する反応を行うことのできる相間移動触媒反応系の構成に成功し、不安定なジアソニウムイオンの関与する反応に応用してその有用性を例証している。これらの知見は相間移動触媒により疎水性有機溶媒相に取り込まれた低次の陽イオン種を用いて同じ反応器内で高次の陽イオン型反応種を生成させ、これを合成反応に利用する相間移動触媒反応の新しい応用形式を示したものとして評価される。

以上、本論文はアニオン型相間移動触媒反応系について触媒の作用機構並びに触媒反応系の特長を明らかにすると共に、その新しい応用形式を種々例証しており、物理有機化学及び有機合成化学に寄与するところが大きい。よって本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

氏 名 (本籍) 中 山 光 治 (神奈川県)
学 位 記 番 号 総理工博甲第 31 号
学位授与の日附 昭和 61 年 3 月 27 日
学 位 論 文 題 目 重水素標識芳香族カルボン酸類の
位置選択的合成に関する研究

論文調査委員

(主 査)	九州大学	教 授	田 代 昌 士
(副 査)	〃	〃	柘 植 乙 彦
	〃	〃	斎 藤 省 吾
	〃	〃	竹 下 齋

論文内容の要旨

同位体には、安定同位体と放射性同位体とが存在することは周知の通りである。放射線の検出が容易であるため、放射性同位体は現在まで化学のみならず多くの分野においてトレーサーとして利用され、各分野の研究活動に大きな貢献をなしてきた。しかしながら、それらは人体に有害であり、取り扱いが容易でないなどの欠点がある。一方、安定同位体にはそのような欠点はなく、また、最近の各種分析機器の発達と普及に

よって確認定量が容易になったため、安定同位体の利用が放射性同位体にとらず各分野において盛んとなった。数多くの安定同位体のうち、入手し易い重水を供給源とすることや大きな同位体効果が期待されることなどから重水素標識体が最も広く利用されている。

また、最近本標識体が非標識体と異なった生理活性を示すことも見出され、今後重水素標識体の研究は多くの分野においてますます重要になってくると思われる。多くの研究がなされているにもかかわらず、有機化合物の所定の位置に任意の数の重水素を導入する方法は現在確立されていない。

そこで、著者は有機化合物の基本的物質の一つであり、また生理活性の点からも興味をもたれる芳香族カルボン酸の位置選択的重水素標識法を開発する目的で本研究を行い、その結果を本論文にもとめた。本論文は 7 章よりなっている。

第 1 章では、重水素標識化合物の従来の研究概要と本研究の目的、意義などについて述べた。

第 2 章では重水素標識の安息香酸の出発原料であるハロ安息香酸の合成及び還元的脱ハロゲン化反応について述べた。すなわち、*o*-位に臭素をもつ安息香酸類は対応するプロモトルエン類の直接酸化では合成が困難であるが、Kröhnke 反応を経由する間接的酸化で容易に得られることを明らかにした。また、重水素標識法における基礎的操作の条件を確立するため、上述のハロ安息香酸類の 10% NaOH 水溶液中数種のラネー合金で処理する還元的脱ハロゲン化反応を種々の条件下で行った。その結果以下のことが明らかとなった。i) ラネー合金の活性は次の順であった。Ni-Al > Co-Al > Cu-Al ≧ Fe-Al. ii) Cu-Al 合金はクロロ安息香酸類に対して不活性でプロモ体のみを還元した。iii) ハロ安息香酸 0.2 mmol のハロゲン—原子当たり 150~200 mg の合金が必要である。

第 3 章では、第 2 章で述べた基本的操作法に基づき、ハロ安息香酸類からの重水素標識安息香酸の合成について種々検討しその結果をまとめた。すなわち、Ni-Al 合金を用いた場合、水素-重水素交換反応が併発し生成した重水素標識体の同位体純度は著しく低下した。Co-Al 合金は Ni-Al 合金より弱い水素交換反応活性を示した。これに反し、Cu-Al 合金は水素交換反応に対してほとんど活性を示さず、高い同位体純度でプロモ安息香酸類から対応する重水素標識安息香酸類を与えた。

第4章では、重水素標識安息香酸の合成法を重水素標識酸類の合成に適用した結果について述べた。すなわち、Ni-Al 合金を用いた場合は安息香酸の場合と同様に水素交換反応が起こり低純度の標識体を与えたにすぎなかったが、Co-Al 合金は第3章の場合と異なってモノクロロサリチル酸類から高い純度の対応する重水素標識体を与えた。Cu-Al 合金とプロモサリチル酸類との組み合わせは、安息香酸の場合と同様に対応する重水素標識体を高い同位体純度で生成した。このようにして得られた重水素標識サリチル酸類より対応するアセチルサリチル酸(アスピリン)を合成し、その反応過程において水素交換反応は起きないことを確認した。

第5章では、重水素標識ピロール-, フラン-, 及びチオフェン-2-カルボン酸の合成について述べた。すなわち、これらカルボン酸のハロゲン誘導体からの重水素標識体の合成には、これらヘテロ環自身の還元活性な Ni-Al 合金は使用できないことを明らかにした。また、これらのハロカルボン酸類の還元的脱ハロゲン化反応により対応する重水素標識体を合成するためには、Cu-Al 合金または Zn 末を用いる必要があることを見出した。

第6章では、上述した Ni-Al 合金を用いた場合に観察された水素-重水素交換反応について詳細に検討し、その結果について述べた。すなわち安息香酸、アルキル安息香酸類、ヒドロ安息香酸類、及びフタル酸類それぞれ自身を 10% NaOD-D₂O 中 Ni-Al 合金で処理して次のような結果が得られた。i) カルボキシル基の隣接位の水素の交換反応は起こりにくい。ii) アルキル安息香酸のアルキル水素は芳香族水素より交換しやすい。この交換反応はベンゼン環に近いほど起こりやすい。この場合、ベンジル型水素が重要な役割を果たしていることを見出した。

これらの結果に基づき、本水素-重水素交換における反応機構を論じた。

第7章は、第2章から第6章までの総括である。

論文調査の要旨

放射性同位体及び安定同位体が科学の諸分野において広く利用され、科学の進歩に多大の貢献をなしてきた。前者は放射能を有するため、その検出、確認は比較的容易であるが人体に有害である欠点を持つ。一方、人体に無害な後者は、近年の分析技術の進歩によって

定性定量分析が容易になったため、最近その利用研究が盛んになってきた。多くの安定同位体の中でも重水素は、入手しやすい重水が供給源であることや、高い同位体効果が期待できることなどから、最も多く利用され重要な標識元素である。しかし、重水素標識化合物の簡便かつ高選択的合成法は知られていない。本論文は、芳香族誘導体の新しい重水素標識法を開発することを目的とし、重水素標識芳香族カルボン酸類の位置選択的合成法を確立した結果をまとめたものである。

従来の重水素標識法によっては芳香環上の所定の位置に任意の数の重水素を導入することはできなかった。本研究ではハロ安息香酸類を NaOD-D₂O 中ラネー合金で処理するという極めて簡便な方法で、対応する重水素標識体が高い同位体純度で得られることを明らかにし、再現性の高い重水素標識芳香族化合物の合成ルートを開拓した。

以下、本論文の主な成果について述べる。

1) 重水素標識体の原料となるオルト位に臭素が置換した安息香酸類は一般に合成が困難であるが、対応するプロモトルエン類を出発原料とし、Kröhnke 反応を用いる新しい合成ルートを開発している。

2) 重水素標識体法確立の基礎研究として、種々のハロ安息香酸類の還元的脱ハロゲン化を詳細に検討し、アルカリ水溶液/ラネー合金系で容易に還元反応が進行することを見出した。また、ラネー合金の活性は Ni-Al > Co-Al > Cu-Al >> Fe-Al の順であることを明らかにしている。

3) プロモ安息香酸類を 10% NaOD-D₂O 中ラネー Cu-Al 合金で処理すると、対応する重水素標識安息香酸類が高収率かつ高い同位体純度で得られ、一方、Ni-Al または、Co-Al 合金を用いると水素-重水素交換反応が併発することを明らかにしている。更に、理論的に可能な 19 種類の重水素標識安息香酸類のすべてを初めて合成し、サリチル酸、2-フラン-, 2-チオフェン-及び 2-ピロールカルボン酸類の重水素標識体の合成にも成功している。

4) 種々の芳香族カルボン酸類の水素-重水素交換反応を Ni-Al 合金を用いて詳細に検討し、新しい反応機構を提案するとともにその合成化学的な利用範囲について明らかにしている。

以上、本研究は重水素標識化合物の選択的合成法開発の一環として重水素化芳香族化合物の位置選択的合成法を確立したもので、有機合成化学の分野に寄与

るところ大である。よって、本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

氏 名 (本籍) 朴 良 徳 (大韓民国)
学 位 記 番 号 総理工博甲第 32 号
学位授与の日附 昭和 61 年 3 月 27 日
学 位 論 文 題 目 メソフェーズの調整および改質に
関する研究
論文調査委員

(主 査) 九州大学 教 授 持 田 勲
(副 査) 〃 〃 小 林 宏
 〃 〃 西 村 幸 雄
 〃 〃 斎 藤 省 吾

論文内容の要旨

石炭や石油から派生する重質油を炭素繊維等の炭素材に転換することは資源の有効利用ならびに機能性素材の製造の点からも意義が大きい。炭素繊維のような高機能の炭素材の製造のためには炭素化中間体である炭素質液晶メソフェーズの構造及び物性を制御することが必須であることがすでに明らかにされている。しかし、メソフェーズの物性及び構成成分の構造を積極的に制御する試みは少ない。そこで、本論文では炭素化中間体メソフェーズに注目し、その調整法、構造及び物性について研究した。

本論文ではまず、メソフェーズピッチを構成する成分間の相互溶解性を調べ、その構成分子の構造を考察した。ついで、炭素繊維あるいは高密度炭素材のプレカーサーとなるメソフェーズピッチおよび球晶の調整法を確立することを試みた。また、出発原料などの違いがメソフェーズピッチの化学構造さらに物性に及ぼす影響を検討し、水素移動反応を利用する炭素材原料の改質に関して研究した。これらの研究を通して、メソフェーズを経て調製される炭素材の製造法に含まれる化学を明らかにした。

第 1 章では、炭素材の評価と炭素生成におけるメソフェーズの役割および制御方法に関する研究の目的および意義について述べた。

第 2 章では、メソフェーズ形成時における低分子量成分の役割を解明するため、メソフェーズのピッチ低留分への溶解性を調べた。メソフェーズがピッチ低留分へバルクメソフェーズ→微細メソフェーズ→網目

状メソフェーズの段階を経て溶解することを見出した。このような溶解性は原料や熱処理条件の異なるメソフェーズおよびピッチ低留分の組合せによって著しく異なり、メソフェーズ形成に対する低留分成分の重要性を明らかにした。

第 3 章では、メソフェーズのピッチ低留分への溶解において両者間の水素の授与、つまりメソフェーズの水素受容能とピッチ低留分の水素供与能が最も重要な因子であることを明らかにした。有機化合物をモデル化合物として、水素受容能と構造とを対比した結果、高い水素受容能を示したものは 4 環以上の芳香族環を単位としており、構造の差異によって水素受容能に差があらわれることを見出した。このことから、メソフェーズピッチ構成分子の単位構造を考察した。

第 4 章では、可溶性メソフェーズの調製法を確立する立から、減圧下、環流下およびガス吸込み条件下でメソフェーズピッチを調製し、生成するメソフェーズピッチの特性や構造を検討した。減圧下で調製したメソフェーズピッチは他の方法で調製したものに比べて、ほぼ 100% 異方性組織が展開した時に高い溶解度、低い融点を示すことを見出した。すなわち、減圧下での熱処理はメソフェーズ形成を妨げる軽質成分を効率よく除去し、比較的高温、短時間の処理によって光学的異方性を展開させるとともに、ピッチの過分解や過縮合の抑制により、均一な分子分布をもったメソフェーズピッチの収率を向上させる。さらに、脱水素反応も制御され、構造中にかなりのナフテン基が残ることを明らかにした。

第 5 章では、メソフェーズピッチの構造に及ぼす原料ピッチの影響を調べ、減圧熱処理で調製したメソフェーズピッチの熱挙動特性および反応性を検討した。ナフテン水素の多いピッチから誘導されたメソフェーズピッチは大きな H/C 原子比を有し、芳香族指数や側鎖の数が小さく、熱的に安定であることを見出した。硫黄共存下で炭化すると、ナフテン水素の多いピッチは全面異方性組織を示すのに対して、ナフテン水素の少ないピッチはほとんど等方性を示した。このように、原料ピッチの構成成分の構造が生成メソフェーズピッチの構造、さらに物性に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。

第 6 章では、市販ピッチを適当な減圧熱処理後、冷却することにより、かなりそろった球径を持つ球晶を選択的に調製する方法を確立した。特に、水素化処

理ピッチは炭素化過程で構成分子間の水素移動によって、可溶性巨大分子が形成され、より高い球晶収率を示すことを見出した。この方法が、球晶を形成しうる成分を調製・濃縮後、冷却によって球晶として析出させるすぐれた方法であることを示した。

第7章では、溶剤精製炭 (SRC) と水素化ピレン (CHP) との加圧共炭化により、CHP を SRC の炭化時まで残留させ、水素移動により SRC を改質するとともに、反応性の高い SRC によって CHP の炭素化が促進され、共炭化物の光学的異方性組織展開の改善とコークス収率の向上が可能であることを見出した。また、共炭化における SRC, CHP の挙動を両者の溶解と関連させて考察した。

第8章では、本研究の成果を総括した。

論文調査の要旨

石炭や石油から派生するタールあるいはピッチ等の高分子量芳香族炭化水素から炭素繊維、ニードルコークス、高密度炭素材などの高機能性炭素材を製造する試みが関連する産業界で広く追及されている。このような材料の機能の発現には、炭素化反応の中間体である炭素質液晶メソフェーズの化学構造や物性を制御することが必要であるが、これ迄、メソフェーズの構成成分の組成や構造と物性との間の関連を明らかにして、炭素化反応を設計する試みはほとんどなされていない。本論文は、メソフェーズ成分の共存低沸点成分への溶解性とその構造との関連、炭素繊維および高密度炭素材の前駆体となるメソフェーズピッチおよび球晶の調製法、原料ピッチの構造が生成するメソフェーズの物性に及ぼす影響、さらに水素移動反応を利用する原料ピッチの改質に関する研究をまとめたものである。

以下に本論文の主な成果について述べる。

1. メソフェーズピッチを調製する過程で、メソフェーズ成分の共存する低沸点成分への溶解がメソフェーズ成分の光学的異方性の発現や軟化点に強く影響することを見出した。この溶解性が原料ピッチや熱処理条件によって著しく異なることを認めている。

2. メソフェーズ成分の低沸点成分への溶解に対して、両者間の水素授受、つまりメソフェーズ成分の水素受容能と低沸点成分の水素供与能が最も重要な因子であることを明らかにしている。さらに、モデル化合物の水素受容能と対比して、メソフェーズ成分の芳香環構造を推定している。

3. 炭素繊維前駆体となる光学的異方性組織がよく発達し、軟化点が低く、溶解性の高いメソフェーズが減圧下で比較的高温、短接触時間条件下でピッチを熱処理することによって高収率で調製できることを見出している。又、この処理法がメソフェーズ形成を妨げる軽質分の効率的除去、過分解、過縮合および過度の脱水素反応の抑制に有効であることを明らかにしている。さらに、この調製法における原料ピッチの構造の影響を調べ、アルキル側鎖数が少なく、ナフテン水素を含む構造がメソフェーズピッチ調製に適していることを明らかにしている。

4. 上記のメソフェーズピッチ調製法に準拠して、メソフェーズ構成成分を選択的に合成、減圧濃縮後、急速冷却することにより球晶を析出させれば、高密度炭素材の前駆体が収率よく調製できることを見出している。

5. 溶剤精製炭を水素化ピレンと加圧共炭化することにより、両者間の水素移動反応を起こさせ、前者の炭素化反応性を大幅に改善できることを明らかにしている。

以上要するに、本論文は高機能性炭素材の前駆体であるメソフェーズの構造、物性および反応性ならびにこれら特性間の相関を明らかにし、その効率的な調製法を提案しており、炭素材料化学、石炭および石油化学に寄与するところ大である。よって、本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

氏 名 (本籍) 深 堀 智 生 (福岡県)

学 位 記 番 号 総理工博甲第33号

学位授与の日附 昭和61年3月27日

学位論文題目 He 生成断面積測定用 He 原子測定装置の開発とその応用

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 神 田 幸 則

(副 査) 〃 〃 的 場 優

〃 〃 〃 渡 辺 亮 治

〃 〃 〃 北 島 貞 吉

論文内容の要旨

He 生成断面積および中性子照射量の測定法として、近年、He 集積法が注目されつつある。He 集積法は中性子核反応により試料中に生成され、集積された He

を直接測定する方法である。従来、He 生成断面積・中性子照射量の測定には生成放射性核種からの γ 線を測定する放射化法が使用されて来たが、この方法には中性子照射中の生成核種崩壊による非線形性および多種核データ使用による誤差の累積という欠点がある。これに対し He 集積法では、照射中性子に比例する He 集積量が測定対象であり、使用核データは He 生成断面積のみであるため、誤差は原理的に小さくなり得る。同方法による測定には、微量 He 原子の測定可能な装置が必要である。本研究の目的は、第 1 に、He 生成断面積・中性子照射量が測定可能な He 原子測定装置およびその較正法の開発、第 2 に、同装置を用いた He 集積法による 14MeV 中性子に対する He 生成断面積の測定である。また、本測定装置の較正法として開発した He イオン注入試料法では、照射 He の試料中への捕獲率が重要となる。この問題との関連で、He イオン注入試料から再放出する He 絶対量測定に本測定装置を応用すると共に、集積 He と試料表面変形の相関を調べることを第 3 の目的とした。

第 1 章では、本研究の位置づけと意義を述べた。

第 2 章では、本研究で開発された He 原子測定装置各部の特性と性能について述べた。He 原子測定装置の測定限界は 8×10^{11} He atoms であり、測定精度は 5~7% である。この He 量は現在の強力 14 MeV 中性子源での中性子照射量を十分測定可能な大きさである。測定限界は、標準に用いる ^3He および試料である ^4He に対応する質量数 3, 4 のバックグラウンドによって決定される。同装置真空系内のバックグラウンドは、ベッキングによる脱ガスの促進、およびガス吸着作用を利用したトラップ部の強化により減少させた。

第 3 章では、新しく開発した He イオン注入試料法について述べた。He 集積法における He 原子測定装置の較正には、従来標準 He ガス法が使用されて来た。同方法は能率的ではあるが、He 集積量が少ない試料の場合には大気中の He 混入の問題がある。これを解決する較正法として、金属片に He イオンを注入し、注入 He 数を標準値とする He イオン注入試料法を開発した。He 数はイオン注入時の電流値測定によって求める。He イオン注入試料法を使用することにより、大気中の He 濃度、すなわち、 5×10^{14} He atoms/cm³ (試料中の He 数 5×10^{12} He atoms に相当) よりも試料ガス中の He ガスが少ない場合にも、較正が可能となった。これにより、He イオン注入試料法と標準 He 集

ガス法とを両者の特徴を活用しつつ相補的に使用することにより、He 原子測定装置のより確実な較正が可能となった。

第 4 章では、本研究で開発した He 原子測定装置および He イオン注入試料較正法使用による 14.8 MeV 中性子に対する ^{27}Al の He 生成断面積測定について述べた。 ^{27}Al の He 生成断面積は、その一部である ($n, n'\alpha$) 反応により生成される残留核 ^{23}Na が安定同位体であるため、放射化法による測定は不可能である。このため、 ^{27}Al の He 生成断面積測定は α 粒子または He 原子の直接測定に限られ、測定値が非常に少ない上に、測定値に大きな差がある。本研究の結果は 141 ± 8 mb であり、これは Kneff らの値に誤差内で一致した。

第 5 章では、Al 試料の $10^{17} \sim 10^{18}$ He atoms/cm² の He イオン照射範囲における He 捕獲量の測定および試料表面観察の結果について述べた。プリスター形成の臨界照射量は 4×10^{17} He atoms/cm² であり、試料を事前に焼鈍することによってその値は低下し、試料中に残留する He 原子数は He イオン照射量に従って鋸歯状の変化をすることを示した。これらの結果から、1 個のプリスターに含まれる平均 He 数は約 10^{11} He atoms であった。

第 6 章では、プリスター形成臨界照射量以下の領域で、He イオン注入試料の昇温による、He 再放出率変化の測定および試料表面変形の観察について述べた。He イオン注入前に試料を焼鈍する度合いが大きい程、He 再放出率が低下する傾向がある。また、He 放出源と思われる表面変形は結晶粒界に集中することが観測された。これは、前章で述べた試料におけるプリスター形成位置の傾向に一致する。

第 7 章では、本研究で得られた結果をまとめ結論とした。

論文調査の要旨

中性子照射量測定および中性子核反応断面積測定には、従来、反応によって生成された放射性核種からの γ 線を測定する放射化法が多く使用されてきた。放射化法による測定では、生成放射能の飽和のため照射中における中性子強度の時間変化に対する補正が必要となると共に、断面積、半減期、崩壊分岐比など多くの核データを使用するため、誤差が大きくなる傾向がある。これに対し、最近、このような欠点のない He 集

積法が提唱されている。同方法は中性子による He 生成反応で試料中に集積される He を測定するもので、生成 He 量と中性子照射量の間に非比例関係があり、飽和は起こらない。また、中性子照射量測定の場合、必要な核データは He 生成断面積のみであるので、測定誤差は原理的に放射化法と比較して小さくできる。更に、高速中性子が主要な役割をたす核融合炉や高速増殖炉では He 生成量が多く、同方法の応用は有用である。しかし、He 集積法を利用するためには、微量の He を検出できる測定装置が必要であるが、この開発は放射化法に於ける γ 線検出器と比較して非常に遅れている。

本論文では、中性子によって生成される He を十分な精度で測定可能な He 原子測定装置の開発を第一の目的とし、第二に同装置の応用について言及している。高速中性子による He 生成反応断面積は比較的大きいが、現在の強力高速中性子源を用いても He 生成量は 10^{11} H atoms/mg sample 程度が限界であるので、He 原子測定装置にはこれ以上の感度が要求される。また、He 原子の絶対量測定という性格上装置の較正法が重要であり、本研究では He イオン注入試料較正法を新たに開発し、これを解決している。He 原子測定装置の応用として、14 MeV 中性子に対する Al の He 生成断面積の測定、He イオン注入 Al についてプリスター形成臨界照射量の測定、およびその近傍での He 捕獲と再放出に対する温度および照射量依存性について述べている。本論文中に示された主な成果ならびに知見は以下のとおりである。

(1) 本研究で開発された He 原子測定装置の測定限界は 8×10^{11} He atoms である。この程度の He を 40 mg の Al に生成する 14 MeV 中性子照射量は 7×10^{15} neutrons/cm² であり、現在の強力 14 MeV 中性子源で十分達成可能な中性子照射量である。

(2) He 集積法における He 原子測定装置の較正は、従来、圧力・体積・温度によって He 原子数を求める標準 He ガス法が用いられてきたが、大気中の He 濃度以下の He 原子数測定の場合、十分な精度が得られないという問題があった。これに対し本研究では、He イオンを金属試料に注入し、イオン電流を測定することによって注入 He 数を求めて較正用標準試料とする He イオン注入試料法を開発することにより、同問題を解決している。

(3) 14 MeV 中性子に対する Al の He 生成断面積

を測定している。Al の高速中性子に対する He 生成断面積は、He 生成反応の一つである $(n, n'\alpha)$ 反応の残留核 ^{23}Na が安定同位体であるため、従来の放射化法では測定不可能である。He を直接測定する方法による従来の実験結果には 20% の差があった。本論文の値はその一方を支持している。Al の値は同種断面積の基準値として使用されるので、本研究の結果は大きな意義がある。

(4) 本研究で開発した He 原子測定装置では He 原子数の絶対量測定が可能のため、He イオン注入試料の表面変形と試料中への He 捕獲の関係を調べることに応用できる。本論文では、Al に $10^{17} \sim 10^{18}$ He atoms/cm² の範囲の He イオンを照射し、Al の表面変形と He 捕獲量の関係を述べている。この分野における従来の測定は、He 照射時に試料から放出される He 原子の測定が主であったが、本研究においては試料中に捕獲されている He 原子数を測定している。その結果、試料中に捕獲されていた He 原子数は He イオン照射量に従って鋸歯状の変化を示している。また、20 keV の He イオンと Al の組み合わせにおけるプリスター形成臨界照射量は 4×10^{17} He atoms/cm² 程度であることを明らかにし、He 注入前の焼鈍によって僅かに変化することをも示している。

(5) プリスター形成臨界照射量以下の領域でも、He 注入試料を昇温することによって表面にキャビティが観察されると共に、He 最放出が起こること、および He イオン注入前に焼鈍することにより、He 再放出率が低下することを実験的に示している。

以上のように、本論文は微量の He 原子を絶対測定するために開発した He 原子測定装置およびその応用について述べている。測定値の極めて少ない He 生成反応断面積測定への He 集積法の応用は新しい手法として中性子工学の分野において重要である。本研究における He 原子測定装置の開発は、同手法による測定を可能にするもので、中性子工学に寄与するところが大きい。また、He 原子測定装置は、材料学的分野において従来測定されていなかった物理量の測定を可能とし、試料に注入された He および中性子照射によって材料中に生成された He の挙動の研究に応用でき、原子炉材料工学への寄与も大きい。したがって、本論文は工学博士の学位論文に値するものと認められる。

~~~~~

氏 名 (本籍) 平 原 裕 行 (鹿児島県)  
学 位 記 番 号 総理工博甲第 34 号  
学位授与の日附 昭和 61 年 3 月 27 日  
学 位 論 文 題 目 衝撃波の斜め反射に関する研究  
論文調査委員

(主 査) 九州大学 教 授 松 尾 一 泰  
(副 査)       〃       〃       小 野 信 輔  
              〃       〃       林    正 徳  
              〃       〃       井 上 雅 弘

## 論文内容の要旨

衝撃波がその波面に対し垂直でない壁面から反射する、いわゆる衝撃波の斜め反射の問題は、純粋に学問的な観点から興味深いテーマであるのみならず、気体の燃焼や爆発に伴うデトネーション波や爆風波が管壁や構造物と干渉する場合、あるいは超音速流れにおける衝撃波と衝撃波、衝撃波と固体壁の干渉問題などを研究する際の基礎として重要である。

従来の研究によれば、斜め反射における衝撃波の反射形態は正常反射とマッハ反射に大別され、更にマッハ反射は単純マッハ反射、複合マッハ反射及び二重マッハ反射に分類される。実際の流れにおいて、これらの反射形態のいずれが起こるかは、入射衝撃波マッハ数、入射衝撃波と壁面のなす角、気体の熱力学的状態量及び流れが定常であるか非定常であるかなどの条件に依存し、各反射形態間の遷移や反射衝撃波の形状と強さとの関係、マッハ反射における滑り面の挙動などについて現在まだ分かっていない点が多い。

本論文は、以上の観点に基づいて、衝撃波管を用い、擬定常流れ及び非定常流れにおける衝撃波の斜め反射について実験的に研究するとともに、従来の実験結果も含めて、衝撃波の斜め反射による諸現象に対し統一の説明を行ったもので、8章より構成されている。

第1章では、衝撃波の斜め反射に関する従来の研究を略述し、この研究の重要性を述べるとともに、問題点を明らかにして、本論文の内容を概説した。

第2章では、正常反射とマッハ反射を解析する上で最も基礎となる二衝撃波理論と三衝撃波理論について説明し、衝撃波極線図を用いて正常反射とマッハ反射の間の遷移基準として知られている離脱基準と力学的平衡基準の物理的意味について述べた。

第3章では、従来の結果と前章で述べた理論を用い、定常流れ、擬定常流れ及び非定常流れの場合につ

いて、衝撃波の斜め反射における各反射形態とその領域について詳述した。また、定常流れにおける反射に関連して正常反射とマッハ反射の間の遷移過程が入射衝撃波が弱い場合と強い場合で異なることを衝撃波極線図を用いて説明した。

第4章は本研究で用いた実験装置と実験方法についての記述である。実験装置は隔膜式衝撃波管で、試験気体には空気と炭酸ガスを使用した。実験には二つの傾斜壁を用いた。すなわち、擬定常流れにおける反射の実験には、傾斜角が可変の傾斜直線壁を、非定常流れにおける実験には、二段階に傾斜した凹面壁(二段傾斜凹面壁)を用い、反射形態をシャドウグラフ法により光学観察した。

第5章では、傾斜直線壁における反射衝撃波の形状からその強さを求める方法を提案し、その方法に基づき、反射衝撃波の強さの波面に沿う分布及びマッハ反射の三重点における強さについて調べた。また、これらの結果から三衝撃波理論が実験値とよく一致する範囲について検討し、弱いマッハ反射において生ずる実験値と理論値の不一致、いわゆるノイマンのパラドックスは単純マッハ反射の領域で生ずることを明らかにした。更にマッハ反射の三重点から生ずる滑り面に関して、広範囲の入射衝撃波マッハ数と種々の初期圧力に対し詳細な実験を行い、流れ場の様子を可視化するとともに、離散渦法を用いてシミュレーションを行って滑り面の広がり幅や渦構造に影響を及ぼす諸因子を明らかにした。

第6章では、ノイマンのパラドックスが生じる領域での弱いマッハ反射について、反射衝撃波の強さが三衝撃波理論による値より弱いことを示し、その理由が理論における滑り面の取り扱いにあることを明らかにした。この結果に基づき、三衝撃波理論を修正した新しい流れモデルを提案し、その計算結果が実験値と良く一致することを示した。

第7章では、非定常流れにおける衝撃波の斜め反射の例として凹面壁からの衝撃波の反射について行った研究を記述した。まず二段傾斜凹面壁における衝撃波の反射過程を実験的に調べ、この場合のマッハ反射から正常反射への遷移基準を明らかにした。次に、上述の実験結果を基に円弧形状凹面壁における衝撃波の反射について理論的に考察し、この場合のマッハ反射によって生じる三重点の軌跡とマッハ反射から正常反射への遷移点を定めるための流れモデルを提案した。本

モデルによる遷移点は、入射衝撃波マッハ数と凹面壁の先端角に依存し、円弧の曲率半径には依存しないが、計算結果は従来の実験値と定性的に一致することを示した。

第8章は本論文の結論である。

## 論文調査の要旨

衝撃波が波面に対し傾斜した壁面から反射する現象は、超音速流れの中に発生する斜め衝撃波が固体壁から反射する場合、あるいはデトネーション波や爆風波が気体中を伝ばし管壁や構造物と干渉する場合など、多くの事例において見られる。このような衝撃波の斜め反射の問題に対して従来より多くの研究が報告されており、その反射形態は正常反射、単純マッハ反射、複合マッハ反射、及び二重マッハ反射に分類されることなどが知られている。しかしこれら各種の反射形態の発生条件や反射衝撃波の形状と強さとの関係など、衝撃波の斜め反射に関して現在分かっていない問題点は多く、その解明が望まれている。

本論文は、静止気体中を伝ばする平面衝撃波が波面に対し傾斜した平面壁及び凹状の曲面壁から反射する問題に関して理論的及び実験的に行った研究をまとめたもので、本論文に示された主な成果ならびに知見は次の通りである。

(1) 伝ばする衝撃波が傾斜した平面壁から反射する流れは、反射衝撃波系の形状が時間とともに相似形を保ちつつ拡大する擬定常流れとなるが、このような場合の反射衝撃波の形状からその強さを理論的に求める方法を提案している。更にその方法に基づき反射衝撃波の強さの波面に沿う分布を求め、強さが極小となる点が存在することを明らかにするとともに、その理由を反射衝撃波の形状と関連づけて説明している。

(2) 単純、複合、及び二重マッハ反射における三重点近傍の反射衝撃波の強さや反射角及び三重点の軌跡角を実験的に求め、三衝撃波理論による値と比較することによって、入射衝撃波が弱いときに生ずる実験値と理論値との不一致、いわゆるノイマンのパラドックスは単純マッハ反射の領域において生ずることを示している。

(3) マッハ反射の三重点から生ずる滑り面に関して、広範囲の入射衝撃波マッハ数と種々の初期圧力に対して詳細な可視化実験を行うとともに、離散渦法を用いて数値シミュレーションを行い、滑り面の広がり幅や

渦構造に影響を及ぼす諸因子を明らかにしている。

(4) ノイマンのパラドックスが生ずる流れでは、反射衝撃波の強さは三衝撃波理論による値より弱く、その理由が理論における滑り面の取り扱いにあることを指摘するとともに、三衝撃波理論を修正した新しい流れモデルを提案し、このモデルによる三重点の軌跡角や衝撃波の反射角などの計算値が実験値と良く一致することを示している。

(5) 伝ばする衝撃波の凹面壁からの反射に関して、二段階に傾斜した平面壁を用いて実験的に調べ、この場合のマッハ反射から正常反射への遷移基準を明らかにしている。その結果に基づき、円弧凹面壁からの衝撃波の反射過程について理論的に考察し、マッハ反射によって生ずる三重点の軌跡とマッハ反射から正常反射への遷移点を求め、入射衝撃波マッハ数と凹面壁の先端角が遷移角に及ぼす影響を明らかにしている。

以上要するに、著者は本論文において伝ばする衝撃波の斜め反射の現象に関し理論と実験の両面から研究を行い、反射衝撃波の形状と強さとの関係、ノイマンのパラドックスが生ずる条件とその理由、各種のマッハ反射において発生する滑り面の特性、及び凹面壁におけるマッハ反射から正常反射への遷移に関して多くの新知見を得ており、これらの成果は流動工学上寄与するところが大きい。よって本論文は工学博士の学位論文に値するものと認められる。

氏 名 (本籍) 梶 原 寿 了 (大分県)

学 位 記 番 号 総理工博甲第35号

学位授与の日附 昭和61年3月27日

学位論文題目 ライマン $\alpha$ レーザー蛍光法による  
水素原子計測法に関する研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 村 岡 克 紀

(副 査) “ “ 赤 崎 正 則

“ “ “ 小 川 禎一郎

“ “ “ 前 田 三 男

## 論文内容の要旨

水素原子は、基礎化学過程の研究や種々の工業的な応用分野で重要な役割を担っている。そこでは、水素原子の密度あるいは速度分布関数を、高い時間・空間分解能で精度良く測定することが重要である。しかし、

従来用いられてきた水素原子計測法では空間あるいは検出器の視野方向にわたって積分された情報しか得ることができないので、低密度の水素原子を時間・空間分解能良く計測できる方法の開発が強く望まれている。

レーザー蛍光法は、この要請を満たす優れた粒子計測法である。しかし、基底状態にある水素原子を計測するためには真空紫外域のレーザー蛍光法を用いる必要があり、未開拓の分野である。すなわち、励起用可変波長真空紫外光源の開発、真空紫外光の蛍光信号の観測、蛍光信号の較正法など、多くの問題を解決せねばならない。

本論文は、ライマン  $\alpha$  線に同調させたレーザー蛍光法による水素原子の計測技術の確立を系統的に行った研究の成果についてまとめたものである。

第 1 章は序論であり、従来用いられてきた水素原子計測法の問題点と、真空紫外レーザー蛍光法の現状について述べ、解決すべき問題点を明らかにし、本研究の意義と目的について述べた。

第 2 章では、励起用の光源の開発について述べた。まず、蛍光観測に必要な光源の性能を明らかにした。それに基づき、現在得られている真空紫外光源について考察を行い、必要な性能を満たし最も実現の可能性の高い方法として、色素レーザー光を基本波とし、希ガス中での第三高調波発生によりライマン  $\alpha$  光を得る方法を採用した。次いで、第三高調波発生 of 理論的考察を行い、その結果を基に必要な性能を得るためのレーザーシステムの設計・製作を行い、最大出力 30 W ( $4 \times 10^{10}$  photons/pulse, 2.3 ns), スペクトル幅  $2.8 \pm 0.3$  pm, 10 W 以上の安定出力 90 分以上と、蛍光観測実験に必要な出力と動作の安定性を有する励起光源を得た。

第 3 章では、第 2 章で得たライマン  $\alpha$  光源を用いて行った計測技術の確立の内容について述べた。まず、蛍光観測に必要なフッ化リチウム (LiF) のライマン  $\alpha$  線の波長における屈折率を正確に決定し、レンズ等光学系の設計資料を得た。また、水素原子の吸収を利用する波長同調装置を示した。次いで、広範囲に水素原子密度を調節可能で、かつ吸収法により密度の絶対値を測定可能な水素原子源を製作し、それを対象に蛍光観測実験を行った。その結果、蛍光信号の較正をアルゴンガスのレーザ信号を用いて行うことにより、水素原子密度の絶対値が 30% 以内の精度で測定可能であり、その検知下限は  $2.7 \times 10^{15} \text{ m}^{-3}$  であることを示

した。

第 4 章では、水素原子計測への適用について述べた。まず、第 3 章で用いた水素原子源に対して水素原子の拡散・再結合過程の観測を行い、その際の水素原子密度の局所測定結果と拡散方程式の解析結果とを時間的・空間的に分解した形で初めて比較検討した。その結果、水素原子の水素ガス中での拡散係数や鉄表面での再結合係数の値を得るとともに、過渡状態での表面再結合係数の時間的な変化を示唆する観測結果を得た。これら実験結果を基に、本計測法による水素原子の一般的な検知限界について考察を行い、光電子増倍管でのショット雑音、水素原子による蛍光信号の自己吸収、ないし水素原子自身が発光している場合にはその発光強度により定まることを示した。次いで、水素原子の発光に対する SN 比を電子衝突による励起を考慮したプラズマモデルを用いて評価し、本研究で得られた光源を用いて計測可能な水素原子密度およびプラズマパラメーターの領域を明らかにした。

第 5 章では、本研究で得られた成果についてまとめるとともに、将来への展望を述べ、総括とした。

## 論文調査の要旨

水素原子は最も単純な原子であるため基礎物理・化学研究の対象となると同時に、各種化学工業原料の構成元素であり、またそのアイソトープは核融合燃料となるなど工業的にも重要である。従って化学基礎過程から、反応プロセス更にはプラズマ・固体面相互作用の各分野の現象解明にとって、水素原子密度ないし速度分布関数を精度良く、低い検出下限でしかも反応が起こりつつある状態で測定することが求められてきたが、そのような方法がなかった。

本研究は上記目的に適う真空紫外域でのレーザー蛍光法の開発を試みたもので、レーザー光源の製作とそれを用いた蛍光法による計測精度の評価を行った結果、以下の成果を挙げている。

1. レーザー蛍光法は可視域及び近紫外域では色素レーザーまたはその第二高調波が光源として利用できるので確立した技術になっているが、真空紫外域では単位波長当りの十分な強度を持つ安定した可変波長光源がないことが問題であった。本研究では色素レーザー光のクリプトンとアルゴン混合気体中の第三高調波発生により、最大尖頭出力 30 W, スペクトル幅 2.8 pm, 10 W 以上の安定動作時間 90 分以上と、水

素原子検出用のレーザー蛍光光源として十分な性能を持つものを得ている。

2. 真空紫外域でのレーザー蛍光法を実行するには、レンズや入射窓等の設計のための光学材料の屈折率の値が必要であるが、十分信頼できるデータがなかった。本研究では、上記光源を用いてフッ化リチウム (LiF) の屈折率  $n$  の精密な決定を行い、ライマン  $\alpha$  線の波長で  $n = 1.65$  の値を得ている。

3. 水素原子密度の検出精度及び検出下限の決定のために、水素原子密度が可変で、しかもその値をレーザー蛍光法とは独立にレーザー吸収法により測定できる水素気体中の点アーク放電形の水素原子源を製作した。それを用いてレーザー蛍光実験を行い、アルゴンガスからのレーリー散乱を用いた光学系の較正の結果を用いて、水素原子の測定精度  $\pm 30\%$ 、検出下限  $1.2 \times 10^{14}$  sr/m<sup>3</sup> の結果を得て、前記の種々の目的のための検出系として十分な性能を有することを示している。

4. 水素気体中の点放電形の水素原子源をスイッチオンした後の水素原子密度上昇をレーザー蛍光法で測定した結果と拡散方程式を比較することにより、水素分子中の水素原子の拡散係数  $D = 0.10$  m<sup>2</sup>/s を得ている。この値は気体運動論により得られた値及び間接的な実験結果から推定された値と一致するものであるが、拡散方程式との直接の比較により初めて精密に決定したものである。またスイッチオン後定常値に落ち着いてからの水素原子密度を用いて水素原子の管壁での再結合係数を決定したが、その値が管壁条件により一桁以上変化すること、更には管壁への吸着過程での表面の吸着水素原子面密度の変化に起因することを示唆する再結合係数の経時変化を検出している。

以上要するに、本研究は高い時間・空間分解能と精度を有する水素原子検出法に用いるライマン  $\alpha$  レーザー蛍光法のための光源の開発、計測法の確立、それを用いての水素原子の水素分子中の拡散係数と表面再結合係数の測定を行ったもので、レーザー計測工学に寄与するところが大きい。よって本論文は工学博士の学位論文に値するものと認められる。

氏 名 (本籍) 賛 田 寛 (宮崎県)

学 位 記 番 号 総理工博乙第 33 号

学位授与の日附 昭和 60 年 10 月 26 日

学位論文題目 低気圧空気中の針対平板ギャップにおけるインパルス放電現象に関する研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 赤 崎 正 則

(副 査)       〃       〃       野 中 作太郎

              〃       〃       村 岡 克 紀

              〃       〃       渡 辺 征 夫

## 論文内容の要旨

低気圧空気中のインパルス電圧による針対平板ギャップのフラッシュオーバー電圧は、気圧に対してU字形の特性を示す。この場合、最低のフラッシュオーバー電圧を示す気圧 ( $P_c$ ) より低い気圧では、放電は真空放電と類似してフラッシュオーバー電圧は気圧の低下と共に高くなる。これに対し、 $P_c$  より高い気圧での放電は気圧が高くなるにつれてフラッシュオーバー電圧が高くなり、ストリーマを經由してフラッシュオーバーに至るほか、放電路に枝分かれがなく低印加電圧で比較的安定に出現することが知られている。この  $P_c$  を含む広い気圧範囲で不平等電界中のインパルス放電の機構を明らかにすることは、低気圧ガス利用の小形避雷器の特性の改良やレーザ発振用グロー放電の安定化条件の研究に寄与すると共に、より高い気圧領域における放電機構の解明にも有用である。

本研究は、上述の  $P_c$  を中心とする広い気圧範囲の低気圧空気中における針対平板ギャップに正及び負のインパルス電圧を印加した場合の放電過程を、光電子増倍管、イメージコンバータカメラ、分光器などを用いて詳細に観測し、これらの観測結果と電気特性とから放電機構の解明を行なったもので、8章からなっている。

第1章では、本研究の意義と目的を述べ、関連のある気中放電について従来の研究を概観した後、本研究の観測気圧領域の特徴及び本研究の内容について述べた。

第2章では、広い視野の光電子増倍管による観測を基にして求めた放電の全過程図から、インパルス放電は前駆現象を経てグローに、あるいは前駆現象とグローを経てアークに至るが、アークの直前には電離電圧波が現われることを明らかにした。又、前駆現象としては一次ストリーマが観測され、その平板到達により顕著な電離電圧波が平板から発生し、この電離電圧

波によって正負の二次ストリーマが出現することを示した。更に、フラッシュオーバの衰退過程では針先と平板表面だけで輝くグローが出現することを示した。

第3章では、小視野の光電子増倍管による観測から放電の詳細な過程図を求めて、一次ストリーマの発生前にグロー状コロナが出現すること、及び正負の二次ストリーマはそれぞれストリーマ群であることを明らかにした。更に、イメージコンバータカメラによる観測から、グロー放電過程は拡散グロー、移行グロー及び収縮グローの現われ方で3種に分類できることを示した。すなわち拡散グローのみのもの、拡散グローから移行グローに進んだ後に衰退するもの、及び拡散グロー、移行グローを経て収縮グローに至るものである。

第4章では、電源の直列抵抗を調節して放電の電気的特性と放電過程との関係を調べた。その結果、放電直列抵抗が大きいと大気圧直流放電の場合と同様にグローとアークの過程が交互に繰り返して出現するフリップフロップ形の現象が現われること見出し、これらが出現するときの電圧と電流の関係を導いた。

第5章では、放電直列抵抗が小さい場合の放電過程を明らかにした。この場合は、フリップフロップ形の現象は現われず、グローアークグロー放電過程が観測され、拡散グロー、移行グロー、収縮グロー及びアークの現れ方で3種に分類できる。すなわち拡散、移行、収縮の各グローを経てアークに移行するもの、拡散グローを経て移行グローの収縮部がギャップを橋絡したときにアークへ移行するもの、及び拡散あるいは移行の各グローから直接アークに至るものである。又、収縮部と拡散部の電界を求める式を示し、収縮部は電流密度が大でリーダに似ていることを指摘した。

第6章では、放電のグロー過程で出現するカソードストリーマのモデルを提案した。これは、先端に負の電荷を持ち平板側に正の電荷と陰極降下部を持っていて先端で電離を行なうモデルである。これにより、カソードストリーマ進展時の強い発光と電流波形との関係、及びカソードストリーマ先端の発光密度を定量的に説明した。

第7章では、分光学的観測から、グロー過程において  $N_2$  第2正帯の帯スペクトルは陽光柱、負グローなどの各発光部に分布するが、 $N_2^+$  第1負帯の帯スペクトルはグロー過程維持の電離、励起が行なわれる針端付近と平板付近にのみ現れることを明らかにした。

又、グロー過程とアークが出現する場合には  $N_2^+$  第1負帯の帯スペクトルは電界の低いグロー収縮部に現れて、この部分での電離が盛んであることを示している。更に、この場合には陰極材料の蒸発によって発光中に金属のスペクトルが認められるが、このスペクトルの継続時間はアークの存続時間に対応していることを明らかにした。

第8章では、本研究で得られた主な結果をまとめて結論とした。

## 論文調査の要旨

低気圧気体中の放電は、電流の増加に伴ってタウンゼント放電からグロー放電の過程を経て、最終の放電形式であるアーク放電に至ることはよく知られている。グロー放電とアーク放電では、陰極からの電子放出及び陽光柱内の電離の機構が異なるため、電極間各部のプラズマの電子温度や電離度などが著しく相異なる。また、グロー放電アーク放電ともに電圧電流特性が負特性を示すために、与えられた回路条件の下では瞬時にその条件下での最終の放電形式に移行するものと考えられていた。したがって、このようなプラズマの性質を利用する放電応用機器では、特定のプラズマ状態を維持するように工夫が施されている。しかるに、最近の研究によって、放電条件によってはグロー放電とアーク放電が交互に出現することが報告され、フリップフロップ現象と呼ばれて注目されている。

本論文は、低気圧空気中の針対平板電極配置で針電極にインパルス電圧を印加した場合に、最低のフラッシュオーバ電圧を示す気圧を含む広い気圧範囲での放電形式の時間的推移を研究して、放電維持機構と電圧電流特性の関係を明らかにしたもので主な成果は以下の通りである。

1. 圧力 0.1~10 Torr の低気圧空气中でギャップ長 6~8 cm の針対平板電極の針電極に正又は負のインパルス電圧を印加したときの放電過程を詳細に調べている。その結果、従来グロー放電又はアーク放電が定在するものと考えられていた場合でも、ギャップ条件(気圧、ギャップ長)と電圧印加条件(極性、電圧、直列抵抗)によっては、グロー放電とアーク放電が交互に現れることを初めて見出している。さらに、この場合のグロー放電とアーク放電の電圧電流特性は、陰極及び陽光柱の放電維持機構が異なるためにともに負特性か又は正特性を示すので、著者はこれらを区別し

て前者をグローアークグロー過程、後者をフリップフロップ過程と命名している。

2. グロー過程は、気圧が1~10 Torr で5~10 k $\Omega$ の直列抵抗を介して、 $V_{100}$  (100%フラッシュオーバー電圧)に近い電圧を印加したときに現れる。正のインパルス電圧が加えられると 先づ針端から拡散したコロナが伸びてギャップ中間に達したとき新たに正の一次ストリーマが成長して、これが平板に到達した点から負のストリーマを誘発する。この正と負のストリーマの発生を数回繰返した後に直流放電における正規グロー放電に類似した放電形式が発達して定在するが、実験条件によって次のように変化する。すなわち、陽極グロー、陽光柱、ファラデー暗部、負グロー、陰極暗部及び陰極グローが明瞭に形成される(拡散グロー)。次に直列抵抗を減少するか印加電圧を上昇すると、定在するグロー放電の陽極側の一部が収縮する(移行グロー)。更に印加電圧を上昇すると、陰極グローを除く全ての発光部が収縮して定在する(収縮グロー)。著者はこれらの放電形式が定在するための条件をモデルを用いて統一的に説明することに成功している。

3. グロー過程のギャップ条件で、直列抵抗を極端に小さくするか印加電圧を更に上昇すると、グロー放電の期間中にアーク放電が介在するグローアークグロー過程が出現する。この現象は、放電の負特性に起因する注入エネルギーの増加と、端子電圧の減衰によるエネルギー減少に伴う陰極点の生成と消滅が原因となっていると指摘している。このことは電離電圧波の発生時刻と陰極グローに現れる陰極材料の金属スペクトルの解析とも一致すると述べている。またこの場合のグロー放電の陽光柱は大気中長ギャップ放電で見られるリーダに類似した放電路であることをも示している。

4. 0.1~10 Torr の気圧領域で、 $V_{100}$  の1~5 倍の電圧を印加して直列抵抗を適当に選定すると、グロー放電とアーク放電が交互に現れる。この場合のグロー及びアークの過程での電圧電流特性は正特性を示すことから、明らかにグローアークグローの過程の放電と異なる。そこで著者は、この放電過程を直流電圧印加の場合に報告されている例にならってフリップフロップ現象と名づけてその詳細を研究している。その結果、このときのグロー及びアーク過程の電圧電流特性はともに  $V=CI^a$  の式で表現できることを明らかにしている。ただし  $V$  と  $I$  の単位はそれぞれ KV と mA で、

$C$  と  $n$  の値はグローとアークでそれぞれ大凡 110 と 3.5 及び 1 と 0.5 である。以上のことから、この場合のグロー放電は直流における異常グローに類似していると述べている。

以上要するに、本論文は低気圧空気中の針対平板電極にインパルス電圧を印加した場合の放電維持機構を解明して、グロー放電及びアーク放電の電圧電流特性を明らかにすることにより放電応用機器設計の指針を与えており、高電圧工学及び放電工学に寄与するところが大きい。よって本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

氏 名 (本籍) 福 田 晃 (福岡県)

学 位 記 番 号 総理工博乙第34号

学位授与の日附 昭和60年12月23日

学位論文題目 情報伝達システムの制御に関する研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教 授 駒 宮 安 男

(副 査)       "       "       牛 島 和 夫

              "       "       相 良 節 夫

              "       "       古 賀 利 郎

## 論文内容の要旨

情報伝達システムにおいては、システムを効率よく運用していくための制御が重要である。それは、ルーティングとフロー制御とに大別できる。ルーティングは、呼の接続ルート選択手順を与える制御である。制御アルゴリズムの確立にあたっては、ルート選択の判断指標として不可欠な要因を明らかにすることが重要である。また、システムのフロー制御については、システムの処理能力を上回る入力加わった場合に、その入力を規制するための制御が基本となる。一般に、入力規制制御系は、観測対象と観測方式および規制方式から構成される。ここで、観測方式は、系の状態を時間軸上で連続的に観測する連続観測方式と、ある決められた時間間隔で観測するサンプリング観測方式とに大別できる。従来、入力規制制御の解析と評価は、連続観測方式を前提としたものが多く、サンプリング観測方式を前提とした入力規制制御は、現実の面から重要であるにもかかわらず、ほとんど解析と検討がなされていない。

本論文は、ルーティングにおけるルート選択に関する問題およびサンプリング観測方式に基づいた入力規制制御に関する研究成果をまとめたもので、6章からなる。

第1章は序論で、本研究の背景と目的、意義について述べる。

第2章では、ルーティングにおけるルート選択に関する問題を解明する。具体的には、情報伝達システムの代表的な例である電話網について、既存のルーティングで呼損となる呼を他のルートへ迂回させるいわゆる迂回拡大を例に取り、ルート選択の判断指標として、回線と交換機のいずれの空き情報が重要であるかを、解析とシミュレーションにより解明する。その結果、交換機の空き情報がルート選択に対して不可欠であることを明らかにする。また、回線の空き情報だけに基づいたルーティングはシステムの性能低下を助長させる危険性があることを指摘する。

第3章では、従来ほとんど解析されていなかったサンプリング観測方式に基づいた入力規制制御を解析する。具体的には、優先呼と非優先呼の2種類の入力が加わる単一待ち行列モデルにおいて、サンプリング観測で得られる系内呼数が閾値以上になると非優先呼をすべて規制する制御方式を提案し、その基本的特性を明らかにする。本モデルは、第2章の迂回拡大における基本的な制御モデルを含むものであり、処理装置数、および待ち室数が複数、かつ非優先呼の生起間隔分布が任意の場合に適用できる。本モデルの定常状態を待ち行列理論により解析し、その結果を無制御および連続観測方式と比較することにより、本制御方式の効果、さらに観測間隔および閾値のパラメータが本制御特性に及ぼす影響を解明する。また、本制御方式では、規制制御発動中における系に過度の空きが生じ易いという欠点が生じることを明らかにする。

第4章では、第3章における制御方式を改善した入力規制制御を解析する。すなわち、規制方式として非優先呼の到着間隔を制御する呼間隔制御を導入した制御を提案し、その特性を明らかにする。本モデルは、呼間隔制御に関するパラメータ値の設定の仕方により、無制御および非優先呼をすべて規制する全面規制方式にも適用できる。過渡状態、および定常状態における本モデルの特性を解析し、全面規制方式よりも優れた点が多いことを指摘する。また、呼間隔制御に関するパラメータ値の設定に関し、優先呼を保護する観点か

ら1つの目安を与える。

第5章では、第4章の制御方式において、非優先呼の生起間隔分布を拡張したモデルを解析する。従って、本モデルは、第4章の制御方式を含むばかりでなく、非優先呼の生起間隔分布が任意の場合を取り扱えるので、一般性がある。本モデルの定常状態を解析する。また、規制制御発動中における非優先呼の平均到着間隔を導出する。その結果、非優先呼の生起間隔のばらつきが小さい程、非優先呼の到着呼量が大きくなることを解析的に示す。さらに、数値例により非優先呼の生起間隔分布が本制御特性に及ぼす影響を明らかにする。

第6章は結論で、得られた成果をまとめ、今後の課題について言及する。

## 論文調査の要旨

情報伝達システムは、社会経済活動の高度化に伴う新しい通信サービスの要求、および近年のLSIに代表される電子デバイス技術の進歩により、めざましく発達してきた。その主体をなす電話網では、蓄積プログラム制御の電子交換機、共通線信号方式等の導入が進められ、ディジタル化が進行している。また、パケット網、ファクシミリ網等の電話以外の各種の通信サービス系の構築が進められている。このように情報伝達システムが高度化していき、サービスの需要が増加するにつれ、その情報伝達システムを効率よく運用していくための制御が重要になる。

本論文では、情報伝達システムにおける制御方式を提案し、その解析に関する問題を扱っている。また、適切な制御アルゴリズムを提案し、実際に制御を導入した大規模網モデルのシミュレーションにより、そのアルゴリズムの有効性を確認している。

情報伝達システムの制御については、その目的から、ルーティングとフロー制御が考えられる。

ルーティングに関しては、以前から特に電話網について多くの研究があるが、それらの研究には、交換機はふくそうしないという仮定を設けている。すなわち、モデルの設定にあたって、交換機の呼接続処理をモデル化していない。本論文では、他のルートへ迂回させる迂回拡大を例にとり、ルート選択の判断指標として、交換機の空き情報がルート選択に対しては不可欠であることを明らかにしている。

一方、フロー制御に関しても多くの研究があるが、

いずれも呼の生起時、または退去時の系内呼数に基づいた制御モデルに関するものである。観測時点が系の状態とは独立であるようなモデルについては、ほとんど検討されていない。わずかに Yaroshevskiy (1979), 川島 (1983) の研究があるが、両者共に、2種類の入力を共にポアソン呼と仮定している。一般に情報伝達システムにおいては、規制の対象となる呼は他のルートからあふれた呼等、非ポアソン呼であることが多い。また、規制方式も、規制の対象となる呼をある決められた割合だけ呼損、またはすべて呼損とする最も簡単な方式である。この方式では実用上種々の問題がある。

本論文では、情報伝達システムにおけるフロー制御として基本的である入力規制制御においては、従来はほとんど解析されていなかったサンプリング観測方式に基づいた制御方式を待ち行列理論を用いて解析している。そこでは、まず全面規制方式について論じ、規制制御発動中における系に過度の空きが生じ易い欠点を指摘している。次に、規制の対象となる呼の系への到着間隔がある決められた値以上になるような呼間隔制御を提案し、その特性を明らかにし、過渡状態、定常状態における状態方程式を導き、数値例により本制御方式の有効性を示している。これまでは規制の対象となる呼は指数分布 (ポアソン呼) として解析を行ったが、さらに一般分布に拡張した場合についても解析を行っている。

なお、現在または将来にわたって、系を観測するためのプログラムを含む種々の呼処理プログラムが離散的に起動されることを考えると、サンプリング観測方式に基づく入力規制制御に関する研究は、今後もきわめて重要になるう。

以上要するに、本論文は情報伝達システムの制御に関し、交換機の呼接続処理をモデル化したルーティングと、サンプリング観測に基づいたフロー制御の方式を提案し、解析とシミュレーションによりその有効性を示したもので、情報システム工学に寄与するところが大きい。よって、本論文は工学博士の学位論文に値するものであると認める。

物・窒素酸化物の同時除去技術に関する研究

#### 論文調査委員

|       |      |    |         |
|-------|------|----|---------|
| (主 査) | 九州大学 | 教授 | 持 田 勲   |
| (副 査) | 〃    | 〃  | 田 代 昌 士 |
| 〃     | 〃    | 〃  | 西 村 幸 雄 |
| 〃     | 〃    | 〃  | 山 添 昇   |

### 論文内容の要旨

現在、大形ボイラーなどの排煙は窒素酸化物についてはアンモニアを用いる高温の選択的接触の反応による還元無害化、硫黄酸化物は湿式酸化後、硫酸カルシウムとして固定化除去の2工程の組み合わせによる脱硝、脱硫により浄化されている。これら技術はおおむね、完成の域にあって、多数の実装置が操業されている。しかし、より大きなエネルギー回収、回収硫黄の柔軟性および用水量の低減、排水処理が不要であることなどの点から、次世代排煙浄化は乾式の同時脱硫・脱硝プロセスであると想定される。

本研究は活性炭あるいは活性コークスを使用する排煙の乾式同時脱硫・脱硝技術を開発するために安価な活性コークスの製造法、活性コークスの脱硫・脱硝能、硫酸賦活による脱硝活性の増強と脱硝機構および活性コークスを用いる移動床プロセス、ポリアクリルニトリルより調製された活性炭素繊維 (PAN-ACF) の脱硝能、硫酸賦活効果および脱硝活性点についての一連の研究結果をまとめたものである。

第1章では、排煙脱硫技術の現況と活性炭による硫黄酸化物の酸化吸着除去について、これまでの研究結果を要約し、高強度活性炭の移動床プロセスの有効性と脱硝能向上の必要性を論じた。

第2章では、石炭から安価で、かつ、高活性、高強度な活性コークスの製造法について検討した。まず、主原料を流動乾留により、適切な粘結性と高比表面積をもつ半成コークスを調製し、これに副原料石炭、軟ピッチを加え、成型炭とし、つぎに、乾留、賦活 (水蒸気賦活) して活性コークスを調製した。その結果、(1) 最適流動乾留温度は半成コークスが最高比表面積を与える 480～500℃である。(2) 活性コークスの強度は配合試料のロガ指数で推定できる。(3) 成型炭の乾留温度は、活性コークスの強度および賦活段階でのガス化速度の両者を勘案して、800℃が最適である。(4) 900℃—40分の賦活は強度を低下させることなく、

氏 名 (本籍) 小松原 克 展 (栃木県)  
学 位 記 番 号 総理工博乙第35号  
学位授与の日附 昭和61年1月25日  
学 位 論 文 題 目 活性炭を用いた排煙中の硫黄酸化

脱硫に十分な比表面積を与えられる。(5) 活性コークスの脱硝能は比表面積にかならずしも比例しないで、原料に依存することが明らかとなった。

第3章では、西ドイツ Bergbau Forschung 社製活性コークス (BF) 上での一酸化窒素-アンモニア反応を閉鎖型循環反応装置を用いて研究した。その結果、活性コークスの脱硝活性は硫酸吸着-二酸化硫黄回収熱再生処理によって、顕著に増加できることを見出した。硫酸を 100%以上 (重量比) 担持したとき、熱再生温度 400～450℃で最大活性がえられた。一方、500℃以上の高温の再生では活性は急速に低下する。また、脱硝反応の律速段階は不可逆に吸着したアンモニアと弱く吸着した一酸化窒素間の反応であることと推論した。

第4章では、二酸化イオウの酸化吸着能のある高比表面積の炭素材料を選び、硫酸処理後の一酸化窒素-アンモニア反応活性を調べた。その結果、ポリアクリルニトリル (PAN) から製造した活性炭素繊維が高活性であることを見出した。また、閉鎖循環型反応器を用いて測定した活性コークスの脱硝活性が実排ガス組成による流通反応試験の結果と対応することも確かめた。

流通反応装置によって、活性コークスの脱硝→脱硫→再生の工程をくり返すと NO-NH<sub>3</sub> 反応活性が増大することを確認し、くり返しによる表面酸素含有量の増大が活性の増加と対応していることを示した。活性コークスの循環にともない、灰分の蓄積が懸念されたが、再使用前のフルイ分けにより防止できた。これらの結果から、活性コークスを用いる移動床乾式脱硫・脱硝が実用的に可能であることが確認できた。そこで、この結果にもとづいて設計された実用プラントの 1/100 規模のパイロット装置の操業結果についても記述した。

第5章では、硫酸賦活した PAN 活性炭素繊維が一酸化窒素を窒素分子に還元できることに注目して、この反応をアンモニアを使用しない脱硝法とするため、炭素繊維の反応性向上と反応機構をしらべた。その結果、この反応に対しても、硫酸賦活による効果は顕著で、PAN-ACF-B に硫酸担持 300% 後、450℃の熱再生を施すことによって、 $9.8 \mu\text{mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$  の窒素生成速度を得た。これは BF 活性コークスでの一酸化窒素-アンモニア反応における反応速度  $16 \mu\text{mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$  に相当する。

NO と炭素繊維の反応は NO 分圧に対し、2 次であることから、NO 2 分子の表面反応律速機構を提案した。なお、PAN-ACF 以外の炭素は活性炭を含めて、硫酸賦活後も本反応に対する反応性は極めて低かった。

第6章では、供試とした炭素材料中、最も活性の高かった PAN-ACF の活性をさらに向上することを目的とし、ACF の種類および賦活条件を検討した。その結果、最高  $63 \mu\text{mol} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{min}^{-1}$  の窒素生成速度 (PAN-ACF-B/3-400) を得た。活性コークスの反応性は不可逆吸着アンモニアの反応性と対応していたが、一連の PAN-ACF では、この吸着量と一酸化窒素の炭素による還元反応速度との積との相関していることを見出し、アンモニア、一酸化窒素の活性化が脱硝触媒活性の主要因子であることを明らかにした。さらに、PAN-ACF の活性点は炭素表面の酸素官能基と考えられ、アンモニアは酸点へ、一酸化窒素は酸化点への吸着、活性化されるものと推論できる。TPD, ESCA を用いて表面の酸素官能基を定性、定量分析し、脱硝活性との関係を明らかにした。

第7章では、活性コークスの再生工程で、発生する高 SO<sub>2</sub> 含有ガスの石炭コークスを用いる元素イオウへの還元方法を研究した。反応生成物は、イオウ、H<sub>2</sub>S, COS, CS<sub>2</sub> であるが、コークスの種類により反応開始温度は異なるものの、いずれのコークスでも、同温度付近での生成物は元素イオウのみであることを見出した。反応温度の上昇とともに、H<sub>2</sub>, CO の生成が顕著となって、さらにこれらのガスがイオウと反応して生成する H<sub>2</sub>S, COS が増大する。3 種の石炭コークスの二酸化イオウに対する反応性の違いは主に、気孔径のかかなり大きな細孔が形成する表面積によってきまり、CO<sub>2</sub> ガスの場合と異なって、含有灰分の触媒効果は小さい。

第8章では本論文の研究成果をまとめた。

## 論文調査の要旨

現在迄に、大形ボイラーなどの排煙中の硫黄酸化物は湿式酸化後硫酸カルシウムとして固定化除去し、窒素酸化物はアンモニアを用いる高温での選択的接触反応により還元無害化する技術がほぼ完成され、我国の大気環境保全に大きく貢献している。しかし、次世代の望ましい技術として一層高効率の乾式同時脱硫脱硝プロセスの開発が強く期待されている。本論文はこの課題を活性炭あるいは活性コークスを使用する移動床

を用いて解決することを目的として、活性コークスの製造、活性炭による硫黄酸化物の酸化吸着除去および窒素酸化物の還元除去反応、さらに石炭による濃縮硫黄酸化物の還元について基礎研究結果をまとめたものである。

従来、高価格の活性炭を用いて硫黄酸化物の吸着除去、金属酸化物担持活性炭による窒素酸化物のアンモニア還元についての研究が報告されているが、本研究では石炭を原料として移動床に使用可能な安価で強固な活性コークスの製造に成功し、さらに活性コークスあるいはポリアクリルニトリル (PAN) 炭を硫酸で賦活することにより、アンモニアを用いる一酸化窒素還元能の大巾な向上を見出し、その活性発現機構を明らかにし、排煙の同時脱硫脱硝法の基礎を確立した。

以下、本論文の主な成果について述べる。

1. 石炭を流動乾留、成型炭化、水蒸気賦活する三工程により高表面積、高強度の活性コークスを安価に製造する方法を確立した。この活性コークスを使用して、移動床による排煙脱硫、二酸化硫黄の濃縮回収が可能であることを明らかにした。

2. 本研究で調製した活性コークスを硫酸吸着-加熱二酸化硫黄回収処理により賦活すると、アンモニアによる一酸化窒素還元能が約 10 倍向上することを見出した。これにより、本活性コークスを用いて移動床同時脱硫脱硝が可能となった。

3. PAN 炭を硫酸賦活することにより、極めて高い脱硝活性が発現することを見出し、PAN 炭中の窒素含量と活性との間に相関があることを明らかにした。

4. 硫酸賦活により活性コークス、PAN 炭上に形成された含酸素酸性基、含酸素酸化性基が脱硝活性点であることを反応速度論、吸着、ESCA、昇温熱分解分析により明らかにした。

5. 以上の成果をふまえて設計建設された活性コークスを用いる移動床脱硫脱硝パイロットプラントの運転に成功し、本法の実用化の可能性を証明した。

以上要するに、本論文は活性コークスを用いる移動床同時脱硫脱硝法の技術開発について、活性コークスの製造、脱硝能の向上、脱硝反応機構の解明、高脱硝活性炭素材の探索の観点から研究した成果をまとめたもので、大気環境保全の技術開発として価値があるばかりでなく、炭素科学、触媒工学にも寄与するところ大である。よって本論文は工学博士の学位に値するも

のと認められる。

氏 名 (本籍) 長 田 一 興 (長崎県)

学 位 記 番 号 総理工博乙第 36 号

学位授与の日附 昭和 61 年 1 月 25 日

学 位 論 文 題 目 一括処理法による手書き文字認識  
に関する研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教 授 吉 田 将

(副 査) 〃 〃 田 町 常 夫

〃 〃 〃 浅 野 長一郎

〃 〃 〃 相 良 節 夫

## 論文内容の要旨

従来から開発されてきた文字認識手法は、文字図形をある要素図形 (Primitive) の集合に分解し、それらの間の構造パラメータの値に基づいて認識を行なういわゆる構造解析的手法と、文字図形を分解することなく文字図形全体の画素情報に基づいて認識を行なう、本研究で一括処理法 (Lump method) と呼んでいる手法に分けることができる。

構造解析的手法は、認識対象となる文字の集合に安定に出現する要素図形を見出せる場合には精密な分析が可能であり数字、カタカナ等の手書き文字に対して有効性が示されているが、認識論理を構成するのに必要な要素図形の属性値・相互関係などの構造パラメータの選択は、認識対象となる文字の集合に依存し、しかも設計者の経験に頼る面が強い。

一括処理法は、文字図形の構造の精密な分析には不向きであり、元来印刷文字認識のために開発されたものが多く、この手法で扱うデータが例えばメッシュ・パターンのような質的に様な情報を要素とするベクトルであり、数学的手法に乗り易く単純であることから、手書き文字認識に適用して設計者の直感に頼ることなく機械的に認識論理を構成することが試みられている。代表的な手法はパターン整合法によるものである。

しかし、パターン整合法でも手書き文字に適用した場合にはいくつかの問題点があり、全く機械的に認識論理を構成できるわけではない。

本研究ではパターン整合法で用いられている距離概念に基づく認識尺度ではなくて、ベイズ的な決定法に

関連した確率概念に基づいた認識尺度をもちいた一つの括処理法を提案し、この手法では全く機械的に認識理論が構成できることを示し、手書きカタカナ、数字、ひらがなを対象とした認識実験によってその有効性を確認した。また、本研究での一括処理法において認識対象となる字種を増やした場合に起こる問題点に対処する方法を示し、手書きカタカナを対象とした認識実験によってその有効性を示した。さらに、有効性が予想されていたものの研究領域の境界に位置しているため従来本格的な研究成果のなかった自然言語情報を援用して認識率を向上させる手法を、文字図形列が日本語の文節列となる場合について提案し、手書きカタカナを対象とした認識実験によってその有効性を確認した。

本論文は5章からなる。

第1章では従来の文字認識法を、認識論理を機械的に構成するという観点から概観し、特にパターン整合法での問題点について論じた後、本研究の目標について述べた。

第2章では、本研究での一括処理法の詳細について述べた。まず、ベイズ的な決定法に関連した認識尺度として尤度積なる量を導き、その値によって認識を行う手法について述べた。次に尤度積ベクトルに統計処理を導入することによって認識率を改善する手法について述べた。さらに有効性を確認するために行った手書きカタカナ、数字、ひらがなを対象とする認識実験結果について論じた。手書きカタカナ、数字、ひらがなについての認識率は、それぞれ、尤度積による場合に、83.5%～84.0%、89.3%～92.1%、90.1%～91.5%であったものが統計処理の導入によって、95.2%～96.4%、95.0%～95.6%、96.7%～99.1%となり大幅に認識率が改善された。

第3章では、認識対象となる字種が増えた場合に尤度積ベクトルの次元数が増して上で述べた統計処理が実際に適用しがたくなるという問題に対処するための方法について述べた。すなわち、伝達情報量によって尤度積ベクトルの各要素の重要度を評価し、重要度の高い要素のみからなるベクトルを用いた認識法を提案した。さらに有効性を確認するために行った手書きカタカナを対象とする認識実験結果について論じた。大幅に認識率を下げることなく、もとの46次元から30～20次元にまで次元数を下げることができることが示された。

第4章では、文字図形列が日本語の文節列である場合に文字図形列が受ける言語的拘束性(文脈)を用いて認識率を向上させる手法を提案した。さらに、入力文に文節分かち書きされるという制限をつけて等価的に文法規則を強めた場合と、入力文には制限をつけないで文脈情報のほかに文節数をヒューリスティック情報として用い、文節数の少ない解を優先した場合についても論じた。

また、認識アルゴリズムの能率についても考察し、入力文字図形列の長さ  $n$  に対して、最大時間計算量、最大領域計算量ともに  $O(n)$  であることを示した。

さらに有効性を認識するために行った手書きカタカナ文字からなる300文を対象とした認識実験結果について論じた一文字ごとの認識率と比べたとき、ベタ書き入力文に対して文脈情報のみを用いた場合には誤認識された文字の17.3%が改善されるが、入力文に制限をつけた場合には48.1%が改善され、文節数をヒューリスティック情報として用いた場合には、入力文に制限をつけた場合よりも少し悪く、何も制限をつけない場合よりもはるかによい改善率(約37%以上)となることが示された。

第5章では、本研究でえられた結果についてまとめ、今後の課題について述べた。

## 論文調査の要旨

情報社会の進展に伴い、文書などの、文字で表わされた情報を計算機で処理したいという要求は急速に強まりつつある。しかしながら、既に書かれている文字を入力する方法は、その需要の大きさにも拘らず、実用化が遅れているのが現状である。特に、日本語文書のように片かな、平がな、数字、英字、漢字その他の記号などの多くの字種が混在して用いられる場合の手書き文字の入力は困難を極めている。

本論文は、手書き文字の認識について、簡潔で基本的な手法を提案し、実験により従来の方法に劣らない認識率が得られることを示すと同時に、計算量の削減方法を与えることにより、日本語文書のように字種の多い場合の入力方式の一つの展望を与えたものである。

手書き文字の認識手法としては、文字を構成しているストロークを抽出し、そのストロークの形状、ストローク間の相互関係などの特徴を用いて認識を行うものと、文字図形全体を分解することなく、画素の集合と考えて認識を行うものがある。著者は前者を構造

解析の手法、後者を一括処理法と呼んでいる。

構造解析の手法は片かなや数字のように抽出すべき特徴が安定して現われる場合に適している。しかし、くずされて書かれる度合の大きい平がなや、図形が複雑な漢字などに対しては、特徴を安定して抽出することが困難であり、また、特徴そのものを如何に捉えるかを設計者の勘に頼って決めなければならず、論理の構成が容易でない。

一括処理法は印刷文字のように標準となる図形が存在し、入力図形との相異が少ない場合に適した方式で、数学的手法に乗せ易く、設計者の勘に頼る部分も少ないという長所を持っているが、図形の構造を精細に捉えるのには不向きであるとされている。この方式の代表的なものはパターン整合法であるが、この方法では標準図形(群)の選択方法などに設計者の勘に依存する部分が残されている。

これに対し著者は、日本語文書のように多くの、性質の異なる字種が混在する場合には、認識論理が全く機械的に構成できることが重要であるとの考えから、標準パターンやパターンの特徴などの設定作業を要しない認識尺度を考案し、これを用いた一括処理法を提案し、手書き片かな、平がな、数字に対して、実験により、その有効性を示している。

著者はまず、まず目の中に書かれた文字を、大きさの不揃いを調整するために規格化した後、その文字をメッシュに区分し、各メッシュ点における図形の黒白の情報を基に、尤度積なる量を定義し、その値の大きい文字カテゴリーに入力文字が属するものと判定する簡潔な認識手法を与えた。そして、この認識手法で手書きかな文字の認識実験を行い、認識率が84%~90%程度であることを確認した。さらに、この尤度積ベクトルに統計処理をほどこすことにより、尤度ベクトルが各メッシュ点において独立であるとしたことに、ある種の依存情報を導入し、認識率の改善を計る方法を提案している。そして、実験によって、この手法による認識率が95%~99%程度となることを確かめ、その有効性を示している。

以上のように、片かな、平がな、数字に対しては、他の方法に劣らない認識率を得ることができた。著者の提案になる一括処理法は、認識論理の単純さ故に、多くの字種を有する場合へのプログラムの拡張は容易であるが、その場合、認識率が実用になる程度に保てるかどうか、また計算量が実用になる程度に抑制でき

るかどうかが問題となる。本論文では、この点については今後の課題とされている。しかし、字種を増やした場合の計算量の増加を抑制するために、各メッシュ点のもつ伝達情報量を求めその値によって各メッシュ点の重要度を評価し、重要度の高い要素のみからなる尤度積ベクトルを用いる認識法を提案している。また、手書き片かなに対して46次元から20次元まで尤度積ベクトルの次元を下げてでも認識率の大幅な低下を見ないことを実験により確かめており、この方法が有効であることを証明している。

最後に著者は、文字が単語、句、文の要素として表われることが多いことに着目し、このような言語的な拘束性を利用して認識率を向上させる2, 3の手法についても検討を行い、文脈拘束性を利用しない場合に誤認識された文字に対して、17%~50%程度認識率を改善できることを実験によって示している。

以上要するに、本論文は手書き文字の認識について、認識対象となる文字種によって認識論理が変わらない比較的単純な認識手法を与え、従来の方法の場合に劣らない認識率が得られることを実験によって確認したものである。さらに、認識率を大幅に低下させることなく計算量を減らすことに成功しており、より多くの字種が混在する場合にもこの手法の適用が期待できることを示したもので、情報システム学上寄与するところが大きい。よって本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。

氏 名(本籍) 嶋 津 好 生(福岡県)

学 位 記 番 号 総理工博乙第37号

学位授与の日附 昭和61年1月25日

学位論文題目 概念ネットワークの賦活制御機構  
に関する研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 田 町 常 夫

(副 査)       〃       〃       駒 宮 安 男

              〃       〃       吉 田 将

              〃       〃       相 良 節 夫

## 論文内容の要旨

自然言語の機械処理において、言語の理解過程を導入する必要性が認められるようになった。自然言語の理解の問題は常識的知識という大きなライブラリを用

いて常識的推論を行う問題に置き換えることができる。

知識の表現法はいくつかあげられるが、常識的知識を取り扱うには意味ネットワークやフレームなどが適当である。従来の意味ネットワークモデルは知識の表現法として種々の難点が指摘されていた。しかし、意味ネットワークの利用法を高度化し、その利用法を実現しかつ大量のデータにも対処できる適切な記憶機構を開発すれば、意味ネットワークモデルの有効性が期待できる。

本研究は、まず、そのような機能を持つ記憶機構に関して、一つの情報処理モデルを提唱した。それを活性化意味ネットワーク (ASN) モデルと呼ぶ。ASN モデルは、意味ネットワークの表現例として数多くある諸提案を一つにまとめ、統一した形式的体系を示す試みでもある。また、意味ネットワークを賦活制御するという方法によって、意味ネットワークを節点と弧とから成る単純な構造に留め置きながら、しかも複雑な知識表現を行うことができる。

本研究はさらにそのモデルに基づいて、複雑に構造化されたネットワークデータを大量に貯蔵し利用するための新しい記憶装置を設計する。それを概念記憶システム NOAH-ASN と呼ぶ。

本論文は 10 章から構成されている。

第 1 章では緒論で、意味ネットワークの概説と ASN モデルを着想するに至った背景について述べる。

第 2 章では ASN モデルについて概説する。意味ネットワークがスロットと呼ばれる変化項をもつことは広く認識されているが、ASN モデルでは、それに、注目されていることを示す項を含め、改めて活性項と呼ぶ。知識の注目された領域は意味ネットワークの上を移動する。その注目されている領域の動態を制御し、かつ変化項を管理することを賦活制御と呼ぶ。その手続きを表現するプログラム言語として、賦活制御言語を提示した。

第 3 章では、ASN の構造とその記法について詳述する。ASN は節点・孤ラベル付き有向グラフを基底の構造とし、その上に、基底の節点の集まりとして複概念が表現され、相互に重なり合っている。ASN モデルは、この潜在化した高次の構造を識別するために、代表節点という概念を導入している。代表節点は、Hendrix, G. G. が提案したネットワーク分割の方法と等価な働きをする。

第 4 章では、因果関係の展開をテーマにして ASN

の賦活動態を例示する。その中で、知識のより広い範囲にわたる連合は賦活動態が起るたびに進行することを示す。

第 5 章では、常識的推論の多くの範例を Rieger, C. の研究成果から参照し、ASN モデルに照らして検討し直す。本章の考察によって、少なくとも Rieger が指摘した常識的推論は ASN の賦活制御によって実現でき、また ASN の賦活動態を構成する要素的な手続きの種類もそう多くないことが分った。

第 6 章では、賦活制御言語の命令形式と各命令の機能、そしてプログラミングの方法などについて詳述する。

第 7 章では、概念記憶システム NOAH-ASN の設計仕様と全体の構成について概説する。NOAH-ASN システムの中核となるのは新しく設計された分配論理連想プロセッサ NOAH である。NOAH-ASN システムは NOAH と 2 次記憶とを結合した構成になっている。

第 8 章では、連想プロセッサ NOAH の回路設計について詳述する。NOAH の命令は ASN 賦活制御言語の命令にほぼ 1 対 1 に対応する。また、NOAH プログラミングの実例も示した。

第 9 章では、NOAH と 2 次記憶との結合法について詳述する。この結合方式を謄写方式と呼ぶ。

第 10 章は結論で、NOAH-ASN システムのまとめとして、その最適設計の指標を示し、ハードウェアの定量的評価を行う。また、ASN モデルの将来への展開方向について言及する。

## 論文調査の要旨

自然言語処理においては意味理解の過程が不可欠である。それには種々の知識、たとえば自然界における感覚・知覚しうる知識、常識的知識、談話の流れなどの環境条件に関する知識等を必要とする。これらは広義の常識的知識という大きな枠組の中で知識を用いて常識的推論を行う問題として取扱うことができよう。

これまでに研究されて来た知識の表現法はいくつかあげられるが、その中で常識的な知識を取扱うためには意味ネットワークやフレームなどによる表現が適当である。しかしこれを知識の表現法として実現するには種々の難点がある。従来 G. G. Hendrix のネットワーク分割や M. Minsky のフレーム理論などが提案されているが、ネットワークを便宜的に複雑に構造化

していくことは記憶機構としての簡明さを失い、実現性に欠けることにもなる。大量のデータを取扱う人間の理解過程に近い記憶機構を実現することは一つの課題である。

著者はこのような記憶機構に関して、従来の諸提案を一つにまとめ統一した形式的体系をもつ活性化意味ネットワークモデル (ASN モデル) という一つのモデルを提唱した。このモデルは節点と弧とからなる単純な構造で複雑な知識を表現し、節点や弧が持っているスロットと呼ぶ変化項を管理し、かつ注目されているネットワークの部分の移動を制御する。そして知識の注目はこのような手続きで生じるネットワークの動態であるとするものである。著者はこれをネットワークの賦活制御と名付けている。

著者は実際に C. Rieger 等の因果関係などに関する成果をこのモデルで検討し、その有効性を確かめるとともにこのモデルの特色となる幾つかの知見を得た。この賦活制御機構をもつ意味ネットワークモデルはその目的と効果において前述のネットワーク分割やフレーム理論の方法と等価でありまた学習などに関してはそれ以上の可能性をもつものと思われる。

つぎにこの形式的な体系に基づいて、知識を単純なネットワークデータとして蓄積し、その賦活制御によって複雑に構造化された知識のユニットを識別することのできる、新しい記憶装置を設計している。これを概念記憶システム NOAH-ASN と称している。これは著者の考案した分配論理連想プロセッサ NOAH (Network-Organized Association Handler) と大容量の2次記憶を適切に結合したものである。従来、ネットワークデータを蓄積・更新・検索するための記憶装置として D. A. Savitt 等の連想蓄積プロセッサや G. J. Lipovski 等の木構造チャネルプロセッサなどがあるが、いずれも記憶上で常識的推論を行う機構として考えられてはいない。著者のシステムの考え方や技法は新規なものとして注目される。

以上要するに、本論文は常識的推論を意味ネットワーク上で行う統一的で簡潔な機構を提示し、かつそれを実現するための記憶システムを設計し新しい記憶機構とその実現性を示したもので、知識工学上寄与する所が大きい。よって本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

氏 名 (本籍) 谷 口 倫一郎 (福岡県)

学 位 記 番 号 総理工博乙第 38 号

学位授与の日附 昭和 61 年 1 月 25 日

学 位 論 文 題 目 計算機を用いた画像・図形の処理  
に関する基礎的研究—天気図の認識と検索を中心として—

#### 論文調査委員

(主 査) 九州大学 教 授 田 町 常 夫

(副 査)       〃       〃       駒 宮 安 男

              〃       〃       吉 田    将

              〃       〃       相 良 節 夫

### 論文内容の要旨

計算機システムの発達に伴い、図形、自然言語等の非数値情報の処理システムに対する要請が高まって来ている。なかでも、視覚的情報 (画像情報) は主要な情報媒体の 1 つであるので、その処理に関する研究は極めて重要な問題である。

画像情報の処理は基本的には 5 つの側面、つまり、画像の変換、画像の表現、画像の認識、画像の生成、画像の検索という側面を持っている。また、画像処理を行なうためのシステムに関する研究も画像情報処理における重要な課題の 1 つである。本論文ではこれらの問題のうち画像の認識、画像の検索、画像処理支援システムに関する研究について述べている。具体的な内容は、それらの問題に関する基礎研究として行なった、天気図認識、天気図の類似検索、汎用画像処理研究支援システムの開発に関する研究をまとめたものであり、その全体の構成は以下の 5 章からなっている。

第 1 章は序論である。ここでは、まず画像情報処理研究に関する基本的な問題点を分析している。その上で、本研究で取り上げた画像認識 (特に、図面等の人工的 2 値画像 (図形) に関するもの)、画像検索、画像処理支援システムに関する研究の現状ならびに解決すべき問題点を明らかにしている。

第 2 章では、本研究の中心となっている天気図を対象とした図形の認識について述べている。ここではまず、認識の過程で天気図から抽出すべき情報—事物とその属性—を分析している。次に、図形の認識では対象図形の適切な構造モデルの設定と、その対象に関する知識の構造化が極めて重要であるという認識に立ち、天気図の図形的構造モデルを定めると共に、認識

処理に必要な天気図及びそれに関連する知識と認識システムとの関連について言及している。ここでシステムに組み込んだ知識は、天気図の図形的構造に関する知識 (KSC) と気象現象に関する知識 (KMP) の 2 種類である。更に、天気図の認識処理のために開発した、1. 要素記号の探索、2. 不変成分の除去、3. 等圧線の断線の補間、4. 気圧の推定等の画像処理アルゴリズムについても述べている。また、以上の研究を基に開発した天気図認識システム WERP の詳細な構成と実験結果を示し、このシステムがほぼ満足できる認識能力を有することを示している。

第 3 章では、天気図を対象とした類似図形検索について述べている。画像検索においては、画像情報の多様性に対処するために類似検索の考え方が必要であるという立場から、入力として天気図を与え、予め設定した類似性に基づいて入力天気図に類似している天気図をデータベースから取り出すという検索方式について検討している。ここでの類似性評価の方法は、天気図の類似性を Dempster と Shafer の信用度モデルに対応させ、第 2 章で分析した天気図の個々の事物情報の類似性から推定評価するというものである。また、これらの考察を基に天気図検索システムを試作した上で類似検索の実験を行ない、図形の全体的な類似性を要素的な情報から評価する枠組みを明らかにしている。更に、類似検索の性能評価及び問題点についても述べている。

第 4 章では、第 3 章までの研究における経験を基にして開発した、画像情報全般を対象とする画像処理研究支援システムについて述べている。このようなシステムを開発する場合、多種多様な画像データの蓄積管理と柔軟な画像処理支援環境を実現することが重要である。この問題を解決すべく本研究で開発した IPSSENS では、入力画像や処理画像の蓄積を行なう画像データベースには、情報処理学会制定の標準画像データフォーマットに準拠したデータ構造を用い、更に、画像データの階層性や多面性をシステムで管理するために画像関係データ (image relation data) を導入している。また、IPSSENS はマルチユーザを想定した会話型のシステムとし、各ユーザ独自のコマンド体系が構築できるような画像処理コマンドプロセッサを開発することによって、ユーザの多様な用途に対応できるように考慮している。

第 5 章は本論文の結論である。ここでは、本論文

で述べた研究を総括すると共に、画像情報処理の今後に対する問題点と展望を述べている。

## 論文調査の要旨

計算機を用いた画像処理は、一般に画像の変換・表現・認識・生成・検索及びそれらの支援システムなどを包括した総称である。このうち最近特に重要視されている問題は、画像の認識、画像の内容検索とこれらの処理システムの構築である。この論文は画像の意味的理解すなわち知的処理の立場から、この 3 つの問題に対する基本的な対応策を見出そうとしたものである。

画像の中には物理的には無数の情報がある。この中から人間にとって意味のある情報を抽出するには、人間の持つ概念に結びつく特徴を抽出する必要がある。それには人間がもつ知識の利用と、人間の知的産物である自然言語の概念に結び付く特徴を見出すことが有効である。この観点は視覚と言語表現とが共通の理解構造 (中間言語) によって仲介されるものとしてそれぞれの分野の研究に有効な役割を果たすものと考えられる。この論文は天気図を対象とし、図の中からこのような意味構造を抽出してこの意味構造をもつ気象通報文を生成すること、また気象に関する質問文に対し、その意味を理解して天気図を検索し、文章で応答することなどを実行するシステムを作成し、さらに画像の知的処理に必要な支援システムとしての完成をはかった研究の成果をまとめたものである。

著者はまず、図形認識には対象に関する知識が不可欠であるという観点から天気図に関する知識、すなわち天気図の図形的構造に関する知識と気象現象に関する知識を整理し内容を明確にした。

またこの知識に基づいて天気図の認識を効率的に行う画像処理アルゴリズム、たとえば知識に基づいて経緯度線などの不変成分を除去する手法、切断された等圧線を復元する手法、等圧線の気圧値の推定を行う手法などを新たに開発している。

つぎに多様な画像情報を効率的に検索するために、類似検索の考え方を導入し、天気図を対象として類似検索システムを開発した。天気図の類似性評価の方式として、構造的な類似性よりも意味的な類似性を重視するため、Dempster と Shafer の信用度モデルを用いて表現し、天気図を構成する基本的要素の類似性から図形全体としての類似性を評価する方式を開発してい

る。

さらに著者は以上のような画像処理研究の効率化を図るための支援システムを開発している。システムに柔軟性を持たせるため、多様な画像データの集合体を記述する関係データを導入するとともに、用途に応じてシステムの機能を拡張していくための画像処理コマンドプロセッサを作成している。

天気図のような複雑な図形の認識に対し、対象に関する知識を積極的に利用することにより正確で効率的な認識を行う手法は、図面のように対象に関する知識が明確である画像の認識に有効なものと期待される。また現在、図形の類似性をもとに図形を検索する方式についての研究はほとんどなく、特に天気図のように幾つもの情報が組合されたものに対してはこのような検索方式は用いられておらず、新規性のある研究であると言える。

以上要するに本論文は人間の認識、理解過程に対応した画像の知的処理(認識、理解、検索)及びそのシステムを天気図を対象として考察し、その実現により理解の基本的問題を明らかにしたもので、情報システム工学上寄与する所が大きい。よって本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

氏 名(本籍) 矢 倉 信 也(大分県)

学 位 記 番 号 総理工博乙第39号

学位授与の日附 昭和61年2月24日

学位論文題目 放電プラズマにおける電位形成に関する研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教授 赤 崎 正 則

(副 査)       "       "       村 岡 克 紀

              "       "       河 合 良 信

              "       "       渡 辺 征 夫

## 論文内容の要旨

低気圧放電プラズマ内には、電界が局所的に集中し、電位ジャンプが生じる場合がある。この領域では正電荷と負電荷の過剰領域が隣接しており、電位ジャンプはこの意味で電荷二重層と呼ばれている。これは、局所的電位ジャンプの大きさが電子の熱運動のエネルギーより大きいためプラズマの強い非線形現象として興味があるばかりでなく、地球上の北極と南極で見ら

れるオーロラ発生の原因と深く関連しているとも考えられている。更に、電位ジャンプの低電位側に負電位のくぼみをつけることによって開放端系核融合装置における、プラズマの静電的閉じ込めがより有効になる。このように、プラズマ内の局所的電位ジャンプの形成の問題はプラズマ内の電位形成に関する研究として、放電物理学、天体物理学、プラズマ工学等において注目を集めている。

本論文は、放電プラズマ内での電位形成に関する研究をまとめたものである。放電プラズマを研究の対象とした理由の一つは電位ジャンプにより新たに生じる電離の効果も利用できるからである。先ず、プラズマの電位形成に関する実験的研究に必要な不可欠なプラズマの電位の測定について議論し、高時間分解能をもつ測定法を開発した。次に、本方法により低気圧ガス及びプラズマ内への電子又はイオンビームを注入した場合の電位形成を観測するとともに、プラズマ中での新たな局所放電により形成された電位ジャンプも測定した。これらの結果を検討し、プラズマの電位形成機構を研究した結果をまとめたもので、本論文は7章からなる。

第1章は序論で、プラズマの電位の測定法及び、プラズマ中の電位形成についてこれまでの研究を概観するとともに、本研究の意義を述べた。

第2章では、電子を放出するエミッシブプローブを用いたプラズマの電位の新しい測定法について述べた。先ず、エミッシブプローブの電流—電圧特性に及ぼすプローブの加熱電圧の影響を議論した。次に、プラズマの電位が時間的に急速に変化し、その変化が周期的である場合に用いる $1\mu\text{s}$ 程度の時間分解能をもつプラズマの電位の新しい測定法を提案した。この方法はフィードバック回路を組込んだサンプリング法を用いてエミッシブプローブの電位を浮動電位にし、時間的・空間的に連続した測定を可能にするもので、プラズマの電位形成、特に動特性に関する研究に有用である。この方法により、複雑で多種多様な電位形成機構を実験的に明確に出来ると期待される。

第3章では、低気圧ガス中に注入した電子ビームの空間電荷により深い負電位の谷をもつV型電位分布が形成されることを示すと同時に、これを実験的、理論的に論じた。荷電粒子を矩形の速度分布で近似し、電離の効果を考慮に入れた理論を提案し、これが実験結果を良く説明できることを示した。本章の結果によ

り低気圧ガス中に電子ビームを注入した場合に生じる電位ジャンプによる電離の効果が明確になった。これは、複雑な電離の効果を中性ガス中に電子ビームを注入するというモデルの単純化により解明する点に特徴がある。

第4章では、イオンシースに低電位側からイオンビームを流入するとイオンが反射し、この反射点でイオン密度の突起が生じ、その空間電荷により電荷二重層が形成されることを示した。この電荷二重層の幅と高さの関係を調べた結果、ここを流れる電子電流の大きさは空間電荷により制限されるという空間電荷制限則で示されることがわかった。更に、イオンをパルス的に流入することにより電荷二重層の形成過程も調べた。本章の実験結果により電荷二重層の一つの形成機構が明白になった。

第5章では、まず、イオンビームをプラズマ中に急激に注入すると立ち上がりの速い密度変動がプラズマ中を伝播し、これにより移動する電荷二重層が形成されることを指摘した。本研究では、注入するイオンビームのエネルギーを制御するためにトリプルプラズマ装置を用い、それに二重メッシュを付加する等の工夫を行っている。形成された電荷二重層の電位ジャンプにおける高電位領域で電子が捕捉され、低電位領域でイオンが反射されることを観測した。本章の結果により、非線形現象により生じる電荷二重層の動特性が明らかになった。

第6章では、磁界が軸方向に印加された円筒形プラズマの終端に置かれた電極の近傍で局所的に新たに放電を生じると、電極の近傍に形成される電位の高いプラズマとアース電位近くにあるプラズマ源との間に電位ジャンプができ、電荷二重層が形成されることを示した。また、この電荷二重層の形成過程において電位のくぼみが生じることも見出した。低電位側に電位のくぼみをもつ電位ジャンプは、電子とイオンの静電的閉じ込めを可能にするので、開放端系核融合装置におけるプラズマの閉じ込めに有用である。更に、磁界と平行及び垂直の電位形成の二次元構造を明確にした。

第7章では、以上のことをまとめて結論とした。

## 論文調査の要旨

一般に、プラズマ内には局所的に正電荷と負電荷の過剰領域が隣接した電荷二重層が生じる。この現象は低気圧放電管における移動荷と極地で見られるオーロ

ラ等の発生機構に関連しているものと考えられている。一方、開放端系核融合装置の両端に電荷二重層を設けることによって、高温プラズマの閉じ込めを実現しようとする試みが提案されている。電荷二重層には電位の変化を伴うので、電荷二重層の研究においてはプラズマ電位の正確な測定が必要であるが、従来の測定法では時間分解能が悪く電荷二重層の発生機構や動特性の解明が困難で、このためプラズマ中の電位形成の機構には不明の点が多い。

本研究は、放電プラズマを対象として種々の方法で電荷二重層を発生させて、それに伴う電位形成の機構を詳細に研究した結果をまとめたもので、主な成果は次の通りである。

1. 電子放出探針 (エミッシブプローブ) を用いて、プラズマ電位を高い時間・空間分解能で測定できる方法を開発している。まず、エミッシブプローブの特性に及ぼす加熱電圧の影響を詳細に検討した結果、加熱用電源の電圧を交流又はパルスにして、電圧の印加されていない位相において求めたプローブの浮動電位から、プラズマ電位を決定する方法を考案している。次に、このプローブの浮動電位測定にサンプリング法とフィードバック法を適用して、時間的・空間的な連続測定が可能で、かつ  $10^{-6}$  秒の時間分解能をもつ新しい測定回路を提案している。

2. 低気圧ガス中に電子ビームを注入するとV型の電位分布をもつ電荷二重層が形成されることを示し、その生成過程を明らかにしている。すなわち、はじめに注入された電子によって負電位の谷が形成され、この電位の谷を通過した後続電子の電離作用で作られた正電荷によって電位上昇が生ずるというモデルを提案している。このモデルに基づいて電子の速度分布関数を矩形で近似し、イオンの温度は無視できると仮定し、電離の効果をとり入れたポアソン方程式を解いて、実験結果の説明に成功している。

3. プラズマ中のイオンシースの低電位側からイオンビームを注入すると、イオンシース内に静止した電荷二重層が形成されることを見出している。この電荷二重層の巾  $L$  と電位上昇の高さ  $V$  との間には  $L \propto V^{3/4}$  が成立し、ここを流れる電流は空間電荷制限則に従うこと、また低電位領域と高電位領域ではそれぞれ、イオンプラズマ周波数と電子プラズマ周波数の波が発生することを示している。

一方、プラズマ内部にイオンを注入するために、3

つの領域からなる特殊なトリプルプラズマ装置を考案して、高速イオンの注入に成功している。この方法によれば、立上がりの早い密度変動が伝播する移動電荷二重層を励起出来ることを指摘している。この伝播速度はイオン音波の速度と同程度で注入イオンのエネルギーを増すと速くなり、電位上昇の値は  $(1 \sim 1.4) kT/e$  であることを示している。

4. 磁化プラズマ中に置かれた電極に電離電圧以上の電圧を印加すると、この電極の前面に局部放電が生じる。この新しい放電プラズマと元のプラズマとの間に電位差が生じて電荷二重層が形成されることを見出している。この電荷二重層の位置と電位上昇の高さは、電極の大きさ、ガス圧力及び磁界の値に依存し、電荷二重層の形成過程で生じる電位のくぼみの深さは  $4.5 kTe/e$  以下で、低電位側の電子の閉じ込めに十分な値であることを指摘している。この場合の電荷二重層は、開放端系核融合装置の静電プラグに応用できる可能性を示している。

以上要するに、本論文は高い時間・空間分解能を有するプラズマ電位の測定法を開発し、これを用いて放電プラズマ中に生成される各種の電荷二重層の生成機構と動特性を明らかにしたもので、プラズマ工学に寄与するところが大きい。よって本論文は工学博士の学位論文に値するものと認められる。

~~~~~

氏 名 (本籍) 和 田 憲 造 (山口県)

学 位 記 番 号 総理工博乙第40号

学位授与の日附 昭和61年2月24日

学位論文題目 ホッパの重量制御に関する研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教 授 相 良 節 夫

(副 査) " " 松 尾 一 泰

 " " 駒 宮 安 男

 " " 長 田 正

論文内容の要旨

近年粉粒体プロセスの自動化は目ざましい進歩を遂げている。しかし粉粒体プロセスの制御並びにオンライン計測は他のプロセスに比べるとまだまだ遅れているのが現状である。その理由として粉粒体の物性が非常に複雑なためプロセス変量の検出が一意的に行えないこと、また粉粒体の流動時において付着・凝集・閉

塞などの現象を伴うことなどが挙げられる。このためプロセス変量の検出を連続的に行えなくなり、このことが自動化への大きな妨げとなっている。

粉粒体プロセスにおいてホッパは貯槽および供給装置として広く用いられており、ホッパの内容量を検出し、その過不足に応じてホッパからの排出およびホッパへの供給を行うという操作は、プロセス全体から見ても必要欠くべからざる操作となっている。

ホッパの内容量を制御する上での問題点としては、ホッパからの流出量の変動(閉塞、架橋などによる)や供給ホッパからの流入量の変動などがあるが、従来のアナログ制御では粉粒体の示すこれらの現象に十分対応してきたとはいえないのが現状である。

本論文は粉粒体プロセスの制御において、制御対象としてホッパを取り上げ、ホッパの内容量の制御をマイクロプロセッサを用いて行い、現代制御理論の適用について検討したものである。制御方式としては、極をすべてZ平面の原点に持っていく有限時間整定制御方式、次に二次形式評価関数を最小化する最適制御方式の適用について検討を行った。さらに近年注目を集めているモデル規範形適応制御方式の適用について検討を行った。以下各章の概略を記す。

第1章は序論であり、本研究の背景と意義について述べ、ついで各章の内容を概説した。

第2章では、ホッパの重量制御システムの構成について記し、本プロセスの状態方程式および第3章以下で共通に用いるオブザーバについて述べ、さらにホッパについての基礎的な事項および問題点などについて述べた。

第3章では、有限時間整定制御方式の適用について述べた。高橋らにより提案されている有限時間整定制御方式は外乱およびモデリング誤差に対して定常偏差をなくするためにメインループに積分動作を設けた構成を用いているが、粉粒体プロセスのように制御量に常に小振幅のノイズが混入しているような場合、積分項による誤差の累積が生じ、さらに操作端自体が積分特性を有していることから応答は振動的となり、必ずしも積分動作が適しているとはいえない。そこで積分動作を比例動作に置き換えた制御方式を考え、この場合の外乱に対する定常偏差の問題などについて検討を行った。また本制御方式においては状態フィードバックを必要とするが、測定できない状態変数は有限時間整定制御器および最小次元オブザーバの2種類の観

測器を用いて推定を行った。まず、観測器として有限時間整定観測器を用いた場合の定常偏差を生じない条件を導き、本プロセスがこの条件を満足していることから外乱に対して定常偏差が生じないことを示した。また最小次元オブザーバを用いた場合について、定常偏差を解消するための設計パラメータの調整方法を提案し、これにより外乱に対して定常偏差が生じないことを示した。さらにプロセスの応答の面からも、比例動作を有する制御方式のほうが良好な応答を示し、本プロセスにより適していることが判明した。

第4章では、最適制御方式の適用について述べた。有限時間整定制御方式の場合非常に優れた応答を示すが、サンプリング周期が小さいとき操作量が大きくなり、操作端の大きな変動を望まないようなプロセスに対しては好ましくない場合があり、本章では二次形式評価関数を最小化する制御方式について検討を行った。

本制御方式の場合、観測器として最小次元オブザーバを用いると、外乱に対して定常偏差を生じない重み行列が存在しないことから、観測器として有限時間整定観測器を用いることにした。また定常偏差については、ここでは新たに設定値および流入量を状態変数の中に組み入れた拡大状態空間モデルを構成することにより、定常偏差の解消を行った。また外乱の場合と同様にモデリング誤差に対しても、観測器として有限時間整定観測器を用いることにより定常偏差が生じないことを示した。さらに第3章における定常偏差を生じない条件を発展させ、 n 次の直列結合のプロセスにおいて、外乱およびモデリング誤差に対して定常偏差を生じないプロセスの構成方法を与えた。

第5章では、近年注目を集めているモデル規範形適応制御方式の適用について検討を行った。本プロセスは連続系モデルを離散値系モデルに直した場合、非最小位相推移系となることから、大川らの Lyapunov の安定理論に基づくモデル規範形適応制御システムを、零点補償を行うことにより非最小位相推移系へ拡張した。そしてこの拡張されたアルゴリズムの有用性について検討を行い、外乱が存在する場合やパラメータが変動するようなプロセスに対しても有効に動作することを示した。

最後に第6章において本論文から得られた成果を要約した。

論文調査の要旨

最近のマイクロプロセッサの進歩は高級な制御を可能にし、現代制御理論を種々のプロセスへ適用することができる状態になってきている。粉体は液体と異なり物性が非常に複雑なため、流動のさいに付着、凝集、閉塞などの現象を伴い、制御が極めて困難なプロセスであり、従来の PID 制御方式では満足のいく制御が行われない場合が多かった。したがって、現代制御理論による優れた制御方式の適用が望まれていたが、まだ実際のプロセスに応用した例は少ない。

本研究は、粉粒体のホッパ重量制御に対して、現代制御理論として定着しつつある有限時間整定制御、最適レギュレータ及びモデル規範形適応制御などを適用するに際しての問題点を指摘し、その解決策を与えるとともに、マイクロコンピュータを用いて制御系を構成した実験的研究を取りまとめたものである。

著者は、まず、ホッパの重量制御に、次数に等しいサンプル時間で目標値に到達する有限時間整定制御方式を適用している。この方式では一般に定常偏差を除去するため積分動作を用いているが、この場合制御量にかなり大きなノイズが混入すること及びホッパ自身が積分作用をもっていることのため、制御装置として積分器を用いることは適切でない。そこで、状態フィードバック方式を採用し、外乱に対して定常偏差を生じない条件を求め、それを用いたオブザーバの設計法を与えている。さらに、最小次元オブザーバを用いた場合の外乱に対して定常偏差を生じない設計パラメータの調整方法の提案も行っている。これらの手法を実際のプロセスに適用しその有効性を確認している。

ついで著者は、状態値と操作量の二次形式評価関数を最小化する最適レギュレータを粉粒体のホッパの重量制御に適用し、その有効性を実験的に確かめている。まず、評価関数の重みと制御応答との関係を根軌跡法を用いて明らかにし、最適レギュレータの設計指針を与えている。また、観測器として最小次元オブザーバを用いた場合、外乱に対して定常偏差を生じない重み行列が存在しないので、有限時間整定オブザーバを用い、設定値と流入量を状態変数に組み入れた拡大変数モデルを構成することにより定常偏差を除去できる方法を提案している。さらに、 n 次の直列結合のプロセスにおいて、外乱及びモデリング誤差に対しても定常偏

差を生じないプロセスの構成法を与えている。

さらに著者は、ホッパの重量制御にモデル規範適応制御方式を適用することについて検討している。特性の異なる数種の粉粒体が層状に存在するようなプロセスでは、特性が大幅に変化するため適応制御方式を採用する必要がある。ホッパのプロセスを離散システムに直すと非最小位相系になることにより通常の適応制御方式が採用できなくなる。そこで、非最小位相系となる単位円外の零点を補償回路の極で相殺することにより最小位相系にして制御する方法を提案している。また、実際のプロセスに対して適用し実験的に本方式の有効性を立証している。

以上要するに本研究は、ホッパの重量制御に対して、現代制御理論に基づいた幾つかの制御方式について、適用に当たっての問題点を解決し、マイクロコンピュータを用いて制御系の実現をはかり実験的にその有効性を明らかにしたもので制御工学上寄与するところが大い。よって、本論文は工学博士の学位論文に値するものと認められる。

氏 名 (本籍) 竹 島 幹 夫 (長野県)
学 位 記 番 号 総理工博乙第 41 号
学位授与の日附 昭和 61 年 3 月 20 日
学 位 論 文 題 目 高分子材料の力学的及び光学的特性とその応用に関する研究

論文調査委員

(主 査) 九州大学 教 授 斎 藤 省 吾
(副 査) 〃 〃 尾 山 外 茂 男
 〃 〃 吉 永 日 出 男
 〃 〃 梶 山 千 里

論文内容の要旨

本論文においては、高分子材料の各種特性の内、特に、情報通信の分野に適用するため不可欠な力学的特性と光学的特性に着目した研究を行い、その検討結果をふまえて、高分子材料を端末外装成形品材料、大型屋外構造物構成材料、光ケーブル構成材料、光ディスク基板材料に応用した結果を述べた。

第1章では、本研究の意義と目的を述べ、次いで高分子材料開発の歴史的背景と情報通信の分野に占める位置付け、高分子材料の特徴と問題点などについて述べた。

第2章及び第3章は力学的特性についての記述であり、その内第2章では、高分子材料の衝撃特性に着目し、情報通信の分野において広く使用されているポリカーボネート(PC)、ポリビニルクロライド(PVC)、ポリメチルメタクリレート(PMMA)、ポリスチレン(PS)、などの単味材料及びPC/AAS(アクリロニトリル、アクリルコム、スチレンの3元共重合体)系複合物について、多軸引張り型の破裂衝撃試験法により解析した。その結果、(1)単味材料の破裂衝撃特性に及ぼす衝撃速度、フィルム厚、衝撃ヘッド形状などの効果を、衝撃による破壊形態(延性破壊と脆性破壊)の立場から明らかにした。(2)破裂衝撃特性が分子鎖の屈曲性や動的粘弾性緩和挙動と密接に関連することが明らかとなった。即ち、Steric hindrance parameter (σ 値) や T_g/T_g^* が小さく、Integrated loss tangent (L 値) の大きな PC の衝撃特性は優れており、逆に σ 値や T_g/T_g^* が大きく、L 値の小さな PMMA、PS などの衝撃特性は劣っている。(3)高分子複合物の混合状態や相溶性は、その衝撃特性の組成曲線や動的粘弾性緩和挙動から推定し得ることが明らかとなった。

第3章では、ガラス繊維(GF)と炭素繊維(CF)との混成複合材料(Hybrid Composite)について、複合構成法及び混成比を変化させた試料を作成し、材料設計の立場から、静的曲げ特性、衝撃特性に及ぼす混合構成法及び混成比の効果を明らかにし、構造物材料への Hybrid Composite 応用の可能性を示した。その結果、(1) Hybrid Composite の曲げによる変形破壊挙動から、GF に対する CF 補強の効果が明らかとなり、少量の CF を用いて大きな補強効果を得ることのできる複合条件を見出した。(2) 衝撃特性については、GF の大きな破壊ひずみにより、CF 充填複合物の劣った衝撃特性を改善できることが明らかとなった。次いで、FRP の材料特性を支配する最大の要因である繊維と樹脂間の接着性を明らかにするため、変形破壊時に材料内部から発生するミクロな音響情報を利用するアコースティック・エミッション(AE)法を活用し、種々の表面処理を施した CF を充填した複合物の曲げ破壊時に発生する AE を解析することにより、繊維と樹脂間の接着性を評価し、AE 法の有用性を示した。

第4章は光学的特性についての記述であり、高分子材料の光学的複屈折現象を取り上げ、先ず PC 射出成形品に関する複屈折と成形条件の関係から、複屈折低減化のための方向付けを行った。次いで、加熱収縮

率及びレーザーラマン分光特性などの解析により、複屈折発生要因を明確にした。以下に得られた結果を示す。(1) 複屈折は、成形品内に凍結された分子配向により発生することが明らかとなり、このような凍結分子配向は T_g 以上の温度での加熱処理により消失する。(2) 複屈折低減化のためには、射出成形過程において、シリンダー温度及び金型温度を上昇させ、金型内におけるアニーリング効果を促進させることが有効である。(3) 凍結分子配向の程度は、加熱収縮率により推定でき、PC の加熱収縮挙動に時間—温度換算則の適用できることが明らかとなった。(4) PC 射出成形品断面に存在する凍結分子配向分布が、ラマンスペクトル解析により、ピーク強度相対比の変化として検出可能となり、分子配向が主として skin zone と core zone の間に存在する shear zone において生ずることが判明した。

以上、第2章から第4章を通じて、高分子材料を情報通信の分野に応用する場合の力学的及び光学的特性に関する基本的特性を明確にした。

第5章では、高分子材料を光伝送用ガラスファイバ2次被覆へ応用する問題を取り上げた。まず、光ファイバの心線化工程における問題点を抽出し、心線化前後において光損失増加を生じない被覆材料、心線構造の選択及び製造条件の明確化を被覆材料の押出し成形性、心線の冷却・引取り特性の検討により明らかにし、ナイロン被覆三層構造心線の実用性を示した。次いで、光ファイバ心線の強度特性、伝送特性の長期信頼性を確立した。強度特性については、各種環境条件下における静疲労寿命の推定、引張り強度特性の長期信頼性について被覆材料の立場から論じ、加熱、湿熱、温度サイクルなどによる被覆層の特性変化が、心線の強度特性に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。伝送特性については、光損失の低温劣化特性及び高温劣化特性を取り上げ、使用環境において光損失増加を生じない被覆材料、心線構造を明確にした。最後に、海底光ケーブルにおいて問題となる静水圧による光損失増加現象を明確にするため、一本の光ファイバ心線を直線状に引き伸ばした状態での静水圧特性を測定し、短尺光ファイバ心線の静水圧による伸縮現象、座屈現象とも合わせ、光損失増加要因を明確にすると共に、被覆材料特性と光ファイバの座屈限界との関連について論じた。

第6章では、高分子材料を情報記録用光ディスク

基板へ応用する問題を取り上げた。まず、光ディスク基板に要求される特性及び製造面からみた問題点を、記録・再生特性、高速回転時の耐久性、長期寸法安定性、プリグループの転写性などの検討結果から明らかにした。次いで、透明性、力学的特性、成形性に優れた PMMA 及び PC 基板について表面精度、平面精度、熱的信頼性、複屈折性、プリグループ転写性などの評価を行い、光ディスク基板への高分子材料応用の可能性を示した。

第7章では、本研究で得られた主な研究成果をまとめて結論とした。

論文調査の要旨

高分子材料の情報通信技術分野への進出はめざましいものがあり、特にそれは光情報技術を構築する重要材料の一つに位置付けされるに至った。端末機器外装成形品、大型屋外構造物構成材料、光ケーブル構成材料、光ディスク基板等はその応用例である。しかし、これら材料の作製にあたっては経験に頼る試行錯誤的手法がとられてきたのが現状であり、材料の構造と物性の関連性に基礎を置いた合理的な材料設計指針の確立が強く望まれている。

本論文では、高分子材料の力学的性質と光学的性質を研究し、耐衝撃性及び光学的複屈折現象を支配する要因を解明し、これらの特性を向上させる手法を明らかにしている。さらに、この結果をふまえ、適切な高分子材料を用いて被覆光ファイバー並びに光ディスク基板を開発している。

以下、本論文の主な成果について述べる。

1) 各種高分子材料の破裂衝撃特性を検討し、その特性が高分子主鎖の局所運動、高分子側鎖の運動及び高分子鎖の屈曲性と密接な関係にあることを明らかにし、構造材料としての高分子を適正選択する指針を示した。

2) 高分子とガラス繊維及び炭素繊維からなる混成複合材料の静的曲げ特性と衝撃特性を検討し、両特性を向上させるための複合構成法及び混成比に関する設計基準を明らかにした。さらに、補強繊維と媒体高分子材料間の接着性を評価するためのアコースティック・エミッション法の有用性を明らかにした。

3) 高分子材料の光学的複屈折現象を検討し、材料の加熱収縮性及びレーザーラマン分光特性の測定から、材料中に凍結された分子鎖配向の異方性とその要因で

あることを明らかにした。さらに、複屈折を低減するための適切な材料成型条件を決定した。

4) 以上の結果に基づき、ナイロン12及びその共重合体を用いて、高強度かつ低損失の被覆光ファイバーを開発した。

5) 透明性と力学的性質に優れたポリメタクリル酸メチル及びポリカーボネートを用いて、表面精度、複屈折性並びにブリググループ転写性に優れた光ディスク基板を開発した。

以上要するに、本論文は高分子材料の力学的強度及び光学的複屈折性を支配する基礎要因を解明し、それらを制御する手法を確立し、さらに、光情報技術に用いる幾つかの材料を開発したものであり、材料工学の分野に寄与するところが大きい。よって、本論文は工学博士の学位論文に値するものと認める。

~~~~~

氏 名 (本籍) 宮 島 義 昭 (鹿児島県)  
学 位 記 番 号 総理工博乙第42号  
学位授与の日附 昭和61年3月20日  
学位論文題目 海底光ケーブルにおける光ファイバ強度設計に関する研究

#### 論文調査委員

(主 査) 九州大学 教 授 赤 崎 正 則  
(副 査)       〃       〃       相 良 節 夫  
              〃       〃       原 田 耕 介  
              〃       〃       福 光 於 菟三

### 論文内容の要旨

本論文は、海底光ケーブルにおける光ファイバ強度設計法の確立を目的とし、光ファイバに課すべきブルーフテスト値、高荷重ブルーフテスト後の光ファイバ生存長に関する研究成果、および、海底光ケーブル用の長尺な高強度光ファイバを歩留り良く得るための高強度接続技術に関する研究成果をまとめたものである。本論文の構成は、以下のとおりである。

第1章は、序論であり、本研究の目的、位置づけ等について明確にした。

第2章は、ブルーフテストによる光ファイバ強度の保証法について述べ、ブルーフテスト後の光ファイバ強度、あるいは破断確率の推定法について理論的に明確にした。まず、光ファイバの強度がその表面傷によって支配されること、および、長尺な光ファイバ内に

時々含まれる低弱部分を取りのぞくために光ファイバ全長にわたって一定荷重を印加する。いわゆる、ブルーフテスト法の有効性を示した。さらに、ブルーフテストを実施したあとの光ファイバ強度を実験的に求めるとともに理論的推定値と良く一致することを示し、ブルーフテストを実施することにより光ファイバの破断確率は低減できることを定量的に明らかにした。

第3章は、海底光ケーブルの伝送媒体である光ファイバに課すべきブルーフテスト値について明らかにした。まず、海底光ケーブルの伸び特性について明らかにした後、実際の布設・引揚げ時にケーブルに生じる伸び歪について明確にした。その後、第2章の理論にもとづき、最大水深8000mまで適用するうえで光ファイバ強度を保証するために必要となるブルーフテスト条件について明らかにした。その結果、水深8000mにおけるケーブル引揚げ時の張力は10トン以下にでき、このときの光ファイバ伸びは1%以下に押えられるため、必要となるブルーフテスト値は2.2%となることを示した。さらに、高荷重ブルーフテストを通過できる光ファイバはコスト高となるため、現実的な布設ルートにおける水深分布と光ファイバに対する経済性を考慮したブルーフテスト値の設定法についても考察した。

第4章は、ブルーフテストを実施した場合の光ファイバ通過長(光ファイバ生存長)および、歩留り率について述べた。すなわち、光ファイバにブルーフテストを実施すると低弱な部分では破断を生じるが、この低弱部分は不規則に存在するので光ファイバ生存長にはばらつきがあり、また、この破断の頻度はブルーフテスト値を高くする程多くなる。このときの光ファイバ生存長の分布が指数関数となること、および、平均光ファイバ生存長とブルーフテスト値との関係を理論的、実験的に明らかにし、平均光ファイバ生存長を知ることにより任意の長さの光ファイバに対する歩留り率を推定できることを明らかにした。さらに、光ファイバ表面傷の存在確率と平均光ファイバ生存長との関係を明らかにし、短尺な光ファイバでの破断試験結果から平均光ファイバ生存長を推定する方法を明らかにした。

第5章は、海底光ケーブルの光ファイバ強度設計を行う場合に基本的パラメータとなる信頼度の設定法について述べた。光ファイバは脆性材料であるため、その破断現象自体マクロ的にみるとばらつきを伴った

確率的現象となる。したがって、光ファイバ強度の保証も確率的に行うこととなり、実用的ブルーフテストレベルの設定においては、光ファイバの破断率をどの程度まで押えるかが重要な問題となる。この目安を与える値が信頼度であり、信頼度を高く設定するとブルーフテスト値も高くする必要があり光ファイバの歩留り率が低下するため光ファイバコストが高くなる。また、信頼度を低く設定すると光ファイバコストは安いが破断が生じ易くなるため保守費が高くなる。この信頼度を適切に設定する根拠として、光ファイバ製造費と保守費の合計が最低となるコストミニマム法を提案し適切な信頼度を明確にした。

第6章は、長尺高強度な光ファイバを歩留り良く得るための高強度接続技術について述べた。海底光ケーブルに用いる光ファイバには、布設・引揚げ時の歪に耐えられるように2%伸び歪み程度のブルーフテストを実施する必要がある。このブルーフテスト値で破断に至るような光ファイバ表面傷(クラック)は、平均で約5 kmに1回の割合で存在するため一連の長尺光ファイバを得にくい。そのため光ファイバを順次接続して長尺化する必要があり、従来の接続技術(最大強度約1 kg)よりも高強度な接続技術を確立する必要があった。本章では、従来の接続部強度劣化要因の一つである表面クラックを光ファイバ表面のエッチング処理により除去し高強度化できること、さらに、接続時の接触によるクラックや熱応力を抑制することにより、最大破断強度4.22 kg(伸び歪で4.9%)、平均強度3.5 kg(伸び歪で4.1%)の高強度接続部が得られたことを示した。また、高強度接続技術を海底光ケーブルに適用するためには接続点に対し2.5%伸び歪のブルーフテストを実施する必要があることを明らかにした。

第7章は、光ファイバ心線の水圧による損失増加特性、および、光ファイバ接続補強部の温度特性について述べた。海底光ケーブル用心線としてシングルモード光ファイバを用いることにより、心線に直接水圧が作用しても損失増加は小さいことを明らかにした。また、接続補強部の低温下における損失増加特性を3種類の補強構造について比較検討し、熱収縮スリーブ法、モールド法が特性的に優れていることを明確にした。

第8章は、結論であり、本研究の結果をまとめた。

## 論文調査の要旨

近年、情報伝送路として脚光を浴びている光ファイバは、低損失・広帯域で軽量であるばかりでなく、材料が自然界に豊富に存在していて価格の低下が期待できることから通信ケーブルとして急速に普及している。しかしながら、光ファイバは脆性材料で作られていて破断伸びが小で、張力が加わるとファイバに存在するクラックが原因となって断線することが多い。また側圧や曲げによって伝送損失が増加することも知られている。特に海底ケーブルの布設及び引き揚げ時には、吊り下げ状態でのケーブル自重並びに布設船の動揺によって数トンに及ぶ張力が作用するので、ケーブルに大きな伸びが生じ光ファイバの破断につながるおそれがある。このため海底ケーブルに用いる長尺光ファイバの強度設計法の開発は重要な研究課題になっている。

本研究は、クラックのある光ファイバを取り除く目的で、ファイバに予め一定張力を与えるブルーフテスト法とファイバの新しい接続法の開発に関して、理論と実験の両面から行った研究をまとめたもので以下の成果を得ている。

1. 光ファイバの強度分布は2モードのワイブル分布に従い、これら2つのモードの境界は破断伸びで示すと7%であることを見出し、ブルーフテストによって強度を改善するためには2.2%の伸び歪みを与える荷重が適当であるとの結論を導いている。また、銅耐圧パイプケーブルでは水深6000 mで所要ブルーフテスト値は3%以上になるが、アルミニウム耐圧パイプケーブルの場合は水深8000 mで2.2%であることを見出すとともに、10000 km長のケーブルで25年間の破断回数を1回としたときの各水深ごとの所要ブルーフテスト値を算出して海底ケーブルの設計指針を確立している。

更に、実際の布設ルートでの水深分布を考慮して10000 km程度の長尺ケーブルを得るには、水深6000 m以下では1.5%、水深6000～8000 mでは2.2%のブルーフテストを行うのが経済性及び作業性の観点から適切であることを示している。

2. 光ファイバ製造過程でブルーフテストを実施したときのファイバ生存長は指数分布に従うことを示し、ブルーフテストを通過できる光ファイバの歩留り率を推定している。一方接続損失を考慮すると平均光ファイバ生存長は5 km以上が必要なことから、10%の歩

留り率を確保するためのブルーテスト値は2%になることを導き、この値が水深 8000 m で使用するアルミニウム耐圧パイプケーブルのブルーテスト値と同等であることを指摘している。

3. ブルーテスト法による保証を行ううえで基本的なパラメータになる信頼度の決定法について考察を行い、ケーブル製造費と障害修理費を信頼度の関数として表し、この合計が最小になる時の信頼度を最適値と定めるコストミニマム法を提案している。現状に近い各コストをもとに算出した結果、光ファイバ5kmあたりに必要となる信頼度は、水深が 5000 m, 6000 m, 7000 m 及び 8000 m のときそれぞれ 99.94%, 99.90%, 99.82%, 及び 99.75%が最適値になることを見出している。また、通常のケーブルは6本の心線から構成されており、心線の増加はブルーテスト値の低減とケーブルコストの上昇を導くが、水深 6000 m 以上では1本の予備心線の追加によって同一信頼度

を前提とした場合のコストは低下することを示している。

4. 長尺な海底光ファイバケーブルを実現するための高強度接続法を開発している。従来の放電融着接続法で接続強度の不足が生じる原因を研究して、新たに表面エッチング処理を施すことによって十分な接続部強度を得ている。その結果、放電時間2秒、電極間隔 2.3 mm, 光ファイバ押し込み速度  $10 \mu\text{m}/\text{sec}$  で、接続部の平均強度 3.5 kg (破断伸び 4.07%) の海底光ケーブルの製造に成功している。

以上要するに、本論文は光ファイバのブルーテスト法と高強度接続法を開発して、最大水深 8000 m の海底ケーブルで 10000 km までの長尺光ファイバを高信頼度で製造するための高強度設計法を確立しており、通信工学上寄与するところが大きい。よって本論文は工学博士の学位論文に値するものと認められる。