

3. パルス通電加熱法を用いた高温における熱物性計測技術

3.1. パルス通電加熱法の概要

1.4.5 章(23 頁)で既に述べたように、パルス通電加熱法を用いた熱物性測定方法は、近年の試料加熱技術、高速の放射測温技術やデータ記録・処理技術等の発達によって初めて可能となったもので、高温における導電性試料の熱物性計測技術の分野においてめざましい発展を遂げている。この方法は微小な導電性試料にパルスの大電流を流して、1 秒以内の短い時間に室温から数千 °C の温度にまで通電加熱することを特徴としており、断熱法やドロップカロメリー法に代表される従来の定常的な測定方法と比べて、以下に挙げるような数多くの利点を有している。

- (1) 短時間のうちに広い温度範囲における複数の熱物性値を測定することが可能である。
- (2) 短時間で測定を終えるので高温での熱損失や試料の蒸発、酸化、化学反応等の影響を最小限に抑えることができる。
- (3) 試料のみを加熱するので大がかりな高温炉等を必要としない。
- (4) 同一の試料で複数の熱物性値を同時に測定するので、異なった試料を用いることに起因する測定誤差を最小限に抑えることができる。
- (5) 超高速の通電加熱などを用いることにより、熔融状態での測定も可能である。

本研究で開発したパルス通電加熱法は、一定時間の試料の通電加熱とその後の放射冷却過程を通して測定を行う単純型と、室温からの急速な加熱の後、フィードバック制御により短い時間だけ試料温度を一定に保つことを特徴とした、新しい高速温度制御を用いる方法の二つに大きく分けられる。

3.2. 単純型のパルス通電加熱法

3.2.1. 序論

図 3-1 に単純型パルス通電加熱法における試料温度の時間変化を模式的に示す。単純型のパルス通電加熱法では、リボン状の試料に 0.1~0.3 秒程度の一定時間だけパルスの大電流を流して通電加熱し、加熱時のジュール熱と、その後の冷却状態を含めた試料温度の時間変化を測定して、試料の比熱容量、半球全放射率、電気抵抗率などを求める。この方法自体はこれまで NIST (米国標準技術研究所) などにおいて研究が行われていたが、本研究のパルス通電加熱法では、分光放射率の測定に半球面鏡を使う点と、加熱電流の制御に半導体素子を使う点において、新しい独自の技術を開発した^{66,67)}。

一般的なパルス通電加熱法では放射温度計で試料温度を測定するが、真の温度を決定するためには、試料表面の分光放射率が既知であるか、または試料の一部を疑似黒体化して、この部分を測温する必要がある。従来のパルス通電加熱法ではチューブ状試料の中央に黒体孔を設ける手法が主流であったが、これに対して本研究では、試料の前面にその中心を試料表面と一致させた半球面鏡を置き、試料表面の分光放

射率を測定した。この半球面鏡の小孔から見た試料表面の実効放射率は1に近づくので、半球面鏡の有無に対応した試料表面の見かけの輝度比を測定して分光放射率を得る。この手法では、試料に黒体孔を設ける必要が無いので、単純なリボン状試料で試料の真温度を得ることができる。

また、これまでのパルス通電加熱法では、加熱電流の開閉に機械式スイッチを用いていた。しかし、このようなスイッチには比較的大きな時間遅れがあり、さらに大電流でスイッチが破壊されることも珍しくはなかった。そこで本研究では、電流の制御に大容量の電解効果型トランジスタ(FET)を使った半導体スイッチを用いた。その結果、スイッチに起因するトラブルが激減しただけでなく、電流の素早い開閉により加熱時間をより精密にコントロールすることが可能となった。

3.2.2. 測定原理

室温から急速かつ一様に通電加熱される試料中央付近の温度分布は、ある短い時間内では一様で、試料から周囲への熱損失は放射によるものに限られると考えられる。さらに試料の熱膨張が無視できると仮定すると、試料中央部での単位試料体積あたりの熱収支関係は次式で与えられる。

$$C_p m \frac{dT_s}{dt} = EI - A_s \epsilon_{ht} \sigma (T_s^4 - T_e^4) \quad (3-1)$$

ここで C_p は試料の比熱容量、 m は電圧プローブ間の有効な試料の質量、 ϵ_{ht} は試料表面の半球全放射率、 T_s と T_e はそれぞれ試料表面と周囲の温度、 E は試料表面に接触させた一对の電圧プローブ間の電位差、 I は試料に流れる電流、 A_s は電圧プローブの間の有効な試料表面積である。(3-1)式は $EI = 0$ とおくことによって通電加熱後の放射冷却状態においても成り立つので、試料が加熱されて再び室温まで冷却される一つの過程を考えると、室温から最高温度の間のある温度、 T_s 、について加熱時と冷却時の二つの熱収支式が存在する(図 3-1 参照)。そこで加熱及び冷却状態における試料表面温度の時間変化から、 T_s における加熱時と冷却時の試料温度の変化率を計算し、同時に測定された通電電流 I と電圧プローブ間の電位差 E から(3-2)と(3-3)式を用いて、 T_s における試料の比熱容量と半球全放射率を求める。これらの式で温度変化率 (dT_s/dt)

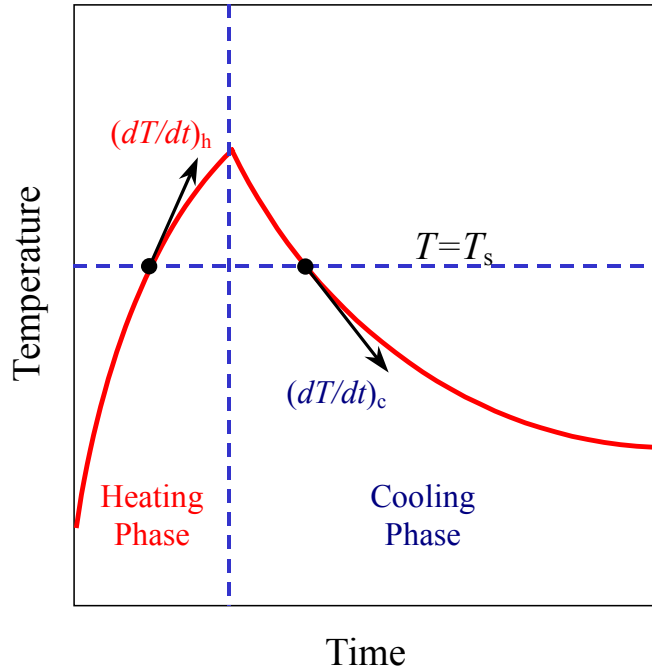


図 3-1 単純型パルス通電加熱法における試料温度の時間変化

の添字 h と c は、それぞれ加熱時と冷却時における値であることを意味する。そしてこの計算を異なる温度において繰り返すことにより、一回の通電加熱から広い温度範囲での比熱容量、放射率を求める。

$$C_p = \frac{EI}{m[(dT_s/dt)_h - (dT_s/dt)_c]} \quad (3-2)$$

$$\epsilon_{ht} = \frac{EI}{A_s \sigma (T_s^4 - T_c^4)} \cdot \frac{(dT_s/dt)_c}{(dT_s/dt)_h - (dT_s/dt)_c} \quad (3-3)$$

パルス通電加熱法では放射温度計を用いた試料表面の正確な温度測定が重要な要素技術の一つであり、放射測温における温度の測定誤差は試料表面の分光放射率の不確かさに起因することが多い。そのために、従来はチューブ状の試料の表面に黒体孔を設けるなどの方法³⁷⁾が用いられてきた。しかし、材料によってはこのような微細な加工は困難であるため、本研究では単純なりボン状試料を用い、黒体孔の代わりに半球面鏡を採用して試料表面の分光放射率を測定し、試料の真温度を決定した。

図 3-2 に半球面鏡を使った分光放射率測定概念図を示す。本研究で用いた半球面鏡は、その中心が試料表面の放射温度計による測温部と一致しており、垂直方向から 15° 傾いた方向に小さな孔が開けられている。この孔から入射した光は、試料表面と半球面鏡との多重反射により、そのほとんどが試料表面に吸収されるため、試料表面の実効的な吸収率は 1 に近づく。この場合、孔から見た試料表面の実効吸収率は解析的に次式で与えられる²¹⁾。

$$\alpha_e = \alpha(1 + \rho_s \rho_m)(1 - \rho_s \rho_m) / [1 - (\rho_s + \rho_d F_m) \rho_m] \quad (3-4)$$

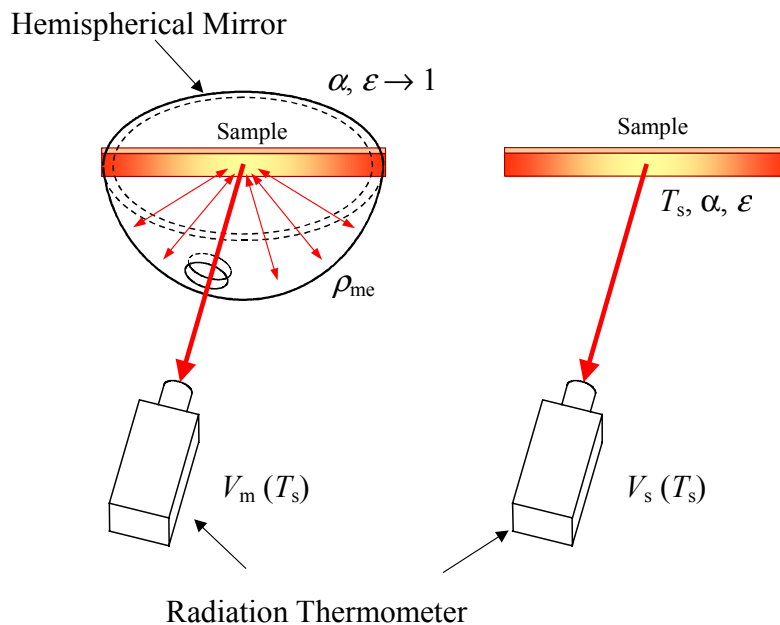


図 3-2 半球面鏡による分光放射率の測定

ここで、 α は試料表面の吸収率、 ρ_s と ρ_d はそれぞれ、試料表面の鏡面および拡散反射率($\rho_s + \rho_d = \rho$)、 ρ_m は半球面鏡の反射率、 F_m は試料から見た半球面鏡の形態係数である。測定する試料表面が完全な拡散表面であると仮定すると、 $\rho_s = 0$ なので、(3-4)式は次の形に簡略化される。

$$\alpha_e = \alpha / (1 - \rho \rho_{me}) \quad (3-5)$$

ここで、 ρ_{me} は開口部の損失を考慮した半球面鏡の実効反射率で、次式で定義される。

$$\rho_{me} = F_m \rho_m \quad (3-6)$$

キルヒホッフの法則(9頁の(1-8)式)によると、不透明体の吸収率は放射率に等しく($\alpha = \epsilon$)、また反射率(ρ)は(1- ϵ)に等しい。また(3-5)式は、ある任意の波長についても成り立つので、この式から、半球面鏡の小孔から見た実効分光放射率は次式で表される。

$$\epsilon_{\lambda,e} = \epsilon_\lambda / [1 - (1 - \epsilon_\lambda) \rho_{me}] \quad (3-7)$$

(3-7)式を分光放射率について解くと、

$$\epsilon_\lambda = 1 - (1 - r) / \rho_{me} \quad (3-8)$$

ここで、 r は ϵ_λ と $\epsilon_{\lambda,e}$ の比である。(1-17)式より、ある一定温度の表面を放射温度計で測定した際の実出力電圧(輝度に比例)は、その表面の分光放射率に比例する。従って、 r は放射温度計の実出力電圧比として次式で与えられる。

$$r \equiv \epsilon_\lambda / \epsilon_{\lambda,e} = V_s(T_s) / V_m(T_s) \quad (3-9)$$

ここで、 V_m と V_s はそれぞれ、ある温度 T_s における半球面鏡がある時とない時の試料表面の放射輝度を、放射温度計で測定した際の実出力電圧である。

放射輝度は表面温度に大きく依存するので、(3-9)式により r を計算する際には、同じ温度で放射温度計の実出力電圧を比較しなくてはならない。この温度の同一性を裏付けるために、本研究では新しく試料の電気抵抗率の温度依存性を用いた。即ち半球面鏡がある時とない時のデータから、対応する電気抵抗率が等しい二つの放射輝度値(放射温度計の実出力電圧)を選んで分光放射率を計算した。

3.2.3. 測定装置及び測定方法

図 3-3 に測定装置全体のブロック図を、図 3-4 に試料周辺の概念図を示す。水冷された真空容器の内部で厚さ 0.1~1 mm、幅 5~10 mm、長さ 40~100 mm 程度の大きさのリボン状試料の両端を一对の電極で保持する。このうち一方の電極は、試料の熱膨張を逃がすように水平方向に可動な構造となっている。試料表面には、電圧降下を測定するための黒鉛製の一对の電圧プローブが一定間隔(約 30~40 mm)で、試料表面に設

けた微小なくぼみ部分に接触させられている。これらの電圧プローブの先端は、それぞれ試料の熱膨張に伴って試料と共に微動する。真空容器の内部は比熱容量、半球全放射率の測定では 1 m Pa 以下の真空に保たれ、分光放射率の測定では半球面鏡を汚さないために大気圧のアルゴンガスで満たした。

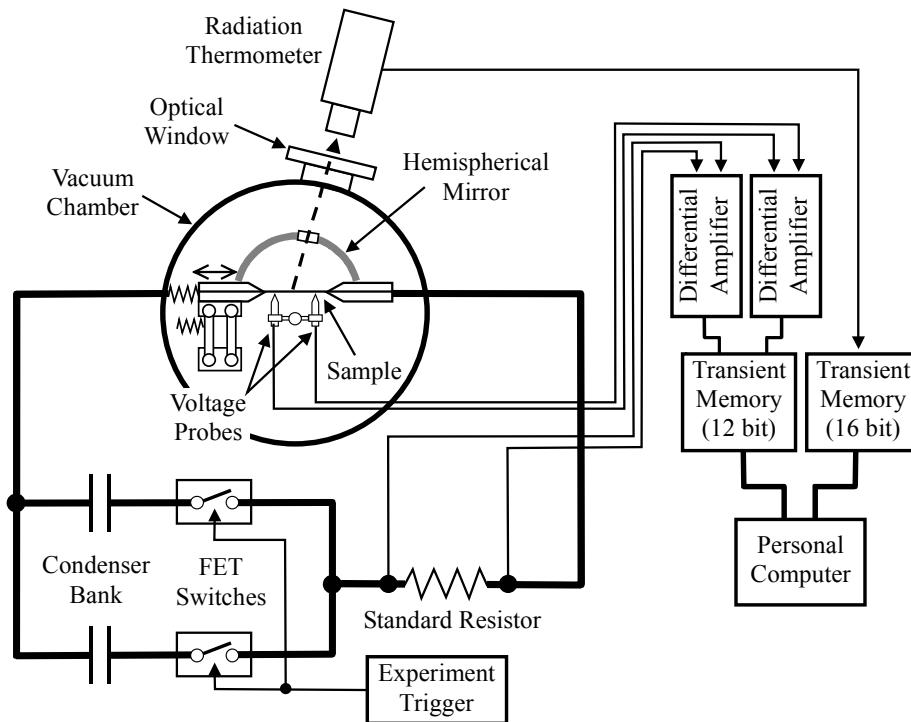


図 3-3 単純型パルス通電加熱装置のブロック図

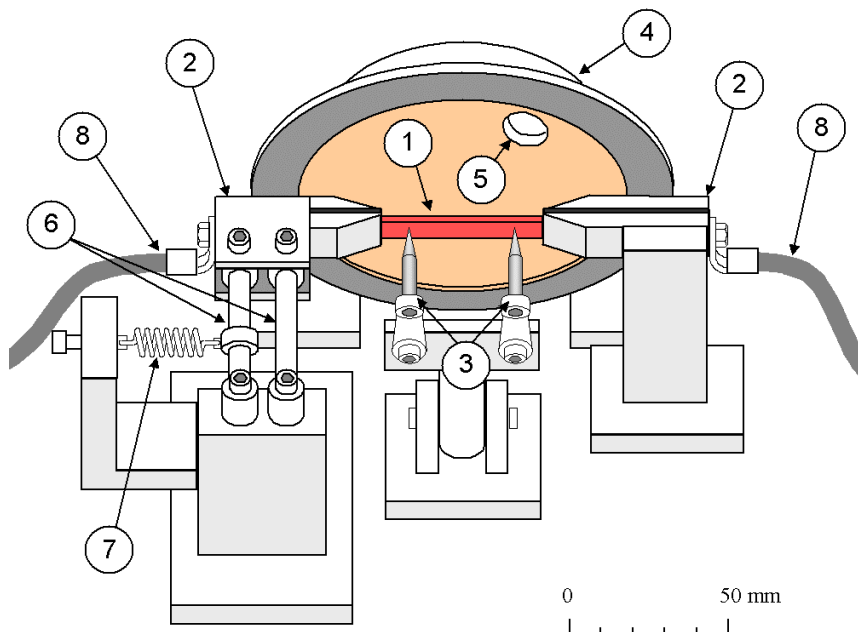


図 3-4 単純型パルス通電加熱法における試料周辺の詳細図

1, 試料; 2, 試料ホルダー; 3, 電圧プローブ; 4, 半球面鏡; 5, のぞき穴; 6, リンク機構; 7, ばね; 8, 通電ケーブル

試料を加熱する電流はコンデンサーバンクとFET(電解効果型トランジスタ)を用いた電流スイッチにより一定時間だけ試料に供給された。コンデンサーバンクは60個の電解コンデンサーによって構成され、その全容量は10.8 F、充電電圧は最大50 Vであった。供給可能な電流は最大3000 Aで、電流の大きさはコンデンサーバンクの充電電圧を変えることにより調節した。放射温度計は検出器としてシリコンフォトダイオードを用いており、測定波長は0.9 μm 、測定温度範囲は約1000~2800 K、ターゲットサイズは直径3 mm(測定距離450 mm)であった。この放射温度計は二台の定点黒体炉を用いて1235 Kと1358 Kにおいて定点校正され、出力電圧と温度の関係式の定数を決定した。放射温度計の特性式としては、(1-14)式(11頁)を用い、(1-15)と(1-17)式を使って試料の真温度を得た。分光放射率の測定に用いた半球面鏡の内径は60 mm、のぞき穴の直径は15 mmであった。この鏡の実効反射率(ρ_{me})は0.976で、分光放射率が0.9の拡散面上にこの半球面鏡を置いたときの実効分光放射率((3-7)式)は、0.997となる。標準抵抗と電圧プローブでの電位差は、差動アンプによって増幅された後12 bitのトランジェントメモリに、放射温度計の出力電圧は直接16 bitのトランジェントメモリに20 μs おきに記録された。そして測定終了後、これらのデータをパーソナルコンピュータに転送してデータ処理を行った。

3.2.4. 測定試料

グラファイト材料やC/C(Carbon/Carbon)複合材料は、超高温で使用することのできる耐熱材料として幅広い分野で利用されている。そして使用される熱的環境(温度や熱流束)が厳しくなるに従い、機器の熱設計をする上でグラファイト材料の高温での熱物性データが必要とされつつある。しかしグラファイト材料の熱物性は一般に個々の試料のキャラクター(組織や結晶状態)に強く依存するために、その熱物性データは金属などに比べて不足気味である。そこで本研究では、パルス通電加熱法を用いて、高温でのグラファイト材料の比熱容量と放射率の測定を行った。

表 3-1 測定試料(大きさ、密度、電気抵抗率は全て室温での値)

試料番号	試料名	厚さ×幅×長さ (mm^3)	表面処理	備考
1	等方性高密度黒鉛 (IG-110)	1.00 × 10.0 × 60.0	未処理	東洋炭素(株)製
2	等方性高密度黒鉛 (POCO AXM-5Q1)	0.50 × 10.0 × 51.0	未処理	NIST 標準試料
3	等方性高密度黒鉛 (POCO AXM-5Q1)	0.7 × 10 × 80	CVD SiCコート (厚さ 100 μm)	NIST 標準試料
4	C/C 複合材料	1.0 × 10 × 80	未処理	PAN系二次元織 (三菱重工(株)製)
5	C/C 複合材料	1.0 × 10 × 80	SiCに転化 (厚さ 80 μm)	PAN系二次元織 (三菱重工(株)製)

表 3-1 に測定した試料の一覧を示す。これらのうち、IG-110 は一般的に広く用いられている工業用黒鉛材料の一つである。POCO AXM-5Q1 グラファイトも、米国 POCO 社によって生産された一般に広く用いられている黒鉛材料の一つであるが、NIST(米国標準技術研究所)により熱伝導率の標準試料として提供されている。

この試料は熱伝導率だけではなく、比熱容量や電気抵抗率などが各国の標準研究所などにおいて幅広く測定されている。NISTより入手した円柱状試料(直径 25.4 mm、長さ 50 mm)から、複数のリボン状試料を切り出して測定を行った。C/C 複合材料は三菱重工業(株)製の PAN 系のもので、繊維は試料の長さと同幅の二次元方向に配向されている。またコーティングについては、グラファイトは CVD (chemical vapor deposition)によって表面に SiC 膜を生成させたもの、C/C 複合材料は表面を SiC に転化したものである。

3.2.5. 電流、電圧、温度の測定結果

図 3-5 には IG-110(表 3-1 の試料番号 1)の加熱及び冷却状態において測定された通電電流、試料での電圧降下、試料表面の放射輝度、温度の時間変化の例を示す。この例では試料は約 0.3 秒の間に約 2800 K まで加熱された。ここで通電開始後に通電電流のピークが見られるが、これは一般にグラファイト材料が 1000 K 付近で電気抵抗率の最小値を持つことによる。

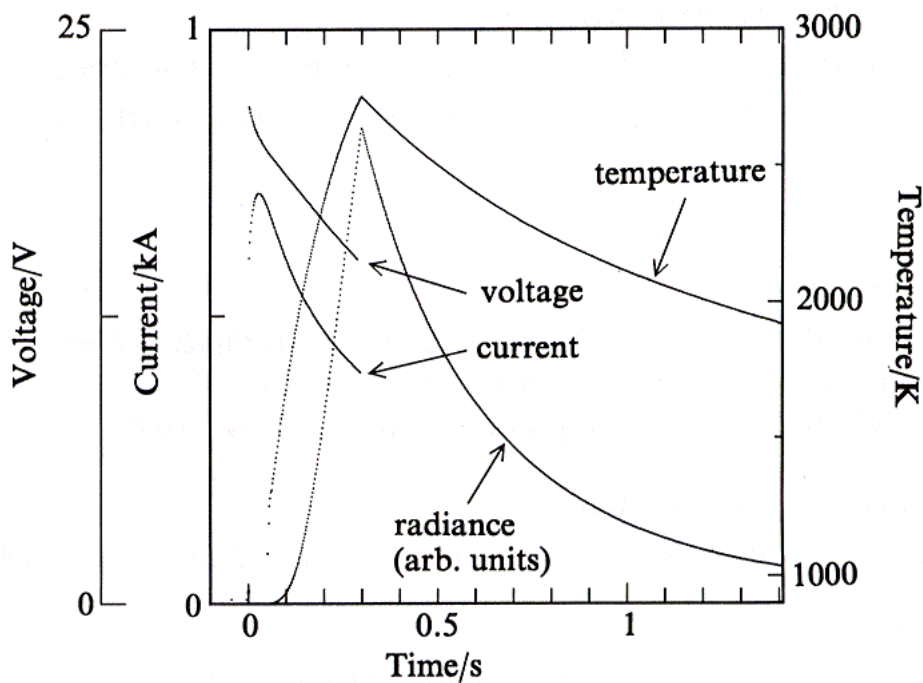


図 3-5 パルス通電加熱法における通電電流、試料での電圧降下、試料表面の放射輝度、温度の時間変化の測定例

3.2.6. 分光放射率の測定結果

図 3-6 に通電加熱時の試料表面(試料番号 1)の見かけの放射輝度を半球面鏡がある時とない時について示す。横軸は試料の電気抵抗率で、試料の温度と対応している。またこの一組の放射輝度データから計算された試料表面の分光放射率も同時に示す。この分光放射率は広い温度範囲ではほぼ一定であったので、この平均値(0.90)を以降の放射温度計による温度測定において使用した。

図 3-7には、半球面鏡を用いて測定された各種の黒鉛材料(表 3-1 の試料番号 2~5)の分光放射率を示す。これらのデータも試料の真温度を求めるためにも用いられた。コーティングのないPOCOグラファイトとC/C複合材料については、3000 K まで10回以上試料を加熱した後に分光放射率が増加する傾向が見られ、特にC/C複合材料においてその傾向が顕著であった。

3.2.7. 電気抵抗率の測定結果

図 3-8 に POCO グラファイト(表 3-1 の試料番号 2)と C/C 複合材料(試料番号 4)の電気抵抗率の測定結果を示す。POCO グラファイトについては、本来、黒鉛材料は電気抵抗率のばらつきが大きいことを考慮すると、測定値は文献値⁴¹⁾と比較的良く一致した。

C/C 複合材料については同じ試料の熱履歴の違いによる電気抵抗率の変化を示したが、この結果によると最高温度を1600 Kに抑えた初期の5回目までのデータに比べ、それ以降の最高温度を3000 Kに上げた加熱では、加熱を繰り返すにつれて特に1000~2000 Kの温度範囲において電気抵抗率が減少した。

そこで測定に使われたものと同じC/C複合材料を用いた別の試料について、3000 Kに至る約20回の通

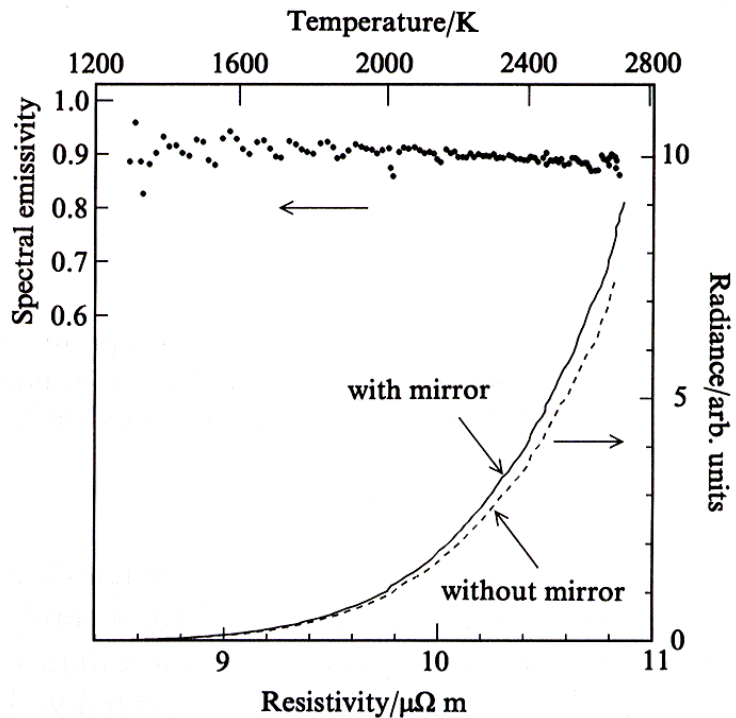


図 3-6 半球面鏡を用いて 0.9 μm で測定された IG-110 試料表面の放射輝度と分光放射率

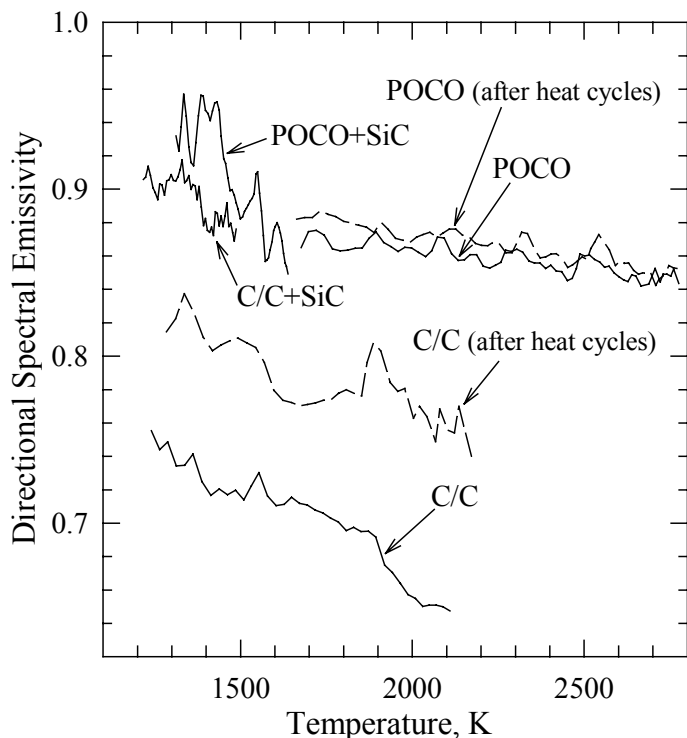


図 3-7 半球面鏡を用いて測定された POCO グラファイト、C/C 複合材料、SiC コートされた POCO グラファイトの方向分光放射率(波長 0.9 μm, 垂直から 15° 方向)

電加熱を行う前と後の粉末X線回折を行った。図 3-9 にグラファイトに特有の回折角 26 度付近の (002) 回折線によるピークを示す。この結果によると、一連の加熱によりピークが鋭くなり広角度側にシフトしている。これは試料生成時の焼成温度(約 2300 K)よりも高い温度への加熱により、試料の黒鉛化がさらに進行したことを示している。そしてこのように炭素材料の結晶化が進行したことが、熱履歴の増加と共に C/C 複合材料の電気抵抗率が減少した主な原因であると考えられる。

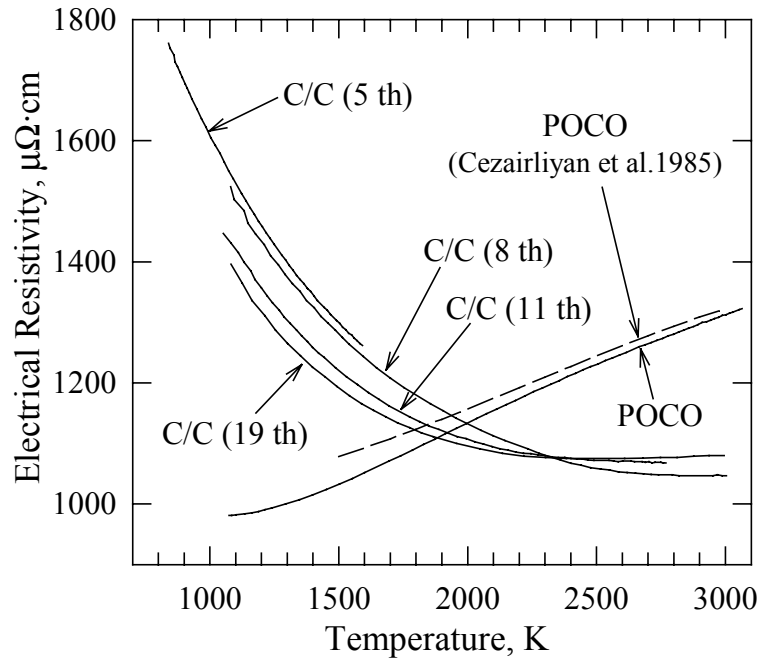


図 3-8 POCO グラファイトと C/C 複合材料の電気抵抗率の測定結果

3.2.8. 半球全放射率の測定結果

図 3-10 には各種の黒鉛材料(表 3-1 の試料番号 2~5)の半球全放射率を示す。これらのデータのうち、2 枚の POCO グラファイト試料の違いは加熱サイクルの違いなどから生じる試料の個体差であると考えられる。また半球全放射率と分光放射率の測定結果の間にはある程度の相関関係があり、分光及び半球全放射率共に C/C 複合材料の値はグラファイトに比べて低く、また SiC コートを施した試料はコーティングがないもの比べて放射率が大きくなる傾向が見られた。

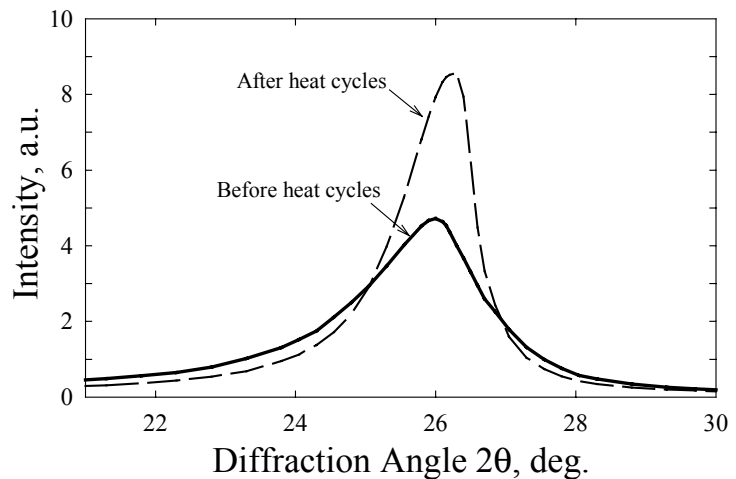


図 3-9 C/C 複合材料の X 線解析結果。約 20 回の加熱の前と後での変化を示す。

3.2.9. 比熱容量の測定結果

図 3-11 には放射温度計の測定レンジの異なる二つの温度域で測定された 2 枚の POCO グラファイト試料と、C/C 複合材料の比熱容量の測定結果を示す。この測定では POCO グラファイトの結果は同時に示されている文献値⁴¹⁾とほぼ ±2 % 以下で一致した。また他の測定例でも報告されているように³⁸⁾、C/C 複合材料と POCO グラファイトの比熱容量の間に有意な違いは見られなかった。

3.2.10. 結論(単純型パルス通電加熱法)

本研究で開発した単純型パルス通電加熱法では、加熱電流の制御に半導体素子を用いた点、そして急速加熱される表面の分光放射率測定に半球面鏡を使った点(従来は温度一定の表面のみ)が従来になく新しい技術である。半球面鏡の採用により、従来のパルス通電加熱法において多く使われていた、黒体孔を開けたチューブ状試料に比べて単純な薄いリボン形状での測定を可能とした。この技術は、特に脆くて精密加工の難しい高融点金属材料や、C/C(カーボン/カーボン)複合材料などの測定で大きな威力を発揮する。また半導体素子を用いた電流制御は、正確かつ再現性の高い試料加熱を可能とただけでなく、後述する高速温度制御を用いたパルス通電加熱法への道を開いた。

この単純型パルス通電加熱法を用いて、1300 ~ 2800 K の温度範囲でグラファイト、C/C 複合材料、及び SiC コーティングを施したグラファイト材料の電気抵抗率、比熱容量、分光放射率、及び半球全放射率を測定した。その結果、グラファイトと C/C 複合材料の比熱容量は、グラファイトの文献値と±2% 以内で一致した。分光放射率と半球全放射率については試料によるばらつきが大きい、材料やコーティングの違いにより放射率の値にある一定の傾向が見られることが確認された。また C/C 複合材料の電気抵抗率については、熱履歴を重ねるに従って抵抗値が低くなる現象が見られた。

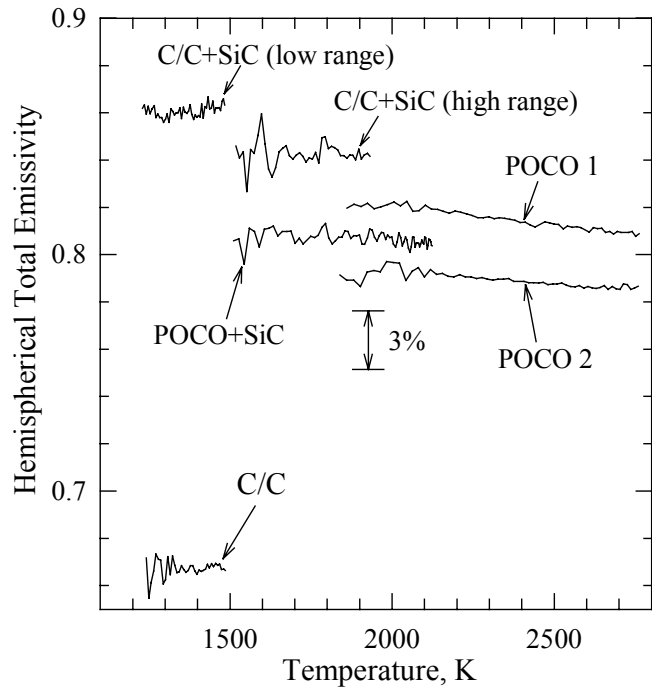


図 3-10 2枚の POCO グラファイト試料、C/C 複合材料、SiC コーティングされた POCO グラファイトの半球全放射率測定値

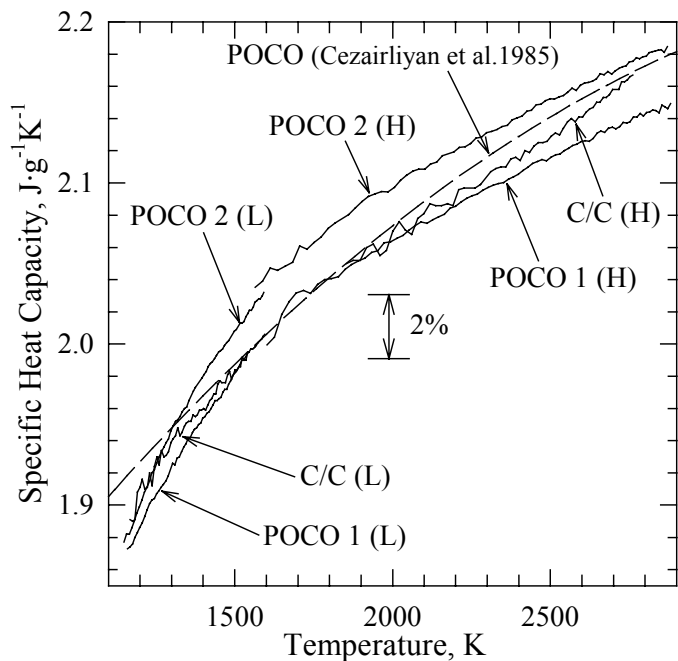


図 3-11 POCO グラファイトと C/C 複合材料の比熱容量測定結果

3.3. 高速温度制御を用いたパルス通電加熱法

3.3.1. 序論

単純型のパルス通電加熱法で開発した半導体スイッチでは、単なる電流の開閉だけではなく、電流値を連続的に制御することも可能である。そこで NIST (米国標準技術研究所) と計量研究所との共同研究により、半導体スイッチを使って加熱電流のフィードバック制御を行うことを特徴としたパルス通電加熱法を、NIST において開発した。そしてこの技術を応用して、試料温度の高速フィードバック制御を用いる新しい半球全放射率の精密測定法を開発した^{68,69)}。

この新しい半球全放射率測定方法は、試料を加熱する電流を高速制御して試料温度を 0.5 秒程度の短い時間だけ一定に保ち、この極めて短い定常状態における試料の熱収支関係から試料表面の半球全放射率を求めるものである。単純型のパルス通電加熱法では、冷却状態の温度変化率から半球全放射率を計算していたが、変化率の計算は温度ノイズの影響を受けやすく、大きなばらつきが生じ易い。これに対して新しい測定法では一定温度で測定を行うので、比較的長い時間(約 0.3 秒間)に渡るデータの平均化処理により、ばらつきの小さい半球全放射率の値が得られる。さらに、パルス通電加熱法で比熱容量を求める場合には放射熱損失の補正が不可欠なので、半球全放射率の精度向上は比熱の精度向上にも直結する。著者は NIST における基礎研究を終えた後、この測定法を計量研究所の装置にも導入し、温度制御の高速化や温度安定性の向上などの点で、さらに改良を行った⁷⁰⁾。

またこの装置では、真温度を得るために不可欠な試料表面の分光放射率を測定するために、新しく高速のエリプソメータを用いた。これは、試料表面に当てたレーザー光の反射光の偏光状態を測定して、表面の屈折率と吸収係数から、試料表面の分光放射率を非接触かつ高速に求める装置である。温度制御を用いたパルス通電加熱法を用いて、タンタル、モリブデン、タングステンの3種類の代表的な高融点金属材料について、約 1500 K からそれぞれの材料の融点に至る温度域で比熱容量と半球全放射率の測定を行った。

3.3.2. 測定原理

図 3-12 に示すように、温度制御を用いる半球全放射率測定法では、単純型のパルス通電加熱法と同様に試料を室温から所定の温度まで急速に加熱(約 100~300 ms)した後、放射温度計によって測定される試料の温度を基準に通電電流のフィードバック制御を行い、試料の温度をある時間(約 500 ms)だけ一定に保つ(図 3-12 の B)。試料は室温の様な温度分布

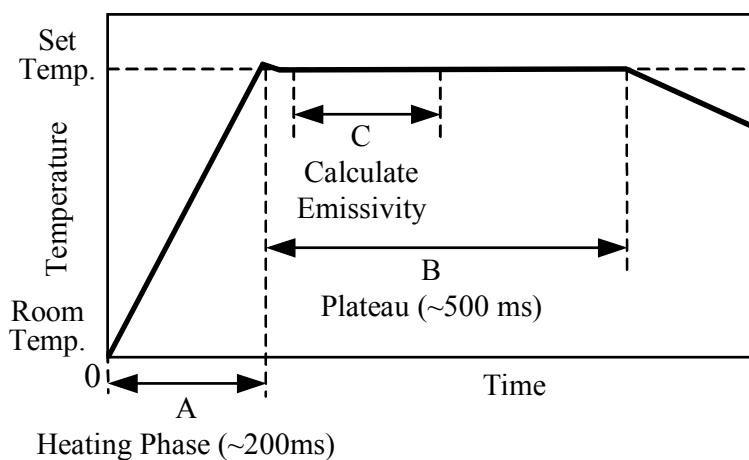


図 3-12 温度制御を用いたパルス通電加熱法の概念図

の状態から急速かつ均一に通電加熱されると仮定すると、温度制御による温度一定の状態(以後、プラトーと呼ぶ)の初期(図 3-12 の C)においては、試料中央部分の温度分布は、まだ一様な状態を保っていると考えられる。従ってこの状態では、試料長さ方向の熱伝導は無視でき、さらに試料温度は一定であるので、試料表面の半球全放射率、 ϵ_{ht} はステファン・ボルツマンの法則に基づいた放射熱流束を表す(1-13)式(10 頁)を使って、次式により与えられる。

$$\epsilon_{ht} = EI / \{ A_s \sigma (T_s^4 - T_e^4) \} \quad (3-10)$$

ここで、 E は試料表面に接触させた一对の電圧プローブ間の電位差、 I は通電電流、 A_s は電圧プローブの間にある試料の表面積、 T_s と T_e はそれぞれ試料表面と周囲の温度である。

実際の測定では測定値に含まれるランダムノイズを低減するため、プラトー初期の不安定な部分やプラトー後期の熱伝導損失の大きい部分を除いた範囲において、得られた半球全放射率の平均を取る。その結果、一回の温度制御を伴う通電加熱について、プラトー温度における一つの半球全放射率が得られる。広い温度範囲における半球全放射率を求めるには、プラトー温度を変えながら通電加熱を繰り返す。

試料の比熱容量については、3.2 章で述べた単純型のパルス通電加熱法と同様に、室温からプラトーへ至る急速加熱部分(図 3-12 の A)で得られたデータを用いて、(3-1)式(59 頁)に基づいて計算する。この比熱容量の計算を行うためには既知の半球全放射率が必要であるが、この値としては、各プラトー温度で(3-10)式により得られた半球全放射率の温度依存性を、温度の一次または二次式で近似した値を用いる。従って比熱容量の計算は、測定温度範囲における一連の通電加熱実験を全て終え、各プラトー温度での半球全放射率を全て計算し終えた後に行う。一回の通電加熱で、放射温度計の測定温度範囲の下限からプラトー温度に至る広い温度範囲における比熱容量の値が得られるので、一連の通電加熱で得られた複数の比熱容量のデータセットを、さらに最小自乗法で近似することにより、最終的に温度依存を伴う一つの比熱容量のデータセットを得る。

3.3.3. 測定装置

図 3-13 に測定装置のブロック図を、図 3-14 には装置の外観図を示す。この装置は、基本的にはこれまでの単純型のパルス通電加熱装置と同じである。新しく加えられた、あるいは変更された部分は、電流スイッチ、データ収集装置、フィードバック制御機構、エリプソメータ、と放射温度計である。これらの新しい部分について以下に詳しく説明する。

加熱電流を制御するためには大容量の FET(電界効果型トランジスタ)を 90 個並列に接続した半導体スイッチを用いた。この半導体スイッチは、加える制御電圧(FET の gate-source 間電圧)を約 3~6 V の範囲で調節することにより、単に電流を開閉するだけでなく、電流の大きさを連続的に変化させることもできる。即ち、制御電圧が 3 V 以下の場合、電流は遮断され、6 V 以上では、電流はコンデンサーバンクの電圧と回路抵抗で決まる最大値に達する。ON/OFF 制御の場合、一個の FET で制御できる電流は 50 A、90 個全部では約

4500 A である。ただし FET を使って電流量を調節する場合には、FET において余分の発熱が生じるため、制御可能な電流値はずっと小さくなる(1000 A 程度)。

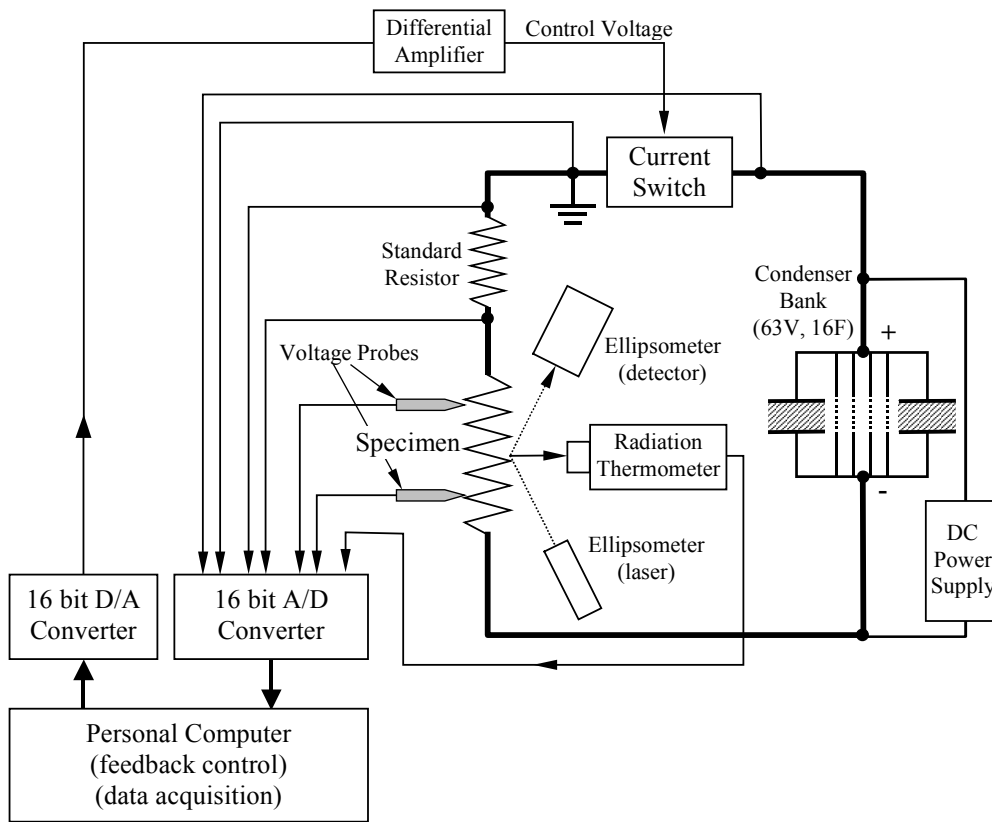


図 3-13 高速温度制御を用いたパルス通電加熱法のブロック図

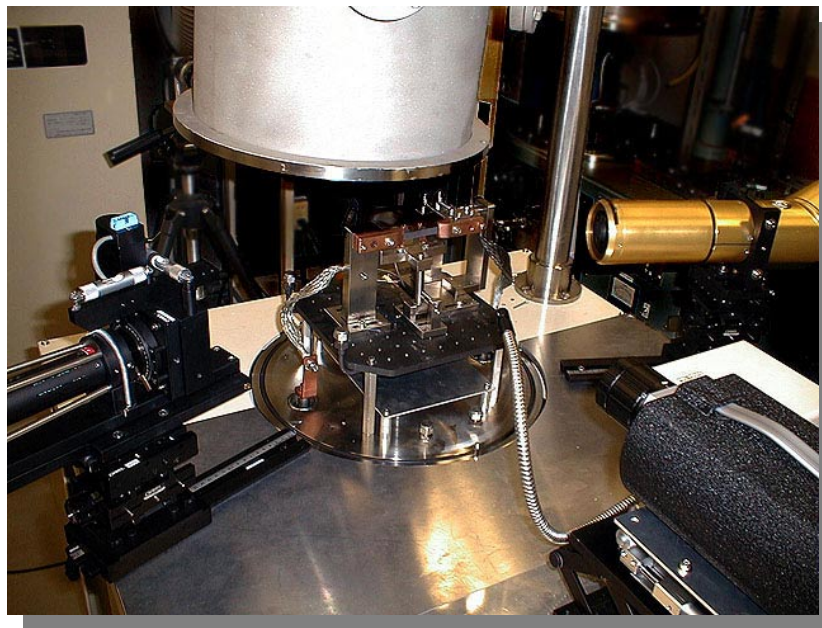


図 3-14 高速温度制御を用いたパルス通電加熱装置の試料周辺の外観

試料温度のフィードバック制御には、16 bit の A/D (analog/digital) 及び D/A 変換器を搭載したパーソナルコンピュータと制御プログラムを用いた。この A/D コンバーターにより、最大 8 チャンネルの電圧を同時測定することが可能である。一つの制御サイクルは以下の過程により構成される。

- (1) 放射温度計の出力電圧を、A/D コンバーターによりデジタル値に変換する。
- (2) 放射温度計の出力電圧を、制御プログラムにより分光放射率を 1 と仮定した輝度温度に変換する。
- (3) 一般に用いられている PID (proportional, integral, and differential) 制御理論に基づき、試料温度を一定に保つために最適な加熱電流値と、それに対応する半導体スイッチの制御電圧値を計算する。
- (4) 制御電圧値を D/A コンバーターで実電圧に変換し、差動アンプを介して半導体スイッチに送る。
- (5) 与えられた新しい制御電圧に従い加熱電流の大きさが再調整される。
- (6) 実験中、以上の制御サイクルを約 100 μ s の周期で繰り返す。

半球全放射率や比熱容量を得るために必要なデータ収集に関しては、①通電電流(回路に挿入された標準抵抗での電位差)、②試料に接触させた一对の電圧プローブ間の電位差、及び③放射温度計の出力電圧と、④半導体スイッチにおける電位差を、フィードバック制御と並行して、制御用の A/D コンバーターにより同時に測定・記録した。即ち、結果的に 4 つの電圧または電位差を、1 台の A/D コンバーターでチャンネルを切り替えながら 100 μ s おきに測定・記録することになる。そして測定終了後、これらのデータをパーソナルコンピュータに転送してデータ処理を行った。ただし前記のデータのうち、④半導体スイッチにおける電位差は、熱物性値の計算には関係はなく、通電電流との積を取ることで半導体スイッチにおける発熱量を算出するために用いられた。この発熱量が大きくなると、半導体スイッチを破損する恐れがあるので、このような場合には自動的に通電加熱を止めるように制御プログラムを作成した。

温度測定に用いた高速放射温度計はシリコンフォトダイオードを用いており、測定波長は 655 nm (半値幅 15 nm)、応答速度は 200 μ s (63 % 応答) であった。この放射温度計の測定温度域は約 1200~1900 K で、これよりも高い温度域での測定には、透過率がそれぞれ 0.337, 0.106, 0.042, 0.012 の 4 枚の ND 減光フィルターのうち、いずれか一枚を用いた。この放射温度計の出力電圧と試料表面の真温度との関係式としては、(1-15)と(1-17)式(11 頁)を用いた。測定に先立ってこの放射温度計は分光応答度の測定と、銅の定点における出力電圧を測定することにより校正された。分光応答度の測定では、分光器を用いて 350 から 1250 nm の波長域の単色光を放射温度計に入射させ、この時の出力電圧を測定した。この結果、放射温度計の波長応答特性が得られるので、プランクの式に基づいて(1-15)式の定数 A と B を決定した。次に銅点黒体炉を用いて測定された銅の凝固点 (1357.8 K) における放射温度計の出力電圧から、定数 C を決定した。

真温度を得るために不可欠な試料表面の分光放射率を測定するためには、新しく高速のエリプソメータの一種を用いた⁷¹⁻⁷³⁾。この装置は、試料表面に当たったレーザー光の反射光の偏光状態の変化を測定し、表面の屈折率と吸収係数から分光放射率を求めるものである。このエリプソメータの測定波長は 675 nm で、通電加熱中の試料表面の分光放射率を 500 μ s おきに測定した。

このエリプソメータの測定波長は放射温度計の測定波長と異なるため、エリプソメータで得られた分光放射率の補正を行った。この補正のための基礎データとしては、同じ物質の融点における複数の波長で測定された分光放射率の文献値(タンタル⁷⁴⁾、モリブデン⁷⁵⁾、タングステン⁷⁶⁾)を用いた。補正を行う波長域(655-675 nm)を含んだ複数の波長における文献値を一次式で近似し、融点における分光放射率の波長による変化率、 $(\partial \epsilon_{\lambda} / \partial \lambda)_{mp}$, を求めた。そして、この変化率が融点以下の温度域でも変わらないと仮定して、(3-11)式により、エリプソメータで得られた分光放射率、 $\epsilon_{\lambda,el}$, から、放射温度計の測定波長における分光放射率に相当する値、 $\epsilon_{\lambda,th}$, を算出した。

$$\epsilon_{\lambda,th} = \epsilon_{\lambda,el} - (\partial \epsilon_{\lambda} / \partial \lambda)_{mp} (\lambda_{el} - \lambda_{th}) \quad (3-11)$$

ここで、 λ_{el} と λ_{th} は、それぞれエリプソメータと放射温度計の測定波長である。高融点金属材料を中心とした実際の測定では、(3-11)式による分光放射率の補正量は最大でも1%程度であった。

3.3.4. 測定

測定はタングステン、モリブデン、タンタルの3種類の代表的な高融点金属材料の各々複数の試料について行った。測定した試料の寸法などを表3-2に示す。

表 3-2 測定試料

試料番号	物質名	厚さ×幅×長さ (mm ³)	純度	表面状態
Ta-1	タンタル	0.34 × 5.0 × 80.0	>99.95%	未処理
Ta-2	タンタル	0.34 × 5.1 × 80.0	>99.95%	未処理
Ta-3	タンタル	0.29 × 4.5 × 80.0	>99.95%	研磨(Rmax < 100 nm)
Mo-1	モリブデン	0.29 × 5.0 × 80.0	>99.95%	研磨(Rmax < 100 nm)
Mo-2	モリブデン	0.29 × 5.0 × 80.0	>99.95%	研磨(Rmax < 100 nm)
Mo-3	モリブデン	0.29 × 5.1 × 80.0	>99.95%	研磨(Rmax < 100 nm)
W-1	タングステン	0.27 × 5.1 × 80.0	>99.95%	研磨(Rmax < 100 nm)
W-2	タングステン	0.27 × 5.1 × 80.0	>99.95%	研磨(Rmax < 100 nm)
W-3	タングステン	0.27 × 5.1 × 80.0	>99.95%	研磨(Rmax < 100 nm)

また試料表面に接触させた電圧プローブの間隔は約40 mmであった。この電極間隔は試料の熱膨張に関係なく常に一定に保たれているので、試料が膨張するに従って、プローブの先端は試料表面を擦動する。ただし熱物性値の算出には、全て室温における寸法を用いた。試料の表面は一部の試料を除いて、最大表面荒さ(Rmax)が100 nm以下になるように鏡面研磨した。そして、前もって約 5×10^{-4} Pa (2×10^{-6} Torr)の真空中で融点に近い温度にまで数回加熱して表面をクリーニングした。この後、直ちに測定を始め、プラトー温度を測定温度域の下限(約1600 K)から約100 Kおきに上げながら繰り返し試料を加熱して、それぞれの試料の融点に近い温度に至る温度範囲で半球全放射率を測定した。

図 3-15 にタンタル試料の測定における温度と通電電流の時間変化の例を示す。この例では試料は約 100 ms の間に約 2260 K まで加熱された後、温度制御により約 400 ms の間一定温度に保たれた。通電電流は試料が設定温度に達するとともに急激に減少し、後はほぼ一定値を示している。図 3-16 はこれらの結果のうち、プラトー部分の温度変化だけを拡大して示したものである。プラトーの初期にやや大きなオーバーシュートが見られるが、その後、温度制御により試料の温度は±0.1 K 以下に保たれた。

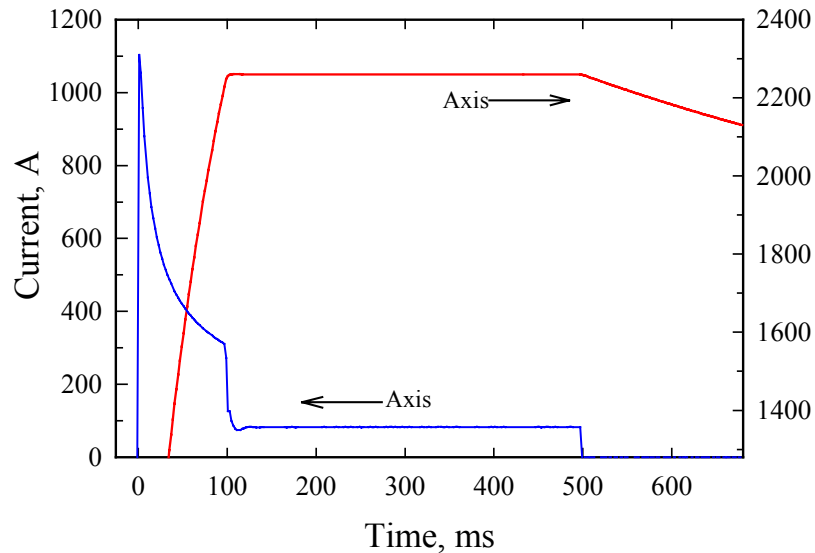


図 3-15 パルス通電加熱法における通電電流と試料温度の時間変化の測定例

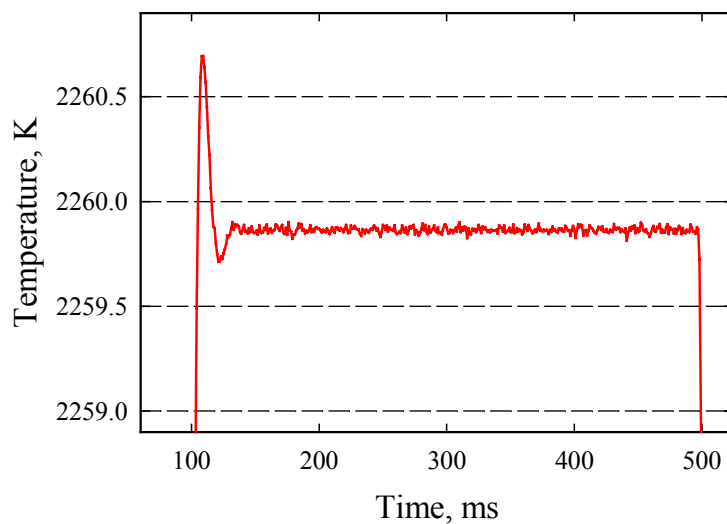


図 3-16 プラトー部分での拡大された試料の温度変化

図 3-17, 図 3-18, 図 3-19 にはエリプソメータによって測定された分光放射率を示す。これら三つのグラフ上の各データ点は、プラトーにおける測定値の平均値で、直線はそれらを一次近似したものである。各試料とも、分光放射率は温度と共にやや低下する傾向を示している。これらの測定結果は試料の真温度を計算するために用いられた。

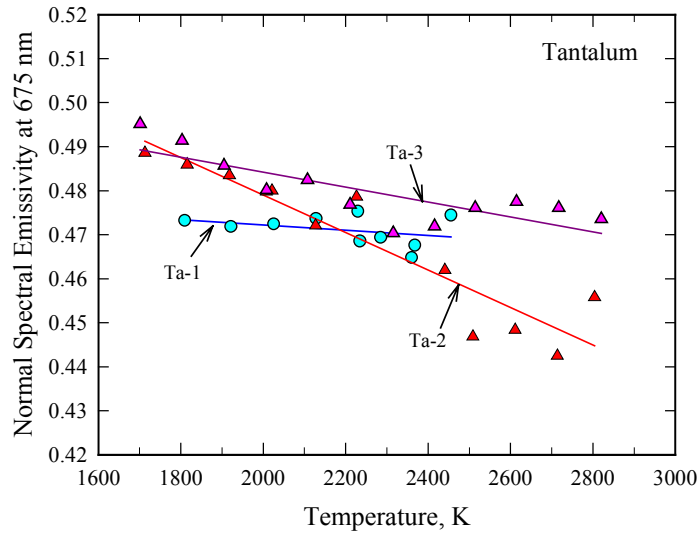


図 3-17 エリプソメータで測定されたタンタルの分光放射率

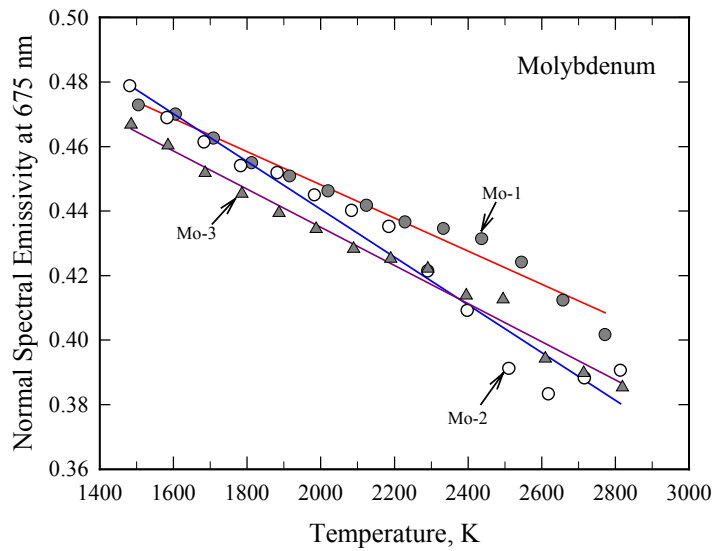


図 3-18 エリプソメータで測定されたモリブデンの分光放射率

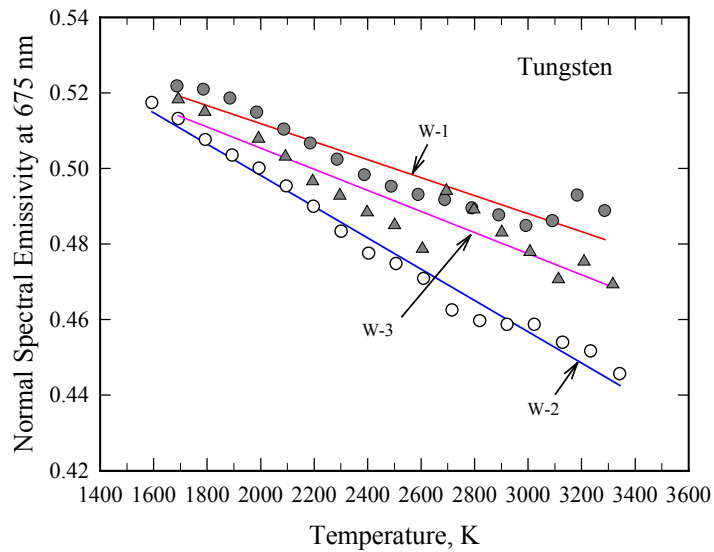


図 3-19 エリプソメータで測定されたタングステンの分光放射率

図 3-20 には、あるタンタル試料のプラトー上の各データ点において、(3-10)式(69 頁)により計算された半球全放射率の生データの例を示す。これらのデータのばらつきは、主に高速に制御される通電電流の擾乱成分による。この例では図中に矢印で示した部分において平均を取ることで、このプラトー温度での半球全放射率(0.253, 標準偏差 1.1%)を求めた。

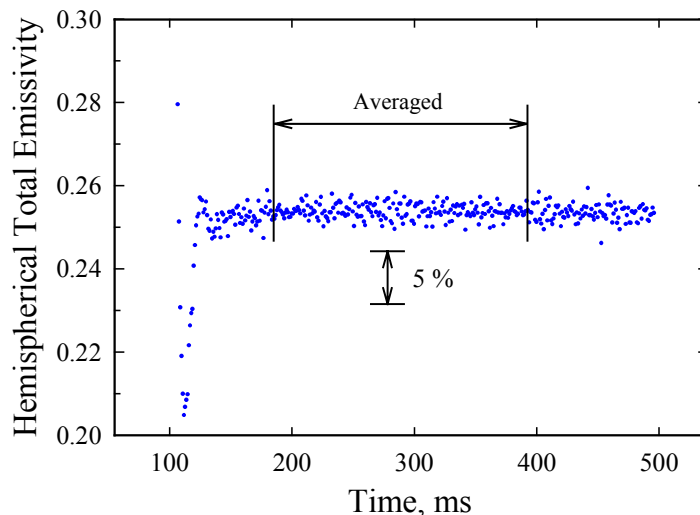


図 3-20 プラトー上の各データ点において計算されたタンタルの半球全放射率

このようにして測定されたタンタル、モリブデン、タングステンの半球全放射率を、それぞれ、図 3-21, 図 3-22, 図 3-23 に示す。これらは三つの物質のそれぞれ三つの試料について、プラトー温度を変化させた一連の測定を行った結果を示したものである。図中の実線は半球全放射率の温度依存性を二次曲線によって近似したものである。これらの全ての結果について、測定値の近似式からのばらつきは、おおよそ $\pm 0.5\%$ 以下、3 つの試料の間での測定値ばらつきは最大でも 10% 程度であった。

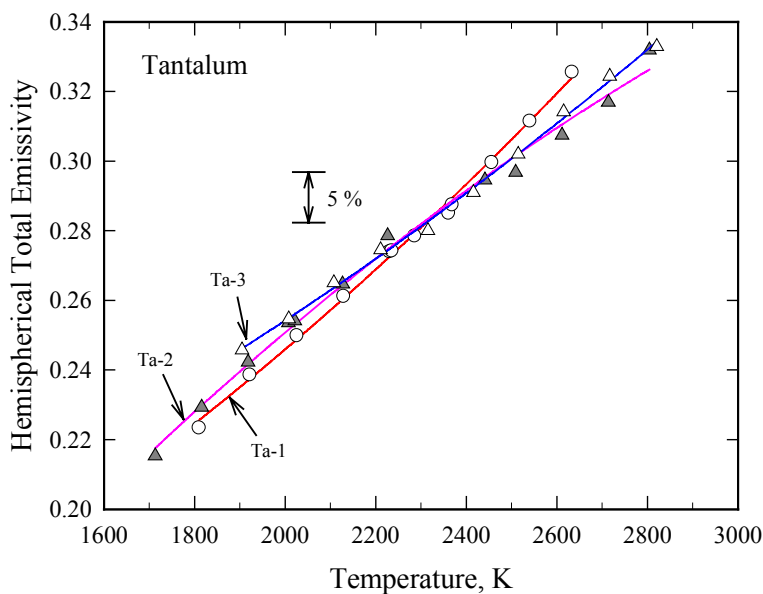


図 3-21 タンタルの半球全放射率測定値

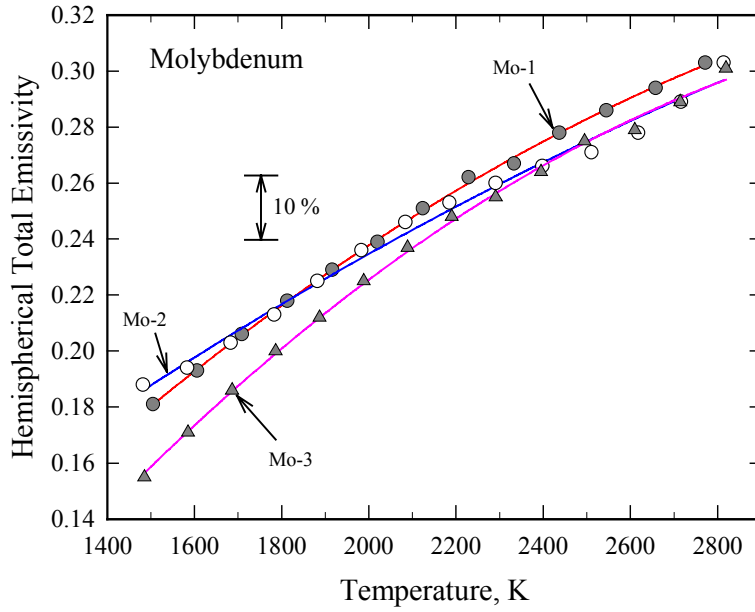


図 3-22 モリブデンの半球全放射率測定値

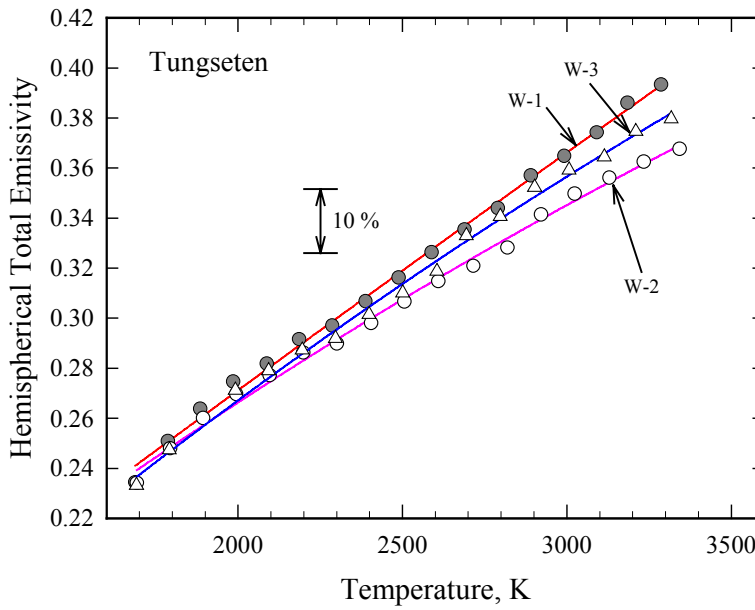


図 3-23 タングステンの半球全放射率測定値

このように、金属の半球全放射率は温度と共に増加する傾向を見せる。これは、一般に波長が短くなると共に金属の分光放射率が増加することに起因している。(1-12)式(10 頁)で表されるように、半球全放射率は分光放射率と黒体の分光放射輝度の積を積分した値として表されるので、分光放射率に波長依存性がある場合には、ウィーンの変位法則(8 頁の(1-6)式)に基づき、温度と共に黒体の分光放射輝度の波長分布が高温側に変位するので、その結果、半球全放射率も温度と共に変化する。

図 3-24, 図 3-25, 図 3-26 には、タンタル、モリブデン、タングステン半球全放射率の文献値^{34,68,69,77-97}を示す。放射率は表面状態に強く依存する物性値であるため、文献値のばらつきも極めて大きく、モリブデンでは 20% 以上にも達している。本研究での測定結果は、文献値と比べて全体に高めの値を示している。

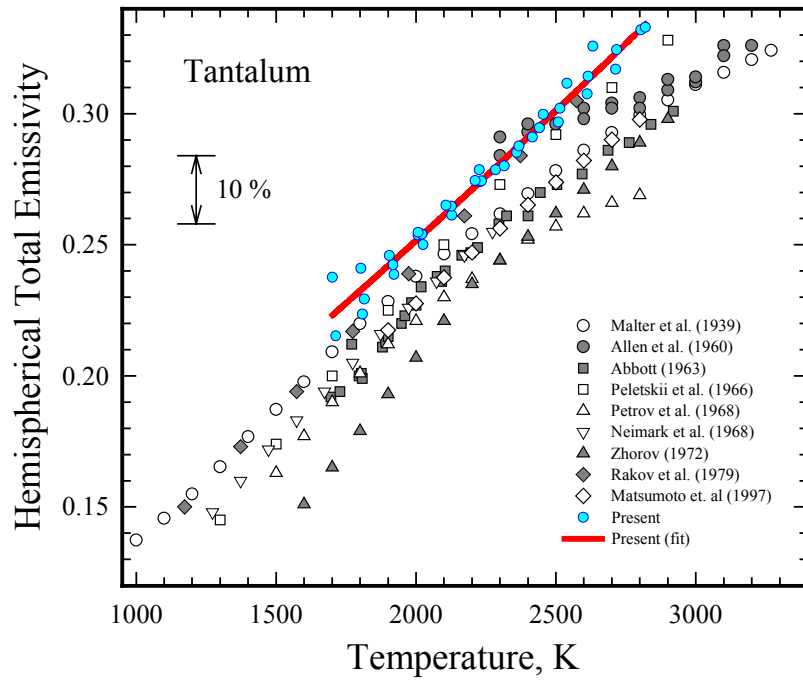


図 3-24 タンタルの半球全放射率の文献値^{68,81,83,88,90,92,93,95,96}

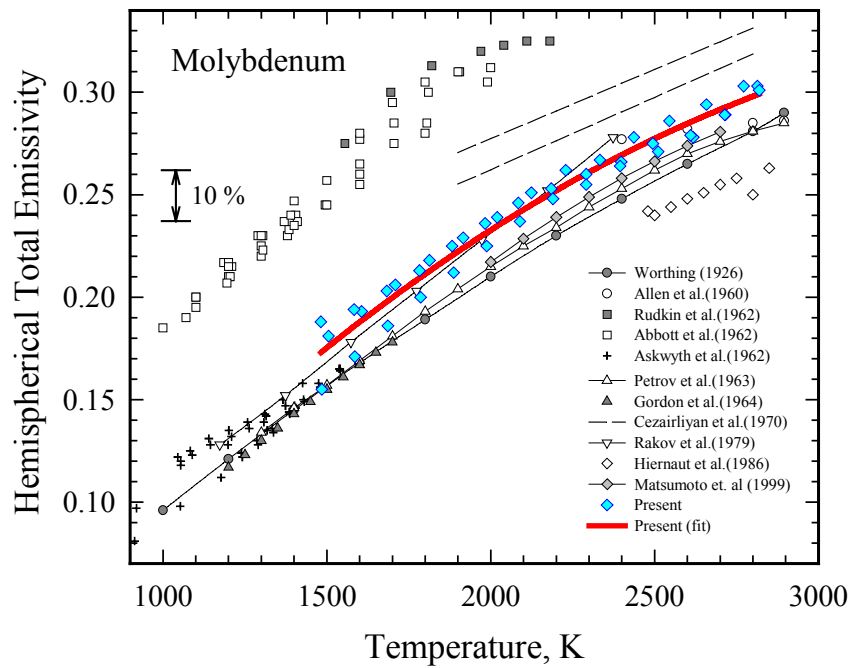


図 3-25 モリブデンの半球全放射率の文献値^{34,69,77,79,83-87,89,96}

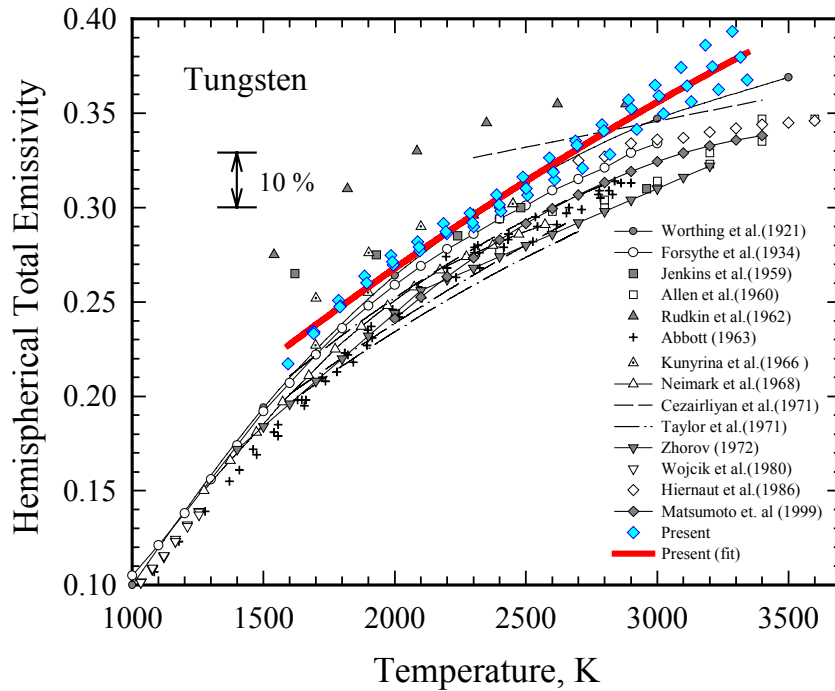


図 3-26 タングステンの半球全放射率の文献値 ^{36,69,77,78,80,82-85,91,93-95,97)}

図 3-27, 図 3-28, 図 3-29 には測定されたタンタル、モリブデン、タングステンの比熱容量を示す。これらの図には、同一物質の三つの異なった試料について測定された比熱容量の値が、三本の曲線で描かれている。また過去に NIST で測定された文献値 (タンタル ³⁵⁾、モリブデン ³⁹⁾、タングステン ³⁶⁾ が破線で示されている。

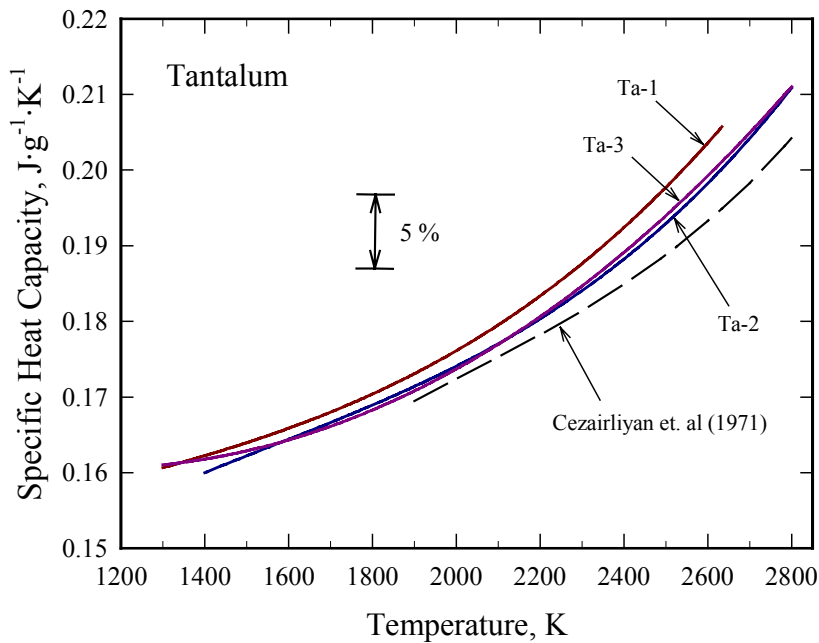


図 3-27 タンタルの比熱容量測定値

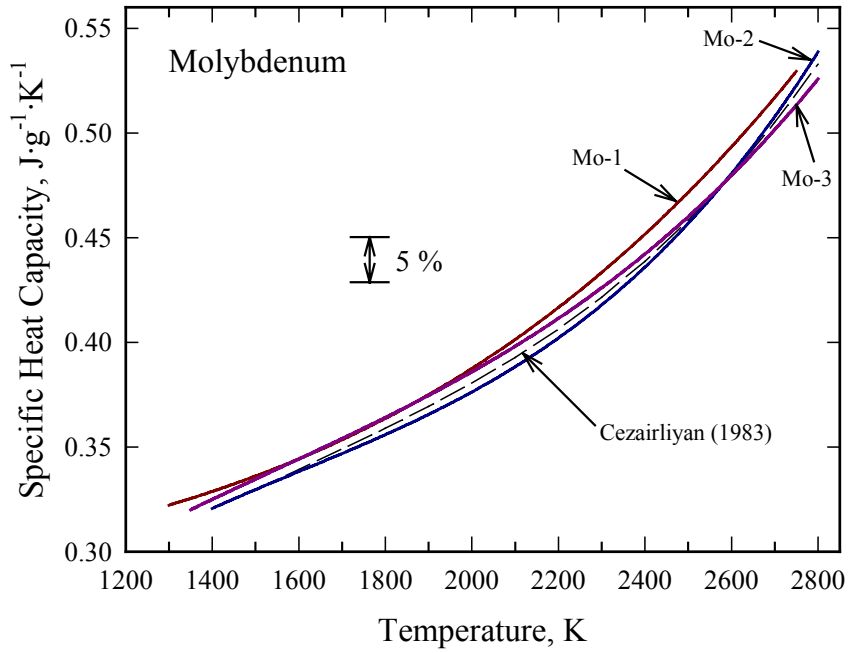


図 3-28 モリブデンの比熱容量測定値

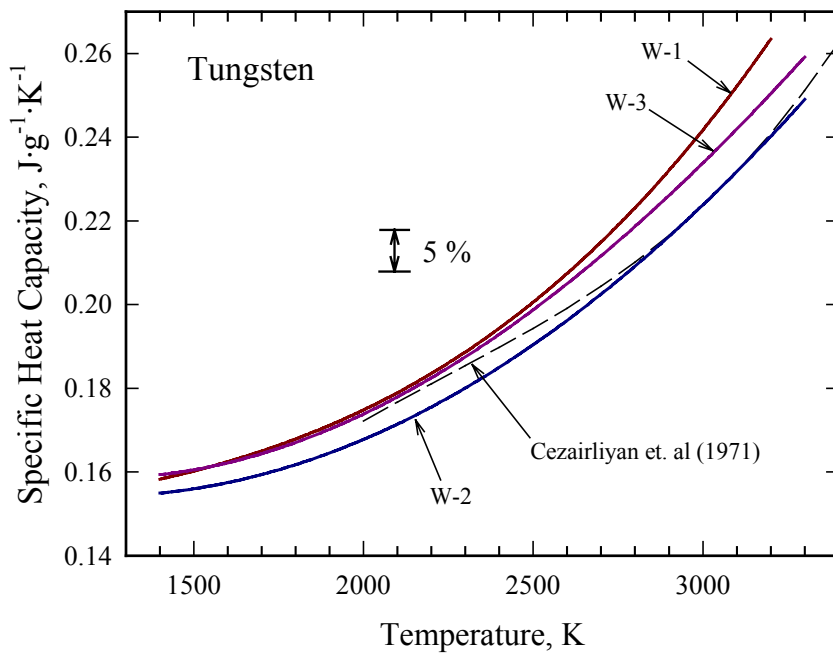


図 3-29 タングステンの比熱容量測定値

これらの結果について、同一物質の三つの試料の間での測定値のばらつきは最大で 5 % 程度であった。また文献値からの偏差は最大で 5 % 程度であった。文献値の不確かさが $\pm 3 \%$ 程度と報告されていることを考慮すると、比較的良い一致であるといえる。

3.4. パルス通電加熱法による測定値の不確かさの評価

ここでは、主に温度制御を用いたパルス通電加熱法について、最終的に得られる比熱容量と半球全放射率に含まれる不確かさについて、詳細な検討を行った結果について述べる。

3.4.1. 主な誤差要因

パルス通電加熱法において、比熱容量と半球全放射率に無視できない程度の大きさの不確かさ(約0.1%以上)を生じる可能性がある誤差要因としては、以下のものが考えられる。

1. 各物理量の測定値自体に含まれる不確かさ。

- ① 加熱電流。
- ② 電圧プローブ間の電位差。
- ③ 試料形状(厚さ、幅、長さ)。
- ④ 試料の質量。
- ⑤ 放射温度計の温度目盛り。
- ⑥ 試料表面の分光放射率。
- ⑦ NDフィルターの透過率(高温域のみ)。

2. 理想的な測定条件からの逸脱に起因する不確かさ。

- ⑧ 電圧プローブおよび、試料両端部からの熱伝導による不要な熱損失。
- ⑨ 試料温度分布の不均一性に起因する電圧プローブ間の電位差の不確かさ。
- ⑩ プラトーにおける温度ドリフト。
- ⑪ 試料の熱膨張。

これらのうち、①は実際には標準抵抗の両端の電位差測定に相当するので、この誤差要因には電位差の測定と標準抵抗の値の不確かさが含まれる。⑤は校正によって決定された(1-14)式(11頁)の定数、 A, B, C の不確かさを意味する。この式の中でも特に定数 C は経時変化を起こしやすいため、事実上、⑤は C の値の不確かさによるものと考えてよい。⑥は半球面鏡またはエリプソメータによる分光放射率測定に起因する不確かさである。

⑧は試料長さ方向の熱伝導により、物性値を測定する試料中央部分において長さ方向の温度勾配が生じることによるものである。測定に用いた温度制御システムは、プラトーにおいて試料中央の測温点の温度が常に一定になるように加熱電流を制御する。従って試料中央部分で長さ方向の伝導熱損失がある場合には、この余分な熱損失を補った上でさらに温度を一定に保つために、加熱電流は熱損失が無い場合よりも大きくなる。この結果、(3-10)式によって計算される見かけの半球全放射率には、プラス側の測定誤差が生じる。

⑨は⑧とよく似ているが、電圧プローブ付近の試料温度がプローブや試料両端部からの伝導熱損失により試料中央よりも低くなることに起因している。一般に金属の電気抵抗率は温度に対して正の依存性を持つため、このように被測定試料に温度分布がある状態では、電気抵抗率の積分値に相当するプローブ間の試料の電気抵抗は、温度が均一な場合の値よりも低くなる。従って加熱電流が同じであると仮定すると、実際に

電圧プローブで測定される電位差は、温度均一の条件における値よりも小さくなり、この電位差から計算される熱物性値に不確かさを生じさせる。

⑩は、温度制御を用いた半球全放射率の測定において、プラトーでの試料温度にわずかな温度ドリフトが残ることに起因する。この問題は特に、プラトーにおいて試料の分光放射率が経時変化する場合に問題となる。現在の温度制御システムでは、試料の分光放射率を 1 と仮定した見かけの試料温度(輝度温度)が一定となるようにフィードバック制御を行う。輝度温度は真温度と分光放射率の両方に依存するので、もしプラトーで分光放射率が経時変化した場合、フィードバック制御の結果として、試料の真温度も経時変化する。

⑪は試料の熱膨張に起因するものである。パルス通電加熱法における熱物性値の計算では、通常、試料の熱膨張を無視しているため、常にある程度の熱膨張に起因する不確かさが生じる。本研究で用いている電圧プローブは、試料の熱膨張に関わらず一定間隔を保つ構造となっており、もし試料が伸びた場合には、プローブ先端は試料表面を擦動する。従って試料の熱膨張の結果、実際には電圧プローブ間にある有効な試料の表面積と質量は温度と共に変化する。このようにあえて熱膨張を無視して物性値の計算を行うのは、信頼できる試料の熱膨張データが常に得られるとは限らないという理由による。信頼性の低い熱膨張データを使って測定値を補正するよりも、補正しないことを明記した上で何もしない方が、測定値の総合的な信頼性は向上する。この手法では、後に信頼性の高い熱膨張データが得られた時点で、改めて測定値を補正することも可能である。

3.4.2. 試料長さ方向の温度分布の不均一性に関する検討

以上で述べた誤差要因のうち、試料温度分布の不均一性に起因するものは解析的な手法で見積もることは困難である。そこで、有限差分法を用いた試料長さ方向の非定常温度分布の数値解析を行った。さらに、プラトーを長く延ばして半球全放射率を測定した際の、見かけの半球全放射率の系統的な変化を調べた。

まず数値解析について、用いた解析モデルは試料と電圧プローブの長さ方向の一次元モデルである。計算には、試料と電圧プローブの長さ方向の熱伝導と、それぞれの表面からの放射熱損失、そして通電加熱による試料でのジュール熱の発生を考慮して行った。使用した計算モデルの概念図を図 3-30 に示す。

試料の温度分布は試料中央に対して左右対称と仮定して、試料の方半分のみ計算を行った。初期条件は試料、プローブとも室温における均一な温度分布、境界条件としては、試料ホルダーでの温度拘束 ($T=T_b$) と、試料中央での断熱条件を与えた。電圧プローブの形状は、先端をテーパさせた最大径 4 mm の円柱形とし、試料に接触する先端部の直径を 0.1 mm と置

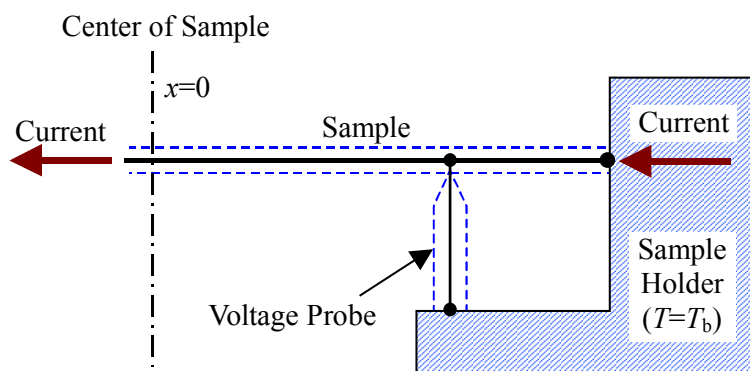


図 3-30 試料の温度分布計算に用いた一次元モデル

いた。電圧プローブについても、長さ方向のみの一次元熱モデルを用いたが、プローブからの放射熱損失と長さ方向への熱伝導は、プローブ径の変化を考慮して計算した。またプローブと試料との間の接触熱抵抗は無視した。従って計算では、プローブからの熱損失は現実よりも多めに見積もられると予想される。プローブの材料は、実際と同じ高密度等方性黒鉛材料とし、計算には文献⁹⁾による物性値を用いた。

試料の大きさは、実際の試料に近い大きさを使用し($0.3 \times 5 \times 70 \text{ mm}^3$)、熱伝導率と密度は室温での文献値⁹⁾ (一定値)を使用した。試料の比熱容量と半球全放射率は、パルス通電加熱法で得られた測定値を計算を行う温度域で平均した値を使用し、電気抵抗率については温度変化が大きいので、測定値の温度依存性を一次式で近似した値を用いた。加熱条件は、0.2 秒の間にプラトー温度にまで急速に加熱し、その後は試料中央部分($x = 0$)の温度を一定に保つように電流を調節して計算を続けた。

これらの数値解析の結果、得られた試料と電圧プローブ温度分布の経時変化の例を、図 3-31 と図 3-32 に示す。これらの温度分布は試料の半分のみを示しており、横軸原点は試料中央、右端が温度一定の試料ホルダーに接する部分である。また電圧プローブでは、横軸原点が試料に接するプローブの先端で、右端が温度一定の支持部分である。これらの温度分布は、加熱開始から 3 秒間の温度分布の変化を 0.2 秒おきに示している。

これらの計算結果から導かれた、異なる温度域での半球全放射率の測定誤差の時間変化を図 3-33 と図 3-34 に示す。これらの図で、実線が半球全放射率の測定誤差を示す。またプラス側の破線は、半球全放射率の測定誤差のうち、熱伝導による熱損失に起因する測定誤差⑧ (80 頁)を示し、マイナス側の破線は電圧プローブ間の電位差の測定

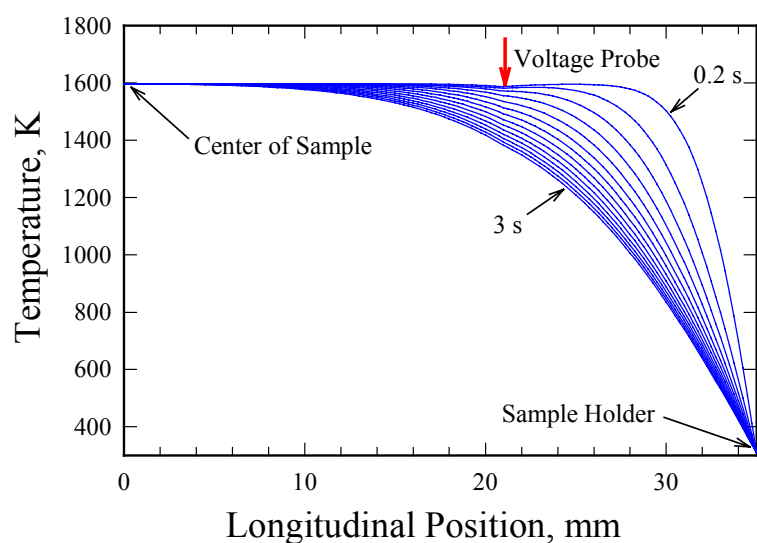


図 3-31 モリブデン試料長さ方向温度分布の計算結果 (温度分布は 0.2 秒おき、最大 3 秒間)

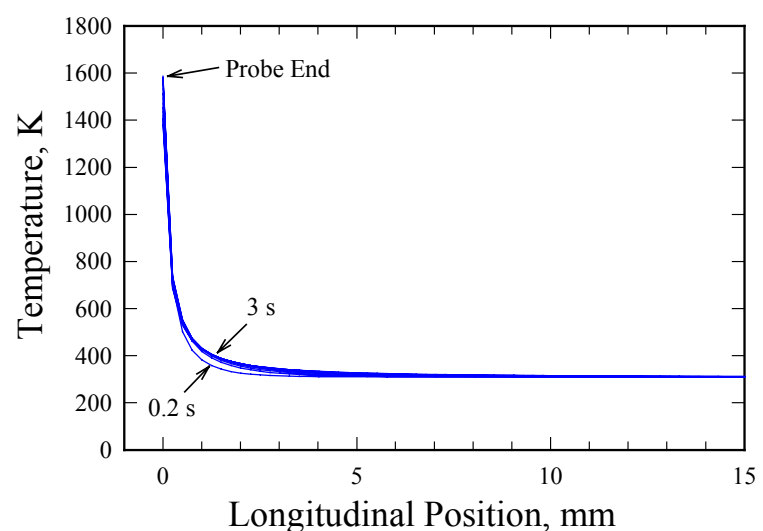


図 3-32 黒鉛製電圧プローブ長さ方向温度分布の計算結果 (温度分布は 0.2 秒おき、最大 3 秒間)

誤差に起因する測定誤差⑨を示す。

低い温度域(1600 K)における計算結果では、熱伝導による誤差⑧が時間と共に増加した。これは低い温度域では時間の経過と共に伝導熱損失が放射熱損失に比べて相対的に大きくなるためであると考えられる。一方、高温域(2200 K)では、熱伝導による誤差は小さくなるが、電位差測定による誤差⑨の大きさはあまり変化していない。しかし全体を通して、加熱時間が1秒以内ならば半球全放射率の測定誤差は十分±1%以下に収まることが示された。

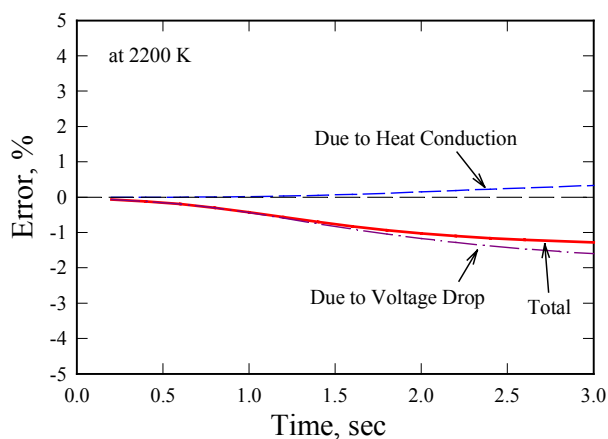
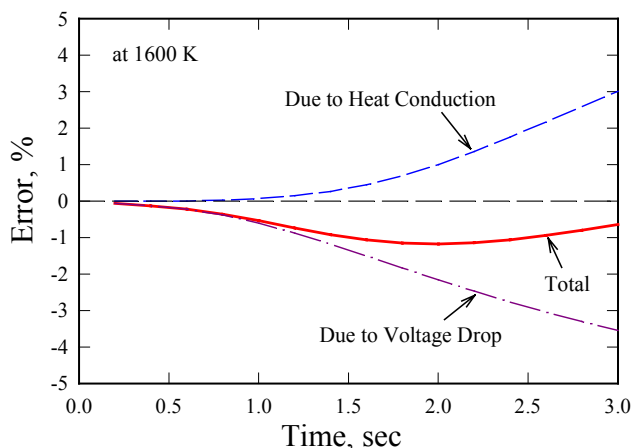


図 3-33 半球全放射率測定誤差の計算結果(1600 K) 図 3-34 半球全放射率測定誤差の計算結果(2200 K)

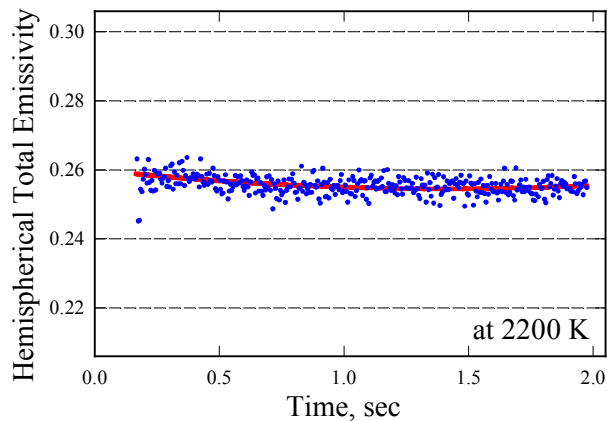
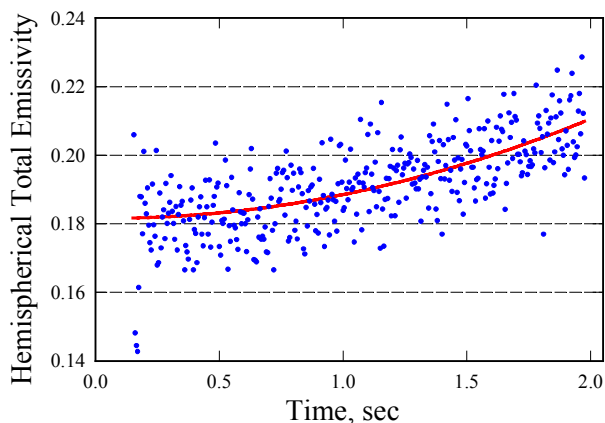


図 3-35 モリブデンの半球全放射率実測値の経時変化(1600 K)

図 3-36 モリブデンの半球全放射率実測値の経時変化(2200 K)

図 3-35 と図 3-36 には、それぞれ 1600 K と 2200 K において実際に測定された、モリブデンの半球全放射率測定値の時間変化を示す。図 3-35 の 1600 K における測定例では、半球全放射率が時間と共に増加しているように見える。これは主に試料長さ方向の熱伝導⑧に起因する系統誤差であると考えられる。またこの図では、図 3-33 の計算結果に見られるようなマイナス方向の測定誤差は見あたらないが、これは現実の電圧プローブからの熱損失が、計算で用いた条件よりもかなり小さいことを意味している。一方、2200 K における測定

例では、熱伝導に起因するプラス方向の誤差は見られないが、その代わりに電位差測定に起因すると思われるマイナス方向の系統誤差⑨が観察される。

さらに、ここには結果を示さないが、タンタルを想定した計算結果では、他の計算条件を同じにした場合、モリブデンやタングステンの結果よりも全体に測定誤差は小さかった。これはタンタルの熱伝導率がモリブデンやタングステンよりも小さいことに起因している。

図 3-37 には、プラトーを長く延ばす代わりに、室温からプラトーに至るまでの加熱速度を変えた場合の見かけの半球全放射率の違いを示す。この半球全放射率の系統的な増加も、主に試料長さ方向の熱伝導に起因していると考えられる。実際の測定では、図中に矢印で示した半球全放射率の系統的な増加が始まる点よりも速い加熱速度を用いた。

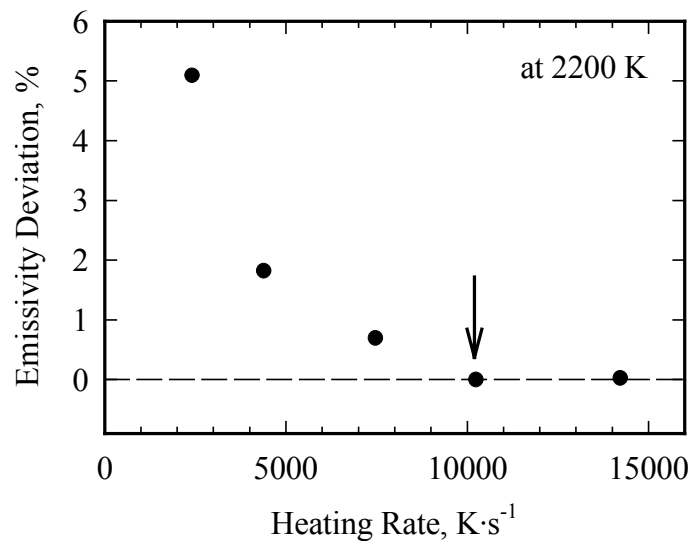


図 3-37 加熱速度の違いによる見かけの半球全放射率測定値の変化

3.4.3. 総合精度の評価

3.4.1 章の①から⑩の各誤差要因につき、それぞれの不確かさを評価し、そしてそれらが比熱容量と半球全放射率の測定値に及ぼす影響を計算した。そしてこれらの自乗和の平方根を取ることにより、最終的に比熱容量と半球全放射率の測定値に含まれる不確かさの大きさを求めた。この計算の基礎となる各要因の不確かさに関して、要因①～⑦については、これらの物理量の測定に用いる計測機器の精度や、実際の測定値のばらつきや再現性を根拠に推測した。⑤については、放射温度計を再校正した際の特特性式の定数 C の再現性も考慮した。⑧と⑨については、前述の数値解析の結果から推定した。⑩は、実際のパルス通電加熱実験における温度データから推定した。そして、⑪は主な高融点金属材料の熱膨張係数の文献値を参考にして決めた。

このようにして、比熱容量と半球全放射率測定値に含まれる不確かさを、1600 K と 2200 K の二つの温度で見積った結果を表 3-3 に示す。この中で、比熱容量の誤差要因の半球全放射率測定とは、プラトーで測定された半球全放射率に含まれる不確かさが、比熱容量測定値に与える影響の大きさを示している。この見積もり結果では半球全放射率と比熱容量共に、分光放射率の測定と伝導熱損失に起因する電位差測定の不確かさが大きな誤差の要因となっている。5 % という分光放射率測定の不確かさは、半球面鏡およびエリプソメータを用いた測定法に共通な見積値で、これが特に高温側で大きな温度測定誤差を生んでいる。また試料

長さ方向熱損失の直接の影響⑧よりも、それが電位差測定に与える影響⑨の方が大きいことも興味深い。これらの結果によると、比熱容量の不確かさは最大で 3 % 程度(標準偏差)である。これは実際の比熱容量の測定結果(図 3-27、図 3-28、図 3-29)における、測定値と文献値との差に近い。

表 3-3 パルス通電加熱法において測定値に含まれる不確かさの見積り結果(不確かさは全て標準偏差)

誤差要因	誤差要因の不確かさ		温度測定への影響		半球全放射率への影響		比熱容量への影響	
	1600 K	2200 K	1600 K	2200 K	1600 K	2200 K	1600 K	2200 K
① 電流測定	0.5%	0.5%			0.5%	0.5%	0.5%	0.5%
② 電位差測定	0.3%	0.3%			0.3%	0.3%	0.3%	0.3%
③ 試料サイズ	0.1%	0.1%			0.1%	0.1%	0.1%	0.1%
④ 試料の質量	0.1%	0.1%					0.1%	0.1%
⑤ 温度目盛(定数 C)	1.0%	1.0%	1.2 K	2.2 K	0.3%	0.4%	0.1%	0.2%
⑥ 分光放射率測定	5.0%	5.0%	6.1 K	11.2 K	1.6%	2.1%	0.7%	1.0%
⑦ ND フィルター透過率		2.0%		4.5 K		0.8%		0.4%
⑧ 試料両端部への伝導熱損失	0.5%	0.1%			0.5%	0.1%	0.5%	0.1%
⑨ 伝導熱損失に起因する電位差の不確かさ	1.0%	1.0%			1.0%	1.0%	1.0%	0.9%
⑩ プラトーにおける温度ドリフト(K/s)	1.5	0.5			0.8%	0.1%		
⑪ 試料の熱膨張($10^{-6}/K$)	6.0	6.0			0.7%	1.0%	0.7%	1.0%
半球全放射率測定	2.2%	2.7%					0.1%	0.2%
合計(自乗和の平方根)			6.2 K	12.3 K	2.2%	2.7%	1.5%	1.8%

3.4.4. 結論(温度制御を用いたパルス通電加熱法)

新しく開発した温度制御を用いる半球全放射率測定法は、従来、熱物性計測の分野では互いに相容れないものと考えられてきた非定常法と定常法を巧妙に組み合わせた点が、全く新しい画期的な発想である。室温からの急速な加熱により、従来のパルス通電加熱法の利点(伝導熱損失の低減、高温での試料の酸化・変質の抑制、短時間での測定など)をそのまま引き継ぐと共に、一定温度での測定データの平均化という点で、従来の定常法の利点を取り入れている。

測定データからの半球全放射率の算出方法に関して、従来の単純型パルス通電加熱法では、加熱終了直後の放射冷却状態にある試料の温度低下率から半球全放射率を計算していた。しかし、低下率の計算は温度のノイズ成分の影響を受け易く、大きなばらつきが生じることが多かった。これに対して新しい測定法では一定温度で測定を行うので、この状態で加熱電流や温度などの測定データを平均することにより、従来の方法よりも圧倒的にばらつきの小さい半球全放射率の値が得られる。

大容量半導体素子による加熱電流の制御も本研究において初めて実現した技術である。最大 3000 A(フィードバック制御時は約 1000 A)にも達する大電流を高速かつ連続的に制御した例は、他にあまり見られない。この技術は新しい半球全放射率の測定法を生み出しただけに留まらず、パーソナルコンピューターを使った加熱時間や最高加熱温度など、測定条件の精密なコントロールを可能とした。この点で従来のパルス通電加熱法では、機械的電流スイッチを使った試行錯誤による測定が多かったため、スイッチの損傷、試料の過熱による変質や溶断、または加熱不足による測定のやり直しなどが多く、測定の効率が極めて悪かった。

さらに試料の真温度を得るために不可欠な試料表面の分光放射率の測定には、新しく高速のエリプソメータを採用した。この装置は、試料表面に当てたレーザー光の反射光の偏光状態を測定して、表面の屈折率と吸収係数から、試料表面の分光放射率を非接触かつ高速に求める装置である。前述の半球面鏡が黒鉛などの粗い表面に適しているのに対し、エリプソメータは原理的に金属などの滑らかな表面の測定に適している。この方法は将来の放射測温技術において重要な要素技術となることが期待される。

本研究におけるこれらの新しい技術開発によって、導電性材料の高温熱物性計測技術としてのパルス通電加熱法の存在意義は、以前にも増して揺るぎないものとなった。さらに、半導体素子とパーソナルコンピューターを使った測定の制御と自動化は、これまで限られた特殊な研究機関でのみ可能であったパルス通電加熱法を、実用的な汎用熱物性計測技術として広く一般に普及させるための新しい道を開いた。