

解 説

# 光通電ハイブリッド・パルス加熱技術を利用した 高速多重物性測定

渡辺博道

(受取日：2010年4月5日，受理日：2010年5月6日)

## Fast Multi-Property Measurement Using Electrical-Optical Hybrid Pulse-Heating Technique

Hiromichi Watanabe

(Received Apr. 5, 2010; Accepted May 6, 2010)

A fast multi-property measurement method using an electrical-optical hybrid pulse-heating technique has been developed for simultaneously measuring specific heat capacity, thermal diffusivity, thermal conductivity, hemispherical total emissivity, normal spectral emissivity, electrical resistivity, and Lorentz ratio of electrically conductive materials at high temperatures with better accuracy and efficiency. This technique is a combination of the electrical pulse heating method and the flash method. A thin strip specimen is directly heated by the passage of current through the specimen and the temperature of the specimen is maintained constant at a preset high temperature for several hundred milliseconds by fast feedback control of the heating current. The front face of the specimen under the brief steady state realized by the feedback control is heated by a light pulse of several hundred microseconds duration and the transient temperature response is observed at the rear face of the specimen. Time-resolved temperature measurements of the sample are carried out using a high-speed pyrometer and photopolarimeter. The details of the method and apparatus are described. Preliminary results measured by this method are presented. The primary advantage of this method is the resultant short exposure of the sample to high temperature, which can minimize the contamination of the sample and apparatus and the measurement cost and time. A further advantage of this technique is its ability of multidisciplinary investigation of both characteristics of bulk and surface of a material by using a specimen and an apparatus.

Keyword: specific heat capacity, thermal conductivity, emissivity, electrical resistivity, calorimetry, flash method

### 1. はじめに

現在，地球温暖化問題の高まりから，様々な産業分野においてエネルギー効率と生産性の向上が求められている。高温で使用されるシステムの安全な運用とエネルギー効率

の向上のためには，システム内での伝熱現象や熱応力現象について計算機シミュレーションを援用した数値解析を行い，現象特性を十分に把握した上で設計を行う必要がある。上記の数値解析を行うには，入力パラメータとしてシステム構成材料の熱伝導率/熱拡散率，比熱容量，半球全放射

率、電気抵抗率（ジュール熱が発生する場合）、熱膨張率等の熱物性の値が必要であり、これらの熱物性値の正確さが数値解析の予測精度を左右する大きな要因となる。それゆえ、高温における物質の熱物性値は今後益々重要となる情報である。

上述したような重要性にもかかわらず、1000℃超の高温における物質の熱物性値を正確に測定することは現在においても容易ではない。その理由は、高温物質の熱物性値を測定する際、次の2つの問題が正確な測定を妨げるためである。

- (1) 試料の汚染や装置の劣化
- (2) 理想的な試料境界条件（均一な温度分布等）の実現の難しさ。

金属のように高温において高い反応性を有する物質は1000℃以上の高温においては、酸化皮膜の生成や試料支持具との反応を生じる場合が多い。また、温度測定に用いる熱電対等の温度センサーは高温環境下では劣化による変質が進行する。更に、多くの物性測定では、試料内の均一な温度分布、試料周囲との断熱状態、試料重量の不変性を前提とした測定原理を採用しているが、高温においては周囲との大きな温度差や熱放射による熱損失、蒸発による試料重量の減少が生じる。これらの問題により、高温における物質の熱物性測定は室温近傍での測定と比較して一般に困難であると共に測定値の誤差が非常に大きくなる。

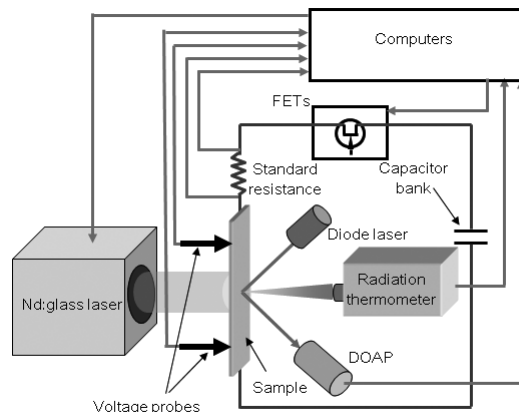
高温物質の熱物性測定における上述の問題を回避するため、2種類の高速加熱技術を融合させた光通電ハイブリッド・パルス加熱技術を利用して、高温における導電性物質の比熱容量、熱拡散率、熱伝導率、半球全放射率、垂直分光放射率、電気抵抗率、ローレンツ比を1秒以下の時間で同時測定する高速多重物性測定法が開発された。<sup>1,2)</sup> 以下では、本測定法の原理・装置の構成・測定結果例、および今後の展開に関して述べる。

## 2. 高速多重物性測定法

### 2.1 測定法の概要

本測定法の特徴である光通電ハイブリッド・パルス加熱技術は、導電性試料にパルス状の大電流を流して瞬時に試料温度を目標温度の定常状態に到達させた上で試料にパルス光を照射して瞬時加熱を行うことを特徴とする。この加熱過程は1秒以内に全て終了し、この間の温度と加熱電流及び試料の電圧降下を連続測定する。得られた温度・電流・電圧の時間変化から、目標温度における比熱容量、熱拡散率、熱伝導率、半球全放射率、垂直分光放射率、電気抵抗率、ローレンツ比を導出する。

本測定法の利点は、3000 K以上の高温物体を測定する場合でも試料が高温に曝される時間を1秒以下にすることが



**Fig.1** Schematic diagram of the fast multi-property measurement system using an electrical-optical hybrid pulse heating technique.

可能なため、高温物性測定において大きな問題となる試料汚染や装置劣化を大幅に低減できることである。また、本測定法による試料加熱の開始直後の短時間においては、試料の温度分布は均一に保たれると共に伝導や対流による熱損失と蒸発による試料重量の減少も無視できる。そのため、物性測定における理想的な試料境界条件を短時間ではあるが高温においても実現できる。更なる利点としては、1つの試料から複数の物性値を同時に短時間で測定できるため、測定効率の飛躍的な向上と複数の物性値の相関を利用した試料の相変化の理論的な考察や測定結果の妥当性評価が可能である。

### 2.2 測定システム

光通電ハイブリッド・パルス加熱技術を利用した高速多重物性測定システムの概略図をFig.1に示す。測定では、室温状態にある薄板形状（80×5×0.3 mm）の試料に対して大容量コンデンサに蓄えた電荷を流して急速通電加熱した後、試料温度が短時間（数100 ms）だけ目標温度に一定に保持されるように、電流回路中に並列に接続した数10個の電界効果トランジスタ（FETs）のゲート電圧を10 kHzの頻度でフィードバック制御する。実験中の試料温度 $T$ は、1 MHzの頻度で放射温度計により測定した輝度温度とDOAP（Division of Amplitude Photopolarimeter）<sup>3)</sup>と呼ばれる高速エリプソメータにより測定した試料表面の垂直分光放射率から導出する。そして、目標温度に一定に保持された試料の片面に、Ndガラス・レーザにより単一のレーザ・パルスを照射する。レーザ照射時間は光検出器を用いて検出する。通電加熱とレーザ・パルス加熱の制御と信号収録は2台のパソコンを用いて自動的に行い、1秒以内で測定の全過程を実行する。また、対流による熱損失や試料表面の酸

化を避けるため真空中にて試料加熱を行う。

### 2.3 光通電ハイブリッド・パルス加熱

Fig.2は、タンタル (Ta) についての測定を行った際の試料温度 (左の縦軸) と試料にレーザー・パルスを照射した時間を特定するための光検出器の信号値 (右の縦軸) を示しており、横軸は試料の通電加熱を開始してから経過時間  $t$  (単位: ms) を表す。Fig.2を用いて、本測定法の技術的な鍵を握る光通電ハイブリッド・パルス加熱を行うための加熱制御の流れを以下に説明する。

- (1)  $0 < t < 170$ ; 電流制御素子 (FET) のゲート電圧  $V_g$  を飽和値に固定して大容量コンデンサから試料に大電流を流す。
- (2)  $t = 170$ ; 試料が目標温度 (2180 K) に到達した時点であり、 $V_g$  の高速フィードバック制御を開始する。
- (3)  $170 < t < 300$ ;  $V_g$  の高速フィードバック制御により試料を目標温度に保持する。
- (4)  $t = 300$ ;  $V_g$  の制御値が一定値に収束した時点であり、 $V_g$  の高速フィードバック制御を停止する。
- (5)  $300 < t < 350$ ;  $V_g$  のフィードバック制御を停止する直前の最終制御値に  $V_g$  を保持する。
- (6)  $t = 305$ ;  $V_g$  を固定して5 ms後の時点であり、Nd ガラス・レーザーから時間幅1 ms以下の単パルス光を試料に照射する。
- (7)  $t = 350$ ;  $V_g$  を零にして電流を停止する。

Fig.2(b)は、上記の温度制御過程 (6) におけるパルス光照射の熱が拡散することによる温度上昇を強調して示しており、この温度変化プロファイルからフラッシュ法の原理により熱拡散率を導出する。試料の比熱容量と半球全放射

率は直接加熱熱量法の原理、電気抵抗率は4端子法の原理により導出される。熱伝導率は、この方法により得られた熱拡散率と比熱容量の値から算出される。そして、熱伝導率と電気抵抗率の測定値からローレンツ比も算出できる。垂直分光放射率については、高速エリプソメータ (DOAP) により測定した光学定数の値から導出される。

本測定では試料の温度分布は均一であるとの仮定の上で上述の熱物性値は導出されるが、実際には時間の経過に連れて試料から電流導入端子などへの伝導による熱損失の影響が増大する。この影響を低減するため、短時間で上述の温度制御過程 (3) に示す温度定常状態を実現すると共に短い定常状態の間にパルス光を照射することが、この測定法を実現する上で最も重要かつ困難な技術課題であった。この課題を克服する上で、近年、リアルタイムOSやFPGA等を用いた高速制御システムの構築が比較的容易になった事や汎用のLSIやメモリの性能が飛躍的に向上したことが大きな助けとなった。

### 2.4 熱物性の測定原理

#### 2.4.1 比熱容量・半球全放射率の測定原理

特性及び断面形状が均質な板状試料を直接通電加熱した際の試料内の熱移動に関する一般式は次式で表すことができる。

$$\delta C_p \left( \frac{\partial T}{\partial t} \right) = \frac{\rho I^2}{S^2} - \frac{\varepsilon_t \sigma_{SB} P (T^4 - T_0^4)}{S} + \frac{\partial}{\partial x} \lambda \frac{\partial T}{\partial x} - \frac{\mu I}{S} \frac{\partial T}{\partial x} \quad (1)$$

式中の  $\delta$  は密度、 $C_p$  は比熱容量、 $T$  は温度、 $t$  は時間、 $\rho$  は電気抵抗率、 $I$  は電流、 $S$  は電流方向に対して垂直な試料断面の面積、 $\varepsilon_t$  は半球全放射率、 $\sigma_{SB}$  は Stefan-Boltzmann

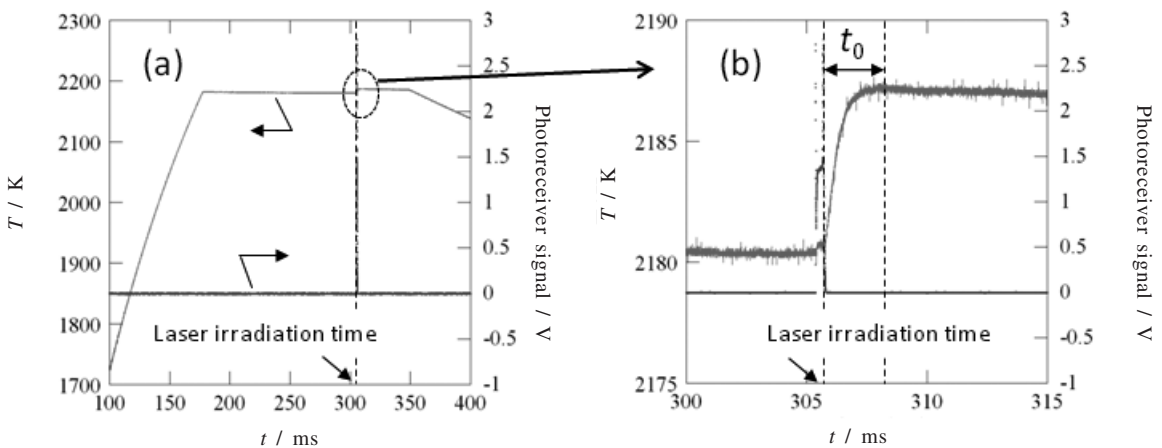


Fig.2 Typical variations of temperature of back face of sample and photoreceiver signal with time during one experiment; (a) whole temperature-time curve (b) partial temperature-time curve showing the temperature rise due to the laser irradiation.

定数,  $p$  は電流方向に対して垂直な試料断面の周囲長,  $T_0$  は試料周囲の温度,  $x$  は試料内微小部分の軸方向 (電流方向) における位置,  $\lambda$  は熱伝導率,  $\mu$  は Thomson 係数である。(1)式から, 熱量法の原理により比熱容量と半球全放射率を測定するためには, 試料の熱伝導率や Thomson 係数が既知であったとしても試料内の温度の空間分布とその時間変化を測定する必要があるが, そのような測定は一般に困難である。そこで, 本測定法では, 短時間であれば断面積が一定で均質な物質を通電加熱した際の試料温度分布がほぼ均一になる特徴を利用する。試料温度分布が均一な場合, 式(1)を近似して得られる次式を用いて比熱容量と半球全放射率を導出することができる。

$$mC_p(dT/dt) = VI - A\epsilon_r\sigma_{SB}(T^4 - T_0^4) \quad (2)$$

式中の  $m$  は電圧測定プローブ間の領域に対応する試料の有効部分 (有効試料) の質量,  $V$  は有効試料における電圧降下,  $A$  は有効試料の表面積であり, 本測定では  $T_0$  は室温と見なせる。式(2)の左辺は, 有効試料の単位時間あたりのエンタルピー増加量を表し, 右辺の第1項と第2項は有効試料内で発生する単位時間あたりのジュール発熱量と放射熱損失にそれぞれ対応している。

本測定では, 始めに  $\epsilon_r$  を以下の手順により決定する。試料を急速加熱し, 所定の目標温度に一定に保持する。その定常状態における試料の熱収支は式(2)の左辺を零とした式で表されるため, 目標温度における  $\epsilon_r$  は次式にて導出することができる。

$$\epsilon_r = VI / \{A\sigma_{SB}(T^4 - T_0^4)\} \quad (3)$$

目標温度を変更して, 同様の  $\epsilon_r$  測定を複数行い, 必要とする温度範囲における  $\epsilon_r$  の温度関数を決定する。得られた  $\epsilon_r$  の温度関数と急速加熱時の  $I, V, T$  測定値を式(2)に代入して  $c_p$  を導出する。

#### 2.4.2 熱拡散率・熱伝導率の測定原理

Fig.2(b)は, 温度が一定に保持された試料にNd ガラス・レーザを照射することによって生じた裏面の温度上昇プロファイルを示しており, 光パルスによって加えられた熱が1次元熱伝導により裏面に伝わるまでの熱拡散時間  $t_0$  (図中に模式的に表示) から  $\alpha$  をフラッシュ法 (非定常測定法の一つ) の原理により導出する。本測定法では, 得られた温度プロファイルに対して放射熱損失を考慮したフラッシュ法の解析アルゴリズム (カーブ・フィッティング法)<sup>4)</sup>を用いて  $\alpha$  を導出した。本測定では, 通常のフラッシュ法とは異なり試料面の一部のみが光パルスにより加熱されるため, 面内方向の熱伝導損失の効果を考慮する必要がある。そこで, Donaldson が提示した面内熱伝導の効果を無視できるフラッシュ法の実験条件<sup>5)</sup>に従い, 試料厚さをレーザ

照射半径の1/10以下となる0.3 mm以下にすることにより面内熱伝導の影響を排除した。また, 試料に照射するレーザ・パルスの時間幅 (約0.4 ms) に起因する不確かさを低減するため, レーザ・パルスの重心時間をレーザ照射時間と見なす補正を行った。測定により得られた  $\alpha$  と  $C_p$  を用いて熱伝導率は次式により導出される。

$$\lambda = \alpha C_p \delta \quad (4)$$

上式中の密度  $\delta$  についても理想的には高温での実測値を利用すべきだが, 測定対象である金属や炭素材料の熱膨張による  $\delta$  の誤差が他の物性値に与える影響は他の誤差要因と比較して大きくない。そこで, 本研究では, 式(3)の  $\delta$  には室温時にアルキメデス法により測定した密度値を代入した。

#### 2.4.3 垂直分光放射率・電気抵抗率・ローレンツ比の測定原理

一般に, 金属等の不透明体については Fresnel の関係と Kirchhoff の法則を組み合わせ得られる次式を用いて, 垂直分光放射率  $\epsilon_s$  を導出することができる。

$$\epsilon_s = 4n\{(n+1)^2 + k^2\} \quad (5)$$

上式中の  $n$  は屈折率,  $k$  は消衰係数である。本測定では, 目標温度に数100 ms 程度の短時間保持された試料の屈折率  $n$  と消衰係数  $k$  を高速エリプソメータにより測定した。この装置では, 波長677 nmの半導体レーザ光を試料に照射し, 反射光を特殊なビームスプリッタにより分割して4つのフォトディテクターに同時に入射させることにより, 反射光の偏光状態を通常のエリプソメータより格段に高い時間分解能 (0.5 ms) で測定できる。また, 高温状態にある試料からは強い熱放射が発生するため, 入射レーザ光強度を正弦波状に変調することで背景熱放射光が偏光状態測定に与える影響を排除している。

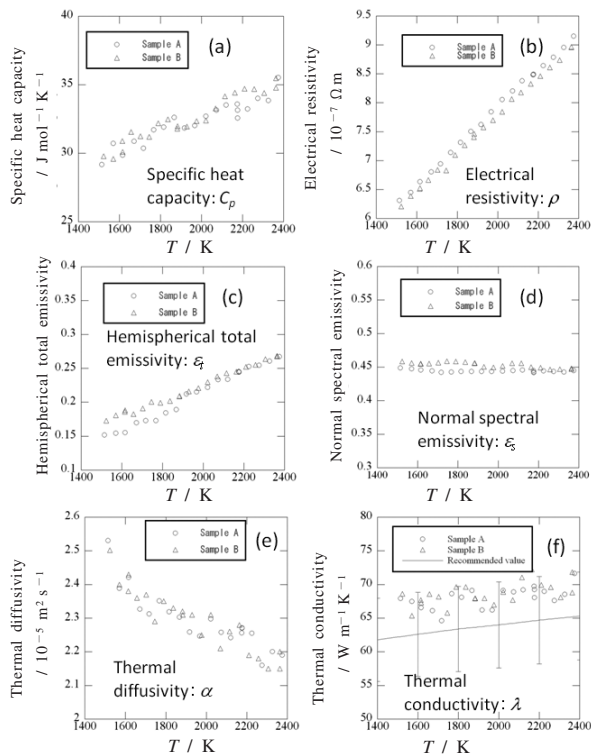
電気抵抗率  $\rho$  は, 試料の温度分布が均一である急速通電加熱中に測定された  $V$  と  $I$  の値から4端子法の原理により導出することができる。本測定の対象温度はほとんどの金属のデバイ温度より高温であるため, 測定された  $\rho$  と熱伝導率  $\lambda$  によりローレンツ比 (Wiedemann-Franz-Lorenz ratio)  $L$  を次式により導出することができる。

$$L = \rho\lambda/T \quad (6)$$

### 3. 測定結果例と測定法の効果

#### 3.1.1 タンタルの測定結果例

測定結果例として, 本測定法により測定したタンタルの6種類の物性値 (比熱容量, 電気抵抗率, 半球全放射率, 分光放射率, 熱拡散率, 熱伝導率) の温度依存性に関する測

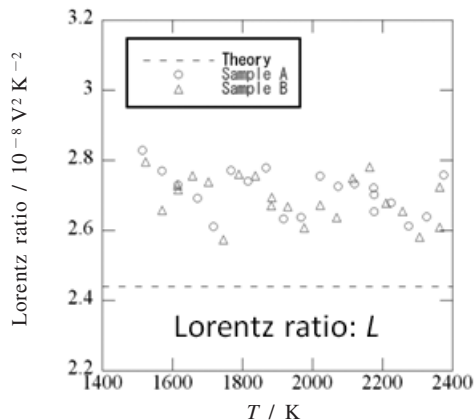


**Fig.3** Results of (a) specific heat capacity, (b) electrical resistivity, (c) hemispherical total emissivity, (d) normal spectral emissivity, (e) thermal diffusivity, and (f) thermal conductivity of two tantalum samples as a function of temperature.

定結果を **Fig.3** に示す。この図には、2個の同形状のタンタル試料（寸法：80×5×0.3 mm）について1500～2400 Kの範囲において約50 Kの温度間隔で数10点測定した結果を示す。熱伝導率（**Fig.3(f)**）については、タンタルの熱伝導率の推奨値<sup>6)</sup>を実線で示しており、図中のエラーバーで示された推奨値の不確かさの範囲内に本研究の結果が含まれることが判る。

### 3.1.2 物性値の相関評価

本測定法で得られる物性値の中では、比熱容量、電気抵抗率、熱伝導率、熱拡散率、ローレンツ比は試料の平均的な構造・組成（バルク特性）に依存するが、半球全放射率と垂直分光放射率は試料表面近傍の構造・組成（表面特性）に依存する。本測定法は、これらの物性値を同一の試料で同時測定可能であるため、得られた測定値とそれらの温度依存性から試料のバルク・表面特性について多面的に評価できる。熱伝導率と電気抵抗率から導出されるローレンツ比の測定値と自由電子理論による計算値（ $2.44 \times 10^{-8} \text{ V}^2 \text{ K}^2$ ）との比較は、熱伝導に寄与する自由電子の寄与を表し



**Fig.4** Results of Lorentz ratio of two tantalum samples as a function of temperature.

ている。ローレンツ比は、電気抵抗率と比較して実測が難しい高温の熱伝導率を簡便に推算することができるため実用上重要な値である。しかしながら、従来は別々の試料・装置で測定された熱伝導率と電気抵抗率を組み合わせるとローレンツ比は導出されていたため、値の不確かさが大きくなるのが難点であった。しかし、本測定法では、熱伝導率と電気抵抗率を同一の試料を用いて同時測定可能であるため、ローレンツ比を正確に測定可能である。例として、前述のタンタル試料についてのローレンツ比の測定値を温度に対してプロットした図を **Fig.4** に示す。図中の点線はローレンツ比の自由電子理論値を示しており、本測定法による測定値と理論値の差はせいぜい12%程度であることが判る。この結果から、1500 K以上の高温域におけるタンタルの熱伝導に占めるフォノンの寄与はかなり小さく電子の寄与が支配的であることが確認できる。ローレンツ比を始めとして本測定法で得られる複数の物性値の相関を利用することは、物質の相変態機構や電子・フォノン特性の理解に有用であると共に測定値の妥当性（信頼性）を評価する上でも有用である。

### 3.1.3 測定効率の向上

**Fig.3**に掲載した種類・温度範囲の熱物性値を従来の測定方法により測定する場合、少なくとも1ヶ月以上の日数を要する。一方、本測定法によりこれらの測定結果を得るために要した時間は試料の交換時間を含めてもわずか1日であり、従来測定法に比べて測定効率が格段に向上したと言える。また、従来の測定装置では、試料加熱炉や装置冷却のために装置の大型化・エネルギー消費量の増大が避けられなかった。しかし、本測定法では、試料のみを直接瞬間加熱するため、2000 K以上の試料の熱物性測定を行う際にもエネルギー消費の大きい冷却装置を用いずに試料周囲

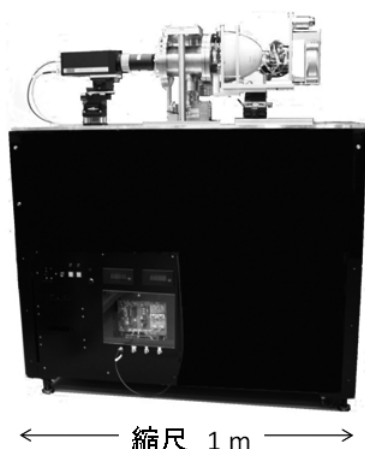


Fig.5 Photograph of a prototype of commercially available fast multi-property measurement system.

ほぼ室温に保持することができる。そのため、測定時のエネルギー消費量や装置の設置スペースを従来の測定法に比べて格段に低減できる。このような高い測定効率、大量の熱物性値を必要とする大規模なシステムの熱設計を行う上で大きな利点である。このような利点を有する本測定法を広く一般に普及させるため、民間企業と協力して装置の市販化を目指した実用化研究も進行中である。<sup>7)</sup> 開発した市販装置プロトタイプの写真を図.5に示す。この装置では、光パルス光源に固体パルスレーザに比較すると安価かつ小型なキセノン・フラッシュ光源を用いると共に加熱電流源に安価な鉛バッテリーを用いることで一般に普及しやすい価格・スペースの装置になることを実証した。

#### 4. まとめ

2種類の高速加熱方法を融合した光通電ハイブリッド・パルス加熱技術を利用して高温における導電性物質（金属や炭素材料）の比熱容量、熱拡散率、熱伝導率、半球全放射率、垂直分光放射率、電気抵抗率、ローレンツ比を1個の試料と1台の装置により高速同時測定する新しい方法を開発した。本測定方法は、試料を目標温度の定常状態に1秒以内に到達させることにより試料の汚染・蒸発や伝導熱損失を抑制し、従来困難であった1000℃以上の高温物質の物性を正確に測定する事が可能である。そして、得られた複数の物性値の相関から、試料のバルク・表面特性を多面的に評価することができると共に測定結果の妥当性をセルフ・チェックする事ができる利点を持つ。現在、本測定法を一般に普及させるために装置の市販化を目指した実用化研究も進行中である。

#### 文 献

- 1) H. Watanabe and T. Baba, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 241901 (2006).
- 2) T. Matsumoto, A. Cezairliyan, *Int. J. Thermophys.* **18**, 1539 (1997).
- 3) S. Krishnan, *J. Opt. Soc. Am. A* **9**, 1615 (1992).
- 4) T. Baba and A. Ono, *Meas. Sci. Technol.* **12**, 2046 (2001).
- 5) A. B. Donaldson, *J. Appl. Phys.* **43**, 4226 (1972).
- 6) Y. S. Touloukian, P. W. Powell, C. Y. Ho, and P. G. Klemens, *Thermophysical Properties of Matter-Volume 1 THERMAL CONDUCTIVITY (METALLIC ELEMENTS AND ALLOYS)*, (IFI/Plenum, New York-Washington, 1970).
- 7) アルバック理工 (株) プレスリリース 2009年3月23日：<http://www.ulvac-riko.co.jp/kaisya-5.htm#20090323>

#### 要 旨

光通電ハイブリッド・パルス加熱技術を利用することにより、高温における導電性物質の比熱容量、熱拡散率、熱伝導率、半球全放射率、垂直分光放射率、電気抵抗率、ローレンツ比を正確かつ効率的に測定する方法を開発した。この方法は、パルス通電加熱法とフラッシュ法を融合させた方法であり、板状の試料に大電流を流して試料を1000℃以上の目標温度に1秒以下で到達させると共に電流を高速フィードバック制御することにより試料を目標温度に数100ms間だけ一定に保持する。そして、一定温度に保持されている試料に単パルス光を照射し、それによる試料の温度変化を測定する。そして、試料の温度、試料を流れた電流と試料による電圧降下の時系列データから上述の物性値を同時測定する。本測定法の最大の特徴は、試料が高温に晒される時間を極力低減できることである。そのため、従来の高温物質の物性測定において大きな誤差要因となる試料の汚染、装置の劣化、伝導熱損失を大幅に抑制することができる。更に、本測定は、1個の試料と1台の装置により複数の物性値を測定できるため、物質のバルク・表面の特性を多面的（総合的）に評価することができる。



渡辺博道 Hiromichi Watanabe  
産業技術総合研究所 計測標準研究部門,  
NMIJ, National Institute of Advanced  
Industrial Science and Technology, E-mail: hiromichi-watanabe@aist.go.jp  
研究テーマ：計測工学  
趣味：読書、散策