### 放射率フリー温度計測による先端熱物性計測技術の開発

代表研究者 東北大学多元物質科学研究所 教授 福山 博之 共同研究者 国立研究開発法人産業技術総合研究所 主席研究員 山田 善郎

### 1. 緒言

金属製錬、鋳造、溶接、結晶成長分野などのように溶融ー凝固過程を経る従来型の材料 プロセスに加え、近年、金属積層造形技術による鋳型を必要としない製造技術が注目され ている。また、マテリアルズ・インフォマティクスの潮流の中でデータ科学と材料工学の 融合による材料開発の効率化・高速度化が求められるなど、ものづくりに急速な変革が生 じつつある。材料プロセス分野において重要である熱・物質移動の数値シミュレーション の精度を左右するのは、熱物性データベースであり、データの高精度化は最重要課題であ る。

固体の熱物性は質・量共に充実しているが、高温になるとデータの数は激減し、融体で はその不確かさが増大する。これは、高温では容器からの汚染や融体内の対流が存在する ため、熱物性測定が難しくなるためである。代表研究者の研究室では、電磁浮遊法に静磁 場を組み合わせて浮遊した溶融金属中の流動を抑制し熱伝導率を測定する技術開発を成し 遂げた。非接触であるため容器からの汚染を回避でき、また、静磁場によって流動を抑制 できるため、真の熱伝導率を測定できたものである。しかしながら、温度計測には大きな 課題が残されている。放射温度計を用いる場合、温度校正のための融点が必要である。融 点が未知の材料については、予め測定しておく必要があるが、高融点で反応性の高い材料 であると熱分析だけでも困難な作業である。したがって、温度計測技術も含めた高温融体 の"完全に非接触"な熱物性測定技術を開発することは極めて重要である。

代表研究者は、電磁浮遊法と静磁場を組み合わせた世界で唯一の超高温熱物性計測シス テムを現在にわたって開発している[1]。これを土台として、放射率を必要としない非接触 温度計測技術を溶融金属に適用するための開発を行う。これにより放射率や融点が未知の 材料について温度計測を行うことができ、完全な非接触熱物性測定を目指す。放射率や融 点が未知の物質の温度を非接触で測定する技術を構築し、融体熱物性計測に応用すること は、未だ報告例の無い独自の研究であり、本研究成果を起点にして幅広い高温融体プロセ スならびに融体物性論の飛躍的な進展につながるものである。

本研究では、放射率を必要としない非接触温度計測技術を溶融金属に適用するための開 発を行う。本研究の共同研究者である山田(産総研計量研)は、2 波長反射率比法(DWR 法)[2]を用い、測定対象物の放射率を必要としない温度計測法を開発している。これは、 補助光源を用いて不透明な物質の放射率と反射率の和は常に1であるというキルヒホッフ の法則に基づいて開発された手法である。本研究では、この測定原理をより高温の金属融 体に適用するための技術課題を抽出し、課題を解決するための光学系を設計・製作し、高 温金属融体の温度測定技術として確立する。

### 2. 波長反射率比法の測定原理

Fig.1に2波長反射率比法の測定系の概略図を示す。



Fig. 1 Schematic diagram of optical system for the DWR method

温度Tの測定対象から放射される波長 $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ の光の各波長の輝度 $L_{off}(\lambda_1, T)$ 、 $L_{off}(\lambda_2, T)$ は、それぞれの波長での測定対象の放射率 $\epsilon_{\lambda_1}$ 、 $\epsilon_{\lambda_2}$ および測定対象と同温の黒体放射輝度 $L_{BB}(\lambda_1, T)$ 、 $L_{BB}(\lambda_2, T)$ を用いて以下のように表される。

$$L_{\text{off}}(\lambda_1, T) = \varepsilon_{\lambda_1} \cdot L_{\text{BB}}(\lambda_1, T) \tag{1}$$

$$L_{\text{off}}(\lambda_2, T) = \varepsilon_{\lambda_2} \cdot L_{\text{BB}}(\lambda_2, T)$$
(2)

その後、検出波長 $\lambda_1$ 、 $\lambda_2$ を含む光を照射できる補助光源を測定対象に対して照射する。 補助光源の各波長の輝度を $L_{LS}(\lambda_1)$ 、 $L_{LS}(\lambda_2)$ とすると、測定対象の表面で反射した光は、測 定対象の各波長の反射率 $\rho_{\lambda_1}$ 、 $\rho_{\lambda_2}$ との積で、 $\rho_{\lambda_1} \cdot L_{LS}(\lambda_1)$ 、 $\rho_{\lambda_2} \cdot L_{LS}(\lambda_2)$ と記述できる。し たがって、検出器で検出される輝度 $L_{on}(\lambda_1, T)$ 、 $L_{on}(\lambda_2, T)$ は、測定対象の放射に反射光が 加わり、以下のように表される。

$$L_{\rm on}(\lambda_1, T) = \varepsilon_{\lambda_1} \cdot L_{\rm BB}(\lambda_1, T) + \rho_{\lambda_1} \cdot L_{\rm LS}(\lambda_1) \tag{3}$$

$$L_{\rm on}(\lambda_2, T) = \varepsilon_{\lambda_2} \cdot L_{\rm BB}(\lambda_2, T) + \rho_{\lambda_2} \cdot L_{\rm LS}(\lambda_2) \tag{4}$$

続いて、これらの測定値から温度を求める手順を示す。式(1)と式(3)および式(2)と式(4) のそれぞれの差を取ることで各波長の放射率を除去し、以下のように反射率を記述できる。

$$\rho_{\lambda_1} = \frac{L_{\rm on}(\lambda_1, T) - L_{\rm off}(\lambda_1, T)}{L_{\rm LS}(\lambda_1)} \tag{5}$$

$$\rho_{\lambda_2} = \frac{L_{\rm on}(\lambda_2, T) - L_{\rm off}(\lambda_2, T)}{L_{\rm LS}(\lambda_2)} \tag{6}$$

式(5)と式(6)の比を取ることで、2波長の反射率の比である反射率比R<sub>p</sub>を以下のように定 義できる。

$$R_{\rho} = \frac{\rho_{\lambda_1}}{\rho_{\lambda_2}} = \frac{L_{\rm on}(\lambda_1, T) - L_{\rm off}(\lambda_1, T)}{L_{\rm on}(\lambda_2, T) - L_{\rm off}(\lambda_2, T)} \cdot \frac{1}{R_{\rm LS}}$$
(7)

ここで $R_{LS}$ は補助光源の 2 波長の輝度比であり、補助光源の各波長の輝度 $L_{LS}(\lambda_1)$ 、  $L_{LS}(\lambda_2)$ を用いて、

$$R_{\rm LS} = \frac{L_{\rm LS}(\lambda_1)}{L_{\rm LS}(\lambda_2)} \tag{8}$$

と表すことができる。

一方で、キルヒホッフの熱放射の法則を適用することができる。ここで、測定対象は十 分な厚みのある金属を想定しているため、透過率は0であると仮定する。

$$\varepsilon_{\lambda} + \rho_{\lambda} = 1 \tag{9}$$

式(9)を式(1)、式(2)に代入して整理すると、反射率比を以下のように記述できる。

$$R_{\rho} = \frac{L_{\rm BB}(\lambda_1, T) - L_{\rm off}(\lambda_1, T)}{L_{\rm BB}(\lambda_2, T) - L_{\rm off}(\lambda_2, T)} \cdot \frac{L_{\rm BB}(\lambda_2, T)}{L_{\rm BB}(\lambda_1, T)}$$
(10)

ここで、2波長の黒体放射輝度の比α(T)を

$$\alpha(T) = \frac{L_{\rm BB}(\lambda_1, T)}{L_{\rm BB}(\lambda_2, T)} \tag{11}$$

と定義すると、各波長の黒体放射輝度を以下のように記述できる。

$$L_{\rm BB}(\lambda_1, T) = \frac{L_{\rm off}(\lambda_1, T) - \alpha(T) \cdot R_{\rho} \cdot L_{\rm off}(\lambda_2, T)}{1 - R_{\rho}}$$
(12)

$$L_{\rm BB}(\lambda_2, T) = \frac{\frac{1}{\alpha(T)} \cdot L_{\rm off}(\lambda_1, T) - R_{\rho} \cdot L_{\rm off}(\lambda_2, T)}{1 - R_{\rho}}$$
(13)

式(12)、式(13)から、温度を求めることができるが、解析的には求めることができないため、数値計算によって求める。まず、初期温度 $T_0$ を仮定し、プランクの式から $\alpha(T_0)$ を計算する。この値を式(12)の右辺に代入し、黒体放射輝度を求めることで、プランクの式から温度 $T_1$ を算出する。このとき、初期温度が真温度であれば $T_0$ と $T_1$ は一致する。一致しない場合は、 $T_1$ を用いて、 $\alpha(T)$ を再計算し、一連の計算を(*i*+1)回繰り返し、 $T_i$ と $T_{i+1}$ が一致するまで数値計算を繰り返し、真温度を得る。

### 3. 実験方法

### 3.1. 還元雰囲気における Cu および Ni の温度測定

実験で用いた装置の概略図を Fig. 2 に示す。直径 8 mm の Cu および Ni 球に、直径 3 mm、深さ約 5 mm の孔を開け、外径 3 mm のアルミナ製保護管を挿入し、加熱用コイ ル中に保持した。保護管には、K 型熱電対(素線径 0.2 mm)が挿入され、試料温度を測定した。熱電対は補償導線を介してデータロガーに接続した。試料は、石英管中に保持し、ダ イヤフラムポンプおよびターボ分子ポンプによって、石英管内を減圧した後に、Ar-5 vol%H2混合ガスを導入し、試料の酸化を防止した。2 波長反射率比法の測定には、放射温 度計および集光レンズを用いたハロゲンランプを使用した。以下に基本的な実験手順を示 す。

- ① 試料直上 300 mm の位置に接写レンズを取り付けた放射温度計および鉛直方向から 20°程度傾けた位置に補助光源としてハロゲンランプを設置した。
- ② 加熱用コイルに高周波電流を流して試料を加熱し、このときの熱電対温度および放射温度計の温度をそれぞれデータロガーおよび PC で収録した。
- ③ 熱電対温度が安定した状態で放射温度計の温度を計測し、Loff(\lambda,T)を決定した。
- ④ 補助光源を照射し、そのときの放射温度計の温度を計測し、Lon(*λ*,*T*)を決定した。
- ⑤ 高周波電源の電流値を調整し、異なる温度で③、④の測定を行った。
- ⑥ 別途測定した光源の輝度比R<sub>LS</sub>とL<sub>off</sub>(λ, T)およびL<sub>on</sub>(λ, T)から2波長反射率比法で温 度を決定し、熱電対温度と比較した。



Fig. 2 Schematic diagram of the experimental setup for DWR measurement of solid Cu and Ni spheres

### 3.2. 大気中における Pt の温度測定

Cu および Ni の実験条件では、試料温度が 1000°C 以下での測定であったが、さらに高 温への適用性を評価するため、そこで、高融点かつ大気中でも酸化しない Pt を試料とし て用いた。実験装置の概略図を Fig. 3 に示す。直径 8 mm の Pt 球を加熱コイル中に保持 し、Pt 球の側面に焼結した R 型熱電対により温度を測定した。2 波長反射率比法の測定に は、放射温度計および集光レンズを取り付けたスーパーコンティニューム光源を使用した。 試料表面でスポット径が直径約 2 mm 程度になるように調整した。光源は試料から 200 mm 程度離れた位置より、鉛直方向から 15°程度傾けて照射した。測定手順は Cu および Ni の 場合と同様である。





### 3.3. 静磁場印加型電磁浮遊装置を用いた電磁浮遊液滴の温度測定

試料は、約1.4gの Cu(99.99 mass%)および Ni(99.99 mass%)を用いた。装置の概略図 を Fig.4に示す。ロータリーポンプおよびターボ分子ポンプを用いてチャンバー内を排気 した後、Ar-5 vol%H₂混合ガスおよび He ガスを導入した。次に、電磁浮遊用コイルに 400 から 480 A の高周波電流を流し、試料を浮遊、溶融させた。試料浮遊中は、超伝導磁石を 用いて 3 から 4 T の静磁場を印加し、試料の表面振動や並進運動を抑制した。実験中の試 料温度は、試料直下にあるミラーを介して単色放射温度計で測定した。2 波長反射率比法 の測定は、試料を中心とする鉛直軸から 5°程度傾けた位置に設置した放射温度計およびそ の反対方向に 5°程度傾けた位置に設置した集光レンズ付きハロゲンランプを用いて行っ た。



Fig. 4 Schematic diagram of the electromagnetic levitation apparatus for the DWR measurement

# 4. 実験結果

# 4.1. 還元雰囲気における Cu および Ni 球の温度測定結果

熱電対温度 1228 Kにおける Cu 球の輝度および熱電対温度の測定結果を Fig. 5 に示す。 波長 922 および 1259 nm の輝度値を青およびオレンジのプロットで示し、熱電対温度  $T_{\rm PC}$ を黒いプロットで右の縦軸で示している。約 20 s までは試料の放射輝度を測定しており、 この領域の平均値から各波長の $L_{\rm off}(\lambda, T)$ を得た。その後、補助光源を照射し、反射光の分 だけ輝度が上昇したことが確認できる。この領域の平均値から $L_{\rm on}(\lambda, T)$ を得た。また、熱 電対温度を見ると、補助光源 ON/OFF 時に試料温度が変化していないことも確認できた。 高周波炉の出力を変化させて、複数の温度で上記の測定を繰り返した。得られた輝度値  $L_{\rm off}(\lambda, T)$ 、 $L_{\rm on}(\lambda, T)$ と予め測定したおいた $R_{\rm LS}$ を用いて 2 波長反射率比法により温度を決 定し、熱電対温度と比較した。Fig. 6 に 2 波長反射率比法による測定温度  $T_{\rm DWR}$ と熱電対 温度  $T_{\rm PC}$ の相関を示す。縦軸は  $T_{\rm DWR}$ と  $T_{\rm PC}$ の差を示している。また、2 波長反射率比法を ステンレス平板に適用した山田らの結果[3]も併せてプロットした。山田らの上限温度が約 840 K であったのに対し、本研究では、測定温度範囲を約 900 から 1250 K まで拡張する ことができた。熱電対温度との差は、Cu 球で最大 8 K、Ni 球で最大 19 K という結果であ った。



Fig. 5 Radiance and temperature profiles of solid Cu sphere measured by a radiation thermometer and thermocouple, respectively with and without light source radiation



O Cu □ Ni × Stainless steel

Fig. 6 Relationship between  $T_{\rm DWR}$  and  $T_{\rm TC}$  for the DWR measurement of solid Cu and Ni spheres.  $T_{\rm DWR}$  and  $T_{\rm TC}$  are the temperatures measured by the DWR method and thermocouple, respectively, together with the data of stainless steel plate[3]

## 4.2. 大気中における Pt 球の温度測定結果

熱電対温度が約1544 K の Pt の輝度および熱電対温度の測定結果を Fig. 7 に示す。約38sまでは試料の放射を安定して測定できたことが分かる。その後、補助光源を照射すると、反射光の分だけ輝度が上昇したが、輝度値のばらつきが大きいことが分かる。これは、補助光源のパルス出力によるものと考えられる。ここでも、平均値を取ることで各波長の

 $L_{off}(\lambda, T)$ 、 $L_{on}(\lambda, T)$ を決定した。また、この温度では熱電対温度に±3 K 程度の時間変化 があったが、光源 ON/OFF 時の温度差はほぼなく、2 波長反射率比法の測定に及ぼす影響 が小さいと見なした。Fig. 8 に 2 波長反射率比法による測定温度  $T_{DWR}$  と熱電対温度  $T_{TC}$ の相関を示す。Cu 球、Ni 球と比較して高温の約 1800 K まで測定温度範囲を拡張するこ とが可能であったが、熱電対温度との差は約 30 から 60 K であり、他の測定結果と比較し て大きい値であった。



Fig. 7 Radiance and temperature profiles of solid Pt sphere measured by radiation thermometer and thermocouple, respectively with and without light source radiation



Fig. 8 Relationship between  $T_{\text{DWR}}$  and  $T_{\text{TC}}$  for the DWR measurements of solid Pt, Cu and Ni spheres together with the data of stainless steel plate[3]

#### 4.3. 静磁場印加型電磁浮遊装置を用いた電磁浮遊液滴の温度測定結果

電磁浮遊している溶融 Cu および Ni の温度は、融点付近における放射温度計の温度プ ラトーから、Cu および Ni の融点を用いて校正し、校正温度  $T_{calib}$  とした。各温度に保持 して光源を ON/OFF 時の輝度の平均値から各波長の $L_{off}(\lambda, T)$ 、 $L_{on}(\lambda, T)$ を決定した。こ れらの輝度値および予め求めた $R_{LS}$ から、2 波長反射率比法により温度を決定した。その温 度  $T_{bwr}$  と  $T_{calib}$  の相関を Fig. 9 に示す。2 波長反射率比法と校正温度の差は、Cu で最大 約 200 K、Ni で最大約 110 K であった。



Fig. 9 Relationship between  $T_{\text{DWR}}$  and  $T_{\text{TC}}$  for the DWR measurements of molten Cu and Ni droplets levitated in the electromagnetic levitator

## 5. 結言

本研究では、2 波長反射率比法による放射率フリー温度計測法の電磁浮遊した溶融金属 液滴への適用を目的として、電磁浮遊液滴を模擬した高温の固体金属球ならびに電磁浮遊 させた溶融金属液滴の温度計測を試み、以下の知見を得た。

(1) 固体 Cu および Ni 球に対してハロゲンランプを、Pt 球に対してスーパーコンティ ニューム光源を補助光源として 2 波長反射率比法により温度を測定した。その結果、Cu お よび Ni については、温度範囲 900~1250 K において、熱電対温度との差が、それぞれ 10 K および 20 K であった。Pt については、温度範囲 1000~1800 K において、熱電対温度 との差 38 K 以内で測定できた。ステンレス鋼板を用いた先行研究の測定温度範囲が 840 K までであったことと比較すると、高温まで拡張することが可能であることを示すことが できた。

(2) 電磁浮遊している Cu および Ni 液滴に対して、ハロゲンランプを補助光源として 2 波長反射率比法を適用した結果、融点で校正した温度との差は、Cu では最大 200 K、Ni

では最大100K程度と大きな値となった。これらの結果より、補助光源の2波長の輝度比 が空間的に均一であること、また、補助光源の光の2波長の輝度比を正確に求めることが 測定精度向上のために不可欠であることが示された。電磁浮遊液滴の測定精度には課題が 残るものの、固体金属球の結果から、本手法が球状試料に対しても十分に適用可能である ことが示された。

## 謝辞

本研究は、2018年度の公益財団法人 JFE21世紀財団の研究助成により行われました。

## 参考文献

- H. Fukuyama, M. Watanabe and M. Adachi, *High Temp. High Press.*, 49 (2020) 197– 210.
- [2] Y. Yamada and J. Ishii, Int. J. Thermophys., 36 (2015) 1699–1712.
- [3] Y. Yamada, J. Ishii, Proc. SICE Annual Conf. 2014, (2014), 1918.