JAEA-Technology
2021-036
DOI:10.11484/jaea-technology-2021-036

レーザー局所加熱による高融点試料の融点測定技術開発

Development of High Melting Temperature Measurement System by Laser Spot Heating

岩佐 龍磨　有馬 立身

Tohma IWASA and Tatsumi ARIMA

原子力科学研究部門
原子力科学研究所
原子力基礎工学研究センター
燃料・材料工学ディビジョン

Fuels and Materials Engineering Division
Nuclear Science and Engineering Center
Nuclear Science Research Institute
Sector of Nuclear Science Research

March 2022

Japan Atomic Energy Agency　日本原子力研究開発機構

JAEA-Technology

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。
本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の
条件で利用してください。（https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（https://www.jaea.go.jp）
より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構　JAEA イノベーションハブ　研究成果利活用課
〒 319-1195　茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地 4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License
(https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under
the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section,
JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2022

JAEA-Technology 2021-036

レーザー局所加熱による高融点試料の融点測定技術開発

日本原子力研究開発機構 原子力科学研究部門 原子力科学研究所
原子力基礎工学研究センター 燃料・材料工学ディビジョン

岩佐　龍磨、有馬　立身[*1]

（2021 年 12 月 3 日受理）

加速器駆動システムによる核変換用のマイナーアクチノイド（MA）含有窒化物燃料について、炉心異常事象時のふるまい解析や安全性の検討のために、その熱分解温度や融点を把握しておくことは非常に重要である。本報告書では、少量試料でごく短時間での測定が期待できる手法として、レーザーを利用した融点測定システムを構築し、実証試験を行った。窒化物燃料の熱分解温度に近い 3000 K 付近の温度領域について、高融点金属試料を用いて温度評価を行い、システムの技術的成立性を評価した後、実際に窒化物試料の融点を測定した。

原子力科学研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2-4
*1　九州大学

JAEA-Technology 2021-036

Development of High Melting Temperature Measurement System by Laser Spot Heating

Tohma IWASA and Tatsumi ARIMA[*1]

Fuels and Materials Engineering Division
Nuclear Science and Engineering Center
Nuclear Science Research Institute
Sector of Nuclear Science Research
Japan Atomic Energy Agency
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received December 3, 2021)

Knowledge on the liquefaction (thermal decomposition and melting) temperatures of MA-bearing nitride fuels for transmutation by accelerator-driven system is essential for elucidation of the fuel behaviors under abnormal condition and for the safety analysis. A melting temperature measurement system for refractory materials was developed based on a laser spot heating method, which is expected to measure in a very short time with a small amount of sample, and demonstration tests using refractory metals and zirconium nitride were performed. As the results, it was found that this melting temperature measurement system can be applicable up to the temperatures around 3000 K which is close to the thermal decomposition temperature of nitride fuels and we confirmed the technical feasibility of this system for future application to small specimens of transuranium nitrides.

Keywords: Nitride Fuel, Thermal Decomposition, Melting Temperature, Laser Spot Heating

---

*1 Kyushu University

目 次

1. 序論 ---------- 1

2. レーザー局所加熱を利用した融点測定装置 ---------- 3
2.1 測定装置 ---------- 3
2.2 測定原理 ---------- 4
2.2.1 放射率 ---------- 4
2.2.2 ハーゲン-ルーベンスの式 ---------- 4
2.2.3 融点評価 ---------- 5

3. 実証試験 ---------- 8
3.1 測定・解析手順 ---------- 8
3.2 金属試料測定 ---------- 9
3.2.1 低融点金属（Ni） ---------- 9
3.2.2 高融点金属（Mo,Ta） ---------- 10
3.3 窒化物試料測定 ---------- 13
3.3.1 試験準備 ---------- 13
3.3.2 試験条件及び測定結果 ---------- 13

4. 結論 ---------- 15

謝辞 ---------- 16

参考文献 ---------- 16

Contents

1. Introduction ---------- 1

2. Melting point measuring system by laser spot heating ---------- 3
2.1 Apparatus ---------- 3
2.2 Principle ---------- 4
2.2.1 Emissivity ---------- 4
2.2.2 Hagen-Rubens relation ---------- 4
2.2.3 Melting point evaluation ---------- 5

3. Verification test ---------- 8
3.1 Method ---------- 8
3.2 Measurement metal sample ---------- 9
3.2.1 Low melting point metal (Ni) ---------- 9
3.2.2 High melting point metal (Mo,Ta) ---------- 10
3.3 Measurement nitride sample ---------- 13
3.3.1 Preparation ---------- 13
3.3.2 Condition and result ---------- 13

4. Conclusion ---------- 15

Acknowledgements ---------- 16

References ---------- 16

1. 序論

燃料中に液相が生成する温度や熱分解が生じる温度を把握することは、原子炉運転時の性能限界や異常昇温時の挙動を把握し、安全性を担保する上で重要であるが、MA 核変換用窒化物燃料の母材となる窒化ジルコニウム（ZrN）と超ウラン元素（TRU）窒化物の固溶体の液相生成に関する知見はこれまで皆無に近く、データ取得が急務である。従来核燃料の融点測定においては、被測定試料をタングステンやレニウム容器に封入した後に高周波誘導加熱によって溶融させ、容器の底部からの疑似黒体放射を利用して融点を決定する手法が用いられてきた [1)]。この手法においては、試料と容器が高温で反応する可能性があること、試料封入作業の煩雑さ、容器が放射性廃棄物となること等の課題が存在した。今回選択したレーザー局所加熱を用いた融点測定手法では、試料表面の一部（mm^2×厚さ数μm）をごく短時間溶融させ、試料外周部を溶融部の受け皿として扱うことで、他の物質との反応のない疑似的な無容器法で、なおかつ少量試料での測定が可能であり、同時に試験後の廃棄物量の抑制にもつながる。取り扱える試料量が限られる TRU の試験において、レーザー局所加熱による少量試料の融点測定技術を窒化物に適用可能とし、これをホット試験へ導入することで、近い将来に窒化物燃料のデータ取得が見込まれる。また、本手法における溶融試料の温度評価は、相転移に伴う温度停留点（サーマルアレスト時）における放射スペクトルと放射率の仮定式より解析を行うため、窒化物燃料の様な放射率データの少ない試料の測定に適している。

窒化ジルコニウム（ZrN）は、大気雰囲気（窒素分圧 0.78 atm）において、3233 K[2)]で液相を生成するとされる。通常、融点とはある物質における固相と液相の相転移温度のことを指すが、窒化物ではそれ以前の温度において窒素をガスとして放出する熱分解反応が起き、組成が変化した状態で液相が生成される。熱分解における平衡反応を考えると、窒化物の液相生成は窒素分圧に依存するため、窒素分圧と液相生成温度（熱分解温度）の関係を把握することが必要となる。また、一定以上の窒素分圧下においては、熱分解を起こさず組成の変化無しで溶融する温度が出現し、これを窒化物の調和融点（congruent melting point）とする。

ZrN は高温において電気伝導率が金属的なふるまいをみせる [3)]物質であり、結晶構造は単純な塩化ナトリウム型（NaCl）構造を持つ。MA 及びプルトニウム（Pu）からなる TRU 窒化物は同様に NaCl 構造を持つため [4)]、ZrN には高濃度の TRU を固溶させることが可能である [5)]。測定技術開発段階のコールド試験においては、窒化物燃料の模擬物質として、非放射性の希土類（RE）窒化物を固溶させた $RE_xZr_{1-x}N$（RE:Er,Dy）を測定する。希土類窒化物は母材となる ZrN と比較しても蒸気圧が高く [6)7)]、$RE_xZr_{1-x}N$ の液相生成時に希土類成分の選択的な蒸発が懸念される。ZrN の不定比性も考慮すれば、溶融試験中に目的試料の組成が大きく変化する恐れがあるため、温度評価に用いる停留点は凝固時（固相生成温度）ではなく溶融時（液相生成温度）の値を評価に用いることが望ましい。

本報告書の構成は以下の通りである。2 章ではレーザー局所加熱による融点測定装置の原理と構成について述べる。3 章ではこの装置を用いて、数種類の高融点金属試料を測定し実証試験を行った結果と、実際に ZrN を測定した結果について述べる。4 章で今回の測定技術開発全体についてまとめ、結論を示す。

2. レーザー局所加熱を利用した融点測定装置

レーザー局所加熱を利用した融点測定装置として、加熱用のレーザーとデータ測定・解析用装置一式、試料容器等を組み合わせたシステムを構築した。以下に、装置及び測定の原理について詳しく述べる。

2.1 測定装置

今回作製した装置全体の概略図を Fig. 1 に、使用した各構成機器の仕様を Table 1 に示す。

試料溶融のためのパルス出力レーザーとして、ネオジム：ヤグ（Nd：YAG）パルスレーザー照射装置を使用した。本レーザーは ms 単位の短時間でのパルス加熱が可能であり、試料に照射して表面一部を溶融させるために用いた。YAG レーザー照射開始時に発せられるトリガ信号をファンクションジェネレータ（FG）に導入することで、レーザーの発振タイミングを起点に、FG で繰り返しのパルス信号を発生させた。FG から発振された信号はアナログ入出力ユニットを通して後述する放射温度計が受け取った信号と共に PC 上のソフトウェアで処理を行い、YAG レーザー発振信号をトリガとして、放射温度計の計測が開始されるシステムを構築した。

半導体連続レーザー（Continuous Wave レーザー）照射光源は、試料の表面広範囲部分を 1000 K 程度の温度域まで予備加熱する役割を担っており、パルスレーザーによる加熱時の熱衝撃緩和を目的とした。また、試料の温度変化を緩やかにしてサーマルアレスト維持時間を延長する効果も期待した。半導体レーザーを動作させる際には、後付けの外部回路によってインターロック機能や 2 重スイッチ等の安全性を確保した。

解析用のデータ取得には、μsec 単位での温度応答を観測可能な単色放射温度計、目的波長（可視光領域・近赤外領域）におけるスペクトル取得用のミニ分光器を用いた。単色放射温度計は放射率を 1 に設定し、試料の単純な温度変化を観測するものとした。放射温度計の測定は、前述したトリガーシステムによって、YAG レーザーの発振タイミングに合わせて開始され、温度変化曲線上で試料溶融凝固時のサーマルアレストを確認すると同時に、試料溶融部からの放射スペクトルを別途ミニ分光器によって測定した。分光器で取得する放射スペクトルデータは、目的波長以外の放射光の影響を避けるため、遮光用の ND フィルタ及びレーザー発振波長カット用のノッチフィルタを組み合わせた光学ケージを通して測定を行った。また、今回使用した分光器の機器特性上、連続したデータ取得には ms 単位のインターバルが必要であり、仮に温度測定と同様にトリガ信号によってデータ取得を開始した場合には目的時間でのデータ取得が困難である。よって、こちらはトリガーシステムに組み込まず、YAG レーザー照射前に手動で連続的なデータ取得を開始し、照射終了後即座に同じく手動でデータ取得を終了することで、連続的に試験中のスペクトルデータを取得した。

アライメント用のランプ光源は、測定時の光軸合わせ（アライメント）の際に、ガイド光機能を持たない分光器のガイド光代用品として用いた。光学ケージに繋ぐファイバを分光器のものとランプ光源のもので付け替えることにより、実質的な観測位置を変えずに光軸合わせが可能となった。

試料密閉用の耐圧セルは小型圧力容器として内径 40 mm 内部高さ 30 mm のものを製作・使用し、最高使用圧力は接続部を含めた装置全体で 0.6 MPa 以下とした。圧力設定については、セルの取扱いが容易な小型圧力容器として扱える圧力範囲を参考とした。試料を耐圧セル内に設置・封入した後、内部を目的の雰囲気ガスによって置換することで圧力及びガスの種類を任意に変更可能とした。試料セル及びレーザーヘッドを始めとする光学系は、アルマイト板及び耐火カーテンで構築した保護用ボックスによって外部と隔てられ、作業者にレーザー光が暴露されないよう対策を行った。測定時は耐火カーテンを閉め切ったクローズ状態として、各レーザー装置のインターロック機能を定めた。系内での作業は、レーザー装置操作側と反対側に面した装置アクセス部分のカーテンをオープンにして、レーザー装置のインターロック機能が作動した状態で行った。

2.2.3 項において後述する変換関数を取得するための黒体炉については、シリコンカーバイド製で最高温度 1773 K の可搬型黒体炉を保護用ボックス外部に設置した。変換関数取得時には、光学ケージのみを通常の測定系から取り外し、フィルタと窓材を通した試料測定時の状態で黒体炉の焦点距離にセットして黒体放射スペクトルを取得した。

2.2 測定原理

2.2.1 放射率

温度 T の物体において、ある波長 λ で観測される理想的な分光放射輝度 L_p は、プランクの式より以下のように表される。

$$L_p(\lambda, T) = \frac{2C_1}{\lambda^5}\frac{1}{\exp\left(\frac{C_2}{\lambda T}\right)-1} \tag{2-1}$$

C_1 :　放射第 1 定数(= 5.9548×10-17 Wm^2)
C_2 :　放射第 2 定数(= -0.01488×10^{-2} mK)

また、温度 T の試料において実測される分光放射輝度 L_s と(2-1)式の関係は以下(2-2)式で表す。

$$\varepsilon(\lambda) \times L_p(\lambda, T) = L_s(\lambda, T) \tag{2-2}$$

ここで、ε(λ)を波長 λ における試料の放射率（分光放射率）として定義する。

2.2.2 ハーゲン-ルーベンスの式

マクスウェルの式より、プランクは金属の表面反射係数と体積抵抗率、入射光の波長の

関係を以下の式で表した[8)]。

$$R_\lambda = \frac{\sqrt{3600\lambda^2/r^2+1}+1-\sqrt{2\left(\sqrt{3600\lambda^2/r^2+1}-1\right)}}{\sqrt{3600\lambda^2/r^2+1}+1+\sqrt{2(\sqrt{3600\lambda^2/r^2+1}-1)}} \tag{2-3}$$

ここで、R_λは入射光に対する単色反射光強度の割合であり、r は金属の体積当たりの電気抵抗率 [Ω・cm]、λ は波長 [cm]である。任意の波長 λ における分光放射率は E_λ=1-R_λ で定義されるので、ハーゲンとルーベンスは(2-3)式を$\sqrt{r/\lambda}$について昇冪の順に展開して、以下のような関係式を得た。この多項式において、高次の項は通常無視出来る。

$$E_\lambda = 0.365\sqrt{\frac{r}{\lambda}} - 0.667\left(\frac{r}{\lambda}\right) + \cdots - \cdots + \tag{2-4}$$

上記の式は主に近赤外以降（>1 μm）の波長域において、金属の分光放射率 E_λの推定に用いられる。また、ドルーデ-ローレンツ分散より、1 μm を境界として可視光領域は束縛電子、赤外領域では自由電子の影響が支配的とされる[9)10)]。溶融金属及び窒化物の熱放射においては自由電子の寄与が大きいものとして、簡単のために本試験で測定に使用する金属試料の放射率 ε(λ)を定数 a、b を用いて以下のような式で仮定した。

$$\varepsilon(\lambda) = \frac{a}{\sqrt{\lambda}} + b \tag{2-5}$$

2.2.3 融点評価

試料温度は、試料が溶融・固化する際に生じる温度変化の停留点を利用するサーマルアレスト法に基づいて解析を行った。試験中、試料の温度変化は単色放射温度計によって確認し、相変化の際に生じるサーマルアレスト（熱停留）部分における放射スペクトルを分光器により測定した。アレスト温度において、試料溶融部からの分光放射スペクトルを分光放射輝度に換算し、プランクの放射則に従って算出した黒体放射との比較・フィッティングを行うことで、試料の放射率と融点の同時評価を行うものとした。以下に黒体炉を用いた解析について、詳細を述べる。

試料の相変化時に観測されるサーマルアレストの温度 T_m において、(2-2)式より、以下の関係が成り立つ。

$$L_s(\lambda, T_m) = \varepsilon(\lambda) \times L_p(\lambda, T_m) \tag{2-6}$$

ε(λ)：　波長 λ における垂直分光放射率

$L_s(\lambda,T_m)$：　波長 λ、温度T_mの試料における垂直分光放射輝度

$L_p(\lambda,T_m)$：　　波長 λ、温度T_mでのプランクの式における垂直分光放射輝度

(2-6)式より、ε≒1 とみなせるような黒体の分光放射輝度 $L_{bb}(\lambda,T_{bb})$は、黒体炉温度 T_{bb} において次のように表せる。

$$L_{bb}(\lambda,T_{bb}) = 1 \times L_p(\lambda,T_{bb}) \tag{2-7}$$

また、温度 T_{bb} の黒体炉において、分光器によって直接測定される分光放射スペクトル $C_{bb}(\lambda,T_{bb})$と $L_{bb}(\lambda,T_{bb})$の関係を以下のように定義する。

$$L_{bb}(\lambda,T_{bb}) = L_p(\lambda,T_{bb}) = C_{bb}(\lambda,T_{bb}) \times K(\lambda) \tag{2-8}$$

ここで、K(λ)は波長ごとに測定されるカウント数を分光放射輝度へ換算するための変換関数として与えられ、分光器の機械的特性等の情報を含んでいる。変換関数 K(λ)と、試料を測定して得られた分光放射スペクトル $C_s(\lambda,T_m)$を掛け合わせることで、分光放射輝度 $L_s(\lambda,T_m)$が得られる。ここで、先ほど 2.1.2 項において定めた通り、試料の放射率を(2-5)式のように仮定すれば、プランクの放射則から導出される L_p の理論値と L_s 間の差異は、(2-6)-(2-8)式より以下の Φ についての式で表せる。この Φ が最小値となるように、ε_s と T_m を変数として Microsoft Excel の solver 機能を用いてフィッティングを行うことで、試料の放射率と溶融温度が決定できる [11)]。実際の計算においては、(2-5)式における放射率仮定式の定数項 a,b 及び温度 T_m を変数として与え、その他は実験値並びに計算値を用いてフィッティングを行った。

$$\Phi = \int \left(\varepsilon_s(\lambda) L_p(\lambda,T_m) - C_s(\lambda,T_m) K(\lambda) \right) d\lambda \tag{2-9}$$

基本となる解析の原理はこれまでに述べた通りではあるが、後述するように今回用意した黒体炉は最大温度 1773 K であり、目的とする 3000 K 以上の高融点材料の測定においては、取得されるスペクトル強度のレンジが異なることで解析に支障が出てくる。また、測定に用いた分光器の特性上、データの取得時間 t の変動によってスペクトルの強度を調整することは困難であった。そこで、高温領域においては黒体炉の代替として、放射率と融点が既知の標準試料（2000 K-3000 K）から変換関数を取得することを検討した。解析に使用する波長域 λ_i において、標準試料の放射率 ε_i が既知であるとき、ある温度 T_i における垂直分光放射輝度 L_i とプランクの放射則との関係は(2-7)式に従って次のように表せる。

$$L_i(\lambda_i, T_i) = \varepsilon_i \times L_p(\lambda_i, T_i) \tag{2-7'}$$

また、分光放射スペクトル C_i と L_p の関係は(2-8)式より次のように表す。

$$L_i(\lambda_i, T_i) = \varepsilon_i \times L_p(\lambda_i, T_i) = C_i(\lambda_i, T_i) \times K(\lambda_i) \tag{2-8'}$$

$K(\lambda_i)$を用いた試料の放射率と溶融温度の解析については、(2-8)-(2-9)式と同様の流れで実行した。

3. 実証試験

3.1 測定・解析手順

窓材、ND フィルタ、ノッチフィルタを通して、黒体炉の定点温度 1773 K における分光スペクトルデータ $C_{bb}(\lambda, T_{bb})$を取得した。この時、蓄積時間 t のパラメータは、検出されるスペクトル強度が飽和しない範囲（Intensity[counts] < 65535）において任意に定めた。プランクの放射則から算出した分光放射輝度 $L_p(\lambda,1773)$と、取得した黒体放射スペクトル $C_{bb}(\lambda,1773)$より、変換関数 $K_{bb}(\lambda)$を導出し、融点測定の実証試験を行った。測定の流れを以下に示す。

光学系の保護用ボックスを開放し、測定試料を耐圧セル内にセットし、PTFE 製 O リング、ゴム製 O リングと合成石英製の窓材を取り付けてセルを密封した後、セル前後のバルブを操作してセル内を任意の雰囲気に置換した。続いて、セル内に設置した試料に対して、各光学機器のアライメント（光軸の位置調整）を行った。

アライメントの流れとしては、まず垂直入射の位置に配置した分光器用光学ケージを基準とし、タングステン-ハロゲンランプ放出用の光ファイバを光学ケージへと繋ぎ、ガイド光の焦点①を目印にサンプル位置を調整した。①に対して、単色放射温度計のプローブ光②が重なり合うように、放射温度計の設置位置を調整した。①と②の位置合わせが完了した後、光学ケージからタングステン-ハロゲンランプ光の放出用ファイバを取り外し、分光器への導光用ファイバを取りつけた。YAG レーザー照射装置からは、高電圧電源を OFF にしたままシャッタを開状態にしてガイド光を ON とすることで、レーザーヘッドからアライメント用のガイド光③が照射され、連続レーザーについては、外付け回路のスイッチを ON にすることで、即座にガイド光④が照射される仕組みとなっており、YAG レーザー照射装置と連続レーザー照射光源のインターロックが正常に動作していることを確認した後に、両装置のガイド光③④と②のアライメントを行った。以上の手順により、ガイド光①-④の焦点位置が一致した状態となった。

雰囲気置換、アライメントが終了した後、暗幕を下げて保護用ボックスを閉状態とし、システム全体（レーザー照射領域）を隔離した。この際、外部から見て暗幕やアルマイト板に損耗が無いことを確認した。②-④のガイド光を全て OFF にした後、YAG レーザー装置の高電圧電源を ON にした。この際、強制的にシャッタが閉状態となるので、再びシャッタを開状態にした。レーザー照射条件については、装置備え付けのコントロールパネル上で目的の条件となるよう操作し、装置への出力負荷が 90 %以上とならない（max85 %程度を推奨）ことを確認した。連続レーザーについては、電流値で出力制御を行っており、基本的にはレーザー照射が OFF の間にのみ出力を操作することが可能である（入力電流を別途 FG 等で変動させることで、レーザー照射中に出力制御を行うことも可能）。データ取得のため、PC 上で温度変化測定用ソフトウェア（C-LOGGER）と、分光器データ記録用ソフトウェア（Spec-evaluation）を起動させた。

試料溶融時に、各測定データを取得するまでの流れを以下に記す。まず連続レーザーの照射スイッチを ON にすることで試料へと連続レーザーを照射し、加熱を開始した。試料の種類にもよるが、熱伝導率の良好な（数十 W/m・K 以上）試料においても、およそ 1 分前後で温度が安定してくることを確認しており、基本的に連続レーザー照射開始から 1 分後に YAG レーザーの照射を行うものとした。YAG レーザーの照射前に、C-LOGGER 上で測定条件の設定ファイルを読み込み、記録開始ボタンを押すことでトリガ待機状態とした。連続レーザー照射開始から 1 分後に、spec-evaluation での記録を開始し、その後即座にパルス YAG レーザーを照射した。C-LOGGER 上で記録が終了したのを確認した後、すぐに Spec-evaluation の記録を停止した。測定後、それぞれのソフトウェア上で取得されたデータを保存した。Spec-evaluation で設定を変えずに再度測定を行う場合は、記録開始ボタンを押すことで即座に次の測定を開始することが可能であるが、C-LOGGER ソフトウェアでは一回の測定ごとに設定ファイルの再読み込みを行った。安全のため、測定後に試料を入れ替える等の操作を行う場合には、必ず両レーザー装置の電源電圧が OFF になっていることを確認したうえでアクセスを行った。

C-LOGGER は入力された電圧信号を記録するためのソフトウェアであり、今回の試験においては、(i) 単色放射温度計の出力値（0-10 V）、(ii) YAG レーザー装置からレーザーの発振信号を受け取ってファンクションジェネレータから発せれたトリガ信号（0-5 V）、(iii) YAG レーザー装置から発信されるレーザーの end out 信号（0-5 V）の三つの値をモニターした。記録時間はレーザー照射時間に合わせて、数百 ms とした。データの記録は、ソフトウェア上で認識された （ii）の立下り信号（2 V）によって開始される設定とした。Spec-evaluation における測定時の各種設定を Table 2 にまとめた。Dark 測定は試料測定前に行うバックグラウンド信号の測定を指す。

取得された C-LOGGER のデータからは、YAG レーザーの照射開始時から終了後までの輝度温度の変化を確認できる。温度変化曲線と分光器の時間軸を同期させることで、目的とするサーマルアレスト時の分光スペクトルデータ $C_s(\lambda)$を取得する。$C_s(\lambda)$における蓄積時間 t_s と同じ条件で得られた $K_{bb}(\lambda)$より、試料溶融時の分光放射輝度 $L_s(\lambda,T)$は（2.8）式に従う。（2.9）式より、$\int[\varepsilon(\lambda)*Lp(\lambda,T)- Cs(\lambda)*K(\lambda)]$が最小となるようフィッティングで導出された $\varepsilon(\lambda)$、T が試料溶融時の放射率と温度となる。初期温度及び制約条件によっては、局地的な最適解が導出されてしまうので、大局的な最適解の導出のために何度か条件を変化させて（後の章で記述）、フィッティングを施行した。

3.2 金属試料測定

3.2.1 低融点金属（Ni）

測定システムの性能評価のため、融点既知である金属 Ni（T_m：1728 K）について、3.1 節の流れで繰り返し測定を行い、その放射率と融点を評価した。Fig. 2 に温度変化の測定

例を 3 通り示した。温度の初期値を 2000 K、$0<\varepsilon_{650\text{-}1000nm}<1$ とする制約条件のみを定めてフィッティングを行った結果、導出された融点の平均値は 1724 K（±21 K）となり、同時に解析された放射率は 0.23-0.51 の範囲で変化していた。液体状態の Ni（T=1800 K）における分光放射率 ε_{650nm} の文献値は $\varepsilon_1=0.35$[12)]、$\varepsilon_2=0.38$[13)]である。文献値を参考に、制約条件として $0.3<\varepsilon_{650nm}<0.4$ を追加してフィッティングを行った結果、導出された融点の平均値は 1732 K（±20 K）となり、制約条件無しの場合と殆ど変わらなかった。従って、この場合には制約条件によらず放射率と融点を解析可能であると考えられる。結果として、黒体炉の変換関数 $K_{bb}(\lambda)$を用いた Ni の融点と放射率の同時評価では、放射率に±0.15 程度の差異は生じるものの一定の数値が導き出され、融点については±20 K（ΔT/T=1.2 %）程度の範囲で評価可能であると判断できる。本測定方法において、分光放射スペクトル取得時の試料温度は、単色放射温度計における温度変化曲線上のサーマルアレストの温度を基準としているが、実際には分光器のデータ取得時間インターバルの機器特性上、データ取得位置と温度変化の時間軸に 3 ms までずれが生じる可能性があり、この測定誤差範囲は直接的に融点評価に影響していると考えられる。取得時間のずれが温度評価に及ぼす影響は、主に試料の温度変化速度に依存するものの、Ni の場合には輝度温度で数十 K 程度の誤差が生まれる可能性がある。予備加熱を利用して温度変化を可能な限り緩やかに抑えることで、均一な温度となる時間範囲を広げることが一つの対策として挙げられる。

3.2.2 高融点金属（Mo,Ta）

窒化物に近い高温領域（3000 K 付近）に融点を持つ金属試料を測定する場合を検討した。分光器によって取得できる C(λ)のスペクトル強度は、蓄積時間 t に対して直線性が悪いため、異なる蓄積時間で得られたデータを用いて校正を行うことが不可能である。よって、高温試料の測定においてデータの飽和が生じないように蓄積時間 t_2 を設定した場合には、変換関数の取得の際にも同じ蓄積時間 t_2 を設定条件とする必要がある。しかしながら、高温のスペクトルに対応した短い蓄積時間 t_2 で低温試料の放射スペクトル強度を取得した場合、取得されるデータの S/N 比が小さくなり、変換関数にも大きくノイズが乗ってしまう。実際に、蓄積時間を t_1 として黒体炉から取得した $K_{bb1}(\lambda)$と、$t_1>t_2$ となるような蓄積時間 t_2 で測定した $K_{bb2}(\lambda)$を比較した場合、t_2 における $K_{bb2}(\lambda)$ではノイズが大きく、全体の変化量が異なることも確認できた。そこで、高温領域における融点補正については、同程度の温度領域において取得する変換関数 K’(λ)を用いることで、この問題の解決を試みるものとした。通常、高温での放射標準としてはタングステンランプが良く使われるが、今回は試料測定を行う際の系の条件をそのまま利用することで、窓材や雰囲気による放射率への影響を無視できることを期待して、試料位置にセットした Mo の融点における分光放射スペクトルを利用して変換関数 K’(λ)を取得した。以下にその手順を

示す。

融点既知である Mo（T_m：2896 K）について測定したデータを利用して、3000 K 付近における変換関数を取得した。まず、Mo 試料（0.1 mm^t）を溶融させ、温度変化曲線における熱停留点において分光放射スペクトル C’s(λ)を取得した。Mo 溶融試験時の温度変化は Fig. 3 に示した。Mo の融点における放射率ε_i'は文献 [14)15)16)]より、(i) Hagen-Rubens 式による液相での値、(ii) Hagen-Rubens 式による固相での値、(iii) 実験値に対するフィッティング式の値を参考値とし、$\varepsilon'_i L_p$（λ,2896）と実際に測定された Mo の分光放射スペクトル$C's(\lambda)$の比から変換関数 K'_i（λ）を以下のように求めた。

$$K'_i(\lambda) = \frac{\varepsilon_i' L_p(\lambda, 2896K)}{C_s'(\lambda)} \tag{3-1}$$

蓄積時間を 700 μs に設定した場合の分光スペクトルデータから取得された、上述の変換関数 K'_i を用いて、Mo のε_i'及び T をフィッティングで導出した。

(3-1)式における定数項（a,b）の初期条件としては、ε=0 となるような（a,b）及び ε=1 となるような（a,b）を与え、補正後の融点 T_m 及び a、b を変数としてフィッティングを行った。この時、制約条件は 0<ε<1 かつ a≠0 とした。解析結果を Table 3 にまとめた。i=1-3 まで全体の平均を取ると、T=2892 K（±63 K）であった。

与えた放射率の理論式の値に対して、フィッティングで求めた放射率は 0.1-0.2 程度の差異があった。補正後の融点温度については文献値に近かったものの、ΔT/T=2.0 %（60 K）程度の誤差が生じていた。誤差要因としては、先にも述べた通りフィッティングによって計算された放射率の誤差が挙げられる。また、$K_i'(\lambda)$の導出の際に参考値とした Mo の放射率の計算値が実際の値と異なる可能性、Ni の場合と同様に、分光器によるスペクトルの取得時間のずれが温度変化曲線上における数十 K のずれとして補正後の融点に影響している可能性が考えられる。

また、得られた K_i'を用いて、融点既知である金属タンタル（Ta）箔（Tm：3290 K）の融点を測定した。溶融時の温度曲線（Fig. 4）を確認し、解析を行った。高温測定における基準とされることの多い 650 nm におけるスペクトルの時間変化を確認し、温度変化曲線と照らし合わせたところ、温度変化の熱停留点部分においてスペクトル強度が一定となる様子が見て取れた。この間のスペクトルを融点における放射スペクトルとして、変換関数と掛け合わせて分光放射輝度 L_{Ta} を算出した。金属の放射率は、先ほどと同様に (2-5)式で与えられるものとした。

制約条件として 0<ε<1 を定義し、最も安定して停留点を確認できたデータに対して、K'_1-K'_3 それぞれを利用し、放射率フリーでフィッティングを行った場合の融点の評価値は 3238-3280 K であった。この際、600 nm-1000 nm における分光放射率は 0.450-0.498 となった。同様に取得したその他 Ta のデータに対しても解析を行った。評価された融点の

平均値は 3374 K（±124 K）であり、大きな誤差範囲が見受けられた。フィッティングによって同時に得られた分光放射率は、600-1000 nm の範囲において 0.289-0.703 となっており、Mo の評価時よりも放射率の変化範囲が大きくなったことが、100 K 近い温度補正の誤差に対して直接的に影響していると考えられる。そこで、文献値 [17)18)]における Ta の固液相間の放射率 ε=0.35-0.55（at.λ=684.5 nm）の範囲を制約条件として適応させ、それぞれの場合で放射率評価値の変動によって融点の評価値がどの程度変化するか確認した。この時、初期条件においては ε=1 となるような（a,b）の値と、ε=0 となるような（a,b）の値を与えた上でそれぞれフィッティングを行い、結果を照らし合わせた（初期条件：0<ε<1, T_m=3000 K）。また、放射率の制約条件を変化させてフィッティングを行うことで、融点評価にどの程度影響があるのかについても確認を行った。

λ=685 nm における放射率の制約条件を変化させてフィッティングを行った際の融点評価値をそれぞれ Table 4 にまとめた。文献値の放射率 0.35-0.55 を制約条件としてフィッティングを行った場合、融点の評価値はおよそ 3438 K であり、誤差範囲は 70 K 程度であった。また、放射率を 0.15-0.35、0.55-0.75 とし条件分けした場合についても解析を行うことで、放射率未知試料の測定に対する適応方法についても検討した。結果として、文献値から外れた放射率を制約条件として与えた場合、解析によって得られた放射率の評価値が制約条件に従って一定の値に固定されることで、融点が正しく評価されない可能性が示唆された。Table 4 において解析値が制約条件に縛られている場合には網掛けで表示している。

続いて、先の条件において適切な解析が行われたと考えられる ε=0.35-0.55 の範囲について、より細分化し、ε=0.35-0.45 及び ε=0.45-0.55 として制約条件を定めた場合について、同様にフィッティングを行い、融点の評価値を求めた。また、目的とする放射率条件の範囲外（ε<0.35, 0.55<ε）の値についてもいくつか解析を行い、先と同様の傾向が表れているかどうかを確認した。解析結果を見ると、ε=0.45-0.55 の条件下において、解析によって得られた放射率は K'_1-K'_3 に対してそれぞれ異なる値を取っており、指定された放射率の範囲で局所的最適解を導出することが出来たと考えられる。一方で、ε=0.25-0.45 及び ε=0.55-0.85 の範囲で放射率を 0.1 毎に変化させた場合における融点評価値とその誤差範囲を確認したところ、放射率の変動が制約条件によって制限されることで、異なる変換関数に対してある一定の放射率が導出され、融点評価の最適解が得られていなかった。よって、今回試験を行った Ta 試料について、適切な放射率の制約条件は ε=0.45-0.55 と判断した。同様に ε=0.45-0.55 の範囲において ε=0.45-0.50 と、ε=0.50-0.55 の条件を定め、解析結果を参照した。こちらについても束縛条件の設定範囲を広げて解析を行ったが、ε=0.30-0.70 の全ての範囲において、放射率がK'_1-K'_3の異なる変換関数に対して等しい値を取っており、先ほどまでに検討していた適切な放射率条件が判断できなかった。この結果より、今回取得したデータにおける試料の放射率範囲は 0.05<Δε<0.10 となっていることが推測される。

上記の検討によって得られた条件下（ε=0.45-0.55）における融点の評価値は 3325 K、誤差は 37 K 程度であり、融点に対して 1 %程度の誤差範囲が確認できた。条件分けによって放射率の範囲を詳細に設定することで、より正確な温度評価が可能であることが確認でき、これまで行った実証試験の結果より、本測定システムによって測定温度に対して 1 %-2 %程度の誤差範囲で融点評価が可能であると判断できる。

3.3 窒化物試料測定

金属試料の測定によって実証された本測定手法を用いて、窒化物試料についても融点測定を行った。測定用の窒化物試料は金属試料を出発物質として調製した。以下に試験準備及び結果について述べる。

3.3.1 試験準備

チップ状の金属 Zr から、ZrN の調製を行った。Zr チップはアルゴン-20 %水素気流中 733 K で水素化加熱を行い、加熱後に取り出した水素化ジルコニウムを粉砕して粉末化し、窒素気流中 1573 K で窒化処理することで ZrN 粉末を調製した。ZrN 粉末を微粉砕して直径 3 mm のディスク状に圧密成型し、窒素気流中 1973 K で焼結した。

焼結後の試料を試験用の耐圧セル内にセットする際には、セル自体をグローブボックス（GB）内に搬入し、試料セット、セルの閉じ切り・開放、試料取り出しといった一連の工程は全て GB 内で行った。これにより、試料調製から測定に至るまで完全に不活性雰囲気下で試料を取り扱うことが可能となった。試料をセットしたセルは GB から搬出した後、光学系内に配置、内部を窒素ガスで置換して任意の圧力となるよう調整した。

3.3.2 試験条件及び測定結果

MA 添加窒化物燃料の模擬試料として、$Er_xZr_{1-x}N$ を溶融させる際には、溶融時に成分中の窒素がガスとして放出されると共に、蒸気圧の高い希土類成分が放出されることが懸念される。そのため、固化時のアレスト温度から融点評価を行った場合には、不明瞭な組成の試料における凝固温度を観察することになる。よって、窒化物の融点評価においては基本的に、試料の溶融時のプラトーから放射率と温度の解析を行うことで、任意の窒素分圧下における液相生成温度を評価することとした。

それぞれの組成の試料について、まず過去のデータを参考にレーザー照射条件を検討し、溶融試験を行った。一回の照射毎に試料の様子を観察し、条件を調整した。液相生成時においては、フィルタを利用した状態でも可視光領域での測定が困難であったため、近赤外領域のスペクトルから解析を行うものとした。

また、ZrN について、文献値 [3)]の電気抵抗率を利用して、1300 nm、常温及び 1273K における分光放射率を概算した結果、ε=0.21、 0.31 となった。熱の吸収が電子振動に起因するものとして、温度上昇に伴ってある程度放射率が上昇することが予測される。別途文献 [19)]より、窒素分圧に依存した ZrN の液相生成温度（熱分解温度）の式は以下の通りである。

$$\log(P_{N_2})\ [atm] = 22.75 - 10.9 \times \frac{10^4}{T} + \frac{10^8}{T^2} \tag{3-2}$$

(3-2)式より、窒素分圧 5.4 atm、1 atm、0.01 atm の時の液相生成温度はそれぞれ 3734 K、3555 K、3101 K となった。また、窒素分圧 60 気圧以上においては、3973±70 K に融点を持つ。

セル内の窒素分圧は 5.4 atm とし、解析の際の変換関数は近赤外領域におけるK_1'及びK_3'を用いた。ZrN 溶融試験時の温度変化及びレーザー出力の変動を Fig. 5 に示した。試料温度変化より、一度溶融（液相生成）してから温度低下し、その後継続的に加熱されることで液面から蒸気が発生し信号が乱れ始めるまでの凹状の部分（Fig. 5 における 20 ms 前後）を液相生成時のサーマルアレストと判断した。この時点における放射スペクトルから導出した液相生成温度は 3871 K であり、分光放射率は 0.34-0.32 であった。解析結果と(3-2)式に示した文献値の比較を Fig. 6 に示した。文献値よりも 100 K 程度大きな値となった要因として、アレスト部分の分光放射スペクトルを観測する際に、継続したレーザー照射によって発生した試料蒸気からの放射光の影響を受けていることが考えられる。加熱条件の緩和によって、溶融後に蒸気発生を出来るだけ抑えた（単色放射温度計による温度変化の観測結果において、温度の乱調が始まる前）状態での観測を試みているものの、まだ影響を抑えきれていないため、エアナイフによって発生蒸気を測定ライン上から物理的に除去することを検討している。これは、今後 Er 添加試料を測定する際に発生する蒸発成分の影響緩和にも役立つ手法である。

4. 結論

高出力なパルス YAG レーザーを用いて試料の一部を溶融させ、相変化時の分光放射スペクトルから試料融点を評価する融点測定システムを構築した。1273 K 程度の低融点試料に対しては、市販の黒体炉を基準として精度よく融点を評価可能であったが、高融点試料に対しては機器特性の問題から黒体炉標準を用いることが出来なかったため、放射率既知の高融点金属である Mo を基準とすることで融点評価を可能とした。Mo 及び Ta の融点について実証試験として評価した後、窒化物試料として ZrN の融点評価を行った。窒化物については、耐圧セル内の窒素ガス圧力を調整可能とすることで窒素圧力に依存した反応の変化も観測可能とした。今回 ZrN については、溶融の際に窒素成分が放出されるため溶融時の液相生成温度の評価が求められ、解析条件及びレーザー出力条件の検討により測定が可能となった。更なる精度向上及び今後希土類を混合した際の成分蒸発の影響緩和のために、エアナイフによる物理的な蒸気の除去を検討している。

謝辞

本報告書は、原子力機構が実施した平成 28 年度-令和元年度文部科学省原子力システム研究開発事業「安全性・経済性向上を目指した MA 核変換用窒化物燃料サイクルに関する研究開発」の成果の一部の内容を参考としている。試料調製と装置構築において助言・協力いただいた燃料高温科学研究グループの高野公秀氏と髙木聖也氏に深く感謝の意を表する。

参考文献

1) 森本恭一, 加藤正人, 青野茂典, 宇野弘樹, プルトニウム-ウラン混合酸化物の融点測定Ⅰ -MOX の融点測定技術開発と融点測定-, JNC TN8400 2004-017, 2004, 56p.
2) Gribaudo, L., Arias, D., and Abriata, J., The N-Zr (Nitrogen-Zirconium) system, J. Phase Equilib., vol.15, no.4, 1994, pp.441-449.
3) Adachi, J., Kurosaki, K., Uno, M., Yamanaka, S., Thermal and electrical properties of zirconium nitride, J. Alloys Compd., vol.399, 2005, pp.242-244.
4) Takano, M., Tagami, S., Minato, K., Kozaki, T., Sato, S., Lattice thermal expansions of (Dy,Zr)N solid solutions, J. Alloys Compd., vol.439, 2007, pp.215-220.
5) Takano, M., Experimental evaluation of solid solubility of lanthanide and transuranium nitrides into ZrN matrix, J. Nucl. Mater., vol.440, 2013, pp.489-494.
6) Brown, R., C., and Clark, N., J., Composition limits and vaporization behaviour of rare earth nitrides, J. Inorg. Nucl. Chem., vol.36, no.11, 1974, pp.2507-2514.
7) Gallahan, P., G., Jarques, B., J., Marx, B., M., Hamdy, A., S., Osterberg, D., D., Butt, D., P., Synthesis of dysprosium and cerium nitrides by a mechanically induced gas-solid reaction, J. Nucl. Mater., vol.392, 2009, pp.121-124.
8) Foote, P.D., The total emissivity of platinum and the relation between total emissivity and resistivity, J. Wash. Acad. Sci., vol.5, no.4, 1915, pp.1-7.
9) Watanabe, H., Susa, M., Fukuyama, H., and Nagata, K., Near-infrared spectral emissivity of Cu, Ag, and Au in the liquid and solid states at their melting points, Int. J. Thermophys., vol.24, no.4, 2003, pp.1105-1120.
10) 大野二郎, 鉄及び代表的な遷移金属の放射率の温度特性, 計測自動制御学会論文集, 第 14 巻, 第 3 号, 1978, pp.283-290.
11) Manara, D., Sheindlin, M., Heinz, W., and Ronchi, C., New techniques for high-temperature melting measurements in volatile refractory materials via laser surface heating, Rev. Sci. Instrum., vol.79, 2008, 113901.

12) Krishnan, S., and Paul, C. N., Spectral emissivities in the visible and infrared of liquid Zr, Ni, and nickel-based binary alloys, J. Appl. Phys., vol.80, no.3, 1996, pp.1735-1742.
13) Kobatake, H., Khosroabadi, H., and Fukuyama, H., Normal spectral emissivity measurement of liquid iron and nickel using electromagnetic levitation in direct current magnetic field, Metall. Mater. Trans. A., vol.43, 2012, pp.2466-2472.
14) Campo, L., Perez-Saez, R. B., Tello, M. J., Esquisabel, X., and Fernandez, I., Armco iron normal spectral emissivity measurements, Int. J. Thermophys., vol.27, no.4, 2006, pp.1160-1172.
15) Hixson, R. S., and Winkler, M. A., Thermophysical properties of molybdenum and rhenium, Int. J. Thermophys., vol.13, no.3, 1992, pp.477-487.
16) Worthing, A. G., Physical properties of well seasoned molybdenum and tantalum as a function of temperature, Phys. Rev., vol.28, 1926, pp.190-201.
17) Cagran, C., Brunner, C., Seifter, A., and Pottlacher, G., Liquid-phase behavior of normal spectral emissivity at 684.5nm of some selected metals, High. Temp. High. Press., vol.34, 2002, pp.669-679.
18) Pottlacher, G., and Seifter, A., Microsecond laser polarimetry for emissivity measurements on liquid metals at high temperatures-application to tantalum, Int. J. Termophys., vol.23, no.5, 2002, pp.1281-1291.
19) Eron'yan, M. A., Avarbe, R. G., and Nikol'skaya, T. A., How the pressure of nitrogen affects the melting point of ZrN_x, Izvestiya Akademii Nauk SSSR, Neorganicheskie Materialy, vol.12, no.2, 1976, pp.247-249. [In Russian].

Table 1　装置仕様一覧

	装置	仕様
1.	Nd:YAG レーザー照射装置	Speedfam、OLY-1015H 発振波長：1064 nm、最大出力 100 W 最大エネルギー：70 J/Pulse
2.	半導体レーザー照射光源 （Continuous Wave レーザー）	浜松ホトニクス、L13920-521 発振波長：808 ± 20 nm、
3.	単色放射温度計	LunaSense、IGA-740-LO 応答速度：>3 μs
4.	ミニ分光器	浜松ホトニクス、 （1）C11697MB、測定波長：320-1000 nm 最小露光時間：6 μs （2）C11482GA、測定波長：900-1700 nm 最小露光時間：10 μs
5.	光学ケージ	・ND フィルタ （1） ND20A （300 nm-1100 nm, OD：2.0） （2） NENIR （1000 nm-1720 nm, OD：2.0） ・ノッチフィルタ カット波長：（1）808 nm、（2）1064 nm ・レンズ 焦点距離：300 mm
6.	耐圧セル	使用圧力（ガス経路含む）：0.6 MPa 内部容積：φ30×h 15 mm
7.	アライメント用ランプ光源	浜松ホトニクス 重水素ランプ/タングステンハロゲンランプ 発振波長：200-400 nm / 400-1100 nm
8.	ファンクションジェネレータ	エヌエフ回路設計ブロック
9.	アナログ入出力ユニット	CONTEC
10.	黒体炉	LAND 、LANDCAL R1500T 最大温度：1773 K
11.	C-LOGGER	CONTEC 温度変化測定用ソフトウェア
12.	Spec-evaluation	浜松ホトニクス 分光スペクトル計測用ソフトウェア

Table 2　Spec-evaluation 各種設定

	Dark 測定	試料測定
計測モード	回数測定	連続測定
蓄積時間	100 μs – 1000 μs	100 μs – 1000 μs
まとめて取得するデータ数	—	100 回
繰り返し回数	5 回	—

Table 3　Mo における異なる放射率の文献値 [14)15)16)]に対する解析結果

i	ε_i' ref.	ε_i' cal.	Ave. Tm [K]
1[14)]	0.303 - 0.371	0.277 – 0.491	2903±65
2[15)]	0.282 - 0.348	0.255 – 0.450	2906±67
3[16)]	0.282 - 0.336	0.269 – 0.502	2866±54

Table 4　束縛条件ごとの放射率及び融点の解析結果（Ta）（1/2）

X<ε<Y	K_i' 1[14)]2[15)]3[16)]	ε_i' cal. at.1000 nm-600 nm	Ave. Tm [K]
0.15 < ε <0.35	K_1'	0.260-0.350	3567 ±77
	K_2'	0.248-0.350	3560 ±94
	K_3'	0.253-0.350	3520 ±81
0.35 < ε <0.55	K_1'	0.316-0.497	3460 ±79
	K_2'	0.310-0.461	3438 ±62
	K_3'	0.314-0.486	3417 ±70
0.55 < ε <0.75	K_1'	0.448-0.587	3251 ±23
	K_2'	0.448-0.587	3201 ±26
	K_3'	0.448-0.587	3193 ±27
0.25 < ε <0.35	K_1'	0.260-0.350	3572 ±80
	K_2'	0.248-0.350	3562 ±92
	K_3'	0.253-0.350	3527 ±82
0.35 < ε <0.45	K_1'	0.316-0.450	3461 ±80
	K_2'	0.308-0.450	3439 ±61
	K_3'	0.314-0.450	3421 ±60
0.45 < ε <0.55	K_1'	0.373-0.498	3350 ±36
	K_2'	0.367-0.481	3319 ±26
	K_3'	0.370-0.485	3304 ±32
0.55 < ε <0.65	K_1'	0.448-0.587	3251 ±23
	K_2'	0.448-0.587	3215 ±22
	K_3'	0.448-0.587	3204 ±22
0.65 < ε <0.75	K_1'	0.502-0.704	3162 ±20
	K_2'	0.530-0.694	3111 ±33
	K_3'	0.530-0.694	3103 ±28
0.75 < ε <0.85	K_1'	0.550-0.824	3089 ±18
	K_2'	0.611-0.801	3059 ±19
	K_3'	0.611-0.801	3048 ±14
0.30 < ε <0.35	K_1'	0.286-0.350	3550 ±55
	K_2'	0.278-0.350	3519 ±52
	K_3'	0.283-0.350	3501 ±52
0.35 < ε <0.40	K_1'	0.316-0.400	3472 ±47
	K_2'	0.308-0.400	3444 ±41
	K_3'	0.314-0.400	3422 ±44
0.40 < ε <0.45	K_1'	0.345-0.450	3414 ±38
	K_2'	0.336-0.450	3377 ±39
	K_3'	0.342-0.450	3364 ±38

Table 4　束縛条件ごとの放射率及び融点の解析結果（Ta）（2/2）

X<ε<Y	K_i' [14)][15)][16)]	ε_i' cal. at.1000 nm-600 nm	Ave. Tm [K]
0.45 < ε <0.50	K_1'	0.373-0.500	3351 ±36
	K_2'	0.367-0.480	3320 ±26
	K_3'	0.370-0.480	3304 ±32
0.50 < ε <0.55	K_1'	0.408-0.534	3301 ±25
	K_2'	0.408-0.534	3265 ±24
	K_3'	0.408-0.534	3254 ±24
0.55 < ε <0.60	K_1'	0.448-0.587	3251 ±23
	K_2'	0.448-0.587	3217 ±28
	K_3'	0.448-0.587	3204 ±22
0.65 < ε <0.70	K_1'	0.502-0.704	3158 ±29
	K_2'	0.530-0.694	3096 ±31
	K_3'	0.530-0.694	3086 ±33

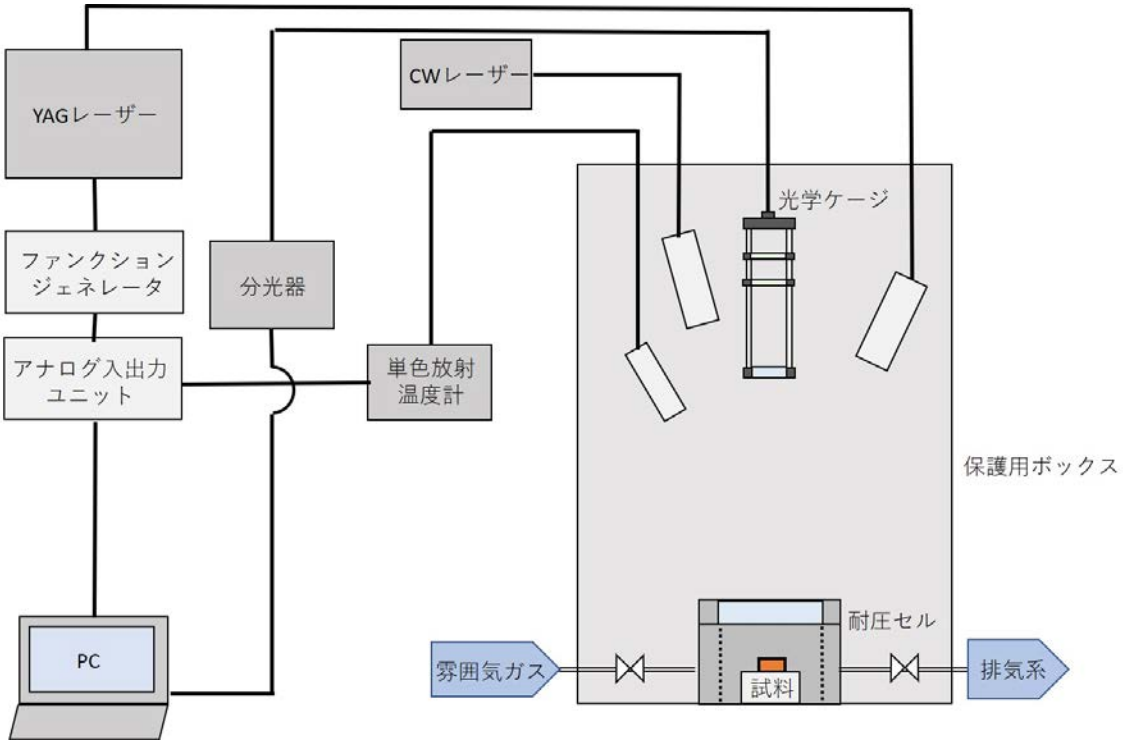

Fig. 1　融点測定システム概略図

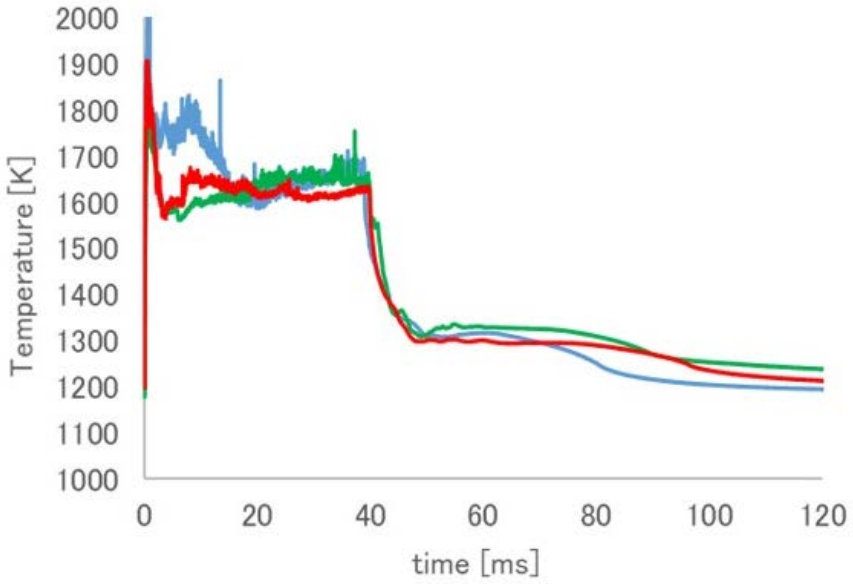

Fig. 2 Ni 溶融試験時の温度変化

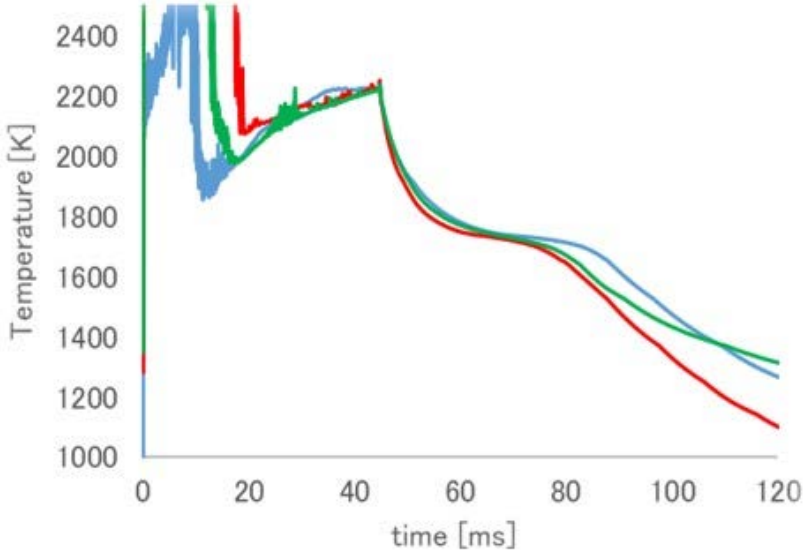

Fig. 3 Mo 溶融試験時の温度変化

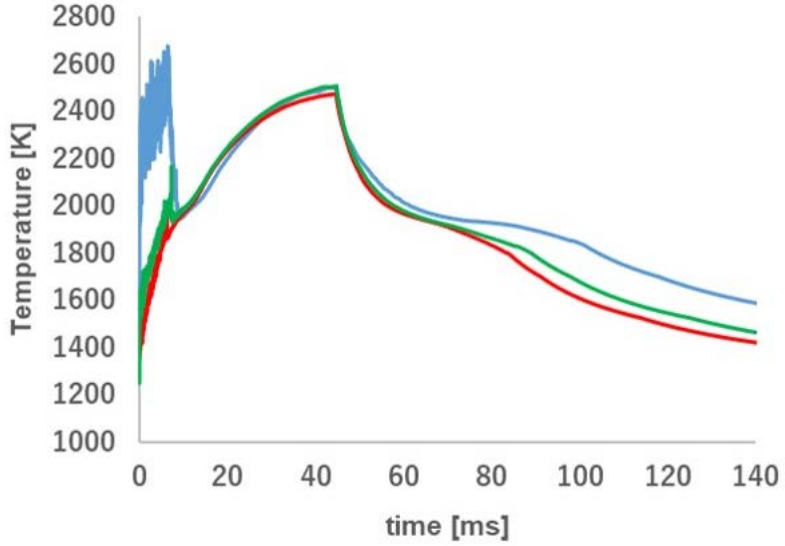

Fig. 4 Ta 溶融試験時の温度変化

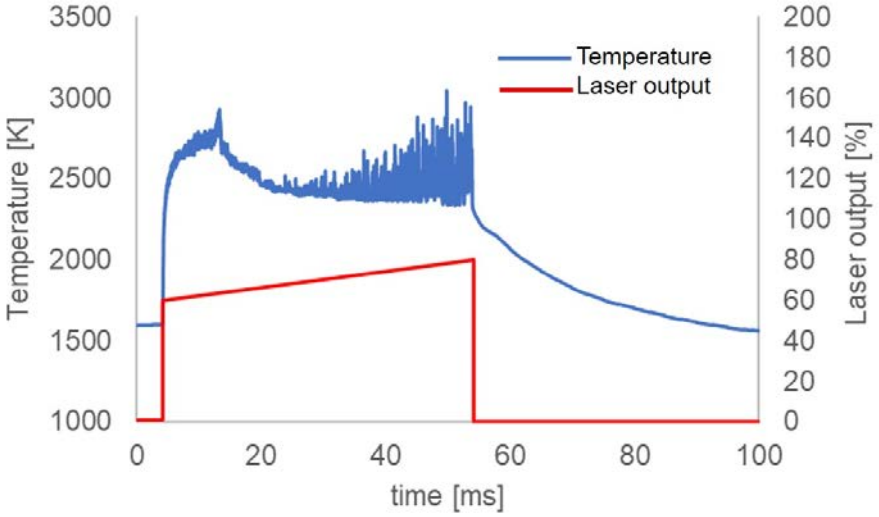

Fig. 5 ZrN 溶融試験時の温度変化とレーザー出力変化

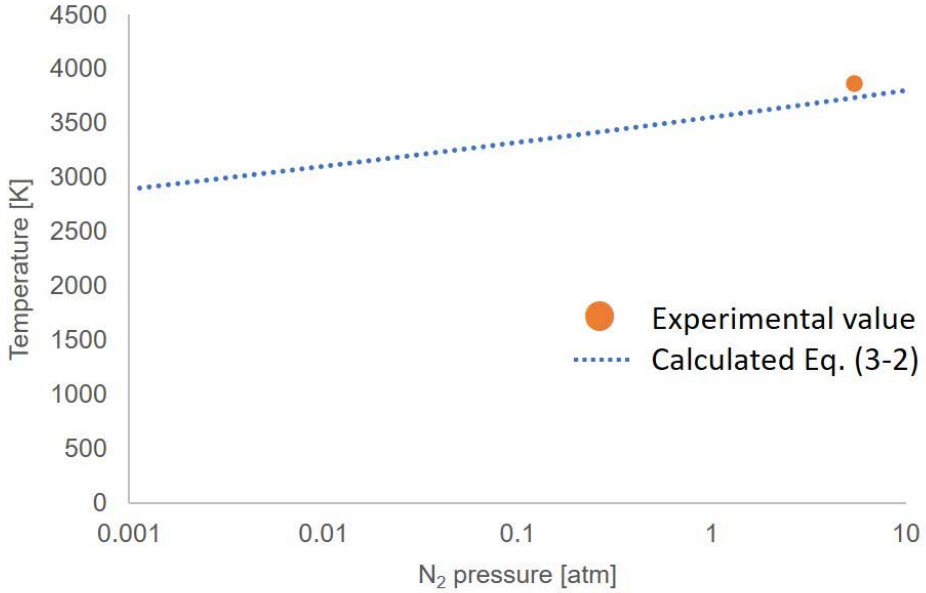

Fig. 6 ZrN の溶融温度まとめ

This is a blank page.