# 熱流体-化学平衡複合モデルによるハロゲン電球タングステン輸送現象 の検証

正会員 別所 誠(東芝ライテック(株) 非会員 大河 正志(新潟大学)

## Examination of Tungsten Transport in Operating Halogen Lamp by Fluid Dynamics and Thermo Chemical Simulation

Member Makoto Bessho (Toshiba lighting & Technology Corp.) and Non-member Masashi Ohkawa (Niigata University)

## ABSTRACT

Tungsten transport in halogen lamp operation was examined by fluid dynamics and thermo-chemical simulation. Partial pressures of almost all species dramatically increased around the coil leads. The cause appears to be a stagnant flow of filling gases. Results of a life test showed that tungsten was slightly deposited at the coil leads. Such a tungsten deposit can be attributed to a high concentration of tungsten compounds during the gas phase.

KEYWORDS: halogen lamp, equilibrium, halogen cycle, CFD, tungsten, blackening

## 1. 緒言

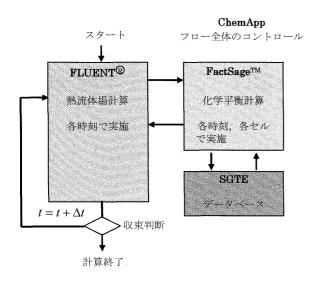
ハロゲン電球は白熱発光を利用した光源である. 白熱発光の一般 的な特徴として,発光する物質が高温であるほど放射スペクトルは 短波長側へシフトする. その結果として、投入エネルギーに対する 可視放射の比率が増し、発光効率が高くなる. これが金属の中で最 も高融点であるタングステンをフィラメントとして利用する理由 である. タングステンは融点近くまで加熱されるため、タングステ ンの平衡蒸気圧が高くなり、気体になったタングステン原子はバル ブ内を拡散と対流により輸送されて、バルブ内壁に付着する. 通常 の白熱電球にはいわゆるハロゲンサイクル反応がないため, バルブ 内壁に付着したタングステン原子はそのまま残り、その結果、光束 維持率が徐々に低下する. 室温近くの温度領域における金属原子の 蒸気圧は通常極めて低いが、ハロゲン元素と化合して生成されたハ ライドやオキシハライドの多くは 500K 付近では気体であり、さら に低温の室温付近では固相を形成しても蒸気圧が非常に高い. その ため、バルブ内壁に付着したタングステンもハロゲン化合物として 蒸発するので、バルブ黒化を防ぐ設計が可能となる. タングステン がフィラメントから蒸発し、ハロゲンと化合して内部を移動し、高 温部で再びハロゲンと乖離する動きをハロゲンサイクルと呼んで いるが、このハロゲンサイクルはハロゲン電球の性能に直接影響を 及ぼす要素となっており、ハロゲンサイクルの適正化は、ハロゲン 電球の寿命の延長、効率の向上、高い光束維持率、製造工程におけ る不純物のコントロールなどに影響を及ぼす重要な課題となる 1)-4). 点灯中のハロゲン電球のバルブ内部は、化学反応を繰り返し ながら熱流体が密閉系を移動する反応系とみなすことができる.

本研究では、熱流体・化学平衡複合計算モデルを提案してハロゲンサイクルを再現し、実際の寿命試験による観察結果および従来の解析方法との比較を通して、タングステンやハロゲン化合物の輸送過程について考察する。また、今回提案したモデルの有効性、ハロゲン電球設計上の留意点等に関する考察を行った。

## 2. 解析

## 2.1 熱流体-化学平衡複合モデルの概要

我々はハロゲン電球におけるタングステン輸送現象を明らかに するため、熱流体-化学平衡複合モデルを提案している. 熱流体-化学平衡複合モデルとは、(1)熱流体場の解析、(2)化学平衡解析、 および(3)それらのインターフェイスの 3 つの解析ソフトウェア を組み合わせることにより、実際の管内現象を熱流体と化学平衡 とを関連させながら同時にシミュレーションする方法である. こ のフローを図1に示す、まず、ハロゲン電球の温度分布と対流を 再現する熱流体モデルを作成し, 各化学種を対流に乗せて単位時 間分移動させる. 次に、移動先のセルで平衡計算を行い、セル内 の生成物が確定した後に拡散を考慮して各化学種を隣接するセ ルへ移動させる. 生成物の分圧の変化があらかじめ設定した閾値 未満になった場合には解が収束したと判断して計算を終える. 一 方、収束しないと判断された場合には時刻 t を設定した時間  $\Delta t$ だけ進め、再計算を行う. シミュレーションコードとして、熱流 体場の計算には FLUENT®, 化学平衡計算は FactSage™, イン ターフェイスとして ChemApp を用いた.



## 図1 繰返し計算のフローチャート

Fig.1 Transport of species by convection and diffusion.

生成物の移動プロセスの模式を**図 2** に示す、熱流体場を計算するためにバルブ内部を分割して作成したセルを x-y 座標を分割して作成した格子点で代表して示す。対流による動きは温度場が決まれば一義的に決まるので、化学平衡計算を行う前に確定しておく。化学平衡計算により各セルにおける化学種の分圧が求まるので、分圧分布の影響として現れる拡散による移動を先にもとめた対流による移動に追加して全体の流れ場を構成する。**図 2** に対流による移動のうちの流入分を実線の矢印で、拡散による移動の流入分を点線の矢印で表す。図が複雑となるため流入方向のみを記しているが、流出分の移動方向は逆向きの矢印で考える。移動と同時に時刻を $\Delta t$  だけ進め、解が安定したと判断されるまでこの計算を繰り返す。

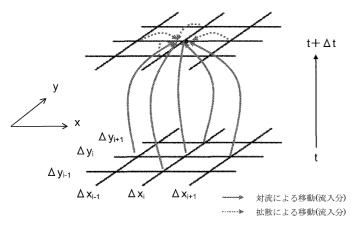


図2 対流と拡散による生成物の移動(流入分)

Fig. 2 Species flown into the cell by convection and diffusion.

## 2.2 複合モデルによるシミュレーション結果

熱流体-化学平衡複合モデルによるシミュレーションを,**表 1** に示す初期組成比の系に対して行った.実際のランプではバルブ内部に不純物として微量の  $H_2O$  と  $O_2$  が残留するため,シミュレーションにおいても系内に若干量の  $O_2$  と  $H_2O$  を含めた.なお,Case\_1 は実際のランプ製造工程において残留し得る正常なレベル,Case\_2 では, $H_2O$  の分率を 10 倍大きくして,材料の枯化が不十分であった場合を想定した.

表 1 初期封入物の組成比

Table 1 Filling amount of initial states.

封入物質	初期封入物の分率		
	Case_1	Case_2	
Kr	9.00×10 <sup>-1</sup>	9.00×10 <sup>-1</sup>	
$N_2$	$9.93 \times 10^{-2}$	9.93×10-2	
$\mathrm{CH_{2}Br_{2}}$	6.00×10 <sup>-4</sup>	6.00×10-4	
$O_2$	5.00×10 <sup>-5</sup>	$5.00 \times 10^{-5}$	
$_{\mathrm{H_2O}}$	$2.00{ imes}10^{-5}$	2.00×10 <sup>-4</sup>	

速度場、温度場をそれぞれ**図3** および**図4** に示す。流速が最大となるのはフィラメント発光部の上端部周辺で,この付近における流速および温度はそれぞれ  $1.10\times10^{-1}$  m/sec, $1700\sim2000$  K である.一方,流速はバルブ最冷部で最小となり, $1.77\times10^{-4}$  m/sec ある.この部分の温度は 430 K である.また,フィラメントの両端部付近の流速は極めて遅く,下側では約  $4.65\times10^{-4}$  m/sec で温度は 1200 K,上側では約  $5.0\times10^{-3}$  m/sec で温度は 1500 K である.この部分では対流が滞留している.

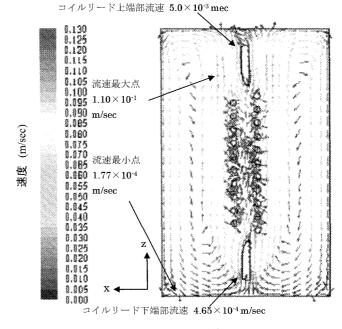


図 3 2 次元モデルにおける速度場 Fig.3 Vector contour in 2D model.

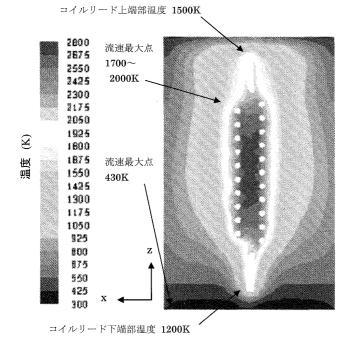
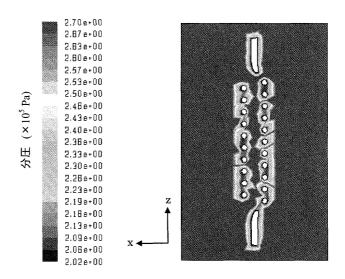


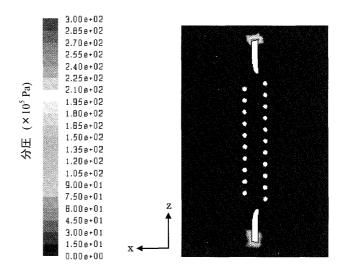
図 4 2 次元モデルにおける温度場 Fig. 4 Temperature distribution in 2D model.

次に、タングステン輸送現象を考察する上で、重要と思われる生成物の分圧分布の推移を代表例として図5~図11に示す. Case\_1と Case\_2 とでは、結果に有意な差が現れなかったため、代表して Case\_1の結果を示す.

図 5 は Kr 分圧分布で、点灯後 1 sec および 300 sec のシミュレーション結果である。 Kr は反応性のない不活性ガスなので、化学反応が無い場合の分圧分布を知る際の参考となる。 点灯直後の 1 sec においては、ほとんどの領域において分圧は  $2.7 \times 10^5$  Pa であり、初期封入分圧と同じである。ところが、分圧が安定する 300 sec になると、ほとんどの領域において分圧は約  $10.0 \times 10^5$  Pa (図 5 の表示スケールでは  $0 \sim 1.5 \times 10^6$  Pa で示されている)で、平均圧力の計算方法  $50 \sim 1.5 \times 10^6$  Pa で示されている。



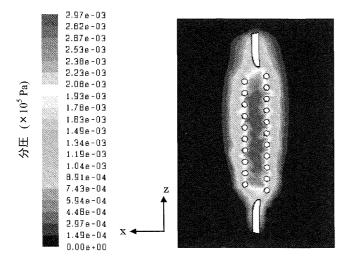
(a) t = 1sec での分圧分布



(b) t = 300sec での分圧分布

図 5 Kr 分圧分布の推移 Fig. 5 Transition of Kr partial pressure.

Br は  $CH_2Br_2$ の分解により生成する。 $CH_2Br_2$ は点灯によりすぐに分解されて生成する。点灯直後の分圧分布を**図 6 (a)** に示すが,まだ対流と拡散の影響が現れる前の分圧の様子が残っている。Br 分圧が安定した 300sec 後の状況を**図 6 (b)** に示す。Br 分圧の高い領域は低温部のコイルリード周辺に限定している。これは,対流と拡散による影響と考えられる。分圧分布はもはや温度に対して一義的に定まらない。**図 6** より,分圧の高くなる領域の温度は  $1200\sim1500$  Kで,**図 3** の示す対流速度が遅い領域と一致していることが分かる。



(a)  $t = 1 \sec$  での分圧分布

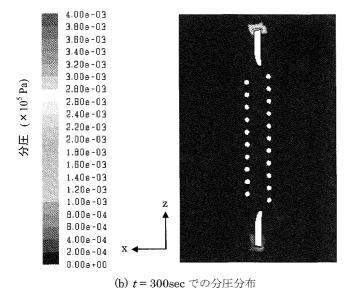


図 6 Br 分圧分布の推移 Fig.6 Transition of Br partial pressure.

分圧が安定した後ではコイルリード周辺部のみで分圧が高くなる現象は各生成物に対して同じであったため、以下 t=300sec の結果のみを図示する.

図7は  $H_2O$  の分圧分布の解析結果である. バルブ内に  $H_2O$  が一定量以上混入すると, バルブ内面へのタングステンの輸送現象が発生し, 黒化を生ずる. これはウォーターサイクルと呼ばれている. 分圧分布が安定すると,  $H_2O$  分圧の高い部分は低温部のコイルリード周辺部のみとなる. この部分は Br 分圧と同様, 対流速度の遅い領域と一致している. 従って, ウォーターサイクルが顕著になり得る領域もレグ周辺部になると予想される. 一方,  $Case_2$  では  $H_2O$  初期分圧が  $Case_1$  の 10 倍あるにもかかわらず, 分圧安定時の  $H_2O$  分圧の分布は  $Case_1$  とほとんど同等である.

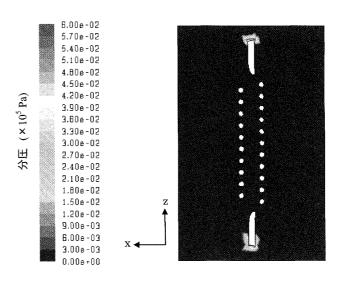


図7 H<sub>2</sub>O 分圧分布 Fig.7 H<sub>2</sub>O partial pressure.

図8はWの分圧分布の解析結果である。点灯直後のW分圧が最大となる点はCase\_1、Case\_2ともにフィラメントの周辺で、10<sup>5</sup> Paのオーダーである。ところが、分圧安定後にW分圧が最大となる領域はコイルリード上端の低温部で、W分圧は点灯直後のフィラメント周辺部の分圧に近い10<sup>6</sup>~10<sup>5</sup> Paのオーダーである。W分圧が時間とともに変化する理由は、蒸発したWが対流と拡散により移動したことによる。コイルリード上端の温度は約1500 Kと低温で、対流を考慮に入れない化学平衡モデルではこのような移動現象を再現することはできない。

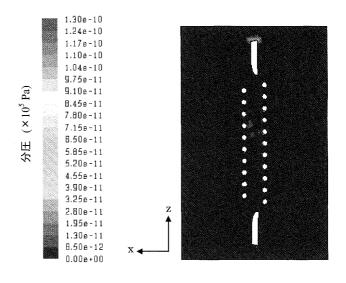


図 8 W 分圧分布 Fig.8 W partial pressure.

図9はWBrの分圧分布の解析結果である. 従来WBr は高温域のハロゲンサイクルにおいて主要な物質であると考えられてきた. ところが、今回のシミュレーションの結果、分圧が安定した後に分圧が高い領域は、低温部の上側レグの先端である. WBr によるフィラメント周辺部でのハロゲンサイクルは過去の文献 607などから予想される程活発ではなく、むしろ、ハロゲンサイクルが活発なのはコイルリード先端の低温領域に限定されている. WBr2 など、他のハライドに対しても同様の結果であった.

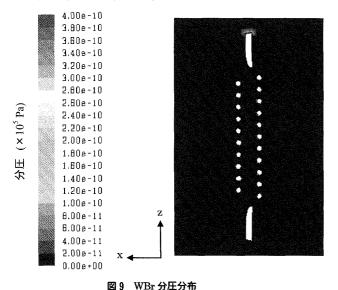


Fig.9 WBr partial pressure.

図10 は WO<sub>2</sub>Br<sub>2</sub> の分圧分布の解析結果である. WO<sub>2</sub>Br<sub>2</sub> は WBr<sub>4</sub> とともに最も高い平衡分圧を示すタングステン化合物の 1 つである. 分圧が高い領域はその他のハライドと同様, 点灯時間の経過とともにコイルリード両端部へ移る. ただ, コイルリード両端における分圧は, 後述する化学平衡計算のみから計算された値(図 14 および図 15 参照) ほど高くない. また, 分圧が高い領域もコイルリード先端部である.

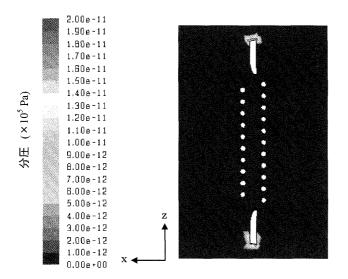


図 10 WO<sub>2</sub>Br<sub>2</sub> 分圧分布 Fig.10 WO<sub>2</sub>Br<sub>2</sub> partial pressure.

図 11 は、SPW 分圧分布の解析結果である. SPW とは Summed pressure of W compounds の略である. SPW はタングステン化 合物の分圧を W の価数で重み付けして合計した値として定義さ れ、単位体積中に含まれる W の総量に対応する. ハロゲンサイ クルへのタングステン供給源は、フィラメントから蒸発するタン グステン原子である. しかし、図 11 はフィラメント近傍におけ る SPW よりも、コイルリード周辺の SPW の方が高いことを示 している. SPW が低温部の方で高くなるのは、コイルリード周 辺部で WO<sub>2</sub>Br<sub>2</sub> や WBr<sub>4</sub> などの生成物の分圧が高く、それらが SPW の値をほぼ決定しているためである. フィラメントから蒸 発したタングステンが、ハライドやオキシハライドという形態で コイルリード周辺に集積することを示している.要約すると、W が析出するレグ周辺とは SPW 値が高くなる領域である. そして、 SPW が高くなる場所は、図3が示すように対流が滞留し、かつ、 温度が約 1200K となる点でシミュレーション結果と実験は良好 に一致している. ただし、封入物の組成およびハロゲン電球の構 造が変われば、対流が滞留する場所および析出点の温度は変化す るが、SPW 値の高い領域であることには変わりないと考える.

その他、図示していないが、次のような知見も得られた。 $O_2$  分圧についても、 $H_2O$  と同様に  $Case\_1$  と  $Case\_2$  との間に分圧 や分布に有意な差は認められず、分圧が高くなる領域はコイルリード先端部であった。 $WO_2$  や WO などのタングステン酸化物においても、分圧が高くなる領域はコイルリード先端部であった。最冷部へは固相の  $BrH_4N(s)$  、 $CW_2(s)$  、CW(s) 、 $WO_2(s)$ などが析出する様子も再現された。 $WO_2(s)$ は低温部で生成する典型的なハライドであることが知られている  $^{8}$ .

なお、計算の収束判定時間は特定のセルと化学種をモニターし、継続して計算された平衡分圧の差が  $10^{-8}$  Pa 以下となり、ほぼ安定した場合に収束とみなした。2 つのケースともに 300 secで分圧はほぼ安定した。 $WO_2Br_2$  を一例として、分圧をモニターした位置を図 12 に、分圧の推移を図 13 に示す。 $WO_2Br_2$  の分圧をモニターした位置は、安定時に分圧が低くなると予想されるフィラメント近傍とした。分圧が安定化する推移は物質により異なるが、初期における変化が大きい傾向にある。

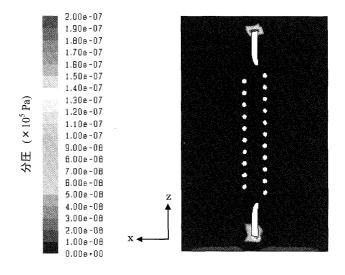


図 11 SPW 分圧分布 Fig.11 SPW partial pressure.

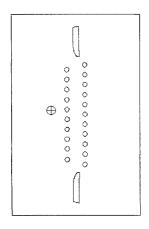


図12 WO<sub>2</sub>Br<sub>2</sub>分圧の推移観察点

Fig.12 Monitor point of WO<sub>2</sub>Br<sub>2</sub> partial pressure.

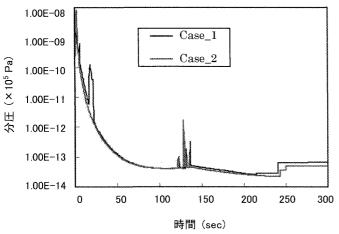


図 13 WO<sub>2</sub>Br<sub>2</sub> 分圧分布の推移

Fig.13 Transition of WO<sub>2</sub>Br<sub>2</sub> partial pressure.

図 13 には分圧の推移の途中にスパイク状およびステップ状の変化が現れている. 図 13 だけからは明らかではないが、変化が現れる時間付近で再計算することにより、これらは観測点で生成されたのではなく、近くの場所で生成されて運ばれてきたものであることが分かる. 生成する期間は一瞬なので、条件が揃って生成し、その現象がピークやステップとして現れたものである.

## 2.3 化学平衡計算

複合計算は化学平衡計算を否定するモデルではなく,発展させたモデルである。シミュレーションする際には分割した各セル,各時刻で化学平衡計算を行っているが,対流と拡散の効果が考慮されている点が化学平衡モデルと大きく異なる。そこで,この違いが結果に及ぼす影響を調べるために,化学平衡計算を行った。結果を $\mathbf{Z}$  10 Pa で一定,温度範囲は 500~3200 K である。生成化合物の種類が非常に多いため,主要なタングステン化合物の分圧のみを選択して示した。分子量の大きな化合物は低温領域で,軽い化合物は高温領域で分圧が高くなる傾向がある。Case\_1 および Case\_2 ともに,1000 K 前後の低温部におけるタングステン化合物としては  $\mathbf{W}$  02 Br2 の分圧が支配的で,分圧のピークは  $\mathbf{1}$  10 Pa オーダーである。一方,3000 K 付近の高温部においては  $\mathbf{W}$  分圧が  $\mathbf{1}$  10 Pa オーダーでタングステン化合物中最も大きい。

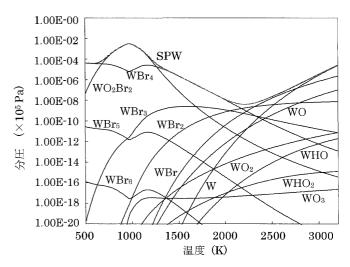


図14 Case\_1 におけるタングステン化合物の平衡分圧 Fig.14 Partial pressure of tungsten compounds in Case\_1.

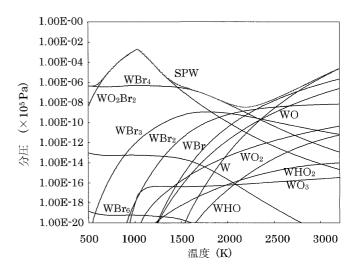


図 15 Case\_2 におけるタングステン化合物の平衡分圧

Fig. 15 Partial pressure of tungsten compounds in Case\_2.

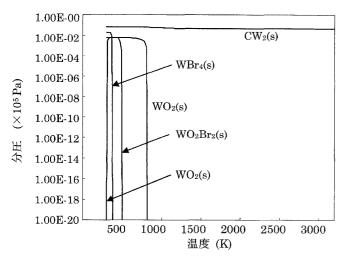
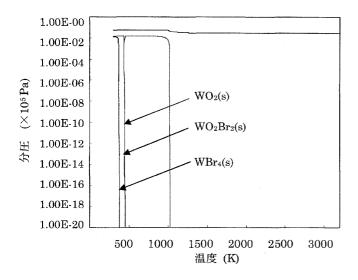


図 16 Case\_1 における固相の析出

Fig. 16 Partial pressure of condensed compounds in Case\_1.



## **図17** Case\_2 における固相の析出

Fig. 17 Partial pressure of Br condensed compounds in Case\_2.

低温領域で生成する固相の状況を調べると、WBr4(s)、WO2Br2(s)、WBrH4(s)はいずれも約500 Kで、WO2(s)は約1000 Kで消滅する。これより高温では、CW2(s)と、グラフでは省略しているがW(s)が安定に存在する。なお、固相の生成量は分圧に換算し、図14 および図15 に単位を Pa に換算して表示した。この換算では、固相として生成するモル数を気相のモル数とみなし、分圧を計算した。Wの平衡分圧は、図14 に示す Case\_1 の場合には、2750 Kのとき1.26 Paである。一方、低温部で生成する WO2Br2の分圧は、例えば1000 Kで2.7 Paに達し、フィラメント近傍でのWの平衡分圧を上回っている。低温部におけるW 化合物の蒸気圧がフィラメント近傍よりも高いことは、フィラメントから蒸発するのと同等以上のタングステン化合物がバルブ内壁から気化することを意味しており、ハロゲンサイクルが正常に機能することの従来の説明であった40.

拡散したWは高温、低温の両側から、SPW曲線が極小値を取る温度領域へ移動すると解釈されている 1)-4)6)-21). 現象的には、バルブが黒化しないことをうまく説明しているが、対流と拡散による化学種の移動が検討できない点に平衡モデルの欠点がある.

個別の化合物について Case\_1 と Case\_2 とを比較してみると、WBrs や WBrs など多くの化合物の分圧の値と温度依存性は異なっているものの、低温領域における WO2Br2 と、高温領域における W の分圧はほとんど変わらない。そして、これらの分圧が支配的であるため、結果として両者の SPW 曲線はほぼ同一となっている。これは、タングステンの析出状況にはほとんど差がないという予測につながる。しかし、SPW 曲線の極小値は 2 つの場合ともに約 2200 K で、従来の解釈に従えば、この温度領域に W が析出することになる。この 2200 K は白熱領域で、複合モデルで予測される析出点の温度よりも 300~500K 高くなっている。

## 3. 実験

## 3.1ランプの仕様

ハロゲンサイクルの結果としてフィラメント周辺部に析出するタングステンの様子を観察するために、ハロゲン電球を試作し、寿命試験を行った.この試験に用いたハロゲン電球の仕様を表2に示す.近年、店舗照明で普及している商用電圧ミラー一体型ハロゲン電球を想定した.

表 2 ハロゲン電球の仕様 Table 2 Specification of the lamp.

特性		寸法	
消費電力	85 W	フィラメント長	8×10-3 m
全光東	1500 lm	バルブ外径	12×10 <sup>-3</sup> m
寿命	3000 hr	バルブ円筒部長さ	20×10-3 m

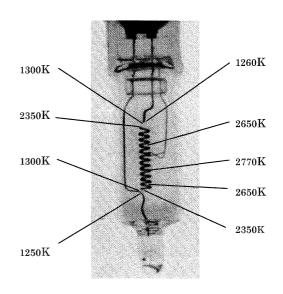


図 18 温度分布

Fig.18 Temperature profile of the burner.

Case 1 および Case 2 の 2 つのグループのハロゲン電球に対し て定格電圧で寿命試験を行なった. 評価数は各3 pcs で, 下向き点 灯である. 3000 hr 経過後にフィラメントの状態を観察し、初期状 態と比較した. パイロメータによる点灯時の温度測定結果を図 18 に示す. フィラメント両端とそれ続く導入線との間の温度差が非常 に大きく、フィラメントに接続する導入線の温度は約 1500 K であ る.

### 3.2 寿命試験の結果

初期状態と 3000 hr 点灯後のフィラメントの状態を**図 19** および 図 20 に比較して示す. 図 19(b) および図 20(b) に示す 3000 hr 点 灯後のランプは寿命末期で、フィラメントが断線する直前の状態で ある. いずれのフィラメントにも変形, 細りやタングステンの析出, バルブ黒化、バルブ内面への異物の析出などはなく、正常な外観を 示しているため、代表して Case\_1 および Case\_2 の中からそれぞ れ1つのフィラメントの拡大写真を示した.

ない問題のないレベルである. また, この析出が見られる場所の 温度は約1200 K であり、これより高温の領域ではタングステン の析出は認められなかった. 図 20 に示す Case\_2 の電球では、フィラメント両端に続く継線 部および中央部のアンカーに,若干のタングステン析出が見られ

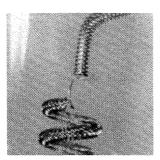
図 19 に示す Case\_1 のランプにおいては, アンカー表面にごく

わずかのタングステンの析出が見られるが、短寿命にはつながら

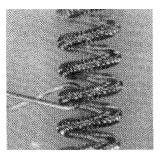
るが、いずれも短寿命につながる心配のないレベルである. これ らの部分の温度は,アンカーが約 1000 K, コイル上端部が約 1800 K, コイル下端部が約1400 K である.

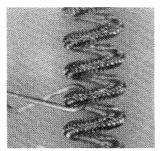
観察結果としては、Case\_1 および Case\_2 ともにフィラメント 周辺部には短寿命に結びつくような細り、タングステンやハライ ドの析出などの現象は発生せず、H2Oの封入量を10倍にしたこ とによる有意な差も認められなかった.



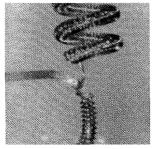


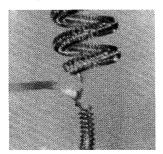
(a) フィラメント上端部





(b) フィラメント中央部

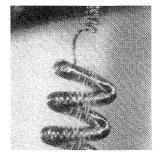




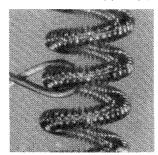
(c) フィラメント下端部 左側は点灯前、右側は 3000 hr 点灯後 図 19 フィラメント表面状態 (Case 1)

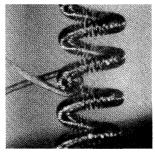
Fig.19 Comparison of the filament surface in Case\_1.





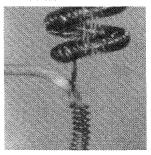
(a) フィラメント上端部





(b) フィラメント中央部





(c) フィラメント下端部 左側は点灯前、右側は3000 hr 点灯後

図 20 フィラメント表面状態 (Case\_2)

Fig.20 Comparison of the filament surface in Case\_2.

なお、今回2つの系に対して差として現れたタングステンのコイルリードおよびアンカーに析出したごくわずかな違いが封入系の違いによるものか、残留不純物のばらつきに起因するものかは明確ではないが、再現性の確保については工程および前処理の安定性が重要であると考えられる.

## 4. 考察

今回の寿命試験と熱流体-化学平衡複合計算および平衡計算の対比により明らかになったことを以下に記す.

## (1) タングステンの析出

タングステンが析出すると予測される点は、平衡計算から SPW 曲線を求めて推定した結果よりも、今回の熱流体-化学平衡複合計算で求めた結果の方が実験の結果に近く、今回考察した方法が有効であると考えられる.

化学平衡モデルでは Csase\_1 と Case\_2 との間では W が析出する温度領域は同一という結果であるが、この温度領域は 2200K でフィラメントの赤熱領域(コイル部)であり、実際に析出が起こったコイルリード部よりも高温であった。また、析出の程度、速度に関しては知見が得らない。

一方、複合計算では、Wが析出する場所は Case\_1 と Case\_2 とでは同一で、コイルリード先端部という予測となり、実際の析出場所と一致した、析出の程度については Case\_1 と Case\_2 とで同等という予測で、これも実測結果と一致した。

分圧が高くなる点は流れが滞留している点で、かつ、温度が1200Kとなる点である。ただし、対流が滞留する場所はハロゲン電球の構造寸法を変えると変化すると考えられる。また、Wが析出すると予測した1200Kの温度領域については、初期封入組成と圧力に依存して変化するものと考えられる。対流のプロファイルを決定する要因はフィラメント形状をはじめ、管内封入物の構造と温度分布によるところが大きいため、ランプ設計においてはこれらを適正化する必要がある。ここで、流れが滞留する点における各生成物の分圧は、全圧を3×105Pa一定と仮定して化学平衡計算で求めた値よりもはるかに高くなっていた。この領域では全圧も点灯直後の全圧よりも高く、これが化学平衡計算による予測と実験により得られる結果が一致しない理由の一つとなっている。

化学平衡計算の結果を用いた従来の方法においては、実験結果との間の不一致を指摘する研究結果が公表されているが 22.23),不一致の理由の一つは化学平衡モデルでは対流の効果を考慮していない点にあり、熱流体-化学平衡複合計算ではより正確にタングステンの析出領域の予測が可能となったと考えられる.

タングステンの析出については、従来はバルブ内部を移動するタングステン化合物が SPW 分圧の低い領域に入ると、「溶存」できる量が少ないために SPW が極小値を取る点に析出するという解釈がなされていた.一方、今回の計算結果では、タングステンが析出する点では SPW 分圧が高くなっている.今回の研究ではタングステンが析出し、結晶成長するメカニズムまでは明らかにされないが、対流の効果がなければ「溶存」できないほどの量のタングステンが各生成物の形態でこの低温部に流れ込み、同時に流れが停滞し、急速に冷却される現象が示された.また、今回の設計仕様においては、 $H_2O$  の封入量を 10 倍にしても寿命やタングステンの析出状況、フィラメントの細り等に有意な差異は観察されなかった.この点については、複合計算でも差異は現れず、実験結果と良好に一致する結果が得られている.

## (2) 信頼性向上への応用

バルブが黒化しないことは,バルブ内壁付近での W 化合物の分圧が低く生成物が多量に存在し得ないということで説明できる.また,低温部にハライド等の固相が析出する状況も,熱流体-化学平衡複合計算により直接予測することができた.

化学平衡モデルでは計算する際には全圧と温度を決めなければならないが、その結果平衡組成は一義的に定まる.一方、複合計算モデルではそれらを定めても対流が滞留する領域が系の形状や境界条件により変化するため、これら条件の変化が生成物の分圧分布に及ぼす変化も予測できる.その結果として、不純物がハロゲン電球の信頼性に及ぼす影響やハロゲンの適正封入量の把握をより高い精度で予測することが可能となる.

点灯中、局所的に超高圧になり得る領域のあることが示された.過去、点灯中の封入圧の推定方法が提案されているが、熱流体-化学平衡複合計算を行うと、より詳細な圧力分布を知ることができる。シミュレーションはバルブの破裂防止など、信頼性向上にも応用できる可能性がある。ただし、この圧力分布は気相の粘性により変化する。現時点では各生成物の粘性はほとんど知られていないため、今後の調査が期待される。

図 13 は、各化合物の分圧の推移が安定しない時間内に点滅点灯を繰り返すと、連続点灯した場合とは全く異なる分圧分布が管内に生ずることを示している。従って、連続点灯時を想定して封入ハロゲン量などを適正化しても、頻繁に点滅を繰り返すような点灯条件下ではハロゲンサイクルが適正に機能せず、タングステン輸送現象、例えば黒化やフィラメントの細り、の生じる可能性のあることが分かる。これは従来の実験事実を裏付ける結果である

## 5. 結言

熱流体・化学平衡複合計算を行い、ハロゲン電球の寿命試験による実際の観察結果と対比した。タングステンの析出点については、従来の化学平衡モデルよりも実際に近い結果が予測できた。一方、析出する点の予測については、SPW 曲線が極小値となる点という、従来の説明とは異なる解釈が求められた。析出するメカニズムについては今後の研究の進歩に期待することになるが、生成物の分圧が高く、対流の流速が遅くなる点と析出点が極めて良く一致するという知見を今回得ることができた。今後さらなる検証研究が必要ではあるが、我々が提案する複合計算は、ハロゲン電球の信頼性向上および設計の適正化に有効な手段と考えられる。

## 参考文献

- (1) G.M.Neumann: Der mechanismus des wolfram halogenkreisprozesses in halogengluhlampen, LICHTTECHNIK, 24-12, pp. 606-607 (1972).
- (2) E.Schnedler: Description of tungsten transport processes in inert gas incandescent lamps, Philips J.Res., 38, p. 224 (1983).
- (3) G.Dittmer and U.Niemann: THE INFLUENCE OF SOLID PHASE ON TRANSPORT CYCLES IN HALOGEN-FILLED INCANDESCENT LAMPS, Philips J.Res., 42, pp. 41-57 (1987).
- (4) G.Dittmer and U.Niemann: THERMODYNAMIC CONSIDERATION ON TRANSPORT PROPERTIES OF HALOGEN-FILLED FLOOD-LIGHT LAMPS, International Symposium on the Science & Technology of Light Sources (LS5) 22P pp. 103-104 (1989).
- (5) E.J.Covington: Hot-to-cold pressure ratios in tungsten halogen lamps, Illuminating Engineering, 11, pp.654-658 (1970).
- (6) D.H.Price: Chemistry of tungsten-halogen incandescent filament lamps, GEC journal of science and technology, vol.39, pp.125-130 (1972).
- (7) J.R.Coaton and J.M.Rees: Future of incandescent and tungsten-halogen lamps, IEE. Proc., 124, pp.763-767 (1977).
- (8) J.C.Hill and A.Dolenga: Fluorine-cycle incandescent lamps, J. Appl. Phys., 48, pp.3089-3092 (1977).
- (9) L.A.Zhivechkova, O.B.Tomilin and A.V.Kharitonox: THERMODYNAMICS OF HALOGEN CYCLES IN INCANDESCENT LAMPS, Light & Engineering, 2-4, pp.25-29 (1994).
- (10) J.R.Coaton: Modern tungsten-halogen-lamp technology, IEE. Proc., 117, pp.1953-1959 (1970).
- (11) G.M.Neumann and W.Knatz: Thermodynamik heterogener gasgleichgewichte. I Freie bildungsentbalpie  $\Delta$  G°B der verbindungen in den wolfram-halogen-systemen, Zeitschrift fur naturforschung, 26a, pp.863-869 (1971).
- (12) G.M.Neumann and G.Gottschalk: Thermodynamik heterogener gasgleichgewichte. II Gasphasenzusmmensetzung und chemische transportreaktionen in den systemen wolfram-halogen, Zeitschrift für naturforschung, 26a, pp.870-880 (1971).
- (13) G.M.Neumann and G.Gottschalk: Thermodynamik heterogener gasgleichgewichte. III Gasphasenzusammensetzung und chemische transportreaktionen im system wolfram-sauerstoff, Zeitschrift fur naturforschung, 26a, pp.882-887 (1971).

- (14) G.M.Neumann : Der mechanismus des wolfram-halogen kreisprozess in halogen gluhlampen, Licht technik, 24 pp.605-607 (1972).
- (15) J.R.Coaton: Nitrogen separation in linear tungsten-halogen lamp, IEE. Proc., 119, pp.1698-1700 (1972).
- (16) B.A.Moys: Behavior of incandescent tungsten filaments during life, GEC journal of science and technology, 40, pp.17-24 (1973).
- (17) G.M.Neumann: Einfluss von sauerstoff auf die transport reaktionen beim wolfram-brom-kreisprozess in halogen gluhlampen, Journal of the less-common metals, 35, pp.51-64 (1974).
- (18) P.Eckerlin and S.Garbe: Analysis of tungsten compounds in the wall region of halogen lamps, Philips J.Res., 35, pp.320-325 (1980).
- (19) G.Dittmer and U.Niemann: HETEROGENEOUS REACTIONS AND CHEMICAL TRANSPORT OF TUNGSTEN WITH HALOGENS AND OXYGEN UNDER STEADY-STATE CONDITIONS OF INCANDESCENT LAMPS, Philips J.Res., 36, pp. 87-111 (1981).
- (20) G.Dittmer and U.Niemann: HETEROGENEOUS REACTIONS AND CHEMICAL TRANSPORT OF MOLYBDENUM WITH HALOGENS AND OXYGEN UNDER STEADY STATE CONDITIONS OF INCANDESCENT LAMPS, Mat.res.Bull., 18, pp. 355-369 (1983).
- (21) G.Dittmer and U.Niemann: THE INFLUENCE OF SOLID PHASE ON TRANSPORT CYCLES IN HALOGEN-FILLED INCANDESCENT LAMPS, Philips J.Res., 42, pp. 41-57 (1987).
- (22) P. Heeley, D.D.Bruguier and R.Devonshire: Halogen lamp computer model incorporating LTCE species diffusion, The 7<sup>th</sup> International Symposium on the Science & Technology of Light sources, 67P pp.229-230 (1995).
- (23) L.Bigio and P.Y.Chang, : Infrared laser measurement of HBr near the filament of a tungsten halogen lamp, J. Electrochem Soc., 141-8, pp.2024-2029 (1994).

(受付日 2009 年 4 月 14 日/採録日 2009 年 8 月 7 日)



大河 正志 (非会員) 新潟大学工学部福祉人間学科 昭和 59 年 3 月大阪大学基礎工学部卒,平成元年 3 月大阪大学大学院基礎工学研究科博士後期課程修了.同年 4 月新潟大学工学部助手.現在同大学教授.工学博士.電子情報通信学会,電気学会,応用物理学会,IEEE,OSA,SPIE 等会員.



別所 誠(正会員) 東芝ライテック株式会社技術本部 昭和58年3月早稲田大学理工学部卒,昭和60年3月早稲田大学大学院理工学研究科博士前期 課程終了.同年4月株式会社東芝入社.平成元年,東芝ライテック株式会社設立にともない出 向移籍.平成12年10月から平成20年3月, オスラム・メルコ・東芝ライティング株式会社 へ出向.