【論文】

点接触式熱物性測定法を利用した軟質材料及び液体の熱伝導率測定手法

A Measurement Method of Thermal Conductivity of Soft Materials and Liquids by Utilizing a Point-Contact Method

岡部 孝裕* 眞下 央* 岡島 淳之介** 小宮 敦樹**
高橋 一郎*** 円山 重直**

Takahiro OKABE, Hiroshi MASHIMO, Junnosuke OKAJIMA, Atsuki KOMIYA,
Ichiro TAKAHASHI and Shigenao MARUYAMA

本報では、点接触式熱物性測定法を軟質材料及び液体へ適用する場合の課題を提起し、この課題に対してポリイミド薄膜を用いた新しい測定手法を提案した。また、ポリイミド薄膜が測定に与える影響を検証するために数値計算を行い、その影響を明らかにした。さらに、水や寒天などの熱伝導率測定を行った結果、再現性は改善されたものの、ポリイミド薄膜の影響によって算出される見かけの熱伝導率と文献値に差異が生じた。しかしながら、各試料の測定結果の間に相関があることから修正式を考慮することで、正確な熱伝導率を算出できる可能性を示した。

A novel method for measurement of thermal conductivity of soft materials and liquids with the polyimide film by utilizing a point contact method has been developed to solve several problems when it was applied to soft materials and liquids. Numerical simulation was carried out to evaluate the effect of the polyimide film. In addition, water, agar, fat and muscle of pig were selected as soft materials and liquids and their thermal conductivity were measured. As a result, the repeatability of measurement was improved by using the polyimide film, but there were differences between determined and literature value of thermal conductivities. A method in this study has a possibility to measure the thermal conductivity of soft materials and liquids by application of sample calibration correcting the bias.

【Keywords: A Point-Contact Method, Thermal Conductivity, Soft and Liquid Materials, Polyimide film】

1. はじめに

医学分野における熱を利用した治療法、例えば凍結手術やハイパーサーミアなどの研究において、生体組織の正確な熱物性値を把握することは必要不可欠である。そのため、生体組織の熱物性測定に関する研究はこれまで多くなされてきた。Bhattacharya ら[1]は加熱プローブを

測定物に突刺す方法を用いて豚や牛などの皮膚や脂肪、筋肉、肝臓などの熱物性測定を行い、熱物性値の温度依存性についても考察している。しかしながら、生体組織を傷つけるこの測定手法を生きた動物や人間に適用することは難しい。一方、Ricketts ら[2]は生体組織を傷つけない非侵襲の熱物性測定手法を構築し、人間の皮膚の熱物性測定を行っているが、このような非侵襲的な測定手法は少ないのが現状である。

そこで、本研究では非侵襲という観点から高橋ら[3]によって考案された点接触式熱物性測定法を実用化した固体熱物性テスター[4]に着目した。Figure 1 に固体熱物性テスターの装置構成を示す。この装置の特徴は、小型で非破壊的に短時間で熱物性を局所測定することが可能なことである。

これまで固体熱物性テスターは金属材料や樹脂材料の熱物性測定だけでなく、品質検査技術や工業材料の劣化診断に広く応用されてきた[5,6]。しかしながら、軟質材

* 東北大学大学院工学研究科, 〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1.

Graduate School of Engineering, Tohoku University, Katahira 2-1-1, Aoba-ku, Sendai 980-8577, Japan
FAX: 022-217-5244 E-mail: okabe@pixy.ifs.tohoku.ac.jp

** 東北大学流体科学研究所, 〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1.

Institute of Fluid Science, Tohoku University, 2-1-1, Katahira, Aoba-ku, Sendai, Miyagi 980-8577, Japan

*** 山形大学工学部機械システム工学科, 〒992-8510 米沢市城南 4-3-16.

Dept. of Mech. Systems Eng. Yamagata University, 4-3-16, Jonan, Yonezawa, Yamagata 992-8510, Japan

Fig. 1 Schematic diagram of measurement system

料や液体に適用することは装置の特性上困難であった。そこで、本研究ではこの問題に対して、ポリイミド薄膜を用いた新しい測定手法を提案した。また、ポリイミド薄膜が測定に与える影響を明らかにするために数値解析を行った。さらに、水や寒天などの熱伝導率測定を行い、再現性の確認、算出される見かけの熱伝導率と文献値との比較、考察を行った。

2. 点接触式熱物性測定法

2.1 測定理論

適当に加熱し定常状態となった温度プローブ先端を測定試料に接触させる。熱移動は Fig. 2 に示すように微小接触面積(半径 r_0)から半球面波状に伝播すると仮定している。この時のプローブ側の温度応答の実測値を解析することで測定試料の熱伝導率 k と熱浸透率 ζ を求める[3]。理論温度応答は 1 次元球対称熱伝導方程式を解くことで式(1)のように求めることができる。

$$T_p^* = \frac{1}{\eta} \frac{\beta}{\beta+1} \operatorname{erfc}\left(\frac{C}{\sqrt{t}}\right) + \frac{1}{\eta(\zeta+1)(\beta+1)} \exp\left(X^2 - \frac{C^2}{t}\right) \operatorname{erfc}(X) \quad (1)$$

ここで、 $\beta = \frac{k_s}{k_p}$ 、 $\zeta = \frac{\xi_s}{\xi_p}$ 、 $\eta = \frac{r_1}{r_0}$ 、 $C = \frac{r_1 - r_0}{2\sqrt{\alpha_p}}$ 、

$X = \frac{C}{\sqrt{t}} + \frac{(\beta+1)(\eta-1)}{2C(\zeta+1)}\sqrt{t}$ である。

2.2 軟質材料及び液体への適用

2.2.1 問題点

固体熱物性テスターを用いた金属や樹脂などの熱物性測定では、接触熱抵抗を軽減するために約 0.15N の接触荷重をかけて、Fig.3(a)に示すような接触形態を維持している。しかしながら、測定試料が軟質材料や液体の場合、

Fig. 2 Theoretical thermal contact model

(a) Contacting hard material (b) Contacting soft material
Fig. 3 Schematic of the tip of the probe contacting sample

その接触荷重によって Fig.3(b)に示すようにプローブ先端が測定試料にめり込む。すると、接触面積の増加に伴って熱移動も増加し、算出される見かけの熱伝導率が高い値を示してしまう。さらに接触面積が安定せず再現性が得られないという問題もある。

この問題に対して、菅井ら[7]は特殊な容器を開発し、点接触式熱物性測定法を利用した新しい少量液体の熱物性測定手法を確立した。しかしながら、この手法を軟質材料に適用するためには、試験片の切り出しが必要となり、本研究の目標としている生体組織への応用は困難と言える。

2.2.2 測定装置の製作

点接触式熱物性測定法を生体組織の熱物性測定に応用するためには、非侵襲的な新たな測定手法が必要である。そこで、本研究では Fig. 4 に示すような厚さ 50μm のポリイミド薄膜を環状のアルミニウムに張力をかけた状態で接着した装置（以後、ポリイミド薄膜と呼ぶ。）を用いることで軟質材料及び液体の非侵襲的な熱物性測定を可能にした。接着後の薄膜の張力は、薄膜の中心に外力を与えた際に生ずる変位を測定し、初期膜張力を有する円環に接着された薄膜の関係式[8]から、500N 程度であることが分かった。ポリイミド薄膜をプローブ先端と測定試料の接触面との間に介在させることで、プローブ先端の

Fig. 4 Schematic of the device with the polyimide film

めり込みを防ぐことが可能となる．測定時は測定箇所によりポリイミド薄膜を押し当て、その上から固体熱物性テスターで測定を行う．そのため測定試料側の形状に制限がなく、非侵襲的な熱物性測定が可能になる．

3. 数値解析によるポリイミド薄膜の影響検証

3.1 多層二次元軸対称モデル

高橋らによって考案された点接触式熱物性測定法の測定理論では、温度伝播は温度プローブから測定試料へ半球面波状に伝播すると仮定している．この仮定が成り立たなければ、正確な熱伝導率測定を行うことはできない．そこで、まず本報で提案したポリイミド薄膜を使用した測定手法においても温度伝播が半球面波状であることを確認するために数値解析を行った．さらにポリイミド薄膜は熱抵抗となることが予想されるため、ポリイミド薄膜を介在させた場合と介在させない場合での測定試料内部の温度分布の違いについて検討した．

本研究で用いた数値解析モデルを Fig. 5 に示す．本数値解析には二次元軸対称の熱伝導モデルを用いた．熱電対及びポリイミド薄膜の実形状との差は小さいと考え、考慮していない．試料の寸法は 3mm×3mm、グリッド数は 200×200 とし、境界条件は熱電対表面以外の面に対して断熱条件を用いた．接触の 10 秒後の境界の温度変化が小さいことが確認されているため、十分に広い計算領域であると考えられる．以下に支配方程式を示す．

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(k r \frac{\partial T}{\partial r} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(k \frac{\partial T}{\partial z} \right) \quad (2)$$

式(2)を有限体積法によって離散化し、完全陰解法と線順法を用いて計算を行った[9]．計算に用いた各構成材料(水、ポリイミド、熱電対)の熱物性値を Table 1 に示す[10,11]．

熱電対(E 型)の熱物性値は、ニクロムの値を用いた．

原点付近に配置した熱電対全体に一定温度を与え、10 秒後の試料内部の温度分布を計算した．この時、Fig.5 に示すような各角度(30°、45°、60°、90°)の線上にお

Fig. 5 2-D axisymmetric calculation model

る温度分布を比較することで熱電対プローブから測定試料への温度伝播の球対称性について検討した．

さらにポリイミド薄膜を介在させた場合と介在させない場合の熱物性測定では、測定試料内部の温度分布にどの程度差異が生じるか検討するための数値解析を行った．ポリイミド薄膜を介在させない場合の計算は Fig. 5 と同等のモデルを用いているが、ポリイミド薄膜の領域を測定試料の物性値を適用することで単層モデルとしている．

Table 1 Thermophysical properties which is used in calculation

Sample	k [W/(m·K)]	c [kJ/(kg·K)]	ρ [kg/m ³]
Water	0.61	4.17	997
Polyimide	0.29	1.13	1400
Thermocouple (Nichrome)	17.4	0.444	8670

3.2 数値解析結果

Figure 6 にポリイミド薄膜を介在させた場合の測定における各角度の内部温度分布の計算結果を示す．縦軸は温度、横軸はプローブ中心からの距離を表している．Figure 6 から内部温度分布は各角度において一致していることが分かる．このことから、点接触式熱物性測定法にポリイミド薄膜を適用した場合においても、水程度の熱物性値の測定試料に対しては温度伝播の球対称性は維持されることが分かる．つまり、生体組織の熱物性測定に対してもポリイミド薄膜を用いた測定手法は有効であると考えられる．

次にポリイミド薄膜が与える測定時の測定試料内部の

Fig. 6 Temperature distribution of varied angle in model with the polyimide film

温度分布への影響を検討するために行った数値解析の結果を Fig.7 に示す. Figure 7 よりポリイミド薄膜を介在させた場合と介在させない場合とでは測定試料内部の温度分布に差異が生じていることが分かる. 深さ 0.5mm 付近で温度差が最も大きく, 約 1°C の差が生じた. 熱伝導率の低いポリイミド薄膜を介在させたことによって, 熱抵抗が生じてしまったことが原因である. そのため, 算出される見かけの熱伝導率は文献値よりも低い値となる可能性がある.

4. 熱伝導率測定

4.1 実験方法及び試料

本研究で行った測定の手順について説明する. まず, 固体熱物性テスターのプロープ先端を測定試料より 10 数°C 高い温度となるようにヒーターで加熱し, 定常状態となるまで十分放置する. 測定時の周囲温度は 25°C で一定に保たれており, 測定試料は試料製作後, 室温と等しくなるように十分時間経過しているものを使用した. その後, 加熱したプロープ先端を, ポリイミド薄膜を介し

Fig. 7 Temperature distribution in the model with and without the polyimide film

て測定試料に約 0.15N の接触荷重で約 10 秒間接触させる. その時のプロープ先端の温度応答を測定し, 結果を解析することで見かけの熱伝導率を算出する. 測定試料は軟質材料として 0.5wt% 寒天, 豚の筋肉及び脂肪, 液体として水, シリコンオイルを用いた. さらに熱物性測定可能範囲を検証するためにポリイミド薄膜よりも熱伝導率が極端に低いスタイロフォーム, 極端に高い真鍮及びアルミニウムの熱伝導率測定も行った. 熱伝導率測定は上記の測定手順で各試料それぞれ複数回行った. これら測定試料の熱物性値を Table 2 に示す[10-13]. 表中の豚の脂肪及び筋肉の熱物性値は組成や状態によって大きく異なるため, 本研究では参考値として扱った.

Table 2 Thermophysical properties of samples

Sample	k [W/(m·K)]	c [kJ/(kg·K)]	ρ [kg/m ³]
Aluminum	237	0.27	2700
Brass	117	0.375	8390
Water	0.61	4.17	997
Silicone oil	0.136	1.48	970
Styrofoam	0.03	0.27	30
Fat of pig	0.313	2.92	1070
Muscle of pig	0.383	1.44	1090

以後の統計結果では各測定試料に対する見かけの熱伝導率の平均値 $\bar{k}$ を用いた. 本測定では各試料に対する見かけの熱伝導率の値を評価するために, 対称な不確かさ区間を求め評価を行った[14]. 約 95% 包括度不確かさを U_{RSS} とすると,

$$\bar{k} \pm U_{RSS} \quad (3)$$

の範囲に熱伝導率の値が存在すると考えられる. 約 95% 包括度不確かさを U_{RSS} は以下のように与えられる.

$$U_{RSS} = [B^2 + (t_{st} S)^2]^{\frac{1}{2}} \quad (4)$$

ここで, B は正確度, t_{st} は対称なスチューデント t 分布に対して面積の 95% を占める点に対応した統計値, S は各測定試料に対する見かけの熱伝導率の精密度を表す. 精密度 S は次式で表される.

$$S = \sqrt{\frac{\sum_{k=1}^N (k - \bar{k})^2}{N-1}} \quad (5)$$

ここで, N は測定回数であり, t_{st} 値を決定する自由度でもある. 式(3)より求められる熱伝導率平均値を中心とした

対称な不確かさ区間を用いて評価した。

4.2 熱伝導率測定結果

まず、ポリイミド薄膜を介在させることによって、これまで課題であった測定の再現性を改善することが可能かどうかの検証を行った。Figure 8 にポリイミド薄膜を介在させた場合と介在させない場合の温度応答の測定結果を示す。縦軸は無次元温度、横軸は経過時間を表している。無次元温度応答は周囲温度と実測の温度応答を用いて規格化されたものを解析に用いている。測定試料は寒天とし、温度応答の測定はそれぞれ同条件の下、3回ずつ行った。

Figure 8 からポリイミド薄膜を介在させない場合、温度応答測定の再現性が得られていないことが分かる。プローブ先端を測定試料に接触させる際の接触荷重が測定毎に変化しているため、プローブ先端のめり込み量が変化する。それによって、測定の再現性を得られなかったと推測される。一方、ポリイミド薄膜を介在させた場合、介在させない場合と比べて測定毎の温度応答の変化が非常に小さく、高い再現性が得られていることが分かる。また、無次元温度応答は介在させない場合と比べて低い。これはポリイミド薄膜を介在させたことによって、プローブ先端の測定試料へのめり込みが大幅に減り、測定毎の接触状態が安定したためと考えられる。

Figure 9 に軟質材料及び液体の熱伝導率の測定結果を示す。各プロットは 10 回測定の平均値である。Figure 9 に示すようにアルミニウムと真鍮の算出された熱伝導率の値はほぼ同じ値、約 $1.0 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ を示した。一方、スタイロフォームの算出された熱伝導率は文献値よりも高い $0.19 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ であった。

Figure 10 は熱伝導率の文献値が 0.1 以上 $0.8 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ 未

Fig. 8 Repeatability test of temperature response under the same condition

Fig. 9 Comparison between calculated and literature value of thermal conductivity

Fig. 10 Comparison between calculated and literature value of thermal conductivity

満の領域を拡大したものである。図中に示すエラーバーは約 95% 包括度不確かさを用いた。水、豚の筋肉のようなポリイミド薄膜に比べて熱伝導率の高い測定試料では、見かけの熱伝導率は文献値より低い値が算出された。一方、ポリイミド薄膜よりも熱伝導率が低いシリコンオイルに関しては、見かけの熱伝導率は文献値より高い値が算出された。ポリイミド薄膜より熱伝導率の高い測定試料の場合、ポリイミド薄膜が熱抵抗として影響を与えるために算出される見かけの熱伝導率が文献値より低い値を示したと考えられる。また、水及び寒天の見かけの熱伝導率を比較すると誤差の範囲内でほぼ一致しているため、本測定手法は、試料内の対流の影響を無視できる可能性を示した。ポリイミド薄膜より熱伝導率が低い場合、ポリイミド薄膜へ伝播する熱量が測定試料へ流れる熱量よりも大きいために、温度伝播の球対称性が崩れている可能性がある。そのために算出される見かけの熱伝導率が文献値に比べて高い値を示した。しかしながら、 $0.14\text{--}0.61 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ の範囲において熱伝導率測定結果の間に相関がみられるため、修正式を立て、適用することで正確な熱伝導率の算出ができる可能性を示した。

5. 結 論

本報では、点接触式熱物性測定法を軟質材料及び液体に適用するために、ポリイミド薄膜を用いた新しい熱物性測定手法の構築を行った。また、ポリイミド薄膜が測定に与える影響を検証するために数値計算を行い、その影響を明らかにした。さらに、水や寒天などの熱伝導率測定を行った。以下に得られた知見を示す。

1. 熱物性テスターを利用して軟質材料及び液体の熱伝導率測定を行う場合、ポリイミド薄膜を用いることで再現性が得られることを示した。
2. 数値解析を行い、ポリイミド薄膜を介在させた場合でも、測定試料内の温度分布は等方的に伝播している可能性を示した。しかしながら、ポリイミド薄膜を使用した場合と比較して、測定試料内部の温度分布に最大約1℃の差異が生じていることが分かった。
3. 測定結果に与えるポリイミド薄膜の影響は大きく、算出される見かけの熱伝導率に文献値と差異が生じた。しかしながら、0.14-0.61W/(m・K)の範囲において測定結果に相関があることから修正式を加えることで正確な熱伝導率を算出できる可能性を示した。

NOMENCLATURE

B	: bias limit, $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
c	: heat capacity, $J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}$
C	: parameter of thermal probe, $s^{1/2}$
k	: thermal conductivity, $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
N	: number of measurement value, —
r	: radius, m
r_0	: contact radius of thermal probe, m
r_1	: position of temperature sensing point, m
S	: precision index, $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
t	: time, s
t_{st}	: student value, —
T	: temperature, K
T_p^*	: dimensionless temperature of thermal probe, —
U_{RSS}	: uncertainty, $W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$
x	: location, m
X	: sensitivity coefficient, —
z	: depth, m
Greek	
α	: thermal diffusivity, $mm^2 \cdot s^{-1}$
β	: ratio of thermal conductivity, —
η	: parameter of thermal probe, —
ρ	: density, $kg \cdot m^{-3}$

ζ	: thermal effusivity, $kJ \cdot m^{-2} \cdot s^{-1/2} \cdot K^{-1}$
ζ	: ratio of thermal effusivity, —
Subscript	
p	: value of testing sample
s	: value of temperature probe

参考文献

- [1] Bhattacharya, R. L. Mahajan; "Temperature Dependence of Thermal Conductivity of Biological Tissues", *Physiological Measurement* 24 (2003), 769-783.
- [2] P. L. Ricketts, O. I. Lanz, C. Y. Lee, T. E. Diller, E. P. Scott; "Noninvasive Blood Perfusion Measurements of an Isolated Rat Liver and an Anesthetized Rat Kidney", *Journal of Biomechanical Engineering*, 130 (2008), 061013
- [3] 高橋一郎, 榎森正晃; 「点接触式温度プローブによる固体熱3定数の測定法(測定理論)」, *熱物性*, 13 (1999), 246-251
- [4] 高橋一郎, 佐藤健一; 「点接触式温度プローブによる固体熱3定数の測定法(温度プローブの改良)」, *熱物性*, 17 (2003), 18-23
- [5] 越川康之, 加藤和憲, 鹿野一郎, 高橋一郎; 「固体熱物性テスターによる樹脂成型加工品の品質検査技術」, *熱物性*, 19 (2005), 216-221
- [6] 加藤和憲, 高橋一郎; 「熱物性計測による工業材料の劣化診断技術に関する研究」, *熱物性*, 21 (2007), 25-30
- [7] 菅井孝輔, 高橋一郎, 鹿野一郎; 「固体熱物性テスターによる少量液体の熱物性測定法」, 第28回日本熱物性シンポジウム講演論文集 (2007), 100-102
- [8] K. Wan, S. Guo, D. A. Dillard; "A Theoretical and Numerical Study of a Thin Clamped Circular Film under an External Load in the Presence of a Tensile Residual Stress", *Thin Solid Films*, 425 (2003), 150-162
- [9] S. V. Patankar 原著, 水谷幸夫, 香月正司共訳; 「コンピュータによる熱移動と流れの数値解析」, (1983), 森北出版
- [10] 日本機械学会; 「JSME テキストシリーズ 伝熱工学」, (2007) 23, 日本機械学会
- [11] 日本熱物性学会編; 「新編熱物性ハンドブック」, (2008) 168, 養賢堂
- [12] H. F. Boeman, E. G. Cravalho, M. Woods; "Theory, Measurement and Application of Thermal Properties of Biomaterials", *Annual Review of Biophysics and Bioengineering*, 4(1975), 43-80
- [13] S. Rahman; "Food properties handbook", (1995), CRC Press
- [14] 日本機械学会訳; 「アメリカ機械学会性能試験規約, 第一部 計測の不確かさ」, (1987), 日本機械学会

[Received Feb. 16, 2012, Accepted July 16, 2012]