【論文】

薄型断熱材の熱伝導率測定方法の検討

Study of Thermal Conductivity Measurement Method of Thin Insulation Material

岡崎亨* 及川一摩* 酒谷茂昭* 倉敷哲生**

Toru Okazaki, Kazuma Oikawa, Shigeaki Sakatani, Tetsusei Kurashiki

近年、シリカのポーラス構造によって高い断熱性を有するエアロゲルを、不織布などの繊維と複合化し、薄く断熱性が高い材料として構成した「エアロゲル複合断熱材」の実用化が盛んである。しかしながら、こうした熱伝導率が $0.02 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ 程度と小さく、厚さが 1 mm 以下の材料の熱伝導率に対して、標準的な測定方法が未確立であり、現在も国際的に議論がされている段階である。これに対し、本研究では、熱伝導率測定方法の一つである「熱流計法」と、複合材料の諸特性を求めるための数式である「複合則」を組合せることにより、上記断熱材の熱伝導率を測定する手法を検討した。本手法により、 $n=5$ (回)の繰返し再現性試験で、ベースとして用いた熱伝導率測定器が持つ再現性に収まる $\pm 2.1\%$ のばらつきで、エアロゲル複合断熱材の熱伝導率が測定できることを確認した。

Aerogel composite insulation sheets which are complexed with fibers such as nonwoven and aerogel have been launched. For these materials, method of measuring the thermal conductivity has not been established because of their thin and high heat insulating property. In the present study, a method for measuring the thermal conductivity of above materials was proposed by combining a standard measurement method of heat-insulating material 'Heat flow meter method' and a mathematical formula for calculating the properties of composite materials 'Rule of mixture'. By this approach, it was confirmed that it is possible to measure the thermal conductivity of $\pm 2.1\%$ precision fit the specifications of the measuring instrument.

[Keywords: thermal insulation material, thermal conductivity measurement, rule of mixture]

1. はじめに

近年、新たな断熱材のベース材として、かねてより各国で研究がなされてきたエアロゲルを適用する動きが盛んである。エアロゲルの歴史は、1931 年、アメリカの研究者 S. S. Kistler が、シリカ材をはじめとするエアロゲルの生成に成功したことが始まりとされる[1]。以来、薄い厚さのものでも十分な断熱性を有することから、エアロゲルを断熱材として活用できないかとの議論がなされ、現在、石油パイプラインの配管に巻く等の用途で一部実用化がなされている。一方、近年、ますます高速化、高性能化するスマートフォンやウェアラブルデバイスなど、よりユーザに身近に用いられるデバイスの発熱が問題となっている。特に、ユーザが長時間デバイスを使用していると、皮膚に接する部分で低温やけどが生じやすくなるという問題が顕著である。こうした問題に対し、デバ

イスメーカーは、機器の発熱が増せば、一時的に電子部品の演算や稼動を停止する等により、発熱を抑える対応を行ってきた。これに対し、スペースがほとんど無いデバイスの中で、発熱部と筐体の間に、薄くても断熱性を発揮するエアロゲルを挟み、ユーザの皮膚に発熱体の熱が伝わりにくくしながら、機器の本来持つ能力を十分発揮できる部材として、Fig.1 に示すエアロゲルをベースとする断熱材が開発された。なお、エアロゲルは非常に脆い材料であるため、単体では用いず、不織布などの薄い繊維を骨格材として、そこにエアロゲルを生成したもの(エアロゲル複合断熱材)がよく適用されている[2]。

エアロゲル複合断熱体は、ウレタンフォーム等の建築・家電用断熱材と同等の $0.02 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ 程度、あるいはそれ以下の低い熱伝導率を持ち、厚さ 1 mm 以下という非常に薄い構造である。こうした“薄く断熱性の高い”材

Fig. 1 Thin insulation material containing aerogel [2]

* パナソニック株式会社 生産技術本部, 〒571-8502 大阪府門真市松葉町 2-7. Production Engineering Division, Panasonic Corporation, 2-7 Matsuba-cho, Kadoma, Osaka 571-8502
E-mail: okazaki.toru@jp.panasonic.com

** 大阪大学大学院工学研究科, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1. Graduate School of Engineering, Osaka University, 2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871

料に対しては、断熱材の性能指標の一つである「熱伝導率」を測定することが難しく、現在も、その方法について国際的な議論がなされている[3]。代用策として、断熱材を複数枚重ね、熱伝導率が測定できる厚みを設け測定する方法が考えられるが、本方法では、不良品のロットアウト等、1枚1枚の製品保証手法として適用ができない。

本研究では、建築・家電用断熱材の熱伝導率測定の標準手法である「熱流計法(JIS A 1412-2)」をベース技術として、厚さ 1 mm 以下の薄い断熱材に対し、1 枚ずつ熱伝導率を測定する手法を検討したので報告する。なお、特に指定がない限り、本文記載の「熱伝導率」は、熱伝導率測定装置により測定された「見かけの熱伝導率」を指す。

2. 測定原理および測定装置

2.1 測定原理

本研究では、「熱流計法」の測定方法をベースに、母材と強化材で構成される複合材料の物性を求める際に用いられる「複合則」の概念を組合せた測定方法を提案する。熱流計法に基づく熱伝導率測定装置として、本研究では、Erich NETZSCH GmbH 製 HFM436/3/1 (以下、HFM と記載) を用いる。Fig.2 に HFM の装置概要図を示す[4]。

Fig. 2 Equipment principle diagram of HFM 436/3/1[4]

HFM をはじめとする熱流計法の測定装置では、熱板(Hot plate)と冷却板(Cold plate)の間に測定サンプルを挟み、2枚の板の通過する熱流 Q 、温度差 ΔT とサンプル厚 Δx から、(1)式に基づきサンプルの熱伝導率 λ を算出する。

$$\lambda = \frac{Q \Delta x}{\Delta T} \quad (1)$$

一方、複合材料における複合則[5]は、弾性率や強度、熱伝導率などの特性 X について、強化材と母材の物性値などを、それぞれ X_f 、 X_m 、強化材と母材の体積含有率をそれぞれ V 、 $(1-V)$ としたとき、複合材料としての特性値の理論値 X_c が(2)式で与えられるという、複合した材料の合成特性を表す数式として汎用されている。

$$X_c = X_f V + X_m (1-V) \quad (2)$$

複合則は、強化材と母材の配置により、並列則と直列則に大別され、熱伝導率の算出式としては、並列則が(3)式、直列則が(4)式で表される。

$$\lambda_c = V \cdot \lambda_f + (1-V) \lambda_m \quad (3)$$

$$\frac{1}{\lambda_c} = \frac{V}{\lambda_f} + \frac{1-V}{\lambda_m} \quad (4)$$

本研究では、Fig. 3 に示すように、異なる熱抵抗を持つ厚いベースプレート(既知の熱伝導率)と、測定対象である薄い断熱材(未知の熱伝導率)を、熱板から冷却板に対し直列を配置することから、(4)式の直列則の式を用いる。

Fig. 3 Proposed measurement method

具体的な測定方法を以下に示す。まず、Fig. 3(a)に示すように、ベースプレート(2 枚)のみを装置に挟み、厚さを計測して熱伝導率を測定する。次に、Fig. 3(b)に示すように、ベースプレートと測定対象であるエアロゲル複合断熱材(Object)を重ねた複合体を装置に挟み、厚さを計測して熱伝導率を測定する。このとき、Fig. 3(a)に示すベースプレート(2 枚)の熱伝導率を λ_B 、厚さを t_B 、Fig. 3(b)に示すベースプレートと断熱材の複合体の熱伝導率を λ_c 、エアロゲル複合断熱材の熱伝導率を λ_f 、厚さを t_f とすると、(4)式は(5)式のように変形できる。

$$\lambda_f = \frac{t_f}{t_f + t_B} \cdot \frac{\lambda_c \lambda_B}{\lambda_B - \left(\frac{t_B}{t_f + t_B} \right) \lambda_c} \quad (5)$$

なお、式中のエアロゲル複合断熱材の厚さ t_f は、Fig. 3 (b) の複合体の厚さ測定値 $(t_f + t_B)$ から Fig. 3(a) のベースプレート(2 枚)の厚さ t_B を減算することにより取得できる。最後に(5)式により、測定対象の熱伝導率 λ_f を算出する。

3. 測定検証

3.1 検証内容

本測定方法では、(5)式に示す複合則を応用させた計算式を用いることから、計測値の違いが、計算式上の誤差として拡大される可能性がある。特に(5)式は、分數式であることから、分母と分子の値のばらつきが、測定対象の熱伝導率算出結果に大きく影響すると考えられる。そ

ここで、本章では、測定値のばらつきを低減するべく、以下の項目について検証を行った。

- ・測定対象とベースプレートを複合体として測定するとき (Fig. 3(b)の状態) の設置方法について
- ・ベースプレートの材質・厚さ仕様について

なお、検証に用いたエアロゲル複合断熱材サンプルは設計厚さ 0.5mm のもの (1 種類) であり、以降、特別な記載がないものについては、すべて本サンプルで検証した結果である。HFM では、熱板と冷却板の中央を中心に、Fig.2 に示す□105 (mm)の熱流計トランスデューサが設置されている。したがって、熱流計トランスデューサを覆うよう、サンプル、ベースプレートについては、□120 (mm)サイズのを準備した。測定環境としては、周囲温度 24℃、湿度 48%に制御されたアクリルケース内にて測定した。Fig.4 に測定装置を示す。

Fig. 4 Measurement environment of thermal conductivity

3. 2 複合体設置方法の検討

Fig. 5 に示す不織布にエアロゲルを複合した断熱材を、熱板・冷却板に直接設置すると、接触部における不織布表面の凹凸による、測定結果への影響が大きいと考える。

Fig. 5 Sectional image of non-woven used in thermal insulation material

そこで本取組みでは、Fig.6(a)に示す、ベースプレートと試験体を直列配置し、試験体と熱板が接触するようにした Serial method と、同図(b)に示す、ベースプレートで試験体を挟み、試験体と熱板が接触しないようにした Sandwich method の2種の方法に対し、繰返し5回の熱伝導率測定を行い、測定値のばらつきを評価することにより方法を選択した。ベースプレートの材料については、次節 Fig.8(c)に示す押出法ポリスチレンフォームを用いた。

Fig. 7(a), (b)にそれぞれ、Serial method、Sandwich method

Fig.6 Evaluation of installation method

の測定結果を示す。同図(a)に示す Serial method の結果では、最大値と最小値の差が $0.0024 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ であるのに対し、同図(b)に示す Sandwich method の結果では、最大値と最小値の差が $0.0009 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ と格段に小さい。また、この差は、HFM の機器精度ばらつき $\pm 3\%$ (カタログ値) を考えると、サンプルの熱伝導率が $0.020 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ であるとした場合のばらつきが $\pm 0.0006 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ (差 $0.0012 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$), ばらつき $\pm 2.1\%$ に収まっており、精度よく繰返し再現性が確保できているといえる。よって、本研究では、ベースプレートと断熱材の複合体の設置方法について、Fig.6(b)に示す Sandwich method を採用する。

(a) Serial method

(b) Sandwich method

Fig. 7 Results of reproducibility of thermal conductivity measurement

3. 3 ベースプレート仕様の検討

3. 3. 1 検討内容

ベースプレートの選定においては、(5)式の計算におけ

る試験体の厚みや熱伝導率に、ばらつき等の影響を及ぼさず、安定した測定が維持できる材質、厚みのものを検討する必要がある。本研究では、上記を実現できるベースプレート材を選択するため、以下に示す、異なる厚みを持つ3材料を候補として挙げ、検討を行った。

- 候補1. アオキ産業(株)製 ニードルフェルト(フェルト材) 厚さ 10mm×2枚, 15mm×2枚
- 候補2. (株)キョーリン製 発泡スチロール(ビーズ法ポリスチレンフォーム) 厚さ 10mm×2枚, 15mm×2枚
- 候補3. (株)カネカ製 カネライトフォーム(押出法ポリスチレンフォーム) 厚さ 10mm×2枚, 20mm×2枚, 30mm×2枚

Fig. 8 に各材料の概観を示す。

Fig. 8 Overview of base plate candidates

前節でも用いた設計厚さ 0.5mm のエアロゲル複合断熱材を対象サンプルとし、測定を行った。ここで上記3材の材質、厚みを選定するための評価の指針としたのは、以下3点である。

- (1) 繰返し測定時の熱伝導率、厚みのばらつきの大きさ
- (2) 熱流計法の規格である JIS A1412-2 に示される“熱抵抗値条件”を満たしているか。
- (3) (5)式で得られた熱伝導率の計算値が、規格に基づいて測定された試験体の基準値とかけ離れていないか。

3. 3. 2 繰返し測定時のばらつき評価

Fig.8 に示した、それぞれ厚みの異なる3種のベースプレート候補を用い、繰返し測定におけるばらつきの評価を行った。(5)式において、最終的に求める試験体の熱伝

導率に影響する“ベースプレート単体のばらつき”と“ベースプレートと試験体の複合体のばらつき”それぞれに対し、各部材、各厚みごとに n=3 (回)、熱伝導率と厚みを測定した。厚みは、HFM での Hot plate 下降時の押圧(4.08 kPa)にて自動計測された値を記録している。試験体については、前章の評価でも用いた設計厚み 0.5mm のエアロゲル複合断熱材サンプルを用いた。

ここでは、“熱伝導率”と“厚み”の両方のばらつきを評価しなければならない。したがって、本取組みでは、上記の両者のばらつきを評価する指標として、(6)式を導入した。

$$Dispersion = \sqrt{\frac{\sum (t - \bar{t})^2}{3}} \times \sqrt{\frac{\sum (\lambda - \bar{\lambda})^2}{3}} \quad (6)$$

ここで、 t は厚み、 λ は熱伝導率を示す。(6)式を用いてまとめた“ベースプレート単体”の各材料のばらつきを Table1 に示す。同表の結果より、ビーズ法ポリスチレンフォーム 10mm×2枚、押出法ポリスチレンフォーム 10mm×2枚、20mm×2枚のばらつきが小さく、ベースプレート材として期待される。

同様にまとめた“ベースプレートと試験体の複合体”のばらつきを Table 2 に示す。同表の結果より、各材料について厚みが厚くなるほど、誤差が大きくなっている。これより、ベースプレートの厚みは、可能な限り薄い方が良いものと考えられる。但し、本検討により、ばらつきが異常に大きいものは見つからず、どの材料、厚みのものについても適用できる可能性が残った。

3. 3. 3 JIS 規格における熱抵抗条件の検討

JIS A 1412-2 には、熱流計法の測定方法が適用できる非硬質試験体の熱抵抗値として、 $0.5 \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ 以上であれば問題がないと規定している。本取組みでは、この熱抵抗値の視点で、前節にて測定した、ベースプレート単体、ベースプレートと試験体の複合体がそれぞれ条件に適合しているか検討した。Fig. 9 にベースプレート単体の熱抵抗と熱伝導率の関係を、Fig. 10 にベースプレートと試験体の複合体の熱抵抗と熱伝導率の関係を示す。Fig. 9, 10

Table1 Dispersion among several evaluated materials for base plates (Based on Eq.(6))

	Felt 10mm×2	Felt 15mm×2	Bead Poly. 10mm×2	Bead Poly. 15mm×2	Ext. Poly. 10mm×2	Ext. Poly. 20mm×2	Ext. Poly. 30mm×2
Dispersion	4.234E-07	2.272E-07	1.176E-08	1.018E-08	3.849E-09	1.176E-08	1.484E-07

Table2 Dispersion among several evaluated materials for base plates and test sample (Based on Eq.(6))

	Felt 10mm×2	Felt 15mm×2	Bead Poly. 10mm×2	Bead Poly. 15mm×2	Ext. Poly. 10mm×2	Ext. Poly. 20mm×2	Ext. Poly. 30mm×2
Dispersion	2.146E-07	2.839E-07	4.807E-08	1.176E-07	3.111E-08	9.051E-08	3.625E-07

より、フェルト 10mm×2 枚とビーズ系ポリスチレンフォーム 10mm×2 枚は、JIS に示される熱抵抗値の下限とほぼ同値であり、安定した測定のためにはもう少し熱抵抗が大きい方が望ましいと考える。また、Fig.11 に、(5)式を用いた試験体の計算上の厚みと熱伝導率を示すが、フェルト 10mm×2 枚、15mm×2 枚、ビーズ系ポリスチレン 10mm×2 枚では、設計厚み 0.5mm の試験体に対して厚みが過小評価されている。これは、HFM 測定時の上板(Hot Plate)の押圧(4.08 kPa)により、ベースプレートが圧縮され(元の厚さを維持できず)、計算された試験体の厚みがマイナス側に誤差を多く含んだからであると考えられる。なお、本測定用試験体の実質厚みは、デジマチックインジケータ((株)ミツトヨ製 ID-H530 押圧 5.00 kPa)で測定の結果、 $t=0.492$ (mm)であった。

Fig.9 Relationship between thermal resistance and thermal conductivity(Base plate)

Fig.10 Relationship between thermal resistance and thermal conductivity(Base plate and test sample)

同図を用いた同様の観点から、押出法ポリスチレンフォーム 20mm×2 枚、30mm×2 枚は厚みが過大に評価されており、これにより、他と比べて試験体の熱伝導率が大きめに評価されているものと考えられる。よって、厚みが 0.5mm より少し小さい値で測定できている、ビーズ系ポ

Fig. 11 Relationship between calculated sample thickness and thermal conductivity

リスチレンフォーム 15mm×2 枚、押出法ポリスチレンフォーム 10mm×2 枚がベースプレートとして有望視される。

3. 3. 4 熱伝導率の基準値との比較検証

第 1 章に示した通り、こうした薄くて熱伝導率の小さい材料の熱伝導率測定方法は国際的に議論されている段階であり、規格に基づき測定された“基準値”を明確にすることが難しい。そこで、本取組みでは、測定対象サンプルと同ロットで製造した設計厚 0.5mm のエアロゲル複合断熱体を 10 枚、20 枚、30 枚と複数枚重ねたもののうち (Fig. 12)、JIS 規定の熱抵抗値条件($R=0.5 \text{ m}^2 \cdot \text{K/W}$ 以上)を満たす厚みで測定した時の熱伝導率を基準値と定義した。

Fig.12 Schematic diagram of measurement of thermal conductivity of plural sheets

前項まででベースプレート候補に挙げたビーズ系ポリスチレンフォーム 15mm×2 枚、押出法ポリスチレンフォーム 10mm×2 枚に対し、上記基準値との比較を行った。Fig.13 に、(5)式を用いて算出したベースプレート材による試験体の熱伝導率算出結果と厚みの関係を、Fig.14 に同製造ロットのエアロゲル複合断熱材を複数枚重ねて測定した熱伝導率と測定厚みの関係を示す。複数枚測定の結

Fig.13 Calculated thickness and thermal conductivity of test sample

果(Fig. 14)より、JIS1412-2 に規定の熱抵抗条件を満たしているのは 30 sheets のみであり、この時の熱伝導率は $\lambda=0.01853 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ である。Fig. 13 において、この熱伝導率の近辺には、押出法ポリスチレンフォーム 10mm×2 枚の結果があり、このベースプレートによる測定が、基準値に近い測定値を得ることができると言える。したがって、押出法ポリスチレンフォーム 10mm×2 枚をベースプレートとして確定する。

4. 拡張性検証

以上にて、サンプル厚さ 0.5mm のエアロゲル複合断熱材の測定方法の検討を行った。本章では、本手法が他の厚さの断熱材の評価にも適用できるかの検証を行った。

3. 2 節と同様の方法にて、設計厚み 1.0mm のサンプルを 1 種準備し、前章で確立した押出法ポリスチレン 10mm×2 枚をベースプレートとして、 $n=5$ (回)の繰返し再現性評価を行った。測定・算出結果を Fig.15 に示す。繰返し時のばらつきは $0.0008 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ であり、厚さ 0.5 mm の時と同様にばらつきの小さい測定が出来ていると考える。本手法は、設計厚み 1.0mm の断熱材にも適用可能である。

5. 結言

1 mm 厚以下の薄く熱伝導率が低い ($\lambda=0.02 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ 以下) エアロゲル複合断熱材の熱伝導率測定方法について検討した。本研究にて得られた結論を以下に示す。

- ・ベースプレートで試験体を挟む方法(Sandwich method)にて機器の仕様に収まる精度(5 回の繰返し再現性試験

Fig.14 Measurement results of sample thickness and thermal conductivity with thermal resistance of plural sheets

Fig.15 Evaluation of reproducibility of measurement of thermal conductivity for test sample of t1.0mm

にて $\pm 2.1\%$)での測定が可能である。

- ・押出法ポリスチレン(カネカ製カネライトフォーム) 10mm 厚をベースプレートとする測定にて良好な精度が確認できた。
- ・厚さ 0.5mm~1.0mm のエアロゲル複合断熱材の熱伝導率測定に適用可能である。

今後は、同様形状の種々断熱材の測定評価を行い、本手法の適用可能範囲の検討を進める。

参考文献

- [1] S. S. Kistler ; "Coherent expanded aerogels and jellies." Nature **127** (1931) 32112.
- [2] パナソニック(株)Homepage; 「業界最薄 厚さ 100 μm の高性能断熱シート NASBIS(R)を開発、量産化」、2015 年 7 月現在.
- [3] 菊池裕介; 「低熱伝導率材料の熱伝導率測定方法の標準化」にかかる北米動向調査報告」, 建材試験情報, **5** (2013) 20-24.
- [4] Erich NETZSCH GmbH, "Heat Flow Meter-HFM 436 Lambda", (2013).
- [5] 藤井太一, 座古 勝; 「複合材料の破壊と力学」, (1978) 10, 実教出版.

[Received Nov. 4, 2015, Accepted Mar. 3, 2016]