【論文】

レーザフラッシュ法による積層試料の
熱拡散率解析法の開発Development of the Analysis Method of the Thermal Diffusivity of
Multi-layered Sample by Laser Flash Method

細野和也* 西剛史** 太田弘道**

Kazuya Hosono, Tsuyoshi Nishi, and Hiromichi Ohta

高温域を含む積層試料の熱拡散率測定を目的として、試料表裏面から放射損失がある条件で試料温度式をラプラス空間で導き、得られた解を用いて積層試料の熱拡散率をラプラス空間で最小二乗法にて決定する方法を検討した。具体的には、熱拡散率と放射損失を表すビオ数を独立変数として解析する方法（直接法）とまず実空間における試料裏面温度低下の減衰時定数を求めて、この値を用いて両者を導出する方法（時定数法）を取り上げ、両方法とも解析対象層の熱拡散率を求められることを精度評価により実証した。また直接法の場合、短い測定時間で熱拡散率解析が可能であることを確認した。

In order to measure the thermal diffusivity of multi-layered material by a laser flash method, analyzing method of the thermal diffusivity of any layer was investigated using the multi-layered sample temperature equation obtained in the Laplace space under the radiation loss. First method is a search of a root-mean-square deviation minimum in the Laplace space under the condition that the thermal diffusivity and the Biot number are independent variable (Direct method). Second method is a method to search the minimum under the condition that the theoretical cooling time constant equals to the cooling time constant of the measured temperature data of real space (Cooling time constant method). It was confirmed that it is possible to determine the thermal diffusivity and Biot number by both methods and the thermal diffusivity can be analyzed by Direct method using data in short measurement time.

[Keywords: flash method, multilayer material, thermal conductivity, thermal diffusivity, biot number]

1. はじめに

工業材料の熱伝導率測定に高精度、簡便性、短時間測定等の利点があるレーザフラッシュ法が多く使用される。この手法では、均質、緻密、不透明な単層材料の他に基材表面に遮熱コーティングを施した2層材や、断熱材等によく見られるポーラスな材料の表裏面に不透明な膜材を貼り付けた3層材の研究が多くなされている[1-7]。これらの多くは、2層材あるいは3層材の特定層の熱拡散率を試料表裏面からの放射損失が無視できる室温付近での測定を対象としている。しかし実際には、放射損失が無視でき

ない高温域での測定の必要性も高い。

Baba[1], Akoshima ら[2]は積層試料の熱拡散率を実時間の試料温度応答を用いて解析する面積熱拡散時間法を開発した。また、これらの手法を用い熱放射の影響も考慮した解析法は、2010年 JISH8453「遮熱コーティングの熱伝導率測定方法」の附属書として、また2016年2月に ISO18555 として制定されている。熱放射を考慮したこれらの面積熱拡散時間法は放射損失がない場合の多層材理論式の解を、従来の単層の熱放射を考慮した理論解に基づく補正法[8-9]と同様の方法で補正している。この方法は各層の熱物性値が大きく異なることがない場合は正しいが、各層の物性値が大きく異なる場合には単層の場合と温度分布が変わってくるため誤差が生じることが懸念される。本論文では高温での測定で問題となる試料表裏面からの放射損失を考慮したラプラス空間における解析法を取り上げ、試料理論温度式の導出とその温度式を用いたレーザフラッシュ法による積層試料の熱拡散率の精度について

* 茨城大学工学部理工学研究科 博士後期課程, 〒316-8511 日立市中成沢町4-12-1. Graduate School, Department of Material Engineering, Ibaraki University, Hitachi 316-8511
FAX: 0836-51-7165 E-mail: hosono@jutem.co.jp

** 茨城大学工学部マテリアル工学科, 〒316-8511 日立市中成沢町4-12-1.
Dept. of Materials Engineering, Ibaraki University, 4-12-1 Nakanarusawa-cho, Ibaraki, 316-8511.

検証した。

2. 試料温度式および解析法

本項では、放射損失がある場合の積層試料裏面の温度式をラプラス空間で導き、この結果を用いて積層試料の熱拡散率解析方法を示す。

2.1 試料温度式

定常温度 T_0 から加熱光照射に伴う温度変化を T とし、試料表裏面から放射損失がある場合の積層試料裏面温度式を導く。この際、各層間には熱抵抗が無いものとする。層の数を n 、加熱光が照射される側を表面 $x=0$ 、各層を添え字 i 、層の厚さを dl_i 、各層の右端の x 座標を L_i 、試料全体の厚さを L_n 、試料に吸収されたレーザー光の熱流束を $Qf(t)$ 、試料表裏面からの放射損失を表わす無次元のビオ数をそれぞれ B_{i0} 、 B_{i1} とする。

Fig. 1 Thermal conduction model

各層の温度の微分方程式、初期条件、境界条件式を Eq(2.1) ~ Eq(2.12) に示す。

第 1 層

$$\frac{\partial T_1}{\partial t} = \alpha_1 \frac{\partial^2 T_1}{\partial x^2} \quad (2.1)$$

$$T_1(x, 0) = 0 \quad (2.2)$$

$$\frac{\partial T_1(0, t)}{\partial x} = -\frac{Qf(t)}{k_1} + \frac{B_{i0}}{L_n} T_1(0, t) \quad (2.3)$$

$$T_1(L_1, t) = T_2(L_1, t) \quad (2.4)$$

$$k_1 \frac{\partial T_1(L_1, t)}{\partial x} = k_2 \frac{\partial T_2(L_1, t)}{\partial x} \quad (2.5)$$

第 i 層

$$\frac{\partial T_i(x, t)}{\partial t} = \alpha_i \frac{\partial^2 T_i(x, t)}{\partial x^2} \quad (2.6)$$

$$T_i(x, 0) = 0 \quad (2.7)$$

$$T_i(L_i, t) = T_{i+1}(L_i, t) \quad (2.8)$$

$$k_i \frac{\partial T_i(L_i, t)}{\partial x} = k_{i+1} \frac{\partial T_{i+1}(L_i, t)}{\partial x} \quad (2.9)$$

第 n 層

$$\frac{\partial T_n(x, t)}{\partial t} = \alpha_n \frac{\partial^2 T_n(x, t)}{\partial x^2} \quad (2.10)$$

$$T_n(x, 0) = 0 \quad (2.11)$$

$$\frac{\partial T_n(L_n, t)}{\partial x} = -\frac{B_{i1}}{L_n} T_n(L_n, t) \quad (2.12)$$

ここで t は時間、 α は熱拡散率、 k は熱伝導率である。試料に吸収される単位面積当たりのエネルギーを Q 、熱流束を $Qf(t)$ とする。これらの式をラプラス変換・解析して試料裏面温度式 Eq(2.13) を得る。ラプラス変換した試料温度は上部に横バーを付す。

$$\bar{T}_n(L_n, p) = \frac{Qf(p)2r_n}{k_1 \left[\begin{aligned} & \left((r_1 + B_{i0}/L_n) \left(r_n - B_{i1}/L_n \right) \exp(-r_n L_n) S_{21} \right. \\ & + \left((r_1 + B_{i0}/L_n) \left(r_n + B_{i1}/L_n \right) \exp(r_n L_n) S_{22} \right. \\ & - \left((r_1 - B_{i0}/L_n) \left(r_n - B_{i1}/L_n \right) \exp(-r_n L_n) S_{11} \right. \\ & \left. \left. - \left((r_1 - B_{i0}/L_n) \left(r_n + B_{i1}/L_n \right) \exp(r_n L_n) S_{12} \right) \right] \right] \quad (2.13) \end{aligned} \right.$$

試料裏面温度式の各変数は、Eq.(2.14) ~ Eq.(2.20) により与えられる。

$$\begin{Bmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{Bmatrix} = \prod_{i=1}^{n-1} G_{i+1} = G_{12} G_{23} \dots G_{n-1n} \quad (2.14)$$

$$G_{i+1} = \begin{Bmatrix} (G_{i+1})_{11} & (G_{i+1})_{12} \\ (G_{i+1})_{21} & (G_{i+1})_{22} \end{Bmatrix} \quad (2.15)$$

$$(G_{i+1})_{11} = \left(1 + \frac{k_{i+1} r_{i+1}}{k_i r_i} \right) \frac{\exp(-r_i L_i + r_{i+1} L_i)}{2} \quad (2.16)$$

$$(G_{i+1})_{12} = \left(1 - \frac{k_{i+1}r_{i+1}}{k_i r_i}\right) \frac{\exp(-r_i L_i - r_{i+1} L_i)}{2} \quad (2.17)$$

$$(G_{i+1})_{21} = \left(1 - \frac{k_{i+1}r_{i+1}}{k_i r_i}\right) \frac{\exp(+r_i L_i + r_{i+1} L_i)}{2} \quad (2.18)$$

$$(G_{i+1})_{22} = \left(1 + \frac{k_{i+1}r_{i+1}}{k_i r_i}\right) \frac{\exp(+r_i L_i - r_{i+1} L_i)}{2} \quad (2.19)$$

ここに r_i はラプラス変数 p と i 層熱拡散率 α_i を用いて Eq.(2.20) で表される。

$$r_i = \sqrt{\frac{p}{\alpha_i}} \quad (2.20)$$

なお同式において加熱光を δ 関数、ビオ数を 0 とした式は放射損失が無い場合の馬場らによって求められているラプラス空間の試料裏面温度式[1]と一致することを 2～5 層材で確認した。

2.2 解析法

本研究では、解析対象以外の層については、従来法と同様に熱拡散率、密度、比熱容量、厚さを既知とし、解析対象層については密度、厚さ以外のこれらの値(熱拡散率と比熱容量)と放射損失の大きさを表すビオ数を未知として熱拡散率を導出する方法を検討した。これらの値のうちビオ数は副次的に得られる値であるが得られた値を精度検証のために示した。また実際に温度応答曲線の解析を行う場合には解析対象の層の物性値が導出される値に影響を与えることが予想される。この点を考慮して解析対象の層の比熱容量と得られる熱拡散率の値の関係についても検討を行った。比熱容量については熱拡散率との同時解析により精度の良い値が得られるかどうかについても検討を行った。

解析はラプラス空間で行う 2 つの方法により行った。具体的には、一つは対象層の熱拡散率、比熱容量、放射損失を表すビオ数を求めるものとし、これらを独立変数として解析する方法(直接法とする)、もう一つは実空間における試料裏面温度の低下領域の減衰時定数を求め、この値を既知として、ラプラス空間で熱拡散率、比熱容量を求める方法(時定数法とする)である。最小二乗法によりこれらの値を導出した。2 乗偏差 R は解析対象の熱拡散率、比熱容量とビオ数の関数であり、次式で与えられる。

$$R(\alpha_i, C_i, B_i) = \sum_j \left[Q \bar{T}_n(L_n, p_j) - E_j \right]^2 \quad (2.21)$$

ここに E_j は測定データをラプラス変換したものであり、ラプラス変数は次式により設定する。

$$p_j = \frac{pt_{\min} + (pt_{\max} - pt_{\min}) \times \frac{j}{(n_p - 1)}}{t_m} \quad j = 0 \sim n_p - 1 \quad (2.22)$$

$pt_{\min}$ ($=p_{\min} \times t_m$ at $j=0$) と $pt_{\max}$ ($=p_{\max} \times t_m$ at $j=n_p-1$) はラプラス変数 p と測定時間 t_m の積の最小値と最大値であり、その間に n_p 個のラプラス変数を設定する。この際、試料表裏面は同じ黒化処理して測定することが多いので、そのビオ数は等しいものとして共通ビオ数 B_i と定義した。

2 乗偏差 R を用いて $\partial R / \partial Q = 0$ とすることにより、Eq.(2.23) のレーザ光の単位面積当たりの試料に吸収された熱量 Q が得られる。

$$Q = \frac{\sum E_j \bar{T}_j}{\sum \bar{T}_j^2} \quad (2.23)$$

Q を Eq.(2.21) に代入することにより Q を含まない 2 乗偏差式が得られ、以下に示す直接法および時定数法解析に使用することができる。

(1) 直接法

直接法による解析の場合、解析対象層の熱拡散率、比熱容量、ビオ数を独立変数としてこれらを逐次設定して 2 乗偏差がより小さくなる組み合わせを探索し、2 乗偏差の最小値を与える変数の組み合わせが求める熱物性値となる。具体的には、比熱容量およびビオ数の初期値を複数設定し、これらの各組み合わせに対して 2 乗偏差を最小とする熱拡散率をニュートン法で求めると同時にその 2 乗偏差値を求め、この 2 乗偏差値がより小さくなるよう比熱容量とビオ数を複数再設定することを繰り返して解析対象層の熱拡散率、比熱容量、ビオ数を求める方法である。本方法は熱放射損失に伴う温度低下の減衰時定数を実空間で求める必要が無いので測定時間の制限が無くなり、裏面温度の立ち上がり部分のみのデータでも原理的に解析可能である。装置の長時間側における安定性が低かったり試料の熱拡散率が小さかったりする場合などで試料裏面温度の低下領域の安定が得られない場合に適した方法である。

(2) 時定数法

時定数法の場合、理論式 Eq.(2.13) より得られる理論時定数 τ_m と実空間試料裏面温度測定データの低下領域から得られる時定数 τ_m を等しくする付加条件のもとに 2 乗偏差最小値を探索し、解析対象層の物性値を求める方法であ

る。レーザ照射後の試料裏面温度が低下する領域では熱放射の寄与が支配的となるため、この領域のみを使って熱放射の大きさを見積もると精度が向上する。ラプラス空間において熱放射の影響を見積もる場合、ラプラス変換はレーザ照射直後のデータの重みが大きいためレーザ照射後の非常に長時間側まで解析しないと熱放射の影響が支配的にならない。一方実際の測定ではあまりに長時間の測定はレーザフラッシュ法の利点である断熱性や迅速性が損なわれるため避けられる傾向がある。このため、ラプラス空間の試料裏面温度式より実空間の温度低下の減衰時定数を求め、この値を実空間の温度低下の減衰時定数と比較して放射の影響を見積もり、比熱容量と熱拡散率についてはラプラス空間における最小二乗法で求める手法が時定数法である。

本方法の場合、理論時定数式が必要であり、以下で導く。試料表面を極短時間加熱した後、十分時間経過した後は加熱波形がどのようなものであれ試料全体がほぼ等温で低下するので、裏面温度は時定数 τ に従って低下 ($T_n(L_m, t) \propto \exp(-t/\tau)$) する。この時間領域におけるラプラス空間における試料裏面温度は Eq.(2.24) で近似される。

$$\bar{T}_n(L_n, p) \propto \frac{1}{[p + 1/\tau]} \quad (2.24)$$

ラプラス空間においては、時間が経過することはラプラス変数 p を小さくすることに対応する。試料裏面温度式 Eq.(2.13) をラプラス変数で展開し、式(2.24)との対応から理論時定数が得られる。2層材の場合の時定数を以下に示す。

$$\tau = \frac{\left[2 \left(\frac{k_1 dl_1}{\alpha_1} + \frac{k_2 dl_2}{\alpha_2} \right) + \frac{B_i}{L_2} \left\{ \left(\frac{dl_1^2}{\alpha_1} + \frac{dl_2^2}{\alpha_2} \right) (k_1 + k_2) + 2 dl_1 dl_2 \left(\frac{k_1}{\alpha_1} + \frac{k_2}{\alpha_2} \right) \right\} + \frac{B_i^2}{L_2^2} \left\{ dl_1 dl_2 \left(\frac{k_1 dl_1}{\alpha_1} + \frac{k_2 dl_2}{\alpha_2} \right) + \frac{k_1 k_2}{3} \left(\frac{dl_1^3}{\alpha_1 k_1} + \frac{dl_2^3}{\alpha_2 k_2} \right) \right\} \right]}{2 \left[\frac{B_i (k_1 + k_2)}{L_2} + \frac{B_i^2 k_1 k_2}{L_2^2} \left(\frac{dl_1}{k_1} + \frac{dl_2}{k_2} \right) \right]} \quad (2.25)$$

層数がより多い場合も同様の手順で時定数を求めることが可能である。

任意層数の場合も Eq.(2.25) 同様の時定数式が得られる

が、分子をビオ数 0 次項、分母をビオ数が 1 次の項までで近似すると任意層数に対して時定数近似式 τ_{app} として次式を得る。

$$\tau_{app} = L_n \sum_{i=1}^n \frac{k_i dl_i}{\alpha_i} \bigg/ [B_i (k_1 + k_n)] \quad (2.26)$$

この近似の精度を確認するために単層の場合について Eq.(2.25) および Eq.(2.26) に対応する式を求め比較する。同式において $\alpha_1 = \alpha_2$, $k_1 = k_2$, $dl_1 + dl_2 = L$ とすることにより単層の場合の時定数式 Eq.(2.27), Eq.(2.28) を得る。

$$\tau = L^2 \left(1 + B_i + \frac{B_i^2}{3!} \right) \bigg/ [\alpha (2 B_i + B_i^2)] \quad (2.27)$$

$$\tau_{app} = L^2 / [2 B_i \alpha] \quad (2.28)$$

近似時定数 τ_{app} の精度を Eq.(2.29) より求め図 2 に示す。これよりビオ数が 0.02 程度より小さい時、近似時定数式の精度は 1% より高いことが確認される。試料裏面から外部に放出される熱流束が $\varepsilon \sigma T^4$ に等しいものとする、概略 Eq.(2.30) が成立する場合にこの時定数近似式が適用可能と考えられる。ここで ε は放射率、 σ はステファンボルツマン定数である。

$$\frac{\tau_{app} - \tau}{\tau} = - \frac{B_i + \frac{B_i^2}{3}}{2 \left(1 + B_i + \frac{B_i^2}{3!} \right)} \quad (2.29)$$

$$0.02 > \frac{4 \varepsilon \sigma L_n T_0^3}{k_n} \quad (2.30)$$

Fig. 2 The accuracy of approximate cooling time constant τ_{app}

2.3 試料裏面温度データ

積層試料の解析方法検証のため、ここではひとつのモデルケースとして多層材のすべての層の物性値が等しい場合について検討を行った。具体的には図3に示す単層試料の裏面温度データを時間空間裏面温度式[10]を用いて作成し、これを同一物性値を有する積層試料の裏面温度データと考えると計算および解析を行った。裏面温度データの最後のデータの時間（測定時間 t_m ）は、特性時間（ $t_0=L^2/\pi^2/\alpha$ ；6ms）の20倍（ $t_m=20\times t_0$ ）であり、サンプリング周期 t_s は $10\mu s$ である。Eq.(2.3)のレーザから試料に吸収される熱流束 $Qf(t)$ は、加熱幅 1ms、三角波形（加熱開始と同時に所定の値で加熱開始し、その後、直線的に加熱が減少し加熱幅時間後に加熱が0となる）とした。

Fig. 3 Temperature response curve of rear surface calculated by [10]

2.4 ラプラス変数の設定

ラプラス空間における熱拡散率解析においては、使用する測定データ記録条件と理論式導出条件が一致することが理想である。しかし、現実にはいくつかの誤差要因が存在する。そのひとつは測定データの有限性である。ラプラス変換は無限時間における積分が含まれるため、有限時間の裏面温度データと無限時間応答に対する理論式を用いた比較が避けられない。図3の場合、測定時間は特性時間の20倍のデータであるが、解析に使用する試料裏面温度理論式は測定時間無限大に対応している。しかしこの問題はラプラス変数を大きな値とすることによって影響を抑えることができる。これより熱拡散率解析精度が高くなるラプラス変数の下限はデータ有限性により、また上限は時刻原点でのデータが取れないこと、加熱光を δ 関数近似する場合に生じる時刻原点のずれ等により規定される。このため、以下のような検討を行いラプラス変数の設定条件を

検討した。具体的には Eq.(2.31)の条件のもとに Eq.(2.22)によりラプラス変数を設定し、解析に用いる規格化時間 n_t （特性時間 t_0 を単位とした測定時間（ $n_t \times t_0$ ）までの裏面温度データ）とラプラス変数の関係を求めた。この際、ラプラス変数の適正值をより詳細に明らかにするために $pt_{\max}$ と $pt_{\min}$ の差を次式に示すように0.1と小さい値とした。

$$pt_{\max} = pt_{\min} + 0.1 \quad (2.31)$$

結果を図4に示す。解析に用いる規格化時間が長ければラプラス変数の設定許容範囲が広いが、短い規格化時間の場合には許容範囲が狭くなる。例えば試料厚さ 0.993mm の場合、解析に用いる規格化時間 $n_t=20$ の時 $10.1 \leq pt_{\min} \leq 114.8$ 、規格化時間 $n_t=3$ の時 $14.0 \leq pt_{\min} \leq 16.7$ 、規格化時間 $n_t=2$ の時 $pt_{\min}=16.0$ で熱拡散率解析精度が1%となる。試料厚さが厚いほど熱拡散率解析精度が1%となる $pt_{\min}$ の範囲は上限、下限とも広くなる傾向があり、試料厚さ 3.441 mm の場合、解析に用いる規格化時間 $n_t=20$ の時 $9.6 \leq pt_{\min} \leq 315.9$ 、 $n_t=1.5$ の時 $14.3 \leq pt_{\min} \leq 21.8$ となる。

Fig. 4 $pt_{\min}$ for obtaining α with an accuracy within 1%

解析に用いるラプラス変数の上限 $p_{\max}$ については時刻原点付近における測定データと試料温度理論式の差により決定され、実空間における最大の測定時間を t_m として t_m が特性時間の20倍以上の測定時間の場合、文献[11]による方法（ $8 \leq p \times t_m \leq 12$ ）より大きいラプラス変数が良いと考えられるが、解析に使用するデータ測定時間が短くなることが想定される場合には、 $p \times t_m = 14 \sim 16$ 程度に設定することが望ましいと考えられる。文献[11]はラプラス変数下限 $p_{\min}$ をデータ有限性に基づく誤差抑制の観点から設定され、ラプラス変数上限 $p_{\max}$ は実験・経験より設定され

ているが、データ点数 ($=t_m/t_s$) 200 点程度での検討であり、時刻原点誤差に起因する解析誤差を抑制するためラプラス変数上限を 12 程度の小さい値に設定されたのではないかと考えられる。これより特性時間当たりのサンプリングデータ数が少ないほど、ラプラス変数上限を小さくすることが望ましいと考えられる。

3. 解析結果

図 3 に示す単層試料裏面温度データを全ての層の密度、比熱容量、熱拡散率が同じ値を有する積層試料と想定し、2 層試料および 3 層試料を想定した直接法、時定数法の解析を行い、解析結果の図 3 で設定した物性値 (熱拡散率: $1.0E-4\text{m}^2/\text{s}$, ビオ数: 0.01) に対する誤差を求めた。比熱容量は本解析方法が解析対象でない層の比熱容量に対する相対的測定となるので解析対象でない層の比熱容量を 1.0kJ/kg/K としてこの値に対する誤差を求めた。また直接法を用いて解析に用いる測定時間を変更して解析精度との関係を調べた。解析においては解析対象層以外の層の熱物性値は既知とした。試料裏面温度データのラプラス変数の設定は Eq.(2.22)を用い、前項結果を元に $pt_{\min}=13$, $pt_{\max}=14$, $n_p=5$ とした。

3. 1 2 層試料第 1 層解析

図 3 のデータを 2 層試料と想定して第 2 層を熱物性値既知として第 1 層の熱物性値を解析した。時定数法および直接法による解析結果を図 5, 図 6 に示す。横軸は第 1 層厚さの全厚さに対する比 (dl_1/L) である。

Fig. 5 The accuracy of the thermophysical properties of the 1st layer (Cooling time constant method)

Fig. 6 The accuracy of the thermophysical properties of the 1st layer (Direct method)

熱拡散率解析精度が 5% より良い厚さ比は、時定数法で 10~95%, 直接法で 30~95% 付近となった。熱拡散率, 比熱容量, ビオ数の解析精度は、時定数法が直接法より高い。この理由として時定数法の場合、時定数の測定値と理論式を等しいとする条件のもとに二乗偏差最小値を探索するため、直接法に比較して精度が高くなると考えられる。

図 5 の時定数法による解析で第 1 層厚さが全厚さの 10% の場合における最小二乗法による解析例を図 7 に示す。同図には、ラプラス空間における解析前の試料裏面温度と解析後の試料裏面温度および解析結果を記載した。最小二乗法により求められるデータと実際の測定データを模擬して計算したデータから得られた値は良く一致している。

Fig. 7 An example of simulated data (Fig.3) and derived temperature response by the least square method (Cooling time constant method)

3. 2 3層試料第2層解析

図3のデータを3層試料と想定して第2層の熱物性値解析を行った。時定数法および直接法による第2層熱物性値解析結果を図8、図9に示す。横軸は第2層厚さの全厚さに対する比であり、第1層と第3層厚さは同一とした。

Fig. 8 The accuracy of the thermophysical properties of the 2nd layer
(Cooling time constant method)

Fig. 9 The accuracy of the thermophysical properties of 2nd layer (Direct method)

熱拡散率解析精度が5%より高い厚さ比は時定数法で5~90%、直接法で20~90%となった。ビオ数解析精度は時定数法で1~10%、直接法で10%~70%程度となった。熱拡散率、比熱容量、ビオ数の解析精度は、3(1)項に記載したように試料の温度低下部から熱放射損失を見積もるため、2層試料同様、時定数法が直接法よりも高い。

3. 3 解析に用いるデータ測定時間と精度

直接法は試料裏面温度データ低下の減衰時定数を使用しないので解析に用いるデータ測定時間を任意に設定可能である。3層試料第2層の熱物性値の解析精度の規格化時間に対する依存性を求めたものを図10に示す。第2層厚さを全厚さの50%とし、表裏面層厚さをそれぞれ全厚さの25%とした。解析に用いるデータ測定時間は特性時間($t_0=L^2/\pi^2/\alpha$)を単位とした規格化時間を用いた。

Fig. 10 The accuracy dependence on the data amount of the 2nd layer thermophysical properties

熱拡散率が5%より良い精度で得られる規格化時間は5以上となった。ビオ数が反映されるデータ測定時間領域は測定時間後方であり、測定時間が短くなるに従い、はじめにビオ数の精度が低下する。一方、熱拡散率および比熱容量特性は加熱直後の裏面温度立ち上がり領域に主に反映されるため、比較的短い規格化時間まで精度は低下しない。

3. 4 比熱容量の熱拡散率精度への影響

図3のデータを同じ密度、比熱容量、熱拡散率を有する3層試料と想定し、第1層および第3層厚さを0.8mm、第2層厚さ0.833mmとして第2層熱拡散率解析を行った。この際、第2層比熱容量を解析対象からはずして真値と異なる値に固定して第2層熱拡散率を解析し、この比熱容量の真値との誤差が第2層熱拡散率解析精度に及ぼす影響について調べた結果を図11に示す。

比熱容量を20%程度変化させても熱拡散率の値の変化は10%弱であり、比熱容量の熱拡散率解析に与える影響は小さいことが確認された。

Fig. 11 The relationship between the accuracy of the 2nd layer thermal diffusivity and the accuracy of the 2nd layer specific heat

(Cooling time constant method)

3. 5 比熱容量の同時解析

2層試料第1層解析結果は図5、図6にも見られるように dl_1/L が50%付近に比熱容量解析精度が悪くなる領域がある。この現象は以下に示すように2層材両層の特性時間 ($t_0=(dl_1^2/\pi^2/\alpha_i)$) が近い値を持つ時に生じる。試料裏面温度式 Eq.(2.13)において2層材で放射損失がない ($B_0=B_H=0$) ものとなすと Eq.(3.1)が得られる。

$$\bar{T}_2(L_2, p) = \frac{Qf(p)2}{k_1 r_1 \left[\begin{aligned} & \left(1 - \frac{k_2 r_2}{k_1 r_1} \right) \frac{\exp(+r_1 dl_1 - r_2 dl_2)}{2} \\ & + \left(1 + \frac{k_2 r_2}{k_1 r_1} \right) \frac{\exp(+r_1 dl_1 + r_2 dl_2)}{2} \\ & - \left(1 + \frac{k_2 r_2}{k_1 r_1} \right) \frac{\exp(-r_1 dl_1 - r_2 dl_2)}{2} \\ & - \left(1 - \frac{k_2 r_2}{k_1 r_1} \right) \frac{\exp(-r_1 dl_1 + r_2 dl_2)}{2} \end{aligned} \right]} \quad (3.1)$$

上式において各層の特性時間が等しい場合、 $r_1 dl_1 = r_2 dl_2$ となり裏面温度は Eq.(3.2)となる。

$$\bar{T}_2(L_2, p) = \frac{2Q}{(\rho_1 C_1 \sqrt{\alpha_1} + \rho_2 C_2 \sqrt{\alpha_2}) \sqrt{p} \sinh(r_1 dl_1 + r_2 dl_2)} f(p) \quad (3.2)$$

この式は2層材両層の特性時間が等しい条件が成立する時には最高上昇温度で規格化した裏面温度が比熱容量に依存しないことを表している。本論文の二乗偏差解析にお

いては、規格化した裏面温度を用いているので、比熱容量は求められないことになる。この条件は荒木ら[3]により試料の比熱容量の影響を受けずに2層材の一方の層の熱拡散率を測定するための条件 ($dl_1/\sqrt{\alpha_1} = dl_2/\sqrt{\alpha_2}$) として発表されている。本測定でも厳密に上記条件が成立しない場合でも、図4、図5に見られるようにこの条件に近い場合には比熱容量の解析誤差が大きくなる。3層以上の積層材の表面層あるいは裏面層の比熱容量解析においても、各層の物性値により同様の現象が生じることが考えられる。またこの方法は、解析対象外の層の熱容量に対する対象層の熱容量の比が小さい領域と大きい領域は解析誤差が大きい。こうした領域を避けると比熱容量の解析を行うことができる。図3のデータに対して内部層厚さの全厚さに対する比が20~70%程度で約10%の精度で解析することができた。

4. 結 論

レーザフラッシュ法を用いた積層試料の熱拡散率測定を想定して試料表裏面からの放射損失を考慮した試料裏面温度式をラプラス空間で導き、同式を用いて積層試料の熱拡散率解析を検討し、以下のことが明らかとなった。

1. 積層試料の熱拡散率の解析法として直接法および時定数法を取り上げ、両者とも積層試料の熱拡散率および放射損失を表すビオ数を解析できることを確認した。また時定数法のほうが直接法より熱拡散率、ビオ数の解析精度が高い。
2. 時定数法で使用する理論時定数式およびその近似式 Eq.(2.26)を積層試料に対して導いた。この時定数近似式の精度は、ビオ数が0.02より小さい時1%より高くなることを確認し、その概略の適用条件を求めた。
3. 直接法は時定数を使用しないため、短いデータ測定時間で解析可能であり、熱拡散率は特性時間の5倍程度以上の規格化時間で5%の精度向上が見込まれる。
4. 解析対象以外の物性値精度が解析対象層の熱拡散率精度に影響を及ぼす。一例として3層試料第2層の比熱容量設定誤差の第2層熱拡散率解析誤差に及ぼす影響を確認し、熱拡散率解析誤差は比熱容量設定誤差の半分程度となった。
5. 比熱容量同時解析は、比熱容量が解析不能な条件が存在する。この条件を避ければ測定を行うことができる。3層試料の内部層について解析を行い熱拡散率に比較して精度が悪いものの解析できることを確認した。

NOMENCLATURE

T_i	: i^{th} layer temperature, K
T_0	: steady state temperature, K
α_i	: i^{th} layer thermal diffusivity, m^2/s
C_i	: i^{th} layer specific heat capacity, kJ/kg/K
ρ_i	: i^{th} layer density, g/m^3
k_i	: i^{th} layer thermal conductivity, W/m/K
n	: number of layers
n_p	: number of laplace variables
$Qf(t)$	: absorbed heat flux from laser, W/m^2
B_{f0}	: Biot number of front surface
B_{r1}	: Biot number of rear surface
dl_i	: i^{th} layer thickness, m
L_i	: thickness(= $\sum dl_j$ $j=1 \sim i$), m
x	: coordinate, m
t	: time, s
t_0	: characteristic time (= $L^2 / \pi^2 / \alpha$), s
t_s	: sampling period, s
p	: laplace variable, $1/\text{s}$
r_i	: = $\sqrt{p/\alpha_i}$, $1/\text{m}$
τ_{th}	: cooling time constant by theory, s
τ_m	: cooling time constant of data, s
t_m	: maximum time of data acquisition, s
n_t	: number for t_m expression by t_0 unit (= t_m/t_0)
$pt_{\min}, pt_{\max}$	: constant for laplace variable setting
$p_{\min}, p_{\max}$	: minimum and maximum of laplace variable ($1/\text{s}$)
σ	: Stefan-Boltzmann constant, $\text{W/m}^2/\text{K}^4$
ε	: emissivity

参考文献

- [1] T.Baba;「Analysis of One-dimensional Heat Diffusion after Light Pulse Heating by the Response Function Method」, Jpn.J.Appl.Phys. **48** (2009) 05EB04.
- [2] M.Akoshima, T.Tanaka, S.Endo, T.Baba, Y.Harada, Y.Kojima, A.Kawasaki, F.Ono;「Thermal Diffusivity Measurement for Thermal Spray Coating Attached to Substrate Using Laser Flash Method」, Jpn. J. Appl. Phys. **50** (2011) 11RE01.
- [3] 荒木信幸, 牧野敦, 三原純;「レーザフラッシュ法による層状試料の熱拡散率測定における問題点」,第 9 回熱物性シンポジウム講演論文集 (1988) 179-182.
- [4] 早稲田嘉夫, 太田弘道, 柴田浩幸, 渡辺啓二, 中島敬治;「有限要素法によるレーザフラッシュ示差 3 層試料法を用いた液体の熱拡散率測定における熱損失の検討」,高温学会誌 **20** (1994) 104-112.
- [5] K.B.Larson, K.Koyama;「Measurement by the Flash Method of Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity in Two-Layer Composite

Samples」, J. Appl. Phys. Phys. **39** (1968) 4408-4416.

- [6] 細野和也, 堂園利憲;「レーザフラッシュ法による熱伝導率解析法」, 第 16 回熱物性シンポジウム講演論文集 (1995) 373-376.
- [7] 細野和也;「レーザフラッシュ法による黒化膜の熱拡散率測定」,第 28 回熱物性シンポジウム講演論文集 (2007) 211-213.
- [8] 高橋洋一, 安積忠彦, 菅野昌義;「レーザフラッシュ法熱拡散率測定法の改良 (I)」, 熱測定, **8** (1981) 62-66.
- [9] 太田弘道, 早稲田嘉夫;「レーザフラッシュ法によるボロンナイトライド及びサファイアの熱拡散率測定」, 窯業協会誌, **94** (1986) 295-299.
- [10] J.A.Cape, G.W.Lehman;「Temperature and Finite Pulse-Time Effects in the Flash Method for Measuring Thermal Diffusivity」, J.App.Phys. **34** (1963) 1909-1913.
- [11] 飯田嘉宏, 重田治彦;「任意加熱による熱物性値の測定法に関する研究」, 日本機械学会論文集 **47** (1981) 470-477.

[Received Oct .3, 2017, Accepted Jan.18, 2018]