非定常加熱による熱物性値の簡易測定*

姫野 修廣^{*1}, 日向 滋^{*1}, 梁取 美智雄^{*2}A Simple Method of Measuring Thermophysical Properties
by Stepwise Heating

Nobuhiro HIMENO, Shigeru HINATA and Michio YANADORI

A simple method of measuring thermophysical properties has been developed. Two square plates of a specimen are heated stepwise for a few seconds by a film heater which is placed between the plates. The resulting temperature history of the opposite surface, to which an aluminum foil is attached to make it have high thermal and electric conductivities, is measured by pressing separated C-A thermocouple wires against the surface. From a comparison between the measured and theoretical temperature histories, the thermal diffusivity, the specific heat and the thermal conductivity of the specimen can be determined automatically in a few minutes by a personal computer. To confirm the accuracy of this method, the specific heat and the thermal conductivity of Pyrex 7740 glass were measured and compared with the reported values. The results showed that the present method can be applied with reasonable accuracy of no more than 10%.

Key Words: Thermophysical Properties, Simple Measuring Method, Transient Heating Method, Stepwise Heating, Thermal Diffusivity, Specific Heat, Thermal Conductivity

1. 緒 言

近年数多くの物質に対して熱物性値の測定が行われているが、新材料や特殊材料を使用して熱設計する場合には、やはり自ら測定せざるを得ない。熱物性値の基本的な測定原理自体はある程度確立されており、特に短時間での測定が可能な非定常法に関しては、パルス加熱法⁽¹⁾、ステップ加熱法^{(2)~(7)}、周期加熱法⁽⁸⁾、連続(任意)加熱法^{(9)~(12)}など、数多くの方法が提案され研究されてきた。しかし、いざ自分で測定しようとする、高価な設備や熟練した測定技術が必要であったり、方法が複雑であったりして、やはり専門家に頼らざるを得ないのが現状のように思われる。

著者のうちの一人は現在石炭灰の有効利用を目的に高温用蓄熱材を開発しているが、その開発段階において作成した試料の熱物性値を測定する必要がある、過去の文献を参考に測定方法について検討した。しかし、初めて熱物性値の測定を行おうとする者にとって、文献に報告されている方法をそのまま適用するには上述のように種々の困難がある。文献(5)の討論の項にも

記されているように、物性値の測定は熟練した人でなければ良いデータが得られないという名人芸的な要素があり、特に温度測定にそうした傾向が強いようである。試料内の温度分布を熱電対で測定しようとするれば、試料を二つ割りにしその間に熱電対を挟み込むことになるが、その場合には、試料の接触熱抵抗や熱電対の位置的精度が問題になる。また試料の表面温度を測定しようとする、接合した熱電対をそのまま押し付けたのでは到底無理で、特別な工夫を凝らすか、ふく射温度計などの高価な装置を用いなければならない。

こうしたことがきっかけとなって種々の方法を検討した結果、これまで熱物性値の測定に携わったことがない者でも比較的手軽に温度伝導率と比熱を同時測定でき熱伝導率も同時に求められる簡易測定法を開発した。基本的な測定原理は小林らの非定常測定法^{(2)~(5)}に基づいているが、加熱源や温度測定法さらにデータ処理法に工夫を施し、測定の簡単化を行った。すなわち、高価な設備を必要としないで測定できるように加熱源をステンレスはくとするとともに、測定の難しい試料の表面温度を簡単な操作により比較的手軽に精度良く測定できるようにした。また、かつては大形計算機で行った理論計算も現在ではパーソナルコンピュータで容易に行えるようになっており、こうした計算機の高

* 平成3年5月31日 第28回日本伝熱シンポジウムにおいて講演、原稿受付 平成3年7月24日。

^{*1} 正員、信州大学繊維学部 (〒386 上田市常田3-15-1)。

^{*2} 正員、(株)日立製作所機械研究所 (〒300 土浦市神立町502)。

性能化を背景に、熱損失量等を事前に見積もることなくただ1回の測定データを入力するだけで熱物性値が短時間で自動的に求まるようにした。

本報では、この簡易測定法について、セラミックス系材料の標準試料であるパイレックスガラスの測定例をもとに、その詳細を報告する。

2. 測定理論

測定原理は、2枚の厚さの等しい平板状試料の間に膜状ヒータを挟み、これにステップ状あるいは方形波パルス状に電流を流して加熱し、このときの試料端面の温度変化を測定して、理論値との比較より熱物性値を算出しようというものである。測定データから熱物性値を求める具体的手順については4章で詳細に述べることにして、以下ではそのために必要な試料温度の理論解をまとめて示す。

2.1 ステップ加熱の場合の解析解 2枚の平板状試料は膜状ヒータにより接触面に対称にステップ状に加熱されるので、図1に示すような解析モデルについて考える。すなわち、一様温度 T_0 の無限平板の一方の面 ($x=l$) が熱流束 H でステップ状に加熱され、もう一方の面 ($x=0$) では一定の熱伝達率 h で熱損失があるものとする。このとき α を温度伝導率、 λ を熱伝導率、 $\theta = T - T_0$ とすると、基礎方程式および境界条件は以下ようになる。

(基礎方程式)

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} = \alpha \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} \quad \dots\dots\dots (1)$$

(境界条件)

$$t=0: \theta=0 \quad \dots\dots\dots (2)$$

$$t>0, x=0: \lambda \frac{\partial \theta}{\partial x} = h\theta \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$x=l: \lambda \frac{\partial \theta}{\partial x} = H \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、次の無次元量を導入し

$$\Theta = \frac{\lambda}{lH} \theta, \quad X = \frac{x}{l}, \quad F = \frac{at}{l^2}, \quad \alpha = \frac{hl}{\lambda} \quad \dots\dots\dots (5)$$

図1 解析モデル

ラプラス変換法により解析解を求めると

$$\Theta(X, F) = \frac{1 + \alpha X}{\alpha} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2[p_n \cos(p_n X) + \alpha \sin(p_n X)]}{p_n(\alpha + \alpha^2 + p_n^2) \cos(p_n)} \times \exp(-p_n^2 F) \quad \dots\dots\dots (6)$$

ここで p_n は次式の n 番目の根である。

$$p \tan p - \alpha = 0 \quad \dots\dots\dots (7)$$

このように平板内の無次元温度 $\Theta(X, F)$ は、熱損失の大きさを表す無次元量(ビオ数) α がパラメータとなっている。

また平板端面 ($X=0$) の無次元温度 $\Theta(0, F)$ は、式(6)で $X=0$ とおくことにより

$$\Theta(0, F) = \frac{1}{\alpha} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2}{(\alpha + \alpha^2 + p_n^2) \cos(p_n)} \times \exp(-p_n^2 F) \quad \dots\dots\dots (8)$$

のように求められる。

2.2 方形波パルスの加熱の場合の解析解 一方、時間 δ の間だけステップ状に加熱するいわゆる方形波パルス加熱の場合には、無次元温度 $\Theta_p(X, F)$ は、 $F_\delta = \alpha \delta / l^2$ とすると、重ね合わせの原理から、式(6)の $\Theta(X, F)$ を用いて次のように表すことができる。

$$\Theta_p(X, F) = \begin{cases} \Theta(X, F) & (0 < F \leq F_\delta) \\ \Theta(X, F) - \Theta(X, F - F_\delta) & (F_\delta < F) \end{cases} \quad \dots\dots\dots (9)$$

したがって、 $F \leq F_\delta (t \leq \delta)$ の場合には、式(6)と同じ形となり、 $F > F_\delta (t > \delta)$ の場合には、式(6)を代入して具体的な形に書き改めると

$$\Theta_p(X, F) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2[p_n \cos(p_n X) + \alpha \sin(p_n X)]}{p_n(\alpha + \alpha^2 + p_n^2) \cos(p_n)} \times [\exp(-p_n^2(F - F_\delta)) - \exp(-p_n^2 F)] \quad \dots\dots\dots (10)$$

このとき試料端面 ($X=0$) では

$$\Theta_p(0, F) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2}{(\alpha + \alpha^2 + p_n^2) \cos(p_n)} \times [\exp(-p_n^2(F - F_\delta)) - \exp(-p_n^2 F)] \quad \dots\dots\dots (11)$$

となる。

2.3 比熱の解析 以上の解析解より平板内の無次元温度分布を計算できるので、実験によりある時刻 τ における平板端面 ($x=0$) の有次元温度 $\theta(0, \tau)$ を測定すれば、 $\tau > \delta$ のとき(方形波パルス加熱終了後)、次のように比熱を求めることができる。

$$c = \frac{H\delta - \alpha \frac{l^2 H}{a} \int_0^{F_\delta} \Theta_p(0, F) dF}{\rho l \theta(0, \tau) \int_0^1 \frac{\Theta_p(X, F_\tau) dX}{\Theta_p(0, F)}} \quad \dots\dots\dots (12)$$

上式において、分子の第1項はヒータによる加熱量、第2項は試料からの熱損失量、また分母は試料内の平均温度を表し

ている。また $\tau \leq \delta$ の場合には、式(12)の分子の $H\delta$ を $H\tau$ で置き換えればよい。

ここでは特に $\tau > \delta$ の場合について、式(12)に式(10)、(11)を代入して、具体的な計算式を求めると

$$c = \frac{H\delta - \alpha \frac{l^2 H}{a} \cdot \left[\frac{F_\delta}{a} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2}{p_n^2 (\alpha + \alpha^2 + p_n^2) \cos(p_n)} [\exp(-p_n^2 F_\tau) - \exp(-p_n^2 (F_\tau - F_\delta))] \right]}{\rho l \theta(0, \tau) \cdot \left[\frac{\sum_{n=1}^{\infty} \frac{2\alpha}{p_n^2 (\alpha + \alpha^2 + p_n^2) \cos(p_n)} [\exp(-p_n^2 (F_\tau - F_\delta)) - \exp(-p_n^2 F_\tau)]}{\sum_{n=1}^{\infty} \frac{2}{(\alpha + \alpha^2 + p_n^2) \cos(p_n)} [\exp(-p_n^2 (F_\tau - F_\delta)) - \exp(-p_n^2 F_\tau)]} \right]} \quad (13)$$

となる。

3. 実験装置および測定方法

図2に実験装置の概略を示す。内径 300 mm、高さ 300 mm の真空容器内に、長さ 250 mm、内径 70 mm の円筒状加熱装置とその中央に試料台が設置されている。

円筒状加熱装置は、内径 70 mm、肉厚 5 mm のセラミックスチューブの外側に $\phi 1$ mm のクロム線(電熱線)を約 5 mm 間隔でらせん状に巻き付けたもので、その外側をグラスウールとアルミはくで覆って断熱してある。一方、試料台には、厚さ約 3 mm、断面 20 mm × 20 mm の 2 枚の平板状試料が、厚さ 20 μ m のステンレス製膜状ヒータを挟んでばねで圧着保持されている。膜状ヒータと試料の間には、シリコングリースを塗布した。また試料からの熱損失を低減するため、先をとがらせたガラス製のつめで試料を保持している。試料の加熱は、直流安定化電源により膜状ヒータに約 5~10 s ステップ状に一定電流を流し、上下対称に熱流束一定の条件で行った。電流のオン・オフはナイフスイッチにより行い、加熱熱流束は、膜状ヒータに流す電流と電圧をデジタルマルチメータで測定して求めた。

なお 2 章で述べたように、実験データから熱物性値を求める際には無限平板として解析するため、試料の縦横比について検討しておく必要がある。これについては、文献(3)、(5)でも報告されているが、本研究でも有限の大きさを持つ円板について温度変化の解析解を求め、無限平板との比較を行って理論的に検討した。その結果、本実験条件では縦横比がほぼ 7 以上であれば、無限平板として扱って差し支えないことを確認し、試料の寸法はこの結果をもとに決定した。また予備実験として、パイレックスガラスを試料に用い、厚さを一定(3 mm)にして、断面が 20 mm × 20 mm (縦横比 7) と 30 mm × 30 mm (縦横比 10) の場合について熱物性値の測定を行った。その結果、両者の間で求めた熱物性値に差異は認められず、本試料寸法では無限平板とみなしてよいことを実験的にも確認した。さらに、膜状ヒータに接続したリード線からの熱損失についても、リード線の径を変化させた場合および上

述の試料断面の大きさを変化させた場合の実験結果に差異が認められなかったことから、その影響が無視できることを確認した。ところで試料の表面温度測定は、本実験の測定精度に最も重要な影響を及ぼし、本研究でもこの点で最も苦労したが、簡単にしかも十分な精度で測定できる方法として以下の方法を用いることにした。すなわち、試料の端面に厚さ 15 μ m のアルミニウムはくをシリコングリースで張り付けて導電性をもたせ、これに未接合の径 70 μ m のクロメルアルメル熱電対を圧着する。この際、熱電対は絶縁管に通した後、電気シールドを兼ねたステンレス製支持管に固定し、2 本の熱電対を約 2~3 mm 離れた状態で試料面(アルミニウムはく面)に垂直に圧着する。熱電対の圧着は、マイクロメータヘッドにより微動調節しながら行った。こうして試料表面に接点を有する熱電対を形成し、その出力を直流重畳電圧補償器と直流増幅器を通して加熱による温度上昇分のみを増幅し、ステンレスヒータ両端の電圧とともにペンレコーダで記録した。通常、こうした方法を熱伝導率の良い金属以外の物質に用いると、熱電対からの熱損失の影響が懸念されるが、本研究では、ある程度の厚さのアルミニウムはくを張り付けて表面での熱伝導性を高め、これにより測温部での温度低下を低減している。実際、表面にアルミニウム蒸着した場合に比べて良好な結果が得られた。ただし、熱電対の径およびアルミニウムはくの厚さについては、今後さらに検討する余地がある。なおシリコングリースの層の厚さは測定の結果 5~10 μ m 程度であり、両者の熱容量と熱抵抗の影響は無視できる。ま

図2 実験装置の概略

Temperature

Heater Voltage

図3 試料(パイレックスガラス)の温度上昇曲線とヒータ電圧の測定例

たステップ加熱前の試料温度もこの熱電対を用いて測定したが、その場合には直流重畳電圧補償器を通さずに直接データロガーに接続し、装置内に数箇所取付けた他の熱電対の出力とともに計測した。

4. データ処理法と実験結果

本実験では試料端面の温度変化が測定データとして得られ、これと解析解を比較することにより熱物性値を求めるが、以下では、その具体的手順について説明する。

図3に、測定データの一例として、パイレックス(7740)ガラス(岩城硝子製)を試料としたときの、試料端面の温度上昇曲線と膜状ヒータ両端の電圧変化をペンレコーダで記録した例を示す。図3に示すように、 $t=0$ の時刻から δ の間だけステップ状に加熱する。測定原理上は単なるステップ加熱でもかまわないが、測定中の試料の温度上昇を小さく抑えるためにこのような加熱方法をとった。この温度上昇曲線から熱物性値を求めるためには、まず図3中に示す時刻 t_1 、 $t_{1/2}$ 、 τ の計3点の温度データを抽出する。ここで、 $t_{1/2}$ は t_1 の1/2の時刻、 τ は最高温度点近くの値とする。これらの点の選び方は文献(4)と同様であるが、本研究ではデータ解析の際に近似を全く行っていないので、 τ については任意の時刻で良く、最高温度点からずれていてもかまわない。

これら三つの時刻における温度の測定値から熱物性値を求める手順については、図4のフローチャートにまとめてあるが、最初に時刻 t_1 と $t_{1/2}$ における温度比から温度伝導率 α を求める。その方法は小林らの方法^{(2)~(5)}と同様であるので、詳細は省略し、ごく簡単に概要を述べると、式(8)または式(11)より、あるフーリエ数 F_1^* とその半分の値 $F_1^*/2$ における無次元温度

図4 物性値計算手順のフローチャート

の比を計算し、その値が実験で得られた温度比に一致するように F_1^* を定める。するとこうして定めた F_1^* は、 t_1 に対応したフーリエ数となっているので

$$\alpha = F_1^* l^2 / t_1 \quad (14)$$

のようにフーリエ数の定義式から逆算して温度伝導率 α を求めることができる。なお温度比から F_1^* を求める方法として、本解析では、 F_1^* の上限と下限を適当に定め、二分法により F_1^* の値を収束させて求めた。また、その際に用いる解析解は、熱損失の大きさを表す無次元量 α がパラメータとなっており、現時点では α の値は未知である。そこでとりあえず適当な α の値を仮定して計算し、後で繰返し計算により真の値を決定する。

こうして α の値を求めると、次に式(13)より、 α 、 a 、および時刻 τ における測定データを用いて比熱 c を計算する。熱伝導率 λ は、こうして求めた α と c より計

算することができる。

このように熱物性値がすべて定まると、式(5)で定義した無次元量と有次元量の間の変換関係が確定し、2章で求めた無次元温度の理論値と実験で得られた有次元温度とを直接比較することができる。ただし、仮定した α の値が正確でないと理論値と測定値は一致しない。本実験条件では、パイレックスガラスの場合 α の真の値は0.03程度であるが、図5では、 α の影響をみるために、 α が大きい場合($\alpha=0.1$)と小さい場合($\alpha=0.0001$)について無次元温度の形で理論値と実験値を比較している。図5中に示した白丸は実験値、実線が各 α の値に対応した理論曲線である。これら二つの場合で、実験データが同じであるにもかかわらずプロット点が異なっているのは、 α の値が異なるとそれから求まる熱物性値の値が異なり、そのため無次元化した値も異なってくるためである。なお、図5の横軸のフーリエ数がほぼ1近くのデータ点が、比熱 c を計算するときに用いた実験点であり、理論曲線は原理的に必ずこの点を通る。しかし、 α の値が大きいと熱損失量を過大に見積もることになり、図5にみられるようにフーリエ数の大きな領域で理論曲線は実験点よりも下側にくる。一方、逆に α の値が小さいと温度低下が小さくなり、フーリエ数の大きな領域では理論曲線は実験点よりも上側にくることになる。このように仮定した α の値が正しくない場合には、 α の大小により理論値と実験値との間に規則だった不一致がみられるので、この大小関係をもとに α の値を修正し真の値を計算することができる。具体的には、図4に示すように、二分法により α の値を修正し、その値を用いて再び α の計算に戻り、理論値と実験値が一致するまで以上の計算を繰り返す。なおこの計算ループにおいて、解析解の計算に必要な p_n の値は、 α の値が変化するたびに式(7)より計算しなおす必要があり、本解析では各繰返しループごとにニュートン法で10番めの根まで求めた。またデータ処理には、NECのパーソナルコ

ンピュータ PC 9801 RA 21 を用い、BASIC でプログラムを組んで行ったが、データ入力後約2 min 弱で計算が収束し、熱物性値がすべて求まる。

図6は、この計算収束後の理論値と測定値とを比較したものである。全域にわたって両者の一致は非常に良い。また図7は、本測定値の妥当性を確認するために、文献(13)で報告されているパイレックスガラスの比熱と熱伝導率を、本測定値と比較したものである。比較を容易にするため、図7中、文献(13)で報告されている値を破線で直線状に結んである。いずれも本測定値とは10%以内で一致している。なおパイレックスガラスはセラミックス系材料に対する標準標準材料として知られているが、必ずしも明確な熱物性値が報告されているわけではなく、文献(13)でも、10人近くの測定者による測定値をもとに熱伝導率の推奨値を提唱しているが、測定者によって値にかなりばらつきがあり、推奨値には $\pm 10\%$ 程度の不確定さがあるとしている。したがってこうした点を考慮すると、本測定結果は十分妥当であると考えられる。

このように本測定法では、事前に熱損失量を見積もることなく、単に試料面温度の測定を行うだけで、短時間のうちに十分な精度で熱物性値を求めることができる。しかも使用した装置は、ほとんどの研究室で備えているようなごく一般的な測定機器のみで、高価な設備は用いていない。もちろん精密な装置を用いればさらに精度の高い測定値を得ることは可能である。例えば、図7を詳細にみると熱伝導率 λ の測定値の再現性が必ずしも良くないが、これは図3に示すような温度波形から立上り(時刻 t_1 と $t_{1/2}$)のわずかな温度上昇量を読み取ってデータ処理しているためで、仮に低ノイズの増幅器を用い、その出力を直接計算機に取り込んで処理するようにすれば、測定精度はかなり向上するはずである。しかし、安価な装置でしかも簡略な測定操作だけで比較的精度の高い測定値が得られるといった点に本測定法の大きな特色があり、精度はともかく

図5 理論値に及ぼす α の影響

図6 計算収束後の理論値と実験値の比較

図7 パイレックスガラスの比熱と熱伝導率

低費用で迅速な測定が必要な場合、例えば、試料の組成にばらつきがあり物性値が一定しない場合や、設計上およその物性値を知りたい場合などに、本測定法は非常に有用であると考えられる。

本報では、パイレックスガラス以外に本測定法を適用した例を紹介する余裕がないが、石炭灰の焼結物を用いた高温用蓄熱材材料に本測定法を適用した結果、妥当な測定結果が得られ、蓄熱材開発上の有用な情報が得られたことを最後に報告しておく。

5. 結 言

高価な装置や熟練技術を要することなく、比較的手軽にしかも十分な精度で温度伝導率と比熱を同時測定でき、熱伝導率も併せて求められる簡易測定法を開発した。

本測定法によれば、かなり簡略な測定装置であっても、10%程度の精度で熱物性値を求められる。精密な測定装置を用いばさらに精度の高い測定値を得ることも可能であるが、安価な装置でしかも簡単な測定操作だけで比較的精度の高い測定値が得られる点に本測定法の大きな特色がある。したがって、試料の組成にばらつきがある場合や、設計上およその物性値を知りたい場合など、精密測定が必要でなく安い費用で迅速に測定したい場合に、本測定法は非常に有用であると考えられる。ただし、表面温度の測定に用いたアルミニウムはくす厚さと熱電対の径については、なお検討の余地があり、今後の課題と考えている。

なお本研究は、一部、中部電力電力技術研究所化学研究室のご援助をいただいたことを付記し、ここに謝意を表す。

文 献

- (1) Parker, W. J., ほか3名, *J. Appl. Phys.*, **32**-9(1961), 1679.
- (2) 小林・熊田, 原子力学会誌, **9**-2(1967), 58.
- (3) 熊田・小林, 原子力学会誌, **11**-8(1969), 462.
- (4) 小林・小林, 機論, **46**-407, B(1980), 1318.
- (5) 小林・高野, 機論, **48**-434, B(1982), 2062.
- (6) 片山・ほか2名, 機論, **34**-267(1968), 2012.
- (7) 片山・岡田, 機論, **35**-272(1969), 832.
- (8) Wheeler, M. J., *Brit. J. Appl. Phys.*, **16**-3(1965), 365.
- (9) 片山・ほか2名, 機論, **37**-298(1971), 1195.
- (10) 岡田・ほか2名, 機誌, **79**-688(1976), 247.
- (11) 飯田・重田, 機論, **47**-415, B(1981), 470.
- (12) 飯田・重田, 機論, **47**-424, B(1981), 2324.
- (13) Hulstrom, L. C., *Proc. 19th Int. Thermal Conduct. Conf.*, (1988), 199.