電磁超音波法による固体材料の熱拡散率と気孔率の研究*
(第1報, 基本原理に関する実験および検討)松島 栄次*¹, 沢 孝一郎*², 長島 昭*¹Thermal Diffusivity and Porosity of Solid Materials
by the Electromagnetic Ultrasonic Technique
(1st Report, The Principle of Measurement)

Eiji MATSUSHIMA, Koichiro SAWA and Akira NAGASHIMA

Carbon-carbon composites are important structural materials at high temperature. Their thermal properties and microscopic structures change with the temperature and the time required for heat treatment. It is expected that the thermal diffusivity and porosity show different values at every moment during heat treatment. The objective of this study is to evaluate the time dependence of the thermal diffusivity and porosity simultaneously using the electromagnetic ultrasonic technique. This report describes the principles of measurement of the properties and the experiment to confirm the principles separately at room temperature. The longitudinal ultrasonic velocities of aluminum and carbon brick in the evaluation of porosity are 6350 m/s and 2530 m/s with precision of $\pm 1.6\%$ and $\pm 0.4\%$, respectively. It was confirmed that the aluminum and the carbon electrodes were able to be heated by the electromagnetic ultrasonic transducer. The thermal diffusivity of carbon brick measures 8-9 mm²/s but the accuracy of measurement will have to be investigated using the standard material in the future.

Key Words: Thermal Diffusivity, Ultrasonic Velocity, Porosity, Electromagnetic Ultrasonic Technique, Composites, Carbon Electrode, Carbon Brick

1. はじめに

航空宇宙開発などにおける高温用構造材として、黒鉛や炭素繊維強化炭素複合材料(C/C複合材料)を適用することが考えられている。一般に、その機械的・熱的性質は、炭素化および黒鉛化処理工程(高密度化処理)に大きく依存することは良く知られている。しかし、Lachterら⁽¹⁾は、熱処理温度および熱処理時間のみによっても、ガラス状炭素材中の気孔寸法が変化することを報告している。このことから、炭素系材料の熱拡散率および気孔率は、熱負荷時に時々刻々変化することが考えられる。また、それらの経時変化を知ることは、材料の使用環境における機械的・熱的な寿命などを評価する上でも必要不可欠である。

本研究では、C/C複合材料の熱拡散率と気孔率の経時変化を調べることを目的とし、同一試料および同一状態においてそれらを同時測定する方法を開発する。そこで、我々は、超音波探傷装置として従来から用いられている電磁超音波探触子⁽²⁾⁽³⁾を、熱拡散率測定

における光加熱などにかわる表面加熱装置として応用することを考えた。つまり、電磁超音波法によれば超音波を発生するだけでなく、同時に誘導加熱することが可能であることを利用して、音速から気孔率の変化率を評価し、試料中の温度履歴から熱拡散率を測定しようとするものである。本報では、電磁超音波法の測定原理およびアルミニウムとC/C複合材料を模擬した炭素系材料に対して行った常温での音速と熱拡散率の測定法に関する実験について報告する⁽⁴⁾⁽⁵⁾⁽⁶⁾。

2. 電磁超音波法の測定原理

図1に、電磁超音波法による音速 v および熱拡散率 a の同時測定原理を示す。図1(a)は、基本的な測定系統図である。円盤状の導電性試料の上面近傍に置かれた渦巻コイル(発生コイル)にパルス電流 I_F を流すと、上面には、中心軸に対して同心円状の渦電流およびそれと直交するように中心軸から放射状に広がる電磁界が生ずる。それらの相互作用による軸方向のローレンツ力が超音波(縦波)の発生源となり⁽²⁾⁽³⁾、同時に、渦電流によるジュール熱が試料の発熱源となる。試料上面での内部発熱により、下面では温度応答 T_R が検

* 平成3年11月25日 91'熱工学部門講演会において講演、原稿受付 平成4年11月20日。

*¹ 正員、慶応義塾大学理工学部 (〒223 横浜市港北区日吉3-14-1)。

*² 慶応義塾大学理工学部。

出される。また、試料下面に伝播した超音波に、電磁石による中心軸から放射状に広がる磁界を作用させると、中心軸に対して同心円状の誘導電流が生ずる。その誘導電流が作る電磁界中に渦巻コイル(検出コイル)を設置することにより、超音波は電圧出力 V_R として検出される。

2・1 音速の測定原理 音速の測定には、基本的にパルス反射法⁽⁷⁾を用いる。図1(b)は、発生コイルに通電するパルス電流 I_F および超音波の理想的な検出波形 V_R である。電磁超音波は、時間 $t=0$ に単発のパルス電流を流すことにより、試料上面に発生する。このときの超音波の周波数はパルス電流のその2倍となる。超音波は、試料中を伝播し、下面において、時間 Δt_{R0} 後に第1波として検出される。その後、下面と上面で反射し、再び下面において時間 Δt_{R1} 後に検出される。以後、上下面で反射を繰り返し、数個の超音波が下面において検出される。ここで、試料上下面は自由端であり、反射によって超音波の位相がずれることはなく、検出された超音波の位相差が試料中を一往復する時間となる。したがって、音速 ν は、

$$\nu = \frac{2L_s}{\Delta t_{Rn}}, \quad n = 1, 2, \dots \quad (1)$$

となる。また、気孔率の変化率は、気孔の増加に伴って、超音波の音速が低下することを利用する超音波音速法⁽⁸⁾によって評価することができる。

2・2 熱拡散率の測定原理 図1(b)のように、周波数 f_F のパルス電流を繰り返し周波数 f_{FR} で断続的に通電すると、 f_{FR} が十分大きければ、試料下面での温度応答 T_R は、図1(c)のようになる。熱拡散率 a は、この温度応答から、加熱方法に誘導加熱を応用したステップ状加熱法⁽⁹⁾により測定される。その原理式には、Green 関数による一次元熱伝導方程式の解を用いる。厚み L_s の無限平板の厚み方向に z 座標をとると、 z 軸に垂直な任意の一面 ($z=z'$) に瞬間熱源 ($t=t'$) が発生する場合の一次元熱伝導方程式は、Green関数を G として、

$$\frac{\partial G}{\partial t} - a \frac{\partial^2 G}{\partial z^2} = \delta(t-t') \delta(z-z') \quad (2)$$

となる。ただし、 $t' \geq 0$ かつ $L_s \geq z' \geq 0$ であり、 $\delta(t)$ と $\delta(z)$ は、それぞれ時間と z 座標に関するデルタ関数である。また、境界条件は、 $z=0$ (試料上面) において、

$$\frac{\partial G}{\partial z} - \frac{h}{\lambda} G = 0 \quad (3)$$

$z=L_s$ (試料下面) において、

$$\frac{\partial G}{\partial z} + \frac{h}{\lambda} G = 0 \quad (4)$$

であり、初期条件は、

図1 電磁超音波法による音速および熱拡散率の同時測定原理

$$[G]_{t=0} = 0 \quad (5)$$

である。Carslawら⁽¹⁰⁾によれば、このときの試料内の温度履歴 (Green関数) は、無次元数を用いて、次式で与えられる。

$$G(Z_n, Fo, Z_n', Fo') = \frac{2}{L_s} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{A_k(Z_n) \cdot A_k(Z_n')}{(\beta_k^2 + Bi^2) + 2Bi} \exp\{-\beta_k^2 (Fo - Fo')\} \quad (6)$$

$$A_k(Z_n) = \beta_k \cos \beta_k Z_n + Bi \sin \beta_k Z_n \quad (7)$$

ここで、

$$Z_n = \frac{z}{L_s}, \quad Z_n' = \frac{z'}{L_s}, \quad Fo = \frac{at}{L_s^2}, \quad Fo' = \frac{at'}{L_s^2},$$

$$Bi = \frac{hL_s}{\lambda}$$

である。 h と λ は、試料表面での熱伝達率および試料の熱伝導率である。また、 β_k は次式の正根である。

$$\tan \beta_k = \frac{2\beta_k Bi}{\beta_k^2 + Bi^2} \quad (8)$$

1 : Pulse current generator, 2 : Transmitting coil, 3 : Sample, 4 : Solenoidal coil, 5 : Electromagnet, 6 : Direct current power supply, 7 : Current transformer, 8 : Receiving coil, 9 : Amplifier, 10 : Band pass filter, 11 : Digital storage oscilloscope. I_F : Pulse current, V_R : Detected voltage, D_s : Sample diameter, L_s : Sample thickness.

図2 音速測定の実験系統図

誘導加熱の場合、試料内での温度履歴は、内部発熱密度分布を $\omega(z', t')$ とすると次のようになる⁽¹¹⁾。

$$T(Z_n, Fo) = \frac{1}{\rho c} \times \int_0^{Fo} \int_0^1 G(Z_n, Fo, Z_n', Fo') \cdot \omega(Z_n', Fo') dZ_n' dFo' \quad (9)$$

ここで、 ρ と c は、それぞれ密度と比熱である。いま、Biot数および内部発熱密度分布が既知とすると、任意の2点の時刻の温度比は、熱拡散率のみの関数となる。したがって、熱拡散率は、図1(c)の時刻 Fo_1 と Fo_2 において測定される T_{R1} と T_{R2} の温度比が、式(9)によって計算される $T(1, Fo_1)$ と $T(1, Fo_2)$ の温度比と一致するように決定される。

3. 実験装置および方法

3・1 音速の測定 図2に、音速測定の実験系統図を示す。パルス電流発生装置は、高耐圧のコンデンサに充電された静電的エネルギーを球間隙のスイッチにより衝撃的に放電する方法を用いている。したがって、発生コイルに流れるパルス電流は、単発であり、その周波数は発生装置のコンデンサと発生コイルのインダクタンスによって決まる。パルス電流の波形は、発生コイルの低電位側に設置された電流検出器により

1 : Pulse current generator, 2 : Transmitting coil, 3 : Sample, 4 : Sample support, 5 : Current transformer, 6 : Thermocouple, 7 : Amplifier, 8 : Digital storage oscilloscope. I_F : Pulse current, T_R : Temperature at the rear surface, D_s : Sample diameter, L_s : Sample thickness.

図3 熱拡散率測定の実験系統図

電圧に変換され、デジタル・ストレージ・オシロスコープ(DSO)に記録される。検出側の電磁石は、中心軸から放射状に広がる磁界を発生できるような軸対称構造を炭素鋼で作成し、ソレノイド・コイルを中心極周囲に設置したものである。検出コイルは、電磁石の磁界発生部分に設置し、その出力電圧は、増幅器と帯域通過フィルタを介し、パルス電流の信号をトリガとして、DSOに記録される。表1に、パルス電流のピーク値と周波数および発生コイルと試料の寸法等を示す。試料は、アルミニウム圧延板材(JIS 5052P)とカーボン煉瓦を用い、その形状は、側面から反射する超音波の影響を少なくするために、横寸法の大きいものとした。

3・2 熱拡散率の測定 図3に、熱拡散率測定の実験系統図を示す。パルス電流発生装置は、4個のコンデンサに充電された静電的エネルギーを高速スイッチング・サイリスタにより衝撃的に直列接続し、放電する方法を用いている。したがって、発生コイルに流れるパルス電流は、断続的であり、その周波数は発生装置のコンデンサと発生コイルのインダクタンスによって決まる。パルス電流の波形は、発生コイルの低電位側に設置された電流検出器により電圧に変換され、DSOに記録される。試料下面での温度履歴は、今後高温測定を行なうことを考え、PR熱電対により測定し、増幅器を介し、パルス電流の信号をトリガとして、DSOに記録される。表1に、パルス電流のピーク値と周波数および発生コイルと試料の寸法等を示す。試料は、アルミニウム、発熱体用カーボン(POCO社 DFP-3-2)およびカーボン煉瓦を用い、その形状は円盤状あ

るいは板状である。パルス繰り返し周波数は、断続的な加熱が、試料表面の温度履歴に影響を与えないように、1kHz程度とする。

4. 実験結果および検討

4・1 音速の測定結果と検討 図4に、アルミニウム圧延板材に対するパルス電流 I_F と検出コイルの出力電圧 V_R の波形を示す。出力電圧として、0~25 μ sでは、本来、超音波の第1波が①の時点で検出されるはずであるが、パルス電流発生時の放電ノイズのために有意な信号は検出されなかった。その後、他の波に比

図4 アルミニウム圧延板材のパルス電流と検出コイルの出力電圧

図5 カーボン煉瓦のパルス電流と検出コイルの出力電圧

表1 実験条件

Experimental conditions		Measured properties	Ultrasonic velocity	Thermal diffusivity
Sample	Thickness [mm]		50.13~63.83	3.10~10.2
	Sectional dimension [mm]		φ200 or □200	φ30 or □30
Pulse current	Frequency [MHz]		0.119	0.92~1.27
	Repetition frequency [kHz]		Single	1.10
	Peak value [A]		240	5
Transmitting coil	Diameter of wire [mm]		0.5	0.2
	Number of turns		30	55
	Sectional dimension [mm]		φ70	φ30 or □30

べて大きな正側にピークを持つ信号がおおよそ 20 μ s 間隔で検出された。②の信号の周波数は、0.238MHzであり、パルス電流のその 2倍であることから、この信号は、超音波であると考えられる。②～⑤のピーク間の位相差から求められる音速は6420 m/sであり、そのばらつきは $\pm 1.6\%$ である。文献(7)によれば、アルミニウムの音速は6350m/sであり、本結果とは70m/s程の差がある。これは試料の組成、加工工程および熱処理の相違によるものと考えられる。

図5に、カーボン煉瓦に対するパルス電流 I_F と検出コイルの出力電圧 V_R の波形を示す。出力電圧として、0～45 μ sでは、本来、超音波の第1波が①の時点で検出されるはずであるが、パルス電流発生時の放電ノイズのために有意な信号は検出されなかった。その後、同じ周波数のパルス信号がおおよそ 40 μ s 間隔で検出された。これらの信号の周波数は、0.238MHzであり、パルス電流のその 2倍であることから、この信号は、超音波であると考えられる。②～⑤のピーク間の位相差から求められる音速は2530 m/sであり、そのばらつきは $\pm 0.4\%$ である。Reinhornら⁽¹²⁾によれば、焼結した炭素電極の音速は見掛けの密度によって2200～2600 m/s の範囲で変化する。カーボン煉瓦の結果は、その範囲にある。

なお、両図において、超音波の信号間に検出される波は、側面などからの反射波であると考えられる。

アルミニウムとカーボン煉瓦の測定値のばらつきの原因として、反射波の影響および超音波の波長に対する板厚の影響があり、両者のばらつきの差には次のような理由が考えられる。カーボン煉瓦中の波長は、アルミニウム中のそれに比べて短いため、発生コイルの直径に対して音圧が 1/2となる半減角⁽¹³⁾は、アルミニウムが 16° で、カーボン煉瓦が 6° であり、後者の指向性が強い。したがって、カーボン煉瓦の場合、アルミニウムに比べると、板厚方向にのみ反射を繰り返す超音波以外の反射波が発生し難いものと考えられる。また、カーボン煉瓦の場合、波長に対する板厚の比が大きく、超音波の信号は明確に分離された。以上のことから、音速の測定において、超音波の波長をできる限り短くし、カーボン煉瓦のように波長に対する板厚の比を 5程度にする必要がある。

4・2 熱拡散率の測定結果と検討 熱拡散率の測定の前に、誘導加熱に対する確認実験を行った。図6に、線径0.2mmの銅線を55巻きした外径30mmの発生コイルに流れる断続的なパルス電流の1波形を示す。そのパルス周波数、繰り返し周波数およびピーク値は、それぞれ1.27MHz、1.10kHzおよび5Aである。図7と8に

は、アルミニウムと発熱体用カーボンに対して、この断続的なパルス電流を方形波パルス状に通電した場合の試料下面での熱電対出力を示す。通電時間は、アルミニウムが約4sであり、発熱体用カーボンが約2sである。いずれの場合も、出力は、通電終了後一旦最大値に達し、下降する。また、発熱体用カーボンの出力は、アルミニウムに対して半分の通電時間で、おおよそ 2倍となった。

図6 断続的なパルス電流の1波形
(方形波パルス状加熱)

図7 アルミニウムの試料下面での熱電対出力
(方形波パルス状加熱)

図8 発熱体用カーボンの試料下面での熱電対出力
(方形波パルス状加熱)

発生コイル上面に絶縁テープを介して取り付けた熱電対の出力は、図7と8のそれに比べて微小だったこと、および熱電対出力に対する電磁界のノイズは高周波であることなどから、これらの出力は、試料の温度上昇であると考えられる。

その原因には、超音波加熱、発生コイルの抵抗発熱による加熱および誘導加熱が考えられる。一般に、電磁超音波の発生には、数百から数千Aのパルス電流が必要とされ、本実験のように、ピーク電流が5Aでは、微小な超音波が発生している可能性はあるが、超音波加熱できるほどのエネルギーを保有しているとは考えられない。また、発生コイルの抵抗発熱により試料が加熱される場合、その熱流束は、アルミニウムも発熱体用カーボンも等しいはずである。しかし、試料の体積において、アルミニウムとカーボンの熱容量⁽¹⁴⁾は、それぞれ5.3J/Kと9.2J/Kであり、カーボンの方が大きいにもかかわらず、熱電対の出力は発熱体用カーボンの方が大きい。さらに、前述のように、発生コイル上面での熱電対出力が微小であることから、抵抗発熱が微小であることは明かである。したがって、ピーク値5Aの断続的なパルス電流によりアルミニウムと発熱体用カーボンの試料が誘導加熱されているものと考えられる。

さて、ステップ状加熱法による熱拡散率の測定には、Fourier数が1以下での温度履歴が必要となる。しかし、アルミニウムおよび発熱体用カーボンについて、それぞれ試みたが、パルス電流のピーク値が小さいため、周囲の対流および熱電対の応答遅れなどの影響により十分な信号が得られなかった。これは、熱拡散率の大きな試料の場合、本装置では単位時間当たりの加熱量が小さいため、Fourier数が1以下となる時間内に大きな温度上昇量を得られないことが原因である。そこで、熱拡散率の比較的小さなカーボン煉瓦を試料として温度履歴を図9のように得た。熱電対の出力は、9秒間の加熱で、 $4.1\mu\text{V}$ であり、温度に換算すると0.55Kである。また、図10に、このときの断続的なパルス電流の1波形を示す。そのパルス周波数、繰り返し周波数およびピーク値は、それぞれ0.92MHz、1.10kHzおよび5Aである。このパルス電流によって試料上面に誘導される渦電流の分布は、浸透深さを持つ指数関数分布⁽¹⁵⁾である。内部発熱は、渦電流によるジュール発熱であるので、その大きさは渦電流の2乗に比例し、その浸透深さ δ は渦電流の1/2となる。炭素耐火物成形品の導電率⁽¹⁶⁾から計算される δ は、約1~2mmである。したがって、板厚に対する δ の比が大きいことから、試料下面の温度履歴に与える δ の影響を考慮して、

誘導加熱による内部発熱密度分布を次式のように定義する。

図9 カーボン煉瓦の試料下面での温度履歴 (ステップ状加熱)

図10 断続的なパルス電流の1波形 (ステップ状加熱)

図11 熱拡散率の時間依存性

$$\omega(z', t') = \omega_0 \exp\left(-\frac{z'}{\delta_l}\right) u(t') \quad (10)$$

$$\delta_l = (4\pi f_F \sigma \mu)^{-1/2} \quad (11)$$

ここで、 σ 、 μ および $u(t')$ は、それぞれ試料の導電率[S/m]と透磁率[H/m]および単位ステップ関数である。上式を式(9)に代入すると、

$$T(Z_n, F_0) = \frac{2\omega_0 L_s^2 D}{\rho c a} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\beta_k \cos \beta_k Z_n + B \sin \beta_k Z_n}{(\beta_k^2 + B^2) + 2Bi} \times \frac{\{\beta_k(1 + DBi) - \exp(-D^{-1})X_k\} \{1 - \exp(-\beta_k^2 F_0)\}}{\{1 + (\beta_k D)^2\} \beta_k^2} \quad (12)$$

$$X_k = \beta_k(1 + DBi) \cos \beta_k + (Bi - \beta_k^2 D) \sin \beta_k \quad (13)$$

$$D = \frac{\delta_l}{L_s}$$

となる。また、試料の温度上昇が微小であるため、周囲の対流による熱電対出力の変動が大きく、その影響をBiot数により考慮した。このとき、温度比は、熱拡散率、浸透深さおよびBiot数の関数となる。熱拡散率の算出において、内部発熱の浸透深さとBiot数の値は、熱拡散率の値が時間に対して、一定となるように選択した。

図11に、図9から求められる熱拡散率の時間依存性を示す。ただし、図11は、本来、時間に対して熱拡散率が一定となるべきものであり、物性値としての熱拡散率の経時変化を示すものではない。熱拡散率は、温度上昇量が微小であるため、ばらつきが大きい、およそ8~9mm²/sを中心として、時間に対して一定値に近づいている。文献(14)によれば、密度1579kg/m³のカーボン煉瓦の熱拡散率は7.81mm²/sであり、本実験の結果は、それよりも大きい。これは、本実験の試料の密度が1651kg/m³と、文献に比べて大きいためであると考えられる。

以上、誘導加熱によりカーボン煉瓦の熱拡散率を求めることに成功したが、その測定精度については、今後、標準試料により、浸透深さを含めて検討する必要がある。

4・3 同時測定のための検討 表1によれば、音速と熱拡散率の測定において最大の相違点は、試料の大きさとパルス電流のピーク値である。今後の高温測定および誘導加熱による発熱量とを考慮すると、同時

測定するには、試料の大きさを熱拡散率測定に用いた程度にする必要がある。その場合、音速を測定するには、超音波に対して、a)試料の厚みに対して十分短い波長、b)検出可能な強度、が必要となる。これらの条件は、熱拡散率測定におけるパルス電流のピーク値を100A程度にすることで満足できるものと考えられる。

5. 結 論

電磁超音波法による音速と熱拡散率の同時測定法について、常温において、それぞれの測定法に関する基本原理を検討する実験を行い、以下の結果を得た。
a)アルミニウムおよびカーボン煉瓦の音速を周波数0.238MHzの超音波により測定することに成功した。
b)アルミニウムおよび発熱体用カーボンについて、誘導加熱できることが確認され、カーボン煉瓦について、その熱拡散率を求めることに成功した。ただし、熱拡散率の測定精度は今後の検討課題である。

謝 辞

本研究の実験にあたり、パルス電流発生装置について、多くの貴重な助言をしていただいた本学電気工学科の岡部 豊氏ほか学生実験準備室の各位、そして実験を手伝ってくれた澤尻修成君と木田 剛君(本学学生)に深く感謝致します。また、この研究に要した経費の一部は、文部省科学研究費補助金(一般B No.02452128)によったことを記し謝意を表します。

文 献

- (1) J. Lachter, et al., Carbon, 25-6 (1987), 775.
- (2) K. Kawashima, J. Acoust. Soc. Am., 60-2 (1976), 365.
- (3) K. Kawashima, J. JSNDI, 30-10 (1981), 785.
- (4) E. Matsushima, et al., Proc. 11th Japan Symp. Thermophysical Prop., (1990), 163.
- (5) E. Matsushima, et al., Proc. 12th Japan Symp. Thermophysical Prop., (1991), 335.
- (6) E. Matsushima, et al., Proc. Thermal Eng. Conf., No.910-84 (1991), 26.
- (7) 日本非破壊検査協会編, 非破壊検査便覧, (1978), 356, 357, 日刊工業新聞社.
- (8) T. Mihara, et al., J. JSNDI, 36-3 (1987), 201.

- (9) K. Kobayashi, et al., J. Atomic Energy Society of Japan, 9-2 (1967), 58.
 - (10) H. S. Carslaw, et al., Conduction of Heat in Solids, 2nd edition, (1959), 360, Oxford University Press.
 - (11) 日本機械学会編, 伝熱工学資料改訂第4版, (1986), 12, 321, (株)丸善.
 - (12) G. Reinhorn, et al., Ultrasonics, 21-4 (1983), 167.
 - (13) 渡辺 正紀他著, 工業電子装置シリーズ10:非破壊検査装置, (1966), 179, 日刊工業新聞社.
 - (14) 日本熱物性学会編, 熱物性ハンドブック, (1990), 19, 30, (株)養賢堂.
 - (15) 熊谷 三郎他著, 工業電子装置シリーズ22:高周波加熱装置, (1966), 150, 日刊工業新聞社.
 - (16) 武井 武他著, 新しい工業材料の科学A-8:炭素と黒鉛製品, (1967), 42, 金原出版(株).
-