レーザフラッシュ法による低熱伝導性試料の 熱拡散率測定に関する研究* (受光板による測定条件の最適化と熱損失補正)

濱田 幸弘^{*1}, 熊田 雅弥^{*2}

Thermal Diffusivity Measurement of Low Conductivity Materials by Laser Flash Method (Optimization of the Measuring Condition Using A Front Shielding Plate and Correction of Heat Loss Effect)

Yukihiro HAMADA and Masaya KUMADA

In this paper, the modified laser-flash method (LF method) measuring thermal diffusivity of low conductivity materials is proposed. What is unique about this method is that the front shielding plate (FSP) is employed. FSP prevents superheating of the irradiated surface and stops the beam from transmitting through when sample is transparent. In order to calculate the thermal diffusivity, the equation describing the rear surface temperature response involving the heat loss effect is derived under assumption that the FSP temperature gradient is negligible because it is so highly conductive. An acrylic resin with copper and aluminum FSP was tested, and the measured thermal diffusivity agreed well with the recommended value in the literature. This modified LF method is useful for measuring high polymer materials such as resin or rubber, especially for the case that their thickness is greater than 2×10^{-3} m.

Key Words: Thermophysical Property, Heat Conduction, High Polymer Materials, Thermal Diffusivity, Laser Flash Method, Transparent Sample

1. 緒 論

ゴム・プラスチックなどの低熱伝導性高分子材料では、用途を問わずその熱物性値は重要な評価項目と位置づけられてきた。特に、最近、熱拡散率測定が重視される傾向にあるため、試料の多様性に合せて、いくつかの測定法が開発されているが⁽¹⁾⁽²⁾、すでに広く普及しているレーザフラッシュ法の適用が可能になれば、その意義は極めて大きい。しかし、この方法は、パルスレーザを試料に照射してその温度応答より決定するため、被照射面の過熱損傷やレーザ光の透過によって測定精度が著しく低下する恐れがある。薄い試料であれば、照射エネルギーを抑制し、透光性試料には遮光のためカーボンスプレー等を塗布することによって有用な測定結果を得ることは可能であるが⁽³⁾⁽⁴⁾、通常供給される2 mm以上の厚さの試料では、十分な温度応答を得るために照射エネルギーを大きくする必要があり試料の過熱や遮光被膜の飛散によるレーザ光の透過を防ぐことは難しい。また、熱損失の寄与を表すビオ数

は金属試料の100倍程度に達するので、雰囲気温度にかかわらず熱損失の影響を考慮する必要があることもその適用を困難にしている。

本報告は、室温でのレーザフラッシュ法の適用に当たり、被照射面に高熱伝導性の金属受光板を配置することによって過熱損傷とレーザ光の透過を防止することを図ったものである。このような二層試料において熱拡散率既知の層から未知の層の熱拡散率を求める方法に関しては、すでに測定条件の詳細な検討がなされており⁽⁵⁾、両者の熱拡散時間が等しければ、それらの比熱や密度の不確かさに影響されずに精度の高い測定が行えることが示されている。一方、受光板を必要とするほどの試料はその熱拡散率と熱伝導率が極めて小さく、受光板の温度こう配と接合層の熱抵抗という二つの要素が無視できると予想されるから、このことを積極的に活用すれば、二層材料であっても、温度応答が熱損失の影響を考慮にいたった形で比較的簡単に表現され、演算操作が容易で簡便な測定法の確立につながることが期待される。

受光板の使用は過去にも提案されているが、実測温度応答曲線とあらかじめ推定した熱損失パラメータにより計算した理論曲線との突合せにより2層めの熱伝導率を求める方法の提示のみであり、実際の測定には

* 平成5年5月27日 第30回日本伝熱シンポジウムにおいて講演、原稿受付 平成6年4月14日。

^{*1} 正員、名古屋市工業研究所 (〒456 名古屋市熱田区六番3-4-41)。

^{*2} 正員、岐阜大学工学部 (〒501-11 岐阜市柳戸1-1)。

適用されていない⁽⁶⁾。また、熔融塩を白金板で挟んだ三層試料を測定した報告もあるが、層間熱抵抗や白金板の温度こう配等の影響については触れられていない⁽⁷⁾。本研究は、この測定手法に関して、原理式、受光板の種類・接着法、データ処理法などを検討し、アクリル樹脂の測定によってその有効性を確認するとともに、測定の信頼性に影響するいくつかの要因について考察を加えたものである。

2. 原理および方法

2.1 原理式 図1は試料系の構成図である。試料および受光板を厚さ一定の無限平板とみなし、系の温度変化を一次元の熱伝導問題として扱う。このような多層系にレーザフラッシュ法を適用した場合の温度応答を表す式は、これまでにいくつか報告されているが^{(5)~(8)}、ここではさらに次のような仮定により、より簡便ではあるが熱損失の影響も考慮した式を導く。まず、受光板はその温度こう配が常に零とみなせるほど十分に熱拡散率が大きくかつ薄いものとする。また、受光板と試料の間に熱抵抗はないものとする。さらに試料系前後面では同一の熱伝達率での熱損失が生ずるものとする。これらの条件のもとで、受光板側に外部からパルスレーザを照射すると、その瞬間の温度分布は図1のような形になり、熱伝導方程式と初期および境界条件は次の式(1)~(4)で表せる。

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

$$\theta(x, 0) = 0 \quad (0 < x < l) \quad (2)$$

$$-\lambda \cdot \frac{\partial \theta}{\partial x} \Big|_{x=l} = \alpha \cdot \theta(l, t) \quad (3)$$

$$\rho_1 C_1 l_1 \cdot \theta(0, t) = Q + \int_0^t \lambda \cdot \frac{\partial \theta}{\partial x} \Big|_{x=0} d\tau - \int_0^t \alpha \cdot \theta(0, \tau) d\tau \quad (4)$$

ここで、 $\theta = \theta(x, t)$ はレーザ照射後の各部の温度上昇

値、 x は位置座標、 t は照射の瞬間を原点とする経過時間、 α は熱拡散率、 l は厚さ、 α は試料系前後面の熱伝達率、 λ は熱伝導率、 Q はレーザ照射により試料系が吸収したエネルギー密度、 C は比熱、 ρ は密度であり、添字1は受光板を示す。

式(1)を条件(2)~(4)のもとで解くと、試料背面の温度応答を表す式(5)を得る。

$$V = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2(1+H) \exp(-\omega p_n^2)}{D_1(p_n) \cdot \cos p_n + D_2(p_n) \cdot \frac{\sin p_n}{p_n}} \quad (5)$$

$$D_1(p_n) = 2 + H + Bi - H \frac{Bi^2}{p_n^2} \quad (6)$$

$$D_2(p_n) = H + Bi + 2H \cdot Bi - p_n^2 + H \frac{Bi^2}{p_n^2} \quad (7)$$

$$V = \frac{\theta(l, t)}{Q / (\rho_1 C_1 l_1 + \rho C l)}, H = \frac{\rho C l}{\rho_1 C_1 l_1},$$

$$\omega = \frac{\alpha t}{l^2}, Bi = \frac{\alpha l}{\lambda}$$

ここで、 V は試料背面の無次元温度、 H は試料と受光板の熱容量比、 Bi はビオ数、 ω はフーリエ数である。

また、 p_n は次の特性方程式(8)の n 番めの根である。

$$\tan p_n = -\frac{p_n^2 - 2H \cdot Bi}{p_n^2(H + Bi) - H \cdot Bi^2} \quad (8)$$

式(5)から、いくつかの代表的な Bi と H に対する V - ω 線図を求めると、図2のようになる。図2中、 $H = \infty, Bi = 0$ の線は、従来の単層試料に対するレーザフラッシュ法の原理式⁽⁹⁾を表す。

また、図2には式(5)の第1項だけの計算結果も破線で示してある。これから明らかなように、温度応答曲線の冷却過程は第1項のみで表せる。そこで、これを改めて式(9)とする。

$$V = \frac{2(1+H) \exp(-\omega p_1^2)}{D_1(p_1) \cdot \cos p_1 + D_2(p_1) \cdot \frac{\sin p_1}{p_1}} \quad (9)$$

図1 試料系構成図

図2 試料背面の理論温度応答

2・2 熱拡散率の計算方法 パルスレーザ照射後、十分な時間にわたって記録した試料背面の温度応答曲線を、2・1節で求めた原理式に基づいて解析し、熱拡散率 κ を求める。解析方法は、 H および l を既知とするハーフタイム法である。すなわち、測定時の H および Bi の値に対応する V - ω 線図を計算し、まず、 V の最大値 $V_{\max}$ を求め、次いで $V = V_{\max}/2$ となる $\omega = K_0$ を求める。一方、実測温度応答曲線からは、背面の最高温度 $\theta_{\max}$ 、次いで $\theta = \theta_{\max}/2$ となる時間(ハーフタイム) $t_{1/2}$ を求める。これより、フーリエ数の定義から次式(10)により熱拡散率 κ が計算できる。

$$K_0 = \frac{\kappa \cdot t_{1/2}}{l^2} \dots\dots\dots (10)$$

ここで、 Bi も κ と同様に未知数であるから、実際の温度応答曲線を忠実に表現する V - ω 線図を直ちに計算することはできない。そこで、 Bi を以下の方法で κ とともに収れんさせることにする。

(1) まず、初期値として $Bi=0$ のもとで κ を求める。

(2) 実測温度応答曲線の冷却過程に対し、最小二乗法により次の式(11)を当てはめ緩和係数 k を求める⁽¹⁰⁾。なお、予備実験の結果より温度応答曲線のうちハーフタイムの6倍以降の部分を冷却過程とみなすことにする。

$$\theta = \theta_0 \cdot \exp(-kt) \dots\dots\dots (11)$$

(3) 上式と式(9)との比較により、次式(12)が成り立つ。これよりさきの κ の値を利用して p_1 が求められる。

$$k = \frac{\kappa}{l^2} p_1^2 \dots\dots\dots (12)$$

(4) 式(8)は Bi の二次方程式であるから、次の式(13)によって Bi が計算できる。

$$Bi = \frac{p_1 \cdot \sin p_1 - 2H \cdot \cos p_1 + \sqrt{p_1^2 \cdot \sin^2 p_1 + 4H^2}}{2H(\sin p_1)/p_1} \dots\dots\dots (13)$$

(5) この新たな Bi のもとで、再び新たな κ を求め、以後 κ が収れんするまで、同様の操作を繰返す。収れんした κ と Bi は、実測温度応答曲線のハーフタイムと冷却過程の双方に、同時に最もよく一致する曲線を描くので、最も確からしい値であると考えられる。なお、収れん条件は $\Delta\kappa/\kappa < 10^{-5}$ とした。

3. アクリル樹脂の測定

3・1 測定装置 使用した測定装置は、レーザフラッシュ法熱定数測定装置 TC-3000 H-NC 型[真空理工(株)製]である。背面温度応答は直径 5×10^{-5} m の

K 熱電対によって検出し、 $5 \sim 50 \times 10^{-3}$ s のサンプリングレートで 12 bit・4 K ワードのトランジェントメモリーに記録した。これに GP-IB を介して 16 bit パーソナルコンピュータを接続し、前述のアルゴリズムに基づいて温度応答の解析を行い、熱拡散率を算出した。

3・2 試料および受光板 試料は市販のアクリル樹脂丸棒から切り出した直径 1×10^{-2} m の円板 10 枚である。各試料の質量 m と l 、ならびに測定した比熱と密度の値を表 1 に示す。一方受光板には、入手が容易で熱拡散率の大きいものという条件から、熱拡散率がほぼ 1×10^{-4} m²/s⁽¹¹⁾ である工業用の銅およびアルミニウムの 2 種類を選び、温度こう配を無視するには薄いほうが望ましく、試料表面の過熱を防ぐには厚くて熱容量の大きいほうが望ましい、という相反する測定上の要求を考慮して、厚さを 5×10^{-4} m とした。今回用いた受光板の質量 m_1 および比熱は、それぞれ銅板が 341.3×10^{-6} kg, 371.4 J/(kg・K)、アルミニウム板が 102.4×10^{-6} kg, 955.7 J/(kg・K) である。 l はマイクロメータ(分解能: 1×10^{-6} m)で測定され、ばらつきの範囲は $\pm 3 \times 10^{-6}$ m であった。また、比熱はレーザフラッシュ法、密度は浮力による測定から求め、測定誤差はそれぞれ試料密度が $\pm 1\%$ 、試料比熱が $0 \sim 5\%$ 、受光板比熱が $\pm 3\%$ と推定された。なお、受光板は試料と同じく直径 1×10^{-2} m としてあり、正面面積が同じであるから熱容量比 H の計算に当たっては、面密度 ρl , $\rho_1 l_1$ に代えて m , m_1 を用いた。また、試料と受光板の接着には熱伝導性シリコングリースアミコン 910-50 [グレースジャパン(株)製]を使用した。さ

表 1 試料諸元

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
l [$\times 10^{-3}$ m]	0.567	0.919	1.544	1.930	2.086	2.483	2.872	3.267	3.656	4.055
m [$\times 10^{-6}$ kg]	49.3	83.3	138.7	173.6	187.4	222.5	262.8	288.0	327.6	355.0
Measured Density: 1190 kg/m ³ , Measured Specific Heat Capacity: 1445 J/(kg・K)

図 3 室温でのアクリル樹脂の熱拡散率

図4 温度応答曲線の実例 ($l=1.930 \times 10^{-3}$ m, $H=1.979$, $t_{1/2}=6.032 \times 10^{-3}$ s, $Bi=0.418$, $\alpha=1.071 \times 10^{-7}$ m²·s⁻¹)

らに、一次元熱伝導状態を確保するため、測定時には試料周囲を発泡断熱材で覆った。

3.3 測定結果 図3に室温での熱拡散率の測定結果を示す。いずれも3~5回の測定の平均値である。厚さ 2×10^{-3} m 以上(試料4~10)での平均値と標準偏差は、アルミニウム受光板では 1.06×10^{-7} m²/s, 2.9%, 銅受光板では 1.04×10^{-7} m²/s, 2.5% となり、測定値は受光板の種類によらずほぼ一定で、文献値⁽¹²⁾の範囲内に収まることがわかる。なお、図4に温度応答曲線の一例を示す。実測曲線と測定結果に基づき式(5)によって計算で求めた理論曲線との間により一致が見られた。しかし、厚さ 1.5×10^{-3} m 以下では、明らかに測定値は低下しており、後述のように主として接合層の熱抵抗の影響による測定精度の低下がうかがえる。以上のことから、本測定法はアクリル樹脂をはじめとする低熱伝導性試料の熱拡散率測定において 2×10^{-3} m 以上の厚さの試料に対する有効な手段になりうる。

4. 考 察

4.1 受光板の温度こう配の影響 本測定法では温度こう配を無視し受光板全体が一様温度であるとしているので、原理的に受光板の熱拡散率は現れていない。これに対し、 $Bi=0$ という条件のもとではあるが、有限の熱拡散率を有する二つの材料からなる二層試料の温度応答式が、Lee⁽⁸⁾によって次のように導かれている。

$$V = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(1+H) \exp(-\omega p_n^2)}{A_1(\eta, p_n) \cdot \cos p_n - A_2(\eta, p_n) \cdot p_n \sin p_n} \quad \dots\dots\dots (14)$$

$$A_1(\eta, p_n) = (1+H) \cdot \cos(\eta p_n) \quad \dots\dots\dots (15)$$

$$A_2(\eta, p_n) = (1+\eta^2 H) \cdot \frac{\sin(\eta p_n)}{\eta p_n} \quad \dots\dots\dots (16)$$

$$H \frac{\tan p_n}{p_n} = - \frac{\tan(\eta p_n)}{\eta p_n} \quad \dots\dots\dots (17)$$

図5 K_0 への受光板の熱拡散時間の影響

$$\eta = \frac{l_1}{\sqrt{\alpha_1}} / \frac{l}{\sqrt{\alpha}} \quad \dots\dots\dots (18)$$

ここで、 $\eta \rightarrow 0$ とした場合が式(5)である(ただし、 $Bi=0$)。したがって、受光板の温度こう配の存在が無視できるということは、受光板の熱拡散時間 l^2/α_1 が試料の熱拡散時間 l^2/α に比べて十分に小さいということにほかならない。この式(14)によって H をパラメータとする K_0 - η 線図を求め、一例を図5に示す。なお、熱拡散率測定において通常要求される精度を考慮して K_0 の不確かさの許容範囲を3%とし、図5中に $K_0(H, \eta) = 1.03 \cdot K_0(H, 0)$ と η の関係を破線で示す。今回用いる受光板に一般的な高分子材料で厚さが 4×10^{-3} m 以下のものを組合せた場合、 $H=5$ が上限と考えられるので、図5より $\eta < 0.1$ であれば K_0 の誤差は大きめに見ても-3%以内となることがわかる。そこで実際に η の値を計算すると、受光板の熱拡散率を 1×10^{-4} m²/s、試料の熱拡散率を 1×10^{-7} m²/s としたとき、試料の厚さが 5×10^{-4} m であっても $\eta = 0.03162$ となるので、受光板の温度こう配を零とみなして差し支えないことになる。念のため、 $H=0.5$ として K_0 を求めると、式(5)によれば $K_0 = 0.30172$ 、式(14)によれば $K_0 = 0.30197$ となり、その差は-0.1%以内である。以上のことから、今回の試料系において受光板の温度こう配は常に零とみなしてよい。

なお、 $\eta < 0.1$ という条件に上記の受光板の熱拡散率と厚さの値を当てはめると、 $l^2/\alpha > 0.25$ s となる。すなわち、この測定法の一つの適用条件として、試料の熱拡散時間が0.25 s以上であることが要求される。

4.2 熱抵抗の影響 試料-受光板間のシリコングリスから成る接合層の熱抵抗を R とし、改めて R を含む背面温度応答の式を求めると、式(19)~(23)となる。

$$V = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2(1+H) \exp(-\omega p_n^2)}{D_3(p_n) \cdot \cos p_n + D_4(p_n) \cdot \frac{\sin p_n}{p_n}} \quad \dots (19)$$

$$D_3(p_n) = D_1(p_n) + U(2Bi + H \cdot Bi - p_n^2) \dots (20)$$

$$D_4(p_n) = D_2(p_n)$$

$$+ U(H \cdot Bi + H \cdot Bi^2 - p_n^2 \cdot Bi - 3p_n^2) \dots (21)$$

$$\frac{\tan p_n}{p_n} = \frac{p_n^2 - 2H \cdot Bi + U \cdot Bi(p_n^2 - H \cdot Bi)}{p_n^2(H + Bi) - H \cdot Bi^2 - U \cdot p_n^2(p_n^2 - H \cdot Bi)} \dots (22)$$

$$U = R\lambda/l \quad \dots (23)$$

ここで、 U は熱抵抗の寄与度を表す無次元数である。図 6 は式(19)から求めた $H=1$ における K_0 - U 線図であり、4・1 節と同様に $K_0(Bi, U) = 1.03 \cdot K_0(Bi, 0)$ と U の関係を破線で示す。計算によれば、 H が大きくなるほど、この破線は右側に変位していく。今回使用した受光板と一般的な高分子材料で厚さが 2×10^{-3} m 以上のものとを組合せたとき、 $H=1$ が下限と考えられるので、実際の測定における U がそれぞれの Bi の値のもとで、図 6 の破線上の値より小さければ、 H の値にかかわらず熱抵抗による K_0 の誤差は -3% 以下と考えてよい。そこで、今回の試料について U の値を見積もり、熱抵抗の影響を評価してみる。まず、熱拡散率 4×10^{-6} m²/s、厚さ 4.437×10^{-3} m の SUS 304 を校正用試料として、 R の値を求める。なお、この校正用試料の熱拡散時間は 5 s となり、4・1 節で述べた条件から受光板の温度こう配は無視できる。校正用試料に受光板をはり付けて熱拡散率の測定を行う。ただし、解析には式(19)を使用し、データ処理の段階で U の値を任意に変化させることができるよう、測定プログラムを変更した。その結果 $U=0.15 \sim 0.35$ が得られ、校正用試料の熱伝導率を 15 W/(m・K) とすると $R=0.5 \sim 1.0 \times 10^{-4}$ m²・K/W となる。マイクロメータによる実測接合層厚さは $5 \sim 10 \times 10^{-6}$ m であった。これより、

図 6 K_0 への接合層熱抵抗の影響

厚さ 2×10^{-3} m 以上のアクリル試料における U を推定すると、先の測定結果からその熱伝導率は 0.2 W/(m・K) 程度となるので最大で $U=0.01$ であり、図 6 の破線より小さな値であるから熱抵抗を無視しても測定結果に影響はないと判断される。しかし厚さ 0.5×10^{-3} m では $U=0.04$ となり、この場合には熱抵抗の影響を考慮しなければならないであろう。なお、図 6 から、 $H \geq 1$ の範囲で最も厳しい U の許容値を求めると、 $H=1, Bi=0$ の下で $U < 0.02$ となる。これは $\lambda/l < 200$ W/(m²・K) であることに相当する。すなわち、熱コンダクタンス λ/l が 200 W/(m²・K) 以下であることが、本測定法のもう一つの適用条件となる。ただし、 H と Bi が大きくなるほどこの条件は緩和される。

4・3 熱損失の影響 本測定法における熱損失補正の効果を高温におけるグラファイトの測定によって確認するとともに、試料円周部からの放熱が測定結果に及ぼす影響を検討する。

4・3・1 高温におけるグラファイトの測定 原理式において $H \rightarrow \infty$ とすると、次のような単層試料において熱損失を考慮した式となる。なお、これらは Cowan⁽¹³⁾ の式と一致することが確かめられている。

$$V = \sum_{n=1}^{\infty} \{2 \exp(-\omega p_n^2)\} / \left\{ \left(1 - \frac{Bi^2}{p_n^2}\right) \cos p_n + \left(1 + 2Bi + \frac{Bi^2}{p_n^2}\right) \frac{\sin p_n}{p_n} \right\} \dots (24)$$

$$\frac{\tan p_n}{p_n} = \frac{2Bi}{p_n^2 - Bi^2} \dots (25)$$

$$Bi = \frac{1 - \cos p_1}{(\sin p_1)/p_1} \dots (26)$$

この式に基づいて高温での NBS の AXM-5 Q 1 グラファイトの熱拡散率を測定した結果、実測曲線と理論曲線はよく一致し、また測定値も図 7 のように熱損失補正のない従来法に比べて顕著に値が低下し NBS の推奨値⁽¹⁴⁾ に近づいている。

4・3・2 円周部からの熱損失 単層試料を有限円

図 7 AXM-5 Q 1 グラファイトの熱拡散率

表 2 円筒座標系模擬温度応答の解析結果

(fixed)			(derived)	
κ (m ² /s)	Bi	Bi _r	κ (m ² /s)	Bi
0.750×10^{-4}	0.040	0.040	0.747×10^{-4}	0.047
1.000×10^{-7}	0.500	0.050	0.997×10^{-7}	0.535

$$l = 4 \times 10^{-3} \text{ m}, a = 5 \times 10^{-3} \text{ m}, \gamma_0 = 1.25$$

図 8 測定精度の関連図

柱とみなし、側面からの放熱を考慮したときの背面の温度応答が Cape ら⁽¹⁵⁾ によって得られている。これにより、全表面で熱損失がある場合の円板状試料の温度応答曲線を算出し熱拡散率を求める。すなわち、円筒座標モデルにより求めた模擬温度応答曲線を一次元モデルに基づき解析する。その結果を、表 2 に示す。ここで Bi_r は試料半径 a と側面の熱伝達率 α_r に基づくビオ数、 $\gamma_0 = a/l$ である。設定した値のうち、 $\kappa = 7.5 \times 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $l = 4 \times 10^{-3} \text{ m}$ はグラファイトに相当し、また $\alpha_r = a$ とみなせるので $Bi_r = Bi \times \gamma_0$ としてある。一方、 $\kappa = 1 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ 、 $l = 4 \times 10^{-3} \text{ m}$ はアクリルに相当し、実際の測定でも周囲には発泡断熱材を配置してあるので、 Bi_r の値は Bi の 1/10 としてある。なお、 Bi の設定値は測定結果に基づいて決定した。表 2 によればグラファイトに相当する場合の誤差は -0.6%、アクリルに相当する場合の誤差は -0.3% で、いずれも極めて小さい。このことは本解析法が Bi を大きめに評価するように作用し、結果として κ の測定値は真の値からあまり大きくずれていないことがわかる。つまり、円周部からの放熱量を前後面からの放熱量に包含して解析が行われたと考えられる。

4.4 測定精度の推定 熱拡散率は式(10)によって算出するので、各項の因子に影響するパラメータを列挙し、それらの関連を図示すると図 8 のようになる。これまでの考察を踏まえ、一例としてアルミニウム受光板、試料厚さ $1.930 \times 10^{-3} \text{ m}$ の場合の測定精度を誤差解析に従って推定する。まず、各測定機器の応

答遅れ、読取り誤差、測定精度などを考慮して $\delta t_{1/2}/t_{1/2} = -0.004 \sim 0.010$ 、 $\delta l/l = \pm 0.002$ 、 $\delta H/H = -0.035 \sim 0.085$ 、 $\delta k/k = \pm 0.02$ 、 $\delta p_1/p_1 = \pm 0.012$ と推定される。これらの値から、さらに $\delta Bi/Bi = -0.035 \sim 0.054$ 、 $U = 0.014$ 、 $\eta = 0.008$ と推定されるから、 $\delta K_0/K_0 = -0.026 \sim -0.013$ となる。したがって、最終的に $\delta \kappa/\kappa = -0.04 \sim -0.01$ という値が得られる。この数値は銅受光板の場合でも同じであった。いくつかの厚さについて同様の評価を行った結果、試料の厚さが 2 mm 以上であれば、測定精度は -5% 以内と推定された。

5. 結 論

従来、レーザフラッシュ法では困難であったゴム・プラスチックなど低熱伝導性試料の常温における熱拡散率測定において、前面に受光板を配置した試料系に熱損失パラメータを含んだ温度応答式を適用する方法を試み、次のような結論を得た。

(1) この方法により試料前面の加熱損傷やレーザ光の透過が防止された。また、受光板として熱拡散率の大きい銅およびアルミニウムを用いたので、その温度こう配や接合層の熱抵抗を無視することができ、熱拡散率およびビオ数算出のための温度応答の解析演算は極めて簡明なものとなった。

(2) この方法をアクリル樹脂に適用し、受光板の厚さ $5 \times 10^{-4} \text{ m}$ 、試料の厚さ $2 \times 10^{-3} \text{ m}$ 以上では、熱拡散率の値として $1.05 \times 10^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$ 、測定値の標準偏差 2.7%、推定測定精度 -5% 以内、という結果が得られた。これは、文献値と比較しても、十分な信頼性を備えた結果と考えられ、本測定法は低熱伝導性試料の熱拡散率測定法として有効であると判断された。

(3) 適用限界についてはなお詳細な検討が必要なものの、受光板として厚さ $5 \times 10^{-4} \text{ m}$ の銅またはアルミニウム板を用いる場合には、熱拡散時間が 0.25 s 以上、熱コンダクタンスが $200 \text{ W}/(\text{m}^2 \cdot \text{K})$ 以下の試料であれば、本測定方法が適用可能である。

本研究をまとめるにあたり、静岡大学工学部 荒木信幸教授から貴重なご助言をいただきました。また、本研究の一部は、内藤科学技術振興財団からの研究助成金により行いました。ここに深甚の謝意を表します。

文 献

- (1) 宮本・堀江・長島, 機論, 58-549, B (1992), 1470.
- (2) 八田, 熱測定, 13-3 (1986), 142.
- (3) 上利・上田, 第 12 回日本熱物性シンポジウム講演集, (1991), 29.
- (4) 上利・上田, 第 13 回日本熱物性シンポジウム講演集,

- (1992), 25.
- (5) Araki, N., Makino, A and Mihara, J., *Int. J. Thermophys.*, **13-2** (1992), 331.
- (6) James, H. M., *High Temperatures-High Pressures*, **17** (1985), 481.
- (7) 塩井・三浦・原田, 第11回日本熱物性シンポジウム講演集, (1990), 259.
- (8) Lee, T. Y. R., Thermal Diffusivity of Dispersed and Layered Composites, Ph. D. thesis, Purdue Univ., (1977).
- (9) Parker, W. J., Jenkins, R. J., Butler, C. P. and Abbott, G. L., *J. Appl. Phys.*, **32-9** (1961), 1679.
- (10) 安積・高橋・菅野, 第1回熱物性シンポジウム, (1980), 97.
- (11) 日本機械学会編, 伝熱工学資料, 改訂第4版, (1986), 318, 丸善.
- (12) 日本熱物性学会編, 熱物性ハンドブック, (1990), 296, 養賢堂.
- (13) Cowan, R. D., *J. Appl. Phys.*, **34-4** (1963), 926.
- (14) Hust, J. G., A Fine-Grained, Isotropic Graphite for Use as NBS Thermophysical Property RM's from 5 to 2500 K, *Natl. Bur. Stand. Special Publ.*, **260-89** (1984).
- (15) Cape, J. A. and Lehman, G. W., *J. Appl. Phys.*, **34-7** (1963), 1909.
-