レーザー誘起熱弾性波の位相差による 金属と合金の熱拡散率の測定

谷山 哲哉¹, 庄司 貴彦²

¹日本大学 理工学部電気工学科 (〒101-8308 東京都千代田区神田駿河台1-8-14)

²日本大学大学院 理工学研究科 (〒101-8308 東京都千代田区神田駿河台1-8-14)

Thermal Diffusivity Measurements of Metals and Alloys by Making Use of the Phase Shift of Laser-Induced Thermoelastic Wave

Tetsuya TANIYAMA¹ and Takahiko SHOUJI²

¹Department of Electrical Engineering, College of Science and Technology, Nihon University,

1-8-14 Surugadai, Kanda, Chiyoda-ku, Tokyo 101-8308

²Department of Electrical Engineering, Graduate School of Science and Technology Nihon University,

1-8-14 Surugadai, Kanda, Chiyoda-ku, Tokyo 101-8308

(Received October 8, 2003)

This paper describes a method of obtaining the thermal diffusivity of a metal sample of known thickness. By irradiating an intensity-modulated laser beam of 8 W to the sample at power density of $1.5 \times 10^8 \text{ W/m}^2$, thermoelastic waves thus produced are detected with a PZT film attached to the back face of the sample. The thermal diffusivity can be obtained by using modulation frequency characteristics of phase contrast of the detected thermoelastic waves. A relation $f_0 = 1.3 \lambda \ell^{-2}$ is confirmed experimentally, where f_0 denotes modulation frequency, ℓ metal thickness and λ thermal diffusivity. This relation coincides well with the calculated result obtained on the basis of the theory developed by Jackson and Amer. We hope a measuring apparatus to the thermal diffusivity of a metal plate with thickness of $1.0 \times 10^{-4} \text{ m} \sim 2.0 \times 10^{-4} \text{ m}$ becomes available for a practical use because of its simple structure as well as easy operation.

Key Words: Thermal diffusivity measurement, Thermo elastic wave, CO₂ laser, Metal and alloy, PZT

1. まえがき

あらゆる分野で開発される新機能材料の熱的評価をする場合に熱拡散率の測定は不可欠である。そのために、熱拡散率の測定法に関する研究の歴史は古く、今日に至るまで数多くの測定法が考案されている。熱拡散率の測定法は定常熱源を与えて加熱時間と熱伝導による裏面の温度上昇を測定する方法と、温度が周期的に変化する熱源を与えて裏面で得られる温度変化の位相遅れを測定する方法とに大別できる。熱源は電気的なヒータ、キセノンランプ、電子ビームあるいはレーザーなど多種多様である。

レーザーにより熱源を与える熱拡散率の測定法について過去に報告されている主なものを挙げれば、パルスレーザー光を金属板表面に照射し、背面の温度変化を熱電対で測定することにより熱拡散率を求めるレーザーフラッシュ法¹⁻⁵⁾、レーザー光を2本に分割してそれぞれを試料の裏と表に断続照射したときに発生する音波をマイクロフォンで検出し、裏と表からの音波の位相差から熱拡散率を求めるTow-beam位相差法^{1,2,6)}等がある。

ここで述べる熱拡散率の測定法は強度変調したレー

ザー光を照射して周期的に温度変化する熱源を厚さが既知の試料に与え、試料の裏面で検出した熱弾性波の位相差の変調周波数特性から試料の熱拡散率を求める方法である。上に述べた二つの方法の測定精度は $\pm 2 \sim 5 \%$ 程度のものである。これらに対し、著者等が提案する測定法は位相差が0度となる変調周波数から求めるため、原理的に精度を $\pm 2 \%$ 以上に出来る可能性がある。また、測定装置の構造が簡単で操作も容易である。この方法を λ の一つの測定法として具現化したいと考えている。この概略を述べると以下のようなものである。CO₂レーザー光の強度を矩形波変調して金属板に照射すると照射部に熱弾性波が発生する。金属板内を伝搬して裏面に到達した熱弾性波をPZTで検出し、そのレーザー光照射時に対する位相差を求める。位相差は熱拡散長が金属板の厚さの1/2になる変調周波数 f_0 に達したときに0度となる⁹⁾。この位相差の変調周波数特性から金属板の熱拡散率を求める。 f_0 と金属板の厚さ ℓ との間には実験式として $f_0 = 1.3 \lambda \ell^{-2}$ なる関係が成立するので、 ℓ が既知であれば λ を求めることが出来る。この実験式はJacksonとAmerが発表した理論¹⁰⁾による計算結果と一致することを既に報告している⁸⁾。しかし、熱弾性波の発生機構などの考察に、彼等がPZTの出力電圧の式を導出

したときに用いたモデルをそのまま適用できるか否かについては未検討であった。この点を実験結果と計算結果との照合から明確にすることと、ここで述べる熱拡散率の測定法の問題点を調べてみた。以下に検討結果を述べる。

2. 実験方法と実験装置

2.1 実験装置の概略

Fig. 1に測定装置の概略図を示す。光源はパワー8 W、連続発振型CO₂レーザーである。ビームの直径は 4.2×10^{-3} mである。レーザーの電源をDuty Cycle = 50 %矩形波電圧で変調した。これを直径 2×10^{-2} m、焦点距離 1×10^{-1} mのZnSeレンズで集光直径約 2.6×10^{-4} mに集光し、金属板の表面に垂直に照射した。パワー密度は 1.5×10^8 W/m²と算定される。金属板の裏面にPZTセンサーを取り付け、二位相ロックインアンプで裏面に到達した熱弾性波の振幅と位相差及び実数部と虚数部を測定した。ロックインアンプの参照信号はレーザー電源に与えた矩形波信号と同一相のものである。

2.2 PZTセンサー部分の構造

Fig. 2にPZTセンサー部の概略図を示した。PZT素子は直径 2×10^{-2} m厚さ 1×10^{-4} mの円板型のPZTを直径 3×10^{-2} m、厚さ 1×10^{-4} mの真鍮円板に両者の中心を合わせて接着したユニモルフ構造である。真鍮円板の厚さを、出力信号が取り出せる範囲内で、できる限り薄くなるように表面を平坦に研磨した。この円板の上に金属板を置き、PZTと金属板とをシリコンオイルをカップリング剤として密着させた。実際に密着した部分は中心から半径 8×10^{-3} m以内、密着面積は約 2×10^{-4} m²である。

5×10^{-2} m角で厚さ 1.6×10^{-3} mの二枚のエポキシ板でスポンジを挟んだ板にPZT素子のPZT面をエポキシ板にシリコンゴムで接着し、X-Y移動台の上に図示のように固定し

Fig. 1 Experimental set up.

Fig. 2 PZT

た。レーザー光の照射位置が常に金属板の対角線の交点となるように設定した。

2.3 金属板の種類と寸法

金属板の材料は純金属8種類、合金材3種類((株)ニラコ製)である。厚さは 1×10^{-4} m $\sim 2 \times 10^{-3}$ mの範囲内のものとした。金属板の形状は縦 20×10^{-3} m、横 20×10^{-3} mの正方形である。表面は鏡面状に磨かれている。表面処理は施していない。各材料の純度または混合率をTable 1に示す。

3. 解析手法

3.1 PZTの出力電圧V

金属板にレーザー光を断続的に照射し、金属板の裏面にPZTを取り付けて熱弾性波を検出した場合におけるPZTの出力電圧Vの計算式をJacksonとAmer¹⁰⁾が導出している。

$$V = M \left(a_i \frac{P\alpha}{k(\alpha^2 - K^2)D} \right) \left[(b-1)(g+r)\exp(-K\ell)F(K\ell) - (b+1)(g+r)\exp(K\ell)F(-K\ell) + (1+g)(r-b)\exp(-\alpha\ell)F(K\ell) + (1-g)(r-g)\exp(-\alpha\ell)F(-K\ell) - (1-g)(1-b)\exp(-K\ell)F(-\alpha\ell) + (1+g)(1+b)\exp(K\ell)F(-\alpha\ell) \right]$$

$$D = (g-1)(b-1)\exp(-K\ell) - (1+g)(1+b)\exp(K\ell)$$

$$M = 2e^{p_{31}L} \frac{1+\nu}{\epsilon_{33}^p A \pi}$$

$$\lambda = \frac{k}{c\rho}, \quad r = \frac{\alpha}{K}, \quad g = \frac{\kappa_1}{kK}, \quad b = \frac{\kappa_2}{kK}, \quad K^2 = \frac{j\omega}{\lambda}$$

$$F(m) = \frac{e^m - 1}{m} + \frac{6 \left[1 + \frac{1}{2}m - e^m \left(1 - \frac{1}{2}m \right) \right]}{m^2}$$

$$V = \text{Real} + j\text{Imaginary} \quad (1)$$

但し、 κ_1 と κ_2 ：金属板の表面と裏面からの熱放散率， P ：レーザー光のパワー， L ：PZTの厚さ， A ：PZTと金属板との密着面積， ℓ ：金属板の厚さ， λ ：金属板の熱拡散率， k ：金属板の熱伝導率， c ：金属板の比熱， ρ ：金属板の密度， α ：金属板の光吸収率， ω ：断続照射の角周波数， a_t ：金属板の線膨張係数， ν ：ポアソン比， e_{31}^P ：PZTの圧電定数， ϵ_{33}^P ：PZTの誘電率である．

3.2 変調周波数特性

Fig. 3に厚さ $\ell = 0.8 \times 10^{-3}$ mの銅の板に $P = 8$ Wを照射した場合の出力電圧 V の計算結果を示す．この計算では，金属板のレーザー光照射面からと裏面から空气中への熱放散は少ないとして， $b = 0$ として $g = 0$ と置いた⁷⁾．(1)式の定数は， $L = 1 \times 10^{-4}$ m， $A = 2 \times 10^{-4}$ m²， $a_t = 16.6 \times 10^{-6}$ K⁻¹， $\nu = 0.32$ 及び $\rho = 8880$ kgm⁻³， $c = 386$ Jkg⁻¹K⁻¹， $k = 398$ Wm⁻¹K⁻¹を使用した¹¹⁾．全て300 Kにおける値である．ここで使用したPZTの圧電定数は $e_{31}^P = -0.035$ VmN⁻¹，誘電率は $\epsilon_{33}^P = 0.855 \times 10^9$ Fm⁻¹K⁻¹である．光吸収率は $\alpha = 1 \times 10^8$ m⁻¹を使用した^{7,8)}． α が 1×10^5 m⁻¹以上では，(1)式において $\alpha^2 \gg K^2$ と $\exp(-\alpha\ell) \approx 0$ となるため， V の絶対値と位相差は α に依存しなくなる．このことは使用した総ての金属において成立する．金属の種類によって V の絶対値は変化するが，各変調周波数においてアルミニウムにおける絶対値を1とすれば，この0.1倍までの範囲内に総て収まる．Fig. 3の測定を20回繰り返した結果，各変調周波数に

おける V の絶対値と実数部及び虚数部の値は計算値に対し $\pm 40\%$ のバラツキとなる．このバラツキは他の金属板についても同様である．

Fig. 3 (a)は出力電圧 V の絶対値(Ab)と位相差(Ph)，(b)は V の実数部(Re)と虚数部(Im)の変調周波数特性を計算した結果である．周波数変化のピッチは1 Hzとして計算した．但し，虚数部は位相差が0度となる変調周波数 f_0 を境に極性が+から-へ変わるが，縦軸を対数目盛で示すため虚数部の絶対値を取った．位相差を0度とする周波数 f_0 は229 Hzと230 Hzの間にある．

3.3 f/λ 特性

Fig. 4(a)と(b)は出力電圧 V の絶対値と位相差及び実数部と虚数部の f/λ に対する変化を $\ell = 1.0 \times 10^{-3}$ mについて計算した結果である．(a)は絶対値(Ab)と位相差(Ph)，(b)は実数部(Re)と虚数部(Im)である．(a)の位相差と(b)の虚数部は f/λ が 1.32×10^6 のときに0度となり， $f_0 = 1.32 \times 10^6 \lambda$ なる関係が得られた．

4. 実験結果

4.1 出力電圧 V の測定結果

Fig. 3(a)に絶対値(○)と位相差(●)，(b)は実数部(□)と虚数部(■)である．計算結果と測定結果をそれぞれ比較すると，各変調周波数特性はほぼ一致している．測定結

(a)

(b)

Fig. 3 Comparison of experimental results and theory.

(a)

(b)

Fig. 4 Calculations of absolute value and phase angle (a) real part and imaginary part (b) by f/λ .

果でも虚数部はFig. 3(b)と同様に虚数部の絶対値を取った。変調周波数を変化させるピッチが20 Hzであったため、 f_0 は220 Hzと240 Hzの間に存在する。計算ではピッチを1 Hzとしたために f_0 における虚数部の落ち込み方に違いが生じたように見えるが、実験と計算の f_0 はほぼ一致した値である。

4.2 f_0 と λ との関係

厚さ ℓ と f_0 との関係を求めた結果をFig. 5(a)～(k)に示す。図中の鎖線は(1)式から求まる特性である。各金属板で $f_0 = \Gamma \ell^{-2}$ の関係が得られた。係数 Γ をTable 1に示す。Fig. 6から Γ と $\lambda^{(1)}$ との間には $\Gamma = 1.3\lambda$ の関係があり、結果として $f_0 = 1.3\lambda \ell^{-2}$ が得られた。Fig. 7に示したように $\ell = 1.0 \times$

(a)

(b)

(c)

(d)

(e)

(f)

(g)

Fig. 5 Relation between modulation frequency f_0 and thickness ℓ of (a) Copper (b) Aluminum (c) Wolfram (d) Molybdenum (e) Zinc (f) Tin (g) Brass (h) Phosphor Bronze (i) Nickel (j) Iron (k) Nickel Chromium.

Table 1 Relation between coefficient Γ and thermal diffusivity λ .

Specimen	Thermal Diffusivity ¹¹⁾ $\lambda[\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}] \times 10^{-6}$	Coefficient $\Gamma[\text{Hz}\cdot\text{m}^2]$	Purity
Aluminum	96.8	127×10^{-6}	> 99.5 %
Copper	117	150×10^{-6}	> 99.5 %
Iron	22.7	24×10^{-6}	> 99.5 %
Molybdenum	54.3	72×10^{-6}	> 99.5 %
Nickel	22.9	28×10^{-6}	> 99.5 %
Tin	40.2	53×10^{-6}	> 99.5 %
Wolfram	66.2	91×10^{-6}	> 99.5 %
Zinc	41.6	57×10^{-6}	> 99.5 %
Brass	35.8	47×10^{-6}	Cu: 65 %, Zn: 35 %
Nickel Chromium	3.4	6×10^{-6}	Ni: 77 %, Cr: 20 % Fe: 1 %
Phosphor Bronze	25	33×10^{-6}	Cu: 94 %, Sn: 6 % P < 1 %

10^{-3} mでは $f_0 = 1.3 \times 10^6 \lambda$ となる．これは3.3の計算で得られた結果とほぼ一致する．

5. 考 察

5.1 測定結果と計算結果の照合について

Fig. 3(a)と(b)で測定結果と計算結果とは良い一致を示した．使用した全ての金属並びに各厚さにおいても良い一致を示した．JacksonとAmer¹⁰⁾はPZTの出力電圧 V の計算

式を導出するときに仮定を設けている．(1)レーザー光の集光径は金属板の寸法に対して極めて小さい．(2)PZTは金属板の厚さよりも薄く，金属板の面より広い．(3)金属板の境界面は自由である．(4) $(2\pi/d)^2 \gg (\omega/v_{\text{sound}})^2$ が成立する． d は金属板の半径， v_{sound} は金属板内の音速．(5) $\rho c \gg 3B\alpha T_{\text{room}}$ が成立する． B は体積弾性率， T_{room} は室温．ここでの実験条件はこれらの仮定を全て満足している．従って，熱弾性波の発生からPZTによる検出までの過程については，彼らが用いたモデルを適用できる．金属板は

Fig. 6 Relation between coefficient Γ of Table 1 and thermal diffusivity λ .

Fig. 7 Relation between modulation frequency f_0 and thermal diffusivity λ .

全て光学的に厚いので、表面歪みはBendingによるものと考えられる¹⁰⁾。

金属板の厚さが既知であれば、 $f_0 = \Gamma \ell^{-2}$ と $\Gamma = 1.3\lambda$ なる関係式を基にしてその熱拡散率 λ の測定装置を具現化することに可能性が見られた。従って、熱拡散率 λ は $\lambda = 0.77 \times 10^6 f_0 \ell^2$ で求められることになる。この関係は厚さ ℓ が $1.0 \times 10^{-4} \text{ m} \sim 2.0 \times 10^{-3} \text{ m}$ までの金属板に適用できる^{7,8)}。

5.2 位相差を0度とする変調周波数 f_0 について

ここまで、位相差を0度とする変調周波数 f_0 に着目して進めてきたが、 f_0 でないと熱拡散率 λ が求まらないということではない。Fig. 3 (a)の変調周波数の変化に対して位

相差が明瞭に変化する+45度から-45度の範囲において、変調周波数 f とそのときの位相差を知れば、Fig. 4 (a)から同じ位相差における $f\lambda$ が決まるので熱拡散率 λ を求めることができる。しかし、Fig. 3 (b)とFig. 4 (b)の虚数部が示すように f_0 の検出が最も容易で且つ正確と考えられたので、位相差を0度、即ち出力電圧の虚数部を0とする f_0 に着目した。

f_0 のバラツキは金属板を取り付けてそのまま20回測定を繰り返すと、各金属においてFig. 7の鎖線が示す f_0 の $\pm 2\%$ 以内に収まるが、毎回金属板を一旦取り外して20回繰り返すと $\pm 20\%$ に広がる。Fig. 7は毎回金属板を一旦取り外したときの測定結果である。バラツキは金属板とPZTとの接触状態によるものと考えられる。一旦取り外すとシリコンオイル層の厚さに再現性が得られないためと考えられ、再現性を得る方法について検討を進めている。

6. むすび

以上、熱拡散率の測定法について述べた。実験結果と計算結果とに良い一致が見られた。金属板とPZTとの接触状態をコントロールできれば、熱拡散率の測定装置を具現化できることが判った。最後に卒業研究生中村 勝晶君のご協力に深く感謝する。

参考文献

- 1) Y. S. Touloukian, R. W. Pouiel, C. Y. Ho, and M. C. Nicolau: "Thermal Diffusion", Vol.10, Y. S. Touloukian and C. Y. Ho (eds.) (Plenum, New York, 1973).
- 2) L. Gomes, M. M. F. Vieira, S. L. Baldochi, N. B. Lima Jr, S. P. Morato, A. J. P. Braga, C. L. Cesar, A. F. S. Penna, and J. M. Filho: J. Appl. Phys. **63** (1986) 5044.
- 3) H. W. Deem and W. D. Wood: Ref. Sci. Instr. **33** (1962) 1107.
- 4) H. Vargas and L. C. M. Miranda: "Photoacoustic and Thermal Wave Phenomena in Semiconductors" Chap.3, A. Mandelis (eds.) (North-Holland, 1987).
- 5) R. S. Carpenter: NAA-SR-TDR-7643, I-20, (1962).
- 6) O. Pessoa, Jr., C. L. Cesar, N. A. Patel, H. Vargs, C. C. Ghizoni, and L. C. M. Miranda: J. Appl. Phys. **59** (1986) 1316.
- 7) 谷山 哲哉: レーザー研究 **28** (2000) 112.
- 8) 谷山 哲哉, 高野 大吾: レーザー研究 **29** (2001) 169.
- 9) 谷山 哲哉: レーザー研究 **30** (2002) 468.
- 10) W. Jackson and N. M. Amer: J. Appl. Phys. **51** (1980) 3343.
- 11) JSME: JSME Heat Transfer Handbook, Maruzen, 1993, p. 366.