パルス法による温度伝導率の自動測定装置†

松田 文夫*・上田 実*

A Device for Automatic Measurement of Thermal Diffusivity by Pulse Method

Fumio MATSUDA* and Minoru UEDA*

A new method to automatically measure thermal diffusivity incorporating analogue computer technique in the previously used pulse method is explained.

In the pulse method, a high-intensity heat pulse such as a laser pulse is absorbed in the front surface of a thermally insulated specimen, and the resulting temperature rise at the rear surface is measured by a thermocouple and recorded with an oscilloscope and a camera. The thermal diffusivity is calculated from the specimen thickness and the time lapse required for the rear surface temperature to reach one-half of the maximum value. This time lapse is determined by the graph of time V.S. temperature of the rear surface.

We propose the new system to decide the thermal diffusivity without a graph or calculation. The fundamental principle of it is the same as the above mentioned measuring method except that an analogue computer is led into the system and the temperature of the rear surface is sampled twice after the heat pulse absorption. The time interval between the two samplings is fixed and the sampled values are held in an analogue memory device. The ratio of the temperature of the 1st sample to that of the 2nd sample must be different when the thermal diffusivity varies. The variation of the ratio of the two samples is simulated in the analogue computer with the variable of the thermal diffusivity. By this simulation the value of the thermal diffusivity of the tested specimen is decided when the simulated ratio of two sample temperatures is equal to the measured ratio on the specimen.

The simulator is composed of integrators,

comparators, multipliers, sample-holders and a thermal diffusivity indicator. With this new system the thermal diffusivity is determined with the accuracy of $\pm 10\%$.

1. ま え が き

熱伝導率, 比熱, 温度伝導率などの熱定数を広範囲な温度において正確かつ迅速に求めることは, 原子力関係ばかりでなく各分野で新しい材料が開発され, しかも高温において使用されることが多くなった現在, 非常に重要になってきている。

熱定数の測定方法としては, 定常法と非定常法がある。定常法は古くから知られており, 試料に定常的に熱を加えてその2点間の温度差と単位時間, 単位面積当り流れる熱量より熱伝導率を求め, さらに $a = \lambda / \rho c$ (λ : 熱伝導率, ρ : 密度, c : 比熱) の関係を使って温度伝導率を求める方法である。これに対して非定常法は, 非定常の熱伝導方程式の解より測定原理が考えだされたもので, 温度伝導率を直接求める方法である。熱の加え方によって周期的加熱法, ステップ加熱法, パルス加熱法に分けられる。周期的加熱法は棚沢ら¹⁾によって, 特に試料の輻射損失を考慮した場合を小林ら²⁾によって, ステップ加熱法はCown³⁾, Cape⁴⁾, 小林ら⁵⁾⁻⁷⁾によってなされた。パルス加熱法は1961年にWolsard⁸⁾, Parkerら⁹⁾によって提案され, その後Rudkin¹⁰⁾, Moser¹¹⁾らは熱源としてフラッシュランプを, Moser¹²⁾, Murabayashi¹³⁾, 難波¹⁴⁾らはフラッシュランプよりエネルギー密度の高いレーザービームを使い, それを熱絶縁された試料に照射し, その裏面の温度変化を電圧に変換してシンクロスコープに描かせ, そのグラフから温度伝導率を求めた。

この方法は温度伝導率を求めるためにブラウン管上または記録紙上で時間を求めなければならないため, 誤差も $\pm 10\%$ ⁹⁾ と大きい。しかし定常法からすれば迅速であるが, 作図と計算を必要とする点で十分では

† 応用物理関係連合講演会で発表 (昭 48・3)

* 名古屋大学工学部 名古屋市千種区不老町

* Faculty of Engineering, Nagoya University, Nagoya
(Received August 21, 1978)

ない。簡単なオペアンプを使ったアナログ計算機によって、温度計測用サーミスタまたは熱電対からの温度をデータ処理することにより、人の手間をかけないで短時間 (30 sec 以内) に温度伝導率の算出を可能にしたもののである。従来のブラウン管上で求める方法の誤差は $\pm 10\%$ 程度⁹⁾ であるので、これと同じ程度にするためにデータ処理による誤差を $\pm 5\%$ 程度におさえようと試みたものであり、これについて述べる。

2. 原 理

Parker ら⁹⁾ のパルス加熱法の原理^{7), 14)} はつぎのようなものである。Fig. 1 において、断熱状態にある厚さ l cm の無限平板の試料に Q cal/cm² の熱パルスを一様に照射した時、 g cm の深さまで $t=0$ で浸透したとすると、試料内の温度 $\theta(x, t)$ の $t=0$ における分布は

$$0 < x \leq g \quad \theta(x, 0) = \frac{Q}{\rho c g} \quad (1)$$

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

であり、さらに t 秒後の温度分布は

$$\theta(x, t) = \frac{Q}{\rho c l} \left[1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \cos \frac{n\pi x}{l} \frac{\sin(n\pi g/l)}{n\pi g/l} \times \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2}{l^2} a t\right) \right] \quad (3)$$

である。ここで c は試料の比熱 (cal/g°C), ρ は密度 (g/cm³), a は温度伝導率 (cm²/s), x は試料内の熱パルス受光面よりの熱パルス方向の距離 (cm) である。 g は l に比べて十分小さいとすれば $\sin(n\pi g/l) \approx n\pi g/l$ として差支えない。また $x=l$ において試料裏面の温度を求めれば

$$\theta(l, t) = \frac{Q}{\rho c l} \left[1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2}{l^2} a t\right) \right] \quad (4)$$

となり、時間と共に変わる温度をブラウン管上に描けば Fig. 2 のようになる。理想的に試料が断熱されたとすれば、 $t \rightarrow \infty$ における温度 $\theta(l, \infty)$ は $Q/\rho c l$ となる。ここで無次元化するために $\theta(l, t)/\theta(l, \infty)$ をとれば

Fig. 1 Block diagram of pulse method

Fig. 2 Temperature progress

$$\frac{\theta(l, t)}{\theta(l, \infty)} = 1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp\left(-\frac{n^2 \pi^2}{l^2} a t\right) \quad (5)$$

となり、 $\theta(l, t)$ が $\theta(l, \infty)$ の $1/2$ になるような時間 $t_{1/2}$ を Fig. 2 より求めれば温度伝導率 a は

$$a = 1.38 l^2 / \pi^2 t_{1/2} \quad (6)$$

として求められる。

ここで筆者らはこの原理を継承し、さらにつぎの考え方を加える。 t_0 と $2t_0$ の試料裏面の温度 $\theta(l, t_0)$ と $\theta(l, 2t_0)$ をサンプリングし、その比をとると

$$\frac{\theta(l, t_0)}{\theta(l, 2t_0)} = \frac{1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp\left(-\frac{\pi^2 t_0}{l^2} n^2 a\right)}{1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n \exp\left(-\frac{\pi^2 2t_0}{l^2} n^2 a\right)} \quad (7)$$

$X = \exp(\pi^2 t_0 / l^2)$ とおけば

$$\frac{\theta(l, t_0)}{\theta(l, 2t_0)} = \frac{0.5 + \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n X^{-n^2 a}}{0.5 + \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n X^{-2n^2 a}} \quad (8)$$

となる。

$\theta(l, t_0), \theta(l, 2t_0)$ は t_0 が決まれば計測可能で、それぞれの値をサンプリングホールドする。 X も t_0 と試料の厚さ l で決まるから、(8)式の右辺は a が 0 から ∞ の変化に対してシミュレート可能である。したがって a を 0 から順に増加し、(8)式の左辺と右辺が一致するような a の値を求めれば、これが温度伝導率である。ここで温度伝導率 a を 0 から順に増加させること

Fig. 3 Time chart of automatic measurement system

Table 1 Measurement range of thermal diffusivity

Thermal diffusivity a (cm^2/s)	Magnification	$\pi^2 t_0/l^2$	t_a s	time scale k
0.001~0.006	X1	500		5×10^3
0.005~0.03	X5	100		10^3
0.01~0.06	X10	50	5~30 (sec)	5×10^2
0.05~0.3	X50	10		10^2
0.1~0.6	X100	5		5×10
0.5~3	X500	1		10

$$\pi^2 t_0/l^2 k = 0.1$$

Table 2 Relation between Integrator's numbers and $\pi^2 t_0/l^2$

$\pi^2 t_0/l^2$	$\exp(\pi^2 t_0/l^2)$	$\theta(l, t_0)/\theta(l, 2t_0)$	Integrator numbers of $\theta(l, t_0, t_a)$	Integrator numbers of $\theta(l, 2t_0, t_a)$
0.1	0.9048	0.0001	8	6
0.2	0.8157	0.00307	5	4
0.3	0.7048	0.0415	5	3
0.4	0.6703	0.0647	4	3
0.5	0.6065	0.1214	4	3
1.0	0.3679	0.4119	3	2
2.0	0.1353	0.7577	2	1
3.0	0.0498	0.9050	1	1
4.0	0.0183	0.9640	1	1
5.0	0.0067	0.9866	1	0

は、 $-0.5\theta(l, t_0)$ と $-0.5\theta(l, 2t_0)$ になるため、Fig. 3 においてわかるように a を 0 からシミュレートした時に一度だけ交叉させるには、左辺の演算器数を偶数、右辺を奇数とするのがよい。さらに $\pi^2 t_0/l^2$ の範囲は 0.5 から 3 までとしたから、その範囲では演算器数は左辺の $\sum X^{-2n^2 a}$ の項は二つ、右辺の $\sum X^{-n^2 a}$ の項は三つとすれば、それ以後の項は 0.0001 以下になり、積分器の精度 0.1% に比べ無視できるので十分である。積分器の入力電圧を e_1 、出力電圧を e_2 とすると $e_2 = -\frac{1}{CR} \int e_1 dt$ であり、この時定数 CR は入力倍率 1 で $1 \text{ M}\Omega \times 1 \mu\text{F} = 1 \text{ sec}$ である。帰還率が 1 を越える場合は入力倍率 10、すなわち $100 \text{ k}\Omega \times 1 \mu\text{F} = 0.1 \text{ sec}$ を使う。

3.4 サンプルホールド回路

試料の温度を熱電対で測定し、増幅し、それをレーザビーム発射後 t_0 と $2t_0$ の時点でサンプルホールドする必要がある。このサンプルホールドの誤差は、データ処理の誤差を $\pm 5\%$ 以内にするためには $\pm 0.1\%$ 以内にすれば十分と考えられる。このサンプルホールドの回路の説明は t_0 だけについてであるが、 $2t_0$ の場合もまったく同じである。サンプルホールドの基本回路を Fig. 7 に示す。この回路のサンプル時、ホ

Fig. 7 Sample and hold circuit

Fig. 8 Errors of sample and hold circuit

(a) Sample error

(b) Hold error

ールド時の出力電圧はつぎのようになる。

サンプル時 (S: on)

$$e_o = e_i(1 - e^{-(t/CR)}) \quad (11)$$

ホールド時 (S: off)

$$e_o = e_{i0} e^{-(1/\mu Cr_i)t} \quad (12)$$

e_o, e_i, e は各部の電圧 (V), i_1, i_2 は各部の電流 (A), R は抵抗 (Ω), C はコンデンサ (F), e_{i0} はスイッチ S が off になる直前の出力電圧 e_o の値 (V), μ, r_i, r_o は増幅器の増幅度, 入力抵抗, 出力抵抗である。サンプルホールド時の出力 e_o は Fig. 8 (a), (b) のようになる。サンプル時の誤差 $e_i - e_o$ の入力 e_i に対する比が一定値に収束するまでの時間 t_i を Table 3 (a) に、またホールド時の誤差 $e_{i0} - e_o$ のホールド開始時の出力 e_{i0} に対する比が一定値内にとどまっている時間 t_{i0} を Table 3 (b) に示す。

ここで熱電対からの信号 $\theta(l, t)$ が適当な l_0 を選ぶことによって、10 msec から 10 sec にわたる変化になるようにすれば、サンプル時には 1 msec 以内に

Table 3 Response at sample and hold

(a) At sample		(b) At hold	
$\frac{e_i - e_o}{e_i} \times 100\%$	t_i	$\frac{e_{i0} - e_o}{e_{i0}} \times 100\%$	t_{i0}
10	$2.3 CR$	10	$0.1 \mu Cr_i$
5	$3 CR$	5	$0.05 \mu Cr_i$
1	$4.6 CR$	1	$0.01 \mu Cr_i$
0.5	$5.3 CR$	0.5	$0.005 \mu Cr_i$
0.1	$7 CR$	0.1	$0.001 \mu Cr_i$

Fig. 9 Error test circuit of multiplier

0.1% に収束させれば十分である。このための CR の値は Table 2 より, $7CR=1$ msec すなわち $CR=0.14$ msec 以下にすればよい。 $\pi^2 t_0 a / l^2$ の範囲が 0.5 ~ 3 に対して時間を 5 sec から 30 sec を対応させると, シミュレートに必要な時間は 30 sec となり, その間ホールドすればよいことになる。このことから 30 sec の間 0.1% 以内にホールドするには Table 3 より $0.001 \mu C r_i = 30$, すなわち $\mu C r_i = 30 \times 10^3$ 以上に選べばよい。以上のことより $C=0.1 \mu$, $R=1$ k Ω , $\mu=80$ db, $r_i=100$ M Ω に選んである。オペアンプは FET 入力の増幅器を使用した。

3.5 かけ算器の精度

かけ算器には電子管, ダイオードなどによる高速度とサーボモータとポテンションを使った低速度形とあり, 前者の誤差は大きく, 一般に 5%, 後者は 1% くらいあるので, データ処理の誤差を $\pm 5\%$ にするためには低速度形を使用する必要がある。低速度形の誤差は Fig. 9 のような試験回路において 0.3% (0~0.1 Hz), 0.8% (~0.8 Hz) である。

4. 結果と検討

ある $\pi^2 t_0 a / l^2$ に対する $\theta(l, t_0) / \theta(l, 2t_0)$ の理論値は (7) 式より求まる。この理論値を, 試料の温度測定用熱電対からの値の代わりに二つのポテンシオメータで設定し, 温度伝導率 a についてシミュレートし, a が定まったらその値, すなわち温度伝導率を直接表示可能な電圧計にて表示する。Fig. 10 は $\pi^2 t_0 / l^2 = 100$, したがって $a=0.005 \sim 0.03$, $\theta(l_0, 2t_0)$ を 0.9 にして, $\theta(l_0, t_0) / \theta(l_0, 2t_0)$ の理論値を設定した時の温度伝導率の本装置による算出結果である。この図よりほぼ $\pm 5\%$ 以内の誤差でデータ処理がなされることがわかる。

この装置に試料の $t_0, 2t_0$ の温度をオフラインで入力

Fig. 10 Automatic Calculation results of thermal diffusivity

した時の温度伝導率の測定結果を Table 4 に示す。 a がその測定結果であり, a^* はグラフから従来の方法で求めた値, a^{**} は他の文献からの値である。測定結果は $\pm 10\%$ 程度の誤差であり, 従来のブラウン管上で求められた誤差と同じ程度である。以上の実験から推定して, 本装置は従来の測定精度を損うことなく温度伝導率の自動データ処理を可能にすると考えられる。

5. む す び

この研究は温度伝導率の自動測定を試みたものであるが, その結果を要約するとつぎのようになる。

- 1) 温度伝導率を 0 から増加させ, それから算出される温度比が計測値と一致するまでの時間から温度伝導率を求める方法を提案し, それによって温度伝導率を人の手間をかけないで直接表示することを可能にした。
- 2) 温度伝導率を 0 から増加させることを時間が経過することに対応させ, それによってアナログ計算器の手法を用いることを可能にした。
- 3) 温度伝導率の自動測定を $\pm 10\%$ 程度で, 直接表示のためのデータ処理を $\pm 5\%$ 以内の精度で可能にした。
- 4) データ処理のためのシミュレート用演算器数は, $\pm 5\%$ の許容誤差においては総計五つで十分であることを明らかにした。
- 5) 本装置に必要なサンプルホールド回路のサンプ

Table 4 Automatic measuring results of thermal diffusivity

	l (cm)	$\frac{\pi^2 t_0}{l^2}$	t_0 (ms)	t_a (s)	Time scale k	a (cm ² /s)	a^* (cm ² /s)	a^{**} (cm ² /s)	$\frac{\theta(l, t_0)}{\theta(l, 2t_0)}$
St. steel	0.6	50	18	21.0	500	0.042	0.04	0.04 ⁽⁴⁾	0.77
W	0.10	5	5.1	32	50	0.64	0.70	0.70 ⁽⁴⁾	0.94
Sulfurous rubber	0.105	500	550	7.4	5,000	0.00148	0.00161	0.0012 ⁽⁵⁾	0.26

ル時、ホールド時両方の時定数を満たす回路定数を明らかにした。

さらに今後かけ算器、演算器、サンプルホールド回路の精度を上げることによって温度伝導率の測定精度を上げることが可能と思われる。

終りに、本研究に有益な助言をいただいた元名古屋市工業研究所、現在(株) F.I.T. の吉田鎌一氏、アナログ計算器について助言をいただいた名古屋市工業研究所 稲垣莊司氏に謝意を表します。

参考文献

- 1) 棚沢：濡れる物質(特に土砂)の熱常数測定法(第1報), 日本機械学会誌, **35**-181, 390/399 (1932)
- 2) 熊田, 小林: 試料のすべての面から輻射熱損失を伴う場合の温度伝導率の非定常測定法; (II) 周期的加熱法, 日本原子力学会誌, **11**-11, 664/669 (1969)
- 3) R. D. Cowan: Proposed Method of Measuring Thermal Diffusivity at High Temperatures, J. of Applied Physics, **32**-7, 1363/1370 (1961)
- 4) J. A. Cape, et al.: Transient Thermal Diffusivity Technique for Refractory Solids, J. of Applied Physics, **34**-12, 3550/3555 (1963)
- 5) 小林, 熊田: ステップ関数状加熱による温度伝導率の測定法, 日本原子力学会誌, **9**-2, 58/64 (1967)
- 6) 熊田, 小林: 試料すべての面から輻射熱損失を伴う場合の温度伝導率の非定常測定法; (I) ステップ関数状加熱法, 日本原子力学会誌, **11**-8, 462/468 (1969)
- 7) 小林: 固体の熱定数の迅速測定, 機械の研究, **21**-1, 89/95 (1969)
- 8) E. L. Wolsard: Pulse Method for the Measurement of Thermal Diffusivity of Metals, J. of Applied Physics, **32**-1, 40/45 (1961)
- 9) W. J. Parker, et al.: Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity and Thermal Conductivity, J. of Applied Physics, **32**-9, 1979/1984 (1964)
- 10) R. L. Rudkin, et al.: Thermal Diffusivity Measurements on Metals at High Temperatures, The Review of Scientific Instruments, **33**-1, 21/24 (1962)
- 11) J. B. Moser and O. L. Kruger: Heat Pulse Measurements on Uranium Compounds, J. of Nuclear Metals, **17**, 153/158 (1965)
- 12) J. B. Moser and O. L. Kruger: Thermal Conductivity and Heat Capacity of the Monocarbide, Monophosphide and Monosulfide of Uranium, J. of Applied Physics, **38**-8, 3215/3222 (1967)
- 13) M. Murabayashi, et al.: Thermal Conductivity of ThO₂-UO₂ System, J. of Nuclear Science and Technology, **6**-3, 128/131 (1969)
- 14) 難波, 金, 新井: レーザーパルス法による熱常数の測定, 応用物理, **36**-8, 661/665 (1967)
- 15) Y. S. Touloukian, et al. (ed.): Thermophysical Properties of Matter, IFI/PLENUM, **10**, p. 401 (1973)