

真空グリース (アピエゾン-N, -T およびシリコングリース) の熱的性質

門倉秀公**, 横川晴美*, 高橋洋一*

(昭和51年12月2日受理)

Thermal Properties of Vacuum Greases
(Apiezon-N, -T and Silicone Grease)

Hidekimi Kadokura*, Harumi Yokokawa* and Yoichi Takahashi*

The heat capacity of vacuum greases has been measured by laser-flash calorimetry at a temperature region from 80 to 400 K. Both Apiezon-N and -T showed an anomaly in heat capacity from 220 to 320 K, while silicone grease showed a sharp anomaly around 230 K. The best choice of a vacuum grease is discussed for the use in maintaining thermal contact between sample and light-absorbing disk in laser-flash calorimetry.

1. 緒言

熱測定関連の実験において、試料と温度センサーとの間などの熱接触を確実にするために、室温以下の温度ではしばしば真空グリースを塗布することが行われる。われわれも、レーザーフラッシュ法熱容量測定において、測定試料表面に受光板を接着するのに真空グリースを用いて好結果を得ている。このような精密熱測定においては、測定結果に必要な補正を行なうため、使用した真空グリースの熱容量が既知である必要があることは勿論であるが、それと同時に熱接触の目的で真空グリースを用いる場合には、使用温度範囲でその熱容量の異常ピークの有無をたしかめることも重要である。もしも顕著な熱容量ピークがあると、その温度では熱拡散率が著しく低下して、当初の目的の熱伝達が効果的に行なわれない恐れがあるからである。

よく用いられる市販の真空グリースのうち、アピエゾン-Tは1-350 K¹⁾、アピエゾン-Nは1-50 K²⁾および80-324 K³⁾の温度範囲での熱容量測定結果が報告されており、これらのグリースでは200-320 Kで熱容量異常が見られることが知られている。レーザーフラッシュ法熱容量測定⁴⁾では、受光板から試料への迅速な熱伝

達が要求されるため、測定温度ごとに適切な真空グリースの選択と、その熱容量のデータを知ることが重要な課題となった。

このような観点から、上記2種のアピエゾングリースのほか、シリコングリースについての熱容量をレーザーフラッシュ法で測定し、これらの比熱容量の標準値を定めると同時に、測定温度ごとに最適なグリースを選定した。この結果は、他の熱測定においても有用であろうと思われるので、以下にその概略を報告する。

2. 実験および結果

レーザーフラッシュ法による熱容量測定の装置・方法の詳細については、文献¹⁾を参照されたい。真空グリース試料の測定のために、Fig.1に示したような非密封の皿型金属(AlまたはTa)容器を用い、受光板(グラッシーカーボン製)を直接試料上にのせた。

測定に用いた真空グリースは次の3種類である：①アピエゾン-N； Apiezon Products Ltd. 製，25 g チューブ

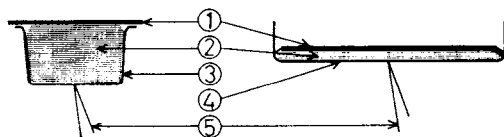


Fig. 1. Calorimeter cell for vacuum-grease samples.
① Absorbing disk, ② Sample grease, ③ Al container, ④ Ta container, ⑤ Thermocouple wires.

* 東京大学工学部原子力工学科：東京都文京区本郷7-3-1

** 現在の所属：住友化学工業(株)菊本製造所
Department of Nuclear Engineering, University of Tokyo, 7-3-1 Hongo Bunkyo-ku, 113 Japan

入り。(2)アピエゾン-T; Metropolitan-Vickers Electrical Co. Ltd. 製 (Apiezon Products Ltd. 販売), 25 g チューブ入り。(3)シリコングリース; Dow Corning Corporation, Cat. No. 970V, 57 g ケース入り。

測定結果を従来の文献値とともに Fig. 2 に図示する。アピエゾン-N, および-T については, 80–260 K ではほぼ文献値と一致する結果が得られたが, 260 K 以上の熱容量異常を示す温度領域では, 再現性にもかなりバラツキがあり, 特にアピエゾン-N については, Bunting ら³⁾の結果よりもかなり低い。これは, 試料の冷却速度による差異が考えられるほか, Bunting らの測定は, 極めてゆっくりした (10 K h^{-1} 程度) の連続加熱方式であるのに対し, われわれのレーザーフラッシュ法ではかなり速い速度で昇温させる (0.1 K s^{-1} のオーダー) ことによるものであろう。レーザーフラッシュ法では, 緩和時間の長い転移については十分に熱平衡に到達させることが困難であり, この意味では, 本実験の 250–320 K でのアピエゾン-N の熱容量データは参考データと考えるべきであると思われる。

このように, アピエゾン-N, アピエゾン-T には, 室温以下 220 K までの温度範囲で熱容量異常があり, 特にアピエゾン-N ではレーザーフラッシュ法では 250–320 K での熱容量の値を定めず, この温度範囲での使用は適当でない。またこの近傍では熱伝達がおくれ, その意味でも望ましくない。Kreitman ら⁵⁾は, これらの真空グリースの“熱コンダクタンス (thermal conductance)”が 210–250 K で急激に低下し, それ以下の温度では極めて低い値にとどまる, と報告している。しかし, この報告では, “熱コンダクタンス”の定義に疑問があり, 実

験の詳細も不明であり, この結論は首肯しがたい。われわれの経験では, 定性的にはあるが, 熱伝達のおくれは熱容量異常の温度範囲に限られ, それ以下では十分迅速な熱伝達が行なわれる。アピエゾン-N と, -T とを比較するなら若干前者の方が低温での熱伝達が良好である。

これに対して, シリコングリースは, 235–310 K の温度範囲で再現性よく測定され, 熱容量の温度依存性も小さく, 熱接触用には好適であると考えられる。しかし 232 K をピーク温度とする比較的幅の狭い熱容量異常が観測され, 熱伝達もこの温度付近では急激に極度に低下することが明らかとなった。従って, この温度近傍での使用は避けなければならない。なお, シリコングリースの熱容量のデータはこれまで報告されていないが, その主成分と考えられるポリジメチルシロキサン⁶⁾の熱容量のデータ(東レシリコン(株)による)⁶⁾と比較的よく一致し, その温度依存性もほぼ一致する。

3. 結 論

以上の結果より, レーザーフラッシュ法において熱接触のために使用する真空グリースとしては, 次のような選択が最良のものと考えられた。

- 80–220 K; アピエゾン-N グリース
- 240–310 K; シリコングリース

220–240 K では, いずれも問題があるが, 強いていえば, アピエゾン-N が最善であろう。アピエゾン-T は, 特に大きな熱容量異常がないので, 広い温度範囲にわたって使用せねばならない時には適している。なお, シリコングリースは, 今回は実測しなかったが 310 K 以上でも同様に使用できるものと思われる。

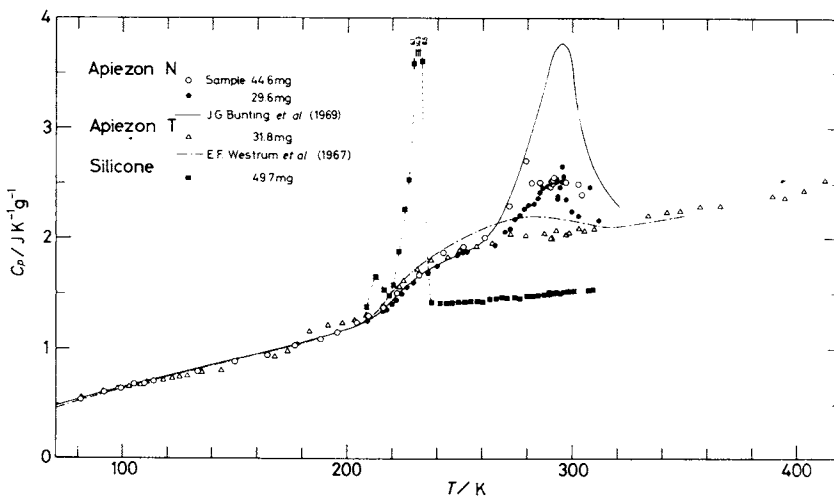


Fig. 2 Heat Capacity of Apiezon-N, Apiezon-T and Silicone grease.

上記の温度範囲で使用する場合の標準比熱容量を、
Table 1 に示す。

$\frac{T}{K}$	$\frac{C_p}{JK^{-1}g^{-1}}$		
	Apiezon-N grease	Apiezon-Γ grease	Silicone grease
80	0.543	0.560	
90	0.599	0.608	
100	0.654	0.654	
110	0.707	0.695	
120	0.759	0.729	
130	0.810	0.758	
140	0.860	0.793	
150	0.910	0.837	
160	0.961	0.890	
170	1.011	0.957	
180	1.063	1.085	
190	1.117	1.193	
200	1.177	1.24	
210	1.26	1.31	
220	1.44	1.49	
230	1.64	1.71	

240	1.76	1.81	1.41
250	1.86	1.89	1.43
260		1.94	1.44
270		1.98	1.46
280		2.02	1.48
290		2.06	1.50
300		2.09	1.52
310		2.12	1.54
320		2.15	1.56*

* extrapolated value.

文 献

- 1) E. F. Westrum, Jr., C. Chow, D. W. Osborne, H. E. Flotow, *Cryogenics* 7, 43 (1967)
- 2) A. J. Bevolo, *Cryogenics* 14, 661 (1974)
- 3) J. G. Bunting, T. Ashworth, H. Steeple, *Cryogenics* 9, 385 (1969)
- 4) Y. Takahashi, H. Yokokawa, H. Kadokura, Y. Sekine, T. Mukaibo, *J. Chem. Thermodyn.* 投稿中
Y. Takahashi, *J. Nucl. Mater.* 51, 17 (1974)
- 5) M. M. Kreitman, T. Ashworth, M. Rechowicz, *Cryogenics* 12, 32 (1972)
- 6) 東レシリコン(株), 私信。

ノ ー ト

NETSUSOKUTEI 4(2) 54-56 (1977)

フォト・カプラーを利用した温度制御装置

松尾隆祐*

(昭和52年2月3日受理)

Construction of a Light-Coupled Power Amplifier for Use in a Temperature-Controller

Takasuke Matsuo*

A direct-current power amplifier has been constructed for use in a temperature controller, in which a light-coupled transistor (electro-optical coupler) incorporated in the amplifier circuit separates the potentiometric null detector from the heater circuit with respect to the electrical potential relative to the ground. This feature gives a wider choice of the grounding points and larger tolerance about the electrical insulation between the thermocouple and heater in the thermostat than is possible with a direct-coupled amplifier. By using a copper-constantan thermocouple as the thermometer, temperature stabilization within 3 mK was readily attained at 220 K. Application of the apparatus in the adiabatic calorimetry is suggested.

1. 緒 言

種々の物理化学実験において試料の温度を制御するた

めに熱電対を感温体とする制御装置がよく使われる。この種の装置では熱電対起電力をある設定値と比較し、その差に応じて負帰還ループを構成すべく試料部のヒーター電力を制御する。原理的には負帰還ループの増幅度が十分大きく、また応答速度が十分に速ければ、幾らでも精密な温度制御が可能である。しかし現実には熱電対の

* 大阪大学理学部化学教室：豊中市待兼山町1番1号
Department of Chemistry, Faculty of Science, Osaka University, Toyonaka, Osaka 560, JAPAN