

レーザーフラッシュ熱拡散率測定法の改良 (I) — 恒温壁型測定装置の試作と熱損失の補正 —

高橋洋一*, 安積忠彦**, 菅野昌義*

(昭和 55 年 10 月 22 日受理)

Improvements on Laser-Flash, Thermal Diffusivity Measurement (I). — A New Isoperibol Type Apparatus and Heat-Loss Correction —

Yoichi Takahashi*, Tadahiko Azumi**
and Masayoshi Kanno*

A new laser-flash apparatus for thermal diffusivity measurement from 300 to 1500 K is described. In this apparatus the sample is surrounded by an isoperibol heat sink made of tantalum, which diminishes heat loss from the sample by radiation at high temperatures. The temperature of the sample is sensed by an infrared detector or alternatively by a thermocouple, whereas that of the heat sink is detected by a thermocouple. An improved method of correction for heat leak is also presented employing a parameter $kt_{1/2}$, where k is the relaxation constant of the heat-loss curve and $t_{1/2}$ is the half rise time to reach the maximum temperature. These values can be experimentally determined and the proposed method provides a convenient and useful way in the correction for the heat loss from the sample. As an example, the thermal diffusivity data on tantalum with the correction for the heat loss are presented and are compared with the available data.

1. 序 論

レーザーフラッシュ法による熱拡散率の測定については、これまでも多数の報告があり、原理的にはすでに確立されたものとなっている¹⁾。その概略を述べると、直径 8~10 mm, 厚さ 0.5~3 mm 程度の小円板状に成形した固体試料の表面に、ある瞬間にレーザー (通常はルビ-レーザー) のパルスをフラッシュさせ、照射時以降の試料内の熱伝導による試料裏面の温度変化を時々刻々に測定する。試料が無限の広がりを持つ二次元媒体で、熱流がこれに直角に均一に伝わる、という単純化されたモデルから導いた理論式を用いて、試料の熱拡散率 α は通常次の式で与えられる。

$$\alpha = 0.1388 \frac{L^2}{t_{1/2}} \quad (1)$$

ここで、 L は試料の厚さ、 $t_{1/2}$ はレーザーフラッシュによる試料裏面の温度上昇が飽和値の 1/2 に達するまでの時間である。熱伝導率 λ は (1) 式の α 及び試料の密度 ρ 、熱容量 C_p を用いて、 $\lambda = \rho \cdot C_p \cdot \alpha$ より算出される。

しかしながら、(1) 式が正確に成り立つのは、次のような条件をみたす理想の場合に限られる。すなわち、(a) $t_{1/2}$ に比べてレーザーの照射時間が十分に短いこと、(b) レーザービームのエネルギー密度が空間的に均一であること、(c) 測定時間中に試料よりの熱損がないことなどで、これらは実験条件として、必ずしも常に成立するわけではない。したがって、レーザーフラッシュ法による測定は、できるだけ上記の理想的な場合に近づけるように実験条件をととのえるか、または理想的条件からのずれによる誤差を定量的に補正することが必要となる。

レーザーフラッシュ法熱拡散率測定はこれまでかなり高温まで用いられてきて、特に熱損失に対する補正は理

* 東京大学工学部原子力工学科：東京都文京区本郷 7-3-1 〒113

Department of Nuclear Engineering, The University of Tokyo, Hongo 7-chome, Bunkyo-ku, Tokyo, 113

** 理学電機 (株) より出向

Rigaku-Denki K.K., Akishima, Japan

論的にはある程度究明されてきているが、実験的に的確な対策を講じたものはあまりみられず、これがこの方法の測定の信頼性に若干の問題を感じさせる原因となっている。また 1300 K 以上の高温では試料裏面の温度を検出するのに熱電対を用いる接触法では限界があるので、半導体検出器を温度センサーとする非接触法が次第に広く用いられているが、この場合、試料温度の変化は比較的鋭敏に検出できるものの、試料の絶対温度の測定に問題が残る。

われわれはこれまで自作のレーザーフラッシュ測定装置²⁾を用い、UN³⁾、UC-UN⁴⁾、UP-US⁵⁾などについての熱拡散率を測定してきたが、上記のような問題点を考慮して、あらたに高温での熱拡散率測定の精度を向上させる一つの方法として、試料周囲に均熱ブロックを設けた装置を試作した。これによって、試料の熱損失は恒温壁条件を仮定することができ、ほぼ定常的となる。また、高温の熱拡散率測定では、半導体検出器による非接触法がより好適であるが、試作した装置では、室温付近での測定の便宜および両測定法の比較校正ができるように、熱電対を用いた接触法による測定も行ない得るようにし、両者の利点を最大限利用できるものとした。この報告では、この装置の詳細と、これを用いた測定において、より正確なデータを得るための熱損失補正の方法を検討した結果を述べる。

2. 恒温壁型改良測定装置

この装置の主要部分の断面図を Fig.1 に示してある。

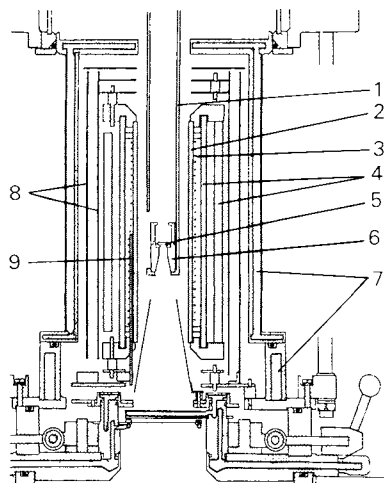


Fig. 1 Apparatus for thermal diffusivity measurement;
1, holding tube (Al_2O_3); 2, heater bobbin;
3, heater wire; 4, adiabatic shields;
5, sample; 6, isothermal block; 7, cooling water;
8, thermal shields; 9, thermocouple.

試料部分および均熱ブロックは試料部支持用アルミナ管にセットされ、内径 50 mm のアルミナ製ボビンに加熱ヒーターを巻いた内熱式電気炉の中央部に保持される。電気炉の外側には断熱筒および反射板があり、これら全体を水冷された真空ジャケットでおおっている。試料をセットするときには、試料部支持用アルミナ管の部分以外は電気炉と真空ジャケットとが一体のまま上方に引き上げられるようになっている。

試料保持部および均熱ブロックの詳細を示したのが Fig.2 である。均熱ブロックは総重量約 200 g のタンタル製で、試料よりの熱放射による熱損を最少限にするため、長さを十分にとってあるが、一方試料のセットの簡便さを考えて一体のブロックではなく、上下二つの部分に分けられ、試料をセットする際には上部を取り外すことができるようにした。下部は、非接触法による測温のために、円錐状に穴がけられている。試料は断熱および絶縁のためのアルミナ製のピンで保持され、さらに同質の試料ホルダーを介して、この均熱ブロックの中央部にセットされる。均熱ブロックの全体は、アルミナ製の支持管で支持され、電気炉の中央におかれる。均熱ブロックの温度は、外周上に設けた深さ 5 mm の孔の中に白金・白金ロジウム 13% (またはクロメル・コンスタンタンかプラチネル) 熱電対を挿入して測定する。

試料の温度は熱電対で測定するが、半導体検出器を利

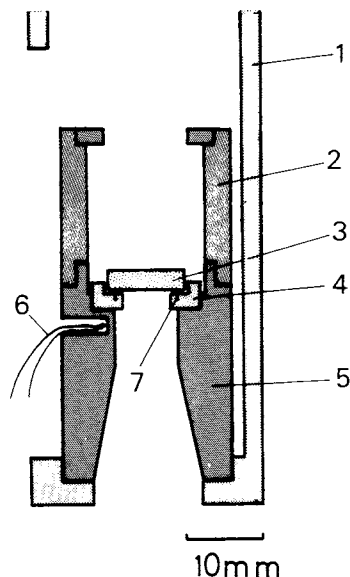


Fig. 2 Sample and its holding assembly;
1, holding tube (Al_2O_3); 2, upper isothermal block (Ta); 3, sample; 4, sample holder (Al_2O_3); 5, lower isothermal block (Ta); 6, thermocouple; 7, pin (Al_2O_3).

用することもできる。熱電対を用いる場合は、試料の中央部に、2本の熱電対を約1mm離して、金属試料ではスポット溶接、また非金属試料では導電性ペースト（たとえば銀ペースト）にてつける。半導体検出器を用いる場合は、試料からの赤外線は30cmの距離にある反射鏡（トロイダルミラー）で集光させ、同時に直角に光を曲げて、さらに30cm離れた位置にある半導体検出器に入れるようにし、真空窓にはKRS-5^{*1}を用いて、常温でも十分有効な赤外線を検知できるよう配慮した。

3. 試料の温度履歴曲線と熱拡散率に及ぼす熱損失の補正

均熱ブロックを用いることにより、試料よりの熱損がどのように抑制され、また恒温壁条件が満たされているか否かを確かめるため、タンタルを使って、1000Kおよび1300Kにおける試料裏面の温度履歴曲線を通常の熱拡散率測定に比べて十分長い時間に亘って測定した。その結果をFig.3に示す。温度測定にはプラチネル熱電対を用いた。これより、恒温壁条件がよく保たれていると同時に高温での熱損が通常の場合に比べて著しく減少していることが確かめられた。 t をレーザー照射後の経過時間、 k を熱損失曲線の緩和係数とすると、試料裏面の温度は最高温度に達した後、次第に指数関数 $\exp(-kt)$ に比例するようになる。Fig.3より求めた緩和係数 k を用いた熱拡散率に対する補正の方法および結果は後述する。

熱拡散率測定における熱損失に対する補正法は多くの論文に報告されている。Heckman⁶⁾は試料の厚さ方向のみの熱損失を考えた熱拡散方程式から試料裏面の温度履歴を表として示し、Capeら⁷⁾は熱損失の大きさを推定することによって、それに対応した補正係数を図として

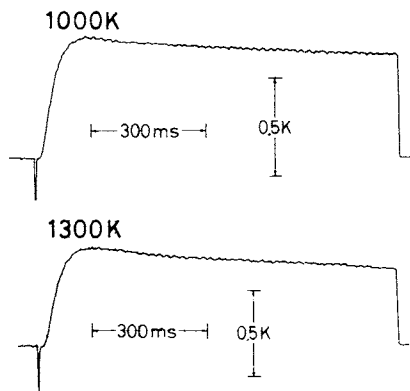


Fig. 3 Temperature history curve for tantalum.

*1 45 μm までの赤外線が透過可能な光学ガラス

与えている。しかし、これらの補正法は試料の径方向（側面）への熱損失を考慮していない。これはフラッシュ法による熱拡散率測定装置では、試料の上面からレーザー等のビームが入射し、試料の下面は温度測定のために大きく開口されているのが常であり、主として、側面だけを電気炉でおおっている関係上、試料の下面より流出する熱量が多く、これらの面からの熱損失効果がより大きく作用すると考えているからである。われわれの装置でも、恒温壁条件を完全に満たしているわけではないが、できるだけ試料の周囲を金属ブロックでおおることによって、恒温壁条件に近づけようとした。その結果、比較的単純なモデル計算から、恒温壁以外へ流出する熱量は全体の約3%であるとみなされることがわかり、ほとんど恒温壁として取扱って問題ないと思われる。

熱拡散率を求める一般的計算式(1)が適用されるのは試料が完全に孤立していて、試料よりの熱損失がない場合である。熱損失を考慮した場合、厳密には(1)式は成立しなくなる。この場合の熱拡散率 α をあらわす一般式として、(1)式のかわりに、

$$\alpha = K \frac{L^2}{t_{1/2}} \quad (2)$$

であらわすことができる。このとき、 K は一般には0.1388よりやや小さい係数で、熱損失のない極限条件で $K = 0.1388$ となる。熱損失の大きさを想定すれば、 K は理論的に計算で求めることができる。またこの場合には、試料温度は飽和しないので、 $t_{1/2}$ を試料裏面の温度が最高温度の半分に達するまでの時間として定義する。

熱損失曲線の緩和係数 k と $t_{1/2}$ の積を用いて、係数 K をあらわすと便利である。 $kt_{1/2}$ と K とは厳密には一意的な関係にはないが、 $kt_{1/2}$ が小さい場合はほぼ関数関係にあると考えてよい。たとえば、Heckmanの論文⁶⁾に載っている表から、これらの間の関係を計算した結果はFig.4に示すようになった。Heckmanは径方向（側面）の熱損失を考慮してなくて、試料の上面からの熱損失 L_1 と、下面からの熱損失 L_2 を独立な変数と考えた。Fig.4には $L_1 = L_2$ とした値を掲げたが、それ以外の値との違いは、 $kt_{1/2}$ が小さい場合は無視できるほどのものであった。たとえば、 $kt_{1/2} = 0.07$ で、ずれは約1%ほどにすぎない。

計算の一例として、Fig.3の温度履歴曲線より緩和係数 k を求め、その温度における $t_{1/2}$ を用いて、Fig.4より K を読み取るとTable1のようになる。Table1の $kt_{1/2}$ の値は試料よりの熱損失が均熱ブロックに対する熱流（輻射熱）として十分説明できる程度のものなので、近似的に恒温壁条件と考えての取扱いが可能であることを示している。

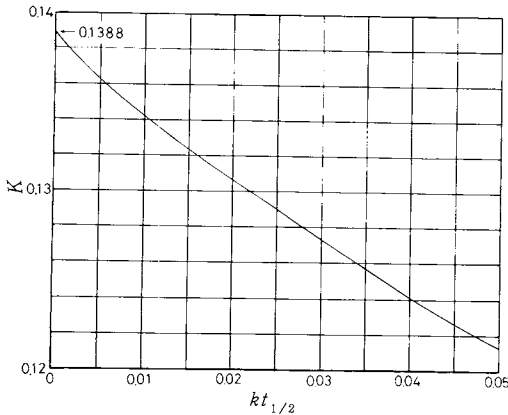


Fig. 4 Calculated curve for correction parameter K (eq. 2) vs. $kt_{1/2}$.

Table 1 Examples of correction parameter K

$\frac{T}{K}$	$kt_{1/2}$	K
1000	0.0057	0.1361
1300	0.0128	0.1332
ideal case*	0	0.1388

*the case of no heat leak

Fig. 4はHeckmanの論文⁶⁾より求めているために、当然径方向の熱損失を無視している。ということは試料の厚みを零とみなしたことと同じであり、試料の厚みを考慮すれば、Fig. 4とは若干異なってくる。この効果については次の機会に報告するつもりである。

$kt_{1/2}$ を補正の変数に用いるのは非常に有効な熱損失に対する補正の手段である。これまでの例では、たとえばCapeら⁷⁾は Y という変数を用いているが、この変数は緩和係数 k と、 $k = 2\alpha Y/L^2$ という関係にあり、未知量の熱拡散率 α が介在しているために、実験的に Y を決定しようとする、繰り返しの過程によって、逐次近似しなければならない。またHeckman⁶⁾は熱リーク曲線を与えているが、実験によって得られた曲線がどの計算曲線にちょうど合うか、curve fittingにより見つけなければならない。ところが、 $kt_{1/2}$ を用いると、この値は実験値のみから求められるので、Fig. 4を用いれば、ただちに補正係数 K が求められ、(2)式より熱拡散率 α (熱損失を補正した値)が算出されるのである。

恒温壁を設けたことによる効果(測定精度の向上)の評価はきわめて困難な課題である。その理由は恒温壁のない場合には、外周の温度の影響をまともに受けるので、熱リークの大きさを推測する手段がないこと、高温の熱拡散率の標準試料がないことのために、最終的な不正確度の評価ができないことなどがあげられる。本装置につ

いても、最終的な測定誤差を定量的に算定することはできず、次の節に示すように半定量的の評価にとどまらざるを得なかった。

4. タンタルの熱拡散率測定結果

例として、タンタル(厚み 2.847 mm, 直径 10 mm)を試料として測定したデータに、前述の熱損失に対する補正を施して得られた結果をFig. 5に示す。参考のため、補正前のデータを数点のせた。熱拡散率の温度依存性はフラッシュ法によるDenmanの測定値⁸⁾および我々の研究室で測定した熱容量⁹⁾とTPRCによる熱伝導率の推奨値¹⁰⁾を用いて計算した値に相対的にはよく一致している。ただし、Denmanの測定値は二つの測温の方法の違い(熱電対と非接触法)で絶対値にずれが認められる。われわれの測定値の再現性は $\pm 2\%$ であり、他のデータと比較しての不正確度は最大に見積もっても、 $\pm 5\%$ 以内であると考えられる。

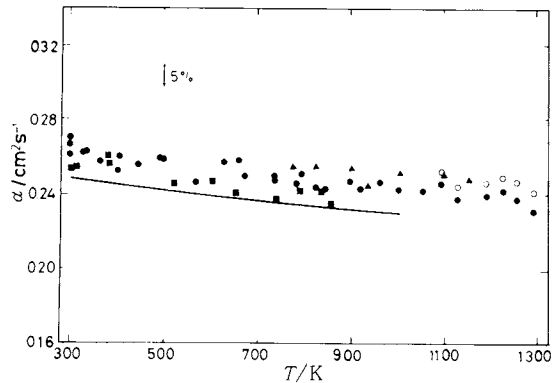


Fig. 5 Thermal diffusivity of tantalum;

- , present data corrected for heat leak;
- , present data before the correction;
- , Denman⁴⁾ (thermocouple);
- ▲, Denman⁴⁾ (infrared detector);
- , calculated value from heat capacity and thermal conductivity.

5. おわりに

均熱ブロックを用いた我々の装置では、近似的に恒温壁条件とみなせることがわかり、 $kt_{1/2}$ を変数とする熱損失補正の妥当性と有用性が評価された。しかし、これまでの実験データは熱電対を用いたものであるために、1000 K以上の高温になると電気的ノイズの問題を生じ、さらに1500 K以上の高温では適当な熱電対がないこともあって、どうしても半導体検出器を用いた非接触法が必要になる。ところで非接触法における問題点として、特に試料の温度の正確な測定が困難なこと、半導体検出

器の感度の温度依存性が大きいために、それによる較正が必要なこと等があげられる。

また、当装置はレンズ系でレーザー光を絞って、試料の一部にレーザー光を照射し、その部分の熱拡散率を測定できるようになっているが、このような場合には熱損失がないときでも、(1)式を適用することはできない。これはビームにホットセンターがある場合とも対応していて、このようなフラッシュ光に対する解析例が他にないので、上記のことを合わせて、現在検討中であり、ひきつづき報告する予定である。

謝 辞

本研究の一部は、文部省昭和53・54年度科学研究費(試験研究(2), 第388023号)によった。記して謝意を表する。

文 献

- 1) たとえば、高橋洋一、村林真行、神本正行，“熱・温度測定と熱分析1974”(日本熱測定学会編)，p.45,

科学技術社，東京(1974)などを参照

- 2) M. Murabayashi, S. Namba, Y. Takahashi and T. Mukaibo, *J. Nucl. Sci. Tech.*, **6**, 128 (1969).
- 3) Y. Takahashi, M. Murabayashi, Y. Akimoto and T. Mukaibo, *J. Nucl. Materials*, **38**, 303 (1971).
- 4) M. Kamimoto, Y. Takahashi and T. Mukaibo, *J. Phys. Chem. Solids*, **35**, 393 (1974).
- 5) M. Kamimoto, Y. Takahashi and T. Mukaibo, *J. Nucl. Sci. Tech.*, **11**, 158 (1974).
- 6) R. C. Heckman, *J. Appl. Phys.*, **44**, 1455 (1973).
- 7) J. A. Cape and G. W. Lehman, *J. Appl. Phys.*, **34**, 1909 (1963).
- 8) G. L. Denman, *High Temp. - High Pressures*, **1**, 327 (1969).
- 9) J. Nakamura, Doctorial Thesis, Univ. of Tokyo (1980).
- 10) C. Y. Ho, R. W. Powell and P. E. Liley, *J. Phys. Chem. Ref. Data*, Vol. 3, Suppl. No. 1, p 631 (1974).

入 会 案 内

日本熱測定学会では、(i) 会誌「熱測定」の発行(年4回)、(ii) 熱測定討論会の開催(年1回)、(iii) 「熱・温度測定と熱分析」の発行(年1回)、(iv) 熱測定講習会の開催(年1回)、(v) 米国、北米、ソ、英、仏、西独、北欧等の学会および国際学会組織(IUPAC, ICTA, CODATA等)との交流を事業として行なっております

ほか、電算機利用研究グループ、BTT情報収集作業グループ、熱分析共同測定作業グループ、工業熱測定グループなどの各研究グループを設けて、会員の便宜をはかっております。

入会を希望される方は、事務局に入会申込書がありますので御利用下さい。

会費(会計年度は10月1日より翌年9月30日)

正会員(個人) 年額 3,000円

維持会員(法人) 〃 20,000円(1口)以上

日本熱測定学会事務局 〒113 東京都文京区湯島 1-5-31

第一金森ビル内 電話 03-815-3988 振替東京 110303