

薄い固体材料の熱伝導率測定法の検討と新たな方法の提案

Study of Measurement Method of Thermal Conductivity for Thin Plate Materials and Propose of New Method

高橋 カネ子

Kaneko TAKAHASHI

Abstract

The objects of this study are improvement and estimation of thin plate quality (thickness D_s is about $0.1 \leq D_s \leq 1.0$ [mm]) that has electric insulating property and more greater thermal conductivity than proper plastics. In this report we have been tried numerical calculation about temperature field having thin and narrow film heater.

The two dimensional temperature field is used for consideration as first approximation. The solution of simultaneous heat conduction equations under initial and boundary conditions is obtained by numerical simulation based on finite difference method. The author have been obtained calibration curves between temperature rising ratio and thermal conductivity of various materials.

[Key Word] thermal conductivity, thin plate, unsteady method, temperature increasing ratio, electric insulation

1. 緒言

我々の生活は主に20世紀の後半における技術の進歩によってこれまでになかった便利かつ快適なものになって来た。しかしながら、それに伴うエネルギー使用の増大と共に環境の汚染・エネルギー資源の枯渇が大きな問題となっている。さらに、世界の人口増加、政治・経済・宗教などの多くの要素が絡み合ったいわゆるトリレンマ^[1]現象として地球規模の大問題になっている。

ここではエネルギー・環境汚染問題に限定して考えるが、これを解決することは非常に困難であると予想され、地道な努力が必要であろう。問題解決の手段として、ソーラー・風力・バイオなどのこれまでエネルギー源として多くを担っていなかったリサイクルエネルギーや新しいエネルギー変換手段である燃料電池などのエネルギー源の開発も重要なことである。しかし、この手段だけではなく、これまでの使用機器の高効率化や高性能断熱材の開発などの省エネルギーに属する努力も忘れてはならない。

エネルギー機器や住宅建材などの民生材料の熱エネル

ギーに関連する材料の使用にあたっては、強度に代表される機械的な性質はもちろんとして、熱物性値を正確に把握することが前述の高効率や省エネルギーを目的とするためには必要不可欠の条件である。

この研究は発電機の性能を改善するために、その中の回転子に使用されているプラスチックを主原料とする電気絶縁シートの絶縁性を保ったまま伝熱性能を改善し、放熱を促進して効率を高めたいという要求から始められたものである。

あとで議論するように、このようなシート状かつ熱伝導率が比較的小さい物質の熱伝導率を的確に測定する方法^[2]は現状では見当たらず、一つの推定法^[3]が提案されたことはあったが、この方法も必ずしも妥当な値をもたらすものではない^[4]。

以上の観点から、本研究は薄いシート状の物質の熱伝導率を測定する方法を探り、それに基づく実験装置を開発して適確な性能評価や改善に役立てることを最終の目的とする。ただし、この論文では最初に既存の提案^[3]や著者らの初期的な検討^[4,5]を基にした測定理論および

方法の提案を内容とする。

2. 測定法の検討と新たな方法の提案

2.1 熱伝導率の測定方法 物質の熱伝導率の測定法には、対象を固体に限定しても多くの方法[2]があり、更に、熱伝導率の値が比較的小さい断熱材については特にいくつかの方法が詳細に述べられて[6]いる。これらの方法の中から、試料の形状および推定される熱伝導率の値をもとに考慮すると、温度場を定常状態に保持する平板比較法もしくは平板絶対法が最も適したものであるように思われる。しかしながら、これらの方法はいずれも試料両表面の温度を測定しその温度差を求める必要がある。この条件は、本研究が目指している厚さ0.1~1.0[mm]程度のシート状試料に対しては測定誤差が大きく生ずる可能性があると思慮される。

また一方、近年電子機器の発達と共に多用されるようになって来たパルス加熱法（レーザーフラッシュ法）も試料の性質・形態によっては非常に優れた方法[2]ではあるが、本研究の試料に対しては厚さおよび複合材料をも将来の測定目的とする条件から適用は困難と考えられる。

以上の検索と考察からこれまでに提案された測定方法や現在一般に使用されている方法の中には目的に合う方法は見当たらないと結論した。また、測定器メーカーから提案された推定法[3]も山田らによって必ずしも適確な値を与えないことが示されて[4]いる。そこで、著者はこれまでの知見を基礎として、薄い試料を他の材質の基盤上に置き、その上に幅の狭い箔状の加熱源を備えたヒーターを置いて非定常加熱を行い、その加熱源温度を観測する方法を考え可能性を検討することとした。この方法によれば熱源温度のみを測定すれば良く、試料両表面間の温度差の測定は必要ないので、前述の定常法による欠点を除去出来ると思慮される。

この方法は非定常プローブ法[2]と呼ばれる方法に似ている部分もあるが、非定常プローブ法は測定時間中（約20~40[sec]程度）に試料の裏面にまで温度波が到達しないという条件を満足させるため、厚さの大きい試料を要する点が、薄い試料のまま測定せねばならぬ本研究の条件と大きく異なる事項である。

2.2 想定される測定装置のモデル化と熱伝導方程式 前節で検討したごとく、非定常プローブ法に類似した測定方法を想定し、測定の可能性を探ることとする。測定試料は一般に厚さは薄いが入り幅は大きく、200×200[mm]のものが容易に入手出来る。従って、測定装置の作成にあたってこれの1/4程度の大きさを用いるとしても、ヒーターの長さは100[mm]となり、中心位置

の温度変化を測定すれば、端面方向への3次元熱流誤差はそれほど大きくないと思慮される。

従って、この論文ではFig.1に示す2次元温度場で測定の可能性を検討することとした。即ち、最下部に基盤（添字bで示す。以下同様）を置き、その上に試料（s）、狭い箔ヒーターを中心部に取り付けたヒーターベース（g）、さらにその上に試料とヒーターベースの接触を確実にしかつ取扱いの容易さを考えたプラスチックブロック（アクリルを想定した）（a）を置いたものである。

もし、測定が可能となった場合、将来的には実際の3次元現象を2次元に近似したことによる測定誤差は次報以降さらに検討することが可能である。

先に述べた試料およびその他の構成物質の形状から、直交座標を用いて図に示すように座標をとると、熱伝導方程式はb, s, g, aの各物質に対し

$$\frac{\partial T_i}{\partial \tau} = \alpha_i \left(\frac{\partial^2 T_i}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T_i}{\partial y^2} \right) \quad (1)$$

のようになる。

ここで、 T は温度、 α は温度伝導率、 τ は時間であり、添字のiはb, s, g, aのそれぞれの物質を表す。従って、4本の連立方程式を以下の初期条件および境界条件の下で解くことになる。

初期条件は、測定開始時に装置全体が温度 T_0 の熱平衡状態にあったとすると

$$\tau \leq 0 \quad \text{において} \quad T_i = T_0 \quad (2)$$

次に境界条件は以下のようにになる。即ち、それぞれの物

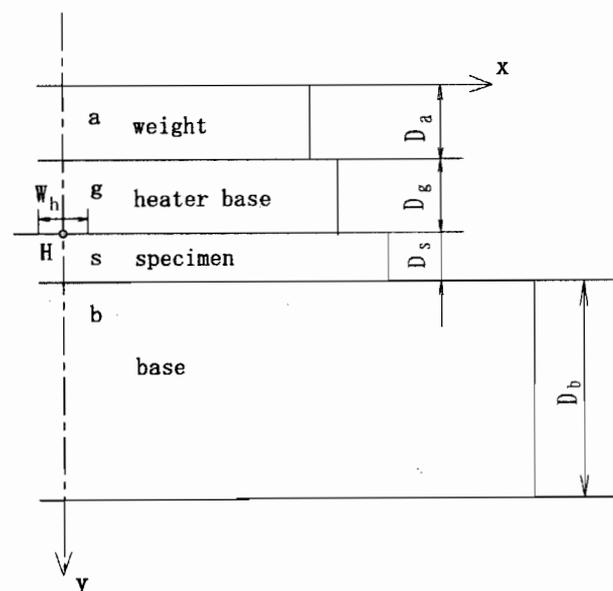


Fig.1 Analytical model of measurement method

質の接触面で接触熱抵抗が存在しないと仮定すると、温度連続および伝熱量連続の関係が成立するので

$$T_i = T_j \quad (3)$$

$$\lambda_i \frac{\partial T_i}{\partial n} = \lambda_j \frac{\partial T_j}{\partial n} \quad (4)$$

ただし、上式で n は等温線への法線方向、 i, j は b, s, g, a の接触する 2 者の適切な組み合わせをとる。更に、各物質が周囲（大気）と接している部分で表面の熱伝達率 h が一定であると仮定すると、

$$\lambda_i \frac{\partial T_i}{\partial n} = h(T_i - T_0) \quad (5)$$

また、ヒーター部で一定の加熱 q_h を与えると

$$y = D_a + D_g \quad \text{かつ} \quad 0 \leq x \leq W_h/2 \quad \text{で} \\ q = q_h \quad (6)$$

となる。

2.3 熱伝導方程式の解法 前節で提示した連立熱伝導方程式を式 (2) ~ (6) の初期条件および境界条件の下で解析的に解くことは非常に困難と考えられる。従って、ここでは数値解析によって解を求め検討を行うことにした。

偏微分方程式の数値解法については、近年の電子計算機の発展に伴い、有限要素法・境界要素法[7]なども多く用いられているが、本研究ではプログラムも比較的容易に自作でき、かつ、考え方も理解しやすい差分法を用いた。現象が非定常であるのでここでは時間軸を進める前進差分法を採用している。差分法においても計算点の採用数によりいくつかの種類が存在する[8]が、今回は最も点数の少ない 5 点差分を用いた。しかしながら、格子の大きさを適切に選べば計算精度を十分にとれることは良く知られている。

1 例として、Fig.2 のごとく計算点 T_0 とその周囲の 4 点を考える。 T_0 への熱の出入り q_0 は C を各温度点間の熱コンダクタンスとすると

$$q_0 = C_{01}(T_1^n - T_0^n) + C_{02}(T_2^n - T_0^n) + \\ C_{03}(T_3^n - T_0^n) + C_{04}(T_4^n - T_0^n) \quad (7)$$

となる。ただし、熱コンダクタンスは温度点間の見掛けの熱伝導率と伝熱面積との積をその間の距離で除したものである。これが $\Delta\tau$ 時間後の T_0 点の温度上昇をもたらすので

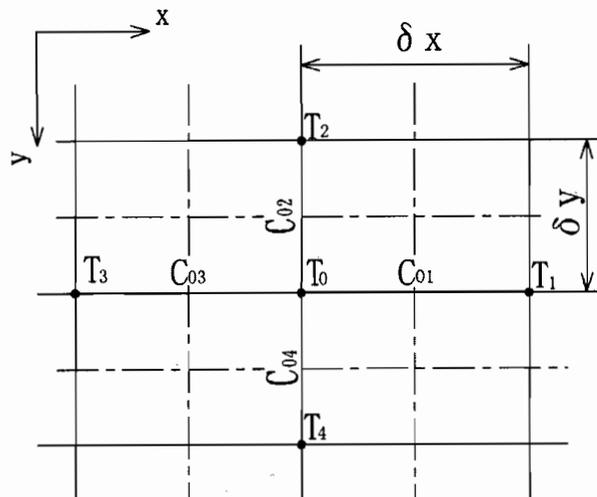


Fig.2 finite difference mesh

$$(T_0^{n+1} - T_0^n) \cdot H_0 = q_0 \cdot \Delta\tau \quad (8)$$

ここで T_0^n および T_0^{n+1} はそれぞれ時間 $n\Delta\tau$ と $(n+1)\Delta\tau$ における T_0 の温度を表す。また、 H_0 は点 T_0 の熱容量であり、比熱容量を c 、密度を ρ で表すと

$$H_0 = c \cdot \rho \cdot \delta x \cdot \delta y \quad (9)$$

のようになる。式 (8) から

$$T_0^{n+1} = q_0 \cdot \Delta\tau / H_0 + T_0^n \quad (10)$$

となり、 $\Delta\tau$ 時間後の点 T_0 の温度が求められる。ただし、Fig.1 の物質相互の寸法において、 x 方向の各寸法（幅 W ）はほぼ同じ大きさで見なして良いが、 y 方向は D_s のみが極端に薄いことを考慮する必要がある。即ち、Fig.1 の y 方向の計算格子を試料に合わせてすべて同一にすると格子数が多くなり過ぎ、計算終了まで多くの時間を要する。また、 x 方向は箔状ヒータ幅 W_h に合わせて、中心部分の格子を $1/2 \cdot W_h$ とし、その外側は大きい値を採用して実験装置の寸法に近似させた。即ち、Fig.3 のように試料および中心軸付近の格子寸法を表し、各格子点を図のように名付けると、代表的な温度点間の熱コンダクタンス C および格子点熱容量 H は次式のようになる。

$$\begin{aligned}
C_{10} &= \lambda_s \cdot \delta x_c / \delta y_s \\
C_{03} &= 0.5(\delta y_s \cdot \lambda_s + \delta y \cdot \lambda_b) / \delta x_c \\
C_{34} &= 0.5(\delta y_s \cdot \lambda_s + \delta y \cdot \lambda_b) / \delta x \\
H_1 &= C_s \cdot \rho_s \cdot \delta y_s \cdot \delta x_c \\
H_0 &= 0.5(\delta y_s \cdot \delta x_c \cdot c_s \cdot \rho_s + \delta y \cdot \delta x_c \cdot c_b \cdot \rho_b) \\
H_3 &= 0.25(\delta x_c + \delta x)(\delta y_s \cdot c_s \cdot \rho_s + \delta y \cdot c_b \cdot \rho_b) \\
&\dots\dots\dots(11)
\end{aligned}$$

上述の計算では、熱移動と温度変化の両過程が時間 $\Delta\tau$ の間、完全に独立になっている。このため、熱移動で流入する熱量は、 $\Delta\tau$ を大にするとそれに比例していくらでも増加し、その結果の温度変化が周囲温度に対する定常平衡温度さえ超えて進行する事態が生ずる。このことは、熱力学第二法則に違反することになるので、 $\Delta\tau$ の許容範囲をあらかじめ求めて^[9] おき、計算中の解の発散などを防ぐことが大切である。

2. 4 数値解析のための数値とパラメータ 本論文での計算は、物性値が既知な断熱材から低熱伝導率の金属にわたる広範囲かつ多種類の物質を想定して計算した。さらに Fig.1 に示した構成部分の寸法や物性値および加熱量もいくつか変化させ、パラメータとして検討した。

数値解析で使用した物質の物性値およびパラメータをまとめ Table 1 および 2 に示した。

Table 1 Properties of various materials

material	λ [W/(mK)]	c [J/(kgK)]	ρ [kg/m ³]
polystyrene(1)	0.033	1800.0	36.0
polystyrene(2)	0.042	2800.0	15.9
perlite	0.050	750.0	150.0
vinyl chrolide	0.15	720.0	1420.0
silicone rubber	0.20	1600.0	970.0
polyethylene	0.42	2100.0	950.0
concrete	1.00	1630.0	2280.0
furnace brick	2.10	1300.0	2220.0
silicone brick	3.00	1000.0	3660.0
granite	4.3	1100.0	2650.0
alumina brick	5.00	840.0	3470.0
carbon brick	10.0	1900.0	1580.0
titanium	16.0	528.0	4520.0
stainless steel	20.7	549.0	7740.0

Table 2 Various parameters for calculation

physical quantities	munerical values
λ_b [W/(mK)]	5.0, 237.0
λ_g [W/(mK)]	0.042, 0.13, 10.0
D_s [mm]	0.01~1.0
q_h [W/m]	18.61, 37.23

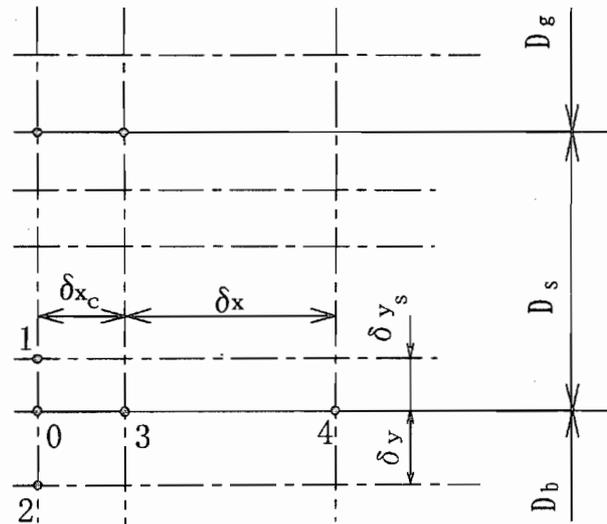


Fig.3 Finite difference mesh near heat source

3. 結果と考察

計算にあたっては、前述のごとく実在の固体物質を試料に選び、箔型のヒーターから加熱量の数値を与えて、温度変化の様子を観察した。基本的にはヒータ温度 T_h [°C] と経過時間 τ [s] の関係を図に表し、これをもとに、後続の処理を行って検討・考察を加えた。

3. 1 代表的表示による λ_s に関する検討 計算結果の代表例として、試料厚さを 0.2 [mm] とした場合のヒーター温度 T_h [°C] と経過時間 τ [s] との関係を試料の熱伝導率 λ_s [W/(mK)] をパラメーターとして Fig.4 に示す。

λ_s の小さいほど熱は試料側に流れにくいのでヒーター温度 T_h は時間の経過につれてより大きくなることが明らかである。また、 λ_s が大きい場合 T_h は短時間で飽和状態に達していることが認められる。これは熱抵抗の小さい試料は温度波の進む速度が速いため、その下にあるベース（この図ではアルミブロック）に到達し、準定常状態になるからである。後で比較を行うがこれまでの知見からこのベースの熱伝導率が大きく、また、熱容量が大きいほど測定試料の適用範囲が広がると考えられる。

Fig.4 は温度変化の様子が定性的によく理解出来るが、温度上昇率一定の部分を読み取りにくいことから、横軸の経過時間 τ を対数で処理することにした。ヒーター温度 T_h と $\log(\tau)$ との関係で示すと Fig.5 のようになる。この図から直線部分が生ずることが明らかに見られ、 λ_s の小さいほど上昇率 A が大きいこと、また、一定になる時間位置が τ の大きい方に移動していることが認められる。

本研究では温度上昇率 A [°C/s] を次式で定義した。

$$\Lambda = (T_2 - T_1) / \log(\tau_2 / \tau_1) \quad (12)$$

ただし、 T_1 と T_2 とは直線部分の始めと終りの温度であり、 τ_1 と τ_2 とはそれらに対応する時間である。

Fig.6 は前の図から求められた上昇率 Λ と λ_s との関係を断熱材に相当する物質から熱伝導率のそれほど大きくない金属の領域にわたって計算した結果をまとめたもので、試料厚さ $D_s = 0.2, 0.4$ [mm] の場合を示している。試料の熱伝導率 λ_s が $0.2 \leq \lambda_s \leq 10.0$ の範囲では両者はほぼ直線関係にあることが認められる。また、それ以外の両端ではゆるやかな曲線にはなるが、計算された全範囲にわたって Λ と λ_s との間に1:1の対応が認められる。

従って、この結果を校正曲線とすれば、Fig.1を模擬した装置で、目的とする薄い試料の熱伝導率が測定出来ると推定される。

3. 2 各種のパラメータの影響 前節においてこの研究目的における代表的な寸法および熱物性値を想定し計算結果を示したが、実際には色々な条件下での測定を行う必要があると予想される。これを考慮しTable 2に示したような各種のパラメータを選んで計算を行った。ヒーターの温度 T_h [°C]と時間 τ [s]との関係はFig.4と定性的には同様であるので、Fig.6にならって Λ と λ_s の関係でFig.7および8に各種のパラメータを変えて示し考察を行う。

(1) ベースの熱伝導率 λ_b 測定装置のベースはある程度の厚さ(熱容量)と強度を持つものが望ましい。試料厚さ D_s を同一にして $\lambda_b = 5$ [W/(mK)] (岩石を想定した)と237 (アルミニウム)とを比較した場合をFig.7に示す。試料中の熱抵抗は同一であるので λ_s が小さい $\lambda_s \leq 0.1$ 程度までは Λ の値に両者の相違はほとんど現われず、それを越えて次第に増大してくることが明らかに見られる。これは λ_s が大きくなるとベースの熱抵抗が試料のそれよりも大きくなるか同じオーダーに近付き、熱を逃がしにくくなるように働くからと考えられる。従って、 $\lambda_b = 5$ の場合でも $\lambda_s = 20$ 程度までは校正曲線としての役目を果たすことは可能であるが、曲線の勾配が小さいので感度が劣り、誤差が大きくなると予想される。

一方、アルミニウムは計算範囲の全域に渡って良好な状態を示していると言える。しかし、試料の熱伝導率 λ_s が10を越えると勾配が小さくなる傾向が見られることから、この測定法の限界を示していると言える。また、アルミニウムは軽量でかつ熱伝導率が非常に大きく、さらに、入手し易いことから、実験装置を作る場合、ベースの材料としては熱伝導率がこれより大である銅・銀な

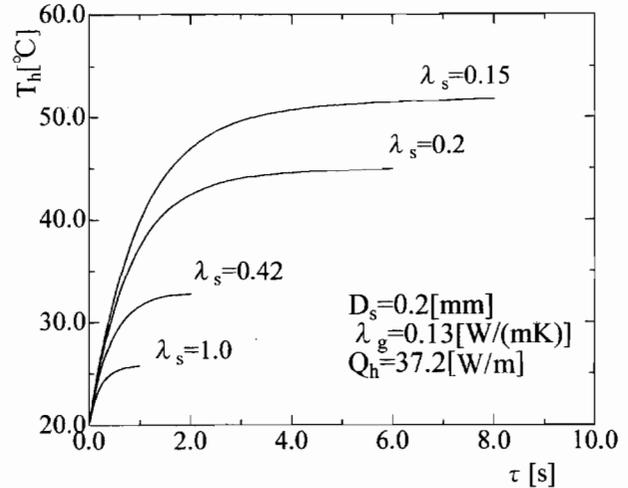


Fig.4 Calculation results between T_h and τ

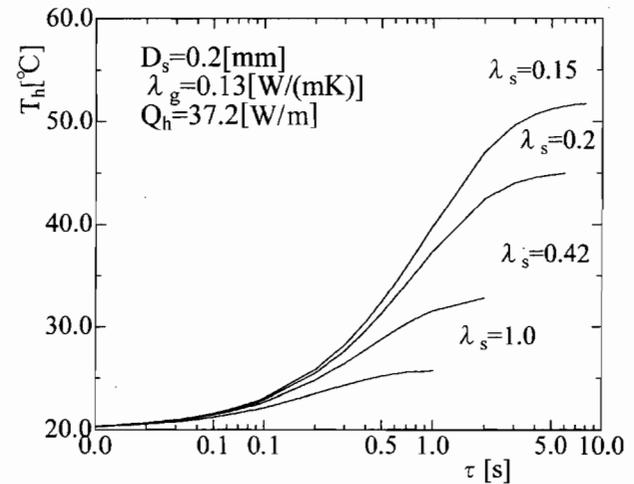


Fig.5 T_h vs. $\log(\tau)$ diagram

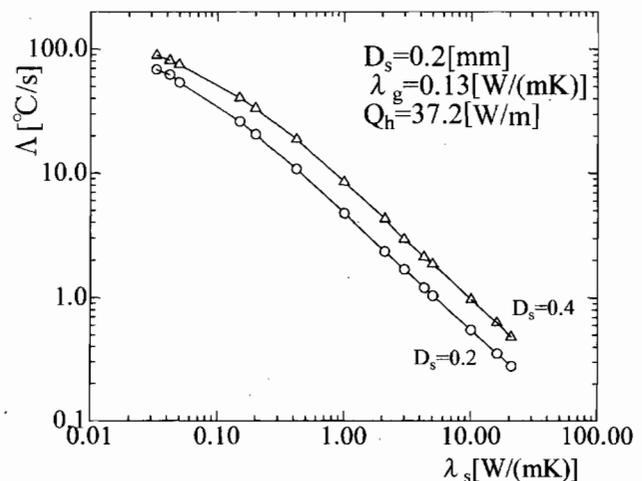


Fig.6 Calibration diagram between Λ and λ_s

どよりも優れていると考えている。

(2) ヒーターベースの熱伝導率 λ_g 箔状の抵抗体を取り付けるヒーターベースには保持すべき条件がいくつか考えられる。即ち、強度・金属箔の接着性・耐熱性・熱伝導率、などである。

Fig.8には発泡ポリスチレンなどのを想定した断熱材 ($\lambda_g = 0.042$)、比較的耐熱性を持ち平板試料への密着度も優れているゴム ($\lambda_g = 0.13$)、特に耐熱性に着目したセラミック材料 ($\lambda_g = 10.0$) の3種の結果を示した。ただし、ベース材料はいずれもアルミを想定して計算している。ヒーターベースは箔状発熱体の補強のみならず、発生した熱を出来るだけ多く試料側に流入させなければならないので、熱伝導率の小さい物質ほど温度上昇率 Δ の勾配が大きいことが予想され、図でも明らかな如く、 $\lambda_g = 0.042$ の場合が3者の中で最も感度がよいことが認められる。一方、セラミックスの場合は熱伝導率が小さい試料の場合には熱が試料に流入せずヒーターベース側に流れるため試料の熱伝導率 $\lambda_s \leq 0.5$ までの領域では Δ と λ_s との間で1:1の対応は成立せず、校正曲線としての役目を果たし得ないといえる。また、それを越える領域でも勾配が小さいため誤差が大きいと予想される。

以上の2者に比べるとゴムの場合は曲線の勾配は断熱材よりもやや小さいが約150℃まで使用に耐えるので、熱伝導率が未知の材料を測定する場合には数10℃で変形する発泡ポリスチレンを使用するよりも安全だと考えられる。また、試料への密着性にも優れており、従ってヒーターベースの材料としてゴムを想定することにした。

(3) ヒータ発熱量 q_h これまでの結果は幅2.5[mm]、抵抗110[Ω]のヒーターに直流電流2[A]を流した場合を想定した計算を行った。これによって温度上昇量が適度にもたらされると考えたからである。しかしながら、熱伝導率の小さい試料の場合にはFig.4に見られるごとく、温度上昇量が大きくなるので、試料材料によっては融解・変形などの不都合が生ずる可能性がある。そこで、発熱量を1/2にした計算も行った。その結果、 Δ が発熱量に比例して1/2になることが求められた。従って、ある発熱量で校正曲線を求めておけば、比例計算のみで Δ の値から試料の熱伝導率 λ_s が求められると推定される。

(4) 試料厚さ D_s あるがままの製品を試料として熱伝導率を測定したいとすれば、平板状の固体に限定しても D_s は各種のものになる。従って、 D_s はパラメータの中で最も重要なものと考えられる。Fig.6には代表例として $\lambda_s = 0.2$ および0.4[mm] の場合を示し、Fig.7.8は0.2[mm]に限定して検討した。

Fig.9にプラスチック材料の熱伝導率のおおよその値

を示す $\lambda_s = 0.2$ とそれにガラス繊維・酸化金属粉などを混合して性能改善を図り熱伝導率の向上が期待出来る数値 $\lambda_s = 1.0$ を代表パラメータとして Δ と D_s との関係を示した。予想されるように、 λ_s が同じ場合、 D_s が小さいほど熱抵抗が小さいので温度波は短時間でベースのアルミに到達し、ベースは大熱容量の低熱源として働くのでヒーター温度は準定常状態になり Δ は小さくなる。また、 D_s が大きい場合にはこれと逆の現象が生じ、長時間・高温に到った後に準定常に到達するので温度上昇率 Δ は大きくなる。ただし、厚さの増大と共に Δ の増加の様子は次第に減少し、ここでは計算時間の制約上、計算を行っていないが、ついには飽和すると予想できる。即ち、この状態が通常の非定常プローブ法の条件であると言える。

本報告では λ_s の広い範囲での D_s に関する計算は行っ

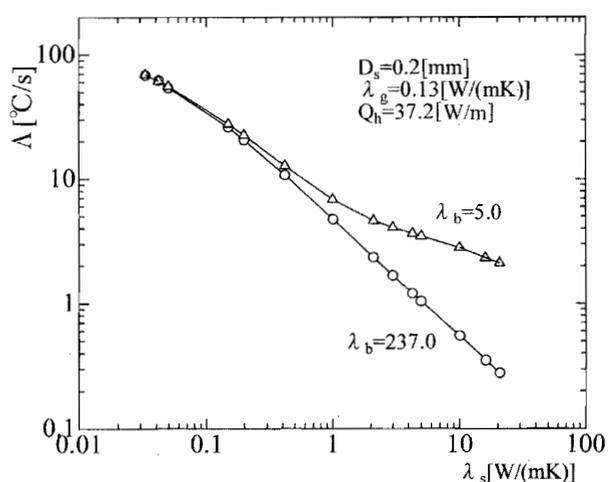


Fig.7 Effect of λ_b on Δ vs. λ_s diagram

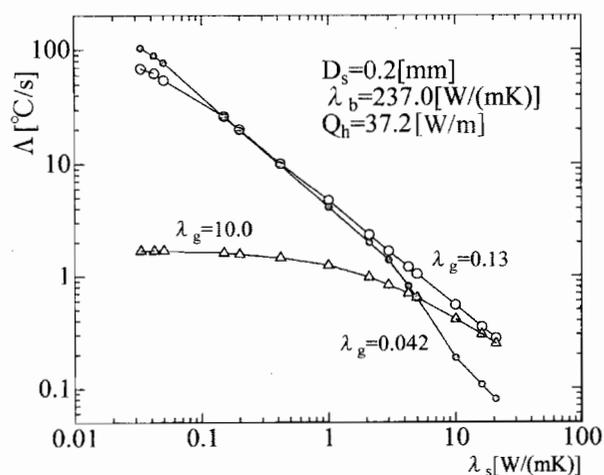


Fig.8 Effect of λ_g on Δ vs. λ_s diagram

ていないが、Fig.6の校正曲線が $0.01 \leq D_s \leq 1.0$ の間で適当な間隔での D_s をパラメータとする曲線群を構成出来れば実用的なものとなるであろう。

4. まとめ

本研究はこれまでの方法では測定が困難な厚さが $0.1 \sim 1.0$ [mm]程度の固体材料の熱伝導率の測定法の開発を目的とするものである。本論文はその第一歩として、実際に予想される測定装置を二次元温度場で近似し、数値解析を用いて測定の可能性について検討を加えた。

得られた主な結果をまとめると以下のようである。

(1) 大きな熱伝導率を持つ厚いベース上に試料を置き、試料をその上部に置いた狭い帯状ヒーターで非定常加熱を行う現象を考えた。そのときに、式(12)で定義されるヒーターの温度上昇率 Λ [°C/s]を測定すると、 Λ [°C/s]と試料の熱伝導率 λ_s [W/(mK)]との間に1:1の対応が成立することを明らかにした。

(2) 従って、 Λ [°C/s]と λ_s [W/(mK)]との間の曲線関係を校正曲線として用いれば試料の熱伝導率を測定することが可能になる。

(3) 校正曲線に対する各種のパラメータの影響を検討し、実験装置の最適な使用材料の予測が出来た。

今後の目標として、試料厚さをパラメータとする Λ [°C/s]と λ_s [W/(mK)]との間の曲線群を作成し、実験装置を作成後、実験結果との比較・検討を行うつもりである。

最後に、この研究に対し適確なご助言を頂いた、山田悦郎名誉教授に感謝の意を表します。

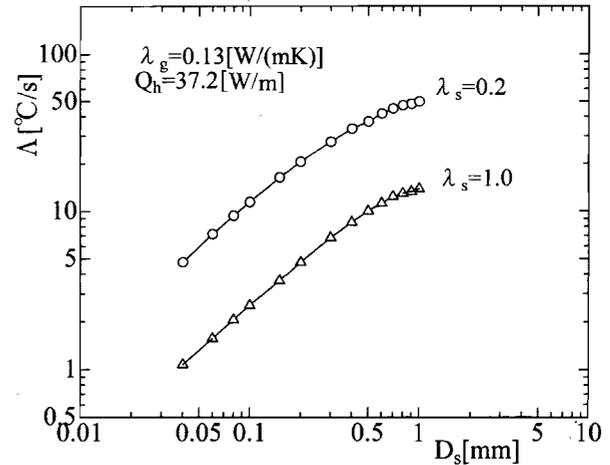


Fig.9 Δ vs. D_s diagram

REFERENCES

- [1] エネルギー教育研究会：現代エネルギー・環境論（株・電力新報社, 7, 1997）
- [2] 日本機械学会編：熱物性値測定法（養賢堂, 166-183, 1991）
- [3] 京都電子，QTM-500技術資料
- [4] 山田ら：第36回日本伝熱シンポジウム講演論文集（36, 685-686, 1999）
- [5] 高橋ら：第22回日本熱物性シンポジウム講演論文集（22, 308-310, 2001）
- [6] 日本熱物性研究会編：熱物性資料集—断熱材編—（養賢堂, 1983）
- [7] 斎藤武雄：数値伝熱学（養賢堂, 115-155, 1986）
- [8] 赤坂 隆：数値計算（コロナ社, 377-439, 1967）
- [9] 甲藤好郎：伝熱概論（養賢堂, 394-414, 1967）