

〈技術レポート〉

非定常熱線法，周期加熱法及びホットディスク法 による熱伝導率測定に関する研究

浜松研究所 RD部門 大村 高弘

－170℃から室温の範囲で，同一試験体を使って非定常熱線法，周期加熱法及びホットディスク法の3手法の測定を可能とする熱伝導率測定装置を開発した。この装置を使ってポリウレタンフォームの熱伝導率を測定し，3手法の熱伝導率測定比較をしたところ，3者とも±10%以内でほぼ一致した。従って，全く異なる手法であっても，同一試験体を同一環境において測定すれば，それぞれの結果は，互いに実用的に十分な精度で一致する事が分かった。ただし，0℃付近では周期加熱法の値が他の2手法に比べ高くなった。この原因は，約4℃の振幅を持つ温度波が試験体内を伝播することで，周期的な水の相変化が生じることによるためと考えられる。また，約－120℃以下になると，ホットディスク法による結果が，他の2手法と比較して小さな値となった。非定常熱線法に関しては，全温度域で良好な測定結果を得ることができた。

1. はじめに

近年，世界的な規模で省エネが実施され，その対象は工場やオフィスビル用のみならず，一般家屋や家電製品用にまで至っており，様々な分野で各種断熱材の性能向上が盛んに研究されるようになった。一方，それらの断熱性能を評価する熱伝導率測定手法には，測定対象物や環境に併せて多くの種類があり，平板直接法，熱流計法，非定常熱線法，周期加熱法などが代表的である。しかしながら，各手法間で結果が異なるケースが多く，その原因が装置固有のものか，それとも測定手法に依存したものであるのかについて検討された例はほとんどない。そこで今回，新たに非定常熱線法と周期加熱法，ホットディスク法の3手法を可能とする熱伝導率測定装置を開発し，ポリウレタンフォームを使って，－170℃～室温にいたる温度範囲で，同一試験体，同一環境下で測定手法間のデータ比較を行った。

2. 測定原理

2.1 非定常熱線法

これは，図1に示すように，試験体内に張った金属細線をステップ状に通電加熱し，細線の発熱量とその温度応答から熱伝導率を測定する方法である¹⁾。無限大，等方性，均一温度の物質を仮定し，この中に直線状に存在する熱源が，一定熱量 Q を放出したとすると，熱伝導率 λ [W/(m·K)]は，

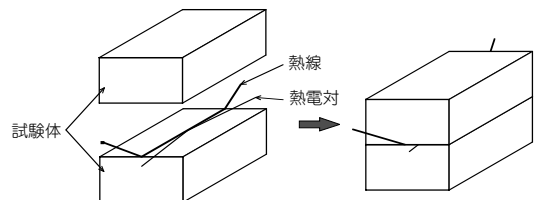


図1 非定常熱線法

$$\lambda = \frac{Q}{4\pi} \frac{\ln(t_2/t_1)}{\Delta T} \dots\dots\dots(1)$$

と表される。ここで、 t は時間、 ΔT は時間 t_1 及び t_2 の間の温度差である。

2.2 周期加熱法

周期加熱法は、試験体の一方の面に温度波（周期 T_f 、振幅 A_s ）を与え、試験体内部での位相差あるいは振幅の減衰比を測定することで熱拡散率を求め手法である²⁾。図2に示すように、熱電対を挟みながら2枚の試験体を重ね、上面から温度波を与える。その際、上面及び重ね面の温度を測定することで各点での温度波が得られ、上面と重ね面の位相差あるいは振幅の減衰比が求まる。この時、下面の温度は一定になるように制御されている。それらの値を以下に示す式(2)～(5)に代入することで熱拡散率が求まり、別途測定した比熱を使って熱伝導率を算出する。

位相差 ϕ と振幅の減衰比 A は、次式の関係を持つ。

$$\phi = \arg \left\{ \frac{\sinh 2kx(1+i)}{\sinh 2kd(1+i)} \right\} \dots\dots\dots(2)$$

$$A = \frac{A_j}{A_s} = \sqrt{\frac{\cosh 2kx - \cos 2kx}{\cosh 2kd - \cos 2kd}} \dots\dots\dots(3)$$

$$k = \sqrt{\frac{\omega}{2\kappa}} \dots\dots\dots(4)$$

$$\omega = \frac{2\pi}{T_f} \dots\dots\dots(5)$$

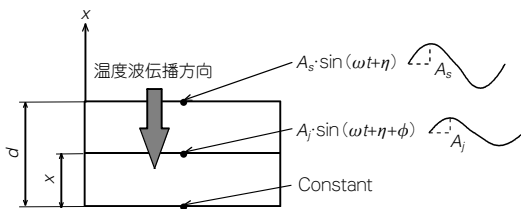


図2 周期加熱法（試験体断面図；熱電対の位置と温度波の関係）

$$\lambda = \rho c \kappa \dots\dots\dots(6)$$

ここで、 κ は熱拡散率、 c は比熱、 ρ は嵩密度、 λ は熱伝導率、 i は虚数、 T_f は周期、 d は2枚の試験体を重ね合わせた時の厚さ、 x は下側の試験体の厚さ、 k は減衰係数であり式(4)で定義される。なお、比熱 c は、本装置に組み込まれたホットディスク法により測定した。

2.3 ホットディスク法

ホットディスク法は、非定常面加熱法（TPS）の理論に基づいて、Gustafssonにより発明されたものであり、装置は京都電子工業株式会社製である³⁾。

ホットディスク法では、加熱面であり同時に温度センサーであるホットディスクが、無限媒体中にあると仮定して、非定常熱伝導方程式が解かれている。その解は、 ΔT をセンサーの温度上昇[K]とすれば、

$$\Delta T(\tau) = \frac{P_0}{\pi^{3/2} a \lambda} D(\tau) \dots\dots\dots(7)$$

$$\tau = \sqrt{\frac{t}{\Theta}} \dots\dots\dots(8)$$

$$\Theta = \frac{a^2}{\kappa} \dots\dots\dots(9)$$

であり、ここで、 P_0 はヒータの発生熱量 [W]、 a はディスクの半径[m]、 λ は試験体の熱伝導率 [W/(m・K)]、 κ は熱拡散率[m²/sec]、 t 、 t' は時間[sec]、 Θ は特性時間であり、 τ は式(8)、 Θ は式(9)で定義される。

従って、横軸に $D(\tau)$ をとり、縦軸に温度変化をとると直線関係が得られ、その勾配から熱伝導率 λ が得られる。すなわち、

$$\lambda = \frac{P_0}{\pi^{3/2} a} \frac{D(\tau)}{\Delta T(\tau)} \dots\dots\dots(10)$$

となる。このとき、 κ と Θ は未知数であるため、直線は逐次近似により求められ、式(9)から熱拡散率 κ が得られる。さらに、比熱はこの熱伝導率と熱拡散率から算出される。

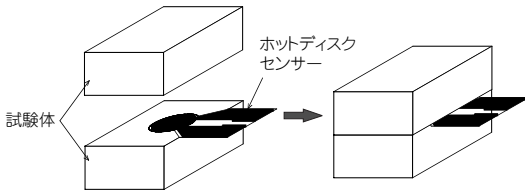


図3 ホットディスク法

図3に、ホットディスクのセンサーと、それを試験体の間に挟んで測定したときの状態を模式的に示す。センサーは、厚さ25 μm のポリイミドの箔にニッケルパターン（螺旋状）を厚さ10 μm まで蒸着されたものであり、ニッケルパターンに一定時間電流を流し、そこで発生する熱による温度上昇から熱伝導率、熱拡散率及び比熱を算出する。その際の温度上昇は、ニッケルパターンの抵抗値の変化から算出されている。本装置に組み込んだセンサーは、先端の円形部分（ニッケル部分）の半径が3.2mmのものである。

3. 測定装置及び試験体

図4に開発した装置概要を示す。装置は、保冷部、測定部、制御部から構成されている。

試験体及びその周辺部分は液体窒素により冷却されるが、保冷部は、その液体窒素を貯えるタンク部分と、それを囲む断熱材（ウレタンフォーム）からなっている。測定部は、試験体を納めるアルミ製の試験体ボックスと、雰囲気温度をつくる円筒ヒータから構成されている。試験体ボックス内

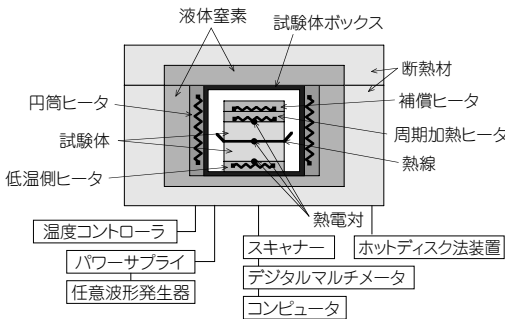


図4 開発した熱伝導率測定装置

には、温度波を発生させるための周期加熱ヒータ（Function Generatorにより波形を発生）、その温度波を試験体側へ効率よく流すための補償ヒータ、そして常に一定温度に制御された低温側ヒータがある。試験体（150 \times 100 \times 20mm）は、2枚重ねにして周期加熱ヒータと低温側ヒータの間に設置され、その際、2枚の試験体間に、熱線（ニクロム線 ϕ 0.3mm、長さ150mm）と熱電対（Kタイプ、 ϕ 0.1mm）、ホットディスクセンサーが挟み込まれる。ただし、ホットディスクセンサーは、ホットディスク法による測定時にものみ挟み込まれる。制御部は、温度コントローラ、任意波形発生器、デジタルマルチメータ、パワーサプライ、スキャナー、ホットディスク装置、コンピュータから構成されている。

非定常熱線法では、熱線に約0.5Vを5～10分間印加し、周期加熱法による測定では、周期1～2時間、振幅1Volt（ $\pm 4^{\circ}\text{C}$ 程度）の温度波を加熱面側にかけた。ホットディスク法では、測定温度によってセンサー部分の発熱量及び発熱時間が異なるが、大凡、0.05W、40secであった。

4. 測定結果

図5に、嵩密度73kg/m³のポリウレタンフォームの熱伝導率を示す。ここで、記号●、△、■は、それぞれ、非定常熱線法、周期加熱法、ホットディスク法による結果である。実線は、3者を比較

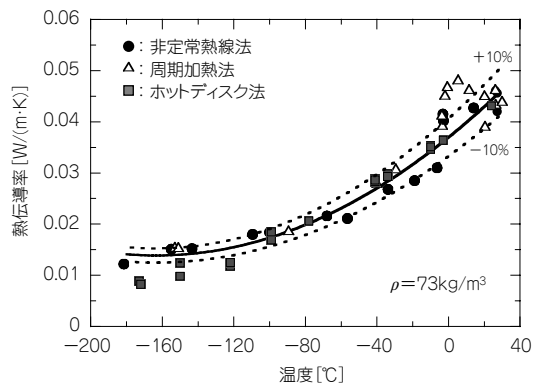


図5 非定常熱線法、周期加熱法及びホットディスク法による測定比較ポリウレタンフォーム（73kg/m³）の熱伝導率

し易くするために非定常熱線法の測定結果を2次式で最小自乗近似した結果であり、破線はその実線の±10%の変化幅を示す。3手法とも、ほぼ±10%以内で一致しているが、周期加熱法に関しては-10℃~10℃付近の辺りで、値が異常に大きくばらつき、一方、ホットディスク法では、-120℃付近から値が他の2手法に比べ徐々に小さくなり始めた。

図6に嵩密度119kg/m³のポリウレタンフォームの熱伝導率を示す。ここで、記号及び実線、破線が持つ意味は、図5におけるものと同じである。ここでも嵩密度73kg/m³の場合と同様に、3者はほぼ±10%以内で一致したが、-20℃~10℃付近の辺りで周期加熱法による測定結果が、他の2手法のそれに比べ大きくばらつき、ホットディスク法でも、-120℃付近から他の2手法に比べ徐々に小さくなり始めた。

5. 考察

5.1 非定常熱線法による測定結果

非定常熱線法による測定では、-170℃~室温の範囲でほぼ安定した結果が得られた。ただし、0℃付近では若干のばらつきが見られた。これは、後述するように、熱線による発熱のためマイナス温度からプラス温度に変化する際の水分の相変化による影響を受けたためと考えられる。しかし、測定時間が5~10分程度であり、熱線の温度上昇

も数℃程度と小さかったために、大きなばらつきにはならなかったと考えられる。

5.2 周期加熱法による測定結果

周期加熱法による測定では、±4℃程度の温度波が、加熱側から減衰を伴いながら試験体内を冷却側へ伝播する。そのため、0℃付近における測定では、温度波が氷の融点をはさんで周期的に変化することになる。その結果、2つの試験体の合わせ面あるいは試験体表面に付着している水分、さらには周期加熱ヒータ内部に含まれる水分の相変化が周期的に生じ、温度波に歪みを与えてしまったと考えられる。従って、周期加熱法における測定では、-10~10℃付近での測定、特に温度波が0℃を周期的に超えるような測定を避けるべきである。

5.3 ホットディスク法による測定結果

-120℃以下でホットディスク法による測定結果が、他の2手法の結果に比べ小さくなってしまった。この原因については今後の十分な調査が必要であるが、現在のところ、ホットディスクセンサーの電気抵抗の温度係数が、低温で十分サポートされていない状態で測定しているためと考えている。

5.4 ポリウレタンフォームの熱伝導率

今回測定したポリウレタンフォームでは、フロンガスにより発泡した試験体の熱伝導率ような、-50℃~室温付近における温度に対する極大・極小値は存在しなかった。この原因は、フロンの沸点にあると考えられる。例えば、特定フロンの代替物質であるHCFC-141bの沸点は32℃である。従って、このガスを使って発泡したセルの内部ではHCFC-141bの液体と気体が混在していると考えられ、その熱伝導率は雑に、

$$\lambda = \lambda_s + \lambda_r + \alpha \lambda_g + (1 - \alpha) \lambda_l \dots \dots \dots (11)$$

と表される。ここで、 λ は熱伝導率であり、添え字のs, r, g, lはそれぞれ固体、輻射、気体、液体、 α はHCFC-141bの気体の比率である。

式(11)から分かるように、温度が下がってくるとHCFC-141bの液体の比率が高まるため α が小さくなり、そのため全体の熱伝導率 λ は λ_l の影響を受けやすくなる。従って、室温からの温度低下

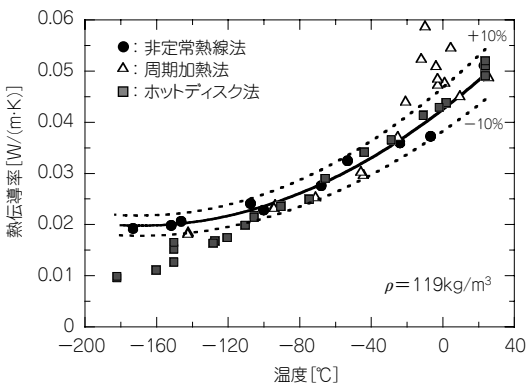


図6 非定常熱線法，周期加熱法及びホットディスク法による測定比較ポリウレタンフォーム (119kg/m³) の熱伝導率

とともに λ_g は小さくなるが、 λ_g よりも値の高い λ_l の比率が高まるため、適当な温度で熱伝導率は上昇に向かってしまう。それが、温度-熱伝導率曲線に現れる極小値であると考えられる。さらに温度低下が進行すると、ほとんどガスの影響がなくなるため、 λ_g が非常に小さくなり、又、輻射による伝熱も抑制されるようになるため、今度は熱伝導率が低下し始める。これが極大値の原因と考えられる。

一方、今回使用した試験体は研究用に炭酸ガス発泡により作製されたものであるが、一般に硬質ポリウレタンフォームはセル内部の気体の組成変化に起因する熱伝導率の経時変化があり、炭酸ガス発泡の場合はセル内部の発泡剤が空気と置換することにより熱伝導率が変化する。一般の硬質ポリウレタンフォーム製品ではこのような経時変化を抑制するよう製品仕様上の工夫がなされているが、今回の測定では熱伝導率の測定法の比較という目的にあわせるため、試験体を所定の寸法に加工した後、強制的に数年間にわたるエージングを行ない、熱伝導率を安定化させたものを用いた。この状態では内部の気体はほとんど空気と置換されている状態にあったと考えられる。従って、内部の気体を空気と仮定すれば、その主成分は窒素および酸素であり、それらの沸点はそれぞれ -196°C 、 -183°C となる⁴⁾。従って、これらの値は、今回の測定温度範囲を超えてしまっており、そのため、気体と液体の混在する状況での差は検出されなかったと考えられる。

6. おわりに

-170°C ～室温の温度範囲で、非定常熱線法、周期加熱法、ホットディスク法の3手法の測定が可能な装置を開発し、ポリウレタンフォームの熱伝導率を測定した。それらの結果を比較したとこ

ろ、ほぼ $\pm 10\%$ 以内で一致した。従って、全く異なる手法であっても、同一試験体で同一環境（ただし測定限界内の範囲）において測定されれば、それぞれの結果は、互いに十分な精度で一致する事を確認した。しかし、周期加熱法では、 $-10\sim 10^\circ\text{C}$ 付近で水の相変化による影響を受け、ホットディスク法では、 -120°C 以下で他の測定結果よりも小さな値となった。よって、それぞれの測定手法に合わせた注意が必要である。

今回の研究では非定常法による測定法を比較したが、保護熱板法や熱流計法といった定常法との比較は行われていない。断熱材、特にウレタンフォームのような内部に閉空間を持った材料の場合、非定常に加熱した際に閉空間内の気体による対流伝熱が生じる可能性もあり、定常法とは違った値を示すことが考えられる。従って、今後、定常法と非定常法の比較を実施し、両者の差異を明らかにしていく必要がある。

参考文献

- 1) 熱物性ハンドブック（日本熱物性学会編）568-570頁（株式会社養賢堂、1990）
- 2) H.S. Carslow, J.C. Jaeger: Conduction of Heat in Solids (1959), 105, OXFORD
- 3) Silas E. Gustafsson: Rev. Sci. Instrum. 62 (3), March 1991, 797-804
- 4) 理科年表（国立天文台編）469頁（丸善株式会社、1994）

筆者紹介



大村 高弘

浜松研究所 RD部門
工学博士