

平成21年度 固体熱物性クラブ全体会合 2010. 1. 26

於：秋葉原コンベンションホール

固体熱物性標準整備の現状と開発計画

熱拡散率／熱伝導率

(独)産業技術総合研究所

計測標準研究部門 熱物性標準研究室

阿子島めぐみ

熱の伝導に関連する物性値

- 熱伝導率 λ [W/(m·K)]
 - 定常的な温度勾配が存在する時の熱エネルギーが伝わる割合
- 熱拡散率 α [m²/s]
 - 温度分布が緩和して熱的な平衡状態になる速さ
- 比熱容量 c [J/(Kg·K)]
 - 単位重量の物体の温度が単位温度上昇するために必要な熱エネルギー

室温以上の温度領域におけるバルク材料の熱伝導率

$$\lambda = \alpha c \rho$$

laser flash method (物質・構造に敏感) DSC (物質に依存)

レーザフラッシュ法

< Half time method > Parker *et al.*, J. Appl. Phys. 32 (1961) 1679.

< Data analysis considered heat loss based on the half method >

Cape *et al.*, J. Appl. Phys. 34 (1963) 1909.

原理: 1次元の熱拡散現象

- 試料: 断熱保持
- パルス加熱: 一様な表面加熱
- 測定: 裏面の温度変化の観測

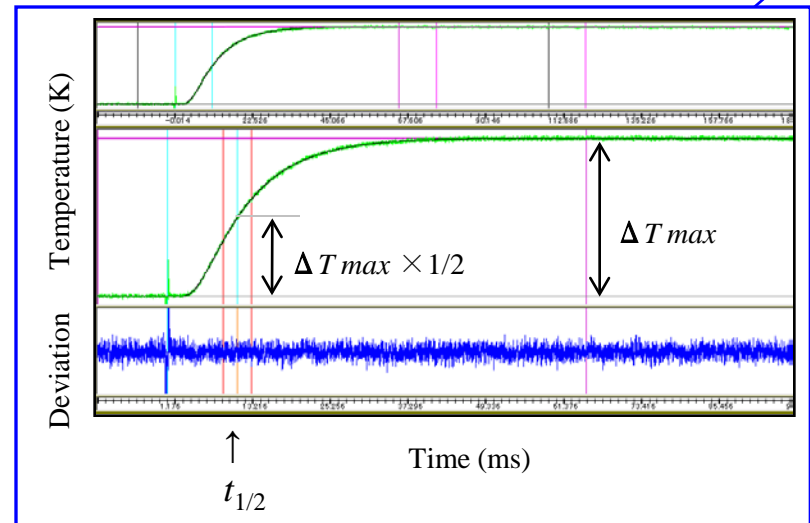
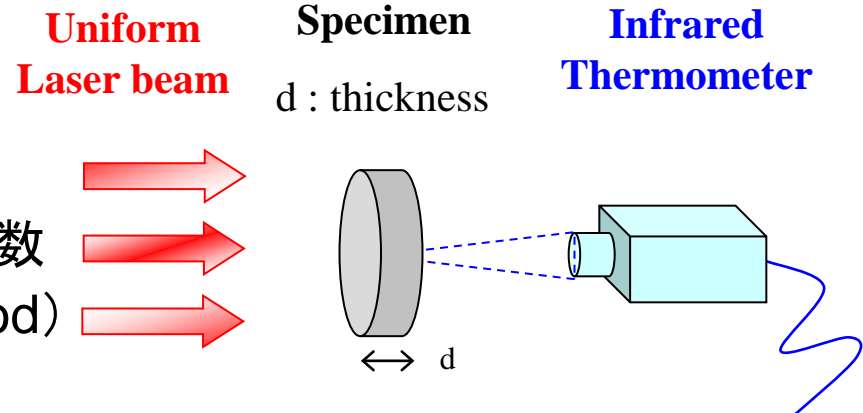


熱拡散率は、試料厚さと熱拡散時間の関数

$$\alpha = \frac{0.1388 \times d^2}{t_{1/2}} \quad (\text{half-time method})$$

特徴

- 高い信頼性 ⇒ 標準測定法
- 実用測定法としての実績、普及
- 適応範囲 (一般的に):
 - 試料 バルク材 (金属、セラミックス、、、、)
 - 温度範囲 \geq room temperature
 - 熱拡散時間 1ms - 1s
 - 熱拡散長 1mm - 5mm
 - 試料形状 disk with $\phi 3\text{mm} - 25.4\text{mm}$



Transient Temperature Curve

国内の整備状況(熱拡散率／熱伝導率の標準)

● 緻密なバルク材料(高熱伝導材料、金属、セラミックスetc.)

–NMIJ

- 熱拡散率依頼試験(レーザフラッシュ法) 2004～ 供給中
※ 適応温度範囲:RT～1500K [ASNITE認定]
- 熱拡散率標準物質[RM](レーザフラッシュ法) 2006～ 頒布中
※ 適応温度範囲:RT～1500K
- 熱伝導率標準物質[CRM](レーザフラッシュ法＋DSC法)FY2009開発予定
※ 適応温度範囲:RT～900K

–JFCC

- 熱拡散率標準物質[RM](レーザフラッシュ法) 1991～ 頒布中

● 緻密でない材料(断熱材、建築材料etc.)

–建材試験センター[JCSS 0210]

- 依頼試験[国際MRA対応JCSS校正](GHP法) FY2007～ 供給中
- 熱伝導率校正板[RM](GHP法) 頒布中

熱拡散率 依頼試験 (校正サービス)

測定対象:

- 材質: 等方性黒鉛 (IG-110)
- 形状: φ10mm 円板 (厚さ: 1.0mm ~ 4.0mm)
- 依頼試験用の試験片セットも有償頒布



測定範囲:

- 温度範囲: 297 K ~ 1500 K
- 熱拡散率: $5.0 \times 10^{-4} \text{ m}^2\text{s}^{-1} \geq \alpha > 1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$
- 不確かさ: 3.1 % 以上 (k=2)
- 雰囲気: 真空

※ 測定点などは要相談

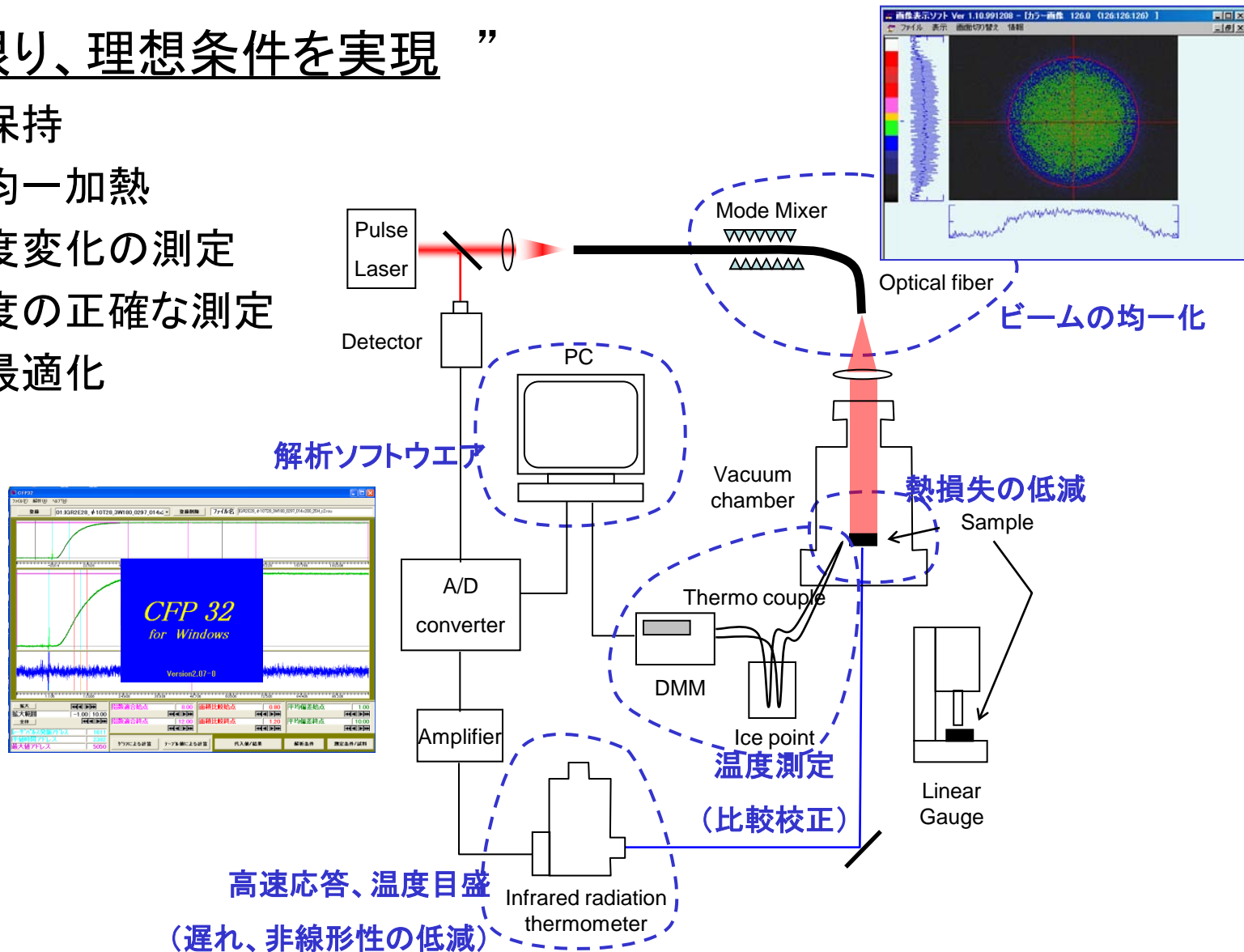
- 2004年度 サービス開始
- 2005年度 品質システムの運営開始
- 2006年度 ASNITE認定



測定装置の高度化

“出来る限り、理想条件を実現”

- 断熱的保持
- 表面の均一加熱
- 裏面温度変化の測定
- 定常温度の正確な測定
- 解析の最適化

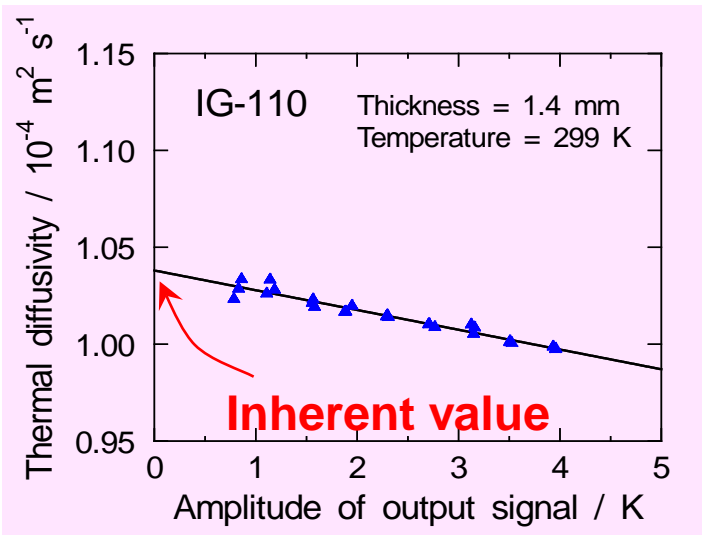
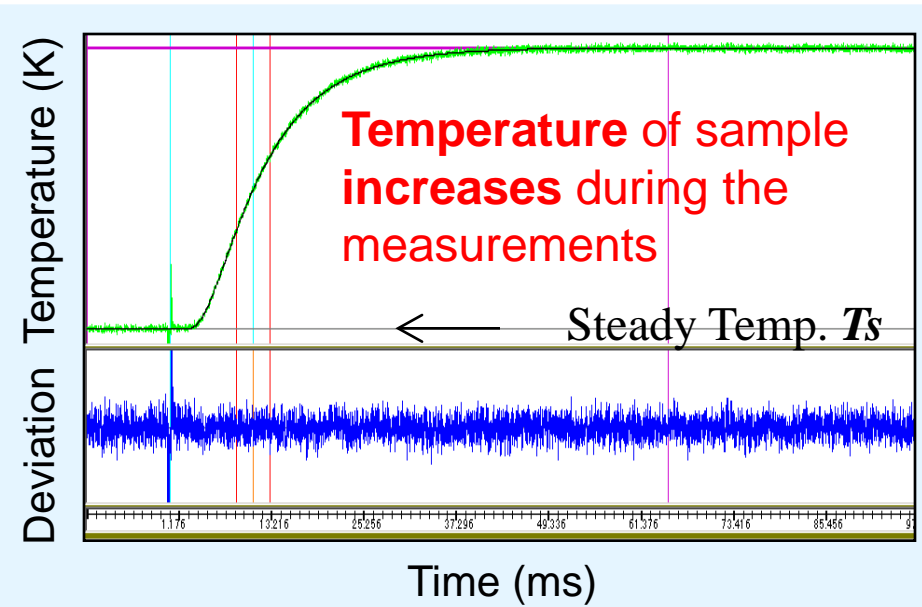


測定条件に依存しない材料固有の熱拡散率を求める手順

- 熱拡散率: 温度に依存する物性値
- 温度変化曲線: 有限の温度幅の変化
⇒ 見掛の熱拡散率は、測定条件に依存。

T_s での熱拡散率

= 温度上昇ゼロの測定



各見掛の熱拡散率の測定から、

- 1) 一定温度のもと、パルス加熱強度を変化させた測定を行う。
- 2) 温度上昇値に対して熱拡散率をプロットする
- 3) ゼロ外挿した値を“熱拡散率”とする

※測定条件に依存しない: *inherent*

SIトレーサブルな熱拡散率測定

熱拡散率: $\alpha(T)$ [m^2/s]

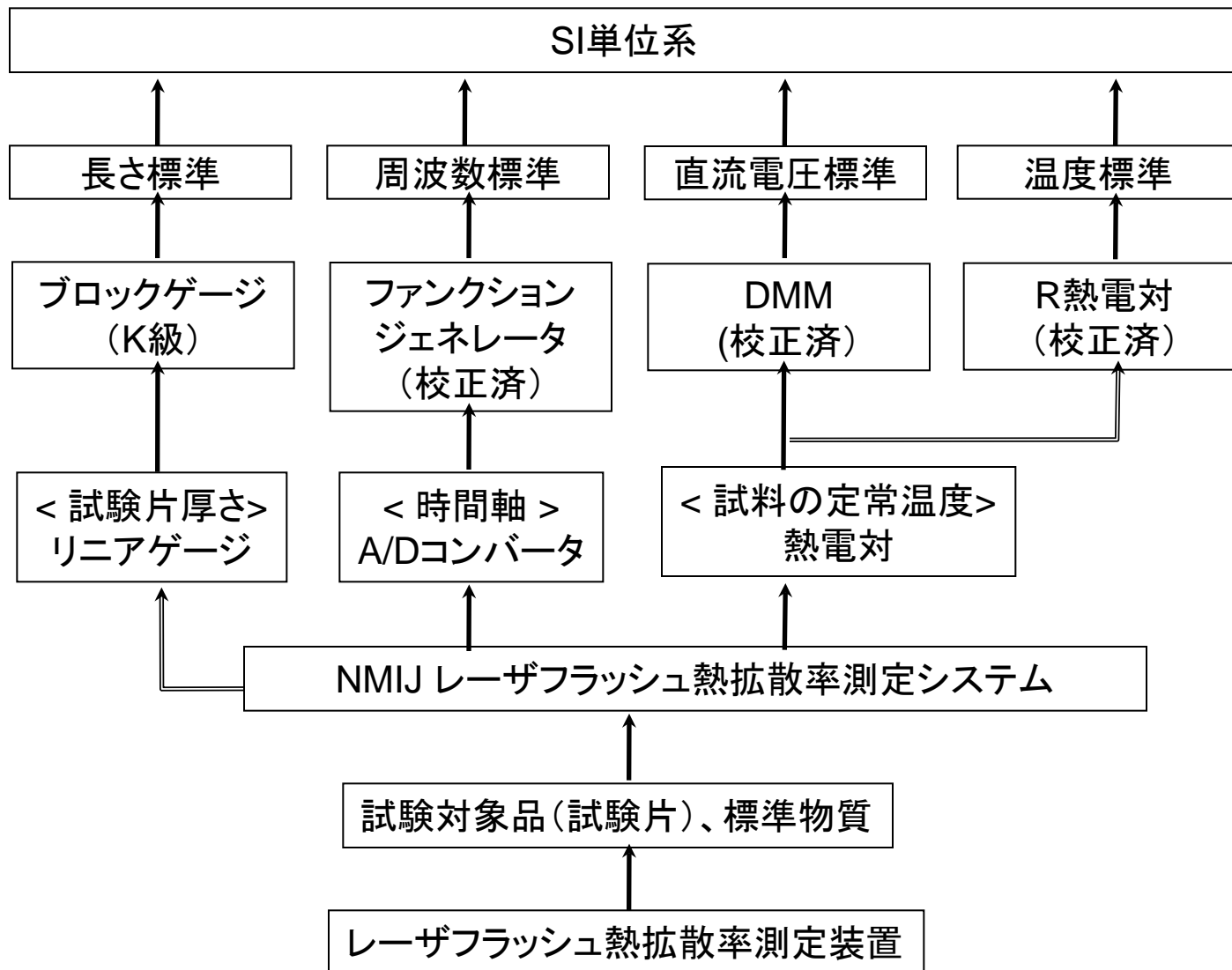
着眼点

- $\alpha = d^2 / \tau_0$
 $= 0.1388 \times d^2 / t_{1/2}$
T : Temperature d : Sample thickness
 τ_0 : Heat diffusion time $t_{1/2}$: Half-time
- 実験的に
 - 試料厚さ
 - 熱拡散特性時間
 - ある一定温度の条件下で測定

熱拡散率は、
長さ、時間、温度の組立て量

- 測定装置の評価
各量の計測に関わるユニット毎に評価
 - 長さ
 - 時間
 - 温度
- 不確かさ評価
 - “ Guide to the expression of uncertainty in measurement ”
に基づく表記
- ISO 17025 :” General requirements for the competence of testing and calibration laboratories ”
- JIS Q 17025:「試験所及び校正機関の能力に関する一般要求事項」

レーザフラッシュ熱拡散率測定の特ラサビリティ体系



不確かさ評価 ～不確かさ要因～

Length: 1. 試料厚さの不確かさ: u_1

Time: 2. サンプルング時間の不確かさ: u_{12}

For LF: 3. 放射計の応答速度の遅れ・不確かさ: u_3

4. 有限幅のパルス加熱による不確かさ: u_4

5. 不均一加熱による不確かさ: u_5

6. 熱損失効果による不確かさ: u_6

7. 定常温度のドリフトによる不確かさ: u_7

8. 温度履歴曲線のデータ解析の不確かさ: u_8

9. ゼロ外挿による解析の不確かさ: u_9

Temperature: 10. 試料温度測定の不確かさ: u_{10}

合成標準不確かさ:

$$u = \sqrt{u_1^2 + u_2^2 + u_3^2 + u_4^2 + u_5^2 + u_6^2 + u_7^2 + u_8^2 + u_9^2 + u_{10}^2},$$

拡張不確かさ:

$$U = 2u. \text{ (coverage factor } k=2 \text{ [95\%])}$$

熱拡散率標準物質 NMIJ RM 1201-a

仕様:

- 材質: 等方性黒鉛 (IG-110)
- 形状: $\phi 10\text{mm}$ 円板
- 厚さ: 1.4mm, 2.0mm, 2.8mm, 4.0mm
各1枚 (合計4枚)
- 物性値: 熱拡散率
不確かさ (100K毎)
温度依存性の関係式



使用条件:

- 温度範囲: 300 K ~ 1500 K
- 熱拡散率: $1.0 \times 10^{-4} \text{ m}^2\text{s}^{-1} \geq \alpha > 1.3 \times 10^{-5} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$
- 不確かさ: 5% ~ 7% (包含係数 $k=2$)
- 雰囲気: 真空 または 不活性ガス
- 使用限界: 1500Kへの昇温10回程度
または、高温 (800°C) 以上への暴露40時間以上

熱拡散率標準物質 NMIJ RM 1201-a

熱拡散率の決定方法

- 1ロット(60組)から6組をサンプリング
- 不確かさ: 測定の不確かさと不均質性から算出
 - 測定の不確かさ: 全ての測定結果の不確かさから決定 1.3~2.8%(k=1)
 - 不均質性: 室温の測定結果を分散分析 1.9%(k=1)

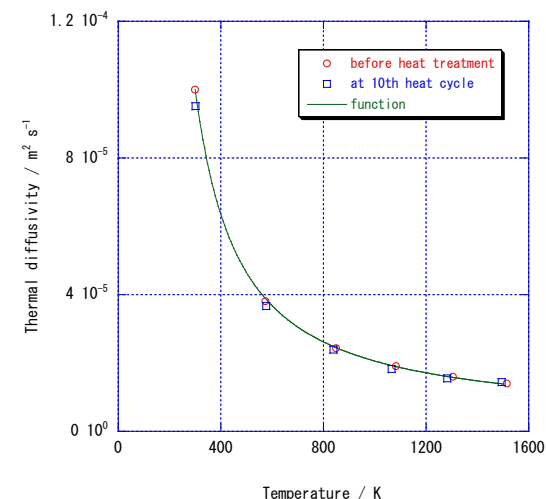
安定性の評価

- 熱サイクルに対する耐性テスト(1500Kまで10回のヒートサイクル)
 - 不確かさの範囲で安定(確認)
- 常温・常圧での保管に関して
 - 別ロットで5年は変化しない(確認)

温度依存性

- フォノン伝導による熱拡散率を考慮

$$\alpha(T) = M_1 + M_2 \times \exp\left(\frac{M_3}{T}\right),$$



熱伝導率の標準物質の開発予定

開発時期：2009年度中に確立、2010年度 頒布開始

形態：Reference Material

仕様（予定）

- 材 料：等方性黒鉛
- サ イ ズ：φ10mm × t1.0mm, 2.0mm
- 物 性 値：熱拡散率、比熱容量、熱伝導率
- 温度範囲：300～900K

- スコープ：緻密なバルク材料を対象とする熱伝導率測定装置
- ポイント：3つの物性値が付加

まとめ

- 熱拡散率／熱拡散率標準の整備状況
 - － 国内の標準整備の現状
 - 標準物質・測定サービス
 - － NMIJが供給・開発する標準
 - 熱拡散率依頼試験／標準物質
 - － SITレーサブル・インヒレント
 - － 不確かさ評価
 - 熱伝導率標準物質の開発予定
 - － 今後の展開
 - 校正サービス・標準物質の試料サイズと材料の多様化
 - グローバル化：各国NMI間での国際比較（実施中）

提案

レーザーフラッシュ法による熱拡散率測定ラウンドロビンテスト

－ 目的：

- 不確かさ評価
- インヒレントな熱拡散率の測定方法
- 標準物質を用いた測定装置の校正方法
- 黒化処理の影響の評価

固体熱物性クラブ主催

を検討する。

－ 測定試料：

- 等方性黒鉛の試験片
- (金属 or セラミックス)

－ 時期：

- 2010年度中に着手(予定)