

題目 室温以上の温度領域における熱拡散率、熱伝導率測定法の開発  
 電子材料学講座 池部研究室 湊 洋一

1、序論

これまで池部研究室では、ヘリウム冷凍機を用いて、10K~300Kにおける熱伝導率、熱拡散率の測定を行ってきた。しかし、室温以上の温度範囲における熱物性値に興味深い物質は多く存在し、例えばある材料を実用化するには、低温における値よりも、やはり室温付近での熱物性値の測定や評価が必要と言える。

よって、300K~400Kの温度範囲における熱伝導率、熱拡散率の測定装置の作製を行い、その装置の精度、誤差を評価することを目的に検討を行った。熱伝導率は定常熱流法、熱拡散率は任意加熱法により測定し、オーステナイト系ステンレス標準試料SRM1460 (NIST製)、SUS316、SUS304の測定値をもとに評価した。また、応用例として、ペロブスカイト型Mn系酸化物 $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ ( $x=0.13\sim 0.4$ )の測定を行い、強磁性転移温度付近による熱伝導率、熱拡散率の変化を調べた。

2、装置の立ち上げ

今回作製した熱伝導率、熱拡散率の測定装置は、温調計、真空排気装置から成る加熱部、デジタルマルチメーター、電流源、スキャナーから成る測定部、パソコン、磁気記録装置等から成る制御及び記録部をGPIBケーブルで接続し、BASICで作製した自動測定システムである。fig.1に測定装置の試料周辺部の概略図を示す。

上端に熱伝導率測定の場合は温度作用ヒーター、熱拡散率測定の場合は熱パルス用ヒーターとなる1kΩ金属皮膜チップ抵抗をワニスを用いて接着した。heat base側のP<sub>2</sub>点の温度T<sub>2</sub>はアルメル-クロメル熱電対を用いて測定し、距離Lだけ離れたヒーター側のP<sub>1</sub>点の温度T<sub>1</sub>は、アルメル-クロメル-アルメル(差動熱電対)を用いて測定したP<sub>1</sub>、P<sub>2</sub>間の温度差dTより、 $T_1=T_2+dT$ より求めた。室温付近の測定では特に輻射の影響が大きくなることが予想され、輻射による熱流入、熱損失を防ぐため、銅製の輻射シールドをheat bathに熱的に接触させた。雰囲気気体による対流と熱伝導を防ぐために、試料室全体を油拡散ポンプを用いて10<sup>-6</sup>Torr程度まで真空に引き、測定を行った。

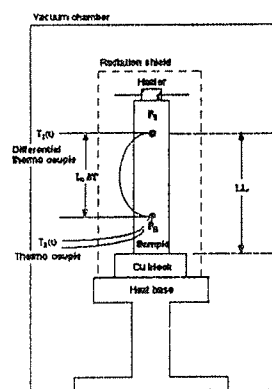


fig.1 試料周辺の概略図

3、熱伝導率、熱拡散率の測定法

熱拡散率 $\alpha$ は、任意加熱法と呼ばれるパルス状加熱による非定常熱流法によって測定した。この方法は、任意の形状、大きさの熱パルスに対して熱拡散率を求めることが出来るという利点を持つ。まず、試料温度を安定させた後、ヒーターに3秒から10秒の電流パルスを加え、その後のT<sub>1</sub>、T<sub>2</sub>の温度変化を毎秒約6回、約200秒間記録する。この値を一次元の熱拡散方程式  $\partial T/\partial t = \alpha(\partial^2 T/\partial x^2)$  (T: 温度、t: 時間、x: 距離) の数値解析の結果と比較することにより求めた。

熱伝導率 $\kappa$ は、定常熱流法によって求めた。各設定温度で熱拡散率を測定した後、ヒーターにP<sub>1</sub>、P<sub>2</sub>間の温度差dTが約1Kになるように一定の電流を流し、 $\kappa = (L/S) \cdot (Q/dT)$  (Q: 試料に加える熱量、S: 試料の断面積) より求めた。

4、結果及び考察

熱伝導率の測定において、その測定値の精度を向上させるためには、装置の内部からの熱損失、外部からの熱流入をいかに無くすかが最も重要なポイントである。また、輻射によって伝達される熱流束の式

$$\dot{q}_{rad} = \frac{\sigma}{\frac{1}{\varepsilon_1} + \frac{A_1}{A_2} \left( \frac{1}{\varepsilon_2} - 1 \right)} (T_1^4 - T_2^4) \times A_1$$

(表面積  $A_1$ 、温度  $T_1$  の物体が、表面積  $A_2$ 、温度  $T_2$  の物体で囲われており、 $A_1$  表面の輻射率を  $\varepsilon_1$ 、 $A_2$  表面の輻射率を  $\varepsilon_2$  とする。)

より、輻射による熱の収支は温度の4乗差に比例するから、今回のように高温領域での実験は、特に注意が必要である。以上のことより、高温になるほど増加する熱の逃げ(熱伝導率の誤差)を減らすために、今回は、上式の要因の一つである、試料と輻射シールドの表面積比( $A_1/A_2$ )に着目し、熱伝導率測定の評価とした。fig. 2 に SUS304 の4つの異なるサイズの試料の  $\kappa$  の測定値と文献から得た  $\kappa$  の値を示す。これにより表面積比の小さい試料ほど  $\kappa$  の文献値との誤差が小さく、 $A_1:A_2$  = 約1:10の試料(A)では、300Kで約20%、400Kだと約40%もあった誤差が、 $A_1:A_2$  = 約1:50の試料(D)では、300Kで約3%、400Kまでの温度範囲でも約12%以内で一致した。これは、試料(A)と同サイズのSRM1460や試料(D)と同じサイズのSUS316の測定においても同じ結果が得られた。次に、fig. 3 に SUS304 試料(B),(C),(D)の  $\alpha$  の測定値と文献より得た  $\alpha$  の値を示す。図より  $\alpha$  の値は300K~400Kの温度範囲でばらつきが約3%以内で、文献値と約5%の誤差で一致した。これにより、任意加熱法は、輻射による影響が少なく、形状の試料で測定可能であることが確認できた。つぎに、 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  焼結体( $x=0.13\sim 0.4$ )の  $\kappa$  &  $\alpha$  を測定した。fig. 4 に  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  ( $x=0.4$ ) の  $\kappa$  の測定値を示す。 $A_1:A_2$  = 約1:50なので、 $\kappa$  の測定値の誤差は12%以内である。測定値より、強磁性転移温度(約350K)付近で、 $\alpha$ 、 $\kappa$  両方の測定値が極小を示した。

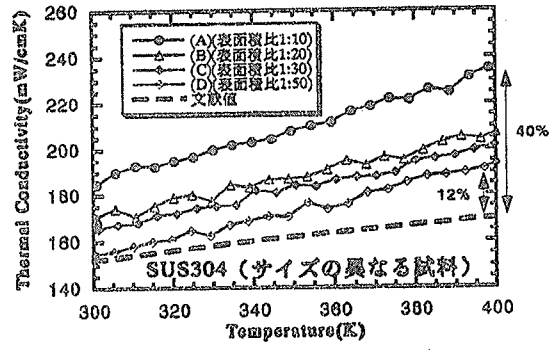


fig.2 SUS304 の熱伝導率

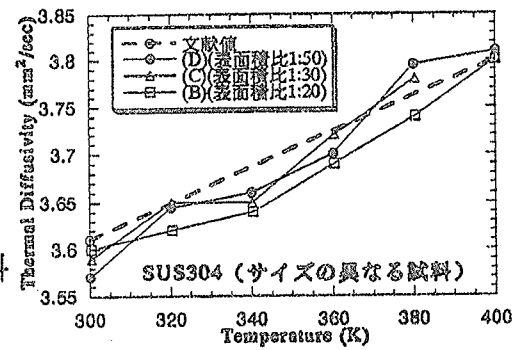


fig.3 SUS304 の拡散率

### 5、まとめ

300K~400Kの温度範囲における熱伝導率、熱拡散率測定装置を作製した。SRM1460、SUS316、SUS304の熱伝導率を測定し、輻射シールドとの表面積比が1:50程度の試料なら、文献値との誤差が300Kで約3%、400Kで約12%以内で測定できることが分かった。熱拡散率の測定は、任意形状の試料において測定可能で、値のばらつきが3%以内、文献値との誤差が5%以内で測定できることが分かった。今後、さらに  $\kappa$  の誤差を小さくしていくためには、輻射シールドの改良(素材、形状、多重化、シールドへの熱の補償など)を検討していかなければならない。

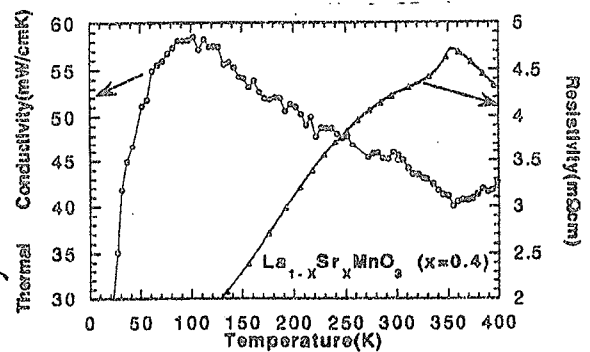


fig.4  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  ( $x=0.4$ ) の  $\kappa(T)$  &  $\rho(T)$