

【論文】

平板直接法による廃プラスチックとフライアッシュを主原料とする再生複合材の熱伝導率測定

Measurement of Thermal Conductivity of Recycled Composite of Plastic Waste and Fly Ash Using Guarded Hot Plate Apparatus

藤野淳市*、本田知宏*

Junichi Fujino, Tomohiro Honda

廃プラスチックとフライアッシュを主原料とする再生複合材の熱伝導率を平板直接法により測定した。試料は廃プラスチックからなる混合相が母材として連続相を形成し、粒径が約 60 μm 以下のフライアッシュ粒子が不規則な間隔で分散している複合材料である。試料内部では小さな気孔が密集しているのも確認された。測定試料の大きさは加熱源と同じ大きさとし、100×100 および 50×50mm² である。

熱伝導率は、試料温度が 250 から 350 K まで上昇すると、約 0.44 から 0.38 $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ まで直線的に減少している。試料 100×100 mm² の測定データの再現性は約±2 %以内、一方、試料 50×50 mm² の場合は約±4 %以内である。また試料 50×50 mm² の測定結果は 100×100 mm² に比べ低めを示しているが、5 % 以内で一致している。

PWFA recycled composite, which is made mostly from plastic waste and fly ash, is one of the materials developed for the purpose of recycling. The authors observed the cutting surface of the composite using a metalloscope and measured the thermal conductivity of the composite using two guarded hot plate apparatus suitable for the different sizes of specimen 100×100 and 50×50 mm² in area.

The spherical particles of fly ash disperse at irregular intervals in the matrix. The matrix composed of the plastic waste and the fire retardant is the continuous phase. And there is a dense area of voids inside the specimen. The thermal conductivity decreases from 0.44 to 0.38 $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ with increasing the specimen temperature from 250 to 350 K. The data for the specimen 50×50 mm² are lower than those for the specimen 100×100 mm², but agree with those for the specimen 100×100 mm² within 5%.

[**Keywords:** dispersion, fly ash, guarded hot plate, plastic composite, recycle, thermal conductivity]

1. はじめに

廃棄物を資源として再生利用することは、天然資源の節約につながるだけではなく、環境破壊の一因と考えられ、新用地の確保が困難で、余裕の無くなった埋立て処分場を今後も上手く利用する上で不可欠である。ところが、廃プラスチックの約 45 %は未利用のまま、単純焼却あるいは埋立て処分されている[1]。PWFA (Plastic Waste / Fly Ash) 再生複合材は廃プラスチックとフライアッシュを再生資源として再生利用することを目的に開発された材料の一つであり、既存の技術では再生利用が難しく、未利用のまま処分されていた廃プラスチックや、形や大きさ、性質の異なる廃プラスチックを原料に利用できる。

またこの複合材は繰返し再生利用が可能である。

PWFA 再生複合材の密度および圧縮強度はフライアッシュ含有量に依存する。その密度はコンクリートの約 5 分の 1 と小さく、また、その圧縮強度はコンクリートとほぼ同等にまで高めることが可能なため、コンクリートの代替品として利用することで、輸送費の削減、工事現場における作業の安全性や効率の改善が期待でき、現在は、地下埋設ケーブルの保護材（ケーブルトラフ）に使用されている。この複合材の熱物性値はケーブルから土中への伝熱量やケーブルの温度上昇を予測する際に必要であるが、まだ信頼できるデータはそろっていない。

この再生複合材の原料には材質や形状の異なる回収された廃プラスチックが利用されている。廃棄物の中から使用可能なプラスチックだけを完全に選別回収することは技術的に困難であるため、回収プラスチックの中には不要な成分がわずかに混入する。そのため、この複合材の熱物性値は回収プラスチックの組成に依存することに

* 福岡大学工学部機械工学科、〒814-0180 福岡市城南区七隈 8 丁目 19 の 1. Dept. of Mechanical Engineering, Fukuoka University, 8-19-1 Nanakuma, Jonan-ku, Fukuoka, 814-0180, Japan. FAX: 092-865-6031, E-mail: fujino@cis.fukuoka-u.ac.jp

なる。その一方で、フライアッシュの含有量や分散状態によっても熱物性値は異なってくる。よって、再生複合材の熱物性値について従来の推算方法[2]による決定や新しい推算モデルの提案の場合には、材料組成、構成材の形状や分布、またその熱的性質に関する情報が必要となる。本研究の目的は、PWFA 再生複合材に関わる伝熱問題の解決やその熱物性値の推算モデルを検討する場合に必要なこの複合材の熱物性データおよび構成材の形状や分布に関する基礎データを得ることである。

著者らは、金属顕微鏡および走査型電子顕微鏡 (SEM) を利用したフライアッシュ粒子や複合材断面の観察、ま

た平板直接法により大きさが 100×100 および $50 \times 50 \text{ mm}^2$ の複合材試料の熱伝導率の測定をおこなった。本報では、PWFA 再生複合材の組成、フライアッシュ粒子やその分散状態の観察結果、実験装置の特徴、実験における試料の温度分布、試料温度が 250 から 350 K における熱伝導率の測定結果について報告する。

2. 測定試料

PWFA 再生複合材の組成データを Table 1 に示す。複合材に含まれる廃プラスチックとフライアッシュの質量

Table 1. Composition of PWFA recycled composite.

components		contents per unit mass (%)	
plastic waste	polypropylene	62	45
	polyethylene	36	
	other	2	
	sum : 100 %		
fly ash		38	
glass fiber		2	
fire retardant		15	
		total : 100 %	

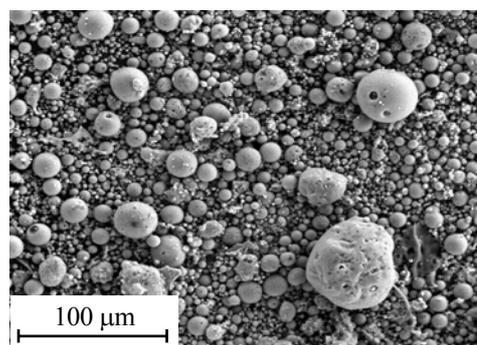
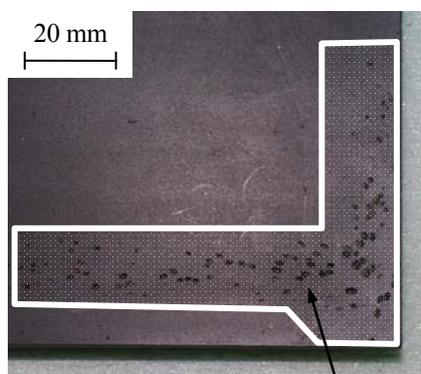
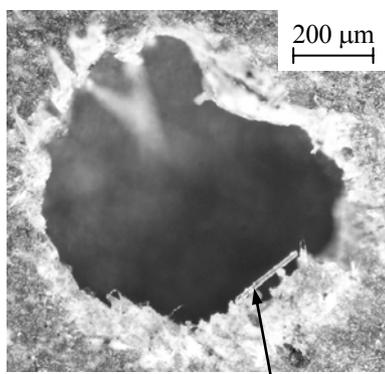


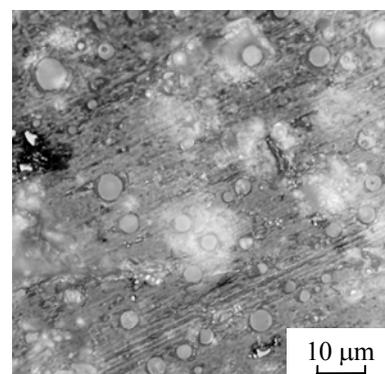
Fig.1 Fly ash particles ($\times 300$: by SEM).



(a) specimen for the experiment



(b) a void ($\times 100$)



(c) polished surface ($\times 1000$)

Fig.2 Observations of the surface of the PWFA recycled composite by a metalloscope.

Table 2. Feature of PWFA recycled composite specimens.

name ¹⁾	nominal size (mm^3)	tolerance of width (or length) (mm)	thickness				bulk density ⁵⁾ ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$)	
			mean ²⁾ (mm)	deviation ³⁾ (mm)	(%)	difference ⁴⁾ (mm)		(%)
100-9-A	$100 \times 100 \times 9$	± 0.3	8.93	0.12	1.3	0.00	0.0	1330
100-11-B	$100 \times 100 \times 11$	± 0.3	11.17	0.22	2.0	0.12	1.1	1330
50-8-C	$50 \times 50 \times 8$	± 0.3	7.96	0.06	0.8	0.01	0.1	1340
50-8-D	$50 \times 50 \times 8$	± 0.3	8.11	0.01	0.1	0.00	0.0	1330
50-9-E	$50 \times 50 \times 9$	± 0.3	8.85	0.07	0.8	0.01	0.1	1330

1) width - thickness - serial number, 2) mean thickness for a pair of specimen at 293 K, 3) maximum deviation from parallel planes for specimen surfaces, related to mean specimen thickness, 4) maximum thickness difference for two specimens, related to mean specimen thickness, 5) mean value for a pair of specimen at 293 K.

含有率の合計は 80%を超えている。その他には、材料の難燃性を増すための難燃剤と強化骨材としてのグラスファイバーが含まれる。廃プラスチックのほとんどは家庭用包装材として使用されたポリプロピレンとポリエチレンで、それらの質量比は約 6:4 であった。フライアッシュは国内の火力発電所で発生したもので、Fig.1 には SEM によるフライアッシュ粒子の観察結果を示す。フライアッシュは球状の微粒子で、その粒径は一定ではなく、およそ 60 μm 以下であった。難燃剤に関しては、材料開発上の重要機密保護の理由から、その組成や化学式などの情報は一切公表されていない。

ISO および JIS 規格[3,4]によれば、平板直接法を用いた熱伝導率測定に適した試料の最小寸法の推奨値は 200 \times 200 mm^2 である。大きさ 200 \times 200 mm^2 の平板状試料を実験用に用意したケーブルトラフから切り出し、その表面を機械加工により整える場合には、ケーブルトラフの肉厚が約 13 mm と薄いため、試料に反りや割れが生じる恐れがあった。また用意したケーブルトラフの量には余裕がなかった。そのため本研究では、Table 2 に示すように、大きさが 100 \times 100 および 50 \times 50 mm^2 の試料をそれぞれ 2 および 3 セット準備した。熱伝導率の測定には同一寸法の試料を 2 枚、また熱源の大きさが試料と同じ大きさに作製した測定装置を使用した。

測定試料の幅および長さの寸法公差は $\pm 0.3 \text{ mm}$ 以内とした。試料の厚さは、熱伝導率測定の前後に測定精度 $\pm 2 \mu\text{m}$ のマイクロメーターにより測定した。測定試料 100-11-B を除くと、二枚一組で使用した試料の厚さの違いは平均厚さの 0.1%以内、また厚さのばらつきは平均厚さの 1.3%以内であった。試料 100-11-B では、厚さのばらつきが平均厚さの 2.0%を超えたが、ISO および JIS 規格の許容範囲内であった。試料 100-11-B の場合、試料の厚さに起因する熱伝導率値の不確かさは $\pm 2.3\%$ 以内と、また他の試料では $\pm 1.4\%$ 以内と評価した。

Fig.2(a)は金属顕微鏡による熱伝導率測定用試料の表面観察結果である。試料表面には大きさの異なる多数の気孔が確認でき、それらは試料の全表面に分散しているのではなく、一部に密集していた。気孔は連続的につながった連続相ではなく、その大きさはおよそ 1 mm 以下であった。気孔の中身は空気と思われる。また Fig.2(b) に示すように、気孔の一つには、他の原料と融合せずに原形を保った一本のグラスファイバーが確認された。

Fig.2(c)には表面観察用に準備した試料の結果を示す。観察面は、砥粒サイズが 30、12 および 9 μm の紙やすりで順番に丁寧に磨いた後、粒子径 0.1 μm のアルミナ研濁

液と仕上げ用のフェルトバフにより研磨した。研磨した試料は上水道による手洗い、さらにイオン交換水による超音波洗浄の後、自然乾燥させた。

大きさが異なり、円く見えるものがフライアッシュ粒子である。フライアッシュ粒子は適当な間隔で分散し、その周りは廃プラスチックと難燃剤からなる母材で囲まれている。母材は連続相を形成している。グラスファイバーと同様に、フライアッシュ粒子も他の原料とは融合せずに原形を保っている。一方、廃プラスチックおよび難燃剤の分布、結合状態、融合状態などの母材に関する情報はまだ得ていない。以上のことから、測定試料は廃プラスチックと難燃剤の混合相を母材として、フライアッシュとグラスファイバーが不規則な間隔で分散している複合材料である。また Table 2 に示すように、試料のかさ密度はおよそ 1330 $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$ である。

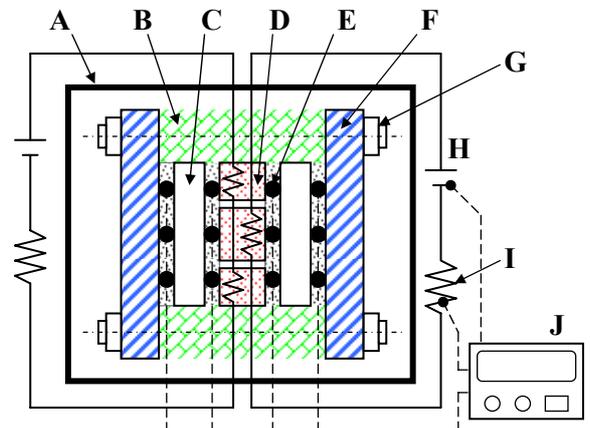


Fig.3 Schematic diagram of experimental apparatus (A: constant temperature chamber, B: polystyrene foam (thermal insulation), C: specimen, D: heat source, E: thermocouples, F: aluminum heat sink, G: bolt and nut, H: DC power supply, I: standard resistor, J: hybrid recorder).

3. 測定装置および方法

Fig.3 は実験装置の概略を示す。また測定に使用した 2 台の実験装置の寸法を Table 3 に示す。測定部は面状加熱源、2 枚の平板状試料、熱電対、発泡ポリスチレン (断熱材) および 2 枚のアルミ製放熱板からなる。熱源は 2 枚の試料の間に置かれ、その発熱面積は試料の大きさと等しい。また熱源は主熱源と補助熱源に分かれている。主熱源および補助熱源の発熱量はそれぞれに接続した直流安定化電源の供給電流を調節することにより設定した。熱源および試料の側面には熱損失を抑えるための断熱材を配置し、それらの側面と断熱材との間はわずかな隙間

Table 3. Dimensions of two experimental apparatus.

specimen size; $L \times L / \text{mm}^2$		100×100	50×50
hot plate	width of main plate ; m / mm	50	20
	width of gap ; g / mm	2	2
	width of guard plate ; s / mm	23	13
	thickness of hot plate ; δ_p / mm	5	2
insulation	inner size / mm^2	100×100	50×50
	outer size / mm^2	400×400	150×150
aluminum heat sink / mm^3		400×400×20	250×150×8

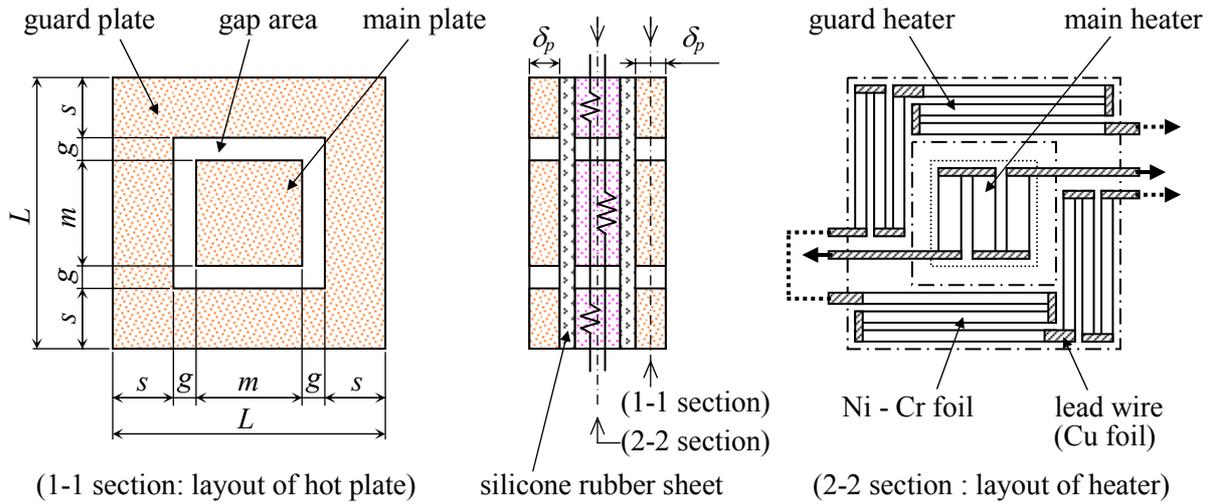
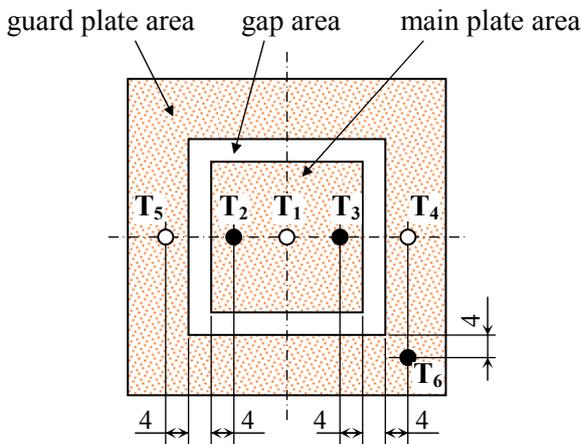


Fig.4 Details of heat source.



- Thermocouples (T_1, T_4, T_5) for specimen 100×100 and $50 \times 50 \text{ mm}^2$ in area
- Additional thermocouples (T_2, T_3, T_6) for specimen $100 \times 100 \text{ mm}^2$ in area

Fig.5 Details of thermocouple positions.

も生じないように密着させた。試料の高温面および低温面の温度測定には、直径 0.08 mm の T 型熱電対を使用した。熱電対と熱源との間および熱電対と放熱板との間には、熱電対の保護および電氣的絶縁のために、厚さ 0.3 mm のシリコンゴムシートを挿入している。熱源、熱電対、シリコンゴムシートおよび試料は、お互いが十分に

密着するように 2 枚の放熱板で挟み込み、ボルトとナットで固定した。測定部は内容積 $1 \times 1 \times 1 \text{ m}^3$ の恒温室内に設置した。恒温室内は設定温度範囲 240 から 353 K において、 $\pm 0.1 \text{ K}$ 以内に一定に保つことができる。

Fig.4 は熱源の詳細を示す。主熱源と補助熱源に分かれた発熱体は、厚さ $20 \mu\text{m}$ のニクロム箔に厚さ $100 \mu\text{m}$ 、幅 1 mm の銅箔（純度 99.9 %）をリード線として半田付けしたものである。発熱体の電気抵抗を増し、小さな電流でも十分な発熱量を得るため、短冊状に切ったニクロム箔を Fig.4 に示すように配置した。またリード線の寸法決定に際しては、リード線の発熱やリード線からの熱損失を抑えることを考慮した。発熱体は、その表面温度を一樣にするため、熱伝導率の高い 2 枚の高温板でその両面から挟みこみ、高温板との電氣的絶縁には、厚さ 0.3 mm のシリコンゴムシートを使用した。

高温板は、大きさ $100 \times 100 \text{ mm}^2$ の熱源の場合には厚さ 5 mm の、また $50 \times 50 \text{ mm}^2$ では厚さ 2 mm の銅板（純度 99.9 %）で、その構造は熱源と同様に、主熱源および補助熱源と同じ面積を持つ主熱板と補助熱板に分かれている。主熱板と補助熱板の間には幅 2 mm のギャップ g を設けた。参考文献[3,4]によれば、熱源の大きさが $50 \times 50 \text{ mm}^2$ の場合、ギャップ幅 2 mm は広すぎる。しかし、ギ

ギャップ幅が狭くなると、主熱板の外縁と補助熱板の内縁とが、わずかな位置ずれによっても接触する可能性が大きくなる。よって本装置では、主熱板と補助熱板の接触を防ぐため、少なくとも幅 2 mm のギャップを設けた。

Fig.5 は試料の高温面および低温面の温度測定位置を、熱源との位置関係が判るように示している。試料表面の温度測定には直径 0.08 mm の T 型熱電対を使用した。熱電対は、厚さが約 45 μm で、大きさが約 8×8 mm² の粘着テープを利用して、試料表面に固定した。試料 50×50 mm² の場合、熱電対 T₁ を試料表面の中心に配置した。そこは主熱源表面の中心に相当し、熱電対 T₁ の指示値を主熱源温度とした。また熱電対 T₄ および T₅ の指示値の平均値を補助熱源温度として用いた。

試料 100×100 mm² の場合は、Fig.5 中に示す位置に熱電対を追加している。主熱源温度は熱電対 T₁、T₂ および T₃ の指示値から、また補助熱源温度は熱電対 T₄、T₅ および T₆ の指示値から、それぞれ算術平均により求めた。

試料表面に熱電対を取り付けた場合、熱電対と試料表面との間には接触熱抵抗が存在する。また熱電対の設置は熱流の歪みの原因となる。そこで、試料の代わりに厚さ 1 mm の銅板（純度 99.9 %）を装置内に取り付け、熱電対に起因する接触熱抵抗の影響を見積もった[5]。銅の熱伝導率は試料に比べ 100 倍程度高く、銅板の厚さは試料に比べかなり薄いため、接触熱抵抗の測定においては、銅板の熱抵抗の影響は無視できた。銅板を繰返し装置に取り付け、接触熱抵抗の測定を繰返しおこなったところ、測定値の再現性は±10 %以内で、そのばらつきに起因する熱伝導率値の不確かさは±0.5 %以内と評価した。

主熱源と補助熱源との温度差が大きくなると、試料側面からの熱損失が増加するため、試料内においては熱流の一次元性が失われる。その結果、熱伝導率の測定誤差は大きくなる。従って、主熱源および補助熱源への通電電流を調節し、主熱板と補助熱板との温度差 ΔT_g は小さくする必要がある。実験中は、温度差 ΔT_g を試料の高温面および低温面の温度差 ΔT_{hc} の±0.5 %以内に保った[4]。

主熱源の発熱量 Q_0 は主熱源への通電電流とその端子間電圧の積として算出した。リード線を介した主熱源からの熱損失 Q_l およびギャップを介した主熱源から補助熱源への熱損失 Q_g は、温度差 ΔT_g から見積もった。本実験では、加熱量 Q_0 の変動、および試料の温度差 ΔT_{hc} に対する試料温度の変動がそれぞれ単位時間当たり±0.5 %以内に安定した場合を、試料内部の伝熱現象が定常状態に達していると判断し、測定をおこなった。

ISO および JIS 規格[3,4]によれば、ギャップ幅 g の一

部は有効加熱面積に含まれる。主熱源の両端にある向かい合ったギャップの中心間の距離を有効加熱面積の一边として、一次元熱伝導におけるフーリエの法則に従い、試料の熱伝導率 k は次式(1)により算出した。

$$k = \frac{(Q_0 - Q_l - Q_g)}{2(m+g)^2} \times \frac{\delta}{\Delta T_{hc}} \quad (1)$$

ここに m および δ はそれぞれ主熱板の幅および試料の厚さである。

既報[5,6]において著者らは、本装置を利用した均質材料の熱伝導率の測定精度に関して、実験および数値計算により検討している。測定試料には、熱伝導率が約 0.2 から 0.6 W·m⁻¹·K⁻¹ の範囲にあるシリコンゴム、アクリル樹脂およびポリエチレン樹脂の 3 種類のプラスチック板を使用し、その大きさは熱源と等しく、100×100 と 50×50 mm² の他に、JIS 規格での推奨寸法 200×200 mm² とした。シリコンゴム板は標準試料として利用するため、その熱伝導率は、(財)建材試験センターの平板直接法を利用した熱伝導率測定装置により較正した。数値計算では、試料の厚さ δ 、ギャップ幅 g 、温度差 ΔT_g および断熱材の熱抵抗が測定に及ぼす影響について検討している。

本実験と同じ寸法の均質材料の場合、測定値は試料の厚さおよびギャップ幅の影響により、試料 200×200 mm² に比べて試料 100×100 および 50×50 mm² では、それぞれ約 1 および 2 %低くなった。また主熱板と補助熱板との温度差 ΔT_g を試料厚さ方向の温度差 ΔT_{hc} の±0.5 %以内に保った場合には、測定値のばらつきは約±1 %以内に抑えることが可能であった。本装置を利用して 3 種類のプラスチック試料の熱伝導率を測定した場合には、試料の厚さと幅の寸法比 $2\delta/L$ を 0.8 以下に、温度差 ΔT_g を温度差 ΔT_{hc} の±0.5 %以内に、および試料と熱源の側面を断熱材で保温したことで、測定値の不確かさを±4 %以内に抑えることができた。

4. 結果および考察

熱源を中央にして左右対称に設置した試料の表面温度測定結果の一例として、試料温度 T_m が約 300 K の結果を Table 4 に示す。ここに温度 T_m は高温面と低温面の温度の平均値である。試料 100×100 mm² の温度差 ΔT_{hc} が 15.18 K の場合、高温面温度のばらつき δT_h は 0.28 K、また低温面温度のばらつき δT_c は 0.40 K である。同様に、50×50 mm² の温度差 ΔT_{hc} が 11.82 K の場合、表面温度のばらつき δT_h および δT_c はそれぞれ 0.29 および 0.19 K である。試料の

大きさには関係なく、表面温度のばらつき δT_h および δT_c は温度差 ΔT_{hc} の 2 % を越えている。データの詳細は省略するが、温度 T_m が約 350 K の場合には、試料 $100 \times 100 \text{ mm}^2$ の温度差 ΔT_{hc} が 16.03 K で、表面温度のばらつき δT_h およ

び δT_c はそれぞれ温度差 ΔT_{hc} の 1.3 および 2.1 %、また $50 \times 50 \text{ mm}^2$ の温度差 ΔT_{hc} が 18.38 K では、それぞれ温度差 ΔT_{hc} の 1.7 および 2.6 % であった。いずれの結果も、既報で測定したプラスチック試料の結果[5,6]に比べて大きい。

Table 4. Example of results of specimen surface temperatures.

specimen	$100 \times 100 \text{ mm}^2$				$50 \times 50 \text{ mm}^2$			
	high temperature surface		low temperature surface		high temperature surface		low temperature surface	
	right	left	right	left	right	left	right	left
main heater area								
T_1 (K)	307.68	307.54	292.55	292.38	302.08	302.04	290.19	290.28
T_2 (K)	307.82	307.66	292.60	292.40				
T_3 (K)	307.78	307.58	292.65	292.43				
T_{MHA} (K)	307.68		292.50		302.06		290.24	
guard heater area								
T_4 (K)	307.70	307.63	292.60	292.38	302.23	302.10	290.12	290.09
T_5 (K)	307.68	307.56	292.60	292.35	302.00	301.94	290.14	290.22
T_6 (K)	307.66	307.66	292.53	292.25				
T_{GHA} (K)	307.65		292.45		302.07		290.14	
average temperature T_m (K)	300.09				296.15			
temperature difference								
ΔT_{hc} (K)	15.18 (= 307.68 - 292.50)				11.82 (= 302.06 - 290.24)			
ΔT_g (K)	0.03 (= 307.68 - 307.65)		(0.19 % of ΔT_{hc})		-0.01 (= 302.06 - 302.07)		(-0.06 % of ΔT_{hc})	
δT_h or δT_c (K)	0.28 (= 307.82 - 307.54)		0.40 (= 292.65 - 292.25)		0.29 (= 302.23 - 301.94)		0.19 (= 290.28 - 290.09)	
	(1.8 % of ΔT_{hc})		(2.6 % of ΔT_{hc})		(2.5 % of ΔT_{hc})		(1.6 % of ΔT_{hc})	

right: right side specimen, left: left side specimen, T_{MHA} : average temperature at main heater area, T_{GHA} : average temperature at guard heater area, $T_m = ((T_{MHA})_h + (T_{MHA})_c) / 2$, $\Delta T_{hc} = (T_{MHA})_h - (T_{MHA})_c$, $\Delta T_g = (T_{MHA})_h - (T_{GHA})_h$.

Table 5. Experimental results for the PWFA recycled composite.

specimen name	size (mm ³)	ΔT_{hc} (K)	$(Q_g + Q_l) / Q_0$ (%)	thermal conductivity			
				data ¹⁾ (W m ⁻¹ K ⁻¹)	deviation (%)	reproducibility (%)	uncertainty ³⁾ (%)
100-9-A	100×100×9	14~21	± 0.2	0.412	---	+1.0 / -1.5	-3.2 3.2
100-11-B	100×100×11	18~28	± 0.2	0.411	---	+1.1 / -1.8	-3.8 3.8
50-8-C	50×50×8	9~14	± 0.6	0.407	-1.1 ²⁾	+2.3 / -3.5	-4.5 4.4
50-8-D	50×50×8	11~18	± 0.3	0.400	-2.8 ²⁾	+1.7 / -1.5	-4.1 3.0
50-9-E	50×50×9	11~13	± 0.5	0.395	-4.0 ²⁾	+1.0 / -0.7	-4.9 2.8

1) Measured value at specimen temperature of 300 K, 2) Deviation from the value calculated from Eq.(2), 3) Combined standard uncertainty [11].

Table 6. Thermal conductivity data of polymers and recommended thermal conductivity of metallic oxides.

PP ¹⁾ [7]		PE ²⁾ [8]		SiO ₂ ³⁾ [10]		Al ₂ O ₃ ⁴⁾ [10]		CaO ⁵⁾ [10]		MgO ⁶⁾ [10]	
T	k	T	k	T	k	T	k	T	k	T	k
273	0.2	273.2	0.42	273	11.6	273.2	52	341.2	12.3	273.2	66.5
400	0.19	298.2	0.39	300	10.4	300	46	345.2	12.8	300	60.0
---	---	323.2	0.37	350	8.8	350	38	367.2	11.8	350	50.7
---	---	351.2	0.33	400	7.6	400	32.4	419.2	11.0	400	43.1

T : temperature (K), k : thermal conductivity (W·m⁻¹·K⁻¹), 1) polypropylene, 2) polyethylene (density 950 kg·m⁻³), 3) high-purity quartz single crystal (parallel to c-axis), 4) high purity synthetic sapphire single crystal, 5) pure and crystalline cube specimen (bulk density 3030 kg·m⁻³, total porosity 8.75 %), 6) 99.96 % pure single crystal.

本装置における加熱量 Q_0 の変動は $\pm 0.1\%$ 以内であった。また主熱源からリード線を介した熱損失 Q_l とギャップを介した熱損失 Q_g の総和は、Table 5 に示すように、加熱量 Q_0 の $\pm 0.6\%$ 以内である。

Fig.6 には再生複合材の熱伝導率の測定結果を、縦軸に熱伝導率 k 、横軸に試料温度 T_m をとり示す。恒温室内の設定温度は 240 から 345 K までの範囲であった。熱伝導率は、温度 T_m が 250 から 350 K まで上昇すると、約 0.44 から 0.38 $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ まで直線的に減少する。また試料の温度差 ΔT_{hc} には依存していない。Table 6 に示すポリプロピレンおよびポリエチレン樹脂[7,8]の、またフライアッシュの主成分[9]と考えられる金属酸化物 (SiO_2 、 Al_2O_3 、 CaO および MgO) [10]の熱伝導率と比べると、再生複合材の熱伝導率の値はプラスチックと金属酸化物の値の間にあり、ポリエチレン樹脂の熱伝導率に近いことが判る。また複合材の熱伝導率が温度の増加とともに減少する傾向は、参考にしたプラスチックや金属酸化物の熱伝導率の温度傾向と同じである。実験では、Fig.3 に示すような試料を直立設置した場合の他に、水平設置での測定、また試料を裏返して、低温側であった試料表面を加熱した場合の測定もおこない、加熱流の方向により測定値が異なることを確認している。試料を装置内に取付けたままの繰返し測定の結果および再度試料を装置へ取付けて測定した結果から、試料 $100\times 100\text{ mm}^2$ の測定値の再現性は約 $\pm 2\%$ 以内である。一方、試料 $50\times 50\text{ mm}^2$ の場合は約 $\pm 4\%$ 以内である。試料 $50\times 50\text{ mm}^2$ のデータは試料 $100\times 100\text{ mm}^2$ に比べ低めを示しているが、 5% 以内で一致している。プラスチック試料の場合[5,6]と比べても、試料 $50\times 50\text{ mm}^2$ の結果は、測定値のばらつきが大きく、また試料 $100\times 100\text{ mm}^2$ の測定値との差が大きい。試料の表面温度のばらつきが大きかったことも考えに入れると、試料が不規則な間隔で分散したフライアッシュやガラスファイバー、また気孔を含む複合材であることが、特に試料 $50\times 50\text{ mm}^2$ の測定に影響したと考えられる。測定データのばらつきや試料寸法の違いによる測定値の差の必然性を判断する上で、このような複合材の熱伝導率を本実験で用いた試料の寸法で測定した場合の信頼性について検討する必要がある。その上で、本実験で用いた試料の寸法が複合材の熱伝導率測定に適しているかを判断する必要がある。

以上のことから、温度 250 から 350 K の範囲における再生複合材の熱伝導率を表す実験式として、試料 $100\times 100\text{ mm}^2$ の測定データを基に次式(2)を得た。また試料の厚さおよび温度測定の不確かさ、加熱量の変動、熱伝導

率の値の再現性、および式(2)から求まる計算値と測定値との差を考慮して、本装置により測定した大きさ 100×100 および $50\times 50\text{ mm}^2$ の再生複合材試料の熱伝導率の値の不確かさは約 $\pm 5\%$ 以内と見積もった[11]。

$$k = 0.576 - 5.5 \times 10^{-4} \times T_m \quad (2)$$

再生複合材のガラスファイバー含有量は、他の構成材に比べ非常に微量である。また試料内部では大きさがおよそ 1 mm 以下の気孔が確認されたが、それらの気孔は連続的な気相を形成しているのではなく、試料内の一部分に偏り、密集していた。このことから、分散相のほとんどはフライアッシュ粒子と言える。フライアッシュ粒子は不規則に分散しているが、その粒径に比べると、測定試料の厚さは 100 倍以上もある。山田ら[12]の研究結果を参考にすると、本実験で使用した測定試料は有効熱伝導率を測定するのに必要な条件（測定試料と分散相の寸法比）を満たしていると判断でき、また巨視的に均質な材料と見なすことができる。熱伝導率が試料の温度差 ΔT_{hc} および加熱流の方向に依存していないことを考慮すると、本測定データは再生複合材の有効熱伝導率と考えられる。

sym.	name	run	ΔT_{hc} K	bulk density $\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$
○	100-9-A	1st run	14 ~ 16	1330
●	100-9-A	2nd run	19 ~ 21	
△	100-11-B	1st run	18 ~ 20	1330
▲	100-11-B	2nd run	24 ~ 28	
□	50-8-C	1st run	9 ~ 10	1340
■	50-8-C	2nd run	13 ~ 14	
+	50-8-D	1st run	11 ~ 12	1330
×	50-8-D	2nd run	16 ~ 18	
◇	50-9-E	1st run	11 ~ 13	1330

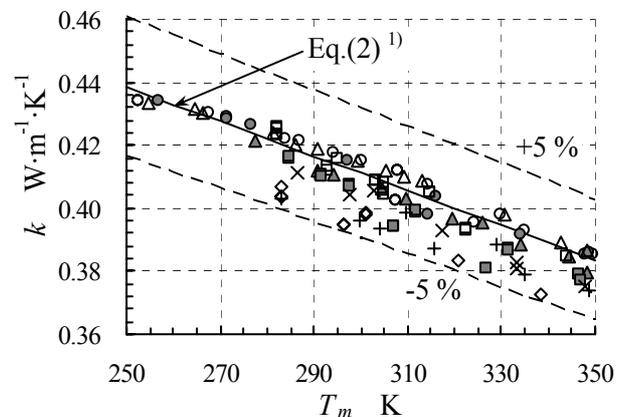


Fig.6 Results for the PWFA recycled composite
(¹) Data calculated from Eq.(2)).

5. おわりに

廃プラスチックとフライアッシュを主原料とする再生複合材の熱伝導率を平板直接法により測定した。測定試料の大きさは加熱源と同じ大きさとし、 100×100 および $50 \times 50 \text{mm}^2$ である。実験は、試料温度が 250 から 350K の範囲で繰返しおこなった。また金属顕微鏡および走査型電子顕微鏡を用いて、フライアッシュ粒子および複合材断面の観察もおこなった。その結果、以下の結論を得た。

- (1) 試料は廃プラスチックと難燃剤からなる混合相が母材として連続相を形成し、フライアッシュとガラスファイバーが不規則な間隔で分散している複合材料である。また試料内部には大きさの異なる多数の気孔が確認された。
- (2) 本装置により測定した大きさ 100×100 および $50 \times 50 \text{mm}^2$ の再生複合材試料の熱伝導率の値の不確かさは約 $\pm 5\%$ 以内である。
- (3) 再生複合材の熱伝導率は、試料温度が 250 から 350 K まで上昇すると、約 0.44 から $0.38 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ まで直線的に減少する。
- (4) 分散相のほとんどはフライアッシュ粒子と考えられ、その粒径は熱伝導率測定に使用した試料の厚さに比べて十分に小さいことから、測定試料は巨視的に均質な材料と見なせる。また熱伝導率が試料の温度差 ΔT_{hc} および加熱流の方向に依存していないことから、本測定結果は再生複合材の有効熱伝導率と言える。

今後は、廃プラスチックおよび難燃剤の分布、結合あるいは融合状態などの母材に関して、また本装置を利用して再生複合材のような試料の熱伝導率を測定する場合に注意しなければならない条件やそのときに得られる測定値の信頼性について検討する予定である。

NOMENCLATURE

- g : gap between the main and guard plates, m
 k : thermal conductivity, $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$
 L : width of the specimen, m
 m : width of the main plate, m
 Q_0 : heat input of the main heater, W
 Q_g : heat loss caused by the gap, W
 Q_l : heat loss to the lead wire, W
 s : width of the guard plate, m
 T : temperature, K
 T_m : average temperature of specimen, K
 ΔT_g : temperature difference between the main and guard plates, K
 ΔT_{hc} : temperature difference between the high and low temperature surfaces of specimen, K

- δ : thickness of specimen, m
 δ_p : thickness of hot plate, m
 ΔT_c : temperature difference at the low temperature surfaces, K
 ΔT_h : temperature difference at the high temperature surfaces, K

Subscripts

- c : low temperature surface
 GHA : guard heater area
 h : high temperature surface
 MHA : main heater area

参考文献

- [1] プラスチック処理促進協会; 「プラスチック製品の生産・廃棄・再資源化・処理処分の状況」、「プラスチックリサイクルの基礎知識」(社団法人 プラスチック処理促進協会、2003).
- [2] 日本熱物性学会編; 「熱物性ハンドブック」 pp.285 – 289 (養賢堂、1990).
- [3] International Organization for Standardization; “ISO 8302 Thermal insulation – Determination of steady-state thermal resistance and related properties – Guarded hot plate apparatus” (International Organization for Standardization, 1991).
- [4] 日本規格協会; 「JIS A 1412-1 熱絶縁材の熱抵抗及び熱伝導率の測定方法 (第1部: 保護熱板法)」(日本規格協会、1999).
- [5] J. Fujino, T. Honda; “Effect of specimen size on the thermal conductivity measurement using guarded hot plate apparatus” Proc. 16th European Conference on Thermophysical Properties, (2002), on CD-ROM.
- [6] J. Fujino, T. Honda, H. Yamashita; “Numerical and experimental studies on the measurement of thermal conductivity of a silicone rubber plate as a reference material” Heat Transfer – Japanese Research, **26** (1997), pp.435 – 448.
- [7] 日本機械学会; 「伝熱工学資料 (改訂第4版)」 p.321 (日本機械学会、1986).
- [8] 高分子学会編; 「高分子データハンドブック (応用編)」 p.5 (培風館、1986).
- [9] 日本フライアッシュ協会; 「石炭灰」(日本フライアッシュ協会、2004).
- [10] Y. S. Touloukian, R. W. Powell, C. Y. Ho, P. G. Klemens; “Thermal Conductivity: Nonmetallic Solids” vol.2 of Thermophysical Properties of Matter (Y. S. Touloukian and C. Y. Ho eds.) pp.93 – 97, pp.141 – 143, pp.158 – 166, pp.174 – 182 (IFI/PLENUM, 1970).
- [11] 米国機械学会編; 「計測の不確かさ」(日本機械学会、1987).
- [12] 山田悦郎、芹田英一、伊藤公悦; 第31回日本伝熱シンポジウム講演論文集、**I** (1994)、pp.295 – 297.

[Received Jan. 28, 2006, Accepted Apr. 24, 2006]