

レーザフラッシュ法によるセラミックス2層試料の熱拡散率測定

The Thermal Diffusivity Measurement of the Two-layer Ceramics Using the Laser Flash Methodn

阿子島 めぐみ*・小 川 光 惠**・馬 場 哲 也*・水 野 峰 男**

Megumi AKOSHIMA, Mitsue OGAWA, Tetsuya BABA and Mineo MIZUNO

(Received July 25, 2008)

Ceramics-based thermal barrier coatings are used as heat and wear shields of gas turbines. There are strong needs to evaluate thermophysical properties of coating, such as thermal conductivity, thermal diffusivity and heat capacity of them. Since the coatings are attached on substrates, it is no easy to measure these properties separately.

The laser flash method is one of the most popular thermal diffusivity measurement methods above room temperature for solid materials. The surface of the plate shape specimen is heated by the pulsed laser-beam, then the time variation of the temperature of the rear surface is observed by the infrared radiometer. The laser flash method is non-contact and short time measurement. In general, the thermal diffusivity of solids that are dense, homogeneous and stable, are measured by this method. It is easy to measure thermal diffusivity of a specimen which shows heat diffusion time about 1 ms to 1 s consistent with the specimen thickness of about 1 mm to 5 mm. On the other hand, this method can be applied to measure the specific heat capacity of the solids. And it is also used to estimate the thermal diffusivity of an unknown layer in the layered materials.

In order to evaluate the thermal diffusivity of the coating attached on substrate, we have developed a measurement procedure using the laser flash method. The multi-layer model based on the response function method was applied to calculate the thermal diffusivity of the coating attached on substrate from the temperature history curve observed for the two-layer sample. We have verified applicability of the laser flash measurement with the multi-layer model using the measured results and the simulation. It was found that the laser flash measurement for the layered sample using the multi-layer model was effective to estimate the thermal diffusivity of an unknown layer in the sample. We have also developed the two-layer ceramics samples as the reference materials for this procedure.

Key Words: Widely Thermal Diffusivity, Laser Flash Method, Coating, Two-Layer Reference Material

1. 緒 言

コーティングは、材料の耐熱性、耐摩耗性などを向上さ せ、材料の特性・機能をより効果的に利用するために用い られている基盤技術である。とくに、セラミックス系のコー ティングは、遮熱コーティングとして期待が大きい。例え ば、ガスタービンのブレード材は、金属をセラミックスで コーティングすることにより、金属の耐熱温度よりも高い 温度での使用を実現している。これらの設計においては、 コーティングのより確からしい熱物性値データが必要であ り、材料開発・評価においては、有効な試験方法が求めら れている。これまで、コーティングを評価する場合、基材 から切出したり、別途作製したりするなどして単体で自立 するコーティングの試験片が用いられてきた。しかし、基 材と一体の状態で使用するものであり、その状態での熱物 性の評価技術のニーズがある。

室温以上の温度領域における固体材料の評価方法とし て、レーザフラッシュ法がよく知られている。レーザフラッ シュ法は、理想的には、緻密で均質な単層の材料の測定を 前提としているが、近年の材料の多様化に合わせ、層状材 料などへも適用が試みられている。層状材料の測定は、解 析解が提案されていて、原理的には可能である。しかし、 解析方法が複雑であったり、層間の界面の影響を評価する ことが困難であったり、実際には、高精度での測定は難し いとされている。

また、レーザフラッシュ装置の一般的な測定範囲は、熱

*(独)産業技術総合研究所 計測標準研究部門 (〒 305-8563 つくば市梅園 1-1-1 中央第 3)

National Metrology Institute of Japan, AIST (Tsukuba Central 3, 1-1-1 Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305-8563, Japan)

**(財)ファインセラミックスセンター (〒 456-8587 名古屋市熱田区六野 2-4-1) Japan Fine Ceramics Center (JFCC) (2-4-1 Mutsuno, Atsuta-ku, Nagoya 456-8587, Japan)



Fig. 1 Principle of the laser flash method and the example of the measurement system.

拡散時間が約 1ms - 1s、熱拡散長が約 1mm - 5mm と推測 される。基材とコーティング部分をそれぞれ取り出して評 価することも考えられるが、コーティング部分の厚さは、 典型的な例では数 100 μm 程度である。よって、コーティ ング部分のみの測定は、容易ではない。

このような背景を踏まえて、本研究では、レーザフラッ シュ法による層状試料の評価方法の高度化として、応答関 数法による多層モデルを適用し、レーザフラッシュ法の比 較測定から基材と一体化した状態でコーティングの熱拡散 率を算出する手順を検討した。実際に測定したデータを用 いて、その効果を実証した。また、その方法により、実用 層状材料を測定する際の指針になる標準物質として、セラ ミックス製の2層標準試料を開発した。

2. レーザフラッシュ法

レーザフラッシュ法の測定原理図を **Fig.1** に示す。半径 $r_n[\mathbf{m}]$ 、熱容量 $C_n[J/K]$ 、試料厚さ $d_n[\mathbf{m}]$ の平板状試料 n に エネルギー密度 $q[J/\mathbf{m}^2]$ のパルスレーザ光が均一に照射さ れたとき、試料の温度上昇 $\Delta T_n[\mathbf{K}]$ は、次式で表される。

$$\Delta T_{\rm n} = \frac{a_{\rm n} \cdot (\pi r_{\rm n}^2) \cdot q}{C_{\rm n}} \tag{1}$$

*a*_nは、試料表面でのレーザ光の吸収率である。 理想的な1次元の熱伝導方程式より、試料裏面の温度変化 *T*_n[K]は、

$$T_{n}(t) = \Delta T_{n} \left\{ 1 + 2 \sum_{m=1}^{\infty} (-1)^{m} \exp\left(-m^{2} \frac{t}{\tau_{n}}\right) \right\}$$
(2)

で与えられる。ここで、 $\tau_n[s]$ は、熱拡散時間である。試料 裏面の温度が $\Delta T_n[K]$ の 1/2 に達するまでに要した時間を $t_{1/2,n}[s]$ (ハーフタイム)とすると、ハーフタイム法¹⁾より、 熱拡散率 $\alpha_n[m^2/s]$ は、

$$\alpha_{\rm n} = \frac{d_{\rm n}^2}{\tau_{\rm n}} = 0.1388 \times \frac{d_{\rm n}^2}{t_{1/2_{\rm n}}}$$
(3)

で表される。実際の測定において、試料裏面の温度は、放 射温度計により、その観測波長における試料の分光放射 輝度として観測する。放射温度計の出力は、試料の温度上 昇に伴い、プランク則に基づいて非線形に増加するととも に、試料の分光放射率 ϵ_n に比例する。温度変化が小さく線 形近似が成立する場合には、試料の分光放射輝度変化 ΔL_n [W·m²sr⁻¹] は、

$$\Delta L_{\rm n} = \varepsilon_{\rm n} \cdot \left(\frac{\partial L}{\partial T}\right)_{T=T_0} \cdot \Delta T_{\rm n} \tag{4}$$

エネルギー密度が均一な大口径のパルスレーザ光で、2個の試料 r, m を同時測定する場合を考える(示差方式レーザフラッシュ法²⁾)。2個の試料は、半径は等しい同じ円板状で、表面でのレーザ光の吸収率と分光放射率が等しいと仮定すると、(1)(4)式より、

$$C_{\rm m} = \frac{\Delta L_{\rm r}}{\Delta L_{\rm m}} \cdot C_{\rm r} = \frac{\Delta T_{\rm r}}{\Delta T_{\rm m}} \cdot C_{\rm r}$$
(5)

(5) 式より、一方の試料の熱容量が既知であれば、分光放射 輝度変化の比、すなわち温度上昇の比からもう片方の試料 の熱容量を求めることができる。同条件で測定した2試料 の比較であるから、原理的には、試料を入替て測定した温 度履歴曲線同士の比較でも測定できる³⁾が、測定条件を完 全に揃えることが難しいので、同時測定する示差方式レー ザフラッシュ法²⁾が提案されている。

応答関数法による多層モデルを用いた層状試料の熱拡 散率算出方法

2層試料について考える(第1層を基材、第2層をコーティングと仮定する)。応答関数法より、パルス加熱後の試料裏面の規格化した温度履歴曲線とその最高温度上昇値の直線が囲む面積 A[s] は、次式で表される⁴⁵⁾。

$$A = \int_{0}^{\infty} \left[1 - b\sqrt{\tau} \cdot T(t) \right] dt = \lim_{\xi \to 0} \left[\frac{1}{\xi} - b\sqrt{\tau} \cdot \widetilde{T}(\xi) \right]$$
(6)

これは、時間の次元を有するので、面積熱拡散時間と呼ぶ。 Fig.2 に示す 2 層試料において、第 i 層の厚さ d_i [m]、熱伝 導率 λ_i [W/(m·K)]、比熱容量 c_i [J/(kg·K)]、密度 ρ_i [kg/m³]、 熱拡散率 α_i [m²/s]、熱浸透率 b_i [(W·s^{1/2})/(m²·K)], 熱拡散時間 τ_i [s]と定義し、伝達関数行列に変換してラプラス空間にお ける試料温度変化を求めると、

$$\widetilde{T}_{2} = \frac{1}{\sqrt{\xi} \left(b_{1} \sinh \sqrt{\xi \tau_{1}} \cosh \sqrt{\xi \tau_{2}} + b_{2} \cosh \sqrt{\xi \tau_{1}} \sinh \sqrt{\xi \tau_{2}} \right)}$$
(7)



Fig. 2 A model of the two-layer sample based on the response function method.

(7)式を(6)式に代入して、第2層裏面の温度履歴曲線とその温度最高上昇値の直線が囲む面積としての面積熱拡散時間は、

$$A = \frac{b_{1}\tau_{1}^{3/2} + 3b_{1}\tau_{2}\tau_{1}^{1/2} + 3b_{2}\tau_{1}\tau_{2}^{1/2} + b_{2}\tau_{2}^{3/2}}{6(b_{1}\sqrt{\tau_{1}} + b_{2}\sqrt{\tau_{2}})}$$
(8)

である。ここで、熱浸透率は、

$$b_{i} = \sqrt{\lambda_{i}c_{i}\rho_{i}} = \sqrt{\alpha_{i}c_{i}\rho_{i}\cdot c_{i}\rho_{i}} = c_{i}\rho_{i}\sqrt{\alpha_{i}} = c_{i}\rho_{i}d_{i}\sqrt{\tau_{i}}$$
(9)

上記のような多層モデルを用いて、(9)式を(8)式に代入して整理すると、

$$\tau_{2} = \frac{6A(c_{1}\rho_{1}d_{1} + c_{2}\rho_{2}d_{2}) - c_{1}\rho_{1}d_{1}\tau_{1} - 3c_{2}\rho_{2}d_{2}\tau_{1}}{3c_{1}\rho_{1}d_{1} + c_{2}\rho_{2}d_{2}}$$
(10)

ここで、第1層(基材)の熱拡散率 α₁[m²/s] は既知であり、

$$\alpha_1 = \frac{d_1^2}{\tau_1} \tag{11}$$

また、第1層の比熱容量 c_1 [J/(kg·K)]と密度 p_1 [kg/m³]、測 定試料の基材部分の厚さ d_1 [m]、第2層の厚さ d_2 [m]と密度 p_2 [kg/m³]が既知であるとすると、これらを (10)式に代入し て、 τ_2 [s]が得られ、第2層の熱拡散率 α_2 [m²/s]を求めるこ とができる。

$$\alpha_2 = \frac{d_2^2}{\tau_2} \tag{12}$$

熱拡散率 $\alpha_2 [m^2/s]$ が得られたので、比熱容量 $c_2 [J/(kg \cdot K)]$ 、 密度 $\rho_2 [kg/m^3]$ との積として、未知層の熱伝導率 $\lambda_2 [W/(m \cdot K)]$ が算出できる。単層試料の場合は、下記の関係式になる³⁾。

$$A = \frac{\tau_1}{6} \tag{13}$$

面積熱拡散時間 A[s] は、Fig.2 に示すように、測定した 温度変化曲線と最大温度上昇のラインが囲む領域の面積で ある。この多層モデルによる解析を利用して2層試料のコー

ティングの熱拡散率を得るためには、この面積熱拡散時間 の算出が重要になる。面積熱拡散時間の算出には、次の3 つの方法が考えられる。まず、"A_{Excel}" [s] として、測定デー タの和をExcelなどの表計算ソフトウエアを用いて算出し、 面積熱拡散時間を求める方法を挙げる。汎用的な表計算 ソフトウエアを利用できる長所があるが、測定データの数 値データを使うことや、熱損失などの影響が大きい場合に あらかじめ測定データを補正しておく必要があるなどの短 所がある。"A112"[s]として、2層試料の測定データに対し て、1 層の場合のハーフタイム法¹⁾を適用して求めた見か けの熱拡散率と(13)式から面積熱拡散時間を求める方法が ある。市販レーザフラッシュ装置には、ハーフタイム法に よる解析機能が標準添付されているので、容易な方法であ る。ただし、1層の場合を仮定する前提が難しい場合に適 用できない可能性がある。"A CFP" [s] は、2 層試料の測定デー タに対して、1層の場合のカーブフィッティング法⁵⁾を適 用して求めた見かけの熱拡散率と(13)式から面積熱拡散時 間を求める方法である。測定データの数値データをカーブ フィッティング法で解析できる無料ソフトウエアが頒布さ れていて、比較的利用しやすい。この場合も、"A_{11/2}"[s]と 同様に、1層の場合を仮定することが難しい場合に適用で きない可能性がある。また、測定データの数値データを必 要とする。

レーザフラッシュ法の比較測定の1つである示差方式 レーザフラッシュ法は、比熱容量測定手法として提案され た。コーティングの熱伝導率測定に適用する場合、基材単 層の試料と、基材とコーティングの2層試料を同時測定す ると、基材の熱拡散率と比熱容量、コーティングの比熱容 量も同時に測定ができる。すなわち、各層の厚さと密度が 既知であれば、それ以外の物性値は、測定から一度に得る ことも可能である⁶。

4. コーティング標準物質

基材と一体化したコーティングの熱拡散率を評価する模擬的な試験片として、2層のセラミックス標準試料を開発した^{7,8)}。開発した標準試料をTable 1に示す。第1層(基材) がジルコニア緻密体、第2層(コーティング)がジルコニ ア多孔体となっている。測定の健全性を検証するための標 準試料であるので、界面熱抵抗が最小限であり、各層の厚 さが十分な精度で定義できることを必要条件として開発し た結果、同じ材料の緻密体と多孔体の組み合わせを最良と した。主原料は、3 mol% イットリア安定化ジルコニアである。

基材は、(助ファインセラミックスセンターがセラミック スの共通焼結体として供給しているリファセラム ZR1 で ある。コーティングは、原料粉末に、多孔化のためのポリ エチレンビーズ、溶剤、分散剤、バインダー、可塑剤など を添加してスラリーを作製し、ドクターブレード法により シート状に成形し、1550℃で焼成した。各層を直径 10mm

Table 1 Developed two-layer reference samples ⁶.

		ジルコニア系標準試料		
++ 府	コーティング	ジルコニア多孔体		
竹貝	基材	ジルコニア緻密体		
庫 7,	コーティング	300 μ m		
序み	基材	1 mm		
コーティング	作製方法	ドクターブレード法		
	焼成温度	1550 °C		
基材		リファセラム ZR1		
高温加圧接合条件		1250°C, 12.5MPz		
熱伝導率	コーティング	1.4		
(W/m・K) 基材		3.2		

の円板に切り出し、接合する面を鏡面に整えて貼り合わせ、 1250℃で12.5MPaの加重を加え、30分間保持することにより接合した。

基材とコーティングの接合状態を確認するために、試験 片の微細組織を走査電子顕微鏡により観測した。標準試料 の界面部分の観測写真を Fig.3 に示す。写真上側がコーティ ング(ジルコニア多孔体)、下側が基材(ジルコニア緻密体) である。コーティングには、10 µm 以下の円形の気孔が均 ーに分散していることが分かる。界面には、亀裂や気孔な どは観測されず、良好な接合であることが確認できた。

標準試料の評価を行い、得られた物性値を Table 2 にま とめる。均質性の評価は、熱拡散率のばらつきとして評価 した。コーティング(ジルコニア多孔体)の 150×200 mm のシートから、縦4列、横4列の合計 16 個の直径 10 mm の試験片を取り出した。これらの熱拡散率を測定して、1 シート辺りの熱拡散率のばらつきは、±1%と非常に小さ いことを確認した。また、基材(ジルコニア緻密体)は、 50×80 mmの板材から縦4列、横7列の28 個の円板が作 製できる。同様に熱拡散率による評価を行い、この場合も ±1% のばらつきであった。

以上より、開発した標準試料は、標準物質として十分な 均質性を有しており、2層の接合も十分良好であることが 確認された。

5. 実験結果と考察

3節の多層モデルを適用した解析方法を用いて、4節の コーティング標準試料(ジルコニア緻密体とジルコニア多 孔体の2層試験片)を測定した。2層試料だけでなく、ジ ルコニア緻密体とジルコニア多孔体の単層試料も測定し、 測定結果の比較を行った。

熱拡散率の測定には、レーザフラッシュ装置(京都電子 工業製 LFA-502N)を用いた。測定は、室温~800℃の温 度範囲において、真空中で行った。試料には、Au蒸着お よびカーボンスプレー塗布による黒化処理を施した。レー



Fig. 3 SEM photo of the section ⁶⁾.

 Table 2 Thermophysical properties of the zirconia reference material⁶

物性值	基材 (緻密体)	コーティング (多孔体)	
密度 kg/m ³	6.06×10^{3}	3.63×10^{3}	
比熱容量 J/(kg・K)	465	465	
熱拡散率 10 ⁻⁶ (m ² /s)	1.08	0.767	
熱伝導率 W/(m・K)	3.04	1.29	



Fig. 4 The temperature history curves; observed at room temperature and calculated using simulation software.

ザフラッシュ法により観測された温度履歴曲線は、"CFP32 for Windows"⁹⁾を用いて解析した。パルス加熱強度を変え て測定を行い、得られた熱拡散率のパルス加熱強度依存性 のゼロ外挿から、熱拡散率を決定した¹⁰⁾。

多層モデルの適用性を検討するために、2層試料の室温 における測定データを、有限要素法のシミュレーションソ フトウエア COMSOL を用いて再現した温度履歴曲線と比 較した。Fig.4 にシミュレーションの様子を示す。実際に 測定して得られた温度履歴曲線は、このシミュレーション で再現した温度履歴曲線とよく一致した。よって、2層試 料の測定は、健全であることが確認できた。

Fig.5 に、ジルコニア緻密体およびジルコニア多孔体の単 層、2 層試料の室温~800℃までの測定結果を示す。2 層試



Fig. 5 Measured thermal diffusivity of the dense zirconia specimen, porous zirconia specimen and the two-layer zirconia specimen.

料の測定値は、試料全体の見かけの熱拡散率である。基材 に対してコーティングの体積占有率は1/4以下であるので、 2層試料の見かけの熱拡散率は、基材と比べて熱拡散率の 低下はわずかであり、顕著な差は現れていない。測定で得 た2層試料の見かけの熱拡散率から、コーティングの熱拡 散率の算出を試みた。まず、室温における測定データにつ いて検討する。Fig.6より、単層の測定値 α_2 =7.83×10⁷ [m²/ s]と比較すると、多層モデルを用いてそれぞれの方法で算 出された熱拡散率は、単層の測定結果よりも小さめになる 傾向が強く、ばらつきは-12%~+6%程度であることが 分かる。

レーザフラッシュ法の熱拡散率測定の不確かさは、均質 な固体材料を測定した場合に、室温において4%程度(試 料の黒化処理の影響を除く)と推測される。よって、10% を越える相違は、有意であると考えられる。値が単層の結 果よりも小さい傾向が見られる原因としては、多層モデル による解析における何らかの問題や、数値計算上の近似、 わずかに存在する界面熱抵抗、温度応答が遅い試料である ことによる熱損失の影響が考えられる。一方、大まかな議 論として、室温においては、この多層モデルによる手法を 用いて、基材と一体化した未知層の熱拡散率は、10%程度 の曖昧さを含むが、算出することができると言える。

次に、室温よりも高温についての測定結果について述べる。Fig.6 に示すように、*A*_{Excel}[s]で算出した結果は、400K 以上で単層の測定結果から大きく外れている。高温におけ る測定では、熱放射や熱損失が温度履歴曲線に大きな影響 を及ぼすことが知られているが、今回は、これらについて 補正を行っていないため、相違が生じたと考えられる。*A*_{tt2} [s] および *A*_{CFP}[s] で求めた熱拡散率は、単層の測定結果に



Fig. 6 Thermal diffusivity of the porous zirconia coating attached on the dense zirconia substrate calculated based on the multi-layer model.

比較的よく合っていると考えられる。特に、A_{CFP} [s] による 算出結果は、値が全体的に 10% 程度小さいいが、温度依存 性は単層と一致している。この 10% 程度の熱拡散率の減少 を界面熱抵抗によるものと仮定すると、コーティングの熱 拡散率は単層と同等の値であると推測することは可能であ る。このように、応答関数法に基づいた多層モデルによる 未知層の熱拡散率の算出手法は、室温だけでなく、高温に おいても有効であると言える。本研究では、室温~ 800 ℃ のデータを扱っているが、これはジルコニア系標準試料の 焼結性が変化しない温度範囲¹¹⁾に限ったためであり、この 解析手順は、原理的には、より高温においても利用するこ とができる。

応答関数法に基づく多層モデルでは、3節の通り、面積 熱拡散率から手軽に未知層の熱拡散率を算出することがで きる。(10)式から明らかであるように、算出式では基材の 熱拡散率および各層の厚さ、密度、比熱容量が既知である 必要がある。使用しているパラメタが多いので、それぞれ の小さな不確かさが積み重なって、最終的な算出値の不確 かさは大きくなる場合も十分に想定される。例えば、各層 の厚さを、数µmの不確かさで得ることは、実際の試料で は難しい場合も容易に予想され、それによるコーティング の不確かさは最大3%と予想される。今回得られた測定結 果の10%程度の相違は、実用的な利用としては、十分な不 確かさの範囲内であろうと解釈できる。

この標準試料の測定結果に対して、不確かさ評価を行った。熱拡散率の測定に関する不確かさは、(独)産業技術総合研究所の熱拡散率の依頼試験(校正)で用いている手順¹²⁾に基づいて行った。まず、各測定値に対して、熱拡散率測定の不確かさと測定時の設定試料温度の不確かさを求

Source	Туре	Uncertainty	Relative uncertainty
Specimen thickness	A, B	0.2 %	
Time interval during a measurement	В	0.00008 %]
Responsibility of infrared thermometer	В	0.00002 %	
Pulse width correction	В	0.1 %	
Non-uniform heating	В	1.0 %	1.2 %
Heat loss	В	0.1 %	
Base line drift during a measurement	В	0.1 %	
Curve fitting analysis	В	0.2 %	
Extrapolating analysis	А	0.6 %	
Black coating	А	1.5 %	1.5 %
Uncertainty of effective specimen temperature	А	1.7 K	1.2 %
Analysis based on the Multi-layer model (Deviation form the temperature dependence curve)	А	4.8 %	4.8 %
Combined standard uncertaint	5 %		

高	温	学	会	誌	第 34 巻	第5号	(2008年9月)

Table 3 An example of uncertainty budget table at about 300 K.

め、設定試料温度の不確かさを、温度依存性を利用して熱 拡散率の不確かさ成分に換算し、熱拡散率測定の不確かさ と合成した。また、測定に用いた試料は、黒化処理を行っ ているので、その不確かさを再現性から見積り、1.5%とし て計上した。Table 3 に、不確かさ表の例を示す。2 層試 料のコーティングに関しては、単層と同様に算出した見か けの熱拡散率の不確かさと、多層モデルによる解析の不確 かさを合成して求めた。多層モデルを適用して得られた熱 拡散率の値のばらつきは、面積熱拡散時間の算出のばらつ き、すなわち見かけの熱拡散率のばらつきを反映している と考えて、多層モデルによる解析の不確かさは、温度依存 性の関数と測定データの間の標準偏差とした。2層試料の 測定値から算出したコーティングの熱拡散率の標準不確か さ(1o)は、室温(約300K)で5%、約500Kで7%、約 600 K ~ 700 K で 8 %、800 K ~ 900 K で 9 %、1000 K 以上 で10%程度であった。この結果からも、10%程度の不確 かさは妥当であると言うことができる。

6. 結論

基材と一体化しているコーティングの熱拡散率測定に関 して、測定手法の検討と標準物質の開発を行った。

標準物質として、ジルコニア緻密体の基材と、ジルコニ ア多孔体のコーティングからなる2層標準試料を開発した。 リファセラム ZR1 である基材と、ドクターブレード法で作 製したコーティングを、高温加圧接合して作製した。作製 した試料は、コーティングの部分は直径10 µm 程度の気孔 が均一に分散した多孔体であり、2層の界面はきれいに接 合されていることを走査電子顕微鏡で確認した。また、室 温で熱拡散率を測定し、そのばらつきが作製したロットの 中で±1%以下と均質性が良いことが分かった。

レーザフラッシュ法に、応答関数法による多層モデルを 適用し、コーティングの熱拡散率を算出する手順を確立し た。開発したセラミックスの2層標準試料(基材と一体化 したコーティング)と各層それぞれの単層試料(基材、コー ティング)を、室温~800℃の温度範囲において実際に測 定し、その測定データから、この手順の適用性を検証した。 算出されたコーティングの熱拡散率は、コーティング単層 の熱拡散率と比較して約10%程度小さい値を示す傾向が 見られた。これは、測定や算出手順における何らかの誤差 や界面熱抵抗による影響と考えている。また、多層モデル の中では、カーブフィッティング法で求めた見かけの熱拡 散率から算出した面積熱拡散時間を用いる方法が、最も適 当であることが分かった。ジルコニア系標準試料について、 測定データから算出したコーティングの熱拡散率は、標準 不確かさ(1g)が10%以下と見積もられた。

このように、応答関数法による多層モデルを適用した レーザフラッシュ法を用いて、基材から剥がすことなく コーティングの熱拡散率を算出する手順を検討し、この手 順が有効であることを確認した。

謝 辞

本研究開発は、新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO)の委託による「ナノテクノロジープログラム ナ ノ計測基盤技術 熱物性の計測基盤の研究」の一環として 行われました。また、本研究の遂行に際し、産業技術総合 研究所の根田雅美氏、津川弘美氏、ファインセラミックス センターの向井一夫氏にご協力頂きました。産業技術総合 研究所の加藤英幸博士には多くのご助言を頂きました。皆 様に御礼申し上げます。

引用文献

- W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, G. L. Abbott: J. Appl. Phys. 32, 1679-1684 (1961).
- 2) K. Shinzato, T. Baba: J. Thermal Anal.Calrom. 64, 413-422 (2001).
- 3) 神本正行、高橋義夫、熱測定 13, 9-16 (1986).
- T. Baba, Proc. 10th International workshop on THERMal Investigations of ICs and System, (2004).

- 5) 馬場哲也、第17回日本熱物性シンポジウム論文集、379-382 (1996).
- 6) 阿子島めぐみ、根田雅美、小川光恵、馬場哲也、加藤英幸、 第 27 回日本熱物性シンポジウム論文集、331-333 (2006).
- 7) 小川光恵、向井和夫、水野峰男、馬場哲也、第25回日本熱物 性シンポジウム論文集、264-266 (2004).
- 小川光恵、小川秋水、阿子島めぐみ、水野峰男、馬場哲也、 第28回日本熱物性シンポジウム論文集、67-69 (2007).
- http://www.nmij.jp/~mprop-stats/thermophys/home-page/research/ cfp32/index.html
- 10) M. Akoshima and T. Baba: Int. J. Thermophys. 26, 151-163 (2005).
- 11) 小川光恵、熱物性 21, 8-13 (2007).
- 12) 阿子島めぐみ、馬場哲也、加藤英幸、第25回日本熱物性シン ポジウム論文集、261-263 (2004).