

異なる測定方法による断熱材の熱伝導率比較 Comparison of Thermal Conductivities of Thermal Insulations by Different Measurement Methods

大村高弘*
Takahiro Ohmura

断熱材の熱伝導率測定に関し、100℃以上の温度範囲において熱伝導率測定の標準物質となるものがほとんど無いという問題がある。例えば保護熱板法（GHP法）による測定では、測定装置あるいは測定者の違いにより、同質材料であるはずの断熱材の熱伝導率に大きな差が生じている。そこで、測定方法や装置の違いが、断熱材の熱伝導率測定にどれほどの影響を与えるものなのかを調査するとともに、標準物質が存在しない温度範囲で如何にして正確な測定をするかという課題に取り組むことにした。本研究では、同一あるいは同質・同形の試験体を使って、100～1300℃の温度範囲においてGHP法、周期加熱法および非定常熱線法による測定が可能な装置を開発し、それらの測定結果を比較することで、測定方法の違いによる熱伝導率の差について検討した。その結果、少なくとも同質・同形の試験体を対象にする限り、測定方法が異なっても±10%の範囲で一致することが分かった。したがって、標準物質が存在しない100℃以上の温度範囲では、ある測定方法で得られた熱伝導率を、異なる測定方法による結果と比較することが、正確な熱伝導率を得る有力な手段の一つになると考えられる。

We have some problems concerning the measurement of thermal conductivity of thermal insulation. One of them is that there are few reference materials for measuring thermal conductivity in the temperature range above 100 °C. Therefore, the thermal conductivity of thermal insulation has much deviation that depends on measurement apparatuses and observers in spite of measuring the same specimen. Then, I have researched how far the influence of the difference in measurement methods and apparatuses extends. Furthermore, I have investigated how to measure thermal conductivity in the temperature range above 100 °C. In this study, I investigated the measurement apparatuses for thermal conductivity of the identical and same kind of thermal insulations using Guarded Hot Plate (GHP), cyclic heat, and transient hot wire methods in the temperature range from 100 to 1300 °C. The thermal conductivities of three kinds of thermal insulations were measured, and compared with each other. As far as measuring the identical and same kind of specimen, it was clear that the results obtained by these three methods agreed with each other within ±10% deviations. Therefore, it is considered that the comparison of the thermal conductivities obtained by the different measurement methods will be practical for improvement of the accuracy measurement at the temperature range in the absence of reference materials.

[Keywords: cyclic heat, GHP, thermal conductivity, thermal insulation, transient hot wire]

1. 緒 言

近年、産業の発展とともに環境破壊が一段と進み、公害や酸性雨、地球温暖化、オゾン層破壊、異常気象が相次ぐようになってきた。なかでも、地球温暖化は世界的な問題にまで発展し、各国とも廃熱量の規制、二酸化炭素の排出量を抑える等の対策に積極的に取り組んでいる。特に、工業炉や焼却炉、工場、ビル、家屋からの廃熱は、省エネルギーの問題にも関連するため非常に注目されており、これらの廃熱を如何に低減させるかということが非常に重要な

課題となってきている。そのため、断熱材のさらなる性能向上が期待されているのだが、断熱材の開発に欠かせない役割を果たしている熱伝導率の測定精度向上も重要な課題の一つである。熱伝導率は断熱材の性能指標の一つであり、これをどこまで低減させることができるかが開発の主目的となる。そして、より正確に熱伝導率を測定できることが、開発段階での断熱性能把握や、温度、高密度等の様々なパラメータとの関係を把握するための必要条件になる。また、断熱材を使用する側にとっても、正確な熱伝導率を使って熱設計することが、過剰な断熱施工によるスペースや資源の無駄、コストアップ、あるいは不十分な断熱施工によるエネルギーの無駄を避けることにつながる。

熱伝導率の測定方法は様々であるが、大別すると定常法

* ニチアス株式会社 浜松研究所 研究部門、〒431-2103
浜松市新都田 1-8-1. RD Dept. Hamamatsu Research Center.
NICHIAS Corp., 1-8-1 Shinmiyakoda, Hamamatsu 431-2103.
FAX: 053-484-1039 E-mail: oomura-t@nichias.co.jp

と非定常法に分けられる。断熱材の熱伝導率測定には主に定常法が好んで用いられ、保護熱板法 (Guarded Hot Plate method, GHP 法)、熱流計法、平板比較法等が代表的である。特に GHP 法は絶対法ともよばれ、標準的な測定方法として位置付けられている。さらに、非定常熱線法は、通常の非定常法のように熱拡散率を測定するのではなく熱伝導率を直接測定できるため、比較的頻繁に使用されている。一方、筆者は非定常法の一つである周期加熱法を用いて、-170 ~ 1500°Cの温度範囲で熱伝導率を測定し、この測定方法が断熱材の熱伝導率測定に有効であることを示した[1, 2]。さらに、同方法を用いて、100 ~ 1500°Cにおける真空中での測定も実施している[2]。

一方、熱伝導率の正確な測定が非常に重要な技術であるにもかかわらず、広い温度範囲において測定の標準となる物質がほとんど無いという問題がある。世界的には米国の国立標準技術研究所 (National Institute of Standards and Technology, NIST) が提供するグラスウール、日本では近年、(財) 建材試験センターが提供し始めたグラスウールのみ

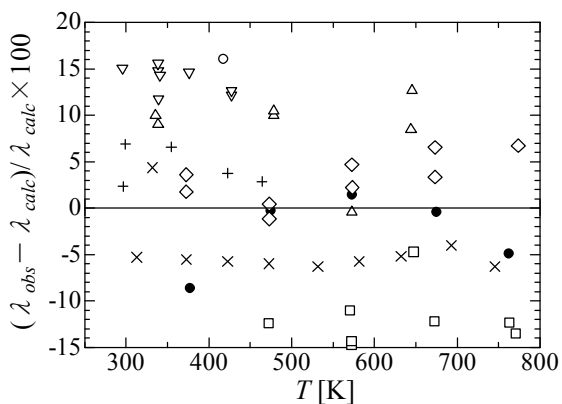


Fig. 1 Deviations of apparent thermal conductivity round-robin test results from value calculated with the corrected equation for fibrous alumina-silica [3].

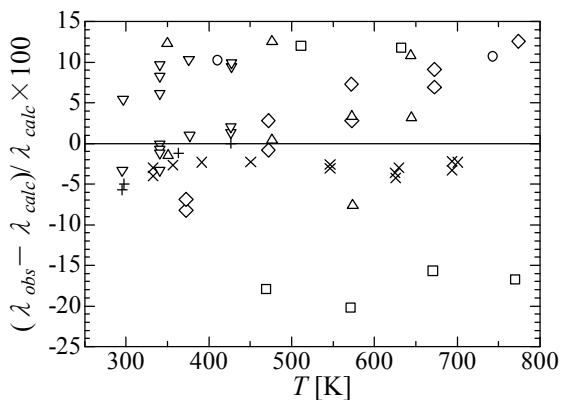


Fig. 2 Deviations of apparent thermal conductivity round-robin test results from value calculated with the corrected equation for calcium silicate [3].

が存在しているだけである。しかし、これらは室温付近のみで使用可能な試料であり、高温域では標準物質がないのが実情である。そのため、絶対法である GHP 法が標準的な測定方法とされてはいるが、この測定にも当然ながら測定装置あるいは測定者の違いにより差があり、それを校正あるいは補正することができない状況となっている。例えば NIST が世界的に行ったラウンドロビン試験では、非常に大きなばらつきのあることが報告されている[3]。Fig. 1 と 2 はその結果であり、それぞれアルミナ-シリカ系繊維質断熱材およびケイ酸カルシウム保温材を試験体として実施された絶対温度 T に対する熱伝導率 λ を示している。ただし、本文中では見かけの熱伝導率 (apparent thermal conductivity) と表記されているが、ここでは熱伝導率という表記で統一した。この試験では、同じ製造ロットの中からいくつかの試験体を選び出し、それらを世界各地の研究機関あるいは試験機関に配っているため、ロット内の試験体ばらつきは含まれたままである。また、試験機関ごとに試験体の形状やサイズが異なり、直径 200mm の円盤状から 610×610mm の板状のものまでさまざまである。図中の○や△等の記号は、各試験機関により測定された結果を表しており、測定温度 T に対して最小自乗法を使って得られた近似式を基準にしたばらつきを示している。ここで、 λ_{obs} は測定値、 λ_{calc} は近似式を使って得られた計算値である。Fig. 1 から、アルミナ-シリカ系繊維質断熱材では、試験機関どうしに最小自乗法で得られた値に対し±15%ほどのばらつきが生じているのが分かる。また、Fig. 2 から、ケイ酸カルシウム保温材では-20~+15%の範囲に至ることが分かる。したがって、住宅建築や工業炉、配管、保冷タンク等の熱設計で、これらの断熱材を使った場合の断熱効果を計算するようになると、どの値を使うかで20~30%もの差が生じてしまい、大きな問題になると予想される。さらには、断熱材の熱伝導率には非常に大きな幅がある、あるいは測定装置に依存するという印象を、断熱材の製造者や利用者に与えてしまう可能性が心配される。

このような大きなばらつきの原因として第一に考えられるのが、試験体の個体差である。しかしながら、同じ製造ロットの断熱材を使用した試験であることから、試験体の個体差だけでこれほどのばらつきが生じるとは考えにくい。したがって、各試験機関が持つ装置の測定誤差も当然のことながら主要原因の一つであると考えられる。同じ測定原理に基づいているにもかかわらず、装置間にこれだけ大きな差が生じるのは、GHP 法を実現するための複雑な構造によるところが大きいと考えられる。例えば、GHP 法では試験

体に一次元方向に熱を流すために保護熱板を用いている。詳細な原理や構造については後述するが、この保護熱板の主熱板に対する大きさや相対位置、保護熱板内の温度分布、主熱板との熱的絶縁性の度合い等が、主熱板で発生する熱量に大きく影響を及ぼし、そのため装置の違いによる差が生じてしまうと考えられる。一般には、温度センサー（熱電対）の数を増やして温度分布測定の精度を上げたり、主熱板と保護熱板との熱的絶縁性を高めるために両者の隙間の形状や熱絶縁材の種類を検討している。さらに、主熱板と保護熱板の相対位置を決めるとともに、両者を固定する役割を果たしている支柱についても、そのサイズを小さくする、あるいは数を減らす等の対策を施している。しかしながら、これらのような対策は構造をより複雑にする傾向を持つ。例えば、温度センサーを増やすことで、むしろ周囲との熱流路を新たに作ることで、結果的に熱損失や熱流入を増大させる可能性があり、また、支柱についても、存在することで熱橋を作っていることになる。そのため、主熱板に与える影響をどこまで小さくできるかは、設計者に依存するところが大きく、それが装置間の差の一つになっていると考えられる。

そこで、測定方法や装置の違いが、断熱材の熱伝導率測定にどれほどの影響を与えるものなのかを調査するとともに、標準物質が存在しない温度範囲でどのようにして正確な値を決定するかという課題に取り組むことにした。その最初の取り組みとして、本研究では、ラウンドロビン試験

で実施してきたような同一測定方法（GHP法）に基づく装置間の比較ではなく、いくつかの全く異なる測定方法を用いて、同一あるいは同質・同形の試験体の熱伝導率を測定比較し、測定方法に依存する差異を検討した。さらに、標準物質の無い温度範囲で、この測定結果の相互比較が正確な熱伝導率を決定するのに有効な方法であるかを検討した。具体的には、同一または同質・同形の試験体を使って異なる測定方法の実施が可能な装置を開発し、各測定方法による結果の比較を試みた。特に、定常法と非定常法による測定結果の比較は、試験体の加熱条件が全く違った場合における熱伝導率を比較することになるため、非常に重要であると考えられる。ここで、同一あるいは同質・同形の試験体を測定するのは、試験体を持つ個体差をできるだけ少なくしたいためである。異なる測定法としては、断熱材の熱伝導率測定として実績のある GHP 法、非定常熱線法、周期加熱法を選択し、これらの測定法が可能な装置を自作し、温度範囲 100~1300℃ において結果の相互比較を行った。

2. 測定原理

2.1 保護熱板法（GHP法）

この測定方法は、試験体が厚さ d の平板で、厚さ方向に一次元定常熱流を実現させ、その時の発熱量 Q 、熱流面積 S 、試験体の両表面間の温度差 $\Delta\theta$ から、熱伝導率 λ を次式より求める方法である[4]。

$$\lambda = \frac{Q \cdot d}{\Delta\theta \cdot S} \quad (1)$$

Fig.3 に示すように、発熱部分は主熱板（Metering section heater）と保護熱板（Guard heater）からなり、保護熱板は、熱的絶縁を目的とした溝（Gap）を挟んで、主熱板を取り囲む構造になっている。両熱板の温度が常に等しくなるように保護熱板の温度を制御することで、熱が試験体の側面方向に流れないようにしている。Fig.3 (a) に測定部の立体図を示す。また、試験体 1 枚方式と 2 枚方式があり、1 枚方式では試験体を 1 枚用意し、主熱板を中心にして試験体を設置する側の反対側に熱が流れないように、断熱材（Thermal insulation）と補償ヒータ（Auxiliary heater）を設けている（Fig.3 (b)）。補償ヒータの温度を主熱板と同温度になるよう制御することで、主熱板で発生した熱が、全て試験体を通過して冷却板（Cooling unit）に吸収される。一方、2 枚方式では同質同厚の試験体を 2 枚用意し、それらで主熱板を挟むように設置する。熱は主熱板で発生し、2 分されてそれぞれの試験体を通過して冷却板に吸収される

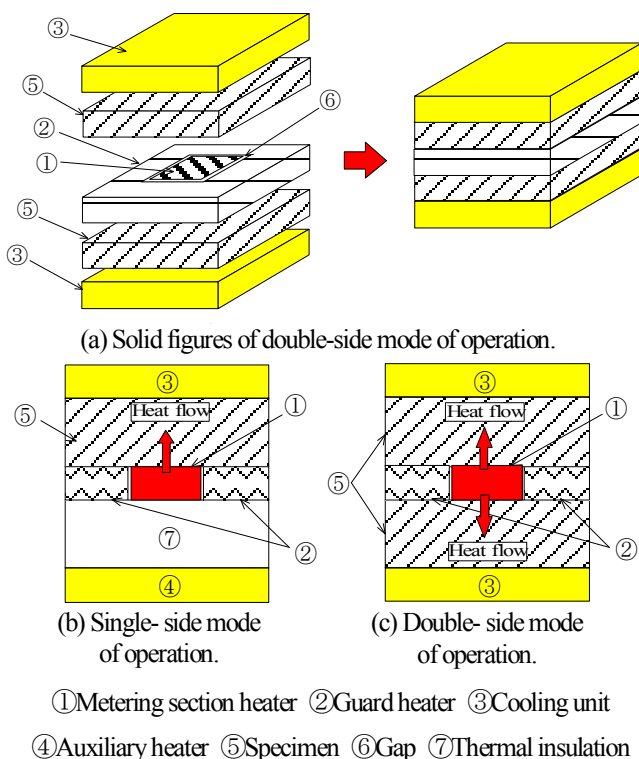


Fig. 3 Schematic diagrams of the Guarded Hot Plate method.

(Fig.3(c)). 本研究では、1枚方式を使用している。

2.2 周期加熱法

周期加熱法は、非定常法による熱拡散率測定の一手法である。ここでは、 x 軸方向への1次元熱流を仮定し、Fig.4に示すように試験体の厚さ方向に x 軸をとり、厚さを d とする。原点に試験体の放熱面、 $x=d$ に試験体加熱面があるとし、原点では温度が常に一定に保持され、 $x=d$ で温度は周期変化 $\sin(\omega t + \eta)$ していると仮定する。ここで、 ω は角振動数、 f は周期、 t は時間、 η は任意の位相である。この条件の下で一次元の熱伝導方程式を解くと、 $x=d$ と任意の点 $x=x_m$ における温度波の振幅比 $A(=\theta_1/\theta_0)$ と位相差 ϕ が次式のように求まる。

$$A = \left| \frac{\sinh kx_m(1+i)}{\sinh kd(1+i)} \right| = \left\{ \frac{\cosh 2kx_m - \cos 2kx_m}{\cosh 2kd - \cos 2kd} \right\}^{1/2} \quad (2)$$

$$\phi = \arg \left\{ \frac{\sinh kx_m(1+i)}{\sinh kd(1+i)} \right\} \quad (3)$$

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

ここで、 i は虚数単位であり、 ω は次式で定義される[5]。

$$\omega = 2\pi/f \quad (5)$$

以上から、加熱面の温度波と試験体内部の任意の位置 x_m における温度波を比較し、その振幅比あるいは位相差を測定することで、熱拡散率を求めることができる。すなわち、測定した振幅比 A を式(2)に代入することで k を求め、その値を式(4)に代入して熱拡散率 κ を得る。同様に、位相差 ϕ を式(3)に代入して得た k と式(4)から熱拡散率 κ が求まる。さらに熱伝導率 λ は、別途測定した密度 ρ と比熱 c を以下

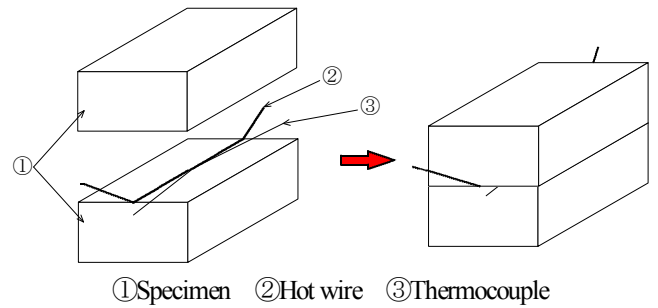


Fig. 5 Schematic diagrams of the transient hot wire method.

の式に代入することで求まる。

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

本研究では、位相差 ϕ を測定して熱拡散率を求めている。これは、振幅比の測定では、試験体の側面から熱損失が生じ、大きな誤差を含む可能性があるためである。

2.3 非定常熱線法

Fig.5に示すように、試験体内に線状の熱源を置き、そこから一定の熱量 Q を発生させ、それが径方向に均一に流れると仮定する。この時、熱を発生し始めてから t_1 および t_2 時間後の、熱源から一定距離にある点の温度変化量を $\Delta\theta$ とすると、熱伝導率 λ は次式から求まる。

$$\lambda = \frac{Q \ln(t_2/t_1)}{4\pi \Delta\theta} \quad (7)$$

3. 測定装置

開発した装置は、GHP法と周期加熱法による測定が可能なH1300型(測定温度範囲:100~1300°C)と、非定常熱線法と周期加熱法による測定が可能なH1000型(測定温度範囲:100~1000°C)の2機種である。H1000型では、同一試験体による測定比較が可能であるが、H1300型では同一ではなく、同質・同形の試験体の測定比較となる。以下に、測定装置の詳細について述べる。

3.1 GHP法による測定装置 (H1300型)

Fig.6にGHP法による熱伝導率測定装置の概略を示す。本装置では、GHP法と周期加熱法による100~1300°Cの温度範囲での測定をターゲットにしており、同時にではないが両測定方法が可能である。また、大気圧下のみならず真空下(約1.3 Pa)での測定も可能である。測定部の構成は、主熱板(Metering section heater)と保護熱板(Guard heater)からなる高温側ヒータ、その上下にある冷却板(Cooling unit)と補償ヒータ(Auxiliary heater)、試験体を取り巻く周辺の

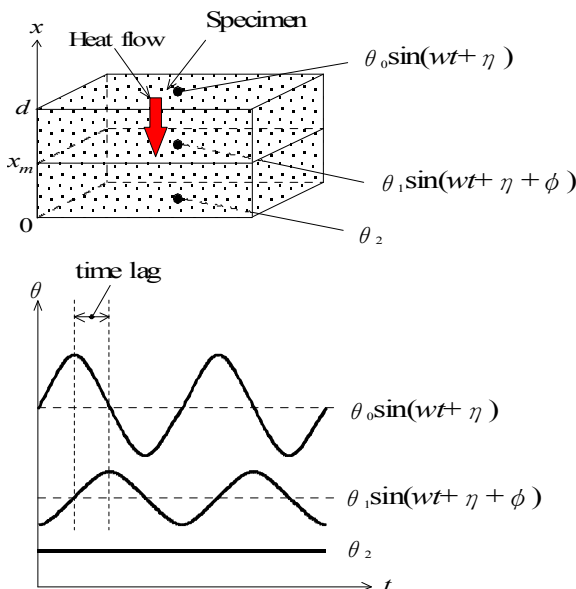
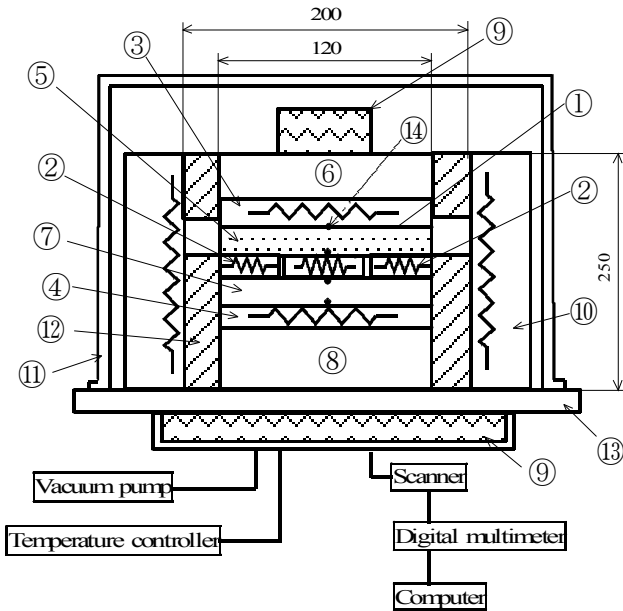


Fig. 4 Schematic diagrams of temperature waves in the cyclic heat method.

雰囲気温度を制御する円筒ヒータ (Cylindrical heater) からなっている。水冷タンク (Water tank) は、補償ヒータおよび冷却板に熱がこもるのを防ぐ働きをしている。試験体 (約 $120 \times 120 \text{ mm}$, 厚さ $15 \sim 20 \text{ mm}$) は高温側ヒータと上側の冷却板の間に設置され、熱流方向は上向きである。円筒ヒータはカンタル併製であるが、その他のヒータは自作したものである。Fig.7 に示すように、加熱面側のヒータは、 $50 \times 50 \text{ mm}$ の主熱板とそれを取り囲む $85 \times 32 \text{ mm}$ の4枚の保護熱板からなり、また、上下の冷却板および補償ヒータ

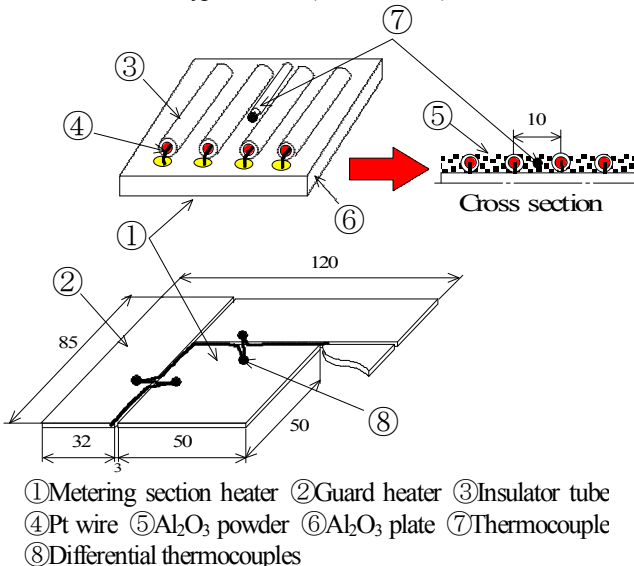
のサイズは $120 \times 120 \text{ mm}$ である。どれも全て緻密質なアルミナ製の厚さ約 3 mm の板であり、これらの板に直径 1 mm 程度の穴を開け、内径 1 mm の碍子管 (Insulator tube) に通した白金線 (Pt wire ; 直径 $\phi 0.6 \text{ mm}$) を巻き付けてヒータとした。ここで、保護熱板は、一本の白金線を使って4枚の板を直列につないだ構造になっている。白金線同士の間隔は、主熱板で約 10 mm 、保護熱板と冷却板および補償ヒータでは共に約 5 mm である。碍子管がむき出しに並ぶことによるヒータ表面の凹凸を無くすために、Fig.7 に示すように主熱板と保護熱板からなる加熱面側ではアルミナの粉末を敷き詰めた。同様の凹凸は冷却板表面 (下向き) にも生じるが、試験体との間に数 mm の厚さのアルミナ繊維質断熱材を挟んで凹凸を無くした。主熱板と保護熱板の間には約 3 mm のギャップがあり、そこには粉末質断熱材を詰めて熱的絶縁とした。緻密質なアルミナ板の熱伝導率は、温度にも依存するが、数十 $\text{W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 程度であるのに対し、粉末質断熱材のそれは大凡 $0.5 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ 以下であり、熱的絶縁の効果を十分持つと判断したためである。また、主熱板と保護熱板との間に熱橋ができるのを避けるため、両者を繋ぐような固定部材を使用せず、Fig. 6 に示す断熱材 (Thermal insulation 2) の上に両熱板を置くだけとした。この断熱材は、厚さ約 20 mm 、熱伝導率は約 $0.1 \sim 0.3 \text{ W}/(\text{m} \cdot \text{K})$ であり、補償ヒータとの間に設置されている。補償ヒータの温度は、主熱板の温度と 1000°C 以下の範囲では 0.1°C 以下で、 1000°C を超える範囲では 1°C 以下で一致するように制御した。さらに保護熱板の温度も同様に制御されるのだが、これに関しては、示差熱電対により両者の起電力差を測定し、温度にして 0.1°C 以下で両者が一致するように制御した。示差熱電対は、Fig.7 に示すように、主熱板と保護熱板の間のギャップに沿って各辺の中央一箇所ずつに、ギャップの縁から $3 \sim 5 \text{ mm}$ 程度熱板の内側に置かれている。各部分の温度測定には R 型熱電対 (直径 $\phi 0.32 \text{ mm}$) を用い、温度および起電力差の制御には (株) チノ製 (SU12N614ILNN) を使用した。また、各部に設置された熱電対はスキャナー (アドバンテスト R7210)、デジタルマルチメータ (YOKOGAWA 2501A) をへてコンピュータに接続されている。主熱板で発生する電力は、デジタルパワーメータ (YOKOGAWA 2533) により測定した電流値と主熱板の抵抗値とから算出し、その値を試験体に流れる熱量とした。

測定中は、主熱板と冷却板の温度差を約 20°C になるように制御し、また、試験体の主熱板側および冷却板側の表面温度測定には、ヒータ制御用熱電対とは別に取り付けられたそ



- ① Metering section heater ② Guard heater ③ Cooling unit
- ④ Auxiliary heater ⑤ Specimen ⑥ Thermal insulation 1
- ⑦ Thermal insulation 2 ⑧ Thermal insulation 3 ⑨ Water tank
- ⑩ Cylindrical heater ⑪ Bell glass ⑫ Thermal insulation
- ⑬ SUS plate ⑭ Thermocouple

Fig. 6 Schematic diagram of measuring apparatus
Type: H1300 (GHP method).



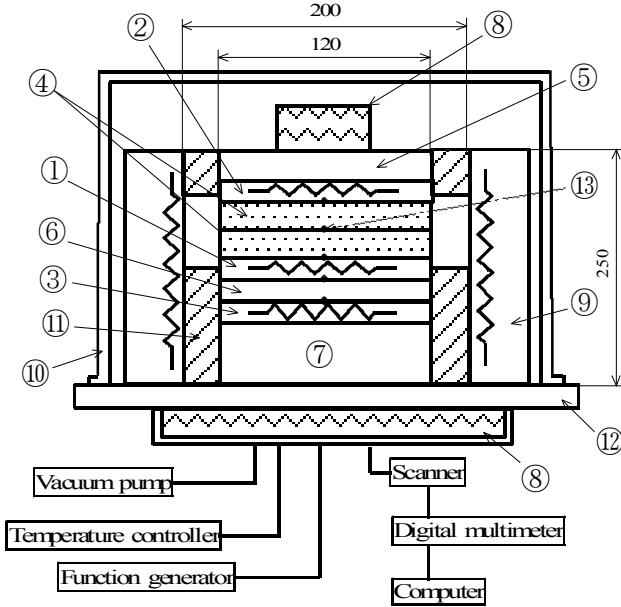
- ① Metering section heater ② Guard heater ③ Insulator tube
- ④ Pt wire ⑤ Al_2O_3 powder ⑥ Al_2O_3 plate ⑦ Thermocouple
- ⑧ Differential thermocouples

Fig. 7 Schematic diagrams of the metering section and guard heaters.

れぞれ一対ずつの熱電対を使用した。主熱板側および冷却板側の表面温度の平均を測定温度とし、測定開始後、約 6 時間を目安に温度が安定したことを確認し、その後の 1 時間の平均値を測定結果とした。測定間隔は約 5 分である。

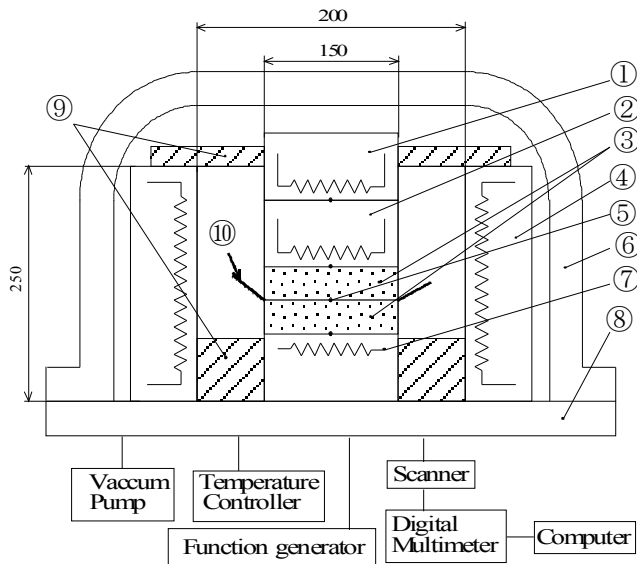
3.2 周期加熱法による測定装置 (H1300 型、H1000 型)

Fig.8 に、H1300 型を使って GHP 法を周期加熱法に切り



- ①Cyclic heater ②Cooling heater ③Auxiliary heater
- ④Specimen ⑤Thermal insulation 1 ⑥Thermal insulation 2
- ⑦Thermal insulation 3 ⑧Water tank ⑨Cylindrical heater
- ⑩Bell glass ⑪Thermal insulation ⑫SUS plate
- ⑬Thermocouple

Fig. 8 Schematic diagram of measuring apparatus
Type: H1300 (Cyclic heat method).



- ①Upper heater ②Cyclic heater ③Specimen ④Cylindrical heater
- ⑤Thermocouple ⑥Bell glass ⑦Lower heater
- ⑧SUS plate ⑨Thermal insulation ⑩Hot wire

Fig. 9 Schematic diagram of measuring apparatus;
Type H1000.

替えた場合の装置の概略を示す。この場合は、GHP 法による測定で使用した主熱板と保護熱板を電氣的に直列に繋ぎ周期加熱ヒータ (Cyclic heater) とし、Function Generator と連結して温度波 (周期 30~60 分、振幅約 5°C) を発生させる。温度波は上向きに伝播する。試験体内部の温度については、GHP 法で使用した試験体の上に、同質・同形の試験体を重ね、その間に設置した熱電対で測定した。そして、加熱面と内部の温度波の位相差より熱拡散率を測定し、平均比熱を使って熱伝導率を算出する。なお、平均比熱の測定には、自作した投下法による装置[6, 7]を使用した。

H1000 型では、その基本的な測定システムの構成は H1300 型とほとんど同じだが、熱流の伝播方向、ヒータの構成が異なっている。Fig.9 に H1000 型の模式図を示す。周期加熱ヒータ (Cyclic Heater) で発生した温度波は、その下側に設置した試験体を伝播する。したがって、H1000 型では温度波の伝播方向は下向きである。上側の補償ヒータ (Auxiliary heater) は、温度波が下側へ効率よく伝播するように、周期加熱ヒータの平均温度とほぼ一致するように温度制御される。下側の冷却板 (Lower heater) は、常に一定の温度に制御されている。これら 3 つのヒータは、どれも Watorow 社製であり、そのサイズは約 150×100mm、厚さは約 50mm である。試験体のサイズは約 150×100mm、厚さ 10~30mm の平板を 2 枚重ねて測定する。また、H1300 型のような水冷タンクは持たないが、土台となっている SUS plate には銅の水冷管が溶接されており、冷却板の温度を一定に保つための補助的役割を担っている。

どちらの装置で測定した場合でも、定常状態に達してから 4 時間以上かけて温度波を計測し、そのうちの任意の 3 つのピークを使って位相差を求め、それらの平均値より熱拡散率を算出した。ピーク値は、温度波形の先端付近を 2 次式で最小自乗近似して決定し、また、式(3)から k を求める際は、1 次補間法を用いている。周期加熱ヒータ側表面の温度波の平均温度と冷却板側の温度の差は約 10°C であり、両温度の平均を測定温度とした。また、平均比熱についても同様に、3 回の測定における平均値をその試験体の比熱とした。

3.3 非定常熱線法による測定装置 (H1000 型)

非定常熱線法による測定は、H1000 型のみで行った。その理由は、H1300 型では試験体のサイズが 120×120mm であるため、熱線が短くなりすぎ、測定誤差が大きくなってしまうためである。そこで、H1000 型を用いて長手方向 150mm に沿って熱線を設置して非定常熱線法を実施した。

ここでは、2枚用意した試験体の間に鉄クロム電熱線2種(FCH2)を熱線として設置した。熱線を設置したイメージを Fig.9 の⑩に示す。熱線の近傍および試験体の上、下面の温度を、直径 ϕ 0.32mmのR型熱電対で測定し、これら3点における温度差が 0.5°C 以内になり、その後1時間以上、 0.1°C 以上の変化がないことを確認してから測定を開始した。熱線にはステップ状に 0.5V の電圧を約7分間印加した。温度上昇は、試験体にもよるが 5°C 程度であり、電圧印加前の温度を測定温度とした。測定回数は各温度で3回であり、1回終了するごとに約2時間放置し、試験体の温度が均一になったことを確認してから、繰り返し測定を行った。

この装置では、周期加熱法との同一試験体による比較が行えるが、周期加熱法を実施する際は、熱線を取り外している。

4. 測定誤差の評価

4.1 GHP法による測定の誤差

GHP法における測定誤差の主要因としては、①試験体内部を伝播する熱が一次元方向に流れなくなる非平衡誤差および熱損失誤差、②主熱板の入力電力の測定誤差、③温度測定誤差、④試験体の厚さ測定誤差の4点が考えられる。

以下に内容を簡単に示す [8]。

① 非平衡誤差および熱損失誤差

JISA 1412-1の付属書(規定) 誤差評価に基づき、測定誤差が1%以下となるように主熱板と保護熱板の大きさ、および試験体の厚さを決定した [9]。この誤差評価は、ふく射に対して不透明な試験体の伝熱を対象としており、低嵩密度のようなふく射に対して半透明な材料には適さない場合もあるが、本研究で使用した試験体の嵩密度は全て $120\text{kg}/\text{m}^3$ 以上であるため適用可能である。試験体の周縁の形状や周囲温度による影響、主熱板と冷却板の温度差、主熱板と保護熱板の間にあるギャップに生じる温度差、試験体側面の温度を考慮した誤差評価の近似式が示されており、それを使って主熱板および保護熱板のサイズ、試験体の厚さを決めることができる。H1300型の場合、試験体の厚さを15mm程度にすることで非平衡および熱損失誤差を1%以下にした。

② 主熱板の入力電力の測定誤差

主熱板で発生する電力は、電流計で測定された電流値と主熱板に巻き付けた白金線の抵抗値から計算される。電流計の精度は $\pm 0.1\%$ 、 $1\mu\text{A}$ まで表示可能である。また、主熱板に巻き付けられた白金線は、装置内の電極タ

ーミナルからの連続線となっており、主熱板部分における抵抗値は、全抵抗の41%を占めている。ただし、室温において測定した結果である。ここでは、 $100\sim 1300^{\circ}\text{C}$ の温度範囲において大凡 200°C 間隔で全抵抗値を測定し、それらの値の41%を主熱板部分の抵抗値として、温度の関数として表した。そのため、室温における抵抗比(41%)を使うことによる測定誤差がある。そこで、室温を 27°C として、 1000°C における測定の場合を想定し、極端な温度条件を仮定して誤差を推定した。すなわち、仮にリード部分も主熱板と同じ 1000°C になった場合と、リード部分が 27°C のままの場合における抵抗値の差を検討した。 1000°C と 27°C の電気抵抗率の差が約 $30\mu\Omega\text{cm}$ [10]、リード部分の全長は約30cmであることから、両温度における抵抗値の差は約 $900\mu\Omega$ となる。したがって、実際のリード部分の温度は $27\sim 1000^{\circ}\text{C}$ の温度分布を持つので、抵抗値の測定誤差は高々 $900\mu\Omega$ 程度であると考えられる。 1000°C に主熱板を加熱した場合における、白金線のリード部分を含めた全抵抗の実測値は 0.498Ω であるから、室温における抵抗比を使うことによる誤差は、せいぜい 0.2% となり、よって、入力電力の測定誤差は1%未満と考えられる。

③ 温度測定誤差

温度測定装置が持つ誤差は 0.1°C 以下であり、主熱板と冷却板の温度差は約 20°C であるから、温度測定の誤差はせいぜい1%程度である。

④ 試験体の厚さ測定誤差

試験体の厚さ測定にはノギスを使い、厚さ約15mmのものを測定した。したがって、測定誤差は 0.5% 程度と見積もれるが、断熱材の場合、試験体の表面は多孔質となり平滑度が悪く、不均一な厚さになることが多い。それを考慮して約1%の誤差と見積もった。

以上より、①が約1%、②が約1%、③が約1%、④が約1%、総合誤差として約5%であると見積もった。

4.2 周期加熱法による測定の誤差

周期加熱法における測定誤差の主要因としては、①温度波の時間的変動による誤差、②温度波の周期に依存した誤差、③2枚の試験体の合わせ面における隙間の影響による誤差の3点が考えられる。ただし、これら3点は熱拡散率を測定する上で生じる誤差であり、熱伝導率を算出する際に使用する平均比熱については別途測定しているため、その測定誤差も考慮する必要がある。以下に内容を簡単に示す [8]。

① 温度波の時間的変動による誤差

周期加熱法では、温度波は常に一定の温度範囲（温度波の振幅の範囲）で周期的に変化することを測定条件としている。ところが、補償ヒータや円筒ヒータ、冷却板等の制御が十分に安定していないような状態で測定すると、試験体の周囲温度が時間とともに変化してしまう。その影響で、温度波が時間とともにドリフトしていきような場合に生じる誤差が、時間的変動による誤差である。ここでは、時間に比例して温度波がドリフトすると仮定し、三角関数で表された温度波に、時間に比例した項を重ね合わせて、温度波のピークのずれを計算し誤差を見積もった。例えば、時間に比例して上昇していくような場合、周期1時間で、ドリフトする量が1時間あたり1°C以下であれば、この誤差は1%以下となる。したがって、ここでは1時間あたりのドリフト量が1°C以下になった状態で測定した。

② 温度波の周期に依存した誤差

これは、試験体の熱容量や熱伝導率に依存して生じる誤差である。例えば、嵩密度が70kg/m³未満のロックウールのような熱容量の小さいものや、金属のような熱伝導率が非常に高い試験体を測定する場合はそれに該当する。このような試験体に対し、大凡30分以上の長い周期で加熱すると、試験体全体がほぼ均一温度で変化するため、試験体内に温度波が伝播するという測定条件が満たされなくなる。しかしながら、対象とした試験体は、嵩密度100kg/m³以上、熱伝導率0.4W/(m・K)以下であるため、誤差を約3%と見積もった。

③ 2枚の試験体の合わせ面における隙間の影響

これは、熱伝導率が高く、剛直な試験体、例えばコンクリートや緻密質レンガ、金属等を測定する場合に生じる誤差であり、合わせ面の隙間が空気層の役割をして、熱伝導率を低くすることがある。大凡であるが、隙間の平均厚さが0.2mm程度で、空隙率が0.7以下の試験体の場合であれば、このような誤差が生じる傾向がある。今回使用した試験体については、空隙率が0.8以上、平均隙間が0.2mm以下であり、したがって、ほとんど問題にならないと考えられる。

④ 平均比熱

平均比熱については、NISTの標準物質 α -Al₂O₃を使った検定により測定誤差を10%以下であると見積もった。以上の検討により、周期加熱法による測定誤差は、①が約1%、②が約3%、③は1%以下、④は10%以下であり、総合誤差として約10~13%であると見積もった。

4.3 非定常熱線法による測定の誤差

非定常熱線法における測定誤差の主要因としては、①試験体の長さおよび厚さによる誤差、②試験体と熱線との接触熱抵抗による誤差が考えられる。以下に内容を簡単に示す[8]。

① 試験体の長さおよび厚さによる誤差

熱線から生じた熱は、径方向に拡散すると仮定しているが、試験体端部ではこの仮定が成り立たなくなる。林ら[11, 12]は各種試料を測定し、試験体の必要最小限の寸法を求めている。それによれば、3%の誤差内で熱伝導率を求めるのに必要な試験体の厚さ d [m]、および長さ l [m]は、次式で表される。

$$d = 10 \times \sqrt{\lambda \times 0.86 \times t / 3600} / 100 \quad (8)$$

$$l = 2 \times \left\{ 234t / 3600 \times (\lambda \times 0.86)^{0.6} \right\}^{1/(2.2-2rx1000)} / 100 \quad (9)$$

ここで、 λ は熱伝導率[W/(m・K)]であり、 t は加熱時間[s]、 r は熱線の半径[m]である。これを今回の測定に当てはめると、最も厳しい条件（熱伝導率が最も大きい条件）として、 $\lambda=0.4$ W/(m・K)の場合を想定すると、 $t=600$ s、 $r=0.16 \times 10^{-3}$ mであるから、式(8)、(9)より得られる結果は、 $d=2.4 \times 10^{-2}$ m、 $l=0.1$ mとなる。測定した試験体のサイズは、厚さが25mm以上、長さは150mmであり、3%以下の誤差の条件を十分に満たしている。

② 試験体と熱線との接触熱抵抗による誤差

竹越ら[13]は、試験体と熱線との間に生じる接触熱抵抗について検討し、熱拡散率 κ [m²/s]と加熱時間 t [s]、熱線の半径 r [m]を使って得られる無次元数 $r^2/(2\kappa t)$ が、1より十分小さい場合に、接触熱抵抗を無視できることを示した。これを今回の測定に当てはめると、最も厳しい条件（最大嵩密度、低熱伝導率）として、 $\lambda=0.2$ W/(m・K)、 $\rho=458$ kg/m³、 $c=1100$ J/(kg・K)を想定すると、 $t=420$ s、 $r=0.16 \times 10^{-3}$ mであるから、 $r^2/(2\kappa t)=7.7 \times 10^{-5}$ となる。よって、接触熱抵抗による誤差は、ほとんど無視できると考えられる。

以上の検討により、①が約3%、②が1%以下、総合誤差は約5%と見積もった。

5. 測定結果

5.1 非定常熱線法と周期加熱法による測定比較

Fig.10 ~12 に、H1000型を使って測定した結果を示す。これらは全て、同一試験体に対して非定常熱線法と周期加熱法を適用した結果であり、各温度において、両測定方法における平均値をそれぞれプロットした。

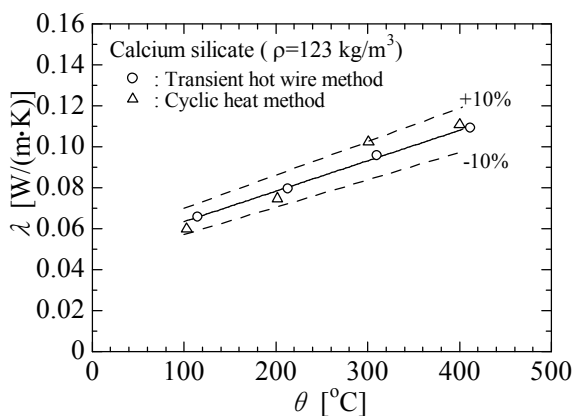


Fig. 10 Comparison of the results by transient hot wire with cyclic heat methods for calcium silicate (123 kg/m^3).

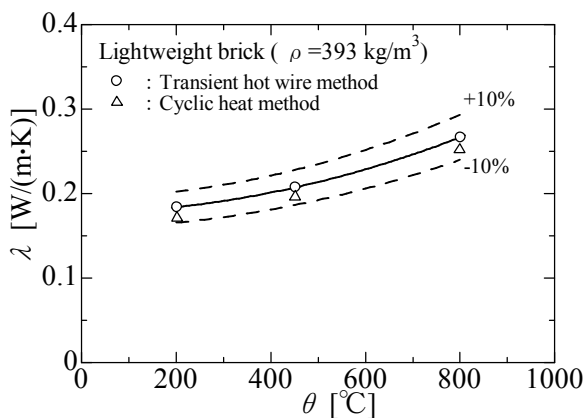


Fig. 11 Comparison of the results by transient hot wire with cyclic heat methods for lightweight brick (393 kg/m^3).

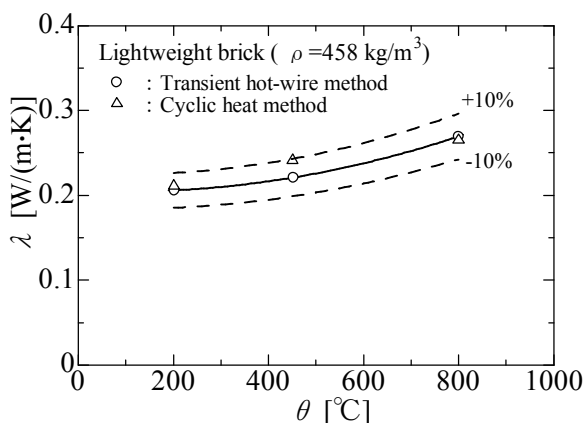


Fig. 12 Comparison of the results by transient hot wire with cyclic heat methods for lightweight brick (458 kg/m^3).

Fig.10 に、ケイ酸カルシウム断熱材(123 kg/m^3)の $100 \sim 400^\circ\text{C}$ における熱伝導率 λ を示す。厚さ 30 mm の試験体を2枚重ねて測定した。ここで、記号 \circ 、 \triangle は、それぞれ、非定常熱線法、周期加熱法による測定結果である。実線は、非定常熱線法による結果に対して1次式で最小自乗近似した結果であり、破線はその近似結果に対する $\pm 10\%$ の範囲を示している。周期加熱法および非定常熱線法における各測定結果の標準偏差は、平均値に対して共に4%以下であった。両者は、約 300°C でほぼ $\pm 10\%$ 、その他の温度では

数%以内で一致していることが分かる。

Fig.11, 12 に、それぞれ、嵩密度が 393 kg/m^3 と 458 kg/m^3 の場合における軽量レンガの $200 \sim 800^\circ\text{C}$ における熱伝導率 λ を示す。両試験体とも、厚さ 25 mm の試験体を2枚重ねて測定した。ここで、記号や曲線等の意味はFig.10と同じであるが、近似曲線は2次式である。周期加熱法および非定常熱線法における各測定結果の標準偏差は、平均値に対して共に5%以下であった。嵩密度が 393 kg/m^3 の軽量レンガでは、 $200 \sim 800^\circ\text{C}$ の温度範囲において数%以内で一致し、 458 kg/m^3 のものについては、約 450°C で10%程度、その他の温度では数%以内で一致していることが分かる。

5.2 GHP法と周期加熱法との測定比較

Fig.13 に、H1300型を使って得た、大気圧下および真空下におけるGHP法と周期加熱法による測定結果の比較を示す。ここで、真空下における測定を実施したのは、通常の大気圧下とは大きく異なる環境条件での比較をするためである。試験体として使用したアルミナ系繊維質断熱材の嵩密度は 205 kg/m^3 である。GHP法による測定では厚さ約 15 mm の試験体1枚を使用し、周期加熱法の際には、さらに同質・同形の試験体をもう一枚重ねて測定した。追加した試験体は、GHP法で使用した物とできるだけ差の無いように注意し、ほぼ同じ厚さの 15 mm 、嵩密度の違いが数%以下の物を選んだ。記号 \square 、 \triangle は、大気圧下におけるGHP法および周期加熱法による測定結果を示し、記号 \blacksquare 、 \blacktriangle は、真空下におけるGHP法および周期加熱法による測定結果をそれぞれ示している。また、実線はGHP法による結果に対して2次式で最小自乗近似した結果であり、破線はその近似結果に対する $\pm 10\%$ の範囲を示している。大気圧下における測定では、GHP法における結果の標準偏差は平均値に対して約5%であり、周期加熱法におけるそれは7%以

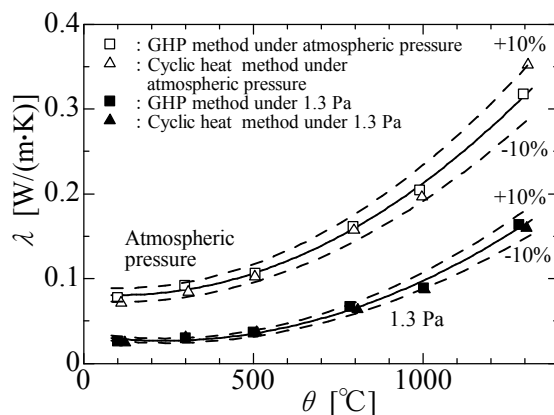


Fig. 13 Comparison of the results by GHP with cyclic heat methods for alumina fibrous insulation (205 kg/m^3).

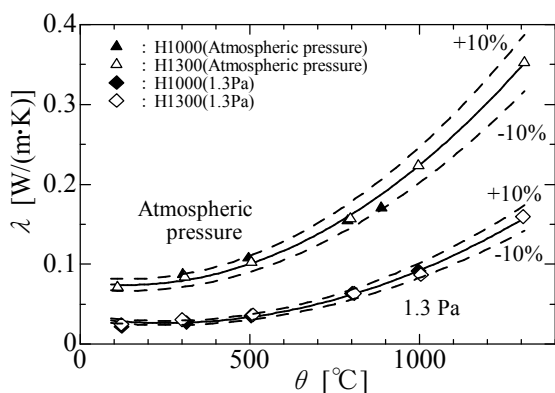


Fig. 14 Comparison between two apparatus based on cyclic heat methods for fibrous insulation (205 kg/m³).

下であった。一方、真空下における測定では、GHP法では3%以下であり、周期加熱法におけるそれは1000°C以下で10%以下、1300°Cで約23%であった。大気圧下における両者の測定結果は、約1300°Cでほぼ10%、その他の温度では数~5%程度で一致し、真空下においては全温度域(100~1300°C)で、±10%以内で一致していた。

5.3 異なる装置による測定比較

異なる装置間(H1000型とH1300型)による差異を、同種の試験体を使って周期加熱法による測定で検討した。ただし、試験体のサイズがそれぞれの装置で違うため、一枚の板状試料からそれぞれのサイズの試験体を切り出し、同種の試験体とした。Fig.14にその結果を示す。記号▲および△は、大気圧下におけるH1000型およびH1300型の結果であり、記号◆および◇は、真空下におけるH1000型およびH1300型の結果である。また、実線はH1300型の結果に対して2次式で最小自乗近似した結果であり、破線はその近似結果に対する±10%の範囲を示している。大気圧下および真空下とも、両者の結果はほぼ±10%以内で一致しており、装置間にほとんど差がないことが分かる。

6. 考察

6.1 周期加熱法と他の測定方法との比較

測定結果の平均と標準偏差の比は、真空下における周期加熱法の場合が最も大きい値となった。特に、1000°Cを超えると標準偏差が大きくなってしまったが、これは、ヒータを構成しているセラミック板や碍子管の電氣的絶縁性が低下することによる電氣的ノイズが原因と考えられる。ノイズ幅としてはそれほど大きくはないが、波形のピークの読み取り誤差を大きくしてしまい、標準偏差

が大きくなってしまったと考えられる。

また、周期加熱法は、熱拡散率と比熱を使って熱伝導率を算出する方法であるため、多くの空隙が存在する断熱材に適用した場合、定常法であるGHP法や熱伝導率を直接求める非定常熱線法による結果との間に大きな差が生じる可能性を予想したが、3者の結果にほとんど差は無かった。これは、断熱材のような複合材料であっても、測定方法の違いによる影響をほとんど受けないことを示していると考えられる。ただし、今回対象とした試験体は、3種類であり、嵩密度も比較的重いものであったため、今後、様々な種類の断熱材や測定方法で検討する必要がある。

6.2 異なる測定方法の結果比較の有効性

同一あるいは同質・同形の試験体を使って、GHP法と周期加熱法、および非定常熱線法と周期加熱法による測定結果を比較したところ、それぞれはほぼ±10%以内で一致した。各測定方法における誤差は、GHP法が約5%、周期加熱法が10~13%、非定常熱線法が約5%であることから、少なくとも同質・同形の試験体を対象にする限り、測定法が異なっても測定誤差の範囲内で一致すると考えられる。したがって、ある測定法により得られた結果を、全く別の方法で測定した結果と比較することで、その結果を再確認することが可能である。これは、一つの測定方法に基づく繰り返し測定による確認とは全く別の確認方法であり、よって、標準物質が存在しないような温度範囲において、異なる測定方法による結果の比較が、正確な熱伝導率を得る有力な方法の一つとして追加できると考えられる。

ただし、断熱材は熱の伝播方向について必ずしも等方性ではなく、例えばロックウールやグラスウール、アルミナ系繊維質断熱材等では、試験体の厚さ方向と面内方向で熱伝導率に大きな差がある。これは繊維の配向の影響を受けているためであり、したがって、断熱材の種類によっては測定できない場合もあり、異なる測定方法として何を選ぶかには注意を要する。今回の測定では、非定常熱線法が内部に配向性を持つ試験体の測定ができないため[1]、等方性の材料についてのみ検討した。

6.3 同一測定方法に基づく異なる装置の結果比較

周期加熱法に基づく二台の装置についての比較ではあるが、両装置の結果は測定誤差の範囲内、すなわち±10%以内で一致することが分かった。しかも、Fig.14では近似曲線に対して±10%の範囲を破線で示したが、各温度における実測値の箇々の比較では、見積った測定誤差が10~13%

であるにもかかわらず、ほぼ±5%で一致した。これは、周期加熱法の最大の誤差原因となっている比熱を、両装置で得られた熱拡散率に対して同じ値を使って熱伝導率を求めたことによるものと考えられる。したがって、この場合は比熱の測定誤差は無視され、熱拡散率測定の誤差のみとなったために約±5%で一致したと考えられる。

さらに、このばらつきは、NIST のラウンドロビン試験のばらつきよりもかなり低い値であることがわかる。この原因として、GHP 法と周期加熱法の装置の構造上の違いが考えられる。GHP 法では、試験体を伝播する熱流と温度差をできるだけ正確に測定する必要があり、そのため装置の構造が複雑になり設計者に依存する傾向がある。一方、周期加熱法では、温度波の位相差のみを測定するため、熱流の測定は必要とされず、また、温度の測定精度が温度波に与える影響が小さいため、設計者にほとんど依存しない。それ故、試験体のサイズや加熱ヒータの構造、熱流方向等が違って、両装置の測定結果に大きな差が生じなかったと考えられる。

7. 結 言

断熱材を対象として、同一あるいは同質・同形の試験体を使って、GHP 法、周期加熱法および非定常熱線法による測定が可能な装置を開発し、温度範囲 100~1300°Cにおいて測定結果の比較を行った。その結果、少なくとも同質・同形の試験体を対象にする限り、測定方法が異なっても測定誤差の範囲内で一致することが分かった。したがって、標準物質が存在しない 100°C以上の温度範囲では、ある測定方法で得られた熱伝導率を、それとは異なる測定方法により得られた結果と比較することが、正確な熱伝導率を得る有力な手段の一つになると考えられる。

NOMENCLATURE

A	: amplitude rate at the point x_m
c	: mean specific heat, kJ/(kg·K)
d	: thickness of specimen, m
f	: heating period, s
i	: imaginary unit
k	: attenuation coefficient defined in Eq. (4)
l	: length of specimen or hot wire, m
Q	: amount of heat, W
r	: radius of hot wire, m
S	: heating surface area, m ²
T	: absolute temperature, K
t	: time, s

x	: space coordinate in Fig. 4
x_m	: measured point of temperature in Fig. 4, m
$\Delta \theta$: differential temperature, K
η	: arbitrary phase of temperature wave, rad
θ	: temperature, °C
κ	: thermal diffusivity, m ² /s
λ	: thermal conductivity, W/(m·K)
ρ	: bulk density, kg/m ³
ϕ	: phase of temperature wave at the point x_m , rad

Subscripts

<i>obs</i>	: measured value
<i>calc</i>	: calculated value by using reference equation from NIST
0	: temperature at the heating surface of specimen
1	: temperature in the middle of specimen in Fig. 4 and the start of measurement for transient hot wire method
2	: temperature at the bottom surface of specimen in Fig. 4 and the finish of measurement for transient hot wire method

参 考 文 献

- [1] T. Ohmura, M. Tsuboi, T. Tomimura; Int. J. Thermophys., **23-3** (2002), 843-853.
- [2] T. Ohmura, M. Tsuboi, M. Onodera, T. Tomimura; 24th ICAS Congress, (2004), Paper No. 249.
- [3] J. G. Hust, D. R. Smith; National Bureau of Standards Department of Commerce, (1988), NBSR 88-3087.
- [4] 「熱物性値測定法」(日本機械学会編) 225 頁 (養賢堂、1991)
- [5] H. S. Carslaw, J. C. Jaeger; "Conduction of Heat in Solids" p. 105 (OXFORD, 1959).
- [6] 大村高弘、坪井幹憲、富村寿夫; 熱物性、17 (1), (2003), 9-17.
- [7] 坪井幹憲、大村高弘、小野寺正剛; ニチアス技術時報、**1**(2004)、9-14.
- [8] 大村 高弘; 「広い温度範囲における各種熱伝導率測定法の比較と断熱材の熱伝導率および比熱測定に関する研究」(学位論文、2003).
- [9] 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)」(1999)
- [10] 「熱物性値測定法」(日本機械学会編) 24 頁 (養賢堂、1991)
- [11] 林 国郎, 上井 勲; 耐火物, **24** (6) (1972), 2-9.
- [12] 林 国郎, 福井雅男, 上井 勲; 窯業協会誌, **82** (4) (1974), 202-208.
- [13] 竹越栄俊, 井村定久, 平沢良男, 竹中利一; 日本機械学会論文集 (B 編), **47**(419) (1981), 1307-1316.

[Received Jan. 9, 2007 Accepted May 7, 2007]