

光音響法による透明皮膜の熱拡散率の測定

小林 武*・高 島 信 也*

Photoacoustic Method for Measuring the Thermal Diffusivity of Optically Transparent Films

Takeshi KOBAYASHI and Nobuya TAKABATAKE

Abstract

A simple photoacoustic method was developed with which we could obtain thermal diffusivity of optically transparent films. This method was applied to an Acrylic resin films with two different backing materials. The backing materials used were Phenol resin and Iron. It has been confirmed that the method gives an accurate value of the thermal diffusivity.

1. はじめに

光音響 (PA) 効果は、物質の熱特性に鋭敏な効果のため、これを利用して物質の熱拡散率の測定に用いられている¹⁻⁴⁾。この PA 法は、強度変調した光ビームを試料に照射し試料表面の交流成分の振幅および位相を通して行なわれる。交流成分はマイクロフォンを用いて PA 信号として測定でき、その測定結果を用いて試料の熱拡散率を求めることができる。

試料が薄い場合には適当な物質で試料を裏打ち (バックング) して保持する必要がある。この場合、試料とバックング材の間の熱特性の相違は PA 信号に影響を及ぼし、測定に何らかの制限が加わる。したがってバックング材による制限の少ない測定法の開発が必要である。そこで筆者らはバックングされた透明試料表面とバックング材だけの表面の間の PA 信号比を光ビームの変調角周波数を変化させて測定し、その変調角周波数特性からバックング材の PA 信号比に対する影響を調べ、透明試料の熱拡散率が測定できる方法を開発した。

この方法の有効性を確認するために透明アクリル樹脂を試料として熱拡散率の決定を試みた。その結果、バックング材に熱特性が大きく異なる物質を用いて

も、得られた熱拡散率は測定に起因する誤差の範囲で一致し、そして文献値⁵⁾とも一致した。その測定法と測定結果について報告する。

2. 測定原理

Fig. 1 に示すように 0 層, 1 層および 2 層からなる 3 層構造を考える。ここで 0 層は空気, 1 層は光学的に透明な試料および 2 層は光学的に不透明であって熱的に十分厚いバックング材である。これに強度変調した光ビームを照射すると、光ビームはバックング材の表面で吸収されて交流的に振動する熱源 $Q_0 e^{i\omega t}$ (ω : 変調

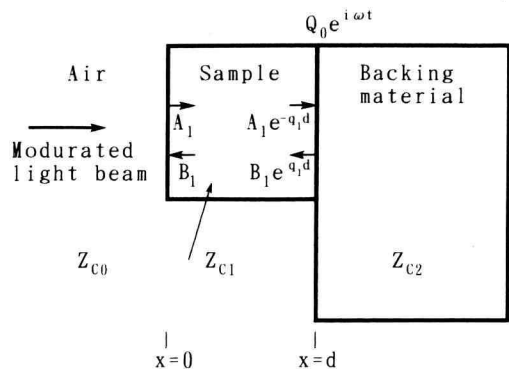


Fig. 1. Schematic drawing of principle of the measurement.

角周波数)となり ω に同期した温度波が伝搬する。今 n 層内の x における温度を $T_n(x)$ とすると $T_n(x)$ は次式の熱拡散方程式を満足し、これをOpsal⁶⁾の方法を用いて解析する。

$$\frac{\partial^2 T_n(x)}{\partial x^2} - \frac{1}{\alpha_n} \frac{\partial T_n(x)}{\partial t} = 0 \quad (1)$$

ここで α_n は n 層の熱拡散率である。 $T_n(x)$ は熱源と同じ周期で交流的に変動するので、

$$T_n(x) = T_n e^{i\omega t} \quad (2)$$

として表わすことができる。式(1)と式(2)から

$$\frac{d^2 T_n(x)}{dx^2} - q_n^2 T_n(x) = 0 \quad (3)$$

となる。 q_n は n 層の温度波の伝搬定数で次式で与えられる。

$$q_n = \frac{(1+i)}{\sqrt{\frac{2\alpha_n}{\omega}}} = \frac{(1+i)}{\mu_n} \quad (4)$$

ここで、 μ_n は熱拡散長である。式(3)の解は、進行波と反射波の合成として得られ次式で与えられる。

$$T_n(x) = A_n e^{-q_n x} + B_n e^{q_n x} \quad (5)$$

式(5)で A_n と B_n を境界条件を与えて決定すれば任意の点の温度 $T_n(x)$ が決定できる。ここで境界条件は次の2点である。1) すべての点で温度は連続、2) $x=d$ 以外の点で熱流は連続である。今ある点の熱流 $Q_n(x)$ と温度 $T_n(x)$ の比 $Z(x)$ を熱インピーダンスとして定義する。この熱インピーダンス $Z(x)$ は次式となる。

$$\begin{aligned} Z(x) &= \frac{Q_n(x)}{T_n(x)} = \frac{-x_n \frac{dT_n(x)}{dx}}{T_n} \\ &= \frac{Z_{cn}(A_n e^{-q_n x} - B_n e^{q_n x})}{A_n e^{-q_n x} + B_n e^{q_n x}} \end{aligned} \quad (6)$$

ここで x_n は n 層の熱伝導率であり、 $Z_{cn} = x_n q_n$ を n 層の熱特性インピーダンスとして定義する。

1層が透明の場合、照射された光ビームは $x=d$ の位置で吸収されて熱源 Q_0 となり、熱流として1層と2層へ分流する。この熱流をそれぞれ Q_1 、 Q_2 とする。 Q_1 と Q_2 に対する熱インピーダンス Z_l と Z_r は

$$Z_l = \frac{Z_{c1}(-A_1 e^{-q_1 d} + B_1 e^{q_1 d})}{A_1 e^{-q_1 d} + B_1 e^{q_1 d}} \quad (7)$$

$$Z_r = Z_{c2} \quad (8)$$

として表わされる。試料の表面 $x=0$ において温度と熱流は連続である。したがってこの点における温度波の反射率 Γ は

$$\Gamma = \frac{A_1}{B_1} = \frac{Z_{c1} - Z_{c0}}{Z_{c1} + Z_{c0}} \quad (9)$$

となる。式(7)、(9)から

$$Z_l = Z_{c1} \frac{Z_{c0} + Z_{c1} \tanh q_1 d}{Z_{c1} + Z_{c0} \tanh q_1 d} \quad (10)$$

となる。式(8)、(10)から $x=d$ における温度 T_d は、

$$T_d = \frac{Q_0}{Z_l + Z_r} \quad (11)$$

となる。以上のことより試料表面($x=d$)における温度 T_s は

$$\begin{aligned} T_s &= \frac{Q_0 Z_{c1} e^{-q_1 d} (1 + \tanh q_1 d)}{Z_{2c}(Z_{c1} + Z_{c0} \tanh q_1 d) + Z_{c1}(Z_{c0} + Z_{c1} \tanh q_1 d)} \end{aligned} \quad (12)$$

となる。また1層がない0層と2層の空気-パッキングだけの場合、層が熱的に厚くそれぞれの層で温度波の反射波はないので表面の温度 T_B は

$$T_B = \frac{Q_0}{Z_{c0} + Z_{c2}} \quad (13)$$

となる。ここで式(12)、(13)より表面温度の比 M は

$$\begin{aligned} M &= \frac{T_s}{T_B} = \frac{2e^{-q_1 d}}{(1+B) + (1-B)e^{-2q_1 d}} \\ &\left(B = \frac{Z_{c0}/Z_{c1} + Z_{c1}/Z_{c2}}{1 + Z_{c0}/Z_{c2}} \right) \end{aligned} \quad (14)$$

である。

M の位相角 Φ は

$$\Phi = - \left[\frac{d}{\mu_1} + \tan^{-1} \left\{ \frac{-(1-B)e^{-\frac{2d}{\mu_1}} \sin\left(\frac{2d}{\mu_1}\right)}{1+B + (1-B)e^{-\frac{2d}{\mu_1}} \cos\left(\frac{2d}{\mu_1}\right)} \right\} \right] \quad (15)$$

で与えられる。Fig. 2に B の各値に対する $\Phi - d/\mu_1$ の特性図を示す。式(15)の Φ を d/μ_1 の関数として展開し、 $\sqrt{\omega}$ の関数で表わすと次式となる。

$$\Phi = k_1 \sqrt{\omega} + k_2 (\sqrt{\omega})^2 + k_3 (\sqrt{\omega})^3 + \dots \quad (16)$$

ここで係数 k_1 、 k_2 および k_3 は

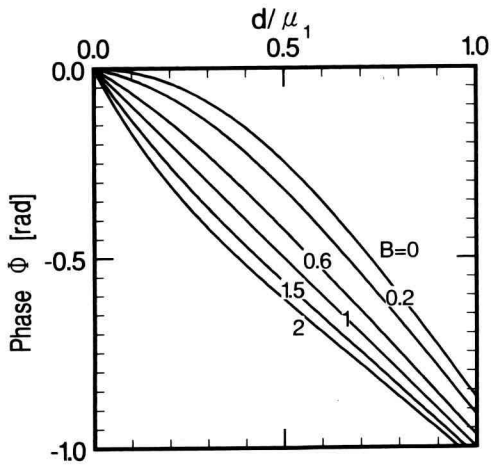


Fig. 2. Phase angle versus normalized length $x = d/\mu_1$

$$k_1 = -B \frac{d}{\sqrt{2\alpha_1}}, \quad k_2 = -(1-B^2) \left(\frac{d}{\sqrt{2\alpha_1}} \right)^2,$$

$$k_3 = \frac{2B(B^2-1)}{3} \left(\frac{d}{\sqrt{2\alpha_1}} \right)^3$$

で与えられる。式(16)を $(\sqrt{\omega})^3$ まで近似 Φ_a としたときの近似誤差 ϵ は

$$\epsilon = \frac{(\Phi_a - \Phi)}{|\Phi|} \quad (17)$$

で与えられる。Fig. 3にBの各値に対する $\epsilon - d/\mu_1$ 特

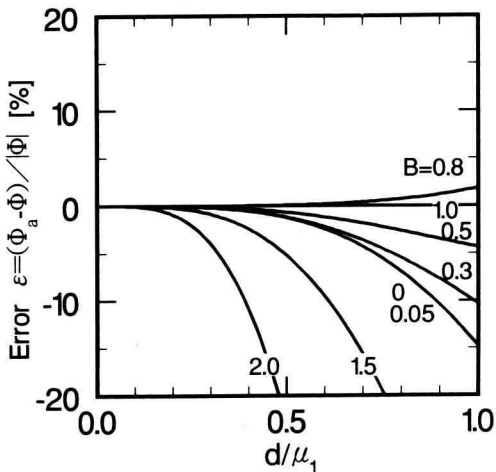


Fig. 3. The approximated error ϵ of phase versus normalized length $x = d/\mu_1$.

性を示す。

PA信号は表面温度に比例するので、マイクロフォンを用いて表面温度 T_s 、 T_B それぞれに対応するPA信号を検出する。次に両信号の位相差から M の位相角 Φ を求めることができる。 Φ を変調角周波数の各値において測定し、測定されたデータを $\sqrt{\omega}$ の関数として最小自乗法を用いて式(16)にフィッティングし、各係数を決定すると試料の熱拡散率 α_1 は、係数 k_1 と k_2 を用い次式から求めることができる。

$$\alpha_1 = \frac{d^2}{2(k_1^2 - k_2)} \quad (18)$$

3. 測定

3.1 試料

透明な試料としてアクリル樹脂(光吸収係数 $2 \times 10^{-4} \mu\text{m}^{-1}$)、バックング材にはフェノール樹脂板と鉄を用いた。これらのバックング材(直径12 mm、厚さ10 mm)の表面をよく研磨し、その表面の半分を試料を噴霧法により所要の厚さに塗布して室温で乾燥後、乾燥器(50°C)を用いて十分乾燥させた。これをFig. 4に示すような直径12 mm、深さ20 mmのPAセル内に置き透明な石英ガラスで封じた。PAセル内壁に光ビームの散乱光が当たって擬似PA信号が発生するので、散乱光が吸収されず反射するように内壁にアルミ

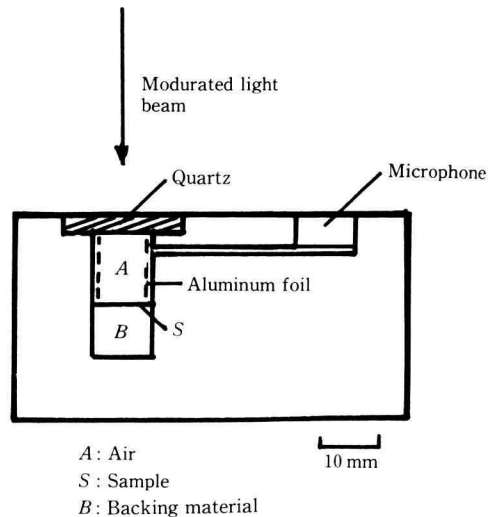


Fig. 4. Structure of PA cell.

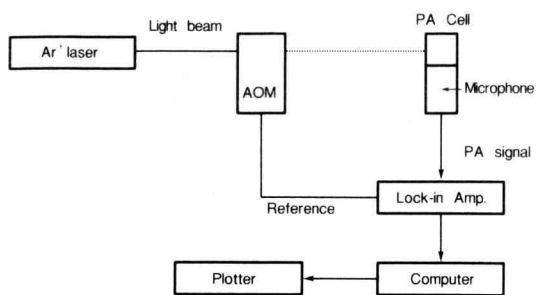


Fig. 5. Block diagram of experimental set up.

ニウムを蒸着して擬似 PA 信号の発生を防止した。

3.2 測定装置

測定に用いた光音響法による熱拡散率の測定系を Fig. 5 のブロック図に示す。光源には Ar⁺ レーザ (波長 λ=488 nm, 最大出力 Pmax=500 mw) を用いた。音響光学変調器 (AOM) により光ビームを正弦波状に変調した。光ビームは AOM からの第一次回折光ビームだけを選択し, PA セル内の試料に照射する。表面温度の交流成分はエレクトロレット型マイクロフォン (感度 -65 dB/0.1 Pa) で PA 信号として検出し, ロックインアンプへ入力する。そしてロックインアンプからの出力をコンピュータに取り込み, 必要なデータ処理を行った後プロッタに記録した。

4. 測定結果および検討

Fig. 6 に透明なアクリル樹脂を試料として, 厚さが 7~33 μm の範囲で測定した M の位相角 Φ の変調角周波数特性を示す。Fig. 3 に示されるように近似誤差 ε は試料の厚さ d とその熱拡散長の比 d/μ₁ で決まる。そこで測定は, 近似誤差が約 3% 以内となる (d/μ₁ <

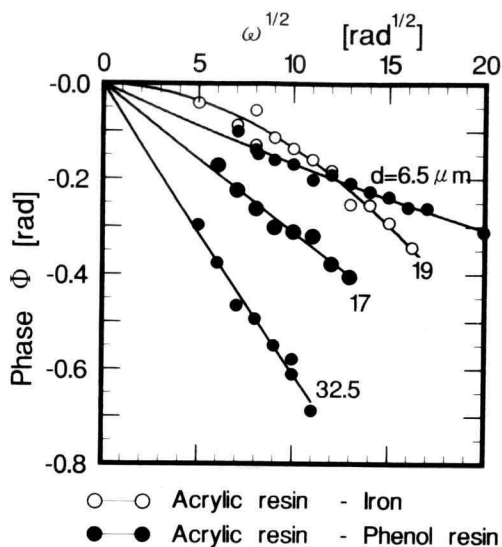


Fig. 6. Experimental plots of phase Φ versus ω^{1/2}.

0.6) 角周波数の範囲で行った。Fig. 4 において ● と ○ は, それぞれバック材がフェノール樹脂, 鉄における測定を示す。これらの実験結果から求められる試料の熱拡散率 α₁ と試料等の熱特性インピーダンスから決定される B の値を測定結果から求め, その結果を Table 1 に示す。試料の厚さを変化させて測定された熱拡散率の平均値は α₁=0.14 mm²/s となった。平均値の α₁ に対して各測定値のばらつきは最大 15% であった。測定された熱拡散率の値は, 文献⁵⁾ による値 0.12 mm²/s とほぼ一致した。デジタルマイクロメータ (感度 1 μm) を用いて試料の厚さを測定した結果, デジタルの固有誤差 1 μm に加えて, くり返し測定のばらつきが 2 μm あった。これらのばらつきから最も薄い試料 (7 μm) で 43%, 最も厚い試料 (33 μm) で 9% の誤差が見込まれる。これらのことより測定された熱拡

Table 1. Experimental results on the thermal diffusivity α₁ and B of Acrylic resin with two different backing material.

Backing material	Thickness of Sample [μm]	K ₁ × 10 ⁻²	K ₂ × 10 ⁻²	Thermal diffusivity α ₁ [mm ² /s]	B
Phenol resin	7	-1.83	1.47	0.13	1.34
	17	-3.21	0.842	0.15	1.04
	33	-6.47	0.852	0.13	1.10
Iron	19	-0.08	17.7	0.14	0.02

Average 0.13 ± 0.01

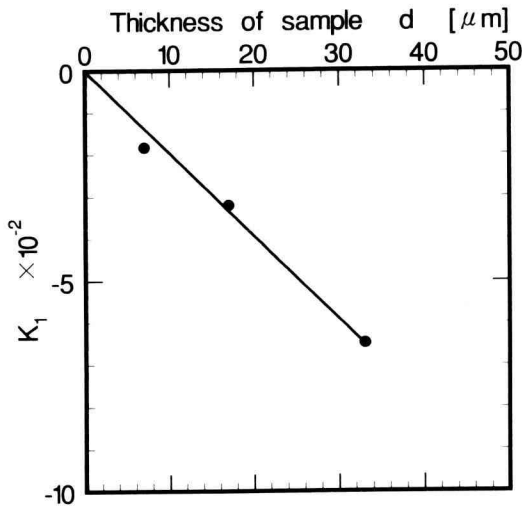


Fig. 7. Coefficient k_1 versus Thickness of sample.

散率は文献値⁵⁾と厚さ測定誤差の範囲で一致しているものと考えられる。またアクリル樹脂-フェノール樹脂、アクリル樹脂-鉄の構造に対して、それぞれの熱物性値から予測される B の値は、0.9と0.04となった。これらの B の値も測定値と予測値はほぼ等しい値となった。

Φ を $\sqrt{\omega}$ の関数として展開した式 (16) において $\sqrt{\omega}$ の一次係数 k_1 は試料の厚さに比例することが示されている。最小自乗法を用いて実験値をフィッティングして求めた k_1 の試料の厚さに対する依存性を

Fig. 7に示す。Fig. 7に示すように実験的にも k_1 は厚さに比例することが確認できた。

5. 結 び

光学的に透明な試料の熱拡散率を光音響法を用いて測定する方法を述べた。この測定法では、バック材の PA 信号に対する影響は測定上求まるので、その熱特性は未知で良い。そして試料表面とバック材の表面温度それぞれに対する PA 信号の位相差を測定するので、試料以外の測定系が持つ位相のオフセットは熱拡散率の測定に影響を与えない。またそれぞれに対する熱源の大きさも位相差には影響を与えないので測定が簡便である。

参 考 文 献

- 1) P. Charpentier, F. Lepoutre and L. Bartrand : J. Appl. Phys. **53** 608 (1982)
- 2) R.T. Swimm : Appl. Phys. Lett. **42** 955 (1983)
- 3) M. Akabori : Y. Nagasaka and A. Nagashima : Int. J. Thermophys. **13** 499 (1992)
- 4) 小林, 高島 : 神奈川工科大学紀要 **16** 235 (1992)
- 5) 日本熱物性学会 : 熱物性ハンドブック (養賢堂)
- 6) J. Opsal and A. Rosencwaig : J. Appl. Phys. **53** 4240 (1982)