【講座】熱物性データベース / Thermophysical properties database

科学技術におけるデータベースの役割(15)

Role of Databases for Science and Technology (15)

馬場 哲也*　馬場 貴弘**　森 孝雄**

Tetsuya Baba, Takahiro Baba, Takao Mori

1. 固体内熱拡散の偏微分方程式による記述

1.1　熱拡散方程式と境界値問題

窯炉・原子炉、プラント、電子機器、車載パワーエレクトロニクスなどでは製造にあたっては熱設計、稼働に際しては温度制御、熱制御が不可欠の課題であり、温度測定などの実測と伝熱計算・伝熱シミュレーションがキーテクノロジーとなる。

固体内の伝熱計算・伝熱シミュレーションは構成する材料の物性値を既知とし、境界条件を指定して熱拡散方程式を与え、一次元熱拡散など幾何学的に単純な場合には解析的に、一般的な立体形状の場合には有限要素法などの数値計算により解かれる。本連載の第２回にも述べたように、これらの解析計算、数値計算の入力情報である熱物性値の提供が熱物性データベースやハンドブックの第１義的な役割である [1]。安定で緻密な材料により構成されるシステム・モジュールの温度応答算出法は既に確立された技術であり。複雑な対象に対する計算のコストや計算に要する時間、結果の信頼性が課題となる。

1.2　熱拡散方程式のグリーン関数

熱物性値が既知で安定な（加熱による変質や相転移を起こさない）均質材料の境界面をパルス加熱した場合の内部の温度分布はグリーン関数により表される [2-4]。

拡散方程式は放物型の偏微分方程式であり時間軸の過去と未来が非対称であり、加熱が原因・結果が温度応答として因果律を満たす。即ち時間に関して非対称となる、

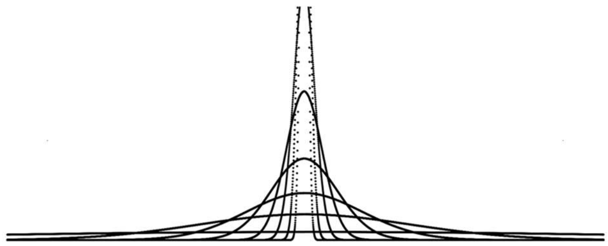

図１　１次元無限空間における熱拡散方程式の基本解（グリーン関数）である正規分布関数（ガウス関数）

均質な無限固体の一点を単位強度のデルタ関数により加熱した後の距離x離れた位置の温度応答は下記の正規分布関数（ガウス関数）により表される　[2-4]。

$$G(x,t|0,0)=\frac{1}{b\left(\sqrt{\pi t}\right)^{dim}}\exp\left(-\frac{x^2}{4\alpha t}\right) \qquad (1)$$

ここでαは対象固体の熱拡散率、bは対象固体の熱浸透率、*dim* は対象の次元である。

１次元の線分や２次元の長方形、３次元の直方体など幾何学的対称性が良く断熱境界の場合のグリーン関数は、無限空間のグリーン関数である正規分布関数の鏡像の無限級数により表される [4]。

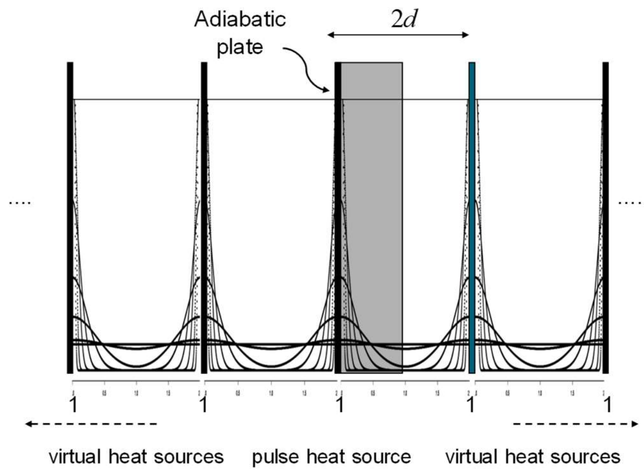

図２　１次元無限空間における熱拡散方程式の断熱境界におけるグリーン関数：無限空間のグリーン関数から鏡像法により計算される。

*　国立研究開発法人 産業技術総合研究所 計量標準総合センター 名誉リサーチャー, 〒305-8563 茨城県つくば市梅園 1-1-1 中央第３, Emeritus researcher, Metrology Institute of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, AIST Tsukuba Central 3, 1-1-1, Umezono, Tsukuba, Ibaraki 305-8563, JAPAN, E-mail: t2baba@ck9.so-net.ne.jp

**　国立研究開発法人　物質・材料研究機構（NIMS）ナノアーキテクトニクス材料研究センター（MANA）〒305-0044 茨城県つくば市並木 1-1, Research Center for Materials Nanoarchitectonics, National Institute for Materials Science, 1-1, Namiki, Tsukuba, Ibaraki 305-0044, JAPAN

両側が断熱された厚さdの均質平板のグリーン関数は、

$$\mathrm{G}_{a}\,(x,t|0,0)=\frac{1}{b\sqrt{\pi t}}\sum_{n=-\infty}^{\infty}\exp\left(-\frac{(x-2nd)^2}{4\alpha t}\right) \tag{2}$$

1.3　グリーン関数とインパルス応答関数

グリーン関数は対象内部の全座標に対して定義される。一方、加熱と測温は対象表面すなわち境界面でなされる。加熱がパルス状であれば温度応答はインパルス応答であるので、インパルス応答関数とよばれる。

インパルス応答関数はグリーン関数の加熱座標と測温座標に境界面の値を代入することにより求められる [4]。

一次元均質平板の場合には, パルス加熱された面の温度応答は(2)式に $x=0$ を代入して、

$$T(0,t)=\frac{1}{b\sqrt{\pi t}}\left(1+2\sum_{n=1}^{\infty}\exp\left(-n^2\frac{\tau_0}{t}\right)\right) \tag{3}$$

ここで $\tau_0=d^2/\alpha$である。

パルス加熱された裏面の温度応答は $t'=0$，$x=d$ を代入して、

$$T(d,t)=\frac{2}{b\sqrt{\pi t}}\sum_{n=0}^{\infty}\exp\left(-(2n+1)^2\frac{\tau_0}{4t}\right) \tag{4}$$

1.3　インパルス応答関数とパルス加熱熱物性測定法

フラッシュ法やパルス光加熱サーモリフレクタンス法はインパルス応答関数を観測する測定法である [4, 5]。図３に示されるようにインパルス応答関数は対象内の全座標に対する関数値ではなく境界での値だけを与えているので、対象内全体の加熱座標と測温座標の関数であるグリーン関数の全体が定まるかどうかが課題となるが、対象内において熱拡散方程式が成立する場合にはグリーン関数は式(2)の解析式で与えられるので、観測されたインパルス応答を(3)式や(4)でフィッティングして熱拡散率を決定すればグリーン関数は一意的に定まる。これがパルス加熱法による熱拡散率測定の基本原理である。

すなわちパルス加熱法はインパルス応答関数を観測し、グリーン関数とそのパラメータである熱拡散率を求める方法であると位置づけられる。

2. 複数の均質部分から構成される対象全体の応答

2.1　積層材の伝熱特性

積層材の厚さ方向の一次元熱拡散は各層の四端子行列のカスケード接続により一般的に解くことができる [2, 4]。ここで応答関数行列の各成分のラプラス変換が伝達関数行列の各成分であり、層の表面と裏面に流入する熱流密度ベクトルのラプラス変換と層の表面と裏面の温度応答のラプラス変換ベクトルは伝達関数行列により関係づけられる。層の表面の温度と流入熱流密度をラプラス変換したベクトルを層の裏面の温度と流出熱流密度をラプラス変換したベクトルに関係づけるように表示を変換することにより四端子行列が求められる [4]。

これは最も単純な一次元熱拡散の場合であるが、複数の材料が３次元的に接合し、３次元の熱拡散が生じる場合に構成する均質材料のグリーン関数の積分方程式 [6] により、対象全体の温度分布、熱流密度分布を表現することができる。

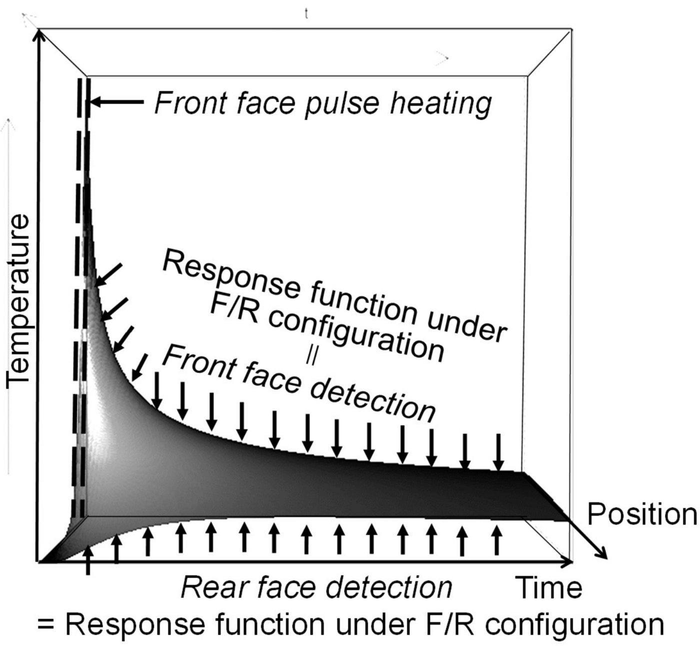

図３　断熱平板のグリーン関数とインパルス応答関数

2.2　応答関数のコンボリューション積分と温度応答

均質平板のグリーン関数が既知であるとき表面および裏面を加熱位置または測温位置としたときのインパルス応答関数も既知であるから、表面を$q_f(t)$、裏面を$q_r(t)$の熱流密度で加熱すると均質平板内部の温度分布は下記の積分により表される。この場合は右辺の積分計算により左辺の温度応答が陽に求まるので積分方程式ではない。

$$\boldsymbol{T}(t)=\boldsymbol{T}_0+\int_0^t \mathrm{R}(t-t')\boldsymbol{q}(t')\,dt' \tag{5}$$

ここで、 $\boldsymbol{T}_0=\begin{bmatrix}T_0\\T_0\end{bmatrix}$, $\boldsymbol{T}(t)=\begin{bmatrix}T_f(t)\\T_r(t)\end{bmatrix}$, $\boldsymbol{q}(t)=\begin{bmatrix}q_f(t)\\q_r(t)\end{bmatrix}$

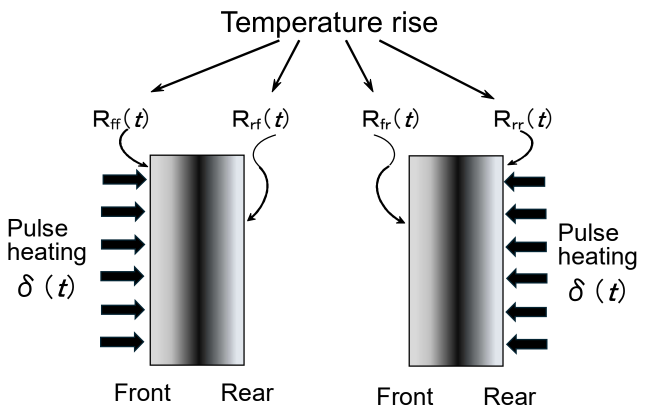

図４　パルス加熱法による平板（沿面方向に均質、厚さ方向の熱物性値変化は可）のインパルス応答関数

成分毎に表示すると、

$$T_f(t)=T_0+\int_0^t\{R_{ff}(t-t')q_f(t')+R_{fr}(t-t')q_r(t')\}dt' \qquad (6)$$

$$T_r(t)=T_0+\int_0^t\{R_{rf}(t-t')q_f(t')+R_{rr}(t-t')q_r(t')\}dt' \qquad (7)$$

$T_0=0$ としても一般性は失われず、ラプラス変換すると両式右辺のコンボリューション積分は代数積となるので[7]、温度ベクトルは伝達関数行列と熱流密度ベクトルとの積となる。

$$\begin{bmatrix}\tilde{T}_f(\xi)\\ \tilde{T}_r(\xi)\end{bmatrix}=\begin{bmatrix}\tilde{R}_{ff}(\xi) & \tilde{R}_{fr}(\xi)\\ \tilde{R}_{rf}(\xi) & \tilde{R}_{rr}(\xi)\end{bmatrix}\cdot\begin{bmatrix}\tilde{q}_f(\xi)\\ \tilde{q}_r(\xi)\end{bmatrix} \qquad (8)$$

四端子行列表示に変換すると、

$$\begin{bmatrix}-\tilde{q}_r(\xi)\\ \tilde{T}_r(\xi)\end{bmatrix}=\tilde{S}(\xi)\cdot\begin{bmatrix}\tilde{q}_f(\xi)\\ \tilde{T}_f(\xi)\end{bmatrix} \qquad (9)$$

均質平板の四端子行列は、

$$\tilde{S}(\xi)=\begin{bmatrix}\cosh\sqrt{\xi\tau_0} & -b\sqrt{\xi}\cdot\sinh\sqrt{\xi\tau_0}\\ -\frac{1}{b\sqrt{\xi}}\cdot\sinh\sqrt{\xi\tau_0} & \cosh\sqrt{\xi\tau_0}\end{bmatrix} \qquad (10)$$

ここで、平板厚さ方向の熱拡散時間：　$\tau_0=d^2/\alpha$

平板の熱浸透率：$b=\sqrt{\lambda c\rho}$

λ：熱伝導率、c：比熱容量、ρ：密度

2.3　グリーン関数と積分方程式

フラッシュ法により薄板状試料の沿面方向の熱拡散率を求める場合、試料の中央に関して対称な２か所のスリットを通してパルス光加熱し、試料の中央を上部から赤外検出器により測温する方法が考案されている［8］。なお薄板の厚さ方向は短時間で均一温度になると仮定し温度勾配はないと仮定した。

この場合、測定系は試料の中心に関して対称なので、図５に示されるように解析範囲を試料の半分に限定し、両端が断熱境界であると考えて考察すればよい。試料の長さを$2l$とすると、時刻t'に位置x'に単位強さのパルス加熱を行った後の時刻 t における位置 x の位置における温度応答は次式で表される。ここで$0\le x,x'\le l$である。

$$G_S(x,t|x',t') = \frac{1}{C\sqrt{\pi(t-t')}}\sum_{n=-\infty}^{\infty}\exp\left(-\frac{(x-x'-2nd)^2}{4\alpha(t-t')}\right) \qquad (11)$$

ここでCは試料の単位長さ・単位幅あたりの熱容量である。

このような薄板状の試料では表面および裏面からの放熱が無視できない。熱伝達のニュートンの法則を仮定し、試料の局所温度$T(x,t)$と外界の温度T_0の差に比例した熱流密度$q(x,t)$が試料から外界に流れるとすると、

$$q(x,t)=K\cdot\left(T(x,t)-T_0\right) \qquad (12)$$

ここでKは熱伝達係数である。この場合も$T_0=0$ としても一般性は失われない。

試料の表裏面からの放熱は実際の試料温度と外界の温度差に比例する。上記の試料の両面からの熱伝達を試料

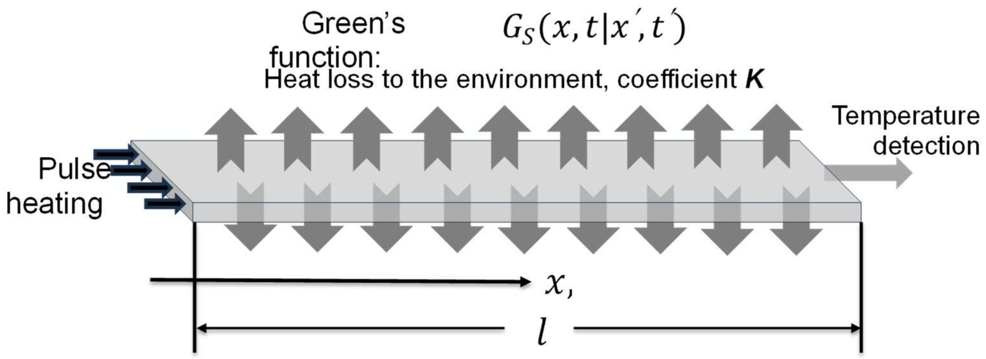

図５　フラッシュ法（パルス加熱法）による薄板状試料の沿面方向熱拡散率測定の幾何学的配置とグリーン関数

表裏面における負の発熱と解釈することにより、(11)式のグリーン関数を用いて次式により記述できる。

$$T(x,t) = G_S(x,t|0,0) - \int_0^t \int_{-\infty}^{\infty} G_S(x,t|x',t') \cdot 2K \cdot T(x',t')\, dx' dt' \tag{13}$$

左辺にも右辺にも未知数である試料温度が含まれるので積分方程式となる。

時間に関してラプラス変換し、位置に関してフーリエ変換し、それぞれにコンボリューション積分の公式を使うと、

$$\tilde{\tilde{T}}(\zeta,\xi) = \frac{\tilde{\tilde{\mathrm{G}}}_{\mathrm{S}}(\zeta,\xi)}{1+\sqrt{2\pi}\cdot 2K \cdot \tilde{\tilde{\mathrm{G}}}_{\mathrm{S}}(\zeta,\xi)} \tag{14}$$

この式をフーリエ逆変換、ラプラス逆変換すると、

$$T(x,t) = \frac{1}{C\sqrt{\pi t}} \exp\left(-\frac{x^2}{4\alpha t}\right) \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau_c}\right) \tag{15}$$

ここで、$\tau_c = C/(2K)$である。

以上のように、時間に関してラプラス変換、試料の長さに関してフーリエ変換を行うと、それぞれのコンボリューション積分が代数式の積になるので、積分方程式が代数方程式に変換されて容易に解けるようになる [8]。

このように、熱拡散方程式をグリーン関数と積分方程式により記述し、ラプラス変換、フーリエ変換とコンボリューション積分の代数積への変換により解くことが最も系統的かつ普遍的な解法として認識されている。四端子行列のカスケード接続による積層材の一次元熱拡散の解析はその最も簡潔な例である。

2.4　境界要素法

複数の材料が立体的に接合した対象内部の温度分布、熱流密度分布は有限要素法[9]、境界要素法[10,11]などの数値シミュレーションにより行われることが一般的である。シミュレーションを行うには構成材料の熱物性値、材料間の界面熱抵抗、発熱密度分布、外部との境界条件（断熱境界、等温境界、熱伝達境界、熱浸透境界など）の情報が必要である。熱物性ハンドブック[12]や熱物性データベースの最も重要な役割の一つはこのような場合の熱物性値の提供であるといえる [2, 13-14]。

有限要素法に関しては多数のパッケージソフトウェアが市販されている。また無償のオープンソースソフトウェ(Salome-Meca)も使用されている。

有限要素法が領域を離散化（領域型解法）して数値計算する数値解法である（解析解法ではない）のに対して、境界要素法は図６に示されるように領域内ではグリーン関数（連続）を用い境界のみを離散化する（境界型解法）準解析的方法である。積分方程式法の自然な離散化であるので境界積分方程式法ともよばれ、偏微分方程式の基本解であるグリーン関数が積分核として用いられる。

2.5　グリーン関数による解析計算・数値計算

以上のように積分方程式法による解析計算も、境界要素法（境界積分方程式法）による数値計算も必要な情報はインパルス応答関数（グリーン関数の境界での値）である。インパルス応答関数はフラッシュ法やパルス加熱サーモリフレクタンス法などのパルス加熱熱物性測定法により実測される。

従って、複数の材料が立体的に接合した対象内部の温度分布、熱流密度分布はその構成要素のインパルス応答関数（パルス加熱法により実測される）が既知であることが必要十分であり、インパルス応答関数やグリーン関数を解析式で記述できた場合のパラメータである熱物性値が求まっていることは不可欠ではない。

特に、構成要素（薄膜、微粒子など）の代表長さ（厚さ、粒径など）が熱担体（伝導電子、フォノンなど）の自由行程より十分長くない場合や、非常に高速にエネルギー密度分布が変化する場合には熱物性値が定義できない。そのような場合でもインパルス応答関数は実験的に求まるので、構成要素から対象全体の応答を明確に記述することができる。

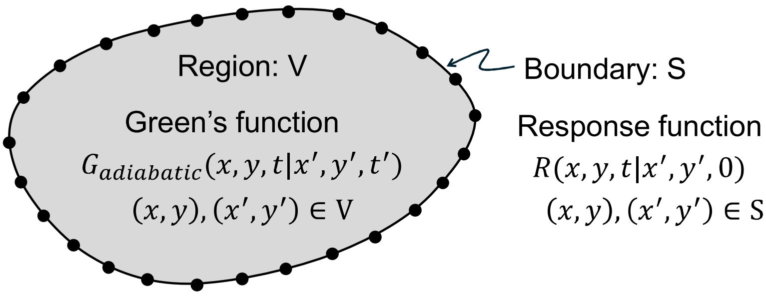

図６　境界におけるグリーン関数の値（＝応答関数）の離散化（２次元の場合）

3. おわりに

熱拡散方程式はグリーン関数・インパルス応答関数に関する積分方程式により体系的に記述することができる。対象が変数分離に適した幾何形状の場合には積分方程式をラプラス変換あるいはフーリエ変換することにより代数方程式が導かれ解析的に解くことができる。幾何形状が複雑な場合には応答関数を境界で離散化した境界要素法（境界積分方程式法）により体系的に算出される。

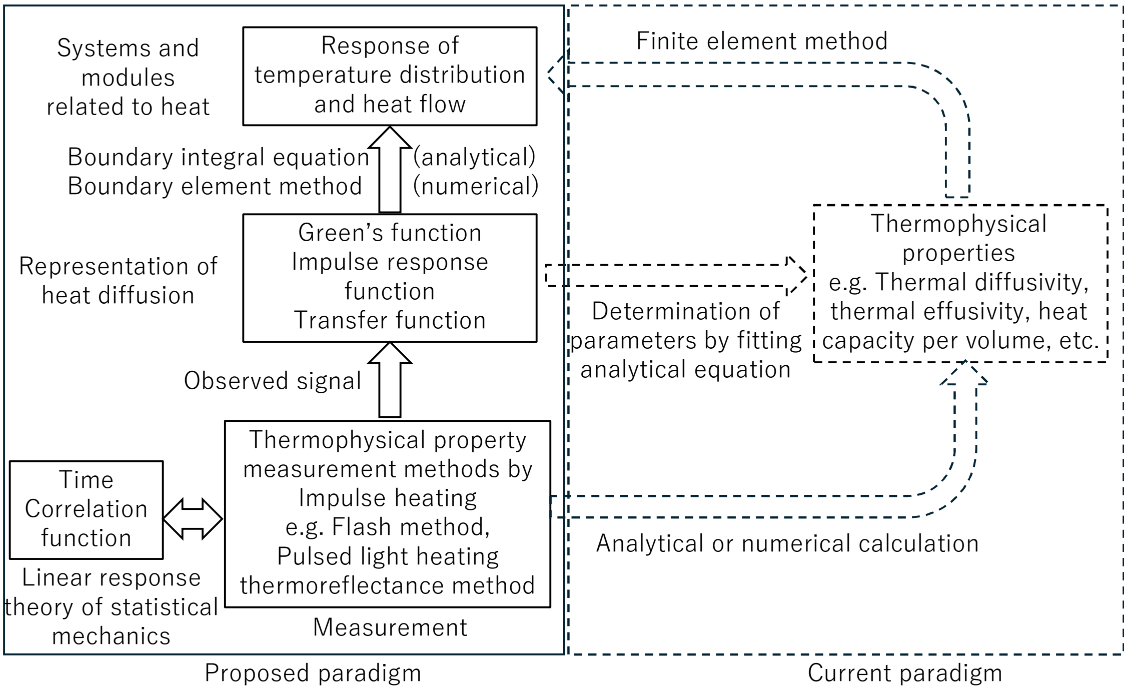

図７　パルス加熱法により測定されるインパルス応答関数とグリーン関数に基づく固体中エネルギー拡散の体系的記述
熱物性値が定義できない場合にも構成部分の応答からシステムやモジュールの応答が導出できる。

インパルス応答関数は線形で因果律を満たす物理現象に対して普遍的に適用できるので対象が熱拡散方程式に従わない場合にも有効であり、パルス入力により誘起される応答を実測することにより明確に求まる [15].

従って、図７に示されるようにパルス加熱法により実測されたインパルス応答関数を、熱物性値による解析表示を介さずとも、境界要素法に直接代入することにより熱が関連するシステムやモジュールのエネルギー密度分布の時間応答を求めることが可能となる。

フォノンや伝導電子の散乱やエネルギー交換の素過程に基づくエネルギー拡散メカニズムの考察もエネルギー密度２時間相関関数であるインパルス応答関数に対して直接適用できる。しかし、応答関数のある種の積分や極限として定義される熱拡散率などの熱物性値、との対応は間接的である。

本研究は国立研究開発法人科学技術振興機構未来社会創造事業大規模プロジェクト型「センサ用独立電源として活用可能な革新的熱電変換技術」により実施された。

参考文献

[1] 馬場哲也；「科学技術におけるデータベースの役割(2)」，熱物性 27(2013) 169-172.

[2] H. S. Carslaw, J. C. Jaeger; “Conduction of heat in solids 2nd edition”, Clarendon Press, 1986, pp.353-386.

[3] 今村勉;「物理とグリーン関数」，物理数学シリーズ (2016), 岩波書店.

[4] T. Baba; “Analysis of one-dimensional heat diffusion after light pulse heating by the response function method”, Japanese J. Applied Physics 48 (5S2), 05EB04.

[5] T. Baba, “Development of ultra fast laser flash method for measuring thermophysical properties of thon films and boundary thermal resistances”, Japanese Journal of Applied Physics, 48 (2009), 05EB04.

[6] 寺沢寛一;「自然科学者のための数学概論（増訂版）」, (1954), 岩波書店, pp.565-605.

[7] 小出昭一郎;「物理現象のフーリエ解析」ちくま学芸文庫, (2018), 筑摩書房, pp.47-51.

[8] 馬場哲也，馬場貴弘，石橋裕子、篠田嘉雄；「薄板状試料沿面方向熱拡散のグリーン関数法による解析」，第 38 回熱物性シンポジウム (和歌山, 2017) C142.

[9] 野原勉;「エンジニアのための有限要素法入門、基礎から応用へ」, (2016), 培風館.

[10] ミカエル D. グリーンベルグ著、関口壮訳;「応用グリーン関数、境界要素法の基礎」, (1983), ブレイン図書出版株式会社、発売元：丸善.

[11] 佐藤光三;「ポテンシャル流れの複素変数境界要素法」, (2003), 培風館.

[12] 日本熱物性学会編; 新編熱物性ハンドブック; 養賢堂: 東京, 2008.

[13] T. Baba, Y. Yamashita, A. Nagashima: Function Sharing and Systematic Collaboration between a Networking Database System and Printed Media on Thermophysical Properties Data, *J. Chem. Eng. Data*, 54, 2745–57 (2009), **DOI:** 10.1021/je9003542.

[14] T. Baba: Measurements and Data of Thermophysical Properties Traceable to a Metrological Standard, Metrologia, 47, S143-S155 (2010), DOI:10.1088/0026-1394/47/2/S12.

[15] 馬場哲也，馬場貴弘，森孝雄；「超高速レーザフラッシュ法と応答関数・線形応答理論」，第 43 回熱物性シンポジウム (和歌山, 2022) B212.

[Received July 16, 2024]