

フラッシュ法熱拡散率計測技術の低温拡張に関する調査研究

上治 寛*

(2025年1月29日受理)

Survey on development of flash method for thermal diffusivity
applicable to low temperature

UEJI Kan

Abstract

Cryogenic technologies are expected to play a role in next-generation infrastructure. To effectively utilize these technologies, it is essential to accurately evaluate the thermal transport properties of the constituent materials in various temperature ranges. Thermal diffusivity, which is the rate of heat transfer inside a material and has SI units of $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$, is the primary choice for assessing thermal transport properties of solid materials. A flash method is the most common method for measuring thermal diffusivity owing to its reliability and precision. The paper shows the measurement techniques of the flash method and the status of standard materials for thermal diffusivity. In the paper, we also denote the problem of performing the flash method at low temperatures and discussed the future directions for research and development.

1 はじめに

近年、次世代インフラを切り開く技術として期待される低温技術への注目が高まり、低温域における熱伝導特性の計測が重要視されている。この分野では、量子情報技術、液体水素を用いたエネルギー源、超電導技術など、さまざまな応用が進展している。例えば、液体ヘリウムを用いた4 K以下の環境では、量子技術が次世代情報インフラを担うと期待されている。内閣府の資料によれば、2030年には量子技術による国内の付加価値額が1.2兆円に達すると予測¹⁾されている。量子チップを冷却するクライオスタットは、最低10 mK以下の極低温まで冷却する必要があるため、熱管理が極めて重要である。一般に、クライオスタット内での温度が1 K以下となる場合には、熱流入を極力抑える必要があり、構成素材の熱伝導特性がシステムの正常な動作に直結する。この

ため、低温域における熱伝導計測技術の確立が量子技術の基盤として欠かせないものとなる。また、液体窒素の温度である77 K付近の温度域では、高効率な送電用に(高温)超電導ケーブルが着目されている。これは電力供給コストの削減を目指した技術であり、液体窒素を循環させて冷却する仕組みを採用している。(高温)超電導ケーブルの実用化に向けた基本的な技術を確立するため、古河電工は液体窒素温度下で500 m超電導ケーブルのフィールド試験を成功させた²⁾。しかし、500 mのケーブルでは約600 Wの熱損失が発生し、さらにケーブルの曲がり部ではその4倍から6倍に達する熱損失が確認されている。こうした熱損失を最小限に抑えるためには、構成素材の熱伝導特性を詳細に把握し、適切な熱管理を行うことが重要である。このように低温技術は次世代インフラの構築に不可欠な要素となりつつある。低温技術を効果的に運用するためには、各温度域における構成素材の熱伝導特性を正確に評価することが求められる。

* 物質計測標準研究部門 熱物性標準研究グループ

熱拡散率は、非定常状態における物質の熱伝導を表現する方程式に関連する物理量である。具体的には、系に熱的な擾乱を与えた後、その温度分布が熱平衡状態に緩和するときの速さを表す。そのため、この物理量は、一部のヨーロッパの文献では「温度伝導率 (Temperature conductivity)」とも呼ばれることがある³⁾が、本調査報告書では「熱拡散率 (thermal diffusivity)」を使用する。等方性物質における一方向の熱伝導が定常状態にある場合には、下記のフーリエの方程式が成立する。

$$\frac{Q}{A} = \kappa \left(\frac{\partial T}{\partial x} \right) \quad (1)$$

ここで、温度勾配 $\partial T / \partial x$ の影響下にある領域 A の単位時間に流れる熱量は Q となり、 κ は熱伝導率である。すなわち、熱伝導率は、定常状態において、単位時間および単位温度勾配あたり単位面積の表面に垂直な方向に伝達される熱量として定義できる。熱物性が温度に依存しないが、温度が時間 t とともに変化する場合は以下のようになる。

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = k \frac{d^2 T}{dx^2} \quad (2)$$

ここで、 ρ は密度、 C_p は定圧における比熱容量である。また、式 (2) は下記のように書き直せる。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \alpha \frac{d^2 T}{dx^2} \quad (3)$$

式 (3) における α は、 $k / (\rho C_p)$ と同じであり、熱拡散率として知られている。その単位は $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ である。ここで注意すべきは、式 (1) および式 (2) で表されるような一次元の熱伝導の場合、熱伝導率、密度、および比熱は、位置と温度に依存しない定数として扱われる。この近似は、均質な試料であれば、一般的に許容可能である。

熱輸送に関連する主要な物性値である熱伝導率と熱拡散率は、いずれも工業的に非常に重要な値である。これらは、比熱容量および密度を介して相互に換算可能であり、どちらか一方の値が判明していればもう一方を計算することができる。そのため、どちらかを直接測定するかは、評価対象や測定目的に応じて選択される。例えば、熱伝導率を測定するためには、式 (1) で示されるフーリエ則に基づくような定常法が採用される。実際の測定では、試料の両端に一定の温度勾配をかけ、温度分布が安定するまで待った後、試料を通る熱流束を測定することで熱伝導率を評価する。この方法は、素材そのもの

だけでなく、実際の材料の形状や形態における実効的な熱伝導率を評価できるという利点がある。しかしながら、温度分布を安定させた定常状態を実現するには時間を要するため、測定時間は比較的長くなる傾向がある。一方で、式 (3) から判断できるように、熱拡散率は時間変化する加熱に対し加熱部分から一定距離を離れた位置での温度変化 (温度応答) を測定することで評価できる。定常状態まで待つ必要が無いため、短時間で測定が可能となる点の特徴である。そのため、熱拡散率の測定は実用的に伝熱特性を評価する際の第一候補である。ただし、前述したように、熱拡散率の測定対象は、基本的に均質である試料 (素材) が前提となることに留意が必要である。(国研) 産業技術総合研究所の計量標準総合センター (National Metrology Institute of Japan: NMIJ) では、熱拡散率の代表的な測定方法であるフラッシュ法を用いて、熱拡散率の評価および標準物質の値付けを行っている。

本調査研究では、熱拡散率計測技術であるフラッシュ法に注目して、現行の測定技術および熱拡散率標準物質の供給状況について調査する。また、低温に拡張する際の技術的な問題点を明らかにするとともに、今後の研究開発の方向性を検討する。

2 熱拡散率の測定技術

熱拡散率は、時間変化する加熱に対し加熱部分から一定距離を離れた位置での温度応答を測定する非定常法によって評価する。非定常法には、一定の熱流を一定時間だけ与えるステップ加熱法「代表例：細線加熱法⁴⁾」、パルス的に加熱するパルス加熱法「代表例：レーザーフラッシュ法⁵⁾」、および周期的に加熱する周期加熱法「代表例： 3ω 法⁶⁾」などがある。NMIJ が公開している計量標準報告書では、熱拡散率に関連する調査研究⁷⁾⁻⁹⁾ もあるため、必要に応じて参照されたい。

計量標準の観点から見ると、標準設定に関わる計測技術として、現在レーザーフラッシュ法が日本を含む多くの国で金属やセラミックスの熱拡散率を計測する国家標準として採用⁵⁾ されている。また、近年では、パルス光加熱サーモリフレクタンス法も、薄膜の熱拡散率を計測する国家標準として日本で採用¹⁰⁾ されている。

ここで、1 回のパルス加熱における理想的な一次元熱伝導について考える。図 1 は、断熱真空下に置かれた厚さ d 、比熱容量 C_p 、密度 ρ を有する平板試料の片面 ($x = 0$) を時刻 $t = 0$ において、時間幅が無視できるほど瞬間的に熱量 Q を加えた際の過渡的な温度変化を示したものである。時刻 t における試料内の位置 x での温度応答は、

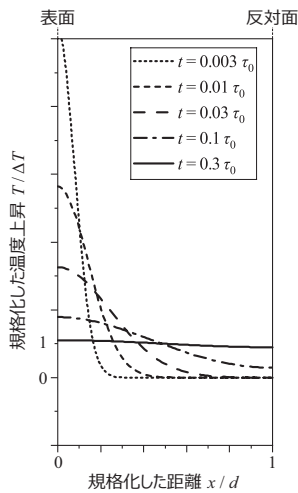


図1：パルス加熱における一次元の温度応答. 式(4)を
図示したグラフ.

以下の式(4)で表される.¹¹⁾

$$T(x, t) = \Delta T \left[1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \cos\left(\frac{n\pi x}{d}\right) \exp\left(- (n\pi)^2 \frac{t}{\tau_0}\right) \right] \quad (4)$$

ここで、 $\Delta T = Q / (\rho C_p d)$ である。この加熱によって、加熱面 ($x=0$) の温度が上昇し、その熱が徐々に反対面 ($x=d$) に伝わることで、最終的に温度分布が緩和し、 $t = \tau_0$ 以降で熱的平衡状態に達する ($\tau_0 = d^2/a$ は熱拡散時間)。この理想的な一次元熱伝導現象を基礎として、加熱源にパルス光源を用い、反対面の温度応答を評価する手法がフラッシュ法である。

1961年にParkerら¹²⁾は、キセノンランプを用いて円板状の固体試料を加熱し、その試料の裏面での温度変化をもとに熱拡散率を算出する方法を提案した。その後、レーザー装置の普及に伴い、加熱源としてキセノンランプの代わりにレーザー光を使用する「レーザーフラッシュ法」へと発展した。図2は、レーザーフラッシュ法の模式図を示す。セットアップとしては、左側から順に、レーザー光を加熱源とし、レーザーの回り込みを制限するための絞り、両面に黒化膜処理を施したサンプル、そしてふく射を検出する光学系で構成される。試料表面の黒化膜は黒体スプレーによって形成され、加熱用のパルスレーザー光を吸収して熱に変換する役割を果たす。また、反対面の黒化膜は放射率を高めることで、ふく射を通じて温度変化をセンシングする役割を担う。この手法により、非接触かつ簡便に熱拡散率を評価できる。

図3には、加熱面とその反対面における理想的な温度応答曲線(時間経過に対する変化)を示す。縦軸は反対

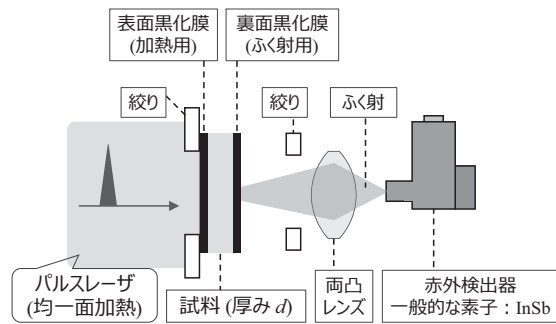


図2：レーザーフラッシュ法の模式図。レーザーを透過する試料を想定。

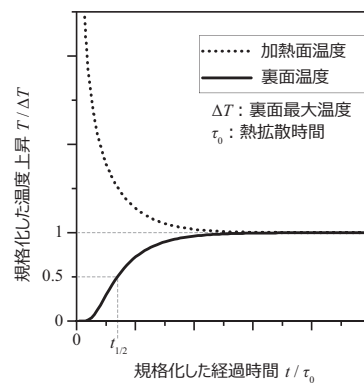


図3：加熱面 ($x=0$) と反対面 ($x=d$) の温度応答曲線.
式(4)を図示したグラフ.

面の最大温度上昇 ΔT で、横軸は熱拡散時間で規格化されている。理想条件において、反対面の温度が最高温度の1/2まで上昇するのに要した時間 $t_{1/2}$ を用いた場合、熱拡散率 α との近似式は以下の式(5)になる。

$$\alpha = 0.1388 \frac{d^2}{t_{1/2}} \quad (5)$$

この式から熱拡散率を求める手法をハーフタイム法と呼ぶ。¹²⁾

理想的には、断熱真空中に置かれた試料の一次元熱伝導・熱拡散現象を観測して、熱拡散率を評価できれば良いが、実際の測定では熱損失などが生じ、完全な一次元性の実現は難しい。また、試料サイズや計測システムを構成する計測器の仕様の都合で、適用範囲が制限される場合も考えられる。測定結果は、これらの事項を考慮してその信頼性を検討する必要がある。NMIJでは、図4に示すような測定装置を整備している。¹³⁾ 図4のシステムは、試料厚さを測定するリニアゲージ、波長1064 nmのNd:YAGレーザー(パルス幅約300 μ s)を用いたパル

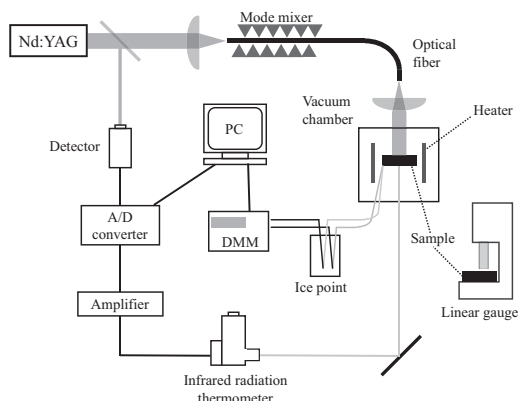


図4：NMIJが所有するフラッシュ法の模式図。DMMはデジタルマルチメータを示す。

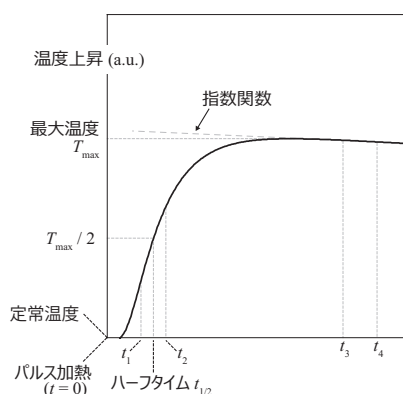


図5：熱損失の影響を含む温度上昇曲線。フィッティングの解析区間を示す。

ス加熱光源、試料加熱の反対面の温度変化を観測する赤外放射計 (InSb 素子搭載, 中心波長約 4 μm), 測定温度を記録する R-Type の熱電対, および試料を断熱および真空に近い状態で保持する真空チャンバ(電気炉を含む)で構成される。測定対象は直径 10 mm, 厚さ数 mm の固体材料である (NMIJ では円柱だけでなく, 正方形の試料の依頼試験の受け入れも行っている)。正確な熱拡散率測定のため, 試料の厚さ方向のみに一次元の熱拡散現象を再現するための工夫が施されている。具体的には, パルス光源からの光は光ファイバ, モードミキサ, レンズを通じて強度分布が均一で, 試料の直径よりも十分に大きいビーム径のパルス光に成形され, 加熱面の全面に照射される。また, 円板試料の側面からのふく射による熱損失の影響を避け, 一次元の熱拡散現象に基づく温度変化を得るため, 試料中央部の直径約 3 mm の小さな領域の温度変化を非接触で測定する赤外放射計が使用される。この装置は, できる限り理想的な熱拡散現象を再現し, 高い信頼性をもった測定が可能である。

ただし, 実際に得られる信号は指数関数的な熱損失が存在するため, 熱損失を想定した関係式で温度上昇曲線をフィッティングする必要¹⁴⁾がある。Cowan¹⁵⁾や Watt¹⁶⁾は熱損失を想定した時の試料の反対面温度上昇曲線全体の解析解を提案した。これを用いることで試料の熱拡散率と熱損失の大きさを表すパラメータである Biot 数が同時に決定できる。また Cape¹⁷⁾は Biot 数 Y が 0.05 より大きい場合には熱損失を考慮する必要があると述べ, その際に適用できる展開式を提案した。その後, Josell¹⁸⁾は Cape らの展開式の高次項にある誤りを訂正した。訂正した Josell らの式と Cape らの式との誤差は, Biot 数 Y が約 0.2 のときに 1%, Biot 数 Y が 1 のときに

6% を超える。この時の試料反対面の温度変化は

$$T(t) = \Delta T \sum_{m=0}^{\infty} A_m \exp\left(-X_m^2 \cdot \frac{t}{\tau_0}\right) \quad (6)$$

ここで,

$$A_m = 2(-1)^m X_m^2 (X_m^2 + 2Y + Y^2)^{-1},$$

$$X_0 \approx (2Y)^{0.5} \left(1 - \frac{Y}{12} + \frac{11Y^2}{1440}\right),$$

$m \geq 1$ のとき,

$$X_m \approx m\pi + \frac{2Y}{m\pi} - \frac{4Y^2}{(m\pi)^3} + \left(\frac{16}{(m\pi)^5} - \frac{2}{3(m\pi)^3}\right) \cdot Y^3 + \left(\frac{-80}{(m\pi)^7} + \frac{16}{3(m\pi)^5}\right) Y^4$$

となる。上記の熱損失を考慮した温度変化からフィッティングを行う。具体的には, 図5における t_3 から t_4 の時間帯の最小自乗法および t_1 から t_2 の時間帯の等面積法によって信頼性の高い熱拡散率を決定する。また, NMIJ では, SI の基本単位系 (長さ, 時間, 温度の各物理量) で不確かさ評価を行っており, 試験片厚さの分布, 検出器の時間応答性, 試料温度を測定する熱電対などの不確かさを合成し, 熱拡散率測定の相対拡張不確かさが 3.2% 以上¹⁹⁾であることがわかっている。

3 熱拡散率の標準物質とその供給範囲

熱拡散率の標準供給範囲とその標準物質について紹介する。図6の実線部分が各国の計量標準研で標準供給さ

れている物質の熱拡散率であり，等方性黒鉛（NMIJ CRM 5804b），セラミック（NMIJ CRM 5807a），ガラスセラミック（BCR-724，欧州標準物質計測研究所），および石英ガラス（NMIJ CRM 5809a）がある。温度範囲は室温から最大 1500 K となり，低温での熱拡散率の標準供給はされていない。また，これら物質の熱拡散率は約 $10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ から $10^{-4} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ のオーダーに収まっている。基本的に室温以下における熱拡散率の測定には課題があり，データブックなどに記載されている室温以下の熱拡散率は，式 (3) の関係式から見積もられた間接的な値である。Purdue 大学が発刊したデータブック²⁰⁾ (Thermophysical Property Research Center, TPRC) もしくは産業技術総合研究所が開発・運営している分散型熱物性データベース²¹⁾ から見積もることができる銅，金，サファイアの室温以下での熱拡散率は $10^{-4} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ を超えており，標準供給の範囲から外れた値である。低温技術を効果的に運用するには低温域における構成素材の熱伝導特性を正確に評価する必要がある。そのため，低温における熱拡散率測定の課題を解決しつつ，標準供給から外れている熱拡散率の値を高い信頼性で測定できる技術を構築する必要がある。

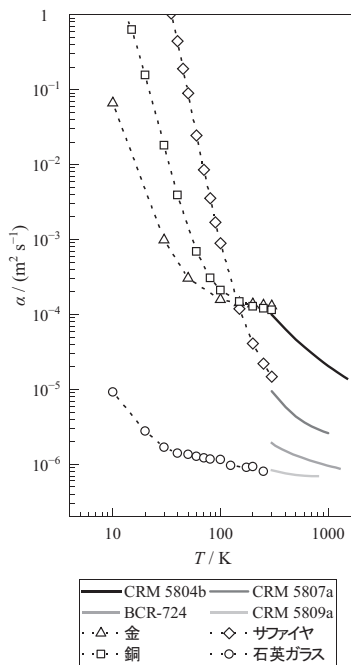


図6：熱拡散率の標準供給範囲（実線）。白抜きマーカーはデータベースから見積もられた間接的な熱拡散率の値であり，点線はガイドラインである。

4 フラッシュ法を低温で運用する課題

フラッシュ法の原理は，加熱面の反対面のふく射を赤外放射計でセンシングして温度上昇を評価する方法が採用される。ここで，ふく射はプランク則に従うため，ふく射の強度・波長・温度の関係式は次式で求められる。

$$L(\lambda, T) = \frac{2C1}{\lambda^5} \cdot \frac{1}{\exp\left(\frac{C2}{\lambda T}\right) - 1} \quad (7)$$

ここで， $L(\lambda, T)$ は分光放射輝度， λ は物体から発散する放射の波長， T は物体の絶対温度， $C1$ および $C2$ は，それぞれ，放射の第1定数 ($c^2 h$) および第2定数 (ch/k) となる (c : 真空中の光の速度， h : プランク定数， k : ボルツマン定数)。式 (7) で求めた黒体の分光放射輝度（ふく射スペクトル）を図7に図示する。ふく射スペクトルのエネルギー強度（図7における全波長帯の積分）は， T の4乗に比例（ステファン・ボルツマンの法則）することから，低温になればエネルギー強度は指数関数的に低下する。そのため赤外放射計によるふく射検出が困難になり，信号のS/N低下が予測される。また，ふく射スペクトルは長波長シフトしているが，長波長（10 μm 以上）の検出に対応する熱型の検出素子（ボロメータやサーモパイルなど）は応答速度が遅いため，フラッシュ法には適応できない。すなわち，低温においてはふく射による温度応答の測定が困難であるため，低温になるほどフラッシュ法による測定は本質的に実施が難しいといえる。したがって，低温環境においても高精度でフラッシュ法を適用し，熱拡散率を評価するためには，低温下でも適切に機能する温度応答測定技術の確立が求められる。以下に，低温での温度応答測定技術を用いた熱拡散現象の測定例について報告する。

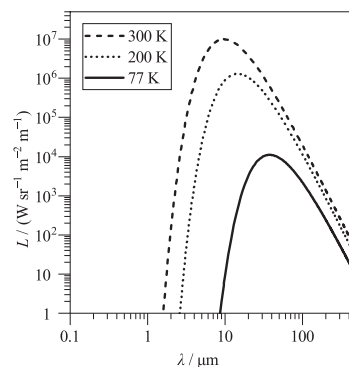


図7：ふく射スペクトルの温度依存性。式 (7) を図示したものの。

● MCT センサを用いたフラッシュ法

赤外放射計を用いたフラッシュ法では、ふく射で熱拡散挙動を捉えるために、比較的速い応答速度の光起電力型の素子が採用される。スタンダードなフラッシュ法装置は、InSb 素子を搭載した赤外放射計を用いてふく射を検出する。これは、InSb 素子が比較的高い分光感度²²⁾ (約 $10^{11} \text{ cm Hz}^{0.5} \text{ W}^{-1}$) を持ち、 $1 \mu\text{m}$ から $5 \mu\text{m}$ の波長範囲を検出できるためである。この波長範囲はプランク則から考えると、室温以上のふく射の測定に適している。一方、代表的な赤外検出素子として感度が最も高いのは InGaAs 素子 (約 $10^{12} \text{ cm Hz}^{0.5} \text{ W}^{-1}$) になる。しかし、長波長タイプでも $2.5 \mu\text{m}$ までしか対応できないため、室温付近のふく射測定には不適であり、フラッシュ法における赤外検出素子としてはほとんど採用されていない。

室温以下の低温におけるふく射を赤外放射計で検出する、従来技術を基にしたフラッシュ法装置も販売されており、その赤外放射計には MCT 素子が搭載されている。MCT 素子は、水銀 (Hg)、カドミウム (Cd)、テルル (Te) を用いた光起電力型素子であり、分光感度 (最大約 $10^{10} \text{ cm Hz}^{0.5} \text{ W}^{-1}$) は InSb 素子よりやや低い²³⁾ もの、対応波長範囲が $2 \mu\text{m}$ から $12 \mu\text{m}$ と広く、プランク則に基づくふく射スペクトルの長波長シフトに対応できる。

図8に、NETZSCH社が提供するアプリケーションノート²⁴⁾ からデータを抽出した銅板 (厚み $235 \mu\text{m}$) の熱拡散率測定結果と文献値の比較を示した。図2に示す同じ原理による測定で、加熱光源はフラッシュランプ、検出器は MCT センサが使用された。この装置では約 200 K 付近まで測定可能だが、それ以下ではふく射信号の強度が弱まるため、実測値は示されていない。この事実は、200 K 程度がふく射検出の限界であることを示唆している。MCT センサを用いたフラッシュ法は、従来と同様

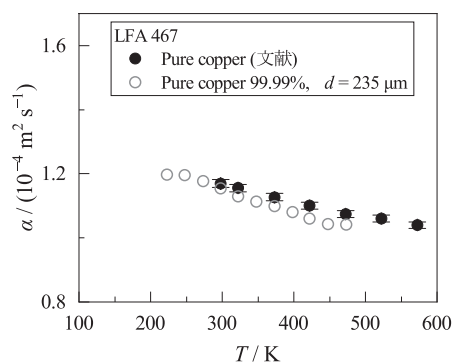


図8：文献²⁴⁾ から修正引用したグラフ。LFA 467 はレーザーフラッシュ法の製品名。

に非接触で熱拡散率を測定でき、検出速度も十分である点が長所である。しかし一方で、ふく射の強度が弱くなるため、200 K が測定限界となることが課題として挙げられる。

● 接触式センサを用いた測温技術 (フラッシュ法)

低温におけるふく射のスペクトル強度の減衰・長波長シフトに依存しない手法として、サンプル自体に接触式センサを取り付けて加熱反対面の温度応答を評価するフラッシュ法装置も販売されている。図9は TA instruments 社の接触式センサを用いた装置概略図とカタログ²⁵⁾ から抽出した無酸素高伝導銅 (OFHC) の熱拡散率の測定値と文献値である。MCT センサでは計測できなかった 100 K まで測定ができており、文献値とほぼ一致した値を示した。また、研究レベルではあるが、加熱反対面に測温抵抗体として電極 (金もしくはカーボンペースト) を成膜し、加熱反対面の温度応答を評価し、熱拡散率を 4 K まで測定した例²⁶⁾ も存在する。接触式センサを用いたフラッシュ法は、表面の温度応答を直接測定できるため、ふく射では測定できなかった極低温領域まで測定可能な点が長所となる。ただし、接触部分からの熱逃げの懸念や検出速度は接触材料の熱容量や形状に依存してしまう点が課題として挙げられる。

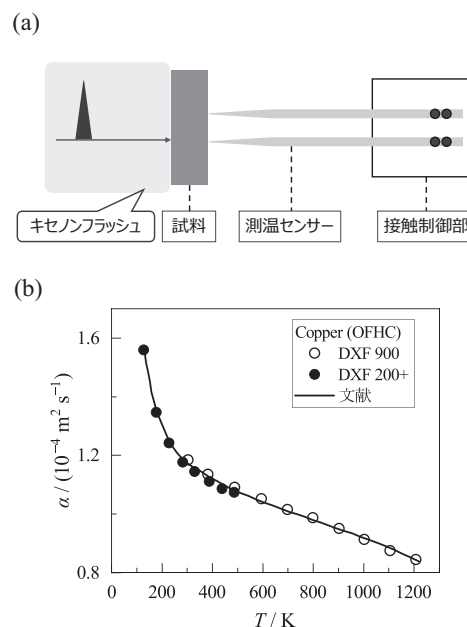


図9：(a) TA Instruments 社の接触式センサを用いたフラッシュ法概略図。(b) 文献²⁵⁾ から修正引用したグラフ。DXF 900 は同社の IR 検出器による装置。DXF200+ は、接触式センサを用いたフラッシュ法装置。

●サーモリフレクタンス現象を用いた測温技術

サーモリフレクタンス (TR) とは、温度変化によって特定波長の物体表面での反射率が変化する現象を指す。基準温度における反射率 R_0 が、小さい温度変化 ΔT が発生したときに生じる反射率変化 ΔR は、表面温度と反射率の変化の関係は線形近似でき、式 (8) のように表現できる。²⁷⁾

$$\frac{\Delta R}{R_0} = \left(\frac{1}{R_0} \frac{\partial R}{\partial T} \right) \Delta T = C \Delta T \quad (8)$$

ここで、 C は相対的 TR 係数、 $\partial R / \partial T$ は TR 係数である。この TR 現象を利用した測温技術を時間分解測定に拡張することで、過渡的な現象 (熱拡散率) を評価^{10), 28)} できる。低温環境下でも TR 現象を用いて熱拡散現象を評価できるかを調査するため、アルミニウムを代表例として、2種類の基準温度 (370 K および 120 K) における反射率変化 $\Delta R / R_0$ と照射波長 λ の関係²⁹⁾ を図 10 に示した。

図 10 に示すように、反射率変化が最大となるのは波長約 800 nm であり、アルミニウムの 1.55 eV のバンド間遷移エネルギーに対応する。また、 $\Delta R / R_0$ の振幅に関わる要素の温度依存性が小さいため、370 K および 120 K でも $\Delta R / R_0$ の振幅は変わらない。ここで、 $\Delta R / R_0$ の振幅に関わる要素は金属によって異なるが、金属の $\Delta R / R_0$ の振幅は一般的に低温でも維持される。³⁰⁾⁻³⁵⁾ この低温でも信号 (反射率変化) の感度が変わらないことを活かして、メタ材料の低温熱物性評価が行われた研究³⁶⁾ もある。

具体的には、図 11 に示すように、架橋したシリコン

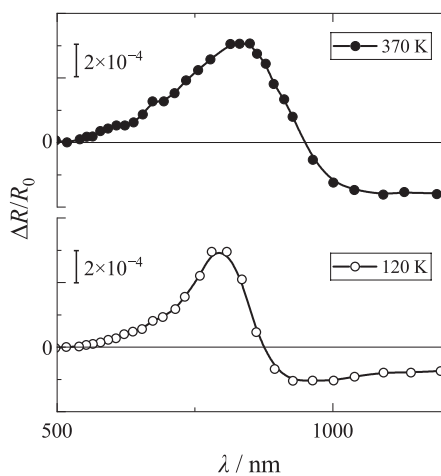


図 10 : 文献²⁹⁾ から修正引用したグラフ。実線はガイドラインとなる。

薄膜の中央部にアルミニウム薄膜を蒸着し、このアルミニウム膜に加熱光と反射率測定のための検出光 (測温光) を照射する。アルミニウム膜の左右のシリコン薄膜には規則的に配列された円孔構造があり、この構造を介して熱が拡散する。その拡散時間を、検出光による反射率変化を利用して 4 K から 300 K まで測定した研究である。この手法は、通常のフラッシュ法と同様に非接触で熱拡散挙動を追跡できる。また、ふく射を利用する場合とは異なり、4 K まで測定できる点が大きな特徴となる。さらに、光学測定であるため、温度応答の検出速度が高速である点も長所となる。しかし一方で、信号感度自体が弱いため、この研究³⁶⁾ では、 10^4 回程度の平均化処理を行った信号を解析に使用しなければならない点が課題として挙げられる。

5 低温域における温度センシング技術のまとめと展望

表 1 で、室温以下における温度応答を測定可能なセンシング技術をまとめる。ふく射方式では非接触で比較的高速な実験が可能だが、極低温での測定には適さない。一方で、接触方式は極低温での測定が可能であるが、接触部からの熱の逃げや検出速度の低下といったデメリットが懸念される。これに対し、サーモリフレクタンス (TR) 法は非接触の利点を活かしながら極低温測定が可能であり、さらに高速な評価が可能という特長がある。ただし、信号強度が弱い点が課題として挙げられる。これらの中では、感度面での課題を解決できれば、サーモリフレクタンス技術が、低温フラッシュ法のセンシング技術として有望であると考えられる。

今後、低温フラッシュ法の実現に向けて、サーモリフレクタンス法の課題である信号強度の低さを克服する手

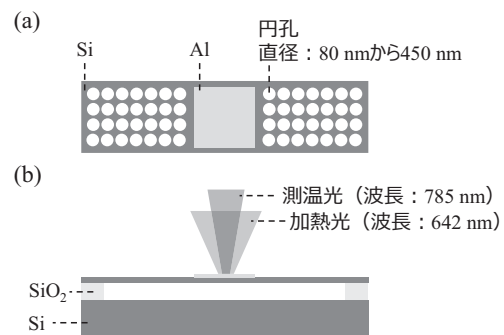


図 11 : 文献³⁶⁾ を参考にした模式図。(a) 架橋されたシリコンメタ材料の上面図。(b) デバイスの断面図および測定模式図。パルス加熱光と測温光をアルミニウム薄膜に照射する。

表 1：低温での温度応答測定技術のまとめ

手法	ふく射 (MCT)	接触式	TR
非接触	○	×	○
感度	○	◎	△ 強度は維持
低温対応	△～× 200 K まで	○～△ 4 K まで	○ 4 K まで
高速性	○～△	△ 接触部依存	◎ > 100 MHz

段を模索し、同技術をフラッシュ法に組み込む方向で研究を進めていく。

謝辞

本調査研究を行うにあたり、八木貴志グループリーダーに熱心なご指導・ご意見を頂きました。また、阿子島めぐみ副研究部門長からもフラッシュ法に関する貴重な知見やご助言を頂きました。アドバンス理工株式会社の方々には、フラッシュ法の現状に関してヒアリングの機会を頂きました。最後に、物質計測標準研究部門熱物性標準研究グループの皆様からは様々な面から支援を頂きました。以上に対し、心より感謝申し上げます。

参考文献

- 1) 内閣府, 資料「量子未来社会ビジョンについて」
https://www8.cao.go.jp/cstp/gaiyo/yusikisha/20230406/siryos3-1_6.pdf. Online; accessed 24 January 2025.
- 2) 八木正史 他, 古河電工時報 第 116 号 p. 53–59,
https://www.furukawa.co.jp/jiho/fj116/fj116_11.pdf.
Online; accessed 24 January 2025.
- 3) Thermophysical properties of matter, The TPRC Data series. Vol.10
- 4) JIS R 2616 : 2001 耐火断熱れんがの熱伝導率の試験方法.
- 5) JIS R 1611 : 2010 ファインセラミックスのフラッシュ法による熱拡散率・比熱容量 / 熱伝導率の測定方法.
- 6) D. G. Cahill; R. O. Pohl. Thermal conductivity of amorphous solids above the plateau. *Physical Review B*. 1987, vol. **35**, no. 8, p. 4067–4073.
- 7) 阿子島めぐみ, “固体材料の熱拡散率計測技術と標準物質に関する調査研究”, 産総研計測標準報告, Vol.1, No.1, p.233–245.

- 8) 李沐, “固体材料に対する熱拡散率計測技術と標準供給に関する調査研究”, 産総研計測標準報告, Vol.10, No.3, p.457–466.
- 9) 劉芽久哉, “ソフトマテリアルの熱的機能評価のための熱物性計測技術と計量標準構築に関する調査研究”, 産総研計測標準報告, Vol.10, No.4, p.619–628.
- 10) JIS R 1689 : 2018 ファインセラミックス薄膜の熱拡散率の測定方法.
- 11) 日本熱物性学会編: 新編熱物性ハンドブック (養賢堂, 2008).
- 12) W. J. Parker et al. Flash Method of Determining Thermal Diffusivity, Heat Capacity, and Thermal Conductivity. *Journal of Applied Physics*. 1961, vol. **32**, no. 9, p. 1679–1684.
- 13) 阿子島めぐみ. レーザフラッシュ法による熱拡散率測定. 高温学会誌. 2008, vol. **34**, no. 5, p. 188–195.
- 14) 馬場哲也: 第 17 回日本熱物性シンポジウム論文集 379 (1996).
- 15) R. D. Cowan. Pulse Method of Measuring Thermal Diffusivity at High Temperatures. *Journal of Applied Physics*. 1963, vol. **34**, no. 4, p. 926–927.
- 16) D. A. Watt. Theory of thermal diffusivity by pulse technique. *British Journal of Applied Physics*. 1966, vol. **17**, no. 2, p. 231.
- 17) J. A. Cape; G. W. Lehman. Temperature and Finite Pulse - Time Effects in the Flash Method for Measuring Thermal Diffusivity. *Journal of Applied Physics*. 1963, vol. **34**, no. 7, p. 1909–1913.
- 18) D. Josell et al. Comment on “Analysis for determining thermal diffusivity from thermal pulse experiments”. *Journal of Applied Physics*. 1995, vol. **78**, no. 11, p. 6867–6869.
- 19) M. Akoshima; T. Baba. Study on a Thermal-diffusivity Standard for Laser Flash Method Measurements. *International Journal of Thermophysics*. 2006, vol. **27**, no. 4, p. 1189–1203.
- 20) Thermophysical properties of matter, The TPRC Data series. Vol.01, 02, 04, and 05
- 21) 分散型熱物性データベース: <https://tpds.db.aist.go.jp/>
- 22) 浜松フォトニクス株式会社, 赤外検出素子セレクションガイド, https://www.hamamatsu.com/content/dam/hamamatsu-photonics/sites/documents/99_SALES_LIBRARY/ssd/infrared_kird0001j.pdf. Online; accessed 24 January 2025

- 23) アイ・アール・システム, MCT センサカタログ, <https://www.irsystem.com/wp-content/uploads/2024/10/VIGO-Photonics%E7%A4%BE-MCT%E3%82%BB%E3%83%B3%E3%82%B5%E9%9B%BB%E5%AD%90%E7%89%88.pdf>. Online; accessed 24 January 2025
- 24) NETZSCH 社, アプリケーションノート, https://analyzing-testing.netzsch.com/_Resources/Persistent/d/1/2/8/d128cbeada1a54ab336ebdbe39339eb33be8c9d3/AN%20086_LFA%20467%20with%20Short%20Pulse%20Duration.pdf. Online; accessed 24 January 2025
- 25) TA Instruments 社, カタログ, <https://www.tainstruments.com/pdf/brochure/BROCH-ThermalConductivityDiffusivity-EN.pdf>. Online; accessed 24 January 2025
- 26) Y. Kogure et al. Low-Temperature Thermal Diffusivity Measurement by Laser-Flash Method. *Journal of the Physical Society of Japan*. 1986, vol. **55**, no. 10, p. 3469–3478.
- 27) V. Quintard et al. Laser beam thermography of circuits in the particular case of passivated semiconductors. *Microelectronic Engineering*. 1996, vol. **31**, no. 1, p. 291–298.
- 28) C. A. Paddock; G. L. Eesley. Transient thermoreflectance from thin metal films. *Journal of Applied Physics*. 1986, vol. **60**, no. 1, p. 285–290.
- 29) R. Rosei; D. W. Lynch. Thermomodulation Spectra of Al, Au, and Cu. *Physical Review B*. 1972, vol. **5**, no. 10, p. 3883–3894.
- 30) A. Humbert et al. Low energy interband transitions in aluminium. *Journal de Physique Lettres*. 1977, vol. **38**, no. 24, p. 479–481.
- 31) R. Rosei et al. d bands position and width in gold from very low temperature thermomodulation measurements. *Surface Science*. 1973, vol. **37**, p. 689–699.
- 32) J. H. Weaver et al. Thermoreflectance of V, Nb, and paramagnetic Cr. *Physical Review B*. 1976, vol. **14**, no. 2, p. 459–463.
- 33) J. H. Weaver et al. Thermoreflectance of Mo from 0.5 to 35 eV. *Solid State Communications*. 1975, vol. **16**, no. 1, p. 163–166.
- 34) R. Rosei et al. Electronic structure of the bcc transition metals: Thermoreflectance studies of bulk V, Nb, Ta, and α TaHx. *Physical Review B*. 1980, vol. **21**, no. 8, p. 3152–3157.
- 35) E. Colavita et al. Thermoreflectance test of W, Mo, and paramagnetic Cr band structures. *Physical Review B*. 1983, vol. **27**, no. 8, p. 4684–4693.
- 36) R. Anufriev et al. Heat guiding and focusing using ballistic phonon transport in phononic nanostructures. *Nature Communications*. 2017, vol. **8**, no. 1, p. 15505.

