

# 低温における熱伝導率計測技術及び 標準開発に関する調査研究

辰巳翔一\*

(2025年1月31日受理)

## A survey on measurement methods and standards for thermal conductivity at low temperature

TATSUMI Shoichi

### Abstract

The thermal conductivity is one of the material parameters to describe an ability to conduct heat. The accurate measurement of the parameter is very important to design or simulate thermal control. So far, several National Metrology Institutes (NMIs) have developed their measurement systems, based on a Guarded Hot Plate (GHP) method. In this paper, the status of measurement methods for thermal conductivity, including reference materials for the purpose, are reviewed. Besides, a new demand for thermal conductivity at low temperature is now increasing. To meet these requirements, some efforts to develop a thermal conductivity measurement system at low temperature performed at NMIJ is also discussed.

### 1 はじめに

熱伝導率は物質中を通る熱エネルギーの伝わりやすさを示す熱物性量であり、長さ1 m 当りに1 K の温度差がある物質の断面積1 m<sup>2</sup> を1 s 当りに流れるエネルギー量として定義され、単位はW m<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup> で表される。この熱伝導率は建築材料や保温・保冷容器等に用いられる断熱材の断熱性能や、電子機器類等に用いられる放熱材料の放熱性能の評価を行う際に重要な熱物性量の一つである。特に、食品や薬品等の冷蔵・冷凍保存に関わる身近な技術や液化ガスの貯蔵、超伝導リニアや量子技術といった低温環境で熱制御する際に重要となる。

低温環境での液化ガスの低温貯蔵を例に挙げると、現在、国内では2050年のカーボンニュートラル実現に向けて、化石燃料の中では、二酸化炭素排出量の少ない天然ガスへの燃料転換が進められている。更には、二酸化

炭素が排出されない水素・アンモニアの利用に向けた技術開発が進められている。<sup>1)</sup>天然ガスや水素、アンモニアといったエネルギー資源は、常温・常圧の気体の状態で利用されるのに対し、輸送及び貯蔵については低温で液体の状態で行われることが多い。液化して輸送・貯蔵する理由は、天然ガスでは気体の体積の約1/600倍、水素では約1/800倍にすることができ、

効率的に輸送及び貯蔵が行えるためである。図1は各種液化ガスの沸点を示しており、天然ガスで約110 K<sup>2)</sup>、水素ではさらに低温の約20 K<sup>3)</sup>となる。輸送や貯蔵の場面においては、外界からの熱流入を抑え、貯蔵タンク内の温度を保つ必要がある。そのため、タンクに用いられる断熱材の熱伝導率を基にタンク内部への熱流入量や



図1：各種液化ガスの沸点 (0.1 MPa)

\* 物質計測標準研究部門 熱物性標準研究グループ

熱流入によるタンク内の液化ガスの揮発速度を種々のモデルによりシミュレーションし、適切なタンク形状、断熱材の厚み、断熱材の種類等を探る研究<sup>4)~6)</sup>が行われている。このような研究は、効率的なエネルギー貯蔵や輸送タンクの軽量化、タンクの建築コストの削減といった観点から重要であり、シミュレーション結果をより正確にするため、正確な熱伝導率を測定することが重要となる。また、液化天然ガスの貯蔵タンクには、断熱材だけでなく、強度の高い素材として支持構造材に用いられるコンクリートやステンレス鋼、低温においても脆化しない素材として内槽材に用いられる9%ニッケル鋼や7%ニッケル鋼等が含まれており、これらの素材に対する正確な熱伝導率計測も貯蔵タンクの性能評価において重要となる。

本調査研究では、室温以下における低温熱伝導率の計測技術及び標準供給の現状について調査を行い、今後の室温以下での熱伝導率計測技術及び標準開発の方向性を明らかにする。

## 2 熱伝導率計測技術の現状

熱伝導率計測の手法は測定時のサンプルに流れる熱流の状態から、定常法と非定常法の2種に分けられる。<sup>7),8)</sup>

定常法は、図2の模式図に示すようにサンプルを冷却板と加熱板の間に置き加熱板に熱量を与えてサンプル間に温度差を発生させたとき、その熱流がフーリエの法則に従うことを利用した測定手法である。ここで、フーリエの法則とは、定常状態で静止した均一な物質に温度勾配が存在するとき、物質中を流れる熱流束は温度勾配に比例するというものであり、1次元の温度勾配の場合、以下の式(1)で表される。

$$q = -\lambda \frac{dT}{dL}. \quad (1)$$

このとき、 $q$ は熱流束(単位は $\text{W m}^{-2}$ )、比例係数 $\lambda$ が熱伝導率(単位は $\text{W m}^{-1} \text{K}^{-1}$ )、 $dT$ はサンプルについ

た温度差(単位はK)、 $dL$ はサンプルの長さ(単位はm)である。実際の測定では、加熱板のヒーターによる電熱的な発熱量 $Q$ (単位はW)と温度差 $\Delta T$ (単位はK)によって熱伝導率を直接測定されるため、以下の式(2)によって熱伝導率が求められる。

$$\lambda = \frac{Q \cdot L}{\Delta T \cdot A}. \quad (2)$$

ここで、 $A$ は熱流 $Q$ を加えたサンプルの端面の面積(単位は $\text{m}^2$ )である。また、定常法の測定手法例としては、保護熱板法(Guarded Hot Plate method, GHP法)<sup>9),10)</sup>、熱流計法(Heat Flow Meter method, HFM法)<sup>10)</sup>、円筒法<sup>11)</sup>等がある。

非定常法は、サンプルに対して、周期的もしくはパルス状のエネルギーを加えた際のサンプルの温度応答を観測することで熱拡散率 $\alpha$ (単位は $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )を求め、別途、測定したサンプルの密度 $\rho$ (単位は $\text{kg m}^{-3}$ )と比熱容量 $c$ (単位は $\text{J K}^{-1} \text{kg}^{-1}$ )を用いて以下の式(3)で熱伝導率 $\lambda$ を求める手法である。

$$\lambda = \alpha \cdot c \cdot \rho. \quad (3)$$

非定常法の測定手法例には、ホットディスク法<sup>12)</sup>、細線加熱法<sup>13)</sup>、レーザーフラッシュ法<sup>14)</sup>、サーモリフレクタンス法<sup>15)</sup>等がある。非定常法は、小さなサンプルを用いて短時間で行えるが、実材料に近い形状や大きさでの材料全体の熱伝導率の評価は難しい測定手法となっている。

一方、定常法はサンプル全体に均一な熱流を加え、サンプルの温度場が定常状態になるまで待ち測定を行う手法のため、測定時間が長時間となるが、実際に使われる材料に近い不均質材料や複合材料の材料全体の熱伝導率計測を行うことができる。

本調査研究の目的の一つである実材料の形状・形態における実効的な熱伝導率を評価することにおいては、定常法が有効であり、以下では、定常法の測定手法について紹介する。

### 2.1 保護熱板法 (Guarded Hot Plate method, GHP 法)

GHP法は、断熱材の熱伝導率計測手法として世界的に広く用いられており、定常法の中で最も精度の高い測定が行える手法である。GHP法の規格としては、表1に示すISO 8302<sup>16)</sup>、JIS A 1412-1<sup>17)</sup>、ASTM C177<sup>18)</sup>、DIN EN 12664<sup>19)</sup>、DIN EN 12667<sup>20)</sup>等がある。

ISO 8302を元にして作成された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

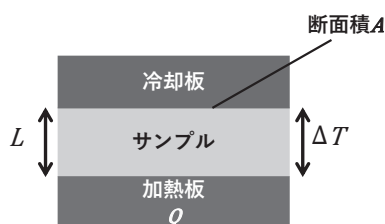


図2: 定常法の模式図

表 1：保護熱板法（Guarded Hot Plate method, GHP 法）の測定規格

規格番号	タイトル
ISO 8302	Thermal insulation - Determination of steady-state thermal resistance and related properties - Guarded hot plate apparatus
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（GHP 法）
ASTM C177	Standard Test Method for Steady-State Heat Flux Measurements and Thermal Transmission Properties by Means of the Guarded-Hot-Plate Apparatus
DIN EN 12664	Thermal performance of building materials and products - Determination of thermal resistance by means of guarded hot plate and heat flow meter methods - Dry and moist products with medium and low thermal resistance
DIN EN 12667	Thermal performance of building materials and products - Determination of thermal resistance by means of guarded hot plate and heat flow meter methods - Products of high and medium thermal resistance

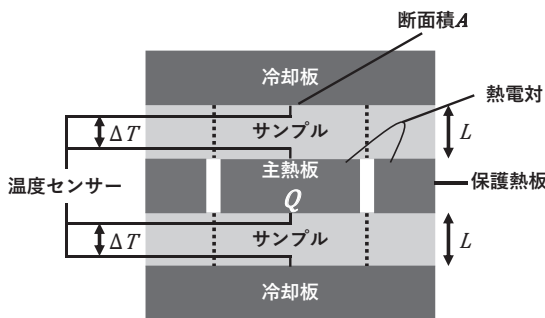


図 3：GHP 法装置の概略図（試験体 2 枚方式）<sup>17)</sup>

法（GHP 法）」で規格化された装置の一般的な構成の概略図を図 3 に示す。GHP 法装置は、定常熱流の発生源となる主熱板を中心に置き、その両端にサンプル、さらに外側に冷却板を置きサンプルを挟む形になっている。この方式は試験体 2 枚方式と呼ばれる。

また、GHP 法装置の特徴として、主熱板の側面を囲む形でギャップをつけ、保護熱板が設置されている。保護熱板は熱電対を用いて、主熱板との温度差を測定し、常に主熱板と保護熱板の間で温度差がないように制御されており、主熱板のヒーターに加えられた熱エネルギーがサンプル以外の方向へ損失することを防ぐことが可能となっている。その熱損失を防ぐことで、ヒーターで発生させた熱をサンプルへのみ流すことができ、主熱板に加える熱流  $Q$  を制御し、サンプルの厚さ  $L$  と断面積  $A$  の寸法とサンプルの両端で温度差  $\Delta T$  を測定し、式 (2) を用いて、熱伝導率  $\lambda$  を求めることができる。

このとき、熱流  $Q$  をサンプル 2 枚に対して加えることになるので、断面積  $A$  は 2 倍の値を用いる必要がある。また、測定領域の断面積  $A$  は図中の点線で示した主熱板と保護熱板のギャップの中心線で囲まれる範囲となる。

図 3 の装置構成では、サンプルを 2 枚用意する必要がある。

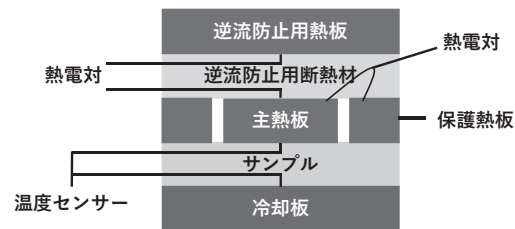


図 4：GHP 法装置の概略図（試験体 1 枚方式）<sup>17)</sup>

ある。また、これらのサンプルは理想的には同等のものを用意する必要があり、サンプルの条件によっては困難な場合がある。そのため、図 4 の概略図に示すような試験体 1 枚方式の装置構成が同じく JIS A 1412-1 で規格化されている。試験体 1 枚方式では、2 枚方式と異なり、逆流防止用断熱材と逆流防止用熱板が主熱板のサンプルと反対側に設置されている。逆流防止用熱板は保護熱板と同様に熱電対を用いて主熱板との温度差を測定し、逆流防止用熱板と主熱板との間で温度差ができないように温度制御されており、逆流防止用断熱材と併せて、熱流がサンプル方向へのみ流れるように設計されている。このような装置構成にすることで、試験体 2 枚方式と同等の測定がサンプル 1 枚で可能となっている。

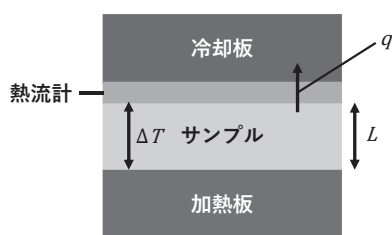
GHP 法では、サンプルと主熱板、冷却板それぞれの熱板との接触面で温度測定を行うため、サンプルに流れる熱流に温度センサーとの接触の影響が出ることが懸念される。

## 2.2 熱流計法（Heat Flow Meter method, HFM 法）

HFM 法は、断熱材等の低熱伝導率材料の試験によく用いられており、GHP 法とよく似た装置構成をしている。HFM 法の規格としては、表 2 に示す ISO 8301<sup>21)</sup>、JIS A 1412-2<sup>22)</sup>、ASTM C518<sup>23)</sup>、DIN EN 12664<sup>19)</sup>、DIN EN 12667<sup>20)</sup> 等がある。

表 2：熱流計法（Heat Flow Meter method, HFM 法）の測定規格

規格番号	タイトル
ISO 8301	Thermal insulation - Determination of steady-state thermal resistance and related properties - Heat flow meter apparatus
JIS A 1412-2	熱絶縁材の熱抵抗及び熱伝導率の測定方法 - 第 2 部：熱流計法（HFM 法）
ASTM C518	Standard Test Method for Steady-State Thermal Transmission Properties by Means of the Heat Flow Meter Apparatus
DIN EN 12664	Thermal performance of building materials and products - Determination of thermal resistance by means of guarded hot plate and heat flow meter methods - Dry and moist products with medium and low thermal resistance
DIN EN 12667	Thermal performance of building materials and products - Determination of thermal resistance by means of guarded hot plate and heat flow meter methods - Products of high and medium thermal resistance

図 5：HFM 法装置の概略図（試験体 1 枚・非対称構成方式）<sup>22)</sup>

HFM 法の装置構成例としては、図 5 の概略図に示すようなものが GHP 法と同様に ISO 8301 を元にして作成された JIS A 1412-2「熱絶縁材の熱抵抗及び熱伝導率の測定方法 - 第 2 部：熱流計法（HFM 法）」で規格化されている。この概略図の場合、HFM 法装置は、サンプルに対して温度差をつけるため、サンプルを加熱板と冷却板で挟み、サンプルと冷却板・加熱板のどちらか一方の間に熱流計を挟む形になっている。この構成は試験体 1 枚・非対称構成方式と呼ばれる。

HFM 法では、予め校正された熱流計を用いて、サンプルを通る熱流束  $q$  を測定し、サンプル端の温度差  $\Delta T$  とサンプルの厚さ  $L$  から以下の式 (4) を用いて熱伝導率  $\lambda$  が求められる。

$$\lambda = \frac{q \cdot L}{\Delta T} \quad (4)$$

GHP 法と異なる点としては、加熱板の周囲に保護熱板がなく、サンプル方向以外への熱損失が生じる。そのため、加熱板のヒーターに加える熱流を制御し測定するのではなく、熱伝導率が既知の標準板を用いて予め校正された熱流計を用いた熱伝導率測定となる。

図 6 に示した 4 種類の装置構成のように、JIS A 1412-2 で規格化されている方式は他に、熱流計を加熱板と冷却板の両側に設置した試験体 1 枚・対称構成方式、サンプルを 2 枚にし、サンプル間に熱流計を設置した試

験体 2 枚・対称構成方式、2 組の試験体 1 枚・非対称構成方式を逆さにして重ねた二重構成、2 組の試験体 2 枚・対称構成方式を重ねた二段構成がある。

HFM 法においても、GHP 法と同様にサンプルと熱板の間に熱流計を設置するため、サンプルに流れる熱流に熱流計との接触による影響が生じる恐れがある。

### 2.3 その他の定常法による熱伝導率計測手法

ガード付き熱流計法（Guarded Heat Flow Meter method, GHFM 法）<sup>24)</sup> という ASTM E1530（Standard Test Method for Evaluating the Resistance to Thermal Transmission by the Guarded Heat Flow Meter Technique）<sup>25)</sup> で規格化された手法がある。この手法は図 7 に示すような装置構成をしており、サンプル周りは HFM 法と似た形になっており、冷却板と加熱板の間にサンプルと熱流計をそれぞれ 1 枚ずつ配置されている。そして、それら全体を囲む形で保護熱板が設置されている。この保護熱板は測定部全体の平均温度となるように制御される。

このような構成にすることで、熱流計の校正は必要となるが、サンプルや熱板の側面からの熱損失を HFM 法よりも抑えた測定が可能となる。

次に、温度傾斜法<sup>26)</sup>について示す。温度傾斜法は ASTM D5470（Standard Test Method for Thermal Transmission Properties of Thermally Conductive Electrical Insulation Materials）<sup>27)</sup> で規格化されており、図 8 に示すような装置構成をしている。サンプルとそれぞれの熱板の間に直方体もしくは円柱状の高熱伝導率の材料でできた Meter Bar や Heat Flow Meter (HFM) block と呼ばれるものを設置し、Meter Bar 上の複数点で温度測定を行い冷却板からサンプルまでの温度勾配と加熱板からサンプルまでの温度勾配を外挿することで、見積もられるサンプルの上面と下面の温度差  $\Delta T$  とサンプルの厚さ  $L$  から熱伝導率  $\lambda$  が求められる。

このような構成にすることにより、温度センサーや熱流計を熱板やサンプルの間に挟まないで、サンプルと

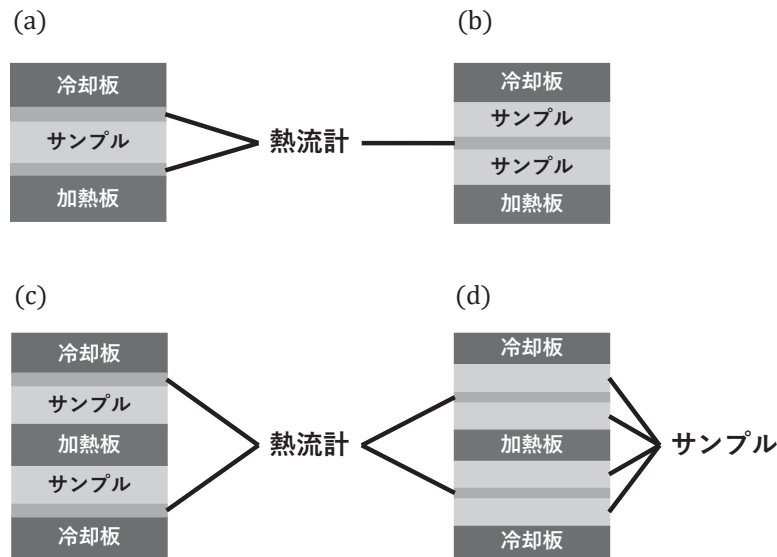


図6：その他のHFM法装置の概略図<sup>22)</sup> (a) 試験体1枚・対称構成方式, (b) 試験体2枚・対称構成方式, (c) 二重構成, (d) 二段構成

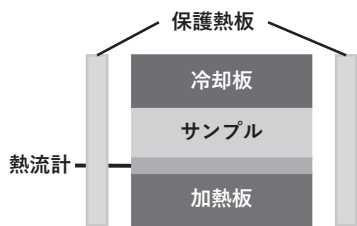


図7：GHFM法装置の概略図<sup>25)</sup>

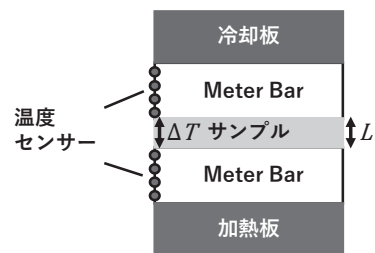


図8：温度傾斜法装置の概略図<sup>27)</sup>

熱源との接触がより良い状態で測定を行うことが可能となる。

### 3 各国の国家計量標準機関での装置開発の現状

各国の国家計量標準機関（National Metrology Institute, NMI）でGHP法による熱伝導率計測装置が開発されており、以下では、これまでに世界のNMIで開発されてきたGHP法装置について、いくつか例を挙げ紹介する。

#### 3.1 National Institute of Standards and Technology (NIST)

アメリカの国立標準技術研究所（National Institute of Standards and Technology, NIST）では、これまでに複数のGHP法装置が開発されており、近年では、直径1016 mmや直径500 mmの円形で大型のGHP法装置が開発されている。いずれの装置もISO 8302もしくはASTM C177に基づいて作成されている。

直径1016 mmのGHP法装置<sup>28)-30)</sup>は、装置の中央に加熱板があり、その両端面にサンプルを設置し、さらにその外側に冷却板を設置した形になっている。直径1016 mmの冷却板はアルミニウム合金でできており、厚さは25.4 mmで-20℃から60℃の温度範囲で制御することが可能となっている。加熱板は厚さ16.1 mmで、直径405.6 mmの主熱板と0.89 mmのギャップを置き、保護熱板が設置されている。加熱板の素材についてもアルミニウム合金となっている。主熱板と保護熱板の温度差は、E型熱電対を用いて測定され、各プレートの温度はカプセル状の白金抵抗温度計を用いて測定されている。測定可能な温度範囲はサンプルの平均温度で280 Kから330 Kとなっており、熱伝導率範囲は $0.005 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ から $0.15 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ の範囲で測定可能となっている。また、サンプルの厚さが10 mmから300 mmであれば測定可能である。low-density fibrous-glass blanketを平均温度297 K、温度差22.2 Kで測定し

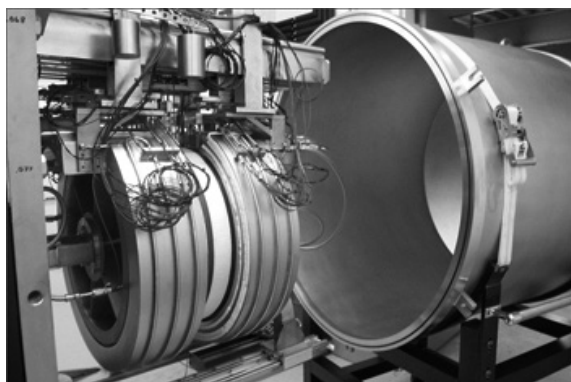


図9：NISTの直径500 mmのGHP法装置<sup>33)</sup>

実際の熱抵抗値の相対拡張不確かさは、サンプルの厚さ25.4 mmで1%、厚さ228.6 mmで3%となっている。

直径500 mmのGHP法装置<sup>31), 32)</sup>は、直径1016 mmの装置では、地面に対して水平にプレートが配置されていたのに対して、図9のように垂直にプレートが配置されている。装置構成は、直径1016 mmの装置と同様に装置の中央に加熱板があり、その両端面にサンプルを設置し、さらにその外側に冷却板を設置した形になっている。冷却板と加熱板はともに純ニッケル（ニッケル201）でできており、加熱板は厚さ16.0 mmで、直径200 mmの主熱板と0.92 mmのギャップを置き、保護熱板が設置されている。主熱板と保護熱板の温度差は、K型熱電対を用いて測定され、各プレートの温度は白金抵抗温度計を用いて測定されている。厚さ21.772 mmのnon-woven fibrous-glass blanketを平均温度293 K、温度差20 Kで測定した際の熱伝導率値の拡張不確かさは1%となっている。

### 3.2 Laboratoire National de Métrologie et d'Essais (LNE)

フランスの国立計量研究所（Laboratoire National de Métrologie et d'Essais, LNE）では、610 mm × 610 mmの角形の装置<sup>28)</sup>が開発されており、装置構成は、NISTの装置と同様に、中央の1枚の加熱板と、外側の2枚の冷却板で構成されている。冷却板は厚さが45 mmあり、水流で温度を一定に保ち、恒温槽で温度を調節している。加熱板はアルミニウムでできており、主熱板のサイズは300 mm × 300 mmとなっている。主熱板と保護熱板の温度差は、K型熱電対で測定されており、各プレートの温度測定についてもK型熱電対が用いられている。測定可能な温度範囲はサンプルの平均温度で273 Kから323 Kとなっており、熱伝導率範囲は0.0015 W m<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup>

から1.5 W m<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup>の範囲で測定可能となっている。また、サンプルの厚さが20 mmから160 mmであれば測定可能である。厚さ34.54 mmのmineral woolを平均温度296 K、温度差20 Kの条件で測定した際の熱伝導率値の拡張不確かさが1%となっている。

### 3.3 National Physical Laboratory (NPL)

イギリスの国立物理学研究所（National Physical Laboratory, NPL）では、サンプルが2枚方式の装置と1枚方式の装置が開発されており、いずれもLNEと同様に角形のプレートが配置されている。

2枚方式の装置<sup>31)</sup>では、305 mm × 305 mmの冷却板2枚と加熱板1枚で構成されている。冷却板は厚さ30 mmの銅でできており、加熱板はアルミニウム合金でできている。主熱板は150.5 mm × 150.5 mmで2 mmのギャップを空け保護熱板が設置されている。主熱板と保護熱板の温度差は、T型熱電対を用いており、各プレートの温度測定についてもT型熱電対で行われている。測定可能な温度範囲はサンプルの平均温度で98 Kから433 Kとなっており、熱伝導率範囲は0.15 W m<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup>までの範囲で測定可能となっている。また、サンプルの厚さが65 mmまでであれば測定可能である。厚さ20.967 mmのnon-woven fibrous-glass blanketを平均温度293 K、温度差20 Kで測定した際の熱伝導率値の拡張不確かさは1.8%となっている。

1枚方式の装置<sup>28)</sup>では、610 mm × 610 mmの冷却板と加熱板それぞれ1枚で構成されている。冷却板と加熱板はともに銅でできている。加熱板の測定領域の面積は305 mm × 305 mmで保護熱板とのギャップは2 mmである。温度測定はすべてE型熱電対で行われている。測定可能な温度範囲はサンプルの平均温度で278 Kから313 Kとなっており、熱伝導率範囲は0.1 W m<sup>-1</sup> K<sup>-1</sup>までの範囲で測定可能となっている。また、サンプルの厚さが20 mmから250 mmの範囲であれば測定可能である。厚さ34.62 mmのmineral woolを平均温度296 K、温度差20 Kで測定した際の熱伝導率値の拡張不確かさは1.5%となっている。

### 3.4 Mendeleev Institute for Metrology (VNIIM)

ロシアのMendeleev Institute for Metrology (VNIIM)では、2枚の角形の冷却板と1枚の円形の加熱板で構成された装置<sup>28)</sup>が開発されている。加熱板は厚さが0.67 mmで直径が300 mm、測定領域の直径が150 mmとなっている。加熱板の温度測定には、T型熱電対が用いられており、冷却板には白金抵抗温度計が用いられて

いる。測定可能な温度範囲はサンプルの平均温度で 248 K から 343 K、熱伝導率範囲は  $0.02 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  から  $0.2 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  の範囲で測定可能となっている。また、測定可能なサンプルの厚さの範囲は 20 mm から 80 mm である。平均温度 296 K、温度差 20 K で厚さ 34.50 mm の mineral wool を測定した際の熱伝導率値の拡張不確かさは 0.6 % となっている。

### 3.5 National Institute of Metrology (NIM)

中国の National Institute of Metrology (NIM) で開発された装置は、円形の冷却板と加熱板それぞれ 1 枚で構成された装置<sup>28)</sup>になっており、加熱板の直径が 337 mm で、測定領域の直径が 200 mm となっている。測定可能な温度範囲は 293 K 以上で、熱伝導率範囲は  $0.05 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  から  $2.0 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 、サンプルの厚さの範囲は 20 mm から 80 mm となっている。厚さ 34.67 mm の expanded polystyrene を平均温度 296.4 K、温度差 20 K で測定した際の熱伝導率値の拡張不確かさは 1.5 % 以下となっている。

### 3.6 Centro Nacional de Metrología (CENAM)

メキシコの Centro Nacional de Metrología (CENAM) では、直径 305 mm の冷却板 2 枚と加熱板 1 枚で構成された装置<sup>28)</sup>が開発されている。いずれの熱板も銅製で、厚さは冷却板が 27 mm、加熱板が 12 mm となっている。測定領域の直径は 150 mm で、全ての温度測定は T 型熱電対を用いて行われている。測定可能な温度範囲は 268 K から 333 K、熱伝導率範囲は  $0.03 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  から  $0.17 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ 、測定可能なサンプルの厚さの範囲は 50 mm までとなっている。厚さ 34.50 mm の mineral wool を平均温度 296.2 K、温度差 20 K で測定した際の熱伝導率値の拡張不確かさは 1.2 % となっている。

### 3.7 Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB)

ドイツの物理工学研究所 (Physikalisch-Technische Bundesanstalt, PTB) では、直径 100 mm、厚さ 5 mm から 25 mm のサンプルを対象とした装置<sup>28)</sup>が開発された。ニッケルメッキした銅でできた冷却板と加熱板が 1 枚ずつ設置されており、温度は T 型熱電対により測定されている。測定可能な温度範囲は 223 K から 468 K で、熱伝導率範囲は  $0.02 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  から  $7.0 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  となっている。サンプルの厚さの範囲は 5 mm から 25 mm であれば測定可能となっている。厚さ 19.98 mm の expanded polystyrene を平均温度 296 K、温度差 20 K で測定した際の熱伝導率値の拡張不確かさは 3 % となっている。

### 3.8 National Metrology Institute of Japan (NMIJ)

日本の計量標準総合センター (National Metrology Institute of Japan, NMIJ) では、200 mm × 200 mm の加熱板と冷却板で構成された装置<sup>34)</sup>がある。主熱板は 100 mm × 100 mm になっており、保護熱板との間に 1 mm のギャップがある。この装置を用いた室温での熱流センサーの校正が行われている。また、国内では NMIJ の他に、建材試験センター (Japan Testing Center for Construction Materials, JTCCM) で GHP 法による 300 mm × 300 mm で厚さ 50 mm までのサンプルを対象とした常温域の 263 K から 343 K と直径 300 mm で厚さ 20 mm から 50 mm までのサンプルを対象とした高温域の 373 K から 873 K での建築材料の熱伝導率試験<sup>35), 36)</sup>が行われている。

### 3.9 NMI での装置開発の現状まとめ

以下の表 3 は以上で紹介した装置の性能について一部抜粋してまとめたものであり、図 10 は横軸に測定可能

表 3：各国の NMI で開発された GHP 法装置<sup>28), 31), 34)</sup>

	NIST (米)	LNE (仏)	NPL (英)	VNIIM (露)	NIM (中)	CENAM (墨)	PTB (独)	NMIJ (日)
サンプル数	2 枚	2 枚	2 枚	2 枚	1 枚	2 枚	1 枚	1 枚
サンプル形状 (mm)	直径 1016	610 × 610	305 × 305	直径 330	直径 337	直径 305	直径 100	200 × 200
測定領域 (mm)	直径 406.4	300 × 300	150.5 × 150.5	直径 150	直径 200	直径 165	-	100 × 100
温度範囲 (K)	280 to 338	273 to 323	98 to 433	248 to 343	≥ 293	268 to 333	223 to 468	室温
サンプルの厚さ (mm)	10 to 300	20 to 160	≤ 65	20 to 80	20 to 80	≤ 50	5 to 25	≤ 50
熱伝導率範囲 ( $\text{W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ )	0.005 to 0.15	0.0015 to 1.5	≤ 0.15	0.02 to 0.2	0.05 to 2	0.03 to 0.17	0.02 to 7	≤ 100 $\text{W m}^{-2}$ (熱流密度) *

な温度範囲、縦軸に測定可能な熱伝導率範囲をとったものである。表3の測定領域の大きさが示すように、建材等の断熱材を対象としていることもあり、最も面積の小さいものがPTBの直径100mmの装置となっている。

また、図10について、温度範囲に注目すると、7つの研究所の装置で300K付近で重なっていることが分かる。次に、縦軸の熱伝導率範囲に注目すると、 $0.01 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  から  $0.1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  の低熱伝導率側は多くの装置で測定可能となっているが、 $1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  以上の熱伝導率が測定可能な装置となると限られている。

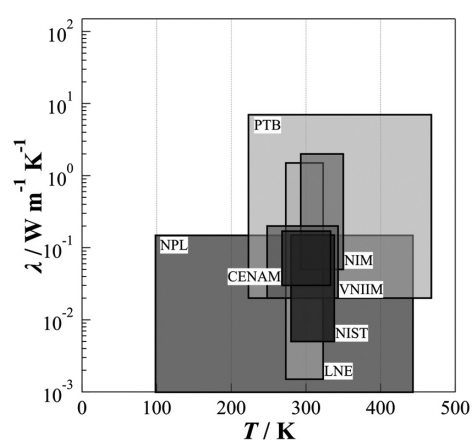


図10：各NMIのGHP法装置の測定可能範囲<sup>28), 31)</sup>

そして、グラフ全体でみると、200K以下の低温で、 $0.1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  以上の範囲が空白となっていることが分かる。 $0.1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  以上の熱伝導率をもつ素材の例を挙げると、石英ガラス ( $1.4 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ )、コンクリート ( $1.6 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ )、SUS 304 ( $16.7 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$ ) 等があるが、これらの素材は低温でも使用されることが予想される。また、実材料に近いものになると、サンプルに不均質性が現れる可能性があるため、この範囲を測定可能な定常法の熱伝導率計測装置の開発が必要となる。

#### 4 標準物質の現状

現在、一般的な建築材料としての断熱材を評価するための装置を対象として、低熱伝導率の板材の標準物質が多く頒布されている。以下では、このような熱伝導率標準物質について過去に頒布されていたものも含めていくつか紹介する。

表4に示すように  $10^{-2} \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  オーダーの低熱伝導率の標準物質については、NISTからSRM 1450e (Thermal Conductivity - Fibrous Glass Board)<sup>32)</sup>、SRM 1452 (Fibrous Glass Blanket for High Precision Measurements)<sup>37)</sup>、SRM 1453 (Thermal Conductivity - Expanded Polystyrene Board)<sup>38)</sup> の3種類が頒布されている。また、欧州委員会共同研究センター (Joint Research Centre, European Commission, JRC) からはIRMM-440C

表4：熱伝導率標準物質<sup>32), 37)-48)</sup>

番号	名称	機関	温度範囲 (K)	サンプル形状 (mm)
SRM 1450e	Thermal Conductivity - Fibrous Glass Board	NIST	280 to 360	610 × 610 × 25
SRM 1452	Fibrous Glass Blanket for High Precision Measurements	NIST	297.1	600 × 600 × 25.4
SRM1453	Thermal Conductivity - Expanded Polystyrene Board	NIST	281 to 313	930 × 660 × 13.4
IRMM-440C	Resin-Bonded Glass Fibre Board	JRC	263 to 323	600 × 600 × 34.2
ERM-FC440	Resin-Bonded Glass Fibre Board	JRC	263 to 343	a : 300 × 300 × 28 b : 500 × 500 × 28 c : 600 × 600 × 28
NMIJ RM 1401-a	等方性黒鉛	NMIJ	300 to 900	直径10 × 厚さ1.0及び2.0
RM 8420	Electrolytic Iron	NIST	2 to 1000	直径6.4 × 長さ50
SRM 1460, 1461, 1462 (頒布終了)	Austenitic Stainless Steel	NIST	2 to 1200	SRM 1460 : 直径6.4 × 長さ50 SRM 1461 : 直径12.7 × 長さ50 SRM 1462 : 直径34 × 長さ50
RM 8422, 8423 (頒布終了)	Sintered Tungsten	NIST	2 to 3000	RM 8422 : 直径3.2 × 長さ50 RM 8423 : 直径6.4 × 長さ50
RM 8424, 8425, 8426 (頒布終了)	Graphite	NIST	5 to 2500	RM 8424 : 直径6.4 × 長さ50 RM 8425 : 直径12.7 × 長さ50 RM 8426 : 直径25.4 × 長さ50

(Resin-Bonded Glass Fibre Board)<sup>39), 40)</sup>とその置き換えとしてERM-FC440 (Resin-Bonded Glass Fibre Board)<sup>41)</sup>が頒布されている。熱伝導率がより高い範囲で、現在も入手可能な標準物質は、NMIJからNMIJ RM 1401-a (等方性黒鉛)<sup>42)</sup>、NISTからRM 8420 (Electrolytic Iron)<sup>43), 44)</sup>の2種類がある。過去にNISTからSRM 1460, 1461, 1462 (Austenitic Stainless Steel)<sup>44), 45)</sup>、RM 8422, 8423 (Sintered Tungsten)<sup>44), 46)</sup>、RM 8424, 8425, 8426 (Graphite)<sup>47), 48)</sup>等の頒布があったが現在は終了し、在庫もない状態となっている。

標準物質の形状については、低熱伝導率のものは、すべて厚さの薄い大きな板状試料となっている。ERM-FC440については、厚さが28 mmで共通の平面サイズの異なるものがa, b, cの3種類あり、aが300 mm × 300 mm、bが500 mm × 500 mm、cが600 mm × 600 mmである。一方、NISTが頒布していた熱伝導率の高い標準物質はロッド状試料が中心となっている。

また、図11にそれぞれの標準物質の値をプロットしたグラフを示す。温度範囲は表4と図11で示したように、低熱伝導率の5種の標準物質が一般的な建築材料の評価のため、室温付近を対象としている。温度範囲はそれぞれSRM 1450eが280 Kから360 K、SRM 1452が297.1 K、SRM 1453が281 Kから313 K、IRMM-440Cが263 Kから323 K、ERM-FC440が263 Kから343 Kとなっている。

高熱伝導率の頒布終了しているものを含めた5種は、低温から高温まで広く対応しており、NMIJ RM 1401-aが300 Kから900 K、RM 8420が2 Kから1000 K、SRM 1460, 1461, 1462が2 Kから1200 K、RM 8422, 8423が2 Kから3000 K、RM 8424, 8425, 8426が5 Kから2500 Kとなっている。

室温以下の低温域について注目すると、図11(a)が示すように現在ではRM 8420が2 Kから1000 Kまで広く対応しており、低熱伝導率のものの場合、JRCのIRMM-440CとERM-FC440が263 Kまで対応している。図11(b)は低熱伝導率の標準物質に絞って(a)のグラフを拡大したものであり、このグラフが示すように、JRCが頒布している2種については、263 K以下の温度域の熱伝導率が参考値として与えられている。

これらのことが示すように、現在、低温域の熱伝導率の標準物質は少なく、今後、需要が見込まれるこの温度域での熱伝導率の標準物質の整備が必要になると予想される。

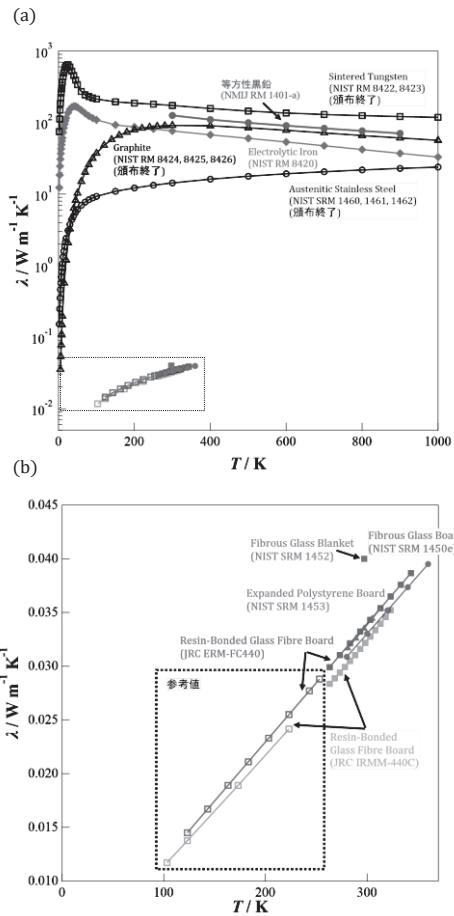


図11：熱伝導率標準物質の熱伝導率値 ((b)は(a)の点線部を拡大) 32), 37)-48)

## 5 今後の装置開発

定常法による熱伝導率計測技術において高精度な測定が可能な手法としてGHP法があるが、室温以下の低温で石英ガラス、コンクリート、SUS 304といった建築材料としてよく用いられる素材の熱伝導率範囲である  $0.1 \text{ W m}^{-1} \text{K}^{-1}$  から  $100 \text{ W m}^{-1} \text{K}^{-1}$  の範囲が空白領域となっており、この領域を測定可能な装置の開発が必要となる。

測定可能な熱伝導率範囲を広げるにあたって、定常法での熱伝導率測定では、測定時にサンプル中に一定の温度勾配をつける必要があるが、従来のGHP法のように板状のサンプルでは、サンプルの熱伝導率が高くなるにつれて、熱が伝わりやすくなり、サンプルの両端で一定の温度差を保つことが難しくなり、測定が困難になることが想定される。これを解決するため、サンプルの形状

をロッド状にし、熱流が流れる面積を狭く、高温側と低温側の距離を離して、温度差のつく条件下での測定が可能な装置の開発が必要となる。

また、定常法による熱伝導率計測を行う上で、測定中のサンプルに流れる熱流をフーリエの法則が成り立つ理想的な1次元熱流に近づけることが最も重要である。しかし、サンプルをロッド状にすることにより、側面からの熱損失により、熱流に影響が出ることが危惧される。そこで、サンプル側面からの熱損失を抑えた測定環境となる装置の設計が重要となる。

これらのことを考慮に入れ開発した装置のサンプル固定部及びその周辺の概略図を図12に示す。図12(a)は、サンプル固定部の概略図である。サンプルとヒーターブロック及びヒートシンクとの接触を良くし、界面熱抵抗の影響を小さくするため、ヒーターブロック及びヒートシンクはC型クランプ状にし、サンプルを包み込む形で固定する。

しかし、C型クランプ状にすることにより、ヒーターブロック及びヒートシンク周辺ではサンプル中の熱流が1次元ではなく、サンプルの中心方向への熱流が生じる。そのため、熱伝導率を求める際の温度差は、熱源から離れたサンプル途中の熱流が1次元になっている2点で温度測定を行う。この際、測温部とサンプルとの間での熱の移動を小さくするため、図12(c)に示したナイフエッジクランプに温度計を取り付け、温度測定を行う。また、ナイフエッジクランプを用いることにより、温度差 $\Delta T$

を測定する距離 $L$ を任意に決めることが可能となる。

熱流 $Q$ については、従来のGHP法と同様にヒーターに加えるエネルギー量によって制御する。

また、1次元熱流の実現については、サンプルからの熱損失として、接触による固体熱伝導、非接触の対流と輻射による影響がある。接触については、測温部をナイフエッジクランプにすることで接触箇所を小さくするといった対策を行う。対流については、測定を $4 \times 10^{-4}$  Pa程度の真空下で行うことにより、サンプル側面からの対流による熱損失を低減する。そして、輻射については、図12(b)に示したサンプル固定部周辺のように、輻射シールドを設置することで抑える。輻射シールドは、GHP法のようにヒーターブロックと温度差がないように制御しているガードヒーターに加えて、ヒートシンク側で冷却ステージと接触した輻射シールドとそれらの間をつなぐサンプル周りのシールドを設置することにより、サンプルからの輻射による熱損失を低減する。また、定常状態に達するまで待つ必要があり、測定が長時間になるため、装置全体の冷却はギフォード・マクマホン(Gifford-McMahon, GM)冷凍機を用いた寒剤を用いず、長時間の連続運転が可能な手法で行う。

現在のサンプル固定用治具では、直径10 mm×長さ100 mmのロッド状試料とサンプル形状が決められた構造となっているが、熱伝導率の範囲や材料によってはこの形状での測定が難しい場合がある。そのため、将来的に測定するサンプルの熱伝導率範囲や材質に合わせた形状で測定が行えるように様々な形状の固定用治具の設計・作製を行い、測定可能な熱伝導率範囲とサンプル形状の拡張を進める。

## 6 まとめ

本調査研究において、室温以下における定常法による熱伝導率計測技術及び標準供給の現状について調査を行い、今後の室温以下における熱伝導率計測技術の開発の方向性を検討した。

まず、熱伝導率計測手法は定常法と非定常法に分けることができる。定常法による測定では、実材料に近いサンプルの測定を行うことができ、その中で精度の高い測定が可能な保護熱板法(GHP法)の装置開発が各国の国家計量標準機関(NMI)で行われている。しかし、測定可能な温度範囲が室温付近のものが多く、低温まで測定可能な装置は少ない。また、標準物質の供給については、 $10^{-2} \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  オーダーの低熱伝導率のものが室温付近の温度範囲でいくつか頒布されている。低温域の標

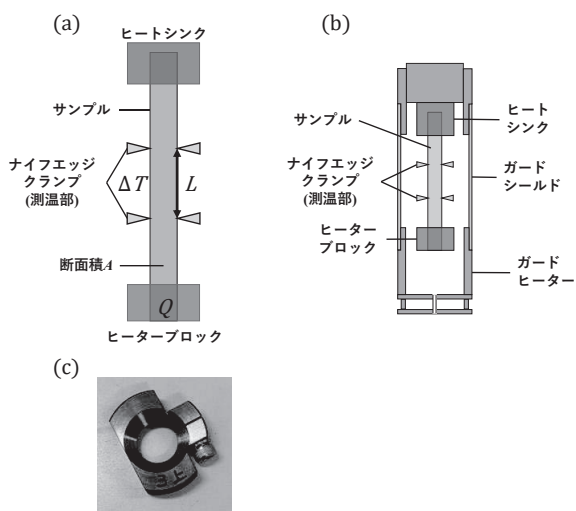


図12: 開発中の装置 (a) サンプル周りの概略図, (b) サンプル固定部周りの概略図, (c) ナイフエッジクランプ

準物質に関しては、現在は、RM 8420 (Electrolytic Iron) のように 2 K まで対応しているものがあるが数は少ない。

これらの調査から、低温域において  $0.1 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  から  $100 \text{ W m}^{-1} \text{ K}^{-1}$  の範囲が空白領域となっていることが示された。そのため、この空白領域を測定できる装置の開発が必要であると考えられる。

今後は、装置開発を進め、サンプルの熱伝導率範囲や材質に合わせた形状での測定が行えるよう固定用治具の設計を行い、測定可能範囲の拡張を進める。

## 謝辞

本調査研究を行うにあたり、ご指導・ご意見を賜りました熱物性標準研究グループの阿部陽香主任研究員、八木貴志グループ長に深く感謝の意を表すとともに厚く御礼申し上げます。本調査研究報告のプレゼンテーション及び執筆において有益なご意見を賜りました物質計測標準研究部門の稲垣和三副研究部門長、阿子島めぐみ副研究部門長、権太聡研究部門長に深く感謝いたします。最後に、本調査研究において、様々な面から支援してくださった物質計測標準研究部門熱物性標準研究グループの皆様へ深く感謝します。

## 参考文献

- 2050 年に向けたガス事業の在り方研究会 中間とりまとめ. 資源エネルギー庁. 2021-04.
- 堀和秀. 液化天然ガス [ えきかてんねんがす ]. JOGMEC 石油・天然ガス資源情報ウェブサイト. 2010-02 改訂. <https://oilgas-info.jogmec.go.jp/term/1000297/1000324.html>. ( 参照 2024-10-03 ).
- 山下誠二, 新郷正志, 海野峻太郎, 今井達也, 洲河誠一. *Journal of Japan Society of Energy and Resources*, 37, 4 (2016).
- E. Lisowski and F. Lisowski. *Thermal Science*, 23, 1381-1391 (2019).
- J. H. Park, N. Kim, and J. I. Lee. *Energy*, 291, 130265 (2024).
- H. Chen, G. Yang, and J. Wu. *Energy*, 283, 128503 (2023).
- 荒木信幸. 機械の研究, 35, 1121-1128 (1983).
- A. Palacios, L. Cong, M. E. Navarro, Y. Ding, and G. Barreneche. *Renewable and Sustainable Energy Reviews*, 108, 32-52 (2019).
- H.-P. Ebert and S. Vidi. *International Journal of Thermophysics*, 45, 20, (2024).
- N. Yüksel. *Insulation Materials in Context of Sustainability*, (2016).
- JIS A 1412-3:1999, 熱絶縁材の熱抵抗及び熱伝導率の測定方法—第 3 部: 円筒法.
- S. E. Gustafsson. *Review of Scientific Instruments*, 62, 797-804, (1991).
- S. G. R. Salim. *Measurement Science and Technology*, 33, 125022, (2022).
- W. J. Parker, R. J. Jenkins, C. P. Butler, and G. L. Abbott. *Journal of Applied Physics*, 32, 1679-1684, (1961).
- S. Sandell, E. Chávez-Ángel, A. E. Sachat, J. He, C. M. S. Torres, and J. Maire. *Journal of Applied Physics*, 128, 131101, (2020).
- ISO 8302:1991, Thermal insulation - Determination of steady-state thermal resistance and related properties - Guarded hot plate apparatus.
- JIS A 1412-1:2016, 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 (GHP 法).
- ASTM C177-19e1, Standard Test Method for Steady-State Heat Flux Measurements and Thermal Transmission Properties by Means of the Guarded-Hot-Plate Apparatus.
- DIN EN 12664:2001-05, Thermal performance of building materials and products - Determination of thermal resistance by means of guarded hot plate and heat flow meter methods - Dry and moist products with medium and low thermal resistance.
- DIN EN 12667:2001-05, Thermal performance of building materials and products - Determination of thermal resistance by means of guarded hot plate and heat flow meter methods - Products of high and medium thermal resistance.
- ISO 8301:1991/Amd 1:2010, Thermal insulation - Determination of steady-state thermal resistance and related properties - Heat flow meter apparatus.
- JIS A 1412-2:1999, 熱絶縁材の熱抵抗及び熱伝導率の測定方法—第 2 部: 熱流計法 (HFM 法).
- ASTM C518-21, Standard Test Method for Steady-State Thermal Transmission Properties by Means of the Heat Flow Meter Apparatus.
- C. Stacey, A. J. Simpkin, and R. N. Jarrett. *International Journal of Thermophysics*, 37, 107, (2016).
- ASTM E1530-25, Standard Test Method for Evaluating the Resistance to Thermal Transmission by the Guarded

- Heat Flow Meter Technique.
- 26) Z. Bulinski, S. Pawlak, T. Kryszynski, W. Adamczyk, and R. Biatecki. *Journal of Achievements in Materials and Manufacturing Engineering*, 95, 57-63 (2019).
  - 27) ASTM D5470-17R24, Standard Test Method for Thermal Transmission Properties of Thermally Conductive Electrical Insulation Materials.
  - 28) B. Hay, R. Zarr, C. Stacey, N. Sokolov, L. Lira-Cortes, J. Zhang, U. Hammerschmidt, J.-R. Filtz, and A. Allard. *Metrologia*, 57, 03003 (2020).
  - 29) R. R. Zarr. *J. Res. Natl. Inst. Stand. Technol.*, 115, 23-59 (2010).
  - 30) W. C. Thomas and R. R. Zarr. *ISA Transactions*, 50, 504-512 (2011).
  - 31) R. R. Zarr, J. Wu, and H.-K. Liu. *Natl. Inst. Stand. Technol. Tech. Note*, 2059 (2020).
  - 32) R. R. Zarr and N. A. Heckert. *Natl. Inst. Stand. Technol. Spec. Publ.*, 260-201 (2020).
  - 33) Line Heat-Source Guarded Hot Plate\_NIST. 2024-06-24 更新 . <https://www.nist.gov/laboratories/tools-instruments/line-heat-source-guarded-hot-plate>. (参照 2024-08-07) .
  - 34) 阿子島めぐみ, 山田修史, 阿部陽香. *低温工学*, 56, 24-31 (2021).
  - 35) 一般財団法人建材試験センター. 建築材料の熱性能 .[https://www.jtccm.or.jp/exam/quality/environment/02#environment-02\\_08](https://www.jtccm.or.jp/exam/quality/environment/02#environment-02_08). (参照 2024-11-01)
  - 36) 藤本哲夫. *建材試験情報*, 38, 25-29 (2002).
  - 37) J. G. Hust. *Natl. Bur. Stand. (U.S.), Spec. Publ.*, 260-103 (1985).
  - 38) R. R. Zarr and A. L. Pintar. *Natl. Inst. Stand. Technol. Spec. Publ.*, 260-175 (2012).
  - 39) S. Quin, G. Venuti, F. De Ponte, and A. Lamberty. *EUR 19572 EN*, (2000).
  - 40) A. Koenen, C. Stacey, E. Rasmussen, R. Schreiner, G. Swołek, and T. Linsinger. *EUR 19572 EN*, (2015).
  - 41) T. P. J. Linsinger. *EUR 30859 EN*, (2021).
  - 42) 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. 標準物質分析成績書. 標準物質 NMIJ RM 1401-a 熱伝導率標準物質 (等方性黒鉛) (2020).
  - 43) J. G. Hust and A. B. Lankford. National Bureau of Standards. Report of Investigation. Research Materials 8420 and 8421. Electrolytic Iron. Thermal Conductivity ( $\lambda$ ) and Electrical resistivity ( $\rho$ ) as a Function of Temperature from 2 to 1000 K. (1984).
  - 44) J. G. Hust and A. B. Lankford. *Natl. Bur. Stand. (U.S.), Spec. Publ.*, 260-90 (1984).
  - 45) J. G. Hust and A. B. Lankford. National Bureau of Standards. Certificate. Standard Reference Materials 1460, 1461, and 1462. Austenitic Stainless Steel. Thermal Conductivity ( $\lambda$ ) and Electrical resistivity ( $\rho$ ) as a Function of Temperature from 2 to 1200 K. (1984).
  - 46) J. G. Hust and A. B. Lankford. National Bureau of Standards. Report of Investigation. Research materials 8422 and 8423. Sintered Tungsten. Thermal Conductivity ( $\lambda$ ) and Electrical resistivity ( $\rho$ ) as a Function of Temperature (IPTS-68 and NBS P2-20) from 2 to 3000 K. (1984).
  - 47) J. G. Hust and A. B. Lankford. National Bureau of Standards. Report of Investigation. Research Materials 8424, 8425, and 8426 Graphite Thermal conductivity ( $\lambda$ ) and electrical Resistivity ( $\rho$ ) as a Function of Temperature (IPTS-68 and NBS P2-20) from 5 to 2500 K. (1984).
  - 48) J. G. Hust. *Natl. Bur. Stand. (U.S.), Spec. Publ.*, 260-89 (1984).