

京都教育大学

2020 年度 修士論文

LHC の高輝度化計画に向けた ATLAS 実験用
シリコンピクセル検出器のための
熱伝導接着剤の熱伝導性評価

教科教育専攻 理科教育専修
藤野 大地

指導教員 高嶋隆一
谷口和成

概要

CERN（欧州合同原子核研究機構）は LHC（大型ハドロン衝突型加速器）を運用し世界最高エネルギーの陽子・陽子衝突実験を進め新たな物理事象の探索を行っている。この LHC の各衝突点では様々な国際共同実験が行われており、ATLAS（A Toroidal LHC ApparatuS）実験もその中の 1 つである。LHC では更なる高統計を得るため、高輝度（HL: High Luminosity）化計画が進められている。LHC の高輝度化（HL-LHC）により、ATLAS 検出器の内部飛跡検出器に新たに実装予定の新型シリコンピクセル検出器には厳しい放射線耐性が要求される。新型シリコンピクセル検出器の読み出しチップは運転中に発熱するため、熱伝導接着剤により冷却部に接着し、排熱を行う必要がある。この熱伝導接着剤にも、高輝度化に伴う厳しい放射線環境への耐性が要求される。

本研究では、熱伝導接着剤に運転中の環境を想定した放射線照射試験を行い、照射前後における熱伝導率を測定し熱伝導接着剤の放射線耐性評価を行った。

接着剤の熱伝導率測定においては、接着剤のみのサンプル（ベアサンプル）の作成や、「femtet」を用いた熱伝導解析を行うなどして手法を改善し測定精度を向上させた。

また、エポキシ樹脂とフィラーを混合し、熱伝導接着剤の自作を試みたが満足な結果を得られなかった。

高熱伝導性万能エポキシ注型樹脂「STYCAST 2850FTJ with CAT9M」について、放射線照射試験の前後で熱伝導率測定を行い、照射による熱伝導率の低下が起きなかったことを確認し、熱伝導率に関して放射線耐性に問題はないと評価した。

STYCAST 2850FTJ の熱伝導率測定用サンプルが照射試験後に膨張した原因の追究と、高輝度化後の検出器の運転において問題が起きないかの検証を今後の課題とした。

目次

1 序論	6
1.1 標準模型	6
1.2 ATLAS 実験	7
1.2.1 LHC	7
1.2.2 ATLAS 検出器	8
1.2.3 HL-LHC 計画	9
2 シリコンピクセル検出器	11
2.1 新型シリコンピクセル検出器の概要	11
2.2 熱伝導接着剤	13
3 検出器組み立てに用いる熱伝導接着剤の候補	15
4 熱伝導率測定手法の確立	18
4.1 定常法	18
4.2 熱伝導率測定装置の概要	19
4.3 熱伝導シート	20
4.4 アルミコインサンプルの熱伝導率測定	21
4.4.1 アルミコインサンプルの作成手順	21
4.4.2 定常法による試料上下の温度差の測定	22
4.4.3 アルミコインサンプルの熱伝導率測定結果と考察	23
4.5 ベアサンプルの熱伝導率測定	25
4.5.1 ベアサンプルの作成手順	25
4.5.2 ベアサンプルの熱伝導率測定結果と考察	27
4.6 熱伝導解析	28
4.6.1 モデリング	28
4.6.2 シミュレーションでできること	29
4.6.3 解析結果と考察	30
4.7 熱伝導解析によって立てた仮説の検証	35
5 熱伝導接着剤の熱伝導性評価	37
5.1 熱伝導接着剤の自作	37

5.2 STYCAST 2850FTJ の放射線耐性評価.....	40
5.2.1 照射試験用ベアサンプルの作成.....	40
5.2.2 照射前の熱伝導率測定.....	41
5.2.3 放射線照射試験後のサンプルの状態.....	43
5.2.4 照射後の熱伝導率測定.....	45
6 結言	47
謝辞	48
参考文献.....	48

図目次

図 1-1 標準模型を構成する粒子	6
図 1-2 LHC の全体図	7
図 1-3 ATLAS 検出器	8
図 1-4 内部飛跡検出器.....	9
図 1-5 高輝度化計画	9
図 2-1 新型シリコンピクセル検出器の概要.....	11
図 3-1 窒化アルミニウム粉末の粒径分布図.....	17
図 4-1 定常法	18
図 4-2 熱伝導率測定装置（左：イラスト、中央：実物、右：試料台部分拡大図）	19
図 4-3 熱伝導シート	20
図 4-4 左：丸抜きカッター、右上：銅板・アルミコイン・スペーサー、右下:完成サンプル	21
図 4-5 熱伝導シートで挟んだサンプルのイメージ.....	22
図 4-6 左：手順 1 の真空攪拌装置、右上：モーター先端のイメージ図、右下：手順 2.....	25
図 4-7 手順 3 でテフロン板の上から銅板を乗せて接着剤の硬化待ち中.....	26
図 4-8 左：丸抜きカッター、 右：打ち抜いた接着剤（STYCAST）	26
図 4-9 熱伝導率測定装置のモデリング	28
図 4-10 熱伝導解析の例（左表は温度の解析値と実測値の比較）	29
図 4-11 熱流束分布の比較（左：直径 12 MM、右：直径 20 MM）	31
図 4-12 上側のアルミ支柱の中央部分.....	32
図 4-13 サンプル中心部と外周部の温度比較（サンプルの厚さ 左：0.1 MM, 右：2.0 MM）	34
図 5-1 E2420 + ALN のベアサンプル.....	37
図 5-2 E2420 + ALN の熱伝導率	39
図 5-3 左：E2420 + ALN（60 %）、 右：E2420 + ALN（70 %）	39
図 5-4 STYCAST 2850FTJ 照射用サンプル	40
図 5-5 サンプル寸法の測定位置.....	41
図 5-6 照射試験後のサンプル.....	43
図 5-7 「PA-1000 RADI（ラディ）」で照射サンプルの放射線量を測定	44

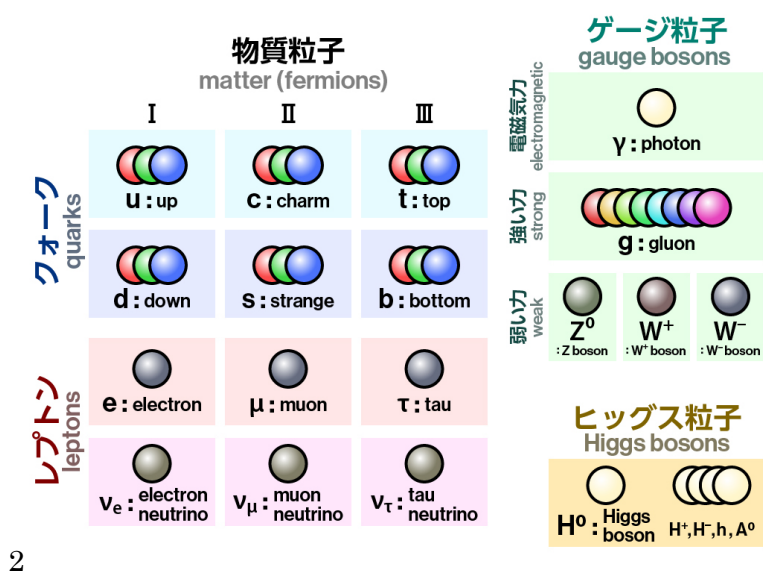
表目次

表 2-1	STYCAST 2850FTJ WITH CAT9M のデータシートの抜粋.....	13
表 3-1	熱伝導接着剤候補一覧.....	15
表 3-2	接着剤候補一覧（熱伝導接着剤自作用）	16
表 4-1	STYCAST のアルミコインサンプルで測定した温度差（K）（左： $\Delta T1$ ，右： $\Delta T2$ ）	23
表 4-2	アルミコインサンプルで測定した STYCAST の熱伝導率.....	24
表 4-3	STYCAST のベアサンプルで測定した温度差（K）（左： $\Delta T1$ ，右： $\Delta T2$ ）	27
表 4-4	ベアサンプルで測定した STYCAST の熱伝導率	27
表 4-5	熱伝導解析による熱伝導率計算結果.....	30
表 4-6	点 A の温度を室温に合わせて解析・熱伝導率計算結果.....	32
表 4-7	直径 12 MM のサンプルで点 A を室温にした際の解析・熱伝導率計算結果	33
表 4-8	ベアサンプル測定時の点 A の温度	35
表 4-9	STYCAST のベアサンプルで測定した温度差（K）（左： $\Delta T1$ ，右： $\Delta T2$ ）	36
表 4-10	ベアサンプルで測定した STYCAST の熱伝導率	36
表 5-1	E2420 + ALN のサンプルで測定した温度差（K）（左： $\Delta T1$ ，右： $\Delta T2$ ）	37
表 5-2	E2420 + ALN のサンプルの熱伝導率測定結果.....	38
表 5-3	BRUGGEMAN の式による、E2420 + ALN の熱伝導率の理論値（左）	38
表 5-4	STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルの寸法.....	41
表 5-5	STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルで測定した温度差 $\Delta T1$ （K）	42
表 5-6	STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルで測定した温度差 $\Delta T2$ （K）	42
表 5-7	STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルの照射前の熱伝導率測定結果	42
表 5-8	「PA-1000 RADI（ラディ）」で測定した放射線量.....	44
表 5-9	照射前後におけるサンプルの厚さの比較	45
表 5-10	STYCAST 2850FTJ 照射後のサンプルで測定した温度差 $\Delta T1$ （K）	45
表 5-11	STYCAST 2850FTJ 照射後のサンプルで測定した温度差 $\Delta T2$ （K）	46
表 5-12	STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルの照射後の熱伝導率測定結果	46

1 序論

1.1 標準模型

標準模型を構成する粒子は図 1-1 に示すように、それぞれ 3 世代 6 種類のクォークとレプトン、電磁気力、強い力、弱い力に対応するゲージ粒子、質量の起源であるヒッグス粒子からなる。2012 年にヒッグス粒子が発見されたことにより、全ての粒子の存在が確認された。



2

図 1-1 標準模型を構成する粒子

出典： HiggsTan 標準模型の素粒子一覧

<https://higgstan.com/standerd-model/>

現在発見されている自然現象や、力の相互作用を説明するために作られた標準模型は、今日の素粒子物理学に関する実験結果をほとんど説明することができる。しかし、暗黒物質の正体や、ニュートリノ振動の発見について等、標準模型では説明できない事象が存在しており、標準模型を超える理論についての研究が盛んに行われている。

1.2 ATLAS 実験

1.2.1 LHC

LHC (大型ハドロン衝突型加速器) は、スイスとフランスにまたがって存在する周長 27 km の巨大な円形加速器である。CERN (欧州合同原子核研究機構) は LHC を運用し世界最高エネルギーの陽子・陽子衝突実験を進め新たな物理事象の探索を行っている。ビームの重心系エネルギーは 13 TeV であり将来的には 14 TeV まで引き上げられる。

この LHC の各衝突点では様々な国際共同実験が行われており、ATLAS (A Toroidal LHC ApparatuS) 実験もその中の 1 つである。ほかに、CMS (Compact Muon Solenoid) 実験や LHCb (LHC-beauty) 実験、ALICE (A Large Ion Collider Experiment) 実験などが行われている (図 1-2)。

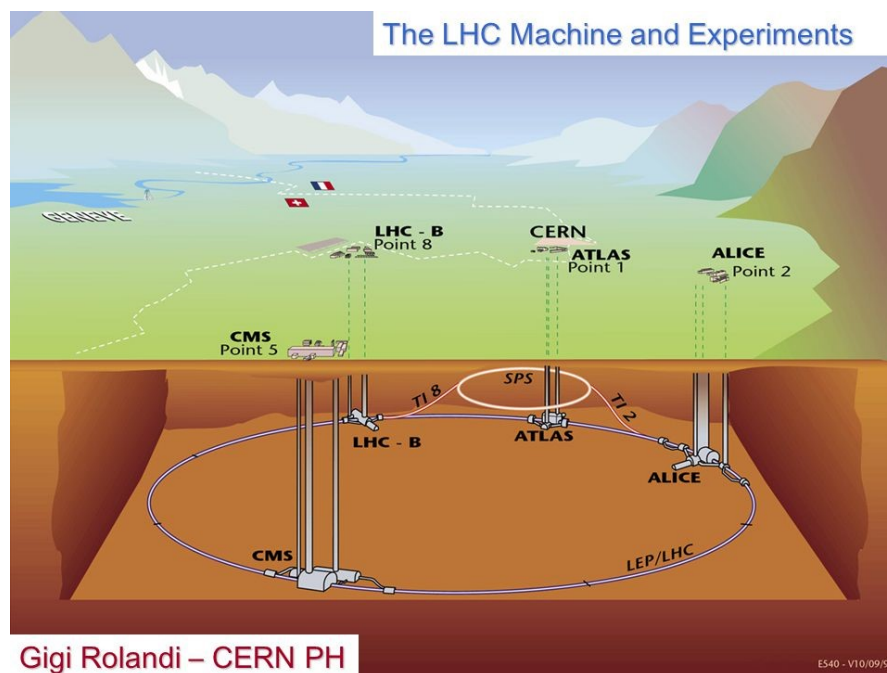


図 1-2 LHC の全体図

1.2.2 ATLAS 検出器

ATLAS 実験で用いている ATLAS 検出器は、直径約 24m、長さ約 44 m、総質量は約 7500 トンの巨大な円筒形の汎用型検出器である（図 1-3）。ビーム同士の衝突点にあたる円筒の中心から順に、内部飛跡検出器、電磁カロリメータ、ハドロンカロリメータ、ミューオンスペクトロメータが衝突点を覆うように存在する。内部飛跡検出器と電磁カロリメータの間にはソレノイド磁石が、カロリメータの外側にはトロイド磁石があり、粒子の飛跡の曲率から運動量を測定するため、それぞれ内部飛跡検出器を通る荷電粒子とミューオンを曲げる役割を持つ。

内部飛跡検出器は、IBL（Insertable B-Layer）、ピクセル検出器、SCT（SemiConductor Tracker）、TRT（Transition Radiation Tracker）の 4 種類の検出器からなっており、衝突点から出てきた荷電粒子を検出することで粒子の飛跡を同定する役割を持つ（図 1-4）。荷電粒子の運動量を測定したり、粒子の飛跡同士を組み合わせたりすることで、粒子が出てきた崩壊点や衝突点を同定する。IBL・ピクセル検出器・SCT はシリコンをセンサーに用いた半導体検出器であり、TRT はストローチューブ検出器である。

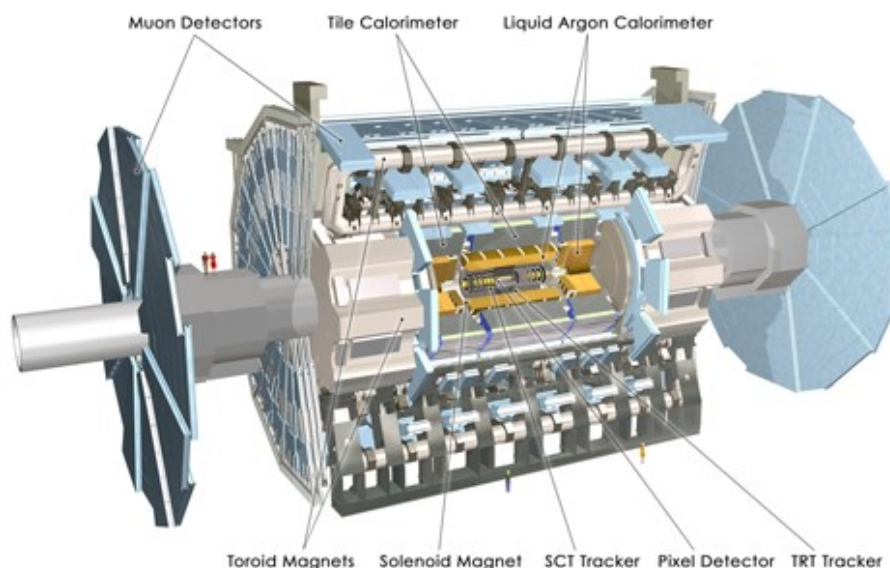


図 1-3 ATLAS 検出器

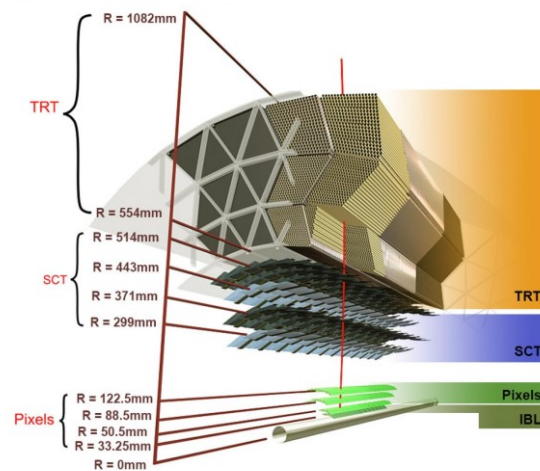


図 1-4 内部飛跡検出器

1.2.3 HL-LHC 計画

LHC では更なる高統計を得るため、高輝度（HL : High Luminosity）化計画が進められている（図 1-5）。高輝度化により粒子の衝突事象数が増えることで、陽子・陽子衝突での素粒子の生成数が大幅に増加する予定である。



図 1-5 高輝度化計画

この計画に伴い ATLAS 検出器でもアップグレードが予定されており、内部飛跡検出器は高輝度化による放射線ダメージの増加、粒子数の増加によるトラック数の増加などに対応するため、その全てをシリコンをセンサーに用いた半導体検出器に置き換える。

新型のピクセル検出器モジュールはおよそ 2000 個を日本で製造する予定で、現在 ITk ピクセルグループでは、この新型シリコンピクセル検出器の組み立てや品質検査の手法等について、大量生産を念頭に置いた開発を進めている。

2 シリコンピクセル検出器

2.1 新型シリコンピクセル検出器の概要

新型シリコンピクセル検出器は、センサー、読み出しチップ (ASIC : Application Specific Integrated Circuit)、フレキシブル基板 (FPC : Flexible Printed Circuit)、冷却用ブロックであるセルにより構成される (図 2-1)。

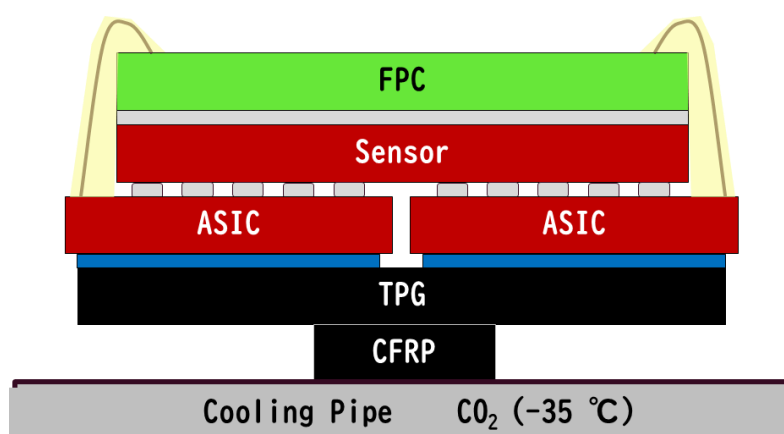


図 2-1 新型シリコンピクセル検出器の概要

センサーと ASIC は予めバンプにより接続している。以降、これをベアモジュールと呼ぶ。ベアモジュールは絶縁性接着剤により FPC と接着している。センサーの電極で収集された電荷はバンプを通して ASIC に送られる。ASIC では信号の増幅、整形、デジタル処理が行われ、フレキシブル基板に送られる。

フレキシブル基板は主に 3 つの役割を担っている。1 つ目の役割は、ASIC から送られてくる信号を PC へ送ることである。2 つ目は、外部の電源からの HV (High Voltage) と LV (Low Voltage) をセンサーと ASIC にそれぞれ供給することである。これらの信号読み出しや電源の供給のため、センサーや ASIC とフレキシブル基板はアルミワイヤーによって電氣的に接続している。3 つ目は、基板上に取り付けられた温度センサーで温度のサンプリングを行うことである。

また ATLAS 検出器の中で運用される際には、ASIC による発熱が発生する。ASIC が発熱した場合、冷却を行わなければセンサーも高温になってしまい、ノイズなどの特性に影響を与える。そこで ASIC からの熱を抑えるため、ベアモジュールは熱伝導接着剤によ

りセルと接着している。

セルは、熱伝導率が良い炭素系の素材でできている TPG (Thermal Pyrolytic Graphite) と CFRP (Carbon Fiber Reinforced Plastic) からなっており、ASIC とクーリングパイプの橋渡しの役割をもつ。クーリングパイプとは、パイプに液体の二酸化炭素を流すことでモジュールを冷やす冷却機構である。

2.2 熱伝導接着剤

前述の通り、LHC の高輝度化が進められることによって、検出器が放射線によって受けるダメージは増大する。放射線耐性について、新型シリコンピクセル検出器に要求される値は $1.0 \times 10^{16} [1\text{MeV} \cdot \text{n}_{\text{eq}}/\text{cm}^2]$ という厳しいものになっている。

2.1 新型シリコンピクセル検出器の概要 で述べたベアモジュールとセルの接着に用いる熱伝導接着剤も例外ではなく、厳しい放射線環境に耐え、接着力や熱伝導率を保てるものを用いる必要がある。

現在熱伝導接着剤として用いるのに最も有力とされているのが、高熱伝導性万能エポキシ注型樹脂「STYCAST 2850FTJ with CAT9M」であり、組み立て試験等で既に用いられている。この接着剤は、主剤が STYCAST 2850FTJ、硬化剤が CATALYST 9M と呼ばれる 2 液混合型のものである。エポキシ系樹脂に酸化アルミニウムのフィラーが混合しており、フィラーの粒径は $45 \mu\text{m}$ 以下のものが 95 % 以上である。熱伝導率については、この接着剤に関するデータシートが 2 種類存在し、それぞれ $1.25 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 、 $1.47 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ と微妙に異なる（表 2-1）。おそらくこれは、品質の個体差や、熱伝導率の測定における誤差等がある影響ではないかと考えられる。本研究では便宜上、熱伝導率の文献値は $1.47 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ に統一して論ずることとする。

表 2-1 STYCAST 2850FTJ with CAT9M のデータシートの抜粋

硬化後			
特性	試験方法	単位	代表値
デュロメーター硬度 @ 25 °C	TP-23	—	9M D-91
引張剪断強度 @ 25 °C Al/Al	TP-21	MPa	9
ガラス転移温度	TP-003, TMA	°C	60
線膨張係数	TP-003, TMA	°C ⁻¹	31×10^{-6}
α_1 α_2			95×10^{-6}
熱伝導率	TP-557W	W/(m·K)	1.47
体積抵抗 @ 25 °C	TP-031	Ω·cm	7×10^{14}
耐化学薬品性	水 0.1N ナイトーグ 30%硫酸 ガンソリン	—	+0.02%
@ 25 °C / 1 週間浸漬			+0.04%
			+0.11%
			±0.00%
熱安定性 @ 150 °C / 1 週間	—	—	-0.17%

TYPICAL PROPERTIES OF CURED MATERIAL LOCTITE STYCAST 2850FTJ with LOCTITE CAT 9

Physical Properties

Hardness, Shore D	96
Linear Shrinkage, %	0.2
Water Absorption (24 hr immersion), %	0.03
Coefficient of Thermal Expansion :	
Alpha 1, ppm	35.0
Alpha 2, ppm	98.9
Glass Transition Temperature, °C	86
Thermal Conductivity, W/(m·K)	1.25

この接着剤の熱伝導率の放射線耐性に対する評価については、既然大川（2020）が行っており、「Stycast 2850FTJ の照射前、照射後の熱伝導率を測定した。照射前では 1.4 W/m/K 程度ある熱伝導率が、照射後 $0.5 \sim 0.6 \text{ W/m/K}$ 程度まで低下する可能性があることが分かった。」(p.50) [3] と述べている。ただし、「Stycast 2850FTJ の照射前のサン

プルと照射後のサンプルは別サンプルであり、同サンプルでの照射前後の熱伝導率の変化ではない。」と述べている上に、放射線照射試験での照射条件は HL-LHC での実際の測定環境よりも厳しいものであった可能性があることから、Stycast 2850FTJ の放射線耐性については、同一のサンプルを使用して照射前後の熱伝導率を測定して再評価する必要がある。

そこで、Stycast 2850FTJ を含めた熱伝導接着剤の候補について照射前後の熱伝導率を測定し、放射線耐性の評価を行う。

3 検出器組み立てに用いる熱伝導接着剤の候補

検出器の組み立てに用いる熱伝導接着剤として Stycast 2850FTJ（以下 stycast）の熱伝導率の放射線耐性を再評価するにあたり、それと並行してその他にも良い熱伝導接着剤の候補がないか探すことにした。新型シリコンピクセル検出器で使用する熱伝導接着剤は、以下のような条件を満たす、エポキシ、シリコン、ウレタンなどの樹脂を主成分としたものでなければならない。ただし、家田(2018)[11] が行った試験にてシリコン系接着剤の照射後の接着力低下が見られるように、放射線耐性が比較的低いようである[13] シリコン系は優先度が低い。

- 熱伝導率が $1 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 以上（stycast と同等かそれ以上）である。
- 電気絶縁性がある。
- 粘度がディスペンサーで塗布可能な程度（ $60,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ 程度以下）である。
- 主剤と硬化剤を混合して使用する二液型のものである。
- 常温で 24 時間以内に硬化する。
- 可使時間が 30 分以上である。
- 使用されている熱伝導フィラーの径が $50 \mu\text{m}$ 以下である。

表 3-1 熱伝導接着剤候補一覧

企業	接着剤名	材質	熱伝導率 (W/m・K)	粘度 (mPa・s)	硬化時間	可使時間	量／価格		
EPO-TEK	T905BN-4	エポキシ	1.78	12,000 - 18,000	24時間 (23℃)	1時間	85 g / ¥140,400		
Polytec	TC 423	エポキシ	3.0 ± 0.5	50,000 - 80,000	24時間 (23℃)	30分 (23℃)	250 g / €225,00		
AI TECHNOLOGY INC	ME7665-DA	エポキシ	1.7	20,000	2時間 (85℃)				
					0.5時間 (125℃)				
Momentive	TIA350R	シリコン	3.5	67,000	0.5時間 (120℃)				
	TIA260R		2.5	70,000	0.5時間 (120℃)				
	XE13-C1862PT		2.5	55,000	1時間 (150℃)				
	TSE328I-G		1.7	60,000	1時間 (150℃)				
Keol		ウレタン							

条件を満たしている接着剤をリストアップ（表 3-1）し取り扱っている企業に、価格や用途に合っているか、日本で入手可能か（外国企業が多いため）等を聞くために問い合わせを行った。その結果、使用試験を行うには高額すぎたり、日本に輸入できなかったり、そもそも連絡が途中で途絶えてしまうこともあり、適当なものを入手することはできなかった。

そこで、熱伝導接着剤を自作することを考えた。そもそも、stycast 等の熱伝導接着剤は、エポキシ樹脂などの熱伝導率の低い接着性のあるものに、熱伝導率の高い銀、銅、アルミニウムなどの金属や、酸化アルミニウム、窒化アルミニウム、炭化ケイ素、グラファイトなどのセラミックスをフィラーとして添加して作られたものである。よって、接着剤と、フィラーを別々に入手して混合することにした。

表 3-2 接着剤候補一覧（熱伝導接着剤自作用）

企業	接着剤名	材質	粘度 (mPa・s)	硬化時間	可使時間	量／価格
コニシ	E2420	エポキシ	1,000以下	20℃ / 16時間	40分 (20℃)	3 kg / ¥9,800
ペルノックス	MU-107A/B	ウレタン	700	25℃ / 24時間	1時間 (25℃)	
	MU-303		2,900	25℃ / 12時間	30分 (25℃)	

接着剤の候補（表 3-2）のうち、コニシ株式会社のエポキシ系接着剤 E2420 を入手することができた。これは、ひび割れなどに注入して補修するための、柔軟性のある接着剤である。ちなみにウレタン系接着剤 MU-107A/B, MU-303 についてもサンプルを頂けるといふ話にまで進展したものの、連絡がとれなくなってしまい入手することができなかった。

接着剤に混合するフィラーとしては、株式会社トクヤマより、窒化アルミニウム粉末 HF-01 を入手することができた。この窒化アルミニウム粉末の熱伝導率は、180 W/m・K で、stycast のフィラーである酸化アルミニウムの熱伝導率 36 W/m・K を大きく上回る [6]。平均粒子径は 1.2 μm （図 3-1）と十分小さく、検出器で使用する熱伝導接着剤のフィラーとしての条件を満たしているものである。

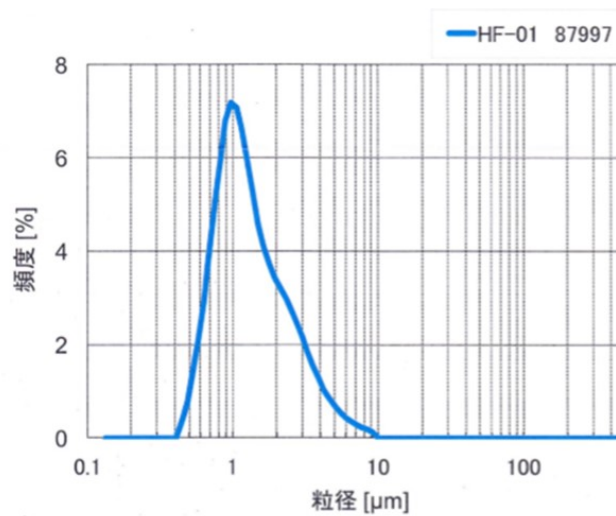


図 3-1 窒化アルミニウム粉末の粒径分布図

出典：高純度窒化アルミニウム（AlN）粉末・顆粒 | 特殊品部門 | Tokuyama

https://www.tokuyama.co.jp/products/specialtyproducts/aln_powder_granules.html

よって、stycast の熱伝導率の再測定を行うとともに、E2420 に、窒化アルミニウム粉末を混ぜた接着剤も作成し、熱伝導接着剤の候補として検出器の組み立てに使用可能であるか検証を行っていくことにした。

4 熱伝導率測定手法の確立

大川（2020）は、測定装置が周囲の空気と熱の授受を行う影響を無視できるように、真空槽を使用して照射後の stycast コインサンプルの熱伝導率測定を行っていた。しかし、京都教育大学では真空槽を所有しておらず、測定のためには、高エネルギー加速器研究機構へ出張する必要があるため、短期間で全ての測定を終える必要があった。

そこで、本研究では、京都教育大学が所有する恒温槽でも精度の高い測定が行えるような手法の確立を行った。この章では、恒温槽での測定手法確立に向けて行ったベアサンプルの作成や熱伝導率測定、Femtet によるシミュレーション等について述べる。

4.1 定常法

本研究における熱伝導率測定は全て、定常法と呼ばれる方法で行う。定常法は、試料の上側を高温に、反対側を低温にし、試料の上下に生じる温度差を測定することで熱伝導率を算出する方法である。測定した温度差と試料の形状から、以下の計算式（1）で熱伝導率を算出することができる。

$$C = \frac{d \times W}{S \times \Delta T} \quad \dots (1)$$

試料の熱伝導率 : C (W / m · K)

試料上下の温度差 : ΔT (K)

試料の底面積 : S (m²)

試料の厚さ : d (m)

伝熱量 : W (w)

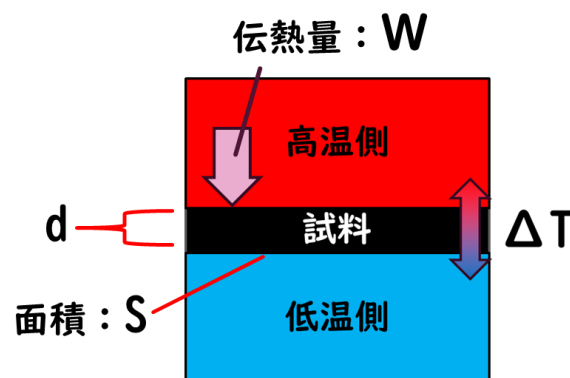


図 4-1 定常法

4.2 熱伝導率測定装置の概要

定常法による熱伝導率の測定を行うためには、試料を挟み上側を高温に、下側を低温にする、すなわち上から下へと一定の熱を流すことができる装置が必要である。

図 4-2 が測定に用いる装置であり、その骨格部分アルミニウム製で、装置の上部にはヒーターがある。そこから発生した熱がヒーターの下側に接触しているアルミニウム製のブロックと支柱および試料を伝わっていき、アルミブロックの下側に接触しているペルチェ素子によって吸熱される。ペルチェ素子下部には、熱が籠ることのないようにヒートシンクとファンを設置して空冷している。またヒーター上部には、断熱材として木製(紫檀)のブロックを設置しており、熱が下側のみに流れるようにしている。

装置の 4 カ所(図 4-2 イラスト中の ch1-ch4) には、熱電対を埋め込んでいて、その 4 カ所の温度が測定できるようになっている。

アルミニウム支柱の試料を乗せて挟む部分には、深さ 250 μm の窪みがある(図 4-2 : 右)。

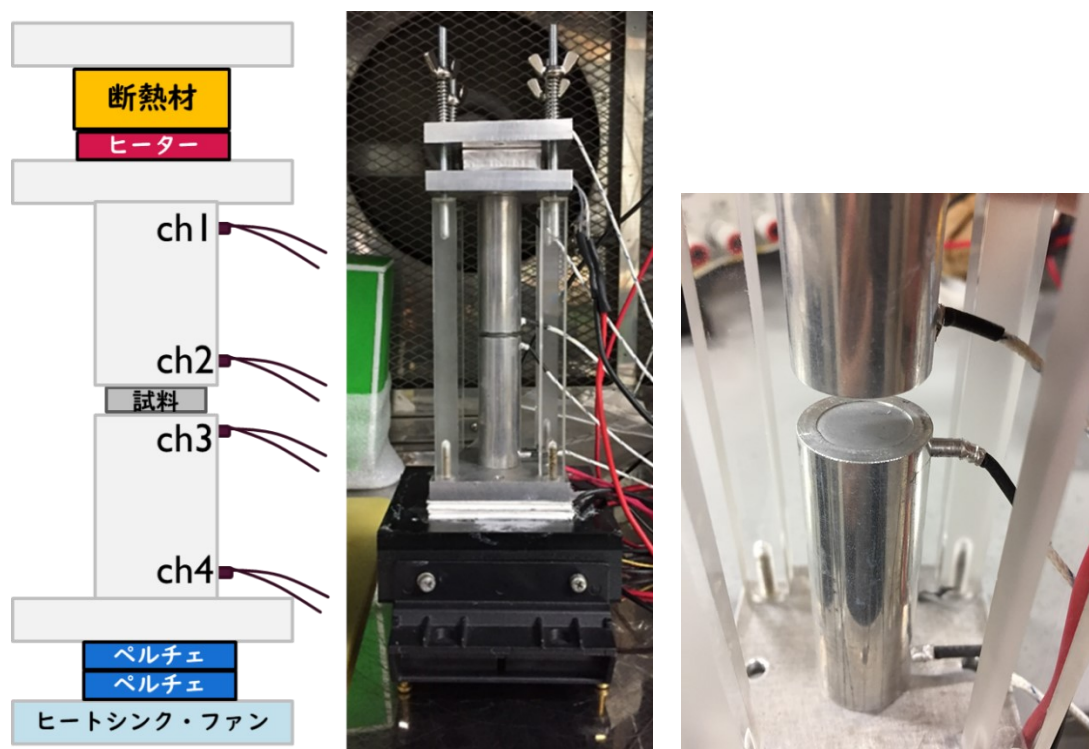


図 4-2 熱伝導率測定装置 (左 : イラスト、中央 : 実物、右 : 試料台部分拡大図)

4.3 熱伝導シート

熱伝導率測定装置のアルミ支柱でサンプルを挟む際に、サンプルとアルミ支柱の間に隙間ができないよう密着させるために、間に熱伝導シートを挟むようにする。本研究では、株式会社アイネックスの低硬度放熱シリコンゴムシート HT-04（図 4-3）を熱伝導シートとして使用する。このシートの厚さは 0.5 mm で、熱伝導率の文献値は $5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ である。（製品外袋に表示）



図 4-3 熱伝導シート

4.4 アルミコインサンプルの熱伝導率測定

4.4.1 アルミコインサンプルの作成手順

接着剤を装置の試料台にそのまま塗布して測定を行うと、装置の再使用が不可能となるため、接着剤をアルミコイン（厚さ 500 μm ）二枚で挟んだ直径 12 mm のサンプルを作成して測定を行う。アルミコインサンプルの作成手順を以下に示す。尚ここでは、接着剤の厚さが 0.2 mm のサンプルを作成する場合について述べており、異なる厚さのサンプルを作成する場合は、適宜スペーサーの厚さと接着剤の量を変えればよい。

1. 厚さ 0.5 mm のアルミ板を丸抜きカッターで直径 12 mm の円形に打ち抜く。
2. 銅板の上に打ち抜いたアルミコインと厚さ 1.2 mm のスペーサーを置き、アルミコインの上に接着剤を（2 液型のものは接着剤と硬化剤を混合してから）乗せる（図 4-4）。
3. 接着剤の上にアルミコインをもう一枚乗せ、さらにその上から重しとして銅板を乗せて 24 時間以上放置する。
- 4.



図 4-4 左：丸抜きカッター、右上：銅板・アルミコイン・スペーサー、右下：完成サンプル

手順 1. で打ち抜いたアルミコインの淵は滑らかでない場合がある。その場合は、研磨剤を使用して滑らかにする。

手順 2. でアルミコインの上に乗せる接着剤の量によっては、最終的に二枚のアルミコ

インから接着剤がはみ出したり、十分に広がりきらなかったりする。なので、直径 12 mm、高さ 0.2 mm の円柱の体積分になるように接着剤の比重から重さを計算して、正確な量をのせるように注意する。

4.4.2 定常法による試料上下の温度差の測定

接着剤の熱伝導率を定常法で求めるにあたり、試料の上下に生じる温度差を測定する必要がある。アルミコインサンプルを用いて温度差を測定する場合の具体的手順を以下に述べる。

1. 丸抜きカッターでサンプル同様に直径 12 mm の円形に打ち抜いた熱伝導シート 2 枚でサンプルを挟む（図 4-5：左）。
2. そのサンプルを 4.2 熱伝導率測定装置の概要 で示した装置の試料台に乗せてアルミ支柱で挟み、25 °C に設定した恒温槽の中に置く。
3. 装置のヒーターを任意の電力で運転し、ペルチェの電力は試料部分の温度がおおよそ 25 °C になるように調整する。
4. 熱電対によって測定される装置 4 ヶ所の温度は、一秒毎にコンピュータで常時記録する。
5. 4 ヶ所の温度が一定になるまで待つ。
6. 温度が一定になったら、試料上下の温度（図 4-2 のイラスト中の ch2 と ch3）を読み、その差を温度差 ΔT_1 とする。
7. 次に、接着剤を挟んだアルミコインではなく、厚さ 1 mm のアルミコインのみを手順 1. と同様に熱伝導シートで挟む（図 4-5：右）。
8. 手順 2. ～ 6. を繰り返し、得られた温度差を ΔT_2 とする。
9. ΔT_1 と ΔT_2 の差を求めると、接着剤のみで生じた温度差 ΔT が得られる。



図 4-5 熱伝導シートで挟んだサンプルのイメージ

手順 3. で試料部分の温度を 25 °C にするのは、装置と雰囲気の間での熱の授受の影響をなるべく抑えるためである。

手順 5. で温度が一定になるまでには、一時間半程度かかる。

手順 6. でアルミ支柱中の ch2 と ch3 の位置は、試料の上端下端からそれぞれ 3 mm ずつ離れているが、アルミニウムは熱伝導率が 237 W/m・K で、熱伝導率が約 1 W/m・K の接着剤と比べて極端に高いので、その影響は無視することができる。

手順 9. について、 ΔT_1 は接着剤だけでなく熱伝導シート 2 枚も含んで生じる温度差であるため、 ΔT_2 の熱伝導シートのみで生じる温度差を求め、差をとることで接着剤のみで生じた温度差 ΔT が得られる。

4.4.3 アルミコインサンプルの熱伝導率測定結果と考察

stycast のアルミコインサンプルを、4.4.1 アルミコインサンプルの作成手順 で示した手順通りに 3 種類作成した。サンプル全体の厚さをマイクロメータで測った後、アルミコイン 2 枚分の厚さ (1mm) を引いて接着剤のみの厚さを計算すると、それぞれ 66.0 μm 、119.8 μm 、185.0 μm だった。これらのサンプルを試料として stycast の熱伝導率を測定する。

まず、4.4.2 定常法による試料上下の温度差の測定 に示した手順で、温度差 ΔT を求める。ヒーターは 2.09 W で運転した。測定の度にサンプルの装置からの取り外しを行い、 ΔT_1 と ΔT_2 それぞれ 5 回ずつ測定を行った (表 4-1)。

表 4-1 stycast のアルミコインサンプルで測定した温度差 (K) (左 : ΔT_1 , 右 : ΔT_2)

厚さ (μm)	66.0	119.8	185.0	厚さ (μm)	66.0	119.8	185.0
1回目	7.76	7.77	7.93	1回目	6.47	6.78	7.05
2回目	7.68	7.74	7.72	2回目	6.64	6.54	6.06
3回目	8.12	7.65	7.78	3回目	6.55	6.27	6.43
4回目	7.64	7.37	8.46	4回目	6.98	6.60	6.63
5回目	7.59	7.80	8.27	5回目	6.30	6.53	6.33
平均	7.76	7.65	8.03	平均	6.59	6.54	6.50

185.0 μm のサンプルについて、温度差 ΔT を求める。

ΔT_1 は、 $8.03 \pm 0.14 \text{ K}$ 、 ΔT_2 は、 $6.50 \pm 0.17 \text{ K}$ であるので、差をとって、

$$\Delta T = \Delta T_1 - \Delta T_2 = 1.53 \pm 0.22 \text{ (K)}$$

より、 ΔT は、 $1.53 \pm 0.22 \text{ K}$ と求まる。また、サンプル接着剤部分の厚さが $185.0 \mu\text{m}$ 、直径が 12 mm 、ヒーターの電力が 2.09 W であることから、4.1 定常法 で示した式 (1) に値を代入して熱伝導率を算出すると、

$$C = \frac{d \times W}{S \times \Delta T} = \frac{185.0 \times 10^{-6} \times 2.09}{6^2 \times 10^{-6} \times \pi \times 1.53} = 2.23 \pm 0.32 \text{ (W / m} \cdot \text{K)}$$

試料の熱伝導率 : $C \text{ (W / m} \cdot \text{K)}$

試料上下の温度差 : $\Delta T \text{ (K)}$

試料の底面積 : $S \text{ (m}^2\text{)}$

試料の厚さ : $d \text{ (m)}$

伝熱量 : $W \text{ (w)}$

よって、熱伝導率は、 $2.23 \pm 0.32 \text{ W / m} \cdot \text{K}$ と求まった。

同様の手順で 3 種類のサンプル全ての熱伝導率を求めた結果を表 4-2 に示す。

表 4-2 アルミコインサンプルで測定した stycast の熱伝導率

厚さ(μm)	66.0	119.8	185.0
熱伝導率(W/m・K)	1.04	2.01	2.23
標準誤差(W/m・K)	0.13	0.23	0.32

3 サンプルのみで測定数が十分とは言えないが、サンプルが厚いほど、熱伝導率が高くなる傾向が見られた。

4.5 ベアサンプルの熱伝導率測定

4.5.1 ベアサンプルの作成手順

アルミコインサンプルで測定を行う場合には、接着剤の形状がアルミコインに隠れて見えなくなってしまうという問題がある。熱伝導率測定手法が確立した後で、最終的にはサンプルに放射線照射試験を行い、その前後での熱伝導率の変化を測定する。そこでは、照射によって接着剤が変形する恐れがある。しかし、アルミコインで接着剤が挟まれていると変形していた場合でも様子を確認することが難しい。また、アルミコインと接着剤の間に空気が入ってしまう危険性もある。

そこで、接着剤のみのサンプルを作成する方法を考えた。以下に **stycast** を使って作成する際の手順を示す。

1. 真空装置内で、先端に竹串のついたモーターを動作させ、接着剤と硬化剤を真空中で攪拌する。
2. テフロン板の上に真空攪拌した接着剤と、スペーサーを乗せる（図 4-6）。
3. その上にテフロン板を乗せ、さらに重しとして銅板を乗せて 24 時間以上放置する（図 4-7）。
4. 硬化した接着剤をテフロン板から取り外し、丸抜きカッターで直径 12 mm の円形に打ち抜く（図 4-8）。

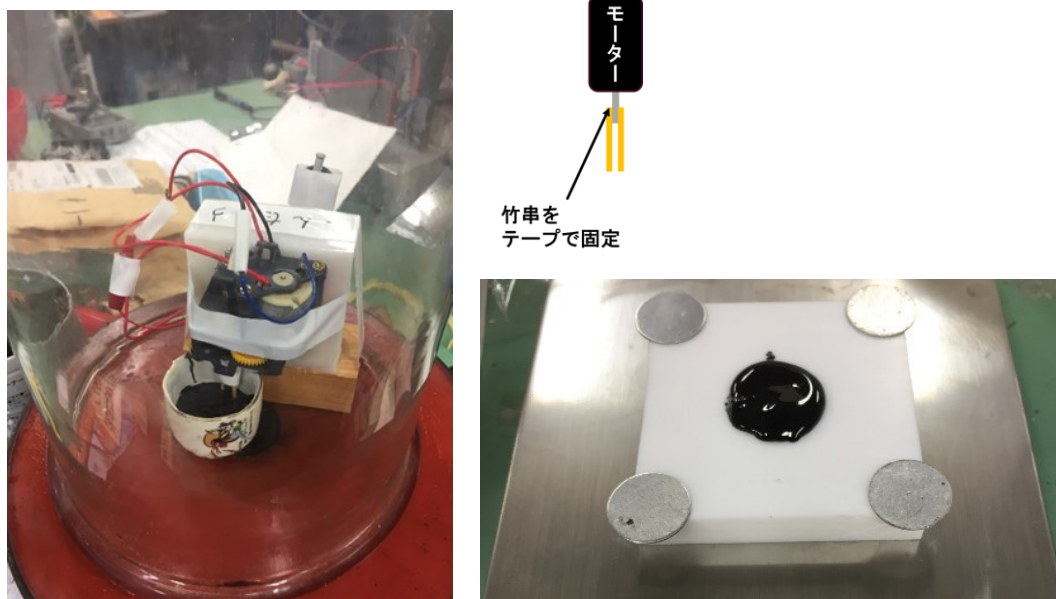


図 4-6 左：手順 1 の真空攪拌装置、右上：モーター先端のイメージ図、右下：手順 2

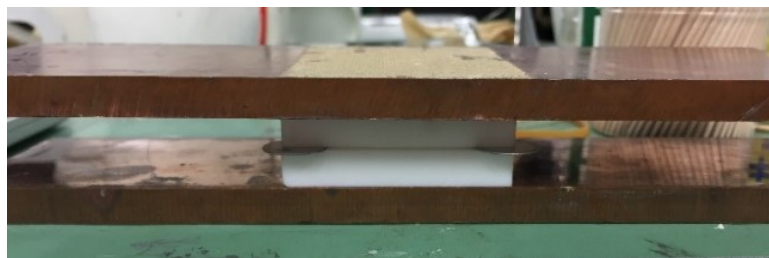


図 4-7 手順 3 でテフロン板の上から銅板を乗せて接着剤の硬化待ち中

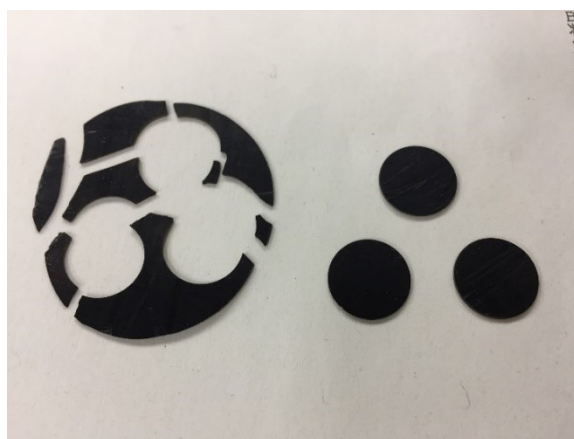


図 4-8 左：丸抜きカッター、 右：打ち抜いた接着剤 (stycast)

手順 1. について。アルミコインサンプルの作成時は行っていなかったが、接着剤に硬化剤を混ぜる際に気泡が混入してしまうのをできるだけ防ぐため、装置を手作りし真空中で攪拌を行えるようにした。

テフロン加工のおかげで、接着剤を硬化後に引き剥がすことが可能となっている。ただし、引き剥がすのは簡単ではなく、接着剤が薄いと割れてしまい、サンプルをうまく剥がすことができなくなってしまう。接着剤が stycast の場合で、厚さ 500 μm までが限度でそれ以上薄いサンプルの作成は困難だった。

この方法で作成したサンプルをベアサンプル (bare sample) と呼ぶことにする。

4.5.2 ベアサンプルの熱伝導率測定結果と考察

stycast のベアサンプルを、4.5.1 ベアサンプルの作成手順 で示した手順通りに 3 種類作成した。サンプルの厚さをマイクロメータで測ると、それぞれ 545.2 μm 、1112.4 μm 、1119.0 μm だった。これらのサンプルを試料として stycast の熱伝導率を測定する。

まず、アルミコインサンプルでの測定と同じように、4.4.2 定常法による試料上下の温度差の測定 に示した手順と同様の手法で、温度差 ΔT を求める。ヒーターは 2.09 W で運転した。測定の度にサンプルの装置からの取り外しを行い、 ΔT_1 と ΔT_2 それぞれ 5 回ずつ測定を行った（表 4-3）。なお、ベアサンプルでの測定のため、 ΔT_2 の測定の際にはアルミコインを用いず、熱伝導シート 2 枚のみを装置に挟んで測定している。

表 4-3 stycast のベアサンプルで測定した温度差 (K) (左: ΔT_1 , 右: ΔT_2)

厚さ(μm)	545.2	1112.4	1119.0	厚さ(μm)	545.2	1112.4	1119.0
1回目	9.65	13.34	12.80	1回目	4.53	4.46	3.85
2回目	9.56	12.98	12.93	2回目	4.60	4.28	4.04
3回目	9.87	12.79	12.26	3回目	4.00	3.89	4.05
4回目	9.33	13.38	12.93	4回目	4.29	4.10	4.10
5回目	9.65	12.97	12.29	5回目	4.57	4.15	4.03
平均	9.61	13.09	12.64	平均	4.40	4.18	4.01

4.4.3 アルミコインサンプルの熱伝導率測定結果と考察 に示したのと同様の手法で、温度差 ΔT を求め、熱伝導率の計算も行った。その結果を表 4-4 に示す。

表 4-4 ベアサンプルで測定した stycast の熱伝導率

厚さ(μm)	545.2	1112.4	1119.0
熱伝導率(W/m $\cdot$ K)	1.93	2.31	2.40
標準誤差(W/m $\cdot$ K)	0.05	0.04	0.04

アルミコインサンプルでの測定と同様に、やはりサンプルが厚いほど、熱伝導率が高くなる傾向が見られた。

4.6 熱伝導解析

stycast のアルミコインサンプルとベアサンプルの両方の測定で、「サンプルを厚くするほど熱伝導率が高くなる」という傾向がみられたため、もっと様々な条件で測定を行い原因を探りたい。しかし、実測すると一つの条件で測定を行うのに 1 日以上時間がかかってしまうので「Femtet」（ムラタソフトウェア株式会社）というシミュレーションソフトで測定環境を再現して、熱伝導解析を行うこととした。

「サンプルを厚くするほど熱伝導率が高くなる」傾向を示す原因を調べる他に、熱伝導率測定で使用するサンプルについて、現在は試料台にある窪みを避けるために装置のアルミニウム支柱の直径（20 mm）より小さい直径（12 mm）のサンプルを作成しているが、そのことによって測定上問題が起きてしまっていないかについても合わせて調べる。

4.6.1 モデリング

まず、Femtet で熱伝導率測定装置を原寸大でモデリングした。それぞれのパーツの大きさ、熱伝導率、発熱量（ヒーターとペルチェのみ）は、図 4-9 に示す通りである。ただし、サンプル台の窪み（深さ 250 μm ）、ネジ穴、熱電対を入れる穴等細かい部分は省略している。ペルチェの発熱量は測定ごとに変更するため、図中では「？」と表示している。

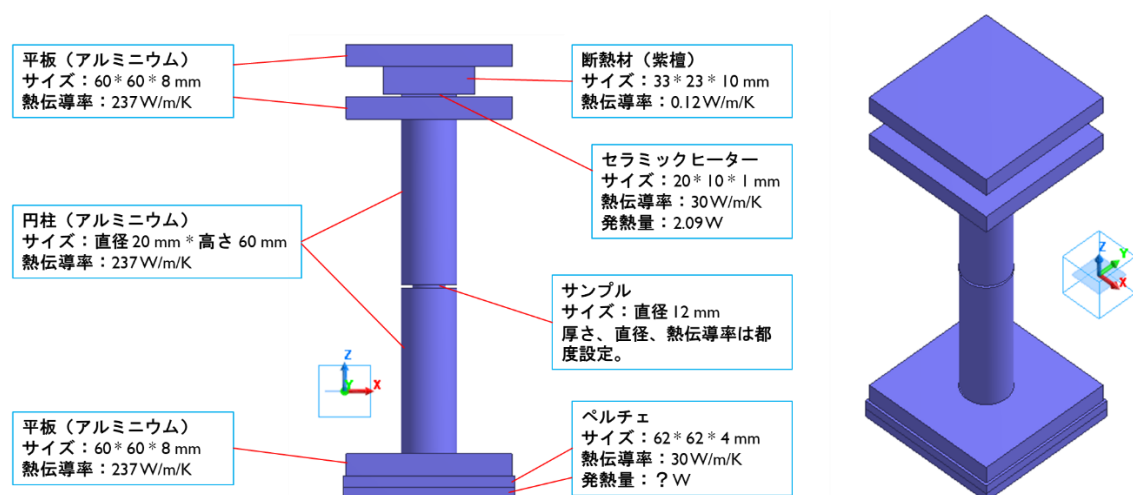


図 4-9 熱伝導率測定装置のモデリング

4.6.2 シミュレーションでできること

Femtet の熱伝導解析でできることについて、例として 4.5 ベアサンプルの熱伝導率測定での、厚さ 1 mm の stycast のベアサンプルの熱伝導率測定において温度差 ΔT_1 を求める際の測定環境を再現して行った解析の結果を用いて以下に述べる。

図 4-9 のモデリングで、サンプル部分は stycast のベアサンプルを熱伝導シート 2 枚で挟んだもの、すなわち、厚さ 1 mm、直径 12 mm、熱伝導率 $1.47 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ の円柱の上下に厚さ 0.5 mm、直径 12 mm、熱伝導率 $5 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ の円柱を置いたものをモデリングし、ペルチェの発熱量を -2.5 W と設定し、室温 25°C で自然対流を想定した解析を実施した。解析結果を図 4-10 に示す。

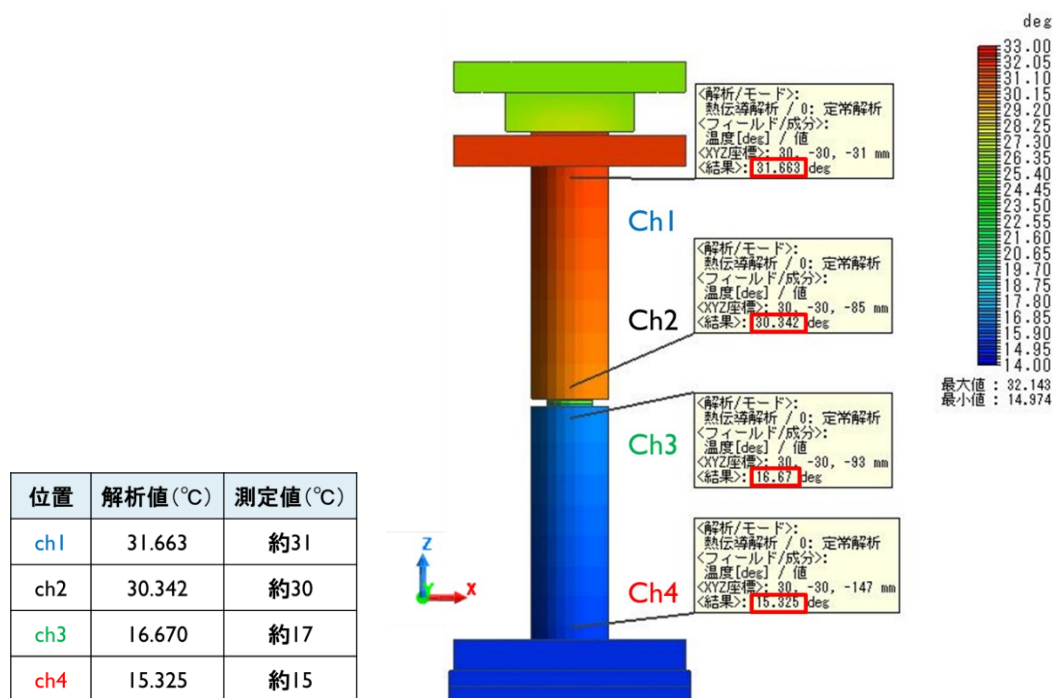


図 4-10 熱伝導解析の例 (左表は温度の解析値と実測値の比較)

ここでは、実際の装置で熱電対を埋め込んでいる ch1～ch4 の 4 ヶ所を指定し、その位置の温度を表示させている (図 4-10 中の赤枠で囲っているところ)。実際の測定値と比較して同じような値が出ており、この条件設定においては熱の流れをうまく解析できている。

このように、測定環境を設定し、指定した任意の点についてその位置の温度 ($^\circ\text{C}$) を解析して表示することができる。またその他にも、熱流束、対流の熱伝達係数、発熱密度、温度勾配等も算出することができる。

4.6.3 解析結果と考察

シミュレーションにおいては熱伝導シートを使用せずとも装置とサンプルが密着するので、これ以降サンプル部分は測定物（ベアサンプル）のみをモデリングする。

サンプルの上端と下端の位置を指定して温度の解析結果を読み、その差をとってサンプル上下にできる温度差 ΔT を算出すれば、その値を用いて熱伝導率を計算できる。このような、熱伝導解析の結果から算出した温度差 ΔT を利用した熱伝導率の計算を、サンプルの種類（熱伝導率）、直径、厚さを変えて様々な組み合わせで行っていった。その結果をまとめたのが表 4-5 であり、サンプルの熱伝導率を stycast の $1.47 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ もしくは、アルミニウムの $237 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ の 2 パターン、サンプルの直径を 12 mm もしくは、20 mm の 2 パターンに設定し、 2×2 パターンで全 4 通りの組み合わせそれぞれについて、サンプルの厚さ毎に熱伝導率を計算した。

表 4-5 熱伝導解析による熱伝導率計算結果

アルミコイン（熱伝導率： $237 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ ）			STYCAST（熱伝導率： $1.47 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ ）		
サンプルの厚さ(mm)	直径12 mmの熱伝導率($\text{W/m} \cdot \text{K}$)	直径20 mmの熱伝導率($\text{W/m} \cdot \text{K}$)	サンプルの厚さ(mm)	直径12 mmの熱伝導率($\text{W/m} \cdot \text{K}$)	直径20 mmの熱伝導率($\text{W/m} \cdot \text{K}$)
300.00	325	258	300.00	119	44.6
10.00	248	228			
5.00	271	228			
1.00	342	229	1.00	1.69	1.50
0.50	370	222	0.50	1.55	1.45
0.20	370	222	0.20	1.51	1.43
0.10	370	222	0.10	1.54	1.42
0.05	462	×	0.05	1.63	1.41

表 4-5 を見ると、実測のときと同様に、全体的に「サンプルを厚くするほど熱伝導率が高くなる」という傾向が見られた。ただし例外として、サンプルの直径が 12 mm（アルミ支柱の直径より小さい実測と同様）の条件で、サンプルの厚さが 0.20 mm 以下であるときの熱伝導率は「薄くするほど高くなる」という逆の傾向を示していた。

また、サンプルの厚さが同じもの同士を比較すると、総じて直径が小さい（12 mm）サンプルの熱伝導率が高く出ている。

そこでまずは、直径が小さいサンプルの方が熱伝導率が高く出てしまう原因から考えていく。サンプルの厚さを 1 mm、熱伝導率を $237 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ に設定したときの解析結果を、サンプルの直径が 12 mm のときと、20 mm のときで熱流束に注目して比較する。熱流束

とは、単位時間に単位面積を横切る熱量を表すものであり、熱流束の値がより大きい箇所には、より多くの熱が流れている。また、熱流束は熱の流れる方向の温度勾配に比例する。

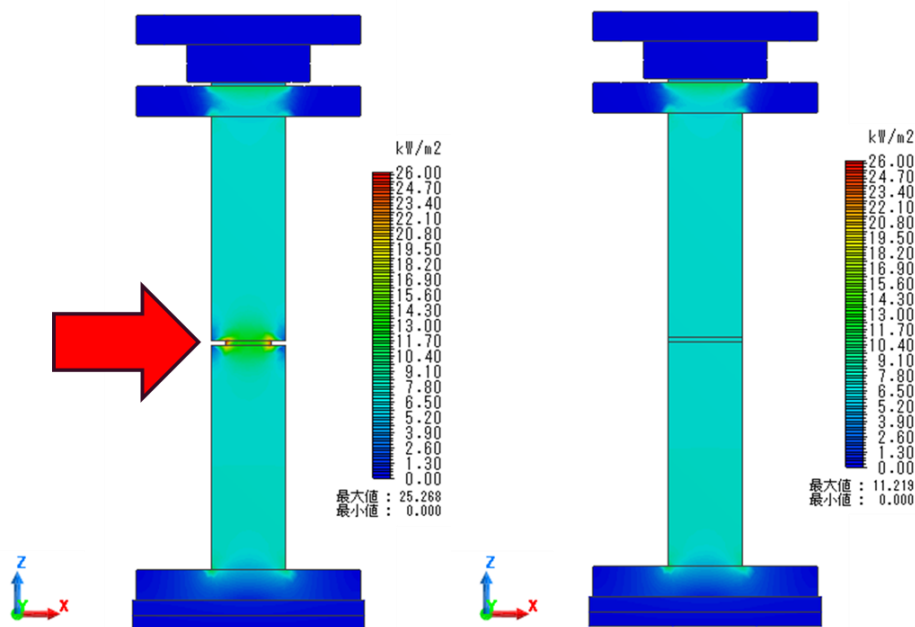


図 4-11 熱流束分布の比較（左：直径 12 mm、右：直径 20 mm）

図 4-11 は、真横から見た装置の断面図で、熱流束の分布を示したものである。サンプルの直径が 20 mm でアルミ支柱の直径と等しいときは、熱流束の分布が一樣であることが見て取れる。対して、直径が 12 mm で支柱より小さいとき、熱流束の分布に偏りが見られる。図中に赤い矢印で示したサンプルの部分では、外側ほど熱流束の値が大きくなっている。熱流束は温度勾配に比例することから、サンプル上下の温度差 ΔT も、サンプルの外周部分は大きく、中心部分では小さくなっている。これが直径 12 mm のサンプルで熱伝導率が高く算出される原因で、計算で用いているのは中心部の温度であるから、小さめの温度差 ΔT を扱っているのだと推測できる。

よって、サンプルの直径がアルミ支柱の直径より小さいと、サンプル上下の温度が測定位置によって異なってしまうので、測定結果に影響を及ぼしてしまうということがわかった。

次に、サンプルを厚くするほど熱伝導率が高くなる原因について考える。恒温槽で測定している実測の条件を再現し、装置周辺の空気の影響を含んだ解析を行っているので、やは

り熱伝導率が正しく出ない原因としては、装置と雰囲気との熱の授受の影響が一番に疑われる。熱伝導率が高く出るとことは、温度差 ΔT が小さく出ている、すなわち装置から雰囲気へ放熱していると考えられる。

そこで、ペルチェの発熱量（負の値）を変えながら熱伝導率計算を行っていくと、おおよそ上側のアルミ支柱の中央部分（図 4-12 の点 A）の温度が、室温と同じ（25℃）になった時に文献値と同じ熱伝導率の値が得られそうな傾向が見えた。

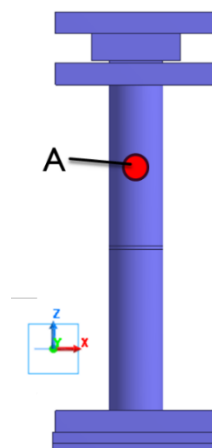


図 4-12 上側のアルミ支柱の中央部分

そこで、サンプル部分の温度ではなく、図 4-12 中の点 A の温度が室温と等しくなるようにペルチェの発熱量を調整して解析を行う。サンプルの直径はアルミ支柱と等しく（20 mm）、熱伝導率は $1.47 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ に設定して、サンプルの厚さを変えながら都度サンプル上下の温度差をとり、熱伝導率を計算した（表 4-6）。

表 4-6 点 A の温度を室温に合わせて解析・熱伝導率計算結果

サンプルの厚さ(mm)	ペルチェの発熱量 (W)	上部支柱中心の温度 (℃)	熱伝導率 (W/m・K)
2.0	-3.10	24.804	1.47
1.0	-2.60	24.993	1.47
0.5	-2.40	24.944	1.47
0.1	-2.25	24.955	1.48

表 4-6 から、サンプルの厚さを変えても熱伝導率が文献値とほぼ等しく算出されたことがわかる。よって、ペルチェの電力の設定は、サンプルの温度が室温と等しくなるようにするのではなく、点 A の温度が室温と等しくなるように調節するべきであるとわかった。

このようになる理由を考える。まず、熱伝導率を計算する際に、サンプルを通る熱量の値（伝熱量 W ）としては、ヒーターの電力を用いている。つまり、装置と雰囲気との熱の授受によって、ヒーターの電力とサンプルを通る熱量の値が変わってしまうと、正しい熱伝導率の値が得られなくなる。次に、装置内の熱は、上から下（ヒーターからペルチェ）へと流れている。よって、サンプルより下側で雰囲気から装置が熱を得たとしても、その熱がサンプル内を通ることはない。つまり測定結果に影響するのは、ヒーターからサンプルまでの部分での装置と雰囲気との熱の授受である。点 A は、ヒーターとサンプルの中間の位

置にある。なのでこの位置の温度を室温と等しくすることで、装置の温度が室温より高い点 A より上の部分での放熱と、室温より低い点 A より下の部分での吸熱が打ち消し合い、結果的にヒーターの電力とサンプルを通る熱量の値が等しくなるのだと考えられる。

今まではかなり曖昧に、サンプルのあたりの温度がおおよそ室温と同じになるようにペルチェの電力を設定していて、実測においてもシミュレーションにおいても、一度設定したらサンプルによって変えたりすることなく測定を行っていた。なので、サンプルが厚くなるほど点 A の温度は上がっており、放熱量も多くなっていた。これがサンプルが厚いほど熱伝導率が高く出ている原因であると考えられる。

次に、直径が小さいサンプルでも同様に、上側アルミ支柱の中央の温度が室温と同じ（25℃）になるように、ペルチェの吸熱量を変えながらシミュレーションを重ねた。サンプルの熱伝導率は、stycast の $1.47 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ 、アルミニウムの $237 \text{ W/m} \cdot \text{K}$ のそれぞれで、厚さを変えながら熱伝導率を計算した（表 4-7）。

表 4-7 直径 12 mm のサンプルで点 A を室温にした際の解析・熱伝導率計算結果

アルミコイン（熱伝導率：237 W/m・K）				STYCAST（熱伝導率：1.47 W/m・K）			
サンプルの厚さ(mm)	ペルチェの発熱量(W)	上部支柱中心の温度(℃)	熱伝導率(T/m・K)	サンプルの厚さ(mm)	ペルチェの発熱量(W)	上部支柱中心の温度(℃)	熱伝導率(T/m・K)
300.0	-5.85	24.959	249	2.0	-5.20	24.967	1.45
2.0	-2.24	24.983	330	1.0	-3.55	24.895	1.46
1.0	-2.24	24.929	362	0.5	-2.82	24.964	1.48
0.5	-2.23	24.979	402	0.1	-2.33	24.996	1.58

表 4-7 より、直径が支柱より小さいサンプルでも、点 A を室温に近くすると比較的文献値に近い値が得られるようになることがわかった。

また、表 4-5 ではサンプルの厚さが 0.20 mm 以下であるときにサンプルが薄いほど熱伝導率が高い傾向を示したが、今回は、0.5mm 以上においても同様に熱伝導率はサンプルを薄くするほど高くなっていた。これは、表 4-5 のときはサンプルを厚くするほど点 A の温度が上がり雰囲気への放熱量が増え熱伝導率が高くなるようになっていたが、今回は点 A を室温に合わせているため放熱量が変化せず、装置と雰囲気との熱の授受の影響が抑えられたことによる変化であると考えられる。

そして、サンプルが厚いほど熱伝導率が文献値に近く、サンプルが薄いほど熱伝導が高くなり文献値から離れていっていることも読み取れる。このことから、サンプルの直径がアルミ支柱より小さいときに生じる熱流束の偏りの影響は、サンプルが薄いほど大きくな

4.7 熱伝導解析によって立てた仮説の検証

4.6 熱伝導解析 で立てた、「厚さ 0.5 mm 以上のサンプルを用いて、ヒーターとサンプルの中心の温度が室温と等しくなるように、毎回ペルチェの電力を調整して測定を行えば、現環境の測定で精度の高い測定が行える。」という仮説を実際に測定を行うことで検証する。

まず、4.5.2 ベアサンプルの熱伝導率測定結果と考察 にて 3 種類のベアサンプルの測定を行ったが、その時に図 4-12 中の点 A（ヒーターとサンプルの中心）の温度はどうなっていたかを表に示す。なお、

$$\text{「点 A の温度 (}^{\circ}\text{C)} = \text{ch1 の温度 (}^{\circ}\text{C)} \times 31 / 54 + \text{ch2 の温度 (}^{\circ}\text{C)} \times 23 / 54\text{」}$$

としている。

表 4-8 ベアサンプル測定時の点 A の温度

サンプルの厚さ(μm)	545.2	1112.4	1119.0
点Aの平均温度(ΔT ₁ 測定時)(°C)	28.53	30.70	30.51
点Aの平均温度(ΔT ₂ 測定時)(°C)	24.25	24.04	23.89
熱伝導率(W/m・K)	1.93	2.31	2.40
標準誤差(W/m・K)	0.05	0.04	0.04

ペルチェの電力を変えずに測定していたので、やはり、ΔT₁ の測定時に、点 A の温度が室温 (25 °C) よりもかなり高くなっており、装置から雰囲気への放熱があったと考えられる。

そこで、545.2 μm と 1119.0 μm のサンプルについて、点 A の温度が室温と同じ 25 °C になるように、ペルチェの電力を毎回調整して測定を行った。なお、ヒーターの電力を 2.09 W にすると、ペルチェの電力を最大にしても点 A の温度が室温まで下がらなかったため、ヒーターの電力を下げた。また、ヒーターの電力を変えても正しく測定が行えるか検証するため、545.2 μm のサンプルの測定は、ヒーターの電力を変えて 3 回行った。測定したサンプル上下の温度差を表 4-9 に、算出した熱伝導率を表 4-10 に示す。

表 4-9 stycast のベアサンプルで測定した温度差 (K) (左: ΔT_1 , 右: ΔT_2)

ヒーター(W)	0.44	1.06	1.57	1.06	ヒーター(W)	0.44	1.06	1.57	1.06
厚さ(μm)	545.2	545.2	545.2	1119.0	厚さ(μm)	545.2	545.2	545.2	1119.0
1回目	2.21	5.27	8.01	8.63	1回目	0.76	1.87	2.97	1.87
2回目	2.20	5.16	7.97	8.12	2回目	0.81	1.67	2.93	1.67
3回目	2.07	5.04	7.93	8.15	3回目	0.79	1.94	2.93	1.94
4回目	2.14	5.01	7.62	8.18	4回目	0.73	1.82	2.93	1.82
5回目	2.16	5.00	8.11	7.67	5回目	0.85	1.87	2.95	1.87
平均	2.16	5.10	7.93	8.15	平均	0.79	1.83	2.94	1.83

表 4-10 ベアサンプルで測定した stycast の熱伝導率

ヒーターの電力(W)	2.09	2.09	2.09	0.44	1.06	1.57	1.06
サンプルの厚さ(μm)	545.2	1112.4	1119.0	545.2	545.2	545.2	1119.0
点Aの平均温度(ΔT_1 測定時)($^{\circ}\text{C}$)	28.53	30.70	30.51	24.94	25.20	24.95	25.07
点Aの平均温度(ΔT_2 測定時)($^{\circ}\text{C}$)	24.25	24.04	23.89	25.06	25.01	24.90	25.01
熱伝導率(W/m $\cdot$ K)	1.93	2.31	2.40	1.54	1.57	1.52	1.67
標準誤差(W/m $\cdot$ K)	0.05	0.04	0.04	0.04	0.03	0.03	0.04

表 4-10 のうち、点 A の温度を室温にして測定した結果を赤枠で囲っている。算出された熱伝導率は、何れも文献値に近い値となっていた上に、ヒーターの電力やサンプルの厚さが変わっても、1.52 ~ 1.67 W/m $\cdot$ K の間に収まっていた。この範囲の誤差であれば、放射線照射試験の前後で熱伝導率の測定を行い耐性評価をするにあたっては問題無い。

よって、恒温槽内でも熱伝導率の測定が十分な精度を保つてできることが確認できた。これ以降は必ず、「厚さ 0.5 mm 以上のサンプルを用いて、ヒーターとサンプルの midpoint の温度が室温と等しくなるように、毎回ペルチェの電力を調整」して測定を行うこととする。

5 熱伝導接着剤の熱伝導性評価

5.1 熱伝導接着剤の自作

3 検出器組み立てに用いる熱伝導接着剤の候補 で述べたように、接着剤 E2420 に、熱伝導フィラーとして窒化アルミニウム粉末を混合して、熱伝導接着剤の自作を試みた。熱伝導率の測定を行うため、ベアサンプルを作成する。基本的には 4.5.1 ベアサンプルの作成手順 で示した手順で作成するが、窒化アルミニウムの粒径が非常に小さく、吸入を避ける必要があるため、マスク・ゴーグル着用の上、ドラフト内で混合を行った。質量分率で、窒化アルミニウムの混合率が 25 % のものを 2 種類、50 % のものを 1 種類作成した。作成したサンプルは、硬化後も柔軟性があった (図 5-1)。



図 5-1 E2420 + AlN のベアサンプル

作成した 3 種類のサンプルの厚さは、混合率 25 % のものが 576.2 μm 、579.4 μm で、混合率 50 % のものが 605.4 μm だった。4 章で確立した方法でそれぞれの熱伝導率を測定した結果を以下に表で示す。

表 5-1 E2420 + AlN のサンプルで測定した温度差 (K) (左 : ΔT_1 , 右 : ΔT_2)

ヒーター(W)	1.28	1.28	1.59	ヒーター(W)	1.28	1.28	1.59
厚さ(μm)	576.2	579.4	605.4	厚さ(μm)	576.2	579.4	605.4
1回目	12.76	12.22	11.10	1回目	2.00	2.15	3.28
2回目	12.36	12.66	11.07	2回目	2.17	2.10	3.30
3回目	12.02	12.61	11.13	3回目	2.15	2.13	3.27
4回目		12.53					
平均	12.38	12.51	11.10	平均	2.11	2.13	3.28

表 5-2 E2420 + AlN のサンプルの熱伝導率測定結果

サンプル	E2420 + AlN (25%)		E2420 + AlN (50%)
サンプルの厚さ(μm)	576.2	579.4	605.4
ヒーターの電力(W)	1.28	1.28	1.59
熱伝導率(W/m・K)	0.64	0.63	1.09
標準誤差(W/m・K)	0.01	0.01	0.004

熱伝導率測定の結果は表 5-2 のように、混合率 50 % でも 1.09 ± 0.04 W/m・K にとどまり、stycast が 1.5 W/m・K 程度であることを考えるとやや低い値となった。

ここで、以下に示す Bruggeman の式 [10] で、AlN を E2420 に充填したときの熱伝導率の理論値を計算した。その結果を表 5-3、図 5-2 に示す。

$$1-\phi = \frac{\lambda_e - \lambda_d}{\lambda_c - \lambda_d} \left[\frac{\lambda_c}{\lambda_e} \right]^{1/3}$$

ϕ : フィラーの体積分率
 λ_e : 複合材の熱伝導率
 λ_c : マトリックス樹脂の熱伝導率
 λ_d : フィラーの熱伝導率

表 5-3 Bruggeman の式による、E2420 + AlN の AlN 混合率毎の熱伝導率の理論値 (左)
計算に用いた AlN と E2420 の密度と熱伝導率 (右)

質量分率	体積分率	熱伝導率 (W/m・K)	実測値 (W/m・K)
0.25	0.11	0.42	0.63
0.50	0.26	0.74	1.09
0.60	0.35	1.06	
0.70	0.45	1.77	
0.80	0.59	3.95	

	AlN	E2420
密度(g/cm ³)	3.26	1.15
熱伝導率 (W/m・K)	180	0.3

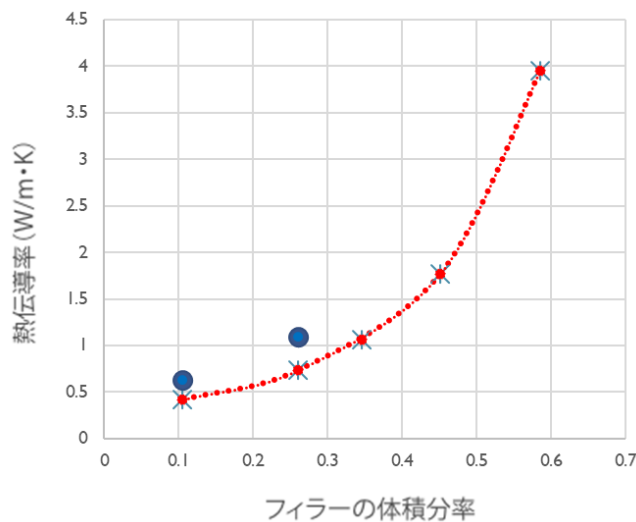


図 5-2 E2420 + AlN の熱伝導率

赤い点線が Bruggeman の式から求めた理論値で、青い点が実測値である。

実測値は理論値よりやや高めに出ているものの、おおよそ近い値をとっている。計算によると、stycast の熱伝導率を上回るには、AlN を 40 vol% 以上まで混ぜたい。すなわち質量分率で AlN を 60 % 以上混合する必要があるのだが、実際に混ぜてみると粘度が stycast と比べてかなり高くなってしまい、ディスペンサーで塗布を行うのに支障をきたしてしまうため、実用が難しいとわかった。ちなみに、70 % まで混合率を上げると、図 5-3 のようにダマになってしまっ液体状にすることもできなかった。

以上より、熱伝導接着剤の自作を断念することにした。



図 5-3 左 : E2420 + AlN (60 %)、 右 : E2420 + AlN (70 %)

5.2 STYCAST 2850FTJ の放射線耐性評価

5.2.1 照射試験用ベアサンプルの作成

4 章にて確立できた、恒温槽における熱伝導率測定の手法を用いて、STYCAST 2850FTJ with CAT9M の放射線照射試験前後における熱伝導性評価を行う。

ベアサンプルは、予備を含めて、厚さ約 600 μm 、1100 μm 、のものをそれぞれ 3 個ずつ、計 6 個作成した (図 5-4)。それらの詳しい寸法を表 5-4 に示す。厚さは図 5-5 の A~E の 5 カ所をマイクロメータで測って平均をとる。直径は、 α 、 β の 2 方向をマイクロメータで測り平均をとる。

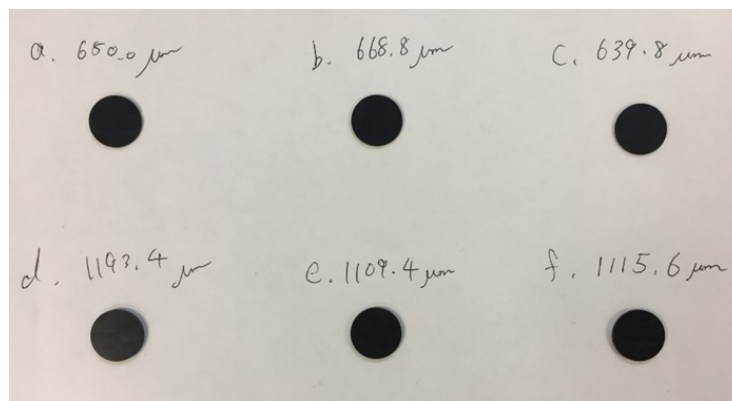


図 5-4 STYCAST 2850FTJ 照射用サンプル

表 5-4 STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルの寸法

厚さ (μm)						
sample ID.	a	b	c	d	e	f
A	649	677	640	1194	1109	1116
B	648	657	648	1196	1109	1121
C	651	667	627	1193	1107	1105
D	648	667	644	1196	1117	1120
E	654	676	640	1188	1105	1116
average	650	669	640	1193	1109	1116
直径 (μm)						
sample ID.	a	b	c	d	e	f
α	12058	12058	12041	12043	12056	12036
β	12043	12048	12050	12029	12034	12040
average	12051	12053	12046	12036	12045	12038

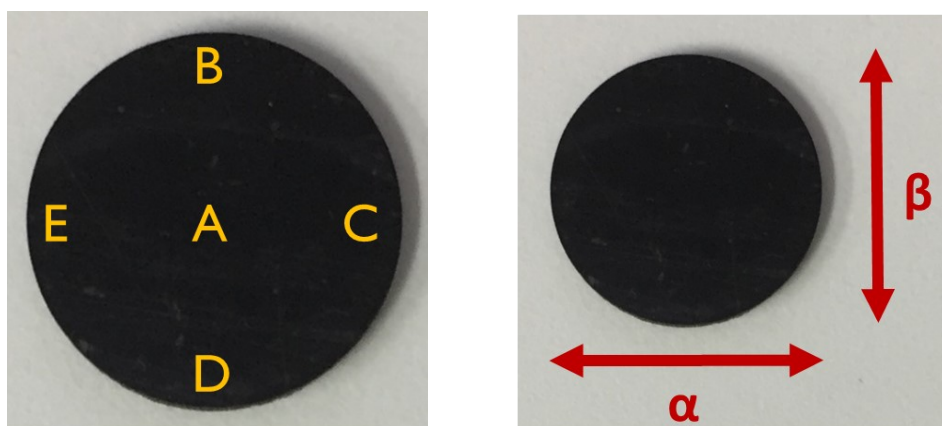


図 5-5 サンプル寸法の測定位置

5.2.2 照射前の熱伝導率測定

この 6 個のサンプルについて、熱伝導率測定を行う。

ヒーターの電力を 0.63 W にしての測定を全サンプル (sample ID. a ~ f) で行うとともに、厚さ約 1100 μm のサンプル (d ~ f) については更に、ヒーターの電力を 0.44 W に下

げて熱伝導率測定を行った。これは、照射後にサンプルの熱伝導率が下がってしまっていた場合、厚いサンプルだと、点 A の温度をペルチェの電力を最大にしても室温まで下げられない恐れがあるからである。測定結果を以下に示す。なお、全ての測定を同じ熱伝導シートを使用して行ったので、温度差 ΔT_2 は、ヒーターの電力毎に共通である。

表 5-5 STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルで測定した温度差 ΔT_1 (K)

ヒーター(W)	0.63	0.63	0.63	0.63	0.63	0.63	0.44	0.44	0.44
厚さ(μm)	650.0	668.8	639.8	1193.4	1109.4	1115.6	1193.4	1109.4	1115.6
1回目	3.75	4.13	3.72	5.71	5.25	4.76	3.81	3.58	3.47
2回目	3.93	4.11	3.72	6.10	5.06	4.85	3.72	3.46	3.50
3回目	3.91	4.24	3.77	6.11	5.17	4.84	3.63	3.58	3.56
4回目	4.01	4.05	3.73	5.99	5.19	4.71	3.75	3.60	3.43
5回目	3.93	4.12	3.73	6.01	5.18	4.75	3.83	3.67	3.47
平均	3.91	4.13	3.73	5.98	5.17	4.78	3.75	3.58	3.49

表 5-6 STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルで測定した温度差 ΔT_2 (K)

ヒーター(W)	0.63	0.44
厚さ(μm)	—	—
1回目	1.31	0.84
2回目	1.27	0.77
3回目	1.25	0.69
4回目	1.32	0.79
5回目	1.34	0.75
平均	1.30	0.77

表 5-7 STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルの照射前の熱伝導率測定結果

sample ID.	a	b	c	d		e		f	
サンプルの厚さ(μm)	650.0	668.8	639.8	1193.4		1109.4		1115.6	
ヒーター(W)	0.63	0.63	0.63	0.44	0.63	0.44	0.63	0.44	0.63
熱伝導率(W/m・K)	1.39	1.32	1.46	1.56	1.42	1.54	1.60	1.60	1.78
標準誤差(W/m・K)	0.02	0.02	0.01	0.02	0.02	0.02	0.01	0.02	0.02

熱伝導率の測定結果は、1.32～1.78 W/m・K の間に収まった。熱伝導率はサンプル毎に個体差もあると考えられ、文献値 1.47 W/m・K と比較して、この程度の測定誤差は熱伝導率の放射線耐性評価を行う上では許容範囲内であるといえる。以上で照射前の測定が完了した。

5.2.3 放射線照射試験後のサンプルの状態

6 個のサンプルに対して照射試験を行った。照射量は、
サンプル a, b, e が、 $1.0 \times 10^{16} [1\text{MeV} \cdot \text{n}_{\text{eq}}/\text{cm}^2]$
サンプル c, d, f が、 $5.0 \times 10^{15} [1\text{MeV} \cdot \text{n}_{\text{eq}}/\text{cm}^2]$
である。

照射試験後十分期間をおいてから、サンプルの状態を確認すると、b と e は目視でわかるほど明らかに変形（膨張）していた（図 5-6）。サンプルの中に入っていた空気が膨張したように見える変形の様子だった。

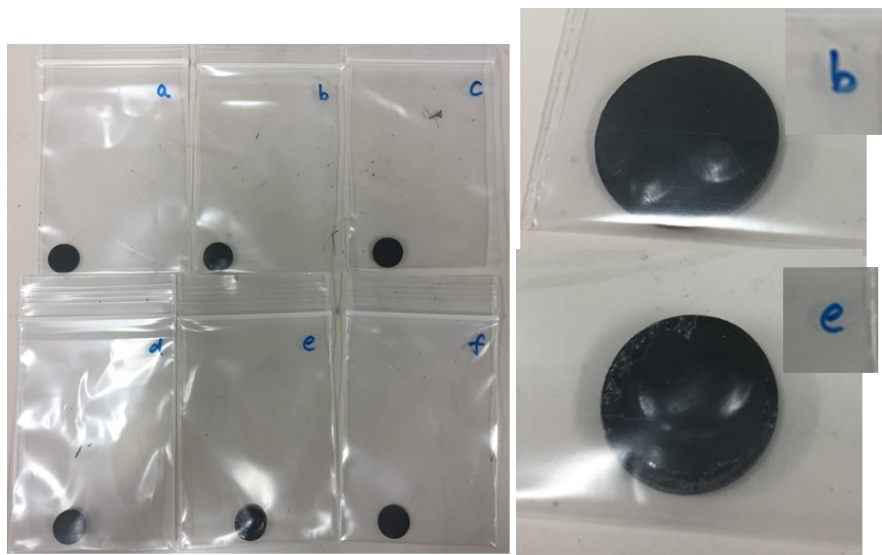


図 5-6 照射試験後のサンプル

また、全サンプルの放射線量を環境放射線モニタ「PA-1000 Radi (ラディ)」を用いて
図 5-7 のようにして測定した。その測定結果を表 5-8 に示す。



図 5-7 「PA-1000 Radi (ラディ)」で照射サンプルの放射線量を測定

表 5-8 「PA-1000 Radi (ラディ)」で測定した放射線量

sample ID.	放射線量 ($\mu\text{Sv/h}$)	target flux ($1\text{MeV} \cdot \text{n}_{\text{eq}}/\text{cm}^2$)	厚さ (μm)
a	2.5	$1\text{e}16$	約600
b	2.5	$1\text{e}16$	
c	1.3	$5\text{e}15$	
d	2.4	$5\text{e}15$	約1100
e	3.9	$1\text{e}16$	
f	2.2	$5\text{e}15$	

「PA-1000 Radi (ラディ)」で測定した放射線量は、照射量の多いものほど大きく、サンプルが厚いものほど大きく測定され、理に適った結果となった。

また、目視では変形が確認できなかったサンプル a, c, d, f については、マイクロメータで各点の厚さを測定し、照射前と比較した。その結果が表 5-9 である。どのサンプルもわずかではあるものの b, e と同様に厚くなっていた（膨張していた）ことがわかった。

表 5-9 照射前後におけるサンプルの厚さの比較

照射前 厚さ (μm)						
sample ID.	a	b	c	d	e	f
A	649	677	640	1194	1109	1116
B	648	657	648	1196	1109	1121
C	651	667	627	1193	1107	1105
D	648	667	644	1196	1117	1120
E	654	676	640	1188	1105	1116
average	650	669	640	1193	1109	1116
照射後 厚さ (μm)						
sample ID.	a	b	c	d	e	f
A	720	1500	650	1275	3315	1151
B	730		655	1250		1186
C	697		632	1250		1132
D	718		654	1247		1139
E	728		645	1265		1138
average	719		647	1257		1149

5.2.4 照射後の熱伝導率測定

照射後のサンプルのうち大きく変形してしまった b, e については装置に取り付けて熱伝導率測定を正しく行うことは困難なので、a, c, d, f の4サンプルのみ、熱伝導率の測定を行うことにした。測定の条件については照射前と全く同じにしており、熱伝導シートも照射前に使用したのと同じものを用いて測定を行った。測定結果を以下に示す。なお、サンプルの厚さは照射後に測り直した値を計算に用いている。

表 5-10 STYCAST 2850FTJ 照射後のサンプルで測定した温度差 ΔT_1 (K)

ヒーター(W)	0.63	0.63	0.44	0.63	0.44	0.63
sample ID	a	c	d	d	f	f
1回目	4.33	3.37	3.70	5.70	3.47	4.85
2回目	4.01	3.60	4.10	5.41	3.39	4.81
3回目	3.88	3.91	3.91	5.72	3.45	4.79
4回目	4.19	3.37	3.77	5.65	3.33	4.80
5回目	3.94	3.63	4.21	5.72	3.42	4.83
平均	4.07	3.58	3.94	5.64	3.41	4.82

表 5-11 STYCAST 2850FTJ 照射後のサンプルで測定した温度差 ΔT_2 (K)

ヒーター(W)	0.63	0.44
sample ID	—	—
1回目	1.31	0.84
2回目	1.27	0.77
3回目	1.25	0.69
4回目	1.32	0.79
5回目	1.34	0.75
平均	1.30	0.77

表 5-12 STYCAST 2850FTJ 照射用サンプルの照射後の熱伝導率測定結果

sample ID.	a	b	c	d		e		f	
照射前のサンプルの厚さ(μm)	650.0	668.8	639.8	1193.4		1109.4		1115.6	
照射後のサンプルの厚さ(μm)	718.6		647.2	1257.4				1149.2	
ヒーター(W)	0.63	0.63	0.63	0.44	0.63	0.44	0.63	0.44	0.63
照射前の熱伝導率(W/m $\cdot$ K)	1.39	1.32	1.46	1.56	1.42	1.54	1.60	1.60	1.78
照射後の熱伝導率(W/m $\cdot$ K)	1.44		1.58	1.54	1.61			1.69	1.82
標準誤差(W/m $\cdot$ K)	0.04		0.07	0.05	0.02			0.02	0.01

表 5-12 について、測定を行えたサンプルについては、熱伝導率測定の結果がどれも照射前後でほとんど変わらなかった。

計算に用いるサンプルの厚さは照射前の値を使うことも考えたが、算出される熱伝導率の値は最大でも 0.1 W/m $\cdot$ K 程度しか変わらなかったのも、どちらにしても照射後に stycast サンプルの熱伝導率の低下は起こっていないと考えられる。よって熱伝導率に関しては、stycast の放射線耐性に問題はないとわかった。

しかし、サンプル b, e を筆頭に全てのサンプルで変形がみられた点は気がかりである。サンプル内に残っていた空気が、照射により高温になって膨張してしまったのではないかと考えたが、別の機会に stycast を高温にした際には、特に脱泡に気を使ったわけでもないのに膨張は見られなかったようである。よって、高温ではなく放射線耐性の問題でアウトガスが発生して stycast が変形した可能性がある。

ただし、照射試験では実際の検出器の運転においては数年かけて受けるような放射線量を短時間で受けていることから、仮に照射試験に耐えられなかったことが原因であったとしても、すぐに熱伝導接着剤として使用する候補から外れるというわけではない。いずれにせよ、今後の課題として引き続き調査する必要がある。

6 結言

LHC の高輝度化に向けて新型シリコンピクセル検出器の開発を行っている中で、ベアモジュールとセルの接着に用いる熱伝導接着剤の熱伝導性評価を以下のように行った。

接着剤の熱伝導率測定において、接着剤のみのサンプル（ベアサンプル）の作成に成功し、熱伝導率測定の精度を向上させるとともに、放射線照射試験の前後におけるサンプルの変形の様子を容易に確認できるようにした。

恒温槽を用いた熱伝導率測定について、熱伝導率測定の結果と、「femtet」を用いた熱伝導解析の結果が示した傾向をもとに手法を改善して測定精度を向上させ、熱伝導接着剤の熱伝導率の放射線耐性評価を行えるようにした。

コニシ株式会社のエポキシ系接着剤 E2420 と、株式会社トクヤマの窒化アルミニウム粉末 HF-01 を混合し、新型シリコンピクセル検出器のための熱伝導接着剤の作成を試みたが、有用なものを作成することはできなかった。

高熱伝導性万能エポキシ注型樹脂「STYCAST 2850FTJ with CAT9M」について、放射線照射試験の前後で熱伝導率測定を行い、照射による熱伝導率の低下が起きなかったことを確認し、熱伝導率に関して放射線耐性に問題はないと評価した。

今後の課題として、STYCAST 2850FTJ の熱伝導率測定用サンプルが照射試験後に膨張した原因の追究と、高輝度化後の検出器の運転において問題が起きないか検証を行う必要がある。

謝辞

本研究を進めるに当たり、指導教員の高嶋隆一教授からは多大な助言を賜りました。厚く感謝を申し上げます。基礎物理学研究室の大川賢悟さんには、研究内容を引き継がせていただくとともに、研究やミーティングでの発表内容について沢山の助言を賜りました。深く感謝しております。同研究室の村田大樹さんにも研究について沢山の助言を賜り、とても感謝しております。ATLAS-J シリコングループのスタッフ・学生の皆様にもミーティング等で沢山の助言を賜り大変お世話になりました。株式会社トクヤマ様には、窒化アルミニウム粉末 HF-01 のサンプルを無償で提供して頂きました。深謝いたします。また、本論文を執筆するにあたって参考にさせて頂いた文献の作成に関わった方々、大学院生活を共に過ごした理科教育専修の方々、大学院で勉強する機会を与えてくれた両親にも厚く御礼を申し上げ、感謝の意を表します。

参考文献

- [1] ATLAS Experiment, CERN
<https://atlas.cern/>
- [2] 東京大学素粒子物理国際研究センター ATLAS
<http://www.icepp.s.u-tokyo.ac.jp/>
- [3] 大川 賢悟 (2020) 『LHC の高輝度化計画に向けた ATLAS 実験用シリコンピクセル検出器組み立てのための熱伝導接着剤の評価』
- [4] 藤野 主一 (2019) 『ATLAS 実験に用いる新型シリコンピクセル検出器の組立と品質保証の研究』
- [5] 彌吉 拓哉 (2020) 『ATLAS 実験用新型シリコンピクセル検出器の組立工程と熱耐性の研究』
- [6] 和田追三志 『伝熱性接着剤』
https://www.nichias.co.jp/research/technique/pdf/350/0717_03.pdf
- [7] Atlas Japan: LHC アトラス実験日本アトラスグループ
<http://atlas.kek.jp/>
- [8] 高純度窒化アルミニウム (AlN) 粉末・顆粒 | 特殊品部門 | Tokuyama
https://www.tokuyama.co.jp/products/specialtyproducts/aln_powder_granules.html

- [9] ムラタソフトウェア株式会社
<https://www.muratasoftware.com/>
- [10] 高熱伝導性銀接着剤 塩井直人／筑波研究所 研究グループ 第二チーム
https://www.harima.co.jp/images/uploads/20120120183114_a64a1d4b447caced25e2f219e82c38a2.pdf
- [11] 家田晋輔 (2018) 『HL-LHC 実験 ATLAS 検出器のアップグレードに向けた新型 Pixel 検出器の組み立てに関する研究』
- [12] 山下将暉 (2019) 『ATLAS 検出器アップグレードに向けた Pixel 検出器のプロトタイプ製作に関する研究』
- [13] 日本原子力研究所 (2003) 『高分子系材料の対放射線特性とデータ集』
<https://jopss.jaea.go.jp/pdfdata/JAERI-Data-Code-2003-015.pdf>