

방형파펄스가열법에 의한 세라믹스의 열물성 측정에 관한 연구

차경옥, 이경희*, 임 광**

명지대학교 공과대학 기계공학과, 용인, 449-728

*명지대학교 공과대학 세라믹화학 학부, 용인, 449-728

**배재대학교 공과대학 고분자재료 전공, 대전, 302-735

(1999년 6월 23일 접수)

The measurements of thermophysical properties of ceramics by single rectangular pulse heating method in transient heat source

K.O. Cha, K.H. Lee* and Going Yim**

Department of Mechlical Engineering, Myongji University, Yong-In 449-728, Korea

**Department of Inorg. Mater., Myongji University, Yong-In 449-728, Korea*

***Fac. of Adv. Mat'ls Eng, Paichai University, Taejon 305-735, Korea*

(Received June 23, 1999)

요 약 본 연구에서는 방형파 펄스 가열법을 이용하여 세라믹 고유전체 열물성치의 측정에 활용하는 것에 대한 가능성을 검토하였다. 여기서 측정의 이론을 설정하고 측정의 자동화를 시도함으로써 매우 짧은 시간내 시료의 열확산계수, 비열 및 열전도율을 얻을 수 있었다. 또한 시료는 실온으로부터 약 1300 K 온도 범위까지 측정하였다.

Abstract Thermophysical properties of the high-dielectric ceramics were measured by a single rectangular pulse heating method. The values of thermal diffusivities, specific heats, and thermal conductivities were measured as a function of temperature ranging from room temperature to 1300 K.

1. 서 론

세라믹스의 기초물성인 열물성치를 정확하게 측정하는데에는 해결해야할 많은 문제점이 있다. 소재의 열물성치 측정법은 그 원리에 따라 보통정상법과 비정상법으로 구분한다.

일반적으로 보통정상법을 광범위하게 사용하고 있으나 온도를 일정하게 유지시키는 데는 실험상 어려움이 많을 뿐 아니라 측정에도 오랜 시간이 걸리는 단점이 있다. 비정상법은 이론해를 얻기 위하여 사용한 이상적인 경계조건을 실험적으로 실현시키는데 세심한 주의를 요구하고 있다. Parker는 섬광법(Flash method)에 의해서 급속의 전도율을 측정한 결과 5~10%의 오차이내에 측정 가능하다고 보고하였으며[1, 2, 3], 그 후 많은 연구 및 측정장치의 개발에도 불구하고 Delta function상의 열원이 펄스로 근사되기 위하여서는 순간적인 열원이 강해야만 했고 시편자체도 극히 얇아야 한다. 또한 Cerco[4]는 주기적 가열법의 이론과 시료전면 및 후면의 온도과에 대한 위상차를 이용

할 수 있는 방법을 제시하여 알루미늄과 카본에 대해서 측정결과를 보고하였다. 그러나 이 방법은 20~30%의 측정오차가 있었으며 측정장치의 개선만 한다면 약 10%의 오차이내로 측정할 수 있다고 했다. 역시 Cowan[5, 6]는 스텝가열법을 개발했으나 측정오차의 범위가 큰 것이 결점이었다. 한편 Kumada[7]는 스텝가열법에 있어서 작은 시편에서도 짧은 시간으로 고온까지 측정할 수 있음을 보였으며 다소의 측정결과를 발표하였다. 한편 Kobayashi[8, 9]는 스텝가열법을 검토한 후, 그 원리에 따른 측정장치를 고려하여 열원의 지속시간이 방형파 펄스상이 되게끔 하였다. 이 측정법은 강한 열원을 시료전면에 투사시켜 열물성치를 측정하여 결과를 얻었다. 이 방법 역시 비정상가열법으로 열확산계수, 비열을 구할 수 있었으나 비열을 측정하는데는 표준시료를 사용하여 열확산계수의 측정시와 유사한 조작을 몇번 반복하여야만 했다.

본 연구에서는 세라믹 유전체의 열물성 측정시의 문제점을 고려하여, 가능한 짧은 시간에 측정이 완료될 수 있게

꿈 방형과 펄스가열법[10, 11]을 채용하여 가능성을 타진 하였다. 측정에 사용했던 시료는 일본 회사에서 시판되고 있는 2MgOTiO₂계, CaOTiO₂계, 1/2CaO1/2SrOTiO₂계, PbO 0.45ZrO₂, 0.55TiO₂계, La₂O₃ 3TiO₂계의 고유전체 소결체를 사용하여 상온에서 약 1300 K 범의까지 열물성인 열확산계수, 비열 그리고 열전도율을 측정하였다.

2. 이론해석

2.1. 열확산계수의 측정

본 해석에서 원판형 시편의 열확산방정식을 방형파 펄스가열법에 이용할 수 있도록 하기 위하여 경계조건과 초기조건 및 열원을 가능한 실험과 부합되도록 다음과 같이 가정하였다.

- (1) 열원의 흐름은 축방향과 반경방향인 2차원 열전도이다.
- (2) 시편에 가하여진 순간적인 열유속은 시간의 함수이며 시편전면에 균일하게 흡수된다.
- (3) 시편의 전·후면 및 원주면에서 대류열전달은 없으나 복사에 의한 열손실만이 존재한다.
- (4) 시편의 열적 및 물리적 성질은 균일하다.
- (5) 열원을 투사하기전 시편과 주위유체 사이의 온도차는 거의 없다.

위와 같은 가정하에서 Fig. 1처럼 초기온도 T₀(K)는 주위와 열평형상태이며 무차원온도는 θ = 0라고 한다. 한편

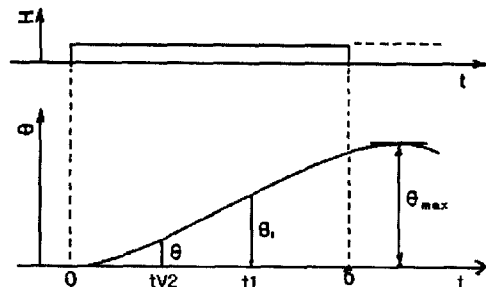
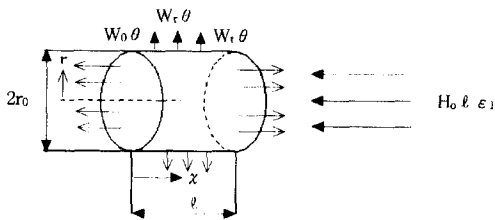


Fig. 1. Schematic of the method by square wave pulse heating on a finite cylindrical specimen.

고진공속에 놓여져 있는 원판형 시편의 전면(x = l)에 일정한 강도의 복사열유속 H₀/ε₁을 시간폭 δ인 방형파 펄스가열시켜보면 시편으로부터 온도상승이 발생된다.

시편전면을 초기조건하에서 복사열유속으로 가열할 경우 시편전표면의 복사열손실을 고려한다면, 열전달방정식 및 경계조건은 다음식과 같다.

열전달지배방정식:

$$\frac{1}{r} \frac{\partial \theta}{\partial r} + \frac{\partial^2 \theta}{\partial r^2} + \frac{\partial^2 \theta}{\partial x^2} = \frac{1}{a} \frac{\partial \theta}{\partial t} \quad (0 < x < l) \quad (1)$$

경계조건 및 초기조건:

x = 0에서

$$k \frac{\partial \theta}{\partial x} = W_0 \theta \quad (2)$$

x = l에서

$$k \frac{\partial \theta}{\partial x} = H_0 - W_1 \theta \quad (3)$$

r = r₀에서

$$k \frac{\partial \theta}{\partial r} = -W_r \theta \quad (4)$$

r = 0에서

$$\frac{\partial \theta}{\partial r} = 0 \quad (5)$$

t ≤ 0에서

$$\theta = 0 \quad (6)$$

t → ∞에서

$$\frac{\partial \theta}{\partial t} \rightarrow 0 \quad (7)$$

복사열유속을 받아서 온도가 θ 만큼 상승했던 시료표면으로부터 주위쪽의 복사열손실은 실제측정시 θ가 2~4°C 정도이기 때문에 T₀ ≫ θ로 간주해도 큰 지장이 없으므로, 복사열손실을 선형화하면 다음과 같다.

$$\epsilon_0 \sigma (T_0 + \theta)^4 - \epsilon_0 \sigma T_0^4 \approx 4 \epsilon_0 \sigma T_0^3 \theta = W_0 \theta \quad (8)$$

위 식은 시료표면(x = l) 및 시료측면(r = r₀)의 W₁ θ, W_r θ에 관해서도 마찬가지로 식이 된다. 또한 시료의 물성치 k, C_p, ρ는 좁은 상온범위내에서 일정한 값이며, 복사열유속 H₀는 시료전면에 대한 받은 열량이다.

한편 열전달지배방정식과 경계조건 및 초기조건을 무차원

화시키면 다음식과 같다.

$$\textcircled{\text{H}} = \frac{\theta}{H_0 l / k} : \text{무차원온도}$$

$$F_0 = at/l^2, F_\delta = a\delta/l^2 : \text{Fourier수}$$

$$R = \frac{r}{r_0} : \text{무차원반경}$$

$$X = \frac{x}{l} : \text{무차원길이}$$

$$r_0 = \frac{r_0}{l} : \text{형상계수}$$

$$B_0 = \frac{W_0 l}{k}, B_1 = \frac{W_0 l}{k}, B_r = \frac{W_r r}{k} : \text{Biot수}$$

유한원관상시료의 전면을 $t = 0$ 에 따라서 step 함수로 가열하면 위의 수식전개로부터 이론온도상승해가 얻어진다. 이때 얻어진 해에서 $t = \delta$ 만큼 지연된 step 함수가열에 의한 해를 빼면 일정한 시간폭 δ 의 방형파 펄스가열의 해가 구하여진다. 즉 방형파 펄스가열에 따른 무차원 온도1 상승의 이론해는 다음 식과 같다.

$$\begin{aligned} \textcircled{\text{H}}(R, X, F_0) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2B_n J_0(W_n R)}{(W_n^2 + B_n^2) J_0(W_n)} \\ &\left[\frac{U_n \cos h(U_n X) + B_0 \sin h(U_n X)}{\alpha U_n \cos h U_n + (B + U_n^2) \sin h U_n} \right. \\ &- 2 \sum_{m=1}^{\infty} \frac{V_m \cos(V_m X) + B_0 \sin(V_m X)}{(V_m^2 + U_n^2) D_m} \\ &\left. \cdot e^{-(V_m^2 + U_n^2) F_0} \right] \quad (0 < F_0 < F_\delta) \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \textcircled{\text{H}}(R, X, F_0) &= 4 \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{B_n J_0(W_n R)}{(W_n^2 + B_n^2) J_0(W_n)} \\ &\cdot \frac{V_m \cos(V_m X) + B_0 \sin(V_m X)}{(V_m^2 + U_n^2) D_m} \\ &\cdot e^{-(V_m^2 + U_n^2) F_0} \left\{ e^{(V_m^2 + U_n^2) F_\delta} - 1 \right\} \quad (0 < F_0 < F_\delta) \end{aligned} \quad (10)$$

단,

W_n : $WJ_1(W) - B_n J_0(W) = 0$ 의 n 번째의 근 $J_0(W)$, $J_1(W)$ 는 각각 0차, 1차의 Bessel 함수이다.

V_m : $a \cos v + (\beta - v) \sin v = 0$ 의 m 번째의 양의 근

$$U_n = W_n / r_0, a = B_0 + B_r, B = B_0 B_r$$

$$D_m = \sin V_m \left[1 + a - \frac{2\beta}{a} + \frac{V_m^2}{a} + \frac{\beta}{V_m^2} + \frac{\beta^2}{a V_m^2} \right]$$

시료의 후면 중심온도는 식(9), 식(10)에 있어서 $X = 0$, $R = 0$ 로 놓으면 다음과 같이 식이 주어진다.

$$\begin{aligned} \textcircled{\text{H}}(0, 0, F_0) &= \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2B_n}{(W_n^2 + B_n^2) J_0(W_n)} \\ &\left[\frac{U_n}{\alpha U_n \cos h U_n + (\beta + U_n^2) \sin h U_n} \right] \\ &- 2 \sum_{m=1}^{\infty} \frac{V_m}{(V_m^2 + U_n^2) D_m} e^{-(V_m^2 + U_n^2) F_0} \quad (0 < F_0 < F_\delta) \end{aligned} \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \textcircled{\text{H}}(0, 0, F_0) &= 4 \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=1}^{\infty} \frac{B_n}{(V_m^2 + U_n^2) J_0(W_n)} \\ &\cdot \frac{V_m}{(V_m^2 + U_n^2) D_m} e^{-(V_m^2 + U_n^2) F_0} \left\{ e^{(V_m^2 + U_n^2) F_\delta} - 1 \right\} \quad (F_0 < F_\delta) \end{aligned} \quad (12)$$

여기서 시료표면의 상당방사율이 모두 같다고 한다면,

$$B_0 = B_1 = \frac{a}{2}, \beta = \frac{a^2}{4}, B_r = B_0 r_0 = a \frac{r_0}{2}$$

가 된다. 이때 시료의 형상계수 $\gamma_0 = r_0/l$ 가 주어지며 식(11)은 α 만이, 식(12)은 α 및 F_δ 가 각각 파라미터로서 F_0 를 변수로 한 식이 된다. 특히 식(11), 식(12)에서 주어진 이론온도상승곡선에 있어 $F_{01} < F_\delta$ 와 같이 2개의 시간 F_{01} , $F_{01/2}(F_{01/2} = 1/2 F_{01})$ 에 대한 무차원 온도상승비 $\textcircled{\text{H}}_1(0, 0, F_{01})/\textcircled{\text{H}}_{1/2}(0, 0, F_{01/2})$ 로 취하여 $F_{01}(\rightarrow F_0)$ 에 관해서 정리한다면 α 를 파라미터로써 온도비-Fourier수 곡선이 얻어진다. 또한 $F_{01} > F_\delta$ 가 될 경우 α 및 $F_0/F_\delta = t/\delta$ 를 파라미터로 간주하면서 F_0 를 변수로 취한 곡선이 된다.

Fig. 2는 컴퓨터로 계산한 온도비-Fourier수 곡선의 한 예를 나타낸 것이다. 또한 실험에서 측정되었던 온도상승곡선으로부터 임의의 시간 t 및 $1/2t(t > \delta)$ 인 경우에는 파라미터 t/δ 값을 만족한 t 및 $1/2t$ 에 대한 온도상승치로부터 온도비를 구한다. 이때 α 값이 주어진다면 Fig. 2에서 $F_0 = at/l^2$ 가 결정될 수 있다. 여기서 시편의 두께 l , 시간 t 는 이미 알고 있기 때문에 열확산계수 α 가 구하여진다.

만약 시료표면으로부터 복사열손실이 무시될 때($\alpha = 0$)의 방형파펄스가열에 의한 이론해(X, F_0)도 step 함수가열에 의한 경우의 이론해[12]로부터 얻을 수 있다. 즉 시료후면에 관한 무차원온도상승은 다음과 같은 식으로 구한다.

$$\textcircled{\text{H}}(0, F_0) = F_0 \left[\frac{1}{6} + \frac{2}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{n} e^{-n^2 \pi^2 2F_0} \right] \quad (0 < F_0 \leq F_\delta) \quad (13)$$

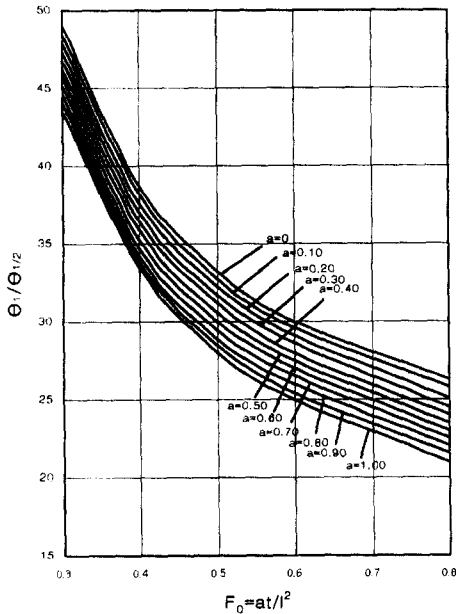


Fig. 2. Relation between the ratio of temperature rises and fourier number.

$$\Theta(0, F_0) = F\delta + \frac{2}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} e^{-n^2 \pi^2 F_0} (e^{n^2 \pi^2 F_0} - 1) \quad (F_0 > F_\delta) \quad (14)$$

식(13) 및 식(14)식으로부터 Fig. 2에 표시한 것처럼 온도비-Fourier수 곡선이 얻어지므로서 복사열손실이 무시될 경우에도 열확산계수를 구할 수가 있다.

2.2. 비열측정

시료표면의 온도가 상온부근에서 복사열손실이 무시될 경우 시료전면(x=1)에 대하여 복사열유속 H_0/ϵ_1 이 시간폭 δ 인 방향파펄스로 가열했을 때 시료후면(x=0)의 온도상승에 대한 무차원온도는 $F_0 \rightarrow \infty (t \rightarrow \infty)$ 으로 하면 일정한 값

$$\Theta_{const} = F_\delta = a\delta/l^2$$

에 달한다. 즉

$$\Theta_{const} = \frac{H_0 \delta}{\rho C l} \quad (15)$$

비열을 이미 알고 있는 표준시료를 사용하고 동일측정장치를 사용한다면 Θ_{const} 는 δ, C, ρ, l 은 이미 알고 있으므로 식(14)에서 열유속 H_0 의 값은 다음 식에 의해서 계산된다.

$$H_0 = \frac{\rho C l \Theta_{const}}{\delta} \quad (16)$$

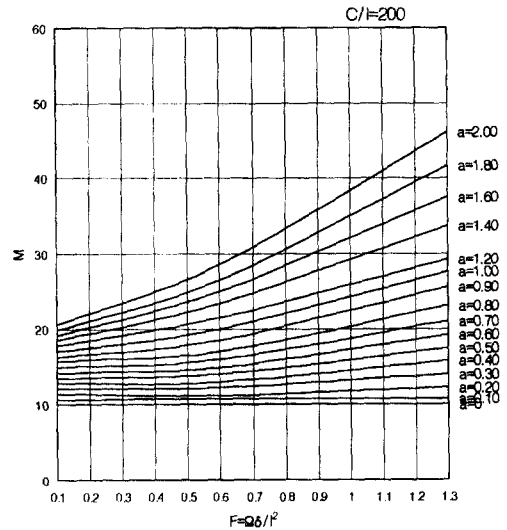


Fig. 3. Relation between temperature correction factor M and Fourier number $F\delta$.

식(16)에서 구하여진 H_0 에 따라 측정하고자 한 시료를 방향파펄스로 가열시켜 온도상승치 Θ_{const} 를 측정하므로서 다음과 같은 식에 의해서 비열 C가 계산되도록 한다. 즉

$$C = \frac{H_0 \delta}{\rho l \Theta_{const}} \quad (17)$$

한편 고온에서 복사열손실이 무시될 수 없도록 한다면 실험으로부터 측정된 원판형 시료의 후면 중심 온도상승곡선은 최대치 Θ_{max} 를 갖는 형상이 된다. 그러므로 비열 C는 Θ_{const} 대신 Θ_{max} 를 사용하여 다음과 같이 보정계수 M을 포함한 식으로 나타낼 수 있다.

$$C = \frac{H_0 \delta}{\rho l \Theta_{max} M} \quad (18)$$

$$M = \frac{\Theta_{const}}{\Theta_{max}} = \frac{\Theta_{const}}{\Theta_{max}} \quad (19)$$

여기서 Θ_{max} 는 식(12)로부터 온도상승이 최고로 나타내고 있다. 비열보정계수 M은 식(19)에 의하여 이론온도상승곡선으로부터 계산할 수 있음을 알 수 있지만 형상계수 $\gamma_0 = r_0/l$ 가 일정할 경우에는 α 를 파라미터로 하고, $F\delta$ 를 변수로 하는 식이 된다.

Fig. 3은 비열보정계수 M의 한 예를 나타내었다. 그러므로 실험에 따라 시료후면 중심의 온도상승의 최대치 Θ_{max} 를 측정하고, 별도로 측정된 α 값을 사용해서 $F\delta$ 값을 계산하므로써 $F\delta$ 에 대한 M의 값을 Fig. 3에서 구한다면 식(18)에 의하여 비열 C의 값이 계산되도록 하였다.

2.3. 복사열손실을 고려한 α 를 구하는 방법

실제시료의 온도가 상온에서 400°C 까지는 복사열손실이 극히 작기 때문에 무시할 수 있다. 그러나 그 이상 고온이라면 복사열손실은 점차적으로 무시될 수 없는 값이다. 이런 경우 반드시 α 를 정해서 그 영향을 고려하여야 한다.

만약 시료에 대한 온도만의 함수인 비열값을 알고 있다면 복사열손실 α 는 다음과 같이 용이하게 구할 수 있다.

$$\alpha = R_0 \{1 + (\epsilon_r/\epsilon_0)\} \quad (20)$$

$$R_0 = 4\epsilon_0\sigma T_0^3/K \quad (21)$$

특히 비열을 알고 있으므로 α 는 식(20)과 식(21)으로 표시하고, R_0 가 구하여진다면 α 는 결정이 가능하다. 식(21)에서 미지의 열전도율 k 가 들어 있으며, k 는 $a C p$ 로써 이미 시료에 대한 비열값을 알고 있기 때문에 지금 측정하고자 한 시료의 온도에 근접한 열확산계수치 a_1 을 근사치로 간주한다면

R_0 는,

$$R_0 = 4\epsilon_0\sigma T_0^3 = 4\epsilon_0\sigma T_0^3 / \rho Ca_1 \quad (22)$$

이다.

따라서 식(22)에 의해서 R_0 의 근사치가 얻어진다. 물론 시료온도가 400°C 온도범위까지는 $\alpha = 0$ 이므로써 시료의 열확산계수를 알 수 있다. R_0 의 근사치와 식(20)에서 구했던 α 를 이용하거나, α 값을 사용해도 재료의 열확산계수치는 보다 정확하게 얻어진다. (at^2)의 α 에 대한 존재성은 작기 때문에 이런 조작을 1, 2회 반복한다면 즉시 α 값은 구하여지므로 이 값을 채용하면 좋다.

실제로 시료의 열확산계수를 측정하고자 할 경우 시료온도는 실온에서 단계적으로 승온하면서 동시 측정되므로 전 온도의 값을 차례로 이용하여 구할 수가 있다. 비록 α 의 값이 10% 오차가 있다해도 α 의 오차를 계산한다면 2% 이하로써 실용상 큰 지장이 없는 오차범위가 된다. 이와 같이 측정하고자 한 시료에 대한 열확산손실의 영향을 고찰해 줌으로써 정확하고 정밀도가 높은 열확산계수를 구할 수가 있다.

3. 실험장치 및 실험방법

이상의 측정원리에 바탕을 둔 측정장치의 개요를 Fig. 4에 표시하였다. 측정에 사용했던 시료는 직경 9.5~10 mm, 두께는 시료의 종류에 따라 1.5~2.5 mm 정도이다. 시료는 로의 중앙부에 놓였으며, 대류에 의한 열손실 방지 및 시료와 로재의 산화방지를 위하여 로는 오일회전펌프와 확산펌프에 의해 10^{-4}mmHg 이상의 고진공으로 유지하였다.

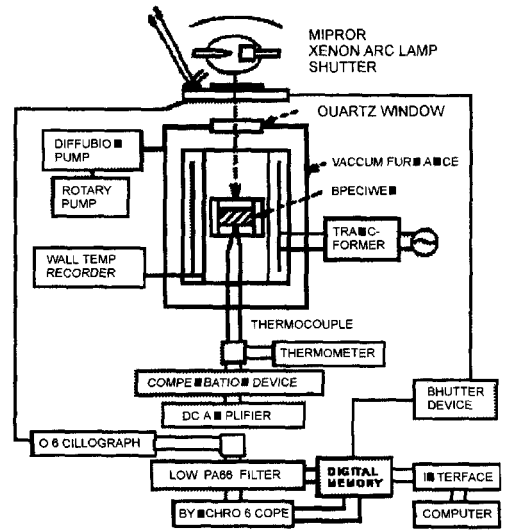


Fig. 4. Block diagram of the square wave pulse heating method.

시료온도는 폴리브덴 히터에 흐르는 전류치를 조절함으로써 소요치로 설정한다.

시료온도가 일정하게 도달하여 열평형상태가 이루어 졌을 때 크세는 아크램프에서 일정한 강도의 복사열류속은 셔터를 순간적으로 눌러주므로써 원판상시료의 상면에 방형파펄스상의 열량이 투사된다.

시료후면 중심에 관한 온도상승은 $1,000^{\circ}\text{C}$ 까지는 Chromel-Alume 열전대로, $1,000^{\circ}\text{C}$ 이상은 백금-백금 로듐 열전대에 의해서 측정한다. 이것은 전압보상장치를 통하여 열 평균상태의 온도에 상당한 열기전력을 상실시킨 상태에서 방형파펄스가열에 의한 온도상승 부분만을 직류증폭기에 입력하면서 지역화대를 통해서 부분 저장하였다. 디지털 스토리지 오실로스코프는 디지털 메모리에 저장된 온도상승곡선을 확인하기 위하여 사용한다. 이때 시료온도는 디지털 온도계로 측정한다. 또한 시료의 온도상승곡선은 오실로그래프에 기록되기도 한다. 특히 디지털 메모리에 저장되며 측정된 온도상승곡선은 인터페이스를 통하여 컴퓨터에 입력되면서 소정의 데이터 처리를 거쳐 열확산계수 및 비열이 계산된다. 이 사이 시간폭 $\delta = 3\sim 6$ 초의 방형파펄스로 시료에 가열할 때 온도상승곡선 측정에 20초 정도, 디지털 메모리로부터 계산기에 온도상승 data를 입력할 경우에는 60~100초, 계산기에 대한 데이터처리 시간을 10초 정도 필요로 하고 있지만, 거의 120초 정도에서 열확산계수와 비열이 측정되고 있다.

Fig. 4에 표시되어 있는 Photo-transistor 증폭기, 전압계의 부분은 조도계이며, 반사광을 전기량으로 변환하고, 이것을 열류속 강도로 환산시키기 위하여 사용하고 있다.

Table 1
Dielectric constant, bulk density, true density of the sample

Sample	Dielectric constant (ϵ)	Bulk density (g/cm^3)	True density (g/cm^3)
MT계 (2MgOTiO_2)	18	3.31	3.41
CT계 (CaOTiO_2)	140	3.77	3.89
SL계 ($1/2\text{CaO} \cdot 1/2\text{SrOTiO}_2$)	250	4.31	4.91
PZT계 ($\text{PbO} \cdot 0.45\text{ZrO} \cdot 0.55\text{TiO}_2$)	1450	7.16	7.50
TLT계 ($\text{La}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{TiO}_2$)	40	5.15	5.31

비열측정에는 열유속 H_0 값이 필요하다. 본 실험에서는 혼합법을 이용하여 상온에서의 비열이 이미 측정되어 있는 시료를 사용하므로 크세는 아크램프의 열유속을 결정하고, 이것을 바탕으로 고온에서의 비열측정을 하였다. 역시 열유속의 강도를 일정하게 하기 위하여 크세는 아크램프에 흐르고 있는 전류치를 일정치로 설정하고 있지만 열류속속도에는 편차가 발생되기 때문에 이 편차를 보정할 목적으로 열류속보정전도를 이용한다. 즉 상온에서 열유속치를 결정할 때 아크램프에 흐르고 있는 설정 전류치로부터 다소 증가 혹은 감소시켰던 상태로 수차례 실행하여 정한다. 열유속 H 대 조도계의 출력전압치에서 나타난 열유속교정전도를 작성한 이것을 식으로 표시하여 계산기에 기억시키므로써 고온영역에서 비열을 측정할 경우 그때의 조도계의 출력전압치를 계산기에 입력되도록 하므로 설정치 H에서 편차가 보정된 열유속치 H가 계산된다.

또한 투사시간 δ 사이에도 조도계의 출력전압치가 일정치로 되기도 전에 열유속이 변동함을 알 수 있지만, 이 변동은 열유속치로 환산한다면 비교적 큰 경우에도 1~2% 정도이므로 조도계의 출력전압치의 평균값을 사용하여 열류속치를 계산하고 있다.

본 실험에 사용된 시험체의 제반 Data는 Table 1과 같다.

4. 실험측정결과

4.1. 열확산계수

Fig. 5는 세라믹스의 열확산계수의 측정결과와 더불어 지금까지 측정발표된 몇가지 물질의 Data를 함께 표시하였다. 2MgOTiO_2 계는 그 주성분이 티탄산 마그네슘으로 유전율이 $\epsilon = 13\sim 18$ 정도로 낮지만 온도계수가 $+150 \text{ ppm}/^\circ\text{C}$ 로 정(+)의 값을 갖기 때문에 온도보상용 콘덴서로 오늘날 많이 쓰이고 있는 세라믹으로서 재현성이 양호하게 얻어지고 있다. 한편 상온에서 열확산계수치가 다른 세라믹에 비해서 아주 큰 값을 가지며, 온도상승과 더불어 급격한 감소를 보이고 있다. 그러나 다른 유전체들보다 열확산계수치가 높

은 편이나 고온일수록 변화율은 상당히 낮아짐을 나타내고 있다. 또한 열확산계수치는 언제나 온도가 상승하면 감소하지만 특히 유전율이 작은 MT-2에서는 이런 경향이 뚜렷하게 표시되고 있다.

CaOTiO_2 계는 실온에서 낮은 열확산계수값을 갖지만 온도가 상승함에 따라 비교적 큰 감소를 나타내고 900°C 이상의 고온일 경우는 2MgOTiO_2 계와 거의 같은 값을 보이고 있다.

$1/2\text{CaO}1/2\text{SrOTiO}_2$ 계는 상온으로부터 약간 낮은 열확산계수값을 보이나 온도상승과 함께 거의 일직선상으로 낮아지고 있다. 또한 온도가 400°C 부근에서부터는 CaOTiO_2 계와 거의 같이 변하고 있다.

PZT계는 상온으로부터 아주 낮은 열확산계수값을 갖지만 다른 세라믹 유전체와 달리 온도증가에 따라 점진적인 상승을 하여 약 500°C 부근까지 정점을 이룬 후 그 이상의 온도에서는 일반 세라믹 유전체와 같이 낮아지고 있다. 열확산계수치의 상승은 큐리점 부근인 $350\sim 650^\circ\text{C}$ 에 걸쳐서 나타내고 있다.

$\text{La}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{TiO}_2$ 계는 열확산계수가 PZT계와 상온에서 거의

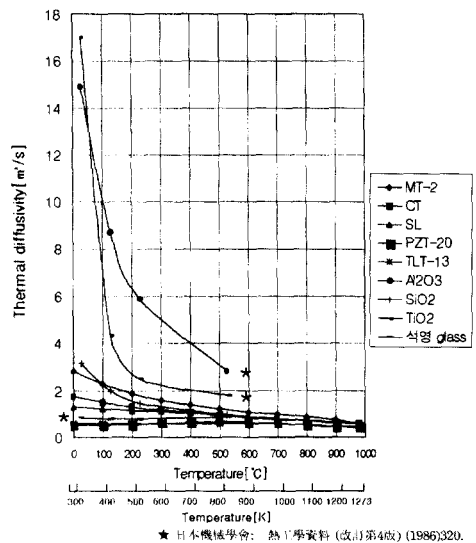


Fig. 5. Thermal diffusivity of ceramic high-dielectrics.

★ 日本機械學會: 熱工學資料 (成山第4版) (1986)320.

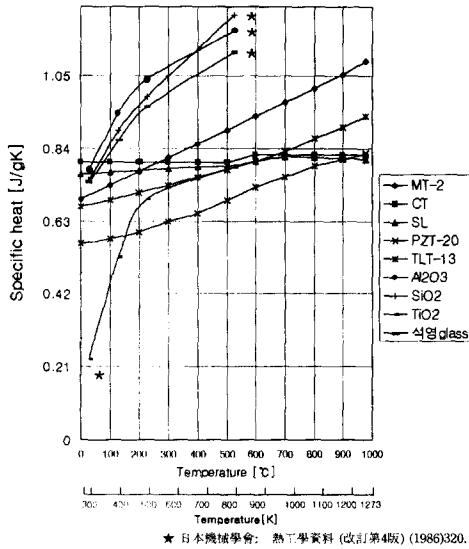


Fig. 6. Specific heat of ceramic high-dielectrics.

같은 값을 취하며 온도의존성이 거의 없이 일정한 값을 나타낸 후 700°C 이후에는 직선적인 하강을 보이고 있다. 전체적으로 보아 단결정인 Al_2O_3 , SiO_2 전은 열확산계수의 범위가 $14 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ 이상을 보이고 있으나 다정질체들은 모두 $3 \times 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$ 로써 낮은 값을 가지고 있다.

4.2. 비열

Fig. 6은 세라믹 유전체의 비열 측정결과이다. 비열은 온도에 따라서 상승하는 것이 일반적이다. 세라믹의 비열은 금속보다는 낮지만 변화율은 거의 비슷하다. MT계는 실온에서는 CT계나 SL계 보다 낮은 비열을 갖지만 온도상승과 더불어 일직선상으로 큰 상승폭을 나타내고 있다. 물론 이 재료는 유전율이 낮지만 변화가 큰 경향을 보이고 있다. CT계는 다른 세라믹 유전체보다 상온에서 높은 값을 가지며 온도가 상승해도 거의 일정하다. SL계는 실온에서 MT계보다 다소 높은 비열값을 가지며 1270 K 이상에서는 CT계와 같은 값을 가진다. PZT계는 상온에서는 다른 세라믹 유전체에 비해서 아주 낮은 값을 가지고 있다. 한편 온도상승과 더불어 MT계와 같은 간격으로 커다란 변화율을 나타내고 있고 약 1200 K 이상에서는 CT계 및 SL계와 같은 값을 유지하고 있다. TLT계는 상온에서는 다른 세라믹 유전체보다 중간 비열값을 갖지만 온도증가와 더불어 완만한 직선상의 상승변화율을 가진 것이 특징이다.

4.3. 열전도율

세라믹에서 열전도를 일으키는 주된 캐리어(Carrier)로는

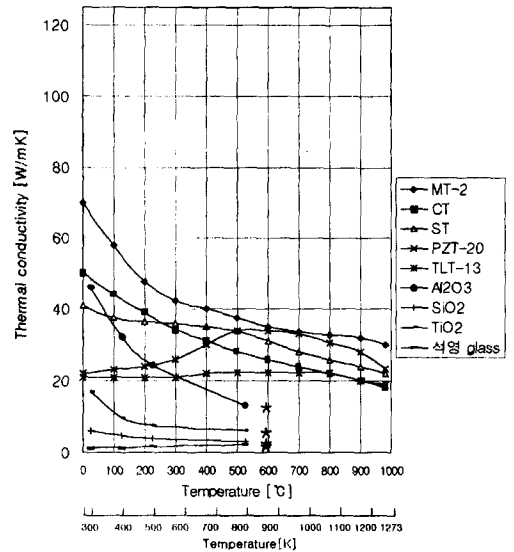


Fig. 7. Thermal conductivity of ceramic high-dielectrics.

전자, 격자진동의 포논(Phonon), 복사의 포톤(Photon) 등이며 이들 각각의 캐리어의 기여가 합해서 전체의 열전도율이 정하여진다.

Fig. 7은 세라믹 고유전체의 열전도율 측정결과이다. 이들 세라믹은 온도상승과 함께 열전도율이 변하고 있다.

MT계는 상온에서 큰 열전도율을 취하지만 600 K까지는 갑작스런 하강을 뚜렷하게 나타내 보이면서 그 이상온도에서 점차 낮아지고 있다. 그러나 고온일수록 완만하다. CT계는 실온에서부터 약 700 K까지는 상당한 큰 변화를 나타내 보이지만 그 이상 온도에서부터는 MT계와 동일폭으로 하강변화를 나타내고 있다. ST계는 상온에서는 CT계보다 약간 낮은 열전도율값을 갖지만 온도상승에 따라서 거의 일직선상으로 하강변화를 보이고 있다.

PZT-20은 다른 세라믹 유전체와 달리 온도상승과 함께 올라가다가 약 800 K 부근에서는 완만한 상승정점을 이루면서 다시 하강변화를 보여 약 1270 K 부근에서는 CT와 같은 열전도율을 나타내고 있다. 이 재료는 온도상승과 더불어 일직선상으로 약간씩 상승을 보이면서 안정을 갖는 것이 특징이다. TLT계는 상온에서 매우 낮은 열전도율을 보이며 온도상승에 대해 거의 변화없이 일정하다. 그러나 약 1000 K 이상 온도에서부터는 점차적인 하강을 나타내고 있다.

4.4. 밀도

측정에 사용했던 세라믹 고유전체 시료의 체적밀도(Bulk density), 진밀도(True density) 및 유전율은 Table 1에

표시하였다.

$2r/l$ 을 크게 한다면 해결될 문제이다.

5. 고 찰

본 실험측정결과를 검토하여 보면 $\pm 5\%$ 정도의 오차가 인정되고 있다. 즉 오차 원인도 다음과 같은 점들이 고려된다고 본다.

- (1) 열전대에 의한 온도 측정의 오차
- (2) 기록 페이퍼 속도 및 독해할 경우의 오차
- (3) α , β 를 구하는 방법에 따른 오차
- (4) 실험 장치내 진공용기의 잔존공기의 열전달에 의한 오차
- (5) 크세는 아크등에 의한 복사열유속의 시간적 공간적 불균일에 따른 오차
- (6) 지지침의 시편냉각효과에 의한 오차

이상의 오차원인을 대략적으로 환산한다면 다음과 같다. 무한 평면의 한편에 열전대를 수직으로 부착하고, 또 다른 면에 방형과 펄스를 흡수상으로 가열하였을 경우 열전대의 열전도에 의한 냉각효과가 뒤따른다. 단 이론상으로는 무한 평면 및 열전대 표면으로부터 열손실이 없고, 평판과 열전대와의 접점에 대한 열저항도 없다고 하였다. 즉 열전대의 외경을 d 로 하고, 시편의 두께를 l 이라고 한다면 $l/d = 50$ 에서 오차는 2% 정도라고 하였다. 그러나 본 측정에는 $l/d > 100$ 범위 내에서 측정이 실시해졌기 때문에 (1)항에 관한 오차는 2% 이하라고 생각되고 있다. 한편, 고온영역에서의 측정은 복사열손실에 따른 영향이 크기 때문에 차이가 있다. 또한 열전대의 접점이 완전하지 못하기 때문에 오차가 생긴다고 본다. 이런 난점들을 극복하기 위하여는 결국 측정기술의 향상밖에 없다.

(2)항에 대한 오차는 증폭기의 신호/잡음비를 크게 하고, 기록용지의 속도를 보정한다면 독해오차를 줄일 수 있다. 독해의 정도는 $\pm 1/100$ mm이지만 기록펜의 흔들림 때문에 비직선상에 따른 오차 0.5% 를 덧붙인다면 0.8% 이하의 오차가 이루어진다고 생각된다.

(3)항의 오차는 본 실험으로부터 $\alpha \leq 0.3$ 의 범위 내에서 측정을 실시하였기 때문에, 비열의 개략치를 알고 있다면 α 의 오차는 0.4% 이하일 것이다.

(4)항에 있어서는 실험장치의 진공도를 높일수만 있다면 오차는 더욱 작아질 것이다. 또한 (4), (5), (6)항에 관한 오차는 정량적인 논의는 할 수 없지만, 두께 1 을 얇게 하면 측정시간을 단축함에 있어 간접적으로 오차를 줄일 수 있다고 본다.

(7)항에 대한 오차는 시료측면으로부터 복사열손실에 관한 측면의 복사율이나 측정시 온도에 따라 차이가 있지만, 시편의 두께를 얇게 하고 시편 직경 $2r$ 와 두께 1 와의 비

6. 결 론

방형과 펄스 가열법에 의한 세라믹스의 열물성치 측정에 있어서 장치의 개발, 측정이론 및 재현성과 오차의 분석 등이 연구되었다.

직경 10 mm, 두께 2 mm의 시료를 사용하여 10^4 mmHg 진공 상태에서 크세는 아크램프를 사용하여 방형과 펄스상 열량을 가하여 시료의 열확산계수, 비열, 열전도율을 측정한다. 결과 다음과 같은 결론을 얻을 수 있었다.

- 1) 6000 W 열원을 가지고 세라믹스의 열물성치를 측정하는 데는 약 $3\sim 6$ 초가 걸렸으며 정밀성은 5% 정도의 오차 범위안에 들어갔다.
- 2) 구해진 열물성치의 절대값에 관한 평가는 원료조성의 특성상 타당성을 검증할 수는 없었으나 높은 재현성을 나타내고 있었다.
- 3) PZT계 조성의 경우 특히 온도상응에 따른 열전도율 비정상 변화가 크게 나타나 있으나 이는 큐리온도가 대체로 $300\sim 400^\circ\text{C}$ 상에 있다는 점과 더불어 비교적 낮은 온도에서의 pb 성분의 분해회발등의 영향이 나타난 것으로 예측된다.

기호설명

- a : 열확산계수(cm^2/s)
- r_0 : 시료반경(cm)
- B_0 : Biot수($= W_l/k$)
- T : 절대온도(K)
- B_1 : Biot수($= W_l/k$)
- T_0 : 초기절대온도(K)
- B_r : Biot수($= W_r r_0/k$)
- t : 시간(s)
- $W_x = 4\epsilon_x \sigma T_0^3(x = 0, 1, r)$: 비열($\text{cal/g}^\circ\text{C}$ 혹은 J/gK)
- F_0 : Fourier수($= at/l^2$)
- x : 시료후면으로부터 거리(cm)
- F_δ : 펄스폭 δ 에 의한 Fourier수($= a\delta/l^2$)
- α : 복사열손실 파라미터
- $H_0(H)$: 복사열유속($\text{cal/cm}^2\text{s}$)
- β : 복사열손실 파라미터
- k : 열전도율($\text{cal/cm}^\circ\text{C}$ 혹은 W/mK)
- γ_0 : 시료의 반경, 두께비($= r_0/l$)
- l : 시료의 두께(cm)

- δ : 가열방향파펄스의 시간폭(S)
 M : 비열보정계수
 ϵ_x : 방사율($x = 0, 1$)
 σ : Stefan-Boltzman 상수(W/cm^2K^4)
 \textcircled{H} : 무차원온도상승 [$= \theta/(H_0/k)$]
 θ : 온도상승(K)
 ρ : 온도(g/cm^3)
 θ_{const} : 복사열손실이 없을 경우 시료후면(중심)의 최고 상승온도($^{\circ}C$)
 θ_{max} : 복사열손실이 있을 경우 시료후면 중심의 최고 상승온도($^{\circ}C$)

참 고 문 헌

- [1] W.J. Parker, J. Appl. Phys. (1961) 1679.
- [2] W.J. Parker, NRCC, Ottawa Canada (1962) 32.
- [3] W.J. Parker and R.J. Jenkins, U. S. Naval and Radiological Defence Laboratory, WADDT technical Report (1962) 61.
- [4] M. Cerceo and H.M. Childers, J. Appl. Phys., Vol. 34 (1963).
- [5] R.D. Cowan, J. Appl. Phys., Vol. 32 (1961) 1363.
- [6] R.D. Cowan, J. Appl., Vol. 32 (1963) 926.
- [7] Kumada and Kobayasi, Technology Report Tohoku Univ., Vol. 32 (1968) 43.
- [8] Kobayasi and Kumada, J. of Atomic Energy Society of Japan., Vol. 9 (1967) 58.
- [9] K. Kobayasi and T. Kobayasi, Trans Jpn. Soc. Mech. Engrs., B. Vol. 46, No. 407 (1980) 1318.
- [10] K.O. Cha, T. Takano and K. Kobayasi, The 7th Japan Symposium on Thermophysical Properties (1986) 215.
- [11] 차경옥, 장희석, 이흥주, 한국자동차공학회지 Vol. 13, No. 2 (1991) 88.