

SUS304/PSZ焼結複合材の熱伝導率

太田 弘道*・友田 陽*・川崎 亮*²・渡辺 龍三*²・早稻田 嘉夫*³

Thermal Conductivities of SUS304/PSZ Composite Materials

Hiromichi Ohta, Yo Tomota, Akira Kawasaki, Ryuzo Watanabe and Yosio Waseda

Synopsis : The effective thermal conductivity and thermal anisotropy of SUS304/PSZ composite materials produced by three different sample preparation processes have been systematically determined by the laser-flash method in the temperature range from room temperature to 1280K. The results obtained are summarized as follows. 1) The thermal conductivity of SUS304/PSZ composite materials increases with increasing the volume fraction of SUS304. 2) Temperature dependence of thermal conductivity of SUS304/PSZ composite materials also changes with increasing the volume fraction of SUS304. This is attributed to the thermal properties of the components of SUS304(positive) and PSZ (slightly negative). 3) Samples having small fractions of pore show higher thermal conductivity values. 4) The thermal anisotropy is not observed in the samples prepared by sintering at atmospheric pressure. On the other hand, the thermal anisotropy is clearly found in the samples prepared by sintering at 20 MPa. This would be attributed to the preferential orientation of PSZ particles in the direction perpendicular to the direction of applied pressure. 5) Estimation for thermal conductivity values has also been made using the equivalent inclusion method in the composition range with relatively low concentration of dispersed phase, because it is difficult to apply this method to the sample where direct contact between dispersed phases is realized. Fair agreement between the estimated and experimental values was found.

Key words : thermal conductivity ; partially stabilized zirconia ; SUS304 ; effective thermal conductivity ; composite materials ; conductive heat transfer ; laser flash method ; thermal anisotropy ; equivalent inclusion method.

1. 緒言

傾斜機能材料はスペースプレーン(宇宙往還機)の外殻、ロケットのエンジン材料などの大きな熱負荷環境下における材料としての使用を主目的として検討されている。特に、大気との摩擦により高温となる外表面から内部に向けてその体積比をセラミックスから金属に連続的に変化させたSUS304/部分安定化ジルコニア(PSZ)系材料は、耐熱性、遮熱性、耐酸化性、経済性の点から熱応力緩和型傾斜機能材料の一つとして有望である。大きな温度勾配下における熱応力を考慮した材料の設計、合成、評価には、熱伝導率の値が不可欠である。熱伝導率の値から複合材料の熱伝導を推算する方法についてはいくつかの検討が行われ²⁾、母相中に異相を分散させた材料に対する等価介在物法の有効性が指摘されている³⁻⁵⁾。しかし、実測値との比較は十分でない。

本研究では、このような観点から実施したSUS304/PSZ系焼結体に関する系統的な熱伝導率の測定結果を、室温から1270Kの広い温度範囲、SUS304の体積分率0%から100%の広い組成範囲について報告する。また、複合材料の物性値予測法としてその有効性が注目されている等価介在物法⁵⁾

を用いた熱伝導率の推算結果についてもあわせて報告する。

2. 実験方法

2・1 試料の作製

供試粉末として、平均粒径が $3\mu\text{m}$ のSUS304粉末と平均粒径が $0.07\mu\text{m}$ の $\text{ZrO}_2\text{-}3\text{mol}\%\text{Y}_2\text{O}_3$ PSZ粉末を使用した。PSZとSUS304を所定の体積比となるように秤量し、湿式ボールミルで86.4ks混合し、浮き型方式の金型に充填、150MPaで圧粉した後、高さ20mm、直径10mmの円柱状に予備成形し、1623Kの純水素中において3.6ks保持して常圧焼結材(試料A)を作製した。また、粒径 $3\mu\text{m}$ のSUS304粉末と平均粒径 $0.18\mu\text{m}$ のPSZ粉末を用いて同様の方法で常圧焼結材(試料B)を作製した。一方、試料Aと同一の方法で調整した混合試料粉末を浮き型方式の金型に充填し、5%水素を含んだアルゴン雰囲気中で1473K、20MPaにおいて3.6ks保持することによって高さ20mm、直径30mmの円柱状の加圧焼結材(試料A_{HP})を作製した。このような3種類のSUS304/PSZ焼結複合材について、常圧焼結材についてはSUS304の体積分率0%から100%の範囲で20%おきに組成を変えた6個の試料、加圧焼結材についてはSUS304の体積分率が0%から100%の範

平成8年3月5日受付 平成8年5月13日受理 (Received on Mar. 5, 1996; Accepted on May 13, 1996)

* 茨城大学工学部 (Faculty of Engineering, Ibaraki University, 4-12-1 Nakanarusawa-cho Hitachi 316)

* 2 東北大学工学部 (Faculty of Engineering, Tohoku University)

* 3 東北大学素材工学研究所 (Institute for Advanced Materials and Processing, Tohoku University)

囲で10%おきに組成を変えた11個の試料をそれぞれ作製し、熱拡散率の測定を行った。

2・2 各相の体積分率および微細組織

気孔を含む各相の体積分率は、焼結体の密度をアルキメデス法により求め、SUS304およびPSZの理論密度および調合組成から導出した。得られた結果をTable 1およびTable 2にまとめて示す。

試料Aは出発材料のPSZとSUS304の粒径の差が大きいため、SUS304粒子の間に粒径の小さいPSZの粉末が入り込んで緻密な組織を構成するのに対し、試料Bの場合は粒径の差が小さいことに起因して、全般に気孔率が高い組織となっている。研究対象とする複合材料の微細組織の情報を得るため、円柱試料の中央部分を切り出し、常圧焼結材については予備成形試料、加圧焼結材については加圧焼結試料の、圧粉方向に平行および垂直な面を耐水研磨紙で1500番まで研磨し、さらに粒径0.3μmのダイヤモンド粒子で鏡面研磨した後、光学顕微鏡により組織観察を行った。

圧粉方向に垂直な面では、すべての試料で等方的な組織が観察された。また常圧焼結を行った試料では成形圧方向に平行な面の組織も等方的で、すべての組成領域で圧粉方向に垂直な面と平行な面の組織の差は認められなかった。一方、加圧焼結を行った試料では、加圧方向に平行な面については、加圧方向に垂直な方向に伸展した組織の異方性が観察された。

一例としてFig. 1に試料Bの組成に伴う組織の変化を示す。低PSZ組成ではSUS304マトリックス中にPSZが分散した組織となっているが、PSZ組織の体積分率の増大に伴い、PSZ相は相互に連結しネットワーク構造をとるようになる。さらにPSZ相が増大すると逆にSUS304相が分散相となる様子が明瞭に認められる。

Fig. 2に同一組成を有する試料A、試料Bおよび試料A_{hp}の圧粉方向に平行な断面の組織を示す。粒径の小さなPSZ粉

末を用いた場合にはPSZの低い体積分率からネットワークの形成が顕著となること、組織写真中に黒い部分として認められる気孔は主としてPSZ相に存在し、かつSUS304相近傍に優先的に存在する傾向が認められる。なお、1つの試料の各部から試料を切り出し組織観察を行い、組織の部位による差が認められないことを確認した。

2・3 熱伝導率の導出

試料の熱伝導率λは、レーザーフラッシュ法⁶⁾により真空中でタングステンメッシュヒーターにより一定温度に保持した試料の熱拡散率αを室温から1270Kまでの温度範囲で測定し、比熱C_p、密度ρの値より、次式の関係を用いて算出した。

$$\lambda = \alpha C_p \rho \dots\dots\dots (1)$$

熱拡散率αの決定に用いたレーザーフラッシュ法は、パル

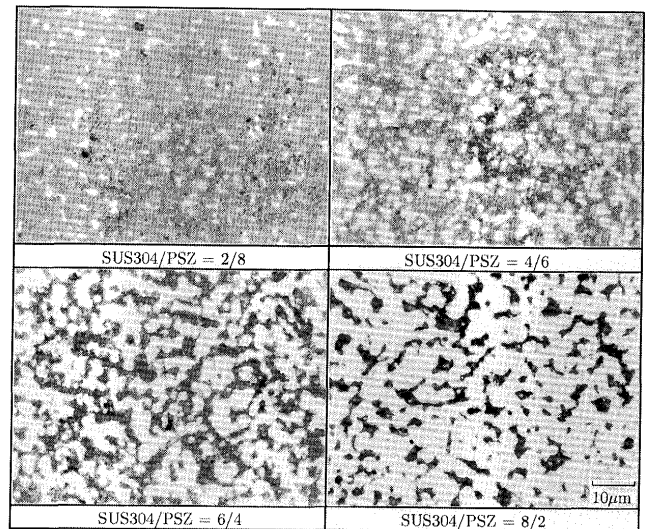


Fig. 1. Microstructures of SUS304/PSZ composite samples (Type B). PSZ phase (gray), SUS304 phase (white) and pore (black).

Table 1. Volume fractions of constituent phases for samples of Types A and B.

A (SUS304-3μm/PSZ-0.07μm)						
Phase	Volume fraction (%)					
SUS304/(SUS304+PSZ)	0	20	40	60	80	100
SUS304	0.0	19.8	39.0	58.2	75.8	93.8
PSZ	84.5	79.3	58.5	38.8	19.0	0.0
Pore	15.5	0.9	2.5	3.0	5.2	6.2

B (SUS304-3μm/PSZ-0.18μm)						
Phase	Volume fraction (%)					
SUS304/(SUS304+PSZ)	0	20	40	60	80	100
SUS304	0.0	19.7	38.3	55.9	72.7	93.0
PSZ	94.7	78.8	57.4	37.3	18.2	0.0
Pore	5.3	1.5	4.3	6.8	9.1	7.0

Table 2. Volume fractions of constituent phases for samples (Type A_{hp}).

A _{hp} (SUS304-3μm/PSZ-0.07μm : Hot press)											
Phase	Volume fraction (%)										
SUS304/(SUS304+PSZ)	0	10	20	30	40	50	60	70	80	90	100
SUS304	0.0	9.8	19.9	29.5	39.4	48.6	56.7	67.5	78.6	86.0	98.9
PSZ	89.3	88.7	79.6	68.9	59.1	48.6	37.8	28.9	19.7	9.5	0.0
Pore	10.7	1.5	0.5	1.6	1.5	2.8	5.5	3.6	1.7	4.5	1.1

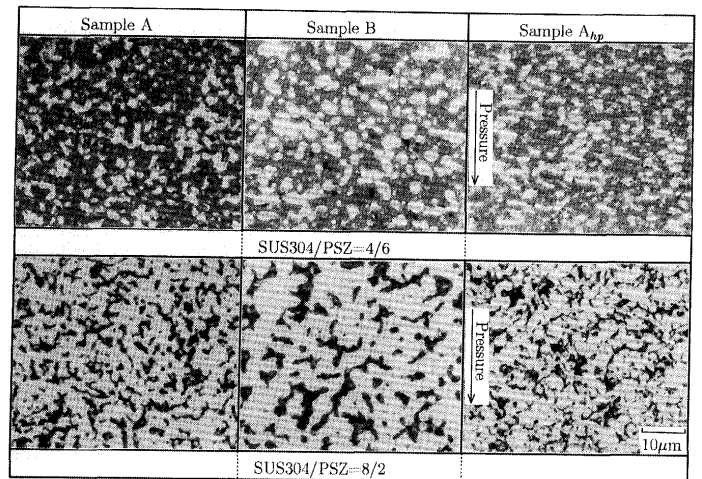


Fig. 2. Microstructures of SUS304/PSZ composite samples (Types A, B and A_{hp}). PSZ phase (gray), SUS304 phase (white) and pore (black).

Table 3. Heat capacity of sample B: Measured values were obtained using DSC, calculated values were estimated from eq.(3).

Temperature		SUS304/(SUS304+PSZ)			
		20%	40%	50%	80%
400 K	Measured	0.534	0.563	0.508	0.566
	Calculated	0.505	0.536	0.546	0.562
500 K	Measured	0.543	0.583	0.584	0.597
	Calculated	0.574	0.599	0.606	0.619
600 K	Measured	0.617	0.590	0.636	0.616
	Calculated	0.594	0.613	0.619	0.629
		kJ/(kg·K)			

レーザー光により試料の表面を瞬間的に加熱，試料の裏面の温度応答を赤外線検出器により時間の関数として測定し，温度の時間変化から，次式により熱拡散率 α を導出する迅速測定法で，既に多くの測定例があり，高温測定についても十分確立されている^{7,8)}。

$$\alpha = 0.1388d^2/t_{0.5} \quad (2)$$

ここで d は試料の厚さ， $t_{0.5}$ は試料裏面が最高温度の半分の温度に達する時間である。なお，本研究では800K以上の温度域の測定については，熱伝導率の値の導出に際して高橋らの提案⁹⁾をもとに熱放射による熱損失の影響を補正した。

一方，比熱については，各相間の反応が十分に小さければ n 種の相からなる複合材料の比熱 C_e は加成則が成立し，次式で表されることが知られている¹⁰⁾。

$$C_e = \frac{\sum_{i=1}^n c_i \rho_i v_i}{\sum_{i=1}^n \rho_i v_i} \quad (3)$$

ここで， c_i ， ρ_i ， v_i はそれぞれ i 相の比熱，密度，体積分率である。組織観察では両相の界面の反応による異相の形成は認められない。また，加成則が成立することを確認するため試料Bの4つの組成について熱流束型DSC(Differential Scanning Calorimeter)により比熱を求めた。これらの実測値と加成則から算出した値との比較をTable 3に示す。本測定に用いたDSCは銅と酸化鉄(Fe_2O_3)の比熱測定の結果と文献値の比較から最大5%の誤差を含む。この誤差を考慮すれば，式(3)の加成則による計算値は，実測値をよく再現していると言える。従って，本研究では熱伝導率の値の算出に必要な比熱の値は，PSZおよびSUS304の文献値¹¹⁾を用いて，式(3)により計算した。なお，密度 ρ はアルキメデス法による実測値を用いた。

3. 等価介在物法による推算

等価介在物法^{3,4,12)}は，分散相の形状を楕円体で近似し物性を推算する手法である。この手法は，分散相の形状を楕円体の軸比として表すため，分散相の配向により生じる熱異方性を評価できること，ディスク状，球状，ウイスカ状などさまざまな形状の分散相を含む材料に適用可能である点に特徴がある^{2,5)}。

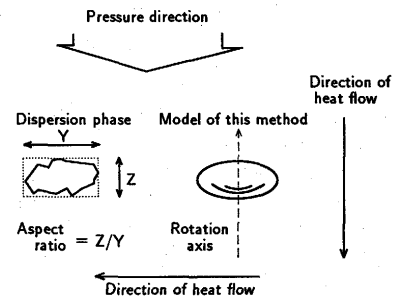


Fig. 3. Model of the microstructures of SUS304/PSZ composite for the equivalent inclusion method.

等価介在物法の詳細は既に報告されているので^{2,5,12,13)}，ここでは，本研究に必要な事項について以下に記す。なお，各相の体積分率は密度と調合組成から求めたTable 1および2の値を用いた。

3・1 等価介在物法の概要

本研究で対象とした試料は，走査電子顕微鏡による観察で各相の間に剥離は認められず，成形のための研削過程でも相間の剥離，欠損は認められなかった。またジルコニア・ニクラリ複合体溶射皮膜/SUS304二層材料の層間抵抗の測定結果において，機械的に異相が十分に結合している場合は相間熱抵抗は無視できることが確認されている¹⁴⁾。これらの結果から本研究では相間の抵抗は考慮せずに解析を行った。

試料の作製方法および組織観察結果から，試料の組織は圧粉方向に対して平行な方向には異方性がないと考えられる。したがって分散相をFig. 3に示すように，圧粉方向と平行な回転軸を持つ軸比 a_0 の楕円体として近似する。この場合，圧粉方向に対して平行な方向の熱伝導率 λ_P および垂直な方向の熱伝導率 λ_V は，次式で表される^{2,5)}。

$$\lambda_P = \lambda_3 \quad (4)$$

$$\lambda_V = \lambda_1 = \lambda_2 \quad (5)$$

$$\lambda_i = \sum_{r=0}^2 f^{(r)} \lambda^{(r)} A_i^{(r)} \quad (6)$$

$$A_i^{(r)} = \frac{\langle H_i \rangle^{(r)}}{\langle H_i \rangle} = \frac{P_i^{(r)}}{\langle P_i \rangle} \quad (7)$$

$$\langle P_i \rangle = \sum_{r=0}^2 f^{(r)} \langle P_i \rangle^{(r)} \quad (8)$$

$$P_i^{(r)} = \left[1 + \sum_{j=1}^3 S_{ij}^{(r)} (\lambda^{(r)} - \lambda^{(0)}) / \lambda^{(0)} \right]^{-1} \quad (9)$$

ここで f は体積分率，添え字(r)は各相を表し，(0)は母相，(1)および(2)は分散相を表す。また， S_{ij} はEshelbyテンソルであり次式で与えられる^{12,13)}。

$$\begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{13} \\ S_{21} & S_{22} & S_{23} \\ S_{31} & S_{32} & S_{33} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} Qa_1^2 I_{11} + RI_1 & Qa_2^2 I_{12} - RI_1 & Qa_3^2 I_{13} - RI_1 \\ Qa_1^2 I_{21} + RI_2 & Qa_2^2 I_{22} + RI_2 & Qa_3^2 I_{23} - RI_2 \\ Qa_1^2 I_{31} - RI_3 & Qa_2^2 I_{32} - RI_3 & Qa_3^2 I_{33} + RI_3 \end{bmatrix} \quad (10)$$

$$Q = \frac{3}{8\pi}, \quad R = \frac{1}{8\pi} \dots\dots\dots (11)$$

$$I_i = 2\pi a_1 a_2 a_3 \int_0^\infty \frac{du}{(a_i^2 + u)\Delta} \dots\dots\dots (12)$$

$$I_{ij} = \begin{cases} 2\pi a_1 a_2 a_3 \int_0^\infty \frac{du}{(a_i^2 + u)^2 \Delta} & i=j \\ \frac{2\pi}{3} a_1 a_2 a_3 \int_0^\infty \frac{du}{(a_i^2 + u)(a_j^2 + u)\Delta} & i \neq j \end{cases} \dots\dots\dots (13)$$

ただし

$$\Delta = \sqrt{(a_1^2 + u)(a_2^2 + u)(a_3^2 + u)}$$

$$a_1 = a_2 = 1, \quad a_3 = a_s$$

気孔は常に分散相とし、PSZとSUS304については組織観察の結果から体積分率30%以下の領域では体積分率の大きい側を母相、小さい側を分散相とした。なお中間組成領域では分散相と母相を区別できないので等価介在物法は適用できない。

3・2 軸比の決定

分散相の軸比は以下の手順により決定した。加圧方向に平行な断面を撮影した光学顕微鏡写真から各分散相に対してランダムに60個の相を選ぶ。ついでFig. 3に示すように分散相に外接し圧粉方向と平行する辺を持つ長方形を描き、この長方形の圧粉方向に垂直な長さと同じ長さの比Z/Yをもって軸比とする。このようにして求めた軸比の例を、異方性の予想される熱間焼結材試料および異方性は認められ

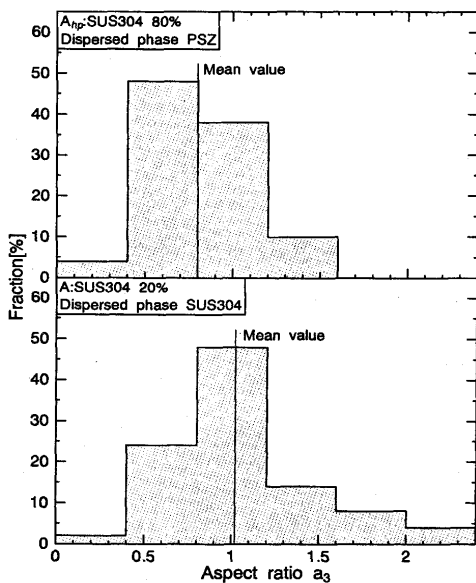


Fig. 4. Distribution of aspect ratios.

Table 4. Aspect ratios of samples.

Sample	SUS304/(SUS304+PSZ)					
	10%	20%	30%	70%	80%	90%
A	—	1.02	—	—	1.04	—
B	—	1.14	—	—	1.09	—
A _{hp}	0.60	0.64	0.76	0.83	0.80	0.81

ない常圧焼結材試料に関してFig. 4に度数分布として示す。常圧焼結材試料の軸比はほぼ1で組織は等方的と考えてよいのに対して、熱間焼結材試料の軸比は1からずれを示し、大きな異方性が存在することを示唆している。軸比の分布は、2つの試料とも大きな偏りを示さず、正規分布に近い。したがって、等価介在物法による推算に必要な軸比 a_s として平均値を用いることとした。推算に用いた軸比をTable 4にまとめて示す。

3・3 各相の熱伝導率

等価介在物法の適用には各相の熱伝導率の値が必要となる。SUS304については十分に信頼性の高い文献値¹¹⁾が報告されているので、この値を採用した。一方、PSZ相については本研究と同一組成のPSZに関する熱伝導率の文献値がなかった。このためPSZ焼結体の熱伝導率から、気孔の寄与を補正しPSZ相の熱伝導率とした。具体的には、気孔の熱伝導率がPSZ相に対して十分小さく0と見なすことができること、本研究で作製したPSZ焼結材は、気孔の体積分率が十分小さく、気孔の軸比はほぼ1であり球状と見なせることから、次式を用いて気孔を含むPSZ焼結材の実測した熱伝導率の値 λ_e からPSZ相の熱伝導率 λ_m を決定した。

$$\lambda_m = \sqrt{\frac{\lambda_e^2}{(1-f_a)^3}} \dots\dots\dots (14)$$

ここで f_a は気孔の体積分率である¹⁵⁾。

4. 結果と考察

4・1 室温における熱伝導率

試料AおよびBの室温における熱伝導率と、等価介在物法による推算値を気孔率とともにFig. 5に示す。なお、中間組成領域ではPSZ、SUS304相とも組織が結合しあい楕円体で近似することが困難であるため等価介在物法が使えないので、この領域に関する推算は試みなかった。熱伝導率はSUS304の量が増えるにつれて増大する。試料Aと試料Bの熱伝導率を比較するとSUS304含有量が20%以上の領域で、試料Aが高い熱伝導率を示す。AとBの熱伝導率の差は気孔率の大小と対応し、気孔率の高い試料が低い熱伝導率を示す。これらの傾向は等価介在物法による推算値においても再現されている。

試料A_{hp}に関する結果をFig. 6に示す。2つの方向の熱伝導率を比較すると、圧粉方向に垂直な方向の熱伝導率は、SUS304の体積分率が90%以上の組成を除く広い組成領域で系統的に高い値を示している。これは加圧焼結により熱伝導率の低いPSZ相が圧粉方向に対して垂直方向に広がった組織となり、これを貫く方向の熱流を妨げるためと考えられる。絶対値の一致は必ずしも十分でないが、SUS304の体積分率の高い領域において、等価介在物法による推算値も、この熱異方性の傾向を再現している。一方、SUS304の体積

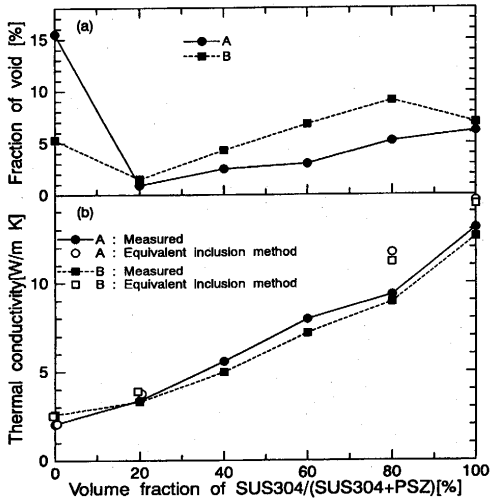


Fig. 5. Volume fractions of pore (a) and calculated and measured conductivities of samples (Types A and B), as a function of the volume fraction of SUS304(b).

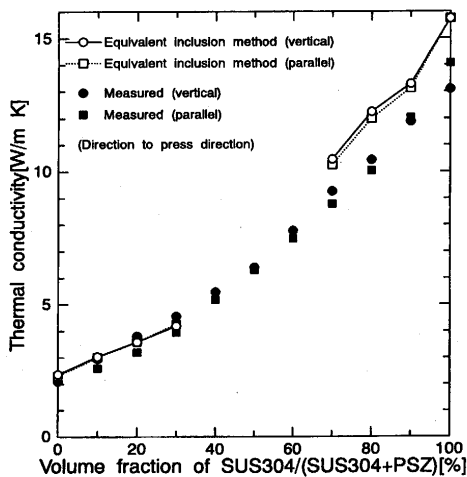


Fig. 6. Calculated and measured thermal conductivities of samples(Type A_{hp}).

分率の小さい組成において、等価介在物法による推算は熱伝導率の絶対値をよく再現しているが、実測値で系統的に認められる熱異方性は、再現できていない。

4・2 熱伝導率の温度依存性

熱伝導率に及ぼす温度の影響を調べるため、試料Bおよび A_{hp} の SUS304/(SUS304+PSZ) 体積分率がそれぞれ 100%, 80%, 60%, 40%, 20%, 0%, および 100%, 80%, 20%, 0% を有する試料について室温から 1280K の温度範囲で測定を実施した。得られた結果について、試料Bの熱伝導率を Fig. 7 に、試料 A_{hp} の熱伝導率を Fig. 8 に示す。SUS304 の体積分率が 40% 以下の試料については、熱伝導率の温度依存性はほとんど認められないが、SUS304 の体積分率が 60% 以上になると、測定温度の上昇と共に熱伝導率が上昇する傾向を明瞭に示す。これは、PSZ の熱伝導率が温度に対して弱い負の温度依存性を持つのにに対し、SUS304 が正の温度依存性

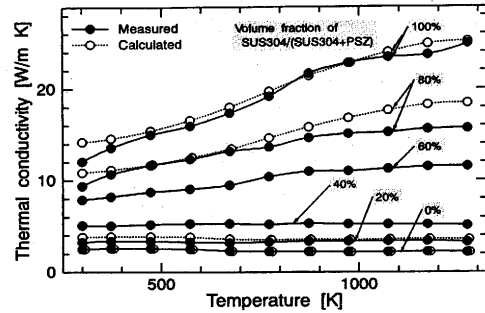


Fig. 7. Thermal conductivities of samples (Type B) with six different volume fractions of SUS304 as a function of temperature. Open circles denote values estimated by the equivalent inclusion method.

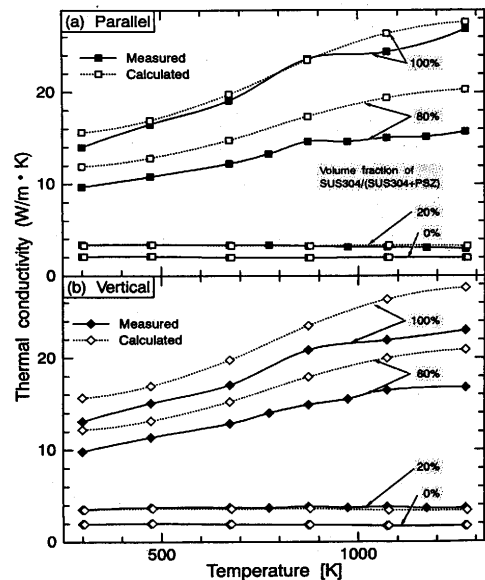


Fig. 8. Thermal conductivities of samples (Type A_{hp}) with four different volume fractions of SUS304 as a function of temperature. (a) For the direction parallel to the direction of applied pressure. (b) For the direction vertical to the direction of applied pressure. Open squares denote volumes estimated using the equivalent inclusion method.

を持つことに起因し、SUS304 の体積分率の増加に伴い正の温度依存性を示すようになると考えられる。同じ傾向は試料 A_{hp} でも認められる。等価介在物法による推算値も図中に示す。推算値は、SUS304 の体積分率の高い領域では、絶対値が大きく、かつ高温側でその傾向が顕著である。

4・3 等価介在物法による推算値と実測値

本研究で得られた等価介在物法による推算値は、多くの組成および温度域で 10% 程度の差で実測値と一致している。一方、同一の手法を用いて推算を行ったジルコニア/ニクラリ複合プラズマ溶射皮膜¹⁶⁾ の場合、よい一致は認められていない。複合溶射皮膜は液滴の衝突により形成され、金属相の体積分率が比較的低い領域においても金属相が相互に連結し伝熱路が形成されるので、分散相が互いに独立して

いるという等価介在物法的前提条件が厳密には成立しない。これに対し焼結法による試料は、分散相の体積分率が低い領域においては、分散相は独立しており、等価介在物法のモデルに、よく適合する。従って推算値と実測値との一致がよいと考えられる。

SUS304の体積分率の低い領域では熱伝導率の実測値の絶対値は推算値とよい一致を示す。しかし加圧焼結体に見られる圧力方向に対する熱異方性は、等価介在物法では十分再現できない。実測された熱異方性を等価介在物法により再現するには、軸比が0.3以下であることが必要である。これに対して実測の軸比はTable 4に示すように0.6以上である。一例としてFig. 2に示す加圧焼結材の組織写真においてSUS304の体積分率の低い場合について多数回、詳細に観察すると、以下の通り等価介在物法の基礎となっている仮定と合致しない要因の存在が認められる。(1)分散相は完全にランダムには分散していないため、圧粉方向に平行に熱の流れやすい部分が存在する。(2)気孔がマトリックス相に完全に均一には分散せず、むしろ特定の部位に優先的に存在する。ただしこれらの傾向は著しいものではなく、また数値として表現することも困難である。

一方、SUS304のみで構成される焼結体の熱伝導率は等価介在物法による推算値と比較して低い。この差がSUS304の体積分率の高い領域において全般に実測値が推算値より低くなる傾向を示す要因と考えられる。これらのことから、SUS304マトリックスの中に気孔が分散していると考えられるよりは、SUS304粒子同士が焼結過程で相互に架橋すると考える方が妥当と思われる。また、焼結前の粒子表面の酸化物相が焼結後も残存し伝熱障壁となること、あるいはSUS304/PSZ界面に新たな相が生成しこの相が熱伝導率に影響を与える可能性なども考えられる。ただし、これらの予測は組織観察結果とは対応しない。いずれにしても実測値と推算値の差は15%程度であり、著者らは、等価介在物法による推算は全体として本研究の実測値の傾向を良く再現していると考えられる。

5. 結言

航空宇宙材料などの高温勾配下における傾斜機能材料としての使用が検討されているSUS304/PSZ系焼結体の熱伝導率を、室温から1270Kの温度範囲、SUS304の体積分率0から100%の組成範囲について系統的な測定を行った。得られた結果は以下のように要約できる。

(1) SUS304の体積分率の増加に伴い熱伝導率は徐々に増加する。組成に対する明確な変曲点は認められない。

(2) SUS304の熱伝導率の温度依存性は正、PSZの熱伝導率の温度依存性は小さいが負の傾向を有することに起因し

て、SUS304の体積分率の増加に伴い、焼結体の熱伝導率の温度依存性は徐々に正となる。

(3) PSZ粒子の大きさを変えることにより、気孔率を変化させた2系列の試料の測定を行った。この結果、気孔率の小さい試料ほど高い熱伝導率を示すことが判明した。また2つの系列の試料に認められた熱伝導率の差の大小は、試料に含まれる気孔率の差の大小とよく一致する。

(4) 常圧焼結を行った試料では組織は等方的で熱伝導率の異方性は認められない。

(5) 加圧焼結を行った試料では圧粉方向に垂直な方向に対して各相が伸展する組織が認められ、これに対応して熱伝導率に異方性が現れる。これは、熱流をさえぎる方向にPSZが配向するため圧粉方向に垂直な方向の熱伝導率が、平行方向と比較して低下するためと考えられる。

(6) 等価介在物法による熱伝導率の推算を試みた結果、SUS304の体積分率の大きい組成領域で、実測値と比較して低い値を示すが、測定を行った温度、組成領域で熱伝導率の異方性も含め、ほぼ実験値の傾向を再現することが判明した。ただし、等価介在物法は分散相と母相の区別が困難となる中間組成領域への適用はできない。中間組成領域への応用も可能な新しい推算法の開発が望まれ、かつ期待される。

本研究における熱伝導率測定および画像の解析には茨城大学大学院生太田理文氏、若松栄氏、同学生石丸誠氏、小林浩安氏、大川和永氏、ウリップ・ファンファニ氏の援助を頂いた。またDSCによる比熱測定には茨城大学大学院生川田孝昇氏に、顕微鏡観察にはニダック株式会社松島正博氏、矢部守男氏に援助頂いた。記して感謝の意を表す。

文 献

- 1) 傾斜機能材料研究会, 未踏科学技術協会: 傾斜機能材料, 工業調査会, (1993), 163.
- 2) 例えば, 太田弘道, 友田 陽: 日本金属学会会報, **29** (1990), 155.
- 3) H.Hatta and T.Taya: J.Appl.Phys., **59** (1986), 1851.
- 4) Y.Benveniste: J.Appl.Math.Phys., **37** (1986), 696.
- 5) 例えば, 田谷 稔: 未だりあ, **33** (1994), 276,409.
- 6) W.J.Parker, R.J.Jenkins, C.P.Butler and G.L.Abbott: J.Appl.Phys., **32** (1963), 1979.
- 7) 太田弘道, 早稲田嘉夫: 窯業協会誌, **94** (1986), 295.
- 8) 太田弘道, 月田達之, 友田 陽, 柴田浩幸, 小倉 岳, 早稲田嘉夫: 日本セラミックス協会学術論文誌, **99** (1991), 483; H.Ohta, T.Tsukida, Y.Tomota, H.Shibata, G.Ogura and Y.Waseda: J.Ceram.Soc.Jpn.Inter.Ed., **99** (1992), 471.
- 9) 高橋洋一, 安積忠彦, 菅野昌義: 熱測定, **8** (1981), 62.
- 10) 例えば, 日本熱物性学会: 熱物性ハンドブック, 養賢堂, (1990), 286.
- 11) 日本熱物性学会: 熱物性ハンドブック, 養賢堂, (1990), 192,262.
- 12) J.D.Eshelby: Proc.Roy.Soc.London, **A241** (1957), 376.
- 13) 村外志夫, 森 勉: マイクロメカニクス, 培風館, (1976), 24.
- 14) 西林景仁, 太田弘道, 友田 陽: 茨城大学工学部研究集報, **38** (1991), 49.
- 15) D.A.G.Bruggeman: Ann.Phys., Lpz., **24** (1935), 636.
- 16) 柴田浩幸, 早稲田嘉夫, 福本昌宏, 西林景仁, 若松 栄, 太田弘道, 友田 陽: 高温学会誌, **20** (1994), 35.