

# 複合材料の有効熱拡散率の推定法の開発

西岡 浩樹\*・村山 武昭\*<sup>2</sup>・小野 陽一\*<sup>2</sup>

Development of Estimation Method of Effective Thermal Diffusivity of Composite Materials

Kouki NISHIOKA, Takeaki MURAYAMA and Yoichi ONO

**Synopsis :** The estimation method of the effective thermal diffusivity of composite materials by numerical calculation of heat transfer in the composite materials using image data was developed. In this method, time for the numerical calculation was reduced significantly by characterization method of the composite materials. The characterization method of composite materials was applied to original image data as follows: At first, dispersion material and pore were approximated by an ellipse as one component. Next, dispersion material was also approximated by an ellipse. Moreover, frame of matrix material was characterized with thinning method. Finally, these two ellipses and the frame were overlapped each other. In this way, characterized image data were obtained and were used for estimation.

Characterized image data of Fe-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dispersion type composite materials were obtained with this method.

The effective thermal diffusivity of the sample was also measured by Halogen Flash method. The estimated results agreed well with the observed data. The effective thermal diffusivity was not affected by the particle size distribution of dispersion material but by existence of pore.

**Key words :** effective thermal diffusivity ; composite materials ; image processing ; image data ; characterization.

## 1. 緒言

複合材料は、構成材料の組み合わせや比率を変化させることにより、実用材料としての様々な要求に答えることができる。熱遮蔽材および航空機用材料の分野で、複合材料の優れた耐久性や熱的性質が高く評価されており、伝熱解析に必要な有効熱拡散率などの熱物性値を知ることが重要な課題となっている。

過去に複合材料の有効熱伝導度を予測する推算式<sup>1,2)</sup>が提案されているが、分散材の分布状態を考慮していないため、いずれの場合も測定値と必ずしも一致せず、複雑な分散材の分布状態を持つ材料への適応は容易ではない。分散材の分布状態を考慮した有効熱伝導度の推定法に等価介在物法<sup>3)</sup>があるが、その取り扱いが煩雑であり、これも測定値と必ずしも一致するわけではない。

筆者らは前報<sup>4)</sup>で、多孔質固体試料の光学顕微鏡組織から画像データを作成し、各画素を計算格子と1対1に対応させ、各画素の輝度に応じた熱拡散率を計算格子に代入し数値計算を行うことで、細孔構造を考慮した有効熱拡散率の推定法の開発を行った。またさらに組織の特徴抽出を行い、数値計算を短時間で実行する手法の開発<sup>5)</sup>も行った。

本研究では、これらの手法に拡張を施し、複合材料の断面組織の画像データから有効熱拡散率を推定する方法の開

発を行った。具体的には、アルミナ、鉄、気孔の3成分から構成される分散型複合材料の断面組織から作成した画像データの特徴抽出を行い縮小した。そして特徴抽出後の画像データから、数値計算により試料内部の温度分布を求め、温度分布から試料の有効熱拡散率の推定を行った。また本研究による有効熱拡散率の推定値とハロゲンフラッシュ法<sup>6)</sup>による測定値の比較検討を行った。

## 2. 試料

直径5mm、純度+99.9%のAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>ボールをクラッシャーで粉砕し、-45μmと355~590μmの2種類の粒度範囲に篩い分けた。純度+99%、-75μmのFe試薬をボールミルで30日間粉砕し、-32μmに篩った。それぞれの粒度に篩い分けたAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>と鉄試薬を所定量計りとり、よく混合した。これを圧力750MPaで直径10mm、厚さ10mmのブリケット状に加圧成型し、H<sub>2</sub>雰囲気、1523Kで3.6ks焼成した。同一の条件で再加圧、再焼成を2度繰り返した。その後152MPa、1573KのAr雰囲気中で7.2ksHIP処理を行い、これを試料とした。各試料の組成および気孔率などをTable 1に示す。試料A1~A3は分散材の粒度が-45μmであり、試料B1~B3は355~590μmである。

平成8年9月9日受付 平成8年11月12日受理 (Received on Sep. 9, 1996; Accepted on Nov. 12, 1996)

\* 九州大学大学院生 (Graduate Student, Kyushu University, 6-10-1 Hakozaki Higashi-ku Fukuoka 812)

\* 2 九州大学工学部 (Faculty of Engineering, Kyushu University)

Table 1. Properties of samples.

Sample	Fe (vol%)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (vol%)	ε (%)	d <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> (μm)	ρ × 10 <sup>-3</sup> (kg/m <sup>3</sup> )
A1	87.2	11.9	0.9	-45	7.05
A2	65.5	27.3	7.2		5.86
A3	50.8	39.9	9.3		4.88
B1	87.9	11.7	0.4	355~590	7.11
B2	67.0	27.8	5.2		5.65
B3	46.8	45.2	8.0		4.62

ε: Porosity, d: Mean particle size, ρ: Density

### 3. 有効熱拡散率の推定方法

#### 3・1 数値計算の原理

2次元の熱伝導を考える。位置 $x^*$ ,  $y^*$ , 時間 $t^*$ における温度 $u^*(x^*, y^*, t^*)$ は、有効熱拡散率を $\alpha_e^*$ とすると、(1)式で与えられる。

$$\frac{\partial u^*}{\partial t^*} = \alpha_e^* \left( \frac{\partial^2 u^*}{\partial x^{*2}} + \frac{\partial^2 u^*}{\partial y^{*2}} \right) \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 $x^* = \frac{x}{L_{ref}}$ ,  $y^* = \frac{y}{L_{ref}}$ ,  $u^* = \frac{u - u_0}{u_1 - u_0}$ ,  $\alpha_e^* = \frac{\alpha_e \cdot t_{ref}}{L_{ref}^2}$ ,  $t^* = \frac{t}{t_{ref}}$ , であり、 $L_{ref}$ は参照長さ、 $u_0$ は初期温度、 $u_1$ は $x=0$ の位置における加熱温度、 $t_{ref}$ は参照熱拡散時間である。ハロゲンフラッシュ法による有効熱拡散率の測定の際の試料の温度上昇は、わずかに数Kである<sup>6)</sup>。したがって(1)式の $\alpha_e^*$ は定数であると仮定した。

(1)式をADIスキーム(Alternative Direction Implicit Scheme)により差分化し数値計算を行った。数値計算は全ての変数を無次元化して行った。数値計算時の境界条件および初期条件は次に示す通りである。

$$\left. \begin{array}{l} y^*=0, y^*=0.75 \text{ において;} \frac{\partial u^*}{\partial y^*} = 0 \\ x^*=1 \text{ において;} \frac{\partial u^*}{\partial x^*} = 0 \\ t^*=0, 0 < x^* \leq 1 \text{ において;} u^* = 0 \\ t^* \geq 0, x^*=0 \text{ において;} u^* = 1 \end{array} \right\} \dots\dots\dots (2)$$

この境界条件をFig. 1に示す。すなわち、ある一様な初期温度に保持されていた試料の左端を、初期温度よりわずかに高いある温度に、常時加熱することに相当する。したがって、熱は紙面に対して左から右に流れることになる。

全体的には $x^*$ 方向への1次元の熱の流れであることから $y^*$ のいかにかわからず $\frac{\partial u^*}{\partial y^*} = 0$ であると仮定し、(2)式の境界条件のもとで(1)式を解くと、(3)式が得られる。

$$u^* = 1 - \frac{4}{\pi} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{2n+1} \exp\left\{-\frac{\alpha_e^* (2n+1)^2 \pi^2 t^*}{4}\right\} \cos\left(\frac{(2n+1)\pi(1-x^*)}{2}\right) \dots\dots\dots (3)$$

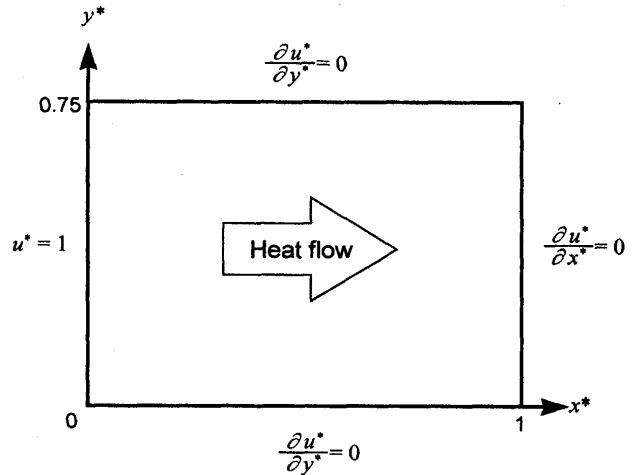


Fig. 1. Boundary conditions for the computation.

ところが数値計算の結果得られた温度は、後に示すように $y^*$ 方向にも分布を持っている。そこで $x^*=1$ の位置における温度の平均値 $\overline{u^*}_{x^*=1}$ を数値計算結果から求め、これを(3)式において $x^*=1$ と置いて得られる(4)式に代入することにより、 $y^*$ 方向の温度分布の影響も考慮に入れた有効熱拡散率 $\alpha_e^*$ を求めることができる。

$$\overline{u^*}_{x^*=1} = 1 - \frac{4}{\pi} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(-1)^n}{2n+1} \exp\left\{-\frac{\alpha_e^* (2n+1)^2 \pi^2 t^*}{4}\right\} \dots (4)$$

なお、任意の $x^*$ における温度の平均値 $\overline{u^*}_{x^*}$ から有効熱拡散率を求めることもできるが、 $\overline{u^*}_{x^*=1}$ を使用することによって $0 \leq x^* \leq 1$ の範囲の全ての細孔構造を考慮した有効熱拡散率を求めることができる。

#### 3・2 組織の特徴抽出

光学顕微鏡組織から作成した画像データの一部をFig. 2に示す。アルミナを取り囲むように気孔が存在している。この組織の特徴抽出をFig. 3に示す方法で行った。まずアルミナと気孔を合わせて1つの図形成分であるとみなし、この図形成分を面積および長軸と短軸の長さの比が等しい楕円形に近似した。これを図形成分(I)とする。次に先の図形成分(I)から気孔を取り除いた部分、すなわちアルミナだけを1つの図形成分であるとし、これを面積および長軸と短軸の長さの比の等しい楕円形に近似した。これを図形成分(II)とする。さらに母材である鉄の特徴抽出を細線化処理により行い図形成分(III)を得た。そして図形成分(I)の平均径の1/4を格子間隔としたマトリックスの上に(I),(II),(III)の順に重ね合わせた。最も内側の楕円で囲まれた部分をアルミナ、2つの楕円に挟まれた領域を気孔、その外側の領域を鉄とし、縮小後の画像を得た。

Fig. 2に上記特徴抽出の手法を適用して得られた縮小後の画像をFig. 4に示す。縮小後の画像は原画像の約1/10~1/100に縮小されるが、縮小率は組織により異なる。一般に図形成分(I)の平均径が大きいほど画像の縮小率は大きく

なる。

原画像の各画素と1対1に対応した計算格子を生成し、そのまま数値計算を行うと膨大な計算時間を必要とするが、特徴抽出後の画像を用いることで、組織を正しく反映した温度分布を短時間で得ることができる。そして温度分布から(4)式により、試料の組織を正しく反映した有効熱拡散率を得ることができる。

この手法は分散材と母材の境界に気孔が存在する場合であれば、3成分系に限らず多成分系への適用が可能である。さらに分散型複合材料の一種である傾斜機能材料への適応も可能であると考えられる。またこの手法は分散型複合材料に限らず、複合材料中に存在する繊維が短軸に比べ長軸が非常に長い粒子であると考えられることにより、繊維強化型複合材料への適用も可能であると考えられる。

### 3.3 解析方法

まず、光学顕微鏡組織から320×240画素で構成される画

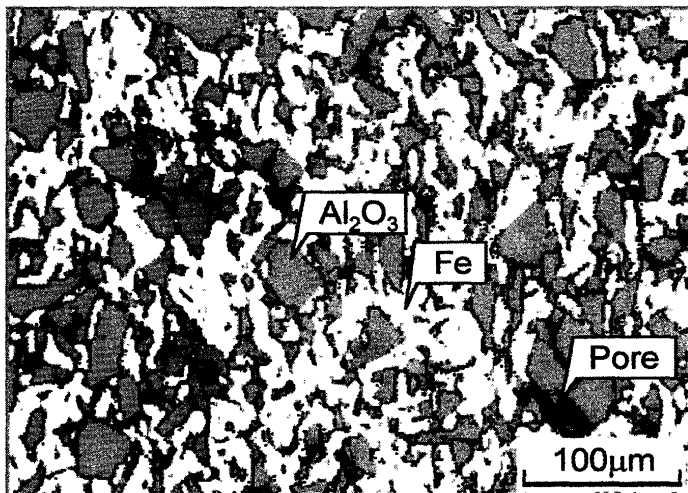


Fig. 2. Original image data of A3(Fe-50%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (-45μm) sample (320×240pixels).

像データを作成した。次に画像データの特徴抽出を行い、画像データの縮小を行った。特徴抽出後の試料A1~A3の画像データは100×80画素程度であり、試料B1~B3の画像データは50×40画素程度であった。そして特徴抽出後の画像データと1対1に対応した計算格子を生成した。有効熱拡散率の推定値に含まれる誤差を小さくするため、試料全体にわたって温度上昇が認められるように、試料A1~A3に関しては熱拡散時間刻みを1.0×10<sup>-7</sup>sとし0.01s後の温度分布を、試料B1~B3に関しては熱拡散時間刻みを1.0×10<sup>-6</sup>sとし0.1s後の温度分布を数値計算により求めた。

数値計算に先立って、緻密な鉄試料とアルミナ試料の熱拡散率の測定を後に述べるハロゲンフラッシュ法により行った。その結果熱拡散率の測定値はアルミナ試料に関しては文献値と良く一致したが、鉄試料に関しては773K, 873Kにおいて文献値より高い測定値が得られた。そこで数値計

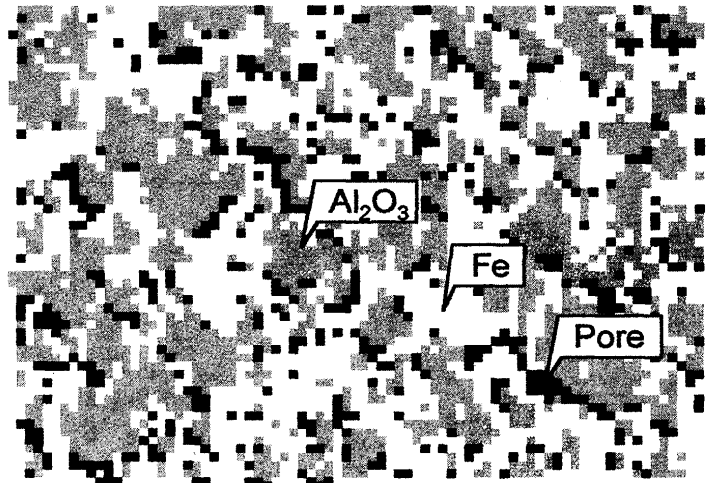


Fig. 4. Image data characterized from original one shown in Fig.2 with developed characterization method (80×59pixels).

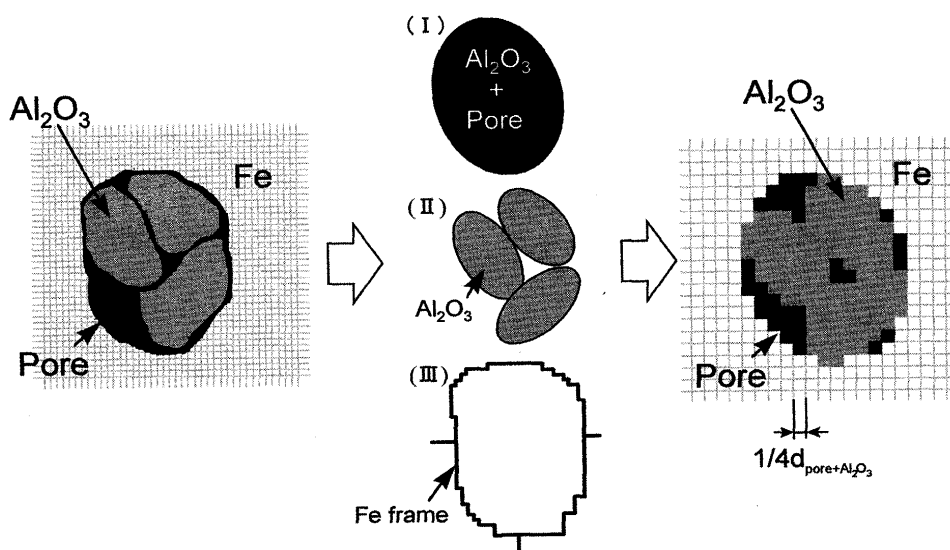
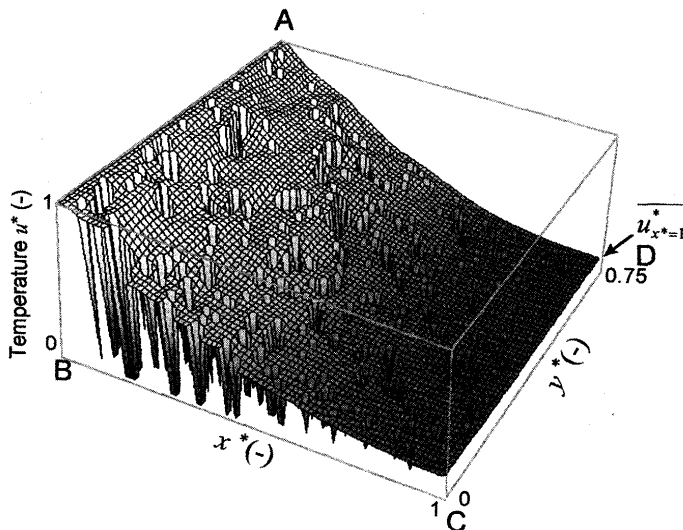


Fig. 3. Principle of characterization for the composite material structure when Fe, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and pore coexist.



$$\begin{aligned} \alpha_{\text{iron}} &= 8.0 \times 10^{-6} (\text{m}^2/\text{s}) & \text{Time} &= 0.01 (\text{s}) \\ \alpha_{\text{alumina}} &= 1.7 \times 10^{-6} (\text{m}^2/\text{s}) & \text{Time step} &= 1.0 \times 10^{-7} (\text{s}) \\ \alpha_{\text{pore}} &= 1.0 \times 10^{-20} (\text{m}^2/\text{s}) \end{aligned}$$

Fig. 5. Temperature distribution in A3(Fe-50%  $\text{Al}_2\text{O}_3$ (-45 $\mu\text{m}$ ) sample at 873K.

算に必要な熱拡散率には、アルミナに関しては文献値<sup>7)</sup>を用い、鉄に関しては573K, 673Kにおいては文献値<sup>8)</sup>を、773K, 873Kにおいては測定値(それぞれ $10.0 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{s}$ ,  $8.0 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{s}$ )を用いた。前報<sup>4)</sup>で示したとおり、気孔部分の輻射の影響は無視できる。そこで、対流および輻射の影響を無視し、気孔部分の熱拡散率は数値計算の都合上ゼロとみなせる値として $10^{-20} \text{m}^2/\text{s}$ とした。

一例として、Fig. 2に示した組織の873Kにおける0.01s後の温度分布をFig. 5に示す。Fig. 2とFig. 5を比較すると、組織と温度分布が正しく対応していることが分かる。得られた温度分布から(4)式により、 $\alpha_e^*$ を求め、 $\alpha_e^* = \frac{\alpha_e \cdot t_{ref}}{L_{ref}^2}$ という定義から有効熱拡散率の推定値 $\alpha_e$ を求めた。試料A3(Fe-50% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (-45 $\mu\text{m}$ ))の573Kを例に取ると、10視野を設定した場合 $\alpha_e$ は $4.73 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{s}$ 、その95%信頼区間は $0.126 \times 10^{-6} \text{m}^2/\text{s}$ であった。有効熱拡散率の測定値のばらつきと比較して推定値の95%信頼区間の方が小さいことから、本研究において有効熱拡散率の推定を精度良く行うためには10視野を確保すれば十分であると考えられる。

#### 4. 有効熱拡散率の測定方法

有効熱拡散率の測定はハロゲンフラッシュ法<sup>6)</sup>により行った。まず試料を高真空が可能な水冷ベルジャー内に設置し、炉内を $10^{-3} \text{Pa}$ 以下に減圧した後、タングステンメッシュヒーターにより所定の温度まで加熱し、その温度に保持した。試料上方に設置したハロゲンランプにより試料上面を加熱し、試料裏面の温度上昇曲線を直径0.1mmのPt-Pt13%Rh熱電対により測定した。熱電対は厚さ0.1mmのPt板にスポット溶接し、Pt板と試料の接合にはPtペーストを用いた。

有効熱拡散率の測定は、573K~873Kの温度範囲で100K間隔で行った。ハロゲンランプの照射時間は、有効熱拡散率の測定に必要な最小限の試料裏面の温度上昇曲線を得るのに十分な、2~5sとした。当初、有効熱拡散率は試料裏面の温度上昇曲線の2点の上昇温度から求めていたが、測定値に非常に大きなばらつきが見られた。そこで有効熱拡散率は、試料裏面の温度上昇曲線に解析解が一致するようにMarquardt法<sup>9)</sup>を用いてパラメータフィッティングを行い求めた。その結果ばらつきの少ない測定値が得られた。

#### 5. 有効熱拡散率の推定値と測定値の比較および考察

試料A2(Fe-30% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (-45 $\mu\text{m}$ )), B2(Fe-30% $\text{Al}_2\text{O}_3$ (355~590 $\mu\text{m}$ ))のハロゲンフラッシュ法による有効熱拡散率の測定値を○で、本研究による推定値を●でそれぞれFig. 6, 7に示す。またFig. 6, 7には、気孔率が10%以下であることから、気孔を無視し、アルミナで置き換えた場合の有効熱拡散率の推定値も■で併せて示している。エラーバーは推定値の95%信頼区間を示している。Fig. 6, 7には比較のため、Maxwellの式<sup>10)</sup>およびBruggemanの式<sup>11)</sup>による有効熱拡散率の推定値も示している。気孔を考慮した場合の有効熱拡散率の推定値と測定値は非常に良く一致しているが、気孔を無視した場合の推定値はいずれの温度においても測定値より大きな値が得られている。気孔率は小さいが、試料中に存在する気孔の多くがアルミナと鉄の境界部分に存在している。そのため熱の流れが気孔により遮断されているためであると考えられる。またMaxwellの式、Bruggemanの式による有効熱拡散率の推定値は、いずれも測定値より大きな値が得られている。またこれらの推算式から得られた有効熱拡散率の推定値は、本研究で気孔を無視した有効熱拡散率の推定値とも良い一致が見られない。このことから、複合材料の有効熱拡散率の推定を行う場合には、本研究のように組織を考慮した数値計算を行う必要があることがわかる。

Fig. 6とFig. 7を比較すると、両者の測定値および本研究による推定値には明確な違いが見られない。この傾向は、試料A1とB1およびA3とB3にも同様に見られた。したがって分散型複合材料に関しては、分散材の粒径が有効熱拡散率に与える影響はほとんど無く、分散材と母材の境界に存在する気孔の影響が大きいことがわかる。

次に試料A1およびA3の有効熱拡散率の測定値および本研究による推定値をFig. 8とFig. 9に示す。試料A1に関しては、測定値に多少のばらつきがあるが、試料A1, A3ともに有効熱拡散率の測定値と推定値が良く一致している。また、2つの推算式による有効熱拡散率の推定値も測定値と良く一致している。したがって、気孔率が1%以下であれば、気孔の影響を無視することができ、また分散材の割合が10%

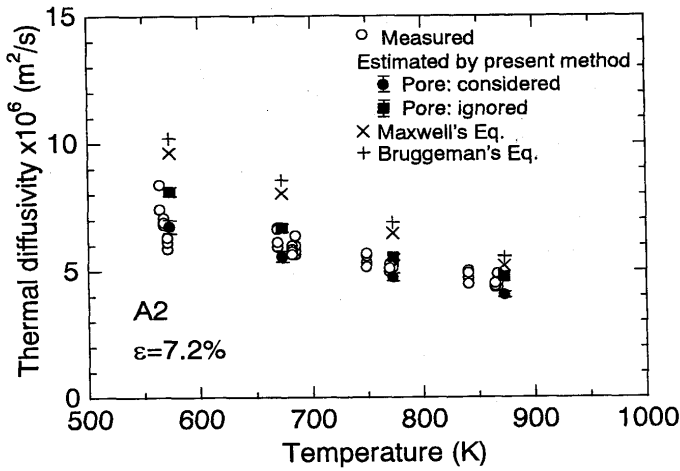


Fig. 6. Comparison of estimated effective thermal diffusivity of Fe-30%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( $-45 \mu\text{m}$ ) composite with measured one.

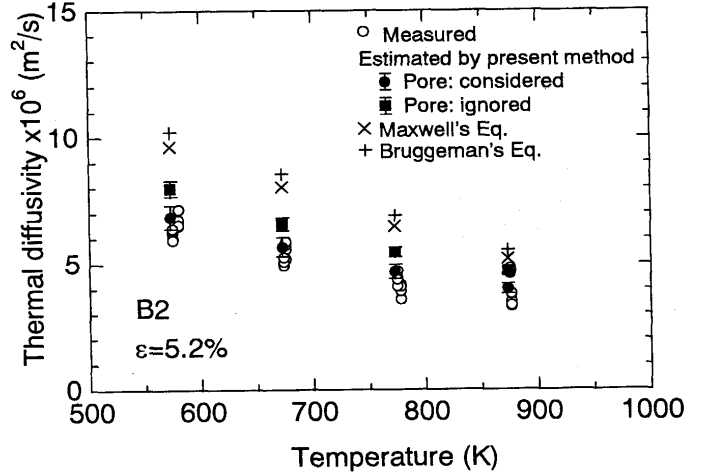


Fig. 7. Comparison of estimated effective thermal diffusivity of Fe-30%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( $355 \sim 590 \mu\text{m}$ ) composite with measured one.

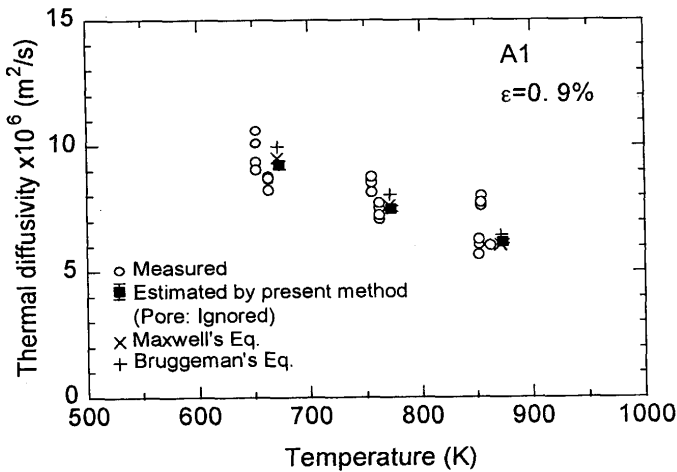


Fig. 8. Comparison of estimated effective thermal diffusivity of Fe-10%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( $-45 \mu\text{m}$ ) composite with measured one.

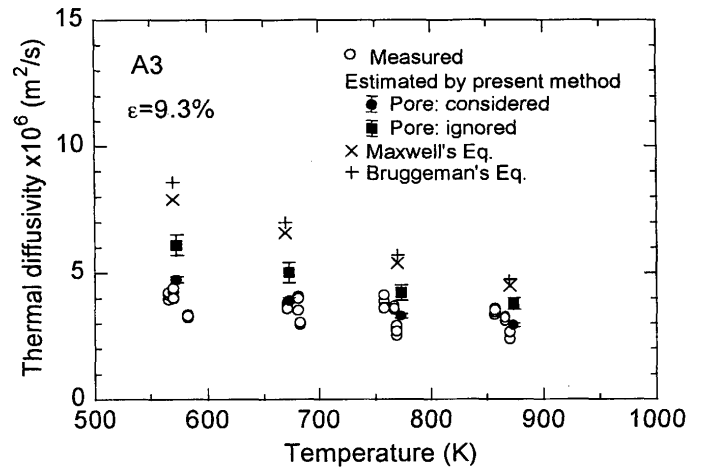


Fig. 9. Comparison of estimated effective thermal diffusivity of Fe-50%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( $-45 \mu\text{m}$ ) composite with measured one.

以下であれば、従来の推算式により有効熱拡散率の推定が可能であることがわかる。従って、本研究で開発した手法を適用することで、分散材と母材の界面に気孔が存在する分散型複合材料の有効熱拡散率の推定を高速かつ精度良く行うことが可能である。

## 6. 結言

複合材料の断面組織の画像データから有効熱拡散率を推定する方法の開発を行った。画像データを用いた数値計算を行う際に必要な計算時間の短縮を図るため、分散材、分散材+気孔、母材の3成分それぞれに着目し、画像データの特徴抽出を行った。この手法を適用して得られた試料の有効熱拡散率の推定値とハロゲンフラッシュ法による測定値を比較検討し、以下の知見を得た。

(1) 本研究により開発された手法を適用することにより、分散材と母材の界面に気孔が存在する分散型複合材料の有効熱拡散率の推定を高速かつ精度良く行うことが可能である。

(2) 分散型複合材料に関しては、分散材の粒径が有効熱拡散率に与える影響はほとんど無く、分散材と母材の境界に存在する気孔の影響が大きい。

(3) 過去に提案されている推算式では、分散材の割合が30%、50%の試料においては、有効熱拡散率の測定値および本研究による推定値とも一致しなかった。

最後に本研究の遂行にあたり、実験機材の面でご協力を頂いた九州大学工学部材料工学科の森克巳教授、実験に関して協力して頂いた九州大学大学院学生の下橋宏規君に謝意を表します。また、本研究は日本学術振興会・特別研究員奨励費の援助を受けたことを付記し謝意を表する。

## 記 号

$L_{ref}$	: 参照長さ ( $x$ 方向の長さ) [ $\mu\text{m}$ ]
$t$	: 熱拡散時間 [s]
$t^*$	: 無次元化熱拡散時間 [-]
$t_{ref}$	: 参照熱拡散時間 [s]
$u$	: 温度 [K]
$u^*$	: 無次元化温度 [-]
$u_0$	: 初期温度 [K]
$u_1$	: 加熱温度 [K]
$\bar{u}_{x^*}$	: $x^*$ における温度の平均値 [-]
$x, y$	: 座標 [ $\mu\text{m}$ ]
$x^*, y^*$	: 無次元化座標 [-]
$\alpha_e$	: 有効熱拡散率 [ $\text{m}^2/\text{s}$ ]
$\alpha_e^*$	: 無次元化した有効熱拡散率 [-]

## 文 献

- 1) J.C.Maxwell: A Treatise on Electricity and Magnetism, Oxford Univ. Press., (1873), 365.
- 2) D.A.G.Bruggeman: Ann. Phys. Lpz., **24** (1935), 636.
- 3) J.D.Eshelby: Proc.R.Soc. London, **A241** (1957), 376.
- 4) K.Nishioka, T.Murayama and Y.Ono: ISIJ Int., **36** (1996), 150.
- 5) 西岡浩樹, 村山武昭, 小野陽一: 鉄と鋼, **82** (1996), 475.
- 6) 西岡浩樹, 村山武昭, 小野陽一: 材料とプロセス, **9** (1996), 674.
- 7) TPRC: Thermophysical Properties of High Temperature Solid Materials, Macmillan Co., New York, **4** (1967), 20.
- 8) TPRC: Thermophysical Properties of High Temperature Solid Materials, Macmillan Co., New York, **1** (1967), 587.
- 9) 渡辺 力, 名取 亮, 小国 力: Fortran 77による数値計算ソフトウェア, 丸善, 東京, (1989), 237.