

令和 2 年 6 月 12 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K06819

研究課題名(和文) 画像解析を用いた金属基複合材料の熱・電気的特性の予測と評価

研究課題名(英文) Prediction and evaluation of thermal and electrical properties of metal matrix composites using image analysis

研究代表者

杉尾 健次郎 (Sugio, Kenjiro)

広島大学・工学研究科・准教授

研究者番号：90294545

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：近年、熱伝導性を向上させた高機能材料の開発が望まれており、複合材料の熱伝導性を支配する因子の詳細な解明が必要となってきた。また、サブナノ～ナノメートルサイズの強化相を持つ金属基複合材料の研究が盛んに行なわれている。強化相のサイズがナノメートル領域になると界面熱抵抗の影響が無視できなくなり、有効熱伝導率に大きな影響を与える。しかしながら、界面熱抵抗は実測することが非常に難しく、これまで実測値の報告は殆どなされていない。本研究では、種々の金属基複合材料の熱伝導率測定、組織観察およびコンピューター・シミュレーションを組み合わせることにより、母相・強化相界面熱抵抗を求めることを目的とした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

金属-セラミックス粒子間の界面熱抵抗は実測することが非常に難しく、これまで実測値の報告は殆どなされていない。本研究ではAl-SiC粒子分散複合材料およびAl-AlN粒子分散複合材料の母相・強化相界面熱抵抗を熱伝導率測定、組織観察およびコンピューター・シミュレーションを組み合わせることにより求めた。

研究成果の概要(英文)：Recently, the high-performance materials with high thermal conductivity has been desired, and detailed elucidation of the factors that govern the thermal conductivity of composite materials has become necessary. In addition, researches on metal matrix composite materials having sub-nanometer to nanometer-sized reinforcements are being actively conducted. When the size of the reinforcements is in the nanometer range, the effect of interfacial thermal resistance cannot be ignored and has a significant effect on the effective thermal conductivity. However, actual measurement of the interfacial thermal resistance is difficult, and there have been almost no reports of actual measured values. The purpose of this study was to determine the interfacial thermal resistance of the matrix-reinforcements interface by combining the thermal conductivity measurements and computer simulation based on microstructure observation of various metal matrix composites.

研究分野：材料工学

キーワード：粒子分散型複合材料 窒化アルミニウム粒子 炭化ケイ素粒子 有効熱伝導率 界面熱抵抗

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

複合材料の有効熱伝導率は数個のパラメーターの関数になっており

$$\lambda_{eff} = f(\lambda_{rein}, \lambda_{mat}, R, V_f) \quad (1)$$

ここで、 λ_{rein} および λ_{mat} はそれぞれ強化相および母相の熱伝導率、 R は強化相と母相の界面熱抵抗、 V_f は強化相の体積率を示している。 f の関数形は材料組織によって変化する。例えば、伝熱方向に対して強化相が平行に配置している場合の有効熱伝導率は以下の式で与えられる。

$$\lambda_{eff} = V_f \lambda_{rein} + (1 - V_f) \lambda_{mat} \quad (2)$$

また、伝熱方向に対して強化相が垂直に配置している場合の有効熱伝導率は以下の式で与えられる。

$$1/\lambda_{eff} = V_f/\lambda_{rein} + (1 - V_f)/\lambda_{mat} \quad (3)$$

さらに、強化相と母相の間に界面熱抵抗が発生する場合の有効熱伝導率は以下の式で与えられる。

$$1/\lambda_{eff} = V_f/\lambda_{rein} + (1 - V_f)/\lambda_{mat} + R \quad (4)$$

ここで、クラッド材等の積層複合材料を作製して、 λ_{eff} 、 λ_{rein} および λ_{mat} を実験的に求めることができれば、界面熱抵抗 R を決定することができる。また、分散複合材料の場合の有効熱伝導率は経験的に以下の式で与えられる。

$$\lambda_{eff} = V_f C_1 \log \lambda_{rein} + (1 - V_f) \log(C_2 \lambda_{mat}) \quad (5)$$

ここで、係数 C_1, C_2 は実験的に求められる。また、分散複合材料に対して理論的には Maxwell[1]、Bruggeman[2]、Change[3]らのモデルが提案されている。しかしながら、これらのモデルでは球形の強化相が均一ランダムに配置していると仮定しているが、実際の複合材料組織では、強化相の形状および大きさは様々であり、また凝集などの強化相の不均一配置が見られる。さらに、これらのモデルにおいて界面熱抵抗は考慮されていない。物質において熱は格子の振動(フォノン)と電子によって伝わると考えられている。しかし、複合材料では二つの異なる物質の界面で反射や散乱が起こり、界面熱抵抗が生まれる。複合材料の界面熱抵抗は測定することが非常に難しく、これまでフォノン散乱不整合モデル[4]を用いて理論計算から推定するほかなかった。また、最近になりパルス光加熱サーモリフレクタンズ法と呼ばれる手法を用いて金属とセラミックスの積層薄膜の界面熱抵抗の測定が可能となった。しかしながら、この方法で得られる界面熱抵抗はあくまで半導体プロセスで作製される薄膜界面の熱抵抗であり、複合材料作製プロセスで形成される界面の熱抵抗と等価であるかは疑わしい。

これまで、我々は熱伝導または電気伝導シミュレーションを行うことにより、複合材料の有効熱伝導率または電気伝導率を算出できるソフトウェアの開発を行ってきた。このソフトウェアでは界面熱抵抗を考慮することができるようになってきている。また、GPGPUを使った高速計算が可能であり、数十万画素からなる実際の組織写真から有効熱伝導率および電気伝導率を算出することができる。実際の組織写真には強化相の体積率、形状、サイズ分布および不均一性等の情報は織り込み済みであるので、この方法を用いれば複雑なモデルを構築する必要がない。有効熱伝導率(λ_{eff})を算出するためのシミュレーションに必要な設定値は、強化相の熱伝導率(λ_{rein})、母相の熱伝導率(λ_{mat})および界面熱抵抗(R)のみであり、ここで、もし、 λ_{eff} 、 λ_{rein} および λ_{mat} を実験的に求めることができれば、 R を逆解析で決定することができる。このようにして求められる界面熱抵抗は、まさに、複合材料作製プロセスで形成される界面の熱抵抗である。しかしながら、組織写真は二次元情報であり、実際に測定される三次元での有効熱伝導率と等価ではないと予想され、その関係についての研究はこれまで行われていない。シリアルセクションングやマイクロ X 線 CT から得られるボクセルデータを用いて有効熱伝導率を算出することは可能であるが、それらの装置は高価であり、汎用性に乏しい。簡易に界面熱抵抗を逆解析で決定するためには、三次元の材料組織と二次元断面の材料組織での有効熱伝導率の統計的關係を調査しておく必要がある。

2. 研究の目的

近年、高い強度を維持したまま、熱伝導性を向上させた高機能材料の開発が望まれており、複合材料の熱伝導性を支配する因子の詳細な解明が必要となってきた。また、サブナノ～ナノメートルサイズの強化相を持つ金属基複合材料の研究が盛んに行なわれている。強化相のサイズがナノメートル領域になると界面熱抵抗の影響が無視できなくなり、有効熱伝導率に大きな影響を与える。しかしながら、界面熱抵抗は実測することが非常に難しく、これまで実測値の報告は殆どなされていない。本研究では、種々の金属基複合材料の熱伝導率測定、電気伝導率測定、組織観察およびコンピューター・シミュレーションを組み合わせることにより、母相・強化相界面熱抵抗を求めることを目的とする。

3. 研究の方法

粒子分散複合材料を粉末冶金法により作成する。粉末冶金法では母相粒子および強化相粒子の粒径比を変化させることによって、強化相粒子の分散性をコントロールすることができる。母相金属としては Al、Cu、Fe を、強化相粒子としては SiC、TiB₂、SiO₂ を用いる。これら母相と強化相の組合せを変化させて粒子分散複合材料を作製する。原料粉末は V 型混合器または遊星ボールミルで混合し、放電焼結機を用いて焼結を行う。試料の組織観察には走査型電子顕微鏡(SEM)を用いる。図 1 は SEM 像から有効熱伝導率を算出する一連の流れを示している。SEM 像

にフィルタリング処理，閾値処理，オープニング処理を施した後，熱伝導シミュレーションにデータを読み込ませて両端に熱源を追加する。有限体積法(FVM)により定常状態の温度分布を計算した後，有効熱伝導率の算出を行う。このシミュレーションに必要な設定値は，強化相の熱伝導率(λ_{rein})，母相の熱伝導率(λ_{mat})および界面熱抵抗(R)のみである。定常熱伝導測定装置を用いて， λ_{eff} および λ_{mat} を計測する。 λ_{rein} に関しては粉末メーカーが公表している熱伝導率を採用した。金属基分散複合材料の界面熱抵抗(R)を逆解析によって求めた。

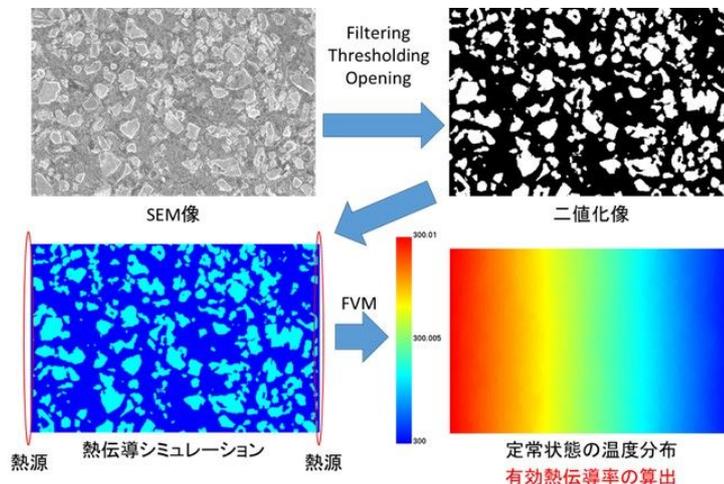


図1 画像解析による有効熱伝導率の算出

4. 研究成果

母材として平均粒径 $3\mu\text{m}$ ，純度 99.9%の Al 粉末（高純度化学研究所）を使用した。強化材には平均粒径 $30\mu\text{m}$ ，純度 99.9%の高純度 SiC 粉末（高純度化学研究所）を使用した。Al 粉末と SiC 粉末を V 型混合器（50 rpm）により混合した。放電プラズマ焼結（SPS）により試料の焼結は行った。有効熱伝導率を向上させるために，カーボン製の型に試料を入れ小型の電気炉で 660°C の熱処理を行った。作製した試料に対して相対密度測定，SEM による組織観察，定常熱伝導率測定装置による有効熱伝導率の測定を行った。表 1 は作製したサンプルの有効熱伝導率と相対密度を示している。相対密度は減少したが，有効熱伝導率は熱処理後に改善された。

表 1 熱処理前後のA-20vol.%SiCの有効熱伝導率と相対密度。

SiC particle size [μm]	Effective thermal conductivity [$\text{W/m} \cdot \text{K}$]		Relative Density [%]	
	Before	After	Before	After
3	147	158	99.6	98.6
30	127	172	96.1	94.6

図2(a)と(b)はSiC粒子サイズがそれぞれ $3\mu\text{m}$ と $30\mu\text{m}$ の Al-20vol.%SiC 複合材料の微細組織を示している。また，図2(a')と(b')は，熱伝導計算のためのシミュレーションセルを示している。

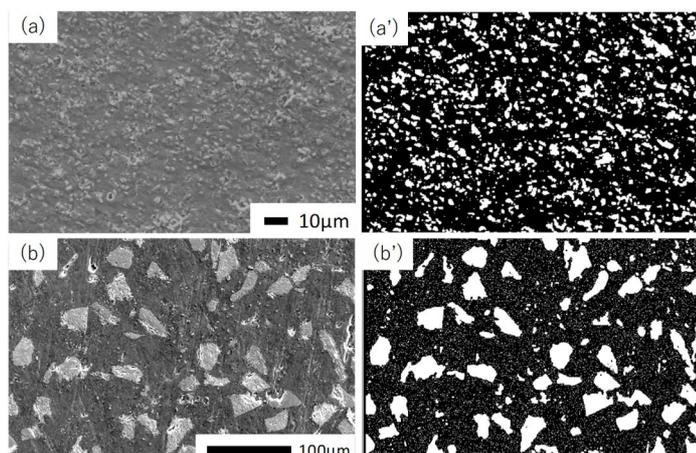


図2 画像解析による有効熱伝導率の算出

図3はAl-SiC界面の熱伝達率に対してシミュレーションによって得られた有効熱伝導率を示している。塗りつぶされた円と実線はシミュレーションにより計算された有効熱伝導率を表し，点線は実測された有効熱伝導率を表す。また，Davisらは界面熱抵抗を考慮した有効熱伝導率を提案しており，図3

には Davis らのモデル[5]により計算される有効熱伝導率も示している。実線と点線の交点から Al と SiC 間の熱伝達係数を求めることができる。表 2 は今回行った画像ベースの計算によって得られた熱伝達係数と Davis らのモデルによって得られた熱伝達係数を比較している。今回得られた熱伝達係数はデービスらのそれよりも大きいことが分かる。また，表 2 にはフォノン拡散不整合モデル（Phonon DMM）[4]によって計算された熱伝達係数を示している。今回得られた熱伝達係数は Phonon DMM のそれよりも小さいことが分かる。Phonon DMM では界面のミスフィットは考慮されておらず，作製された試料には界面のミスフィットが存在する可能性があるためこのような違いが生じたと考えられる。また，表 2 には熱伝達係数の逆数である界面熱抵抗を示

している。

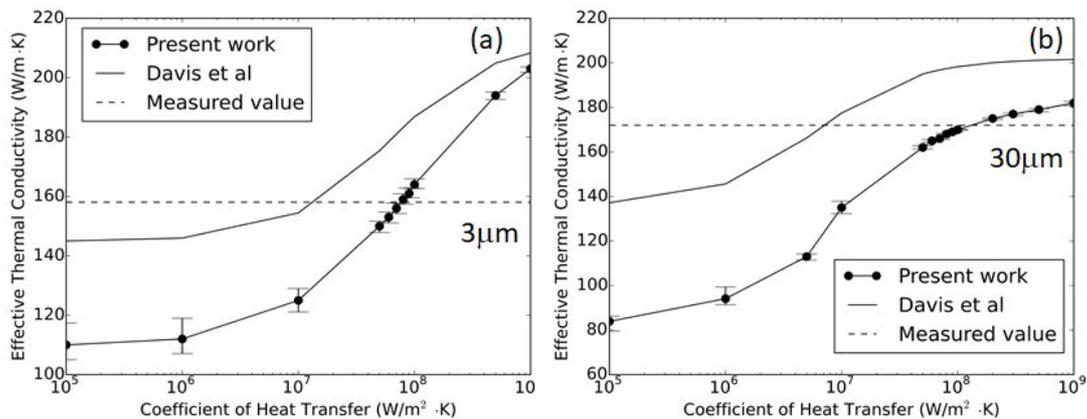


図3 Al-SiC 界面での熱伝達係数と有効熱伝導率の関係。

表2 A-20vol.%SiC の界面での熱伝達係数と界面熱抵抗。

SiC particle size [μm]	Coefficient of heat transfer [$\text{W}/(\text{m}^2\text{K})$]			Interfacial thermal resistance [$(\text{m}^2\text{K})/\text{W}$]
	Present work	Davis et al.	Phonon DMM	
3	8.0×10^7	1.5×10^7	2.2×10^8	1.25×10^{-8}
30	1.0×10^8	7.0×10^6		1.0×10^{-8}

< 引用文献 >

- [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] S. Chang, C. Chen, S. Lin, T. Z. Kattamis: Acta. Mater., 51 (2003), 6191.
- [4] E. T. Swartz and R. O. Pohl: Reviews of Modern Physics, 61 (1989), 605.
- [5] L. C. Davis and B. E. Artz, Journal of Applied Physics, 77 (1995), 4954.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Sugio Kenjiro, Kono Keisuke, Choi Yong Bum, Sasaki Gen	4. 巻 941
2. 論文標題 Evaluation of Effective Thermal Conductivity of Metal Matrix Composites by Using Image-Based Calculation	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Materials Science Forum	6. 最初と最後の頁 1939 ~ 1943
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.941.1939	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Sasaki Gen, Choi Yong Bum, Sugio Kenjiro, Matsugi Kazuhiro	4. 巻 941
2. 論文標題 Development of Tool Steel Matrix Composites with High Thermal Conductivity	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Materials Science Forum	6. 最初と最後の頁 1956 ~ 1960
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.941.1956	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 杉尾健次郎, 崔 龍範, 佐々木 元	4. 巻 81
2. 論文標題 アルミニウム基複合材料の有効熱伝導率に対する 界面熱抵抗の影響	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 日本金属学会誌	6. 最初と最後の頁 467-474
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 0件/うち国際学会 6件）

1. 発表者名 杉尾健次郎 河野圭将 崔龍範 佐々木元
2. 発表標題 イメージベースシミュレーションによるAl基粒子分散型複合材料の 界面熱抵抗の評価
3. 学会等名 軽金属学会 第134回春期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 杉尾健次郎, 川田拓哉, 崔龍範, 佐々木元
2. 発表標題 Al-AIN粒子分散型複合材料の熱伝導・熱膨張特性評価
3. 学会等名 日本金属学会 2018年秋期講演大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 杉尾健次郎, 川田拓哉, 崔龍範, 佐々木元
2. 発表標題 イメージベースシミュレーションによるAl-AIN粒子分散複合材料の界面熱抵抗の評価
3. 学会等名 日本金属学会 2019年春期講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kenjiro Sugio, Takuya Kawata, Yongbum Choi and Gen Sasaki
2. 発表標題 EVLUATION OF THERMAL PROPERTIES OF Al-AIN PARTICLE DISPERSED COMPOSITES
3. 学会等名 The 5th Asian Symposium on Materials and Processing (ASMP2018) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kenjiro Sugio, Yongbum Choi, Gen Sasaki
2. 発表標題 Evaluation of effective thermal conductivity of metal matrix composites by using image-based calculation
3. 学会等名 Thermec2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Keisuke Kono, Kenjiro Sugio, Yongbum Choi and Gen Sasaki
2. 発表標題 Evaluation of Interfacial Thermal Resistance of Al-SiC Composites by Using Image-based Calculation
3. 学会等名 International Symposium on Green Manufacturing and Applications (ISGMA 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 杉尾健次郎, 河野圭将, 崔龍範, 佐々木元
2. 発表標題 イメージベースシミュレーションによるAl-SiC粒子分散複合材料の界面熱抵抗の評価
3. 学会等名 日本金属学会 2017年秋期講演大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 杉尾健次郎, 河野圭将, 崔龍範, 佐々木元
2. 発表標題 イメージベースシミュレーションによるAl-SiC粒子分散複合材料の界面熱抵抗の評価
3. 学会等名 日本金属学会 2018年春期講演大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 杉尾健次郎, 河野圭将, 崔龍範, 佐々木元
2. 発表標題 Al-SiC粒子分散複合材料の界面熱抵抗の評価
3. 学会等名 軽金属学会 第133回秋期大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Yan Zhao, Kenjiro Sugio, Yongbum Choi, Sasaki Gen, Zhefeng Xu, Jinku Yu
2. 発表標題 The Relationship Between the Effective Thermal Conductivity and the Orientation of Graphite Flakes in Al Matrix Composites
3. 学会等名 PRICM10 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 K. Sugio, T. Kawata, Y. Choi and G. Sasaki
2. 発表標題 EVALUATION OF INTERFACIAL THERMAL RESISTANCE OF ALALN PARTICLE DISPERSED COMPOSITES BY USING IMAGEBASED CALCULATION
3. 学会等名 ICCM22 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takuya KAWATA, Kenjiro SUGIO, Yongbum CHOI, Gen SASAKI
2. 発表標題 Relationship Between Effective Thermal Conductivity and Interfacial Thermal Resistance of Al-AlN and Al-Si Composites
3. 学会等名 The 1st Korea-China-Japan Joint Symposium on Composite Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 F e - S i C 複合材料の製造方法、および F e - S i C 複合材料	発明者 杉尾健次郎	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、148884	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

GitHub(<https://github.com/ksugio/MPGrid>)にて研究に使用したソースコードを公開している。

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	佐々木 元 (Sasaki Gen) (30192595)	広島大学・工学研究科・教授 (15401)	