

| | |
|----------|---------------------------------------------------------|
| 氏名(本籍) | 濱田幸弘(高知県) |
| 学位の種類 | 博士(工学) |
| 学位記番号 | 甲第39号 |
| 学位授与年月日 | 平成8年3月25日 |
| 専攻 | 生産開発システム工学専攻 |
| 学位論文題目 | 高分子材料を母材とする分散系混合物の熱伝導率に関する研究 |
| 学位論文審査委員 | (主査) 教授 熊田 雅 彌 (副査) 教授 若井 和 憲 教授 西村 誠 助教授 檜和田 宗 彦 |

論文内容の要旨

最近高分子材料を母材とする複合材は多種多様化して様々な分野で活用が進んでおり、これに伴ってその物性評価も重要性を増しつつある。本研究は、このような複合材料の熱伝導率測定法と推算法の向上に寄与するため、ウレタン-マイカ分散系混合物へのレーザフラッシュ法の拡張と熱伝導率推算手法の検討を行ったものである。

第1章では、熱伝導率測定法と分散系混合物の熱伝導率推算法に関する従来の研究を概括し、本研究の位置づけを明らかにしている。まず、従来の熱伝導率・熱拡散率測定法を列挙し、それぞれの特徴を指摘した上で、高分子系材料への適用可能性を検証していく必要があること、また、従来の複合材の熱伝導率推算法においては、マイカ等を混合した分散系混合物の熱伝導率をその異方性と粒子配向の面から解明し推算しようと試みた例は見あたらないことを述べ、本研究では代表的な非定常法であるレーザフラッシュ法による高分子材料の測定手法開発とこれによる分散系混合物の熱伝導率測定、ウレタン系複合材を対応事例としたマイカ混合物の熱伝導率推算手法の検討・検証を目的とすることを述べている。

第2章では、従来のレーザフラッシュ法が有する問題点、すなわちパルスレーザ照射による所定の初期温度分布の実現が高分子材料では困難である点を指摘し、新たに試料前面に受光板を配置した測定試料系を提案している。適当な熱容量と遮光性を有する高熱伝導性金属受光板を用いればレーザ光の透過と被照射面の過熱損傷を防ぐことができ、しかもこれを完全熱伝導体とみなすことにより原理式が過度に複雑になることもない。このような考えのもとで測定原理式を導き、試料背面の温度応答から熱拡散率を求めるデータ処理法を確立した上で、 $2 \times 10^{-3} \text{ m}$ 以上の厚さの一般的な高分子材料が比較的容易な試料系の構成によって測定可能であることを明らかにしている。

第3章では、この測定法により得たアクリル樹脂とポリウレタンゴムの熱拡散率・熱伝導率が、文献値や他の測定法による値と良い一致を示すこと、また試料-受光板接合層の熱抵抗など種々の誤差要因について考察を加えた結果これらの試料に対して

は十分な測定精度を有することを明らかにしている。

第4章では、この測定法をウレタンを母材とする分散系混合物に適用し、得られた熱伝導率を他の測定法による値や従来の予測式による推算値と比較検討している。平均粒径 $4 \times 10^{-6} \text{ m}$ の等方性ランダム微粒子を混合した場合は測定・推算ともによく一致する結果を与えるのに対し、粒度 $80 \mu \text{ m}$ 及び $40 \mu \text{ m}$ のマイカを混合した試料では他の測定法との間で測定値に僅かなずれが認められ、また推算値はいずれの方法による測定値とも一致しないことを示した。一方、粒子の大きさによる温度応答の空間的ばらつきを 50×50 の格子中に正方形粒子をランダムに配置したモデルを用いた数値計算によって検討し、さらに粒子の配向による温度応答の空間的ばらつきをマイカ粒子の側面形状を模擬したユニットセルの組合せモデルを用いた数値計算によって評価したところ、温度応答の変動幅は高々1%程度と推定されるので粒子体積分率10%以下のウレタン-マイカ混合物の熱伝導率も粒度 $80 \mu \text{ m}$ 以下、試料厚さ $2 \times 10^{-3} \text{ m}$ 程度であればレーザフラッシュ法によって測定可能であることを示した。これらの結果と電子顕微鏡による微細構造観察の結果から、測定されたウレタン-マイカ混合物の熱伝導率の挙動を把握するにはマイカ粒子の形状・寸法と配向の巨視的な影響評価が重要であることを明らかにしている。

第5章においては、ウレタン-マイカ混合物の熱伝導率推算において粒子配向の影響を盛り込んだ手法の確立を図っている。まず、コンピュータ画像解析装置によって試料断面の電子顕微鏡写真から個々の粒子の配向を求め、それらを等温面と熱流方向の間で 30° ごとに分類積算し、得られた各配向率と粒子体積分率との積である”配向体積分率”と熱伝導率の関係から、熱伝導率に対しては熱流方向に配向した粒子の寄与が際だって大きいことを明らかにしている。さらにマイカの熱伝導率異方性を考慮したユニットセルでの数値計算により各配向の寄与の相対的な大きさを評価し、ユニットセルを 9×9 個組み合わせたモデルによって実際の配向をもとにした熱伝導率の推算を行った結果、組合せモデルによってウレタン-マイカ混合物の熱伝導率の定性的な把握が可能であること、また、各”配向体積分率”に適切な重みを付与した”有効配向体積分率”によって熱伝導率の簡潔な推算が可能であることを明らかにしている。

第6章ではこれらの結果を総括して、新たな測定手法により厚さ $2 \times 10^{-3} \text{ m}$ 程度の高分子系複合材料の熱伝導率測定が可能となったこと、マイカの配向と異方性を考慮した二次元数値計算によってウレタン-マイカ混合物の実用上十分な熱伝導率推算が可能であるとの結論を述べている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、近年多種多様化して様々な分野で活用が進んでいる高分子材料を母材とする複合材の熱伝導率測定法と推算法の向上に寄与するため、レーザフラッシュ法の拡張とウレタン-マイカ分散系混合物の熱伝導率推算手法の実験的・理論的検討を行ったものである。特に、対象としたマイカの熱伝導率の異方性を考慮した検討は独創的なものである。

第1章では、熱伝導率測定法と分散系混合物の熱伝導率推算法に関する従来の研究を総括し、高分子系材料への適用の可能性の検証の必要を明らかにし、本研究の位置付けをしている。特に、マイカ等を混合した分散系混合物の熱伝導率をその異方性と粒子配向の面から解明し推算しようと試みは、皆無であり独創性がある。本研究は、代表的な非定常法であるレーザフラッシュ法による高分子材料の測定手法開発とこれによる分散系混合物の熱伝導率測定、ウレタン系複合材を対応事例としたマイカ混合物の熱伝導率推算手法の検討検証を目的としている。

第2章では、従来のレーザフラッシュ法において、パルスレーザ照射による所定の初期温度分布の実現が高分子材料では困難である点を指摘し、新たに試料前面に受光板を配置した測定試料系を提案している。適当な熱容量と遮光性を有する高熱伝導性金属受光板を用いればレーザ光の透過と被照射面の過熱損傷を防ぐことができ、しかもこれを完全熱伝導体とみなすことにより原理式が過度に複雑にならないことを示し、実際に測定原理式を導き、試料背面の温度応答から熱拡散率を求めるデータ処理法を確立した上で、 $2 \times 10^{-3} \text{ m}$ 以上の厚さの高分子材料が比較的容易な試料系の構成によって測定可能であることを明らかにしている。

第3章では、この測定法により得たアクリル樹脂とポリウレタンゴムの熱拡散率・熱伝導率が、文献値や他の測定法による値と良い一致を示し、また試料-受光板接合層の熱抵抗など種々の誤差要因について考察を加え、十分な測定精度を有することを明らかにしている。

第4章では、この測定法をウレタンを母材とする分散系混合物に適用し、得られた熱伝導率を他の測定法による値や従来の予測式による推算値と比較検討し、平均粒径 $4 \times 10^{-6} \text{ m}$ の等方性ランダム微粒子を混合した場合は測定・推算ともによく一致するが、粒度 $80 \mu \text{ m}$ 及び $40 \mu \text{ m}$ のマイカを混合した試料では他の測定法との間で測定値に僅かなずれが認められ、また、計算値はいずれの方法による測定値とも一致しないことを示している。一方、粒子の大きさによる温度応答の空間的ばらつきを 50×50 の格子中に正方形粒子をランダムに配置したモデルを用いた数値計算によって検討し、さらに粒子の配向による温度応答の空間的ばらつきをマイカ粒子の側面形状を模擬したユニットセルの組合せモデルを用いた数値計算によって評価し、温度応答の変動幅は高々1%程度と推定される示し、粒子体積分率10%以下のウレタン-マイカ混合物の熱伝導率も粒度 $80 \mu \text{ m}$ 以下、試料厚さ $2 \times 10^{-3} \text{ m}$ 程度であればレーザフラッシュ法によって測定

可能であることを示した。これらの結果と電子顕微鏡による微細構造観察の結果から、測定されたウレタン-マイカ混合物の熱伝導率の挙動を把握するにはマイカ粒子の形状・寸法と配向の巨視的な影響評価が重要であることを明らかにしている。

第5章では、ウレタン-マイカ混合物の熱伝導率推算において、コンピュータ画像解析装置によって試料断面の電子顕微鏡写真から個々の粒子の配向を求め、それらを等温面と熱流方向の間で 30° ごとに分類積算し、得られた各配向率と粒子体積分率との積である”配向体積分率”を導入し、それより、熱伝導率に対しては熱流方向への配向の寄与が際だって大きいことを明らかにしている。さらにマイカの熱伝導率異方性を考慮したユニットセルでの数値計算により各配向の寄与の相対的な大きさを評価し、ユニットセルを 9×9 個組み合わせさせたモデルによって実際の配向をもとにした熱伝導率の推算を行った結果、組合せモデルによってウレタン-マイカ混合物の熱伝導率の定性的な把握が可能であること、また、各”配向体積分率”に適当な重みを付与した”有効配向体積分率”によって熱伝導率の簡潔な推算が可能であることを明らかにしている。

以上の結果により、本論文のウレタン-マイカ混合物へのレーザーフラッシュ法の拡張と熱伝導率の推算法の確立は、学術的にも工業的にも貢献するものであり、学位論文に値するものと判断される。