

VGCF-CNT フィラーを用いたアルミニウム基高熱伝導 複合材料の熱特性に及ぼす非弾性変形の影響

福地 孝平*・佐々木 克彦**・今西 輝光***, ****・片桐 一彰***・垣辻 篤*****

Effect of Inelastic Deformation on Thermal Property of Aluminum Based High Thermal Conductive Composites Containing VGCF-CNT Filler

Kohei FUKUCHI Katsuhiko SASAKI Terumitsu IMANISHI
Kazuaki KATAGIRI Atsushi KAKITSUJI

Abstract — This paper evaluates the reliability of an aluminum based composite including vapor growth carbon fibers (VGCF) and carbon nanotubes (CNT). The composite is fabricated using spark plasma sintering and has high thermal conductivity. For the reliability evaluation, the correlation between the inelastic deformation and thermal conductivity is discussed with both experiments and simulations, which are conducted using the finite element method and Nan model. In the experiments, the thermal conductivities are measured before and after tensile tests. Both the simulations and experiments show that the thermal conductivities depend on the inelastic deformation of the composites.

Key words : Carbon nanotube, Vapor growth carbon fiber, Aluminum matrix composite, High thermal conductivity, deformation dependency

1. 緒言

近年、環境負荷の低減や低炭素社会の実現のために各種機器のエネルギー効率の向上が求められている。これらの問題を解決するために高い熱伝導特性や優れた比強度を有する新材料の開発が急務となっている。その一助として筆者らは強度、熱伝導特性や導電率に著しく優れたカーボンナノチューブ (CNT ; carbon nanotube)、および、CNT の一種である気相成長炭素繊維

維 (VGCF ; vapor growth carbon fiber) ⁽¹⁾をアルミニウム (Al) 中に分散した VGCF-Al 複合材料の開発を行ってきた⁽²⁻⁴⁾。その結果、複合材料を放電プラズマ焼結法によって試作し、複合材料の熱伝導率が Al の 3 倍を超えることを明らかにした。

複合材料のアプリケーション先として、放熱フィンやヒートシンクを想定した場合、熱負荷により複合材料に非弾性変形(永久変形)が生じることが予想される。そこで、本論文では、複合材料に非弾性変形が生じた際の熱伝導率の変化について検討した。さらに、有限要素解析 (FEM) と Nan モデル^(5,6)を用いたシミュレーションを、非弾性変形に伴う材料内部の損傷を考慮して行った。

2. 材料の作製および熱伝導特性の概要⁽²⁻⁴⁾

* 釧路高専機械工学科

** 北海道大学大学院工学研究院

*** 住友精密工業株式会社

**** 単層 CNT 融合新材料研究開発機構(TASCO)

***** 大阪府立産業技術総合研究所

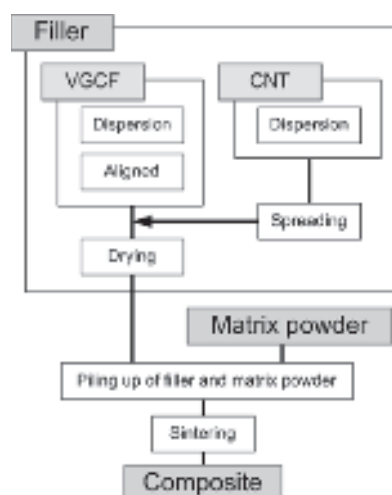


Fig.1 Procedure for fabrication of the composites.

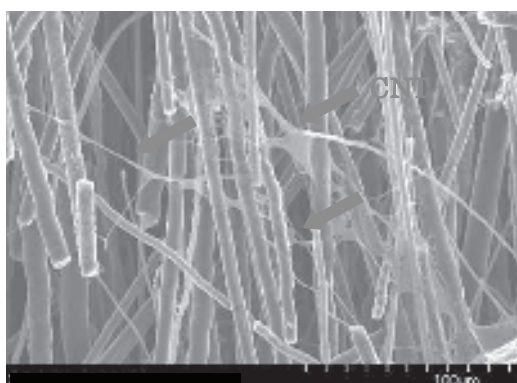


Fig. 2 SEM image of VGCF-CNT filler.

図 1 に複合材料の製造方法の概略を示す。まず、VGCF を一方向に配向させたシート状のフィラーに極微量の CNT を添加した VGCF-CNT フィラーを製作する。図 2 にフィラーの SEM 写真を示す。図 2 より、フィラー中で CNT と VGCF 間がネットワーク化していることがわかる。ついで、製作したフィラーと Al 粉末を焼結型に交互に積層し、放電プラズマ焼結装置を用いて焼結する。Al 粉末には純 Al と Al-12Si を重量比 9:1 で混合した粉末を用いた。

図 3 に製造した複合材料の模式図を示す。図 3 に示すように、配向された VGCF の軸方向を X 方向とし、半径方向を Y 方向、焼結時の加圧方向を Z 方向とする。

図 4 にレーザーフラッシュ法を用いて測定した複合材料の X, Y, Z 各方向の熱伝導率と VGCF 体積含有率の関係を示す。VGCF 体積含有率が大きいほど、X 方向の熱伝導率が増加していることがわかる。また、X 方向の熱伝導率が、Y および Z 方向に比べて著しく高く、複合材料は熱異方性を有することがわかる。この熱異方性は、VGCF の軸方向の熱伝導率が極めて高く、半径方向の熱伝導率が極めて低いという VGCF 自体の熱異方性に起因すると考えられる。

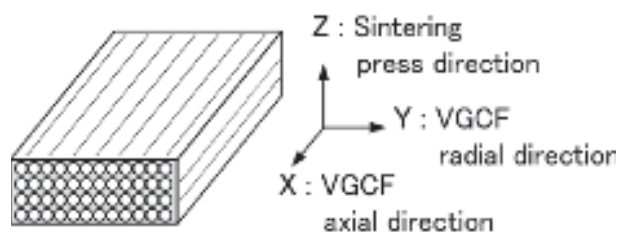


Fig. 3 Schematic figure of the composites.

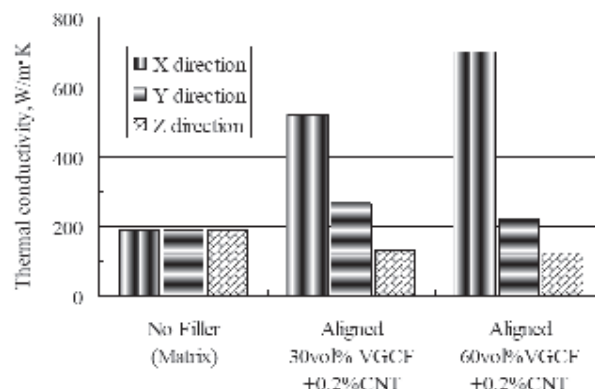


Fig. 4 Thermal conductivities of the composites.

3. 非弾性変形による熱伝導特性への影響

非弾性変形が熱伝導率に与える影響について、引張り荷重前後の熱伝導率測定により検討した。実験は、Alマトリックス単体の試料と、VGCFとCNTをそれぞれ30vol%と0.2vol%含有した複合材料を用いて行った。図5に示すように、試験片形状は平行部長さ25mm、幅25mm、厚さ2mmの板状であり、VGCF軸方向が引張り方向と一致している。なお、引張り試験はAlマトリックス単体と複合材料に対して、それぞれ8本ずつ行った。

引張り試験は、クロスヘッド速度0.3mm/minで行い、様々な非弾性ひずみを試験片に与えた。目標のひずみを与えられた試験片に対して、除荷後熱伝導率測定を行った。なお、除荷の際のクロスヘッド速度は負荷時と同様に0.3mm/minとした。試験機は島津製作所製EZグラフ（最大荷重5kN）を使用し、ひずみは共和電業社製ひずみゲージ(KFG-1-120-C1-16)により検出した。熱伝導率測定は、引張り除荷後の試験片中央部より25mm×25mm×2mmを切り出し、レーザーフラッシュ法により測定した。

図6は、Alマトリックス単体の熱伝導率と、引張り荷重による非弾性ひずみの関係を示している。図6中の○、□、◇は、それぞれX, Y, Z各方向の測定値であるが、マトリックス単体では全方向の熱伝導率に違いがないことがわかる。また、Alマトリックス単体において、

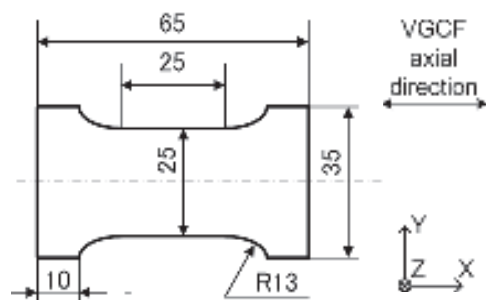


Fig. 5 Geometry of specimen.

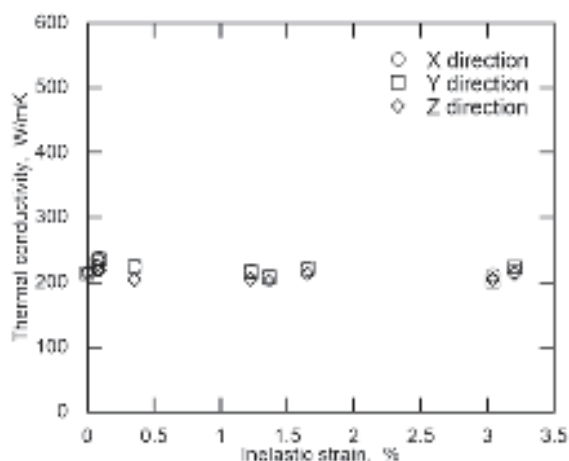


Fig. 6 Relationship between thermal conductivity and inelastic strain (matrix).

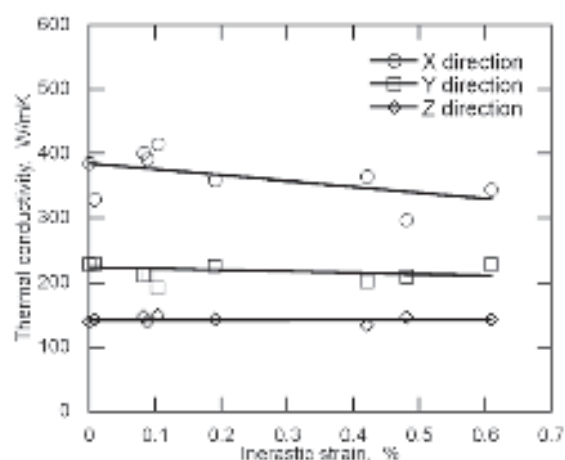


Fig. 7 Relationship between thermal conductivity and inelastic strain (30% of VGCF).

非弾性ひずみによる熱伝導率の変化は観察されない。すなわち、Alマトリックス単体の場合には、熱伝導率は非弾性ひずみの影響を受けないことが明らかである。

図7は、VGCFを30vol%含有した複合材料の熱伝導率と、引張り負荷による非弾性ひずみの関係を示している。図7中の○、□、◇は、それぞれX、Y、Z各方向の測定値であり、実線は最小二乗法による近似直線である。図7より、X方向については、非弾性ひずみが大きくなるに従い、熱伝導率が減少することがわかる。

しかしながら、YおよびZ方向の熱伝導率は、非弾性ひずみによらず一定であり、非弾性ひずみの影響は見られない。これは、VGCFとCNTのネットワーク化により高い熱伝導率であったX方向に対して非弾性ひずみが生じたことにより、ネットワーク化が崩れたためと考えられる。一方、VGCFの半径方向に相当するYおよびZ方向は、もともとネットワーク化による熱伝導率向上がみられないため、非弾性ひずみによるネットワークの崩れの影響は受けない。すなわち、図7は、VGCF-CNTネットワークの熱伝導率に対する効果をも表している。

4. 非弾性変形を考慮した熱伝導特性解析

前章で明らかにしたように、非弾性変形の増加により熱伝導率が低下する原因として、非弾性変形により複合材料内部に生じる、VGCFとCNTのネットワークの消失などの損傷が考えられる。そこで、有限要素解析とNanモデル^(5,6)を用いて内部損傷を考慮した数値解析により、内部損傷の検証を行った。図8に解析の手順を示す。まず、母材と繊維間の様々なはく離の発生を模擬した有限要素解析を行い、はく離を考慮した複合材料の熱伝導率を算出する。次に、複合材料を算出した熱伝導率を有する均一な材料と仮定する。その後、Nanモデルを導入し、複合材料中で繭状になる繊維や、複合材料製造初期に発生する損傷などを想定した空げきを考慮した解析を行う。以上により、はく離と空げきが発生した場合の複合材料の熱伝導率を算出した。

有限要素解析には、CNTとVGCFが軸方向にネットワーク化したモデルを用いた。ネットワーク化したモデルにおいて、非弾性変形により図9に示す母材と繊維間の界面はく離が発生すると仮定して解析を行った。図9に解析に用いたモデルを示す。図9中でN-Dははく離なし、R-DはVGCFとCNTの半径方向のはく離、A-DはVGCFとCNTのネットワークの消失を表現するための軸方向のはく離、B-Dは外周の全面はく離をそれぞれ模擬している。解析には汎用有限要素解析ソフトANSYSを使用した。表1に熱伝導解析に用いた各材料の熱伝導率を示す。なお、Alとはく離部は等方性材料、VGCFおよびCNTは異方性材料として扱った。また、VGCF、CNTの体積含有率をそれぞれ30vol%、0.5vol%として解析を行った。

Nanモデルでは、内部の空げきを介在物として熱伝導率を算出する。空げきの形状を球状と仮定してNanモデルを用いると複合材料の熱伝導率は以下の式で表すことができる。

Table1 Thermal conductivity of materials.

Material	Thermal conductivity, W/mK
Aluminum	230
VGCF axial direction	2000
VGCF radial direction	10
CNT axial direction	6000
CNT radial direction	10
Debonding and void	1×10^{-5}

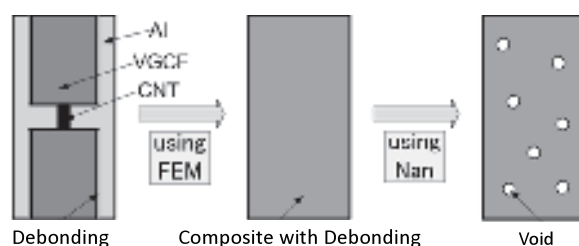


Fig. 8 Analysis flow chart considering debonding and void in the composite.

$$K = K_m \frac{K_p(1+2\alpha) + 2K_m + 2f[K_p(1-\alpha) - K_m]}{K_p(1+2\alpha) + 2K_m - f[K_p(1-\alpha) - K_m]} \quad (1)$$

$$\alpha = \frac{R_{Bd} K_m}{a} \quad (2)$$

式(1)の K が複合材料の熱伝導率である。 K_m は有限要素解析により求めた、はく離が生じた複合材料の熱伝導率、 K_p は空げきの熱伝導率であり、先の有限要素解析のはく離部と同様に $1 \times 10^{-5} \text{ W/mK}$ とした。 f は空げきの体積含有率である。式(2)の R_{Bd} は母材と空げきの界面熱抵抗 $8.3 \times 10^{-8} \text{ m}^2 \text{ K/W}$ 、 a は空げきの直径であり $10 \mu\text{m}$ とした。また、空げき率を5%として解析を行った。

図10に解析より得た複合材料の熱伝導率を示す。繊維軸方向の熱伝導率に関しては、繊維の全面はく離のB-Dの熱伝導率の低下が著しく、繊維軸方向はく離のA-D、半径方向はく離のR-Dの順に熱伝導率への影響が小さくなるのがわかる。特に、VGCFとCNTのネットワークの消失を模擬したA-Dモデルにおいて、20%程度の熱伝導率の減少が見られ、ネットワークの消失が熱伝導率減少の一因であることが明らかである。以上のように、FEMとNanモデルを組み合わせた数値解析により、非弾性変形と熱伝導率の関連性を定性的にはあるが、表すことが出来た。今後、定量的な評価のために、複合材料内部の更に詳細な観察によるモデル化を行い、解析に取り入れる予定である。

5. 結言

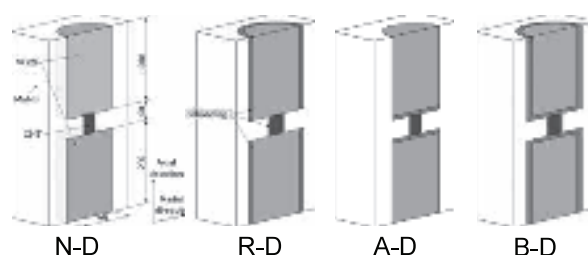


Fig. 9 VGCF-CNT network model for FEM.

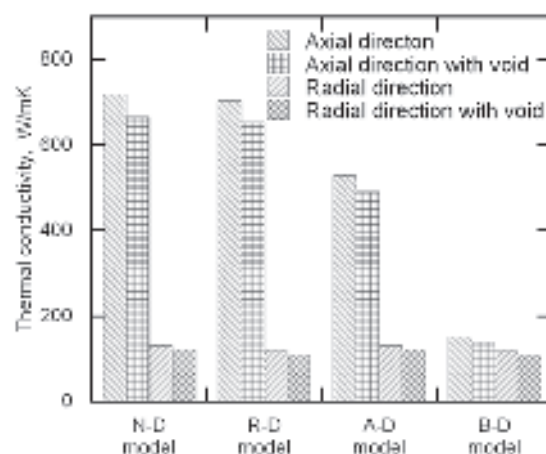


Fig. 10 Effect of the debonding with void on the thermal conductivity of composite.

本研究では、VGCF-CNTのネットワーク構造を有するAl基の高熱伝導複合材料の熱伝導率と非弾性変形の関係について、実験、FEMとNanモデルを併用した解析より検討した。その結果、非弾性変形の増加により複合材料の繊維軸方向の熱伝導率が低下することを明らかにした。また、繊維と母材間のはく離や空げきを模擬したモデルにより、非弾性変形に伴う熱伝導特性の変化を定性的に表記可能であることを示した。

参考文献

- 1) S. Iijima : Helical microtubules of graphitic carbon, Nature 354, 56-58(1991).
- 2) 今西輝光, 佐々木克彦, 片桐一彰, 垣辻篤: 日本機械学会論文集A編, 74(741), 655-661(2008).
- 3) 今西輝光, 佐々木克彦, 片桐一彰, 垣辻篤, 日本機械学会論文集A編, 75(749), 27-33(2009).
- 4) Kohei FUKUCHI, Katsuhiko SASAKI, Terumitsu IMANISHI, Kazuaki KATAGIRI, Atsushi KAKITSUJI, The Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering(JSMME), Vol.6, No.7, 801-813, (2012).
- 5) C-W. Nan, R. Birringer, D. R. Clarke, and H. Gleiter, Journal of Applied Physics, 81, 6692-6699(1997).
- 6) C-W. Nan, G. Liu., Y. Lin, and M. Li, Applied Physics Letters, 85, 3549-3551(2004).