画像データの解析による複合材料の 熱伝導率推算法の開発

太田 弘道* 友田 陽*
渡辺 龍三** 早稲田嘉夫***

*茨城大学工学部物質工学科

**東北大学工学部材料加工学科

***東北大学素材工学研究所

J. Japan Inst. Metals, Vol. 60, No. 7 (1996), pp. 679-684

New Method for Estimating the Effective Thermal Conductivity of Composite Materials from the Optical Micrograph Data

Hiromichi Ohta*, Yo Tomota*,
Ryuzo Watanabe** and Yoshio Waseda***

*Faculty of Engineering, Ibaraki University, Hitachi

**Faculty of Engineering, Tohoku University, Sendai

***Institute for Advanced Materials Processing (AMP), Tohoku University, Sendai

Effective thermal conductivity of composite materials is known to heavily depend upon the structure and distribution of dispersed phases in the matrix. Although the equivalent inclusion method has frequently been used for estimating the thermal conductivities of composite materials, the results include some reservation for the case where the percolation behavior of some phases is suggested by finding direct contact of some dispersed phases. With this fact in mind, a new method has been developed for estimating the effective thermal conductivity of composite materials directly from its optical micrograph data by applying an image analysis of 400×640 digitized elements at the micro-computer level. The capability of this new method has been clearly demonstrated by reproducing the effective thermal conductivity values of SUS304/PSZ composite materials with a wide composition range and thermal anisotropy.

(Received December 26, 1995)

Keywords: thermal conductivity, composite materials, image analysis, thermal anisotropy, heat transfer, effective thermal conductivity

I. 緒 言

セラミックス/金属系傾斜機能材料は、中間相の複合比率を連続的に変えることにより高靱性と高耐熱性を同時に達成可能な材料として期待されている⁽¹⁾。熱的極端条件下では、熱膨張率の差による傾斜相内部の応力を低下させるため、傾斜相の組織形態を制御することにより伝熱物性値を制御することが必要となる。複合材料の熱伝導を組織形態から推算する手法については種々の提案が行われており⁽²⁾、母相中に体積率の低い相が分散した組織形態を持つ材料については既に等価介在物法⁽³⁾の有効性が確認されている⁽⁴⁾。しかし、傾斜機能材料の中間組成域の部分では、各構成要素の体積比率がほぼ等しくなり、各相が互いに連続する複雑な構造となるため等価介在物法は適用できない。また、相の連結/非連結の

みでなく、各相の連結部の太さ、形状により物性値が変化するため、ベッチ数⁽⁵⁾やフラクタル次元⁽⁶⁾などのパラメータにより系の特性を記述し、相の連続性に着目して解析を行うパーコレーション理論による扱いも必ずしも有効でないことが知られている。このことは分散相と母相が明確に区別できない材料に対しては、輸送物性値の推算法の新たな開発が不可欠であることを示している。

差分法を用いた複合材料の組織に関するシミュレーションではモデルをどのように実際の組織に関係付けるかが常に問題となる。一方、実際のランダムな複合相に対して伝熱方程式を適用し伝熱物性を検討した研究は、著者らの知る限りでは、異なった熱伝導率を持つ相の粗い粒からなる煉瓦を各粒を要素として有限要素法により熱伝導率を推算した報告⁽⁷⁾がなされているにすぎない。伝熱方程式の直接の適用による推算が周期性を持たない複雑な組織に対して困難な理由は、次

の点が考えられる。(1)組織形態を十分に再現し、かつ複合組織全体の平均と考えられるような解像度の高さと領域の広さとを合わせ持つ画像データは、構造がランダムであり、2次元解析が有効な場合でも10万点以上の画素を必要とする。(2)このような膨大なデータ量に対する伝熱方程式の解法は、原理的には可能であっても非常に大きな計算量を要し、むしろ無意味ではないかと予想されてきた。

本論文では、緩和法による解法を拡張し計算手順を工夫することにより、25万6千画素からなる画像データに対して直接伝熱方程式を解き、パーソナルコンピュータレベルで有効熱伝導率を推算する新しい手法を開発した。この新しい手法の原理、具体的な手順および SUS304/PSZ 焼結体への応用結果を報告する。

II. 推算法の基本原理

解析を行う組織の画像データの一例として、縦400、横640の25万6千画素からなる画像を Fig. 1 に示す。この試料はボールミルで24 h 混合した粒径3 μm の SUS304 と粒径0.07 μm の部分安定化ジルコニア粉末を150 MPa で圧粉し、純水素中、1626 K で1 h 保持した常圧焼結材⁽⁸⁾である。黒の画素が気孔、灰色がセラミックス、白が金属相に対応する。Fig. 1 の組織における上下方向の熱伝導率 λ は、上端および下端の温度をそれぞれ T_1 , T_2 (ただし $T_1 < T_2$)で等温とした場合の定常熱流束 J 、上下の辺の間の距離を H とすれば、次式の関係で表される。

$$J = \lambda(T_2 - T_1)/H \quad (1)$$

画像データの一つ一つの画素は気孔、セラミックス、金属相のいずれかに対応するので、各画素を要素とする定常伝熱方程式を数値的に解くことによって得られる温度分布から各部分の温度勾配を求め、その部分の熱伝導率と温度勾配との積として定常熱流束 J を求めることができる。

Fig. 1 A sample of graphic data of composite material (Sample A). PSZ component (gray), SUS304 component (white) and pore (black).

III. 新しい推算法の具体的手順

Fig. 2 に計算を行う要素を模式的に示す。各要素 i, j は熱伝導率 $\lambda_{i,j}$ の単一相とする。縦方向の要素数を L 、横方向の要素数を Y とする。内部の要素については、正味の熱移動量 $\text{div } J = 0$ および $J \propto \text{grad } T$ の関係より次式が成立する。

$$J_{i-} + J_{j-} - J_{i+} - J_{j+} = 0 \quad (2)$$

$$J_{i+} = -\lambda_{i+} \frac{\partial T}{\partial x} \quad J_{i-} = -\lambda_{i-} \frac{\partial T}{\partial x} \quad (3)$$

$$J_{j+} = -\lambda_{j+} \frac{\partial T}{\partial y} \quad J_{j-} = -\lambda_{j-} \frac{\partial T}{\partial y} \quad (4)$$

したがって

$$\lambda_{i-}(T_{i,j} - T_{i-1,j}) + \lambda_{j-}(T_{i,j} - T_{i,j-1}) - \lambda_{i+}(T_{i+1,j} - T_{i,j}) - \lambda_{j+}(T_{i,j+1} - T_{i,j}) = 0 \quad (5)$$

$$(\lambda_{i+} + \lambda_{i-} + \lambda_{j+} + \lambda_{j-}) T_{i,j} - (\lambda_{i+} T_{i+1,j} + \lambda_{i-} T_{i-1,j} + \lambda_{j+} T_{i,j+1} + \lambda_{j-} T_{i,j-1}) = 0 \quad (6)$$

ここで

$$\lambda_{i+} = \frac{2\lambda_{i,j}\lambda_{i+1,j}}{\lambda_{i,j} + \lambda_{i+1,j}} \quad (7)$$

$$\lambda_{i-} = \frac{2\lambda_{i,j}\lambda_{i-1,j}}{\lambda_{i,j} + \lambda_{i-1,j}} \quad (8)$$

$$\lambda_{j+} = \frac{2\lambda_{i,j}\lambda_{i,j+1}}{\lambda_{i,j} + \lambda_{i,j+1}} \quad (9)$$

$$\lambda_{j-} = \frac{2\lambda_{i,j}\lambda_{i,j-1}}{\lambda_{i,j} + \lambda_{i,j-1}} \quad (10)$$

上下の境界条件は、

$$T_{i,1} = T_1 \quad (11)$$

$$T_{i,L} = T_2 \quad (12)$$

左右の境界条件(断熱)は、

$$T_{1,j} - T_{2,j} = 0 \quad (13)$$

$$T_{Y,j} - T_{Y-1,j} = 0 \quad (14)$$

定常温度分布は、原理的にはこれらの連立一次方程式をガ

Fig. 2 Schematic diagram of interior finite elements.

ウス-ザイデル法⁽⁹⁾や緩和法⁽¹⁰⁾を用いて解くことにより得られる。しかし本研究のように十萬を越える要素を持つ画像データに対し、これらの手法を直接適用することは、(1)2次元の配列を使うため、演算のたびにメモリーのアドレス計算が必要となり計算量が大きいこと、(2)境界と内部で異なった演算を行うためプログラム中に判断、分岐が入り高速演算が難しいこと、(3)要素間の緩和の伝播が常に再隣接の要素に限られるため収束が遅いこと、などから現実的でない。

そこで本研究では、以下の手順により演算を行う工夫を試みた。 λ_{j+} は要素 $i, j+1$ の λ_{j-} と、 λ_{j-} は要素 $i, j-1$ の λ_{j+} と同一になることを考慮して式(6)を整理すると、

$$T_{i,j} = (\lambda_{i,j}^{(x)} T_{i+1,j} + \lambda_{i,j}^{(x)} T_{i-1,j} + \lambda_{i,j}^{(y)} T_{i,j+1} + \lambda_{i,j}^{(y)} T_{i,j-1}) / \lambda_{i,j}^{(w)} \quad (15)$$

ここで、

$$\lambda_{j+} = \lambda_{i,j}^{(y)}; \lambda_{j-} = \lambda_{i,j-1}^{(y)} \quad (16)$$

$$\lambda_{i-} = \lambda_{i-1,j}^{(x)}; \lambda_{i+} = \lambda_{i,j}^{(x)}$$

$$\lambda_{i,j}^{(w)} = \lambda_{i,j}^{(y)} + \lambda_{i,j-1}^{(y)} + \lambda_{i-1,j}^{(x)} + \lambda_{i,j}^{(x)} \quad (17)$$

ここに設定したモデルは Fig. 3 に示すように、要素中央の代表点の間を伝熱抵抗で接続することに対応する。この基本的なアイデアに基づいて、Fig. 4 に示すように代表温度 T (円)、伝熱抵抗 $\lambda^{(y)}$ および $\lambda^{(x)}$ (楕円)、伝熱抵抗の和 $\lambda^{(w)}$ (四角)からなる空間的配置を有する系に境界条件を組み込む。図中、黒丸を付した点は断熱境界条件を実現するために導入した熱伝導率ゼロの仮想点である。この2次元配列について、Fig. 5 に示すように各配列の右端を次の列の左端に連続させることによって、一次元配列とする。この操作により右の境界と左の境界の断熱条件が成立し、かつ上下の境

Fig. 3 Schematic diagram of bonding model for finite elements.

Fig. 4 Schematic diagram of bonding model for 5x3 elements.

Fig. 5 One dimensional arrays for 5x3 elements.

界要素に境界温度 T_1 を T_2 を入れれば、すべての要素について同一の計算を行うことによって温度分布を導出できる。なお Fig. 5 で三角形は計算機のメモリー上の番地を指すポインタであり、それぞれに名前を付けることによりメモリー上の位置を指示するために導入した。具体的な解は、温度分布が収束するまで以下の(1)から(4)の手順で計算を繰り返すことによって求めた。

(1) ポインタ te, tbl, tb, td, ta, tal, xb, xa, ybl, yd, wd を以下のように位置付ける。

$$\begin{aligned} te &= tds + Y \times (L-1) & xb &= xtc \\ tbl &= tds & xa &= xtc + 1 \\ tb &= tds + Y - 1 & ybl &= ytc \\ td &= tds + Y & yd &= ytc + Y \\ ta &= tds + Y + 1 & wd &= wtc \\ tal &= tds + Y \times 2 \end{aligned}$$

(2) ポインタ td の指す番地に次式により計算した値を書き込む。

$$*td = (*tbl \times *ybl + *tal \times *yd + *tb \times *xb + *ta \times *xa) / (*wd)$$

ここで *x はポインタ x の指す番地の内容を表すものとする。

(3) ポインタ tbl, tb, td, ta, tal, xb, xa, ybl, yd, wd を右に1つ移動する。

(4) td が te より左にある間、(2)と(3)を繰り返す。

この計算を実行する場合、熱伝導率の空間的な分布を表す配列 xtc, ytc, wtc の値は、繰り返し計算を行う前に画像データから一度だけ求め、その値を以後の計算で用いた。この演算は高速で実行できるが、再隣接の要素のデータのみを用いるため、離れた要素間の影響の伝播には多くの繰返しを要し必ずしも収束は早くない。ただし、この計算上の支障は計算を行う要素を粗から密へピラミッド型に構成することにより、改善できる。

複合材料中のある領域の平均温度は、その部分の平均的熱

伝導率に支配される．したがって本研究では Fig. 6 に示すように，いくつかの要素を含む領域の平均の熱伝導率を用いて計算を行い，まず巨視的なおおよその温度分布を求め，徐々に細部の温度を決定し，最後に画像データ全体を対象として計算を行う方法を採用した．Fig. 6(a)は，黒で示す低熱伝導率の部分と，白で示す高熱伝導率の2つの相からなる組織と対応する 8×8 の要素の画像データである．この要素を 2×2 ずつの要素にまとめ，ついでこの 2×2 の要素の平均の熱伝導率をもった要素を考え，Fig. 6(b)のように 4×4 の大きさの行列とする．この行列では空間的に遠くのポイントの影響が平均的な形ではあるがより早い速度で伝播する．さらに Fig. 6(c)のように Fig. 6(b)の格子を 2×2 ずつまとめたものを考えれば，遠距離の格子の影響をさらに迅速に取り込むことが可能となる．

本研究では 400×640 (25万6千画素)の画像データを Table 1 にしたがって，再編し，段階的に温度分布を決定した．また，要素の熱伝導率の平均値は，複合相の取り得る最大の熱伝導率 λ_p と最小値 λ_v の平均値 λ_{av} と設定した．ただし，

$$\lambda_p = \sum \lambda_{i,j} / N \quad (18)$$

$$\frac{1}{\lambda_v} = \frac{\sum (1/\lambda_{i,j})}{N} \quad (19)$$

$$\lambda_{av} = \frac{\lambda_p + \lambda_v}{2} \quad (20)$$

ここで $\lambda_{i,j}$ は各要素の熱伝導率， N は要素数である．粗い要素について得られた温度は平面に対し線型補間し次のステップのより細かい要素の初期温度とした．

繰り返し演算の初期値は境界の温度 T_1 の T_2 間に線型温度分布を設定した．高速化のためすべてのデータは計算機の

Fig. 6 Conversion of elements to larger ones. (The tone of color corresponds to the order of thermal conductivity).

Table 1 Number of pixels and elements employed in the present calculation.

Step for calculation	Number of pixels in one element	Number of elements
1	16×16	25×40
2	8×8	50×80
3	4×4	100×160
4	2×2	200×320
5	1×1	400×640

メモリー上に置き，32ビット整数，一部64ビット整数を用いて演算を行った．通常の整数演算における除法は小数点以下切り捨てである．しかし，熱伝導率が正確に予測できる積層材に対する本手法による計算結果と理論値との比較，および浮動小数点演算と整数演算を用いた場合の結果の比較から，整数演算を行った場合は切り捨て誤差の累積による精度の低下が認められた．したがって，本研究では整数演算の除法で四捨五入演算を採用した．収束条件は，「100回の繰り返しごとに全要素の温度を調べ，すべての要素について100回の繰返しによる温度変動が最高温度の $1/1000$ 以下」であることとした．なお，この収束条件は種々の条件で計算を行い，得られる有効熱伝導率の変化を調べ，十分有効性を確認した．演算時間は解の収束速度がデータによって異なるため一定ではないがインテル 486DX, 66 MHzを用いた場合，通常，数分から数10分の範囲であった．得られた結果の一例として，Fig. 1の画像データに対応する等温線を Fig. 7 に示す．Fig. 1において黒で表示されている熱伝導率の低い気孔の部分では等温線の間隔が狭くなり，白で表示されている高熱伝導率の金属相の部分では広くなるなど，Fig. 1の組織形態を十分に反映した結果となっている．

N. 実測値と推算値との比較

本研究で開発した手法の応用例として，広い組成範囲で熱伝導率の値が明らかにされている SUS304/部分安定化ジルコニア粉末混合焼結材⁽⁸⁾の熱伝導率の推算を試みた．対象とした試料は，粒径 $3 \mu\text{m}$ の SUS304 粉末と粒径 $0.07 \mu\text{m}$ の PSZ 粉末をボールミルで24 h 混合し150 MPaで圧粉した後，1623 Kの純水素中において1 h 保持した常圧焼結材試料(A)，粒径 $0.18 \mu\text{m}$ の PSZ 粉末を用い同様の方法で作製した常圧焼結材試料(B)，粒径 $3 \mu\text{m}$ の SUS304 粉末と粒径 $0.07 \mu\text{m}$ の PSZ 粉末をボールミルで24 h 混合し，5%水素を含むアルゴン雰囲気中において1473 Kで20 MPaの圧力をかけ1 h 保持した加圧焼結材試料(A_{hp})の3種類である．なお，常圧焼結材(試料 A および B)については SUS304 の

Fig. 7 Temperature distribution estimated from the image data of Fig. 1.

体積率 0~100% の範囲で 20% おきに 6 組成, また加圧焼結材については SUS304 の体積率 0~100% の範囲で 10% おきに 11 組成の試料を作製し, レーザーフラッシュ法を用い著者ら自身で系統的に熱拡散率を測定し, 報告済である⁽⁸⁾. なお, これらの試料のうち SUS304 あるいは PSZ の体積分率が比較的低く, 分散相と母相が明確に分離して観察される場合については, 等価介在物法を用いた熱伝導率の推算も行った.

計算に必要な複合相を構成する各相の熱伝導率は, SUS304 については文献値⁽¹¹⁾を用いた. PSZ については同一の組成の文献値がなかったため, 焼結体について測定した値から気孔の寄与を補正した値を用いた⁽⁸⁾. ただし, 気孔の熱伝導率は, 空気の熱伝導率が SUS304 の熱伝導率と比較して著しく小さいので, 整数演算の過程でゼロとなる. したがって, 本研究では気孔の熱伝導率はゼロとおいた. なお念のため, いくつかの試料について気孔の熱伝導率をゼロでなく SUS304 の熱伝導率の 255 分の 1 ($2^8 - 1$ 分の 1 に相当) の値を与えて計算を行い, 得られる有効熱伝導率の計算値の変化は 1% 以下であることを確認した. 一方, 画像データは, 一つの試料について 4 枚から 8 枚の顕微鏡写真を撮り, スキャナーにより数値データに変換した後, 一枚の写真から圧粉方向およびそれに垂直な方向の 2 方向の熱伝導率の値を算出した.

熱伝導率の実測値に異方性の認められない試料 A の各組成に対する解析結果を Fig. 8 に示す. 4 枚の写真に対する 2 方向の解析から各組成に対して得られた 8 つの値は, Fig. 8 から容易に理解できるようによく一致する. この結果は, 本研究で新たに開発した手法が妥当であることを示すとともに, 解析条件も全体の組織形態に対応した値を与えるに足る

Fig. 8 Calculated effective thermal conductivity values of sample A.

十分広い視野をカバーしていることを示唆している.

試料 A および B に対する推算結果を, 等価介在物法による推算値⁽⁸⁾とともに, それぞれ Fig. 9 および Fig. 10 に示す. この比較では推算値, 実測値とも平均値で代表させた. なお, 等価介在物法は, 中間組成領域では SUS304 相, PSZ 相がともに連続した相となり, 分散相と母相の判別および分散相の回転楕円体近似が困難であるため, 適用できない.

本研究で新たに開発した手法を用いた推算値は, 全組成領域で実測値をほぼ再現している. 一方, 3 次元的解析である等価介在物法は, 本研究で対象としたような複雑な形態の分散相に対しては必ずしも良い結果を与えないようである. 等価介在物法では平均場の仮定を導入するが, 実際の組織では, 相の形状のみならず分布形態も粒子径や粒子の塑性変形に対する抵抗の差のため必ずしも「平均的」とはならない場合も多い. このような試料に対しては, 等価介在物法では分散相の相互の影響を十分取り込むことが難しい. これに対し本研究で開発した手法は 2 次元的情報を基礎とするが, Fig. 1 に例示する画像データを直接取り込むことによって,

Fig. 9 Comparison of calculated effective thermal conductivity with experimental data for sample A. Crosses indicate the calculated values using the equivalent inclusion method.

Fig. 10 Comparison of calculated effective thermal conductivity with experimental data for sample B. Crosses indicate the calculated values using the equivalent inclusion method.

Fig. 11 Comparison of calculated effective thermal conductivity with experimental data for sample A_{hp} indicating thermal anisotropy.

むしろ相の形態，相間の影響を反映させた推算が実現できていると考えられる．このことは，比較的分散相の体積分率の低い領域でも，本研究で開発した手法が実測値を十分な精度で再現していることから，容易に確認できる．

Fig. 11 には，熱伝導率に異方性の認められた加圧焼結により作成した試料 A_{hp} の推算値と実測値を示す．この結果より本研究で開発した手法は，異方性を有する複合材料の熱伝導率を推算する場合にも有効であることが，明瞭に認められる．

V. 結 言

組織の画像データと各構成相の熱伝導率の値をもとに複合材料の有効熱伝導率を推定する新しい解析法を開発し，SUS304/PSZ 焼結体の熱伝導率の推算に応用した．その結果，光学顕微鏡写真をスキャナーにより取り込んだ 400×640 の 25 万 6 千画素からなる画像データを基礎とする本研究で新たに開発した手法は，パーソナルコンピュータレベルの

数値計算により，画像データと各構成相の熱伝導率の値のみから直接，十分な精度で複合材料の熱伝導率を算出できることが確認できた．この新しい手法は，原理的には複合組織の基本的特徴が顕微鏡観察で得られるような 2 次元情報で十分表現できるすべての複合材料の熱解析に対して有効である．今後，複合分散相構造あるいは二重海島構造と呼ばれる組織形態を持つような場合を含め，傾斜機能材料や新しい組織形態を持つ材料への広範な応用が期待できる．

本研究で使用了画像データの作成は，茨城大学大学院生 太田理文氏，茨城大学学生 大川和永氏，大貫貴久氏に援助頂いた．また計算に用いた C コンパイラ djgpp，図の作成に用いた Gp, qfig はそれぞれ D. J. Delorie 氏 (University of California)，枝松圭一氏 (東北大学)，岩熊哲夫氏 (東北大学) のフリーソフトウェアである．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) 例えば，田谷 稔：まてりあ，**33**(1994)，276; 409.
- (4) 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；太田理文，大貫貴久，太田弘道，竹内 庸，友田 陽，早稲田嘉夫：軽金属，(1996)，投稿中.
- (5) 福本昌宏，外山順敏，山崎隆典，梅本 実，岡根 功，西林景仁，太田弘道，友田 陽：溶射，**28**(1991)，1.
- (6) 小田垣孝：パーコレーションの科学，裳華房，(1993)，37.
- (7) R. R. Bittle and R. E. Taylor: J. Am. Ceram. Soc., **67**(1984)，186.
- (8) 太田弘道，友田 陽，日比野 敦，川崎 亮，渡辺龍三，早稲田嘉夫：鉄と鋼，**81**(1995)，印刷中.
- (9) 例えば，磯田和男，大野 豊：FORTRAN による数値計算ハンドブック，オーム社，(1971)，35.
- (10) 例えば，Y. Jaluria and K. E. Torrance: Computational Heat Transfer, Hemisphere Publishing Corporation, Washington, (1986)，38.
- (11) 日本熱物性学会：熱物性ハンドブック，養賢堂，(1990)，192.