【論文】

ロックイン・サーモグラフィを用いた 高熱伝導炭素系複合材料の熱的異方性評価装置の開発 Development of a Thermal Anisotropy Measurement Method for High-Thermal-Conductive Carbon Fiber Reinforced Plastic Composites Using a Lock-in Thermography

栗原理也*, 長野方星*
Masaya Kuribara, Hosei Nagano

ピッチ系炭素繊維強化プラスチック (Carbon Fiber Reinforced Plastic, CFRP) の面内方向の熱拡散率とその異方性を非接触かつ簡易・迅速に評価するための新しい装置を開発した。本装置は、レーザースポット式周期加熱法を基本原理とし、温度および位相計測にロックイン・サーモグラフィを用いている。サーモグラフィにより周期点熱源と試料温度との位相差を計測、解析することで熱拡散率が求められる。繊維の配向方向の異なる二種類のサンプル（一方向材 $[0^\circ]$ と二方向材 $[0^\circ/90^\circ]$ ）を製作し、面内熱拡散率を測定した。その結果、一方向材と二方向材では異なる熱拡散率分布を有すること、また面内異方性の程度を視覚的に示すことができた。また、両者の面内熱拡散率の角度依存性を定量的に求めた。さらに、別で求めた比熱容量と密度から、熱伝導率を算出し評価を行った。

This paper presents measurement technique of the distribution of anisotropy and the in-plane thermal diffusivity for the pitch-based carbon fiber reinforced plastics (CFRPs). The measurement was conducted by using a laser-spot periodic heating method. The temperature of the sample is detected by using a lock-in thermography. The thermography can analyze the phase difference between periodic heat input and temperature response of the sample. Two kinds of samples, unidirectional (UD) and cross-ply (CP) CFRPs, were fabricated. All carbon fibers of the UD sample run in one direction $[0^\circ]$. The carbon fibers of the CP sample run in two directions $[0^\circ/90^\circ]$. It is found that, by using the lock-in thermography, it is able to visualize the degree of thermal anisotropy and calculate the angular dependence of the in-plane thermal diffusivity of the CFRP. Thermal conductivities of these samples were also calculated from the measured thermal diffusivity, specific heat, and density.

[**Keywords** : Laser spot periodic heating method, CFRP, Anisotropy, Thermal diffusivity]

1. 緒言

宇宙機の熱設計において、熱制御素子の軽量化および高性能化が要求されている。特に重量の大きなラジエータの改良が重要視され、従来のアルミニウム合金に代わり、高熱伝導 CFRP (Carbon Fiber Reinforced Plastic) の利用が期待されている[1]。一般に CFRP は軽量、高剛性、低熱膨張性などの特徴を有する。炭素繊維には PAN 系とピッチ系があり、ピッチ系を使うことで高熱伝導性が得られる。ラジエータの放熱面積は、要求排熱量と材料の熱

物性値より決定される。そのため材料の熱伝導率、放射率や太陽光吸収率などの熱物性値の測定が不可欠である。特に CFRP は、繊維の配向方向により熱伝導率に大きな異方性を有するため、異方性評価が重要となる。

CFRP の熱伝導率測定に関する研究は、これまで PAN 系を対象にした報告はいくつか存在する[2-5]。PAN 系 CFRP の厚み方向の熱拡散率をレーザーフラッシュ法を用いて常温で測定した報告[2]や、PAN 系 CFRP の炭素繊維方向と直交方向の熱拡散率の温度依存性をレーザーフラッシュ法で測定した報告[3]、また PAN 系 CFRP の熱伝導率の温度依存性を定常法で測定した報告[4]、ならびに、PAN 系炭素繊維の繊維自体の熱拡散率の温度依存性を測定した報告[5]などがある。しかし、CFRP の面内熱拡散率を 1 方向または 2 方向だけでなく、角度依存性も含めて

* 名古屋大学大学院航空宇宙工学専攻, 〒464-8603 名古屋千種区不老町
Dept. of Aerospace Eng., Nagoya University, Furo-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8603 Aichi.
FAX: 052-789-3280 E-mail:nagano@prop2.nuae.nagoya-u.ac.jp

測定した報告例はない．さらに，ピッチ系 CFRP の熱拡散率の詳細な測定報告もほとんどない．

そのような背景のもと，本研究では CFRP の熱伝導率とその異方性を明らかにする手法を確立し，高熱伝導性を有するピッチ系 CFRP の熱伝導率異方性を明らかにすることを最終目標とする．これまで，熱伝導率測定法の中で，異方性材料に対して有効なレーザースポット周期加熱法[6]を原理とし，温度測定に熱電対細線を用いて，ピッチ系 CFRP の面内熱拡散率を評価してきた[7]．この方法は，高精度の測定に適しているが，熱電対の試料への取り付けが難しい事，加熱信号が熱電対へ到達する範囲内に測定が限定されること，試料の大きさが限られること，測定に長時間を要することなどの制約があった．

そこで本研究では，温度測定に非接触なロックイン・サーモグラフィを用いることで，面内方向の熱伝導率異方性を簡易かつ迅速に，加えて広範囲に測定可能な手法を新たに確立することを研究目的とする．本論文では，新たに構築したロックイン・サーモグラフィによる面内方向の熱拡散率異方性評価装置の開発と，本装置を用いたピッチ系 CFRP の 1 方向材と 2 方向材の面内熱拡散率と異方性分布測定結果について報告する．また，熱電対細線を用いて測定した結果と比較する．さらに，別で求めた比熱容量と密度から熱伝導率を明らかにしたので報告する．

2. 測定試料

測定試料のピッチ系 CFRP は，1 方向に引きそろえた炭素繊維に半硬化状態の樹脂を含浸したシート状成形中間素材であるプリプレグ（三菱樹脂製，HYEJ16M90D）を積層し，オートクレーブを用いて 125℃，0.5MPa で 1.5 時間硬化させ自作した．プリプレグを構成する炭素繊維はメソフェーズピッチ系で，繊維直径約 10 μm である．また，マトリックス樹脂はビスフェノール A 型エポキシ樹脂で，その重量含有率は 32% である．測定試料は，図 1 のように，プリプレグ 1 枚を硬化させた 1 方向材（unidirectional, UD, 90×105×t0.12 mm, [0°]）と，2 枚を直角に積層して硬化させた 2 方向材（cross-ply, CP, 150×150×t0.24 mm, [0°/90°]）の 2 種類を製作した．

3. 測定原理および実験装置

3.1 測定原理

Fig. 1 CFRP samples

等方的な連続媒体中に周期的な点熱源 $\varphi = \varphi_0 e^{i(2\pi ft)}$ があるとき，点熱源から r 離れた位置での交流温度 T_{ac} は次の(1)式で表される[8]．

$$T_{ac} = T_0 e^{i(2\pi ft - kr)} e^{-kr} \quad (1)$$

ここで f は周波数， φ_0 ， T_0 は定数である．また， k は熱拡散長 l の逆数であり，(2)式で表される．

$$k = \sqrt{\pi f / D} = l^{-1} \quad (2)$$

点熱源に対する交流温度の位相遅れ θ は，位置 r において

$$\theta = -kr \quad (3)$$

である．(2)式と(3)式より(4)式が得られ，位相遅れの距離依存性から熱拡散率 D が求められる．

$$d\theta/dr = -\sqrt{\pi f / D} \quad (4)$$

実際の試料は有限サイズであるため，本原理が成立する範囲が限定され，試料サイズに応じて選択できる周波数が制限される．まず 1 つ目に，試料厚さ d と厚み方向の波数 k_d が，試料内の交流温度が試料断面に対して一次的に伝わる条件(5)式を満たす必要がある[9]．

$$k_d d \leq 0.5 \quad (5)$$

2 つ目に，加熱部から試料端までの距離 L と面内方向の波数 k_L が，交流温度が試料境界で反射して测温部に伝わらないための条件(6)式を満たす必要がある[10]．

$$L k_L \geq 2.75 \quad (6)$$

式(5)，(6)を連立させて，厚み効果およびエッジ効果の影響を受けない測定周波数条件が式(7)で決定される．

$$D_d / 4\pi d^2 \geq f \geq 7.57 D_L / \pi L^2 \quad (7)$$

ただし D_d および D_L はそれぞれ厚さ方向，面内方向の熱拡散率である．

3.2 実験装置

図 2 に新たに構築した実験装置の概略図を示す．本装置は，ダイオードレーザー，音響光学変調器（AOM），ビームエキスパンダー，光学顕微鏡，CCD カメラ，試料支持装置，サーモグラフィ，ファンクションジェネレーター（FG），およびコンピュータから構成される．ダイオードレーザーから熱源となる加熱光が照射され，

Fig. 2 Schematic of the experiment

Table 1 Specification of thermography

Detector	InSb
Spectral response, μm	2.5 to 5.1
Pixels	320×256
Pitch, μm	30×30
Frame rate, Hz	5 to 170
Frame rate resolution, Hz	1
Temperature range, $^{\circ}\text{C}$	5 to 300
Noise equivalent temperature difference, K	<0.02
Temperature measurement accuracy, $^{\circ}\text{C}$	$\pm 1^{\circ}\text{C}$

AOM で周期変調される。AOM は FG の設定周波数によりコントロールされる。変調された加熱光はビームエクステンダーで直径を拡大された後に光学顕微鏡で集光され、試料支持装置に取り付けられた試料を周期的にスポット加熱する。レーザーのスポットの形成は CCD カメラの映像から確認する。試料温度は、加熱面と反対側に設置したサーモグラフィで計測する。サーモグラフィには、FG から参照信号が送られている。サーモグラフィは測定温度と参照信号をコンピューターに送っている。コンピューターが、送信されてきたデータから、測定温度と参照信号の位相差を解析する。ダイオードレーザーの最大出力は 150mW で、ビーム直径は 1.28mm、ビーム形状はガウス分布である。レーザーから照射されたビームは複数の光学部品を通過するため減衰し、試料到達時のビーム強度は 37.6mW となった。また、パワーメーターを用いてレーザースポットの強度分布を測定した結果、スポットの直径は約 $7\mu\text{m}$ であった。装置の評価は試料を高純

度アルミニウム（純度 99%以上）を用いて行い、熱拡散率の推奨値に対して $\pm 2\%$ 以内で一致した。表 1 に使用したサーモグラフィの諸元を示す。

4. 測定方法および解析方法

ロックイン・サーモグラフィによる熱拡散率の測定手順を以下に示す。

- ① 試料を許容周波数範囲内の任意の周波数で周期加熱する。
- ② サーモグラフィにより温度応答を測定する。
- ③ ②を複数回繰り返す、複数枚の温度動画を撮影する。
- ④ 撮影した温度動画から、PC を用いて参照信号と温度応答の位相差を解析し、位相遅れ分布図を得る。
- ⑤ 位相遅れ分布図を積算し、位相遅れの平均値および標準偏差の 2 倍 (2σ) を計算する。
- ⑥ 位相遅れの距離依存性から、熱拡散率を計算する。

熱拡散率を計算するために、撮影された温度動画の 1 ピクセル当たりの長さを計算する必要がある。本測定では、長さが既知のテープを試料に貼り付けて撮影を行い、画面上のテープのピクセル数から、1 ピクセル当たりの長さを計算した。

表 2 に試料の詳細と測定条件を示す。加熱周波数は式(7)の許容加熱周波数を満たすように選定する。 D_d は一方向材の繊維直交方向の面内熱拡散率の値を用いた。測定の初期段階では D_d および D_L は未知であるため、初期値としてメーカーから提供される熱伝導率参考値を元に算出した熱拡散率を用いて、いくつか周波数を変えながら測定を行い、反復的に D_d , D_L および適正周波数範囲を決定する。撮影は 1 回の測定時間を加熱周期の 5 倍以上とし、それを 7 回繰り返した。

Table 2 Measurement condition

Sample	UD [0°] 1ply	CP [0/90°] 2ply
Size, mm	90×105×0.12	150×150×0.24
Heating freq., Hz	4	1
Allowed range of freq., Hz	0.29 to 12.8	0.058 to 3.1
Length of a pixel, mm/px	0.1407	0.1407
Number of measurement	7	7
Integration time, μs	582	582
Sampling rate, Hz	97	97

Fig. 3 Mapping of phase-lag of UD sample

Fig. 4 Mapping of phase-lag of CP sample

5. 測定結果および考察

5.1 異方性分布

図3, 4にそれぞれ, 1方向材, 2方向材の位相遅れ分布図を示す. ロックイン・サーモグラフィを用いることでCFRPの異方性分布を瞬時に可視化することができる.

図3の1方向材は, x 方向が繊維方向 ($UD_{//}$), y 方向が繊維方向と直交方向 ($UD_{\perp}$)である. 加熱中心である画面中央から外側に向かって位相遅れが大きくなっていることが見て取れる. ただし -180° 以下の位相遅れは一周ずれて 360° 加わって表示されていることを注記しておく. 等方性材料の場合, 位相遅れは円形に分布する. それに対して1方向材の場合, 位相遅れは横長に分布し, 外の方はノイズが観測されている. 熱拡散率が小さい場合は, 短い距離で位相遅れが大きくなる. 従って図3より, 繊維が配向されている x 方向に熱拡散率が大きく, それ以外の方向で熱拡散率が小さいことが確認された.

図4の2方向材は, x, y 方向が繊維方向 ($CP_{//}$)である. 画面中央から外側に向かって位相遅れが大きくなって

る. 2方向材の場合, 位相遅れはひし形に分布し, 外の方はノイズが観測されている. 位相遅れ分布図の様子から, 45° , 135° , 225° , 315° 方向に熱拡散率が小さく, 繊維が配向されている x, y 方向に熱拡散率が大きいことが明らかとなった.

5.2 位相遅れの距離依存性

位相遅れ分布図を7枚撮影し, 位相遅れの平均, 2σ を計算した. また, 後の熱拡散率の解析のため $2\sigma \geq 45^{\circ}$ の領域をノイズ領域と定義した. 図5, 6に1方向材の繊維方向, 繊維と直交方向の位相遅れの平均の距離依存性を示す. 図7に2方向材の位相遅れの平均の距離依存性を示す.

図5の1方向材の繊維方向の結果では, 全体的に位相遅れのばらつきが小さく, 広範囲でかつ十分なデータ点数の信号を得ることができた. 温度振幅が減衰するため, 加熱位置から遠いほど 2σ が大きくなった. 図6の1方向材の繊維と直交方向の結果では, 繊維方向と比べるとデータ点数が少ない結果となった. また, 温度振幅の減衰が大きいため, 繊維方向と比較すると, より加熱位置に近い領域で 2σ が大きくなった.

図7の2方向材の結果では, 1方向材の繊維方向と比べると, 位相遅れのばらつきが大きくなった. これは, 温度振幅が小さくSN比が小さいことに起因する. この場合, 1枚の位相遅れ分布図からは位相遅れの直線性は得られず, 熱拡散率を計算することはできなかった. しかし, 図7のように複数枚の位相遅れ分布図の平均をとることで, 位相遅れの直線性が得られることが明らかとなった.

Fig. 5 Distance dependence of phase-lag to the fiber direction of UD

Fig. 6 Distance dependence of phase-lag to perpendicular direction of UD

Fig. 7 Distance dependence of phase-lag to the fiber direction of CP

5.3 熱拡散率

次に、図 5～7 の直線部分から熱拡散率を算出した。なお直線部分は、隣接する点間の傾きの 5 点移動平均の値が 15%以内の範囲の領域とした。また、従来の熱電対細線を用いた場合の測定結果[11]と比較した。結果を表 3 に示す。なお、熱電対細線による装置の測定不確かさは純銅を用いて±3%以下と見積もられている[11]。

1 方向材の繊維方向と直交方向の熱拡散率の比は約 121 倍であり、大きな異方性が確認された。また、2 方向材の熱拡散率は 1 方向材の繊維方向と直交方向の平均値より大きいことが明らかとなった。

熱電対を用いた測定結果を比較すると、サーモグラフィを用いた測定は、1 方向材の繊維方向は 11%小さく、1 方向材の繊維と直交方向は 11%大きかった。熱電対を用い

た測定では、繊維方向を 0.5deg.の精度で同定して測定を行っている。それに対しサーモグラフィを用いた測定は、素子の分解能の限界から、繊維方向に対し最大 2.6 deg.のずれが生じ得る。したがってサーモグラフィを用いた測定では、真の繊維方向と測定結果から同定した繊維方向に多少のずれが生じている可能性がある。そのため熱電対を用いた結果に対し、繊維方向で熱拡散率が小さく、繊維と直交方向で熱拡散率が大きく計測されたと考えられる。今後装置を改良し、繊維方向を正しく同定する手法を考案する必要がある。

一方、2 方向材は、サーモグラフィを用いた測定と熱電対を用いた測定結果は 3%以内で一致した。2 方向材では繊維方向から少しずれても熱拡散率が急激に小さくなることはなく、1 方向材と比較すると、2 つの装置で結果が良く一致したと言える。

Table 3 Thermal diffusivity comparison

	Thermography	Thermocouples[11]
UD _{//}	230 mm ² /s	257 mm ² /s
UD _⊥	1.9 mm ² /s	1.7 mm ² /s
CP _{//}	140 mm ² /s	144 mm ² /s

5.4 熱拡散率の角度依存性

続いて図3および図4から、繊維方向に対する異方比の角度依存性を算出した。異方比は、試料内の最大熱拡散率に対する、任意の方向での熱拡散率の比で定義される。1方向材および2方向材の熱拡散率異方比の角度依存性算出結果を図8および図9にそれぞれ示す。これより1回の試料セッティングで、面内熱拡散率の角度依存性が、材料の不均質性も含め計測できることが示された。図8に示す1方向材の熱拡散率は、繊維方向(0°)で極端に大きく、繊維方向以外では大幅に小さくなることが明らかとなった。一方、2方向材の熱拡散率は、繊維の配向されていない±45°方向で小さく、等方性材料ではないことが確認された。±45°方向の熱拡散率は、繊維方向の75%程度であることが分かった。さらに、方向に依存する異方比のバラツキは、CFRPの内部構造の不均質性に起因すると考えられる。したがって、高精度な熱設計を行うためには、個々のCFRP部材の各箇所に対して熱拡散率測定を行う必要がある。その際に、非接触で簡易迅速で、さらに広範囲に測定が可能な本測定手法が有効であると考えられる。

Fig. 8 Direction dependence of anisotropic ratio of UD

Fig. 9 Direction dependence of anisotropic ratio of CP

6. 熱伝導率の算出

比熱容量を DSC 法で測定し、密度を試料形状と質量から計算して、それらを熱拡散率と掛け合わせて熱伝導率を計算した。本測定で用いた DSC 装置を用いて α アルミナの比熱容量を測定したところ、推奨値に対して 3.5% 以内で一致した。CFRP の常温での比熱容量は、1 方向材が $841\text{J}/(\text{kg}\cdot\text{K})$ 、2 方向材が $828\text{J}/(\text{kg}\cdot\text{K})$ であった。密度はどちらも $1761\text{kg}/\text{m}^3$ であった。熱伝導率の計算結果を以下に示す。なお、本熱拡散率装置および DSC 装置の測定の不確かさを合成して得られる熱伝導率の不確かさは 4% 程度と見積もられた。

1 方向材 繊維方向 : $340\text{ [W}/(\text{m}\cdot\text{K})]$

1 方向材 直交方向 : $2.81\text{ [W}/(\text{m}\cdot\text{K})]$

2 方向材 繊維方向 : $204\text{ [W}/(\text{m}\cdot\text{K})]$

1 方向材の繊維方向の熱伝導率は、高熱伝導材料の純銅よりも 15% 程度小さく、純アルミニウムよりも 43% 程度大きかった。また、2 方向材についても、アルミニウムの

熱伝導率に近い熱伝導率となり、本研究で用いたピッチ系 CFRP が高い熱伝導率を有することが確認された。

7. 結言

ピッチ系炭素繊維強化プラスチックの熱拡散率とその異方性分布を非接触かつ簡易・迅速に評価するため、ロックイン・サーモグラフィを用いた計測装置を新たに構築し、高熱伝導 CFRP の 1 方向材および 2 方向材の面内異方性分布と熱拡散率を測定した。従来の熱電対による熱拡散率測定結果と比較し、本測定法の有効性を示すことができた。熱拡散率と比熱容量、密度より熱伝導率を計算し、本研究で製作したピッチ系 CFRP が高い熱伝導率を有することを明らかにした。今後は積層枚数を増やした試料での測定を行い、本測定法の異方性積層試料の熱拡散率測定への適用性を明らかにすることを予定している。また、測定におけるビーム径と繊維径との関係についても今後検討する必要がある。

【謝辞】

本研究を進めるに当たり、産業技術総合研究所の加藤英幸博士、八木貴志博士ならびに名古屋大学の八田一郎名誉教授には貴重なアドバイスをいただいた。また、プリプレグ材は三菱樹脂の木下隆代様よりご提供いただいた。本研究費の一部は科研費 (23686122) の助成を得た。記して謝意を表す。

NOMENCLATURE

d	: thickness of the sample, m
D	: thermal diffusivity, m^2/s
D_d	: thermal diffusivity to the thickness direction, m^2/s
D_L	: thermal diffusivity to the in-plane direction, m^2/s
f	: frequency, Hz^{-1}
k	: wave number, m^{-1}
k_d	: wave number to the thickness direction, m^{-1}
k_L	: wave number to the in-plane direction, m^{-1}
l	: thermal diffusion length, m
L	: distance between heat source and sample edge, m
r	: distance, m
t	: time, s
T_{ac}	: ac temperature, K
T_0	: temperature, K

REFERENCES

- [1] 大西晃 ; 「科学衛星の熱設計の歩みと熱物性研究に

- ついて(7)火星探査機「のぞみ」・小惑星探査機「はやぶさ」, 熱物性, **23** (2009), 203-211.
- [2] G. Wrobel, Z. Rdzawski, G. Muzia and S. Pawlak; "Determination of Thermal Diffusivity of Carbon/epoxy Composites with Different Fiber Content using Transient Thermography", J. Achievements Mater. Manuf. Eng, **37** (2009), 518-525.
- [3] D. L. Ellis and D. L. McDanel; "Thermal. Conductivity and Thermal Expansion of Graphite. Fiber/Copper Matrix Composites", NASA Technical Memorandum, 105233, (1991).
- [4] S. R. Mirmira, and L. S. Fletcher; "Comparison of Effective Thermal Conductivity and Contact Conductance of Fibrous Composites", J. Thermophys. Heat Transf., **13** (1999) 272-276.
- [5] T. Yamane, S. Katayama, M. Todoki and I. Hatta; "Thermal Diffusivity Measurement of Single Fibers by an AC Calorimetric Method", J Appl. Phys., **80** (1996), 4358-4365.
- [6] H. Nagano, H. Kato, A. Ohnishi and Y. Nagasaka; "Measurement of Thermal Diffusivity of Anisotropy Graphite Sheet using AC Calorimetric Method," Int. J. Thermophys., **22** (2001), 301-312.
- [7] 栗原理也, 長野方星「宇宙用高性能ラジエータの開発を目指した高熱伝導CFRPの異方的熱拡散率測定」, 第32回日本熱物性シンポジウム講演論文集 (2011), 153-155.
- [8] H. S. Carslaw, J. C. Jaeger, "Conduction of heat in solids second edition", (1959), 263., Oxford University Press,
- [9] I. Hatta, K. Fujii, A. Sakakibara, F. Takahashi, Y. Hamada and Y. Kaneda; "Two-Dimensional Effects on Measurement of Thermal Diffusivity by AC Calorimetric Method: I. Conditions for Precise Measurement", Jpn. J. Appl. Phys. **38** (1999) 2988-2992.
- [10] I. Hatta, Y. Q. Gu and L. X. Yu; "Thermal Diffusivity of Diamond/Si Composite Films Measured by an ac Calorimetric Method. I. Edge Effects", Int. J. Thermophys. **18** (1997) 515-523.
- [11] M. Kuribara and H. Nagano; "Anisotropic Thermal Diffusivity Measurements in High Thermal Conductive CFRP Composites", Presented at 18th Symp. Thermophys. Prop., Bolder, CO., (2012).
- [Received Mar. 28, 2013, Accepted Feb. 20, 2014]