流動を利用した配向制御による

炭素繊維添加高分子複合材料の熱伝導率向上

齊藤卓志*

・伊原哲志*

・川口達也*

・佐藤 勲*

Improvement of Thermal Conductivity of Carbon Fiber-Filled

Polymer Composites using Flow-Induced Fiber Orientation

Saito, Takushi*/Ihara, Satoshi*/Kawaguchi, Tatsuya*/Satoh, Isao*

In this study, an intermediate process for forcibly orienting carbon fibers was proposed in order to improve the thermal conductivity in thickness direction of a polymer composite sheet. Thin strands containing carbon fibers obtained by extrusion process were hot-pressed to produce an intermediate sample. After giving a zigzag shape to this intermediate sample, the target structure was obtained by folding the sample. Laser flash analysis of the thermal conductivity of sample showed that the value of 1.74 W/(m·K) was achieved at the carbon fiber volume fraction of 15%.

Key words : Thermal conductivity, Polymer composite sheet, Fiber Orientation

1. 緒 言

炭素繊維を高分子材料に添加した複合材料は、電気伝導性を発現するだけでなく、熱伝導率の向上も期待される^{1),2)}。炭素繊維のようにアスペクト比が大きなフィラーを添加する場合、フィラー配向によって、得られる成形体の熱伝導率に大きな異方性が生じる³⁾。このため、熱伝導性フィルムやシートの厚さ方向の熱伝導率向上を目指す場合、面外方向にフィラーを配向させることがポイントとなる。

これを実現するために、炭素繊維の反磁性に着目し、エポキシ樹脂や不飽和ポリエステル樹脂中に分散させた炭素繊維に対し、磁束密度 10 T という磁場を印加することで配向させた後、樹脂を硬化させる技術が報告されている⁴⁾。しかし、強磁場を得るために超伝導磁石が必要となることや、配向に要する時間が比較的長いというプロセス上の難点がある。

一方、せん断流動や伸長流動を用いれば、流動起因のフィラー配向は容易に得られる。ただし、フィルムやシートの作成時に生じる流動では、フィラー配向は面内に沿った方向としかならない。そこで本研究では、流動により炭素繊維を一方向に配向させた中間シートを作成した後に、これを二次成形することでシート垂直方向にフィラーを配向させる手法の提案を行うとともに、実際に試料の作成を試み

た。また、提案手法により得られた試料について、厚さ方向の熱伝導率をレーザーフラッシュ法により評価したので併せて報告する。

2. 試料調製および評価方法

本研究では、炭素繊維（ミルドカーボンファイバー HC-600-10 M、日本グラファイトファイバー製）を熱伝導性フィラーとし、ポリスチレン（スミブライト ST 970 K、住友化学製）を母材としたモデル複合材料を採用した。それらの物性値等を表 1 にまとめる。また、中間シートの作成方法、ならびにその二次成形の手順を以下にまとめる。

- 炭素繊維を所定の体積含有率となるよう計量した後、樹脂ペレットとドライブレンドした。
- これをスクリー式単軸押出機（スクリー径 14 mm、L/D 20、井元製作所製）に投入し、スクリー回転数 50 rpm、シリンダー温度 200℃ で可塑化/混練し、押出された試料を延伸することで線径 0.2～

Table 1 Physical properties of the materials

	carbon fiber	polystyrene
Density[kg/m ³]	2,210	1,050
Specific heat [J/(kg·K)]	710	1,500
Thermal conductivity [W/(m·K)]	600	0.15
Mean fiber length[μm]	100	—
Fiber diameter[μm]	7	—
Glass-transition temperature[℃]	—	100

* 東京工業大学 工学院機械系
Department of Mechanical Engineering, School of Engineering,
Tokyo Institute of Technology
東京都目黒区大岡山 2-12-1 (〒152-8552)
2-12-1, O-okayama, Meguro-ku, Tokyo, Japan
tsaito@mep.titech.ac.jp
2018.9.6 受理

(a) Appearance of the extruded fiber

(b) Fiber orientation observed from the upper side of the sheet

(c) Cross sectional image of the folded sample

Fig.1 Optical microscope observation of the samples

0.3 mm の繊維体を得た。その外観を光学顕微鏡 (VK-X 100, キーエンス製) により観察することで、炭素繊維が試料の長手方向に配向することを確認した (図 1(a))。

- 3) 得られた繊維体を適切な長さにカットして平行に配置し、150℃ で加熱プレスすることで、炭素繊維が一方向に配向した中間シートを得た (図 2(a))。この時、中間シートのサイズは長さ 50 mm、幅 10 mm、厚さ 0.2 mm であった。また、このシートを上面から観察した画像 (xy 面) を図 1(b) に示す。

- 4) 続いて図 2(b) に示す、表面に三角溝が刻まれた加熱プレートをを用いて 3) で得られた中間シートを蛇腹状に二次加工した。ただし、この時のプレス温度は 130℃ であり、蛇腹の筋は中間シートにおける炭素繊維の配向方向と直交する向きに与えた。

- 5) 4) で得られた蛇腹状のシートを図 2(c) に示す装置を用いて折り畳んだ上で 130℃ まで再加熱し、炭素繊維の大部分がシート厚さ方向に配向したシートを成形した (図 1(c))。

6) 以上の工程を経て最終的に得られた垂直配向シートの寸法は長さ 10 mm、幅 10 mm、厚さ 1 mm であった。なお、上述の 150℃ および 130℃ という設定温度は試行錯誤により得た本実験での適正温度であることを付記する。

(a) Fibers were hot-pressed into a sheet

(b) Giving a zig-zag shape by the hot-pressing

(c) Folding of the zig-zag sample

unit: mm

Fig.2 Schematics of shaping and folding processes for intermediate sheet

また、図 1 中に示される光学顕微鏡観察像は、炭素繊維の配向状況を見やすくするために、体積含有率 1% の試料に対して行ったものである。

3. 熱伝導率の評価

得られた試料の厚さ方向の熱伝導率を、レーザーフラッシュ法により以下の手順で評価した。すなわち、シート状試料の一方の表面に対して炭酸ガスレーザー (Firestar series v 30, SYNRAD 製) を照射し、厚さ方向への熱拡散により生じる試料裏側の表面温度変化から、試料の熱拡散率を最初に求めた。ただし、試料は表面/裏面ともに黒体塗料によりコートすることで、レーザー吸収を表面のみで生じさせるとともに、赤外線カメラ (TVS-700, 日本アビオニクス製) による温度測定精度の向上を図った。

理想的な条件において、厚さ L の試料について、加熱開始後の試料裏面の温度が最高到達温度の 1/2 に達するまでの時間を t_{half} とすると、試料の熱拡散率は次式で与えられる⁵⁾。

$$\alpha = \frac{1.38L^2}{\pi^2 t_{\text{half}}} \quad (1)$$

熱拡散率 α が求まると、材料の密度 ρ および比熱 c を使って次式より熱伝導率 κ が算出される。

$$\kappa = \rho c \alpha \quad (2)$$

ただし、複合材料の密度および比熱については、重量平均により算出した。なお実験では、炭酸ガスレーザーをビームエキスパンダーにより拡大することで、試料全面を平均 19 W/cm^2 のふく射強度で加熱した。また、その際のパルス幅は 0.1 秒であった。なお、測定時における温度上昇は $10 \sim 20 \text{ K}$ 程度であり、試料の変形や流動は認められなかった。

カーボン繊維の体積含有率が 5% 、 10% 、 15% の試料について、熱伝導率測定を行った結果を図 3 に示す。なお、図中には比較として、炭素繊維を含まない結果（体積含有率 0% ）も併せて示されている。ポリスチレン単体での熱伝導率は $0.172 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ となったが、本研究で提案する手法によりシート厚さ方向に炭素繊維を配向させることで、体積含有率 15% において $1.74 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ の熱伝導率が得られた。

また、炭素繊維の体積含有率が 15% の場合の熱伝導率について、シート面内に配向している試料（図 2(a)に相当）と、提案手法によりシート厚さ方向に配向させた試料を比較した（図 4）。提案手法により、同じ体積含有率でも面内配向に比べて熱伝導率が約 4.6 倍となる結果が示された。参考までに、Hatta-Taya モデル⁶⁾を用いて、理想的な状況（炭素繊維の体積含有率 15% 、厚さ方向に完全に配向）における熱伝導率を算出すると $2.37 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ となる。このことは、本研究で提案する手法により、期待される熱伝導率の 73% が達成されたことを意味する。

4. 結 言

本研究では、炭素繊維を含有するシート状の成形体における厚さ方向の熱伝導率を向上させるために、流動により炭素繊維を一方向に配向させた中間シートを作成し、これを二次成形した後、折り畳みにより繊維配向を厚さ方向に揃える手法の提案を行った。また、これにより得られた炭素繊維添加高分子複合材料のシート厚さ方向の熱伝導率をレーザーフラッシュ法により評価した。その結果、炭素繊維の体積含有率 15% の場合に $1.74 \text{ W/(m}\cdot\text{K)}$ の熱伝導率が得られ、面内配向に比べて約 4.6 倍の向上となることを示した。

今後は繊維を配向させるプロセスの精度向上と簡略化を検討するとともに、連続プロセスへの展開を考案していく予定である。

Fig. 3 Effect of the fiber volume fraction on the effective thermal conductivity of the sample

Fig. 4 Comparison of the effective thermal conductivity of samples having different fiber orientation states

参 考 文 献

- 1) Taipalus, R., Harmia, T., Zhang, M. Q. and Friedrich, K. : *Composites Science and Technology*, **61**, 801 (2001)
- 2) Yu, G. C., Wu, L. Z., Feng, L. J. and Yang, W. : *Composite Structure*, **149**, 213 (2016)
- 3) Soga, K., Saito, T., Kawaguchi, T. and Satoh, I. : *Journal of Thermal Science and Technology*, **12**, 16-00581 (2017)
- 4) 飛田雅之 : 日本ゴム協会誌, **76**, 364 (2003)
- 5) 阿子島めぐみ : 高温熱学会誌, **34**, 188 (2008)
- 6) Hatta, H. and Taya, M. : *Journal of Applied Physics*, **58**, 2478 (1985)