C/C 複合材料中におけるガス漏洩解析*1

The Gas Leakage Analysis in C/C Composites

西山 勇一*2・八田 博志*3・坂東 貴政*4・杉林 俊雄*5
Yuichi NISHIYAMA, Hiroshi HATTA, Takamasa BANDO and Toshio SUGIBAYASHI

Key Words: Composite Materials, Engines, Leak, C/C, Heat Exchanger

Abstract: Gas leakage through carbon fiber reinforcement carbon composites, C/Cs, was discussed so as to apply C/Cs to heat exchangers in an engine system for a future space-plane. Since C/Cs include many cracks and pores, gas easily leaks through C/Cs. To predict and to prevent the gas flow through a C/C, leakage rate was measured as a function of pressure and gas flow path was identified by micro-observation of the C/C. Then, several analytical models were examined to clarify principal mechanism yielding gas flow resistance. It was found that laminar flow models gave far small flow resistance compared with experimental results, but a model based on adiabatic expansion and compression flow, used for gas leak through labyrinth seals, resulted in reasonable agreement. Finally, Si impregnation in a C/C was examined to minimize the gas leakage. This treatment was shown to be an excellent measure to reduce the gas leakage through C/C.

1. はじめに

炭素繊維強化炭素基複合材料（以下 C/C と略記）は高比強度、高比弾性等の優れた機械的特性が高温まで持続する材料であり、また金や銅と同等かそれ以上の熱伝導率を有している。こうした材料特性に基づいて航空宇宙分野などの極限環境における C/C の使用が検討、実施されている。筆者らは C/C の優れた材料特性に注目し、現在、文部科学省宇宙科学研究所にて開発中である宇宙往還機エンジンの熱交換器部材等への C/C 適用を検討中である^{1,3)}。熱交換器等に C/C が適用できれば、エンジン重量の軽量化や熱源部の高温化が可能となり、大幅な熱効率の向上が期待できる。しかし C/C は、繊維-トリックス間の界面剥離、ポイド、積層型のものでは配向角の異なる層間の熱膨張係数の違いやマトリックスの炭化収縮によるトランスバースクラック等の欠陥を含んでおり、多孔質材料と見なされる。したがって C/C を熱交換器部材として使用する場合には、作動流体がこれらの欠陥を流路として外部に漏洩することが問題になると想定される。

複合材料内の気体透過に関しては、宇宙機用の CFRP 製液体水素タンクの開発に関連して水素ガス漏洩についての報告がある^{3,4)}。しかしながら筆者らが知る限りでは、C/C に関する研究はロケットのスラスター用ノズルへの適用化研究で若干検討されたものしかなく、漏洩の機構やそのモデル化を行ったものはないようである⁵⁾。

本研究では、上記の熱交換器への適用を念頭に、気体が C/C 内を漏洩する現象を検討した。材料としては直交積層 C/C を用い、圧力やガス種を変えてガス漏洩量を実測するとともに、C/C 内の欠陥を模擬するガス透過流路をモデル化し、漏洩するガス流量の解析を行った。更に、C/C を透過するガス漏洩量を減少させるために、C/C に Si 含浸を行い、流路となる内在欠陥を炭素と Si の反応生成物である SiC で満たす方法^{6,7)} を検討した。

2. 試験片および漏洩試験

2.1 試験片 ガス漏洩試験に用いた試験片は、積層数 49 層のアクロス社製直交積層 C/C である。この C/C は、プリフォームドヤーン法により成形されたもので、成形法の詳細は既報に譲る⁸⁾。供試 C/C は高弾性炭素繊維 Trayca M40 を強化繊維とするもので、繊維含有率は 50%、厚さは約 10 mm である。この C/C の断面拡大写真を第 1 図に示す。図示のようにこの C/C 中には、繊維に平行に走るトランスバースクラックが各繊維層を貫通している。これらのトランスバースクラックは 0 度層と 90 度層の熱膨張の差やマトリックスの炭化収縮により材料の成形段階で発生するもので、積層型の C/C では発生を抑えることは困難であるとされている。トランスバースクラックは漏洩路になりうる内在欠陥の中でも最大のものであり、かつ各繊維層ごとのトランスバースクラックは層間で結合し、C/C 板を貫通している。したがって、トランスバースクラックは C/C を通過するガスの主要な漏洩経路になると想定され、本研究ではトランスバースクラックのみを気体透過路と想定した解析を行った。第 2 図は Si 含浸を行っていない C/C の光学顕微鏡観察より得られたクラック間隔の測定結果である。図示のようにクラック間隔は平均 320 μm であった。また、

*1 © 2002 日本航空宇宙学会

平成 14 年 1 月 11 日原稿受理

*2 東京工業大学大学院総合理工学研究科精密機械システム専攻

*3 宇宙科学研究所宇宙推進研究系高温材料工学部門

*4 宇宙技術開発（株）

*5 拓殖大学工学部機械システム工学科

第 1 図 直行積層 C/C 断面観察結果

第 3 図 Si 含浸 C/C 断面観察結果

第 2 図 トランスバースクラック間隔測定結果

第 4 図 漏洩試験機概略図

クラックの平均開口幅は各層の中間付近では $27.5 \mu\text{m}$ 、層の変わり目に近づくとも $9.5 \mu\text{m}$ に減少した。試験片は C/C ブロックを切削加工して製作した。形状は直径 24 mm、厚さ 10 mm の円筒形であり、円筒の上下面と積層方向は平行とした。さらに、漏洩防止のために Si 含浸を施した直交積層 C/C を用意した。この C/C は積層数 7、板厚 3 mm のアクロス社製直交積層 C/C を用いた。Si 含浸を行った C/C 断面の光学顕微鏡による観察結果を第 3 図に示す。写真中灰色の領域が生成された SiC を示し、白い部分は未反応の Si である。トランスバースクラックは SiC によりほぼ完全に満たされている。しかし、繊維 1 本分程度の開口幅を有するトランスバースクラックが Si 含浸により新たに発生しており、完全には漏洩経路がふさがれていないことが分かる。Si 含浸 C/C のトランスバースクラック開口幅は約 $2 \mu\text{m}$ 、開口間隔は約 $2500 \mu\text{m}$ である。本研究が適用対象としている宇宙往還機に用いる熱交換器の設計上の理由により板厚 3 mm の C/C を用いた。試験片は Si 含浸していないものと Si 含浸を行ったものについてそれぞれ 3 個用意した。また、実験結果は 3 個の試験片を用いた実験結果の平均値を用いた。

2.2 漏洩試験 試験装置の概要を第 4 図に示す。試験片はサンプルホルダ内に接着して固定した。サンプルホルダは耐圧容器内に挿入され、O-リングにより密封される。図示のように実験時には、試験片の片面を高圧のガスに曝し、反対側の面は大気開放として、高圧側のガス圧力および C/C を通過して漏洩するガスの流量を測定した。接着層からの漏洩が懸念されたが、漏洩の無い金属板を試料と

第 5 図 漏洩試験結果

する予備試験を行い、本研究の漏洩量測定における精度の範囲では無視できることを確認した。用いたガスは窒素およびヘリウムである。実際の宇宙往還機用熱交換器の作動流体は水素であるが、取り扱いに危険が伴うため使用は見合わせた。また、熱交換器の使用条件は最大 30 気圧 (約 3 MPa) であり、高圧側のガス圧力を 1~5 MPa の間で変化させた際の漏洩量を計測した。実験は室温で行った。

3. 漏洩試験結果

Si 含浸を行っていない C/C を用いた漏洩試験のガス漏洩量測定結果を第 5 図に示す。本図より高圧側のガス圧力の増加に伴って漏洩量が直線的に増加することが確認できる。

第6図 ランスバースクラック流路モデル

第7図 漏洩試験結果より算出したレイノルズ数

4. 漏 洩 解 析

4.1 平行平板間および円管モデルによる解析 ガス漏洩経路はトランスバースクラックと考えられる．このことから C/C を貫通するスリット状のクラックを仮定して漏洩経路のモデル化を試みた．

第一のモデルとしてはクラックが厚さ方向に貫通していると仮定した平行平板間の粘性流れを考えた．また，実際のトランスバースクラックは，第6図に示すように繊維層ごとに直交しており，クラックの隣接部はクラック幅を延長とする四角い穴になっている．そこで，第二のモデルとしては漏洩路を C/C を貫通する四角穴とした管内の粘性流れを検討した．上記のことから，粘性の影響のみを考える限り，第一モデルは漏洩流量を過大推定し，第二モデルは過小推定すると想定された．

解析にあたり，トランスバースクラック内の流れ状態を確認するために，まずトランスバースクラック開口幅を代表長さとしてレイノルズ数を求めた．第7図に示すように，レイノルズ数は最大でも数百であり，管内流れの臨界レイノルズ数である 2000 を大きく下回っている．したがって，試験を行った圧力範囲ではトランスバースクラック内の流れは層流であると判断された．

平行平板間および円管内の流れはポアズイユ流れとして知られている．しかし本研究の実験系では，流れの方向における圧力勾配が大きく，作動流体が気体であることから圧縮性を考慮する必要がある．そこで，圧縮性の補正のために圧力 × 体積 (pv) = 一定の条件で平行平板については (1) 式，円管については (2) 式の運動方程式を解いた．

第8図 並行平板および円管モデル解析結果 (P.P.: 平行平板, C.P.: 円管)

$$U = -\frac{H^2}{12\mu} \frac{dp}{dx} \quad (1)$$

$$U = -\frac{R^2}{8\mu} \frac{dp}{dx} \quad (2)$$

得られた平行平板間モデルの平均流速の式を以下の (3) 式に，また，円管モデルの平均流速を (4) 式に，圧力分布の式を (5) 式に示す．

$$\bar{U} = \frac{H^2}{24\mu L_p} (p_i^2 - p_o^2) \quad (3)$$

$$\bar{U} = \frac{R^2}{16\mu L_p} (p_i^2 - p_o^2) \quad (4)$$

$$p = \sqrt{\frac{1}{L} (p_i^2 - p_o^2) x + p_o^2} \quad (5)$$

ここで U : 流速 [m/s], $\bar{U}$: 平均流速 [m/s], μ : 粘性率 [Pa·s], L : C/C 板厚 [m], p : 圧力 [Pa], p_i : 高圧側圧力 [Pa], p_o : 低圧側圧力 [Pa], x : 位置 [m], H : 平行平板間モデルにおける間隙 [m], R : 円管モデルにおける流路半径 [m] である．既述のように最小流れ断面は四角であった．ここでは流路の周囲長をあわせて円管モデルで近似した．

以上の式を用い，繊維層の中間付近でのトランスバースクラック開口幅および間隔より求めた出口部での流速と実験結果を比較したのが第8図である．図中，黒塗りの記号は実験値，白抜き記号は上記の簡略モデルによる推定値であり，P.P. は平行平板モデルを C.P. は円管モデルを意味している．図示のように，試験結果と解析結果は $10 \sim 10^3$ 倍程度のずれが生じていた．特に漏洩量を過小評価すると想定された円管モデルでさえ過大評価になっており，この結果は上記の粘性のみを考慮したモデルでは漏洩量を説明できないことを示すといえよう．また，上記解析結果では気体速度は音速を超えており，この面でも現実的ではないと推定された．

4.2 ラビリンスシールモデルによる解析 以上の結果から粘性以外の減速効果を示すモデルを導入することが必要なことが分かる．ここでは，第9図に示すラビリンスシールで使われているモデルを考えてみた⁹⁾．ラビリンスシールは非接触シールの一種であり，ガスの流路に多数の拡大，縮小部を設ける．このシールを通過する流体には，圧縮・膨

第 9 図 ラビリンスシール概略図

張を繰り返すことで漏洩に対する抵抗が生じ、シールからのガス漏洩は最小限に防止される。一方、C/C 内の漏洩路を考えると、トランスバースクラックが直交して結合する構造となっており、トランスバースクラックが拡大部、また、二つのクラックの結合部が縮小部に対応しており、ラビリンスシールと C/C 内の漏洩路は同様な構造であると考えられる。ラビリンスシールモデルをガス漏洩解析に用いた例としては、ピストンリングからの燃焼ガスの漏洩解析に用いた報告がある^{10, 11)}。理想的な断熱膨張と断熱圧縮を仮定すると、ラビリンスシールからの漏洩量は、次の (6) 式で推定される¹²⁾。

$$G = \alpha_i F_i P_{i-1} \times \sqrt{\frac{k_{i-1}}{k_{i-1}-1} \frac{1}{RT_{i-1}} \left\{ \left(\frac{P_i}{P_{i-1}} \right)^{\frac{2}{k_{i-1}}} - \left(\frac{P_i}{P_{i-1}} \right)^{\frac{k_{i-1}+1}{k_{i-1}}} \right\}} \quad (6)$$

ここで G : 質量流量 [kg/s], α : 流量係数, F : 隙間面積 [m^2], P : 圧力 [MPa], κ : 比熱比, R : ガス定数 [J/kg·K], T : 温度 [K], i : $1 \sim n$ (ラビリンス段数) である。質量流量は各段で共通であるから、この式はラビリンスシールの縮小, 拡大部を一組とする各段で与えられる n 個 (n 段) の連立方程式となる。なお (6) 式で、 P_i/P_{i-1} が (7) 式に示す臨界圧力比以下になった場合には (7) 式を P_i/P_{i-1} に代入するものとする。

$$\left(\frac{2}{k_{i-1}+1} \right)^{\frac{k_{i-1}}{k_{i-1}-1}} \quad (7)$$

既知の量は $\alpha, F, \kappa, R, T, P_0$ および P_n であり、 α, F, κ および T はラビリンスシール全段にわたり一定として計算した。未知数は質量流量 G および圧力 $P_1 \sim P_{n-1}$ の n 個であるので、(6) 式は原理的には解くことが可能である。しかし P_i/P_{i-1} の項にかかる指数部が実数であり、また P_i/P_{i-1} が臨界圧力比以下になることで式の形が変わるため解析的に解くことは困難である。そこで、数値計算を以下の過程で行った。まず P_1/P_0 の初期値を仮定すると G の暫定値が決まる。 G の値は i によらず一定であり、 P_0 は既知なのでニュートン法を用いて (6) 式を解くと P_1 が決まり、 G は共通であるから同様にして順次 $P_2, P_3, \dots, P_n$ が求まる。しかし、ここで求まる最終段圧力 P_n は低圧側の設定値なの

第 10 図 ラビリンスシールモデル解析結果

で既知 (大気圧) である。そこで、 P_1/P_0 の初期値を最終段圧力 P_n が低圧側の設定値になる方向に変化させ、上記の計算を繰り返した。この計算を P_1/P_0 から求めた G の値と既知の低圧側圧力を含む最終段圧力比から求めた G の値が一致するまで繰り返し計算を行い、収束値を計算値とした。

数値計算に用いた数値は以下のとおりである。隙間面積 F はトランスバースクラック結合部の面積である。したがって C/C の顕微鏡観察によって得られた層間付近のトランスバースクラック開口幅を 1 辺の長さとする矩形の面積となる。また、 F は材料内のクラック開口幅から求まる量である。したがって、材料内でのクラック開口幅の分布状態が (6) 式の計算結果に影響することが想定される。しかし、 F は (6) 式において比例定数として扱われており、クラック開口幅の平均値を用いて計算することが可能である。流量係数 α はトランスバースクラック縮小部のエッジ形状や表面の粗さ等に影響される。縮小部のエッジ形状は主に縮流に影響を与える。トランスバースクラックの開口幅は各層の中間付近で大きく、層間に向かうにつれて狭まる傾向がある。このような流路形状は縮流を強め、流量係数を小さくさせる。また、トランスバースクラック内表面は多数の凹凸が存在し、このことも流量係数を小さくする要因となる。通常、流量係数は 0.6~1.0 の値をとるが以上に述べた理由により流量係数の値として 0.6 を用いた。比熱比 κ は圧力および温度の関数であるが、その変化は微小であり窒素の場合 1.40、ヘリウムの場合 1.66 で一定値とした。

数値計算結果と試験結果を比較したのが第 10 図である。本図で、白抜き記号は計算値で黒塗り記号は実測値である。図示のように数値計算結果と試験結果はよく一致している。したがって、ラビリンスシールモデルは C/C 内の流路モデルとして有効であると考えられる。

5. Si 含浸による漏洩防止

C/C 内の主な漏洩経路はトランスバースクラックであり、何らかの方法でトランスバースクラックを埋めることで漏洩量は減少するはずである。実際に C/C 製口ケットノズルでの燃焼ガス漏洩試験では Si 含浸により漏洩量が減少したとの報告がある⁶⁾。そこで、本研究でも溶融 Si をトランスバースクラック内に含浸させ、トランスバースクラック内

第 11 図 Si 含浸 C/C 漏洩試験結果

を Si と C/C 中の炭素との反応生成物である SiC で満たす方法を検討した。Si は融点である 1687 K 以上になると容易に炭素と反応し SiC を形成する。SiC は融点が 2000 °C を遙かに越すため、含浸材料も 2000 °C 以上の耐熱性が期待できる。

Si 含浸 C/C による窒素ガスを用いた漏洩試験結果を第 11 図に示す。図中の黒丸および黒塗り三角のプロットは含浸前および Si 含浸後の漏洩量を示す。未含浸材については Si 含浸材の積層数を用いてラビンスシールモデルにより計算した値である。同図より、C/C に Si 含浸を行うことで 3 桁程度の漏洩量減少がみられ、Si 含浸が漏洩減少に極めて有効であることが分かる。熱交換器の設計上許容可能な漏洩量は約 10 m^2 の熱交換断面積で供給ガスの 3 wt% である¹⁾。この 3 wt% の漏洩量が第 11 図の破線である。したがって、漏洩量は Si 含浸により設計上の要求が満たされるまで減少したことが分かる。

6. 考 察

6.1 Si 含浸 C/C での漏洩解析 Si 含浸 C/C に生じているトランスバースクラック開口幅は微小であり、漏洩ガスに対する粘性の影響が大きくなる可能性がある。したがって、Si 含浸材についてもラビンスシールモデルによる漏洩量予測が可能かどうかを考察した。Si 含浸 C/C の漏洩はラビンスシールモデルおよび円管モデルを用いて解析した。Si 含浸 C/C のトランスバースクラック開口幅は約 $2 \mu\text{m}$ 、開口間隔は約 $2500 \mu\text{m}$ である。この条件での漏洩解析結果と実験結果を比較したのが第 12 図である。同図には比較のために Si 含浸材と積層数を等しくしたラビンスシールモデルによる未含浸材の解析結果をプロットしてある。ラビンスシールモデルと円管モデルの値は Si 含浸を行っていない C/C の解析結果ほどは実験値に対して一致していない。この原因としては、Si 含浸によりクラック開口幅が狭くなり、粘性の影響が大きくなったことが考えられる。実際、第 12 図に示すように Si 含浸材では粘性だけを考えた円管モデルの数値計算結果 (C.P. Cal (Si)) と実験結果 (Exp. (Si)) との差が含浸前のものに比べて小さくなっている。このことはクラック開口幅が狭まることで漏洩ガスに対し壁面からの粘性抵抗が強く影響したためと考えられる。したがって、トランスバースクラック開口幅

第 12 図 Si 含浸 C/C における漏洩解析結果 (C.P.: 円管)

第 13 図 Si 含浸 C/C の高温水素漏洩予測

が狭い場合の詳細な漏洩解析には、ラビンスシールモデルに平行平板や円管モデルを組み合わせた解析モデルが必要と思われる。

6.2 高温水素での漏洩予測 実際の宇宙往還機エンジンに用いられる熱交換器の作動流体は水素が予定されている。また実際の熱交換器は高温環境で使用される。したがって、水素を作動流体として、温度変化した場合の漏洩量予測が重要である。そこで、水素を漏洩ガスとして温度範囲 300~3000 K でのラビンスシールモデルを用いた Si 含浸 C/C の漏洩量予測を試みた。解析結果を第 13 図に示す。図示のように、温度が上昇するとともに漏洩量は減少する。このことは熱交換器の設計上有利であると考えられる。この結果はトランスバースクラックの開口幅は変化しないとして得られたものであるが、実際には C/C のトランスバースクラック開口幅は温度の上昇と共に狭くなる⁷⁾ ことから、漏洩量は高温ではさらに減少すると考えられる。

7. 結 論

本研究では熱交換器への C/C 適用のための基礎研究として直交積層 C/C のガス漏洩の問題を検討した結果、以下の結論を得た。

- ・トランスバースクラックが主要な漏洩路となる直交積層 C/C の漏洩量はラビンスシールモデルを用いた解析により予測可能であると考えられる。
- ・ガス漏洩の観点から見れば熱交換器への C/C 適用は C/C に Si 含浸を行えば十分可能であると思われる。

参 考 文 献

- 1) Sato, T., Tanatsugu, N., Hatta, H., Goto, K., Kobayashi, H., Omi, J., and Tomike, J.: Development Study of the ATREX Engine for TSTO Spaceplane, 10th International Space Planes and Hypersonic Systems and Tech. Conf. 2001, AIAA Paper 2001-1839, 2001.
- 2) Hatta, H., Goto, K., Kogo, Y., and Ichikawa, M.: Heat Exchangers for Air-Turbo-Ram-Jet Engine, Proceedings of High Temperature Ceramic Matrix Composites 4, Krenkel, W., Naslain, R., and Schneider, H., eds., 2001, pp. 797-801.
- 3) Morino, Y., Ishikawa, T., Aoki, T., Kumazawa, H., and Hayashi, Y.: CFRP Material Characterization Testing for the RLV Cryogenic Propellant Tank, AIAA Paper 99-1297, 1999.
- 4) Aoki, T., Ishikawa, T., Kumazawa, H., and Morino, Y.: Mechanical Performance of CF/Polymer Composite Laminates under Cryogenic Conditions, AIAA Paper 2000-1605, 2000.
- 5) 只野 真, 佐藤政裕, 黒田行郎, 日下和夫, 植田修一, 末光 毅, 長谷川聡, 久手幸徳: C/C 複合材のロケット燃焼器への適用 (その 1) C/C 複合材のロケット燃焼ガス加熱評価試験, NAL TR-1264, 1995.
- 6) 佐藤政裕, 只野 真, 植田修一, 黒田行郎, 日下和夫, 末光 毅, 長谷川聡, 久手幸徳: C/C 複合材のロケット燃焼器への適用 (その 2) ロケット燃焼器の試作および評価試験, NAL TR-1268, 1995.
- 7) 八田博志, 須藤恵美, 向後保雄, 塩田一路: Si 含浸法によって作製された SiC 被覆 C/C 複合材料の耐酸化特性及び機械的特性, 日本金属学会誌, **62** (1998), pp. 861-867.
- 8) 超高温材料研究所: 平成 5 年度調査報告書, 超耐熱複合材料の超高温下における耐久性, NEDO-ITK-9309, 1993.
- 9) 小茂鳥和夫: 非接触シール論, コロナ社, 東京, 1973.
- 10) 古浜庄一, 多田寿雄: ピストンリングを漏れるガスの流れ, 第 1 報, 漏れガスの流量係数と温度, 日本機械学会論文集, **27** (1961), pp. 240-247.
- 11) 古浜庄一, 多田寿雄: ピストンリングを漏れるガスの流れ, 第 2 報, 漏れの特性, 日本機械学会論文集, **27** (1961), pp. 247-255.
- 12) 小茂鳥和夫: ラビリンスパッキンよりの空気の流出について (直通形の場合) 第 1 報, 日本機械学会論文集, **21** (1955), pp. 377-382.