研究論文

電気インピーダンス変化による CFRP の吸湿モニタリング

島村 佳伸^{*1}, 占部 貴之^{*2}, 轟 章^{*3}, 小林 英男^{**4}

(2003 年 8 月 6 日受付)

Electrical Impedance Change Method for Moisture Absorption Monitoring of CFRP

Yoshinobu SHIMAMURA,^{*1} Takashi URABE,^{*2} Akira TODOROKI^{*3} and Hideo KOBAYASHI^{**4}

(Received August 6, 2003)

Health monitoring techniques for CFRP composite structures have been developed to assure the structural integrity. Electric impedance method is cost-effective and easy to apply for various structures. In order to apply the method to actual environment, the influence of moisture absorption on the electric impedance change of CFRP can not be neglected. In this paper, the influence of moisture absorption is investigated experimentally. The electric impedances both in the fiber direction and transverse direction are measured during moisture absorption. For both directions, it is found the electric impedance increases with moisture absorption. Furthermore, a monitoring method of moisture absorption rate near surface is proposed and experimentally investigated. As a result, it is shown that the change of the electric impedance follows the change of moisture absorption ratio near the surface.

1. 緒 言

CFRP 大型構造の構造健全性を保証するために、その損傷検知を目的とした構造ヘルスマニタリング手法の開発が実施されており、光ファイバーを用いた研究^{1~4)}、FRP の振動特性^{5~8)}、電気的特性^{9~15)}、AE¹⁶⁾ を利用した手法などが提案されている。

中でも、CFRP 構造を対象とした電気抵抗または電気インピーダンスに基づく損傷検知手法は、CFRP 内の炭素繊維自体をセンサとするため、光ファイバーなどの異物を埋め込むことによる強度低下や成型法などの問題が生じない上に安価であり、かつ実際には構造表面に電極を取り付けるだけで適用可能であるため既存構造にも容易に適用可能であるという利点を有する。

従来、CFRP の電気抵抗や電気インピーダンスの変化に基づく手法（以下では総称して電気インピーダンス

法と呼ぶこととする）により繊維破断^{9~12)}、層間はく離^{13,14)}、マトリックス割れ¹⁵⁾などの損傷検知やひずみの測定¹⁷⁾や硬化度¹⁸⁾、ポストキュアモニタリング¹⁹⁾が実施されている。

Banks et al.²⁰⁾は CFRP の高周波領域（300 kHz~3 GHz）において吸湿に伴い誘電率が増加することを明らかにしている。このため、電気インピーダンス法の実機への適用には、吸湿が CFRP の電気インピーダンスに及ぼす影響について検討する必要がある。実機環境を考慮すると、このような高周波領域での誘電率などの電気的特性を正確に測定することは困難であり、またひずみや損傷モニタリングなどでは直流や低周波数領域での測定が行われている。しかし、低周波数領域での CFRP の電気インピーダンスに吸湿が及ぼす影響の検討はなされていない。

そこで本研究では、まず初めに CFRP の電気インピーダンスへ吸湿が及ぼす影響を実験的に検討した。ウォーターバスを用いて吸水試験を実施して吸湿に伴う電気インピーダンスの変化を測定するとともに、そのメカニズムについての検討を実施した。

CFRP は吸湿によって圧縮強度などの力学的性質が低下することが知られており、航空宇宙機器の CFRP 構造においても吸湿の及ぼす影響は無視できない²¹⁾。吸湿

^{*1,*3,*4} 東京工業大学大学院理工学研究科 (152-8552 東京都目黒区大岡山 2-12-1)

Tokyo Institute of Technology

^{*1} 助手 Research Associate, ^{*3} 助教授 Associate Professor, ^{**4} 教授 Professor

^{*2} 東京工業大学大学院

Graduate Student, Tokyo Institute of Technology

に伴う電気インピーダンス変化を利用すると CFRP の吸湿率モニタリングが可能である。そこで本研究では、実機への適用を考慮して、電極を表面に取り付けて CFRP 構造表面の吸湿率をモニタリングする手法を提案し、その可能性の基礎的検討を実施した。

2. 吸湿率の測定

2.1 試験片と実験方法

吸湿試験は JIS7209 に準拠してウォーターバスにて加速試験を実施した。試験片は正方形平板である。CF/Epoxy プリブレグ (東邦テナックス ベスファイト Q-1112) であり、一方向に 15 層積層後、ホットプレスで 130°C で 1.5 h キュアして作製した平板を、50×50×3.3 [mm] に切り出して作製した。試験片は小型恒温チャン

バーを用い 50°C で 24 h 保持して十分に乾燥した後、ウォーターバスを用いて 50°C 純水中に浸し、定期的に取り出して精密電子天秤にて試験片重量を測定した。また、2 軸ゲージを試験片両面に貼り付け、吸湿に伴う繊維方向及び繊維直交方向のひずみを測定した。吸湿率 M [%] は次式で計算できる。

$$M = (W_2 - W_1) / W_1 \times 100 \quad (1)$$

ここで W_1 は吸湿前の試験片質量、 W_2 は吸湿後の試験片質量である。

2.2 吸湿理論

CFRP の吸湿は Fick の拡散法則に従うことが従来から知られている。吸湿に関して直交異方性がある場合の吸湿量 m と時間 t の関係は次式のように表せる²⁾。

$$m = \frac{4m_{\infty}}{\sqrt{\pi}} \sqrt{t} \left(\frac{1}{L} \sqrt{D_L} + \frac{1}{W} \sqrt{D_W} + \frac{1}{t} \sqrt{D_t} \right) \quad (2)$$

ここで、 m_{∞} は飽和吸湿量であり、 D_i は i 方向の拡散係数である。ただし、Eq. (2) の適用範囲は飽和による吸湿の緩和が生じる前までである。Eq. (2) より、飽和による吸湿緩和が生じ始めるまでは、吸湿量は時間の平方根に比例して増えることがわかる。

2.3 実験結果と考察

吸湿率の変化を Fig. 1 に示す。縦軸は吸湿率、横軸は時間である。ただし、Fig. 1(b) では、横軸は時間の平方根で整理してある。吸湿は 120 日実施した。吸湿率 1.0% 程度 (約 55 日) まで時間の平方根に比例しており、Eq. (2) の理論式の関係と良く一致していることがわかる。

次に吸湿に伴う繊維方向ひずみおよび繊維直交方向ひずみを Fig. 2 に示す。縦軸はひずみ、横軸は吸湿率である。

(a)

(b)

Fig. 1 Water absorption ratio.

Fig. 2 Strain due to water absorption.

Fig. 3 Specimen configuration for electric impedance measurement.

る。吸湿率 0.7% のときにひずみゲージがはく離したため、ひずみ測定はそこで中止した。繊維方向ひずみの変化は極めて微小であり無視できるのに対し、繊維直交方向ひずみは吸湿に伴い大きく増加していく。繊維である炭素繊維はほとんど吸湿しないが、マトリックスであるエポキシは吸湿して膨潤する。加えて、マトリックスに比較して繊維の弾性係数は極めて大きいので、結果として繊維方向には伸張せずに、繊維直交方向だけにひずみが生じることとなる。ただし、吸湿の最初期には試験片内のボイドに水分が浸入して吸湿が体積増加に寄与しないため、繊維直交方向もひずみ変化は小さい。

3. 吸湿に伴う電気インピーダンス変化

3.1 実験方法と試験片

吸湿に伴う電気インピーダンス変化を 4 電極法で測定した (Fig. 3 参照)。通電方向は繊維方向と繊維直交方向の 2 通りとし、ウォーターバスにて 2 日間吸水させた。試験片成形方法および吸湿試験方法は前節と同様である。ただし、試験片は短冊形 (長さ 80 × 幅 12 × 板厚 3.3 [mm]) とし、Fig. 3 に示す電極位置を紙ヤスリで研磨した後に銀ペーストを塗布して電極を作製した。加えて、電極作製後にひずみゲージ用コーティング剤 (東京測器 N-1) でコーティングをして吸湿中の電極のはく離を防止した。電気インピーダンスと位相角の測定には LCR メータ (日置電機 3532-50) を用いた。また、電極を取り付けない試験片も作製し、吸湿量の変化を前節と同じ方法で測定した。これは試験片形状が前節と異なるためである。

3.2 周波数特性

吸湿前の試験片の周波数特性を Fig. 4 に示す。Fig. 4(a) は繊維方向通電時のインピーダンスと位相角であり、Fig. 4(b) は繊維直交方向通電時のインピーダンスと位相角である。繊維方向に通電した場合には 10^4 Hz 程度まで、繊維直交方向に通電した場合には少なくとも 10^5 Hz までは位相角はほぼ 0 であり、いずれの方向に通

(a) Longitudinal specimen

(b) Transverse specimen

Fig. 4 Frequency response of electric impedance and phase angle.

電した場合でも、その周波数までは試験片は純粋な抵抗とみなせることがわかる。

繊維方向が抵抗と見なせるのは当然の結果であるが、実際の積層板内では炭素繊維同士の接触があるため (Fig. 5(a) 参照)、繊維一本一本をそれぞれ抵抗と見なした純粋な並列回路になるのではなく、実際にはところどころの繊維間接触により Fig. 5(a) に示すようなネットワーク回路を構成していると考えられる。繊維直交方向については一般には RC 回路モデルが用いられているが、前述の通り積層板内の炭素繊維同士の接触があり繊維間で通電するため (Fig. 5(b) 参照)、少なくとも 10^5

Fig. 5 Model of electric conductivity.

Hz まではキャパシタンス成分は生じていない。

3.3 繊維方向通電時の電気インピーダンス変化

前節の実験から、周波数 1 kHz におけるインピーダンスで安定した測定が可能であったため、以下では 1 kHz での測定結果を示す。

まず、繊維方向に通電したときの、吸湿に伴う電気インピーダンスの変化を Fig. 6(a) に示す。縦軸は電気インピーダンス変化率であり、横軸は吸湿率である。吸湿に伴い電気インピーダンスは増加したが、位相角についてはほとんど変化が生じなかった。吸湿率 0.1% でインピーダンスの変化率は約 5% であり極めて大きく、繊維方向の電気インピーダンスは吸湿に極めて敏感であることがわかる。

吸湿に伴い電気インピーダンスが増加する理由は、膨潤により繊維間の接触抵抗が増加して Fig. 5(a) のネットワーク回路が純粋な並列回路に近づくとともに、ネットワークに寄与しない繊維が生じ全体のインピーダンスが増加するためと、炭素繊維と樹脂との相互インダクタンスが吸湿に伴い増加するためだと推察されるが、それらの影響の定量的な検討は今後の課題である。

また、CFRP 一方向積層板の繊維方向引張りひずみによる電気抵抗変化のオーダーは $10^{-3} \sim 10^{-2}$ であることから¹⁷⁾、吸湿に伴う繊維の電気インピーダンスの変化は膨潤ひずみと同程度の引張りひずみによるものと比較して十分大きいといえる。

3.4 繊維直交方向通電時の電気インピーダンス変化

次に、繊維直交方向に通電したときの、吸湿に伴う電気インピーダンスの変化を Fig. 6(b) に示す。縦軸は電気インピーダンス変化率であり、横軸は吸湿率である。繊維方向通電時と同様に、吸湿に伴い電気インピーダン

(a) Longitudinal specimen

(b) Transverse specimen

Fig. 6 Impedance change ratio.

スが増加したが、位相角についてはほとんど変化しなかった。また、吸湿率 0.1% のときのインピーダンスの変化率は約 0.4% であり、繊維方向と比較するとその変化は桁小さい。吸湿に伴い電気インピーダンスが増加する理由は、膨潤により繊維間の距離が離れるために繊維間の接触抵抗が増加することが主原因だと考えられる。

CFRP 一方向積層板の繊維直交方向引張りひずみによる電気抵抗変化のオーダーも $10^{-3} \sim 10^{-2}$ であり¹⁷⁾、吸湿に伴う繊維直交方向の電気インピーダンスの変化は膨潤ひずみと同程度の引張りひずみによるものとほぼ同程度である。

以上より、CFRP の成形後試験片の電気的特性は通電方向にかかわらずほぼ抵抗と見なすことができ、その電気インピーダンスは吸湿に伴い増加するが、位相角には変化が見られなかった。インピーダンスの変化量は繊維

Fig. 7 Specimen configuration for water absorption monitoring.

方向については、膨潤ひずみと同程度の引張ひずみによるものと比較して十分大きい、繊維直交方向については同程度であることを実験的に明らかにした。

4. モニタリングへの応用

4.1 複合材料構造の吸湿モニタリング

前節までの結果により、CFRP の電気インピーダンスが吸湿に伴い増加することを明らかにした。長繊維強化 CFRP は繊維方向の導電率がその他の方向に比べて $10^2 \sim 10^3$ のオーダーで大きいため、積層構造の表面層に繊維方向に通電すれば、電極近傍に層間はく離など損傷が生じた場合を除き¹³⁻¹⁵⁾、表面層より内部の層の影響をほとんど受けずにすむ。そこで、本研究では積層板の表面に電極を取り付けて繊維方向に通電させる場合について、単調吸湿および繰り返し吸湿・乾燥を実施して、吸湿のモニタリングが可能かどうかを実験的に検討した。

4.2 実験方法と試験片

2 節で実施した吸湿試験と同じ正方形試験片の表面に電極を取り付け、吸湿に伴う電気インピーダンス変化を 4 電極法で測定した (Fig. 7 参照)。試験片成形方法および吸湿試験方法は前節と同様であるが、電極は積層板作製時に銅箔を同時成形して取り付けている。成形後、ひずみゲージ用コーティング剤 (東京測器 N-1) で電極表面をコーティングして吸湿中の電極のはく離を防止した。電気インピーダンスと位相角の測定には LCR メータ (日置電機 3532-50) を用いた。吸湿後の乾燥は、小型恒温チャンバーでウォータースバスと同じ 50°C で乾燥させた。

4.3 電流密度分布

表面に電極を貼り付けることで、電流がどの深さまで侵入するかを確認するために、試験片に直流電流 (3

(a) Contour of current density

(b) Current density on A-A' section

Fig. 8 Current density distribution.

mA) を加えたときの試験片内の電流密度分布を汎用有限要素法 ANSYS で解析した結果を Fig. 8 に示す。実際には交流を加えているが、解析の簡単のため電極は点電極とし直流の場合の結果を示す。CFRP の導電率は文献値¹³⁾を用いた。Fig. 8(a) は上面に電極を取り付けた場合の断面での電流密度分布である。Fig. 8(b) は試験片中央での板厚方向 (Fig. 8(a) 中の A-A' 断面) に関する電流密度であり、縦軸が板厚方向座標、横軸が電流密度である。CFRP では電氣的異方性が著しいため、直流の場合でもほとんどの電流は電極側表面近傍を流れていることがわかる。交流の場合には表皮効果により、さらに表面近傍を流れると推測される。よって、表面に電極を貼り付ける本手法により、CFRP 積層板の表面近傍の吸湿率をモニタリングできると期待できる。

4.4 単調吸湿時の電気インピーダンス変化

吸湿に伴う電気インピーダンスの変化を Fig. 9 に示す。吸湿時間は 120 日である。縦軸は電気インピーダンス変化率であり、横軸は試験片の平均吸湿率である。短冊形試験片と同様に、吸湿に伴い電気インピーダンスが増加しており、飽和による吸湿緩和以前では、吸湿率と電気インピーダンスの関係はほぼ線形であることがわ

Fig. 9 Impedance change ratio for long term water absorption.

かる。ただし、吸湿緩和が生じ始める吸湿率1%以降では、電気インピーダンスの急増が観察された。高吸湿時には繊維/マトリックス界面のはく離が進行し始めるため^{23,24)}、繊維間の接触抵抗が急激に増加するためだと考えられる。

また、吸湿率と電気インピーダンス変化の関係は短冊形試験片（繊維方向）の結果の約1/2である。表面に電極を貼り付ける本手法でえられる電気インピーダンスは繊維直交方向に加えて繊維直交方向（板厚方向）の影響を含んでおり、繊維直交方向の吸湿に伴う電気インピーダンス変化は繊維方向に比較して一桁小さいため、結果として短冊形試験片（繊維方向）の結果よりも小さくなっていると考えられるが、それでも電気インピーダンスの変化量は吸湿率0.1%で2%程度であり、膨潤ひずみと同程度の引張ひずみによる変化に比較して十分大きい。

4.5 吸湿・乾燥繰り返し時の電気インピーダンス変化

まず飽和吸湿率の約1/10にあたる0.15%程度まで吸湿・乾燥を繰り返した場合の電気インピーダンスの変化をFig. 10(a)に示す。本実験では、吸湿2日・乾燥2日を2サイクルで計8日間測定を実施した。縦軸は電気インピーダンス変化率であり、横軸は試験片の平均吸湿率である。電気インピーダンス変化には若干のヒステリシスが見うけられ、吸湿時には上に凸に、乾燥時には下に凸の曲線が得られた。ヒステリシスの理由は次のようであると考えられる。表面近傍の吸湿率は、吸湿時には平均吸湿量よりも高く、乾燥時には低くなる。そのため、本試験片のように表面に電極を取り付けている場合、平均吸湿率に対して電気インピーダンスは吸湿時には高めに、乾燥時には低めに測定されるためであり、本手法が表面近傍の吸湿に伴う電気インピーダンス変化を測定し

(a) 2 days

(b) 30 days

Fig. 10 Impedance change ratio for absorption and desorption.

ていることを裏付けている。

次に飽和吸湿率の約40%にあたる0.6%程度まで吸湿・乾燥を繰り返した場合の電気インピーダンスの変化をFig. 10(b)に示す。本実験では、吸湿30日・乾燥10日で計40日間測定を実施した。縦軸は電気インピーダンス変化率であり、横軸は吸湿率である。低吸湿率の場合に比較して大きなヒステリシスが観察されたが、この理由も上述の通りであると考えられる。

以上より、表面取り付け電極による吸湿率モニタリングについて検討した結果、吸湿に伴う電気インピーダンスの変化が測定可能であることを明らかにした。また吸湿・乾燥の結果から、本手法が表面近傍の吸湿率をモニタリングしていることを実験的に明らかにした。

5. 結 言

本研究では、CFRP の電気インピーダンスに吸湿が及ぼす影響を検討するために、ウォータースバスを用いて加速試験を実施し、吸湿に伴う電気インピーダンスの変化を実測した。その結果、CFRP の電気的特性は通電方向にかかわらずほぼ抵抗と見なすことができ、その電気インピーダンスは吸湿に伴い増加すること、また繊維方向についてはその変化量が膨潤ひずみと同程度の引張ひずみによるものと比べて十分大きいことを実験的に明らかにした。

次に、表面取り付け電極による吸湿率モニタリングについて検討した結果、吸湿・乾燥に伴う電気インピーダンス変化から表面近傍の吸湿率の測定が可能であることを実験的に明らかにした。

参 考 文 献

- 1) K. Osaka, T. Kosaka, Y. Kawasaki & T. Fukuda : *Adv. Composite Mater.*, **10**, 2-3 (2001), 169-176.
- 2) Y. Okabe, N. Takeda & S. Takeda : *Composites Part A*, **33**, 7 (2002), 971-980.
- 3) H. Murayama, K. Kageyama, H. Naruse, A. Shimada & K. Uzawa : *J. Intell. Mater. Syst. Struct.*, **14**, 1 (2003), 3-13.
- 4) 影山和郎：非破壊検査, **52**, 4 (2003), 174-177.
- 5) O. Byon & Y. Aoki : *J. Thermoplast. Compos. Mater.*, **15**, 2 (2002), 115-126.
- 6) 小野崎徹, 関根英樹：日本航空宇宙学会論文集, **50**, 586 (2002), 444-450.
- 7) 稲田貴臣, 島村佳伸, 轟 章, 小林英男：機論, **69**, 678A (2003), 231-238.
- 8) N. Toyama, T. Okabe & N. Takeda : *J. Mat. Sci.*, **38**, 8 (2003), 1765-1771.
- 9) 本山泰之, 志賀浩介, 守谷一政, 太田俊昭：日本複合材料学会誌, **28**, 5 (2002), 196-203.
- 10) K. Schulte : 日本複合材料学会誌, **19**, 2 (2003), 48-57.
- 11) Z. Xia, T. Okabe, J.B. Park, W.A. Curtin & N. Takeda : *Comp. Sci. Tech.*, **63**, 10 (2003), 1411-1422.
- 12) N. Muto, Y. Arai, S.G. Shin, H. Matsubara, H. Yanagida, M. Sugita & T. Nakatsuji : *Comp. Sci. Tech.*, **61** (2001), 875-883.
- 13) 轟 章, 田中美帆, 島村佳伸, 小林英男：日本複合材料学会誌, **29**, 3 (2003), 113-119.
- 14) A. Todoroki, M. Tanaka & Y. Shimamura : *Comp. Sci. Tech.*, **62**, 5 (2002), 619-628.
- 15) 轟 章, 小曲一臣, 島村佳伸, 小林英男：2003 年度日本複合材料学会研究発表講演予稿集 (2003), pp. 47-48.
- 16) 水谷義弘, 府川典史, 二木 崇, 西野秀郎, 竹本幹男：非破壊検査, **50** (2001), 314-320.
- 17) A. Todoroki & J. Yoshida : *JSME Int. J., Ser. A*, **47**, 3 (2004), 357-364.
- 18) 稲田貴臣, 轟 章：材料, **52**, 8 (2003), 922-926.
- 19) 黄木景二, 高雄善裕：日本複合材料学会誌, **28**, 6 (2002), 228-234.
- 20) W.M. Banks, F. Dumolin, S.T. Halliday, D. Hayward, Z.C. Li & R.A. Pethrick : *Comp. Struct.*, **76** (2000), 43-55.
- 21) H.S. Choi, K.J. Ahn, J.D. Nam & H.J. Chun : *Composites Part A*, **32** (2001), 709-720.
- 22) F. Pierron, Y. Poirrette & A. Vautrin : *J. Comp. Mat.*, **36**, 19 (2002), 2219-2243.
- 23) 駒井謙治郎, 箕島弘二, 渋谷豊茂：機論, **56**, 525A (1990), 1021-1029.
- 24) 本庄孝子, 中西洋一郎：材料, **40**, 451 (1991), 464-469.