研究論文

一方向強化 CFRP のピエゾ抵抗特性に及ぼす
温度効果の実験的解明

井上 宏樹*, 黄木 景二*, 白石 哲郎*

(2006 年 5 月 11 日受付)

Experimental Study of the Temperature Effect on the Piezoresistance
Characteristic of Unidirectional CFRP Laminates

Hiroki INOUE,* Keiji OGI* and Tetsuro SHIRAISHI*

(Received May 11, 2006)

This paper describes effect of temperature on the resistance and piezoresistance behavior in a carbon fiber reinforced plastics (CFRP) unidirectional (UD) laminate under tensile loading. Resistance change of on- and off-axis specimens was examined during tensile loading at various temperatures. It was observed that the initial gage factor (IGF) shows temperature dependence for all the off-axis angles with the maximum at the angle of 12 degrees for all temperatures. Temperature dependence of IGF was mainly attributed to temperature-dependent piezoresistivity and compliance. The resistivity decreased with increasing temperature for all the off-axis angles. This negative temperature coefficient of the UD laminate is ascribed to the temperature dependence of resistance of carbon fiber and the contact resistance between fibers.

1. 緒 言

炭素繊維強化プラスチック (carbon fiber reinforced plastic; CFRP) は高弾性率, 高強度, 高耐食性を有し, 軽量構造部材として航空機やスポーツ, 建築物, 産業機器, 自動車等の幅広い分野で活用されている。CFRP の機械的特性以外の注目すべき性質として導電性があり, 近年, 損傷の発生や進展による抵抗変化, 電気ポテンシャル変化を利用した構造健全性診断 (ヘルスマニタリング) 技術が研究されている。電氣的ヘルスマニタリング手法の利点は, 材料の力学的特性を損なうことなくセンシングできる点であり, 今後, 本手法の確立が望まれる。

CFRP の電気抵抗の変化は, 機械的負荷による変形や損傷, 温度負荷およびそれらの履歴や繰返しによって生じる。特に機械的ひずみに対する電気抵抗の変化すなわちピエゾ抵抗特性に関する研究報告例はこれまでに

いくつかなされている^{1~10)}。Xiao ら¹⁾は複合材料積層板のピエゾ抵抗に関する積層理論を構築している。筆者ら^{2,11)}は一方向強化 CFRP の二次元ピエゾ抵抗モデルを提案し, ゲージ率の繊維配向角依存性を説明している。

ところで, 複合材料の構造ヘルスマニタリングにおいては機械的ひずみだけでなく温度変化をモニタすることも要求される場合がある。これまでに光ファイバーセンサーを用いた複合材料のひずみと温度検出に関する研究^{12,13)}はなされているが, CFRP の電気抵抗の温度効果に関する系統的な実験データは見られず, 理論的な検討もいまだ不十分である。

そこで本研究では, CFRP 一方向積層板に対して電気抵抗およびピエゾ抵抗の温度依存性を実験的に解明することを目的とする。様々な繊維配向角を持つ CFRP 一方向積層試験片について, 室温から 110°C までの雰囲気温度下で引張試験を行い, 負荷前の初期抵抗および負荷除荷 1 サイクル中の電気抵抗変化とひずみを計測した。得られたデータから, 温度係数 (温度変化に対する抵抗変化率) と各温度におけるゲージ率 (機械的ひずみに対する抵抗変化率) を計算し, 電気抵抗とピエゾ抵抗の温度依存性を議論した。

* 愛媛大学大学院理工学研究科 (790-8577 松山市文京町 3 番)
Graduate School of Science and Engineering,
Ehime University, Matsuyama 790-8577, Japan

2. ピエゾ抵抗モデル

本節では文献 2, 11) に述べられているピエゾ抵抗モデルについて要約する。CFRP 一方向板を薄い直交異方性板とみなし、平面応力状態を仮定する。この際、板厚方向の電流は面内の電流に比べて小さいため、電気伝導も 2 次元であると仮定する。CFRP 一方向板は微視的には繊維自身の抵抗と繊維間の接触抵抗からなる抵抗回路網を形成していると考えられるが、巨視的には異方性抵抗体とみなすことができる。短冊形試験片において、 i, j 方向の表面抵抗 R_{ij} は次式で与えられる：

$$R_{ij} = \beta_{ij} \frac{L_i}{W_j} \quad (1)$$

ここで、 $i, j=1, 2$ はそれぞれ繊維に対して平行な方向、直交する方向を表し、 β_{ij} , W_i , L_i はそれぞれ i, j 方向の表面抵抗係数、幅、長さを表す。材料主軸に関する表面抵抗係数増分 $\Delta\beta_{ii}$ と機械的ひずみ ϵ_{ii}^M の関係式は次式のように与えられる：

$$\begin{bmatrix} \Delta\beta_{11} \\ \Delta\beta_{22} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} c_{11} & c_{12} \\ c_{21} & c_{22} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \epsilon_{11}^M \\ \epsilon_{22}^M \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} d_{11} \\ d_{22} \end{bmatrix} \Delta T \quad (2)$$

ここで c_{ij} , d_{ij} はそれぞれピエゾ抵抗係数、表面抵抗係数の温度係数で、 ΔT は基準とする温度からの温度変化である。

次に、単軸負荷を受ける非主軸試験片の表面抵抗変化率 $\Delta\bar{R}_{11}/\bar{R}_{11}^0$ とゲージ率 $\bar{K}_{11}^M$ 、温度係数 $\bar{K}_{11}^T$ は次式のように与えられる：

$$\frac{\Delta\bar{R}_{11}}{\bar{R}_{11}^0} = \bar{K}_{11}^M \bar{\epsilon}_{11}^M + \bar{K}_{11}^T \Delta T \quad (3)$$

$$\bar{K}_{11}^M = \frac{\bar{c}_{11} + \bar{c}_{12} \bar{S}_{12} / \bar{S}_{11} + \bar{c}_{16} \bar{S}_{16} / 2 \bar{S}_{11} + 1 - \bar{S}_{12}}{\bar{\beta}_{11}^0} \quad (4)$$

$$\bar{K}_{11}^T = \frac{\bar{d}_{11}}{\bar{\beta}_{11}^0} + (\bar{\alpha}_{11} - \bar{\alpha}_{22}) \quad (5)$$

ここで変数のハットはすべて非主軸座標系に関する量を表し、 $\bar{R}_{11}^0$ は非主軸試験片の初期表面抵抗、 $\Delta\bar{R}_{11}$ は基準温度からの温度変化 ΔT と機械的ひずみ $\bar{\epsilon}_{11}^M$ の両方に起因する抵抗変化量、 $\bar{S}_{ij}$, $\bar{\alpha}_{ii}$ はそれぞれコンプライアンス、熱膨張率である。また、 $\bar{\beta}_{11}^0$ は初期表面抵抗係数であり、非主軸角 θ の関数として次の近似式を適用する：

$$\frac{1}{\bar{\beta}_{11}^0} = \frac{m^2}{\beta_{11}^0} + \frac{n^2}{\beta_{22}^0} - k(\theta) \frac{(1/\beta_{11}^0 - 1/\beta_{22}^0)}{n^2/\beta_{11}^0 + m^2/\beta_{22}^0} m^2 n^2 \quad (6)$$

$$k(\theta) = 1 - \exp(-a \tan^b \theta) \quad (7)$$

ここで $m = \cos \theta$, $n = \sin \theta$ であり、 a , b は実験的に決定されるパラメーターである。

3. 実験方法

Fig. 1 に負荷除荷試験に用いた 120°C 硬化型 CFRP 一方向板試験片 (T700S/#2500, Toray) $[0^\circ_s]$ の形状および寸法を示す。CFRP 一方向積層板から、繊維配向角を 0 度、10 度、20 度、30 度、45 度、60 度、90 度とする短冊状試験片を切り出した。図のように電極部分を研磨した後、電極が試験片を一周するように上下面と両端面に耐熱性のある導電性接着剤 (ドータイト XA910, 藤倉化成) を塗布することによって四端子電極を形成し、CFRP 表面中央にひずみゲージを接着した。

Fig. 2 に抵抗とひずみの測定システムを示す。直流電源 (ADVANTEST, R6144) にて電流一定で試験片に通電し、恒温槽付き油圧式疲労試験機を用いて雰囲気温度 25°C, 55°C, 90°C, 110°C の下で引張試験を行った。ひずみが 0.2% に達するまで引張負荷を加えた後、完全に除荷することにより、1 サイクルの負荷除荷サイクルを与え、その間の電気抵抗変化とひずみを測定した。この際の荷重速度は、0 度、10 度試験片に対して、それぞれ 19.6 N/s, 9.8 N/s, 20 度、30 度、45 度、60 度、90 度試験片に対して 4.9 N/s とした。また、抵抗の小さい、すなわち θ の小さい試験片の電圧変化の測定精度向上のため、印加電流は 0 度、10 度、20 度試験片に対して 150 mA, 30 度、45 度試験片に対してそれぞれ 80 mA, 70 mA, 60 度、90 度試験片に対して 20 mA とした。なお、この際のジュール発熱による温度上昇は 2°C 程度と推算され無視できる。

Fig. 1 Size and geometry of a specimen for measuring electric resistance at various off-axis angles.

Fig. 2 Experimental setup for measurement of strain and electric resistance at various off-axis angles.

4. 実験結果と考察

以下、 25°C を基準温度 T_0 として温度変化 $\Delta T = T - T_0$ を計算する。Fig. 3 (a) に機械的ひずみ $\varepsilon_{11}^M = 0$ 、温度 $T = T_0$ における表面抵抗係数 $\bar{\rho}_{11}^0$ -非主軸角 θ 線図を示す。 θ の増大に伴い、 $\bar{\rho}_{11}^0$ は急激に増大している ((6) 式参照)。次に、Fig. 3 (b) に $\varepsilon_{11}^M = 0$ における表面抵抗変化率 $\Delta \bar{R}_{11} / \bar{R}_{11}^0$ -非主軸角 θ 線図を各雰囲気温度 T について示す。表面抵抗は $\theta = 10$ 度で最も変化率が大きく、 -20% 程度である。

Fig. 4 (a) に $\varepsilon_{11}^M = 0$ における表面抵抗変化率 $\Delta \bar{R}_{11} / \bar{R}_{11}^0$ -雰囲気温度 T 線図を各非主軸角 θ について示す。いずれの θ についても、温度上昇に伴い電気抵抗はほぼ線形的に低下する。(5) 式の温度係数とは温度変化に対する抵抗変化率であり、Fig. 4 (a) のグラフの傾きである。従って、後で示す温度係数 (Fig. 4 (a)) は抵抗変化率 (Fig. 3 (b)) を単位温度当りに換算したものである。ここで CFRP 一方向積層板の抵抗に関する負の温度係数 (negative temperature coefficient; NTC) 特性について考察を加える。一般に、炭素繊維は焼成温度にもよるが、幅広い温度範囲で NTC 特性を示し、 25°C の体積抵抗率 (表面抵抗係数に厚さを乗じた値と定義) および 25°C から 200°C の温度範囲における温度係数はそれぞれ、 $2.7 \times 10^{-5} \Omega\text{m}$ 、 $-9.6 \times 10^{-4} \text{K}^{-1}$ である¹¹⁾。一方、今回の実験結果によれば、繊維方向 (0 度方向)、90 度方向の体積抵抗率はそれぞれ $5.0 \times 10^{-5} \Omega\text{m}$ 、 $7.0 \times 10^{-2} \Omega\text{m}$ 、0 度方向、90 度方向の温度係数はそれぞれ $-5.7 \times 10^{-4} \text{K}^{-1}$ 、 $-5.8 \times 10^{-4} \text{K}^{-1}$ である。従って、

(a)

(b)

Fig. 3 (a) Surface resistivity $\bar{\rho}_{11}^0$ at T_0 against fiber orientation angle θ . (b) Change rate of resistance $\Delta \bar{R}_{11} / \bar{R}_{11}^0$ against fiber orientation angle θ at various temperatures.

0 度方向の抵抗は炭素繊維自身の抵抗が支配的であり、0 度方向の負の温度係数は炭素繊維の NTC 特性によるものと考えられる。一方、90 度方向の抵抗は繊維の抵抗と繊維間の接触抵抗からなる回路網と等価であると考えられる²⁾。一般に樹脂の熱膨張率は繊維のそれより高いため、温度上昇に伴い繊維間隔は増大する。この幾何学的な変化は、繊維間のトンネル伝導と接触伝導を妨げ、接触抵抗を増大させる方向に作用する。従って、接触抵抗は正の温度係数 (positive temperature coefficient ;

Fig. 4 (a) Change rate of resistance $\Delta \bar{R}_{11}/\bar{R}_{11}^0$ against temperature T at various off-axis angles. (b) Temperature coefficient $\bar{K}_{11}^T$ against fiber orientation angle θ . (c) Temperature coefficient of resistivity $\bar{d}_{11}^T$ and surface resistivity $\bar{\beta}_{11}^0$ against fiber orientation angle θ .

PTC) 特性を持つ。しかしながらこれらの伝導機構の温度依存性の説明には物性論的アプローチを要し、本研究では解明できていない。90 度方向は PTC 特性のある繊維間の接触抵抗が支配的であると考えられ、90 度方向の温度係数が負であるという実験事実から繊維の NTC 特性が寄与していることは推測できる。

Fig. 4 (a) の傾きを抵抗の温度係数 $\bar{K}_{11}^T$ として、Fig. 4 (b) にプロットした。 $\theta=10$ 度でピークが観察され、負の温度係数の絶対値が大きい。(5) 式の温度係数 $\bar{K}_{11}^T$ において第 1 項 $\bar{d}_{11}/\bar{\beta}_{11}^0$ の値が支配的である。 $\bar{d}_{11}$ 、 $\bar{\beta}_{11}^0$ と θ の関係を Fig. 4 (c) に示す。 $\bar{d}_{11}$ は θ の増大に伴い

ほぼ線形的に低下するのに対し、初期表面抵抗係数 $\bar{\beta}_{11}^0$ は指数関数的に増加するため、 $\theta=10$ 度付近でピークが見られる。

Fig. 5 (a)～(g) に各試験片の表面抵抗変化率 $\Delta \bar{R}_{11}/\bar{R}_{11}^0$ - 機械的ひずみ $\bar{\epsilon}_{11}^M$ 線図を各雰囲気温度 T について示す。低ひずみ域での挙動であるにも関わらず、抵抗は機械的ひずみの増加に対し非線形に増加し、特に高温における非線形性が大きい。初期ひずみ域 0～0.1% における抵抗変化は小さいが、これは成形時に繊維がやや波打って配向しており、低い引張負荷に対し、繊維に引張ひずみが生じていないためであると推測される。な

Fig. 5 Change rate of resistance $\Delta \bar{R}_{11} / \bar{R}_{11}^0$ against mechanical strain $\bar{\epsilon}_{11}^m$ during a loading/unloading cycle for (a) 0°, (b) 10°, (c) 20°, (d) 30°, (e) 45°, (f) 60° and (g) 90° specimens at various temperatures.

お、すべての試験片の抵抗-温度曲線において負荷除荷サイクルの間にヒステリシスが観察されるが、このヒステリシスは高温になるほど顕著である。

Fig. 6 (a) に各試験片の初期ゲージ率 $\bar{R}_{11}^M$ -雰囲気温度 T 線図を各非主軸角について示す。ここでは、抵抗の初期線形部と見られるひずみ域 0.1~0.15% の範囲の Fig. 5 の曲線の傾きを初期ゲージ率とした。ゲージ率はいずれの θ についても、温度上昇に伴い非線形に増大する。特に、非主軸試験片は主軸試験片に比べ、変化の

絶対量が大いだが、25°C を基準値とした場合の相対的変化率はいずれの θ についても約 3 倍以内である。

Fig. 6 (b) に初期ゲージ率 $\bar{R}_{11}^M$ -非主軸角 θ 線図を各雰囲気温度 T について示す。いずれの温度についても、ゲージ率は $\theta=10$ 度において最大値をとる。これは次のような理由による。(4) 式のゲージ率 $\bar{R}_{11}^M$ において面積変化に起因する第 2 項が 1 程度の値であるのに対し、抵抗係数変化に起因する第 1 項は約 1~10 の値をとるため、第 1 項が支配的因子である。温度によらずピエ

(e) 45°

(f) 60°

(g) 90°

Fig. 5 continued.

(a)

(b)

Fig. 6 (a) Gage factor $\bar{K}_{11}^M$ against temperature T at various off-axis angles. (b) Gage factor $\bar{K}_{11}^M$ against fiber orientation angle θ at various temperatures.

ゾ抵抗係数 $\bar{c}_{ij}$ は θ の増大に伴いほぼ線形的に低下するのに対し、初期表面抵抗係数 $\bar{\beta}_{11}^0$ は指数関数的に増加する。この結果 (4) 式の第1項のピークが10度付近で得られる。

5. 結 言

様々な雰囲気温度下で機械的負荷を受けるCFRP一方向板の電気抵抗およびピエゾ抵抗変化を実験的に調べるとともに、温度係数とゲージ率の繊維配向角依存性を調べ、以下の知見を得た。雰囲気温度の上昇に伴ってゲージ率は増大し、抵抗係数は低下する。ゲージ率および温度係数は10度付近でピークが観察される。これらの現象は2次元ピエゾ抵抗モデルで説明される。以上の結果を通して、比較的線形変化が現れる低ひずみ域において機械的ひずみおよび温度の一方を測定すれば、電気抵抗変化から他方を計算により決定できることが確かめられた。

参 考 文 献

- 1) J. Xiao, Y. Li & W.X. Fan : *Comp. Sci. Tech.*, **59** (1999), 1369-1373.
- 2) K. Ogi & Y. Takao : *Comp. Sci. Tech.*, **65** (2005), 231-239.
- 3) K. Schulte : *Materials Science for the 21st Century, Invited Papers* (2001), pp. 286-295.
- 4) D.Y. Song, J.B. Park & N. Takeda : *Key Engineering Materials*, **183-187** (2000), 1129-1134.
- 5) J.C. Abry, Y.K. Choi, A. Chateauminois, B. Dalloz, G. Giraud & M. Salvia : *Comp. Sci. Tech.*, **61** (2001), 855-864.
- 6) A. Todoroki & J. Yoshida : *JSME Int. J. Ser. A*, **47** (2004), 357-364.
- 7) K. Schulte & Ch. Baron : *Comp. Sci. Tech.*, **36** (1989), 63-76.
- 8) J.B. Park, T. Okabe, N. Takeda & W.A. Curtin : *Composites Part A*, **33** (2002), 267-275.
- 9) J.B. Park, T. Okabe & N. Takeda : *Smart Mater. Struct.*, **12** (2003), 105-114.
- 10) N. Angelidis, C.Y. Wei & P.E. Irving : *Composites A*, **35** (2004), 1135.
- 11) K. Ogi & H. Inoue : *Proceedings of the 12th US-Japan Conference on Composite Materials, Dearborn, Michigan, U.S.A.* (2006), 200-206.
- 12) A.D. Kersey, M.A. Davis, H.J. Patrick, M. Leblanc, K.P. Koo, C.G. Askins, M.A. Putnam & E.J. Friebele : *Lightwave Technol.*, **15** (1997), 1442-1463.
- 13) N. Tanaka, Y. Okabe & N. Takeda : *Smart Mater. Struct.*, **12** (2003), 940-946.