樹脂系複合材料の新加速吸湿法の研究[†]

板 東 舜^{*} 百 瀬 豊^{**}
平 博 仁^{**} 座 古 勝^{***}

A Study of a Rapid Moisture Absorption Technique for Composite Aircraft Structures

by

Shun-ichi BANDO^{*}, Yutaka MOMOSE^{**}, Hirohito HIRA^{**} and Masaru ZAKO^{***}

The strength of composite materials depends on absorbing moisture. The aircraft structural integrity should be demonstrated by considering every factor which degrade its strength. The composite aircraft structural components should be tested after moisture absorption equivalent to the component lifetime exposure. However, the thick laminate needs a long period to absorb moisture in a conventional manner, such as high temperature and 100% humidity but ambient pressure. Then the rapid moisture absorption technique has been studied using a pressure chamber. The purposes of this study are cutting the period for moisture absorption and adjusting the moisture distribution inside components so that much higher reliability of the aircraft, the cost reduction of development and weight reduction of the components will be obtained. Some moisture absorption tests have been carried out. From this study, following results were obtained. 1) Under some high pressure and temperature condition, moisture absorption speed can be accelerated. 2) New analytical method can be suggested. 3) By using this technique, the period for 20mm thick laminates can be reduced by a factor of 3.5 under a 20 year moisture absorption condition 4) The appropriate moisture distribution inside of the thick laminate can be obtained by this technique.

Key words : Composite materials, Aircraft structural integrity, Moisture absorption, Pressure chamber, Period for moisture absorption, Moisture distribution

1 緒 言

航空機の主構造材として使用されている樹脂系複合材は、運用中に吸湿して強度が低下する。そのため、樹脂系複合材構造の強度保証は運用中の吸湿を考慮して行わなければならない。その一つの手法として、推定される実環境履歴における吸湿状態となるように、供試体を加速吸湿させて強度保証を行う方法がある。その手法自体は、低コストで構造強度証明を行える可能性を持っているが、加速吸湿に必要な期間は長期間を要し、機体開発期間全体に影響を与える。近年、特に厚物複合材構造の適用が広がっているが、従来の加速吸湿条件では、吸湿期間が非常に長くなるだけでなく、構造内部の吸湿分布が不適切な状態になることが報告されている。

かかることから、本研究では樹脂系複合材構造に対する新加速吸湿法を開発し、実大強度試験の期間を短縮することにより、全体の開発期間短縮と、開発コスト低減のための技術を確立することを目的とする。

1・1 航空機の樹脂系複合材構造に関する強度証明法

航空機の複合材料構造に関する強度証明の考え方は、米軍規格 MIL-HDBK-17¹⁾に示されている。これは Fig. 1 に示すように、数千個のクーポン試験から最終的に 1 個

Fig. 1. Building block method for certification of composite aircraft structures.

の実大試験に至る Building Block 法と呼ばれる実証方式を採用している。基本的には、Building Block における部分構造試験段階までは環境の影響を考慮して試験を実施するが、実大構造試験のように大きなものは室温下において試験し、解析的に環境の影響を考慮して強度

[†] 原稿受理 平成 12 年 10 月 10 日 Received Oct. 10, 2000

^{*} 川崎重工業株式会社航空宇宙事業部技術部 〒504-8710 各務原市川崎町, Aerospace Eng. Dept., Aerospace Group, Kawasaki Heavy Industries, Ltd., Kawasaki-cho, Kakamigahara, 504-8710

^{**} 川崎重工業岐阜技術研究所材料技術研究グループ 〒504-8710 各務原市川崎町, Material Res. Section, Gifu Technical Inst. Group, Kawasaki Heavy Industries, Ltd., Kawasaki-cho, kakamigahara, 504-8710

^{***} 正 会 員 大阪大学大学院工学研究科生産科学専攻 〒565-0871 吹田市山田丘, Dept. of Manufacturing Sci., Osaka Univ., Yamadaoka, Suita, 565-0871

証明しても良いなど、さまざまな強度試験方法が選択できる。

1・2 樹脂系複合材構造の強度証明手順とその課題

米国航空局 FAA は、アドバイザリーサーキュラー AC20-107A²⁾の中で、航空機構造証明の具体的方法を規定している。

Table I に示す代表的な 3 種類の方法は、全て最終的には実大試験による強度実証に帰着するが、その試験条件および解析との組合せ方に相異点がある。開発時には、これらの中から 1 つを選択して証明しなければならない。

- 証明法 I は、吸湿処理した実大供試体を、高温高湿環境下で試験することにより、強度を保証するものである。この方法は、方法 III の欠点である大量のデータを整備する必要がなく、方法 II の欠点である金属との組み合わせ構造にも適正に対応できるという利点があるが、実大供試体の吸湿処理技術が確立されていなかったため、採用されてこなかった。
- 証明法 II は、環境による強度低下分だけ試験荷重を増加させ、実大試験を実施する方法である。この方法では、複合材構造の吸湿処理は不要である。しかし、金属と複合材の組み合わせ構造においては、金属は環境に対する強度変化がほとんどないので、その荷重増加分だけ高い試験荷重に耐えるよう設計しなければならないため重量が増加する。
- 証明方法 III は、ボーイング 777 の尾翼開発に適用された³⁾この方法は、クーボン試験片 (Coupons) および構造要素 (Elements and details) 試験レベルにおいて、環境条件をパラメータとする試験を大量に実施して、強度劣化に関するデータベースを構築し、解析に反映する。そして、実大構造試験と解析の両方の結果を組合せて、強度を証明する。その代わり、証明法 I とは逆に、実大試験は吸湿処理のない供試体を使用し、室温環境下で実施できる。この方法では、非常に大量のクーボン/構造要素試験を必要とし、開発期間が長く、また開発コストが非常に大きくなってしまいうという欠点がある。

Table I. Methods for proof of composite structure.²⁾

Proof of Structure	Analysis Supported by Test	Component Test Condition		Moisture Absorption for Component test Articles
		Environment	Test Load	
I (Component Test)	Not necessary	Hot-wet	Ultimate	Necessary
II (Degradation accounted in Test Load)	Necessary	Ambient Atmosphere	Limit	Not necessary
III (Degradation accounted in Analysis)	Necessary			Not necessary

2 研究手順

2・1 基本方針

前項で述べたように、航空機の樹脂系複合材構造を開発する場合、構造の保証法として証明法 I を採用し、吸湿処理した実大供試体を実環境下で試験することができれば、多数のクーボン試験や構造要素試験を省略でき、低コストかつ短期間に開発できる。

しかし従来の吸湿技術では、吸湿には長期間を要し、内部吸湿分布の不適切という課題がある。そこで、この課題を解決できる新しい加速吸湿法、およびその解析技術を開発することに焦点を絞る。

2・2 吸湿処理期間の短縮

従来の樹脂系複合材構造の構造試験前の吸湿処理は、機体に想定されたライフサイクルにおける環境スペクトルを使って求めた目標吸湿率まで、一定の条件で加速吸湿させる方法、すなわち 71℃、95%RH 以上の高湿度状態で実施するものであった。

本研究では 1 気圧以上、100℃以上の高温高压下での高湿度雰囲気中に暴露させ、しかも段階的に条件を変化させることによって、複合材中への水分拡散を促進させ、吸湿処理期間を短縮させる方法を提案する。

従来との比較の模式図を Fig. 2 に示す。例えば、この図の (Proposed method) に示すように、まず温度を 120℃、湿度を 85%RH、そして圧力を大気圧より 0.2MPa 高く加圧した環境槽の中で加速吸湿させる。この条件では供試体全体に極めて急速に吸湿される。この結果、特に表面付近は非常に高い吸湿状態になるので、その後環境槽内の温度湿度圧力を下げて若干乾燥させることにより、表面付近の吸湿率を適度な値に調整する。このような手順で、目標とする吸湿に達するまでの時間を大幅に短縮することを第一の目標とする。

2・3 吸湿率内部分布の適正化

吸湿処理した供試体の準備については、吸湿期間の問題と共に、吸湿率の内部分布に関する課題がある

従来の加速吸湿試験では、想定される実運用中に吸収する水分の総量、もしくは平均吸湿率に適合するように吸湿条件を選定する。その条件は、温度 71℃、および湿

Fig. 2. First purpose of this study, cutting the period of moisture absorption.

度 95% であり、その条件下で吸湿期間を調整することにより、目標吸湿となる。板厚が大きい場合、従来の加速吸湿では実際に想定される製品と、部材内部の湿度分布が異なる。例えば、Fig. 3 に厚さ 20mm の CFRP について、実運用の場合と従来の加速吸湿で供試体を処理した場合の吸湿率分布の解析結果を示す。なお、解析手法については、次節に示す。

この図から実環境想定結果と比較して、表面側が高吸湿状態で内部は低吸湿状態となることがわかる。

このような吸湿分布の差異によって、特に表面の強度特性に差を生じさせ、面外荷重が負荷された場合等に、構造全体の強度に影響を及ぼすことが考えられる。

よって、このような複合材内部の吸湿分布も、できる限り実環境履歴想定結果と適合させる必要がある。

3 吸湿に関する基礎理論

複合材の吸湿解析について、従来法の基礎方程式⁵⁾を以下に示す。これを基に、複合材内部の吸湿分布を解析する。Fig. 3 はこの解析結果の一例である。

解析手順は、本章に示される(1)から(5)の条件式から計算プログラムを作成し、各環境条件をインプットして計算機の中で数値積分して求めるものである。Fig. 3 の 24 年間の実運用に相当する吸湿分布については、運用環境条件における温度湿度のパターンを上記プログラムの中にインプットし、各ブロックの時間毎に逐次積分して求めたものである。

基礎方程式

① フィックの法則

$$J = -D \frac{\partial C}{\partial x} \tag{1}$$

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} = \frac{\partial C}{\partial \tau} \tag{2}$$

② アレニウスの式 (Arrhenius equation.)

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{A}{T}\right) = D_R \exp\left(\frac{A}{T_R} - \frac{A}{T}\right) \tag{3}$$

③ 相対湿度と飽和吸湿率との関係

$$Me = Mm \left(\frac{\phi}{100} \right)^b \tag{4}$$

Fig. 3. Second purpose of this study, adjusting the internal moisture distribution of aircraft components.

④ 吸湿率と水分濃度との関係

$$M = \frac{C}{\rho_c} \times 100 \tag{5}$$

ただし、

- A : 定数 (K)   b : 定数 (無次元)
- C : 水分濃度 (g/mm³)   D : 水分拡散係数 (mm²/sec)
- D₀ : 定数 (mm²/sec)   J : 水分の流束 (g/mm²/sec)
- M : 吸湿率 (%)   M_e : 飽和吸湿率 (%)
- M_m : 最大吸湿率 (%)   T : 絶対温度 (K)
- x : 板厚方向の座標 (mm)   ϕ : 相対湿度 (%)
- ρ_c : 複合材の密度 (g/mm³)   τ : 時間 (sec)

4 材料基礎試験

新加速吸湿法を適用するためには、吸湿解析技術を確認する必要がある。総吸湿量 (又は平均吸湿率) は、吸湿処理前後の供試体重量を測定してその増加分を計測することにより、実験的に求めることができるが、構造部材内部の吸湿分布については、実験的に求めることが出来ない。また、新加速吸湿条件において、吸湿分布を解析的に求めることが出来なければ、本研究の目的である吸湿分布の最適化は達成できない。

そこで、本項で材料基礎試験を実施し、解析と実験によって平均吸湿率と吸湿時間の関係を比較評価し、従来の解析理論が適用できるか検討する。

最後に、本項にて確認した解析手法によって、長期間運用した場合の吸湿状態を短期間で適切に実現し得る吸湿条件を求め、従来の吸湿処理方法と比較して、その加速吸湿効果を確認する。

4・1 材料および試験片

供試体は以下に示す材料と成型条件により製作した。

なお、端部からの吸湿を防止するため、板厚さ 4mm と 9mm の供試体については、端部をシールした。

(a) 材料：180℃硬化型エポキシ樹脂-方向炭素繊維化プリプレグ、東邦レーヨン社製 QC133-149A

(炭素繊維 IM500 / エポキシ樹脂 QC133)

(b) 成形方法：オートクレーブ硬化、

(成形条件) 温度 180℃ 2 時間、圧力 0.392MPa

(c) 試験片形状：150mm × 100mm、

(板厚) 1.0mm, 4.0mm, 9.0mm

4・2 吸湿特性試験

4・2・1 試験方法 Fig. 4 に示す実験用加圧容器を用いて、雰囲気気圧 1 気圧以上の加圧、100℃以上の高温での高湿度環境を実現し、以下の条件を組み合わせによる吸湿試験を実施した。

・試験温度 (℃) : 111, 116, 120, 125 および 130

・試験圧力 (hPa) : 1489 および 2000

4・2・2 試験結果

(1) 水分拡散係数 D および定数 A, 定数 D₀ の測定
新加速吸湿条件による水分拡散係数が、従来の拡散式にのるかどうか確認するために、吸湿試験を実施した。

Fig. 5 にその結果の一例を示す。この吸湿曲線の初期傾きからフィックの式 (2) により、各条件における水分拡散係数 D を求め、絶対温度 T の逆数でプロットしたも

Fig. 4. Experimental pressure chamber.

Fig. 5. Test results of water absorption at 133°C, 100%Rh and 2000hPa condition.

のを Fig. 6 に示す。

新加速吸湿条件における水分拡散係数 D は、従来通り、絶対温度 T の逆数に比例する温度依存性を持っていることがわかる。この関係はアレニウスの関係として知られているもので、Fig. 6 の関係から、式 (3) より本供試体の材料に関する水分拡散係数に関わる定数 A と D_0 を求めることができる。

(2) 飽和吸湿率 M_e および係数 M_m 、係数 b の測定

また Fig. 5 からその上限の吸湿率、すなわち飽和吸湿率 M_e が求められる。Fig. 7 に示す通り、その飽和吸湿率 M_e は、各相対湿度においてその圧力状態に依存し、高圧下では大気圧下で吸湿する最大吸湿率よりも多く吸湿することがわかる。以上のことから、飽和吸湿率 M_e について、従来法の関係と同様な関係式 (4)

Fig. 6. Diffusion coefficient vs temperature.

Fig. 7. Moisture equilibrium M_e vs Relative Humidity ϕ .

$$M_e = M_m \times (\phi/100)^b$$

が成立すると考えられる。ただし、係数 M_m と b については、以下に示すように圧力について異なる値が得られた。

- 2000hPa については、 $M_m = 1.95$, $b = 2.9$
- 1489hPa については、 $M_m = 1.71$, $b = 2.4$

これは従来理論からは予測されない事柄であり、本実験より明らかになった。

4・2・3 吸湿解析の検討 4・2・2 項で取得した吸湿に関わる物性値を用いて、3 項で示した従来手法による吸湿解析を小試験片について実施した。物性値を以下に示す。

- ① 板厚：9.0mm
- ② 新加速吸湿条件：120.2°C，100 %RH，2000hPa
- ③ A ：定数： 5.42×10^3
- ④ b ：定数：2.9 (圧力 2000hPa 時)
- ⑤ D_R ：水分拡散係数： $5.67 \times 10^{-8} \text{ mm}^2/\text{sec}$
- ⑥ T_R ：絶対温度：293.15K
- ⑦ T ：絶対温度：393.15K
- ⑧ ϕ ：相対湿度：100%RH
- ⑨ M_m ：最大吸湿率：1.96% (圧力 2000hPa 時)

解析と実験の結果について、平均吸湿率と吸湿時間の関係で比較評価した。その評価結果の一例を Fig. 8 に示す。理論と実験結果が良く一致していることにより、従来の吸湿解析手法が新しい吸湿条件においても適用できることが確認できた。

一方、前項の結果より b および M_m が圧力 p に依存することが確認されている。したがって、係数 b を圧力 p の関数 $b = f_1(p)$ で、最大吸湿率 M_m を $M_m = f_2(p)$ で示すこ

Fig. 8. Comparison between theory and test results.

とができるとすると, $f_1(p)$ および $f_2(p)$ を理論および実験によって求め, 式 (4) に代入することにより, 圧力を変えても吸湿率が解析できるようになると考えられる。

5 加速吸湿法の検討

実環境を想定した環境条件のライフサイクルスペクトルと運用期間から, 実運用の最終時期における吸湿量および吸湿分布を 4・2・3 項で確認した解析手法より求める。そして, この条件と従来法による吸湿を比較し, その効果を確認する。

5・1 環境スペクトルの設定

航空機の複合材構造の運用中における吸湿挙動を推定するためには, その航空機の運用環境条件等を設定しなければならない。今回は, Fig. 9 に示す様な運用環境条件を設定した。これは日本の気象庁の平年記録を基にして, 1 年間の気温と湿度の変化を簡略化し, 各月毎の 12 個のブロックにパターン化したものである。

5・2 加速吸湿解析結果

板厚 20mm の CFRP 平板について, 第 3 章に示したプログラムを用いて以下の 3 つのケースについて解析を実施した。

(1) Fig. 9 の環境スペクトルにおける運用期間 25 年間の条件での吸湿。

(2) 従来法である 71℃, 95%RH 一定条件での吸湿。

(3) 新加速吸湿法は, 第一段階の 120℃, 100%RH の条件で内部に多量に吸湿させ, 第二段階の 95℃, 65%RH の条件で若干乾燥させて, 表面/中心部の吸湿分布を①の結果に適合させるように設定した。

解析結果の一例を Fig. 10 に示す。

これは, 2・3 節で示した吸湿解析結果 Fig. 3 と同じく, 表面からの板厚方向の距離に対する吸湿率 M の変化を示したものである。従来法では 25 年後の中心部吸湿率に合わせるのに 308 日間かかるのが, 新加速吸湿法では 88 日となり, 約 1/3.5 に吸湿期間を短縮できるとい

Fig. 9. Environmental spectrum.

—■— In 25 year service

—✕— New:

2000hPa, 120℃, 100%RH + atmosphere, 95℃, 60%RH, τ = 88 days

—▲— Conventional (matched to AV.): 71℃, 95%RH, τ = 182 days

—○— Conventional (matched to center portion): 71℃, 95%RH, τ = 308 days

Fig. 10. Internal moisture content distribution analytical results for thick laminate.

う結果となった。

また, 板厚方向の吸湿分布についても, ほとんど 25 年後の吸湿結果に合っていることが確認できる。

5・3 加速吸湿に必要な設備等の検討

設定した新吸湿条件, およびそれを適用する複合材構造を想定して, 実機に適用する場合の吸湿設備の仕様等について検討した。Fig. 11 に概念図を示す。

(1) 設備仕様

設備の大きさ : 3m 径 × 10mL ~ 1m 径 × 5mL

温度・圧力 : 最大 175℃, 最大 0.618Mpa

(2) 作業手順

① 供試体を枠に取付ける。② クレーンで枠を缶体内部に搬入する。③ センサーを結線後, 蓋を閉じる。④ 缶

Fig. 11. Suggested moisture absorption chamber for actual aircraft components.

体内部を加圧する。⑤ 温風送風機により内部を加温する。⑥ 水蒸気を内側缶体内部に送り吸湿する。⑦ これ以降はプログラム制御による自動運転。

6 結 言

樹脂系複合材料に対して、従来よりも非常に早く吸湿できる新加速吸湿条件範囲を取得できた。また、その複合材中の水分の拡散挙動に対して、従来の解析手法が適用できることを確認した。さらに、圧力により吸湿特性が変化することも確認でき、解析理論のさらなる検討の必要性が明確になった。これらの成果によって、吸湿期間を大幅に短縮でき、また適切な吸湿分布を実現できる新加速吸湿条件の目処が得られた。また本技術を実際に適用する場合の有効性や、必要な設備の概要も把握できた。

複合材料の吸湿は可逆反応であり、一度吸湿させたものを再度乾燥させても、樹脂のガラス転移点以下の温度条件では強度劣化が無いことはわかっている。一方、本研究結果から、加速吸湿を短時間に完了させるには高温・高圧が望ましいことがわかったが、あまり高温になると材料劣化が生じると思われるので、それが加速吸湿条件の上限となる。よって、加速吸湿後の静強度や疲労

強度特性への影響について、実験的に検討する必要がある。さらに実構造を対象とした吸湿試験および強度評価を行い、新加速吸湿法の実機適用性を確認する必要がある。

これらの検討結果については、次報にて報告したい。

本研究は平成 11 年度日本航空宇宙工業会の委託を受けて実施したもの^{*1}で、有益な助言ご指導をいただいた関係各位に、本文をもって謝意を表したい。

参 考 文 献

- 1) MIL-HDBK-17E, Composite Materials Handbook, General Information for Polymer, Metal, and Ceramic Matrix Composites Areas (1997).
- 2) AC20-107A, Composite Aircraft Structure (1984).
- 3) A. Fawcett, J. Trostle and S. Ward, Boeing Commercial Airplane Group, Proc. ICCM-11 pp.I-178/I-199, Gold Coast, July 14-18 (1997).
- 4) Y. Momose, H. Hira, H. Miyabe, T. Tanaka and S. Bandoh, SAMPE '99 Symposium, 724 (1999).
- 5) C. H. Shen and G. S. Springer, J. Composite Materials, **10**, 2 (1976).

^{*1} 革新航空機技術開発センター，平成 11 年度委託調査研究「樹脂系複合材料構造の新加速吸湿法の開発」No.1104