熱残留応力緩和およびフィジカルエージングによる CFRP 擬似等方性積層板の経時寸法変化*

丹羽 智之^{*1}, 荒尾 与史彦^{*2}, 川田 宏之^{*3}

Time-Dependent Deformation of CFRP Quasi-Isotropic Laminates Caused by Relaxation of Thermal Residual Stress and Physical Aging

Tomoyuki NIWA^{*1}, Yoshihiko ARAO and Hiroyuki KAWADA

^{*1} Graduate School of Waseda Univ. Dept. of Mechanical Engineering
3-4-1 Okubo, Shinjyuku-ku, Tokyo, 169-8555, Japan

In this paper, time-dependent dimensional change in quasi-isotropic laminates induced by relaxation of thermal residual stress and physical aging was predicted by the classical lamination theory. CFRP with pitch-based carbon fiber and cyanate ester resin was chosen for the study. Viscoelastic properties were investigated by performing tensile creep test for unidirectional laminates in the transverse direction. In addition, shrinkage strain induced by physical aging was studied by measuring the strain change of unidirectional laminates as well. Shrinkage strain in off-axis layers was calculated by using the coordinate-transform method. Shrinkage strain in 60° and 45° laminates were measured and the results were compared with the calculation. From the comparison, it was found that shrinkage strain of off-axis layers can be calculated by using the coordinate-transform method. Experimental results were applied to the classical theory in order to predict the time-dependent dimensional change of quasi-isotropic laminates. The strain change in quasi-isotropic laminates was obtained experimentally, and the result was compared with the prediction. It was verified that the time-dependent deformation of quasi-isotropic laminates can be predicted with a $\mu\epsilon$ -order by using proposed prediction method.

Key Words : Composite Material, Residual Stress, Stress Relaxation, Physical Aging

1. 緒 言

人工衛星をはじめとする宇宙用構造物において、比強度・比剛性に優れた炭素繊維強化プラスチック (CFRP : Carbon fiber reinforced plastics) の適用が進められている。宇宙空間では構造部材は-150°C~200°C という非常に厳しい温度変化にさらされる。CFRP は炭素繊維が負の熱膨張率を有することを利用して、プリプレグシートの積層構成によって熱膨張係数をコントロールすることができ、熱膨張係数がゼロの材料も設計可能である⁽¹⁾⁽²⁾。Niels らは次世代大型望遠鏡の構造物に CFRP を用いた際の優位性について述べている⁽³⁾。大型望遠鏡を CFRP で設計することで、自重変形、熱変形を大幅に低減できることが報告されている。また、Ozaki らは宇宙望遠鏡用の 1.5m の支持構造物を開発しており、10°C の温度変化に対する熱変形を 1 μ m 以下に抑えることを可能にしている⁽⁴⁾。このように CFRP は、高い比剛性と極めて低い熱膨張率、さらに設計の自由度の高さを活かすことで、マイクロレベルでの寸法保持機能を有する精密構造物の設計が可能となる。

精密構造部の CFRP の成形は、主にプリプレグテープを用いたオートクレーブ法である。オートクレーブ法では加温により樹脂の流動性を上げ同時に加圧をすることで、高い繊維含有率でかつ特性のばらつきが小さい CFRP を成形することができる。一方でプリプレグシートを手作業で積層させるため、積層角度の誤差など成形

* 原稿受付 2013 年 1 月 17 日

^{*1} 早稲田大学大学院 (〒169-8555 東京都新宿区大久保 3-4-1)

^{*2} 正員, 同志社大学

^{*3} 正員, フェロー, 早稲田大学

E-mail: tomoyuki.niwa@gmail.com

の際の不整が生じる⁽⁵⁾⁽⁷⁾。例えば擬似等方性積層板では積層角度の不整により、厳密には擬似等方性ではなくなり、熱変化により面外へのカップリング変形が生じる。擬似等方性積層板でも、面外への変形が数十 μm レベルで生じるため、望遠鏡などの精密構造物では問題となる。著者の一人は成形時の積層角度の誤差を考慮に入れて熱変形解析を行っており、積層板にハニカムコアなどの背面構造を取り付けて曲げ剛性を向上させることにより、面外変形を積層板単体の変形の 1/10 以下に抑えることができ、CFRP を用いた望遠鏡の設計が可能であることを明らかにした⁽⁸⁾⁽⁹⁾。以上のように、熱変形に対しては十分に設計対策を行うことができるが、寸法安定性の長期保証は十分でない。CFRP は母材が高分子であることに起因して、吸湿変形、熱残留応力の緩和、フィジカルエージングによるマトリクスの自己収縮などの経時変形が生じる。特に母材がエポキシ樹脂のように吸湿しやすい樹脂である場合は、吸湿を防ぐ対策が最も重要であることが分かっている⁽¹⁰⁾。一方で熱残留応力の緩和、フィジカルエージングによる変形はまだ明確になっていない。精密構造物では変形がマイクロ、あるいはナノレベルであるため、実測が難しい。そのため、熱残留応力の緩和およびフィジカルエージングの変形を予測するモデルを構築することが望まれる。

CFRP は繊維方向と繊維直交方向に大きな異方性を有するため、各方向に熱膨張率が異なる。そのため、様々な角度に繊維が配向されるように積層すると、硬化温度から冷却する際に各層に生じる寸法変化量の差によって熱残留応力が発生する。この内部の熱残留応力の測定は、非対称積層板の曲率を測定することで正確に求めることができる⁽¹¹⁾。硬化温度から室温に戻した際、樹脂の収縮は繊維によって拘束されるため、特に樹脂の特性が支配的となる 90°方向では、引張の熱残留応力が生じる。樹脂は粘弾性体であるため、この熱残留応力は時間とともに変化し CFRP 積層板の寸法変化を引き起こす。さらに、一般に高分子系複合材料ではフィジカルエージングによって時間とともに体積変化や粘弾性特性の変化が生じることが知られている⁽¹²⁾。対称積層板であるクロスプライ積層板を対象に、古典積層理論を応用することにより熱残留応力緩和およびフィジカルエージングによる微小寸法変化を予測した結果、これらの現象が積層板の微小寸法変化の要因となることが確認され、また実験と予測モデルが良い一致を示すことも確認されている⁽¹³⁾。しかし、この予測手法は CFRP 積層板の 90°方向のみの収縮、応力緩和に着目しているため、他の積層構成に用いることはできない。

そこで本研究では、クロスプライ積層板に関する古典積層理論を用いた経時ひずみ変化の予測手法を、任意の積層構成まで拡張することを目的とする。擬似等方性積層板など非主軸方向に対しても繊維が配向されている積層板においては繊維配向角とフィジカルエージングの収縮ひずみの関係を明らかにする必要がある。また、CFRP 一方向材の 90°方向の粘弾性特性に対して座標変換を用いることで各層の粘弾性特性を算出し、古典積層理論により応力緩和、フィジカルエージングによる経時ひずみ変化を予測する。予測値の妥当性を確認するために異なる 2 種類の積層構成を有する擬似等方性積層板の経時ひずみ変化を測定し、予測結果と比較・検討する。さらに、予測手法を任意の積層構成に拡張するために $[0\pm30/0]_s$ の経時ひずみ変化について予測を行い、実験結果との比較を行う。この比較結果をもとに、本モデルを用いた $[0\pm\theta/0]_s$ の予測における $\pm\theta$ の適用範囲について考察する。

2. 解析方法

2・1 熱残留応力緩和に伴う経時ひずみ変化

CFRP は、その繊維方向に対しては炭素繊維の特性が支配的となり、繊維直交方向に対しては樹脂の特性が支配的となる。このため、熱膨張係数は大きな異方性を持ち、硬化温度から使用温度までの温度変化に伴い、層間に大きな残留応力が生じる。クロスプライ積層板を例に考えると、冷却過程において 90°層が大きく収縮しようとするのを 0°層が拘束するため各層のひずみは一致し、90°層に引張、0°層には圧縮の残留応力が働く。このとき積層板に生じる熱残留応力は繊維方向と繊維直交方向の熱膨張係数の差が大きいほど、また成形温度から使用温度までの温度差が大きいほど大きくなる。ただし、90°層は粘弾性特性を示すため、生じた引張残留応力は時間とともに緩和し、これに伴い積層板のひずみが増大する⁽¹³⁾。クロスプライ積層板の場合は、CFRP の繊維直交方向の粘弾性特性によって緩和挙動が生じるため、予測には繊維直交方向の粘弾性特性のみが重要となった。しかし、擬似等方性積層板には非主軸方向に対しても繊維が配向されており、各層の粘弾性特性を明らかにする必要がある。また、CFRP の母材である高分子にはフィジカルエージングが生じ、体積収縮により各層に収縮ひずみを引き起こすと推測される。収縮ひずみは層間に生じる応力に対しても影響を及ぼすことが考えられるので、各層に生じる収縮ひずみを定量的に評価し古典積層理論モデルに組み込む必要がある。

2・2 古典積層理論

本研究では、CFRP の層間に生じる熱残留応力を古典積層理論により算出し、各層の繊維方向以外の粘弾性特性およびフィジカルエージングによる収縮ひずみを理論に組み込むことで、熱残留応力緩和およびフィジカルエージングに伴う経時寸法変化を予測する。対称積層板において、合力とひずみの関係式は以下のように表される⁽¹⁴⁾。

$$\begin{Bmatrix} N_x \\ N_y \\ N_{xy} \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{11} & A_{12} & A_{16} \\ A_{12} & A_{22} & A_{26} \\ A_{16} & A_{26} & A_{66} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \varepsilon_x \\ \varepsilon_y \\ \gamma_{xy} \end{Bmatrix} \quad (1)$$

ただし、このとき N_i は積層板に働く合力、 A_{ij} は面内剛性係数、 ε_i は垂直ひずみ、 γ_{ij} はせん断ひずみである。このとき積層板に働く合力は、

$$\begin{Bmatrix} N_x^T \\ N_y^T \\ N_{xy}^T \end{Bmatrix} = \sum_{k=1}^n \begin{bmatrix} \bar{Q}_{11} & \bar{Q}_{12} & \bar{Q}_{16} \\ \bar{Q}_{12} & \bar{Q}_{22} & \bar{Q}_{26} \\ \bar{Q}_{16} & \bar{Q}_{26} & \bar{Q}_{66} \end{bmatrix}_k \int_{z_{k-1}}^{z_k} \begin{Bmatrix} \alpha_x \Delta T \\ \alpha_y \Delta T \\ \alpha_{xy} \Delta T \end{Bmatrix} dz \quad (2)$$

と表現される。ただし、この時 $\bar{Q}_{ij}$ は変換剛性係数、 α_i は各方向の熱膨張係数、 ΔT は応力フリー温度から環境温度までの温度差である。積層板の熱残留応力がゼロとなる応力フリー温度は成形温度とし⁽¹⁵⁾、本研究では ΔT を成形温度から試験温度までの差とした。フィジカルエージングの進行に伴って積層板の各層に生じる収縮ひずみによって発生する合力を式 (3) のように表現する。

$$\begin{Bmatrix} N_x^{PA} \\ N_y^{PA} \\ N_{xy}^{PA} \end{Bmatrix} = \sum_{k=1}^n \begin{bmatrix} \bar{Q}_{11} & \bar{Q}_{12} & \bar{Q}_{16} \\ \bar{Q}_{12} & \bar{Q}_{22} & \bar{Q}_{26} \\ \bar{Q}_{16} & \bar{Q}_{26} & \bar{Q}_{66} \end{bmatrix}_k \int_{z_{k-1}}^{z_k} \begin{Bmatrix} \varepsilon_x^{PA} \\ \varepsilon_y^{PA} \\ \gamma_{xy}^{PA} \end{Bmatrix} dz \quad (3)$$

過去の研究においては解析対象をクロスプライ積層板に限定していたため、非主軸方向に発生する収縮ひずみやせん断ひずみを考慮する必要がなかった。しかし、本研究においては擬似等方性積層板など非主軸方向に繊維が配向されている積層板も解析対象に含めるため、それらを考慮する必要がある。各層に生じる収縮ひずみは式 (4) を用いて、繊維直交方向に生じる収縮ひずみより算出した。なお、このとき繊維方向にも収縮ひずみが生じていると考えられるが、繊維によって樹脂の変形は拘束されているので本モデルにおいてはゼロと仮定して扱う。

$$\begin{aligned} \varepsilon_x^{PA} &= \varepsilon_L^{PA} \cos^2 \theta + \varepsilon_T^{PA} \sin^2 \theta \\ \varepsilon_y^{PA} &= \varepsilon_L^{PA} \sin^2 \theta + \varepsilon_T^{PA} \cos^2 \theta \\ \gamma_{xy}^{PA} &= 2(\varepsilon_L^{PA} - \varepsilon_T^{PA}) \cos \theta \sin \theta \end{aligned} \quad (4)$$

熱残留応力とフィジカルエージングによる合力が積層板に働くと考えれば、

$$\begin{Bmatrix} N_x \\ N_y \\ N_{xy} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} N_x^T + N_x^{PA} \\ N_y^T + N_y^{PA} \\ N_{xy}^T + N_{xy}^{PA} \end{Bmatrix} \quad (5)$$

を式 (1) に代入することで、積層板の面内ひずみが算出可能となる。ただし、時間経過に伴う積層板のひずみ変化を求めるためには、式 (1) ～ (3) の面内剛性係数および剛性係数について、粘弾性の構成式を組み込む必要がある。本モデルにおいては繊維直交方向を線形粘弾性体として取り扱い、式 (6) に示すべき乗則で表現した。

$$E_T(t, T) = E_{T0} \frac{1}{1 + \{t/\tau_0(T)\}^n} \quad (6)$$

このとき、 $E_T(t, T)$ は繊維直交方向の緩和弾性率、 E_{T0} は繊維直交方向の初期弾性率、 τ_0 、 n は引張クリープ試験結果から定める粘弾性パラメータである。繊維直交方向の弾性率の時間変化に対して座標変換を行うことで、任意の繊維方向を有する各層の弾性率の時間変化を算出できる。

さらに、式 (4) においてフィジカルエージングの進行とともに繊維直交方向に生じる収縮ひずみ $\varepsilon_T^{\text{PA}}$ については式 (7) のように定式化した。このときパラメータ A 、 C 、 m については実際に、測定した収縮ひずみに対してフィッティングを行うことで決定する。

$$\varepsilon_T^{\text{PA}} = A \left(\frac{1}{1 + Ct^m} - 1 \right) \quad (7)$$

粘弾性パラメータとフィジカルエージングによる収縮ひずみを示すパラメータを決定することができれば、積層板にした際の寸法変化を予測することが可能となる。

3. 実験方法

3・1 試験片

宇宙用構造物などの精密構造部材に使用される CFRP では、強化材としてピッチ系高弾性炭素繊維が多く用いられている。母材にはエポキシ樹脂などの熱硬化性樹脂が広く使用されているが、低吸湿性を有するシアネートエステル樹脂はより高い寸法安定性が要求される構造部材への利用が検討され始めている。シアネートエステル樹脂はエポキシ樹脂と比較して 4 分の 1 程度の吸湿量となることが明らかになっており、吸湿変形において有利となる。しかし CF/シアネート積層板の粘弾性特性については研究事例が少なく⁽¹⁶⁾、特に実構造物に多く使用されているような擬似等方性積層板についての研究はまだ行われていない。

そこで、本研究では CF/シアネート擬似等方性積層板を対象に実験・解析を行う。炭素繊維には三菱樹脂 (株) 製ピッチ系炭素繊維 K1352U を、母材には Tencate (株) 製シアネートエステル樹脂 EX1515 を用いた。試験片はブリプレグを重ね合わせてオートクレーブを用いて成形した。硬化条件は 1 次硬化 121°C にて 3 時間、後硬化 177°C にて 2 時間である。後硬化後から試験片に与える熱履歴は各試験片の粘弾性特性やフィジカルエージングに伴う収縮ひずみに対して影響を及ぼすことが分かっている。そこで、試験片に与える熱履歴を統一するために試験を行う直前に後硬化を行い、3 時間かけて 80°C まで冷却した後に試験に使用することとする。

CF/シアネート積層板の機械的特性調査のため、JIS K 7165 に準じて 0°材、90°材の静的引張試験を行った。また、熱膨張係数測定試験機 (DIL 402C/L180, Netzch 製) を用いて 0°方向、90°方向の熱膨張係数を測定した。温度と熱膨張係数の関係を図 1 に示す。-30°C から 190°C までの熱膨張係数を測定し、20°C から 180°C までの結果を示した。図 1 より 0°方向、90°方向共に温度と熱膨張係数は一定ではなく、温度によって熱膨張係数に差があることが分かる。そのため、本研究では熱膨張率の温度依存性を考慮するために、熱膨張率は対象とする温度までの平均値を用いた。具体的には、後硬化温度 (177°C) から試験温度 (80°C) までの温度差 ($\Delta T=97^\circ\text{C}$) でその間に生じたひずみ変化を割ることにより、平均熱膨張率を算出した。平均熱膨張率は、試験温度によって変化するが、本研究では 80°C のみを対象とするので、一定値として扱う。得られた試験片の機械的特性を表 1 にまとめる。

Fig. 1 Coefficient of thermal expansion of unidirectional laminate.

Table 1 Material properties of CF/Cyanate (K1352U/EX1515) laminate

Longitudinal Young's modulus E_L [MPa]	352000
Transverse Young's modulus E_T [MPa]	4570
Longitudinal coefficient of thermal expansion α_L [1/K]	-7.3×10^{-7}
Transverse coefficient of thermal expansion α_T [1/K]	7.5×10^{-5}
Poisson's ratio ν_{LT}	0.3
Poisson's ratio ν_{TL}	0.006

3・2 引張クリープ試験

熱残留応力緩和を予測する際に用いる粘弾性特性を表現するパラメータとして、引張クリープ試験より得られたクリープコンプライアンスを使用する。線形粘弾性範囲内ではクリープコンプライアンスの逆数から緩和弾性率を近似的に求めることができる⁽¹⁷⁾。引張クリープ試験は JIS K 7087 に準じ、タブには GFRP の $\pm 45^\circ$ 材を用いた。試験片寸法を図 2 に示す。積層構成は $[90_{20}]$ の一方向材とした。試験片は一次硬化終了後に試験片形状に加工し、二液エポキシ室温硬化型接着剤を用いて、タブを常温 24 時間で貼り付けた。試験機には温度チャンバー付きてこ式クリープ試験機 (JT トーシ社製、テコ比 1 : 10) を用いた。温度チャンバー内で後硬化を行い、試験温度である 80°C まで 3 時間かけて冷却し、温度が安定した後 (0.5 時間後) に錘を用いて一定荷重を与えた。試験応力は 10MPa とし、この負荷応力は線形粘弾性が成り立つ範囲内であることは確認している。ひずみ測定には伸び計および高温用ひずみゲージを用いた。また、このとき同じ熱履歴を与えたダミー試験片を同じ温度チャンバー内に設置し、そのひずみ変化も合わせて測定した。

Fig. 2 Size and dimensions of specimen.

3・3 45° , 60° , 90° 材および擬似等方性積層板の経時ひずみ変化測定試験

フィジカルエージングの進行に伴い繊維直交方向に生じる収縮ひずみを測定するために一方向材 $[90_{20}]$ の経時ひずみ変化を測定した。試験片寸法は引張用試験片と同様だが、タブは貼り付けていない。 90° 材の収縮ひずみは

引張クリープ試験時にダミー試験片として求めたが、非主軸方向に生じる収縮ひずみとの関係性を明らかにするために 45°材および 60°材についても同様に無負荷状態での長手方向の経時ひずみ変化を測定する。ひずみ測定には伸び計および高温用ひずみゲージを用いた。試験片は後硬化後 3 時間かけて試験温度である 80°C まで冷却し、0.5 時間の温度慣らしを行った後に測定を開始した。

また、本研究では CFRP 擬似等方性積層板の熱残留応力緩和およびフィジカルエージングに伴う経時ひずみ変化を予測することが目的であるため、このひずみ変化を実際に測定し、実験結果と予測結果の比較を行う。試験片寸法および試験片に与えた熱履歴は同様とし、擬似等方性積層板 $[0_2/45_2/-45_2/90_2]_s$ および $[0_2/60_2/-60_2]_s$ の経時ひずみ変化を伸び計および高温用ひずみゲージを用いて測定した。

4. 結果および考察

4・1 引張クリープ試験結果

図 3 に引張クリープ試験によって得られたクリープひずみ、ダミー試験片の経時ひずみの測定結果を示す。ダミー試験片の結果より、試験片は時間とともに収縮することが分かる。この収縮ひずみはフィジカルエージングが進行したことによるものである。クリープひずみにおいても、フィジカルエージングの進行による収縮ひずみが影響することが分かっている。そこで、クリープひずみに関して、ダミー試験片のひずみを差し引いた値を補正クリープひずみとする。得られた補正クリープひずみよりクリープコンプライアンスを求め、その逆数をとることで緩和弾性率を近似的に求めた。得られた緩和弾性率を図 4 に示す。なお、CF/シアネート積層板 (K1352U/EX1515) は応力域 0~20MPa においては線形粘弾性範囲内にあることを確認している⁽¹³⁾。図 4 における緩和弾性率について線形粘弾性の構成式である式 (6) を用いてフィッティングを行ったところ、前述の粘弾性パラメータとして $n = 0.1900$, $\tau_0 = 180700$ [hr] が得られた。

Fig. 3 Creep test result for unidirectional laminate in transverse direction.

Fig. 4 Creep test result for unidirectional laminate in transverse direction.

4・2 90°材の経時ひずみ変化測定結果および非主軸方向におけるひずみ変化との関係

一方向材 $[90_{20}]$ の 80°C 環境下における経時ひずみ変化を測定した結果を図 5 に示す。過去の研究より 90°材は時間経過とともに収縮ひずみが生じることが知られており、本研究でも 300 時間で約 160 $\mu\epsilon$ 程度の収縮ひずみが確認された。式 (7) を用いて 90°材の収縮ひずみに関してフィッティングを行い、収縮ひずみの変化を時間の関数として表現する。フィッティングした曲線を図 5 に実線で示す。式 (7) におけるフィッティングパラメータは $A = 727.9$, $C = 0.02958$, $m = 0.4013$ となった。

非主軸方向におけるフィジカルエージングによる経時ひずみ変化は $[90_{20}]$ の収縮ひずみに対して式 (4) を用いて座標変換することで算出した。式 (4) において ϵ^{PA} はフィジカルエージングの進行に伴う収縮ひずみを表しており、 ϵ_T^{PA} に対して式 (7) によって表現される繊維直交方向の収縮ひずみを代入した。また、繊維方向の収縮ひ

ずみは非常に小さく、 $\varepsilon_L^{PA} = 0$ と近似して計算を行った。 $\theta = 45^\circ$ および 60° を代入し、 45° 材および 60° 材の長手方向における経時ひずみを算出し図 6 に一点鎖線と破線を用いてそれぞれ示す。

Fig. 5 Shrinkage strain induced by physical aging in the 90° laminates at 80°C and fitting result.

Fig. 6 Shrinkage strain calculated by using the coordinate-transform method and experimental results in the 60° , 45° laminates at 80°C .

座標変換より得られた 45° 材および 60° 材の長手方向の経時ひずみ変化の妥当性を検証するために、 $[45_{20}]$ および $[60_{20}]$ の経時ひずみ変化を測定し、図 6 に合わせて示す。図 6 より、 $[45_{20}]$ は 300 時間で約 $80\mu\text{ε}$ 、 $[60_{20}]$ は約 $125\mu\text{ε}$ 収縮していることが見て取れる。また、座標変換によって得られたひずみ変化曲線と $[45_{20}]$ および $[60_{20}]$ の収縮ひずみの実験値は良い一致を示していることが分かる。よって、 90° 材の収縮ひずみを取得し座標変換を用いることで、任意の繊維配向角をもつ一方向材のフィジカルエージングの進行に伴う収縮ひずみを算出することが妥当であることが確認された。

4・3 解析結果の妥当性

上記で得られた実験結果をもとに、積層板の経時変化を予測する。擬似等方性積層板 $[0_2/45_2/-45_2/90_2]_s$ および $[0_2/60_2/-60_2]_s$ の 80°C 環境における熱残留応力緩和に伴う経時ひずみ変化について、解析結果と実験結果を合わせて図 7、図 8 に示す。試験はそれぞれの積層構成で 4 本ずつ行い、代表的な 2 本を図に示したが、すべての試験片が膨張する傾向を示した。試験では吸湿変形が懸念されたが、試験前後で試験片の重量は変化しておらず、よって吸湿以外の因子による変形である。つまり、硬化温度からの冷却により樹脂に生じる熱収縮が繊維によって拘束された際に生じる熱応力が時間とともに緩和され、その結果、積層板が膨張する挙動を示すことになったと言える。擬似等方性積層板において、吸湿以外の要因で $10\mu\text{ε}$ レベルの変形を示すことが分かった。熱残留応力の緩和は十分に大きく、設計の際に考慮に入れる必要がある。

図 7 および図 8 の曲線は古典積層理論を用いた計算値を示している。破線はフィジカルエージングによる収縮ひずみを考慮に入れない場合であり、実線はフィジカルエージングによる収縮ひずみを考慮した場合である。以下に計算における条件を確認する。

- ① 繊維方向を線形弾性体、繊維直交方向を粘弾性体と仮定し、各方向の層の剛性を変換剛性係数 $\bar{Q}_{ij}$ により求める。
- ② 平均熱膨張係数と応力フリー温度から試験温度までの温度変化 ΔT より熱残留応力を求める。
- ③ 実験における温度慣らしを考慮するために、式 (6) において $t = 3.5\text{hr}$ を初期値、すなわち実験値の $t = 0\text{hr}$ とみなす。

図 7、8 における計算値と実験値の $0 \sim 100\text{hr}$ に見られる誤差は、上記計算の仮定および条件に起因すると考えられる。一般的に複合材の繊維方向は線形粘弾性体として取り扱うため、本研究において繊維方向は線形弾性体と

みなして計算を行っている。実際に繊維を線形弾性体、樹脂を粘弾性体として複合則より繊維方向を粘弾性体として取り扱ったところ、樹脂の緩和による弾性率変化は繊維の弾性率と比較して微小であり、無視できることを確認している。すなわち繊維方向においては応力緩和が発生しないとした仮定①が妥当であることを確認している。また仮定②は Cowley らの実験によって熱残留応力が正しく計算されることが実証されている⁽¹¹⁾。

試験片には計測を開始する時点において冷却時間3時間および温度慣らし0.5時間の計3.5時間の熱履歴が与えられており、解析結果ではその影響を考慮する必要がある。積層板内部には各層の熱膨張率のミスマッチによって冷却過程から徐々に層間応力が発生し、その層間応力は樹脂の粘弾性特性に起因して緩和する。その応力緩和を表現するために式(6)のように弾性率を変化させる。今回の実験において冷却時間および温度慣らし中に進化したと考えられる緩和を考慮するために、式(6)において $t=3.5\text{hr}$ を初期値とした弾性率を古典積層理論に適用した(仮定③)。実際の試験では、冷却中の温度変化により層間応力と粘弾性係数が時々刻々と変化しており、今回仮定した 80°C での層間応力が 80°C の粘弾性係数で3.5hrだけ緩和するものとは異なり、誤差を生む要因となる。特に試験時間が温度慣らし3.5hrと同程度で短い場合は大きい誤差が生じ、図7, 8のような実験結果と計算結果の差となったものと考えられる。

Fig. 7 Comparison of predicted value with experimental results ($[0_2/60_2/-60_2]_s$).

Fig. 8 Comparison of predicted value with experimental results ($[0_2/+45_2/-45_2/90_2]_s$).

古典積層理論を用いた計算値と実験値を比較すると、0時間から150時間までは実験値が予測値を上回っているが、150時間から300時間にかけてはフィジカルエージングによる収縮ひずみを考慮した計算値と一致した挙動を示していることが分かる。過去の研究においてクロスプライ積層板について解析を行い実験値との比較を行った結果、フィジカルエージングの収縮ひずみを考慮した場合と実験値が一致し、収縮ひずみを考慮しないと変形を過大評価してしまうことが分かっている⁽¹³⁾。本研究でも長時間側にてフィジカルエージングの収縮ひずみを考慮していない計算値が $2\mu\epsilon$ 程度実験値を上回っており、同様の傾向を示していることが分かる。しかし、熱残留応力緩和によって生じる経時ひずみ変化は300時間で $12\mu\epsilon$ 程度であり、フィジカルエージングによる収縮ひずみの影響は熱残留応力の緩和による変形と比較して小さいことが分かる。

以上より、古典積層理論を用いた予測手法を用いることで本実験の範囲内において長時間側のひずみ変化挙動を精度良く予測可能であることが分かった。よって、繊維方向および繊維直交方向の弾性率、熱膨張率などの材料定数に加え、繊維直交方向の補正クリープひずみより緩和弾性率を取得することで擬似等方性積層板の経時ひずみ変化のオーダーを予測できることを示した。さらに、擬似等方性積層板においてもフィジカルエージングによる収縮ひずみの影響を考慮することで、より正確な予測が可能になると考えられる。

4・4 その他の積層構成への応用

一般的に用いられる擬似等方性積層板や直交積層板では層間の熱残留応力が大きく、この場合は層間の熱残留応力緩和とフィジカルエージングの収縮ひずみを考えることで寸法変化を予測することができると確認され

た．一方で、パイプ形状など一軸方向を強化するものでは、例えば $[0/\pm 30/0]_s$ のように主に軸方向が繊維方向となるように積層する．このような場合では層間熱残留応力は小さくなるものと考えられるため、本モデルが適用できるかどうか検証した．

予測値及び実験値を図 9 に示した．ここで実験値は擬似等方性積層板の時と同様の試験より得られたものである．図 9 より、予測値は 300 時間で約 $11\mu\epsilon$ 収縮しているのに対して実験値は $7\mu\epsilon$ 程度膨張した後に僅かに収縮する傾向を示しており、一致していないことが見て取れる．これまで考えてきた積層構成はクロスプライ積層板や擬似等方性積層板など層間に発生する残留応力が大きく、その緩和が支配的となり積層板全体の経時ひずみ変化に対して影響を及ぼしてきた．しかし、今回行ったような繊維方向が長手方向に偏っている積層板では、層間に発生する応力は擬似等方性積層板などと比較して極めて小さい．このことから、積層角度の変化が小さく、層間に発生する熱残留応力が小さくなる積層構成においては、層間に発生する残留応力の緩和だけでは積層板全体のひずみ変化を考えることは難しいと考えられる．

Yunfa らは繊維と樹脂の熱膨張係数のミスマッチによって繊維/樹脂レベルでも残留応力が発生しており、その残留応力を代表要素モデル (RVE) を用いて算出している⁽¹⁸⁾．この繊維/樹脂レベルで発生した残留応力は樹脂の粘弾性特性により弾性率が低下することで緩和し、その際に繊維方向に対して膨張するような経時ひずみ変化が生じると考えられる．そこで、 $[0/\pm 30/0]_s$ のような繊維配向角の差が小さく、層間に発生する残留応力が小さい積層構成ではむしろ繊維/樹脂レベルの緩和の影響が支配的になると予想される．したがって、層間応力が小さくなるような積層構成においては、積層板構成基材の材料定数に基づき RVE などを用いて繊維/樹脂レベルの応力緩和挙動を予測する必要がある．そのためには構成基材の材料定数を新たに取得する必要がある．

$[0/\pm \theta/0]_s$ のような積層構成の積層板の経時ひずみ変化の予測を行う際に、本研究で用いたモデルが適用できる θ の範囲はある程度層間応力が大きくなるような領域でなくてはならない．擬似等方性積層板である $[0/\pm 60]_s$ やクロスプライ積層板 $[0_4/90_8]_s$ が予測可能であることを考えると θ の範囲は少なくとも $60^\circ \sim 90^\circ$ の領域を含んでいると考えられる．また、 $60^\circ \sim 45^\circ$ の領域では、層間応力が小さくなるにしたがって、実験値と予測値には誤差が生じることが予想されるが、本研究の範囲では確かめられていない．

以上、層間に生じる熱残留応力が大きくなる擬似等方性積層板やクロスプライ積層板では、層間の応力緩和を予測したモデルによって、精度良く寸法変化を予測することができるが、一方で層間応力が小さくなる積層構成では、本研究で提案したモデルでは予測することが不可能であることを示した．層間応力が小さくなる積層構成では、繊維/樹脂レベルの熱残留応力緩和を考慮しなければならないと推測される．

Fig. 9 Comparison of predicted value with experimental results of $[0/\pm 30/0]_s$ laminate at 80°C .

5. 結 言

これまで直交積層板における熱残留応力緩和およびフィジカルエージングに伴う経時ひずみ変化を予測するために使用してきた古典積層理論モデルを、任意の積層構成に拡張することを目的として調査を行った。古典積層理論において繊維方向は線形弾性体、その他の方向は全て線形粘弾性体として扱い、弾性率を時間とともに低下させることによって熱残留応力緩和を表現した。また、フィジカルエージングによって各層に生じる収縮ひずみやせん断ひずみは、一方向材の繊維直交方向に生じる収縮ひずみを座標変換することで算出し、古典積層理論に適用した。その結果、擬似等方性積層板の経時ひずみ変化を、提案した式によって予測できることを実証した。

層間に生じる残留応力が大きい擬似等方性積層板やクロスプライ積層板に対しては、層間に発生する応力の緩和が支配的となるため本モデルを用いた予測が可能であった。しかし、層間に発生する応力が小さく繊維が支配的になるような積層構成に関しては、層間に生じる残留応力の緩和ではなく繊維/樹脂レベルのミクロな領域に生じる残留応力の緩和を考慮する必要があると推測される。

謝 辞

本研究に用いた試験片は JAXA の宇都宮真様に提供していただいた。また実験装置に関しては JAXA の武田真一様、加藤久弥様にお世話になった。ここに記して感謝の意を表する。

文 献

- (1) 石川隆司, 福永久雄, 小野幸一, “熱膨張率を制御した積層複合材の設計方法”, 鉄と鋼, Vol. 9 (1989), pp. 26-33.
- (2) Kelly, A., Stearn, R.J., McCartney, L.N., “Composite materials of controlled thermal expansion”, *Composite Science and Technology*, Vol. 66 (2006), pp. 154-159.
- (3) Niels, C.J., Hans, U.N.N., Jorgen, S., “CFRP lightweight structures for extremely large telescope”, *Composite Structures*, Vol. 82 (2008), pp. 310-316.
- (4) Ozaki, T., Naito, K., Mikami, I., Yamauchi, H., “High precision composite pipes for SOLAR-B optical structure”, *Acta Astronautica*, Vol. 48 (2001), pp. 321-329.
- (5) Hinckley, C.M., “Statistical evaluation of the variation in laminated composite properties resulting from ply misalignment” *Proceeding of SPIE*, Vol. 1303 (1990), pp. 497-511.
- (6) Arao, Y., Koyanagi, J., Utsunomiya, S., Kawada, H., “Effect of ply angle misalignment on the out-of-plane deformation of symmetric cross-ply CFRP laminates: Accuracy of the ply alignment” *Composite Structure*, Vol. 93 (2011), pp. 1225-1230.
- (7) Arao, Y., Koyanagi J., Utsunomiya, S., Kawada, H., “Time-dependent out-of-plane deformation of UD-CFRP in humid environment”, *Composite Science and Technology*, Vol. 69 (2009), pp. 1720-1725.
- (8) Arao, Y., Koyanagi, J., Utsunomiya, S., Kawada, H., “Analysis of thermal deformation on honeycomb sandwich CFRP mirror”, *Mechanics of Advanced Composite Materials*, Vol. 17 (2010), pp. 328-334.
- (9) 荒尾与史彦, 小柳潤, 武田真一, 宇都宮真, 川田宏之, “CFRP 積層板における層の配向誤差による面外変形 (積層構成の熱変形に対する影響)”, 日本機械学会論文集 A 編, Vol. 77 (2011), pp. 619-628.
- (10) Arao, Y., Koyanagi, J., Utsunomiya, S., Takeda, S., Kawada, H., “Analysis of time-dependent deformation of a CFRP mirror under a hot and humid conditions”, *Mechanics of Time-Dependent Materials*, Vol. 13 (2009), pp. 183-197.
- (11) Cowley, K.D. and Beaumont, P.W.R., “The measurement and prediction of residual stresses in carbon-fibre/polymer composites”, *Composites Science and Technology*, Vol. 57 (1997), pp. 1445-1455.
- (12) Miyano, Y., Nakada M., Kasamori M., Muki R., “Effect of Physical Aging on the Creep Deformation of an Epoxy Resin,” *Mechanics of Time-Dependent Materials*, Vol. 4 (2000), pp. 9-20.
- (13) 荒尾与史彦, 奥土居由貴江, 武田真一, 小柳潤, 宇都宮真, 川田宏之, “CFRP 直交積層板の熱残留応力緩和に伴う寸法変化の予測” 日本機械学会論文集 A 編, Vol. 77 (2011), pp. 1238-1246.

- (14) Gurdal, Z., Haftka, R.T., Hajela, P., “Design and optimization of laminated composite materials”, *A Wiley-Interscience Publication*, (1999).
 - (15) Arao, Y., Koyanagi, J., Okudoi, Y., Otsuka, M., Kawada, H., “Prediction of the relaxation behavior of residual stress in CFRP cross-ply laminate”, *Journal of Solid Mechanics and Materials Engineering*, Vol. 4 (2010), pp. 1595-1604.
 - (16) Wang, J.Z., Parvatareddy, H., Chang, T., Iyengar, N., Dillard, D.A. and Reifsnider, K.L., “Physical aging behavior of high-performance composites”, *Composites Science and Technology*, Vol. 54 (1995), pp. 405-415.
 - (17) Christensen R.M., “Theory of viscoelasticity , An introduction.” *Academic press, Inc.*, (1982).
 - (18) Yunfa, Z., Zihui X., Fernand E., “Evolution and influence of residual stresses/strains of fiber reinforced laminates” *Composites Science and Technology*, Vol. 64 (2004), pp. 1613-1621.
-