

燃料電池車用水素タンクの AE による品質評価

日本フィジカルアコースティクス株式会社 西本重人

Quality evaluation of Hydrogen Tank for Fuel Cell Vehicle by AE

Nippon Physical Acoustics, Ltd Shigeto Nishimoto

キーワード：アコースティックエミッション、複合材料、欠陥、圧力容器、品質保証、自動車

1.はじめに

燃料電池車 (FCV) は、大気汚染の原因となる有害物質を排出しないゼロエミッション車である点や、エネルギー補給が二次電池式電気自動車と比較して短時間で済む点などから、環境にやさしい自動車と期待されている。しかし、この燃料電池車に搭載される水素タンクは、水素脆化を引き起こす可能性が高く、さらに大気中の酸素と爆発的燃焼を引き起こす可能性があるため、安全性は常に最重要課題となっている。しかし、CFRP(Carbon Fiber Reinforced Plastics) や GFRP(Glass Fiber Reinforced Plastics) などから構成される水素タンクは、その構造から超音波探傷などの非破壊検査技術の適用は難しく、品質保証、品質管理の観点から検査方法の開発が望まれている。これに対し、アコースティックエミッション法 (AE 法) は、従来から圧力容器の試験や、複合材料の試験等にも使用されていることから、現在、燃料用水素タンク、あるいは水素ステーションのタンクの品質管理への応用が期待されている。

タンク・容器の AE の検査方法は、1980 年代 CARP(Committee on Acoustic Emission from Reinforced Plastics)規格を原案に、その後 ASME(American Society of Mechanical Engineers)になり、非常に多くの研究がなされた¹⁾²⁾。したがって、ここであらためて解説する必要はないと思われるが、燃料電池車が実用段階に入った現在、複雑な解析や、高価な計測装置を使用することは、実用化の大きな障害となる。そこで、本論では、できるだけ簡単な方法で、さらに検査装置の費用を考慮して実用化が進められている検査方法について解説する。

なお、本論では、秘密保持の関係から、一部、試験条件等の記載がない部分や、写真に不鮮明な部分があるので、御了承をお願いする。

2.高圧水素タンク用材料の AE の基礎特性

燃料電池車では、水素は70Mpaに圧縮して貯蔵されるので、高圧水素タンクは、その高圧に耐えられる本体の強度と構造が必要となる。その構造により、タイプ1からタイプ4が存在し、車載用タンクはライナーがアルミ合金のタイプ3あるいは軽量で安価なライナーが樹脂のタイプ4などが多く利用されるようになってきた。

このような構造上、高圧水素タンクの強度を確保するために CFRP 層の品質が重要である。しかし、CFRP という構造上、上述のように超音波探傷などの非破壊検査技術の適用は難しく、さらに中層であるので、表面層の影響を除去することは難しい。そこで、本論では、この高圧水素タンク用の CFRP に関して、まず AE の基礎特性の評価方法を紹介し、次章で実機の評価方法を紹介する。

2.1 試験方法

CFRP は、繊維には炭素繊維が使用され、これを母材である樹脂で保持している。すでに知られているように、CFRP の破壊過程は、まず、母材である樹脂に亀裂が進行し、繊維を保持する力が低下してはく離を生じるようになる。さらに損傷が進行すると、繊維に応力が集中するようになり、繊維の破断が発生する。そこで、それぞれの破壊過程における AE の特徴を把握するために、樹脂単体、繊維単体の破壊試験を実施することにより、それぞれの破壊過程における AE の特徴を把握し、さらに CFRP の破壊試験を実施することにより、樹脂の破壊と繊維の破壊を除いた残りの破壊過程であるはく離の特性を把握した。試験方法としては、実際の高圧水素タンクに加わる応力は主に引っ張り方向に作用すると考えられることから、引張試験を実施した。試験の状況を図1に、また、試験条件を表1に示す。使用した AE センサは、発生する AE の周波数特性を検出するために広帯域型の AE センサを使用した。また、取り付け方法としては検出部にシリコングリースを塗布して、試験体の破壊しない平面部に押し付けた。なお、材質や、負荷応力等の詳細な試験体の条件は、秘密保持の関係から記載を差し控える。

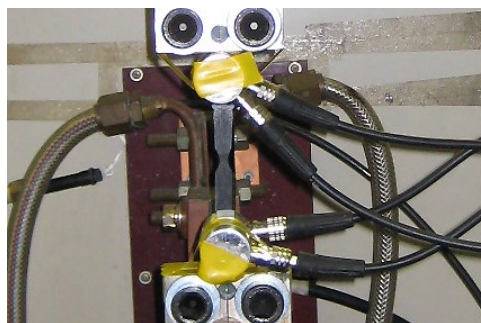


図1 試験方法

表1 試験条件

項目	条件
引張速度	5mm/min
試験体形状	W:10 L:100 t=2.9mm
ハイパスフィルタ (HPF)	30kHz
ローパスフィルタ (LPF)	1MHz
サンプリング周波数	10MHz
プリアンプ	40dB

2.2 試験結果⁴⁾⁵⁾⁶⁾

図2に、母材である樹脂単体で製作した試験体について、破壊時に計測されたAE信号とその周波数分析結果を示す。また、図3に繊維のみで製作した試験体の結果を、図4に試験後の試験体の状況を示す。

図2に示すように、樹脂単体の亀裂進展時には突発型のAEが発生する。さらに、その周波数成分は200kHz近くまで有し、特に、100kHz以下の比較的低い帯域が主成分である。これに対し、繊維の亀裂進展時には、同様に200kHz程度の周波数帯域をもつものの、主成分は樹脂と異なり、100kHz～200kHzの周波数帯域に特徴を有する。

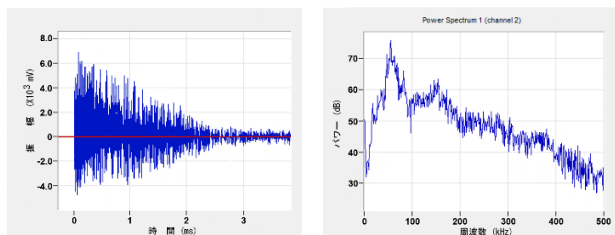


図2 樹脂単体のAE挙動

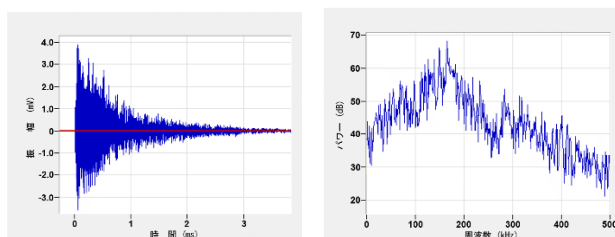


図3 繊維単体のAE挙動



図4 試験後の試験体（繊維単体）

次に、上記の試験で使用した樹脂と繊維により製作したCFRPを使用して試験体を製作し、同様の条件で引張試験を実施する。その結果、CFRPの破壊過程では、上記の樹脂や繊維で観察されたような突発型の信号が多数観察されるが、その他に、図5に示すような持続時間の長い連続型のAEが、主に破壊末期に近づくにつれて発生するのが観察される。周波数成分としては、100kHz以下の比較的低い帯域が主成分である。前述のように、CFRPの破壊過程は、まず、母材である樹脂に亀裂が進行し、繊維を保持する力が低下してはく離を生じることになる。さらに損傷が進行すると、次に繊維の破断が発生する。上記のように、樹脂、繊維の破壊時に観察されるAEの波形形状は突発型を示していることから、このCFRPから観察された持続性の長いAEは、その特徴からも、はく離の情報を含んでいると考えられる。

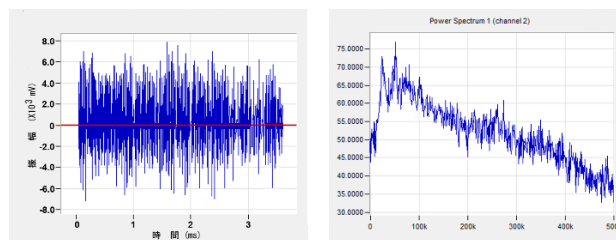


図5 CFRPの特異的なAE挙動

2.3 高圧水素タンク用材料のAEの特徴

以上のように、樹脂単体、繊維単体、CFRPの試験結果から、高圧水素タンクの破壊に至る各過程で発生するAEの特徴は下記となる。

- 1) 樹脂の破壊：
周波数成分が100kHz以下の突発型波形
- 2) 繊維の破壊：
周波数成分が100kHz～200kHz以下の突発型波形
- 3) はく離
周波数成分が100kHz以下の持続性の長い連続型

3. 実機タンクのAE挙動

上述のAEの基礎特性を応用し、実機水素タンクがパーストに至るAEの挙動を検討する。なお、実機の水素タンクのパースト試験では、樹脂の破壊自体はタンクの強度へ与える影響は小さく、樹脂の破壊が進行してはく離に移行していく過程と、繊維が破断する過程が重要である。そこで、実機の計測では、はく離の発生と進行の評価と、繊維の破断の評価に重きをおいて計測・解析している。

3.1 計測方法

試験に使用したタンクの外観を図6に示す。試験方法としては、タンクの安全を考慮して水圧で段階的に加圧していき、最終的にパースト破壊を生じさせて、発生するAEの挙動を検討する。

AEセンサは発生位置を検討するために、合計6個のAEセンサを使用して図7に示す位置に取り付けた。試験条件を表2に示す。

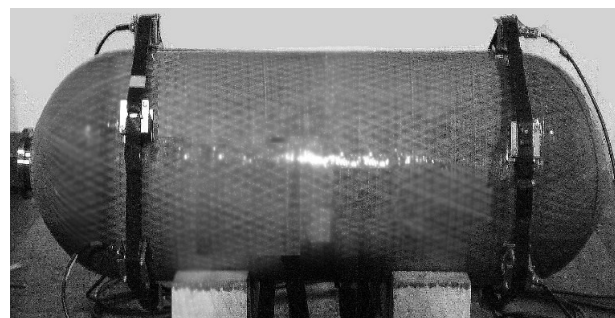


図6 試験タンク

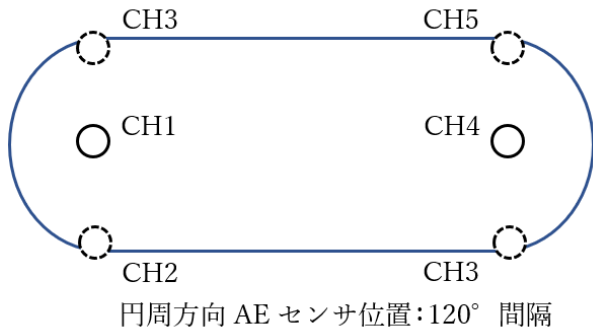


図 7 AE センサ設置位置

表 2 試験条件

項目	条件
サンプリング周波数	10MHz
プリアンプ	40dB (20dB+20dB)
ハイパスフィルタ (HPF)	30kHz
ローパスフィルタ (LPF)	1MHz
AE センサ	WSA (Physical Acoustics)

実機のタンクの AE 計測に関しては、通常の AE の計測と比較していくつかの工夫が必要である。まず、AE センサの設置であるが、タンクの表面は凸凹が大きく、強度の面からも表面を平たんに加工することはできないので、そのままでは AE センサを感度差なく取り付けることは困難である。そこで、一例として、AE センサの検出面に図 8 に示すような治具を接着し、検出点を小さくするなど、検出面の影響を小さくする工夫が必要である。

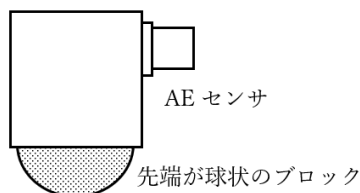


図 8 AE センサ取り付け治具

次に、上述のように、各破壊過程を区別して判断するためには、周波数成分を検討することが必要であるが、周波数分析等を実施して信号を弁別することは、CFRP のように大量に AE が発生する場合には処理することは困難である。また、装置のコスト面でも、高周波数で高速処理の要する FFT 処理などは避けたい。そこで、処理方法としては、図 9 に示すように検出された AE をバンドパスフィルタを使用して弁別し、具体的には、樹脂用、はく離用としてバンドパスフィルタ(以下 BPF) : 30kHz~100kHz を使用し、繊維用として BPF:100kHz~200kHz を使用して信号を 2 つにアナログ弁別し、それぞれの信号に対してパラメータ評価を行うことにより、低価格で高速の処理を行うことができる。なお、フィルタはアクティブフィルタを使用し、バッファおよびノイズ混入抑制の目的で、BPF の前に 20dB 増幅している。

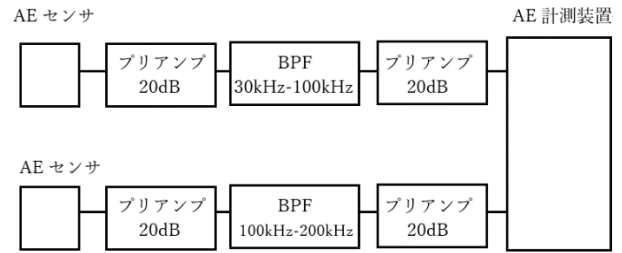


図 9 信号弁別方法

さらに、計測しきい値であるが、CFRP で構成されるタンクは、どうしても潜在的に微小な欠陥が多数存在し、振幅は小さいものの大量の AE が発生する。大量の AE が発生すると信号は連続型となるために Event の計測が困難となる。通常、AE の計測では、しきい値はできるだけ小さくすることが鉄則であるが、車載用の水素タンクの場合には、ある程度高めにしきい値を設定する必要がある。このしきい値の値は、同じ製造工程で製作されるタンクではほぼ同様の値になるが、製造工程が異なると大きく異なることから、しきい値を決定するために何回かのトライが必要である。なお、後述するが、破壊試験ではなくタンクの製造後の品質評価を行う場合には、潜在的な欠陥を評価するために、しきい値を低く設定する必要がある。

その他考慮する点として、バースト試験は破壊のエネルギーが非常に大きい。AE センサを強度高く固定していると、タンク破壊時に破壊する可能性が高い。AE センサは可能な限り外れやすくしておき、特にケーブルはできるだけ固定せず、破壊時にタンクから外れるようにしておく方がよい。

3.2 試験結果

まず、はく離の進行を評価するためのパラメータであるが、はく離は 2 章から周波数成分が 100kHz 以下であり、さらに持続性が高い AE 信号が発生する。そこで、評価としては、BPF: 30kHz~100kHz を通過した AE の、2 章の図 2、3 から仮に持続時間 3ms 以上の AE 発生数を評価した。繊維の破断の判断に関しては、繊維の破断の周波数成分は 100kHz~200kHz であるので、評価としては BPF:100kHz~200kHz を通過した AE のエネルギー値を評価した。

計測結果を図 10 に示す。最終バーストまで応力を上昇させて、発生する AE の挙動を検討した。応力上昇直後から AE の発生が観察されるが、応力上昇に伴い AE の発生は徐々に小さくなる傾向が認められる。これは、水素タンクの製造時の初期欠陥の進行により AE が発生し、その後、欠陥が小さいので、欠陥の進行が停止して AE が低下していくものと考えられる。その後、応力を大きくしていくと、持続時間の増加がまず開始し、その後少し遅れてエネルギーが増加してバースト直前にはエネルギーの急増が認められる。すなわち、応力の増加に伴いはく離が発生し、はく離の進行に伴いエネルギーの増加、すなわち繊維に応力が集中して繊維の破断が急激に進んだと考えられる。

上記より、水素タンクの破壊の予知方法としては、BPF: 30kHz~100kHz 後の AE の持続時間の増加と、BPF:100kHz~200kHz 後の AE のエネルギーの増加の評価が有効であることが分かる。

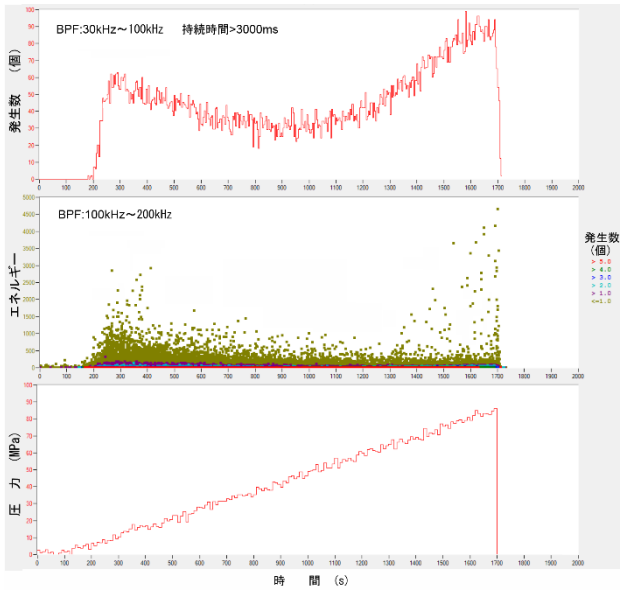


図 10 試験結果

3.3 AE の発生位置の評価

水素タンクの開発過程では、欠陥の発生しやすい位置を求めることが重要である。そこで、AE の発生位置の評価について検討した。

発生位置を計測するために、まず実機のタンクの AE の伝搬速度を計測した。ただし、実機の水素タンクでは 3 層構造となるため、中間層の CFRP の AE の伝搬時間を求めることは困難であるので、実機と同じ材質で平板の試験片を作成して伝搬速度を検討した。伝搬速度は、AE センサに電圧を与えて模擬 AE を発振させ、この発振点を中心に半径 200mm で 360° 計測して伝搬速度を求めた。表 3 に伝搬速度の計測結果例を示す。ばらつきが非常に大きいことが分かる。これは、知られているように CFRP に異方性があることや製造上、繊維の状況が場所により異なることから生じると考えられ、さらに表面層が加わるとばらつきはさらに大きくなると考えられる。今回は、計測時の AE の Event 数の低下を許容して、横波だけの評価をおこなった。

表 3 AE の音速

角 度	伝搬速度
0°	3252m/s
60°	3057m/s
120°	3621m/s
180°	3207m/s
240°	2969m/s
300°	3127m/s

図 11 に AE の発生位置の検出結果を示す。図は、BPF:100kHz ~200kHz 後の AE 信号を使用して位置を求めた結果である。すなわち、繊維の破断位置の検出に重きをおいている。図中指示部で最も多く AE が発生している。実際の水素タンクの破壊

部を図 12 に示す。おおよそ、AE の発生位置と一致している。なお、繊維の本数から考えて、位置特定できている AE の発生数が非常に少ないように思える。図 10 の結果からも同様に AE の発生数が少ないように思える。これは、CFRP ではバースト前には大量の AE が発生して連続し、時間差を利用する Event の計測ができなくなっていることと、上述のように異方性により縦波で伝搬した AE を考慮していないことから生じているものと考えられる。

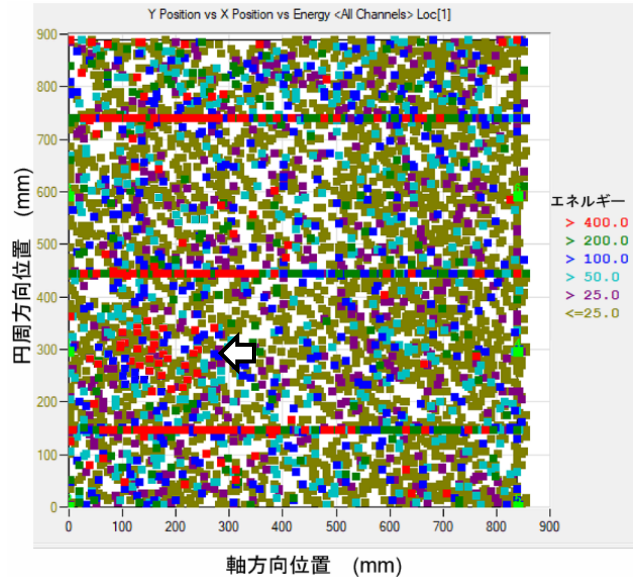


図 11 AE 発生位置

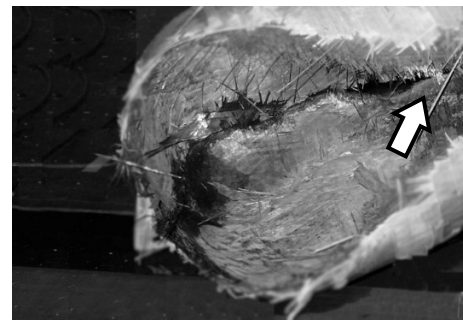


図 12 バースト状況

3.4 実機タンクの AE 挙動の特徴

実機水素タンクの AE 挙動は下記の特徴を有する。

- 1) バースト前に、最初に持続性の長いバーストが原因と考えられる AE の発生が増加する。
- 2) 上記の持続時間の増加に続き、繊維の破断によると思われる AE のエネルギーが増加し、バースト直前に急増する。
- 3) AE の位置標定は可能であるが、CFRP 中の AE 伝搬速度のばらつきが大きいため、誤差が大きい。
- 4) バースト前には、AE の発生が多くなり、連続した信号となることから評価できる AE の発生数は実際の AE の発生より少なくなる。

4. 高圧水素タンクの品質評価

上記のように、AE を使用した水素タンクの破壊評価の可能性は比較的容易であるが、さらに必要なのは品質の評価方法である。これは、製造後の製品の出荷検査、定期的な水素タンクのチェックに必須の技術である。さらに燃料電池車の普及の大きな障害となっている水素ステーションのタンクの品質評価に不可欠な技術でもある。

CFRP のタンクの品質評価方法としては、現在、ASME (American Society of Mechanical Engineers) 規格にも設定されているが⁴⁵⁾、車載用高圧水素タンクはプラスチックを含む3層構造であることや、実際には大きな応力は付加できないことから、この規格はそのまま適用することはできない。さらに、出荷検査に使用する場合、上述のように試験に使用する応力は品質の維持や検査設備の問題であまり大きくすることは困難である。また、実用面では、サイクルタイムを考慮する必要があることからより低い応力で検査できることが望ましい。車載用高圧水素タンクの品質評価方法については、知る限りまだ確立されていないと思われるが、AE によりその可能性が高くなっている。その可能性について解説する。

4.1 低応力下の AE 挙動

製造後の品質評価を考えた場合、応力を付加して検査する手法を用いるなら、付加する応力としては、破壊応力のような大きな応力を付加することはできない。最大で付加できるのは規定圧力、例えば車載用高圧水素タンクでは、30MPa や 70MPa であるが、実際にはこのような応力を付加することさえ困難であり、実用的には付加できる圧力はこの規定圧力の半分以下であると思われる。

そこで、低応力下における AE の挙動から欠陥の存在を評価できないか検討した。図 13 は、タンクに 20MPa まで段階的に応力を付加した時に発生した AE の挙動を示している。なお、解析条件は 3 章と同様の方法を使用している。応力の付加により初期欠陥から AE の発生が観察されるが、応力が増加しても、AE の発生は増加せず、エネルギーは逆に小さくなる傾向にある。

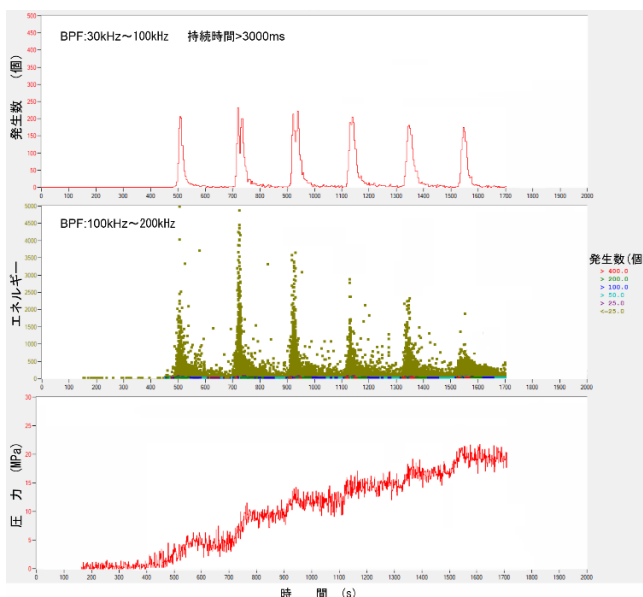


図 13 低応力下の AE 挙動

これは初期欠陥の進行が止まり、それ以上進行しないことを示している。もし、初期欠陥の中に、大きき大きく進行性が高い欠陥が存在したとすると、この応力下においても他の欠陥に対し異なる挙動を示すと考えられる。

ここで、検討するパラメータであるが、前述のように CFRP の強度ははく離の進行が重要であり、製造工程から考えても、生じる欠陥の種類としては、はく離の発生が多いと考えられる。さらに初期欠陥の進行を考えると、樹脂部の亀裂の進行程度は、亀裂の進展距離と相関のある振幅が有効ではないかと考えられる。そこで、破壊の進行でなく、水素タンクに低応力を付加して欠陥の動きを評価する本方法では、評価するパラメータは発生する AE の振幅と持続時間を検討することにした。ここで、破壊試験ではないので、評価するはく離面積は小さいと思われる。また欠陥の大きさは、はく離面積と相関があると思われるので、発生する AE の持続時間は、上記のように持続時間 3000ms 以上の発生数でなく、持続時間の数値そのものを評価している。

図 14 に、正常な水素タンクと、人工的に欠陥を付加したタンクの持続時間と振幅の関係を示す。なお、ここで欠陥としては、5mm×5mm のテープをライナーと CFRP 間に張り付けた。欠陥の存在するタンクでは、図の色は点の重なり数、すなわち発生数を示しているが、発生数が他より多く集中している分布部(水色、青色などの部分)が 10000 μ s を超える持続時間の長い方向へ増加しているのが分かる。これは、持続時間の長い AE 信号、すなわち、はく離の存在が大きいことを示していると考えられる。

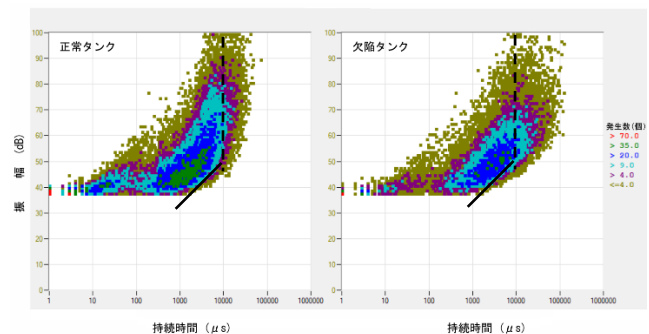


図 14 低応力下の AE の持続時間と振幅の分布

ここで、上記は人工欠陥を付加して、明らかに欠陥の存在が判断できる条件であるので判断がしやすいとも考えられる。図 15 に実製品を試験し、欠陥を調査した検査例を示すが、実際の製造品では明らかに分布の異なる①と④の判別は可能であるが、③のように欠陥が小さい場合など区別は難しい。

このような場合、威力を発揮するのが AI 技術である。図 15 のような解析図を、色と形状で示される図形と解釈して判断することは AI の解析技術のもっと得意とするところである。例えば、図 15 のデータを持続時間に重み付けをして AI に判断させた結果を図 16 に示す。これは、試験体数が 15 例だけであるが、AE 計測後にバースト試験を実施して、その破壊応力を教師として AI に判断させたものである。正常な状態と比較して、欠陥状態では数値が大きくなり、明確に区別できている。現在、この AI による判断は試験個数が少なく、まだ有効性、信頼性の確認はできていないが、新しい評価方法の一つとして有効と考える。

参考文献

- 1) CARP : Recommend Practice for Acoustic Emission Testing of Fiberglass Tanks/Vessels(1982)
- 2) C.Howard Adams : Journal of AE, Vol.1, NO.3, (1985), pp165-172
- 3) 中村、志波、諸橋：強化プラスチック, Vol.31, NO.9, P423-432
- 4) F. Lissek, A. Haeger, V. Knoblauch, S. Hloch, F. Pude and M. Kaufeld : Acoustic emission for interlaminar toughness testing of CFRP: Evaluation of the crack growth due to burst analysis, Composites, part B, (2018. 3), pp. 55 – 62
- 5) D. Baccar and D. Söffker, Proc. : Identification and classification of failure modes in laminated composites by using a multivariate statistical analysis of wavelet coefficients, Mechanical Systems and Signal Processing, Vol. 96, (2017. 11), pp. 77 – 87
- 6) M. Takizawa, H. Kawasaki, H. Nakamura, H. Sato and I. Iida : Study of the Damage Evaluation Method for the CFRP Material Using F.C.O.G part 1, Proc. in Acoustic Emission XV II , JSNDI International Acoustic Emission Symposium, (2014. 11), pp. 105 – 110
- 7) 上野谷敏之, 水谷義弘: 損傷・破壊モニタリングと評価, 材料, Vol. 55, No. 3, 2006年3月, pp. 341 – 347
- 8) ASME Boiler and Pressure Vessel Code Section V Article 11 : Acoustic Emission Examination of Fiber Reinforced Plastic Vessels , American Society for Mechanical Engineers Latest edition

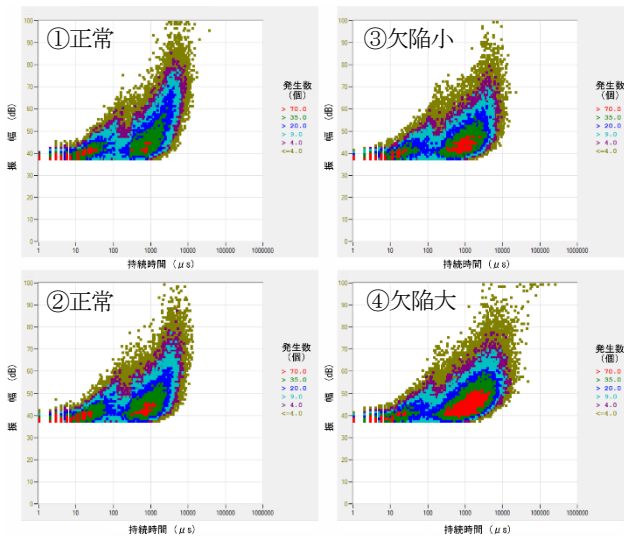


図 15 低応力下の AE の持続時間と振幅の分布

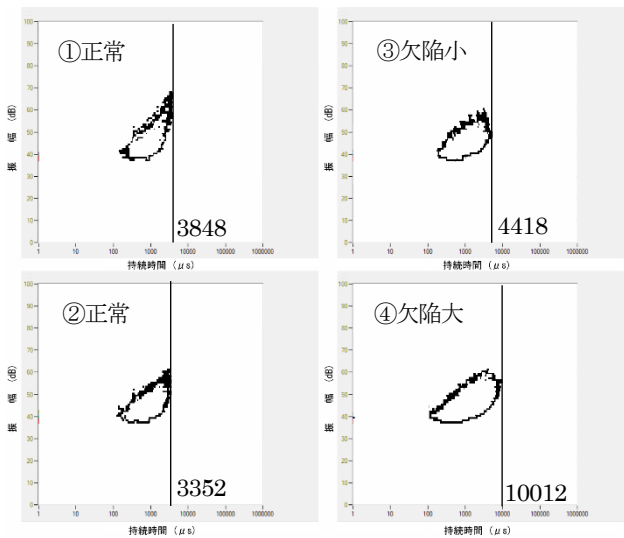


図 16 AI による判断 (持続時間)

5. おわりに

燃料電池車 (FCV) の AE による品質評価技術について、現状進められている技術について解説した。破壊の評価に関しては、基本的には従来から多数報告されている CFRP の評価技術を基盤とした技術であり、実用化段階にきていると考えられる。品質評価に関しては、解説した手法は AI 技術を利用した新しい考え方であり、まだ試験数も少なく有効性は不明確であるが、ひとつの手法として参考にして頂きたい。