極低温におけるガラス繊維分散有機複合材料の 破壊靱性と微視破壊機構

関根英樹, 藤田 淳, 穴山 武

東北大学工学部 基礎工学教室 仙台市荒巻字青葉

(1984年12月27日受理)

Fracture Toughness and Microfracture Mechanism of a Short Glass
Fiber Reinforced Polyester Composite at Cryogenic Temperature
Hideki SEKINE, Jun FUJITA and Takeshi ANAYAMA

Department of Engineering Science, Tohoku University, Sendai 980, Japan

(Received December 27, 1984)

Synopsis:

For the purpose of clarifying the fracture toughness and microfracture mechanism of fiber reinforced plastics composites at cryogenic temperature 4 K, fracture toughness tests were performed for a short glass fiber reinforced polyester composite. Acoustic emission signals were also detected during the fracture toughness tests to obtain a reasonable explanation of the microfracture mechanism. The results are summarized, as follows:

- (1) The maximum load on the load-displacement curve at 4 K increases by about three times that at room temperature 297 K.
- (2) The AE activity for the specimen at 4 K is extremely higher than that at 297 K.
- (3) The fracture toughness K_{AE} , which is defined as the critical stress intensity factor corresponding to the abrupt increase of AE energy, becomes larger with decreasing temperature below room temperature.
- (4) The fracture toughness obtained by the 5% offset procedure of ASTM standard does not agree with the fracture toughness K_{AE} .
- (5) The AE signals were discriminated into two types by the spectrum analysis and the microfracture mechanism was discussed.

1. 序 論

近年、繊維強化プラスチック (FRP) は核融合炉用超電導マグネットの電気絶縁材・熱絶縁材として期待されており、極低温における FRP の各種の性質に関する研究はきわめて重要となっている。低温における FRP の引張り強さ、圧縮強さ、破壊靱性等に関してはこれまでいくつかの研究^{1)~4)}があるが、FRP を極低温において使用するためにはさらに破壊過程における微視破壊現象の解明を含めた十分な強度研究が望まれている。

本研究では、液体ヘリウム中の繊維分散形複合材料について、微視破壊現象を解明するための有力な手法として知られているアコースティック・エミッション (AE) 法を併用した破壊靱性試験を実施し、極低温における破壊靱性および微視破壊機構に検討を加えた。

2. 実験方法

本実験に用いた材料はガラス繊維強化プラスチックであり、長さ25mm、直径13 μ mのEガラス繊維のストランドを面内に不規則に配向させたマットを8層に重ね、不飽和ポリエステルを含浸させ加熱・加圧成形

したものである。ガラス繊維の重量含有率は約60%である。*実験に使用する試験片として、板厚8 mmの供試材料よりFig. 1に示すコンパクト・テンション試験片を作製した。Gagger⁵⁾らの報告によると、チョップドストランドマット積層板の積層方向と垂直な方向の破壊靱性値は切欠先端半径にほとんど依存しない。したがって機械加工により切欠きを作成し、切欠先端半径を0.25 mmとした。

破壊靱性試験はインストロン型引張り試験機にFig. 2に示すクライオスタットを取付け、ASTM E 399-81⁶⁾に準拠して行った。ただし変位速度は1.0 mm/minとした。試験片を試験機に装着した状態で液体窒素で試験片を約1時間予冷した後に、あらかじめ別に液体窒素で冷却しておいたクライオスタットの内・外筒を試験機に取付け内筒に液体ヘリウムを外筒に液体窒素をそれぞれ注入した。温度計と液面計により試験片が完全に液体ヘリウムに漬かったことを確認した後約20分間保持して実験を開始した。実験においては荷重Pと切欠肩部開口変位 V_M をX-Yレコーダを用いて記録するとともに、Fig. 3に示すAE計測系を用いてAE信号のモニターおよび記録を行った。実験終了後計測されたAE信号のエネルギーを算定してAE累積エネルギーを算出し、また高速フーリエ変換器を用いて周波数解析を行った。

3. 実験結果の検討

液体ヘリウム温度(4 K)の場合の荷重Pと切欠肩部開口変位 V_M との関係をFig. 4に示す。図にはゲイン30 dBで検出された振幅0.25 V以上のAE信号の10秒毎の発生個数も合わせて示した。Fig. 5に室温(297 K)の場合の結果を示す。ただしこの場合変位速度は0.3 mm/minである。Fig. 4とFig. 5を比較すると4 Kの場合の最大荷重(9.8 kN)は297 Kの場合の最大荷重(3.4 kN)に比べ約3倍大きく、P- V_M 曲線は4 Kの場合の方がより非線形性を示す。また試験片温度にかかわらずP- V_M 曲線上で荷重降下が観察された。これらは297 Kの場合には最大荷重付近のみで表れるが、4 Kでは全般的に表れ、その表れ方も顕著である。AE信号の発生に関しては4 Kの場合の方が297 Kの場合より全般的にAE活性度が高く、297 Kの場

Fig. 1 Geometry of compact tension specimen.

Fig. 2 Cryostat.

* 本研究の主な目的は極低温における破壊靱性や微視破壊機構に関する基本的知見を得ることなので、実際に極低温において使用する材料を供試材料としていない。

合にはある負荷レベルを境にAE発生個数が急激に増加するが、4 Kでは負荷初期段階からAE発生個数が急激に増加する。

Fig. 3 Block diagram of acoustic emission measurement system.

Fig. 4 P- V_m curve and number of AE events for 10 seconds intervals for the specimen at 4K.

Fig. 5 P- V_m curve and number of AE events for 10 seconds intervals for the specimen at 297K.

Fig. 6 および Fig. 7 はそれぞれ 4 K および 297 K の場合にゲイン 30 dB で検出された AE 信号の AE 累積エネルギー ΣE_{AE} と応力拡大係数 K との関係を両対数表示したものである。4 K の場合の AE 累積エネルギーは 297 K の場合のそれに比べ 10^2 程度大きい。前述した荷重降下に対応して大きなエネルギーを持つ AE 信号が検出され、AE 累積エネルギーも $P-V_M$ 曲線上に表われる荷重降下に応じて増加する。Fig. 6 および Fig. 7 から $\log \Sigma E_{AE} - \log K$ 線図の関係は 2 直線近似が可能であることがわかる。AE 信号は微視破壊に伴い放出されるので、 $\Sigma E_{AE} - K$ 線図に表れる AE 累積エネルギーの急増は微視破壊が累積した損傷域の急激な拡大を示すものと考えてよい。最近、著者^{7)~9)}らは各種の FRP について AE 法を併用した破壊靱性試験を行い、AE 累積エネルギーの急増点として定義される破壊靱性値 K_{AE} が ASTM E 399 に示される 5% オフセット法から得られる破壊靱性値 K_Q とよく一致することを発見し、FRP の K_Q 値の物理的意味を明確にした。AE 累積エネルギーの急増点すなわち Fig. 6 および Fig. 7 の 2 直線の交点 (矢印) として得られる破壊靱性値 K_{AE} を Table 1 に示す。 K_{AE} 値に対応する荷重を Fig. 4 および Fig. 5 に矢印で示した。4 K の場合の K_{AE} 値は 297 K の場合の K_{AE} 値の 2.2 倍程度大きくなった。これらの値と ASTM E 399 に示される 5% オフセット法より求めた K_Q 値とを比較すると、4 K の場合には K_Q 値は $33.5 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ となり K_{AE} 値に比し小さくなり、297 K の場合には K_Q 値は $17.5 \text{ MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$ となり K_{AE} 値とよい一致をみた。Fig. 8 にガラス繊維の破断強度や FRP の破壊靱性値と温度の関係を示す。各値は室温の値で無次元化してある。○印は K_{AE} 値であり液体窒素 (77 K) の場合の結果も加えられている。▲印はガラス繊維の破断強度である¹⁰⁾。FRP の破壊靱性値、ガラス繊維の破断強度ともに低温になるにしたがい増大する。

Fig. 9 は 4 K および 297 K の場合の試験片の破面の写真を示したものである。4 K の場合はガラス繊維はストランドの状態を保ってストランド単位でガラス繊維の界面はく離や破断が生じ長く引抜け露出してい

Table 1 Fracture toughness values.

Temperature (K)	K_{AE} ($\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2}$)
4	36.9
297	16.8

Fig. 6 $\Sigma E_{AE} - K$ diagram for the specimen at 4 K.

Fig. 7 $\Sigma E_{AE} - K$ diagram for the specimen at 297 K.

Fig. 8 Strength of glass fibers and fracture toughness values versus temperature.

Fig. 9 Fracture surfaces of the specimens (a) at 4 K (b) at 297 K.

る。一方、297 K の場合にはガラス繊維はほとんど引抜けずに破断している。また、最大荷重到達後大きく荷重落下した時点で実験を中止し、巨視き裂と損傷域の観察を行った。4 K の場合には巨視き裂は全く観察されず、損傷域は切欠先端付近に拡大しているのがわかった。また 297 K の場合には切欠先端に巨視き裂が

Fig. 10 Two types of AE spectra at 4 K.

進展しており、損傷域はき裂面のごく近傍に若干観察される。

Fig. 10は4 Kの場合に周波数特性に基づき二つに分類した AE スペクトラムの典型例を示したものである。大きく二つに分類された AE 信号のうち、タイプ I の AE 信号は全般的に数多く検出された。また前述した荷重降下に対応するエネルギーの大きい AE 信号はこのタイプであった。タイプ II の AE 信号のエネルギーは負荷レベルによらず中程度の値であった。またタイプ II の AE 信号はタイプ I の AE 信号に遅れて発生している。

4. 考 察

前述したように破面および損傷域の観察結果より、4 K の場合にはガラス繊維と母材との間のはく離が生

じ長いストランドの状態で引抜け、損傷域は広範囲におよぶ。4 Kの場合にガラス繊維の引抜けが長くなることは次のようにして理解することができる。ガラス繊維の破断強度を σ_B 、界面上の摩擦応力を τ 、ガラス繊維の半径を r とすると最大引抜け長さ l_0 は次式で与えられる¹¹⁾。

$$l_0 = \sigma_B r / 2\tau \quad (1)$$

4 Kおよび297 Kの場合の引抜けたガラス繊維の表面上の母材であるポリエステルの付着の状態はほとんど同じであることから τ は第一近似的には一定であるとする事ができる。したがって、式(1)よりガラス繊維の破断強度が増すと最大引抜け長さが長くなる事がわかる。

297 Kの場合には K_{AE} 値と K_Q 値はよく一致し、4 Kの場合には K_{AE} 値と K_Q 値は一致しないが、このことは損傷域の大きさの違いにより説明できる。297 Kの場合には損傷域が試験片寸法に比べて小さく切欠先端領域に限られているが4 Kの場合には損傷域が切欠先端から遠くにまで及んでおりP-V_M 曲線が非線形性を示すので K_{AE} 値と K_Q 値が一致しない。

4 Kの場合の試験片の損傷域を側面から観察したところ、切欠先端付近を中心とした同心円上の円周方向に微小なき裂が多数存在し、中心に近い程その密度が高くなっていることが確認された。最大荷重を過ぎた後に除荷した試験片について切欠先端の損傷域を浸透探傷剤で染色した試験片の側面の写真をFig. 11に示す。これらの円周方向の微小なき裂は297 Kの場合には全く観察されていないことから、低温であるために生じたものでありP-V_M 曲線の非線形性の原因と考えられる。

破壊靱性試験中に小さな荷重降下が生じることを前述したが、これはガラス繊維のストランドの界面はく離が進展したときに生じると考えられる。つまり界面はく離が進展すると試験片のコンプライアンスが増加するが、変位制御により負荷しているので変位は増加せずに荷重降下が生じるのである。4 Kの場合に荷重降下が顕著になるのは、低温でガラス繊維の強度が増すことによりガラス繊維のストランドの不安定な界面はく離が多発するようになるからであると考えられる。

4 Kの場合に検知されたAE信号の個数が297 Kの場合のそれより桁違いに多いこともこのことから理解できる。

また、このような破壊現象の差は破壊靱性値にも表

Fig. 11 Damage zone at notch tip of the specimen at 4 K.

れる。297 Kより4 Kの場合の方がガラス繊維の強度の増加分と損傷域に必要とされる分だけ破壊エネルギーが大きくなり、 K_{AE} 値が増加すると考えられる。FRPの破壊現象や破壊靱性は強化材である繊維の破断強度に大きく依存すると言える。

4 Kの場合の破壊靱性試験中に検出されたAE信号の周波数解析の結果を検討したところ、ほとんどのAE信号はタイプIの周波数特性を持っていた。さらに荷重降下に対応して検出されたエネルギーの高いAE信号もタイプIであった。タイプIの周波数成分は金属材料におけるポップインき裂伝播の時のような周波数特性を持っている。したがってタイプIのAE信号はガラス繊維の破断・界面はく離に対応するものと考えられる。このように考えると、荷重降下とAE活性度を関連づけ説明することができる。タイプIIのAE信号は全体的にタイプIのAE信号に遅れて検出されエネルギーはほとんどすべて中程度であることから、ガラス繊維の破断・界面はく離の発生した後に生じるガラス繊維の引抜けに対応するものと考えられる。

5. 結 論

本研究では、極低温における繊維分散形複合材料についてAE法を併用した破壊靱性試験を行い次の知見を得た。

(1) 4 Kの場合の最大荷重は297 Kの場合の最大荷重の約3倍となり、P-V_M 曲線は4 Kの場合の方がより非線形性を示す。非線形性の原因としては4 Kの場合には切欠先端付近の大きな損傷域の生成が挙げられる。

(2) 4 K の場合の方が297 K の場合より全体的にAE 活性度が高い。297 K の場合にはある負荷レベルを境に AE 発生個数が急増するが、4 K では負荷初期段階から AE 発生個数が急増する。

(3) AE 累積エネルギーの急増点として定義される破壊靱性値 K_{AE} に関して、 K_{AE} 値は低温になるにしたがい増大する。4 K の場合の K_{AE} 値は297 K の場合の K_{AE} 値の2.2 倍程度大きくなった。破壊靱性値は強化材であるガラス繊維の破断強度に大きく依存する。

(4) 297 K の場合には K_{AE} 値と ASTM E 399 に示される5% オフセット法により求めた K_Q 値と一致し、4 K の場合には K_{AE} 値と K_Q 値は一致しない。

(5) 周波数解析の結果、AE 信号を大きく二つのタイプに分類し、それぞれのタイプの信号に対応する微視破壊を考察した。

謝 辞

本研究の遂行にあたり多大なご支援を頂いた東北大学工学部高橋秀明教授ならびに有益なご討論を頂いた東北大学工学部新妻弘明助教授に謝意を表します。なお液体ヘリウムの供給は東北大学低温センターによって付記し謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) K. Kadotani: *Comp.* **11** (1980) 84.
- 2) K.S. Han: *Comp.* **14** (1983) 145.
- 3) Z.G. Khim & M.W. Ng: *Adv. Cry. Eng.* **26** (1981) 280.
- 4) K.S. Han & J. Koutsky: *J. Comp. Mater.* **15** (1981) 371.
- 5) S.K. Gagger & L.J. Broutman: *ASTM STP* **631** (1977) 310.
- 6) American National Standards ANSI/ASTM E 399-81 *Annual Book of ASTM Standards* **10** (1982) 592.
- 7) H. Sekine, K. Shimomura, H. Takahashi & K. Fujino: *First Int. Symp. AE Reinforced Comp.* (1983) S3 1.
- 8) H. Sekine & Y. Ozawa: *Progress AE II* (1984) 488.
- 9) 下村慶一, 関根英樹, 高橋秀明, 岸本秀弘, 鈴木正彦, 藤埜一仁: *非破壊検査* **33** (1984) 520
- 10) N.M. Cameron: *Glass Tech.* **9** (1968) 14.
- 11) A. Kelly: *Proc. Roy. Soc. Lond. A* **319** (1970) 95.