研究論文

短繊維強化複合材料の等価剛性予測に対する
不完全接着を考慮した力学モデルの評価井上 良徳*¹, 井川 泰爾*², 岡部 朋永*³

(2016 年 4 月 14 日受付)

Validation of Micromechanics Models Including Imperfect
Interfaces for Short Fiber CompositesYoshinori INOUE,*¹ Taiji IKAWA*² and Tomonaga OKABE*³

(Received April 14, 2016)

Abstract: Micromechanics models proposed by Nairn et al. and Hashin, which can treat imperfect bonded interfaces between fibers and matrix polymers, are evaluated to utilize the models for predicting accurate deformation of injection molded parts of short fiber reinforced thermoplastics. The treatment of the imperfect interfaces is essential to deal with a difference of the interface conditions which affect mechanical properties of the parts. In contrast, general micromechanics models, such as the Mori-Tanaka (MT) model, are not appropriate because a perfect bonded interface is assumed in the models. For the evaluation of the Nairn-Hashin (NH) models, we first compare the NH models with the MT model under the condition of the perfect interface. Elastic moduli calculated from the NH models almost agreed with that from the MT model. The NH models are then evaluated by using elastic moduli measured for randomly fiber-oriented films of short glass fiber reinforced polypropylene. By considering the imperfect interface parameters estimated from pull-out tests of a single glass fiber embedded in a polypropylene matrix, the NH models predicted the measured elastic moduli.

Key words: Micromechanics model, Imperfect bonded interface, Short fiber composite, Model validation, Mechanical property

1. 緒 言

自動車産業の分野では、燃費向上および環境負荷低減の要請に伴って、車体の軽量化が進められている¹⁾。軽量化に当たっては、金属材料を樹脂系の繊維強化複合材料に代替することが盛んに行われ、適用部材に応じて多様な材料系と成形方法が検討されている²⁾。その中でも、構造部材のように高強度、高弾性率を必要としない部品

類に対しては、その優れた成形効率と複雑形状への適用の良さから、熱可塑性樹脂を短繊維（通常、数 mm 以下）で強化した複合材料を用いた射出成形法が多く使われる。

しかし、射出成形では、成形品内の部位ごとで成形加工時に材料が受ける熱や流動の履歴が異なり、それにより母材樹脂の結晶状態や繊維の配向状態が異なるものとなる³⁻⁵⁾。このため、成形品内では、弾性率などの力学特性とその異方性が部位ごとで異なり、分布が生じる。また、繊維の表面処理の違い、つまり界面状態の違いによっても力学特性は影響を受ける^{6,7)}。そこで、射出成形した複合材料の変形解析を精度よく行うためには、上記の力学特性の分布や界面状態の違いを考慮することが重要である。一般に、有限要素法などを使って部品等の変形解析を行う場合は、材料を均質体として、その等価剛性を用いて解析を行うことが多い。そこで、力学特性の分

*1,*2 (株)豊田中央研究所 材料・プロセス 2 部 (480-1192 愛知県長久手市横道 41-1)

Material & Processing Department II, Toyota Central R&D Labs., Inc.

*1 主任研究員 Senior Researcher, *2 室長 Research Manager

*3 東北大学大学院工学研究科 教授
Professor, Department of Aerospace Engineering,
Tohoku University

布や界面状態の違いを考慮して等価剛性を予測できる力学モデルが必要となる。

Tucker ら⁸⁾は、短繊維が一方方向に揃った複合材料(一方方向材料)の等価剛性の予測に対して、主要な力学モデルの評価を行い、Mori-Tanaka 理論⁹⁾および Lielens らのモデル¹⁰⁾が優れていることを報告している。しかし、Tucker らが評価したモデルも含め、これまでに提案された多くの力学モデルは、繊維と母材の2相のみを扱い、界面にて完全接着を仮定している。このため、母材樹脂や繊維の力学特性の違いは考慮できるが³⁾、界面状態の違いを扱うことができない。

界面状態の違いを扱うため、Zhao と Weng¹¹⁾および Fitoussi ら¹²⁾は、Mori-Tanaka 理論とその基礎となる Eshelby の等価介在物法¹³⁾を用いて、界面の接着性の違いを考慮できる力学モデルを提案した。しかし、これらのモデルでは、繊維端にて界面接着性の違いが考慮されていないなど、短繊維の複合材料に対しては適さない仮定が使われている。Jain ら¹⁴⁾はこの仮定を見直し、短繊維材料に適用できるモデルを報告している。しかしながら、Nairn ら¹⁵⁾は界面接着性の違い(不完全接着)を考慮した場合、繊維内の応力分布が不均一になり、等価介在物法を適用する前提条件が満たされなくなると主張している。そして、shear-lag 法に基づき、不完全接着を考慮できる力学モデルを提案した。

そこで本研究では、短繊維強化の熱可塑性樹脂複合材料の等価剛性予測に対して、Nairn らの力学モデルを取り上げ、その予測性能を評価する。なお、Nairn らのモデルでは一方方向材料における繊維軸方向の縦弾性率しか得られない。そこで、縦弾性率以外の弾性特性は、連続繊維からなる複合材料に対して Hashin¹⁶⁾により提案された力学モデルを用い、両モデルによる等価剛性の予測性能を評価する。そして、これらの力学モデルにより、不完全接着を考慮した短繊維強化複合材料の等価剛性予測が可能かを検討する。

2. 不完全接着考慮の力学モデル

長さ l_f 、半径 r_f の繊維が母材樹脂中に体積分率 V_f で分散し、全ての繊維が一方方向に揃った状態を考える。Nairn らは shear-lag 法に基づいた力学モデルを提案し、この状態の繊維軸方向の縦弾性率 E_A を次式で表した。

$$E_A = E_2 \left/ \left[1 + \left(\frac{E_f}{E_m} - 1 \right) (V_f - V_t) + \frac{E_f V_f}{E_m V_m} \Lambda(\rho) \right] \right. \quad (1)$$

ここで、 E は縦弾性率、 V は体積分率を表し、添え字 f ,

m はそれぞれ繊維および母材樹脂を表す。さらに、

$$E_2 = E_f V_f + E_m V_m, \quad V_f = \frac{r_f^2}{(r_f + \Delta)^2}, \quad V_m = 1 - V_f,$$

$$(r_f + \Delta)^2 (\rho r_f + \Delta) = \frac{\rho r_f^3}{V_f},$$

$$\Lambda(\rho) = \frac{V_m}{V_f} \frac{\frac{E_2}{E_f} \frac{t_1}{\beta_1 \rho} + \left\{ 1 + \left(1 - \frac{E_2}{E_f} \right) \frac{t_1}{\beta_1 \eta} \right\} \frac{t_2}{\beta_2 \rho}}{1 + \frac{t_1}{\beta_1 \eta} + \frac{E_2}{\eta E_f} \frac{t_2}{\beta_2}},$$

$$t_1 = \tanh(\beta_1^* \rho), \quad t_2 = \tanh(\beta_2 \rho)$$

$$\beta_1^2 = - \frac{4 G_m V_2}{E_m (V_2 + \ln V_1)},$$

$$\beta_2^2 = \frac{\frac{4 E_2}{E_f E_m}}{\frac{V_2}{2 G_f} - \frac{1}{G_m} \left(\frac{V_2}{2} + 1 + \frac{\ln V_1}{V_2} \right) + \frac{2 V_2}{r_f D_i}},$$

$$\beta_1^* = \frac{(V_1 - V_f) \beta_1}{2 V_f}, \quad \eta = \frac{E_m V_2}{r_f D_n}$$

であり、 G はせん断弾性率、 ρ は繊維のアスペクト比(= $l_f/2r_f$)を表す。また、本研究では、繊維および母材樹脂は等方性を仮定し、 $G = E/[2(1+\nu)]$ の関係を用いた。ここで、 ν はポアソン比である。

さて、Nairn らの力学モデルでは、繊維と母材の界面は仮想的なばねで繋がれているとして、そのばね定数 D_i 、 D_n により界面でのずれやすさを表す。そして、 D_i は界面が繊維軸方向にせん断変形を受ける場合のばね定数であり、 D_n は界面がその法線方向に引張変形を受ける場合のばね定数である。さらに後述されるが、 D_s は界面が繊維の円周に沿ってせん断変形を受ける場合の値である。

繊維が一方方向に揃った状態を横等方性体と仮定すると、その力学特性を表すためには、 E_A 以外に4つの弾性特性が必要である。 E_A 以外は繊維長による影響が少ないことが報告されている¹⁵⁾ ので、ここでは連続繊維を対象に Hashin より提案された力学モデルを用いた。本モデルは、全ての繊維が一方方向に揃った複合材料にて不完全接着がある場合の力学特性を一般化 self-consistent 法によりモデル化したものであり、不完全接着を仮想ばねで表す手法は元来 Hashin が提案したものである。本モデルにより、体積弾性率 K 、縦方向ポアソン比 ν_A および縦方向せん断弾性率 G_A は次のように表される。

$$K = K_m + \frac{V_f}{\frac{1}{K_e - K_m} + \frac{V_m}{K_m + G_m}} \quad (2)$$

$$\nu_A = \nu_m V_m + \nu_f V_f + \frac{(\nu_f - \nu_m) \left(\frac{1}{K_m} - \frac{1}{K_e} \right) V_m V_f}{\frac{V_m}{K_e} + \frac{V_f}{K_m} + \frac{1}{G_m}} \quad (3)$$

$$G_A = G_m + \frac{V_f}{\frac{1}{G_e - G_m} + \frac{V_m}{2G_m}} \quad (4)$$

ここで,

$$K_e = \frac{K_f}{1 + \frac{2K_f}{r_f D_n}}, \quad G_e = \frac{G_f}{1 + \frac{2G_f}{r_f D_t}}$$

である. また, 横方向せん断弾性率 G_T は次式より得られる.

$$D(g^*) = \begin{vmatrix} 1 & -1 & 1 & 1 & 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & \frac{2+\xi_m}{1-\xi_m} & 1 & \frac{\xi_m}{1+\xi_m} & -1 & 0 & 0 \\ g^* & 3g^* & 0 & 1 & -\frac{2}{1+\xi_m} & -3 & 0 & 0 \\ g^* & -3g^* & \frac{3}{1-\xi_m} & 1 & \frac{1}{1+\xi_m} & 3 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & -\frac{2}{(1+\xi_m)V_f} & -3/V_f^2 & 0 & -\frac{G_f}{G_m} \\ 0 & 0 & \frac{3V_f}{1-\xi_m} & 1 & \frac{1}{(1+\xi_m)V_f} & 3/V_f^2 & -\frac{3G_f V_f}{(1-\xi_f)G_m} & -\frac{G_f}{G_m} \\ 0 & 0 & V_f & 1 & 1/V_f & 1/V_f^2 & -V_f & -(p+1) \\ 0 & 0 & \frac{(2+\xi_m)V_f}{1-\xi_m} & 1 & \frac{\xi_m}{(1+\xi_m)V_f} & -1/V_f^2 & -\frac{(3q+2+\xi_f)V_f}{1-\xi_f} & -(q+1) \end{vmatrix} = 0 \quad (5)$$

ここで,

$$g^* = \frac{G_f}{G_m}, \quad \xi_m = \frac{G_m}{K_m}, \quad \xi_f = \frac{G_f}{K_f}, \quad p = \frac{2G_f}{r_f D_n}, \quad q = \frac{2G_f}{r_f D_s}$$

である. (5)式は g^* に関する以下の2次式となることから, その係数を(7)式より求め, (6)式を解くことで, g^* すなわち G_T が求められる¹⁶⁾. なお, 行列式 D の計算にはガウスの消去法を用いた.

$$D(g^*) = Ag^{*2} + 2Bg^* + C = 0 \quad (6)$$

$$\begin{cases} A = \frac{1}{2} [D(1) + D(-1)] - D(0), \\ B = \frac{1}{4} [D(1) - D(-1)], \\ C = D(0) \end{cases} \quad (7)$$

本モデルの適用においても, 繊維および母材樹脂は等方性を仮定し, $G = E / \{2(1+\nu)\}$ および $K = G / (1-2\nu)$ の関係を用いた.

以上より, 横等方性体の剛性マトリックスは, 上記で得られた5つの弾性特性より次で表される. (8)式にて, 座標軸1は繊維の配向方向で, 座標軸2,3はそれに垂直な方向である. また, σ, τ は応力, ϵ, γ はひずみを表す.

$$\begin{bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \tau_{23} \\ \tau_{31} \\ \tau_{12} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} Q_{11} & Q_{12} & Q_{12} & 0 & 0 & 0 \\ Q_{12} & Q_{22} & Q_{23} & 0 & 0 & 0 \\ Q_{12} & Q_{23} & Q_{22} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{2}(Q_{22} - Q_{23}) & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & Q_{66} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & Q_{66} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \epsilon_1 \\ \epsilon_2 \\ \epsilon_3 \\ \gamma_{23} \\ \gamma_{31} \\ \gamma_{12} \end{bmatrix} \quad (8)$$

ここで,

$$Q_{11} = E_A + 4K\nu_A^2, \quad Q_{22} = K + G_T, \quad Q_{66} = G_A, \\ Q_{12} = 2K\nu_A, \quad Q_{23} = K - G_T$$

である.

Nairn および Hashin の力学モデル(以後, 両者を合わせて Nairn-Hashin モデルと呼ぶ) の評価に当たって, 本研究ではガラス短繊維がランダム配向したフィルム状試験片を用いて引張試験を行った(詳細は後述する). そこで, 本試験より得られる弾性率との比較を行うため, 次の手順により, ランダム配向したフィルムに対応する弾性率を求めた.

まず, フィルム状試料であることから, 平面応力状態を仮定すると, 剛性マトリックスは次のようになる.

$$\begin{Bmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \tau_{12} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} Q_{11} & Q_{12} & 0 \\ Q_{12} & Q_{22} & 0 \\ 0 & 0 & Q_{66} \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \gamma_{12} \end{Bmatrix} \quad (9)$$

そして、フィルムの面内に x - y 座標系を考え、 x 座標が繊維の配向方向から θ だけ傾いているとすると、(9)式の座標変換より次式が得られる。

$$\begin{Bmatrix} \sigma_x \\ \sigma_y \\ \tau_{xy} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \bar{Q}_{11} & \bar{Q}_{12} & \bar{Q}_{16} \\ \bar{Q}_{12} & \bar{Q}_{22} & \bar{Q}_{26} \\ \bar{Q}_{16} & \bar{Q}_{26} & \bar{Q}_{66} \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} \varepsilon_x \\ \varepsilon_y \\ \gamma_{xy} \end{Bmatrix} \quad (10)$$

ここで、

$$\begin{Bmatrix} \bar{Q}_{11} \\ \bar{Q}_{12} \\ \bar{Q}_{22} \\ \bar{Q}_{16} \\ \bar{Q}_{26} \\ \bar{Q}_{66} \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} c^4 & 2c^2s^2 & s^4 & 4c^2s^2 \\ c^2s^2 & c^4+s^4 & c^2s^2 & -4c^2s^2 \\ s^4 & 2c^2s^2 & c^4 & 4c^2s^2 \\ c^3s & cs^3-c^3s & -cs^3 & 2(cs^3-c^3s) \\ cs^3 & c^3s-cs^3 & -c^3s & 2(c^3s-cs^3) \\ c^2s^2 & -2c^2s^2 & c^2s^2 & (c^2-s^2)^2 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} Q_{11} \\ Q_{12} \\ Q_{22} \\ Q_{66} \end{Bmatrix},$$

$$c = \cos \theta, \quad s = \sin \theta$$

である。そして、繊維長分布および繊維配向分布を考慮した複合材料全体としての剛性マトリックス A_{ij} は、laminate analogy approach¹⁷⁾ を適用し、次で表される。

$$A_{ij} = \int_0^\pi \int_{l_{\min}}^{l_{\max}} \bar{Q}_{ij} \psi(l) \phi(\theta) dl d\theta \quad (11)$$

ここで、 $\psi(l)$ は繊維長分布の確率密度関数で、 $\phi(\theta)$ は繊維配向分布の確率密度関数である。ランダム配向の場合、 $\phi(\theta)$ は全ての角度 θ で同じ値を用いる。これより、実測に対応する弾性率 E_{xx} は、次のように表される。

$$E_{xx} = \frac{A_{11}A_{22} - A_{12}^2}{A_{22}} \quad (12)$$

3. 検証実験

3.1 供試材料

検証で用いた樹脂は、ガラス繊維強化ポリプロピレン (モストロン L-2040P, プライムポリマー) である。本樹脂には、長さ 8 mm のガラス繊維 (GF) 束に 50 wt% のポリプロピレン (PP) が含浸した長繊維 PP ペレットと PP 単体ペレットが混じっており、全体で GF 含有率が 20 wt% となっている。検討では、母材樹脂の特性を調べるために、PP 単体ペレットのみの材料も用意した。GF 入りの材料については、GF を材料中に均一分散さ

せるために、混練・押出成形評価試験装置ラボプラストミル (10C100, 東洋精機製作所) を用いて混練した。混練時間は 5 分間で、その時の樹脂温度とローター回転数は繊維長が異なる材料を作製する目的で 2 条件を採用した。それらは、条件 1 (190°C, 100 rpm) と条件 2 (220°C, 25 rpm) である。なお、本混練条件が母材樹脂の劣化 (分子量低下) に及ぼす影響は、混練温度が樹脂の熱分解温度¹⁸⁾ よりも十分低く、かつローター回転によるせん断速度も十分低速である¹⁹⁾ ことから、非常に小さいと考えられる。

3.2 繊維長測定

上記で作製した GF 入り材料をるつぽに入れ、600°C のホットプレート上で 1 時間加熱して、樹脂成分を完全に燃焼させた。残った繊維をシャーレ上に広げた上で拡大画像を実体顕微鏡で撮影し、画像解析装置 (LUZEX-AP, ニレコ) により繊維長分布を測定した。

3.3 試験片作製

準備した材料それぞれについて、熱履歴の異なる 2 水準のフィルムをプレス成形により作製した。作製方法は、まず 2 枚のステンレス板に材料とスペーサー (板厚 0.1 mm) をはさみ、220°C の熱プレスにて 4 分間熔融する。その後、28°C に保持した冷プレスにステンレス板ごとすばやく移動して 4 分間保持し、急冷フィルムを作製した。一方、同様の熔融後、熱プレスより取り出したステンレス板を室温中に放置して徐冷フィルムを作製した。徐冷中の温度は、ステンレス板表面を接触温度計で測定した結果、40 分で 41°C まで低下したことから、40 分後にステンレス板よりフィルムを取り出した。引張試験で用いるダンベル形試験片 (JIS K7162-1994 5A 形) は上記で作製したフィルムを打ち抜き作製した。なお、フィルム厚さの 0.1 mm は、厚み方向での不均一性を避けるために採用した²⁰⁾。

3.4 引張試験

前節で作製したダンベル形試験片を用いて引張試験を行った。試験機は万能試験機 (5566, インストロン) であり、引張速度を 1 mm/min として、 $n=5$ で測定した。標線間ひずみは、一部の試験片を用いたビデオ伸び計による計測と市販の構造解析ソフト (ABAQUS, ダッソーシステムズ) を用いた解析の両者より、ストロークから求めたひずみの 1.25 倍であった。そこで、ひずみ量はストロークから求めたひずみを 1.25 倍して算出した。弾性率は得られた公称応力-公称ひずみ曲線より、ひずみが 0.2% と 0.3% の応力値を用いて求めた。

3.5 繊維配向観察

GFを含む急冷フィルムについては、X線CT装置(TDM-1000H-II, ヤマト科学)を用いた2次元スキャンにより、板厚方向全域に渡る繊維配向状態を観察した。

3.6 結晶化度測定

PPの急冷および徐冷フィルムについて、結晶化度を測定した。測定方法は、DSC(示差走査熱量計, Q1000, TA インストルメント)により融解熱を測定し、完全結晶での融解熱 $209 \text{ J/g}^{21)}$ との比を取ることで求めた。なお、GFが核剤としてPPの結晶化に作用する能力は小さく²²⁾、さらにGFの含有率も8 vol% (20 wt%) と低いことから、結晶化度に対するGFの影響は非常に小さいと考えられる。

4. 結果と考察

試験片作製時の急冷条件および徐冷条件の妥当性を見るために、結晶化度を測定した。測定した結晶化度は急冷サンプルにて56.8%、徐冷サンプルにて61.0%であった。PPは成形時の冷却条件によって結晶化度が異なり、その範囲は55~65%と報告されている²³⁾。今回得られた値はその範囲に入り、それぞれが上限および下限寄りの値となっていることから、今回のサンプル作製条件は成形時の急冷および徐冷を模擬した条件になっていると考える。

繊維長の測定結果をFig. 1に示す。条件1に対して、条件2は混練が弱い条件であるため、繊維長が長く保たれていることが分かる。体積平均繊維長は条件1で1.01 mm、条件2で3.00 mmであった。そこで、以後の説明では条件1の材料をPPGF-Sとし、条件2の材料をPPGF-Lとする。両材料を用いた急冷フィルムのX線CTによる繊維配向の観察結果をFig. 2に示す。フィルム厚が0.1 mmに対して繊維長が1~3 mmであるためにほぼ面内配向と考えられるが、Fig. 2よりいずれの材料でもGFは面内のあらゆる方向を向き、面内でのランダム配向が実現されていることが分かる。

さて、実測値との比較によるNairn-Hashinモデルの評価に先立ち、他の力学モデルとの比較を行った。対象としたモデルはMori-Tanaka理論である。このために、Nairn-Hashinモデルの計算では、界面での完全接着 ($1/D_t=1/D_n=1/D_s=0$) を仮定した。両モデルの計算に当たっては、母材PPの弾性率は実測値(後述のFig. 3に記載)を用い、GFの弾性率およびPPとGFのポアソン比はそれぞれ72 GPa, 0.35, 0.22を用いた^{24,25)}。また、GFの直径は実測の0.015 mmとした。比較結果を

Fig. 3に示す。ここで、実測値の表示では棒グラフにより平均値を示し、標準偏差をエラーバーで示した。Fig. 3より、Nairn-Hashinモデルにて完全接着を仮定した結果は、Mori-Tanaka理論の結果とほぼ同等であることが分かる。一方、実測値と比べると、両モデルとも高い弾性率を示している。この違いについては、次のように考

Fig. 1 Fiber length distributions.

Fig. 2 X-ray transmission images for fiber orientation measurements.

Fig. 3 Comparison of measured and calculated elastic moduli. The calculated ones are obtained under the assumption of perfect bonded interfaces.

Fig. 4 Comparison of elastic moduli calculated using fiber length distributions and averaged fiber lengths.

える。まず、PP 単体では 2 GPa 前後の弾性率が測定され、さらに一般の PP の弾性率が 1~2 GPa 程度であることから、弾性率の測定自体には大きな問題はないと考えている。一方、今回用いた樹脂ペレットは、通常、射出成形で用いられるものである。このため、サンプル作製に用いたプレス成形では、射出成形の保圧過程に相当する樹脂収縮時の加圧が充分でないために、樹脂と繊維の界面接着が十分に確立されず、低い弾性率が測定されたと考えられる。

次に、界面での完全接着の仮定のまま、繊維長分布を考慮した場合と考慮せずに平均繊維長を用いた場合の比較を行った。その結果を Fig. 4 に示す。これより、いずれのモデルでも平均値を用いた場合に弾性率はわずかに高くなるが、今回のサンプルでは大きな違いがないことが分かった。なお、以後の評価では、計算の正確性を上げるために、全ての計算は繊維長分布を考慮して行った。

さて、Fig. 3 での考察より、実サンプルでは樹脂と繊維の界面にて接着の不完全性が懸念された。そこで、Nairn-Hashin モデルを用いて、不完全接着を考慮した弾性率予測を試みた。先に述べたように、本モデルでは界面を仮想ばねで繋ぎ、変形方向に応じてそのばね定数を与えることで、各方向への界面のすべりやすさを表している。このため、方向に応じたばね定数の値が必要となるが、これらの実測値は著者の知る限り報告されていない。一方、単繊維を使ったプルアウト試験やマイクロボンド試験により、繊維の引き抜き量に対するせん断応力の関係が測定されている。この試験は界面せん断強度の測定を主目的にしたものであるが、見方を変えれば、界面に設置した仮想ばねを引き抜き方向に引張り、その

Fig. 5 Comparison of measured and calculated elastic moduli. The calculated ones are obtained using imperfect interface parameters.

時の応力つまり単位面積当たりのばね定数を測定しているとも考えることもできる。Yang ら²⁶⁾ および Mader ら²⁷⁾ は、ポリプロピレンとガラス単繊維を対象にせん断応力-引き抜き量曲線を測定した。そこで、この曲線の直線部分の傾きより、上記のばね定数に相当する値 (0.05~0.1 GPa/mm) を求め、その値を Nairn-Hashin モデルの 3 つのばね定数に共通に用いて計算を行った。

不完全接着を考慮した弾性率計算の結果を Fig. 5 に示す。ここで、計算値のエラーバーはばね定数の幅 (0.05~0.1 GPa/mm) を表す。これより、完全接着を仮定した時は、Fig. 3 に示したように弾性率の計算値は実測値よりも大きな値を示したが、Fig. 5 の結果では逆に計算値が実測値よりも小さくなっている。この理由としては、上記のプルアウト試験やマイクロボンド試験では繊維の引き抜きに伴って、界面のみが変形するだけでなく、周りの樹脂も変形を受ける。このため、ばね定数としては小さな値が見積もられ、これにより低い弾性率が計算されたと考える。しかし、界面のみの変形量 (正確には、母材物性で表すことのできない中間層も含めた変形量) を得ることは上記の試験では難しく、他の方法も見当たらない。そこで、Yang らおよび Mader らの実験結果において、繊維の引き抜き量全体に対して、界面層 (以後、中間層も含めた界面領域を指す) での変位は任意の比率で生じると仮定して、その比率と弾性率の関係を調べた。界面層の比率を考慮した弾性率計算の結果を Fig. 6 に示す。ここで、例えば比率 5% が意味するところは、5% の変位が界面層で生じ、残り 95% の変位が母材樹脂で生じるというものである。Fig. 6 より、この比率

Fig. 6 Dependence of elastic moduli on the ratio of displacement in interface area to that in matrix area.

が小さくなるに従って、界面層での変位が小さくなるため、これに応じて弾性率が高くなることから分かる。この傾向は繊維の長さおよびサンプルに依らず、ほぼ同様である。そこで次に、Fig. 6の結果と実測値を比較した (Fig. 7)。ここで、Fig. 6の結果からは、いずれのサンプルでも繊維長が短い場合に実測値に近づくように計算値を選択した。具体的には、急冷サンプルでは本比率が0.5% (界面のばね定数が15 GPa/mm) の結果を選択し、徐冷サンプルでは本比率が2.0% (界面のばね定数が3.8 GPa/mm) の結果を選んだ。これらの比率の妥当性については、それに対応する実験データがないために正確な判断は難しい。しかし、実測サンプルの作製で用いた繊維強化樹脂は市販品であり、樹脂と繊維の界面では良好な相互作用が実現されていると考えられる。このため、界面層での変位量はさほど小さくなく、0.5% および2.0% という値は概ね妥当な比率ではないかと考える。

また、冷却条件によって界面層の比率が異なる妥当性については、次のように考える。Zhou ら²⁸⁾ はポリプロ

Fig. 7 Comparison of measured and calculated elastic moduli. The calculated ones are obtained using imperfect interface parameters revised.

ピレンとガラス単繊維を用いたフラグメンテーション試験より、徐冷サンプルの界面せん断強度が急冷サンプルのものよりも小さくなることを報告している。そして、その理由として、母材 PP の分子鎖と繊維表面にある無水マレイン酸変性 PP の分子鎖の相互侵入 (絡み合い) が、徐冷サンプルでは冷却時の分子運動で緩和され、母材と界面層の相互作用が弱まっているためと考察している。本研究で使用している材料のガラス繊維で表面処理に無水マレイン酸変性 PP を用いているかは市販品のため不明であるが、何らかの表面処理剤が使用されていると考えられる。そこで、本研究の徐冷サンプルでも同様に、母材 PP 分子と表面処理剤の分子との相互作用が弱まっていると考え、界面層では変形しやすく、ばね定数としては小さな値となる。そして、小さなばね定数は大きな界面変位量の比率に相当するので、これにより徐冷サンプルにて本比率が大きくなるものと考えられる。

さて Fig. 7 より、いずれの冷却条件でも、実測値に比べ計算値にて繊維長による差が大きく出ている。計算では繊維は直線であると仮定され、繊維の湾曲があると弾性率は実測よりも高く計算される。このため、繊維長が長い試料では湾曲した繊維が増えて弾性率が高く計算され、その結果、繊維長による差が大きくなったのではないかと考える。

5. 結 言

本研究では、短繊維強化の熱可塑性樹脂複合材料の等価剛性予測に対して、界面の不完全接着を考慮できる力

学モデルとして Nairn-Hashin モデルを取り上げ、その予測性能を評価した。その結果、以下の知見を得た。

- (1) 本モデルにて、繊維/母材界面の完全接着を仮定して計算した弾性率は、Mori-Tanaka 理論より得られた弾性率とほぼ同等であった。
- (2) ガラス繊維強化ポリプロピレンを対象に、単繊維の引き抜き試験の結果より、界面の不完全接着を表すばね定数を推定し、その値を用いて本モデルにて弾性率を計算した。計算した弾性率は、引張試験より得た弾性率の実測値をほぼ表すことができた。

参 考 文 献

- 1) 高橋 淳, 鵜澤 潔, 松尾 剛, 山根正睦：未来材料, **13**, 1 (2013), 36-41.
- 2) 米山 猛：型技術, **30**, 5 (2015), 18-22.
- 3) Y. Pang, X. Dong, X. Zhang, K. Liu, E. Chen, C.C. Han & D. Wang : *Polymer*, **49** (2008), 2568-2577.
- 4) M. Avella, E. Martuscelli, C. Sellitti & E. Gargagnani : *J. Mater. Sci.*, **22** (1987), 3185-3193.
- 5) M. Akay & D. Barkley : *J. Mater. Sci.*, **26** (1991), 2731-2742.
- 6) H.F. Wu, D.W. Dwight & N.T. Huff : *Compos. Sci. Technol.*, **57** (1997), 975-983.
- 7) J.L. Thomason & G.E. Schoolenberg : *Composites*, **25**, 3 (1994), 197-203.
- 8) C.L. Tucker III & E. Liang : *Compos. Sci. Technol.*, **59** (1999), 655-671.
- 9) T. Mori & K. Tanaka : *Acta Metall.*, **21** (1973), 571-574.
- 10) G. Lielens, P. Pirotte, A. Courniot, F. Dupret & R. Keunings : *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, **29**, 1-2 (1998), 63-70.
- 11) Y.H. Zhao & G.J. Weng : *Int. J. Solids Struct.*, **34**, 4 (1997), 493-507.
- 12) J. Fitoussi, N. Bourgeois, G. Guo & D. Baptiste : *Comp. Mater. Sci.*, **5** (1996), 87-100.
- 13) J.D. Eshelby : *P. Roy. Soc. A-Math. Phys.*, **241**, 1226 (1957), 376-396.
- 14) A. Jain, Y. Abidin, W.V. Paepegem, I. Verpoest & S.V. Lomov : *Compos. Struct.*, **131** (2015), 692-706.
- 15) J.A. Nairn & M.S. Mohammadi : *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, **77** (2015), 26-36.
- 16) Z. Hashin : *Mech. Mater.*, **8** (1990), 333-348.
- 17) S.Y. Fu & B. Lauke : *Compos. Sci. Technol.*, **58** (1998), 389-400.
- 18) 高木謙行, 佐々木平三：プラスチック材料講座 [7] ポリプロピレン樹脂 (第3版), 日刊工業新聞社, 東京 (1974), p. 56.
- 19) 高橋秀郎：博士論文 (京都大学) (1990), p. 52.
- 20) Q. Zia, H.J. Radusch & R. Androsch : *Polym. Bull.*, **63** (2009), 755-771.
- 21) 大久保信明, 吉田博久：熱測定, **21**, 2 (1994), 55-60.
- 22) J.L. Thomason & A.A. Van Rooyen : *J. Mater. Sci.*, **27** (1992), 889-896.
- 23) 左納武蔵, 角五正弘：高分子, **37**, 11 (1988), 808-809.
- 24) J.L. Thomason : *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, **33** (2002), 1283-1288.
- 25) F. Garesci & S. Fliegner : *Compos. Sci. Technol.*, **85** (2013), 142-147.
- 26) L. Yang, J.L. Thomason & W. Zhu : *Compos. Part A Appl. Sci. Manuf.*, **42** (2011), 1293-1300.
- 27) E. Mader & K.H. Freitag : *Composites*, **21**, 5 (1990), 397-402.
- 28) X. Zhou, G. Dai, W. Guo & Q. Lin : *J. Appl. Polym. Sci.*, **76** (2000), 1359-1365.