研究論文

スプリッティング破壊を伴う一方向材の強度解析

武田 一朗^{*1}, 竹原 大洋^{*2}, Larissa Gorbatikh^{*3},
Stepan Lomov^{*4}, Ignaas Verpoest^{*5}

(2017 年 6 月 9 日受付)

Strength Analysis of Unidirectional Composites to Explain Fiber Bundle Splitting

Ichiro TAKETA,^{*1} Tomohiro TAKEHARA,^{*2} Larissa GORBATIKH,^{*3}
Stepan LOMOV^{*4} and Ignaas VERPOEST^{*5}

(Received June 9, 2017)

Abstract: This paper proposes a 0° tensile strength prediction model for unidirectional composites with a low interfacial strength or low matrix yield stress by investigating carbon fiber reinforced polypropylene. First, a critical cluster dimension in the presence of splitting is formulated using the principles of fracture mechanics. Based on the geometry of fiber packing, a relation between the rate of fiber breakage and the probability distribution of the cluster dimension is then derived. Lastly, the assumption that the cross-sectional area separated by splitting sustains no load is used as a discounting factor to reduce the tensile stress in the unidirectional composites; a stress-strain curve of the composites can then be predicted. The discounting factor is calculated by comparing the probability distribution for the cluster dimensions estimated from the rate of fiber breakage with that of the critical cluster dimension, both of which are functions of fiber stress. When the interfacial toughness related to the critical cluster dimension is estimated from the single-fiber pull-out test and substituted into this model, the predicted tensile strengths are in good agreement with the experimental results.

Key words: Unidirectional composites, Tensile strength prediction, Splitting, Pull-out test, Interfacial fracture toughness

1. 緒 言

生産サイクル短縮に対する要求の高まりとともに、成形時に化学反応を伴わない熱可塑性樹脂をマトリックスとした CFRP が注目を集めている。特にプリプレグは繊維を細密充填できる成形材料であるため、炭素繊維の優れた特性を最大限に発揮でき、高粘度樹脂の含浸など

に困難さはあるものの熱可塑性樹脂をマトリックスとしたプリプレグの適用も広がりつつある。中でも安価で比重 0.9 と軽量であり、自動車用途等に広く用いられているポリプロピレン (PP) 樹脂をマトリックスとしたプリプレグへの期待は大きい。

一方で、プリプレグを用いた CFRP 設計の上で特に重要な特性である 0° 引張強度について、エポキシ樹脂を含浸したプリプレグ対比、PP プリプレグを用いた一方向材は大幅に強度低下することがわかってきた¹⁾。以下に 1 mm 厚程度の一方向材で同一炭素繊維 T700S を用いた 0° 引張強度および典型的な応力-ひずみ線図 (Fig. 1) を比較した例を示す。エポキシ樹脂 # 2521R のプリプレグ (東レ) は 3 気圧、130°C、2 時間保持の条件でオートクレープ成形し、PP プリプレグ (Jonam Composites) は 3 気圧、165°C、10 分保持、冷却速度 10°C/分の条件で

^{*1,*2} 東レ株式会社複合材料研究所 (791-3193 愛媛県伊予郡松前町大字筒井 1515)

Composite Materials Research Laboratories, Toray Industries, Inc.

^{*1} 主任研究員 Research Associate, ^{*2} 所員 Research Engineer

^{*3~*5} Department of Materials Engineering, KU Leuven

^{*3} リサーチエキスパート Research Expert, ^{*4} 教授 Professor, ^{*5} 名誉教授 Professor Emeritus

Fig. 1 Difference of stress-strain curves between CF/Epoxy and PP.

Fig. 2 Typical dispersed failure of CF/PP.

プレス成形した。それぞれ繊維体積含有率 V_f は 58%, 40%で、引張強度は 2,815 MPa (CV 値 2%), 1,530 MPa (CV 値 4%) であった。 V_f で正規化した強度を比較すると、PP プリプレグ対比、エポキシプリプレグを用いて成形した一方向材は 27% 高く発現した。

草野ら²⁾ はエポキシプリプレグからなる一方向材の引張破壊過程を高速度カメラで捉え、荷重方向にほぼ垂直に繊維破断が連続的に起き、続いて繊維破断部からスプリットングが発生する様子を明らかにした。すなわち、スプリットングが強度に影響しないことを示した。一方、PP プリプレグからなる一方向材は引張試験中にスプリットングが多く発生し、長手方向に一気に進展するスプリットングによりコンポジット片が試験片から分断された。Fig. 1 に示すように顕著な剛性低下を伴いながら破断に至り、Fig. 2 に示すような箒状の破断形態を示した。Fuwa ら³⁾ はマトリックス樹脂のエポキシが硬化しているものは脆性的な破断形態、未硬化のものは箒状の破断形態を示すことを報告しており、低界面強度もしくは低マトリックス降伏応力の場合にはスプリットングが支配的な破壊モードとなる可能性を示している。

一方向材の引張強度予測モデルとしては、破断繊維が受け持っていた荷重が同一平面内に存在する全ての健全な繊維に等しく分配されると仮定した Global load sharing (GLS) モデル⁴⁾、破断繊維が受け持っていた荷

重が破断繊維近傍に存在する同一平面内の繊維に局所的な応力集中として付与される Local load sharing (LLS) モデル⁵⁾、ばね要素を用いて破断繊維周りの 3 次元的な応力再分配を考慮したモデル⁶⁻⁹⁾、など数多く報告されている。一方でスプリットングを考慮したモデルは限られ、繊維周りの樹脂剥がれを界面せん断応力の低下としてモデル化し破断繊維周りの応力分布を解いた例¹⁰⁾はあるが、スプリットングによりコンポジット片が分断されることによる引張荷重の低下を考慮したモデルは、著者の知る限り見当たらない。

本研究は、破断前に多くのスプリットングが発生し強度に影響する場合の引張強度予測モデルを構築し、低界面強度もしくは低マトリックス降伏応力の場合の引張破壊メカニズムを明らかにすることを目的としている。

2. スプリットングを考慮した 引張強度予測モデル

提案するモデルのアウトラインを下記する。まずスプリットング発生に寄与する代表区間を繊維長手方向に定義し、代表区間内に含まれる隣接した繊維破断をクラスターと見なすこととする。繊維破断の集積したクラスターからスプリットングが発生する臨界クラスター寸法を破壊力学により定式化すると共に、繊維破断率とクラスター寸法の確率分布との関係を繊維配置の幾何学的関係を元に導出する。次に繊維応力の関数である繊維破断率から推定されるクラスター寸法の確率分布と、同じく繊維応力の関数である臨界クラスター寸法との関係から、スプリットングにより分断される断面積分は荷重負担しないとして、一方向材の引張応力を低減させる割引率として定義する。スプリットングが優先して発生するため、破断部の応力集中が隣接繊維に与える影響は少ないと考え、一方向材の引張強度予測モデルの中でも GLS モデル⁴⁾ を用いてスプリットングが発生しない場合の引張応力-ひずみ関係を計算し、得られた引張応力に割引率を掛け、スプリットングによる剛性低下を考慮した引張応力ひずみ関係を計算する¹⁾。以下にモデルの詳細説明を行う。

まずクラスターからのスプリットング発生を破壊力学により定式化する。Fig. 3 において、一方向材の一部、長手方向 L 、断面積 A の円筒領域に引張荷重 F が加わり、断面積 a 、外周長 s のクラスターが存在するとする。クラスターに属する繊維は長手方向の代表区間 l 内に 1 つずつ破断点を含んでいるとする。クラスターを含む領域 I、その他の領域 II のひずみエネルギー U_I 、 U_{II} はそ

Fig. 3 Fracture mechanics model for splitting initiation.

それぞれ式(1), (2)のように求まる. ここで E_L は無損傷の一方向材弾性率, λ はクラスター内の一方向材弾性率の E_L 対比の保持率を表す.

$$U_I = \frac{1}{2\lambda E_L} \left(\frac{F}{a} \cdot \frac{\lambda E_L a}{\lambda E_L a + E_L(A-a)} \right)^2 \cdot al + \frac{1}{2E_L} \left(\frac{F}{A-a} \cdot \frac{E_L(A-a)}{\lambda E_L a + E_L(A-a)} \right)^2 \cdot (A-a)l \quad (1)$$

$$U_{II} = \frac{1}{2E_L} \left(\frac{F}{A} \right)^2 \cdot A(L-l) \quad (2)$$

F/A を無損傷の一方向材応力 σ_L と定義すると, クラスター端から進展するスプリッティングに関するエネルギー解放率 G は式(1), (2)を用いて式(3)のように求まる.

$$G = \frac{1}{s} \left(\frac{dU_I}{dl} + \frac{dU_{II}}{dl} \right) = \frac{(1-\lambda)aF^2}{2E_L A \{A - (1-\lambda)a\}s} = \frac{(1-\lambda)Aa\sigma_L^2}{2E_L \{A - (1-\lambda)a\}s} \quad (3)$$

さらに $A \gg a$ として式(3)は式(4)のように近似できる.

$$G \approx \frac{(1-\lambda)\sigma_L^2 a}{2E_L} \frac{a}{s} \quad (4)$$

ここで σ_L, E_L はそれぞれ無損傷の繊維応力 σ_f , 繊維弾性率 E_f を用いて式(5), (6)で近似できる.

$$\sigma_L \approx V_f \cdot \sigma_f \quad (5)$$

$$E_L \approx V_f \cdot E_f \quad (6)$$

式(4)~(6)を用いて G が破壊靱性値 G_c に達した際の臨界クラスター寸法 χ を式(7)のように定義する.

Fig. 4 Fiber stress distribution around fiber breakage.

$$\chi \equiv \left(\frac{a}{s} \right)^* = \frac{2G_c E_f}{(1-\lambda)V_f \sigma_f^2} \quad (7)$$

Fig. 4 に示すように破断点周りの無効長さ δ の範囲で界面に一定せん断応力 τ_y が加わり応力回復すると仮定し¹¹⁾, λ を求めた. δ は式(8)で定義される. r_f は繊維半径である.

$$\delta = \frac{\sigma_f r_f}{2\tau_y} \quad (8)$$

代表区間 l の平均回復応力 σ_r は l と δ の関係によって式(9)~(11)のように場合分けされる.

$l \leq \delta$ の場合,

$$\sigma_r = \frac{\int_0^l \left(\frac{\sigma_f(l-a_1)^2}{2\delta} + \frac{\sigma_f a_1^2}{2\delta} \right) da_1}{l \cdot l} = \frac{l}{3\delta} \sigma_f \quad (9)$$

$\delta < l \leq 2\delta$ の場合,

$$\begin{aligned} \sigma_r &= \frac{\int_0^{l-\delta} \left(\sigma_f(l-\delta-a_1) + \frac{\sigma_f}{2} \delta + \frac{\sigma_f a_1^2}{2\delta} \right) da_1}{l \cdot l} \\ &+ \frac{\int_{l-\delta}^\delta \left(\frac{\sigma_f(l-a_1)^2}{2\delta} + \frac{\sigma_f a_1^2}{2\delta} \right) da_1}{l \cdot l} \\ &+ \frac{\int_\delta^l \left(\frac{\sigma_f(l-a_1)^2}{2\delta} + \frac{\sigma_f}{2} \delta + \sigma_f(a_1-\delta) \right) da_1}{l \cdot l} \\ &= \left(1 - \frac{\delta}{l} + \frac{\delta^2}{3l^2} \right) \sigma_f \end{aligned} \quad (10)$$

$2\delta < l$ の場合,

$$\begin{aligned} \sigma_r &= \frac{\int_0^\delta \left(\sigma_f(l-\delta-a_1) + \frac{\sigma_f}{2} \delta + \frac{\sigma_f a_1^2}{2\delta} \right) da_1}{l \cdot l} \\ &+ \frac{\int_\delta^{l-\delta} \left(\sigma_f \delta + \sigma_f(l-2\delta) \right) da_1}{l \cdot l} \\ &+ \frac{\int_{l-\delta}^l \left(\frac{\sigma_f(l-a_1)^2}{2\delta} + \frac{\sigma_f}{2} \delta + \sigma_f(a_1-\delta) \right) da_1}{l \cdot l} \\ &= \left(1 - \frac{\delta}{l} + \frac{\delta^2}{3l^2} \right) \sigma_f \end{aligned} \quad (11)$$

Fig. 5 Fiber packing model to calculate relation between fiber breakage rate P_f and cluster dimension a/s .

式(9)～(11)を整理し直すと、 λ は式(12), (13)となる.

$$\lambda = \frac{l}{3\delta} \quad (l \leq \delta) \quad (12)$$

$$\lambda = 1 - \frac{\delta}{l} + \frac{\delta^2}{3l^2} \quad (\delta < l) \quad (13)$$

ここで式(4)に示すように、スプリッティング進展に関わるエネルギー解放率 G は λ の関数であり、スプリッティング進展距離に対応する l が大きくなるほど G は小さくなることがわかる。一方1章で紹介した実験において、長手方向に一気に進展するスプリッティングによりコンポジット片が試験片から分断されることが示されており、ある程度進展したスプリッティング同士は連結し、クラスター寸法が倍増することによって継続的にクラスター進展が起こった可能性が示唆された。本研究では、一旦発生したスプリッティングにより分断されたクラスター面積分は荷重負担しない、との仮定の元、モデル化を行う。

次に繊維配置の幾何学的関係を元に、繊維破断率 P_f とクラスター寸法 a/s の確率分布の関係を計算する。Fig. 5に示すように、一方向材断面に十分多くの繊維が六方充填しているとし、繊維間の中間線をスプリッティングが分断するとしてクラスター寸法を定義した。繊維周りに6方向に定義された中間線の一片の長さ u は式(14)のように表せる。

$$u = r_f \sqrt{\frac{2\pi}{3\sqrt{3}V_f}} \quad (14)$$

Fig. 5において、モデル全体の繊維本数に所定の繊維破断率 P_f を掛けた数の破断繊維がランダムに割り当てられる。隣接する破断繊維の群をクラスターと認識し、それぞれクラスター寸法 a/s を計算し、クラスター寸法

Fig. 6 Relation between cluster dimension a/s and cumulative cluster area rate (i.e. between critical cluster dimension χ and discounting factor D).

の確率分布を求める。Fig. 6には1,000×1,000本の繊維をモデル化し100回シミュレーションした結果の平均について、 P_f が0.1, 0.2, ..., 0.9となる場合の例を抽出して記している。横軸それぞれの a/s に対応する縦軸の数値は、 a/s よりも大きいクラスター寸法のクラスター群のそれぞれの面積 a の累積をモデル全体の面積で除した累積クラスター面積率を示し、従って $a/s = 0$ 時の累積クラスター面積率は繊維破断率 P_f と一致する。

ここで P_f はWeibull分布の定義¹²⁾より、試長 L_0 におけるWeibull尺度母数 σ_0 、剛性 m を用いて式(15)のように近似できる。

$$P_f \approx \frac{l}{L_0} \left(\frac{\sigma_f}{\sigma_0} \right)^m \quad (15)$$

上記シミュレーションを通じて、Fig. 6のように σ_f の関数である P_f が決まれば推定される a/s と累積クラスター面積率との関係が導かれる。一方、臨界クラスター寸法 χ 以上の a/s となるクラスターではスプリッティングが発生しており、スプリッティングにより分断されたクラスター面積分は引張応力を負担しないことから、 a/s が、 P_f 同様 σ_f の関数である χ 以上となるクラスター群の累積クラスター面積率が、スプリッティングがない場合に予想される引張応力からの低下分、割引率 D として定義される。最終的に、一方向材の引張応力 σ_{LD} は式(16)のように求まる。

$$\sigma_{LD} = \left(1 - \frac{L}{l} D(P_f, \chi) \right) \sigma_{GLS} \quad (16)$$

ここで σ_{GLS} はGLSの仮定に基づき予測された、スプリッティングが発生しない場合の引張応力であり、引張応

Fig. 7 Relation between tensile strength and representative length l .

Fig. 8 Comparison of stress-strain curves between experiment and prediction calculated with various fracture toughness G_c .

力-ひずみ関係は式(17), (18)で表される⁴⁾. また σ_f と一方向材ひずみ ϵ_L の関係は式(19)で表される.

$$\sigma_{GLS} = V_f \sigma_f \left\{ 1 - \frac{1}{2} \left(\frac{\sigma_f}{\sigma_1} \right)^{m+1} \right\} \quad (17)$$

$$\sigma_1 = \left(\frac{\sigma_0^m L_0 \tau_y}{r_f} \right)^{\frac{1}{m+1}} \quad (18)$$

$$\sigma_f = E_f \epsilon_L \quad (19)$$

ここからは1章で紹介したPPブリブregを用いた一方向材の引張試験結果を題材に, 本モデルを用いたパラメータスタディを行う. V_f は40%, r_f は3.5 μm , E_f は230 GPaである. T700Sのワイブル係数は L_0 が10 mm, σ_0 が5,200 MPa, m が4.6とした¹³⁾. τ_y は不明であるが20 MPaと仮定した. 試験片のスパン長150 mmをモデル長 L とする一方, スプリッティング発生に寄与する代表区間 l はパラメータスタディ前には同定できないが, 様々な l を用いて計算し, 最低の引張強度をもたらし l を真の値として採用した. またスプリッティングに対す

Fig. 9 Relation between embedded length, pull-out load and interfacial shear strength.

る破壊靱性 G_c は25, 30, 50, 100, 200 J/m² のそれぞれのケースでシミュレーションを行い, 実験値と強度が一致する l と G_c の組合せを探索した. Fig. 7 にまとめたとおり, $l=1.25\delta$, $G_c=30 \text{ J/m}^2$ の場合に最もよく実験値を再現できた. Fig. 8 には $l=1.25\delta$ の場合に G_c を変化した際の応力-ひずみ線図を実験値と比較しており, 同様に $G_c=30 \text{ J/m}^2$ の際によく一致することを確認した.

3. 界面靱性値の取得

2章のPPブリブregを用いた一方向材の引張強度予測において, 未知数であった繊維破断部の界面に加わる一定の界面せん断応力 τ_y およびスプリッティングに対する破壊靱性値, すなわちせん断破壊に関する界面靱性値 G_c について, 単糸プルアウト試験により取得を試みた.

Fig. 1の試験で用いたPPブリブregの樹脂グレードは不明であるが, 同様と推定される無水マレイン酸変性PPを用いてプルアウト試験を実施した. 210°Cで溶融したPPにT700S単糸を挿入後, 10°C/分で冷却して得た試験片で単糸引抜時の荷重を測定した結果をFig. 9にまとめた. 埋め込み深さ h が小さくなるほど界面せん断強度 τ_y が高くなる傾向にあるが, 一方で引抜き荷重 P に注目すると埋め込み深さに関わらずほぼ一定となることがわかった. τ_y としては式(20)に従い, 界面全域で均一なせん断応力分布に近づいているであろう埋め込み深さが小さい領域を参照し, 概ね20 MPaと推定した. これは2章のシミュレーション条件と一致する.

$$\tau_y = \frac{P}{2\pi r_f h} \quad (20)$$

Fig. 10 には典型的なプルアウト試験における荷重-変位線図を示しているが, ピーク荷重を迎えた後, 一気に引抜きが起きている様子がわかる. 埋め込み端に微小な

Fig. 10 Typical load-displacement curve of pull-out test.

Fig. 11 Fracture mechanics model for pull-out test.

剥がれを仮定し、エネルギー解放率が界面靱性値を超えた際にスプリッティングが発生し一気に引抜かれたと仮定し、Fig. 11 のような破壊力学モデルを提案した。

埋め込み端の長さ L 、半径 R の円柱状の微小領域に注目し、長さ a の剥がれが含まれる区間 A、それ以外を B と分別し、それぞれのひずみエネルギー U_A 、 U_B を式 (21)、(22) のように求めた。それらを用いてエネルギー解放率 G は式 (23) のように求まる。 E_t 、 E_m はそれぞれ繊維、樹脂の弾性率、 r_f は繊維半径を表す。

$$U_A = \left(\frac{P}{\pi r_f^2} \right)^2 \frac{1}{2E_t} \pi r_f^2 a \quad (21)$$

$$U_B = \left(\frac{P}{\pi R^2} \right)^2 \frac{1}{2 \left\{ \frac{E_t \pi r_f^2 + E_m (\pi R^2 - \pi r_f^2)}{\pi R^2} \right\}} \times \pi R^2 (L - a) \quad (22)$$

$$G = \frac{1}{2\pi r_f} \left(\frac{dU_A}{da} + \frac{dU_B}{da} \right) = \frac{P^2}{4E_t \pi^2 r_f^3} \frac{\frac{E_m}{E_t} \left(1 - \frac{1}{\alpha^2} \right)}{\frac{1}{\alpha^2} + \frac{E_m}{E_t} \left(1 - \frac{1}{\alpha^2} \right)} \quad (23)$$

ここで α は R/r_f で定義され、1 より十分大きいので、 G は最終的に式 (24) のように近似される。

$$G \approx \frac{P^2}{4E_t \pi^2 r_f^3} = \frac{\sigma_t^2 r_f}{4E_t} \quad (24)$$

式 (24) は埋め込み深さの項が含まれていない。これは

Fig. 9 に示す、引抜き荷重 P の最大ピーク値が埋め込み深さに依存しない実験の傾向を捉えている。実験から得られた P の最大ピーク値は 0.1~0.15 N の範囲であり、式 (23) により計算された対応する G は 25~55 J/m² となる。プルアウト試験から得られた界面靱性値が、一方向材のスプリッティング破壊の破壊靱性値と同一とするなら、Fig. 7, 8 に示したように界面靱性値 G_c が 30 J/m² であれば PP プリプレグを用いた一方向材の引張強度を説明できることから、2 章で提案したスプリッティングを考慮した引張強度予測モデルは主要な強度発現メカニズムを捉えていると推測された。

4. 結 言

PP プリプレグからなる一方向材を題材に、樹脂のせん断降伏応力もしくは界面せん断強度が低い場合の引張強度予測モデルを構築し、引張破断前に多くのスプリッティングが発生し強度低下をもたらすメカニズムを説明した。スプリッティング発生の際となる界面靱性値を単糸プルアウト試験により同定し、本モデルに代入したところ、予測される引張強度は実験値とよく整合した。

参 考 文 献

- 1) I. Taketa : PhD thesis, KU Leuven (2011).
- 2) 草野英昭, 青木雄一郎, 平野義鎮, 永尾陽典 : 日本複合材料学会誌, **37**, 2 (2011), 63-69.
- 3) M. Fuwa, A.R. Bunsell & B. Harris : *J. Mater. Sci.*, **10**, 12 (1975), 2062-2070.
- 4) W.A. Curtin : *J. Am. Ceram. Soc.*, **74**, 11 (1991), 2837-2845.
- 5) W.A. Curtin : *J. Compos. Mater.*, **34**, 15 (2000), 1301-1332.
- 6) T. Okabe & N. Takeda : *Composites Part A*, **33**, 10 (2002), 1327-1335.
- 7) T. Okabe, N. Takeda, Y. Kamoshida, M. Shimizu & W.A. Curtin : *Compos. Sci. Technol.*, **61**, 12 (2001), 1773-1787.
- 8) T. Okabe, H. Sekine, K. Ishii, M. Nishikawa & N. Takeda : *Compos. Sci. Technol.*, **65**, 6 (2005), 921-933.
- 9) T. Okabe, K. Ishii, M. Nishikawa & N. Takeda : *Adv. Compos. Mater.*, **19**, 3 (2010), 229-241.
- 10) A.B. de Moraes : *Compos. Sci. Technol.*, **61**, 11 (2001), 1571-1580.
- 11) A. Kelly & W.R. Tyson : *J. Mech. Phys. Sol.*, **13**, 6 (1965), 329-338.
- 12) W. Weibull : *J. Appl. Mech.*, **18** (1951), 293-297.
- 13) 渡邊 潤, 田中文彦, 岡部朋永 : 第 38 回複合材料シンポジウム (2013).