研究論文

修正 cruciform 試験に基づく CF/PC 界面引張強度の実験的評価

山田 湧太^{*1}, 高橋 健斗^{*2}, 斉藤 博嗣^{*3}, 金 原 勲^{*4}

(2018 年 3 月 17 日受付)

Experimental Evaluation of CF/PC Interfacial Tensile Strength Based on Modified Cruciform Test

Yuta YAMADA,^{*1} Kento TAKAHASHI,^{*2} Hiroshi SAITO^{*3} and Isao KIMPARA^{*4}

(Received March 17, 2018)

Abstract: In this study, we applied a modified cruciform test to the evaluation of the interfacial tensile strength (IFTS) of the carbon fiber (CF)/polycarbonate (PC) interface and evaluated the effectiveness of the evaluation method via in situ observation. Although the interfacial shear strength has been extensively analyzed in previous works with thermosetting plastics, few studies have evaluated IFTS of thermoplastics, for instance, PC. However, previous reports have stated that the cruciform test is not suitable when the fiber transverse modulus is much lower than the matrix modulus. Therefore, in the present study, the modified cruciform test was carried out with specimen in which loading arms are reinforced with CF/PC cross-ply laminates in order to induce stress concentration at the fiber surface. Debonding was observed and was found to instantly propagate along the fiber, and the IFTS was calculated as 63.1 ± 12.6 MPa on average. Thus, this investigation has revealed the IFTS of the CF/PC composite, and the effectiveness of the modified test to evaluate thermoplastic composites was confirmed.

Key words: Carbon fiber reinforced thermoplastics, Cruciform test, Interfacial tensile strength, Debonding

1. 緒 言

近年の自動車排ガス規制および燃費規制等の背景を受け、輸送機器の構造用材料の軽量化が命題とされている¹⁾。そこで、複合材料が盛んに研究対象とされ、特に、量産製造の期待から熱可塑性樹脂複合材料 (CFRTP) の検討が進められている。一般に、複合材料の破壊は材料内部において数多くのメゾスケールの破壊が発生し、樹脂や繊維樹脂界面等の破壊が集積することで材料全体と

しての破壊に至ることが知られている²⁾。特に、繊維樹脂間で発生する界面はく離は破壊の起点であり、材料特性へ顕著な影響をおよぼすことから、既往の研究において界面特性に関する検討が主に熱硬化性樹脂を中心に進められてきた^{3~24)}。

マトリックス樹脂と単繊維からなる単繊維複合材料モデル試験片を用いた繊維樹脂界面特性の評価法には、界面せん断強度 (interfacial shear strength, IFSS) と界面引張強度 (interfacial tensile strength, IFTS) が挙げ

^{*1} 金沢工業大学大学院工学研究科高信頼ものづくり専攻 大学院生 (注: 研究従事時) (921-8501 石川県野々市市扇が丘 7-1)

Graduate School of Engineering, Kanazawa Institute of Technology, 7-1 Ohgigaoka, Nonoichi, Ishikawa 921-8501, Japan

^{*2,*3} 金沢工業大学工学部機械工学科 (921-8501 石川県野々市市扇が丘 7-1)

Department of Mechanical Engineering, Kanazawa Institute of Technology, 7-1 Ohgigaoka, Nonoichi, Ishikawa 921-8501, Japan

^{*2} 大学生 (注: 研究従事時), ^{*3} 准教授

^{*4} 金沢工業大学ものづくり研究所 教授 (924-0838 石川県白山市八束穂 3-1)

Research Laboratory for Integrated Technology Systems, Kanazawa Institute of Technology, 3-1 Yatsukaho, Hakusan, Ishikawa 924-0838, Japan

られ、種々の試験法に基づいた検討が報告されている。IFSS 評価法には fragmentation 試験³⁻⁵⁾, microbond 試験^{6,7)}, pull-out 試験⁸⁻¹⁰⁾, push-in 試験¹¹⁾ など数多くの試験法が提案され、また、IFTS 評価法には Broutman 試験¹²⁻¹⁵⁾, transverse 試験¹⁶⁻¹⁸⁾, cruciform 試験¹⁹⁻²⁴⁾ が提案されている。その中でも、cruciform 試験は短冊状の試験片に引張方向に対して直行方向に単繊維を埋め込み、同箇所へ繊維に沿って広く十字形状となるように樹脂の余剰領域を設けた試験片を用いた試験法である。十字形状とすることで単繊維端に生じる応力特異性を排除し、試験片中央の繊維樹脂界面において引張負荷による界面はく離を観察する試験片形状である。近年の検討において、cruciform 試験に基づきガラス繊維 (GF) 強化エポキシ (EP) 樹脂複合材料の IFTS が報告されている²²⁻²⁴⁾。熱硬化樹脂をマトリックスとした複合材料への有用性について議論される一方で、熱可塑性樹脂に関するものは著者の知る限り未検討であり、同材料の機械的特性を決定付ける上で十分な検討が行われたとは言い難い。

また、Gundel ら²⁰⁾ は極小径の繊維 (数 μm から数十 μm) を対象とする場合、樹脂を介して試験片長手方向の荷重が界面へ伝達されないため、試験片隅部およびつかみ部の界面近傍以外へ応力集中が分散することで、界面破壊より樹脂破壊が先行して発生することに言及している。そのため、補強材を用いて応力集中箇所を限定する修正 cruciform 試験が提案されている一方で、同氏ら²⁰⁾ の検討において同法に基づき熱可塑性樹脂を評価した事例はなく、セラミックス基複合材料を用いた限定的な評価である。したがって、異なる材料系への同試験法の応用および有用性の検討は残存する研究課題である。

加えて、材料設計をおこなうにあたり有限要素解析 (finite element analysis, FEA) による解析的検討をおこなう上で IFTS が重要な因子となる。界面の破壊初生および進展を解析的に表現するために結合力要素法による解析手法が提案され、様々な検討が進められている²⁵⁻²⁷⁾。界面破壊を解析的に表現する有用な評価手法である一方、著者の知る範囲において、上記の界面特性、特に、実測に基づく IFTS を用いた研究事例は少なく、任意の値による界面特性の変化がき裂挙動におよぼすパラメトリックな検討²⁵⁾、もしくは IFSS と IFTS を同値と仮定した解析的検討²⁶⁾ に留まっている。したがって、より高精度に界面破壊をシミュレートするために IFTS は最も重要な因子の一つになり得ることから実験的検討が求められる。

本研究では Gundel ら²⁰⁾ の修正 cruciform 試験に基づ

Fig. 1 Interfacial normal stress vs. distance along fiber.²⁰⁾

き CF/PC の IFTS に関する実験的検討から同試験法の複合材料評価への有用性の検討をおこなった。はじめに、FEA より最適な試験片形状を検討し、決定した試験片形状の応力分布から応力集中係数 (stress concentration factor, SCF) を確認した。この値は公称応力に乗算することで IFTS が導出され、また、先行研究および先行研究と同系の材料を用いた修正 cruciform 試験との比較より妥当性を検証した。

2. 評価方法

2.1 修正 cruciform 試験

Gundel ら²⁰⁾ の取組みによると、界面への応力と繊維および樹脂の弾性率の関係について繊維横弾性率に対する樹脂の弾性率比が 10 を下回る場合、界面へ作用する応力は試験片隅部やつかみ部などの樹脂へ作用する応力に対して極端に小さい値となることから、界面近傍への応力の分散が生じる懸念があるとしている。そのため、同氏らは応力集中範囲を補強材の頂点を挟む二点間 (繊維界面近傍) へ限定する修正 cruciform 試験²⁰⁾ を提案している。Fig. 1 に示すように補強材を用いることにより応力集中範囲を試験片幅方向に対して限定することを狙った試験片形状である。

2.2 有限要素法解析による最適試験片形状の検討

繊維樹脂界面へ有効に応力が作用する試験片形状を検討し、界面近傍に作用する応力を用いて公称応力に対する SCF を確認することを目的として FEA をおこなった。本研究では補強材に炭素繊維 (CF) と母材にポリカーボネイト (PC) 樹脂を想定して汎用有限要素解析ソフト MSC.Marc および Mentat2013.1.0 を使用した。Fig. 2 に示すように試験片形状が x - y - z 面に対して対称であ

Fig. 2 Illustration of finite element analysis model.

Table 1 Elastic properties of fiber and matrix.

	CF ⁽³⁰⁾	PC ⁽²⁹⁾	GF ⁽²³⁾	EP ⁽²³⁾
Elastic constants				
E_{11} [GPa]	235			
E_{22} [GPa]	28	2.25	76	4.28
E_{33} [GPa]	28			
ν_{12}	0.28			
ν_{23}	0.33	0.35	0.22	0.42
ν_{31}	0.02			
G_{12} [GPa]	24			
G_{23} [GPa]	7.2	0.83	38	2.1
G_{31} [GPa]	24			

ることから、1/8 モデルを用いて対称面に対して変位拘束を指示した。また、補強材間標点距離に対する変位量がひずみ 1% となるように任意の寸法に変化させた各モデルにおいて試験片長手方向に最大の面に対して変位拘束を指示し、要素は 8 接点六面体要素を使用して、後述するモデル寸法により多少の変化はあるがおおよそ要素：37,000、接点数：32,000 でおこなった。繊維樹脂界面の応力勾配が大きい領域は要素を細かく分割した。材料定数を Table 1 に示す。補強材の接着に用いたシアノアクリレート系接着剤の材料定数は文献⁽²⁸⁾を参考にして、ヤング率 1.7 GPa およびポアソン比 0.4 とした。ここで、小柳ら⁽²³⁾は高分子材料が非弾性-ひずみ関係を有することから、樹脂の非線形を考慮する必要があることに言及している。そのため、PC 樹脂の応力-ひずみ関係を文献値⁽²⁹⁾を参照し、降伏点（降伏応力：63 MPa、降伏ひずみ：5%）までの領域と降伏点から破断点（破断応力：68 MPa、破断ひずみ：90%）までの組成域を二直線近似することで樹脂の非線形挙動を考慮した解析モデルとした。また、EP についても同様に文献値⁽³⁰⁾を参照し、二直

Fig. 3 Geometry of revised cruciform specimen.

線近似により非線形挙動を考慮したモデルとした。Table 1 には両樹脂とも弾性域のヤング率を示す。

試験片形状に関して、その場観察による界面はく離の観察が可能である試験片幅を 5.0 mm とした。単繊維が配置された箇所における幅は萩原ら⁽²²⁾の取組みを参考に、試験片幅に対して十分に大きい寸法とするため余剰樹脂領域 $2l$ を 8.0 mm とした。また、最適な試験片形状を検討するため Fig. 3 に示すように負荷方向樹脂距離 $2w$ と補強材間長 $2h$ を任意の値に変化させる応力解析をおこなった。それぞれ、 $2w$ は 1.0 mm, 2.0 mm, 3.0 mm ($2h=2.0$ mm で固定)、 $2h$ は 1.0 mm, 2.0 mm, 3.0 mm ($2w=2.0$ mm で固定) とした。また、補強材 (face sheet, f.c.) 厚 t_{fc} およびモノフィラメント厚 t_{film} は次項に詳細を示す試験片作製工程における実測に基づきそれぞれ、 $t_{fc}=0.30$ mm と $t_{film}=0.070$ mm とした。

加えて、修正 cruciform 試験の妥当性評価のため、前述の解析モデルと解析条件に準じ、Table 1 に示すように材料定数と繊維径を変更させることで GF/EP 試験片についても同様に SCF の確認のため FEA をおこなった。

2.3 解析結果

本試験の性質上、実験的に測定可能な基準応力は補強材を含む試験片つかみ部であるため、同箇所へ作用する力の和より求まる公称応力を基準応力として繊維近傍に生じる界面引張応力を正規化することで SCF を確認した。また、既往の研究^(19~24)で報告される cruciform 試験に基づく検討においても同様に、任意の変位による境界条件を設定した FEA より SCF を確認していることから、導出方法としては従来法に則した妥当性のある方法であることに留意されたい。ここで、解析結果を Fig. 4 および Fig. 5 に示す。Fig. 4 は試験片および補強材の寸

Fig. 4 Parametric study results of stress concentration factor (SCF) affected by varied face sheet gage length $2h$ (Constant $2w = 2.0$).

Fig. 5 Parametric study results of stress concentration factor (SCF) affected by varied vertical direction length of extra resin field $2w$ (Constant $2h=2.0$).

法を Fig. 3(a) に示す寸法で固定し、繊維が埋め込まれた余剰樹脂領域の試験片長手方向の長さ $2w$ を 1.0 mm, 2.0 mm, 3.0 mm と変化させた場合の試験片中央に生じる応力分布を示す。同図において、縦軸は SCF, 横軸は試験片中央から端面へ繊維樹脂界面に沿った中心距離 x である。この図より、単繊維端における応力特異点を排除し、試験片中央における応力集中が生じる形状を確認したことから、同箇所における界面はく離が観察されることが考えられる。また、 $2h$ の増大に伴い SCF が低く

Fig. 6 Geometry of revised cruciform specimen.

見積られる傾向を示した。一方で、試験片幅に対する試験片中央における顕著な応力集中は確認されず、SCF についても顕著な差異は認められない傾向が示された。次に、Fig. 5 に Fig. 3(b) に示す試験片寸法による任意の補強材評点間距離 $2w$ と中心距離 x の関係を示す。同図より、 $2w$ の変更による解析の有意差は確認されなかった。以上より、試験片作製工程に留意して $2w=2.0$ mm および $2h=2.0$ mm の寸法を採用した。決定した試験片形状による FEA の結果、CF/PC 試験片で SCF として 22.0 を確認した。また、同解析条件により GF/EP 試験片も同様に応力解析をおこない、その結果、SCF として 16.7 を確認した。

3. 材料および試験片

本研究で用いた材料は繊維に炭素繊維（東邦テナックス, HTS40-12k）、樹脂にポリカーボネイトフィルム（厚さ 35 mm, ミツヤ）である。ホットプレス（HC300-15, アズワン）を使用して、保持温度 240°C, 保持圧力 1 MPa, 保持時間 1 min の成形条件より、単繊維の埋め込まれたモノフィラメントフィルムを作製した。作製したモノフィラメントフィルムから、前項で決定した試験片形状に切り出しをおこなった。PC の接着性を考慮するため CF/PC セミプレグ（ミツヤ）を用いて成形した直交積層板から Fig. 6 に示す寸法で補強材を作製し、接着剤には中粘度シアノアクリレート系接着剤（PT-02, Zap）を使用して接着した。本研究では先行研究^{18,22-24}より報告されている GF/EP の IFTS との比較から修正 cruciform 試験の妥当性を評価することを目的としてガラス繊維（ERS2310-232, セントラルファイバー）とエポキシ樹脂（主剤：JER828, 三菱化学, 硬化剤：LV11, 三菱化学）を用いて Fig. 6 と同寸法の GF/EP 試験片を用い

Fig. 7 Setup for in-situ observation.

た評価をおこなった。プリプレグ (T800SC/#2592, 東レ) を用いて、オートクレーブ成形より直交積層板から Fig. 6 に示す寸法で補強材を作製した。

4. 実験的評価

4.1 試験条件

作製した試験片を用いて修正 cruciform 試験をおこなった。試験機は卓上万能試験機 (AGS-X, 島津製作所, 秤量 500 N) を使用した。試験機のカロスヘッド移動速度を 0.05 mm/min として、スポットライト (LA-50USW, HAYASHI) を用いて界面はく離のその場観察を容易にした。なお、CF/PC および GF/EP 試験片に対して同条件で試験をおこなった。Fig. 7 に試験セットアップを示す。

4.2 試験結果

Fig. 8 に CF/PC 試験片を用いた修正 cruciform 試験より観察された界面はく離を示す。同図の左下に示す値は界面はく離が観察された荷重値である。界面はく離は補強材間の試験片中央における繊維樹脂界面において観察され、はく離の初生後、即座に繊維に沿って試験片幅方向へ全域的に進展したことから高い応力集中が界面近傍へ作用していたことが考えられる。界面はく離初生時の荷重値に対し、2.3 節より得られた SCF を乗算した IFTS を求めた結果、CF/PC および GF/EP の平均界面引張強度としてそれぞれ 63.1 ± 12.6 MPa, および 37.6 ± 5.62 MPa が得られた。

4.3 先行研究との比較に基づく整合性の検証

本項では先行研究との比較より修正 cruciform 試験の妥当性を検証した。ここで、既往の研究において本研究と同系の材料を用いた IFTS に関する検討が報告されていないことから、既往の資料を用いた直接的な比較がおこなえないことに留意されたい。

Fig. 8 Revised cruciform test results for CF/PC specimen by in-situ observation (upper) and binary format image based on in-situ observation results (lower).

Fig. 9 に修正 cruciform 試験に基づく本研究結果および cruciform 試験に基づく先行研究結果^{18,22~24)}を示す。同図より、従来、先行研究において報告される IFTS は総体的に約 30~70 MPa で分布することから、現状で IFTS の実測はばらつきの程度が大きく、また cruciform 試験が再現性の低い評価法であることが推察される。このように IFTS の定量的検討について議論の余地

Fig. 9 Comparison between IFTS based on revised cruciform test and cruciform test.

がある一方で、本研究の範囲内において GF/EP の IFTS として 37.6 ± 5.62 MPa が得られた。この値は先行研究のばらつき内であることから概ね妥当性のある値であることが示唆された。以上より、修正 cruciform 試験に基づく IFTS 評価の妥当性が示され、同法に基づく複合材料評価の有用性が示された。また、同評価法に基づく CF/PC の IFTS についても同様に妥当性の高い検討結果であることが考えられる。

一方で、CF/PC は GF/EP に対して、IFTS およびばらつきの程度が大きい傾向を示したことから、試験精度が十分に制御できない可能性が示唆された。この原因には補強材と接着性および熱可塑性樹脂の樹脂特性が試験結果へ影響をおよぼしたことが考えられる。FEA により SCF を確認した際に、樹脂フィルム、補強および接着剤の要素を同じ形状として接着を表現した応力解析をおこなった。一方で、試験片作製工程における接着不良などの人為的な作業に起因する解析条件との相違が SCF の課題評価の原因の一つであることが考えられる。PC の破断ひずみ⁽²⁹⁾ 約 80~100% に対して、EP は約 5%⁽³⁰⁾ と著しい差異があることから、PC では特に評価部である補強材間における応力集中に伴い、界面はく離が形成されると同時に局所的な塑性変形が生じやすい応力状態にあると考えられる。そのため、CF/PC の試験では、試験片に与えられた荷重より、樹脂の塑性変形を伴いながら界面はく離が形成されることから、見かけの IFTS が向上することが考えられる。つまり、CF/PC の IFTS は樹

脂特性が加味された強度であり、CF/PC の IFTS は見かけ上 GF/EP より高い値であることが考えられる。この点を踏まえると、CF/PC の試験より得られた IFTS のばらつきが GF/EP の試験のそれより大きい点についてよく説明され、補強材とモノフィラメントフィルムの境界や試験片の十字形状交差部が応力を受け持つことから、界面への応力集中が分散し、試験結果精度へ影響をおよぼすことが考えられる。

5. 結 言

修正 cruciform 試験を複合材料モデル試験片へ応用するため FEA をおこない最適試験片形状を検討した。その結果、GF/EP および CF/PC 試験片で応力集中係数としてそれぞれ 22.0 および 17.6 を確認した。加えて、修正 cruciform 試験より GF/EP および CF/PC でそれぞれ 37.6 ± 5.62 MPa および 63.1 ± 12.6 MPa が得られ、同評価法による複合材料評価の妥当性が先行研究との比較より示された。一方で、後者の材料系に関しては塑性変形がおよぼす影響が示唆されたことからさらなる検討が求められる。

参 考 文 献

- 1) Global fuel economy initiative, <http://www.globalfuelconomy.org/media/203446/gfei-state-of-the-world-report-2016.pdf> (2018/2/1 閲覧)。
- 2) D.ハル(宮入裕夫, 池上皓三, 金原 勲訳): 複合材料入門 (改訂版), 培風館, 東京 (2003), p. 11.
- 3) B. Kim & J. Nairn: *J. Compos. Mater.*, **36**, 15 (2002), 1825-1858.
- 4) J. Lee & L. Darzal: *Int. J. Adhes. Adhes.*, **25**, 5 (2005), 398-394.
- 5) P. Gonzalez-Chi & R. Youn: *J. Compos. Mater.*, **41**, 9 (2007), 1087-1099.
- 6) S. Safi, A. Zadhoush & M. Masoomi: *J. Compos. Mater.*, **51**, 11 (2016), 1-9.
- 7) Q. Zhao, C.C. Qian, L.T. Harper & N.A. Warrior: *J. Compos. Mater.*, **52**, 16 (2017), 2163-2177.
- 8) T. Ramanathan, A. Bismarck, E. Shulz & K. Subramanian: *Compos. Sci. Technol.*, **61**, 4 (2001), 599-605.
- 9) 田中和人, 正部祐季, 片山傳生: 材料, **58**, 7 (2009), 635-641.
- 10) J.J. Sha, J.X. Dai, Z.Q. Wei, J.-M. Hausherr & W. Krenkel: *J. Compos. Mater.*, **48**, 11 (2014), 1303-1311.
- 11) C. Medina, J. Molina-Alfareguia, C. Gonzalez, M. Melendrez, P. Flores & J. LLorca: *J. Compos. Mater.*, **50**, 12 (2016), 1651-1659.
- 12) L. Broutman: *Interfaces in Composites*, STP 452,

- West Conshohocken, PA (1969), pp. 27-41.
- 13) C. Agrorges, K. Friedrich & B. Lauk : *Composites Part A*, **30** (1999), 1423-1434.
 - 14) T. Schuller, W. Beckert, B. Lauke, C. Ageorges & K. Friedrich : *Composites Part A*, **31** (2000), 661-670.
 - 15) J. Park, J. Kim & D. Yoon : *J. Colloid Interf. Sci.*, **247** (2002), 231-245.
 - 16) H. Zhang, M. Ericson, J. Varna & L. Berglund : *Composites Part A*, **28A** (1997), 309-315.
 - 17) M. Chan & M. Piggott : *Compos. Interface.*, **6**, 6 (1999), 543-556.
 - 18) K. Totten, B. Kutub & L. Carlsson : *J. Compos. Mater.*, **50**, 5 (2015), 589-599.
 - 19) G. Tandon & V. Bechel : *J. Compos. Mater.*, **36**, 23 (2002), 2667-2691.
 - 20) D. Gundel, B. Majumdar & D. Miracle : *Scripta Metall. Mater.*, **33**, 12 (1995), 2057-2065.
 - 21) S. Warriar, D. Gundel, B. Majumdar & D. Miracle : *Metall. Mater. Trans. A*, **27A** (1996), 1996-2043.
 - 22) 荻原慎二, 坂本頼昭, 小柳 潤 : 日本機械学会講演論文集 A 編, **75**, 749 (2009), 49-55.
 - 23) 小柳 潤, 荻原慎二 : 実験力学, **10**, 4 (2010), 394-400.
 - 24) 鹿島彰浩, 小柳 潤, 荻原慎二 : 日本複合材料学会誌, **37** (2011), 216-225.
 - 25) Y. Shang & H. Shi : *J. Reinf. Plast. Comp.*, **34**, 2 (2015), 131-141.
 - 26) M. Alfaro & A. Suiler : *J. Compos. Mater.*, **44**, 12 (2010), 1493-1516.
 - 27) T. Hobbiebrunken, M. Hojo, K. Jin & S. Ha : *Compos. Sci. Technol.*, **68** (2008), 3107-3113.
 - 28) 横山 隆 : 日本接着学会誌, **50**, 5 (2014), 161-169.
 - 29) タキロン : ポリカーボネート—総合資料—, タキロンシーアイ (2017), pp. 4-5.
 - 30) T. Hobbiebrunken : Microscopic transverse failure initiation in composite materials: an interdisciplinary multi-scale research, doctor thesis, Kyoto University (2005).