研究論文

一方向性 CFRP の損傷発生挙動のひずみ速度・温度依存性

坂井 建宣^{*1}, 安部 聡^{*2}, 蔭山 健介^{*3}

(2019 年 11 月 12 日受付)

Effects of Strain Rate and Temperature Dependency on Damage Initiation Behavior of Unidirectional Carbon Fiber Reinforced Plastic

Takenobu SAKAI,^{*1} Satoru ABE^{*2} and Kensuke KAGEYAMA^{*3}

(Received November 12, 2019)

Abstract: Carbon fiber reinforced plastic (CFRP) is composed of carbon fiber and a polymer material, which is a matrix resin. Resin-dependent damage initiation behaviors, such as matrix cracking and interfacial debonding, are affected by the viscoelasticity of the resin (effects of temperature and strain rate), and the strength of the entire CFRP is also affected. In situ observation is required to investigate the effects of viscoelasticity on the damage initiation behaviors. Therefore, in this study, the effects of temperature and strain rate on the damage initiation behaviors of unidirectional CFRP were investigated using the acoustic emission (AE) technique. To understand the details of AE information, frequency analysis was performed. In the frequency analysis, the resonant frequency of AE sensors affects the frequency properties of the detected signals, so we attempted to eliminate the effect of the sensors by deconvolution of the AE sensor frequency properties from the detected signals. As a result of the deconvolution, we could distinguish the failure modes as matrix cracking, fiber/matrix interfacial debonding, and fiber breaking. From these results, matrix cracking and fiber/matrix interfacial debonding were affected by temperature and strain rate; however, fiber breaking was not affected. Scanning electron microscope observation of the fracture surface confirmed that the resin around the fiber was affected by temperature and strain rate. From this damage initiation behavior of the matrix resin, which was affected by the viscoelasticity, it became clear that the behavior influenced the strength of the entire composite material.

Key words: CFRP, Acoustic emission, Viscoelasticity, Temperature dependency, Strain rate dependency

1. 緒 言

一般的に炭素繊維強化プラスチック (carbon fiber reinforced plastic, CFRP) は樹脂割れ, 界面はく離, 繊維破断が発生し最終破断に至ることが知られており¹⁻³⁾, このような複合材料の破壊機構の解明に関しては AE (acoustic emission, アコースティック・エミッション) 法が有効とされている²⁻⁹⁾. 鈴木らは AE 法のパワ

^{*1-*} 埼玉大学大学院理工学研究科 (338-8570 埼玉県さいたま市桜区下大久保 255)

Graduate School of Science and Engineering, Saitama University

^{*1} 准教授 Associate Professor, ^{*2} 学生 Student, ^{*3} 教授 Professor

ースペクトル解析により破損部位が把握できるとしており, AE のピーク周波数が 50~100 kHz は母材の割れ, 150~250 kHz は繊維の界面はく離, 270~390 kHz は繊維と母材との摩擦と繊維の破断であると報告している⁴⁾. 一方, Waller らは CFRP の損傷と AE 波の周波数の対応を調べ, 周波数が 90~180 kHz は樹脂割れ, 180~240 kHz は繊維引き抜け, 240~300 kHz は界面はく離, 300~600 kHz は繊維破断であると報告している¹⁰⁾. 他の研究においても違いはあるものの樹脂割れ, 界面はく離, 繊維破断の順に周波数帯が高くなっている^{3,5)}. また, これら複合材料の破壊機構をより詳細に解明するためには複数の AE パラメータを総合的に判断する必要がある. そこで駒井ら¹¹⁾ は一方向強化炭素繊維/エポキシ樹脂複

合材料について静的引張試験および繰り返し引張試験を行い、試験中に検出した AE 波の AE 事象数, AE 振幅分布, AE 持続時間分布, カウント/持続時間の 4 種のパラメータの経時変化を解析し, 破壊要素と AE 波のパラメータとの関連を調べ, AE パラメータと AE 発生要因の関係性を明らかにしている。また AE 事象数は負荷直後に多く発生し, その後発生頻度が小さくなり, 最終破断に近づくとき再び急増するという結果を得ている。

CFRP の母材である樹脂の機械的性質は時間と温度により変化する, いわゆる粘弾性挙動を示す。したがって, CFRP 全体の機械的性質も時間および温度依存性を示すことが推測される。特に一方向 CFRP の繊維方向の機械的性質は強化繊維のそれに大きく依存するが, マトリックス樹脂には繊維から繊維へと荷重を伝達するという役割があるため, マトリックス樹脂の粘弾性挙動により, 繊維方向といえどもその引張強度は時間および温度依存性を示すことが考えられる。これまでに Nakada らは一方向 CFRP として炭素繊維束に樹脂を含浸した樹脂含浸ストランドを取り上げ, その静的引張試験を種々の負荷速度と温度の下で行い, 引張強度の時間依存性を求めた。その結果, 引張強度は破断時間の増加と温度の上昇とともに低下し, 著しい時間-温度依存性を示した。また引張強度の時間依存性と温度依存性の間には時間-温度換算則が成立した¹²⁾。また, Koyanagi らは CFRP の界面強度の時間-温度依存性を調べた。90°材での破断面観察結果から高温, 低ひずみ速度では樹脂破壊が支配的, 低温, 高ひずみ速度では界面破壊が支配的であることを示した¹³⁾。

特に樹脂割れや界面はく離などの樹脂に依存した損傷蓄積挙動は樹脂の粘弾性の影響を受けることが考えられるが, これまでに CFRP の各種損傷モードにおける損傷発生挙動の温度・ひずみ速度依存性を調査した研究はほとんど存在していない。

そこで本研究では, リアルタイム計測が可能な AE 法を用いて一方向性 CFRP の損傷発生挙動に及ぼす温度およびひずみ速度の影響を明らかにすることを目的とする。

2. 供試材料および実験方法

2.1 供試材料

本研究に用いた一方向性 CFRP は, プリプレグシート (T700S/#2592, 東レ製) から 140 mm×140 mm に切り出し, 一方向に 16 枚積層した。その後, 真空を引きながら圧力を 0.2 MPa, 130°C にて 90 分間ホットプレス成形した。試験片は繊維配向方向が引張方向となるように切

Fig. 1 Schematic drawing of tensile test apparatus with AE measurement system.

り出した。試験片寸法は長さ 120 mm, 幅 10 mm, 厚さ 2 mm とし, 両端のつかみ部には, チャック部の応力集中を防ぐため, 長さ 30 mm, 厚さ 1 mm の GFRP (glass fiber reinforced plastics, ガラス繊維強化プラスチック) タブを取り付けた。

2.2 試験方法

Fig. 1 に実験装置の概略図を示す。引張試験機には Instron 4204 を用い, 試験片の中央に AE センサを取り付け, その裏面にひずみゲージを取り付けた。試験条件は温度を 25°C, 50°C, 75°C の 3 条件, ひずみ速度を $2.78 \times 10^{-5}/s$, $2.78 \times 10^{-4}/s$, $2.78 \times 10^{-3}/s$ の 3 条件で行った。温度制御は自作の恒温槽を用い, 試験片全体を一定温度にするため, 各指定温度に到達後 30 分間保持したのち試験を行った。AE センサは, NF 回路ブロック社の AE-900M, AE の計測システムは, PicoScope4424 および, LabVIEW2015[®] で作成した AE 計測プログラムを用いた¹⁴⁾。AE の計測条件は, プリアンプで 60 dB 増幅した後の閾値 800 mV, 測定周波数 20~1,200 kHz, サンプリングレートは 5 MHz とした。なお, 周波数フィルタには 6 次のバタワースフィルタを用いた。

2.3 AE 波形解析手法

AE 波形解析手法の手順を Fig. 2 に示す。試験中に得られた AE 波形 (Fig. 2 左上) に対して FFT (fast Fourier transform) 解析を行うと, 横軸に周波数, 縦軸に周波数スペクトルのグラフ (Fig. 2 右上) が得られる。これをすべての AE に対して行い, 周波数スペクトルの最大値を 1 として正規化したものを時系列に並べると, Fig. 2 左下のグラフが得られる。さらにそれを横軸に時間,

Fig. 2 AE waveform analysis method.

Fig. 3 Stress and AE behavior of unidirectional CFRP tested at (a) 50°C and (b) 70°C with the strain rate of 2.78×10^{-4} /s.

縦軸に周波数、 z 軸方向に周波数スペクトルの FFT 正規化強度としてコンター図で示したものが Fig. 2 右下のグラフである。これより、時間とともに変化する損傷を評価することが可能となる。

本手法では、治具からのノイズも含めた結果が表示される（位置フィルタが適用されていない）が、前報の結果¹⁵⁾と遜色ない結果が得られていること、また周波数フィルタにより大幅にノイズを除外できていることから、CFRP から発生する AE 音と比較して、治具等からのノイズの数が少ないと判断し、検討を行った。

3. 一方向性 CFRP の静的引張試験結果

一例として、ひずみ速度 2.78×10^{-4} /s の 50°C および 70°C における代表的な引張試験結果を Fig. 3(a) および

(b) に示す。横軸に時間、縦軸に応力、AE 振幅、累積 AE エネルギーの関係を示したものである。応力-時間曲線から応力はほぼ線形的に増加していることがわかる。50°C における AE 振幅に着目すると序盤は低振幅 (2~3 V 程度) の AE が発生しているが、試験中盤において大きな AE (25 V 以上) が複数回計測され、その後少しずつ振幅が大きくなり (10 V 以上) なり、破断直前では高振幅の AE (15 V 程度) が多数発生した。試験中盤および破断直前に累積 AE エネルギーも増加している。25°C および 50°C のすべてのひずみ速度において同様の傾向が見られた。また Fig. 3(b) より 70°C においては、ほかの温度域と異なりほかの温度域のデータより全体的に小さな AE が検出された。特に 25°C、50°C において複数回見られた試験中盤の大きい振幅 (25 V 以上) の AE 波形が減衰してお

Fig. 4 Relationship between temperature and strain rate and the stress at the rapid increase in cumulative AE energy.

(a)

(b)

Fig. 5 Averaged Young's modulus and tensile strength of each testing conditions, (a) Young's modulus and (b) maximum strength of unidirectional CFRP.

り (10 V 程度), それに伴い累積 AE もなだらかに増加する傾向が見られた。これは高温において樹脂の粘性が低くなり, その結果 AE 音がセンサに到達する前に減衰してしまっていることが原因であると推察される。

Fig. 6 Transfer function map in detecting AE signals.

引張試験開始後, 最初に $1,000 \text{ V}^2\text{s} [\times 10^{-9}]$ のエネルギーが増加した応力を AE エネルギー急増応力として温度とひずみ速度の影響を調べた結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 から AE エネルギー急増応力は高温かつ高ひずみ速度ほど高応力側にシフトしていることがわかる。また, ヤング率と最大強度をまとめたものを Fig. 5(a), (b) に示す。ヤング率はひずみ速度および温度による変化はあまり見られなかったが, 最大強度は低温ほど高くなる傾向が得られた。これは Nakada ら¹²⁾ の結果と一致しており, 母材樹脂の粘弾性挙動の影響を受けるためだと考えられる。しかし, AE エネルギー急増応力と最大強度は温度について逆の傾向が得られていることから, AE についてより詳細を調べるため, AE 波形の周波数解析を行った。

4. AE センサの共振周波数の影響の除去

AE 波形のスペクトル分析を行って, その特徴を検討する場合には, 得られたスペクトルが発生源での周波数成分のみを表しているのではないことに注意が必要である。それは, 発生源から検出される記録されるまでにいくつかの変化を受ける。フーリエ解析の概念に従って, その大略を示すと Fig. 6 のように考えることができる⁸⁾。つまり検出された AE 波形のフーリエ変換した周波数スペクトルを $X(f)$, AE 原波形の周波数スペクトルを $S(f)$, 材料内を伝播する際の系の応答をフーリエ変換した周波数スペクトルを $D(f)$, AE センサの応答をフーリエ変換した周波数スペクトルを $T(f)$, 計測系 (増幅器, フィルタなど) の応答をフーリエ変換した周波数スペクトルを $U(f)$ とすると式 (1) で表される¹⁶⁾。

$$X(f) = U(f)T(f)D(f)S(f) \quad (1)$$

このように, 各要因の影響は周波数領域での積と考えることができる。式 (1) より, $U(f)$, $T(f)$, $D(f)$ などの影響が大きければ, 検出された AE 波形のスペクトルは発生源でのスペクトルとは無関係になっている可能性がある。したがって, これらの影響の程度を知り, あるいはその影響を除いたスペクトル分析が望まれる。ここで計測系の応答 $U(f)$ は, よほどのことがない限り

Fig. 7 Measuring method for AE sensor's transfer function (a) schematic drawing of used apparatus and (b) input and output signal's spectrum strength.

Fig. 8 FFT spectrum of AE signals during tensile tests (a) without considering transfer function of AE sensors and (b) with considering them.

$X(f)$ には影響のないことが知られている。ただし、本論文では周波数フィルタを導入しているため、 $U(f)$ は $X(f)$ に影響を及ぼす。しかし本論文における AE 計測において、周波数フィルタを導入することが前提（ノイズ除去等）であるため、本論文では計測系の応答 $U(f)$ は無視できるとする。

そこで、今回は AE センサの共振周波数の影響を除去するため、AE センサの応答 $T(f)$ を除去することを試みた。まず、AE センサの応答 $T(f)$ を求めるためにファンクションジェネレータ（WF1973, NF 回路ブロック）を用いて 1～1,500 kHz のスイープ波を 5 V で出力、それを同じ型で周波数特性に近い AE センサで受信し、プリアンプで 20 dB 増幅後、USB オシロスコープ（Pico technology 社、Picoscope 4424）を用いて送受信応答を得た。サンプリングレートは 5 MHz とした。その後 AE センサ同士の送受信応答を用いて式 (1) に当てはめることにより AE センサの応答を除去することができる。Fig. 7(a) に試験装置の概略図を示す。ファンクション

ジェネレータから AE センサに入力された波形を入力波形、AE センサを介して AE センサから出力された波形を出力波形として AE センサの応答を調べた結果を Fig. 7(b) に示す。なお、AE センサの応答 $T(f)$ は、実験的には入力用 AE センサ $T_1(f)$ と出力用センサ $T_2(f)$ の合計として以下の式 (2) のように表される。

$$2 \times T(f) = T_1(f)T_2(f) \quad (2)$$

AE センサの入出力波形の差分は 2 つのセンサの特性を足し合わせた値となるため、2 で割ることで 2 つのセンサの平均値として $T(f)$ を求めた。横軸に周波数、縦軸にスペクトル強度を示している。Fig. 7(b) からこの AE センサは 300 kHz 付近と 750 kHz 付近にピークを持つことが明らかとなった。

Fig. 8(a), (b) に 50°C、 $2.78 \times 10^{-5}/s$ の補正をかける前とかけた後の結果をそれぞれ示す。全体的に周波数が低下しているが、特に 600 kHz 以上の AE が減少し、50 kHz 以下の AE が増加した。また AE のピーク周波数

(a) Under 50 kHz

(b) 50 ~ 300 kHz

(c) Over 300 kHz

Fig. 9 Relationship between temperature and strain rate and the stress at the rapid increase in cumulative AE energy in each frequency range. (a) Under 50 kHz, (b) 50~300 kHz, (c) Over 300 kHz.

は、50 kHz 以下、50~300 kHz、300 kHz 以上で分類できた。50 kHz 以下は樹脂割れによるもの、50~300 kHz は繊維の引き抜けや界面はく離によるもの、300 kHz 以上は繊維破断によるものだと考えられる^{1,3,4)}。今後この

(a) 25°C, 2.78×10^{-5} /s (b) 75°C, 2.78×10^{-3} /s

Fig. 10 SEM photograph of fractured surface of unidirectional CFRP tested with the conditions of (a) 25°C, 2.78×10^{-5} /s and (b) 75°C, 2.78×10^{-3} /s.

周波数分類結果を基に考察を行う。

5. 各損傷モードにおける損傷蓄積挙動

各損傷に対応すると思われる周波数ごとの最初の AE エネルギー急増応力の温度とひずみ速度の関係を Fig. 9 に示す。

50 kHz 以下では高温ほど高応力側にシフトしている傾向が得られた。これは樹脂に関する損傷は高温ほど樹脂が粘性的になるため樹脂が変形しやすく、樹脂割れの発生が遅くなったと考えられる。

一方、50~300 kHz では低温ほど高応力側にシフトしている傾向が得られた。これらは、界面はく離は宮野ら¹⁷⁾の研究にあるように高温、低ひずみ速度ほど樹脂の粘弾性の影響を受けて弾性率が低下し、樹脂が繊維を拘束する力が弱まるため、低温ほど高応力側にシフトしたものだと考えられる。界面はく離に関する AE エネルギー急増応力は、最大強度の温度およびひずみ速度の関係と同様な傾向を示していることから、界面剥離が強度に支配的な影響を及ぼしていることが明らかとなった。

また、300 kHz 以上の繊維破断については、ひずみ速

Lower temperature

Fig. 11 Schematic diagram of damage accumulation behavior of unidirectional CFRP.

度・温度の影響はあまり受けていないことが見受けられる。これは炭素繊維が粘弾性体ではなく、本論文における試験温度範囲・ひずみ速度範囲ではこれらの影響を受けないことが原因であると考えられる。

以上より、樹脂割れ・界面はく離は温度の影響を受けることがわかり、最大強度は界面はく離や繊維破断の影響を受けることが示唆された。

さらに、破断面の温度およびひずみ速度の違いによる影響を明らかにするため、SEM 観察を行った。25°C、 $2.78 \times 10^{-5}/s$ および 75°C、 $2.78 \times 10^{-3}/s$ の結果を Fig. 10 (a), (b) にそれぞれ示す。低温・高ひずみ速度では小さな樹脂が付着しているのに対し、高温・低ひずみ速度では比較的大きな樹脂の付着や界面はく離が起きていることがわかる。よって、特に温度の違いにより損傷蓄積挙動が異なると予想される。

以上をまとめた模式図を Fig. 11 に示す。なお試験片のほとんどがスプリットング破壊を示したが、本研究における AE 波形分類結果からはスプリットングに対応する AE 波形の周波数を明らかにすることが困難であったため、スプリットングが生じた応力を評価している。

低温・高ひずみ速度では、約 800 MPa で樹脂割れが

発生し、その後樹脂割れが増加する。さらに約 1,200 MPa で界面はく離と繊維破断が発生し、約 2,000 MPa でスプリットングの発生や繊維破断も増加し、最終破断に至ると考えられる。一方、高温・低ひずみ速度では約 800 MPa の時では樹脂割れは発生せずに伸びていることが考えられる。その後、約 900 MPa で樹脂割れ、界面はく離が発生し、約 1,200 MPa で繊維破断が発生する。そして約 1,500 MPa でスプリットングの発生や繊維破断が増加し最終破断に至ると考えられる。以上より、AE 発生挙動において温度の影響が見られ、破断面の損傷形態も異なることが明らかになった。

6. 結 言

一方向性 CFRP の静的引張試験結果から以下の結言を得た。

- (1) 弾性率は温度およびひずみ速度の影響はあまり見られなかったが、最大強度は低温ほど高くなった。
- (2) AE エネルギー急増点は 25°C と 50°C では中盤と終盤に発生しているが、75°C では終盤に発生している。
- (3) センサの影響を除去することで界面はく離に対応すると思われる 50~300 kHz の周波数帯を得ることができた。その結果、界面はく離は低温ほど高応力側にシ

フトする傾向が得られた。これは高温ほど樹脂の粘弾性の影響を受け強度が下がるためであると考えられる。

(4) 破断面の SEM 観察結果と AE エネルギー急増応力から、母材樹脂が高温ほど粘性的になるため樹脂が変形しやすく、樹脂割れの発生が遅くなり損傷形態に違いが表れたことが示唆される。

参 考 文 献

- 1) V. Munoz, B. Vales, M. Perrin, M.L. Pastor, H. Weleman, A. Cantarel & M. Karama : *Composites Part B*, **85** (2016), 68-75.
- 2) P.F. Liu, J.K. Chu, Y.L. Liu & J.Y. Zheng : *Materials and Design*, **37** (2012), 228-235.
- 3) R. Gutkin, C.J. Green, S. Vangrattanachai, S.T. Pinho, P. Robinson & P.T. Curtis : *Mech. Syst. Signal Pr.*, **25** (2011), 1393-1407.
- 4) 鈴木 恵, 中西 博, 岩本正治, 自念栄一, 前川善一郎, 森 旭, 孫 峰 : 日本機械学会論文集 (A 編), **53** (1987), 1459-1466.
- 5) P.J. Groot, P.A.M. Wijnen & R.B.F. Janssen : *Compos. Sci. Technol.*, **55** (1995), 405-412.
- 6) M. Surgeon & M. Wevers : *NDT&E Int.*, **32** (1999), 311-322.
- 7) M. Bourchak, J.R. Farrow, I.P. Bond, C.W. Rowl & F. Menan : *Int. J. Fatigue*, **29** (2007), 457-470.
- 8) C. Baker, G.N. Morscher, V.V. Pujar & J.R. Lemanski : *Compos. Sci. Technol.*, **116** (2015), 26-32.
- 9) E. Maillet, C. Baker, G.N. Morscher, V.V. Pujar & J.R. Lemanski : *Composites Part A*, **75** (2015), 77-83.
- 10) J.M. Waller, R.L. Saulsberry & E. Andrade : *QNDE Conference*, **29** (2010), 1111-1118.
- 11) 駒井謙治朗, 箕島弘二, 渋谷豊茂 : 日本機械学会論文集 (A 編), **56** (1990), 72-79.
- 12) M. Nakada & Y. Miyano : *J. Compos. Mater.*, **49** (2015), 163-175.
- 13) J. Koyanagi, S. Yoneyama, A. Nemoto & J.D.D. Melo : *Compos. Sci. Technol.*, **70** (2010), 1395-1400.
- 14) Carbon Quants HP : <https://www.carbonquants.com/ae>
- 15) 坂井建宣, 安部 聡, 後藤 健, 小林訓史, 上田政人, 荻原慎二, 若山修一, 蔭山健介 : 実験力学, **17** (2017), 27-33.
- 16) T. Kishi & T. Ohira : *Trans. Japan Inst. Met.*, **24** (1983), 255-263.
- 17) 宮野 靖, 金 光 学, 國尾 武 : 材料, **31** (1982), 902-907.