SMC 複合材料の破壊じん性と微視的破壊[†]

関根 英樹* 小沢 喜仁** 藤田 淳***

Fracture Toughness and Microfractures of
a Sheet Molding Compound Composite

by

Hideki SEKINE*, Yoshihito OZAWA** and Jun FUJITA***

The paper is concerned with the fracture toughness and microfractures of a sheet molding compound polyester composite at room and low temperatures. Fracture toughness tests were performed by using compact tension specimens of the composite at room temperature and liquid nitrogen temperature, 77K. Acoustic emission signals were monitored during the fracture toughness tests. The microscopic observation of the fractured surfaces and the spectrum analysis of the acoustic emission signals were made in order to obtain a reasonable explanation of the fracture mechanism. The results are summarized as follows:

(1) The load-crack mouth displacement curves at liquid nitrogen and room temperatures became nonlinear at about the same load level and the maximum load observed at liquid nitrogen temperature increased by about three times that observed at room temperature. The acoustic emission activity for the specimen tested at liquid nitrogen temperature was higher than that at room temperature.

(2) The fracture toughness K_{AE} at liquid nitrogen temperature, obtained as the stress intensity factor which corresponds to the onset of abrupt increase of the accumulated acoustic emission energy, was extremely larger than that at room temperature.

(3) At room temperature the fracture toughness K_{AE} was in good agreement with the fracture toughness K_Q obtained by the 5% offset procedure of ASTM E399, and at liquid nitrogen temperature K_{AE} was larger than K_Q .

(4) From the microscopic observation, it was found that the fracture of a sheet molding compound composite accompanies the microfractures of four types, *i. e.* fiber breakage, fiber debonding, resin cracking and delamination.

(5) The spectrum analysis indicated that the acoustic emission signals could be classified into three types for the specimens tested at room temperature and four types for the specimens tested at liquid nitrogen temperature. An attempt was made to assign each type of the frequency spectra to the microfracture, and the fracture mechanism of the SMC composite was discussed.

キー・ワード: SMC 複合材料, 破壊じん性, 低温, 微視的破壊, アコースティック・エミッション

1 緒 言

各種の長所を有する複合材料はエネルギー開発, 宇宙開発, 海洋開発などにおける構造物および航空機・車両などの多岐にわたる工業分野において使用が増大している。なかでも短繊維強化形複合材料は近年その製造技術の進歩により使用範囲が大きく広がっている。SMC (Sheet Molding Compound) 複合材料は繊維含有率を高くでき, 比強度がすぐれていることや量産が可能で経済性がすぐれていることなどから, 近年最も注目されている短繊維強化形複合材料の一つであるが, 比較的新しい材料であるために破壊強度を含め機械的性質に関する研究は数少ない。Gagger らは SEN (Single Edge Notch), DEN (Double Edge Notches)

および三点曲げの各試験片から SMC 複合材料の破壊じん性値を破壊じん性試験法 ASTM E 399²⁾にしたがって求め, これらの比較検討を行った。また, 切欠き先端において繊維と母材との界面はく離が生じる荷重に対応する限界応力拡大係数も設計の観点から重要なパラメータであると主張している。SMC 複合材料では最大荷重よりはるかに小さな荷重で繊維の破断, 繊維と母材との界面はく離および母材の割れなどの微視的破壊が生じ切欠き先端部に損傷域が形成されるが, 高荷重になるまで巨視的裂は発生しない。したがって, 繊維と母材との界面はく離が生じるときの応力拡大係数を破壊じん性値とすると材料の破壊じん性を過小評価することになる。一方, Yanada らは最大荷重に対

[†] 原稿受理 昭和60年5月18日 Received May 18, 1985

* 正会員 東北大学工学部 仙台市荒巻字青葉, Department of Engineering Science, Tohoku University, Aramaki Aoba, Sendai

** 福島大学教育学部 福島市松川町浅川字直道, Faculty of Education, Fukushima University, Matsukawa-cho, Fukushima

*** 東北大学大学院(現在, 三菱電機(株)) 仙台市荒巻字青葉, Graduate Student, Tohoku University, Aramaki Aoba, Sendai

応する応力拡大係数が試験片形状によらず一定値となることを示し、最大荷重に対応する応力拡大係数を破壊じん性値とした。また、Wang⁵⁾らも同様に試験時の最大荷重から SMC 複合材料のモードⅠ、モードⅡおよび混合モードの破壊じん性値を求めている。このように SMC 複合材料の破壊じん性の評価規準は明確に定まっていないのが現状である。

AE (Acoustic Emission) 法は材料の微視的破壊を的確に検知する有力な手法としてよく知られている。近年、著者らは各種の FRP (Fiber Reinforced Plastics) 複合材料において AE 法を併用した破壊じん性試験を実施し、AE 法が破壊じん性の決定に有効であることを示した。

本研究では SMC 複合材料であるガラス繊維強化不飽和ポリエステル積層板よりコンパクトテンション試験片を作製し、室温および液体窒素温度で AE 法を併用した破壊じん性試験を行い、得られた結果を検討した。さらに、周波数解析結果より検知した AE 信号の分類を試み、AE 信号と微視的破壊との対応を議論し、破壊機構を明らかにした。

2 試験片および実験方法

本実験に用いた SMC 複合材料 (大日本インキ R MC-312-25) は、E ガラス短繊維のチョップドストランドマットに不飽和ポリエステルを含浸させ 8 層に積層し加熱・加圧成形したものである。強化材であるチョップドストランドは直径 $13\mu\text{m}$ の繊維 200 本からなるストランドを 25 mm の長さに切ったものであり、アクリルシラン処理が施してある。添加剤としては触媒、増粘剤、内部離型剤を使用し、増量剤 (炭酸カルシウム) は加えていない。ガラス繊維の重量含有率は約 60% である。供試材料の室温における機械的性質を

Table I. Mechanical properties of the SMC composite at room temperature.

Tensile strength (MPa)	226
Young's modulus (GPa)	16.2
Poisson's ratio	0.32

Unit : mm

Fig. 1. Geometry of compact tension specimen.

Table I に示す。Fig. 1 は破壊じん性試験に用いたコンパクトテンション試験片の形状とチョップドストランドマットの積層方向の様子を模式的に示したものである。図に示すようにガラス繊維はマット面内でランダムに配向しており切欠き前縁は積層方向となるようにした。Gagger¹⁾らはチョップドストランドマット材の破壊じん性値は切欠き先端半径に依存しないことを報告している。このことに留意して本実験に用いたコンパクトテンション試験片の切欠き先端半径

Fig. 2. Block diagram of acoustic emission measurement system.

は 0.25 mm とした。

破壊じん性試験はインストロン型引張試験機を用い ASTM E399 に準拠しクロスヘッド速度 0.30 mm/min で実施した。荷重 P および切欠き肩部開口変位 V_M を X-Y レコーダを用いて記録し、試験終了後に破壊じん性値を算定した。試験中に発生する AE 信号のモニターおよび記録は Fig. 2 に示す AE 計測系を用いて行った。AE 信号は試験片の上端部に取付けた直径 4 mm、長さ 200 mm のステンレス製ウェーブガイドを通して共振周波数 1 MHz の AE 変換子で検出し、7 kHz のハイパスフィルタで試験機ノイズを除去した後、主増幅器により総合利得 30 dB および 50 dB に増幅した。増幅した AE 信号の振幅を 2 乗演算して各 AE 信号のエネルギーを求め、その和をとって AE 累積エネルギーを算出した。周波数解析は 7~650 kHz の範囲で高速フーリエ変換器を用いて行った。

低温における破壊じん性試験は試験機に低温槽を取付け、試験片を液体窒素 (77K) 中に完全に浸した状態で行った^{*1}。急激な冷却による試験片の損傷をさけるために最初の 5 分間は液体窒素を少量ずつ注入して冷却し、その後、徐々に液量を増し試験片が完全に漬かるようにした。この状態に 1 時間保持した後に実験を行った。なお、冷却時にも総合利得 30 dB で AE 信号の計測を行った結果、検知された振幅 0.2 V 以上の AE 信号の数は破壊じん性試験時の AE 信号の検知個数 (3386 個) の 3.5 % と非常に少なく、冷却時に試験片に生じた繊維と母材との界面はく離などの微視的破壊の蓄積はほとんどないことがわかった。

3 実験結果および考察

3.1 荷重-開口変位曲線と AE 放出特性

室温および液体窒素温度における荷重 P と切欠き肩部開口変位 V_M との関係を Fig. 3 および Fig. 4 に示す。図には総合利得 30 dB で検知された振幅 0.2 V 以上の AE 信号の発生個数も併せて示してある。

室温の場合の P - V_M 曲線は最大荷重点付近を除くと比較的線形性を示し、AE 信号の活性度は低い。最大荷重到達直前になると小さな荷重降下が生じ試験片のコンプライアンスが増加して曲線は非線形となる。この図には示していないが荷重降下に対応して大きなエネルギーを持つ AE 信号が検知された。

液体窒素温度の場合、 P - V_M 曲線は室温の場合とほぼ同程度の荷重レベルから非線形性を示す。液体窒素温度の場合は室温の場合に比べ最大荷重が約 3 倍と高いから非線形性を示しはじめる荷重レベルを最大荷重レベルに対する比としてみると液体窒素温度の場合に

Fig. 3. P - V_M curve and number of AE events for 10 second intervals for the specimen tested at room temperature.

Fig. 4. P - V_M curve and number of AE events for 10 second intervals for the specimen tested at liquid nitrogen temperature.

は室温の場合に比べ低い荷重レベル比のときから非線形性を示すことになる。また、最大荷重に比べて小さな荷重状態において、室温の場合に最大荷重到達直前に観察されたものと同様の荷重降下が認められた。AE 信号の活性度は室温の場合のそれに比べ全般的に高く負荷初期段階から急増する。その後、AE 信号の発生個数はほぼ一定であり、荷重降下が顕著になると発生個数は減少する。AE 信号の発生個数の減少は変位制御で実験を行っているため、荷重降下した後それまでの最大荷重に達するまでに時間を要し、その間に Kaiser 効果により AE 信号の発生が少ないことが原因と思われる。後述するように、試験片の破面観察の

*1 本実験で得られた結果には低温の影響のほかに、試験片を液体窒素に直接浸漬しているので、液体窒素がガラス繊維と母材との界面に浸透することによる影響も含まれているものと思われる。

結果、室温の場合にはガラス繊維はほとんど引抜けずに破断するが、液体窒素温度の場合にはガラス繊維はストランドの状態を保って長く引抜ける。このような現象が生じるのは、ガラス繊維の引張強さは液体窒素温度になると室温の場合の引張強さの約 1.5 倍増加するために、液体窒素温度の場合には室温でガラス繊維が破断した負荷レベルでは破断せず、さらに界面はく離が進展するからである。したがって、室温の場合切欠き先端部に形成される界面はく離等の微視的破壊が生じた領域、すなわち損傷域は小さく、液体窒素温度の場合には損傷域が切欠き先端部から広範囲に及ぶことになると考えられる。この損傷域の大きさに違いがあることから、室温の場合には $P-V_M$ 曲線は最大荷重点付近まで比較的線形性を示すが、液体窒素温度の場合には $P-V_M$ 曲線は最大荷重レベルに対して低い荷重レベルのときから非線形性を示すことが理解できる。また、液体窒素温度の場合は損傷域が広範囲に及ぶことから微視的破壊が多数発生すると考えられ、AE 活性度が室温の場合に比べ高くなることも理解できる。液体窒素温度の場合の最大荷重が室温の場合の最大荷重に比べて約 3 倍高くなったが、このことに関する定性的な説明は以下のとおりである。^{*2} ガラス繊維と母材との界面はく離に伴う AE 信号のエネルギーを検討すると、液体窒素温度の場合は室温の場合に比べて若干高い。したがって、液体窒素温度になると界面はく離強度は若干増すものと思われる。さらに、前述したように、液体窒素温度の場合には室温の場合に比べガラス繊維の引張強さが増し損傷域が大きくなる。結局、液体窒素温度の場合には損傷域において全体として高荷重を支えることになり、最大荷重は室温の場合に比べ非常に高くなる。

3・2 破壊じん性

緒言でも述べたように SMC 複合材料の破壊じん性の規準として次の三つが挙げられる。

- (1) ASTM E399 に基づいて荷重-開口変位曲線上の 5% オフセット荷重から算出される破壊じん性値¹⁾
- (2) 試験時の最大荷重から算出される破壊じん性値^{3,4)}
- (3) AE 累積エネルギーの急増開始荷重から算出される破壊じん性値^{5,6)}

SMC 複合材料の場合は、一般に 5% オフセット荷重では切欠き先端部に損傷域が形成され巨視き裂は発生しない。しかし、規準(1)は試験片のコンプライアンスの変化から 5% オフセット荷重、すなわち巨視き裂が 2% だけ進展した場合に対応する荷重を求め、これから破壊じん性値を算出するものである。規準(2)は最大荷重を用いて巨視的な不安定破壊に対する破壊じん

性値を決定するものである。規準(3)は巨視的な破壊を直接的に意味しない微視的破壊に着目したものである。SMC 複合材料では微視的破壊が荷重初期段階でも存在するが、規準(3)は微視的破壊の累積した損傷域が急速に拡大し始める荷重に対する応力拡大係数を破壊じん性値とするものである。本報においては規準(3)により破壊じん性値を求め、さらに、規準(1)により求めた破壊じん性値との比較検討も行った。

Fig. 5 および Fig. 6 は、それぞれ室温および液体窒素温度の場合に総合利得 30dB で検知した AE 信号の AE 累積エネルギー $\sum E_{AE}$ 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。両図とも $\log \sum E_{AE}$

Fig. 5. $\sum E_{AE}-K$ diagram for the specimen tested at room temperature.

Fig. 6. $\sum E_{AE}-K$ diagram for the specimen tested at liquid nitrogen temperature.

*2 定量的な議論は損傷域の生成を含めた応力の再分配に関する数値解析を待たなければならない。

と $\log K$ の関係は2直線近似が可能であり, 2直線の交点(矢印)すなわちAE累積エネルギーの急増開始点が存在することがわかる. AE信号は微視的破壊に伴って放出されるので, $\Sigma E_{AE}-K$ 線図に現れるAE累積エネルギーの急増は微視的破壊の累積した損傷域の急速な拡大に対応していると考えられる. Fig. 5 および Fig. 6 の $\Sigma E_{AE}-K$ 線図のAE累積エネルギーの急増開始点の応力拡大係数から破壊じん性値 K_{AE} を求め, この K_{AE} 値に対応する荷重を Fig. 3 および Fig. 4 に矢印で示した. 得られた室温および液体窒素温度の場合の K_{AE} 値を Table II に示す. 液体窒素温度の場合の K_{AE} 値は室温のそれに比べ非常に大きい. 母材の引張強さは低温になると室温の場合の2~3倍程度高くなると推測されるが, ガラス繊維の引張強さに比べると非常に小さいから, 液体窒素温度で破壊じん性値が増大する主要因子はガラス繊維の引張強さの増大であると考えられる. Cameron が測定した室温および低温でのガラス繊維の引張強さを Table III に示す. Table II には K_{AE} 値のほかに, ASTM E 399 による5%オフセット法から求めた K_Q 値も示した. 室温の場合は K_{AE} 値と K_Q 値とは比較的良好一致するが, 液体窒素温度の場合には K_{AE} 値は K_Q 値より高い値となった. これは液体窒素温度の場合に急速な拡大を開始し始めたときの損傷域の大きさが室温の場合のそれに比べ大きいことを示唆している.

Table II. Fracture toughness of the SMC composite.

Temperature	$K_{AE}(\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2})$	$K_Q(\text{MPa} \cdot \text{m}^{1/2})$
Room temperature	16.8	17.5
Liquid nitrogen temperature, 77K	33.1	30.2

Table III. Tensile strength of glass fibers⁸⁾.

Temperature	Room temperature	Liquid nitrogen temperature, 77K
Tensile strength (GPa)	3.79	5.65

3・3 微視的破壊と AE 信号の分類

SMC 複合材料の破壊過程について検討するために, コンパクトテンション試験片の巨視破面の観察および AE 信号の周波数解析を行った.

室温および液体窒素温度において破壊じん性試験を行った破面写真を Fig. 7 (a), (b) に示す. Fig. 7 (a) からわかるように室温で実験を行った試験片においては, 平滑な面をした母材と, 破断あるいは引抜けたと考えられるガラス繊維が観察された. 破面に露出したガラ

Fig. 7. Fracture surfaces of the specimens tested at room temperature (a) and at liquid nitrogen temperature (b).

ス繊維は, ストランドの状態をくずしておりその長さは短い. ガラス繊維の端面を拡大して観察すると, 破断したと考えられる平滑な面をした繊維と破断せず引抜けたと考えられる母材の付着したものがあつた. 一方, Fig. 7 (b) に示されるように液体窒素温度で実験を行った試験片においては, ガラス繊維はストランドの状態を保っていてその長さも長い. また, マットの層間には離れも観察された. 以上より, SMC 複合材料の破壊は繊維の破断, 繊維と母材との界面は離れ, 母材の割れ, 層間には離れの4種類の微視的破壊を伴うと考えられる.

破壊機構を明確にする目的で, 室温における破壊じん性試験の全負荷過程および液体窒素温度における破壊じん性試験の負荷初期段階 (Fig. 4 の区間 A), K_{AE} 値に対応する荷重付近の負荷段階 (区間 B) および最大荷重直前の負荷段階 (区間 C) において総合利得 30dB で検知された AE 信号について周波数解析を行った.

検知された AE 信号を周波数特性に基づき整理すると, 室温の場合には Fig. 8 に示すタイプ I, II および III の3種類に, 液体窒素温度の場合には室温の場合のタイプ I, II, III の他にタイプ IV を加えた4種類に分類することができた. タイプ II の AE 信号はエネルギーが大きく 100~250 kHz の範囲および 350 kHz 付近に卓越した周波数成分を持つ. $P-V_M$ 曲線において観察される小さな荷重降下に対応して検知された AE 信号はタイプ II であった. したがってタイプ II の AE 信号はガラス繊維と母材との界面は離れに対応するものと考えられる. タイプ I の AE 信号の周波数特性はタイプ II と同様の 100~250 kHz の範囲および 350

*3 総合利得 30dB で検知された AE 信号をもとに, 総合利得 20dB で検知される振幅 0.2V 以上の AE 信号の累積エネルギーを用いても K_{AE} 値としてはほぼ同じ値が得られる.

Fig. 8. Frequency spectra of AE signals detected from the specimens tested at room and liquid nitrogen temperatures. The spectrum of the type IV was detected only at liquid nitrogen temperature.

kHz 付近に卓越した周波数成分を持ち、さらに 100 kHz 以下にも卓越した周波数成分を持つ。低周波数成分が卓越した AE 信号は衝撃や分離破断時に観測されることがよく知られている。タイプ I の AE 信号のエネルギーは非常に高いことと破面観察との結果から、タイプ I の AE 信号は時間的に相前後して起きる繊維と母材との界面はく離とガラス繊維の破断に対応するものと考えられる。タイプ I, II の AE 信号は共に負荷初期段階から検知されるが、 K_{AE} 値に対応する荷重点近傍を境にして発生個数が著しく増加する。タイプ III の AE 信号は 100~250 kHz の範囲に卓越した周波数成分を持ち、AE 信号のもつエネルギーも小さいことから、母材の割れに対応するものと考えられる。室温および液体窒素温度の場合について、全体の AE 信号に占めるタイプ I とタイプ II の AE 信号の割合を調べてみると、室温の場合はタイプ I の AE 信号の発生率が高いが、液体窒素温度の場合はタイプ II の AE 信号の発生率が高い。前述したように液体窒素温度の場合のガラス繊維の引張強さは室温の場合より高いから、液体窒素温度の場合はガラス繊維はストランド単位ではく離して長く引抜ける。このことから液体窒素温度の場合はタイプ II の AE 信号の発生率が高いことが理解できる。液体窒素温度の場合にのみ検知されたタイプ IV の AE 信号は、100~200 kHz の範囲および 350 kHz 付近に卓越した周波数成分を持つ。このタイプの AE 信号は負荷後期段階の小さな荷重降下直後に観察されており、そのエネルギーは高くない。したがって、このタイプ IV の AE 信号は液体窒素温度の場合におい

てのみ観察されたガラス繊維マットの層間はく離に対応するものと考えられる。

以上より SMC 複合材料の破壊機構は次のように考えられる。負荷初期段階においても母材の割れや繊維と母材との界面はく離、繊維の破断などの微視的破壊が生じるが、 K_{AE} 値に対応する荷重点近傍を境にしてこれらの微視的破壊は急激に進む。さらに室温と液体窒素温度の場合を比較すると、室温の場合には時間的に相前後して起きる繊維と母材との界面はく離と繊維の破断が、液体窒素温度の場合には繊維の破断を伴わない繊維と母材との界面はく離が微視的破壊の発生個数の上から優勢となる。

4 結 言

SMC 複合材料の室温および低温における破壊じん性および微視的破壊を明らかにする目的で、微視的破壊を的確に検知する有力な手法として知られている AE 法を併用した破壊じん性試験を室温および液体窒素温度 77K で実施し次の知見を得た。

(1) 液体窒素温度の場合には荷重 P -切欠き肩部開口変位 V_M 曲線は室温の場合とはほぼ同程度の荷重レベルから非線形性を示し、最大荷重は室温の場合の約 3 倍となる。液体窒素温度の場合の AE 信号の活性度は室温の場合のそれに比べ全般的に高い。

(2) 切欠き先端における微視的破壊の累積した損傷域の急速な拡大開始を意味する AE 累積エネルギーの急増開始点の応力拡大係数から破壊じん性値 K_{AE} を得た。液体窒素温度の場合の K_{AE} 値は室温の場合のそれに比べ非常に大きい。

(3) 室温の場合は K_{AE} 値は ASTM E399 の 5% オフセット法により求めた K_Q 値とよく一致するが、液体窒素温度の場合は K_{AE} 値は K_Q 値より高い値となった。

(4) 試験片の破面観察より SMC 複合材料の破壊は繊維の破断、繊維と母材との界面はく離、母材の割れおよび層間はく離の 4 種類の微視的破壊を伴うことを明らかにした。

(5) 周波数解析の結果に基づき AE 信号を室温では 3 種類に、液体窒素温度では 4 種類に分類した。さらにそれぞれのタイプの AE 信号と微視的破壊との対応を議論し、破壊機構を明らかにした。

本研究の遂行にあたり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。なお液体窒素の供給は東北大学工学部低温センタによったことを付記し謝意を表する。

(昭和60年3月19日 第14回 FRP シンポジウムにて講演)

参 考 文 献

- 1) S. K. Gagger and L. J. Broutman, ASTM STP 631, 310 (1977).
- 2) ASTM Standards E399-81, "Annual Book of ASTM Standards", Part 10, p. 592 (1982) American Society for Testing and Materials.
- 3) H. Yanada and H. Honma, J. Mater. Sci., **18**, 133 (1983).
- 4) S. S. Wang, E. S.-M. Chim, T. P. Yu and D. P. Goetz, J. Compos. Mater., **17**, 299 (1983).
- 5) H. Sekine, K. Shimomura, H. Takahashi and K. Fujino, "First International Symposium on Acoustic Emission from Reinforced Composites", S3, p. 1 (1983) Soc. Plastic Industry, Inc.
- 6) 下村慶一, 関根英樹, 高橋秀明, 岸本正彦, 藤埜一仁, 非破壊検査, **33**, 520 (1984).
- 7) H. Niitsuma, N. Chubachi, M. Kameyama, T. Higuchi and H. Sekine, "First International Symposium on Acoustic Emission from Reinforced Composites", S5, p. 1 (1983) Soc. Plastic Industry, Inc.
- 8) N. M. Cameron, Glass Tech., **9**, 14 (1968).
- 9) 尾上守夫, 山口楠雄, 仲佐博裕, 佐野謙一, 磯野英二, 渡辺哲夫, "アコースティック・エミッションの基礎と応用" (1976) コロナ社.