先進 FRP の引張および曲げ強度のばらつきについて[†]

三木 光 範* 室 津 義 定* 酒 井 利 彦**

Variations of Tensile and Flexural Strengths of
Advanced Fiber Reinforced Plastics

by

Mitsunori MIKI*, Yoshisada MUROTSU* and Toshihiko SAKAI**

A database for the mechanical properties of advanced composites was developed. The data were obtained from the research and development project of composite materials for future industries supported by the Ministry of International Trade and Industry (MITI). This paper deals with the statistical analysis of the tensile and flexural strengths of fiber reinforced plastic (FRP) based on this database.

The present analysis consists of the following three parts: (1) the calculation of basic statistical properties, the calculation of parameters of Weibull distribution, and the testing of goodness-of-fit for the primary populations where the sample size is larger than 10, (2) the clarification of the effects of various factors such as hybridization, discontinuousness of fibers, temperature, thermal aging, orientation, and matrix properties on the mean strength and the variation, and (3) the clarification of statistical properties of the parameters of the strength distribution.

Key words : Composite materials, Reliability, Variation of strength, Database, Statistical analysis, FRP

1 緒 言

炭素繊維強化エポキシ樹脂など高剛性、高強度の複合材料は先進複合材料 (Advanced composite materials) と呼ばれ、航空機や宇宙構造物などの一次構造部材として今後大きな発展が期待されている材料である。また、こうした材料の発展は航空・宇宙の分野のみならず自動車、ロボットあるいは精密機械などの分野への応用範囲をも広げ、各機械の性能向上に寄与することとなる。

昭和 56 年、通商産業省は来るべき将来に日本が技術立国としての地位をますます強固にするために次世代産業基盤技術研究開発制度を発足させ、新材料、バイオテクノロジーおよび新機能素子に関する 12 のテーマで基礎的研究を推進することにした。複合材料の研究開発はその中の一つである。¹⁾

次世代制度における複合材料の研究開発においては主として航空・宇宙の分野での応用を念頭に、複合材料の高強度化ならびに耐熱性の向上が目標となっている。Table I は設定された目標例である。いずれの目標値も、95% の信頼水準で 90% の信頼度をもつ強度として与えられており、MIL 規格における B 値に相当するきわめて高い目標となっている。

この研究のために多くの企業、国立試験・研究所、

Table I. Typical goal strength of composite materials being developed for future industries.

	Typical goal strength along the fiber orientation
FRP	① R. T. strength 2350 MPa
	② High temp. strength 2115 MPa at 250°C
FRM	① R. T. strength 1470 MPa
	② High temp. strength 1320 MPa at 450°C

Note: Strength is in 90% reliability with 95% confidence level.

そして大学が共同して材料開発、評価方法の検討、試験などを行ってきた。筆者らはこのうち材料強度データベースの開発を担当してきた。

複合材料のファクトデータベースの開発は日本で初めての試みであり、素材、試験条件、および強度値をデータベース化するため、項目、記述法、そしてデータ構造を研究し、昭和 60 年度には基本方式を確立した。²⁾ その後データの入力作業に取りかかり、現在 Table II に示すようなデータが蓄積されている。

本研究は、このデータベースを基に統計解析作業を行い、先進複合材料の強度とそのばらつきについて検

[†] 原稿受理 昭和62年12月11日 Received Dec. 11, 1987

* 正 会 員 大阪府立大学工学部 堺市百舌鳥梅町, College of Engineering, University of Osaka Prefecture, Mozu-Umemachi, Sakai

** 大阪府立大学工学部 堺市百舌鳥梅町, College of Engineering, University of Osaka Prefecture, Mozu-Umemachi, Sakai

Table II. Number of data stored in the composite materials data base.

Material / Year		1984	1985	1986	Subtotal	Total
FRP	Tensile	742	150	568	1460	5474
	Bending	434	149	65	648	
	Shear	268	496	435	1199	
FRM	Tensile	784	747	602	2133	
	Bending	4	30	0	34	
	Shear	0	0	0	0	

討したものであり、第1段階として、高分子材料をマトリックスとする FRP の引張および曲げ強度の信頼性について明らかにしたものである。これらの結果は、現在最先端の材料の大量データの統計解析によりはじめて得られるもので、航空・宇宙構造物の計画・設計に不可欠なものであるほか、他分野での先進複合材料の応用に大きな指針を与えるものと思われる。

2 対象としたデータの内訳

本研究では、蓄積されたデータが豊富であること、そして、試験片1本1本が極めて高度な技術と多くの労力・費用をもとに作成されたものであること、さらに、強度試験についても新しい方法を開発したり、あるいは極めて慎重な配慮の下でデータ採取が行われたことなどを勘案し、次の方針で母集団を作成した。

- ① 同一条件下のデータで標本数が10以上のものを第1次母集団とする。
- ② 標本数が10に満たないものであっても、その素材の重要性が特に高いものについては第1次母集団とする。
- ③ 試験条件や素材構成が類似のものはデータ併合を行い第2次母集団とする。
- ④ 本報では、FRP の引張および曲げ強度のみを対象とする。

Table III. Number of data used for the present statistical analysis.

	No. of tests		No. of specimens	
	Tensile	Bending	Tensile	Bending
CF / Epoxy	16	1	209	10
CF / Polyimide	4	1	48	34
CF / PPQ	5	0	70	0
CF-SMC	102	7	510	150
GF-Cloth	1	3	24	60
CF-Cloth	1	3	24	48
CF / GF-Cloth	1	6	24	80
SiC / Polyimide	0	1	0	10
Kevlar / Epoxy	0	1	0	10
Subtotal	130	23	909	402
Total	153		1311	

こうして作成された第1次母集団の数と標本数を Table III に示す。表からわかるように、今回対象としたデータ総数は試験組数にして153、試験片本数にして1311にのぼる大規模データとなっており、データの背景を考えると本研究と対比できるものはない。

3 データの統計解析

統計解析は次のように行った。

- ① 基礎統計量（平均、標準偏差、変動係数）の算出
- ② 2母数ワイブル分布の形状母数 α および尺度母数 β の算出。2母数ワイブル分布の分布関数は次式で与えられる。

$$F(x) = 1 - \exp\left\{-\left(\frac{x}{\beta}\right)^{\alpha}\right\} \quad (1)$$

α および β の算出は線形法³⁾によった。なお、3母数ワイブル分布は形状母数の物理的意味がなくなることから採用しなかった。

- ③ 正規分布 $N(\mu, \sigma)$ へのあてはめ。
- ④ 各分布の適合度検定。方法は、小数標本に対しても適用可能なコルモゴロフ・スミルノフ検定⁴⁾を用いた。
- ⑤ MIL 規格における A, B 基準値の算出。
- ⑥ 正規およびワイブル確率紙上へのデータのプロット。

4 結果と考察

4・1 1次母集団に係る統計解析

Table III に示した1次母集団153組について統計解析を行った。ここではその中から代表的なものとして、3例を示す。

Fig. 1 はカーボンクロス強化不飽和ポリエステル樹脂（トレカクロス 6343／ポリマール X-440, 0°/90° *12 層）の縦糸方向、室温での引張強度（P60T5：母集団識別番号）と炭素繊維（T400）強化ポリイミド樹脂 UD, $V_f=67\%$ ）の0°方向、室温での引張強度

Fig. 1. Typical tensile strength distributions of CFRP. P61T15: Torayca-cloth/polyester, P60T5: T400B/polyimide.

(P61T15)の破壊確率をワイブル分布確率紙に示したもので、いずれもワイブル分布によく適合していることが分かる。平均強度（以下 $\bar{X}$ と記す）はそれぞれ480MPaおよび2400MPaで変動係数（以下CVと記す）はいずれも5.6%および3.5%で、 α の値では19.5と28.2であり、1次構造材料として十分な性能を有していることがわかる。従来のガラスクロス不飽和ポリエステルに関するデータ（ $CV=5.1-5.8\%$ ）⁵⁾やT300/5208のUD材に関するデータ（ $\alpha=13.2-13.3$ ）⁶⁾と比較して同等もしくはかなり良好な値となっていることがわかる。

Fig. 2は炭素繊維強化エポキシ樹脂（T300/F6986 S03, UD, $V_f=45-47\%$ ）の 0° 方向、室温での曲げ強度（P61B3）と炭素繊維（T400）強化ポリイミド樹脂（UD）の 0° 方向、室温での曲げ強度（P60B1）の強度分布である。それぞれ、CVは2.8%および7.8%で、後者は硬化条件が多少異なるものを併合しているためCVが大となっているが、いずれも1次構造材料として十分な信頼性を有していることがわかる。

Fig. 3はCVが多少大きい母集団の例として炭素短

Fig. 2. Typical flexural strength distributions of CFRP. P61B3: T300/epoxy, P60B1: T400/polyimide.

Fig. 3. Typical flexural strength distributions with large variations. P59B13: Torayca-cloth/polyester with poor pregnancy.

繊維 SMC（トレカ SMC）（P59B13）およびカーボンクロス強化不飽和ポリエステル樹脂（トレカクロス 6343/ポリマール X-440AM, $0^\circ/90^\circ * 12$ 層）（P59B17）の曲げ強度分布を示したものである。炭素繊維の SMC の $\bar{X}$ は470MPaと極めて高く、しかもCVは9.9%と十分小さく、広範囲の応用が期待される。GF-SMCに関する従来のデータ（ $CV=14-16\%$ ）⁵⁾と比較してもかなりばらつきは小さいことがわかる。一方、母集団 P59B17では明らかに高強度部と低強度部のデータが存在し、低強度部のデータは試験後の試験片の詳細な観察により、いずれも含浸不良であったことがわかった。

4・2 種々の要因の影響

第1次母集団の統計解析の結果をもとに、引張および曲げ強度の平均値（ $\bar{X}$ ）と変動係数（CV）におよぼす種々の要因の影響を明らかにした。

(1) ハイブリッド化の影響 Fig. 4はカーボンクロス（CF-cloth/polyester）、ガラスクロス（GF-cloth/polyester）および両者のハイブリッド材（CF/GF/CF / polyester）の引張および曲げ強度特性を示したものである。ハイブリッド材は静強度的にはメリットは小さいが、曲げ条件下でCVが小さくなるというメリットがある。

Fig. 4. Variations of the mean tensile and flexural strength and CV of glass, carbon, and glass/carbon composites.

(2) SMCにおける材料条件の影響 炭素短繊維 SMC（T300/Vinylester）において素材の条件を変化させた時の強度特性をFig. 5に示す。これより、 $\bar{X}$ は条件変化により全て減少しており、特に繊維をT300からM40に変えると $\bar{X}$ は著しく減少することがわかる。一方、マトリックスをエポキシ樹脂にするとCVは40%近くにもなり、成形の困難性をうかがわせる。また、 $\bar{X}$ とCVの関連性を考えると、 $\bar{X}$ が

Fig. 5. Variations of the mean flexural strength and CV of CF-SMC with the changes in materials constitution. Material; 1: Decrease in viscosity, 2: Change of the matrix (vinylester $\rightarrow$ epoxy) 3: Increase in viscosity, 4: Halving of the length of the fibers, 5: Change of the fiber (T300 $\rightarrow$ M40) 6: Change in viscosity of the material 5.

大きくなると CV は小さく、逆に $\bar{X}$ が低いと CV が大となっている。このことは、SMC では強化繊維の成形品中での分散が不均一になると $\bar{X}$ が減少し、CV が増加することになるものと思われる。

(3) 温度の影響 FRP の耐熱性の向上は次世代複合材料研究の中で最も重要なテーマである。航空機の高速化、宇宙環境での使用を考えると耐熱性のあるマトリックスの開発は急務である。

FRP のマトリックスの耐熱性向上は主として三つの方向で研究が進められている。すなわち、① エポキシ樹脂の骨格の変更、② 耐熱性のあるポリイミド樹脂の成形性の向上、③ 新規樹脂の開発、である。

Fig. 6 はそれぞれ、 $\bar{X}$ および CV と試験温度との関係を種々の CFRP の UD 材についてまとめたものである。強化繊維は全てトレカ T400、マトリックスは、記号 PG がエポキシ樹脂、記号 PI がポリイミド樹脂、そして PPQ が新規樹脂のポリフェニルキノキサリン樹脂である。

この図より、マトリックスがエポキシ樹脂系では、耐熱性を付与しても $\bar{X}$ は 200°C までは室温強度の 90% 以上を保持しているが、250°C になると 80% 程度にまで減少する。しかし、ポリイミド樹脂系やポリフェニルキノキサリン樹脂系のもものでは 250°C でも室温強度の 95% 程度を保持しており、耐熱性が良好であることがわかる。

一方、CV について見ると、特徴的な傾向はなく、高温化でも CV は平均的には不変と考えることがで

(a) Mean strength.

(b) Coefficient of variation.

Fig. 6. The relation between the mean strength (a) and CV (b) and the temperature. Matrix=PG-1, PG-2, PG-3: Epoxy, PI-1, PI-2: Polyimide, PPQ: Polyphenyl-quinoxaline.

Fig. 7. The variations of the R.T. flexural strength and CV of CF-SMC with the exposure time in high temperatures.

きる。

(4) 熱老化の影響 Fig. 7 は炭素短繊維 SMC に関

する熱老化試験の結果をまとめたものである。それぞれ、80°C、120°C、160°Cの温度で最高700h（1カ月）保持した後の室温強度特性である。これらより、 $\bar{X}$ および CV とも熱老化の影響は少ないことがわかる。 $\bar{X}$ は加熱により増加することもあり、これは硬化が進んだことによるものと思われる。CV は材料条件、硬化条件などが異なるデータの併合であるにもかかわらず10%程度であり、SMC としては十分信頼性のある材料であることがわかる。

(5) 配向角の影響 Fig. 8 は炭素繊維強化エポキシ樹脂 (T400/PG) について強度特性に及ぼす配向角の影響をまとめたものである。 $\bar{X}$ が配向角の増加により著しく減少することは当然であるが、CV はその逆に増加することがわかる。0° 方向では、CV = 5-6% であるが45° や90° 方向では15-20% にもなり、このことから多方向積層材での CV はかなり大きくなるものと予想できる。

Fig. 8. The variations of the mean strength and CV of CFRP with the change in fiber orientations.

(6) マトリックスの影響 前項3でも述べたようにFRPの耐熱性はマトリックスに用いられている樹脂によって変化する。Fig. 9 はそれぞれ、室温および高温（250°C）におけるCFRP、UD材の強度特性をマトリックス別にまとめたものである。強化繊維はすべてT400であり、樹脂の記号は第3項で説明した。横軸の樹脂は室温での $\bar{X}$ の小さいものから順に並べた。室温強度が最も低いのがポリフェニルキノキサリン樹脂のCFRPであり、順にポリイミド系、エポキシ系、と強度が増加している。

室温での CV は PPQ を除いて $\bar{X}$ の増加とともに増加している。しかしながらそれらはいずれも3-6%程度であってポリイミド系とエポキシ系とで CV に

(a) Room temperature.

(b) High temperature.

Fig. 9. The variations of the mean strength and CV of CFRP with the change in matrix material. PPQ: Polyphenylquinoxaline; PI-1, PI-2: Polyimide; PG-1, PG-2, PG-3: Epoxy.

特に目立つ差はない。ただ、ポリフェニルキノキサリン樹脂では CV が8.5%程度で高い値を示している。これは $\bar{X}$ の減少とも合わせて成形性が未だ若干悪いことが原因と思われる。

高温強度はポリイミド樹脂のCFRPが高い値を示している。CVに関しては特徴的な変化はない。

(7) クロスチェック 重要な材料に関しては、材料開発を行った企業での試験データの他に同一材料をいくつかの国立試験・研究所で試験しクロスチェックを

Fig. 10. The difference between original test data and cross-checked test data by the government research institutes.

行ってデータの信頼性を検討する。

Fig. 10 は四つの母集団に関する開発企業データとクロスチェックデータを比較したものである。材料のロット番号の相違、試験機の相違、試験機の検定、試験者の相違などを考慮すると $\bar{X}$ で 2-4 % の相違しかないことは両計測データの良好な一致ならびに信頼性を示しているものと考えることができる。また、CV に関しても P61T8 母集団を除いて極めて良好な一致を示しており、試験が困難な高強度 UD 材のデータとして信頼度の高いデータが得られていることがわかる。

4・3 併合データの統計解析

Fig. 11 は CFRP, UD 材の 0° 方向引張強度として 1 次母集団を併合し、標本数を 254 とした場合の強度分布、および CF-SMC の曲げ強度として併合し、標本数を 150 とした場合の強度分布を示す。前者はワイブル分布に良く適合していることがわかる。CFRP, UD 材の基礎統計量は、

$$\bar{X}=2300\text{MPa}, CV=10.6\% \quad \alpha=11.3 \quad (2)$$

であり、この値は最先端の CFRP を包括的に表す重要な数値である。同一材料であれば $CV=4-6\%$ となることはすでに述べたとおりである。一方、CF-SMC の強度分布はかなり素材条件が大きく異なっていることから 2 母数ワイブル分布で近似することはできず、3 母数のワイブル分布の適用が可能であるように思われる。ただ、今回はこの解析で行っておらず、今後の課題としたい。基礎統計量は

$$\bar{X}=330\text{MPa}, CV=35.7\% \quad \alpha=3.13 \quad (3)$$

であり、この数値は CF-SMC を包括的に特性づける数値と考えられる。同一材料であれば $CV=10\%$ 程度となることはすでに述べたとおりである。

Fig. 11. Strength distributions of pooled data.
O: CF UD 0° Tensile, Δ : CF-SMC.

4・4 統計量のばらつきについて

いくつかの母集団のデータを併合して大標本の母集団を作成すると 4・3 節のように CV は増加し、同一条件下でのばらつきが不明となる欠点がある。このた

め、データを包括的に考えるのではなく、しかも全般的傾向を知ろうとすれば第 1 次母集団で得られた CV や α のばらつきを求めればよい。

Fig. 12 は引張および曲げ強度の CV および α の分布を正規確率紙上に示したものである。いずれも、正規分布には適合していないことがわかる。基礎統計量は、

$$\begin{aligned} \overline{CV} &= 8.8\% & CV(CV) &= 48.8\% \text{ (引張り)} \\ \overline{CV} &= 12.3\% & CV(CV) &= 102\% \text{ (曲げ)} \end{aligned} \quad (4)$$

である。ここで $\overline{CV}$ は CV の平均値であり、 $CV(CV)$ は CV の変動係数である。曲げと引張りで材料が同一ではないので両者の比較はできない。

これらより、ばらつきの尺度の統計的解析としては形状母数 α での結果が正規確率紙上で 2 直線で近似できることがわかる。すなわち、引張りおよび曲げのいずれの場合も概略的に $\alpha=10$ 付近で交わる。それぞれ 2 本の直線に沿って α が分布するといえる。

この結果は次のことを示唆している。すなわち、FRP の引張および曲げ強度のばらつきを支配している因子は大別して 2 種類であり、 $\alpha=10$ がその境界となっている。この詳細な検討は今後の課題である。

(a) Coefficient of variation.

(b) Shape parameter.

Fig. 12. The distributions of CV and α on Normal papers.

一方、Fig. 13 は CFRP, UD 材の 0° 方向引張強度だけに限定して α の分布を調べたものである。図よ

Fig. 13. The distributions of the shape parameters of unidirectional CFRP on Normal papers.

り α はほぼ正規分布し, α の平均値は 19.7, α の CV は 29.7% であることがわかった. この値は CFRP の強度のばらつきを考える上で重要な値となる.

4・5 平均値とばらつきの関係

Fig. 14 は引張および曲げ強度の $\bar{X}$ と CV との関係を示したものである. これより $\bar{X}$ が約 500MPa 以上のものでは CV は 10% 以下であり, $\bar{X}$ が 500MPa 以下では CV は数 % から 30% 程度までばらついていることがわかる.

Fig. 14. The relation between the mean strength and CV.

このことは, すなわち FRP が繊維方向で破壊して十分な強度がでる場合にはばらつきは十分小さいが, そうでない場合には, 強度も小さく, かつばらつきが大となることを示している.

このため, 構造物の設計方針としては, ① 高強度を要求される部材では荷重が主な繊維方向に正しく作用する構造形態に工夫することにより高信頼性設計ができ, ② 中強度部材では十分な安全係数を見込むことが重要となる.

重要なことは, GFRP などの慣用複合材料の強度に対して先進複合材料の強度および剛性は著しく増加しているにもかかわらず, CV が増加せず 2000MPa の強度においても 5% 程度となっていることであろう.

5 結 言

最も先端的な複合材料のファクトデータベースを構築し, それをもとにデータの統計解析を行い, FRP の引張および曲げ強度とそのばらつきについて検討した. こうした試みは初めてのものであり, 航空, 宇宙, 自動車などの分野への先進複合材料の応用, ならびに今後の材料開発のために有用な知見が得られた.

ただし, 本統計解析は現在進行中の研究開発の中間試験データに基づくものであり, 個々の材料系の評価を意味しないことに注意を要する.

本研究をまとめるにあたり, 統計解析手法に関して京都工芸繊維大学 前川善一郎教授に有益な助言を頂いた. ここに記して謝意を表す.

なお, 本研究は通商産業省工業技術院の次世代産業基盤技術研究開発制度に基づき, (財)次世代金属・複合材料研究開発協会が委託をうけた「複合材料の開発」の一環として行っているものである.

参 考 文 献

- 1) “財団法人・次世代金属・複合材料研究開発協会要覧”, (1983) 次世代金属・複合材料研究開発協会.
- 2) 三木光範, 千葉嘉子, 中易秀敏, 日本複合材料学会誌, **13**, 79 (1987).
- 3) 前川善一郎, 日本複合材料学会誌, **10**, 2 (1984).
- 4) J. F. Lawless, “Statistical Models and Methods for Lifetime Data”, p. 431 (1982) John Wiley & Sons.
- 5) 前川善一郎, 日本複合材料学会誌, **13**, 180, (1987).
- 6) J. M. Whitney & M. Knight, Exper. Mech., **37**, 211 (1980).