一方向炭素繊維強化熱可塑性プラスチックの 高温疲労層間はく離き裂伝ば[†]

植 松 美 彦* 北 村 隆 行**
大 谷 隆 一** 大 塚 裕 之***

Delamination Crack Growth of Unidirectional Carbon Fiber Reinforced Thermoplastic Polymer under High Temperature Fatigue

by

Yoshihiko UEMATSU*, Takayuki KITAMURA**, Ryuichi OHTANI**
and Hiroyuki OHTSUKA***

Behavior of delamination crack growth in a carbon fiber reinforced plastic (CFRP) was investigated under static creep, two step creep and high temperature fatigue at 473K (200°C) using DCB specimens. The material was a unidirectional laminate, APC-2, which consists of carbon fibers, AS4, and a thermoplastic polymer, poly-ether-ether-ketone (PEEK). In the static and two step creep tests, the crack propagation rate against time, dl/dt , was governed by the energy release rate, G , regardless of the stress change. The crack propagation in high temperature fatigue was classified into time-dependent and cycle-dependent ones. In the former, the propagation rate against time, dl/dt , was correlated well with the energy release rate, G , and the relationship coincided with that in static creep ($dl/dt = C_c G^{m_c}$; C_c and m_c are material constants). In the latter, the rate against load cycles, dl/dN , was controlled by the energy release rate range, ΔG ($dl/dN = C_f \Delta G^{m_f}$; C_f and m_f are material constants). These imply that the crack grew under the small scale creep and small scale yielding condition, respectively. The condition of transition from the time-dependent crack propagation to the cycle-dependent one was given by a relationship, $C_c \int_0^{t_1} G^{m_c} dt = C_f \Delta G^{m_f}$, where t_1 is the cycle period. The fracture surface in the time-dependent fatigue was characterized by the interface cracking between fibers and matrices. On the other hand, the matrix cracking near the fiber dominated in the cycle-dependent fatigue.

Key words : Composite material, CFRP, Delamination, Crack propagation, Creep fatigue, Thermoplastic polymer, Energy release rate

1 緒 言

炭素繊維強化プラスチック (CFRP) は、その比強度の高さによる軽量化効果などのために航空宇宙分野での使用が期待されており、欧米各国では軍用機や大型旅客機等の一次構造材としての使用例もある¹⁾。さらに、近い将来に実現が期待されている超音速旅客機や宇宙往還機においては大気圏内での超音速巡航が想定されるので、空力加熱により機体表面だけでなくその構造材までも高温にさらされる。したがって、高温条件下でも十分な強度を持つ CFRP の開発が重要となるが、CFRP の高温強度に関する研究報告はほとんどない²⁾。また、CFRP は積層構造を持つため、層間^{3), 4)}はく離が主要な破壊モードになると考えられる。

そこで、本研究では耐熱性があり高温条件下での使用が有望視される熱可塑性樹脂をマトリックスとする一方向強化 CFRP 積層板を用いてクリープおよび高温疲労条件下で層間⁵⁾はく離き裂伝ば試験を実施し、そのき裂伝ばを律速する破壊力学法則について検討した。

2 供試材および試験方法

供試材は一方向に炭素繊維 (AS4) で強化した熱可塑性樹脂ポリエーテルエーテルケトン (PEEK) (APC-2, ICI 社製) であり、48 層のプリプレグを厚さ 6 mm に加圧成形したものを用いた。その積層構造および室温における弾性定数と破壊じん性値を Table I に示す。なお、PEEK のガラス転移温度は約 413K (140°C)、融点は約 603K (330°C) である。

[†] 原稿受理 平成 4 年 4 月 14 日 Received Feb. 26, 1992

* 学生会員 京都大学大学院 〒606-01 京都市左京区吉田本町, Graduate Student, Kyoto Univ., Sakyo-ku, Kyoto, 606-01

** 正 会 員 京都大学工学部物理工学科 〒606-01 京都市左京区吉田本町, Dept. of Mech. Eng., Kyoto Univ., Sakyo-ku, Kyoto, 606-01

*** 石川島播磨重工業(株) 〒235 横浜市磯子区新中原町, Ishikawajima Harima Heavy Industry, Isogo-ku, Yokohama, 235

Table I. Test Material and mechanical properties at room temperature.

Prepreg Carbon fiber Matrix	ICI APC-2 Hercules AS4 ICI PEEK
Volume fraction of fiber	62%
Constitution of laminate	(0) ₄₈
Crystallinity of PEEK	34%
Elastic constants at room temperature (GPa)	$E_1=134$, $E_2=8.9$, $G_{12}=5.1$, $\nu_{12}=0.37$
Fracture toughness at room temperature	K_{Ic} (MPa · m ^{1/2}) G_{Ic} (N/m)
	4.7 1700

試験片は Fig. 1 に示す DCB (Double Cantilever Beam) 試験片であり, 繊維方向とき裂伝ば方向が一致するように切出した. 初期き裂は成形時に厚さ 15 μm のアルミニウム箔を 2 つ折りにして層間に挿入することにより導入し, その長さは 40 mm ~ 50 mm とした. 試験片端にはヒンジをネジ止めし, ヒンジの他方を試験機のプルロッドにピンを介して固定し, 負荷した (Fig. 1).

(i) 荷重一定の静クリープ, (ii) 2 段階荷重変動クリープ, (iii) 高温疲労の各試験を実施した. 静クリープ試験および 2 段階荷重変動下のクリープ試験は赤外線加熱炉を具備した直荷重型クリープ試験機にて実施し, 高温疲労試験には電気・機械サーボ式または電気・油圧サーボ式疲労試験機を用いた. 試験は大気中で行い, 試験温度は 473K (200°C) とした. 温度はアルメル・クロメル熱電対を用いて測定し, 試験部が $\pm 3\text{K}$ の

Table II. Test conditions in static and two step creep.

	Static creep		Two step creep	
Loading condition	P=249N	P=228N
Symbol in figures	+	×	◆ → ◇	☒ → ☐

Table III. Test conditions in high temperature fatigue.

Load Waveform
$R=P_{\min}/P_{\max}$	0.1				0.1		0.1		
$P_{\max}$ (N)	150	228	190		228		228	190	
$1/\nu$ (s)	0.5	0.5	0.5	2	2	20	1752	4992	4764
t_H (s)					1	10	360	3600	3600
Symbol in figures	▽	○	△	□	◇	●	●	▲	■

Fig. 1. Double cantilever beam (DCB) specimen (dimensions in mm).

範囲に入るよう制御した. き裂の長さは荷重線からき裂先端までの距離とし, 炉に設けた観察窓より測微顕微鏡で試験中随時測定した.

静クリープ試験は荷重 228N および 249N で行った. 2 段階荷重変動クリープ試験では, き裂伝ば中に荷重を増加させたもの (Low-High) と減少させたもの (High-Low) の 2 種類の試験を行った. 試験条件の詳細を Table II に示す. 高温疲労試験は主に最大荷重 $P_{\max}=228\text{N}$, 応行比 $R (=P_{\min}/P_{\max})=0.1$ にて行い, 周期 $1/\nu$ を 0.5 s から 4992 s の範囲で数種類選んだ. 試験条件を Table III に示す.

また, 試験終了後破面に金蒸着を施し, 走査型電子顕微鏡を用いて破面の観察を行った.

3 試験結果および考察

3・1 クリープき裂伝ばにおよぼす応力変動の影響

Fig. 2 に 2 段階荷重変動クリープ試験におけるき裂伝ば速度とき裂長さの関係を静クリープ試験の結果と共に示す. 一般に金属材料の 2 段階荷重変動クリープ試験では, 応力急変直後のき裂伝ば速度が同一荷重下の静クリープのそれより過渡的に加速されたり (Low-High の場合), 減速される (High-Low の場合) ことが報告されている. 本試験における CFRP ではこの様な過渡現象は観察されず, 応力急変直後からき裂

伝ば速度は対応する荷重の静クリープのき裂伝ば速度とほぼ一致している. 金属材料における過渡現象は主に応力変動直後の遷移クリープに起因しているのに対して, CFRP の場合にはマトリックスのクリープ変形が高強度の炭素繊維に拘束されてき裂先端近傍のみに限定される小規模クリープ状態となっているため, き裂伝ばは弾性応力場に支配されて遷移クリープの影

Fig. 2. Relationship between crack propagation rate, dl/dt , and crack length, l , under static creep and two step creep.

響が現れなかったものと考えられる。Fig. 3 に示すように、2 段階荷重変動クリープ試験におけるき裂伝ば速度 dl/dt は、静クリープと同様にエネルギー解放率 G と良い対応関係を示す。これは、上述の小規模クリープ状態下でのき裂伝ばを裏付けている。ここで、エネルギー解放率 G は次式より求めた。

$$G = \frac{P^2}{2W} \cdot \frac{d\lambda}{dl} \quad (1)$$

P は荷重、 W は試験片幅、 λ はコンプライアンスである。なお、473K (200°C) におけるコンプライアンス λ とき裂長さ l の関係は

$$\lambda^{1/3} = 0.466 + 0.0450 l \quad (2)$$

で表されることが、カミソリで人工的にき裂を導入したき裂長さの異なる DCB 試験片の負荷-開口変位曲

Fig. 3. Relationship between crack propagation rate, dl/dt , and elastic energy release rate, G .

線より判明している。また、式 (2) と同様の関係が同材の室温高サイクル疲労き裂についても成立することがすでに報告されている。

Fig. 3 には荷重保持時間の長い高温疲労試験 (Cyclic creep) の結果も併示している。この場合、き裂伝ば速度は荷重保持時間に対するものであり、保持荷重におけるエネルギー解放率との関係をプロットした。高温疲労試験の結果は静クリープ試験の結果と同様の dl/dt - G 関係を示し、応力変動の影響は認められない。これより、荷重変動がある場合でもき裂はクリープによって伝ばし、き裂伝ば速度は純時間依存性を示すことがわかる。

3・2 高温疲労き裂伝ば

高温疲労試験の同一 G_{max} 値 ($G_{max}=1567$ N/m) における時間に対するき裂伝ば速度 dl/dt と周期 $1/\nu$ の関係を Fig. 4 に示す。図の右端に静クリープ試験結果をあわせてプロットした。 $1/\nu > 20$ s では、静クリープ試験の結果も含めて dl/dt は $1/\nu$ によらずほぼ一定であり、マトリックスのクリープに起因する純時間依存性き裂伝ばであることが分かる。一方、 $1/\nu < 20$ s では dl/dt は $1/\nu$ と傾き -1 の逆比例関係にあり、荷重繰返し数 N に対するき裂伝ば速度 dl/dN が一定となっている。これは、負荷時間によらず 1 サイクル毎の荷重変動によりき裂伝ばしたことを示しており、純繰返し数依存性き裂伝ばとなっている。すなわち、 $1/\nu=20$ s を境として高温疲労き裂伝ばには時間依存性と繰返し数依存性の 2 種類のき裂伝ば形態が存在することを示している。

一般に、金属材料の高温疲労き裂伝ばにおいても周期によって時間依存性と繰返し数依存性のき裂伝ばが存在することが知られている⁸⁾。しかし、金属材料では両タイプのき裂伝ばの間にクリープと疲労の相互作用領域と呼ばれる中間領域が存在し、その領域ではき裂伝ば速度は時間依存性と繰返し数依存性のき裂伝ば速度の和以上に加速される。本試験においては時間依存性から繰返し数依存性への遷移は明瞭であり、中間周

Fig. 4. Relationship between crack propagation rate, dl/dt , and period of cycle, $1/\nu$, in high temperature fatigue.

Fig. 5. Relationship between crack propagation rate, dl/dt , and elastic energy release rate, G , or maximum energy release rate, G_{max} .

期領域の存在は認められなかった。この相違は次のように説明できる。金属材料のクリープ疲労相互作用き裂伝ばは、主にクリープ、塑性、弾性の各変形の相互作用によって生じることが明らかになっている⁹⁾。CFRP ではクリープと塑性変形がき裂先端近傍の局所のみ限定されている小規模クリープまたは小規模降伏状態にあるため、このような変形の相互作用の影響は小さく、クリープ疲労相互作用領域は現れなかった。

Fig. 5 は本試験における荷重保持時間に対するき裂伝ば速度 dl/dt と保持時のエネルギー解放率 G の関係である。前節において静クリープでは dl/dt は G と一価関係を有することを示したが、 $1/\nu > 20$ s の試験結果（黒印）もほぼ同一の直線上に乗っており、き裂伝ばがクリープにより律速されていることがわかる。クリープき裂伝ばでは dl/dt と G の関係における勾配が大きいため、 G 値が最大荷重保持中の G_{max} より小さい負荷過程、除荷過程および最小荷重保持過程では著しく dl/dt が小さくなるので、同過程中のクリープき裂伝ばは無視できると考えられる。図中に直線で示した時間依存性疲労き裂伝ば則は次式のようにまとめることができる。

$$dl/dt \text{ [mm/h]} = 5.85 \times 10^{-34} G^{10.2} \text{ [N/m]} \quad (3)$$

Fig. 2 および Fig. 3 の結果を合わせて考慮すると、クリープき裂伝ばは荷重履歴によらずその時の G 値のみに律速されていることになる。したがって、式 (3) は Table III 中に示した台形波や矩形波のみならず一般の波形にも適用できると考えられる。また、時間依存性き裂伝ばにおける dl/dt が G で整理できることより、長周期の高温疲労条件下でも小規模クリープ

Fig. 6. Comparison between creep crack propagation rate calculated, $(dl/dt)_c$ and crack propagation rate, dl/dt .

状態が満足されていることがわかる。

一方、 $1/\nu < 20$ s の試験結果（白印）は、 $1/\nu$ が短くなるにつれて式 (3) の直線関係より高 dl/dt 側にはずれ、 dl/dt は G と一価関係を示さない。なお、荷重波形として正弦波を用いた結果は1サイクルの平均き裂伝ば速度 $\nu \frac{dl}{dN}$ を最大エネルギー解放率に対してプロットした。ここで、 $1/\nu < 20$ s の矩形波および正弦波に対するき裂伝ば速度がクリープによるものでないことを示すために、逆にこれらの波形に対して式 (3) を用いてクリープによるき裂伝ば速度 $(dl/dt)_c$ を次式 (4) から計算により求め、実際に観測されたき裂伝ば速度と比較する。

$$(dl/dt)_c = \frac{1}{t_1} \int_0^{t_1} C_c G^{m_c} dt \quad (4)$$

ここで、 t_1 は周期であり、 C_c , m_c は式 (3) の定数 5.85×10^{-34} および 10.2 である。Fig. 6 はこの計算結果と実験により観察された dl/dt を比較して示したものである。同図から、 $1/\nu = 20$ s, 4992 s の結果は両者がほぼ一致しておりクリープによるき裂伝ばであることを示しているのに対して、 $1/\nu < 20$ s（白印）の実際のき裂伝ば速度はクリープによるき裂伝ば速度 $(dl/dt)_c$ よりかなり高速であることがわかる。これは $1/\nu < 20$ s のき裂伝ばがクリープによるものではなく、時間依存性き裂伝ばとは異なることを示している。

Fig. 7 は繰返し数に対するき裂伝ば速度 dl/dN とエネルギー解放率範囲 $\Delta G (= G_{max} - G_{min})$ の関係である。 $1/\nu < 20$ s（白印）の短周期領域（繰返し数依存性領域）における試験結果はほぼ同一直線上にある。図中に直線で示した繰返し数依存性の疲労き裂伝ば則は次式のようにまとめることができる。

$$dl/dN \text{ [mm/cycle]} = 2.29 \times 10^{-20} \Delta G^{5.3} \text{ [N/m]} \quad (5)$$

一方、 $1/\nu > 20$ s の試験結果（黒印）は、 $1/\nu$ が長く

Fig. 7. Relationship between crack propagation rate against load cycle, dl/dN , and energy release rate range, ΔG , in room and high temperature fatigue.

なるにつれて式(4)の直線関係より高 dl/dN 側に移行しており、 dl/dN は ΔG と一価関係を示さない。

なお、Fig. 7 中には温度 296K (23°C)、周波数 10 Hz、応力比 0.2 で行われた同材の室温疲労試験における dl/dN と ΔG との関係⁷⁾を同時に示した。高温疲労試験における dl/dN は室温疲労のそれよりも低くなっている。これは、高温下における PEEK は室温に比べて延性が増加しており、層間のき裂伝ば抵抗が増加したためと考えられる。また、この様にかかなりの高 ΔG においても dl/dN と ΔG が直線関係を保つこと、すなわち、き裂先端において小規模降伏状態が保たれていることは本材に特徴的な性質である。

以上の結果より、き裂伝ばが時間依存性の領域では dl/dt と G が、繰返し数依存性領域では dl/dN と ΔG が良好な対応関係を示していることがわかる。また、両者の境界となる $1/\nu=20$ s (半黒印) では、Fig. 5, 7 いずれにおいても良い対応関係を示している。

3・3 時間依存性き裂伝ばと繰返し数依存性き裂伝ばの遷移条件

Fig. 4 に示したように、高温疲労き裂伝ばは時間依存性および繰返し数依存性に大別することができ、しかもその間の遷移は明瞭である。したがって、両者のき裂伝ば則である式(3)および(5)からその遷移条件を求めることができる。

式(3)より時間依存性疲労き裂伝ば則は

$$dl/dt = C_c G^{m_c} \quad (6)$$

(C_c , m_c : 材料定数)

と表され、また式(5)より繰返し数依存性疲労き裂伝

ば則は

$$(dl/dN)_f = C_f \Delta G^{m_f} \quad (7)$$

(C_f , m_f : 材料定数)

と表される。1 サイクルの周期を t_1 とすると式(6)より、クリープによる 1 サイクル中のき裂伝ば量 $(dl/dN)_c$ は次式より求められる。

$$(dl/dN)_c = \int_0^{t_1} C_c G^{m_c} dt \quad (8)$$

Fig. 5, 7 の結果は $(dl/dN)_f > (dl/dN)_c$ の場合には繰返し数依存性のき裂伝ばは、 $(dl/dN)_c > (dl/dN)_f$ の場合には時間依存性のき裂伝ばとなることを示している。したがって、両者の遷移条件は

$$(dl/dN)_f = (dl/dN)_c \quad (9)$$

によって与えられ、これに式(7)および(8)を代入すると

$$C_c \int_0^{t_1} G^{m_c} dt = C_f \Delta G^{m_f} \quad (10)$$

となる。本試験の場合には、式(3), (5)より

$$\int_0^{t_1} G^{10 \cdot 2} dt = 3.91 \times \Delta G^{5.3} \times 10^{13} \quad (11)$$

で与えられる。

3・4 破面の様相

Fig. 8(a), (b), (c) にそれぞれ最大荷重 228N における静クリープ、周期 4992 s (時間依存性領域) および 0.5 s (繰返し数依存性領域) の高温疲労の試験片破面様相を示す。

静クリープおよび時間依存性高温疲労の破面 (Fig. 8(a), (b)) は類似しており、炭素繊維が露出した部分と炭素繊維の脱落した溝が交互に観察され、き裂が繊維とマトリックスの界面を伝ばしていることがわかる。また、炭素繊維周囲には大きく変形して引きちぎられたマトリックスが見られ、両条件とも樹脂のクリープ変形が先行し、その結果として界面破壊が生じたことを示している。

一方、繰返し数依存性き裂伝ばの場合 (Fig. 8(c)) は、一部時間依存性き裂伝ばの破面と同様な繊維とマトリックスの界面破壊を示す部分が観察されるが、多くは繊維全体に薄くマトリックスが付着しており、繊維近傍のマトリックス破壊となっている。室温の疲労破面ではマトリックス破壊が支配的となることが報告されており⁷⁾、高温でも繰返し数依存性き裂伝ばの場合にはこれと類似する傾向が認められる。このように、時間依存性き裂伝ばと繰返し数依存性き裂伝ばとは異なった破壊機構でき裂が伝ばしたことがわかる。

4 結 言

一方炭素強化 CF/PEEK 積層板を用いてクリープおよび高温疲労下のモード I 層間はく離き裂伝ば試験を行った。得られた結果は以下のように要約できる。

(a) Static creep at load of 228N.

(b) Time-dependent fatigue at the maximum load, $P_{\max}=228\text{N}$, and the period of cycle, $1/\nu=1752\text{ s}$. (c) Cycle-dependent fatigue at the maximum load, $P_{\max}=228\text{N}$, and the period of cycle, $1/\nu=0.5\text{ s}$.

Fig. 8. Fractographs taken by means of scanning electron microscope.

(1) 2 段階重変動クリープ試験では, き裂伝ばにおよぼす応力変動の影響は認められない. これはクリープ変形領域がき裂先端近傍に限定された小規模クリー

プ状態下でき裂が伝ばするためである. また, き裂伝ば速度 dl/dt はエネルギー解放率 G によって統一的に整理できる.

(2) 高温疲労き裂伝ばは時間依存性のものと繰返し数依存性のものに大別できる. 前者の時間に対するき裂伝ば速度 dl/dt はエネルギー解放率 G と良い対応関係 ($dl/dt = C_c G^{m_c}$; C_c , m_c は材料定数) を示し, 後者の繰返し数に対するき裂伝ば速度 dl/dN はエネルギー解放率範囲 ΔG と良い対応関係 ($dl/dN = C_f \Delta G^{m_f}$; C_f , m_f は材料定数) を示す.

(3) 時間依存性き裂伝ば則および繰返し数依存性き裂伝ば則より両者の遷移条件は次式で表すことができる.

$$C_c \int_0^{t_1} G^{m_c} dt = C_f \Delta G^{m_f}$$

(t_1 : 1 サイクルの周期)

(4) 破面観察結果より, 時間依存性き裂伝ばの場合にはき裂は繊維とマトリックスの界面を伝ばし, 繰返し数依存性き裂伝ばの場合には主に界面近傍のマトリックス破壊となっていることが判明した.

本研究は, 平成 2, 3 年度文部省科学研究費補助金一般研究 (B) (02452094) の補助を得て実施した.

(平成 4 年 3 月 18 日 日本材料学会第 21 回 FRP シンポジウムにて講演)

参 考 文 献

- 1) 上田昭夫, 航空宇宙機器を支える ACM, 日経マテリアル, No. 71, p. 170 (1989).
- 2) N. G. Newaz and S. Mall, J. Composite Materials, **23**, 133 (1989).
- 3) 影山和郎, 材料, **39**, 235 (1990).
- 4) M. Hojo, C.-G. Gustafson, K. Tanaka and R. Hayashi, Proc. First Swedish-Japanese Seminar on Composite Materials, p. 52 (1987).
- 5) 大谷隆一, 北村隆行, 平 修二, 日本機械学会講演論文集, **780**, 135 (1978).
- 6) 大谷隆一, 北村隆行, 森田 宏, 山田雅也, 北條正樹, 日本機械学会論文集, A-57, 556 (1991).
- 7) 北條正樹, 田中啓介, C.-G. Gustafson, P.-A. Cradin, 剣持 潔, 日本機械学会論文集, A-56, 1327 (1990).
- 8) S. Taira, R. Ohtani and T. Komatsu, Trans. ASME, J. Engineering Materials and Technology, **101**, 162 (1979).
- 9) 北村隆行, 大谷隆一, 日本機械学会論文集, A-52, 1816 (1986).