長炭素繊維強化プラスチックの引張強さの分布と そのシミュレーション[†]

戸 梶 恵 郎* 小 川 武 史* 堀 智 明**

The Distribution of Tensile Strength and Its Simulation in Long-Carbon-Fiber Reinforced Plastic

by

Keiro TOKAJI*, Takeshi OGAWA* and Chiaki HORI**

Tensile tests have been carried out using the smooth specimens of long-carbon-fiber reinforced plastic. The distribution of tensile strength was examined and the cause of the scatter was studied based on the macroscopic appearance of fractured specimens and the SEM observation of fracture surfaces. Tensile strength showed a considerable scatter which was due to the difference in fiber content and morphology of fiber distribution among specimens. Based on the experimental results, a simple model in which the scatter of fiber content and the fiber distribution were considered was developed and a simulation of the distribution of tensile strength was performed by using a modified law of mixture. It was shown that the experimental distribution could be expressed reasonably by the simulation.

Key words: Fiber reinforced plastic, Long-carbon-fiber, Tensile property, Statistical treatment, Law of mixture, Simulation

1 緒 言

炭素繊維強化プラスチック (CFRP) は高い比強度と比弾性率を有するので、航空宇宙分野を代表とする軽量構造材料として用いられていることは周知のとおりである。これまでに構造材料として評価が不可欠な種々の強度特性について研究が行われているが、なかでも静的強度、疲労強度および寿命のばらつきや分布特性に関する研究が多いようである。この背景には、複合材料が異種の材料の組合せであり、単一材料と比べて強度や寿命を変動させる要因が多くなる事実がある。したがって、強度や寿命の統計的性質を明らかにすることは、材料信頼性といった観点から実用的にきわめて重要である。

ところで、これまでの研究対象材料の多くが一方向連続繊維強化型の FRP であり、不連続ランダム繊維強化型の FRP に関する研究は比較的少ない。本研究で用いる長炭素繊維強化 CFRP は疑似等方性である後者に属し、連続繊維と短繊維の中間的な長繊維 (繊維長さ: 24 mm) を用いることにより強度と剛性の向上を目指した材料である。現在はその優れた成形性を利用した用途が主であるが、将来自動車部品などの構造材料としての応用も考慮されている。しかし、強度特性や破壊機構などについてはほとんど明らかにされていない。

そこで本研究では、上記 CFRP を用いて引張試験を行い、まず引張強さの分布を調べ、そのばらつきの要因について破面観察を通じて検討する。続いて、実験結果を基礎として簡単なモデルを構築し、修正複合則を用いて引張強さの分布シミュレーションを試み、実験結果と

比較、検討する。

2 材料および実験方法

2・1 供試材および試験片

供試材は、長さ 24 mm の PAN 系炭素繊維の不織布に熱硬化性樹脂 (フェノール系ポリマアロイ) を含浸させ、これをプレスにより成形した CFRP (KPC-202, (株) 神戸製鋼所製) である。炭素繊維の含有率は約 28.5 体積 % である。カタログデータによる繊維の物性値を Table I に示す。素材は実製品から採取された約 175 mm×150 mm、厚さ約 1 mm の平板である。片側表面にはリブやボスが付属しているので、後述する試験片をそのような部分を避けて採取した。

Fig. 1 に試験片表面および断面における繊維の配向および分布状態を示す。巨視的には繊維はランダムに配向されていると考えられるが、微視的には繊維が同一方向に配向したり、繊維が単体ではなく束になって存在していることがわかる。

用いた試験片の形状寸法を Fig. 2 に示す。平行部長さ 25 mm、幅 10 mm の平滑試験片である。実験に際して試験片がつかみ部で破断するのを防ぐため、試験片つかみ部を厚さ 1 mm のプラスチックプレートで補強した。

Table I. Details of fiber.

Fiber content V_f (%)	Strength of fiber σ_{fu} (MPa)	Fiber diameter d (μ m)	Fiber length $\bar{l}$ (mm)
28.5	3629	8	24

[†] 原稿受理 平成 7 年 2 月 9 日 Received Feb. 9, 1995

* 正 会 員 岐阜大学工学部機械工学科 〒501-11 岐阜市柳戸, Dept. of Mech. Eng., Gifu Univ., Yanagido, Gifu, 501-11

** (株)クボタ 〒590 堺市石津北町, Kubota Co. Ltd., Ishizukita-machi, Sakai, 590

Fig. 1. Orientation distribution of fiber.

Fig. 2. Configuration of specimen.

2・2 実験方法

実験には容量 4.9 kN の電気油圧式疲労試験機を用いた。室温大気中で 30 本の試験片を用いて引張試験を行った。負荷速度は 440 N/min である。その際、試験片平行部中央に貼布したひずみゲージ（標点距離：20 mm）により、弾性係数の測定を行った。

試験片表面の観察には光学顕微鏡、レーザー顕微鏡および走査型電子顕微鏡 (SEM) を使い、破面観察には SEM を用いた。

3 実験結果および考察

3・1 引張強さと弾性係数の分布特性

まず、引張強さ σ_B および弾性係数 E のばらつきを正規確率紙、対数正規確率紙、およびワイブル確率紙にプロットしたところ、両者はワイブル分布に最も良く適合することがわかった。そこで、ワイブル確率紙上に整理した結果を、それぞれ Fig. 3 および Fig. 4 に示す。縦軸の破壊確率はミーンランク法による累積確率 $i/(n+1)$ (n : 標本数, i : 順位) である。図から明らかなように、 σ_B は最小値が 140.8 MPa, 最大値が 271.1 MPa であり、ほぼ 2 倍のばらつきを示す。同様に、 E も 17.9~28.7 GPa のばらつきを示す。

ところで、3 母数ワイブル分布の分布関数は次式で与えられる。

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

ここで、 x は σ_B または E , パラメータ m , α および γ はそれぞれ形状母数, 尺度母数および位置母数である。この 3 母数の推定には相関係数法を用い、得られた母数

Fig. 3. Distribution of tensile strength plotted on a Weibull probability paper.

Fig. 4. Distribution of elastic modulus plotted on a Weibull probability paper.

を用いた分布関数 $F(x)$ の曲線を図中に実線で示した。Fig. 3 および Fig. 4 から明らかなように、分布関数は実験結果の傾向をよく表している。推定した 3 母数と変動係数 CV などをまとめて Table II に示す。 σ_B の CV は約 16% であり、一方向連続繊維強化 CFRP と比べるとかなり大きい¹⁾。なお、破壊確率 $F=50\%$ の σ_B および E は、それぞれ 172.7 MPa および 21.3 GPa である。

Fig. 5 に σ_B と E の関係を示す。 $\sigma_B < 210$ MPa においてはばらつきが大きく、両者の相関はやや不明瞭であるが、全体的には σ_B の高い試験片は高い E を示す傾向にあると言える。

Table II. Three parameters of Weibull distribution and coefficient of variation.

Tensile properties	Shape parameter m	Scale parameter α	Location parameter γ	Coefficient of variation CV (%)
σ_B	1.560	47.653	135.0	15.9
E	1.719	5.023	17.2	11.4

Fig. 5. Relationship between elastic modulus and tensile strength.

ところで、複合材料の σ_B や E はよく知られているように複合則に従う。すなわち、両者は繊維含有率に依存する。したがって、Fig. 3 および Fig. 4 に示した σ_B および E のばらつきは、まず試験片間の繊維含有率のばらつきに起因すると思われる。同時に、Fig. 1 から明らかのように、繊維配向や繊維分布状態（繊維束の存在）にも強く依存すると考えられる。以下に、試験片の巨視的破壊様相や破面の SEM 観察から、これらについて検討する。

3・2 巨視的破壊様相

Fig. 6 に引張試験片の破壊様相の一例を示す。(a) および (b) は、それぞれ低強度および高強度を示した試験片に対応している。低強度の試験片の場合 (Fig. 6 (a))、全体的に繊維含有率が低い、または含有率が高いようでも繊維が荷重軸に対して大きな角度の方向に多く配向している。また、両試験片とも繊維に沿って比較的直線的に破壊している。一方、高強度の試験片の場合 (Fig. 6 (b))、全体的に繊維含有率が高く、繊維は比較的ランダム、または荷重軸に平行な方向に多く配向している。また、両試験片ともに破面はジグザグとなり、複雑な破壊形態を示している。なお、中強度の試験片の場合、巨

Fig. 6. Macroscopic appearance of fractured specimens.

視的破壊様相は上記両試験片の中間的な様相を呈していた。

3・3 SEM による破面観察

SEM による破面観察結果を Fig. 7 に示す。(a) および (b) はそれぞれ低強度および高強度の試験片に対するものであり、破面の全体的な様相と特徴的な破面様相を拡大写真で示してある。低強度の試験片の場合 (Fig. 7 (a))、長い繊維束が破面上に多く観察される。また、拡大写真に示すように母材で破壊している領域も認められる。すなわち、繊維に沿った方向や強度の弱い母材で破壊している。高強度の試験片 (Fig. 7 (b)) においても、破面上に多くの繊維が観察されるが、破面に平行な繊維は全体的に少ない傾向にあり、拡大写真に示すように破面に垂直、すなわち荷重軸方向の繊維が引き抜かれたり、切断されている部分が多くみられる。

以上の巨視的破壊様相および SEM による破面観察から、低強度の試験片は全体的に繊維含有率が低く、繊維が荷重軸に対して大きな角度で配向されている場合が多い。破壊はそのような繊維に沿って、すなわち界面はく離を生じやすい。結果として、比較的直線的な破壊形態を示す。一方、高強度の試験片は全体的に繊維含有率が高く、荷重軸に対してほぼ平行に配向された繊維が多い。破壊は繊維を切断および引き抜くように生じ、結果としてジグザグな破壊形態となる。こうしたことから、 σ_B のばらつきは試験片間の繊維含有率の偏り、配向のばらつき、および繊維の分布状態（繊維束の存在）に起因していると考えられる。また、個々の試験片においても、同じ理由により極端に弱い部分や強い部分が生じ、 σ_B は最も弱い部分によって規定されることになると思われる。金属材料などでは、 σ_B は試験片の平均的な性質を反映する結果、そのばらつきは正規分布に従う場合が多い²⁾。しかし、長繊維で強化された本材料のような場合、 σ_B は上述したように試験片の局所的な性質、すなわち最弱リンクモデルによって説明されうると考えられる。

4 引張強さのシミュレーション

実験結果から、破壊機構は単純ではなく、 σ_B は繊維の含有率、配向および分布状態、界面強度、繊維・界面・樹脂の破断によるき裂の発生と進展などの因子に依存すると考えられる。したがって、これらの因子の影響が試験片ごとに異なるためにばらつきを生じ、また個々の試験片の σ_B はその試験片の最弱部分によって決まると考えられる。そこで、試験片を幾つかのユニットに分割したモデルを構築し、上記の因子の影響を考慮して個々のユニットの強度を求め、そのなかの最弱ユニットの強度を試験片の σ_B とするシミュレーションが可能と考えられる。シミュレーションに際しては、個々の因子の影響がある程度定量的に把握されていることが必要であるので、ここでは強度に最も強く影響を及ぼす因子と考えられ、複合則で取り扱うことが可能な繊維含有率、配向および分布状態のみを考慮することによって、どの程度まで本材料の強度を予測できるかについて検討する。以下ではこのような考え方に基づくシミュレーションの概

Fig. 7. SEM micrographs of fracture surfaces.

要を述べ, シミュレーション結果と実験結果を比較, 検討する.

4・1 複合則に基づく引張強さの予測

複合材料の σ_B の予測には, Fukuda と Chou³⁾による繊維長さおよび配向分布の効果を考慮した修正複合則を用いた. ここでは最終的な式のみを以下に示し, 詳細は文献にゆずる.

$$\begin{aligned} \sigma_{cu} &= \sigma_{fu} V_f \left(1 - \frac{l_c}{2\bar{l}}\right) \int_0^{\pi/2} g(\theta) \cos \theta d\theta \\ &\times \int_0^{\theta_0} g(\theta) \cos^3 \theta d\theta \int_0^{\theta_0} \left(1 - \frac{\beta}{\cos \theta}\right) \\ &\times g(\theta) d\theta + \sigma'_m (1 - V_f) \end{aligned} \quad (2)$$

σ_{cu} : 複合材料の破壊強度

σ_{fu} : 繊維の破壊強度

σ'_m : 複合材破壊時の母材の応力

V_f : 繊維の体積含有率

$\bar{l}$: 平均繊維長さ

l_c : 限界繊維長さ

β : 定数 (<1)

θ : 繊維の配向角

$g(\theta)$: 繊維配向に関する確率密度関数

なお, 式 (2) は, 繊維に強度分布がなく, すべての繊維が配向角度に依存した応力を破断まで保持することを前提としている.

4・2 シミュレーションの手順

モデルの簡略化をはかるため, 本シミュレーションでは繊維長さ一定ランダム配向材料とし, 繊維含有率と繊維分布状態のみを考慮することとする. シミュレーションの概要と手順は以下のとおりである.

(1) 試験片モデルの作製にあたって, Fig. 8 に示すような 75×10 mm の平板を考慮する. ここで, 平板の長さを 75 mm (繊維長さのほぼ 3 倍) としたのは, 後述する測定対象部 (試験片平行部) に対して外部からの繊維が配向角度に依存した応力を破断まで保持することを前提としている.

Fig. 8. Modeling of specimen.

維の侵入を考えなければ、測定対象部両端における繊維含有率が必ず低く見積もられるからである。

(2) 繊維の中心座標および荷重軸に対する角度（配向角）を一様乱数を用いて与えることによって、平板内の繊維の分布をモデル化する。

(3) 平板内の繊維が所定の含有率（面積率）になるまで(2)を繰り返す。

(4) 平板の中央部（25×10 mm の部分）を測定対象部（試験片平行部、Fig. 2 参照）とする。

(5) 測定対象部を限界領域 $\beta \bar{l}$ （ユニット）に分割し、そのユニット内に含まれる繊維含有率を求める。

(6) 各ユニットの強度を式(2)を用いて算出する。

(7) 最弱リンク説に従って破壊すると考え、最弱ユニットの強度をその試験片の σ_B とする。

(8) 試験片モデルを 30 本作成し、上述の方法を繰り返すことにより、 σ_B の分布を求める。

計算に用いた繊維の含有率、長さおよび引張強さは、Table I に示したとおりである。シミュレーションにおいて強度を支配するパラメータは、限界領域 $\beta \bar{l}$ 、繊維直径 d および限界繊維長さ l_c である。

4・3 シミュレーション結果と検討

まず、前述の手順に従い、3つのパラメータ、 $\beta \bar{l}$ 、 d および l_c の値を変化させ、これらの予測強度に及ぼす影響について検討した。その結果を Fig. 9 に示す。図より明らかなように、 l_c の増加に伴い強度は緩やかに直線的に低下する。同様に、 d の増加に伴い強度は低下する。また、 $\beta \bar{l}$ の増大に伴い強度は大きく低下し、 d が小さいほどその割合が大きくなる。すなわち、各パラメータの増加に伴い強度は低下し、最も強度に敏感なパラメータは $\beta \bar{l}$ であり、 l_c の影響は比較的小さい。

シミュレーションの正確を期すためには、上記の3つのパラメータを試験片の状況を考慮して定めることが望ましい。しかし、極めて困難を伴うので、結果的にシミュレーション結果が実験結果と最も近くなるときの値を採用した。 $\beta \bar{l}=2.5$ mm、 $d=80 \mu\text{m}$ 、 $l_c=2$ mm としたときのシミュレーション結果を実験結果と比較して Fig. 10 に示す。図から明らかなように、低強度および高強度領域において実験結果からわずかに逸脱し、分散もやや小さくなる傾向にあるが、平均値はよく一致しており、かなり良好なシミュレーション結果が得られている。

Fig. 9. Effect of three parameters in equation (2) on predicted strength.

Fig. 10. Simulation of tensile strength: ($\beta \bar{l}=2.5$ mm, $d=80 \mu\text{m}$, $l_c=2$ mm).

と言える。ここで、 $\beta \bar{l}$ は破壊が生じる領域、すなわち破面の凹凸の高さで近似できるものと考え、実測結果の平均値は約 2.6 mm であったので $\beta \bar{l}=2.5$ mm は妥当な値と考えられる。 d は式(2)中には含まれていないが、この値の変化は各ユニットの繊維含有率に影響を及ぼし、その結果強度に影響を及ぼす。 d の値はカタログデータによると $8 \mu\text{m}$ であるが、Fig. 1 の組織写真からもわかるように、繊維は繊維束として存在することが多い。この繊維束の直径は一定ではなく、求めることは困難であった。したがって、繊維束を任意の直径をもつ繊維として取り扱った形となっている。すなわち、繊維束の平均値が約 $80 \mu\text{m}$ ということになる。また、 l_c は次式で与えられる⁴⁾。

$$\frac{l_c}{d} = \frac{\sigma_{fu}}{2\tau_y} \quad (3)$$

ここで、 τ_y は母材の降伏応力である。しかし、本材料の樹脂は降伏挙動を示さなかったため、式(3)の降伏応力の代わりに樹脂の引張強さを用い、 l_c を概算すると約 $800 \mu\text{m}$ になった。前述の l_c の強度依存性 (Fig. 9) を考慮すると、 $l_c=2$ mm との差異はそれほど問題ではない。

以上のように、本研究で用いた長繊維強化複合材料においては、実験結果に基づいて、ユニット内の繊維含有率のばらつきと繊維（繊維束）の配向および分布状態のみを考慮した簡単なモデルを構築し、複合則を用いたシミュレーションによって実験結果と同様の強度分布を得ることができる。今後さらに、強度に影響を及ぼす他の因子を考慮すること、および繊維の強度、配向、直径、および長さなどの統計的情報を用いることにより、より実際に近いシミュレーションが可能になると考えられる。今後の課題である。

結 言

本研究では、長炭素繊維強化プラスチックを用いて静的試験を行った。引張強さの分布特性を調べ、破面観察を通じてそのばらつき要因について検討した。また、実

験結果を基礎として簡単なモデルを構築し、複合則を用いることにより、引張強さの分布のシミュレーションを試みた。得られた結果を以下に要約する。

(1) 引張強さおよび弾性係数はかなりのばらつきを示し、その分布は3母数ワイブル分布に従う。破壊確率50%の引張強さと弾性係数はそれぞれ 172.7 MPa, 21.3 GPa である。

(2) 引張強さのばらつきは、主として試験片間の繊維含有率のばらつき、配向および分布状態（繊維束の存在）に起因している。

(3) 繊維含有率のばらつきと繊維配向および分布状態が強度を支配する主たる因子であるとの前提に基づいて、簡単なモデルを構築し、複合則を用いたシミュレーションによって、ほぼ実験結果と同様の引張強さの分布を得ることができる。なお、この場合、適切にパラメータを選ぶ必要があるが、最適パラメータは実験結果から説明

が可能である。

最後に、材料をご提供いただいた(株)神戸製鋼所に謝意を表す。また、本研究の一部を卒業研究として協力された高木 論君（現在岐阜大学大学院）に感謝する。

参 考 文 献

- 1) 例えば、三木光範, 室津義定, 酒井利彦, 材料, **37**, 1022 (1988); 下河利行, 浜口泰正, 材料, **32**, 1050 (1983).
- 2) 例えば, 材料強度確率モデル研究会, “材料強度の統計的性質—各種材料強度データの分布特性—”, p. 4 (1992) 養賢堂.
- 3) H. Fukuda and T.-W. Chou, J. Mater. Sci., **17**, 1003 (1982).
- 4) 森田幹郎, 金原 勲, 福田 博, “複合材料”, p. 28 (1988) 日刊工業新聞社.

書 評

“Advanced Composite Materials”

Louis A. Pilato and Michael J. Michno (著)

(1994年, Springer-Verlag 発行, A 5 判, 208ページ, 定価 13800円)

本書は全208ページのコンパクトな複合材料, 特に高分子材料をマトリックスとする複合材料の入門書である。

緒論に始まり, マトリックス樹脂, 高性能繊維, 解析/試験, 界面, 力学的特性, 構造特性, 圧縮強度, 衝撃後圧縮強度, 熱可塑性複合材そして応用の全八章で構成されている。特に, マトリックス樹脂に全体の1/3のスペースをさき, 高性能繊維には20ページ, 応用に30ページを割りあて, 他の章は10ページ弱程度である。

著者たちは序文において Advanced Composites の今後は, 多くの分野の人達の協力と理解が必要であることを強調している。すなわち設計者, 材料/成形技術者, 品質管理者などの協力である。また一方, 専門分野として化学, 高分子化学, 表面化学, 繊維/テキスタイル, 化学工学, 機械工学, 材料科学, 分析化学, 分析, 成形などを専攻した人達が十分に交わり, 刺激することが重要であり, そのような考えに基づき, 本書は書かれたとしている。

第4章以降はどちらかと言えば化学を専攻した人に有益であろう。複合材料の力学的特性について, ごく簡単にまとめられているし, 構造物として重要な圧縮特性にも言及されている。また, 数式を使用しないで説明している。一方, 前半の樹脂, 繊維の章においては化学式を多く用いてエポキシ, フェノール, ポリイミドなどの熱硬化性樹脂, PAE, TPI, PAS などの熱可塑性樹脂の反応について詳しく記述している。さらに分子複合材料, 相互貫入樹脂, アロイ, ブレンドにも言及している。高性能繊維の章においては, ポリエチレン繊維, アラミド繊維, 炭素繊維, S-ガラス繊維などの製造方法と化学的構造物性との関連について述べている。

以上のように本書は, 様々な分野の研究者が複合材料とくに先進複合材料の入門の書として拾い読みするには格好の書といえよう。

(京都工芸繊維大学 濱田 泰以)