引張荷重下における疑似等方性カーボン／エポキシ積層材の 破壊メカニズムに及ぼす積層順序の影響†

谷 本 敏 夫* 森 井 亨* 塚 本 貴 史**

Effect of Stacking Sequence on Fracture Mechanism of Quasi-Isotropic Carbon/Epoxy Laminates under Static Tensile Loading

by

Toshio TANIMOTO*, Tohru MORII* and Takashi TSUKAMOTO**

This study dealt with the tensile strength and fracture mechanism of quasi-isotropic carbon/epoxy laminates with different stacking sequence. The stacking sequences employed in this study were $[0/\pm 45/90]_s$, $[0/+45/90/-45]_s$, $[0/90/\pm 45]_s$, $[\pm 45/0/90]_s$, $[\pm 45/90/0]_s$, $[90/0/\pm 45]_s$ and $[90/\pm 45/0]_s$. The maximum load of each quasi-isotropic laminate showed a higher value than that of $[0]_s$ laminate.

Splitting failure in 0° layer, shear fracture in 45° layer and delamination initiated from the cracks in 90° layer were dominant fracture patterns in quasi-isotropic carbon/epoxy laminates, and their control was important to improve the laminate strength. Especially the suppression of the splitting failure in 0° layer was most important for the improvement of laminate strength because the load bearing capacity of 0° layer was the highest among all layers. The laminates with 0° layer placed at the inner layer showed higher strength because the splitting failure in 0° layer was suppressed sufficiently. The shear fracture in 45° layer initiated from the cracks in 90° layer also affected the laminate strength. The $[90/\pm 45/0]_s$ laminate showed the highest strength among the laminates employed in this study, since the suppression of the fracture in 0° layer and of the fracture progress from the cracks in 90° layer is realized well. From the viewpoint of the suppression of fracture, it was verified that the application of interleaf was effective for the improvement of laminate strength of quasi-isotropic carbon/epoxy laminates.

Key words : Quasi-isotropic laminate, Tensile strength, Fracture mechanism, Splitting, Delamination, Shear fracture

1 緒 言

炭素繊維強化プラスチック (CFRP) は、軽量かつ高強度・高剛性を有する材料として、航空・宇宙分野をはじめとする様々な分野において、構造材料として利用されるようになっている。特に一方向プリプレグを任意の配向角で積層することにより、意図する材料定数を有する異方性材料を設計することが可能である。しかしながら、実際の構造物に対して異方性材料を適用することは非常に困難な場合が多いため、一般的には 0° , 90° および 45° の各方向を繊維で強化した、いわゆる疑似等方性積層材が用いられることが多い。そのため、疑似等方性積層構成を有する材料に関する研究は数多く行われている。^{1)~3)} 0° , 90° , $+45^\circ$ および -45° からなる疑似等方性積層材では、これらの各層の組み合わせにより、様々な積層構成(順序)の積層材が作製可能である。繊維配向角が同一でも積層構成が異なれば、負荷により各層および層間に生じる応力は異なるものと考えられ、そのためこれらの積層材の諸特性は異なるものと考えられる。

CFRP の破壊は、構成材料である樹脂および繊維の破壊のみならず、局所的な繊維／樹脂界面のはく離や層

間のはく離などが組合わされることにより生じ、非常に複雑である。特に一方向プリプレグを積層することにより作製された積層材では、しばしば層間のはく離破壊が支配的となり、これが積層材の強度に大きく影響するため、層間のはく離を抑制する手法に関する研究が盛んに行われている。層間のはく離の抑制手法としては、インターリーフ材の層間への挿入、平板端面のノッチ処理、ステッチングによる各層の結合などが挙げられる。^{4)~9)} 層間のはく離やその他の破壊の発生メカニズムに関しては、破壊力学的観点や^{10)~13)} 3次元応力解析などにより検討されており、特に Long¹³⁾ らは耐はく離性に関して積層構成による順位付けを行っており、また積層構成による強度の相違についても実験的に検討している。しかしながらこれらの研究は、特定の破壊現象に焦点を絞ったものであり、実際に積層材で起こり得る種々の破壊の発生メカニズムやそれらの相互作用は十分には明らかにされていない。また上述のような層間のはく離抑制手法を有効に活用するための設計手法も未だ確立されていないのが現状であると言える。以上の観点から本研究では、積層順序の異なる疑似等方性カーボン／エポキシ積層材の引張試験および破壊

† 原稿受理 平成7年2月3日 Received Feb. 3, 1995

* 正 会 員 湘南工科大学材料工学科 〒251 藤沢市辻堂西海岸, Dept. of Mat. Sci. & Ceramic Tech., Shonan Inst. of Tech., Tsujido-Nishikaigan, Fujisawa, 251

** 湘南工科大学大学院 〒251 藤沢市辻堂西海岸, Graduate Student, Shonan Inst. of Tech., Tsujido-Nishikaigan, Fujisawa, 251

Fig. 1. Cure cycle diagram for specimens.

進展の観察を行い、最終強度と破壊の関係について定性的な検討を行った。またその結果を基に、積層順序の観点から疑似等方性積層材の最終強度設計のための指針について言及した。

2 実験方法

用いた材料は、一方向炭素繊維／エポキシプリプレグ (T800H/＃2500, 東レ(株)製) であり、試験片の積層構成は疑似等方性積層である $[0/\pm 45/90]_s$, $[0/+45/90/-45]_s$, $[0/90/\pm 45]_s$, $[\pm 45/0/90]_s$, $[\pm 45/90/0]_s$, $[90/0/\pm 45]_s$ および $[90/\pm 45/0]_s$ の 7 種類とした。各積層材は、Fig. 1 に示す成形条件でオートクレーブにより作製した。引張試験片形状は $210\text{ mm} \times 25\text{ mm}$ とした。すべての試験片は、試験を行う前に温度 23°C 、湿度 65% の恒温恒湿槽内に 48 時間以上放置することにより、状態調節を行った。

引張試験は、インストロン万能試験機 (4206 型) により、引張速度 0.5 mm/min 、つかみ具間距離 120 mm 、室温下で行った。試験片数は、各積層材 5 本以上とした。また破壊進展挙動を詳細に検討するため、同一試験片に関して引張強度の 40%、60% および 80% まで上述と同様の条件で引張負荷し、その後内部損傷状態を走査型超音波探傷映像装置 (HA-711, 本多電子(株)製) により観察した。観察には 25 MHz の探触子を用いた。本超音波探傷装置では、1 回の走査で厚さ方向に 8 ヶ所の位置を同時に観察することができるため、観察は積層材の各層間を中心に行った。また破壊進展と引張強度の関係を明らかにするため、引張試験時の損傷進展を CCD カメラにより観察し、ビデオテープに録画した。観察は試験片側面部に関して行った。

3 結果および考察

3・1 疑似等方性積層材の引張特性および破壊過程

Table I に各試験片の引張特性を示す。 0° 、 45° および 90° の同一の積層構成から成っていても、積層順序により引張強度が著しく異なることが明らかである。これは、積層順序によって破壊の発生および進展過程が異なるためであると考えられる。繊維配向角のみに着目した積層理論等の従来の設計手法では、このことの予測は困難であり、スプリッティング破壊、トランスバース・クラック、層間はく離といったような、負荷過程において発生するマトリックス損傷および界面損傷モードが、破壊過

程において果たす役割を実験的に把握することによってのみ理解できるものと言える。本研究で用いた積層材のうち、 0° 層が内層に位置し、かつ $+45^\circ$ 層および -45° 層が隣接している積層材が、他の積層材に比較し高い引張強度を示す。また 0° 層が最外層に配置された積層材や 90° 層の両面に 45° 層が接している積層材の引張強度は低い値を示す傾向にある。繊維配向角が同一である積層材でも、積層順序が異なることにより、負荷をうけた際に層間に発生する応力は異なると考えられる。層間応力が異なれば、各積層材の破壊進展挙動は異なり、強度の相違が生じると考えられる。Long¹³⁾ らは、IM7/8551-7 カーボン／エポキシ積層材を用いて同様の検討を行っており、 $[\pm 45/0/90]_s$ 積層材の強度が最も低くなることを示しているが、本研究で得られた結果はこの結果とは異なっている。また筆者らもカーボン／PEEK 積層材に関して同様の試験を行い、本研究で得られた結果とは異なる傾向となることを確認している。したがって疑似等方性積層材の強度には、積層構成のみならず用いる材料 (マトリックス樹脂、繊維) も大きく影響し、材料によりその破壊過程も異なると考えられる。そのため以下、各積層材の破壊進展挙動と強度との関係について、CCD カメラおよび超音波探傷による観察結果をもとに検討する。

Table I. Comparison of tensile properties.

Stacking sequence	Tensile strength $\sigma_{\max}$ (MPa)	CV of $\sigma_{\max}$ (%)
$[0/\pm 45/90]_s$	737	2.3
$[0/+45/90/-45]_s$	725	6.2
$[0/90/\pm 45]_s$	756	5.4
$[\pm 45/0/90]_s$	800	5.1
$[\pm 45/90/0]_s$	756	3.9
$[90/0/\pm 45]_s$	758	3.6
$[90/\pm 45/0]_s$	850	2.0

CV: Coefficient of Variation

Fig. 2 に CCD カメラにより観察した負荷中の試験片端面の損傷状態を示す。最外層に 0° 層が配置された $[0/\pm 45/90]_s$ 材、 $[0/+45/90/-45]_s$ 材および $[0/90/\pm 45]_s$ 材では、スプリッティング破壊や 0° 層繊維の破断が負荷の増大に伴い生じる。また $[0/\pm 45/90]_s$ 材および $[\pm 45/0/90]_s$ 材においては、静的負荷により最内層に配置された 90° 層にトランスバース・クラックが発生し、これが隣接する 90° 層に容易に進展する。そのためトランスバース・クラックの規模は大きくなり、このようなクラックが層間にはく離を引き起こすと考えられる。 $[\pm 45/90/0]_s$ 材および $[0/+45/90/-45]_s$ 材では、 90° 層に発生した微視クラックが隣接する 45° 層に進展し、層間にはく離および 45° 層の破壊を引き起こす。特に $[0/+45/90/-45]_s$ 材では、 90° 層に発生した微視クラックがその両面に隣接する 45° 層に影響するため、 45° 層の破壊の規模は $[\pm 45/90/0]_s$ 材よりも大きくなり、その結果引張強度は低い値を示すと考えられる。また $[\pm 45/90/0]_s$ 材では、 $[0/+45/90/-45]_s$ 材に比べ著しい層間にはく離が発生する。 $[90/\pm 45/0]_s$ 材および $[90/0/\pm 45]_s$ 材では、

Fig. 2. Fracture appearance at free-edge of each laminate during static tensile loading.

最外層に配置された 90° 層にトランスバース・クラックが発生する。 $[90/\pm 45/0]_s$ 材では、 $90^\circ/+45^\circ$ 層間にはく離が生じるが、このような破壊が他の層に及ぼす影響は小さく、最終破断まで他の層および層間には破壊は見られない。一方 $[90/0/\pm 45]_s$ 材では、 90° 層にトランス

バース・クラックが発生し脱落することにより、その内層に配置された 0° 層は拘束されない状態となる。そのため、 0° 層が最外層に配置された積層材とほぼ同様の破壊過程および引張強度を示す。 Fig. 3 に各積層材の各応力レベルにおいて得られた超音波探傷像を示す。前述

Fig. 3. Ultrasonic inspection results at stress level ($\sigma/\sigma_{\max}$) of 60% and 80%.

のように $[\pm 45/0/90]_s$ 材および $[0/\pm 45/90]_s$ 材では、最内層に配置された 90° 層にトランスバース・クラックが最初に発生し、それに伴う著しい層間はく離が $[\pm 45/0/90]_s$ 材では $0^\circ/90^\circ$ 層間に、 $[0/\pm 45/90]_s$ 材では $-45^\circ/90^\circ$ 層間に観察できる。 $[\pm 45/0/90]_s$ 材では応力レベル 60% において、最内層に配置された 90° 層にトランスバース・クラックが発生し、それに伴って層間はく離が発生し、発生した層間はく離は急激に層間全面に広がる。一方 $[0/\pm 45/90]_s$ 材では、応力レベル 60% では超音波探傷で検出できる内部損傷は発生していないが、応力レベル 80% において著しい層間はく離が発生する。したがって、 $[0/\pm 45/90]_s$ 材と $[\pm 45/0/90]_s$ 材は非常に類似した層間破壊を示すが、その発生は $[0/\pm 45/90]_s$ 材のほうが $[\pm 45/0/90]_s$ 材に比べ遅い。一方 $[\pm 45/90/0]_s$ 材および $[0/+45/90/-45]_s$ 材では、応力レベル 60% から主に 45° 層に、繊維に沿ったせん断破壊が観察でき、比較的低応力レベルから内部破壊が進展している。このようなせん断破壊は、 $[\pm 45/90/0]_s$ 材では -45° 層に、 $[0/+45/90/-45]_s$ 材では 90° 層の両面に接している $+45^\circ$ 層および -45° 層に多く発生している。これらに対して、 $[90/\pm 45/0]_s$ 材および $[90/0/\pm 45]_s$ 材では、応力レベル 80% まで超音波探傷で観察できるような内部破壊はほとんど発生していない。

これらの観察結果をもとに、各積層材の破壊モードを模式的に Fig. 4 に示す。各積層材の破壊モードの特徴は以下のように要約することができる。

(1) 最外層に 0° 層が配置された場合

$[0/\pm 45/90]_s$ 材、 $[0/90/\pm 45]_s$ 材および $[0/+45/90/-45]_s$ 材では、 0° 層の一方の面が拘束されていないため、

スプリッティング破壊や 0° 繊維の破断が生じる。その結果、最も荷重を分担し得る 0° 層の荷重分担能力が低下するため、低い引張強度を示す。

(2) 最内層に 90° 層が隣接して配置された場合

$[0/\pm 45/90]_s$ 材および $[\pm 45/0/90]_s$ 材では、負荷により 90° 層の一方にクラックが発生し、これが隣り合うもう一方の 90° 層に進展することによりトランスバース・クラックとなって試験片幅方向に 90° 層内を進展する。

(3) 2つの 90° 層がそれぞれ独立して配置された場合

$[\pm 45/90/0]_s$ 材および $[0/+45/90/-45]_s$ 材では、 90° 層に発生したクラックが隣接する 45° 層に進展し、 45° 層内に繊維に沿ったせん断破壊を引起す。しかしながら、これらの積層材における 90° 層内の破壊は、 $[0/\pm 45/90]_s$ 材および $[\pm 45/0/90]_s$ 材に比較し、その規模は小さい。したがって 90° 層内の破壊の規模や破壊時に解放されるエネルギーの大きさが、層間はく離を引起すか、 45° 層内のせん断破壊を引起すかを決定する。また $[0/+45/90/-45]_s$ 材では、 90° 層の両面に 45° 層が接しているため、 90° 層に発生したクラックがその両面に接している $+45^\circ$ 層および -45° 層に進展し、各層でせん断破壊を引起す。その結果、 90° 層の片面にのみ 45° 層が接している $[\pm 45/90/0]_s$ 材に比べ、せん断破壊の規模は大きくなる。そのため 45° 層の荷重分担能力が低下し、低い引張強度を示す。さらに $[\pm 45/90/0]_s$ 材では、 $[0/+45/90/-45]_s$ 材に比べ層間はく離も多く発生する。

(4) 最外層に 90° 層が配置された場合

$[90/\pm 45/0]_s$ 材および $[90/0/\pm 45]_s$ 材では、最外層に配置された 90° 層にトランスバース・クラックが発生し、 $[90/\pm 45/0]_s$ 材では $90^\circ/+45^\circ$ 層間にはく離を引起す。

Fig. 4. Schematic representation of fracture appearance of each laminate.

はく離の発生により 90° 層は他の層と分離されるため、他の層にこの破壊は進展せず、内層に配置された ±45° 層および 0° 層が最終破断まで荷重を有効に分担し、高い引張強度を示す。一方 [90/0/±45]_s 材は、90° 層にトランスバース・クラックが発生し、はく離が生じることにより 90° 層の一部が試験片表面より脱落する。そのため 0° 層が表面に現れた状態となり、その結果 0° 層が最外層に配置された積層材とほぼ同様の破壊過程および引張強度を示す。

以上の結果から、90° 層のトランスバース・クラックに伴う層間はく離そのものが引張強度に及ぼす影響は小さく、一方 0° 層の破壊（スプリッティング・繊維破断）や 45° 層に発生するせん断破壊が強度に大きく影響することが明らかである。また 45° 層に発生するせん断破壊は 90° 層の破壊に伴って生じることから、90° 層の破壊の進展が積層材の強度に影響を与える。

3・2 疑似等方性積層材の最終強度設計

上述の疑似等方性積層材の引張試験結果から、疑似等方性積層材の最終強度設計について考える。

まず疑似等方性積層材において、最も荷重を分担し得る 0° 層の破壊を抑制することが最も重要である。0° 層の破壊の抑制は、0° 層を積層材の内層に配置することにより達成できる。また次に荷重を分担し得る 45° 層の破壊は、主に 90° 層と隣接している場合に、90° 層の破壊に伴って引き起こされるため、45° 層と 90° 層との接触面積を極力減らすことが必要である。そのため +45° 層と -45° 層は組合わせて ±45° 層とし、90° 層から離れて配置すればよい。最も低応力で破壊が生じる 90° 層は、他

の層の破壊を誘発しないように配置することが重要である。例えば、90° 層を最外層に配置すれば、90° 層が破壊したことにより生じるエネルギーは、外部へ放出されるため他の層の破壊を引き起こしにくくなる。また最内層に 2 つの 90° 層を組み合わせ配置した場合には、規模の大きなトランスバース・クラックとなり、これによって層間はく離が生じることにより、最内層ではあるが 90° 層は孤立した状態となり、結果として他の層の破壊を引き起こさない。

本研究で用いた材料システムに関して、以上の条件を満足し得る積層構成としては [90/±45/0]_s 材や [±45/0/90]_s 材が挙げられる。これらのうち [90/±45/0]_s 材は、Table I に示したように最も高い強度を示すが、表面層である 90° 層が脱落してしまうため、構造材料として適用することは困難である。したがって、強度に関して最適な積層構成は、[±45/0/90]_s 材であると考えられる。しかしながら構造材料では、必ずしも一定の方向に常に負荷が加わるわけではないので、実際にはこの点を十分に考慮する必要がある。負荷方向がある程度限られているなら、負荷方向に対して表面層の繊維配向角が 0° にならないように配置すれば、比較的高い強度を得ることが可能である。

3・3 疑似等方性積層材の強度改善手法

前述のように強度に最も影響を及ぼす 0° 層の破壊は、0° 層を内層に配置することにより抑制できる。これに対して 45° 層および 90° 層の破壊や層間はく離は、積層順序を変えても抑制することは非常に困難であると考えられる。ここで 45° 層の破壊や層間はく離は、主に 90°

層の破壊の進展により引起されることから, ここでは90°層の破壊の進展を抑制する手法について検討する。

90°層で発生した破壊が他層もしくは層間へ進展するのを防ぐためには, 積層界面における破壊の進展を抑制することが必要であると考えられる。そこで本研究では, これらを抑制し得る方法としてインターリーフの概念を導入した積層材を作製し, その強度および破壊について検討した。ここで積層材の積層構成は, 最も一般的な疑似等方性材の積層構成である $[0/\pm 45/90]_s$ とした。インターリーフ材には厚さ70 μm のポリエチレン系シートを用い, インターリーフ材挿入位置は90°層の破壊に係する $-45^\circ/90^\circ$ 層間および $90^\circ/90^\circ$ 層間とした。

Table IIにこれらの積層材の引張試験における最大荷重およびその変動係数を示す。インターリーフ材を挿入した積層材の最大荷重は, 挿入しない積層材(従来材)よりも約5%高い値を示し, また変動係数も小さくなっている。インターリーフ材を挿入した積層では, 従来材と同様に90°層内にクラックが発生するものの, それが発生する荷重は従来材よりも高く, またそのクラックはインターリーフ材によって進展が停止する。その結果, Fig. 5に示すように従来材には見られた層間はく離が, インターリーフ材を挿入した試験片では破断直前まで観察できない。また45°層への破壊の進展も見られない。インターリーフ材挿入による最大荷重向上への効果は, 0°層のスプリッティング破壊抑制の効果に比べればわずかではあるが, 90°層の破壊進展を抑制することにより破断荷重は向上し, なおかつ最終破断まで大きな破壊は生じないことから, 破壊進展を制御し強度を改善する手法としてインターリーフ材挿入は, 非常に効果的な手法と言える。また破壊進展を制御することにより,

ばらつきの少ない信頼性の高い材料を得ることができる。

4 結 言

本研究では, 積層順序の異なる疑似等方性カーボン/エポキシ積層材の引張試験を行い, 破壊進展挙動と強度の関係について検討した。その結果疑似等方性積層材では, 荷重分担能力の高い0°層の破壊を抑制することが最適な強度設計を行う上で重要であり, また45°層の破壊の大きさも積層材の強度に大きく影響することが明らかとなった。これらの破壊は主に90°層の破壊に起因するため, 実際の積層材では90°層の破壊が他の層へ進展することを抑制する必要がある。すなわち90°層を積層材内で孤立化させる必要があり, これを満たす積層構成としては $[90/\pm 45/0]_s$ 材や $[\pm 45/0/90]_s$ 材が挙げられる。また90°層の孤立化を図る意味では, 層間へのインターリーフ・フィルムの挿入や粒子分散層の付与が有効であると考えられ, 実際にインターリーフ材を挿入した場合には90°層からの破壊の進展が抑制され, 結果として積層材の強度を改善することができた。

(平成6年3月18日 日本材料学会第23回FRPシンポジウムにて講演)

参 考 文 献

- 1) C. T. Sun and S. G. Zhou, J. Reinf. Plast. Compos., **7**, 515 (1988).
- 2) 青木隆平, 久保智郎, 小山一夫, 近藤恭平, 小林繁夫, 日本複合材料学会誌, **15**, 122 (1989).
- 3) I. Kimpara, K. Kageyama, T. Suzuki and I. Ohsawa, Progress in Acoustic Emission VI, 63 (1992).
- 4) W. S. Chan, C. Rogers and S. Aker, Composite Materials: Testing and Design, ASTM STP 893, 266 (1986) American Society for Testing and Materials.
- 5) R. M. Jones, Proc. ICCM-8, 28-M-1 (1991).
- 6) P. A. Lagace, R. L. Mong, and C. W. Kuhlmann, Proc. ICCM-9, 705 (1993).
- 7) C. T. Sun and G. D. Chu, J. Compos. Mater., **25**, 142 (1991).
- 8) W. S. Chan, Proc. Japan-U. S. CCM-V, 201 (1990).
- 9) K. Dransfield, C. Baillie and Y. W. Mai, Compos. Sci. Technol., **50**, 305 (1994).
- 10) S. R. Swanson and B. C. Trask, Compos. Sci. Technol., **34**, 19 (1989).
- 11) W. S. Chan and A. S. D. Wang, Compos. Sci. Technol., **38**, 143 (1990).
- 12) Z. Tian and S. R. Swanson, Compos. Struct., **21**, 195 (1992).
- 13) B. J. Long and S. R. Swanson, Composites, **25**, 183 (1994).
- 14) S. W. Tsai and H. T. Hahn, (藤井太一監訳), “複合材料の強度解析と設計入門”, p. 219 (1986) 日刊工業新聞社.
- 15) 日本複合材料学会編, “複合材料ハンドブック”, p. 777 (1989) 日刊工業新聞社.
- 16) 谷本敏夫, 森井 亨, 塚本貴史, 日本材料学会第22回FRPシンポジウム講演論文集, p. 61 (1993).

Table II. Tensile properties of the laminates with and without interleaf films.

Interleafing	Maximum load (kN)	Coefficient of Variation (%)
None	25.2	5.7
$-45^\circ/90^\circ$	26.1	4.3
$90^\circ/90^\circ$	26.4	3.1

Fig. 5. Damage appearance at free-edge.