不織布挿入型ハイブリッド複合材料の層間破壊じん性について*

(第1報, モードI層間破壊じん性)

李 丞 桓^{*1}, 金 永 培^{*2}, 野 口 博 司^{*3}

Interlaminar Fracture Toughness of Hybrid Composites with Non-Woven Tissue (1st Report, Mode I Interlaminar Fracture Toughness)

Seung-Hwan LEE, Young-Bae KIM and Hiroshi NOGUCHI^{*4}

^{*4} Faculty of Engineering, Kyushu University,
6-10-1 Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka-shi, Fukuoka, 812-8581 Japan

Interlaminar fracture behavior of hybrid composites with non-woven carbon tissue is investigated under a Mode I loading condition with a DCB specimen. Hybrid composites are made by inserting non-woven tissue between prepreg layers. Two kinds of specimens are prepared from $[0]_{24}$ and $[0_2/0_{12}]$. Here, the symbol “/” means that non-woven carbon tissue is located at a 0/0 mid-plane of the specimen. An initial interlaminar crack is introduced to a mid-plane of the specimen. Interlaminar fracture toughness (G_{Ic}) of hybrid composites is compared with that of CFRP. G_{Ic} of hybrid composites is almost dependent on only that of matrix resin. The fracture surfaces of the specimens are observed with an optical microscope and SEM, and the failure mechanism is discussed.

Key Words: CFRP, Hybrid Composites, Non-Woven Carbon Tissue, Mode I, Fracture Toughness

1. 緒 言

単一な強化材の組合わせでは得ることのできない特殊な機械的特性を得るために、2種類またはそれ以上の異なった材料で構成されるハイブリッド複合材料は、一般の複合材料とは機能的に異なる優れる性質が十分期待でき、そのパラメータも多様である⁽¹⁾⁻⁽⁶⁾。構造材料として幅広く使用されているFRP積層複合材料は、繊維方向には高強度を有するが、層間の強度が低く層間破壊を生じ易いことが知られている^{(7),(8)}。繊維強化複合積層板の破壊形態の一つとして自由縁近傍の層間応力集中による層間はく離が挙げられる^{(9),(10)}。従って、複合材料の性能を予測するため、層間破壊のデータは重要である。繊維強化複合材料の欠点である低い層間破壊に対する材料の抵抗特性を改善する研究が行われており⁽¹¹⁾⁻⁽¹⁵⁾、IshaiとSelaらは高じん性フィルムを層間

に挿入することによって層間破壊靱性を増加させ⁽¹⁶⁾、⁽¹⁷⁾、また山下らはウイスカを用いてそれを増加させている^{(18),(19)}。しかし、いずれも成形条件の難しさやコストが高くなる等の問題がある。一方、プリプレグと面内にランダムに並べられた短繊維シート(以下では不織布とよぶ)を用い、それらを積層したハイブリッド複合材料は安価であり、製造も易しく、信頼性も高い特徴をもつので、その機械的性質に関する研究も行われている⁽²⁰⁾⁻⁽²⁴⁾。図1に、不織布と一方向プリプレグを一對としたハイブリッドプリプレグ⁽²⁴⁾の概念を示す。不織布は一般には、航空産業、自動車産業、海上運送産業、腐食抵抗が要求される圧力容器、化学設備、電子回路基板などの表面保護および外装材に使用されている。その繊維種類には、ポリエステル、ガラス、カーボンそしてアラミドなどがある。その繊維長は3mmから25mmまで多様であり、また単位面積あたりの重さも、1g/m²から20g/m²まで多様である⁽²⁵⁾。

不織布挿入型ハイブリッド複合材料の層間破壊じん性値については、 G_{IIC} 値は、CFRP のその 3 倍弱である⁽²³⁾。この長所の詳細は第2報で論じることとし、本報ではまず、母材より90°一方向複合材料の強度が

* 原稿受付 2000年11月21日。

^{*1} 正員、九州大学大学院(☎821-8581 福岡市東区箱崎6-10-1)。

^{*2} 大韓民国ソウル産業大学大学院(☎139-743 ソウル特別市蘆原区孔陵2洞172)。

^{*3} 正員、九州大学大学院工学研究院。

E-mail: nogu@mech.kyushu-u.ac.jp

Fig. 1 Concept of hybrid prepreg.

Fig. 2 Non-woven carbon tissue prepreg.

Fig. 3 Lay-ups process of hybrid composites for Mode I test.

低いことに関連して、ハイブリッド化による低下が危
ぐされる G_{IC} 値について論じる(本論分で求める材料定
数は G_{IIC} 値の議論の際にも必要となる)。

2. 実験

2.1 材料および試験片 不織布挿入型ハイブリ
ッド複合材料の層間破壊じん性特性を調べるため、炭
素繊維/エポキシ樹脂強化一方向プリプレグ(SK-
Chemicals, USN125 Series)を用いて、一般CFRP積層板
及びプリプレグの層間に図2のようにカーボン不織布
(TFP, Optimat203 Series : FAW 12g/m²)とエポキシフ
ィルム(SK- Chemicals #SKR2514 : 42~84g/m²)を結合させ

Width (B)	Length (L)	Laminate Thickness(2h)		Initial crack Length (a_0)
		CFRP	Hybrid	
25	200	2.9 ± 0.1		50~120

Unit : mm

Fig. 4 Configuration of DCB specimen.

Table 1 Tensile material properties of CFRP, non-woven carbon tissue composites and epoxy resin.

Property	CFRP	Non-Woven Carbon Tissue Composites	Epoxy
Longitudinal Young's Modulus E_1 (GPa)	128.0	14.0	3.2
Transverse Young's Modulus E_2 (GPa)	8.5		
Longitudinal Tensile Strength σ_1 (MPa)	2200	215	80
Transverse Tensile Strength σ_2 (MPa)	75		
Fiber Volume Fraction V_f (%)	58.0	11.0	-
Poisson's Ratio ν_{12}	0.32	0.41	0.43

たカーボン不織布プリプレグを挿入させたハイブリ
ッド積層板を製作した。DCB(Double Cantilever Beam)試
験片の積層構成として、一般CFRP積層板は $[0]_{24}$ を、
そしてハイブリッド積層板は $[0]_{12}/[0]_{12}$ を用いた。こ
こで、ハイブリッド積層板の“/”は0度12層のプリプ
レグとプリプレグの間にカーボン不織布を挿入させる
ことを意味する。予き裂は成型の際に図3のように、
積層中央に厚さ12 μ mのテフロンフィルムを挿入す
ることによって得た^{(26),(27)}。試験片の成型にはオートク
レーブを用いた。図4に試験片の寸法を示す。表1に
CFRP、カーボン不織布複合材料とエポキシ樹脂の機
械的性質を示す。ここで、カーボン不織布複合材料は
カーボン不織布プリプレグを20枚積層させて作り、
標準規格^{(28),(29)}にしたがって引張試験を行った。また、
カーボン不織布複合材料の破壊じん性値を調べるため、

片側にき裂(積層面と直角なき裂)がある帯板の引張試験⁽³⁰⁾を行った結果、 $K_{IC}^T=3.5\text{MPa}\sqrt{\text{m}}$ と求められた。

2.2 実験方法 モード I の実験は万能引張試験機(インストロン 4467)を用いて標準規格で行った^{(26),(27)}。変位速度は 1mm/min で静的引張荷重を加えてはく離き裂を発生させた。き裂の観察はカラスキャナと光学顕微鏡を使用してき裂の発生過程と長さを測定した。また、破壊メカニズムを明らかにするため走査型電子顕微鏡(SEM)を使用して試験片の破断面を観察した。

3. Mode I 層間破壊靱性値の評価

エネルギー解放率 G は線形弾性破壊理論によってコンプライアンス: C を用いて次式で表わされる⁽³⁰⁾。

$$G = \frac{P^2}{2B} \frac{dC}{da} \quad (1)$$

モード I 臨界エネルギー解放率 G_{IC} は式(1)に線形はり理論を用いて次式で与えられる⁽³¹⁾。

$$G_{IC} = \frac{3P_C \delta_C}{2Ba} \quad (2)$$

ここで、 P_C は臨界荷重、 δ_C は臨界き裂開口変位であり、 B は試験片幅、 a はき裂長さである。さらに、式(2)においてき裂先端で発生する非線形変位、回転によるき裂長さの変化、金属ブロックの影響を考慮すれば^{(26),(32)}

$$G_{IC} = \frac{F}{N} \frac{3P_C \delta_C}{2B(a+|\Delta|)} \quad (3)$$

となる。ここで、 F と N は係数、 $|\Delta|$ は実験による有効き裂長さである。

4. 実験結果および考察

図 5 に示すようなプリプレグの間におけるカーボン不織布プリプレグの枚数 ($n=1, 2, 6, 12$ 枚) を変えたハイブリッド複合試験片とカーボン不織布プリプレグ (80 枚) を積層させたカーボン不織布試験片の実験を行った。CFRP プリプレグ層の繊維含有率は約 58% で、カーボン不織布層の繊維含有率⁽³³⁾ は各々約 7%($n=1$ のとき)、8%($n=2$ のとき)、9%($n=6$ のとき) および 10%($n=12$ のとき、及びカーボン不織布試験片) である。不織布層の繊維含有率(枚数)を変化させることにより、不織布層の中にある短繊維のファイバブリッジングの影響が変化することが期待される。

図 6(a) のようにハイブリッド試験片にモード I 実験

Fig. 5 Section of hybrid specimen.

(a) Explanation for Mode I test

(b) Typical load and COD curve for DCB test

(c) Initial crack in hybrid specimen($n=1$)

Fig. 6 Mode I test.

を行った。図 6(b)は、図 6(a)の実験において臨界荷重 (P_c)と臨界変位 (δ_c)で生じたビーチマークの説明図を示す。図 6(c)には理想き裂導入のための実験によりテフロンフィルムからき裂が進展・停留した状態を示しているが、この状態のき裂を Mode I 試験の初期き裂とする。図 7 はモード I 試験によるハイブリッド試験片のき裂進展の経路を示す。図 7(a)はハイブリッド試験片のき裂がカーボン不織布層の中央に沿って進展したことを示している。図 7(b)はハイブリッド試験片の層間破壊メカニズムのモデルである。き裂が不織布層の中央に沿って進展するのは、一方向プリプレグ層と

(a) Crack propagation

(b) Mesoscopic model of fracture mechanism

Fig. 7 Crack path in hybrid specimen.

Table 2 Results of fracture toughness for Mode I test.

Material	Mean G_{IC} (J/m^2)
Epoxy Specimen	232[3.60]
CFRP Specimen	227[28.3]
(1L)Hybrid Specimen	213[11.2]
(2L)Hybrid Specimen	225[16.1]
(6L)Hybrid Specimen	245[11.8]
(12L)Hybrid Specimen	289[14.8]
(80L)Non-Woven Carbon Tissue Specimen	290[8.40]

[] : Shape Parameter

(a) Results of epoxy resin, CFRP and hybrid specimens for Mode I fracture toughness

(b) G_{IC} on Weibull probability paper (c) Mean G_{IC} Values

Fig. 8 Mode I fracture toughness of epoxy resin specimen, CFRP specimen and hybrid specimens.

(b) Typical photo on beach mark of (a)

Fig. 9 SEM photo of fracture surface of non-woven carbon tissue layer ($n=1$) in hybrid specimen of $V_f=7\%$.

不織布層のポアソン効果の相違により、不織布プリブレグ層中央では3軸応力状態となり、板中央で応力集中が生じるためである。

モードI試験により得られた G_{IC} データを、次式で表わす2母数ワイブル分布でフィッティングする。

$$F = 1 - \exp \left\{ - \left(\frac{G_{IC}}{\eta} \right)^m \right\} \quad (4)$$

ここで、 m は形状母数、 η は尺度母数である。

本来ワイブル分布は3母数であるが、簡単のため、本論文では位置母数を零とした。

表2は G_{IC} データの平均値と形状母数(m)の値を示している。図8はエポキシ樹脂、CFRPとハイブリッド試験片のモードI試験に対する破壊じん性値を示している。ここで、エポキシ樹脂の G_{IC} はCT試験片を用いた高分子材料試験法⁽³⁴⁾による K_{IC} 値から求めた。図

(b) Typical photo on beach mark of (a)

Fig. 10 SEM photo of fracture surface of non-woven carbon tissue layer ($n=12$) in hybrid specimen of $V_f=10\%$.

8(b)には、 G_{IC} の信頼性の評価が容易なように、ワイブル確率紙に図8(a)のデータを示した。この図によるとエポキシ樹脂の G_{IC} が最もばらつき、CFRP試験片の G_{IC} は一番ばらつきが小さいがハイブリッド複合材料のそれと大差ない。図8(c)には、エポキシ樹脂、CFRP試験片とハイブリッド試験片の破壊じん性値の平均値を比較した。図8(c)によると、カーボン不織布プリブレグ挿入によって、その応力集中源の導入により $n=1$ のときの G_{IC} はCFRP試験片より約6%ほど小さくなる。(これは、表1においてエポキシの強度より90°方向CFRPの強度が約6%小さくなることと同じ理由による)。しかし n が2以上になると G_{IC} が大きくなる傾向となる。不織布プリブレグ挿入が正の作用となる物理的考察のため以下にSEMによる破面観察を行う。

図9はプリブレグの間に1層のカーボン不織布を挿入したハイブリッド試験片(不織布プリブレグでは V_f

=7%)の SEM による破面写真である。図 9(a)はビーチマークを含む破面であり、そのビーチマーク部の典型を示したものが図 9(b)であるが、カーボン短繊維のファイバブリッジングにより繊維破断が観察された。また、図 10 はプリプレグの間に 12 層のカーボン不織布プリプレグを挿入したハイブリッド試験片の破面の SEM 写真である(不織布プリプレグでは $V_f=10\%$)。図 10(a)におけるビーチマーク部の典型を示したものが図 10(b)である。カーボン短繊維のファイバブリッジングにより繊維破断が観察されたが、図 9 と比べてファイバブリッジングと繊維破断の発生が多いことがわかる。以上のように、 n が大きくなると不織布積層面外方向を向いた短繊維が多くみられるようになり、カーボン短繊維のファイバブリッジングの効果によって破壊じん性値が増加することをわかった。

5. 結 論

本研究では、CFRP(炭素繊維強化複合材料)にカーボン不織布を挿入したハイブリッド複合材料の静的モード I 層間破壊靱性試験を行い、一般的な積層複合材料の層間破壊靱性と比較、検討した結果、 G_{IC} に及ぼす不織布挿入の影響について以下の知見を得た。

不織布挿入では、 G_{IC} に対しては、応力集中源導入による負の作用と、不織布積層面外方向を向いた短繊維によるファイバブリッジングによる正の作用の両方が共存する。本ハイブリッド複合材料では、 G_{IC} は CFRP 複合材料のそれより $n=1$ では小さくなり、 $n=2$ では等しく、それ以上では大きくなる傾向であるが、 $n=12$ ではほぼ飽和する。

供試材の提供とご討論いただいた韓国のソウル産業大学の鄭成均副教授と韓国の(株)SK-Chemicals の林昇奎博士に対し、深く感謝の意を表します。

文 献

- [1] Erich. F., Carbon Fibres and their Composites : United Nations Financing System for Science and Technology for Development. (1985).
- [2] Goto. A., Maekawa. Z. and Miyake. K., Materials Science Research International, 2(3), (1996), 160-165.
- [3] Stevanovic. M. M. and Stecenko. T. B., Journal of Material Science, 27, (1985), 941-946.
- [4] Engineered Materials Handbook : Composites Applications and Experience, 46, (1997), 799-845.
- [5] Aksoy. K. and Carlsson. L. A., Composites Science and Technology, 43, (1992), 55-69.
- [6] Hull. D. and Clyne. T. W., An Introduction to Composite Materials : Cambridge University Press, (1996).
- [7] 文献[1], 191-195.
- [8] Grady. E. and Sun. C. T., ASTM STP 907(1986), 5-31.
- [9] Pagano. N. J. and Pipes. R., Journal of Composite Materials, 5, (1971), 50-57.
- [10] Kunoo. K., Uda. N., Ono. K. and Onohara. K., Theoretical and Applied Mechanics, 41, (1992), 137-146.
- [11] Jain. L., Dransfield. K. and Mai. Y. W., Journal of Composite Materials, 32, (1998), 2016-2041.
- [12] 日下貴之, 北條正樹, 黒川知明, 落合庄治郎, 機論 A, 64, (1998), 1625-1631.
- [13] Vlot. A. and Van Ingen. J. W., Journal of Composite Materials, 32(19), (1998), 1784-1805.
- [14] Svensson. N., Shishoo. R. and Gilchrist. M., Journal of Composite Materials, 32, (1998), 1808-1835.
- [15] 松田聡, 北條正樹, 落合庄治郎, 機論 A, 63, (1997), 39-45.
- [16] Ishai. O., Rosenthal. H., Sela. N. and Drukker. E., Composites, 19, (1988), 49-54.
- [17] Sela. N., Ishai. O. and Banks-Sills. L., Composites, 20, (1989), 257-264.
- [18] Yamashita. S., Hatta. H., Sugano. T. and Murayama. K., Journal of Composite Materials, 23, (1989), 32-41.
- [19] Yamashita. S., Hatta. H., Takei. T. and Sugano. T., Journal of Composite Materials, 26, (1992), 1254-1268.
- [20] Cheong. S. K. and Lee. S. H., Journal of the Korea Society of Machine Tool Engineers, 6-4, (1997), 96-100.
- [21] Cheong. S. K., Lee. S. H. and Lim. S. G., The First Asian-Australasian Conference on Composite Materials (ACCM-1), (1998), 420. 1-420.4.
- [22] 李丞桓, 小野村貫浩, 木村誠, 野口博司, 鄭成均, 日本機械学会材料力学部門講演会, (1999), 407-408.
- [23] 李丞桓, 金永培, 姜振植, 野口博司, 鄭成均, 日本機械学会材料力学部門講演会, (2000), 85-86.
- [24] Lim. S. G. and Cheong. S. K., Hybrid Prepreg and Its Manufacturing Method, Patent Bureau of Korea, (1997), To be Submitted (99-066235).
- [25] SK-Chemicals in Korea : Document of CFRP Non-woven Tissue, (1996).
- [26] Standard Test Method for Mode I Interlaminar Fracture Toughness of Unidirectional Fiber-Reinforced Polymer Matrix Composites : ASTM D5528-94, (1994).
- [27] 日本工業規格 : JIS K 7086 炭素繊維強化プラスチックの層間破壊じん(靱)性試験方法, (1993).
- [28] Standard Test Method for Tensile Properties of Polymer Matrix Composite Materials : ASTM D3039-95, (1995).
- [29] 日本工業規格 : JIS K 7073 炭素繊維強化プラスチックの引張試験方法, (1988).
- [30] 岡村弘之 : 線形破壊力学入門, 培風館, (1995), 217.
- [31] Swanson. R., Introduction to Design and analysis with Advanced Composite Materials : Prentice-Hall International, Inc, (1997), 126-128.
- [32] Ducept. F., Davies. P. and Gamby. D., Composites Part A, 28A, (1997), 719-729.
- [33] Compston. P. and Jar. P. Y. B., The First Asian-Australasian Conference on Composite Materials (ACCM-1), (1998), 710.1-710. 4.
- [34] Standard Test Method for Plain strain Fracture Toughness and Strain Energy Release Rate of Plastic Materials : ASTM D5045-91, (1991).