繊維強化複合材料のメゾ メカニクスへのモンテカルロ シミュレーションの応用

落 合 庄治郎* 北 條 正 樹**

1. は じ め に

(1) メゾスケール

われわれが使用する材料は無限個の原子の集合体であるが、原子1個1個が材料としての力学特性を決定するわけではない。通常の金属材料ではボイドやクラックの形成・成長・合体、転位の増殖・セル形成、界面・粒界すべり等が関与する nm $\sim$ μ m が材料の特性に影響する長さ領域といえる。また、繊維や粒子で強化した複合材料では、例えば強化相・マトリックスそのものについては上記領域が、界面とその近傍の挙動についてはおよそ nm レベルの領域、強化相とマトリックスの力学的相互作用については、界面近傍の nm からおよそ強化相間距離相当の数十 nm $\sim$ 数十 μ m 程度の領域、さらに破壊に至るまでに生じる強化相破断、引き抜け、界面剝離等の影響域については強化相サイズや形態にもよるが数十 nm $\sim$ 数百 μ m、場合によっては $\sim$ mm がその領域といえる。

このように、材料の力学特性を決める長さスケールは、強化機構や材料種別により異なるが、原子レベルからマクロに至る中間の長さ、すなわち、メゾスコピックスケール (Mesoscopic scale) にあるといえる。メゾ (Meso) とは女性歌手のメゾソプラノ [Mesosopurano: ソプラノとアルトの中間] や古代文明発祥地のメソポタミヤ [Mesopotamia: チグリス、ユーフラテス河の中間の地方]、中間子 [Mesotron] 等にみられるように、中間を意味する接頭語である。ただし、メゾの具体的スケールは上述のごとく現象毎に異なるこ

とに留意する必要がある。気象学では、空間スケールが2 $\sim$ 2000 km で生じる現象はメゾスケール気象現象と総称されているが、さらに再分化されて2 $\sim$ 20 km で生じる雷雨等、20 $\sim$ 200 km で生じる集中豪雨等、および200 $\sim$ 2000 km で生じる梅雨前線・海陸風等はメゾスケール α , β , および γ 気象現象と呼ばれており、材料の場合と同様に現象によってメゾスケールには違いがある。

(2) メゾメカニクス

材料においては転位の運動やクラックの形成・成長といったメゾ力学事象は原子の種類と空間配置、第2相のサイズ・形態・空間分布状態、第2相とマトリックスの界面状態等のメゾ構造に依存する。材料の力学特性の本質的理解のためには、まず、メゾ力学事象の素過程とメゾ構造との関係を解明することが必要となる。

しかしながら、メゾ力学事象そのものの解明だけでは、材料全体の特性を把握するには十分ではない。材料はメゾ領域の集合体であるから、各メゾ領域での構造とそれに由来する振る舞いの協力現象として全体としての応答を記述する必要がある。つまり、ミクロとマクロを結ぶための、多体問題の解析・評価が要求される。

すなわち、材料の力学挙動・特性研究では、メゾ領域の構造とその力学応答の素過程を明らかにするとともに、変形・破壊過程で生じる多数のメゾ力学事象 (クラックやボイドの形成・成長・合体、転位の増殖・セル形成、界面・粒界すべり、応力集中源の発生と消滅等) の協力現象 (多体問題) としてマクロ挙動・特性を把握・記述することが必要である。素

* 京都大学教授; 工学部附属メゾ材料研究センター (〒606-01 京都市左京区吉田本町)

** 京都大学助教授; 工学部附属メゾ材料研究センター

Application of Monte Carlo Simulation to Mesomechanics of Fiber-reinforced Composite Materials; Shojiro Ochiai, Masaki Hojo (Mesoscopic Materials Research Center, Faculty of Engineering, Kyoto University, Kyoto)

Keywords: fiber-reinforced composite, mesomechanics, Monte Carlo simulation, multiple fracture, tensile strength, interfacial bonding strength, fracture

1994年5月6日受理

過程と協力現象の研究結果は、目的とする力学特性を最大限発揮させるための最適構造材料設計法に役立てることができ、材料の改質・改善、飛躍的高性能化、新規材料の創製・開発を可能にする。そのためには、界面を含む微細構造の解明からマクロな特性の評価さらには材料設計にわたる広領域を統一的に体系だてて取扱う必要があり、材料組織学、界面科学、物性学、材料化学、破壊力学、材料力学などを学際的に融合させたメゾメカニクスとも呼ぶべき分野の進展が望ま

表1 主な研究テーマと手法.

研究テーマ	手 法
メゾスケール力学事象の素過程	メゾ領域の構造解析・状態分析
	FIM, EXAFS, X線, AES, AEM, IMA, SIMS, SEM, TEM, STM, UPS, 結晶学, 分子軌道法, 分子動力学, 材料組織学
	メゾ領域の力学応答の <i>in-situ</i> 観察
	TEM, SEM, AFM, 超音波, ラマン散乱, モアレ, レーザ, X線(透過, 散乱)
	メゾ領域の力学応答の負荷応力・時間・環境依存性評価
メゾスケール力学事象の協力現象・多体問題	SEM, AFM, TEM, STM, 超音波, X線(透過, 散乱), 破壊力学, クリープ理論, 転位論, マイクロメカニクス, 拡散論, 弾・塑性力学, 電気化学, 環境強度論
	メゾ構造・組織と既存および生成欠陥との相互作用の実験・解析
	SEM, EPMA, AFM, TEM, 破壊力学, 転位論, 弾・塑性力学, FEM, BEM, 分子動力学, マイクロメカニクス
	異種材料界面の構造と力学応答の相関評価
	SEM, EPMA, AFM, TEM, 弾・塑性論, 転位論, 破壊力学, FEM, BEM, 界面化学, マイクロメカニクス
	分散粒子・繊維・析出物・介在物・ボイド等の第2相の数・サイズ・空間分布測定
	SEM, TEM, FIM, X線・中性子線(小角散乱), 画像解析
	個々のメゾ領域での強度や靱性のばらつき評価
	TEM, SEM, 超微小硬度計, 転位論, 破壊力学, 統計学(ワイブル他)
	欠陥の数, サイズ・空間分布の微細組織・負荷応力・時間・環境依存性に関する測定・解析
材料設計	SEM, TEM, X線・中性子線(小角散乱), 画像解析, 超音波, X線(透過), AE
	欠陥間の単範囲・長範囲相互作用評価
	転位論, 破壊力学, 弾・塑性論, FEM, BEM, 統計学, シェアラグアナリシス, 分子動力学, マイクロメカニクス
	特定のメゾ力学事象の影響を抽出できる高精度力学特性評価法
	試験法(引張, 圧縮, 曲げ, クリープ, 疲労, 破壊, 摩耗), 試験片形状, 環境制御
材料設計	多数のメゾ事象の集積とそのマクロ特性の相関に関する統計法・シミュレーション法
	統計学, 破壊力学, 転位論, 弾・塑性力学, FEM, BEM, モンテカルロシミュレーション
	データベース
材料設計	基礎データの集積, 計算機援用システム
	設計法
材料設計	結晶学, 界面化学, 材料組織学, 分子軌道法, 分子動力学, 転位論, 破壊力学, 弾・塑性論, 最適化法, シミュレーション
材料設計	成形法, 加工法
	最適メゾ構造をつくりこむための手法の開発(PVD, CVD, メカニカルアロイング, 塑性加工, 鋳造, プレス, 熱処理, アトムックモウルディング等プロセッシングに関する工学的手法)

れる。表1にこのような分野で研究の進展が期待される主なテーマと、現在用いられている実験・解析・評価法の主なものを挙げる。

本稿では、繊維強化複合材料のメゾ力学事象を紹介した後、FRMにおけるメゾ力学事象の集積とマクロ特性の相関評価へのモンテカルロシミュレーションの応用について、著者らの試みを中心に紹介する。

2. 複合材料のメゾ構造とメゾ力学事象

繊維強化複合材のメゾ事象は多様なので、ここでは、図1左側に模式的に示す例を中心に話を進める。FRMでは界面反応を生じると脆弱な反応層、繊維表面の荒れ、ビット等の欠陥が生じ、繊維や複合材強度を左右するが、これらのサイズはnm～数 μm のレベルにある。層間剝離抵抗を改善するため層間に延性粒子添加(ハイブリッド化)したCFRPでは、粒子を変形させつつ避けるようにき裂が進む。この場合の粒子径や間隔は μm オーダーである。また変形・破壊中に繊維破断、マトリックスき裂、界面剝離、繊維の橋掛け(繊維架橋)、繊維の引き抜け(プルアウト)等様々な事象が生じるが、これら事象の出現・影響域の大きさは初期段階ではnmレベルであるが次第に成長し、材料特性に影響を及ぼす段階では数十nmから数百 μm 、ときにはmmに及ぶこともある。

このような種々のメゾ事象は、例えば図1右に示すような疲労き裂進展速度、疲労のS-N特性、応力(荷重)-ひずみ(COD)曲線等の巨視的な事象に決定的な影響を与える。しかし、事象を細かく分類し、各事象を事細かに捉えていくだけでは材料全体の挙動や特性を記述するには十分ではない。負荷応力下で生じる個々の事象の素過程を微細組織との関係を踏まえて解明したうえで、多数の事象の協力現象として材料全体の挙動を把握する必要がある。図1左下に示した繊維破断、繊維橋掛け、界面剝離、繊維引き抜け等を例にとると、その発生数は、構成材のヤング率、剛性率、降伏応力、靱性、強さとそのバラツキなどの機械的性質、界面状態(接着強さ、界面反応の有無)、繊維間距離、繊維径とそのばらつきなどの幾何学的因子、残留応力の有無などの影響を受けつつ、負荷応力レベルの上昇とともに増加し、かつ、発生する位置には統計的なばらつきがある。複合材料の力学特性の解明にはこのような多数の因子の影響を受けつつ、統計的にばらついて生じ、応力レベルの上昇とともに進行する種々のメゾスケールの事象を的確に把握するとともに、これらと材料全体の応答の相関を評価することが必要となる。さらにこれらの結果をもとに既存材料の改善や新材料の創製のためのメゾ構造の制御・最適化をはかっていくことが要求される。

3. 複合材のメゾメカニクスへのモンテカルロシミュレーションの応用

(1) モンテカルロシミュレーションの有用性

著者らは上記観点より、繊維強化複合材料の「メゾスケール力学事象の素過程」-「各事象の集積」-「集積した各事象が材

図1 繊維強化複合材のメゾスケール事象例と巨視的な事象例。

料全体の挙動・特性に及ぼす影響」を結び付けるためのモデリング研究の一環として、モンテカルロシミュレーション(Monte Carlo simulation)の適用を試みている(1)-(11)。この方法では、応力レベルの上昇とともに、統計的バラツキをもって集積する事象とそのマクロ特性への影響を記述・予測することが可能であることに加え、把握したい特定の因子の複合材挙動に及ぼす影響を他の因子を変えことなく推定できる特徴がある。例えば、実験的に界面接着を変えようとすれば界面反応が生じるため界面接着の影響のみを独立して把握するのは困難な場合が多いが、この方法では任意の接着強さを設定して挙動を推定できるので最適界面の設計といった今後の課題に対して有力な武器となろう。また、複合材強度は強度分布を持つ繊維で強化しているため、必ずばらつく。このように本質的にばらつく要因を内在している材料の信頼性評価にも有用である。

(2) 多重破断現象：メゾ力学事象(低破断ひずみ構成材の破断)の集積

図2に種々の繊維体積率(V_f)の単繊維 W/Cu 複合材料の荷重-ひずみ曲線を示す。 V_f の高い場合は繊維が破断すると複合材も破断するが、低い場合は多数の荷重の低下が見られる。各荷重低下は繊維の破断に対応し、もともと連続であった繊維は破断を重ね、最終的には図中の写真に示すように寸断される。このように、より低破断ひずみの構成材が破断を繰返す現象は多重破断現象と呼ばれ、低 V_f の繊維強化材中の繊維(1)(12)(13)、銀シース酸化物超伝導線材中の酸化物(3)(14)、繊維軸が引張軸と平行(0°)および直角(90°)のプラ

図2 単繊維 W/Cu 複合材料の荷重-ひずみ曲線および多重破断した繊維の様相。

イを積層した($0^\circ/90^\circ$)_sタイプの炭素繊維/エポキシ直交積層複合材中の 90° プライ(4)(15)-(17)等で観察されている。

多重破断現象は低破断ひずみ材の体積率が臨界値以下の場合に以下のメカニズムで生じる(1)(14)。低破断ひずみ材が破断するとその断面での荷重負担能力は一旦減少し荷重の低下を示すが、その後は高破断ひずみ材のひずみの増加により再びその断面での荷重負担能力は上昇し他の断面と同じレベルに到達する。この過程で破断した低破断ひずみ材には界面のせん断応力を介して応力が伝達され、他の断面でも低破断ひずみ材は破断する。このような過程の繰返しにより低破断ひずみ材は多重破断する。多重破断の生じ方は、低破断ひずみ

材の強さ分布、複合材への負荷応力とともに変化する破断点の数と位置およびその結果生じる破断片長のばらつきと応力分布の不均一性等に依存するので、モンテカルロシミュレーション法がその記述に有効となる。応力伝達に関わるメソスケールは界面の結合状態に対応する nm スケールから応力の分布の不均一性に対応する $\mu\text{m}\sim\text{mm}$ と広範囲にある。

(i) シミュレーション手順

単繊維複合材中の繊維の多重破断のシミュレーションの主な手順は以下の通りである⁽¹⁾⁻⁽³⁾。後に 3.(2)(iii)節で示す $0^\circ/90^\circ/0^\circ$ タイプの積層材についても本質的に同様の手順が適用できる⁽⁴⁾⁽⁵⁾。

(1) 繊維は長さ L_e の微小要素 N 個よりなるとみなし、端部より順番に各要素に 1 から N と番号を付けた(図 3(a))。繊維強度はワイブル分布⁽¹⁸⁾に従うものとし、乱数を発生させて各要素($r=1\sim N$)に強度 $S(r)$ を与えた。

(2) 複合材応力 σ_c が低く、繊維が破断しないときは全要素には同一の応力が負荷されているが、 σ_c が増加するとやがて弱い要素は破断するようになる。弱い要素が破断すると、応力の再分布が生じる。繊維中の応力分布は、必要に応じて構成材間の熱膨張係数の差により生じる残留応力や界面接着が弱い場合の剝離等の影響を繰り込んで、計算した⁽³⁾⁽⁴⁾⁽¹⁹⁾。

(3) 例えば、図 3(b)に示すように i および j 要素が破断したとすると繊維の応力分布は模式的に実線で示すように計算される。シミュレーションでは○印で示すように各要素の中点での応力をその要素にかかる代表応力 $\sigma_f(r)$ とし、はじめに与えた要素強さ $S(r)$ と比較して破断するか否かを決定した。もし、 k 要素について $\sigma_f(k) > S(k)$ であれば、 k 要素

図3 低ひずみ破断材(繊維)の多重破断のモンテカルロシミュレーションにおける要素分割と応力分布模式図。

- (a) 繊維の要素分割。
- (b) i および j 要素が破断している場合の応力分布。各要素の応力は要素中点の値(○)で代表した。
- (c) (b)の状態からさらに k 要素が破断した場合の同一負荷応力下での応力分布(実線)。負荷応力が増加すると応力分布は点線で示したように上昇する。

は破断するとし、以後は $S(k)=0$ とした。

(4) 与えられた複合材応力 σ_c で、 k 要素の破断したときの応力の再分布は(c)の実線のように計算される。負荷応力を σ_c から $\sigma_c + \Delta\sigma_c$ へと上げると、界面接着が強い場合は再び応力分布(c)に点線で示したように上昇する。この状態で要素が破断するか否かを(3)と同様にして吟味した。

(5) 複合材応力は $\Delta\sigma_c$ ずつ複合材が破断するまで上昇させた。

(ii) 単繊維金属基複合材中の繊維の多重破断⁽¹⁾⁽¹⁹⁾

図2に示したように、 V_f の高い場合は繊維が破断すると複合材も破断するが、低い場合は多数の荷重の低下が見られる。図4に界面接着の強い単繊維 W/Cu 複合材中の複合材破断時の繊維のアスペクト比 l/d_f (長さ l を直径 d_f で規格化した値) と V_f の関係の実験結果を△印、シミュレーション結果を○印で示す。実験結果は本シミュレーション法ではほぼ再現されている。 l/d_f は、 V_f が約0.06以下の領域では V_f の増加とともに僅かに増加するが V_f が、約0.07以上では急激に増加し、0.1以上では繊維の最初の破断が複合材を破断させるのできわめて大きくなる。この結果は繊維体積率が高くなるにつれ応力が伝達されにくくなる傾向⁽¹⁹⁾を反映している。この傾向は図5に示す $V_f=4\%$ と 8% の場合のシミュレーション結果にもよくあらわれている。

最終破断長さは繊維の臨界長さ l_c (繊維強度を発揮させるに必要な最小長さ) のおよそ $1/2$ ⁽¹²⁾ (より正確には $3/4$) に相当するので、実験的に求めた最終破断長さと Kelly の式⁽¹²⁾ ($l_c/d_f = \sigma_{fu}/2\tau$; d_f =直径, σ_{fu} =繊維強さ, τ =界面せん断応力)より界面せん断応力を推定できる。そのためこのような単繊維複合材を用いた多重破断試験法は、金属系・プラスチック系複合材で簡便な界面せん断応力評価法としてしばしば

図4 単繊維 W/Cu 複合材料の破断時の繊維のアスペクト比 l/d_f と V_f の関係。△は測定結果、○はシミュレーション結果を表す。

図5 $V_f=4$ および 8% の場合の単繊維 W/Cu 複合材中の繊維の多重破断の進行のシミュレーション結果. 負荷応力は 1→6 の順に高い. 6 は最終破断状態を示す.

用いられている. しかしこの実験方法では, 上述のように界面接着強さが高い場合, 臨界長さが繊維体積率 V_f の増加に従い長くなるため, 低 V_f 材では高 V_f 材に比して高い τ の値となる傾向がある. また接着が弱い場合は τ の値には界面剝離部分の摩擦せん断応力と未剝離部分のせん断応力の影響が入るが, 明確に分離できるには至っていない.

(iii) $0^\circ/90^\circ/0^\circ$ タイプ炭素繊維強化エポキシ積層複合材中の 90° プライの多重破断挙動

$0^\circ/90^\circ/0^\circ$ タイプの炭素繊維強化エポキシ積層複合材中では 90° プライが多重破断し, 0° と 90° のプライ間で界面を通して 90° プライに応力が伝達される. Peters⁽¹⁶⁾ (17) や Reifsnider ら⁽²⁰⁾ は測定結果から, $0^\circ \sim 90^\circ$ プライ間の応力伝達を規定しているのは $10 \sim 15 \mu\text{m}$ 厚さ程度の樹脂富化層 (Resin rich layer) であろうと推定してきた. このような条件で応力伝達が行われているとし, さらに残留応力を考慮して応力分布を計算して, 90° プライの破断数 N_f と複合材への負荷応力 σ_c の関係をシミュレートした結果を図 6⁽⁴⁾ に示す. 図中, 例えば, $0_2/90_6/0_2$ は厚さ $125 \mu\text{m}$ のプリプレグを 0° 方向に 2 層, 90° 方向に 6 層, さらに 0° 方向に 2 層積層した複合材を示す. このように, 実験結果 (ハッチ部) はほぼ再現されている. このことは, Peters や Reifsnider らの推定した値が実際の挙動を良く説明すること, すなわち応力伝達を担っているのは繊維直径の 2 倍程度の厚さの樹脂富化層であることを証明している. このように, 本手法は界面近傍の状態の推定やその証明にも利用できる⁽⁴⁾ (5). また本手法で, 90° プライの多重破断による複合材全体としての剛性の低下や $0^\circ \sim 90^\circ$ プライ間の接着が弱い場合の N_f の σ_c 依存性のシミュレート等も可能であり⁽⁴⁾, この手法は航空機材料として問題となっている FRP 積層板の多重破断現象の予測

図6 $0^\circ/90^\circ/0^\circ$ タイプの炭素繊維強化エポキシ直交積層複合材中の 90° プライの破断数 N_f と複合材への負荷応力 σ_c の関係のシミュレーションおよび実験結果⁽⁴⁾.

や剛性低下の問題等にも有用な評価・予測手段となりえるものと思われる.

(3) 多繊維複合材の引張変形・破壊挙動: メゾ力学事象の協力現象としてのマクロ挙動

複合材中では図 7(a) に示すように, 一般に繊維破断は複

図7 (a) 複合材料の変形・破壊中の繊維の破断の集積. (b) 破断繊維に隣接する繊維の応力分布. (c) 破断繊維の応力分布. (d) 界面接着が強い場合のクラック伝播. (e) 界面接着が弱い場合の界面剝離. (f) モンテカルロシミュレーションのための複合材のモデル化の模式図.

数の箇所で生じ、負荷応力レベルの上昇に伴って破断数も増加する。各繊維破断箇所では(b)(c)に示すように応力の乱れが生じる。破断繊維に隣接する繊維は高い応力集中(以下集中係数を K とする)を受け(b), 一方, 破断繊維は破断点から臨界長さ l_c の $1/2$ 以下の領域では荷重負担能力が低下する(c)。応力伝達の効率は l_c が長くなるにつれ減少する。 K や l_c は界面状態(接着の良否, 界面反応の有無), 繊維・マトリックスの力学特性, 繊維体積率, 負荷応力レベル等の影響を受ける⁽²¹⁾。これらは有限要素法やシェア・ラグ・アナリシス法によって計算される。後者の方法はマトリックスは応力伝達媒体としてのみ働くとし, 軸方向の繊維応力とせん断応力の釣合から, 多体問題を近似的に解くもので, Hedgepeth⁽²²⁾によって提案された。彼は弾性解を導いたが, 方程式と境界条件を修正することにより界面の剝離やマトリックスの降伏の影響を繰り込める⁽²³⁾⁻⁽³⁰⁾。この方法は, 実験および有限要素法計算より, 繊維体積率が高く, またマトリックスの負担応力が繊維のそれに比して小さい場合に有効であることが確認されている⁽³¹⁾⁻⁽³³⁾。最近, 繊維間隔が不均一な場合⁽³⁴⁾やマトリックス応力が無視できない場合⁽³⁵⁾についても適用できるよう修正・拡張されてきている。

破断繊維と隣接繊維間のメゾ領域の界面およびマトリックスの様相は図8に示すように負荷応力レベルとともに変化する⁽¹⁾。負荷応力レベルが低いときはマトリックスはせん断弾性変形する(a)。負荷応力レベルが上がると, マトリックスのせん断降伏応力 τ_y が界面せん断接着強さ τ_i より高いときは, 界面がまず $x=0$ で剝離し, その後, 界面剝離領域(ID)は成長する(b)。一方, $\tau_i > \tau_y$ であれば, まず $x=0$ でマトリックスがせん断降伏し, 降伏域(MY)は応力レベルの上昇とともに大きくなる(c)。さらに応力レベルが上昇すると, τ_i がマトリックスのせん断強さ τ_u より低い場合は, 界面剝離領域が形成・成長し(d), 逆に高いとマトリックスのせん断破壊領域(MF)が形成・成長する(e)。ただし, 常に(d)や(e)の様相を示すに至るとは限らない。(c)の状態では複合材が破断してしまうこともある。MY, ID, MFの各領域はそれぞれ臨界応力以上で生じ, 最初は各領域サイズはnmレベルと小さいが, 負荷応力の上昇とともに成長する。複合材の強さや靱性に影響するのは, これらの領域が μm ~数百 μm の場合が多い。負荷応力レベルの上昇に伴う各領域長さの変化により, 繊維の応力分布もまた著しく変化する。図8(f)に隣接繊維に及ぼす応力集中係数の長さ方向変化の模式図を示す。①は(a), ②は(c), ③は(d)の状態に対応する。このように, 界面剝離せずマトリックスが弾性変形する場合の応力集中係数は $x=0$ (繊維の破断点)で高いこと, マトリックスが降伏すると $x=0$ での応力集中係数は減少すること, 界面剝離が生じると応力集中係数は著しく減少すること, 界面剝離が進行すると $x=0$ と界面剝離-未剝離の2点で極値を持つようになること等の特徴がある。一方, 臨界長さは, マトリックスの降伏および界面剝離によって増加する。さらに広範な条件で計算を行うとこれらの特徴に加えて, 繊維のヤング率, マトリックスの降伏応力・加工硬化係数, 接着強さが高いほど, 応力集中は高くなり臨界長さは短くなるとの結果が

図8 (a)~(e) 破断繊維と隣接繊維間のメゾ領域の界面およびマトリックスの様相の負荷応力増加に伴う変化⁽¹⁾。

(f) 隣接繊維の応力集中係数の長さ方向変化の模式図。

MYは破断繊維-隣接繊維間のマトリックスがせん断塑性変形する領域, IDは界面剝離領域, およびMFはマトリックスのせん断破壊領域を示す。(f)中の①は(a), ②は(c), ③は(d)の状態に対応する。③の $x>0$ での K の極値はID→MY遷移点に相当する。

得られている。このように, メゾ領域の挙動は負荷応力の増加とともに変化する, それにしたがってメゾ領域の応力分布も変化する。

(i) シミュレーション手順

繊維の破断は複数の箇所で生じ, 個々の破断点近傍に応力の乱れを生じる(図7(b)(c))。応力の乱れは上述の如くメゾ領域の挙動の変化とともに変化する。また負荷応力レベルが高くなると, 形成されたクラックは界面接着が強い場合は繊

維軸に直角方向に伝播し(d), 弱い場合は界面剝離が生じる(e)といった現象も現れる. このような繊維破断やクラック形成の集積が全体として複合材の挙動を決定する. 多繊維複合材料の変形・破壊挙動についてのシミュレーションの主な仮定と手順は以下の通りである⁽⁶⁾⁻⁽¹¹⁾.

(1) 複合材は2次元モデルとした.

(2) 図7(f)に示すように, 複合材は微小な単繊維複合体の集合体であるとみなし, 繊維は微小要素のつながりとした. 乱数を発生させて各繊維要素に強さを与えた.

(3) 繊維破断による応力集中と臨界長さはシェア・ラグ・アナリシス法で計算した.

(4) 複合材破断は以下のように判定した. ①マトリックスの靱性が十分高い場合は, 破断繊維の未破断繊維への応力集中により, 連鎖反動的に全繊維が破断する場合と繊維のプルアウトを伴いながら破断する場合がある. プルアウトは破断点が破面から臨界長さの半分以上にあれば生じるので, お互いに隣接する繊維の破断点間の長さ方向の距離が臨界長さ以内にあれば可能とし, 全繊維の破断点が臨界長さ以内でつながったときはじめて複合材は破断するとした(1本でもつながらなければ破断しない). この判断基準を用いると全繊維が同一断面で破断している場合もプルアウトを伴って破断している場合も容易に判定できる. ②マトリックスの靱性が低く界面接着強さが高い場合は, 繊維破断によって形成されたクラックは横方向に進展する(図7(d))が, 接着が弱く剝離する場合(e)は, クラックの横方向への進展は阻止される. ここでは, 界面剝離が生じない状況下では, 最大クラックが Tetelman⁽³⁶⁾ の式 $\sigma_F = [E_c d_f (1 - V_f)^2 U / V_f] / (\pi a)$ (σ_F : 複合材強さ, E_c : 複合材ヤング率, d_f : 繊維径, V_f : 繊維容積率, U : マトリックスを破壊させるために必要な単位体積当りの仕事, $2a$: 最大のクラックのサイズ)を満足するとき, 横方向へのクラックの不安定成長により複合材は破断するとした. 一方, 界面剝離が生じた場合はこのメカニズムは

働かないとした.

(ii) 繊維強度のバラツキが複合材の挙動に及ぼす影響

Herring ら⁽³⁷⁾は実験的に接着良好な単層や2層のB/Al複合材を用いて, 繊維強度のばらつきを変え, その複合材強さに及ぼす影響を調べている. 抽出繊維の強度分布と複合材破断時の繊維応力を図9(a), 10(a)に示す. 図9はばらつきが小さい場合で, 弱い繊維の破断が直接複合材の破断を引き起こす(非集積破断)ことを示している. 一方, 図10はばらつきが大きい場合で, 弱い繊維の破断が生じても複合材は破断せず, ある程度繊維破断の集積が起こった後, 複合材は破断する(集積破断)ことを示している.

図9(a), 図10(a)の抽出繊維の強さ分布および既知の物性定数を用いて行った複合材破断時の繊維応力のシミュレーション結果を図9(b), 10(b)に, 種々の応力レベルでの繊維破断の様相を示すスナップショットを図9(c), 10(c)⁽⁶⁾に示す. 0 および * はそれぞれ未破断および破断要素を示す. 本シミュレーション結果は, 繊維強さのばらつきが小さい場合は非集積型, 大きい場合は集積型の破断が生じるとの観察結果を再現している. このように, 本手法により繊維強さのばらつきの度合いの差によるメゾ事象(繊維破断)の生じ方の違いおよびそのマクロ特性に及ぼす影響がかなりの程度まで記述できた.

(iii) 調製条件が複合材の挙動に及ぼす影響

調製条件によっては, 複合材料の界面状態は異なり, その結果複合材の挙動は著しく異なったものとなる. 一例として, 図11に一定圧力・温度で真空ホットプレス法で調製した単層のB/Alの破面および複合材の引張強さ時の平均繊維応力(σ_{fu})の調製時間(t)依存性を示す. t が短い場合(a)は, 接着が弱く繊維は長いプルアウトを示し, σ_{fu} も低い, t の増加に伴い接着強さは上昇しプルアウトは短くなり σ_{fu} も高くなる. しかし, さらに t が長くなると, 接着強さは上昇するが, 界面反応により AlB_2 が形成される. このような場合

図9 繊維強度分布が狭い場合のB/Al複合材中の(a)繊維強度分布と複合材破断時の繊維応力(Herring ら⁽³⁷⁾), (b)複合材破断時の繊維応力のシミュレーション結果⁽⁶⁾および(c)種々の応力レベルでの繊維破断の様相を示すスナップショット(シミュレーション結果)⁽⁶⁾. (c)中の0 および * はそれぞれ未破断および破断繊維要素を示す.

図10 繊維強度分布が広い場合の B/Al 複合材中の (a) 繊維強度分布と複合材破断時の繊維応力 (Herring ら⁽³⁷⁾), (b) 複合材破断時の繊維応力のシミュレーション結果⁽⁶⁾および (c) 種々の応力レベルでの繊維破断の様相を示すスナップショット (シミュレーション結果)⁽⁶⁾.

図11 一定圧力・温度で真空ホットプレス法で調製した単層の B/Al の破面および複合材の引張強さ時の平均繊維応力 ($\bar{\sigma}_{fu}$) の試料調製時間 (t) 依存性の実験およびシミュレーション結果.

には反応層破断による繊維表面でのクラックの形成→クラックの繊維への伝播→繊維破断→隣接繊維表面の反応層の応力集中による破断すなわち隣接繊維表面でのクラック形成→クラック伝播による隣接繊維破断が連鎖反的に生じ、複合材強度は低下する⁽⁷⁾。実験的に測定した抽出繊維の強度分布、

界面接着強さ、界面剥離後の界面せん断摩擦応力⁽³⁸⁾を用いて行ったシミュレーションの結果を図11に併せて示す。ただし、この実験では純アルミニウムをマトリックス材に用いているので、シミュレーションではマトリックスの靱性は高いものとした。実験的に観察された破面や測定された σ_{fu} は、シミュレーションにより良く再現されており、本手法は最適プロセッシング条件の予測にも有力な武器となり得ることを示唆している。

(iv) 界面接着強さの影響

接着強さを上昇させると臨界長さは短くなる。この効果は複合材強さを上昇させる方向に働く。しかし、応力集中は高くなり、形成された比較的大きなクラックは不安定成長しやすく (図 7(d)) なる。この効果は複合材強さを低下させる方向に働く。一方、接着を低下させると、臨界長さを長くする点では強さを低下させる方向に働くが、応力集中を減じ、クラックの進展を止める (e) 点では強さを上昇させる方向に働く。したがって、高強度複合材を得るためには、(A) 応力集中を下げ、クラックの進展を抑制することと、(B) 応力伝達効率を上げる (臨界長さをできるだけ短くする) ことを両立する界面接着を実現することが必要となる。しかしながら、(A) を実現しようとするれば、(B) は満たされなくなり、逆に (B) を実現しようとするれば (A) は満たされなくなる。つまり、(A) (B) 2 つの条件を同時に完全に実現する界面接着は存在しない。実際の複合材作製においては (A) (B) を如何にバランスさせるかが界面接着の最適化問題となる。図11を例にとると、(a)~(c) 中では (b) が最適界面に近いといえる。

図12に種々の破壊仕事 (U) をもつマトリックスを強化した場合の複合材強さの界面接着強さ依存性に関するシミュレーション結果の一例⁽¹⁰⁾を示す。 U が高い場合は複合材強さは接着強さの上昇とともに上昇する。しかし、 U が低い場合は接着強さの上昇とともに一旦上昇し最高値を示した後、低下する。これは、以下の理由による。接着強さの低い領域で

図12 種々の破壊仕事(U)をもつマトリックスを強化した場合の複合材強さの界面接着強さ依存性の一例⁽¹⁰⁾(シミュレーション結果)。

は界面剥離が生じクラックの進展は止められる。この点では界面剥離は有効な働きをしている。しかし、接着が弱すぎると繊維への応力伝達効率は悪く、繊維の持つ荷重負担能力を有効に生かせないため、複合材強さは低い。接着強さをクラックの進展を止められる範囲で上げると、応力伝達効率は上がる。このため、接着強さを上げると複合材強さは上昇する。しかし、接着を強くしすぎるとクラックの進展が起こるようになり、複合材強さはかえって低下する。

以上の結果は複合材強さに関してマトリックスが十分高い靱性を持っている場合には高い接着強さが高強度化には有効であるが、マトリックスの靱性が低い場合には、最適接着強さが存在することを示す。この最適接着強さは U の減少とともに低くなる。また、最適接着強さで到達できる複合材強さは U の減少とともに低くなる。現在までに化合物が内在することによるマトリックスの脆化は複合材強さを低下させることが指摘されており⁽³⁹⁾、さらにスペースプレーン等の計画では金属間化合物等の比較的靱性の低い材料をマトリックスとした複合材の開発が要請されている。これらの複合材では高強度複合材を得るためにはマトリックスの靱性を上げることが望ましいが、それが不可能な場合は適切な界面接着を実現する必要があるといえる。

(v) 試験温度の影響

マトリックスの軟化は破断繊維の隣接繊維への応力集中を低下させる点では複合材強度を上昇させる方向に働くが、一方では、臨界長さが増加し応力伝達効率を低下させる点では複合材強度を低下させる方向に働く。これら相反する効果が重畳して複合材強度を決めることになるが、アルミニウム基複合材では強さは試験温度が高くなると低下する傾向にある⁽⁴⁰⁾⁻⁽⁴²⁾。このことは前者の影響がより大きいことを示唆している。図13にSi-Ti-C-O(チラノ)/Al複合材の実験結果⁽⁴²⁾とマトリックスの弾性率や降伏応力の温度依存性を組み込んで行ったシミュレーション結果を示すが、両者はほぼ

図13 Si-Ti-C-O(チラノ)/Al複合材の温度依存性の実験結果⁽⁴²⁾とシミュレーション結果。

対応しており、高温での複合材強度の低下は主としてマトリックスの軟化による臨界長さの増加によるものであるといえる。ただし、強化繊維が金属間化合物の場合⁽⁴³⁾や繊維・マトリックス界面に金属間化合物が形成される場合⁽⁴⁴⁾は、化合物の高温での軟化により、複合材強さは温度の上昇とともに一旦増加し、ピークを示した後低下する。これらのシミュレーションには前者では化合物の強さ、降伏応力、靱性等の機械的性質のばらつきおよびそれらの温度依存性等のデータの収集と両構成材が延性的な場合の破壊モデルの構築が、後者では界面化合物の数、サイズ、空間分布状態や機械的性質とそのばらつきの温度依存性等のデータ収集が必要であり、今後の課題である。

(vi) 繊維容積率の影響

図14⁽¹⁰⁾に複合材強さの繊維容積率依存性のシミュレーション結果の例を示す。条件によってはほぼ複合則に近い関係が高い繊維容積率まで得られる場合、繊維容積率の低い領域では複合則に近い値が得られるが、繊維容積率が高くなると、複合則からの逸脱が大きくなり、場合によっては繊維容積率を高くし過ぎるとかえって複合材強さが低下する場合、さらに、繊維容積率に対してほぼ直線的に強さは上昇するがその値は複合則よりはるかに低い場合等がある。このような強さの繊維容積率依存性の多様性は実験的にも観察されてきたものである⁽⁴⁵⁾⁻⁽⁴⁸⁾。一連のシミュレーション結果をまとめると、「繊維強化材の強さを予測するのに複合則がよく用いられるが、複合則には、界面状態(接着強さ、界面反応の有無等)、繊維強度のバラツキ、繊維破断により生じる応力集中、マトリックスの靱性等の強さを決定する重要な因子が含まれておらず、その結果メゾ事象が考慮されていないため、適用に際しては注意が必要である」、ただし、「複合則値

図14 複合材強さの繊維体積率依存性(シミュレーション結果)。

はおおよそ実現され得る上限値に近く、複合材作製の目標値として経験的には有用である」といえる。

4. お わ り に

本稿ではメゾスケール力学事象の集積と複合材のマクロ引張挙動を結び付ける方法の一つとしてのモンテカルロシミュレーションの試みの一端を紹介した。複合材のメゾメカニクスにおいて有力な研究手段である本手法にご興味をもっていたいただければ幸いである。

メゾメカニクスのコンセプトやアプローチ手法(1.2や表1)については、筆者らの浅学非才故の独断・偏見が入っていることと思う。読者諸賢のご批判・ご意見を仰ぐ次第である。

本文は京都大学・長村光造教授、宇部興産・松永賢二氏、Hamburg-Harburg 大学・K. Schulte 教授、DLR 材料学研究所・P. W. M. Peters 博士をはじめ多数の共同研究者との研究結果の一部をまとめたものであることを記し、深く感謝の意を表します。研究遂行にあたり補助金を交付いただきました文部省、池谷科学技術振興財団、軽金属奨学会、マツダ財団に厚くお礼申し上げます。

文 献

- (1) S. Ochiai and K. Osamura: Z. Metallkd., **77**(1986), 255.
- (2) S. Ochiai and K. Osamura: J. Mater. Sci., **21**(1986), 2735.
- (3) S. Ochiai, K. Hayashi and K. Osamura: Met. Trans. A., **25A**(1994), 349.
- (4) S. Ochiai, P. W. M. Peters and K. Schulte: J. Mater. Sci., **26**(1991), 5433.

- (5) S. Ochiai, P. W. M. Peters and K. Schulte: Mater. Sci. Eng., **A154**(1992), 65.
- (6) S. Ochiai, K. Osamura and K. Abe: Z. Metallkd., **76**(1985), 402.
- (7) S. Ochiai and K. Osamura: Met. Trans. A., **18A**(1987), 673.
- (8) S. Ochiai and K. Osamura: J. Mater. Sci., **23**(1988), 886.
- (9) S. Ochiai and K. Osamura: J. Mater. Sci., **24**(1989), 3536.
- (10) S. Ochiai and K. Osamura: Met. Trans. A., **21A**(1990), 971.
- (11) S. Ochiai and K. Osamura: J. Mater. Sci., **27**(1992), 4061.
- (12) A. Kelly and W. R. Tyson: J. Mech. Phys. Solids, **13**(1965), 329.
- (13) S. Ochiai, K. Shimomura, M. Mizuhara and Y. Murakami: Trans. JIM, **15**(1975), 463.
- (14) S. Ochiai, K. Hayashi and K. Osamura: Cryogenics, **32**(1992), 799.
- (15) A. Parvizi, K. W. Garret and J. E. Bailey: J. Mater. Sci., **13**(1978), 195.
- (16) P. W. M. Peters: J. Comp. Mater., **18**(1984), 545.
- (17) P. W. M. Peters and T. W. Chou: Composites, **18**(1987), 40.
- (18) W. Weibull: J. Appl. Mech., **28**(1951), 293.
- (19) S. Ochiai and K. Osamura: Z. Metallkd., **77**(1986), 249.
- (20) K. L. Reifsnider, E. G. Henneke and W. W. Stinchcomb: Defects-property Relationships in Composite Materials, ASML-TR-76-81, Part IV, (June, 1979).
- (21) S. Ochiai: *Application of Fracture Mechanics to Composite Materials*, Ed. by K. Friedrich, Elsevier, (1989), p. 491.
- (22) J. M. Hedgepeth: NASA TN D-882, NASA, Washington, (1961).
- (23) C. Zweben: Eng. Frac. Mech., **6**(1974), 1.
- (24) J. G. Goree and R. S. Gross: Eng. Frac. Mech., **13**(1980), 563.
- (25) E. D. Reedy, jr.: J. Mech. Phys. Solids, **28**(1980), 265.
- (26) H. Fukuda and K. Kawata: Fib. Sci. Tech., **13**(1980), 255.
- (27) L. R. Dharani, W. F. Jones and J. G. Goree: Eng. Frac. Mech., **17**(1983), 555.
- (28) S. Ochiai, K. Abe and K. Osamura: Z. Metallkd., **76**(1985), 299.
- (29) J. A. Narin: J. Comp. Mater., **22**(1988), 561.
- (30) S. Ochiai, K. Osamura, K. Tokinori, M. Nakatani and K. Yamatsuta: Met. Trans. A, **22A**(1991), 2085.
- (31) G. W. Zender and J. W. Deaton: NASA TN-D1609, NASA, Washington, (1963).
- (32) E. D. Reedy, Jr.: J. Comp. Mater., **18**(1984), 595.
- (33) 合田公一, 北原耕一, 田中誠一郎, 福永秀春: 日本機械学会中国四国支部第27期講演会口頭発表, (1989).
- (34) S. Ochiai and K. Osamura: J. Mater. Sci., **24**(1989), 3865.
- (35) S. Ochiai, K. Schulte and P. W. M. Peters: Comp. Sci. Tech., **41**(1991), 237.
- (36) A. S. Tetelman: Composite Materials: Testing and Design, ASTM STP 460, ASTM, Philadelphia, (1969), p. 473.
- (37) W. H. Herring, J. L. Lytton and J. H. Steele, Jr.: Met. Trans., **4**(1973), 807.
- (38) 落合庄治郎, 阿部研吾, 長村光造: 日本金属学会誌, **48**(1984), 1028.
- (39) 砥綿真一, 山田銃一: 日本金属学会誌, **50**(1986), 336.
- (40) 和久芳春, 山本忠司, 鈴木道之, 中川成人, 西 正: 鉄と鋼, **75**(1989), 1563.
- (41) 今井義一: 第6回次世代産業基盤技術シンポジウム—金属・複合材料技術—(1989年3月), p. 327.
- (42) 松永賢治, 落合庄治郎, 長村光造, 和久芳春, 山村武民: 軽金属, **43**(1993), 219.
- (43) S. Ochiai, M. Mizuhara, M. Kawasaki and Y. Murakami: Trans. JIM, **15**(1974), 66.
- (44) S. Ochiai, T. Arai, K. Tokinori, K. Osamura, M. Nakatani and K. Yanatsuta: J. Mater. Sci., **27**(1992), 4667.
- (45) D. L. McDanel, R. W. Jech and J. W. Weeton: Trans. Metall. Soc. AIME, **233**(1965), 636.
- (46) A. Kelly and W. R. Tyson: J. Mech. Phys. Sol., **13**(1965), 329.
- (47) S. Kohara and N. Muto: ASTM STP 864, ASTM, Philadelphia, (1985), p. 456.
- (48) 中田栄一, 香川 豊, 宮下博仁, 野田英俊: 早稲田大学鋳研報告, **36**(1981), 93.