繊維強化熱可塑性樹脂の異方性粘弾性構成則における
緩和特性と弾性率の温度依存性に関する数値解析的検討山本 晃司^{*1}, 石橋 慶輝^{*2}, 染宮 聖人^{*3}, 平山 紀夫^{*4}, 寺田 賢二郎^{*5}Computational study on temperature-dependencies of relaxation and elastic properties
in anisotropic viscoelastic constitutive law for fiber-reinforced thermoplastic resinKoji YAMAMOTO^{*1}, Yoshiteru ISHIBASHI^{*2}, Masato SOMEMIYA^{*3},
Norio HIRAYAMA^{*4} and Kenjiro TERADA^{*5}^{*1} CYBERNET SYSTEMS CO.,LTD. FUJISOFT Bldg, 3 Kanda-neribeicho, Chiyoda-ku, Tokyo 101-0022, Japan^{*2} Department of Civil Engineering, Tohoku University, 468-1 Aramaki, Aza-Aoba, Aoba-ku, Sendai-shi, Miyagi 980-8572, Japan^{*3,*4} Department of Mechanical Engineering, Nihon University, 1-2-1 Izumi-cho, Narashino-shi, Chiba 275-8575, Japan^{*5} International Research Institute of Disaster Science, Tohoku University, 468-1 Aramaki, Aza-Aoba, Aoba-ku, Sendai-shi, Miyagi 980-8572, Japan

Received: 19 February 2019; Revised: 25 March 2019; Accepted: 21 May 2019

Abstract

With use of the numerical material testing (NMT) approach based on homogenization theory, a time-temperature reduction law is proposed for both relaxation and elastic properties in the orthotropic viscoelastic constitutive equation, which is supposed to represent the macroscopic material behavior of unidirectional fiber reinforced thermoplastics (FRTP) under various temperature environments. We start with dynamic viscoelastic measurements for polycarbonate (PC) under different ambient temperatures to evaluate the master curves of storage and loss moduli as well as loss tangent that exhibit the temperature- and time-dependent characteristics of its relaxation and elastic properties. Then, with the use of the obtained viscoelastic properties of the resin, a series of NMTs simulating macroscopic stress relaxation are conducted on a periodic microstructure (unit cell) model of the FRTP to characterize the macroscopic viscoelastic material behavior. Finally, the shift functions of the orthotropic relaxation and elastic properties in the assumed macroscopic viscoelastic constitutive law involving the proposed time-temperature reduction law are determined to clarify its time- and temperature-dependent characteristics.

Keywords : FRTP, Viscoelasticity, Anisotropy, Time-temperature reduction, Elastic-moduli-temperature reduction, Homogenization

1. 緒 言

繊維強化複合材料, 特にカーボンやガラス繊維で強化されたプラスチック (以下, FRP) は, 高い比強度および比剛性を持つことから, 主に構造物の軽量化用途に対する貢献が期待されている. 従来は生産性の観点から, 射出成形により生産された短繊維強化複合材料が構造物の非強度部材に適用されることが多かったが, 近年では, 不連続な長繊維あるいは連続繊維強化複合材料を 1 次強度部材に適用する実績も増えてきている. この傾向は, プレスに代表される成形技術の発展による貢献が大きく, 今後も産業界への適用範囲はより広がっていくものと思わ

No.19-00058 [DOI:10.1299/transjsme.19-00058], J-STAGE Advance Publication date : 28 May, 2019

^{*1} 正員, サイバネットシステム (株) メカニカル CAE 事業部 (〒112-0012 東京都千代田区神田練馬町 3)^{*2} 東北大学大学院工学研究科 (〒980-8572 宮城県仙台市青葉区荒巻字青葉 468-1)^{*3} 日本大学 生産工学部 (〒275-8575 千葉県習志野市泉町 1-2-1)^{*4} 正員, 日本大学 生産工学部^{*5} 正員, フェロー, 東北大学 災害科学国際研究所

E-mail of corresponding author: yamamo-k@cybernet.co.jp

れる。なかでも FRP の基材に熱可塑性樹脂を用いた複合材料（以下、FRTP）は、加熱によって再溶融できることから 2 次賦形やりサイクルができるメリットを持つ。特にリサイクル性は、近年強く望まれている地球環境負荷低減の目的にも貢献できるため、自動車をはじめとした輸送機器の分野では応用が期待されている。しかし、熱可塑性樹脂は溶融前後で分子量に変化は生じないため、成形後に分子が架橋構造を持つ熱硬化性樹脂以上に、低温下であっても流動挙動を含んだ機械特性、すなわち粘弾性特性が顕在化するため解決すべき課題が多く残されている。特に、樹脂が長い繊維で強化された場合には、材料挙動の異方性も無視できないため、FRTP 製主要部材の長期信頼性を確保するためには、温度依存性の異方性機械特性を事前に把握することが極めて重要である。

材料の粘弾性挙動を計測する際には、長時間領域に渡る緩和挙動を把握するために、一般的には緩和特性の時間-温度換算則を利用することが多い。これによって、樹脂の緩和特性の温度依存性が定量化されるため、長時間領域の緩和挙動も、試験片を高温環境下におくことで短時間の計測結果から予測できるようになる。宮野ら（宮野他, 1979）は、エポキシ樹脂とそれを繊維で強化した短冊形の試験片それぞれに対して、様々な温度下におけるクリープコンプライアンスを 3 点曲げ試験によって計測することで、長時間領域の材料挙動および、緩和特性の時間-温度換算則の同定を行った。その結果として、FRP の緩和特性の温度依存性はエポキシ樹脂単体の挙動と一致することを示した。平山ら（平山, 三木, 2001）や岩本ら（岩本, 宗宮, 1995）もまた、異なる素材の繊維強化材に対して調査を行い同様の結論を示した。金光ら（金光他, 1984）は FRP の 3 点曲げの強度に関しても温度依存性を実験的に観察することで、強度特性にも強い温度依存性があり、しかもその依存性には樹脂の緩和特性と同じ時間-温度換算則が適用できることを示した。一方で、弾性挙動もまた温度に依存するため、緩和特性のみに着目した時間-温度換算則では粘弾性挙動の温度依存性を完全には表現のできないことも知られている。Sullivan (Sullivan, 1990) によると、この現象は樹脂材料が熱力学的に非平衡からゆっくり平衡状態に遷移している状態、すなわちフィジカルエージングの進行に起因するとされている。この問題を解決するために、宮野ら（宮野他, 1993, 宮野他, 1995）は弾性挙動の温度への依存性も考慮した修正型の時間-温度換算則を提案した。後に、坂井ら（坂井, 宗宮, 2007）も同様の定式化を異なる素材から構成される FRP に適用することでその有用性を確認している。

これら既往の実試験に基づく研究例によって、樹脂の粘弾性特性の温度依存性はある程度解明され、その知見は FRP の異方性粘弾性構成則に反映させることが可能になったといえる。しかしながら、これら実験的研究では、試験的制約により 3 点曲げなどの変形モードに限定した検討が多く、FRP の任意の異方性挙動が力学理論に照らして体系的に把握されているとはいえない。これに対して、有限要素法などの利用を前提とした数値解析的研究によれば、数値シミュレーションが実験的研究の知見を補完することができ、異方性挙動をより深く理解できる可能性がある。特に、数学的均質化法 (Benssousan et al., 1978, Sanchez-Palencia, 1980, Lions, 1981, Suquet, 1987; 寺田, 菊池, 2003) によれば、FRP の微視的（以下、ミクロ）構造を解析対象とする数値実験（以下、数値材料試験と呼ぶ）により、巨視的（以下、マクロ）材料挙動を算出することが可能であり、厳密な数学理論に基づいて、かつ力学的理論に忠実にマクロな異方性粘弾性挙動の特徴づけが可能となることが知られている（寺田他, 2009, Terada et al., 2014, Xin et al., 2018）。この数値材料試験におけるミクロ構造は周期配置されているものと仮定されるためユニットセルと呼ばれており、これがマイクロメカニクス (Mura, 1982) における代表体積要素の役割を果たす。均質化法はこのユニットセルに対する境界値問題とマクロ境界値問題を結び付ける理論であるため、数値材料試験を通して、マクロ材料応答を評価して構成則に落とし込むことができれば全体構造物の数値シミュレーションも可能になるのである (Terada et al., 2013, 山本他, 2016)。これを実現するためには、FRTP を構成する材料構成則およびその物性値、さらにはマクロ応答を正確に表現するための材料構成則が必要不可欠である。ユニットセルの数値解析モデルに樹脂の粘弾性挙動の温度依存性を導入すれば、マクロ粘弾性挙動の温度依存性も評価できることになるが、従来の研究では緩和特性に関する検討に止まっており（寺田他, 2009）、弾性特性についての報告例は存在しない。つまり、応力緩和や動的粘弾性の特性が、温度変化によって時間軸あるいは周波数軸方向に平行移動する材料挙動のみを仮定しており、弾性率軸の方向に対する温度依存性は考慮できていなかった。

そこで本研究では、FRTP のマクロ粘弾性材料挙動の温度依存性に関する特徴付けを行うために、樹脂の緩和および弾性挙動の温度への依存性を考慮した材料構成則を用いて様々な温度環境下での応力緩和試験を模擬した数値材料試験を行った結果から、異方性的なマクロ粘弾性構成則における緩和特性に加えて弾性特性の温度への依存性を調査し、それを表現できるような換算則を提案する。まず、代表的な熱可塑性樹脂であるポリカーボネート樹脂（以下、PC）に対して様々な環境温度下で動的粘弾性試験を行い、貯蔵弾性率、損失弾性率、損失正接の

温度依存性を把握する。次いで、マクロ緩和特性だけでなくマクロ弾性特性の温度依存性を考慮できるように直交異方性弾性特性の温度に対する換算則を定式化したうえで、この PC の材料特性を母材に用いた FRTP のユニットセルモデルに対して代表的なマクロ変形モードを与える応力緩和の数値材料試験を実施する。そして、直交異方性マクロ粘弾性構成則における緩和特性と弾性特性のシフト量を決定し、それらの温度依存性を明らかにする。

2. 樹脂の粘弾性特性

2・1 供試材

本研究では母材に代表的な熱可塑性樹脂の一つであるポリカーボネート樹脂を用いた。ポリカーボネート樹脂フィルム（パンライト PC-1151/2151, 帝人（株））を 16 層重ねて、高温プレス成形機内で温度 290 [°C] にて加熱・溶融し、その後、圧力 5.6 [MPa] の条件下で成形し、冷却速度 10 [°C/min] にて 50 [°C] まで冷却した後にプレス機から取り出した。こうして平板状に成形されたポリカーボネート樹脂の厚みは 1.9 [mm] で、ガラス点 T_g は動的粘弾性試験の損失正接のピークから判断すると 155.8 [°C] であった。

2・2 動的粘弾性試験

動的粘弾性試験は、JIS K7244-3 に準じた曲げ振動法で行った。ポリカーボネート樹脂の試験片形状は、図 1 に示すように、厚さ $h = 1.9$ [mm]、幅 $b = 10$ [mm]、長さ 50 [mm] で試料長 $l = 28$ [mm] の短冊形に切り出したものとした。試験装置には、セイコーインスツルメンツ社製の SII Exster 6100 を使い、両端部を完全固定とし、試料中央部を 8 [mm] 幅でクランプし、曲げによる正弦的ひずみを加えた。温度条件は表 1 に示すように、 $T = 30$ [°C] から 170 [°C] の間で 5 [°C] の間隔で計測し、加振周波数は 0.01 ~ 10 [Hz] の範囲で連続的に変化させ測定を行った。複素弾性率 E^* 、貯蔵弾性率 E' 、損失弾性率 E'' および損失正接 $\tan\delta$ は次式から算出した。

$$E^* = \frac{l^3}{16bh^3} \cdot \frac{\Delta F}{\Delta Y} \quad (1)$$

$$E' = E^* \cdot \cos\delta \quad (2)$$

$$E'' = E^* \cdot \sin\delta \quad (3)$$

$$\tan\delta = \frac{E''}{E'} \quad (4)$$

ここで、 ΔF は試験片に生じる動的荷重、 ΔY は試験片に生じる動的変位、 δ は応力とひずみの位相差である。

Fig. 1 Configuration of dynamic viscoelastic test.

Table 1 Frequency and temperature levels for dynamic viscoelastic tests.

Conditions	Value
Frequency [Hz]	0.01, 0.02, 0.05, 0.10, 0.20, 0.50, 1.00, 2.00, 5.00, 10.0
Temperature [°C]	30.0, 35.0, 40.0, 45.0, 50.0, 55.0, 60.0, 65.0, 70.0, 75.0, 80.0, 85.0, 90.0, 95.0 100.0, 105.0, 110.0, 115.0, 120.0, 125.0, 130.0, 140.0, 145.0, 150.0, 155.0, 160.0, 165.0, 170.0

Fig. 2 Generalized Maxwell model for anisotropic viscoelasticity.

2・3 樹脂の粘弾性構成則

数値材料試験における解析対象であるユニットセル内部の樹脂の粘弾性挙動には等方性を仮定し、図2に示すようなレオロジーモデルに基づく一般化 Maxwell モデルにより表現されるものとする。図中でバネ要素を平衡部、弾性バネとダッシュポッドが直列接続されている Maxwell 要素を非平衡部と呼ぶこととし、それぞれ平衡応力と非平衡応力を分担する。また、非平衡部の変形には非圧縮性を仮定し、作用する応力の偏差成分のみが緩和挙動を発現するものとする。このとき、ひずみテンソルを ϵ とすると、平衡部で発生する応力 σ_∞ と非平衡部の要素 α で発生する応力 σ_α は、それぞれ次式のようになる。

$$\sigma_\infty = \hat{K}_\infty \epsilon_{\text{vol}} \mathbf{I} + 2\hat{G}_\infty \text{dev}(\epsilon) \quad (5)$$

$$\sigma_\alpha = 2\hat{G}_\alpha \int_{-\infty}^t \exp\left(-\frac{t-s}{\tilde{\tau}_\alpha}\right) \frac{d}{ds} \text{dev}(\epsilon) ds \quad (6)$$

ここで s は载荷時間、 ϵ_{vol} 、 $\text{dev}(\epsilon)$ はそれぞれ体積ひずみと偏差ひずみテンソルを表し、 G_∞ 、 K_∞ はそれぞれ基準温度における平衡部のせん断弾性率と体積弾性率、 G_α は基準温度における非平衡部のせん断弾性率である。また、 $\tilde{\tau}_\alpha$ は前述の緩和特性の時間-温度換算則により変換された非平衡部の緩和時間であり、基準温度における粘性 η_α は、時間-温度換算則のシフトファクター a_T を用いて

$$\tilde{\eta}_\alpha = a_T \eta_\alpha, \quad \tilde{\tau}_\alpha = \frac{\tilde{\eta}_\alpha}{G_\alpha} \quad (7)$$

のように変換される。さらに、上付きの^付けて表した弾性係数は、次式のように弾性特性の温度換算則におけるシフトファクター b_T を用いて変換された値である。

$$\hat{K}_\infty = b_T K_\infty, \quad \hat{G}_\infty = b_T G_\infty, \quad \hat{G}_\alpha = b_T G_\alpha \quad (8)$$

通常、動的粘弾性試験で得られるデータは、周波数を横軸、貯蔵弾性率と損失弾性率を縦軸にとってプロットするため、便宜上、これら a_T と b_T によるシフトを、それぞれ“横軸シフト”、“縦軸シフト”と呼称することにする。横軸シフトは、温度に依存して分子鎖同士の絡み合いの程度が変化することに起因するが、縦軸シフトはフィジカルエージングによって引き起こされるとされている。すなわち、材料成形時の冷却過程で分子鎖が非平衡状態のまま凍結し、その後緩慢に平衡状態へと遷移していく様子が弾性率の温度依存性として表れる。一般に、熱可塑性樹脂の横軸シフト量には強い温度依存性があることが知られており、アレニウス型や WLF 型などの関数形が提案されているが、本研究ではより汎用性の高い多直線近似で定義することにする。また、縦軸シフト量も同様に多直線近似を採用する。

このようにして温度換算された緩和特性および弾性特性を用いて、式(5)や(6)から平衡部と非平衡部の応力を求めることで、最終的に全応力 σ が次式のように各要素の応力の和で表される。

$$\sigma = \sigma_\infty + \sum_{\alpha=1}^N \sigma_\alpha \quad (9)$$

ここで、応力緩和試験を想定して、極めて短い時間 ($t \approx 0$) で瞬間的にひずみを負荷し、それを長時間保持する条件を与えると、材料の粘性特性の影響を受けて応力が緩和する。その時の応力-ひずみ間の比例定数である緩和せん断弾性率 $G_r(t)$ は以下に示すような Prony 級数式で表される。

$$G_r(t) = \hat{G}_\infty + \sum_{\alpha=1}^N \hat{G}_\alpha \exp\left(-\frac{t}{\tau_\alpha}\right) \quad (10)$$

一方、実際の材料試験では、理想的な応力緩和試験を行うことは困難であるため、実試験から材料物性値を決定するためには、前節で述べた動的粘弾性試験の結果が用いられる。ここで、ある角周波数 ω で振動する単位ひずみ量 ($\epsilon = e^{i\omega t}$) を強制的に与えることを考えると、粘弾性特性である複素弾性率の実部の貯蔵弾性率と虚部の損失弾性率は

$$G'(\omega) = G_\infty + \sum_{\alpha=1}^N \frac{G_\alpha \tau_\alpha^2 \omega^2}{1 + \tau_\alpha^2 \omega^2} \quad (11)$$

$$G''(\omega) = \sum_{\alpha=1}^N \frac{G_\alpha \tau_\alpha \omega}{1 + \tau_\alpha^2 \omega^2} \quad (12)$$

と表されることが知られている (村上, 1991)。なお、実試験の評価項目と整合するように縦弾性係数で式を整理するため、本研究では樹脂の Poisson 比には緩和挙動は存在しないものと仮定する。このとき、等方性の弾性構成則では、縦弾性係数とせん断弾性係数および Poisson 比との間の

$$E = 2(1 + \nu)G \quad (13)$$

なる関係は時間や温度に対して不変であり、縦弾性係数についてもせん断弾性係数と同様に次式が成立する。

$$E'(\omega) = E_\infty + \sum_{\alpha=1}^N \frac{E_\alpha \tau_\alpha^2 \omega^2}{1 + \tau_\alpha^2 \omega^2} \quad (14)$$

$$E''(\omega) = \sum_{\alpha=1}^N \frac{E_\alpha \tau_\alpha \omega}{1 + \tau_\alpha^2 \omega^2} \quad (15)$$

実際、Poisson 比の緩和挙動については、曾我部ら (曾我部他, 1987) がアクリル材に対して実測を行った結果から、ほぼ無視できるとも報告されている。

以上の定式化を基に、樹脂の材料物性値を同定するための手順の概略をまとめると、まず実試験で表 1 に示すような様々な温度環境に対して、同一範囲の周波数帯における動的な弾性特性を取得しておく。次に、上述の 2 種類の換算則を用いて、材料応答を各軸方向に任意量シフトさせることで、各温度水準のデータが 1 本に繋がった曲線 (マスターカーブと呼ばれている) を作成すると同時にそのシフト特性を取得する。そして、式 (14) および (15) からなる動的粘弾性応答がマスターカーブと一致するように縦弾性係数 E_α や E_∞ および緩和時間 τ_α を決定する。

3. 樹脂の材料物性値同定解析フロー

粘弾性材料構成則の物性値を同定する際の重要なプロセスの一つに横軸および縦軸方向のシフト量の決定がある。前節の最後で述べたが、これは実試験で得られた様々な温度、加振周波数帯における貯蔵弾性率・損失弾性率・損失正接を用いてマスターカーブを描くプロセスである。本節では、その自動的にかつある程度客観的な計算アルゴリズムを提案する。

本研究では、実測された樹脂の動的粘弾性特性から各軸のシフト関数を同定するために最適化手法に基づくアプローチを採用する。すなわち、隣り合う温度域の動的粘弾性特性の横軸方向と縦軸方向の不一致量を表す次の誤差関数 ϕ_a^{iso} , ϕ_b^{iso} をそれぞれ次式で定義し、それらが最小になるように横軸と縦軸のシフト量を同定することにする。

$$\phi_a^{\text{iso}}(a_T) = \sum_{i=1}^{m+1} (\tan(\delta_L)(f_i; a_T) - \tan(\delta_H)(f_i; a_T)) \quad (16)$$

$$\phi_b^{\text{iso}}(b_T) = \sum_{i=1}^{m+1} (E'_L(f_i; b_T) - E'_H(f_i; b_T)) \quad (17)$$

Fig. 3 Schematics of error functions to determine the shift functions for master curves. The gray area indicates the range for evaluating the error. The loss tangent and the storage modulus are used to identify horizontal and vertical shift values, respectively.

ここで、セミコロン“;”の前の引数 f_i は入力した加振周波数であり、後ろ側が同定したいシフト量である。また、添え字 L と H はそれぞれ隣り合う試験温度の低温側および高温側の特性を意味する。図 3 はこれらの誤差関数を模式的に表したものである。誤差を算定する周波数範囲はシフト演算操作によりカーブが重なり合う（グレーで色づけした）低温側の最小周波数 ($f_{\min}$) と高温側の最大周波数 ($f_{\max}$) で囲まれた範囲とし、これを m 分割して各周波数点における誤差を計測して総和をとる。横軸シフトの場合には、誤差関数を計測する範囲がシフト量に依存して変動することになるが、誤差を計測する点の数を常に固定することで、誤差の計測範囲である周波数軸上の幅に依存しない誤差が定量化できる。なお、実測点以外の周波数における損失正接および貯蔵弾性率はスプライン補間によって内挿した値を用いる。また、本研究では誤差関数を最小化するための最適なシフト量の探索は 2 分法によって行うことにする。

上記の誤差関数は、隣り合う温度水準の組すべてについて定義されるが、すべての温度水準に対応するカーブを同時にシフトさせると、任意性が出てしまい、最適なシフト量を一意に決定することができない。このため、まずはじめに任意に決定した基準温度のデータを固定し、それと隣り合う温度水準のデータのみをシフトさせる。続いて、今同定された温度におけるシフト量を固定して、これより 1 セット分だけ基準温度から高い（あるいは低い）温度水準のデータを対象として上記の誤差関数を最小にするようなシフト量を得る。これら一連の操作を、基準温度から最も遠い温度水準データまで、低温側と高温側それぞれの方向に繰り返し行うことですべてのシフト量を算出し、全体のマスターカーブを作成する。また、このような誤差関数最小化によるシフト操作は、縦軸方向と横軸方向に対して同時には行わず、はじめに横軸方向のみで誤差関数を最小化したのちに、縦軸方向のシフト操作を行う。

4. ポリカーボネート樹脂の材料特性

4・1 ポリカーボネート樹脂のマスターカーブ

ポリカーボネート (PC) 樹脂単体の試験片に対して行われた動的粘弾性試験結果を入力データとして、前節で述べた同定方法を適用することで横軸および縦軸方向のシフト量を算定した。なお、誤差算定のための周波数範囲は $m = 50$ とし、基準温度は 150°C に設定した。詳細なデータは後述するが、この温度は縦軸シフト挙動が顕著に表れはじめる温度に対応している。 150°C よりも高い温度では、ほとんど縦軸シフトは見られなかった。実際に高温領域にも縦軸のフィッティング操作をすると、縦軸シフト量が不規則に振動する傾向が見られた。これは計測誤差に関連しているものであり解析上重要ではないと考えて、基準温度よりも高い領域は縦軸シフト量をゼロとおいた。こうして得られたシフト量を用いて描いたマスターカーブを図 4 に示す。ここで、横軸シフト操作のみを行った結果を図の左列に、横軸シフト後の特性に対して縦軸のシフト操作を追加した結果を右列に表示した。

Fig. 4 Master curves evaluated with horizontal and vertical shift operations: (a) Horizontal shift operation only; (b) Both horizontal and vertical shift operations.

Fig. 5 Evaluated shift properties for relaxation time and modulus: (a) Horizontal shift factor; (b) Vertical shift factor. Reference temperature is set at 150 degrees.

左側の貯蔵弾性率の結果は、マスターカーブが高温側（低周波数側）では連続的に繋がっているのに対して、低温側（高周波数側）では縦軸方向にずれている様子が確認できる。これに対して、図4の右列から分かるように、縦軸方向のシフト操作を施すことでこの誤差を補正でき、マスターカーブがより適正に描けている様子が確認できる。これら2方向のシフト操作によって得られた1本のマスターカーブが正しい粘弾性挙動であるならば、横軸シフトのみで作成した貯蔵弾性特性は最大で約12.9%の誤差率と見積もられ、決して無視することのできない縦軸シフト量であるといえる。

ちなみに、横軸シフト操作を行うことで緩和特性の時間-温度換算則の具体的な横軸シフト量を同定し、マスターカーブを作成する際には、慣例的に損失正接の試験結果を用いることが多い。これは、貯蔵弾性率あるいは損失弾性率が仮に縦軸方向にシフトしたとしても、その効果を相殺できると期待しているからである。しかし、貯蔵弾性率と損失粘弾性の温度依存性が同一である保証はなく、縦軸シフトの影響を無視した解析を行う上では有効な手段であるが、粘弾性特性の本来の温度依存性材料挙動を正確には表現できない可能性がある点に注意が必要である。図4において損失弾性率と損失正接の左右の結果を比較すると、ほとんど結果に違いがないように見えるのは、縦軸シフトする周波数帯では貯蔵弾性率の絶対値が圧倒的に小さいためである。最後に、これらのマスターカーブを作成するために施した各軸方向の温度依存性シフト量を図5に示す。横軸シフト関数は一般的に知られているような、ガラス転位点近傍で不連続に変化する、いわゆる典型的なアレニウス型の特性を示す様子が確認される。縦軸シフト量については、ガラス転位点よりも低い温度で急激に変化し、その後の温度低下に対してはほぼ線形的な傾向をとることが確認される。

4・2 ポリカーボネート樹脂の粘弾性パラメータの同定

上で得られたポリカーボネート樹脂の貯蔵弾性率のマスターカーブに対して、Prony級数式(14)を用いてカーブフィッティング操作を行うことで粘弾性パラメータを同定する。本研究では、Prony級数の粘弾性パラメータの同定には藤川ら（藤川他、2006）が提案した方法を適用し、そのなかで必要となる最適化アルゴリズムには粒子群最適化（PSO）手法を採用する。ただし、一般化Maxwellモデルを構成するMaxwell要素の数は $N=15$ に固定して最適化対象から除外する。また、緩和時間に対する誤差関数の感度が極めて高いため、安定して最適解が取得できるように探索範囲を限定する。具体的にはマスターカーブが得られている周波数帯である $10^{-7} \sim 10^7$ の間を対数スケールで等間隔に15等分した時刻の0.1倍～10倍の範囲を各緩和項の探索範囲とする。

最適化解析の条件としては探索個体数を30に設定し、探索のための反復は経験的に十分誤差が小さくなる200回で強制終了することにする。終了後には全探索個体が同じ最適値に収束していることを確認するとともに、複数回の最適化解析を試行して毎回同じ最適値に収束することを確認することで、全体最適値に収束しているものと判断する。このような方針で前述の貯蔵弾性率のマスターカーブに対してフィッティングした結果を図6に示す。図中には得られたProny級数の値も併記している。実測から得られたマスターカーブのプロットと、同定され

た Prony 級数の応答はほぼ一致しており、良好にフィッティングができていることが確認できる。また、平衡部の（あるいは緩和完了時の）縦弾性率は 1.05×10^5 [Pa] と同定され、未緩和の貯蔵弾性率の値である約 2.5×10^9 [Pa] と比較して 10^4 ほど小さい。このように PC 樹脂単体では、時間経過に伴う緩和によって初期弾性率の大部分が失われることが分かる。

Fig. 6 Fitting result of storage modulus with identified relaxation times and elastic moduli.

5. FRTP のマクロ構成則

5・1 異方性一般化 Maxwell モデルとシフト関数

FRTP のマクロ構成則には、第 2 節で示した一般化 Maxwell モデルの平衡部と非平衡部の弾性および粘性に異方性を導入したモデルを採用する。なお、特に混乱のない限り、以降は応力およびひずみなどのマクロ変数、材料パラメータには同一の表記・記号を用いることにする。

平衡部と α 番目の非平衡部の応力-ひずみ関係を次式のように与える。

$$\sigma_\infty = \hat{C}_\infty : \epsilon \quad (18)$$

$$\sigma_\alpha = \tilde{\eta}_\alpha : \dot{\epsilon}_\alpha^v = \hat{C}_\alpha : \epsilon_\alpha^e \quad (19)$$

ここで、 $\hat{C}_\infty$ は平衡部の弾性テンソル、 $\tilde{\eta}_\alpha$ と $\hat{C}_\alpha$ はそれぞれ非平衡部の粘性テンソルと弾性テンソルである。また、ひずみに付した上付添え字 v と e は、それぞれがダッシュポット要素とバネ要素のひずみに対応していることを表している。さらに、 $\tilde{\eta}_\alpha$ に付した $\sim$ は前節と同様に、緩和に関係する粘性が時間-温度換算されたことを意味するが、実際の換算則は α 番目の Maxwell 要素の緩和時間テンソル $\tilde{\tau}_\alpha (= \tilde{\eta}_\alpha : C_\alpha^{-1})$ に仮定する。この緩和時間テンソルに直交異方性を仮定して Voigt 表記で表すと次式のようなになる。

$$[\tilde{\tau}^\alpha] = \begin{bmatrix} a_{11}\tau_{11}^\alpha & a_{12}\tau_{12}^\alpha & a_{13}\tau_{13}^\alpha & 0 & 0 & 0 \\ & a_{22}\tau_{22}^\alpha & a_{23}\tau_{23}^\alpha & 0 & 0 & 0 \\ & & a_{33}\tau_{33}^\alpha & 0 & 0 & 0 \\ & & & a_{44}\tau_{44}^\alpha & 0 & 0 \\ \text{sym.} & & & & a_{55}\tau_{55}^\alpha & 0 \\ & & & & & a_{66}\tau_{66}^\alpha \end{bmatrix} \quad (20)$$

ここで、 a_{ij} は基準温度の緩和時間テンソルの成分 τ_{ij}^α に対する時間-温度間の換算のためのシフト量を表す。なお、本研究を通して Voigt 表記で表す際の 2 階テンソルの成分の並びは 11, 22, 33, 12, 23, 31 とする。

また、直交異方性も仮定して、Poisson 効果以外の連成成分はゼロとする。さらに、マトリクスには対称性があるため、一つの緩和項が持つ横軸シフト量の独立な成分は 9 つである。一方、本研究では各弾性テンソルについ

でも対称性および温度依存性を考慮して次の変換式を提案する.

$$[\hat{C}_\infty] = \begin{bmatrix} b_{11}^\infty C_{11}^\infty & b_{12}^\infty C_{12}^\infty & b_{13}^\infty C_{13}^\infty & 0 & 0 & 0 \\ & b_{22}^\infty C_{22}^\infty & b_{23}^\infty C_{23}^\infty & 0 & 0 & 0 \\ & & b_{33}^\infty C_{33}^\infty & 0 & 0 & 0 \\ & & & b_{44}^\infty C_{44}^\infty & 0 & 0 \\ \text{sym.} & & & & b_{55}^\infty C_{55}^\infty & 0 \\ & & & & & b_{66}^\infty C_{66}^\infty \end{bmatrix} \quad (21)$$

$$[\hat{C}_\alpha] = \begin{bmatrix} b_{11}^v C_{11}^\alpha & b_{12}^v C_{12}^\alpha & b_{13}^v C_{13}^\alpha & 0 & 0 & 0 \\ & b_{22}^v C_{22}^\alpha & b_{23}^v C_{23}^\alpha & 0 & 0 & 0 \\ & & b_{33}^v C_{33}^\alpha & 0 & 0 & 0 \\ & & & b_{44}^v C_{44}^\alpha & 0 & 0 \\ \text{sym.} & & & & b_{55}^v C_{55}^\alpha & 0 \\ & & & & & b_{66}^v C_{66}^\alpha \end{bmatrix} \quad (22)$$

ここで、右辺の成分 C_{ij}^∞ および C_{ij}^α は、それぞれ Maxwell 要素の平衡部と非平衡部の基準温度における弾性テンソルの成分であり、 b_{ij}^∞ および b_{ij}^v はそれぞれ対応する弾性率成分-温度間を換算する縦軸シフト量で、互いに独立であるものと仮定する. また、非平衡部は Maxwell 要素の数だけ縦軸シフト量を定義することも可能であるが、そうした場合、後述する解析事例において、安定したフィッティング結果が得られない問題が発生した. 一方、すべて同じ縦軸シフト量を定義した方が、より安定的で且つ実用上十分なフィッティング精度を得られることが確認できたため、経験則として後者の定式化を採用した. なお、これらのシフト量は、樹脂の特性を反映して温度依存性を持つことが想定されるので、温度に対して多直線関数で近似する.

以上の各軸シフトを考慮した弾性率および粘性係数を用いると、粘弾性体の弾性率の時間経過に伴う変化は、以下のような緩和弾性テンソルの Prony 級数式で表すことができる.

$$C(t) = \hat{C}_\infty + \sum_{\alpha=1}^N \hat{C}_\alpha \exp(-t\bar{\tau}_\alpha^{-1}) \quad (23)$$

なお、ここでは一般性を保つ目的で粘性にも異方性を仮定したが、既往の研究（宮野，鈴木，1974，平山，三木，2001，岩本，宗宮，1995）によれば CFRP の粘弾性挙動は樹脂のそれを引き継ぐことが確認されているため、対応する一般化 Maxwell モデルにおける緩和特性は等方的と考えて良く、横軸シフト量も既知のはずである. このとき、式 (20) の Voigt 表記で表した 2 階の緩和時間テンソル $\bar{\tau}_\alpha$ はスカラー値 $\bar{\tau}_\alpha$ に縮退し、Prony 級数も平衡部と非平衡部の弾性係数テンソルにのみ異方性を考慮した次式のような表現になる.

$$C(t) = \hat{C}_\infty + \sum_{\alpha=1}^N \hat{C}_\alpha \exp\left(-\frac{t}{\bar{\tau}_\alpha}\right) \quad (24)$$

ただし、異方性緩和時間テンソルの定義式 $\bar{\tau}_\alpha = \bar{\eta}_\alpha : C_\alpha^{-1}$ において、粘性の異方性の物理的解釈が困難であるため、スカラー値への縮退は自明ではないことに注意されたい.

5・2 FRTP の異方性粘弾性パラメータの同定

樹脂の実試験では、第 2 節で述べたような 3 点曲げによる単一の振動モードだけで材料挙動の表現に必要な材料パラメータをすべて同定することができるが、異方性を有する FRTP では、単一モードの材料試験のみで式 (20)、(21) および式 (22) のすべてのテンソル成分を決定することはできない. そのため、マクロひずみテンソルの 6 つの独立な成分のうち一成分のみが値を持ち、それ以外の成分はゼロであるようなマクロ変形モードを 6 パターン用意し、それぞれを入力データとして数値材料試験を実施する. なお、数値材料試験では準定常に近い状態に達するまで解析を行う必要があり、計算コストが大きくなってしまったため、本研究では動的粘弾性試験ではなく静的な応力緩和試験を実施することにする.

異方性一般化 Maxwell モデルについての Prony 級数および各軸方向のシフト量の同定に際しても、4.2 節で紹介した樹脂と同様の最適化計算に基づく手法を適用する。異方性一般化 Maxwell モデルでは、緩和弾性テンソルおよび緩和時間テンソルの成分はそれぞれ独立しており、そのすべてを同定する必要があるが、数値材料試験における応力緩和解析では、緩和弾性テンソルの全成分の材料応答を容易に取得することができる。また、今回採用した Prony 級数型の粘弾性材料構成則では、異なるマクロ成分ひずみが線形結合された形で定式化されているため、緩和弾性テンソルの各成分を独立して個々に同定すればよい。ただし、実試験で行った動的粘弾性試験からの同定プロセスとは異なり、まず先にマスターカーブを Prony 級数でカーブフィットしてから各軸のシフト量を同定する。これは、異方性の縦軸シフト量は (21) 式や (22) 式で示したように、純弾性項と Maxwell 要素の弾性項の 2 つの成分を持つためである。言い換えると、FRTP では一定の温度環境下にて、全時間範囲において等しく縦軸方向にシフトする、すなわち、応力緩和特性の形状を保持しつつ単純に縦軸方向に平行移動するだけとは限らないため、応力緩和特性の幾何学的な形状から誤差関数を作りカーブフィットをすることが難しい。一方、数値材料試験では、広い時間領域の材料応答を容易に取得することができることから、様々な温度の特性を縦や横にシフトさせることなく、単一の温度データのみからマスターカーブを得ることができるためこの問題を解決することができる。

いま、Voigt 表記で 6 パターンのマクロ変形モード j ($j = 1 \sim 6$) を入力データとする数値材料試験を行い、 i ($i = 1 \sim 6$) 成分の緩和弾性率の各時刻 t_k での成分値 $\bar{C}_{ij}(t_k)$ が算出できたものとする。このとき、Prony 級数 (24) の各項における弾性率の成分 C_{ij}^∞ および C_{ij}^α は、任意に設定した基準温度における各成分の緩和弾性特性を用いて、以下の誤差関数を最小化することで同定することができる。

$$\phi^{\text{aniso}}(C_{ij}^\infty, C_{ij}^\alpha) = \sum_{k=1}^{m+1} \left(\bar{C}_{ij}(t_k) - C_{ij}(t_k, \tau^\alpha; C_{ij}^\infty, C_{ij}^\alpha) \right) = \sum_{k=1}^{m+1} \left(\bar{C}_{ij}(t_k) - \left(C_{ij}^\infty + \sum_{\alpha=1}^n C_{ij}^\alpha \exp\left(-\frac{t_k}{\tau^\alpha}\right) \right) \right) \quad (25)$$

ここで C_{ij} が材料構成則の応答である。なお、前述のように FRTP のマクロ緩和特性は樹脂のそれを引き継ぐため、緩和時間には樹脂と同じ値を与え、同定対象とはしないことにする。また、基準温度以外の緩和弾性率を決定する際に、横軸シフト量については樹脂のそれを転用できるのであれば同定対象にする必要はないが、次節ではそのことを確認するために、異方性を仮定して全テンソル成分を同定することにする。具体的には、第 3 節で説明した樹脂単体のシフト量を同定する方法に倣って、緩和弾性率の各成分について次の誤差関数を最小にするように横軸シフトを決定する。

$$\phi_a^{\text{aniso}}(a_{ij}) = \sum_{k=1}^{m+1} \left(\bar{C}_{ij,L}(t_k) - \bar{C}_{ij,H}(t_k; a_{ij}) \right) \quad (26)$$

ここで、 $\bar{C}_{ij}$ は Prony 級数式 (24) の τ_α に反映させることで横軸シフト適用した後の応答である。一方、縦軸シフト量については、式 (21), (22) の変換則を用いて Prony 級数式 (24) の応答をシフトさせた緩和曲線が数値材料試験の結果と一致するように決定する。具体的には、誤差関数

$$\phi_b^{\text{aniso}}(b_{ij}) = \sum_{k=1}^{m+1} \left(\bar{C}_{ij,L}(t_k, a_{ij}) - \hat{C}_{ij,H}(t_k; b_{ij}) \right) \quad (27)$$

を最小にする横軸シフト量 b_{ij} を成分ごとに独立に決定する。ここで、 $\hat{C}_{ij}$ は横軸シフト適用後の $\bar{C}_{ij}$ に対して縦軸シフトを適用した後の緩和弾性率である。

6. FRTP の数値材料試験

動的粘性試験の実測から同定された PC の材料物性値を用いて、均質化法に基づく数値材料試験によって FRTP のマクロな粘弾性挙動の特徴付けを行うとともに、前節で示した異方性粘弾性構成則のパラメータを同定する。解析には、汎用 FEM 解析ツールの ANSYS19.0 (ANSYS, 2019) およびその均質化解析アドインツールである Multiscale.Sim19.0 (CYBERNET, 2019; CMAS, 2019) を用いる。温度依存性を多直線で近似した横軸シフト挙動および縦軸のシフト挙動を表現するための材料構成則は、ツールの中には標準実装されていないため、材料構成則のユーザーサブルーチンである ‘usermat’ を用いて開発した。

6・1 解析条件

解析対象物は、カーボン繊維で一方向に強化された繊維強化熱可塑性樹脂（CFRTP：Carbon Fiber Reinforced Thermoplastics）とする。解析に使用した FE モデルの概観と幾何条件および炭素繊維の直交異方性弾性率を図 7 に示す。マトリクスを構成する要素には、前述した横軸および縦軸シフトを考慮した PC の粘弾性特性を定義する。炭素繊維とマトリックスであるポリカーボネート樹脂の界面は、一般的に密着性は良好ではないが、有機溶剤による炭素繊維表面のエポキシ系サイジング剤の除去やオゾン酸化処理による界面処理により、繊維破断まで良好な接着性が得られることが知られている（小熊他，2016）。そのため本研究では、炭素繊維とポリカーボネート樹脂との界面は完全に結合されていると仮定する。これらの条件の下、マクロひずみを強制変位として与えた静的な応力緩和試験を模擬した解析を行う。温度水準には表 1 に示した実試験と同じ条件を適用する。

Fig. 7 Finite element model for numerical material testing.

前述したように、連続繊維系の複合材料は極めて強い異方性挙動を示すため、複数の変形モードに対して数値材料試験を行う必要がある。解析対象とした一方向強化材では、 y_2 – y_3 平面内では擬似等方的な特性を有する対称性を持つため、単軸引張圧縮のモードには y_1 方向と y_3 方向の 2 種類、純せん断モードについても y_{12} 方向と y_{23} 方向の 2 種類の合計 4 種類の変形モードについて、対応するマクロひずみ成分を 1.0%、他の成分はゼロに保持するような応力緩和試験の数値解析を行う。負荷途中に緩和挙動が出ないように 10^{-15} [sec] の極めて短い時間で与えた後にこのマクロひずみ成分を 10^{15} [sec] の時刻まで保持する。マクロ緩和弾性テンソルの各成分は、こうして得られる各変形モードのマクロ応力成分を 100 倍した値である。

6・2 解析結果

一方向強化材のユニットセルモデルに対して応力緩和の数値材料試験を実施することで得られた緩和弾性率の結果を図 8 に示す。数値材料試験結果のプロットに加えて、マスターカーブを Prony 級数で近似した結果と、それに対して式 (20)～(22) による縦軸および横軸シフト量を与えてフィッティングした結果を実線で示している。ここで、Prony 級数近似に用いたマスターカーブには温度 150 [°C] の結果を採用した。樹脂単体の場合と同様にそれよりも高温状態の縦軸シフト量はゼロとおいた。なお、ここでは結果を見やすくするために、全温度データではなく、30～170 [°C] 間を 20 [°C] の間隔で抽出した温度水準の結果のみを表示している。

繊維が配向している方向の弾性率成分 C_{11} は、他の方向と比較して極端に大きな値を示しているものの、他の方向と同様に緩和する挙動は示している。さらに、各試験温度にて緩和弾性率が急激に減少しはじめる時刻および緩和が終了する時刻は、すべての緩和弾性率成分にて類似している様子も確認できる。このことは、FRTP の弾性挙動は異方性が顕著であるが、その緩和挙動はほぼ等方的に振る舞うことを示唆している。実際、基準温度 150 [°C] のマスターカーブと一致するよう、グラフを横軸にシフトさせてシフト量を同定してみると図 9 に示すようになる。図中には、第 4.1 節で求めた PC 樹脂単体のシフト量も記載しているが、すべての横軸シフト成分が樹脂の特性とほぼ一致していることが分かる。したがって、FRTP の緩和挙動に関する時間-温度換算則については、既

Fig. 8 Components of macroscopic relaxation moduli tensor of CFRTP model. Dot indicates the result of numerical material testing and the line indicates the result of curve fitting analysis. The responses of material model proposed in this study show good agreement with numerical test results.

往の実験的研究で報告されているように、樹脂の特性がそのまま FRTP に引き継がれることが確認できる。すなわち、FRTP の緩和時間および時間-温度換算特性は等方的である。この場合、同定すべき Prony 級数は弾性係数の

Fig. 9 Macroscopic horizontal shift property for each direction of CFRP model.

a) Shift factors for equilibrium part of elastic moduli b) Shift factors for Non-equilibrium parts of elastic moduli

Fig. 10 Macroscopic vertical shift property for each direction of CFRP model. All the components of vertical shift factors b_{ij}^{∞} are much smaller than that of the pure resin. Anisotropic behavior is observed for the vertical shift factors of the non-equilibrium parts b_{ij}^v and its tendency is not in agreement with the relaxation modulus.

みとなるため、寺田ら（寺田他，2009）によって提案された同定手法が簡便で実用上も都合が良い。樹脂の弾性率がFRTPのマクロ弾性率に与える感度に変形モードによって異なるとしても、樹脂の弾性率低下に追従してマクロ弾性率も低下する傾向を示すことは自明であるため、このような傾向は、樹脂の種類や微視構造の形状に依存することなく決定されることが考えられる。ただし、複合材料を構成する材料の中に粘弾性体が複数存在している場合には、例外的に緩和時間テンソルが異方性を示すことも考えられ、その成分と対応するシフト量も同定対象となることが考えられるが、この点については今回の検討対象とはしない。

次に、縦軸シフトの同定結果を図10に示す。FRTPのマクロ粘弾性構成則として採用した異方性一般化Maxwellモデルについて、その平衡部の弾性係数テンソルに関する縦軸シフト量は、すべての成分がほぼゼロである。これに対して、非平衡部の弾性係数テンソルに関する縦軸シフト量は、樹脂と類似の傾向があるものの、一致もせず異方的な挙動を示すことが確認される。これは、樹脂の弾性率がFRTPのマクロ弾性率に与える感度に異方性が存在するためである。これらの結果から、縦軸シフトの特徴的な挙動が2点ほど示唆される。まず、平衡部と非平衡部のシフト量が異なることから、縦軸方向には全時間範囲にて等しくシフトしてないことが分かる。その傾向を定量的に示すために、試験開始時（ 1.0×10^{-15} sec）と終了時（ 1.0×10^{15} sec）の挙動に着目して、雰囲気温度

Fig. 11 Ratios of relaxation moduli of 30 [°C] to 150 [°C].

Fig. 12 Percentages of elastic moduli in equilibrium part with respect to relaxation moduli. The result of pure resin shows the C_{11} component as a representative. The fact that C_{11}^{∞}/C_{ij} is close to 100 % implies that the elastic property in the equilibrium part mostly contributes.

30[°C] と 150[°C] のときの緩和弾性率の比率を計算した結果を図 11 に示す。この図から、樹脂が完全に緩和した時刻（終了時）では、すべての緩和弾性率の成分についてこの比率がほぼ 1.0 であり、温度の違いによる差はほとんどないことが分かる。これに対して、緩和前の時刻（試験開始時）の緩和弾性率ではすべての成分で温度の違いによる差が大きい。このことから、緩和弾性率は、温度の変化に伴って緩和曲線を変化させながら縦軸方向にシフトしていると言える。これは、横軸シフト挙動とは大きく異なる特徴である。特に、 C_{22} や C_{55} のように、マクロ緩和弾性率に対する樹脂の緩和弾性率の影響が大きい成分ではこの傾向がより顕著に表われていることが分かる。一方、非対角成分も樹脂物性がマクロ弾性率に影響を与えており、特に C_{12} は全成分の中で最も影響が大きいことが示唆される。通常、樹脂の物性が支配的な変形モードでは、マクロ弾性率が小さな値を示す傾向があるが、図 8 では C_{12} は他の成分と比較して最小値を示していない。これは、マクロポアソン比もマクロ弾性率に少なからず影響を与えるためであると考えられる。緩和弾性率の非対角項の物理的な解釈は困難であるが、このような視点で結果を評価することによって、間接的にマクロ材料挙動の特徴づけが可能になるはずである。

非平衡部の縦軸のシフト量 b_{ij}^y は、温度に対するマクロ緩和弾性率の変化量とは必ずしも大小関係が一致しないことも注目すべきである。図 11 を見ると、緩和前の緩和弾性率の温度に対する変化率が最も大きいのは C_{12} で約 1.1 倍であるのに対して、 C_{11} ではわずか 1.005 倍である。ところが、図 10 に示した非平衡部の縦軸シフト量 b_{ij}^y を比較すると、11 成分の方が大きな値を示している。このような結果となる原因は非平衡部の弾性率の値にある

ものと考えられる。このことを確認するために、マクロ緩和弾性率のなかで平衡部の弾性率が占める割合を図 12 に示す。この図から、11 成分では緩和弾性率のうちの約 97%もの割合が平衡部で占められており、非平衡部の弾性率はわずかな値であることが分かる。非平衡部の弾性率が小さい場合には、たとえ縦軸シフト量が小さくても、大きな b_{ij}^v を乗じなければ目的のシフト量を達成することができない点に留意する必要がある。なお、今回は繊維の体積含有率を 60%に限定して解析を行ったが、体積含有率が変化した場合には、樹脂の緩和特性が支配的である b_{12} 等では、その影響が図 11 等に顕著に表れると予想される。

以上のように、縦軸シフトは様々な要因でシフト量が決定されるため、単純に任意の時刻だけに着目して各温度の弾性率比から同定することはできず、適切な誤差関数を設定した最適化手法によって同定する必要があると結論付けられる。

7. 結 言

本研究では、代表的な熱可塑性樹脂であるポリカーボネート樹脂を長繊維で一方向に強化した FRTP のマクロ粘弾性材料挙動を表現することを意図して、異方性粘弾性構成則における緩和および弾性特性の温度への依存性を表現可能な換算則を提案し、ユニットセルに対する様々な温度環境下における応力緩和試験を模擬した数値材料試験の結果から、提案した緩和特性と弾性特性のシフト量を決定することで温度依存性について調査した。その結果として次のような事実が明らかとなった。

- 1) 実試験で計測されたポリカーボネート樹脂単体の計測動的粘弾性特性は、エポキシ樹脂について得られている従来の知見と同様に、ガラス転位点よりも高い温度では緩和挙動に温度依存性を示す一方で、低い温度では弾性率に顕著な温度依存性を示す様子が確認された。弾性率の温度依存性については製品設計上無視されることも多いが、今回の計測結果では比較的大きい差異が認められた。樹脂製品の解析を高精度に行う上では、縦軸シフトも考慮することが有効であると言える。そこで、等方性粘弾性特性の縦軸シフトを表現するための新しい構成則を提案した。実試験結果が良好にカーブフィットできたことから、本構成則の妥当性を確認した。
- 2) 粘弾性体を仮定したポリカーボネート樹脂と、弾性体を仮定した繊維から構成される複合材料モデルに対して、マクロ応力緩和挙動を調査するための数値材料試験を行った結果、みかけの弾性率に強い異方性を示すことはあっても、緩和時間の温度依存性に関してはほぼ等方性の挙動を示し、かつ複合材料を構成する樹脂の特性をそのまま引き継ぐことを確認した。これは既往の複数の研究例において、限定された変形モードから観測された結果とも一致する。
- 3) 一方で、弾性率の温度依存性については強い異方性を示した。さらに、観測時間にも依存しており、樹脂の緩和後よりも緩和前の初期状態の方が温度依存性が顕著であった。

以上の議論に基づいて、緩和弾性率の温度依存性を考慮するための材料構成則として、異方性の一般化 Maxwell モデルにおける平衡部と非平衡部で異なる縦軸方向のシフトファクターを持った定式化を提案した。実際に最適化手法に基づくカーブフィットも実施することで、数値材料試験で得られた FRTP のマクロ応力緩和特性が良好にフィッティングできることを確認した。今回、FRTP については実試験を実施することはできなかったが、材料界面の接着性が良好であれば、均質化法によって妥当な物性値が取得できることが過去の研究例によって示されており（寺田他, 2009）、本解析アプローチは実用上有益な材料挙動が予測できていると期待される。

文 献

- ANSYS Inc., Web Site, available from <<https://www.ansys.com/>>, (参照日 2019 年 2 月 19 日).
- Benssousan, A., Lions, J. L. and Papanicoulau, G., Asymptotic analysis for periodic structures, North-Holland, Amsterdam (1978).
- CYBERNET SYSTEMS Co., Ltd., マルチスケール解析について, available from <<http://www.cybernet.co.jp/ansys/product/lineup/multiscale/>>, (参照日 2019 年 2 月 19 日).
- Eberhart, R.C. and Kennedy, J., A new optimizer using particle swarm theory, Proceedings of the Sixth International Symposium on Micromachine and Human Science, Nagoya, Japan (1995), pp. 39-43.

- 藤川 正毅, 三上 貴央, 隆 雅久, 三原 康子, 小林 卓哉, 線形粘弾性特性係数関数の実用的近似法, 日本機械学会論文集 A 編, Vol. 72, No. 723 (2006), pp.1703–1710.
- 平山紀夫, 三木恭輔, ビニルエステル樹脂をマトリックスとするガラス短繊維強化プラスチックの動的粘弾性および曲げクリープ挙動, 日本複合材料学会誌, Vol. 27, No. 3 (2001), pp.146–154.
- 岩本典之, 宗宮詮, 熱可塑性ポリイミド系 CFRTP のクリープコンプライアンスに及ぼす繊維含有率の影響, 日本機械学会論文集 A 編, Vol. 61, No. 589 (1995), pp.1951–1956.
- 金光学, 宮野靖, 国尾武, CFRP 繊維方向の曲げ強度の時間-温度依存性, 材料, Vol. 33, No. 370 (1984), pp.869–875.
- Kennedy, J. and Eberhart, R.C., Particle swarm optimization, Proceedings of IEEE the International Conference on Neural Networks, Piscataway, NJ. (1995), pp. 1942–1948.
- Lions, J. L., Some methods in mathematical analysis of systems and their control, Kexue Chubanshe Science Press and Gordon & Breach Science Pub, Beijing (1981).
- 宮野靖, 後藤康一, 笠森正人, 中田政之, エポキシ樹脂のクリープ変形に及ぼすフィジカルエージングの評価, 材料, Vol. 44, No. 506 (1995), pp.1367–1371.
- 宮野靖, 金光学, 国尾武, CFRP 繊維直角方向の力学的挙動の時間-温度依存性, 材料, Vol. 28, No. 314 (1979), pp.1098–1103.
- 宮野靖, 笠森正人, 平桜康晴, エポキシ樹脂およびそれをマトリックスとする CFRP 繊維直角方向の曲げクリープ挙動, 日本複合材料学会誌, Vol. 19, No. 1 (1993), pp.20–25.
- 宮野靖, 鈴木克人, 曲げを荷重を受ける GRP 板の時間-温度依存性, 材料, Vol. 23, No. 255 (1974), pp.1057–1062.
- Mura, T., Micromechanics of defects in solids, Martinus Nijho (1982).
- 村上謙吉, レオロジー基礎論, 産業図書 (1991), pp.142–143.
- 中田政之, 宮野靖, 鈴木恵, 服部陽一, C/A ハイブリッド方向 FRP 積層板の疲労挙動の時間および温度依存性, 材料, Vol. 40, No. 449 (1991), pp.199–204.
- 小熊広之, 熊谷知哉, 坂本大輔, 関根正裕, 平山紀夫, 邊吾一, 連続炭素繊維強化ポリカーボネートのオゾン酸化処理による強度向上, 日本複合材料学会誌, Vol. 42, No. 5 (2016), pp.178–184.
- 坂井建宣, 宗宮詮, ガラス繊維強化ポリカーボネートのクリープ挙動に及ぼすフィジカルエージングの影響, 材料, Vol. 56, No. 5 (2007), pp.399–405.
- Sanchez-Palencia, E., Non-homogeneous media and vibration theory, Springer-Verlag, Berlin (1980).
- 曾我部雄次, 都築正之, 山本順一, 衝撃を受ける PMMA 材の粘弾性特性の三次元評価, 日本機械学会論文集 A 編, Vol. 53, No. 486 (1987), pp.348–353.
- Sullivan, J. L, Creep and physical aging of composites, Composites Science and Technology, Vol.39 (1990), pp.207–232.
- Suquet, P. M., in: Sanchez-Palencia, E. and Zaoui, A.(Eds.), Elements of homogenization theory for inelastic solid mechanics, Homogenization Techniques for Composite Media, Springer-Verlag, Berlin (1987) pp. 193–278.
- 鈴木克人, 宮野靖, 天城滋夫, 積層 GRP 板の圧縮特性, 材料, Vol. 24, No. 259 (1974), pp.308–313.
- 鈴木克人, 宮野靖, 積層 GRP 板の曲げ強度の時間および温度依存性, 材料, Vol. 25, No. 270 (1975), pp.302–308.
- 寺田賢二郎, 濱名康彰, 平山紀夫, 繊維強化プラスチックの粘弾性マルチスケール解析手法, 日本機械学会論文集 A 編, Vol. 60, No. 760 (2009), pp.1674–1683.
- Terada, K., Hirayama, N., Yamamoto, K., Kato, J., Kyoya, T., Matsubara, S., Arakawa, Y., Ueno, Y. and Miyanaga, N., Applicability of micro-macro decoupling scheme to two-scale analysis of fiber-reinforced plastics, Advanced Composite Materials, Vol.23, (2014), pp.421–450.
- Terada, K., Kato, J., Hirayama, N., Inugai, T. and Yamamoto, K., A method of two-scale analysis with micro-macro decoupling scheme: application to hyperelastic composite materials, Computational Mechanics, Vol.52, (2013), pp.1199–1219.
- 寺田賢二郎, 菊池昇, 均質化法入門, 丸善 (2003).
- Xin, L., Tian, T., Wenbin, Y. and Byron, P. R., Multiscale modeling of viscoelastic behaviors of textile composites, International Journal of Engineering Science, Vol. 130 (2018), pp.175–186.
- 山本晃司, 平山紀夫, 寺田賢二郎, 数値材料試験データに基づく強化プラスチックの異方性 Hill 定数の同定, 日本機械学会論文集, Vol. 82, No. 840 (2016), DOI:10.1299/transjsme.16-00056.

References

- ANSYS Inc., Web Site, available from <<https://www.ansys.com/>>, (accessed on 19 February, 2019).
- Benssousan, A., Lions, J. L. and Papanicoulau, G., Asymptotic analysis for periodic structures, North-Holland, Amsterdam (1978).
- CYBERNET SYSTEMS Co., Ltd., About multiscale analysis, available from <<http://www.cybernet.co.jp/ansys/product/lineup/multiscale/en/>>, (accessed on 19 February, 2019).
- Eberhart, R. C. and Kennedy, J., A new optimizer using particle swarm theory, Proceedings of the Sixth International Symposium on Micromachine and Human Science, Nagoya, Japan (1995), pp. 39-43.
- Fujikawa, M., Mikami, T., Takashi, M., Mihara, Y. and Kobayashi, T., A practical technique for approximation of characteristics function of viscoelastic material, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A, Vol. 72, No. 723 (2006), pp.1703–1710 (in Japanese).
- Hirayama, N. and Miki, K., Dynamic viscoelastic and flexural creep behavior of GFRP consisting of short fiberglass and vinyl ester resin, Journal of the Japan Society for Composite Materials, Vol. 27, No. 3 (2001), pp.146–154 (in Japanese).
- Iwamoto, N. and Somiya, S., Effects of fiber volume fraction on creep compliance of carbon fiber reinforced thermoplastic polyimide, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A, Vol. 61, No. 589 (1995), pp.1951–1956 (in Japanese).
- Kanemitsu, M., Miyano, Y. and Kunio, T., Time and temperature dependences of longitudinal flexural strength in CFRP - three point bending test -, Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 33, No. 370 (1984), pp.869–875 (in Japanese).
- Kennedy, J. and Eberhart, R. C., Particle swarm optimization, Proceedings of IEEE the International Conference on Neural Networks, Piscataway, NJ. (1995), pp. 1942-1948.
- Lions, J. L., Some methods in mathematical analysis of systems and their control, Kexue Chubanshe Science Press and Gordon & Breach Science Pub, Beijing (1981).
- Miyano, Y., Gotoh, K., Kasamori, M. and Nakada, M., Evaluation of physical aging on creep deformation of epoxy resin, Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 44, No. 506 (1995), pp.1367–1371 (in Japanese).
- Miyano, Y., Kanemitsu, M. and Kunio, T., Time-and temperature dependence of mechanical behaviors in transversal direction of fibers in CFRP, Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 28, No. 314 (1979), pp.1098–1103 (in Japanese).
- Miyano, Y., Kasamori, M. and Hirazakura, Y., Flexural creep behavior of epoxy resin and transversal direction of fibers in CFRP, Journal of the Japan Society for Composite Materials, Vol. 19, No. 1 (1993), pp.20–25 (in Japanese).
- Miyano, Y. and Suzuki, K., Time-temperature dependence of GRP plate under flexural loading, Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 23, No. 255 (1974), pp.1057–1062 (in Japanese).
- Mura, T., Micromechanics of defects in solids, Martinus Nijho (1982).
- Murakami, K., Rheology kisoron, Sangyo Tosho (1991), pp.142–143 (in Japanese).
- Nakada, M., Miyano, Y., Suzuki, M. and Hattori, Y., Time and temperature dependences of fatigue behavior of C/A hybrid unidirectional FRP laminates, Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 40, No. 449 (1991), pp.199–204 (in Japanese).
- Oguma, H., Kumagai, T., Sakamoto, D., Sekine, M., Hirayama, N. and Ben, G., Improvement in mechanical properties of continuous carbon fiber reinforced polycarbonates by ozone oxidation treatment, Journal of the Japan Society for Composite Materials, Vol. 42, No. 5 (2016), pp.178-184 (in Japanese).
- Sakai, T. and Somiya, S., Effect of physical aging on creep behavior of glass fiber reinforced polycarbonate, Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 56, No. 5 (2007), pp.399-405 (in Japanese).
- Sanchez-Palencia, E., Non-homogeneous media and vibration theory, Springer-Verlag, Berlin (1980).
- Sogabe, Y., Tsuzuki, M. and Yamamoto, J., Determination of the viscoelastic law of PMMA in three dimensions, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A, Vol. 53, No. 486 (1987), pp.348–353 (in Japanese).

Yamamoto, Ishibashi, Somemiya, Hirayama and Terada, Transactions of the JSME (in Japanese), Vol.85, No.874 (2019)

Japanese).

- Sullivan, J. L, Creep and physical aging of composites, Composites Science and Technology, Vol.39 (1990), pp.207-232.
- Suquet, P. M., in: Sanchez-Palencia, E. and Zaoui, A.(Eds.), Elements of homogenization theory for inelastic solid mechanics, Homogenization Techniques for Composite Media, Springer-Verlag, Berlin (1987) pp. 193-278.
- Suzuki, K., Miyano, Y. and Amagi, S., Compressive properties of GRP laminates, Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 24, No. 259 (1974), pp.308–313 (in Japanese).
- Suzuki, K. and Miyano, Y., Time-temperature dependence of flexural strength of GRP laminates, Journal of the Society of Materials Science, Japan, Vol. 25, No. 270 (1975), pp.302–308 (in Japanese).
- Terada, K., Hamana, Y. and Hirayama, N., A method of viscoelastic two-scale analyses for FRP, Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series A, Vol. 75, No. 760 (2009), pp.1674–1683 (in Japanese).
- Terada, K., Hirayama, N., Yamamoto, K., Kato, J., Kyoya, T., Matsubara, S., Arakawa, Y., Ueno, Y. and Miyanaga, N., Applicability of micro-macro decoupling scheme to two-scale analysis of fiber-reinforced plastics, Advanced Composite Materials, Vol.23, (2014), pp.421-450.
- Terada, K., Kato, J., Hirayama, N., Inugai, T. and Yamamoto, K., A method of two-scale analysis with micro-macro decoupling scheme: application to hyperelastic composite materials, Computational Mechanics, Vol.52, (2013), pp.1199-1219.
- Terada, K. and Kikuchi, N., Kinsitsukahou nyuumon, Maruzen (2003) (in Japanese).
- Xin, L., Tian, T., Wenbin, Y. and Byron, P. R., Multiscale modeling of viscoelastic behaviors of textile composites, International Journal of Engineering Science, Vol. 130 (2018), pp.175-186.
- Yamamoto, K., Hirayama, N. and Terada, K., Identification of Hill ' s anisotropic parameters for reinforced plastics based on numerical material test results, Transactions of the JSME (in Japanese), Vol. 82, No. 840 (2016), DOI:10.1299/transjsme.16-00056.