

短繊維強化プラスチック複合材料の破壊の
微視的機構に関する研究

宋 東 烈

①

短繊維強化プラスチック複合材料の破壊の
微視的機構に関する研究

東京大学大学院工学系研究科航空宇宙工学専攻博士論文

指導教官 塩谷 義 教授

17085 宋 東烈

目次

目次	目次1
図目次	目次3
表目次	目次6
本論文中で定義した記号	目次7
第1章 序論	1
1.1 緒言	1
1.2 熱可塑性樹脂 (Thermoplastic resin)	2
1.3 従来の研究動向	2
1.3.1 繊維/マトリックス樹脂界面の微視力学	2
図表	4
1.3.2 短繊維強化複合材料の力学的特性と破壊メカニズム	5
1.3.3 短繊維強化複合材料の微視的応力場解析	8
1.4 本研究の目的と構成	9
図表	11
第2章 単一繊維複合材料の繊維/マトリックス樹脂界面の微視力学的検討	12
2.1 緒言	12
2.2 実験方法	12
2.2.1 材料及び試験片	12
2.2.2 埋込み繊維破断試験 (Single fiber fragmentation tests)	13
2.2.2.1 理論	13
2.2.2.2 臨界繊維長さ L_c の測定及び破壊過程の観察	14
2.2.3 引抜き試験 (Single fiber pull-out tests)	14
2.2.3.1 理論	14
2.2.3.2 繊維の引抜きプロセスの観察	16
2.3 実験結果及び検討	16
2.3.1 埋込み繊維破断試験	16
2.3.1.1 繊維表面処理と界面せん断応力伝達性	16
2.3.1.2 光学顕微鏡による微視的変形・破壊プロセス	16
2.3.2 単繊維引抜き試験	17
2.3.2.1 界面せん断強度	17
2.3.2.2 界面特性	17

2.4 破断繊維端近傍の微視破壊様相の定量的検討	18
2.4.1 有限要素解析モデル	18
2.4.2 破断繊維端近傍の応力分布	19
2.5 結 言	20
付録 2.1	21
付録 2.2	23
図表	25
第3章 ランダム配向短繊維強化複合材料の 巨視的力学特性と破壊挙動	45
3.1 緒言	45
3.2 実験方法	45
3.2.1 材料及び試験片	45
3.2.2 引張試験	45
3.2.3 衝撃試験	46
3.2.4 静的破壊靱性試験	46
3.2.5 SAMその場観察	47
3.2.6 SEMその場観察	47
3.2.7 破面観察	47
3.3 実験結果および検討	48
3.3.1 引張強度特性	48
3.3.2 衝撃破壊特性	48
3.3.3 静的破壊靱性	49
3.3.4 微視的破面解析	49
3.3.5 SAMによる微視的破壊特性評価	50
3.3.6 SEMその場観察による微視的変形・破壊プロセスの検討	52
3.3.7 巨視的力学特性及び微視的変形・破壊プロセスのモデリング	53
3.4 結言	55
図表	56
第4章 短繊維強化複合材料の応力場解析 と破壊メカニズム	90
4.1 緒言	90
4.2 解析方法	90
4.2.1 解析モデル	90

4.2.2 基礎方程式	92
4.2.2.1 遠方での厳密解 (σ_{ij}^0 の決定)	92
4.2.2.2 繊維端近傍の近似解 ($\bar{\sigma}_{ij}^0$ の決定)	96
4.3 解析結果および検討	99
4.4 結言	101
図表	102

第5章 結 論	111
---------	-----

参考文献	114
------	-----

謝 辞	122
-----	-----

図目次

第1章

Figure 1-1. Summary of failure modes in a single filament.	4
Figure 1-2. Outline of the present study.	11

第2章

Figure A2-1. Schematic representation of pull-out test.	25
Figure A2-2. Model for thermal stress analysis.	25
Figure 2-1. Configuration of fragmentation test specimen.	27
Figure 2-2. Configuration of pull-out test specimen .	27
Figure 2-3. Schematic representation of the single fiber fragmentation process.	28
Figure 2-4. Experimental apparatus for single fiber tension tests.	29
Figure 2-5. Stress distributions along a short embedded fiber.	30
Figure 2-6. Optically observed pull-out sequence.	31
Figure 2-7. Distribution of fragment length at 25°C.	32
Figure 2-8(a). Relation between temperature and critical aspect ratio.	34
Figure 2-8(b). Relation between temperature and interfacial shear transmission.	34
Figure 2-9. Optically observed failure sequence of single fiber composites at 25°C.	35

Figure 2-10. Optically observed failure sequence of single fiber composites at 80°C.	36
Figure 2-11. τ_{cs} vs. L for single fiber pull-out tests.	37
Figure 2-12. Variation in α with respect to G_f for different thickness of b_f .	39
Figure 2-13. Variation in b with respect to G_f .	40
Figure 2-14. Distribution of the displacement field near a fiber break ends.	41
Figure 2-15. Axisymmetric model for elasto-plastic finite element analysis.	42
Figure 2-16. Deformation of the each element near crack tip.	43
Figure 2-17. Stress distributions along the fiber/matrix interface obtained from finite element analysis.	44

第3章

Figure 3-1. Molding process of glass short- fiber reinforced thermoplastic composites.	56
Figure 3-2. Tensile specimen configuration and dimensions .	57
Figure 3-3. Instrumented drop-weight testing machine.	58
Figure 3-4. Compact tension(CT) specimen configuration .	59
Figure 3-5. Schematic drawing of scanning acoustic microscope observation.	60
Figure 3-6. Loading apparatus for in-situ SAM observations in static in-plane fracture toughness tests.	61
Figure 3-7. SEM specimen configuration and dimensions.	62
Figure 3-8. Loading apparatus for SEM observation.	63
Figure 3-9. Typical stress-strain curves at room temperature.	64
Figure 3-10. Normalized mechanical properties for short-fiber composites and nylon 6 resin matrix.	65
Figure 3-11. Normalized mechanical properties for short-fiber composites and nylon 6 resin matrix.	66
Figure 3-12. Specimen photos after drop-weight impact tests (Material D).	67
Figure 3-13. Dynamic load (absorbed energy) - time diagrams obtained from instrumented drop-weight impact tests.	69
Figure 3-14. Load P-COD δ diagrams and cumulative AE energy in static in-plane fracture toughness tests.	70

Figure 3-15. Specimen photos after crack propagation.	71
Figure 3-16. Fracture appearance near crack tip.	72
Figure 3-17. Comparison of J- δ diagrams.	73
Figure 3-18. SEM micrographs of fracture surfaces of the composites at room temperature.	75
Figure 3-19. SEM micrographs of fracture surfaces of the composites at high temperature (80 °C).	76
Figure 3-20. In-situ SAM surface images of damage progress near crack tip for material C.	77
Figure 3-21. In-situ SAM surface images along crack paths for material C.	78
Figure 3-22. In-situ SAM surface images of damage progress near crack tip for material B.	79
Figure 3-23. The surface of the specimen before loading, which was buffed and polished with alumina power and coated with gold film.	80
Figure 3-24. Microcracks occurring in the matrix around the fibre tips, which was obtained under about 75% of failure load.	81
Figure 3-25. Microvoid occurring at the interface separating the fibre tip from the matrix and interfacial microfailure along the fibre sides, which were obtained under about 85% of failure load.	82
Figure 3-26. Band of microcracks in the matrix region, which was obtained under about 90% of failure load. The band indicates the occurrence of plastic deformation of matrix.	83
Figure 3-27. Crack opening occurring in the large plastic deformation band of the matrix, which was obtained under about 95% of failure load.	84
Figure 3-28. Fast crack propagation of the matrix with fibre pull-out, which was obtained under load just before failure.	85
Figure 3-29. In-situ SEM surfaces images of fracture progress near a notch root for material A.	86
Figure 3-30. In-situ SEM surfaces images of fracture progress near a notch root for material D.	87
Figure 3-31. Relationship between macroscopic mechanical properties and interfacial shear strength in short glass fiber/Nylon 6 thermoplastics injection molded composites.	88
Figure 3-32. Schematic modelling of the micro-fracture mechanism.	89

第4章

Figure 4-1.	Model of short-fiber composites subjected to uniform tensile and thermal loading.	91
Figure 4-2.	Schematic representation of approximate stress analysis of short fiber composites using superposition method.	102
Figure 4-3.	Schematic representation of the way to approximate to the traction at the fiber end of short-fiber composites.	103
Figure 4-4.	Fiber axial stress distributions along fiber length.	105
Figure 4-5.	Interfacial shear stress distributions along fiber length.	106
Figure 4-6.	Interfacial radial stress distributions along fiber length.	107
Figure 4-7.	Matrix axial stress distributions in radial direction along fiber length at $\Delta T = -80^\circ\text{C}$: ($z/L_c=0$), ($z/L_c=0.5$), ($z/L_c=1.0$).	108
Figure 4-8.	Fiber/interphase interfacial shear stress distributions along fiber length: ($E_i/E_m = 0.1$, $E_i/E_m = 1$, $E_i/E_m = 2$).	109
Figure 4-9.	Modelling of micro-failure progress of short-fiber reinforced thermoplastic composites with different fiber surface treatments.	110

表目次

第2章

Table 2-1.	Tested materials.	26
Table 2-2.	Results of single fiber fragmentation test at 25°C .	33
Table 2-3.	Results of single fiber pull-out tests.	38

第3章

Table 3-1.	Results of drop-weight impact tests.	68
Table 3-2.	Comparison of J_c values obtained from in-plane fracture toughness tests.	74

第4章

Table 4-1.	Material properties for stress analysis.	104
------------	--	-----

本論文中で定義した記号

τ_i	: 繊維/マトリックス樹脂界面でのせん断応力伝達係数
L	: 埋め込み繊維長さ
L_c	: 臨界繊維長さ
$\sigma_f(L_c)$: 臨界長さ L_c における繊維引張強度
d_f	: 繊維直径
R_f	: 繊維半径
L_{av}	: 平均繊維長さ
τ_{av}	: 平均界面せん断応力
P	: 繊維引き抜き力 (= 繊維とマトリックス樹脂のはく離が生じた瞬間の力)
τ_{max}	: 繊維/樹脂界面のせん断強度 (= 最大せん断応力)
α	: 界面の弾性応答を表す定数
G_i	: 界面せん断弾性係数
b_i	: 界面の厚さ
E_f	: 繊維の弾性係数
E_m	: マトリックス樹脂の弾性係数
G_m	: マトリックス樹脂のせん断弾性係数
ν_m	: マトリックス樹脂のポアソン比
ΔT	: 室温とガラス軟化点温度の差
E_{50}	: 50%破壊衝撃エネルギー
J	: 衝撃エネルギー
a_0	: 初期き裂長さ
δ	: 荷重線変位
δ_c	: き裂が安定成長する限界変位
J_c	: 累積AEエネルギー急増点 δ_c に対応する限界 J 値
P_1	: 第1ピーク時の荷重値
E_1	: 第1ピーク時の荷重値に対応する吸収エネルギー
P_2, P_3	: 第2, 第3のピーク荷重
E_2, E_3	: P_2, P_3 値に対応する吸収エネルギー
R	: 反射率
Z_1, Z_2	: 音響インピーダンス
α_{nL} と α_{nT}	: 材料の長手方向と横方向の熱膨張係数
C_{ij}^n	: 材料の弾性係数 ($n=1$: 繊維、 $n=2$: 界面層、 $n=3$: マトリックス)
β_1^n	: $(C_{11}^n \alpha_{nL}^n + C_{12}^n \alpha_{nT}^n)$

- β_i^n : $(C_{12}^n \alpha_{nL}^n + (C_{22}^n + C_{23}^n) \alpha_{nT}^n)$
 R_i : 繊維中心から界面層までの半径
 V_f : 繊維体積含有率
 $\Phi_{ij}(r, z)$: 材料の応力関数
 $\bar{\sigma}_{ij}^n$: 繊維端近傍の近似応力場
 λ : shear lag 理論を用いて、破断繊維端近傍の応力分布を近似的に評価するとき用いられた係数
 σ_{zz}^f : 繊維軸方向応力
 σ_{rz} : せん断応力
 σ_{rr} : 繊維に沿うマトリックス内の半径方向の応力
 η : 繊維とマトリックスの弾性係数の比 (E_m/E_f)
 ξ : 熱応力計算時の繊維半径と繊維中心から界面層までの半径の比 (a^2/b^2)
 a^2 : 熱応力計算時の繊維半径
 b^2 : 熱応力計算時の繊維中心から界面層までの半径
 $A_1^n, A_2^n, A_3^n, H, I, J, K, L, P, Q, S, M$
: 第4章での応力場計算するとき境界条件から求められる係数

第1章 序 論

1.1 緒言

複合材料は、異なる素材の特性を合理的に補い、単体の素材にはなかった優れた性能を実現した材料で、現在まで、航空機、ロケット、人工衛星、スペースシャトルなどの航空宇宙分野をはじめ、高比強度と高比剛性の観点からスポーツ用品、工作ロボットや医療装置などに、また、複合材料用繊維と樹脂の高性能化と低価格に伴い、自動車、船舶、機械などの広い産業まで、その使用が着実に増加してきている^(1,2)。

このため、複合材料の力学的特性をはじめ、強度や破壊などの問題が重要な研究課題となってきた。複合材料では、材料特性が異なる素材が接合されているため、その破壊は均一材料の場合に比べきわめて複雑となる^(3,4)。すなわち、構成素材の材料定数の組み合わせ、構成の幾何学的なパラメータ、接合界面での接着強度など、あるいは構成素材本来の内部欠陥や製造工程などにより複合材料内部のき裂発生やその進展様式などが多様化し、それによって複合材料全体の巨視的破壊強度も変化する。したがって、このような複合材料の工学的適用においての効率的な使用には、これらの力学的特性および巨視的破壊様相を支配する微視力学的破壊プロセスおよび破壊メカニズム（マイクロフラクチャメカニクス）に関する的確な知識が極めて重要である。これまでは複合材料の微視力学に関する理論解析は数多くなされたが、現実の材料での理論の立証が実験的にできていなかったといえよう。このため、ミクロな変形様相や破壊クライテリオンなどがよく理解できていない。したがって、複合材料の実験微視力学の開発研究がとくに必要であると考えられる。また、複合材料の微視力学の実験的解明により、はじめて構造設計からの材料開発へのフィードバックが可能になると考える。

このような観点から、本研究では積層複合材料に比べ、強度はとくに高くなく、短繊維の不均一分布によって強度および靱性の向上を両立できる短繊維強化複合材料を対象とする。具体的には、繊維、マトリックス樹脂およびその界面のミクロな変形・破壊特性が中心となる微視的破壊プロセスおよび破壊メカニズムを明らかにするための実験的および理論的検討を行う。

1.2 熱可塑性樹脂 (Thermoplastic resin)

熱硬化性樹脂においては、液状樹脂は化学的な架橋により硬く脆い固体物質ともなりうる。とくに、架橋は3次元ネットワークを強固に結びつけているため、その力学的特性はネットワークを構成する分子にかなり依存する。これに対して、熱可塑性樹脂は架橋されていないが、単位分子の高い分子量で構成される特性にほぼ近い強度と剛性が得られる。また、熱可塑性樹脂は成形前にすでに化学反応が終了しており、成形加工は、加熱による軟化、溶融と冷却による固化を利用して行われ、溶融射出や再成形ができるという大きな特長を有する。熱可塑性樹脂のマトリックスは、通常、短繊維強化材を用い、射出成形法によって成形される分野に応用されている。マトリックスとして用いられる最も一般的なものは、ポリプロピレン、ナイロン、ポリカーボネートとなっている。ポリプロピレン、ナイロンはほぼ25-50% 結晶化した半結晶体で、ポリカーボネートはアモルファスである。

熱可塑性樹脂は降伏し、最終破壊前に大きな変形を生じ、その破断伸びは熱硬化性エポキシ樹脂の数倍から十数倍を越えるのが普通である。したがって、先進複合材料用のマトリックスとして用いるとき、強度や剛性の低下なしにその複合材料の靱性を大きく改善することができる。また、熱可塑性樹脂は熱硬化性樹脂に比べると耐熱性の面で劣るとされてきたが、最近、ポリエーテルエーテルケトン(PEEK)に代表される耐熱性樹脂の開発により耐熱性についても大きく改良されている。

1.3 従来の研究動向

1.3.1 繊維/マトリックス樹脂界面の微視力学

繊維/マトリックス樹脂界面の力学的特性把握、複合材料の荷重伝達能力に及ぼす繊維表面処理効果などの界面での荷重伝達及び破壊メカニズムに関する多くの研究が多様な実験的手法によってなされてきた。その中で最も使われている手法は埋込み繊維破断(Embedded single fiber fragmentation)試験⁽⁷⁻¹¹⁾と単繊維引抜き(Single fiber pull-out)⁽¹²⁻¹⁷⁾試験である。

DiBenedettoら^(7,8)はガラスや炭素繊維強化複合材料を用いた埋込み繊維破断試験において破断繊維長さ分布から繊維/マトリックス界面を通じた応力伝達性を評価し、破断繊維長さ分布は繊維表面処理と温度に依存し、複合材料の強度や剛性特性を予測するのに有効であることを論じた。Herrera-FrancoとDrzal⁽⁹⁾は炭素繊維/エポキシ樹脂複合材料の界面せん断強度を求めるために用いられた3つの異なる実験的手法、すなわち埋込み繊維破断試験、単繊維引抜き試験

およびマイクロインデンテーション (micro-indentation) 試験のおいての繊維／マトリックス樹脂間の力学的相互作用を中心としてその客観的比較検討を行った。また、3つの異なる実験的手法に対する各々試験モデルでの応力状態の違いを有限要素法と光弾性解析を用いて検討した。Netravaliら⁽¹⁰⁾はガラス繊維と弾性特性が異なる2種のエポキシ樹脂からなる複合材料においてAE(Acoustic Emission)手法を用いて破断繊維長さを測定し、界面せん断強度値の評価においてのAE手法の有効性を示した。また、LePetitcorpsら⁽¹¹⁾はCVDフィラメント繊維とTiマトリックス間の力学的接着に関する研究において繊維臨界長さの測定及びせん断強度を統計的解析手法を用いて求め、界面接着における繊維表面処理効果を検討した。さらに、これらの結果を実用複合材料特性と関係づけて検討した。Asloumら⁽¹²⁾は繊維表面処理の関数としての接着効果、繊維臨界形状比(L_c/d_f)に対する温度および繊維／マトリックス樹脂弾性係数比の影響を実験的に検討した。RaoとDrzal⁽¹³⁾はマトリックス樹脂特性に対する界面せん断強度の依存性を検討し、2種のエポキシ樹脂システムにおける埋込み繊維破断試験から測定された界面せん断強度はマトリックス樹脂の弾性係数の低下に伴って線形的に減少することを確認した。また、試験温度および硬化マトリックス樹脂のガラス転移温度の違いと界面せん断強度は線形的な関係を持つことを示した。さらに破壊モードはマトリックス樹脂の延性の変化に依存してないことを認めた。また、偏光透過光線を用いた繊維破断点での応力パターンの観察から破壊モードの違いを定性的に論じた。Termonia⁽¹⁴⁾は繊維における効率的な応力伝達が繊維とマトリックスの弾性係数比の関数であることを有限差分法を用いて示した。また、接着係数を考慮して接着に対する繊維臨界長さの依存性を検討し、臨界長さの増加に伴う接着の減少を示した。Shortallら⁽¹⁵⁾はガラス繊維とポリエステル樹脂複合材システムの界面での接着は繊維と樹脂のミスマッチによる熱力学的力及び繊維-表面処理-樹脂の3つの構成材間の化学的接着や物理的な相互作用に起因すると論じた。FolkesとWong⁽¹⁶⁾はガラス繊維強化ポリプロピレン熱可塑性樹脂複合材料での繊維／マトリックス樹脂界面接着に関する研究において、シランカップリング剤のレベル、繊維直径、マトリックス樹脂のせん断降伏強度などが界面接着強度評価に重要な役割を演じることを示した。特に、ガラス繊維周辺に形成された樹脂の微視結晶性形態が臨界繊維長さに影響を及ぼすと論じ、このような結晶性形態の存在は局所的な界面層の弾性係数の変化に起因すると予測した。一方、このような界面での応力伝達能力の正確な解析のためには繊維／マトリックス樹脂界面やその近傍での破壊メカニズムと関連した情報を把握しなければならない。透明なマトリックス樹脂内に一本あるいは多数のフィラメント繊維を埋め込んだ単一繊維モデル材の引張試験から破壊モードの観察は可能である。Mullinら⁽¹⁷⁾はFig.1-1に示すボロン繊維／エポキシ樹脂モデル材において繊維が界面でのせん断を通して負荷される

と以下のように3つの破壊モードが生じると予測した。

- 1) 界面接着強度やマトリックス樹脂の引張強度が十分に大きい場合は、繊維は中央部近傍A点で破壊する。このとき、円盤形状のき裂D、あるいは円錐形Cき裂などが生じる。
- 2) 界面での接着強度が低い場合は、繊維端界面Bで単純なはく離が生じる。また、界面に沿うせん断応力分布は繊維中央に向かって移動する。この過程はく離した界面での摩擦が繊維に伝達なくなるまでつづける。
- 3) 接着強度が大きく、マトリックス樹脂が引張荷重に弱い場合は、引張き裂かCが、繊維破壊に先立ちマトリックス樹脂内の高いせん断応力伝達領域へ伝播し、そのあと繊維にほぼ垂直な方向に伝播する。

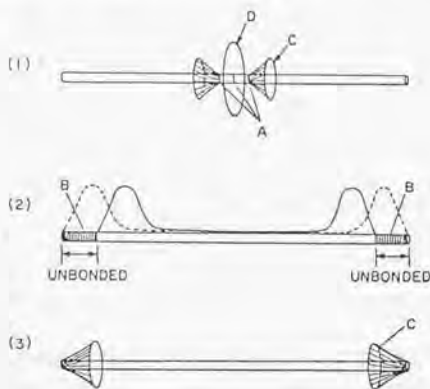


Figure 1-1. Summary of failure modes in a single filament⁽¹⁷⁾.

一方、単一繊維引き抜き試験を用いて界面での接着強度を評価する多くの理論的モデルも提案されている。Greszczuk⁽²⁴⁾、Lawrence⁽²⁵⁾は繊維/マトリックス間に伝達した荷重は繊維に沿って変化し、せん断応力分布が埋込み繊維長さの関数であり、応力及び力の分布は弾性マトリックスの特性に依存することを示した。TakakuとArridge⁽²⁶⁾は引抜き応力やはく離応力に対する埋込み繊維長さの効果及びポアソンの収縮による影響も考慮した。Gray⁽²⁷⁾は弾性マトリックスから繊維を引抜きするときの最大せん断応力をGreszczukとLawrenceの理論に基づいて評価し、引抜きときに生じる摩擦抵抗と界面での接着力の両方が埋込み繊維長さに依存し、埋込み繊維長さに伴って接着力は減少するが摩擦による引抜き摩擦抵抗は増加することを示した。Banbaji⁽²⁷⁾は単繊維の引抜き

力におよぼす繊維方向に垂直な応力の効果を考慮した理論的モデルを提案した。

以上のように繊維とマトリックス界面の微視力学に関する研究は現在まで活発になされている。しかしながら、その大部分は熱硬化性樹脂からなる複合材料のもので、製造上の困難さからきわめて少ない熱可塑性樹脂に異なる表面処理を施した繊維を埋め込んだ単一繊維複合材料において、繊維/マトリックス樹脂界面やその近傍での破壊様相と界面での応力伝達メカニズムを結びつけて界面の微視力学的挙動を定量的に検討した研究はこれまであまりなされていない。とくに、本研究の場合、このような界面での応力伝達能力の正確な解析のために、破断繊維端から発生する破壊モードに注目し、界面はく離やマトリックスき裂発生などの破壊様相の相違を応力基準として最大せん断応力を用いて検討する。ここでは、初期破壊発生に着目し破壊モードの判断基準を論じる関係上、き裂の進展条件として主に扱うエネルギー的手法による検討は行っていない。

1.3.2 短繊維強化複合材料の力学的特性と破壊メカニズム

短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料は性能、経済性や成形性が優れ、産業の多様な分野で広く使用されている。それに伴い、この材料の力学的特性、特に強度および靱性の向上に関して活発な研究がなされている。

まず、線形弾性破壊力学(LEFM)的手法を用いて、複合材料におけるき裂の発生および伝播条件についての破壊靱性の評価、疲労き裂進展挙動の評価などの研究を概観する。

Agarwalら⁽³⁵⁾は短繊維強化複合材料の破壊過程において、初期き裂先端近傍に巨視き裂が観察される以前に微視破壊が集積し、損傷領域を形成することを確認し、その損傷の拡大に着目し破壊抵抗の議論を行った。GaggarとBroutman⁽³⁶⁾はランダム配向ガラス短繊維強化エポキシ樹脂複合材料において、破壊靱性におよぼす試験片の形状の影響を検討した。また、ノッチ先端での繊維とマトリックス樹脂界面ではく離が生じる荷重に対応する応力拡大係数を設計上重要なパラメータであることを論じた。Friedrichら⁽³⁷⁾はガラス繊維強化熱可塑性樹脂複合材料における微視組織の形状パラメータ(繊維体積含有率、繊維の配向、繊維形状比、繊維分布)と破壊靱性や支配的破壊メカニズム間の関連性を実験的に調べ、脆性的マトリックス樹脂、良好な界面接着および繊維がき裂先端に垂直に配向している条件では繊維体積含有率に比例して破壊靱性が増加し、マトリックス樹脂が延性的な場合には逆に減少することを、破壊まで散逸されたエネルギーに対する繊維とマトリックス樹脂の相対的寄与と関連して検討した。関根ら⁽³⁸⁾は短繊維分散強化SMC複合材料中のノッチ先端に発生する損傷とこれを構成する微視き裂について詳細な検討を行い、微視き裂の進

展による弾性ひずみエネルギーの解放（弾性コンプライアンスの変化）という観点からその破壊挙動における損傷の形成・拡大の過程を把握することを試みた。QingとJinen⁽⁴²⁾は短繊維強化ナイロン6.6CFRPのノッチ試験片を用いて、静的引張による単調増加荷重下における実験を行い、ノッチ先端の損傷域の形成および安定き裂の進展過程を観察し、同時に、AE信号を計測することにより材料の破壊メカニズムの解明、AEパラメータと弾塑性破壊力学パラメータとの関係などを調べた。Nikpurら⁽⁴³⁾は一方向短繊維強化エポキシ複合材料における破壊靱性をき裂先端でのエネルギー解放率に着目して解析し、実験的に検証した。

また、Wangら⁽⁴⁴⁾はランダム配向短繊維強化複合材料の疲労き裂伝播挙動を破壊力学的手法を用いて検討し、様々な疲労荷重モードにおけるき裂成長速度と応力拡大係数範囲との関係を得て、疲労き裂成長メカニズムを破面と関連づけて把握した。VossとFriedrich⁽⁴⁵⁾はガラス短繊維強化複合材料の破壊靱性および疲労き裂抵抗に及ぼす繊維強化の影響を複合材料の微視組織の関数として明らかにした。ChowとLu⁽⁴⁶⁾は短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の疲労き裂伝播特性を統一的に評価しようと試みた。ここで、提案した評価手法についてその妥当性を調べるための実験的検討を行い、この手法を用いて様々な機械的特性を有している材料を特徴づけることができることを示した。

以上のように複合材料を均質・異方性連続体として取扱う巨視力学的モデルとしては破壊挙動における物理的メカニズムの完全な理解は不十分である。したがって、材料の非均質性の効果が説明できる破壊モデルにおける微視力学的変形・破壊プロセスの考慮はより現実的な破壊挙動の予測に必要である。

短繊維強化複合材料は繊維長さや繊維配向⁽⁴⁷⁻⁵³⁾、繊維とマトリックス間の接着状態⁽⁵⁴⁻⁶⁰⁾および射出成形時の製作条件⁽⁶¹⁻⁶³⁾などの多くのパラメータによって影響され、非常に複雑な破壊挙動を呈するが、この材料の微視的損傷・破壊メカニズムについてはいまだ十分に究明されていない。

Chouら⁽⁴⁷⁾は引張強度より低い荷重下での繊維、マトリックスおよび界面での応力レベルを評価するための微視的応力解析を行って界面の微視的破壊が複合材料破壊の最初段階に生じることを示した。BaderとCollins⁽⁶⁴⁾はガラス短繊維強化ポリアミド-6熱可塑性樹脂複合材料の引張試験において繊維表面処理による機械的特性の向上を示した。また、微視的な損傷の検討から試験片表面上に形成された歪みバンドが繊維端近傍のマトリックスの歪み集中による局部的なはく離やき裂の合体およびマトリックスの塑性流動に起因して生じると論じ、この歪みバンドの成長、拡大により最終的に複合材料が急激な脆性破壊挙動を示すことを論じた。Curtisら⁽⁶⁵⁾は荷重下での微視破壊の発生を検知する有力な手段であるAcoustic emission (AE)法による損傷のモニタリングから、微視破壊は引張強度より低い荷重で発生し、荷重の増加につれて微視破壊の

集積が複合材料の最終的破壊をもたらすことを示した。Satoら^(66, 67)はガラス短繊維強化ポリアミド-6熱可塑性樹脂複合材の破壊メカニズムを光学顕微鏡、電子顕微鏡やAE法を用いて検討し、繊維端での界面き裂の発生、繊維側面に沿う界面き裂の伝播及び複合材料の破壊を招来するマトリックス内のき裂伝播のような破壊の特徴的なき裂の発生、進展段階を確認した。また、き裂発生や伝播とAE信号間の密接な対応関係、すなわち比較的低い応力下で発生する低振幅AE信号は界面き裂の生成や伝播、そして複合材料の破壊直前に観察された高い振幅のAE信号はマトリックス樹脂内でのき裂発生と関連にあると述べた。さらに、Eshelby^(68, 69)の等価介在物法を用いて複合材料破壊応力下で計算した繊維、マトリックス及び繊維/マトリックス界面での応力レベルと破壊メカニズムを関連づけて論じた。Schultzら⁽⁷⁰⁾はガラス短繊維強化ポリエチレンテレフタレート(PET)樹脂の引張り破壊挙動についてコンパクトテンション試験片を用いて調べ、室温以下の低温や高歪み速度ではマトリックス樹脂の脆性破壊、界面はく離、繊維引抜き様相、60°Cの中間的温度では繊維端でマトリックスのクレイジングの生成、拡大進展による巨視き裂の形成、そして100°C以上の高温の場合、マトリックスの粘性流動に伴う繊維のはく離や引抜き様相を明らかにした。また、ガラス繊維強化ポリアミド6.6熱可塑性樹脂複合材料の破壊挙動に関するKarger-KocsisとFriedrich⁽⁷¹⁾の研究においてもほぼ同一な破壊様相を示した。Guptaら⁽⁷²⁾はガラス短繊維強化ポリプロピレン樹脂複合材料において、破壊仕事をエネルギー吸収メカニズムにより説明できることを示した。すなわち、試験片破断までの引張荷重-伸び曲線から破断仕事を求め、エネルギー吸収メカニズムについて、繊維およびマトリックス樹脂の表面エネルギーやマトリックス樹脂の塑性変形、はく離、滑りおよび繊維引抜きの仕事さらに、AEおよびSEM観察などから検討した。Laukeら⁽⁷³⁻⁷⁵⁾は繊維/マトリックス界面での滑り、はく離およびマトリックスの局部的塑性変形を考慮した微視力学的検討から短繊維強化複合材料のエネルギー散逸メカニズムを提案した。さらに、このような微視力学的破壊メカニズムに基づいて破壊仕事と破壊靱性の相関関係も検討した。また、繊維とマトリックス間の接着状態^(74, 75)、破断繊維端から発生する特徴的なき裂伝播のパターン⁽⁷⁶⁾、繊維に沿う疲労き裂伝播^(44, 77, 78)などが走査電子顕微鏡(SEM)による破面解析から確認された。

これらの研究は、短繊維強化複合材料の微視的損傷・破壊メカニズムに関する有用な知識を与える。しかしながら短繊維強化複合材料の損傷の形成・拡大の過程における微視き裂の状態とその破壊過程における変化を完全に把握するためには、特定の荷重レベルにおける試験片の一断面あるいは破断後の破面に対する断片的観察では不十分であり、試験片の損傷の状態を直接かつ連続的に観察することが重要と考えられる。また、繊維、マトリックス樹脂およびその界面のミクロな変形・破壊特性が中心となる短繊維強化複合材料の微視的破壊

プロセスおよび破壊メカニズムと巨視的力学特性を結び付けた体系的な研究はまだ不十分である。

1.3.3 短繊維強化複合材料の微視的応力場解析

短繊維強化複合材料の微視的挙動、特に、破壊特性の把握において繊維端付近の応力およびひずみ分布に関する知識は非常に重要である。最近まで、有限要素解析⁽⁸⁰⁻⁸⁵⁾、せん断遅れ(Shear lag)解析⁽⁸⁶⁻⁸⁸⁾及び弾性論による解析手法⁽⁸⁹⁻¹⁰⁴⁾などを用いて複合材料内部の応力場評価に関する多くの研究がなされてきた。しかしながら、大部分は一方向連続繊維強化複合材料について、繊維方向に引張荷重が与えた場合に生じる複合材料内部の近似的応力分布や平均的意味の複合材料の剛性、強度の予測などに関するものが主である。一方、連続繊維強化複合材料に比べて、繊維端での応力集中、繊維とマトリックス樹脂間の相互作用などによって非常に複雑な破壊挙動をあらわす短繊維強化複合材料の応力場に関する解析学的研究はあまりなされていない。Cox⁽⁸⁶⁾、Rosenら^(87,88)はせん断遅れ(Shear lag)解析により単繊維複合材料内の繊維軸方向応力や繊維/マトリックス界面剪断応力分布を求めた。しかし、繊維とマトリックス樹脂のポアソン比や熱膨張係数の違いにより界面破壊に影響を及ぼす半径方向の応力分布はこのようなせん断遅れ(Shear lag)解析からは求められない。WhitneyとDrzal⁽⁸⁹⁾は無有限体のマトリックス内に埋め込んでいる単一破断繊維複合材モデルにより近似的軸対称応力分布を予測した。近似解は破断繊維端近傍における応力分布の基本的性質に基づいて、多項式をかけた減少指数関数の形態で表れる。ここで、古典的弾性理論の平衡方程式及び境界条件式は繊維、マトリックスに対して厳密に満たされるが適合式は近似的に満たされる。SmithとSpencer⁽⁹⁰⁾は一方向繊維強化マトリックス複合材料の破壊発生メカニズムとして繊維とその周辺のマトリックス間の接着破壊をとりあげて、数値解析により繊維とマトリックス界面でのトラクション(traction)を求めた。Takao^(91,92)は短繊維(破断繊維)強化複合材料の微視的破壊伝播における臨界荷重を求めるためにマトリックス内の軸荷重、破断繊維と連続繊維に沿って各々異なるせん断応力を考慮した修正shear lagモデルを提案した。また、はく離長さの関数としての臨界荷重を評価するためにマトリックスの最大引張応力、界面に沿う最大せん断応力及びGriffithのエネルギー式を考慮した。ChonとSun⁽⁹³⁾はshear lag解析を用いて短繊維強化複合材料の繊維に沿う応力分布、すなわち軸応力や界面せん断応力を繊維配向角度、繊維体積含有率の関数として求めた。McCartney⁽¹⁰⁰⁾は単一破断繊維、あるいはマトリックスき裂を持つ一方向繊維強化複合材料において繊維とマトリックス間の熱膨張やポアソン比のミスマッチング(mismatching)による熱残留応力を考慮して界面での応力伝達を予測できる解析的モデルを提案した。また、

Nairn⁽¹⁰⁾は変分力学に基づいたより正確な3次元軸対称近似解析により単一繊維複合材内の破断繊維周囲の応力場を評価した。MikataとTaya⁽⁹⁾はコーティング短繊維強化複合材内の応力場解析において無限マトリックスに囲まれている2つの同心球としてコーティングされた短繊維をモデル化し、コーティング厚さ、剛性及び繊維形状比に対する応力場の効果を検討した。最近、CarmanとReifsnider⁽¹¹⁾は弾性理論に古典的なShear lag問題の近似解析を適用し非対称負荷下で3次元短繊維強化複合材内の局部的応力場とこの材料の巨視的剛性を予測した。また、ChoiとTakahashi⁽⁸⁾は有限要素解析により短繊維強化複合材の表面と内部の応力分布を求め、破壊メカニズムの違いを定性的に論じた。

このように研究の大部分は短繊維強化複合材の応力分布や剛性を求めることでこの材料の微視的破壊挙動と結びつけた体系的な研究はまだ不十分である。また、複合材の製作工程の産物(例:繊維表面処理、コーティングなど)としての繊維/マトリックス間に存在する界面層を考慮した応力場や破壊メカニズムに関する研究はあまりなされていない。界面の特性は繊維/マトリックス間の接着プロセスの熱的、化学的や力学的性質に直接依存し、複合材の剛性、強度および微視的破壊特性に影響を及ぼす^{(8), (9), (10), (11)}。

1.4 本研究の目的と構成

短繊維強化熱可塑性樹脂複合材は力学的特性や成形性が優れているために最近自動車、航空宇宙、スポーツ分野などの構造用材料として注目されている。これらの繊維強化複合材の破壊については、巨視的な強度・変形特性のみが評価されることが多く、これらの巨視的な特性と材料製造条件や構成材の特性データを直接結び付けることはきわめて困難であった。これは製造条件と直接関係づけられる繊維とマトリックス樹脂間の相互作用を含む微視的損傷の発生および破壊プロセスの理解が十分なされていないためである。

このような観点から、本研究では短繊維強化熱可塑性樹脂複合材の微視的破壊プロセスおよび破壊メカニズム(マイクロフラクチャメカニクス)の実験的および理論的検討を行い、この材料の微視力学的破壊挙動を明らかにすることを目的とする。

第一に、これまであまり行われていない熱可塑性樹脂に異なる繊維表面処理を施した一本のガラス繊維を埋め込んだ単一繊維複合材モデル材料を製作し、繊維/マトリックス樹脂界面の力学的特性および界面での応力伝達や破壊メカニズムを結びつけることにより、界面の微視力学的挙動を定量的に評価する試みを行った。

第二に、これら単一繊維複合材の結果をもとに、同様の異なる繊維表面処理を施した実用の射出成形ランダム配向ガラス短繊維強化熱可塑性複合材に

ついて、巨視的力学特性である引張強度、静的面内破壊靱性や落錘衝撃破壊特性の検討を行う。また、超音波顕微鏡(Scanning Acoustic Microscope: SAM)及び走査電子顕微鏡(Scanning Electron Microscope: SEM)下での負荷過程中的のその場観察により微視的な変形・損傷・破壊プロセスの詳細な検討を行って、繊維とマトリックス樹脂間の相互作用を含む微視的破壊メカニズムと巨視的力学特性との相関関係を体系的に明らかにする。

第三に、このような界面特性の変化による実際の損傷進展や破壊メカニズムを定量的に把握するためには、各材料特性パラメータが与える影響を簡単に知るための応力場の理論式が必要となることから、弾性理論に基づいて、短繊維端近傍の応力場の近似的解析を試みる。これにより材料の微視的破壊メカニズムの理解が体系的に行える。

このように本研究では、材料製造者が材料科学を駆使する材料製造条件と、構造設計者が力学設計上必要とする巨視的力学特性とを、繊維／マトリックス界面を中心とする微視力学的損傷・破壊プロセスの実験観察とそれに伴う理論解析により系統的に結びつけるものであることにその独創性がある。この研究は、基礎的な複合材料の最適製造法の研究にフィードバックされ得るばかりでなく、一般のマクロな破壊プロセス・メカニズム解明の研究などにも有力な情報となる。すなわち、先進複合材料の開発においての最適な材料設計及び構造設計面においての巨視的力学特性の向上と密接につながり、その工学的意義は大きいものと考えられる。Fig.1-2に本論文の構成をまとめて示す。

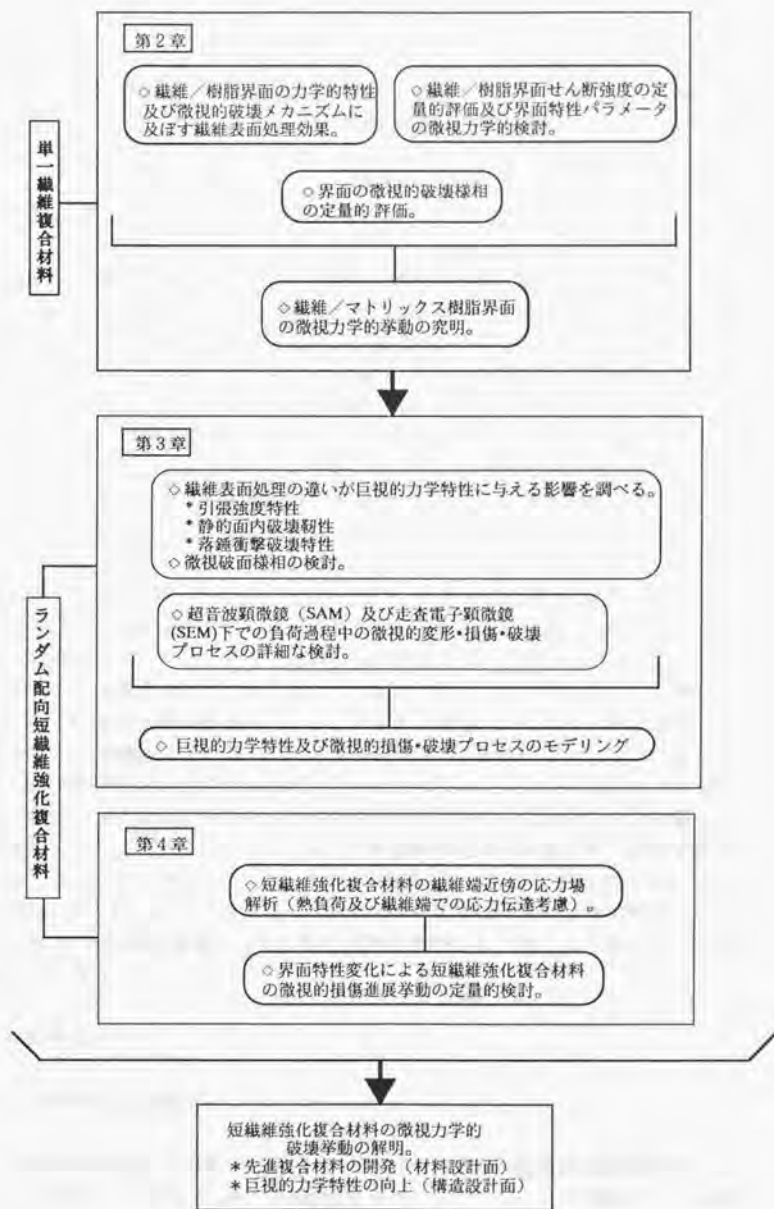


Figure 1-2. Outline of the present study.

第2章 単一繊維複合材料の繊維／マトリックス樹脂 界面の微視力学的検討

2.1 緒言

繊維強化複合材料の特性（例：強度、靱性など）は繊維およびマトリックス樹脂間の界面特性に非常に影響される。したがって、界面に関する知識は繊維強化複合材料の研究に欠かせないほど重要である。複合材料界面の重要な役割はマトリックス樹脂から高強度の繊維に応力を伝達することである。応力伝達能力はマトリックス樹脂の力学的特性、繊維の荷重耐荷能力および繊維／マトリックス樹脂界面の強度に依存する。界面接着の欠如は強度の低下や環境的劣化を招来する。したがって、高性能の複合材料を得るためには界面で生じる力学的、化学的および物理的現象の的確な解析および管理が最も必要である。高強度炭素繊維やガラス繊維の特性は製造過程中的繊維表面欠陥に依存する。カップリング剤やサイジング剤が表面損傷および破損を防止するために繊維製作用過程中に脆性繊維に与えられる。カップリング剤の主な機能は繊維とマトリックス樹脂間の接着を向上することであり、サイジング剤は製作用過程中生じる摩擦や繊維間の相互作用に対して繊維を保護するために使われている^(7,8,15,18)。

本章では繊維表面処理が異なるガラス繊維とナイロン6マトリックス樹脂から成っている単一繊維複合材料に対してまず、破壊プロセスを光学顕微鏡下で負荷下その場観察により明らかにすることにより、繊維／マトリックス樹脂界面の力学的特性および微視的破壊メカニズムに及ぼす繊維表面処理効果を調べる。次に、複合材料の微視力学的挙動を調べるときに、最も重要な物性値である繊維とマトリックス樹脂間の界面せん断強度を光学顕微鏡下の引抜き実験を行うことにより求める。さらに、界面の特性パラメータである G_i と b_i に関する微視力学的検討も行う。最後に、界面の微視的破壊挙動の定量的把握のために、弾・塑性有限要素解析により繊維破壊断近傍の応力場および界面での熱残留応力を検討する。

2.2 実験方法

2.2.1 材料及び試験片

本実験で使用した材料はTable 2-1に示すような4種の繊維表面処理が異なるガラス繊維（直径約50 μm ）を2枚のナイロン6マトリックス樹脂フィルムの上に埋め込んでホットプレス成形により作成した単一繊維複合材料である。熱

可塑性樹脂の単一繊維複合材料製造の例は製造上の困難さからきわめて少ない。施した繊維表面処理において、カップリング剤はアミノシラン系が使われている。これはガラス繊維表面とマトリックス樹脂の結合を強固に密着させる役割をする。また、製作過程の摩擦と表面損傷を減少するための助剤はパラフィン、接着剤は3種の異なるウレタン集束剤が使用される。これは紡糸以後の工程に使われてガラスフィラメント間の接着を向上させる。ここで、繊維とマトリックス樹脂間の界面せん断強度はA, B, C, Dの順に低くなると予想される。

これらの複合材料を用いて、埋め込み試験片は荷重方向に平行に単繊維のみを含むように切り出しFig.2-1に示すように用意された。試験片はゲイジ長さ40 mm、幅10 mm、厚さ0.12 mmである。また、引抜き試験片は埋め込み試験片に引張り荷重をかけ繊維破断が確認されたら、Fig.2-2に示すように繊維/マトリックス樹脂界面で損傷が起らないように注意深くノッチを入れて得た。

2.2.2 埋込み繊維破断試験 (Single fiber fragmentation tests)

2.2.2.1 理論

マトリックス樹脂内に埋め込まれた単一繊維複合材料モデルに繊維軸方向引張荷重が加えられると、繊維は引張強度に達する点において多重破断する (fragmentation)。ここで、マトリックス樹脂の破断歪は繊維よりかなり大きい。すべての繊維の長さがある長さより短くなるまでこの破断過程を繰り返すと、これらの長さ方向に沿う繊維/マトリックス樹脂界面でのせん断応力はもはやこれ以上の破断を引き起こすのに十分な繊維引張応力を加えなくなる。このような最終的な破断繊維長さを臨界長さ L_c と呼ぶ (Fig.2-3)。ここで 界面におけるせん断応力が繊維長さに沿って一定であるとする、界面でのせん断応力伝達性は次のように表される^(9, 12, 16, 19-24)。

$$\tau_i = \frac{\sigma_f(L_c)d_f}{2L_c} \quad (1)$$

ここで、 τ_i は繊維/マトリックス樹脂界面でのせん断応力伝達係数、 $\sigma_f(L_c)$ は臨界長さ L_c における繊維引張強度、 d_f は繊維直径である。また、逐次的な繊維破断過程で繊維は $L_c/2 \sim L_c$ の範囲で存在する (実際は繊維長さの減少に伴って繊維の引張強度が増加し、より広い分布を示す^(20, 25-29))。したがって、繊維の臨界長さ L_c は次のように表される。

$$L_c = \frac{4L_{av}}{3} \quad (2)$$

ここで、 L_{av} は平均破断繊維の長さである。また、臨界長さ L_c における繊維の引張強度は、それぞれのゲイジ長さにおける引張試験で得られた繊維引張強度からワイブル関数のような統計的分布関数を用いて求められる^(20,31)。

2.2.2.2 臨界繊維長さ L_c の測定及び破壊過程の観察

埋め込み試験は表面処理が異なる4種の材料に対してそれぞれ5本以上の試験片を用意して、再現性を確かめ、0.5 mm/minの一定歪速度で25°C(室温)、60°Cおよび80°Cの温度で実施された。試験はFig.2.4に示すような光学顕微鏡のステージ上に取り付けた負荷装置を用いて、繊維の逐次的破断が起こらなくなるまで(マトリックス樹脂から繊維への応力伝達の限界:本試験では約11%延伸まで)繊維軸方向荷重をかけながら繊維破断部周辺の微視的変形・破壊プロセスの観察を行った。破断繊維の長さは実測顕微鏡下の写真撮影により測定された。臨界長さ L_c を求めるために測定された破断繊維の数は平均80~100個であった。また、界面でのせん断応力伝達係数 τ_i は式(1)と(2)から得られた。ここで、臨界長さ L_c における繊維引張強度 σ_f は本実験では2.0 GPaと仮定する(実際にそれぞれのゲイジ長さとの関係から外挿して臨界長さ L_c における繊維引張強度 σ_f を求める^(24, 25, 28, 30, 31))。

2.2.3 引抜き試験 (Single fiber pull-out tests)

2.2.3.1 理論

複合材料の微視力学的挙動を調べるとき、繊維とマトリックス樹脂間の界面せん断強度は最も重要な特性値である。しかしながら、このパラメータの正確な評価は今まで困難であった。Gray⁽³²⁾は単一繊維引抜き試験を含む多数の試験法に関してその妥当性を検討したが、これらの試験法すべては平均界面せん断応力 τ_{av} のみを以下の式から得るにすぎない。

$$\tau_{av} = \frac{P}{\pi d_f L} \quad (3)$$

ここで、 P は引抜き力(=繊維とマトリックス樹脂のはく離が生じた瞬間の力)、 d_f は繊維の直径、 L は埋め込み繊維長さである。

したがって、界面の結合強度に相当し、複合材料性能制御する最も重要なパラメータである繊維とマトリックス樹脂間の最大せん断応力は求められていない。そこで、単一繊維引抜き試験を行って繊維とマトリックス樹脂間の最大せん断応力を以下で述べる簡単な方法で求める。

繊維とマトリックス樹脂間の荷重伝達に関するCoxの解析的な研究⁽³¹⁾はせん断遅れ解析 (Shear lag) と呼ばれ、引張応力は繊維のみに、せん断応力はマトリックス樹脂のみにかかると仮定している。Fig.2-5に繊維中の引張応力と界面でのせん断応力の繊維に沿った分布を示す。(繊維とマトリックス樹脂は弾性で界面での接着は完全である)ここで、マトリックス樹脂から繊維への荷重伝達は臨界繊維長さ L_c に通して起こる。もし、 L が L_c よりも長い繊維の測定結果に対して式(3)からせん断強度を評価するとせん断強度は実際より低くなる。これは L がせん断応力を伝達していない長さを含むためである。そして、埋め込まれた長さが短くなるほどせん断強度の値は高くなる。実際のせん断強度 (= 最大せん断応力) は埋め込み長さ L が0、あるいは、測定不可能な程度短くなったとき得られる。

したがって、本試験では、繊維/樹脂界面のせん断強度 τ_{max} (= 最大せん断応力) はGreszczukのモデル⁽³⁴⁾ (付録2.1参照)を用い、埋め込み繊維長さを変化させながら行った繊維の引抜き試験の結果と組み合わせることにより求める。ここで、 τ_{max} と τ_{av} の関係は次のように表せる。

$$\tau_{av} = \frac{\tau_{max} \tanh(\alpha L)}{\alpha L} \quad (4)$$

ここで、 τ_{av} は平均せん断応力 (= $P/2\pi R_f L$)、 P は界面はく離発生荷重、 R_f は繊維半径、 L は埋め込み繊維長さである。また、 α は界面の弾性応答を表す定数として次のように表せる。

$$\alpha = \left[\frac{2G_f}{b_f R_f E_f} \right]^{1/2} \quad (5)$$

ここで、 G_f は界面せん断弾性係数、 b_f は界面の厚さ、 E_f は繊維の弾性係数である。現在、 G_f と b_f についてそれらを厳密に測定する方法は見いだされていない。

式(4)から、 $\alpha L \rightarrow 0$ において τ_{av} は τ_{max} になることがわかる。界面せん断強度はこの条件から求められる。すなわち、 α は定数であり、 τ_{av}/τ_{max} は埋め込み繊維長さ L のみの関係である。したがって、埋め込み繊維長さを変化させな

から行った単繊維の引抜き試験から界面せん断強度 τ_{max} は τ_{av} - L に関する曲線をプロットして $L=0$ で τ_{av} を外挿して求められる。

2.2.3.2 繊維の引抜きプロセスの観察

試験はCCDカメラシステムがセットされた光学顕微鏡のステージ上に付けた荷重装置を用いて0.5 mm/minの一定変位速度で荷重をかけながら界面の微視破壊を伴う繊維の引抜きプロセスの観察を行った。Fig.2-6に示すように試験片に引張荷重を加えると時間-荷重曲線は線形的に増加し、ある荷重に到達するとノッチ先端部の繊維/マトリックス樹脂界面にはく離が発生し、その後、破断繊維端に向かって伝播していく。はく離がほぼ繊維端に至ると同時に繊維の引抜きが始まった。

2.3 実験結果及び検討

2.3.1 埋込み繊維破断試験

2.3.1.1 繊維表面処理と界面せん断応力伝達性

接着剤、助剤とカップリング剤すべてを用いた表面処理を行ったA材と接着剤のみを用いて表面処理を行ったD材の引張荷重下で得られた破断繊維の分布をFig.2-7に示す。A材はD材に比べて破断繊維の長さが比較的短い側に分布している。これはカップリング剤で表面処理を行ったA材の場合がより高い界面せん断応力伝達性を持つことを示唆する。Table 2-2に各材料の臨界繊維長さ L_c と界面せん断応力伝達性 τ_i を示す。ここで、繊維の長さによる引張強度分布は考慮されていない、すなわち σ_f は2.0 GPaとする。破断繊維分布の平均値から求めた臨界繊維長さ L_c はD材が一番長く、A材が最低値 $L_c=2.18$ mmを示す。せん断応力伝達係数 τ_i は L_c の減少に伴って高くなりA材で最大値 $\tau_i=23$ MPaを示す。Fig.2-8の(a)-(b)は臨界アスペクト比 L_c/d_f とせん断応力伝達係数 τ_i に対する温度の影響を示す。繊維表面処理にかかわらず、臨界アスペクト比 L_c/d_f は温度が高くなるほど大きくなり、せん断応力伝達性 τ_i は温度の増加に伴って減少することがわかる。このように臨界繊維長さ L_c と界面せん断応力伝達性 τ_i の相違は、繊維表面処理および温度による繊維/樹脂界面やその近傍の微視学的変化を示唆する。

2.3.1.2 光学顕微鏡による微視的変形・破壊プロセス

Fig.2-9に歪増加による繊維破断点近傍の破壊進展の様相を示す。いずれの表面処理を施した試験片についても最初の繊維破断は $\epsilon=1.5\%$ 近傍で生じ、歪の増加に伴う逐次的な繊維破断の進行とともに、破断繊維端での繊維表面処理の違いによる繊維/樹脂界面の微視的破壊様相の相違が認められる。最も高い界面せん断応力伝達性を表すA材の場合は樹脂の塑性変形が生じ、さらに歪の増加によって塑性域の拡大進展が明らかである。繊維軸方向に垂直に樹脂破壊が発生する場合もある(B材の場合も類似な様相を示した)。これに対し、繊維/マトリックス樹脂界面せん断応力伝達性が一番低いD材では破断繊維端で生成された高いせん断応力によって繊維に沿う界面はく離が発生、成長することがわかる。一方、C材の場合は、界面せん断応力伝達性および破壊様相ともに中間的な挙動を示す。すなわち、樹脂の塑性変形と界面はく離が同時に生じている。また、Fig.2-10は80°C高温での微視的破壊様相を示す。A材ではマトリックス樹脂の塑性変形や破壊、D材の場合は界面はく離の様相を示し、各材料ともに室温の場合と破壊進展様相においての違いは見られなかった。すなわち、繊維/樹脂界面での接着強度は高温の場合でも十分に維持されることが予測できる。したがって、温度の変化による界面せん断応力伝達性の減少は主に樹脂強度の劣化に起因すると考えられる。熱硬化性樹脂からなる複合材料についてのMullin⁽¹⁷⁾、Drzal^(20,21)らの研究報告でも示唆されたこのような破壊様相に関する情報は繊維/樹脂界面での微視力学的特性を把握するためにきわめて重要である。

2.3.2 単繊維引抜き試験

2.3.2.1 界面せん断強度

Fig.2-11は各々材料について、 τ_w - L の関係を示す。この関係から、A, B, C, Dの各材料においての界面せん断強度 τ_{max} は求められる。ここで、 τ_w - L の曲線は埋め込み繊維長さを変化させながら行った繊維の引抜き試験データを最小自乗方法によってフィッティングして得られる。Table 2-3はこのような方法から求められた各材料での界面せん断強度 τ_{max} と界面の弾性応答を表すパラメータ α の値を示す。界面せん断強度はA材が $\tau_{max} = 88$ MPaで一番高く、D材が $\tau_{max} = 30$ MPaの一番低い値を示す。このような各材料間の界面せん断強度の違いは、繊維表面処理方法の違いによるものである。

2.3.2.2 界面特性

Table 2-3に示すように各々材料において、 α の値が異なる。これは各材料で

の界面層の特性が違ふことを示唆する。式(5)の5つのパラメータ中に E_f と R_f は既知であり、 G_f と b_f は未知定数として、 α は前述に述べた方法から求める定数である。したがって、 G_f と b_f のいずれが独立的に設定されていないと、式(5)は完全に求められない。しかし、 α は材料定数である4個のパラメータ(E_f, R_f, G_f, b_f)に依存する。Fig. 2-12は界面厚さ b_f と界面弾性係数 G_f の任意の値に対する、各材料での α の変化を示す。式(5)を満足する G_f と b_f の値は、対応する各材料の α 値と各曲線の交点から得られる。各々の材料において、これらの値をプロットして示したものがFig. 2-13である。 G_f と b_f は線形的関係を示す。一方、特定の複合材料において適切な G_f/b_f 値を得るためには、まず α に関する式(5)より、 G_f あるいは b_f の値が決められなければならない。ここでは、1次近似として、マトリックス樹脂のせん断弾性係数が次の関係式から与えられるとする。

$$G_m = \frac{E_m}{2(1 + \nu_m)} \quad (6)$$

ここで、ナイロン6樹脂のヤング率 E_m は2.5 GPa、ポアソン比 ν_m は0.3である。そこで、マトリックス樹脂のせん断弾性係数 G_m は0.962 GPaになる。

したがって、このような値を式(4)に代入して各材料に対する界面厚さ b_f を求めると、いずれの材料においても実用の界面厚さ(普通1~3 μm である)に比べるとかなり大きい値を示した。例えば、A材料では51.6 μm の厚さであった。しかしながら、 b_f は界面厚さの尺度というよりはむしろ界面せん断応力が作用している繊維からの距離の尺度を表すパラメータである。したがって、この距離は界面層の厚さよりはかなり大きくなるだろう。実際に、界面せん断強度が一番高い材料Aにおける破断繊維端近傍であらわれる変位線の様相を見ると、界面せん断応力が作用している繊維からの距離は50 μm (=繊維直径)以上の距離まで広がっていることがわかる(Fig. 2-14)。また、界面せん断応力が作用しているこのような距離は界面層の特性にも非常に依存するだろう。

以上のようにパラメータ α は繊維とマトリックス樹脂の特性の変化が界面にどんな影響を及ぼすかを予測することなどの界面に関する多くの情報を把握するために有効である。

2.4 破断繊維端近傍の微視破壊様相の定量的検討

2.4.1 有限要素解析モデル

単一繊維埋め込み引張り試験から明らかになった破壊様相の違いを定量的

に説明するために弾・塑性有限要素解析による繊維破断点近傍の応力分布を調べた。Fig. 2-15に軸対称2次元有限要素モデルの寸法、境界条件および材料特性値を示す。解析は4節点長方形軸対称要素を用いて、幾何学的対称性から有限要素モデルの4分の1に対して行われた。繊維のき裂先端では応力場の特異性が存在する。このためにき裂先端および繊維/マトリックス界面に沿う要素は幅 $0.1R_f$ で細かく分割された。また、繊維から離れ行くにつれて要素の大きさは増加する。解析モデルは770要素、828節点で構成された。ここで、繊維は線形弾性等方体であり、マトリックス樹脂は等方体でVon Mises降伏条件に従う材料としてモデル化した。また、解析モデルには $\epsilon = 1.5\%$ の一定歪が加えられる。これは単一繊維埋め込み引張り試験で、最初繊維破断が生じるときの歪に対応する値である。

2.4.2 破断繊維端近傍の応力分布

解析は繊維/マトリックス界面に沿うマトリックス樹脂側の要素においてのせん断応力、半径方向応力、軸方向応力などの3つの応力成分について行った(き裂先端やその付近の要素の変形様相を示すFig.2-16を参考)。

Fig.2-17には繊維/マトリックス樹脂界面に沿う応力分布を示す。界面のせん断応力は繊維端から少し離れた $x = 0.7R_f$ 付近で最大せん断応力 $(\tau_{xz})_{max} = 24$ MPaを示し、 x の増加に伴い緩やかに減少し0に収束する。とくに、この $(\tau_{xz})_{max}$ の値は、D材の場合、単繊維引抜き試験から得られた繊維/マトリックス樹脂界面せん断強度 $\tau_{max} = 30$ MPaとほぼ等しく、強度のばらつきを考慮すると、D材では界面はく離の発生が生じることが予測できる。また、界面せん断強度が一番高いA材($\tau_{max} = 88$ MPa)では、界面が十分な接着強度をもつため、マトリックス樹脂の塑性変形および樹脂内のき裂伝播の可能性が示唆される。本解析の場合、き裂先端では特異性の存在により界面に沿う応力値は x が0に近づくと無限大になる。したがって、 $x = 0$ 近傍での正確な解を得るためにはき裂先端での特異性を考慮した特別な要素の設定が必要である。

一方、半径方向の応力 σ_r は繊維端で引張成分を示し、 $x = 0.2R_f$ で0に急激に減少し、その後圧縮に変わって減衰する。このような引張成分応力は界面のはく離に寄与すると知られている^(9, 132-134)。ただし、本解析では考慮しなかった熱残留応力分は負であるため、実際の σ_r の絶対値はかなり低くなる。ここで、この材料の熱残留応力を計算した結果(付録2.2参照)によると、繊維/マトリックス樹脂界面での熱残留応力は $\Delta T = -80^\circ\text{C}$ の場合、 $\sigma_r = -16.1$ MPaが得られた。この値が破断繊維端付近の引張応力成分の約30%に達することを考えると実際に界面破壊に及ぼす σ_r の影響はほとんどないと考えられる。

2.5 結 言

繊維/マトリックス樹脂界面の微視力学的挙動を明らかにするために、繊維表面処理が異なるガラス繊維とナイロン6マトリックス樹脂から成る単一繊維複合材料モデルについて行った実験的および理論的検討から次のような結果を得た。

- 1) 埋め込み単一繊維引張試験について、界面せん断応力伝達性と臨界繊維長さは繊維表面処理および温度に強く依存する。すなわち、カップリング剤を含んだ表面処理を施したA材の場合が臨界繊維長さがより短く、最も高い界面せん断応力伝達性を示した。また、繊維表面処理にかかわらず、臨界アスペクト比 L_c/d_f は温度が高くなるほど大きくなり、せん断応力伝達性は温度の増加に伴って減少することがわかった。したがって、臨界繊維長さと界面せん断応力伝達性の相違は、繊維表面処理および温度による繊維/マトリックス樹脂界面やその近傍の微視力学的変化に起因すると言える。
- 2) 逐次的繊維破断過程の光学顕微鏡下の直接観察により、界面での応力伝達メカニズムの解析において最も重要な繊維/マトリックス樹脂界面での破壊様相を明らかにした。すなわち、比較的高い界面せん断応力伝達性を表すAとB材の場合は樹脂の塑性変形や樹脂破壊が生じるのに対し、界面せん断応力伝達性が一番低いD材では界面はく離が発生、伝播することがわかった。また、中間的な挙動のC材では樹脂破壊と界面せん断破壊が混在した様相を示した。
- 3) 繊維表面処理が異なる単一繊維引抜き試験から、複合材料性能を制御する最も重要なパラメータである繊維とマトリックス樹脂間の最大せん断応力を求めた。また、界面せん断弾性係数 G_i と界面厚さ h_i に関する情報は界面領域の微視力学的モデリングに有効であると言える。
- 4) 繊維破断点近傍の応力場解析により破壊進展挙動の相違、すなわち、界面せん断強度が高いA材の場合はマトリックス樹脂の塑性変形や樹脂破壊が発生すること、一方、界面せん断強度が比較的低いD材では界面はく離が生じることなどの定量的予測が可能になった。

付録 2.1

GreszczukのモデルをFig. A2-1に示す。繊維の微小要素 dx 部分の力のつり合いから

$$-F + (F + dF) + (2\pi r) dx \tau_i = 0 \quad (\text{A2.1.1})$$

$$\frac{dF}{dx} = -2\pi r \tau_i \quad (\text{A2.1.2})$$

になる。また、繊維のひずみ ε は、繊維の変位 $u(x)$ を用いて、

$$\varepsilon = \frac{du}{dx} = \frac{F}{\pi r^2 E_f} \quad (\text{A2.1.3})$$

である。ここで、 E_f は繊維の弾性係数である。また、界面のせん断ひずみ γ は

$$\gamma = -\frac{u}{b_i} \quad (\text{A2.1.4})$$

である。ここで、 b_i は界面の有効厚さであり、せん断応力とせん断ひずみの関係から

$$\gamma = \frac{\tau_i}{G_i} \quad (\text{A2.1.5})$$

になる。ここで、 G_i は界面のせん断弾性係数である。式(A2.1.3)と(A2.1.4)から界面せん断応力 τ_i は次のようになる。

$$\tau_i = u \frac{G_i}{b_i} \quad (\text{A2.1.6})$$

式(A2.1.6)を(A2.1.2)に代入し、 u を x で微分し、その結果を式(A2.1.3)に代入すると

$$\frac{d^2 F}{dx^2} - \alpha^2 F = 0 \quad (\text{A2.1.7})$$

になる。ここで、

$$\alpha = \left[\frac{2G_f}{b_f r E_f} \right]^{\frac{1}{2}}$$

である。式(A2.1.6)を解くと、次のようになる。

$$F = A_1 \sinh \alpha x + A_2 \cosh \alpha x \quad (\text{A2.1.8})$$

A_1 、 A_2 は未知定数であり、次の境界条件より求められる。

$$\text{at } x = 0 \quad F = P$$

$$\text{at } x = L \quad F = 0$$

したがって、任意の x においてのせん断応力 τ_i は、式(A2.1.2)より

$$\tau_i = \frac{P \alpha}{2 \pi r} (-\sinh \alpha x + \coth \alpha L \cosh \alpha x) \quad (\text{A2.1.9})$$

になる。ここで、最大せん断応力($x=0$)は、式(A2.1.9)から次のように表せる。

$$\frac{\tau_{max}}{\tau_{av}} = \alpha L \coth \alpha L \quad (\text{A2.1.10})$$

付録 2.2

熱残留応力解析モデルをFig.A2-2に示す。境界条件および連続条件は次のようになる。

- 1) 円筒の外側 ($r=b$) での半径方向の応力は0である ($\alpha=0$)。ここで、繊維に比べてマトリックス樹脂の半径が十分に大きい (繊維体積含有率が低い)。
- 2) 繊維方向の歪は繊維、マトリックス樹脂で等しい ($\epsilon_{zf} = \epsilon_{zm}$)。ここで、モデルは繊維方向に十分に長い。
- 3) ホットプレスしたときの温度から徐々に冷却するとき、繊維とマトリックス樹脂間で滑りが生じない ($\epsilon_{\theta f} = \epsilon_{\theta m}; r=a$)。
- 4) 外力がかからないのでつり合い式が考慮される。すなわち、 $(b^2 - a^2)\sigma_{zm} + a^2\sigma_{zf} = 0$ である。

熱膨張係数を考慮した構成方程式は

$$\begin{aligned}
 \epsilon_{rm} &= \frac{1}{E_m} [\sigma_{rm} - \nu_m (\sigma_{\theta m} + \sigma_{zm})] + \alpha_m \Delta T \\
 \epsilon_{zf} &= \frac{1}{E_f} [\sigma_{zf} - \nu_f (\sigma_{\theta f} + \sigma_{zf})] + \alpha_f \Delta T \\
 \epsilon_{\theta m} &= \frac{1}{E_m} [\sigma_{\theta m} - \nu_m (\sigma_{rm} + \sigma_{zm})] + \alpha_m \Delta T \\
 \epsilon_{\theta f} &= \frac{1}{E_f} [\sigma_{\theta f} - \nu_f (\sigma_{rf} + \sigma_{zf})] + \alpha_f \Delta T \\
 \epsilon_{zm} &= \frac{1}{E_m} [\sigma_{zm} - \nu_m (\sigma_{rm} + \sigma_{\theta m})] + \alpha_m \Delta T \\
 \epsilon_{zf} &= \frac{1}{E_f} [\sigma_{zf} - \nu_f (\sigma_{rf} + \sigma_{\theta f})] + \alpha_f \Delta T
 \end{aligned} \tag{A2.2.1}$$

になる。ここで、 ΔT は室温とガラス軟化点温度の差、 α は熱膨張係数、 E はヤング率、 ν はポアソン比である。また、 f, m は各々繊維とマトリックス樹脂を表す。

また、 r, θ に対する応力は次のようになる⁽¹⁵⁾。

$$\sigma_{zf} = \sigma_{\theta f} = \sigma_z \quad \text{at } r = a$$

$$\sigma_{rm} = \sigma_1 \frac{a^2(b^2 - r^2)}{r^2(b^2 - a^2)} \quad (\text{A2.2.2})$$

$$\sigma_{\theta m} = -\sigma_1 \frac{a^2(b^2 + r^2)}{r^2(b^2 - a^2)}$$

したがって、式(A2.2.1)と(A2.2.2)から界面($r = a$)での応力 σ_{zm} , σ_{zf} , σ_1 は次のような連立方程式を解くと得られる。

$$\begin{bmatrix} 1 & -\eta_z & 2(\eta_z \nu_f + \nu_m \frac{\xi}{1-\xi}) \\ \nu_m & -\eta_\theta \nu_f & \eta_\theta(1-\nu_f) + \nu_m + \frac{1+\xi}{1-\xi} \\ 1 & \frac{\xi}{1-\xi} & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \sigma_{zm} \\ \sigma_{zf} \\ \sigma_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} E_m(\alpha_{zf} - \alpha_m)\Delta T \\ E_m(\alpha_m - \alpha_{\theta f})\Delta T \\ 0 \end{bmatrix}$$

(A2.2.3)

ここで、 $\eta_z = \frac{E_m}{E_{zf}}$, $\eta_\theta = \frac{E_m}{E_{\theta f}}$, $\xi = \frac{a^2}{b^2}$ である。

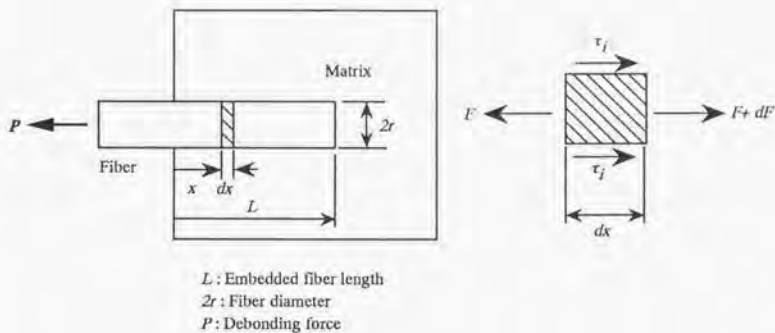


Figure A2-1. Schematic representation of pull-out test ⁽³⁴⁾.

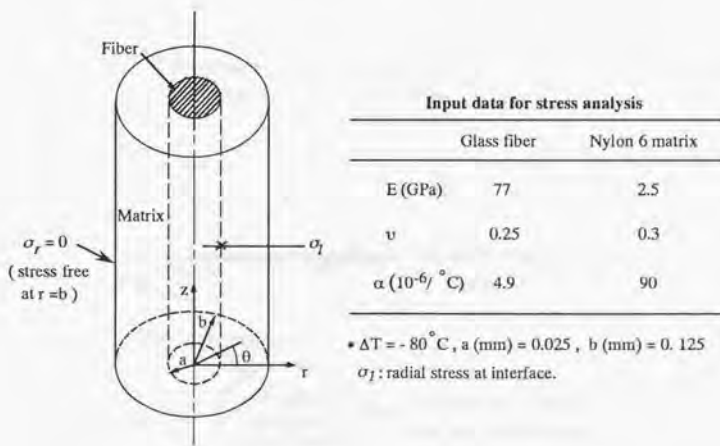
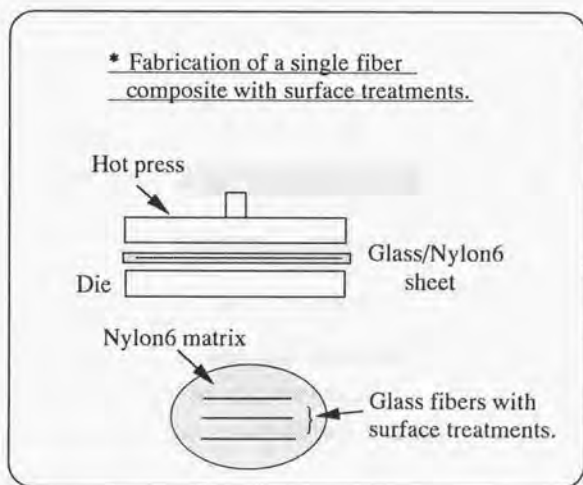


Figure A2-2. Model for thermal stress analysis⁽¹¹⁵⁾.

Table 2-1. Tested materials.

材 料	接着剤 ^{*1)}	カップリング剤 ^{*2)}	助剤 ^{*3)}
A	○ _a	○	○
B	○ _b	○	○
C	○ _c	○	○
D	○	×	×

- 注： 1) ガラスフィラメント集束用、ウレタン系の異なる3種。
 2) ガラスとナイロン6結合用、アミノシラン系。
 3) 紡糸時、混合時の作業性向上用、パラフィン。



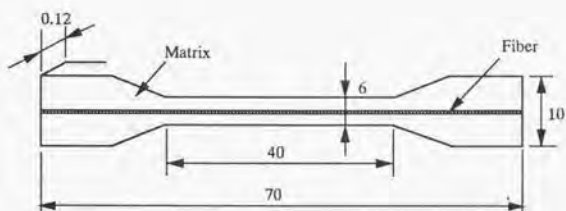
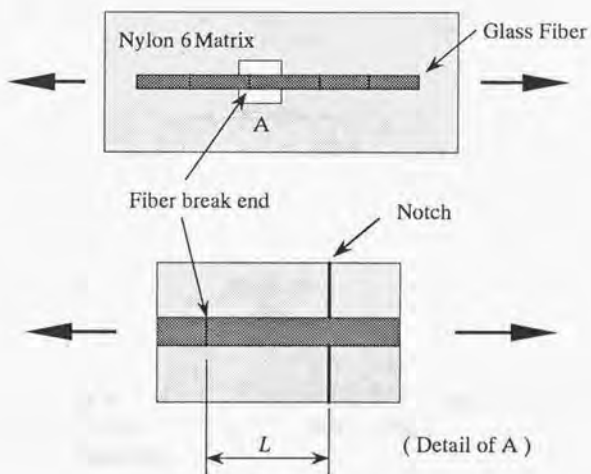
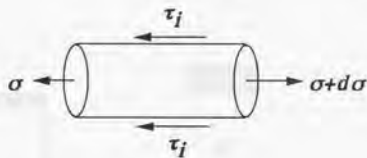
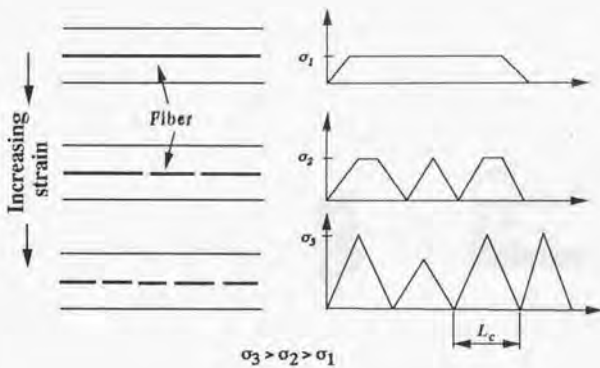


Figure 2-1. Configuration of fragmentation test specimen (unit: mm).



L : Embedded fiber length
 Fiber diameter : $50 \mu\text{m}$
 Specimen thickness : 0.12 mm

Figure 2-2. Configuration of pull-out test specimen (unit: mm).



$$\tau_f = \frac{\sigma_f(L_c)d_f}{2L_c}$$

ここで、

- τ_f : 繊維/マトリックス樹脂界面でのせん断応力伝達係数.
- $\sigma_f(L_c)$: 臨界長さ L_c における繊維引張強度.
- d_f : 繊維直径.
- L_c : 臨界繊維長さ (= $4/3 L_{av}$).
- L_{av} : 平均破断繊維長さ.

Figure 2-3. Schematic representation of the single fiber fragmentation process.

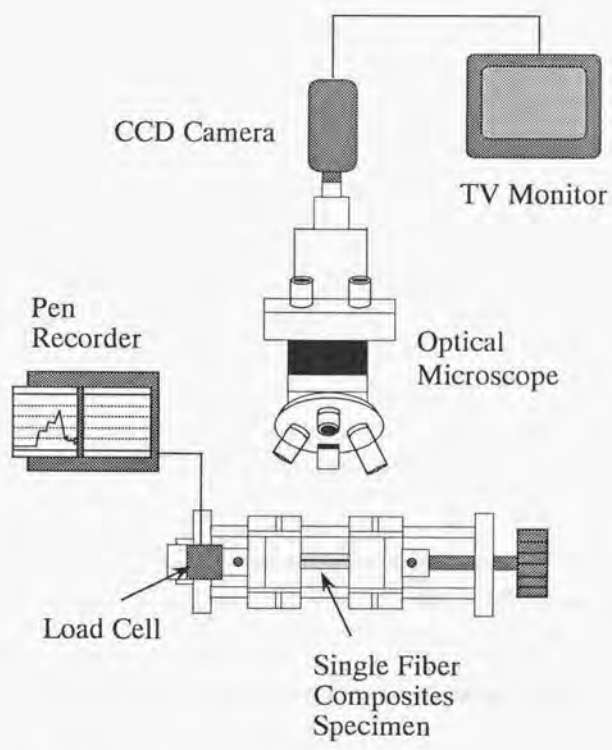


Figure 2-4. Experimental apparatus for single fiber tension tests.

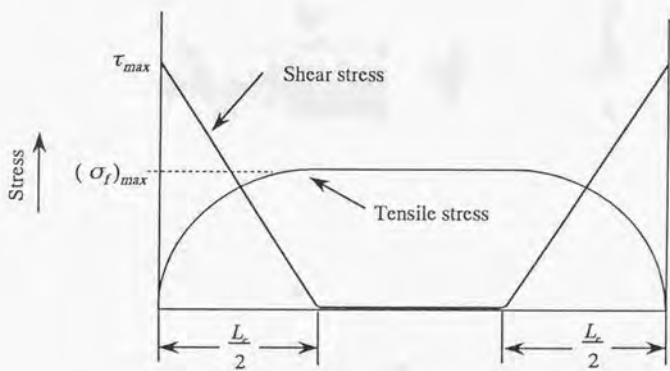


Figure 2-5. Stress distributions along a short embedded fiber⁽³³⁾.

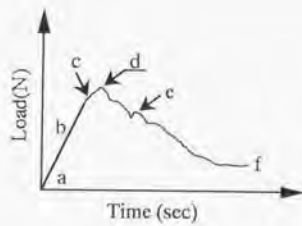
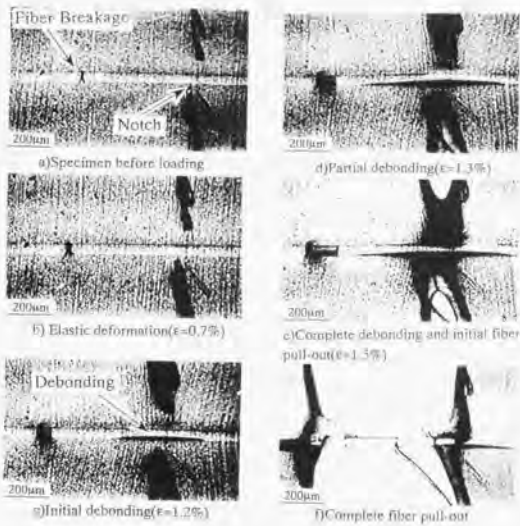


Figure 2-6. Optically observed pull-out sequence.

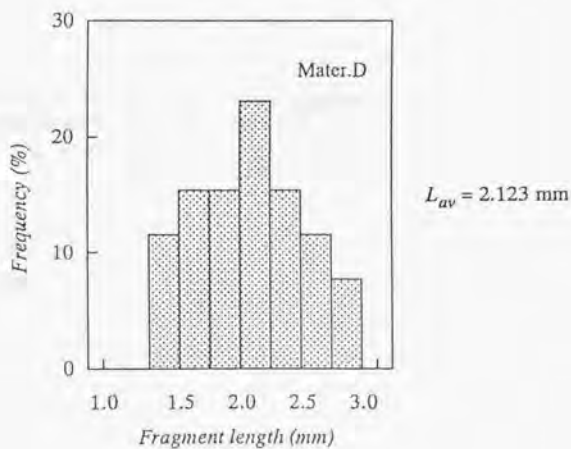
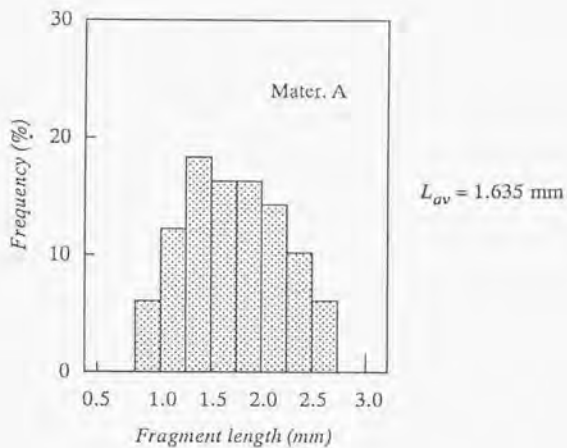


Figure 2-7. Distribution of fragment length at 25°C.

Table 2-2. Results of single fiber fragmentation tests at 25°C.

Mater.	L_c (mm) ^a	σ_f (GPa) ^b	τ_i (MPa) ^c
A	2.18	2.0	23.0
B	2.30	2.0	21.77
C	2.53	2.0	19.78
D	2.83	2.0	17.67

a) Critical fiber length : 4/3 average fragment length.

b) Assumed tensile strength of the fiber of length, L_c .

c) Shear stress transmission at fiber/matrix interface.

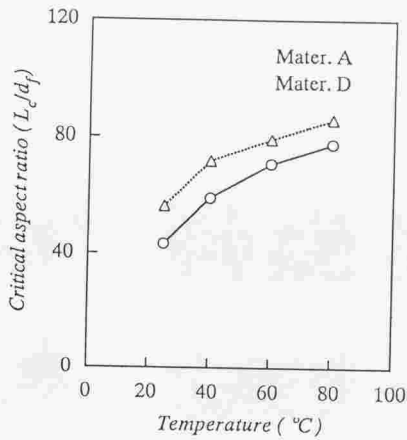


Figure 2-8(a). Relation between temperature and critical aspect ratio.

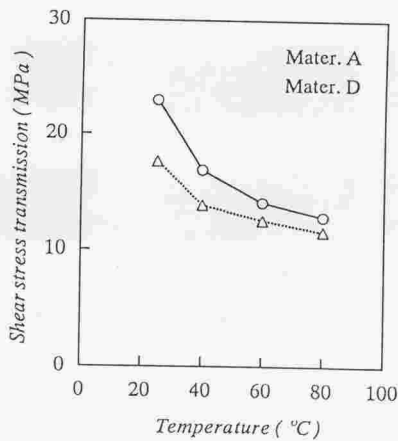


Figure 2-8(b). Relation between temperature and interfacial shear transmission.

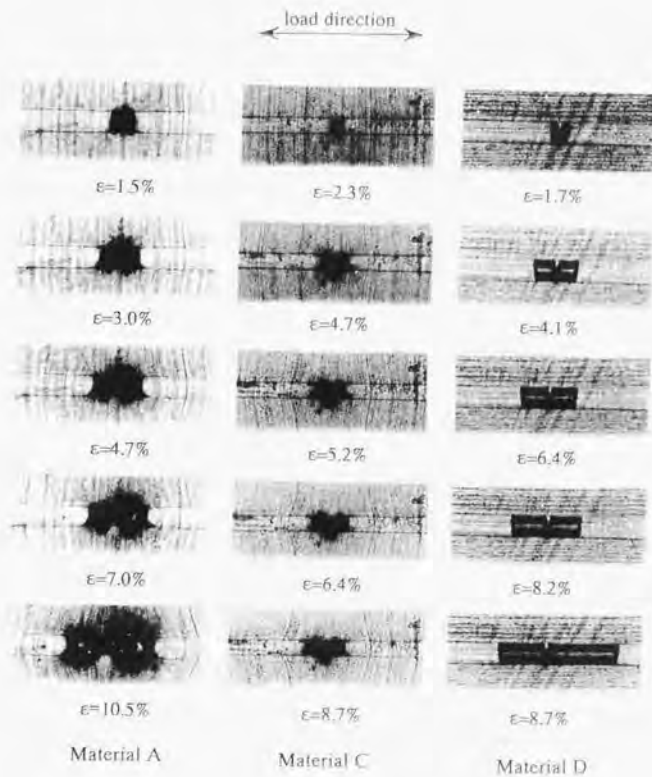


Figure 2-9. Optically observed failure sequence of single fiber composites at 25°C.

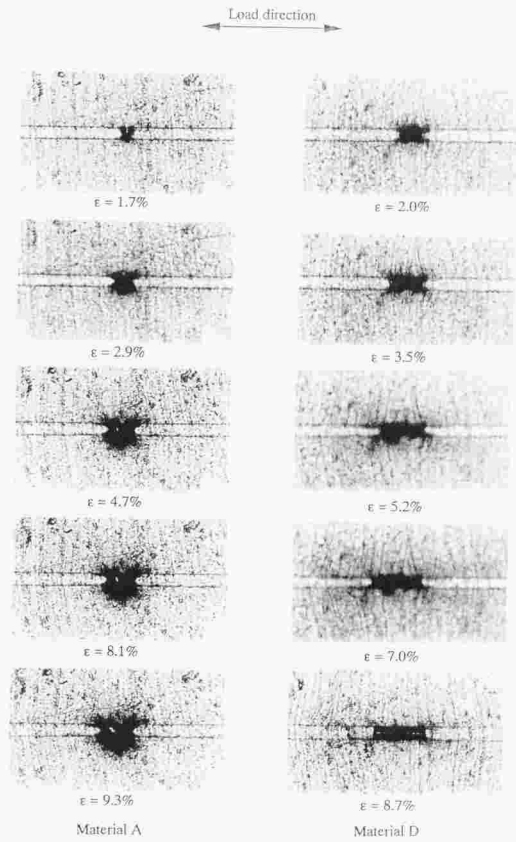


Figure 2-10. Optically observed failure sequence of single fiber composites at 80°C.

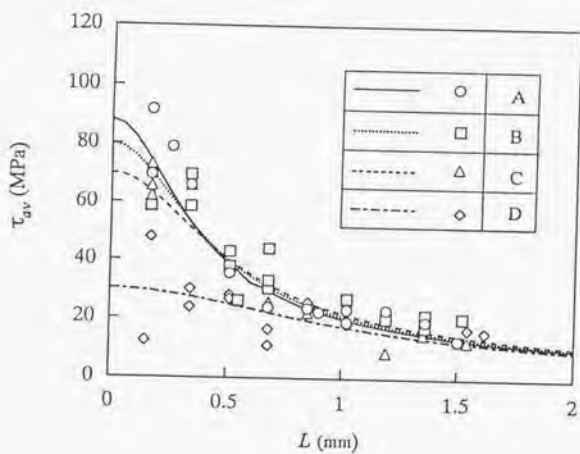


Figure 2-11. τ_{av} vs. L for single fiber pull-out tests.

Table 2-3. Results of single fiber pull-out tests.

Material	τ_{max} (MPa)	α (1/m)
A	88	4400
B	80	3800
C	70	3180
D	30	1580

$$\alpha = \left[\frac{2G_i}{b_i R_f E_f} \right]^{\frac{1}{2}}$$

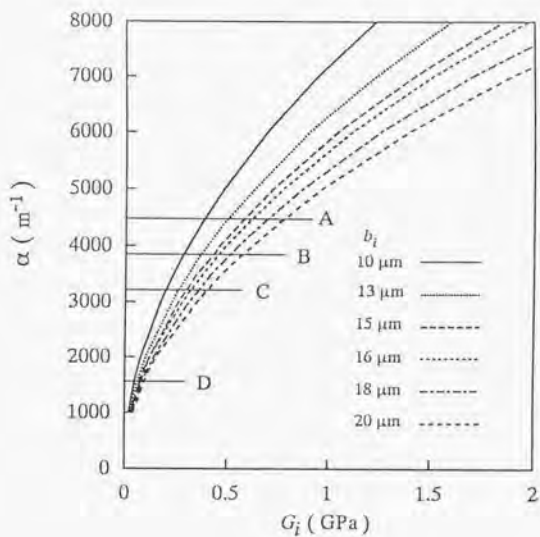


Figure 2-12. Variation in α with respect to G_i for different thickness of b_i .

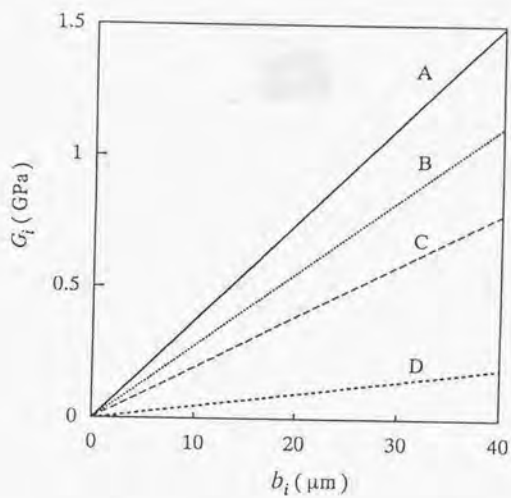
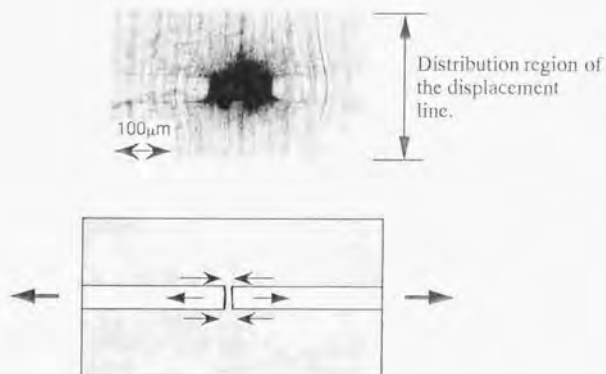


Figure 2-13. Variation in b_i with respect to G_i .



Interfacial shear stress acting along interfaces

Figure 2-14. Distribution of the displacement field near a fiber break ends.

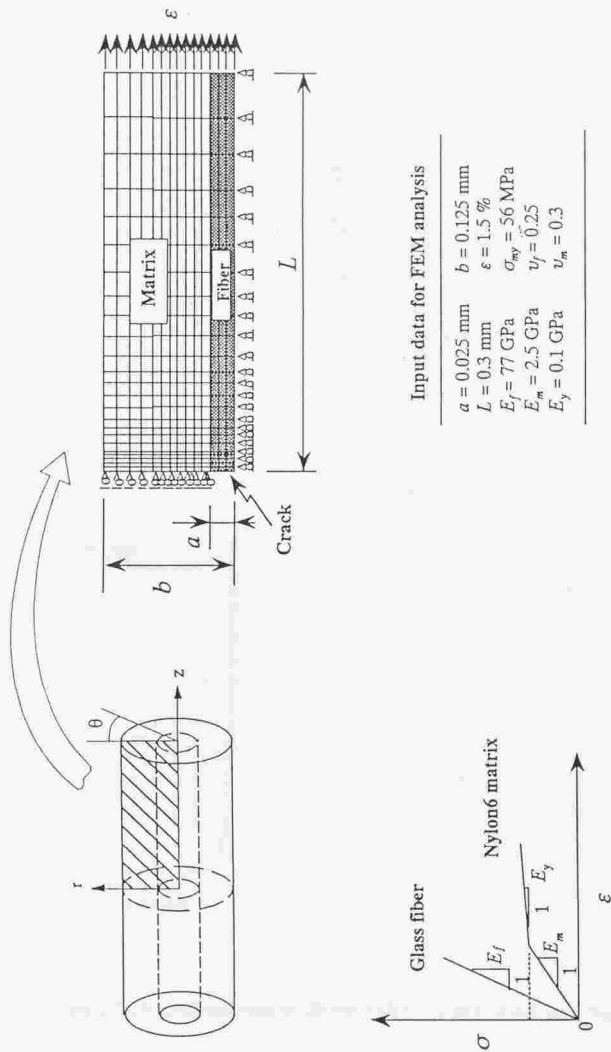
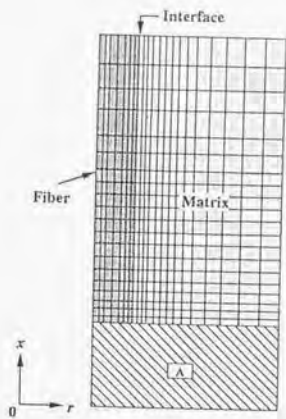


Figure 2-15. Axisymmetric model for elasto-plastic finite element analysis.



Detail of region A

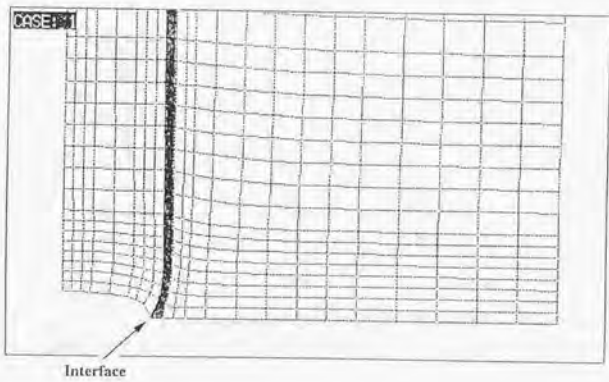


Figure 2-16. Deformation of the each element near crack tip (region A).

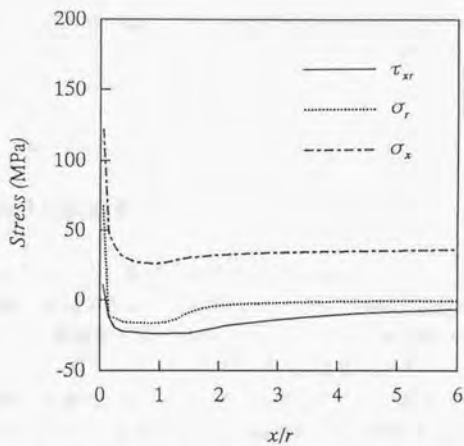


Figure 2-17. Stress distributions along the fiber/matrix interface obtained from finite element analysis.

第3章 ランダム配向短繊維強化複合材料の 巨視的力学特性と破壊挙動

3.1 緒言

本章では、ランダムに配向させたガラス短繊維強化ナイロン6熱可塑性樹脂複合材料について、第2章の単一繊維強化複合材料の場合に用いたと同じ4種類の異なる繊維表面処理がこの材料の巨視的力学特性である引張強度、静的面内破壊靱性や落錘衝撃破壊特性に与える影響を調べる。また、超音波顕微鏡 (Scanning Acoustic Microscope: SAM) 及び走査電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscope: SEM) 下での負荷過程中的その場観察により微視的な変形・損傷・破壊プロセスの詳細な検討を行って、巨視的な力学特性との相関関係を明らかにする。これにより単一繊維強化複合材料から得られる基礎的物性データから実用のランダム配向ガラス短繊維強化ナイロン6熱可塑性樹脂複合材料の巨視的力学特性が予測できることを示す。

3.2 実験方法

3.2.1 材料及び試験片

供試材はランダムに配向させたガラス短繊維強化ナイロン6熱可塑性樹脂である。試験片は以下のように作製した。まず、繊維表面処理効果を調べる目的で第2章の単一繊維強化複合材料に用いたと全く同じ繊維表面処理を用いた。すなわち、カップリング剤と助剤が同一、接着剤が異なる3種 (材料 A, B, C) および助剤と接着剤あり、カップリング剤なしの (材料 D) 計4種の異なる表面処理で試作した長さ3 mmのガラス短繊維 (平均繊維直径13 μm) を用意した。次に、Fig. 3-1に示した手順で、ガラス繊維重量含有率30%になるようにナイロン6ペレット (東レ・アミラン CM107) とよく混合し、270 $^{\circ}\text{C}$ で押し出し成形して混合ペレットを作製した後、このペレットを射出成形後のシリンダー温度260 $^{\circ}\text{C}$ 、型温度65 $^{\circ}\text{C}$ の条件で射出成形して試験片を作製した。試験片中の平均繊維長さは250~300 μm であった。射出成形板の寸法は75 \times 85 \times 3 mm^3 であり、ASTM D 638規格に伴うダンベル形の引張試験片のゲージ部の長さは60 mm、幅が12.5 mm、厚さが3 mmである。試験片中の短繊維はほぼ面内に向いているが2次元ランダムではなく、厚さ方向の位置により配向度が異なる。すなわち表面層では主として繊維は射出方向に向いているのに対し、内部のコア層ではむしろ射出方向に垂直な方向に向いている^(20,21)。試験片は試験前ま

で約 20 %の湿度を維持するようにデシケータ中で保管した。

3.2.2 引張試験

複合材料の引張強度特性に及ぼす繊維表面処理、温度および負荷速度の影響を調べるために、単軸引張り試験が 25 °C (室温)、60 °C および 80 °C の温度で、また、クロスヘッド速度 0.5~15 mm/min で実施された。試験の結果得られた応力-歪み曲線から、各試験片のヤング率は応力-歪曲線上における初期傾きとして求めた。また、引張強度は試験片の最大応力 (樹脂の場合は降伏応力) で与えた。試験片の形状と寸法は Fig.3-2 に示す。

3.2.3 衝撃試験

衝撃試験は、次の2通りの方法で行った。第1は、簡便なデュポン式落下衝撃試験機を用いるもので、半径 12.7 mm の半球部を先端にもつ丸棒とそれに合致する半径 12.7 mm の半径状凹みをもつ受台との間に GFRP 試験板を置いて、300 g の重錘を一定の高さから丸棒上部に落下させ、試験板の引張り側の表面にき裂が生じる限界落下高さまたは衝撃エネルギーを求めるものである。テスト方法は JIS K7211 に準拠し、50 %破壊衝撃エネルギー E_b を求めた。第2は、計装化落錘衝撃試験機 (Fig.3-3) を用いるもので半径 25.4 mm の円穴をもつ鋼製台上に置かれた試験板に、半径 10 mm の半円筒状先端部をもつ計装化されたタップを取付けた落錘を衝突させる。ただし、先端部の円筒軸方向を試験片の射出方向と一致させている。試験片貫通に要するエネルギーの約 2~3 倍の衝撃エネルギー 10 J (約 2 kg、3.2 m/s) を与え、動的荷重 (吸収エネルギー) - 時間線度を得た。衝撃試験は試験片温度 25 °C で行った。計装化落錘衝撃試験解析方法の詳細は文献⁽¹⁶⁾を参照されたい。

3.2.4 静的破壊靱性試験

衝撃負荷時のき裂発生、進展特性に対応すべく、静的面内き裂発生、進展特性を、Fig.3-4 に示すコンパクトテンション (CT) 試験片を用いて調べた。初期き裂長さ a_0 は、 $a_0/W = 0.5$ とした。き裂進展方向は射出方向と一致させた。ピン荷重 P と、クリップゲージにより計測される荷重線変位 δ とを記録するとともに、変形、破壊過程中的アコースティックエミッション (AE) 信号を、NAIS-AE 4800 システムを用いてモニターした。各試験片ごとに、き裂先端の基準音原からの信号が、常にある一定振幅で検出されるようにして、き裂進展を検知した。

ところで、後に示すように、試験片の応力-ひずみ線図にはかなりの非線形領域が存在する。また、静的破壊靱性試験では、安定き裂成長を伴う損傷域が生じるため、線形破壊力学の応用には問題がある。このような材料には、非線形性も組み込める J 積分概念の適用が有効と考えられる。ここでは、一本の試験片のみを使うMerkleとCortenの式を用いる方法⁽¹⁷⁾により、変位 δ に対する J 値を求め、き裂が安定成長する限界変位 δ_c より、対応する限界 J 値(J_c)を求めた。

3.2.5 SAMその場観察

Fig.3-5に示すように、SAM(オリンパスUH-3)により、表面または表面下($z < 0$)における x - y 平面内にスキャンされた超音波映像を得た。まず、r. f. パルス入力を圧電トランスデューサに供給することにより、サファイアロッドに縦波平面波を発生させる。蒸留水を媒体として使用し、サファイア/水界面が音響レンズを構成する。縦波は表面上または表面下の1点に集束される。反射波は逆の経路を戻り、増幅後信号処理され、1点の反射波強度が記録される。以上の測定を x - y 平面内にスキャンすることにより反射波強度分布が映像化される。反射波は試験片の弾性係数、密度、粘性に依存する。本試験では200または400 MHz音響レンズを用いた。引張り荷重下でコンパクトテンション(CT)試験片のき裂先端近傍の微視的損傷プロセスのSAMその場観察を行うためにFig.3-6に示すような負荷装置が用意された。

3.2.6 SEMその場観察

ランダム配向短繊維複合材料の微視的損傷・破壊挙動を調べるために引張負荷下のSEMその場観察を行った。試験片は最初に射出成形板(75×85×3mm³)から射出方向を長手方向にしてFig.3-7に示すようなサイズで切り出し、試験片中央部にダイヤモンドブレードを用いてノッチ先端半径0.05mmの片側ノッチを入れた。試験片の表面(40×3mm²)を研磨した後SEM観察のために金で真空蒸着した。試験片はSEM内のミニ引張負荷装置(スパン長さ50mm)にセットし、0.05mm/sの一定変位速度で引張荷重が与えられた(Fig.3-8)。試験片が破壊するまで少しずつ荷重を増加させながら連続的に微視破壊形態と破壊プロセスを調べた。

3.2.7 破面観察

引張試験、静的面内破壊靱性試験、落下衝撃試験後の破面を、走査電子顕微

鏡 (SEM) を用いて観察した。破面に金を真空蒸着した後、典型的な破面を観察し、微視的破壊メカニズムを検討した。

3.3 実験結果および検討

3.3.1 引張強度特性

Fig.3-9は室温での引張応力-歪曲線を示す。複合材料は荷重の増加につれてほぼ線形的な変形を示し、引張強度の約76%点付近から非線形的な挙動を示しながら急激に脆性的に破壊する。界面せん断強度が一番高いA材と一番低いD材を比べると引張強度および最大歪はA材がD材のほぼ1.5倍であることがわかる。また、破壊までのエネルギー（応力-歪曲線下の面積に対応する値）もA, B, C, D材の順に大きい。一方、剛性は界面せん断強度変化に影響されない。また、ナイロン6マトリックス樹脂は $\epsilon = 1.6\%$ 付近から非線形的挙動を起こし、ほぼ $\epsilon = 250\%$ まで変形した後最終破壊に至る。したがって、複合材の応力-歪挙動は繊維/マトリックス樹脂間の界面の応力伝達能力に非常に依存することがわかる。Fig.3-10と3-11は引張強度（樹脂の場合は降伏応力）および弾性率に及ぼす温度と負荷速度の影響を複合材料A, Dやナイロン6マトリックス樹脂に対して調べた結果を示す（ここで、 σ と E は25°C（室温）およびクロスヘッド速度0.5mm/minでの引張強度および弾性率の値で標準化したものである）。温度が上がるにつれて強度と弾性率共に低下する。特に、マトリックス樹脂については、その特性の低下の割合が大きいことから、高温での複合材料の力学的特性はマトリックス樹脂の温度依存性にかなり影響されると思われる。また、負荷速度の影響は温度に比べると小さいが、速度の増加につれて強度と弾性率はやや高くなる傾向が見られる。

3.3.2 衝撃破壊特性

衝撃破壊試験後の試験片の様相をFig.3-12に示す。デュポン式落下衝撃試験機を用いた試験における、初期発生表面き裂は常に射出方向に伸びている。これは前述の繊維配向効果によるものである。一方、計装化落錘衝撃試験機を用いた試験においては、十分大きな衝撃エネルギーが与えられ、試験片は貫通している。衝撃試験結果のまとめをTable 3-1に示す。デュポン式落下の衝撃試験から得られた E_{50} 値は $D < C < B$ の順であり、DはBの約69%、CはBの72%である。一方、計装化落錘衝撃試験より得られた動的荷重-時間（変形）の線図の例（材料B, C）をFig.3-13に示す。動的荷重の正確な測定を困難にする試験系に固有の振動は、負荷初期にのみ見られるが、あまり大きくない。まず、第1ピ

ーク時の荷重値 P_1 (対応する吸収エネルギー E_1) は、上述の E_{90} 値と同様、引張り側の表面き裂発生に伴うものと考えられるが、B、C、Dの E_1 の比が E_{90} の比と異なるのは、主として両試験機において与えた衝撃エネルギーの違いに伴う破壊プロセスの相違によると思われる。次に、各動的荷重-時間線図には、第1ピーク荷重以外にもき裂の進展、分枝などの破壊の進行に伴い第2、第3のピーク荷重 P_2 、 P_3 も生じる場合も多い。試験片ごとに破壊プロセスが異なるため P_2 、 P_3 値 (対応する吸収エネルギー E_2 、 E_3) を相互比較することは困難である。全吸収エネルギー E_t は比較する意味はあると考えられる。第1ピーク時の荷重値 P_1 は $D < C < B$ の順である。また、全吸収エネルギー E_t についても、 $D < C < B$ の順になっている。以上より、各材料間の比較及び材料適性としては、B材が、衝撃荷重が一番高いことから、界面強度が最も高く、衝撃吸収エネルギーも大きく、耐衝撃性が最も優れていることになる。それに対して、D材は界面強度が低くすぎて衝撃エネルギー-吸収はかなり低い。したがって、表面き裂発生が設計基準となる場合にはD材は不適である。

3.3.3 静的破壊靱性

Fig.3-14に $P-\delta$ 線図と対応するAEエネルギーの例を示す。 $P-\delta$ 線図の初期傾き、最大荷重共に材料D、C、Bの順に大きいことが明らかである。いずれの $P-\delta$ 線図もかなりの非線形性をもつため、 J 積分概念の導入が必要である。き裂進展後の試験片写真をFig.3-15に示す。き裂先端部における損傷が、B、C材ではき裂長さ方向にのみ伸びているのに対し、D材ではき裂線上から離れた領域にまで広がっている。き裂先端近傍の写真をFig.3-16に示す。D材では、繊維/マトリックス樹脂界面強度が低いことによるき裂の分岐が著しい。

Fig.3-17に $a_0/W = 0.5$ の場合のデータを使うMerkleとCortenの式⁽¹⁷⁾を用いて求めた $J-\delta$ 線図を示す。 J 値は変位の増加につれてゆるやかな曲線形状を示す。そして、ある一定変位においての J 値は $D < C < B$ の順であり、前述の衝撃破壊特性との密接な関係が示唆される。さらに、安定き裂成長時の J 値 (以下 J_s と示す) で比較しよう。ここでは、 J_s を累積AEエネルギー急増点 (δ_c) における J 値と定義する。この δ_c は、顕微鏡によるき裂先端部の観察による安定き裂成長時とはほぼ一致するが、より定量的な扱いが可能である。Fig.3-14より $a_0/W = 0.5$ の場合の δ_c を求め、Fig.3-17より対応する J_s を求めると、Table 3-2が得られる。各材料の J_s の傾向は上述の E_{90} 、 P_1 の傾向とよく一致していることから、一方の結果からもう一方の結果が推定できる可能性が示唆される。

3.3.4 微視的破面解析

繊維とマトリックス樹脂間の接着における繊維表面処理および温度の影響を引張試験後の破面の形態から検討する。Fig.3-18は室温においてのA材とD材の代表的な破面様相を示す。A材の場合には、繊維引抜き長さがかなり短く(平均 $30\mu\text{m}$)、引き抜き後のマトリックス樹脂の穴と周辺の樹脂がかなり変形した様子がわかる。これは繊維とマトリックス樹脂間の良い接着により繊維が引き抜かれるとき、マトリックス樹脂に相当に大きな変形が与えられたと考えられる。また、マトリックス樹脂の塑性変形が著しく、引き抜かれた繊維表面にはマトリックス樹脂の薄い膜がかなり残されている。この残存マトリックス樹脂の存在から界面の微視破壊は界面での単純なはく離ではなく、界面に隣接したマトリックス樹脂の凝集破壊であることが予測できる。これは界面せん断強度がマトリックス樹脂のせん断強度より高いことを示唆する。これに対し繊維とマトリックス樹脂間の界面強度が低いD材の場合は、界面での剥離が生じやすく、引き抜かれた繊維の長さが比較的長く(平均 $100\mu\text{m}$)、繊維表面に樹脂はほとんど残っていない。また、引抜き後の穴も明らかであり、その周辺のマトリックス樹脂表面も比較的なめらかな形態を示す。これはマトリックス樹脂が繊維の引き抜きにほとんど拘束の役割を果たさなかったことを示す。このように複合材料の微視的破壊メカニズムは繊維/マトリックス樹脂界面の微視力学的特性と密接な関連性がある。

Fig.3-19は 80°C の高温においてのA材とD材の代表的な破面様相を示す。室温の場合と比べると両者いずれもマトリックス樹脂がかなり変形したことが認められる。一方、引き抜かれた繊維表面には依然として樹脂の残滓が多く残っていることから 80°C の高温でも繊維/マトリックス樹脂界面接着が十分に保持されることがわかる。したがって、この材料の力学的特性の低下はマトリックス樹脂の劣化に起因するといえる。

3.3.5 SAMによる微視的破壊特性評価

材料B、Cの引張負荷下き裂先端近傍における微視的変形・損傷プロセスをSAMにより観察した超音波映像がFig.3-20、Fig.3-21、Fig.3-22に示す。ここで超音波映像は焦点を試験片の表面にあわせて得られた。一般に超音波映像のコントラストの成因は、次の4項目に分類される。

- (1) 試料中の反射率の差によるコントラスト
- (2) 試料形状から生じる透過散乱によるコントラスト
- (3) 試料中の表面波速度の差によるコントラスト
- (4) 試料中の吸収の差によるコントラスト

観察したFRTP試験片の表面状態は良好で、形状凹凸が原因で生じる透過散乱によるコントラストは無視できる。したがって、(1)、(3)、(4)について順次考

察する。(1)試料中の反射率の差によるコントラストは、音響インピーダンスに差によるコントラストに置き換えて考えられる。反射率Rは一般に次式で表される。

$$R = \left\{ \frac{Z_1 - Z_2}{Z_1 + Z_2} \right\}^2 \quad (1)$$

ここで、 Z_1 、 Z_2 は音響インピーダンスを示す。FRTPに分散している繊維と樹脂相のコントラストは繊維、樹脂それぞれの音響インピーダンスの差、すなわち、上記(1)が原因で生じている。このため、SAMで得られる繊維と樹脂相の境界は、光学顕微鏡のそれに比べてかなり明瞭に識別できる。また、走査型電子顕微鏡ではフラットな面は観察しにくい、SAMでは可能である。さらに、繊維／マトリックス樹脂間のディボンディングに伴うコントラストもこれが原因である。ディボンディング領域は輝度がきわめて高くなることから知られる(例：Fig. 3-20のステージ3、4を参照)。

さて、Fig. 3-21(a)に示したき裂先端部での超音波映像のコントラストについて考えよう。焦点深度が深くなるとコントラストは明確に変わる。き裂先端部で観察された白いコントラストの領域は塑性変形域であり、(3)の試料中の表面波速度の差によって生じるものと思われる。

Fig. 3-21(b)には除荷後のSAMの表面映像からき裂進路に沿う明確な超音波コントラストを示す。式(1)で、水の音響インピーダンス Z_1 、樹脂相のインピーダンス Z_2 とする。この場合 Z_1 、 Z_2 の値は非常に近いため、音響の反射は小さい。残留塑性変形域で測定された吸収はき裂進路近傍で3~9dBにも達している。このように表面焦点であるにもかかわらずき裂両側に見られるコントラストは主に(4)の試料中の残留塑性変形が生じている領域と生じていない領域における吸収の差による。

一方、試験材料による微視的損傷プロセスの相違をFig. 3-20とFig. 3-22に示す。まず、材料Cの場合、ステージ1でき裂先端近傍の塑性変形の成長がはじまる。また、ステージ2でマトリックス樹脂の微小き裂の開口が生じる。さらに、ステージ3で繊維／マトリックス樹脂界面とつながったマトリックス樹脂の微小き裂から繊維とマトリックス樹脂のディボンディングが発生し、音波の反射によりディボンディングされた繊維表面は輝度がきわめて高くなることからわかる。またステージ4では繊維のブリッジング様相も認められる。その後、ステージ5で繊維の引き抜きが生じ、引き抜かれた繊維の周辺ではマトリックス樹脂の応力緩和が観察される。繊維の引き抜き過程はこの材料の最大荷重に対応するステージ6で終わる。除荷時のステージ7、8においては、永久損傷が生じ、負荷前の状態にはもどらないことがわかる。

一方、繊維／マトリックス樹脂界面強度がより高いB材の損傷進展プロセス

はFig.3-22に示したようになり異なる。強い界面接着により、全体的に、マトリックス樹脂内に塑性変形の発生、拡大成長が支配的で、マトリックス樹脂の微視割れや繊維ディボンディングはあまり生じないことが認められる。また、相当な塑性変形が生じる領域では繊維のブリッジングも観察される。

以上から明らかなように、繊維/マトリックス樹脂界面特性の相違が、微視的変形・破壊プロセスの相違を引き起こす。

3.3.6 SEMその場観察による微視的変形・破壊プロセスの検討

負荷を与える以前の試験片(A材)の表面をFig.3-23に示す。繊維、マトリックス、繊維/マトリックス界面のいずれの場合においても損傷は認められなかった。試験片に荷重を加えると微小き裂が繊維端周辺のマトリックス樹脂内で観察された。Fig.3-24は繊維端での微小き裂の典型的な例である。これは試験片の破壊荷重の約75%の荷重下で得られた。微小き裂は繊維端周辺での引張応力集中によって発生したと思われる。荷重を少しずつ増加させていくと、マトリックス樹脂と繊維端間の界面での分離が生じ、そこで微小ボイドが形成される。荷重をより増加させるとせん断モードの微小き裂が繊維端から繊維側面の界面に沿ってマトリックス樹脂内で発生し、伝播することが認められた。Fig.3-25は繊維端界面で形成されたボイドと繊維側面に沿う界面の微視破壊の典型的な例を示す。これは破壊の約85%での荷重下で得られた。界面微視破壊は繊維側面に沿うせん断応力集中によって発生したと考えられる。荷重が破壊点近傍まで増加するとFig.3-26に示したように微小き裂のバンドが界面微視破壊から伝播されマトリックス領域にまで広がることが観察された。このようなバンドは局所的な領域でのマトリックスの塑性変形に起因すると思われる。荷重がさらに増加すると塑性変形バンド内の相当な応力集中によりマトリックスが裂ける。これはFig.3-27に示したようにマトリックス内のき裂開口(Crack opening)発生の要因になる。そして、このようなマトリックス内のマクロなき裂がある臨界長さまで成長すると、このき裂は相当に早い速度で伝播し試験片の最終破壊をもたらす。Fig.3-28は試験片破壊直前のき裂面上を示したもので、繊維の引抜きを伴うマトリックス樹脂の脆性的なき裂伝播様相が認められる。

以上のような微視破壊の発生と成長を応力分布に基づいて検討してまとめることとなる。

- 1) 負荷応力下でほぼ負荷方向に向いている繊維周辺、特に繊維端で高い応力集中が生じる。このように集中された応力の影響によって最初の微視き裂は繊維端で発生する。
- 2) 応力の増加に伴って繊維側面に沿うマトリックスはせん断応力集中を受け

る。せん断変形が臨界値に達すると、界面微視破壊は繊維端から繊維側面に沿って伝播する。

- 3) このような界面微視破壊の結果として、繊維の荷重能力は相当に減少されマトリックスが荷重の大部分を保持することになる。そこで、マトリックス内の相当な応力集中は周辺の界面き裂にも影響されて微視き裂のバンドを生じさせる。バンド内のマトリックスが変形限界に達するとマトリックスの塑性破壊が生じ、これが突発的なマトリックス内のき裂伝播につながって複合材の最終的破壊が発生する。

Fig.3-29 と 3-30 は繊維表面処理が異なるA材とD材に対してノッチ先端近傍の微視的変形・破壊挙動を観察した結果を示す。A材の場合は繊維端部における応力集中によって微小き裂が発生し、その後荷重増加に伴い、繊維の破断と微小き裂の拡大成長によるポイドの生成、さらに樹脂との分離が発生する。また、繊維端部の繊維側面に沿う界面き裂の発生は応力レベル $\sigma_{max} = 114 \text{ MPa}$ に達するまではほとんど見られない。さらに荷重を増加するとノッチ先端でマトリックス樹脂の塑性流動が発生し繊維端部を起点として発生成長した局部的破壊との合体より複合材料の最終的な破壊に至る。これに対し、D材の場合は繊維/マトリックス樹脂界面強度が低いため、比較的低い荷重下で繊維端および界面でき裂が生じ、より大きな速度で進展する。とくに、A材に比べて繊維の側面に沿う界面はく離の様相が顕著であり、この界面き裂の拡大進展により樹脂との分離が生じ、隣接した繊維端および界面でのき裂との合体によって最大応力 $\sigma_{max} = 120 \text{ MPa}$ 近傍で急激な破壊が起こることが観察される。

3.3.7 巨視的力学特性及び微視的変形・破壊プロセスのモデリング

Fig.3-31は短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料について、繊維/マトリックス樹脂界面せん断強度とこの材料の巨視的力学特性の関係をまとめたものである。

一般的に、熱硬化性樹脂複合材料について、弱い界面をもつ場合は、比較的強度や剛性が低いが、破壊に対して大きい抵抗を持つ。一方、強い界面接着を持つ場合では、高い強度と剛性を有するが、非常にノッチに敏感な脆性的であることが知られている。しかしながら、本研究では、界面せん断強度が高くなるに伴って複合材料の引張強度、静的面内破壊靱性や落錘衝撃破壊特性)のすべてが増加する。とくに、ノッチ材(静的面内破壊靱性や落錘衝撃破壊特性)に対するその傾向はより大きい。このように複合材料の静的強度および破壊靱性に及ぼす界面の効果は必ずしも一致してない。この効果はき裂伝播中の繊維とマトリックス樹脂間の相互作用を含む微視的損傷メカニズム(繊維破壊、繊維のはく離や引抜け、マトリックス樹脂の塑性変形など)と密接に関係する。

以上のように単一繊維強化複合材料から得られる基礎的物性データから実用のランダム配向ガラス短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の巨視的力学特性が予測できる。

Fig.3-32は短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の微視破面の検討および超音波顕微鏡 (SAM)、走査電子顕微鏡 (SEM) による微視的変形・破壊挙動を負荷下で直接観察した結果に基づいて、この材料の微視的変形・損傷・破壊プロセスをモデル化したものである。高い繊維/マトリックス樹脂界面せん断強度を持つ場合は、まず、繊維端の応力集中により端部にき裂が生じる。つぎに、繊維端周辺のマトリックス樹脂のせん断応力集中に起因して繊維側面に沿うマトリックス樹脂のせん断破壊が発生そして進展し、それがマトリックス樹脂内の局所的な塑性流動の拡大、伝播につながる。したがって、破壊メカニズムは主にマトリックス樹脂の塑性変形が支配的である。ここで、エネルギー散逸、すなわち破壊靱性を制御する最も重要なパラメータはマトリックス樹脂の塑性変形メカニズムである。これに対して、界面せん断強度が比較的低い場合は顕著な繊維/マトリックス樹脂界面はく離、それに伴い繊維の引抜きによる破壊メカニズムが複合材料全体の破壊を支配する。この場合は、界面破壊による繊維引抜きがエネルギー散逸メカニズムに重要な役割を演じる。

3.4 結言

ガラス短繊維強化ナイロン6熱可塑性樹脂複合材料について、引張負荷下き裂先端近傍における微視的な変形・損傷・破壊プロセスを超音波顕微鏡 (SAM) 及び走査電子顕微鏡 (SEM) 観察により明らかにした。とくに、異なる繊維表面処理が変形・損傷・破壊プロセスに与える効果を明らかにすることにより、破壊メカニズムの相違を明らかにした。また、これら微視的力学特性を巨視的な力学特性である引張強度、静的面内破壊靱性や落錘衝撃破壊特性と関連づけて検討した。主な結果を以下にまとめる。

- 1) 複合材料の応力-歪挙動は繊維/マトリックス樹脂界面の応力伝達性により依存する。温度上昇に伴う複合材料の強度や弾性率の低下はマトリックス樹脂の温度依存性により影響される。負荷速度の変化による影響は温度に比べればあまり大きくない。
- 2) デュボン式落下衝撃試験により求めた、試験板引張り側の表面にき裂が生じる、50%破壊衝撃エネルギー E_{50} は $D < C < B$ の順である。
- 3) 計装化落錘衝撃試験より得られた動的荷重-時間線図によれば、第1ピーク時の荷重値 P_1 (対応する吸収エネルギー E_1) は $D < C < B$ のであった。この第1ピーク荷重が生じる原因は、上述の E_{50} 値と同様、引張り側の表面き裂発生に伴うものと考えられるが、B、C、D各材料の E_1 の比が E_{50} の比と異なるのは、主として両試験機において与えた衝撃エネルギーの違いに伴う破壊プロセスの相違によると思われる。
- 4) ある一定変位においての J 値は $D < C < B$ の順であり、前述の衝撃破壊特性との密接な関係が示唆される。さらに、安定き裂成長時の J 値の傾向は上述の E_{50} 、 P_1 の傾向とよく一致していることから、一方の結果からもう一方の結果が推定できる可能性が示唆される。
- 5) 微視的な変形・損傷・破壊プロセスの負荷下その場観察により、繊維/マトリックス樹脂間の界面せん断強度が高い場合は、繊維端で発生した微小き裂は繊維端周辺のマトリックス樹脂のせん断応力集中により繊維側面に沿うマトリックス樹脂のせん断破壊を生じ、さらに進展し、マトリックス樹脂内の局所的な塑性流動の拡大、伝播につながって最終的破壊に至ることを示した。したがって、マトリックス樹脂の塑性変形が支配的な様相を示し、これがエネルギー散逸メカニズムを制御する最も重要なパラメータである。これに対して、界面せん断強度が比較的低い場合は、顕著な繊維/マトリックス樹脂界面はく離、それに伴い繊維の引抜きによる破壊様相が複合材料全体の破壊を支配し、界面破壊による繊維引抜きがエネルギー散逸メカニズムに重要な役割を演じる。

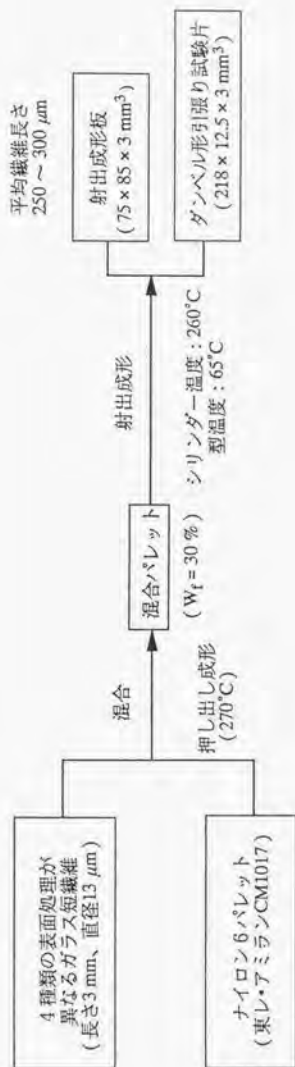


Figure 3-1. Molding process of glass short-fiber reinforced thermoplastic composites.

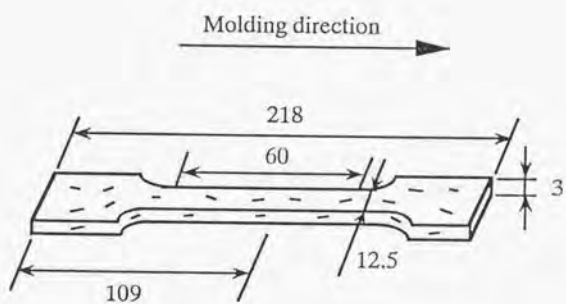


Figure 3-2. Tensile specimen configuration and dimensions (unit : mm).

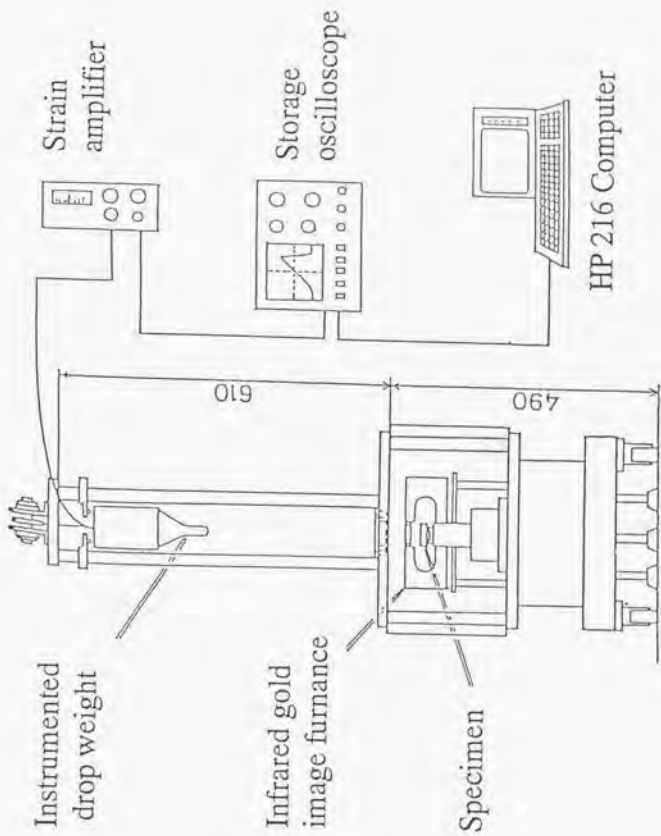


Figure 3-3. Instrumented drop-weight testing machine.

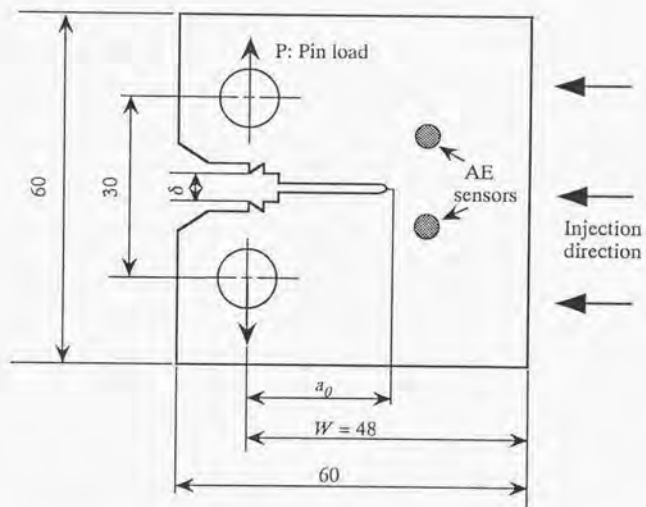


Figure 3-4. Compact tension (CT) specimen configuration (Unit: mm).

* Crack growth direction was chosen to correspond to the injection-mold direction, $a_0/w = 0.5$.

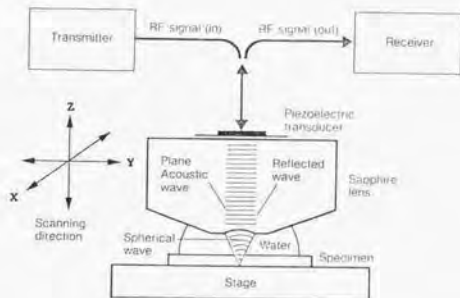


Figure 3-5. Schematic drawing of scanning acoustic microscope observation.

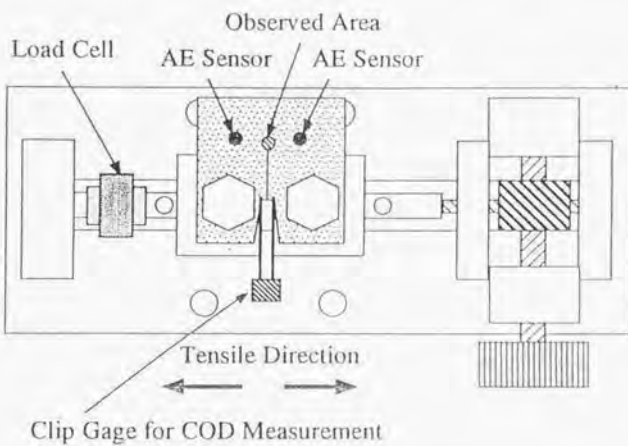


Figure 3-6. Loading apparatus for in-situ SAM observations in static in-plane fracture toughness tests.

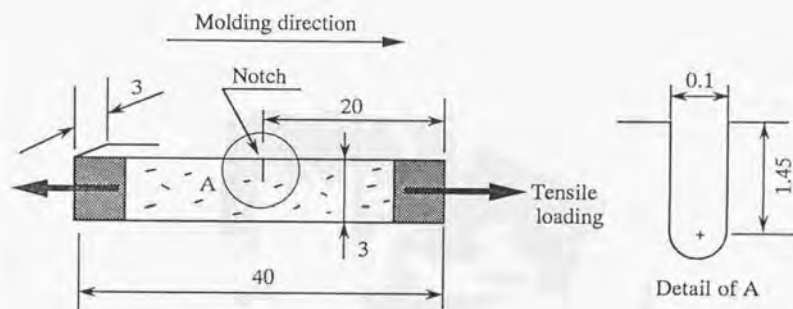
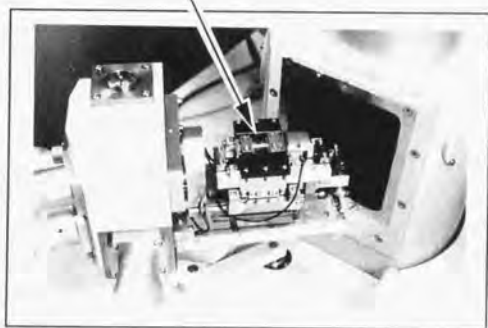
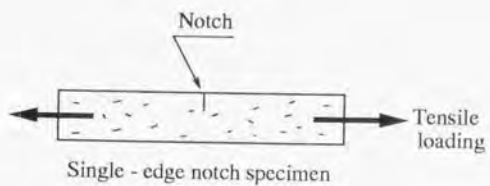


Figure 3-7. SEM specimen configuration and dimensions (unit : mm).



Loading stage

Figure 3-8. Loading apparatus for SEM observation.

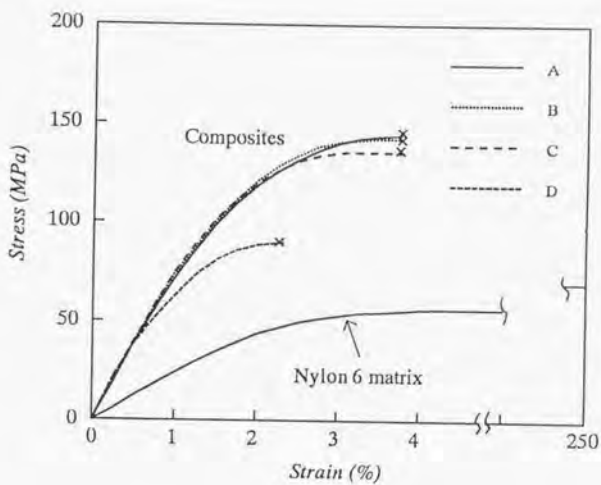


Figure 3-9. Typical stress-strain curves at room temperature.

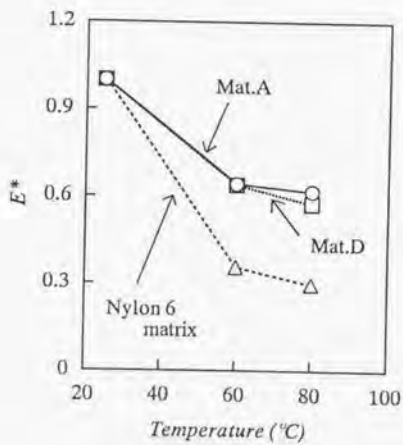
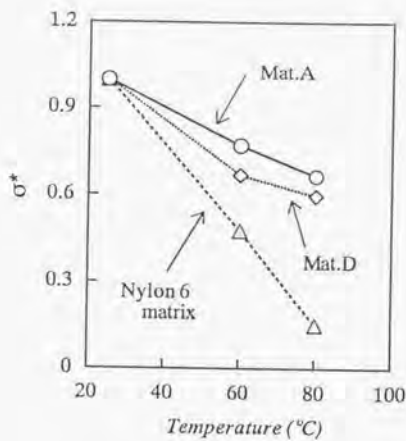


Figure 3-10. Normalized mechanical properties for short-fiber composites and nylon 6 resin matrix.

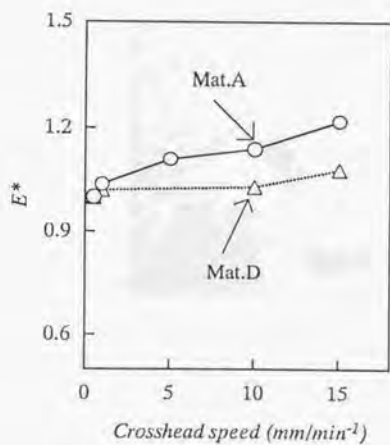
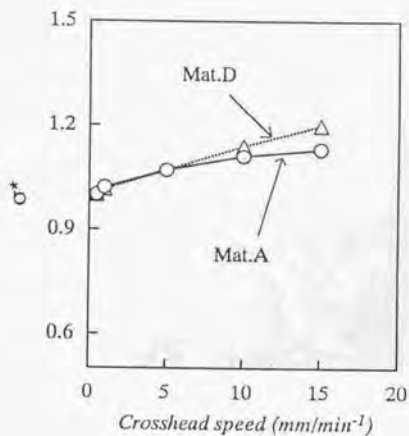
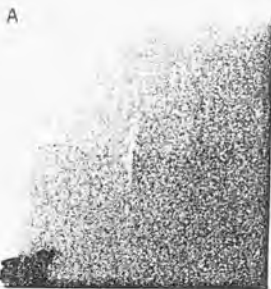


Figure 3-11. Normalized mechanical properties for short- fiber composites and nylon 6 resin matrix.



(Simple drop weight impact test)



(Instrumented drop weight impact test)

Figure 3-12. Specimen photos after drop-weight impact tests (Material D).

Table 3-1 Results of drop-weight impact tests.

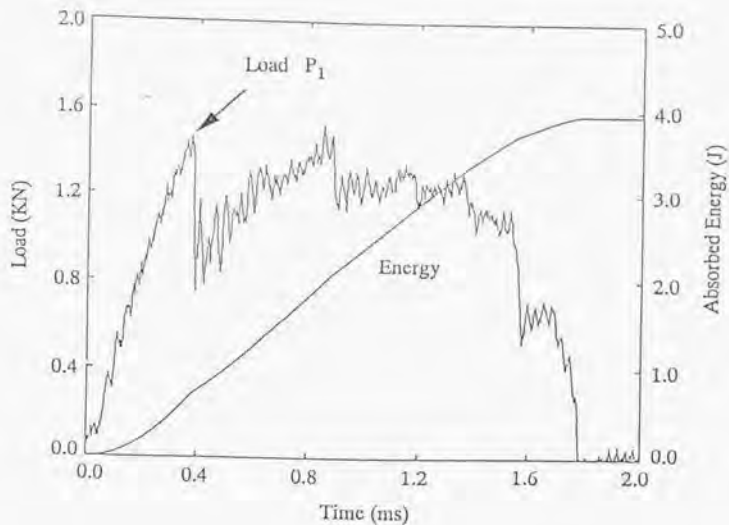
Material	E_{50} (J)	P_1 (KN)	E_1 (J)	E_t (J)
B	1.10	1.48	0.72	3.70
C	0.79	1.28	0.53	2.95
D	0.75	0.83	0.21	2.07

E_{50} : Fracture energy when 50% of specimens are cracked.

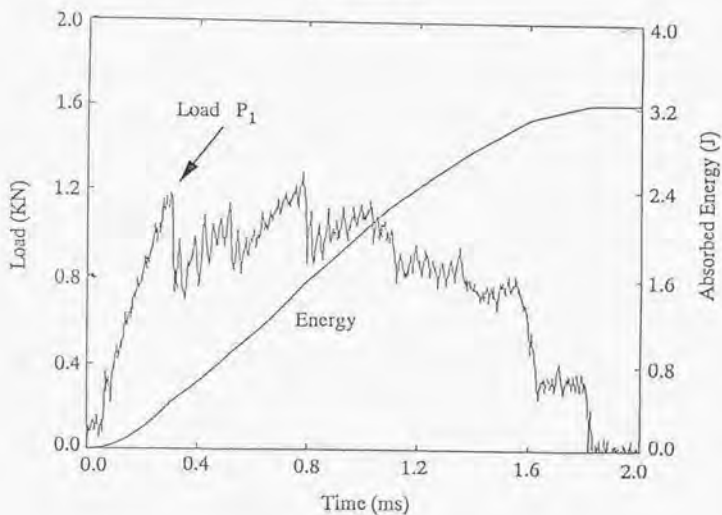
P_1 : First peak load.

E_1 : Absorbed energy at P_1 .

E_t : Total absorbed energy.



(Material B)



(Material C)

Figure 3-13. Dynamic load (absorbed energy) - time diagrams obtained from instrumented drop-weight impact tests.

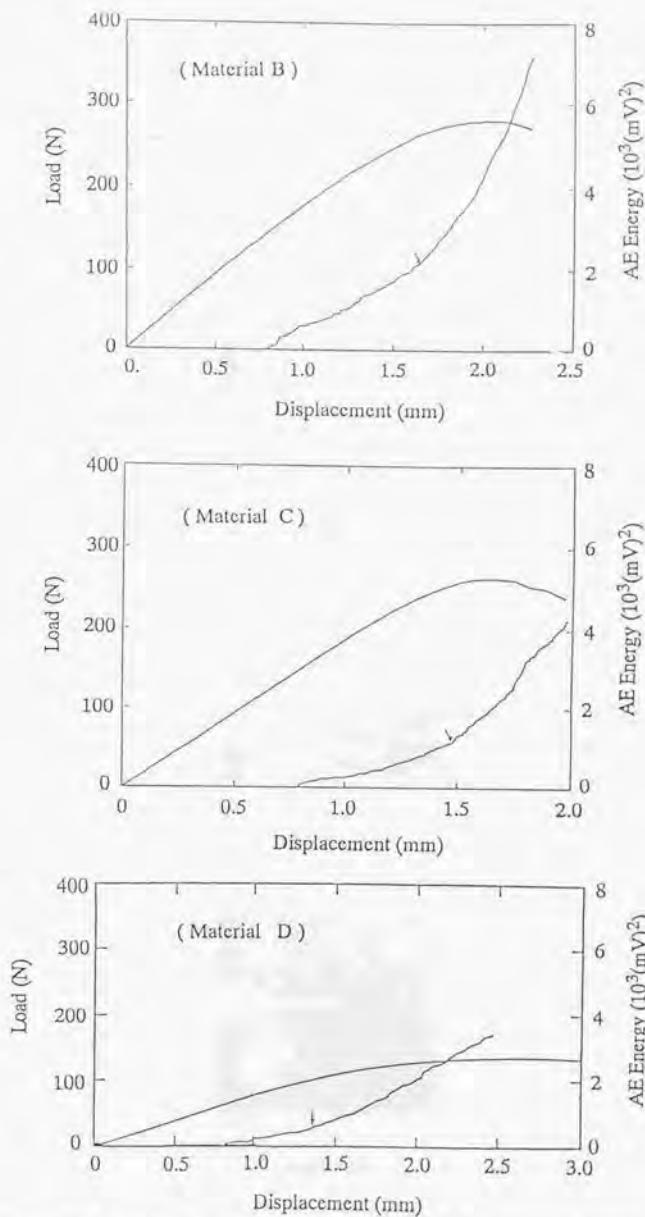


Figure 3-14. Load P-COD δ diagrams and cumulative AE energy in static in-plane fracture toughness tests.



(Material B)

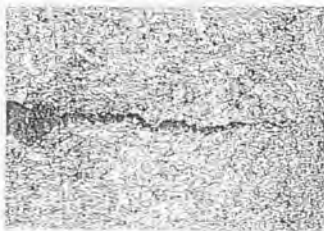


(Material C)

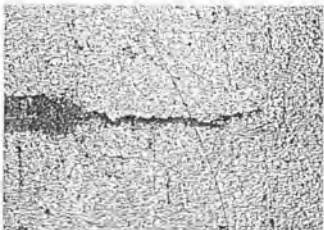


(Material D)

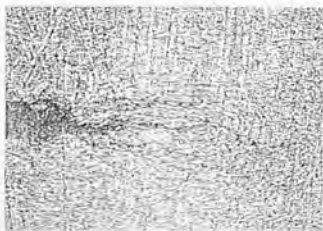
Figure 3-15. Specimen photos after crack propagation.



(Material B)



(Material C)



(Material D)

Figure 3-16. Fracture appearance near crack tip.

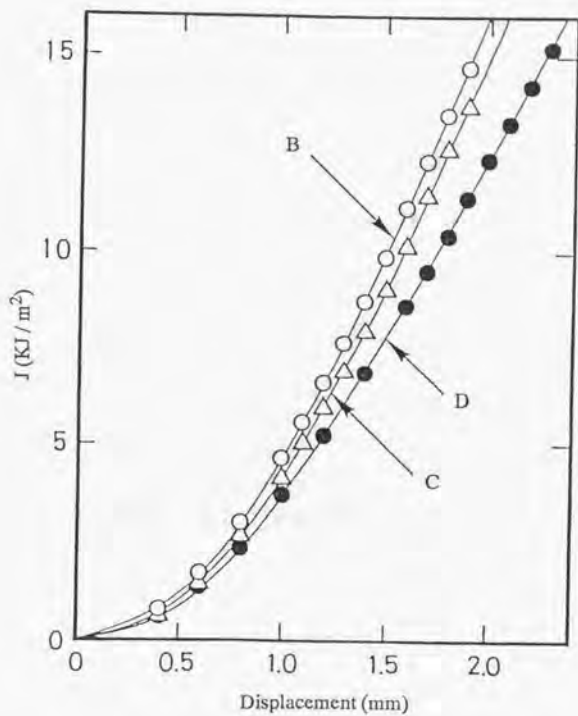
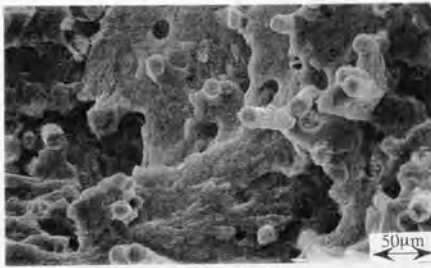


Figure 3-17. Comparison of J - δ diagrams.
 ($a_0/w = 0.5$, Mercle and Corten's method)

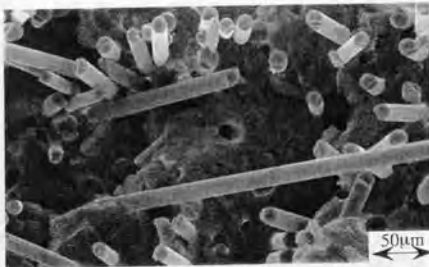
Table 3-2 Comparison of J_c values obtained from in-plane fracture toughness tests.

Material	δ_c (mm)	J_c (KJ/m ²)
B	1.70	10.3
C	1.45	7.8 [0.76]*
D	1.37	6.0 [0.58]

* Number in [] is the ratio of each material to value of material B.



Material A

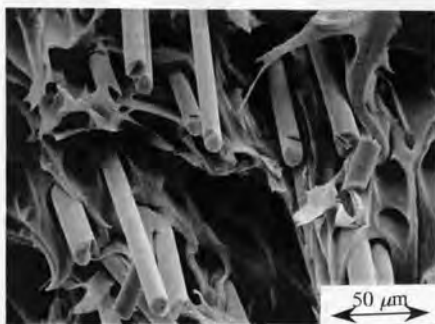


Material D

Figure 3-18. SEM micrographs of fracture surfaces of the composites at room temperature.



Material A



Material D

Figure 3-19. SEM micrographs of fracture surfaces of the composites at high temperature (80 °C).

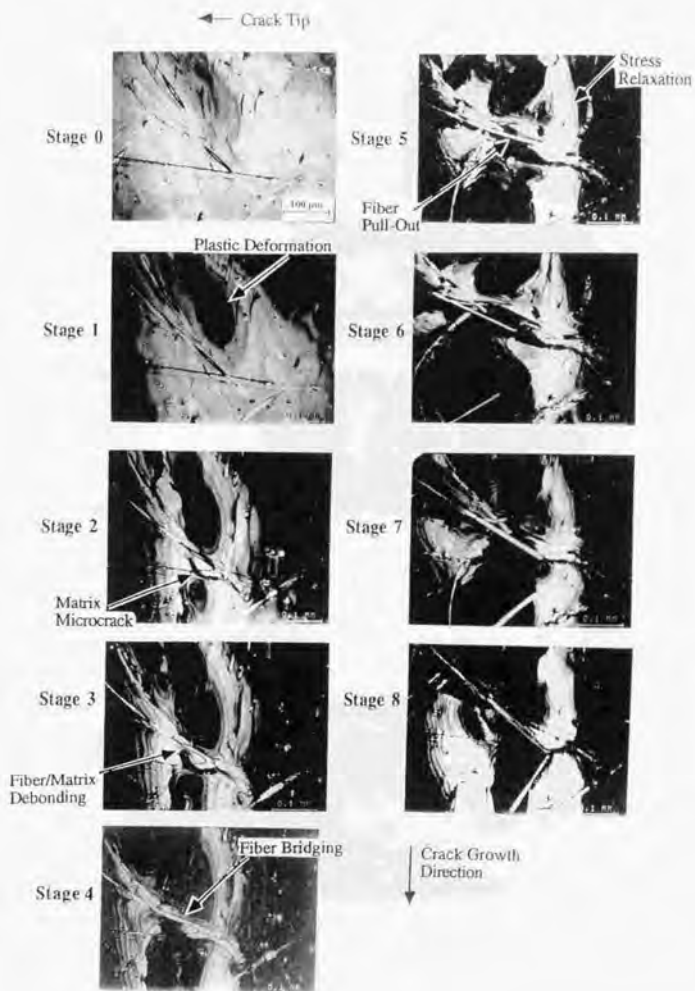
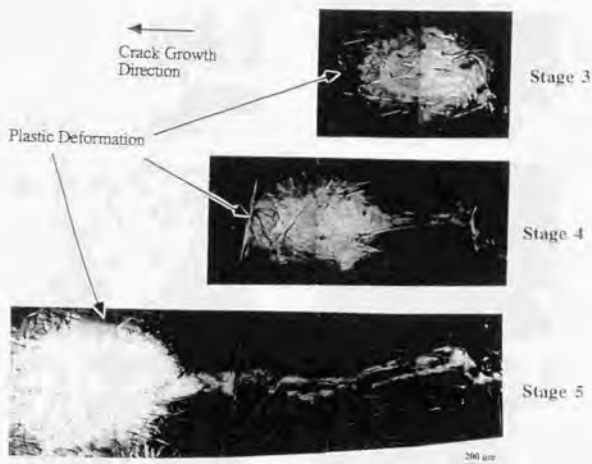


Figure 3-20. In-situ SAM surface images of damage progress near crack tip for material C.



(a) Image near crack tip under load.



(b) Image of residual plastic deformation after unloading.

Figure 3-21. In-situ SAM surface images along crack paths for material C.

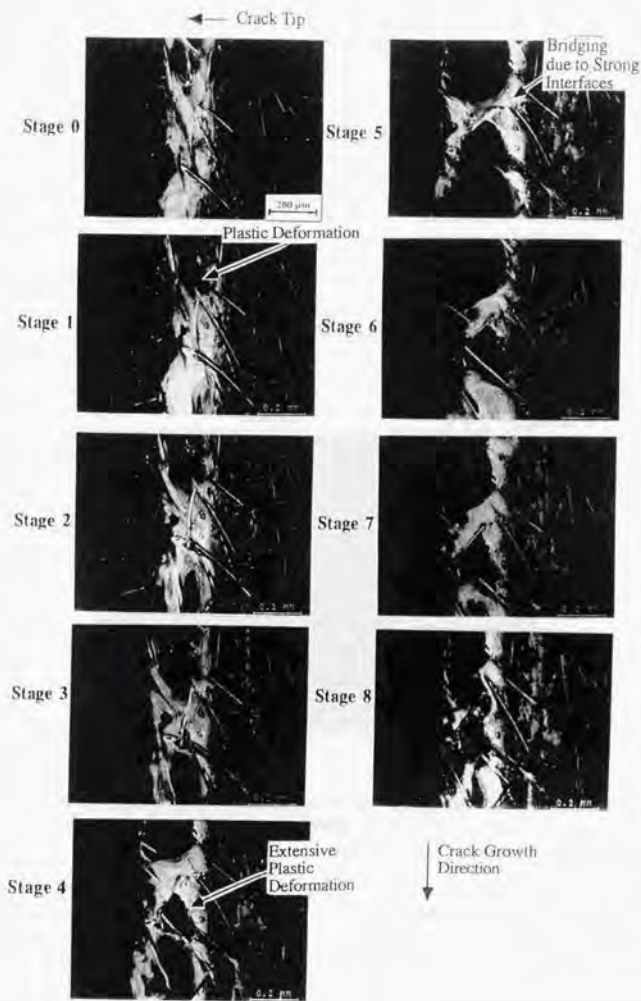


Figure 3-22. In-situ SAM surface images of damage progress near crack tip for material B.

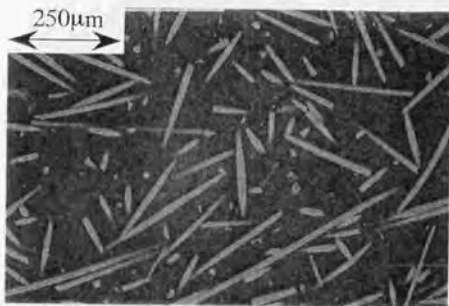


Figure 3-23. The surface of the specimen before loading, which was buffed and polished with alumina powder and coated with gold film.

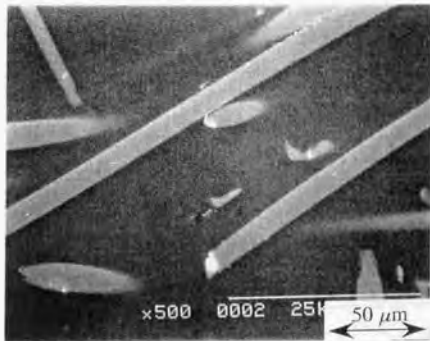


Figure 3-24. Microcracks occurring in the matrix around the fibre tips, which was obtained under about 75% of failure load.



Figure 3-25. Microvoid occurring at the interface separating the fibre tip from the matrix and interfacial microfailure along the fibre sides, which were obtained under about 85% of failure load.

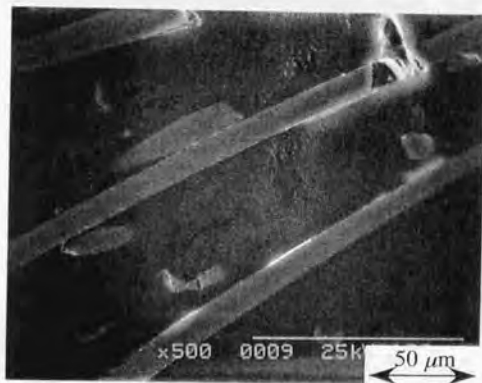


Figure 3-26. Band of microcracks in the matrix region, which was obtained under about 90% of failure load. The band indicates the occurrence of plastic deformation of matrix.



Figure 3-27. Crack opening occurring in the large plastic deformation band of the matrix, which was obtained under about 95% of failure load.



Figure 3-28. Fast crack propagation of the matrix with fibre pull-out, which was obtained under load just before failure.

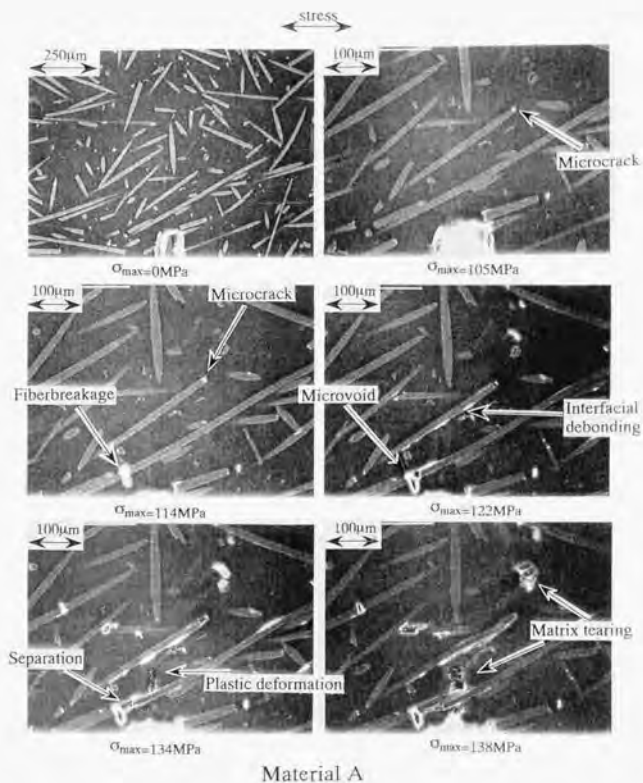


Figure 3-29. *In-situ* SEM surfaces images of fracture progress near a notch root for material A.

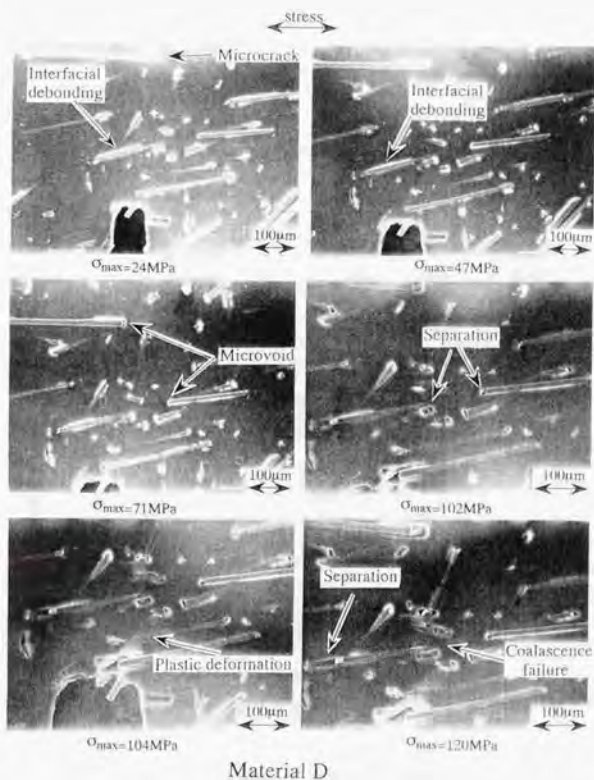


Figure 3-30. *In-situ* SEM surfaces images of fracture progress near a notch root for material D.

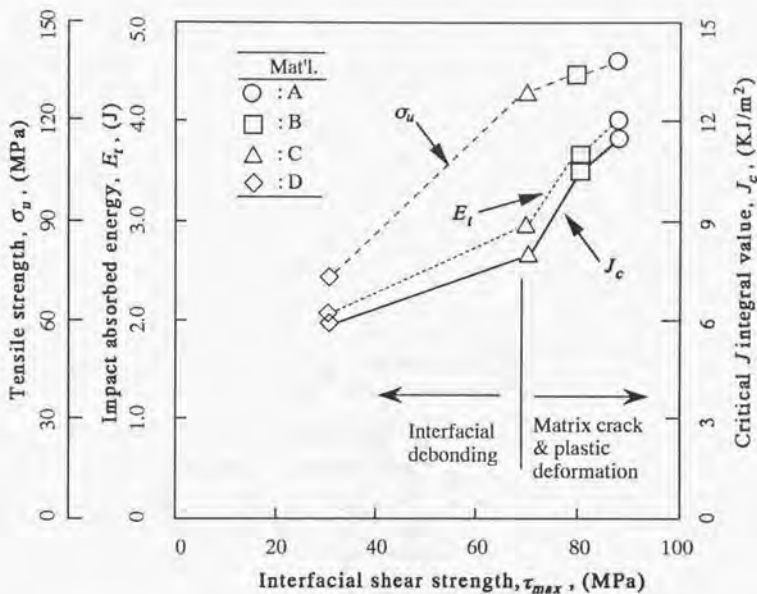
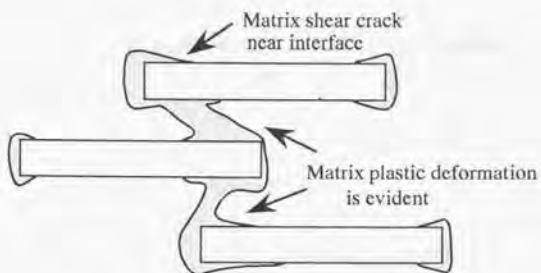
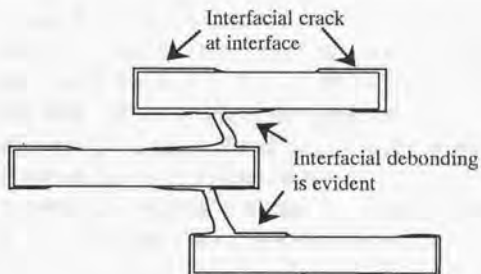


Figure 3-31. Relationship between macroscopic mechanical properties (E_t , J_c , σ_u) and interfacial shear strength (τ_{max}) in short glass fiber/Nylon 6 thermoplastics injection molded composites.



- * Matrix plastic deformation is a major energy dissipation mechanism.
- * Impact fracture resistance is high.
- * Static in-plane fracture toughness is relatively high.

**Interfacial shear strength is high
(Good adhesion at interface).**



- * Fiber pull-out is a major energy dissipation mechanism.
- * Impact fracture resistance is low.
- * Static in-plane fracture toughness is low.

**Interfacial shear strength is low
(Poor adhesion at interface).**

Figure 3-32. Schematic modelling of the micro-fracture mechanism.

第4章 短繊維強化複合材料の応力場解析 と破壊メカニズム

4.1 緒言

前章までは、単一繊維埋め込み試験片や単繊維引抜き試験片より求めた界面強度特性と、実用射出成形材の巨視的な引張強度特性及びき裂進展特性を定量的に関係づける試みを行ってきた。たとえば、異なる表面処理を施した材料A～Dについて、単繊維埋め込み試験片の破断繊維近傍の損傷進展様相から、材料A、Bでは破断点近傍の塑性変形が主であるのに対し、材料Dでは繊維/樹脂界面のはく離進展が顕著であった。また、材料Cではその中間的な損傷形態を示した。単繊維引抜き試験片より求めた界面せん断強度は材料A→D順に小さくなっていった。また、同じ表面処理を施した実用射出成形材の巨視的力学特性も、上記の微視力学的特性を反映していることを示した。

このような微視力学挙動、特に、破壊特性の把握において繊維端付近の応力およびひずみ分布に関する知識は非常に重要である。最近まで、有限要素解析、せん断遅れ(Shear lag)解析及び弾性論による解析手法などを用いて複合材料内部の応力場評価に関する多くの研究がなされてきたが、実際の損傷進展と直接比較することを目指した研究は少ない。このような観点から本章では、繊維、界面層、マトリックス樹脂で成っている3相円筒形複合材モデルに引張負荷および一定熱負荷が加えられている場合、繊維端での応力伝達を考慮して繊維端近傍の応力分布を弾性理論に基づいて近似的に解析する。これにより、実用の短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の界面特性の変化による微視的損傷・破壊メカニズムの相違に関する力学的理解を得ることを目的とする。

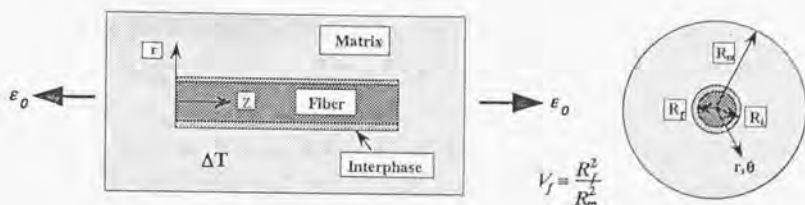
4.2 解析方法

4.2.1 解析モデル

繊維方向に引張負荷及び一様な熱負荷が加えられている短繊維複合材料の解析モデルをFig.4-1に示す。以下のように仮定する。

- 1) 繊維の横断面は円形である。
- 2) 繊維/界面層、界面層/マトリックス間の接着は完全である。
- 3) 繊維間の相互作用は無視するが、繊維端を通じた応力伝達は考慮する。
- 4) 繊維、界面層、マトリックス、いずれも線形弾性挙動を示す。

- 5) 繊維は横方向等方性を持つ直交異方性弾性体で、界面層やマトリックスは等方性弾性体である。
- 6) 繊維軸方向に一様なひずみ ϵ_0 が加えられている。
- 7) 複合材料の温度は一様であり、基準温度（熱応力が0であるときの温度）より ΔT 高い。
- 8) 軸対称問題である。



ϵ_0 : Uniform axial load.
 ΔT : Uniform axisymmetric temperature change.
 R_f, R_i, R_m : Radius of fiber, interphase and matrix, respectively.
 V_f : Fiber volume fraction.
 r, θ : Transverse plane.

Figure 4-1. Model of short-fiber composites subjected to uniform tensile and thermal loading.

解析モデルはFig.4-2に示すように2段階過程により解析される。第一段階は繊維端から十分に離れたところでの弾性応力場計算である。これは繊維端効果を見捨てた長繊維に関する解と等価であり遠方解（Far-field solution）と称する。第二段階は繊維端近傍の近似的な応力場の計算として繊維端解（Fiber-end solution）と称する。この2つの解は繊維や近傍の界面層、マトリックスに対する3次元応力場を得るために重ね合わせる。

4.2.2 基礎方程式

4.2.2.1 遠方での厳密解 (σ_{ij}^n の決定)

1) つり合い方程式 (物体力がゼロ)

$$\begin{aligned} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \sigma_{rr}^n) + \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma_{r\theta}^n}{\partial \theta} + \frac{\partial \sigma_{rz}^n}{\partial z} - \frac{\sigma_{\theta\theta}^n}{r} &= 0 \\ \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 \sigma_{\theta\theta}^n) + \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma_{\theta\theta}^n}{\partial \theta} + \frac{\partial \sigma_{\theta z}^n}{\partial z} &= 0 \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \sigma_{rz}^n) + \frac{1}{r} \frac{\partial \sigma_{rz}^n}{\partial \theta} + \frac{\partial \sigma_{zz}^n}{\partial z} &= 0 \end{aligned} \quad (1)$$

2) 応力とひずみ関係式

$$\begin{aligned} \sigma_{rr}^n &= C_{12}^n \varepsilon_{zz}^n + C_{22}^n \varepsilon_{rr}^n + C_{23}^n \varepsilon_{\theta\theta}^n - \beta_2^n \Delta T \\ \sigma_{\theta\theta}^n &= C_{12}^n \varepsilon_{zz}^n + C_{22}^n \varepsilon_{rr}^n + C_{22}^n \varepsilon_{\theta\theta}^n - \beta_2^n \Delta T \\ \sigma_{zz}^n &= C_{11}^n \varepsilon_{zz}^n + C_{12}^n \varepsilon_{rr}^n + C_{12}^n \varepsilon_{\theta\theta}^n - \beta_1^n \Delta T \\ \sigma_{r\theta}^n &= (C_{22}^n - C_{23}^n) \varepsilon_{r\theta}^n \\ \sigma_{\theta z}^n &= 2C_{55}^n \varepsilon_{\theta z}^n \\ \sigma_{rz}^n &= 2C_{55}^n \varepsilon_{rz}^n \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \beta_1^n &= C_{11}^n \alpha_{nL} + 2C_{12}^n \alpha_{nT} \\ \beta_2^n &= C_{12}^n \alpha_{nL} + (C_{22}^n + C_{23}^n) \alpha_{nT} \end{aligned} \quad (3)$$

ここで、 C_{ij}^n は材料の弾性係数 ($n=1$: 繊維、 $n=2$: 界面層、 $n=3$: マトリックス、 $i, j=r, \theta, z$)、 α_{nL} と α_{nT} はそれぞれ材料の長手方向と横方向の熱膨張係数である。

3) ひずみと変位関係式

$$\begin{aligned} \varepsilon_{rr}^n &= \frac{\partial u_r^n}{\partial r} \\ \varepsilon_{\theta\theta}^n &= \frac{1}{r} \frac{\partial u_\theta^n}{\partial \theta} + \frac{u_r^n}{r} \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_{zz}^n &= \frac{\partial u_z^n}{\partial z} \\ \varepsilon_{r\theta}^n &= \frac{1}{2} \left(\frac{1}{r} \frac{\partial u_r^n}{\partial \theta} + \frac{\partial u_\theta^n}{\partial r} - \frac{u_\theta^n}{r} \right) \\ \varepsilon_{rz}^n &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_r^n}{\partial r} + \frac{\partial u_z^n}{\partial z} \right) \\ \varepsilon_{\theta z}^n &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_\theta^n}{\partial z} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_z^n}{\partial \theta} \right) \end{aligned} \quad (4)$$

軸対称問題により各材料の変位場は次のようになる。

$$\begin{aligned} u_r^n &= u_n(r) \\ u_\theta^n &= 0 \\ u_z^n &= w_n(z) \end{aligned} \quad (5)$$

式(5)を式(4)に代入すると

$$\begin{aligned} \varepsilon_{rr}^n &= \frac{\partial u_n}{\partial r} \\ \varepsilon_{\theta\theta}^n &= \frac{u_n}{r} \\ \varepsilon_{zz}^n &= \frac{\partial w_n}{\partial z} \\ \varepsilon_{rz}^n &= \varepsilon_{zr}^n = \varepsilon_{\theta z}^n = \varepsilon_{z\theta}^n = 0 \end{aligned} \quad (6)$$

になる。式(6)を式(2)に代入すると次のようになる。

$$\begin{aligned} \sigma_{rr}^n &= C_{12}^n \frac{\partial w_n}{\partial z} + C_{22}^n \frac{\partial u_n}{\partial r} + C_{23}^n \frac{u_n}{r} - \beta_2^n \Delta T \\ \sigma_{\theta\theta}^n &= C_{12}^n \frac{\partial w_n}{\partial z} + C_{23}^n \frac{\partial u_n}{\partial r} + C_{22}^n \frac{u_n}{r} - \beta_2^n \Delta T \\ \sigma_{zz}^n &= C_{11}^n \frac{\partial w_n}{\partial z} + C_{12}^n \frac{\partial u_n}{\partial r} + C_{12}^n \frac{u_n}{r} - \beta_1^n \Delta T \\ \sigma_{r\theta}^n &= \sigma_{\theta r}^n = \sigma_{rz}^n = \sigma_{zr}^n = 0 \end{aligned} \quad (7)$$

式(7)を式(1)に代入し、変位に関する支配方程式

$$\begin{aligned} \frac{d^2 u_n}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{du_n}{dr} - \frac{u_n}{r^2} &= 0 \\ \frac{d^2 w_n}{dz^2} &= 0 \end{aligned} \quad (8)$$

を得る。従って、式(8)の一般解は次のようになる。

$$\begin{aligned} u_n(r) &= A_1^n r + \frac{A_2^n}{r} \\ W_n(z) &= A_3^n z \end{aligned} \quad (9)$$

ここで、 A_1^n, A_2^n, A_3^n は以下の条件式から求められる未知定数である。

1) 初期境界条件：

$$\varepsilon_z^1 = \varepsilon_z^2 = \varepsilon_z^3 = \varepsilon_0 (= \text{Const.}) \quad (10)$$

2) 繊維と界面層間の接着面 ($r = R_f$)、界面層とマトリックス間の接着面 ($r = R_j$)での連続条件：

$$\begin{aligned} u_r^1(R_f, z) = u_r^2(R_f, z) \quad u_r^2(R_f, z) = u_r^3(R_f, z) \\ \sigma_{rr}^1(R_f, z) = \sigma_{rr}^2(R_f, z) \quad \sigma_{rr}^2(R_j, z) = \sigma_{rr}^3(R_j, z) \end{aligned} \quad (11)$$

3) 繊維中心 ($r = 0$)での変位や応力の有限条件：

$$A_2^1 = 0 \quad (12)$$

4) 円筒外側表面 ($r = R_m$)での条件：

$$\sigma_{rr}^3(R_m, z) = 0 \quad \sigma_{rz}^3(R_m, z) = 0 \quad (13)$$

従って、式(9)-(13)より式(7)を整理すると長繊維に対する遠方での応力 σ_{ij}^n は次のように求められる。

$$\begin{aligned}
\sigma_{rr}^n &= C_{12}^n A_3^n + (C_{22}^n + C_{23}^n) A_1^n - \frac{(C_{22}^n - C_{23}^n)}{r^2} A_2^n - \beta_2^n \Delta T \\
\sigma_{\theta\theta}^n &= C_{12}^n A_3^n + (C_{22}^n + C_{23}^n) A_1^n + \frac{(C_{22}^n - C_{23}^n)}{r^2} A_2^n - \beta_2^n \Delta T \quad (14) \\
\sigma_{zz}^n &= C_{11}^n A_3^n + 2C_{12}^n A_1^n - \beta_1^n \Delta T \\
\sigma_{r\theta}^n &= \sigma_{\theta r}^n = \sigma_{rz}^n = 0
\end{aligned}$$

ここで

$$A_2^3 = \frac{R_f^2 [(H+I)(R_m^2 J Q + 2C_{14}^3 K) + L R_m^2 (2C_{44}^3 H - P I) - 2R_f^2 C_{44}^3 (I J + H L)]}{2C_{44}^3 [R_f^2 Q (H+I) + 2C_{44}^3 (R_f^2 H + R_f^2 I) + (R_f^2 - R_f^2) P I]}$$

$$A_1^3 = \frac{2R_f^2 C_{44}^3}{H} \left[-\frac{A_2^3}{R_f^2 R_f^2} \{ (R_f^2 - R_f^2) P + R_f^2 Q + 2R_f^2 C_{44}^3 \} + (K - I) - \frac{R_m^2 (P - Q)}{2R_f^2 C_{44}^3} \right]$$

$$A_2^2 = \frac{R_m^2}{2C_{44}^2} [L + A_1^2 S]$$

$$A_1^1 = A_1^3 + \frac{A_2^3}{R_f^2} + A_2^2 \left(\frac{1}{R_f^2} - \frac{1}{R_m^2} \right)$$

$$A_1^2 = A_1^3 + \frac{1}{R_f^2} (A_2^3 - A_2^2)$$

$$A_1^1 = 0 \quad A_1^2 = A_2^3 - A_1^3 = \varepsilon_0$$

$$H = (P - Q)(R_m^2 S + 2R_f^2 C_{44}^3) \quad I = 2R_f^2 C_{44}^3 (Q - S) + R_m^2 S (Q + 2C_{44}^3)$$

$$J = C_{44}^3 \varepsilon_0 - \beta_1^3 \Delta T \quad K = C_{12}^2 \varepsilon_0 - \beta_2^2 \Delta T \quad L = C_{12}^3 \varepsilon_0 - \beta_2^3 \Delta T$$

$$P = C_{22}^1 + C_{23}^1 \quad Q = C_{22}^2 + C_{23}^2 \quad S = C_{22}^3 + C_{23}^3$$

$$C_{44}^3 = C_{22}^3 - C_{23}^3 \quad C_{44}^2 = C_{22}^2 - C_{23}^2$$

4.2.2.2 繊維端近傍の近似解 ($\tilde{\sigma}_{ij}^n$ の決定)

1) つり合い方程式

前述の式(1)を整理して表すと

$$\frac{\partial \tilde{\sigma}_{zz}^n}{\partial z} + \frac{\partial \tilde{\sigma}_{rz}^n}{\partial r} + \frac{\tilde{\sigma}_{rz}^n}{r} = 0 \quad (15)$$

$$\frac{\partial \tilde{\sigma}_{rz}^n}{\partial z} + \frac{\partial \tilde{\sigma}_{rr}^n}{\partial r} + \frac{\tilde{\sigma}_{rr}^n - \tilde{\sigma}_{\theta\theta}^n}{r} = 0 \quad (16)$$

$$\frac{\partial \tilde{\sigma}_{\theta\theta}^n}{\partial z} + \frac{\partial \tilde{\sigma}_{r\theta}^n}{\partial r} + \frac{2\tilde{\sigma}_{r\theta}^n}{r} = 0 \quad (17)$$

になる。ここで、軸対称問題により、 $\tilde{\sigma}_{nz}^n = \tilde{\sigma}_{rn}^n = 0$ になり、式(17)は自動的に成立する。また、式(15)、(16)は次のような応力関数 $\Phi_n(r, z)$ を用いると満たされる。

$$\begin{aligned} \tilde{\sigma}_{zz}^n &= \frac{\partial^2 \Phi_n}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial \Phi_n}{\partial r} \\ \tilde{\sigma}_{rr}^n &= \tilde{\sigma}_{\theta\theta}^n = \frac{\partial^2 \Phi_n}{\partial z^2} \\ \tilde{\sigma}_{rz}^n &= -\frac{\partial^2 \Phi_n}{\partial r \partial z} \end{aligned} \quad (18)$$

ここで、応力関数 $\Phi_n(r, z)$ は次のように仮定する。

$$\begin{aligned} \Phi_1(r, z) &= [D + Er^2(1 + \lambda z)]e^{-\lambda z} & 0 \leq r \leq R_f \\ \Phi_2(r, z) &= \frac{F}{r^2}(1 + \lambda z)e^{-\lambda z} & R_f \leq r \leq R_s \\ \Phi_3(r, z) &= \Phi_2(r, z) & r \geq R_s \end{aligned} \quad (19)$$

ここで、 D, E, F, λ は定数であり、未知定数 D, E, F は以下の条件式から求められる。

1) 繊維端での表面力境界条件:

繊維端での表面力を近似させる多様な方法があるだろう。ここでは、繊維端での表面力はFig.4-3に示すように繊維をマトリックスで置き換えた複合材料の場合と等価であると想定し求められる。これは全てがマトリックス材のみ構成された均質複合材料を表す。境界条件は次のようになる。

$$\begin{aligned}\bar{\sigma}_{zz}^1(r, 0) &= \sigma_{zz(mat)}(r, 0) - \sigma_{zz}^1(r, 0) \\ &= C_{11}^{mat} A_3^{mat} - C_{11}^1 A_3^1 + 2C_{12}^{mat} A_1^{mat} - 2C_{12}^1 A_1^1 - \beta_1^{mat} \Delta T + \beta_1^1 \Delta T\end{aligned}\quad (20)$$

ここで、"mat" はマトリックスのみで成る均質複合材料の解を表す。

2) 繊維、界面層、マトリックス間の接着面での連続条件:

$$\begin{aligned}\bar{\sigma}_{rz}^1(R_f, z) &= \bar{\sigma}_{rz}^2(R_f, z) & \bar{\sigma}_{rz}^2(R_f, z) &= \bar{\sigma}_{rz}^3(R_f, z) \\ \bar{\sigma}_{rr}^1(R_f, z) &= \bar{\sigma}_{rr}^2(R_f, z) & \bar{\sigma}_{rr}^2(R_f, z) &= \bar{\sigma}_{rr}^3(R_f, z)\end{aligned}\quad (21)$$

3) 破断繊維端近傍の応力分布を近似的に評価するときに用いられる λ はshear lag理論を用いて求めた係数である⁽⁸⁾。

$$\lambda = \frac{1}{R_f} \left[\frac{1}{2} \left[\frac{1 - V_f^2}{V_f^2} \right] \left[\frac{1}{S_{11}^1 C_{33}^2} \right] \right]^{-\frac{1}{2}}\quad (22)$$

従って、式(19)~(22)より繊維端近傍の応力 $\bar{\sigma}_{ij}^n$ は次のように求められる。

$$\begin{aligned}\bar{\sigma}_{zz}^1 &= M(1 + \lambda z)e^{-\lambda z} \\ \bar{\sigma}_{rr}^1 = \bar{\sigma}_{\theta\theta}^1 &= (2R^2 - r^2) \frac{M}{4} \lambda^2 (1 - \lambda z)e^{-\lambda z} \\ \bar{\sigma}_{rz}^1 &= \frac{Mr}{2} \lambda^2 z e^{-\lambda z} \\ \bar{\sigma}_{r\theta}^1 = \bar{\sigma}_{\theta r}^1 &= 0\end{aligned}\quad (23)$$

$$\bar{\sigma}_{zz}^2 = \bar{\sigma}_{zz}^3 = -\left(\frac{R}{r}\right)^4 M(1 + \lambda z)e^{-\lambda z}$$

$$\bar{\sigma}_{rr}^2 = \bar{\sigma}_{\theta\theta}^2 = \bar{\sigma}_{rr}^3 = \bar{\sigma}_{\theta\theta}^3 = \frac{R^4 M}{4r^2} \lambda^2 (1 - \lambda z)e^{-\lambda z} \quad (23)$$

$$\bar{\sigma}_{rz}^2 = \bar{\sigma}_{rz}^3 = \frac{R^4 M}{2r^3} \lambda^2 z e^{-\lambda z}$$

$$\bar{\sigma}_{r\theta}^2 = \bar{\sigma}_{\theta z}^2 = \bar{\sigma}_{r\theta}^3 = \bar{\sigma}_{\theta z}^3$$

ここで、 M は次のようになる。

$$M = C_{11}^{mat} A_3^{mat} - C_{11}^J A_3^J + 2C_{12}^{mat} A_1^{mat} - 2C_{12}^J A_1^J - \beta_1^{mat} \Delta T + \beta_1^J \Delta T$$

4.3 解析結果および検討

数値解析は繊維軸方向に一定引張負荷 ($\epsilon = 1.5\%$) と一定熱負荷 ($\Delta T = -80^\circ\text{C}$) が加えられているガラス繊維とナイロン6マトリックス樹脂に対して行われた。ここで、 $\epsilon = 1.5\%$ はこの材料の引張試験において、最初の微視き裂が発生するときの歪に対応する値である。界面層の力学的特性はマトリックス樹脂とほとんど同一であると仮定する。また、界面層厚さは $0.06 R_f$ (一般的な実用複合材料の界面層の厚さは $0.001 R_f \sim 0.1 R_f$ である)、繊維直径は $13 \mu\text{m}$ 、繊維体積含有率 V_f は 30% である。Table 4-1 に各材料の特性値を示す。

Fig. 4-4 は繊維に沿う繊維軸方向応力分布を示す。ここで、繊維端からの距離 z は臨界繊維長さ L_c で標準化した。本解析において臨界繊維長さは繊維軸方向応力 σ_{zz}^f が長繊維においての遠方応力の 95% に達する繊維端からの距離として仮定した。繊維端を通じた応力伝達を考慮すると、軸方向繊維応力は繊維端で $\sigma_{zz}^f = 37.5 \text{ MPa}$ 値を示し、繊維端からの距離の増加に伴って大きくなって長繊維の遠方応力に至ることがわかる。また、 $\Delta T = -80^\circ\text{C}$ の場合、繊維端で引張応力 σ_{zz}^f は約 80 MPa を示し熱負荷が加えられてない場合と比較すると3倍ほど高い値を示し繊維端近傍の応力集中をもたらす。

Fig. 4-5 は繊維に沿う繊維/界面層や界面層/マトリックス間の界面でのせん断応力分布がせん断遅れ (shear lag) 理論による近似解と共に示す。せん断応力は急速にピーク値に達した後、 z の増加とともに減少し 0 に収束する。また、せん断応力 σ_{rz} の最大値は繊維端付近の繊維/界面層の界面で約 36 MPa を示す。また、shear lag 理論によるせん断応力の最大値は約 100 MPa として本解析から予測した最大せん断応力より約3倍ほど過大評価されたことがわかる。しかし、繊維端から離れいくにつれて両者がだいたい同一な挙動を示す。このような繊維端付近で生成された高いせん断応力は繊維/マトリックス樹脂界面接着強度のレベルに依存して、界面せん断破壊 (界面はく離) の発生や繊維端近傍のマトリックス樹脂のせん断降伏による樹脂の塑性変形および樹脂破壊を招来する要因になる。また、熱負荷が界面でのせん断応力に及ぼす効果はほとんどない。

Fig. 4-6 は繊維に沿うマトリックス内の半径方向の応力分布を示す。引張負荷及び熱負荷が与えられると、繊維と界面層そしてマトリックスの各構成材の熱膨張係数やポアソン比の違いは半径方向応力 σ_r に大きな影響を及ぼす。界面はく離の破壊基準として繊維/マトリックス界面近傍の半径方向応力成分が考慮される場合、負の σ_r は界面で繊維とマトリックス間の接着の向上に寄与し、正の σ_r は界面でのはく離発生や界面分離の可能性を示唆する。本解析の場合では、半径方向応力分布は繊維/界面層および界面層/マトリックス間の界面で圧縮成分を示し、半径方向の応力 σ_r が繊維端付近での界面はく離に及ぼす影響は大

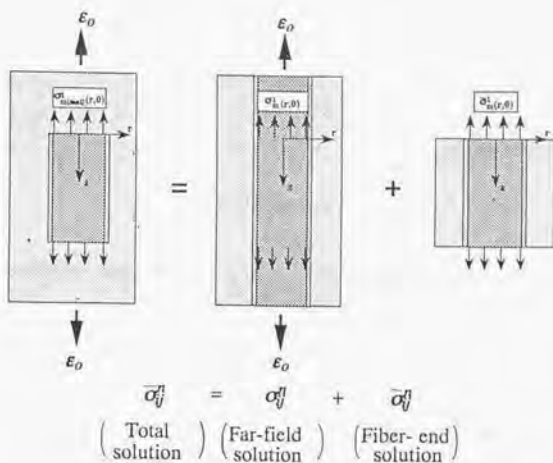
きくないと言える。Fig.4-7は繊維軸に平行な界面層やマトリックス内の引張応力分布を示す。引張応力 σ_z は繊維端で一番高く、繊維端から離れていくにつれて減少していく。このような繊維端付近での応力集中は繊維/マトリックス界面接着強度が充分大きく、マトリックスの強度が低い場合においては、マトリックスの引張破壊が生じうる。

Fig.4-8はマトリックス樹脂と界面層の弾性特性の相対的变化による繊維に沿う界面でのせん断応力分布を示す。界面層がマトリックス樹脂に比べて柔らかい場合には繊維/界面層の界面付近で生じる最大せん断応力は高くなる傾向を示す。したがって、繊維とマトリックス間の界面でゴムのような柔らかい層が導入されると、界面の微視破壊発生は界面層の大きな変形によって減少すると思われる。

Fig.4-9は前述のガラス短繊維強化ナイロン6熱可塑性樹脂複合材料の引張試験後の破面に見られる繊維の形態から繊維端より発生したクラックの進展様相をモデル化したものである。タイプ(I)は界面接着がよくない例としてクラックが繊維と表面処理による界面層間の界面を進展する場合であり、タイプ(II)は界面の接着が良好なためにマトリックス樹脂中を進展する場合に相当する。本解析ではせん断応力が繊維/界面層の界面で最大値 $\sigma_z \approx 36$ MPaを示し、前述の繊維直径 $50 \mu\text{m}$ に対して行われた単一繊維引抜き実験から得られた界面せん断強度値(材料A = 88 MPa、材料D = 30 MPa)とナイロン6マトリックス樹脂のせん断強度が約42 MPaであることを考慮すると、Fig.4-9に示すようにこの材料の微視的破壊メカニズムの相違すなわち、繊維/樹脂間の界面せん断強度が比較的低い材料Dの場合はタイプ(I)のように繊維と表面処理による界面層の界面でクラックが発生、進展し、繊維/樹脂間の界面せん断強度が高いA材料の場合は強い繊維/樹脂界面接着によりマトリックス樹脂の塑性変形やせん断降伏によってタイプ(II)のようにクラックが進展する様相の定量的な予測ができる。

4.4 結言

繊維表面処理は最適な複合材料の特性を得るために人工的に与えられる。このような繊維表面処理は複合材料の微視力学的破壊挙動を制御する重要なパラメータである。本解析はこのような繊維／マトリックス樹脂界面特性の変化による微視的破壊メカニズムの相違を、引張負荷および一定熱負荷が加えられた短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の応力場に関する解析学的検討により定量的に検討した。



第1段階 (Far-field solution)

◇ 繊維端から十分に離れたところの弾性応力場計算。
(繊維端効果を見捨てた長繊維に関する解と等価)

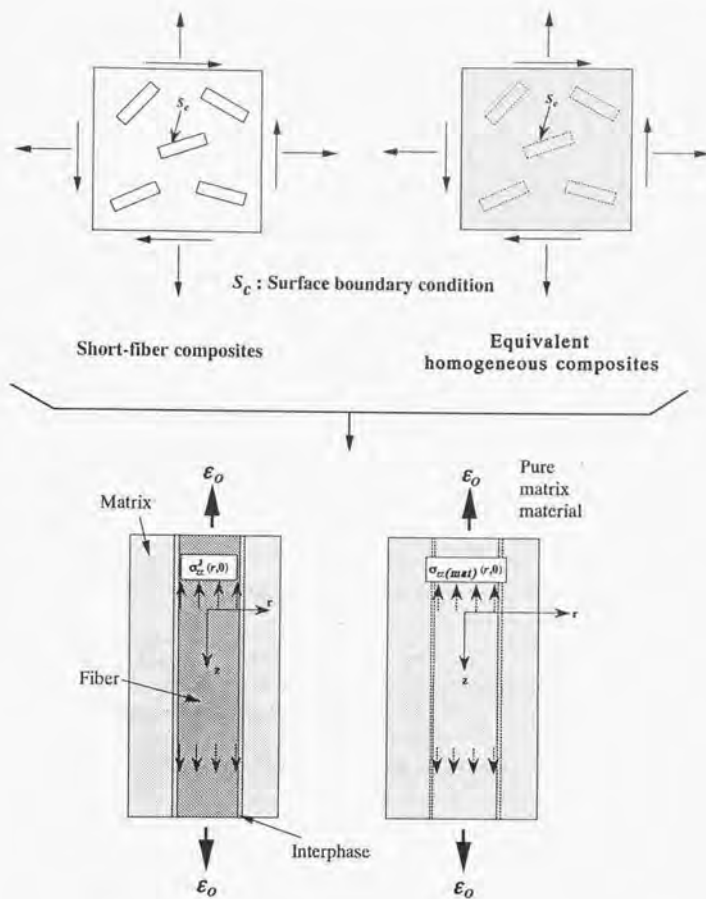
第2段階 (Fiber-end solution)

◇ 繊維端近傍の近似的な応力場の計算。

完全解 (Total solution)

◇ 繊維や近傍の界面層、マトリックスに対する
3次元応力場。

Figure 4-2. Schematic representation of approximate stress analysis of short fiber composites using superposition method.



◇ 繊維端での表面力境界条件 :

$$\begin{aligned} \bar{\sigma}_z^f(r, \theta) &= \sigma_{z(mat)}(r, \theta) - \sigma_z^f(r, \theta) \\ &= C_{11}^{mat} A_3^{mat} - C_{11}^f A_3^f + 2C_{12}^{mat} A_4^{mat} - 2C_{12}^f A_4^f - \beta_1^{mat} \Delta T + \beta_1^f \Delta T \end{aligned}$$

ここで、"mat" はマトリックスのみで成る均一複合材料を表す。

Figure 4-3. Schematic representation of the way to approximate to the traction at the fiber end of short-fiber composites.

Table 4-1. Material properties for stress analysis.

Property	Glass fiber	Nylon 6 matrix	Interphase
Young's modulus E (GPa)	77	2.5	2.2
Poisson's ratio ν	0.25	0.3	0.3
Coefficient of thermal expansion α ($10^{-6}/^{\circ}\text{C}$)	4.9	90	90

- * Interphase thickness ($= R_i - R_f$) : $0.06 R_f$
- * Fiber diameter ($= 2R_f$) : $13 \mu\text{m}$
- * Fiber volume fraction ($= V_f$) : 30 %

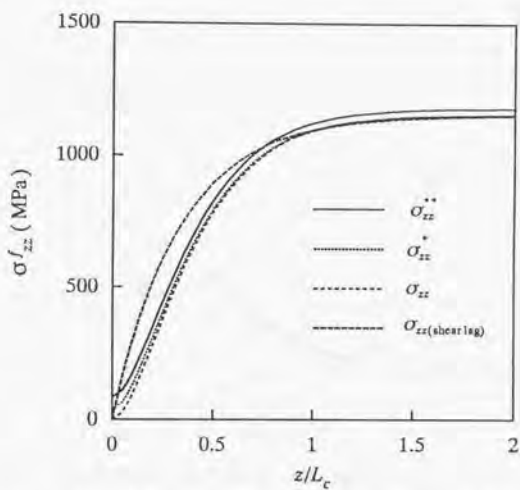


Figure 4-4. Fiber axial stress distributions along fiber length: (σ_{zz}^{**} ; $\Delta T = -80^\circ\text{C}$, σ_{zz}^* ; $\Delta T = 0^\circ\text{C}$: stress transfer is considered at fiber ends) and (σ_{zz} ; $\Delta T = 0^\circ\text{C}$: stress transfer is not considered at fiber ends), $\sigma_{zz}^{(shear\ lag)}$: shear lag solution.

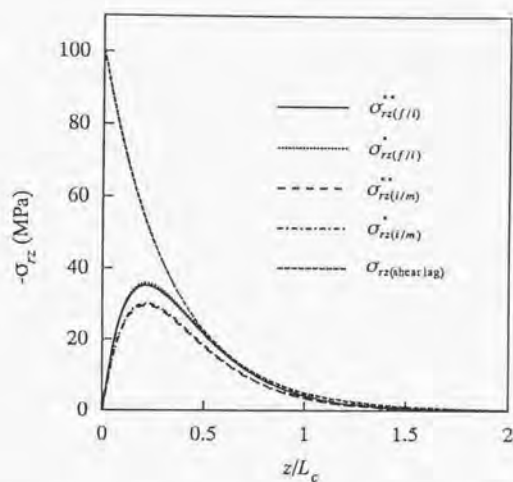


Figure 4-5. Interfacial shear stress distributions along fiber length: ($\sigma_{rz}^{**}(f/i)$, $\sigma_{rz}^{**}(i/m)$; $\Delta T = -80^\circ\text{C}$, $\sigma_{rz}^{\cdot}(f/i)$, $\sigma_{rz}^{\cdot}(i/m)$; $\Delta T = 0^\circ\text{C}$, stress transfer is considered at fiber ends), $\sigma_{rz}(\text{shear lag})$: shear lag solution, (f/i and i/m represent interface of fiber / interphase and interphase/matrix, respectively).

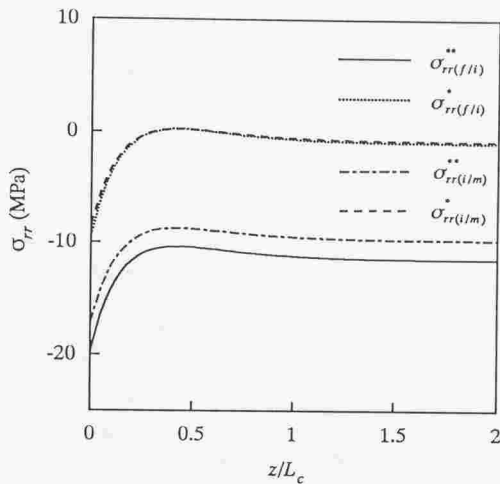


Figure 4-6. Interfacial radial stress distributions along fiber length: $\sigma_{rr}^{**}(f/i)$, $\sigma_{rr}^{**}(i/m)$; $\Delta T = -80^\circ\text{C}$, $\sigma_{rr}^*(f/i)$, $\sigma_{rr}^*(i/m)$; $\Delta T = 0^\circ\text{C}$, (f/i and i/m represent interface of fiber / interphase and interphase/matrix, respectively).

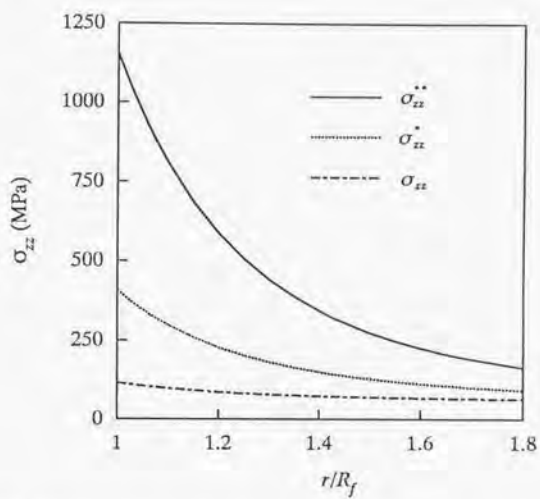


Figure 4-7. Matrix axial stress distributions in radial direction along fiber length at $\Delta T = -80^\circ\text{C}$: $\sigma_{zz}^*(z/L_c=0)$, $\sigma_{zz}^*(z/L_c=0.5)$, $\sigma_{zz}(z/L_c=1.0)$.

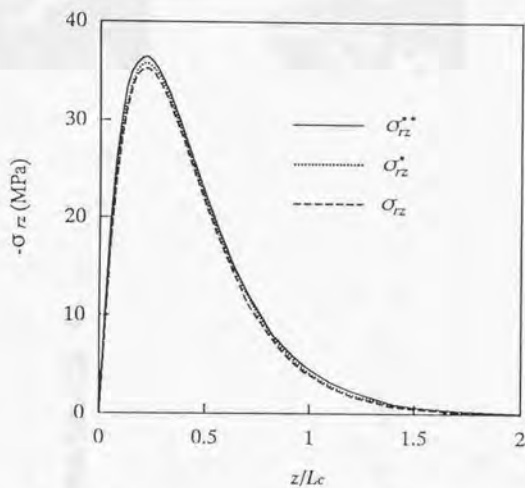


Figure 4-8. Fiber/interphase interfacial shear stress distributions along fiber length: ($\sigma_{rz}^* : E_i / E_m = 0.1$, $\sigma_{rz}^* : E_i / E_m = 1$, $\sigma_{rz} : E_i / E_m = 2$).

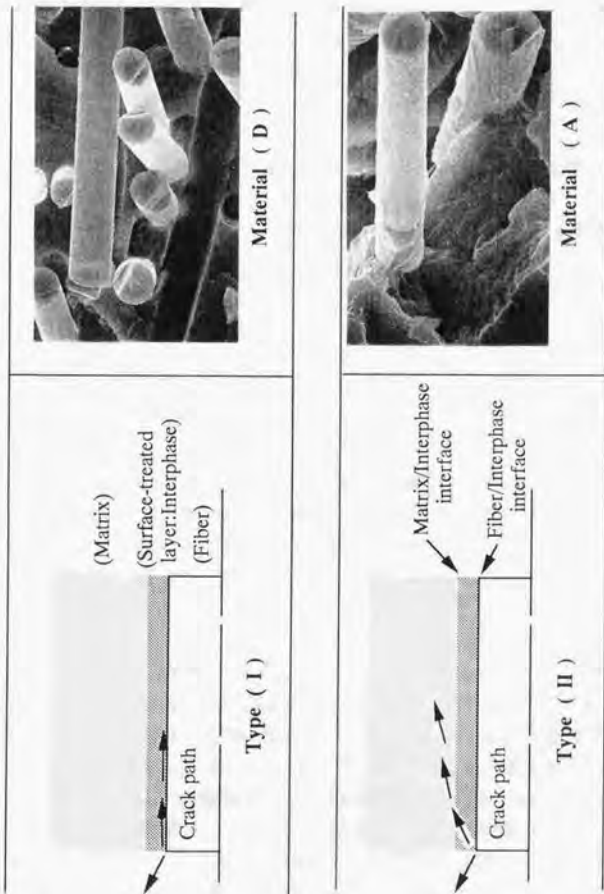


Figure 4-9. Modelling of micro-failure progress of short-fiber reinforced thermoplastic composites with different fiber surface treatments.

第5章 結 論

本論文は、短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の微視的な破壊プロセス、メカニズムの実験的および理論的検討を行い、この材料の微視力学的破壊挙動を明らかにすることを目的としている。

得られた結果をまとめると以下の通りである。

第2章では、繊維/マトリックス樹脂界面の微視力学的挙動を明らかにするために、繊維表面処理が異なるガラス繊維とナイロン6マトリックス樹脂から成る単一繊維複合材料モデルについて行った実験的および理論的検討から次のような結果を得た。

- 1) 埋め込み繊維破断試験及び単一繊維引抜き試験から、界面せん断応力伝達性と臨界繊維長さに及ぼす繊維表面処理および温度の効果を明らかにした。また、複合材料性能を制御する最も重要なパラメータである繊維とマトリックス樹脂間の界面せん断強度を求めた。
- 2) 光学顕微鏡下の負荷下その場観察及び繊維破断点近傍の応力場解析により界面での破壊進展様相の相違 すなわち、界面せん断強度が高い場合はマトリックス樹脂の塑性変形や樹脂破壊が生じること、一方、界面せん断強度が比較的低い場合には界面はく離が発生、伝播することなどの定量的予測が可能になった。

第3章では、第2章の単一繊維複合材料の結果をもとに、同様の異なる繊維表面処理を施した実用の射出成形ランダム配向ガラス短繊維強化熱可塑性複合材料について、巨視的力学特性である引張強度、静的面内破壊靱性や落錘衝撃破壊特性を検討した。また、超音波顕微鏡(SAM)及び走査電子顕微鏡(SEM)下での負荷過程中的その場観察により微視的な変形・損傷・破壊プロセスの詳細な検討を行って、繊維/マトリックス樹脂界面特性の相違によるこの材料の微視的破壊メカニズムと巨視的力学特性との相関関係を明らかにした。得られた結果をまとめると以下の通りである

- 1) 巨視的力学特性である引張強度、静的面内破壊靱性や落錘衝撃破壊特性は繊維/マトリックス樹脂間の界面の応力伝達能力(界面せん断強度)と密接な関連性を示し、単一繊維強化複合材料から得られる基礎的物性データから実用のランダム配向ガラス短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の巨視的力学特

性が予測できることを示した。すなわち、界面せん断強度が高くなるに伴って、この材料の静的強度および破壊靱性は増加する。これは、界面せん断強度が低い場合に、破壊に対してより大きい抵抗を持つ熱硬化性樹脂複合材料の結果とは異なる(Fig.5-1)。

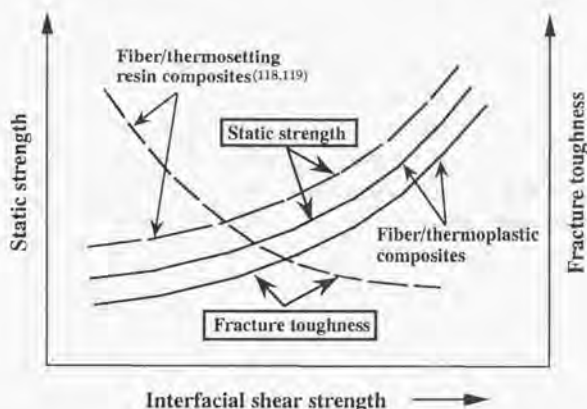


Figure 5-1. Relationship between fracture toughness and interfacial shear strength in short fiber/thermoplastic composites.

- 2) き裂先端近傍における微視的な変形・損傷・破壊プロセスを超音波顕微鏡 (SAM) 及び走査電子顕微鏡 (SEM) 観察により、繊維/マトリックス樹脂間の界面せん断強度が高い場合は、繊維端で発生した微小き裂は繊維端周辺のマトリックス樹脂のせん断応力集中により繊維側面に沿うマトリックス樹脂のせん断破壊を生じ、さらに進展し、マトリックス樹脂内の局所的な塑性流動の拡大、伝播につながって最終的破壊に至る。したがって、マトリックス樹脂の塑性変形が支配的な様相を示し、これがエネルギー散逸メカニズムを制御する最も重要なパラメータである。これに対して、界面せん断強度が比較的低い場合は顕著な繊維/マトリックス樹脂界面はく離、それに伴い繊維の引抜きによる破壊様相が複合材料全体の破壊を支配し、界面破壊による繊維引抜きがエネルギー散逸メカニズムに重要な役割を演じる。

第4章では、繊維、界面層、マトリックス樹脂で成っている3相円筒形複合材料モデルに引張負荷および一定熱負荷が加えられている場合、繊維端での応力

伝達を考慮して繊維端近傍の応力分布を弾性理論に基づいて近似的に解析し、短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の界面特性の変化による実際の損傷進展や破壊メカニズムの相違に関する力学的理解を得た。これにより材料の微視的破壊メカニズムの理解が体系的に行える。

以上のように短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の微視的な破壊プロセス、メカニズム（マイクロフラクチャメカニクス）の実験的および理論的検討を行い、とくに、材料製造条件と直接結びつく繊維／マトリックス樹脂界面が微視的損傷・破壊プロセスに与える基本的な役割を理解し、繊維と樹脂間の相互作用を含む微視的破壊メカニズムと巨視的力学特性との相関関係を明らかにした。

今後、界面のミクロな変形破壊特性が中心となる微視的な破壊プロセス、メカニズムの解明のための定量的な実験及び理論解析を続けたい。その一つの研究課題として、短繊維強化熱可塑性樹脂複合材料の微視的破壊様相である繊維端と樹脂との分離、繊維／樹脂界面での離離、繊維破壊、樹脂の塑性流動などをエネルギー散逸メカニズムとを関連づけて微視力学的モデル化を進めば、さらに定量的なマイクロフラクチャメカニクスの理解が可能となると期待される。

参考文献

1. M. J. Salkind and Holister(Eds), Application of composite materials, *ASTM-STP 524*, American Society for Testing and Materials, 1975.
2. 石川隆司, 最近の航空宇宙分野における複合材構造の研究と応用の動向, 日本航空宇宙学会誌, **32**, 370, 1984, pp. 612-630.
3. B. Rosen, Tensile failure of fibrous composites, *J. AIAA*, **2**, 11, 1964, pp. 1985-1991.
4. G. A. Cooper and A. Kelly, Tensile properties of fiber reinforced metals: fracture mechanics, *J. Mech. phys. Solids*, **15**, 1967, pp. 279-297.
5. S. S. Wang and H. T. Wang, Interlaminar crack growth in fiber reinforced composites during fatigue, *J. Eng. Mater. Tech., Trans: ASME*, **101**, 1979, pp.34-41.
6. P. S. Theocaris and C. A. Stassirakis, Crack propagation in fibrous composite materials studied by SEM, *J. Comp. Mater.*, **15**, 1981, pp. 276-286.
7. A. T. DiBenedetto, Measurement of the thermomechanical stability of interphases by the embedded single fiber test, *Comp. Sci. Tech.*, **42**, 1991, pp. 103-123.
8. A. T. DiBenedetto and P. J. Lex, Evaluation of surface treatments for glass fibers in composite materials, *Polymer Eng. Sci.*, **29**, 8, April, 1989, pp. 543-555.
9. P. J. Herrera-Franco and L. T. Drzal, Comparison of methods for the measurement of fibre/matrix adhesion in composites, *Composites* **23**, 1, 1992, pp. 2-27.
10. A. N. Netravali, L. T. T. Topoleski, W. H. Sachse and S. L. Phoenix, An acoustic emission technique for measuring fiber fragment length distributions in the single fiber composite test, *Comp. Sci. Tech.*, **35**, 1989, pp. 13-29.
11. Y. Le Petitcorps, R. Pailler and R. Naslain, The fibre/matrix interfacial shear strength in titanium alloy matrix composites reinforced by silicon carbide or boron CVD filaments, *Comp. Sci. Tech.*, **35**, 1989, pp. 207-214.
12. El. M. Asloun, M. Nardin and J. Schultz, Stress transfer in single-fiber composites: effect of adhesion, elastic modulus of fiber and matrix and polymer chain mobility, *J. Mater. Sci.*, **24**, 1989, pp. 1835-1844.
13. V. Rao and L. T. Drzal, The dependence of interfacial shear strength on matrix and interphase properties, *Polymer Composites*, **12**, 1, 1991, pp. 48-56.
14. Y. Termonia, Theoretical study of the stress transfer in single fibre composites, *J. Mater. Sci.*, **22**, 1987, pp. 504-508.
15. J. B. Shortall and H. W. C. Yip, The interfacial bond strength in glass fiber-polyester resin composite systems: Part 1, *J. Adhesion*, **7**, 1976, pp. 311-332.
16. M. J. Folkes and W. K. Wong, Determination of interfacial shear strength in

- fiber-reinforced thermoplastic composites, *Polymer*, **28**, 1987, pp. 1309-1314.
17. J. Mullin, J. M. Berry and A. Gatti, Some fundamental fracture mechanisms applicable to advanced filament reinforced composites, *J. Comp. Mater.*, **2**, 1, Jan. 1968, pp. 82-103.
 18. H. W. C. Yip and J. B. Shortall, The interfacial bond strength in glass fiber-polyester resin composite systems: Part 2, *J. Adhesion*, **8**, 1976, pp. 155-169.
 19. A. Kelly and W. R. Tyson, Tensile properties of fiber-reinforced metals: copper/tungsten and copper/molybdenum, *J. Mech. Solids*, **13**, 1965, pp. 329-350.
 20. L. T. Drzal, M. J. Rich and P. F. Lloyd, Adhesion of graphite fibers to epoxy matrices: 1. The role of fiber surface treatment, *J. Adhesion*, **16**, 1983, pp. 1-30.
 21. W. D. Bascom, L. W. Corder, J. L. Hinkley and N. J. Johnston, Determination of carbon fiber adhesion to thermoplastic polymers using single fiber/matrix tensile test, *Proc. Amer. Soc. Composites, 1st Tech. Conf.*, Technomics Publishing, 1986, pp. 238-244.
 22. W. D. Bascom and R. M. Jensen, Stress transfer in single fiber/resin tensile tests, *J. Adhesion*, **19**, 1986, pp. 219-239.
 23. L. T. Drzal and M. Madhukar, Measurement of fiber-matrix adhesion and its relationship to composite mechanical properties, ICCM/8, 1991, 11-A.
 24. T. Takeichi, Y. Takayama and O. Tsuda, interfacial shear strength of unsaturated polyester-glass fiber systems, *Trans. JSCM*, **12**, 1/2, 1986-1988, pp. 7-12.
 25. W. A. Fraser, F. H. Ancker and A. T. DiBenedetto, A computer modeled single filament technique for measuring coupling and sizing agent effects in fiber reinforced composites, *Proc. 30th Ann. Tech. Conf.*, SPI, WA, 1975, 22-A.
 26. L. T. Drzal, M. J. Rich, J. D. Camping and W. J. Park, Interfacial shear strength and failure mechanism in graphite fiber composites, *Proc. 35th Ann. Tech. Conf.*, SPI, WA, 1980, 20-C.
 27. W. A. Fraser, F. H. Ancker, A. T. DiBenedetto and B. Elbirili, Evaluation of surface treatments for fibers in composite materials, *Polym. Composites*, **4**, 1983, pp. 238-248.
 28. R. B. Henstenburg and S. L. Phoenix, Interfacial shear strength studies using single-filament composite test, Part II. A probability model and Monte Carlo simulation, *Polym. Composites*, **10**, 6, Dec. 1989, pp. 389-408.
 29. J. P. Favre, P. Sigety and D. Jacoues, Stress transfer by shear in carbon fibre model composites: Part 2. Computer simulation of the fragmentation test, *J. Mater. Sci.*, **26**, 1991, pp. 189-195.
 30. M. Miwa, T. Ohsawa and K. Tahara, Effect of fiber length on the tensile strength of epoxy/glass and polyester/glass fiber composites, *J. App. Poly. Sci.*, **25**, 1980,

pp.795-807.

31. A. T. DiBenedetto and L. A. Nicolais, A technique for evaluating the effects of coupling agents on the strength of interface in fibre reinforced composite materials, *Proc. 40th Ann. Tech. Conf.*, SPI, WA, 1985, 21-A.
32. R. J. Gray, Analysis of the effect of embedded fibre length on fiber debonding and pull-out from an elastic matrix, *J. Mater. Sci.*, **19**, 1984, pp. 861-870.
33. H. L. Cox, The elasticity and strength of paper and other fibrous materials, *Brit. J. Appl. Phys.*, **3**, 1, Mar. 1952, pp. 72-79.
34. L. B. Greszczuk, Theoretical studies of the mechanics of the fiber-matrix interface in composites, in *Interfaces in Composites*, ASTM STP 452, American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA, USA, 1969, pp. 42-58.
35. P. Lawrence, Some theoretical considerations of pull-out from an elastic matrix, *J. Mater. Sci.*, **7**, 1972, pp. 1-6.
36. A. Takaku and R. G. C. Arridge, The effect of interfacial radial and shear stress on fiber pull-out in composite materials, *Appl. Phys.*, **6**, 1073, pp. 2038-2047.
37. M. R. Piggott, Debonding and friction at fiber-polymer interfaces. I, criteria for failure and sliding, *Comp. Sci. Tech.*, **30**, 1987, pp. 295-306.
38. B. D. Agarwal and G. S. Giare, Crack growth resistance of short fibre composites: 1-influence of fiber concentrations, specimen thickness and width, *Fibre Sci. Tech.*, **15**, 1981, pp. 283-298.
39. S. Gggar and L. J. Broutman, Fracture toughness of random glass fiber epoxy composites: An experimental investigation, *ASTM STP 631*, American Society for Testing and Materials, 1977, pp. 310-330.
40. K. Fridrich, Microstructural efficiency and fracture toughness of short fiber/thermoplastic matrix composites, *Comp. Sci. Tech.*, **22**, 1985, pp. 43-74.
41. H. Sekine, S. Kamiya and T. Sasaki, Formation process of damage in random short fiber reinforced SMC composites, *Japan Soc. Comp. Mater.*, **17**, 3, 1991, pp. 118-124.
42. Q. Qing and E. Jinen, Fracture mechanism and acoustic emission of short carbon fiber reinforced nylon 66, *J. Soc. Mat. Sci.*, Japan, **42**, 474, 1983, pp. 255-261.
43. K. Nikpur, Y. F. Chen and J. L. Kardos, Fracture toughness of unidirectional short fiber reinforced epoxy composites, *Comp. Sci. Tech.*, **38**, 2, 1990, pp. 175-192.
44. S. S. Wang, E. S. -M. Chim and N. M. Zahlan, Fatigue Crack Propagation in random short fiber SMC composite, *J. Comp. Mater.*, **17**, 1983, pp. 250-266.
45. H. Voss and K. Friedrich, Fracture and fatigue of short glass fiber reinforced PTFE composites, *J. Mater. Sci. Letters*, **5**, 5, 1989, pp. 569-572.
46. C. L. Chow and T. J. Lu, Characterization of fatigue crack propagation in short

- fiber reinforced thermoplastics. A unified approach, *J. reinforced Plastic and Composites*, **10**, 1, 1991, pp. 58-83.
47. T. W. Chou, S. Nomura and M. Taya, A self-consistent approach to the elastic stiffness of short-fiber composites, *J. Comp. Mater.*, **14**, 1980, pp. 178-188.
48. M. Taya, On stiffness and strength of an aligned short-fiber reinforced composite containing penny-shaped cracks in the matrix, *J. Comp. Mater.*, **15**, 1981, pp. 198-210.
49. K. E. Evans and A. G. Gibson, Prediction of the maximum packing fraction achievable in randomly oriented short-fiber composites, *Comp. Sci. Tech.*, **25**, 1986, pp. 149-162.
50. D. Hull, An introduction to composite materials, Cambridge University Press, Cambridge, 1981, pp. 81-101.
51. S. Rau, S. Mcgee and R. L. McCullough, Determination of fiber orientation in short-fiber composites, Center for Composite Materials, Report No. CCM-80-11, University of Delaware, Newark, DE, 1980.
52. M. W. Darlington, P. L. Mcginley and G. R. Smith, Structure and anisotropy of stiffness in glass fiber reinforced thermoplastics, *J. Mater. Sci.*, **11**, 1976, pp. 877-886.
53. B. Spencer and J. T. Barnby, The effects of notch and fiber angles on crack propagation in fiber reinforced polymers, *J. Mater. Sci.*, **11**, 1976, pp. 83-88.
54. T. Vu-Khanh and B. Fisa, Fracture behavior of mica-reinforced polypropylene: Effects of coupling agent, flake orientation and degradation, *Polym. Comp.*, **7**, 1986, pp. 220-226.
55. T. Vu-Khanh and J. Denault, Toughness of reinforced ductile thermoplastics, *J. Comp. Mater.*, **26**, 15, 1992, pp. 2262-2277.
56. N. S. Choj and K. Takahashi, Influence of fiber diameter on microstructure and failure mechanisms of short-fiber reinforced poly(ethylene terephthalate), *Japan Society of Composite Materials*, **17**, 5, 1991, pp. 205-212.
57. P. Mallick and L. J. Broutman, The influence of the interface on the fracture toughness of low aspect ratio fiber composites, *29th Annual Tech. Conference*, SPI, Section 13-B, 1974, p. 1-14.
58. L. Ongchin, W. K. Olender and F. H. Ancker, Fiber/matrix adhesion and the fracture behavior of glass reinforced high density polyethylene, *27th Annual Tech. Conference*, SPI, Section 11-A, 1972, p.1-8.
59. F. J. McGarry and M. Fujiwara, Glass fiber-resin bond studies, *23rd Annual Tech. Conference*, SPI, Section 9-B, 1968, p. 1-16.
60. V. B. Gupta et al., Some studies on glass fiber reinforced polypropylene Part II: Mechanical properties and their dependence on fiber length, interfacial adhesion and fiber dispersion, *Polym. Comp.*, **10**, 1, 1989, pp. 16-27.

61. J. M. Charrier, Basic aspects of structure-property relationships for composites, *Polym. Eng. Sci.*, **15**, 1975, pp. 731-746.
62. D. McNally, W. T. Freed, J. R. Shaner and J. W. Sell, A method to evaluate the effect of compounding technology on the stress transfer interface in short-fiber reinforced thermoplastics, *Polym. Eng. Sci.*, **18**, 1978, pp. 396-403.
63. H. Ishida, A review of recent progress in the studies of molecular and microstructure of coupling agents and their functions in composites, coatings and adhesive joints, *Polym. Comp.*, **5**, 1984, pp. 101-123.
64. M. G. Bader and J. F. Collins, The strength ductility and failure of thermoplastics reinforced with short-glass fibers, 4th Int. Conf. on Comp. Mater., Tokyo Japan, 1982, pp. 1067-1074.
65. P. T. Curtis, M. G. Bader and J. E. Bailey, The stiffness and strength of a polyamide thermoplastic reinforced with glass and carbon fibers, *J. Mater. Sci.*, **13**, 1978, pp. 377-390.
66. N. Sato, K. Kurauchi, S. Sato and O. Kamigaito, Mechanism of fracture of short glass fiber reinforced polyamide thermoplastic, *J. Mater. Sci.*, **19**, 1984, pp. 1145-1152.
67. N. Sato, K. Kurauchi, S. Sato and O. Kamigaito, In-situ SEM observation of fracture progresses in short glass reinforced thermoplastic composite, In ASTM STP 868, American Society for Testing and materials, Philadelphia, PA, USA, 1985, pp. 493-503.
68. J. D. Eshelby, The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion and related problems, *Proc. Royal Soc. Lond., Series A*, **241**, 1957, pp. 376-386.
69. J. D. Eshelby, The elastic field outside an ellipsoidal inclusion, *Proc. Royal Society, London, Series A*, **252**, 1959, pp. 561-569.
70. J. M. Schultz and K. Friedrich, Effect of temperature and strain rate on the strength of a PET/glass fibre composite, *J. Mater. Sci.*, **19**, 1984, pp. 2246-2258.
71. J. Karger-kocsis and K. Friedrich, Fracture behavior of injection-molded short and long glass fiber-polyamide 6.6 composites, *Comp. Sci. Tech.*, **32**, 1988, pp. 293-325.
72. V. B. Gupta, R. K. Mittal and M. Goel, Energy absorbing mechanisms in short glass fibre reinforced polypropylene, *Comp. Sci. Tech.*, **37**, 1990, pp. 353-369. *
73. B. Lauke and B. Schultrich, Deformation behavior of short-fiber reinforced materials with debonding interfaces, *Fiber Sci. Tech.*, **19**, 1983, pp. 111-126.
74. B. Lauke, B. Schultrich and R. Barthel, Contribution to the micromechanical interpretation of fracture work of short-fiber-reinforced thermoplastics, *Comp. Sci. Tech.*, **23**, 1985, pp. 21-35.
75. B. Lauke and W. Pompe, Relation between work of fracture and fracture toughness

- of short-fiber reinforced polymers, *Comp. Sci. Tech.*, **31**, 1988, pp. 25-33.
76. D. S. Matsumoto, Fatigue initiation in a short glass fiber composite, *J. Mater. Sci. Letters*, **2**, 1983, pp. 7-11.
77. K. Friedrich, Stress corrosion crack propagation in glass fibre reinforced/thermoplastic PET, *J. Mater. Sci.*, **16**, 1981, pp. 3292-3302.
78. C. Lhymn and J. M. Schultz, Chemically-assisted fracture of thermoplastic PET reinforced with short E-glass fibre, *J. Mater. Sci.*, **18**, 1983, pp. 2923-2938.
79. S. S. Wang and E. S.-M. Chim, Fatigue damage and degradation in random short-fiber SMC composite, *J. Comp. mater.*, **17**, 1983, pp. 114-134.
80. A. S. Carrara and F. J. McGarry, Matrix and interface stresses in a discontinuous fiber composite model, *J. Comp. Mater.*, **2**, 2, Apr., 1968, pp. 222-243.
81. L. J. Broutman and B. D. Agarwal, A theoretical study of the effect an interfacial layer on the properties of composites, *Polym. Eng. Sci.*, **14**, 8, Aug., 1974, pp.581-588.
82. W. L. Ko, Finite element microscopic stress analysis of cracked composite systems, *J. Comp. Mater.*, **12**, 1978, pp. 97-115.
83. S. J. Hwang and R. F. Gibson, Micromechanical modelling of damping in discontinuous fiber composites using a strain energy/finite element approach, *J. Eng. Mater. Tech.*, **109**, 1987, pp. 47-52.
84. P. Gilormini and Y. Germain, A finite element analysis of the inclusion problem for power law viscous materials, *Int. J. Solids Structures*, **23**, 1987, pp. 413-437.
85. N. S. Choi and K. Takahashi, Stress fields on and beneath the surface of short-fiber reinforced composites and their failure mechanisms, *Comp.Sci. Tech.*, **43**, 1992, pp. 237-243.
86. H. L. Cox, The elasticity and strength of paper and other fibrous materials, *British J. Appl. Phys.*, **3**, 1, 1952, pp. 72-79.
87. Z. Hashin and B. W. Rosen, The elastic moduli of fiber-reinforced materials, *J. Appl. Mech.*, **31**, 1964, pp. 223-232.
88. B. W. Rosen, Mechanics of Composite Strengthening, Fiber Composite Materials, Amer. Soc.of Metals, Metals Park Ohio, 1964, pp. 37-75.
89. J. Amirbayat and W. S. Hearle, Properties of unit composites as determined by the properties of the interface, Part I: Mechanics of Matrix-Fiber Load Transfer, *Fiber Sci.Tech.*, **2**, 2, 1969, pp. 123-141.
90. Choon T. Chon and C. T. Sun, Stress distributions along a short fibre in fibre reinforced plastics, *J. Mater. Sci.*, **15**, 1980, pp. 931-938.
91. Y. Takao, Microscopic damage criteria in the vicinity of short (broken) fiber ends in composites materials, *Trans. Japan Soc. Comp. Mater.*, **9**, 1983, pp. 56-62.

92. Y. Takao, Microscopic damage propagation at the broken fiber ends in hybrid composite materials with debonding resistance between fiber and matrix, Composites'86: Recent advances in Japan and the United States, *Proc. Japan-U.S. CCM-III*, Tokyo, 1986.
93. Chun-Hway. Hsueh, Analytical analyses of stress transfer in fibre-reinforced composites with bonded and debonded fiber ends, *J. Mater. Sci.*, **24**, 1989, pp. 4475-4482.
94. N. J. Pagano, The stress field in a cylindrical anisotropic body under two dimensional surface tractions, *J. Appl. Mech.*, **38**, 1971, pp. 1-6.
95. T. Ishikawa, K. Koyama and S. Kobayashi, Thermal expansion coefficients of unidirectional composites, *J. Comp. Mater.*, **12**, 1978, pp. 153-168.
96. R. M. Christensen and H. Lo, Solutions for effective shear properties in three-phase sphere and cylinder models, *J. Mech. Phys. Solids*, **27**, 1979, pp. 315-330.
97. Y. Mikata and M. Taya, Stress field in a coated continuous fiber composite subjected to thermo-mechanical loadings, *J. Comp. Mater.*, **19**, 1985, pp. 554-579.
98. Y. Mikata and M. Taya, Stress field in and around a coated short fiber in an infinite matrix subjected to uniaxial and biaxial loadings, *J. Appl. Mech.*, **52**, Mar., 1985, pp. 19-24.
99. G. P. Tandon and N. J. Pagano, Effect of constituent material properties on the elastic behavior of composites, *Proc. Amer. Soc. for Comp., 2nd Tech. Conference*, Univ. of Delaware, 1987, pp. 429-440.
100. N. J. Pagano and G. P. Tandon, Elastic response of multi-directional coated-fiber composites, *Comp. Sci. Tech.*, **31**, 1988, pp. 273-293.
101. J. M. Whitney and L. T. Drzal, Axisymmetric stress distribution around an isolated fiber fragment, In ASTM STP 937, American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA, USA, 1987, pp. 179-196.
102. L. N. McCartney, New theoretical model of stress transfer between fiber and matrix in a uniaxially fiber-reinforced composite, *Proc. Royal Soc. Lond.*, **A25**, 1990, pp. 215-244.
103. G. P. Carman and K. L. Reifsnider, Micromechanics of short-fiber composites, *Comp. Sci. Tech.*, **43**, 1992, pp. 137-146.
104. J. A. Nairn, A variational mechanics analysis of the stresses around breaks in embedded fibers Composites, *Mech. of Mater.*, **13**, 1992, pp. 131-154.
105. G. E. Smith and A. J. M. Spencer, Interfacial tractions in a fibre-reinforced elastic composite material, *J. Mech. Phys. Solids*, **18**, 1970, pp. 81-100.
106. D. F. Adams, A micromechanical analysis of the influence of the interface on the performance of polymer-matrix composites, *Proc. Amer. Soc. for Comp.*, **26**, 18,

1992, pp. 207-226.

107. S. Jao and F. J. McGarry, On the failure work and modulus of composites reinforced by thin elastomer-coated fibers, *J. Comp. Mater.*, **26**, 18, 1992, pp. 2632-2655.

108. A. DiAnselmo, M. L. Accorsi and A. T. DiBenedetto, The effect of an interphase on the stress and energy distribution in the embedded single fibre test, *Comp. Sci. Tech.*, **44**, 1992, pp. 215-225.

109. K. Jayaraman and K. L. Reifsnider, The interphase in unidirectional fiber-reinforced epoxies: effect on residual thermal stresses, *Comp. Sci. Tech.*, **47**, 1993, pp. 119-129.

110. N. Takeda, C. Miyasaka and k. Nakata, In-situ scanning acoustic microscopy for damage progress characterization in thermoplastic composites, *Proc. 8th Int. Conf. Comp. Mater.*, Hawaii, Section 27-J, 1991, p. 1-9.

111. M. W. Darlington, P. L. McGinley and G. R. Smith, Structure and anisotropy of stiffness in glass-fiber reinforced thermoplastics, *J. Mater. Sci.*, **11**, 1976, pp. 876-886.

112. W. L. Ko, Finite element microscopic stress analysis of cracked composite systems, *J. Comp. Mater.*, **12**, 1978, pp. 97-115.

113. J. M. Whitney and L. T. Drzal, Axisymmetric stress distribution around an isolated fiber fragment, In *ASTM STP 937*, American Society for Testing and Materials, Philadelphia, PA, USA, 1987, pp. 179-196.

114. P. J. Herrera-Franco, V. Rao, L. T. Drzal. and M. Y. M. Chiang, Bond strength measurement in composites-analysis of experimental techniques, *Comp. Engng.*, **2**, 1, 1992, pp. 31-45.

115. K. K. Chawla, *Composites materials (Science and Engineering)*, Springer-Verlag New York Inc. 1987, pp. 186-196.

116. T. Kishi, N. Takeda, N. S. Kim and K. Suzuki, *J. Cer. Soc. Japan*, Int. Ed., **97**, 1989, pp. 1396-1397.

117. J. G. Merkle and H. T. Corten, *J. Pres. Vessel Tech.*, *Trans. ASME*, Ser. J. **94**, 4, 1974, pp. 286-292.

118. C. C. Chamis, Mechanics of load transfer at the fiber/matrix interface, *NASA Tech. Note TN D-6588*, Feb. 1972.

119. M.C. Murphy and J. O. Outwater, The toughness of reinforced plastics, *Proc. 28th Annu. Tech. Conf. of the Reinforced Plastic/Composites Institute*, 1973, Society of Plastic Industry, New York, 1973, Section 17-A, pp. 1-16.

謝辞

本研究の遂行にあたって、多くの方々に大変お世話になりました。指導教官の東京大学工学部航空宇宙工学科塩谷義教授には、常に有意義な御指導、御鞭撻をいただきました。

東京大学先端科学技術センターの武田展雄助教授には、本研究の開始から論文の完成に到るまで、研究テーマの選定、組立から、実験、理論の展開、まとめ、文章の推敲も含めて全面的に多大の御指導と御助言をいただきました。

東京大学工学部航空宇宙工学科近藤恭平教授、宇宙科学研究所の小野田淳次郎教授、東京大学生産技術研究所の木村好次教授には、本論文の提出に際し数々の有益なご意見をいただきました。

塩谷研究室の石田龍吉氏、佐藤勝彦氏、瀬古（旧姓谷口）智子氏、大学院生の森本哲也氏、周風華氏、柴田善朗氏、大西秀和氏、上西幸司氏、坂東博氏、また、武田研究室の荻原慎二氏（現東京理科大学）、万利群氏、黄木景二氏、木村浩巳氏、三井康成氏（現（株）三井ハイテク）、佐藤哲郎氏（現（株）日本車輛）、高坂達郎氏、新妻秀規氏、熊本大誉氏、津吉宏卓氏、稲垣孝一氏、池嶋晋一郎氏、また、東京理科大学の卒業生であった松本潤一氏、山田学氏、大学院生の島田卓也氏には研究生生活を通じていろいろお世話になりました。

著者の修士課程における指導教官である金楨圭教授（韓国漢陽大学校機械設計学科）には、常に暖かい励ましをいただきました。大谷信男博士（現群馬職業訓練短大）には様々なアドバイスをいただきました。

本当に多くの方々に深く感謝致します。

最後に、今日まで支えてくれた家族に感謝します。

