

アラミド繊維/エポキシ樹脂複合材料の破壊機構と
超音波顕微鏡による損傷評価*駒井 謙治郎*¹, 箕島 弘二*¹, 木下 定*²
中野 守人*³, 植松 美彦*⁴Investigation of Fracture Mechanisms of Aramid/Epoxy Composites
and Damage Estimation by Means of SAMKenjiro KOMAI, Kohji MINOSHIMA, Sadamu Kinoshita,
Morihiro NAKANO and Yoshihiko UEMATSU

An investigation of the fracture mechanisms of $(0/\pm 45/90)_2s$ aramid fiber/epoxy composites, i. e., Kevlar 49 and HM50 composites, has been carried out, and the delamination characteristics have been quantitatively measured by means of an acoustic microscope. Free-edge delamination occurs initially at $-45^\circ/90^\circ$ and $90^\circ/0^\circ$ interfaces in static tensile tests, whereas it occurs initially at $\pm 45^\circ$ interfaces in fatigue tests. Under static tensile loading, resin cracking and interface debonding in the weakest 90° ply are followed by the lowering of the load-carrying capacity of 90° and 45° plies. The final fracture is caused through an increase in 0° ply stress. No difference in the fracture process between Kevlar 49 and HM50 composites is observed. Compliance changes in fatigue tests are divided into two stages: stage I where the compliance is almost constant, and stage II where the compliance grows with progression of stress cycles. In stage I, no 0° ply damage occurs, whilst 0° ply damage as well as $0^\circ/45^\circ$ and $90^\circ/0^\circ$ delaminations takes place in stage II.

Key Words: Composite Materials, Aramid Fiber, Epoxy Resin, Fracture, Fatigue, Delamination, Acoustic Microscope

1. 結 言

機械的性質の全く異なる繊維とマトリックスからなる繊維強化複合樹脂 (FRP) は異方性をもつ不連続体であり, 従来の金属材料とは異なる破壊形態を示すため, 安全性, 信頼性を向上させる上で, 破壊機構の解明や損傷評価方法の確立が必要不可欠である. FRP の複雑な破壊過程を評価する方法として AE (Acoustic Emission) が用いられており^{(1)~(5)}, また著者らは, FRP の内部損傷を観察する方法として超音波顕微鏡が有用であることを報告した⁽¹⁾⁽⁶⁾⁽⁷⁾.

本研究では 2 種類のアラミド繊維強化複合樹脂 (ArFRP) を用いて静的引張試験と引張疲労試験を実施し, AE パラメータの解析, 走査型超音波顕微鏡 (SAM) による内部観察, ならびに走査型電子顕微鏡 (SEM) による破面観察を行い, ArFRP の破壊機構について総合的に検討した.

2. 実験方法

供試材は, Kevlar 49[®]繊維 (デュポン)/エポコート 828 樹脂複合材料 (以下, Kevlar 49 とする) と Technora[®]繊維 (帝人)/エポコート 828 樹脂複合材料 (以下, HM 50 とする) の 2 種類で, それぞれの繊維の機械的性質を表 1⁽⁸⁾ に, 積層構成, 平均厚さ, および繊維体積含有率を表 2 に, 各積層板の機械的性質を表 3 に示す. 試験片は長さ 200 mm, 幅 10 mm の短冊形である.

静的引張試験は島津 AG-10 TD 形オートグラフ (容量 100 kN) を用いて, 引張速度 1 mm/min で実施した. また, 疲労試験は島津電気油圧式サーボ疲労試験機 (サーボパルサ EHF-EA 10, 容量 98 kN) を用い, 正弦波波形, 応力比 $R=0.1$, 荷重繰返し速度 $f=1$ Hz の荷重一定繰返し引張疲労試験を実施した. 疲労試験においては, パーソナルコンピュータ (HP 社 HP 9000 シリーズ, モデル 310) 計測システムによって 40 サイクル分の平均化を施してコンプライアンスを算出した.

静的引張試験においては 2 個の AE センサ (Physical Acoustics 社製 PICO[®] の小形広帯域形, 直径 4 mm) を, 70 mm の間隔でシリコングリースとビニー

* 原稿受付 平成 3 年 6 月 21 日.

¹ 正員, 京都大学工学部 (〒606-01 京都市左京区吉田本町).² 京都大学工学部.³ 准員, 関西電力(株) (〒919-12 福井県三方郡美浜町丹生).⁴ 京都大学大学院.

ルテープで試験片に圧着し、AE 信号を検出した。AE 信号の計測と解析には、Physical Acoustics 社製 LOCAN (ディスク記憶容量 20 MB) を用いた。

試験片の内部損傷の観察には走査型超音波顕微鏡 SAM (オリンパス光学 UH 3 形) を使用した。送信波は 50 MHz のパルス波としたが、ゲート幅は、目的の 1 層間のみのはく離情報を取り出す場合には最小の 50 ns に、また、各層間のはく離情報の総和を取り出す場合には 1 200~1 600 ns と大きくした。超音波顕微鏡撮影で得られた原画像は直接パーソナルコンピュータ (HP 社 HP Vectra) に入力し、二値化を行い、層間は

く離面積を算出した。

3. 実験結果および考察

3.1 静的引張破壊過程

3.1.1 Kevlar 49 強化材 Kevlar 49 強化材の静

表 1 繊維の機械的性質

Fiber	Density (g/cm ³)	Tensile strength (MPa)	Modulus of elasticity (GPa)	Elongation (%)
Kevlar49	1.45	2790	127	2.4
HM50	1.39	3040	69.6	4.4

表 2 積層構成

	Kevlar49	HM50
Stacking sequence	(0°/±45°/90°) _{2s}	
Volume fraction of fiber	68%	63%
Mean thickness	2.60mm	2.48mm

表 3 機械的性質 (かっこ内の数字は 3-7 試験片で求めた標準偏差を示す)

Composite	Kevlar49	HM50
Tensile strength (MPa)	420.6 (8.17)	391.0 (11.7)
Modulus of elasticity (GPa)	22.36 (0.93)	16.90 (0.51)
Elongation (%)	2.13 (0.05)	3.02 (0.13)

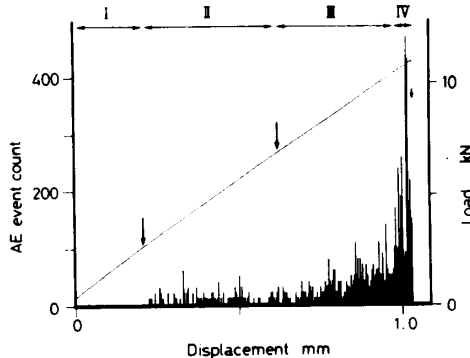
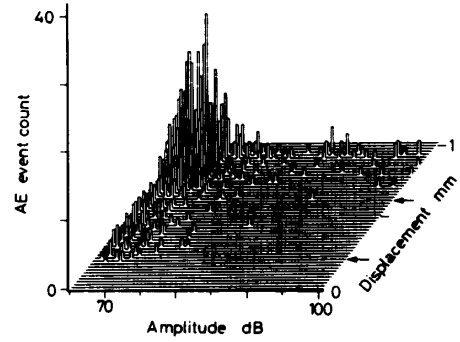
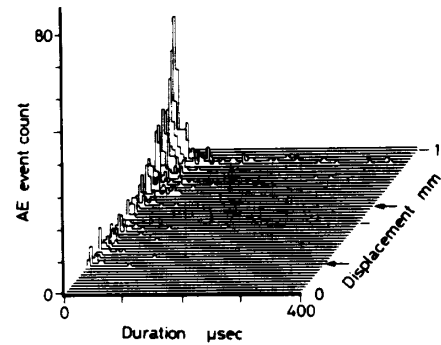


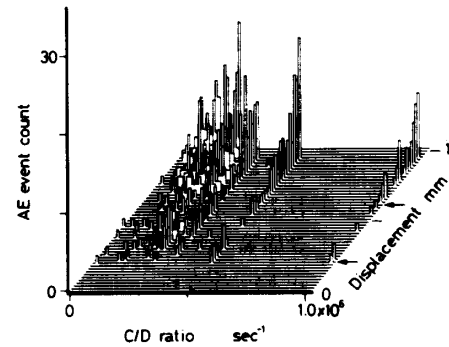
図 1 荷重-変位曲線と AE イベント数変化 (Kevlar 49 強化材, 静的引張試験)



(a) AE 振幅分布



(b) AE 持続時間分布



(c) C/D 比分布

図 2 AE 発生挙動 (Kevlar 49 強化材, 静的引張試験, 総 AE イベント数: 720)

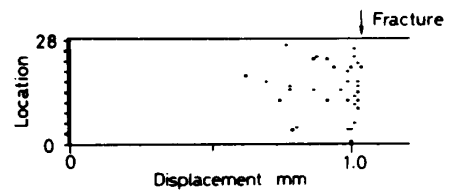


図 3 AE 発生位置 (Kevlar 49 強化材, 静的引張試験, 縦軸の“0-28”はセンサ間隔 70 mm に対応する)

的引張試験による荷重-変位曲線と AE イベント数を図 1 に示す。図 2 は AE 振幅分布, AE 持続時間分布, および AE 波の周波数に相当するカウント数/持続時間 (以下, C/D 比とする) 分布の三次元表示であり, また, 図 3 に AE 発生位置の分布を示す。図 3 の縦軸の 0 および 28 は AE センサを取付けた位置であり, センサ間隔 70 mm に対応する。

図 1 の荷重-変位曲線には 2 450 N (250 kgf), 7 000 N (700 kgf) 付近 (図中矢印で示す) で折点が見られ, これと AE イベント数発生挙動から図に示すような四つの領域に分割でき, この区分をもとに AE 波の特徴をまとめると次のようになる。

AE 振幅 [図 2 (a)]: 領域 II では小振幅の信号が発生しており, 特に 80 dB 以下の信号が多い。また, 領域 III では小振幅のものが増加している。大振幅の信号は領域 III から領域 IV にかけて発生している。

持続時間 [図 2 (b)]: 大部分が 40 μ s 以下の小持続時間のものであり, 特に領域 II では 20 μ s 以下のものが多い。一方, 中-大持続時間のものは破断直前に発生している。

C/D 比 [図 2 (c)]: 領域 II では小 C/D 比のものが多く, $0.3 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 以上の大 C/D 比のものは領域 III, IV で発生している。

AE 発生位置 (図 3): 領域 II では位置評定できた信号は見られないが, 破断時には試験片全体から AE 信号が発生している。

以上の AE 波の特徴をもとに, 各領域ごとの破壊プロセスを考察すると次のようである。

領域 I: 初期段階での損傷は少ない。

領域 II: 5 880 N 負荷したのち除荷した試験片の SAM 観察 (後述) によれば, 3-4 層間と 4-5 層間の試験片縁で特に白い部分が見られ, 層間はく離が発生していた。1-2 層間, 2-3 層間では層間はく離が観察されなかったことより, 90° 層で樹脂割れが生じて, 3-4, 4-5 層層間にはく離が発生したものである。よって領域 II で発生している 80 dB 以下の振幅, $0.3 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 以下の C/D 比の信号は樹脂割れ, 層間はく離によるも

のである。また, Kevlar 49 繊維の表面は極めて滑らかで界面強度が低いために⁽⁷⁾, 領域 II でも界面はく離が起こっているものと思われる。

(0/±45/90) 積層材では, まず最弱層の 90° 層で界面はく離および樹脂割れが起こり, 荷重-変位曲線の 2 450 N 付近において折点が見れる。この領域で AE 源の位置評定ができなかったのは, 樹脂割れのような小振幅の信号は途中で減衰し, 2 個のセンサへ到達しにくいためである。位置評定された AE 信号の多くは大振幅を持つ繊維破断に相当するものと考えられる。

領域 III: 8 820 N 負荷したのち除荷した SAM 観察によれば, 2-3 層間の試験片縁で層間はく離が生じていた。この領域での信号が領域 II と同じく小振幅, $0.3 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 以下の小 C/D 比の信号であることより, 45° 層で樹脂割れが起こり, 2-3 層間の層間はく離へと進展したことがわかる。荷重-変位曲線の 7 000 N 付近における折点は, 45° 層の荷重分担能力の低下を意味している。領域 III, IV で中-大振幅, $0.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 以上の大 C/D 比の信号と, 位置評定された信号の発生時期が対応していることより, 中-大振幅, $0.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ 以上の大 C/D 比の信号は繊維破断であると考えられる。これは 90° 層, 45° 層での荷重分担能力の低下により 0° 層の荷重分担応力が上昇し, 一部の繊維の破断が起こったためである。

領域 IV: 破断直前では 0° 層の荷重分担応力がかなり高いために, まず位置評定にみられるように試験片の至るところで繊維破断が生じ, ついで繊維の引き抜け, そして樹脂破壊に至ったと考えられる。この領域だけに見られる中持続時間の信号は, 繊維の引き抜けによるものである。

3.1.2 HM 50 強化材 HM 50 強化材の静的引張試験による荷重-変位曲線 (略) においても, Kevlar 49 強化材と同様, 2 350 N (240 kgf) と 6 370 N (650 kgf) 付近に折点が二つ存在し, この場合は弾性率の変化がかなり顕著であった。SAM 観察によれば, Kevlar 49 強化材と同様, 第 1 の折点は 90° 層の荷重分担能力の低下, 第 2 の折点は 45° 層の荷重分担能力の低下を意味していた。この時, HM 50 強化材では界面強度が高く, また繊維が樹脂よりも延性に富むため, 折点前後の弾性率の変化が Kevlar 49 強化材よりも大きくなったものと考えられる。

3.1.3 AE パラメータと AE 発生要因との関係

これまでの SAM 観察, SEM 観察, AE 計測結果より明らかになった AE パラメータと AE 発生要因との関係を表 4 に示す。繊維破断は中-大振幅, 大 C/D 比, 短持続時間の AE 信号をもたらすのに対してマトリッ

表 4 AE 発生要因と AE パラメータの関係

	Amplitude	C/D ratio	Duration
Fiber breaking	Middle-Large	Large ($>0.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$)	Short ($<30 \mu\text{s}$)
Resin cracking	Small ($<80\text{dB}$)	Small ($<0.3 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$)	Short
Interlaminar delamination	Small ($<80\text{dB}$)	Small ($<0.3 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$)	Short
Fiber pullout	Small	Large ($>0.5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$)	Medium

クスの破壊は小振幅、低 C/D 比、短持続時間の AE 信号が生じる。層間はく離については低振幅、小 C/D 比、短持続時間の AE 信号がもたらされる。さらに、繊維の引き抜けにより、小振幅、大 C/D 比、中持続時間の AE 信号が発生する。

3.1.4 引張層間はく離進展曲線 静的引張試験の各荷重段階で試験片を取り外して SAM 撮影を行った。各層間はく離損傷の総和を表す SAM 写真を図 4 (Kevlar 49 強化材) に示す。また、図 4 (b) ($\sigma=339$ MPa 負荷後) に①、②で示す場所の超音波波形を各々図 5 (a), (b) に示すように、3-4 層間、4-5 層間にてはく離が開始して 2-3 層間の層間はく離が生じていることがわかる。この場合、2-3 層間に比して 4-5 層間の層間はく離が顕著であった。層間はく離は、試験片縁から平行に進展し、荷重増とともに増加する。そこで、SAM 撮影により得られた白化部を二値化して層間は

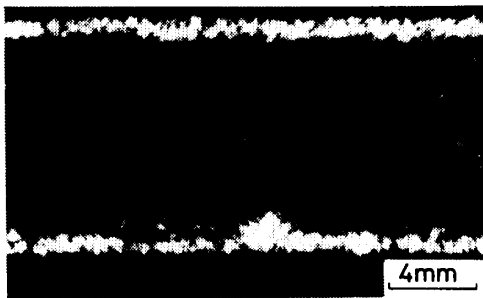
く離損傷とみなし、層間はく離面積比 (= 層間はく離面積/試験片面積) と静的引張応力比 (= 負荷応力/引張強さ) との関係を図 6 に示す。層間はく離と引張応力との間には良い対応関係がある。この時、直線の傾きは層間はく離進展抵抗を示すが、Kevlar 49 強化材と HM 50 強化材を比較すると後者の層間はく離進展抵抗が小さいことがわかる。

3.2 疲労破壊過程

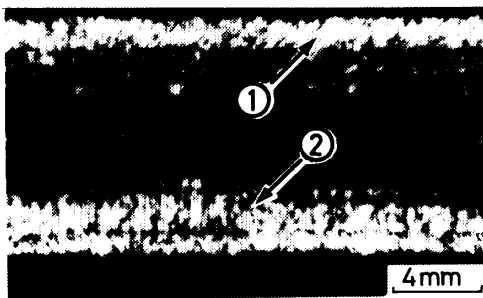
3.2.1 S-N 曲線 疲労試験により得られた S-N 曲線を図 7 に示す。低応力繰返し速度のため、HM 50 一方向強化材で見られたような発熱⁽⁷⁾は見られなかった。

3.2.2 疲労層間はく離進展特性 疲労試験を中断し、SAM を用いて試験片内部の疲労層間はく離を観察した。Kevlar 49 強化材 ($\sigma_{max}=0.8\sigma_B$) および HM 50 強化材 ($\sigma_{max}=0.7\sigma_B$) の代表的な SAM 写真をそれぞれ図 8 (a), (b) に示す。HM 50 強化材では、疲労層間はく離が試験片の両縁から非常にきれいに進展しているのが観察されるが、Kevlar 49 強化材では必ずしも試験片の両縁からはく離が進んでいるわけではない。超音波波形観察からこの場合の疲労層間はく離はまず 2-3 層間 ($\pm 45^\circ$ 層間) に生じ、ついで 3-4 層間 ($-45^\circ/90^\circ$ 層間) ではく離が生じていた。

応力繰返しに伴う層間はく離面積比の変化を図 9 に



(a) $\sigma=188$ MPa



(b) $\sigma=339$ MPa

図 4 SAM による層間はく離観察 (Kevlar 49 強化材, 静的引張試験)

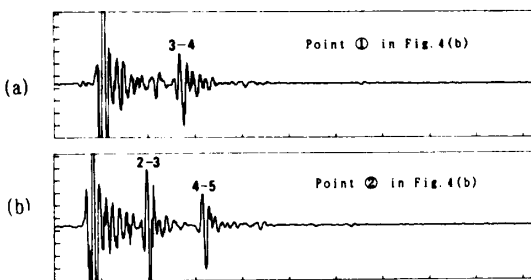


図 5 超音波信号 (Kevlar 49 強化材)

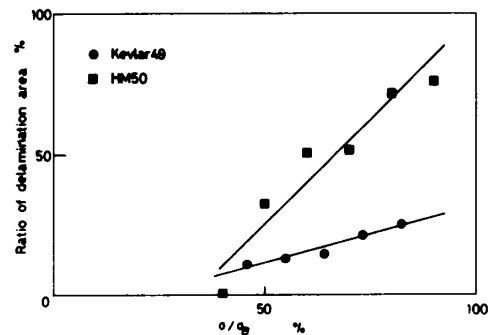


図 6 層間はく離面積比と静的引張応力比の関係

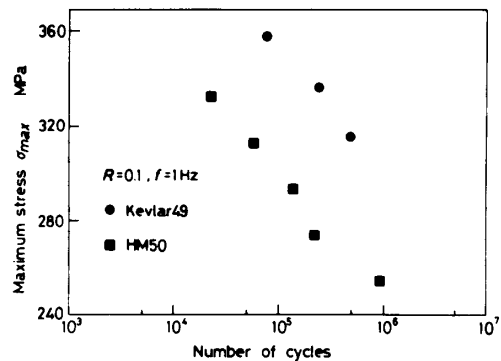


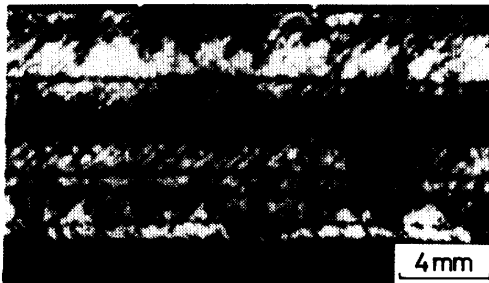
図 7 S-N 曲線

示す。ここでははく離面積比とは、はく離面積を試験片つかみ部間の面積で除した値である。図9よりはく離進展曲線の傾き m は、強化繊維の種類や負荷応力によらず、一定 ($m=0.42$) となった。 m は1より小さいので層間はく離進展速度 dA/dN は応力繰返しとともに減少すること、HM 50 強化材の dA/dN は Kevlar 49 強化材の dA/dN の 4.9~13 倍となることがわかる。なお、Kevlar 49 強化材においてははく離進展曲線に水平部が見られるが、これは、試験片切出し加工時にすでに層間く離を生じていたためである。

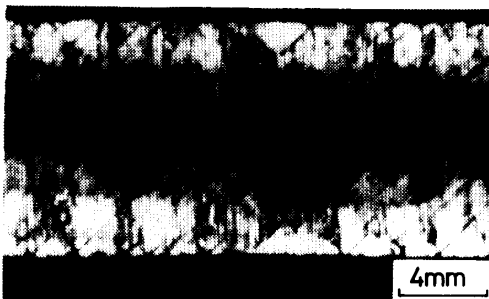
応力繰返しに伴う試験片コンプライアンスの変化を図10(a) (Kevlar 49 強化材)、(b) (HM 50 強化材) に示すように、コンプライアンス変化はほぼ一定の期間(領域I)と増加期間(領域II)に分けられる。領域Iと領域IIの境界を下向き矢印で示す。Kevlar 49 強化材ではコンプライアンス一定の領域Iが長い

が、領域IIのコンプライアンス増加は急激である。一方、HM 50 強化材では領域Iが極めて短く、領域IIのコンプライアンスが漸増していることがわかる。HM 50 強化材では層内損傷が寿命初期から生じているためである。

次に、はく離面積比とコンプライアンスの関係を両対数グラフで、図11 (HM 50 強化材) に示すように、両者の関係は2本の直線で近似できる。すなわち、疲労層間はく離が進展してもコンプライアンスがほとんど

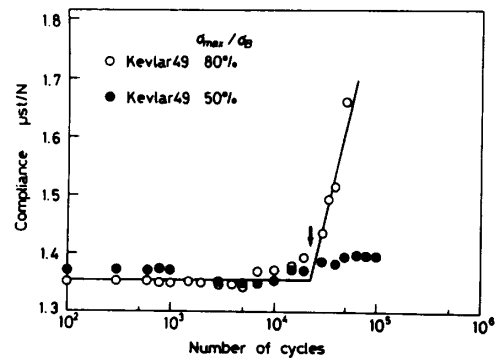


(a) Kevlar 49 強化材 ($\sigma_{max}=0.8\sigma_B$, $n=4 \times 10^4$)

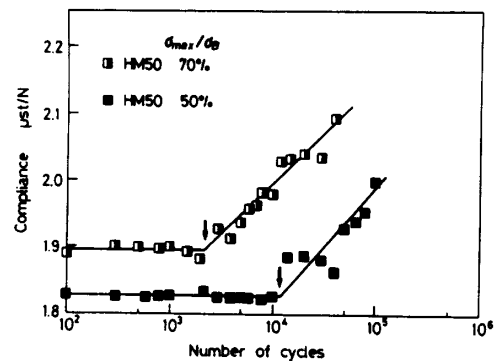


(b) HM 50 強化材 ($\sigma_{max}=0.7\sigma_B$, $n=3 \times 10^3$)

図8 SAMによる層間はく離観察(疲労試験)



(a) Kevlar 49 強化材



(b) HM 50 強化材

図10 コンプライアンスと応力繰返し数の関係

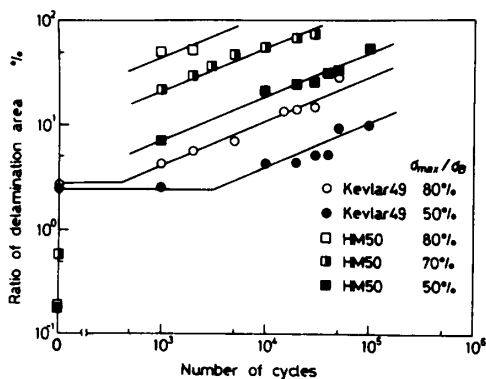


図9 層間はく離面積比と応力繰返し数の関係

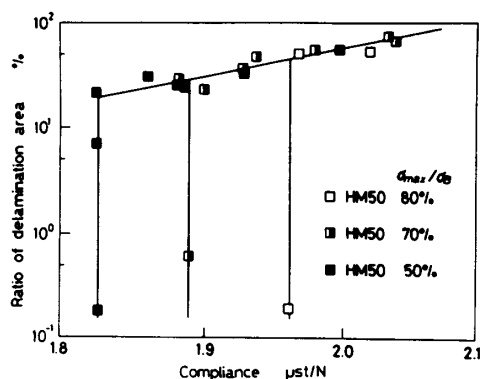


図11 層間はく離面積比とコンプライアンスの関係

ど変化しない領域Ⅰと、疲労層間はく離がある値まで進むと、荷重に無関係に層間はく離面積比とコンプライアンスが1:1で対応する領域Ⅱであり、この領域は図10における領域Ⅰ、Ⅱと対応している。

本研究で用いた $(0/\pm 45/90)_{2s}$ 構成の積層材においては、最初に疲労層内損傷が発生するのは、静的引張試験におけると同様最も荷重分担能力の低い 90° 層である。しかし、超音波波形から判断すると、疲労層間はく離は主に2-3層間、すなわち、 $\pm 45^\circ$ 層間において顕著であり、 $\pm 45^\circ$ 層においても層内損傷が発生していた。ここで、 -45° 層は 0° 層から最も離れているため、 0° 層による拘束力が弱く、 -45° 層内で最初に層内損傷が発生しているものと考えられる。 -45° 層内で発生した損傷が進展して、2-3層間および3-4層間のはく離を引き起こし、 $\pm 45^\circ$ 層内と 90° 層内損傷へと進展する。さらにこの層内損傷が1-2層間および4-5層間の層間はく離を引き起こし、最後に 0° 層内損傷にまで進展する。この間層内損傷が $\pm 45^\circ$ 層と 90° 層にとどまっている間は、 0° 層内はまだ損傷を受けていないのでコンプライアンスは変化しない。アラミド繊維強化複合材料の 0° 方向および、 90° 方向の一方向強化材と、 $\pm 45^\circ$ 斜交積層強化材の弾性率⁽⁷⁾⁽⁹⁾を表5に示すように、本実験で用いた $(0/\pm 45/90)_{2s}$ 構成の積層材において 0° 層の荷重分担能力が圧倒的に大きく、 $\pm 45^\circ$ 層と 90° 層の荷重分担能力は非常に小さいことがわかる。すなわち、コンプライアンス変化は、 0° 層の弾性率の変化に支配されており、 0° 層内において樹脂破壊、繊維/マトリックス界面はく離、繊維破断が生じて始めて、コンプライアンスが急激に上昇し疲労破壊するものと考えられる。

4. 結 言

2種類のアラミド繊維/エポキシ樹脂 $(0/\pm 45/90)_{2s}$ 積層材を用いて、静的引張試験と引張疲労試験を実施し、AE波解析、SAMによる内部観察およびSEMによる破面観察を行い、破壊機構について検討を加えた。

(1) 複合材料の複雑な破壊機構を解明する上で、AE法は有効な手段であるが、これに加うるに、SAMによる内部損傷評価やSEMによる破面観察を行うこ

表5 種々の積層構成を有する複合材の弾性係数

Stacking sequence	Tensile modulus	
	Kevlar49 (GPa)	HM50 (GPa)
$(0^\circ)_{14}$	75.9	38.7
$(90^\circ)_{14}$	3.3	2.4
$(\pm 45^\circ)_{3s}$	4.4	4.0

とにより、破壊機構のより正確な説明が可能となる。

(2) $(0/\pm 45/90)_{2s}$ 積層構成材の層間はく離は、試験片平行部両縁より入るが、最初に層間はく離を生じる位置は、引張試験においては3-4層間 ($-45^\circ/90^\circ$ 層間) と4-5層間 ($90^\circ/0^\circ$ 層間)、疲労試験においては2-3層間 ($\pm 45^\circ$ 層間) であり、負荷形態により層間はく離発生位置が異なった。

(3) 平滑材の静的引張りにおいては、最弱層の 90° 層で樹脂割れ、界面はく離 $\rightarrow 90^\circ$ 層の荷重分担能力の低下 $\rightarrow 45^\circ$ 層の荷重分担能力の低下を経て、最終的に、 0° 層の荷重分担能力が上昇し破壊へと至る。この時、Kevlar 49 と HM 50 強化材の破壊過程の差は見られなかった。

(4) 疲労試験におけるコンプライアンス変化は、コンプライアンス一定の領域Ⅰとコンプライアンスが応力繰返しとともに増加する領域Ⅱに分けられる。領域Ⅰにおいては、 0° 層の層内損傷は生じていない。領域Ⅱにおいては、 $0^\circ/+45^\circ$ と $90^\circ/0^\circ$ 層間はく離とともに 0° 層の層内損傷が生じていた。

本研究は昭和63年度、平成元年度文部省科学研究費一般研究(A) (課題番号63420026) により行ったものである。また、試験片作成に当たっては帝人(株)相戸勇三氏にご尽力いただいた。記して謝意を表す。

文 献

- (1) 駒井・箕島・渋谷・野村, 機論, 54-505, A(1988), 1673.
- (2) 駒井・箕島・渋谷, 機論, 56-525, A(1990), 1021.
- (3) 駒井・箕島・渋谷, 機論, 56-528, A(1990), 1792.
- (4) 鈴木・伊村・岩本・自稔・藤原, 機論, 55-513, A(1989), 1081.
- (5) 鈴木・中西・岩本・自稔・前川・森・孫, 機論, 53-492, A(1987), 1459.
- (6) 駒井・箕島・木下・小川・黒田・材料, 39-438(1990), 271.
- (7) 駒井・城下・木下・Grenestedt, 材料, 38-434(1989), 1329.
- (8) 帝人技術資料, TI-102/86.1(1).
- (9) 駒井・城下・Bruschke, 材料, 36-411(1987), 1395.