

FRPリサイクル材の強度に関する基礎的研究*

— 射出成形板の強度に及ぼす繊維含有率の影響 —

山 本 俊 浩**

Study on Strength of Recycled FRP Material

— Effect of Fiber Content on Strength of Short Glass Fiber-reinforced Polycarbonate made by Injection Molding —

Toshihiro YAMAMOTO

The effect of fiber content on the strength and damage near the notch root of short fiber reinforced plastic (FRP) has been investigated. This is accomplished by obtaining experimental data of static tension and fatigue tests of pulsating tension on a short glass fiber-reinforced polycarbonate. To evaluate the damage, we measured the luminance distributions by means of the luminance measuring technique with a CCD camera. Closer observation on the notch-root surface revealed that the process of microfracture in the damaged zone depends on the fiber content. Deformation bands were observed in the matrix around the fiber for the specimen of low fiber content. On the fatigue test, the deformation bands were observed at the ends of the surface crack and the crack surface spreads inside of specimen in the early stage of fatigue life. The discontinuous crack growth (DCG) bands observed in the fracture surface of polycarbonate were observed in the resin rich area of the FRP. On the other hand, microcracks initiated at the corners of fiber-ends in the damaged zone for the specimen of high fiber content. Several microcracks joint together and grew up a crack. The DCG region was not observed on the fracture surface of high fiber content. The fracture strength and the process of damage initiation and growth of short glass fiber reinforced polycarbonate composites were discussed in terms of mechanical properties and yield behavior of the matrix.

Key Words: FRP, Recycled Material, Fiber Content, Polycarbonate, Static Tension, Fatigue, Luminance

1. 緒 言

循環型社会の形成を目指して、現在、多くのリサイクル材料が開発されつつある。プラスチックの優れた成形性を利用し、廃材を強化材とした高分子系複合材料を射出成形で製造する試みもなされている。しかしその複合材料の力学的評価は、十分には行われていないように思われる。

強化材が繊維の場合、力学的性質は繊維直径、繊維長さ、繊維配向および繊維含有率のような微視的パラメータに強く依存する。著者らは、これまでに強度および損傷に及ぼす繊維配向の影響^{(1)~(6)}、繊維長さの影響^{(7),(8)}について報告している。

本報は、ガラス繊維の重量含有率がそれぞれ0, 1, 10, 20, 30および50%の6種類のガラス繊維強化ポリカーボネート射出成形板(GF/PC)を用いて、引張試験および疲労試験を行い、強度および損傷に及ぼす繊維含有率の影響について検討したものである。

損傷の評価には、これまでと同様CCDカメラと画像

* 平成16年11月30日受付

** 資源循環・環境グループ

解析装置による輝度測定システム^{(9)~(11)}を用いた。さらに、微小破壊の実体を明らかにするために、切欠底表面の観察を光学顕微鏡を用いて行った。

これはリサイクル材の強度評価に関する一連の研究の一つで、廃材を強化材として高分子系複合材料を作成する際の強度に及ぼす廃材含有率の影響を明らかにしようとするものである。

2. 材料, 試験片および実験方法

使用した試験材は、短いガラス繊維を入れたポリカーボネート射出成形板(出光興産製)である。板の寸法は長さ270mm, 幅70mm, 厚さ3mmである。ガラス繊維の重量含有率は0, 1, 10, 20, 30および50%の6種類である。それぞれの試験材を0wt%, 1wt%, 10wt%, 20wt%, 30wt%および50wt%と記す。

図1に、10wt%, 20wt%, 30wt%および50wt%の板の長手方向に対して垂直な断面、板厚中央付近を示す。ガラス繊維はEガラス、繊維直径は約0.013mm, 長さは1mm以下である。図に示すように、繊維含有率の増加とともに繊維間隔が狭くなっていることがわかる。

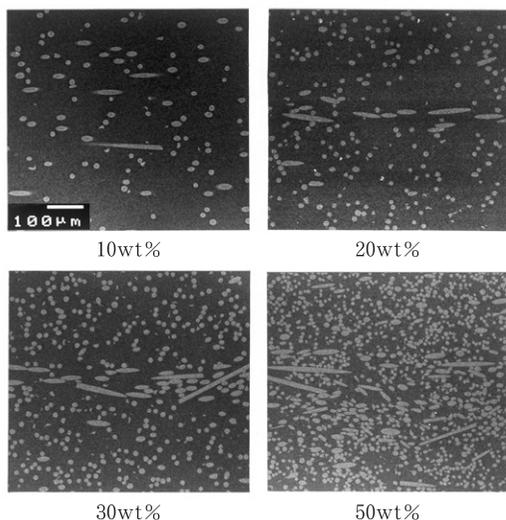


図1 板厚中央付近の断面

20wt%以上の試験材では、ガラス繊維は板の長手方向に配列しており、板の長手方向に切り出した試験片の引張強度が最も高い。各方向に切り出した試験片の引張応力-ひずみ線図は異なり、異方性は顕著である。これに対して10wt%以下ではガラス繊維は比較的ランダムに配列し、顕著な異方性は認められなかった。

引張試験⁽¹¹⁾および疲労試験⁽¹²⁾に用いた平滑試験片および切欠試験片の形状と寸法は前報^{(11), (12)}と同じである。

すべての試験片の試験部の板幅は20mm一定である。その試験部中央の両側にU形の切欠きをつけて切欠試験片とした。切欠半径 ρ は0.25, 0.5, 1および2mmの4とおり、切欠深さ a は引張試験片が3mm, 疲労試験片が4mmである。疲労試験の平滑試験片は、切欠半径 ρ (=20mm)に対して最小断面部の板幅(=20mm)が小さい試験片を用いた。疲労試験片のつかみの部分の詳細については既に報告⁽¹²⁾している。すべての試験片は板の長手方向に沿って切り出した。

引張試験機にはインストロン形を用い、クロスヘッド速度は0.5mm/minである。疲労試験はサーボ油圧式疲労試験機を用い、繰返し速度は2Hz, 応力比0.1の片振り引張疲労試験を荷重制御で大気中, 室温(22±0.5℃)のもとで行った。

損傷の評価は、これまでと同様^{(9)~(11)}、輝度測定システムを用いた。試験片の背後より光を照射し、試験片を透過する光をCCDカメラでとらえ、画像解析装置によって光の輝度を測定し、損傷を輝度の分布で評価する。比較的解像度の高い可視光を利用し、損傷を評価するこの方法は損傷を検出する作業や周りの環境への負荷も少ない非破壊検出・評価方法であると考えられる。

引張試験および疲労試験ともに、切欠底表面の微小破壊の発生および成長過程に及ぼす繊維含有率の影響を明らかにするために、除荷後、試験片を試験機から取り外し、切欠底表面を光学顕微鏡で観察した。

引張試験の場合、クロスヘッド速度一定のもとで所定の荷重まで負荷し、直ちに同じ速度で除荷した。負荷・除荷の繰返しの影響を避けるため、除荷する所定の荷重ごとに新たな試験片を使用した。すなわち、一つの試験片に荷重が負荷されるのは一度だけである。

疲労試験の場合は、一本の試験片を所定の荷重繰返しごとに除荷し、切欠底表面に発生する微小破壊の成長過程を破断に至るまで観察した。

3. 実験結果および考察

3.1 引張試験

図2に、平滑試験片の引張応力-ひずみ線図を示す。ガラス繊維含有率が10wt%以下では延性的に破損し、それ以上では荷重増加の過程でぜい性的に破断した。マトリックス材料に1%のガラス繊維を入れたもの(1wt%)は、マトリックス材料(0wt%)の強度よりも低下している。これはわずかに混入されたガラス繊維が破壊の起点となり破断したもので、マトリックス材料内に異物が混入した場合、それが破壊の起点になることを考えれば妥当な結果といえる。このため、本報では切欠試験の引張試験および疲労試験には1wt%を使用しなかった。

図3に、マトリックス材料であるポリカーボネート(PC, 0wt%)における引張荷重と伸びの関係の模式図を示す。図2に示したPCの応力-ひずみ線図は、図3の最大荷重A点までを図示したものである。

図3に示すように、PC丸棒平滑材では最大荷重点(いわゆる降伏点)Aを越えると試験片にdeformation bands⁽¹³⁾が発生し、試験片の一部にくびれが生じ、荷重は急速にB点まで低下する。BC間では、ほぼ一定の荷重のもとで、いわゆる冷延伸の過程が進行する。C点で冷延伸の過程が終了し、荷重は再び増加し、D点で破断する。PC丸棒平滑材の真応力(破断点D点の荷重を変形後の試験片断面積で割ったもの)は約120MPaであった。

図4(a)および(b)に、それぞれ繊維含有率30wt%および10wt%の荷重時および除荷時における各相対輝度の面積の変化の例を示す。これらはそれぞれ破断応力の約90%の荷重(図4のC点)で除荷したものである。相対輝度R.L.とは試験前の透過光の輝度に対する測定時の輝度の比である。したがってR.L.の値が小さい領域ほど輝度の透過する割合が低下した領域、損傷の激しい領域であると考えられる。

いずれの材料も、切欠底の最大弾性応力 σ_{max} が約80MPaでR.L.≤90%の領域が検出され、荷重の増加と

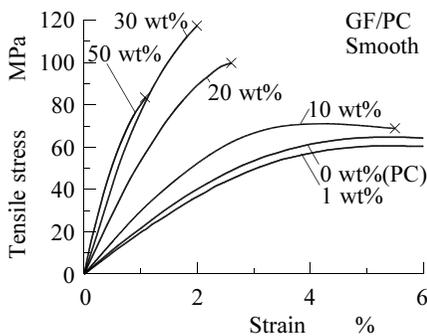


図2 平滑試験片の引張応力-ひずみ線図

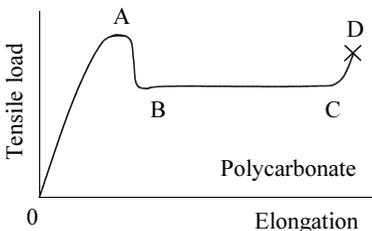


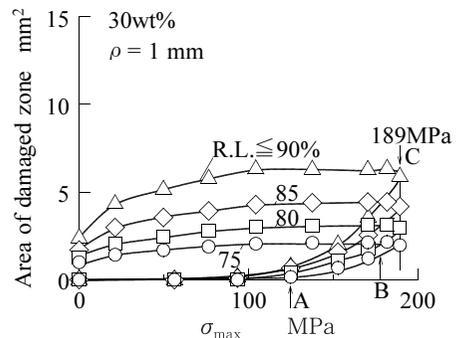
図3 ポリカーボネート丸棒平滑試験片における引張荷重と伸びとの関係の模式図

もに損傷域の面積も増加する。除荷後、損傷域の面積は最大荷重時の面積に対して低下しており、低下の割合は相対輝度が高い領域ほど大きいことが分かる。また繊維含有率30wt%と10wt%を比較すると、同じ応力における損傷域の面積は繊維含有率10wt%の方が30wt%よりも大きいことがわかる。図中のA、B、Cの応力で除荷したときの切欠底表面における微小破壊の発生と成長過程を図5および6に示す。

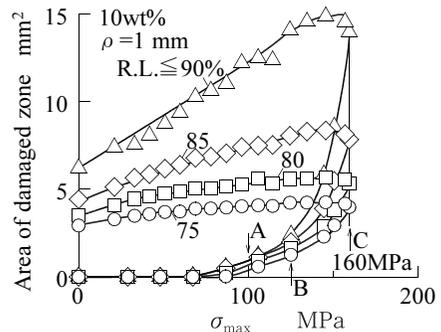
図5は繊維含有率30wt%の場合で、図4(a)のA点、B点およびC点で除荷した場合に相当する3本の試験片の切欠底表面である。前述したように、負荷・除荷の繰返しの影響を避けるため、除荷する所定の応力ごとに新たな試験片を使用した。荷重は図の上下方向に作用し、図の左右方向が板厚方向である。

R.L.≤75%の損傷域が検出される $\sigma_{max}=125\text{MPa}$ (図4(a)のA点)で切欠底表面にはガラス繊維端に微小き裂の発生が観察され、 $\sigma_{max}=179\text{MPa}$ (B点)で微小き裂は板厚方向に成長、連結している。さらに $\sigma_{max}=189\text{MPa}$ (C点)では多数のき裂が連結し、その密度が増している。

これらの観察結果より、繊維含有率30wt%のGF/



(a) 繊維含有率30wt%



(b) 繊維含有率10wt%

図4 荷重時-除荷時における各損傷域の面積変化

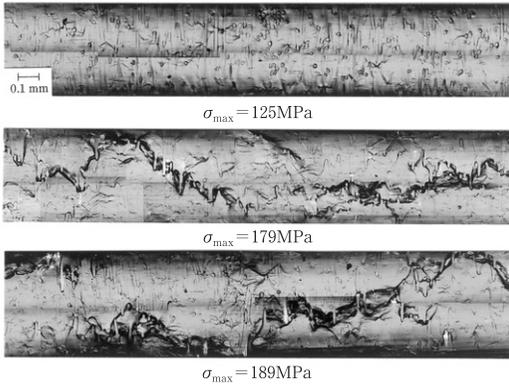


図5 切欠底表面における微小破壊の形態 (繊維含有率30wt%)

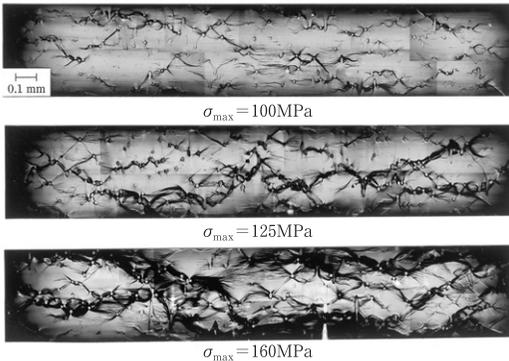


図6 切欠底表面における微小破壊の形態 (繊維含有率10wt%)

P C切欠平板の損傷域は、微小き裂の発生および成長によって形成されることがわかる。

図6に繊維含有率10wt%の切欠底表面における微小破壊の発生および成長過程を示す。損傷域が検出された図4 (b)のA点 ($\sigma_{max} = 100\text{MPa}$)で切欠底表面のガラス繊維から deformation bands の発生が観察される (図6)。荷重の増加とともに deformation bands は成長連結し (B点, $\sigma_{max} = 125\text{MPa}$)、さらにC点 ($\sigma_{max} = 160\text{MPa}$)で deformation bands は切欠底表面の広い範囲にわたって板幅全体に広がっている。

これより繊維含有率10wt%のGF/P C切欠平板の損傷域は deformation bands の発生および成長によって形成され、繊維含有率の違いによって微小破壊の形態が異なることがわかる。

図7に繊維含有率 (重量含有率) と平滑試験片の引張強さとの関係を示す。図に示すように、繊維含有率が30wt%以上では引張強さの増加は認められない。GF/

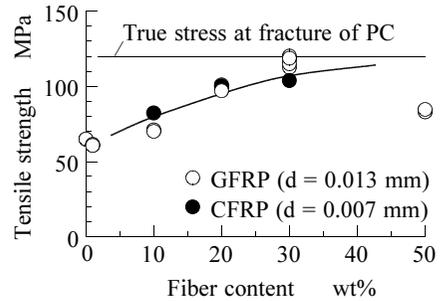


図7 繊維含有率と平滑試験片の引張強さとの関係

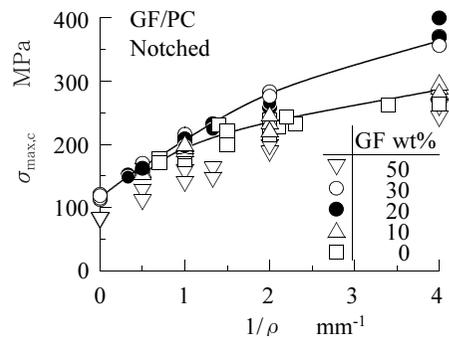


図8 破断時における切欠底の最大弾性応力 $\sigma_{max,c}$ と切欠半径 ρ との関係

P Cの最大の引張強さは、P Cの限界強さ、P C丸棒平滑材の引張りにおける最大真応力、120MPa (図3のD点)よりも低い。

図には、秋庭らが同じP Cに短い炭素繊維 (直径 $d = 0.007\text{mm}$) を入れた射出成形板 (出光興産製)で行った試験結果⁽¹⁴⁾を、●印としてプロットしている。この場合、炭素繊維含有率が30wt%の引張強さは104MPa⁽¹⁴⁾であり、ガラス繊維の場合と同様にP Cの限界強さよりも低い。

これらの実験結果より、短いガラス繊維を入れたFRPの強度および破損には、マトリックスの破損挙動が大きく影響すると考えられる。

繊維含有率が低いほど繊維間の距離は長く、したがってマトリックスは変形しやすくなる。マトリックスがP Cの場合、変形の拘束がなければ deformation bands が発生して降伏する。図6に示すように、10wt%の場合は損傷域は deformation bands による変形が支配的である。

繊維含有率が高くなれば、deformation bands の発生は繊維によって妨げられ、マトリックスの強さの限界値近くまで破断は起こらないと考えられる。この場合、

破断は繊維端部からの微小き裂の発生および成長による(図5)。すなわちこの場合、FRPの強度はマトリックスの強度でほぼ決まると考えられ、図7に示すように、繊維を30wt%以上入れても強度の増加は期待できない。さらに、このことは前述したように繊維の種類とも無関係と思われる。

図8に、破断時における切欠底の最大弾性応力 $\sigma_{\max,c}$ と切欠半径 ρ との関係を示す。両者の関係は繊維含有率が一定の材料ごとに一対一に対応している。切欠試験片の静荷重における破壊強度において、繊維含有率20wt% (図中の●印)と30wt% (○印)の間に大きな差違は認められなかった。

一般に繊維含有率が増せば、強度は増すと考えられるが、図7および8に示すように、繊維含有率50wt%の場合は強度が低下している。このことは繊維含有率が高い場合、成形が困難であり、たとえ成形品ができたとしてもその強度に注意が必要なることを示唆している。

3.2 疲労試験

図9にS-N曲線を示す。縦軸 σ_n は最小断面部における公称応力の最大値、横軸 N_f は破断までの荷重繰返し数、疲労寿命である。(a)は平滑試験片の結果である。図に示すように、疲労寿命に及ぼす繊維含有率の影響は顕著であり、繊維含有率の増加とともに疲労寿命は増加している。

引張試験において破壊強度に大きな差違が認められなかった繊維含有率20wt%と30wt%の切欠試験片について、疲労試験を行い、両者の結果を比較検討した。

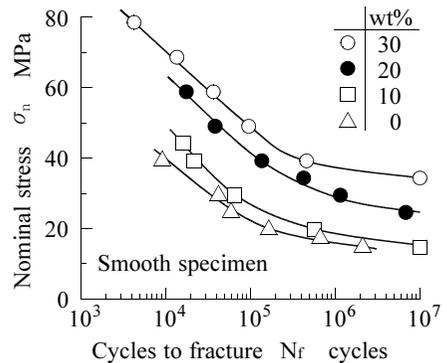
図9(b)に20wt%と30wt%の切欠試験片のS-N曲線を示す。切欠深さ($a=4\text{mm}$)一定の場合である。両者の疲労寿命には差が認められ、同じ応力での30wt%の寿命は20wt%の寿命に比べて長いことがわかる。一方、同じ繊維含有率の場合、切欠半径の影響は少ない。

図10に切欠底付近の疲労破面を示す。(a)は20wt%の場合である。マトリックスであるPCの疲労破面で観察されるdiscontinuous crack growth(DCG)bands^{(15)~(17)}が、20wt%の疲労破面の樹脂リッチの領域で認められる。DCG bandsはPCの疲労破面の起点付近で観察されるもので、試験片表面のき裂の成長とともにほぼ半円状に試験片内部に広がっていく^{(16), (17)}。

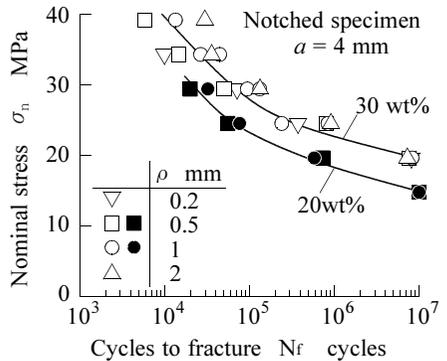
これに対して図10(b)に示すように、30wt%の疲労破面には、樹脂リッチの領域は少なく、DCG bandsは観察されなかった。

図11に20wt%の切欠底表面に生ずる微小な疲労き裂の発生および成長過程を示す。荷重は図の上下方向に作用し、図の左右方向が板厚方向である。 2×10^3 cycles(疲労寿命の約8%)で切欠底表面のガラス繊維のまわりに多数の微小き裂が発生し、表面き裂の先端には

deformation bandsの発生が観察される。マトリックス材料であるPCの場合、試験片表面のき裂先端にdeformation bandsが発生し、表面き裂の成長が止まった後もき裂面は試験片内部に向かって袋状に広がる^{(16), (17)}。図11に示すように、 1.2×10^4 cyclesではガラス繊維に発生した微小き裂はそれぞれ成長し、他の疲労き裂と連結している。しかし、このときの主き裂は板厚全体には達していない。前報⁽¹⁸⁾で示した30wt%に比べると、板厚全体に達する前から切欠底表面で観察されるき裂は太く、除荷後においても開口していることがわか

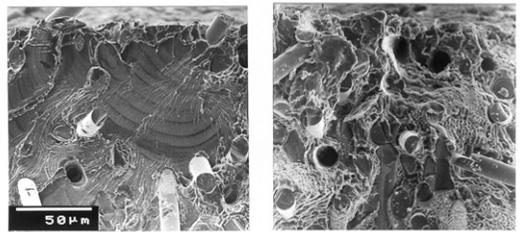


(a) 平滑試験片



(b) 切欠試験片

図9 S-N曲線



(a) 20wt%

(b) 30wt%

図10 疲労破面

る. 図10(a)に示したように, このとき疲労き裂前縁は内部に広がっていると考えられる. 切欠底表面の主き裂は 2×10^4 cycles で板厚全体に達する. 切欠底表面で観察されるき裂の数は, 30wt%に比べて少ないように思われる.

図12に切欠底付近における疲労損傷の発生および成長過程を示す. (a) 30wt%および (b) 20wt%の場合である. これらは疲労損傷を相対輝度 R.L.=60, 65, 70および75%の4段階で表している.

図12(a), (b)で, 切欠半径 $\rho (=0.5\text{mm})$ および切欠底の最大弾性応力 σ_{\max} はほぼ等しい. 図に示すように, 切欠底付近に生ずる疲労損傷の形態は繊維含有率の違いによって顕著に異なる. 30wt%の疲労損傷は上記の4段階の R.L. が検出され, 切欠底の比較的広い範囲に沿って発生, 成長している. 30wt%の場合, 切欠底表面の多くのガラス繊維端から微小き裂が多数発生し, 成長, 連結しながら板厚全体に進展し, その後板幅方向に成長する⁽¹⁸⁾.

これに対して, 20wt%の疲労損傷には R.L. $\leq 60\%$ の領域は検出されず, 損傷域も30wt%に比べると切欠底の狭い範囲に集中している. 20wt%の場合, 切欠底表面に発生する微小き裂は30wt%に比べ少なく, 図10(a)に示すように発生したき裂は試験片内部に成長する. 切欠底表面のき裂先端には deformation bands も観察された.

図13に切欠半径 ρ が0.5mmの疲労損傷の成長曲線を示す. 30wt%では R.L. $\leq 60\%$ の面積が 0.1mm^2 のとき, 切欠底表面で観察される主き裂は板厚全体に達していた⁽¹⁸⁾. 20wt%では板厚全体に主き裂が達したとき, R.L. $\leq 70\%$ の面積が約 0.1mm^2 であった. これより疲労損傷を30wt%は R.L. $\leq 60\%$, 20wt%は R.L. $\leq 70\%$ の領域と

した. 疲労損傷開始点 N_d はこれまでと同様⁽¹⁸⁾, 疲労損傷の面積が 0.1mm^2 に達したときの荷重繰返し数とした.

図13に示すように, 30wt% (図中○印) と20wt%

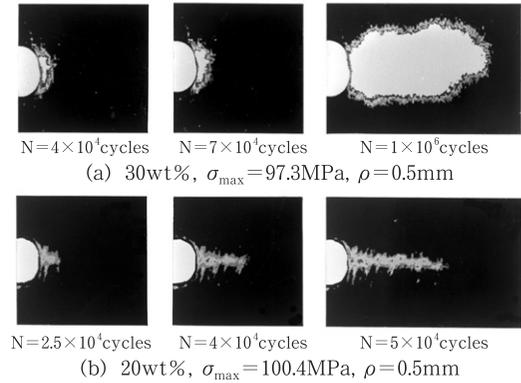


図12 切欠底付近における疲労損傷の発生および成長過程

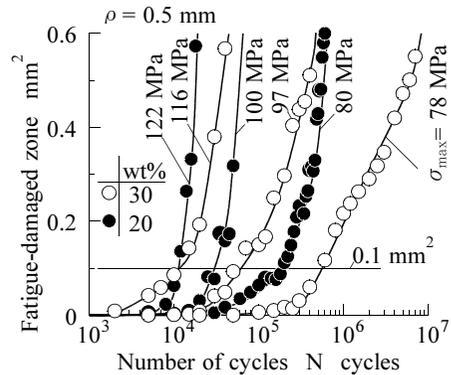


図13 疲労損傷の成長曲線 (切欠半径 $\rho = 0.5\text{mm}$)

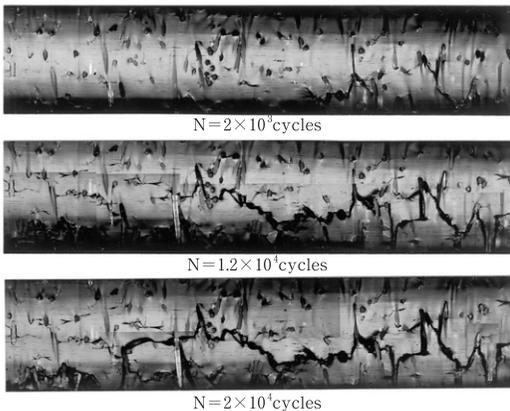


図11 切欠底表面における微小な疲労き裂の発生および成長過程 (20wt%, $\sigma_{\max} = 86.5\text{MPa}$, $\rho = 1\text{mm}$)

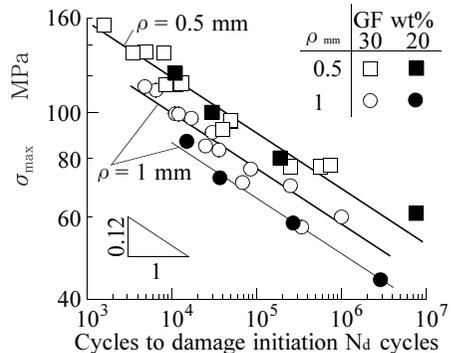


図14 切欠底の最大弾性応力 σ_{\max} と疲労損傷開始点 N_d との関係

(●印) の同じ応力を比較すると、両者の成長曲線は N_d 以降顕著に異なる。すなわち、 N_d 以降20wt%は30wt%に比べ、急激に成長し破断していることがわかる。

図14に切欠底の最大弾性応力 σ_{max} と N_d との関係を示す。 $\sigma_{max}-N_d$ 線図は ρ ごとに一対一に対応し、互いに平行な直線で表されている。30wt%と20wt%の $\sigma_{max}-N_d$ 線図を比べると、 $\rho=0.5\text{mm}$ では両者に差はなく、 $\rho=1\text{mm}$ では20wt%の方が30wt%よりも疲労損傷が早く発生することがわかる。

4. 結 言

ガラス繊維の重量含有率が種々異なる6種類のガラス繊維強化ポリカーボネート射出成形板を用いて、引張試験および疲労試験を行い、強度および損傷に及ぼす繊維含有率の影響を調べ、次の結果を得た。

短いガラス繊維を入れたポリカーボネート射出成形板の強度、疲労寿命および微小破壊の形態は繊維含有率に依存する。

繊維含有率が低い場合は、繊維のまわりのマトリックス(PC)に deformation bands が発生し、荷重の増加とともに、deformation bands が切欠底表面の広い範囲に広がっていく。疲労試験においては、deformation bands が表面き裂の両端に観察され、き裂前縁は疲労寿命の初期の段階から内部に進展する。マトリックス材料であるPCの疲労破面で観察される DCG bands が、樹脂リッチの領域で観察された。

これに対して、繊維含有率が高くなると、deformation bands の発生は抑えられ、繊維の端部に生ずる多数の微小き裂が成長連結し、破断に至る。疲労破面には樹脂リッチの領域は少なく、DCG bands も観察されなかった。

短い繊維を入れたPC、FRPの限界強さはマトリックス材料であるPCの強度(真応力)で決まり、繊維含有率および繊維の種類とは無関係である。

50wt%の実験結果は、繊維含有率を増加して成形することの困難さを示唆しているものと思われる。

謝 辞

この研究をはじめ、長年にわたり、終始懇切なご指導と暖かいご鞭撻を賜った福岡大学工学部 百武 秀教授に心より感謝の意を表します。使用したFRP板は出光興産(株)の竹田英俊博士から提供されたものである。ここに記して謝意を表します。

参 考 文 献

(1) 百武 秀, 山本俊浩, “切欠きをもつFRP板の静的破壊特性に及ぼす切欠形状と繊維方向の影響”, 材

料, 44巻499号, 401-406, (1995).

- (2) Hiizu Hyakutake and Toshihiro Yamamoto, “Effect of Fiber Orientation on Damage for Notched FRP Plates”, Proceedings of Asian Pacific Conference for Fracture and Strength '96, 551-556, (1996).
- (3) Toshihiro Yamamoto and Hiizu Hyakutake, “Effect of Fiber Orientation on Fatigue Damage of Notched FRP Plates”, Proceedings of International Conference on Materials and Mechanics '97, 649-650, (1997).
- (4) 山本俊浩, “切欠きをもつガラス布基材エポキシ樹脂積層板の損傷に及ぼす繊維方向の影響”, 福岡大学工学集報, 62号, 1-6, (1999).
- (5) 山本俊浩, “切欠きをもつガラス布基材エポキシ樹脂積層板の疲労破損の条件”, 福岡大学工学集報, 64号, 1-7, (2000).
- (6) 山本俊浩, “ガラス繊維強化ポリカーボネート切欠平板の静荷重のもとでの損傷”, 福岡大学工学集報, 65号, 1-8, (2000).
- (7) 山本俊浩, “切欠きをもつGF/PP射出成形板の強度および損傷に及ぼす繊維長さの影響”, 福岡大学工学集報, 71号, 183-187, (2003).
- (8) Toshihiro Yamamoto, Hiizu Hyakutake and Hidetoshi Takeda, “Damage and Strength for Notched Plates of Short Glass Fiber Reinforced Polypropylene”, Proceedings of International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2003, CD, (2003).
- (9) Hiizu Hyakutake and Toshihiro Yamamoto, “Evaluation of Damage of Notched FRP Plates in Static Load”, Science and Engineering of Composite Materials, Vol.6, No.2, 121-129, (1997).
- (10) 山本俊浩, 百武 秀, “切欠きをもつFRP板の静荷重による損傷”, 日本機械学会論文集(A編), 63巻608号, 780-786, (1997).
- (11) 山本俊浩, “輝度測定によるFRP切欠平板の静荷重のもとでの損傷の検出と評価”, 福岡大学工学集報, 58号, 1-6, (1997).
- (12) 山本俊浩, “短いガラス繊維で強化したポリカーボネート切欠平板の疲労損傷”, 福岡大学工学集報, 66号, 1-6, (2001).
- (13) Masakazu Higuchi and Hiizu Hyakutake, “Mechanical Instability and Yielding of Polycarbonate”, Reports of Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, 16巻54号, 265-282, (1968).

- (14) 秋庭義明, 原田昭治, 柳生佳則, 中野雅弘, “短繊維強化プラスチックの疲労強度に及ぼす繊維含有率と配向角の影響”, 材料, 41巻467号, 1285-1291, (1992).
- (15) Michael T. Takemori, “Fatigue Fracture of Polycarbonate”, Polymer Engineering and Science, Vol.22, No.15, 937-945, (1982).
- (16) 百武 秀, 山本俊浩, “ポリカーボネート平滑試験片における疲労き裂の発生と進展”, 日本機械学会論文集 (A編), 56巻529号, 1925-1930, (1990).
- (17) 山本俊浩, 百武 秀, “ポリカーボネートの回転曲げ疲労試験片におけるき裂の発生と進展”, 材料, 39巻446号, 1576-1582, (1990).
- (18) Toshihiro Yamamoto and Hiizu Hyakutake, “Damage and Fracture for Notched FRP Plates under Static and Cyclic Loading”, Proceedings of 6th International Workshop on Advances in Experimental Mechanics, 97-103, (2001).