

## 研究論文

融点近傍における CF/PA6 一方向板の  
粘度と流動特性の関係金崎 真人<sup>\*1</sup>, 北口 尚紀<sup>\*2</sup>, 西川 雅章<sup>\*3</sup>, 北條 正樹<sup>\*4</sup>

(2017年7月10日受付)

Relation between Viscosity and Flow Characteristics  
in Uni-directional CF/PA6 Laminates near the Melting PointManato KANESAKI,<sup>\*1</sup> Naoki KITAGUCHI,<sup>\*2</sup> Masaaki NISHIKAWA<sup>\*3</sup> and Masaki HOJO<sup>\*4</sup>

(Received July 10, 2017)

**Abstract:** In this study, the viscosity of unidirectional CFRTP laminates near the melting point was evaluated to discuss the relationship between the thermal fusion conditions and the flow of fiber and matrix. The laminates were regarded as a fluid flowing in a direction perpendicular to the fiber. The microscopic flow of the fiber and matrix near the melting point was observed during a parallel plate compression test. Based on this observation, viscosity and flow properties were evaluated by the finite element method. The results of the parallel plate compression test showed that the test conditions and the decrease in the thickness of the laminates are related to the apparent viscosity of the unidirectional plate. In addition, cracks in the direction of the maximum shear stress were detected via in situ observation near the melting point of the matrix. The occurrence of this phenomenon depended on the apparent viscosity of the unidirectional laminates and it was found that no cracks occurred when the apparent maximum viscosity of the unidirectional laminates was lower than a certain threshold.

**Key words:** CFRTP, In situ observation, Power law fluid, Viscosity, FEM

## 1. 緒 言

熱可塑性樹脂は熱による固体-液体の相変化を繰り返すことができるという特性を持ち、一般的に熱硬化性樹脂と比較し高じん性である<sup>1)</sup>。このため、炭素繊維強化熱可塑性樹脂 (carbon fiber reinforced thermoplastics: CFRTP) は炭素繊維強化熱硬化性樹脂と比較し、耐衝撃

<sup>\*1</sup> 金沢工業大学革新複合材料開発センター 研究員  
(924-0838 石川県白山市八束穂 2-2)

Researcher, Innovative Composite Materials  
Research and Development Center, Kanazawa  
Institute of Technology, 2-2, Yatsukaho, Ha-  
kusan, Ishikawa 924-0838, Japan

<sup>\*2-<sup>\*4</sup></sup> 京都大学大学院工学研究科機械理工学専攻  
Department of Mechanical Engineering and Sci-  
ence, Graduate School of Engineering, Kyoto  
University

<sup>\*2</sup> 修士課程 Graduate Student, <sup>\*3</sup> 准教授 Associate  
Professor, <sup>\*4</sup> 教授 Professor

性に優れるだけでなく、熱を用いた二次加工や融着 (以下、熱融着) が可能という特性がある<sup>2,3)</sup>。CFRTPの熱融着による接合は加熱圧縮によるマトリクス融着のみで成されるため、その接合部には理論的にはマトリクス自身と同等の力学的特性を期待できる。また、機械的接合のような開孔やファスナーなどの部品が不要である。よって、CFRTPの適用範囲の拡大において、熱融着は重要な技術のひとつであるといえる。また、これを応用することでCFRTP内のき裂を融着し修復することもできる<sup>4,5)</sup>。著者らはCFRTP積層板に発生した層間はく離を融点近傍で修復し、力学的特性を回復させる検討を行ってきた<sup>5)</sup>。

CFRTPを用いた成形や熱融着において、樹脂や複合材料の流動特性は重要とされている。たとえば、成形時に高い圧力を材料に付与して流動を伴う成形法 (プレス成形やダイヤフラム成形などの圧縮成形) においては、所望の形状に賦形するために流動が重要である一方で、

過剰な流動による成形品の繊維配向の乱れが懸念される。また、熱融着ではマトリクスを融点以上に加熱するため、熱融着時の温度、圧力、時間が融着後のCFRTPの力学的特性に与える影響を考慮する必要がある<sup>6-8)</sup>。たとえば、流動による繊維配向の乱れ、樹脂の流出、ボイドの発生など微視的な要因により融着部の力学特性が低下する恐れがある。あるいは、実際の構造を対象とした熱融着においては、局所加熱や加熱速度の制約により十分な温度を付与できない状況で、逆に流動性が十分に確保されないなどの課題も生じる。このような状況で、熱融着時の繊維および樹脂流動を制御するには、溶融時のCFRTPの流動特性を調べる必要がある。

このような連続繊維強化型CFRTPの流動性を評価する際、その流動特性が繊維直交方向に対して繊維方向の粘度が非常に高いという直交異方性を有するため、等方性材料で用いられるような回転粘度計などを用いた一般的な流体測定手法<sup>9,10)</sup>は適用できない。そのため、面外方向から平行平板で圧縮したときの平板間距離の減少速度と圧縮応力の関係を求め、これらの関係から粘度を求めるという手法がとられる<sup>11-14)</sup>。ここで、熱可塑性樹脂の粘度はせん断ひずみ速度依存性を示し、せん断ひずみ速度が低速の領域では一定ではあるが、高速になるほど低下し、最終的には再び一定の値に収束する性質を持つ。このせん断速度依存性を示す領域の粘性挙動はべき乗則やCarreauモデルなどで表現される非ニュートン流体として扱われ、マトリクスだけでなくCFRTPの流動挙動の評価でも適用されている<sup>11,15)</sup>。しかし、こうした報告はCFRTPを巨視的に扱ったものであり、巨視的に評価されるCFRTPの流動挙動の要因となる繊維・マトリクスの流動といった現象を微視的に観察して考察を行った研究は極めて少ない。

本研究では、マトリクスが流体としての挙動を示し始める融点近傍の温度におけるCFRTP一方向板の繊維直交方向の流動に着目し、巨視的な流動特性の評価と繊維・マトリクスの流動の微視的観察を行い、その関係について検証した。具体的には、繊維および樹脂の微視的な流動をその場観察しながら平行平板間圧縮を行い、巨視的な流動特性として、板厚減少速度と圧縮応力の関係を求めた。さらに、CFRTP一方向板を繊維直交方向のみに流動する均質なべき乗則流体として捉え、有限要素解析で面外方向からの平行平板間圧縮を再現したモデルを作成した。この解析モデルを用いて、実験で求めた板厚減少速度と圧縮応力の関係からCFRTP一方向板を均質体として捉えたときの粘度分布を求めた。これに

より、圧縮試験時の試験片温度および試験片に加わる応力を変化させたときの流動特性について巨視的にみ違いを議論した。また、上記で得られた知見とその場観察の結果を組み合わせ、CFRTP一方向板の粘度変化による繊維・樹脂の微視的な流動の変化について検討を行い、繊維流動を伴う熱融着の際の融着条件について、粘度の観点から考察を行った。

## 2. 平行平板間圧縮試験

### 2.1 試験片の材料および作製方法

本研究ではCFRTP一方向材の材料として、炭素繊維(carbon fiber: CF)をTR 50S(三菱レイヨン(株))、マトリクスをポリアミド6(polyamide 6: PA6)とする、開繊PA6-CF一方向セミプレグシート((株)ミツヤ)を用いた。このセミプレグシートの繊維体積含有率は54%、厚さは0.043 mmである。積層構成を $[0]_{24}$ とし、成形温度280°C、成形圧力2 MPa、成形時間2 hの条件でホットプレス成形を行い、一方向板を作製した。なお、成形時に樹脂流出がほぼなかったことから、一方向材もセミプレグシートと同等の繊維体積含有率を保持しているものと考えた。この板から、長さ20 mm、幅6 mm、厚さ0.9 mmの試験片を切り出した。また、繊維直交方向の繊維と樹脂の流動挙動をその場観察するため、試験片側面を鏡面になるよう研磨した。

### 2.2 実験装置

本研究では、樹脂融点近傍における平行平板間圧縮試験を行った。恒温加熱ステージ((株)井元製作所)の内部の様子と装置全体の模式図をFig. 1に示す。また、デジタルマイクロスコープVHX-500(キーエンス(株))を用いて試験中の試験片側面を300倍でその場観察し、繊維直交方向の断面の樹脂および繊維の流動をその場観察した。この際、高温加熱ステージにガラス製の窓を備えたステンレス製の蓋をし、デジタルマイクロスコープを保護しながらその窓越しに観察を行った。この装置では、手動にてロードセル付きのロッド間の距離を変化させることにより、試験片に負荷される荷重を制御する。試験片の温度は、左右に配置された2つのセラミックヒータによって制御する。ヒータと試験片の間に配置されたSUSブロックは1) 圧縮荷重を試験片に均等に加える、2) ヒータの温度を間接的に伝えることで試験片温度の急激な変化を防ぐ、という役割を果たしている。ところで、試験片は一方向板であるため、平行平板間圧縮により板厚が減少すると基本的には板幅だけが増加する。そこで、SUSブロックと試験片の間に試験片より幅の狭い、長さ

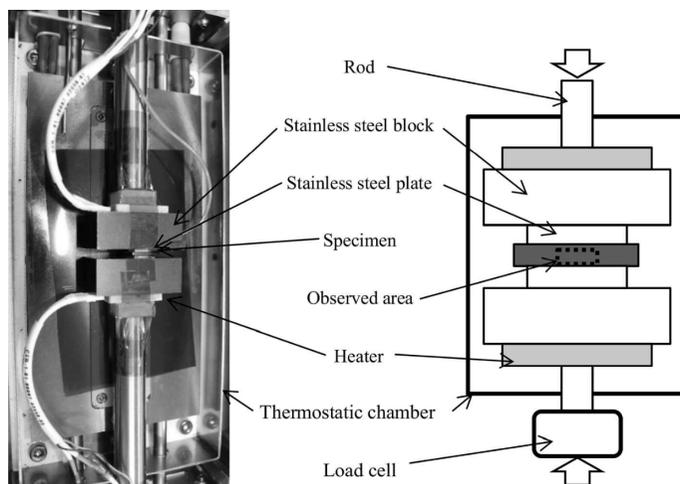


Fig. 1 Photograph and schematic drawing of setup for compressive test.

Table 1 Condition for compressive test and results of in-situ observation and FEM analysis for each specimen P.

	Applied pressure (MPa)	Applied temperature (K)	$t_d$ (s)	Thickness decreasing rate (mm/s)	Average of thickness decreasing rate (mm/s)	$K$	$N$
P-4a	4		3.4	-0.14	-0.18	54	
P-4b			1.7	-0.26			
P-4c			2.3	-0.15			
P-3a	3	488	—	—	-0.039	52	0.15
P-3b			5.3	-0.042			
P-3c			4.3	-0.037			
P-2a	2		7.3	-0.0043	-0.0032	49	
P-2b			13	-0.0012			
P-2c			5.0	-0.0042			

20 mm, 幅 5 mm, 厚さ 1 mm の小さなステンレス板を挿入した。これにより、板幅の増加が進んでも圧縮荷重が負荷される面積は一定となり、手動でも試験片に加わる応力を一定に保つことができる。

### 2.3 試験方法

PA6 の融点近傍の温度において面外方向から平行平板で試験片を圧縮し、そのときの圧縮応力と板厚減少速度の関係を求めた。圧縮試験において試験片ごとに变化させたパラメータは、圧縮時の試験片温度と試験片に加わる圧縮応力の二つとした。以降、圧縮時の試験片温度を 215°C とし、圧縮応力をパラメータ (2, 3, 4 MPa) とした試験片を試験片 P とよぶ (Table 1)。また、試験片温度をパラメータ (220~225°C) とし、圧縮応力を 2 MPa とした試験片を試験片 T とよぶ (Table 2)。

圧縮試験の手順は次のとおりである。まず、Fig. 1 のように配置した試験片の温度を、試験片に温度分布が生じないように試験温度まで昇温した。また、昇温過程で流出が生じないように、試験片に加わる圧縮応力が 0.1 MPa 未満になるよう制御した。さらに、目標の試験温度に達した後、試験機の熱膨張による応力の変動をなくすために 10 分間保持した。その後、試験片に加わる圧縮応力を 1 秒未満の短時間で、オーバーシュートしないよう目標の試験応力まで上昇させ、5 分間保持した。ここで、圧力一定試験においては圧力が一定となるように保持するため、荷重表示を確認しながら変位量を手動制御することで概ね一定となるようにした。圧縮試験中は試験片側面をデジタルマイクロSCOPE で動画を撮影し、それをもとに板厚を計測した。その場観察の動画は 28 fps で撮影

Table 2 Condition for compressive test and results of in-situ observation and FEM analysis for each specimen T.

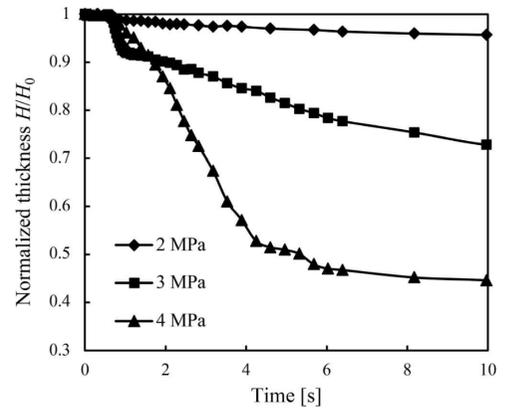
	Applied pressure (MPa)	Applied temperature (K)	$t_d$ (s)	Thickness decreasing rate (mm/s)	True compressive stress (MPa)	$K$	$N$
T-220a	2	493	0.32	-0.26	1.1	14	0.15
T-220b			0.46	-0.13	1.0	15	
T-221	494	0.36	-0.61	1.5	17		
T-222a	495	495	0.21	-0.96	1.2	12	
T-222b			0.25	-0.80	0.98	11	
T-223a	496	496	0.25	-1.1	1.1	11	
T-223b			0.18	-0.47	0.76	8.9	
T-224a	497	497	0.21	-0.97	1.1	11	
T-224b			0.54	-0.60	1.0	11	
T-225a	498	498	0.18	-1.1	0.95	9.9	
T-225b			0.18	-1.0	0.91	9.6	

した。本試験では、板厚が減少し始める領域では1フレームごとに板厚を計測し、時間経過に従って計測する時間間隔を広げていった。各時間で同じ箇所を3回計測し、これらの平均値をその時刻における板厚とした。

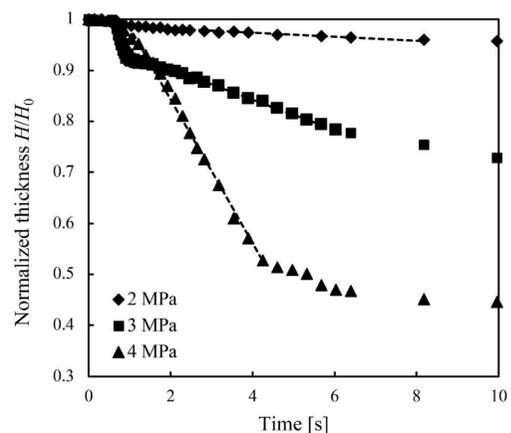
#### 2.4 圧縮応力と温度の変化による板厚推移

2.2節で示した平行平板間圧縮試験で得られた板厚減少開始からの時刻と板厚の代表的な推移を、試験片Pおよび試験片Tについて、それぞれFig.2およびFig.3に示す。横軸は圧縮開始からの時間であり、縦軸は各時刻における板厚を減少前の板厚で除して正規化した値である。ここでは、板厚が圧縮前と比べて1%以上減少したときに板厚の減少が始まったとみなし、その1フレーム前の点からプロットした。Fig.2およびFig.3をみると、いずれの図においてもはじめはそれぞれある一定の割合で板厚が減少しているが、時間経過とともに減少が緩やかになり、最終的にはある一定の値に収束しているのがわかる。

本実験では、実験から得られた板厚の推移に対して、板厚が圧縮前と比べて1%以上減少した点を始点とし、最小二乗法を用いた回帰直線の傾きをその試験片の板厚減少速度と定めた。このとき、板厚減少の終点は決定係数  $R^2$  の値が0.99以上を満たす時間最大の点とした。また、始点から終点までの時間を板厚減少時間  $t_d$  と定義した(この範囲で回帰直線を求めている)。例外として試験片P-2では、板厚減少量の絶対値が他の条件と比べて小さかったため、決定係数  $R^2$  が0.95以上を満たす時間最大の点を終点とした。また、試験片P-4の板厚の推移は試験片P-2およびP-3と比べてばらつきが大きかった。このばらつきは負荷を手動制御で与えるという試験機の制

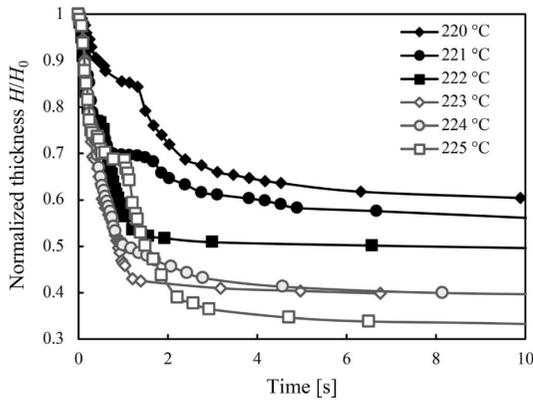


(a) Time history

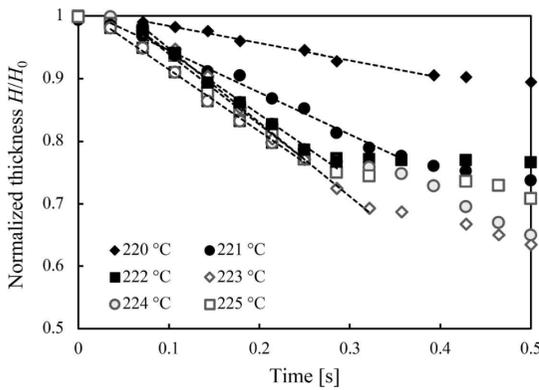


(b) Regression lines for obtaining thickness decreasing rate

Fig. 2 Decrease in normalized thickness of specimens P during compressive test.



(a) Time history



(b) Regression lines for obtaining thickness decreasing rate

Fig. 3 Decrease in normalized thickness of specimens T during compressive test.

約から生じたと考えられる。そこで、試験片 P については板厚減少速度を平均値で評価することとした。板厚減少速度および板厚減少時間  $t_d$  を、Table 1 および Table 2 に示す。ただし、試験片 P-3a では初期に圧縮応力が 3 MPa 以上となったため、Table 1 の結果から除外した。

Table 1 および Table 2 の板厚減少時間  $t_d$  に注目すると、Table 1 では  $t_d = 1.73 \sim 12.5$  s であるのに対して、Table 2 では  $t_d = 0.179 \sim 0.536$  s と非常に短い。ここで、試験片 T における時間経過に対する板厚および圧縮応力の推移の一例として、試験片 T-221 についてプロットしたものを Fig. 4 に示す。Fig. 4 に示すように、本試験においては板厚減少に伴って圧縮応力は増加しており、一定値ではない。そこで、 $t_d$  の間で変動する圧縮応力の平均値を真の試験応力として求め、圧縮応力と板厚減少速度の関係を Fig. 5 にプロットした。一般に、ニュートン

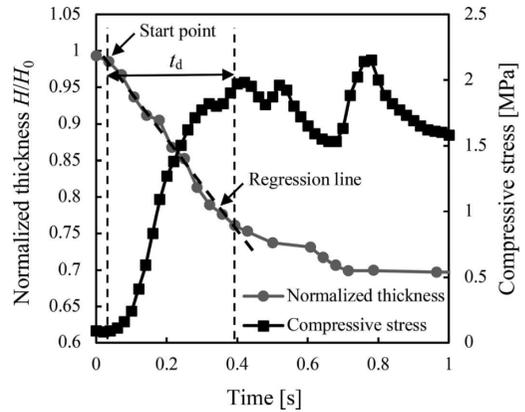


Fig. 4 Definition of the average of compressive stress during decreasing thickness of specimen T-221.

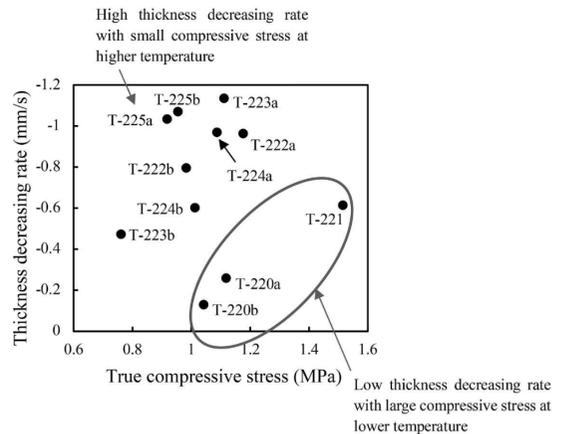


Fig. 5 Relationship between true compressive stress and thickness decreasing rate in specimen T.

ン流体においては、Shuler と Advani の文献<sup>15)</sup>でも関係式が与えられているように、圧縮応力と板厚減少速度は比例関係となる。非ニュートン流体においても、試験初期においては同様の傾向となり、圧縮応力と板厚減少速度の比が試験片全体の見かけの粘度に相当する。Fig. 5 では、グラフの左上に行くほど、小さい応力で板厚が速く減少することを意味しており、左上に分布する試験片ほど見かけの粘度が低くなっているといえる。さらに、Fig. 5 の各試験片の分布をみると、多少のばらつきはあるが、試験片温度の高いものほど左上に分布し、温度の低いものほど右下に分布している傾向が見られる。この傾向は、後で述べるように、高分子の粘度の温度依存性

を表す3.1節の式(4)と定性的に一致していることがわかる。

Fig. 2およびFig. 3では、圧縮試験時の条件により板厚減少速度や最終的な板厚が変化した。そこで、不均質材であるCF/PA6一方向板をひとつの均質な非圧縮性粘性流体としてとらえたときの見かけの粘度を考える。

Fig. 2は、試験片の温度を同じにし、圧縮応力だけを変化させたときの板厚推移の変化を示している。圧縮応力が大きくなるほど、流動の要因となる一方向板内部のせん断ひずみ速度が大きくなるため、一方向板としての見かけの粘度が低下し、流出が生じやすくなる（これは後述する3.1節の式(2)の係数に相当する）。このため、Fig. 2においては圧縮応力を大きくするほど板厚の減少が速くなっていると考えられる。また、板厚減少が進むと繊維間隔が狭まり、繊維同士の摩擦力などの流出に対する抵抗力が増加するため板厚の減少が止まり、見かけの粘度に応じてある一定の板厚に収束すると考えられる。文献<sup>15)</sup>の理論においても、スクイーズ流れを引き起こす力が一定のニュートン流体を考えた場合、板厚減少速度は、繊維束間隔の3/2乗に比例することが示されており、繊維束間隔が狭まることによる影響が大きいことがわかる。

Fig. 3は、試験片温度を変化させたときの板厚推移の変化を示している。温度を上げると樹脂粘度が低下するため、見かけの粘度も低下する。最終的な板厚を比較すると温度が高いほど薄くなる傾向がみられる。これは高温ほど樹脂の流動が起きやすい状態にあるためと考えられる。一方で、Table 2において板厚減少速度を比較すると、222°Cまでは温度上昇とともに、板厚減少速度が増加している傾向がみられるが、223°C以降では増加傾向はみられない。これは、223°C以降では、本研究において使用した圧縮試験機で与えられる板厚減少速度の上限に達しているためであると考えられる。

以上のように、圧縮試験条件の変化による板厚推移の変化は、見かけの粘度によって考察することができた。

### 3. 有限要素解析による流動特性評価

#### 3.1 べき乗則流体の流動特性

非圧縮性粘性流体では、応力 $\sigma_{ij}$ とひずみ速度 $\dot{\gamma}_{ij}$ の関係が次式で与えられる。

$$\sigma_{ij} = \eta \dot{\gamma}_{ij} \quad (1)$$

ここで $\eta$ は粘性係数である。中でも、べき乗則流体はせん断ひずみ速度が増加するにしたがって粘度が低下する

という特徴を持ち、粘性係数 $\eta$ は相対ひずみ速度 $\dot{\gamma}$ の関数として次式のように表現できる<sup>16)</sup>。

$$\eta = \eta_0 K (\dot{\gamma})^{-(1-N)} \quad (0 < N < 1) \quad (2)$$

$$\dot{\gamma} = \left( \frac{1}{2} \dot{\gamma}_{ij} \dot{\gamma}_{ij} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3)$$

$\eta_0$ は時刻0における粘度である。 $N$ は粘度のせん断ひずみ速度依存性の程度を示す。 $N$ が1のときはニュートン流体であり、 $N$ が0に近づくほどせん断ひずみ速度が増加したときの粘度の減少率が大きくなる。また $K$ は無次元定数であり、 $K$ が大きいほど同じせん断ひずみ速度のときの粘度が高くなる。この $K$ は温度依存性を示し、温度 $T$ の関数として以下のように書くことができる<sup>17)</sup>。

$$K = K_0 a_T = K_0 \exp \left[ \frac{\Delta E}{R} \left( \frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] \quad (4)$$

ここで、 $K_0$ は温度 $T_0$ での $K$ の値、 $R$ は気体定数、 $\Delta E$ は流動の活性化エネルギーである。また、 $a_T$ はAndradeの式と呼ばれ、高温における粘度の温度依存性をよく表すことができる。

CF/PA6一方向板を、以上のような特徴を持つべき乗則流体としてとらえたときの定数 $K$ および $N$ を求め、せん断ひずみ速度の分布を求めることで粘度分布を求めた。

#### 3.2 解析モデル

本研究では、有限要素法汎用解析コードMSC.Marc 2013およびプリポストプロセッサMSC.Mentat 2013を用いて流体解析を行った。ここでは2.2節の平行平板間圧縮試験を想定し、CF/PA6一方向板を繊維直交方向のみに流動する均質なべき乗則流体としてとらえるため、四節点平面ひずみ要素を用いた2次元モデルを作成した。Fig. 6に解析モデルの模式図を示す。Fig. 6において、紙面奥行き方向が繊維方向、 $x$ 方向、 $y$ 方向がそれぞれ試験片の厚さ方向、幅方向に対応し、 $xy$ 面内等方向性を仮定した。Fig. 6は2次元の1/4モデルであり辺AD、

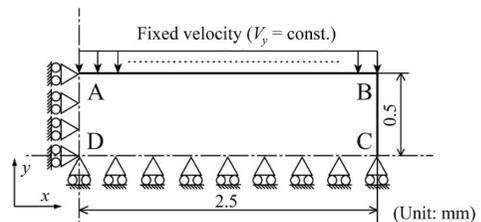


Fig. 6 Schematic drawing of finite element model.

辺 DC が対称軸である。辺 AB が平行平板との接触面に相当し、解析では辺 AB に  $y$  軸方向の一定速度変位を与えることで平行平板間圧縮を実現した。試験片と平行平板との間ではすべりが生じないと仮定し、辺 AB 上の節点の  $x$  方向速度は 0 とした。本解析での CF/PA6 一方向板の密度は炭素繊維および PA6 の密度と繊維体積含有率より算出し、 $1.498 \text{ g/cm}^3$  とした。また、 $\eta_0$  は  $12,000 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  とした。これは、繊維強化していない PA6 で  $225^\circ\text{C}$  において  $K=1$  としたときの文献値である<sup>9)</sup>。PA6 は分子量により粘度が変化するため、定量的な検討はできないが、同じ  $225^\circ\text{C}$  のときの  $K$  の値から連続繊維で強化したときの粘度の変化について定性的な検討ができると考えた。

### 3.3 有限要素解析による粘度パラメータ $K$ , $N$ の特定

Fig. 6 の解析モデルについて、辺 AB の  $y$  方向速度として、実験で得られた板厚減少速度を与えた。これによりモデル内部で応力が発生するが、この値はべき乗流体の定数パラメータ  $K$  および  $N$  によって変化する。そのため、辺 AB 上の節点で発生する垂直応力の  $y$  方向成分の平均値が実験値で与えた圧縮応力と一致するように  $K$ ,  $N$  の値を求めた。このような  $K$ ,  $N$  の組は無数に存在するが、樹脂の粘度に関して  $N$  の値への温度依存性の影響は小さいことから、以下の検討では  $N$  は一定とした。Table 1 に示す試験片 P では、すべて同じ温度で実験が行われたため  $K$  の値は等しくなると考え、 $N$  を 0.05 刻みで変化させたときの  $K$  の値を求め、4, 3, 2 MPa それぞれの圧縮応力で最もばらつきが小さいときの  $K$  および  $N$  の値を定めた。続いて、この  $N$  を用いて Table 2 に示す試験片 T における  $K$  の値を求めた。このようにして求めたすべての試験片における  $K$  および  $N$  の値を Table 1 および Table 2 に示す。

## 4. 一方向板の粘度特性と微視的流動特性

### 4.1 一方向板の粘度特性と微視的流動の関係

本節では、試験片 P に対して行った実験および解析により得られた結果から、CF/PA6 一方向板に対する平行平板間圧縮での圧縮応力変化に対する流動特性の変化について考察を行う。

Table 1 および Table 2 に示す、式(2)の粘度のせん断ひずみ速度依存性を表す  $N$  の値について、本研究においては  $N=0.15$  であるが、繊維強化していない PA6 ではおよそ  $N=0.4\sim 0.5$  の範囲を取るのが一般的である<sup>9)</sup>。これらを比較すると、今回求められた  $N$  の値が小さいことがわかる。本結果は、Shuler-Advani<sup>15)</sup> の文献において

PEEK 単体とその複合材料で比較した場合に、高ひずみ速度領域におけるひずみ速度依存性の指数が複合材料の場合に低下する結果とも整合している。これにより、樹脂を繊維によって強化することで、せん断ひずみ速度を増加させたときの粘度の減少率が大きくなる可能性が示唆された。これには、二つの理由が考えられる。

一つは粘度計測手法の違いである。PA6 などの等方性流体で用いられる計測法では、流体に対してせん断力のみがかかるような条件で測定を行う。一方、本研究で行った平行平板間圧縮試験では、流体に対して大きく垂直応力が加わる。そのため圧縮応力を大きくすると、板厚の減少速度が大きくなり、生じるせん断ひずみ速度が大きくなるが、これと同時に、流体に加わる圧力も大きくなる。高分子材料では粘度は温度依存性だけではなく圧力依存性も示し、圧力の増加に伴ってみかけの粘度が低下することが知られており<sup>18)</sup>、これは本研究の結果と定性的に一致する。しかし、本研究の解析においては粘度の圧力依存性を考慮していない。以上の理由から、せん断ひずみ速度が大きくなるにしたがって流体に加わる圧力が大きくなり、粘度の低下率が大きくなったと考えられる。

もう一つは複合材料の不均質性によるものである。本研究における有限要素解析では CF/PA6 一方向板は巨視的に見て均質体としてとらえたが、微視的にみると不均質な材料である。そのため内部に発生する応力も繊維や樹脂の配置により不均一になり、内部の樹脂のすべりや流動も不均一に生じていると考えられる。一例として、試験片 P-3b について、解析によって得られた板厚が減少するときの有限要素解析におけるせん断ひずみ速度の分布を Fig. 7 に、圧縮試験の間の観察画像を Fig. 8 に示す。Fig. 8 において、各画像右上の数値はその時点での板厚の初期板厚に対する割合である。これらを比較すると、Fig. 7 においてはせん断ひずみ速度がなめらかに分布しているのに対し、Fig. 8 の観察画像においては局所的に、 $45^\circ$  方向に大きなすべりが複数生じているのがわかる。この  $45^\circ$  方向へのすべりは、他の試験片 P においても観察された。またこの方向は、面外方向から圧縮応力を加えたときの最大せん断応力方向と一致する。このことから、CF/PA6 一方向板に平行平板間圧縮試験を行った際には最大せん断応力方向にすべりが生じ、すべりが起きた箇所ですべて優先的に変形が進行するため均質な等方性材料に比べて見かけの粘度の低下率が大きくなったと考えられる。圧縮試験後の試験片 P-3b について、すべりが生じている場所を拡大したものを Fig. 9 に示

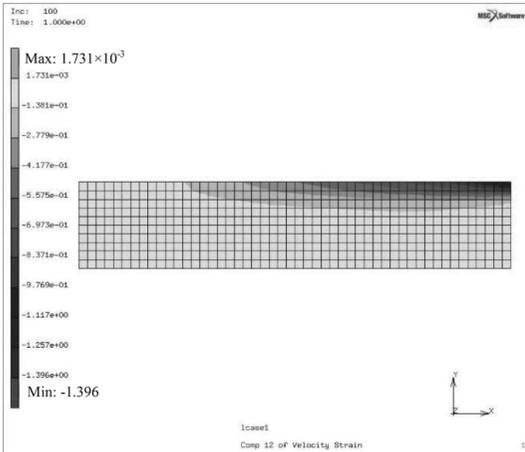


Fig. 7 Analytical distribution of the  $x$ - $y$  component of shear strain rate for specimen P-3b.

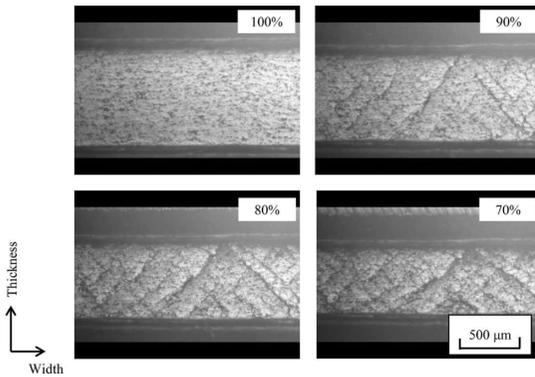


Fig. 8 Photograph of the surface of specimen P-3b: black lines like slip line appeared and increase during compressive test.

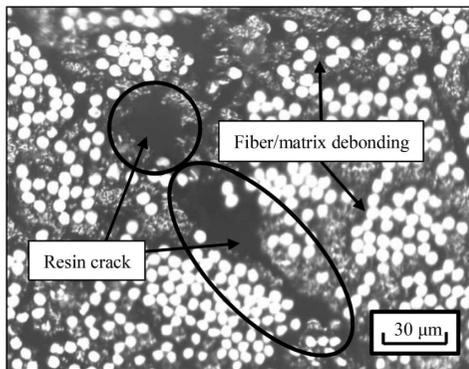


Fig. 9 Enlarged photo of specimen P-3b after compressive test: black lines were matrix cracks.

す。これより、すべりが生じた場所では樹脂割れおよび繊維とマトリクス間の界面はく離などのき裂が生じているのが観察された。したがって、融点近傍の温度で平行平板間圧縮を行う際には、巨視的にみると板厚が減少しており、流体として特徴づけることができる場合でも、繊維・マトリクススケールで微視的にみると最大せん断ひずみ方向にすべりが生じ、これにより内部にき裂が発生している可能性があるということがわかった。

このき裂は、CF/PA6一方向板としての粘度が高い状態で面外方向から圧縮されるため、流体としての挙動を示さずに圧縮破壊が生じているものと考えられる。つまり、融点近傍の基材は、流体的な流動する特徴と、固体のようなき裂が生じる特徴の両方を併せ持つことが明らかとなった。

#### 4.2 温度による粘度の変化とき裂の発生

前節の議論から、融点近傍の温度においてCF/PA6一方向板に対して平行平板間圧縮を行うと、最大せん断応力方向にすべりが生じ、き裂が発生することがわかった。部材同士の接合のように繊維流動を伴う熱融着では、このようなき裂が発生すると接合部の力学特性が低下する可能性がある。そのため、このようなき裂を生じずに熱融着が行うことのできる条件について検討を行う必要がある。本節では熱可塑性樹脂の粘度が温度変化によって大きく変化することを利用して、試験温度を変化させて実験を行った試験片Tの実験および解析の結果と、圧縮試験における観察画像から、き裂が発生せずに平行平板間圧縮が行えるような条件を考える。

一定速度で板厚が減少している領域での違いを検討するために、試験片Tの代表的な圧縮前の観察画像と板厚が圧縮前の90%になったときの観察画像、ならびに観察画像にみられる特徴的な線の模式図を示す (Fig. 10(a)~(c))。ここで、模式図において黒く描かれている線は、圧縮前の観察画像において樹脂リッチなどが原因でみられる特徴的な模様である。また、90%になったときの模式図において圧縮前の模式図から増えた線は、板厚減少前にはみられなかったが板厚減少後に新たに観察されたき裂を示している。その場観察の結果から、板厚が90%になったときに新たにみられるき裂により、試験片を Fig. 10(a)~(c)にみられるような、3つのグループに分類することができた。すなわち、グループa (45°方向に大きくすべりが生じているのが観察される T-220a, T-220b, T-221)、グループb (板厚減少前後でわずかに45°方向のすべりがみられる T-222a, T-222b, T-223b)、グループc (45°方向のすべりが観察されない T-223a, T-

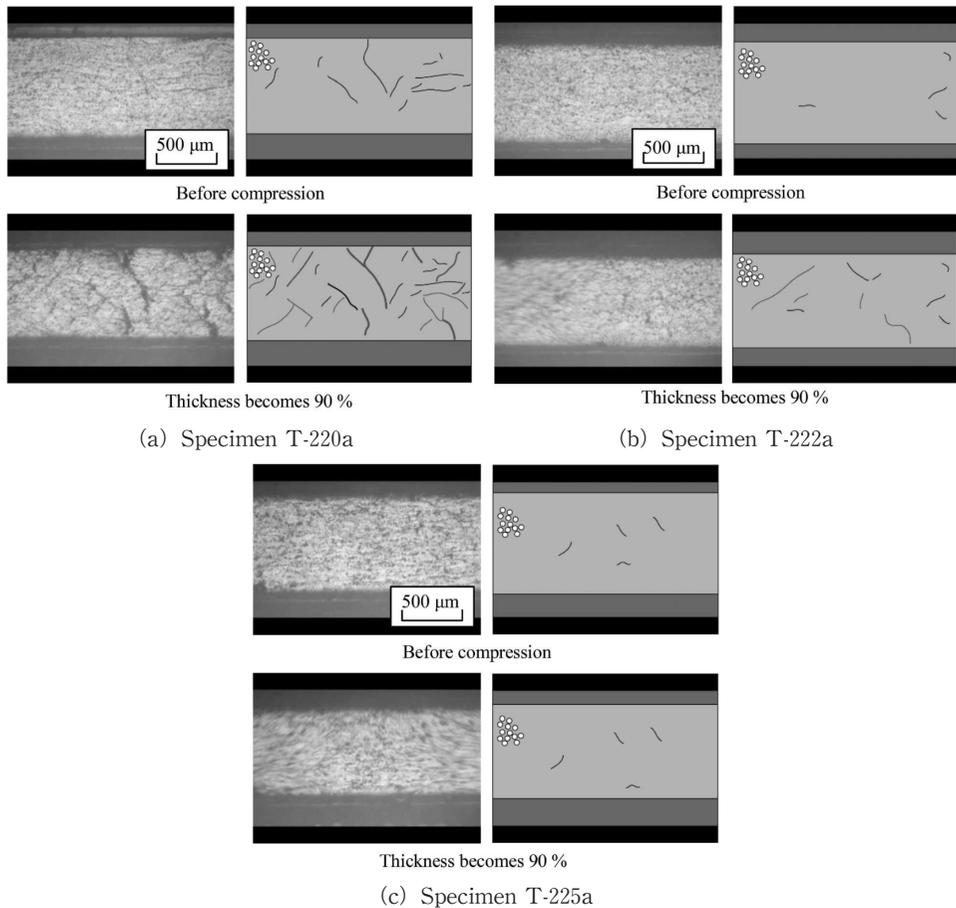


Fig. 10 Photographs and schematic images of specimens during compressive test.

224a, T-224b, T-225a, T-225b) である。

ここで、平行平板間圧縮試験の試験条件と 3.2 節で示した有限要素解析のモデルを用いて、上記のそれぞれの試験片 T 内における相当せん断ひずみ速度を求め、その最大値と最小値から式(2)を用いて粘性係数を導出し、両対数グラフにプロットしたものを Fig. 11 に示す。なお、この相当せん断ひずみ速度分布を求める際に用いた板厚減少速度は、2.4 節で求めた近似直線の傾きである。この傾きを求める際に用いた領域は必ずしも板厚が 100~90%の領域ではないが、ここでは板厚 100~90%の領域での傾きと、最小二乗法で求めた傾きが一致すると仮定する。Fig. 11 より、多少前後はあるもののグループ a, b, c の順で粘性係数が低くなる傾向がみられ、き裂が現れはじめるグループ b とき裂を生じないグループ c の境界が最大の粘性係数  $3 \times 10^6 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  近傍に存在することがわかった。よって、本章で用いた CF/PA6 一方向板で

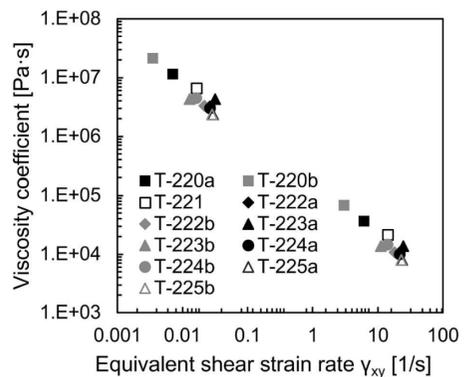


Fig. 11 Distribution of maximum and minimum viscosity of all specimens T.

は最大の粘性係数が  $3 \times 10^6 \text{ Pa}\cdot\text{s}$  より十分小さくなるような条件で面外方向圧縮を行うことで、き裂の発生を避

けることができる。

以上のことから、平行平板間圧縮において生じるき裂は、粘度を低くすることで生じにくくすることができ、最大の粘性係数がある値より低くなるとき裂が発生しなくなるとことがわかった。なお、本報で用いた粘度パラメータの同定手法( $K$ ,  $N$ の決定方法)により、このような遷移が起きる粘度範囲が変わる可能性はあるが、本報で得られた傾向には影響しないものと考えられる。

## 5. 結 言

本研究では、CFRTP 一方向板の融点近傍における見かけの粘度と微視的流動の関係について検討するために、CF/PA6 一方向板に対して試験温度および圧縮応力を変化させて平行平板間圧縮試験を行い、圧縮時の繊維・樹脂の流動の様子をその場観察した。さらに、圧縮試験で得られた圧縮応力と板厚減少速度の関係から、有限要素解析により一方向板の粘度パラメータおよび粘度分布を求めた。これにより、以下の知見を得た。

1. 平行平板間圧縮試験では、圧縮試験時の条件と板厚の推移の変化が、一方向板の見かけの粘度によって関係付けられることがわかった。すなわち、一方向板の見かけの粘度が小さいほど板厚減少初期の傾きが急になり、最終的な板厚が薄くなる。
2. その場観察の結果により、樹脂の融点近傍での平行平板間圧縮では、最大せん断応力方向へのすべりが局所的に発生しているのが観察された。すべりが生じている場所では、樹脂割れや繊維-樹脂界面のはく離などのき裂が生じていた。このき裂の発生は、一方向板の見かけの粘度に依存し、一方向板の最大粘度がある値より低くなるとき裂が生じなくなると考えられる。

本研究は JSPS 科研費 25・1110 の助成を受けて行った。

## 参 考 文 献

- 1) 成澤郁夫：プラスチックの破壊靱性，シグマ出版，東京 (1993)，p. 60.
- 2) A. Yousefpour, M. Hojjati & J.P. Immarigeon : *J. Thermoplastic Compos. Mater.*, **17** (2004), 303-341.
- 3) A. Offringa : *JEC Composites Magazine*, **58** (2010), 45-49.
- 4) G. Reyes & U. Sharma : *Compos. Struct.*, **92**, 2 (2010), 523-531.
- 5) 金崎真人, 内城千翔, 田中基嗣, 斉藤博嗣, 西川雅章, 北條正樹, 金原 勲 : 日本複合材料学会誌, **41**, 1 (2015), 33-44.
- 6) Y. Sun, Y. Luo, X. Wang & Y. Feng : *Adv. Mater. Res.*, **217-218** (2011), 45-50.
- 7) F. Yang & R. Pitchumani : *Polym. Eng. Sci.*, **42**, 2 (2002), 424-438.
- 8) I.D. Baere, W.V. Paeppegem & J. Degrieck : *J. Thermoplastic Compos. Mater.*, **25** (2012), 135-151.
- 9) Z. Tadmor & C.G. Gogos : *Principles of Polymer Processing* (2nd Ed.), Wiley-Interscience (2006), pp. 887-911.
- 10) 日本規格協会 : JIS ハンドブック : プラスチック - 1996 (1996), pp. 433-448.
- 11) R. Balasubramanyam, R.S. Jones & A.B. Wheeler : *Composites*, **20** (1989), 33-37.
- 12) J.A. Barnes & F.N. Cogswell : *Composites*, **20** (1989), 38-42.
- 13) P. Harrison, T. Haylock & A.C. Long : Measurement of the transverse and longitudinal viscosities of continuous fibre reinforced composites, In 8th International ESAFORM Conference on Material Forming, Cluj-Napoca, Romania (2005).
- 14) A.C. Caba : Characterization of carbon mat thermoplastic composites: flow and mechanical properties, PhD Thesis of Virginia Polytechnic Institute and State University (2005).
- 15) S.F. Shuler & S.G. Advani : *J. Non-newtonian Fluid Mech.*, **65** (1996), 47-74.
- 16) Z. Tadmor & C.G. Gogos : *Principles of Polymer Processing* (2nd Ed.), Wiley-Interscience (2006), pp. 108-109.
- 17) 日本レオロジー学会 : 講座・レオロジー, 高分子刊行会 (1992), p. 54.
- 18) 安田武夫 : プラスチックス, **52**, 9 (2007), 96-103.

- 1) 成澤郁夫：プラスチックの破壊靱性，シグマ出版，