

1. 緒言

合成高分子は自然環境下では容易には分解されず、プラスチック廃棄物は環境破壊や廃棄物処理問題の要因となっている。近年この問題を軽減する代替材料として自然環境中に存在する微生物などにより分解される生分解性プラスチックの製造開発が行われている。また、合成高分子の更なる用途拡大に不可欠である力学的特性を向上させるために各種繊維を母材に混練して複合材料とする手法が用いられている。

本研究では生分解性プラスチックの一種であるバイオノーレに炭素繊維を複合化させた炭素繊維強化バイオノーレの強度特性に及ぼす繊維含有率の影響を調べると共に、非弾性変形特性を温度及び負荷速度を考慮して調べ、過応力モデルに基づく粘弾塑性構成方程式の構築を行う。

2. 実験

2-1 試験片

バイオノーレと炭素繊維を複合化するために二軸混練機を使用し、円柱丸棒状に成形した材料を Fig.1 に示す形状に旋盤加工したものを本実験で用いる試験片とした。

2-2 実験装置

本実験で用いた試験機は、電気油圧サーボ制御疲労試験機サーボパルサーであり、変位制御(変位計を用いた真ひずみ速度制御)で引張試験および応力緩和試験を行った。

2-3 実験条件

Table1 の条件で単純引張り負荷を加え、その後 2000 秒の応力緩和を行った。

Table1 Experimental Conditions

Fiber Content (%)	Temperature(°C)	Strain rate (1/s)	Max strain
0	20,40,50	1.0 $\times 10^{-3}, 10^{-4}, 10^{-5}$	0.03
5			0.02
10			0.01
15			0.005

3. 過応力理論

本研究で用いる構成モデルは過応力理論に基づいた弾性、粘性、塑性の各要素から成る Fig.2 のような 3 要素連結モデルである。このモデルの構成式は一般的に式(1)で表される。

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}^e + \dot{\epsilon}^p = \frac{\dot{\sigma}}{E} + \frac{\sigma - g}{K \cdot E} = \frac{\dot{\sigma}}{E} + \frac{X}{K \cdot E} \quad (1)$$

($\dot{\epsilon}$:全ひずみ速度, $\dot{\epsilon}^e$:弾性ひずみ速度, $\dot{\epsilon}^p$:塑性ひずみ速度, E :縦弾性係数, K :粘性関数, g :準平衡応力, X :過応力)

4. 実験結果及び考察

4-1 応力ひずみ線図

炭素繊維含有率 5%試験片における各温度の応力-ひずみ線図を Fig.3 に示す。これより温度の違いによる応力の変動は大きい。一方、各温度においてひずみ速度依存性は非常に小さいことが確認できる。

4-2 炭素繊維複合化による剛性の変化

炭素繊維の複合率の違いによる応力-ひずみ線図を温度 40°C、ひずみ速度 1.0×10^{-4} (1/s) の場合について Fig.4 に示す。これより炭素繊維を複合する事で弾性係数が高くなり、繊維による剛性上昇の効果が現れていることがわかる。また、温度ごとで比較すると、試験片温度が高くなると繊維複合による弾性係数の増加割合が大きくなることわかった。

4-3 混合則に基づく比較検討

実験結果から得られた弾性係数と混合則から計算され

た弾性係数との比較を試みた。実験から得られた応力ひずみ曲線のひずみ $\epsilon = 0.001$ までの傾きを各ひずみ速度での弾性係数とし、それらの平均値を各温度における弾性係数とした。混合則による予測計算に関し、本実験で作製した複合材は作製過程における流動速度が小さいことから、繊維長の短い炭素繊維を三次元的にランダム配向したものと近似的にみなすことができる。このような場合の修正混合則が提案されており、次式で表される。

$$E = C \left(\frac{L}{2L_c} \right) E_f V_f + E_m V_m \quad (2)$$

(C :繊維配向係数, L :繊維長さ, L_c :臨界繊維長さ, E_f :繊維の縦弾性係数, V_f :繊維の体積含有率, E_m :母材の縦弾性係数, V_m :母材の体積含有率)

温度 20°C で行った実験から求めた弾性係数と式(2)の混合則から計算された弾性係数とを比較したものを Table2 に示す。

Table2 Elastic Modulus(20°C)

Fiber Content(%)	Experimental(MPa)	Calculated(MPa)
0	888	888
5[28.1%]	945(1.5%)	1007
10[31.6%]	1004(2.4%)	1125
15[34.7%]	1045(3.9%)	1245

Table2 から計算による弾性係数は実験結果に比べて高い値となっている事がわかる。この原因として様々な要因が考えられるが、主たる原因と考えられるものは以下の 2 点である。

- ・ 材料内部に存在する空気(気泡)の存在
- ・ バイオノーレ-炭素繊維界面の接着不良

実験に使用した試験片の破面観察を行った結果を Fig.5(a)(b)に示す。炭素繊維含有量が 5%の破面と 15%の破面を比較すると、15%の破面に気泡が存在することが確認できる。気泡が材料内部に占める体積割合(%)を密度測定により算出して Table2 実験結果欄の()内に示した。これより炭素繊維含有率の多い試験片ほど気泡が多いことが解る。これは繊維含有量が多くなればなるほど、試料の流動性が悪くなり混練時及び冷却時の体積収縮により試料内部に取り込まれた空気が抜け出しにくくなったためである。

また、複合材内部でバイオノーレと炭素繊維が完全に接着していない部分が少なからず存在するはずであり、両者の界面で接着が無ければ複合された繊維は繊維強化の役割を果たさない。実験結果と計算結果の差から付着不良繊維の割合(%)を算出して、Table2 繊維含有率欄の[]内に示した。この結果から繊維含有率が多いほど接着不良繊維の割合が多く、含有した繊維量と実際に繊維強化に寄与した繊維量の差が大きいことがわかる。これは繊維含有率が多いほど材料内部で繊維同士が隣り合ってしまう確率が高くなり、バイオノーレと炭素繊維との接着が行われにくくなるためである。

このように内部気泡とバイオノーレ-繊維間の接着不良が実験結果と混合則による計算結果との差を生み、繊維含有率が高いものほど両者の差を大きくした主要因と考えられる。

5. 過応力理論による検討

5-1 準平衡応力 g の定式化

準平衡応力はひずみ速度がほぼ 0 の時の変形応力である。本研究では、応力緩和曲線より任意時間 $t = 10^5$ (s)後

の応力値を外挿する事で準平衡応力 g を求めた。 g をひずみ ε と温度 T (°C) と炭素繊維含有率 V_f (%) の関数として式(3)で表す。

$$g = a \cdot \tanh(b \cdot \varepsilon) \quad (3)$$

この式による各温度での計算結果と実験結果との比較を炭素繊維含有率 5% の場合について Fig.6 に示す。

5-2 粘性関数 K の定式化

高分子材料では一般に弾性変形と塑性変形との明確な区別が困難であり、たとえ塑性ひずみに対応する粘性係数が得られたとしても予測計算において塑性ひずみが予め分かっている必要はない。ここでは式(1)で $\dot{\varepsilon} = \varepsilon^p$ とおいて得られる式(4)から粘性関数 K をひずみの関数として定式化を行う。

$$K = \frac{X}{E \cdot \varepsilon} \quad (4)$$

Fig.7 に炭素繊維含有率 5%、試験片温度 20°C の場合の粘性関数 K と過応力 X の関係を示す。この結果から過応力 X と $\log_{10} K$ の間には線形関係があることが解り、式(5)で表すことが出来る。 $\log_{10} K = -K_1(X - K_2)$ (5)

5-3 応力緩和挙動解析

5-2 節で得られた粘性関数 K の有効性確認の為に応力ひずみ曲線と応力緩和挙動のシミュレーション解析を行った。応力緩和挙動の実験結果と予測結果との比較を炭素繊維含有率 5%、試験片温度 50°C の場合について Fig.8 に示す。予測結果は実験結果とよく一致しており、得られた構成式が有用であることを示している。

6. 結言

本研究では炭素繊維を複合化させたバイオノールの力学特性及び弾粘塑性変形特性に関する検討を行い、変形特性を予測することが出来る弾粘塑性構成方程式の構築を試みた結果以下のような結論を得た。

- ・炭素繊維複合化により生分解高分子材料 (バイオノール) の剛性が 20% 程度高められることを実験的に確認した。
- ・炭素繊維複合時の気泡の混入率とバイオノール-炭素繊維間の接着性の不良度を考慮した複合則を示し、短繊維複合高分子材料の弾性係数の算出が可能であることを示した。
- ・過応力理論より導き出された構成式を用いて炭素繊維強化バイオノールの非弾性変形特性の正確な予測が可能である。

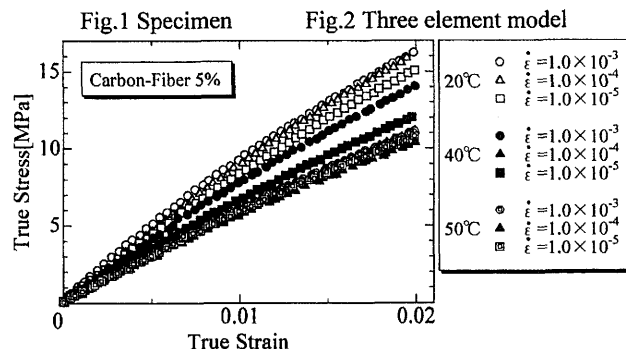
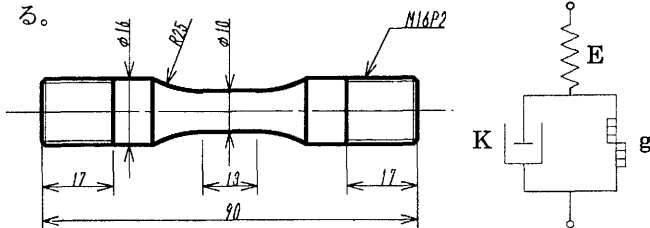


Fig.3 Effect of Strain Rate and Temperature on Stress-Strain Curves (Carbon-Fiber 5%)

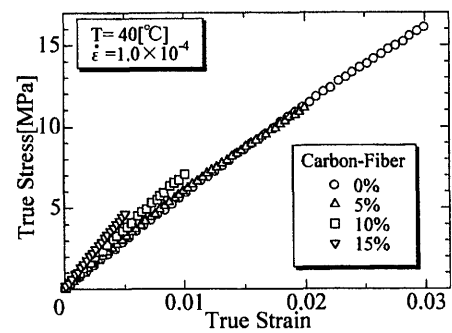


Fig.4 Effect of Content Rate on Stress-Strain Curves (T=40°C $\dot{\varepsilon}=1.0 \times 10^{-4}$)

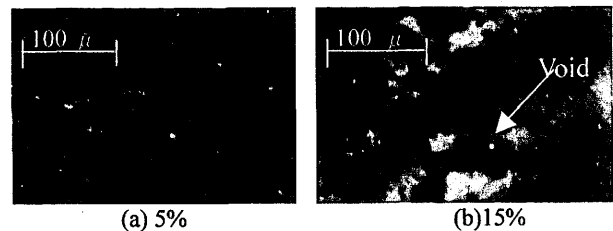


Fig.5 Fracture surface

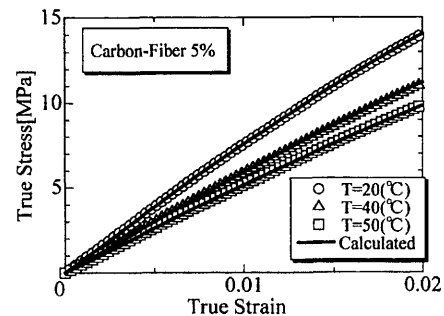


Fig.6 g-curves (Carbon-Fiber 5%)

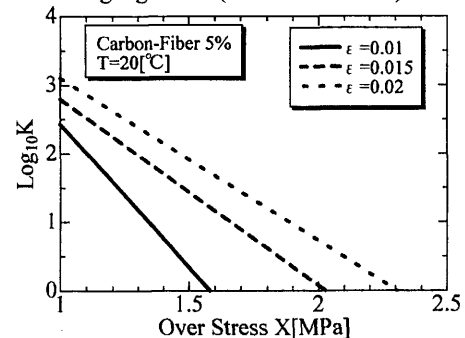


Fig.7 Relationship between Overstress and $\log_{10} K$ (Carbon-Fiber 5% T=20°C)

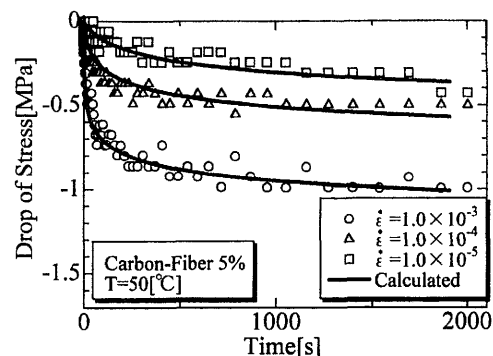


Fig.8 Comparison between Experimental and Calculated Results (Carbon-Fiber 5% T=50°C)