

アクリル樹脂合わせ板の曲げ破壊現象

岐阜職業能力開発短期大学校 竹内 勇夫

Bending Fracture Phenomenon of Acrylic Resin Laminated Plate

Isao TAKEUCHI

要約

アクリル樹脂、ポリウレタン—不飽和ポリエステル製の2種類の層間膜を持つ、アクリル樹脂合わせ板を試験片として、L/h(支点間隔/高さ)を変化させて3点曲げ実験を行った。その結果をMullinらの曲げ破壊理論に基づいて解析し、アクリル樹脂合わせ板の曲げ破壊現象を考察した。また、合わせ板にすることの意義についても考察した。

各試験片の曲げ破壊現象については、L/hの変化に対して① 曲げ破壊のみを起こす、② 別々のL/h範囲で曲げ破壊と層間せん断破壊を起こす、③ 層間せん断破壊のみを起こす、の3グループに分かれ、各試験片の曲げ破壊強さを明確に分別することができた。また各グループの曲げ破壊時の、L/hに対する曲げ応力(σ_{max})およびせん断応力(τ_{max})の変化については、それぞれの実験曲線から理論曲線を求めることができた。そして① グループの合わせ板では、同一厚さのアクリル樹脂単板より、最高1.6倍の曲げ破壊強さが得られ、合わせ板にすることの意義が認められた。

1. はじめに

GFRP(ガラス繊維強化プラスチック)は、ガラスの優れた力学的性質と、不飽和ポリエステルなどの成形性の良いマトリックスの組合せ(複合化)により、近年新しい工業材料として広く用いられている。そして最近では、新しい繊維と耐熱性の良い樹脂の開発により、FRPの応用分野は益々拡大しつつある。複合材料が工業材料として認知されるには、単材料では持ち合わせなかった特性が、複合化により実現された時である。そのためには基本問題として、材料相互のぬれとそれに基づく接着性の良否がキーポイントになる。我々は、その接着性の良否を判定する簡易的な試験法として、曲げ試験を最も多く活用している。

複合材料の曲げ試験では、試験片のスパン(支点間隔)/高さ(試験片の厚さ): (L/h)比の変化により、L/hが大きい場合は曲げ破壊が、L/hが小さくなると層間せん断破壊が起こることがしばしばみられる。Mullinら⁽¹⁾はその現象に着目し、片持ばり、ハニカム構造ばりでのL/h変化における、曲げ破壊現象を理論的に考察した。更に文献データにより、理論的考察を

吟味し、曲げ破壊からせん断破壊への移行にあたっては、L/hのある点で転移域があることを予想した。

一方牧⁽²⁾、金原ら⁽³⁾、Fujiiら⁽⁴⁾は、ガラス繊維またはガラスマットと不飽和ポリエステルとのFRP試験片で、L/h変化により3点曲げ実験を行った。その結果、Mullinらが考察した破壊の転移点があることを実証し、かつ破壊現象を詳細に考察している。

以上の様に、L/h変化による3点曲げ実験は、複合材料の曲げ破壊強さおよび曲げ破壊部位を明確にできる特徴がある。

さて本実験では、最近乗用車の窓ガラス用として注目され、今後多方面への活用が期待できるアクリル樹脂合わせ板を試験片として、L/hを変化させて3点曲げ実験を行った。その実験結果から、アクリル樹脂合わせ板の曲げ破壊現象および合わせ板にすることの意義を考察したので、その内容について報告する。

II. 実験

1. 層間膜

(1) アクリル樹脂系

接着剤用のMMA中間体を使用した。触媒添加量

は、1.0、0.5、0.2 (W%) の3種類とした。

(2) ポリウレタン-不飽和ポリエステル系

不飽和ポリエステルは、アクリル樹脂板との接着性が悪いので、あらかじめアクリル樹脂板上に軟質ポリウレタン膜 (鉛筆硬度: <5B, 膜厚0.005 mm) を形成し試験板とした。不飽和ポリエステル膜は、硬質 (同硬度: 2H) タイプを使用した。

層間膜の樹脂の内容、硬化条件については、表1に示す。また層間膜厚は、0.05、0.10 mm の2種類とした。

表1 試験片の内容

試験片の内容	試験片の記号	合わせ板 (1mm厚×2枚)	層間膜 (接着剤)			
			種類	硬化触媒添加量 (wt)	膜硬化条件 (温度, 時間)	膜厚 (mm)
アクリル樹脂を層間膜としたアクリル樹脂合わせ板 (PM系 *1)	PM1-1	アクリル樹脂板	MMA 中間体	1.0	60°C, 8H	0.05
	PM1-2			1.0		0.10
	PM2-1			0.5		0.05
	PM2-2			0.5		0.10
	PM3-1			1.0	20~25°C 48H	0.05
	PM3-2			1.0		0.10
	PM4-1			0.5		0.05
	PM4-2			0.5		0.10
	PM5-1			0.2		0.05
	PM5-2			0.2		0.10
ポリウレタン-不飽和ポリエステルを層間膜としたアクリル樹脂合わせ板 (UP系 *2)	UP1-1	処理	不飽和	硬化触媒	60°C, 8H	0.05
	UP1-2	アクリル樹脂板	ポリウレタン	1.5		0.10
		*3	硬化促進剤	1.0		

*1 PM系の接着剤: MMA中間体 (アクリボンド, 三菱レイオン製), 硬化触媒 (アクリボンド用過酸化合物溶液, 三菱レイオン製)

*2 (UP系の接着剤: 不飽和ポリエステル (ゴセラック500B, 日本合成製), 硬化触媒 (メタキシルトロン"ホセ" 20%酢酸エチル溶液), 硬化促進剤 (ナフテン酸コバルト10%酢酸エチル溶液)

*3 処理アクリル樹脂: 板の接着面にポリウレタン皮膜を0.005mm厚形成した樹脂板
ポリウレタン溶液配合組成
ポリオール: パーノックD-30-55 (大日本インキ製)
ポリイソシアネート: パーノックDN950 (大日本インキ製)
配合比: OH/NCO=1. 硬化条件: 60°C, 16H

2. 試験板の調整

アクリル樹脂板は、寸法950×1830 mm、厚さ1 mm (コモガラスCG, 品番P301, 透明: クラレ製) を使用し、この板から長手方向に40×150 mmの板を切り出し試験板とした。1枚の試験板に適量の樹脂液を滴下し、その上に2枚目の試験板を重ね合わせ、圧延ロールで樹脂液を拡散させると同時に脱泡させた。その後、表1の膜硬化条件で膜を形成し、合わせ試験板を作成した。

3. 実験方法

試験板から25 mm (幅)×100 mm (長さ) の試験片を切り出し、図1の方法で各支点間隔 (L) で3点曲げ実験を行った。試験速度は2.5 mm/minとした。実験値は同一試験条件で5回行い、その測定値の平均とした。また、最大曲げ応力 (σ_{max}) および最大せん断応力 (τ_{max}) は(1)、(2)式から求めた。

$$\sigma_{max} = \frac{3PL}{2bh^2} \text{ (N/mm}^2\text{)} \quad (1)$$

$$\tau_{max} = \frac{3P}{4bh} \text{ (N/mm}^2\text{)} \quad (2)$$

P: 荷重 (N)、L: 支点間隔 (mm)、b: 試験片の幅 (mm)、h: 試験片の高さ (mm)

実験は23~25°C、RH50~60%の環境条件で行った。

III. 複合材料の3点曲げ実験における曲げ破壊現象の理論的考察およびアクリル樹脂合わせ板の活用展望

3点曲げ実験において、単純ばりに直角に荷重がかかるとうると、 σ_{max} は試験片の最外層で、 τ_{max} は試験片の中心で発生する (図1)。そして σ_{max} 、 τ_{max} は(1)、(2)式により求めることができる。更に(1)、(2)式から(3)式が得られる。

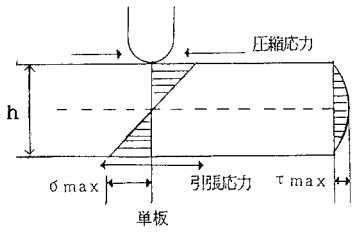
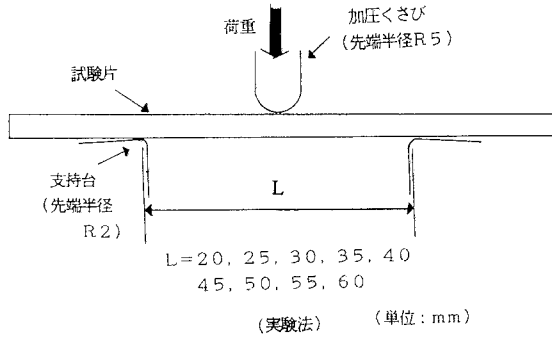
$$\tau_{max} = \frac{\sigma_{max}}{2(L/h)} \quad (3)$$

いま、試験片固有の σ_{max} 、 τ_{max} を σ_0 、 τ_0 とすると、(3)式は(4)式に置き換えられる。(4)式に

$$\tau_{max} = \frac{\sigma_0}{2(L/h)} \quad (4)$$

により試験片の L/h 対して τ_{max} をプロットしたのが図2である。注意すべき事は、図2の (L/h)_T 以上の L/h 範囲での τ_{max} は、曲げ破壊が起こる時に発生するせん断応力を示す。また (L/h)_T では、曲げおよびせん断破壊が複合して起こる所の L/h 点で、この点をせん断破壊から曲げ破壊に移行する転移点と呼ぶことができる。当然転移点以下の L/h ではせん断破壊が、以上の L/h では曲げ破壊が起こることになる。

以上の事をまとめて、試験片の L/h 対する破壊時の σ_{max} および τ_{max} をプロットしたのが図3である。



* h/2 の厚さを持つ2枚の板を接着し、合わせ板とした場合の応力分布は、荷重が同一であれば、hの厚さを持つ単板と同様となる。

図1 3点曲げ実験法と負荷により試験片に発生する応力分布

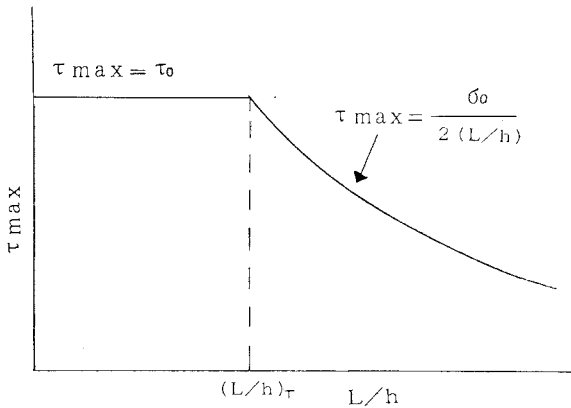


図2 3点曲げ実験での試験片のL/hとtau_maxの関係

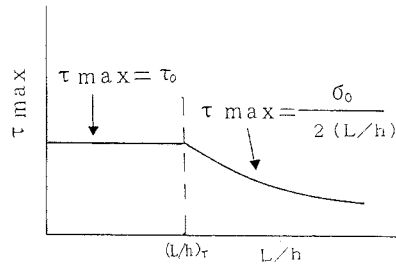
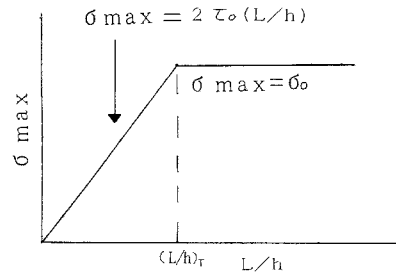


図3 試験片破壊時のL/hとsigma_maxおよびtau_maxの関係

さて、アクリル樹脂合わせ板は、VD(Laser Vision Disk)ですでに活用されている。アクリル樹脂は吸水率が高いために経時的に板の反りが発生し、信号の読み取りが不可能になる。従って、その反りを防ぐために合わせ板にしている。また乗用車のフロントガラス以外の窓ガラスは、現在ハードコート処理をした有機合わせ板に変わろうとしている(素材はアクリル樹脂かポリカーボネート)。この事は、プラスチックの軽量性と強靱性をうまく活用し、更に合わせ板にしたのは、ハードコート処理により発生する素材の機械的性質の低下を回復すること、および破損した時の破片を鈍角状とし人体への損傷を軽くするなどの理由が考えられる。そしてこの合わせ板の延長線には、無機ガラスと透明プラスチックまたは透明硬質プラスチックと軟質プラスチックの合わせ板が考えられ、両材の長所を生かせれば、実用材としての活用が今後期待できる。

IV. 結果と考察

1. 3点曲げ実験での試験片のL/hとsigma_max、tau_maxの関係および破壊様相

図5~16までは、表1に示す2種類の層間膜を持つアクリル樹脂合わせ板試験片(以下試験片とする)の、3点曲げ実験におけるL/hとsigma_max、tau_maxの関係を示す。また図の上部には、各L/h点での試験片の破壊様相を示した。

試験片の破壊様相は目視で確認した。その様相は図4の通り5分類に区分した。A、B区分ではいずれも曲げ破壊を起こしているが、A区分では荷重線に沿った板曲げ破壊である。B区分は、荷重線から試験片の横端に向かって斜めに、かつ合わせ面と垂直に大きな割れが発生した後の曲げ破壊である。C区分は、合わせ面の層間破壊が点または線で多数発生した後の曲げ破壊である。D区分は完全な合わせ面の層間破壊であり、合わせ面に多くのヘアークラックが発生するか、全面剝離が起こった直後の破壊である。

次に以上の破壊区分に従って実験結果を報告し考察する。

(1) アクリル系層間膜 (PM系)

図5～8は、層間膜を加熱硬化により形成した試験片 (PM 1, PM 2) の実験結果である。破壊様相は、L/hの変化に関係なく荷重線の裏面から亀裂が発生し、破壊する曲げ破壊であった。しかし同じ曲げ破壊でも、L/hが大きな範囲ではA区分の曲げ破壊様相を示し、L/hが小さくなるとB区分の破壊様相に移行した。B区分にみられた大きな割れは、金原⁽³⁾、Fujii⁽⁴⁾が報告した荷重点から支点に向かう斜めせん断破壊 (GFRPの同様実験でのL/hの小さい範囲で発生した) に類似している。金原⁽³⁾は、この割れは荷重点近傍の局部応力の影響が、支点付近まで及ぶため起こるとしている。そしてFEMによる応力解析により、最大せん断応力の方向が斜めせん断亀裂の方向と一致することを確認した。従ってPM 1, 2については、L/hが大きい範囲では荷重点近傍の応力集中によりA区分の割れが、またL/hが小さい範囲では、せん断応力が働く方向に大きな割れが発生し、その後曲げ破壊に至ると考えられる。しかしこの割れ現象については、更に詳細な解析が必要であろう。

またPM 1, 2では総てのL/h範囲で曲げ破壊を起こし、破壊の開始は荷重点の反対面から起った。この事は、試験片に引張応力が働く面から破壊が起ったことになる。一般にプラスチック材は、鋳物のように圧縮強さが引張強さより著しく大きいために、引張応力が働く部位から破壊が起るとされている⁽⁵⁾。

一方曲げ破壊時の σ_{max} の変化は、いずれの試験片でも、L/hが小さくなるほど反比例的に大きくなり、L/hが15～17.5以下で平衡となった。そして平衡点で見られる最大曲げ応力(σ_0)は、PM 1-1、2-1で135(N/mm²)、PM 1-2で125、PM 2-2で117と各試験片で差がみられた。今回の実験範囲では、この結果から、層間膜厚は薄くかつ硬化触媒量のある一定

限度に多くすることにより、アクリル板に対する接着力および抗張力の強い層間膜が形成され、その影響を受けて各試験片の σ_0 に差が生じたことを示唆している^(注1)。

図9, 10は接着剤の触媒添加量を1.0%、そして図11, 12は同添加量を0.5%配合して、共に常温硬化で層間膜を形成した試験片グループ (PM 3, 4) の結果である。このグループでは、L/hの小さい範囲では層間せん断破壊が、L/hが大きくなると曲げ破壊が起こった。そしてその転移点は、L/hの15～20の範囲であった。この結果は、Mullin⁽¹⁾の理論的考察と一致した現象を示したことになる。ただし σ_{max} は、(L/h)_T以上で平衡と成らず僅かに減少する傾向がみられた。また転移点は、破壊様相のC区分にほぼ収まっており、目視での破壊様相の確認が妥当であることが実証された。そして転移点は、 σ_{max} および τ_{max} の変曲点として明確に現れた。この様な明確な転移点は、FRPではマトリックスの硬化度の小さい場合⁽²⁾、繊維材が二方向性強化よりも一方向性強化の場合⁽³⁾、にみられるとしている。その観点から考えると、今回の試験片では、後者で考えられる複合層の単純性により、破壊の転移が急速に進むため、シャープな転移点が現れたと考える。

一方各試験片の σ_0 及び τ_0 の比較では、僅かに差がみられる。その傾向はPM 1, 2の結果と同様であった。図13, 14は触媒添加量を0.2%配合して、常温硬化により層間膜を形成した試験片 (PM 5) の結果である。試験片は、どのL/hでも層間せん断破壊を起こした。従って破壊時の応力変化は、 τ_{max} の変化をみる必要がある。その変化はL/hが小さくなるほど τ_{max} は反比例的に増大しL/hが17.5～20以下ではほぼ平衡となった。この τ_{max} の変化は、総てのL/hで曲げ破壊を起こしたPM 1, 2の σ_{max} の変化挙動と類似した。また破壊様相は、層間膜に著しいヘアークラックが生じ、その後破壊が起こった。

(2) ポリウレタン-不飽和ポリエステル系層間膜 (UP系)

図15, 16は、ポリウレタン-不飽和ポリエステルを層間膜とした試験片グループ (UP 1) の結果である。PM 3, 4と同様に今回の試験範囲内のL/hで、層間せん断破壊と曲げ破壊の転移が観られた。そしてその転移はL/hの17.5の所で起こり、層間せん断破壊からせん断-曲げ複合破壊に移行する点に集まった。その原因としてはアクリル系よりも、アクリル樹脂板とポリウレタン膜および二種類の層間膜同士の接着力が弱

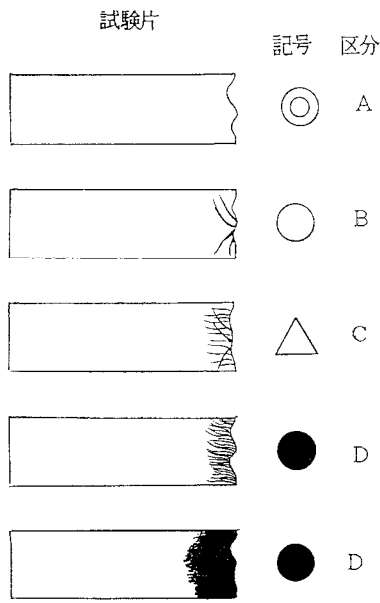


図4 曲げ破壊様相の区分

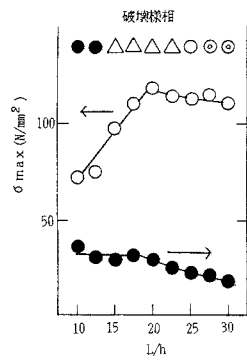


図9 試験片: PM3-1

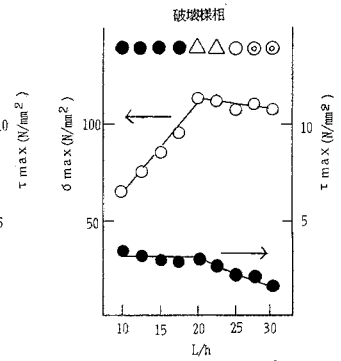


図10 試験片: PM3-2

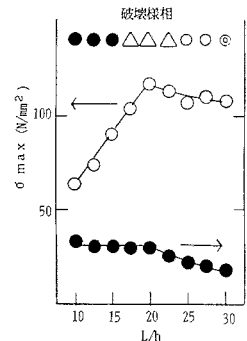


図11 試験片: PM4-1

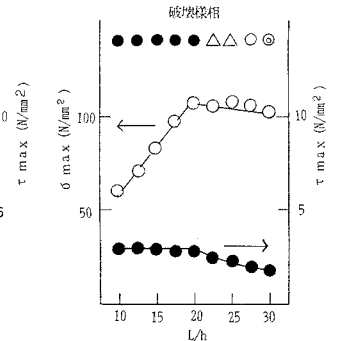


図12 試験片: PM4-2

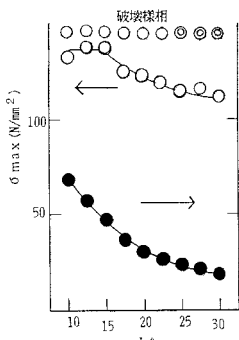


図5 試験片: PM1-1

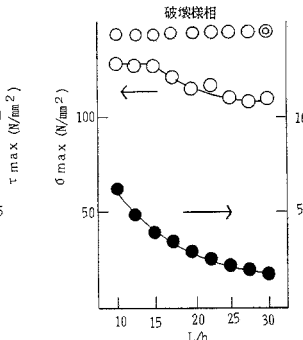


図6 試験片: PM1-2

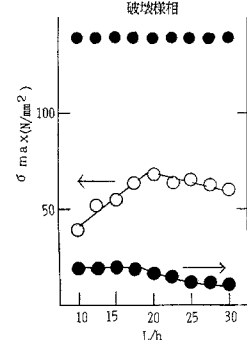


図13 試験片: PM5-1

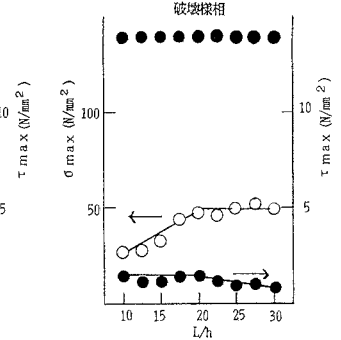


図14 試験片: PM5-2

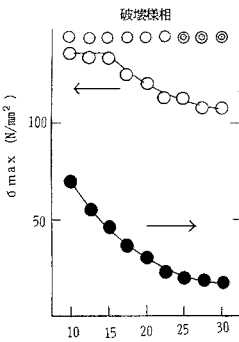


図7 試験片: PM2-1

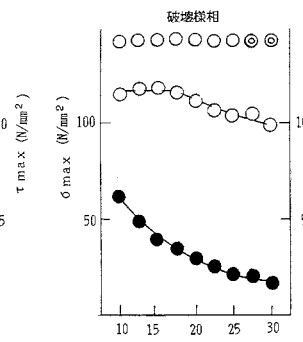


図8 試験片: PM2-2

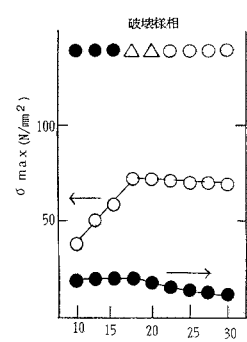


図15 試験片: UP1-1

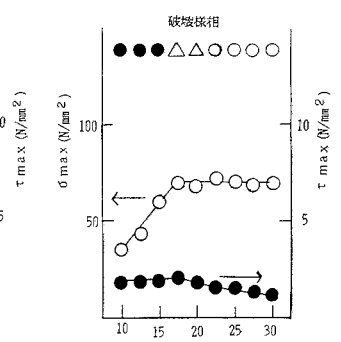


図16 試験片: UP1-2

図5～16 各試験片での曲げ実験におけるL/hと σ_{max} および τ_{max} の関係および破壊様相

いこと、またポリウレタン膜の脆弱性が挙げられる。それを裏付ける現象として、UP系の破壊様相は、ある一定以上の荷重で急激に層間膜の全面剥離が起り破壊に至る様相であった。更にUP系では、層間膜厚が異なっても σ_0 はほぼ変わらないことから、層間せん断破壊は、ポリウレタン膜の接着面破壊または膜の凝集破壊により主体的に引き起こされていると考える。

また σ_0 は、PM 3、4と比較すると約50~60%に低下しており、層間膜の接着強度および膜自体の強さが試験片の破壊強さに大きく影響することが解った。

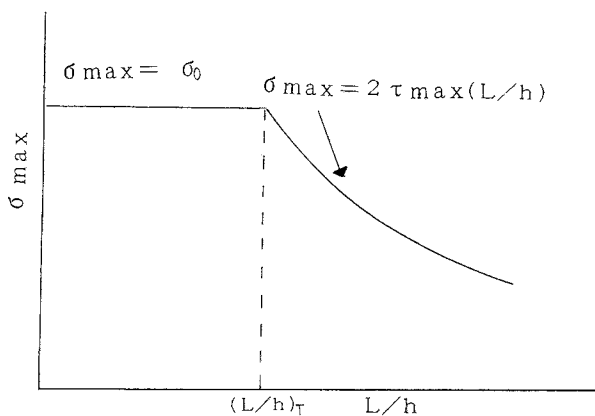


図17 試験片破壊時のL/hと σ_{max} の関係 (曲げ破壊のみ起こす場合)

以上(1)、(2)の実験結果からL/hに対する σ_{max} および τ_{max} の変化は、2つのグループに分けることが出来る。1つのグループは、今回の測定L/h範囲で破壊様相が転移する場合で、PM 3、4およびUP 1が該当する。そして σ_{max} 、 τ_{max} の変化は、図3の理論曲線とほぼ一致した。もう1つのグループは、測定L/h範囲で破壊様相が変わらない場合である。PM 1、2では、総てのL/h範囲で曲げ破壊を起こした。この場合はL/hに対する σ_{max} の理論曲線は、図17のように表すことが出来る。またPM 5では、総てのL/hで層間せん断破壊を起こし、 τ_{max} の理論曲線は図3の τ_{max} の理論曲線と同様であった。

2. アクリル樹脂合わせ板とアクリル樹脂単板の曲げ破壊の比較

PM 1-1、2-1の σ_0 は、135 (N/mm²)であった。図18は、60℃、8時間(試験片を作成した加熱条

件と同一)アニールしたアクリル樹脂単板(2 mm厚)の、L/hに対する σ_{max} および τ_{max} をプロットした図である。そして図の上部には、破壊様相も示した。破壊は総て曲げ破壊で、破壊の開始は荷重点の反対面から起こった。そして σ_0 は、L/hが12.5の所で85(N/mm²)の値を得た。従ってPM 1-1、PM 2-1では、同一厚さの単板と比較し、曲げ破壊強さは約1.6倍に増大したことになる。

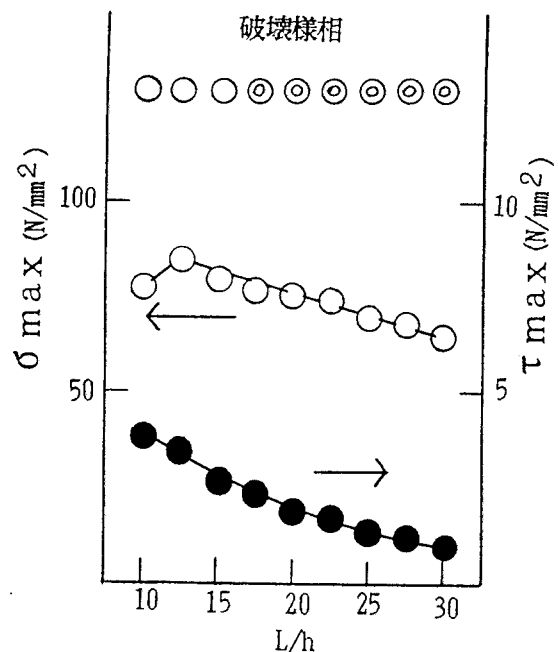


図18 アクリル樹脂単板(2 mm厚)の曲げ実験でのL/hと σ_{max} 、 τ_{max} の関係および破壊様相

さて図1に示す通り、単板と同一厚さの合わせ板では、単板と同じ曲げ荷重をかけたとしても、単板と同様の応力分布を示し、また材の荷重側では圧縮応力が、反対面では引張応力が働く。従って、いま1と2 mm厚のアクリル樹脂板での分子組成および分子配列構造がほぼ同一と仮定すると、曲げ破壊強さはほぼ一致しなければならない。しかし今回の実験結果では、合わせ板にすることにより、単板と比較し約1.6倍の曲げ破壊強さの向上がみられた。この原因については、今回の実験だけでは十分な解析が出来ないが、曲げ破壊は引張応力が働く側から発生していることから、おそらく層間膜形成によって試験片の引張応力の減少が起きているためと推測した。

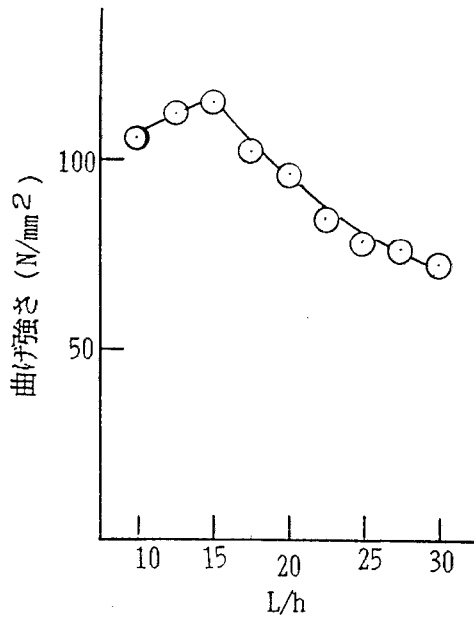


図19 アクリル樹脂単板 (1 mm 厚) の曲げ実験での L/h と曲げ強さの関係

図19は、60℃、8時間アニールしたアクリル樹脂単板 (1 mm 厚) の L/h に対する曲げ強さをプロットした図である。この実験では、総ての L/h で曲げ破壊を起こさなかったので曲げ強さを求めた。そして最大曲げ強さは、115 N/mm² (L/h : 15) であった。この値は PM 1、2 の σ_0 の値よりやや低めであったが、曲げ破壊のみ起こす合わせ板の σ_0 は、その板を構成する単板の σ_0 とほぼ一致すると考えて良いであろう。

V. まとめ

アクリル樹脂、ポリウレタン—不飽和ポリエステル の 2 種類の層間膜を持つアクリル樹脂合わせ板を試作した。その試験片により、それぞれ L/h を変化させ 3 点曲げ実験を行った。そして実験結果から、Mullin らの曲げ破壊理論に基づいて曲げ破壊現象を考察した。またアクリル樹脂単板とアクリル樹脂合わせ板の曲げ破壊現象を比較し、合わせ板にすることの意義を考察した。

それらをまとめると次の様である。

(1) 今回試作した合わせ板では、L/h の変化により
 ①曲げ破壊のみ起こすグループ ② L/h により曲げ
 および層間せん断破壊を起こすグループ ③層間せん
 断破壊のみ起こすグループに分かれ、各試験片の曲げ

破壊強さを明確に分別できた。

②のグループでは、Mullin らが提唱した理論曲線とほぼ一致した σ_{max} と τ_{max} の曲線が得られ、破壊転移点は複合層の単純性のためにシャープな形で現れた。①、③のグループの σ_{max} (①) または τ_{max} (③) の曲線変化は、L/h が小さくなるほど反比例的に増大し、ある一定の L/h で平衡となる曲線を示した。その実験曲線から①では σ_{max} および③では τ_{max} の理論曲線を求めることができた。

(2) ①のグループは、板材の曲げ破壊であるから合わせ板として理想の曲げ破壊現象であり、同一厚さの単板と比較し約1.6倍の曲げ破壊強さを示した。この結果は、単板に荷重がかかった場合に発生する引張応力が、同一厚さの合わせ板では同じとはならず、小さくなることにより起こると考えられるが、今回の実験範囲ではその原因を明確にできなかった。また合わせ板の曲げ破壊強さは、合わせ板を構成する単板の曲げ破壊強さに関係するものとする。

(注1) 2 mm 厚のアクリル樹脂板の両面に0.01 mm 厚の紫外線硬化塗料を塗布した試験片の曲げ実験では、膜硬度の差により曲げ破壊強さに差がみられた。そして軟質膜被覆試験片では、単板と比較し、曲げ破壊強さが38%向上した。この事は、薄膜の付与によりアクリル樹脂板の曲げ物性が大きく変わることを意味する⁽⁶⁾。

引用文献

- (1) J. V. Mullin and A. C. Knoell : SPI, 25th, sec. 21 -B, 1 (1970)
- (2) 牧 廣 : 第3回複合材料シンポジウム講演予稿集 (日本科学技術連盟)、463 (1970)
- (3) 金原、大沢、竹鼻 : 第3回複合材料シンポジウム予稿集、8 (1977)
- (4) T. Fujii and Z. Maekawa : Proc. J. C. M. R., 23, 322 (1980)
- (5) 山口章三郎 : プラスチックの機械的性質、日刊工業新聞社 (1967) P 125
- (6) 竹内勇夫、本田尚吾 : 塗装工学、27(11)522 (1992)