

## 短繊維強化ポリプロピレン押出材の縦弾性係数と強度の予測

佐野村 幸夫\* 早川 邦夫\*\*

水野 衛\*\*\* 川村 宗弘\*\*\*\*

### Prediction of Young's Modulus and Strength of Extrudate in Short-Fiber-Reinforced Polypropylene

Yukio SANOMURA, Kunio HAYAKAWA,  
Mamoru MIZUNO and Munehiro KAWAMURA

(Received on )

In this study, we examine the effect of process conditions on Young's modulus and tensile strength of extruded short-fiber reinforced thermoplastics. The mechanical properties of the matrix are improved with increasing extrusion ratio and decreasing extrusion temperature. The fiber alignment increases with increasing extrusion ratio and decreasing extrusion temperature. The mean fiber length decreases with increasing extrusion ratio and decreasing extrusion temperature. The orientation parameter, mean fiber length, Young's modulus and tensile strength of the matrix are described as a function of extrusion ratio and extrusion temperature. The models proposed by Fukuda and Kawata, and Fukuda and Chou are applied to predict Young's modulus and tensile strength of the composites using orientation parameter. By comparing the predicted Young's modulus and tensile strength with experimental results, the validity of the models is examined. The prediction of Young's modulus agreed almost with the experimental results. The tensile strength of composite extruded below the melting point agreed almost with that of the matrix. There is no the strengthening effect of the fiber since the angle between fracture surface and fiber direction is very small.

**Key words:** extrusion, composite material, short-fiber reinforced thermoplastics, extruded composite, Young's modulus, tensile strength, fiber orientation parameter

#### 1. 緒言

熱可塑性樹脂を母材とする短繊維強化複合材料は，成形中の樹脂の流動に伴って，繊維配向する<sup>1)</sup>．このうち，射出成形<sup>2)</sup>，圧縮成形<sup>3)</sup>，静水圧押し出し<sup>4)</sup>ならびにラム押し出し<sup>5)</sup>の繊維配向が，報告されている．このような繊維配向は，短繊維強化複合材料部品の剛性<sup>5)-7)</sup>と強度<sup>8)9)</sup>に，著しく影響する．

ランダム分布の短繊維強化複合材料を融点近傍で押し出し（一軸延伸）すれば，押し出方向に繊維配向を制御することができる<sup>4)5)</sup>．このとき母材の顕著な塑性流動は，強化繊維の配向だけでなく，母材自身の分子配向を引き起こす．したがって，押し出材の力学的性質は押し出方向に著しく強化される．

前報<sup>5)</sup>では，短繊維強化複合材料のラム押し出しを行い，ほぼ一様な繊維配向分布をもつ押し出材を得た．このとき，押し出比によって繊維配向分布を制御することができた．また，押し出比の増加に伴って，縦弾性係数が増加するが，それは配向パラメーターで限界角度を計算<sup>5)</sup>したFukudaとKawataの理論<sup>6)</sup>で，ほぼ記述することができた．

本研究では，ラム押し出し加工した短繊維強化ポリプロピレン丸棒の剛性と強度に及ぼす押し出成形条件の影響を調べる．ここでは，配向パラメーター<sup>10)</sup>を用いて，繊維配向を有する短繊維強化複合材料の縦弾性係数と強度の予測を試みる．まず，配向パラメーターと平均繊維長を押し出温度と押し出比の関数として，記述する．つづいて，母材の縦弾性係数を押し出温度と押し出比の関数として記述し，FukudaとKawataの理論を適用して，縦弾性係数を予測する<sup>5)6)</sup>．さらに，母材の強度を押し出温度と押し出比の関数として記述し，FukudaとChouの理論<sup>8)</sup>を適用して複合材料の強度を予測する．最後に，計算値と実験値を比較検討する．

#### 2. 供試材料と実験方法

##### 2.1 供試材料とラム押し出方法

溶融押し出成形機で重量繊維含有率 $w_f = 10\text{wt}\%$ の短繊維強化ポリプロピレン（グラントポリマー K7000，(株)グラントポリマー）を直径32mmの丸棒に成形した．これを長さ60mmに旋削後，ラム押し出しのビレットにした．ラム押し出しは，油圧プレスに押し出装置を組み込んで行った<sup>11)</sup>．ビレットをコンテナ内で加熱して，所定の温度に達した後，種々の押し出し比でラム押し出しを行った．ここでは，押し出温度 $T_E$ を金型の設定温度とした．なお，押し出し比を $R_A = (d_B/d_E)^2$ と定義する．ここで $d_B$ と $d_E$ は，それぞれビレットと押し出し材の直径を表す．

##### 2.2 配向角の定義

押し出し方向と平行な面（中心を通る面）を切断・研磨後，押し出し材を光学顕微鏡で観察した．その一例を Fig.1 に示す．このとき，ガラス繊維の切断面は一般に楕円と

\*玉川大学工学部〒194-8610 東京都町田市玉川学園6-1-1

\*\*静岡大学工学部〒432-8561 静岡県浜松市城北3丁目5-1

\*\*\*秋田県立大学システム科学技術学部〒015-0055 秋田県本荘市土谷字海老ノ口84-4

\*\*\*\*山口県産業技術センター〒755-0151 山口県宇部市あすとびあ 4-1-1

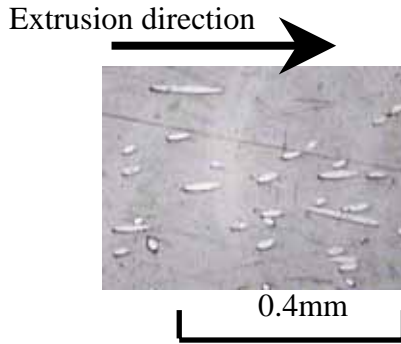


Fig.1 An example of optical micrograph of a polished cross section in extruded composite ( $T_E=448K$ ,  $R_A=9.68$ )

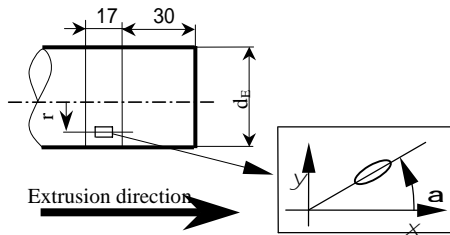


Fig.2 The definition of fiber orientation angle

なる．この楕円長軸の押し出方向 ( $x$  軸) からの角度を Fig.2 のように配向角  $\alpha$  とした．したがって， $\alpha$  は押し出し方向の繊維配向を表す．

### 2.3 繊維長の計測

620 で 2 時間電気炉において押し出材の母材を燃焼させて，残存するガラス繊維の繊維長をスカラ(株)製のビデオルーペ VL-11SL とデスクトップスケール DTS とで計測した．

### 2.4 引張試験

ラム押し出方向と同一方向における押し出材の引張試験を行った．引張速度 0.5mm/min，室温で MTS 伸び計 632.13F-20(標線距離 10mm)とロードセル(共和電業製 LUK-2TBS)を用いて行った．試験片の寸法は，平行部直径 8mm，平行部長さ 12mm，肩半径 17mm である．なお縦弾性係数は，応力-ひずみ曲線の初期勾配から求めた．

## 3. 配向パラメーターと縦弾性係数と強度の予測

### 3.1 配向パラメーターの定義

繊維配向分布は，短繊維複合材料の力学的挙動に著しい影響を及ぼすことが知られており，その状態を適切に表現する必要がある．このため，数多くの提案が成されているが，ここでは次の配向パラメーター  $f_p$  を用いる<sup>10)</sup>．

$$f_p = 2\langle \cos^2 \alpha \rangle - 1 \quad (1a)$$

$$\langle \cos^2 \alpha \rangle = \int_0^{\pi/2} n(\alpha) \cos^2 \alpha \, d\alpha \quad (1b)$$

ここに  $f_p = 1.0$  は完全に押し出し方向と平行な繊維だけが配列した場合を表し， $f_p = 0.0$  はランダム分布を意味する．さらに  $f_p = -1.0$  は，完全に押し出し方向と垂直な方向に繊維が配向したことを表す．なお， $n(\alpha)$  は配向分布関数であり，次式を満足しなければならない．

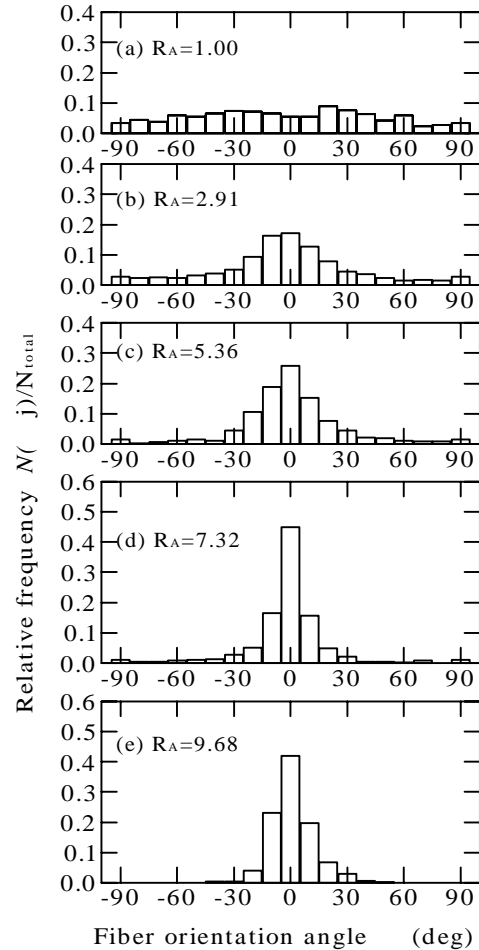


Fig.3 An example of fiber orientation distribution ( $T_E=448K$ ).

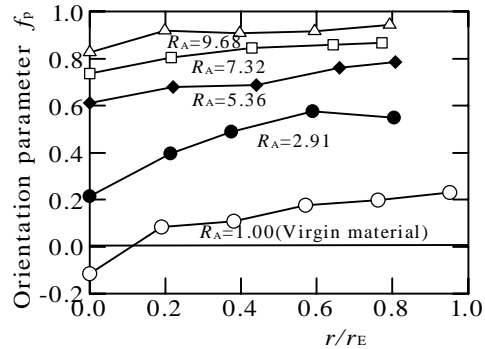


Fig.4 Change of orientation parameter with normalized radius of cross section ( $T_E=448K$ ).

$$\int_0^{\pi} n(\alpha) \, d\alpha = 1 \quad (2)$$

実験では，区  $j$  における平均配向角  $\alpha_j$  における測定繊維の頻度  $N(\alpha_j)$  を計測して，次式で計算した．

$$\langle \cos^2 \alpha \rangle = \sum_j \frac{N(\alpha_j)}{N_{total}} \cos^2 \alpha_j \quad (3)$$

ここに  $N_{total}$  は，測定繊維の総数を表す．

Fig.3 は， $T_E=448K$  で種々の押し出比で押し出した押し出材の繊維配向分布を示す．図から処女材は，ほぼ一様なランダム分布であることがわかる．押し出比の増加に伴って，押し出方向と平行な繊維が増加することがわかる．

次に，押し出材内部の繊維配向の均一性を検討する．Fig.4

は，配向パラメーターの押出材半径方向変化を表す．文献5)の $T_E=433\text{K}$ と同様に，押出比の増加に伴って，次第に一般的な配向パラメーターとなる．

### 3.2 短繊維強化複合材料における縦弾性係数の予測

Coxは，短繊維における力の釣り合いから繊維が受け持つ応力分布を解析的に求めることによって，次式が得られる<sup>13)</sup>．

$$E = \eta E_f V_f + E_m(1 - V_f) \quad (4)$$

ここに $E_f$ ， $E_m$ ， $V_f$ は，それぞれ繊維の縦弾性係数，母材の縦弾性係数および繊維の体積含有率を表す．さらに $\eta$ は，繊維長 $l$ が短いために生じる剛性低下を表し，次式で与えられる．

$$\eta = 1 - (\tanh \frac{1}{2} \beta l) / (\frac{1}{2} \beta l) \quad (5a)$$

$$\beta = \sqrt{\frac{2G_m}{E_f r_f^2 \ln(R/r_f)}} \quad (5b)$$

ここに $r_f$ と $G_m$ は，それぞれ繊維の半径ならびに母材の横弾性係数を表す．さらに， $2R$ は繊維間隔を表し，理想的な正方配列を仮定すれば

$$R = \frac{r_f}{2} \sqrt{\frac{\pi}{V_f}} \quad (6)$$

となる．また，母材の等方性を仮定すれば

$$G_m = \frac{E_m}{2(1 + \nu_m)} \quad (7)$$

となる．なお，体積含有率 $V_f$ と重量含有率 $W_f$ の換算は，次式となる．

$$V_f = \frac{W_f / \rho_f}{W_f / \rho_f + W_m / \rho_m} \quad (8)$$

ここに $\rho_f$ と $\rho_m$ は，それぞれ繊維と母材の密度を表す．

FukudaとKawada<sup>6)</sup>は林の理論を拡張して，配向分布を有する短繊維強化複合材料の弾性定数を導いた．このとき，繊維配向分布を考慮した配向係数 $\eta_0$ を用いて

$$E = \eta_0 \eta_l E_f V_f + E_m(1 - V_f) \quad (9)$$

と書ける．このとき，配向分布関数を次のような長方形分布

$$n(\alpha) = \begin{cases} \frac{1}{\alpha_0} & (0 < \alpha < \alpha_0) \\ 0 & (\alpha_0 < \alpha) \end{cases} \quad (11)$$

に仮定した場合

$$\eta_0 = \frac{\sin \alpha_0}{\alpha_0} \left( \frac{3 - \nu_m}{4} \frac{\sin \alpha_0}{\alpha_0} + \frac{1 + \nu_m}{4} \frac{\sin 3\alpha_0}{3\alpha_0} \right) \quad (12)$$

が得られる．ここで $\alpha_0$ は，繊維配向限界角度を表す．

式(11)を式(1)に代入して，計算すれば容易に次式が求まる．

$$f_p = \frac{\sin 2\alpha_0}{2\alpha_0} \quad (13)$$

したがって，実験で測定した配向パラメーター $f_p$ から式(13)によって，繊維配向限界角度 $\alpha_0$ を計算できる．この値を式(12)に代入すれば，繊維配向分布による剛性低下割合 $\eta_0$ を求めることができる．

### 3.3 短繊維強化複合材料における強度の予測

KellyとTyson<sup>12)</sup>は，まず母材が塑性変形し，つづいて繊維が降伏後，最終的に破壊に至ると考えた．1本の繊維とその周りの母材の弾塑性解析をすれば，次式を得る．

$$\sigma_{cu} = \begin{cases} \sigma_f \left(1 - \frac{l_c}{2l}\right) V_f + \sigma_m^*(1 - V_f) & (l > l_c) \\ \sigma_f \frac{l}{2l_c} V_f + \sigma_m^*(1 - V_f) & (l \leq l_c) \end{cases} \quad (14)$$

ここで， $\sigma_f$ ， $\sigma_m^*$ ， $l_c$ は，それぞれ繊維の引張強さ，母材の降伏応力，繊維の限界長さを表す．

Fukuda-Chou<sup>8)</sup>は，Kelly-Tysonの理論を拡張して，繊維配向分布を伴う複合材料の引張強さの予測式を解析的に導いた．

$$\sigma_{cu} = \begin{cases} \sigma_f \left(1 - \frac{l_c}{2l}\right) V_f C_0 + \sigma_m^*(1 - V_f) & (l > l_c) \\ \sigma_f \frac{l}{2l_c} V_f C_0 + \sigma_m^*(1 - V_f) & (l \leq l_c) \end{cases} \quad (15)$$

ここで $C_0$ は，繊維配向係数であり，式(11)のような長方形分布の場合，次式で表現できる．

$$C_0 = \frac{\sin \alpha_0}{\alpha_0} \frac{1}{\alpha_0} \left( \frac{1}{12} \sin 3\alpha_0 + \frac{3}{4} \sin \alpha_0 \right) \quad (16)$$

## 4. 実験結果と考察

### 4.1 配向パラメーターと平均繊維長の近似

配向パラメーター $f_p$ を押し出温度 $T_E$ と押し出比 $R_A$ の関係を次のようなべき乗の曲線で近似した．なお， $T_{em}$ は，母材の融点である．

$$f_p = \left( -1.70 \frac{T_E}{T_{em}} + 2.10 \right) (R_A - 1)^{0.4} \quad (17)$$

Fig.5は，式(17)による近似曲線と実験値(各記号)を表す．式(17)は，実験結果の傾向をほぼ記述することができる．押し出温度 $T_E=403\text{K}$ では，加工温度が低いために，押し出

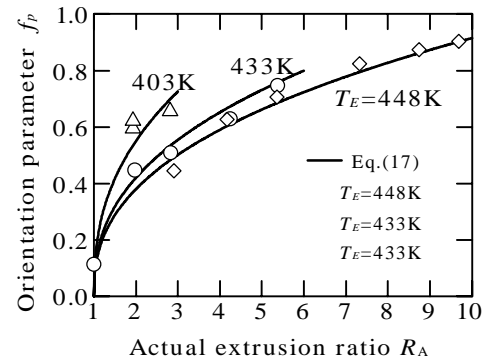
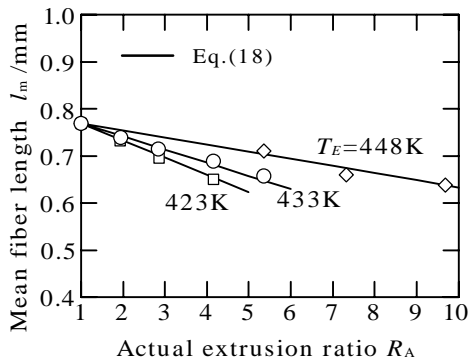


Fig.5 Variation of orientation parameter with actual extrusion ratio and extrusion temperature.



**Fig.6** Variation of mean fiber length with actual extrusion ratio and extrusion temperature.

$R_A=3$  以上で押出材に微視的なき裂が生じる。

つづいて, 平均繊維長を押し出温度と押し出比の関係として, 次のような直線で近似した。

$$l_m = \left( 0.375 \frac{T_E}{T_{em}} - 0.396 \right) (R_A - 1) + 0.769 \quad (18)$$

Fig.6に見られるように, 平均繊維長は, 押し出比の増加に伴って減少する。これは, 押し出加工による大きな塑性流動に伴ってガラス繊維が折損するためである。その折損の度合いは, 押し出温度が低いほど著しいことがわかる。

**4.2 複合材料の縦弾性係数の予測と実験値**

母材の縦弾性係数は, 押し出温度と押し出比の関数として, 次式で表現できる。

$$E_m = \begin{cases} 2.07 + \left( -18.99 \frac{T_E}{T_{em}} + 19.30 \right) \times \left( \frac{R_A - 1}{-15.4 \frac{T_E}{T_{em}} + 16.86} \right)^{-13.56 \frac{T_E}{T_{em}} + 14.33} & \frac{T_E}{T_{em}} < 1 \\ 2.07 & \frac{T_E}{T_{em}} = 1 \end{cases} \quad (19)$$

押し出材は, 融点以上で押し出しても, 延伸による物性の向上が見られない。このため, 式(19)では融点以上の押し出加工による縦弾性係数を一定値(2.07GPa)とした。

Fig.7 から式(19)は, 母材の縦弾性係数に及ぼす押し出成形加工条件の影響を比較的良好に記述することがわかる。

Fig.8 は, 縦弾性係数の実験値と Fukuda-Kawata の理論による計算値との比較を示す。このとき, 以下の定数を用いた。

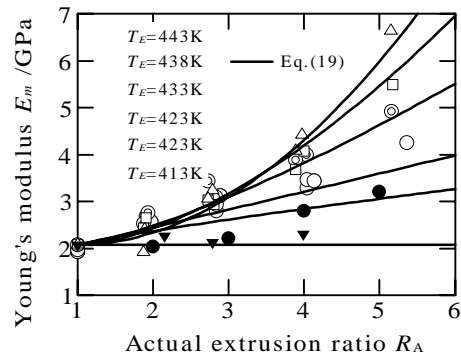
$$\left. \begin{aligned} E_f &= 72.0 \text{GPa}, \rho_f = 2.56 \text{g/cm}^3, r_f = 7 \mu\text{m} \\ \rho_m &= 0.911 \text{g/cm}^3, \nu_m = 0.36 \end{aligned} \right\} \quad (20)$$

ここで,  $E_f$  と  $\rho_f$  は, それぞれ文献 13) と 14) の値を用いた。また,  $r_f$ ,  $\rho_m$  と  $\nu_m$  は, 実測値を用いた。

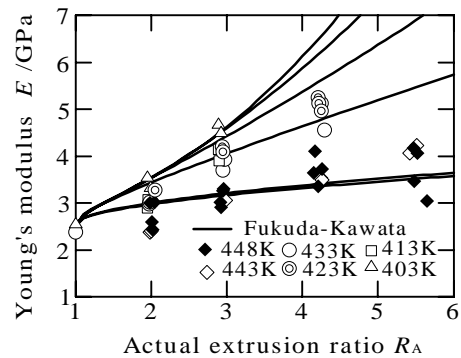
図から計算結果は, 実験結果をほぼ記述できることがわかる。

**4.3 複合材料の引張強さの予測と実験値**

つづいて, 複合材料の強度の予測を行う。このため,



**Fig.7** Identification of Young's modulus of matrix with actual extrusion ratio and extrusion temperature.



**Fig.8** Comparison of Young's modulus obtained from experimental results with predicted results by Fukuda-Kawata.

母材の強度は, 押し出温度と押し出比を用いて, 次のような直線で近似する。

$$\sigma_m^* = \left\{ -3469 \left( \frac{T_E}{T_{em}} \right)^2 + 6385 \frac{T_E}{T_{em}} - 2905 \right\} (R_A - 1) + 36.7 \quad (21)$$

Fig.9 に示すように, 式(21)は母材の強度をよく表現できることがわかる。

Fig.10 は, 複合材料の強度の予測値と実験値の比較を示す。このとき, 予測値式(15)で必要な値は, 次のとおりである。

$$l_c = \frac{\sigma_f}{2\tau_{mf}} d_f = \frac{2000}{2 \times 11.95} \times 0.014 = 1.17 \text{mm} \quad (22a)$$

$$\sigma_f = 2.00 \text{GPa}, \quad \tau_{mf} = \frac{\sigma_{my}}{\sqrt{3}} = \frac{20.7}{\sqrt{3}} = 11.95 \text{MPa} \quad (22b)$$

ここで  $\sigma_f$  は, 文献 13) の値を用いた。  $d_f$  は, 実測値を用いた。  $\tau_{mf}$  は, 引張試験から求めた降伏応力  $\sigma_{my}$  から Mises の降伏条件を仮定して計算した。

Fig.10 から融点以上 ( $T_E=443\text{K}$ ) の押し出材は, 比較的良好に実験値と計算値が一致する。しかし, 融点以下の固相押し出材では, 複合材料の強度は, 母材の強度 (破線) にしか過ぎない。すなわち, 強化繊維の補強効果が失われている。

Fig.11 は, 引張り破断後の SEM 写真を示す。処女材では, 破断面と垂直な面上で破断しているため, 繊維が抜けているのが観察される。一方押し出材では, 母材の破断面と平行な面上に多数の繊維が観察される。このことが, 固相押し出材の引張強さに繊維の補強効果の生

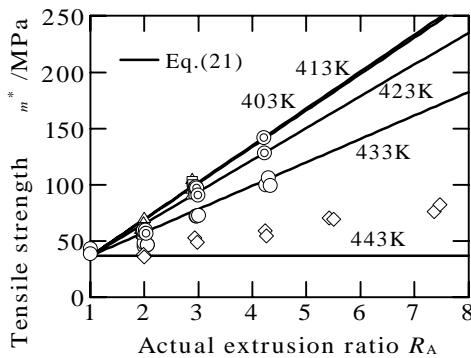


Fig.9 Identification of tensile strength of matrix with actual extrusion ratio and extrusion temperature.

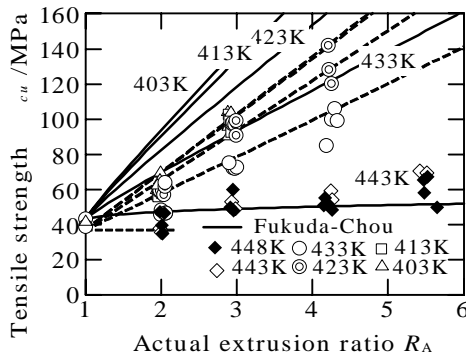
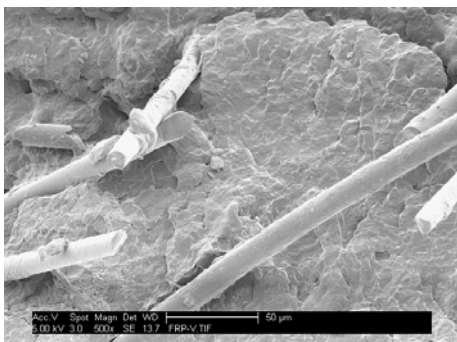
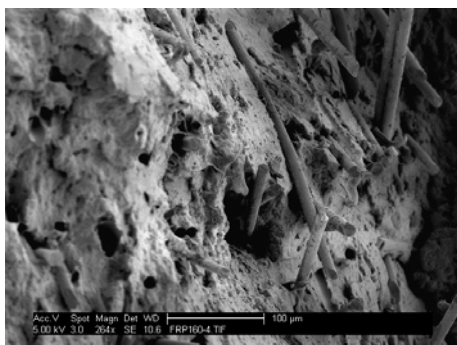


Fig. 10 Comparison of tensile strength obtained from experimental results with predicted results by Fukuda-Chou.



(a) Virgin material



(b) Extrudate ( $R_A=4.24, T_E=433K$ )

Fig.11 SEM micrographs of tensile fracture in composites

しない原因と考えられる。

### 1. 結 言

ラム押出加工した短繊維強化ポリブレン丸棒の剛性と強度に及ぼす押出成形条件の影響を調べた。ここでは、配向パラメーターを用いて、繊維配向を有する短繊維強化複合材料の縦弾性係数と強度の予測を試みた。縦弾性係数については、予測値は実験値とほぼ一致した。しかし、固相押出材の引張強度については、繊維の補強効果を得ることはできなかった。今後、3次元繊維配向計測を行い、押出材の異方弾性係数と異方強度を予測する必要がある。

走査電子顕微鏡観察に際して、ご協力を賜った神奈川県産業技術総合研究所の富田正一氏ならびに服部正己氏に深くお礼申し上げます。また、本研究の一部は、シミュレーション統合システム分科会「構成式の開発と汎用有限要素法プログラムへの組み込み」研究班の成果であることを申し上げます。

### 参 考 文 献

- 1) Papathanasiou, T. D. and Guell, D. C.編 : Flow-induced Alignment in Composite Materials, (1997), Woodhead.
- 2) Zainudin, E. S., Sapuan, S. M., Sulaiman, S. and Ahmad, M. H. M. : Journal of Injection Molding Technology, **6**-1 (2002), 1-10.
- 3) Advai, S. G. and Tucker, C. L. : Polymer Composites, **11**-3 (1990), 164-173.
- 4) Hine, P. J., Wire, S., Duckett, R. A. and Ward, I. M. : Polymer Composites, **18**-5 (1997), 634-641.
- 5) Sanomura, Y. and Kawamura, M. : Polymer Composites, **24**-5, (2003), 587-596 .
- 6) Fukuda, H. and Kawata, K. : Fiber Science and Technology, **7** (1974), 207-222.
- 7) Takao, Y., Chou, T. W. and Taya, M. : Transactions of the ASME, Journal of Applied Mechanics, **49** (1982), 536-540.
- 8) Fukuda, H. and Chou, T.-W. : Journal of Material Science, **17** (1982), 1003-1011.
- 9) Brooks, R., Mai-Ngam, B. and Hsu, C. Y. : Plastics, Rubber and Composites Processing and Applications, **27**-4 (1998), 172-178.
- 10) Pipes, R. B., Mccullough, R. L. and Taggart, G. : Polymer Composites, **3**-1 (1982), 34-39.
- 11) Sanomura, Y. : Materials Science Research International, **9**-4 (2003), 248-254.
- 12) A.Kelly and W.R.Tyson: J. Mech. Phys Solids, **13**-6 (1969), 329-350.
- 13) Hull, D. (宮入裕夫, 池上皓三, 金原 勲訳): 複合材料入門, (1983), 培風館 .
- 14) Laws, N. L. and McLaughlin, R. : J. Mech. Phys. Solids, **27** (1978), 1-13.