

シリカ粒子充てんエポキシ樹脂の  
衝撃疲労特性\*上井清史\*<sup>1</sup>, 新家光雄\*<sup>2</sup>  
小林俊郎\*<sup>2</sup>, 岡原淳\*<sup>3</sup>Impact Fatigue Properties of Epoxy Resin Filled with SiO<sub>2</sub> ParticlesKiyoshi UWAI, Mitsuo NIINOMI,  
Toshiro KOBAYASHI, and Atsushi OKAHARA

The impact fatigue test was carried out on an epoxy resin filled with SiO<sub>2</sub> particles. The effect of the SiO<sub>2</sub> content ratio on the impact fatigue strength and the effect of the impact repeating speed and the life to failure on fracture surface morphology were examined. The impact fatigue strength  $\sigma_i$  can be estimated by the formula of  $\sigma_i (N_f T_i)^{m_i} = D_i$ , where  $N_f T_i$  is the cumulative duration time, and  $m_i$  and  $D_i$  are parameters of the impact fatigue properties. The impact fatigue strength and static strength were governed by the content ratio of the SiO<sub>2</sub> particles. The crack initiated by decohesion at the epoxy-SiO<sub>2</sub> interface and the stable crack grew along this interface under the monotonic and the impact repeated loading conditions. During the unstable fracture, however, the crack propagated regardless of the existence of the SiO<sub>2</sub> particles.

**Key Words:** Fracture, Impact Fatigue, Fracture Surface, Law of Mixture Epoxy Resin Filled with SiO<sub>2</sub> Particles, S-N Curve

## 1. 緒言

シリカ粒子充てんエポキシ樹脂は、絶縁構造物に要求される電気的特性(耐アーク性、耐トラッキング性、耐電圧、絶縁抵抗など)に優れるため、高電圧絶縁材料として広く用いられている。

従来、これらの部材の設計は諸電気絶縁特性が重要視され、機械的強度を考慮した設計はほとんど行われなかった。しかし、これらの絶縁構造部材は各機器の開閉動作時に衝撃的荷重を受けるため<sup>(1)</sup>、その衝撃荷重下での強度的特性や破壊機構について十分把握しておく必要がある。そのため、最近ではエポキシ樹脂の衝撃疲労および衝撃破壊に関する報告がいくつかなされており<sup>(2)~(6)</sup>、今後よりいっそうの解析が切望されている。

そこで、本研究ではこのシリカ粒子充てんエポキシ樹脂について、シリカ粒子充てん率と破壊強度および衝撃疲労強度との関係ならびに衝撃疲労強度におよぼ

す衝撃繰返し速度の影響を明らかにし、破面形態との関連から微視的破壊機構を検討した。

## 2. 実験方法

**2.1 供試材および試験片** 本研究に使用した供試材は、粒径 10~60 μm の粉碎結晶性シリカ粒子を 0, 60, 64, 68 wt% の割合で充てんし、耐湿性改善のために分子中に 2 個以上の異なった反応基を持つシランカップリング剤を少量添加したエポキシ樹脂で、図 1 に示す JIS K 7113 3 号試験片の形状に、微細な気泡や空けきを残さないように真空注形し、衝撃引張疲労試験および静的引張試験に供した。なお、今回は実際の製品に近い表面状態での破壊機構を調べるため、注形したままの状態試験に供した。

**2.2 実験装置および方法** 本研究では、比較的

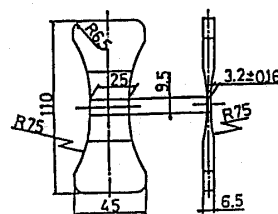


図 1 試験片形状(mm)

\* 平成元年 3 月 10 日 東海支部第 38 期総会講演会において講演、原稿受付 昭和 63 年 5 月 2 日。

\*<sup>1</sup> 学生員、豊橋技術科学大学大学院 (〒440 豊橋市天伯町雲雀ヶ丘 1-1)。

\*<sup>2</sup> 正員、豊橋技術科学大学工学部。

\*<sup>3</sup> (株)高岳製作所 (〒452 愛知県西春日井郡西枇杷島町)。

高サイクル域までのS-N曲線を得るため、図2に示す本研究室で新しく開発した回転円盤型衝撃引張疲労試験機を用い、負荷時間を変えるため、衝撃繰返し速度を2および15 c. p. sと変化させ試験を行った。図3に実測した衝撃引張応力波形を示す。上部波形はロードセルより得られた荷重-時間波形、下部波形は試験片に直接に付したひずみゲージより得られたひずみ-時間波形である。衝撃繰返し速度の異なる両波形(2 c. p. sおよび15 c. p. s)の相違点は荷重が最大荷重に達するまでに要する時間  $T_r$  および全負荷時間  $T_e$  である。両波形についてのこれらの値を表1にまとめて示す。また、衝撃引張疲労試験に先立って、静的引張試験をインストロン型万能試験機を用い JIS K 7113 硬質プラスチックの引張試験方法に従い、室温で、クロスヘッド速度 5 mm/min にて試験を実施した。

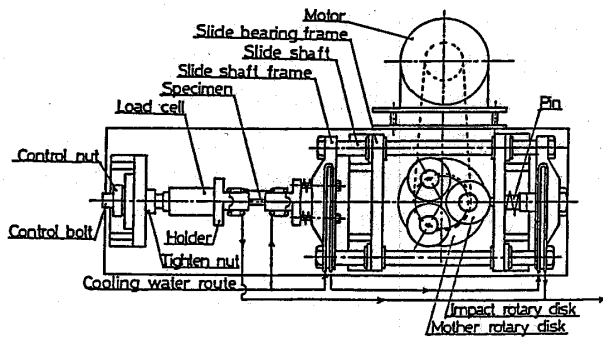
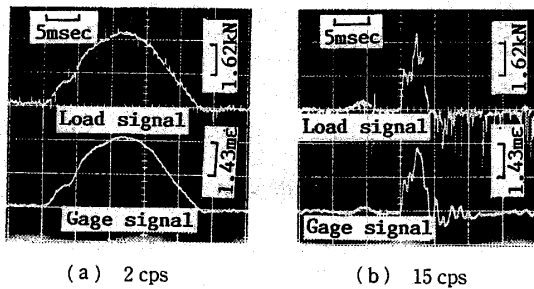


図2 回転円盤型衝撃疲労引張試験機



(a) 2 cps

(b) 15 cps

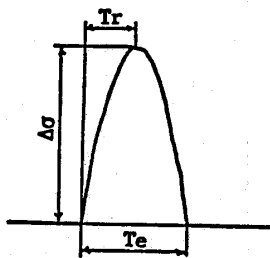


図3 代表的衝撃引張応力波形

### 3. 実験結果および考察

**3.1 静的引張特性** シリカ粒子充てん率と静的引張強度との関係を図4に示す。図4中の実線はNielsenの提唱するマトリックス相と充てん材間の界面が完全密着の場合の複合則で、次式によって表される<sup>(8)-(10)</sup>。

$$\frac{\sigma_c}{\sigma_1} = \frac{E_c}{E_1} (1 - \phi_2^{1/3}) \dots \dots \dots (1)$$

$$\frac{E_c}{E_1} = \frac{1 + A \cdot B \cdot \phi_2}{1 - B \cdot \phi_2} \dots \dots \dots (2)$$

$$A = K_e - 1 \dots \dots \dots (3)$$

$$B = \left( \frac{E_2}{E_1} - 1 \right) / \left( \frac{E_2}{E_1} + A \right) \dots \dots \dots (4)$$

$$\phi = 1 + \left( \frac{1 - \phi_m}{\phi_m^2} \right) \phi_2 \dots \dots \dots (5)$$

ここで、 $E_c$ ,  $E_1$ ,  $E_2$ ,  $\sigma_c$  および  $\sigma_1$  はそれぞれ複合材、連続相および充てん材のヤング率ならびに引張強さであり、 $\phi_2$  および  $\phi_m$  はそれぞれ充てん材の体積分率および最大充てん率で、ここでは  $\phi_m = 0.64$  を採用した<sup>(10)</sup>。また、 $K_e$  はアインシュタイン係数で、ここでは  $K_e = 4.77$  を採用した<sup>(8)</sup>。このNielsenの複合則と実測値は比較的良い一致を示した。

### 3.2 衝撃引張疲労特性

**3.2.1 衝撃繰返し速度の影響** 図5は衝撃繰返し速度を変化させた場合の衝撃引張応力  $\sigma_i$  と破壊寿命  $N_f$  との関係を示している。いずれの繰返し速度の場合にも、衝撃負荷の繰返し数の増加とともに疲労損傷の累積による強度低下が明りように認められる。い

表1  $T_r$  および  $T_e$  値

Stress pattern	$T_r$ msec	$T_e$ msec
(a) 2 c.p.s	11	22
(b) 15 c.p.s	2	4

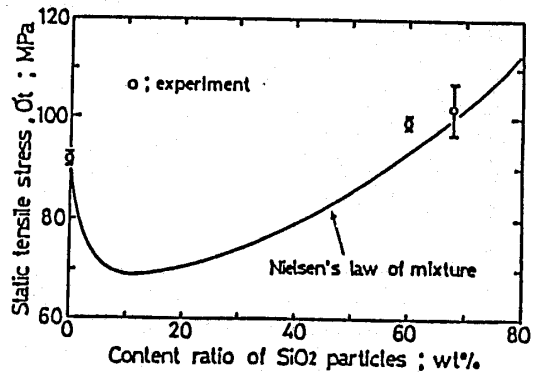


図4 シリカ粒子充てん率と静的引張強度との関係

ま、衝撃繰返し速度に注目すると、衝撃繰返し速度が大きい場合(15 c. p. s)には、小さい場合(2 c. p. s)に比べ低サイクル域で早期に破壊し、高サイクル域では逆に寿命が長くなる。このことから、衝撃疲労特性は衝撃繰返し速度に依存すると考えられる。一般にホプキンソン式衝撃疲労試験機を用いた衝撃疲労試験では、破壊寿命  $N_f$  と負荷時間  $T_e$  との積で表される累積負荷時間 ( $N_f \cdot T_e$ ) と衝撃疲労強度  $\sigma_t$  との関係は、負荷時間  $T_e$  の長さに依存せず1本の直線でよく近似でき、次式で表される<sup>(6) (7)</sup>。

$$\sigma_t (N_f \cdot T_e)^{m_t} = D_t \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 $m_t$  および  $D_t$  は衝撃疲労強度パラメータであり、 $m_t$  は衝撃疲労損傷の累積による強度低下の傾向を表す強度劣化指数、 $D_t$  は材料の強度レベルを決定する強度指数である。そこで、図6に本研究での累積負荷時間 ( $N_f \cdot T_e$ ) と衝撃疲労強度  $\sigma_t$  との関係を示す。この図6からわかるように、本研究の場合には、両者の関係を負荷時間(衝撃繰返し速度)に無関係に1本の直線で表すことはできない。これは、式(6)の  $m_t$  および  $D_t$  が材料のパラメータであると同時に衝撃繰返し速度のパラメータでもあるためと思われる。

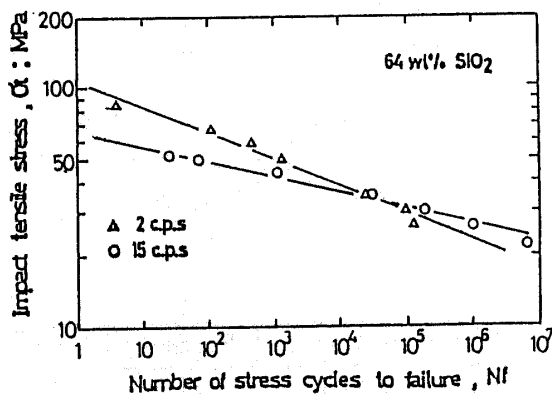


図5 衝撃繰返し速度の破壊寿命  $N_f$  におよぼす影響

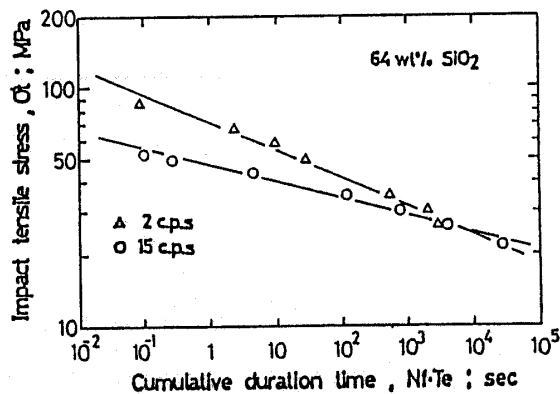


図6 衝撃繰返し速度の累積負荷時間 ( $N_f \cdot T_e$ ) におよぼす影響

本衝撃疲労試験機の場合、図3に示すように衝撃応力波形が三角波状の波形であるため、衝撃繰返し速度の変化にともない、波形の立上り、すなわちひずみ速度が変化する。したがって本研究の衝撃疲労強度は、衝撃繰返し速度により異なる。これに対し、ホプキンソン式衝撃疲労試験機の場合、得られる波形は矩形波で負荷時間の変化により波形の立上り(ひずみ速度)がほとんど変化しないため、 $\sigma_t$  と ( $N_f \cdot T_e$ ) との関係は負荷時間に依存せず1本の直線で近似できると考えられる。しかし、この点については、今後さらに詳細な検討が必要であると思われる。

**3.2.2 シリカ粒子充てん率の影響** 図7は衝撃繰返し速度を15 c. p. s一定として、シリカ粒子充てん率を0, 60 wt%および68 wt%と変化した場合の衝撃疲労強度  $\sigma_t$  と累積負荷時間 ( $N_f \cdot T_e$ ) との関係を示している。図7より、同一累積負荷時間 ( $N_f \cdot T_e$ ) に対する衝撃疲労強度は、シリカ粒子充てん率が増加するほど増加しており、衝撃疲労特性には明りょうなシリカ粒子充てん率依存性が認められる。また、それぞれの直線の傾きが等しいことから、式(6)で表される衝撃疲労強度  $\sigma_t$  と累積負荷時間 ( $N_f \cdot T_e$ ) との関係で、材料の強度レベルを決定する強度因子である  $D_t$  のみが、シリカ粒子充てん率の増加にともない増加したと考えられる。この  $D_t$  の増加は、図4に示されるシリカ

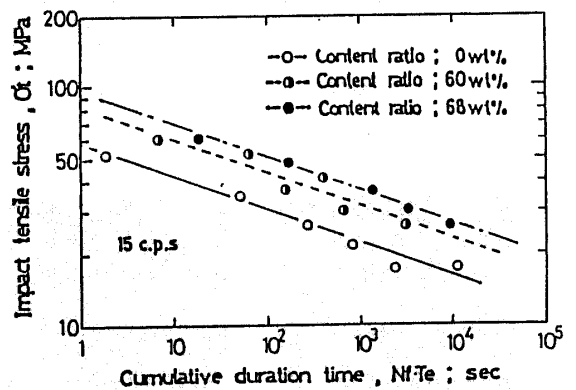


図7 シリカ粒子充てん率の累積負荷時間 ( $N_f \cdot T_e$ ) におよぼす影響

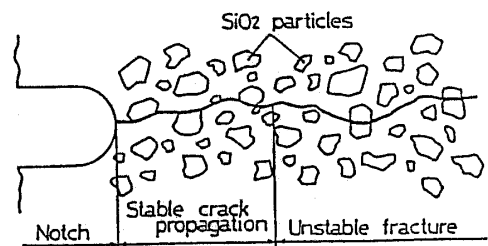


図8 静的破壊におけるき裂進展経路の模式図

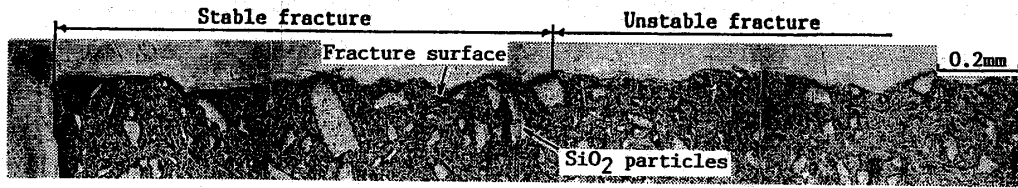
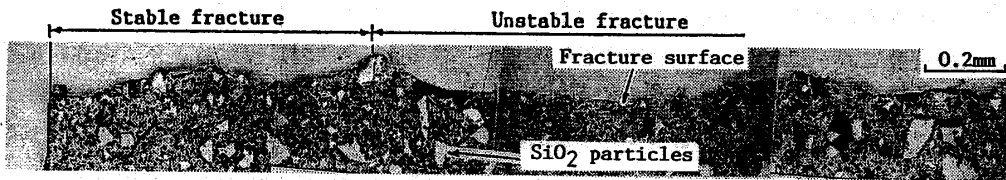
(a) 高サイクル域 ( $6.98 \times 10^6$  サイクル)(b) 低サイクル域 ( $7.40 \times 10^2$  サイクル)

図9 衝撃疲労破面の横断面組織図

粒子充てん率の増加にともなう材料の静的引張強度の増加に起因すると考えられる。

### 3.3 破面形態

**3.3.1 静的破壊** 図8は幅0.3mmのノッチを有した標準シャルピー試験片を三点曲げ試験により静的に破壊したときのき裂の伝ば状況を模式的に描いた図である。この結果より破壊はき裂発生付近のゆっくりした安定破壊領域とその後の比較的急速な伝ばをともなう不安定破壊領域とに大別できる。すなわち、切欠底でのシリカ粒子界面のはく離によりき裂が発生し、これが粒子間を連結するように成長し、その後不安定破壊に至る。不安定破壊領域では、き裂は粒子の存在にかかわりなく伝ばする。この破壊プロセスについては他の報告<sup>(3)</sup>と不安定破壊の形態を除いては類似している。この不安定破壊の形態の相違は、充てん材の違い(アルミナ粒子に対し、本報告ではシリカ粒子)による界面状態の差などによると思われる。

#### 3.3.2

(1) 破壊寿命と破面形態との関係 図9(a), (b)はそれぞれ衝撃引張疲労試験で高サイクル域( $6.98 \times 10^6$  サイクル)および低サイクル域( $7.40 \times 10^2$  サイクル)で破壊した試験片の破面の横断面を示している。図9(a)では破壊は、き裂発生付近で比較的長く安定域を形成し、その後不安定破壊に至っている。また、巨視的破面は非常に滑らかで平たんであった。これに対し図9(b)では、き裂発生領域の極近傍でのみ安定破壊領域が存在し、破面の大部分は不安定破壊領域で形成されていた。また、巨視的破面も凹凸が激しく、二次き裂も認められた。

図10は、衝撃引張疲労破壊の典型的破壊プロセスを模式的に示した図で、静的破壊と同様に安定破壊の

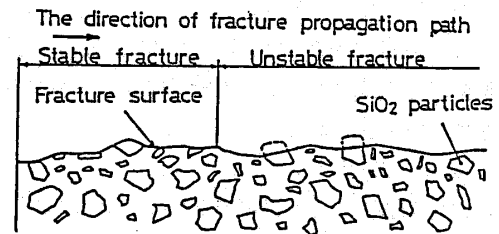


図10 衝撃疲労破壊におけるき裂進展経路の模式図

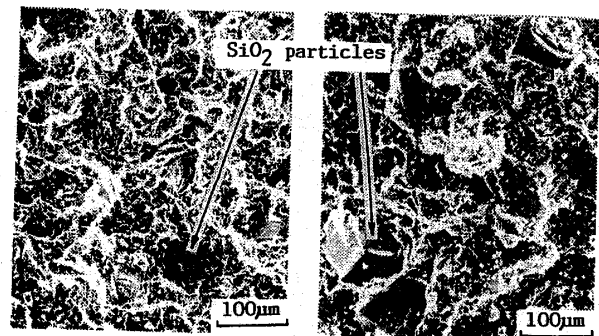
(a) 2 cps ( $1.34 \times 10^5$ )(b) 15 cps ( $2.00 \times 10^5$ )

図11 各衝撃繰返し速度でのSEM破面

後に不安定破壊に至っている。また、図10中の安定破壊領域の全破面に占める面積率は、破壊寿命に依存することを確認した。すなわち、破壊寿命が長いほどその面積率は大きくなった。

(2) 衝撃繰返し速度と破面形態との関係 図11(a), (b)はシリカ粒子充てん率64wt.%で、それぞれ2c.p.sおよび15c.p.sの場合に高サイクル域(それぞれ $1.34 \times 10^5$ および $2.00 \times 10^5$  サイクル)の破壊寿命で衝撃疲労破壊したときの、安定破壊域でのSEM写真である。これらの写真より、破面に占めるシ

リカ粒子の割合はそれぞれ9%および25%と算出され、破面形態が衝撃繰返し速度に依存することが明らかとなった。また、これは累積負荷時間( $N_f \cdot T_e$ )とも相関があると思われる。

#### 4. 結 言

シリカ粒子充てんエポキシ樹脂注形材について、シリカ粒子充てん率を種々変化させたときの静的引張強度および衝撃疲労強度におよぼす影響、衝撃繰返し速度の衝撃疲労強度および破面形態におよぼす影響ならびに破壊寿命の破面形態におよぼす影響について検討し、以下の結論を得た。

(1) 静的引張試験では、シリカ粒子充てん率の上昇にともない静的引張強度も上昇した。この静的引張強度とシリカ粒子充てん率の関係はNielsenの提唱する複合則と良い一致を示した。

(2) 衝撃引張疲労試験では、衝撃疲労強度 $\sigma_i$ が衝撃繰返し速度に依存し、各衝撃繰返し速度に対して、次式によって表された。

$$\sigma_i(N_f \cdot T_e)^{m_i} = D_i$$

ここで、( $N_f \cdot T_e$ )は累積負荷時間、 $m_i$  および  $D_i$  は衝撃特性パラメータである。

また、衝撃疲労強度はシリカ粒子充てん率依存性があり、シリカ粒子充てん率の上昇にともない、静的引

張強度と同様に衝撃疲労強度も上昇した。

(3) 破面観察により、静的破壊および衝撃疲労破壊のいずれの場合もき裂発生領域近傍は、粒子界面を通過する安定破壊領域と、それ以後の不安定の破壊領域とに大別でき、不安定き裂は粒子の存在にかかわりなく進展した。また、安定破壊領域の全破面に占める面積率は、破壊寿命と相関があり、破壊寿命が増加すればその面積率も増加した。

最後に、供試材の提供および研究遂行にご援助いただきました(株)高岳製作所、ならびに衝撃疲労試験機の製作にあたりご協力くださった豊橋技術科学大学大学院生 江頭弘晃氏に深く感謝致します。

#### 文 献

- (1) 鎌田・岡部, 電気学会雑誌, 43(1981), 101.
- (2) Kobayashi, T., Koide, Y., Daicho, Y., and Ikeda, R., *Eng. Fract. Mech.*, 28(1987), 21.
- (3) 山崎・千葉, 材料, 33(1984), 64.
- (4) 村上・松下・吉識・新保, 材料, 33(1984), 58.
- (5) 岡部・矢野・鎌田・森, 材料, 34(1984), 333.
- (6) 岡部・矢野・鎌田・森, 材料, 33(1983), 1186.
- (7) 中山・田中, 材料, 34(1985), 1483.
- (8) 小野木, 高分子と複合材料の力学的性質, (1976), 120, 化学同人.
- (9) 佐藤, 充てん高分子の物性, (1978), 7, 理工出版社.
- (10) 向井・金城, 技術者のための実学高分子, (1981), 203, 新日本印刷.