

セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜を
用いたガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの
衝撃破壊挙動に関する研究

2022年3月

屋敷 和秀

目次

第1章 序論

1.1	研究の背景	1
1.1.1	安全ガラスの分類	1
1.1.2	産業用安全ガラスの要求特性と課題	4
1.1.3	合わせガラスに関する先行研究	7
1.1.4	中間膜の複合材料化の可能性	8
1.2	本研究の目的	12
	参考文献	15

第2章 ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価

2.1	緒言	19
2.2	供試材	20
2.3	ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの耐衝撃性	20
2.3.1	実験方法	20
2.3.2	実験結果および考察	23
2.4	アクリル中間膜の粘弾性特性評価	29
2.4.1	実験方法	29
2.4.2	実験結果および考察	30
2.5	陽解法有限要素解析	32
2.5.1	解析モデル	32
2.5.2	材料モデル	34
2.5.2.1	ポリカーボネートの材料モデル	34
2.5.2.2	ガラスの材料モデル	35
2.5.2.3	中間膜の材料モデル	38
2.5.3	解析結果および考察	39

2.5.3.1	ポリカーボネート単板の衝撃破壊挙動	39
2.5.3.2	ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの衝撃破壊挙動	41
2.5.3.3	加撃体質量と速度の影響	52
2.6	結言	56
	参考文献	58

第 3 章 セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜を用いた ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価

3.1	緒言	60
3.2	供試材	61
3.3	試験体の製作方法	63
3.4	分光透過率測定	65
3.4.1	実験方法	65
3.4.2	実験結果および考察	66
3.5	粘弾性特性評価	67
3.5.1	実験方法	67
3.5.2	実験結果および考察	67
3.5.2.1	動的粘弾性特性	67
3.5.2.2	時間 - 温度換算則による高周波数域の推定	72
3.6	引張特性評価	75
3.6.1	実験方法	75
3.6.2	実験結果および考察	77
3.7	セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜の微視的構造 が及ぼす力学特性への影響	85
3.7.1	解析方法	85
3.7.2	解析結果および考察	87

3.8	セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜を用いたガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの耐衝撃性	91
3.8.1	実験方法	91
3.8.2	実験結果および考察	93
3.9	結言	99
	参考文献	101

第 4 章 セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜の接着特性評価

4.1	緒言	102
4.2	供試材	103
4.3	ガラス接着界面における接着特性評価	103
4.3.1	実験方法	103
4.3.1.1	へき開試験	103
4.3.1.2	引張せん断試験	105
4.3.1.3	破断面観察	106
4.3.2	実験結果および考察	108
4.3.2.1	へき開接着強度	108
4.3.2.2	引張せん断強度	113
4.4	ポリカーボネート接着界面における接着特性評価	118
4.4.1	実験方法	118
4.4.2	実験結果および考察	119
4.5	各構成部材の界面特性を考慮した落錘衝撃試験に関する陽解法有限要素解析	124
4.5.1	解析モデル	124
4.5.2	解析結果および考察	126
4.6	結言	135
	参考文献	136

第5章 結論

5.1	本研究の総括	138
5.1.1	ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価	139
5.1.2	セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜を用いたガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価	140
5.1.3	セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜の接着特性評価	141
5.1.4	ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスにおける耐衝撃性向上のための中間膜特性	142
5.2	今後の課題	143
	謝辞	144

第 1 章 序論

1.1 研究の背景

1.1.1 安全ガラスの分類

ガラスの歴史は古く、その起源は、紀元前 3000 年以前であると言われている。ガラスが使われるようになってから、様々な成型方法が開発され、今日に至っている。紀元前 1 世紀頃には、砂や木の鑄型に熔融ガラスを吹き込んで成型する型吹き法が発明され、その後に金属パイプの先に熔融ガラスを付け、息を吹き込んで任意の形状に成型する宙吹き法が確立された。4 世紀初めのローマ帝国時代には、Crown 法と呼ばれる宙吹き法を応用した板ガラス製造方法が発明された⁽¹⁾。現在の板ガラスの主流となっている製造方法は、1952 年にイギリスの Pilkington 社によって発明された Float 法と呼ばれるもので、熔融状態のガラスを熔融したスズの上に流し込み、水平方向に引っ張ることによって板ガラスに成型するものである。熔融したガラスは、熔融したスズよりも比重が小さいため、熔融ガラスは熔融スズの上に浮かんだ状態で成型される⁽³⁾。この方法で成型された板ガラスの厚さは高精度に均一であり、表面は極めて平滑であるため、透明性に優れる。また、近年では Float 法や Overflow 法あるいは Slot-down-draw 法等によって薄板ガラスと呼ばれる従来の板ガラスよりも薄い厚さ 1.1 mm 以下の特殊な板ガラスが製造されている⁽⁴⁾。これらの板ガラスは、建築用の外装や内装部材、自動車の窓、ディスプレイ等に使用されており、我々の生活に欠かせないものになっている。ガラスの利点は、前述の通り透明性に優れることはもちろんのことだが、これに加えて耐薬品性や耐擦傷性、寸法安定性、高耐候性等が挙げられる。一方、ガラスの欠点は、脆性的で割れやすく、衝撃に弱いことが挙げられる。特に、ガラスが割れた場合の破片は刃物のように鋭利となり、人体には極めて危険である。ガラスの強度は、理論的には 20 GPa を超える高い値を示すが、Griffith-crack と呼ばれるガラス表面の微細な擦傷の存在により、実用強度は 50~100 MPa 程度に留まる⁽⁵⁾。

このような欠点を補うため、高い透明性を保持しつつ、板ガラスの安全性を高めた各種安全ガラスが開発された。安全ガラスには、主として、強化ガラス、樹脂ガラス、合わせガラスがある。強化ガラスは加工工程の違いから風冷強化ガラ

スと化学強化ガラスがある。風冷強化ガラスは、板ガラスを熱処理することによって、板ガラスの表面層に圧縮応力を形成させ、通常の板ガラスよりも3~5倍の強度に向上させている。また、風冷強化ガラスが破壊した場合には、細かい粒状の破片となり、ガラスの破片で人がケガをする可能性が低いため、階段の手すりやガラス製のインテリア家具、自動車の側面窓等に使用されている⁽⁶⁾。

化学強化ガラスは、化学処理によって板ガラスの表面層に圧縮応力を形成させる方法である。Na⁺イオンを含むガラスをK⁺イオンを含有する塩に接触させると、板ガラス表面では、Na⁺とK⁺イオンが置換される。各イオンの有効半径は、Na⁺が0.098 nm、K⁺が0.133 nmであり、K⁺の方が大きいため周囲のガラスの網目構造に微視的に圧縮応力を発生させることで板ガラスの強度を向上させている⁽⁷⁾。ただし、破壊した場合のガラス破片は風冷強化ガラスのような細かい粒状ではなく、通常の板ガラスと似た形状となる。化学強化ガラスは、風冷強化ガラスよりも圧縮応力形成層を著しく薄くすることができるため、風冷強化ガラスになりにくい厚さ3 mm以下の薄板ガラスにおいても強化ガラスにすることが可能である。そのため、スマートフォンやタブレット等のディスプレイに採用されており、今後はよりサイズの大きなデジタルサイネージや自動車の内装ディスプレイ等にも展開していくと予想される。

樹脂ガラスは、主として熱可塑性高分子材料からなる透明板であり、ポリメチルメタクリレート (Polymethyl methacrylate, PMMA) やポリカーボネート (Polycarbonate, PC) 等がある。いずれも高い透明性を有しており、板ガラスよりも軽量で耐衝撃性が高い。特に、PCは、高分子材料の中で最高の耐衝撃性を有しており、高い危険性を伴う産業用機械の窓等に使用されている。しかし、表面に擦傷が付きやすく、耐薬品性が低い欠点を持つ。

合わせガラスは、2枚の板ガラスを中間膜によって接着させたもので、E. Benedictusにより発明された。当初は、表面にゼラチン溶液を塗り乾燥させた2枚のガラスをセルロイドで接着させたものであった⁽⁸⁾。その後、ポリビニルブチラル (Polyvinyl butyral, PVB) が開発され、今日では、2枚のガラスの間にPVBのフィルム状の中間膜を挟み込み、加熱圧着させることによって製造されている。2枚のガラスが中間膜で接着されているため、ガラスが破壊しても破片が飛散することはほとんどなく、人体に対して安全である。このため、建築部材用途の他、自動車のウインドシールド⁽⁹⁾や太陽電池モジュール⁽¹⁰⁾等に使用されている。合わせガラス中間膜の素材としては、PVBの他にエチレンビニルアセテート

(Ethylene vinyl acetate, EVA) や熱可塑性ポリウレタン (Thermoplastic polyurethane, TPU) があるが、いずれも PVB と同様に加熱圧着させることによって合わせガラスとなる。一方、中間膜にアクリル樹脂の共重合体を用いたものも存在する。これは、前述の PVB 等を用いた合わせガラスの製造方法とは大きく異なり、2枚のガラスの間に空隙を設け、その空隙に液体のアクリル樹脂液を充てんし、常温常圧で重合・接着させ、合わせガラスとするものである。常温常圧で接着させることができるため、ガラス同士のみではなく、線膨張係数の異なる材料同士を貼り合わせることが可能である。また、アクリル樹脂液に顔料や染料を分散させ、任意の色調に表現したり、機能性フィラーの分散によって新たな機能を付与したりすることが比較的容易に実現できる。以上のように、各種安全ガラスはその特徴によって用途が分かれている。

図 1-1 は、各種安全ガラスの破壊の様子を示したもので、通常の板ガラス、風冷強化ガラス、化学強化ガラスおよび合わせガラスの場合である。なお、安全ガラスの破壊は、金槌を用いてガラス中央部に加撃した。通常の板ガラスは、加撃部から放射状にき裂が発生し、破片は大きく鋭利な形状となっている。風冷強化ガラスは、板ガラスよりも強く加撃することにより破壊した。加撃した際には板ガラスの場合よりも広い範囲に破片が飛散し、非常に細かな粒状となった。化学強化ガラスは、風冷強化ガラスと同様に、破壊には板ガラスよりも強い力を要した。加撃した際には、風冷強化ガラスのように広い範囲に破片が飛散することはなく、破片の形状は板ガラスとほぼ同様の形状となった。これは、風冷強化ガラスのガラス表面層は圧縮応力となっているが、内部は引張応力が残留しているため、ガラスが破壊した際には、その残留応力によって飛散したものと考えられる。一方、化学強化ガラスの表面層は、同様に圧縮応力層が形成されているが、ガラス内部は風冷強化ガラスよりも引張方向の残留応力が小さいために、ガラスが破壊した際にほとんど飛散しなかったものと考えられる。合わせガラスは、ガラスが破壊したものの板ガラスや強化ガラスのように破片が分離したり飛散したりすることではなく、放射状と円周状のき裂が発生したのみであった。これは、ガラスが中間膜によって接着しているためである。この特徴から、合わせガラスは、安全ガラスの中でも特に安全性に優れているといえる。

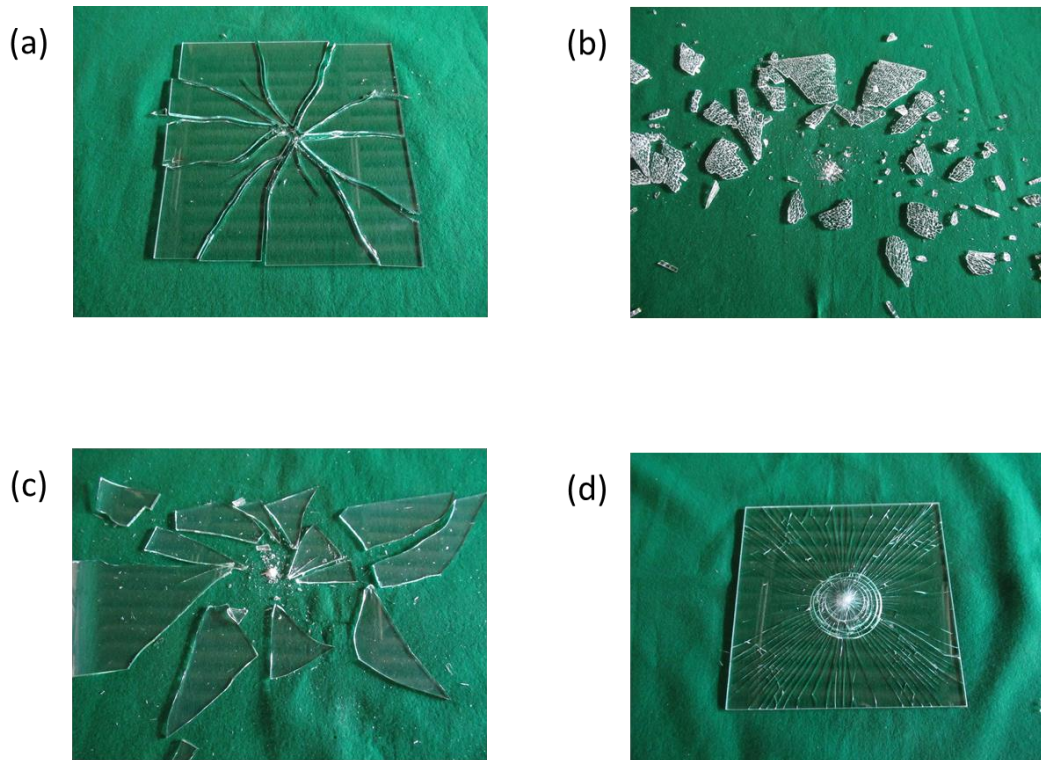


Fig. 1-1 Damage states of various safety glass: (a) Sheet glass; (b) Thermally strengthened glass; (c) Chemically strengthened glass; (d) Laminated glass.

1.1.2 産業用安全ガラスの要求特性と課題

世の中には様々な産業用機械が存在する。中でも工作機械は、マザーマシンと呼ばれ、機械を作る機械であり、あらゆる産業を支える重要な機械である。工作機械には、工作物を回転させ、バイトと呼ばれる切削工具によって工作物の表面を切削する旋盤や、回転工具によって平面の面出しや溝・穴加工等を行うフライス盤等がある。フライス盤は、工具を自動交換できる機構を備えることによって、多様な加工を可能にしたマシニングセンタへと発展している⁽¹¹⁾。また、旋盤にマシニングセンタの機能を付加したターニングセンタも開発されてきており、加工工程の集約化が進んでいる⁽¹²⁾。加えて、加工精度や加工効率の向上に関する研究開発も行われている⁽¹³⁾。さらに、近年では、金属粉末をレーザーにより積層造

形することによって、3次元造形物を作り出し、切削加工を行うことによって精度を高める新たな加工方法も開発されている⁽¹⁴⁾。以上のように、工作機械の発展は目覚ましく、今後もさらなる高精度化・高速化・工程集約化が進むものと予想される。一方、工作機械による工作物の加工は、工具や主軸が高速に回転し、工作物が取り付けられたテーブルは高速で移動するため、万が一、加工中に作業者がこれらに触れた場合には重大な人身事故が発生する。また、切削片の飛散による怪我の発生も考えられる。このようなことを確実に防止するため、安全に対する設計指針は厳格に定められている⁽¹⁵⁾。

工作機械には、その多くは目視による確認ができるように窓が設置されており⁽¹⁶⁾、先に述べた各種安全ガラスが採用されている。工作機械の窓として使用される安全ガラスに対しては、安全性、視認性、切削油に耐える耐薬品性が要求されている^{(17)~(19)}。これらの要求をすべて満たすには、先に挙げた各種安全ガラスでは不十分である。そこで、耐貫通性に優れたPCを用いて、板ガラスとPCとの間に空気層を設けて複層構造としたものや板ガラスとPCをアクリル中間膜（Acrylic interlayer, ACIL）で貼り合わせた合わせガラス構造のガラス／ポリカーボネート（Glass/Polycarbonate, G/PC）積層安全ガラス等の特殊な安全ガラスを採用することでそれらの要求を満たしている。図1-2に、複層構造の安全ガラスおよびG/PC積層安全ガラスの構造を示す。

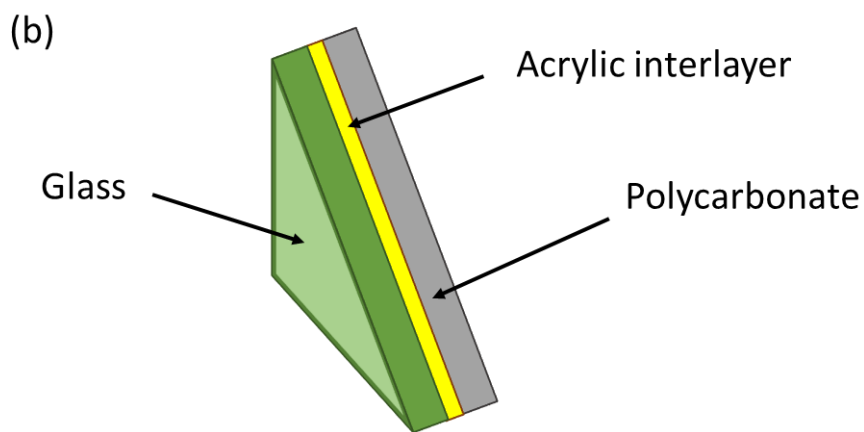
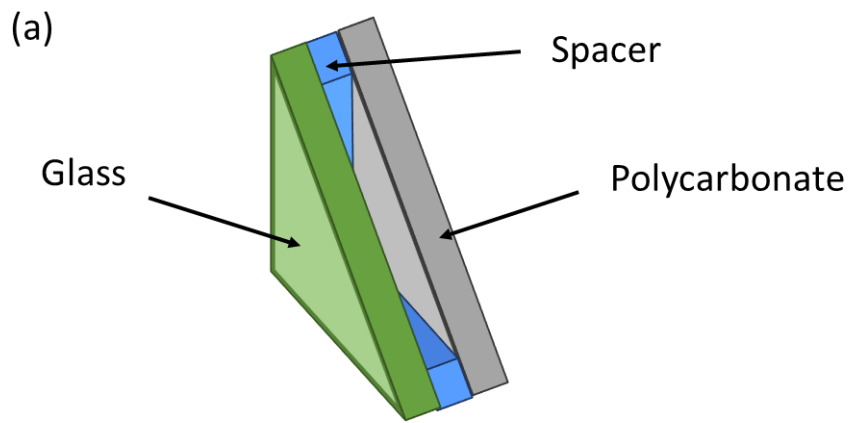


Fig. 1-2 Schematic image of G/PC safety glass for machine tools: (a) Double glazed structure; (b) Laminated structure with acrylic interlayer.

工作機械の運転状況によっては、工具の破損や掴み具の緩み等により、非常に大きな運動エネルギーを持った飛散物が発生する恐れがある。また、先に述べたように、加工精度や加工効率の向上によって、加工速度の高速化^{(20)~(22)}や主軸の高回転化が進んでおり、危険性は増大している。一方で、工作機械の小型化は、限られたスペースにより多くの工作機械を設置できることや、工作機械全体の熱容量が小さくなるために稼働時の温度を制御しやすくなる等の利点があるため、ますます必須となっている。また、工作機械の小型化により狭くなった内部空間をできるだけ有効活用するためには、工作機械の筐体設計が重要となり、安全ガラスの薄肉化が望まれている⁽²³⁾。従って、耐衝撃性を向上させた安全ガラスを開発し、構成部材の厚さを最適化することで、安全ガラスの薄肉化を図ることが重要である。

通常、安全ガラスの耐衝撃性を向上させるためには、各構成部材の厚さを増大させるか、構成部材を多層化させるかとなる。しかし、いずれも安全ガラスの総厚さは増大する傾向となり、前述の薄肉化の要求を満たすことは困難となる。また、構成部材の特性をさらに高めることが有効であるとも考えられるが、風冷強化ガラスの場合、板ガラスよりも約 40%程度の強度向上⁽²⁴⁾が期待できるものの風冷強化ガラスをさらに高強度化する方法は現時点では報告されていない。また、樹脂ガラスにおいては、PCを超える耐衝撃性と透明性を有した高分子材料は現在のところ報告されていない。さらに、合わせガラスの中間膜は、その化学組成を変更させることによって特性を変えることが可能であるが、ガラスへの接着特性、透明性、耐久性等へも影響があると想定されるため、慎重に行わなければならない。以上のように、安全ガラスの耐衝撃性の向上は、様々な制約を踏まえた上で検討しなければならない。

1.1.3 合わせガラスに関する先行研究

前述したように、安全ガラスは様々な飛散物等から人体を保護する役割を担っている。また、安全ガラスが破壊した場合には、安全ガラスの破片によって人体に危険を及ぼしてはならない。安全ガラスの中でも合わせガラスは、板ガラスや強化ガラスと比較すると、飛散物が合わせガラスに衝突しても貫通しにくく、破壊してもガラスの破片が飛散しにくいいため、様々な分野で広く普及している。

これまで、合わせガラスの衝撃破壊に関する研究は多数行われてきた。丸山ら⁽²⁵⁾は、台風等の強風による飛散物を想定し、合わせガラスの破壊状態における加撃体の形状や姿勢の影響を明らかにした。尾田ら^{(26), (27)}は、中間膜に PVB を使用した合わせガラスを対象に、初期き裂発生試験と貫通破壊試験等を行い、合わせガラスの貫通破壊過程を推定した。また、自動車のエアバッグを想定した衝撃破壊実験を行い、予き裂を有した合わせガラスの衝撃破壊挙動を検討した。東藤ら⁽²⁸⁾は、EVA を使用した合わせガラスを対象に、低速衝撃破壊時のエネルギー吸収能を定量的に評価した。また、有限要素法を用いた合わせガラスの衝撃破壊挙動解析も多数行われている。Hidallana-Gamage ら⁽²⁹⁾は、端部にシーリング材で固定することを想定した合わせガラスへの衝撃破壊に関する解析を行い、中間膜特性が衝撃破壊に大きな影響を及ぼすことを明らかにした。真田ら⁽³⁰⁾は、鋼球が合わせガラスに衝突した後の鋼球の速度変化とガラスの破壊状況の関連性を見出した。さらに、合わせガラスにおけるガラスと中間膜との接着に関する報告もされている。Vedrtnam⁽³¹⁾は、合わせガラスの界面剥離強度に及ぼす中間膜の種類と厚さの影響を検討した。Rivers⁽³²⁾らは、熱可塑性ポリウレタンを中間膜とした板ガラスと PC の積層体の接着界面の剥離に及ぼす温度・水分の影響を検討した。Wu⁽³³⁾らは、合わせガラスを対象とした鋼球による衝撃試験に関する陽解法有限要素解析を行い、板ガラスと中間膜界面の接着強度が加撃体の衝撃エネルギーの吸収に影響を及ぼすことを報告している。

以上のように、2 枚の板ガラスで構成された合わせガラスの衝撃破壊挙動に関する研究は多数報告されているが、マシニングセンタや旋盤等の工作機械に多く採用されている G/PC 積層安全ガラスに関しては報告例がほとんど無く、衝撃破壊挙動は十分に解明されていないのが現状である。

1.1.4 中間膜の複合材料化の可能性

中間膜の化学組成を変えて特性を変えることは、様々な課題を残すことが予想されるが、複合材料化により特性を変えることも可能である。複合材料は、2 種類以上の材料を組み合わせることで、材料単体では発現しない特性を付与した材料である。複合材料は、母材と強化材で構成され、強化材の形態により、粒

子分散複合材料と繊維強化複合材料に大別される。軽くて強いことが主な特徴であり、炭素繊維強化複合材料は、鉄鋼材料に比べて、比強度（強度を比重または密度で除した値）および比剛性（剛性を比重または密度で除した値）が優れる。また、粒子分散複合材料は、耐衝撃性向上や導電性の付与、熱伝導率の向上等の機能性付与の目的で各種充てん材（フィラー）が複合化されている^{(34), (35)}。

図 1-2 (b) に示した G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性は、ACIL の特性に大きな影響を受けると予想されるため、ACIL へのフィラー添加等により複合材料化し、力学特性を変化させることで、G/PC 積層安全ガラスに対してより最適な中間膜特性が得られる可能性がある。しかし、1.1.2 節でも述べたように安全ガラスにおいては透明性も重要な要求特性であることから、フィラーを添加しても ACIL の透明性を維持しなければならない。そこで、ACIL へ添加するフィラーとして、繊維径がナノサイズで高アスペクト比が特徴であるセルロースナノファイバー（Cellulose nanofiber, CNF）に着目した。

CNF は、樹木等の植物を原料としたナノファイバーで、最も基本となる直径約 4nm のマイクロフィブリル、これが 4 本程度の束となって細胞壁中に存在するセルロースマイクロフィブリル束、さらにこれが数十～数百 nm の束となったマイクロフィブリル化セルロース等の様々な形態がある。CNF の構造式を図 1-3 に示す⁽³⁶⁾。

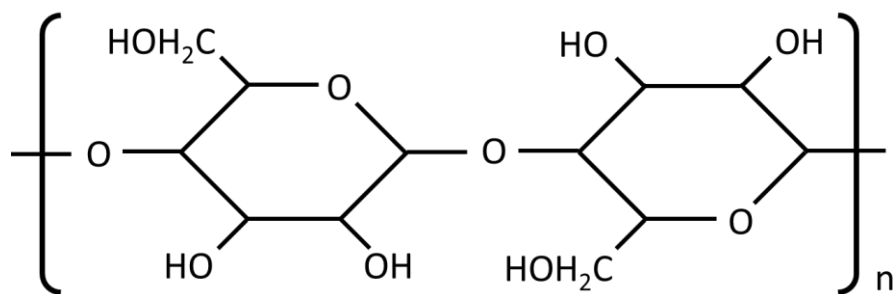


Fig. 1-3 Structural formula of cellulose nanofiber.

CNF の特徴は、軽量で高強度、低線膨張係数、高アスペクト比、高比表面積、チキソトロピー性、生分解性等が挙げられる⁽³⁷⁾。また、繊維径が可視光線領域の波長（380～780 nm）よりも十分に小さく、CNF 添加による光の散乱が起きにく

い⁽³⁸⁾ため、ACIL の透明性を損なわないことが期待できる。これらの特徴を活かし、化粧品や電子デバイス、自動車部品等の様々な分野への用途展開に関する研究が行われている⁽³⁷⁾。また、CNF に関する研究開発は、2014 年に日本国政府より「日本再興戦略」改訂 2014 によって CNF の研究開発等によるマテリアル利用促進の方針が打ち出されて以降、国家プロジェクトとして推進されてきている⁽³⁹⁾。環境省では委託事業として、CNF を活用した軽量化自動車の製造を目的とした Nano Cellulose Vehicle プロジェクトが京都大学生存圏研究所を中心として多数の企業や大学等の参加のもとに行われ、自動車部品用途として研究開発が進められてきた⁽⁴⁰⁾。また、富山県では、文部科学省地域イノベーション戦略支援プログラムの支援を受けて、CNF に関する研究開発が活発に行われた⁽⁴¹⁾。以上のように、企業や大学、各地域や分野のコンソーシアム等で活発に研究開発が行われてきている。

CNF は、木材等の木質バイオマスを解繊して得られる。CNF の解繊方法は、これまで様々な方法が提案され、実用化されてきている。矢野ら⁽⁴²⁾は、木質バイオマスから作られた乾燥させたパルプを化学処理後に粉碎し、樹脂と熔融混練させることで、乾燥パルプの解繊と樹脂への分散を同時に行う方法を開発した。また、磯貝ら⁽⁴³⁾は 2,2,6,6-テトラメチルピペリジン-1-オキシラジカル (2,2,6,6-tetramethylpiperidine-1-oxyl radical, TEMPO) 触媒酸化 によってセルロースよりも低分子量で非晶性のヘミセルロース成分を含まない高純度の酸化セルロースが得られ、軽微な水中解繊処理により、繊維径約 3 nm, 平均繊維長 500 nm 以上の CNF 水分散体を作製できることを見出した。さらに、Matsuki ら⁽⁴⁴⁾は、木材パルプを高濃度の次亜塩素酸で酸化させることによって、CNF を得る方法を報告している。その他、高圧ホモジナイザー法、水中カウンターコリジョン法、グラインダー磨砕法、ビーズミル法等の様々な CNF の解繊方法も提案されている^{(37), (45)}。

解繊した CNF を複合材料のフィラーにするためには、母材との親和性と母材中の分散性に対する課題を克服する必要がある。CNF は親水性であるため、水分散体や極性溶媒を分散媒とした分散体は比較的容易に実現できるが、ポリプロピレン (Polypropylene, PP) やポリアミド (Polyamide, PA), PMMA 等の疎水性樹脂への分散は困難である。また、解繊工程は、ほとんどが水存在下によって行われているため、解繊された CNF は水分散体である場合が多い。疎水性樹脂へ分散させるには、CNF の水分をできる限り取り除く必要があるが、安易に

乾燥させると水素結合が形成され強固に凝集し、再分散が困難になる。このため、再分散が可能なパウダータイプの CNF も開発されてきている。中谷ら⁽⁴⁶⁾は、CNF 水分散体に水溶性高分子を配合し、乾燥させたパウダータイプの CNF に関して報告している。また、株式会社スギノマシンと富山県立大学真田研究室の共同研究では、パルプをウォータージェット法により湿式解繊した CNF を急速乾燥することで、水分含有量が 4wt%以下のパウダータイプの CNF の開発に成功している。図 1-4 に株式会社スギノマシンによって作製されたパウダータイプの CNF の外観を示す。

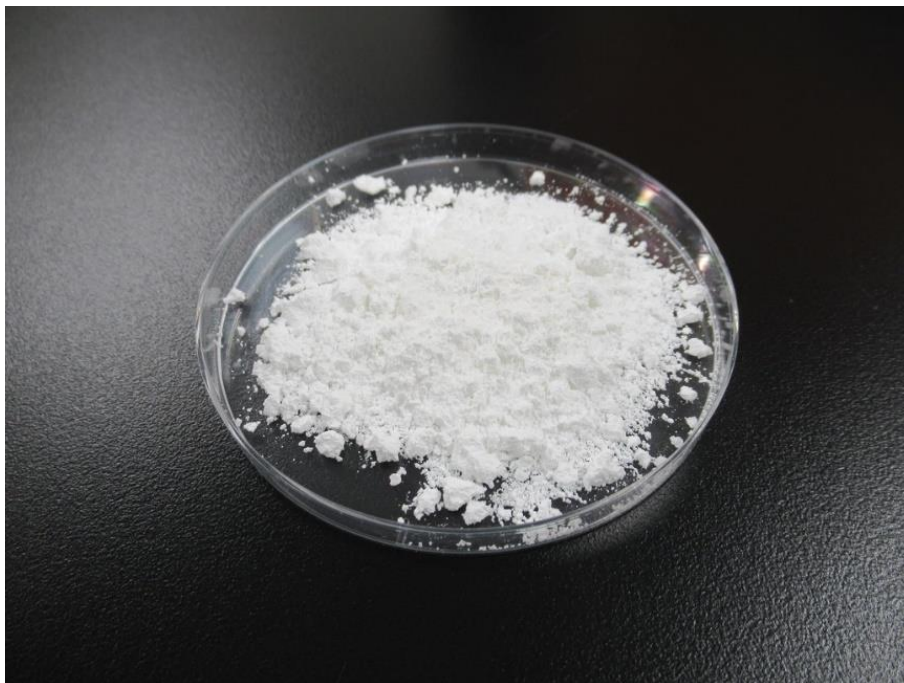


Fig. 1-4 Appearance of powder type CNFs.

また、表面処理や化学修飾を施した CNF を用いた疎水性樹脂への分散も検討されている。奥田ら⁽⁴⁷⁾は、疎水化剤を用いて疎水化処理した CNF を添加したポリプロピレン (PP) 樹脂複合材料の引張特性を検討した。また、杉本ら⁽⁴⁸⁾は、フルオレン修飾 CNF を合成し、ポリアミド (PA) 樹脂へ分散させた複合材料を対象に、CNF の分散性と力学特性を検討した。以上のように、様々な方法によっ

て、各種高分子材料への CNF の分散が試みられ、得られた CNF 複合材料の各種特性に関して評価されている。CNF の高分子材料への分散は、熱可塑性樹脂の場合は、主に 2 軸混練機を用いて行われる^{(47),(48)}。しかし、熱硬化性樹脂の場合は、材料の粘度が比較的小さいために、2 軸混練機を用いても十分なせん断力が発生しにくく、CNF の分散は困難である。すなわち、熱硬化性樹脂の場合は、2 軸混練機以外の方法で分散させることを検討する必要がある。藤崎ら⁽⁴⁹⁾は、エポキシ樹脂に疎水化された結晶性セルロースを超音波印加によって分散させた自己修復開繊炭素繊維/エポキシ樹脂積層材料の見掛けの層間せん断強度と修復率について検討した。Nissilä⁽⁵⁰⁾らは、氷晶テンプレート法で得られた CNF エアロゲルをエポキシ樹脂で含浸した CNF/エポキシ樹脂複合材料の力学特性を評価した。また、アクリル樹脂へ CNF を分散させた複合材料に関する研究は、山本ら⁽⁵¹⁾によって、水分散 CNF をポリアクリル酸 2 メトキシエチル/アクリルアミド共重合体に複合化し、CNF の力学特性に与える影響が報告されている。しかし、CNF の熱硬化性樹脂への分散に関する報告例は少なく、その複合材料を G/PC 積層安全ガラスへ適用して耐衝撃性を高めようとする検討は、報告されていないのが現状である。また、これまで紹介した CNF に関する先行研究では、CNF 添加量が数 wt% から数十 wt% の範囲において検討されているが、1wt% を下回るような少量添加に関する検討はほとんど行われていないのが現状である。

1.2 本研究の目的

前述のように、G/PC 積層安全ガラスの ACIL へ CNF を添加することで、耐衝撃性を向上させようとする検討は、ほとんど行なわれていない。また、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動も十分に解明されておらず、G/PC 積層安全ガラスの薄肉化のための設計指針も確立されていないのが現状である。そこで本研究は、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性向上と薄肉化のための積層構造設計指針の確立を目的として、CNF を用いたアクリル中間膜の複合材料化検討、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動解明のための実験と有限要素法による数値シミュレーションを行った。本論文は、図 1-5 に示す章の構成となっており、以下に、各章の概要を記述する。

第 1 章「序論」では、安全ガラスの分類、工作機械で使用される安全ガラスの

要求特性と課題を示した。また、安全ガラスの中でもさらに安全性を高めた合わせガラスとファイラーとして注目されている CNF に関して、これまでの研究動向を調査し、G/PC 積層安全ガラスに対する研究の位置づけを明らかにして、本論文の目的を示している。

第 2 章「ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価」では、G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験を行い、各部材構成における臨界衝撃エネルギーと衝撃破壊による損傷状態に及ぼす構成部材の影響を検討した。また、G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験に関する有限要素解析を陽解法ソルバー LS-DYNA を用いて行い、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動と加撃体の衝撃エネルギーの関連性について考察を加えた。

第 3 章「セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜を用いたガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価」では、ビーズミルを用いて作製した CNF 分散液を用いて CNF 添加アクリル中間膜を作製し、光学特性と力学特性を評価した。また、CNF 添加アクリル中間膜を用いた G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験を行い、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性に及ぼすアクリル中間膜 (ACIL) への CNF 添加の影響を検討した。さらに、CNF 添加アクリル中間膜の微視構造を考慮した代表体積要素モデルを用いた弾性特性に関する有限要素解析を行い、弾性特性に及ぼす CNF の添加量とアスペクト比の影響を検討し、実験結果に考察を加えた。

第 4 章「セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜の接着特性評価」では、G-CNF/ACIL および PC-CNF/ACIL 接着界面を有する試験片を用いたへき開試験と引張せん断試験を行い、G-CNF/ACIL および PC-CNF/ACIL 接着界面の接着強度を評価した。また、接着界面の接着強度を考慮した G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験に関する陽解法有限要素解析を行い、衝撃破壊挙動に及ぼす G-ACIL および PC-ACIL 接着界面の剥離の影響を検討した。

第 5 章「結論」では、各章で述べた内容の総括と主要な研究成果を示している。

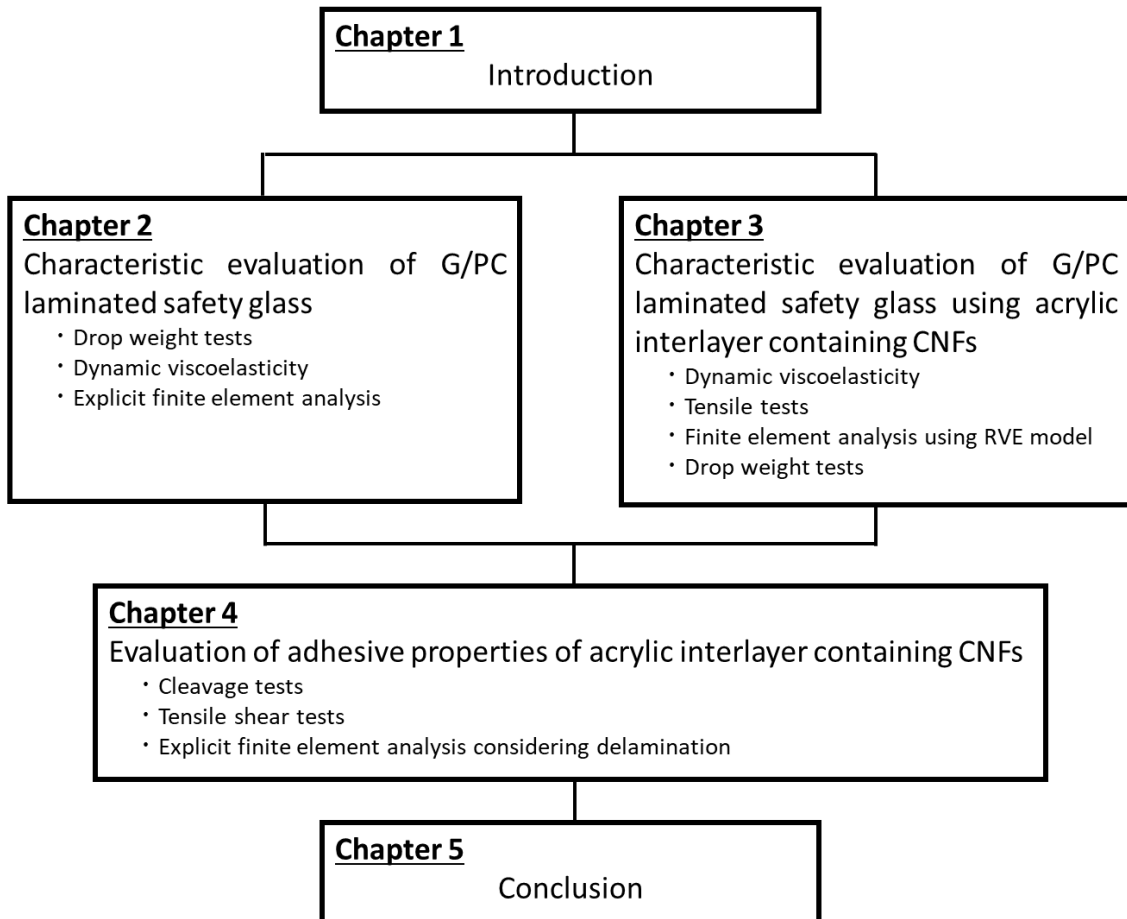


Fig. 1-5 Schematic block diagram of thesis.

参考文献

- (1) 坂田浩伸, 「古代ガラスの技術」, 精密工学会誌, 第 58 巻, 11 号, pp. 1813-1816, 1992.
- (2) 日本建築学会, 「ガラスの建築学」, 学芸出版社, pp. 23-53, 2004.
- (3) 玉村亮, 「ガラス工業—板ガラスにおける最近のトピックス—」, 化学と教育, 第 41 巻, 4 号, pp. 266-270, 1993.
- (4) 三和義治, 「フレキシブルエレクトロニクス用超薄板ガラス」, 化学と教育, 第 63 巻, 1 号, pp. 16-19, 2015.
- (5) 原守久, 「ガラスの破壊強度と Griffith Crack」, 精密機械, 第 31 巻, 9 号, pp. 57-62, 1965.
- (6) 藤原辰彦, 「連載 建築用ガラスの最近の動向 第 3 回 (最終回) 安全ガラス」, Finex, 第 3 巻, 8 号, pp. 68-75, 1991.
- (7) 長嶋廉仁, 「ガラスの化学強化」, 表面技術, 第 64 巻, 8 号, pp. 434-438, 2013.
- (8) 荒木鶴雄, 「安全ガラス」, 工業化学雑誌, 第 41 巻, 11 号, pp. 840-844, 1938.
- (9) 栗田康二, 「自動車に使われる安全なガラス」, 化学と教育, 第 38 巻, 5 号, pp. 527-529, 1990.
- (10) 増田淳, 「太陽発電産業・技術の最新動向と将来展望」, Journal of the Vacuum Society of Japan, 第 55 巻, 12 号, 2012.
- (11) 森脇俊道, 「入門 マザーマシンと多軸制御工作機械」, 日本機械学会誌, 第 111 巻, 1073 号, pp. 282-285, 2008.
- (12) 新海洋平, 近藤昌樹, 廣垣俊樹, 青山栄一, 「ターニングセンタにおけるラインレーザビームを用いた機上焼き入れ法の検討」, 砥粒加工学会誌, 第 63 巻, 2 号, pp. 87-92, 2019.
- (13) 長江昭充, 「工作機械の最新動向」, 計測と制御, 第 42 巻, 7 号, pp. 587-590, 2003.
- (14) 上田隆司, 「レーザ加工とエンドミル加工を融合した金属粉末積層造形法」, システム／制御／情報, 第 59 巻, 8 号, pp. 301-306, 2015.
- (15) 藤嶋誠, 「工作機械の安全設計について」, 日本機械学会誌, 第 110 巻, 1067 号, pp. 788-791, 2007.

- (16) 山田之弘, 「最新マシニングセンタの性能と有効活用」, 日本機械学会北陸信越支部第 49 期総会・講演会講演論文集, 0812, 2012.
- (17) 日本規格協会, 「機械類の安全性 - ガード - 固定式及び可動式ガードの設計及び製作のための一般要求事項」, JIS B 9716, 2019.
- (18) International Organization for Standardization, “Machine Tools -Safety - Turning Machines”, ISO 23125, 2015.
- (19) British Standards Institution, “Machine Tools - Safety - Machining Centres”, BS EN 12417, 2010.
- (20) 堤正臣, 「工作機械の高速化を実現する重要技術」, 日本機械学会論文集 (C 編), 第 60 巻, 577 号, pp. 2894-2899, 1994.
- (21) 高橋一郎, 安齋正博, 中川威雄, 「往復送りカッタパス」を用いる超高速ミーリング機の開発」, 精密加工学会誌, 第 65 巻, 5 号, 714-718, 1999.
- (22) 安齋正博, 「高速化するミーリングによる金型加工に技術動向」, 2015 年度精密工学会秋季大会学術講演会講演論文集, pp. 143-146, 2015.
- (23) 清水伸二, 「工作機械の小形軽量化」, 精密工学会誌, 第 60 巻, 7 号, pp. 920-925, 1994.
- (24) 小島朋久, 歌川和宏, 納富充雄, 「薄膜フィルム貼付による板ガラスの耐衝撃強化」, 実験力学, 第 18 巻, 2 号, pp. 103-109, 2018.
- (25) 丸山敬, 河井宏允, 西村宏昭, 花谷真由子, 「種々の加撃体を用いた合わせガラスの耐衝撃試験と標準加撃体の提案」, 日本風工学会論文集, 第 39 巻, 1 号, pp. 1-12, 2014.
- (26) 尾田十八, 木田外明, 小西美智孝, 古出雅士, 「合わせガラスの衝撃破壊実験とその考察」, 日本機械学会論文集 (A 編), 第 56 巻, 524 号, pp. 924-929, 1990.
- (27) 尾田十八, 高林徹, 山本秀樹, 「予き裂を有する合わせガラスの衝撃強さに関する研究」, 日本機械学会論文集 (A 編), 第 66 巻, 647 号, pp. 1308-1313, 2000.
- (28) 東藤貢, 浅田隆宏, 新川和夫, 田原雅貴, 「合わせガラスの衝撃エネルギー吸収機構」, 実験力学, 第 4 巻, 2 号, pp. 120-127, 2004.
- (29) H. D. Hidallana-Gamage, D. P. Thambiratnam and N. J. Perera, “Numerical modelling and analysis of the blast performance of laminated glass panels and the influence of material parameters”, *Engineering Failure Analysis*, Vol. 45, pp. 65-84,

- 2014.
- (30) 真田和昭, 乾成裕, 林善永, 「合わせガラスの衝撃破壊挙動に関する陽解法有限要素解析」, 日本機械学会計算力学講演会講演論文集, 第 27 巻, pp. 844-845, 2014.
 - (31) A. Vedrtnam, “Experimental and simulation studies on delamination strength of laminated glass composites having polyvinyl butyral and ethyl vinyl acetate interlayers of different critical thicknesses”, *Defence Technology*, Vol. 14, pp. 313-317, 2018.
 - (32) G. Rivers and D. Cronin, “Influence of moisture and thermal cycling on delamination flaws in transparent armor materials: Thermoplastic polyurethane bonded glass-polycarbonate laminates”, *Materials and Design*, Vol. 182, 108026, 2019.
 - (33) C. D. Wu, X. Q. Yan and L. M. Shen, “A numerical study on dynamic failure of nanomaterial enhanced laminated glass under impact”, *Proceedings of the 9th World Congress on Computational Mechanics and 4th Asian Pacific Congress on Computational Mechanics*, 012176, 2010.
 - (34) 住田雅夫, 「複合材料」, 繊維学会誌, 第 45 巻, 12 号, pp.556-563, 1989.
 - (35) 中山裕敏, 田中良平, 「複合材料の特徴」, まてりあ, 第 40 巻, 2 号, pp. 106-110, 2001.
 - (36) 矢野浩之, 「セルロース系材料における基礎と応用 3.セルロース系ナノコンポジット」, 材料, 第 57 巻, 3 号, pp. 310-315, 2008.
 - (37) ナノセルロースフォーラム, 「図解よくわかるナノセルロース」, 日刊工業新聞社, pp. 20-205, 2015.
 - (38) 能木雅也, 矢野浩之, 「21 世紀の紙ーセルロースナノファイバー低熱膨張性透明材料ー」, 色材協会誌, 第 82 巻, 8 号, pp. 351-356, 2009.
 - (39) 「日本再興戦略改訂 2014ー未来への挑戦ー」, www.kantei.go.jp/jp/singi/keizaisaisei/pdf/honbun2JP.pdf.
 - (40) 仙波健, 「セルロースナノファイバーを用いた高性能複合材料の開発」, ぷらすとす, 第 1 巻, 5 号, pp. 338-341, 2018.
 - (41) 水野渡, 「富山県産業技術研究開発センターものづくり研究開発センターにおけるプラスチック関連技術」, 成型加工, 第 32 巻, 11 号, pp. 391-393, 2020.
 - (42) 矢野浩之, 「木の国ニッポンの資源」, 森林科学, 第 81 巻, pp. 3-6, 2017.
 - (43) 磯貝明, 「セルロースナノファイバー」, 表面技術, 第 71 巻, 6 号, 2020.

- (44) S. Matsuki, H. Kayano, J. Takada, H. Kono, S. Fujisawa, T. Saito and A. Isogai, “Nanocellulose production via one-pot formation of C2 and C3 carboxylate groups using highly concentrated NaClO aqueous solution”, *ACS Sustainable Chemistry Engineering*, Vol. 8, No. 48, pp. 17800-17806, 2020.
- (45) 石川敦子, 片岡厚, 大木博成, 何昕, 伊藤拓美, 下川知子, 林徳子, 眞柄謙吾, 小林正彦, 神林徹, 木口実, 「酵素・湿式粉碎処理により製造されたセルロースナノファイバーを配合した塗料の性質」, 木材保存, 第 45 巻, 2 号, pp. 68-76, 2019.
- (46) 中谷丈史, 佐藤伸治, 「粉末化セルロースナノファイバーの製造方法」, 紙パ技協誌, 第 72 巻, 2 号, pp. 197-201, 2018.
- (47) 奥田慎一, 永田員也, 眞田和昭, 「疎水化セルロースナノファイバー/ポリプロピレン樹脂複合材料の引張特性」, 日本機械学会 2016 年度年次大会講演論文集, J0450203, 2016.
- (48) 杉本雅行, 山田昌宏, 荘所大策, 佐藤嘉計, 徳満勝久, 「フルオレン修飾セルロースナノファイバーにより補強したポリアミドの特性評価」, 成型加工, 第 32 巻, 2 号, pp. 63-67, 2020.
- (49) 藤崎力哉, 眞田和昭, 永田員也, 「セルロースナノファイバー含有開繊炭素繊維/エポキシ樹脂積層材料の層間せん断強度と自己修復」, 日本機械学会北陸信越支部総会・講演会講演論文集, 第 54 巻, G033, 2017.
- (50) T. Nissilä, M. Hietala and K. Oksman, “A method for preparing epoxy-cellulose nanofiber composites with an oriented structure”, *Composites Part A*, vol.125, 105515, 2019.
- (51) 山本莉沙, 吉田美悠, N. D. Tien, 高瀬弘嗣, 高田じゅん, 山本勝弘, 「ポリアクリル酸 2-メトキシエチル/アクリルアミド共重合体の力学特性に与えるセルロースナノファイバー複合化効果」, 材料, 第 68 巻, 1 号, pp. 42-46, 2019.

第 2 章 ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価

2.1 緒言

旋盤やマシニングセンタ等の工作機械の窓に使用される安全ガラスには、安全性、視認性、切削油に耐える耐薬品性が要求されており^{(1)~(3)}、ガラスとポリカーボネート (Polycarbonate, PC) をアクリル中間膜 (Acrylic interlayer, ACIL) で貼り合わせたガラス／ポリカーボネート (G/PC) 積層安全ガラスはその要求を満たしている。工作機械の窓の安全性への信頼は、耐衝撃性能評価^{(2),(3)}で確保しているが、より高い耐衝撃性を有し、省スペース化を実現した安全ガラスを得るには、安全ガラスの衝撃破壊挙動に及ぼす構成部材の寸法・特性の影響を解明することが重要である。尾田ら⁽⁴⁾は、中間膜にポリビニルブチラル (Polyvinyl butyral, PVB) を使用した合わせガラスを対象に、初期き裂発生試験と貫通破壊試験を行い、合わせガラスの貫通破壊過程を考察している。東藤ら⁽⁵⁾は、エチレンビニルアセテート (Ethylene vinyl acetate, EVA) を使用した合わせガラスを対象に、低速衝撃破壊時のエネルギー吸収能を定量的に評価している。また、有限要素法を用いた合わせガラスの衝撃破壊挙動解析も多数行われている。真田ら⁽⁶⁾は、鋼球が合わせガラスに衝突した後の鋼球の速度変化とガラスの破壊状態の関連性を見出している。また、Hidallana-Gamage⁽⁷⁾らは、端部をシーリング材で固定することを想定した合わせガラスの衝撃破壊に関する解析を行い、中間膜特性が衝撃破壊に大きな影響を与えることを明らかにしている。以上のように、2 枚のガラスを構成部材とした合わせガラスの安全性や衝撃破壊挙動に関する研究は多数報告されているが、G/PC 積層安全ガラスに関する報告例はほとんど無く、衝撃破壊における挙動は十分に解明されていないのが現状である。

本章では、G/PC 積層安全ガラスを対象に、落錘衝撃試験を行い、各部材構成における耐貫通性能と衝撃破壊による損傷状態への影響を検討した。また、落錘衝撃試験に関する有限要素解析を陽解法ソルバー LS-DYNA を用いて行い、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動と加撃体の衝撃エネルギーの関連性について考察を加えた。

2.2 供試材

ACIL を形成する原料は、主剤としてメタクリレートモノマーおよびアクリレートモノマーの混合物（三井化学株式会社）、硬化剤として有機過酸化物、遷移金属系硬化促進剤を用いた。有機過酸化物は、遷移金属の存在下で容易に開裂しラジカルが発生するものとした。G/PC 積層安全ガラスの構成部材であるガラスは、フロート法⁽⁸⁾により製造されたソーダ石灰ガラスで、一般的な建築物によく使用される板ガラス（AGC 株式会社）とした。また、PC はタキロンシーアイ株式会社製のものを用いた。

2.3 ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの耐衝撃性

2.3.1 実験方法

G/PC 積層安全ガラスを対象とした落錘衝撃試験を行い、耐貫通性能および衝撃破壊状態に及ぼす各構成部材厚さの影響を評価した。試験は、EN12417 付属書 A⁽³⁾を参考に、図 2-1 に示す形状の加撃体（質量 8.75 kg）を所定の高さから自由落下により試験体中央部に衝突させた。図 2-2 に落錘衝撃試験装置の概要を示す。試験体の寸法は 500×500 mm とし、4 辺それぞれの端部より 25 mm の領域を試験体支持枠に挟み込むことで試験体を固定した。試験体支持枠は、加撃体が通過する部分のみ開口した槽の中に設置し、槽内を 20°C に保持した。試験体への加撃はガラス面側とし、加撃回数は 1 回とした。加撃体の衝撃エネルギー U は、加撃体高さ h 、加撃体質量 m および重力加速度 g とすると次式で表される。

$$U = mgh \quad (2-1)$$

初回の試験における加撃体の衝撃エネルギーは、構成部材である PC 厚さの変化に伴い、耐衝撃性が変化することが予想されることから、PC 厚さ×100 J 付近に設定して、式(2-1)より h を算出し、加撃体の高さを調節して初回の試験を行い、試験体の衝撃破壊状態を観察した。貫通き裂（一方の表面からもう一方の表面まで目に見えるき裂）もしくは加撃体の明確な貫通があった場合には衝撃エ

エネルギーを減少させ、座屈やふくらみ（き裂のない恒久的な変形）もしくは初期き裂（表面上のみ見えるき裂）があった場合には衝撃エネルギーを増大させて、新たな試験体を用いて次の試験を行った。このように、落錘衝撃試験と衝撃破壊状態の観察を繰り返すことで、加撃体の貫通時の衝撃エネルギーと未貫通時の衝撃エネルギーを見出し、1回でも加撃体が貫通した時の衝撃エネルギーを臨界衝撃エネルギーとした。

図 2-3 に試験体の構造を示す。試験体の作製は、厚さ 5 mm のガラスと厚さ 1 ~ 5 mm の PC との間に 1 ~ 2 mm の厚さで硬化剤を配合したアクリル樹脂液を充てんし常温常圧で接着させ、図 2-3(a) に示す G/PC 積層安全ガラスとした。また、比較のために、厚さ 5 mm の PC 単体も用いた（図 2-3(b)）。試験体は、試験前に恒温槽を用いて 20°C で 24 時間保持した。

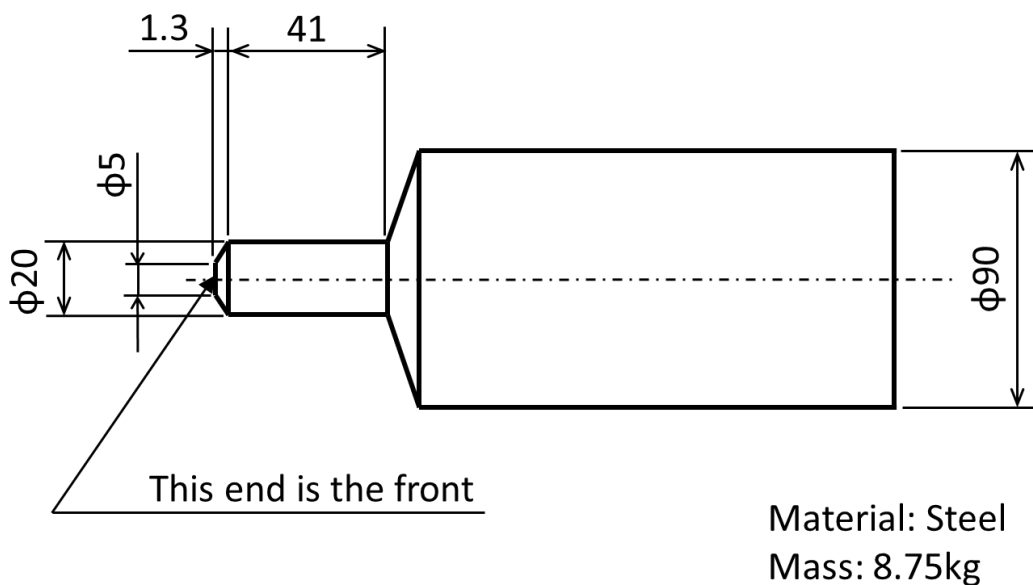


Fig. 2-1 Shape of the impactor.

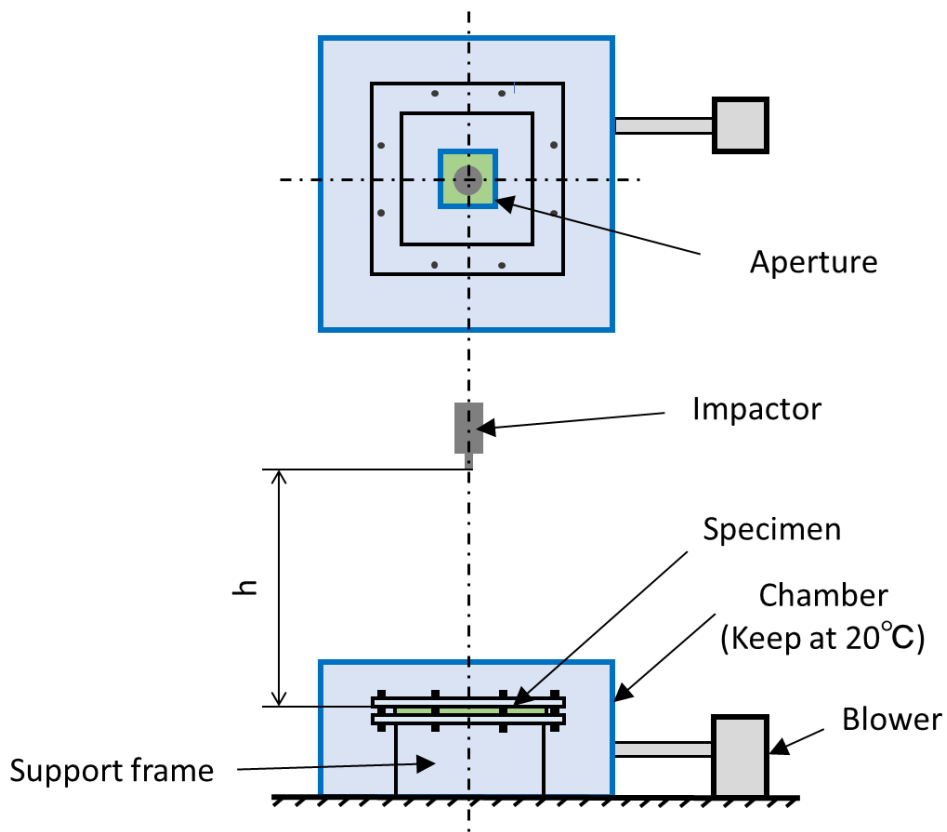


Fig. 2-2 Schematic image of drop weight test.

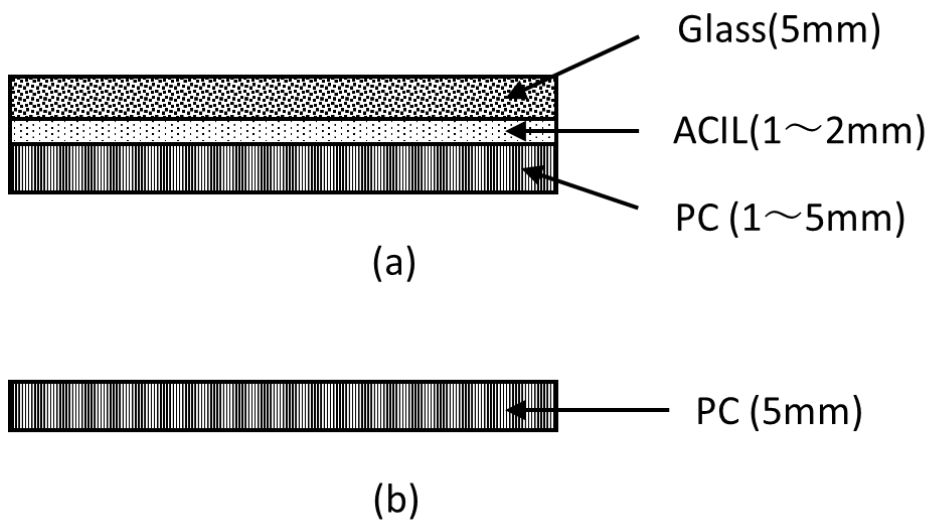


Fig.2-3 Structure of specimens: (a) G/PC laminated safety glass; (b) PC plate.

2.3.2 実験結果および考察

図 2-4 に各材料構成における落錘衝撃試験結果を示す。なお、図中、G はガラス、ACIL はアクリル中間膜、PC はポリカーボネートであり、それぞれの記号の後の数字は厚さを示す。また、●は加撃体が未貫通の結果、×は貫通の結果を示しており、青色の実線は臨界衝撃エネルギーを示している。構成部材に PC3 を使用している G5/ACIL1/PC3 および G5/ACIL2/PC3 は、PC5 に比べて PC 厚さが薄いにも関わらず臨界衝撃エネルギーは増大している。また、構成部材に同じ PC5 を使用している G5/ACIL1/PC5 の臨界衝撃エネルギーは飛躍的に増大している。

表 2-1 に、落錘衝撃試験で決定した各材料構成における臨界衝撃エネルギーを示す。PC 厚さの増大に伴い臨界衝撃エネルギーは増大する傾向であり、PC 厚さが同一の場合では、中間膜厚さが大きいほうが臨界衝撃エネルギーは大きくなった。また、G5/ACIL1/PC5 の臨界衝撃エネルギーは、PC5 の結果に比べて、約 2 倍となった。これは、ガラスのみの場合における耐衝撃性が非常に低いこと⁽⁹⁾を考慮すると、ACIL を用いたガラスと PC の積層により耐衝撃性向上効果が発現したためと考えられる。

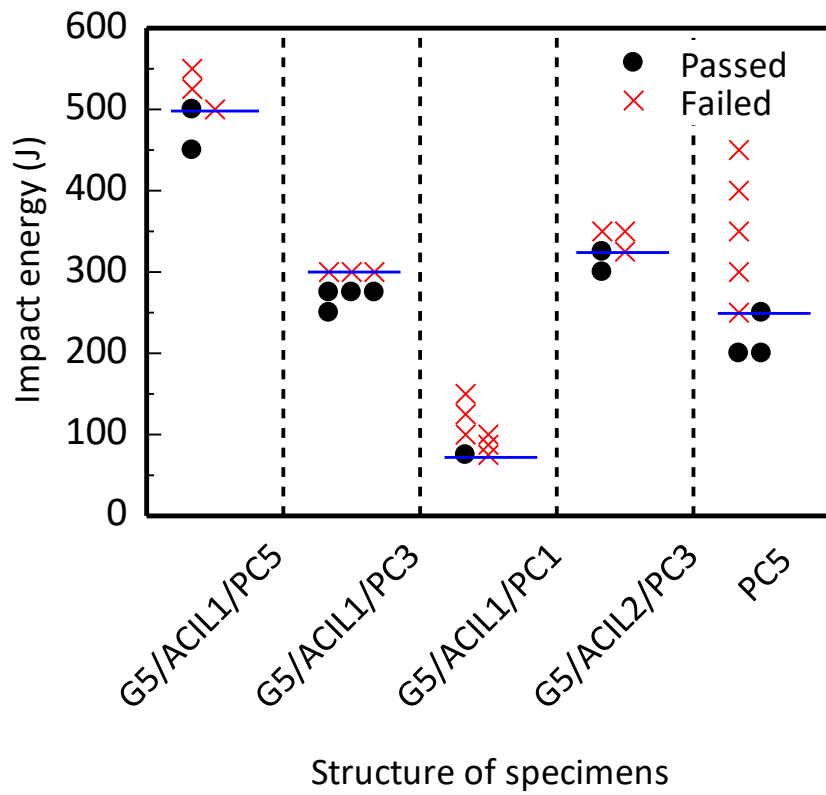


Fig. 2-4 Result of drop weight test using G/PC laminated safety glass and PC (5 mm).

Table 2-1 Critical impact energy of each specimen.

Structure of specimens	Critical impact energy (J)
G5/ACIL1/PC5	500
G5/ACIL1/PC3	300
G5/ACIL1/PC1	75
G5/ACIL2/PC3	325
PC5	250

図 2-5 に各材料構成における未貫通の場合と貫通の場合の試験体の衝撃破壊状態を示す。また、表 2-2 に各試験体における加撃体衝突部と周辺領域の損傷の発生量と状態を示す。表中、損傷の発生量が少ない場合を S, 中間の場合を M, 多い場合を L とし、損傷の状態が円周状の場合を Circular, 放射状の場合を Radial, 粒状の場合を Granular と示した。G/PC 積層安全ガラスにおけるガラスの損傷状態は加撃体衝突部より放射状に発生した損傷と円周状に発生した損傷が混在しているが、部材構成により損傷の発生の様子が異なっている。

G5/ACIL1/PC5 の場合では、未貫通の 450 J においてはガラスの損傷は加撃体衝突部に集中し、周囲部では比較的損傷の程度は小さい。貫通した 500 J では、衝撃エネルギーが増大しているために、加撃体衝突部の損傷は著しく、450 J の場合よりも広範囲にわたり放射状の損傷と円周状の損傷が多数発生していた。G5/ACIL1/PC3 の場合では、未貫通の 275 J においては、G5/ACIL1/PC5 の場合よりも衝撃エネルギーは小さいが、損傷の程度は顕著となっており、その範囲は拡大している。貫通した 300 J では、G5/ACIL1/PC5 の 500 J の場合と同様の損傷状態であった。G5/ACIL1/PC1 の場合では、未貫通の 75 J においては、G5/ACIL1/PC3 の場合よりもさらに衝撃エネルギーは小さいが、全体に大きな損傷が発生し、特に加撃体衝突部付近では、G5/ACIL1/PC5 と G5/ACIL1/PC3 の場合で見られた円周状の損傷に加えて細かい粒状の損傷が発生した。これは、貫通した 100 J においても同様の損傷状態であった。PC の厚さが 3 mm から 1 mm に減少することにより、G/PC 積層安全ガラス全体の剛性が大きく低下したために損傷状態が大きく変化したものと考えられる。

構成部材に PC3 を使用し中間膜厚さが 2 mm の場合である G5/ACIL2/PC3 では、未貫通の 300 J においては、中間膜厚さ 1 mm の G5/ACIL1/PC3 の場合よりも全体の損傷の程度は大きい加撃体衝突部では小さい傾向であった。貫通した 325 J では、G5/ACIL1/PC5 や G5/ACIL1/PC3 の場合の損傷状態と同様の傾向だが、より細かな損傷が発生した。

PC5 の損傷状態は、加撃体衝突部に塑性変形や貫通穴が発生したのみで、周囲部に損傷は発生しなかった。

以上より、臨界衝撃エネルギーに近い衝撃レベルでは、加撃体が未貫通の場合、PC 厚さが薄くなると損傷状態が大きくなる傾向であり、特に PC 厚さが 1 mm の場合では、3 mm や 5 mm を用いた場合とは損傷状態に大きく差異があった。また、中間膜厚さの増大に伴い、全体の損傷状態の程度が大きくなる一方、加撃

体衝突部付近では損傷状態の程度が小さくなる傾向であった。

G/PC 積層安全ガラスにおけるガラスの損傷状態は、前述のとおり放射状の損傷と円周状の損傷に大別され、複合的に発生している。これらの損傷状態は、それぞれ曲げ破壊と押し込み破壊によって発生すると考えられる。PC 厚さが増大すると G/PC 積層安全ガラスの剛性が増大し、曲げ変形が生じにくくなるため、押し込み破壊により生じる円周状の損傷が支配的になると考えられる。一方、PC 厚さが減少すると G/PC 積層安全ガラスの剛性が減少し、曲げ変形が生じやすくなるため、曲げ破壊により生じる放射状の損傷が支配的になると考えられる。

さらに、G/PC 積層安全ガラスは、PC 単体の場合よりも大幅に臨界衝撃エネルギーが増大することが明らかとなった。これは、ガラスが破壊することによる衝撃吸収能と中間膜の存在による衝撃エネルギーの広範囲な拡散が影響していると考えられる。すなわち、中間膜厚さを変化させることにより損傷状態が大きく変化することから、中間膜の力学特性と厚さを最適化することで、同一厚さのガラスおよび PC を使用した構成であっても耐衝撃性を向上できることが示唆された。


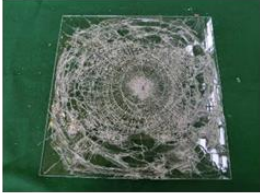

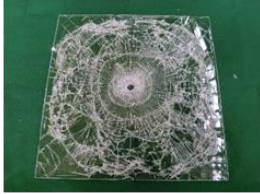
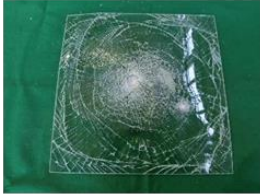


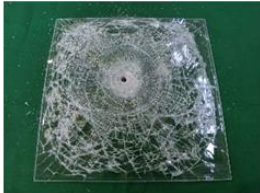
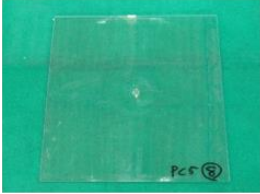
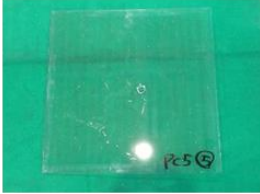
Structure of specimens	Damage state	
	Passed (Impact energy (J))	Failed (Impact energy (J))
G5/ACIL1/PC5	 (450)	 (500)
G5/ACIL1/PC3	 (275)	 (300)
G5/ACIL1/PC1	 (75)	 (100)
G5/ACIL2/PC3	 (300)	 (325)
PC5	 (200)	 (250)

Fig. 2-5 Damage state of G/PC laminated safety glass and PC plate.

Table 2-2 Summary of amount of damage and damage state of G/PC laminated safety glass with various structural members.

Structure of specimens	Results	Amount of damage / Damage state	
		Impact region	Peripheral region
G5/ACIL1/PC5	Passed	M / Granular	S / Circular, Radial
	Failed	L / Granular	L / Circular
G5/ACIL1/PC3	Passed	L / Granular	M / Circular, Radial
	Failed	L / Granular	L / Circular
G5/ACIL1/PC1	Passed	L / Granular	S / Radial
	Failed	L / Granular	S / Radial
G5/ACIL2/PC3	Passed	M / Granular	M / Circular
	Failed	L / Granular	L / Circular
PC5	Passed	Plastic deformation only	
	Failed	Penetration only	

2.4 アクリル中間膜の粘弾性特性評価

2.4.1 実験方法

G/PC 積層安全ガラスの構成部材である ACIL の粘弾性特性を評価するために動的粘弾性測定 (Dynamic mechanical analysis, DMA) 試験を行った。測定試料は、落錘衝撃試験体で使用したものと同等のアクリル樹脂液を厚さ 2 mm のシート状成型型に充てんし、室温で硬化させた。硬化後、型から硬化物を取り出し、幅 6 mm、厚さ 2 mm、長さ 35 mm の短冊形状に調整した。ACIL の DMA 試験は、粘弾性測定装置 DMS6100 (エスアイアイナノテクノロジー株式会社) を用いて行った (図 2-6)。測定条件は、引張モードで振幅 10 μm 、周波数 1 Hz、測定温度範囲 -50~85°C、昇温速度 1°C/min とし、貯蔵弾性率と損失弾性率の温度依存性 (温度分散) を評価した。

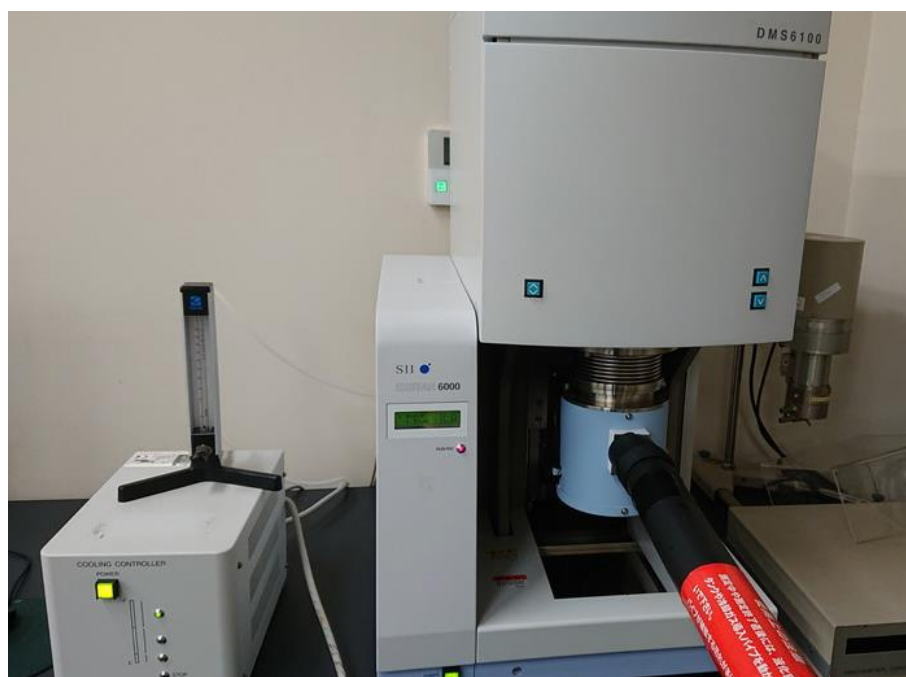


Fig. 2-6 Appearance of dynamic viscoelastic analyzer.

2.4.2 実験結果および考察

図 2-7 に落錘衝撃試験体に用いた中間膜の貯蔵弾性率 E' と損失弾性率 E'' の温度依存性を示す。 E' および E'' とともに 0~50°C の範囲で大きな変曲点があることから、通常 G/PC 積層安全ガラスとして使用する温度領域では、顕著な温度依存性を示すことが明らかとなった。

表 2-3 に 0~50°C の温度範囲における E' と E'' の値を示す。 E' は、0°C から 20°C に上昇すると約 1/10 になり、さらに 50°C まで上昇すると約 1/400 にまで減少した。一方、 E'' は、0°C から 20°C に上昇すると約 1/3 になり、さらに 50°C まで上昇すると約 1/170 に減少した。 E'' は、 E' よりも温度上昇に伴う弾性率の減少の程度が小さく、20~40°C の温度領域では、 E' と E'' はほぼ同じ値かもしくは E'' の方が大きい値を示した。

このことから、周波数 1 Hz では、20~40°C の温度領域において制振性能や衝撃吸収性能を良く発現する特性を有していると考えられる。落錘衝撃試験での試験体温度は 20°C としたため、試験時の加撃体衝突直前における中間膜の E' は 43.6 MPa、 E'' は 41.5 MPa である。しかし、落錘衝撃試験では、衝撃エネルギーが 400 J の場合、試験体衝突直前の加撃体速度は約 9.6 m/s となるため、加撃体衝突後の試験体のひずみ速度は、動的粘弾性試験の試験体のひずみ速度よりも著しく大きいと考えられる。安藤らは、ポリカーボネートの破断ひずみのひずみ速度依存性について時間-温度換算則を適用し、温度が低下することとひずみ速度が高くなることが等価であることを報告している⁽¹⁰⁾。中間膜においても同様であると考えられ、実際の落錘衝撃試験では、20°C よりも低温の弾性率を示していると推測される。しかしながら、G/PC 積層安全ガラスは各構成部材が接着された積層体であることから、加撃体の衝突による各構成部材の変形量は同程度であり、中間膜の E' が約 45 MPa、PC の弾性率が約 2.3 GPa⁽¹⁰⁾であることを考慮すると、中間膜は、PC に比べて、剛性が非常に低く、加撃体の運動エネルギーを内部エネルギーとして蓄える能力も非常に小さいと考えられる。

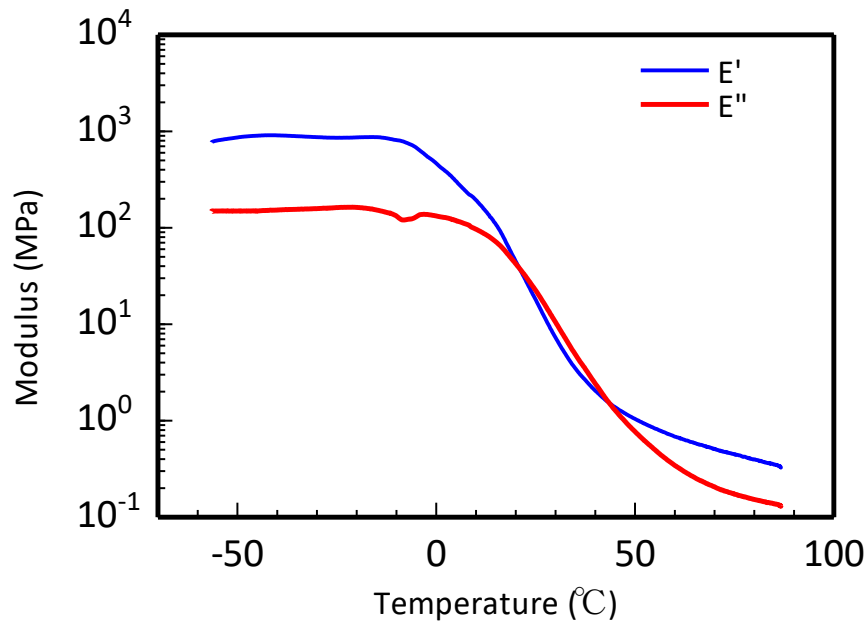


Fig. 2-7 Temperature dependence of storage and loss moduli of ACIL under the frequency of 1 Hz.

Table 2-3 Values of storage and loss moduli of ACIL under the frequency of 1 Hz at various temperature.

Temperature (°C)	E' (MPa)	E'' (MPa)
0	465.1	132.6
10	193.8	96.6
20	43.6	41.5
30	7.1	10.3
40	2.0	2.4
50	1.0	0.8

2.5 陽解法有限要素解析

2.5.1 解析モデル

G/PC 積層安全ガラスにおける衝撃破壊挙動解析は、汎用有限要素解析コード ANSYS に組み込まれている陽解法ソルバーLS-DYNA を用いて行った。また、プリ・ポストプロセッサ機能は ANSYS を用いた。図 2-8 に解析モデルを示す。解析モデルは、落錘衝撃試験に準拠したもので、対称性を考慮した 1/4 の領域としている。境界条件は、安全ガラスの周囲を完全拘束した。G/PC 積層安全ガラスの寸法は 450×450 mm（固定部を除く）で、ガラス厚さは 5 mm とし、PC 厚さは 1～5 mm、中間膜厚さは 1～2 mm に変化させた。また、実験では質量 8.75 kg に調整した鋼製の加撃体を用い、式(2-1)より算出された高さから落下させて G/PC 積層安全ガラスに衝突させたが、本解析モデルは、密度を規定の質量になるように調整し、高さ 1 mm から初速度を与えた加撃体を落下させた。落錘衝撃試験における加撃体高さを h_e 、解析モデルにおける加撃体高さを h_a とすると、初速度 v_0 は、次式で表される。

$$v_0 = \sqrt{2g(h_e - h_a)} \quad (2-2)$$

要素分割は、8 節点 6 面体要素（SOLID164）を用いて行った。

比較のために PC 単体における衝撃破壊挙動解析も行った。解析は、図 2-8 で示した解析モデルと同様とし、PC 厚さ 3 mm および 5 mm の場合について行った。

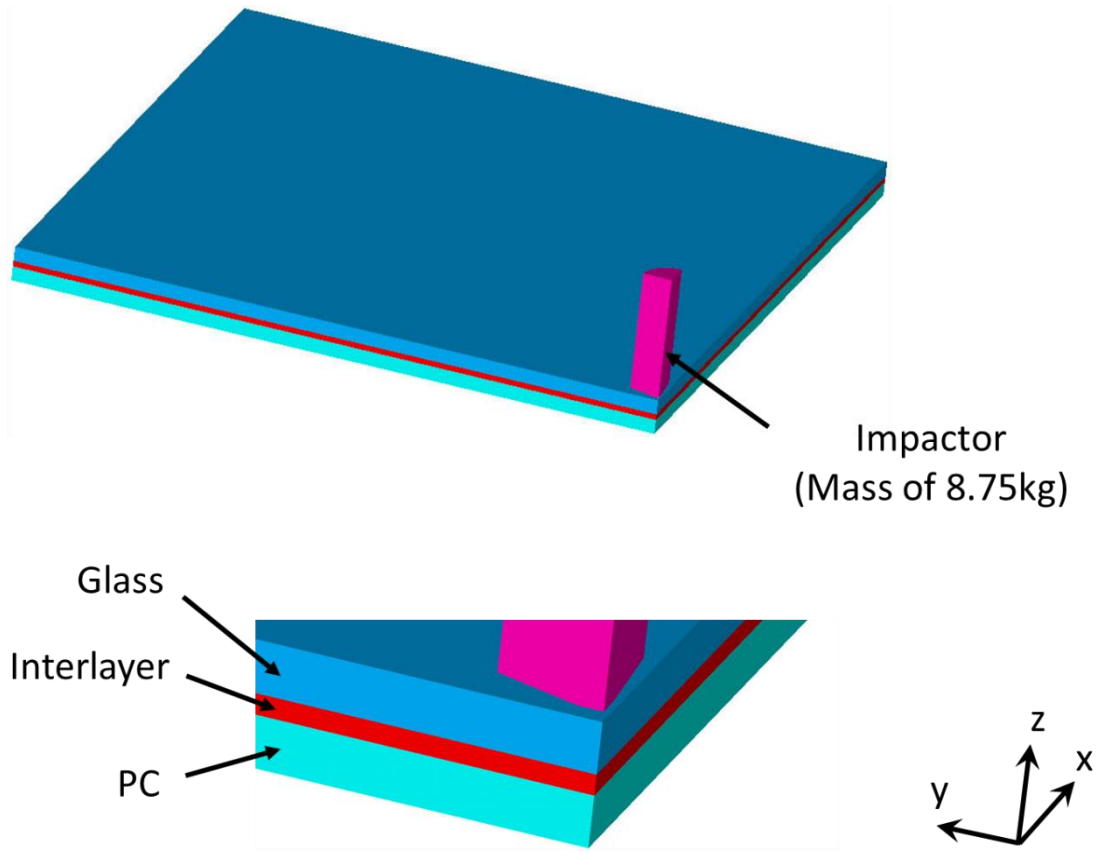


Fig. 2-8 Finite element model of drop weight impact tests using 8.75 kg impactor.

2.5.2 材料モデル

2.5.2.1 ポリカーボネートの材料モデル

PC は、図 2-9 に示す損傷進展による要素削除を考慮できる弾塑性モデルを適用し、密度 $\rho = 1.2 \text{ g/cm}^3$ ，ヤング率（縦弾性係数） $E = 2.2 \text{ GPa}$ ，横弾性係数 $G = 0.85 \text{ GPa}$ ，体積弾性率 $K = 1.8 \text{ GPa}$ ，ポアソン比 $\nu = 0.3$ ，降伏応力（引張） $\sigma_y = 63 \text{ MPa}$ ，降伏応力（圧縮） $\sigma_{yc} = 78 \text{ MPa}$ ，ひずみ硬化係数 $E_t = 22 \text{ kPa}$ ，破断ひずみ $\epsilon_f = 90\%$ とした⁽¹⁾。

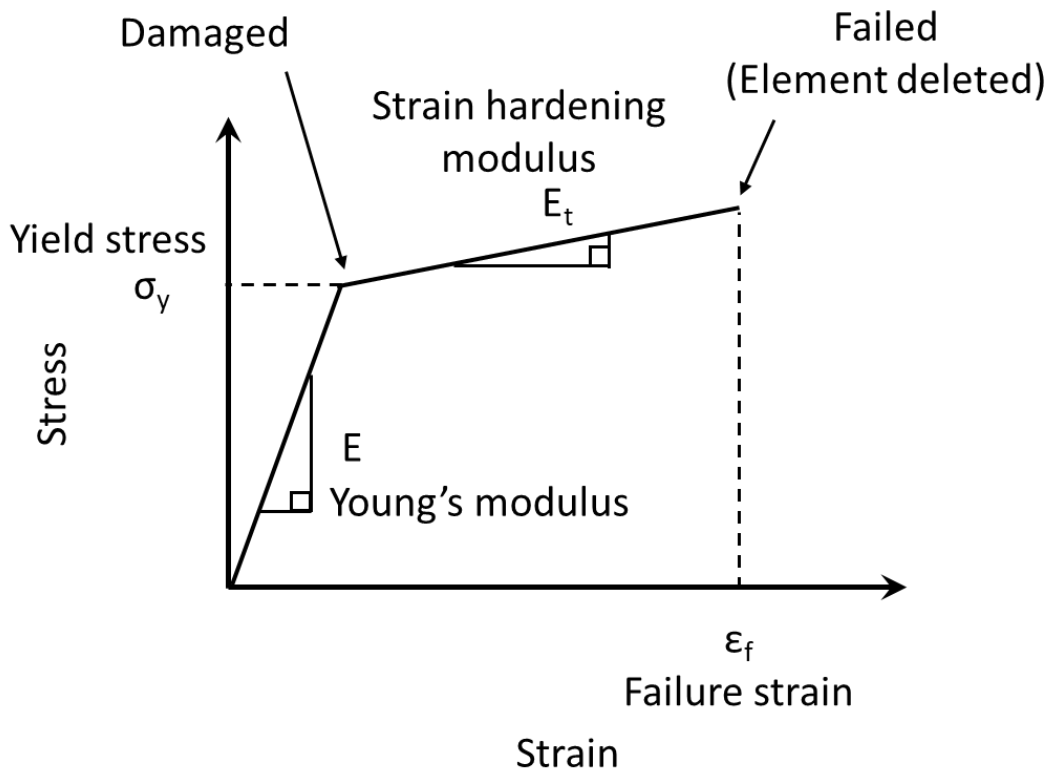


Fig. 2-9 Material model of isotropic elasticity with simple plastic strain failure.

2.5.2.2 ガラスの材料モデル

ガラスは、図 2-10 に示す微視破壊による損傷とき裂進展による要素削除を考慮した Johnson-Holmquist-Ceramics (JH2) 材料モデルを適用した。JH2 モデルは、相当応力が損傷の始まる臨界強度に達すると、ガラスに微視破壊が発生し剛性が低下していくと考えており、微視破壊による剛性の低下を相当塑性ひずみの関数とした損傷パラメータで表現している^{(12)~(14)}。図中、相当応力を σ とすると、 σ_i は、損傷の蓄積を表す損傷パラメータ $D = 0$ (ガラスに損傷が発生していない状態) の場合の相当応力である。JH2 モデルでは、荷重 P および引張強度 T は、ユゴニオ弾性限界 HEL における荷重 P_{HEL} で正規化される。衝撃圧縮荷重下において、低圧力の場合では弾性変形挙動を示すが、ある圧力を超えると弾性を失い始め徐々に塑性的となる。ユゴニオ弾性限界は、その弾性変形領域の限界値である⁽¹⁵⁾。正規化された荷重を P^* 、正規化された引張強度を T^* とすると、それぞれ $P^* = P/P_{HEL}$ 、 $T^* = T/P_{HEL}$ と表される。また、正規化された相当応力 σ^* は、 HEL における相当応力を σ_{HEL} とすると、 $\sigma^* = \sigma/\sigma_{HEL}$ と表される。 $D = 0$ における正規化された相当応力 σ_i^* は、次式で表される。なお、記号の右上に付した*は正規化されていることを表している。

$$\sigma_i^* = A(P^* + T^*)^N (1 + C \ln \dot{\varepsilon}^*) \quad (2-3)$$

$$\dot{\varepsilon}^* = \frac{\dot{\varepsilon}}{\dot{\varepsilon}_0} \quad (2-4)$$

ここで、 A 、 C 、 N は材料定数である。また、 $\dot{\varepsilon}^*$ は正規化された無次元ひずみ速度で、経過時刻におけるひずみ速度を $\dot{\varepsilon}$ 、初期のひずみ速度を $\dot{\varepsilon}_0$ としている。損傷パラメータが $0 < D < 1$ の範囲では、 σ^* は次式で表される。

$$\sigma^* = \sigma_i^* - D(\sigma_i^* - \sigma_f^*) \quad (2-5)$$

また、累積相当塑性ひずみを ε^p 、破壊時の相当塑性ひずみを ε_f^p とすると、 D は次式で表される。

$$D = \frac{\varepsilon^p}{\varepsilon_f^p} \quad (2-6)$$

$$\varepsilon_f^p = D_1 (P^* + T^*)^{D_2} \quad (2-7)$$

ここで、 D_1 および D_2 は損傷因子である。さらに損傷が進展し $D=1$ に達すると、ガラスは完全に破壊する。この時の破断応力 σ_f^* は次式で表される。

$$\sigma_f^* = B(P^*)^M (1 + C \ln \dot{\varepsilon}^*) \quad (2-8)$$

ここで、 B と M は材料定数である。表 2-4 に JH2 材料モデルのパラメータを示す⁽¹⁴⁾。ガラスの引張強度 T を 50 MPa、破壊（要素削除）時の相当塑性ひずみ FS (ε_f^p) を 150% とし、その他のパラメータは文献値を参考にした。

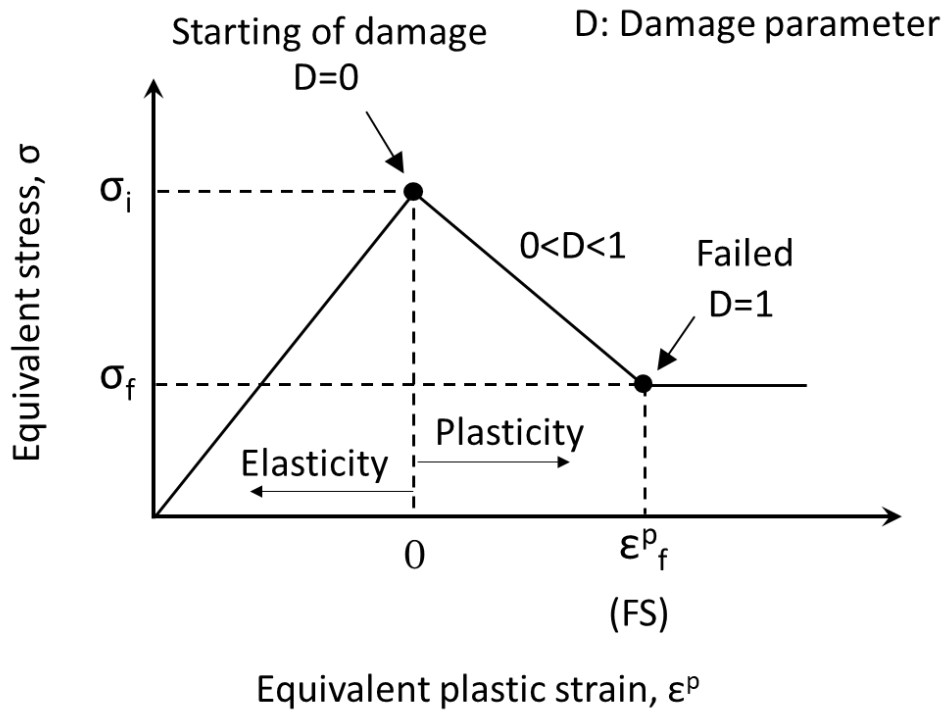


Fig. 2-10 Material model of Jhonson-Holmquist-Ceramics (JH2).

Table 2-4 Material parameters for JH2 model.

Parameters	Value	Parameters	Value
RO(kg/m ³)	2530	HEL(GPa)	5.95
G(GPa)	30.4	PHEL(GPa)	2.92
A	0.93	BETA	1.0
B	0.088	D1	0.053
C	0.003	D2	0.85
M	0.35	K1(GPa)	45.4
N	0.77	K2(GPa)	-138
EPSI	1.0	K3(GPa)	290
T(MPa)	50	FS	1.5
SFMAX	0.5		

2.5.2.3 中間膜の材料モデル

中間膜は超弾性体とし、Mooney-Rivlin 材料モデル (2 パラメータ) を適用した。Bois ら⁽¹⁶⁾は、PVB を中間膜に用いた合わせガラスを対象に、陽解法有限要素解析を行い、低ひずみ領域においては、Blatz-Ko 材料モデルや Mooney-Rivlin 材料モデルが適切であることを明らかにしている。特に、Mooney-Rivlin 材料モデル (2 パラメータ) は、式(2-9)のように、横弾性係数 G を A と B のパラメータで表現することができるため、Blatz-Ko 材料モデルよりも実際の材料に近い挙動を表すことができる。応力 - ひずみ曲線では、 G が一定の場合、 A の値を増大させると、線形性が強くなり、 B の値を増大させると非線形性が強くなる挙動を示す。

$$G = 2(A + B) \quad (2-9)$$

一方、中間膜が等方弾性体であると仮定すると、微小変形下では、ヤング率 E 、ポアソン比 ν 、横弾性係数 G の間には次式の関係が成り立つ。

$$G = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad (2-10)$$

ここで、非圧縮性を考慮し $\nu = 0.49$ とすると、近似的に G と E の関係が次式のようなになる。

$$G \approx \frac{E}{3} \quad (2-11)$$

動的粘弾性試験で得られた 20°C における E' の値をヤング率とみなすと、式(2-10)より $G \approx 14.5 \text{ MPa}$ となる。第3章3.5節で示すように、ACIL の応力 - ひずみ曲線は非線形性が強い傾向であるため、本解析では式(2-9)より、 $A = 0 \text{ MPa}$ 、 $B = 7.25 \text{ MPa}$ とした。また、破壊 (要素削除) 時の最大ひずみを 50% とした。

2.5.3 解析結果および考察

2.5.3.1 ポリカーボネート単板の衝撃破壊挙動

図 2-11 は、PC 単体の加撃体衝突後の時間経過における加撃体速度変化を示したもので、衝撃エネルギーを 100~150 J に変化させたものである。なお、時間は、加撃体衝突後の経過時間を示している。速度は、落下方向を負の方向としており、負の値から 0 を超えて正の値になった場合、加撃体は PC を貫通せずに押し戻されている状況を表している。加撃体速度は、厚さ 3 mm の場合は、5 ms 付近まではほぼ等速で推移したが、厚さ 5 mm の場合はわずかに減少した。その後は、時間経過とともに減少する傾向を示した。

衝撃エネルギーが 100 J の場合、加撃体速度が、厚さ 3 mm の場合は 13 ms 付近、厚さ 5 mm の場合は 10 ms 付近で正の方向に変化しており、両方とも加撃体は貫通しなかった。また、衝撃エネルギーが 125 J に増大すると、加撃体速度は、厚さ 5 mm の場合、衝撃エネルギー 100 J の場合と同様の変化を示したが、厚さ 3 mm の場合、13 ms 付近でほぼ 0 m/s となり、その後わずかに負の方向へ推移した。すなわち、厚さ 3 mm の場合は貫通した。さらに、衝撃エネルギーが 150 J に増大すると、加撃体速度は、厚さ 3 mm の場合、8 ms 付近でほぼ 0 m/s となり等速となった。厚さ 5 mm の場合、10 ms 付近で負の値のままほぼ等速となった。すなわち、厚さ 3 mm、厚さ 5 mm とともに貫通した。

以上より、PC 厚さが増大すると、PC の剛性が増大するため、加撃体衝突後、比較的早い時間から加撃体速度の減衰が始まり、5 ms 以降の減衰量に大きく差異が生じたものと考えられる。また、加撃体速度の減衰の強さが PC の臨界衝撃エネルギーを増大させる要因になっていると推測される。

解析結果から、PC の臨界衝撃エネルギーは、厚さ 3 mm の場合、100~125 J であり、厚さ 5 mm の場合、125~150 J であると評価できるが、落錘衝撃試験で得られた厚さ 5 mm の PC の臨界衝撃エネルギーは 250 J となり、解析結果は実験結果よりも低くなった。

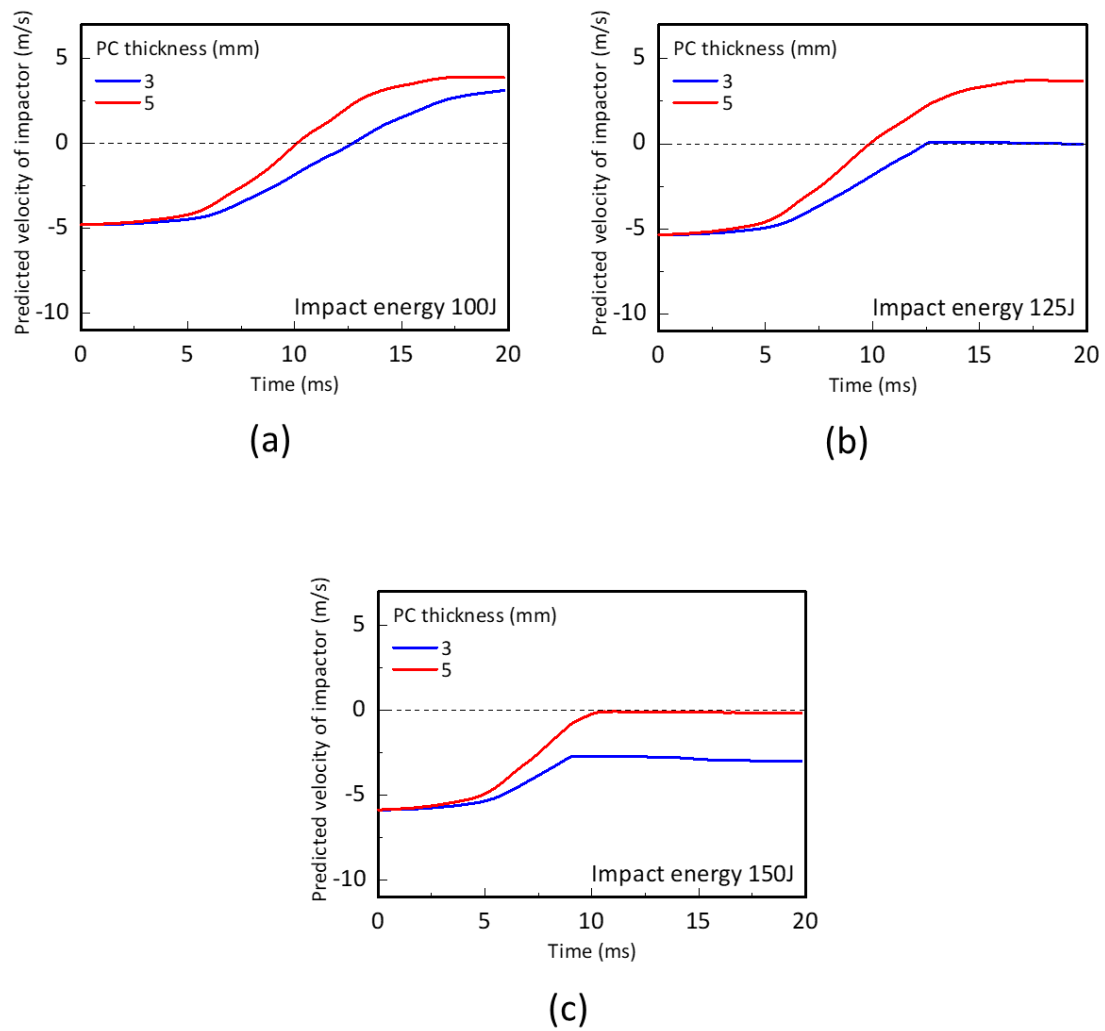


Fig. 2-11 Effect of PC thickness on the predicted velocity of impactor collided with neat PC under various impact energy: (a)100 J; (b)125 J; (c)150 J.

2.5.3.2 ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの衝撃破壊挙動

図 2-12 は、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動解析で得られたガラスの相当応力分布を示したもので、加撃体の衝撃エネルギー400 Jとした場合である。なお、時間は加撃体衝突後の経過時間である。加撃体衝突後、応力の高い領域が加撃体衝突部から端部へ拡大し、時間経過とともに、G/PC 積層安全ガラスの曲げ変形の影響が大きくなることにより、ガラスの角部付近に応力の高い領域が形成される傾向を示した。

G5/ACIL1/PC1 の場合では、1 ms から 2 ms へ時間が経過すると、加撃体衝突部を中心に高い応力が発生する状態から対角線方向に高い応力が発生する状態に変化した。さらに時間が経過すると、加撃体衝突部とガラスの角部付近に応力が集中する傾向を示した。5 ms になると、加撃体が貫通したために、それまで高い値を示していた領域の応力は緩和され、減少した。

G5/ACIL1/PC3 の場合では、時間経過における相当応力分布の推移は、G5/ACIL1/PC1 の場合と同様であったが、加撃体衝突部とガラス角部では、G5/ACIL1/PC1 の場合よりも高い応力が発生した。

G5/ACIL1/PC5 の場合では、G5/ACIL1/PC1 や G5/ACIL1/PC3 の場合と同様な傾向で、相当応力分布が推移したが、2 ms 時点で対角線方向を中心にG5/ACIL1/PC3 の場合よりも高い応力が広い範囲に発生した。さらに時間が経過すると、ガラス全体に高い応力が発生した。

以上より、加撃体衝突後のガラスの相当応力は、PC 厚さの増大に伴い増大し、その範囲は拡大する傾向を示した。これは、PC 厚さ 5 mm の場合、G/PC 積層安全ガラスの剛性が大きいため曲げ変形が生じにくく、衝撃荷重を受けやすくなったため、応力が増大したと考えられる。一方、PC 厚さ 1 mm の場合、G/PC 積層安全ガラスの剛性が小さいために加撃体の衝撃荷重により曲げ変形が生じやすく、応力が増大しにくくなったと考えられる。落錘衝撃試験結果を考慮すると、高い応力がガラス全体に均一に発生しやすい部材構成とすることで、加撃体は貫通しにくくなると考えられる。

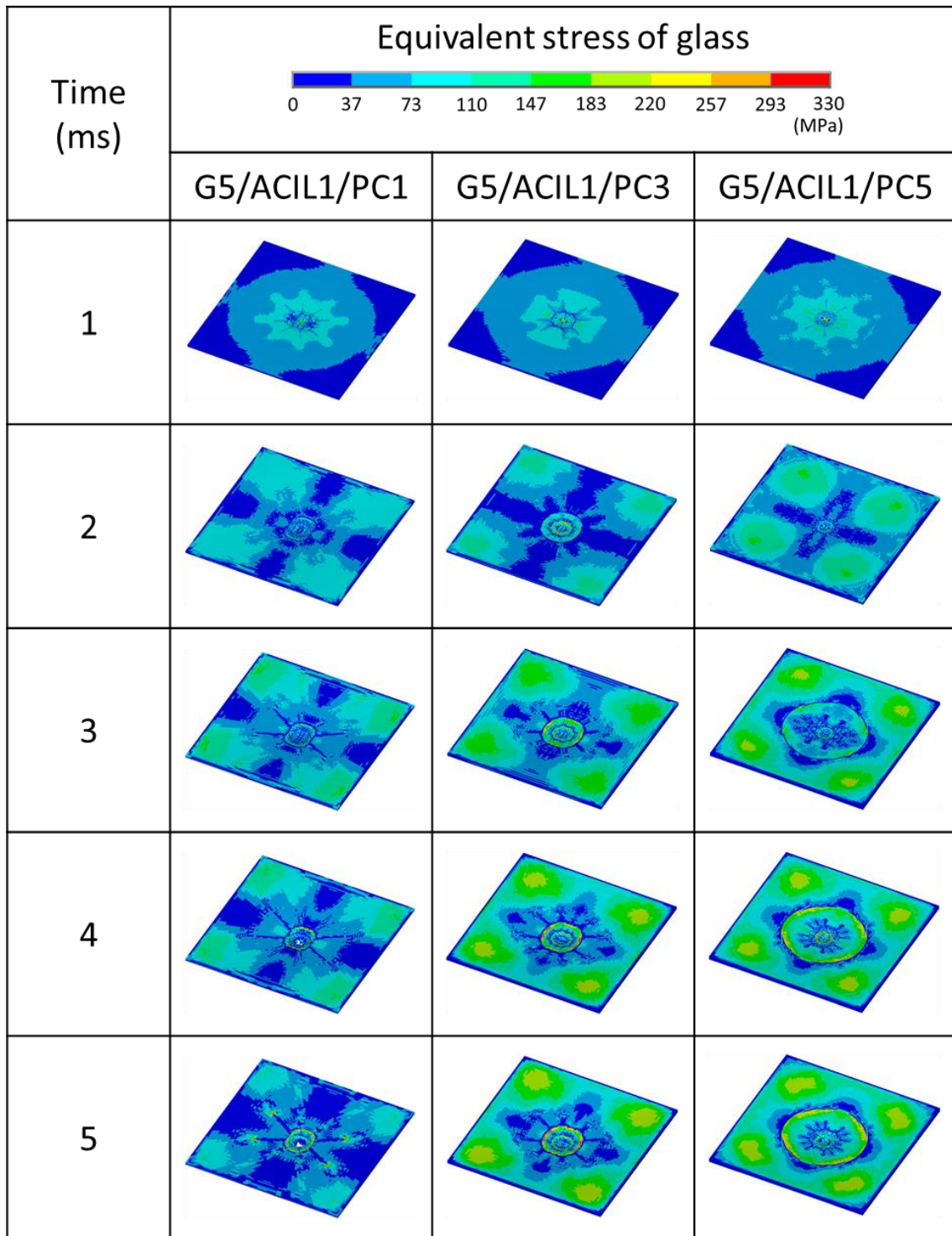


Fig. 2-12 Time dependence of predicted equivalent stress distribution of glass in the G/PC laminated safety glass with various PC thickness after colliding impactor under impact energy of 400 J.

図 2-13 は、図 2-12 で示した部材構成の G/PC 積層安全ガラスにおけるガラスの損傷状態を示したものである。図中、ガラスの損傷は、ガラスの相当塑性ひずみが 0.1%を超えた部分を示している。ガラスの損傷は、1 ms では加撃体衝突部付近のみに発生したが、時間が経過すると、損傷範囲は拡大し、放射状と円周状の損傷が混在して発生した。また、PC 厚さが増大すると、放射状の損傷から円周状の損傷に変化した。これは、図 2-12 でも示したように、PC 厚さの増大で G/PC 積層安全ガラスの剛性が増大し、曲げ変形が生じにくくなったため、衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体で受けやすくなったことにより、曲げ破壊よりも押し込みによる破壊が支配的となり、円周状の損傷が発生したと考えられる。一方、PC 厚さが減少すると G/PC 積層安全ガラスの剛性は減少し、曲げ変形が生じやすくなったため、曲げ破壊が支配的となり、加撃体衝突部付近とガラス角部に応力が集中することで、放射状の損傷が発生したものと考えられる。




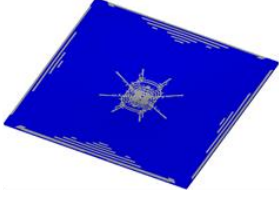
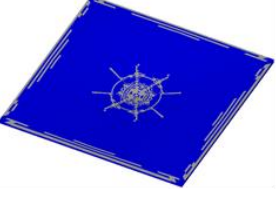
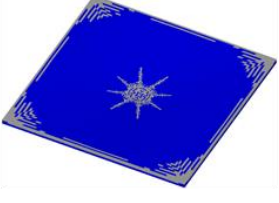
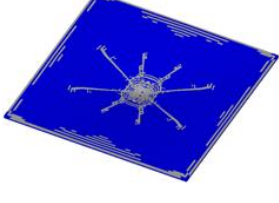
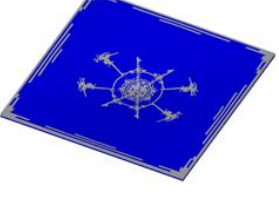
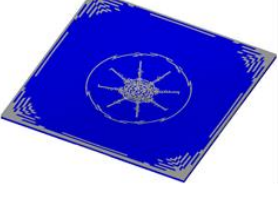
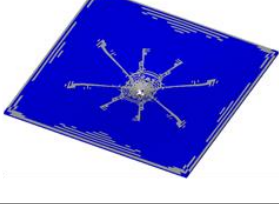
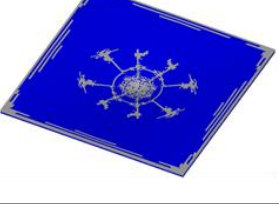
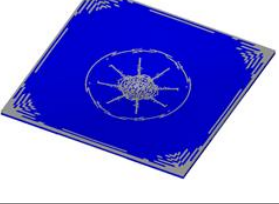
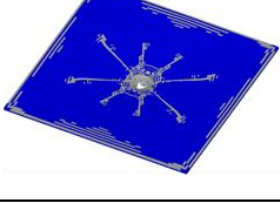
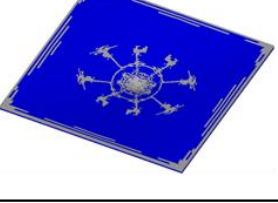
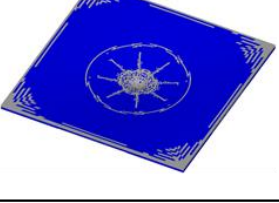
Time (ms)	Damage state of glass		
	G5/ACIL1/PC1	G5/ACIL1/PC3	G5/ACIL1/PC5
1			
2			
3			
4			
5			

Fig. 2-13 Time dependence of damage state of glass in the G/PC laminated safety glass with various PC thickness after colliding impactor under impact energy of 400 J.

図 2-14 は、図 2-12 と同様の図であり、ガラス厚さ 5 mm、PC 厚さ 3 mm で、ACIL 厚さを変化させた場合である。G5/ACIL2/PC3 の場合、図 2-12 で示した G5/ACIL1/PC3 の時間経過に伴う相当応力分布の変化と同様の傾向であるが、G5/ACIL2/PC3 の場合の方が、高い応力の範囲がより全体に拡大する傾向で推移した。また、G5/ACIL1/PC3 の場合では、加撃体衝突部付近とガラス角部付近に応力が集中し、G5/ACIL2/PC3 の場合よりも高い値となっている。これより、ACIL 厚さの増大により、衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体に伝播させる効果が高まり、加撃体衝突部付近とガラス角部周辺の応力集中を緩和させたと考えられる。

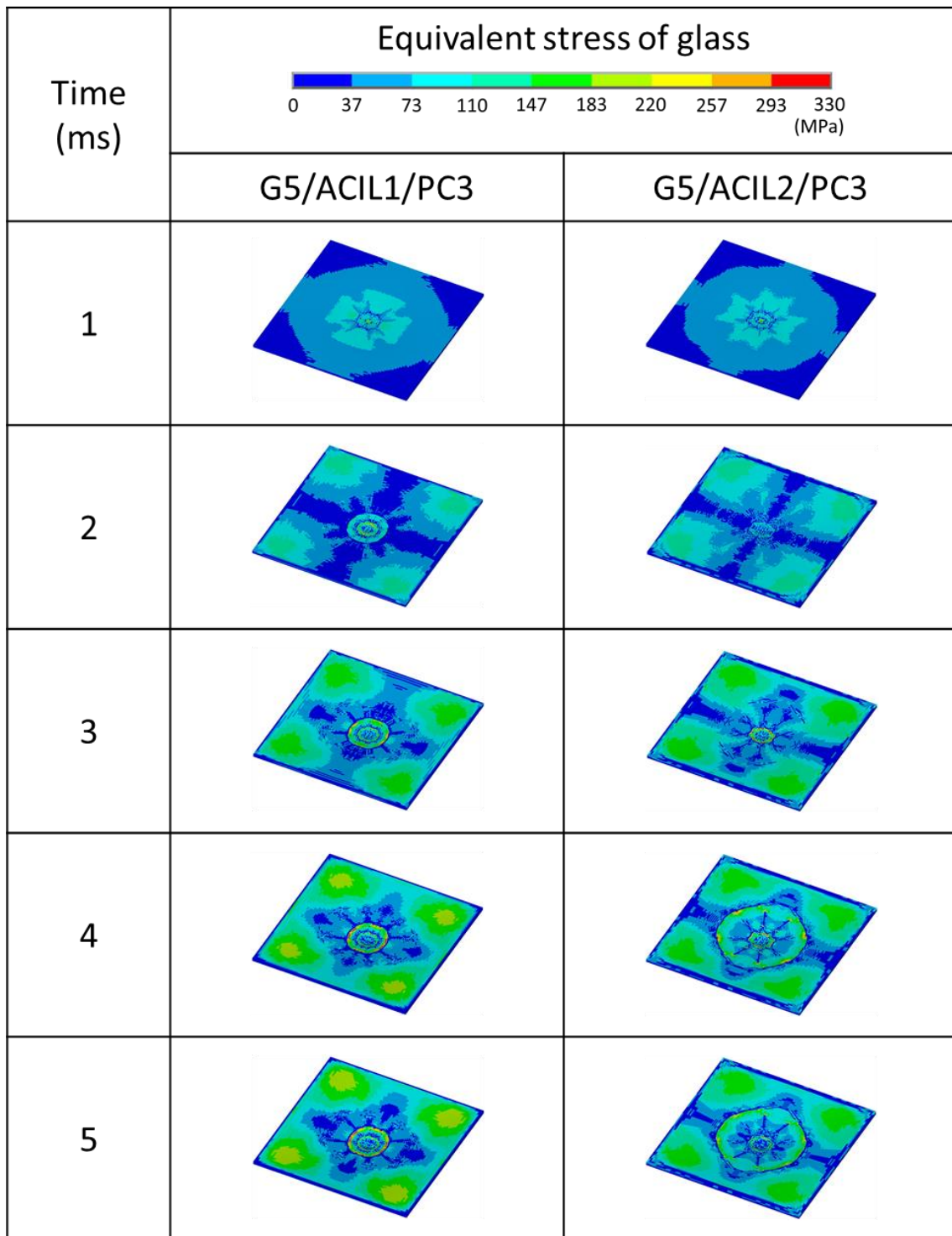


Fig. 2-14 Time dependence of predicted equivalent stress distribution of glass in the G/PC laminated safety glass with various ACIL thickness after colliding impactor under impact energy of 400 J.

図 2-15 は、図 2-13 と同様の図で、図 2-14 で示した部材構成の G/PC 積層安全ガラスにおけるガラスの損傷状態を示したものである。ACIL 厚さが増大すると、放射状の損傷よりも円周状の損傷が発生しやすい傾向に変化した。これは、ACIL 厚さの増大により、衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体に伝播させる効果が高まり、衝撃荷重が局所的に集中する状態（曲げ破壊が支配的な状態）から、より広範囲に分配される状態（押し込み破壊が支配的な状態）に変化したと考えられる。

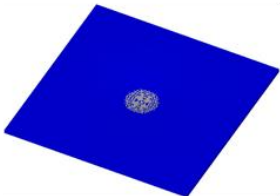

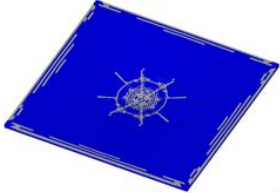
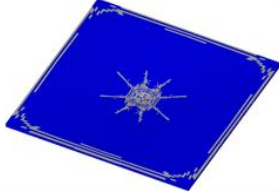
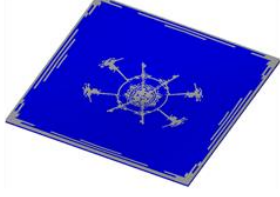
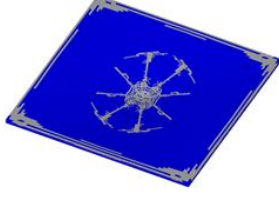
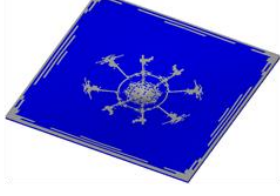
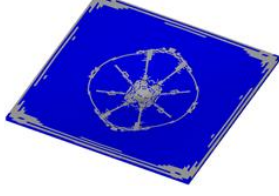
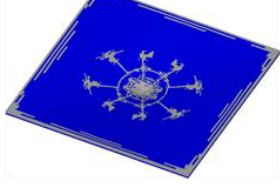
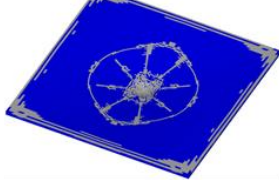
Time (ms)	Damage state of glass	
	G5/ACIL1/PC3	G5/ACIL2/PC3
1		
2		
3		
4		
5		

Fig. 2-15 Time dependence of damage state of glass in the G/PC laminated safety glass with various ACIL thickness after colliding impactor under impact energy of 400 J.

図 2-16 は、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動解析で得られた ACIL 厚さ 1 mm と 2 mm の場合の加撃体衝突後の時間経過における加撃体速度変化を示したもので、ガラス厚さ 5 mm、PC 厚さ 3 mm で、衝撃エネルギーを 100~400 J に変化させたものである。加撃体速度は加撃体衝突直後から時間経過とともに減少する傾向を示した。衝撃エネルギー 100 J では、ACIL 厚さの違いが加撃体の速度変化にほとんど影響しておらず、ACIL 厚さ 1 mm、2 mm とともに 7 ms 付近で加撃体速度が負から正へ変化し、加撃体は貫通しなかった。衝撃エネルギー 200 J では、ACIL 厚さ 1 mm、2 mm とともに貫通しなかったが、5 ms 付近から加撃体速度は減衰傾向に差異が生じており、ACIL 厚さ 2 mm の場合の方が加撃体の速度減衰量が大きい傾向であった。衝撃エネルギー 300 J では、加撃体速度は 6 ms 辺りから減衰傾向に差異が生じ、時間経過とともにその差は拡大した。衝撃エネルギーが 310 J になると、ACIL 厚さ 2 mm の場合は貫通しなかったが、1 mm の場合は 0 m/s に達せずに貫通した。一方、衝撃エネルギーが 320 J まで増大すると、6 ms 付近で ACIL 厚さ 1 mm、2 mm とともに加撃体速度が 0 を超えずにほぼ等速になり、加撃体は貫通したが、速度減衰量の程度は ACIL 厚さ 2 mm の場合がわずかに大きくなった。また、衝撃エネルギー 400 J では、3 ms 付近から加撃体速度の減衰量に差異が少し生じ、5 ms を過ぎた辺りで ACIL 厚さ 1 mm、2 mm とともに加撃体速度が 0 を超えずにほぼ等速になり、加撃体は貫通した。

以上の結果より、ACIL 厚さの増大に伴い、加撃体速度の減衰量は増大することが明らかとなった。加撃体速度の減衰量の増大は臨界衝撃エネルギーの増大を意味しており、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性が向上したことを示していると考えられる。また、G/PC 積層安全ガラスに衝突した加撃体速度は、衝突直後から時間経過とともに減衰する傾向であったが、図 2-11 で示した PC 単体に衝突した加撃体速度は、5 ms 付近まで等速で推移しており、異なる挙動を示した。従って、PC にガラスを ACIL で貼り合わせた構造とすることにより、加撃体衝突直後から顕著に加撃体速度を減衰させることが可能となり、結果として臨界衝撃エネルギーが増大したと推測される。

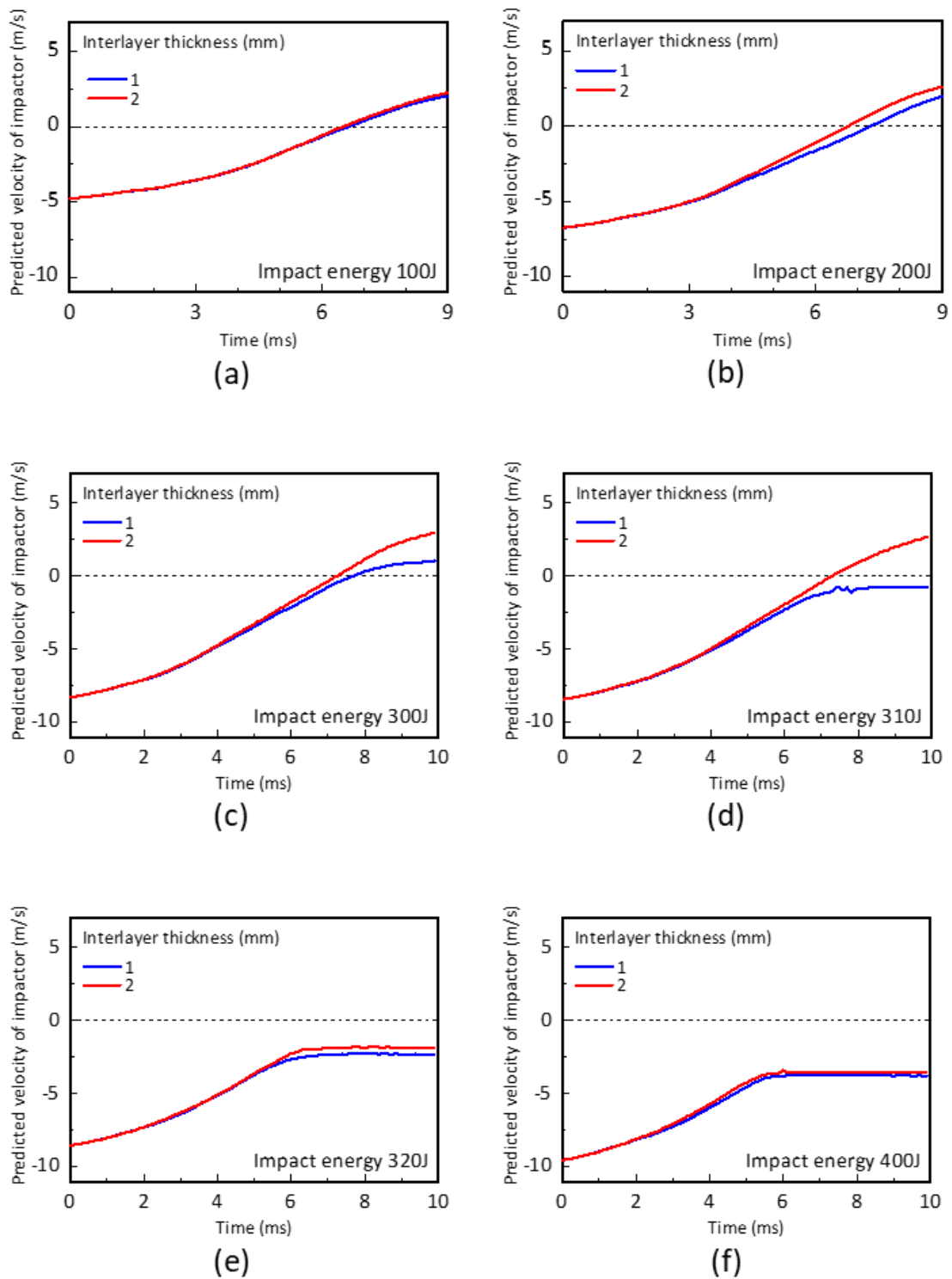


Fig. 2-16 Effect of ACIL thickness on the predicted velocity of impactor collided with G/PC laminated safety glass under various impact energy: (a)100 J; (b)200 J; (c)300 J; (d)310 J; (e)320 J; (f)400 J.

表 2-5 は、G/PC 積層安全ガラスの臨界衝撃エネルギーを示したもので、解析結果と落錘衝撃試験で得られた結果を比較している。今回の解析では、G5/ACIL1/PC3 は、300 J までは貫通せず 310 J で貫通し、G5/ACIL2/PC3 は、310 J までは貫通せず 320 J で貫通したという結果から、解析で得られた臨界衝撃エネルギーは、G5/ACIL1/PC3 の場合 310 J、G5/ACIL2/PC3 の場合 320 J と評価できる。落錘衝撃試験で得られた結果と比較すると、300 J 付近に臨界衝撃エネルギーが存在することがほぼ一致しており、ACIL 厚さが 1 mm から 2 mm に増大すると臨界衝撃エネルギーが 25 J の増大に対し、解析では 10 J 増大する傾向を示しており、実際の実験結果を良く再現できた。

Table 2-5 Comparison of critical impact energy between experimental result obtained by drop weight test and analytical result obtained by explicit finite element analysis in the G/PC laminated safety glass with various ACIL thickness.

Structure	Critical impact energy (J)	
	Experimental result	Analytical result
G5/ACIL1/PC3	300	310
G5/ACIL2/PC3	325	320

2.5.3.3 加撃体質量と速度の影響

表 2-6 に、衝撃エネルギー400 Jにおける加撃体の質量と衝突速度の関係を示す。なお、加撃体の位置エネルギーと落下とともに増大する運動エネルギーには等価性があるため、G/PC 積層安全ガラスに衝突する瞬間の加撃体の衝撃エネルギー U と質量 m および衝突速度 v_c の関係は、式(2-1)より次式で表される。

$$U = \frac{1}{2}mv_c^2 \quad (2-12)$$

$$v_c = \sqrt{2gh} \quad (2-13)$$

衝撃エネルギーが一定の場合、加撃体の質量が増大すると衝突速度は減少する。

図 2-17 に、ガラス厚さ 5 mm, ACIL 厚さ 2 mm, PC 厚さ 5 mm の場合で、衝撃エネルギー400 Jにおける加撃体質量を変化させた場合の加撃体速度の推移を示す。なお、対象とした加撃体質量は、1 kg および 20 kg の他に、本章 2.3 節で行った落錘衝撃試験で用いた加撃体（質量 8.75 kg）と第 3 章で行った落錘衝撃試験で用いた加撃体（質量 112 kg）とした。質量 1 kg の場合では、衝突直後から、加撃体速度は著しく減少し、3 ms 辺りで加撃体速度は 0 m/s に達した。加撃体質量が増大すると、衝突後の加撃体速度の減衰量は減少し、0 m/s に達するまでの時間は増大した。

図 2-18 に、図 2-17 の各加撃体質量におけるガラスの損傷の様子を示す。図中、ガラスの損傷は、図 2-13 と同様に、ガラスの相当塑性ひずみが 0.1%を超えた部分を示している。なお、各水準において加撃体速度が大きく異なるため、衝突速度を基準とした速度減衰量の割合 10%、30%、50%の場合とした。加撃体質量 1 kg の場合では、ガラスの損傷は加撃体衝突部より円周状に損傷が進展し、加撃体速度の減衰率が増大するとともに、損傷の範囲は拡大した。加撃体質量 8.75 kg の場合では、加撃体衝突部に損傷が発生しているが、ガラス端部の辺付近においても少し損傷が発生している。速度減衰率が増大するとともに放射状の損傷が発生・拡大し、ガラス端部においても損傷範囲が拡大している。加撃体質量 20 kg の場合では、8.75 kg の場合と同様の傾向であるが、速度減衰率の増大とともに放射状の損傷に加えて円周状の損傷が発生し、ガラス端部の辺付近の損傷範囲はさらに拡大する傾向を示した。加撃体質量 112 kg の場合では、20 kg の場

合とほぼ同様の傾向を示した。

以上より、一定の衝撃エネルギーの場合、加撃体質量が小さい場合は、衝突速度は増大し、加撃体衝突部付近より損傷が進展するが、加撃体質量が増大するとともに衝突速度は減少し、加撃体衝突部付近に加えてガラス端部においても損傷が発生することが明らかとなった。これは、加撃体質量の増大によって、加撃体速度が減少するため、G/PC 積層安全ガラスに対して静的負荷状態に近づき、負荷時間は増大する傾向であることに起因していると考えられる。

Table 2-6 Relationship between mass and initial velocity of impactor under impact energy of 400 J.

Impactor mass (kg)	Initial velocity of Impactor (m/s)
1	28.28
8.75	9.56
20	6.32
112	2.67

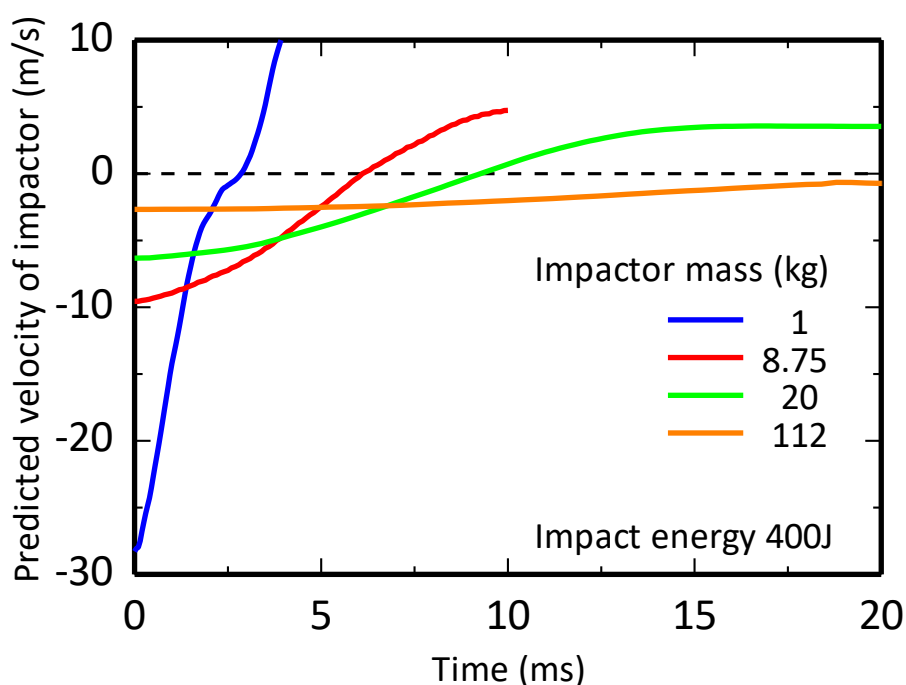


Fig. 2-17 Effect of impactor mass on the predicted velocity of impactor collided with G/PC laminated safety glass under the impact energy of 400 J.

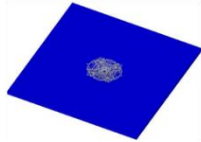
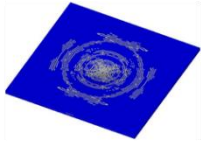
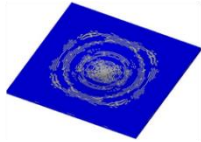

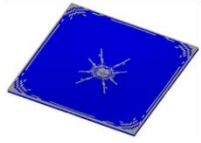
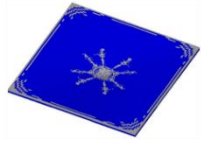
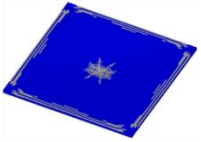
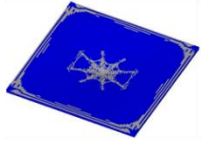
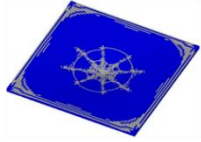
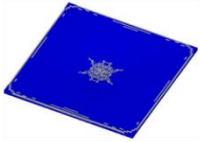
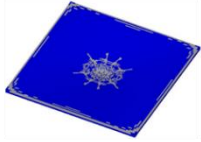
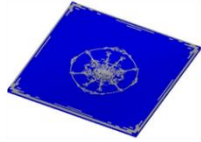
Impactor mass (kg)	Velocity attenuation rate		
	10%	30%	50%
1	 0.3 ms	 0.7 ms	 1 ms
8.75	 1.2 ms	 2.8 ms	 3.8 ms
20	 2.6 ms	 4.4 ms	 6 ms
112	 6.6 ms	 12 ms	 14.2 ms

Fig. 2-18 Predicted damage state of glass in G/PC laminated safety glass collided with impactor with various mass under impact energy of 400 J.

表 2-7 に、衝撃エネルギー400 J の場合の各加撃体質量における衝撃荷重持続時間を示す。なお、衝撃荷重持続時間は、加撃体が貫通しない場合、加撃体が G/PC 積層安全ガラスに衝突してから加撃体速度が 0 m/s に達するまでの時間、加撃体が貫通した場合、加撃体が G/PC 積層安全ガラスに衝突してから加撃体が貫通し始めるまでの時間とした。本章 2.3 節で行った落錘衝撃試験では、加撃体質量が 8.75 kg であることから、衝撃エネルギー400 J の場合、衝撃荷重持続時間は 6 ms 付近であったと考えられる。加撃体質量が増大すると加撃体衝突速度が低下するため、衝撃荷重持続時間は増大し、加撃体質量 112 kg の場合では、18.4 ms で貫通した。従って、第 3 章 3.8 節で行った落錘衝撃試験では、衝撃エネルギー400 J で衝撃荷重持続時間は 20 ms 付近であったと考えられる。

Table 2-7 Effect of impactor mass on the duration of impact load to G/PC laminated safety glass under impact energy of 400 J.

Impactor mass (kg)	Duration of impact load (ms)	State of impactor
8.75	6.1	Non-penetration
112	18.4	Penetration

2.6 結言

本章では、G/PC 積層安全ガラスを対象に落錘衝撃試験を行い、各材料構成における耐貫通性能と衝撃破壊状態を評価し、各構成部材の影響を検討した。また、ACIL の動的粘弾性測定試験を行い、粘弾性特性を評価した。さらに、得られた貯蔵弾性率から横弾性係数を算出し、G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験に関する陽解法有限要素解析を行い、衝撃破壊挙動に及ぼす各構成部材と加撃体の衝撃エネルギーの影響を解明した。以下に主要な知見を示す。

- (1) 落錘衝撃試験の結果より、臨界衝撃エネルギーは、PC 厚さが大きくなると増大し、PC 厚さが同一の場合には ACIL 厚さが大きくなると増大した。損傷状態においては、PC 厚さが小さくなるほど損傷状態は大きくなり、PC 厚さ 3 mm から 1 mm になると損傷状態に大きな変化があった。PC 厚さが同一の場合には、ACIL 厚さが大きくなると全体の損傷の程度が大きくなり、加撃体衝突部付近では損傷の程度は小さくなった。また、厚さ 5 mm の PC を用いた G/PC 積層安全ガラスは、厚さ 5 mm の PC 単体の場合に比べて、臨界衝撃エネルギーが 2 倍程度増大した。
- (2) 陽解法有限要素解析の結果より、加撃体衝突時には、衝突部より応力が発生し、その発生範囲は時間経過とともに G/PC 積層安全ガラス全体へ拡大していくことが明らかとなった。また、PC 厚さが増大すると剛性が増大するために、衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体で受けやすくなり、PC 厚さが減少すると剛性は減少するために、衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体で受けにくくなる特性に変化した。さらには、ACIL 厚さが増大すると、ACIL によって、衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体に伝播させやすくなり、加撃体衝突部付近の応力集中を緩和させることが示唆された。
- (3) 落錘衝撃試験と陽解法有限要素解析の結果を比較すると、厚さ 3 mm の PC を用いた G/PC 積層安全ガラスの臨界衝撃エネルギーが約 300 J 付近に存在することや、ACIL 厚さが増大すると臨界衝撃エネルギーがわずかに増大した解析結果が実際の実験結果を良く表現していることを確認した。

- (4) 加撃体の衝撃エネルギーが一定の場合、加撃体質量が小さい場合は、衝突速度は増大し、加撃体衝突部付近より損傷が進展するが、加撃体質量が増大するとともに衝突速度は減少し、加撃体衝突部付近に加えてガラス端部においても損傷が発生することが明らかとなった。

参考文献

- (1) 日本規格協会,「機械類の安全性 - ガード - 固定式及び可動式ガードの設計及び製作のための一般要求事項」, JIS B 9716, 2019.
- (2) International Organization for Standardization, “Machine Tools -Safety - Turning Machines”, ISO 23125, 2015.
- (3) British Standards Institution, “Machine Tools - Safety - Machining Centres”, BS EN 12417, 2010.
- (4) 尾田十八, 木田外明, 小西美智孝, 古出雅士, 「合わせガラスの衝撃破壊実験とその考察」, 日本機械学会論文集 (A 編), 第 56 巻, 524 号, pp. 924-929, 1990.
- (5) 東藤貢, 浅田隆宏, 新川和夫, 田原雅貴, 「合わせガラスの衝撃エネルギー吸収機構」, 実験力学, 第 4 巻, 2 号, pp. 120-127, 2004.
- (6) 真田和昭, 乾成裕, 林善永, 「合わせガラスの衝撃破壊挙動に関する陽解法有限要素解析」, 計算力学講演会講演論文集, 第 27 巻, pp. 844-845, 2014.
- (7) H. D. Hidallana-Gamage, D. P. Thambiratnam and N. J. Perera, “Numerical modelling and analysis of the blast performance of laminated glass panels and the influence of material parameters”, *Engineering Failure Analysis*, Vol. 45, pp. 65-84, 2014.
- (8) 玉村亮, 「8 ガラス工業 : 板ガラスにおける最近トピックス (日本の化学工業 : 最近の動向)」, 化学と教育, 第 41 巻, 4 号, pp. 266-270, 1993.
- (9) 金子武, 「脆性材料の衝撃特性」, 粉体および粉末冶金, 第 43 巻, 10 号, pp. 1231-1237, 1996.
- (10) 安藤誠人, 野田尚昭, 黒島義人, 石川康弘, 竹田英俊, 「ポリジメチルシロキサンを共重合したポリカーボネートの衝撃特性と時間 - 温度換算測の適用」, 日本機械学会論文集, 第 80 巻, 814 号, SMM0149, 2014.
- (11) タキロンシーアイ株式会社, 「ポリカーボネートプレート - 総合技術資料 - 」, 2018 年 4 月改訂版, pp.1-65, 2018.
- (12) Livemore Software Technology Corporation, “MAT JOHNSON HOLMQUIST CERAMICS, *LS-DYNA keyword user's manual R10.0*, vol. 2, pp. 2-566-2-569, 2017.
- (13) G. R. Johnson and T. J. Holmquist, “An improved computational constitutive model

- for brittle materials”, *AIP Conference Proceedings*, vol. 309, pp. 981-984, 1994.
- (14) D. S. Cronin, K. Bui, C. Kaufmann, G. McIntosh and T. Berstad, “Implementation and validation of the Johnson-Holmquist ceramic material model in LS-Dyna”, *Proceedings of the 4th European LS-DYNA Users Conference*, pp. D-I-47-D-I-60, 2003.
- (15) 横山隆, 「衝撃工学の基礎と応用」, 共立出版株式会社, pp. 143-156, 2014.
- (16) P. A. Du Bois, S. Kolling and W. Fassnacht, “Modelling of safety glass for crash simulation”, *Computational Materials Science*, vol. 28, pp. 675-683, 2003.

第 3 章 セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜を用いたガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価

3.1 緒言

第 2 章では G/PC 積層安全ガラスを対象とした落錘衝撃試験と陽解法有限要素解析を行い、衝撃破壊挙動に及ぼす各構成部材の影響を解明した。G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性を高めるためには、PC 厚さ、または ACIL 厚さ、もしくはその両方の厚さを増大させることによって臨界衝撃エネルギーが増大することが明らかとなったが、第 1 章でも述べた通り、この方法では安全ガラスの薄肉化の要求を満たすことができない。しかし、ここで注目すべきは、ACIL 厚さを増大させた場合に臨界衝撃エネルギーが増大したことである。ACIL 厚さの増大によって、衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体に伝播させやくすなり、加撃体衝突部付近の応力集中を緩和させることが示唆されたが、ACIL 厚さを増大せずとも ACIL へのフィラー添加によってこの機能を付与することができれば、G/PC 積層安全ガラスの総厚さを変えずに臨界衝撃エネルギーは増大するはずである。G/PC 積層安全ガラスは視認性も重要な要求特性であることから、フィラーの添加によっても ACIL の透明性を維持しなければならない。そこで、ACIL へ添加するフィラーとして、繊維径がナノサイズで高アスペクト比が特徴であるセルロースナノファイバー (Cellulose nanofibers, CNF)⁽¹⁾に着目した。CNF は、繊維径が可視光線領域の波長 (380~780 nm) よりも十分に小さく、CNF 添加による光の散乱が起きにくい⁽²⁾ため、ACIL の透明性を損なわないことが期待できる。近年、CNF を用いた複合材料に関する研究は盛んに行われており、様々な研究結果が報告されている。奥田ら⁽³⁾は、疎水化処理を施した CNF を添加したポリプロピレン樹脂複合材料の引張特性に関して報告している。また、杉本ら⁽⁴⁾はフルオレン修飾 CNF をポリアミドに分散させ、その分散性と CNF による強度向上効果を報告している。しかしながら、アクリル樹脂へ CNF を添加した複合材料に関する研究⁽⁵⁾は一部報告されてはいるが、報告例が少なく、CNF 添加アクリル樹脂中間膜を G/PC 積層安全ガラスへ適用して耐衝撃性を高めようとする

る検討は、報告されていないのが現状である。

本章では、ビーズミルにより得られた CNF 分散液を用いて CNF 添加アクリル中間膜 (CNF/ACIL) を作製し、光学特性と力学特性を評価した。また、CNF/ACIL の微視構造を考慮した代表体積要素 (Representative volume element, RVE) モデルを用いて有限要素解析を行い、引張特性に及ぼす CNF の添加量とアスペクト比の影響を検討し、実験結果に考察を加えた。さらに、CNF/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスを対象に落錘衝撃試験を行い、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性を評価した。

3.2 供試材

ACIL を形成する原料は、主剤としてメタクリレートモノマーおよびアクリレートモノマーの混合物 (三井化学株式会社)、硬化剤として有機過酸化物、遷移金属系硬化促進剤を用いた。有機過酸化物は、遷移金属の存在下で容易に開裂しラジカルが発生するものとした。G/PC 積層安全ガラスの構成部材であるガラスは、フロート法により製造されたソーダライムガラスで、一般的な建築物によく使用される板ガラス (AGC 株式会社) を用いた。また、PC はタキロンシーアイ株式会社製のものを用いた。

CNF は、繊維長の異なる 2 種類の CNF を使用した。図 3-1 に CNF の外観の走査型電子顕微鏡 (Scanning electron microscope, SEM) 写真を示す。短繊維長タイプの CNF (CNF-S) は、BiNFi-s FMa (メーカー公称値 : 平均繊維径 20 nm, 平均繊維長 1 μm 以上)、長繊維長タイプの CNF (CNF-L) は、BiNFi-s WFo (メーカー公称値 : 平均繊維径 20 nm, 平均繊維長 10 μm 以上) とし、いずれも株式会社スギノマシン製ドライパウダータイプで表面にアクリル系分散剤処理を施したものとした。図 3-2 に各 CNF における水分散体の場合の粒度分布を示す。粒度分布測定は、レーザー回折・散乱法を用いた粒子径分布測定装置 MT3300EX-II (マイクロトラック・ベル株式会社) を使用して行った。CNF-S および CNF-L のメジアン径はそれぞれ 3.4 μm , 7.6 μm であった。測定した粒度分布は、主に繊維長が検出されており、検出時の繊維の配向やうねり具合によって粒径の値は変化すると考えられるため、実際は測定値よりも長いと考えられる。

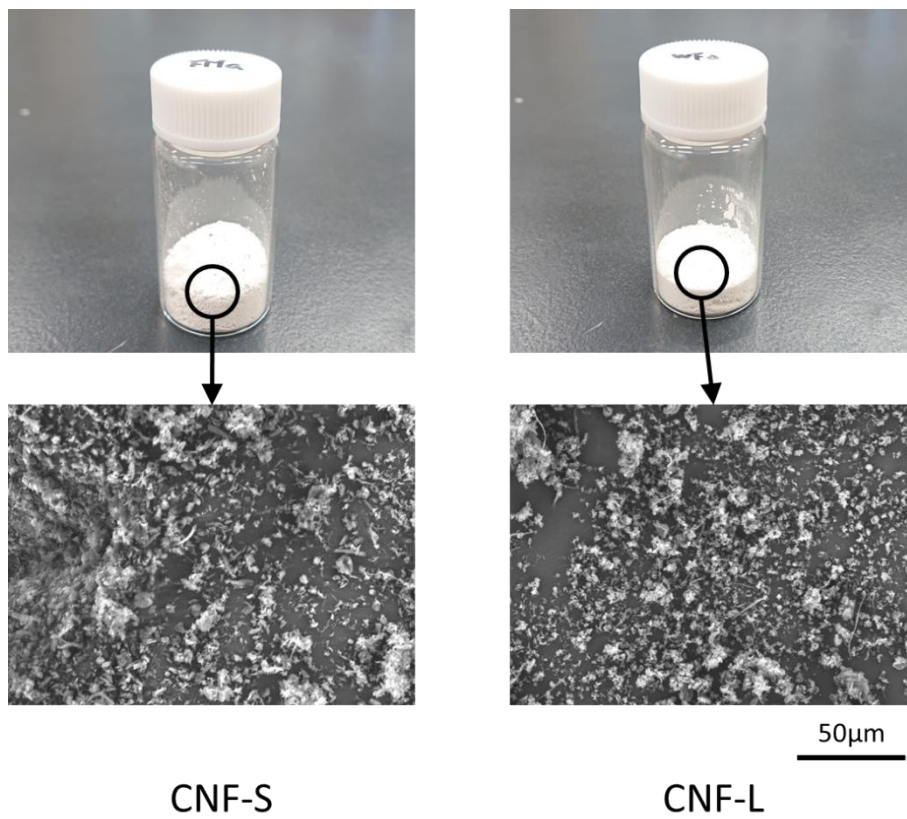


Fig. 3-1 SEM images of CNFs with different fiber length.

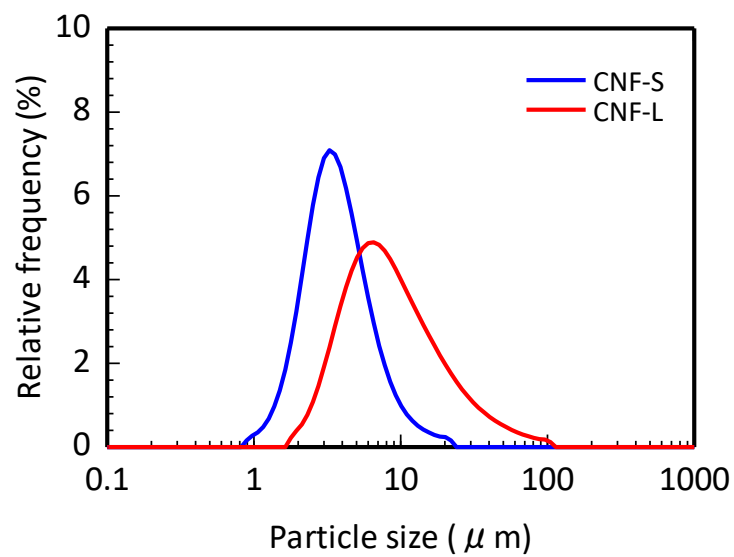


Fig. 3-2 Particle size distribution of CNFs with different fiber length dispersed in water.

3.3 試験体の製作方法

CNF/ACIL の作製は、次の手順で行った。まず、CNF 濃度 1wt% の CNF 分散液にメタクリレートモノマーおよびアクリレートモノマーの混合物を配合し、所定の CNF 濃度となるように調整した CNF/アクリルモノマー液に、有機過酸化化物と遷移金属系硬化促進剤を混合し真空脱泡した。次に、真空脱泡後の CNF/アクリルモノマー液を厚さ 2 mm の成形型に充てんし、常温常圧で重合させた後に型を除去することでシート状の硬化物を得た。CNF 分散液は、メディア攪拌型湿式超微粉碎機（ビーズミル）MSC220（日本コークス工業株式会社）を用いて作製した。分散質は CNF-S あるいは CNF-L とし、分散媒は CNF/ACIL 作製の際に用いるメタクリレートモノマーおよびアクリレートモノマーの混合物とした。また、分散条件は、ビーズ径 0.03~0.5 mm および分散時間 4~48 時間から、CNF の分散性が最も良好となる条件を見出した。以降、本章では、CNF-S を使用した CNF/ACIL を CNF-S/ACIL, CNF-L を使用した CNF/ACIL を CNF-L/ACIL, この 2 種類を特に区別しない場合を CNF/ACIL とする。

図 3-3 に 0.3wt%CNF-L/ACIL の外観写真を示す。得られた CNF-L/ACIL は、透明性のある外観を有していた。また、図 3-4 に透過型電子顕微鏡（Transmission electron microscope, TEM）を用いた CNF/ACIL の内部微視構造観察結果を示す。特殊染色を施して加速電圧 200 kV で観察すると、CNF-S/ACIL の場合はロッド状の CNF, CNF-L/ACIL の場合は長い繊維状の CNF が分散していることが確認された。

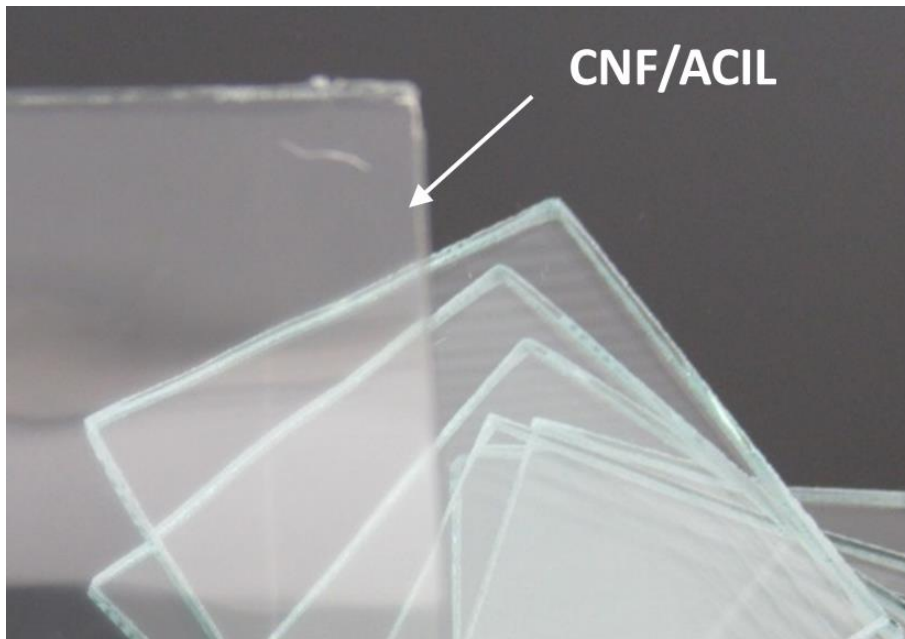


Fig. 3-3 Appearance of the 0.3wt%CNF-L/ACIL.

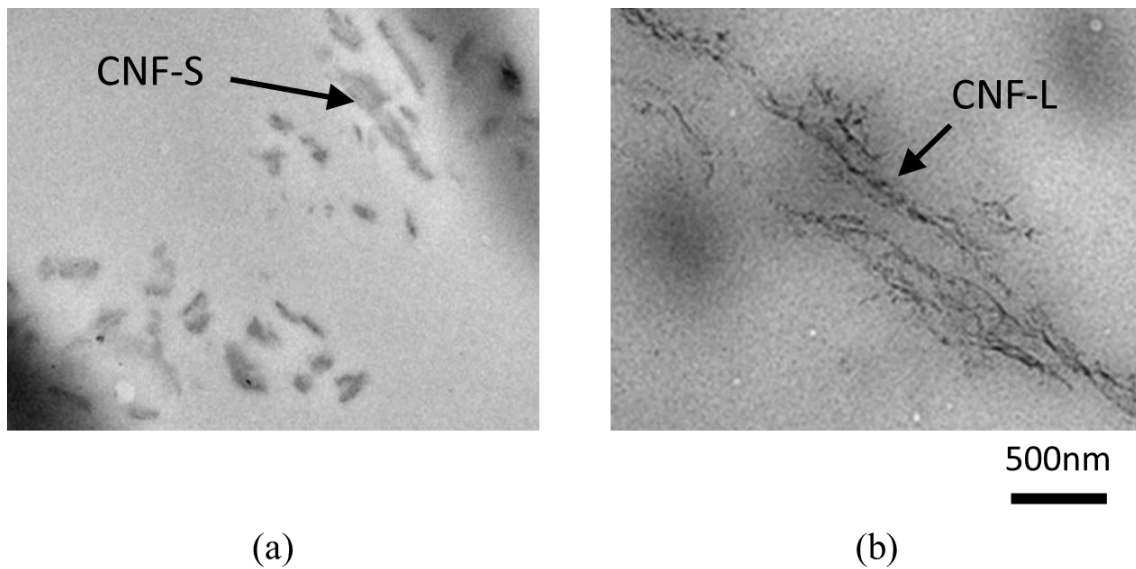


Fig. 3-4 TEM images of dispersion state of CNFs in various CNF/ACIL: (a) CNF-S/ACIL; (b) CNF-L/ACIL.

3.4 分光透過率測定

3.4.1 実験方法

CNF/ACIL の分光透過率測定は、紫外可視近赤外分光光度計 UH4150（株式会社日立ハイテクサイエンス）を用い、JIS R3106 に準拠した可視光透過率測定により評価した（図 3-5）。測定条件は、測定波長域 300～780 nm、スキャンスピード 600 nm/min、サンプリング間隔 1 nm、スリット 4 nm とした。また、検知器は直径 60 mm の標準積分球を用いた（図 3-6）。



Fig. 3-5 Appearance of ultraviolet/visible/near infrared spectrophotometer.

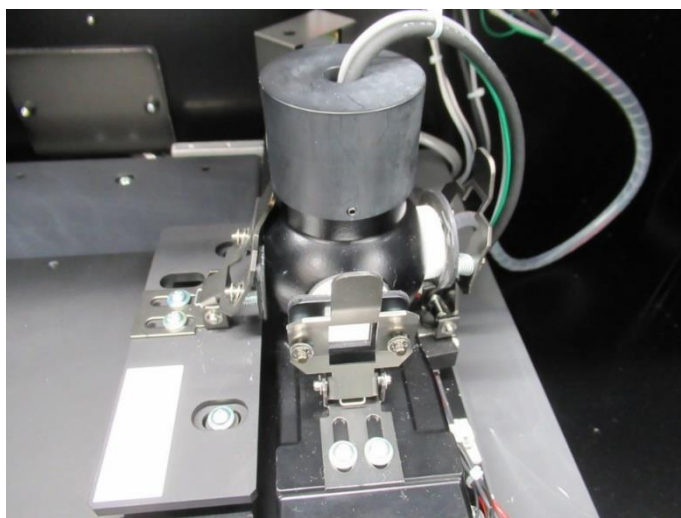


Fig. 3-6 Appearance of 60 mm integrating sphere installed in the ultraviolet/visible/near infrared spectrophotometer.

3.4.2 実験結果および考察

表 3-1 に、CNF 濃度を変化させた CNF-L/ACIL の可視光透過率を示す。CNF 濃度が増大すると、可視光透過率は減少する傾向を示したが、CNF 濃度 0～0.5wt%の範囲で 2 ポイント程度の減少であり、CNF 濃度 0.5wt%で可視光透過率 90%以上を維持しており、高い透明性を有した CNF-L/ACIL が得られた。しかし、CNF 濃度 1wt%では、CNF 濃度 0wt%と比較して 5 ポイント以上減少し、可視光透過率が 90%を下回っていることから、中間膜として要求される透明性が不十分であると考えられる。CNF 濃度増大に伴う可視光透過率の減少は、CNF と ACIL の屈折率の違いによるものと考えられる。

Table 3-1 Visible light transmittance of the CNF-L/ACIL with different CNF concentrations.

CNF concentration (wt%)	Visible light transmittance (%)
0	92.4
0.25	91.2
0.5	90.2
1	87.2

3.5 粘弾性特性評価

3.5.1 実験方法

CNF 濃度 0～0.5wt%の CNF-L/ACIL について動的粘弾性測定（Dynamic mechanical analysis, DMA）試験を行い、粘弾性特性を評価した。試験は、粘弾性測定装置 DMS6100（エスアイアイナノテクノロジー株式会社）を用いて行った。測定条件は、引張モードで周波数 1, 5, 10, 50, 100 Hz, 振幅 10 μm, 測定温度範囲-50～100°C, 昇温速度 2°C/min とした。試験片は、厚さ 2 mm のシート状に重合させた CNF-L/ACIL を、幅 6 mm, 長さ 35 mm の短冊形状に調整したものとし、チャック間距離は 10 mm とした。

3.5.2 実験結果および考察

3.5.2.1 動的粘弾性特性

図 3-7 は、CNF-L/ACIL の測定周波数 1 Hz における貯蔵弾性率 E' 、損失弾性率 E'' および損失正接 $\tan \delta$ の温度分散曲線を示したもので、CNF-L の添加量を変化させたものである。なお、 $\tan \delta$ は次式で与えられる。

$$\tan \delta = \frac{E''}{E'} \quad (3-1)$$

E' は、0°C 辺りから 50°C 辺りの領域でガラス転移に伴う急激な減少が確認され、50°C を超えた辺りからゴム状平坦領域が確認された。 E'' は、15°C 辺りから急激に減少したが、ガラス転移付近で増大するエネルギー損失に起因する明確なピークは確認されなかった。これは、ACIL が共重合体であるためと考えられる。 $\tan \delta$ は、0°C 辺りから 50°C 辺りの領域でガラス転移に伴うピークが確認された。CNF 濃度 0.3wt% の場合では、CNF 濃度 0wt% の場合と比較すると、 E' および E'' の温度分散曲線は、ガラス転移に伴う変曲領域ではやや減少する傾向を示した。CNF 濃度が増大するとさらに減少する傾向を示したが、その程度は微小であつ

た. また, $\tan \delta$ の温度分散曲線は, CNF 濃度 0.3wt% の場合は CNF 濃度 0wt% の場合よりも低温側にシフトした. これは, CNF 添加が ACIL の重合反応に影響を及ぼしたことで, 架橋点間距離が増大し, アクリル樹脂分子鎖が運動しやすい状態になったためと考えられる. しかし, $\tan \delta$ のピーク温度の低温側へのシフトは微小であるため, ACIL の重合反応に及ぼす CNF 添加の影響は小さいと考えられる.

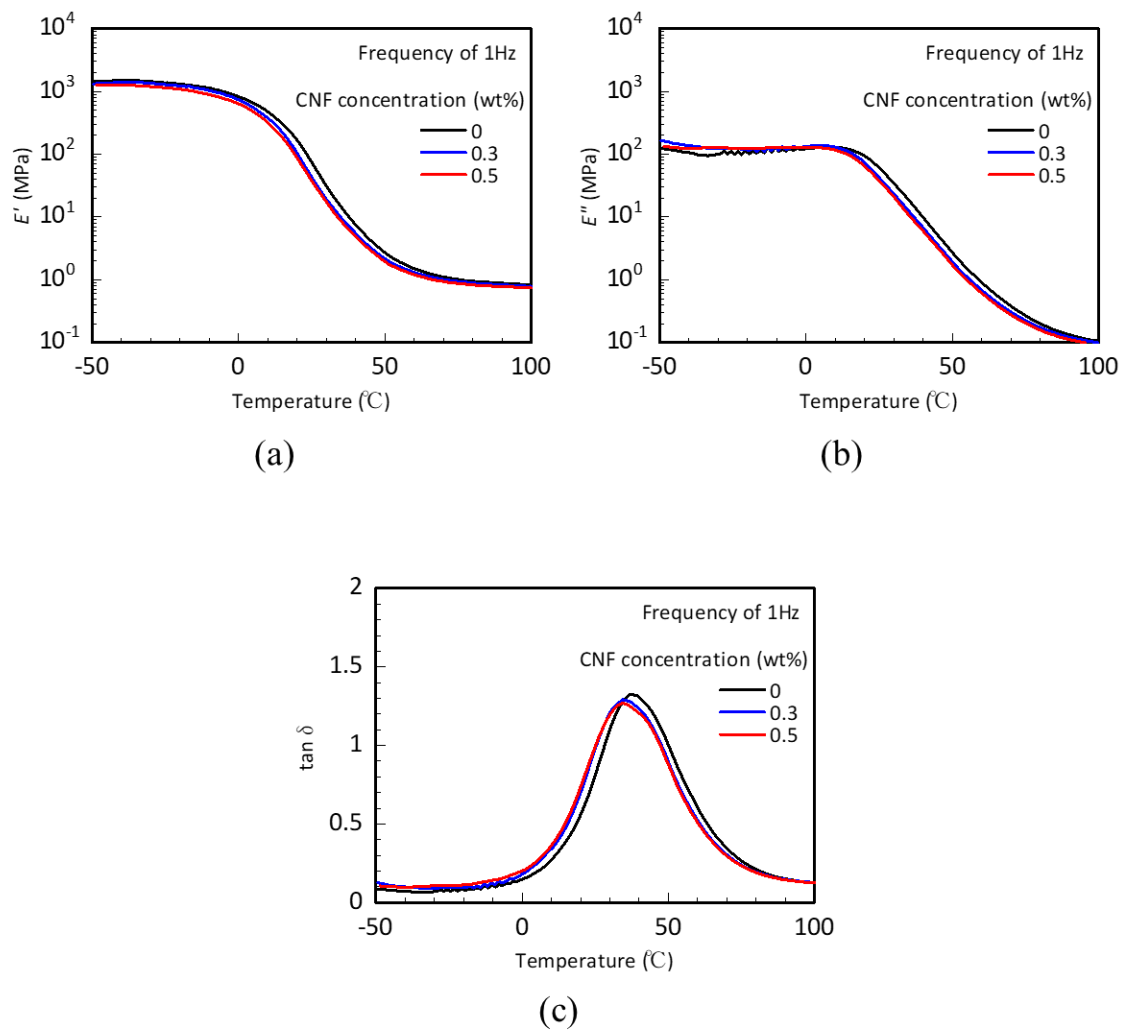


Fig. 3-7 Temperature dependence curves obtained from DMA using the neat ACIL and the CNF-L/ACIL with different CNF-L concentration at frequency of 1 Hz: (a) Storage modulus; (b) Loss modulus; (c) Loss tangent.

図 3-8 は、図 3-7 と同様のグラフを示したもので、測定周波数 100 Hz の場合である。CNF 添加に伴う E' 、 E'' および $\tan \delta$ の曲線の傾向は測定周波数 1 Hz の場合とほぼ同様であるが、1 Hz の場合で確認された変曲領域や $\tan \delta$ のピークが現れる温度領域は 100 Hz では高温側へ推移した。

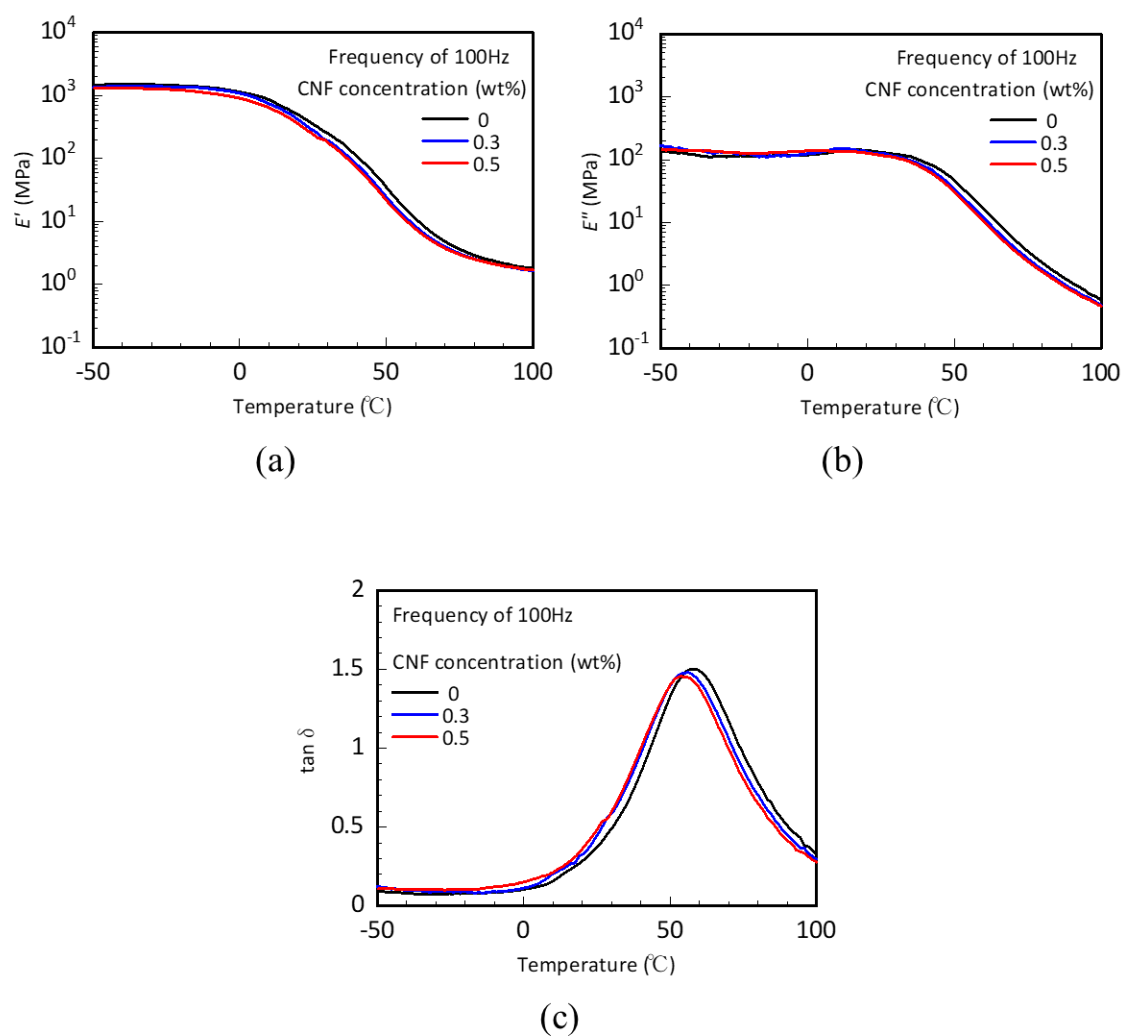
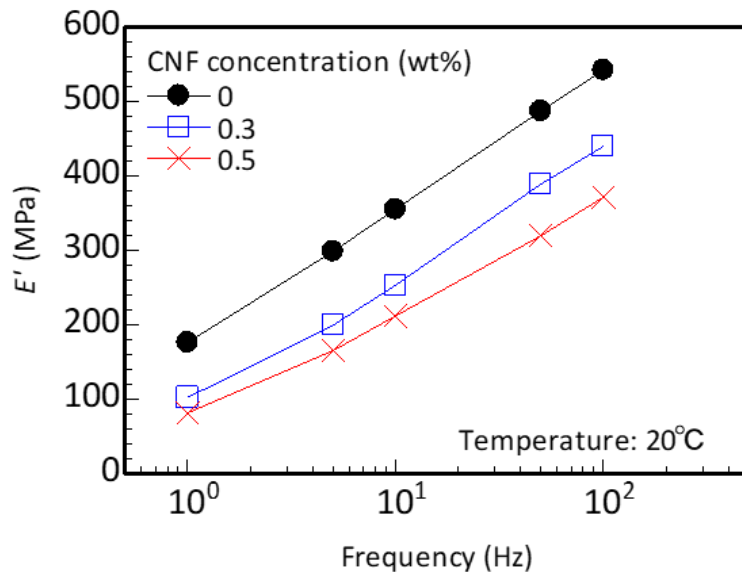
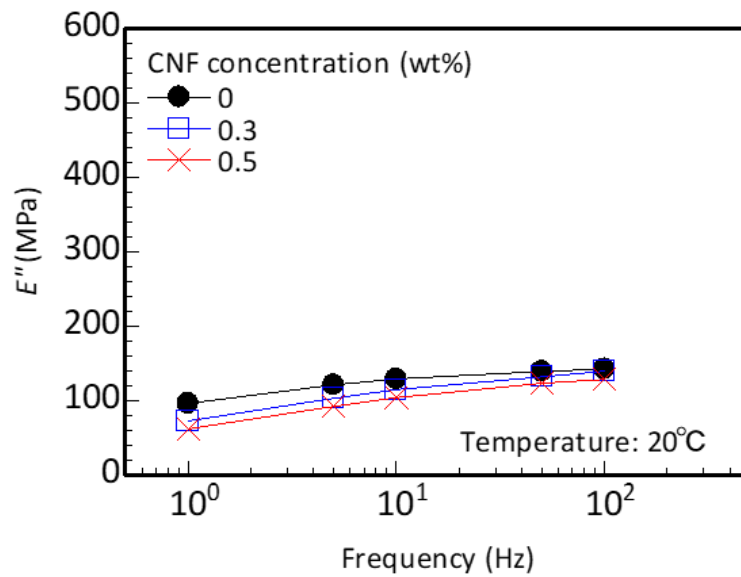


Fig. 3-8 Temperature dependence curves obtained from DMA using the neat ACIL and the CNF-L/ACIL with different CNF-L concentration at frequency of 100 Hz: (a) Storage modulus; (b) Loss modulus; (c) Loss tangent.

図 3-9 は、CNF-L/ACIL の 20°Cにおける E' 、 E'' の周波数分散曲線を示したもので、CNF-L 濃度を変化させたものである。 E' は、周波数の増大に伴い増大する傾向を示した。また、CNF 濃度が増大すると、 E' は減少し、周波数の増大に伴い、減少傾向は強くなった。 E'' は、周波数の増大に伴い少し増大したが、 E' に比べて増大傾向は弱かった。また、CNF 濃度が増大してもほとんど変わらなかった。これより、CNF-L/ACIL の E' は周波数依存性が大きく、 E'' は周波数依存性が小さい傾向を示した。また、CNF 濃度が増大しても E'' はほとんど変わらなかったことから、微小変形下においては、少量の CNF 添加は ACIL のエネルギー散逸に対してほとんど影響を及ぼさないと考えられる。



(a)



(b)

Fig. 3-9 Frequency dependence curves obtained from DMA using the neat ACIL and the CNF-L/ACIL with different CNF-L concentration at temperature of 20°C: (a) Storage modulus; (b) Loss modulus.

3.5.2.2 時間－温度換算則による高周波数域の推定

DMA 試験で得られた結果が温度と時間（周波数）に依存性を示す場合，一般的には，時間 - 温度換算則が適用できる．時間 - 温度換算則は，時間と温度スケールに等価性があり，ある温度における時間スケールの粘弾性特性は，異なる温度においては異なる時間スケールの粘弾性特性に対応する．種々の温度で測定された粘弾性特性の周波数分散データを移動因子（シフトファクター）によって，時間軸上で平行移動することにより，非常に広い時間範囲にわたる合成曲線（マスターカーブ）が得られることが経験的に確認されており，M. L. Williams, R. F. Landel, J. D. Ferry によって具体的な関数として提案されている⁽⁶⁾．シフトファクター a_T は次式で与えられる．

$$\log a_T = -\frac{C_1(T-T_0)}{C_2+T-T_0} \quad (3-2)$$

ここで， T は温度， T_0 は基準温度， C_1 ， C_2 は係数である．これは，Williams-Landel-Ferry (WLF) 式と呼ばれ，非晶性ポリマーの場合，ガラス転移温度 T_g から T_g より 100°C 程度の高温の範囲でよく成立するとされている．

図 3-10 は，測定温度 $-10\sim 50^\circ\text{C}$ における周波数分散測定結果から式(3-2)を用いて得られた E' ， E'' のマスターカーブ ($T_0=20^\circ\text{C}$) で，CNF の濃度を変化させたものである．なお，表 3-2 に各 CNF 濃度のマスターカーブに適用した C_1 および C_2 の値を示す． E' は，周波数が増大すると増大し，CNF 濃度 0.3 および 0.5wt% の場合は，CNF 濃度 0wt%の場合に近づく傾向を示した． E'' は，周波数が増大してもほぼ横ばいに推移し，CNF 濃度が増大してもほとんど変わらなかった．後述する G/PC 積層安全ガラスを対象とした落錘衝撃試験では，加撃体衝突時における加撃体速度は約 3 m/s であり，DMA 試験を行ったと仮定した場合，試験片を固定しているつかみ具の 1 波長当たりの移動量は振幅の 4 倍となるため，振幅を 10 μm とすると，周波数 f は以下となる．

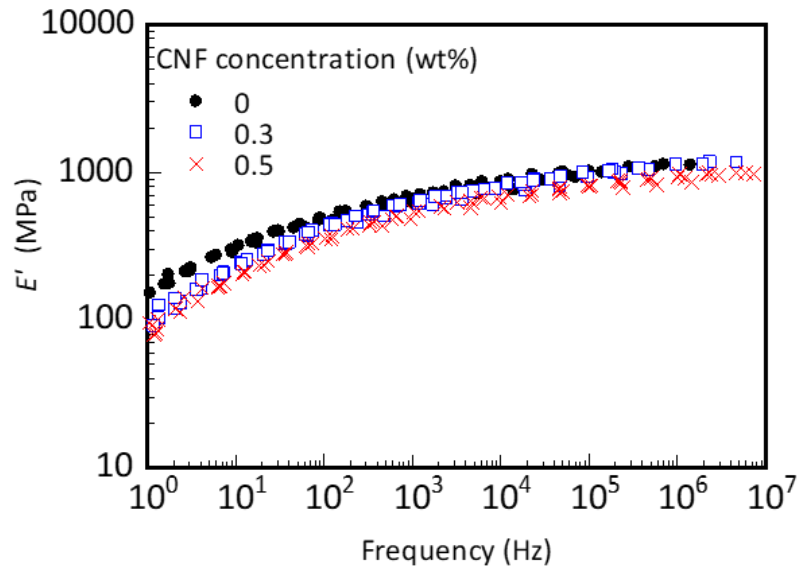
$$f = \frac{3}{4 \times 10 \times 10^{-6}} = 7.5 \times 10^4 \quad (3-3)$$

これより， E'' のマスターカーブにおける周波数 10^5 Hz 付近では，CNF 濃度 0.5wt%

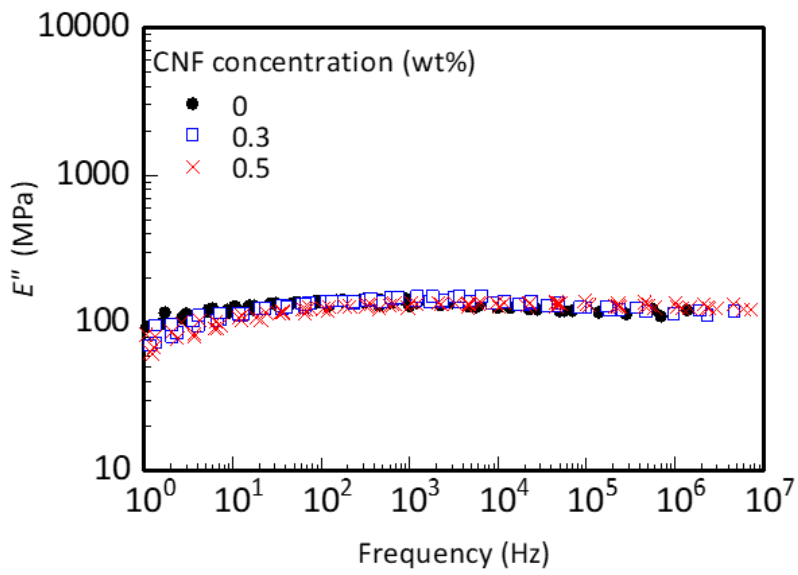
の場合と CNF 濃度 0wt%の場合でほぼ同等であった。これより、CNF の少量添加の場合、微小変形下における高ひずみ速度の場合のエネルギー散逸の程度はほとんど変化しないと考えられる。

Table 3-2 Values of C_1 and C_2 applied to WLF equation for the neat ACIL and the CNF-L/ACIL with different CNF-L concentration.

CNF concentration (wt%)	C_1	C_2
0	13	58
0.3	14	60
0.5	16	64



(a)



(b)

Fig. 3-10 Master curves obtained from WLF equation based on time-temperature superposition principle for the neat ACIL and the CNF-L/ACIL with different CNF-L concentration: (a) Storage modulus; (b) Loss modulus.

3.6 引張特性評価

3.6.1 実験方法

CNF 濃度 0~0.5wt%の CNF/ACIL の引張試験を行い，引張特性を評価した．引張試験は，精密万能試験機 AG-X plus 50kN（株式会社島津製作所）を用いて行い，ロードセルは最大容量 5 kN（SLBL-5kN）のものを使用した（図 3-11）．試験方法は，JIS K6251⁽⁷⁾に準拠した．試験片は，3.3 節で作製した CNF/ACIL を既定の形状に打ち抜いたものとした．試験片形状はダンベル状 5 号形とし，平行部の標線間距離は 25 mm，試験片のつかみ具間距離は 85 mm とした．また，クロスヘッド速度は 500 mm/min とし，試験温度は 20°C とした．試験回数は 5 とした．標線間の伸びは，ビデオ式非接触伸び幅計 TRViewX240S（株式会社島津製作所）を使用し，試験片平行部の標線部にマーカーを設置して測定した（図 3-12）．



Fig. 3-11 Appearance of universal testing machine.

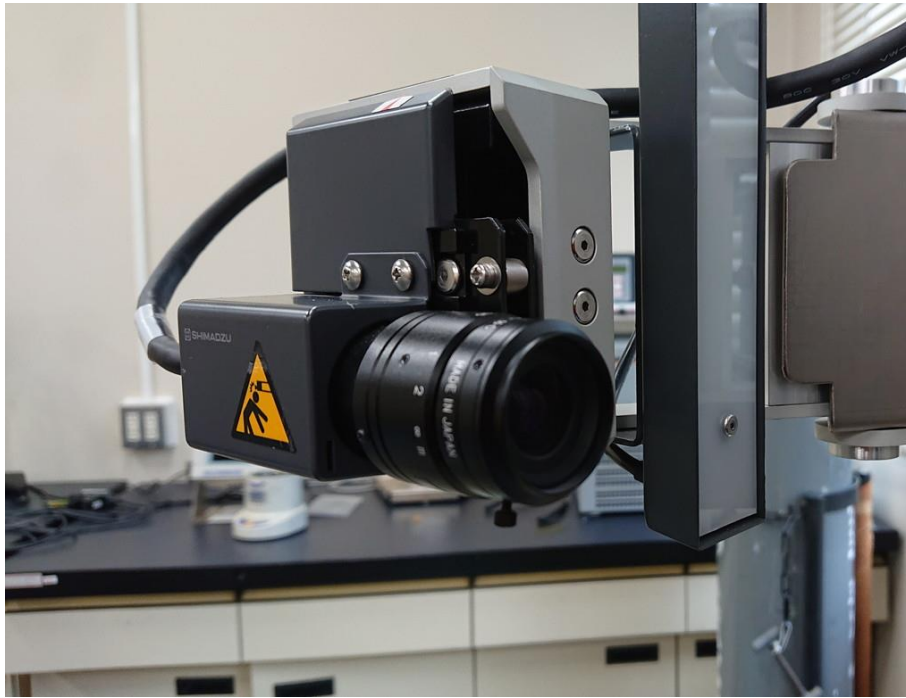
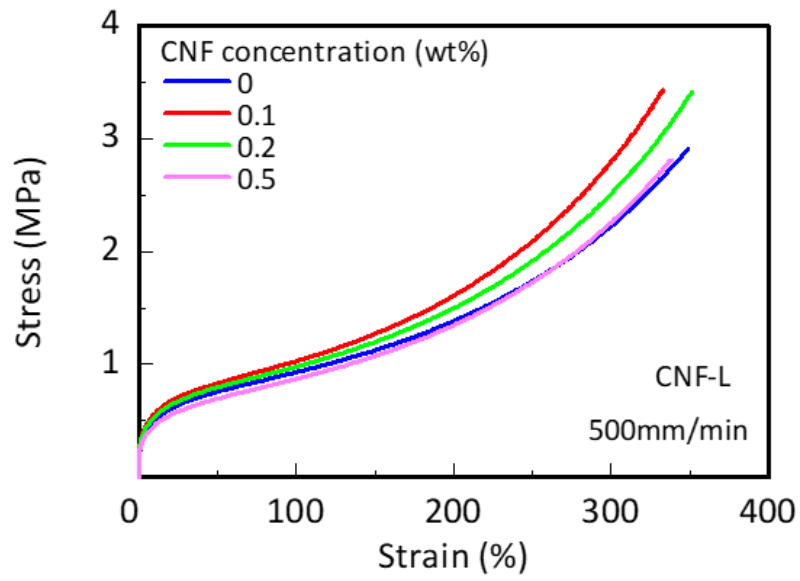


Fig. 3-12 Appearance of non-contact digital video extensometer.

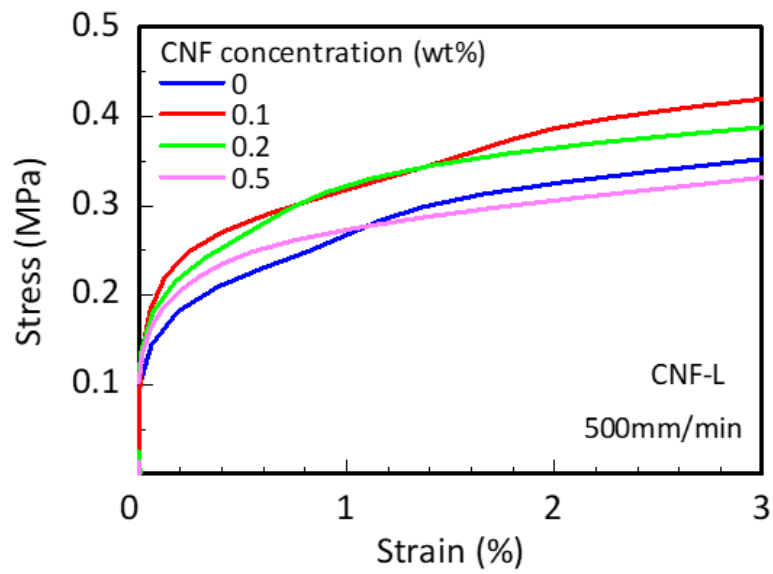
3.6.2 実験結果および考察

図 3-13 は、引張試験で得られた CNF-L/ACIL の応力 - ひずみ曲線を示したもので、CNF 濃度 0, 0.1, 0.2, 0.5wt%において、破断応力の平均値に近い破断応力を示す曲線を比較している。なお、(a)は破断まで、(b)は 3%ひずみまでの範囲を示している。応力は、初期ひずみ領域で急激に増大した後、緩やかに増大し、破断付近で増大傾向が強くなる挙動を示した。この挙動は、ゴムの引張挙動に類似している⁽⁸⁾。CNF 濃度 0wt%の場合と比較すると、CNF 濃度 0.1wt%の場合では、低ひずみ領域から破断に至るまで CNF 濃度 0wt%よりも高い応力を示し、特に高ひずみ領域においては、曲線の傾きが増大する傾向を示した。CNF 濃度 0.2wt%の場合は、CNF 濃度 0wt%の場合よりも高い応力を示し、CNF 濃度 0.1wt%の場合と同様に高ひずみ領域においては曲線の傾きが増大する傾向を示した。CNF 濃度 0.5wt%の場合では、低ひずみ領域では CNF 濃度 0wt%よりもやや低い応力で推移したが、ひずみが約 250%に達した辺りで、応力は逆転した。すなわち、CNF 濃度 0.1wt%や CNF 濃度 0.2wt%の場合と同様に、高ひずみ領域においては CNF 濃度 0wt%の場合よりも曲線の傾きが増大する傾向を示した。しかし、CNF 濃度 0.1wt%の場合と CNF 濃度 0.5wt%の場合を比較すると、応力は CNF 濃度 0.5wt%の方が全ひずみ域において CNF 濃度 0.1wt%よりも減少する傾向を示した。

(b)に示す初期のひずみ領域では、応力-ひずみ曲線の立ち上がりが急激で非線形性が強く、弾性率の算出は困難であるが、0~0.2%ひずみ領域の曲線の傾きに注目すると、CNF が添加された場合は、CNF 濃度 0wt%の場合よりも、やや大きい傾向を示しており、特に CNF 濃度 0.1wt%の場合は顕著に大きくなっている。



(a)



(b)

Fig. 3-13 Stress-strain curves of the neat ACIL and the CNF-L/ACIL with different CNF concentration (crosshead speed of 500 mm/min): (a) Strain region from 0% to failure; (b) Strain region from 0% to 3%.

図 3-14 は、CNF-L/ACIL の応力 - ひずみ曲線の 20%ひずみ時の応力を示したもので、CNF 濃度を変化させた場合である。CNF 濃度 0wt%の場合と比較すると、CNF 濃度 0.1wt%では約 6%増大した。CNF 濃度が 0.1wt%よりも増大すると応力は単調に減少する傾向を示し、CNF 濃度 0.5wt%では、CNF 濃度 0wt%の場合よりも応力は約 13%減少した。

図 3-15 は、図 3-14 と同様なグラフであり、300%ひずみ時の応力を示している。300%の高ひずみ領域では、CNF 濃度 0wt%の場合と比較すると、応力は CNF 濃度 0.1wt%で約 15%増大した。CNF 濃度が 0.1wt%よりも増大すると応力は単調に減少する傾向を示し、CNF 濃度 0.5wt%では、CNF 濃度 0wt%の場合よりも応力は約 2%減少した。この傾向は 20%ひずみ時と同様であるが、その変化の割合は増大した。

以上より、低ひずみ領域では、応力に及ぼす CNF 添加の影響は小さいが、高ひずみ領域では、少量の CNF 添加によって応力が増大するものの、CNF 濃度が増大すると応力は減少する傾向を示した。屋代らは、非晶性ポリマーの引張変形に関する分子動力学解析を行い、分子鎖の運動挙動が発生する応力へ影響を及ぼすことを報告しており⁹⁾、CNF/ACIL においても同様の挙動が示されているものと考えられる。CNF/ACIL を構成するアクリル樹脂の分子鎖は複雑にからみ合った構造であると推測されるが、低ひずみ領域では、分子鎖のからみ合い点が疑似的な架橋点となり、初期ひずみによって応力は急激に増大する。CNF は、このからみ合い構造の中にランダムに配向した状態で少量存在しているため、ほとんど応力に影響を及ぼさないものと考えられる。高ひずみ領域では、アクリル樹脂の分子鎖が配向し応力が増大する。また、分子鎖と同様に CNF も配向するため、応力の増大傾向が強くなったと考えられる。しかし、CNF 濃度が増大すると、CNF の存在により、アクリル樹脂分子鎖の配向を阻害する作用が生じるとともに、CNF の相互干渉で CNF 自体も配向しにくくなるため、応力が減少すると考えられる。

3.5 節でも述べたように、CNF 添加が ACIL の重合反応へ微小ながら影響を及ぼしていると考えられることから、CNF 添加による剛性の変化は、アクリル樹脂分子鎖の架橋点間距離とアクリル樹脂分子鎖および CNF の配向のバランスによって決定されると考えられる。すなわち、CNF 添加による ACIL の剛性の増大は、その濃度に最適値があることが示唆される。

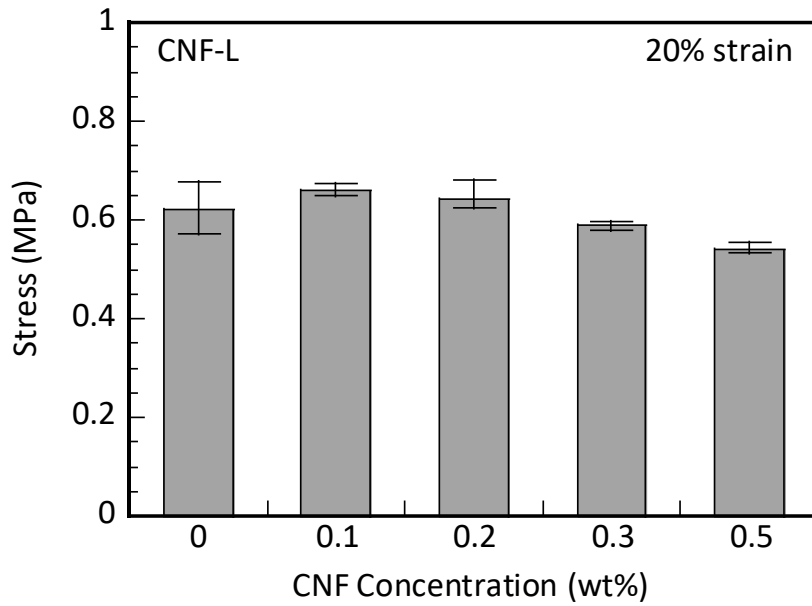


Fig. 3-14 Stresses at 20% strain of the neat ACIL and the CNF-L/ACIL with different CNF concentration obtained from tensile tests (crosshead speed of 500 mm/min).

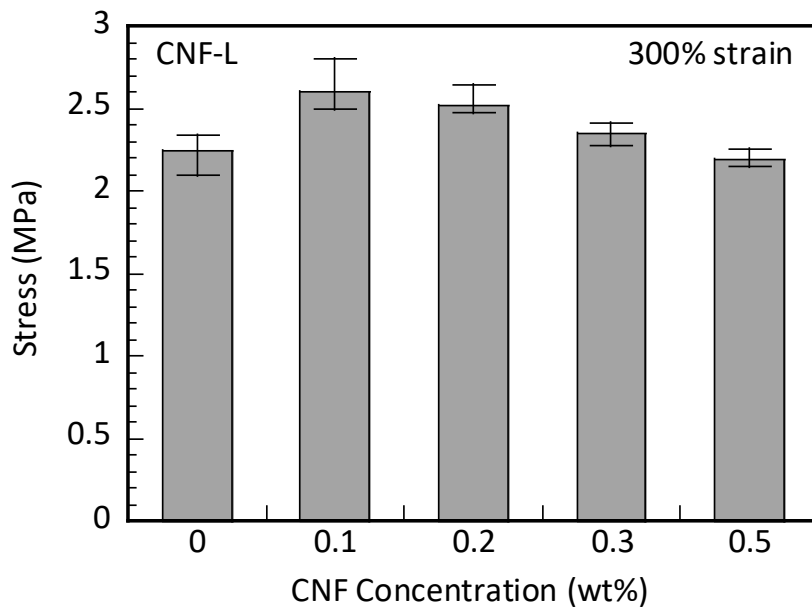
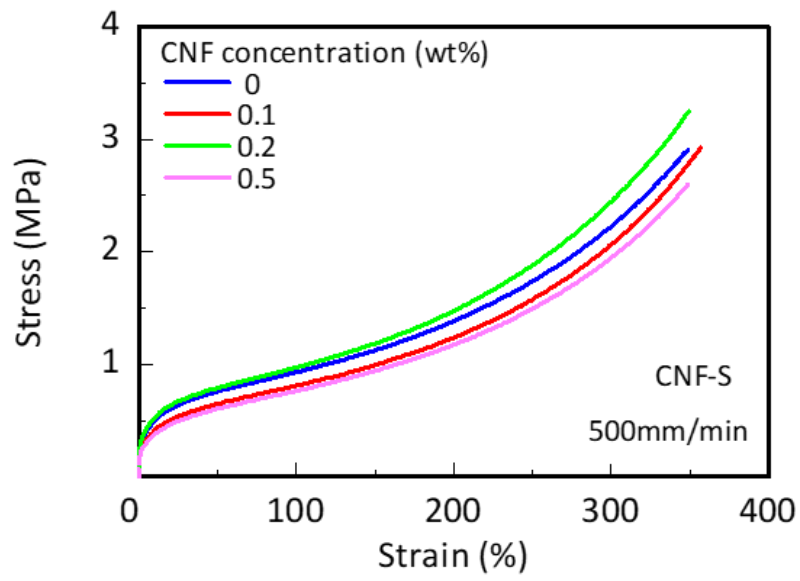


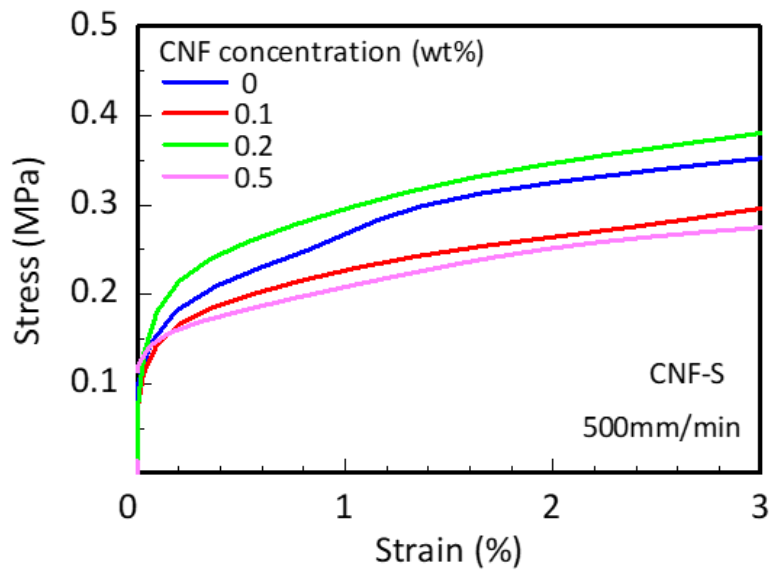
Fig. 3-15 Stresses at 300% strain of the neat ACIL and the CNF-L/ACIL with different CNF concentration obtained from tensile tests (crosshead speed of 500 mm/min).

図 3-16 は、図 3-13 と同様のグラフで、CNF-S/ACIL の場合の応力 - ひずみ曲線である。CNF-L/ACIL の場合と同様に、応力は、初期ひずみ領域で急激に増大した後、緩やかに増大し、破断付近で増大傾向が強くなった。CNF 濃度 0wt% の場合と比較すると、CNF 濃度 0.1wt% の場合では、低ひずみ領域から破断に至るまで CNF 濃度 0wt% よりも低い応力を示した。CNF 濃度 0.5wt% の場合は、CNF 濃度 0.1wt% よりも低い応力で推移した。一方、CNF 濃度 0.2wt% の場合では、低ひずみ領域から破断に至るまで CNF 濃度 0wt% よりも高い応力を示した。

(b) に示す初期のひずみ領域では、CNF-L/ACIL の場合と同様に、応力 - ひずみ曲線の立ち上がりが急激で非線形性が強く、弾性率の算出は困難であるが、0～0.2% ひずみ領域の曲線の傾きに注目すると、CNF 濃度 0wt%、CNF 濃度 0.1wt%、CNF 濃度 0.5wt% の結果はほぼ同様であるのに対し、CNF 濃度 0.2wt% の結果はそれらよりもやや大きい傾向を示した。



(a)



(b)

Fig. 3-16 Stress-strain curves of the neat ACIL and the CNF-S/ACIL with different CNF concentration (crosshead speed of 500 mm/min): (a) Strain region from 0% to failure; (b) Strain region from 0% to 3%.

図 3-17 は、CNF-S/ACIL の応力 - ひずみ曲線の 20%ひずみ時の応力を示したもので、CNF 濃度を変化させた場合である。CNF 濃度 0wt%の場合と比較すると、CNF 濃度 0.1wt%では約 17%減少し、CNF 濃度 0.2wt%では約 3%増大した。さらに CNF 濃度が増大すると応力は減少する傾向を示し、CNF 濃度 0.5wt%では、CNF 濃度 0wt%の場合よりも約 24%減少した。

図 3-18 は、図 3-17 と同様なグラフであり、300%ひずみ時の応力を示している。300%の高ひずみ領域では、CNF 濃度 0wt%の場合と比較すると、応力は CNF 濃度 0.1wt%で約 7%減少し、CNF 濃度 0.2wt%では約 10%増大した。さらに CNF 濃度が増大すると応力は減少する傾向を示し、CNF 濃度 0.5wt%では、CNF 濃度 0wt%の場合よりも約 13%減少した。この傾向は 20%ひずみ時と同様であるが、その変化の割合は CNF 濃度 0.2wt%の場合のみ増大し、その他の CNF 濃度の場合では減少した。

以上より、CNF-L/ACIL の場合と同様に剛性が増大する CNF 濃度には最適値があると考えられるが、その最適値は CNF-L/ACIL の場合よりも CNF 濃度が大きい範囲にあることが示唆される。また、CNF-S/ACIL では、CNF 濃度 0.2wt%以外の CNF 濃度の場合で高ひずみ領域での顕著な応力の増大は認められなかったことから、CNF の繊維長が長い方が高ひずみ領域におけるアクリル樹脂分子鎖及び CNF の配向に伴う応力の増大が発現しやすいと考えられる。

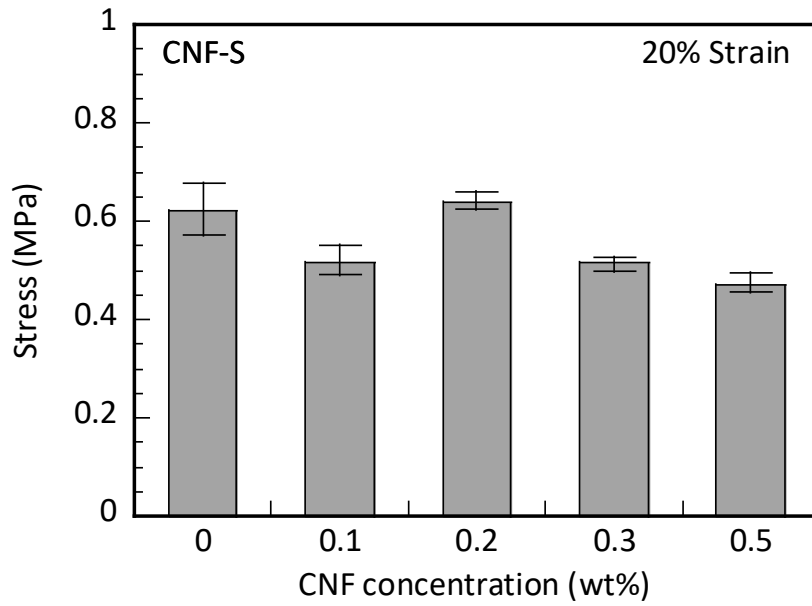


Fig. 3-17 Stresses at 20% strain of the neat ACIL and the CNF-S/ACIL with different CNF concentration obtained from tensile tests (crosshead speed of 500 mm/min).

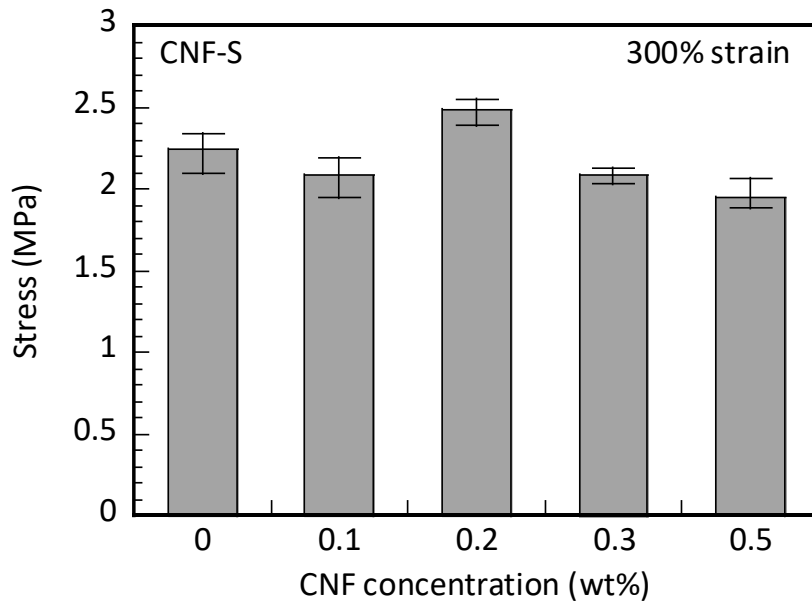


Fig. 3-18 Stresses at 300% strain of the neat ACIL and the CNF-S/ACIL with different CNF concentration obtained from tensile tests (crosshead speed of 500 mm/min).

3.7 セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜の微視的構造が及ぼす力学特性への影響

3.7.1 解析方法

CNF/ACIL の引張特性に関する有限要素解析は、Digimat-FE (MSC ソフトウェア) を用いて、図 3-19 に示す直角座標系 (x, y, z) における代表体積要素 (Representative volume element, RVE) モデルを作成し、単軸引張の条件下で行った。RVE モデルは、アクリル樹脂中に CNF が重なり合うことなくランダムに分散した微視構造を考慮し、アクリル樹脂と CNF の界面は完全に接着していると仮定した。CNF は、線形弾性体とし、密度 1.5 g/cm^3 、ヤング率 $140 \text{ GPa}^{(10)}$ 、ポアソン比 0.3 とした。また、繊維形状はうねりのない直径 20 nm の円柱状とし、充てん量は $0 \sim 5\text{wt}\%$ とした。実験で用いた CNF のアスペクト比は 500 以上であったが、RVE モデルにおいてアスペクト比 500 でランダム配向とした場合、RVE モデルのサイズが著しく大きくなり、要素分割が非常に困難となったため、今回は RVE モデルが作成できる範囲で、アスペクト比を $5 \sim 15$ と変化させた。アクリル樹脂は、超弾性体とし、密度 1.2 g/cm^3 、Mooney-Rivlin 材料モデルを適用した。Mooney-Rivlin 材料モデルは、横弾性係数 G を A と B のパラメータで $G = 2(A+B)$ と表現できるが、今回の解析では、 $A = 0 \text{ MPa}$ 、 $B = 5 \text{ MPa}$ とした。境界条件は、RVE モデルのすべての面において周期対称性を考慮した。また、静的荷重により x 方向垂直ひずみが 20% となるように設定した。要素分割における要素形状は四面体とした。

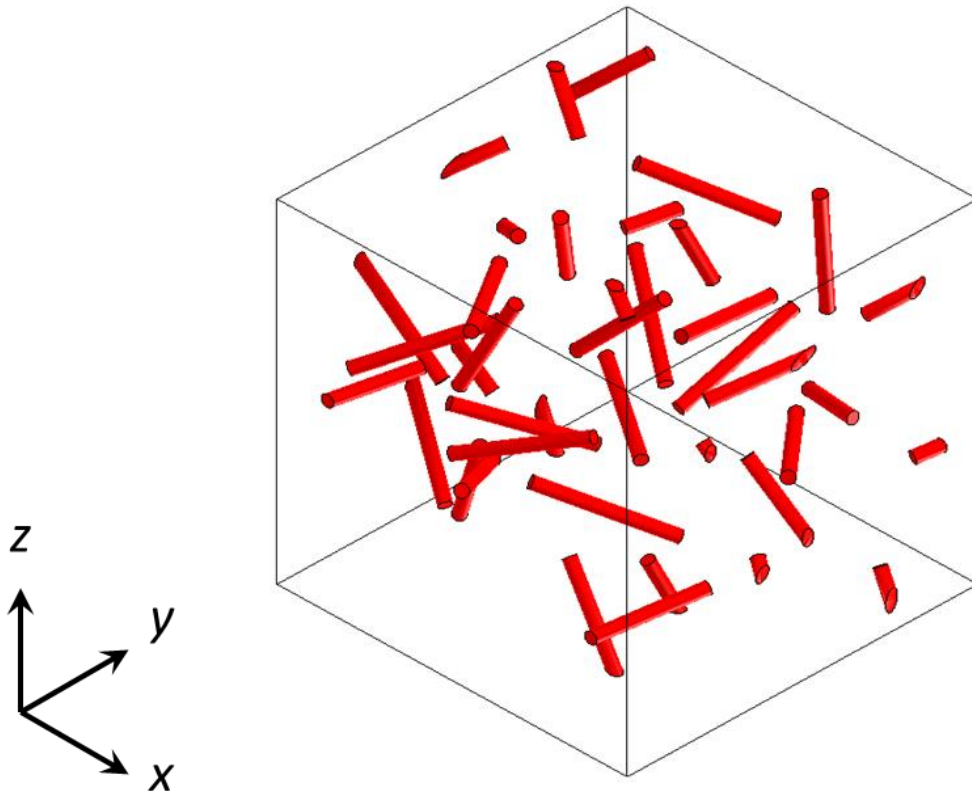


Fig. 3-19 RVE model of the CNF/ACIL.

3.7.2 解析結果および考察

図 3-20 は、CNF のアスペクト比を 10 とした場合の応力 - ひずみ曲線を示したもので、CNF 濃度を変化させた場合である。CNF 濃度 0wt%から 0.1wt%に変化しても低ひずみ領域から 20%ひずみにおいてはほぼ同等の結果を示した。1wt%の場合では、低ひずみ領域における応力は CNF 濃度 0wt%および CNF 濃度 0.1wt%の場合とほぼ同様の推移を示したが、曲線の傾きが少し大きくなっており、20%ひずみにおける応力は少し増大した。CNF 濃度 5wt%の場合では、低ひずみ領域から曲線の傾きが大きくなり、20%ひずみにおける応力は顕著に増大した。このことから、CNF/ACIL における CNF 添加量の増大は応力に影響を与えるが、CNF アスペクト比 10 の場合においては、CNF 濃度 0.1wt%程度の比較的少量の場合ではほとんど影響はなく、CNF 濃度の増大に伴い応力の増大が顕著に表れることが明らかとなった。

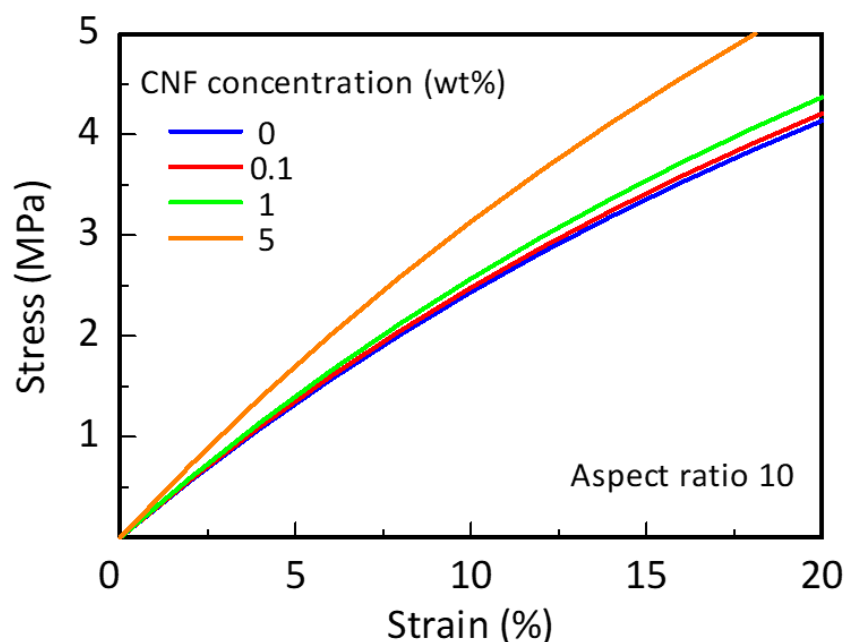


Fig. 3-20 Effect of CNF concentration on the predicted stress-strain curves for the CNF/ACIL with CNF aspect ratio of 10.

図 3-21 は、CNF 濃度 1wt%における応力 - ひずみ曲線を示したもので、CNF のアスペクト比を変化させた場合である。前述の通り、CNF 濃度 0wt%と比較すると、CNF 濃度 1wt%では、アスペクト比に関わらず 20%ひずみにおける応力は少し増大した。また、アスペクト比が 5 から 15 に変化するとともに、20%ひずみにおける応力は僅かではあるが、増大傾向であった。これより、CNF 濃度 1wt% の場合では、CNF のアスペクト比の影響は小さいことが明らかとなった。しかしながら、実験で使用した CNF のアスペクト比は、長繊維長のもので 500 以上であるため、実際には 20%ひずみにおける応力に対する CNF 濃度の影響はもう少し顕著に発現すると推測する。すなわち、CNF 濃度が 1wt%以下であっても、CNF のアスペクト比が非常に大きい場合には、CNF 添加による応力の増大がある程度顕著に発現することが示唆される。

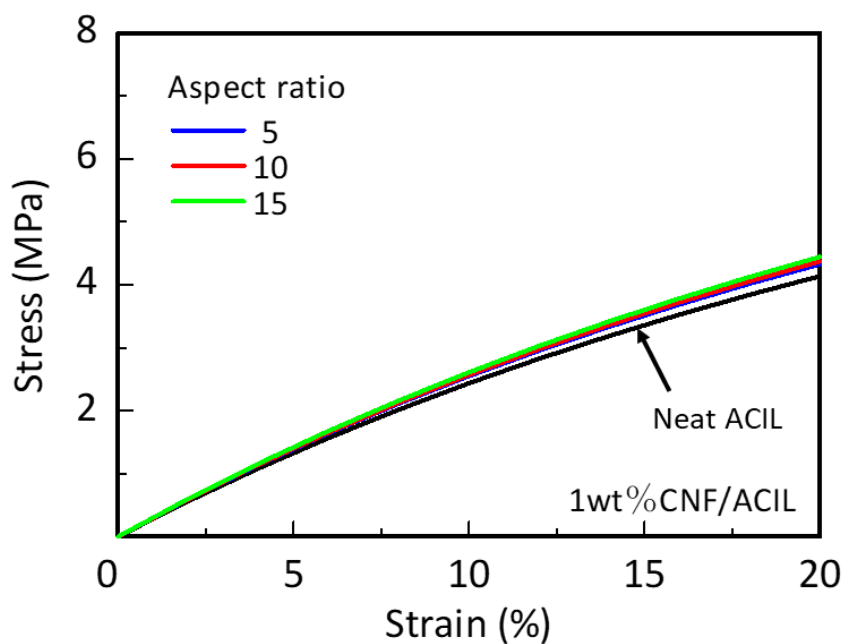


Fig. 3-21 Effect of CNF aspect ratios on predicted stress-strain curves for the 1wt%CNF/ACIL.

図 3-22 は、図 3-21 と同様のグラフであり、CNF 濃度 5wt% の場合である。アスペクト比 5 の場合には、Neat ACIL と比較すると低ひずみ領域から傾きが大きく推移し、20%ひずみにおける応力は顕著に増大した。アスペクト比が 10 に変化すると、応力はさらに増大した。これより、CNF 添加量 5wt% の場合には、応力-ひずみ曲線において CNF のアスペクト比の影響が大きくなることが明らかとなった。

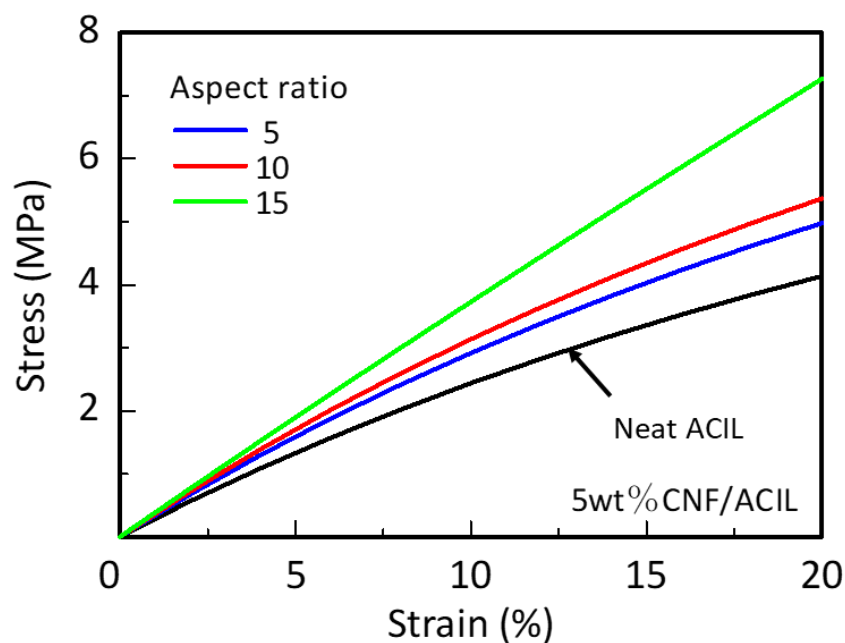


Fig. 3-22 Effect of CNF aspect ratios on predicted stress-strain curves for the 5wt%CNF/ACIL.

以上のように、CNF と ACIL の界面が完全に接着していると仮定した場合は、CNF 濃度の増大あるいは CNF のアスペクト比が増大すると、20%ひずみにおける応力は増大し、特に、CNF 濃度が 1wt%を超えると顕著に増大する傾向を示した。これは、CNF と ACIL の界面が完全接着することによって、CNF/ACIL 内部に生じる応力のうち、より剛性のある CNF が受け持つ荷重が増大したためであると考えられる。また、アスペクト比が増大した場合は、1 本の CNF が存在する範囲が拡大するため、CNF/ACIL にかかる荷重をより広い範囲で受け持つことができるため応力が増大したものと考えられる。実験結果では、アスペクト比の増大によって剛性が増大しやすいことが示されたが、解析結果においても同様の傾向であり、定性的に一致している。今回の解析では CNF と ACIL の弾性特性のみで評価しているが、実際の CNF/ACIL では、CNF を起点とする微視破壊等の複雑な破壊挙動を示すと考えられる。

3.8 セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜を用いたガラス ／ポリカーボネート積層安全ガラスの耐衝撃性

3.8.1 実験方法

CNF-L/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスを対象に落錘衝撃試験を行い、耐衝撃性を評価した。試験体の製作は、厚さ 5 mm のガラスと厚さ 5 mm の PC との間に 2 mm の厚さで 3.3 節と同様の手順で作製した CNF-L/アクリルモノマー液を充てんし、常温常圧で硬化させて G/PC 積層安全ガラスとした。試験は、図 3-23 に示す落錘型衝撃試験機（株式会社エス・テック）を用いて行った。本試験機は、支柱の内側に設置された 2 本のガイドシャフトによって加撃体が連結されており、試験体への衝突時の加撃体の衝突位置と姿勢が高精度に一定となるような構造となっている。加撃体は、質量 112 kg として、任意の高さからの自由落下により、所定の衝撃エネルギーで試験体中央部に衝突させた。加撃体の先端形状は、図 3-24 に示すように、マシニングセンタの安全性を評価するための衝撃試験方法を規定した EN12417 付属書 A⁽¹⁾に準拠した。試験体の寸法は 500 × 500 mm とし、4 辺それぞれの端部より 25 mm の領域を試験体支持枠に挟み込むことで試験体を固定した。試験体への加撃はガラス面側とし、加撃回数は 1 回とした。加撃体の衝撃エネルギー U は、重力加速度 g 、加撃体質量 m および加撃体高さ h とすると次式で表される。

$$U = mgh \quad (3-4)$$

耐衝撃性評価は次の方法で行った。まず、初期の衝撃エネルギーを 350 J として式(3-4)より算出された加撃体高さに設定して初回の試験を行い、試験体の衝撃破壊状態を観察した。貫通き裂（一方の表面からもう一方の表面まで目に見えるき裂）もしくは加撃体の明確な貫通があった場合には衝撃エネルギーを減少させ、座屈やふくらみ（き裂のない恒久的な変形）もしくは初期き裂（表面上のみ見えるき裂）があった場合には衝撃エネルギーを増大させて、新たな試験体を使用して次の試験を行った。このように衝撃試験と衝撃破壊状態の観察を繰り返すことにより、加撃体の貫通時の衝撃エネルギーと未貫通時の衝撃エネルギーを見出し、1 回でも加撃体が貫通した時の衝撃エネルギーを臨界衝撃エネルギー

とした。



Fig. 3-23 Appearance of drop-weight impact tester.

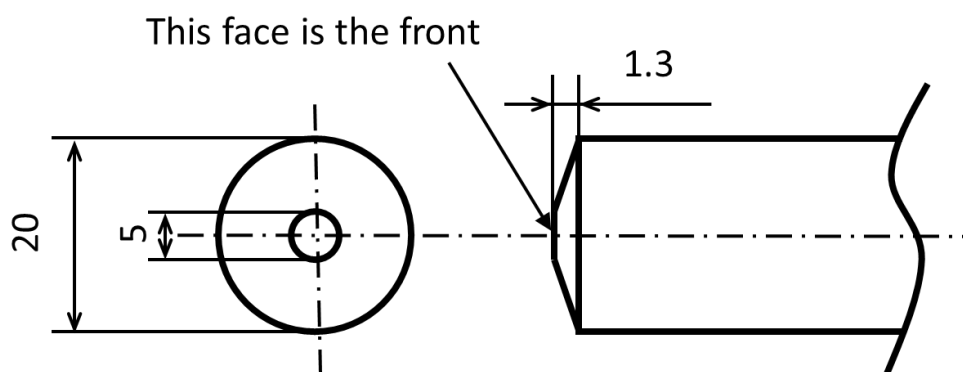


Fig. 3-24 Shape of tip on the impactor.

3.8.2 実験結果および考察

図 3-25 に CNF-L/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスにおける落錘衝撃試験結果を示す。図中、●は加撃体が未貫通の結果、×は加撃体が貫通の結果を示しており、これらの個数は試験回数を表している。また、実線は臨界衝撃エネルギーを示している。CNF 濃度 0wt% から 0.5wt% の範囲では CNF 濃度の増大に伴い、臨界衝撃エネルギーは増大した。臨界衝撃エネルギーの増大は、耐衝撃性の向上を意味することから、ACIL へ CNF を添加することによって、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性は向上することが明らかとなった。一方、CNF 濃度が 0.5wt% から 1wt% に増大すると、臨界衝撃エネルギーは 0wt% の場合よりも減少した。各構成部材が接着されていることから、加撃体の衝突による中間膜の変形は、PC の変形と同程度であるため、図 3-15 で注目した 300% ひずみのような大変形ではなく、図 3-14 で注目した 20% ひずみ程度の変形であると考えられる。従って、図 3-14 で示したように、CNF 添加による応力の変化が微小であることを考慮すると、CNF 添加による臨界衝撃エネルギーの増大は、中間膜の弾性特性の変化によるものではなく、CNF とアクリル樹脂界面での内部摩擦や CNF を起点とする微小な破壊等によるエネルギー散逸の効果によるものと考えられる。以上より、ACIL への CNF 添加は、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性を向上させるが、その濃度は 0 から 1.0wt% の範囲内に最適値があることが示唆された。

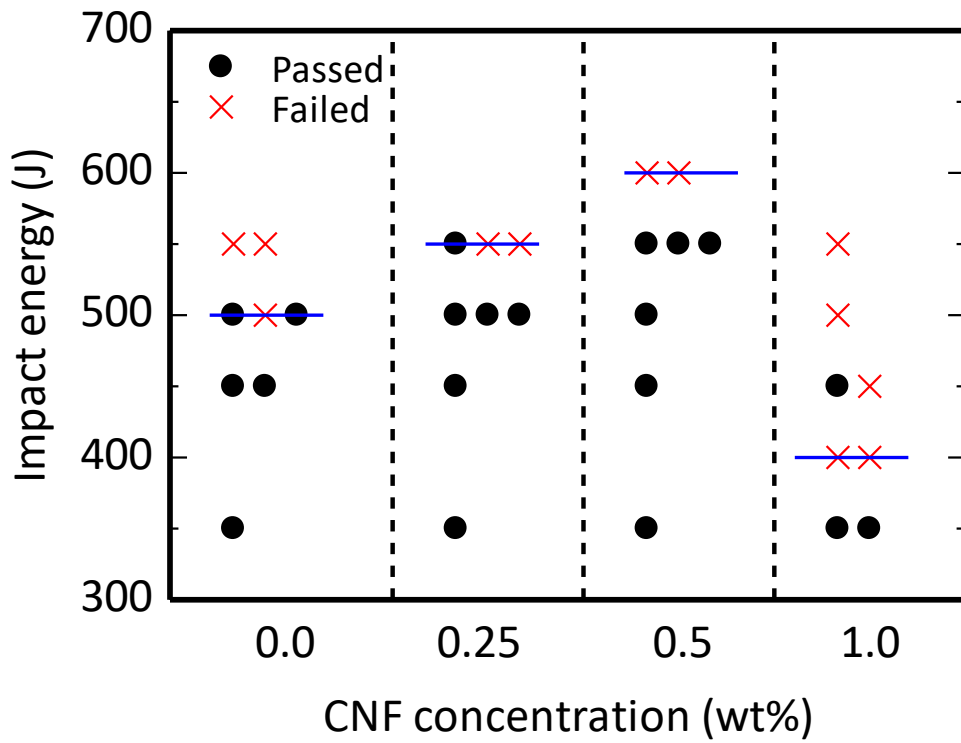


Fig. 3-25 Result of drop-weight test on the G/PC laminated safety glass using the CNF-L/ACIL with different CNF concentration.

図 3-26 は、各 CNF 濃度の CNF-L/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスにおける衝撃破壊状態を示したもので、衝撃エネルギーが臨界衝撃エネルギーより 50 J 小さい値の場合の結果（未貫通）と衝撃エネルギーが臨界衝撃エネルギーの場合の結果（貫通）である。各試験体のガラスには、共通して放射状の損傷と円周状の損傷が混在して発生した。また、PC は、未貫通の場合、塑性変形のみ発生し、貫通した場合、塑性変形に加えて加撃体衝突部に貫通穴が発生した。

CNF 濃度 0wt% の場合は、450 J では、加撃体衝突部付近と試験体角部付近の損傷が著しく、ガラスは小さな破片状に破壊した。また、その中間の領域では、円周状の損傷が発生し、ガラスはその他の領域よりも比較的大きな破片状に破壊した。加撃体が貫通した 500 J では、450 J の場合と比較すると、円周状の損傷が支配的となった。また、加撃体衝突部付近の損傷の範囲は拡大し、それ以外の領域全体においても小さな破片状に破壊した。

CNF 濃度 0.25wt% の場合は、500 J では、CNF 濃度 0wt% (450 J) の場合と比較すると、加撃体衝突部の損傷の範囲がやや小さく、試験体角部付近の損傷の程度も小さい傾向となった。また、その中間の領域では、円周状の損傷の密度が増大し、ガラスの損傷の程度はやや大きくなった。加撃体が貫通した 550 J では、CNF 濃度 0wt% (500 J) の場合と同様の傾向となり、衝撃エネルギーが増大したことにより、ガラスの損傷の程度は全体的にやや大きくなった。

CNF 濃度 0.5wt% の場合は、550 J では、加撃体衝突部付近の損傷が著しく、ガラスは非常に小さな粉状に破壊し、その範囲は CNF 濃度 0.25wt% (500 J) の場合よりも大きくなった。また、試験体角部付近やそれらの中間の領域においても損傷の程度は大きくなった。加撃体が貫通した 600 J では、加撃体衝突部付近は CNF 濃度 0wt% (500 J) や 0.25wt% (550 J) の場合とほぼ同様であったが、試験体角部付近の損傷の程度はより大きくなり、中間の領域では円周状の損傷の密度は少し減少した。

CNF 濃度 1wt% の場合は、350 J では、加撃体衝突部付近の損傷の程度は CNF 濃度 0wt% (450 J) の場合よりもやや小さく、その他の領域においても損傷の程度は小さい傾向となり、放射状の損傷が支配的に発生した。加撃体が貫通した 400 J では、加撃体衝突部付近の損傷の程度は CNF 濃度 0wt% (500 J) の場合とほぼ同様であったが、その他の領域では、顕著に小さい傾向であった。

以上より、CNF 濃度 0wt% の破壊状態と比較すると、CNF 濃度が 0.5wt% までの範囲で CNF 濃度が増大すると、加撃体衝突部付近と試験体角部の損傷の程度

が大きくなる傾向であることが明らかとなった。また、それらの中間の領域では CNF 濃度の増大とともに円周状の損傷の密度が増大し、損傷の程度は大きくなる傾向であることが明らかとなった。これは、CNF-L/ACIL が加撃体の衝撃エネルギーを加撃体衝突部から、試験体全体へ散逸させているためであると考えられる。すなわち、ACIL へ CNF を添加することによって、加撃体の衝撃エネルギーを試験体全体へより効率よく分配し、内部摩擦により散逸する中間膜特性に変化したと示唆される。一方、CNF 濃度 1wt%になると、0.25wt%や 0.5wt%の場合の破壊状態とは大きく異なり、加撃体衝突部付近のみ損傷の程度が大きい傾向を示したことから、CNF-L/ACIL が加撃体の衝撃エネルギーを試験体全体へうまく分配できない中間膜特性に変化したと考えられる。

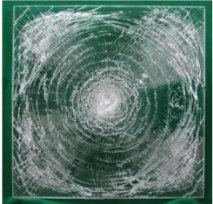
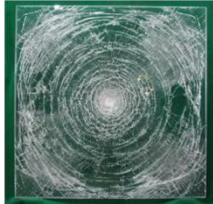




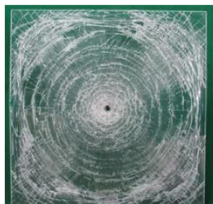

Damage state	CNF concentration (wt%)			
	0	0.25	0.5	1
Passed				
Impact energy (J) (Critical point -50J)	450	500	550	350
Failed				
Impact energy (J) (Critical point)	500	550	600	400

Fig. 3-26 Damage states of G/PC laminated safety glass using the CNF-L/ACIL with different CNF concentration.

図 3-27 は、ACIL 厚さを変化させた場合の G/PC 積層安全ガラスの臨界衝撃エネルギーと PC 厚さの関係を示したもので、第 2 章 2.3.2 節の表 2-1 で示した加撃体質量 8.75 kg の落錘衝撃試験で得られた結果を用いた。なお、ACIL 厚さ 1 mm の場合は、最小二乗法により求めた近似直線も示した。ACIL 厚さ 1 mm の場合、PC 厚さが 1 mm 増大すると、臨界衝撃エネルギーは直線的に 106 J 程度増大した。また、PC 厚さ 3 mm の場合、ACIL 厚さが 1 mm 増大すると、臨界衝撃エネルギーは 25 J 程度増大した。

一方、図 3-25 に示す加撃体質量 112 kg の落錘衝撃試験で得られた、PC 厚さ 5 mm、ACIL 厚さ 2 mm、CNF 濃度 0wt% の G/PC 積層安全ガラスの臨界衝撃エネルギーは 500 J であり、図 3-27 に示す加撃体質量 8.75 kg の落錘衝撃試験で得られた、PC 厚さ 5 mm、ACIL 厚さ 1 mm の G/PC 積層安全ガラスの臨界衝撃エネルギーと同様な値を示した。従って、臨界衝撃エネルギーに及ぼす加撃体質量と ACIL 厚さの影響は小さいと考えることができるため、図 3-27 に示した臨界衝撃エネルギーと PC 厚さの関係を用いて考察する。

臨界衝撃エネルギーは、CNF 濃度 0.5wt% の場合で CNF 濃度 0wt% の場合よりも約 100 J 増大した。すなわち、CNF 濃度 0.5wt% の CNF/ACIL を用いた場合、PC 厚さが 1 mm 増大した場合と同等の臨界衝撃エネルギーが得られると考えられる。従って、CNF 濃度 0.5wt% の CNF/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスは、CNF 濃度 0wt% の ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスと同等の臨界衝撃エネルギーを得ようとする場合、PC 厚さは 1 mm 程度薄くできることが示唆される。

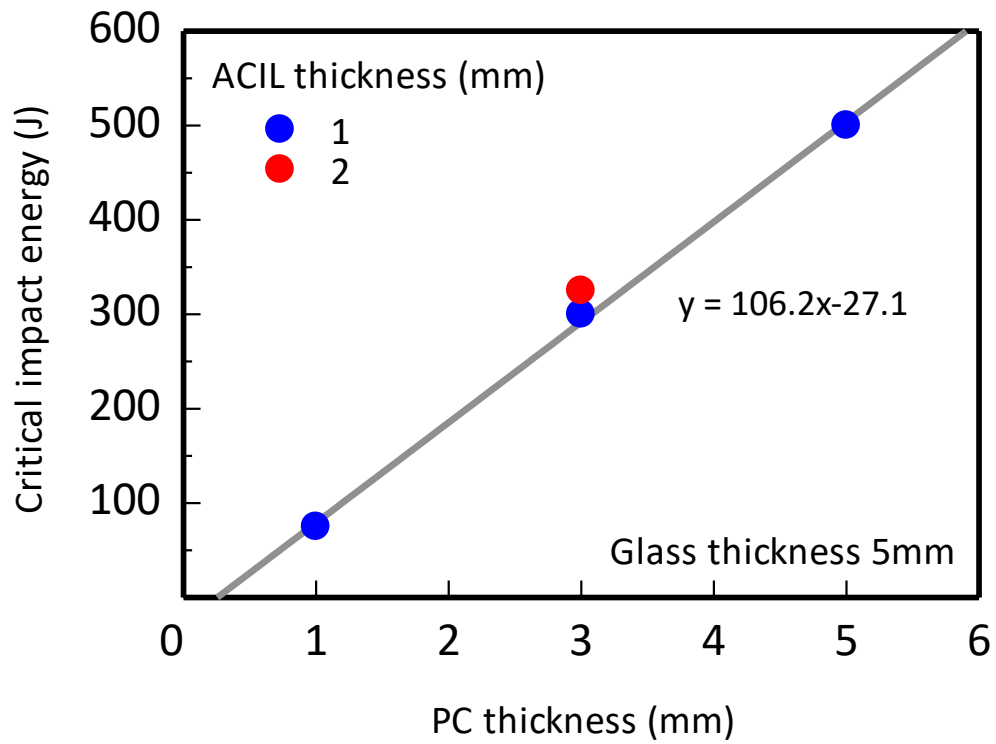


Fig. 3-27 Effect of PC and ACIL thickness on the critical impact energy with G/PC laminated safety glass using ACIL without CNFs.

3.9 結言

ビーズミルで得られた CNF 分散液を用いた CNF/ACIL について可視光透過率測定, DMA 試験および引張試験を行い, 光学特性と力学特性を評価した. また, CNF-L/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスについて落錘衝撃試験を行い, 耐衝撃性を評価した. 以下に主要な知見を示す.

- (1) CNF 濃度が増大すると, 可視光透過率は減少する傾向を示したが, CNF 濃度 0~0.5wt%の範囲で可視光透過率 90%以上を維持した高い透明性を有した CNF-L/ACIL が得られた.
- (2) ACIL に CNF を添加した場合は, CNF 濃度 0wt%の場合と比較すると, DMA 試験で得られた周波数 1 Hz における E' および E'' の温度分散曲線は, ガラス転移に伴う変曲領域においてやや減少する傾向を示し, $\tan \delta$ の温度分散曲線は, 低温側へシフトした. また, CNF 濃度が増大すると, E' および E'' はさらに減少し, $\tan \delta$ はより低温側にシフトしたが, その程度はいずれも微小であった. また, 周波数分散曲線では, CNF 濃度が増大しても E'' はほとんど変わらなかったことから, 微小変形下においては, 少量の CNF 添加は ACIL のエネルギー散逸に対してほとんど影響を及ぼさないと考えられる.
- (3) 引張試験結果から, CNF-L/ACIL の場合では, 応力に及ぼす CNF 添加の影響は小さいが, 高ひずみ領域では, 少量の CNF 添加によって応力は増大するものの, CNF 濃度が増大すると応力は減少する傾向を示した. 一方, CNF-S/ACIL の場合では, 応力は CNF 濃度 0.2wt%の場合のみで剛性の増大が認められた. CNF の繊維長が長い方が高ひずみ領域におけるアクリル樹脂分子鎖および CNF の配向に伴う応力の増大は発現しやすいと考えられる. また, この現象が発現する CNF 濃度には最適値があると考えられ, CNF のアスペクト比によって異なることが示唆された.
- (4) CNF/ACIL の引張特性に関する有限要素解析結果より, CNF と ACIL の界面が完全に接着していると仮定した場合, CNF アスペクト比 10 の場合に

において、CNF 濃度 0.1wt%程度では応力にほとんど影響はなかったが、CNF 濃度の増大に伴い応力の増大が顕著に表れることが明らかとなった。一方、CNF 濃度 5wt%の場合において、CNF アスペクト比の影響が大きく現れ、20%ひずみにおける応力はアスペクト比が大きくなると顕著に増大した。実験結果では、アスペクト比の増大によって剛性が増大しやすくなることが示されたが、解析結果においても同様の傾向であり、定性的に一致した。

- (5) 落錘衝撃試験の結果から、CNF-L/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスは、CNF 濃度 0.5wt%までの範囲で、CNF 濃度の増大に伴い臨界衝撃エネルギーは増大した。一方、CNF 濃度 1wt%の場合では、CNF 濃度 0wt%の場合よりも臨界衝撃エネルギーは減少した。

参考文献

- (1) 矢野浩之, 「セルロースナノファイバーとその利用」, 日本ゴム協会誌, 第 85 巻, 12 号, pp. 376-381, 2012.
- (2) 能木雅也, 矢野浩之, 「21 世紀の紙—セルロースナノファイバー低熱膨張性透明材料—」, 色材協会誌, 第 82 巻, 8 号, pp.351-356, 2009.
- (3) 奥田慎一, 永田員也, 真田和昭, 「疎水化セルロースナノファイバー/ポリプロピレン樹脂複合材料の引張特性」, 日本機械学会 2016 年度年次大会講演論文集, J0450203, 2016.
- (4) 杉本雅行, 山田昌宏, 荘所大策, 佐藤嘉計, 徳満勝久, 「フルオレン修飾セルロースナノファイバーにより補強したポリアミドの特性評価」, 成型加工, 第 32 巻, 2 号, pp. 63-67, 2020.
- (5) 山本莉沙, 吉田美悠, N. D. Tien, 高瀬弘嗣, 高田じゅん, 山本勝弘, 「ポリアクリル酸 2 メトキシエチル/アクリルアミド共重合体の力学特性に与えるセルロースナノファイバー複合化効果」, 材料, 第 68 巻, 1 号, pp. 42-46, 2019.
- (6) M. L. Williams, R. F. Landel and J. D. Ferry, “The temperature dependence of relaxation mechanisms in amorphous polymers and other glass-forming liquids”, *Journal of the American Chemical Society*, vol, 77, pp. 3701-3707, 1955.
- (7) 日本規格協会, 「加硫ゴム及び熱可塑性ゴム—引張特性の求め方」, 日本工業規格, JIS K6251:2017, pp. 1-25, 2017.
- (8) 新田晃平, 「高分子材料における破壊現象の理論的考察」, 高分子論文集, 第 73 巻, 3 号, pp. 281-293, 2016.
- (9) 屋代如月, 伊藤智啓, 富田佳宏, 「単軸引張下の非晶性ポリマー内部における分子鎖配向とからみ点形成の分子動力学解析」, 材料, 第 53 巻, 1 号, pp. 114-119, 2004.
- (10) 藤澤秀次, 「TEMPO 酸化 CNF を用いた樹脂コンポジットの力学特性」, 成型加工, 第 28 巻, 8 号, pp. 326-329, 2016.
- (11) British Standards Institution, “Machine Tools - Safety - Machining Centres”, BS EN 12417, 2010.

第 4 章 セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜の接着特性評価

4.1 緒言

第 2 章では、G/PC 積層安全ガラスを対象とした落錘衝撃試験と陽解法有限要素解析を行い、衝撃破壊挙動に及ぼす各構成部材の影響を解明した。第 3 章では、ガラス/ポリカーボネート (Glass/polycarbonate, G/PC) 積層安全ガラスの透明性の維持が期待できるセルロースナノファイバー (Cellulose nanofiber, CNF) に着目し、アクリル中間膜 (Acrylic interlayer, ACIL) への CNF 少量添加により、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性が向上することを見出した。一方、G/PC 積層安全ガラスは、各構成部材が積層し、隣り合う部材同士が接着した構造であり、外部からの負荷によって接着界面で剥離が生じる可能性がある。Rivers⁽¹⁾らは、熱可塑性ポリウレタンを中間膜としたガラスと PC の積層体の接着界面が、熱や水分の影響によって、剥離することを報告している。Vedrtnam⁽²⁾は、合わせガラスの界面剥離強度に及ぼす中間膜の種類と厚さの影響を報告している。また、Wu⁽³⁾らは、合わせガラスを対象とした鋼球による衝撃試験に関する陽解法有限要素解析を行い、中間膜とガラス界面の接着強度が加撃体の衝撃エネルギーの吸収に影響を及ぼすことを報告している。以上のように、種々の積層体の耐衝撃性に及ぼす接着界面の剥離の影響に関する検討は行われているが、CNF 添加 ACIL (CNF/ACIL) を用いた G/PC 積層安全ガラスを対象とした検討は行われていないのが現状である。

そこで本章では、G-CNF/ACIL あるいは PC-CNF/ACIL 接着界面を有する試験片を用いたへき開試験と引張せん断試験を行い、G-CNF/ACIL および PC-CNF/ACIL 接着界面の接着強度を評価した。また、接着界面の接着強度を考慮した G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験に関する陽解法有限要素解析を行い、衝撃破壊挙動に及ぼす G-ACIL および PC-ACIL 接着界面の剥離の影響を検討し考察を加えた。

4.2 供試材

第3章と同様に、ACILを形成する原料は、主剤としてメタクリレートモノマーおよびアクリレートモノマーの混合物（三井化学株式会社）、硬化剤として有機過酸化物、遷移金属系硬化促進剤を用いた。有機過酸化物は、遷移金属の存在下で容易に開裂しラジカルが発生するものとした。G/PC積層安全ガラスの構成部材であるガラスは、ソーダ石灰ガラスでフロート法により製造された一般的な建築物によく使用される板ガラス（AGC株式会社）を用いた。また、PCはタキロンシーアイ株式会社製のものを用いた。

CNFは、株式会社スギノマシン製のドライパウダータイプ CNF BiNF_i-s WFO（メーカー公称値：平均繊維径 20 nm，平均繊維長 10 μm 以上）とし、表面にアクリル系分散剤処理を施したものとした。

4.3 ガラス接着界面における接着特性評価

4.3.1 実験方法

4.3.1.1 へき開試験

G/PC積層安全ガラスの構成部材であるガラスとCNF/ACILとの接着界面（G-CNF/ACIL接着界面）を対象としたへき開試験を行い、接着界面に対して垂直方向に引張荷重が与えられた場合の接着特性を評価した。G-CNF/ACIL接着界面を有した試験体の製作は、厚さ 5 mm で寸法 200×200 mm のガラス 2 枚の間に第3章 3.3 節と同様に所定の CNF 濃度に調整した CNF/アクリルモノマー液を充てんし、常温常圧で硬化させて接着した。第3章 3.8 節で行った落錘衝撃試験では、G/PC積層安全ガラスの ACIL 厚さを 2 mm としたため、これに合わせて試験体の ACIL 厚さを 2 mm とした。フロート法により製造されたガラスは、その製造過程の特徴から、熔融した金属（スズ）に接した面（ボトム面）と接していない面（トップ面）が存在し、各表面の特性は異なっている⁽⁴⁾。今回は、ガラスの表面状態を同一にするため、トップ面を接着面とした。接着後、40×40 mm の寸法に切り出し、ガラス表面にアクリル系高強度接着剤を使用して T 字形の治

具を接着し試験体とした (図 4-1). 試験は, 精密万能試験機 AG-X plus 50kN (株式会社島津製作所) を用いて行い, ロードセルは最大容量 50 kN (SFL-50KNAG) のものを使用した. 試験方法は, クロスヘッド速度を 30 mm/min とし, 試験温度を 20°C とした. また, 試験回数は 5 とし, ACIL 以外の部材が破壊した場合は再試験を行うこととした.

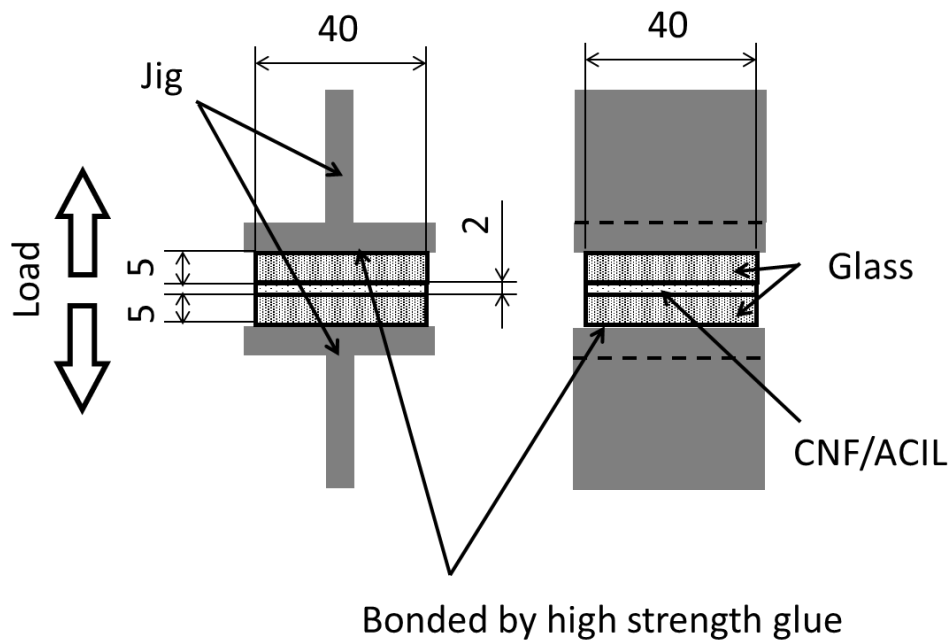


Fig. 4-1 Shape and dimensions of specimens with G-CNF/ACIL adhesive interface for cleavage tests.

4.3.1.2 引張せん断試験

G-CNF/ACIL 接着界面を対象とした引張せん断試験を行い、接着面内にせん断荷重が与えられた場合の接着特性を評価した。G-CNF/ACIL 接着界面を有した試験体の製作は、厚さ 5 mm で寸法 106×300 mm のガラス 2 枚のそれぞれ一部を重ねるように組み合わせ、その重ねた部分に 4.3.1.1 節と同様に、2 mm の厚さで CNF/アクリルモノマー液を充てんし、常温常圧で硬化させて接着した。接着後、JIS K6850⁽⁵⁾を参考に、幅 25 mm の寸法に切り出し、評価する接着寸法を 12.5×25 mm に調整した。ガラス表面にアクリル系高強度接着剤を使用して鋼製補強板を接着し試験体とした。このとき、鋼製補強板は、CNF/ACIL が試験体厚さの中央に位置し、かつ試験の際にガラスに曲げ応力を発生させない厚さとした(図 4-2)。試験は、精密万能試験機 AG-X plus 50kN を用いて行い、ロードセルは最大容量 5 kN (SLBL-5kN) のものを使用した。試験方法は、クロスヘッド速度を 30 mm/min とし、試験温度を 20°C とした。また、試験回数は 5 とし、へき開試験の場合と同様に ACIL 以外の部材が破壊した場合は再試験を行うこととした。

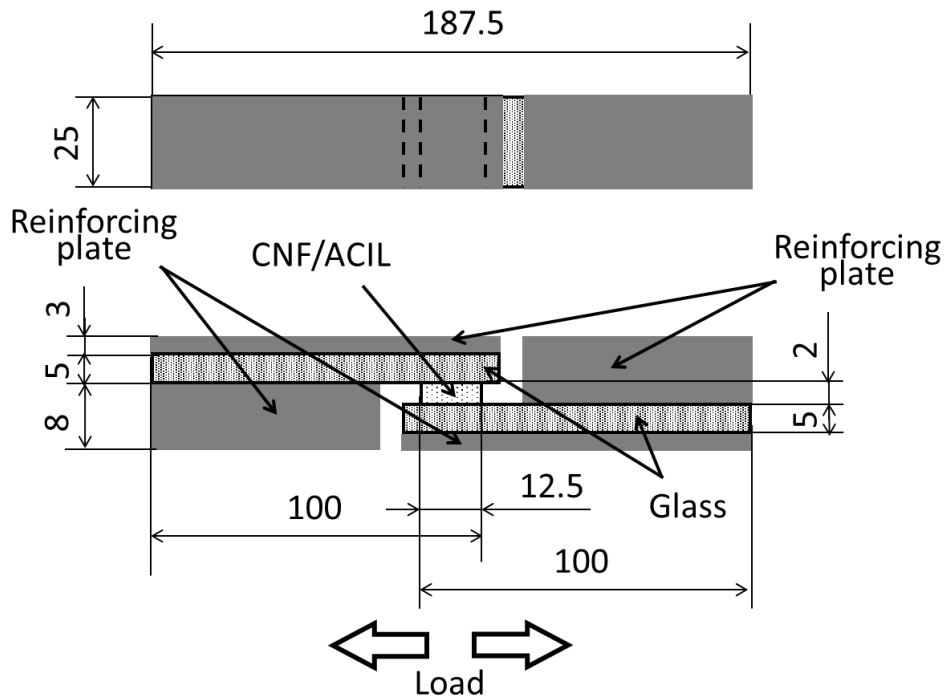


Fig. 4-2 Shape and dimensions of specimens with G-CNF/ACIL adhesive interface for tensile shear tests.

4.3.1.3 破断面観察

へき開試験および引張せん断試験後の試験体の破断面観察は、目視と顕微鏡によって行った。目視による観察では、ACIL の破壊状態を JIS K 6866⁽⁶⁾に規定された破壊の特徴により分類した。図 4-3 に破壊状態の分類を示す。ACIL が厚さ方向の中央部で破壊した状態を凝集破壊、ACIL が中央部以外で複雑に破壊した状態を複雑な凝集破壊とした。また、ACIL の片側あるいは両面の接着界面が剥離した状態を界面破壊、ACIL の凝集破壊と接着界面の剥離が混在した状態を剥離を伴う凝集・界面破壊とした。一方、顕微鏡による観察では、走査型電子顕微鏡 (Scanning electron microscope, SEM) TM-1000 (株式会社日立ハイテクノロジーズ) を用いて微視的な破壊の様子を観察した。SEM 観察に用いた試料は、試験体から切り出したものをスパッタ装置 MSP-1S (株式会社真空デバイス) により表面処理を行ったものとした。図 4-4 および図 4-5 にそれぞれ SEM とスパッタ装置を示す。

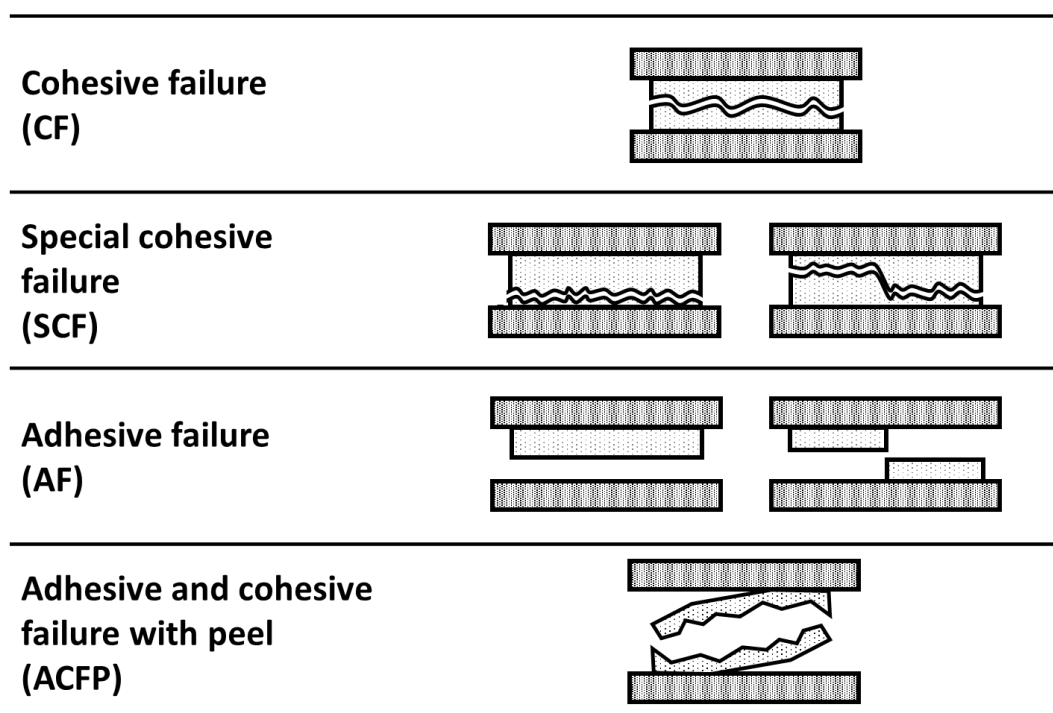


Fig.4-3 Classification of failure states after tensile test or tensile shear test.

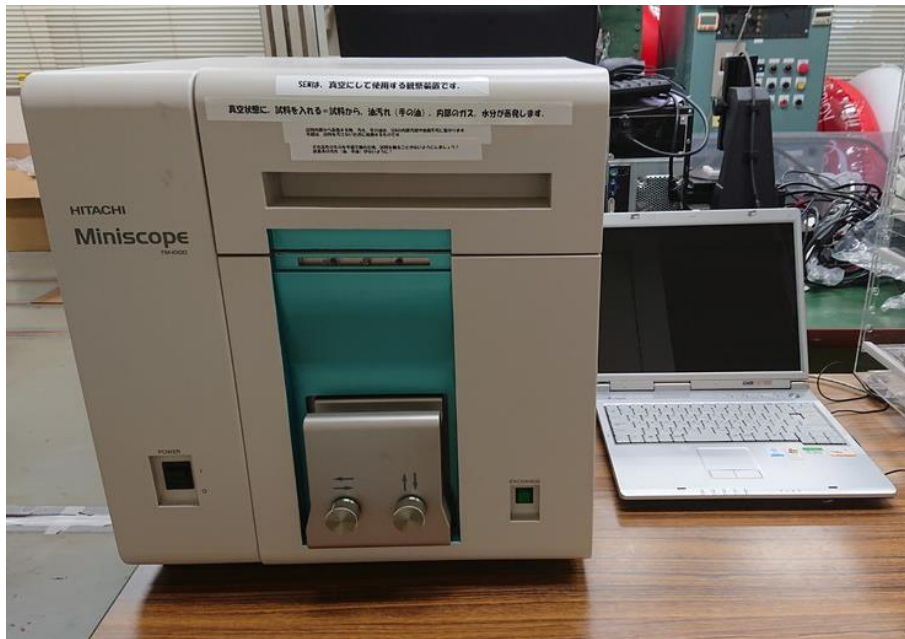


Fig. 4-4 Appearance of scanning electron microscope.



Fig. 4-5 Appearance of sputtering machine.

4.3.2 実験結果および考察

4.3.2.1 へき開接着強度

図 4-6 は, G-CNF/ACIL 接着界面を有する試験体のへき開試験で得られた CNF 濃度 0, 0.3, 0.5wt% の応力 - 変位曲線を示したもので, 最大応力の平均値に近い最大応力を示す曲線を比較している. なお, (a) は変位 6 mm まで, (b) は変位 0.3 mm までの結果を示している. 応力は, 初期の変位領域で急激に増大して最大値を示した後, 降伏挙動を示した. その後, 応力は大きく減少し, 変位 1.5 mm を超えた辺りから約 2 MPa 付近で横ばいに推移した. さらに変位が増大すると, 応力は減少し破断した.

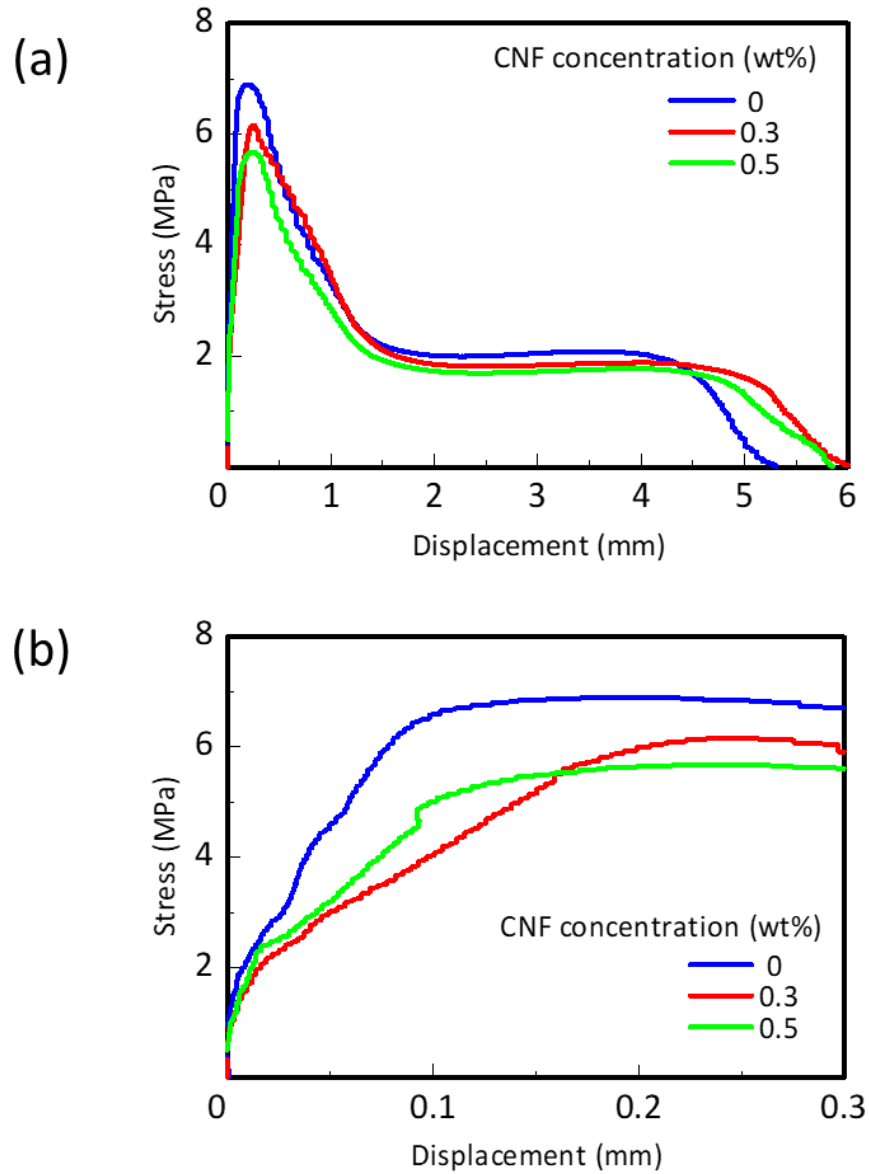


Fig. 4-6 Stress-displacement curves of specimens with G-ACIL and G-CNF/ACIL adhesive interface obtained by cleavage tests (crosshead speed of 30 mm/min): (a) Displacement region from 0 mm to failure; (b) Displacement region from 0 mm to 0.3 mm.

表 4-1 に、へき開試験で得られた CNF 濃度 0, 0.3, 0.5wt%における最大応力、最大応力時の変位および破断時の破壊の様子を示す。なお、最大応力および変位は平均値であり、破壊の様子は図 4-3 で示した分類の内、支配的な特徴のものとした。最大応力は、CNF 濃度が増大すると減少する傾向を示したが、最大応力時の変位はほとんど変化しなかった。また、破壊状態はすべて凝集破壊であった。G-CNF/ACIL 接着界面で剥離する前に CNF/ACIL が破断したため、G-CNF/ACIL 接着界面のへき開に対する強度は、CNF/ACIL の強度よりも高いと考えられる。

Table 4-1 Maximum stress, displacement at maximum stress and damage state of specimens with G-CNF/ACIL adhesive interface obtained by cleavage tests.

CNF concentration (%)	Maximum stress (MPa)	Displacement at maximum stress (mm)	Damage state
0	6.9	0.18	CF
0.3	6.1	0.22	CF
0.5	5.7	0.18	CF

図 4-7 は、図 4-6 で示した曲線が得られた試験体の破断面の SEM 写真を示したもので、CNF 濃度 0, 0.3, 0.5wt% の場合である。なお、倍率は 100 倍と 500 倍とし、500 倍の写真は倍率 100 倍の写真内、破線の円で示した部分を拡大した。また、荷重方向は写真に対して垂直方向である。倍率 100 倍の写真で示すように、いずれの場合においても、ある部分から微視的に放射状のき裂が発生しており、同様の特徴のき裂は試験体破断面に無数に確認された。今回のような試験体の構造でへき開引張荷重を与えた場合、接着剤の変形に伴い、内部に大きな負圧が生じることで無数のキャビティが生成し、接着剤全体が破壊せずにフィブリル化することが知られている⁽⁷⁾。CNF/ACIL 内部においても、同様の現象が発生していたと考えられ、放射状のき裂は CNF/ACIL の変形に伴ってフィブリル化した際に発生し、さらに変形が進んだことにより放射状のき裂の中心部で破断したと推測される。倍率 500 倍の写真では、CNF 濃度 0wt% の場合、線状のき裂のみ発生したが、CNF 濃度 0.3wt% の場合では、線状のき裂に加えて網目状のき裂の発生が確認された。また、CNF 濃度 0.5wt% の場合では、網目状のき裂が支配的に発生した。

これより、ACIL 内部に CNF が存在することで、ACIL に微小な破壊が発生する特性に変化し、CNF 濃度が増大するとその傾向が強くなったと考えられる。CNF 濃度が増大すると、最大応力が減少する傾向となったのは、このような微小な破壊が無数に発生したことによるものと考えられる。

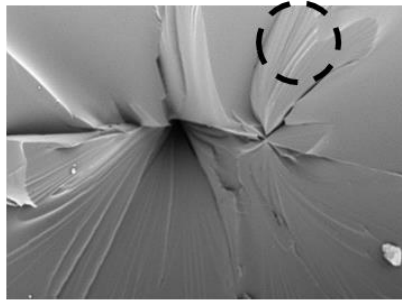
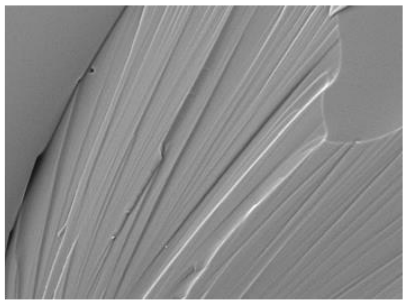
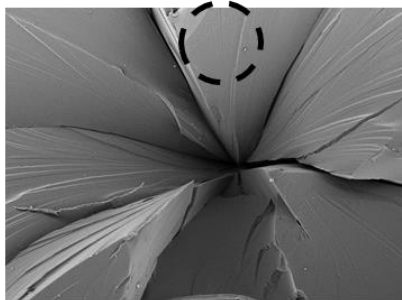
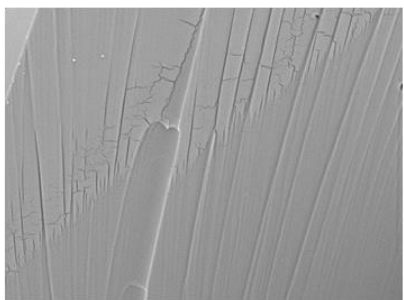
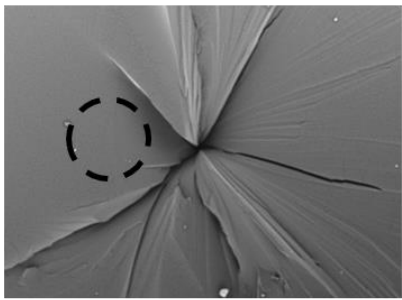
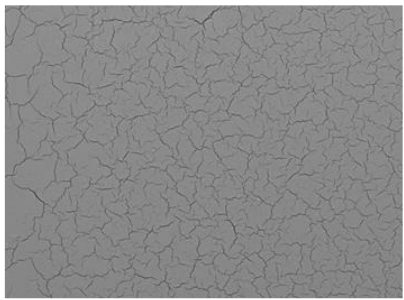
	Magnification	
	$\times 100$ <u>0.5mm</u>	$\times 500$ <u>0.1mm</u>
(a)		
(b)		
(c)		
Load direction	Perpendicular to the SEM image	

Fig.4-7 SEM images of fracture surface of specimens with G-CNF/ACIL adhesive interface obtained by cleavage tests: (a) Without CNFs; (b) 0.3wt%CNF; (c) 0.5wt%CNF.

4.3.2.2 引張せん断強度

図 4-8 は、引張せん断試験で得られた G-CNF/ACIL 接着界面を有した試験体の応力 - 変位曲線であり、CNF 濃度 0, 0.3, 0.5wt%において、最大応力の平均値に近い最大応力を示す曲線を比較している。なお、(a) は変位 10 mm まで、(b) は変位 0.5 mm までの結果を示している。応力は、変位の増大に伴って増大し、最大値に達した後、降伏挙動を示し急激に減少した。しかし、完全に破断せずに、約 0.3 MPa 付近でほぼ横ばいに推移した。初期の微小な変位領域に注目すると、応力は初期で急激に増大し、約 0.1 MPa で横ばいに推移した。その後、応力は再び急激に増大した後に、変位の増大とともに緩やかに増大した。この最初の急激な応力の増大は、引張せん断負荷によって CNF/ACIL 層の端部に応力集中が発生したためであると考えられる。その後の 1 MPa 付近の平坦領域は、CNF/ACIL 層端部での応力集中により局所的に降伏が生じ、この降伏領域が G-CNF/ACIL 接着界面近傍で伝播したために生じたと考えられる。また、CNF 添加量の増大に伴い、1 MPa 付近の平坦領域が大きくなったのは、CNF と ACIL の界面でのすべりに伴う応力緩和で、局所的な降伏領域の伝播が遅くなったためであると考えられる。さらに、局所的な降伏領域が十分に伝播した後、CNF/ACIL 層全体が変形するようになり、再び応力が増大したと考えられる。

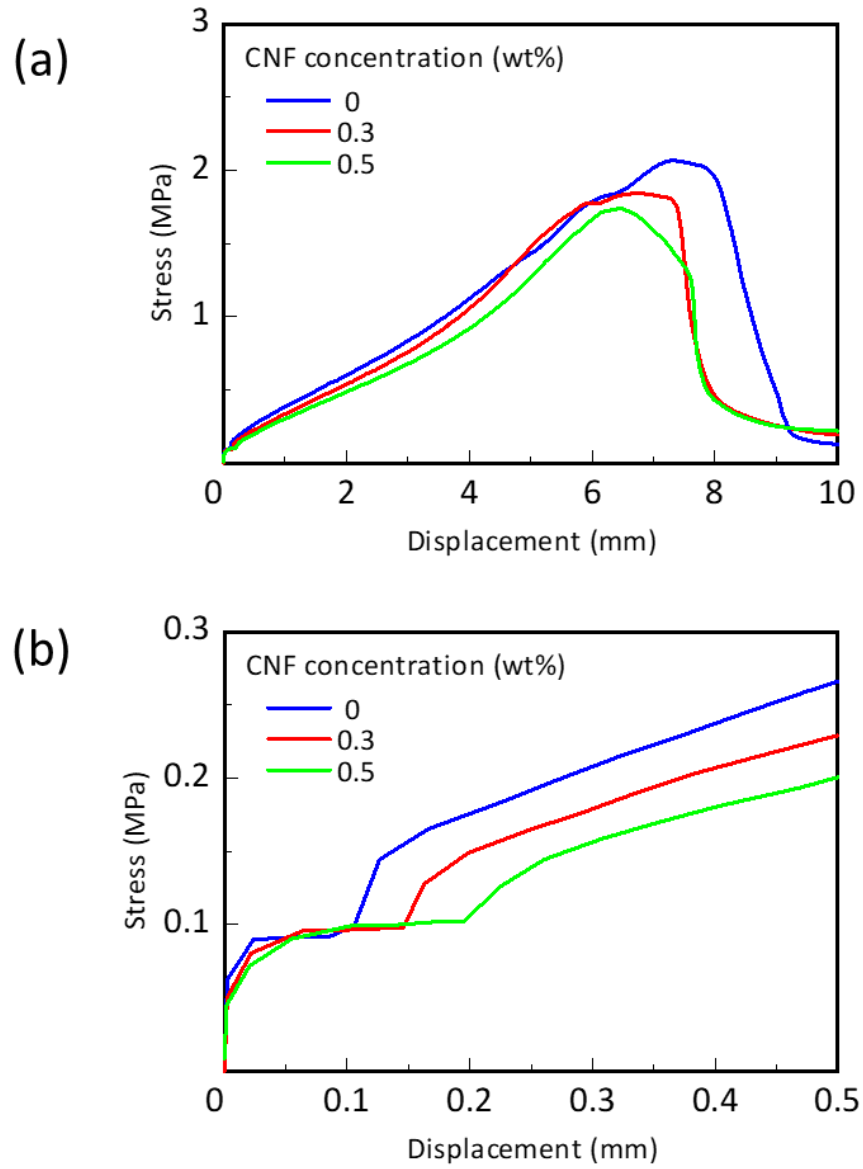


Fig. 4-8 Stress-displacement curves of specimens with G-ACIL and G-CNF/ACIL adhesive interface obtained by tensile shear tests (crosshead speed of 30 mm/min): (a) Displacement region from 0 mm to failure; (b) Displacement region from 0 mm to 0.5 mm.

表 4-2 に、引張せん断試験で得られた CNF 濃度 0, 0.3, 0.5wt%における最大応力, 最大応力時の変位および破断時の破壊の様子を示す. へき開試験の場合と同様に, 最大応力は, CNF 濃度が増大すると減少する傾向を示したが, 最大応力時の変位はほとんど変化しなかった. また, 引張せん断試験で得られた最大応力時の変位は, へき開試験の場合に比べて, 非常に大きくなった. 破壊状態は CNF 濃度 0 および 0.3wt%では剥離を伴う凝集破壊, 0.5wt%では破断面形状が複雑な特殊凝集破壊であった. これより, CNF 濃度 0.3wt%の場合までは, G-CNF/ACIL 接着界面の強度と CNF/ACIL の強度は同程度であったため, 剥離を伴う凝集破壊が生じたが, CNF 濃度 0.5wt%の場合では, CNF/ACIL の強度が G-CNF/ACIL 接着界面のせん断に対する強度よりも減少したために, 凝集破壊に変化したと考えられる.

Table 4-2 Maximum stress, displacement at maximum stress and damage state of specimens with G-CNF/ACIL adhesive interface obtained by tensile shear tests.

CNF concentration (%)	Maximum stress (MPa)	Displacement at maximum stress (mm)	Damage state
0	2.1	7.52	ACFP
0.3	1.9	7.23	ACFP
0.5	1.7	7.25	SCF

図 4-9 は、図 4-8 で示した曲線が得られた試験体の破断面の SEM 写真を示したもので、CNF 濃度 0, 0.3, 0.5wt% の場合である。なお、倍率 100 倍の場合と倍率 500 倍の場合であり、荷重方向は写真の横方向である。いずれの場合においても、き裂は荷重方向と平行に発生する傾向であった。CNF 濃度 0wt% の場合は、線状のき裂が支配的に発生し、CNF 濃度 0.3wt% の場合は、線状のき裂に加えて、網目状のき裂の発生が確認された。また、CNF 濃度 0.5wt% の場合では、より微細な網目状のき裂が確認された。

これより、へき開試験と同様に、引張せん断試験においても、ACIL 内部に CNF が存在することによって、CNF/ACIL の変形に伴い、CNF を起点とする ACIL の微視破壊が発生したと考えられる。

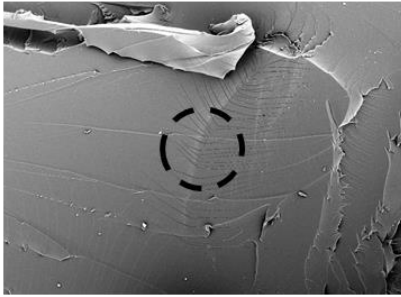
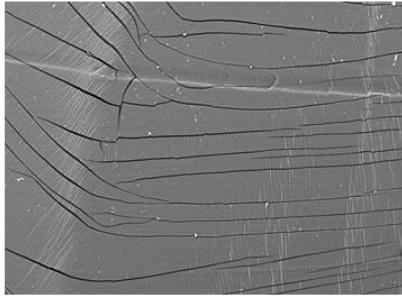
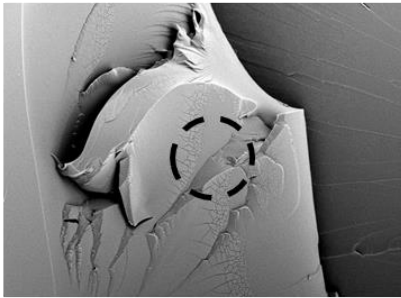
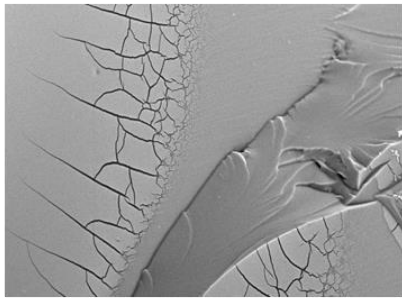
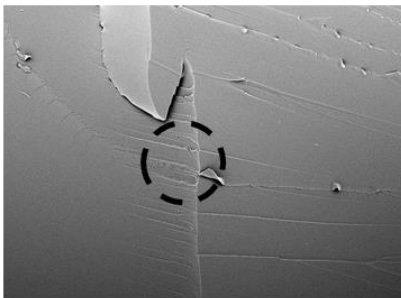
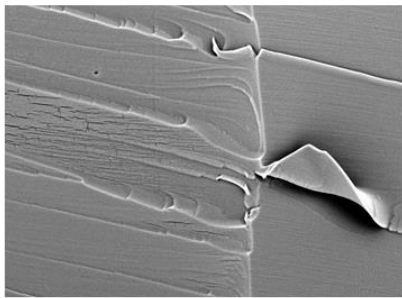

	Magnification	
	$\times 100$ <u>0.5mm</u>	$\times 500$ <u>0.1mm</u>
(a)		
(b)		
(c)		
Load direction		

Fig. 4-9 SEM images of fracture surface of specimens with G-CNF/ACIL adhesive interface obtained by tensile shear tests: (a) Without CNFs; (b) 0.3wt%CNF; (c) 0.5wt%CNF.

4.4 ポリカーボネート接着界面における接着特性評価

4.4.1 実験方法

G/PC 積層安全ガラスにおける PC と CNF/ACIL との界面 (PC-CNF/ACIL 接着界面) を対象とした引張せん断試験を行い、接着面内にせん断荷重が与えられた場合の接着特性を評価した。PC-CNF/ACIL 接着界面を有する試験体の製作は、厚さ 8 mm で寸法 300×187.5 mm の PC 2 枚の間に 4.3.1.1 節と同様に、2 mm の厚さで CNF/アクリルモノマー液を充てんし、常温常圧で硬化させて接着した。接着後、幅 25 mm の寸法に切り出すことにより試験体寸法を 25×187.5 mm とした。また、JIS K6850⁽⁶⁾を参考に、中央部に寸法 25×12.5 mm の独立した接着領域が得られるように、PC 両面に切り込みを設けた (図 4-10)。なお、PC 厚さを 8 mm にすることにより、十分な剛性を確保し、試験時に発生する曲げ応力を無視できる程度に小さくした。引張せん断試験は 4.3.1.2 節、試験後の破断面観察は 4.3.1.3 節に示した条件と同様の条件で行った。

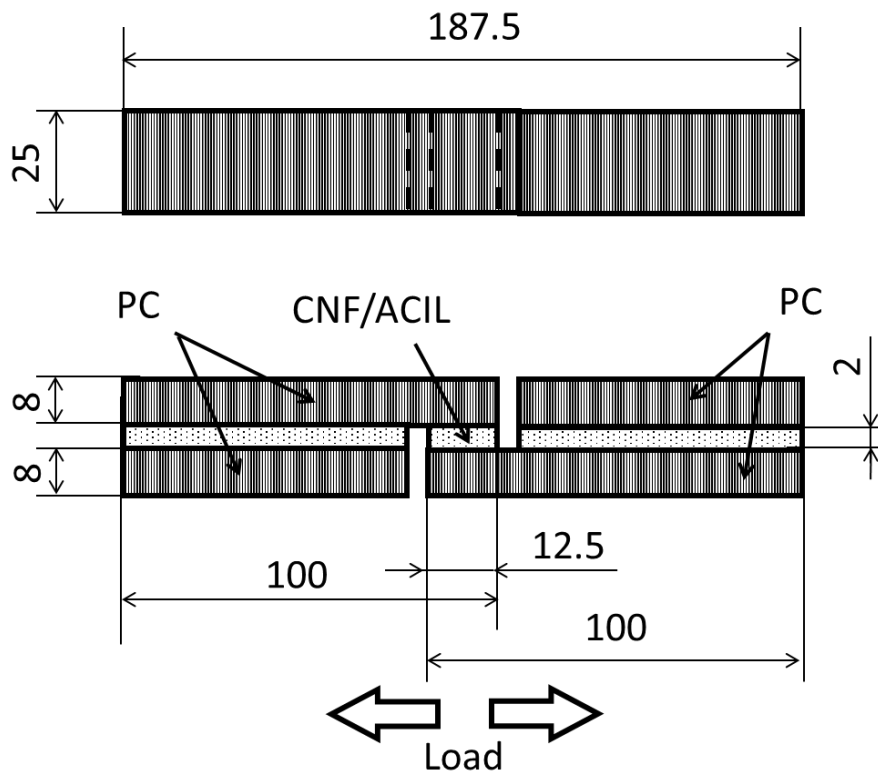


Fig. 4-10 Shape and dimensions of specimens with PC-CNF/ACIL adhesive interface for tensile shear tests.

4.4.2 実験結果および考察

図 4-11 は、引張せん断試験で得られた CNF 濃度 0, 0.3, 0.5wt% の PC-CNF/ACIL 接着界面を有した試験体の応力 - 変位曲線を示したもので、最大応力の平均値に近い最大応力を示す曲線を比較している。なお、(a) は変位 10 mm まで、(b) は変位 0.5 mm までの結果を示している。応力は、変位の増大に伴って増大し、最大値に達した後に破断した。図 4-8 で示した G-CNF/ACIL 接着界面の場合と比較すると、PC-CNF/ACIL 接着界面の場合では、破断に至るまでの応力は小さく、変位の増大に伴い、応力の傾きはやや減少している。これより、PC-CNF/ACIL 接着界面では、変位が比較的小さい段階から部分的に剥離が生じ、変位の増大に伴い、剥離面積が拡大したと考えられる。

初期の微小な変位領域では、G-CNF/ACIL 接着界面の場合と同様の傾向を示したが、最初の急激な応力増大後の約 0.1 MPa で横ばいに推移する領域の変位は増大し、CNF 濃度が増大すると、この領域の範囲はより増大する傾向を示した。これは、CNF と ACIL の界面でのすべりに伴う応力緩和だけでなく、PC-CNF/ACIL 接着界面が G-CNF/ACIL 接着界面よりも接着強度が小さいために、接着界面での応力緩和も大きくなり、PC-CNF/ACIL 接着界面近傍における局所的な降伏領域の伝播が遅くなったためであると考えられる。

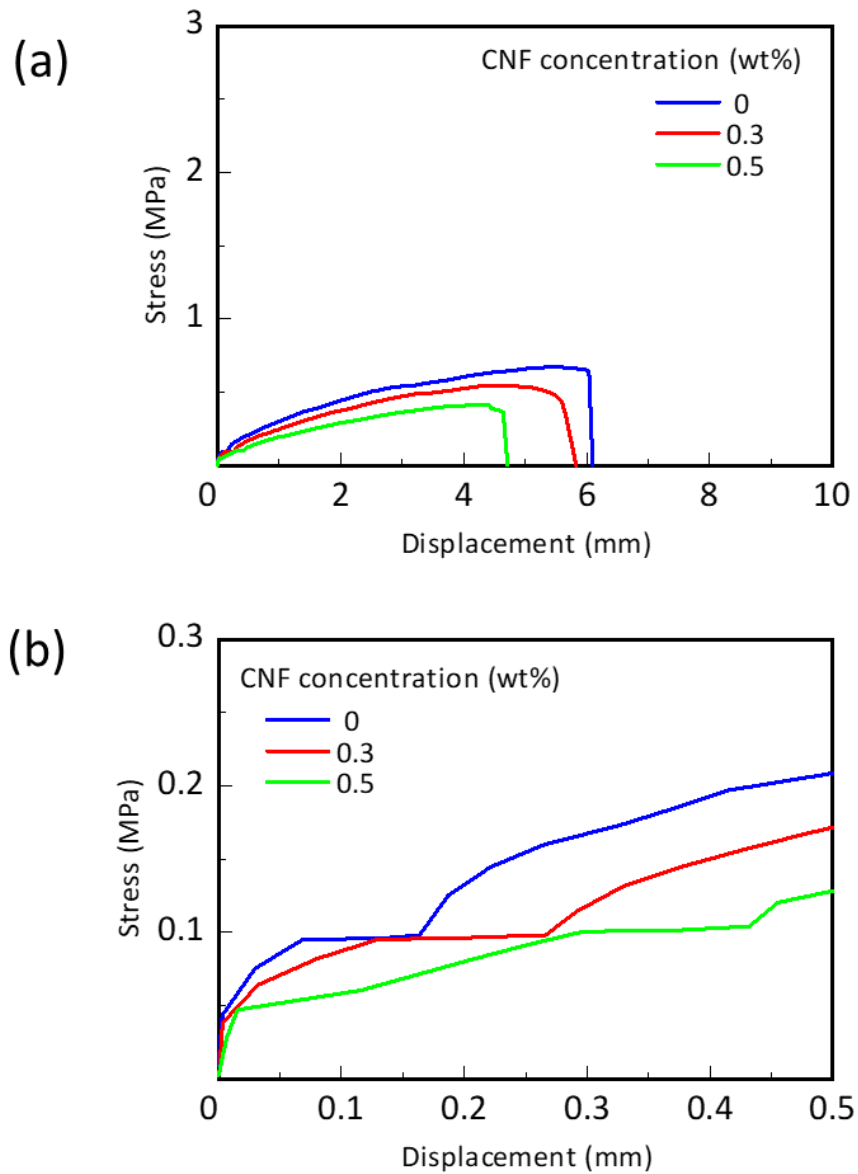


Fig. 4-11 Stress-displacement curves of specimens with PC-CNF/ACIL adhesive interface obtained by tensile shear tests (crosshead speed of 30 mm/min): (a) Displacement region from 0 mm to failure; (b) Displacement region from 0 mm to 0.5 mm.

表 4-3 に, 引張せん断試験で得られた CNF 濃度 0, 0.3, 0.5wt%の PC-CNF/ACIL 接着界面を有する試験体の最大応力, 最大応力時の変位および破断時の破壊の様子を示す. G-CNF/ACIL 接着界面の場合と同様に, 最大応力は CNF 濃度が増大すると減少し, 最大応力時の変位も減少する傾向を示した. 破壊状態はすべて PC-CNF/ACIL 接着界面での界面破壊であった. これより, PC-CNF/ACIL 接着界面のせん断に対する強度は, CNF/ACIL の強度よりも著しく減少したために界面破壊が生じ, CNF 濃度の増大によって, さらに減少する傾向であると考えられる.

Table 4-3 Maximum stress, displacement at maximum stress and damage state of specimens with PC-CNF/ACIL adhesive interface obtained by tensile shear tests.

CNF concentration (%)	Maximum stress (MPa)	Displacement at maximum stress (mm)	Damage state
0	0.6	5.43	AF
0.3	0.5	4.41	AF
0.5	0.4	4.19	AF

図 4-12 は、図 4-11 で示した曲線が得られた試験体の破断面の SEM 写真を示したもので、CNF 濃度 0, 0.3, 0.5wt% の場合である。なお、倍率 100 倍の場合と倍率 500 倍の場合であり、荷重方向が写真の横方向となるように撮影した。破断面は平滑であり、G-CNF/ACIL 接着界面の場合で確認された線状のき裂や網目状のき裂の発生は確認されなかった。PC-CNF/ACIL 接着界面では、CNF/ACIL にき裂が生じる前に PC-CNF/ACIL 接着界面全体が界面破壊したと考えられる。これより、PC-CNF/ACIL 接着界面のせん断に対する強度は、G-CNF/ACIL 接着界面と比較して著しく小さく、CNF 濃度の増大によってさらに減少することが明らかとなった。

第 3 章 3.8 節で行った落錘衝撃試験では、CNF 濃度 0.5wt% の CNF/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスの臨界衝撃エネルギーは、CNF 濃度 0wt% の場合よりも、約 20% 増大した。この要因として、ACIL 内部に分散した CNF が起点となる ACIL の微視破壊によるエネルギー散逸のため、もしくは、CNF の存在で ACIL の荷重伝達能力が向上し、加撃体の衝撃エネルギーを G/PC 積層安全ガラス全体に効率よく分配したためであると考えられる。一方、ACIL に CNF を添加すると、G-CNF/ACIL および PC-CNF/ACIL 接着界面の強度は低下するが、落錘衝撃試験では、特に PC-CNF/ACIL 接着界面は圧縮荷重が支配的となるため、接着性の影響は小さいと考えられる。従って、CNF 添加による接着性低下による耐衝撃性低下の効果よりも中間膜特性変化による耐衝撃性向上の効果の方が大きく発現したと考えられる。

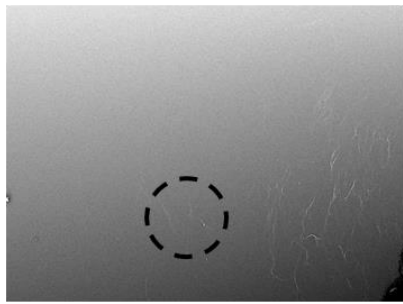
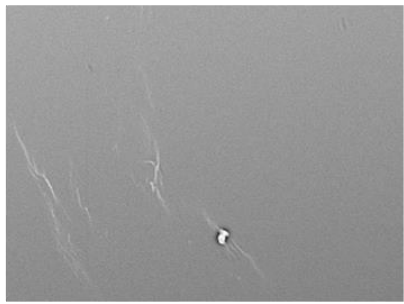
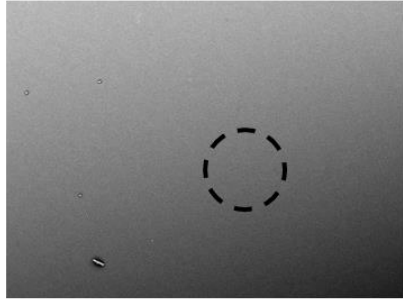
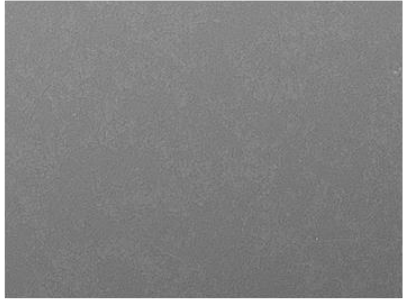
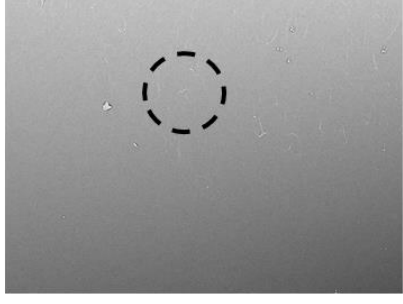


	Magnification	
	$\times 100$ <u>0.5mm</u>	$\times 500$ <u>0.1mm</u>
(a)		
(b)		
(c)		
Load direction		

Fig. 4-12 SEM images of fracture surface of specimens with PC-CNF/ACIL adhesive interface obtained by tensile shear tests: (a) Without CNFs; (b) 0.3wt%CNF; (c) 0.5wt%CNF.

4.5 各構成部材の界面特性を考慮した落錘衝撃試験に関する陽解法有限要素解析

4.5.1 解析モデル

G/PC 積層安全ガラスを対象とした落錘衝撃試験に関する陽解法有限要素解析を行い、衝撃破壊挙動に及ぼす G-ACIL および PC-ACIL 接着界面の剥離の影響を検討した。解析は、第 2 章 2.5 節の場合と同様に、汎用有限要素解析コード ANSYS に組み込まれている陽解法ソルバー LS-DYNA を用いて行った。また、プリ・ポストプロセッサ機能は ANSYS を用いた。図 4-13 に解析モデルを示す。解析モデルは、第 3 章で行った落錘衝撃試験に準拠したもので、対称性を考慮して 1/4 の領域とし、合わせガラスの周囲を完全拘束した。G/PC 積層安全ガラスの寸法は 450×450 mm（固定部を除く）で、ガラスおよび PC 厚さは 5 mm、ACIL 厚さは 2 mm とした。落錘衝撃試験では、質量 112 kg に調整した鋼製の加撃体を任意の衝撃エネルギーとなるように高さを調整し、自由落下させて G/PC 積層安全ガラスに衝突させている。本解析では、第 2 章 2.5 節で行った解析と同様に、加撃体の密度を調整して、加撃体の質量が実験と同じになるようにし、高さ 1 mm から初速度を与えた加撃体を落下させた。加撃体の衝撃エネルギーは 400 J とした。要素分割は、8 節点 6 面体要素（SOLID164）を用いて行った。

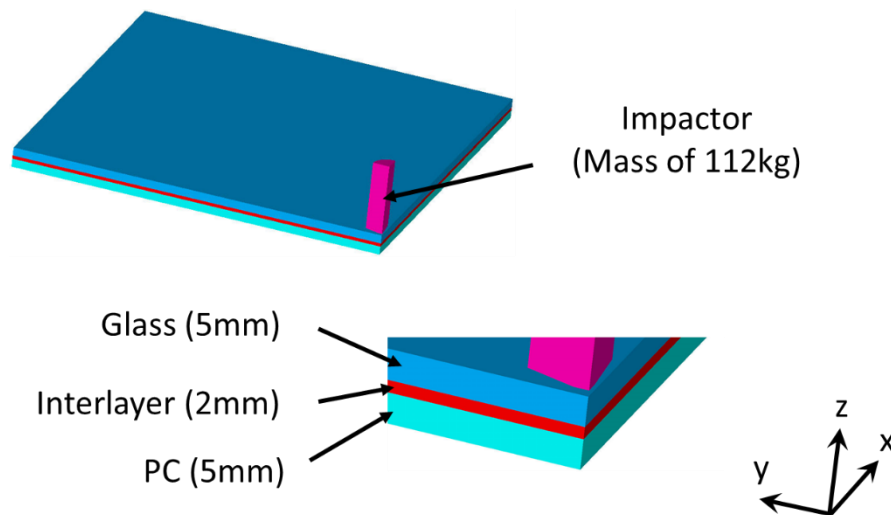


Fig. 4-13 Finite element model of drop weight impact tests using 112kg impactor.

第2章と同様に、PCは、き裂進展による要素削除を考慮できる弾塑性モデルを適用し、ガラスは、微視破壊による損傷とき裂進展による要素削除を考慮したJohnson-Holmquist-Ceramics (JH2) 材料モデルを適用した^{(8)~(10)}。ACILは超弾性体とし、Mooney-Rivlin 材料モデル (2パラメータ) を適用した⁽¹¹⁾。各材料モデルにおけるパラメータの値は第2章で用いた値を適用した。実験では、G-CNF/ACIL 接着界面は凝集破壊、PC-CNF/ACIL 接着界面は界面破壊が支配的となる結果であったため、本解析では、G-ACIL 接着界面は完全接着 (節点共有) とし、PC-ACIL 接着界面では、垂直破壊応力とせん断破壊応力で決定された破壊包絡線を境界として、発生した応力がこの境界を超えた場合に節点を分離させる機能によって剥離を考慮し、摩擦係数と垂直破壊応力およびせん断破壊応力を変化させた。図4-14にPC-ACIL 接着界面の破壊包絡線を示す。破壊包絡線は、垂直応力 σ_n 、せん断応力 σ_s 、垂直破壊応力 σ_{nf} 、せん断破壊応力 σ_{sf} とすると、以下の関係が成り立つ。

$$\frac{\sigma_n^2}{\sigma_{nf}^2} + \frac{\sigma_s^2}{\sigma_{sf}^2} = 1 \quad (4-1)$$

$$\sigma_n > 0, \sigma_s > 0, \sigma_{nf} > 0, \sigma_{sf} > 0 \quad (4-2)$$

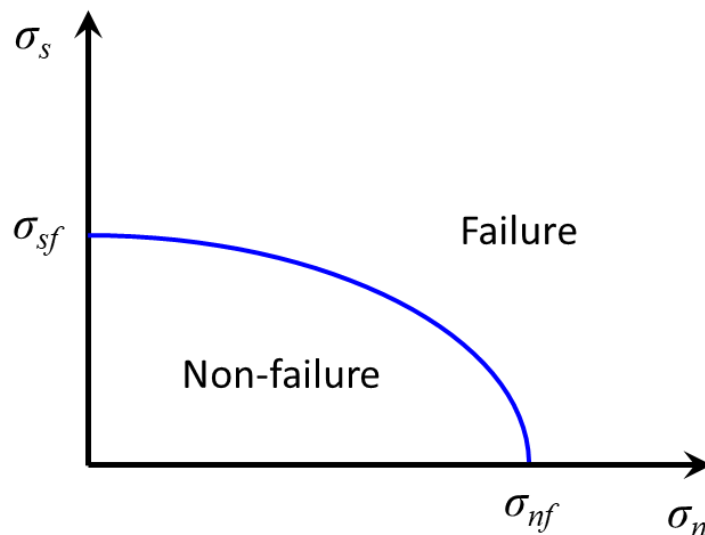


Fig. 4-14 Schematic image of failure envelope for PC-ACIL adhesive interface.

4.5.2 解析結果および考察

図 4-15 に、垂直破壊応力 2 MPa、せん断破壊応力 0.6 MPa で摩擦係数を 0.1～2 に変化させた場合の時間経過における加撃体の速度変化を示す。一般的に、摩擦係数は、1 未満である場合がほとんどであるが、ゴム等の場合では、1 を超える値を示すものも存在するため⁽¹²⁾、本解析では 1 を超える値まで変化させた。加撃体速度は、G/PC 積層安全ガラスに衝突後、時間経過とともに減少し、その傾きは増大する傾向を示した。摩擦係数が変化しても、加撃体速度変化の推移にはほとんど差異がなかったため、PC-ACIL 接着界面の摩擦係数は、加撃体速度の減衰にほとんど影響を及ぼさないと考えられる。

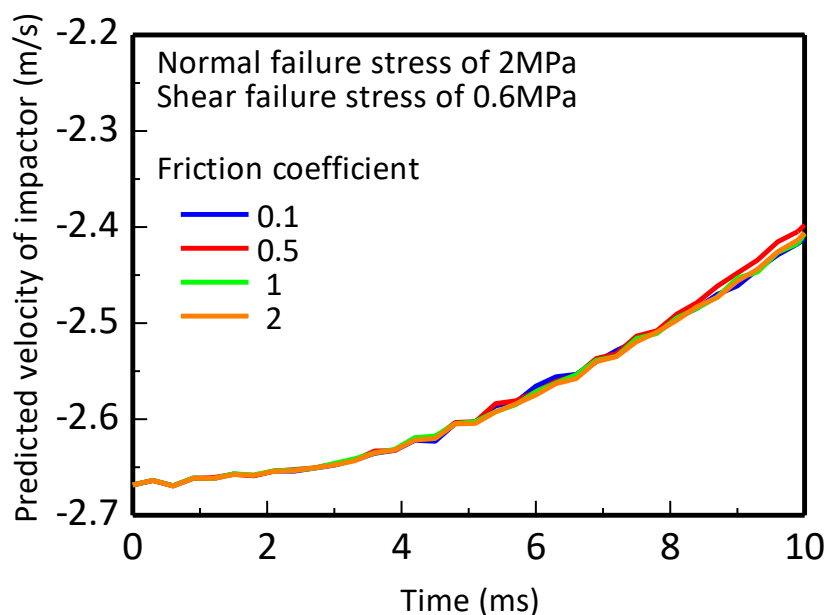


Fig. 4-15 Effect of friction coefficient of PC-ACIL adhesive interface on the predicted velocity of impactor collided with G/PC laminated safety glass under impact energy of 400 J.

図 4-16 に、摩擦係数 1，せん断破壊応力 2 MPa で垂直破壊応力を 0.1~2 MPa に変化させた場合の時間経過における加撃体の速度変化を示す。垂直破壊応力の増大に伴い加撃体速度の減衰は増大し、10 ms ではその差は顕著となった。また、各垂直破壊応力の場合で加撃体速度の減衰に差異が生じる時間が確認されるが、この時間は垂直破壊応力の減少に伴い、早くなる傾向であった。

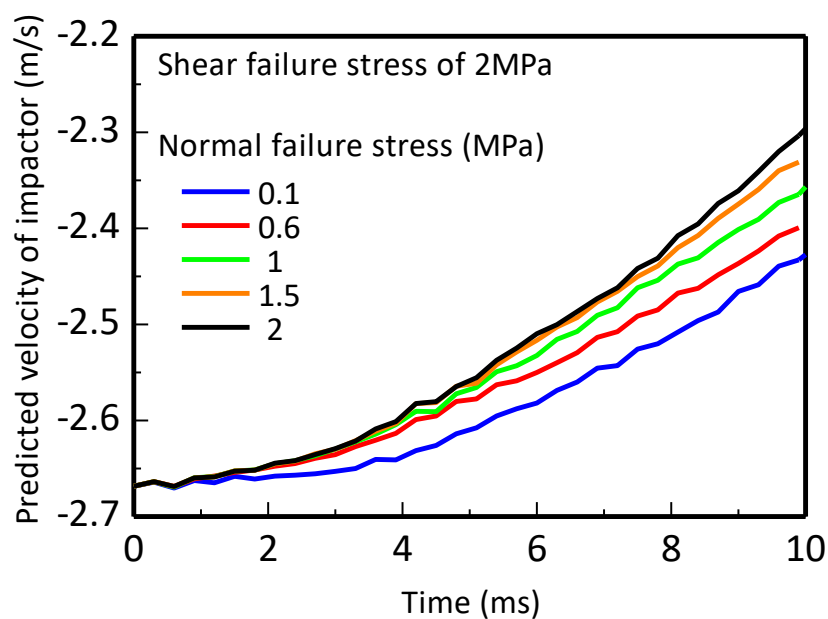


Fig. 4-16 Effect of normal failure stress of PC-ACIL adhesive interface on the predicted velocity of impactor collided with G/PC laminated safety glass under impact energy of 400 J.

図 4-17 に、垂直破壊応力を 0.1, 0.6, 1.5 MPa と変化させた場合の加撃体衝突後 10 ms 経過時におけるガラスと PC の相当応力分布を示す。図中の相当応力分布は、ガラスは加撃体衝突面側、PC は PC-ACIL 接着面側を示している。ガラスの相当応力分布は、加撃体衝突部から対角線に沿うように高い応力が発生し、PC-ACIL 接着界面の垂直破壊応力の増大に伴い、ガラス全体に高い応力が発生する傾向を示した。また、PC の相当応力分布は、PC-ACIL 接着界面の垂直破壊応力が増大すると、高い応力の発生する範囲は拡大する傾向を示した。これより、PC-ACIL 接着界面の垂直破壊応力が増大すると、PC-ACIL 接着界面の剥離面積が減少し、G/PC 積層安全ガラスの中央部に与えられた衝撃エネルギーをより広い範囲に効率よく分散させていると考えられる。

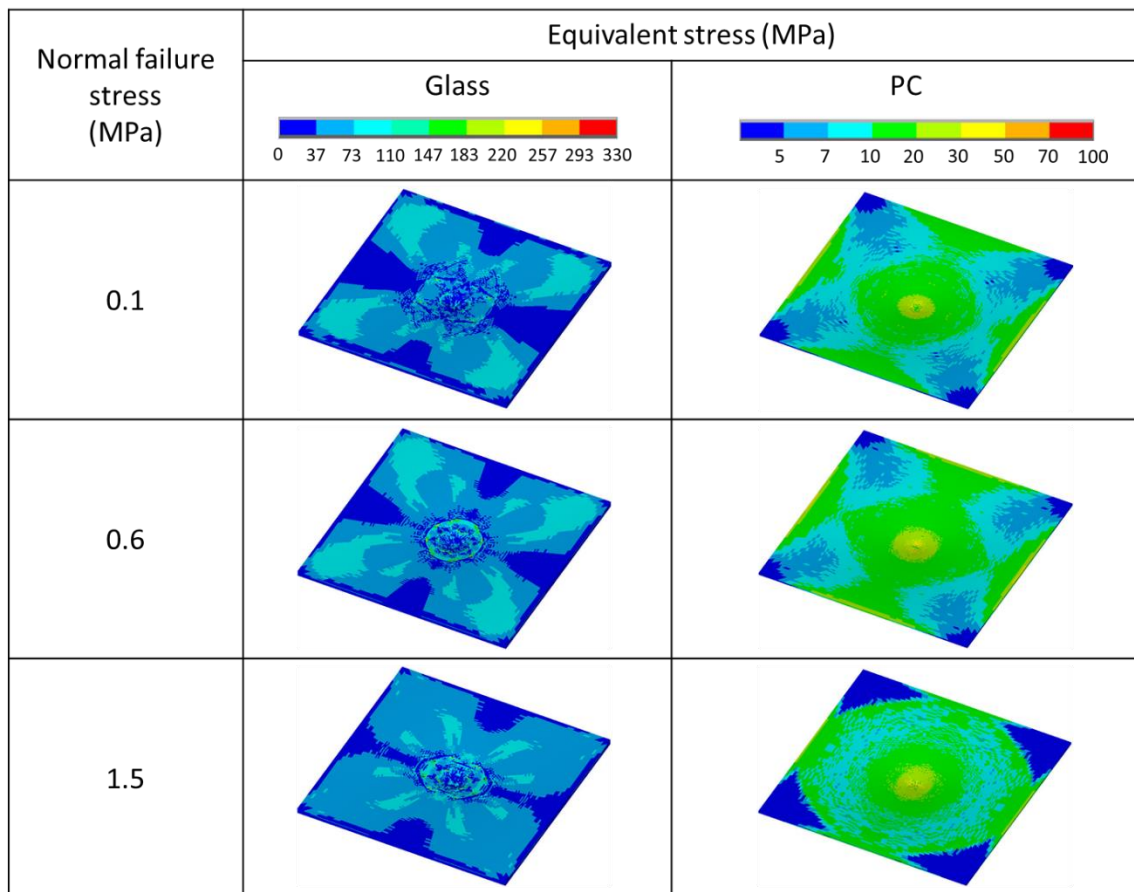


Fig. 4-17 Predicted equivalent stress distribution of glass and PC in G/PC laminated safety glass with different normal failure stress of PC-ACIL adhesive interface (400 J, 10 ms).

図 4-18 は、図 4-17 の解析で得られた PC-ACIL 接着界面の積層方向 (z 方向) の変位差を示したもので、加撃体衝突部から対角線方向へ 50 mm および 130 mm 離れた位置の場合である。なお、変位差は PC-ACIL 接着界面における PC 表面と ACIL 表面の差であり、0 mm の場合は接着状態、0 よりも大きな値になった場合は剥離状態を表す。

加撃体衝突部より 50 mm 離れた位置では、垂直破壊応力 0.1 MPa の場合は、加撃体衝突後約 1 ms で剥離が発生し、約 2 ms 辺りまでは PC-ACIL 接着界面の変位差はほぼ横ばいに推移した。その後は時間経過とともに複雑に変化しながら顕著に増大した。垂直破壊応力が増大すると、剥離発生時間は遅くなり、剥離発生後の PC-ACIL 接着界面の変位差は、垂直破壊応力 0.1 MPa の場合と同様に、時間経過とともに複雑に変化しながら増大した。

130 mm 離れた位置では、すべての場合において、50 mm 離れた位置の場合よりも遅い時間に剥離が発生し、剥離発生後は急激に変位差が増大する傾向を示した。また、垂直破壊応力が増大すると剥離発生時間はより遅くなった。剥離発生直後の急激な変位差の増大が発生する時間領域に注目すると、垂直破壊応力 0.1 MPa の場合は、50 mm 離れた位置と比較して、2 から 3.5 ms の領域でほぼ同様の傾きで変位差が増大した。また、垂直破壊応力 0.6 MPa の場合では、5 から 7 ms の領域で 50 mm 離れた位置よりも変位差は小さいもののほぼ同様の傾きで増大した。垂直破壊応力 1.5 MPa の場合においても、8 から 10 ms の領域で垂直破壊応力 0.6 MPa と同様の傾向を示した。

以上より、加撃体の衝突で発生したガラスの破壊に伴う ACIL の変形によって、PC-ACIL 接着界面の応力が図 4-14 で示した破壊包絡線を超えたために剥離したと考えられるが、加撃体衝突部付近で剥離が発生し、PC-ACIL 接着界面の変位差が拡大し始めると、剥離領域は時間経過とともに全体に拡大したものと考えられる。この時、垂直破壊応力が小さい場合、PC-ACIL 接着界面の剥離領域は非常に速く拡大し、垂直破壊応力が増大すると、剥離領域の拡大速度は遅くなると考えられる。すなわち、PC-ACIL 接着界面は、せん断破壊応力が一定の場合、垂直破壊応力が増大すると、剥離しにくくなることが明らかとなった。

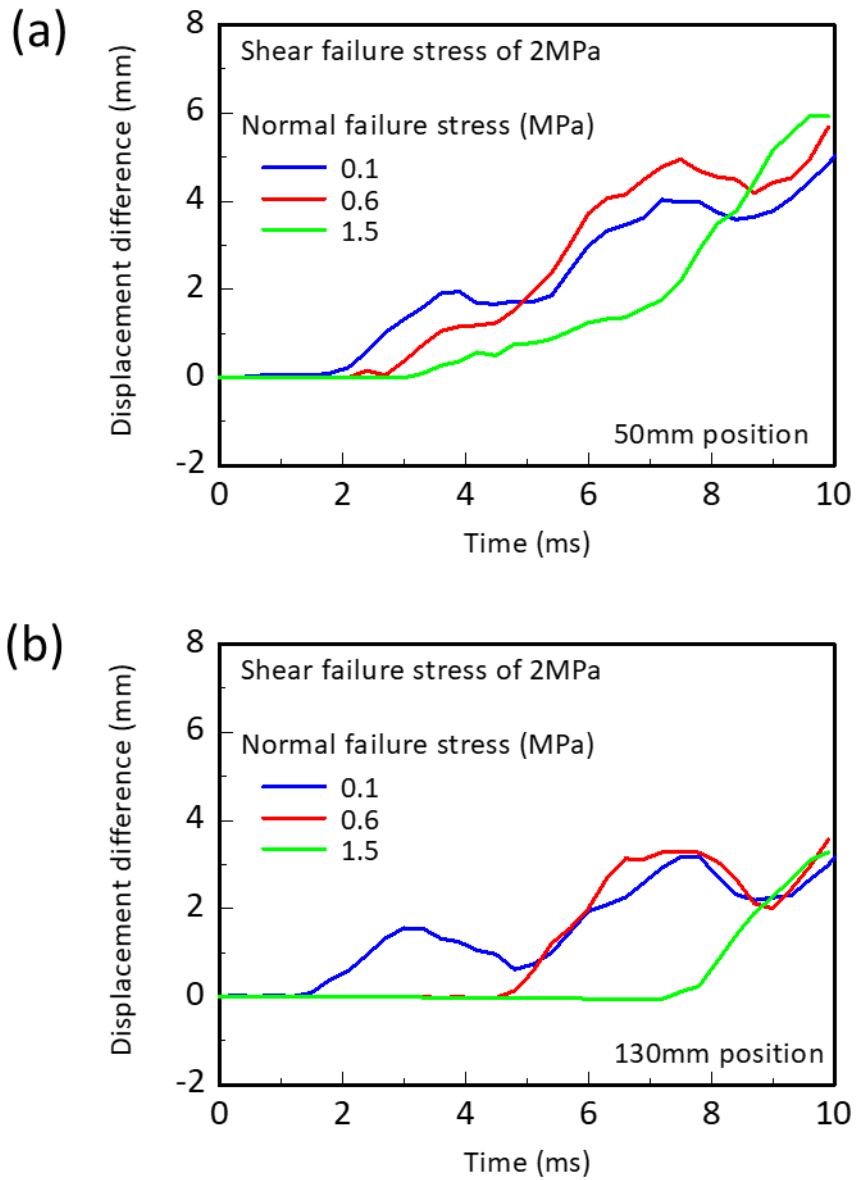


Fig. 4-18 Predicted displacement difference of PC-ACIL adhesive interface in G/PC laminated safety glass with different normal failure stress at various distance from impact point: (a) 50 mm; (b) 130 mm.

図 4-19 は、図 4-16 と同様のグラフであり、垂直破壊応力 2 MPa でせん断破壊応力を 0.1~2 MPa に変化させた場合である。せん断破壊応力の増大に伴い、加撃体速度の減衰は増大した。加撃体速度の減衰の増大は、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性向上を意味することから、PC-ACIL 接着界面の垂直破壊応力またはせん断破壊応力が増大すると、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性は向上すると考えられる。また、図 4-16 の場合とは異なり、加撃体速度の減衰は 1 ms 付近で差異が生じたが、この時間はせん断破壊応力が変化してもほとんど変わらなかった。さらに、10 ms では、垂直破壊応力を増大させた場合は、せん断破壊応力を増大させた場合よりも加撃体速度の減衰の程度は大きくなる傾向を示した。すなわち、加撃体速度の減衰に対して、垂直破壊応力はせん断破壊応力よりも強く影響を及ぼすと考えられる。

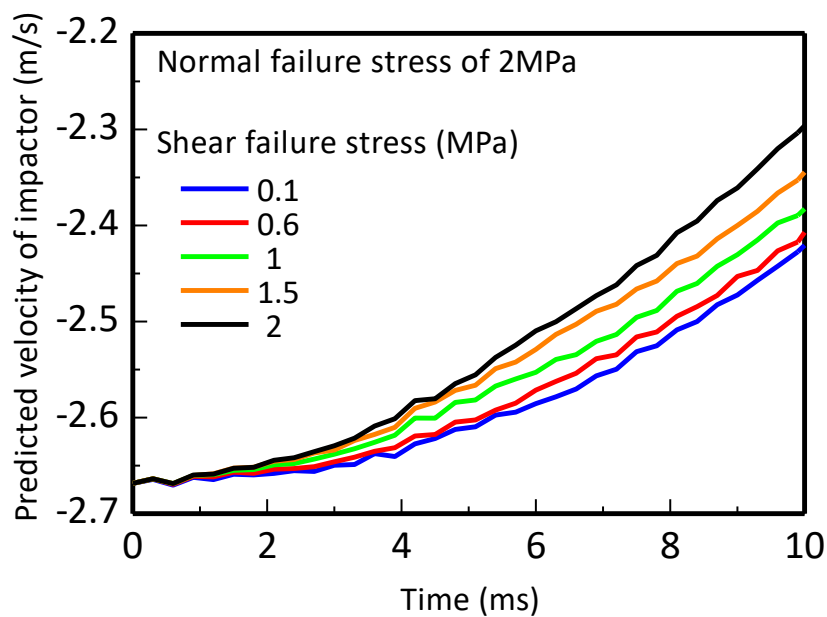


Fig. 4-19 Effect of shear failure stress of PC-ACIL adhesive interface on the predicted velocity of impactor collided with G/PC laminated safety glass under impact energy of 400 J.

図 4-20 は、図 4-17 と同様の図であり、せん断破壊応力を 0.1, 0.6, 1.5 MPa と変化させた場合である。ガラスの相当応力分布は、加撃体衝突部から対角線に沿うように高い応力が発生しており、PC-ACIL 接着界面のせん断破壊応力の増大に伴い、応力は角部付近に集中する傾向を示した。また、PC の相当応力分布は、PC-ACIL 接着界面のせん断破壊応力の増大に伴い、高い応力の発生する範囲が拡大する傾向を示した。

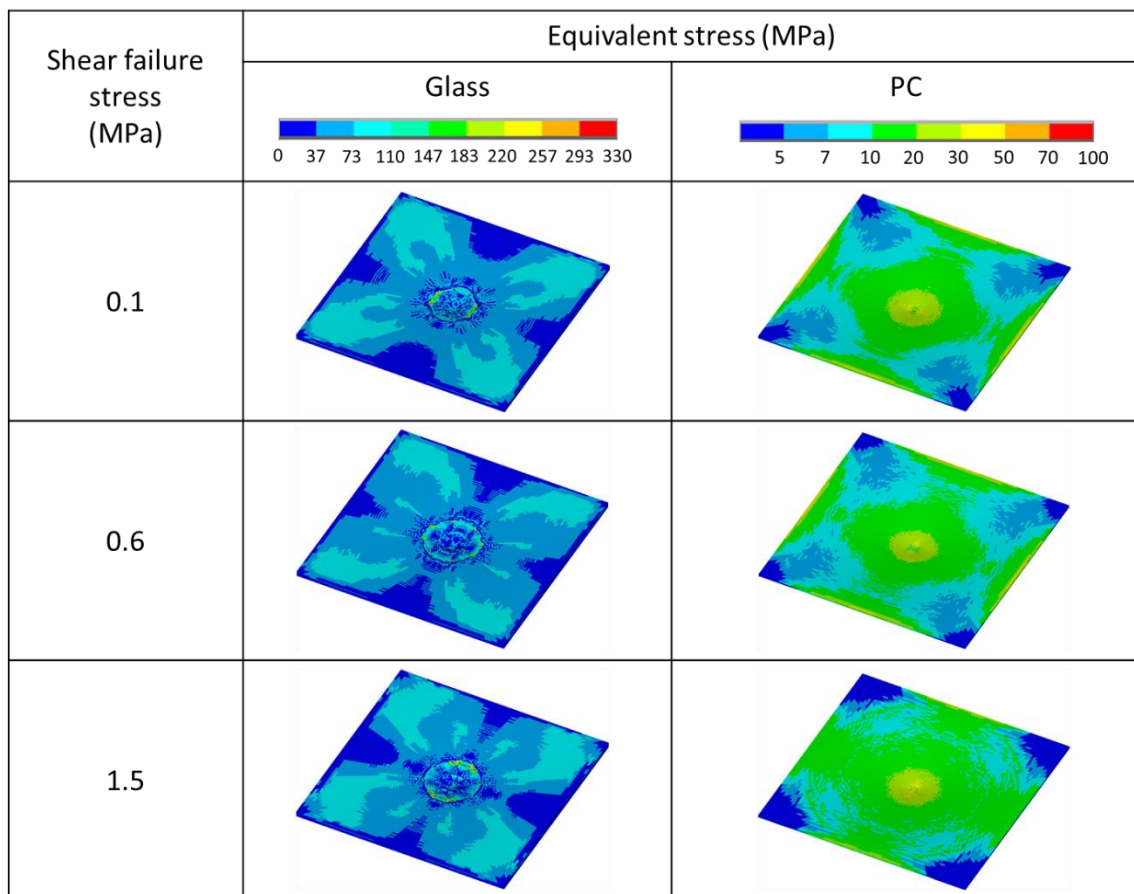


Fig. 4-20 Predicted equivalent stress distribution of glass and PC in G/PC laminated safety glass with different shear failure stress of PC-ACIL adhesive interface (400 J, 10 ms).

図 4-21 は図 4-18 と同様のグラフで、図 4-20 の解析で得られた PC-ACIL 接着界面の積層方向 (z 方向) の変位差を示したものである。加撃体衝突部より 50 mm 離れた位置では、せん断破壊応力 0.1 MPa の場合は、加撃体衝突後約 1 ms で剥離が発生し、その後時間経過とともに ACIL と PC の変位差は複雑に変化しながら増大する傾向を示した。また、せん断破壊応力が増大すると、剥離の発生する時間は遅くなる傾向を示した。

130 mm 離れた位置では、すべての場合において、50 mm 離れた位置の場合よりも遅い時間に剥離が発生した。せん断破壊応力 0.1 MPa の場合は、加撃体衝突後約 2 ms で剥離が発生し、その後は増大と減少を繰り返しながら増大した。50 mm 離れた位置の場合と同様に、せん断破壊応力が増大すると剥離する時間は遅くなり、その程度は増大した。せん断破壊応力 1.5 MPa の場合では、6 ms 辺りで剥離しており、0.1 MPa や 0.6 MPa の場合よりも長い時間接着している。図 4-18 の場合と同様に、PC-ACIL 接着界面の剥離は、加撃体衝突部付近に発生した後、周囲部へ拡大するが、垂直破壊応力が一定の場合、せん断破壊応力が増大すると、剥離領域の拡大速度は遅くなると考えられる。

図 4-18 と比較すると、50 mm 離れた位置の変位差の推移は、垂直破壊応力を変化させた場合とせん断破壊応力を変化させた場合とではほぼ同様の傾向であるが、130 mm 離れた位置では、せん断破壊応力を変化させた場合は、垂直破壊応力を変化させた場合よりも剥離発生の時間は早く、剥離発生直後の変位差は緩やかに増大する傾向を示している。これより、垂直破壊応力とせん断破壊応力の大きさのバランスにより、時間経過における PC-ACIL 接着界面の剥離の挙動と相当応力分布は複雑に変化すると考えられる。図 4-19 および図 4-20 を考慮すると、PC-ACIL 接着界面のせん断破壊応力が増大すると、PC-ACIL 接着界面の剥離領域が減少し、G/PC 積層安全ガラスの中央部に与えられた衝撃エネルギーをより広い範囲に効率よく分散させていると考えられる。また、PC-ACIL 接着界面の剥離面積が減少すると、ACIL のひずみも増大するため、内部摩擦による散逸エネルギーも増大すると考えられる。従って、第 3 章 3.8 節と 4.4 節で示した結果より、PC-CNF/ACIL 接着界面の強度が増大すると、剥離しにくくなるため、CNF/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスのさらなる耐衝撃性向上の可能性が示唆される。

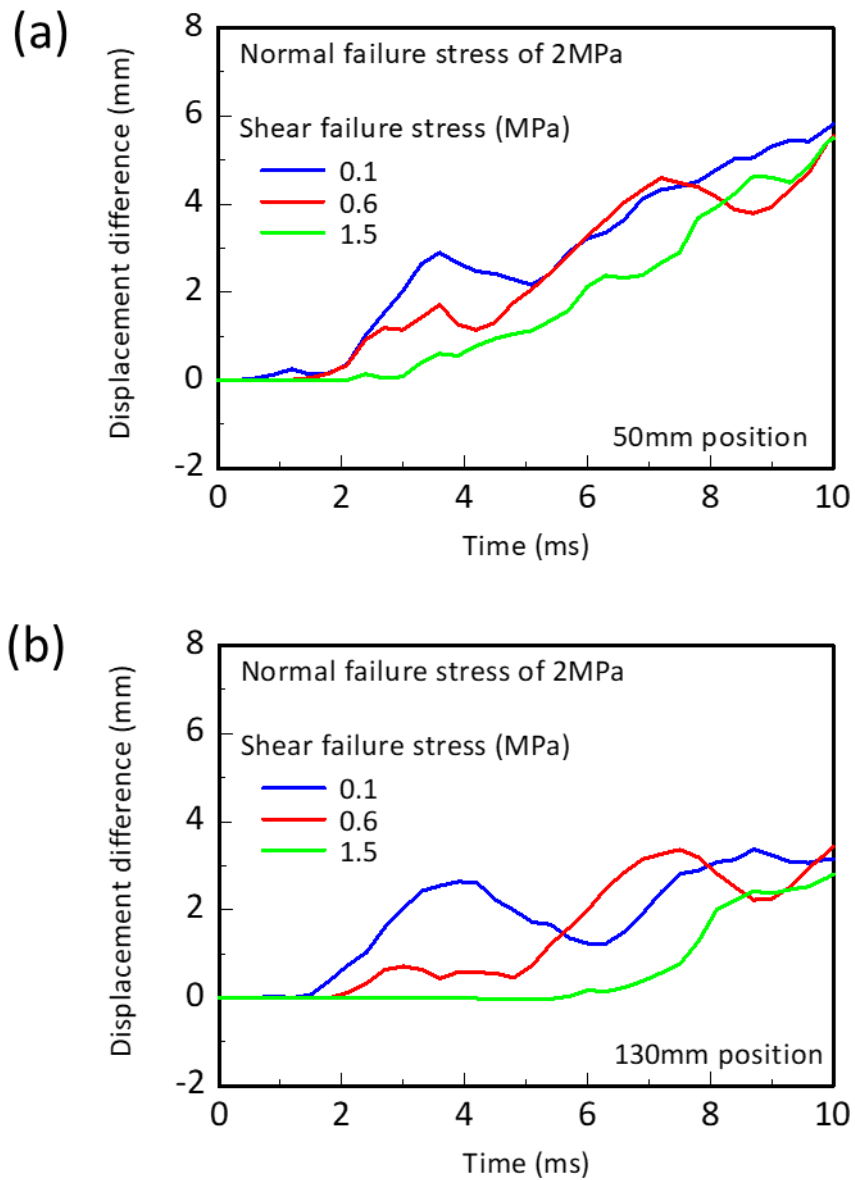


Fig. 4-21 Predicted displacement difference of PC-ACIL adhesive interface in G/PC laminated safety glass with different shear failure stress at various distance from impact point: (a) 50 mm; (b) 130 mm.

4.6 結言

CNF/ACILを用いたG/PC積層安全ガラスのG-CNF/ACILおよびPC-CNF/ACIL接着界面を対象としたへき開試験および引張せん断試験を行い、接着特性を評価した。また、G/PC積層安全ガラスの落錘衝撃試験に関する陽解法有限要素解析を行い、G/PC積層安全ガラスの衝撃破壊挙動に及ぼすPC-ACIL接着界面の剥離の影響を検討した。以下に得られた結果の要約を記す。

- (1) G-CNF/ACIL 接着界面におけるへき開試験および引張せん断試験の結果より、最大応力は、CNF濃度の増大に伴い減少する傾向を示した。また、破壊状態は、凝集破壊が支配的であり、接着界面の接着特性としては良好であった。試験体の破断面観察より、CNF濃度の増大に伴い、線状のき裂から網目状のき裂に変化した。
- (2) PC-CNF/ACIL 接着界面における引張せん断試験の結果より、最大応力はG-CNF/ACIL 接着界面の場合と同様に、CNF濃度が増大すると、減少する傾向を示した。また、G-CNF/ACIL 接着界面の場合に比べて、最大応力は著しく低下し、破壊状態は界面破壊が支配的であった。
- (3) PC-ACIL 接着界面の剥離の影響を考慮したG/PC積層安全ガラスの落錘衝撃試験に関する陽解法有限要素解析の結果より、垂直破壊応力を増大させた場合は、せん断破壊応力を増大させた場合よりも加撃体速度の減衰の程度は大きくなる傾向を示した。これより、G/PC積層安全ガラスの耐衝撃性向上には、PC-ACIL 接着界面の引張せん断強度よりもへき開接着強度を増大させる方が効果的であることが示唆された。また、垂直破壊応力とせん断破壊応力のバランスによって、時間経過におけるPC-ACIL 接着界面の剥離の挙動と相当応力分布は複雑に変化すると考えられる。

参考文献

- (1) G. Rivers and D. Cronin, “Influence of moisture and thermal cycling on delamination flaws in transparent armor materials: Thermoplastic polyurethane bonded glass-polycarbonate laminates”, *Materials and Design*, Vol. 182, 2019.
- (2) A. Vedrtnam, “Experimental and simulation studies on delamination strength of laminated glass composites having polyvinyl butyral and ethyl vinyl acetate inter-layers of different critical thicknesses”, *Defence Technology*, Vol. 14, pp. 313-317, 2018.
- (3) C. D. Wu, X. Q. Yan and L. M. Shen, “A numerical study on dynamic failure of nanomaterial enhanced laminated glass under impact”, *Proceedings of the 9th World Congress on Computational Mechanics and 4th Asian Pacific Congress on Computational Mechanics*, 012176, 2010.
- (4) 林泰夫, 工藤正博, 「ガラス表面のキャラクタリゼーション(I)—ガラス表面における諸現象の発現機構—」, 表面化学, 第 22 卷, 1 号, pp.55-63, 2001.
- (5) 日本規格協会, 「接着剤—剛性被着材の引張せん断接着強さ試験方法」, 日本工業規格, JIS K6850:1999, pp. 1-5, 1999.
- (6) 日本規格協会, 「接着剤—主要破壊様式の名称」, 日本工業規格, JIS K6866:1999, pp. 1-3, 1999.
- (7) 中村吉伸, 今村圭吾, 伊東慶子, 浦濱圭彬, 「タック試験による粘着性発現メカニズムの最近の研究動向」, 日本接着学会誌, 第 48 卷, 1 号, pp. 22-29, 2012.
- (8) Livemore Software Technology Corporation, “MAT JOHNSON HOLMQUIST CERAMICS, *LS-DYNA keyword user’s manual R10.0*, vol. 2, pp. 2-566-2-569, 2017.
- (9) G. R. Johnson and T. J. Holmquist, “An improved computational constitutive model for brittle materials”, *AIP Conference Proceedings*, vol. 309, pp. 981-984, 1994.
- (10) D. S. Cronin, K. Bui, C. Kaufmann, G. McIntosh and T. Berstad, “Implementation and validation of the Jhonson-Holmquist ceramic material model in LS-Dyna”, *Proceedings of the 4th European LS-DYNA Users Conference*, pp. D-I-47-D-I-60, 2003.

- (11) P. A. Du Bois, S. Kolling and W. Fasnacht, “Modelling of safety glass for crash simulation”, *Computational Materials Science*, vol. 28, pp. 675-683, 2003.
- (12) 深堀美英, 「破壊があぶりだすゴムの正体 (その4) 架橋ゴムの摩擦・摩擦を支配するゴム表面の粘性作用」, ゴム協会誌, 第 88 巻, 3 号, pp. 86-92, 2015.

第5章 結論

5.1 本研究の総括

本論文は、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性に関する実験的理論的研究を行なったもので、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動を解明し、薄肉化・軽量化のための積層構造設計指針の確立を図るとともに、アクリル樹脂中間膜への CNF 添加による G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性向上効果を検証した。

旋盤やマシニングセンタ等の工作機械の窓には、安全ガラスが使用されており、G/PC 積層安全ガラスはその要求特性を満たしているが、最近では、加工の高速化や主軸の高回転化で発生する高速飛翔物に対する G/PC 積層安全ガラスの安全性の向上および工作機械カバーの省スペース化に伴う G/PC 積層安全ガラスの薄肉化・軽量化の要求に対応していく必要がある、さらなる G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性向上が望まれている。しかし、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動に関する検討はこれまで行われておらず、積層構造設計指針を確立するためには未解明な部分が多く残されている。また、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性は、ACIL の特性に大きな影響を受けるため、フィラー添加によって ACIL の特性を最適に制御できれば、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性を向上できると考えられるが、ACIL の透明性保持の観点から、これまでほとんど検討が行われていなかった。そこで、本研究では、G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験と陽解法有限要素解析を行い、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動に及ぼす構成部材厚さの影響を詳細に検討した。また、ACIL へ CNF を添加した CNF/ACIL の光学特性と力学特性を評価し、CNF による ACIL 特性制御の可能性を検討するとともに、CNF/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験を行い、耐衝撃性向上を検証した。さらに、G-CNF/ACIL 接着界面および PC-CNF/ACIL 接着界面の接着特性を評価するとともに、G/PC 積層安全ガラスの剥離を考慮した陽解法有限要素解析を行い、衝撃破壊挙動に及ぼす構成部材の剥離の影響を検討した。

以下に得られた結果と考察の要約を示す。

5.1.1 ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価

1. 落錘衝撃試験の結果より，臨界衝撃エネルギーは，PC 厚さが大きくなると増大し，PC 厚さが同一の場合には ACIL 厚さが大きくなると増大した．損傷状態においては，PC 厚さが小さくなるほど損傷状態は大きくなり，PC 厚さ 3 mm から 1 mm になると損傷状態に大きな変化があった．PC 厚さが同一の場合には，ACIL 厚さが大きくなると全体の損傷の程度が大きくなり，加撃体衝突部付近では損傷の程度は小さくなった．また，厚さ 5 mm の PC を用いた G/PC 積層安全ガラスは，厚さ 5 mm の PC 単体の場合に比べて，臨界衝撃エネルギーが 2 倍程度増大した．これは，G/PC 積層安全ガラスのガラスが破壊することによる衝撃吸収能と中間膜の存在による衝撃エネルギーの広範囲な拡散が影響していると考えられる．中間膜厚さを変化させることで損傷状態が大きく変化することから，中間膜の力学特性と厚さを最適化することで，同一厚さのガラスおよび PC を使用した構成であっても耐衝撃性を向上できることが示唆された．
2. 陽解法有限要素解析の結果より，加撃体衝突時には，衝突部より応力が発生し，その発生範囲は時間経過とともに G/PC 積層安全ガラス全体へ拡大していくことが明らかとなった．また，PC 厚さが増大すると剛性が増大するために，衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体で受けやすくなり，PC 厚さが減少すると剛性は減少するために，衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体で受けにくくなる特性に変化した．さらには，ACIL 厚さが増大すると，ACIL によって，衝撃荷重を G/PC 積層安全ガラス全体に伝播させやすくなり，加撃体衝突部付近の応力集中を緩和させることが示唆された．
3. 落錘衝撃試験と陽解法有限要素解析の結果を比較すると，厚さ 3 mm の PC を用いた G/PC 積層安全ガラスの臨界衝撃エネルギーが約 300 J 付近に存在することや，ACIL 厚さが増大すると臨界衝撃エネルギーがわずかに増大した解析結果が実際の実験結果を良く表現していることを確認した．
4. 加撃体の衝撃エネルギーが一定の場合，加撃体質量が小さい場合は，衝突速度は増大し，加撃体衝突部付近より損傷が進展するが，加撃体質量が増大するとともに衝突速度は減少し，加撃体衝突部付近に加えてガラス端部においても損傷が発生することが明らかとなった．これは，加撃体質量の増大によって，加撃体速度が低下するため，G/PC 積層安全ガラスに対して静的負荷

状態に近づき、負荷時間は増大する傾向であることに起因していると考えられる。

5.1.2 セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜を用いたガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスの特性評価

5. CNF 濃度が増大すると、可視光透過率は減少する傾向を示したが、CNF 濃度 0～0.5wt%の範囲で可視光透過率 90%以上を維持した高い透明性を有した CNF-L/ACIL が得られた。
6. ACIL に CNF を添加した場合は、CNF 濃度 0wt%の場合と比較すると、DMA 試験で得られた周波数 1 Hz における E' および E'' の温度分散曲線は、ガラス転移に伴う変曲領域においてやや減少する傾向を示し、 $\tan \delta$ の温度分散曲線は、低温側へシフトした。また、CNF 添加量が増大すると、 E' および E'' はさらに減少し、 $\tan \delta$ はより低温側にシフトしたが、その程度はいずれも微小であった。また、周波数分散曲線では、CNF 濃度が増大しても E'' はほとんど変わらなかったことから、微小変形下においては、少量の CNF 添加は ACIL のエネルギー散逸に対してほとんど影響を及ぼさないと考えられる。
7. 引張試験結果から、CNF-L/ACIL の場合では、応力に及ぼす CNF 添加の影響は小さいが、高ひずみ領域では、少量の CNF 添加によって応力は増大するものの、CNF 濃度が増大すると応力は減少する傾向を示した。一方、CNF-S/ACIL の場合では、応力は CNF 濃度 0.2wt%の場合のみで剛性の増大が認められた。CNF の繊維長が長い方が高ひずみ領域におけるアクリル樹脂分子鎖および CNF の配向に伴う応力の増大は発現しやすいと考えられる。また、補強効果が発現する CNF 濃度には最適値があると考えられ、CNF のアスペクト比によって異なることが示唆された。
8. CNF/ACIL の引張特性に関する有限要素解析結果より、CNF と ACIL の界面が完全に接着していると仮定した場合、CNF アスペクト比 10 の場合において、添加量 0.1wt%程度では応力にほとんど影響はなかったが、CNF 添加量の増大に伴い応力の増大が顕著に表れることが明らかとなった。一方、CNF 添加量 5wt%の場合において、CNF アスペクト比の影響が大きく現れ、20%

ひずみにおける応力はアスペクト比が大きくなると顕著に増大した。実験結果では、アスペクト比の増大によって剛性が増大しやすくなることが示されたが、解析結果においても同様の傾向であり、定性的に一致した。今回の解析では CNF と ACIL の弾性特性のみで評価しているが、実際の CNF/ACIL では、CNF を起点とする微視破壊等の複雑な破壊挙動を示すと考えられる。

9. 落錘衝撃試験の結果から、CNF-L/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスは、CNF 濃度 0.5wt%までの範囲で、CNF 濃度が増大すると臨界衝撃エネルギーは増大した。これは、CNF-L/ACIL が加撃体の衝撃エネルギーを加撃体衝突部から、試験体全体へ散逸させているためであると考えられる。一方、CNF 濃度 1wt%の場合では、CNF 濃度 0wt%の場合よりも臨界衝撃エネルギーは減少した。加撃体衝突部付近のみ損傷の程度が大きい傾向を示したことから、CNF-L/ACIL が加撃体の衝撃エネルギーを試験体全体へうまく分配できない中間膜特性に変化したと考えられる。これより、ACIL への CNF 添加は G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性を向上させることが明らかとなった。また、その場合の CNF 濃度には 0 から 1.0wt%の範囲内に最適値があることが示唆された。

5.1.3 セルロースナノファイバー添加アクリル中間膜の接着特性評価

10. G-CNF/ACIL 接着界面におけるへき開試験および引張せん断試験の結果より、最大応力は、CNF 濃度の増大に伴い減少する傾向を示した。また、破壊状態は、凝集破壊が支配的であり、接着界面の接着特性としては良好であった。試験体の破断面観察より、CNF 濃度の増大に伴い、線状のき裂から網目状のき裂に変化した。ACIL 内部に CNF が存在することにより、ACIL が微視的に破壊する特性に変化し、CNF 濃度の増大により、その傾向は強くなったと考えられる。
11. PC-CNF/ACIL 接着界面における引張せん断試験の結果より、最大応力は G-CNF/ACIL 接着界面の場合と同様に、CNF 濃度が増大すると、減少する傾向を示した。また、G-CNF/ACIL 接着界面の場合に比べて、最大応力は著しく

低下し、破壊状態は界面破壊が支配的であった。

12. PC-ACIL 接着界面の剥離の影響を考慮した G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験に関する陽解法有限要素解析の結果より、垂直破壊応力を増大させた場合は、せん断破壊応力を増大させた場合よりも加撃体速度の減衰の程度は大きくなる傾向を示した。これより、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性向上には、PC-ACIL 接着界面の引張せん断強度よりもへき開接着強度を増大させる方が効果的であることが示唆された。また、垂直破壊応力とせん断破壊応力のバランスによって、時間経過における PC-ACIL 接着界面の剥離の挙動と相当応力分布は複雑に変化すると考えられる。

5.1.4 ガラス／ポリカーボネート積層安全ガラスにおける耐衝撃性

向上のための中間膜特性

以上の結果および考察から、工作機械用窓として高い耐衝撃性を有した G/PC 積層安全ガラスを得るための中間膜特性を以下に示す。

1. 衝撃荷重が G/PC 積層安全ガラス全体へ分配されやすくなるような力学特性
2. 衝撃荷重により、内部に微視的な破壊が発生しやすくなり、エネルギー散逸が大きくなる特性
3. PC への高い接着特性

5.2 今後の課題

以上のように、本論文では、G/PC 積層安全ガラスの落錘衝撃試験と陽解法有限要素解析を行い、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動に及ぼす構成部材厚さの影響を解明した。また、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性向上の方策として、ACIL へ CNF を少量添加した CNF/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスに関する検討を行い、CNF による ACIL 特性制御の可能性と、G/PC 積層安全ガラスの耐衝撃性向上を見出した。さらには、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動に及ぼす構成部材の剥離の影響を明らかにした。これらは、工作機械用窓として G/PC 積層安全ガラスを使用する場合の積層構造設計指針確立のための重要な知見となり得る。また、CNF に関する研究において、CNF 濃度が数 wt%から数十 wt% の範囲の力学特性評価が盛んに行われている中で、CNF を少量添加した ACIL を用いることにより、G/PC 積層安全ガラスの透明性を維持しながら一定の耐衝撃性向上効果が得られたことは、今後の CNF の用途開発を行う上で、新たな方向性を示唆するものであると考えられる。

しかしながら、本研究で行った陽解法有限要素解析によって G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動に関する多くの知見を得ることはできたが、CNF/ACIL の微視破壊や CNF-ACIL 界面における接着特性は考慮できていない。また、CNF/ACIL を用いた G/PC 積層安全ガラスを実際の製品として適用するには、耐久性や CNF の供給安定性等を検討する必要がある。特に CNF の供給に関しては、ようやく各製造メーカーが量産体制を整えつつあるが、現時点では CNF の導入はその他のフィラーと比べて高コストになる状況にある。また、ACIL への分散を可能にするための専用仕様であった場合、需要が限定的であるために、さらにコスト高になるとともに、将来的にも価格が低下しない可能性が高い。現状を鑑みると、G/PC 積層安全ガラスへの CNF の導入は、できる限り低コストで実現できる方法を検討しなければならない。これは、G/PC 積層安全ガラスに限ったことではなく、CNF がこれまで以上に広く普及するには非常に重要な検討事項である。

最後に、本研究は、G/PC 積層安全ガラスの衝撃破壊挙動の解明によって積層構造設計指針が確立すれば、工作機械用窓以外の分野の安全ガラスとしても展開できる。また、CNF の少量添加による耐衝撃性向上に関する研究は新たな試みであり、優れた力学特性を有した CNF 分散複合材料の発展に寄与する重要な研究になることを期待する。

謝辞

本研究を遂行し学位論文をまとめるにあたり，多大なるご支援とご指導を賜りました富山県立大学大学院工学研究科機械システム工学専攻 真田和昭教授に心より深く感謝申し上げます。研究内容に関する議論の中で，真田教授より多様な視点から多くの気付きを与えて頂いたことで，本研究内容に関する理解をより一層深めることができました。名古屋大学大学院工学研究科航空宇宙工学専攻 荒井政大教授，富山県立大学大学院工学研究科機械システム工学専攻 中川慎二教授，堀川教世教授，棚橋満准教授には，示唆に富んだご指摘や有益なご助言を賜りましたことを深く感謝申し上げます。また，富山県立大学 永田員也客員教授には，研究に関する議論はもとより，企業における研究職のあり方や研究開発業務の進め方等に関するご助言を賜り，企業研究者の心得をご教授頂きましたことに深く感謝申し上げます。

研究の遂行に必要な様々な実験等にご協力頂いた新光硝子工業株式会社企画開発部 松下直人係長，森井多美子さん（当時）に感謝の意を表します。また，材料設計加工学研究室 3 に在籍の皆様には，日ごろから様々な面でサポートして頂いたことに感謝いたします。

富山県立大学大学院工学研究科博士後期課程への進学のお機をを与えてくださいました新光硝子工業株式会社 鷲山浩一会長（当時），新海伸治社長，末永孝光専務をはじめ各役員の皆様には深く感謝いたします。また，同社 著者の上司および同僚の皆様には，日常業務と大学での研究との両立にご理解とご協力，時には激励の言葉を賜りましたことを感謝いたします。

本研究の成果の一部は，富山県産学官連携推進事業＜新商品・新事業枠＞，経済産業省中小企業庁戦略的基盤技術高度化支援事業，地域新成長産業創出促進事業（地域産業デジタル化支援事業）により得られたものであり，関係各所に謝意を表します。

最後に，これまで長きにわたり著者を様々な面で支えて頂いた妻と 2 人の娘たちには心より感謝いたします。そして，いつも気にかけて頂いている両親に感謝いたします。