

## 熱可塑性樹脂の引圧疲労の発熱係数：ポリメタクリル酸メチルとポリ塩化ビニール

樋口, 正一  
九州大学応用力学研究所：教授

今井, 康文  
長崎大学工学部講師

<https://doi.org/10.15017/4743527>

---

出版情報：応用力学研究所所報. 41, pp.13-23, 1974-02. 九州大学応用力学研究所  
バージョン：  
権利関係：

熱可塑性樹脂の引圧疲労の発熱係数<sup>†</sup>

(ポリメタクリル酸メチルとポリ塩化ビニール)

樋 口 正 一\*  
今 井 康 文\*\*

## 概 要

材料は疲労中に加えられる外部からの仕事をほとんど熱エネルギーに変え発熱消散させる。この発熱現象は今まであまり重要視されていなかったようであるが、その機構は疲労の機構と密接に関係していると思われる。

この研究では、熱可塑性樹脂であるポリメタクリル酸メチルとポリ塩化ビニールについて、疲労発熱による温度変化の測定から応力繰返し1サイクル当りの発熱量を計算し、それと疲労寿命との間に疲労破壊の規準となる一定の関係があることを示した。この関係式に周囲温度が与える影響は熱活性化過程におけるものと同じ形に表わすことができる。同じ応力振幅での発熱量の大きさは、周囲温度に影響されない。

## 1. 結 言

高分子材料は最近急速に開発され機械部品にも積極的に使用されるようになってきて、その機械的強度の研究が必要とされている。特に疲労強度に関しては高分子材料の疲労をそのクリープ現象と同一視して考えることの可否など研究を要する点が多い<sup>1)2)</sup>。疲労機構に対して、結晶質である金属については種々の議論が見られる<sup>3)</sup>が、無定形質高分子材料に、それをそのまま適用することはむずかしく、高分子材料に対しては別個に疲労機構を明らかにすべきであろうと思われる。

ところで、応力や歪の繰返しは金属材料にかぎらずどのような材料にでも、ごくわずかではあっても疲労被害を与えるものであり、疲労の過程は疲労被害が累積される過程であると考えられる。この疲労被害は金属材料においては表面でのすべり帯の発生、増加あるいは内部での転位線の移動、増殖などの微視的な内部組織の変形として疲労過程のかなり初期から観察されるが<sup>4)</sup>、高分子材料では疲労過程の遅い時期にクレーズの発生が観察される程度で初期の様相を表面観察から推測することはむずかしい<sup>5)6)</sup>。しかし、材料組織の微視的変形は外力による仕事の結果であり、そのエネルギーは完全に材料内に内部エネルギーとして蓄えられるのではなく、そのほとんどが微視的組織変形に伴って熱エネルギーすなわち変形に伴う広義の摩擦熱に変化し、材料の温度を上昇させるものと考えられるので、疲労過程のど

<sup>†</sup>昭和47年10月、日本機械学会九州中国四国支部合同講演会(倉敷)において講演。

\*九州大学教授、応用力学研究所

\*\*長崎大学工学部講師

の段階でもこの温度上昇量から求められる発熱量を疲労被害を測る巨視的な尺度として用いることができよう。このような立場から、発熱量によってすでに、種々の材料の疲労機構を説明してきた<sup>7)-12)</sup> (木材<sup>13)14)</sup> やゴム<sup>15)</sup> に対しても同様の取扱いができると思われる)。表題に掲げた材料 (PMMA と PVC と略称する) の振り疲労<sup>9)</sup> については別に報告する予定であるので、本論文では引圧疲労試験の結果について述べる。

## 2. 試験片および試験方法

試験片は市販の PMMA と PVC の丸棒 (直径 30 mm, 長さ 1 m) を図 1 に示す形状に機械加工し, エメリペーパー, バフで研磨したものである。試験機はインストロン型の万能試験機 Shinko TOM 5000

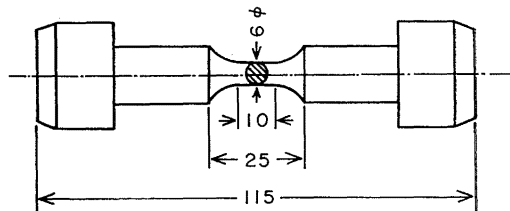


図 1 試験片形状

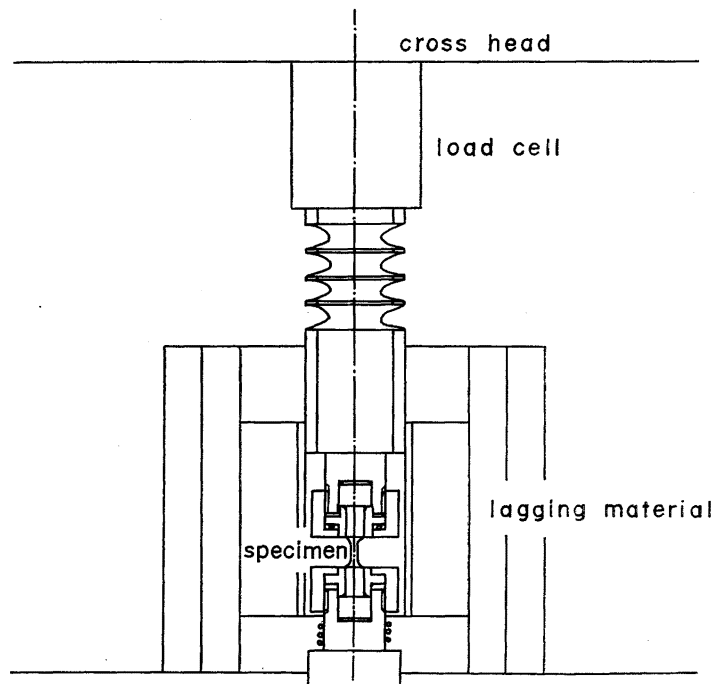


図 2 試験装置概要

であり、(1) 引圧荷重が加えられる、(2) 試験片軸方向に温度勾配が生じない、(3) ロードセルの温度が上昇しない、などの条件を満足するように、試験片チャック部、ロードセル取付け部およびその周辺を改造した。また、試験片周囲温度を所定の温度に保つため二重の恒温槽を取り付け、試験片が直接ふれる空気は静止状態にあるように温度制御された空気を外側の槽内に流した。図2にその概要を示す。

試験は荷重制御で、歪速度  $0.5 \sim 1.0 \text{ min}^{-1}$  の範囲で行なった。

疲労試験中の材料表面の温度変化を銅コンスタンタンシート状サーモカップル “Philips PR 6435 A/00” を用いて測定した。まずサーモカップルの測温部を粘着テープで試験片の試験部中央表面に、また別の測温部を試験片と同材料で作った応力をかけない同形状の試片の表面に同様に固定し、温度差による熱起電力を検出した。起電力は  $\mu\text{V}$  計で増幅しペン書き記録計で試験の始めから破断まで連続的に記録した。応力がかかっていない試片の温度は試験片周囲の温度を示しているのので、この温度を周囲温度として同時に記録した (図3参照)。

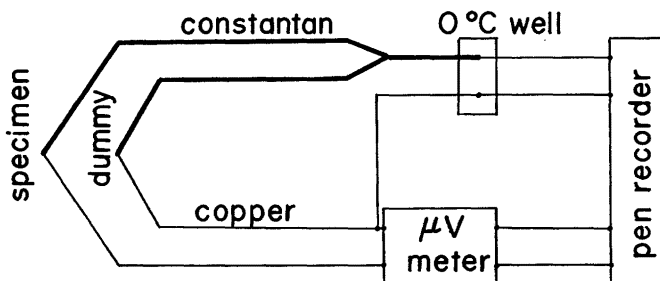


図 3 銅コンスタンタン熱電対による試験片と周囲温度の測定方法を示す模式図

### 3. 結 果

#### 3.1. $S-N$ 曲線と温度上昇

それぞれの材料の  $S-N$  曲線を図4に示す。疲労破壊に二様性が認められ<sup>16)</sup>、低応力振幅繰返しでは破面にほとんど塑性変形が認められない引張り型破壊であるが、高応力振幅では破断面近傍に大きな塑性流れを伴ういわゆるせん断型破壊を起す。そして疲労寿命が短く  $S-N$  曲線で傾斜のゆるやかな部分に当る。

前者の場合試験片温度は図5に見られるように、ある程度時間がたつと平衡値におちつき、その平均温度はすでにポリカーボネート (PC) を使った試験で得られている式<sup>7)</sup>

$$\theta = \frac{\text{HGR}}{\beta\lambda} (1 - e^{-\beta\lambda N}) \quad (1)$$

HGR 発熱係数,  $\beta$  放熱係数,  $\lambda$  1サイクルに要する時間,  $N$  繰返し数

で近似できる (図6参照)。

しかし、後者の場合には図7に示すように時間が経過しても一定値におちつかず温度は上昇し続ける。それゆえ HGR = 一定と仮定して得られた (1) 式では平均温度は近似できない。詳しくは後述するが

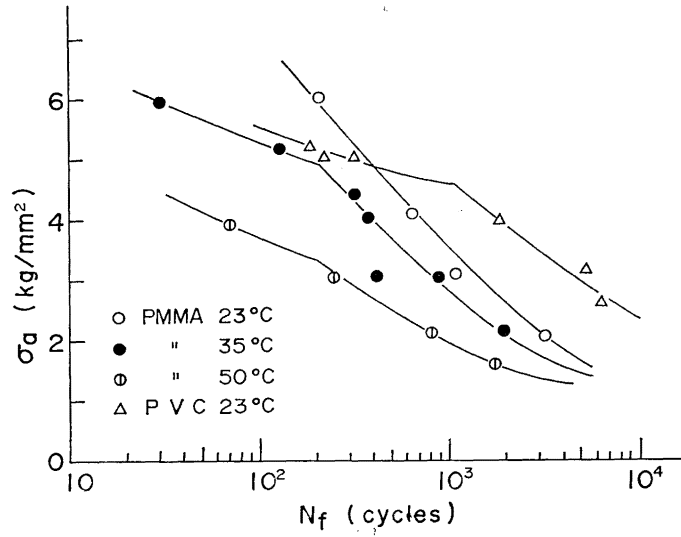


図 4 PMMA と PVC の引圧疲労 S-N 曲線  
図中の温度は周囲温度を表わす。

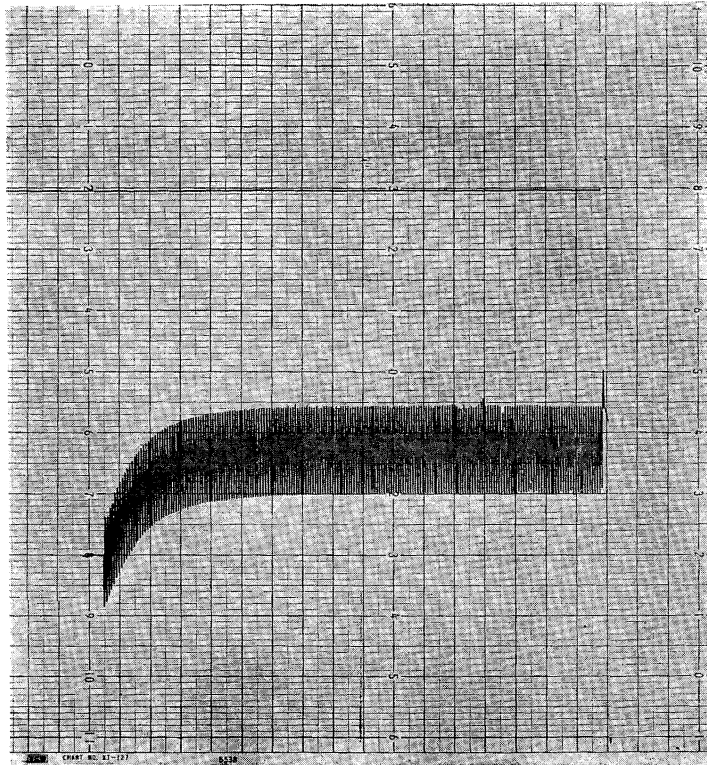


図 5 引張り型疲労発熱による温度上昇の例  
PMMA,  $\sigma_a=6.02 \text{ kg/mm}^2$ ,  $N_f=208 \text{ cycles}$ ,  
図中上方の直線が周囲温度を示す,  $20.5^\circ\text{C}$ 。

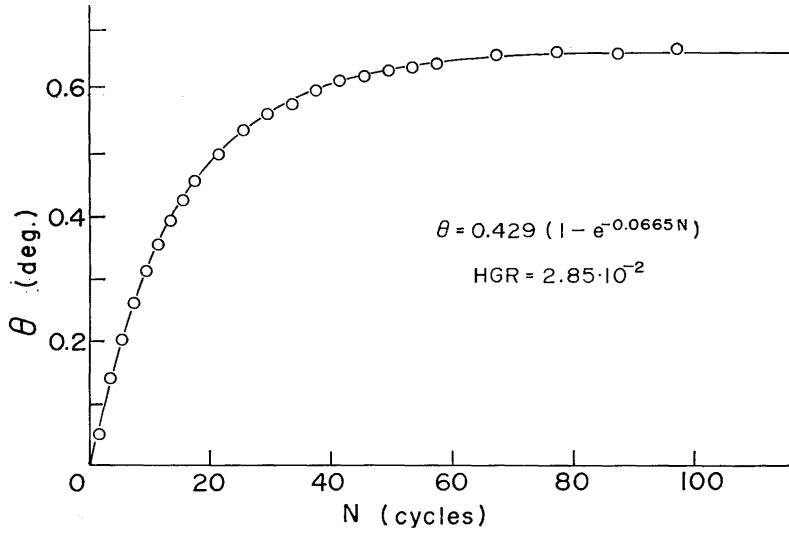


図 6 平均温度の変化と (1) 式のあてはめ  
○印は測定点, 実線は図中の式が表わす関係.  
(図 5 の記録から)

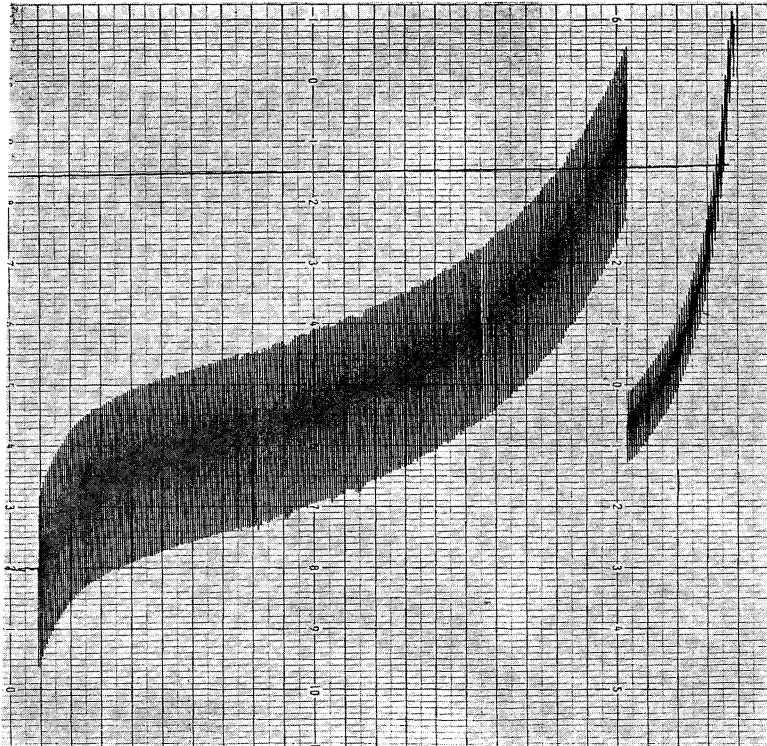


図 7 せん断型疲労発熱による温度上昇の例  
PVC,  $\sigma_a = 5.02 \text{ kg/mm}^2$ ,  $N_f = 320 \text{ cycles}$ , 周囲温度  $20.5^\circ\text{C}$ .

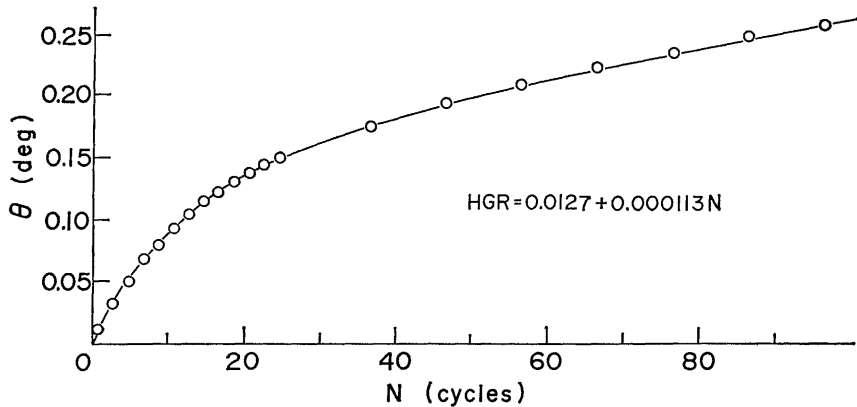


図 8 セン断型疲労の初期の平均温度の変化と (2) 式のあてはめ  
○印は測定点, 実線は HGR が図中の式で表わされる場合の計算値を表わす. (図 7 の記録から)

繰返し初期で HGR が繰返し数と共に増加すると仮定すると, 温度変化は

$$\theta = \frac{\text{HGR}_0}{\beta\lambda} \left[ \left(1 - \frac{r\rho}{\beta\lambda}\right) (1 - e^{-\beta\lambda N}) + r\rho N \right] \quad (2)$$

ここで

$$\text{HGR} = \text{HGR}_0 (1 + r\rho N), \quad r\rho \text{ 一定}$$

と計算できる. 図 7 に示した例で (2) 式が表わす曲線を示すと図 8 のようになる.

破断に近くなるとこれ以上に温度は上昇し大きな塑性流れを生じるが, それでも材料のガラス転移点温度にまで達するわけではない. これは疲労被害が集中することにより局所的に自由体積の量がガラス転移点の量に達するためと思われる.

### 3.2. 発熱係数と疲労の規準式

(1), (2) 式を, 測定した温度変化に直接あてはめることによりその係数を求めた (方法は既報と同様<sup>7)10)</sup>, 文献 7) 8) 9) では HGR を  $\alpha$  と表わしている). 表 1, 2 にその数値を示す. 図 9 は HGR と繰返し応力振幅の関係を示したものである. PMMA に対しては周囲温度によらず

$$\text{HGR} \propto \sigma_a^2 \quad (3)$$

が成立しており, 測定範囲の応力値に対して線型粘弾性的にふるまうことを示している<sup>11)</sup>. PVC は応力振幅の小さい範囲では (3) 式の関係にあるようであるが, 応力振幅が大きくなるとその関係からはずれ, 非線型なモデルを考える必要があることを示唆している.

図 10 は HGR と疲労寿命  $N_f$  との関係を示したもので各周囲温度において, 疲労の規準式

$$(\text{HGR} - a)N_f = C(T) \quad (4)$$

が成立している. 式の形は PC<sup>7)</sup>, 炭素鋼<sup>11)</sup> で得られたものとまったく同じである. 式中の定数  $a, C(T)$  は図中に書き込んであるように材料の種類, 周囲温度によって異なる.

図9, 10のうち( )で囲んだ点は, セン断型疲労に対するもので(2)式の  $HGR_0$  でプロットしていることを意味する.  $HGR$  が変化する場合には疲労初期の  $HGR$  が(4)式の関係にある. ( )の付いていないものは疲労中一定である.

### 3.3. 疲労の規準式の周囲温度依存性 (PMMA について)

PC におけると同様, (4)式右辺の値は周囲温度  $T$  ( $^{\circ}\text{K}$ ) によって異なる. 図11はこの値を  $1/T$  ( $^{\circ}\text{K}^{-1}$ ) でプロットしたものでやはり同様に直線関係がある. すなわち(4)式は周囲温度の影響を取り入れて次のように書き換えられる.

表 1 PMMA 両振引圧疲労試験データ

応力振幅 $\sigma_a$	周囲温度	放熱係数 $\beta$	発熱係数 HGR	疲労寿命 $N_f$
$\text{kgmm}^{-2}$	$^{\circ}\text{C}$	$10^{-3}\text{sec}^{-1}$	$10^{-3}\text{degcycle}^{-1}$	cycles
6.02	20.5	4.72	28.5	208
4.08	21.0	5.52	11.3	642
3.10	23.0	5.10	6.69	1077
2.05	23.0	5.17	3.15	3167
5.95	35.0	—	(34.6)*	30
5.16	35.0	5.17	(23.9)	127
4.42	35.0	4.06	(15.9)	316
4.01	35.0	4.55	10.8	377
3.16	35.0	4.60	7.14	890
3.06	35.0	5.40	8.50	414
2.13	35.0	6.10	3.33	1930
3.92	50.0	5.26	(15.4)	70
3.04	51.0	3.98	6.10	243
2.11	51.0	5.15	2.50	804
1.59	50.0	4.05	1.87	1734

\*( )の値は  $HGR_0$

表 2 PVC 両振引圧疲労試験データ

応力振幅 $\sigma_a$	周囲温度	放熱係数 $\beta$	発熱係数 HGR	疲労寿命 $N_f$
$\text{kgmm}^{-2}$	$^{\circ}\text{C}$	$10^{-3}\text{sec}^{-1}$	$10^{-3}\text{degcycle}^{-1}$	cycles
5.20	24.0	5.95	(12.2)*	186
5.02	21.5	6.87	(12.7)	320
5.02	20.5	6.68	(14.3)	221
3.97	23.0	5.53	4.55	1860
3.14	22.5	5.85	1.70	5300
2.60	24.0	6.02	1.22	6200

\*( )の値は  $HGR_0$



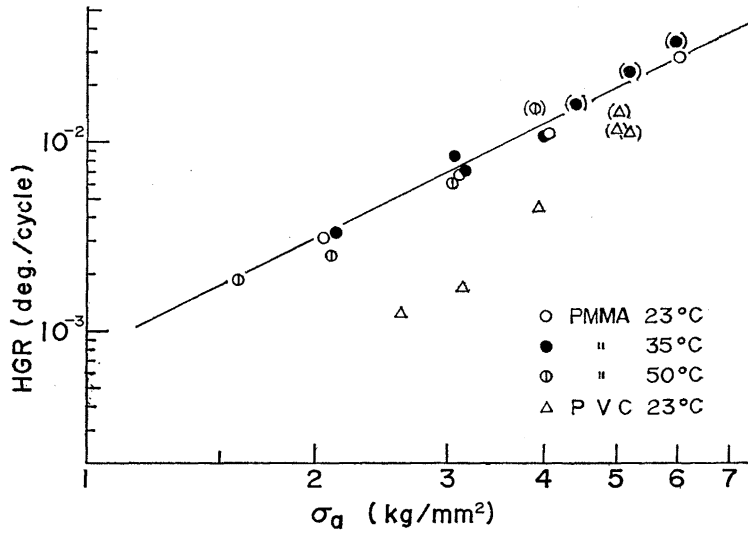


図 9 発熱係数と繰返し応力振幅の関係  
図中の直線は (3) 式の関係を表わす。

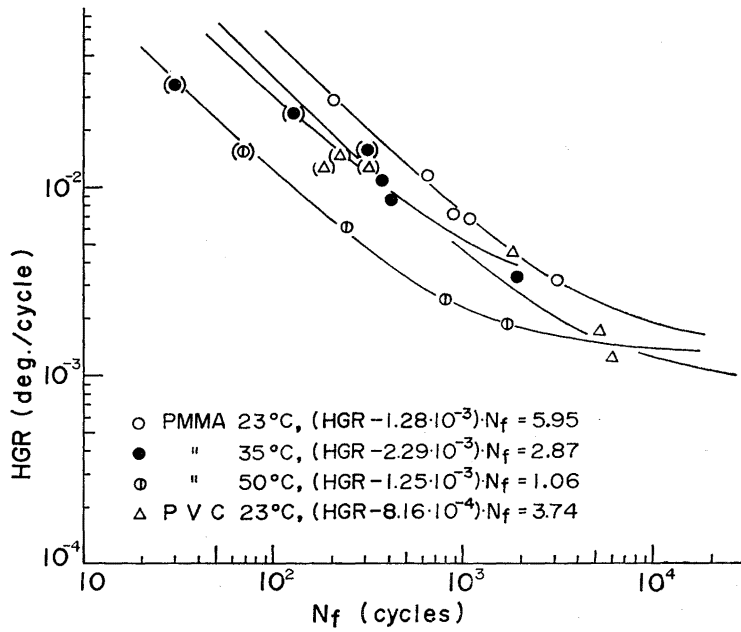


図 10 発熱係数と疲労寿命の関係  
実線は図中に書き込んだ式が表わす関係。  
( )で囲んだ点は  $HGR_0$  でプロットしたものの。

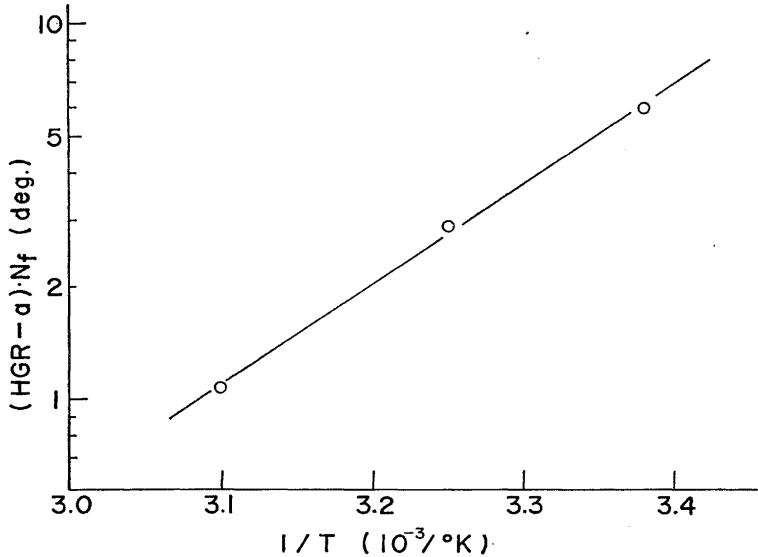


図 11 疲労の規準式の周囲温度依存性を示す Arrhenius プロット PMMA について。

$$(HGR-a) \cdot N_f \cdot \exp(-U/RT) = \text{const.} \quad (5)$$

ここで  $U=12\text{kcal/mol}$ ,  $R$  はガス定数 ( $\text{kcal/mol}\cdot^\circ\text{K}$ ) である。

すなわち PMMA の疲労過程を熱活性化過程であると考えれば, その見かけの活性化エネルギーは約  $12\text{kcal/mol}$  である。しかもこの値は PC について得られた値と全く等しい。

#### 4. 考 察

熱可塑性高分子材料の単純引張りにおける塑性流動の開始点は, 材料の温度がガラス転移点の温度にまで上昇するのではなく材料内の自由体積の量がガラス転移点の量にまで増加した時であることを示す研究結果がある<sup>17)</sup>。材料の疲労現象も微視的には単純引張りでの塑性流動と同様の現象と考え(き裂発生までの過程は特にそうであると考えられる), 疲労損傷の累積を自由体積増加の過程として説明すべきものと考えられる。

疲労する前の材料は, ガラス転移点以下の温度においては, 材料中の自由体積がほぼ均一に分散し凍結していて自由体積の離合集散を起すことができない状態にあると考えられる。その材料に外力を加えることによりある個所の分子が少しずれ, 自由体積がその位置を移動することができる。外力の繰返しは材料内での自由体積の移動を助けるものであり, あるものは合体してより大きなものになる(このような自由体積の移動, 増殖の過程を以後疲労の素過程と呼ぶ)。そして材料内に不均一な自由体積の分布状態が生まれ, 局所的に自由体積の量がガラス転移点の量に達すれば, そこは塑性流動を起すことができる。これがクレーズ質といわれるものだと思う。材料全体の破壊はクレーズがき裂に変化し, き裂の進展により起る<sup>5)6)</sup>。

さて, 外力による仕事のうち分子の位置変化に伴う内部エネルギーの変化量と, 新しくできた自由体

積の表面エネルギーを差引いた残りのものはほとんど熱エネルギーに変換される。発生した熱量は分子の位置のずれ、いかえれば疲労の素過程に伴う広義の摩擦熱と考えることができる。そしてこの発熱量は材料内の素過程発生の数を知る尺度となるものであり、HGR と比熱  $c$ 、密度  $\rho$  との積がこれに相当する。

ところで、低応力振幅における疲労の過程で発熱係数が一定であるということからその応力振幅の範囲では、各サイクル毎の素過程発生数  $n_0$  は同じで素過程の性質自体にも差異がなくまた独立であると解される。すなわち、一素過程当りの発熱量を一定と考え  $c\rho h$  で表わせば

$$\text{HGR} = n_0 h \quad (\text{一定}) \quad (6)$$

と書くことができる。一方、高応力振幅に対しては HGR は一定ではなく増加し続ける。これは温度上昇により材質が軟化し、その個所に変形が集中しますます軟化していくという不安定現象と考えられている<sup>18)19)</sup>。そこで一つの試みとしてこの考えを次のように表現してみる。“ $n$  個の素過程のうち  $r$  の部分が疲労中に互に影響し合い、次のサイクルでの素過程の数を増加せしめる。そして単位体積中の素過程の数  $n$  は繰返し数  $N$  の関数として

$$d(n)/dN = prn$$

$$\text{あるいは} \quad rn = r n_0 \exp(pN) \quad (7)$$

のように表わされる。”このような場合の発熱係数は

$$\text{HGR} = \text{HGR}_0 \{ (1-r) + r \exp(pN) \} \quad (8)$$

$$\text{ここで} \quad \text{HGR}_0 = n_0 h$$

と計算され、試験片の温度変化がつきのように示される。

$$\theta = \text{HGR}_0 \left[ \frac{1-r}{\beta\lambda} + \frac{r}{p+\beta\lambda} (1 - e^{-\beta\lambda N}) + \frac{r}{p+\beta\lambda} (e^{pN} - 1) \right] \quad (9)$$

この表式の当てはめが図 12 の曲線である。ただし、繰返しの初期では (8) 式は

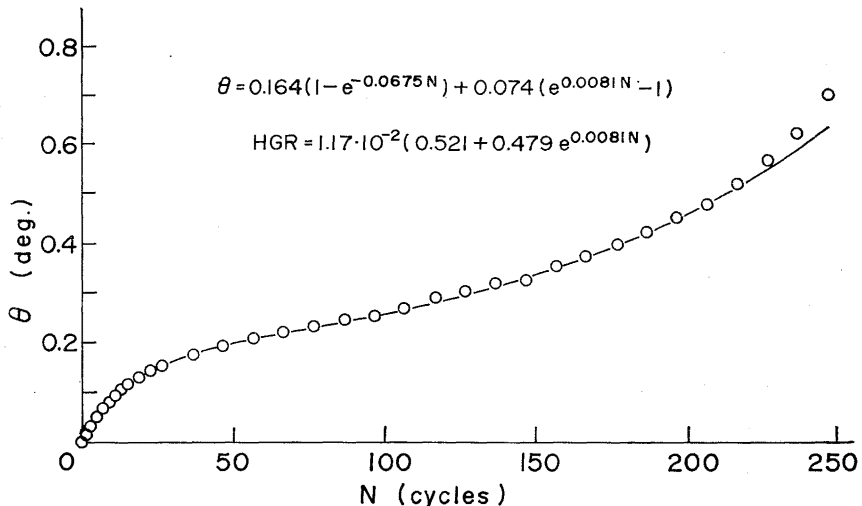


図 12 セン断型疲労全過程の平均温度の変化と (9) 式の当てはめ  
○印は測定点、実線は図中の式が表わす関係。(図 7 の記録から)

$$\text{HGR} = \text{HGR}_0(1 + prN) \quad (10)$$

と近似できるので、(2)式はこのようにして求めたものである。

なお(8)式では繰返しの始めから素過程発生率が増加する場合を考えたが、始め一定で  $N_0$  回後から増加し始めると解釈しなければならない場合は  $N_0$  回までは(6)式、それ以降は(8)式の  $N$  を  $N - N_0$  で置きかえた式で HGR が表わされる。これらについてはさらに考究を積むべき余地がある。

## 5. 結 語

この実験からつぎのような結論を得た。

(1) PMMA, PVC とともに発熱係数と疲労寿命との間に、PC などでも得られた次のような関係式が成立する。

$$(\text{HGR} - a) \cdot N_f \cdot \exp(-U/RT) = \text{const.}$$

(2) PMMA の疲労過程は全体として一つの熱活性化過程と考えることもでき、その時の見かけ上の活性化エネルギー  $U$  は約 12 kcal/mol であり、この値は PC で得られた値に等しい。

(3) 疲労発熱は材料内の自由体積の移動、増殖過程で生じる広義の摩擦熱と考えられる。また自由体積のある型式の増殖を仮定すれば、せん断型疲労で得られる温度変化の説明ができる。

最後に、この実験を行なうあたり竹中稔技官に手伝っていただいた。大屋春代嬢には試験片を磨いていただいた。深く感謝する。

## 文 献

- 1) Rosen, B., ed., *Fracture processes in polymeric solids*, John Wiley & Sons, 1964.
- 2) Bartenev, G. M., Zuyev, Yu. S., *Strength and failure of visco-elastic materials*, trans. by F. F. & P. Jaray, Pergamon Press, 1968.
- 3) 石橋正, 金属の疲労と破壊の防止, 養賢堂, 1967.
- 4) 日本金属学会, 新版転位論—その金属学への応用—, 丸善, 1971, p. 167.
- 5) Higuchi, M., Ishii, H., Rep. Res. Inst. for Appl. Mech., Kyushu Univ., 16, 1968, p. 69.
- 6) 百武秀, 機械学会講演論文集, No. 710-1, 1971, p. 217.
- 7) Higuchi, M., Ishii, H., Imai, Y., Rep. Res. Inst. for Appl. Mech., Kyushu Univ., 16, 1968, p. 361.
- 8) Higuchi, M., Imai, Y., J. Appl. Polym. Sci., 14, 1970, p. 2377.
- 9) 石井秀夫, 樋口正一, 材料学会第19期総会講演前刷集, 1970, p. 91.
- 10) Imai, Y., Higuchi, M., Mechanical Behavior of Materials, JSMS, 3, 1972, p. 590.
- 11) 今井康文, 樋口正一, 竹中稔, 機械学会講演論文集, No. 728-1, 1972, p. 29.
- 12) 今井康文, 樋口正一, 機械学会講演論文集, No. 730-1, 1973, p. 145.
- 13) 今山延洋, 松本昴, 木材学会誌, 16, 1970, p. 319.
- 14) 今山延洋, 松本昴, 木材学会大会(名古屋)研究発表要旨集, 1971, p. 129.
- 15) 寺崎和郎, 川下研介, その他, 機械学会講演論文集, No. 730-17, 1973, p. 269.
- 16) Higuchi, M., Ishii, H., Rep. Res. Inst. for Appl. Mech., Kyushu Univ., 16, 1968, p. 97.
- 17) Rusch, K. C., Beck, R. H., Jr., J. Macromol. Sci. Rhys., B3 (3), 1969, p. 365.
- 18) 大石不二夫, 材料, 17, 1968, p. 1016.
- 19) Constable, I., Williams, J. G., Burns, D. J., J. Mech. Eng. Sci., 12, 1970, p. 20.

(昭和48年10月31日 受理)