

メタクリル樹脂の高速クラック先端局所域における 剛性とクレージングの動的挙動：超音波フラクトグ ラフィーのポリマー破壊物性研究への応用

高橋, 清
九州大学応用力学研究所：助教授

<https://doi.org/10.15017/4743629>

出版情報：応用力学研究所所報. 54, pp.1-14, 1981-02. 九州大学応用力学研究所
バージョン：
権利関係：



メタクリル樹脂の高速クラック先端局所域における剛性とクレージングの動的挙動*

——超音波フラクトグラフィーのポリマー破壊物性研究への応用——

高 橋 清**

概 要

ガラス状ポリマーを伝播するクラックフロントの準微視域における動的な剛性を評価する新しい手法を提案した。クラックを周期的に偏向させ、破面にそのマークを残させるためにメガヘルツオーダーの周波数をもつ横波超音波を用いた。マークの深さと剛性率の関係を弾性波および破壊力学に関する式から導出した。得られた剛性率は、通常の状態のこの材料の剛性率を大幅に上回った。これにクレーズ層の存在にもとづく補正をほどこしても、ゴム化仮説が予測するようなクレーズ先端部の軟化は認め得なかった。超音波重量応力下におけるクレーズとクラックの成長に関して1つのモデルを与えた。

Key words : Poly (methyl Methacrylate), Fast Fracture, Rigidity, Crazeing, Ultrasonic Fractography.

1. はじめに

クレージング現象はポリマーの強度物性のなかで特に重要なものと考えられている。それは、クレージングが熱可塑性高分子材料を中心とする多くのポリマーの破壊の先駆現象としてそれらの破壊挙動を支配する有力な要因となっていること、また、クレーズの発現が材料に失透効果をもたらす、その商品価値を著しく低下させること、などの理由による。そのためクレージング現象は多くの研究者の関心を集め、この30年余りの間に数多くの研究結果が発表され、クレーズ発生に関する多くのクライテリアが提案されている^{1)~10)}。またそのミクロな構造、光学的・力学的性質、成長則、環境効果および破壊力学の適用などにつき、多くの成果が得られていることは事実である。しかしながらこれらの研究は概して現象論的立場に依拠しているものが多く、非晶体中の分子ないし分子集団のいかなる挙動がクレーズの発現をもたらすのかという最も根本的な問題は未解決のまま残されている。

クレーズの発生成長過程が1種の分子配向過程であることを考えるならば、分子の易動性がクレーズ

* US-Japan Joint Seminar on Crazeing, Flow, and Forming of Polymers, May, 1980 (New Brunswick) で発表した論文の一部手を加えた。前記論文は J. Macromol. Sci. -Phys. に掲載される予定である。

** 九州大学助教授、応用力学研究所

発生において重要な要素となろう。Sternstein らの応力バイアスクライテリオン⁹⁾は、このことをマクロな立場から実証してみせたと解釈するならば、現象の本質に近いという点で大変に興味深い。分子の易動性は変形のしやすさ、つまり剛性率の低下を意味する。

Gent のゴム化仮説¹⁰⁾は分子の易動性の原因について大胆な仮定—ゴム化—をした提案である。彼の説によると、クラック先端の局所域における三軸的負圧状態のもとでガラス温度が低下し、室温下でゴム状態となり、ここでマイクロボイドが発生し、クレーズに成長すると仮定する。彼の説はクレーズに関するいくつかの基本的な性質を半定量的に説明することに成功している。しかしながら時間効果については実験結果と異なり、また分子の配向過程についても明確な説明が与えられているわけではない。したがって今のところ仮説の域を出ないわけであるが、クレーズ発生過程をマイクロな立場から論じた点で数少ないモデルの1つである。

以上に述べた理由により、クレーズ・クラック先端局所域(せいぜい100 μm 迄の領域)におけるクレーズ発生過程を研究しようとするとき、問題の準微視域における剛性率を実験的に求めることは重要なことといえる。しかしながら従来はそれを可能にする有効な手段がなかった。本研究は、その剛性率を実験的に評価する方法の提案を行い、この方法によってメタクリル樹脂(以下 PMMA と呼ぶ)のクラック先端部での剛性率のオーダー エスティメーションを行い、ゴム化仮説の妥当性を判断することを目的としている。

前述の要因以外にもポリマーのクラック先端部で局所的に剛性率を低下させる要因がある。それは破壊発生時の力学的エネルギーの熱エネルギーへの転化による局所的な温度上昇¹¹⁾¹²⁾であり、また、 N_2 ガスその他多くの異分子の拡散侵入による1種の可塑化効果(環境効果)¹³⁾などである。これらの要因を排除したうえで、前記三軸負圧効果のみを実験の対象としなければ無意味なことはいうまでもない。ポリマーは熱の不良導体であるので、破壊速度が早くなれば破壊は断熱的になる。計算によると¹⁴⁾、速度が1 m/s 以上になると PMMA のクレーズ層長さである20~30 μm だけクラック先端から離れた場所迄は破壊による熱は伝わらなくなるとされている。異分子の拡散侵入についても相当の時間を必要とすることはいう迄もない。本研究で扱うような高速クラック(200~300 m/s)においてはこれらの影響を完全に無視することができよう。

2. 剛性率評価のプリンシプル

進行中のクラック先端部の局所的剛性率を評価するために、図1に示すように、周期的な主応力方向変化に対するクラックの応答性を利用する。図1で、クラックには通常の引張応力 σ_0 (これが破壊を進行させる)の他に横波超音波によるせん断応力 σ_t が周期的にかかっている。したがってこの周波で主応力方向は σ_t/σ_0 だけ変化していることになる。ぜい性破壊は常に主応力方向と直角の方向に進もうとするので、条件がととのえば、クラックは各サイクル毎に進行方向を変えることが期待され、この場合には人工の Wallner 線である所謂超音波線が破面上に刻印されることになる。(この手法は Kerkhof¹⁵⁾により開発され、ガラスの破壊速度の精密測定のために応用されてきた。ガラスの他に、イオン結晶の破壊速度測定にも用いられたことがあるが¹⁶⁾、ポリマーへの応用はその粘弾性ゆえに疑問視され

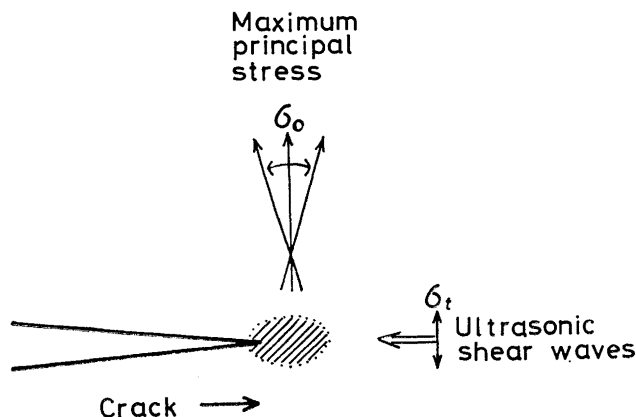


図1 高速クラックに対する超音波重畳

てきた。しかしながら著者らは強力な超音波を用い、これを PMMA¹⁷⁾¹⁸⁾¹⁹⁾、エポキシ²⁰⁾ などに応用し、このようなガラス状ポリマーにも超音波線縞を発生させ得ることを明らかにさせた。

破壊終了後破面に残された超音波線の深さ（凹凸差）から次のようにして剛性率を評価する。まず、主応力方向変化に対する PMMA クラックの進行方向からの方向変化 ξ （図2参照）を Erdoganら²¹⁾にしたがって*

$$\xi = 2 K_{II} / K_I \quad (1)$$

とする。ここで K_I および K_{II} はそれぞれモード I および II の応力拡大係数である。 K_{II} は横波超音波のせん断応力にもとづくもので、当然周期的に変化している。ここではその最大値 $K_{II\max}$ のみに注目することとすると、これに対応する ξ の最大値 ξ_m は

$$\xi_m = 2 K_{II\max} / K_I \quad (2)$$

となる。 ξ_m をフラクトグラフィにより求めるために、超音波重畳破面が正弦状に波うっているものと仮定し（後述）、

$$\xi_m = k_1 \xi_m' = k_1 \cdot \pi h / \lambda_b \quad (3)$$

の関係式を利用する。ここで ξ_m' は正弦状波うちの最大傾度、 h は深さ、 λ_b は破面に刻印されている超音波線の波長である（図3参照）。 k_1 は物質の粘弾性にもとづく補正係数である。その値は当然1よりも大きいはずであるが、ここでは簡単のために $k_1 = 1$ と近似する。横波超音波の振幅 σ_{Im} に対する $K_{II\max}$ を

* 文献 22) において著者は (1) 式の代りに K_{II} / K_I ($\xi_0 =$ 図2参照) を用いている。これは最大限として主応力方向変化分だけ偏向する、との考えにもとづく。一方 Erdogan らはせん断応力を重畳された静止クラックの理論的、実験的研究を行い、クラック伝播の初期にはその2倍だけ偏向するとしている。この場合もちろん最終的には ξ_0 に収束するわけであるが、超音波による主応力方向変化はきわめて高速度で行われていることを考慮し、ここでは Erdogan らの説に従い $\xi = 2\xi_0$ を偏向角度として用いることとした。

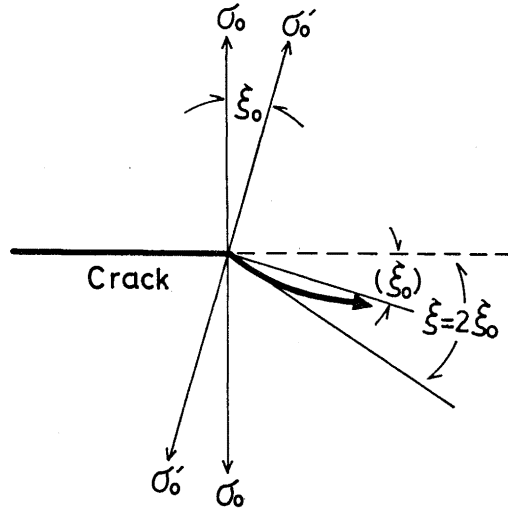


図2 主応力方向変化によるクラックフロントの偏向

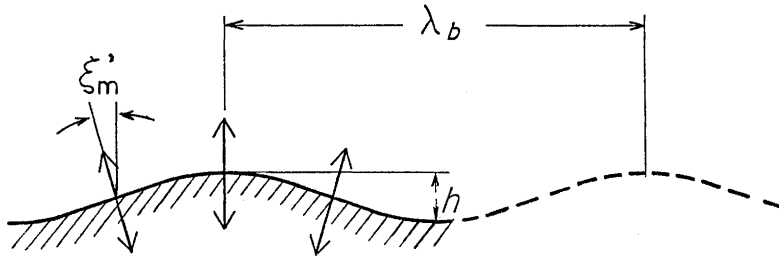


図3 超音波重畳破面の断面図

$$K_{IIm} = \sigma_{tm} \lambda_t^{1/2} / \pi \quad (4)$$

とする²³⁾。\$\lambda_t\$ は超音波の波長である。一方、

$$\sigma_{tm} = 2\pi G d_{tm} / \lambda_t = (2W)^{1/2} (\rho G)^{1/4} \quad (5)$$

は弾性波に関する基本的な関係式である。ここで、\$G\$ は求める剛性率、\$W\$ は超音波エネルギー、\$\rho\$ は密度である。また、

$$W = 2\pi^2 \rho c_t \nu_t^2 d_{tm}^2 \quad (6)$$

$$c_t = \nu_t \lambda_t = (G/\rho)^{1/2} \quad (7)$$

もよく知られた関係式である。一方、超音波トランスミッターから試料中の距離 \$D\$ の場所における \$W\$ を、入力強度 \$W_0\$、パワー減衰係数 \$\delta\$ として、次のような指数関数で表わせるものとする。

$$W = W_0 \exp(-\delta D) \quad (8)$$

以上の諸関係式から剛性率 \$G\$ は次のように与えられる。

$$G = \pi^8 h^4 K_I^4 / 64 \rho \lambda_b^4 \lambda_t^2 W_0^2 \exp(-2\delta D) \quad (9)$$

G 値を得るため、(9) 式右辺の各量（ただし、 ρ , δ は表および文献値引用）を次の章で述べるように実験的に求めた。

3. 実 験

3. 1 超音波重畳実験

図 4 に示すように、張力を負荷された短冊状試料（ノッチ付、 $160 \times 15 \times 4 \text{ mm}^3$ ）に超音波を重畳した。トランスデューサーには、3.6 MHz と 7.2 MHz の共振周波数をもつ 2 種類の Y カット水晶を用いた。この水晶片をアルミニウムの小ブロックに接着してトランスミッターとし、それを試料に図のように接着した。発振機の公称出力は 600 W である。トランスデューサーと発振機とのマッチングが充分にはとれていないことと、試料の加熱を防ぐという 2 つの理由により、超音波負荷はごく短時間（せいぜい数秒以内）に限る必要があった。そのために引張歪み速度を 0.3~12/min と高とした。原則として水晶片付トランスミッターは水冷して用いた。実験温度は室温である。

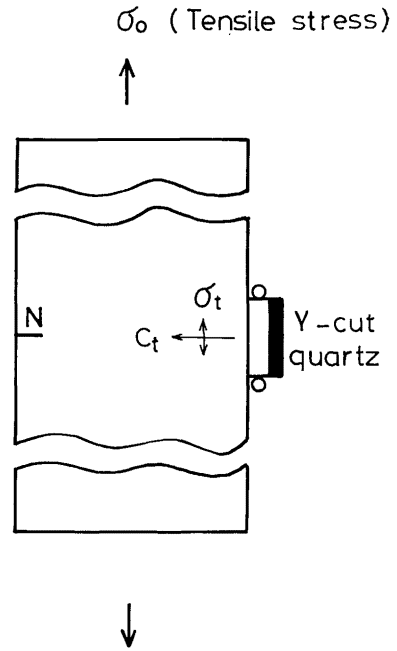


図 4 超音波重畳テスト

3. 2 動的応力拡大係数

進行中のクラックの K_I の測定には影点法を用いた²⁴⁾。Manogg²⁵⁾ によると鋭いクラックの K_I は、PMMA のような光学的に等方な物質では

$$K_I = (2(2\pi)^{1/2} 3 z_0 d c \mu^{3/2}) (\phi_\mu/3, 17)^{5/2} \quad (10)$$

で与えられる。ここで ϕ_μ は影点の最大直径、 z_0 は試料と像面間の距離、 d は試料厚さ、 c は光応力定数、 μ は実験定数である。

3. 3 その他の測定

λ_b , h はそれぞれ光学顕微鏡、干渉顕微鏡により求めた。

W_0 は破壊テストに用いたと同じ形状の試料板を用い、カロリメータにより熱的に求めた。重畳テストのときと同じ条件にすることで超音波を一定時間試料板に入れ、ベックマン温度計付の熱量計（水を使用）で水温変化を求め、 W_0 を算出した。

4. 実 験 結 果

4. 1 超音波重畳実験

写真 1 に PMMA の超音波重畳破面の顕微鏡写真を示した。図のように凹面のフォーカルプレーンに

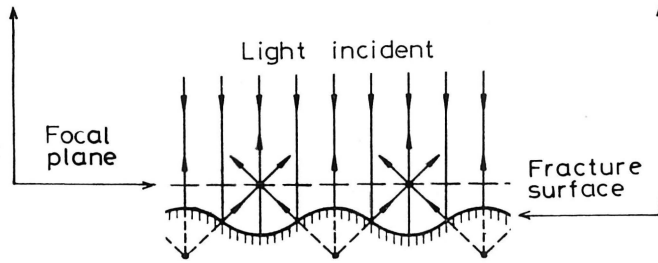
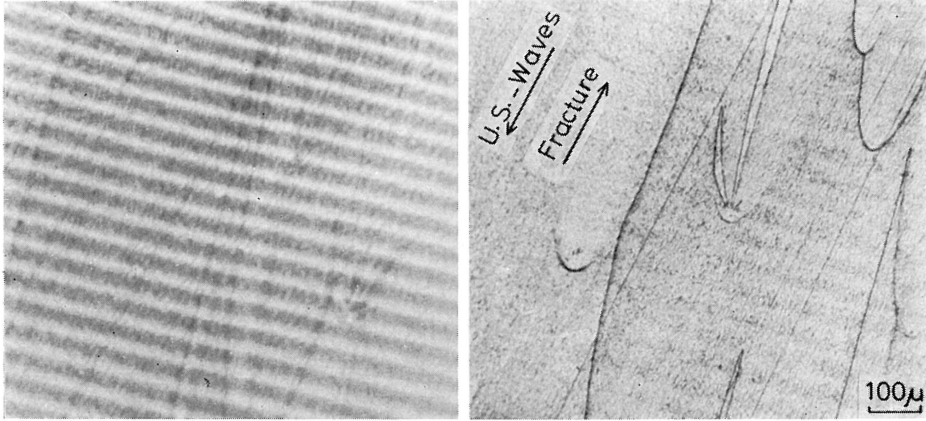


写真1 PMMA 超音波重畳破面の光顕写真

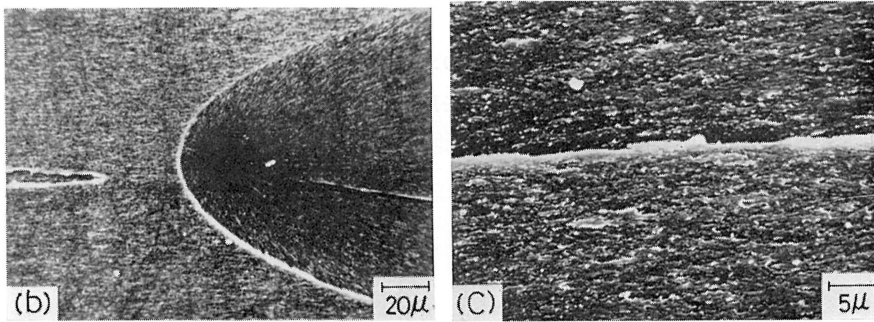
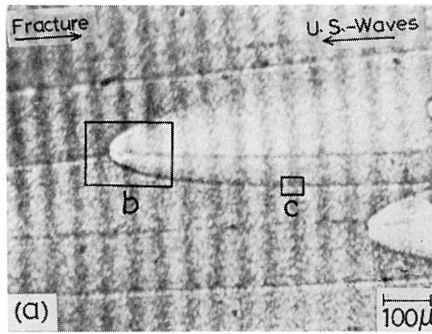


写真2 PMMA 超音波重畳破面の走査電顕写真

ピントを合わせることにより超音波線の存在がはっきりする。この線の波長 λ_b を測定することにより破壊速度を求めることができるが、その結果によると¹⁸⁾、同じような試料条件で高速度撮影その他の方法によって求まる速度と大略一致する。このことはクラックが伝播の途次各サイクル毎に応答しながら進行しているとする我々の仮定を裏付けるデータの1つと考えている。

超音波重畳破面は PMMA 特有の干渉色²⁶⁾ に色どられている。このことは凹凸をくり返しながらもクラックが常にクレーズ内部を進んでいることを示唆している。つまり強力な横波超音波による重畳を受けながらも、クラックフロントはクレーズ-母相の境界には達していないのである。写真2は超音波重畳破面の走査電顕写真である。予想されるように超音波重畳を受けない破面と比べて、特に有意な違いは認められていない。

写真3は干渉顕微鏡による破面の観察例である。ちなみに (a) および (b) のほぼ中央部における h の値は、それぞれ 2200, 1200 Å となっている。図5¹⁴⁾, 6にはこのようにして測定された h の距離 D

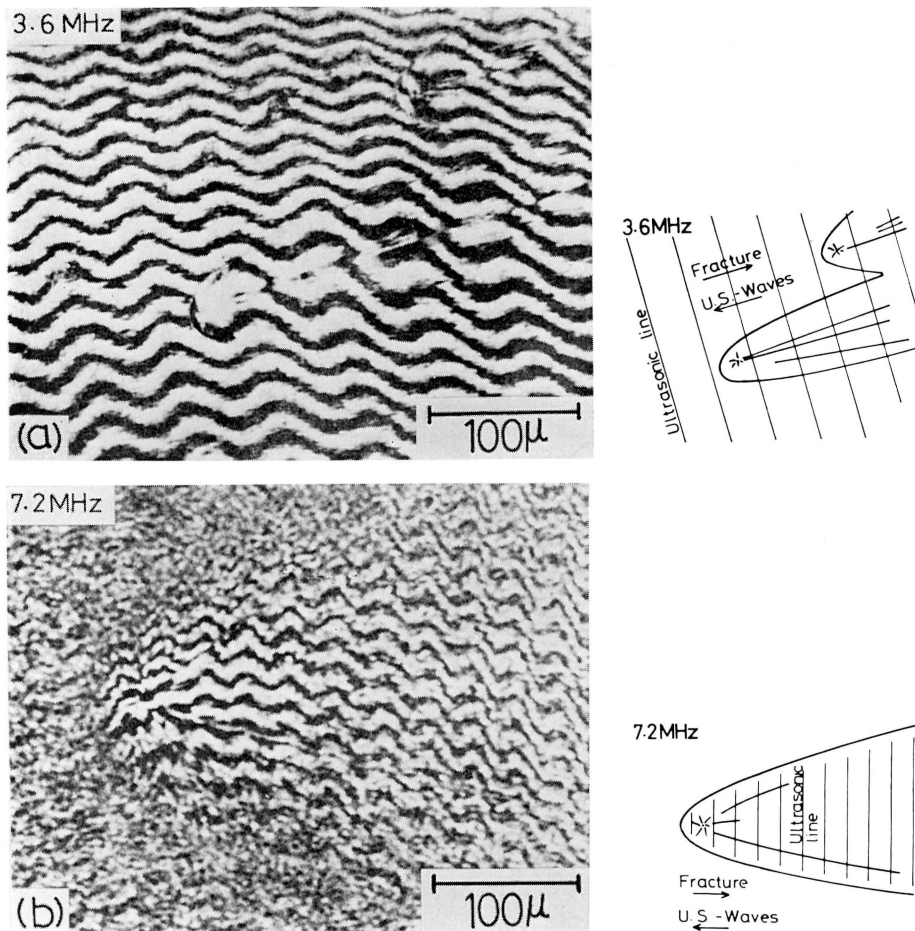


写真3 PMMA 超音波重畳破面の干渉顕微鏡写真 (5460 Å 使用)

に対する依存性を図示した。トランスデューサーから遠ざかるにつれ h は指数関数的に減衰していることがよくわかる。3.6 MHz の場合 h の減衰定数を求めてみると、同周波横波超音波の室温下におけるこの物質中の減衰定数 1.45 Np とよく一致している。このことは $h \propto \sigma_{im}$ の関係にあることを意味する。ポリカーボネートやポリスチレンの破面には超音波重畳されなくともしばしば周期的模様が現われ、Wallner 線と間違われやすい。写真1~3に示した超音波線がこれら擬似 Wallner 線と異なることの証拠として、前述の速度の一致の他に $h \propto \sigma_{im}$ の結果をあげてもよいであろう。図6の7.2 MHz の場合、3.6 MHz の場合と比べ当然のことながら λ_b が小さくなり、減衰も著しくなる。そのため h の測定は誤差も大きくなり難しくなる。しかしながら写真3 (b) から明らかのように、7.2 MHz の高周波重畳においても PMMA クラックはその音場変化に追随したことは明らかである。(以下の G の評価ではデータがより豊富でより確かな 3.6 MHz の測定結果を利用する。)

超音波の波長 λ_t は音速 (1380 m/s²⁷⁾) と周波数とから 380 μm となった。また超音波強度の減衰定数 δ は振幅減衰定数の2倍として 2.9 Np/cm とした。

前記カロリメトリーの結果 W_0 として $7.5 \times 10^8 \text{ erg/sec} \cdot \text{cm}^2$ の値を得た。

4. 2 伝播クラックの動的応力拡大係数

伝播クラックの応力拡大係数は破壊速度に依存する。5 mm の厚さの板試料につき各種速度における

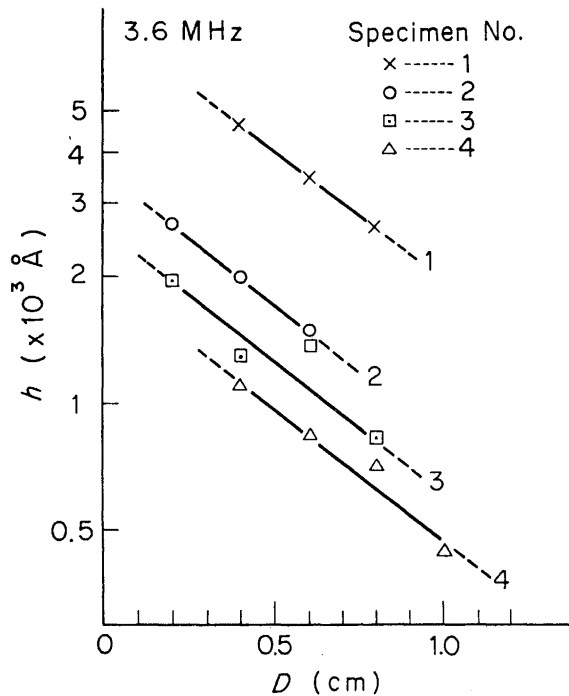


図5 破面上の凹凸差 (h) の超音波伝播距離 (D) に対する依存性 (3.6 MHz).

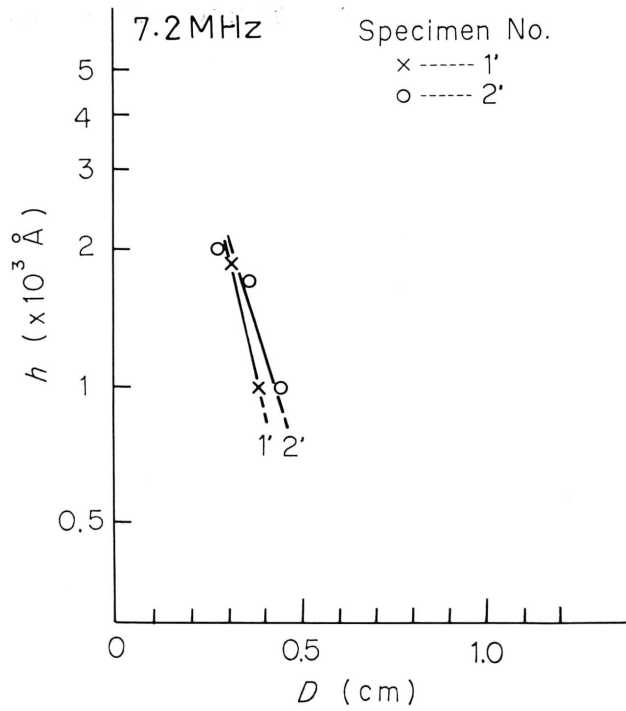


図6 破面上の凹凸差 (h) の超音波伝播距離 (D) に対する依存性 (7.2 MHz).

影点の大きさ ϕ_μ を高速度撮影により求めた²⁴⁾. 写真4にその1例を示した. (a) は実際に撮影された影点であり, (b) は弾性論的に導かれるコースティック (caustic) のパターンである (座標軸は規格化されている). 図5の超音波テストにおける試料の破壊速度約 200 m/s に対応する K_I 値として $2 \times 10^8 \text{ dyne/cm}^{3/2}$ を得た.

4.3 G 値の評価

以上のようにして求めた各種の値をまとめると表1のようになる. ここで h には $D=0.8 \text{ cm}$ に対

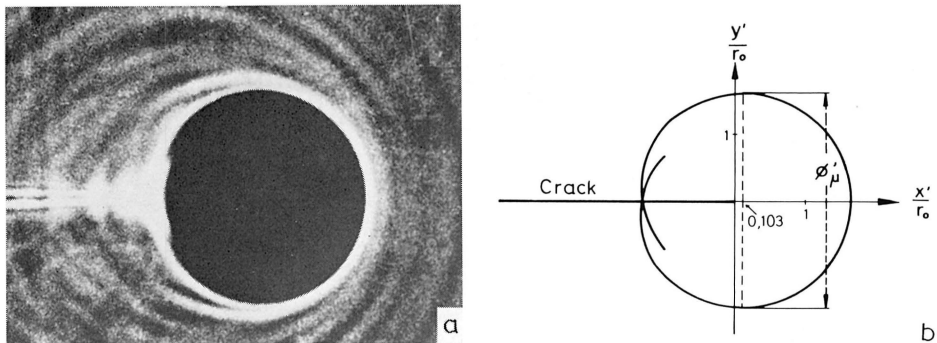


写真4 撮影された影点の1例 (a) と, 計算されたコースティック (caustic) パターン (b).

応する NO. 1 試料の値を用いた。最も効率よく重畳されたこの試料が W_0 測定時の条件に近いと考えられたためである (後述)。表 1 の各値を (9) 式に代入すると $G=9 \times 10^{12}$ dyne/cm² が得られた。

表 1 G 値評価のための各量のまとめ

D	0.8 cm	δ	2.9 Np/cm
h	2700 Å	λ_f	3.8×10^{-2} cm
$(\xi_m)'$	1.4×10^{-2} rad	λ_b	6.1×10^{-3} cm
K_I	2×10^8 dyne/cm ^{3/2}	ρ	1.2 g/cm ³
W_0	7.5×10^8 erg/sec·cm ²		

5. 考 察

PMMA の剛性率は通常 10^{10} dyne/cm² のオーダーである。ポリマーの弾性率は一般にひずみ速度依存性をもつが、PMMA のヤング率を例にとると $10^0 \sim 10^{-7}$ 秒の時間域内での増加率はせいぜい 100%程度である²⁸⁾。前記結果はこれらの値より 2~3 桁大きな値となっている。以下においてこの点に関して考察する。まず超音波重畳応力下のクレージングの動的挙動について考察する。次にクレーズの存在にもとづく (9) 式の修正を考える。1, 2 の他の問題も含め、これらの結果を勘案して最後にゴム化仮説の適否を判断する。

5. 1 クレージングの動的挙動とクレーズ層の影響

まず、超音波で偏向させられるのはクラッキングそのものか？ それとも先行するクレージングか？ という問題が重要である。図 7 (a), (b) はこの考え得る 2 つのケースをそれぞれ模式的に図示したものである。2 つの理由から著者は (b) が実現されているものと考えている。その 1 つは、クレーズはフォームラバーに似た構造をもち、剛性をほとんど有しないはずなので、超音波のせん断応力をクラック先端に伝えて (a) のようにこれを偏向させることは不可能と考えられることである。もう 1 つの理由としては、もし図 7 (a) が実現されているとすると、多くの超音波重畳破面のクレーズ層は $1 \sim 2 \times 10^3$

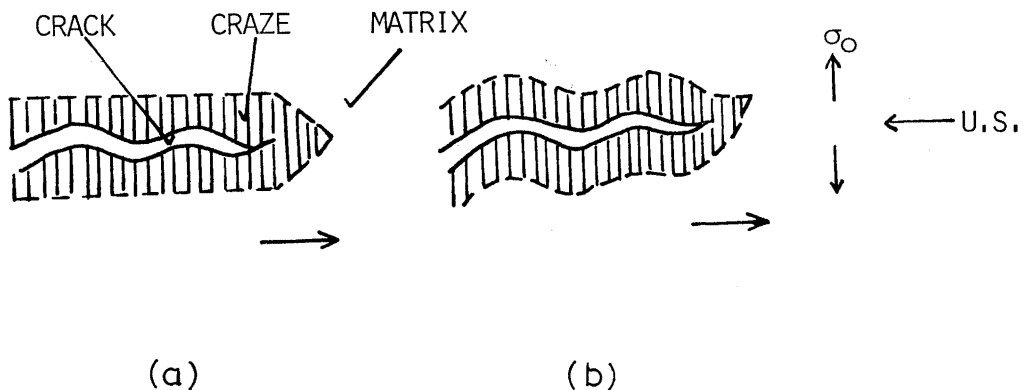


図 7 超音波重畳下におけるクレージングとクラッキングの関係について想定される 2 つのケース

Å 程度の周期的なクレース厚さの変化をもつはずであり、母相樹脂とクレース層との屈折率の違い²⁹⁾により、この厚さ変化は当然破面に干渉色の色調変化をもたらすことになるはずであるが、実際にはそれがほとんど認められない、ということがあげられる。

図7 (b) のように、MHz オーダーの横波超音波に対してクレージングがダイナミックに応答するとした場合、このクレース層の中でいかにして周期的凹凸をもつクラックが形成されるかが説明されなければならないだろう。図8は、伝播するクレースの長さ³⁰⁾と厚さ^{26)30)31)~33)}につきすでに知られているデータをもとにより現実的と思われるスケールを図7 (b) にあてはめ、超音波重畳下の PMMA のクレージングとクラッキングにつき現在考えられているありさまをモデル的に図示したものである。このモデルは、「クレース分子束のどの部分が開口されてクラックに到るかはクレース延伸過程ですでにきまっています、そのきまり方に何らかの規則性があるはずである」との仮定にもとづいている。超音波重畳をされていない通常の PMMA 破面の干渉色の色調が、パラボラマーク部をのぞいて、かなり安定してつづいていることを考えるならば、この規則性に関する仮定は受け入れ難いものではないと考えられる。

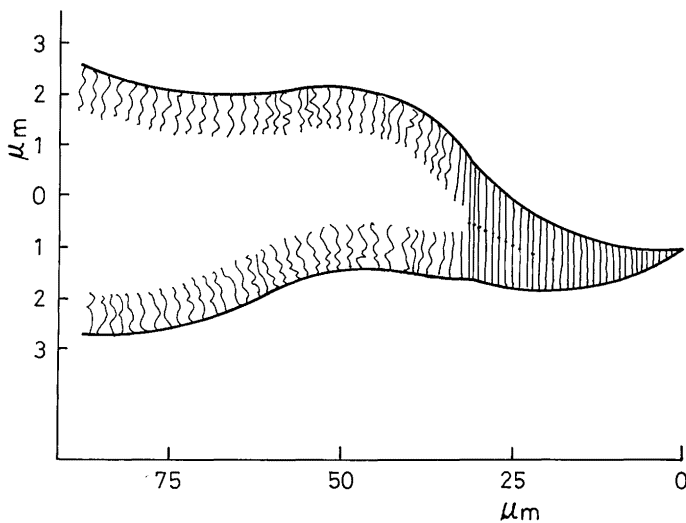


図8 超音波重畳におけるクレージング、クラッキングのモデル図

図8のようなモデルを想定した場合、次のような理由から (9) 式の修正が必要となつてこよう：(9) 式の導出にあたり、クラック先端部で単純な Sneddon 型の応力分布をとり入れた連続体の力学を我々は適用した。ここではクラックに先行するクレース層の存在を無視した。(4.2) の K_I の測定も巨視的である。 K_I 測定には伝播しつつあるクラックの先端約 2 mm 迄の応力-ひずみ関係が反映されており、20~30 μm のクレース層があっても測定には影響しない。) しかしながらクレース層が超音波重畳応力によって偏向されているとするならば、問題なのはクレース先端における真の σ_{yy} および σ_{xy} 成分である。クレースが有限の長さをもっているとすると (x とする)、 σ_{xy}/σ_{yy} の値は単純に K_{II}/K_I の関係

によっては与えられなくなる。なぜならばクレーズ先端における σ_{yy} はほぼ $K_1/\sqrt{2\pi x}$ で与えられるとしても、 σ_{xy} は $K_{II}/\sqrt{2\pi x_1}$ で与えられることになる。ここで x_1 は x よりもはるかに小さい値である。 x と x_1 の違いは、クレーズは、相当量の引張応力に耐え得るにもかかわらず、せん断応力に対しては無抵抗でほとんどシャークラックとして振舞う、という性質をもっていることに由来する。以上の理由から (9) 式を修正するならば、

$$G = \pi^2 h^4 K_1^2 (x_1/x)^2 / 64 \rho \lambda_0^2 W_0^2 \exp(-2\delta D) \quad (11)$$

となる。 x として図 8 の $25\mu m$ をとり、 x_1 として仮に $1\mu m$ をとるならば、 G の値は 10^{10} dynes/cm² のオーダーとなる。

5. 2 その他の要因

次に h のとり方その他について考えてみる。図 5 にみられるように各試料間で h の値は大変ばらついている。この理由として強い引張負荷をかけられた状態の試料中へ図 4 のように伝えられる超音波パワーそのものがばらつくとみなして、前述のように、 G 値の評価では h の値を NO. 1 の試料から選んだ。しかし W_0 の測定と破壊実験は同時に行われていないので、この仮定の適否は確認されてはいない。いまかりに図 5 の全試料の平均値 ($D = 0.8$ cm に対する) を h として用いるならば、その値は 1500 \AA となり、その結果 G はおよそ 1 桁小さくなる。

以上のような (11) 式や h 値の補正が正しいとしてこれを取り入れたとしても、ゴム化仮説から期待されるように G 値が 10^{10} dyne/cm² のオーダーを大幅に下回る、ということにはならない。なぜならばまだ取り上げられていない粘弾性項補正 ((3) 式の k_1 が 1 より大) は G 値を増加させるようにはたらくからである。我々は k_1 に関しては具体的なデータをもち合わせていない。しかしこの項の補正が G 値を減少させるものではないことが明らかである以上、これまでの考察の過程からすでに導かれたと考える 1 つの結論、つまり、「クレーズ先端局所域で軟化が生じるとするゴム化仮説に対して、この超音波重畳実験により得られた結果は否定的である」に影響を与えるものではない。

6. 結 論

超音波フラクトグラフィーにより高速クラック先端局所域の剛性率を評価する方法を与えた。この方法を PMMA のクラックに適用した。高速クラックに先行するクレーズ先端準微視域における剛性率は 10^{10} dyne/cm² を下回ることはないものと思われる。またこのクレーズ層は MHz オーダーの主応力方向変化に追随し、屈曲を繰り返しながら進行する性質をもっている。

謝 辞

この研究では多くの人々の協力を得ている。著者の東京大学在任中、超音波実験をすすめるうえで、兵藤申一教授には何かとげましをいただいた。当時学部学生であった吉野さやか、三井康郎、永井愛作、宮内康行の 4 君には超音波実験を手伝っていただいた。4.2 の測定は西独フラウンホーファー協会

固体力学研究所（現・材料力学研究所）で筆者の滞在中になされたが、そこで Kerkhof 教授, Döll 博士他多くの方々にお世話になった。また本研究所の栖原寿郎教授, 福田重久氏には走査型電顕の利用その他で便宜をはかっていただいた。写真 2, 3 は本研究所の桜田泰弘, 小松治男, 馬田俊雄の各氏の協力により得られた。ここに記して各位に謝意を表す。

参 考 文 献

- 1) Stuart, H. A., Markowski, G., and Jaschke, D.: *Kunststoffe*, **54** (1964) 618.
- 2) Wang, T. T., Matsuo, M., and Kwei, T. K.: *J. Appl. Phys.*, **42** (1971) 4188.
- 3) Regel, V. R.: *Sov. Phys.-Tech. Phys.*, **1** (1956) 353.
- 4) Newman, S., and Strella, S.: *J. Appl. Polym. Sci.*, **9** (1965) 2297.
- 5) Oxborough, R. J., and Bowden, P. B.: *Phil. Mag.*, **28** (1973) 547.
- 6) Marisawa, I., and Kondo, T.: *Int. J. Frac. Mech.*, **8** (1972) 435.
- 7) Haward, R. N., Murphy, B. M., and White, E. F. R.: *J. Polym. Sci. A-2*, **9** (1971) 801.
- 8) Argon, A. S., and Hannoosh, J. G.: *Phil. Mag.*, **36** (1977) 1195.
- 9) Sternstein, S. S., and Ongchin, L.: *ACS Polym. Prepr.*, **10** (1969) 1117.
- 10) Gent, A. N.: *J. Mater. Sci.*, **5** (1970) 925.
- 11) Kambour, R. P., and Barker, R. E., Jr.: *J. Polym. Sci., A-2*, **4** (1966) 359.
- 12) Fuller, K. N. G., and Fox, P. G.: *Nature-Phys. Sci.*, **234** (1971) 13.
- 13) Brown, N., and Parrish, M. F.: *Polym. Letts.*, **10** (1972) 777.
- 14) Weichert, R., and Schönert, K.: *J. Mech. Phys. Solids*, **22** (1974) 127.
- 15) Kerkhof, F.: *Naturwiss.*, **40** (1953) 478.
- 16) Greenwood, J. H.: *Int. J. Fract. Mech.*, **8** (1972) 183.
- 17) 吉野さやか, 三井康郎, 高橋清, *日本材料科学会誌*, **11** (1974) 62.
- 18) Takahashi, K., Kimura, M., and Hyodo, S.: *J. Mater. Sci.*, **13** (1978) 2718.
- 19) Takahashi, K., Nagai, A., Miyauchi, Y., and Hyodo, S.: *J. Appl. Phys.*, **50** (1979) 4451.
- 20) 未発表
- 21) Erdogan, F., and Sih, G. C.: *J. Basic Engng.-Trans. ASME* **85D** (1963) 519.
- 22) Takahashi, K.: *Rep. Prog. Polym. Phys. Japan*, **22** (1979) 335.
- 23) Küppers, H.: *Wiss. Ber.*, 4/66, Ernst-Mach Inst. (1966).
- 24) Takahashi, K.: *Wiss. Ber.*, W5, Inst. Festkörpermechanik, (1977).
- 25) Manogg, P.: *Glastech. Ber.*, **39** (1966) 323.
- 26) Higuchi, M.: *Rep. Res. Inst. Appl. Mech., Kyushu Univ.*, **6** (1958) 173.
- 27) Buvet, R.: *J. Phys. Radium*, **57** (1960) 255.
- 28) Döll, W.: *Wiss. Ber.*, 4/74, Inst. Festkörpermechanik, (1974).
- 29) Kambour, R. P.: *J. Polym. Sci., A*, **2** (1964) 4159.
- 30) Schinker, M. G., and Döll, W.: *Proc. 2nd Conf. on the Mechanical Properties of Materials at High Rates of Strain*, Inst. Phys, Bristol and London, 1980, p. 224.
- 31) Kambour, R. P.: *J. Polym. Sci., A*, **3** (1965) 1713.

- 32) Lednicky, F., and Pelzbauer, Z.: J. Polym. Sci., C, **38** (1972) 375.
- 33) Pelzbauer, Z., and Lednicky, F.: J. Polym. Sci., Polym. Phys., **12** (1974) 2173.

(昭和55年10月13日受理)