(昭和60年10月14日受理)

熱可塑性高分子材料の疲労強度に及ぼす
温度の影響

工業技術院繊維高分子材料研究所 中野 詔彦・長谷川澄子

EFFECT OF TEMPERATURE ON THE FATIGUE STRENGTH
OF SOME THERMOPLASTIC POLYMERS

By Nobuhiko Nakano and Sumiko Hasegawa

(Research Institute for Polymers and Textiles,
1-1-4 Yatabe-higashi, Tsukuba, Ibaraki, 305 Japan)

The fatigue strength in thermoplastic polymers is affected remarkably by temperature. The effects of temperature on the fatigue strength of some thermoplastic polymers such as poly(methyl methacrylate) (PMMA), polyoxymethylene (POM), polyethylene (PE), poly(vinyl chloride) (PVC), polystyrene (PS) and acrylonitrile-butadiene-styrene copolymer (ABS) have been investigated with the change of rise of surface temperature by the fatigue, alternating stress amplitude-number of cycles (S-N) curves and tensile stress-strain (S-S) curves.

The change of fatigue strength of thermoplastic polymers with temperature may be indicated with one curve which has a certain transition temperature and the fatigue fracture in thermoplastic polymers may be roughly divided into three types as thermal fracture which breaks with the rise of temperature, cracking fracture which does not depend on the rise of temperature and the mixed fracture. PMMA is thermal fracture-type, ABS and PS are cracking fracture-type and POM, PE and PVC are the mixed fracture-type at $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$.

(Received October 14, 1985)

1. 緒 言

熱可塑性高分子材料の疲労強度は温度の影響を大いに受けるので、ヒステリシス損失による材料の温度上昇の影響も大きいと思われる。高分子材料の疲労に関する研究は多数行なわれており^{1~32)}、疲労による材料の温度の上昇についてはすでに1944年にLazanら³³⁾が報告している。またShimamuraら^{34,35)}は試験片表面の温度変化を連続測定し、繰り返し応力-繰り返し数曲線(S-N曲線)の転移点と温度上昇の関係について考察している。最近の研究は応力、振動数、試料のディメンション及び熱伝導特性、環境温度及び材料特性の影響が重要であることを指摘している^{36~90)}。Schmidtら⁴⁰⁾は、熱発生量が材料のダンピング及び応力振幅の平方に比例し、動的弾性率に反比例して増加することを示し、Ratnerら³⁶⁾

は材料の温度上昇が上記の因子に加えて、振動数、試料の直径に比例し熱伝導率に反比例することを示した。Ferry⁴¹⁾は、線形粘弾性の仮定から類似の関係を見出し、材料の温度変化は振動数、損失コンプライアンス及び応力振幅の平方に比例し、密度及び比熱に反比例することを示している。Riddellら^{37,38)}は材料の温度上昇及びそれに基づく熱破壊について検討し温度上昇が損失コンプライアンスの変化に密接な関係があり、ガラス転移点(T_g)付近において急激に温度上昇が起ることを示し、熱破壊は疲労条件により応力との共同作用で材料がある限界温度に到達したときに生ずることを示した。Sauerら^{12,20,21)}は、分子量、応力及び振動数の増大とともに温度上昇幅が増大することを示した。分子量と疲労強度の関係については多くの研究がなされている^{5,61~72)}。さらに振動数と疲労強度の関係^{9,21~23,37,46)}、試料の厚さと

疲労強度の関係^{10,36,37)}、振動波形と疲労強度の関係^{36,42)}、疲労試験の中断と疲労強度の関係^{37,43~45)}、等温非等温と疲労強度の関係^{24,39)}、試料の冷却と疲労強度の関係^{25,30)}、熱伝導特性と疲労強度の関係¹⁸⁾、応力分布及び温度分布と疲労強度の関係¹⁰⁾、などが検討され、いずれの場合においても材料の温度上昇により疲労強度が低下し温度上昇を阻止することにより疲労強度が上昇することが示された。Crawfordら⁴²⁾は、熱破壊は振動数に依存するが、亀裂破壊は振動数に依存しないことを示し、さらに熱破壊を生じない限界の振動数、応力及び形状の実験的な関係を見出した。疲労亀裂の進展挙動に関する研究は多くあり^{26,76~89)} Tamら³²⁾は温度と疲労亀裂の進展について応力拡大係数と亀裂進展の関係から分類している。またChenら^{6,11)}は、クレーズ発生と疲労抵抗の関係について述べている。一般に疲労強度は温度の増加とともに減少することが示されている²⁾が、Dillon⁷³⁾は疲労寿命のサイクル数の対数が絶対温度に比例して減少することを示した。大石⁷⁴⁾及びBedmoreら⁷⁵⁾は、材料のS-N曲線と機械的性質の関係を示し、Oikawa⁷⁾は、環境温度の変化によるS-N曲線の変化からフェノール系高分子複合材料について、くり返し応力と疲労破壊までのくり返し数の関係を見出し出している。上述の多くの研究結果は、以下の事実の重要性を示している。すなわち、熱可塑性高分子材料においては疲労破壊が亀裂破壊と熱破壊に分類され条件により異なるが両破壊の転移点が存在し、最も重要な条件は環境温度及び疲労による試料の温度上昇などの温度条件である。またこれらの変化と密接な関係にあるのが疲労のS-N曲線であり、材料の特性である。

本報告では、熱可塑性高分子材料の疲労現象における種々の変化を明らかにするために、試料形状及び振動数が一定の試験条件における熱可塑性高分子材料の繰返し屈曲疲労試験に基づく疲労強度に及ぼす温度の影響を疲労による温度上昇の幅の変化、温度上昇のタイプ、S-N曲線のタイプ及び引張試験における応力-ひずみ曲線(S-S曲線)のタイプの変化などの面から検討した結果を述べる。

2. 実 験

試料としては、ポリオキシメチレン(POM, ジュラコン)、ポリメチルメタクリレート(PMMA, アクリライトS)、アクリロニトリル-ブタジエンスチレン共重合体(ABS, サイコラックGS-E)、ポリ塩化ビニル(PVC, Geon 103 EP-8)、ポリエチレン(PE, 三井石油化学)及びポリスチレン(PS, デンカスチロールNW-1-301)の6種類の市販シート(厚さ3mm)を用いた。

疲労試験機は、ASTM-B型荷重一定型繰返し屈曲疲労試験機を使用した。振動数は25Hzであった。上記シートからASTMB型試験片を切り出した。温度は試験機に恒温槽をとりつけて変化させ、-20℃、0℃、20℃、40℃及び60℃の等温雰囲気中で実験を行なった。引張試験はインストロンを用い、温度の調整は同試験機に恒温槽を組み込み雰囲気中で実験を行った。引張試験片は1号試験片(JIS K 6301)と同寸法のものを用いた。疲労試験片の表面温度の測定は、熱電対型の温度計のセンサー部分を接着テープで試料表面に固定し、疲労試験の開始から連続的に測定した。センサーの固定の疲労強度への影響はほとんどなかった。なお温度測定には、参考として赤外線放射顕微鏡(バーンズK.K.)も一部使用したが、熱電対による測定結果とほぼ同様の結果を得た。

3. 結 果

3.1 S-N曲線に及ぼす温度の影響

図1~6は、各試料の繰返し応力-繰返し数曲線(S-N曲線)の温度による変化を示したものである。図1はPMMAの-20℃~60℃におけるS-N曲線で、各温度ともほぼ同様の傾向を示し、 $10^4 \sim 10^6$ サイクル付近に屈折点を有している。温度の増加に対しては、 10^7 サイクルの疲労強度がほぼ直線的に低下している。図2はPOMの結果を示したもので、-20℃及び0℃において、S-N曲線に転移点があらわれており、疲労破壊の機構が異なることを示唆している。図3はPEの結果であり-20℃のS-N曲線において 10^5 サイクル付近に転移点があらわれている。図4はPVCの結果であり、40℃におけるS-N曲線に転移点があらわれている。図5はPSの結果であり、各温度ともS-N曲線は類似の下に凸の傾向を示しており、温度による 10^7 疲労強度の変化は大きくない。図6はABSの結果であり、各温度におけるS-N曲線は類似の傾向を示しており、 10^7 疲労強度は-20℃~20℃及び40℃~60℃の変化は小さく、20℃と40℃の相違が大である。

3.2 疲労強度に及ぼす温度の影響

以上の結果から、 10^7 サイクルにおける疲労強度の温度に対する変化を各試料について求めると図7のようになる。全ての材料はNielsen²⁾が述べているように温度の増加に対して疲労強度が低下する傾向を示すが、その温度に対する低下の傾向は材料によって異なる。各材料はDillon⁷³⁾が述べているような統一的な傾向は示さない。またフェノール系高分子複合材料についてOikawa⁷⁾が示しているような直線的な低下は、全試料では起らない。PMMAは温度の増大に対して疲労強度は直線的に低下している。POMは、低温から20℃までの疲労強度の低

Fig. 1 S-N curves of PMMA at $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$. Fig. 4 S-N curves of PVC at $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$. Fig. 2 S-N curves of POM at $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$. Fig. 5 S-N curves of PS at $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$. Fig. 3 S-N curves of PE at $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$. Fig. 6 S-N curves of ABS at $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$.

Fig. 7 Relation between temperature and fatigue strength of thermoplastic polymers.

下が緩やかで、その後温度が高くなるに従い疲労強度が急激に低下する傾向を示す。PEも0℃までは疲労強度の低下は緩やかであるが、その後温度の増加とともに急激に低下している。PVC及びABSは温度の増加に対して疲労強度はS字曲線を描いて低下している。PSは温度の増大に対して疲労強度が漸減している。

3.3 疲労による表面温度の変化

S-N曲線及び疲労強度の変化に及ぼす温度の影響の上述のような結果の考察に資するために、繰り返し応力振幅に基づくヒステリシス損失による温度上昇の変化を試片の表面温度の変化から測定した。疲労試験片の表面温度の測定は前述のように、応力、振動数及び試験片の形状などの影響の面からPMMA、ポリカーボネート、PS、PVC、ABS、ポリアミドなどの測定結果が報告されており^{10,12,19~25,46~55)}、室温におけるそれらの結果は、本実験の結果とほぼ同様の傾向を示している。6ナイロンについては雰囲気温度による温度上昇の変化についても検討され、雰囲気温度が高い程温度上昇幅が大きくなることを示している⁵⁴⁾。しかし温度条件、材料によっては以下に示すように必ずしも雰囲気温度が高い程温度上昇幅が大きくなるとは限らない。図8~13に各試料の疲労による表面温度上昇の傾向をサイクル数に対して示した。この場合は振動数が25 Hzと一定であり、材料の形状も一定なので、材料の種類、応力及び雰囲気温度の影響が検討できる。図8はPMMAの結果を示したもので、応力振幅が大きい場合すなわち疲労破壊のサイクル数が小さい場合には、温度上昇が小さいうちに破壊するが、 10^4 付近から一定温度に到達すると破壊する傾向を示す。温度上昇幅は20℃のときが最大でそれよりも温度が高くなっても低くなっても温度上昇幅は低下する傾向を示す。各雰囲気温度とも、ある一定温度に到達しな

Fig. 8 Rise of surface temperature by fatigue at various temperatures for PMMA.

Fig. 9 Rise of surface temperature by fatigue at various temperatures for POM.

ような応力振幅条件では 10^7 サイクルまで破壊は生じない。また20℃以上の雰囲気温度では、破壊が材料の T_g (80℃)に依存していることを示している。図9はPOMについての温度上昇傾向であり、20℃~60℃の範囲では、PMMAと同様にある一定温度に到達すると疲労破壊するのに対し、0℃及び-20℃ではサイクル数が大きくなると破壊までの温度上昇幅が低下する傾向を示

Fig. 14 S-S curves of PMMA at various temperatures.

Fig. 17 S-S curves of PVC at various temperatures.

Fig. 15 S-S curves of POM at various temperatures.

Fig. 18 S-S curves of PS at various temperatures.

Fig. 16 S-S curves of PE at various temperatures.

Fig. 19 S-S curves of ABS at various temperatures.

がい温度上昇幅が減少する傾向を示し、 $40^{\circ}\text{C} \sim 20^{\circ}\text{C}$ ではほとんど温度上昇を生じない。図13はABSについての結果であり、 $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ において、サイクル数の増大にしたがい温度上昇幅が減少していることを示す。また 20°C 付近に温度上昇幅の極大があることを示している。

3.4 S-S曲線に及ぼす温度の影響

上述の結果は、温度上昇のタイプがS-N曲線のタイプに密接に関連していることを示唆しているが、さらに温度上昇の幅が材料の機械的性質と関連していることが示唆されるので、引張試験による引張応力-ひずみ曲線(S-S曲線)の温度による変化の傾向を検討した。図14~19に各試料の温度によるS-S曲線の変化の傾向を示した。図14はPMMAのS-S曲線の温度による変化を示したもので、 -20°C 及び 0°C ではほぼ直線を示し、 $20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ では、3%程度で降伏しひずみが増大している。図15はPOMのS-S曲線を示しており、 -20°C 及び 0°C では降伏後、断面積の急激な変化により応力が低下しているが、 $20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ ではほぼ均一延伸となっている。図16はPEの結果であり、全ての温度において降伏後応力の減少を生じており、断面積の急激な変化をとまっている。図17はPVCの結果であり、PEと同様に全ての温度において降伏後断面積の急激な変化をとまっている。図18はPSの結果であり、 $-20^{\circ}\text{C} \sim 60^{\circ}\text{C}$ ではほぼ直線的な変化を示している。図19はABSの結果であり、 $-20^{\circ}\text{C} \sim 20^{\circ}\text{C}$ までは断面積の急激な変化をとっており 40°C 及び 60°C ではほぼ均一延伸となることを示している。

4. 考 察

S-N曲線の転移現象については、多くの研究で指摘されており^{34, 35, 42, 56~60)}、熱破壊と亀裂破壊の転移点であると説明している⁴²⁾。ここでは、この現象も含めて熱可塑性高分子材料の疲労強度の温度による変化を系統的に考察するために温度上昇の幅の変化、温度上昇のタイプ、S-N曲線のタイプ及びS-S曲線のタイプをモデル的に分類して各材料及び温度についてそれぞれ比較検討した。

4.1 温度上昇幅の変化の分類

疲労試験片の表面温度上昇の幅の変化は、結果から図20に示すように試験温度に対して極大を示すことが明らかになった。この極大温度は、Ferry⁴¹⁾によれば損失コンプライアンスと繰り返し応力振幅の大きさのかわあいによるものと考えられる。その極大付近の温度をBとし、温度が高くなるに従い温度上昇幅が増大する領域をA、逆に温度が高くなるに従い温度上昇幅が減少する

Fig. 20 Relation between temperature and change of width of temperature rising.

Fig. 21 Models for type of temperature rising.

領域をCとすると、各材料及び温度条件により温度上昇幅の変化の分類ができる。

4.2 温度上昇のタイプの分類

疲労試験片の表面温度の上昇の疲労破壊サイクル数に対する変化のタイプを結果から分類してモデル的に示すと図21のようになる。ここで疲労破壊のタイプを熱破壊と亀裂破壊に分類して⁴²⁾、一定温度に到達すると破壊するタイプを熱破壊タイプ、温度上昇によらず破壊するタイプを亀裂破壊タイプと呼ぶ。Aは熱破壊タイプで試験片表面が一定温度に到達したら破壊することを示している。Bはサイクル数が小さいときは一定温度に到達後破壊し、サイクル数が大きくなると温度上昇によらず破壊する亀裂破壊タイプとなることを示している。すなわち熱破壊と亀裂破壊の混合タイプである。Cはサイクル数の増大にしたがい温度の上昇幅が減少することを示し

ている。すなわち温度上昇はみられるが、破壊は温度上昇によらない亀裂破壊タイプを示すものである。Dは繰り返し疲労によりほとんど温度上昇を示さない亀裂破壊タイプを示すものである。各材料及び温度条件により温度上昇のタイプが分類できる。

4.3 S-N 曲線のタイプの分類

温度変化によるS-N曲線の変化の結果から図22に示すようにS-N曲線のタイプはA、B及びCに分類できる。この分類は上述の温度上昇のタイプの分類に対応して分類できるもので、Aは熱破壊タイプ、Bは熱破壊と亀裂破壊の混合タイプで転移点を有している。Cは亀裂破壊のタイプである。S-N曲線の転移現象は、このように温度上昇のタイプに基づく疲労破壊の機構の変化から説明できる⁽⁴⁾。各試料及び温度条件によるS-N曲線のタイプが温度上昇のタイプと対応させることにより分類できる。

4.4 S-S 曲線のタイプの分類

温度変化による各試料のS-S曲線の変化の結果から

Fig. 22 Models for type of S-N curve.

Fig. 23 Models for type of S-S curve.

図23に示すようにS-S曲線を分類することができる。これは損失コンプライアンスと応力の関係すなわち温度上昇幅に関係するものである。Aは降伏点を示さず直線的に変化するタイプ、Bは急激な断面積変化をとって降伏点以後に応力が低下するタイプ、Cは降伏点以後ほぼ均一延伸して伸度が大きくなるタイプである。各試料及び温度条件によりS-S曲線のタイプが分類できる。

4.5 各材料及び温度条件による各分類の比較

以上の四つの分類法により各材料及び温度条件に対して分類を行った結果を表1に示す。温度が高くなるに従い温度上昇の幅の変化は、AからB、Cになり、温度上昇のタイプはDからC、B、Aになり、S-S曲線のタイプはAからB、Cになり、S-N曲線のタイプはCからB、Aになる。温度上昇のタイプのC及びDをS-N曲線のCと対応させると、温度上昇のタイプとS-N曲線のタイプは全く一致することになる。PMMAは各温度ともAタイプで熱破壊型である。POMは-20℃及び0℃においてはBタイプでありS-N曲線に転移点を有しており、熱破壊と亀裂破壊の混合型である。20℃~60℃においてはAタイプで熱破壊型である。PEは-20℃においてはBタイプで混合型であり、0℃~60℃ではAタイプで熱破壊型である。PVCは-20℃~20℃においては、温度上昇D、Cタイプであり、S-N曲線Cタイプで亀裂破壊型である。40℃ではBタイプで混合型であり、60℃ではAタイプで熱破壊型である。PSは温度上昇でD、CタイプでありS-N曲線でCタイプの亀裂破壊型である。ABSはCタイプで亀裂破壊型である。また温度上昇の幅の変化とS-S曲線のタイプには密接な関係があり、S-S曲線がBまたはAからCタイプに変換する付近で、温度上昇の幅が極大となるBを示す。環境温度の変化に対してS-S曲線のタイプが変化せず、ずっとBまたはAの場合には、温度幅の変化もずっとAのまま温度が高くなるに従い温度上昇の幅が増大する。本研究においては、PE、PVC及びPSがこのタイプであるが、Zilver⁽⁴⁾は6ナイロンについて温度が高い程、温度上昇幅が大きくなることを示しており、この結果もAの領域であったと思われる。

4.6 温度による疲労強度の変化

各材料の疲労強度に及ぼす温度の影響の結果及び上述までの結果から、各材料の温度に対する疲労強度は、図24に示すような一本の曲線になるものと思われる。各材料によって温度による疲労強度の値は異なるが、-20℃から60℃の変化は各材料にとって一本の曲線の中の一部であり、温度領域をひろげれば傾向として類似のものになると考えられる。各材料については、図7の結果から各長方形で囲まれた温度領域が-20~60℃の範囲の

Table 1 Types of rise of surface temperature, S-S curve and S-N curve of thermoplastic polymers at various temperatures.

material	temperature (°C)	change of width of temperature rising	type of temperature rising	type of S-S curve	type of S-N curve
PMMA	-20	A	A	A	A
	0	A	A	A	A
	20	B	A	C	A
	40	C	A	C	A
	60	C	A	C	A
POM	-20	A	B	B	B
	0	B	B	B	B
	20	C	A	C	A
	40	C	A	C	A
	60	C	A	C	A
P E	-20	A	B	B	B
	0	A	A	B	A
	20	A	A	B	A
	40	A	A	B	A
	60	A	A	B	A
P V C	-20	A	D	B	C
	0	A	D	B	C
	20	A	C	B	C
	40	A	B	B	B
	60	A	A	B	A
P S	-20	A	D	A	C
	0	A	D	A	C
	20	A	D	A	C
	40	A	D	A	C
	60	A	C	A	C
A B S	-20	A	C	B	C
	0	B	C	B	C
	20	B	C	B	C
	40	C	C	C	C
	60	C	C	C	C

Fig. 24 Change of fatigue strength by temperature for thermoplastic polymers.

疲労強度の変化をあらわしている。すなわち同じ-20℃～60℃の温度領域でも、例えばABSとしては他の材料に比べて最も低温領域で疲労試験が行なわれたことになり、PMMAは最も高温領域で疲労試験が行なわれたことになる。疲労強度-温度曲線には低温側と高温側にショルダーがある。高温側のショルダー付近に熱破壊と亀裂破壊の転移領域があり、この領域を境として低温側は

亀裂破壊、高温側は熱破壊を示す。

5. 結 言

6種類の汎用熱可塑性高分子材料の繰り返し屈曲疲労強度に及ぼす温度の影響について、温度と疲労強度、S-S曲線のタイプ、S-N曲線のタイプ、温度上昇幅の変化のタイプ及び温度上昇のタイプの関係から検討した。

熱可塑性高分子材料の疲労強度は温度に対して一本の曲線であらわすことができ、それはある転移温度を有している。転移温度を境にそれより低温側は疲労破壊が温度上昇によらない亀裂破壊を示し、高温側はヒステリシス損失に基づく温度上昇により、ある一定温度になったときに破壊を生ずる熱破壊を示す。-20℃～60℃の温度領域では、ABS及びPSは亀裂破壊を示し、PVC、POM及びPEは熱破壊と亀裂破壊の両方を示し、PMMAは熱破壊を示す。PMMAのように熱破壊のみを示す条件において、破壊が T_g と密接に関係すると思われる。

今後、各材料について温度領域を拡げて検討することにより、さらに詳細な事実が明らかにされることが期待できる。

〈付 記〉本報告の一部は、第7回繊維連合研究発表会(昭和50年10月大阪)にて発表したものである。

文 献

- 1) J. F. Knott, "Fundamental of Fracture Mechanics", Wiley, New York (1973)
- 2) L. E. Nielsen, "Mechanical Properties of Polymers and Composites", Vol. 2, Marcel Dekker Inc., New York (1974)
- 3) C. B. Bucknall, "Toughened Plastics", Applied Science Publishers, London (1977)
- 4) R. W. Hertzberg and A. Manson, "Fatigue of Engineering Plastic", Academic Press, New York (1980)
- 5) G. Pitman and I. M. Ward, *J. Mater. Sci.*, **15**, 635 (1980)
- 6) C. B. Bucknall and W. W. Stevens, *J. Mater. Sci.*, **15**, 2950 (1980)
- 7) Y. Oikawa, *J. Macromol. Sci. Phys.*, **B19**, 679 (1981)
- 8) C. M. Rimnac, J. A. Manson, R. W. Hertzberg, S. M. Webler, and M. D. Skibo, *J. Macromol. Sci. Phys.*, **B19**, 351 (1981)
- 9) D. J. Woan, M. Habibullah, and J. A. Sauer, *Polymer*, **22**, 699 (1981)
- 10) R. Vinet, R. Connolly, and R. Gauvin, *Polym. Eng. Sci.*, **21**, 1203 (1981)
- 11) C. C. Chen, N. Chheda, and J. A. Sauer, *J. Macromol. Sci. Phys.*, **B19**, 565 (1981)
- 12) J. A. Sauer, M. Habibullah, and C. C. Chen, *J. Appl. Phys.*, **52**, 5970 (1981)
- 13) R. W. Nunes, J. R. Martin and J. F. Johnson, *Polym. Eng. Sci.*, **22**, 205 (1982)
- 14) M. T. Takemori and D. S. Matsumoto, *J. Polym. Sci. Phys.*, **20**, 2027 (1982)
- 15) M. T. Takemori, *Polym. Eng. Sci.*, **22**, 937 (1982)
- 16) A. Chudnovsky and A. Moet, *Polym. Eng. Sci.*, **22**, 922 (1982)
- 17) E. Foden, D. R. Morrow, and J. A. Sauer, *J. Appl. Polym. Sci.*, **16**, 519 (1972)
- 18) J. G. Williams, "Stress Analysis of Polymers", 2nd edn, J. Wiley and Sons, New York (1980)
- 19) M. T. Hahn, R. W. Hertzberg, J. A. Manson, R. W. Lang, and P. E. Bretz, *Polymer*, **23**, 1675 (1982)
- 20) C. C. Chen, D. R. Morrow, and J. A. Sauer, *Polym. Eng. Sci.*, **22**, 451 (1982)
- 21) J. A. Sauer and C. C. Chen, *Polym. Eng. Sci.*, **24**, 786 (1984)
- 22) R. W. Lang, M. T. Hahn, R. W. Hertzberg and J. A. Manson, *J. Mater. Sci. letters*, **3**, 224 (1984)
- 23) J. A. Sauer and C. C. Chen, *Adv. in Polym. Sci.*, **52/53**, 170 (1983)
- 24) T. A. Morelli, and M. T. Takemori, *J. Mater. Sci.*, **19**, 385 (1984)
- 25) R. Connolly, R. Gauvin, and J. P. Chalifoux, *Polym. Eng. Sci.*, **25**, 548 (1985)
- 26) M. G. Schinker, L. Könczöl, and W. Döll, *Colloid & Polymer Sci.*, **262**, 230 (1984)
- 27) C. M. Rimnac, R. W. Hertzberg, and J. A. Manson, *J. Mater. Sci. letters*, **2**, 325 (1983)
- 28) M. Kitagawa, H. Kajiware, H. Kanzaki, and T. Zhang, *J. Mater. Sci.*, **20**, 1945 (1985)
- 29) D. S. Matsumoto and S. K. Gifford, *J. Mater. Sci.*, **20**, 4610 (1985)
- 30) T. A. Morelli, and M. T. Takemori, *J. Mater. Sci.*, **18**, 1836 (1983)
- 31) A. M. Serrano, G. E. Welsch and R. Gibala, *Polym. Eng. Sci.*, **22**, 946 (1985)
- 32) E. P. Tam and G. C. Martin, *J. Macromol. Sci. Phys.*, **B23**, 415 (1984~85)
- 33) B. J. Lazan, and A. Yorgiadis, ASTM, STP24, 66 (1944)
- 34) S. Shimamura, and H. Maki, *Proc. JCTM*, **5**, 136 (1961)
- 35) S. Shimamura, and H. Maki, *Proc. JCTM*, **6**, 6 (1962)
- 36) S. B. Ratner, and V. I. Korobov, *Mekh. Polim.*, **1**, 93 (1965)
- 37) M. N. Riddell, G. P. Koo and J. L. O'Toole, *Polym. Eng. Sci.*, **6**, 363 (1966)
- 38) G. P. Koo, M. N. Riddell, and J. L. O'Toole, *Polym. Eng. Sci.*, **7**, 182 (1967)
- 39) L. C. Cessna, J. A. Levens, and J. B. Thomson, *Polym. Eng. Sci.*, **9**, 339 (1969)
- 40) A. X. Schmidt and C. A. Marlies, "Principle of High-Polymer Theory and Practice" p578, McGraw-Hill, New York (1948)
- 41) J. D. Ferry, "Viscoelastic Properties of Polymers", Wiley, New York (1961)
- 42) R. J. Crawford, and P. P. Benham, *Polymer*, **16**, 908 (1975)
- 43) L. J. Broutman, and S. K. Gagggar, *Inst. J. Poly. Mater.*, **1**, 295 (1972)
- 44) A. V. Stinskis and S. B. Ratner, *Sov. Plast.*, **49** (1962)
- 45) R. W. Hertzberg, J. A. Manson, and M. D. Skibo, *Polymer*, **19**, 358 (1978)
- 46) 大石不二夫, 材料, **7**, 826 (1968)
- 47) T. R. Tauchert, and S. M. Afzal, *J. Appl. Phys.*, **38**, 4568 (1967)
- 48) K. Oberbach, *Kunststoffe*, **63**, 35 (1973)
- 49) M. Higuchi, and Y. Imai, *J. Appl. Polym. Sci.*, **14**, 2377 (1970)
- 50) 大石不二夫, 材料, **17**, 1016 (1968)
- 51) S. Wintergerest, *Kunststoffe*, **50**, 277 (1960)
- 52) P. P. Benham, and V. I. Korobov, *Mekh. Polim.*, **1**, 93 (1965)
- 53) A. V. Strinkas, N. I. Antropava, S. B. Ratner, A. V. Samokhvalov, and A. V. Sharova, *Mekh. Polim.*, **1**, 118 (1965)
- 54) V. Zilvar, *J. Macromol. Sci. Phys.*, **B5**, 273 (1971)

- 55) V. Zilvar, *Plas. Polym.*, **39**, 328 (1971)
56) 堀 幸夫, 機械の研究, **11**, 675 (1959)
57) 堀 幸夫, 高分子, **10**, 606 (1961)
58) 黒田寿記, 石橋 徹, 材料試験, **10**, 485 (1961)
59) 黒田寿記, 谷口 肇, 材料試験, **11**, 504 (1962)
60) 黒田寿記, 小牧和夫, 材料, **14**, 172 (1965)
61) J. R. Martin and J. F. Johnson, *J. Appl. Polym. Sci.*, **18**, 3227 (1974)
62) J. A. Sauer, E. Foden, and D. R. Morrow, *SPE ANTEC Tech. Pap.*, **22**, 107 (1976)
63) S. L. Kim, M. D. Skibo, J. A. Manson and R. W. Hertzberg, *Polym. Eng. Sci.*, **17**, 194 (1977)
64) E. Foden, J. A. Sauer and D. R. Morrow, *J. Appl. Polym. Sci.*, **16**, 519 (1972)
65) A. N. Gent and A. G. Thomas, *J. Polym. Sci. Part A-2*, **10**, 571 (1972)
66) R. P. Kambour, *J. Polym. Sci., Part D*, **7**, 1 (1973)
67) J. F. Fellers, and B. F. Kee, *J. Appl. Polym. Sci.*, **18**, 2355 (1974)
68) F. Ohishi, S. Nakamura, D. Kogama, K. Minabe, Y. Fujisawa and Y. Tsuruga, *J. Appl. Polym. Sci.*, **20**, 79 (1976)
69) S. Warty, J. A. Sauer and A. Charlesky, *Eur. Polym. J.*, **15**, 445 (1979)
70) J. A. Sauer, E. Foden and D. R. Morrow, *Polym. Eng. Sci.*, **17**, 246 (1977)
71) S. K. Bhateja, J. K. Reike and E. H. Andrews, *J. Mater. Sci.*, **14**, 2103 (1979)
72) S. L. Kim, M. D. Skibo, J. A. Manson, R. W. Hertzberg and J. Janiszewski, *Polym. Eng. Sci.*, **18**, 1093 (1978)
73) J. H. Dillon, "Advances in Colloid Science", Vol. 3, p219, H. Mark, E. J. W. Verwey, Ed., Interscience, New York (1950)
74) 大石不二夫, 材料, **17**, 44 (1968)
75) P. Beadmore and S. Rabinowitz, *Appl. Polym. Symp.*, **24**, 25 (1974)
76) S. Arad, J. C. Radon, and L. E. Culver, *Polym. Eng. Sci.*, **12**, 193 (1972)
77) S. Arad, J. C. Radon, and L. E. Culver, *J. Mech. Eng. Sci.*, **13**, 75 (1971)
78) W. J. Plumbridge, *J. Mater. Sci.*, **7**, 939 (1972)
79) J. G. Williams, *J. Mater. Sci.*, **12**, 2525 (1977)
80) G. C. Martin and W. W. Gerberich, *J. Mater. Sci.*, **11**, 231 (1976)
81) R. W. Hertzberg, H. Nordberg, and J. A. Manson, *J. Mater. Sci.*, **5**, 521 (1970)
82) J. C. Radon and L. E. Culver, *Polym. Eng. Sci.*, **15**, 500 (1975)
83) S. Arad, J. C. Radon, and L. E. Culver, *J. Mech. Eng. Sci.*, **13**, 2 (1971)
84) S. Arad, J. C. Radon, and L. E. Culver, *J. Mech. Eng. Sci.*, **14**, 328 (1972)
85) N. H. Watts and D. J. Burns, *Polym. Eng. Sci.*, **7**, 90 (1967)
86) T. Kurobe and H. Wakashima, in Proceeding of the 15th Japan Congress on Materials Research, Society of Materials Science, Kyoto, Japan, p137 (1972)
87) J. C. Radon, P. Chauhan, and L. E. Culver, *Colloid Polym. Sci.*, **254**, 382 (1976)
88) J. C. Radon, *Polym. Eng. Sci.*, **12**, 425 (1972)
89) J. C. Radon and L. E. Culver, *Polym. Eng. Sci.*, **15**, 507 (1975)
90) S. B. Ratner, and N. I. Barash, *Mekh. Polim.*, **1**, 124 (1965)
-