曲げ荷重をうける GRP 板の時間-温度依存性*

宮 野 靖** 鈴木 克 人***

Time-Temperature Dependence of GRP Plate under Flexural Loading

by

Yasushi MIYANO and Katuhito SUZUKI

(Hitachi Research Laboratory, Hitachi Ltd., Hitachi)

This paper is concerned with the time- and temperature dependences of the bending properties of the plain fabric glass cloth reinforced laminates (GRP) and the unsaturated polyester resins which are the matrices of the GRP.

The results obtained are summarized as follows :

(1) The creep compliances of the matrix and the GRP show the remarkable time- and temperature dependences; that is, they have so called viscoelastic behaviors.

(2) The master curves of the creep compliances for both the matrix and the GRP can be constructed, using their thermo-rheological simple properties. As for the time- and temperature shift factors, they are in good agreement quantitatively.

(3) It was found that the relation between the creep compliances of the matrix and the GRP is uniquely determined by the rule of mixture for viscoelastic materials, independent of the conditions of their circumstance such as time and temperature. This was also confirmed experimentally.

(Received Mar. 4, 1974)

1 緒 言

一般に、高分子材料の機械的性質には強い時間および温度依存性、つまり時間や温度によりその機械的性質が著しく変化するという粘弾性の性質がある。したがって、熱硬化性樹脂をマトリックスとしている繊維強化プラスチック (FRP) の機械的性質にも当然このような粘弾性挙動が現われることが予想される。

FRP の機械的性質の時間および温度依存性については、これまで種々の研究が行なわれているが、これらはクリープ実験によるものがほとんどである。たとえば、K. H. Boller 等は非常に多種のガラス繊維強化プラスチック (GRP) について粘弾性の挙動の一つであるクリープ破断強度、クリープひずみの実験式を提案している。しかし、FRP の機械的性質の時間および温度依存性つまり粘弾性の性質をそのマトリックスである樹脂の特性との関連において考察したものは、一方向繊維強化プラスチックの力学的挙動について

実験および理論的考察を行なった白鳥等²⁾による研究やその他 2, 3 の例を数えるのみである。

本報告は、GRP のマトリックスとして最もよく使用される不飽和ポリエステル樹脂ならびにこれをマトリックスとした平織ガラス布の GRP を取り上げた。そして、これらの樹脂および GRP の機械的性質のうち、まず微小変形時の力学的挙動、つまり応力-ひずみ関係の時間および温度依存性について実験を行ないその結果に検討を加えた。さらにマトリックスそのものの樹脂とこれをマトリックスとした GRP との粘弾性挙動の相関関係を応力-ひずみ関係について考察した。

2 基礎理論

まず、線形粘弾性体の応力-ひずみ関係の実験的評価方法について述べ、ついで時間-温度換算則について考察する。

2・1 応力-ひずみ関係の評価方法^{6,8)}

線形粘弾性理論によれば、粘弾性体のラプラス変換面における挙動は物理面における弾性体の挙動と類似である。

3 点曲げ試験において中央点の変位入力 $U(t)$ とし、その荷重応答を $W(t)$ とすれば、その関係は弾性体で

* 本報を「FRP の機械的性質の時間-温度依存性(第1報)」(Time and Temperature Dependence of the Mechanical Properties of FRP Laminates, I) とする。

原稿受理 昭和49年3月4日

** 正 会 員 (株)日立製作所日立研究所 日立市久慈町

*** (株)日立製作所日立研究所 日立市久慈町

は

$$W(t) = \frac{4bd^3}{l^3} \cdot E \cdot U(t) \quad (1)$$

ここで E : 弾性体の縦弾性係数

l : スパン間距離

b : 試験片の幅

d : 試験片の厚さ

試料が粘弾性体の場合はラプラス変換面において

$$\bar{W}(p) = \frac{4bd^3}{l^3} \cdot E(p) \cdot \bar{U}(p) \quad (2)$$

ここで $\bar{W}(p)$: $W(t)$ のラプラス変換

$\bar{U}(p)$: $U(t)$ のラプラス変換

$E(p)$: ラプラス変換面における 応力-ひずみ関係

となる。(1)式から(2)式の導入にあたっては慣性力や体積力を考慮しなくて良い準静的な状態で、かつ両者の境界条件の一致、温度の一定といった条件を満たしていなければならない。さらに、3点曲げ試験における(1)式の成立の条件である Bernoulli-Navier の仮説、軸方向繊維の独立性といった仮定は粘弾性体の場合にも成立するものとして(2)式を求めた。(2)式は(3)式に書きかえられる。

$$E(p) = \frac{l^3}{4bd^3} \cdot \frac{\bar{W}(p)}{\bar{U}(p)} (=1/D(p)) \quad (3)$$

一定荷重負荷 $W(t) = W_0$ のクリープ試験においては、(3)式をラプラス逆変換することにより、クリープコンプライアンス $D_c(t)$ が次式のように求まる。

$$D_c(t) = \frac{4bd^3}{l^3} \cdot \frac{U(t)}{W_0} \quad (4)$$

つぎに中央点の変位が $U(t) = Rt$ の一定変位速度試験については、同じく(3)式よりリラクゼーションモジュラス $E_r(t)$ は次式で表わされる。

$$E_r(t) = \frac{l^3}{4bd^3} \left[\frac{W(t)/R}{t} \cdot \frac{d \log(W(t)/R)}{d \log t} \right] \quad (5)$$

また、 $D_c(t)$ および $E_r(t)$ のラプラス変換 $\bar{D}_c(p)$, $\bar{E}_r(p)$ は変換面において次の関係がある。

$$\left. \begin{aligned} \bar{D}_c(p) &= D(p)/p (=1/E(p) \cdot p) \\ \bar{E}_r(p) &= E(p)/p \end{aligned} \right\} \quad (6)$$

なお、 $E_r(t)$ と $D_c(t)$ の間には近似的に次の関係が成立する。

$$E_r(t) \doteq 1/D_c(t) \quad (7)$$

2・2 時間-温度換算則

一般に高分子材料には高温、長時間領域の現象と低温、短時間領域の現象が同じであるとした時間-温度換算則が成立する。^(6,8) すなわち、任意の測定温度 T において物理時間 t で観察された現象と同じ現象を基準温度 T_0 において次式で表わされる換算時間 t' で観察することができる。

$$\log a_{T_0}(T) = \log t - \log t' \quad (8)$$

ここで時間-温度移動因子 (Time-Temperature Shift Factor) $a_{T_0}(T)$ は測定温度 T と基準温度 T_0 によって決まるものであり、このような性質を有する材料は熱レオロジー的に単純 (Thermorheologically Simple) であるという。測定温度 T が時間とともに変化する場合は(8)式の物理時間 t と基準温度 T_0 における換算時間 t' の関係は次のように書き換えることができる。

$$t' = \int_0^t d\tau / a_{T_0}(T(\tau)) \quad (9)$$

この時間-温度換算則を利用すれば、種々の測定温度 T で測定されたたとえば応力-ひずみ関係より、基準温度 T_0 における広い時間範囲のマスター曲線を求めることができる。

さらに、その応力-ひずみ関係に時間および温度依存性があり、かつ時間-温度換算則が成立する樹脂をマトリックスとする FRP のような複合材料の応力-ひずみ関係にも、当然時間および温度依存性があり、かつ樹脂と全く同じ時間-温度換算則が成立することが予想される。すなわち、今ある負荷条件での FRP の応力-ひずみ関係を表わす諸係数 $F_i (i=1 \sim n)$ が次式で表わされるものとする。

$$\left. \begin{aligned} F_1(t, T) &= f_1(E_m(t, T), \nu_m(t, T), E_f, \nu_f \dots) \\ F_i(t, T) &= f_i(E_m(t, T), \nu_m(t, T), E_f, \nu_f \dots) \\ F_n(t, T) &= f_n(E_m(t, T), \nu_m(t, T), E_f, \nu_f \dots) \end{aligned} \right\} \quad (10)$$

ここで $E_m(t, T)$: 樹脂の縦弾性係数

$\nu_m(t, T)$: 樹脂のポアソン比

E_f : 繊維の縦弾性係数で一定値

ν_f : 繊維のポアソン比で一定値

n : FRP が直交異方性体の時 $n=9$

樹脂の応力-ひずみ関係に時間-温度換算則が成立するので、それらは次のように表わせる。

$$\left. \begin{aligned} E_m(t, T) &= E_m(t', T_0) \\ \nu_m(t, T) &= \nu_m(t', T_0) \end{aligned} \right\} \quad (ただし \ t/t' = a_{T_0}(T)) \quad (11)$$

(10), (11)式により FRP の諸係数 F_i に次の関係が成立する。

$$F_i(t, T) = F_i(t', T_0) \quad (ただし \ t/t' = a_{T_0}(T)) \quad (12)$$

そして FRP の $a_{T_0}(T)$ は樹脂のそれと一致する。このようにマトリックスである樹脂に時間-温度換算則が成立すれば、FRP にも時間-温度換算則が成立し、基準温度 T_0 での応力-ひずみ関係を表わす諸係数のマスター曲線を求めることができる。

樹脂とそれをマトリックスとした FRP の両者の、ある負荷条件の下でのマスター曲線が求まり、かつ両者の時間-温度移動因子 $a_{T_0}(T)$ が等しいことから、両者の応力-ひずみ関係の間の相関関係は時間や温度といった環境条件には影響されずに一義的に決まるといえる。言いかえれば、種々の測定温度、時間での樹

脂の応力-ひずみ関係に対する同じ測定条件での FRP の応力-ひずみ関係のグラフは測定条件にかかわらず 1 本の曲線上にある。

3 実験方法

粘弾性挙動を示す材料の応力とひずみとの間の関係を実験的に求める方法はいろいろあるが、ここでは 3 点曲げによるクリープ試験を行ない、そのクリープコンプライアンス $D_c(t)$ を求めた。以下、樹脂および GRP のクリープ試験法を記す。

3・1 樹脂のクリープ試験

用いた樹脂の成分ならびに硬化条件を Table I に示す。樹脂は不飽和ポリエステル樹脂でそのガラス転移点 $T_g=120^\circ\text{C}$ 、熱変形温度 HDT $=136^\circ\text{C}$ である。成形方法としては、液状のレジン成型内に流し込み、真空脱気した後 Table I に示す条件で硬化し、Fig. 1 に示す寸法の試験片を製作した。

Table I. Composition of resin and GRP.

	Resin	GRP
Composition	Unsaturated polyester	Polyester + Plain fabric glass cloth [ECL 13 350 produced by Nittobo]
	Himic acid type	20 layers and 5mm thickness Volume fraction of resin $V_r=50\%$
Cure schedule	50°C・15 h+130°C・15 h	
T_g	120°C	—

Fig. 1. Specimen and testing method.

負荷方法は Fig. 1 に示すとおりで、クリープ試験は恒温槽付プラスチック用クリープ試験機（島津製作所製、最大容量 0.5 ton）によって行なった。負荷条件としては時刻 $t=0$ において一定荷重 W_0 を加え、また温度条件としては常温から 160°C までの 6 段階の一定温度に保った。そして支持点の変位 $U(t)$ を $t=1.7 \times 10^{-3} \text{h} (1 \text{ min}) \sim 10\% \text{h}$ の時間範囲でダイヤルゲージ（最小自盛 1/100 mm）により測定した。一般に応力とひずみの間に線形性の存在する場合のクリープコンプライアンス $D_c(t)$ は前章の(4)式で与えられる。本実験に先立ち短冊形の引張試験片を用いて測定温度 $T=60^\circ\text{C}$, 120°C , 150°C において種々のひずみ速度の定

ひずみ速度試験を行ない、ひずみ $\epsilon < 1.2\%$ の範囲でこの樹脂が線形粘弾性を保持することを確認した。したがって、3 点曲げのクリープ試験においても上下表面に生ずる最大ひずみが 1.2% を越えないような一定荷重 W_0 を選んだ。

3・2 GRP のクリープ試験

試料は Table I に示すようなマトリックスとして上述の不飽和ポリエステル樹脂を用いた平織ガラス布の積層板である。成形方法としては金型内にガラスクロス 20 枚積み重ね、レジン真空含浸し、Table I に示す条件で硬化して 140 mm×140 mm×厚さ 5 mm の GRP 積層板を作った。これより Fig. 1 に示す寸法の試験片を切り出した。この際、平織繊維の方向を試験片の長手方向と一致するようにした。

負荷方法は Fig. 1 に示すとおりで、温度条件および負荷条件は前述の樹脂の場合とほぼ同様である。またクリープコンプライアンス $D_c(t)$ は(4)式より求めた。ここで、GRP 積層板に(4)式が成立するかどうかという疑問はあるが、2・1 節で述べた粘弾性体の場合と同じように GRP 積層板にも Bernoulli-Navier の仮説、軸方向繊維の独立性の仮定は成立するものとして(4)式よりクリープコンプライアンス $D_c(t)$ を求めた。また、線形性の許容範囲を 5% とした場合、試験片の表面の最大ひずみが 1% を越えない範囲で線形性は保持されており、この範囲におさまるように一定荷重 W_0 を選んだ。

なお、短時間領域ではクリープ試験の時刻 $t=0$ において一定荷重 W_0 を負荷することはむしろそれだけ精度が低下する。また、粘弾性現象がそれほど顕著でない GRP のような場合、 $D_c(t)$ とリラクゼーションモジュラス $E_r(t)$ の間には(7)式の関係がある。したがって短時間領域 $0.83 \times 10^{-3} \text{h} (3 \text{ sec}) \sim 1.7 \times 10^{-2} \text{h} (1 \text{ min})$ の範囲では、実験が容易でかつ実験精度の高い定ひずみ速度試験によって得た $E_r(t)$ から(7)式を用いて $D_c(t)$ を算出し、これをクリープ実験結果に接続して全領域の $D_c(t)$ を求めた。実際には、恒温槽付インストロン型定ひずみ速度試験機（東洋ボールドウィン製、最大容量 5 ton）を用いて、温度条件はクリープ試験と同じで負荷条件としては中央点の変位が一定速度 R の 3 点曲げ試験を行ない、荷重応答 $W(t)$ を測定した。 $E_r(t)$ は前章の(5)式により算出し、ついで(7)式より $D_c(t)$ を求めた。もちろん、線形粘弾性領域つまり試験片の上下表面の最大ひずみが 1% をこえない範囲で実験を行なった。

4 実験結果および考察

4・1 各測定温度におけるクリープコンプライアンス $D_c(t)$

前章のようにして求めた樹脂および GRP の微小変

Fig. 2. Creep compliance of unsaturated polyester resin.

Fig. 3. Creep compliance of GRP.

形領域, つまり線形粘弾性領域における各測定温度でのクリープコンプライアンス $D_c(t)$ を Fig. 2, 3 に示す。

Fig. 2 より, 樹脂の $D_c(t)$ は温度の上昇または時間の経過とともに増加することが認められ, したがってクリープコンプライアンスに時間および温度依存性があることがわかる。また同図より常温近傍で時間の短い領域では $D_c(t)$ の時間に対する変化量は少なく, したがってガラス状弾性を示すことが知れ, 一方温度 $T = 120^\circ\text{C}$, 時間 $t = 1 \text{ hr}$ 近傍ではグラフのこう配は最大となる。つまり著しい粘弾性を示すことになる。さらに温度が上昇すると時間に対する $D_c(t)$ のこう配が減少して, いわゆるゴム状弾性域に入る。言い換えれば, この樹脂は試験された温度範囲および時間領域においてガラス状弾性→粘弾性→ゴム状弾性と変化することがわかる。

つぎに, GRP に関しては Fig. 3 からわかるように樹脂の場合と同じく温度の上昇および時間の経過とともに $D_c(t)$ は増加し, かつ $D_c(t)$ のこう配も樹脂の場合と同様の傾向を示す。つまり粘弾性を示す。これは定性的にはマトリックスである樹脂の特性より当然予想されることである。

4.2 クリープコンプライアンスのマスター曲線

まず不飽和ポリエステル樹脂について前述の時間-温度換算則の検討をするため Fig. 4 の左側の各測定温

Fig. 4. Master curve of creep compliance of unsaturated polyester resin.

度の $D_c(t)$ の曲線を対数時間軸に沿って平行移動した。その結果, Fig. 4 の右側に示すように 1 本のきれいな曲線が得られ, 基準温度 $T_0 = 100^\circ\text{C}$ における樹脂のマスター曲線が求まった。このことから, 用いられた樹脂は時間-温度換算則が成立し, 熱レオロジー的に単純な材料であることがわかった。そして, このマスター曲線から, この樹脂の非常に短い時間領域から長い時間領域 ($10^{-10} \sim 10^7 \text{ hr}$) での力学的挙動の予測が可能となった。

なお, 一般に樹脂の応力-ひずみ関係にはゴム弾性による温度の補正が行なわれるのが通常であるが, 本報告ではガラス転移点より低い温度領域での検討が主な目的であるため, この補正は省略した。

つぎに, この時間-温度換算則を GRP に対しても適用した。まず, 樹脂の場合と同じように Fig. 5 の左側に示す各測定温度の $D_c(t)$ のグラフを対数時間軸に沿って平行移動すると Fig. 5 の右側に示すように 1 本のきれいな曲線となり, 基準温度 $T_0 = 100^\circ\text{C}$ における GRP のマスター曲線が得られた。したがって GRP もマトリックスである樹脂と同じように時間-温度換算則が成立し, 熱レオロジー的に単純な材料であることがわかり, 樹脂の場合と同様, このマスター曲線から GRP についても $10^{-10} \sim 10^5 \text{ h}$ といった広い時間範囲にわたる力学的挙動の予測が可能となった。

さて, マスター曲線作成の際の対数時間軸の平行移

Fig. 5. Master curve of creep compliance of GRP.

Fig. 6. Time-temperature shift factor $a_{T_0}(T)$.

動量である時間-温度移動因子 $a_{T_0}(T)$ について考察を加えよう。Fig. 6 はここで用いた樹脂および GRP に対する $D_c(t)$ のマスター曲線を得るための平行移動量 $a_{T_0}(T)$ を温度に対してプロットしたグラフである。この図からわかるように×印で示した樹脂の $a_{T_0}(T)$ と○印で示したそれをマトリックスとした GRP に対する $a_{T_0}(T)$ とは全く一致することから、両者には全く同じ時間-温度換算則が適用できることがわかった。またこの $a_{T_0}(T)$ は低温領域および高温領域において、それぞれ異なる活性化エネルギー ΔH (低温側では $\Delta H=36\text{kcal/mol}$, 高温側では $\Delta H=86\text{kcal/mol}$) をもつ 2 本の次のようなアレニウス式で表現できることも確認された。

$$\log a_{T_0}(T) = \frac{\Delta H}{2.303 G} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \quad (13)$$

ここで ΔH : 活性化エネルギー (kcal/mol)

G : ガス定数 $1.69 \times 10^{-3} \text{kcal/deg}^\circ\text{C} \cdot \text{mol}$

T : 測定温度

T_0 : 基準温度

ここで注目することは 2 本のアレニウス式の接点における温度は約 110°C で、これはマトリックス樹脂のガラス転移点 $T_g=120^\circ\text{C}$ に近い値を示すことである。このことは樹脂の変形の様式がこの温度を境にして異なることを意味するものと推定される。

4.3 樹脂と GRP のクリープコンプライアンスの相関関係

任意の測定温度、時間における樹脂の $D_c(t)$ と同じ温度、時間における GRP の $D_c(t)$ の関係を示したのが Fig. 7 である。同図から樹脂の $D_c(t)$ とそれをマトリックスとした GRP の $D_c(t)$ の関係は、時間や温度が異なってもすべて 1 本の曲線で表わされることがわかる。つまり、両者の関係は時間や温度に関係なく一義的に決まるものと結論される。

つぎに上述の実験事実つまり実験的に求めた樹脂の $D_c(t)$ と GRP の $D_c(t)$ の関係を複合則を用いて検討

Fig. 7. Relationship between $D_c(t)$ of resin and $D_c(t)$ of GRP.

を加えよう。

複合則の適用にあたっては、供試材料である GRP の材料特性を次のようにした。

(1) 繊維の体積含有率 $V_f=50\%$ ……燃焼法により得た実測値

(2) ガラス繊維の縦弾性係数 $E_f=7400\text{ kg/mm}^2$ ¹⁰⁾……文献値
 ガラス繊維のポアソン比 $\nu_f=0.20$ ¹¹⁾……文献値
 樹脂のポアソン比 $\nu_m=0.35$

つぎに供試材料である平織ガラス布強化プラスチックのモデルを Fig. 8 に示す。そして次のことを仮定する。

Fig. 8. Separation of GRP plate to three parts.

(3) Fig. 8 の力学モデルは繊維束 A, B および樹脂部分 C よりなり、これらが負荷方向に対して並列になっている。

(4) 繊維束 A と繊維束 B は全く同一のものであり、繊維束 A の繊維方向は負荷方向で、繊維束 B のそれは負荷方向と直角の方向である。

(5) 繊維束 A, B 内の繊維の体積含有率 $V_{fA}=V_{fB}=70\%$ とする。これと $V_f=50\%$ より樹脂部分 C の全体に占める割合は $V_c=29\%$ となる。

(1)~(5)の実測値および仮定に対して複合則を適用した。この場合、厳密には粘弾性体に対する複合則を適用し

なければならぬが、簡単のために近似解として弾性体に対する複合則を適用した。¹¹⁾¹²⁾

計算の詳細は省略して結果のみをFig. 7の破線で示す。このグラフからわかるように上述の複合則で求めた理論値と実験値の傾向は一致している。ただし、高温、長時間領域においては理論値と実験値は傾向も異なるが、これは試験が3点曲げであったため層間せん断の影響がでてきたこと、複合則を適用した力学モデルが実際の試料の構成を必ずしも正確に表わしていないことおよびマトリックスが粘弾性であるにもかかわらず、弾性体に対する複合則を適用したことによると考えられる。

5 結 言

不飽和ポリエステル樹脂およびそれをマトリックスとした平織ガラス布強化の積層 GRP 板について曲げによる応力-ひずみ関係の時間依存性および温度依存性について調べた結果、次のことがわかった。

(1) 樹脂および GRP のクリープコンプライアンス $D_c(t)$ を種々の測定温度において時間範囲 $10^{-3} \sim 10^3$ h で測定した。そして樹脂および GRP の力学的性質には時間および温度依存性がある。

(2) 樹脂および GRP は熱レオロジー的に単純な材料であり、時間-温度換算則が適用できる。これよりこれらの $D_c(t)$ のマスター曲線が求まった。またこの時の時間-温度移動因子 $a_{T_0}(T)$ は樹脂と GRP では全く同じ値を示し、活性化エネルギーの異なった2本のアレニウス式で近似できる。

(3) 樹脂の $D_c(t)$ とそれをマトリックスとした GRP の $D_c(t)$ の関係は時間や温度によらず一義的に決まる。また両者の関係は高温、長時間領域を除き複合則による理論値とその傾向は一致する。

(4) 結論(2)の樹脂と GRP の $a_{T_0}(T)$ が一致すること、および結論(3)の樹脂の応力-ひずみ関係と GRP の応力-ひずみ関係の相関関係が時間や温度によらずに一義的に決まることは、マトリックスが粘弾性挙動を示す FRP 一般に対していえることである。本報告においては平織ガラス布強化の不飽和ポリエステル樹脂の積層板の曲げ特性によりこれを確認した。

終わりに本研究に対して多大のご助力を賜った慶応義塾大学工学部国尾武教授、日立製作所日立工場西政隆氏、渡辺精治氏、中央研究所室井忠博士ならびに日立研究所紫藤延彦博士に対して心から感謝します。

(昭和47年8月26日 第16回材料研究連合講演会にて講演)

参 考 文 献

- 1) Boller, K. H., 11th Annual Technical Conference, Reinforced Plastics/Composites, SPI, Section 1-B (1956).
- 2) 白鳥英亮, 他2名, 材料, **22**, 850 (1973).
- 3) 自念栄一, 鈴木 恵, 高分子化学, **29**, 485 (1972).
- 4) 座古 勝, 他2名, 日本機械学会論文集(第1部) **39**, 1822 (1973).
- 5) Moehlenpah, A.E., 他2名, Polymer Engineering and Science, **11**, 129 (1971).
- 6) 国尾 武, M. L. Williams, 日本機械学会誌, **68**, 83 (1965).
- 7) Knauss, W. G., GALCIT, SM63-1 (1963).
- 8) 牟岐鹿楼, 日本機械学会誌, **64**, 1392 (1961).
- 9) たとえば, 佐藤良泰, 高分子, **15**, 665 (1966).
- 10) 林 毅編, “複合材料工学”, p. 86 (1971) 日科技連
- 11) Adams, D. F., D. R. Doner, and R. L. Thomas, Tech. Report, AFML-TR-67-66 (1967).
- 12) 林 毅編, “複合材料工学”, p. 31 (1971) 日科技連