軟化セルロイドの単軸クリープ変形[†] ——大ひずみに対する粘-粘弾性模型の適用性——

戸 伏 壽 昭*

Uniaxial Creep Deformation of Softened Celluloid —Applicability of Viscous-Viscoelastic Model to Large Strain—

by

Hisaaki TOBUSHI*

Creep and its recovery behavior of celluloid softened by heating were investigated by uniaxial tension creep tests with stepwise loading and unloading for the case of large strain. Formulation of these deformations was attempted by using a viscous-viscoelastic model.

The main results obtained are summarized as follows.

(1) For time-independent strain, the strain under loading was larger than that during removal of stress in the range of high stress. Both of these strains were representable by the viscous-viscoelastic model with 3rd order of stress.

(2) Creep strain was expressed by a power function of time and the value of exponent in the function was almost constant. The time coefficient of the power function was approximately represented by the viscous-viscoelastic model with 3rd order of stress. But, in the case of huge creep strain, it became necessary to take into account of the terms of more higher order of stress.

(3) Recoverable strain saturated to a certain value for large creep strain. Further discussion is necessary in order to represent this phenomenon of saturation of recoverable strain by viscous-viscoelastic model.

キー・ワード：非線形粘弾性理論，クリープ変形，軟化セルロイド，大ひずみ，粘-粘弾性模型

1 緒 言

粘弾性材料の力学的性質の記述は通常Green-Rivlin¹⁾の理論に基づき行われている。非線形粘弾性理論の一般式に含まれる多重積分表示を一重積分表示に簡単化し、高分子および高温における金属の多軸クリープ変形を表示する理論の一つに、Findley^{2)~5)}らによる粘-粘弾性模型がある。この模型の一般性を検討するために、著者らは軟化セルロイドの多軸クリープ変形について種々の応力条件の下での適用性を調べ、その有用性を確かめた。^{6)~8)}それらの調査の中で、ひずみの大きい場合や多軸応力下で応力の反転を含む場合には、模型の若干の修正および検討が必要となることを見出した。他方、軟化セルロイドを高温における金属の模擬材と考えた場合、クリープ変形に関しては著者らの従来の研究範囲をより高い応力レベルまで拡張した検討が必要である。

本研究では、これらの問題点の中で大きなひずみ範囲までの検討ができるような実験装置を製作し、基礎的な実験として、一定温度の加熱により軟化したセルロイド板の単軸引張クリープ試験により、特にひずみの大きい場合の検討を行った。すなわち、種々の応力

値についての階段状の負荷・除荷試験により、一定応力の下で生じるクリープ変形と、その後の応力除去により生じる回復変形の応力およびひずみへの依存性を調べると共に、これらの変形挙動の粘-粘弾性模型による表示を検討した。

2 粘-粘弾性模型

Findley²⁾らによって検討されている粘-粘弾性模型においては、修正した重ね合せの原理により構成式の多重積分表示を一重積分表示に簡単化し、最初の3項²⁾すなわち応力に関して3次までの項を考えている。例えば、一定の軸応力 σ の下で生じる軸ひずみ ε は

$$\varepsilon = F_1 \sigma + F_2 \sigma^2 + F_3 \sigma^3 \quad (1)$$

で与えられる。ここで、ひずみが時間独立ひずみと時間依存ひずみから成り、時間依存ひずみが時間 t のべき関数で表される場合には、クリープ関数 F_i はつぎのようになる。

$$F_i = F_i^0 + F_i^+ t^n, \quad (i=1\sim 3) \quad (2)$$

ここで、右辺第1項は時間独立ひずみに、第2項は時間依存ひずみに対応し、 F_i^0 、 F_i^+ 、 n は試験温度における材料定数である。

応力の変化に対して瞬間的に生じる時間独立ひずみ

[†] 原稿受理 昭和59年9月19日 Received Sep. 19, 1984

* 正 会 員 愛知工業大学 豊田市八草町八千草, Aichi Institute of Technology, Yachigusa, Yagusa-cho, Toyota

は弾性ひずみと塑性ひずみから成り、時間依存ひずみは非回復な粘性ひずみと回復可能な粘弾性ひずみとから成る。弾性ひずみは応力と線形関係にある。粘性ひずみにはひずみ硬化理論が適用され、またこのひずみは正と負の部分から成り、応力の反転で完全に消失する。粘弾性ひずみには修正した重ね合せの原理が適用される。粘性ひずみと粘弾性ひずみが時間に関して同一のべき指数で表される場合、両者は一定の比をとる。

3 試験片および実験方法

3.1 試験片

試験片は厚さ 3 mm、平行部の板幅 20 mm、標点間距離 20 mm のセルロイド板であり、その形状・寸法を Fig. 1 に示す。試験片の両端には、ピンにより実験装置に取り付けるための円孔を設けてある。標点位置には、変位検出部のナイフエッジを装着するためのけがき線が設けてある。瞬間的な応力変化で生じるひずみに関して定まる、試験温度における材料のヤング率と比例限度は 2 000 MPa と 3 MPa である。

Fig. 1. Shape and dimension of specimen.

3.2 実験装置

一定温度の油中で高分子材料の単軸引張試験を行う実験装置の概略図を Fig. 2 に示す。

試験片への軸方向の負荷は、装置上部のハンドルの回転と連動するスピンドルの上下運動により与える。この軸荷重はロードセルを介して記録計により検出する。所要の軸荷重はハンドルの回転により制御して実現する。ロードセルの容量は 1 960 N である。

Fig. 2. Schematic illustration of experimental apparatus.

試験片の標点間の伸びは、標点位置のけがき線に装着したナイフエッジ間の相対変位を、アームを介してダイヤルゲージにより検出する。ダイヤルゲージおよびアームの自重に関して、一端をダイヤルゲージの上部に固定した釣糸の他端が滑車を介してバラストと接続してあるので、これらの自重はバラストとつり合う。したがって、これらの上下運動は、鉛直にかつ滑らかに行われる。ナイフエッジの試験片への装着は、試験片のけがき線の真後にワイヤーを当て、このワイヤーの両端とナイフエッジの両端とを釣糸により連結して行った。この釣糸の一端はワイヤーに固定し、他端は滑車を介して重量 0.5 N のバラストに接続してある。したがって、このバラストの重量によりナイフエッジは試験片に押付けられる。ダイヤルゲージの最小目盛は 1/1 000 mm である。

試験温度の実現は、底部に設けたヒータにより一定温度に加熱した油槽に試験片を浸すことにより行った。試験片の標点間近傍の油温の変化は、試験温度の $\pm 0.1^\circ\text{C}$ 以内に保った。

3.3 実験条件

実験は 48°C の白スピンドル油中に浸した試験片に軸荷重を一定時間与え、この間に生じるクリープひずみと、その後この軸荷重を除いて時間と共に回復するひずみを測定する。

実験においては、時間 $t=0$ にて瞬間的に軸応力 σ を与え、この値を 1 hr 一定に保つ。この場合の応力は、材料の等方性・非圧縮性を仮定して真の応力とする。その後瞬間的に σ を 0 にして 1 hr 保つ。この軸応力 σ の値は、比例限度を越える値を主として 7 種類を選んだ。応力値は Table I に示す。

Table I. Values of stress σ .

Exp. No.	σ (MPa)
1	14.70
2	12.74
3	10.78
4	8.82
5	7.84
6	5.88
7	2.94

4 実験結果と検討

4.1 ひずみ-時間関係

実験により得られた軸ひずみ ε と時間 t との関係を図 3 に示す。ここで、軸ひずみ ε は、標点間の変位より定めた対数ひずみである。

図から、他の高分子材料や高温における金属材料と同様に、瞬間的な負荷および除荷に対する変形の応答、一定応力下におけるクリープひずみ、除荷後の回復ひずみおよび残留ひずみが現れている。これらの変形量

Fig. 3. Relation between strain ε and time t .

は、いずれも応力が大きくなるに従い大きくなっている。また、クリープおよび回復ひずみの変化率は時間の経過と共に小さくなっており、特に回復ひずみは応力の大きさに比例して大きくならない傾向が見られる。

これらの各ひずみ成分の傾向を詳細に検討すると共に、これらの表示の粘-粘弾性模型の適用性を検討するために、軸ひずみ ε と時間 t との関係の模式図を Fig. 4 に示す。瞬間的な負荷および除荷で生じる時間独立ひずみを ε^l および ε^u で表し、時間依存ひずみは負荷期間 t_1 で生じるクリープひずみを ε^c 、除荷期間 ($t_2 - t_1$) で生じる回復ひずみを ε^r 、そして時間 t_2 で生じている残留ひずみを ε^p で表す。以下の節では、これらの各ひずみ成分について検討する。

Fig. 4. Schematic illustration of relation between strain ε and time t .

4・2 時間独立ひずみ

瞬間的な応力 σ の変化に対応して生じた時間独立ひずみ ε^l と ε^u を Fig. 5 に各丸印で示す。負荷および除荷により生じるひずみ ε^l および ε^u は、応力 σ の小さい範囲内では一致する。しかし、応力が大きくなると共に非線形成分が現れ、両者に差異が生じる。すなわち、特に ε^l の非線形成分の増加が顕著になる。

Fig. 5. Relation of stress σ versus strain ε^l and ε^u .

図中の破線は線形関係を示し、実線は粘-粘弾性模型の式(1)と(2)による計算結果を示す。この計算に用いた材料定数 F_i^0 の値は、負荷 (l) および除荷 (u) に関して、 $F_1^{0l} = F_2^{0u} = 5 \times 10^{-4} (\text{MPa})^{-1}$ 、 $F_2^{0l} = 1.5 \times 10^{-5} (\text{MPa})^{-2}$ 、 $F_3^{0l} = 1.5 \times 10^{-6} (\text{MPa})^{-3}$ 、 $F_2^{0u} = 1 \times 10^{-5} (\text{MPa})^{-2}$ 、 $F_3^{0u} = 3 \times 10^{-7} (\text{MPa})^{-3}$ である。ここで、係数 F_1^0 の逆数は材料のヤング率に対応する。図中の実験値と計算結果を比較すると、両者は良く一致している。これらから、時間独立ひずみは、応力に関して3次までの粘-粘弾性模型で表せることがわかる。

4・3 時間依存ひずみ

4・3・1 クリープひずみ

式(1)および(2)で表される粘-粘弾性模型によれば、クリープひずみ ε^c は時間 t のべき関数で表される。すなわち、

$$\varepsilon^c = \varepsilon^+ t^n \quad (3)$$

ここで、時間係数 ε^+ は応力の関数であり、3次まで

Fig. 6. Relation between ε^c and t .

の項で表され、べき指数 n は材料定数である。

この関係を検討するために、実験で得られたクリープひずみ ε^c と時間 t との関係を示す Fig. 6 の両対数グラフに丸印で示す。いずれの実験結果も若干上に凸の傾向を示すが、図中の実線で示されるようにほぼ直線で近似できる。したがって、 ε^c は時間のべき関数で表される。Fig. 6 の直線の傾きで示される時間のべき指数 n の値を Table II に示す。表から、応力が最大の Exp. 1 の場合に若干小さい値を取るが、実験全体を通してほぼ一定値を示しており、指数 n の応力やひずみへの依存性は小さい。

Table II. Values of coefficient n .

Exp. No.	n
1	0.664
2	0.744
3	0.760
4	0.736
5	0.720
6	0.720
7	0.780
Average	0.732

つぎに、Fig. 6 の縦軸の切片で示される式(3)の時間係数 ε^+ と応力 σ との関係を Fig. 7 に丸印で示す。図中の実線は式(1)と(2)で表される粘-粘弾性模型による計算結果を示す。この計算に用いた係数 F_i^+ の値は $F_1^+=2.3 \times 10^{-5}(\text{MPa})^{-1}(\text{min})^{-n}$ 、 $F_2^+=5 \times 10^{-6}(\text{MPa})^{-2}(\text{min})^{-n}$ 、 $F_3^+=1 \times 10^{-6}(\text{MPa})^{-3}(\text{min})^{-n}$ である。実験結果と実線との比較から、両者は良く一致しており、ほぼこの関係式で表される。しかし、応力が非常に大きくなった場合、係数 ε^+ の非線形成分は著しく大きくなり、応力に関して3次までを考慮する式(1)では、その傾向を表示できなくなる。そこで、式(1)の応力に関して3次の項 ($F_3\sigma^3$) を6次の項 ($F_6\sigma^6$) で置き換えた場合の計算結果を Fig. 7 に破線で示す。

Fig. 7. Relation between σ and ε^+ .

計算に用いた係数 F_i^+ の値は、 F_1^+ と F_2^+ は実線の場合と同一で、 $F_6^+=1 \times 10^{-9}(\text{MPa})^{-6}(\text{min})^{-n}$ である。これから、破線は応力が大きい場合の実験結果の傾向も良く表せる。したがって、応力が非常に大きくなった場合には、応力に関して3次より高次の項を考慮する必要が生じる。換言すれば、単軸引張りのクリープ変形に関しては、5%以上のクリープひずみを表すためにはより高次の項が必要になるが、これ以下のクリープひずみに関しては応力に関して3次までの粘-粘弾性模型で表せる。

一方、高次の非線形項を必要とする場合、非線形粘弾性理論の一般式の多重積分を一重積分にして簡単化する方法では、応力について1次、2次、……と順次高次の項が現れる。このように項の数が増えることは、実用的な面では、材料定数の決定や計算手順の煩雑化を意味する。したがって、このような目的に対しては、従来のクリープ力学においてクリープ曲線を表す実験式として多く使用されている応力についてのべき関数あるいは双曲線関数等を用いる方が、取り扱いが簡単になる。

4・3・2 回復ひずみ 一定の応力下の期間 t_1 で生じるクリープひずみ ε^c に関して、除荷後の期間 ($t_2 - t_1$) で生じる回復ひずみ ε^r と時間 t_2 における残留ひずみ ε^b との関係を Fig. 8 に各丸印で示す。図中の曲線はそれらの実験点を結んだものである。図から、回復ひずみ ε^r はクリープひずみ ε^c の小さい間は比例して増加するが、 ε^c の増大と共に ε^r の増加率は減少し、 ε^r はほぼ一定値に飽和するようになる。したがって、 ε^c の大部分を残留ひずみ ε^b が占めるようになる。このような ε^r の飽和傾向は、前報の軟化セルロイドの多軸応力下における場合や高温における金属の場合の回復ひずみの挙動と同じである。

Fig. 8. Relation of ε^r versus ε^b and ε^c .

このように、応力が大きく、したがってクリープひずみが大きくなると回復ひずみの飽和する現象から、つぎのような微小要素の変形に対する応答が推察される。すなわち、変形に伴い高分子鎖の配向が進み、高分子鎖が橋かけによって互いに結びつけられ、結晶領域が増し、またこれらのからみ合いが増すと共に、側鎖の分断による分子鎖間のすべりぬけが生じるために、残留ひずみが多くなるものと考えられる。^{10,11)} 回復ひずみが生じるためには、荷重時のクリープ変形により内部に回復可能な変形を生じさせるエネルギーの蓄えられる機構、すなわち微小要素の拘束されている状態が必要であり、この条件が破られると一担生じたクリープひずみは回復しなくなる。したがって、粘-粘弾性模型における粘性ひずみ ε^V と粘弾性ひずみ ε^{VE} が一定の割合を示すという条件は、 ε^e に比例して ε^r の増加するひずみの小さい範囲内では成立するが、ひずみが大きくなり、したがって ε^r が一定値に飽和するようになると成立しなくなる。

つぎに、粘-粘弾性模型による回復ひずみの表示を検討する。まず、粘弾性ひずみ ε^{VE} が時間 t のべき関数で表される場合を考える。すなわち、一定応力の下では

$$\varepsilon^{VE} = b t^m \quad (4)$$

となる。ここで、係数 b は応力の関数であり、べき指数 m は材料定数である。一定時間 t_1 の荷重に続く除荷後の回復区間に関して、 ε^{VE} に修正した重ね合せの原理を適用すると

$$\varepsilon^{VE} = b \{ t^m - (t - t_1)^m \}, \quad (t > t_1) \quad (5)$$

となる。したがって、考える瞬間 t_2 における回復ひずみ ε^r は

$$\varepsilon^r = b \{ (t_2 - t_1)^m - (t_2^m - t_1^m) \} \quad (6)$$

となる。この式から、同一の荷重期間 t_1 と除荷期間 $(t_2 - t_1)$ について、係数 b が応力の単調増加関数であれば、回復ひずみ ε^r も応力と共に増加する。したがって、Fig. 8 で示された応力の大きい領域における ε^r の飽和現象に対して、式(5)では回復ひずみ ε^r を大きく見積りすぎることになる。

このようなクリープひずみによる材料の硬化を考慮し、回復ひずみをおさえるために、Findley らは粘-粘弾性模型に含まれるクリープ関数が時間のみでなく応力履歴へも依存することを考慮し、この模型の修正を検討している。しかし、このような模型の修正によっても回復ひずみの飽和現象を表すことは容易でなく、さらに検討が必要である。このような回復ひずみの飽和現象の応力およびひずみへの依存性を考慮するためには、さらに回復ひずみの挙動を実験的に調べ、それ

らの現象を表す理論を構成することが必要である。

5 結 言

加熱により軟化したセルロイドに関して、ひずみの大きい場合の検討が行える実験装置を製作し、階段状の荷重・除荷を伴う単軸引張クリープ試験により、特にひずみの大きい場合のクリープと回復変形挙動を調べると共に、粘-粘弾性模型による変形の表示を検討した。

得られた結果の要点はつぎの通りである。

- (1) 時間独立ひずみに関しては、応力の大きい範囲で荷重時のひずみは除荷時のものより大きくなる。両者共、応力の3次までの粘-粘弾性模型で表せる。
- (2) クリープひずみは時間のべき関数で表され、べき指数は一定値をとる。このべき関数の時間係数は応力の3次までの粘-粘弾性模型でほぼ表示できる。しかし、クリープひずみが非常に大きくなった場合には、より高次の項を考慮する必要がある。
- (3) クリープひずみが大きくなると、回復ひずみは一定値に飽和する。この飽和現象を粘-粘弾性模型で表示するためには、さらに検討が必要である。

終りに、本研究に関しご助言をいただいた本学大橋義夫教授および実験に協力された当時本学学生諸君に感謝する。

(昭和59年9月11日 第28回材料研究連合講演会にて講演)

参 考 文 献

- 1) A. E. Green and R. S. Rivlin, Arch. Ration. Mech. Anal., **1**, 1 (1957).
- 2) W. N. Findley and J. S. Lai, Trans. ASME, J. Appl. Mech., **45**, 507 (1978).
- 3) J. S. Lai and W. N. Findley, Trans. ASME, J. Appl. Mech., **47**, 21 (1980).
- 4) U. W. Cho and W. N. Findley, Trans. ASME, J. Appl. Mech., **50**, 580 (1983).
- 5) J.-L. Ding and W. N. Findley, Trans. ASME, J. Appl. Mech., **51**, 133 (1984).
- 6) 戸伏壽昭, 鳴海 裕, 中根若富, 材料, **31**, 341 (1982).
- 7) 戸伏壽昭, 鳴海 裕, 大沢孝治, 日本機械学会講演論文集, No. 843-1, 52 (1984).
- 8) 戸伏壽昭, 大橋義夫, 大沢孝治, 日本機械学会講演論文集, No. 840-9, 118 (1984).
- 9) 八木晃一, 久保 清, 田中千秋, 材料, **27**, 955 (1978).
- 10) 小野木重治, “高分子材料科学”, p. 104 (1973) 誠文堂新光社.
- 11) J. D. Ferry, Viscoelastic Properties of Polymers, 3rd ed., p. 224 (1980) John Wiley & Sons.