スーパーエンジニア製機器の高温疲労寿命曲線における非線形挙動*

渡 辺 裕^{*1}, 中 村 雅 史^{*2}
原 口 忠 男^{*2}, 鈴 木 秀 人^{*2}Nonlinear Behavior on Fatigue Life Curves of Super Engineering Plastics
for Machines at Elevated TemperatureYutaka WATANABE, Masashi NAKAMURA,
Tadao HARAGUCHI and Hideto SUZUKI

The purpose of this study is to investigate the relationship between nonlinear behavior of fatigue life curves and fatigue life for carbon-fiber-reinforced PEEK and PA 66 under two-step loading above T_g (Glass transition temperature) and below T_g . As a results, the fatigue life curves in the case of PEEK/Below T_g , PA 66/Above T_g and PA 66/Below T_g were found linear. Moreover, the fatigue lives were calculated by linear cumulative damage law under two step loading. On the other hand, the fatigue life curves in the case of PEEK/Above T_g was found nonlinear. Moreover, the fatigue lives were not calculated by linear cumulative damage law under two-step loading. It was found that these factors occurred because of 'Transition phenomenon' which fatigue fracture mechanisms transferred in the range between two fatigue life curves.

Key Words: Reliability, Reinforced Plastics, Fatigue at Elevated Temperature, Thermo-Plastics, Fluctuating Load, Glass Transition Temperature, Linear Cumulative Damage Law, Nonlinear, Fatigue-Creep Interaction

1. 緒 言

金属材料のメカデザインでは、図1に示すようにS-N線図のデータを三段階の疲労寿命領域に分割した強度設計が行われている。しかしながら、プラスチック製品のメカデザインに関しては、金属材料のような明確な設計法が確立されていない。さらに、実際のエンジニア製高温機器では、負荷が変動し疲労とクリープが干渉し合うため、疲労損傷において非線形挙動が発現しやすい。そのため、エンジニア製高温機器では、疲労・クリープ相互作用(FCI: Fatigue-Creep Interaction)^{(1)~(3)}を考慮した設計法の構築が不可欠である。

これらをかながみて、著者らはエンジニアおよびスーパーエンジニア(スーパーエンジニアリングプラスチック)材の高温疲労信頼性を検討してきた^{(4)~(11)}。これまでの研究成果により、FRTP(Fiber-Reinforced-Thermo-Plastics)材における一定応力($\Delta\sigma=0$)での疲労破壊には、図2に示すような熱的疲労および力学的疲労の

二つの破壊形態が存在することを明らかにした^{(9)~(14)}。すなわち、高応力(S_H)により自己発熱が大きく延性的な破面形態を示す熱的疲労と低応力(S_L)により自己発熱が小さく脆性的な破面形態を示す力学的疲労である。

Fig.1 Mech-design for metals

Fig.2 Fracture mechanisms of FRTP

* 原稿受付 1998 年 10 月 20 日。

^{*1} 学生員、茨城大学大学院(☎ 316-8511 日立市中成沢町 4-12-1)。^{*2} 正員、茨城大学工学部。

E-mail: belltree@msv.ipc.ibaraki.ac.jp

本研究では、炭素短繊維で強化した PEEK (ポリエーテルエーテルケトン) 材と PA 66 (ポリアミド 66) 材を用いて、ガラス転移温度 (T_g) 以上⁽¹⁾ および T_g 以下の環境下における二段階変動荷重試験を実施した。特に、二様性を有する疲労寿命曲線の非線形挙動と変動荷重下での線形累積損傷則^{(1)~(3)(15)~(19)} による疲労寿命評価の係数に焦点を当て、実証的に検討した。

2. 実験方法

2.1 供試材料および試験条件 供試材料は、30 wt.% の炭素短繊維 (CF 30) で強化した PEEK 材と PA 66 材を用いた。この炭素短繊維は直径 $7\mu\text{m}$ 、初期長さ 10 mm である。本供試材は射出成形により板材を作成し、機械加工により図 3 に示すようなダンベル形の形状に仕上げた。射出方向は荷重方向に対して平行である。また、表面層 (スキン層) における繊維配向は荷重方向に対して平行であり、中央層 (コア層) におけるそれは垂直である。なお、樹脂の主な熱的性質を表 1 に示す。

高温疲労試験は、図 4 に示す高温恒温槽、コンピュータ制御サーボ疲労試験機および赤外線放射温度測定装置を複合化した高温疲労試験システムを用いて行った。さらに、試験後走査形電子顕微鏡 (SEM) による破面解析を行った。なお、負荷波形は、応力比 0.1、負荷速度 10 Hz の正弦波の片振り荷重である。また、試験環境温度は樹脂の T_g 以上と T_g 以下とするため、PEEK 材が 433 K (PEEK/ T_g 以上) と 373 K (PEEK/ T_g 以下)、PA 66 材が 373 K (PA 66/ T_g 以上) と 293

K (PA 66/ T_g 以下) とした。

2.2 二段階変動荷重の試験方法 二段階変動荷重試験は、疲労寿命曲線より破断寿命 $N_f = 10^5$ 以下における熱的疲労の領域 (高応力 S_H) と $N_f = 10^5$ 以上における力学的疲労 (低応力 S_L) の二応力を選択し、 $S_H \rightarrow S_L$ への変動 ($S_H \rightarrow S_L$ 変動) と $S_L \rightarrow S_H$ への変動 ($S_L \rightarrow S_H$ 変動) で行った。この第 I 段階負荷応力 (第 I 応力) はこの応力一定下における N_f の 1/2 の繰返し数を負荷 (繰返し数比: $n_1/N_{f1} = 1/2$) する。その後、破断するまで第 II 段階負荷応力 (第 II 応力) を負荷し、 n_2/N_{f2} を比較する。したがって、二段階変動荷重試験の寿命評価は、線形累積損傷則を用いて式 (1) の累積繰返し数比 D により行った^{(1)~(3)(15)~(19)}。

$$D = n_1/N_{f1} + n_2/N_{f2} \dots \dots \dots (1)$$

ただし、 $n_1/N_{f1} = 1/2$ (一定)。

n_1, n_2 : 各応力下での負荷繰返し数

N_{f1}, N_{f2} : 各一定応力下での破断繰返し数

各供試材に負荷する応力および一定応力下の N_f を PEEK 材は表 2 に、PA 66 材は表 3 に示す。

3. 実験結果

PEEK 材、PA 66 材の疲労寿命曲線の結果を図 5 に示す。図 5 より、疲労寿命曲線の形状は直線形と曲線

Fig. 3 Shape and dimension of specimen

Table 1 Thermal properties of matrices

Matrix	PEEK	PA66
Glass transition temperature (K)	416	339
Thermal deformation temperature (K)	425	353
Melting point (K)	607	533

Table 2 Stresses tested of PEEK in two-step loading

Tg	Stress	Stress amplitude	Number of cycles to failure
Above	S_H	20MPa	3.30×10^3
	S_L	18MPa	2.00×10^4
Below	S_H	30MPa	2.20×10^4
	S_L	24MPa	2.02×10^5

Table 3 Stresses tested of PA 66 in two-step loading

Tg	Stress	Stress amplitude	Number of cycles to failure
Above	S_H	32MPa	2.60×10^3
	S_L	22MPa	1.02×10^5

Fig. 4 Experimental apparatus for fatigue testing at elevated temperature

形の二つに分類できるのがわかる。すなわち、PEEK/ T_g 以下、PA 66/ T_g 以下および PA 66/ T_g 以上では疲労寿命曲線が直線となり線形性を示している。一方、PEEK/ T_g 以上では疲労寿命曲線が下に凸の曲線となり非線形性を示している。

これらの疲労寿命曲線をもとに二段階変動荷重試験を実施し、その結果を表4に示す。さらに、第II応力での推定疲労寿命 N_{f2}^* を疲労寿命曲線上にプロットし、図6に示す。ここで、 N_{f2}^* は表4の試験結果を用いて式(2)より求めたものである⁽¹⁵⁾⁽¹⁸⁾。なお、PA 66材の試験結果は、PA 66/ T_g 以上のみをプロットした。

$$N_{f2}^* = n_2 / (1 - n_1 / N_{f1}) \dots\dots\dots (2)$$

表4および図6より、変動荷重下における疲労寿命は、線形累積損傷則で整理可能な場合と不可能な場合に分かれる。すなわち、疲労寿命曲線が線形性を示した PEEK/ T_g 以下および PA 66/ T_g 以上では疲労寿命が線形累積損傷則により整理可能であり、 N_{f2}^* が疲労寿命曲線とよく一致する。一方、疲労寿命曲線が

非線形性を示した PEEK/ T_g 以上では疲労寿命が線形累積損傷則により整理不可能であり、 N_{f2}^* は疲労寿命曲線から大きくはずれる。

以上のように、これらの疲労試験の結果は大きく二つに分類することができた。そこで4章では、これら傾向について破壊形態の観点から検討を行う。

4. 考 察

4.1 二様性を有する疲労寿命曲線の非線形挙動

一般に、プラスチック材料の疲労寿命曲線の形状は図5の実験結果のように直線で整理される線形性を示す場合と曲線で整理される非線形性を示す場合に分けられる。この疲労寿命曲線が非線形性を示す要因は、疲労による材料の内部発熱⁽²⁰⁾、材料強度の温度依存性、材料の低い熱伝導率などのためであると考えられている^{(21)~(26)}。これまでの著者らの研究成果においても、疲労寿命曲線が非線形性を示す場合、緒言で述べたように熱的・力学的疲労の二つの破壊形態が存在することを明らかにした^{(9)~(11)}。

さらに、疲労寿命曲線が非線形性を示す場合では図7に示すように疲労寿命に有限幅をもつばらつきが認

Table 4 Cumulative cycle ratio

Stress (MPa)	Matrix T _g	Number of cycles		Cumulative cycle ratio D
		n_1	N_{f1}	
	PEEK Above	1.42×10^5	2.84×10^5	0.64
		7.53×10^5	1.56×10^6	0.56
	PEEK Below	2.88×10^5	5.76×10^5	1.45
		5.01×10^5	1.02×10^6	0.74
	PA 66 Above	5.00×10^5	1.00×10^6	0.99
		3.90×10^5	7.80×10^5	0.88
	PEEK Above	1.62×10^4	3.24×10^4	5.40
		1.45×10^4	2.90×10^4	4.98
	PEEK Above	2.32×10^5	4.64×10^5	21.56
		1.32×10^5	2.64×10^5	12.45
	PEEK Below	1.68×10^4	3.36×10^4	1.33
		1.40×10^4	2.80×10^4	1.14
	PA 66 Below	2.40×10^3	4.80×10^3	1.42
		1.70×10^3	3.40×10^3	1.15

Fig. 5 Relationship between stress amplitude and number of cycles

Fig. 6 Relationship between fatigue life curves and estimated fatigue life N_{f2}^*

Fig. 7 Relationship between 'Transition phenomenon' and two fatigue life curves

(a) Lower fatigue life

(b) Higher fatigue life

Fig. 8 Scanning electron micrographs of fracture surface for PEEK/Above T_g ($S=18$ MPa)

められた。このばらつきを「飛び移り現象」と呼ぶことにする。この現象は、応力の高低にかかわらず同応力において、短寿命側で破断した場合(点 A, C)熱的疲労側、一方、長寿命側で破断した場合(点 B, D)力学的疲労側の破断形態を呈するものである。これらは、図 8 に示すように同応力における破面観察から明らかである。すなわち、図 8(a)の低寿命側で破断した場合は樹脂の伸びが大きく、繊維の抜けが多い熱的疲労側の破壊形態を呈している。一方、図 8(b)の長寿命側で破断した場合は樹脂の伸びが小さく、繊維の破断が多い力学的疲労側の破壊形態を呈している。

したがって、疲労寿命曲線が非線形性を示す場合には、図 7 に示すように熱的・力学的疲労の二つの破壊形態が存在するため、二つの疲労寿命曲線に挟まれた領域で寿命が遷移する「飛び移り現象」が起こるものと考えられる。一方、疲労寿命曲線が線形性を示す場合には、一つの破壊形態による寿命曲線のため、「飛び移り現象」が現れないものと示唆される。4・2 節では、さらに「飛び移り現象」と疲労寿命の関係を検討する。

4・2 変動荷重下における破壊形態の遷移 変動荷重下での「飛び移り現象」について、SEM による疲労破面解析および試験片表面の温度上昇の解析から

(a) $S_L \rightarrow S_H$ (14 MPa $\rightarrow$ 20 MPa) (b) S_H constant (20 MPa)Fig. 9 Scanning electron micrographs of fracture surface for PEEK/Above T_g ($S_L \rightarrow S_H$, S_H constant) (a) $S_H \rightarrow S_L$ (20 MPa $\rightarrow$ 14 MPa) (b) S_L constant (14 MPa)Fig. 10 Scanning electron micrographs of fracture surface for PEEK/Above T_g ($S_H \rightarrow S_L$, S_L constant)

考察を行う。図9, 10に PEEK/ T_g 以上の破面観察結果を示す。図9, 10より、変動荷重下での破面形態は一定応力下の場合と異なることがわかる。すなわち、図9より、 $S_L \rightarrow S_H$ 変動の破面では S_H 一定の場合に比べ樹脂の大きな伸びがなく、比較的平坦で脆性的な破面形態を呈している。さらに、図10より、 $S_H \rightarrow S_L$ 変動の破面では S_L 一定の場合に比べ樹脂の伸びが大きく、凹凸のある延性的な破面形態を呈している。一方、本報では示していないが、PEEK/ T_g 以下と PA 66/ T_g 以上の破面形態は、変動荷重下の場合と一定応力下の場合がほぼ類似していた⁽¹¹⁾。

これらの変動荷重下の場合と一定応力下の場合との関係は、温度上昇の解析結果でも同様である。この温度上昇の測定結果を温度上昇 $\Delta T (= T_m - T_r)$ と応力繰返し数 N との関係に整理し、PEEK/ T_g 以上の測定結果を図11に示す⁽²⁰⁾。ここで、 T_m は切欠底における最高温度、 T_r は環境温度である。なお、変動荷重の場合の ΔT は第II応力に変化させた後のものであり、一定応力下の結果も併せて示す。図11より、PEEK/ T_g 以上の ΔT は変動荷重下の場合と一定応力下の場合が一致しないことがわかる。すなわち、第

Fig. 11 Relationship between temperature rising ΔT and number of cycles N in PEEK/Above T_g

II 応力に注目すると、 $S_L \rightarrow S_H$ 変動における ΔT は S_H 一定の場合に比べて低く、 $S_H \rightarrow S_L$ 変動における ΔT は S_L 一定の場合に比べて高い。一方、本報では示していないが、PEEK/ T_g 以下および PA 66/ T_g 以上における ΔT は変動荷重下の場合と一定応力下の場合がほぼ一致していた⁽¹¹⁾。

以上の見知より、変動荷重下の場合と一定応力下の場合の破壊形態の相違は、疲労寿命曲線が非線形性を示す場合において顕著になっていることがわかった。これは、二つの疲労寿命曲線の存在により変動荷重下において第I応力の履歴を受け、「飛び移り現象」が顕著に発現したためであると示唆される。

4.3 応力履歴による熱的・力学的疲労の発現

4.2節までの見知より、PEEK/ T_g 以上における変動荷重下での応力履歴は、破壊形態および疲労寿命を大きく変化させることが明らかとなった。これらの現象は、図12の模式図のように整理される。すなわち、PEEK/ T_g 以上において、 $S_L \rightarrow S_H$ 変動では第I応力 S_L の力学的疲労による応力履歴が材料の硬化現象をもたらす⁽²⁷⁾ のと示唆される。そのため、第II応力 S_H では熱的疲労が消失し、長寿命側の力学的疲労へと遷移する「飛び移り現象」が現れる。一方、 $S_H \rightarrow S_L$ 変動では第I応力 S_H の熱的疲労による応力履歴が材料の熱による劣化を促進させるものと示唆される。そのため、第II応力 S_L では力学的疲労が消失し、短寿命側の熱的疲労へと遷移する「飛び移り現象」が現れる。

したがって、疲労寿命曲線が非線形性を示す場合では、二つの破壊形態が存在するため応力履歴による「飛び移り現象」が起こり、変動荷重での疲労寿命が線形累積損傷則で整理不可能になるものと解釈され

Fig. 12 Relationship between fatigue lives and fracture behavior under two-step loading

る。一方、疲労寿命曲線が線形を示す場合では、一つの破壊形態のみが存在するため応力履歴の影響が小さく、変動荷重下での疲労寿命が線形累積損傷則で整理可能になるものと解釈される。

4・4 疲労・クリープ相互作用による非線形挙動

本研究では荷重制御での疲労試験であるので、応力負荷方式が静的試験に属するクリープ試験の場合と同じであると仮定できる⁽²⁸⁾。これを考慮すると、「飛び移り現象」および変動荷重下での寿命変化は、 T_g 以上という高温環境下によりクリープの影響が顕著になるためであると考えられる。そこで、一定応力下での疲労過程における切欠底の局所平均ひずみをひずみゲージにより測定した。その結果を図 13 に示す。なお、平均ひずみ測定を行った応力は、疲労寿命曲線において $N_f = 5.0 \times 10^4$ 前後のものである。

図 13 より、疲労寿命曲線が非線形性を示す場合では、疲労過程においてクリープの影響が顕著であることが示唆される。すなわち、疲労寿命曲線が非線形性を示す場合では、疲労過程の初期段階から徐々に平均ひずみが増加している。一方、疲労寿命曲線が線形性を示す場合では疲労過程における平均ひずみがほぼ一定でクリープの影響が小さいものと示唆される。

これらの結果より、疲労寿命曲線が線形性を示す場合では、平均ひずみの時間依存性がなく、負荷繰返し数だけで評価する n 乗則および線形累積損傷則により寿命評価が可能であると示唆される。一方、疲労寿命曲線が非線形性を示す場合では、平均ひずみの時間依存性があり、FCI 寿命評価の必要性が示唆される。すなわち、疲労寿命はクリープの影響を顕著に受けるため、熱的・力学的疲労の二つの破壊形態が存在し、二つの疲労寿命曲線に挟まれた領域で寿命が遷移する「飛び移り現象」なる非線形性を示すものと考えられる。したがって、クリープ現象を考慮して負荷繰返し数と時間を要素に取り入れた寿命設計が必要不可欠である。今後、二様性を有する疲労寿命曲線のメカニズム解明と FCI 寿命評価を検討する必要がある。

5. 結 言

炭素繊維で強化した PEEK 材と PA 66 材を用いてガラス転移温度 (T_g) 以上および T_g 以下の環境下において二段階変動荷重試験を実施した。特に、二様性を有する疲労寿命曲線の非線形挙動と変動荷重下での線形累積損傷則による疲労寿命評価の係に焦点を当て、実証的に検討した。得られた結果は以下のとおりである。

(1) 疲労寿命曲線は、大きく分けて線形性を示す

Fig. 13 Relationship between Strain and number of cycles

場合と非線形性を示す場合に分類できた。すなわち、疲労寿命曲線は、PEEK/ T_g 以下、PA 66/ T_g 以下および PA 66/ T_g 以上の場合直線となり線形性を示したが、PEEK/ T_g 以上の場合曲線となり非線形性を示した。

(2) 変動荷重下において線形累積損傷則による寿命評価は、疲労寿命曲線が線形性を示す場合整理可能であったが、非線形性を示す場合整理不可能であった。

(3) 疲労寿命曲線が非線形性を示す要因は、二つの破壊形態の存在により、二つの疲労寿命曲線に挟まれた領域で寿命が遷移する「飛び移り現象」が起こるためであると解釈された。一方、疲労寿命曲線が線形性を示す要因は、一つの破壊形態による疲労寿命曲線であるためと解釈された。

(4) 疲労寿命曲線が非線形性を示す場合では、負荷繰返し数と時間を要素に取り入れた FCI 寿命評価の必要性が示唆された。これは、疲労過程における切欠底の平均ひずみが増加していることより、クリープ現象が顕著であると示唆されたためである。

本研究の遂行に当たり、茨城大学 SVBL(サテライト・ベンチャー・ビジネス・ラボラトリー)およびバンドー化学(株)の援助を受けたことに対し感謝の意を表す。さらに、本研究について、(財)化学技術戦略推進機構高分子複合劣化調査委員会にご討論していただいたことに対し感謝の意を表す。

文 献

- (1) 横堀武夫, 材料強度学, (1964), 204-208, 岩波全書.
- (2) 松田憲昭・市川国弘・福田嘉男・吉成明・鳥谷初, 日本ガスタービン学会誌, **23**-89(1995), 83-91.
- (3) 野中勇・北川正樹・島畑政二, 材料, **44**-496(1995), 41-45.
- (4) 鈴木秀人・ほか 7 名, プラスチック等の複合劣化, (財)化学技術戦略推進機構, (1998-3).
- (5) Suzuki, H., Nakamura, M., Haraguchi, T. and Watanabe, Y., *JSMF Int. J.*, **41** 1(1998), 127-133.
- (6) 中村雅史・原口忠男・鈴木秀人, 機論, **62**-600, A(1996), 1773-1778.
- (7) 鈴木秀人・中村雅史・原口忠男・渡辺裕, 機論, **63** 608, A

- (1997), 695-701.
- (8) 中村雅史・鈴木秀人・原口忠男・渡辺裕, 機論, **63**-606, A (1997), 213-219.
- (9) 鈴木秀人・中村雅史・原口忠男・渡辺裕, 機論, **63**-607, A (1997), 465-470.
- (10) 鈴木秀人・中村雅史・渡辺裕, 機論, **63**-612, A (1997), 1601-1606.
- (11) 鈴木秀人・中村雅史・渡辺裕・原口忠男, 機論, **64**-625, A (1998), 2339-2345.
- (12) 鈴木秀人, 材料試験技術, **36**-3 (1991), 188-195.
- (13) Takahara, A., Yamada, K., Kajiyama, T. and Takayanagi, M., *J. Appl. Polym. Sci.*, **25** (1980), 597-614.
- (14) 森川明彦・石垣卓俊・土川秀治・木村慎一, *JSR Tech. Rev.*, No. 100 (1992), 31-36.
- (15) 菊川真・城野政弘・宋智浩, 材料, **23**-252 (1974), 743-750.
- (16) 山内雅文・猪狩敏秀・松原俊郎・瀬戸口克哉, 材料, **39**-442 (1990), 133-137.
- (17) 宮原光雄・時政勝行, 材料, **39**-442 (1990), 138-143.
- (18) 大石不二夫, 高分子材料の耐久性, (1993), 150-154, 工業調査会.
- (19) Miyano, Y., Nakada, M., McMurray, M. K. and Maki, R., *J. Compos. Mater.*, **31**-6 (1997), 619-638.
- (20) Lang, R. W. and Manson, J. A., *J. Mater. Sci.*, **22** (1987), 3576-3580.
- (21) 大石不二夫・成沢邦夫, プラスチック材料の寿命(耐久性と破壊), (1987), 189-192, 日刊工業新聞社.
- (22) 浅井邦明, 材料, **39**-441 (1990), 782-789.
- (23) プラスチック標準試験方法研究会編, プラスチック試験ハンドブック, (1969), 117-120, 日刊工業新聞社.
- (24) Sauer, J. A., Forden, E. and Morrow, D. R., *Polym. Eng. Sci.*, **17** (1977), 246-252.
- (25) Yang, J. N., Miller, R. K. and Sun, C. T., *J. Compos. Mater.*, **14** (1980), 82-90.
- (26) Park, W. J. and Kim, R. Y., *Proc. ICCM-IV*, (1982), 709-715.
- (27) 小寺沢良一, 材料強度学要論, (1979), 138-146, 朝倉書店.
- (28) 加藤淳・半田浩一・成沢郁夫, 高分子論文集, **54**-5 (1997), 309-315.