PP の疲労破壊特性に及ぼす射出成形速度の影響*

邱 建 輝^{*1}, 川 越 誠^{*2}
水 野 渡^{*3}, 森 田 幹 郎^{*2}Effect of Injection-Molded Speed on Fatigue Fracture Properties
of PolypropyleneJianhui QIU^{*4}, Makoto KAWAGOE,
Wataru MIZUNO and Mikio MORITA^{*4} Department of Machine Intelligence and Systems Engineering, Faculty of Science and Technology,
Akita Prefectural University, 84-4 Tsuchiya-Ebinokuchi, honjyo Akita, 015-0055 Japan

The effect of injection speed on the fatigue fracture property of polypropylene has been mainly investigated from a low temperature of -40°C to a high temperature of 50°C . Results show that, (1) The thickness of the skin layer (with low hardness) and the intermediate layer (with high hardness) decreases but the thickness of core layer (with middle hardness) increases as the injection-molded speed increases. The ductile property of all specimens becomes better. (2) In the all fatigue fracture test, the origin of crack from the intermediate layer of high hardness and propagation of the crack leads the specimen to rupture. (3) Under the condition that the temperature (20°C , 50°C) is over the room temperature, fatigue tests show that the life of specimen becomes longer as the injection-molded speed increases. (4) Under a lower temperature (-40°C , -10°C), fatigue tests show that the value of $\tan\delta$ decrease but the E does not in the fatigue process of all specimens. There is a tendency of brittle fracture. The fatigue life of specimes made with the injection-molded speed of $22\text{ cm}^3/\text{s}$ is the shortest for the thickness and hardness distributions in each layer of specimen sections are strongly interrelated. (5) Under all the test temperature, the status of fatigue crack took placed in a layer in closely related to the injection-molded speed. It has a great influence on the specimen fracture mechanism.

Key Words: High Polymer Materials, Fatigue, Visco Elasticity, Brittle Fracture, Ductile Fracture, Injection-Molded Speed, Microstructure, Hardness, Text Temperature

1. はじめに

高分子材料の強度評価に関しては常温下での準静的な破壊(引張, 曲げ, クリープ), 衝撃破壊, き裂の進展抵抗などの研究が多く, 疲労破壊の研究も以前からかなり行なわれている⁽¹⁾⁻⁽⁶⁾. しかし, 疲労に関する研究方法としては金属と同様に応力振幅 S と破断に至るまでの繰返し数 N との関係を示した $S-N$ 曲線を得ることが一般的である.

ところで, 高分子材料には特有の高次構造と粘弾性の性質があり, そのため金属の疲労破壊とは現象および機構が自ずと大きく違ってくる. したがって, 高分子材料の疲労破壊は疲労寿命の測定だけでなく, 疲労破損の進行する過程の解析も非常に重要となる. 繰返し荷重下で粘弾性特性因子(貯蔵弾性率 E' , 損失正接 $\tan\delta$ など)の変化を連続的に追跡することは疲労過程における試料

内部のミクロ的な破壊機構を解明するには有効な方法と考えられる⁽⁷⁾⁻⁽¹¹⁾.

熱可塑性高分子の成形加工は射出成形が最も多い. 射出成形条件(射出成形速度, 温度, 圧力および金型温度など)の違いにより試料の内部構造も異なり, これらが材料の物性にかなり影響を与えることが知られている⁽¹²⁾⁻⁽¹⁶⁾. しかし, これまでの研究では射出成形試料の内部微細構造と疲労過程におけるき裂の発生・成長および破壊機構などを関連付けた検討が少ない. また, 高分子材料の疲労強度評価は室温で行うことが多いが, 環境温度, 特に低温が疲労に及ぼす影響に関してはあまり検討例がないようである.

本研究では主に自動車部品や電気関係など様々な工業分野で使われているポリプロピレン(PP)を用い, その射出成形速度の変化による低温から高温にかけて材料の疲労破壊特性を検討することを目的とした. 実験温度はPPのガラス転移温度(T_g)を挟んだ $-40\sim 50^{\circ}\text{C}$ の範囲を設定した. 疲労過程における材料内部特性の変化を調べるために, 動的粘弾性因子である E' と $\tan\delta$ を試料破

* 原稿受付 2000 年 3 月 17 日.

^{*1} 正員, 秋田県立大学システム科学技術学部 (〒015-0055 本荘市土谷字海老ノ口 84-4).^{*2} 正員, 富山県立大学工学部 (〒939-0398 富山県射水郡小杉町黒河 5180).^{*3} 正員, 富山県工業技術センター (〒933-0981 高岡市二上町 150).

E-mail: qiu@akita-pu.ac.jp

壊するまで連続的に測定した。また、疲労破壊特性と試料内部微細構造との関連性についても検討した。

2 実験方法

2.1 実験材料と試験片 市販の PP ペレット(旭化成(株)製・M1700)を用いて、射出成形機(日本製鋼(株)製、J75SS2)により JIS1 号ダンベル型試験片(試験片の形状および寸法は図 1 に示した)を成形した。射出成形速度は成形機的能力を十分に発揮するとともに健全な試験片が得られるように $2.2\text{cm}^3/\text{s}$ 、 $22\text{cm}^3/\text{s}$ 、 $55\text{cm}^3/\text{s}$ の三速度を設定した。そのほかの成形条件はシリンダ温度 180°C 、ノズル温度 200°C 、金型温度 40°C 、射出圧力 56.4MPa 、冷却時間 20s とした。

Fig.1 Specimen geometry

2.2 内部組織および破断面の観察 射出成形した試料の内部モルフォロジーを調べるため、試料の長手方向の中央部からロータリーマイクローム(Microm(株)製、HM325)で厚さ $10\mu\text{m}$ の薄片を流れ方向に沿って切り出し、光学顕微鏡(Zeiss(株)製、Axioplan)により観察した。疲労試験で破断された試料の破断面を SEM(日立製作所(株)製、S4000)で観察した。その際、観察面を金スパッタコーティングした。

2.3 試料断面の硬さの測定 射出成形した試料断面におけるスキン、中間、コア各層の力学特性の違いを調べるためダイナミック超微小硬度計(島津製作所(株)製、DUH-200)により硬さを測定した。測定位置は試料の長手方向の中央部である。測定面はエメリー紙で研磨した後、バフ研磨で仕上げた。測定は試験荷重 0.098N 、負荷速度 $2.65 \times 10^{-3}\text{N/s}$ 、保持時間 5s 、室温で行った。硬さは $DH = \alpha P/D^2$ (ただし、 P は試験荷重、 D は押し込み深さ、 $\alpha = 37.838(115 \text{ 度三角錐圧子})$)により表示した。

2.4 疲労試験 実験装置は粘弾性追従型疲労試験機(オリエンテック(株)製、VFA-1KNA)である。この試験機により応力制御条件下での疲労過程における貯蔵弾性率 E' 、損失弾性率 E'' 、力学的損失正接 $\tan\delta$ 、試料の伸び L_d 、伸び振幅 ΔL および試料の表面温度などを連続的に測定した。試験条件としては試料長(チャック間距離) 90mm 、周波数 5Hz 、応力比(最小応力/最大応力) 0.02 、引張片振り正弦波を設定した。試験温度はガラス転移点(T_g)を挟んだ $-40 \sim 50^\circ\text{C}$ 間で、 30°C の間隔で設定

した。

各試験温度における応力振幅は試料の自己発熱が起これないように試料(射出成形速度 $22\text{cm}^3/\text{s}$)の引張降伏応力(応力が低下し始める時の応力値)の約三分の一に設定した。疲労過程における材料の自己発熱は高分子材料の特有な現象であり、材料の破壊特徴に大きな影響を与えるはずであるが、このことについては既に別報⁽⁸⁾で試験温度と応力振幅の変化から詳しく検討した。本報では自己発熱の影響を除いた材料の破壊特性を明らかにするため、応力振幅を低めに設定した。また、低温での疲労試験の温度をコントロールするには液体窒素を用いて行うため、タンクの大きさの制限によりあまり長時間の試験ができない。テストを行った結果、疲労応力振幅を試料の降伏応力の約三分の一に選定した。各試験温度における応力振幅の大きさはそれぞれ、 $-40^\circ\text{C} \rightarrow 24\text{MPa}$ 、 $-10^\circ\text{C} \rightarrow 18\text{MPa}$ 、 $20^\circ\text{C} \rightarrow 14\text{MPa}$ 、 $50^\circ\text{C} \rightarrow 9\text{MPa}$ である。

試験は設定温度まで冷却(液体窒素)・加熱(熱風)し、その温度で約 20 分間(試料の伸び縮みがほぼ無くなり、試料表面と内部が同一温度と見なされる)保温してから実験を開始した。実験中における温度の変化は約 $\pm 1^\circ\text{C}$ 以内になるようにコントロールを行った。

各条件の試験片における疲労試験はこれまでの関連実験の結果を参考する上で、基本的に 2 回行い、重要なデータ(例えば、 -40°C 、疲労寿命の短い $22\text{cm}^3/\text{s}$ の試料)については 3 回以上実験を行った。各実験における疲労寿命のばらつきは約 20% 以内となっており、また、疲労試験に関する各データ(例えば、 L_d 、 ΔL など)の測定誤差は 5% 以内である。

3 結果および考察

3.1 試料の内部構造と材料特性 後続の疲労破壊機構と材料の内部構造との関連性を検討するために、まず、射出成形速度による試料の内部微細構造などを明らかにする必要がある。射出成形した試料は図 2 のようにスキン(上表面)→中間→コア(下側)という三層構造が形成されている。射出成形速度が速くなるにつれて各層の厚さ(試料厚さ 2mm の半分に対応する厚さ)の変化は図 3 のように、スキン層と中間層が $2.2\text{cm}^3/\text{s} \rightarrow 104\mu\text{m}$ と $416\mu\text{m}$ 、 $22\text{cm}^3/\text{s} \rightarrow 40\mu\text{m}$ と $300\mu\text{m}$ 、 $55\text{cm}^3/\text{s} \rightarrow 20\mu\text{m}$ と $260\mu\text{m}$ のように薄くなり、コア層が厚くなっていくことがわかる。特に射出成形速度の遅い $2.2\text{cm}^3/\text{s}$ の試料(図 2)ではスキン層と中間層の厚さが試料断面の半分以上を占めている。

図 4 には試料断面各層における微小硬さの分布を示した。各試料の硬さは、スキン層→コア層→中間層の順

Fig.2 Micrographs of cross section(2.2cm³/s)

Fig.3 Effect of injection speed on the thickness of each layer

Fig.4 Distribution of hardness in cross section

に高くなるという不均一の分布となっている．射出成形速度の遅い試料(2.2cm³/s)は中間層が厚いため，高硬度区域が広くっており，それにコア層の硬度も比較的高いレベルを持っている．逆に射出成形速度の速い試料(55cm³/s)では中間層が薄く，また，充填速度も速いので，試料全体(スキン層付近を除く)が速やかに充填した後，ほぼ一斉に冷却凝固するため，断面における硬さ分布の差が最も小さくなっている．射出成形速度 22cm³/s の試料の硬さ分布はほぼその中間的な傾向となっていることがわかる．断面における硬さの平均値は，射出成形速度が速くなるにつれて低くなり，すなわち，試料が軟化され，延性的な特性が高くなっていることがわかる．

射出成形した PP の動的粘弾性特性(温度分散曲線)の変化⁽⁸⁾により，-10℃付近には E' の急低下と tanδ の急上昇が観察され，PP のガラス転移温度であることがわかる．本研究の試験温度について，-40℃と-10℃の場合はガラス転移温度以下と付近であり，試料が高い E' と低い tanδ を有し，20℃と 50℃の場合は逆に低い E' と高い tanδ を有していることがわかる．

3.2 高温における疲労破壊特性 図 5(a)(b)には室温(20℃)における疲労過程の tanδ と E' の変化および試料伸び Ld と伸び振幅 ΔL の変化を示した．各試料では，負荷繰返しにつれて，内部破壊の進行により，E' が緩やかに低下するとともに，tanδ が上昇している．破断直前にき裂の急速伝播により E' の急低下と tanδ の急上昇が見られる．また，試料の伸び Ld と伸び振幅 ΔL も tanδ の変化傾向と同様である．しかし，それらの各パラメータの変化傾向は射出成形速度が遅いほど弱くなり，つまり，試料の疲労破壊は射出成形速度が遅くなるにつれてより脆性的になることが考えられる．また，射出成形速度の増加につれて E' のレベルが低くなり，tanδ のレベルが高くなっている．これらの特性は前述した材料の内部構造などと一致している．

疲労寿命については射出成形速度の上昇につれて 1.73×10^5 回 $\rightarrow 3.97 \times 10^5$ 回 $\rightarrow 6.39 \times 10^5$ 回と長くなっていることがわかる．これは射出成形速度による試料の内部構造，硬さ，結晶化度，配向度などの変化と関係があるが，主に前述した射出成形速度による中間層の厚さの変化と深く関連していると思われる．つまり，射出成形した試料の中間層は高硬度，高弾性率，高配向度であり，外部負荷を受ける際，中間層に応力集中しやすいため，き裂の発生と伝播が起こりやすくなる．射出成形速度 2.2cm³/s の試料の中間層は断面の約半分を占めており，ほとんどの外部負荷を負担している．一旦，中間層に微小クラックが発生したら，脆性的な中間層内で速やかに伝播し，試料が破断されてしまう．疲労過程の試料

(a) Variations in E' and $\tan\delta$ during fatigue process (b) Variations in L_s and ΔL during fatigue process.

Fig.5 Dynamic viscoelastic properties of fatigue process (20°C)

の観察により中間層からき裂の発生が認められる。また、破断後の試料は平行部に中間層に大量の微小き裂とかなり成長した大きなき裂が存在しているが、コア層には破断部付近以外にき裂がなかった。したがって、試料の破断は中間層の破壊によるものである。一方、射出成形速度の速い $55\text{cm}^3/\text{s}$ の試料では中間層が薄いし、中間層とコア層の硬度差も最も小さいため、コア層がかなり外部負荷を分担している。さらに試料全体は延性的な

Fig.6 SEM micrographs of fatigue fracture surfaces (20°C)

特性が高いため、き裂が発生してもき裂先端が鈍化しやすいので、き裂の成長が遅くなり、疲労寿命が長くなると考えられる。射出成形速度 $22\text{cm}^3/\text{s}$ の試料では中間層が比較的薄く、中間層に応力集中するが、コア層にもある程度外部負荷を分担している。さらに中間層およびコア層の硬さは $55\text{cm}^3/\text{s}$ の試料に近く、比較的延性的な特性を有するため、き裂先端を鈍化させる能力があるし、疲労寿命が中間的な傾向となるわけである。疲労破断後の試料の観察により、この両試料とも平行部に亘って中間層とコア層に大量の微小き裂の存在が認められる。

図6の疲労破断面により、各試料のき裂発生源は中間層にある(例えば、各図中の矢印A)ことがわかる。射出成形速度 $2.2\text{cm}^3/\text{s}$ の試料は中間層が平坦であり、き裂が発生してから、その面内にて十分に伝播し、最後に断面全体をほぼ脆性的に破断したことが認められる。 $22\text{cm}^3/\text{s}$ の試料では中間層に数多くの場所からき裂が発

生し、伝播している。また、中間層とコア層が明瞭に分けられており、中間層のき裂が十分に成長した後、コア層を破壊したと考えられる。一方、 $55\text{cm}^3/\text{s}$ の試料では中間層とコア層の明瞭な境を観察されず、中間層とコア層ともき裂の発生が認められる。それに、破断面はやや延性的な破壊傾向が示している。

図 7(a)(b) の 50°C の場合では、各試料において負荷繰返しがある程度(約 10^3 回前後)進んだ後、 E' のやや上昇と $\tan\delta$ のやや低下が観察される。これは脆性的な破壊の特徴を示している。試験温度が高いが、負荷応力振幅が

(a) Variations in E' and $\tan\delta$ during fatigue process

(b) Variations in L_s and ΔL during fatigue process.

Fig.7 Dynamic viscoelastic properties of fatigue process (50°C)

低い場合、試料の自己発熱を抑えたことによる現象であると考えられる。疲労過程における試料の伸び L_d の変化を見ると、 20°C の場合よりやや大きい、伸び振幅 ΔL の変化が小さいため、 E' がやや増加している。

疲労寿命については射出成形速度が速くなるにつれて、 $2.2\text{cm}^3/\text{s} \rightarrow 4.29 \times 10^5$ 回、 $22\text{cm}^3/\text{s} \rightarrow 1.09 \times 10^6$ 回、 $55\text{cm}^3/\text{s} \rightarrow 1.35 \times 10^6$ 回と長くなり、 20°C の場合と同様な傾向である。その理由は前述したことと同じように考えられる。試験温度は 20°C から 50°C に変わっても、材料の特性はガラス転移温度の前後のような激しい変化ではないため、基本的には同じであると考えられる。疲労後の試料のき裂の状況を観察したところ、 20°C の場合とほぼ変わらない。

一方、図 8 の各試料の破断面により、疲労進行中に数多くの場所からき裂の発生が観察され、 $22\text{cm}^3/\text{s}$ と $55\text{cm}^3/\text{s}$ の試料のコア層にも大量なき裂が存在している。また、破断面の破損も激しく、き裂が十分に発生、成長

Fig.8 SEM micrographs of fatigue fracture surfaces (50°C)

した後に破断したと考えられる。2.2cm³/sの試料の破断面は脆性的な傾向であると認められるが、ほかの二種類の試料ではやや延性的な破壊傾向を示している。これは試験温度が高いことにより、動的粘弾性特性からわかるように試料のE'が低く、tanδがかなり高いレベルとなっているため、試料が強い自己発熱の能力を持っている。疲労過程には応力振幅が小さいので、試料の自己発熱を抑えたが、破断する直前になると破断部付近の局部的な塑性変形が大きくなるため、試料の自己発熱を引き起こし、速やかにより高い温度へ昇温し、延性的な破壊挙動となったと考えられる。

3.3 低温における疲労破壊特性 図9(a)(b)には室温以下の-40℃における疲労過程でのtanδとE'の変化および試料の伸び量Ldと伸び振幅ΔLの変化を示した。また、図10には各試料における疲労破断面のSEM写真を示した。射出成形速度変化しても各試料の疲労過程におけるE'とtanδの変化傾向は、負荷繰返しにつれてE'が単調的に上昇するとともにtanδが次第に低下していくという脆性的な破壊特性を示している。また、疲労過程における試料の伸びLdと伸び振幅ΔLの変化はほぼ観察されなかった。

疲労過程におけるE'とtanδのレベルについては高温試験と同様に射出速度が速くなるにつれてE'が低く、tanδが高くなっていることがわかる。つまり弾性的な特性が低下している。しかし、各試料の疲労寿命については射出成形速度の遅い試料(2.2cm³/s→2.34×10⁵回)と速い試料(55cm³/s→2.63×10⁵回)がほぼ同じであるが、中間的な射出成形速度の試料(2.2cm³/s→6.91×10⁴回)は他の試料の約1/4~1/3しかない。その原因ははっきりわからないが、次のことが考えられる。-40℃の低温ではPPのガラス転移温度以下であり、試料の脆性的な特性が強くなっている。前の試料断面における微小硬さの分布について述べたように、射出成形速度2.2cm³/sの試料は硬い中間層が断面の約半分を占めており、硬さの平均値も最も高いため、低温になると、弾性的な高強度の材料となるわけで、疲労寿命が長くなる。一方、射出成形速度55cm³/sの試料では断面における硬さの平均値が最も低く、延性的な特性が高いが、低温になると、強度特性がかなり向上している。さらにこの試料の断面における硬さの分布はほかの試料より平坦であり、中間層とコア層の差がかなり小さいため、負荷を受けるとき、コア層がかなり外力を分担し、中間層の応力集中程度はほかの試料より軽く、き裂の伝播速度も遅くなるので、疲労寿命が伸びていく。しかし、中間的な射出成形速度22cm³/sの試料では延性的な特性は射出成形速度55cm³/sの試料

に近いにもかかわらず、断面における硬さの分布の差が大きい。中間層の硬さはコア層よりかなり高く、負荷を受けるとき、薄い中間層に応力を集中させ、中間層から微小クラックが一旦発生したら、速やかに伝播し、短時間で破断を起こしてしまう。疲労過程でのtanδの変化を見ると、疲労の初期段階では55cm³/sの試料に近いが、約10³回を超えると、次第に大きく低下し、2.2cm³/sの試料に近づいていく。このような変化は材料の高次構造や分子鎖の配向状態が繰返し変形下で変化し、材料はより弾性的な状態になってき裂が伝播するという脆性破

(a) Variations in E' and tanδ during fatigue process

(b) Variations in Ls and ΔL during fatigue process.

Fig.9 Dynamic viscoelastic properties of fatigue process (-40℃)

損の挙動を示している⁽¹¹⁾。高弾性の状態下ではき裂先端の応力集中が高く、き裂の伝播速度も速いため、短寿命となった。

以上のことについては疲労破壊後の試料の肉眼観察からも認められている。すなわち、射出成形速度 $2.2\text{cm}^3/\text{s}$ の試料は破断部以外の部分にはき裂が存在せず、破断部の微小クラックが発生した後、そのき裂の伝播により試料が破断した。射出成形速度 $55\text{cm}^3/\text{s}$ の試料は試料平行部全体に亘ってき裂が観察され、中間層に大きなき裂が多数存在している。試料の破断は中間層から引き起こしたが、疲労過程においてコア層もかなり外力を分担したことがわかる。しかし、射出成形速度 $22\text{cm}^3/\text{s}$ の試料では平行部の中間層に大量なき裂が観察されたが、コア層にはかなり少ない。試料の破断は応力高度集中した中間層のき裂の急速伝播によるものであると考えられる。

破断面の SEM 写真(図 10)により、すべての試料はき裂の発生源が高温試験と同様に中間層にあり、それに脆性的な破壊であることが認められる。射出成形速度

$2.2\text{cm}^3/\text{s}$ の場合は中間層からき裂が発生し、負荷繰返しにつれてこのき裂が中間層とコア層の両方へ充分に伝播してから試料を破断した。射出成形速度 22 と $55\text{cm}^3/\text{s}$ の場合は、中間層から発生したき裂が中間層内で伝播し、最後にほかのき裂と合体するとともにコア層を破壊させ、試料が破断した。

以上により T_g 以下の低温における材料の耐疲労破壊強さは射出成形速度のある臨界値が存在しているのではないかと考えられる。つまり、 T_g 以下になると、各材料は脆性的な特性が高くなっている。射出成形速度が遅いほど、高硬度の中間層が厚くなるため、材料強度が高いし、応力集中程度も比較的に低くなる。射出成形速度が速くなると、コア層の硬度の低下が少ないが、中間層では薄くなり、比較的に中間層の応力集中程度が上昇する。かなり高い射出成形速度では中間層がもっと薄くなるが、中間層とコア層の硬度の差も低下するため、中間層の応力集中程度が再び下がり、き裂の発生と伝播が遅くなる。したがって、中間層の応力集中が最も高い状態となる中間的な射出成形速度(臨界速度)が存在するはずである。室温以上の試験温度と違って、 T_g 以下では各材料とも脆性的なガラス状態となっているため、中間層に微小き裂が発生したら、き裂先端の応力集中を鈍化させる能力が小さく、き裂が比較的に速い速度で伝播し、ついに試料を破断してしまう。したがって、中間層における応力集中の大きさは疲労寿命に大きな影響を与えよう。

図 11 の試験温度 -10°C の場合は、負荷繰返しにつれて E' と $\tan\delta$ の変化は基本的に -40°C の場合と似ているが、ガ

Fig.10 SEM micrographs of fatigue fracture surfaces (-40°C)

Fig.11 Dynamic viscoelastic properties of fatigue process (-10°C)

Fig. 12 SEM micrographs of fatigue fracture surfaces (-10°C)

ラス転移温度付近であるため、繰返しにつれて試料の伸びが射出成形速度の増加の順に少し大きくなっている。疲労寿命は-40°Cの場合と同様に中間的な射出成形速度($22\text{cm}^3/\text{s} \rightarrow 4.38 \times 10^5$ 回)の試料が最も短い。ほかの試料では 6.64×10^5 回でも破断しなかったが、液体窒素がその以上の時間を持たないため、実験を中止した。破断した射出成形速度 $22\text{cm}^3/\text{s}$ の試料の断面(図 12(a))を観察すると、き裂の発生源は中間層であることが認められるが、コア層にもき裂が存在している。その拡大写真(図 12(b))を見ると、かなりの高温での延性的な破壊であることが考えられる。これは疲労破壊直前における破断部の応力集中により局所な大塑性変形(破断寸前の伸び振幅 ΔL と $\tan\delta$ の急上昇が認められる)が発生し、内部発熱を引き起こしたためと考えられる。

4 むすび

本研究では射出成形速度の変化により、各試験温度における PP の疲労破壊特性と内部微細構造との関連性について検討した。その結果は次の通りである。

(1) 射出成形した試料にはスキン(低硬度)・中間(高硬度)・コア(中間程度の硬度)という三層構造が形成されている。射出成形速度が速くなるにつれて、スキン、中間層の厚さが減少し、コア層の厚さが増加しており、試料の延性的な特性が向上している。

(2) すべての疲労破壊は高硬度、高配向度の中間層の応力集中によってき裂が発生し、そのき裂の伝播により試料が破断された。

(3) 室温以上(20°C, 50°C)の疲労試験では射出成形速度が速くなるにつれて、疲労寿命が長くなり、疲労破壊も延性的な傾向が強くなる。試験温度 50°C の場合は $\tan\delta$ が高いレベルにあるため、試料が破断直前の局所的な塑性変形によって、延性的な破壊を示している。

(4) 低温(-40°C, -10°C)の疲労試験ではすべての試料は疲労過程において、 $\tan\delta$ の低下が観察され、脆性的な破壊傾向を示している。疲労寿命では射出成形速度の遅い試料($2.2\text{cm}^3/\text{s}$)と速い試料($55\text{cm}^3/\text{s}$)は比較的に長いですが、中間的な試料($22\text{cm}^3/\text{s}$)では短くなっている。これは試料断面各層の厚さと硬さの分布特徴、つまり中間層における応力集中の大きさに強く関連している。

(5) すべての試験温度において、射出成形速度の遅い試料($2.2\text{cm}^3/\text{s}$)は中間層の破損が大きいですが、コア層のき裂の発生が認められなかった。射出成形速度の速い試料($55\text{cm}^3/\text{s}$)では中間層とコア層の硬さの差が小さいため、中間層とコア層の破損が観察される。射出成形速度 $22\text{cm}^3/\text{s}$ の試料ではほぼその中間的な傾向である。

参考文献

- (1) M.N.Riddell, G.P.Koo and J.L.O'Toole., Fatigue Mechanisms of Thermoplastics, Polym. Eng. Sci, 6(1966), 363-368.
- (2) 成沢郁夫, 繊維・高分子の疲労と破壊, 繊維と工業, 41(1985), 81-88.
- (3) 梶山千里, 動的粘弾性測定に基づく高分子材料の疲労挙動の解析, 繊維と工業, 39(1983), 445-451.
- (4) 北川正義, 高分子材の疲れき裂成長, 日本機械学会論文集(第1部), 40(1974), 1828-1834.
- (5) J.A.Sauer, E.Foden, D.R.Morrow., Influence of Molecular Weight on Fatigue Behavior of Polyethylene and Polystyrene. Polym. Eng. Sci, 22(1982), 246-250.
- (6) 石川 優・成沢郁夫, 高分子固体の破壊条件とじん性の評価, 材料強度学会誌, 17(1983), 85-101.
- (7) 川越 誠・水野 渡・邱 建輝・森田幹郎, ポリプロピレン/液晶ポリエステル系ポリマーブレンドの疲労過程, 高分子論文集, 52(1995), 328-335.
- (8) 邱 建輝・川越 誠・水野 渡・森田幹郎, 射出成形した PP の微細構造と疲労破壊特性, 日本機械学会論文集(A), 63-614(1997), 2105-2113.
- (9) 邱 建輝・川越 誠・水野 渡・森田幹郎, 圧延によるポリプロピレン/液晶ポリエステルブレンドの耐疲労性の向上, 高分子論文集, 56(1999), 151-158.
- (10) 宮地智章・川越 誠・邱 建輝・水野 渡・森田幹郎, ポリプロピレン射出成形試料の疲労破壊機構, 高分子論文集, 56(1999), 133-140.
- (11) 梶山千里・高原 淳, 動的粘弾性測定に基づく疲労寿命の評価法, 日本ゴム協会誌, 59-1, (1986), 3-10.
- (12) S.S.Katti and J. M. Schultz, The Microstructure of Injection-Molded Semicrystalline Polymers: A Review, Polym. Eng. Sci, 22(1982), 1001-1017.
- (13) J. M. Schultz., Microstructural Aspects of Failure in Semicrystalline Polymers. Polym. Eng. Sci, 24(1984), 770-785.
- (14) 松本喜代一・三浦一郎・林田建世, ポリプロピレン射出

- 成形品の内部組織, 高分子論文集, 36(1979), 401-406.
- (15) D. G. M. Wright and R. Dunk, The effect of crystallinity on the properties of injection moulded polypropylene and polyacetal, *Polymer*, 29(1988), 793-796.
- (16) 水野 渡・川越 誠・邱 建輝・森田幹郎, ポリプロピレン射出成形品の疲労による破壊と高次構造変化, 高分子論文集, 52(1995), 445-451.
-