学会賞受賞講演

Researches on the Mechanics of Rubbers and Fibrous Materials

Sueo KAWABATA*

Professor emeritus, Kyoto University

For the past thirty years, the author has been conducting researches on the mechanics of rubber elasticity and fibrous materials. This article presents a historical review of the development of these researches. The author's first research project was an investigation of thickness irregularity in fiber bundles. This irregularity is caused by the random arrangement of the short fibers that form the bundle, and increases during the drafting of the bundle in the spinning process. The author presented a theory that made it possible to predict the power spectrum of this irregularity. This research stimulated the author's interest in the mechanics of fiber assembly bodies, also known as "fibrous materials".

This interest remains strong today. After completing his first research project, the author spent a year at the California Institute of Technology, in Pasadena, where he initiated research on rubber elasticity as a basis for research on the failure behavior of solid rocket propellant. He has developed a bi-axial extension experiment for rubbers, and found a simple form of the strain energy density function for these rubbers. Parallel with this research on rubber elasticity, the author continued research on the deformation mechanism of fibrous materials such as yarns and woven and knitted fabric structures. On the basis of this research, the author developed an objective evaluation of fabric hand; evaluations had previously been made by a subjective method called "hand judgment". There is a similarity between research on the mechanics of rubber and research on the mechanics of fibrous materials. These researches deal with assembly body of molecular chain or fiber and have been carried out with an interactive concept. The author has also introduced his recent research on the measurement of anisotropy in the mechanical property of single fibers. This measurement was conducted with a micro-measurement instrument developed by the author. Some of the results of these measurements are also presented here.

ゴム状高分子および繊維状材料のレオロジーに関する研究

川端 季雄*

(原稿受理:1994年10月14日)

1. 研究の動機

ゴム状高分子と繊維状材料の研究という、筆者が長年にわたって少しずつ進めてきた二つの分野は筆者が依然として現在進めている研究分野である。一見両者は結び付きのないように思われ

る。事実、その始まりは全く別のことで始まっている。筆者が、故・藤野清久先生の指導の下で始めて研究を行った時、短い繊維の集団である繊維の束になぜ太さむらが現れるか、またその延伸過程でなぜむらが拡大するかというテーマであった。連続体では意味がなくなりまさに集合体のレオロジーであった。理想の状態でのむらのスペクトル密度関数を理論的に誘導し、さらにドラフト過程と呼ばれる延伸過程で正のフィードバックによりこのむ

*Sueo Kawabata, 京都大学名誉教授, 滋賀県立大学開設準備顧問

Fig. 1 Fiber bundle and the model of the drafting process.

Fig. 2 Power spectrum of the thickness irregularity of the fiber bundle, where k is the irregularity enlargement parameter, and $k=0$ is the case when no irregularity enlargement occurs during drafting.

らが繊維長の約2倍の波長域で拡大する機構を提出^{1),2)}, いわゆるドラフト理論を完成させ(Fig. 1, Fig. 2), これが学位論文となった。筆者にとってはこの研究が繊維集合体へ、そしてさらにその変形や力学へ強く興味を惹かれる直接の動機となった。一方、しばらくして1964年に米国のカリフォルニア工科大学に研究員として滞在する機会を与えて頂いた。ここでの研究テーマは、航空工学科のなかの材料系グループである関係上、ロケットの固体燃料の破損の問題が主テーマであった。当時、この大学の附属研究所、ジェット推進研究所が月にロケットを命中させ、その表面を探索する計画を政府から請け負っていた。レインジャー計画と呼びアポロ計画の準備の為の計画であった。宇宙計画のみ

でなく、当時の世界は冷戦の最中にあり、ミサイルロケットの安定した発射が大きな課題であるという事情もあり、本部キャンパスの航空科にもこうした研究依頼が殺到していた。よく知られるようにロケット固体燃料は酸化剤粒子、重い金属粒子などをゴムをバインダーとして固めた複合材である。筆者はウィリアムス教授の下で選択の余地なしにP.J. Blatz博士らと共にゴム複合系の力学と変形の研究、つまりレオロジー研究に入った。特に問題になったのはクリープ破壊であった。固体燃料は巨大な円筒構造であり、内部に燃焼面となる星型断面の穴があいている巨大な竹輪のようなものである。そして保存中に自重で固体内にクラックが生じ、特に内面に露出したクラックは点火後異常燃焼面を生じてロケットの推進方向を狂わし、悪くすればロケットを爆発させる。当時レオロジストとしては大学附属研究所ジェット推進研究所にLandel博士がおられ、共同研究グループとして交流を深め、またその先任者でスタンフォード大学へ移られたThor Smith博士の実験装置をお借りしたりして、共にこの研究に打ち込んだ。

2. 純ゴムの研究へ

固体燃料は金属粒子や酸化剤粒子をゴムに埋め込んだ複合材である。しかし、深く研究すればするほどバインダーのゴムそのもののレオロジーに行き当たる。Blatz博士は、かつてプリンストン大学の故Tobolsky博士の学生であり、根は純粋の科学者である。工学の世界に馴染んでいるが、どうしても半分は純ゴムの研究へと傾く。筆者は根は工学の人間である。しかし、深く進もうとすればゴムの物性に行き当たる。当時1960年代はゴムに関してはいわゆる古典ゴム弾性理論が完成した後、Rivlinが数学者の立場からその理論に疑問を投げかけていた頃で、ゴムの精密な物質データはほとんどなかった。大学の研究室で当時普及が始まった有限要素法とコンピュータの威力に驚き、それを応用して応力計算しようにもどうにもならない。Rivlinがカリフォルニア工科大学に滞在して行った8回の講義のノートをもて数学者であることのためか、実際のデータに乏しい。こうしてBlatz博士とは異なる方向から、つまり工学者の立場から“急がば回れ”の考えで筆者もまたBlatz博士と共にゴム弾性の研究の世界へ入っていくこととなった。

帰国後、Rivlinの実験の再検討をするためもあり、精密な2軸伸長試験機を設計^{3),4)}し、ゴムのひずみエネルギー密度関数の観測実験に入り、ほぼ15年を経てエネルギー密度関数の W 関数形が微分形でFig. 3³⁾に示すように実験的に解明されることになった^{3)~8)}。その関数形は、古典ゴム弾性理論式がそのまま生き、非エントロピー項が新たに加算されるという次の式のような極めて単純な形であった⁵⁾。

$$W = CT(I_1 - 3) + \beta(I_1, I_2) \quad (1)$$

ここで、 C は定数、 T は絶対温度、 I_1, I_2 はGreenの変形テンソルの不変量で、右辺第一項が古典ゴム弾性理論式、第二項の β 関数は温度が関与しない新しい非エントロピー項である。

この新しい非エントロピー項と分子の関係が次の焦点になった。古典理論では分子鎖端間隔の一次元的伸長エネルギーを考え、分子鎖間の凝集または反撥力は無視し、消去する。しかし実験結果からFig. 4のように3つの分子鎖でつくる三角面モデルを考え、その面の持つ二次元的ポテンシャルの概念を導入すると

Fig. 3 Differential forms of the strain energy density function of a pure SBR vulcanizate measured by the biaxial stress relaxation method in extension state. This clearly shows that both $\partial W/\partial I_1$ and $\partial W/\partial I_2$ are functions of I_1 and I_2 . Where I_1 and I_2 are the first and the second invariants of Green's deformation tensor respectively. The classical Kinetic theory of rubber elasticity predicts that $\partial W/\partial I_1$ is a constant value and $\partial W/\partial I_2$ is zero for all rubbers.

実験で観測される関数形と酷似する新しいエネルギー項が説明できること^{3), 5)}を提出した。Fig. 5(a)は、この二次元的な面ポテンシャルの概念を用い、面積の関数としてのポテンシャル関数形を仮定し、式(1)の β 関数を計算し、それを式(1)第一項に加えて W 関数を導き、それから求めた $\partial W/\partial I_1$ と $\partial W/\partial I_2$ である。ただし、この図の計算では、立方体のネットワークモデルを用いた。Fig. 5(b)は実測値で、理論値とよく似た関数形が求まっている。Fig. 5(a)(b)とも変形は一軸拘束二軸伸長、すなわち pure shear 変形である。しかしゴムの分子間力をもっとも直接に表すのは体積変化、つまり三次元的ポテンシャルにある。この確認はどうしても必要であった。困難な三次元実験が約10年間続く。例をみない、かつ精密を要する実験に学生諸君と苦勞を共にしたが、最近に至り体積ポテンシャルの全容が明確になってきた。新しいゴム弾性の理論的考察はこれから始まる。

こうした基礎的研究は多くの応用を生む。ゴム弾性の研究の進

Fig. 4 The concept of the "Potential of area". (a) Image of the network of molecular chains and the area element, (b) An area formed by three cross-linking points, A, B, and C. N is direction of the area element.

(a) THEORETICAL

(b) EXPERIMENTAL

Fig. 5 Differential forms of the strain energy density function for strip-biaxial extension (pure shear deformation), (a) Theoretically introduced by using a cubic structural-model of the network with the concept of area potential, (b) Experimental result in the same deformation mode.

展は、ゴムのカーボン補強機構、熱可塑性ゴムの変形機構⁹⁾、ゴムの2次元、3次元強度の研究を促進させ、これらの新しい研究が平行して進みかつ現在も進んでいる。

3. 繊維集合体の研究

一方、繊維集合体の研究は帰国後も平行して続けることになった。それは全くリンクしなかった二つの分野が筆者の頭の中では強くリンクしたものになってきていたからである。ゴムの破壊は分子鎖の切断から始まるとすれば、いやおうなしに分子鎖1本とその集合体を考えなければならない。繊維集合体の扱い方と相似してくるのである。

前述のようにこの二つの分野の研究は全く別のきっかけで始まったのであるが、筆者の思考の中では極めて近い、むしろ同じものとして違和感なしに重なり、この二つの研究をこれまで進めてきたように思う。換言すれば、いずれも集合体構造という点で共通性をもつ。繊維束のドラフト理論は1本の繊維の位置を捉え、その位置の並べ換えで束の太さを変える。ここでは連続体の概念は使えない。確率的に決まる繊維の位置を平均化すれば、繊維束はむらのない棒になり研究の意味がなくなる。ゴムの破壊も究極では連続体としての扱いに限界があり、分子集合体としてみなければならないところにきている。

細い繊維が1軸に沿って平行に並んで糸構造をつくり、これに

軽く撚りがかかると Fig. 6 に示すように、繊維はらせん形状をとる。紡績糸では繊維間に多くの空隙が生じ、ふくらみをもつが、この糸を縦方向に伸長すると、らせん形状の変形は繊維自身の伸びよりも、らせんが糸本体を圧縮しつつ伸びる変形が優先する。この変形は斜線断面の最密充填状態まで続く、以後は主に繊維自身の伸びとなる。したがって糸の初期変形では、糸の圧縮特性からもたらされる弾性エネルギーが、糸伸長の主要な要因となる。そして初期に伸びやすい非線形伸長特性が生まれる¹¹⁾(Fig. 7)。このような初期から上方へ曲がる形の伸長特性は現在の合成高分子連続体では実現できない性質である。繊維の集合構造からのみ生まれてくる。しかしこの特性は人間の皮膚の伸長特性がそうであり人間と馴染む性質である。さらにこの糸を織って2次元形態をとらせるとさらにこの特性が明瞭化しかつ伸長性が増す。しかし強度は強い繊維の強度をそのまま継承し、強くても柔らかい非線形特性を持つようになる。これが人類が長い歴史で作ってきた衣服材料としての布である。曲げ、せん断、圧縮の各特性にもこうした非線形特性がある。繊維から糸へ、そして布へ、こうした非線形特性の理論的な解析と誘導についての研究を続け、だんだんとこれらが解明された^{12~15)}。これらの研究で明らかになってきたのは、繊維集合体内の繊維間空隙の効果と繊維間摩擦の重要性である。

Fig. 6 Model of a twisted yarn structure which consists of helical fibers with space between the fibers. The shadowed cross-section is the state of closest packing. The helical fiber is subjected to transverse pressure during yarn extension and this pressure induces a major extension force of the yarn.

Fig. 7 Theoretical and experimental curves for the extension and recovery processes of the yarn. λ_c is the stretch ratio at the closest packing state without elongation of fiber.

4. 風合いの研究へ

しかし、繊維集合体の研究で、根が工学者である筆者には再び疑問が生まれる。繊維集合体の研究を行っている目的への疑問である。繊維は糸を経て織物になり、最後に人の衣服となる。この順に筆者の研究は進んでいった。この研究分野は実は繊維工学と呼ばれ、旧い分野であって当時はもはや過去のすたれた分野と思う人が多かった。しかし、深く研究に入ってみると未知の部分がほとんどで、役に立つ肝心のところが全く手つかずになっている。学問としても全く初期的段階にあることに驚いた。織物のもつ低荷重域の特有の非線形伸長特性はこうして筆者が共同研究者の力を得て理論的に解明できた。しかし、何のためにこうした研究をしているのか、最終製品の衣服材料としての性能を設計するためではないのかという疑問が依然として解消しない。そして衣服に適する布地とは何かという疑問に対し経験熟練者の風合い判断という大学の研究者には手の届かない主観判断のあることも知っていた。

高分子の合成に始まり、高速紡糸工程の発展で繊維を量産する時代に入っている。しかし、その先の設計の科学的手段を持たないことが高分子、繊維工業に非近代性をもたらす原因となっており、この工業に関わる若い人達にいろいろな面で悪い影響を与えていた。こうしたことで、布の風合いの研究は常に頭の中にあった。やや大げさにいえば、その解明と客観評価の実現が繊維工業とそれにつながる高分子工業を「製品設計」のできる真の近代工業へと進めることになる。この風合いの研究は多くの繊維研究者の関心の的であった。早くも1930年に英国のJ. Textile Insti-

Fig. 8 Ideal fabric zone for suiting materials.

tute に F. T. Peirce が論文を発表して以来、多くの研究が多方面でなされたが、手探りに終わり、依然として客観評価の実現にまで至らなかった。

筆者が少しずつこの研究に入ったのは1965年頃である。この研究も多くの協力者を得て風合いの解析、標準化、客観評価へと進み、今日では布の物性データを基にして熟練者なみに布の風合いや品質を判断できる客観評価システムを作り上げ、実用化させるところに到達¹⁶⁾し、この方法は広く普及した。最近はそうした成果を生かし今度は逆に理想的な布^{17), 18)}を作るのにどのように繊維や糸、布を設計するかという極めて技術的な問題について工場技術者と一緒に研究をしている。ここでいう理想的な布とは、よい風合い(good hand)、美しい外観(シルエット)の衣服をつくる性質(good appearance)、軽い着心地(comfortable wearing)を満足する布である(Fig. 8)。しかし20~30年前の日本の繊維教育の中断によって特に糸やテキスタイルに携わる若い繊維技術者がいなくなったという背景は深刻なように思う。

この布の風合いという一見、古めかしい研究は私にとって一つの新鮮な材料研究の始まりであった。材料が人間と接触するときの材料と人間とのやりとりの研究である。考えると衣服用の布のみでなく、人の近くにありまたは触る機会のある全ての材料がこうした問題に関係するにもかかわらず、これらは工学の分野では本格的な対象としてほとんど無視されてきた。事実、大学の講義にもないのである。私はこうした材料を Human Interactive Material とよんでいる。ポリエステル繊維が夢の繊維として出現した時、技術者はこの繊維の将来を過大な期待で見たようである。しかし消費者は“合繊”という名前を付けて低級品にランクした。こうしてポリエステル工業の苦難の歴史が始まる。新合繊がその解決の一つとして最近のトピックスとなったが、ファイバー技術者は依然として“ハイテク”に浮かれ、人との接点としての織物を理解しようとし、私は昨年、現状の新合繊布地の品質を分析してその前途の険しいことを報告した¹⁹⁾。

しかしこれらの研究によって布の力学的性質、特にその微妙な

非線形性が人間の感覚や感性に驚くほど敏感にひびくことを知った。また、人間は物事を総合的に捉え、最終はイエスかノーかの判断が重要であり、そのように物事を認知すること、細分化に向かう近代科学の方法は人間の思考や認知方法と相反することも知った。私にとっては、この風合いの研究は誠に新鮮な知見を与えてくれる研究であり、新しい材料研究のあり方とその方向を示してくれた。

5. 短繊維のマイクロ測定

一方、最近の高性能繊維の出現は、繊維の工業用途を広げ繊維状材料の設計法に関する研究をさらに具体的に発展させなければならなかった。繊維が信頼性の要求される材料に、積極的に使われるようになってきたからである。さらに、複合材料の設計も精密性が要求されるようになった。しかし、これらのいずれにも肝心な繊維の性質があまりにも不完全にしか捉えられていなかった。

風合いの設計からも、またこうした高強度材料の設計の面から、この研究の不完全さが大きな欠落部分として浮かび上がってきた。例えば、繊維強化複合材でそれに力が加わる時の、マトリックスに埋まる繊維がマトリックスから界面を通して受ける力を計算するには繊維を線形弾性体と考えてもその異方性のために、計算には Fig. 9 に示すように繊維の5つの物性弾性定数が必要である。

すなわち、応力テンソルとひずみテンソルをそれぞれの工学成分 σ_j と ε_i ($i, j=1, 2, 3$) で表すと、線形弾性理論では次の式を用いる。

$$\varepsilon_i = S_{ij} \sigma_j \quad (2)$$

繊維対称異方性体では、物質特性である弾性定数 S_{ij} は5個の弾性定数で与えられる。

Fig. 9 Anisotropic elastic-constants of fiber.

$$S_{ij} = \begin{bmatrix} 1/E_T & -\nu_{TT}/E_T & -\nu_{LT}/E_L & 0 & 0 & 0 \\ & 1/E_T & -\nu_{LT}/E_L & 0 & 0 & 0 \\ & & 1/E_L & 0 & 0 & 0 \\ & & & 1/G_{LT} & 0 & 0 \\ \text{Symmetric} & & & & 1/G_{LT} & 0 \\ & & & & & 2(1+\nu_{TT})/E_T \end{bmatrix} \quad (3)$$

ここで E_L , E_T はそれぞれ繊維軸方向(L 方向)の弾性率, 繊維軸に直交する方向(T 方向)の弾性率で, G_{LT} は繊維軸のまわりに捩じった変形が関与するせん断弾性率, ν_{LT} は L 方向への伸長ひずみに対する T 方向(直径方向)の縮みひずみの比で定義されるポアソン比, ν_{TT} は繊維断面の面内での等方性ポアソン比である。しかし普通はそのうちの繊維軸方向の E_L のみが物性データとして提供されているにすぎない。他は不明であった。まして繊維の剛性や粘弾性, 強度の異方性についての詳細はほとんどわかっていないことに愕然とした。そうして, 最近の研究は再び単繊維の研究という振り出しに戻り, その測定の研究を進めたが, 繊維の寸法の細さという困難さが正面に立ちはだかる。この数年, マイクロ測定という名称をつけた単繊維直接測定システムの開発²⁰⁾に多くの時間を注ぎ, 最近に至り, 各種繊維の多くのデータが生まれるようになった^{21)~24)}。Fig. 10 は繊維軸に垂直方向の特性を圧縮測定で求めた例²¹⁾でアラミド繊維の同特性を示す。Table I²²⁾ は同じ繊維の全弾性定数である。

Fig. 10 Principle of the micro-measurement of a single fiber (top) and a typical result of the transverse compression-recovery experiment for Kevlar® fibers.

Table I Anisotropic elastic-constants for Kevlar® fibers.

	Kevlar 49	Kevlar 29
Symbol	DK49	DK29
Fiber Dia. (μm)	13.8	13.8
E_L (GPa)		
Initial region	113.4	79.8
Breaking region	129.6	98.4
E_T (GPa)	2.49	2.59
G_{LT} (GPa)	2.01	2.17
ν_{LT}	0.62	0.63
ν_{TT}	0.31	0.43

6. おわりに

筆者のこれまでの研究の軌跡とその成果のいくつかの紹介をさせていただいた。そのいずれもが評価はむしろこれからの研究にかかっていると言うべきで, 研究途中の報告と見做していただきたい。ただ研究してきた分野は他にあまり研究する人の少ない分野であった。多数の方がたがおられれば筆者のようにゆっくりした研究は取り残されていたように思う。しかし他に少ない研究は多くの余分な回り道と慎重に進めねばならないことの故にゆっくりしたものにならざるを得なかったことも事実である。

文 献

- 1) Fujino K, Kawabata S, *J Textile Machinery Soc Japan, English Ed*, 5, 1 (1959).
- 2) Fujino K, Kawabata S, *J Textile Machinery Soc Japan, English Ed*, 8, 1 (1962).
- 3) Kawabata S, *J Macromolecular Sci, Phys* B8 (3-4), 605 (1973).
- 4) Kawabata S, Kawai H, "Advances in polymer Science", Vol. 24 (1977), Springer Verlag, Heidelberg, P89.
- 5) Kawabata S, Matsuda M, Tei K, Kawai H, *Macromolecules*, 14, 154 (1981).
- 6) Matsuda M, Kawabata S, Kawai H, *Macromolecules*, 14, 1688 (1981).
- 7) Matsuda M, Kawabata S, Kawai H, *Macromolecules*, 15, 160 (1982).
- 8) Kawabata S, "Rheological Behavior of Elastomers under Multiaxial Stress field", *Current Topics in Polymer Science*, Vol. 2, Ottenbrite et al Ed (1987), Hanser Publishers, p167.
- 9) Kawabata S, Kitawaki S, Arisawa Y, Yamashita Y, Guo X, *J Appl Polymer Sci, Appl Polymer Symposium*, 50, 245 (1992).
- 10) 川端季雄, 日本レオロジー学会誌, 12, 69 (1984).
- 11) 川端季雄, 丹羽雅子, 中林才治, 日本繊維機械学会誌, 28, 153 (1973).
- 12) Kawabata S, Niwa M, Kawai H, *J Text Inst*, 64, 21 (1973).
- 13) Kawabata S, Niwa M, Kawai H, *J Text Inst*, 64, 47

- (1973).
- 14) Kawabata S, Niwa M, Kawai H, *J Text Inst*, **64**, 62 (1973).
- 15) Kawabata S, "Textile Structural Composites", Chow TW, Ko F ed (1998), Composite materials Series, 3, Elsevier, NY, Chap 3, P67.
- 16) Kawabata S, Niwa M, *J Text Inst*, **80**, 19 (1989).
- 17) Kawabata S, Niwa M, Preprint, World Textile Congress, University of Huddersfield, UK (1993).
- 18) Kawabata S, Niwa M, Kurihara S, Abstract of the 23rd Textile Research Symposium at Mt. Fuji, 33 (1994).
- 19) Kawabata S, *Int'l J Clothing Sci Technol*, **6**, 17 (1994).
- 20) Kawabata S, Proc 4th US-Japan Conf on Composite Materials, Washington DC, 1988, 253, Technomic Lancaster PA USA (1989).
- 21) Kawabata S, *J Text Inst*, **81**, 432 (1990).
- 22) Kawabata S, Sera M, Kotani T, Katsuma K, Niwa M, Xiaoxin, Proc 9th Int Conf Composite Materials (ICCM-9), Madrid, 6, 671 (1993).
- 23) Kawabata S, Sera M, "Advanced Composites 93", Proc. International Conf. on Advanced Composite Materials in Wolongong, Australia, The Minerals, Metals and Material Soc, USA (1993).
- 24) Kawabata S, Preprint for Doctoral Lecture at the Liberec Technical University, Czech (1993).