

● 総説

# ガラス転移域で起こるゴム破壊の弾性－ 粘性転移と速度ジャンプの物理像 (前編)：ゴム破壊の弾性－粘性転移に伴う スティックスリップ振動と速度ジャンプの実態

深堀 美英<sup>1\*</sup> · Kartpan SAKULKAEW<sup>2</sup> · James J.C. BUSFIELD<sup>3</sup>

Physical Aspects for Elastic-Viscous Transition and Velocity Jump near Glass  
Transition Region in Fracture of Rubbers;  
(the first half) Detailed Aspects of the Elastic-Viscous Transition Phenomenon  
Accompanied with Stick-slip Motion and Velocity Jump

Yoshihide FUKAHORI<sup>1\*</sup>, Kartpan SAKULKAEW<sup>2</sup> and James J.C. BUSFIELD<sup>3</sup> (<sup>1</sup>Queen Mary University of London, Mile End Road, London E1 4NS, UK <sup>2</sup>Department of Science Service, Physics and Engineering Programme, Rama 6 Road, Rachathewi, Bangkok 10400, THAILAND <sup>3</sup>School of Engineering and Materials Science, Queen Mary, University of London, London, E1 4NS, UK) y777-fukahori@kve.biglobe.ne.jp

It has been reported widely for more than half a century period that the crack growth rate increases abruptly and significantly in spite that the input strain energy release rate is kept constant, named a velocity jump, when rate of tear fracture of cross-linked rubbers approaches the velocity of elastic wave. This phenomenon is associated closely with the balance of elasticity and viscosity of the material and hence its glass transition behavior. Recently the authors summarized and defined this unstable behavior as an elastic-viscous transition phenomenon in fracture of rubber using an elastic-viscous transition diagram, where the diagram consists of three zones, each with a different fracture mode. These are an elastic-brittle fracture zone I, a viscous-ductile fracture zone III and an intermediate transition zone II between the elastic and viscous zones characterized by unstable stick-slip motions and the corresponding velocity jump. In the first half of this article, the authors show real aspects of these phenomena in detail focusing on the fracture surface formation and the stick-slip motion in the transition zone II and in the latter half we propose a new physical aspect for this transition phenomenon accompanied with velocity jump.

(Received on March 8, 2018)

**Key Words** : Cross-linked Rubber, Fracture Behavior of Rubber, Elastic-viscous Transition, Strain Energy Release Rate, Stick-slip Motion, Fracture Surface Roughness, Glass-transition Velocity

## 1. はじめに

架橋ゴムを含むすべての高分子はガラス転移点を持ち、ガラス転移領域では弾性率やエネルギー損失などの非破壊特性の大幅な変化とともに破壊特性も大きく変化する。ゴムの引裂き破壊において従来から着目されてきたものに、“ある高速の引裂き破壊過程に入ると、破壊をもたらす入力是一定であるにもかかわらず、突然、スティックスリップ振動を伴う不安定な亀裂成長が起こり、亀裂成長速度が2～3桁も増加する(速度ジャンプ)”という破壊現象がある。これは非常に危険な現象で、高速度の屈曲変形やタイ

ヤの高速走行時に突然、疲労破壊や摩耗が急激に増大する可能性があることを示唆している。同様の現象は粘接着物の剥離でも起こっており、従来から不安定剥離として注目されてきた。

筆者らの研究室では最近、この現象の本質をゴムの破壊における弾性－粘性転移と定義し、ガラス転移域付近で架橋ゴムの弾性と粘性の大幅な変化に伴って破壊様式が脆性と延性の間で変化する様子を総括した。さらに、速度ジャンプを引き起こすエネルギーがスティックスリップ振動によってもたらされることを解明し、水－水蒸気相転移(一定温度での体積の急増大)との類似性を指摘した。本総説

ではゴムの破壊で起こるこの不思議な現象を多方面から解説し、その物理像を明らかにしたい。

本誌には今1つの意図がある。言うまでもなく破壊に起因する諸現象(疲労, 劣化, 摩耗)は製品の信頼性を支配する最大要因であり、その解明には破断強度や破断伸びだけを取り扱う現象論では全く不十分で、どうしても破壊力学的な取扱いが必要になる。ところが破壊力学はその概念が一般の技術者には馴染みにくい。そこで本稿では本論に入る前に破壊力学の本質を出来るだけやさしく解説し、後編で再び、破壊力学の材料設計や構造設計への活かし方を論じることによりたい。

## 2. ゴムの破壊力学の本質とやさしい捉え方

### 2.1 亀裂進展を推進するひずみエネルギー解放率

従来の材料力学では、破壊をその材料固有の破壊限界値以上の入力が増えられた時、全体が瞬時にバラバラに分解する静的現象と捉え、この限界値を破断強度、破断伸びとした。しかしそれでは破断における温度、速度の影響、クリーブ破壊における破断時間の違いなどを説明出来ず、破壊に対処する方法を全く見出せなかった。これに対して破壊力学では、破壊の原因はその材料の内部に潜む欠陥であり、欠陥成長の最終段階を破断と捉える。そう仮定すると、そこに存在する亀裂の大きさとその亀裂によって生み出される応力場の大きさが破壊を決定づける因子となり、破壊は速度、温度、時間、負荷様式などに依存する動的現象と捉えることが出来る。

今、亀裂のない板状試験片(a)を引っ張ると、図1の応力~ひずみ曲線OAを描くとしてしよう。ひずみ $\epsilon_0$ のとき応力が $\sigma_0$ であり、このとき系に蓄えられるひずみエネルギー $W_0$ は応力~ひずみ曲線下の面積( $\Delta OAH$ )で与えられる。

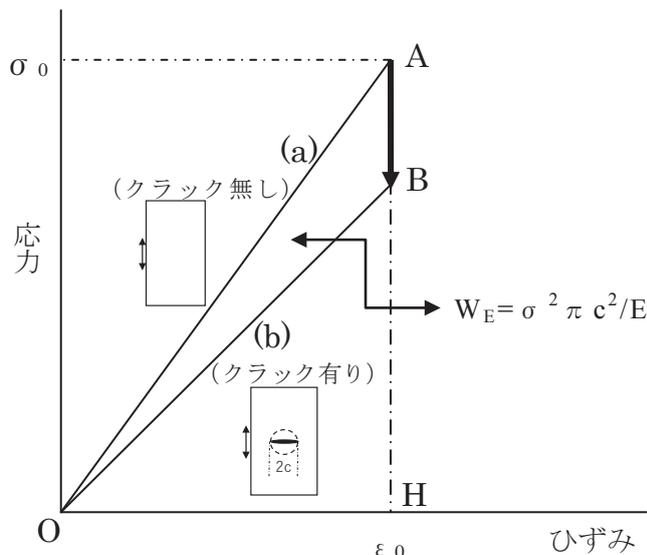


図1 亀裂無し板状試験片(a)の応力~ひずみ曲線(OA)と亀裂有り試験片(b)の応力~ひずみ曲線(OB)の模式図

さてひずみを $\epsilon$  ( $\epsilon_0$ を一般化して)に保ったままこの試験片に長さ $2c$ の亀裂を入れると(b), 応力~ひずみ曲線はOBに低下し、両曲線の差( $\Delta OAB$ )は亀裂存在によるひずみエネルギーの低下量となる。ここで、引張りによって亀裂が開くことによる円弧状の空間の大きさを概略、亀裂を囲む円形領域(直径 $2c$ の円)と仮定すれば、この部分のひずみエネルギー $W$ は(1)式で与えられる。Eは弾性率。

$$W = (\sigma\epsilon/2) \times (\pi c^2) = \sigma^2 \pi c^2 / (2E) \quad (1)$$

ただし詳細な解析<sup>1)</sup>によると $W = \sigma^2 \pi c^2 / E$ 。つまり亀裂の存在によって系のひずみエネルギーは $W = \sigma^2 \pi c^2 / E$ だけ低下する(解放される)ことになり、このような自由エネルギー低下をもたらす現象は自発的に起こると考える。

さて(1)式が示すように解放されるひずみエネルギー $W$ に対して $\sigma$ と $c$ は等価に関わってくる。これは亀裂のない系では破壊の促進力は $\sigma$ (または $\epsilon$ や $W$ )だったものが、亀裂を含む系では $\sigma$ と $c$ が等価の破壊推進力として働くことを意味する。そこで単位長さの亀裂成長をもたらすひずみエネルギーの解放量として $W$ の微分量( $\partial W / \partial c$ )を定義し、これを“ひずみエネルギー解放率 $G (= \partial W / \partial c)$ ”と定義する。したがって亀裂を含む系ではひずみエネルギー解放率が入力(破壊推進力)の基本量になる。さらに、 $G$ がある臨界値 $G_c$ に達したとき亀裂成長が始まるとすれば、 $G_c$ が大きいほど亀裂は成長しにくいことになるので $G_c$ 値は亀裂成長に抵抗する力として破壊靱性(じんせい)と呼ばれる。つまり亀裂成長の有無は $G$ と $G_c$ の綱引きで決まる。

### 2.2 亀裂進展を阻害するヒステリシスロス

上記のGriffith<sup>2)</sup>による破壊力学をゴムに拡大したのがRivlin&Thomas<sup>3)</sup>であり、 $G$ を(2)式で定義した。ここで $A = ct$ (亀裂面積)、 $t$ は試験片厚さ。

$$G = \partial W / \partial A \quad (2)$$

$G$ の求め方はかなり複雑であるが、彼らは $G$ を求める簡易

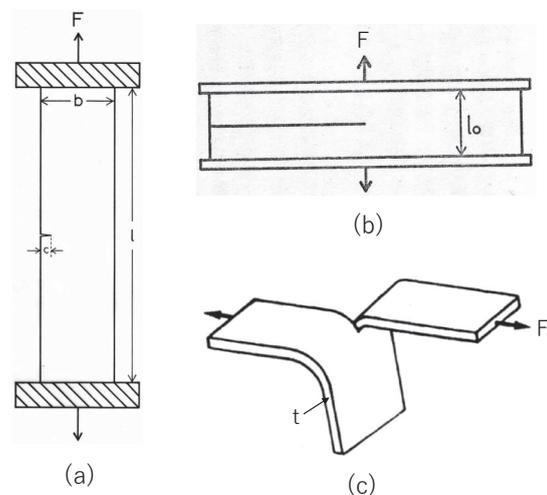


図2 簡易的にひずみエネルギー解放率 $G$ を求める試験片<sup>3)</sup>: 引張り型(a)、純せん断型(b)、ズボン型(c)

法を提案した。例えば図2の試験片に対して、引張り型 (a) では  $G=2kcW$ 、純せん断型 (b) では  $G=l_0W$ 、ズボン型 (c) では  $G=2F/t$  で与えられる。ここで  $k, l_0, F$  は定数、試験片長さ、引張り力である。これら3種類の試験片で求められる  $G_c$  値はどれも一致するということが実験的に確かめられ、このような簡易法で求められる  $G$  がゴムのひずみエネルギー解放率として定着した。

Rivlin&Thomasは亀裂進展が起こる臨界値 (破壊靱性値)  $G_c$  を“引裂きエネルギー”と命名し、その後多くの研究者<sup>4-7)</sup>がこの概念を用いて種々のゴム材料の引裂きエネルギーを評価した。本来、破壊靱性値は亀裂による2つの界面を生み出すエネルギーなので線形材料であれば表面 (界面) エネルギーの2倍になるはずであるが、実際の粘弾性ゴムの引裂きエネルギーは温度や速度によって大きく変化し、特に低温、高速条件では理論的引裂きエネルギー ( $G_0$ )<sup>8)</sup> に比べて2~3桁高い値になることがわかった。このことに着目したAndrews<sup>9)</sup>は架橋ゴムのもつ粘弾性効果が、正確には言えば大変形に伴うヒステリシスロス発現が架橋ゴムの  $G_0$  値を桁違いに増大させることを (3) 式によって理論的に導いた。

$$G_c = \Phi G_0 \quad (3)$$

ここでロス関数と呼ばれる係数  $\Phi [= \Phi(T, V, \epsilon), V$  は速度] はヒステリシス比と正相関の関係にある。つまり  $G_c$  が  $G_0$  より2~3桁大きいということは  $\Phi = 10^2 \sim 10^3$  ということであり、(3) 式は実験的<sup>10)</sup>にも証明された。

一方、Fukahori & Andrew<sup>11)</sup>は架橋ゴムの破断面の凹凸が他の材料に比べて非常に大きいことに着目し、ゴムの破壊進行過程 (破断面形成) のメカニズムを提出した。従来の破壊力学では亀裂 (主クラック) のみに着目し亀裂は引張りと直行方向に直線的に進む (その結果、完全な鏡面の破断面が形成される) と考えたのに対し、彼らは引張り応力場の中を主クラックが進むときその前方に点在する潜在欠陥も主クラックの応力場の影響を受けて二次クラック

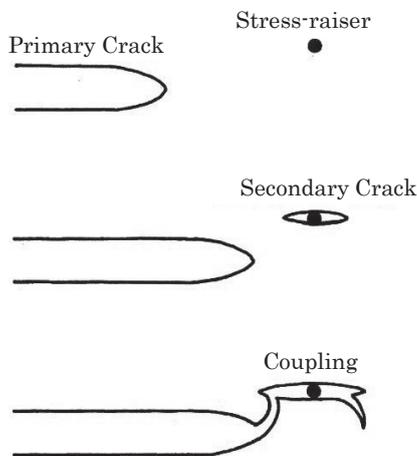


図3 主クラック (亀裂) と成長した二次クラックの合体による破断面凹凸形成の模式図<sup>11)</sup>; なお Stress raiser は潜在欠陥の意味

(3)

に成長しているはずと考えた。その結果、主クラックは単独に進むのではなくこれらの二次クラック群と合体しながら進むため、破断面に凹凸が形成されると捉えた (図3)。その際、破断面の凹凸深さを  $\Delta D$  とすれば、 $\Delta D$  は主クラックや二次クラックの大きさ  $c_1, c_2$  やひずみエネルギー  $W$  が大きくなるほど、またロス関数  $\Phi$  が小さいほど大きくなるとして (4) 式を導き、これを実験的に証明した。  $k$  は定数。

$$\Delta D = kc_1c_2W / (\Phi G_0) \quad (4)$$

### 3. 架橋ゴムのガラス転移域付近で起こる速度ジャンプ

さて破壊力学の復習を一応終了し、ここから本稿の主題に入りたい。例えばタイヤ、防振ゴム、免震ゴムなどのゴム製品が実際に受ける変形速度は10 m/secのオーダーである。ところが市販試験機の引張り速度は  $(1 \sim 10) \times 10^{-3}$  m/secであり、そのような低速で得られる一般的な破壊データと製品で起こる実際の破壊の対応性は常に問題視されてきた。

今から半世紀以上も前にGreensmith<sup>12, 13)</sup>は手製の装置を駆使して低速から高速に至る幅広い変形速度での架橋ゴムの引裂き破壊挙動を調べた。図4は入力であるひずみエネルギー解放率  $G$  を変化させたとき、亀裂成長速度  $R$  がどのように変化するかを示した模式図である。  $G$  の小さい領域Aでは  $G$  の増加に伴い  $R$  は単調に増加し破断面は非常に凹凸の激しいものであった。  $G$  の大きい領域Cでも  $R$  は  $G$  に伴って単調に増加するが、破断面は非常に滑らかなであった。問題は領域Aと領域Cの間に領域Bが存在し、亀裂成長はスティックスリップ的変動 (鋸歯状の応力変動) を伴っており、破断面には凹凸の激しい所と滑らかな所が混在していた。そこでスティックスリップ変動域では平均の  $G$  値を用いると図4のような  $\log G \sim \log R$  曲線が得られ、領域Bは一定の  $G$  値に対して亀裂成長速度  $R$  が突然、急激に増加する“速度ジャンプ現象”と報告された。

当時、この現象は非常に注目されさまざまな方面から研

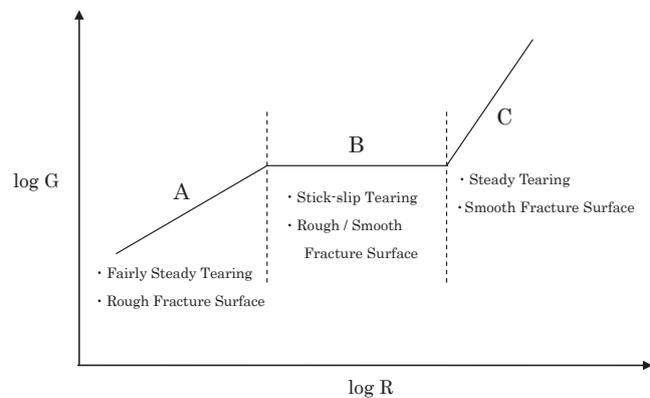


図4 3領域に区分されたひずみエネルギー解放率  $G$  の引裂き速度  $R$  依存性 (模式図)<sup>12)</sup>

3

究<sup>14-16)</sup>されたが、結局、その本質に迫ることは出来なかった。それでも Kadir & Thomas<sup>17)</sup> は図4の領域Cはガラス転移温度に密接に関係し、ガラス転移温度が低いゴムほど領域Cは高速度側にシフトすることを示した。Tsunodaら<sup>18)</sup> はヒステリシスロスの小さい高架橋密度ゴムや良溶媒で膨潤させたゴムでは図4の  $\log G \sim \log R$  曲線における平坦領域Bの幅が狭く  $G$  値も低下し、架橋度や膨潤度を非常に高くしたゴムではほとんど領域Bが消失することを報告した。Sakulkaewら<sup>19)</sup> も架橋やカーボンブラック充填効果を確認した。最近、Fukahori, Sakulkaew & Busfieldは上記の現象が架橋ゴムのガラス転移点(ガラス転位速度)付近で現れる破壊の転移現象として「弾性-粘性転移」と命名<sup>20)</sup> し、その実態と物理像<sup>21)</sup> を明らかにした。そこで本稿ではこれ以降、Fukahori, Sakulkaew & Busfieldの研究<sup>20, 21)</sup> を中心に話を進めたい。

#### 4. 弾性-粘性転移と速度ジャンプの実態

##### 4.1 亀裂先端で起こる弾性-粘性転移と速度ジャンプ

速度ジャンプ現象を詳細に調べるために新たに作成した装置は、重量物が自然落下する時の加速度効果を利用する落垂試験機(図5)であり、落下距離を変えることによって高速破壊を実現した。この試験機でズボン型の切り欠き(亀裂)を入れた試験片を引き裂いたときに発生する力(応力)の変動を時間に対して記録した曲線の模式図が図6である。図6で最初の亀裂成長が発生するのは鋸歯状曲線の最初の頂点部であり、破壊が起こるとひずみエネルギーが解放され応力が低下する様子を示している。

この力~時間曲線から亀裂開始時のひずみエネルギー解放率  $G_{tip}$  と  $G$  の変化速度  $\dot{G}$  ( $= dG/dt$ ) を直接求めると、これらの値は亀裂先端で起こった直接的なひずみエネルギー解放率と亀裂成長速度を表している。なお、 $\dot{G}$  は亀裂成長速度そのものではないが  $G$  が亀裂長  $c$  の関数なので容易に亀裂成長速度 ( $dc/dt$ ) に変換できる。こうして得られた  $G_{tip}$  と  $\dot{G}$  は、従来の測定で得られた  $G$  と  $R$  (図4) が破壊時の平均的なひずみエネルギー解放率と平均的な破壊速度であるのに対し、亀裂先端で起こる個々の破壊条件に対応し

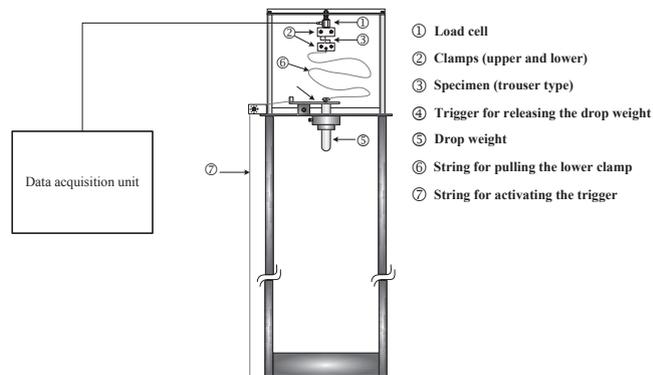


図5 重量物が自然落下する時の加速度効果を利用する落垂試験機<sup>20)</sup>

ている。

さて架橋ゴムにおいてゴムの破壊と強度を支配する最大の因子はヒステリシスロスであることは前に見た通りである。そこでこの実験に用いた材料はヒステリシスロスを大幅に変化させるために、未充填のSBRとNRに対して各々、架橋度小 ( $S = 2.5$  phr 配合) と架橋度大 ( $S = 7$  phr) を用意し、同様にHAFカーボンブラック 50 phr 充填のSBRとNRにも架橋度小と大を組み合わせ、合計8種類の配合ゴムを用意した。図7はSBR系について、未充填SBR (SBR0) とHAFカーボン充填SBR (SBR50) で、架橋密度小 ( $S1$ ) と架橋密度大 ( $S3$ ) の組み合わせさせた4種類の配合ゴムの  $G_{tip}$  と  $\dot{G}$  の関係を示す。図7には図4に対応する3つの領域 I, II, IIIが見られ、一点鎖線と実線でその境界が示されている。図からわかるように、高ヒステリシスロスの低架橋密度組成物やカーボンブラック充填ゴムでは領域II (平坦域) の  $G_{tip}$  の値が高く、 $\dot{G}$  軸上の幅が広い。

一方、図8はNR系の場合であり、SBR系と同一の傾向を示している。ただしSBR系と違って、NR系では領域IV (2つの一点鎖線 (A), (B) 間に挟まれた領域) が新たに現れ、低速度領域 I の  $G_{tip}$  を高上げしている。これはNRの伸

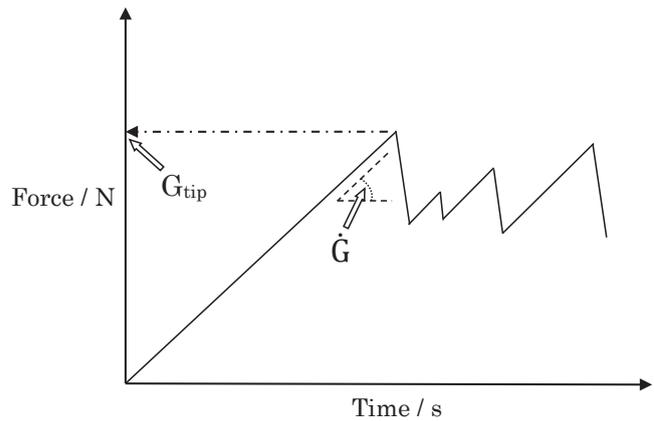


図6 力~時間曲線から亀裂成長開始時のひずみエネルギー解放率  $G_{tip}$  と  $\dot{G}$  ( $= dG/dt$ ) の求め方<sup>20)</sup>

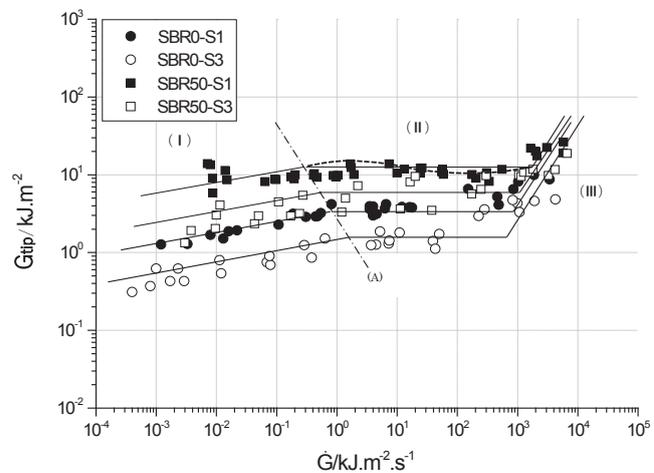


図7 4種類のSBR系ゴムの亀裂先端における  $G_{tip} \sim \dot{G}$  の関係と3つの領域の出現<sup>21)</sup>

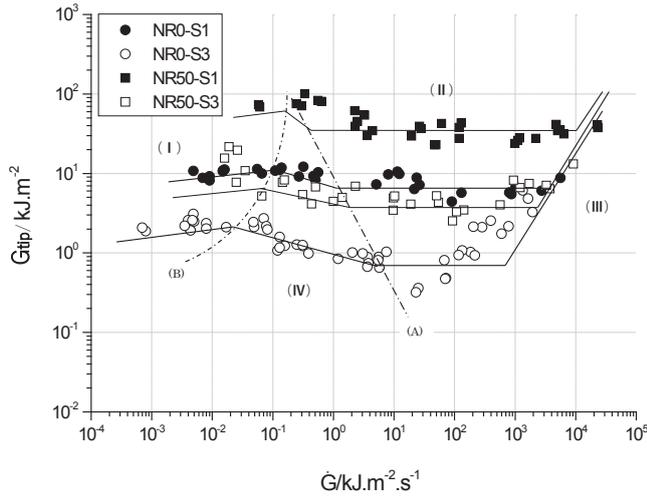


図8 4種類のNR系ゴムの亀裂先端における  $G_{tip} \sim \dot{G}$  の関係と4つの領域の出現<sup>21)</sup>

長結晶化の影響と思われる、結晶化時間が不足する高速度域では現れないが低速度域になるとその効果が加算して現れ、また伸張結晶化は材料を高ヒステリシス化するので  $G_{tip}$  を増加させていると考えたい。そこでこれらを総合して、図9に示すような「弾性-粘性転移図」(伸長結晶性ゴムは除外)を提出した。ただしここでは  $G_{tip}$  と  $\dot{G}$  を一般的な表現に改めて、亀裂先端で起こるひずみエネルギー解放率  $G_{tip}$  と亀裂成長速度  $R_{tip}$  に統一し  $\log G_{tip} \sim \log R_{tip}$  線図としている。

なお、図7、図8を詳細に見ると領域IIは完全に平坦ではなく、 $\dot{G}$  の増加に伴い最初は  $G_{crit}$  がやや増加した後に緩やかに低下(負勾配)し、再び増加する傾向がある。その一例をSBR50-S1のケースのみに点線で示しており、図9のNR系ではその傾向が著しいように見える。このことは後編で取り上げるが、ここではそれを無視して領域IIは平坦とする。

#### 4.2 $\log G_{tip} \sim \log R_{tip}$ 線図の特徴

そこで図9に従って架橋ゴムの弾性-粘性転移の概念を考えてみたい。架橋されたゴム(ここでは伸長結晶の影響を除く)ではガラス転位点(ガラス転位速度  $R_g$ ) 付近でそのゴムの粘弾性特性に応じて3つの領域が出現する。まず、ひずみエネルギー解放率  $G_{tip}$  が非常に小さく、亀裂成長速度  $R_{tip}$  も非常に遅い弾性域Iでは破壊様式は弾性的、脆性的応答を示す。逆に  $G_{tip}$  が非常に大きく  $R_{tip}$  も速い粘性域IIIでは破壊は粘性的、延性的になる。さらに、弾性域Iと粘性域IIIの間に材料の粘弾性特性の大きさに応じて平坦な転移域IIが出現し、その破壊様式はIとIIIの混合体になる。

転移域IIの  $G_{tip}$  の高さや  $R_{tip}$  軸上の平坦域の幅はゴムの粘性(ヒステリシスロス  $\Phi$ ) の大きさに依存し、高ロス体ほど  $G_{tip}$  が高く転移域の幅が広がる。図9の  $\Phi \gg 1$  がそのケースであり、カーボンブラック充填ゴムや非常に低架橋密度ゴムが含まれる。一方、ほとんど粘性効果を含まない理論

的引裂きエネルギー  $G_0$  をもつ(それでも高分子鎖としての分子間力や絡み合いを含む)架橋ゴム ( $\Phi = 1$ ) では転移域IIが現れず、弾性域Iから直接、粘性域IIIへ移る。それ以外の一般的な架橋ゴムは図9の  $\Phi > 1$  のケースに該当する。なお、理論的な完全弾性体であれば亀裂成長速度は無限大になり、 $\log G_{tip} \sim \log R_{tip}$  線図上では  $\log R_{tip}$  軸に平行な直線になるはずであるが、どのような材料にも分子間力が働くために若干の勾配を持った直線(点線)になる。

転移域IIにおける  $G_{tip}$  の高さや  $R_{tip}$  軸上の幅はゴムの粘性( $\Phi$ ) の大きさに依存するために  $\log G_{tip} \sim \log R_{tip}$  線図は上に広がるV字型曲線を描く。このV字形状は転移域で起こるスティックスリップと密接に関係しているが(後編で取り上げる)、ここでは単純に  $R_{tip}$  軸上の幅は  $\tan \delta$  の温度軸、速度軸上の幅に比例していると考えていただきたい。図10<sup>22)</sup> はカーボンブラック充填に伴う  $\tan \delta$  の変化を示しており、充填量が増加(粘性効果増大)するほどガラス転移域付近の速度軸上の  $\tan \delta$  の幅が増加する様子がわかる。 $\log G_{tip} \sim \log R_{tip}$  線図におけるカーボンブラック充填効果は

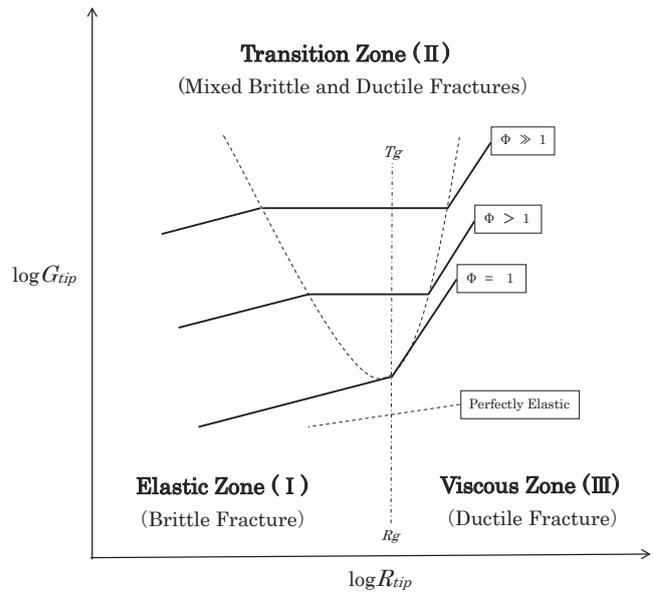


図9 架橋ゴムの亀裂先端で起こる破壊の「弾性-粘性転移図」<sup>21)</sup>; ただし一般的な表現として  $\dot{G}$  を亀裂成長速度  $R_{tip}$  に書き改めている

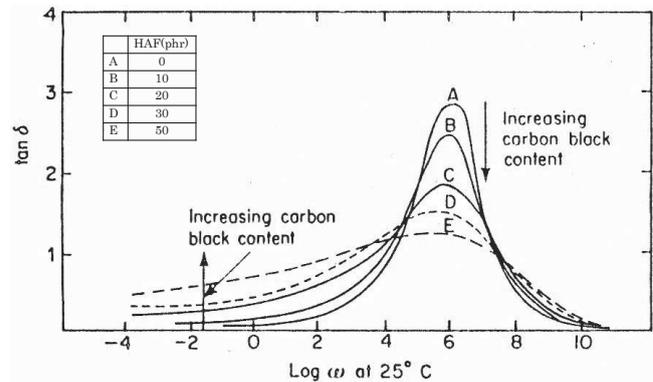


図10 HAFカーボン充填NRにおける  $\tan \delta$  の変化<sup>22)</sup>

このことを反映している。

図9の  $\log G_{tip} \sim \log R_{tip}$  線図で今1つ重要なことは領域Iと領域IIIにおける直線の勾配であり、図7、図8よりこの2つの領域で各々、 $\log G_{tip}$  と  $\log R_{tip}$  の間に (5) 式が成り立つ。

$$G_{tip} = R_{tip}^n \quad (5)$$

$n$  値に関し領域Iでは  $n_I \approx 1/6$ 、領域IIIでは  $n_{III} \approx 5/4$  であり、概略、 $n_{III}/n_I = 7$  が成り立つ。これは亀裂成長に必要な入力(ひずみエネルギー解放率)が領域Iに比べると領域IIIでははるかに大きいことを示しており、ガラス状態ではゴム状態に比べて格段に亀裂成長が起こりにくいことを意味している。このことは弾性-粘性転移と速度ジャンプを考える上で極めて重要であり、後編で詳しく議論する。

### 5. 弾性-粘性転移で起こる破壊挙動の変化

#### 5.1 弾性-粘性転移に伴う破断面の変化

上に述べたように弾性-粘性転移では転移域を境にして2つの破壊挙動の変化が現れるが、その1つは破壊様式の変化である。図11に示す破断面写真(SEM)はSBR系配合ゴムであり、図11(a)は最も  $\Phi$  の小さい未充填高架橋密度ゴム(SBR0-S3)、図11(b)が中程度の  $\Phi$  である未充填の低架橋密度ゴム(SBR0-S1)、図11(c)が最も  $\Phi$  の大きいカーボンブラック充填ゴム(SBR50-S1)である。ここでは破断面凹凸度( $\Delta D$ )と  $\Phi$  の関係が明瞭に見られ、I、II、IIIの各々の領域を通して  $\Phi$  の大きい配合物ほど破断面凹凸が小さくなる。

一方、これらの破断面を同一材料で比較すると、どの配

合ゴムでも(カーボンブラック充填ゴムでは不明瞭ではあるが)弾性的な応答を示す( $\Phi$ の小さい)弾性域Iの破断面は凹凸の激しい脆性破面であり、粘性的な応答を示す( $\Phi$ の大きい)粘性域IIIの破断面は凹凸の小さい滑らかな延性的な破面になっている。その中間の転移域IIの破断面は弾性域と粘性域の両破断面の混合体とみなしてよい。

#### 5.2 転移域IIで発生するスティックスリップ振動

弾性-粘性転移で起こる今1つの破壊挙動の変化とは、弾

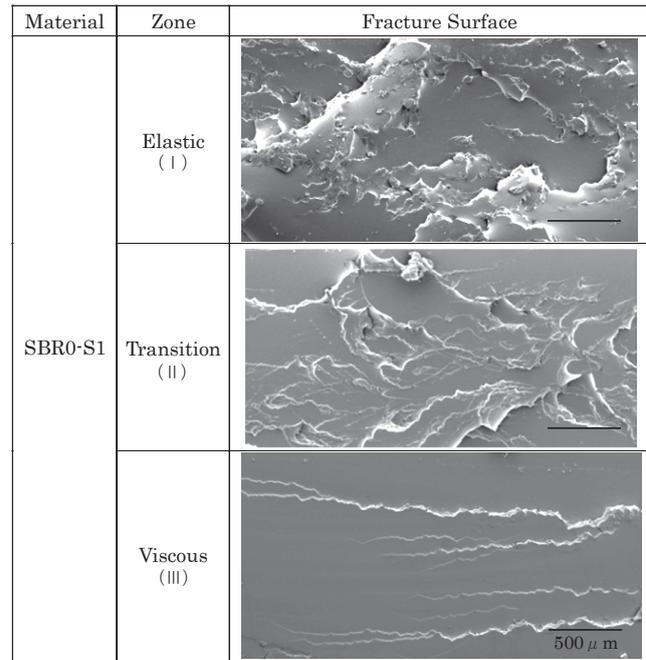


図11(b) 中程度の  $\Phi$  である未充填低架橋密度SBR (SBR0-S1) の破断面<sup>20)</sup>

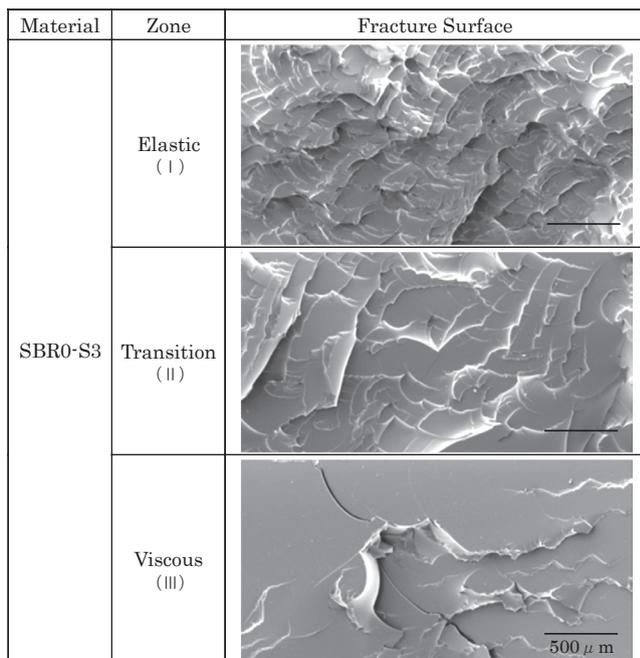


図11(a)  $\Phi$  の最も小さい未充填高架橋密度SBR (SBR0-S3) の3つの領域 (I, II, III) における破断面 (SEM) <sup>20)</sup>

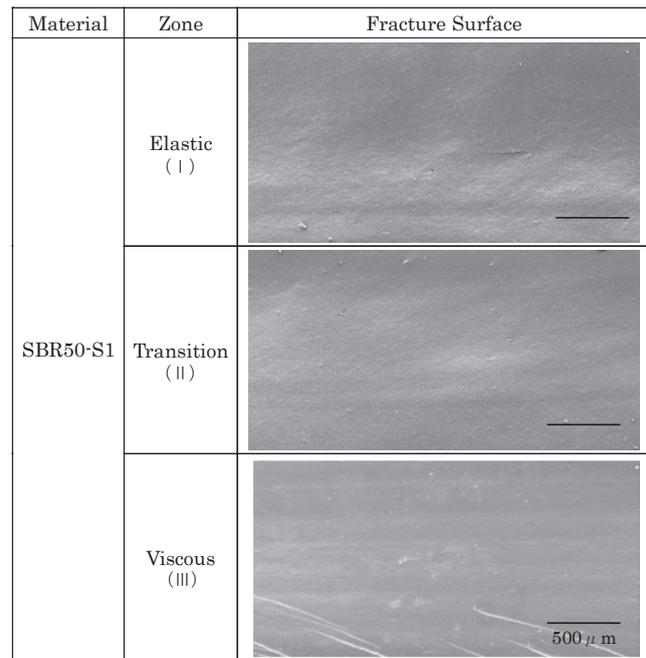


図11(c)  $\Phi$  の最も大きいカーボンブラック充填SBR (SBR50-S1) の破断面<sup>20)</sup>

性域Ⅰや粘性域Ⅲでは入力 $G_{tip}$ に対して亀裂成長速度 $R_{tip}$ は安定で単調に増加する(図9, (5)式)のに対し, 転移域Ⅱでは亀裂成長時の応力(したがって $G_{tip}$ )が不安定なスティックスリップ変動を伴っている点である. 図12(a)は未充填NR0-S1と未充填NR0-S3における亀裂進展に伴う応力変動を3つの領域に分けて記録したものである. 弾性域Ⅰでも鋸刃状の応力変動が見られるが, その周期は数百~千秒のオーダーであり, 一般の実験室測定ではこのような長周期は測定されない. 一方, 粘性域Ⅲでは周期的変動は起こらないと考えてよい.

図12(b)は未充填SBR0-S1と未充填SBR0-S3に関するものであるが, 図12(a)とほぼ類似の現象が起こっていると見てよい. いずれのゴム組成物でも弾性域Ⅰと粘性域Ⅲの中間の転移域Ⅱでは周期が0.1~0.2秒(5~10 Hz)の明瞭な周期的(スティックスリップ的)応力変動が現れる. つまり転移域Ⅱに入ると突然, 系が大幅に不安定になって

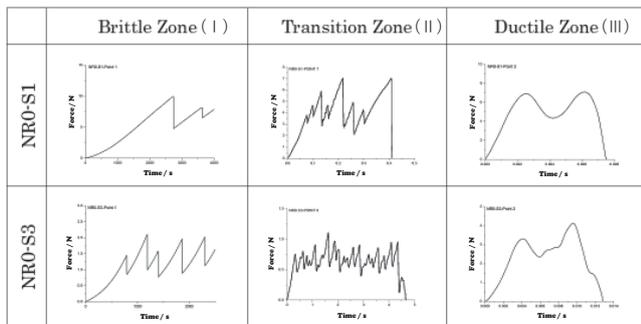


図12(a) 未充填NR0-S1, 未充填NR0-S3で亀裂進展に伴って発生する応力変動(スティックスリップ振動)を3つの領域(Ⅰ, Ⅱ, Ⅲ)に分けて記録したもの<sup>20)</sup>

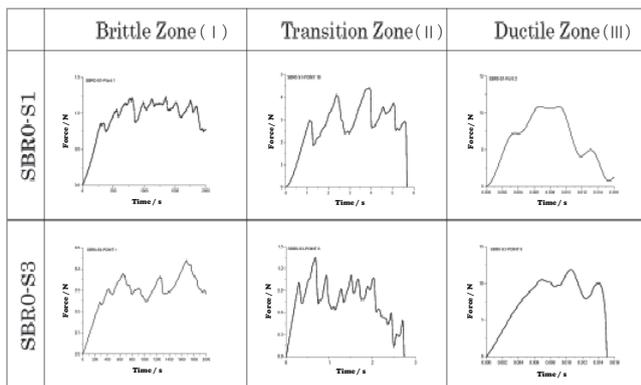


図12(b) 未充填SBR0-S1, 未充填SBR0-S3で発生する3つの領域における応力変動<sup>20)</sup>



深堀 美英: ロンドン大学クイーンメリーカレッジ, Visiting Academic Staff, 工博 (PhD). 1970年, 九州大学工学部応用化学科修士卒, 1970年~2003年, (株)ブリヂストン, (株)一条工務店, 1974年~1976年, ロンドン大学留学, PhD取得. 2003年~2010年, ロンドン大学客員教授, 2011年より現職. 専門は, 高分子物性, 高分子の破壊力学, 免震技術. 日本ゴム協会エラストマーの補強分科会主査.

応力が周期的に変動することを示している. ここで面白いことには, 転移域Ⅱでは明瞭なスティックスリップ振動が発生(図12)しているにもかかわらず, その破断面(図11)にはスティックスリップ的破壊を示すストライエーション(周期的条線)が全く見られないことである. いずれにせよ, 転移域Ⅱにおけるスティックスリップ振動の発生は弾性-粘性転移における速度ジャンプを理解するのに決定的な重要性をもっており, 破断面形成とともに後編で詳しく議論する.

References

- 1) Inglis, C.E.: Trans. Instn. Nav. Archit., **55**, 219 (1913)
- 2) Griffith, A.A.: Phil. Tran. Roy. Soc., **A221**, 163 (1921)
- 3) Rivlin, R.S.; Thomas, A.G.: J. Polym. Sci., **10**, 291 (1953)
- 4) Thomas, A.G.: J. Polym. Sci., **18**, 177 (1955)
- 5) Greensmith, H.W.; Thomas, A.G.: J. Polym. Sci., **18**, 189 (1955)
- 6) Mullins, L.: Trans. Inst. Rubber Ind., **35**, 213 (1959)
- 7) Lake, G.J.; Lindley, P.B.: J. Appl. Polym. Sci., **9**, 1223 (1965)
- 8) Lake, G.J.; Thomas, A.G.: Proc. Roy. Soc., 300, 108 (1967)
- 9) Andrews, E.H.: J. Mater. Sci. **9**, 887 (1974)
- 10) Andrews, E.H.; Fukahori, Y.: J. Mater. Sci. **12**, 1307 (1977)
- 11) Fukahori, Y.; Andrews, E.H.: J. Mater. Sci. **13**, 777 (1978)
- 12) Greensmith, H.W.: J. Polym. Sci. **21**, 175 (1956)
- 13) Greensmith, H.W.: J. Appl. Polym. Sci., **7**, 993 (1963)
- 14) Thomas, A.G.: J. Appl. Polym. Sci., **3**, 168 (1960)
- 15) Wolock, I.; Newman, S.B.: "Fracture Process in polymeric Solids", Rosen Wiley, (1964)
- 16) Gent, A.N.: J. Mater. Sci., **5**, 925 (1970)
- 17) Kadir, A.; Thomas, A.G.: Rubber Chem. Tech.: **54**, 15 (1981)
- 18) Tsunoda, K.; Busfield, J.J.C.; Davies, C.K.L.; Thomas, A.G.: J. Mater. Sci., **35**, 5187 (2000)
- 19) Sakulaew, K.; Thomas, A.G.; Busfield, J.J.C.: Polymer Test., **30**, 163 (2010)
- 20) Fukahori, Y.; Sakulaew, K.; Busfield, J.J.C.: Polymer: **54**, 1905 (2013)
- 21) Fukahori, Y.; Sakulaew, K.; Busfield, J.J.C.: Polymer **125**, 30 (2017)
- 22) Payne, A.R.: "Use of Rubber in Engineering" (1966), Ed. by Allen, P.W.; Lindley, P.B.; Payne, A.R., Maclaren and Sons, London, p25



SAKULKAEW, Kartpan : Department of Science Service, Physics and Engineering Programme (Rama 6 Road, Rachathewi, Bangkok 10400, THAILAND), Senior Scientist, PhD. Personal Career: 2013, graduated from a PhD course of Queen Mary, University of London. Fields of Specialty: Characterization of rubber materials, Fracture of rubbers



BUSFIELD, James J.C.: School of Engineering and Materials Science, Queen Mary, University of London (London, E1 4NS, UK), Professor, PhD. Personal Career : 1989, graduated from a master course of Oxford University 2000, graduated from a PhD course of Queen Mary, University of London. Fields of Specialty: Rubber physics and engineering, Fracture mechanics of rubbers, Modeling of reinforced composites.