

高密度ポリエチレンの粘塑性変形*

(ひずみ速度と温度の影響について)

廣江哲幸^{*1}, 松尾日出男^{*2}, 藤原和人^{*2}
宮田政信^{*2}, 柴田陽介^{*3}, 酒井憲司^{*3}

Viscoplastic Deformation of High-Density Polyethylene (The Influence of Temperature on the Strain Rate Effect)

Tetsuyuki HIROE, Hideo MATSUO, Kazuhito FUJIWARA,
Masanobu MIYATA, Yohsuke SIBATA and Kenji SAKAI

Monotonic compressive loading tests and relaxation tests are conducted on high-density polyethylene (HD-PE) at the strain rates of 1.1×10^{-1} to $1.1 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ and temperatures of 10, 25 and 40°C. The observed stress-strain responses are similar to those for steels at elevated temperature. The material constants of the viscoplasticity model based on overstress is determined for HD-PE at every temperature and the model is shown to successfully simulate such rate-dependent phenomena numerically. The examination of the stress-strain curves suggests that the strain-rate and temperature effects on the deformation curves can be expressed using a unified parameter. The viscoplastic behavior observed in the strain-rate cycling test at 25°C is reproduced in the similar test at 40°C designed for this parameter, and the phenomenon is verified in the numerical experiment by the overstress model.

Key Words: High Polymer Materials, Inelasticity, Constitutive Equation, Strain Rate Effect, Temperature Effect

1. 緒 言

近年、高密度の結晶性高分子材料は、機械・構造部材の軽量化を図るために、ある程度の強度を必要とする部材材料としても用途を広げている。しかし高分子材料の強度に係わる機械的性質についての研究は、金属材料等、既存の構造材料に比べて不十分である。特に、常温域での時間依存性変形(粘塑性変形)は、高分子材料に特徴的に見られる現象であり、実験による現象究明と応力-ひずみ関係式(構成式)モデルの研究は今後の重要なテーマとなっている。

北川ら^{(1)~(4)}は、最近、種々の高分子材料を対象に、構成式の構築を念頭に置いた初めての精密な応力-ひずみの計測・実験を行っており、一部、過大応力(overstress)モデルによる数値シミュレーションも試みている。このKremplらによって提案された粘塑性モデル⁽⁵⁾⁽⁶⁾については、廣江ら^{(7)~(9)}によって室温から高温クリープ域までの鋼材の非弾性変形挙動解析に拡張・適用されているが、このモデルが全ひずみで表現され、

また過大応力という直感的にわかりやすい関数に基づいているため、高分子材料のように新しく構成式を検討する場合に適していると考えられる。

本研究は、このような高分子材料の構成式構築のための基礎研究の一環として、高密度ポリエチレンを対象に、そのひずみ速度効果への温度の影響について検討した。高分子材料の応力-ひずみ曲線の温度依存性についてはポリプロピレンを対象とした研究⁽²⁾があるが、本研究では、特にひずみ速度効果と温度の影響との類似性に着目して実験と数値解析を行った。

2. 実験方法

供試材は市販の高密度ポリエチレン(サンプラテック社製: HD-PE)丸棒材(30 mmφ)を使用した。試験片は直径 20 mm、高さ 30 mm の円柱形とし棒材の軸方向に合わせて加工した。加工後、70°C × 2 時間の熱処理を行ったが未処理材と比べ形状変化やその後の応力-ひずみ実験結果で有意差はみられなかった。荷重負荷はコンピュータ制御の油圧サーボ試験機(MTS 製 10 t)を用い、各種の圧縮実験を行った。また実験中、試験片の温度を一定に保持するために試験機に恒温水槽を取付けて実験した(HD-PE の吸水率は無視できる)。本実験条件において水槽中の温度は ±1°C 以内で

* 原稿受付 平成6年8月1日。

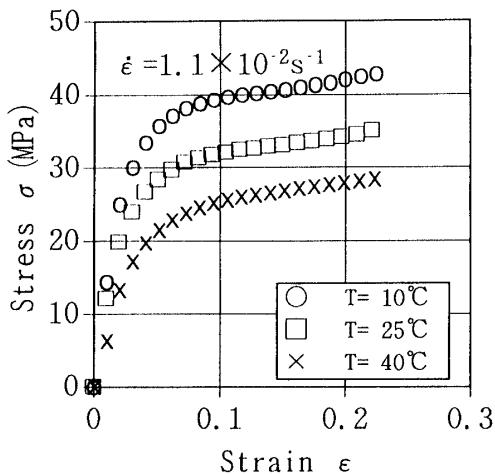
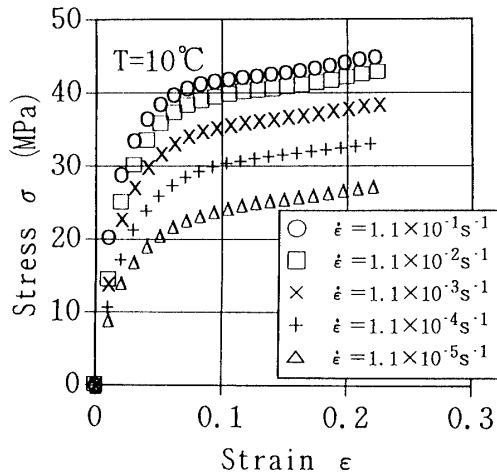
*1 正員、熊本大学工学部(☎860 熊本市黒髪2-39-1)。

*2 熊本大学工学部。

*3 熊本大学工学部大学院。

表 1 実験条件

Tests		Temperature (°C)	Loading Conditions	
			Strain Rate (s ⁻¹)	Strain-Time Diagram
Basic Tests	Monotonic Compression Test (Test A)	10	1.1×10 ⁻¹ 1.1×10 ⁻² 1.1×10 ⁻³ 1.1×10 ⁻⁴ 1.1×10 ⁻⁵	
	Relaxation Test (Test B)	25 40	1.1×10 ⁻²	
Strain-Rate Cycling Tests (Test C)	Test C1A (①②①)	25	① 1.1×10 ⁻³ ② 1.1×10 ⁻⁵	
	Test C1B (②①②)			
Strain-Rate Cycling Tests (Test C)	Test C2A (①②①)	40	① 3.48×10 ⁻² ② 3.48×10 ⁻⁴	
	Test C2B (②①②)			

図 1 定ひずみ速度負荷応答への温度の影響
($\dot{\epsilon} : 1.1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$, Test A)図 2 定ひずみ速度負荷応答へのひずみ速度値の影響
($T : 10^\circ\text{C}$, Test A)

保持できた。実験温度は通常の使用環境範囲内の 10°C , 25°C , 40°C の 3 種類とした。表 1 に本研究で実施した実験(圧縮実験)の条件を示す。基礎試験として単調負荷の定ひずみ速度実験(ひずみ速度: 5 種類)とリラクゼーション試験を行った。これらのデータから構成式モデルの設定ができる。応用実験としては圧縮負荷の途中でひずみ速度を周期的に変動させる実験を 25°C と 40°C で行っている。 40°C での実験は 25°C の応力-ひずみ挙動の再現を試みている。

本実験における応力-ひずみは圧縮を正値としているが、ひずみ ϵ は公称ひずみ ϵ_n が適用できる微少ひずみ域を越しているため次の対数ひずみで表した。

$$\epsilon = \ln\{1/(1-\epsilon_n)\} \quad \dots \dots \dots (1)$$

また応力 σ についても断面積の変化が無視できないため体積一定を仮定した次式によって真応力を算出した(P : 荷重, A_0 : 初期断面積)。

$$\sigma = P(1 - \epsilon_n)/A_0 \quad \dots \dots \dots (2)$$

試験片はひずみが大きくなると若干樽形形状を示すようになるがこの影響は無視し平均的な応力-ひずみで評価を行った。また本報においてひずみ制御と称している実験はアクチュエータ間の変位制御実験であり、対数ひずみ表示では厳密なひずみ制御とは言えないが特に区別しなかった(ひずみ速度値は最大対数ひずみ値を時間で除した値を採用している)。

3. 基礎実験結果と粘塑性モデルの設定

3・1 実験結果 定ひずみ速度単調圧縮実験(Test A)での応力-ひずみ結果は鋼材の高温クリープ域での挙動^{(7)~(9)}と類似している。図 1 はひずみ速度 $1.1 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ における負荷応答を 3 種類の実験温度で比較している。通常の使用温度域であるが変形に与える温度の影響が著しく、この範囲では温度の上昇度合

にはほぼ比例して応力レベルが低下していることがわかる。図2は定ひずみ速度圧縮応答曲線へのひずみ速度値(1.1×10^{-1} ~ $1.1 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$)の影響を調べた 10°C における実験結果を示す。ひずみ速度が大きくなると変形抵抗が増大するひずみ速度効果が明らかに認められるが、本実験範囲では鋼材の場合⁽⁹⁾のように実験温度(室温~ 600°C)によってこの効果が顕著に変化することはなかった。これらの基本的粘塑性挙動は鋼材の高温非弾性挙動動析で用いてきた構成式モデルがHD-PEに対しても適用できる可能性を示している。本研究で検討を行う過大応力モデルでは、クリープまたはリラクゼーション実験におけるひずみまたは応力の静止点あるいは無限に低ひずみ速度における応力-ひずみ曲線として定義される平衡応力関数の存在を仮定している。図3はひずみ0.22における応力のリラクゼーション挙動の計測結果(Test B)を示している。各温度での緩和量は時間の経過とともに急速に減少しており、緩和停止応力の存在が推測される。しかし本報ではそれほど長時間の変化は対象としていないことから、便宜的に 10^4 s まで計測し 10^5 s に緩和曲線を外挿して得た応力値を平衡応力値とした。また応力-ひずみ図においてこの平衡応力点と原点とを通る平衡応力関数の曲線形は、関数の定義から定ひずみ速度実験における応力-ひずみ曲線と応力方向に相似であると考えられ、3・2節ではこの仮定に基づいて式設定を行っている。

3・2 粘塑性モデル 3・1節の実験結果から高分子材料であるHD-PEに対しても次式で表される過大応力モデルが設定できる見通しが得られた。

$$\dot{\epsilon} = \sigma/E + X/(E \cdot k[X, \epsilon]), \quad X = \sigma - g[\epsilon] \quad \dots \quad (3)$$

ここで E はヤング率、奇関数 g は平衡応力関数、 X

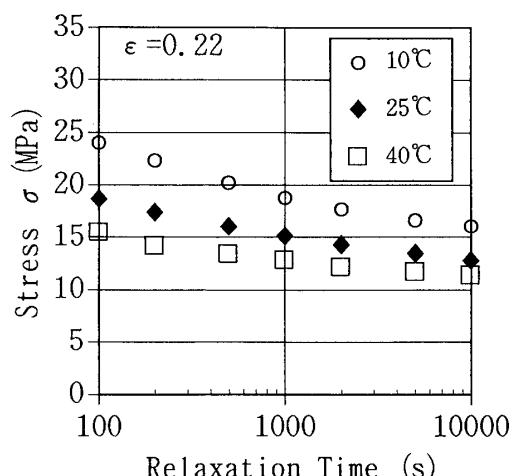


図3 応力緩和実験
($\epsilon : 0.22, T : 10, 25, 40^\circ\text{C}, \text{Test B}$)

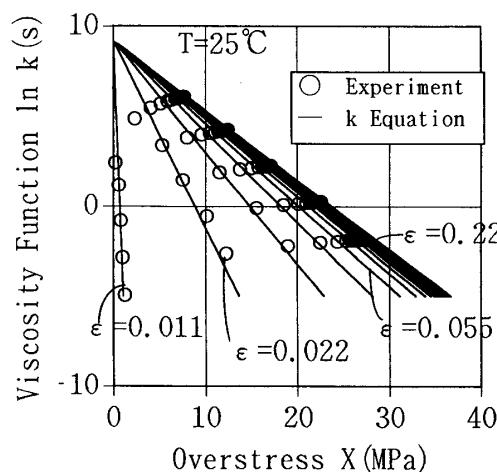
は過大応力、 k は粘性関数である。また $[]$ 内は関数の引数を、 \cdot は時間微分を示す。 E は高ひずみ速度実験での応力-ひずみ線図の初期こう配とし、 g は先に述べたようにリラクゼーション実験結果より推定した。 k 関数は式(3)を変形した次式に定ひずみ速度実験の応力-ひずみデータを用いて設定できる。

$$k = X / \{\dot{\epsilon}(E - d\sigma/d\epsilon)\} \dots \quad (4)$$

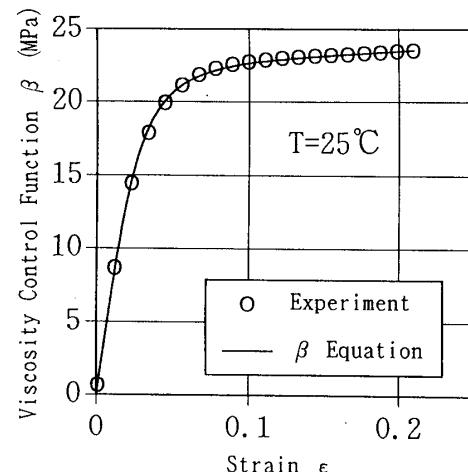
図4は 25°C における k 関数の設定を示している。図4(a)はひずみをパラメータに k と X とをプロットしたもので、鋼材の高温非弾性挙動⁽⁷⁾と同じく顕著なひずみ依存性が認められる。また同一ひずみに対する k の対数値と X とは一点を通るほぼ直線関係にあることがわかる。これらの直線の横軸切片とひずみの関係は図4(b)のように表されることから、これを粘性制御関数 $\beta[\epsilon]$ とすれば粘性制御関数は

$$k[X, \epsilon] = k[X, \beta[\epsilon]] \dots \quad (5)$$

となり、定式化できる。表2に過大応力モデルに用い



(a) 粘性関数 k と過大応力 $\sigma-g$ の関係



(b) 粘性制御関数 β とひずみ ϵ の関係

図4 粘性関数 k の設定例(25°C)

た g , k , β の各材料関数式を示す。 g , β の関数は、いずれも応力-ひずみ面上で、初期こう配直線から滑らかに離れ、次第に接線こう配直線に漸近する曲線であるとみなすことができ、この関係表示に適した関係式 [詳細は文献(10)参照]を用いた。この式はこれまで鋼材の構成式^{(5)~(9)}で用いてきた。 k の表示式は図 4 (a)をそのまま定式化したものである。また 10°C, 25°C, 40°C の各温度において上記の方法で設定したこれらの関数の定数値を表 3 にまとめて示した(表中の最右欄の値については後述する)。

表 2 粘塑性構成式における材料関数

Equilibrium Stress Function $g[\epsilon]$					
$g[\epsilon] = E_{tg} + (U_{1g} + U_{2g})B_g / (\xi_g - 2)$					where $U_{1g} = (\xi_g - 2) (U_g - V_g) (2 - \xi_g)$
$U_{2g} = (1 + U_g) (2 - \xi_g) - (1 + V_g) (2 - \xi_g)$					$U_g = R_{1g} + R_{og} \epsilon$, $V_g = R_{1g} - R_{og} \epsilon$
$B_g = G_{sg} / (2R_{1g})$					$R_{og} = (E_g - E_{tg}) / \{2B_g (1 - (1 + R_{1g}) (1 - \xi_g))\}$
Viscosity Function $k[\sigma - g[\epsilon], \beta[\epsilon]]$					
$k = A_0 \exp \{A_1 - (A_1 / (\beta[\epsilon] + D_0)) X\}$					where $X = \sigma - g[\epsilon]$
Viscosity Control Function $\beta[\epsilon]$					
$\beta[\epsilon] = E_{tc} + (U_{1c} + U_{2c})B_c / (\xi_c - 2)$					where $U_{1c} = (\xi_c - 2) (U_c - V_c) (2 - \xi_c)$
$U_{2c} = (1 + U_c) (2 - \xi_c) - (1 + V_c) (2 - \xi_c)$					$U_c = R_{1c} + R_{oc} \epsilon$, $V_c = R_{1c} - R_{oc} \epsilon$
$B_c = G_{sc} / (2R_{1c})$					$R_{oc} = (E_c - E_{tc}) / \{2B_c (1 - (1 + R_{1c}) (1 - \xi_c))\}$

表 3 粘塑性構成式モデルにおける材料定数

Material Function	Constants	Temperature T (°C)			Unified Parameter
		10	25	40	
g (MPa)	E_g (MPa)	418	298	219	219
	E_{tg} (MPa)	17.8	18.6	21.5	21.5
	G_{sg} (MPa)	10.0	8.04	5.33	5.33
	ξ_g	18	15	20	20
	R_{1g}	0.02	0.02	0.02	0.02
k (s)	A_0 (s)	12.4	9.04	8.85	16.7
	A_1	1.0	1.0	1.0	1.0
	D_0 (MPa)	1.0	1.0	1.0	0.82
β (MPa)	E_c (MPa)	986	775	436	1538
	E_{tc} (MPa)	8.69	6.40	3.89	6.37
	G_{sc} (MPa)	26.3	21.2	19.2	36.7
	ξ_c	8.0	8.0	11.0	7.0
	R_{1c}	0.2	0.2	0.2	0.2
Young's Modulus	E (MPa)	2100	1400	790	2100

4. 各種ひずみ速度実験結果と 数値シミュレーション

3 章で設定した構成式は定ひずみ速度実験結果とリラクゼーション実験結果を用いており、まずこれらの実験条件に対して数値シミュレーションを行った。図 5 は 25°Cにおける定ひずみ速度実験結果とシミュレーション結果を比較している。図中の破線は構成式モデルで設定した平衡応力関数を示している。数値解析結果はほぼ実験結果を再現しており、両者の差異は構成式の関数設定時の誤差であると考えられる。他の基礎実験に対してもシミュレーションは良好であった。

次に 25°Cにおけるひずみ速度変動実験(Test C 1 A, C 1 B)の結果とその数値シミュレーション結果を図 6 に示す。各々の実験では圧縮負荷の途中でひずみ速度

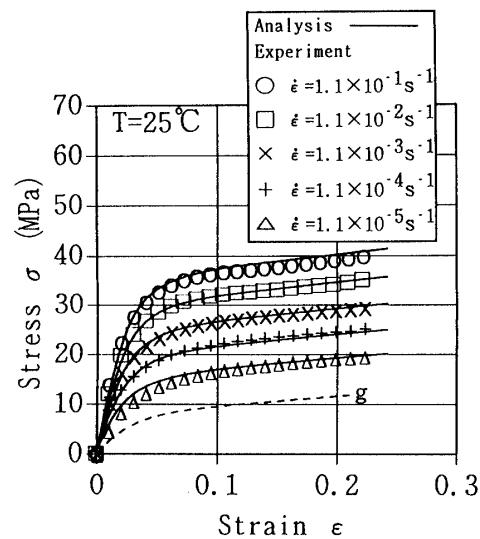


図 5 単調負荷応答の解析結果と実験結果
(T : 25°C, 破線: 平衡応力-ひずみ曲線)

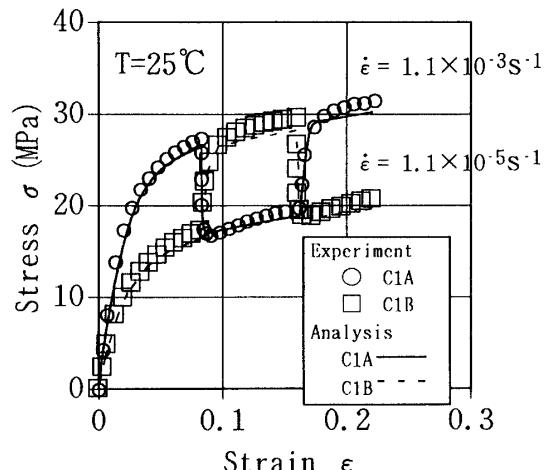


図 6 ひずみ速度変動実験の解析結果と実験結果
(T : 25°C, Test C 1 A, C 1 B)

を減少または増加させ再び元のひずみ速度に戻している。実験で得られた応力-ひずみ挙動はいずれも前の履歴に関係なく、ひずみ速度変動によって変動後のひずみ速度の定ひずみ速度実験の応力-ひずみ曲線に急速移行する挙動を示している。このモデルによる数値シミュレーション結果も応力レベルに若干の誤差があるものの実験結果と同じ応答挙動となっている。これは本研究で検討している“全ひずみと過大応力に基づく粘塑性モデル”的基本的な特性^{(5)～(7)}である。これらの結果から本構成式モデルは HD-PE の粘塑性解析に適していると考えられる。

5. 温度の影響に対する考察

5・1 統一パラメータの導出 3章で述べたように HD-PE の定ひずみ速度負荷応答の特徴として、本実験の温度範囲では温度上昇は応力レベルを低下させるだけで各温度によるひずみ速度効果の差異がほとんどなかった。5・1節では定ひずみ速度負荷応答に与えるひずみ速度効果と温度の影響についてさらに詳しく調べるために、まず図7では3温度、5ひずみ速度の15条件下におけるすべての応力-ひずみ曲線をプロットした。同一ひずみ速度の3本の曲線が、上から10°C, 25°C, 40°Cの順に並んでいる。本図から応力-ひずみ曲線はいずれも極めて類似しており、座標上的一点を通る曲線は1本であると考えてよいことがわかる。そこでこれらの応力-ひずみ曲線のパラメータであるひずみ速度と温度がさらに整理できないか検討を進め、具体的には図8のように両方の影響を表す単一パラメータの導出を試みた。図8(a)は各定ひずみ速度実験においてひずみ0.1での応力と温度の関係をプロットし

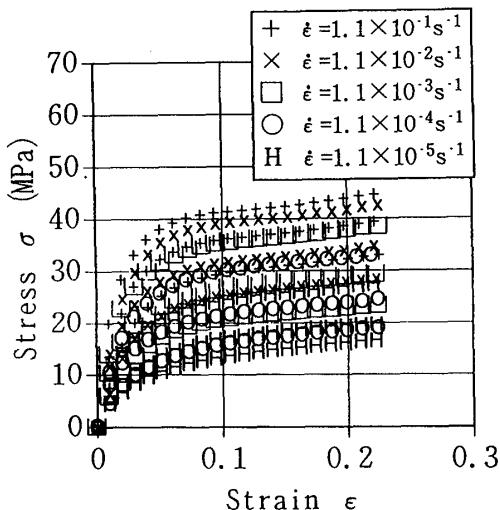
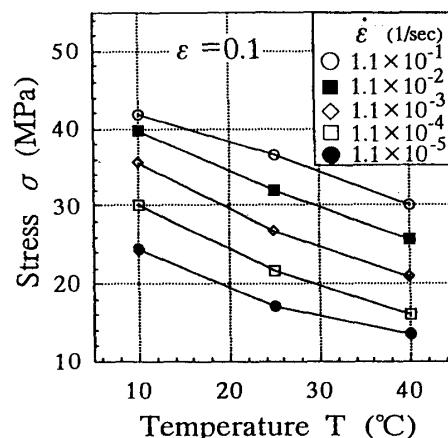


図 7 単調圧縮応答の全実験結果
 $(\dot{\epsilon} : 1.1 \times 10^{-1} \sim 1.1 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}, T : 10, 25, 40^\circ\text{C})$

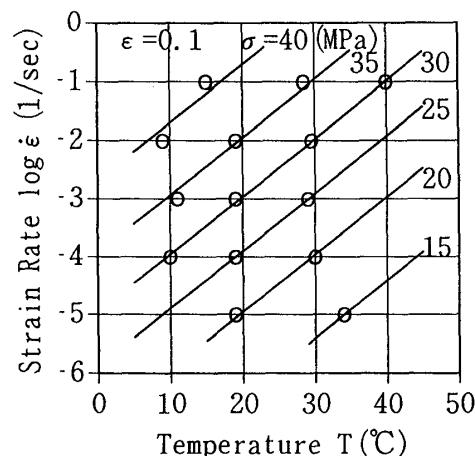
ている。この図から図 8 (b) のようにひずみ 0.1 に対して応力をパラメータとしたひずみ速度と温度の関係が得られる。各応力レベル σ に対する $\log \dot{\epsilon} [\text{s}^{-1}]$ と $T [\text{°C}]$ はいずれも直線関係にあることから定数 A , 関数 $f[\sigma]$ を含む次式が成立つ(ここで $A=0.1$)。

したがって次式で表される ε と T を含むパラメータ

を用いればこれはひずみ 0.1 における応力値 σ と対応する。そして他のひずみ値に対してもひずみ 0.1 と同じく $\log \dot{\epsilon}$ と T の関係は同じ傾きの直線となつた。このことと図 7 で述べた応力-ひずみ線図の特性から、結局、定ひずみ速度負荷応答に対する $\dot{\epsilon}$ と T の効果を单一のパラメータ P_u で表現できることになる。図 9 は統一パラメータ P_u の導出過程に順じて行ったデータ整理を示している。図 9(a) は、ひずみ 0.1



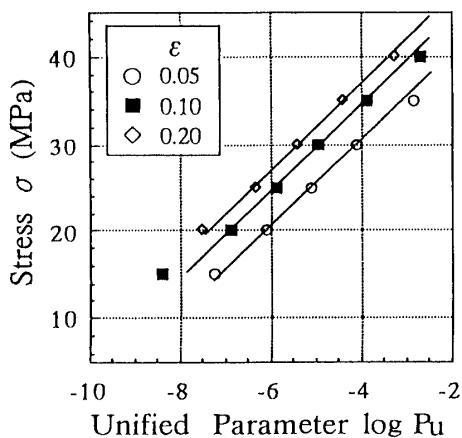
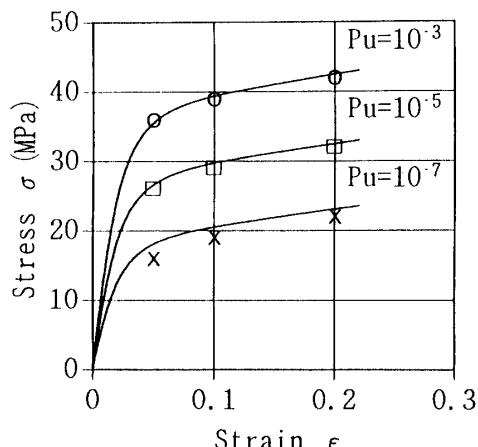
(a) 定ひずみ速度実験におけるひずみ 0.1 での応力と温度の関係



(b) 各応力値に対する 0.1 ひずみでのひずみ速度と温度の関係

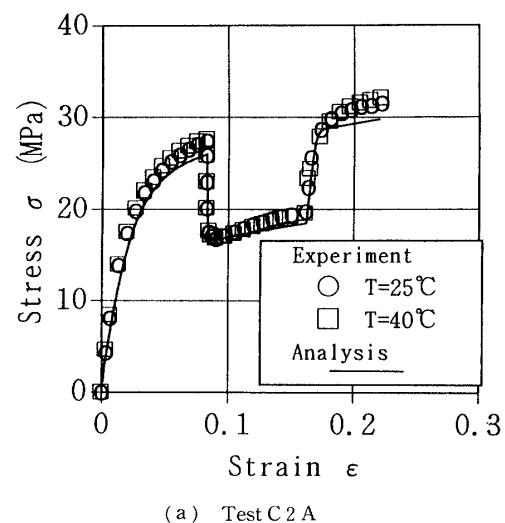
図 8 応力-ひずみ曲線へのひずみ速度と温度の影響
を表す単一パラメータの導出

の場合、図8(b)の6種類の応力パラメータに対応する統一パラメータ P_u の対数値をプロットしたもの(したがってこのデータは図8(a)の15点のデータより得ている)であり、他のひずみ値に対しても同様の整理を行っている。各ひずみでの応力とパラメータ P_u の関係は直線に近い。図9(b)は3種類の P_u をパラメータとした定ひずみ速度実験における応答を示している。図中の記号は図9(a)からプロットしたものであり、実線は P_u ベースの構成式を用いて数値シミュレーションした結果である。この構成式は、図7のデータすべてを15種類の P_u 一定の実験データと考えて設定しており、定ひずみ速度・定温度条件下では、式(3)の $\dot{\epsilon}$ を $10^{4-T}P_u$ に、 ϵ を $10^{4-T}P_u \cdot t$ に置換させて解くことになる(t :時間)。構成式の各定数は表3中に記しているが、 g 値は便宜的に $T=40^\circ\text{C}$ の値を使用した。以上の結果、HD-PEに対しては $T=10^\circ\text{C}-40^\circ\text{C}$ 、 $\dot{\epsilon}=1.1\times10^{-1}-1.1\times10^{-5}\text{s}^{-1}$ において定ひずみ速度の応力-ひずみ挙動がひずみ速度と温度の統一パラメータ P_u で表されることがわかった。

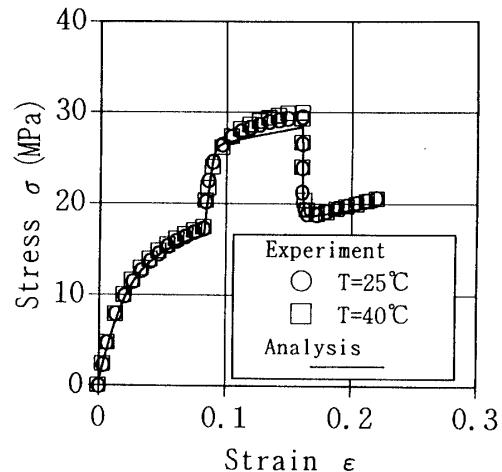
(a) 各ひずみ値に対する応力とパラメータ P_u の関係(b) パラメータ P_u を用いた定ひずみ速度応力-ひずみ曲線図9 パラメータ P_u を用いたデータ整理

タ P_u で表されることがわかった。

5・2 応力-ひずみ挙動の異温度下での再現 5・1節でのパラメータ P_u の導出および4章のひずみ速度変動実験の基本特性から、既に示した 25°C におけるひずみ速度変動実験(Test C1A, C1B)の応力-ひずみ応答を 40°C で再現することが可能であると予測される。 25°C での実験条件に対応する 40°C でのひずみ速度条件は P_u を同じにすればよいから式(7)を用いて表1のTest C2A, C2Bの条件を得る。図10(a), (b)は各々Test C2A, C2Bの再現実験結果であり、対応する 25°C の実験結果および P_u パラメータに基づく構成式による数値解析結果(25°C , 40°C とも同じ)も併記している。いずれも 40°C での応力-ひずみ応答は 25°C での挙動をほぼ完全に再現しており、ひずみ速度変動応答に対してもパラメータ P_u が十分に適用できることがわかった。



(a) Test C2A



(b) Test C2B

図10 応力-ひずみ挙動の異温度での再現

6. 結論

高密度ポリエチレン(HD-PE)を対象に粘塑性変形、特にひずみ速度と温度の影響について実験による特性把握を試み、また構成式モデルによる数値シミュレーションについても検討した結果、次の結論を得た。

(1) 定ひずみ速度実験におけるひずみ速度(1.1×10^{-1} ~ $1.1 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$)と温度(10°C~40°C)の影響、リラクゼーション実験における応力緩和量の急速減少および負荷途中におけるひずみ速度変動実験等での基本的応力-ひずみ挙動はいずれも鋼材の高温非弾性挙動と類似していた。

(2) 3温度に対して過大応力概念に基づく粘塑性構成式モデルの定数設定を行うことができ、このモデルを用いて各実験によって得られた負荷応答を良好にシミュレートすることができた。

(3) HD-PEの粘塑性特性として観測された定ひずみ速度応力-ひずみ挙動のひずみ速度効果への温度

の影響を検討した結果、本実験条件内ではひずみ速度と温度のパラメータが単一のパラメータで表されることがわかった。このパラメータの応用として40°Cで25°Cのひずみ速度変動実験結果を再現することができた。

最後に、MTS試験機の使用についてご協力いただいた本学・尾原助教授に感謝する。

文 献

- (1) 北川・松谷、材料、37-423(1988), 1391.
- (2) 北川・森・松谷、機論、55-512, A(1989), 923.
- (3) 北川・邸・水谷、機論、58-548, A(1992), 113.
- (4) 北川・邸・西田、材料、41-461(1992), 225.
- (5) Krempl, E., *J. Mech., Phys. Solids*, 27(1979), 363.
- (6) Cernocky, E. P. and Krempl, E., *J. Mecanique Appliquée*, 5(1981), 293.
- (7) 広江・猪狩、機論、51-461, A(1985), 248.
- (8) 広江・中島、機論、55-518, A(1989), 2091.
- (9) Hiroe, T. and Igari, T., *Nucl. Eng. Des.*, 77(1984), 139.
- (10) Cernocky, E. P. and Krempl, E., *Trans. ASME, J. Appl. Mech.*, 45(1978), 789.