

氏 名	古 田 勲 ふる た いさお
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	論 工 博 第 477 号
学位授与の日付	昭 和 47 年 1 月 24 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
学 位 論 文 題 目	ゴム試験法の粘弾性的研究

論文調査委員	(主 査) 教 授 河 合 弘 廸	教 授 西 島 安 則	教 授 小 野 木 重 治
--------	----------------------	-------------	---------------

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は現在本邦ゴム工業界において広く用いられている JIS 規格に基づくゴム試験法のうち、主として材料の力学的性質に関する各種試験法を高分子レオロジーの立場から、試験法の内容、各試験量（指標）のもつ意義および各指標相互の関連性について論じたもので、全編 5 章より成っている。

第 1 章は緒論であって、本研究の目的、意義および方法論について概述したものである。すなわち天然ゴムを素材として発展してきたゴム材料に対する試験規格は、ゴム工業の歴史の古いこととも関連して、必ずしも合理的であるとはいえず、試験法の特徴が余りにも実用本位であり、ゴム材料の力学的性質が極めて顕著な時間および温度依存性を有するにもかかわらず、試験条件について一点測定が多く、また試験項目自身も相互の関連性が十分に検討整理されたものとはいえないとしている。

上述の諸問題に対処するにあたり、高分子レオロジーの研究成果を導入するのが最も合理的であると考え、機械的刺戟に対するゴム材料の応答挙動を刺戟因子による部分と物質因子による部分とに分け統一的に考察しようとする概念を述べている。結果として材料のレオロジー関数値として得られる物質因子と試験条件によって定まる刺戟因子とから、各種試験法における指標値を理論的に誘導し、実験結果との比較において本考察の妥当性を検討するのみならず、各試験法相互の関連性を明確にしようとするものである。

第 2 章は主として JIS・K 6301 に規定されている各種ゴム試験法のうち、レジリエンス、硬さ、発熱、引裂きおよび定速伸長試験について、試験内容および最も広く使用されている試験機器の構造および指標値について解析を行ない、前章に述べられた概念における刺戟因子および応答量に対し検討を加えたものである。さらにゴム材料の力学的物質因子の決定に必要な粘弾性関数の測定機器についても、筆者が試作開発にたずさわった非共振強制縦振動法による粘弾性スペクトロメータ、鎖荷重方式による伸長応力緩和計、さらにねじり自由減衰振動法によるトーションペンジュラム型粘弾性測定機について詳細に述べている。

第3章は架橋および未架橋ゴムの粘弾性挙動を上述3種の測定機を用いて観測した結果について述べている。すなわち未加硫ゴムのガラスーゴム転移領域における粘弾性挙動をスチレンブタジエンゴムおよびイソプレンゴムについて測定し、これらが典型的な線形粘弾性を示すこと、また3種の測定機による観測結果が良好な一致を示すことなどを確かめている。

さらに本質的には線形粘弾性体であるが、低温において結晶化による微結晶の生成のため、みかけ上時間一温度換算則が成立しなくなり、従って線形粘弾性挙動の統一的评价の困難となるような系として、2種の *cis*-4 ポリブタジエン、その加硫物および充填剤混合物について、それらのガラス転移点近傍における測定を行なっている。得られた結果に二宮-前川によって提出された2成分高分子不均一混合系に対する混合則の適用が可能であるとして時間一温度換算則の修正拡大を試みている。

また充填剤混入加硫ゴムは一般に数%以下の微小変形領域において顕著な非線形性を示すが、これが充填剤周辺にゴム分子が充填剤と何らかの相互作用によって密に凝集された新たな稠密層を作るものと考え、上述混合則をさらに3成分系へ拡張し、この稠密層とゴム相の容積分率がひずみ依存性をもつものと仮定し、非線形性の現象論的記述を行なっている。

第4章は第1章に述べられた概念によるゴム試験法の粘弾性的取扱に関する各論である。すなわち第2章に述べられたレジリエンス、硬さ、発熱、および引裂きおよび定速一軸伸長試験に規定された各種試験法による指標値を、試料の粘弾性から解析し、第3章に示された各種ゴム試料の粘弾性測定結果および同試料の該当試験法による指標値との関係を理論ならびに実験的に比較検討したものである。

レジリエンスについてはヤーズレーレジリエンス、インパクトレジリエンスおよび強制振動レジリエンスがいずれも試料の複素動的弾性率における力学的損失正切 ($\tan \delta$) の指数関数として与えられることを導き、実験的に検討している。JIS スプリング型硬さ試験器による指標については、これが試料の剪断緩和弾性率と試料の非線形性に関する係数の積として近似的に与えられることを導き、同様実験的な検討を行なっている。

線形粘弾性体に定常振動ひずみを与えた際の発熱量については、それが試料の損失弾性率、ひずみ振幅の自乗および振動角速度に比例することは容易に理解されるが、實際上発熱の問題は充填剤を含む工業用ゴム材料に特に重要であることを考慮し、この問題の解析を特に非線形性の顕著な充填剤系ゴムに拡張し、非線形補正項を含む近似式を導いている。これらの結果からさらに試料の放熱形態を考慮し、試料の定常振動時の平衡温度上昇値を導き、グッドリッチフレクソメータによる実験結果と比較検討している。

引裂き試験については、JIS-A およびB型試験片を通常の切欠きをもつリボン型試験片の定速一軸伸長に等価にすべき形状因子の実験的誘導を試み、あわせて JIS 型試験片の切り込み深さの最適値、引裂き強さの推定法などを述べている。さらに通常の定速一軸伸長試験における特定伸長率における引張り応力、破壊伸びおよび破壊応力の測定、いわゆるスラブテストについては、高弾性体に対する Mooney-Rivlin 式を基礎に Smith-Frederick によって誘導された半理論式と緩和スペクトルを含む線形粘弾体の等速伸長とを組合せた定量的表現を導いている。なお破壊特性の表現には Smith-Frederick 式中の破壊伸びに関するパラメータの決定に際し、Smith-Landel によるいわゆる破壊包絡線および破壊特性の時間一温度換算より誘導される等速伸長下での破壊伸びの温度分散曲線（破断スペクトル）の最大値を用いて

いる。実験結果との対比は、試料が充填剤を含むなど複雑な系になる程、また測定量が破壊応力など極限状態のものになる程、必ずしも良好な一致は与えないが、定性的には満足すべきものであることを示している。

第5章はゴム試験法の試指標のパラメータ表示について論じたものである。すなわち前章までに述べられたように試験法の指標値（力学応答）を刺戟因子と物質因子によって解析し、指標自身の定量的表現および指標相互の関連性を明らかにしているが、その骨子となったものは物質因子については非破壊現象に対し緩和スペクトルを中心とする粘弾性関数であり、破壊現象については破断スペクトルであった。刺戟の時間と温度の換算にいわゆる式によって与えられる時間—温度換算則を用い、大変形における非線形応力を時間とひずみとの独立関数によって記述するいわゆる **factorization** を採用したわけである。その結果それらの具体的数式表現には **Mooney-Rivlin** 式における常数 C_1 を含め少なくとも12個のパラメータを必要とした。本章ではこの12個のパラメータをもつ普遍的な力学応答モデルの作成を提案するのみならず、パラメータ間の相互関係を見出すことによってパラメータの数の減少、換言すれば本研究の主旨をより実用化に近づけるための二、三の試みを行なっている。さらに刺戟因子および物質因子をすべて冪関数によって表現し、任意の試験指標をそれらの指数のみによって与えようとする筆者の考え方を述べ、スラブテストについてその実施例を示している。

論文審査の結果の要旨

本論文は現在本邦ゴム工業界において広く用いられている **JIS** 規格に基づく試験法のうち、主として材料の力学的性質に関する各種試験法を、高分子レオロジーの立場から、試験法自身の内容、各試験量（指標）のもつ意義および各指標間相互の関連性について統一的に論じたもので、得られた成果の主たるものは次の2点にあると考えられる。

1. ゴム試験法の刺戟—応答則による統一的解釈。機械的刺戟に対するゴム材料の応答挙動を刺戟因子による部分と物質因子による部分とに分け、試験条件によって定まる刺戟因子と材料のレオロジー関数値として得られる物質因子とから、各種試験法における指標値（応答量）を統一的に記述しようとする概念を提出している。すなわち物質因子については非破壊現象に対し緩和スペクトルを中心とする粘弾性関数を、破壊現象については **Smith-Landel** によって提出されたいわゆる破壊包絡線と破壊特性の時間—温度換算とから誘導される等速伸長下での破壊伸びの温度分散曲線（破断スペクトル）を、刺戟の時間と温度との換算に **Williams-Landel-Ferry** によって提出されたいわゆる **WLF** 式によって与えられる換算則を、さらに大変形における非線形応力を時間とひずみとの独立関数によって記述するいわゆる **factorization** の手法をそれぞれ採用し、各種ゴム材料の試験指標を統一的に記述する概念を確立し、各指標のもつ高分子物性論的意義および各指標間の関係を明らかにしている。

2. レジリエンス、硬さ、発熱、および引裂きおよび等速—軸引張り試験の指標値の解析。上述の概念に基づいて前記各種試験指標の具体的解析を行なっている。例えばレジリエンス試験についてはヤーズレーレジリエンス、インパクトレジリエンスおよび強制振動レジリエンスがいずれも試料の力学的損失正切 ($\tan \delta$) の指数関数として与えられることを導き、実験的に検証している。

また試料の強制定常振動下の力学的損失による発熱量について、特に非線形挙動の顕著な充填剤を含む系に対する非線形補正項の導入を試み、これらの結果からさらに試料の放熱形態を考慮し、試料の平衡温度上昇値を導き、グッドリッチフレクソメータによる試験結果と比較検討している。

また例えば通常の定速一軸伸長試験における特定伸長率における引張り応力、破壊伸びおよび破壊応力の測定、いわゆるスラブテストについては、ゴム状弾性体に対する Mooney-Rivlin 式を基礎に Smith-Frederick によって誘導された引張り応力に関する半理論式と線形粘弾性体の緩和スペクトルを含む等速伸長式とを組合せた定量的表現を導いている。実験結果との対比は、試料が充填剤を含むなど複雑な系になる程、また指標が破壊応力など極限状態のものになる程、必ずしも良好な一致を与えないが、定性的には満足すべきものであることを示している。

以上を要するに本論文はゴム材料の各種力学的試験法の指標のもつ意義および各指標相互の関連性を、高分子レオロジーの立場から統一的に解析したもので、学術的にも技術的にも寄与するところが少ない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。