

# ゴムの伸長結晶化による長寿命化に関する研究

## Research on Lifetime Extension by Strain-induced Crystallization of Rubber

精密工学専攻 19号 栗山 正太郎

Shotaro Kuriyama

### 1. 緒言

現在までに様々な素材や駆動原理を用いたソフトアクチュエータが研究されている。中でも空気圧ゴム人工筋肉は、ゴム等の弾性構造体に空気等の作動流体を注入して動力を得るアクチュエータであり、出力として収縮が得られ、柔軟であるという特徴から人間との協調性の高いアクチュエータとして注目されている。その一つとして軸方向繊維強化型空気圧ゴム人工筋肉<sup>(1)</sup> (以下: SF-ARM)の開発が行われている。これは、従来広く使用されてきた McKibben 型と比較して、高変位、高出力であることが確認されている<sup>(1)</sup>。しかし、SF-ARM は疲労寿命が短く実用化に向けて長寿命化が必要である。ゴム材料のリング型試験片による引張疲労試験より、天然ゴム(以下: NR)に予めひずみを加えた状態で繰り返し伸長を行うと長寿命化することが実験的に分かっている<sup>(2)</sup>。伸長結晶化が要因と仮説を立てているが、試験片チャック部での破断も多数あり仮説の立証には至っていない。

本研究では、疲労試験に用いる試験片の検討を行うと共に伸長結晶化が疲労特性へ与える影響を調べることを目的とする。方法として、ゴム材料の単軸引張試験からゴム材料の材料特性を決定した。そしてリング型とダンベル型試験片の FEM 解析で応力分布を確認し、引張時にチャック部で破断しない試験片の検討を行った。次に、ダンベル型試験片による単軸引張疲労試験を行い、伸長結晶性のある NR と伸長結晶性のないスチレンブタジエンゴム(以下: SBR)の疲労寿命と破断箇所を比較し、伸長結晶化が疲労特性へ与える影響を調べた。

### 2. 天然ゴムの伸長結晶化

ゴムのような高分子材料は、応力集中の原因となる潜在欠陥を有し、外力を受けた際にその欠陥が成長することによりやがてき裂となって材料の破壊を引き起こす。天然ゴムなどの一部のゴムは伸長により分子鎖が伸長方向に配向し、結晶化する伸長結晶性を持つ。Fig. 1 に伸長結晶化のモデルを示す。図中の四角部は伸長結晶層を模式的に示している。Fig. 2 に亀裂進展の阻害モデルを示す。この結晶層が亀裂の進展を阻害し、天然ゴムの疲労寿命を延ばすことが出来ると考える。天然ゴムの伸長収縮における結晶化度  $X_c$ (材料に生じた伸長結晶層の割合を表す)を Fig. 3 に示す。青いプロットは伸長過程、橙のプロットは収縮過程の結果を示している。どちらの過程でもひずみ約 2 以上で伸長結晶化が起こっていることが分かる。また、伸長結晶化は可逆的で、一度形成されてもひずみが小さくなると消失することが分かる<sup>(3)(4)</sup>。

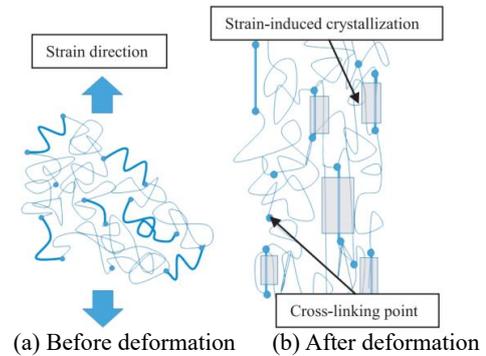


Fig. 1 Crystallization model of NR <sup>(2)</sup>

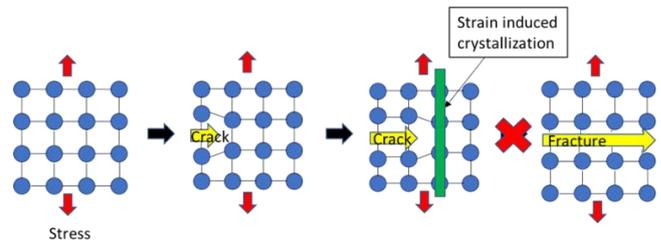


Fig. 2 Crack growth inhibition of NR <sup>(2)</sup>

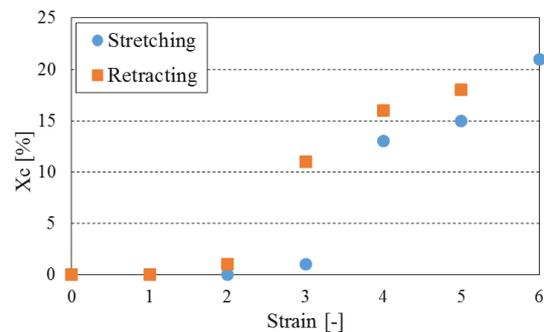


Fig. 3 Relationship between strain and crystallinity <sup>(2)</sup>

### 3. ゴム材料の材料特性決定

#### 3.1. 単軸引張試験

ゴム材料をモデル化するために単軸引張試験を行う。荷重はロードセル (定格荷重 1 kN 分解能 0.1 N) で測定し、試験片標線間のひずみを画像相関法(DIC)で測定する。DIC は、測定対象表面にスペックルパターンと呼ばれるランダムな模様を塗布し、サンプルの変形前後の画像を比較解析することにより、計測範囲全体の変位・ひずみ分布やその方向を非接触に求めることができる手法である。試験片にスプレーでランダムパターンを塗布し、ひずみを導出する。試験片の形状は Fig. 4 に示す。試験片は Fig.4(a)のように厚さ 2mm の 3 号型ダンベル形状を用いた。Fig.4(b)のように幅 5mm の箇所

に標線をつけた(標線間距離 20mm). 変位 5mm 毎に試験機を一時停止させて, 試験片をデジタルカメラ (ニコン D40X, 解像度 3872×2592, 画素数 10.2Mpixel, レンズ:シグマ光機, 17-70 mm, F2.8) で撮影する. 引張速度を 50 mm/min で行い, 変位 75 mm まで試験を行う. その結果から得られた応力ひずみ線図を Fig. 5 に赤いプロットで示す.

### 3.2. 材料定数の導出

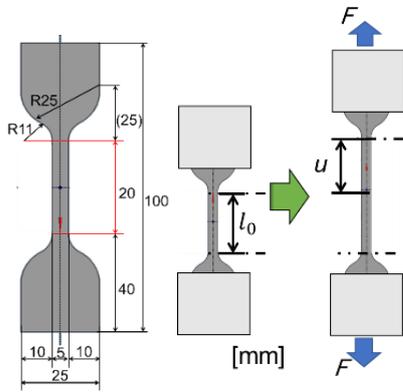
一般的にゴムのような超弾性を表現する式の一つに Mooney-Rivlin が挙げられ, ひずみエネルギー密度関数  $W$  は式(1)のように表される. ここで式(1)を伸長比で偏微分した上で, 非圧縮性と仮定することで伸長比を  $\lambda_1 = \lambda$ ,  $\lambda_2 = \lambda_3 = 1/\sqrt{\lambda}$  と定義し, 式(2)が得られる.

$$W = C_{10}(\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 - 3) + C_{01}\left(\frac{1}{\lambda_1^2} + \frac{1}{\lambda_2^2} + \frac{1}{\lambda_3^2} - 3\right) \quad (1)$$

$$\sigma = 2\left(\lambda - \frac{1}{\lambda^2}\right)\left(C_{10} + \frac{C_{01}}{\lambda}\right) \quad (2)$$

( $C_{10}$ ,  $C_{01}$  は材料固有の定数)

式(2)を用いて引張試験で得られた応力ひずみ線図のカーブフィッティングを行い  $C_{10}=0.0882$  MPa,  $C_{01}=0.1753$  MPa と定めた. カーブフィッティングの結果を Fig. 5 の青の実線で示す. ひずみ約 4.5 までの範囲では, Mooney-Rivlin モデルが実測による応力とひずみの関係を表現できた.



(a) Test piece (b) Method of tensile test

Fig. 4 Uniaxial tensile test of rubber dumbbell piece

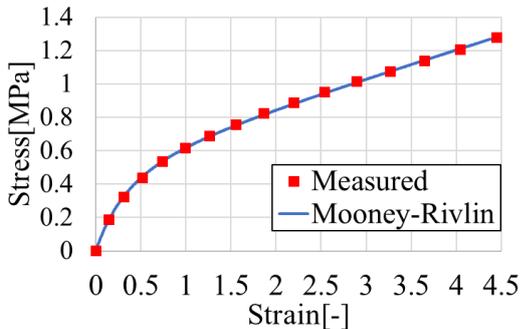
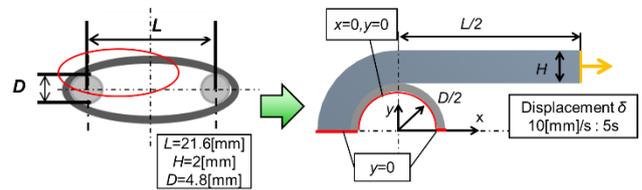


Fig. 5 Stress-strain diagram of rubber material

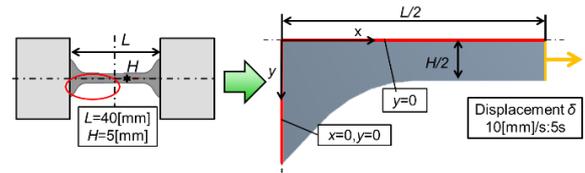
## 4. 試験片の FEM 解析

先行研究ではリング型試験片を用いていたが, チャック部での破断が多数見られた. そこでリング型とダンベル型試験片の有限要素法によるシミュレーション(FEM)を行い, 引張疲労試験に用いる試験片の検討を行った. Fig. 6 に作成した試験片のモデルを示す. 試験片が対称的な変形をするものと仮定して, リング片とダンベル片共に赤の実線で囲んだ対称モデルを作成した.

単軸引張荷重による  $\delta=50$  mm 時のモデルの応力分布を Fig. 7 に示す. 形状は変形前の形状を示す. 色分けは第一主応力を表している. Fig. 7(a)から, リング片ではチャックとの接触箇所で最大主応力となっており, この箇所から破断すると考えられる. Fig. 7(b)から, ダンベル片では標線間で応力が最大となり, R がついている箇所ですら徐々に応力が低下している. このことから, 3号型ダンベル型試験片は, 単軸引張時に標線間で破断が起こると考える. 以上の結果から引張疲労試験ではダンベル型試験片を用いる.

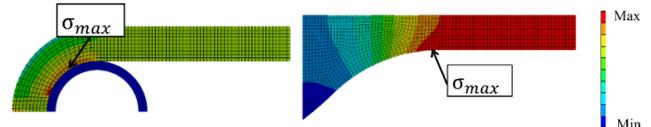


(a) Ring piece



(b) Dumbbell piece

Fig. 6 FEM model



(a) Ring piece

(b) Dumbbell piece

Fig. 7 stress distribution of FEM ( $\delta = 50$ mm)

## 5. 繰り返し引張疲労試験

ゴム材料単体での引張に対する疲労特性を調べるために Fig. 8 に示す試験装置を用いて繰り返し引張疲労試験を行う. 試験の概要を Fig. 9 に示す. ゴムが伸長結晶化を起こすようにするためにひずみ 0 の状態から初期ストローク  $a$  [mm] だけ伸長を加え, その状態から試験片が破断するまで  $u$  [mm] の繰り返し伸長を加える. アルミ板の上にスライダとロードセルを固定し, スライダが動くことでチャック間に取り付けた試験片が伸長する. 試験片形状は FEM 解析を行ったダンベル型試験片を用いる. 試料には伸長結晶性を持つ NR と伸長結晶性を持たない SBR の二種類を用いる. 伸長結晶化

が疲労特性にどのような影響を与えるのかを調べるために  $a$  の値を変えて実験を行い、破断箇所と寿命を観察する。

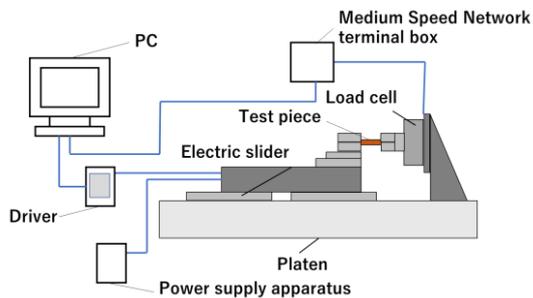


Fig. 8 The uniaxial tensile fatigue test equipment

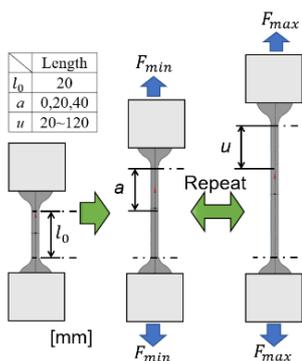


Fig. 9 Repeated tensile fatigue test of rubber dumbbell piece

### 5.1. 試験片の破断箇所観察

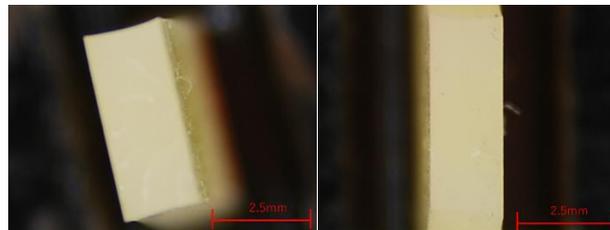
破断箇所から亀裂の進展の様子を観察する。破断面は真上から引張試験同様のカメラで撮影する。また、亀裂生成箇所は顕微鏡(KEYENCE 製 VH-Z450)を用いて倍率 450 倍で観察する。

観察した破断面を Fig. 10 に示す。NR の破断面を Fig. 10(a), (b) に、SBR の破断面を Fig. 10(c), (d) に示す。Fig. 10(a), (c), (d) に示すように SBR とひずみ 0 の状態から繰り返し伸長を行った NR の破断面では凹凸はなく、平らな破断面であることを確認できた。Fig. 10(b) に示すようにひずみを与えた状態から繰り返し伸長を行った NR の破断面は凹凸であることを確認できた。これは、伸長結晶化により亀裂の進展が阻害され亀裂の分岐が起こったからだと考える。また、ひずみを与えた状態から繰り返し伸長を行った NR の破断面では色の変色を確認できた。これは試験片内部の多数の小さな初期欠陥が拡大して変色したと考える。次に Fig. 11 に試験片の亀裂の進展箇所の観察結果を示す。Fig. 11(a) からひずみ 0 の状態から繰り返し伸長を行った NR では亀裂は引張方向に対して垂直に形成されているのを確認できた。Fig. 11(b) からひずみを与えた状態から繰り返し伸長を行った NR では亀裂が分岐しながら進展していることが確認できた。

以上の結果から、NR は応力を 0 まで戻しきらずに使用することで伸長結晶化による亀裂進展の阻害が起こっていると考える。

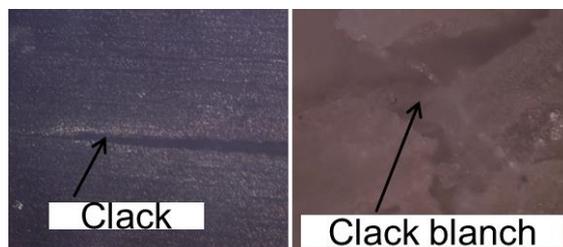


(a) NR from  $a=0$ mm (b) NR from  $a=20$ mm



(c) SBR from  $a=0$ mm (d) SBR from  $a=20$ mm

Fig. 10 Breaking section of dumbbell piece ( $u=60$ mm)



(a) NR from  $a=0$ mm (b) NR from  $a=20$ mm

Fig. 11 Clack growth of dumbbell piece ( $u=40$ mm)

### 5.2. 試験片の破断位置観察

試験片の破断箇所の応力を確認するために、試験片の破断位置を測定する。Fig. 12 に破断位置と破断位置の応力関係を示す。縦軸は破断位置を示し、チャック箇所を 0 とする。横軸は FEM 解析で求めた最大応力に対する破断位置の応力を示す。 $a=40$  mm の試験片では応力が小さくなる R がついている箇所での破断が多く確認できた。これは、標線間部分では常に一定の応力がかかり伸長結晶層が形成され補強されているので、最小応力が小さく結晶層が形成されない R 部分で破断したと考える。

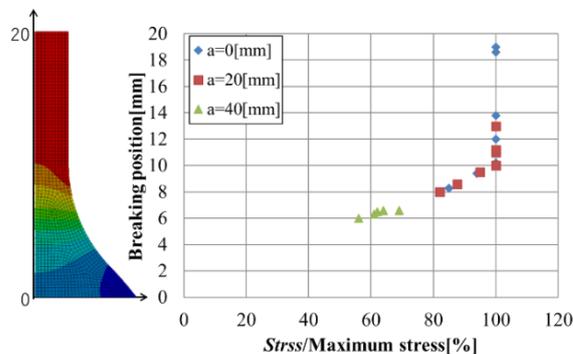


Fig. 12 Relationship between Breaking position and stress/Maximum stress (NR)

### 5.3. ゴムの寿命特性

Fig. 13 に NR の疲労試験の結果を示す．縦軸は真応力振幅  $\Delta\sigma_T$ ，横軸はゴムが破断するまでの引張回数  $N$  を表している．ここで，試験片の変形後の幅  $b$ ，厚さ  $t$  はそれぞれ式(3)のように表される．また，ゴムが非圧縮性・等方性であると仮定すると，式(4)，式(5)が成り立つ． $\lambda_i$  は各軸方向への伸長比である．式(3)~(5)より，真応力  $\sigma_T$  は式(6)のように求めることができる．

$$b = b_0\lambda_2, \quad t = t_0\lambda_3 \quad (3)$$

$$\lambda_1 = \frac{l_0+u}{l_0}, \quad \lambda_2 = \lambda_3 = \frac{\sqrt{l_0}}{\sqrt{l_0+u}} \quad (4)$$

$$\lambda_1\lambda_2\lambda_3 = 1 \quad (5)$$

$$\sigma_T = \frac{F}{bt} = \frac{F}{b_0\lambda_2 t_0\lambda_3} = \frac{l_0+u}{b_0 t_0 l_0} F \quad (6)$$

Fig. 13 のプロットはそれぞれ一つの試験片の疲労試験結果に対応し，ラインは  $a$  の値が同じプロットの対数近似曲線である．また，Fig. 14 はそれぞれの  $a$  の値での  $\Delta\sigma_T \doteq 12$  MPa における結果を抽出したものである．縦軸は引張回数  $N$ ，横軸は最小応力  $\sigma_{Tmin}$  を表す．この結果から，NR は最小応力  $\sigma_{Tmin}$  が大きくなるほど疲労寿命が延伸する傾向を持つことが確認できた．同様に，SBR の疲労試験の結果を Fig. 15 に，それぞれの  $a$  の値での  $\Delta\sigma_T \doteq 8$  MPa における結果を抽出したものを Fig. 16 に示す．この結果から，最小応力  $\sigma_{Tmin}$  が大きくなるほど疲労寿命が短くなる傾向を持つことが確認できた．  
今回疲労試験を行った 2 種類のゴムの結果を比較すると，NR は応力を 0 まで戻しきらずに使用することで疲労寿命を延伸させることが可能であり，これは伸長結晶化の効果であると考えられる．

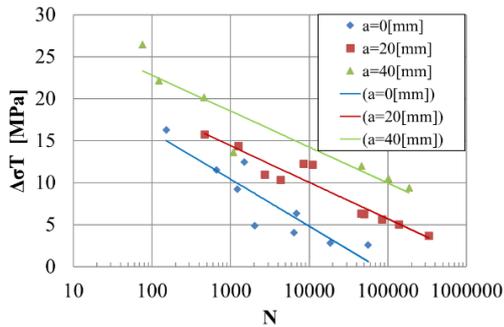


Fig. 13 Result of the tensile fatigue test (NR)

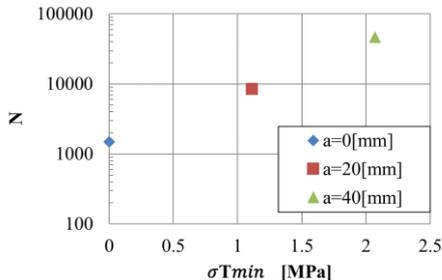


Fig. 14 Relationship between  $N$  and  $\sigma_{Tmin}$  at  $\Delta\sigma_T \doteq 12$ [MPa] (NR)

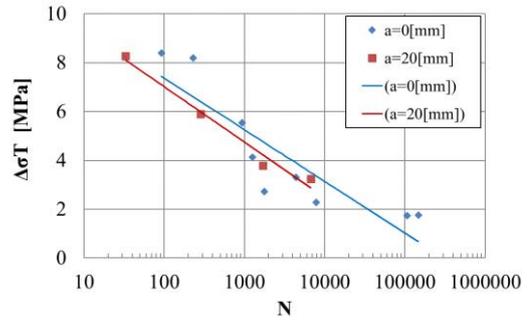


Fig. 15 Result of the tensile fatigue test (SBR)

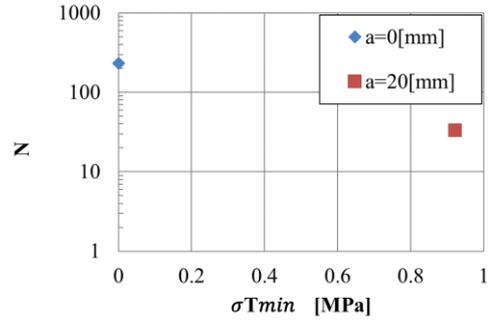


Fig. 16 Relationship between  $N$  and  $\sigma_{Tmin}$  at  $\Delta\sigma_T \doteq 8$ [MPa] (SBR)

## 6. 結言

本研究では，疲労試験に用いる試験片の検討と伸長結晶化が疲労特性へ与える影響を調べることを目的とし，ゴムの引張試験と試験片の FEM 解析を行い，引張疲労試験に用いる試験片の形状の検討を行った．また，ゴム材料に対して単軸引張疲労試験を行い，材料の疲労特性の評価と伸長結晶化の影響の確認を行った．以下に得られた結果を示す．

- 1) Mooney-Rivlin モデルに必要な材料定数を単軸引張試験により求め，FEM 解析を行い引張時の応力分布を確認した．
- 2) 試験片の破断箇所の観察から，伸長結晶化の影響と考えられる亀裂の分岐を確認できた．
- 3) 伸長結晶化がゴムの疲労寿命特性にどのように寄与するのかを調べるために繰り返し単軸引張試験を行い，伸長結晶化による NR の寿命延伸が確認できた．

## 参考文献

- (1) 小島 明寛, 奥井 学, 山田 泰之, 中村 太郎, 軸方向繊維強化型空気圧ゴム人工筋肉の長寿命化のための材料とアスペクト比の検討, 日本機械学会論文集, Vol.84, No.857 (2018), p. 17-00299
- (2) 久道樹, ゴム材料の特性評価とその長寿命化に関する研究, 修士論文, 中央大学, 2019
- (3) 土岐 重之, ゴムの力学と伸長結晶化, 日本ゴム協会誌, Vol.79, No.10 (2006), p. 472-479
- (4) N.Saintier, Cyclic loadings and crystallization of natural rubber: An explanation of fatigue crack propagation reinforcement under a positive loading ratio, Materials science and engineering, vol.528(2010), p.1078-1086