

令和 3 年 4 月 21 日現在

機関番号：12701

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H01333

研究課題名(和文) 高強度プラスチックのX線非破壊応力測定と変形強度評価

研究課題名(英文) X-Ray Nondestructive Stress Measurement and Deformation Evaluation of High Strength Plastics

研究代表者

秋庭 義明 (AKINIWA, Yoshiaki)

横浜国立大学・大学院工学研究院・教授

研究者番号：00212431

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,400,000円

研究成果の概要(和文)：高分子は軽量材料として重要であるが、安全安心して使うためには、材料中に存在する応力や変形損傷を非破壊的に評価する必要がある。本研究では、X線法を用いて、非破壊的に高強度高分子材料の応力および変形挙動を評価する方法について検討した。高分子材料は、結晶質と非晶質があり、結晶性材料でも非晶部分が存在する。ここでは、いくつかの高分子材料を対象として、結晶性材料のみならず非晶性材料についても応力を測定する方法を検討した。特に、除荷後に元に戻る弾性変形領域を含め、それを超えて、元に戻らないくらい変形させた場合の変形量を評価する方法についても検討した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究において最も重要な成果は、結晶性高分子および非晶性高分子いずれも、従来のX線装置を用いて応力測定が可能であることを示した点である。特に非晶性材料においては、回折情報が低い角度に現れるハローピークを利用することができることを示した点である。回折情報に対してやや難解な補正を施した場合と、簡便に測定情報をそのまま利用した場合でも則手精度に大きな生じないことを示したが、これは、本手法を現場技術として簡便に利用できることを意味しており、汎用的な手法として期待できる。さらに、弾性域を超えて、塑性変形が生じる場合についても、その変形の程度が評価できることを明らかにすることができた。

研究成果の概要(英文)：Although polymers are important as lightweight materials, it is necessary to nondestructively evaluate the stress and deformation damage existing in the materials for safe and secure use. In this study, a method to nondestructively evaluate the stress and deformation behavior of high-strength polymer materials was investigated using the X-ray method. There are two types of polymer materials, crystalline and amorphous, and even crystalline materials have amorphous parts. In this study, we investigated a method for measuring stress not only in crystalline materials but also in amorphous materials for some polymer materials. In particular, we also examined a method for evaluating the amount of deformation when the elastic deformation region that returns to its original state after unloading is included and is deformed to the extent that it cannot return to its original state.

研究分野：材料強度

キーワード：X線 回折法 高分子 ひずみ 応力 機械的性質

### 1. 研究開始当初の背景

高分子材料は軽量素材としてその役割が年々増加しており、成型時に導入される残留応力の非破壊評価が最重要課題となっている。高分子材料は結晶性材料においても結晶化度が20～90%程度で、図1に示すように結晶質と非晶質の混相状態にある。従来のX線法でも結晶性高分子に適用した例は一部報告されているが、結晶領域の情報のみを評価していることに注意が必要である。高精度応力評価には、結晶質と非晶質の両相の変形挙動を明らかにした上で、結晶化度を考慮したマクロな応力・強度特性を評価することが求められる。

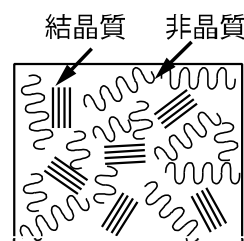


図1 結晶性高分子の構造

機械構造物の強度信頼性を向上させるためには、部材中に存在する内部応力を高精度に把握することが必須条件となる。特に残留応力評価は、設計・管理維持に際しての情報として不可欠であり、その非破壊的評価が要求されることが多い。X線法は代表的な非破壊応力測定法であり、多くの産業分野の現場技術として広く用いられている。X線法では、結晶性材料の周期的原子配列に基づく格子面によるX線のブラッグ反射を基礎理論とするため、その測定対象は結晶性材料に限られており、少なくとも材料強度を扱う研究者においては、X線法によって評価可能な材料は、結晶性の材料に限られるとの認識が一般的であり、非晶性材料に対するアプローチはなされてこなかった。

これに対して本研究では、非晶性材料においても負荷によって隣接原子間距離が変化しなければならぬという材料変形の本質的なメカニズムに着目し、従来顧みられることのなかった「X線回折法による非晶質材料の応力測定は本当に不可能か」の学問的問いに、新たなアプローチによって答えようとするものである。

結晶性の材料においては、特定の結晶面(回折面)に対応した角度に、結晶性由来の回折ピークである鋭く強い回折情報が得られ、そのピーク位置の角度移動量からひずみ(応力)を求めることができる。これに対して、非晶性材料においては、結晶のような整列した原子配置が存在しないために、鋭い回折ピークは存在しない。それに代わって、低回折角度にぼんやりした鈍いピークが生じることが知られており「ハロー」と称される。その回折プロファイルは平均近接原子間距離の情報を有しており、構造解析の研究分野では利用されているものの、応力・ひずみの解析に利用された例はほとんどなかった。その理由は、1)ブラッグ条件に基づく従来のX線応力測定理論が適用できない。2)ピーク形状が鈍く回折角決定が困難である。3)回折角が低い(10°近傍)ため、ひずみ感度が小さいこと等が挙げられる。

本研究では上記の問題のブレークスルーを図り、結晶質相に関しては従来手法を適用するとともに非晶質相には隣接原子間距離の変化を高精度に抽出することによって、高精度応力測定を可能にし、従来の結晶性材料について拓かれた応力評価法を非晶性材料まで拡張することから、結晶性にとらわれない一般的なX線応力測定法として展開することを目指そうとするものである。

### 2. 研究の目的

本研究では、数種類の高分子材料を対象として、以下の三点を明らかにすることを目的とする。第一に結晶性高分子および非晶性高分子のいくつかを対象として、残留応力をX線にて非破壊測定する方法、ならびに、応力を決定するために必要な弾性定数を明らかにする。第二に、弾性域のみならず、より大きな変形を評価するのに必要な塑性変形域におけるひずみ量とX線パラメータの関係を明らかにすることから塑性変形の定量的評価を可能にする。第三に、高分子材料の強度評価で重要な環境応力割れに着目し、負荷応力観点からその破壊と応力の関係を明らかにし、環境応力割れ対策のための残留応力の役割について検討する。

### 3. 研究の方法

第一の研究目的である応力測定法は以下のように検討する。結晶性材料においては、特定の回折ピークに注目して、汎用性も考慮して、従来の応力測定法である $\sin^2$ 法を援用することで、X線的弾性定数を決定する。弾性定数を決定するためには、応力を決定することが必要であるため、応力測定法はすなわち弾性定数測定法に対応する。このときの測定精度は、弾性定数の決定精度に対応する。ただし、材料によっては、孤立したシングルピークが得られない場合がある。その場合には、複数の回折ピークを含む、比較的広い範囲の回折情報を用いて、波形分離手法を援用することによって、個々の回折ピークを分離し、その移動量から弾性定数を決定する方法を検討する。一方、非晶性材料においては、低角度に現れるハローピークを対象にする。構造解析においては、動径分布(原子二体分布)解析法がしばしば利用される。本研究では、この手法をひずみ測定に応用することによって、ひずみ(応力)を評価する方法を検討し、その測定精度を議論する。さらには、このようなやや複雑な手順によらない、簡便手法として、測定された生の回折データを直接解析する方法についても、その測定精度を明らかにする。

第二に弾性域での変形のみならず、塑性変形が生じる大きな変形領域での変形損傷を評価する方法を検討する。本研究では、比較的簡便に材料の原子配置の乱れを評価することができる X 線パラメータとして、回折線幅に注目する。平滑座を単軸引張負荷によって大変形領域まで引張変形させ、塑性ひずみ量と回折線幅の関係を明らかにし、これを較正曲線として用いることで塑性ひずみ評価を行う。一般の機械構造物においては、単軸の変形は特殊で、一般には多軸状態での変形が問題となる。そこで本研究では、片側切り欠き材の塑性変形材に対して、その有効性を確認する。このとき、試料表面のひずみを画像相関法によって測定し、これと X 線法を比較することから、その有効性を評価する。

第三に環境応力割れ強度試験を実施する。負荷応力とともに、試料環境として作動油および灯油環境での強度を明らかにする。種々の切欠き半径を有する切欠き材に対して、試料を油中に浸漬し、曲げ応力を負荷することで、その変形および破壊挙動を明らかにし、応力の役割を抽出する。切欠き底の応力は、有限要素解析によって解析する。すなわち、切欠き底応力分布は、負荷応力の関数として決定することができる。

#### 4. 研究成果

まずはじめに、X 線装置に装着可能な引張負荷装置を開発した。図 2(a)が外観であり、図 2(b)が模式図である。図 2 のセットアップは、試料を透過した X 線を検出する、透過法のセッティング状況である。これによって、荷重軸方向の板厚全体の平均的なひずみを決定することができる。このセッティングのまま、装置を 90 度回転（軸まわり）することで、引張方向に垂直な方向のひずみを決定することができる。また、軸まわりに 90 度回転させたセッティングにすることで、反射法のセッティングにすることができる。この場合は、試料表面の情報が内部よりも相対的に強くなる状況での測定をすることができる。

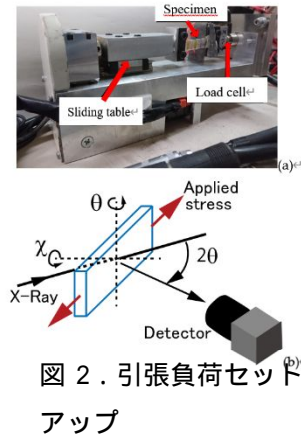
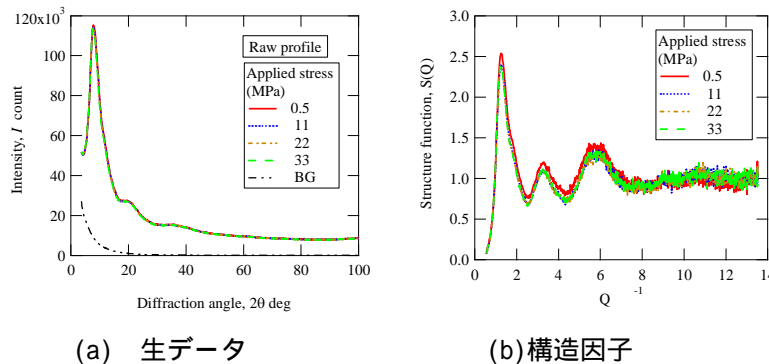


図 2. 引張負荷セットアップ



(a) 生データ (b) 構造因子  
図 3. ポリカーボネートの解析プロファイル

図 3 は非晶質高分子材料であるポリカーボネートの回折プロファイルである。(a)は生データで、(b)はバックグラウンド、偏光、原子散乱因子、吸収、コンプトン散乱等の補正を行った後の構造因子である。(a)の黒線の BG は、試料を装着せず、空気散乱によるバックグラウンドの X 線強度分布である。また赤線や緑線は、弾性範囲内で試料に荷重を負荷した状態での回折強度分布である。(a)では、負荷の有無にかかわらず、ほぼ重なっており、ピーク移動は存在しないかのように見えるが、詳細に見ると、低角側に移動している。このピークの移動量から X 線によるひずみを決定することができる。なお、このとき、負荷装置には荷重検出器が装着されているため、負荷応力が既知である。これら両者の関係から X 線的な弾性定数を決定することができる。

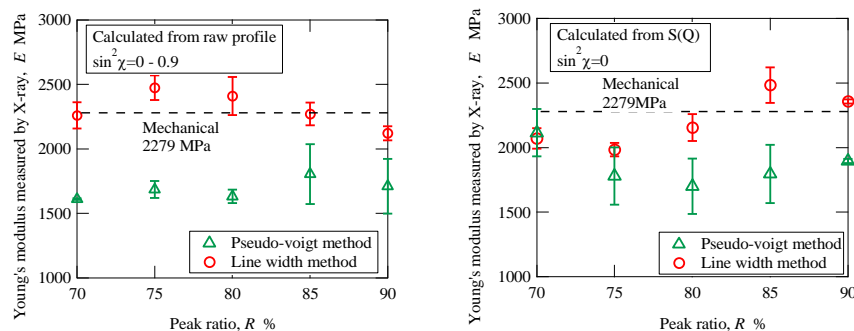
また(b)は構造関数のプロファイルを示しているが、図中の赤線や緑線は(a)と同じである。この場合にも、負荷応力が大きくなるにつれて、左側にシフトしている。また、図のプロファイルからわかるように解析対象が可能なピークとして 3 つ確認できる。本研究ではそれぞれについて確認している。結果は省略するが、最も右側にあるピークが、ひずみ測定に適することが明らかになった。なお、この 3 つのピークに対応するプロファイルとして、(a)を注意深く見ると 3 つのピークが存在することが確認できる。

図 4 は、図 3 に示したプロファイルをから、荷重負荷に従って右側へシフトする変位量を、回折線の最大強度の 90%から 70%の強度で算出して、ひずみに換算し、弾性定数まで計算した結果を示したものである。このとき、回折線と交差する点としての移動量と、プロファイルを擬フォークト関数で近似して、そのピーク位置の移動量をそれぞれ算出して、ひずみを計算している。(a)は生データを用いて簡便に計算した結果で、(b)は構造因子から得られた結果である。(a)についてみると、図中の赤丸は回折線との交点の移動量から得られた結果で、緑丸は擬フォークト

関数近似の結果である。また図中の黒の水平線はひずみゲージから得られた機械的なひずみによって得られた値である。赤○は緑より大きく、おおよそ機械的な値に近いことがわかる。また、(b)の構造因子の結果についてみると、やや傾向は変わってはいるが、赤○が緑より大きく、また機械的な値に近いという結果は(a)と同じである。すなわち、あらかじめ対象とする材料の弾性指数を決定した条件さえ同じものを用いれば、解析方法によらずに、従来の sin2 法を用いて、応力を決定することができることがわかった。

さらに、実機の部材の応力評価に際しては、残留応力を決定する必要がある。従来の sin2 法においては、無負荷状態の sin2 線図の傾きがゼロになる性質が存在するため、残留応力を決定することができる。しかしながら、本手法においては、無負荷状態でも傾きがゼロにはならず、傾きが高度比 R に依存することを明らかにした。すなわち、あらかじめ、対象材料の無負荷状態での傾きがゼロになる R を把握していれば、その R を用いて残留応力を決定することができることを示したことが、本研究の最も重要な成果である。

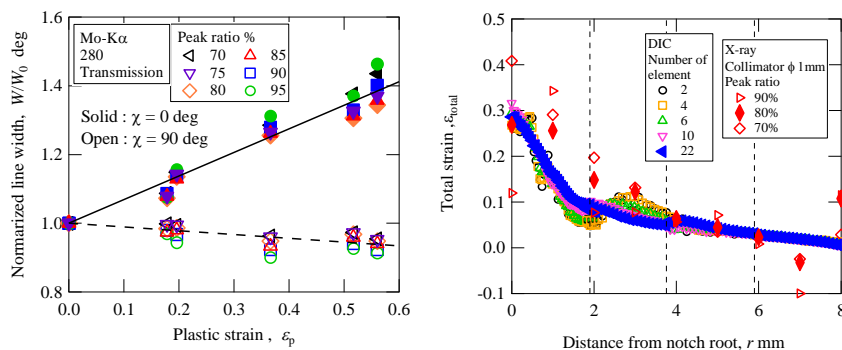
次いで、X線法を用いて塑性ひずみ評価を行った。図 5(a)は単軸で引張変形した材料を用い



(a) 生データの解析結果 (b) 構造因子の解析結果

図 4. X線の弾性定数と解析に用いた回折強度割合の関係

て、塑性ひずみと回折線幅の関係を求めたものである。図中のマークの違いは、強度比 R の違いに対応する。図中のデータは大きく 2 つのグループに分けられ、右上がりのデータ群と右下がりのデータ群である。右上がりのデータは、引張軸方向のひずみ測定時に測定される回折線幅であり、右下がりのデータは、それに垂直な横方向ひずみを測定する際に得られる回折線幅である。縦軸は、負荷変形する前の初期値  $W_0$  で正規化している。この結果からわかるように、回折線幅は、塑性ひずみに対して直線的に変化することがわかる。この関係を用いて、切欠き底に発生した塑性ひずみを求めた結果が図 5(b)である。縦軸が塑性ひずみで、横軸は切欠き底からの距離である。図中の赤印が X 線によって決定された塑性ひずみであり、他のマークは画像相関法 DIC によって決定された値である。X 線法では強度比が 80%以外の結果はばらつきが大きいことから、塑性ひずみ評価の際には、強度比 80%が適することがわかる。またその値は、DIC の結果ともよく一致する。



(a) 単軸負荷の回折線幅変化 (b) X線法と DIC の比較

図 5. 塑性ひずみの X 線測定結果

図 6 は、ポリカーボネート切欠き材の環境応力割れ強度評価を行った結果である。切欠き半径が 1mm, 2.5mm および 5mm になるように片側切り欠きをエンドミルによって機械加工で導入した。また、このほかに切欠き半径がさらに小さくなるように、カミソリの刃を用いて、き裂状の切欠きを導入した試料も用意した。図 6(a)は負荷公称応力(切欠き半径による応力集中がないと考

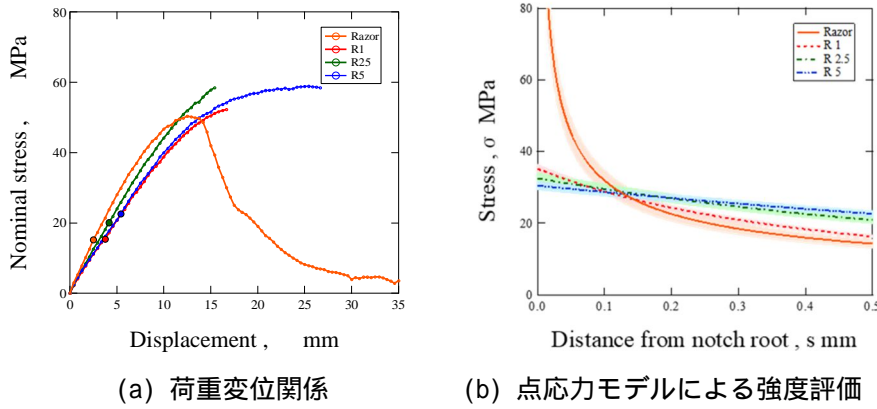


図 6. 灯油中負荷の環境応力割れ強度

えた時の切欠き底応力)と負荷変位(曲げ負荷ジグの負荷ボルトの変位)の関係である。試料が耐えうる最大応力は、5mm がやや小さいものの、切欠き半径が大きくなるにつれて大きくなることからわかる。図中の丸印(20MPa 前後にプロット)は、各試料のき裂発生時の負荷応力である。環境応力割れのき裂発生限界に注目して、切欠き底からの FEM による応力分布をプロットしたのが、図 6(b)である。切欠き材の環境応力割れの破壊条件は点応力モデルでおおよそ推定可能であることがわかる。

本研究における応力測定では、コリメータ直径 1mm について検討してきた。その意味では、照射領域内 1mm の平均的な応力を評価していることになる。切欠き底の局所応力を議論するためには、例えば図 6(b)を参照すれば、設計に際しての要求精度にも依存するが、最低でも 20MPa 程度の精度が要求されることが読み取れる。例えば前述の弾性定数の精度を考えると、20MPa を保証するためには、さらなる精度向上が必要である。今後、この精度向上を目指しての検討が必要である。

結晶性高分子材料の X 線の弾性定数についても検討した。結晶性材料であるポリエーテルエーテルケトン(PEEK)の他、ポリエチレン(PE)、ポリプロピレン(PP)を対象として応力定数を評価した。PEEK および PE は、孤立ピークが存在するため、特定の回折ピークに注目した。一方、PP は各ピークが相互に重なるため、波形分離を行うことによって解析した。弾性定数の評価のためには、回折強度が十分高いこと、なるべく他のピークの影響を受けないことが、高精度測定に必要であることを示した。また、得られた X 線の弾性定数は、いずれの材料も機械的弾性定数より大きく回折面に依存するが、おおよそ 1~5 倍程度であり、非晶質領域の存在が大きく影響することが示唆された。また、熱処理や負荷の繰返しによって弾性定数が変化した。機械的弾性定数とともに X 線弾性定数も増加する傾向が認められたが、一部の回折面では、機械的弾性定数が変化する一方で、X 線の弾性定数はほぼ一定となる場合もあった。回折面依存性については、今後さらなる回折面のデータを集約したうえで議論しなければならない。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Kawamura Yuki, Akiniwa Yoshiaki	4. 巻 4
2. 論文標題 Measurement of the X-ray Elastic Constants of Amorphous Polycarbonate	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Quantum Beam Science	6. 最初と最後の頁 35 ~ 35
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/qubs4040035	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 向山祐樹, 秋庭 義明
2. 発表標題 X線法による非晶質ポリカーボネート切欠き材 のひずみ分布評価
3. 学会等名 日本材料学会 第54回 X線材料強度に関するシンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 竹澤遼, 秋庭義明, 竹田英俊
2. 発表標題 X 線による非晶質ポリカーボネートの応力評価
3. 学会等名 日本材料学会 第53回 X線材料強度に関するシンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊田幹太, 秋庭義明
2. 発表標題 熱処理されたポリエーテルエーテルケトンのX 線応力測定
3. 学会等名 日本材料学会 第53回 X線材料強度に関するシンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 秋庭義明, 河村優生, 山本康平, 竹田英俊
2. 発表標題 X線法による非晶質ポリカーボネートの変形評価
3. 学会等名 第52回 X線材料強度に関するシンポジウム
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関