

ランダムな接続性を有するネットワークポリマーの緩和挙動

東亜合成 ° 佐々木裕

1 はじめに

ゴムの高い破壊靱性の起源を説明するために、ヒステリシスロスなどのエネルギー散逸によって亀裂の伝播が抑制される Andrews のモデルが提案されている [1]。ゴム弾性体の古典的なモデルである「アフィンネットワークモデル」からの発展形として、節点の揺らぎに着目した「ファントムネットワークモデル (PNM)」が提案された。Flory によればメルト状態と同一なストランドのゆらぎを有するランダムネットワークにおいて PNM のふるまいを示すとされている [3]。我々は、この結節点のゆらぎ由来の散逸が、粘弾的なエネルギー散逸モデルとなりうるのではないかと考え、これまで検討を進めている。

以前に、規則構造ネットワークの接続性をランダムへと変えることで PNM を再現できることを報告した [4]。ここでは、ランダムな連結性を持つネットワークポリマーの緩和挙動について、MD シミュレーションにより検討した結果を報告する。

2 結果

2.1 シミュレーションについて

既報 [4] に従い、ランダムな接続性を有する 3, 4 および 6 分岐のネットワークを作成した。ストランドとして、セグメント間に LJ 相互作用を導入した KG 鎖と相互作用を入れないファントム鎖を用いた。その平衡状態および変形（一軸伸張およびずりせん断）時の振る舞いについて、OCTA 上の COGNAC シミュレーターを用いた分子動力学シミュレーションにより評価した。

2.2 力学応答の評価

セグメント間相互作用のないファントム鎖を用いた場合、せん断速度の低下により理論的なファントムネットワークの応答と同様なものを得た。絡み合いの存在する KG 鎖では、変形速度依存性が消失するせん断速度において、PNM モデルが示す弾性率 G の約二倍程度の弾性率となった。この弾性率の差は、セグメント間相互作用と絡み合いの双方の寄与があるものと推定できた。

PNM へと漸近する変形速度 ($1.0E-4 \lambda/\tau$) で周期的なせん断変形 ($\lambda = 1$) を付与した結果、複数回の変形に対しても迅速な回復を伴った力学的ヒステリシス (Hysteresis loss $\simeq 40\%$) を示すことが確認できた。

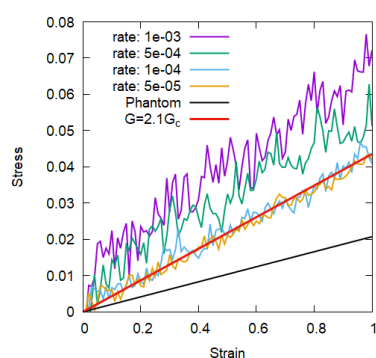


Fig.1 Stress-Strain Curves for 4-chain NW at varied shear rate ($1e-2 \sim 5e-5 \lambda/\tau$)

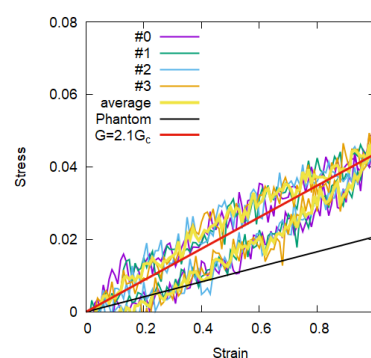


Fig.2 Hysteresis Curves for 4-chain NW by Cyclic Shear ($\lambda = 1$): shear rate $2e-4 \lambda/\tau$

参考文献

- [1] E. H. Andrews, Y. Fukahori Journal of Materials Science, 12, 1307 (1977)
- [2] T. L. Smith, R. A. Dickie Journal of Polymer Science Part A-2: Polymer Physics, 7, 635 (1969)
- [3] P. J. Flory Proceedings of the Royal Society of London. Series A, 351, 351 (1976)
- [4] H. Sasaki, 69th Rheology Symposium Preprint (2021)