

# MD シミュレーションによるネットワークポリマーのゴム弾性

東亜合成 ° 佐々木裕

## 1 はじめに

破壊靱性が高いゴム系材料は、フィラー同士の相互作用のような比較的大きなスケールの構造から、フィラー界面近傍での拘束領域のような中間的なスケール、さらには、ネットワーク構造の均一性のようなマイクロなスケールに至るマルチスケールの事象が階層的に組み合わせりマクロ特性に大きな影響を与えることが知られている。

ゴムの大きな破壊靱性値について、ヒステリシスロスの存在が亀裂進展に伴うエネルギー開放量を減少させ、その結果、亀裂の進展が抑制されるというモデルが Andrews に提案されている [1]。ゴムへのフィラーの添加 [2] においては大きなヒステリシスが存在し、その高靱性メカニズムはこの考え方に合致している。この効果はメゾスケール領域での挙動であると考えられているが、ヒステリシス挙動はこのスケールでしか発現しないのであろうか。我々は、分子鎖描像のようなマイクロな領域においても粘弾性緩和でのエネルギー散逸を設計することでエラストマー材料の破壊靱性を向上し、しなやかな強さを付与できる可能性が残されているのではないかと考えている。

ゴム弾性の古典的なモデルとして、結節点のマイクロな変形がマクロな変形と相似でアフィン変形するとした「ネオ・フックアンモデル」が知られている。この発展形として、結節点の揺らぎに注目しマイクロな変形がマクロと異なるとした「ファントムネットワークモデル」が提案されている。我々は、この結節点のゆらぎ由来の散逸が、マイクロなスケールでの粘弾性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ている。

本報告では、規則構造ネットワークのユニットセル間における規則性をランダムへと変えることで、「ファントムネットワークモデル」を再現できるシミュレーション系の構築を目指し、平衡構造での鎖の挙動、及び、大変形時の挙動に注目した検討結果について報告する。

## 2 シミュレーション

### 2.1 ネットワークモデルの作成

任意の分岐数  $f$  ( $f = 3 \sim 6$ ) の結節点からなる規則構造を有するネットワークより、以下のアルゴリズムでランダムな結合性を導入した。

1. 任意の分岐数のトポロジーモデルを作成 (Fig. 1)。
2. 代数的連結性を指標として連結性を維持しながらストランド交換し、結節点の結合性にランダム性を導入 (Fig. 2)。
3. トポロジーモデルに対応して実空間の構造からストランドを除去。

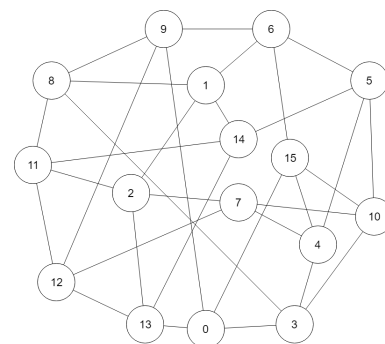


Fig.1 Topological NW Model

### 2.2 MD シミュレーション

上記にて生成したネットワークを OCTA 上の COGNAC シミュレーターにより MD シミュレーションを行った。

- 初期状態は、黒色のボンドと潜在的な緑色のボンド (8-Chain のときに存在)
- 任意のボンド (ピンクのボンド) を一つ選択：真ん中の状態
- そのボンドを含んだ平行四辺形のトポロジーを探す。
- 二本毎にセット (黒色のボンドと緑色のボンド) で入れ替える。

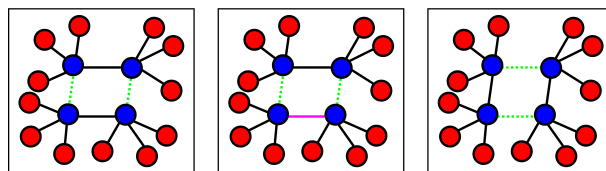


Fig.2 Strand Exchange Procedure

## 3 結果と考察

### 3.1 ストランドの末端間距離 $\langle R \rangle$ の分布関数

初期緩和後のストランドの末端間距離は初期設定と比較して伸びており、ファントムネットワークモデルで予想される振る舞いとほぼ合致した。

### 3.2 ファントムネットワークの緩和

ステップ変形により応力緩和を評価し、ネットワークの緩和について調べた。

## 参考文献

- [1] E. H. Andrews, Y. Fukahori *Journal of Materials Science* **1977**, 12, 1307–1319.
- [2] T. Igarashi *et al. Macromolecules* **2013**, 46, 1916–1922.