

革新的力学機能材料の創出に向けたナノスケール動的挙動と力学特性機構
の解明

2022 年度
年次報告書

2020 年度採択研究代表者

浦山 健治

京都大学 大学院工学研究科
教授

ひずみ誘起結晶化機構の解明と最大化によるエラストマーの革新的強靱化

主たる共同研究者:

櫻井 伸一 (京都工芸繊維大学 繊維学系 教授)

谷口 貴志 (京都大学 大学院工学研究科 准教授)

角田 克彦 ((株)ブリヂストン サステナブル・先端材料統括部門 首席研究
主幹)

沼田 圭司 (京都大学 大学院工学研究科 教授)

研究成果の概要

「ひずみ誘起結晶化(SIC)」は、ナノスケールで生じるエラストマーのマクロな強靭化機構である。本研究は、(1) SIC のナノダイナミクスとマクロな強靭化の相関の解明、(2) 分子シミュレーションを併用した SIC の動的分子機構の解明、(3) 天然ゴム(NR)の SIC 性能の更新と代替 NR 開発の新戦略の確立、を目的としている。2022 年度の主たる成果を挙げる。

(I) NR のき裂先端近傍での SIC について、細いビームを用いた WAXS 測定で結晶化度と結晶 c 軸方向の空間分布を、顕微鏡下の DIC 解析でひずみ場を調べ、結晶/非晶領域の境界は二軸性に関係なく一定の主ひずみで決まること、c 軸はひずみテンソル主軸と方向分布が一致すること、などがわかった。

(II) SIC 結晶の配向が一軸伸長では一軸円筒対称であるが平面伸長では面配向が優勢であり、ひずみの二軸性が結晶配向に影響を与えることがわかった。一軸伸長の SIC 結晶では昇温過程で a, b 軸は熱膨張によって増加するが c 軸はエントロピー弾性効果で減少するという特異性を見出した。

(III) 脱タンパク処理した NR にオリゴペプチドを添加すると、脱タンパクで低下した SIC 性能が回復した。NR の SIC 挙動には残存タンパク質の水酸基が影響していることが示唆された。

(IV) 全原子シミュレーションを用いて NR での微量残留タンパク(PAP)とイソプレン鎖の会合状態を調べ、従来説とは逆に、PAP は鎖の水酸基末端と強く結合しジメチルアリル末端とはほとんど会合していないことがわかった。

(V) 初期き裂長を変量した NR の破壊エネルギーがある臨界長で不連続的に変化する挙動を、破壊機構の支配因子の SIC から粘性散逸への転移として説明し、この挙動が SIC 由来強度の評価法を与えることを示した。

【代表的な原著論文情報】

- 1) “Impact of Strain-Induced Crystallization on Fast Crack Growth in Stretched Cis-1,4-Polyisoprene Rubber”, Osumi, R., Yasui, T., Tanaka, R., Mai, T.-T., Takagi, H., Shimizu, N., Tsunoda, K., Sakurai, S., Urayama, K., *ACS Macro Lett.*, **11**, 747-752 (2022).
- 2) “Experimental Analysis of Fast Crack Growth in Elastomers”, Mai, T.-T., Morishita, Y., Tsunoda, K., Urayama, K., *Adv. Polym. Sci.*, 289, 239-272 (2023).
- 3) “Comparison of Mullins Effect Anisotropy of the Elastomers Reinforced by Carbon black and Silica Filler”, Mai, T.-T., Taniguchi, Y., Tsunoda, K., Urayama, K., *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **51**(1), 33-39 (2023).
- 4) “Substantial Effect of Terminal Groups in cis-Polyisoprene: A Multiscale Molecular Dynamics Simulation Study”, Dixit, M., Taniguchi, T., *Macromolecules*, **55**, 9650–9662 (2022).
- 6) “Transition of Rupture Mode of Strain Crystallizing Elastomers in Tensile Edge-Crack Test”, Tsunoda, K., Kitamura, Y., Urayama, K., *Soft Matter*, **19**, 1966-1976 (2023).