

Title	傾斜をつけた高性能エラストマーの材料設計
Author(s)	杜 國 越
Citation	
Issue Date	2025-03
Type	Thesis or Dissertation
Text version	ETD
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10119/19945">http://hdl.handle.net/10119/19945</a>
Rights	
Description	Supervisor: 山口 政之, 先端科学技術研究科, 博士

氏 名	DO Quoc-Viet		
学 位 の 種 類	博士（マテリアルサイエンス）		
学 位 記 番 号	博材第 609 号		
学 位 授 与 年 月 日	令和 7 年 3 月 21 日		
論 文 題 目	Material design of high-performance elastomers with gradient structure		
論 文 審 査 委 員	山口 政之	北陸先端科学技術大学院大学	教授
	松村 和明	同	教授
	都 英次郎	同	教授
	ホ アン ヴァン	同	教授
	浦山 健治	京都大学	教授

論文の内容の要旨

With the increasing demand for new materials, there is a need for advanced material design methods that can meet various performance requirements. This thesis presents a novel approach to material design by creating graded structures using a simple thermal treatment technique. Typically, crosslinked rubber is assumed to have a homogeneous distribution of crosslinking points. However, in most conventional rubbers, especially those produced by compression molding, a crosslink density gradient exists due to variations in thermal history, depending on the distance from the mold. This phenomenon is reasonable because polymeric materials generally have low thermal diffusivity, meaning it takes longer to reach an equilibrium temperature profile during heating processes, including vulcanization. As a result, the core region in rubber is exposed to high temperatures for a shorter duration than the skin layer, leading to a difference in crosslink density. Following this concept, a temperature gradient was applied during vulcanization to fabricate rubber with a graded crosslink density.

In this thesis, graded rubber with a crosslink density gradient in the thickness direction was prepared using conventional Styrene-Butadiene Rubber (SBR). The mechanical properties of the graded rubber were systematically studied and compared with those of homogeneous rubbers. The graded rubber exhibited significant strain recovery and high energy absorption. Moreover, it demonstrated interesting swelling behavior. These phenomena correspond to the presence of a gradient structure, where the mutual interaction between high-crosslink and low-crosslink regions is the origin of the peculiar properties. Finally, the segregation behavior, which is known to lead to a concentration gradient, was investigated in the SBR/tackifier blend to clarify the mechanism of segregation. By using this technique, the properties of the graded material could be easily tailored.

It is hoped that this thesis will contribute to a profound understanding of the unique properties of graded rubber and other materials with gradient structures. The findings of this

research are also intended to inspire the design of novel smart materials in material science.

Key words: material design; temperature gradient; graded rubber; strain recovery; swelling; segregation.

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、傾斜構造を有するゴム材料の調製方法と、その力学特性に関する研究内容を纏めたものである。主として、架橋密度に傾斜をつけた材料と、低分子量添加剤の濃度に傾斜をつけた材料を研究対象としている。

架橋密度に傾斜を与えたゴム材料は、温度勾配下で架橋処理を行う方法によって得ている。高温側は架橋密度が高く、低温側は架橋密度が低い。このように表裏で架橋密度の異なるゴムシートの力学特性を調べたところ、延伸後に応力を開放すると極めて長い時間をかけて元の形状に戻ることが明らかになった。その結果、繰り返し変形下では大きなヒステリシスを生じる。エネルギー吸収性が高まったことから振動吸収材などの用途に適した材料であると言える。さらに、この傾斜構造ゴムを有機溶媒中に浸すと、浸漬直後は架橋密度の高い面を外側にしてカールし、長時間経過後には逆方向（架橋密度の低い面を外側）にカールすることが判明した。長時間経過後のカール状態は網目密度によって容易に予想できるが、短時間域で観測された逆方向へのカール現象はこれまでに報告例がない。片方の表面が束縛されたゴムの膨潤では、その初期に束縛されていない側の表面が不規則に乱れる現象が過去に報告されている。本研究では、その表面が乱れることを説明した理論に基づき解析を進め、カール現象が生じる理由を説明している。どのような化学構造のゴムであっても同様の現象が期待できることから、今後、ハイドロゲルなどを用いることでアクチュエータ等に応用できる可能性がある。

低分子化合物の濃度に勾配を与えた材料も、温度勾配下にサンプルを晒すことで得られる。本研究ではスチレン-ブタジエンゴムにタッキファイヤーとして知られる $\alpha$ -メチルスチレン系オリゴマーを添加している。本系は熱力学的に相溶性を示すが、温度勾配後は低温側でタッキファイヤー濃度が高くなることが判明した。また、この偏析現象は相互作用パラメータの温度依存性によって整理できる可能性を明らかにしている。タッキファイヤーの濃度分布を利用することで、優れた振動吸収性能を示すゴム材料の設計が期待できるなど工業的にも興味深い。

以上、ゴム材料を対象として、傾斜構造を与える研究を系統的に実施し、力学特性に関する新しい知見を得ると共に、その学術的な説明も行っている。材料設計の手法は極めてシンプルであり、工業化に向けての問題点もほとんどない。

本論文は、新規な機能性ゴムについて研究したものであり、学術的に貢献するところも大きい。よって博士（マテリアルサイエンス）の学位論文として十分価値あるものと認めた。