

令和 3 年 6 月 16 日現在

機関番号：14303

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18H02034

研究課題名(和文)多様な変形モードを用いた液晶エラストマーのソフト弾性挙動の解析

研究課題名(英文) Characterization of the soft elasticity of liquid crystal elastomers by various stretching modes

研究代表者

浦山 健治 (Urayama, Kenji)

京都工芸繊維大学・材料化学系・教授

研究者番号：20263147

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)：液晶エラストマー(LCE)は液晶配向とゴム弾性のカップリングによってソフト弾性とよばれる性質を示す。本研究は、ポリドメイン配向LCE膜の力学特性を直交する2方向に伸長する二軸伸長変形で調べ、2方向のひずみ比にかかわらず、2方向の真応力が均等化され、その真応力が2方向のひずみには関係なく膜厚方向のひずみ(または荷重面の面積)のみによって決まる、という特異性を見出した。一方で、液晶配向は二軸ひずみ場に応じて再配向していることを広角X線散乱測定によって確認した。この結果は、二軸伸長されたLCEは膜厚一定下で自由に形状を変化できる液体的な挙動を示すことを意味し、ソフト弾性の本質的な特徴を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

一般的に、力学異方性のないゴムを直交する2方向に伸長すると、真応力(変形状態の断面積あたりの荷重)はひずみの大きい方向の方が大きくなる。液晶ドメインがランダム配向したポリドメイン液晶エラストマーに二軸伸長すると、2方向のひずみの組み合わせに関係なく、2方向の真応力が均等化されるという特異な性質を見出した。また、この真応力の大きさは膜厚方向のひずみ(もしくは荷重面の面積ひずみ)のみで決まっていることも明らかにした。この結果は、ポリドメインLCE膜が二軸荷重下で液体的な挙動を示すことを意味している。この性質により、ポリドメインLCE膜は皺が発生しにくい膜の素材としての応用も期待できる。

研究成果の概要(英文)：Liquid crystal elastomers (LCE) exhibit a characteristic mechanical property called "soft elasticity" as a result of the coupling between liquid crystal orientation and rubber elasticity. We have revealed the unusual feature of mechanical properties by biaxial stretching of polydomain LCE membranes: The true stresses in the two orthogonal directions are equalized and a function of only the thickness variation (or only area strain of loading plane), independent of the combination of the two orthogonal strains. The wide-angle X-ray scattering measurements confirm that the imposed biaxial strain drives the realignment of local nematic order. The results signifies that the polydomain LCE membranes behave like as a liquid under biaxial loading.

研究分野：高分子物性

キーワード：液晶エラストマー 液晶高分子 高分子液晶 エラストマー ゴム 液晶

1. 研究開始当初の背景

液晶エラストマー (LCE) は液晶性をもつゴムである。LCE は液晶配向とゴム弾性のカップリングによりソフト弾性とよばれる特異な力学的性質を示すことが知られている。LCE を一方向に伸長すると、伸長方向に液晶が再配向し、その再配向に誘起された伸長方向への変形が自発的に生じることにより、極めて小さい張力で高伸長できることが様々な LCE について確認されてきた。このような LCE の力学的性質は高分子や液晶の物理分野で注目されるだけでなく、ソフトアクチュエータとしての素材として応用面でも関心を集めてきた。既往研究では LCE の力学的性質は専ら、一方向に単純に伸長する一軸伸長によって調べられてきた。しかし、一軸伸長はエラストマーが可能な変形のうちの特異な一変形にすぎず、複雑な変形をうける実用面を考えれば、多軸ひずみ状態での力学応答を調べる必要がある。また、LCE のソフト弾性の性質が多軸ひずみ状態ではどのように顕在化するかは学問的に興味深い問題である。

2. 研究の目的

本研究は、直交する 2 方向に LCE 膜を様々なひずみ比で伸長し、二軸伸長下の応力一ひずみ挙動および液晶の再配向挙動を調べ、多軸変形下でのソフト弾性の効果を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

<大面積で均一な LCE 膜の合成>

エン/チオール反応を用いた手法 (Yakacki et al., RSC Adv. 2014) によって、ポリドメイン配向の主鎖型 LCE 膜 (65 x 65 x 2 mm) を作製した。等方相で架橋を行い、キャスト法により成膜した。二軸伸長測定のためには上記の大面積で均一な膜試料が必要であり、この条件を満たす成膜条件を確立した。

<二軸伸長測定>

特別製作した現有の二軸伸長装置を用いた。x と y 方向のひずみ比を 1/1, 5/1, 5/2, 5/3 とした二軸伸長、y 軸を初期長のまま固定して x 軸に伸長する平面伸長、および単純な一軸伸長、の計 6 種類の伸長モードを用いた。伸長速度は、伸長中の応力緩和の影響がほぼ無視できる遅い速度を用いた。

4. 研究成果[1-3]

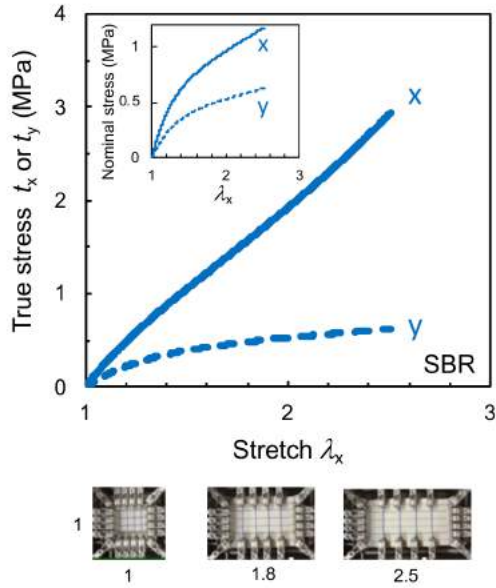


Figure 1

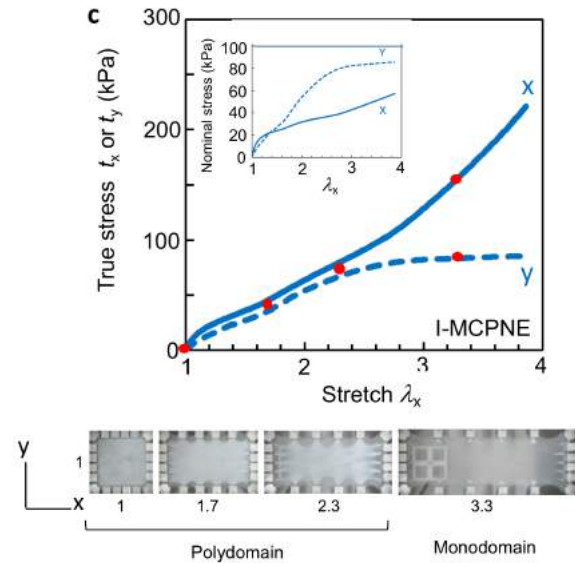


Figure 2

Fig. 1 に非液晶性ゴムであるスチレンブタジエン共重合体ゴム (SBR) の平面伸長での真応力-伸びデータを示す。一般に観察されるように、真応力および公称応力ともに伸長軸 (x 軸) の方が拘束軸 (y 軸) よりも全ひずみ領域で大きい。一方、LCE ではポリドメイン領域に相当するひずみ域では真応力が両軸で等しいことがわかる。この領域では、公称応力 (張力に比例) は伸長初期では x 軸の方が大きいものの、ひずみが数十%を越えると y 軸の方が大きくなる。ひずみが十分に大きくなり、LCE が x 軸に配向したモノドメインに変化すると (試料が透明化)、真応力は x 軸の方が大きくなり、通常のゴムと同様の挙動になる。

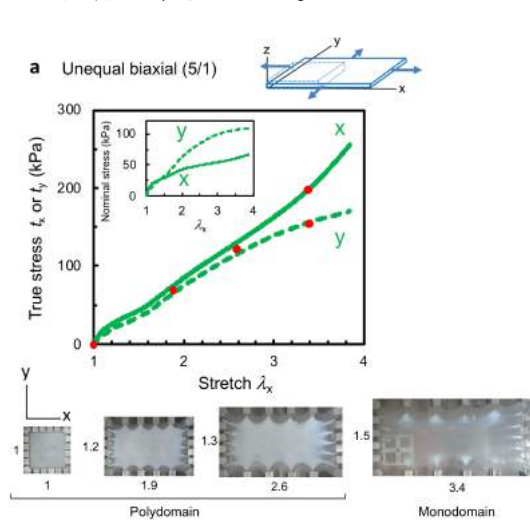


Figure 3

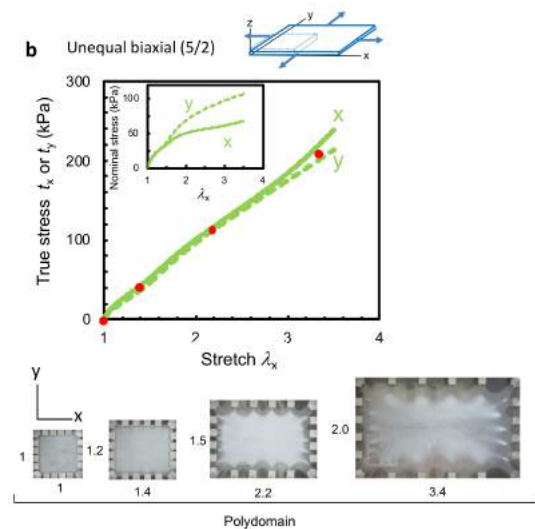


Figure 4

Figure 3 と 4 に、ひずみ比を 5/1 および 5/2 とした二軸伸長での LCE の結果を示す。

平面伸長の場合と同様に、ポリドメイン領域ではいずれのひずみ比でも2方向の応力は均等化されている。モノドメイン化に必要なひずみは、ひずみ比5/1の方が平面伸長よりも大きくなっており、y軸方向の伸長が大きいほどダイレクタのx軸方向への再配向が妨げられることがわかる。

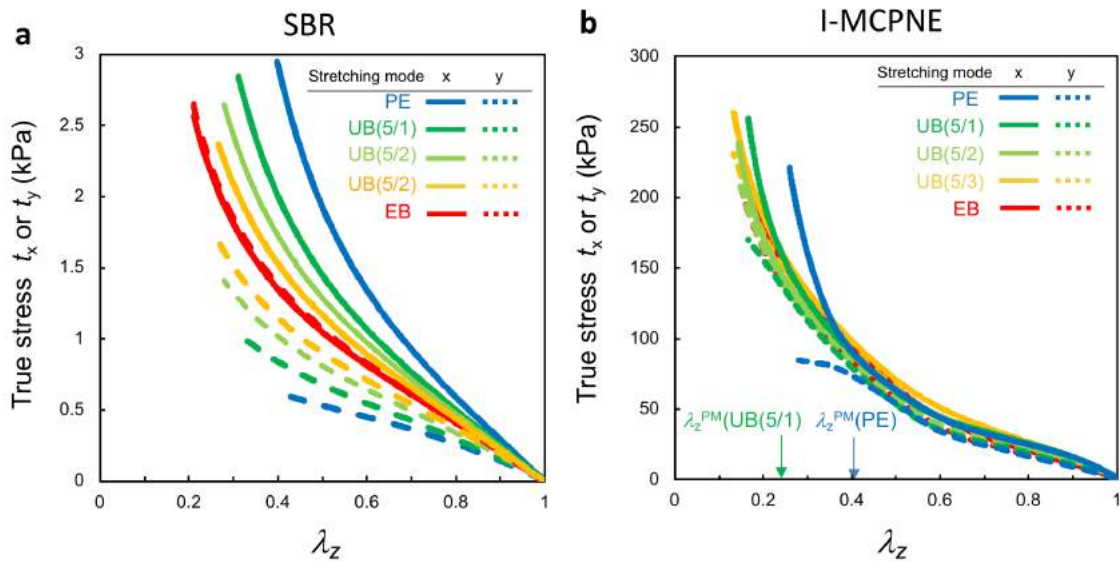


Figure 5

Figure 5 に様々なひずみ比で二軸伸長したときの2方向の真応力を、膜厚方向の軸比 λ_z に対してプロットした結果を示す。 λ_z は、体積一定の条件から求めた (変形時の体積変化が無視できるほど小さいことは別の実験で確かめている)。SBR の場合、当然ながら、各変形および各方向の真応力は λ_x と λ_y の関数であるため、 λ_z に対しての依存性には見るべき特徴はない。一方、LCE の場合、ポリドメイン領域における各変形および各方向の真応力のデータは一本の曲線を形成し、 λ_z のみの関数 (言い換えると、 $\lambda_x \lambda_y$ のみの関数) になっていることがわかる。

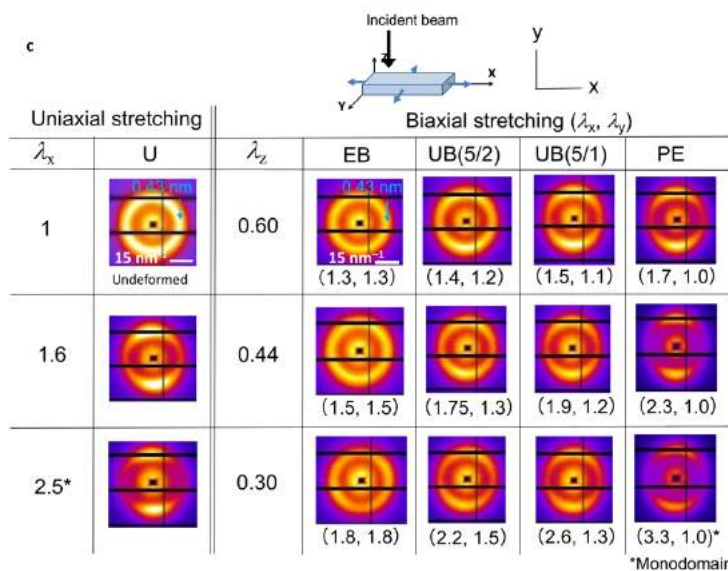


Figure 6

Fig. 6 に様々な二軸伸長状態の LCE の二次元 WAXS パターンを示す。最も外側に位置する回折は、液晶のメソゲン基の間隔に相当しており、未変形状態では液晶ドメインのランダム配向を反映した円環状のパターンを示している。x 軸方向のひずみが大きいほど回折リングの偏りが大きくアーク状に変化しており、x 軸方向への再配向が進行していることがわかる。

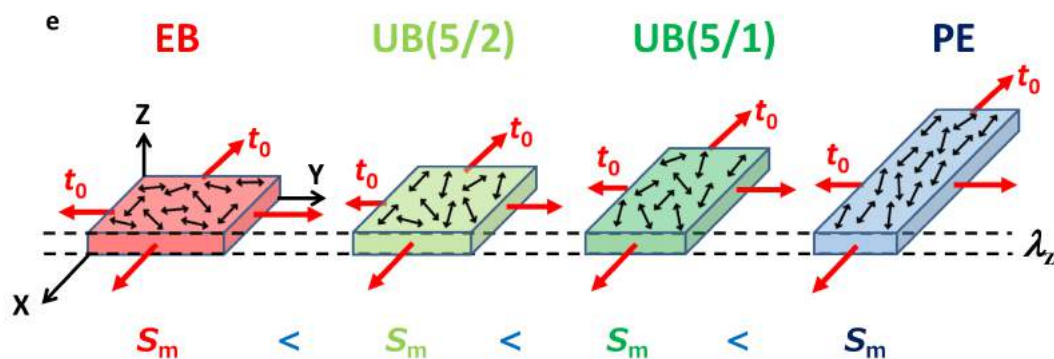


Figure 7

Fig. 5 と 6 の結果より、ポリドメイン配向で二軸伸長された LCE では、厚さが同じであれば、ひずみ比に関係なく、2方向の真応力は同じである一方で、液晶の再配向の程度はひずみ場の異方性ととも高くなる、といえる (Fig. 7)。この性質は、ポリドメイン配向の LCE は、膜厚ひずみ (荷重面の面積) が同じであれば、外からの力学的仕事を加えなくても自由に形状を変化させられること、すなわち液体のように挙動することを明確に示している。この成果は LCE のソフト弾性の本質を捉えたものであるとともに、皺のよらないソフト膜への応用の可能性も秘めている。

< 発表論文 >

(1) Tokumoto, H., Hao, Z., Takebe, A., Kamitani, K., Kojio, K., Takahara, A., Bhattacharya, K.*, Urayama, K.*

"Probing the in-plane liquid-like behavior of liquid crystal elastomers"

Sci. Adv., accepted for publication.

(2) Okamoto, S., Sakurai, S., Urayama, K.*

"Effect of Stretching Angle on Stress Plateau Behavior of Main-Chain Liquid Crystal Elastomers"

Soft Matter, **17**, 3128-3136 (2021). DOI: 10.1039/d0sm02244f.

(3) Takebe, A., Urayama, K.*

"Supersoft Elasticity and Slow Dynamics of Isotropic-Genesis Polydomain Liquid Crystal Elastomers Investigated by Loading and Strain Rate Controlled Tests"

Phys. Rev. E, **102**, 012701 (2020). DOI: 10.1103/PhysRevE.102.012701.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Tokumoto, H., Hao, Z., Takebe, A., Kamitani, K., Kojio, K., Takahara, A., Bhattacharya, K., Urayama, K.	4. 巻 7
2. 論文標題 Probing the in-plane liquid-like behavior of liquid crystal elastomers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 eabe9495
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	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 該当する

1. 著者名 Takebe, A., Urayama, K.	4. 巻 102
2. 論文標題 Supersoft Elasticity and Slow Dynamics of Isotropic-Genesis Polydomain Liquid Crystal Elastomers Investigated by Loading and Strain Rate Controlled Tests	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 012701-1-7
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevE.102.012701	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Okamoto, S., Sakurai, S., Urayama, K.	4. 巻 17
2. 論文標題 Effect of Stretching Angle on Stress Plateau Behavior of Main-Chain Liquid Crystal Elastomers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 3128-3136
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/d0sm02244f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 4件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 Kenji Urayama
2. 発表標題 Responsive Photonic Crystals Based on Cholesteric Liquid Crystal Elastomers/Gels
3. 学会等名 EMN meeting on Smart and Multifunctional Materials（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kenji Urayama
2. 発表標題 Responsive Photonic Cholesteric Elastomers/Gels
3. 学会等名 The 5th International Conference on Nanomechanics and Nanocomposites (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kenji Urayama
2. 発表標題 Stimulus Responsive Liquid Crystal Elastomers/Gels
3. 学会等名 The 12th International Gel Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Kenji Urayama
2. 発表標題 Multiaxial Deformation and Crack Growth of Elastomers and Gels
3. 学会等名 International Webinar on Gels and Networks (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 浦山健治	4. 発行年 2018年
2. 出版社 NTS出版	5. 総ページ数 10
3. 書名 刺激応答性高分子ハンドブック	

1. 著者名 Kenji Urayama	4. 発行年 2019年
2. 出版社 Springer	5. 総ページ数 17
3. 書名 Soft Actuators (2nd Ed.), Chapter 16, "Thermal and Electrical Actuation of Liquid Crystal Elastomers"	

〔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
研究 分 担 者	小椎尾 謙 (Kojio Ken) (20346935)	九州大学・先導物質化学研究所・准教授 (17102)	

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			
米国	California Institute of Technology			