

実験報告書様式(一般利用課題・成果公開利用)

(※本報告書は英語で記述してください。ただし、産業利用課題として採択されている方は日本語で記述していただいても結構です。)

 MLF Experimental Report	提出日 Date of Report 2013/7/5
課題番号 Project No. 2012B0183 実験課題名 Title of experiment 高分子/フィラー複合系における補強効果 実験責任者名 Name of principal investigator 増井 友美 所属 Affiliation 住友ゴム工業株式会社 材料開発本部 材料第三部	装置責任者 Name of responsible person 中島 健次 装置名 Name of Instrument/(BL No.) AMATERAS/BL-14 実施日 Date of Experiment 2012/12/21~25

試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、結論等を、記述して下さい。(適宜、図表添付のこと)
Please report your samples, experimental method and results, discussion and conclusions. Please add figures and tables for better explanation.

1. 試料 Name of sample(s) and chemical formula, or compositions including physical form.
Polybutadiene : 100 (phr), Silica : 65, Si69 : 4.5, ZnO : 2.5, Stearic acid : 2, Sulfur : 1.5, CZ : 1.7, DPG : 2 Polyisoprene: 100 (phr), CB: 50, Stearic acid : 2, Sulfur : 1.5, NS : 1.0

2. 実験方法及び結果 (実験がうまくいかなかった場合、その理由を記述してください。) Experimental method and results. If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons.
<p>【実験方法】</p> <p>高温測定を実施するため、BL01:四季分光器から高温スティックを借り、試料セルである二重円筒セルを用いて実験を実施した。実験中の J-PARC の出力は 270~280 [kW]であった。</p> <p>高分解能かつ高効率で実験を行うために、低エネルギーモードを用いた。使用した中性子のエネルギーは 1.6855, 3.134, 7.733 [meV] の 3 つである。2012A 期で実施したフィラー充填量を変化させたゴムのデータ点の追加実験および、CB 種違いによるポリマーダイナミクスの影響を調べるため、298, 312, 340, 366 [K] で実験を行った。各温度点で統計精度の高いデータを得るため、700 万カウントとなるように測定時間を決めて測定を行った(ビーム停止がなければ約 3.5 時間)。</p>

2. 実験方法及び結果(つづき) Experimental method and results (continued)

【実験結果】

AMATERAS で得られた準弾性散乱曲線をデルタ関数と二つのローレンツ関数の和でモデル解析を記述することができた。各散乱ベクトル Q 、温度に対して得られた準弾性散乱曲線を同関数でフィッティングを行うことで線幅の狭いローレンツ関数の半値全幅 Γ_b 、線幅の広いローレンツ関数の半値全幅 Γ_n を得た。図 1、2 に半値全幅のフィラー充填量依存性を示す。半値全幅 Γ_b はフィラー充填量にほとんど依存しないことが分かった。一方、線幅の狭いローレンツ関数の半値全幅 Γ_n はフィラー充填量によって $Q^2 > 3 \text{ \AA}^{-2}$ の領域で半値全幅の値が変化することが分かった。京都大学金谷教授らによるポリブタジエン単体の報告例を参考にして、解析した結果、線幅の狭い半値全幅 Γ_n はジャンプ拡散運動モデルで解析することができ、ポリブタジエンの局所的なコンフォーメーション転移に由来するものと考えられる。

ジャンプ拡散運動モデルで解析した結果、フィラー充填量によってポリブタジエンの滞在時間が極小値をもつことが明らかになった。これは、フィラー充填量が低いときには、ポリマーは自由に動けるが、フィラー充填量の増大によって運動が阻害されたためと考えられる。極小値は、フィラー充填量が一定値以上になるとフィラーの凝集塊が生成することにより、逆にポリマーの自由に動ける領域が増えることで運動の阻害が抑制されたものと考えられるが、フィラー分散などの解析は別途 SPring-8 等で実施予定である。

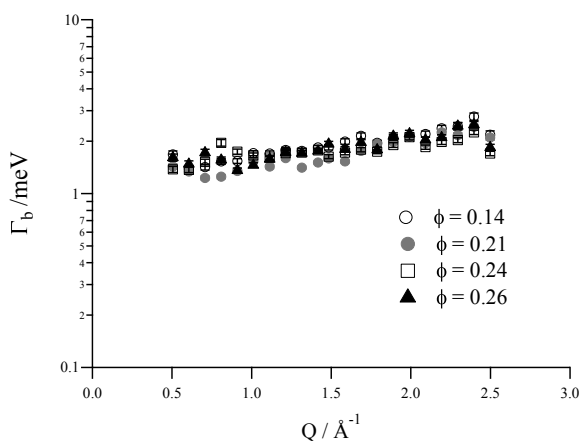


図1 300 K における半値全幅 Γ_b のフィラー濃度依存性。

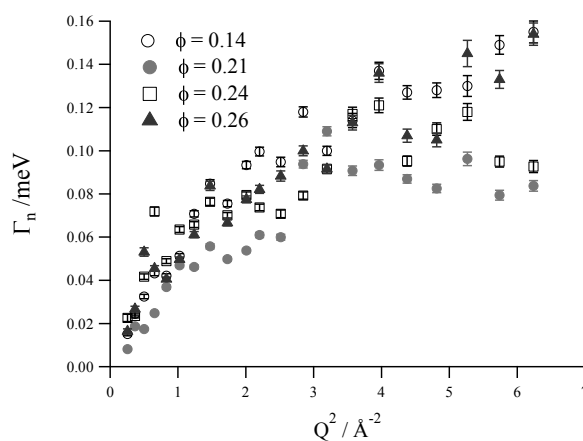


図2 300 K における半値全幅 Γ_n のフィラー濃度依存性。