


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。)

	承認日 Date of Approval 2014/10/1 承認者 Approver Kaoru SHIBATA 提出日 Date of Report 2014/9/24
課題番号 Project No. 2014A0118 実験課題名 Title of experiment Relation between spatio-temporal structure of polymer nano-composites and dynamic viscoelasticity 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	装置責任者 Name of Instrument scientist 柴田 薫 装置名 Name of Instrument/(BL No.) DNA/(BL02) 実施日 Date of Experiment 2014.5.16~5.21

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.
フィラー充填ポリブタジエンゴム : シリカ体積分率 $\phi = 0 \sim 0.3$

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>本実験課題では、フィラー添加によるゴムの力学物性の変化のメカニズムを明らかにするため、フィラー添加によるポリマーのダイナミクス変化について中性子非弾性散乱法により調べた。</p> <p>【実験方法】</p> <p>試料: 試料は、中空円筒型の純アルミニウム試料ホルダー(高さ 72mm、直径 14 mm、厚み 0.25mm)の円筒内壁に沿って縦 40mm、横 50mm 角サイズのゴムシートを配置して測定を行った。試料による多重散乱を防ぐため、厚さ 0.3mm に成形したゴムシートを用いた。</p> <p>実験: 各種試料に対し、0°C、30°Cで変えて中性子非弾性散乱実験を行った。実験は分解能 13μeV の低分解能モードと波形整形チョッパーを用いた分解能 3μeV の高分解能モードの両者でそれぞれ実施し、アナライザーは Si(111)反射面を用いた。</p>

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

【実験結果】

フィラー未充填のポリブタジエン (polybutadiene) とシリカ充填ポリブタジエン (Silica filled polybutadiene) のそれぞれに対して中性子非弾性散乱実験を実施した。図1に、温度 300K、 $Q = 1.08 \text{ \AA}^{-1}$ で得た分解能 $13 \mu\text{eV}$ の低分解能モード条件の中性子準弾性散乱データを、図2に分解能 $3 \mu\text{eV}$ の高分解能モード条件で得た中性子準弾性散乱データを示す。赤実線、青実線はそれぞれフィラー未充填のポリブタジエン、シリカ充填ポリブタジエンから得られたデータである。黒実線はバナジウム試料から得た分解能関数である。グラフから明らかのように、シリカ充填をすることにより準弾性散乱データの広がりが抑制されることが分かる。

本試料はシリカとポリブタジエンからなっており、元素としてケイ素、酸素、水素を含む。ケイ素、酸素の散乱断面積は水素の散乱断面積の約 20分の1 であることから、得られた準弾性散乱曲線の広がりは、主にポリブタジエンに含まれる水素原子からの非干渉性散乱に由来するものである。したがって、本実験によりシリカ充填することでポリブタジエンの拘束成分が増加し、運動性が低減したことを意味している。

図1, 2のデータは一つのデルタ関数と二つのローレンツ関数の和でフィッティングすることができた。その結果、各成分比が変化するとともに、ローレンツ関数の半値全幅が変化することを明らかにすることができた。一方、高分子系の緩和挙動に関しては、Kohlausch-Williams -Watts (KWW) 式で記述するのが一般的であり、現在、本データを KWW 式で解析し、その指数変化についても並行して検討を進める予定である。

最後に、本試料に関しては、BL14 の AMATERAS 装置でも同一温度での実験を実施しており、AMATERAS、DNA の異なる分解能のデータを統合することで、ピコ秒からナノ秒に渡るフィラー充填ゴムのダイナミクスについて詳細解析できることが期待できる。今後、得られた結果をもとにシミュレーションを応用しながら力学物性との対応関係を検討していく予定である。

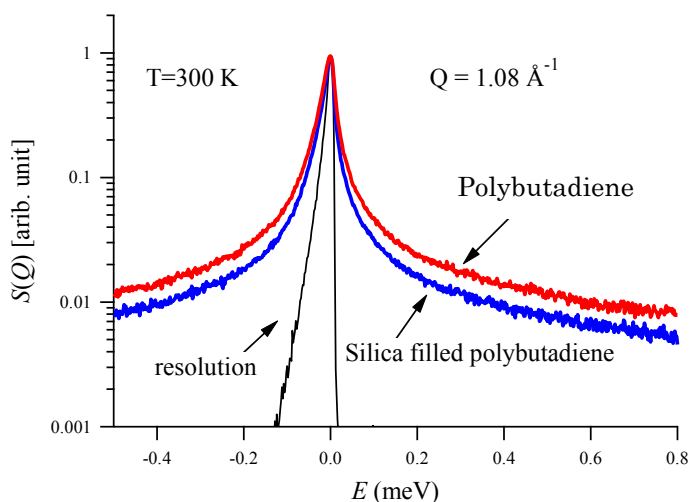


図1 低分解能条件で得た 300K における Polybutadiene (赤実線) と Silica filled polybutadiene (青実線) の中性子準弾性散乱データ

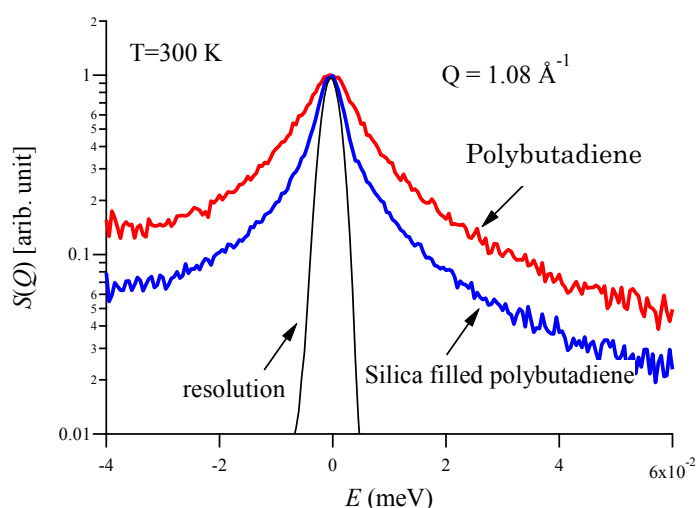


図1 高分解能条件で得た 300K における Polybutadiene (赤実線) と Silica filled polybutadiene (青実線) の中性子準弾性散乱データ