

実験報告書様式(トライアルユース)

(※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 Jan. 4, 2015 承認者 Approver J. Suzuki 提出日 Date of Report 2014/8/5
課題番号 Project No. 2014A0059 実験課題名 Title of experiment 中性子散乱を利用した 3 次元架橋有機高分子の不均一性解析 実験責任者名 Name of principal investigator 富永哲雄 所属 Affiliation JSR 株式会社	装置責任者 Name of Instrument scientist 岩瀬裕希 装置名 Name of Instrument/(BL No.) TAIKAN/BL-15 実施日 Date of Experiment 2014 年 4 月 24 日～26 日

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.
スチレンブタジエンゴム加硫物(シート) ポリイソプレンゴム加硫物(シート) D-トルエン

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>低燃費タイヤ用ゴム材料における架橋の不均一構造を解析するため、D-トルエンで膨潤したゴムシート試料について小角中性子散乱測定を行った。本実験方法は柴山らにより提唱され天然ゴム、ポリイソプレンゴムなどに応用されている。架橋ゴムを膨潤させると、架橋密度の粗密により微視的オーダーで膨潤度にむらができる。この時溶媒としてD-トルエンを用いることでSANS測定により架橋の不均一構造に対応する特徴的な散乱パターンが検出される。この方法は膨潤により不均一性を「可視化」するため「膨潤可視化法」と呼ばれている¹⁾。本実験では、試料の特徴的な散乱パターンがSANS実験装置の測定範囲に入るかどうかのポイントとなる。</p> <p>本トライアルユース課題では、弊社の各種ゴム材料についてJ-PARC/MLF BL-15 TAIKANでSANS測定を実施し、各試料における架橋の不均一構造に対応する散乱パターンがTAIKANの測定範囲に入るかどうか調べることを目的とする。</p>

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

・実験結果および考察

図1にスチレンブタジエンゴム(SBR)試料 2 種(SBR_1, SBR_2)およびポリイソプレンゴム(IR)試料 2 種(IR_1, IR_2)の D-トルエン膨潤平衡状態における SANS プロファイルを示す。ここで、SBR_1、IR_1 は標準的な配合の試料、SBR_2、IR_2 は酸化亜鉛を抜いた配合の試料である。いずれの試料でも文献で報告されている形状に類似の散乱パターンを示している。また、試料間で散乱パターンが異なることから、架橋の不均一構造が異なると考えられる。

膨潤可視化法では、試料の散乱 $I(q)$ が式(1)のように網目散乱(OZ 項)と不均一散乱(SL 項)の和で与えられると仮定する。

$$I(q) = I_{OZ}(0)/(1+\zeta^2q^2) + I_{SL}(0)/(1 + \varepsilon^2q^2)^2 \quad (1)$$

ここで、 ζ は架橋網目の相関長、 ε は不均一性の特徴長を表す。

図2に SBR_1 の散乱プロファイルを式(1)でフィッティングした結果を示す。この試料は式(1)でよくフィッティングされていることが分かる。フィッティングにより得られた SBR_1 の相関長 ζ は 6 Å、不均一性の特徴長 ε は 112 Å となった。SBR_2 の散乱プロファイルは SBR_1 の散乱プロファイルが小角側にシフトした形状なので、 ζ 、 ε も SBR_1 より大きな値になると予想される。これは、天然ゴムの実験で酸化亜鉛を増加させるとメッシュサイズが小さくなるという結果¹⁾とコンシステントである。SBR_2 についても同様の解析で ζ 、 ε を得ることにより試料間の定量比較が可能であるが、SBR_2 は小角側のデータが十分でなく不均一散乱における上に凸の形状が得られていないため、フィッティングで得られた ζ 、 ε の値は誤差が大きく試料間の定量的な比較が難しいと考えられる。実際、SBR_1 におけるフィッティング領域を上にも凸の形状を含まない 0.02 \AA^{-1} 以上に制限すると、 ζ は 7 Å、 ε は 212 Å となった。このことから ζ 、 ε の値を決めるためには、上に凸の形状の領域を測定する必要があるということが出来る。IR_1、IR_2 についても酸化亜鉛の効果について SBR と同様の違いが見られるが、小角側の上にも凸の形状が検出されていないので定量的な比較は難しい。

今回の TAIKAN における SANS 測定において、小角側の上にも凸の散乱プロファイルが測定された試料は SBR_1 のみであり、他の試料については上に凸の散乱プロファイルが検出されなかったことから架橋の不均一構造を定量的に比較することはできなかった。弊社のゴム材料について「膨潤可視化法」で架橋の不均一構造を定量的に評価するためには、より小角側のデータが必要であり測定範囲の小角側への拡張が望まれる。TANKAN においては測定範囲を小角側に広げる計画があるとのことなので、これにより評価可能な試料が増えることが期待される。

・参考文献

1) 柴山充弘：日本ゴム協会誌, **84**, 24 (2011).

