

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 2016/07/29 承認者 Approver Kaoru Shibata 提出日 Date of Report 2016/07/26
課題番号 2015A0175  <b>実験課題名</b> 中性子準弾性散乱によるエラストマー複合材中の 高分子鎖運動解析  <b>実験責任者名</b> 大江 裕彰  <b>所属</b> 東洋ゴム工業株式会社	<b>装置責任者</b> Name of responsible person  <b>装置名</b> BL02  <b>実施日</b> 2016.3.23～2016.3.26

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.

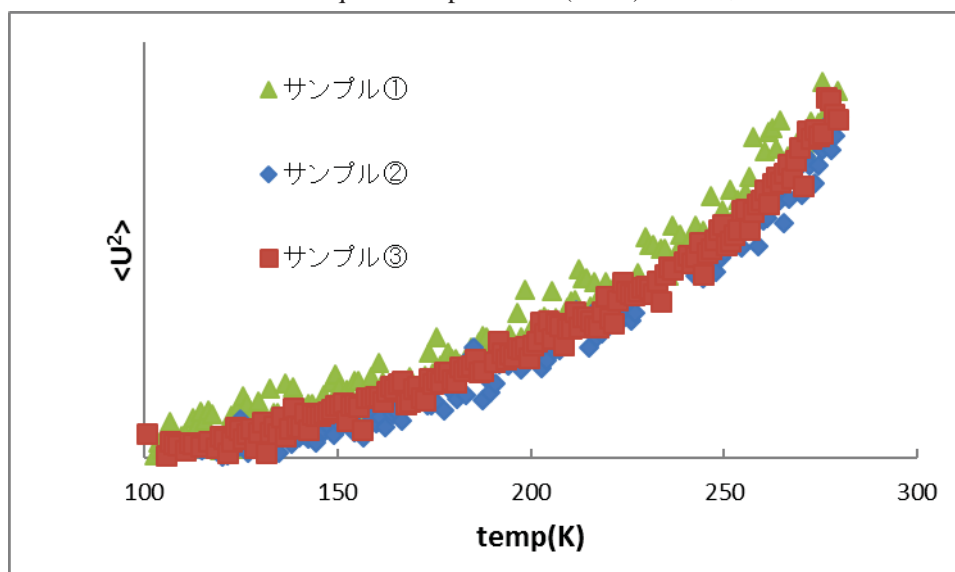
<p>1. 試料 Name of sample(s) and chemical formula, or compositions including physical form.</p> <p>試料は、スチレンブタジエンゴム、シリカ、シランカップリング剤、酸化亜鉛、ステアリン酸、硫黄をバンバリーミキサーで混練し作成した。シリカの濃度または化学的処理により、シリカによって拘束されたポリマー量を調整した下記 3 種類にて実施した。ポリマーとシリカの比率および拘束量は以下の通り。</p> <p>サンプル① スチレンブタジエンゴム=100 拘束量 0%                  サンプル② スチレンブタジエンゴム/シリカ=100/50 拘束量 25%                  サンプル③ スチレンブタジエンゴム/シリカ=100/50 拘束量 50%</p> <p>これらの試料を中性子準弾性散乱実験に適切な厚み (0.2mm 程度) のゴムシートに成型し、BL02 における試料セルにセットし測定した。</p>
--

## 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.

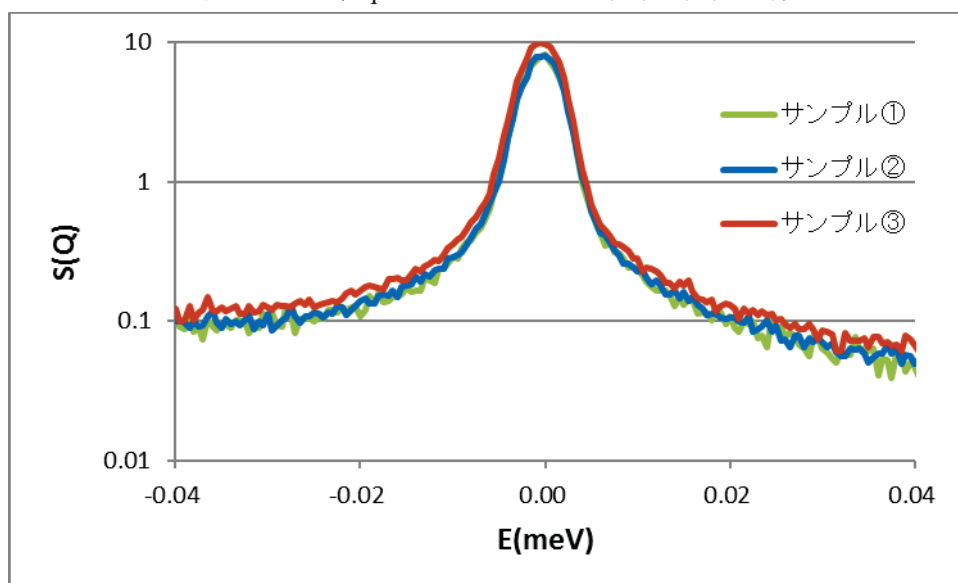
測定は、まずElastic Scanを実施し緩和現象の温度依存性を確認した。結果を図1に示す。サンプルのガラス転移温度である220K以降で、ポリマー拘束量による運動モードの違いが、ジャンプ量・傾き等から観測されると予想したが、期待した差、傾向は観測できなかった。一方で系全体の運動量の差は議論できる可能性あるため、次に300Kにおける準弾性散乱を測定した。

図1 mean-squared displacement(MSD)の温度依存性



準弾性散乱は高分子の比較的遅いダイナミクスを測定可能な高エネルギー分解能モードで実施した。ダイナミクス解析装置「DNA」(BL-02)のエネルギー分解能で求められる時間スケールは100ps~1ns程度であるため、この測定では主に、高分子鎖のローカルなセグメント運動に由来すると考えられる準弾性散乱の広がり観測できる。

図2 300K、 $q=0.18 \text{ \AA}^{-1}$ における準弾性散乱曲線



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

図2に各サンプルの準弾性散乱曲線を示す。ポリマー拘束量の多いサンプル③では、エネルギー=0での強度が増加しており、これはすべてのサンプルに共通して観測されるポリマーマトリックスに由来した運動モードとは別の比較的遅い運動モードに由来するものと考えられる。しかし、サンプル③のピークは他と比べてブロードであり、これが一般的にポリマーのフレキシブル性を示す結果であることを考慮すると、一概に拘束層の増加によるものと結論づけできない。詳細にこれを考察するべく、ローレンツ関数でフィッティングし半値半幅のQ依存性から、緩和時間、拡散係数を算出した。サンプル③はサンプル①②と比較して、いずれの値も運動量の減少を示す傾向にあった。こちらも系全体としての結果であると考え、上述のピークがブロードである現象には適用しがたい。現時点ではサンプル③のポリマー拘束層とフリー層が顕著に局在化しているための結果と予想しているが、これを掘り下げて考察するには、現状データ不足で別途実験が必要と考える。

今後はコントラスト変調法、あるいは運動モードをより際立たせる膨潤、引張などの外部操作とあわせた実験結果から、ゴム中ポリマーの運動モードを議論していきたい。