

1. Introduction

これまで MLF 実験課題においてゴム物質の準弾性散乱(QENS)測定実験を行ってきたが、近年のタイヤゴムの開発で重要視されているシランカップリング剤(CA)についても実験を行っている。しかしながら、CA についてはその有無や種類を変えても QENS シグナルにわずかしか差が見られなかった。一方、弾性散乱強度は CA に依存して変化していることがわかった。そのため、この弾性散乱強度の変化が CA とゴム性能の相関に関わっている可能性が大きい。

研究の最終目的は、CA とゴム性能の物理的な関係性を明らかにすることである。その中で、本実験では CA による弾性散乱強度の変化を明らかにし、その変化の原因の特定することを目的とした。さらに CA が物性に与える影響の解明も目指した。本実験では、CA 有無が異なる試料を用いて、低温から高温まで弾性散乱強度測定(elastic scan)を行い、Q ごとの弾性散乱強度の変化と温度の関係性を調べた。

2. Experiment

測定条件は以下の通り、

- Samples: シリカ配合 SBR(スチレンブタジエンゴム) シランカップリング剤(CA)あり/なし
- Temperature: 50K から 360K まで 1 K min^{-1} で昇温しながら測定、途中 290 K 前後で低温モードから高温モードに切り替え
- E-resolution: $4.2 \text{ } \mu\text{eV}$
- Beam power: 394 kW

測定データから 3 分ごとに弾性散乱の強度を計算する。温度ごとのデータを最低温のデータで割り、温度変化による強度変化に規格化する。得られた強度の Q 変化から次式を使用したフィッティングにより平均2乗変位 $\langle u^2 \rangle$ を求めた。

$$I(Q) = I_0 \exp\left(-\frac{\langle u^2 \rangle Q^2}{3}\right) \quad (1)$$

3. Results

CA あり/なしの試料それぞれについて、 $\pm 1.5 \mu\text{eV}$ の範囲で弾性散乱強度を計算した。また、比較のための分解能が異なるデータとして、 $\pm 20 \mu\text{eV}$ の範囲の積分強度も計算した。Fig. 1 にそれぞれの試料から得られた $\langle u^2 \rangle$ の温度変化を示す。その結果、分解能に関わらず CA の有無でほとんどの温度範囲でほぼ差がなかった。しかし、300K 以上の高温でわずかに差を観測することができた(Fig.2)。これまでの中性子散乱実験から数 meV 程度に観測されるモードが CA の有無で変わることがわかっている。この $\langle u^2 \rangle$ の変化がこのモードであるとする、エネルギー範囲とは大きく異なるため、積分するエネルギー範囲を変化させても、 $\langle u^2 \rangle$ の差は変わらない。実際の実験結果では積分範囲を大きくすると差は小さくなっている。したがって、今回観測されたモードの変化は、これまで観測されている変化とは異なり、非常に遅い拡散的なモードによるものである。この結果から、CA が配合されることでポリマーセグメントの緩和である α 緩和に差が生じていると考えられる。

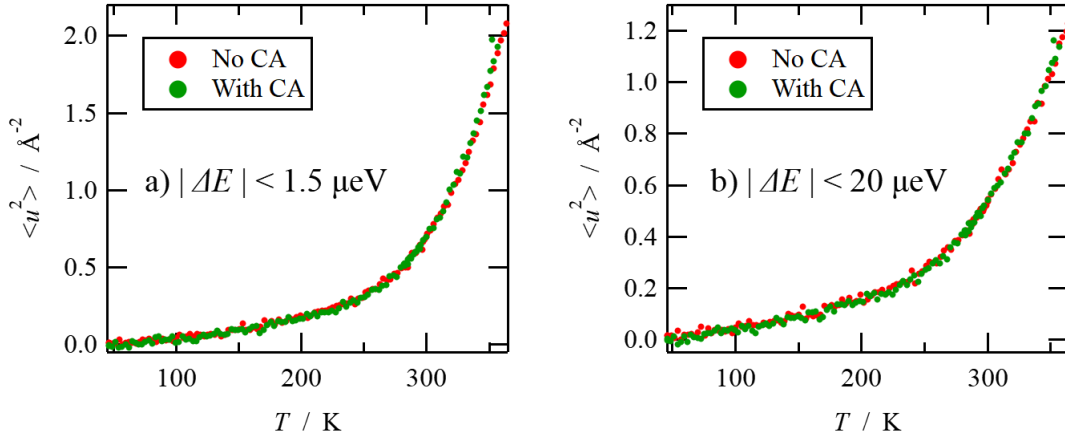


Fig.1 Mean square displacements of the rubbers calculated from the elastic intensity in $0.1 < Q / \text{\AA}^{-1} < 1.9$, which are obtained by integrating within (a) $|\Delta E| < 1.5 \mu\text{eV}$, or (b) $|\Delta E| < 20 \mu\text{eV}$.

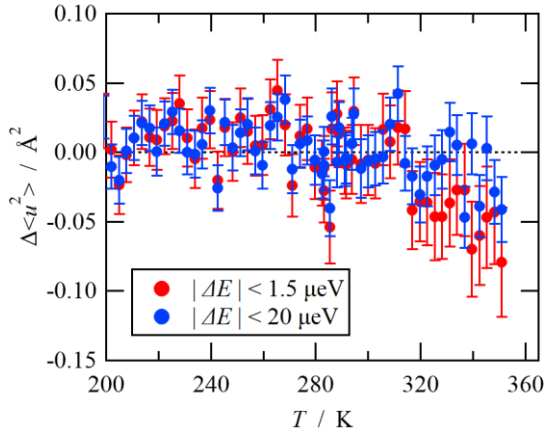


Fig.2 Differences of mean square displacements between samples with and without silane coupling agent (CA). The mean square displacements of the sample without CA are lower than that of the sample with CA.

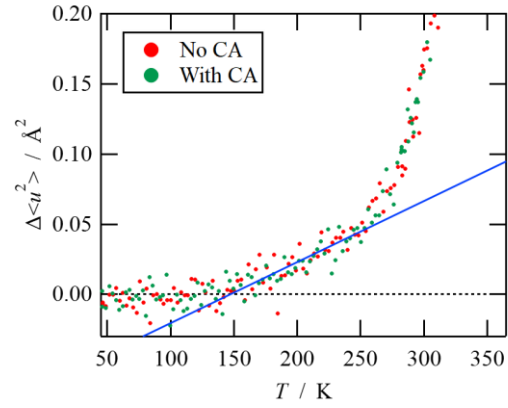


Fig.3 Differences of mean square displacements of the rubbers obtained from two energy-ranges which are $|\Delta E| < 1.5 \mu\text{eV}$, and $|\Delta E| < 20 \mu\text{eV}$. There is no difference in $T < 147 \text{ K}$. The differences are observed in $T > 147 \text{ K}$, which may be occurred by a diffusive mode.

4. Conclusion

今回の実験からゴム物質における CA の有無が運動に与える影響を elastic scan により明らかにすることができた。本実験の系で得られた差はわずかであったが、ダイナミクスの変化を捉えるために elastic scan は非常に有用であると考えている。例えば、Fig.3 では積分範囲を変えて得られた $\langle u^2 \rangle$ の差を示しているが、147K 以上で準弾性散乱的なモードが現れていることが明確にわかる。今後は、これまでに測定した QENS の結果と合わせて、中性子散乱の有用な中性子産業利用法とゴム物質の物理の解明を追求する。