

 <b>MLF Experimental Report</b>	提出日(Date of Report) 2018.5.17
課題番号(Project No.) 2017BM0015 実験課題名(Title of experiment) 小角中性子散乱法を用いた架橋ポリオレフィンの結晶化と架橋構造に関する研究 実験責任者名(Name of principal investigator) 三田 一樹 所属(Affiliation) 三井化学株式会社	装置責任者(Name of responsible person) 石垣 徹 装置名(Name of Instrument : BL No.) iMATERIA/(BL20) 実施日(Date of Experiment) 2018.3.21

実験目的、試料、実験方法、利用の結果得られた主なデータ、考察、及び結論を記述して下さい。

実験結果などの内容をわかりやすくするため、適宜図表添付して下さい。

Please report experimental aim, samples, experimental method, results, discussion and conclusions. Please add figures and tables for better explanation.

### 1. 実験目的(Objectives of experiment)

架橋ポリオレフィンとは、様々な産業材用途で使用されており、その機械物性や成形性を制御するには、結晶・架橋構造の精密な制御が必要不可欠である。中性子散乱法の活用により、結晶・架橋構造共存系の構造解析を行う。

### 2. 試料及び実験方法

Sample(s), chemical compositions and experimental procedure

#### 2.1 試料 (sample(s))

- ・高結晶性ポリエチレン(PE-1)、固体
- ・低結晶性ポリエチレン(PE-2)、固体
- ・重水素化パラキシレン(*p*-xylene-d<sub>10</sub>)、液体
- ・パラキシレン(*p*-xylene-h<sub>10</sub>)、液体

過酸化剤架橋を行った PE-1, 2 をプレス成形することにより、厚み 1mm のプレスシートを作製した。これを試料セルサイズに打ち抜き、*p*-xylene-d<sub>10</sub>/*p*-xylene-h<sub>10</sub> 混合体積比(D/H)の異なる 5 種類の溶媒(D/H = 0/100, 30/70, 50/50, 70/30, 100/0)に 48 時間浸漬させ、測定試料とした。PE-2 のほうがジエンの導入により結晶化度が低いことがわかっている。

#### 2.2 実験方法(Experimental procedure)

BL20 (iMATERIA)にて、小角中性子散乱(SANS)測定を行った。アルミニウムウィンドウを用いた試料セル、オートサンプルチェンジャーを利用して、室温測定を実施した。

### 3. 実験結果及び考察（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 results and discussion. If you failed to conduct experiment as planned, please describe reasons.

膨潤シート試料の測定結果を Fig. 1 に示す。ここで  $q$  は散乱ベクトルの大きさである。Fig. 1ab を見ると、溶媒の D/H により散乱プロファイル(コントラスト)が変化したことがわかる。次に PE-1,2 の D/H=100/0 プロファイルと比較した Fig.1c について述べる。PE-1, 2 いずれの試料においても、 $q = 0.025\text{\AA}^{-1}$  付近にピークおよびショルダーが観測された。これらは、PE の結晶部と溶媒を含んだ非晶部のコントラストを反映していると考えられる。結晶化度の高い PE-1 のほうが  $q = 0.025\text{\AA}^{-1}$  における強度は高くなった。またそれより小角側では PE-2 のほうが高い散乱強度を示した。高次構造を形成していると考えられる。以上より、結晶・架橋構造共存系を溶媒膨潤した試料では、結晶化度によって異なる階層構造を形成することがわかった。

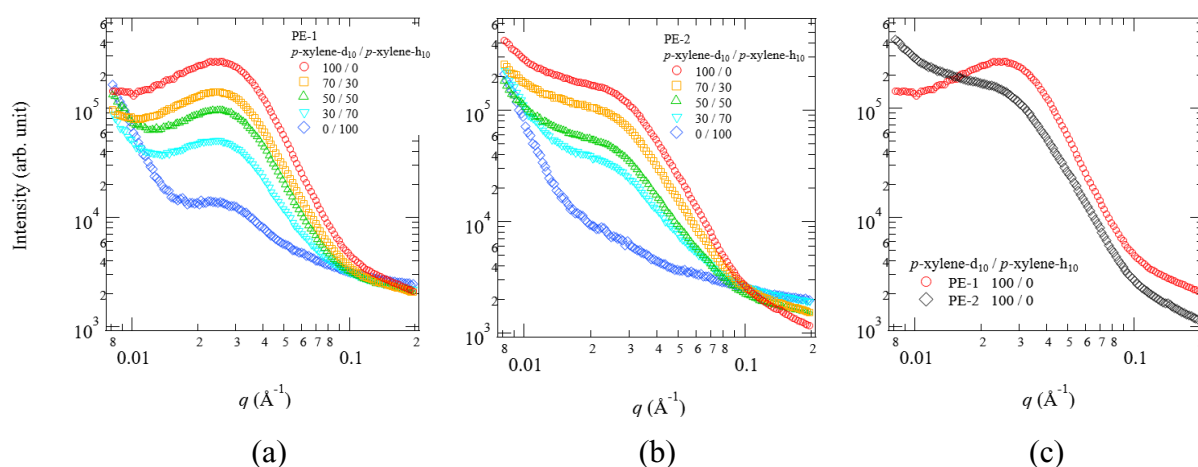


Fig. 1 SANS profiles of (a)PE-1 and (b)PE-2 swollen by mixture of *p*-xylene- $d_{10}$  and *p*-xylene- $h_{10}$ . (c)SANS profiles of PE-1, 2 swollen by *p*-xylene- $d_{10}$  (D/H=100/0).

### 4. 結論(Conclusions)

結晶・架橋構造共存系を溶媒膨潤させた試料において、結晶化度によって異なる階層構造を形成していることがわかった。今後、より詳細なモデル・フィッティングを検討する。

1. Takenaka, M.; Nishitsuji, S.; Amino, N.; Ishikawa, Y.; Yamaguchi, D.; Koizumi, S., Structure Analyses of Swollen Rubber-Filler Systems by Using Contrast Variation SANS. *Macromolecules* **2009**, *42* (1), 308-311.