

# USWAXSCT 法によるゴム充填系材料の延伸下における フィラー及びゴム鎖の配向分布変化

(<sup>1</sup>京大院・工、<sup>2</sup>京大・化研、<sup>3</sup>住友ゴム)

○島袋航<sup>1</sup>、小川紘樹<sup>2</sup>、間下亮<sup>3</sup>、竹中幹人<sup>2</sup>

## 〔緒言〕

フィラーが充填されたゴム材料の延伸下での破断機構の理解には、破壊の直接的な要因である空洞が空間的に不均一に発現することが報告されている[1]。しかしながら、空洞の発現機構の解明には、空洞発現前におけるフィラーとゴム鎖の配向分布状態を知る必要がある。そこで本研究では、超小角 X 線散乱 (USAXS) と広角 X 線散乱 (WAXS) を同時に測定し、これらにコンピュータトモグラフィー法 (CT 法) を組み合わせた USWAXSCT 法を用いることにより、ゴム充填系材料の延伸下でのフィラーとゴム鎖の配向分布変化を同時に評価することを試みた。

## 〔実験〕

ゴム充填系材料は、直径 100 nm のシーホスタ (シリカ粒子) を体積分率で 20% 含むスチレン-ブタジエンゴムを用いた。ゴム板から凍結マイクロームにより厚さが 0.5 mm、面が約 2 mm 角の板状に切削したものを測定試料とした。測定は、SPRING-8 の BL03XU において実施した。この試料を厚さ方向 ( $z$  軸方向) に延伸比 130% となるように延伸した状態で、USWAXSCT 測定を行った。入射する X 線の波長は 1.2 Å を選択し、USAXS のカメラ長を約 8 m、WAXS のカメラ長を約 285 mm とした。USAXS と WAXS の同時測定を行うために、WAXS の検出器は延伸方向に対して並行方向と垂直方向をそれぞれ計測できるように 2 台設置した。各 CT 画像を再構成するために、試料は  $z$  軸周りの回転角  $\varphi$  を 12° ずつ、0° から 180° までの範囲で回転させ、各  $\varphi$  において X 線を試料に対して X 線と垂直な方向 ( $x$  軸方向) に 40  $\mu\text{m}$  毎に入射して測定を行った。

## 〔結果と考察〕

延伸比 130% における二次元 USAXS 像の一例を Fig.1(a) に示す。散乱パターンはアーク状のパターンが発現し、延伸方向に対して垂直方向よりも平行方向の強度が増加していた。一方で、WAXS 像はリング状パターンの一部が観察された。しかしながら、Fig.1(b) の延伸方向に対して平行方向の強度よりも Fig.1(c) の垂直方向の強度の方が増加することがわかった。これまでの研究により、この散乱ピークは、ゴム分子鎖の短距離相関に対応していることが報告されている[2]。延伸に対して垂直方向の強度が増加していることから、延伸方向にゴム鎖が配向したことにより、分子鎖間の相関が増加したと考えられる。USAXS 像におけるアーク状パターン上の散乱強度から CT 像を再構成した結果を Fig.2(a) に示す。強度の不均一性が観測され、延伸方向に対して平行方向に配向した粒子の分布が不均一であることを示唆している。一方で、WAXS 像における延伸方向に対して平行方向と垂直方向との散乱ピーク強度から CT 像を再構成した結果をそれぞれ Fig.2(b) と Fig.2(c) に示す。強度分布から不均一性は確認されたが、Fig.2(a) で観察された分布状態とは一致しないことがわかった。

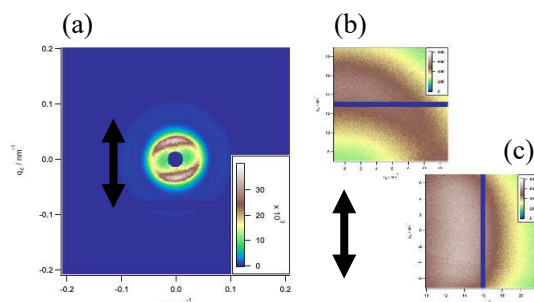


Fig.1 延伸比 130% における (a) USAXS 像と (b), (c) WAXS 像。黒矢印は延伸方向を示す。

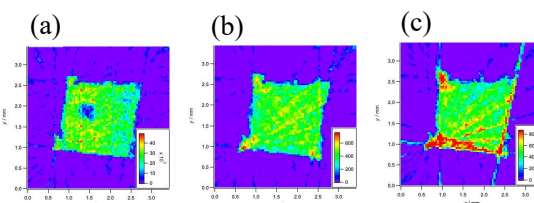


Fig.2 (a) Fig.1(a) のアーク状パターン上の強度から再構成した CT 像。 (b) Fig.1(b) の  $q_y=0 \text{ nm}^{-1}$  上における散乱ピーク上の強度から再構成した CT 像。 (c) Fig.1(c) の  $q_z=0 \text{ nm}^{-1}$  上における散乱ピーク上の強度から再構成した CT 像。赤部分は強度が高いことを表している。

[1] R. Mashita et al. *Scientific Reports* **13**, 5805 (2023)

[2] B. Frick et al. *Physical Review E* **67**, 051801 (2003)

## The Change of Orientation Distribution of Fillers and Rubber Chains under Extension of Rubber Filled Materials by USWAXSCT Method

Wataru SHIMABUKURO<sup>1</sup>, Hiroki OGAWA<sup>2</sup>, Ryo MASHITA<sup>3</sup>, and Mikihiro TAKENAKA<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Graduate School of Engineering, Kyoto University, Kyoto daigaku-katsura, Nishikyo-ku, Kyoto 615-8530, Japan; <sup>2</sup> Institute for Chemical Research, Kyoto University, Gokasho, Uji, Kyoto 611-0011, Japan; <sup>3</sup> Sumitomo Rubber Industries, Ltd., 3-6-9 Wakinohama-cho, Chuo-ku, Kobe, Hyogo 651-0072, Japan  
Tel: 0774-38-3145, Fax: 0774-38-3146, E-mail: shimabukuro.wataru.32s@st.kyoto-u.ac.jp