 <b>MLF Experimental Report</b>	提出日(Date of Report) 2017年4月10日
課題番号(Project No.) 2016BM0001 実験課題名(Title of experiment) 小角散乱による印刷用顔料複合体(トナー,インク)の構造変化解析 実験責任者名(Name of principal investigator) 増田 稔 所属(Affiliation) (株)リコー	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) 2017年1月20日

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.

<b>1. 実験目的(Objectives of experiment)</b>
<p>粉体</p> <p>この粉体は、樹脂中にさまざまな微粒子を含む多成分系の複合体である。この粉体の中にフィラー粒子を分散させるが、フィラー粒子の分散具合により、粉体の特性が大きく変わることが判っている。従来の TEM や SEM による観察では、どのような状態でフィラーが粉体中に存在するのか判っていなかった。</p> <p>以上の現状から、本研究では小角散乱により、このフィラーのナノスケールレベルでの状態、およびその変化を解析できるか検討したい。</p> <p>それができれば、粉体の構造をより制御できる指針を得ることができ工業的に役に立つ情報を得ることができる。</p> <p>微粒子分散溶液</p> <p>微粒子分散溶液は、有機微粒子・溶媒（水を含む）から成る固液複合材料である。この微粒子分散溶液は製造後、経時で粘度が変化するが、その詳細なメカニズムは分かっていない。</p> <p>これまでの検討結果の一つとして、パルス NMR での緩和時間の変化が挙げられる。微粒子分散溶液の粘度変化前後でパルス NMR 解析を行ったところ緩和時間が変化することが確認された。固液複合材料における緩和時間の変化は固体/液体間の相互作用が変化していることを示唆しているため、粘度変化前後での緩和維持間の変化は、微粒子分散溶液の微粒子と溶媒の相互作用が変化した、さらに言うと微粒子表面の微小構造が変化したためと推測している。ただし、その変化を観察あるいは特性値評価できた結果はない。</p> <p>本実験では、微粒子分散溶液の粘度変化が中性子小角散乱測定により得られる顔料の構造あるいは構成物質間の相互作用の差異として求められるか、関連を明確にすることを目的とする。</p>

## 2. 試料及び実験方法

Sample(s), chemical compositions and experimental procedure

### 2.1 試料 (sample(s))

粉体

- ① 粉体 A フィラーを高分散した粉体
- ② 粉体 B フィラーを通常分散した粉体
- ③ 粉体 A の中間材料 C(マスターバッチ)
- ④ 粉体 B の中間材料 D(マスターバッチ)

微粒子分散溶液

- |                             |               |
|-----------------------------|---------------|
| ① 溶液 E 微粒子分散溶液1を製造後低温保管したもの | 粘度 8.52 mPa·s |
| ② 溶液 F 微粒子分散溶液1を製造後常温保管したもの | 粘度 8.36 mPa·s |
| ③ 溶液 G 微粒子分散溶液1を製造後高温保管したもの | 粘度 8.16 mPa·s |
| ④ 溶液 H 微粒子分散溶液2を製造後低温保管したもの | 粘度 8.24 mPa·s |
| ⑤ 溶液 I 微粒子分散溶液2を製造後常温保管したもの | 粘度 8.14 mPa·s |
| ⑥ 溶液 J 微粒子分散溶液2を製造後高温保管したもの | 粘度 8.16 mPa·s |

### 2.2 実験方法(Experimental procedure)

iMATERIA(BL20)小角散乱、出力150KW

測定時間

粉体 : 1時間

微粒子分散液 : 0.5 時間

### 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.

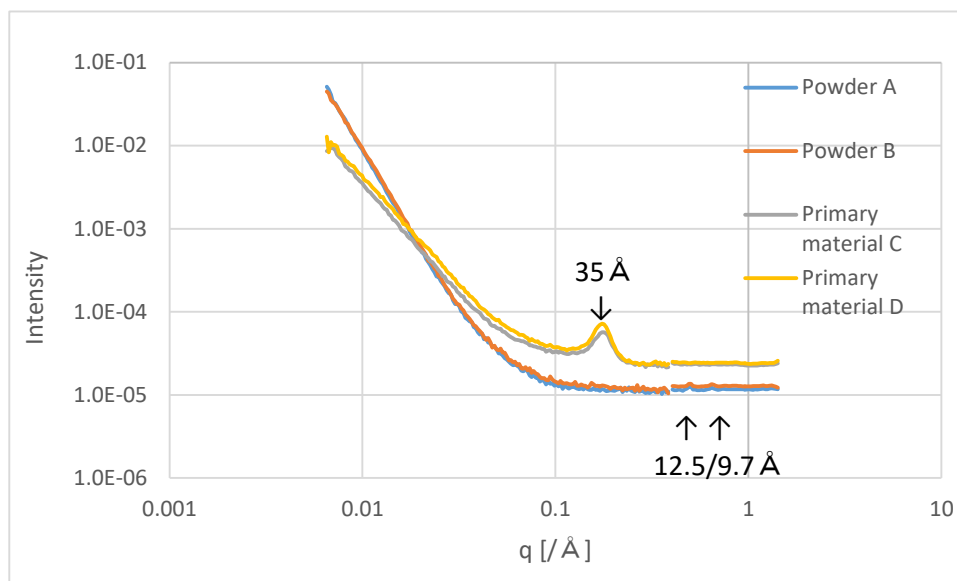


図1. 粉体とその原材料の測定結果

- ・粉体 A と粉体 B は、中性子小角散乱では、構造に大きな違いが見られなかった。これについては、フィラー量が少ないため、小角散乱のデータで、差が出るほど違いが得られなかったと考えられる。
- ・粉体 A と粉体 B で、 $q$  が 0.50 と 0.65 付近にピークがみられ、12.5 Å と 9.7 Å ぐらいの構造があると推測される。
- ・原材料 C と原材料 D は、中性子小角散乱に違いが見られる。フィラーの分散状態が異なっていることが原因と考えられる。
- ・原材料 C と原材料 D で、 $q$  が 0.175 付近にピークがみられ、35 Å ぐらいの構造があると推測される。

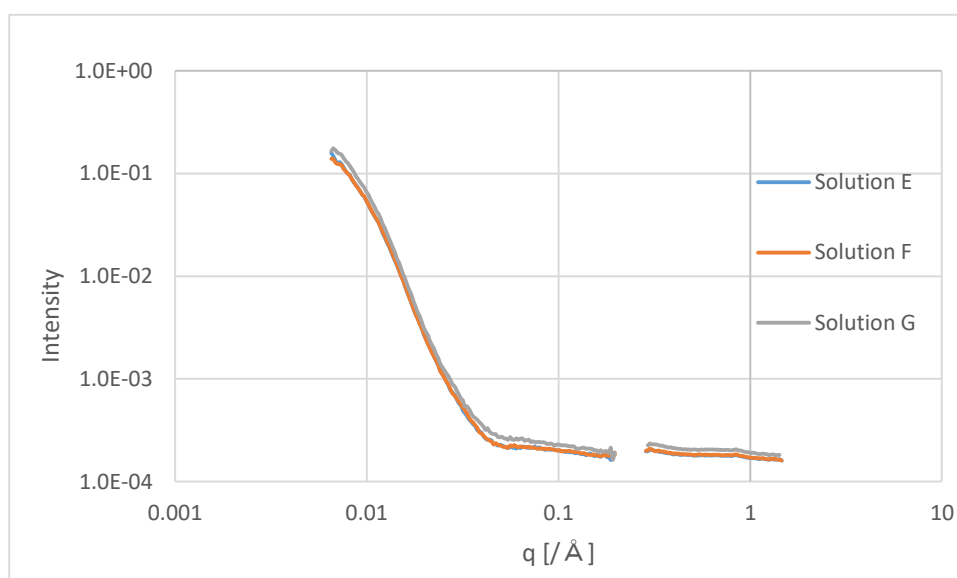


図2. 溶液 E,F,G の測定結果

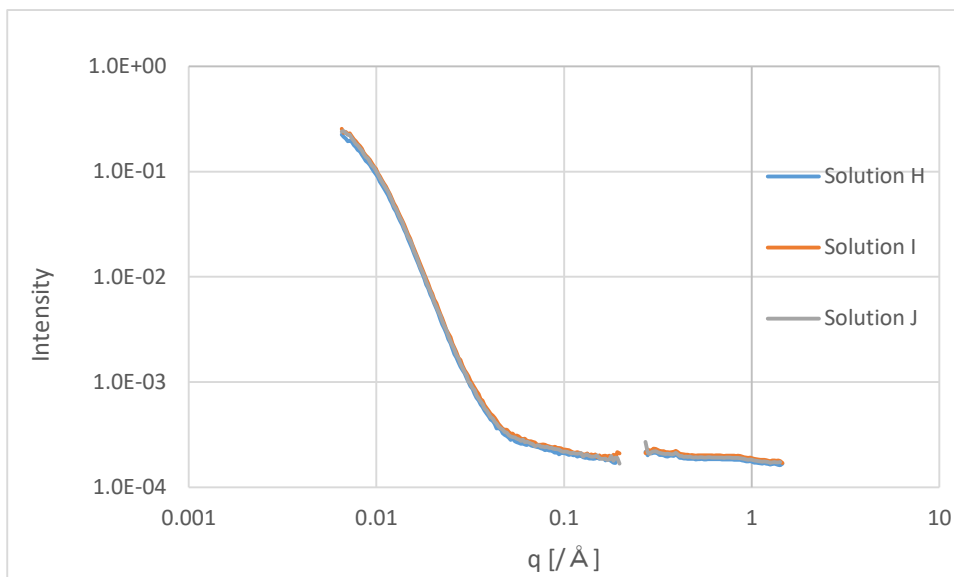


図3. 溶液 H,I,J の測定結果

- ・微粒子分散溶液1、微粒子分散溶液2とも、保存状態を変化させて粘度を変化させることにより、溶液の構造が変化して、中性子小角散乱のデータに違いが出ている。特に溶液 G は、溶液 E、溶液 F と構造の違いがよく見られる。
- ・溶液 E と溶液 F では、粘度変化に比べ、中性子散乱のデータに違いが見られない。これは、溶液の粘度測定を実施してから、中性子小角散乱の実験を行うまでに、常温に置かれた時間が長かったため、溶液 E の粘度が溶液 F の粘度に近づいたと考えられる。
- ・溶液 H、溶液 I、溶液 J については、溶液の粘度が近いので、中性子小角散乱のデータにも差が少なく、溶液の構造の変化が少なかった為と考えられる。

#### 4. 結論(Conclusions)

- ・粉体 A と粉体 B については、中性子小角散乱から、構造の違いを確認することが出来なかった。但し、フィラーの分散性を変えた原材料 C、原材料 D では、中性子小角散乱の違いを確認することが出来た。
- ・微粒子分散溶液については、保存状態の違いにより、微粒子分散溶液の構造が変化し、中性子小角散乱に違いが見られた。溶液の粘度変化は、微粒子分散溶液の構造変化が原因として考えられる。