

## 樹脂と複合化したナノ粉体の超小角 X 線散乱法(USAXS)による 粒度分布解析

### Particle Size Distribution Analysis of Nano-Powder in Resin Complex using Ultra Small Angle X-ray Scattering (USAXS)

橋本 久之<sup>a</sup>, 南雲 敏朗<sup>a</sup>, 鈴木 良知<sup>a</sup>, 稲場 徹<sup>a</sup>, 古川 洋一郎<sup>a</sup>,  
奥井 真人<sup>b</sup>, 福島 整<sup>b</sup>

Hisayuki Hashimoto<sup>a</sup>, Toshiaki Nagumo<sup>a</sup>, Ryouchi Suzuki<sup>a</sup>, Tohru Inaba<sup>a</sup>, Yoichiro Furukawa<sup>a</sup>,  
Masato Okui<sup>b</sup>, Sei Fukushima<sup>b</sup>

<sup>a</sup>電気化学工業（株）中央研究所, <sup>b</sup>独立行政法人 物質・材料研究機構 物質研究所

<sup>a</sup>Research Center DENKI KAGAKU KOGYO K.K., <sup>b</sup>NIMS

樹脂と複合化したナノ粉末の粒度分布解析を目的に、大型放射光施設 SPring-8 の BL15XU を用いて超小角 X 線散乱 (USAXS) 実験を行った。試料は ZnO ナノ粉末を PET 樹脂製のフィルムに厚さ 5 $\mu$ m で塗布した試験片を用いた。得られた USAXS スペクトルを解析した結果、樹脂と複合化した ZnO ナノ粉末の粒度分布解析が可能であることを確認した。本技術は複合体中のナノ粉末の粒度分布を非破壊で解析できることから、ナノ粉末含有製品の材料物性評価や品質管理手法として適用されることが期待される。

Particle size distributions of nano-powder in resin complex were analyzed by Ultra Small Angle X-ray Scattering (USAXS) at the BL15XU beamline. The particle size distribution of the ZnO nano powder dispersed into the PET film can be measured easily and precisely on non-destructive conditions. This technique is considered to be applied as the physical properties evaluation or the quality control for the several products contained the nano-powder.

#### 背景と研究目的

昨今の科学技術の進歩により、ナノ材料が様々な産業分野で使用されている。例えば半導体材料、充填材、触媒または医薬分野ではナノ粉末（ナノメートルサイズの粒子）を使用することがあるが、その粒度分布が製品の物性に大きな影響を与えるためにナノ粒子の

粒度分布解析技術が必要とされていた。そこで本課題実験者らは 2003B 期に実施した BL15XU ビームラインを用いた課題実験 (Prop. No. 2003B0110-ND1d-np) にて、超小角 X 線散乱法 (USAXS) によるナノ粉体の粒度分布測定技術を確立した<sup>1), 2), [1]</sup>。しかし、ナノ粉末は樹脂などの材料と複合化して（す

なわち製品として) 使用されることが多いため、製品の物性評価や品質管理を行うために複合化状態における粒度分布測定手法の確立が急務であった。よって本課題実験では複合材料中のナノ粒子の粒度分布解析を行うため、BL15XU による USAXS 実験を試みた。

## 実験

実験は BL15XU に設置された高精度粉末回折計を用い、入射 X 線エネルギー 8000(1)eV の条件にて行った。試料は ZnO (酸化亜鉛) ナノ粉末と、それを PET (ポリエチレンテレフタレート) 樹脂に厚さ 5 $\mu$ m で塗布した試験片を用いた。USAXS 測定領域は散乱角度  $0.010^{\circ} < 2\theta < 1.000^{\circ}$  とし、さらに得られる散乱強度が検出器に用いた YaP シンチレーションカウンターの計数直線性が最も優れる 100 ~ 100,000cps の範囲内となるように適宜 Al アッテネータの厚さを最適化しながら測定を実施した。

## 結果及び考察

Fig. 1.に ZnO 粉末およびその PET 複合化体より得られた散乱スペクトルを示す。

ZnO 粉末及びその PET 複合化体より得られた USAXS スペクトルを、従来の解析法である *Fankuchen* 法<sup>1)</sup>に本課題実験者らが改良を加えた修正 *Fankuchen* 法<sup>3)</sup>を用いて解析した粒度分布を Fig. 2(a, b).に示す。同一の ZnO 粉末を使用したにもかかわらず、ZnO 粉末単体と PET 複合化体より得られる粒度分布に差があり、PET 複合化体では ZnO 粉末の粒度分布が粒子径が小さい側に変化していることが確認された。これは ZnO 粉末の SEM 像(Fig. 2(a))及び PET に塗布した ZnO 粉末の TEM 像

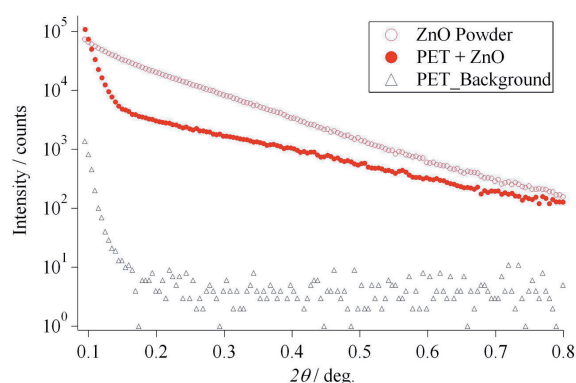


Fig. 1. USAXS spectra of a ZnO powder (○) and its PET complex (●) using BL15XU at SPring-8.

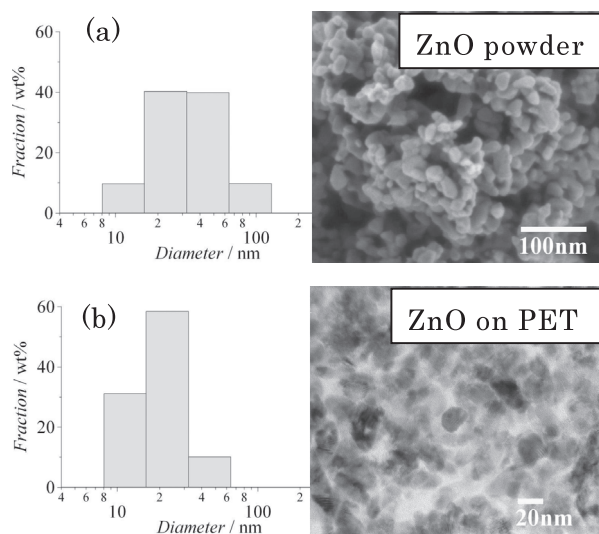


Fig. 2. Particle size distributions of (a) a ZnO nano-powder with SEM image and (b) its PET complex with TEM image.

(Fig. 2(b))から、ZnO 粉末単体では ZnO 粒子同士が凝集してストラクチャーを形成しているのに対して、PET 複合化体では塗布工程にてそのストラクチャーが解砕され、ZnO 粒子が一次粒子に近い状態まで分散していることを示唆していると考えられる。

本課題実験の結果、BL15XU を用いた USAXS 測定により樹脂などの材料と複合化したナノ粉末の非破壊且つ簡易的な粒度分布測定が可能であることを確認した<sup>[2], [3]</sup>。

## 今後の課題

本技術を用いることで、ナノ粒子が樹脂などの材料と複合化した状態、すなわち製品中のナノ粒子の粒度分布を非破壊且つ簡易的に計測することが可能である。さらに本技術を応用することで複合体中のナノ粒子の分散状態を分析することが可能であると考えられることから、本技術がナノ粉末含有製品の材料物性評価及び品質管理手法の一つとしてさまざまな産業分野にて適用されることが期待される。

## 参考文献

- 1) M. H. Jellinek and I. Fankuchen, Ind. Eng. Chem.**37** 158-163 (1945)
- 2) H. Hashimoto, T. Nagumo, T. Inaba, Y. Furukawa, M. Okui, S. Fukushima, Appl. Surf. Sci. (2004) in printing
- 3) H. Hashimoto and T. Inaba, Adv. X-ray Chem Anal. **35** (2004) 29-37.

## 論文発表状況・特許状況：

- [1] H. Hashimoto, T. Nagumo, T. Inaba, Y. Furukawa, M. Okui, S. Fukushima, The 9th International Symposium on Advanced Physical Fields, 2004（ポスター発表）
- [2] H. Hashimoto, T. Nagumo, R. Suzuki, T. Inaba, Y. Furukawa, M. Okui, S. Fukushima, 放射光利用 ナノテク最前線 2004（口頭発表）
- [3] H. Hashimoto et al., in preparation

## キーワード

・超小角 X 線散乱法（USAXS）

散乱角度が数度以下、特に  $0.1^{\circ}$  以下にて得られる散乱 X 線を解析することで、ナノ領域（数 nm～数 100nm）の構造解析を行う分析手法