

(様式第5号)

## 定速昇温および温度ジャンプを組み合わせることによる高分子結晶の再組織化と相転移現象の X 線小角散乱と X 線広角回折その場観測 (II)

*In situ* SAXS and WAXD observations of structural changes during reorganizations and phase transitions of crystalline polymers on constant rate heating and temperature-jump processes (II).

野崎 浩二<sup>1)</sup>・稲垣 美沙子<sup>1)</sup>・大亀 洋輔<sup>1)</sup>・三好 崇太<sup>1)</sup>・山田 浩司<sup>2)</sup>  
NOZAKI Koji<sup>1)</sup>, INAGAKI Misako<sup>1)</sup>, OOKAME Yosuke<sup>1)</sup>, MIYOSHI Takahiro<sup>1)</sup>,  
YAMADA Koji<sup>2)</sup>

1)山口大院創成科学・2)東洋紡

1) Graduate School of Sciences and Technology for Innovation, Yamaguchi University

2) TOYOBO CO., LTD.

- ※ 1 先端創生利用（長期タイプ）課題は、実施課題名の末尾に期を表す（Ⅰ）、（Ⅱ）、（Ⅲ）を追記してください。
- ※ 2 利用情報の公開が必要な課題は、本利用報告書とは別に利用年度終了後 2 年以内に研究成果公開 {論文（査読付）の発表又は研究センターの研究成果公報で公表} が必要です（トライアル利用を除く）。
- ※ 3 実験に参加された機関を全てご記載ください。
- ※ 4 共著者には実験参加者をご記載ください（各実験参加機関より 1 人以上）。

### 1. 概要（注：結論を含めてください）

アイソタクチックポリプロピレン(iPP)結晶について、定速昇温・等温熱処理過程および定速昇温・温度ジャンプ・等温熱処理過程における  $\alpha 1 \rightarrow \alpha 2$  相転移の進行を X 線広角回折法でその場観測した(*in situ* WAXD)。10°C/min で到達温度（部分融解温度）までの定速昇温中は  $\alpha 1$  相結晶の部分融解が進行し、そのとき相転移は観測されない。その後の等温熱処理過程において  $\alpha 2$  相への再結晶化が観測される。 $\alpha 1 \rightarrow \alpha 2$  相転移が  $\alpha 1$  相結晶の融解と  $\alpha 2$  相への再結晶化で進行する実験事実が *in situ* WAXD で得られた。再結晶化中は  $\alpha 2$  相への結晶化と共に  $\alpha 1$  相への結晶化も進行する。再結晶化する結晶の  $\alpha 2$  分率  $\Delta W_{\alpha 2}^{\text{recry}}$  は、部分融解温度と再結晶化温度が高いとほぼ 100%になり、部分融解温度と再結晶化温度が低いと  $W_{\alpha 2}^{\text{recry}}$  は低下する。

#### (English)

*In situ* wide-angle X-ray diffraction (WAXD) observations of the  $\alpha 1$ - $\alpha 2$  transition of isotactic polypropylene (iPP) crystal have been made upon the constant-rate-heating and the successive isothermal (heating/isothermal) process and the constant-rate-heating, the temperature jump, and the successive isothermal (heating/temperature-jump/isothermal) process. The partial melting of the  $\alpha 1$  crystals proceeded upon heating at 10°C/min to the end-point temperature (partial melting temperature:  $T_{\text{pm}}$ ); the phase transition was not observed upon heating. During the successive isothermal process, the crystallization into the  $\alpha 2$  phase was observed. We showed the experimental evidence that the  $\alpha 1$ - $\alpha 2$  transition of isotactic polypropylene proceeds by the melting of the  $\alpha 1$  crystals and the recrystallization of the  $\alpha 2$  crystals. iPP crystallizes into the  $\alpha 1$  phase as well as into the  $\alpha 2$  phase during the recrystallization process (isothermal process). The fraction of the  $\alpha 2$  crystals in the all crystals  $\Delta W_{\alpha 2}^{\text{recry}}$  reaches to 100% at high  $T_{\text{pm}}$  and high recrystallization temperature  $T_{\text{rc}}$ . With deceasing  $T_{\text{pm}}$  and  $T_{\text{rc}}$ ,  $\Delta W_{\alpha 2}^{\text{recry}}$  becomes lower.

## 2. 背景と目的

結晶性高分子では、通常、結晶化直後は分子が折りたたまれた準安定な状態の結晶が出現する。その後、昇温中は結晶の厚化、結晶領域の再秩序化、融解・再結晶化等のさまざまな再組織化過程が競合する。結晶性高分子の再組織化や相転移は基礎科学的に興味をもたれることに加え、製造プロセスや耐熱性に関連して産業応用上も重要である。

高分子結晶の再組織化過程は初期の高次構造にも強く支配される。したがって、再組織化過程の本質的な理解のためには、結晶化時に形成される初期高次構造を把握し、その後の再組織化過程をその場観測することが必要となる。

申請者らは、2017年度までの先端創生利用（長期タイプ）<sup>1,2</sup>において、いくつかの結晶性高分子について温度ジャンプ法により広い過冷却領域での結晶化を実現し、結晶化中の結晶ラメラ厚の変化をX線小角散乱その場測定（*in situ* SAXS）により、また、結晶領域の再秩序化についてX線広角回折その場測定（*in situ* WAXD）により調べてきた<sup>3</sup>。

2020年度からは、定速昇温と等温熱処理を組み合わせた新たな実験方法によって、結晶性高分子であるアイソタクチックポリプロピレン（iPP）結晶の $\alpha 1 \rightarrow \alpha 2$ 相転移が、高分子の再組織化の一つの過程である融解・再結晶化によって進行することをその場測定から明らかにし、現在、他の過程を含む再組織化が相転移に及ぼす影響について調べている<sup>4</sup>。

高分子結晶の昇温中は結晶の厚化や融解・再結晶化などの複数の再組織化過程が競合する。さらに、融解・再結晶化は融解と再結晶化は逐次的に進行すること、および、高分子結晶の厚さの分布によって融解開始温度にも分布が生じることから、融解再結晶化はある温度幅の範囲で進行する。再組織化と相転移進行を理解するためには、競合する複数の再組織化を制御しながらその場観測することが必要である。

2020年度の先端創生利用（長期タイプ）<sup>4</sup>では、iPP結晶について、ある昇温速度（典型的には $10^\circ\text{C}/\text{min}$ ）での定速昇温と等温熱処理を組み合わせる方法により、昇温中には主に融解のみを進行させ、等温熱処理では主に再結晶を進行させることに成功した。その過程における*in situ* WAXDでiPPの $\alpha 1 \rightarrow \alpha 2$ 相転移が融解・再結晶化によって進行することを直接確認できた<sup>5</sup>。

2021年度は、温度ジャンプステージ（2ステージタイプと3ステージタイプ）を用い、定速昇降温、温度ジャンプ昇降温、等温熱処理を組み合わせることで、さまざまな熱処理過程を実現し、高分子結晶で進行する再組織化とiPP結晶の相転移進行をWAXDとSAXSでその場観測し、再組織化と相転移進行の定量的な関係を得ることを目的とする。さらに、他の高分子結晶についても同様の熱処理過程における再組織化のその場観測を行い、高分子結晶の再組織化の実態を探る。

2021年度Ⅱ期は、今年度の課題の総括のための実験を行った。iPP結晶について、定速昇温・等温熱処理過程および定速昇温・温度ジャンプ・等温熱処理過程における融解・再結晶化による $\alpha 1 \rightarrow \alpha 2$ 相転移進行を*in situ* WAXDでその場観察した。相転移進行と部分融解温度、再結晶温度の関係を明らかにする。

## 3. 実験内容（試料、実験方法、解析方法の説明）

### （1）試料

試料には重量平均分子量 $M_w = 240,000$ 、分子量分布 $M_w/M_n = 4.4$ 、立体規則性 $[mmmm] = 0.978$ のiPPを用いた。初期試料は融液から $120^\circ\text{C}$ で等温結晶化した。この条件では積層ラメラ構造からなる球晶モルフォロジーを持つ試料（球晶試料）となる。球晶試料は初期状態では $\alpha 1$ 相である。

## (2) 熱処理

Fig. 1(a)と(b)に示す定速昇温・等温熱処理過程と定速昇温・温度ジャンプ・等温熱処理過程の2種類の熱処理過程を実施した。定速昇温・等温熱処理過程は、昇温速度 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で部分融解温度 $T_{\text{pm}}$ まで昇温し、その後同じ温度で等温熱処理を行う過程である。定速昇温・温度ジャンプ・等温熱処理過程は、部分融解温度と再結晶化温度を独立して制御する熱処理過程であり、昇温速度 $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ で $T_{\text{pm}}$ まで昇温し、その後再結晶化温度 $T_{\text{rc}}$ に温度ジャンプし等温熱処理を行う。

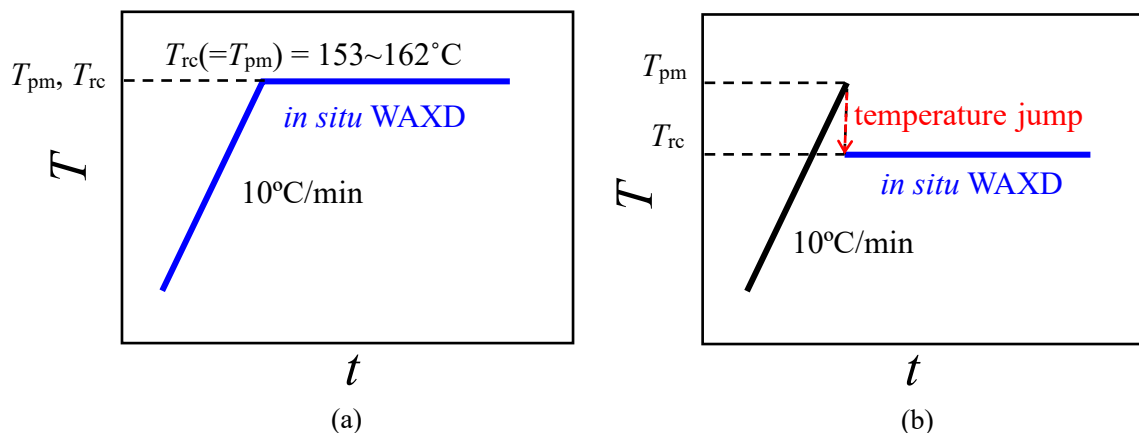
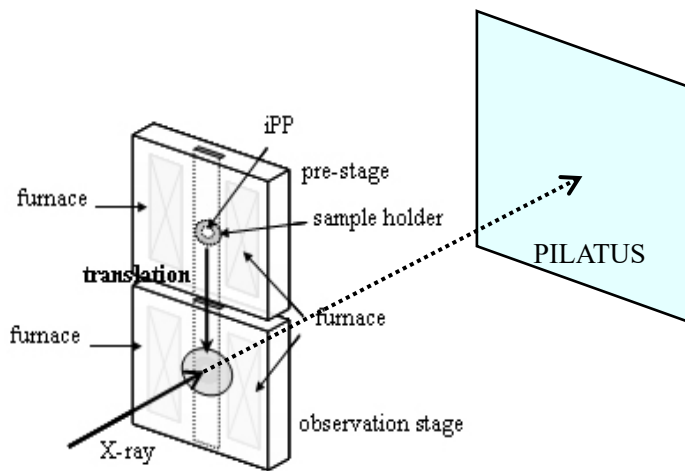


Fig. 1 定速昇温・等温熱処理過程; (a)と定速昇温・温度ジャンプ・等温熱処理過程; (b)

熱処理にはFig. 2に示す個々に温度制御できる上下に並んだ2つの縦型ステージを搭載する温度ジャンプステージを使用した。この温度ジャンプステージの下側のステージでのみX線散乱実験が可能である。試料は上のステージから下のステージに瞬時に移動可能になっている。温度ジャンプが含まれる熱処理過程の実験では、上のステージで部分融解温度まで昇温し、X線散乱実験が可能な下方ステージに試料を落とすことで、温度ジャンプを実現した。その後、下のステージでその場観測をした。温度ジャンプを使用しない熱処理過程は下側のステージのみを使用した。



Temperature-jump type hot stage

Fig. 2 2ステージタイプ温度ジャンプステージ

## (3) *in situ* WAXD

*in situ* WAXDはSAGA-LSのBL11で行った。X線のエネルギーは $8.0\text{ keV}$ 、カメラ長は約 $80\text{ mm}$ 、検出器にはPILATUSを用いた。典型的な露光時間は $5\text{ s}$ ,  $60\text{ s}$ とした。得られた2次元WAXD像を円環平均して強度-散乱角( $I-2\theta$ )のデータに変換した。

## (4) iPPの $\alpha 1$ 相と $\alpha 2$ 相のWAXDプロファイル

iPPの $\alpha 1$ 相と $\alpha 2$ 相の結晶内での分子配列は類似しており、両方ともに単位格子は単斜晶系で格子定数もほぼ同じである。したがって、WAXDプロファイルで観測されるBragg反射のピークもほぼ同じ散乱角となる。それぞれの空間群は分子配列の秩序性の違いを反映して $\alpha 1$ 相は $C2/c$ 、 $\alpha 2$ 相は $P2_1/c$ である。

Fig. 3 は iPP の  $\alpha 1$  相と  $\alpha 2$  相の典型的な WAXD プロファイルである。結晶性の相違により Bragg 反射ピークの幅に違いがあるが、Bragg 反射ピークの位置には大きな違いはない。決定的な違いは C 底心の消滅則に相当する  $h + k = \text{odd}$  の Bragg 反射の有無であり、 $\alpha 2$  相には  $\bar{1}61$ 、 $\bar{2}31$  反射が観測されるが  $\alpha 1$  相には観測されない。以降、両者の区別はこの Bragg 反射の有無で判断する。さらに、 $\alpha 2$  相の分率は  $\bar{1}61$ 、 $\bar{2}31$  の相対強度によって判断できる。分率を定量的に導出する際にはこの反射の積分強度と他の反射の積分強度、および、構造因子<sup>6</sup>を用いて導出した。

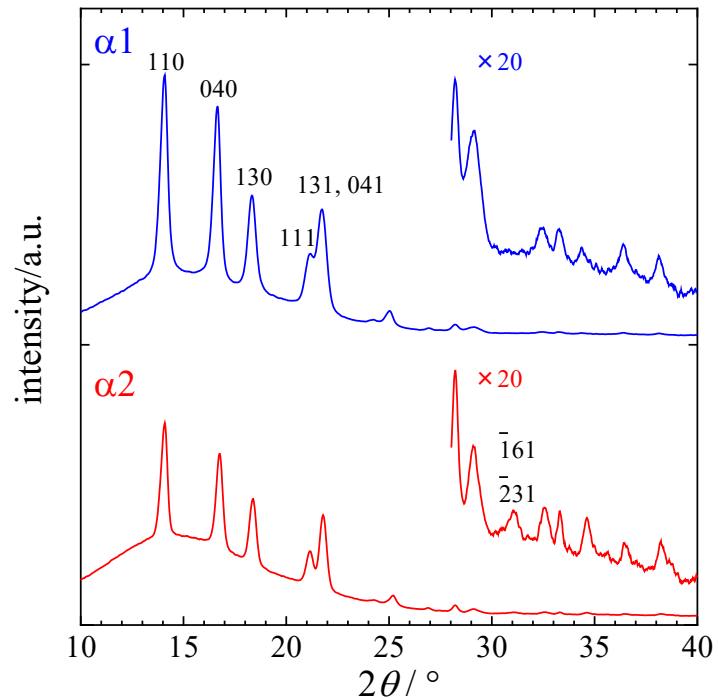


Fig. 3 iPP の  $\alpha 1$  相と  $\alpha 2$  相の WAXD プロファイル(8.0 keV)

#### 4. 実験結果と考察

##### (1) 定速昇温・等温熱処理過程 ( $T_{\text{pm}} (=T_{\text{rc}}) = 162^{\circ}\text{C}$ ) における $\alpha 1 \rightarrow \alpha 2$ 相転移の進行

$\alpha 1$  相球晶試料の  $T_{\text{pm}} (=T_{\text{rc}}) = 162^{\circ}\text{C}$  のときの定速昇温・等温熱処理過程における昇温中の WAXD プロファイルの温度変化と等温熱処理中の WAXD プロファイルの時間変化を Fig. 4 に示す。昇温中は温度上昇とともにすべての Bragg 反射強度が減少し、等温過程では再び増加する。これは融解・再結晶化が進行したことを示している。昇温中は  $\alpha 2$  相に特有の  $\bar{1}61$ 、 $\bar{2}31$  反射は出現せず、等温過程に入ってから  $\alpha 2$  相が出現して増加する。

$T_{\text{pm}} (=T_{\text{rc}}) = 162^{\circ}\text{C}$  のときの昇温中と等温熱処理中の WAXD プロファイルから導出した全結晶化度  $\chi_c$ 、 $\alpha 1$  相の結晶化度  $\chi_{\alpha 1}$ 、 $\alpha 2$  相の結晶化度  $\chi_{\alpha 2}$  の温度変化・時間変化を Fig. 5(a), (b) にそれぞれ示す。昇温中(Fig. 5(a))は、全結晶化度が減少、すなわち融解が進行する。このとき、結晶化度は完全に 0 にはならず数%で減少は停止し、結晶が残存する。すなわち、昇温過程では結晶は完全に融解せず、部分融解が進行する。昇温中は  $\alpha 2$  相の出現は確認できない。

等温熱処理過程(Fig. 5(b))に移行後 25 s までは融解が進行する。25 s 以降は、全結晶化度は増加に転じ、再結晶化が進行する。このとき、 $\alpha 2$  相の結晶化が確認され、時間経過とともに増加する。25 s 以降は  $\alpha 1$  相の結晶化度もわずかに増加する。(ここで長時間経過後は  $\alpha 1$  相が減少している傾向に見えるが、これは Bragg 反射の積分強度を用いた  $\alpha 2$  相分率を導出する過程で温度因子を定数値であると仮定したことによるエラーであり、実際に  $\alpha 1$  相の結晶化度は低下していないと判断する。)  $T_{\text{pm}} (=T_{\text{rc}}) = 162^{\circ}\text{C}$  のときの定速昇温・等温熱処理過程では、昇温中に主に  $\alpha 1$  相の部分融解が進行し、等温過程では主に  $\alpha 2$  相が再結晶化することが明らかになった。

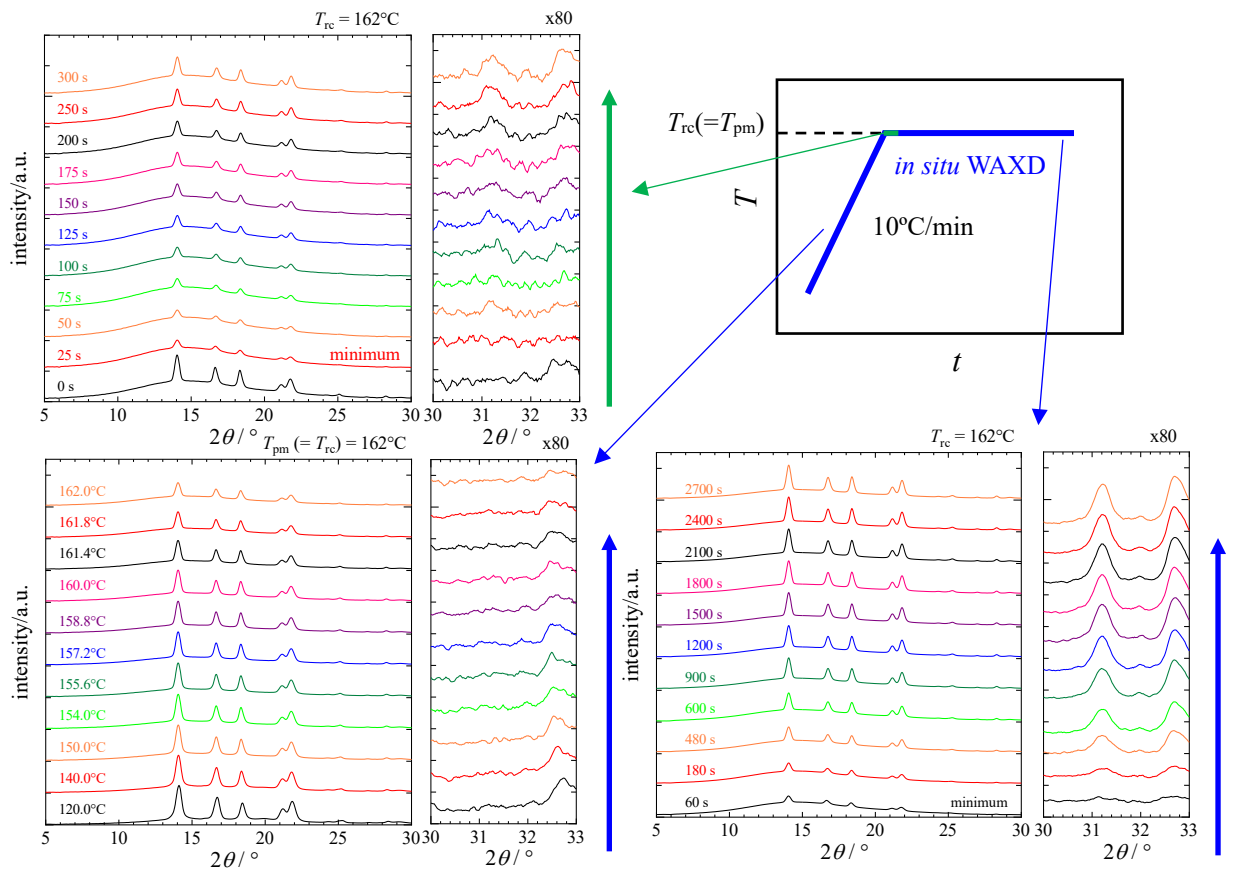


Fig. 4  $\alpha_1$  相球晶試料を  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  で  $T_{\text{pm}} (= T_{\text{rc}}) = 162^\circ\text{C}$  まで昇温し等温熱処理したときの WAXD プロファイルの変化

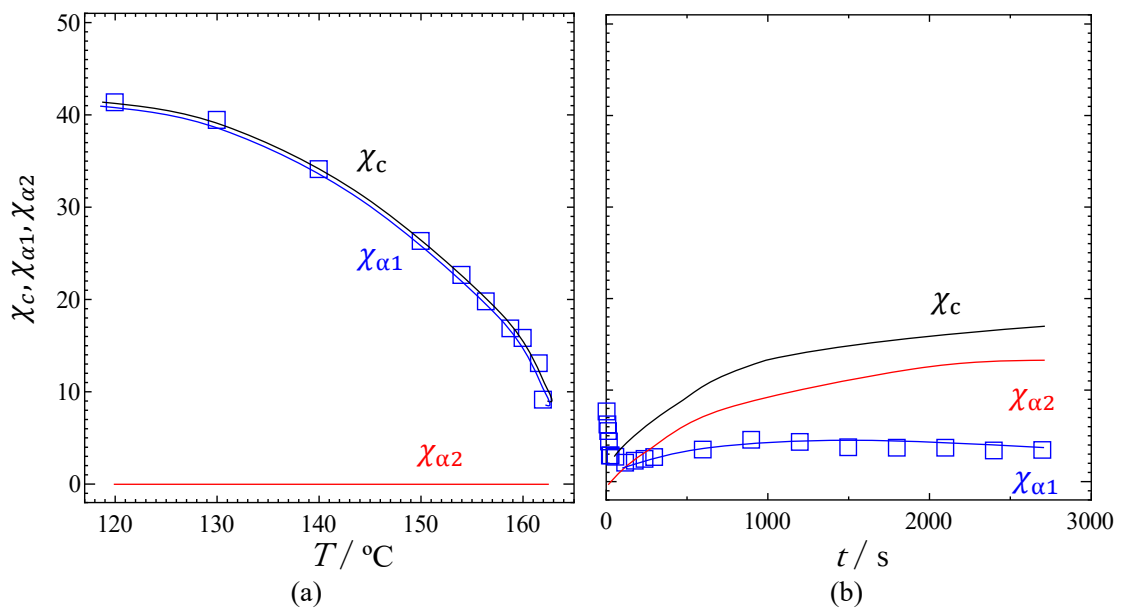


Fig. 5  $\alpha_1$  相球晶試料を  $10^\circ\text{C}/\text{min}$  で  $T_{\text{pm}} (= T_{\text{rc}}) = 162^\circ\text{C}$  まで昇温し等温熱処理したときの全結晶化度  $\chi_c$ 、 $\alpha_1$  相の結晶化度  $\chi_{\alpha 1}$ 、 $\alpha_2$  相の結晶化度  $\chi_{\alpha 2}$  の(a)温度変化と(b)時間変化

## (2) 融解・再結晶化過程における $\alpha_1 \rightarrow \alpha_2$ 相転移の進行

Fig. 6 のように部分融解量  $\Delta\chi_c^{\text{pm}}$  と再結晶化量  $\Delta\chi_c^{\text{recry}}$  を定義する。部分融解量  $\Delta\chi_c^{\text{pm}}$  は、 $T = 120^\circ\text{C}$  での結晶化度 ( $\chi_c^{\text{initial}}$ ) を初期結晶化度と定義し、 $T_{\text{pm}}$  到達時 ( $t_{\text{start}}$ ) の結晶化度 ( $\chi_c(t_{\text{start}})$ )、あるいは、等温過程に入っても融解が継続する場合は結晶化度が最小となる時刻を  $t_{\text{start}}$  とし、初期結晶化度とそのときの

結晶化度( $\chi_c(t_{start})$ )との差

$$\Delta\chi_c^{pm} \equiv \chi_c^{initial} - \chi_c(t_{start}) \quad (1)$$

として定義する。再結晶化量 $\Delta\chi_c^{recry}$ は、等温熱処理過程において増加した結晶化度の量であり、最終的に到達した結晶化度( $\chi_c(t_{end})$ )と  $t_{start}$  における結晶化度( $\chi_c(t_{start})$ )との差

$$\Delta\chi_c^{recry} \equiv \chi_c(t_{end}) - \chi_c(t_{start}) \quad (2)$$

と定義する。ここで  $t_{end}$  は実験で行った等温過程における最大時間(典型的には 2700 s)とした。さらに時刻  $t_{start}$  と  $t_{end}$  それぞれにおける  $\alpha_2$  相分率  $W_{\alpha_2}(t_{start})$  と  $W_{\alpha_2}(t_{end})$  からそれぞれの時刻における  $\alpha_1$  相の結晶化度 ( $\chi_{\alpha_1}(t_{start})$  と  $\chi_{\alpha_1}(t_{end})$ ) および  $\alpha_2$  相の結晶化度 ( $\chi_{\alpha_2}(t_{start})$  と  $\chi_{\alpha_2}(t_{end})$ ) を導出する。つぎに  $\alpha_2$  相の再結晶化量を

$$\Delta\chi_{\alpha_2}^{recry} \equiv \chi_{\alpha_2}(t_{end}) - \chi_{\alpha_2}(t_{start}) \quad (3)$$

と定義する。さらに  $\alpha_1$  相の再結晶化に関する量として

$$\Delta\chi_{\alpha_1}^{recry*} \equiv \chi_{\alpha_1}(t_{end}) - \chi_{\alpha_1}(t_{start}) \quad (4)$$

を定義する。ここで、等温熱処理中に再結晶化が観測され始めても薄い  $\alpha_1$  相の結晶ラメラの融解が継続するような場合は  $\Delta\chi_{\alpha_1}^{recry*} < 0$  となる。これ以降は再結晶化で生成する結晶の振る舞いを評価する目的で  $\alpha_1$  相の再結晶化量  $\Delta\chi_{\alpha_1}^{recry}$  を

$$\begin{aligned} \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry*} \geq 0 \text{ の場合} &\rightarrow \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry} \equiv \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry*} \\ \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry*} < 0 \text{ の場合} &\rightarrow \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry} = 0 \end{aligned}$$

と定義する。したがって、

$$\Delta\chi_c^{recry} = \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry*} + \Delta\chi_{\alpha_2}^{recry} \quad (5)$$

はいつでも成立するが、 $\Delta\chi_{\alpha_1}^{recry*} < 0$  の場合  $\Delta\chi_c^{recry} = \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry} + \Delta\chi_{\alpha_2}^{recry}$  は厳密には成立せず

$$\begin{aligned} \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry*} \geq 0 \text{ の場合} &\rightarrow \Delta\chi_c^{recry} = \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry} + \Delta\chi_{\alpha_2}^{recry} \\ \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry*} < 0 \text{ の場合} &\rightarrow \Delta\chi_c^{recry} \equiv \Delta\chi_{\alpha_1}^{recry} + \Delta\chi_{\alpha_2}^{recry} \end{aligned}$$

となる。

さらに以降の議論では再結晶化中に生成する結晶における  $\alpha_2$  相分率  $W_{\alpha_2}^{recry}$  を

$$W_{\alpha_2}^{recry} \equiv \frac{\Delta\chi_{\alpha_2}^{recry}}{\Delta\chi_{\alpha_1}^{recry} + \Delta\chi_{\alpha_2}^{recry}} \quad (6)$$

と定義して用いる。

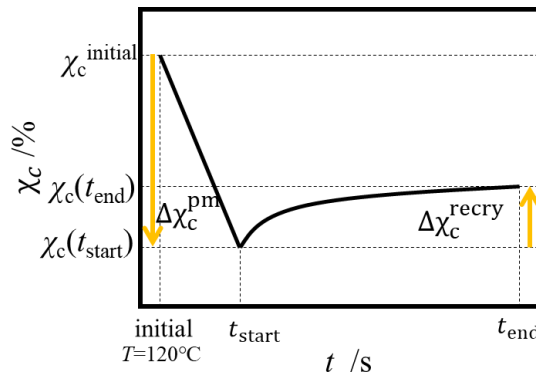


Fig. 6 部分融解量 $\Delta\chi_c^{pm}$ と再結晶化量 $\Delta\chi_c^{recry}$ の定義

### (3) $\alpha_1 \rightarrow \alpha_2$ 相転移進行の部分融解温度( $T_{pm}$ )と再結晶化温度( $T_{rc}$ )依存性

Fig. 7 は部分融解量 $\Delta\chi_c^{pm}$ の部分融解温度  $T_{pm}$  依存性である。部分融解量は部分融解温度が高いほど多い。これは試料内に結晶ラメラ厚の分布があることによると考えられる。試料内のそれぞれのラメラ結晶の融点はラメラ厚に依存する。ある部分融解温度では、その温度以下の融点をもつラメラ結晶



が融解する。部分融解温度が高いほど、その温度以下の融点をもつ結晶の割合が増えるので、部分融解量が多くなる。

Fig. 8 は再結晶化量 $\Delta\chi_c^{\text{recry}}$ の再結晶化温度  $T_{\text{rc}}$  依存性である。再結晶化過程での再結晶化量の再結晶化温度依存性である。各部分融解温度において、全体の再結晶化量は再結晶化温度が高いほど小さくなる。また、部分融解温度が低いほど再結晶化量の再結晶化温度依存性の曲線は再結晶化量の少ない方にシフトする。この詳細な考察はここでは省略するが、試料内の分子量分布によると考えらる。

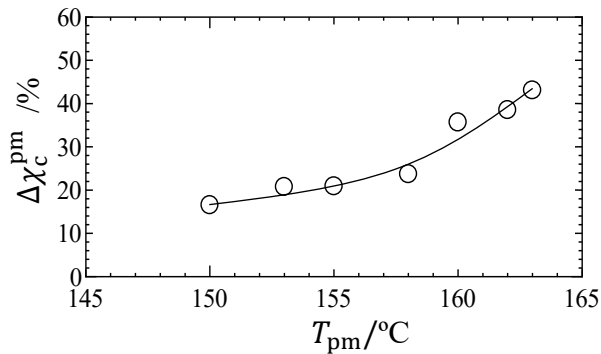


Fig. 7 部分融解量 $\Delta\chi_c^{\text{pm}}$ の部分融解温度

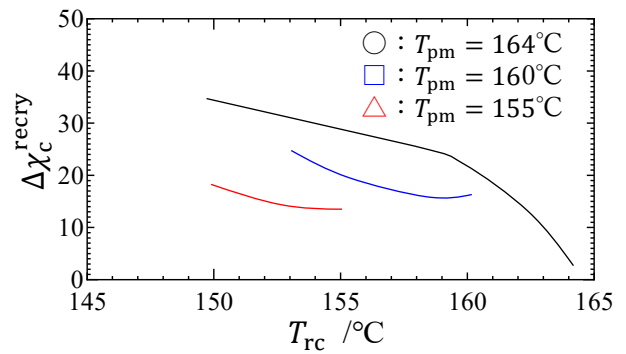


Fig. 8 再結晶化量 $\Delta\chi_c^{\text{recry}}$ の再結晶化温  $T_{\text{rc}}$  依存性

Fig. 9 は  $\alpha_1$  相および  $\alpha_2$  相の再結晶化量  $\Delta\chi_{\alpha_1}^{\text{recry}}$  と  $\Delta\chi_{\alpha_2}^{\text{recry}}$  の再結晶化温  $T_{\text{rc}}$  依存性である。 $\alpha_1$  相の再結晶化量は再結晶化温度が高いほど小さくなる。一方、 $\alpha_2$  相の再結晶化量は再結晶化温度が高いほど大きくなる。また、部分融解温度  $T_{\text{pm}}$  が高いほど  $\alpha_2$  相の再結晶化量の再結晶化温度依存性の曲線は結晶化度の多い方にシフトする。

融解・再結晶化による  $\alpha_1 \rightarrow \alpha_2$  相転移の進行度は部分融解過程で融解する  $\alpha_1$  相の量と再結晶化過程で再結晶化する  $\alpha_2$  相の量によって決まる。再結晶化過程における  $\alpha_2$  相の量は、再結晶化中に生成する  $\alpha_2$  相結晶の分率に大きく支配される。さまざまな条件での定速昇温・等温熱処理過程、定速昇温・温度ジャンプ・等温熱処理過程における WAXD その場観測を行い、その結果から

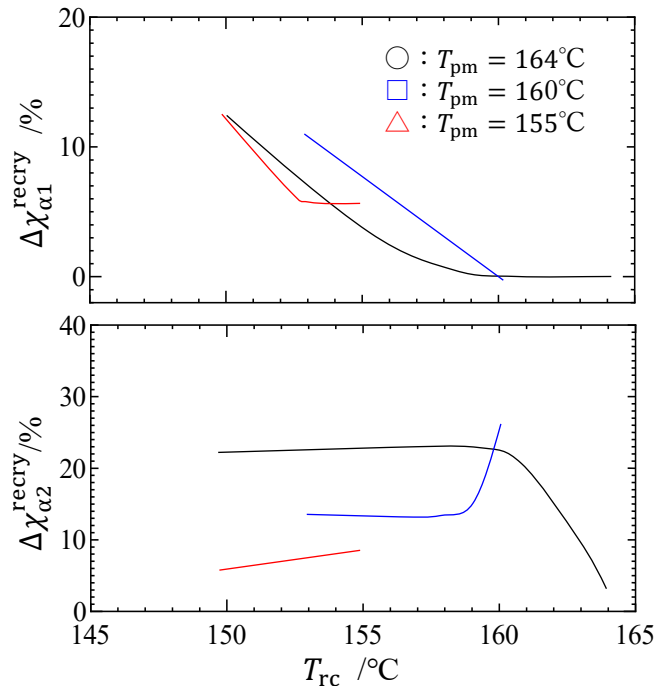


Fig. 9  $\alpha_1$  相および  $\alpha_2$  相の再結晶化量 $\Delta\chi_{\alpha_1}^{\text{recry}}$  のと  $\Delta\chi_{\alpha_2}^{\text{recry}}$  の再結晶化温  $T_{\text{rc}}$  依存性

得た再結晶化過程で結晶化する結晶の  $\alpha_2$  相分率  $W_{\alpha_2}^{\text{recry}}$  の部分融解温度  $T_{\text{pm}}$  依存性を再結晶化温度ごとに Fig. 10 に示す。再結晶化温度が高い場合は、全ての部分融解温度で  $W_{\alpha_2}^{\text{recry}}$  はほぼ 100%になる。再結晶化温度が 158°C 以下では部分融解温度が低下すると  $W_{\alpha_2}^{\text{recry}}$  が低下する。部分融解温度低下に伴う  $W_{\alpha_2}^{\text{recry}}$  の低下は再結晶化温度が低い方が顕著である。以上をまとめると、再結晶化過程で結晶化する結晶の  $\alpha_2$  相分率  $W_{\alpha_2}^{\text{recry}}$  は部分融解温度と再結晶化温度のどちらにも依存し、それぞれが高いほど  $W_{\alpha_2}^{\text{recry}}$  は大きくなる。

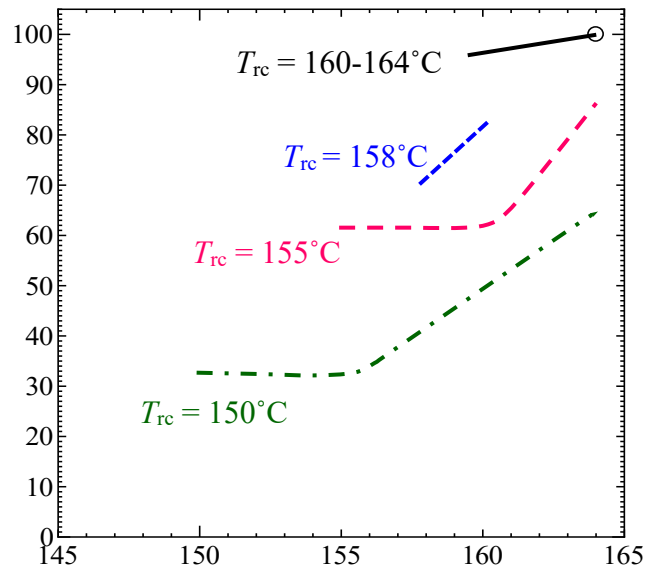


Fig. 10 再結晶化過程で結晶化する結晶の  $\alpha_2$  相分率  $W_{\alpha_2}^{\text{recry}}$  の部分融解温度  $T_{\text{pm}}$  依存性

## 5. 今後の課題

実験結果の考察を進め、論文発表を行う。

## 6. 参考文献

- 野崎浩二, et al, Saga-LS 2016 年度 先端創生利用 (長期タイプ) 課題 1604027A.
- 野崎浩二, et al, Saga-LS 2017 年度 先端創生利用 (長期タイプ) 課題 1702008A.
- Akihiko Toda, Ken Taguchi, Gaku Kono and Koji Nozaki, Polymer 169, 11-20 (2019).
- 野崎浩二, et al, Saga-LS 2020 年度 先端創生利用 (長期タイプ) 課題 2003028A.
- 稲垣美沙子, 三好 崇太, 野崎 浩二, 山田 浩司, 「アイソタクチックポリプロピレンの  $\alpha_1 \rightarrow \alpha_2$  相転移進行に及ぼす再組織化の影響: 融解・再結晶化が支配する相転移進行」, Polymer Preprints, Japan Vol. 70, No. 2 (2021 オンライン) 1G12.
- Masamichi Hikosaka and Tsuneo Seto, Polymer J., 5, 111-127 (1973).

## 7. 論文発表・特許 (注: 本課題に関連するこれまでの代表的な成果)

## 8. キーワード (注: 試料及び実験方法を特定する用語を 2~3)

アイソタクチックポリプロピレン、相転移、その場観測

9. 研究成果公開について (注: ※2に記載した研究成果の公開について①と②のうち該当しない方を消してください。また、論文(査読付)発表と研究センターへの報告、または研究成果公報への原稿提出時期を記入してください。提出期限は利用年度終了後2年以内です。例えば2018年度実施課題であれば、2020年度末(2021年3月31日)となります。)

長期タイプ課題は、ご利用の最終期の利用報告書にご記入ください。

① 論文(査読付)発表の報告 (報告時期: 2024年3月)

② 研究成果公報の原稿提出 (提出時期: 年 月)