

RESUM

El desenvolupament de nous materials polimèrics de major complexitat produeix un desafiament cada vegada major en l'àrea de les ciències bàsiques. La relació entre l'estructura i la dinàmica molecular resulta de gran importància per al desenrotllament de noves tecnologies basades en aquests materials polimèrics. Així, una major comprensió de com petits canvis en l'estructura química afecten a les propietats dels materials, resulta essencial per al progrés científic i tecnològic. Un anàlisi en profunditat de la mobilitat molecular permet establir les relacions estructura-propietats. Partint d'aquesta base, el principal objectiu del present treball és l'estudi de la mobilitat molecular de dues famílies diferents de materials polimèrics. Per a això, les tècniques experimentals utilitzades van ser principalment la Calorimetria Diferencial de Rastreig (DSC) i l'Espectroscòpia de Relaxació Dielèctrica (DRS)

La primera família de polímers caracteritzada va ser una sèrie de copolímers entrecreuat químicament compostos pels monòmers Vinilpirrolidona (VP) i Acrilat de Butilo (BA). L'estudi d'aquesta família es va dividir en dues parts, que s'arpleguen en els Capítols 4 i 5.

En primer lloc, el Capítol 4 conté el estudi de la influència de la proporció molar de monòmer (XVP/YBA) en les propietats del copolímer. A través d'una anàlisi per Espectroscòpia d'Infraroig per Transformada de Fourier (FTIR), es va verificar l'existència d'interaccions dipol-dipol entre els grups amida. Mitjançant l'anàlisi per DSC, DRS i Anàlisi Dinamomecànic (DMA), es va evidenciar la influència d'aquestes interaccions en diferents paràmetres relacionats amb la mobilitat molecular. Es va observar una única temperatura de transició vítria (T_g), el valor de la qual incrementava amb el contingut en VP per la reducció en la mobilitat molecular. Els espectres mecànics i dielèctrics van mostrar tres relaxacions γ , β i α en orde creixent de temperatura, seguits per una contribució conductiva, observada únicament en l'espectre dielèctric. El procés de relaxació γ està relacionat amb el moviment local de les unitats butil i el procés β va resultar ser una relaxació secundària Johari-Goldstein (JG), que està relacionada amb moviments locals del grup pirrolidona junt amb el moviment de segments de la cadena principal. Es va observar que la conductivitat dc (σ_{dc}) va augmentar amb el contingut en VP. Finalment, es va trobar que la conductivitat es desacobrava de la dinàmica segmental a temperatures prop de la transició vítria

En segon lloc, el Capítol 5 arreplega l'anàlisi de l'efecte de la densitat d'entrecreuant en la dinàmica molecular dels copolímers 60VP/40BA mitjançant DSC i DRS. A través de les mesures de DSC es va observar una única transició vítria per a tots els continguts d'agent entrecreuant. L'espectre dielèctric va mostrar, per a totes les mostres, processos conductius i tres relaxacions dipolars α , β i γ en orde decreixent de temperatura. L'increment en agent entrecreuant va produir l'efecte esperat en la dinàmica del procés α . En canvi, el procés β , que tenia les característiques típiques d'una relaxació JG, va perdre de forma inesperada el seu caràcter intermolecular per al major contingut en agent entrecreuant. El procés més ràpid γ no es va veure afectat.

VIII

La segona família de materials polimèrics estudiada va ser una sèrie de poliuretans segmentats (PUPH) modificats amb diferents quantitats de grafit expandit (EG) , utilitzat com a farcit conductiu (des de 0 a 50% en pes). La presentació i discussió dels resultats s'arreglega en el Capítol 6. L'anàlisi dels resultats obtinguts per mitjà de Microscòpia Electrònica de Rastreig (SEM), Difracció de Rajos X i FTIR va mostrar la dispersió homogènia del EG en la matriu de PUPH. La tècnica DRS es va utilitzar per a estudiar les propietats dielèctriques dels materials compostos PUPH/EG. La permitivitat dielèctrica dels materials va mostrar una transició de percolació des d'aïllant a conductor amb l'increment de contingut en EG. Es van observar canvis significatius en la permitivitat dielèctrica quan la fracció en pes d'EG estava en el interval de 20-30% en pes. L'addició d'EG a la matriu de PUPH va causar un increment significatiu en la conductivitat dielèctrica, de deu ordes de magnitud.

Finalment, les conclusions generals es resumeixen en el Capítol 7.