

低包接率ポリロタキサンとプラズマ改質無機粒子からなる複合材料の創成 Composites of low-covered polyrotaxane and plasma modified inorganic particle

東大新領域¹、産総研²、東大物性研³

°(M1)高木 直人¹, 井上 健一^{1,2}, 安藤 翔太¹, 眞弓 皓一³, 宗岡 均¹,

清水 禎樹², 伊藤 剛仁^{1,2}, 伊藤 耕三¹, 寺嶋 和夫^{1,2}

UTokyo FS¹, AIST², UTokyo ISSP³

°(M1)Naoto Takagi¹, Kenichi Inoue^{1,2}, Shota Ando¹, Koichi Mayumi³, Hitoshi Muneoka¹,

Yoshiki Shimizu², Tsuyohito Ito^{1,2}, Kohzo Ito¹, Kazuo Terashima^{1,2}

E-mail: takagi@plasma.k.u-tokyo.ac.jp

緒言 近年、柔軟性や強靱性といった機械的特性と高熱伝導性を両立した材料がフレキシブルデバイスの基板等への応用の観点から大きく注目されている。このような材料作製の一手として、柔軟なエラストマーと高熱伝導性の無機粒子の複合化が挙げられる。しかし、一般的に熱伝導性の向上を目的としたエラストマーへの過度な無機粒子の添加は材料の脆化をもたらす。これは、機械的特性と高熱伝導性の両立における課題となっている。この課題を解決すべく、我々は、①ポリロタキサン (polyrotaxane; PR) を用いたエラストマー作製と②六方晶窒化ホウ素 (hexagonal boron nitride; hBN) をはじめとする高熱伝導性無機粒子への液中プラズマによる表面改質の2点に着目した研究を行ってきた。PR は Fig.1 で示すように軸分子に対し、軸分子上を自由に動くことが可能な環状分子が通った数珠状の超分子である。PR エラストマーでは環状分子同士が架橋され、可動架橋点が形成されるため、従来の固定架橋のエラストマーと比べ靱性や破断伸びが向上する[1]。また液中プラズマは高い反応性を伴う反応場を提供し、hBN に対しヒドロキシ基等の官能基を修飾することで、hBN の複合材料内における分散性の向上をもたらす[2]。本研究では更なる機械的特性の向上を目的に、低包接率 PR に着目し、プラズマ改質 hBN との複合化を試みた。包接率は PR 中において軸分子に対し導入された環状分子の割合を示す値である。この値が小さい程、軸分子に対する環状分子数が少ないため、エラストマー内での架橋点の可動領域が大きくなる。その結果、純粋な PR エラストマーにおいてヤング率の低下や破断伸びの向上が起こることは確認されている[3]。複合材料においても PR の包接率の低下に伴い同様な機械的特性の変化が起ると期待される。

実験・結果 本実験では包接率が 7%と 25%の2種類の PR を用いた。0.5 g の PR に対し、ヘキサメチレンジイソシアネート (hexamethylene diisocyanate; HMDI)を架橋剤として 10 μ L 用いて、PR エラストマーを作製した。各 PR エラストマーに対して、プラズマ改質済み hBN(Sigma-Aldrich)を 30wt%充填したもの、未改質 hBN を 30wt%充填したもののサンプルを作製した。プラズマ処理は先行研究と同様のパルス放電液中プラズマを用いて行った[4]。得られたサンプルに対して引張試験と靱性試験を行い、機械的特性の測定を行った。その結果、PR の低包接率化に伴いヤング率の低下、破断時伸びの向上、靱性値の向上が起こることが確認された。またどちらの包接率においても、先行研究[2,4]と同様にプラズマ処理によって機械特性がさらに向上することが確認できた。さらに熱伝導率計測から、PR の包接率によらず、作製した複合材料は 0.3-0.5 W/m $\cdot$ K の熱伝導率を有していることがわかった。この値は hBN 無充填のサンプルと比較すると約 2 倍程度の値である。以上の様に、PR とプラズマ改質無機粒子からなる複合材料において、PR の低包接率化は、柔軟性や強靱性といった機械的特性の向上に有効である。

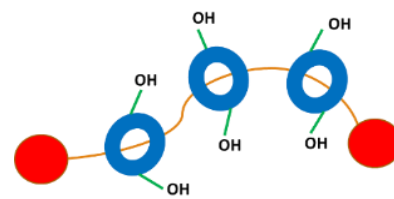


Fig.1 Image of polyrotaxane

参考文献

- [1] K. Minato, K. Mayumi, R. Maeda, K. Kato, H. Yokoyama, and K. Ito, *Polymer*. **128**, 386-391 (2017).
- [2] K. Inoue, T. Goto, T. Ito, Y. Shimizu, Y. Hakuta, and K. Terashima, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **54**, 425202 (2021).
- [3] K. Kato, A. Hori, and K. Ito, *Polymer*. **147**, 67-72(2018).
- [4] T. Goto, M. Iida, H. Tan, C. Liu, K. Mayumi, R. Maeda, K. Kitahara, K. Hatakeyama, T. Ito, Y. Shimizu, H. Yokoyama, K. Kimura, K. Ito, Y. Hakuta, and K. Terashima, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 101901 (2018).