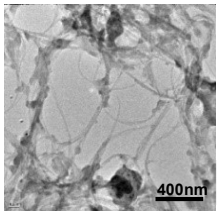


# 単層カーボンナノチューブナノフィラーを用いた ポリビニルブチラル複合体フィルムの構造、力学物性および熱伝導性

(岡山大院・自然)○樋口穂、内田哲也

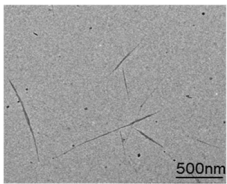
**[緒言]** 単層カーボンナノチューブ(SWNT)は二次元網目状のグラフェンシートが円筒状に繋がった中空繊維状物質である<sup>1)</sup>。直径は約 1nm、長さは数  $\mu\text{m}$ ～数十  $\mu\text{m}$  であり、アスペクト比が大きい。また、比重は  $1.4\sim 1.6\text{g/cm}^3$  と軽量でありながら、高弾性(1000GPa)、高熱伝導性( $6600\text{W/m}\cdot\text{K}$ )を有する<sup>2,3)</sup>。この優れた特性から、高分子材料の力学物性、熱伝導性を向上させる添加材(フィラー)として期待されている。しかし、SWNT は凝集性が非常に強いので通常数本～数十本の SWNT が束(bundle)状になった凝集構造を形成してしまう(**Fig.1**)<sup>4)</sup>。添加効果を十分に得るためには、フィラーの母材への分散性向上、数密度と比表面積の増大が必要である。そこで本研究では SWNT を切断してナノフィラー化し、母材に分散させる方法が検討されてきた。SWNT を分散させるためには、長さ数百 nm に切断することが有効であり、SWNT に強酸中で超音波を照射して切断する方法が報告されている<sup>5)</sup>。この方法により SWNT の凝集構造を制御<sup>6)</sup>し、溶媒への分散性が向上した SWNT ナノフィラーの作製に成功している。本研究では、溶融混練法による SWNT ナノフィラーと PVB との複合体フィルムの作製および複合体フィルムを一軸で延伸し、SWNT ナノフィラーの添加とフィルムの延伸が PVB フィルムの物性と構造に与える影響についての検討を行った。



**Fig.1** SWNT の TEM 写真

**[実験]** SWNT を混酸(98wt%硫酸:69wt%硝酸=3:1)に加え、超音波を照射して SWNT を切断した。作製した SWNT ナノフィラーの透過型電子顕微鏡(TEM)観察を行った。溶融混練法にて PVB/SWNT ナノフィラー複合体フィルムを作製し物性評価を行った。さらにフィルムの一軸延伸を行い、作製した延伸フィルムの複屈折測定、偏光ラマンでの SWNT ナノフィラーの配向評価、物性評価を行った。偏光ラマン測定では相対強度  $= I_V/I_X$  ( $I_V$ :偏光板が延伸方向と平行の際の強度、 $I_X$ :垂直の際の強度)として評価した。

**[結果と考察]** 作製した SWNT ナノフィラーの TEM 観察結果を **Fig.2** に示す。フィラーは直線状であり、長さ  $769\pm 381\text{nm}$ 、幅  $31\pm 15\text{nm}$  であった。未処理の SWNT と比較すると長さが短く、幅は細くなり、絡み合いのない SWNT ナノフィラーが作製できた。作製したフィルムの複屈折度、相対強度、引張試験結果、熱拡散率測定結果を **Table 1** に示す。PVB に SWNT ナノフィラーを添加すると、弾性率・降伏強度が向上した。これは、フィルム中に SWNT ナノフィラーが均一に分散し SWNT の力学特性を付与できたためであると考ええる。また、面内方向の熱拡散率が向上し、熱伝導に異方性を付与することができた。フィルムを延伸すると、相対ラマン強度が増大した。このことから、延伸倍率が大きくなるほど SWNT ナノフィラーが延伸方向に配向したことがわかった。また、フィルムを延伸すると、弾性率・降伏強度・延伸平行方向の熱拡散率がさらに向上した。これは延伸により PVB 分子鎖及び SWNT ナノフィラーが延伸方向に配向したためであると考ええる。



**Fig.2** SWNT ナノフィラーの TEM 写真

**Table1** 作製したフィルムの物性評価

| フィルム               | 添加濃度 (wt%) | 延伸倍率 | 複屈折度 ( $\times 10^{-3}$ ) | 相対ラマン強度 ( $=I_V/I_X$ ) | 弾性率 (GPa)      | 降伏強度 (MPa)    | 熱拡散率 ( $\times 10^{-7}\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ) |                |                |
|--------------------|------------|------|---------------------------|------------------------|----------------|---------------|--|----------------|----------------|
|                    |            |      |                           |                        |                |               | 厚み方向   | 面内方向           |                |
|                    |            |      |                           |                        |                |               |  | 延伸垂直方向         | 延伸平行方向         |
| PVB                | -          | -    | -                         | -                      | $0.77\pm 0.07$ | $37.5\pm 4.0$ | $1.31\pm 0.03$                                   | $1.88\pm 0.10$ |                |
|                    |            | 2    | $5.98\pm 1.19$            | -                      | $1.10\pm 0.15$ | $50.5\pm 7.0$ | $1.49\pm 0.49$                                   | $2.07\pm 0.10$ | $2.83\pm 0.31$ |
|                    |            | 3    | $9.32\pm 0.59$            | -                      | $1.41\pm 0.10$ | $55.8\pm 5.6$ | $1.49\pm 0.20$                                   | $2.04\pm 0.23$ | $3.37\pm 0.28$ |
| PVB/SWNT<br>ナノフィラー | 0.3        | -    | -                         | 1.06                   | $0.93\pm 0.04$ | $46.5\pm 2.2$ | $1.25\pm 0.23$                                   | $2.71\pm 0.04$ |                |
|                    |            | 2    | $5.83\pm 1.14$            | 3.74                   | $1.26\pm 0.09$ | $56.2\pm 4.7$ | $1.60\pm 0.11$                                   | $2.06\pm 0.16$ | $3.50\pm 0.15$ |
|                    |            | 3    | $9.37\pm 0.79$            | 9.22                   | $1.62\pm 0.06$ | $58.2\pm 1.9$ | $1.44\pm 0.38$                                   | $1.91\pm 0.21$ | $3.89\pm 0.32$ |

**[参考文献]**

1) C.M. Sayes et al., *Toxicol. Lett.*, **161**, 138(2006)

2) S. Berber, et al., *Phys. Rev. Lett.*, **84**, 4613 (2000)

3) J. P. Lu, *Phys. Rev. Lett.*, **79**, 1297 (1997)

4) A. Thess, et al., *Science*, **273**, 483 (1996)

5) J. Liu, et al., *Science*, **280**, 1253 (1998)

6) T. Uchida, et al., *Polymer*, **216**, 123425 (2021)

**Mechanical and Thermal Properties of Poly (Vinyl Butyral)/Single-Walled Carbon Nanotube Nanofiller Composite Film**

Minori HIGUCHI, and Tetsuya UCHIDA: Graduate School of Natural Science and Technology, Okayama University, 3-1-1, Tsushima-naka, Kita-ku, Okayama 700-8530, Japan, Tel: +81-86-251-8103, E-mail: tuchida@cc.okayama-u.ac.jp