アミノ化セルロースナノファイバーで硬化したエポキシ樹脂複合材料 の構造と物性

(神戸大院工) 〇谷 昌紀, 松本拓也, 西野 孝

【緒言】

エポキシ樹脂(EP)は、一般に主剤と硬化剤を混合し、硬化させることで得られるネットワークポリマーである。エポキシ基は、その高い反応性によりヒドロキシル基やカルボキシ基、アミノ基などを有する多種多様な硬化剤と反応することが可能である。また、EPは電気絶縁性や接着性に優れ、電子基板の絶縁材や封止材に用いられる。しかし、 EPの低い熱寸法安定性が、温度変化に伴う膨張、収縮による界面での剥離をもたらし、またその低熱伝導率が外部への熱放散の阻害によるオーバーヒートを引き起こすなどの課題が指摘されている。

植物繊維を解繊することで得られるセルロースナノファイバー(CNF)は、低熱膨張性、高熱伝導性、高弾性率などの特徴を有し、複合材料のフィラーとして注目を集めている。また、CNFは表面改質により新たに官能基を導入することが可能である。そのため、CNFの表面にアミノ基やカルボキシル基を導入することで、EPと密な架橋構造の形成が可能になると考えられる。なかでもアミノ基は、エポキシ基との反応性が高いため、アミノ化CNFをEPの硬化剤としての役割を兼ねた補強材として用いることで温度変化による亀裂や剥離を抑制した高熱伝導性の複合材料の作製が期待できる。

本研究では、セルロース繊維に対し、アミノ化およびグラインダー処理を施すことで得たアミノ化グラインダー処理CNF(AGCN)を硬化剤として充てんしたEP/AGCN、比較対象としてグラインダー処理CNF(GCN)および2,2,6,6-tetramethylpiperidine-1-oxyl(TEMPO)触媒酸化CNF(TOCN)を硬化剤として充填したEP/GCN、EP/TOCNを作製し、熱寸法安定性と熱伝導率を比較することでCNFへのアミノ基の導入がこれらの物性に与える影響について検討した。

【実験方法】

水系エポキシ主剤 (jER®W2801, 三菱ケミカル(株)) をAGCN, GCN, TOCNの水分散液に加えて40 $^{\circ}$ Cでキャストし, 乾燥させた後, 120 $^{\circ}$ Cで硬化させることで厚み200 $^{\circ}$ μmのEP/AGCN, EP/TOCN およびEP/GCN複合フィルムを作製した。また, 硬化剤として変性ポリアミドアミン(PA)(jER®キュアWD11M60, 三菱ケミカル(株))を用いて,同様の条件でEP/PAフィルムを作製し,参照試料とした。各試料について, 熱機械分析により線熱膨張係数(α)を, 熱拡散率測定により熱伝導率を評価した。

【実験結果】

図1には、EP/PA、EP/GCN、EP/TOCNおよびEP/AGCNの引張応力下における70 ℃から180 ℃の温度範囲の熱膨張挙動から算出したαを示した。EP/GCN、EP/TOCNと比較して、EP/AGCNのαは低下し、熱寸法安定性が増加した。これは、高い熱寸法安定性を有するAGCNが複合材料中で多くの架橋点を形成したためであると考えられた。

図2には、EP/PA、EP/GCN、EP/TOCNおよびEP/AGCNの面内方向の熱伝導率を示した。EP/TOCNと比較して、EP/AGCNの熱伝導率は増大した。これは、TOCNはカルボキシラートの静電反発により複合材料内で高い分散性を維持した一方で、AGCNはGCNと同様に複合材料内で凝集し、CNF間の接触が増大したことでより多くの熱伝達経路を形成したことに起因すると考えられた。

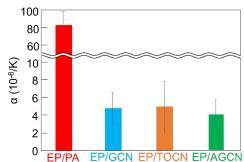


Fig.1 Thermal expansion coefficients (α) of EP/AGCN, EP/GCN, EP/TOCN and EP/PA between 70 °C and 180 °C.

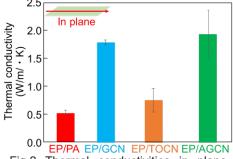


Fig.2 Thermal conductivities in plane direction of EP/PA, EP/GCN, EP/TOCN and EP/AGCN.

Properties and Structure of Epoxy Resin Composites Cured with Aminated Cellulose Nanofibers, Masaki TANI, Takuya MATSUMOTO, Takashi NISHINO: Graduate School of Engineering, Kobe University, Rokko, Nada, Kobe 657-8501, Japan, Tel/Fax: 078-803-6198, E-mail: tnishino@kobe-u.ac.jp