

博士論文の内容の要旨
Abstract of Doctoral Dissertation

氏名 Full Name	田村 諭
学位名 Name of Degree	博士 Doctor of (工学/ENGINEERING)
学位授与年月日 Date of The Degree Conferral	2022年 9月30日/September 30th
論文題目 Dissertation Title	ポリジメチルシロキサン複合体の電場応答性 —極性基含有化合物の添加効果—

(博士論文の内容の要旨 Abstract of Doctoral Dissertation)

近年、高分子材料は他の有機材料や無機材料などと複合化することにより、材料自体が環境の変化に応じて適切かつ自律的に機能する材料として、情報技術や加工技術などの周辺技術と協奏的に発展している。光、温度、圧力、電場、磁場などの環境変化を鋭敏に感知することにより、形状、物性などを可逆的に制御できる自律応答材料が注目されている。なかでも、電場による形状変化である電場応答機能を制御可能にした高分子アクチュエータは従来型のアクチュエータと比較して、柔軟性、軽量、成形性、設計の自由度が高いなどの特徴を有しており、しなやかさを特徴としたアクチュエータや人工筋肉への応用に期待が高まっている。シリコーンは耐溶剤性、耐熱性などの高機能特性を有した弾性率と成形性の自由度が高いエラストマーであり、高分子アクチュエータとして有望な材料であるが、高い絶縁性から電場による駆動が難しいとされてきた。

本研究ではシリコーンの一種であるポリジメチルシロキサン (PDMS) を用いた電場応答性材料の開発を目的とし、PDMS に極性基含有化合物を添加した複合体フィルム (以下、複合体と略記) を作製した。電場応答性の指標の一つである屈曲変形に及ぼす極性基含有化合物の影響を調査するため、複合体の断面構造の観察や電気的特性の評価、空間電荷分布の解析などを行い、変形機構の解明を目指した。その結果、複合体は電氣的に活性な誘電アクチュエータ材料になる可能性を見出し、屈曲変形機構は厚さ方向での非対称な空間電荷分布により説明が可能であると結論付けた。

第1章の序論では研究背景と目的について述べ、高分子アクチュエータの概略と誘電現象および空間電荷分布に関して記述した。

第2章では複合体の屈曲変形に及ぼす極性基含有化合物の影響を検討した。極性基含有化合物として、カルボキシル基 (-COOH)、フルオロアルキル基 (-CH₂CH₂CF₃)、アミノ基 (-RNH₂) などを有する変性シリコーンオイル、分子内にシアノ基 (-CN) を有するシアノエチルスクロース (CR-U)、イオン液体などを使用した。これらを付加反応型 PDMS に添加して複合体を作製した。複合体の両表面に電極として極めて薄い金箔を貼り、電場を印可した。その結果、フルオロアルキル基変性シリコーンオイル (FL) 含有複合体 (PDMS/FL) と CR-U 含有複合体 (PDMS/CR-U) が実質的な屈曲変形を示した。屈曲変形は極性基含有化合物の含有量の増加にとともに増加した。また、電場のおおよそ二乗に比例した増加を示し、マクスウェル応力で近似できた。複合体の電荷分布は陽極と陰極で非対称な空間電荷分布を示し、試料内部の電荷蓄積は極性基含有化合物の含有量や電場の増加とともに増加した。

第3章では PDMS/CR-U 複合体の屈曲変形挙動と形態 (相分離と断面構造) の関係を調査した。複合体作製の際、CR-U は高粘度で PDMS との混合が難しかったため、CR-U をその良溶媒であるアセトン (ACT) とテトラヒドロフラン (THF) またはこれらの割合を変えた溶媒に溶解し、粘度を下げて PDMS に添加した。使用した溶媒により複合体の構造は大きく異なった。THF の割合が大きい溶媒で作製した複合体は PDMS マトリックス中に比較的大きな球状の CR-U が分散した形態が観測された。加えて、片側にスキン層を有する非対称な断面構造を示した。他

方, ACT の割合が大きい溶媒で作製した複合体は小球径 CR-U がフィルム全体に均一に分散した対称構造を示した。複合体に電場を印加したところ, 対称構造の複合体では, ほとんど屈曲変形は観測されなかった。これに対し, 表面にスキン層を有する非対称な複合体は電場の印加により, スキン層側とは逆の方向に変形する屈曲挙動を示した。この屈曲方向は電場を反転させても変わらなかった。空間電荷分布測定から, 非対称構造の複合体ではスキン層付近だけに電荷の蓄積が認められる非対称な分布を示した。他方, 対称構造の複合体では電荷の蓄積は認められなかった。これらの結果から, 屈曲変形の要因はスキン層付近に蓄積した電荷同士の反発により, スキン層が伸長したものではないかと結論した。

第 4 章では PDMS/FL の屈曲変形挙動と空間電荷分布形成過程の関係を調査した。併せて複合体ではないが, PDMS 鎖にフルオロアルキル基が結合した縮合反応型のフルオロシリコーンエラストマー (F-PDMS) についても同様な調査を行った。その結果, PDMS/FL 複合体の電場印加中の屈曲変形は保持されるが, F-PDMS の屈曲変形は電場印加直後に大きな変形と急激に減少する緩和現象を示し, フルオロアルキル基の分布状態が電場応答機構を支配していることを示唆した。

第 5 章では極性基含有化合物の電場下の流動現象を観測することにより, 電荷担体としての可能性を調査した。CR-U と FL は陽極への流動現象を示し, シアノ基とフルオロアルキル基が電荷担体としての役割を担っていることを確認した。

本研究で得られたこれらの成果は今後の誘電アクチュエータの開発に大いに役立つものと考えている。