

バイオポリイミド/シリカハイブリッドの作成

(北陸先端大 環境・エネルギー) ○坂本 茂樹, Sumant Dwivedi, 立山 誠治, 金子 達雄

【要旨】

微生物により生産された 4-アミノ桂皮酸の二量体である 4,4'-ジアミノトルキシル酸を用いたポリイミドノカルボキシル基に、シリカなどの無機物を付加することによりポリイミドを主体とする有機/無機ハイブリッドを作製する。これにより、ポリイミドの耐熱性および力学特性の向上を目的とする。また、シリカ源であるアルコキシシランの添加量を変化させることでポリイミド/シリカハイブリッドの耐熱性および力学特性を制御する。

1. 緒言

現在、バイオポリイミドやケイ素材料は透明性や力学的特性が高いことから、自動車のフロントガラスやディスプレイ等のガラス代替材料としての応用が見込まれるとして注目を集めている。¹⁾ しかし、現在使用されているポリイミドは石油資源から作られておりこれからの持続可能な社会の実現には不向きである。バイオポリイミドは、生物資源から作られるため二酸化炭素排出量削減と廃棄物処理への貢献度が高く、環境への負荷が少ない。しかし、その力学物性や耐熱性の向上が望まれている。一方、有機/無機ハイブリッドは有機材料に無機材料をナノレベルで混合することにより、力学的特性や耐熱性、電気的特性等が向上することが知られている^{2) 3)}。

そこで本研究では、微生物により生産された 4-アミノ桂皮酸の二量体である 4,4'-ジアミノトルキシル酸を、天然分子であるフマル酸の光二量体である CBDA (1,2,3,4-シクロブタンテトラカルボン酸二無水物)と反応させることにより得られたポリアミド酸にアルコキシシランを加えその後加熱することによりバイオポリイミドシリカ複合材料を作成し熱力学特性の向上を検討した。

2. 実験

4-アミノ桂皮酸を塩酸塩化させた後、高圧水銀灯により光二量化を行い 4,4'-ジアミノトルキシル酸を生成した。4,4'-ジアミノトルキシル酸を 1M 水酸化ナトリウム水溶液を用いて中和した後、CBDA を加え重合しポリアミド酸を生成した。ポリアミド酸に TEOS とトリエチルアミンを加え攪拌した後に加熱イミド化によりポリイミドを作成した(Figure 1)。

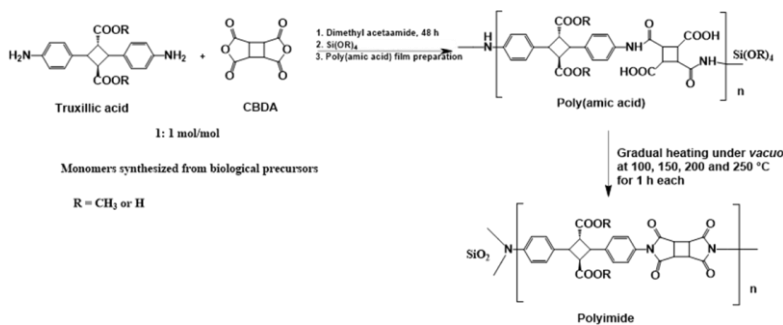


Figure 1. Synthesis of polyimide/Silica hybrid polymer.

3. 結果・考察

ポリイミドのシリカ濃度の上昇に伴って、ポリイミドフィルムの透明度が減少した。これはシリカ微粒子が凝集したためであると考えられる。Table 1 にバイオポリイミドおよびバイオポリイミド/シリカ (5 wt%)、バイオポリイミド/シリカ (10 wt%) の重量減少温度および引張強度、延伸率の結果を示す。ポリイミドのシリカ濃度の上昇に伴って、耐熱性および力学特性が向上していることが分かる。ポリイミドにシリカ粒子を混練させることでハイブリッド化が発言したためであると推測できる。

Table 1. Thermomechanical Properties and Refractive Indices of PI films

polymers	T ₅ (°C)	T ₁₀ (°C)	tensile strength (MPa)	elongation (%)
Bio PI	356.5	377.7	91.15	3.14
Bio PI/SiO ₂ (5 wt %)	360.4	381.6	-	-
Bio PI/SiO ₂ (10 wt %)	370.8	389.5	123.84	3.43

4. 結論

バイオポリイミド/シリカハイブリッドの作製に成功し、ポリイミド中のシリカ濃度を上昇させることで耐熱性および力学特性を向上させることができた。しかし、シリカ微粒子が凝集してしまったことによりポリイミドフィルムの透明度が低下したため、シリカ微粒子のサイズを制御する必要がある。また、粒子径をナノサイズに制御することでハイブリッド化による効果が大きくなり、更なる耐熱性および力学特性の向上が見込まれる。

5. 参考文献

- 1) T. Kaneko, et al. *Macromolecules*, 2014 47 1586-1593
- 2) H. U. Rehman, et al. *Macromolecules Science*, 2006, 43, 703-717
- 3) Bor-Kuan Chen, et al. *Polemer Science*, 2004, 94, 382-393

【謝辞】

本研究は科学技術機構 (JST) 戦略的創造研究推進事業・先端的低炭素化技術開発 (ALCA, 5100270)のもとで行われた。

Preparation of biopolyimide /silica hybrid materials

○Shigeki Sakamoto, Sumant Dwivedi, Seiji Tateyama, Tatsuo Kaneko

(Energy and Environment, Japan Advanced Institute of Science and Technology (JAIST), 1-1 Asahidai, Nomi, Ishikawa 923-1292, Japan, Japan Science and Technology Agency, Advanced Low Carbon Technology Research and Development Program [JST-ALCA])

Tel: +81-761-51-1631, kaneko@jaist.ac.jp