



室蘭工業大学

学術資源アーカイブ

Muroran Institute of Technology Academic Resources Archive



## 多孔質シルク成形体の作製と誘電特性

メタデータ	言語: jpn 出版者: 室蘭工業大学地域共同研究開発センター 公開日: 2016-12-06 キーワード (Ja): キーワード (En): fibroin, silk compact, porosity, dielectric Properties 作成者: 岩崎, 雄樹, 葛谷, 俊博, 平井, 伸治, 玉田, 靖 メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/10258/00009094">http://hdl.handle.net/10258/00009094</a>

# 多孔質シルク成形体の作製と誘電特性

岩崎 雄樹<sup>\*1</sup>・葛谷 俊博<sup>\*2</sup>・平井 伸治<sup>\*2</sup>・玉田 靖<sup>\*3</sup>

## Preparation and Dielectric Properties of Porous Silk Compacts

Yuuki IWASAKI<sup>\*1</sup>, Toshihiro KUZUYA<sup>\*2</sup>, Shinji HIRAI<sup>\*2</sup> and Yasushi TAMADA<sup>\*3</sup>

### Abstract

The potential of silk-based porous resins for use as a novel bio-based materials was investigated by studying their dielectric properties. A porous silk compact was fabricated by dispersing powdered sodium chloride into the silk resin and leaching it in distilled water. The dielectric constants and loss tangent of the porous silk compact were measured by employing the parallel plate method and the open-ended reflection method. These values decreased as the porosity of the porous compact was increased by adding a large amount of powdered sodium chloride. In the case of a porous silk compact with a porosity of 54%, the dielectric constant was 2.5 at a frequency of 1 MHz and decreased gradually at higher frequencies. The dielectric constant was 2.1 at a frequency of 1.8 GHz. The loss tangent was 0.015 at a frequency of 1 MHz and did not change even at higher frequencies.

Keywords : fibroin, silk compact, porosity, dielectric Properties

### 1 緒言

われわれは、パルス通電焼結装置を用いたシルクの樹脂化を試み、従来のホットプレス法で達成されていない、完全に樹脂化した成形体の作製を可能にしてきた。そのシルク成形体では、ポリ乳酸を大きく超える三点曲げ強度と 453 K に達するガラス転移温度を確認した。さらに、シルク成形体のコンポスト条件下のシルク布並みの生分解性

を確認した上で、シルク成形体を機械的粉碎した粉末について、中性塩水溶液への溶解、脱塩、乾燥を経て粉末化したシルク粉末を再びパルス通電焼結装置を用いて成形する方法により再成形体を作製し、そのリサイクル性を証明することができた。その他、シルク成形体の誘電特性について検討し、20 GHz における比誘電率は 4.1、誘電正接( $\tan \delta$ )は 0.05 と、高周波数域でとくに優れた誘電特性を示すことを見出した<sup>[1]</sup>。熱伝導性についても調査し、高密度ポリエチレンと同等の 0.40 ~ 0.46 W/(m・K)のバイオプラスチックとしては高い熱伝導率を確認した。

\*1 大学院・機械創造工学系専攻

\*2 もの創造系領域

\*3 独立行政法人 農業生物資源研究所

情報処理の高速化のため、信号伝播速度の高速化が要求されているなか、配線基板材料としては比誘電率を低くする必要があり、使用する電波の周波数が高くなるほど配線基板の回路中で熱に変わる作用が働きやすくなり伝送損失が大きくなるため、 $\tan\delta$  が小さい材料が求められている。

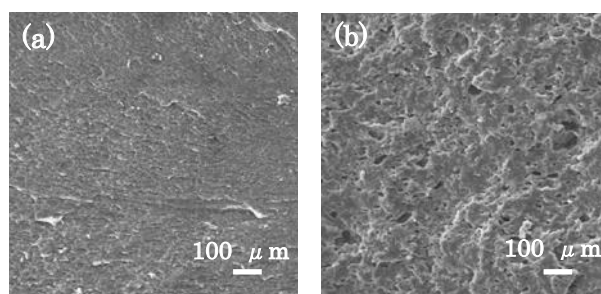
本研究では、とくにシルク成形体の高周波数域における良好な誘電特性に着目し、シルク成形体の見掛け上の比誘電率や  $\tan\delta$  を一層低下させるために、比誘電率が 1 の空気層の導入を図ることにした。その方法として、成形時に成形体中に NaCl 粉末を分散させ、その後で溶出させる方法を提案し、さらに得られた多孔質成形体の誘電特性を評価した。

## 2 実験方法

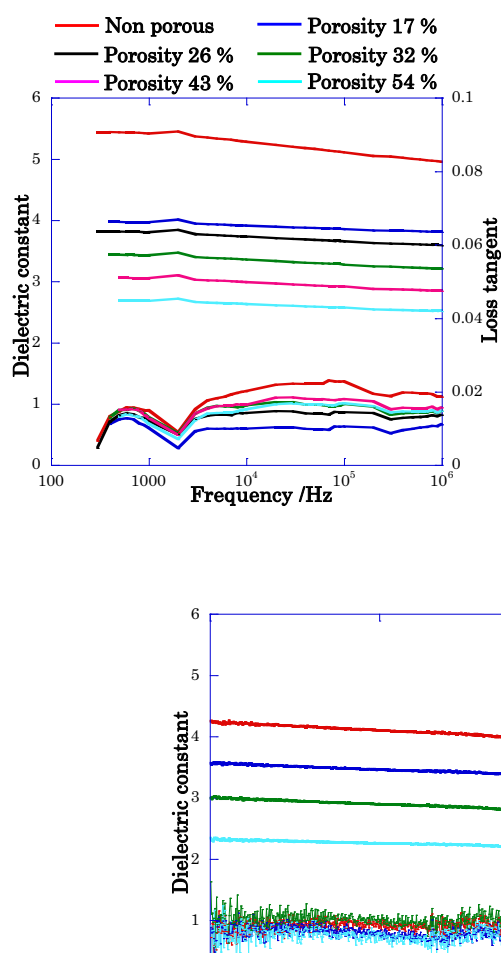
アルカリ処理により微粉化された市販のシルク粉末 (KB セーレン(株), IM, 平均粒径:  $7\ \mu\text{m}$ ) に、試薬を真空ボールミル中で粉砕した NaCl 粉末 (Merck) と飽和食塩水を加え、スラリー状になるまで十分混合した。シルク粉末に対する NaCl 粉末と飽和食塩水の添加量は、それぞれ 5~70 mass%, 25.4 mass%とした。次に、混合物を  $\phi 15\ \text{mm}$  の黒鉛ジグに充填し、パルス通電焼結装置を用いて成形体を作製した。成形は 20 MPa で予備圧縮した後、4.0 Pa 以下の真空中、20 MPa の加圧下で 423 K まで 20 K/min で昇温させ、直ちに 30 K/min で冷却させる方法で行った。成形後は、超音波洗浄機を用いて蒸留水中で 3 時間食塩粉末を溶出させ、さらに 293 K で比誘電率が 80.4 に達する成形体中に残存した遊離水の影響をなくすため、室温下の半日間の乾燥と続く 373 K における 3 日間の乾燥を行った。得られた多孔質成形体は、かさ密度から空隙率を算出した後、室温において低周波数域は LCR メーターを用いた平行平板電極法、高周波域は終端開放型同軸プローブ法により 1.8 GHz までの比誘電率、 $\tan\delta$  を測定した。この他、三点曲げ試験により曲げ強度の測定を行った。

## 3 結果

最初に、SEM 観察により粉砕後の NaCl の粒径が 5~10  $\mu\text{m}$  であることを確認した。この NaCl 粉末を用いて成形したところ、その添加量が 20 mass%以下の場合では成形体に亀裂が発生したの



**Figure 1.** SEM photographs of fracture sections of (a) non porous silk compact and (b) porous silk compacts with porosity of 17 % after leaching in water, respectively.



**Figure 2.** Change of dielectric properties of silk compacts with porosity.

に対し、30 mass%以上では亀裂は確認されなかった。

Figure 1 に NaCl 未添加の場合と 30 mass%の NaCl 粉末を添加した場合の各々の成形体破断面の SEM 観察結果を示す。NaCl 粉末添加の場合、成形体の中心部まで NaCl 結晶の残存は確認されず、NaCl

溶出による空孔の形成が確認された。また、NaCl 添加量が 30, 50, 70 mass% と増加すると、成形体の空孔率も 17, 32, 54 % と直線的に増加する傾向が確認された。

Figure 2 はそれぞれの空孔率の成形体の誘電特性を示す。多孔質体の場合、全ての周波数域において空孔率の増加とともに比誘電率が減少する傾向と、 $\tan\delta$  が多孔質化していないシルク成形体に比べて低い傾向が見られた。多孔質化していない成形体の 1.8 GHz における 3.9 の比誘電率、0.018 の  $\tan\delta$  に対し、たとえば、空孔率 54 % の成形体ではそれぞれ 2.1 と 0.015 であった。ポリエチレンテレフタレート、ポリプロピレンのような多くの高分子材料では、1 MHz 付近において  $\tan\delta$  の急激な増加が確認されているが<sup>[2]</sup>、多孔質成形体では周波数が増加しても  $\tan\delta$  はほぼ一定であった。なお、これらの多孔質成形体の比誘電率の値は、比誘電率が 1 の空孔とその外のシルク成形体の体積比から見積もられる値とほぼ一致した。

次に、成形体の曲げ強度の空孔率依存性を調べたところ、多孔質化していない成形体の 88.5 MPa の曲げ強度に対し、空孔率の増加とともに曲げ強度は減少した。今後、ガラス繊維、竹繊維などの繊維強化による改善が期待される

#### 4 結言

シルク粉末に NaCl 粉末と飽和食塩水を加えたスラリー状の混合物をパルス通電焼結装置を用いて成形した NaCl が分散した成形体から、NaCl を水で溶出することにより空孔率が最大 54 % に達する多孔質成形体を作製した。この成形体の最高 1.8 GHz までの比誘電率は、空孔率とともに減少し、 $\tan\delta$  は多孔質化していないシルク成形体に比べて低い傾向があることを確認した。

#### 文献

- (1) 平井伸治, 金子淳, 玉田靖 BIO INDUSTRY, シーエムシー出版, 24, 11 (2007), p27-33.
- (2) 安田武夫, プラスチックス, 52 (2001), p79.