

## ポリマー繊維アクチュエーターの動作過程における分子構造変化の解析 Analysis of Molecular Structure Change during Operating Actuator Composed of Polymer Fibers

上原 宏樹<sup>a</sup>, 林 直毅<sup>b</sup>, 平岡 牧<sup>b</sup>, 山延 健<sup>a</sup>, 増永 啓康<sup>c</sup>  
Hiroki Uehara<sup>a</sup>, Naoki Hayashi<sup>b</sup>, Maki Hiraoka<sup>b</sup>, Takeshi Yamanobe<sup>a</sup>, Hiroyasu Masunaga<sup>c</sup>

<sup>a</sup>群馬大学, <sup>b</sup>パナソニック(株), <sup>c</sup>(公財)高輝度光科学研究センター  
<sup>a</sup>Gunma Univ., <sup>b</sup>Panasonic Corp., <sup>c</sup>JASRI,

近年、軽量な高分子材料で構成されるソフト・アクチュエーターが注目されるようになった。特に、ドライ環境下での駆動可能なアクチュエーターが求められている。これを実現するために、本研究では直鎖状低密度ポリエチレン(LLDPE)および高密度ポリエチレン(HDPE)を熔融紡糸して繊維を調製した。これを伸縮させた際の応力応答と小角 X 線散乱(SAXS)像を同時記録した。その結果、延伸時には子午線方向(横方向)に太っているパターンが得られたが、収縮時ではこれが挟れていた。これは、延伸時では結晶ラメラの傾きが平行に変化していることを意味しており、ラメラ構造の変化がアクチュエーターの動作機構と関連していることが確かめられた。

キーワード： アクチュエーター、ポリマー繊維、分子構造、WAXD、SAXS、*in-situ* 測定

### 背景と研究目的：

本産学連携チームのメンバーであるパナソニック(株)先端研究本部では、ポリマー繊維をコイル状に巻き付けたアクチュエーターを開発し、その動作状況を調べている[1]。このアクチュエーターの特徴は、ドライ状態で駆動できることと、従来の高分子ゲル・アクチュエーターの100倍以上の駆動力が得られる点にある。具体的には、直鎖状低密度ポリエチレン(LLDPE)、高密度ポリエチレン(HDPE)、ナイロン6,6(Nylon6,6)を熔融紡糸した繊維をコイル状に巻き付けたアクチュエーターを調製したところ(Fig.1)、昇温すると収縮して、LLDPEから作製した長さ100mm、直径0.7mmのコイル状細線で50gの重りを20mm以上、持ち上げることができ、冷却すると伸びて元の状態に戻る優れた回復性を示した。

このような昇降温に伴う延伸/収縮挙動は、ゴム材料のエントロピー弾性と類似しており、ゴム材料では架橋点を基点とした分子配向とランダム状態の可逆変化がこの挙動を誘起していることを考えると、本研究の繊維状アクチュエーターでも、同様の分子構造変化がキーとなっていることが予想される。

また、このようなアクチュエーター性能は、繊維原料によっても大きく異なり、前述の3種の原料の中では、LLDPEが最も大きな可動歪みおよび荷重を示した(Fig.2)。これら繊維の小角 X 線

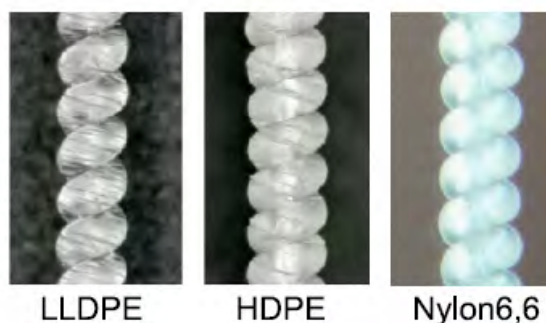


Fig.1 コイル状繊維アクチュエーターの写真(LLDPE、HDPE、Nylon6,6)。

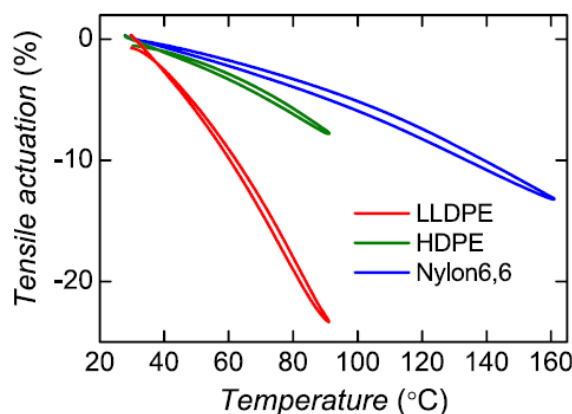


Fig.2 各アクチュエーターの温度変化に伴う変位ヒステリシス。

散乱(SAXS)測定を単繊維について行ったところ、LLDPE で明瞭な四点像が観察され(Fig.3)、傾いたラメラ結晶とその間に挟まれた非晶鎖の配向がアクチュエーター性能に大きな影響を与えていることが示唆された。しかしながら、ラボ装置の制約上、実際のアクチュエーター動作時(延伸/収縮過程)での高次構造変化を確認するには至っていない。

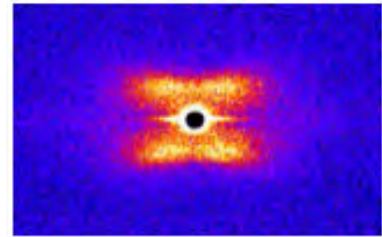


Fig.3 LLDPE 単繊維の SAXS 像(未過重状態). 繊維軸方向は縦方向.

一方、群馬大学の研究グループでは、ポリマー繊維やフィルムを延伸した過程における *in-situ* X 線測定を行うためのインプロセス計測システムを構築し[2]、これを用いて SPring-8 にて超高分子量ポリエチレンを溶融延伸した過程における SAXS 測定を行っている[3]。また、伸縮過程における SAXS 測定も行っており[4]、ポリマー繊維やフィルムを対象とした *in-situ* 計測に関して独自のノウハウを有している。

そこで、本研究では、これら両グループが持つ研究シーズを融合して、まず基礎検討として、コイル化前のポリマー単繊維の伸縮過程における *in-situ* SAXS 測定を行った。得られた結果から、分子鎖の配向状態と高次構造の変化の関係性を考察した。

### 実験：

LLDPE および HDPE を原料として作製したポリマー単繊維を用いた。延伸/収縮のサイクル温度は 2 水準(室温、70°C)、延伸歪みは 3%、5%、9%の 3 水準、繰り返し回数は 20 回とした。

ビームラインの試料ホルダー位置に自作の一軸延伸機をセットした。上記の条件で繊維を延伸および収縮させながら SAXS 像を *in-situ* で記録した。カメラ長は約 1000 mm とした。また、延伸機に取り付けたロードセルにより、変形応力を同時測定した。

### 結果および考察：

LLDPE 単繊維について、70°C にて歪み 5%まで延伸後、歪み 2%まで収縮させるサイクルを 20 回繰り返した際に記録した応力プロファイルと SAXS 像変化を Fig.4 に示した。なお、SAXS 像における繊維軸方向(伸縮方向)は横方向である。70°C においては、20 回のサイクルを繰り返しても、印加応力が下がっておらず、良好な伸縮性能を示していた。

一方、SAXS 像を見ると、ラボ装置で観察されたのと同様の四点像が観察されている。ラボ装置では、これ以外に赤道線方向(縦方向)のストリークが観察されていたが、これは、ラボ装置を用いた場合は単繊維では散乱強度が弱く、複数の繊維を束ねた状態で測定しているためである。これに対して、BL40XU は輝度が高く、単繊維でも十分な散乱強度が得られるため、このようなストリークが現れていない。したがって、SAXS 像から切り出したプロファイルの信頼性はラボ装置に比べて各段に高く、SPring-8 測定の有効性が確かめられた。

伸縮に伴う像変化を見ると、延伸時には子午線方向(横方向)に太っているパターンが得られているが、収縮時ではこれが挟れていることがわかる。これは、延伸時では結晶ラメラの傾きが平行に変化していることを意味しており、ラメラ構造の変化がアクチュエーターの動作機構と関連していることが確かめられた。

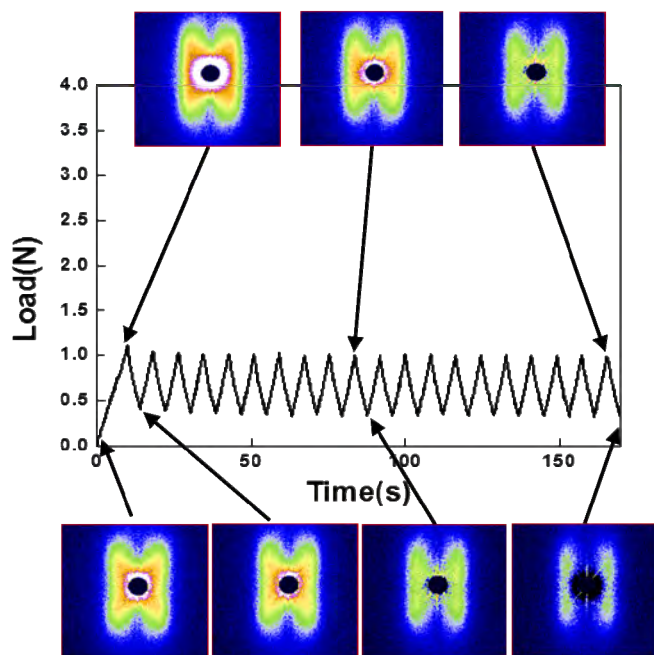


Fig.4 LLDPE 繊維を 70°C にて歪み 5%まで延伸後、歪み 2%まで収縮させるサイクルを 20 回繰り返した際に記録した応力プロファイルと SAXS 像変化. 繊維軸方向は横方向.

参考文献：

- [1] M. Hiraoka, K. Nakamura, H. Arase, K. Asai, Y. Kaneko, S. W. John, K. Tagashira, A. Omote, *Sci. Rep.* **6**, 36358 (2016).
- [2] 上原宏樹、SPring-8 利用者情報、**15**(4), 214 (2010).
- [3] M. Kakiage, M. Sekiya, T. Yamanobe, T. Komoto, S. Sasaki, S. Murakami, H. Uehara, *Polymer* **48**, 7385 (2007).
- [4] 攬上将規 他、平成 18 年度 萌芽の研究支援課題成果報告書(2006B), pp. 219, 2006B1698.