

分散媒の混合によるシリカ懸濁液の粒子凝集構造とレオロジー測定

Particle Aggregate Structure and Rheological Measurement for the
Silica Suspension in Mixed Dispersion Medium

伊藤 巧樹¹⁾

Koki ITO

平野 綾菜²⁾

Ayana HIRANO

鳥飼 直也^{1), 2)}

Naoya TORIKAI

¹⁾ 三重大学工学部

²⁾ 三重大学大学院工学研究科

(概要)

グリセロール水溶液を分散媒とする親水性フュームドシリカの懸濁液が示すせん断増粘挙動および、小角中性子散乱 (SANS) 測定により評価した懸濁液中のフュームドシリカの凝集状態について、混合分散媒の組成による影響を調べた。フュームドシリカの添加量が 12 wt% の懸濁液では、混合分散媒のグリセロール組成が 40 vol% まではサスペンションの粘度はせん断速度の増加に伴い単調に減少したのに対して、50 vol% 以上ではせん断増粘を示した。SANS 測定では、散乱ベクトル q が 0.05 nm^{-1} 付近に、粒子間の相関を反映するブロードなピークが観測され、その q 位置より見積もられるフュームドシリカ凝集間の相関距離が概ねグリセロール組成の増加とともに短くなることが明らかになった。

キーワード：フュームドシリカ懸濁液、混合分散媒、せん断増粘、凝集構造、小角中性子散乱

1. 目的

固体粒子を液体中に分散させた懸濁液は、従来より理論・実験の両面で多くの研究がなされ、単一の分散媒を用いた系については、その特性の理解がかなり確立されている[1,2]。懸濁液中の粒子の凝集状態によって、せん断速度の増加に伴い粘度が増加するせん断増粘挙動や、ゲル化など、サスペンションは複雑な非ニュートン挙動を示す。一方、実用の懸濁液の多くが複数の分散媒、分散質の組み合わせで構成されるが、それらの混合による懸濁液の特性への影響はほとんど明らかにされていない。

本研究では、これまで主に用いてきたプロピレングリコールの代わりに、グリセロールと水を異なる組成で混合してフュームドシリカの懸濁液を調製し、そのレオロジー特性に及ぼす混合分散媒の影響と懸濁液中のフュームドシリカの凝集状態を小角中性子散乱 (SANS) 測定により調べた。

2. 方法

分散質として親水性フュームドシリカ (FS) Aerosil-130 (日本アエロジル) を、組成が異なる脱イオン水とグリセロールの混合分散媒中に、T.K. ロボミックス (特殊機化工業) により 3,000 rpm で 30 分の攪拌で分散させて懸濁液を得た。

サスペンションの定常流粘性率測定は、MCR302 (Anton Paar) を用いて、コーンプレート (コーン径: 50 mm, ギャップ: 0.099 mm) を治具に実施した。せん断速度 $1,000 \text{ s}^{-1}$ で、20 分のプレシアを印加した後、所定のせん断速度での粘度が一定となる定常粘度を計測した。

また、研究用原子炉 JRR-3 の SANS-J にて小角中性子散乱 (SANS) 測定により懸濁液中の FS の静的な凝集構造を評価した。散乱強度プロファイルは、異なるカメラ長で得られた散乱データを散乱ベクトル q ($= (4\pi/\lambda)\sin\theta$, ここで、 λ は中性子の波長、 2θ は散乱角を示す。) の関数として変換した後、繋ぎ合わせて一つのプロファイルとした。

3. 結果及び考察

図 1 に、FS 濃度が 12 wt% のサスペンションで、異なるグリセロール組成の混合分散媒に対して、粘度 η をせん断速度の関数として示す。脱イオン水 (グリセロール組成 0 vol%) を含め、グリセロール組成が 40 vol% まではせん断速度の増加に伴い η が減少したのに対して、グリセロール組成が 50 vol% 以上ではあるせ

せん断速度でせん断増粘を示した。また、FS 濃度がより高い方が、増粘を示すせん断速度が低速度側にシフトした。せん断下におけるサスペンション中の粒子には、せん断やブラウン運動などによる粒子を分散させる力と、その逆に粒子を凝集させる流体力学的相互作用などが働く。粒子の凝集に寄与する流体力学的相互作用は分散媒自体の粘度に比例し、グリセロール ($\eta=0.76 \text{ Pa}\cdot\text{s}$) の方がプロピレングリコール ($\eta=0.037 \text{ Pa}\cdot\text{s}$) よりも粘度が高いために、より低い組成でせん断増粘が観測されたと考えている[3]。

図 2 に、グリセロール ($\text{D}_2\text{O}/\text{H}_2\text{O}$ の 50/50 混合物) の組成が異なるサスペンションに対して得られた SANS プロファイルを散乱ベクトル q の関数として比較する。 q が $0.2\text{--}0.3 \text{ nm}^{-1}$ 付近に FS の一次粒子径 (16 nm) の大きさを反映した変曲点が観測された。また、 q がさらに低い 0.05 nm^{-1} 付近に FS 凝集体間の相関を反映する極大が観測され、その q 位置より見積もられる凝集体間の相関距離はバラツキはあるものの概ね分散媒のグリセロール組成が高い方が短くなる傾向にあることが示唆された。

4. 引用(参照)文献等

- [1] W. B. Russel, D. A. Saville, W. R. Schowalter, Colloidal Dispersion, Cambridge University Press, New York (1989).
- [2] J. Mewis, N. J. Wagner, Colloidal Suspension Rheology, Cambridge University Press, New York (2012).
- [3] J. Warren, S. Offenberger, H. Toghiani, C. U. Pittman, Jr., T. E. Lacy, S. Kundu, *ACS Appl. Mater. Interfaces*, 7, 18650 (2015).

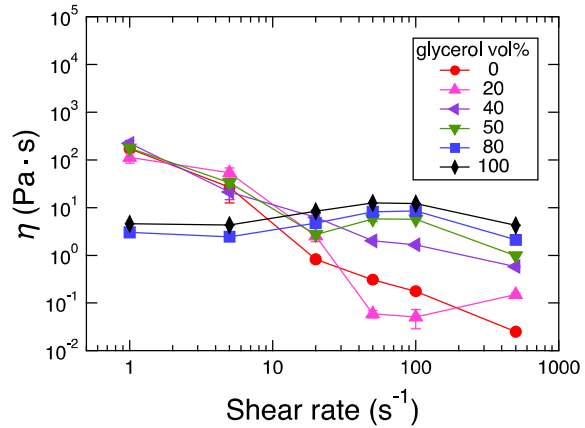


Figure 1 Viscosity as a function of shear rate for the 12 wt% FS suspensions in the mixed dispersion media with the different glycerol compositions.

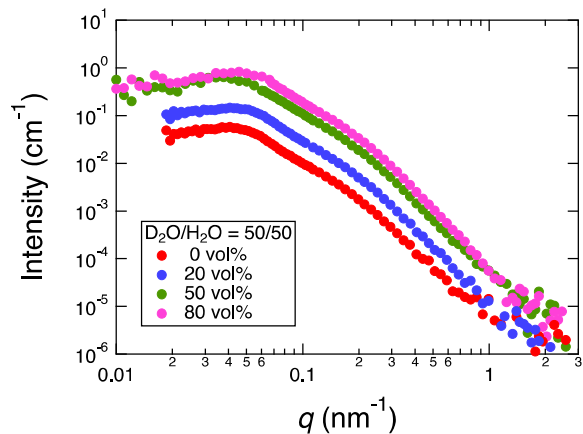


Figure 2 SANS profiles as a function of scattering vector, q , for the 12wt% FS suspensions in the mixed dispersion media with the different glycerol compositions.