

### 浸透圧測定を利用したナノ粒子スラリーの 粒子分散・凝集状態評価に関する研究

森, 智紀 / Mori, Tomoki

---

(出版者 / Publisher)

法政大学大学院理工学・工学研究科

(雑誌名 / Journal or Publication Title)

法政大学大学院紀要. 理工学・工学研究科編 / 法政大学大学院紀要. 理工学・工学研究科編

(巻 / Volume)

58

(開始ページ / Start Page)

1

(終了ページ / End Page)

2

(発行年 / Year)

2017-03-31

(URL)

<https://doi.org/10.15002/00014150>

## 浸透圧測定を利用したナノ粒子スラリーの 粒子分散・凝集状態評価に関する研究

### EVALUATION OF DISPERSION AND AGGREGATION STATE OF NANOPARTICLE SLURRIES BY OSMOTIC PRESSURE MEASUREMENT

森智紀

Tomoki MORI

指導教員 森隆昌

法政大学大学院理工学研究科応用化学専攻修士課程

It is very difficult to handle nanoparticles in dry process, thus, nanoparticle slurries are widely used for material fabrication processes. Since the particle dispersion and aggregation state has a great influence on the quality of various products fabricated from nanoparticles. However, the characterization techniques for the particle dispersion state of dense nanoparticle slurries have not been established, yet. Therefore, in this study, a novel evaluation technique, in which the osmotic pressure of nanoparticle slurry is measured, has been developed in order to characterize the dispersion state of nanoparticles in the slurry. It was shown that the osmotic pressure of nanoparticle slurry increased with a decrease in the median diameter of the slurry, indicating that the well dispersed slurry had larger osmotic pressure and we can evaluate the dispersion state of nanoparticles through the osmotic pressure measurement. It was also demonstrated that the osmotic pressure measurement could be useful for dense and/or less transparent slurries although the conventional particle size measurement, dynamic light scattering, was not applicable.

**Key Words** : osmotic pressure, nano-particle slurry, dispersion and flocculation state

#### 1. 緒言

ナノ粒子は様々な分野で応用研究が実施されているが、通常乾式では扱いが困難なためスラリーとして扱われることが多い。ナノ粒子の分散・凝集状態は製品の性能に大きく影響するため、ナノ粒子スラリーの粒子分散凝集状態を評価する技術の確立が求められている。ナノ粒子スラリーの粒子分散・凝集状態を評価することは難しく、特に高濃度の場合、現在もその方法が確立されていない。

そこで我々はナノ粒子スラリーの浸透圧に着目し、浸透圧の大小から分散・凝集状態を評価することを行ってきた。これまでの研究で比較的希薄なシリカナノ粒子スラリーについて動的光散乱で測定したメジアン径が小さいすなわち分散しているスラリーの方が浸透圧が高い傾向を示している。

そこで本研究では分散・凝集状態や粒子体積濃度、粉体の種類を変化させたナノ粒子スラリーを用いて、浸透圧と動的光散乱法でメジアン径の測定を行い、浸透圧と分散・凝集状態の関係を幅広い試料で検討した。

#### 2. 実験方法

SiO<sub>2</sub>スラリーはSNOWTEX-40(日産化学製、一次粒子径 10-20 nm)を 5,20 vol%に希釈し、NaCl を添加して塩濃度を変化させて分散・凝集状態を変えたものを用いた。ZrO<sub>2</sub>スラリーはナノユース ZR-30BNF(日産化学製、一次粒子径 10-30 nm)を 5 vol%に希釈し、pH 調整を行い、分散・凝集状態を変化させたものを用いた。透明性の低いスラリーとして Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>スラリーを

AS-520(日産化学製、一次粒子径 15-30nm)を 5vol%に希釈し、NaCl を添加して塩濃度を変化させて分散・凝集状態を変えたものを用いた。

Fig.1 で示した実験装置を用いて浸透圧を測定した。

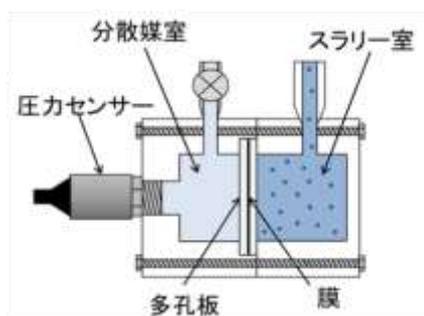


Fig.1 浸透圧測定装置概略図

分散媒にはイオン交換水(pH をスラリーと同一にしたもの)、膜は限外濾過膜(ミリポア製、分画分子量 100000)を用いた。

まず、分散媒室に分散媒を注入し、バルブを開けて密閉した。次にスラリー室にスラリーを注入し、分散媒室に設置した圧力センサーで圧力を測定した。

スラリー中の粒子のメジアン径は動的光散乱法粒子径分布測定装置(堀場製作所, LB-550)を用いて測定した。

さらに Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>5vol%と SiO<sub>2</sub>20vol%スラリーは、9000G で 3 時間遠心分離を行い、上澄み液(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 5vol%)は 10mL、SiO<sub>2</sub>

20vol%は 5mL)の固形分濃度を水分計(島津製作所,MOC63u)測定した。

### 3. 結果と考察

Fig.2に各pHにおけるメジアン径と浸透圧の関係を示した。メジアン径が小さいほど、より分散しているスラリーであると考えられる。Fig.2より、ZrO<sub>2</sub> 5 vol%スラリーでは分散しているスラリーの方が浸透圧が大きい傾向がみられた。したがって、異なる粒子のスラリーでも浸透圧測定法が応用可能であることが示された。

Fig.2はメジアン径の測定値と、式(1)で示した剛球体モデルでの浸透圧の式である Carnahan and starling 式(CS 式)を用いて浸透圧の測定値から計算した粒子径の関係を示した。

Fig.2 より、メジアン径と浸透圧の測定値に良い相関がみられた。今後は計算値と測定値の差がみられたことから、分散媒室とスラリー室のイオン濃度を測定しイオン濃度差とそこから求まる電気二重層の厚さ、ゼータ電位測定で粒子の帯電を考慮する予定である。

$$P = akT \frac{1 + \eta + \eta^2 - \eta^3}{(1 - \eta)^3} \quad (1)$$

$P$  [Pa]は浸透圧,  $a$  [ $m^{-3}$ ]は見かけ個数濃度,  $k$  [ $J \cdot K^{-1}$ ]はボルツマン定数,  $T$  [K]は絶対温度,  $\eta$  [-]は粒子体積濃度とする。

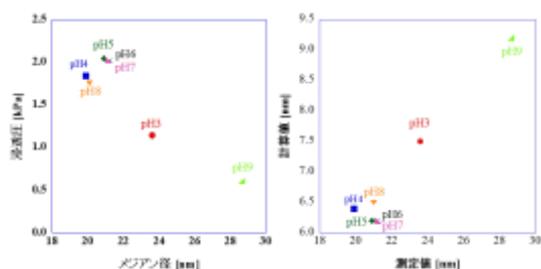


Fig.2 ZrO<sub>2</sub> 5vol% メジアン径の測定値と浸透圧, 計算値の関係

透明性の低い Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 5vol%のスラリーと高濃度の SiO<sub>2</sub> 20 vol%スラリーにおいて Fig.3 はメジアン径と浸透圧の関係を, Fig.5 は上澄みの固形分濃度と浸透圧の関係を示した。

Fig.3 より動的光散乱法による粒子径分布の測定が難しい試料であることが, Fig.4, Fig.5より NaClの添加量の少ないスラリーほど分散していることが確認できた。

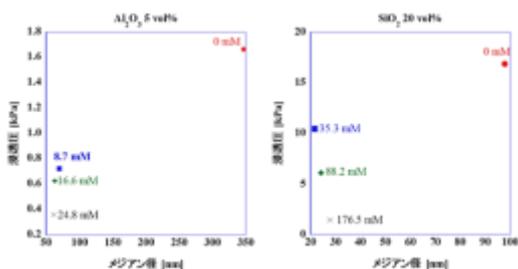


Fig.3 メジアン径と浸透圧の関係

Fig.4, Fig.5より Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 5vol%, SiO<sub>2</sub> 20vol%ともに NaClの添加量の小さい分散しているスラリーほど浸透圧が大きくなる傾向がみられた。したがって、動的光散乱法による粒子径分布測定が困難な高濃度のスラリーや透明性の低いスラリーにおいても浸透圧測定法が応用可能であることが示された。

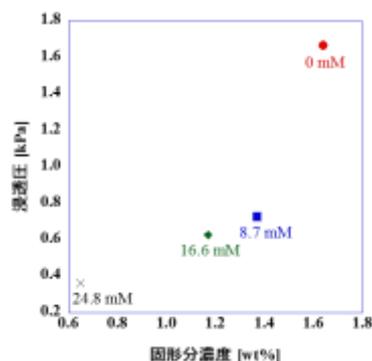


Fig.4 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 5vol% 固形分濃度と浸透圧の関係

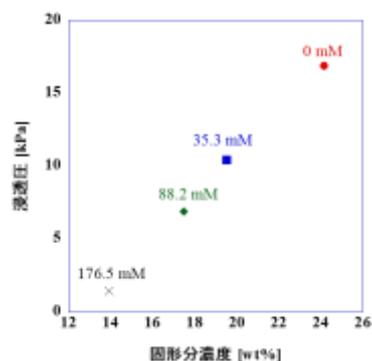


Fig.5 SiO<sub>2</sub> 20vol% 固形分濃度と浸透圧の関係

### 4. 結言

各試料から調製したスラリーにおいて、メジアン径が小さいほど浸透圧が高い傾向がみられ、一般性を確認することができた。

メジアン径の測定値と CS 式を用いて浸透圧の測定値から算出された粒子径の値は分散媒とスラリーのイオン濃度差により生じる浸透圧とそこから得られる電気二重層、ゼータ電位測定で帯電を考慮することが必要である可能性が示された。

動的光散乱法による粒子径分布測定の困難である高濃度のスラリーや透明性の低いスラリーでも分散・凝集状態の評価が可能であることが示された。

### 参考文献

- 1) 椿淳一郎,森隆昌,佐藤根大士;基礎スラリー工学,丸善出版(2016)
- 2) 神谷秀博,飯島志行;ナノ粒子の分散挙動制御とその応用;The Micromeritics,55,12-18,(2012)

### 謝辞

本研究の一部は、JST A-STEP シーズ頭在化タイプの支援のもとで実施しました。ここに記して謝意を表します。