

# 低圧力勾配下における Na モンモリロナイト懸濁液の 固有粘度と流体力学的相互作用係数に対する考察

An analysis of the intrinsic viscosity and the pair interaction coefficient  
of Montmorillonite Suspension under low pressure gradient

○辻本 陽子\*, 足立 泰久\*

Tsujimoto Yoko Adachi Yasuhisa

## 1. 背景・目的

粘土懸濁液の特異な流動特性は様々な利用がなされているが、その流動特性が出現する機構は十分明らかではない。Batchelor (1977)は球状コロイド粒子の懸濁液の還元粘度  $\eta_{red}$  を固相体積分率  $\phi$  の関数として

$$\eta_{red} = \frac{\eta_r - 1}{\phi} = k_1 + k_2\phi \quad (1)$$

と導いた。ここで  $\eta_r$  は相対粘度、 $k_1$  は粒子と周囲の流体との相互作用、 $k_2$  は流れによって接近した粒子同士の相互作用を反映しており、剛体球粒子について得られた値は各々 2.5、6.2 である。注意すべき点は、剛体球の場合、 $k_1^2 \approx k_2$  となることである。Miyahara ら(1998)はモンモリロナイト懸濁液について、希薄な状態での粘度測定を詳細に行い、分散状態では  $k_1 \approx 170 \sim 200$  であり、凝集状態になるとその値は数倍に増加することを報告した。また、凝集状態の粘度のデータから、イオン強度の増加による凝集では、 $k_1^2 \ll k_2$  となることが読み取れる。この結果は、凝集体同士の相互作用を解析する観点において興味深い。この相互作用は、凝集体同士の強度や経過時間、凝集の進行に伴い変化するものと予測される。本研究では、単純な2体間の相互作用を精度良く解析する立場から、希薄な状態で、粒子にかかる力をできるだけ弱くして測定を行う。pH を関数としてモンモリロナイト懸濁液の粘度を低圧力勾配下において測定し、表面荷電の影響による  $k_1$  と  $k_2$  の比と粒子間相互作用について解析する。

## 2. 実験

### 2.1. 螺旋状毛細管型粘度計

実験には、当研究室で独自に開発された螺旋状毛細管型粘度計(Fig.1)を使用した。この粘度計により、従来の毛細管型粘度計よりも 1000 分の 1 程度の圧力勾配下で粘度測定が可能である。粘度計内の懸濁液をニュートン流体と仮定した場合、ポアズイユ則より求められる流量と流量保存との関係から水位差  $h(t)$  を流動時間関数  $t$  として以下のように表わされる。

$$\frac{h(t)}{h_0} = \exp\left(-\frac{\pi g D^4 \rho t}{64 A L \eta}\right) \quad (2)$$

( $g$ :重力加速度,  $D$ :管径,  $A$ :メスシリンダー断面積(6.25 cm<sup>2</sup>),  $L$ :管路長(100 cm),  $\rho$ :密度)つまり、流動時間に対して水位差の比を片対数グラフにプロットし、傾きの逆数から粘度を算出することができる。

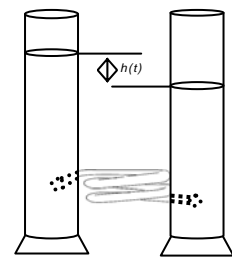


Fig.1 螺旋状毛細管型粘度計模式  
The illustration of  
Spiral-capillary-viscometer

\*筑波大学大学院生命環境科学研究科. Graduate School of Life and Environmental Sciences, Univ. of Tsukuba

キーワード: レオロジー、モンモリロナイト、固有粘度、流体力学的相互作用係数

## 2.2. 試料・実験方法

試料のモンモリロナイト(クニミネ工業のクニピア F 使用)は、2:1 型の粘土鉱物で薄いシート状の構造をした粒子である。face 部に永久負荷電、edge 部に pH 依存荷電を持ち、酸性条件下では正に、塩基性条件下では負に帯電する。モンモリロナイトはあらかじめ飽和 NaCl 溶液に漬け、粘土粒子表面の対イオンを  $\text{Na}^+$  イオンで飽和させ、蒸留水で透析した。モンモリロナイト懸濁液の体積分率は  $1.0 \times 10^{-4} < \phi < 1.0 \times 10^{-3}$  とし、pH の調製には NaOH 溶液を用いた。また、イオン強度は  $5.0 \times 10^{-3} \text{ M}$  とした。

## 3. 結果と考察

Fig.2 にモンモリロナイト懸濁液( $\phi = 8.0 \times 10^{-4}$ )の水位差の経時変化を示した。酸性条件下において、粘度の増加が確認された。水位差の経時変化から算出した粘度に基づき、還元粘度を体積分率に対してプロットした(Fig.3)。切片から pH6 と 9 の懸濁液の  $k_1$  はそれぞれおよそ 1000、250 であり、酸性条件下におけるモンモリロナイト懸濁液の固有粘度の増加が確認された。これは pH6 において、edge 部の正荷電と face 部の負荷電との静電的な引力により凝集したためと考えられる。凝集による固有粘度の増加は Miyahara らの結果と一致するものである。また、edge - face の凝集で形成したフロックは、単分散した時と比べて、有効体積分率が 4 倍近く増加したと考えられる。 $k_1^2 \doteq k_2$  として、モンモリロナイトの  $k_1$ 、 $k_2$  を式(1)に代入した値を破線で Fig.3 に示した。pH6 の場合、破線に比べて実測値の傾きが小さいことから、Miyahara らの結果に比べて、モンモリロナイト粒子のフロックが変形しやすく、フロック同士の流体力学的相互作用が弱いと考えられる。また、Fig.4 から粘度の増加に時間依存性が見られ、経過時間による  $k_2$  の増加が予想される。

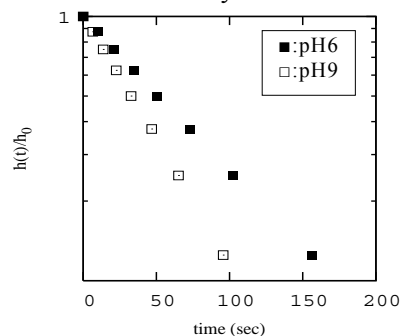


Fig.2 モンモリロナイト懸濁液の水位差の経時変化  
Change in characteristic of water level with time of Montmorillonite suspension ( $\phi = 8.0 \times 10^{-4}$ )

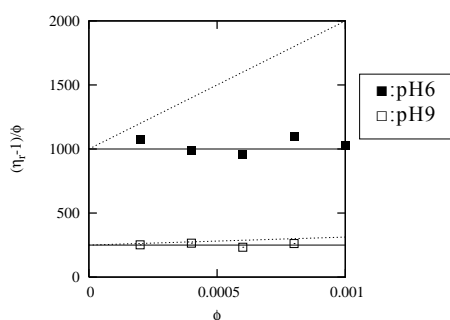


Fig.3 体積分率に対する還元粘度の変化  
Change in reduced viscosity with volume fraction of Montmorillonite suspension

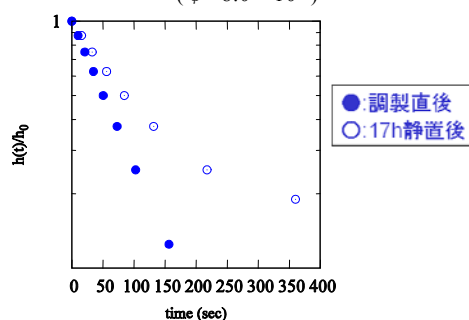


Fig.4 17 時間静置後の水位差の経時変化  
Change in characteristic of water level with time of Montmorillonite suspension after 17 hours.

[1]G.K.Batchelor, *J. Fluid Mech.* **83**(1977), 97

[2]Benjamin J. Anderson, Charles F. Zukoski, *Macromolecules* **42**(2009), 8370-8384

[3]K.Miyahara, Y.Adachi, K.Nakaishi, *Colloids and Surface A:Physicochemical and Engineering Aspects* **131**(1998), 69-75

[4]小林俊也, 足立泰久, 農業土木学会論文集 **238**(2005), 21-32