

## V-535 MMA系レジンコンクリートに使用するフィラーの分散性と付着

熊谷組	正会員	黒本 雅哲
同上	正会員	河村 彰男
同上	正会員	岩井 孝幸
東京工業大学		
		住田 雅夫

## 1. はじめに

レジンコンクリート（REC）のような複合材料の性能は、充填される骨材やフィラーの体積分率だけではなく、それらの分散形態と界面での付着状態に大きな影響を受ける。特に、比表面積の大きいフィラーは、RECの力学的特性やワーカビリティを大きく左右し、分散形態の制御と、マトリックス樹脂に対する付着性の改善が重要な課題となっている。筆者らは、RECの性能向上と高機能化を目指し、こうしたフィラーの分散状態や付着状態の定量的な評価を試みた。本報では、レジンペースト中のフィラーの分散状態を、電子顕微鏡写真的画像統計解析によって評価した。また、レジンペーストの力学的特性から、マトリックス樹脂とフィラーとの付着状態を考察した。

## 2. 材料とレジンペーストの配合

結合材には、メタクリル酸メチルを主成分とする液状レジン（密度：0.965g/cm<sup>3</sup>、粘度：2cP）を用いた。フィラーはアルミナ（アルミナA、平均粒径：2.2 μm、比重：3.95）とし、充填量はレジンペーストの0～30vol%とした。また、重合開始剤は、過酸化ベンゾイルの50%希釈品とし、液状レジンの質量に対して6.5%添加した。試験に供したレジンペーストの概要を表-1に示す。配合2で使用したフィラーは、アルミナAの表面をγ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン（シラン）で改質したもの（アルミナA-ST）である。また、配合3ではフィラー質量の2wt%に相当するシランをレジンペーストにブレンドした。

## 3. 試験概要

(a) フィラーの分散状態：20vol%のフィラーを充填したレジンペーストの断面の電子顕微鏡写真を、森下の区画法[1]によって画像統計解析した。

森下の区画法では、森下指数  $I_\delta$  が分散状態を特徴づける重要なパラメータであり、次式で定義される。

$$I_\delta = q \cdot \delta \quad (1)$$

$$\delta = \left\{ \sum_{i=1}^q ni(ni-1) \right\} / N(N-1) \quad (2)$$

ここで、 $q$  は全区画数、 $n_i$  は  $i$  番目の区画内の粒子数、 $N$  は全粒子数である。また、 $\delta$  は一つの区画内に注目する2粒子が存在する確率を表しており、 $I_\delta$  は  $\delta$  に全区画数  $q$  を掛けた値である。

図-1①、②、③は、等しい面積内に50個の粒子（フィラー）が分散している状態を表しており、それぞれ粒子の典型的な分散状態に対応している。①はポアソン分布であり、全ての粒子が他の粒子と独立してランダムに分散している。②は規則分布であり、各粒子を中心として一定半径内に何らかの反発力が存在する時に起こりやすいものである。③は集中分布であり、粒子間に親和力が働き集塊を形成している。

キーワード：レジンコンクリート、フィラー、分散、付着、森下指数

連絡先：〒300-22 つくば市鬼ヶ窪1043 TEL: 0298-47-7501 FAX: 0298-47-7480

表-1 レジンペーストの概要

配合	フィラー (アルミナ)	フィラーの シラン処理	シランの 添加
1	A	なし	なし
2	A-ST	あり	なし
3	A	なし	2wt%

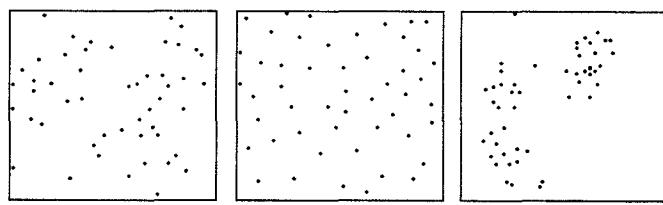


図-1 典型的な粒子（フィラー）の分散パターン

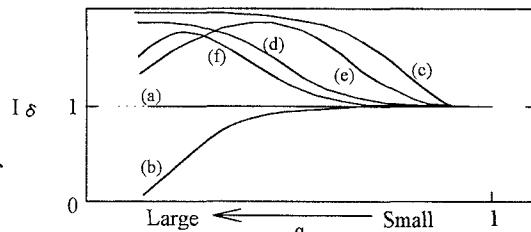


図-2 森下指数  $I_\delta$  と区画数  $q$

図-2は、図-1の①～③に示した典型的な分散状態について、 $q$ の変化に伴う $I\delta$ の変化を模式的に示したものである。 $q$ の増加に伴い、 $I\delta = 1$ のときボアソン分布(図-2(a))、 $I\delta < 1$ のとき規則分布(同(b))、 $I\delta > 1$ のとき集中分布(同(c)～(f))である。集中分布については、集塊の大きさと集塊内の粒子の分散状態によって、曲線(c)～(f)をとる。

(b) レジンペーストの粘度: B型粘度計を用い、20℃における硬化前のレジンペーストの粘度を測定した。

(c) レジンペーストの引張強度: 室温において硬化させたレジンペーストから、幅10×長さ30×厚さ0.5～0.7mmの試験片を作製し、引張強度を測定した。

#### 4. 結果と考察

##### 4.1 フィラーの分散状態

分散状態の評価結果を図-3に示す。表面改質を行わないフィラーの分散状態は、シラン添加の有無にかかわらず、わずかに集中分布の傾向が認められるボアソン分布である。一方、表面改質を行ったフィラーは規則分布を示す。つまり、無改質のアルミナは、粒子間に反発力が働くことなく、粒子は互いに独立した状態でランダムに分散する。また、粒子間に凝集力が働くことなく、わずかに集塊を形成する。これに対し、表面改質を行ったアルミナA-STでは、粒子間に何らかの反発力が働くことなく、集塊の形成が抑制されること、粒子とマトリックス樹脂の界面に良好な親和性が存在していることがわかる。

図-4には、硬化前のレジンペーストの粘度を示した。レジンペーストの粘度とフィラーの分散状態には、明瞭な相関が認められる。集塊の形成がなく、樹脂との界面に良好な親和性が存在するフィラーは、レジンペーストの粘度を著しく低下させる。

##### 4.2 フィラーとマトリックス樹脂の付着

図-5に示すように、いずれの配合のレジンペーストでも、引張強度はフィラー充填量の増加とともに増大する傾向にある。また、20vol%までの充填量では、配合1～3の引張強度はほぼ等しい。つまり、アルミナとマトリックス樹脂の界面における付着は、表面改質を行わない場合であっても、改質した場合と変わらず、良好であるとみなされる。ただし、30vol%の充填量において、表面改質を施した配合2、シランを添加した配合3の引張強度が、シランを使用しない配合1に比べて大きくなっている。シランが界面における付着を補強するものと推定される[2]。

#### 5.まとめ

シランによる表面改質は、粒子と樹脂との反発とマトリックス樹脂への優れた親和性をもたらし、レジンペースト中のアルミナの分散性を改善する。単にシランをブレンドしただけでは、粒子間に反発力は生じず、アルミナの分散性は改善しない。表面改質を行わない場合でも、改質した場合と同様、フィラーとマトリックス樹脂との界面の付着は良好である。シランの使用は、界面における付着をさらに高める可能性がある。

参考文献 [1]住田 雅夫, 高分子加工, vol.43, No.4, p.p.32-36 (1994)

[2]M. Kuromoto, Proceeding of the 2<sup>nd</sup> East Asia Symposium on Polymers in Concrete, Submitted (1997)

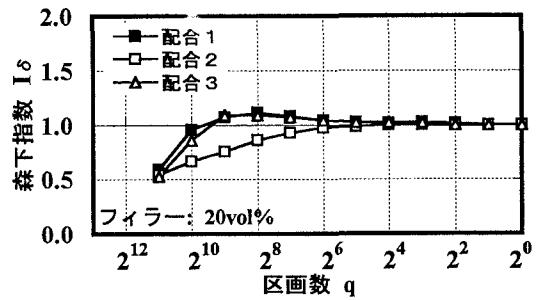


図-3 フィラーの分散状態

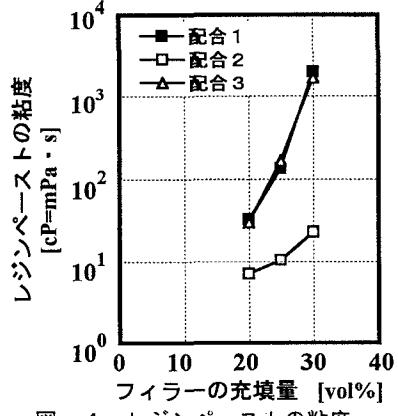


図-4 レジンペーストの粘度

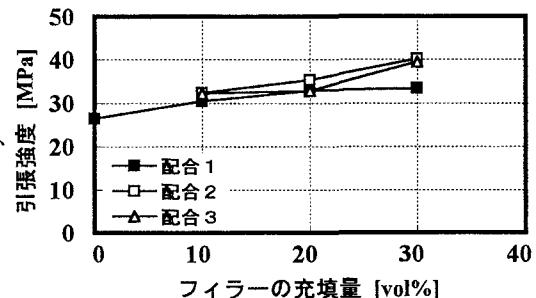


図-5 レジンペーストの引張強度