

高分子中に分散したシリカ微粒子の分散状態の評価方法の提案—エントロピー・ボロノイ分割—

京工織院大工 ○八木俊憲・一刈昌太・西川幸宏・高橋雅興

【緒言】

微粒子の分散は、コロイド科学の重要なトピックの1つであるが、分散状態の"良し悪し"の定義はあいまいなまま今日に至っている。我々は高分子をマトリックスとし、フィラーを充填したコンポジット材料を X 線 CT を用いることで、フィラーの位置情報を正確に決定し、微粒子の分散を議論するためのモデル系を構築した。このモデル系を用いてエントロピーの概念やボロノイ分割を活用した分散の定量化を提案する。

【解析方法】

1) エントロピー

エントロピーは熱力学において

$$S = k_B \ln W \quad (W; \text{粒子の配置の場合の数})$$

と表せる。3次元画像の全体積を n 個に分割し、各空間内に存在する粒子数を N_1, N_2, \dots, N_n として数え上げる粒子をそのように分布させた時の場合の数 W は以下の式で与えられる。

$$W(N_1, N_2, \dots, N_n) = \frac{N!}{N_1! N_2! \dots N_n!}$$

2) ボロノイ分割

3次元画像中の各画素において最も近い粒子を見つけ出し、各粒子が占有する体積を画像化する解析法はボロノイ分割と呼ばれる。この解析により粒子1つを含む多面体の領域に分割される。各多面体をここではセルと呼ぶこととする。

【結果と考察】

本実験では Fig.1 に示されるような $300 \times 200 \times 200$ pixel の画像を用い、1辺が 50 pixel の立方体を分割する体積と考え、一つの画像を 96 個の空間に分割してエントロピーの算出を行った。Fig.2 にその結果を示す。シリカ粒子の充填量が大きくなるにつれ、空間内におけるエントロピーも大きくなった。これは充填量の増加と共にシリカの粒子数が増加することで空間内の粒子の配置方法が増えることを意味する。また Fig.3 に示した図より、充填量の増加により粒子の占有している領域が小さくなっていることが見てわかる。発表時には均一分散と不均一分散時の分散状態をエントロピーとボロノイ分割を用いて定量的に比較する。

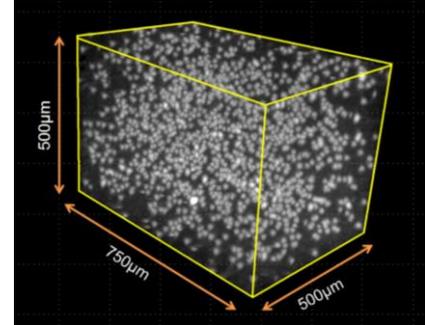


Fig.1 X-ray CT image of Silica Particles dispersed in PMMA

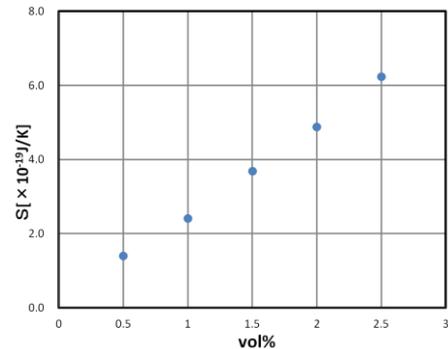


Fig.2 Total entropy(S) vs volume fraction for PMMA/Silica

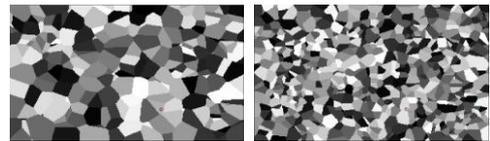


Fig.3 2D image of Voronoi Tessellation in PMMA/Silica
Left ; 0.5vol% and Right ; 2.5vol%

Numerical analysis of spatial distribution of silica particles dispersed in polymer medium

Yoshinori YAGI, Shouta ICHIKARI, Yukihiro NISHIKAWA, and Masaoki TAKAHASHI

(Department of Macromolecular Science and Engineering, Kyoto Institute of Technology,

aruda.0928@gmail.com)

Abstract: Three-dimensional dispersion of monodisperse hydrophilic silica particles in polymers was observed by X-ray CT and the entropy of the spatial distributing of particles was calculated. The total entropy increased with the increase of volume fraction of silica. But the entropy per one silica particle was constant regardless of the amount of volume fraction of silica. The silica particles were also dispersed in a polymer blend of PS/PMMA with bicontinuous phase-separation structure. The silica particles exclusively localized in the PMMA phase. The total entropy decreased with the annealing time.