

平成 29 年度

長岡技術科学大学大学院 工学研究科

博士学位論文

せん断・伸張複合流れ場における  
粒子配向と粘度異方性の関係

専攻： エネルギー・環境工学専攻

氏名： 杉原 幸信

学籍番号： 12304187

指導教員： 高橋 勉 教授

# 目次

---

目次 .....	i
----------	---

## 第 1 章 序論

1.1. ネマチック液晶と懸濁液の粘度異方性について .....	1
1.2. 平面伸張粘度の評価手法に関する従来の研究 .....	3
1.3. 一軸伸張流れ場と単純せん断流れ場における異方性形状粒子の運動 .....	4
1.3.1. 一軸伸張流れ場での運動 .....	5
1.3.2. 単純せん断流れ場での運動 .....	6
1.4. 本研究の目的 .....	9
1.5. 本論文の構成 .....	9

## 第 2 章 砲弾ボブを用いた平面伸張粘度の機械的測定手法

2.1. 緒言 .....	10
2.2. 砲弾ボブの形状および数値解析の条件 .....	11
2.2.1. 砲弾ボブの押し込みによる平面伸張流動場の形成 .....	11
2.2.2. 数値解析に用いる支配方程式と境界条件 .....	12
2.3. 実験装置および試料 .....	13
2.3.1. 実験装置 .....	13
2.3.2. 試料 .....	14
2.4. 実験結果および考察 .....	15
2.4.1. 砲弾ボブに作用する押し込み反力 .....	15
2.4.2. 数値解析による砲弾ボブ近傍の流れ場の検討 .....	17
2.4.3. 砲弾ボブを用いた平面伸張粘度の評価 .....	19
2.4. 第 2 章 結言 .....	22
第 2 章 使用記号一覧 .....	23

### 第 3 章 ナイフエッジ型円板ボブを用いた平面伸張粘度の機械的測定手法

3.1. 緒言 .....	25
3.2. 実験装置および試料 .....	25
3.2.1. 実験装置 .....	25
3.2.2. 試料 .....	26
3.3. 実験結果および考察 .....	27
3.3.1. ナイフエッジ型円板ボブに作用する押し込み反力 .....	27
3.3.2. 平面伸張粘度評価式の導出 .....	29
3.3.3. 最適な代表長さの検討 .....	31
3.3.4. すき間依存性の検討 .....	32
3.3.5. ナイフエッジ型円板ボブを用いた平面伸張粘度の評価 .....	33
3.4. 第 3 章 結言 .....	35
第 3 章 使用記号一覧 .....	36

### 第 4 章 同心二重円筒流路の内円筒ボブの押し込みにより発生する流入・流出圧力損失および第一法線応力差の測定

4.1. 緒言 .....	37
4.2. 実験装置および試料 .....	37
4.2.1. 実験装置 .....	37
4.2.2. 試料 .....	38
4.3. 実験結果および考察 .....	39
4.3.1. 内円筒ボブの押し込み過程と反力の変化パターンについて .....	39
4.3.2. 領域 4 において内円筒ボブに作用する反力の測定結果 .....	40
4.3.3. 領域 4 において内円筒ボブに作用する反力の簡易解析:ニュートン流体 ..	42
4.3.4. 領域 4 において内円筒ボブに作用する反力の簡易解析:べき乗則流体 ...	44
4.3.5. バグレイ・プロットを応用した流入・流出圧力損失による力の測定 .....	45
4.3.6. 測定結果と計算結果の比較 .....	48
4.3.7. 領域 4 における第一法線応力差の評価 .....	50
4.4. 第 4 章 結言 .....	51
第 4 章 使用記号一覧 .....	53

## 第 5 章 流動配向による粒子懸濁液のせん断粘度異方性

5.1. 緒言 .....	54
5.2. 実験装置および試料 .....	55
5.2.1. 実験装置 .....	55
5.2.2. 試料 .....	56
5.3. 実験結果および考察 .....	58
5.3.1. 内円筒ボブに作用するトルクとスラスト力の補正過程 .....	58
5.3.1.1. トルクとスラスト力の測定値 .....	58
5.3.1.2. 測定されたトルクの補正 .....	59
5.3.1.3. 測定されたスラスト力の補正 .....	61
5.3.2. 回転方向および押し込み方向のせん断粘度評価式の導出 .....	63
5.3.2.1. 回転方向のせん断粘度評価式 .....	63
5.3.2.2. 押し込み方向のせん断粘度評価式 .....	64
5.3.3. ニュートン流体を用いた測定手法の検定 .....	66
5.3.4. 懸濁液におけるせん断粘度異方性の発現 .....	67
5.3.4.1. 粒子形状の検討 .....	67
5.3.4.2. 粒子分散濃度の検討 .....	70
5.3.4.3. シアシニングを考慮したせん断粘度異方性の大きさの検討 .....	71
5.4. 第 5 章 結言 .....	74
第 5 章 使用記号一覧 .....	75

## 第 6 章 過渡的せん断流動場における粒子の姿勢とせん断粘度の同時測定

6.1. 緒言 .....	77
6.2. 実験装置および試料 .....	77
6.2.1. 実験装置 .....	77
6.2.2. 試料 .....	78
6.3. 粒子の姿勢解析 .....	80
6.4. 実験結果および考察 .....	81
6.4.1. 平行円板流路に充填した棒状粒子懸濁液の流動による粒子配向制御 .....	81

6.4.1.1. 円板の動作と粒子挙動の関係 .....	81
6.4.1.2. 最適な円板の上限および下限位置の検討 .....	86
6.4.1.3. 上下動の繰り返し数が配向秩序度に及ぼす影響 .....	86
6.4.2. 過渡的せん断流動場における粒子配向とせん断粘度の関係 .....	87
6.5. 第6章 結言 .....	92
第6章 使用記号一覧 .....	93
第7章 結論 .....	94
参考文献 .....	97
謝辞 .....	101

# 第1章

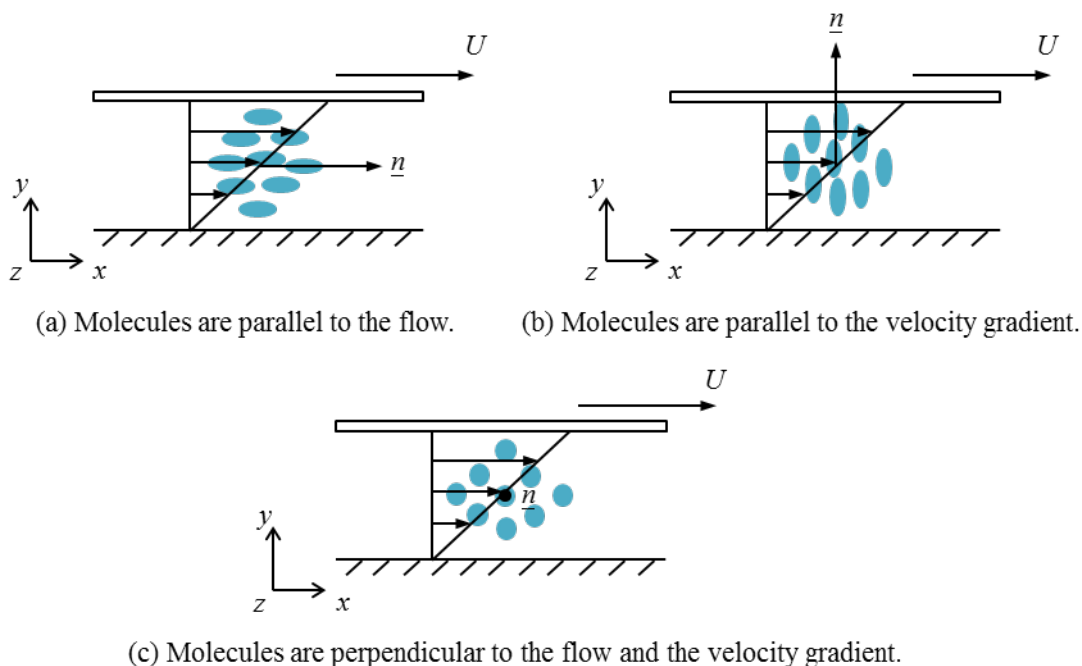
## 序論

### 1.1. ネマチック液晶と懸濁液の粘度異方性について

ネマチック液晶は液晶分子がある特定の方向に配向した異方性構造を持ち、せん断流動を加える方向によって異なるせん断粘度を示すことがわかっている。“チャンドラセカール 液晶の物理学原書 第2版<sup>1)</sup>”には、このネマチック液晶の異方性的粘性をはじめて精密測定したのは多分 Miesowicz であると書かれており、現在はミーソビッツの粘性係数<sup>2)</sup>として知られている。Table 1.1 にミーソビッツの粘性係数の測定例を示す<sup>2)</sup>。また、Fig. 1.1 に配向ベクトル(director)と流れ場の関係を示す。ここで、配向ベクトル  $\underline{n}$  は任意の点の近傍にある分子の優先配向の方向を示す<sup>1)</sup>。Table 1.1 と Fig. 1.1 より、ネマチック液晶の粘度は「分子が速度こう配に平行となる状態」が最も大きくなることがわかる。そして、「分子が流れと速度こう配に垂直となる状態」、「分子が流れに平行となる状態」の順に小さくなる ( $\eta_2 > \eta_3 > \eta_1$ )。この異方性を考慮に入れたネマチック液晶の構成方程式は Ericksen と Leslie によって定式化されており(エリクセン-レスリーの理論)<sup>1)</sup>、ネマチック状態の議論にはこの理論が広く用いられている。

**Table 1.1.** Measurement examples of Miesowicz viscosity coefficients ( $\times 10^{-2}$  [P] =  $10^{-3}$  [Pa s])<sup>1)</sup>.

	Molecules are parallel to the flow.	Molecules are parallel to the velocity gradient.	Molecules are perpendicular to the flow and the velocity gradient.
	$\eta_1$	$\eta_2$	$\eta_3$
<i>p</i> - Azoxyanisole 122 °C	2.4 ± 0.05	9.2 ± 0.4	3.4 ± 0.3
<i>p</i> - Azoxphenetole 144.4 °C	1.3 ± 0.05	8.3 ± 0.4	2.5 ± 0.3



**Fig. 1.1.** Relationship between the director of the molecules and the flow field.

一方で、懸濁液中に分散した棒状や繊維状などの異方性形状の粒子は、流動の加わっていない中立な状態において、その方向が既定されないため、ネマチック液晶とは異なり粘度異方性が発現しない。しかし、伸張流れ場などによって粒子配向が誘起され、それが保持されている状態であれば、懸濁液でもネマチック液晶と同じく粘度異方性が生じると予想される。実際に、プラスチック製品へ力学的特性の向上のために分散されたフィラーが、金型内において配向することによって成形品の弾性率や強度に異方性が生じたり、表面にテクスチャーが発生したりするなどの問題が起きている。しかしながら、流れ場と粒子配向、さらには、粒子配向と粘度異方性の関係を包括した懸濁液に対する一般的な構成方程式が提案されていない。そのため、粒子の動きなどのミクロ的挙動がマクロ的な粘度や強度、テクスチャーなどに及ぼす影響を正確に予測することができない。そこで、ミクロ的挙動とマクロ的挙動を包括した粒子分散系流体に対する構成方程式の考案を最終目標とする。そして、本研究では未だに実証されていない異方性形状の粒子が分散した懸濁液における粒子配向と粘度異方性の関係を実験によって明らかにする。変形と力の関係を示す構成方程式は現象の理論的解析に必須であり、粒子分散系に対する粒子挙動と粘度、さらには、それらと応力の関係を示す構成方程式の考案は学術および工業の分野へ大きな発展をもたらすことと期待される。

## 1.2. 平面伸張粘度の評価手法に関する従来の研究

粘度異方性は棒状や板状など形状異方性を有する分子や粒子が特定方向に配向した場合に発現する。流れ場に存在する単独粒子の運動、特にそれらの向いている方向に対する解析的な評価として Jeffrey orbits <sup>3)</sup>がある。この式によると、粒子の姿勢は流れ場の回転速度テンソルと変形速度テンソルにより決定される。そして、伸張流動場では粒子が伸張方向に配向する。粒子の濃度が高い場合や流路が粒子の大きさを無視できないほど小さい場合では、粒子・分子の干渉や壁面効果によりせん断流動でも配向は発生するが、伸張流動場を利用する方が配向状態を制御する方法としてより正確で安定する。伸張流動には一軸伸張、二軸伸張および平面伸張の3つの形態があるが、平面伸張は2次元流れとして取り扱うことが可能であり、せん断流動との複合に適している。そこで本研究では、粒子配向状態を誘起する平面伸張流れ場の評価手法の開発にも取り組む。平面伸張流れは、フィルム成形 <sup>4-6)</sup>やブロー成形 <sup>7)</sup>などの高分子加工プロセスで見られる。さらに、平面伸張流れは、渦なし流れであることを利用し、分子や粒子の配向制御 <sup>8-11)</sup>に用いられる工業的に重要な流れ場である。しかしながら、一軸伸張流れに関係する物質定数である一軸伸張粘度と平面伸張流れ場を支配する平面伸張粘度とは別の物性値であり、ニュートンの粘性法則に従わない非ニュートン流体では相関性がない。簡易的に測定可能な一軸伸張粘度に対して、流動性の高い流体に対する平面伸張粘度を測定する技術は後述するように未だ開発途上の技術であり、汎用性の高い低コストの平面伸張粘度測定手法の開発が望まれている。

Kato et al. <sup>12)</sup>は平面伸張流れ場の特性を評価する流路として、これまでに4-ロールミル流路、二次元対向噴流流路、二次元縮小流路が用いられたことを記している。これらの流路を用いて行われた平面伸張流れ場の評価手法の概略をまとめる。Macosko et al. <sup>13)</sup>および Haward and McKinley <sup>14)</sup>, Haward et al. <sup>15)</sup>は二次元対向噴流流路を用い、よどみ線上で平面伸張流れ場を形成した。Kato and Takahashi <sup>16)</sup>は、二次元対向噴流流路を用いてよどみ線上に定常平面伸張流れ場を形成し、機械的および光学的手法から平面伸張粘度を評価した。Pendse and Collier <sup>17)</sup>は、二次元縮小流路の壁面に設けたマノメータから圧力損失を測定し、平面伸張応力を推定することにより平面伸張粘度を評価した。Boukellal et al. <sup>18)</sup>は二次元縮小流路により平面伸張流動場を形成し、Flow-induced birefringence measurements <sup>19, 20)</sup>により平面伸張粘度を評価した。Kelly and Graessley <sup>21)</sup>は、正弦曲線の上壁面を持つ長方形流路を用いて二次縮小・拡大流れ場を形成し、流動複屈折測定から流れ場に作用する応力を評価した。Kato et al.は4-ロールミル流路 <sup>22)</sup>および平面スクイーズ流路 <sup>23, 24)</sup>を用いて定常平面伸張流れ場を形成し、よどみ線上の流動複屈折から平面伸張応力を求めた。また、スリットへ流入する急縮小流れを利用した平面伸張流れ場の評価手法も提案されている。Ahmed and Mackley <sup>25)</sup>は slit die へ流入する流れを平面伸張流れに相当するとし、流動複屈折測定から平面伸張応力を評価した。Shirakashi et al. <sup>26)</sup>は Hele-Shaw Cell を用いた急縮小流れの流入部の流線形状から平面伸張応力を評価する方法を提案した。



このように提案されている大半の手法は流動複屈折法<sup>27)</sup>を用いて流れ場の平面伸張応力を測定し、平面伸張粘度を評価している。流動複屈折法は非接触の測定方法であるため流れ場に影響を与えることがなく、さらに、多点測定を行うことで流れ場に作用する応力分布を評価できる利点を有する。しかしながら、この方法では測定できる対象が光弾性則に従う光を透過する試料に限定される。また、上記で取り上げた評価手法はポンプやマンメータ、ロードセル、光学レンズなど流れ場の形成および応力の測定のためにいくつかの追加設備を用いる必要があり、それらを取り扱う高度な技術も必要となる。このような現状を鑑み、本研究では、不透明な試料であるスラリーなどを含む様々な試料を測定でき、手軽に平面伸張粘度を評価できる手法の開発を目指す。

### 1.3. 一軸伸張流れ場と単純せん断流れ場における異方性形状粒子の運動

流動によって粒子の姿勢を制御する方法として Jeffery の式を紹介する。Jeffery はストークス流れの中に置かれた単独の回転楕円体の運動に関する研究を行い、式(1.1)に示す Jeffery の式を導いた<sup>3, 28)</sup>。

$$\dot{\underline{m}} = \underline{m} \cdot \underline{W} + \left( \frac{r_p^2 - 1}{r_p^2 + 1} \right) (\underline{m} \cdot \underline{D} - \underline{m} \underline{m} \underline{m} : \underline{D}) \quad (1.1)^{3)}$$

ここに、 $\underline{m}$  は回転楕円体の対称軸に沿う単位ベクトル、 $\dot{\underline{m}}$  は  $\underline{m}$  の時間微分、 $r_p$  は回転楕円体の長軸と短軸の比(アスペクト比)、 $\underline{W}$  は回転速度テンソル、 $\underline{D}$  は変形速度テンソルを表す。式(1.1)より、回転楕円体の姿勢は、初期条件  $\underline{m}$  と流れ場の回転速度テンソル  $\underline{W}$  および変形速度テンソル  $\underline{D}$  から導出されることがわかる。以下に Jeffery の式が成り立つ条件を箇条書きで列記する。

< Jeffery の式が成り立つ条件<sup>3, 29-31)</sup> >

- ・ 流れ場はストークス流れである。すなわち、粒子と粒子、粒子と流体との間に働く慣性力は無視する。
- ・ 単独で存在している粒子、もしくは、粒子の分散濃度が低い希薄系を想定する。すなわち、粒子と粒子との間の相互作用は無視する。
- ・ 粒子形状は回転楕円体と仮定する。
- ・ ブラウン運動は考慮しない。
- ・ 粒子に働く浮力と重力はつり合っており、中立の状態とする。

### 1.3.1. 一軸伸張流れ場での運動

一軸伸張速度  $\dot{\epsilon}$  の一軸伸張流れ場における速度分布は式(1.2)によって表すことができる.

$$v_x = \dot{\epsilon}x, \quad v_y = -\frac{1}{2}\dot{\epsilon}y, \quad v_z = -\frac{1}{2}\dot{\epsilon}z \quad (1.2)$$

Takserman-Krozer らは Jeffery の式をこの一軸伸張流れ場に適用した<sup>29)</sup>. これによると, 回転楕円体の姿勢を Fig. 1.2 のように示せば, 配向角  $\alpha$  と  $\beta$  の時間変化は式(1.3)となる.

$$\frac{d\alpha}{dt} = -\frac{3}{4}\dot{\epsilon} \left( \frac{r_p^2 - 1}{r_p^2 + 1} \right) \sin 2\alpha, \quad \frac{d\beta}{dt} = 0 \quad (1.3)^{29)}$$

初期配向角を  $\alpha_0$  として式(1.3)を解くと, 配向角  $\alpha$  は式(1.4)より導くことができる.

$$\tan \alpha = \exp \left\{ -\frac{2}{3} \dot{\epsilon} \left( \frac{r_p^2 - 1}{r_p^2 + 1} \right) t \right\} \tan \alpha_0 \quad (1.4)^{29)}$$

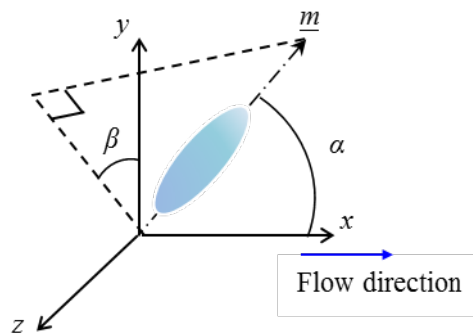


Fig. 1.2. Orientation angle  $\alpha$ ,  $\beta$  and the flow direction of uniaxial elongation flow<sup>29)</sup>.

Fig. 1.3 に式(1.4)から導いた一軸伸張流れ場における回転楕円体の配向挙動を示す. ここで, 一軸伸張速度  $\dot{\epsilon}=0.1 \text{ s}^{-1}$ , アスペクト比  $r_p=5$  とした. Fig. 1.3 より, 一軸伸張流れ場における回転楕円体の配向は時間  $t$ , すなわち, ひずみ量の増加とともに進行することがわかる. そして, 初期配向角が  $\alpha_0=90 \text{ deg.}$  のものを除き, 最終的に回転楕円体の長軸は流れ方向へ向くことが見て取れる. さらに, Fig. 1.4 に回転楕円体のアスペクト比が配向挙動に及ぼす影響を示す. ここで, 一軸伸張速度  $\dot{\epsilon}=0.1 \text{ s}^{-1}$ , 初期配向角  $\alpha_0=60 \text{ deg.}$  とした. Fig. 1.4 より, 回転楕円体のアスペクト比 が大きくなるにつれて配向挙動が速くなることがわかる. これらのことから, 異方性形状粒子を含む懸濁液が伸張流れ場を流動した場合, 分散粒子は流れ方向へ配向するといえる.

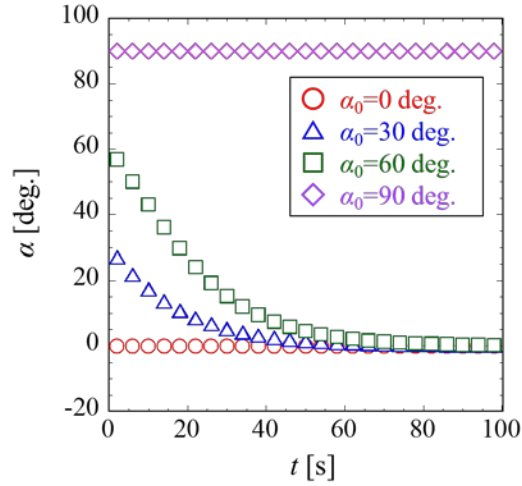


Fig. 1.3. Orientation behavior of a spheroid in the uniaxial elongation flow field ( $\dot{\epsilon}=0.1 \text{ s}^{-1}$ ,  $r_p=5$ ).

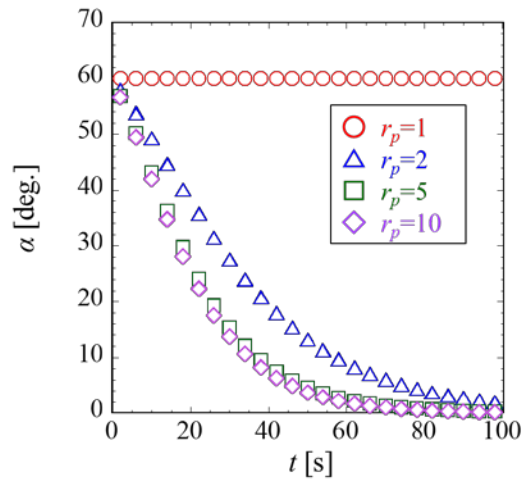


Fig. 1.4. Influence of the aspect ratio on the Orientation behavior ( $\dot{\epsilon}=0.1 \text{ s}^{-1}$ ,  $\alpha_0=60 \text{ deg.}$ ).

### 1.3.2. 単純せん断流れ場での運動

Fig. 1.5 に単純せん断流れ場における回転楕円体の姿勢を示す。この単純せん断流れ場に Jeffery の式を適用すると、回転楕円体の角速度は次式となる<sup>30)</sup>。

$$\dot{\phi} = -\frac{\dot{\gamma}}{r_p^2 + 1} (r_p^2 \sin^2 \phi + \cos^2 \phi) \quad (1.5)^{30)}$$

$$\dot{\theta} = \left( \frac{r_p^2 - 1}{r_p^2 + 1} \right) \frac{\dot{\gamma}}{4} \sin 2\phi \sin 2\theta \quad (1.6)^{30)}$$

初期配向角を  $\phi_0$  として式(1.3)を解くと、配向角  $\phi$  および  $\theta$  はそれぞれ式(1.7)と式(1.8)より導くことができる。

$$\tan \phi = \frac{1}{r_p} \tan \left[ -\dot{\gamma} \frac{r_p}{r_p^2 + 1} + \tan^{-1}(r_p \tan \phi_0) \right] \quad (1.7)^{30}$$

$$\tan \theta = \frac{Cr_p}{(r_p^2 \sin^2 \phi + \cos^2 \phi)^{\frac{1}{2}}} \quad (1.8)^{30}$$

ここに,  $C$  は積分定数であり  $C=0$  のとき  $\theta=0$ ,  $C \rightarrow \infty$  のとき  $\theta=\pi/2$  を意味する. また, 回転楕円体の角度  $\phi$  が一回転するのにかかる周期  $T_{cycle}$  は式(1.9)となる.

$$T_{cycle} = \frac{2\pi}{\dot{\gamma}} \left( \frac{r_p^2 + 1}{r_p} \right) \quad (1.9)^{30}$$

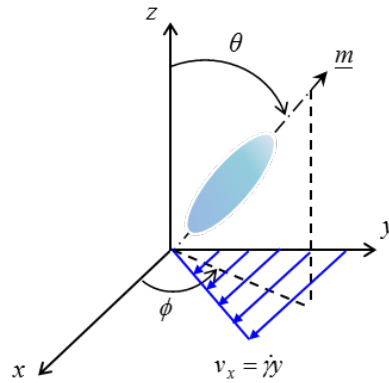


Fig. 1.5. Orientation angle  $\phi$  and  $\alpha$  of a spheroid in the simple shear flow<sup>30)</sup>.

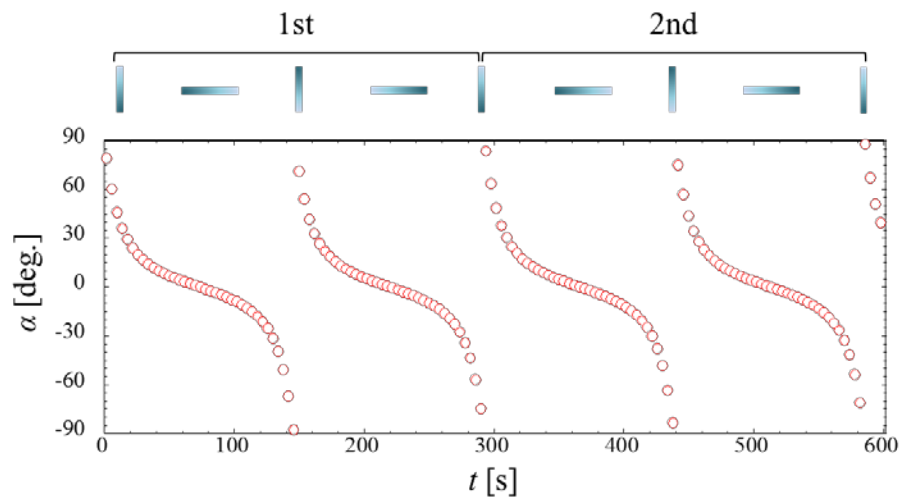
単純せん断流れ場における前後対称粒子および円柱形状粒子の運動について以下の研究が行われた. Bretherton<sup>32)</sup>は回転楕円体の運動を規定した Jeffery の式が等価アスペクト比を用いることでいくつかの前後対称粒子に適用できることを示した. また, Harris and Pittman<sup>33)</sup>は Jeffery の式における回転楕円体の一回転の運動と実験から得られた円柱形状粒子の一回転の運動を比較することで, 式(1.10)で示される円柱形状粒子の等価アスペクト比を導いた. この理論はクエット流れとポアズイユ流れによる実験結果から正当性を実証されており, 式(1.10)を Jeffery の式に適用することで単純せん断流れ場における円柱形状粒子の運動を導くことができる.

$$r_p = 1.14r_{pf}^{0.844} \quad (1.10)^{33}$$

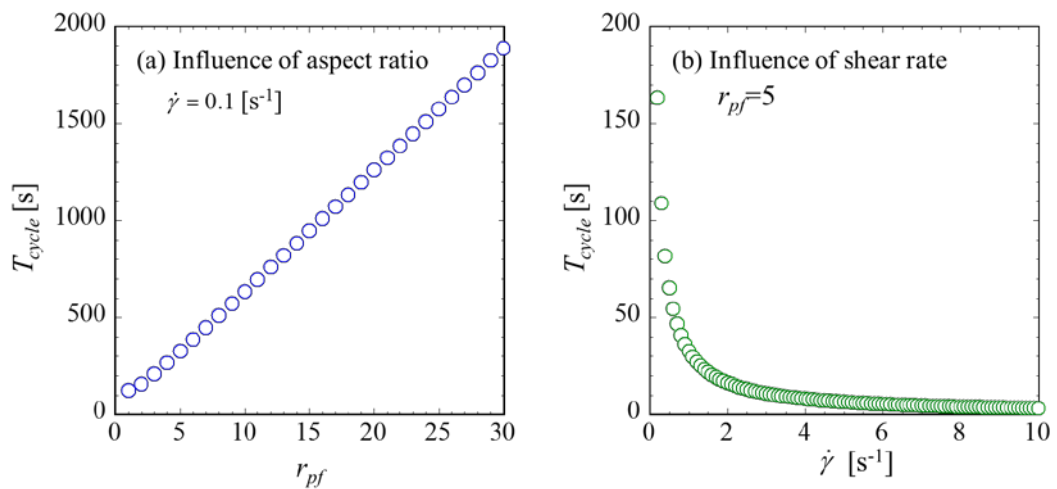
ここに,  $r_{pf}$  は円柱形状粒子のアスペクト比である.

Fig. 1.6 にせん断速度  $\dot{\gamma}=0.1 \text{ s}^{-1}$  の単純せん断流れ場における円柱形状粒子の運動を示す. 円柱形状粒子のアスペクト比は  $r_{pf}=5$ , 初期配向角は  $\phi_0=90 \text{ deg}$ . である. Fig. 1.6 より, 円柱形状粒子は回

転周期が約 293 s のタンブリング運動を行うことがわかる。粒子の向きが  $\phi=0 \text{ deg.} \pm 10 \%$  の場合を流れ方向に配向していると仮定する。そして、 $\phi=90 \text{ deg.}$  から  $\phi=-90 \text{ deg.}$  まで回転する時間の内、流れ方向に配向している割合を求めると、約 38 % (半周期 147 s の内、 $\phi=0 \text{ deg.} \pm 10 \%$  となっている時間は 56 s) となる。したがって、アスペクト比  $r_{pf}$  およびせん断速度  $\dot{\gamma}$  の関係によっては、タンブリング運動の大半が流れ方向に配向した状態となる。また、粒子の向きが流れに対して垂直な方向を向くほど角速度  $\dot{\phi}$  は大きくなる。さらに、Fig. 1.7 に円柱形状粒子のアスペクト比  $r_{pf}$  および流れ場のせん断速度  $\dot{\gamma}$  が回転周期に及ぼす影響を示す。Fig. 1.7(a)よりアスペクト比 が大きくなるにつれて回転周期  $T_{cycle}$  は長くなることがわかる。また、Fig. 1.7(b)よりせん断速度  $\dot{\gamma}$  が大きくなると回転周期  $T_{cycle}$  は短くなることが明らかである。



**Fig. 1.6.** Orientation behavior of a rodlike particle in the simple shear flow field ( $\dot{\gamma}=0.1 \text{ s}^{-1}$ ,  $r_{pf}=5$ ,  $\phi_0=90 \text{ deg.}$ ,  $\theta=0 \text{ deg.}$ ).



**Fig. 1.7.** Influence of the aspect ratio and the shear rate on the rotation cycle.

## 1.4. 本研究の目的

本研究では懸濁液の粒子配向と粘度異方性の関係を明らかにすることを大きな目的とする。このための基盤技術として伸張流動場における形状異方性を有する粒子の流動配向制御および配向状態と粘度の関係性の解明を行い、汎用性の高い平面伸張粘度の機械的測定手法を開発することをもう一つの目的とする。平面伸張粘度の測定に関してはこの分野において標準的に利用される汎用的な手法の開発を目指す。具体的には市販の回転型レオメータに簡単なパーツをひとつ追加するだけで測定できるスライド型レオメトリ技術を開発する。さらに、粒子配向を誘起させながら直交する二方向へ制御されたせん断流れを加え、発生した応力をそれぞれの方向に対して独立かつ同時に計測できる技術を構築する。そして、これらの応力から定常状態におけるせん断粘度をそれぞれ評価し、異方形状の粒子が分散した懸濁液における粘度異方性を検討する。また、粒子挙動の可視化により粒子の配向状態を配向秩序度として定量的に評価する。そして、せん断粘度との同時測定から過渡的せん断流動場における配向状態と粘度の時間的変化を比較し、これらの関連性を明らかにする。

これらにより、従来全く検討されていなかった形状異方性を有する粒子分散系流体における粘度異方性の発現を実証し、工業的な必要性や重要性を示す。そして、新たに呈示した評価方法をもとにこれらの現象を配慮した解析方法や生産方法の発展に寄与することを目指す。

## 1.5. 本論文の構成

本論文は『せん断・伸張複合流れ場における粒子配向と粘度異方性の関係』と題し、全7章で構成される。以下に各章の概略を記す。

**第1章**では、本研究の背景や目的を記す。**第2章**では、回転型レオメータを、中心軸の押し込み動作で測定するスライド型レオメータに転用し、先端が砲弾形状の中心軸と円筒型カップからなる環状縮小流路を用いた平面伸張粘度の機械的測定手法について述べる。**第3章**では、第2章で生じたせん断流れの影響を鑑み、中心軸の先端を外縁部がナイフエッジとなっている円板形状に改良し、引き続き平面伸張粘度の機械的測定手法について議論する。**第4章**では、同心二重円筒流路の内円筒を試料へ押し込んだ際に内円筒と外円筒のすき間で生じる流入・流出圧力損失および第一法線応力差の測定について検討する。**第5章**では、粒子配向を誘起しながら直交する二方向のせん断粘度を同時に評価する手法を確立し、定常状態における粒子懸濁液のせん断粘度異方性について述べる。**第6章**では、平行円板流路に充填した棒状粒子懸濁液の粒子配向状態を任意に制御する技術を構築する。そして、粒子配向状態を任意に制御した棒状粒子懸濁液に対して過渡的せん断流れを印加した際の粒子挙動を可視化し、過渡的状态における粒子の姿勢とせん断粘度の関係を明らかにする。**第7章**では、本論文の各章で得られた知見をまとめ、結論を述べる。

## 第2章

---

# 砲弾ボブを用いた平面伸張粘度の機械的測定 手法<sup>34)</sup>

### 2.1. 緒言

本章では、トルクおよびスラスト力測定器を内蔵した市販の回転型レオメータを、押し込み動作で粘弾性特性を測定するスライド型レオメータに転用し、様々な試料に適用できる汎用性の高い平面伸張粘度の機械的測定手法を開発する。平面伸張流動場の形成には Fig. 2.1(a)に示す二次元縮小流路を検討する。二次元縮小流路では壁面摩擦の効果を低減するために奥行き方向 (Fig. 2.1(a)では紙面に垂直方向)の厚さを流路幅に対して十分に大きく取る必要があり、定常流動場を作り出すためには大量の試料が必要となる。そこで、Fig. 2.1(b)に示すように砲弾型のボブと円筒型のカップとの側面によって構成される環状縮小流路を提案する。環状縮小流路で生じる流動場は砲弾ボブと円筒型カップの間のすき間がボブの半径に比べて十分に小さければ軸対称な二次元流動場と見なされる。また、Fig. 2.1(a)の従来の二次元縮小流路における紙面に垂直方向の上下平面に相当する壁面が存在しないため、せん断の影響を低減したより正確な平面伸張流動場の形成が可能である。さらに、円筒型カップに満たされた試料は砲弾ボブの押し込み動作によって流動するため、ポンプなどの流動発生装置が不要となり、微量の試料で測定を行うことができる。そして、実験のプラットフォームとして市販のレオメータを使用することで、砲弾ボブの押し込み速度、すなわち、平面伸張速度を容易に制御しつつ、ボブに作用する押し込み反力 (スラスト力) を同時に求めることができる。この押し込み反力には、平面伸張応力の効果が含まれるため、その他のせん断流れなどに起因した反力を補正することで平面伸張粘度を機械的に見積もることができる。

この砲弾ボブを用いた平面伸張粘度の機械的測定技術について、本章ではニュートン流体および粘弾性流体を用いて試験的な計測を行い、押し込み速度とボブに作用する押し込み反力の関係を求

める。さらに、数値解析によって砲弾ボブの周囲の流れ場を計算し、測定結果との比較を行う。そして、簡易的な解析によって押し込み反力から平面伸張応力を見積もる方法を検討し、平面伸張粘度を算出する。

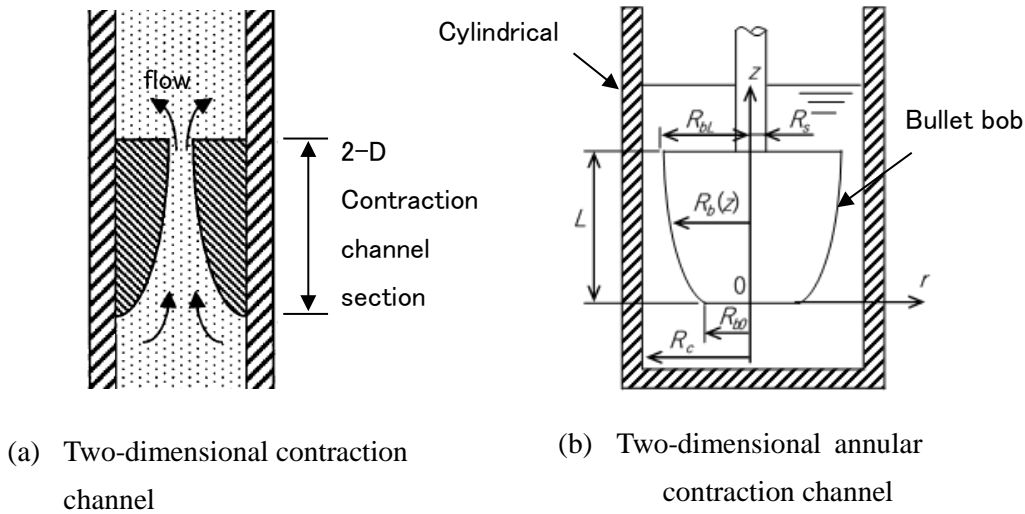


Fig. 2.1. Flow cells to generate a steady planar elongation flow for the mechanical measurement method.

## 2.2. 砲弾ボブの形状および数値解析の条件

### 2.2.1. 砲弾ボブの押し込みによる平面伸張流動場の形成

砲弾ボブを一定の速度で試料に押し込んだ際、砲弾ボブと円筒型カップの側面で構成されるすき間に平面伸張速度  $\dot{\epsilon}_{PE}$  一定の定常平面伸張流動場が形成されるように砲弾ボブ側面の形状  $R_b(z)$  を設計する。ここで、座標系は砲弾ボブ底面の中心を原点とし、砲弾ボブの半径方向を  $r$  軸、高さ方向を  $z$  軸とする円筒座標系を用いた。壁面近傍ではせん断による影響などが考えられるが、本手法ではそれらを考慮しないこととする。そして、断面平均流速  $\bar{v}(z)$  が一定の増加率、すなわち、一定の平面伸張速度  $\dot{\epsilon}_{PE}$  で流動方向に比例して増加すると仮定する。 $\bar{v}(z)$  は式(2.1)で示される。

$$\bar{v}(z) = \dot{\epsilon}_{PE} z + \bar{v}_0 \quad (2.1)$$

ここに、 $\bar{v}_0$  はすき間の入口 ( $z=0$ ) における平均流入速度である。 $\bar{v}_0$  は円筒型カップの底面から砲弾ボブの押し込み速度  $V$  と等しい流速の一樣流が流れ込むと仮定して式(2.2)より求める。

$$\bar{v}_0 = \frac{R_c^2}{R_c^2 - R_{b0}^2} V \quad (2.2)$$

すき間入口とすき間内の任意断面において連続の式を考えることにより、砲弾ボブの側面形状  $R_b(z)$  は式(2.3)で表される。



$$R_b(z) = \sqrt{R_c^2 - \frac{(R_c^2 - R_{b0}^2)R_c^2}{e(R_c^2 - R_{b0}^2)z + R_c^2}} \quad (2.3)$$

ここに、 $e$  は伸張速度係数を表し、 $\dot{\epsilon}_{PE}$  とボブの押し込み速度  $V$  を関係付ける比例定数と定義する。

$$\dot{\epsilon}_{PE} = eV \quad (2.4)$$

### 2.2.2. 数値解析に用いる支配方程式と境界条件

砲弾ボブの押し込みによって生じる伸張速度を数値解析によって明らかにする。非圧縮性流体の等温定常流れにおける連続の式と運動方程式をそれぞれ式(2.5)、式(2.6)に示す。

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (2.5)$$

$$\rho \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} + \nabla p - \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} - \rho \mathbf{g} = \mathbf{0} \quad (2.6)$$

ここに、 $\mathbf{v}$  は速度ベクトル、 $\boldsymbol{\tau}$  は異方性応力テンソル、 $p$  は圧力、 $\rho$  は密度、 $\mathbf{g}$  は重力加速度ベクトルである。ニュートン流体ならびに非ニュートン流体の構成方程式には式(2.7)を用いた。式中の粘度  $\eta$  については、式(2.8)の Carreau Yasuda モデル<sup>35)</sup>を用いた。

$$\boldsymbol{\tau} = 2\eta \mathbf{S} \quad (2.7)$$

$$\eta = \eta_0 \left[ 1 + (\lambda \dot{\gamma})^a \right]^{-d/a} \quad (2.8)$$

ここに、 $\dot{\gamma}$  はせん断速度、 $\lambda$  は緩和時間、 $d$  はべき乗則における傾き、 $a$  はパラメータ値である。 $\mathbf{S}$  は変形速度テンソルであり、次式により定義される。

$$\mathbf{S} \equiv \left[ \nabla \mathbf{v} + (\nabla \mathbf{v})^T \right] / 2 \quad (2.9)$$

よって、伸張速度を式(2.10)より算出した<sup>36)</sup>。

$$\dot{\epsilon} = 3 \frac{\text{III}_d}{\text{II}_d} \quad (2.10)$$

ここに、 $\text{II}_d$  は変形速度テンソルの第2不変量、 $\text{III}_d$  は変形速度テンソルの第3不変量である

粘弾性流動解析では、単一モード Giesekus モデル<sup>37)</sup>である式(2.11)、式(2.12)をそれぞれ用いた。

$$\boldsymbol{\tau} = 2\eta_0 s \mathbf{S} + \mathbf{E} \quad (2.11)$$

$$\mathbf{E} + \lambda \overset{\nabla}{\mathbf{E}} + (\alpha/G) \mathbf{E}^2 = 2\eta_0 (1-s) \mathbf{S} \quad (2.12)$$

ここに、 $\mathbf{E}$  は弾性応力テンソル、 $\overset{\nabla}{\mathbf{E}}$  は式(2.13)に示す反変型対流微分である。  $\eta_0$  はゼロせん断粘度、 $G$  は緩和弾性率、 $\alpha$  と  $s$  はモデルパラメータである。

$$\overset{\nabla}{\mathbf{E}} \equiv \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{E} - \left[ (\nabla \mathbf{v})^T \cdot \mathbf{E} + \mathbf{E} \cdot \nabla \mathbf{v} \right] \quad (2.13)$$

Fig. 2.2(a)に境界条件を示す。カップとボブの中心軸には軸対称条件を与えた。実験では砲弾ボブを試料の入ったカップに押し込むことで流れ場を得ている。一方、解析では砲弾ボブとカップを静止させ、カップの底面を流路入口とし、完全発達流れをボブの押し込み速度  $V$  と一致する平均流速で与えた。また、出口では入口と同じ流量だけ流出するよう設定した。粘弾性流動解析における Solver には、Ansys Polyflow v.16.1 を使い、構成方程式には EVSS 法<sup>38)</sup>を用いた。速度と変形速度には双二次要素を、圧力には双一次要素を、応力場には 4x4 サブエレメント法<sup>39)</sup>を用いた。二次元流路出口のカップ側の点でのゲージ圧力を 0 Pa と与え、反復解法により解を求めた。ボブ近傍の要素分割を Fig. 2.2(b)に示す。ボブとカップの間の領域は半径方向に 20 分割した。

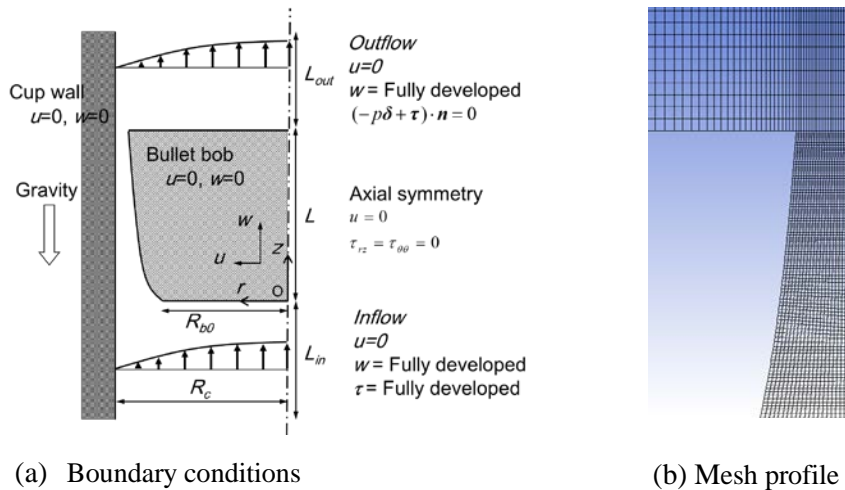


Fig. 2.2. Boundary conditions and a mesh profile of the numerical simulation.

## 2.3. 実験装置および試料

### 2.3.1. 実験装置

測定のプラットフォームとしてひずみ制御型の回転型レオメータ ARES-LS (TA Instruments 社) を用いた。このレオメータをスライド型に転用する。円筒型カップはレオメータに付属の同心二重円筒型流路のカップ (内半径 8.5 mm) を使用した。また、砲弾ボブは  $V=1.0 \text{ mm/s}$  のときに  $\dot{\epsilon}_{PE} = 0.75, 1.0 \text{ s}^{-1}$  となる二種類のボブを準備した。それぞれ、 $e=0.75, e=1.0$  とよぶ。式(2.4)より、伸張速度係数  $e$  に  $V$  をかけることですき間に生じる平面伸張速度を算出できる。使用した砲弾ボブおよび円筒型カップの諸元

を Table 2.1 に示す.

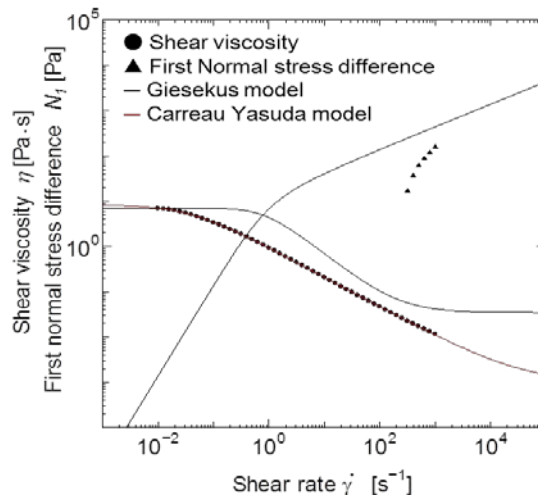
**Table 2.1.** Dimensions of the bullet bob.

Bullet bob	e=0.75, L=9.3	e=1.0, L=7.0
$\dot{\epsilon}_{PE}$ at $V_b=1.0$ mm/s	$0.75 \text{ s}^{-1}$	$1.0 \text{ s}^{-1}$
Maximum radius $R_{bL}$	8.00 mm	
Minimum radius $R_{b0}$	5.50 mm	5.50 mm
Length $L$	9.30 mm	7.00 mm
Cup radius $R_c$	8.50 mm	

### 2.3.2. 試料

実験および数値解析には、ニュートン流体として粘度計校正用標準液である JS2000 (せん断粘度  $\eta=1.31 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ , 密度  $\rho=850 \text{ kg/m}^3$ ) を用いた. また, 粘弾性流体には水溶性高分子ポリアクリルアミドをイオン交換水に 0.2wt% の割合で溶かした PAA0.2wt% 水溶液 ( $\rho=1026 \text{ kg/m}^3$ ) を使用した. 以後, PAA0.2wt% と表記する. Fig. 2.3 に PAA0.2wt% のレオロジー特性と Carreau-Yasuda, Giesekus モデルによる相関の結果を示す. また, PAA0.2wt% をべき乗則流体と仮定して第一および第二ニュートン領域を除いた範囲をべき乗則で近似すると, 擬塑性粘度  $K$  と構造粘度指数  $n$  はそれぞれ  $K=0.809 \text{ Pa}\cdot\text{s}^n$ , および,  $n=0.399$  となる. 式(2.14)にべき乗則流体の構成方程式を示す<sup>40</sup>. 実験は 23~25°C で行った.

$$\tau = K|\dot{\gamma}|^{n-1}\dot{\gamma} \quad (2.14)$$



**Fig. 2.3.** Rheological property of PAA0.2 wt%. Red line is correlation of the Carreau-Yasuda model. Black line is correlation of the Giesekus model.

## 2.4. 実験結果および考察

### 2.4.1. 砲弾ボブに作用する押し込み反力

Fig. 2.4 に試料液面下に没した砲弾ボブをステップ状に一定速度  $V=0.1$  mm/s で降下させ、急停止させたときの押し込み反力  $F$  の時間変化を示す. 試料は JS2000 である. また、横軸は砲弾ボブの押し込み開始を  $t=0$  s とした時間を示す. ボブを一定速度で降下させている過程 ( $0 < t < 50$  s) では、ボブを支える中心軸が試料中に押し込まれていくため浮力  $F_b$  が増加し、 $F$  は時間  $t$  に比例して大きくなる.  $t=50$  s において砲弾ボブを急停止させると流動により生じていた反力の成分がゼロとなり、 $F$  は浮力  $F_b$  に相当する値を示して一定となる ( $t > 50$  s). この  $F_b$  の値は式(2.15)より幾何学的に求めた理論値と正確に一致する. そして、 $F$  から  $F_b$  を引くことで浮力を補正した反力  $F'$ 、すなわち、流動によって生じる反力を得る.

$$F_b = \rho g \pi R_s^2 \left( 1 + \frac{R_s^2}{R_c^2 - R_s^2} \right) V t \quad (2.15)$$

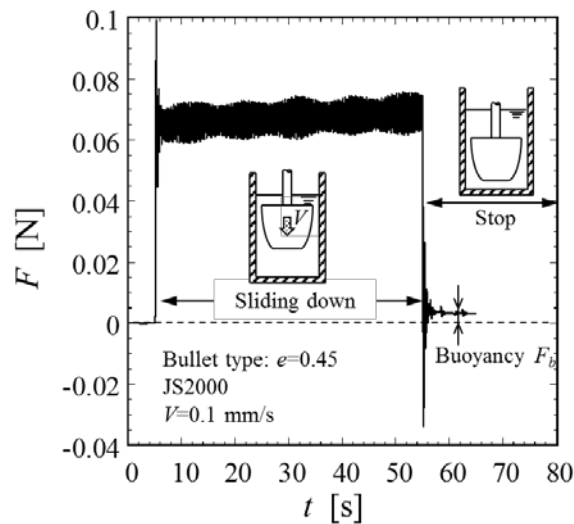


Fig. 2.4. Resistant force  $F$  acting on the bullet bob.

Fig. 2.5(a)と(b)に JS2000 および PAA0.2wt%の浮力を補正した反力  $F'$  の時間変化を示す. ニュートン流体である JS2000 の場合,  $F_b$  を差し引いた  $F'$  は押し込み過程で一定の値を保ち, 押し込み停止と同時にゼロに戻る. 粘弾性流体である PAA0.2wt% の場合, 流動開始直後に  $F'$  がオーバーシュートする挙動がみられ, 時間経過に伴い  $F'$  が増加することがわかる. 押し込み停止後の  $F'$  は JS2000 と異なり, 徐々にゼロに戻ることをわかる. これは PAA0.2wt% 水溶液の緩和時間に依存した挙動と考えられる.

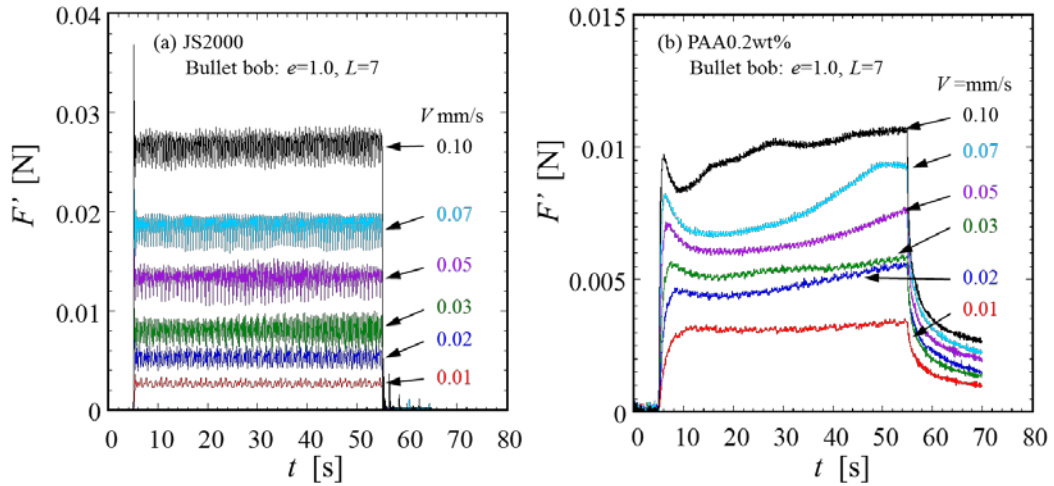


Fig. 2.5. Resistant force correcting a buoyancy  $F'$  of (a) JS100 and (b) PAA0.2wt% as a function of the time  $t$ .

これらの実験結果よりオーバーシュート領域を除いた  $F'$  の平均値と  $\dot{\epsilon}_{PE}$  の関係を調べた. ここで,  $F'$  の振動周期に対して十分に広い時間領域を平均することにより, 振動による値の変化が平均値に影響しないようにしている. Fig. 2.6(a)より, JS2000 の  $F'_{ave}$  は  $\dot{\epsilon}_{PE}$  におおよそ比例して増加することがわかる. ニュートン流体においてせん断粘度と平面伸張粘度は変形速度に依存しない定数となることから,  $\dot{\epsilon}_{PE}$  と  $F'_{ave}$  の比例関係は予想される結果と一致する. 一方で PAA0.2wt% の結果は  $\dot{\epsilon}_{PE}$  の増加に対して  $F'_{ave}$  の増加率が減少する. これは, PAA0.2wt% の粘度が変形速度の増加に伴って減少することを示している(Fig. 2.6(b)). また, それぞれの結果に関して同じ  $\dot{\epsilon}_{PE}$  でも砲弾ボブ  $e=0.75$  ( $L=9.3$  mm)の方が大きな値となることをわかる. 砲弾ボブ  $e=0.75$  は  $e=1$  ( $L=7.0$  mm)よりもボブが長いので, せん断流れによる反力が大きくなったことが原因として考えられる.

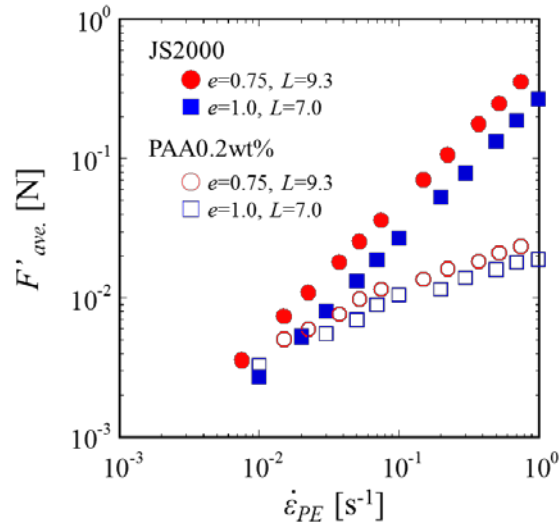
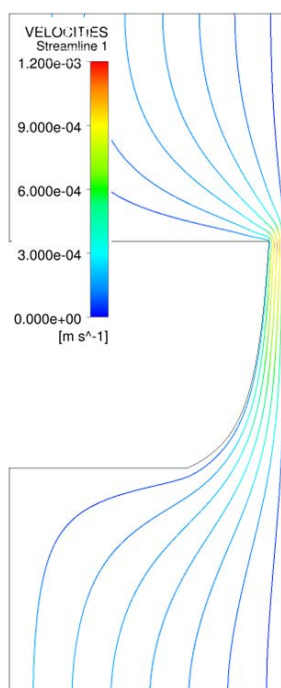


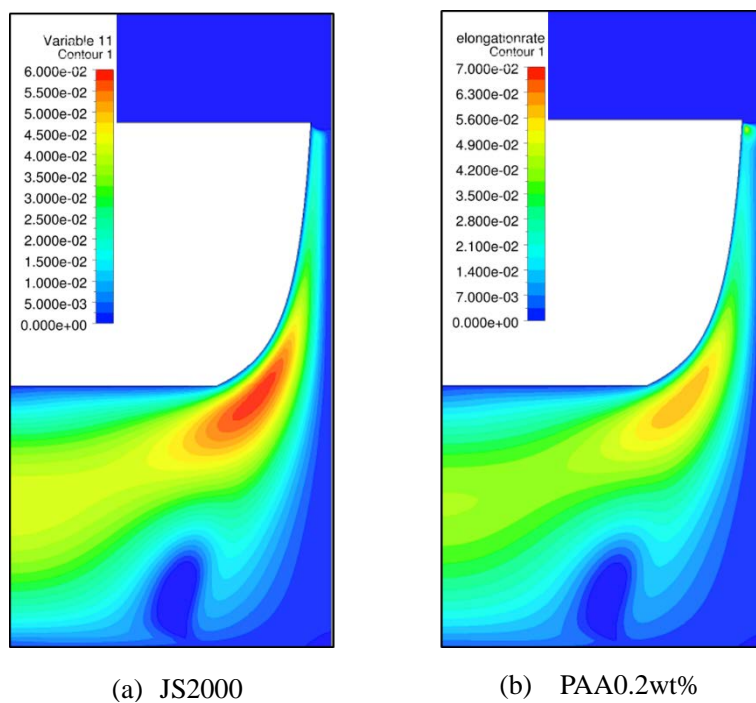
Fig. 2.6. Averaged resistant forces caused by flow  $F'_{ave}$  as a function of the planar elongation rate  $\dot{\epsilon}_{PE}$ .

#### 2.4.2. 数値解析による砲弾ボブ近傍の流れ場の検討

Fig. 2.7 に PAA0.2wt% の流れ場を示す。砲弾ボブの形状は  $e=1.0$ 、押し込み速度は  $V=0.1\text{mm/s}$  である。この図より、砲弾ボブと円筒型カップの側面によって構成されるすき間へ流入する流れは急激に加速し、出口近傍で最も流速が速くなるのがわかる。また、Fig. 2.8(a)と(b)に JS2000 と PAA0.2wt% の伸張速度の結果をそれぞれ示す。これらの図より、JS2000 と PAA0.2wt% においてほぼ同様の伸張速度場が形成されており、砲弾ボブ下部に存在する試料がすき間へ流入する際に大きな伸張変形が生じることがわかる。出口付近のカップ壁面における伸張速度を比較すると、粘弾性流体である PAA0.2wt% の方が、わずかではあるが伸張速度が大きな領域が広い。また、平面伸張速度の設計値  $\dot{\epsilon}_{PE} = e \times V = 0.1 \text{ s}^{-1}$  に対して数値解析結果、すなわち、壁面摩擦を考慮する流れ場では 1/3 程度の伸張速度となるものの、ボブ中央部から出口にかけての伸張速度は比較的一様な値を示していることがわかる。このことから、砲弾ボブの押し込みによってすき間内におよそ均一な伸張流れ場を得られることが明らかとなった。



**Fig. 2.7.** Streamline of PAA0.2 wt%. Bullet bob shape is  $e=1.0$ ,  $L=7.0$ , and the speed is  $V=0.1\text{mm/s}$ .



**Fig. 2.8.** Elongation rate distribution. Bullet bob shape is  $e=1.0$ ,  $L=7.0$ , and the speed is  $V=0.1\text{mm/s}$ .

### 2.4.3. 砲弾ボブを用いた平面伸張粘度の評価

砲弾ボブに作用する押し込み反力を簡易的な解析によって見積もることにより、実験値から平面伸張粘度  $\eta_{PE}$  の算出を行う。砲弾ボブとカップのすき間部では砲弾ボブの押し込みによる排除体積に従って試料が上方に向かい流動する。この際、平面伸張流れとせん断流れが合成した流れ場が生じると仮定し、流動に起因した反力  $F'$  を式(2.16)と考える。

$$F' = F - F_b = F_{ss} + F_{sn} + F_{PE} \quad (2.16)$$

$F_{PE}$  が砲弾ボブ底面に作用する平面伸張流れに起因した圧力損失による力を表す。また、すき間に生じるせん断流れ場は、砲弾ボブとカップの側面の速度差に起因するクエット型とボブ下面の圧力上昇に起因するポアズイユ型の 2 つのせん断変形が合成した流れ場であると考えられる。砲弾ボブ底面の断面積に対してボブとカップのすき間部の断面積が極めて小さい。このことから、すき間部ではポアズイユ型のせん断変形が支配的であり、クエット型の成分は小さいと考えられる。また、すき間を代表長さとしたレイノルズ数は  $10^{-4}$  から  $10^{-2}$  のオーダーであることから、慣性力は無視できる。これより、ボブ底面の圧力増加はポアズイユ型のせん断変形に伴う粘性損失が支配的となる。そこで、 $F_{ss}$  をボブ側面に作用するクエット・ポアズイユ複合流れ場のせん断応力  $\tau_w$  による力、そして、 $F_{sn}$  をポアズイユ型のせん断変形に起因するボブ上下の圧力差による力と定義する。

$$F_{ss} = \int_0^L \tau_w \times 2\pi R_B \times dx = 2\pi R_B L \tau_w \quad (2.17)$$

$$F_{sn} = \int_0^L \left( -\frac{dp}{dx} \right) dx \times \pi R_B^2 = \left( -\frac{dp}{dx} \right) L \pi R_B^2 \quad (2.18)$$

$(-dp/dx)$  は流れ方向の圧力こう配である。ここで、砲弾ボブを支えるシャフト側面に作用するせん断応力による力は無視することとする。したがって、本手法では実験によって求めた流動による反力  $F'_{exp}$  からせん断流れによる反力の成分  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  を補正することにより、式(2.19)から平面伸張粘度  $\eta_{PE}$  を評価する。

$$\eta_{PE} = \frac{F_{PE}}{\dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_{bL}^2} = \frac{F'_{exp} - (F_{ss} + F_{sn})_{calc.}}{\dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_{bL}^2} \quad (2.19)$$

次に、すき間内のクエット型とポアズイユ型が合成したせん断流れ場を簡易解析し、せん断変形による反力の成分  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  を求める。ボブとカップの側面のすき間  $h = R_c - R_b(z)$  はボブの半径  $R_b(z)$  に対して十分に小さいことから、すき間内の流れ場は二次元定常流れと見なすことができる。Fig. 2.1(b)における  $z=0$ ,  $r=R_{b0}$  を座標原点、そして、流れ方向を  $x$  軸、半径方向を  $y$  軸とした直交座標系を適用した。また、レイノルズ数が小さいことから助走区間を無視し、十分に発達した流れ場を想定した。 $0 < y < h/2$  におけるべき乗則流体の速度分布  $v_x$  と圧力こう配  $(-dp/dx)$ 、ボブ壁面におけるせん断速度  $\dot{\gamma}_w$ 、



ボブ壁面に作用するせん断応力  $\tau_w$  はそれぞれ式(2.20), (2.21), (2.22)によって示される. ただし, 速度分布  $v_x$  はせん断速度  $\dot{\gamma}$  が正の値となる  $0 < y < h/2$  の領域で求めた.

$$v_x = \frac{n}{n+1} \left\{ \frac{1}{K} \left( -\frac{dp}{dx} \right) \right\}^{\frac{1}{n}} \left\{ \left( \frac{h}{2} \right)^{\frac{n+1}{n}} - \left( \frac{h}{2} - y \right)^{\frac{n+1}{n}} \right\} + V \left( \frac{y}{h} - 1 \right) \quad (2.20)$$

$$\left( -\frac{dp}{dx} \right) = K \left[ \frac{2n+1}{n} \times \frac{V_b}{8(R_c + R_b)} \times \left( \frac{2}{h} \right)^{\frac{2n+1}{n}} \times \left\{ (R_{b0} + R_{bL})^2 + 2h(R_c + R_b) \right\} \right] \quad (2.21)$$

$$\dot{\gamma}_w = \left\{ \frac{h}{2K} \left( -\frac{dp}{dx} \right) \right\}^{\frac{1}{n}} + \frac{V}{h} \quad (2.22)$$

$$\tau = K \left[ \left\{ \frac{h}{2K} \left( -\frac{dp}{dx} \right) \right\}^{\frac{1}{n}} + \frac{V}{h} \right]^n \quad (2.20)$$

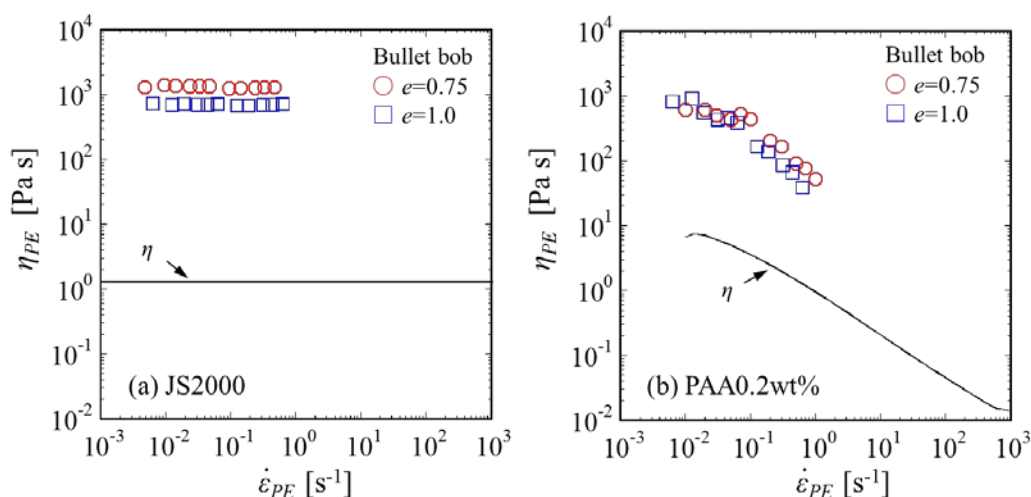
上式を式(2.17), (2.18)に代入することにより  $F_{ss}$  と  $F_{sn}$  を導く.

砲弾ボブの押し込みから算出した JS2000 と PAA0.2wt% の平面伸張粘度  $\eta_{PE}$  を Fig. 2.9(a) と (b) にそれぞれ示す. Fig. 2.9(a) より, JS2000 の平面伸張粘度  $\eta_{PE}$  は  $\dot{\epsilon}_{PE}$  に依らず一定の値を保つことがわかる. これは, ニュートン流体の粘度は変形速度に依存しない定数であるという既知の事実と一致しており, 本手法がその定性的傾向をよく表していることがわかる. また, Fig. 2.9(b) より, PAA0.2wt% の平面伸張粘度  $\eta_{PE}$  は  $\dot{\epsilon}_{PE}$  の増加に伴って減少する *elongational-thinning* を示すことがわかる. しかしながら, 算出された  $\eta_{PE}$  はせん断粘度  $\eta$  の値に対しておおよそ  $10^3$  倍大きい値を示している. これは, ニュートン流体では平面伸張粘度がせん断粘度の 4 倍となる<sup>41)</sup>(トルートン比  $T_r = \eta_{PE}/\eta = 4$ ) という理論値と大きく異なっており, 本手法の測定精度は平面伸張粘度の定量的評価を行える段階に至っていないことが明らかとなった. この原因として平面伸張粘度の簡易解析に対して導入した仮定の問題や考慮できていない影響因子の存在, せん断・平面伸張複合流れ場におけるせん断流れの優位性などが考えられる. Fig. 2.9 より平面伸張粘度が大きく算出されていることから, 一見せん断流れよりも平面伸張流れの占める割合の方が大きいと予想される. そこで, 簡易解析に基づいて流動による反力  $F'$  に占める平面伸張流れによる反力  $F_{PE}$  の割合を試算する. 平面伸張応力による力は式(2.21)より見積もった.

$$F_{PE} = \tau_{PE} \times \pi R_{bL}^2 = \eta_{PE} \times \dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_{bL}^2 = 4\eta \times \dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_{bL}^2 \quad (2.21)$$

例えば, 砲弾ボブ  $e=1.0$  を  $V=1.0$  mm/s で JS2000 の満たされたカップに押し込んだ場合, 式(2.16)に示すそれぞれの力の大きさは  $F_{ss}=0.014$  N,  $F_{sn}=0.16$  N,  $F_{PE}=0.00067$  N となる. したがって, 流動による反力  $F'$  に占める平面伸張流れによる反力  $F_{PE}$  の割合は 0.38% である. これに対し, せん断流れに

よる力  $F_{ss}+F_{sn}$  は  $F_{PE}$  のおよそ 260 倍となる. このことから, 実験結果から推測される予想と反し, 流れ場においてせん断流れの占める割合が非常に大きいことがわかった. そのため, 砲弾ボブを用いた本手法では, せん断流れが支配的となり平面伸張流れによる影響を正しく測定できない問題, また, 測定器の計測誤差が平面伸張粘度の値に大きな影響を及ぼす問題を改善する必要があることが明らかとなった.



**Fig. 2.9.** Evaluated planar elongation viscosity of (a) JS2000 and (b) PAA0.2wt% using the bullet-shaped bob.

そこで, 解決策の一つとしてせん断流れの影響を削減し, 全体の反力  $F'$  に対して  $F_{PE}$  の占める割合が大きくなる砲弾ボブの形状を検討する. ここで, 砲弾ボブ  $e=1$  において円筒型カップの半径  $R_c$  を一定とした条件で設計を行うと仮定する. Fig. 2.10 にせん断流れの影響を削減できる最適な砲弾ボブの形状を試算を示す. 縦軸は平面伸張応力による力  $F_{PE}$  と流動による反力  $F'$  の比であり,  $F_{PE}/F'$  が 1 に近いほど全体の反力に占める平面伸張応力の力の割合が大きいかを示している. また, 横軸は砲弾ボブとカップの側面によって構成されるすき間における入口と出口の大きさの比であり, 1 に近づくほど側面の曲率がなくなった円筒形状のボブになることを表している. そして, 記号の違いはカップの半径  $R_c$  に対する砲弾ボブの長さ  $L$  を示しており, この値がゼロに近づくほど長さの短い円板型のボブとなる. Fig. 2.10 より  $L/R_c < 0.1$ , かつ,  $(R_c - R_{b0}) / (R_c - R_{bL}) \approx 1.7$  において全体の反力  $F'$  に占める  $F_{PE}$  の割合が 70%ほどとなり, 砲弾ボブ  $e=1.0$  の 0.38% という結果から大幅に改善されることがわかる. このことから, すき間における入口と出口の大きさの比を 1.7 程度に保ち, かつ, 長さを短くした形状にすることによって, せん断流れの影響を削減した平面伸張粘度測定に最適な砲弾ボブを設計できるといえる.

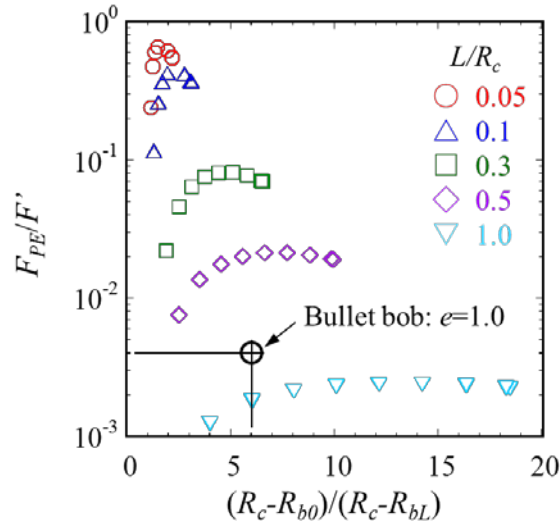


Fig. 2.10. Estimation of an optimal shape of the bullet shaped bob.

## 2.4. 第2章 結言

本研究では平面伸張粘度の機械的測定法として、砲弾ボブと円筒型カップからなる環状縮小流路を市販の回転型レオメータに取り付けて押し込み反力を測定した。そして、簡易解析により平面伸張粘度を算出する方法を提案した。また、数値解析により砲弾ボブのまわりの流れ場を検討した。以下に得られた結果をまとめる。

JS2000 および PAA0.2wt%の押し込み反力と変形速度の関係はそれぞれの試料が有するニュートン粘性およびずり流動化の特性を示すことが明らかとなった。数値解析より、すき間内にはほぼ様な伸張速度分布が形成されることが示された。簡易解析によって算出された JS2000 および PAA0.2wt%の平面伸張粘度はせん断粘度のおおよそ  $10^3$  倍大きい値となった。この結果を鑑み、簡易解析に基づいて流動による反力  $F'$  に占める平面伸張流れによる反力  $F_{PE}$  の割合を試算した。これにより、流動による反力  $F'$  に占める平面伸張流れによる反力  $F_{PE}$  の割合は 0.38% であることがわかった。砲弾ボブを用いた本手法では伸張速度が制御された平面伸張流れ場を形成できるという利点を有するものの、せん断流れが支配的となり平面伸張流れによる影響を正しく計測できない。また、測定器の計測誤差が平面伸張粘度の値に大きな影響を及ぼすという問題があることが明らかとなった。これに対し、せん断流れの影響を削減した平面伸張粘度測定に最適な砲弾ボブの形状は  $L/R_c < 0.1$ 、かつ、 $(R_c - R_{b0}) / (R_c - R_{bL}) \doteq 1.7$ 、すなわち、長さの短い円板形状であることを示した。

この結果を踏まえ、第3章では円板形状の外縁部がナイフエッジ状となっているナイフエッジ型円板ボブを用いた平面伸張粘度測定手法について議論する。

## 第2章 使用記号一覧

---

記号	: 概要 [単位]
$a$	: パラメータ値 [-]
$d$	: き乗則における傾き [-]
$e$	: 伸張速度係数 [ $\text{m}^{-1}$ ]
$E$	: 弾性応力テンソル [Pa]
$\nabla E$	: 反変型対流微分
$F$	: 押し込み反力 [N]
$F'$	: 浮力を補正した反力 [N]
$F'_{ave}$	: 浮力を補正した反力の平均値 [N]
$F_b$	: 浮力 [N]
$F_{PE}$	: 平面伸張流れに起因した圧力損失による力 [N]
$F_{sn}$	: せん断流れの圧力損失によって生じる力 [N]
$F_{ss}$	: ボブ側面に作用するせん断応力による力 [N]
$g$	: 重力加速度ベクトル [ $\text{m}/\text{s}^2$ ]
$G$	: 緩和弾性率 [-]
$h$	: すき間 [m]
$K$	: 擬塑性粘度 [ $\text{Pa s}^n$ ]
$L$	: 砲弾ボブの長さ [m]
$n$	: 構造粘度指数 [-]
$p$	: 圧力 [Pa]
$(-dp/dx)$	: 流れ方向の圧力こう配 [ $\text{Pa}/\text{m}$ ]
$R_b(z)$	: 砲弾ボブ側面の形状 [m]
$R_{bL}$	: 砲弾ボブ上端の半径 [m]
$R_{b0}$	: 砲弾ボブ下端の半径 [m]
$R_c(z)$	: カップの半径 [m]
$R_s$	: 砲弾ボブのシャフトの半径 [m]
$S$	: 変形速度テンソル [ $\text{s}^{-1}$ ]
$t$	: 時間 [s]
$T_r$	: トルーション比 [-]
$v$	: 速度ベクトル [ $\text{m}/\text{s}$ ]
$\bar{v}(z)$	: 断面平均流速 [ $\text{m}/\text{s}$ ]
$v_x$	: 速度分布 [ $\text{m}/\text{s}$ ]
$\bar{v}_0$	: すき間の入口( $z=0$ )における平均流入速度 [ $\text{m}/\text{s}$ ]
$V$	: ボブの押し込み速度 [ $\text{m}/\text{s}$ ]
$\dot{\gamma}$	: せん断速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]
$\dot{\gamma}_w$	: ボブ壁面におけるせん断速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]
$\dot{\epsilon}_{PE}$	: 平面伸張速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]

- $\eta$  : 粘度 [Pa s]  
 $\eta_0$  : ゼロせん断粘度 [Pa s]  
 $\eta_{PE}$  : 平面伸張粘度 [Pa s]  
 $\lambda$  : 緩和時間 [s]  
 $\rho$  : 密度 [kg/m<sup>3</sup>]  
 $\tau$  : 異方性応力テンソル [Pa]  
 $\tau_w$  : ボブ壁面に作用するせん断応力 [Pa]  
 $\text{II}_d$  : 変形速度テンソルの第2不変量  
 $\text{III}_d$  : 変形速度テンソルの第3不変量

## 第3章

---

# ナイフエッジ型円板ボブを用いた平面伸張粘度の機械的測定手法<sup>42)</sup>

### 3.1. 緒言

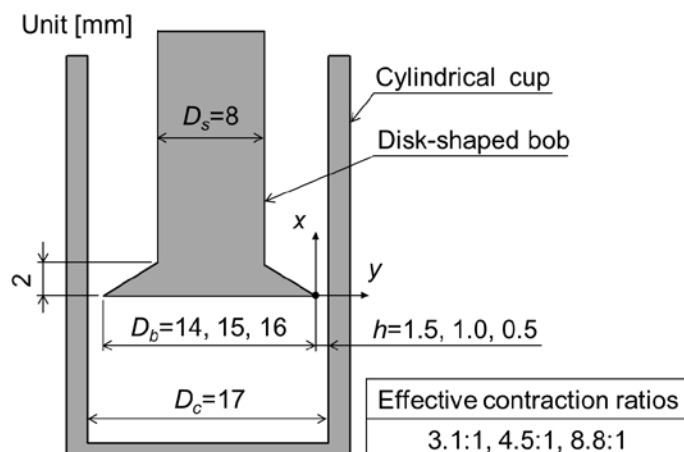
第2章において、砲弾ボブを厚さの薄い円板形状にすることによってせん断・平面伸張複合流れ場におけるせん断流れの影響を大幅に削減できることを示した。この改善を施すことにより、評価したトルートン比  $T_r$  (平面伸張粘度とせん断粘度の比)<sup>41)</sup> が理論値と一致する正確な測定手法に近づくと考えられる。そこで、本章では外縁部の厚さを無視できるナイフエッジリム付きの円板形状ボブ (以後、ナイフエッジ型円板ボブと表記する) を用い、引き続き平面伸張粘度の機械的測定手法について議論する。

### 3.2. 実験装置および試料

#### 3.2.1. 実験装置

Fig. 3.1 にナイフエッジ型円板ボブを用いた環状急縮小流路の概略図を示す。流れ場の二次元性の検証のため、直径の異なる三種類の円板ボブを用意した。有効縮小比 ( $=D_c^2/(D_c^2 - D_b^2)$ ) はそれぞれ 3.1:1, 4.5:1, 8.8:1 である。測定のパラットフォームとしてひずみ制御型の回転型レオメータ ARES-G2 (TA Instruments 社) を用いた。この回転型レオメータのスラスト軸にナイフエッジ型円板ボブ、回転軸にカップをそれぞれ取り付け、ボブの押し込みによって測定するスライド型レオメータとして使用する。ナイフエッジ型円板ボブの外縁部と円筒型カップの側面で構成されるすき間が試験部に相当する。実験の手順は以下の通りである。まず、流動開始前の状態を統一するためにナイフエッジ型円板ボブの円板部が試料液面より下となる位置まで押し込み、一定時間静止させる。その後、円板ボブを一定速

度で試料に押し込み, 試験部近傍に環状急縮小流れを形成させる. 本手法ではすき間  $h$  が円板ボブの半径  $R_b$  に対して十分に小さいという仮定のもと, 円板ボブの押し込みによって生じた環状急縮小流れを平面伸張流れとみなす. そして, この一連の過程において円板ボブに作用する反力を測定することにより, 平面伸張粘度を評価した



**Fig. 3.1.** Schematic diagram of an annular abrupt contraction flow cell. The flow cell consists of the cylindrical cup ( $D_c=17$  mm) and the disk-shaped bob ( $D_b=14, 15, 16$  mm). The effective contraction ratios are 3.1:1, 4.5:1 and 8.8:1, respectively. The test section is a gap between the cup and the rim of the bob. All bobs have a knife-edged rim to reduce the shear stress acting on the disk.

### 3.2.2. 試料

ニュートン流体として粘度計校正用標準液である JS100 と JS1000, JS2000 を用いた. せん断粘度はそれぞれ 0.0699, 0.682, 1.19 Pa s である. また, 粘弾性流体として M1 流体<sup>43, 44)</sup>を使用した. Fig. 3.1(a)と(b)に回転型レオメータに円錐円板型流路を取り付けて測定したニュートン流体と M1 流体のレオロジー特性を示す. Fig. 3.1(b)より, M1 流体は高せん断速度領域では粘弾性流体特有の第一法線応力差  $N_1$  を示すにも関わらず, 幅広いせん断速度領域でおよそ一定のせん断粘度を保つ流体であることがわかる. ただし, 若干のシアシニング(ずり流動化)を示すので, 本章では M1 流体をべき乗則流体として取り扱う. 擬塑性粘度  $K$  と構造粘度指数  $n$  はそれぞれ  $K=1.25$  Pa s <sup>$n$</sup> , および,  $n=0.988$  である. 液温は  $25\pm 0.5$  °C とした.

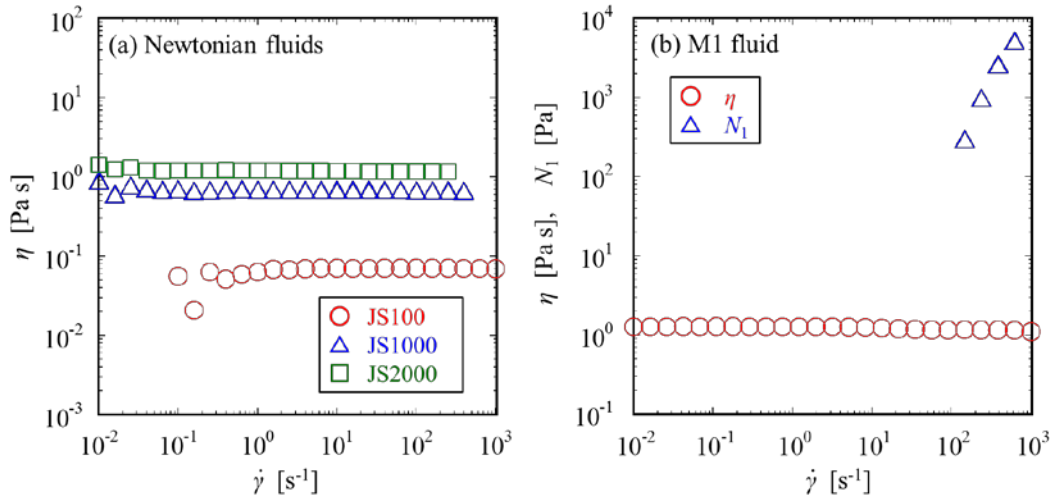


Fig. 3.2. Flow property of (a) Newtonian fluids and (b) M1 fluid as a function of shear rate  $\dot{\gamma}$ .

### 3.3. 実験結果および考察

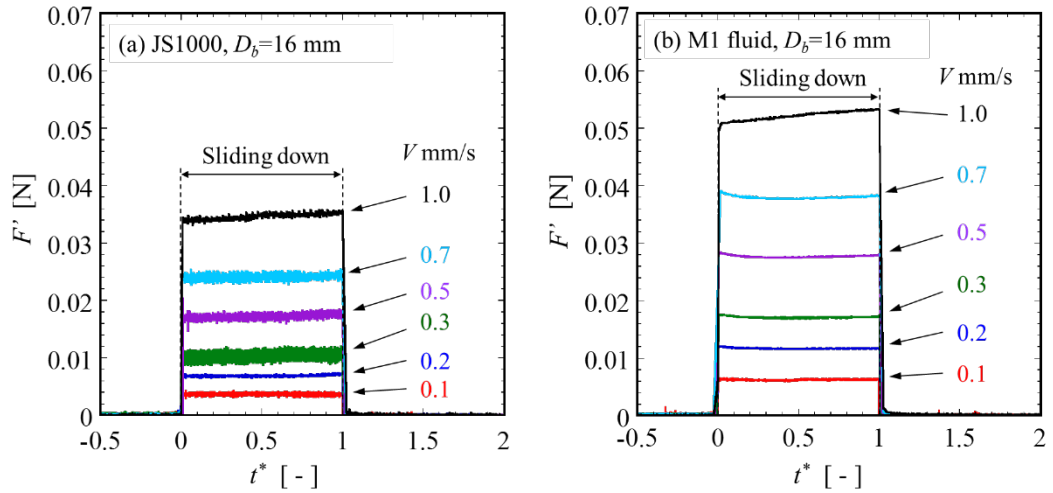
#### 3.3.1. ナイフエッジ型円板ボブに作用する押し込み反力

Fig. 3.3(a)および(b)にJS1000とM1流体の浮力を補正した押し込み反力 $F'$ の時間変化を示す. 直径16 mmの円板ボブを用いて測定を行った. 浮力 $F_b$ の補正方法については2.4.1項に詳細を記載している. また, 横軸は押し込み開始をゼロ, 押し込み停止を1とした正規化時間 $t^*$ である(式(3.1)).

$$t^* = \frac{t}{l/V} \quad (3.1)$$

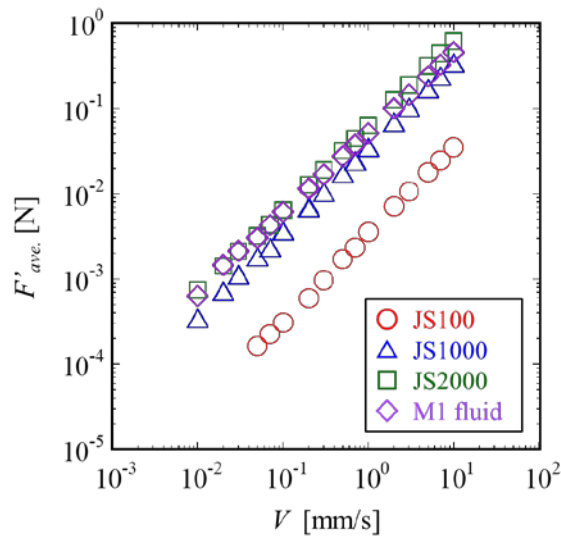
ここに,  $l$ は円板ボブの移動距離,  $V$ は移動速度を示す. まず,  $V=0.1\sim 0.7$  mm/sの押し込み過程に着目する. Fig. 3.3(a)より, ニュートン流体であるJS1000では浮力を補正した反力 $F'$ が一定値となることがわかる. Fig. 3.3(b)に示すM1流体では, 円板ボブの押し込み開始と同時に $F'$ のオーバーシュートが見られる. そして, 正規化時間 $t^*$ の増加とともに $F'$ は徐々に減少し, 一定値に達することがわかる. これらから, JS1000とM1流体ともに $V=0.1\sim 0.7$  mm/sでは最終的に $F'$ が一定値に達するので, 流れ場が定常状態となることが明らかとなった. これに対し,  $V=1.0$  mm/sでは $F'$ は $t^*$ に比例して増加する. これは円板ボブ底面とカップの間の試料が押しつぶされることによって生じる二軸伸張流れの影響であると考えられる. そして,  $F'$ は押し込み停止( $t^*=1$ )と同時にゼロに戻ることをわかる.





**Fig. 3.3.** Resistant force caused by flow  $F'$  of (a) JS1000 and (b) M1 fluid as a function of normalized time  $t^*$ . The diameter of the disk-shaped bob is 16 mm.

これらの実験結果より、二軸伸張流れの影響も踏まえ、オーバーシュート領域を除いた流動による反力  $F'$  の平均値  $F'_{ave}$  を得た。Fig. 3.4 に  $F'_{ave}$  と押し込み速度  $V$  の関係を示す。この Fig. 3.4 より、ニュートン流体では  $F'_{ave}$  が押し込み速度  $V$  に比例して大きくなることがわかる。JS100, JS1000, JS2000 の傾きはそれぞれ 1.0, 0.99, 0.98 であり、比例を示す傾き 1 と一致する。ニュートン流体では粘度が変形速度に依存しない定数であることから、 $F'_{ave}$  と  $V$  の比例関係は予想される結果と一致する。これに対し、粘弾性流体である M1 流体の傾きは 0.94 となり、1 より若干小さな値を示す。これは、せん断粘度のみならず平面伸張粘度も変形速度の増加に伴って減少することを示唆している。



**Fig. 3.4.** Averaged resistant forces caused by flow  $F'_{ave}$  of Newtonian fluids and M1 fluid as a function of bob sliding speed  $V$ .

### 3.3.2. 平面伸張粘度評価式の導出

円板ボブに作用する流動による反力  $F'$  を簡易的な解析によって見積もり、実験値から平面伸張変形に起因する力を抽出して平面伸張粘度  $\eta_{PE}$  およびトルートン比  $T_r$  の算出を行う。第2章と同様に、円板ボブとカップのすき間部には平面伸張流れとせん断流れが合成した流れ場が生じると仮定する。特に、せん断流れ場においては、円板ボブとカップの側面の速度差に起因するクエット型とボブ底面の圧力上昇に起因するポアズイユ型の2つのせん断変形が合成した流れ場であると考えられる。ここで、ナイフエッジ型円板ボブは外縁部の厚さを無視できるため、試験部における壁面せん断応力による力  $F_{ss}$  を排除できる。さらに、ポアズイユ型のせん断変形に起因するボブ上下の圧力差による力  $F_{sn}$  を削減することができる。したがって、円板ボブに作用する流動による反力  $F'$  を式(3.2)と仮定する。

$$F' = F - F_b = F_{sn} + F_{PE} \quad (3.2)$$

ここに、 $F_{PE}$  は円板ボブ底面に作用する平面伸張流れに起因した圧力損失による力である。式(3.2)において、入口・出口圧力損失およびナイフエッジ型円板ボブを支えるシャフト側面に作用するせん断応力による力は無視する。また、円板ボブ底面に作用するせん断流れによる力は半径方向に働くので無視する。

次に、すき間内のクエット・ポアズイユ複合流れ場の解析を行う。すき間  $h$  は円板ボブの半径  $R_b$  に対して十分に小さいことから、すき間内の流れ場は二次元定常流れであると仮定する。また、すき間を代表長さとしたレイノルズ数は  $10^{-2}$  程度のオーダーであることから助走区間を無視し、十分に発達した流れ場を想定する。円板ボブの端面を座標原点とし、流れ方向を  $x$  軸、半径方向を  $y$  軸とした直交座標系を適用する(Fig. 3.1)。カップの底面から円板ボブの押し込み速度  $V$  と等しい流速の一樣流が流れ込むと仮定すると、試験部の流速  $Q$  は式(3.3)で示すことができる。

$$Q = \pi R_c^2 V \quad (3.3)$$

ここに、 $R_c$  は円筒型カップの半径である。上記の仮定を考慮することにより、べき乗則流体のせん断流れ場における圧力こう配  $(-dp/dx)$  は式(3.4)によって示される。

$$\left(-\frac{dp}{dx}\right) = K \left[ \frac{2n+1}{2n} \times \left(\frac{2}{h}\right)^{\frac{2n+1}{n}} \times \left(\frac{R_c^2}{R_b + R_c} + \frac{h}{2}\right) \times V \right]^n \quad (3.4)$$

よって、せん断流れに起因した圧力損失による力  $F_{sn}$  は円板ボブの厚さの代わりに既定したある代表長さ  $L$  に渡って圧力こう配  $(-dp/dx)$  を積分することにより式(3.5)から算出される。

$$F_{sn} = \int_0^L \left(-\frac{dp}{dx}\right) dx \times \pi R_b^2 = \left(-\frac{dp}{dx}\right) \times L \times \pi R_b^2 \quad (3.5)$$

また、試験部近傍で生じる平面伸張速度  $\dot{\epsilon}_{PE}$  は試験部における平均流速を代表長さ  $L$  で割ることにより式(3.6)と仮定する。

$$\dot{\epsilon}_{PE} = \frac{Q}{\pi(R_c^2 - R_b^2)} \times \frac{1}{L} = \frac{R_c^2 V}{L(R_c^2 - R_b^2)} \quad (3.6)$$

このように、ナイフエッジ型円板ボブを用いた手法では円板ボブの外縁部の厚さ、すなわち、試験部の長さをゼロと仮定しているため、 $F_{sn}$  および  $\dot{\epsilon}_{PE}$  の導出にあたり新たに代表長さ  $L$  を定める必要がある。Fig. 3.5 に試験部の長さの代わりとなる代表長さ  $L$  の位置を示す。本手法では代表長さ  $L$  を平面伸張流れの影響が支配的な領域と仮定する。ここで、Ushida et al.はスリットやオリフィスに流入する流れのひずみ速度をそれぞれ平均流速をスリット幅およびオリフィス径で割ることにより求めた<sup>45)</sup>。これに則り、代表長さ  $L$  としてすき間  $h$  を検討した。さらに、本手法では式(3.7)で示される水力平均深さ  $m$  についても検討した。

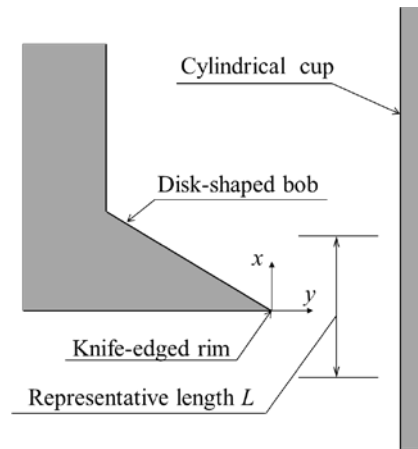
$$m = \frac{\pi(R_c^2 - R_b^2)}{2\pi(R_c + R_b)} = \frac{R_c - R_b}{2} \quad (3.7)$$

以上のことを考慮し、平面伸張粘度  $\eta_{PE}$  およびトルートン比  $T_r$  を式(3.8)と(3.9)に基づいて評価する。

$$\eta_{PE} = \frac{F_{PE}}{\dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_b^2} = \frac{F' - F_{sn}}{\dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_b^2} = \frac{F'_{exp.} - (F_{sn})_{calc.}}{\dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_b^2} \quad (3.8)$$

$$T_r = \frac{\eta_{PE}}{\eta} = \frac{\eta_{PE}}{K\dot{\gamma}^{n-1}} \quad (3.9)$$

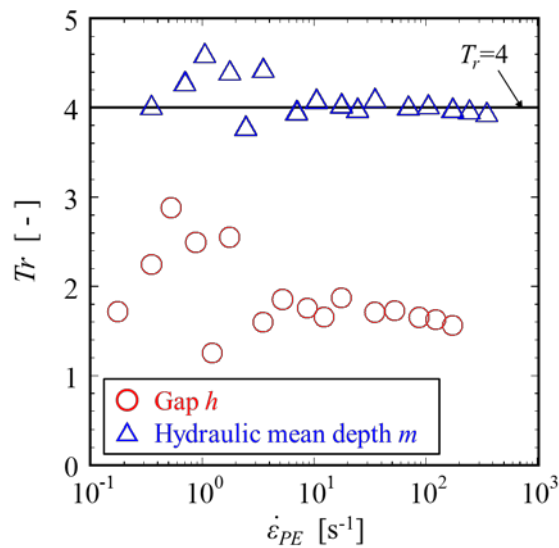
ここに、 $F'_{exp.}$ は流動による反力の測定結果、 $(F_{sn})_{calc.}$ は式(3.4)から算出したポアズイユ型のせん断流れに起因した圧力損失による力の計算結果である。



**Fig. 3.5.** A representative length  $L$  for the disk-shaped bob. The representative length  $L$  is the length to the  $x$ -direction instead of the thickness of the knife-edged rim.

### 3.3.3. 最適な代表長さの検討

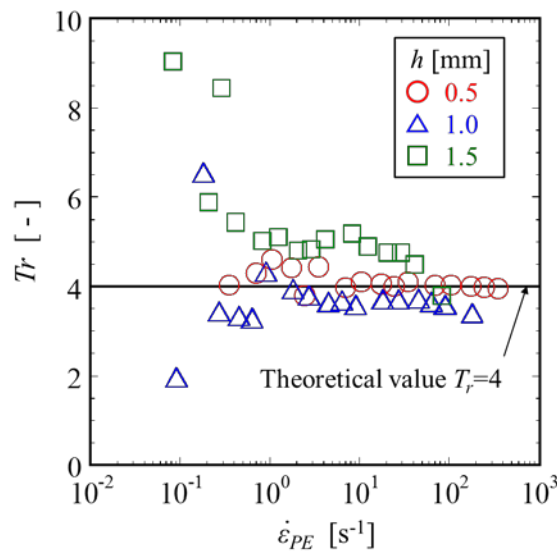
まず、本手法に適した代表長さ  $L$  の検討を行う。ここで、式(3.9)より評価したニュートン流体のトルートン比と理論値との相対誤差率、および、評価したトルートン比の標準偏差を判断基準とする。Fig. 3.6 に代表長さ  $L$  をすき間  $h$ 、および、水力平均深さ  $m$  として算出した JS1000 のトルートン比  $T_r$  を示す。流動による反力の測定値  $F'_{exp}$  には Fig. 3.4 に示す  $F'_{ave}$  を使用した。円板ボブは直径  $D_b=16$  mm である。Fig. 3.6 より、代表長さ  $L$  を水力平均深さ  $m$  として評価したトルートン比  $T_r$  はニュートン流体の理論値  $T_r=4$  と非常に良く一致した。これに対してすき間  $h$  を用いた結果はおよそ  $T_r=2$  となり、理論値の半分程度となる。評価したトルートン比の平均値と理論値との相対誤差率を求めると、 $L=h$  の場合は  $-52.9\%$  であるのに対して  $L=m$  の場合は  $2.84\%$  となる。さらに、評価したトルートン比の標準偏差はそれぞれ  $L=h$  のとき  $0.418$ 、 $L=m$  のとき  $0.209$  となる。ニュートン流体に関しては、代表長さ  $L$  として水力平均深さ  $m$  を用いることによって、非常に精度よく平面伸張粘度を評価できることが明らかとなった。本来、流入部における速度分布を解析的あるいは実験的に求め、そこから平面伸張速度を算出すべきである。しかし、現在のところ速度分布の評価ができていない。このことから、逆説的に平面伸張粘度として妥当な結果が得られる平面伸張速度を示す水力平均深さ  $m$  を代表長さとして使用することにする。以後、水力平均深さ  $m$  を用いて平面伸張粘度の評価を行う。



**Fig. 3.6.** Comparison of the evaluated Trouton ratio  $T_r$  calculated by the gap  $h$  (circles) and the hydraulic mean depth  $m$  (triangles) as the representative length  $L$ . The diameter of the disk-shaped bob is 16 mm. The sample is JS1000. The solid line shows a theoretical Trouton ratio  $T_r=4$  of the Newtonian fluid.

### 3.3.4. すき間依存性の検討

次に、試験部のすき間  $h$  の大きさが測定結果に及ぼす影響を検討する。Fig. 3.7 に三種類のすき間  $h$  において測定した JS1000 のトルートン比  $T_r$  を示す。そして、Table 3.1 に評価したトルートン比の理論値に対する相対誤差率、および、評価したトルートン比の標準偏差を示す。Table 3.1 より円板ボブの直径  $D_b$  とカップの内径  $D_c$  の比  $D_b/D_c$  が大きくなるにつれて相対誤差率と標準偏差は小さくなることわかる。すなわち、すき間  $h$  が小さくなるほど平面伸張粘度の測定精度が向上する。この理由として、すき間に対して円板ボブの半径が大きいほど流れ場の二次元性が保たれ、正確な平面伸張流れ場が評価できることが考えられる。このことから、本手法では  $D_b/D_c$  が 1 に近い形状が最適であることが明らかとなった。



**Fig. 3.7.** Influence of the gap  $h=0.5$  (circles), 1.0 (triangles) and 1.5 mm (squares) on the evaluated Trouton ratio  $T_r$ . The test fluid is JS1000. The solid line shows a  $T_r=4$ .

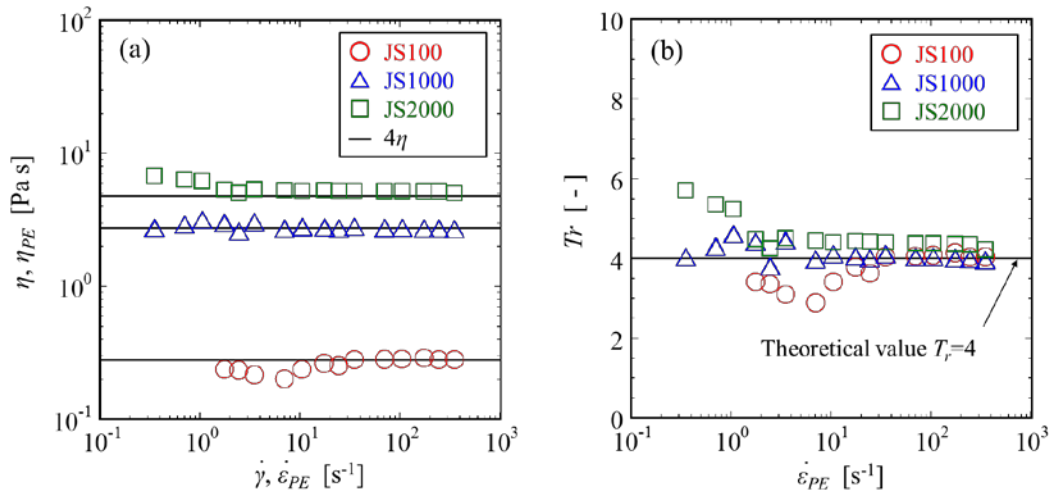
**Table 3.1.** The relative error with respect to  $T_r=4$  and the standard deviation evaluated from Fig. 3.7. The sample is JS1000. The  $D_b/D_c$  is the ratio of the diameter of the disk to the inner diameter of the cup.

$h$ [mm]	$D_b/D_c$ [-]	Relative error [%]	Standard deviation [-]
1.5	0.82	47.4	2.22
1.0	0.88	-6.82	0.841
0.5	0.94	2.84	0.209

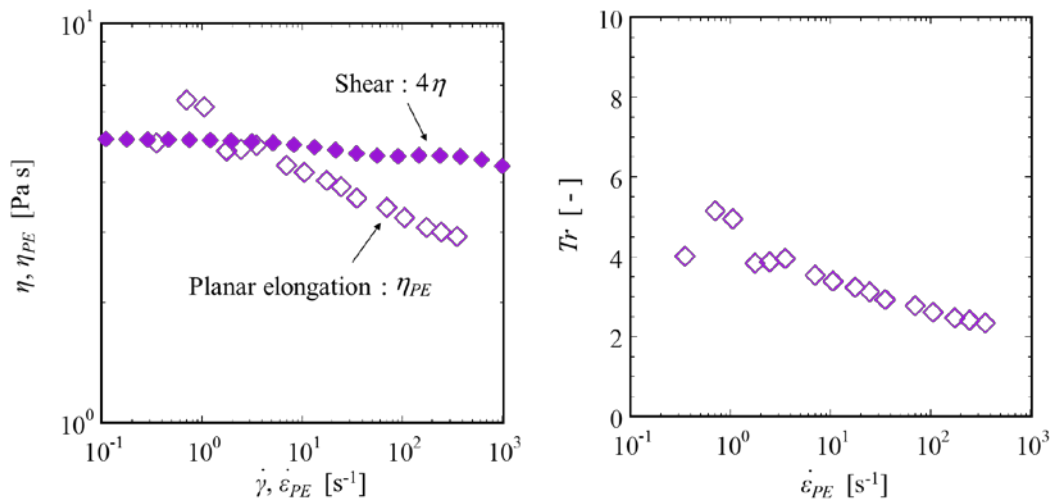
### 3.3.5. ナイフエッジ型円板ボブを用いた平面伸張粘度の評価

Fig. 3.8(a)と(b)に本手法で評価したニュートン流体の平面伸張粘度 $\eta_{PE}$ とトルートン比 $T_r$ をそれぞれ示す。ナイフエッジ型円板ボブの直径は16 mm ( $h=0.5$  mm,  $D_b/D_c=0.94$ )である。代表長さ $L$ には水力平均深さ $m$ を用いた。図中の実線は試料ごとの理論値を示している。Fig. 3.8より、本手法で評価したニュートン流体の平面伸張粘度 $\eta_{PE}$ およびトルートン比 $T_r$ は理論値とよく一致することがわかる。測定を行った伸張速度領域におけるJS100とJS1000, JS2000の相対誤差率はそれぞれ-7.72%, 2.84%, 14.6%となる。これに対し、第2章の砲弾ボブを用いた手法では、JS2000のトルートン比はおよそ1000であった。このことから、ナイフエッジ型円板ボブを用いて流れ場におけるせん断の影響を削減することにより、測定精度を大幅に向上できることが明らかとなった。さらに、本手法は平面伸張粘度 $\eta_{PE}$ が $10^{-1}$  Pa s オーダーの低粘度流体に適用可能であることがわかった。ここで、低平面伸張速度領域における値のばらつきは、装置の反力検出限界に近いことによるものと考えられる。

Fig. 3.9(a)と(b)にM1流体の平面伸張粘度 $\eta_{PE}$ とトルートン比 $T_r$ をそれぞれ示す。Fig. 3.9(a)より、M1流体は平面伸張速度 $\dot{\epsilon}_{PE}$ の増加に伴って $\eta_{PE}$ が減少する elongational-thinning を示すことがわかる。べき乗則流体と仮定して Fig. 3.9(a)の結果を近似すると、平面伸張粘度に対する構造粘度指数は $n=0.894$ となる。これは、せん断粘度の $n=0.988$ よりも小さい値であり、elongational-thinning がシアニングよりも強く発現することが明らかとなった。一方、Binding et al. <sup>44)</sup>は直径が0.5 mm および1 mm のオリフィスを用いた縮小流れやスピンラインレオメータ、オープンサイフォン法によってM1流体の一軸伸張粘度を測定した。これらの手法で測定したM1流体の一軸伸張粘度は一軸伸張速度の増加に伴って大きくなる Elongational thickening を示すことがわかっている。さらに、トルートン比は $10^2$ から $10^8$ (ニュートン流体の場合、一軸伸張流れのトルートン比は3となる)、そして、評価可能な一軸伸張速度領域は $10^0$ から $10^1$  s<sup>-1</sup>となることが詳細されている。これに対し、Fig. 3.9(b)より、円板ボブで評価したM1流体の平面伸張変形に対するトルートン比は2から6、そして、評価可能な平面伸張速度領域は $10^1$ から $10^3$  s<sup>-1</sup>となった。このことから、円板ボブを用いた本手法は、従来の伸張粘度測定手法よりも広範囲の伸張速度領域を測定できることが明らかとなった。



**Fig. 3.8.** (a) Planar elongation viscosity  $\eta_{PE}$  and (b) Trouton ratio  $T_r$  of the Newtonian fluids as a function of the planar elongation rate  $\dot{\epsilon}_{PE}$ . They are evaluated by the disk-shaped bob ( $D_b=16$  mm). The solid line shows the theoretical value for each sample. The theoretical Trouton ratio of the Newtonian fluid is 4.



**Fig. 3.9.** (a) Planar elongation viscosity  $\eta_{PE}$  and (b) Trouton ratio  $T_r$  of the M1 fluid as a function of the planar elongation rate  $\dot{\epsilon}_{PE}$ . The diameter of the disk-shaped bob is 16 mm. The M1 fluid shows an elongational thinning. When the M1 fluid is approximated by the power law, the flow coefficient  $K$  is 5.44 Pa s and the power-law index  $n$  is 0.894.

### 3.4. 第3章 結言

本章ではナイフエッジ型円板ボブを用いた平面伸張粘度の機械的測定手法を検討した。その結果、ニュートン流体において評価したトルートン比と理論値との相対誤差率が 20%以内に収まり、砲弾ボブを用いた測定手法に比べて大幅に測定精度が向上した。さらに、本手法が平面伸張粘度  $10^{-1} \text{ Pa s}$  オーダーの低粘度流体に適用できることを示した。これらの結果を導くにあたり、下記の 3 つの大きな仮定を導入した。1 つ目に、本手法では試験部近傍で生じる環状急縮小流れを平面伸張流れとみなした。2 つ目に、円板ボブに作用する押し込み反力を①浮力と②試験部におけるせん断流れによって生じた圧力損失による力、③平面伸張流れに起因した圧力損失による力の合力と仮定した。3 つ目に、ナイフエッジ型円板ボブの厚さに代わる代表長さとして水力平均深さをを用いた。以上から、市販の回転型レオメータに円板ボブを取り付けるだけで手軽に低粘度粘弾性流体や光弾性則に従わない不透明な溶液などの平面伸張粘度を評価できる機械的測定手法を提案することができた。

しかしながら、本手法は砲弾ボブのように任意に制御された平面伸張流れ場を形成することができないという問題を有する。これは、平面伸張速度の計算に用いた水力平均深さはトルートン比に基づいて決められており、実際の流れ場との相関が未確認だからである。これについては数値解析を用いて円板ボブの押し込みに伴う流れ場を明らかにするなどの今後の進展に期待したい。



### 第3章 使用記号一覧

---

記号	: 概要 [単位]
$D_b$	: 円板ボブの直径 [m]
$D_c$	: カップの直径 [m]
$D_s$	: 円板ボブのシャフトの直径 [m]
$F$	: 押し込み反力 [N]
$F'$	: 浮力を補正した反力 [N]
$F'_{ave}$	: 浮力を補正した反力の平均値 [N]
$F_b$	: 浮力 [N]
$F_{PE}$	: 平面伸張流れに起因した圧力損失による力 [N]
$F_{sn}$	: せん断流れの圧力損失によって生じる力 [N]
$F_{ss}$	: ボブ側面に作用するせん断応力による力 [N]
$h$	: すき間 [m]
$K$	: 擬塑性粘度 [ $\text{Pa s}^n$ ]
$l$	: 円板ボブの移動距離 [m]
$L$	: 代表長さ [m]
$m$	: 水力平均深さ [m]
$n$	: 構造粘度指数 [-]
$N_1$	: 第一法線応力差 [Pa]
$(-dp/dx)$	: 流れ方向の圧力こう配 [ $\text{Pa/m}$ ]
$Q$	: 流量 [ $\text{m}^3/\text{s}$ ]
$R_b$	: 円板ボブの半径 [m]
$R_c$	: カップの半径 [m]
$R_s$	: 円板ボブのシャフトの半径 [m]
$t$	: 時間 [s]
$t^*$	: 正規化時間 [-]
$T_r$	: トルーション比 [-]
$V$	: ボブの押し込み速度 [ $\text{m/s}$ ]
$\dot{\gamma}$	: せん断速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]
$\dot{\epsilon}_{PE}$	: 平面伸張速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]
$\eta$	: 粘度 [ $\text{Pa s}$ ]
$\eta_{PE}$	: 平面伸張粘度 [ $\text{Pa s}$ ]
$\rho$	: 密度 [ $\text{kg/m}^3$ ]
$\tau_w$	: ボブ壁面に作用するせん断応力 [Pa]

## 第4章

---

# 同心二重円筒流路の内円筒ボブの押し込みにより発生する流入・流出圧力損失および第一法線応力差の測定<sup>46)</sup>

### 4.1. 緒言

粒子懸濁液の粘度異方性は回転しているカップの中に円筒型のボブを押し込むことで測定する。これに先立ち、本章では同心二重円筒流路の内円筒ボブとカップの側面によって構成されるすき間において発生する流入・流出圧力損失、および、試料が粘弾性流体の場合に生じる第一法線応力差を測定する。まず、内円筒ボブを試料に接していない位置から押し込んだ際に生じる押し込み反力のパターンを明らかにする。そして、第2章および第3章で考慮しなかった流入・流出圧力損失をバグレイ・プロット<sup>47, 48)</sup>の考え方を応用して測定する。また、内円筒ボブに作用する押し込み反力から第一法線応力差を見積もる簡易解析手法を示す。そして、一般的に用いられている円錐円板型流路を使用したトータル・スラスト法で評価した第一法線応力差と比較することにより、同心二重円筒流路を用いた本手法の妥当性を検討する。

### 4.2. 実験装置および試料

#### 4.2.1. 実験装置

実験用プラットフォームとしてひずみ制御型レオメータ ARES-LS (TA Instruments 社)を用いた。Fig. 4.1(a)に使用した同心二重円筒流路の概略図を示す。また、Table 4.1 に流路の寸法を示す。バグレイ・プロット<sup>47, 48)</sup>の考えを応用した流入・流出圧力損失の測定のため、長さ  $L=15, 25, 33$  mm の三種

類の内円筒ボブを用意した。これらをそれぞれ  $L=15$ ,  $L=25$ ,  $L=33$  とよぶ。

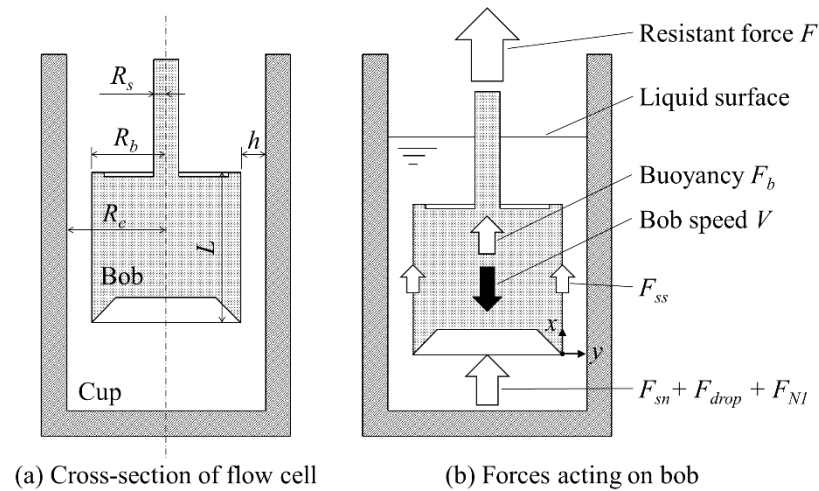


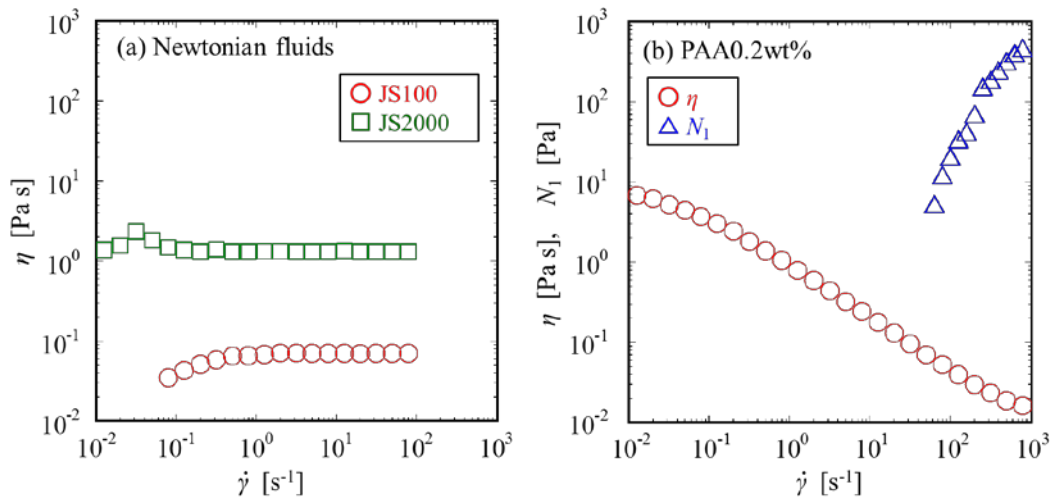
Fig. 4.1. Schematic diagrams of a concentric cylinder flow cell and forces acting on the bob.

Table 4.1. Dimensions of the concentric cylinder flow cell.

Radius of cup $R_c$	17.0 mm
Radius of bob $R_b$	16.0 mm
Radius of shaft $R_s$	6.35 mm
Length of bob $L$	15.0, 25.0, 33.0 mm
Gap between cup and bob $h$	1.0 mm

#### 4.2.2. 試料

ニュートン流体として粘度計校正用標準液である JS100 および JS2000 を用いた。また、粘弾性流体としてせん断粘度と第一法線応力差がべき乗則に従うポリアクリルアミド 0.2wt% 水溶液 (以後、PAA0.2wt%とよぶ) を使用した。Fig. 4.2 に ARES-LS に直径 25 mm の円錐円板型流路を取り付けて測定した JS100, JS2000 および PAA0.2wt% のレオロジー特性を示す。JS100 と JS2000 のせん断粘度はそれぞれ 0.0702, 1.31 Pa s である。これらの値はせん断速度が  $1 \text{ s}^{-1}$  以上の範囲を平均することにより求めた。また、PAA0.2wt% をべき乗則流体と仮定して  $0.05 < \dot{\gamma} < 500 \text{ s}^{-1}$  の領域を近似した場合、擬塑性粘度  $K$  と構造粘度指数  $n$  はそれぞれ  $K=0.849 \text{ Pa s}^n$ , および,  $n=0.378$  となる。液温は  $25 \pm 1 \text{ }^\circ\text{C}$  とした。



**Fig. 4.2.** Flow property as a function of the shear rate  $\dot{\gamma}$ . (a) The shear viscosity  $\eta$  of the Newtonian fluids. (b) The shear viscosity  $\eta$  and the first normal stress difference  $N_1$  of PAA0.2wt%.

### 4.3. 実験結果および考察

#### 4.3.1. 内円筒ボブの押し込み過程と反力の変化パターンについて

同心二重円筒流路の内円筒ボブを試料に接しない位置から一定の速度で降下させた際に生じる押し込み反力のパターンを明らかにする。実験の手順を以下に示す。まず、カップに試料を満たして静止させる。そして、内円筒ボブの底面が液面に接しない位置から一定の速度で試料に押し込む。試料と接触後も等速で押し込みを続け、ある距離を移動させた後に停止させる。この一連の過程でボブに作用する反力  $F$  を測定した。Fig. 4.3 に  $V=0.01$  mm/s における JS2000 の測定結果を示す。ボブの長さ  $L=33$  mm である。Fig. 4.3 より、反力の変化パターンはボブの押し込み過程に基づいて 6 つの領域に分けることができる。領域 0 はボブの底面が液面に接触していない領域である。このときボブに作用する力を  $F=0$  N と定義する。また、ボブが液面と接触した瞬間を基準時刻  $t=0$  s とする。この瞬間にボブとカップのすき間には毛管力が発生し、ボブを引き下げる力が生じる。さらに、ボブ底面のくぼみ部分においては、試料がくぼみ内壁面を這い上がるため所定の接触角を伴う気泡が形成される。この際にも表面張力に係わる引き下げ力が発生する。これらのボブを引き下げる力はすぐに定常に達するため、ボブの押し込みが進むと押し込み量に比例して発生する押し上げ力が支配的な状態に移行する。そこで、ボブが液面に接触して引き下げ力が支配的な状態を領域 1 とし、押し込み量と押し上げ力が比例する状態を領域 2 とする。領域 2 では試料液面はボブの沈降に合わせてボブとカップの側面のすき間を一定速度で上昇する。濡れ面積の増加に伴ってボブに作用する浮力、ボブ側面に作用するせん断応力による押し上げ力、および、ボブ底面に作用する流動に起因した圧力損失による押し上げ力の 3 つが時間に比例して増加する。そのため、 $F$  は時間に比例して一様に増加する。そ

の後、液面がボブの上端を超えると  $F$  は急激に大きくなる。これはすき間から流出した試料がボブの末端にピン止めされたままカップ側面を這い上がり、ボブが上方へ引っ張られるためだと考えられる。これを領域3とする。試料の液面がボブの上面を覆い尽くしたあとはボブのシャフト部が試料に押し込まれる量に従って浮力が増加する。また、すき間は完全に試料で満たされており、すき間内の流れ場は定常に達する。すなわち、流動によって生じる力は一定値を示す。これを領域4とする。第2章と第3章はこの領域4を用いてボブに作用する押し込み反力から平面伸張粘度を評価した。そして、領域4においてボブの移動を急停止すると  $F$  は低下し、ボブに作用している浮力の値を示して一定となる。これを領域5とする。

本章では、内円筒ボブが完全に試料に没し、すき間内が完全に試料で満たされた状態の領域4において流入・流出圧力損失および第一法線応力差の測定を行う。

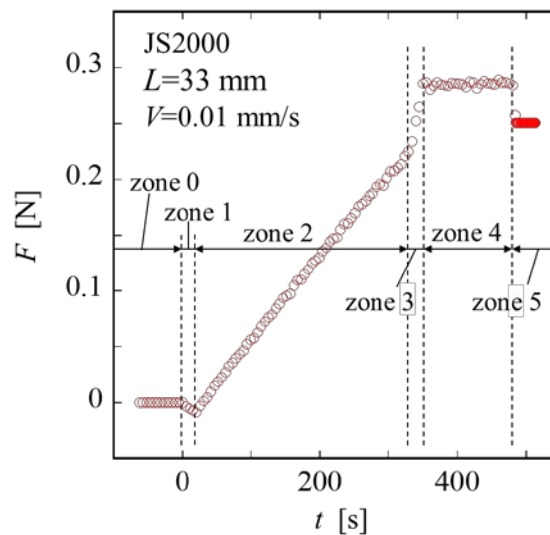


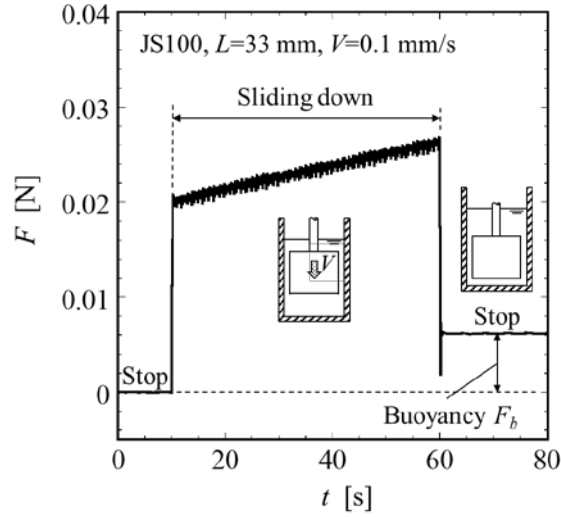
Fig. 4.3. Resistant force acting on the bob  $F$  of JS2000 at a constant speed  $V=0.01$  mm/s.

#### 4.3.2. 領域4において内円筒ボブに作用する反力の測定結果

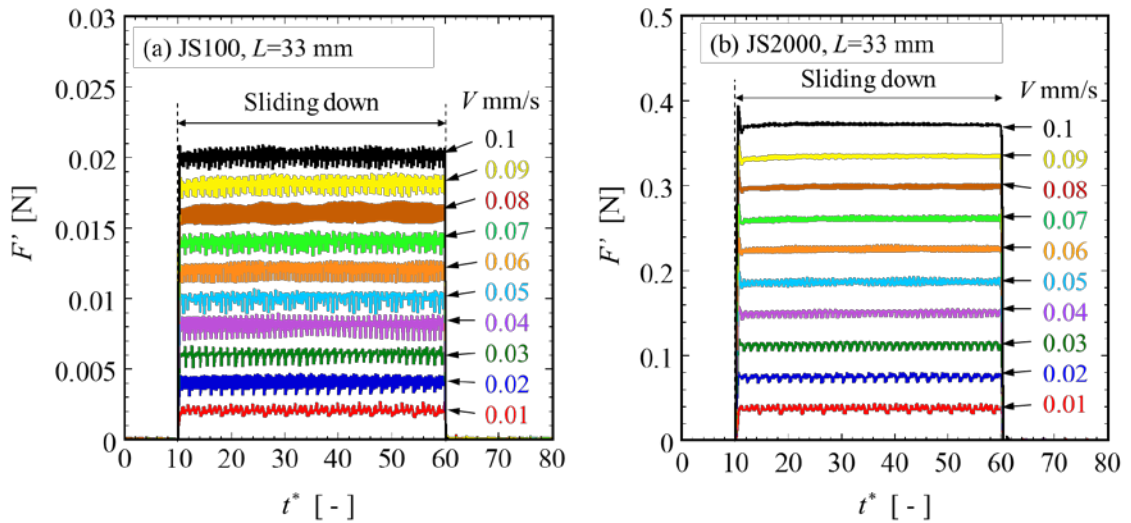
Fig. 4.4 に領域4における押し込み反力  $F$  の時間変化を示す。試料は JS100, ボブの長さは  $L=33$  mm である。流動開始前の状態を統一するためにボブの上面が試料液面より下となる位置まで押し込み、その後一定時間静止させてから測定を開始した。ボブを一定速度で降下させている過程では、ボブを支える中心軸が試料中に押し込まれていくため浮力  $F_b$  が増加し、 $F$  は時間に比例して大きくなる。この状態からボブを停止すると  $F$  は低下し、 $F_b$  に相当する値を示して一定となる。この値を  $F$  から引くことで浮力を補正した反力  $F'$  を得る。浮力  $F_b$  の補正方法については第2章および第3章と同様である(詳細は 2.4.1 項参照)。

Fig. 4.5 に JS100 と JS2000, そして, Fig. 4.6 に PAA0.2wt% の浮力を補正した反力  $F'$  の時間変化を示す。ニュートン流体である JS100 と JS2000 の場合、浮力  $F_b$  を差し引いた  $F'$  は押し込み過程で一

一定の値を保ち、押し込み停止と同時にゼロに戻る。粘弾性流体である PAA0.2wt% の場合、ボブの押し込み開始とともに  $F'$  はオーバーシュートしたのち緩やかに減少し、ほぼ一定の値を保つ。ニュートン流体と異なり押し込み停止後の  $F'$  は PAA0.2wt% の緩和に依存して徐々にゼロに達する。



**Fig. 4.4.** Relationship between the resistant force acting on the bob  $F$  and the time  $t$  in the zone 4 (JS100,  $L=33$  mm,  $V=0.1$  mm/s).



**Fig. 4.5.** Resistant force correcting a buoyancy  $F'$  of (a) JS100 and (b) JS2000 as a function of the time  $t$ .

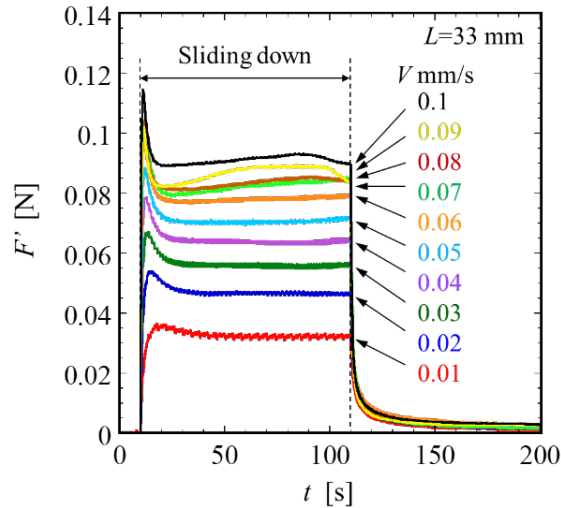


Fig. 4.6. Resistant force correcting a buoyancy  $F'$  of PAA0.2wt% as a function of the time  $t$ .

#### 4.3.3. 領域 4 において内円筒ボブに作用する反力の簡易解析: ニュートン流体

領域 4 において、ボブとカップの側面によって構成されるすき間内の定常に達した流れ場を簡易的に解析する。ここで、Suzuki et al. は同心二重円筒流路の内円筒を微小距離移動させた際に生じる反力を、壁面せん断応力による力とすき間内のせん断変形に起因した圧力損失による力の合力と仮定して解析を行うことにより、液状食品の粘性を評価した<sup>49,50</sup>。そこで、本章ではこれらに加えて流入・流出圧力損失および第一法線応力差による影響も考慮して内円筒ボブに作用する反力を見積もる。

ニュートン流体では第一法線応力差が生じないので、浮力を補正した反力  $F'$  を式(4.1)と仮定する (Fig. 4.1(b)参照)。

$$F' = F - F_b = F_{ss} + F_{sn} + F_{drop} \quad (4.1)$$

ここに、 $F_b$  は浮力を示す(式(2.15))。また、ボブとカップのすき間部ではボブの押し込みによる排除体積に従って試料が上方に向かい流動する。この際、ボブとカップの側面の速度差に起因するクエット型のせん断変形と、ボブ下面の圧力上昇に起因するポアズイユ型のせん断変形の 2 つが合成された流れ場が形成される。ただし、ボブ底面の断面積に対して、ボブとカップのすき間部の断面積が極めて小さいことから、ポアズイユ型のせん断変形が支配的でありクエット型の成分は無視できるほど小さい。また、ボブの降下速度が非常に小さいため慣性力も無視できる。これより、ボブ底面の圧力増加はポアズイユ型のせん断変形に伴う粘性損失が支配的となる。そこで、 $F_{ss}$  をボブ側面に作用する合成された流れ場のせん断応力  $\tau_w$  による力、 $F_{sn}$  をポアズイユ型のせん断変形に起因するボブ上下の圧力差による力と定義する。それぞれ式(4.2)と式(4.3)によって表すことができる。

$$F_{ss} = \int_0^L \tau_w \times 2\pi R_b \times dx = 2\pi R_b L \tau_w \quad (4.2)$$

$$F_{sn} = \int_0^L \left( -\frac{dp}{dx} \right) dx \times \pi R_b^2 = \left( -\frac{dp}{dx} \right) L \pi R_b^2 \quad (4.3)$$

ここに、 $L$ はボブの長さ、 $(-dp/dx)$ は流れ方向の圧力こう配である。さらに、式(4.4)によって示される $F_{drop}$ はすき間の流入・流出圧力損失 $\Delta p_{drop}$ によって生じる力であり、バグレイ・プロットを応用して測定する。

$$F_{drop} = \Delta p_{drop} \times \pi R_b^2 \quad (4.4)$$

したがって、浮力 $F_b$ と流入・流出圧力損失による力 $F_{drop}$ を補正した反力は式(4.5)で示される。

$$F' - F_{drop} = F_{ss} + F_{sn} \quad (4.5)$$

ボブとカップの側面のすき間 $h$ はボブの半径 $R_b$ に対して十分に小さいことから、すき間内の流れ場は二次元定常流れで、かつ、ポアズイユ型のせん断流動が支配的と見なすことができる。また、すき間 $h$ を代表長さとしたレイノルズ数は $10^{-4}$ から $10^{-2}$ のオーダーである。このことから助走区間を無視し、十分に発達した流れ場を想定した。Fig. 4.1(b)に示すように内円筒ボブの下部端を座標原点とし、流れ方向を $x$ 軸、半径方向を $y$ 軸とした直交座標系を適用する。ニュートンの粘性法則を考慮すると流れ場の運動方程式は式(4.6)で表される。

$$0 = \left( -\frac{dp}{dx} \right) + \frac{d\tau}{dy} = \left( -\frac{dp}{dx} \right) + \eta \frac{d^2 v_x}{dy^2} \quad (4.6)$$

式(4.7)で示される境界条件(ボブ壁面で $-V$ 、カップ壁面で速度ゼロ)を考慮することにより、速度分布 $v_x$ は式(4.8)となる。ここに、 $h=R_c-R_b$ である。

$$\begin{cases} y=0, v_x = -V \\ y=h, v_x = 0 \end{cases} \quad (4.7)$$

$$v_x = \frac{h^2}{2\eta} \left( -\frac{dp}{dx} \right) \left\{ \frac{y}{h} - \left( \frac{y}{h} \right)^2 \right\} + V \left( \frac{y}{h} - 1 \right) \quad (4.8)$$

したがって、二次元定常流れと仮定したすき間内の平均流速 $\bar{v}_x$ は式(4.9)で示される。

$$\bar{v}_x = \frac{1}{\pi(R_b + R_c)h} \int_0^h v_x \times \frac{2\pi(R_b + R_c)}{2} \times dy = \frac{h^2}{12\eta} \left( -\frac{dp}{dx} \right) - \frac{V}{2} \quad (4.9)$$

一方で、 $\bar{v}_x$ はボブの移動速度 $V$ から幾何学的に式(4.10)で算出できる。ここに、すき間に生じる体積流量 $Q$ は式(4.11)と仮定する。



$$\bar{v}_x = \frac{\pi R_b^2 V}{\pi(R_b + R_c)h} = \frac{R_b^2 V}{(R_b + R_c)h} \quad (4.10)$$

$$Q = \pi R_b^2 V \quad (4.11)$$

式(4.9)と式(4.10)より, 圧力こう配は式(4.12)で表される.

$$\left(-\frac{dp}{dx}\right) = \frac{12\eta V}{h^3} \left(\frac{R_b^2}{R_b + R_c} + \frac{h}{2}\right) \quad (4.12)$$

また, ボブ壁面におけるせん断速度  $\dot{\gamma}_w$  は式(4.13)となる.

$$\dot{\gamma}_w = \frac{h}{2\eta} \left(-\frac{dp}{dx}\right) + \frac{V}{h} \quad (4.13)$$

ボブ壁面に作用するせん断応力  $\tau_w$  はニュートンの粘性法則より式(4.14)で示すことができる.

$$\tau_w = \eta \dot{\gamma}_w = \frac{h}{2} \left(-\frac{dp}{dx}\right) + \frac{V}{h} \eta \quad (4.14)$$

本章では式(4.5)の左辺を実験によって求め, 右辺を上記の簡易解析によって見積もる. そして, 両者を  $(F' - F_{drop})_{exp.}$  および  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  として比較することにより, バグレイ・プロット<sup>47, 48)</sup>を応用した流入・流出圧力損失の測定手法の妥当性を検討する.

#### 4.3.4. 領域4において内円筒ボブに作用する反力の簡易解析: べき乗則流体

同様の簡易解析をべき乗則流体に対して行う. Fig. 4.1(b)より, べき乗則流体の  $F'$  を式(4.15)のように仮定する.

$$F' = F - F_b = F_{ss} + F_{sn} + F_{drop} + F_{N1} \quad (4.15)$$

ここで, すき間内の流れにおいて第一法線応力差は張力として作用する. そのため, ボブの側壁面に対しては直接的な力は作用せず, 入口側と出口側の圧力に対して影響を与えられ. すき間の出口部分では弾性力の回復のためにボブ上面の圧力が増加し, 下向きの力が発生する. そして, すき間の入口近傍では法線応力によってボブ下部の試料がすき間内へ引っ張られることにより圧力が低下すると推測される. しかし, これらの現象はまだ解析的に正しい把握ができない. したがって, 本手法ではボブとカップのすき間におけるせん断流動によって生じた第一法線応力差は, ボブの上下の間に圧力差を生み, ボブを下から上へ押し上げる力  $F_{N1}$  を発生させると仮定する(Fig. 4.1(b)参照). べき乗則流体の流れ場の導出では, まずボブとカップが静止した状態の十分に発達した二次元ポア

ズイユ流れとボブが速度 $-V$ で移動するクエット流れを別々に導いた。そして、それらを足し合わせることによって $0 < y < h/2$ の領域における二次元定常せん断流れを得た。速度分布 $v_x$ は式(4.16)で表される。

$$v_x = \frac{n}{n+1} \left\{ \frac{1}{K} \left( -\frac{dp}{dx} \right) \right\}^{\frac{1}{n}} \left\{ \left( \frac{h}{2} \right)^{\frac{n+1}{n}} - \left( \frac{h}{2} - y \right)^{\frac{n+1}{n}} \right\} + V \left( \frac{y}{h} - 1 \right) \quad (4.16)$$

ここに、右辺第一項は十分に発達した二次元ポアズイユ流れ、第二項はクエット流れの速度分布を示す。また、平均流速 $\bar{v}_x$ は式(4.17)となる。

$$\bar{v}_x = \frac{2n}{(2n+1)h} \left\{ \frac{1}{K} \left( -\frac{dp}{dx} \right) \right\}^{\frac{1}{n}} \left( \frac{h}{2} \right)^{\frac{2n+1}{n}} - \frac{V}{2} \quad (4.17)$$

したがって、式(4.10)と式(4.17)より、圧力こう配は式(4.18)で表される。

$$\left( -\frac{dp}{dx} \right) = K \left[ \frac{2n+1}{n} \times \frac{V}{2} \times \left( \frac{2}{h} \right)^{\frac{2n+1}{n}} \times \left\{ \frac{R_b^2}{R_b + R_c} + \frac{h}{2} \right\} \right]^n \quad (4.18)$$

ボブ壁面におけるせん断速度 $\dot{\gamma}_w$ は式(4.19)となる。

$$\dot{\gamma}_w = \left\{ \frac{h}{2K} \left( -\frac{dp}{dx} \right) \right\}^{\frac{1}{n}} + \frac{V}{h} \quad (4.19)$$

よって、第一法線応力差 $N_1$ を式(4.20)より評価する。

$$N_1 = \frac{F_{N1}}{\pi R_b^2} = \frac{F' - (F_{ss} + F_{sn} + F_{drop})}{\pi R_b^2} \quad (4.20)$$

#### 4.3.5. バグレイ・プロットを応用した流入・流出圧力損失による力の測定

ボブとカップの側面によって構成されるすき間へ試料が流入・流出する際の流入・流出圧力損失に起因した力 $F_{drop}$ をバグレイ・プロット<sup>47, 48)</sup>の考え方を応用して測定する。Fig. 4.7(a)より、バグレイ・プロットは長さの異なる同じ断面形状の細管で流量 $Q$ が一定となる点での圧力損失 $\Delta p$ を測定し、横軸に長さとの比 $L/R$ 、縦軸に圧力損失 $\Delta p$ のグラフを作成する。そして、グラフの切片( $L/R=0$ )の圧力損失 $\Delta p_0$ を流入・流出圧力損失とする手法である。この考えを利用し、Fig. 4.7(b)のように横軸にボブの長さとの比 $L/h$ 、縦軸に同じボブ押し込み速度 $V$ における浮力を補正した反力 $F'$ をとる。そし

て,  $L/h = 0$  のときの  $F'$  を流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  とし,  $V$  との関係求めた. ここで, 式(4.11)より, すき間に生じる流量  $Q$  は押し込み速度  $V$  の関数であり, 一意の  $V$  が定めれば異なる  $L/h$  においても一定の値を保つ.

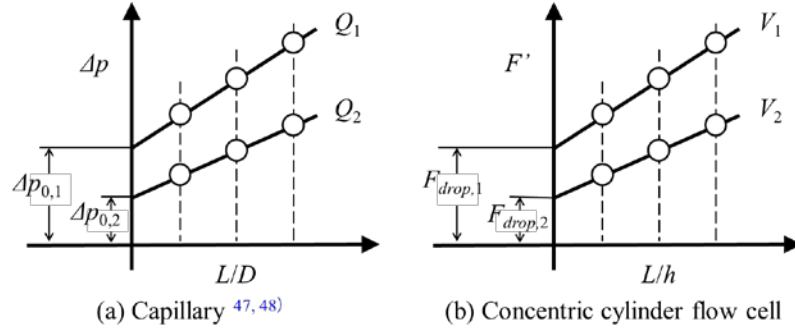


Fig. 4.7. Measurement of the inlet and outlet pressure drop using the Bagley plot (47, 48).

Fig. 4.8 に JS100 および JS2000 のバグレイ・プロットの結果を示す. これらの結果をもとにそれぞれの押し込み速度  $V$  の実験結果を線形近似し,  $L/h=0$  における  $F'$  の値, すなわち, 流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  を求めた. Fig. 4.9 に JS100 と JS2000 における  $F_{drop}$  と  $V$  の関係を示す. Fig. 4.9 より, ニュートン流体では流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  と  $V$  が比例の関係となることがわかる. したがって, 原点を通過する一次関数で実験結果を近似すると, JS100 と JS2000 の流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  はそれぞれ式(4.21)と式(4.22)によって表すことができる.

$$\text{JS100: } F_{drop} = 0.00997V \quad (4.21)$$

$$\text{JS2000: } F_{drop} = 0.146V \quad (4.22)$$

同様の測定を PAA0.2wt% に対して行った. Fig. 4.10 に PAA0.2wt% のバグレイ・プロットの結果を示す. また, Fig. 4.11 に PAA0.2 wt% におけるボブの移動速度  $V$  と流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  の関係を示す. Fig. 4.11 より, 粘弾性流体である PAA0.2 wt% では流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  と  $V$  がべき関数の関係となることがわかる. そこで, 両者の関係をべき関数で近似すると, PAA0.2 wt% の流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  は実験的に式(4.23)によって表すことができる.

$$F_{drop} = 0.0561V^{0.324} \quad (4.23)$$

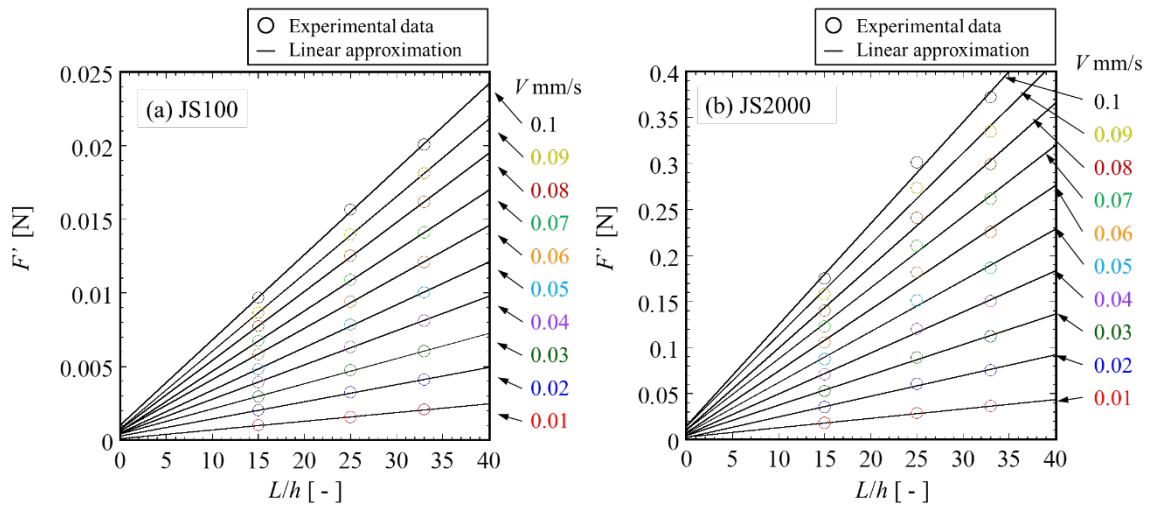


Fig. 4.8. Bagley plots of (a) JS100 and (b) JS2000.

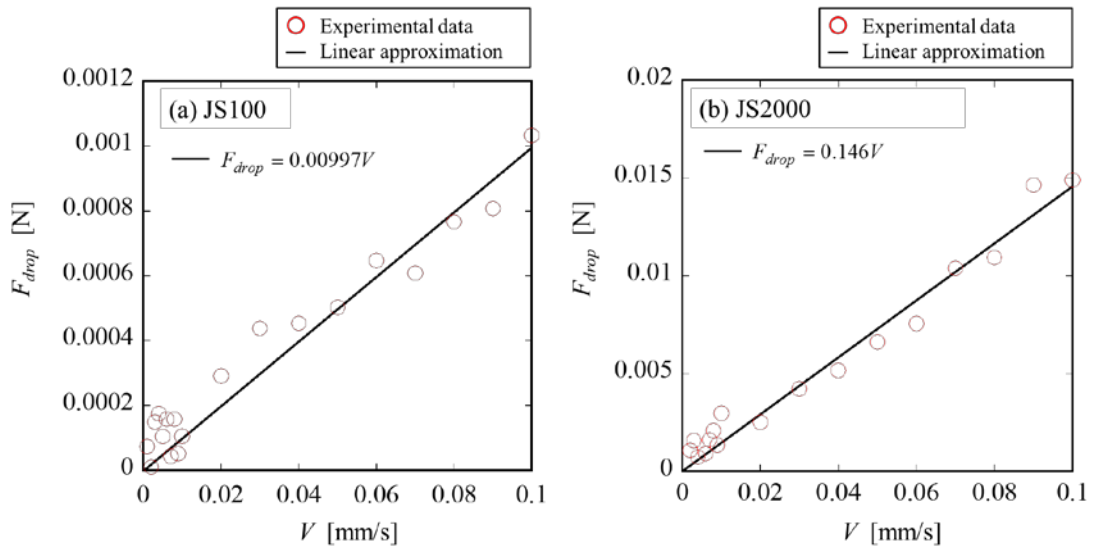


Fig. 4.9. Relationship between the force caused by the inlet and outlet pressure drop  $F_{drop}$  and the bob speed  $V$  of (a) JS100 and (b) JS2000.

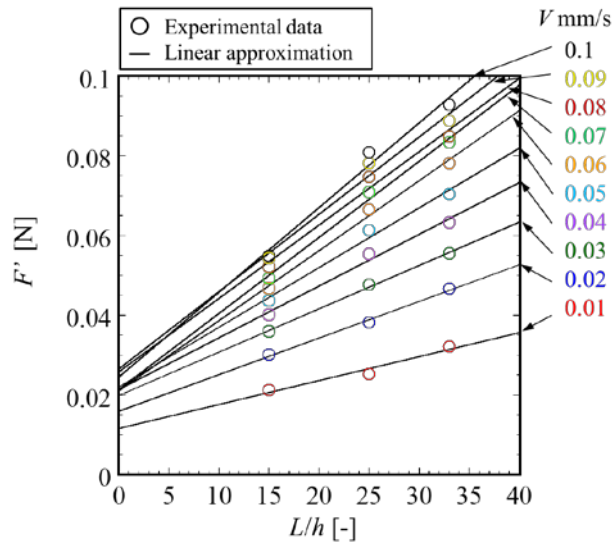


Fig. 4.10. Bagley plots of PAA0.2wt%.

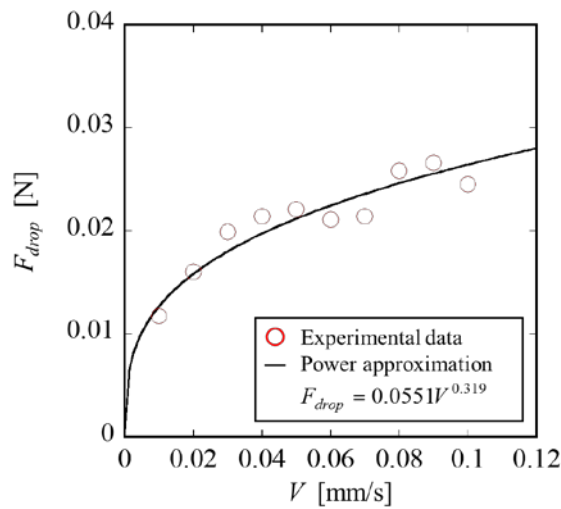


Fig. 4.11. Relationship between the force caused by the inlet and outlet pressure drop  $F_{drop}$  and the bob speed  $V$  of PAA0.2wt%.

#### 4.3.6. 測定結果と計算結果の比較

ボブに作用する反力の測定結果と計算結果の比較を行う。ここで、実験によって得た浮力を補正した反力  $F'$  の平均値を  $F'_{exp}$ 、バグレイ・プロットから求めた流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  を補正した反力を  $(F' - F_{drop})_{exp}$  と表記する。そして、第一法線応力差の影響を含まない式(4.5)より算出される計算結果を  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc}$  とする。式(4.5)よりバグレイ・プロットを応用した流入・流出圧力損失による力の測定が正しく行えており、かつ、簡易解析で導入した仮定が妥当であれば  $(F' - F_{drop})_{exp}$  と  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc}$  は一致するはずである。

Fig. 4.12 に JS100 および JS2000 の比較結果を示す。ニュートン流体の場合、計算結果  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc}$ 。

に対する測定結果  $F'_{exp}$  の相対誤差率は JS100 において約 5.7%, JS2000 において約 4.7% である。これに対し、流入・流出圧力損失による力を補正した  $(F' - F_{drop})_{exp}$  ではそれぞれ約 -1.5% および約 -1.1% となる。流入・流出圧力損失による力を補正した反力よりも計算結果の方が大きくなるものの  $(F' - F_{drop})_{exp} < (F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$ , 両者の値はおおむね一致しているといえる。このことから、バグレイ・プロットを応用した流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  の測定方法はニュートン流体に対して有効であり、この力を考慮することによって測定結果と計算結果がよく一致することが明らかとなった。

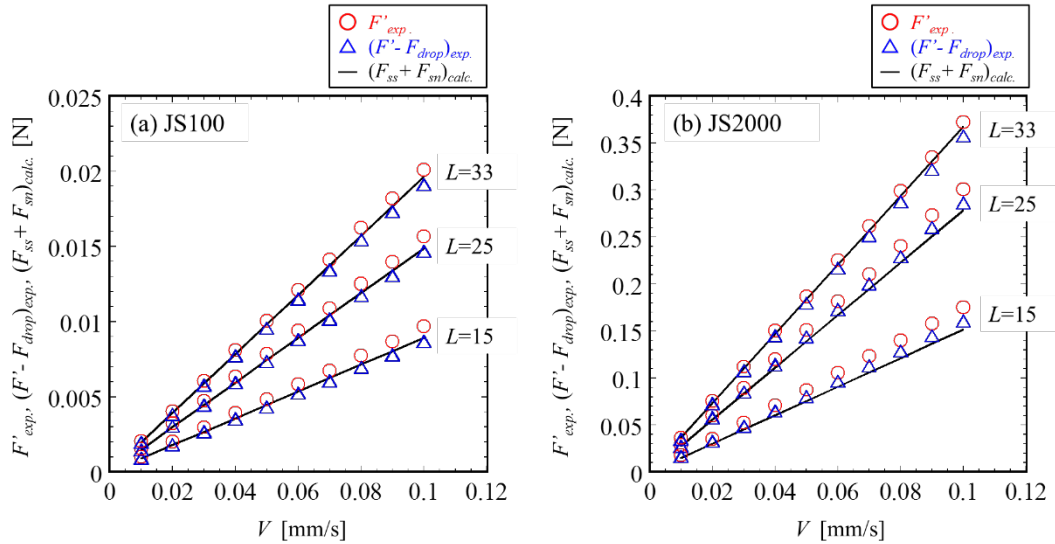


Fig. 4.12. Comparison between the experimental data and the calculation of (a) JS100 and (b) JS2000.

一方, Fig. 4.13 に示す PAA0.2wt% の場合, 測定結果  $F'_{exp}$  および  $(F' - F_{drop})_{exp}$  と計算結果  $F'_{calc.}$  には差が生じることがわかる。本手法ではこの測定結果と計算結果の差が第一法線応力差  $N_1$  の影響を表しており, 式(4.24)を用いて第一法線応力差  $N_1$  の算出を試みる。

$$N_1 = \frac{F_{N1}}{\pi R_b^2} = \frac{F' - (F_{ss} + F_{sn} + F_{drop})}{\pi R_b^2} = \frac{(F' - F_{drop})_{exp} - (F_{ss} + F_{sn})_{calc.}}{\pi R_b^2} \quad (4.24)$$

式(4.24)より,  $(F' - F_{drop})_{exp} > (F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  において,  $N_1 > 0$  となることがわかる。しかし, Fig. 4.13 よりボブの長さを変更した全ての条件において  $(F' - F_{drop})_{exp} < (F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  となるため, 式(4.24)によって見積もられる  $N_1$  は負の値を示すこととなる。さらに, ボブの長さ  $L$  が長くなるにつれて計算結果  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  が測定結果  $F'_{exp}$  および  $(F' - F_{drop})_{exp}$  よりも大きな値となることがわかる。また, 浮力のみを補正を行った測定結果  $F'_{exp}$  の方が  $(F' - F_{drop})_{exp}$  よりも計算結果に近いことが見て取れる。これらは粘弾性流体の簡易解析に対して導入した仮定の問題や考慮できていない影響因子の存在が原因と考える。そのため, 粘弾性流体に対するバグレイ・プロットを応用した流入・流出圧力損失の補正方法については再検討する必要があることが明らかとなった。よって, 本章では流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  を補正して

いない浮力のみを差し引いた反力  $F'_{exp}$  を用い、式(4.25)より第一法線応力差  $N_1$  を評価する。

$$N_1 = \frac{F_{N1}}{\pi R_b^2} = \frac{F' - (F_{ss} + F_{sn})}{\pi R_b^2} = \frac{F'_{exp} - F'_{calc}}{\pi R_b^2} \quad (4.25)$$

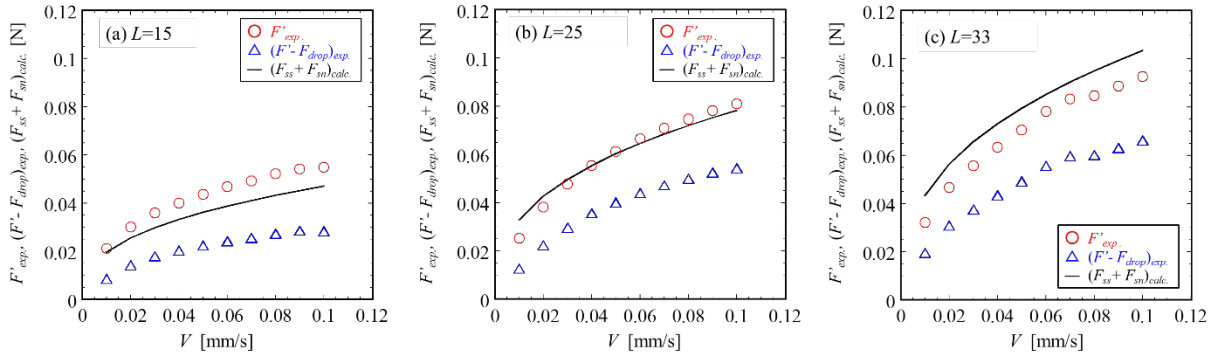
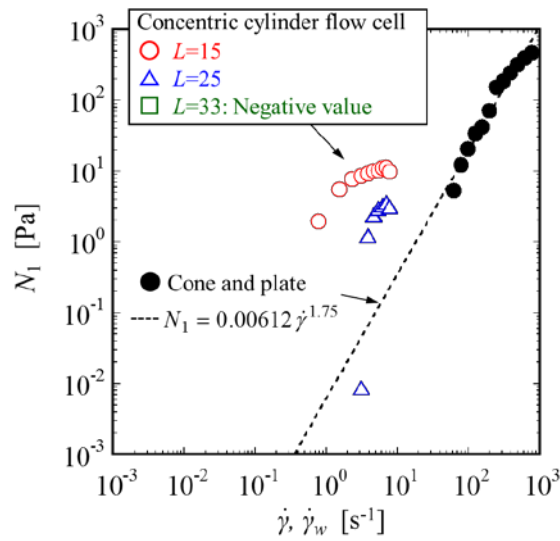


Fig. 4.13. Comparison between the experimental data and the calculation of PAA0.2wt%.

#### 4.3.7. 領域 4 における第一法線応力差の評価

Fig. 4.14 に式(4.25)より算出した PAA0.2wt%の第一法線応力差  $N_1$  を示す。ここで、塗り潰し記号 (●記号) は ARES-LS に円錐円板型流路を取り付けて測定した  $N_1$ , そして、破線は円錐円板型流路で評価した  $N_1$  をべき乗則で近似して低せん断速度側に外挿した予測値を示す。Fig. 4.14 より同心二重円筒流路の内円筒ボブに作用する押し込み反力から評価した  $N_1$  はボブの長さが  $L=15$  mm よりも  $L=25$  mm で評価した値の方が破線の予測値に近くなる。このことから、 $L$  が大きくなると円錐円板型流路の結果に近づく傾向があることがわかった。そして、 $L=25$  mm で評価した  $N_1$  は最も低いせん断速度の結果を除いて円錐円板型流路の結果と定性的に一致した。円錐円板型流路によるトータル・スラスト法においては、スラスト力を測定するセンサーの精度の限界のため評価可能な最低せん断速度は  $60 \text{ s}^{-1}$  程度であり、低せん断側の測定精度は低下する。これに対し内円筒ボブの押し込みの場合、 $L=15$  mm では二桁低いせん断速度  $0.5 \text{ s}^{-1}$  まで評価できている。しかし、評価された結果は使用するボブの長さに依存しており、特に  $L=33$  mm では  $N_1 < 0$  となった。以上のことから、本解析手法がトータル・スラスト法では測定できない低せん断速度領域に適用できること、そして、得られた結果がおおよそ妥当な値であることを示した。一方で、すき間への流入部・流出部の影響が無視でき、すき間内に理想的な流れ場が形成されている場合には  $N_1$  はボブの長さ  $L$  に依存しないと考えられること、さらに、長さの異なる全てのボブにおいて入口・出口圧力損失による力を補正することにより評価した  $N_1$  が負の値となることなど、不合理な結果も生じた。これらは導入した仮定に関する妥当性の問題や見落とししている影響因子の存在が原因と考える。特に本手法で用いたバグレイ・プロットによる入口・出口圧力損失の補正方法については再検討の必要がある。これらについては今後の検討事項とする。



**Fig. 4.14.** Evaluated first normal stress difference  $N_1$  of PAA0.2wt% using the concentric cylinder flow cell in the zone 4.

#### 4.4. 第4章 結言

本章では、同心二重円筒流路の内円筒ボブとカップの側面によって構成されるすき間において発生する流入・流出圧力損失、および、試料が粘弾性流体の場合に生じる第一法線応力差の測定について検討した。その結果、ボブの底面が試料の液面に接しない位置から一定の速度で押し込んでいく過程において反力の変化パターンは6つの領域に分けられることが明らかとなった。また、バグレイ・プロットを応用することによってニュートン流体の流入・流出圧力損失による力  $F_{drop}$  を実験的に見積もることができた。さらに、ニュートン流体では浮力と流入・流出圧力損失を補正した反力の測定結果  $(F' - F_{drop})_{exp.}$  と計算結果  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  がよく一致した。このことから、ニュートン流体の場合にはバグレイ・プロットを応用した流入・流出圧力損失による力の測定が有効であること、そして、簡易解析で導入した仮定が妥当であることが明らかとなった。粘弾性流体である PAA0.2wt% の場合、長さ 25 mm のボブを用いて評価した  $N_1$  が円錐円板型流路の値と定性的に一致した。さらに、同じレオメータを用いた円錐円板型流路による従来のトータル・スラスト法に対して二桁ほど低い低せん断速度領域における評価が可能となった。これらより、同心二重円筒流路の押し込みを利用した本手法は、既存の装置をそのまま使用するだけで低粘度粘弾性流体の第一法線応力差を測定できる可能性を明らかにした。一方で、PAA0.2wt% では浮力のみを補正を行った測定結果  $F'_{exp.}$  の方が  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  に近い値となり、ボブの長さを変更した全ての条件において  $(F' - F_{drop})_{exp.}$  は  $(F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  の 3 分の 2 程度の大きさとなること、さらに、評価された  $N_1$  におけるボブ長さの依存の発生といった不合理性が生じた。これらは粘弾性流体の簡易解析に対して導入した仮定の問題や考慮できていない影響因子の存在、さらに、流入・



流出圧力損失の補正方法の妥当性が原因と考える。このことから、バグレイ・プロットを用いた複雑流体に対する流入・流出圧力損失の補正方法については更なる検討が必要である。したがって、粒子懸濁液のせん断粘度異方性の測定では流入・流出圧力損失による影響の補正を無視することとする。

## 第4章 使用記号一覧

---

記号 : 概要 [単位]

- $F$  : 押し込み反力 [N]  
 $F'$  : 浮力を補正した反力 [N]  
 $F'_{ave}$  : 浮力を補正した反力の平均値 [N]  
 $F_b$  : 浮力 [N]  
 $F'_{exp.}$  : 実験によって得た浮力を補正した反力  $F'$  の平均値 [N]  
 $(F' - F_{drop})_{exp}$  : 流入・流出圧力損失による力を補正した反力 (測定値) [N]  
 $(F_{ss} + F_{sn})_{calc.}$  :  $F_{ss}$  と  $F_{sn}$  の和 (計算値) [N]  
 $F_{drop}$  : 流入・流出圧力損失による力 [N]  
 $F_{N1}$  : 第一法線応力差によって生じる力 [N]  
 $F_{sn}$  : せん断流れの圧力損失によって生じる力 [N]  
 $F_{ss}$  : ボブ側面に作用するせん断応力による力 [N]  
 $h$  : すき間 [m]  
 $K$  : 擬塑性粘度 [Pa s<sup>n</sup>]  
 $L$  : 内円筒ボブの長さ [m]  
 $N_1$  : 第一法線応力差 [Pa]  
 $n$  : 構造粘度指数 [-]  
 $(-dp/dx)$  : 流れ方向の圧力こう配 [Pa/m]  
 $\Delta p_{drop}$  : すき間の入口・出口圧力損失 [Pa]  
 $Q$  : 流量 [m<sup>3</sup>/s]  
 $R_b$  : 内円筒ボブの半径 [m]  
 $R_c$  : カップの半径 [m]  
 $R_s$  : 内円筒ボブのシャフトの半径 [m]  
 $t$  : 時間 [s]  
 $V$  : ボブの押し込み速度 [m/s]  
 $\dot{\gamma}$  : せん断速度 [s<sup>-1</sup>]  
 $\eta$  : 粘度 [Pa s]  
 $\rho$  : 密度 [kg/m<sup>3</sup>]  
 $\tau_w$  : ボブ壁面に作用するせん断応力 [Pa]

## 第 5 章

# 流動配向による粒子懸濁液のせん断粘度異方性

### 5.1. 緒言

本章では形状異方性を有する粒子が分散した懸濁液の粒子配向とせん断粘度異方性の関係を明らかにする。粒子配向による粘度異方性を明らかにするためには流動によって粒子配向を誘起し、さらに、二方向のせん断粘度を同時に評価する必要がある。また、新たに開発する粘度異方性の測定手法は世界の標準的測定法となることを目指し、汎用性を高く、あまり特別な装置を使わない技術にすべきと考える。そこで、市販の回転型レオメータに新たに作製した同心二重円筒流路を取り付けるだけで粘度異方性を評価できる手法を検討する(Fig. 5.1)。第 2 章から第 4 章において市販の回転型レオメータを用いたスライド型レオメータの有効性について述べた。そこで、本測定手法では回転と押し込み動作を同時に行い、それぞれの方向に作用するトルクおよびスラスト力から定常状態におけるせん断粘度を評価する手法を確立する。そして、この測定手法を用いて異方性形状の粒子が分散した懸濁液における粘度異方性について議論する。

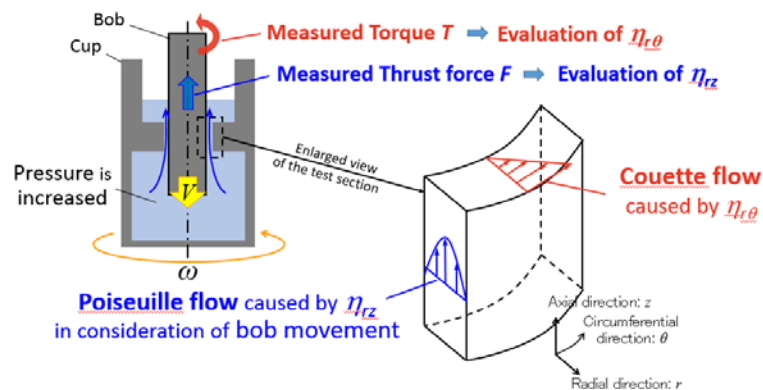
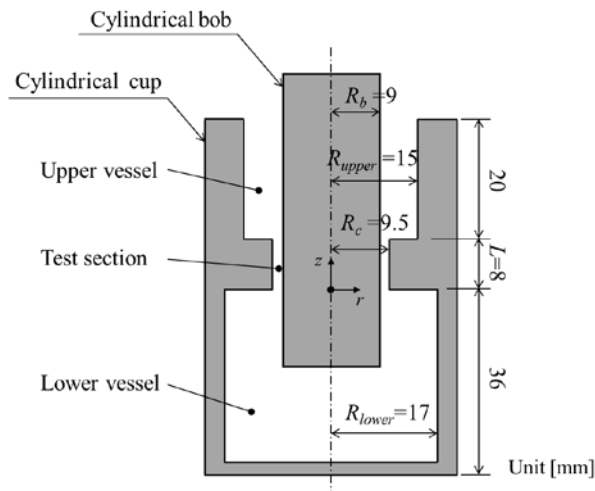


Fig. 5.1. Concept of the evaluation technique of the anisotropic shear viscosity

## 5.2. 実験装置および試料

### 5.2.1. 実験装置

Fig. 5.2 に粘度異方性測定用同心二重円筒流路の概略図を示す. 流路は急縮小部を持つ円筒型カップと直径が一定の内円筒ボブによって構成される. カップとボブの側面によって構成される急縮小部におけるすき間が試験部であり, その上下のすき間は試料たまり部となる. 測定のプラットフォームとしてひずみ制御型の回転型レオメータ ARES-G2 (TA Instruments 社) を用いた. この回転型レオメータのスラスト軸に内円筒ボブ, 回転軸に急縮小部付カップをそれぞれ取り付ける. Fig. 5.3 に実験の手順を示す. まず, カップ上端から 20 mm の位置まで試料を充填する. そして, 内円筒ボブを 32 mm の位置まで挿入し, カップを一定の角速度  $\omega$  で回転させる. これによりボブとカップのすき間には半径方向に速度こう配を持つクエット流れが生じ, この流動抵抗によってボブにはトルクが作用する. ボブに作用するトルクが安定した後, カップの回転を保ちつつボブを一定速度  $V$  で降下させる. この動作によって, 下部の試料たまり部から押し出された試料は試験部  $L$  に流入し, 上部試料たまり部へ流出する. この際, 試験部入口近傍では伸張流動が発生するため, 粒子は軸方向へ配向した状態で試験部へ流入する. さらに, この上方への流動は圧力差により駆動されることから試験部における流れ場はポアズイユ流れとなり, 液面と下部試料たまり部の間に圧力差を生じる. これがボブ底面を押し上げるスラスト力として作用する. 以上から, カップの回転とボブの押し込みが同時に行われているとき, 試験部では回転方向のポアズイユ流れと軸方向のクエット流れが合成した螺旋状の流れ場が生じることとなる. したがって, トルクとスラスト力はこの流れ場において生じる力の回転方向と押し込み方向の成分を表している. この一連の実験過程においてボブに作用するトルクおよびスラスト力を測定することにより, 互いに直交する二方向のせん断粘度を同時に評価する(Fig. 5.1 参照). また, クエット流れおよびポアズイユ流れはカップの角速度  $\omega$  とボブの押し込み速度  $V$  を変えることでそれぞれ独立かつ任意に制御できる.



**Fig. 5.2.** Schematic diagram of a concentric cylinder flow cell. This flow cell consists of a cylindrical cup with an annular abrupt contraction section, which is a test section, and a cylindrical bob ( $R_b=9$  mm).

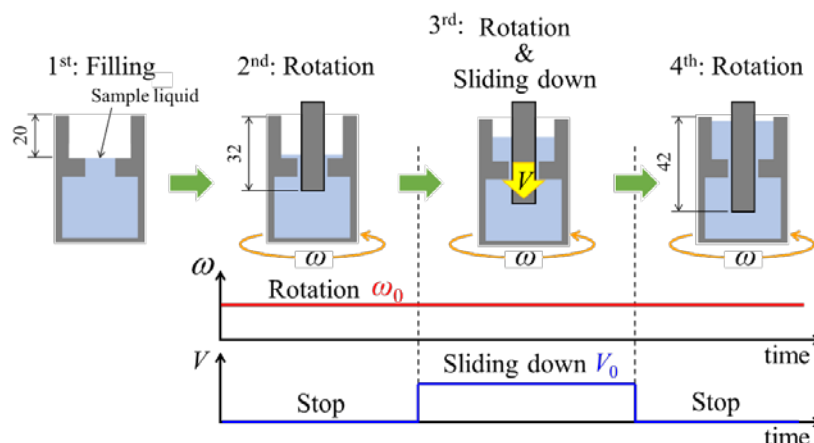


Fig. 5.3. Schematic diagram of an experimental procedure.

### 5.2.2. 試料

ニュートン流体としてせん断粘度が  $1.08 \text{ Pa s}$  のシリコンオイル(KF-96-1000cs, 信越化学工業,  $\mu=1.08 \text{ Pa s}$ )を用いた. 懸濁液は粒子形状がせん断粘度異方性に及ぼす影響を明らかにするため, 球状粒子および棒状粒子をシリコンオイルへそれぞれ分散させた二種類の懸濁液を用意した. 球状粒子懸濁液の体積濃度比は  $25.0\text{vol}\%$ とした. また, 棒状粒子懸濁液の体積濃度比は  $2.8, 5.7, 11.9, 15.2, 18.8, 26.4\text{vol}\%$ とした. 粒子はスターラ等を用いた攪拌によって分散させており, 界面活性剤は添加していない. Fig. 5.4 に球状粒子の粒子径分布, Fig. 5.5(a)と(b)に棒状粒子の長さおよび粒子径分布を示す. また, Fig. 5.6(a)と(b)に球状粒子懸濁液と棒状粒子懸濁液の定常粘弾性試験結果をそれぞれ示す. Fig. 5.6 より, およそ同じ体積濃度比の懸濁液でも棒状粒子を分散させる方が球状粒子を分散させるよりも粘度が高くなるのがわかる. また, 低せん断速度領域におけるシアシニングも棒状粒子懸濁液の方が顕著に表れることがわかる.

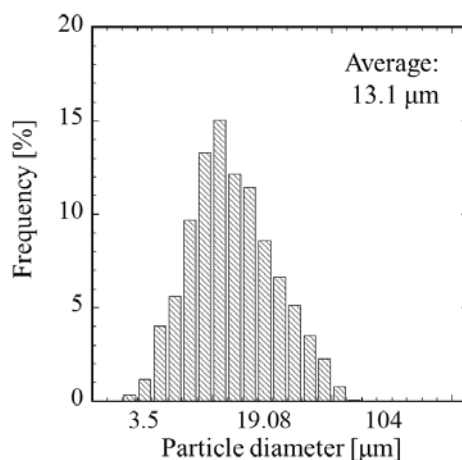
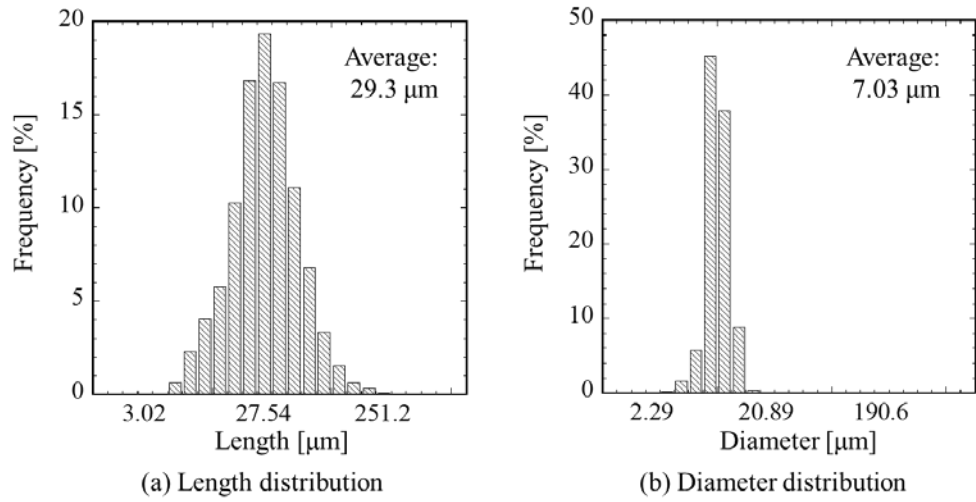
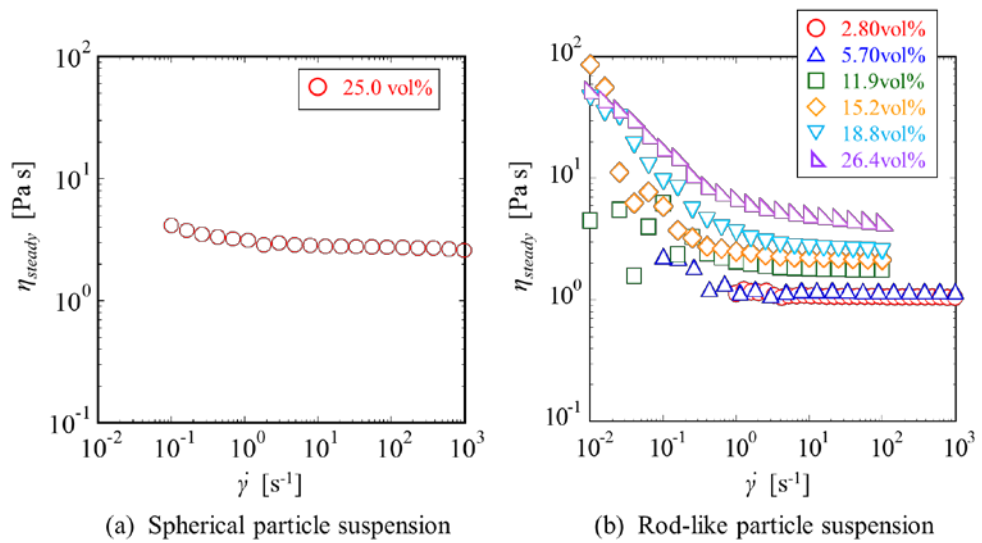


Fig. 5.4. Particle diameter distribution of the spherical particle.



**Fig. 5.5.** Length and diameter distribution of the rod-like particle.



**Fig. 5.6.** Flow property of each suspensions as a function of shear rate  $\dot{\gamma}$ .

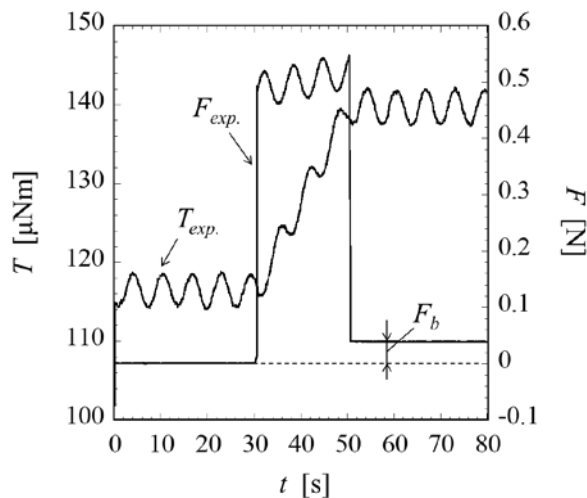
### 5.3. 実験結果および考察

#### 5.3.1. 内円筒ボブに作用するトルクとスラスト力の補正過程

本手法では試験部における回転方向と押し込み方向のせん断粘度を算出し、評価する。しかし、実験によって得られたトルクおよびスラスト力の測定値には試験部以外の影響も含まれている。したがって、試験部の流動によって生じた反力を得るためには測定値の補正が必要である。そこで、シリコーンオイルの実験結果を用いてその補正過程を解説する。

##### 5.3.1.1. トルクとスラスト力の測定値

Fig. 5.7 にカップの角速度を  $\omega=1.0$  rad/s, ボブの押し込み速度を  $V=0.5$  mm/s としたときのシリコーンオイルの実験結果を示す。Fig. 5.7 の縦軸はボブに作用するトルク  $T_{exp.}$  とスラスト力  $F_{exp.}$  の測定値、横軸は実験を始めた時刻をゼロとした時間  $t$  を表す。この実験の総時間は 80 s であり、カップは終始角速度  $\omega=1.0$  rad/s で回転している。また、ボブは  $30 < t < 50$  s の間に  $V=0.5$  mm/s で 10 mm 下方へ移動する。 $0 < t < 30$  s の領域ではカップが回転しているだけなので試料との濡れ面積に応じたトルクのみを示し、スラスト力はゼロとなる。ここで、スラスト力に関しては初期位置において作用する浮力をゼロと定義している。 $30 < t < 50$  s の領域ではカップの回転が保たれたままボブが押し込まれるため、トルクは濡れ面積の増加量に比例して大きくなる。さらに、スラスト力はボブの押し込みによって生じた流れによる壁面せん断応力と圧力損失によって急激に増加する。そして、ボブの下降に伴う浮力  $F_b$  により、押し込み中は時間  $t$  に比例して大きくなる。 $50 < t < 80$  s の領域ではボブの押し込みによって生じた濡れ面積の増加分に相当するトルク、そして、スラスト力は浮力に等しい値を示して一定を保つ。測定結果に見られる周期的な変動(変動周期: 6.08 s)はカップの角速度  $\omega=1.0$  rad/s における回転周期 6.28 s と同程度であるため、流路形状の精度に依存する問題と考えられる。



**Fig. 5.7.** Measured torque  $T_{exp.}$  and thrust force  $F_{exp.}$  as a function of time  $t$ . The angular velocity is 1.0 rad/s, and the bob speed is 0.5 mm/s. The test sample is the silicone oil.

### 5.3.1.2. 測定されたトルクの補正

まず、トルクの補正過程について記す。トルクの測定値を構成する因子を式(5.1)と仮定する(Fig. 5.8 参照)。

$$T_{exp.} = T + T_{sample} + T_{upper} + T_{lower} + T_{bottom} \quad (5.1)$$

ここに、 $T$  は試験部に作用するトルクを示す。また、 $T_{sample}$  は試料注入量の差によるトルクを示し、実験値から補正する。 $T_{upper}$  および  $T_{lower}$  は上下の試料たまり部に作用するトルクを示し、式(5.2)と式(5.3)より算出される。

$$\begin{aligned} T_{upper} &= 2\pi R_b \times L_{upper} \times \tau_{r\theta} \times R_b \\ &= 4\pi\omega \frac{R_b^4 R_{upper}^2}{(R_{upper}^2 - R_b^2)^2} (l_0 + Vt) \times \eta_{steady} \end{aligned} \quad (5.2)$$

$$\begin{aligned} T_{lower} &= 2\pi R_b \times L_{lower} \times \tau_{r\theta} \times R_b \\ &= 4\pi\omega \frac{R_b^2 R_{lower}^2}{R_{lower}^2 - R_b^2} \{(l_0 - L) + Vt\} \times \eta_{steady} \end{aligned} \quad (5.3)$$

ここに、 $L_{upper}$  および  $L_{lower}$  は上下試料たまり部におけるボブと試料との濡れ幅、 $l_0$  はボブの初期押し込み距離、 $\eta_{steady}$  は定常粘弾性試験より得られるせん断粘度を示す。式(5.2)と式(5.3)はカップの回転により上下試料たまり部とカップの間に流れ方向が周方向、速度こう配方向が半径方向のクエット流れが生じると仮定し、円筒座標系を用いて導いた。そして、 $T_{bottom}$  はボブの底面に作用するトルクを示し、ボブ底面とカップとの間にクエット流れが生じると仮定すると式(5.4)より求めることができる。

$$\begin{aligned} T_{bottom} &= \int_0^{R_b} dT_{bottom} \\ &= \int_0^{R_b} 2\pi \times \eta_{steady} \times \frac{r^3 \omega}{h} \times dr \\ &= \frac{\pi \times \eta_{steady} \times \omega}{2h} \times R_b^4 \end{aligned} \quad (5.4)$$

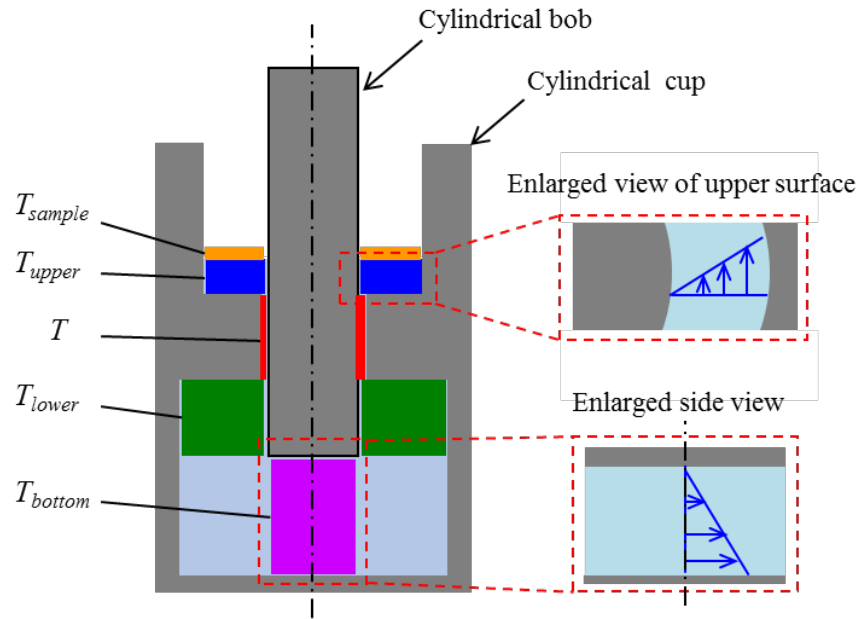
ここに、 $h$  はボブ底面からカップまでの長さである。また、せん断速度は半径の関数となるが、ここではボブ半径  $R_b$  の値を使用した。以上から、式(5.2)、(5.3)、(5.4)および実験から得られた  $T_{sample}$  を式(5.1)に代入することにより、試験部に作用するトルク  $T$  は式(5.5)によって求めることができる。

$$T = T_{exp.} - (T_{sample} + T_{upper} + T_{lower} + T_{bottom}) \quad (5.5)$$

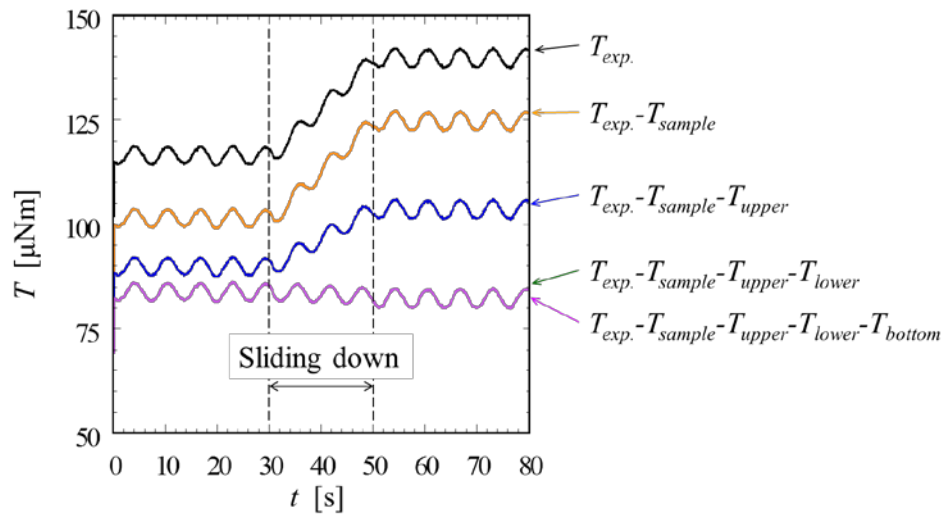
Fig. 5.7 で示したトルクの測定値の補正過程を Fig. 5.9 に示す。Fig. 5.9 より、補正を行うことでボブの濡れ面積増加に伴うトルクの上昇分が排除されるため、最終的に算出された試験部に作用するトルク  $T$  はほぼ一定値となることがわかる。また、 $T_{bottom}$  の値は非常に小さいため無視できることが明らかと



なった.



**Fig. 5.8.** Breakdown of the measured torque  $T_{exp}$  acting on the bob.



**Fig. 5.9.** Correction process of the measured torque  $T_{exp}$ . The angular velocity is 1.0 rad/s, and the bob speed is 0.5 mm/s. The test sample is the silicone oil.

### 5.3.1.3. 測定されたスラスト力の補正

同様に、スラスト力の補正過程について記す。スラスト力の測定値を構成する因子を式(5.1)と仮定する(Fig. 5.10 参照)。

$$F_{exp.} = F + F_b + F_{upper} + F_{lower} \quad (5.6)$$

ここに、 $F$  は試験部の流動によって生じるスラスト力を示す。また、 $F_b$  はボブに作用する浮力を示し、式(5.7)より算出される。

$$F_b = \rho g \pi R_b^2 \left( 1 + \frac{R_b^2}{R_{upper}^2 - R_b^2} \right) Vt \quad (5.7)$$

さらに、 $F_{upper}$  および  $F_{lower}$  は上下の試料たまり部に作用するスラスト力を示す。ボブの押し込みにより上下試料たまり部とカップの間に流れ方向が軸方向、速度こう配方向が半径方向のクエット流れが生じると仮定することにより、式(5.8)と式(5.9)より算出される。

$$\begin{aligned} F_{upper} &= 2\pi R_b \times L_{upper} \times \tau_{rz} \\ &= 2\pi \times \frac{R_b^2}{R_{upper}^2 - R_b^2} (l_0 + Vt) \times \eta_{steady} \times \frac{V}{\ln \frac{R_{upper}}{R_b}} \end{aligned} \quad (5.8)$$

$$\begin{aligned} F_{lower} &= 2\pi R_b \times L_{lower} \times \tau_{rz} \\ &= 2\pi \times ((l_0 - L) + Vt) \times \eta_{steady} \times \frac{V}{\ln \frac{R_{lower}}{R_b}} \end{aligned} \quad (5.9)$$

以上から、式(5.7)、(5.8)、(5.9)を式(5.6)に代入することにより、試験部の流動によって生じるスラスト力  $F$  は式(5.10)によって求めることができる。

$$F = F_{exp.} - (F_b + F_{upper} + F_{lower}) \quad (5.10)$$

Fig. 5.7 で示したスラスト力の測定値の補正過程を Fig. 5.11 に示す。Fig. 5.11 より、浮力  $F_b$  の補正を行った反力は押し込み過程で一定の値を保つことがわかる。これはボブの押し込みによって形成された流れ場が定常状態に達していることを意味している。また、 $F_{upper}$  および  $F_{lower}$  の値は非常に小さいため無視できることが明らかとなった。

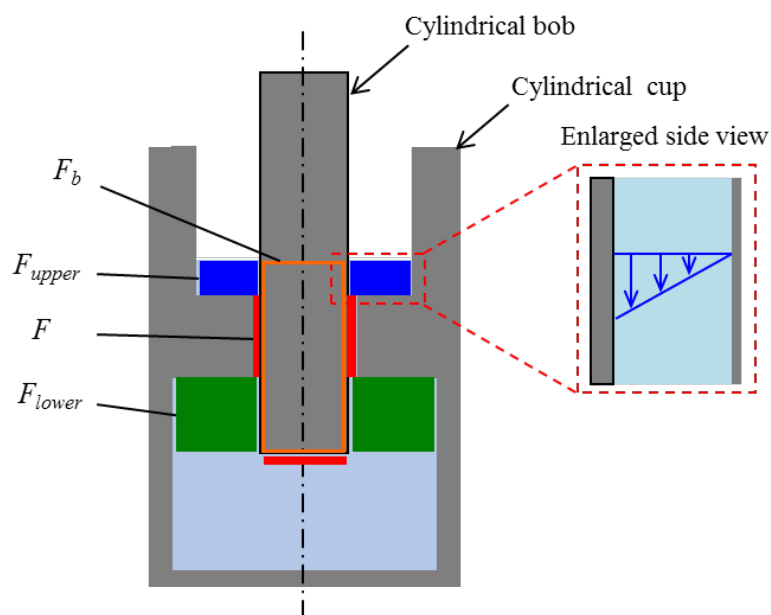


Fig. 5.10. Breakdown of the measured thrust force  $F_{exp.}$  acting on the bob.

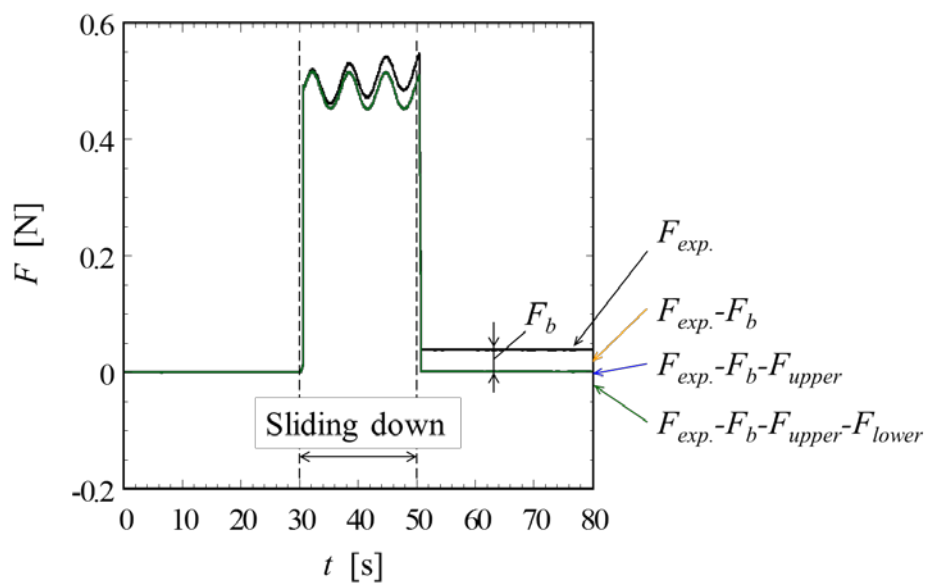


Fig. 5.11. Correction process of the measured thrust force  $F_{exp.}$ . The angular velocity is 1.0 rad/s, and the bob speed is 0.5 mm/s. The test sample is the silicone oil.

### 5.3.2. 回転方向および押し込み方向のせん断粘度評価式の導出

5.3.1.項より, 測定値から試験部の流動によって発生したトルク  $T$  とスラスト力  $F$  を抽出することができた. そこで, 流れ場を簡易的に解析することにより, これらの値から回転方向と押し込み方向のせん断粘度を算出する.

#### 5.3.2.1. 回転方向のせん断粘度評価式

まず, 試験部における回転方向のせん断粘度  $\eta_{r\theta}$  を導出する. 試験部に作用するトルク  $T$  は内円筒ボブの側面に働くせん断応力  $\eta_{r\theta}$  によって生じると仮定すると, 式(5.11)で表すことができる.

$$\begin{aligned} T &= (2\pi R_b \times L) \times \tau_{r\theta} \times R_b \\ &= (2\pi R_b \times L) \times \eta_{r\theta} \times \dot{\gamma}_{r\theta} \Big|_{r=R_b} \times R_b \end{aligned} \quad (5.11)$$

ここに,  $\dot{\gamma}_{r\theta} \Big|_{r=R_b}$  はボブ壁面せん断速度である. 回転によって試験部に生じる流れ場をクエット流れ場と仮定すると, 運動方程式は式(5.12)で示される.

$$0 = \frac{d}{dr} (r^2 \tau_{r\theta}) \quad (5.12)$$

ニュートン流体を想定し, さらに, 式(5.13)の境界条件を用いることによって流れ場の速度分布  $v_\theta$  とボブ壁面せん断速度  $\dot{\gamma}_{r\theta} \Big|_{r=R_b}$  はそれぞれ式(5.14)と(5.15)で表すことができる. Fig. 5.12 に式(5.14)より算出した回転方向の速度分布を示す. 角速度  $\omega$  は 1.0 rad/s である.

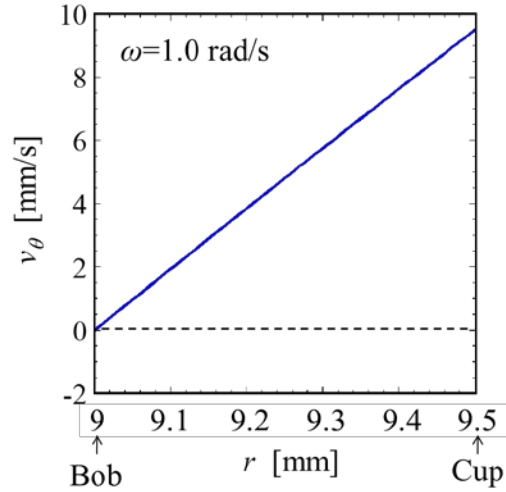
$$\begin{cases} r = R_b, v_\theta = 0 \\ r = R_c, v_\theta = R_c \omega \end{cases} \quad (5.13)$$

$$v_\theta = \frac{R_c^2 \omega}{R_c^2 - R_b^2} \left\{ 1 - \left( \frac{R_b}{r} \right)^2 \right\} r \quad (5.14)$$

$$\dot{\gamma}_{r\theta} \Big|_{r=R_b} = \frac{2\omega R_c^2}{R_c^2 - R_b^2} \quad (5.15)$$

したがって, 試験部における回転方向のせん断粘度  $\eta_{r\theta}$  は式(5.15)を式(5.11)へ代入することにより, 式(5.16)から導くことができる.

$$\eta_{r\theta} = \frac{T}{4\pi\omega L} \left( \frac{R_c^2 - R_b^2}{R_b^2 R_c^2} \right) \quad (5.16)$$



**Fig. 5.12.** Velocity distribution of the circumferential direction  $v_\theta$  calculated by eq. (5.14). The angular velocity is 1.0 rad/s.

### 5.3.2.2. 押し込み方向のせん断粘度評価式

次に、試験部における押し込み方向のせん断粘度  $\eta_{rz}$  を導出する。試験部の流動によって生じたスラスト力  $F$  を式(5.17)と考える。

$$F = F_{ss} + F_{sn} \quad (5.17)$$

ここに、 $F_{ss}$  はボブ側面に作用するせん断応力による力(式(5.18))、 $F_{sn}$  は試験部におけるポアズイユ流れによって生じた圧力損失による力(式(5.19))である。試験部における入口・出口圧力損失による力は考慮しない。

$$\begin{aligned} F_{ss} &= \int_0^L \tau_{rz} \times 2\pi R_b \times dz \\ &= 2\pi R_b L \times \tau_{rz} \\ &= 2\pi R_b L \times (\eta_{rz} \times \dot{\gamma}_{rz}|_{r=R_b}) \end{aligned} \quad (5.18)$$

$$\begin{aligned} F_{sn} &= \int_0^L \left( -\frac{dp}{dz} \right) dz \times \pi R_b^2 \\ &= \left( -\frac{dp}{dz} \right) L \pi R_b^2 \end{aligned} \quad (5.19)$$

$(-dp/dz)$ は試験部のポアズイユ流れによって生じた押し込み方向の圧力こう配である。ここで、ボブとカップの側面のすき間( $R_c - R_b$ )はボブの半径  $R_b$  に対して十分に小さいことから、すき間内のせん断流れを内円筒ボブの移動を考慮した二次元ポアズイユ流れと仮定する。さらに、すき間を代表長さとしたレイノルズ数は  $10^{-5}$  から  $10^{-2}$  のオーダーであることから助走区間を無視すると、流れ場の運動方程式は

式(5.20)で示される.

$$0 = -\frac{dp}{dz} + \frac{1}{r} \frac{d}{dr} (r\tau_{rz}) \quad (5.20)$$

ニュートン流体を想定し, さらに, 式(5.21)の境界条件を用いることによって流れ場の速度分布  $v_z$  と圧力こう配 ( $-dp/dz$ ), そして, ボブ壁面せん断速度  $\dot{\gamma}_{rz}|_{r=R_b}$  はそれぞれ式(5.22), (5.23), (5.24)で表すことができる. Fig. 5.13 に式(5.22)より算出した押し込み方向の速度分布を示す. 押し込み速度  $V$  は 1.0 mm/s である. ボブの移動を考慮しているため, ボブ壁面近傍の流れ場は負の値となる.

$$\begin{cases} r = R_b, v_z = -V \\ r = R_c, v_z = 0 \end{cases} \quad (5.21)$$

$$v_z = \frac{1}{4\eta_{rz}} \left( -\frac{dp}{dz} \right) \left( -r^2 + R_c^2 + \frac{R_b^2 - R_c^2}{\ln \frac{R_b}{R_c}} \ln \frac{|r|}{R_c} \right) - V \frac{1}{\ln \frac{R_b}{R_c}} \ln \frac{|r|}{R_c} \quad (5.22)$$

$$\left( -\frac{dp}{dz} \right) = \frac{4\eta_{rz} V \left[ 2R_b^2 - \frac{1}{\ln \frac{R_b}{R_c}} \left\{ R_c^2 - R_b^2 \left( 1 + 2 \ln \frac{R_c}{R_b} \right) \right\} \right]}{R_c^4 + R_b^4 - 2R_b^2 R_c^2 - \frac{R_b^2 - R_c^2}{\ln \frac{R_b}{R_c}} \left\{ R_c^2 - R_b^2 \left( 1 + 2 \ln \frac{R_c}{R_b} \right) \right\}} \quad (5.23)$$

$$\dot{\gamma}_{rz}|_{r=R_b} = \frac{1}{2\eta_{rz}} \left( -\frac{dp}{dz} \right) \left( \frac{R_b^2 - R_c^2}{2R_b \ln \frac{R_b}{R_c}} - R_b \right) - \frac{V}{R_b \ln \frac{R_b}{R_c}} \quad (5.24)$$

したがって, 試験部における押し込み方向のせん断粘度  $\eta_{rz}$  は上式を式(5.17)へ代入することにより, 式(5.25)から導くことができる.

$$\eta_{rz} = \frac{F}{\frac{2\pi LV (R_c^2 + R_b^2)}{(R_c^2 + R_b^2) \ln \frac{R_c}{R_b} - (R_c^2 - R_b^2)}} \quad (5.25)$$

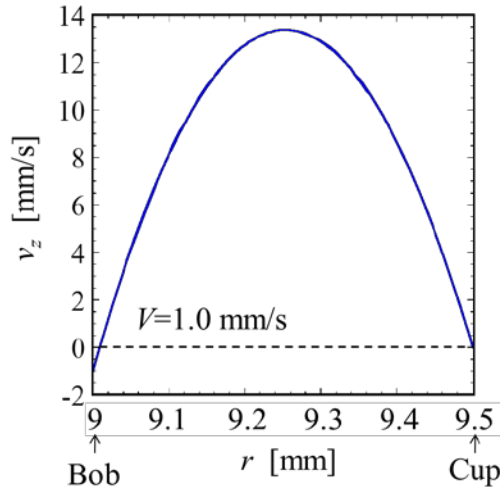


Fig. 5.13. Velocity distribution of the axial direction  $v_z$  calculated by eq. (5.14). The bob speed is 1.0 rad/s.

### 5.3.3. ニュートン流体を用いた測定手法の検定

直交する二方向のせん断粘度同時測定手法をニュートン流体の評価結果から検定する. 試験部の流動によるトルク  $T$  およびスラスト力  $F$  の定常値を式(5.16), 式(5.25)に代入し, 回転方向のせん断粘度  $\eta_{r\theta}$  と押し込み方向のせん断粘度  $\eta_{rz}$  を算出した. Fig. 5.14 にニュートン流体であるシリコンオイルの結果を示す. ここで, 白抜き記号は回転方向のせん断粘度  $\eta_{r\theta}$ , 塗り潰し記号は押し込み方向のせん断粘度  $\eta_{rz}$  を示す. 同じ形の記号が同じ実験で同時に評価した回転方向と押し込み方向のせん断粘度の対を意味し, 形の違いは角速度の違いを表す. 破線はカップの回転のみで測定した回転方向のせん断粘度  $\eta_{r\theta}(V=0)$ , 一点鎖線はボブの押し込みのみで測定した押し込み方向のせん断粘度  $\eta_{rz}(\omega=0)$ , 実線は定常粘弾性試験で得られたせん断粘度  $\eta_{steady}$  を示す. 横軸は二方向のせん断流れを合成した螺旋状の流れ場のせん断速度  $\dot{\gamma}_{res.}$  である(式(5.26)<sup>51</sup>). 同じ形の記号における  $\dot{\gamma}_{res.}$  の大小はカップの回転速度を固定してボブの押し込み速度  $V$  を変化させて行った実験を示している.

$$\dot{\gamma}_{res.} = \sqrt{\left(\dot{\gamma}_{r\theta}|_{r=R_b}\right)^2 + \left(\dot{\gamma}_{rz}|_{r=R_b}\right)^2} \quad (5.26)^{51}$$

視認性のため, それぞれの図において(a)に回転方向のせん断粘度  $\eta_{r\theta}$ , (b)に押し込み方向のせん断粘度  $\eta_{rz}$ , (c)に  $\eta_{r\theta}$  と  $\eta_{rz}$  をまとめたグラフを示す. Fig. 5.14(a)と(b)より, シリコンオイルの  $\eta_{r\theta}$  と  $\eta_{rz}$  はせん断速度に依存せず一定の値を保つこと, そして, 評価した粘度は定常粘弾性試験の結果と良い一致を示すことがわかる. 定常粘弾性試験結果  $\eta_{steady}$  に対する  $\eta_{r\theta}$  と  $\eta_{rz}$  の相対誤差率はそれぞれ-2.67%, -6.56%である. さらに, Fig. 5.14(c)より, 同じ実験条件で同時に評価した二方向のせん断粘度はおおよそ一致することがわかる. 以上から, 本測定手法はニュートン流体のせん断粘度がせん断速度に依存

しない性質，すなわち，等方的である性質を正しく計測でき，さらに，粘度そのものの定量的評価も精度よく行えることがわかった．したがって，本研究で提案した直交する二方向のせん断粘度同時測定手法は妥当な性能を有することが明らかとなった．

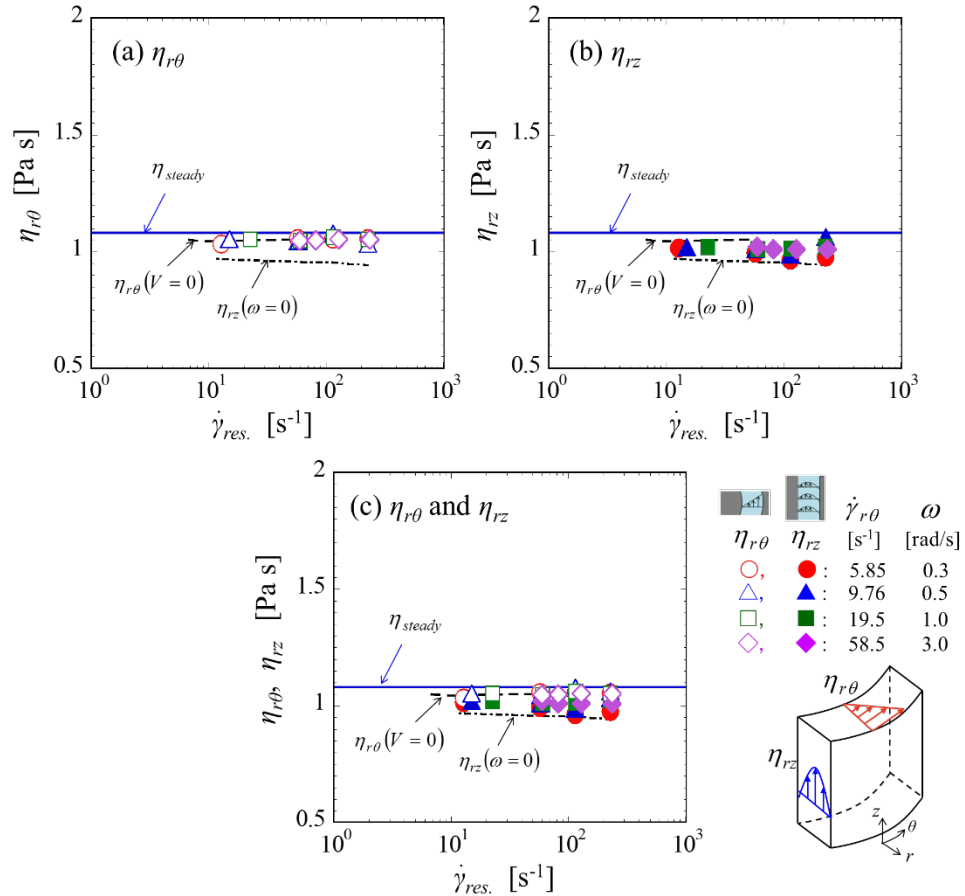


Fig. 5.14. Evaluated viscosities in the circumferential and the axial direction of the silicone oil.

### 5.3.4. 懸濁液におけるせん断粘度異方性の発現

確立した手法を用いて懸濁液のせん断粘度異方性に及ぼす粒子形状および粒子分散濃度の影響を検討する．

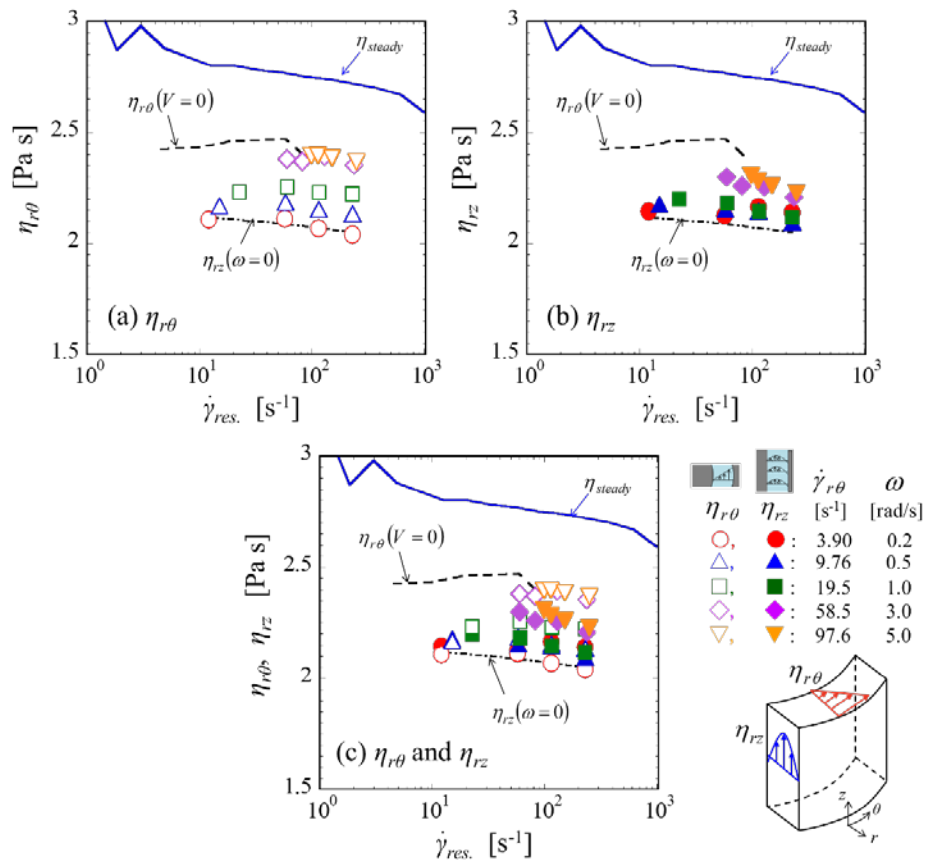
#### 5.3.4.1. 粒子形状の検討

球状粒子または棒状粒子を同程度の体積濃度比で分散させた懸濁液をそれぞれ用意し，粒子形状がせん断粘度異方性に及ぼす影響について検討する．実験には体積濃度比が 25.0vol%の球状粒子懸濁液，26.4vol%の棒状粒子懸濁液を用いる．

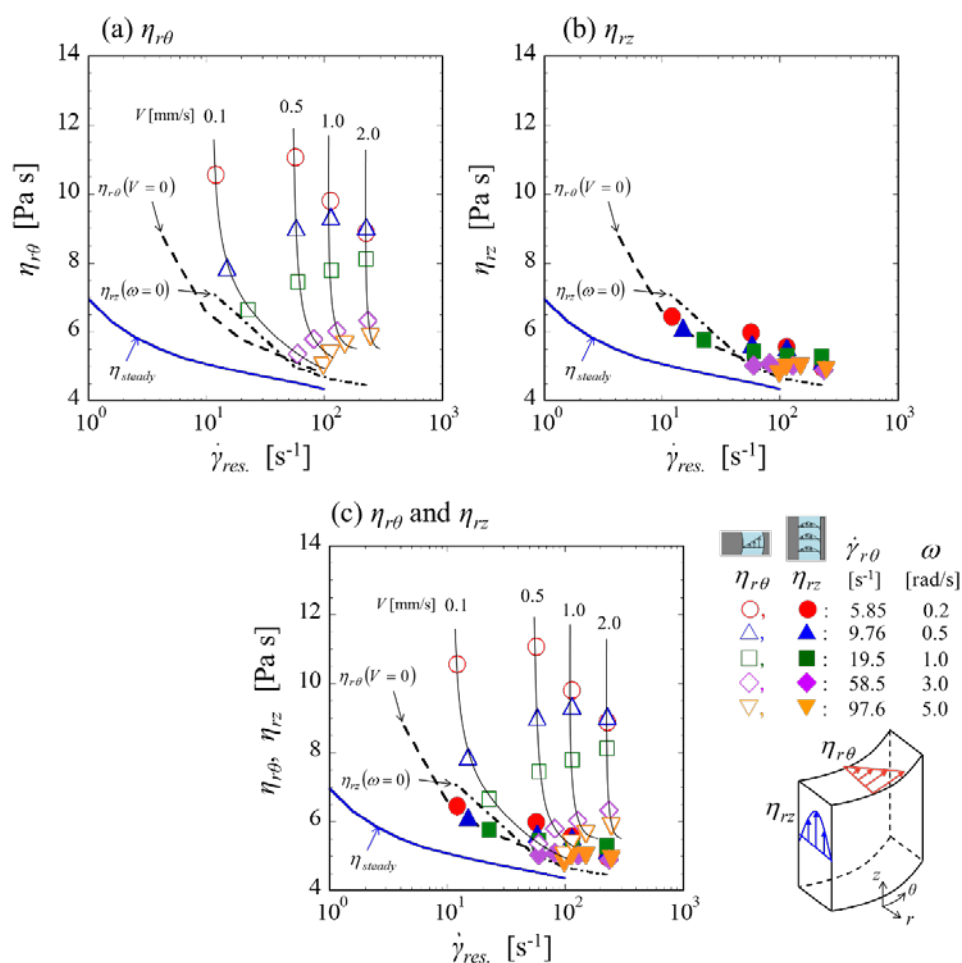
Fig. 5.15とFig. 5.16に球状粒子懸濁液および棒状粒子懸濁液の結果をそれぞれ示す．Fig. 5.15(c)より，球状粒子懸濁液の同時に評価した二方向のせん断粘度はほぼ一致することがわかる．このこと



から、球状粒子懸濁液のせん断粘度はせん断流動を印加する方向に依存せず、等方的な性質を示すことが明らかとなった。これに対し、Fig. 5.16(c)より棒状粒子懸濁液では回転方向のせん断粘度が押し込み方向のせん断粘度よりも最大で 1.8 倍大きくなることわかる。さらに、Fig. 5.16(a)よりボブの押し込み速度  $V$  を増加していくにつれて回転方向の粘度  $\eta_{r\theta}$  が  $\eta_{r\theta}(V=0)$  と  $\eta_{rz}(\omega=0)$  より大きくなっていくことがわかる。 $\eta_{r\theta}(V=0)$  および  $\eta_{rz}(\omega=0)$  が粒子配向に沿う方向のせん断粘度を評価しているのに対し、 $\eta_{r\theta}$  は粒子配向と直交方向のせん断粘度を評価していると考えられる。 $\eta_{r\theta}(V=0)$  と  $\eta_{rz}(\omega=0)$  が粒子配向に沿う方向のせん断粘度を示しているのは両者の結果が  $\eta_{steady}$  に最も近いことから明らかである。そして、 $V$  が増加すると軸方向( $z$  軸方向)への配向が促進されるため、 $\eta_{r\theta}$  は粒子が回転方向( $\theta$  軸方向)へ配向している状態を測定した  $\eta_{r\theta}(V=0)$  と異なる値を示す。また、 $\omega$  が増加すると回転方向へ揃う粒子が多くなるので  $\eta_{r\theta}$  は回転のみの  $\eta_{r\theta}(V=0)$  に近づくのだと考えられる。



**Fig. 5.15.** Evaluated viscosities in the circumferential and the axial direction of the spherical particle suspension 25.0vol%.



**Fig. 5.16.** Evaluated viscosities in the circumferential and the axial direction of the rod-like particle suspension 26.4vol%.

以上のことから、形状に異方性を有する粒子が分散した懸濁液では粒子配向方向に対してせん断粘度に異方性が生じることが明らかとなった。粒子配向と直交方向のせん断粘度の方が粒子配向に沿う方向の粘度よりも大きくなることがわかった。ここで、1.1節で紹介したネマチック液晶における異方性的粘性係数、すなわち、ミーソビッツの粘性係数(Table 1.1<sup>D</sup>, Fig. 1.1 参照)と本実験で測定した棒状粒子懸濁液の  $\eta_{r\theta}$  と  $\eta_{rz}$  の大小関係を比較する。Fig. 5.17 に粘度異方性測定用同心二重円筒流路の試験部における粒子配向と流れ場の関係、そして、それに伴うネマチック液晶と棒状粒子懸濁液の粘度異方性の比較を示す。カップの角速度  $\omega$  に対してボブの押し込み速度  $V$  が十分に大きい場合、棒状粒子は軸方向( $z$  軸方向)へ配向する。したがって、Fig. 5.17 より、カップの回転によるクエット流れで測定した回転方向のせん断粘度  $\eta_{r\theta}$  は、ミーソビッツの粘性係数における「分子が流れと速度こう配に垂直となる状態」の  $\eta_3$  と対応する。また、ボブの押し込みによるポアズイユ流れで測定した押し込み方向のせん断粘度  $\eta_{rz}$  は、「分子が流れに平行となる状態」の  $\eta_1$  と対応する。Table 1.1 より、ミーソビツ

ツの粘性係数では  $\eta_3 > \eta_1$  となることが知られている。これと、本実験で測定した棒状粒子懸濁液の  $\eta_{r\theta} > \eta_{rz}$  の関係が定性的に一致しており、棒状粒子を高濃度で分散させた懸濁液がネマチック液晶と同様の性質を見せることが明らかとなった。

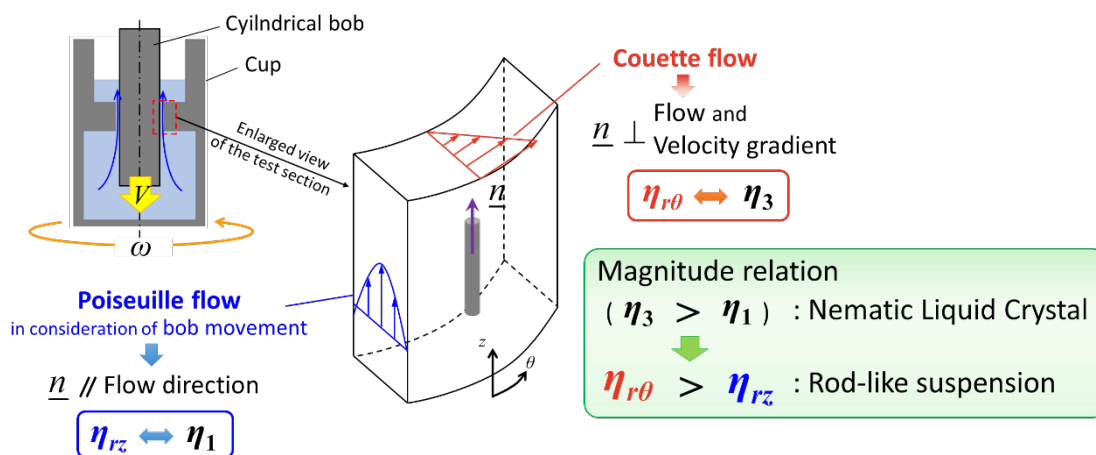


Fig. 5.17. Comparison of the shear viscosity of the nematic liquid crystal and the rod-like suspension.

### 5.3.4.2. 粒子分散濃度の検討

5.3.4.1.番で棒状粒子を体積濃度比 26.4vol%で分散させた懸濁液においてせん断粘度異方性が生じることが明らかとなった。そこで、粒子の分散濃度が粘度異方性に及ぼす影響を明らかにする。

Fig. 5.18(a)から(f)に体積濃度比が 2.8, 5.7, 11.9, 15.2, 18.8, 26.4vol%の棒状粒子懸濁液の結果を示す。Fig. 5.18(a)と(b)より、2.8vol%および5.7vol%では同時に測定した回転方向のせん断粘度  $\eta_{r\theta}$  と押し込み方向のせん断粘度  $\eta_{rz}$  が一致することがわかる。また、 $\eta_{r\theta}(V=0)$ と  $\eta_{r\theta}$  もおよそ等しい値となる。このことから、異方性形状の粒子が分散していたとしてもその分散濃度が低い場合にはせん断粘度に異方性は生じないことが明らかとなった。これに対し、Fig. 5.18(c)に示す 11.9vol%では  $\eta_{r\theta}$  が  $\eta_{rz}$  よりも大きくなり、差が生じている。そして、15.2vol%では  $V$  の増加に伴って  $\eta_{r\theta}$  が  $\eta_{r\theta}(V=0)$ とよりも大きくなる現象が表れ、以降、分散濃度を高くするにつれてこの現象が顕著となるが見て取れる。

以上のことから、粒子分散濃度がせん断粘度異方性の発現に大きな影響を及ぼすことが明らかとなった。

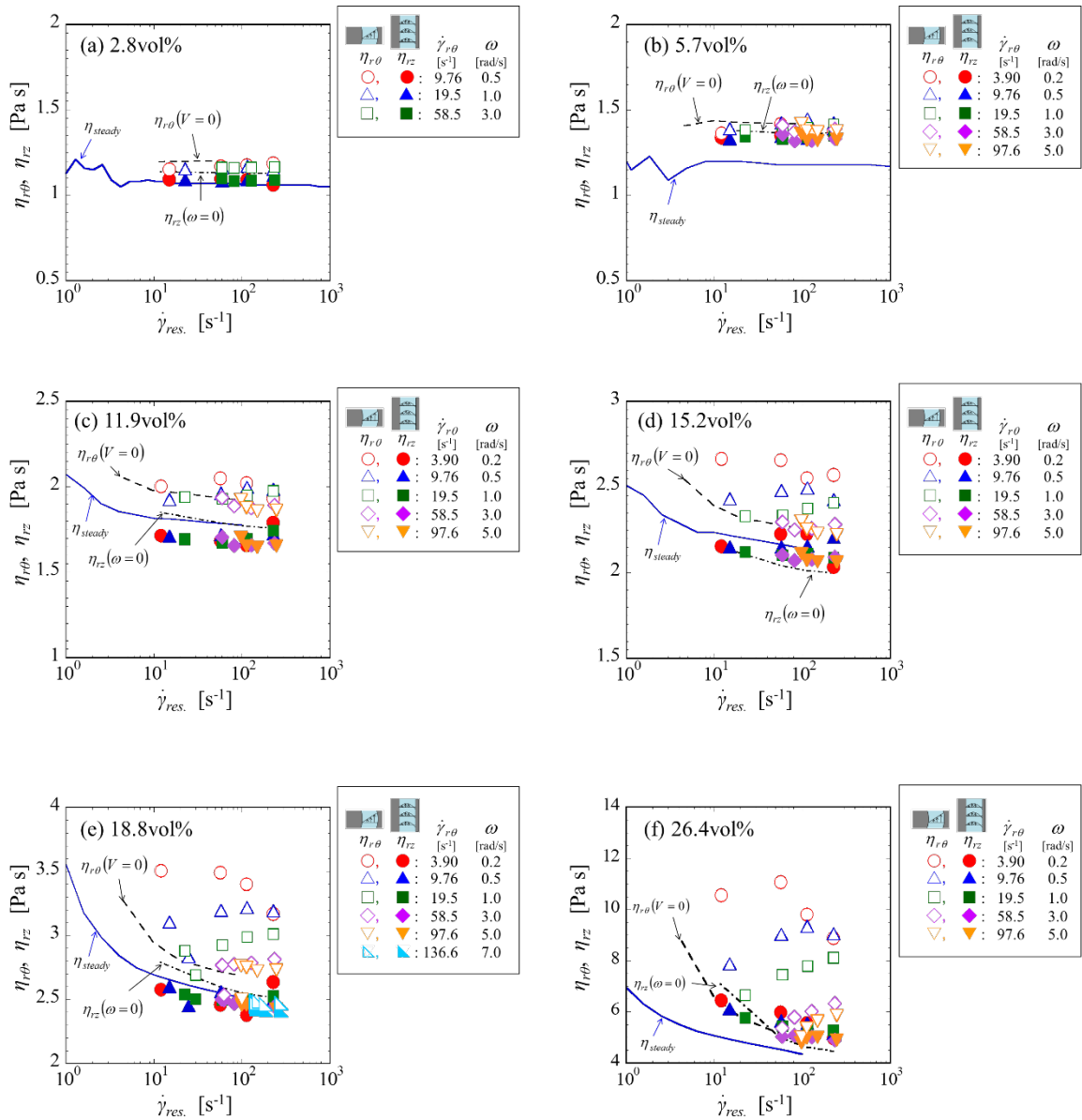


Fig. 5.18. Influence of the concentration ratio on the anisotropic shear viscosity of the rod-like suspension.

### 5.3.4.3. シアシニングを考慮したせん断粘度異方性の大きさの検討

最後に、試料の有するシアシニング（せん断速度の増加に伴ってせん断粘度が低下していく現象）を考慮してせん断粘度異方性の大きさを検討する。上述した内容ではせん断粘度異方性を評価するグラフの横軸に合成せん断速度  $\dot{\gamma}_{res}$  を用いてきた。螺旋状の流れ場のせん断速度である  $\dot{\gamma}_{res}$  を用いることで  $\eta_{r\theta}$  と  $\eta_{rz}$  を同じ軸上に配置することができ、両者の評価が容易に行えるという利点があった。一方で、本来ならばより低せん断速度側の粘度である  $\eta_{r\theta}$  を高せん断速度側に移動させているという問題も考えられる。実際、本実験条件ではクエット型の回転方向のせん断速度よりもポアズイユ型の押し込み方向のせん断速度の方が大きくなることがわかっている。そのため、合成せん断速度  $\dot{\gamma}_{res}$  を用いた比較では、シアシニングを考慮するとせん断粘度が等方性であっても  $\eta_{r\theta}$  の方が  $\eta_{rz}$  よりも大きく

表示され、見かけ上せん断粘度に異方性が生じたように見える可能性がある。そこで、縦軸に回転方向と押し込み方向の粘度の比  $\eta_{r\theta}/\eta_{rz}$ 、横軸にせん断速度の比  $\dot{\gamma}_{r\theta}|_{r=R_b}/\dot{\gamma}_{rz}|_{r=R_b}$  をとり、シアシニングを考慮して直交する二方向のせん断粘度を評価する。この評価は、シアシニングを示すせん断粘度等方性の流体において合成された流れ場で生じるせん断速度を直交する二方向へ分解した場合、せん断粘度もそれぞれの方向へ分解されるという仮定に基づいて行う。

今、せん断速度が流動方向に依存しない等方的な流体を考える。そして、螺旋状の流れ場を回転方向と押し込み方向に分解することができるかと仮定すると、べき乗則流体における粘度比とせん断速度比の関係は式(5.27)で示される。

$$\frac{\eta_{r\theta}}{\eta_{rz}} = \frac{K|\dot{\gamma}_{r\theta}|_{r=R_b}|^{n-1}}{K|\dot{\gamma}_{rz}|_{r=R_b}|^{n-1}} = \left( \frac{\dot{\gamma}_{r\theta}|_{r=R_b}}{\dot{\gamma}_{rz}|_{r=R_b}} \right)^{n-1} \quad (5.27)$$

ここに、 $K$ は擬塑性粘度、 $n$ は構造粘度指数を示す。Fig. 5.19 に式(5.27)の計算結果を示す。Fig. 5.19 より、ニュートン流体( $n=1$ )ではせん断速度比に依らず粘度比は一定となることがわかる。そして、シアシニング性が強くなっていくほどせん断速度比の増加に対する粘度比の減少率が大きくなることがわかる。等方的な流体であれば Fig. 5.19 の算出結果と一致し、せん断粘度異方性が発現すれば算出結果から外れるはずである。

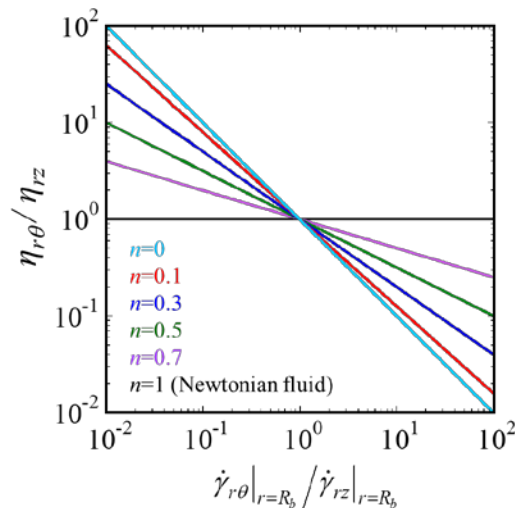


Fig. 5.19. Calculation result of the relationship between the ratio of the viscosity and the ratio of the shear rate.

Fig. 5.20(a), (b), (c)にシリコンオイルと 25.0vol%の球状粒子懸濁液, 26.4vol%の棒状粒子懸濁液の結果をそれぞれ示す. ここで, 実線は定常粘弾性試験結果(Fig. 5.6 参照)をべき乗則近似して得られた構造粘度指数  $n$  から求めた計算値である. また, 記号の違いは回転方向のせん断速度の違いを示す. 同じ形の記号における一番左側のプロットが押し込み方向のせん断速度が  $228 \text{ s}^{-1}$  の結果, 一番右側が  $11.4 \text{ s}^{-1}$  の結果を示す. Fig. 5.20(a)と(b)より, 等方的な性質を示したシリコンオイルと球状粒子懸濁液では測定結果と計算結果が一致する. このことから, シアシニングの影響を考慮しても粒子配向によるせん断粘度異方性は生じないことが明らかとなった. これに対し, Fig. 5.20(c)の棒状粒子懸濁液では測定結果が計算結果よりも大きくなる. これは, せん断粘度異方性の発現を示しており, 回転方向のせん断粘度の方が押し込み方向よりも大きい値であることを示している. さらに, 回転方向のせん断速度が小さくなるにつれて, 計算値と測定値のずれは大きくなる. これは, 回転方向のせん断速度が小さくなると押し込みによる軸方向の粒子配向を崩すことなくその配向と直交方向の粘度を評価できるためと考えられる. 以上のことから, 試料の持つシアニングを考慮したとしても異方性形状の粒子が分散した懸濁液ではせん断粘度異方性が発現し, 粒子配向と直交方向のせん断粘度の方が粒子配向に沿う方向の粘度よりも大きくなることが明らかとなった.

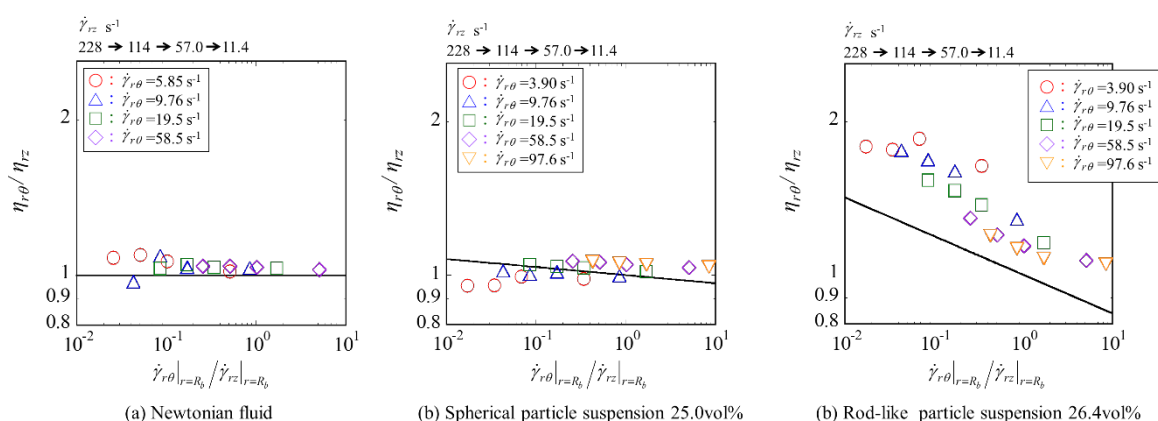


Fig. 5.20. Relationship between the ratio of the viscosity and the ratio of the shear rate.

#### 5.4. 第5章 結言

本章では形状異方性を有する粒子が分散した懸濁液の粒子配向とせん断粘度異方性の関係について検討した。まず市販の回転型レオメータに新設計の同心二重円筒流路を取り付けるだけで粒子配向を誘起させながら二方向のせん断粘度を同時に評価できる手法を提案した。本手法ではレオメータの回転と押し込み動作を同時に行い、流動によって生じたそれぞれの方向に作用するトルクおよびスラスト力の同時測定から定常状態におけるせん断粘度を評価した。ニュートン流体を用いて装置の検定を行い、妥当性を示した。そして、確立した手法を用いて懸濁液のせん断粘度異方性に及ぼす粒子形状および粒子分散濃度の影響を検討した。その結果、等方性形状の球状粒子を分散させた懸濁液ではせん断粘度に異方性が生じないことを示した。これに対し、異方性形状の棒状粒子を分散させた懸濁液では粒子配向方向に対してせん断粘度に異方性が生じることが明らかとなった。粒子配向と直交方向のせん断粘度の方が粒子配向に沿う方向の粘度よりも大きくなることがわかった。この結果はネマチック液晶におけるミーンビッツの粘性係数<sup>1, 2)</sup>の傾向と一致しており、棒状粒子を高濃度で分散させた懸濁液がネマチック液晶と同様の性質を見せることが示された。さらに、棒状粒子の分散濃度を変更することにより、粒子分散濃度がせん断粘度異方性の発現に及ぼす影響を明らかにした。

## 第5章 使用記号一覧

---

記号 : 概要 [単位]

$F_b$  : 浮力 [N]

$F_{exp.}$  : スラスト力の測定値 [N]

$F_{lower}$  : 下部の試料たまり部に作用するスラスト力 [N]

$F_{upper}$  : 上部の試料たまり部に作用するスラスト力 [N]

$F_{sn}$  : せん断流れの圧力損失によって生じる力 [N]

$F_{ss}$  : ボブ側面に作用するせん断応力による力 [N]

$h$  : ボブ底面からカップまでの長さ [m]

$K$  : 擬塑性粘度 [ $\text{Pa s}^n$ ]

$l_0$  : ボブの初期押し込み距離 [m]

$L$  : 試験部の長さ [m]

$L_{lower}$  : 下部試料たまり部におけるボブと試料との濡れ幅 [m]

$L_{upper}$  : 上部試料たまり部におけるボブと試料との濡れ幅 [m]

$n$  : 構造粘度指数 [-]

$(-dp/dx)$  : 流れ方向の圧力こう配 [ $\text{Pa/m}$ ]

$R_b$  : ボブの半径 [m]

$R_c$  : カップの試験部の半径 [m]

$R_{lower}$  : 下部試料たまり部の半径 [m]

$R_{upper}$  : 上部試料たまり部の半径 [m]

$t$  : 時間 [s]

$T$  : 試験部に作用するトルク [Nm]

$T_{bottom.}$  : ボブの底面に作用するトルク [Nm]

$T_{sample.}$  : 試料注入量の差によるトルク [Nm]

$T_{lower}$  : 下部試料たまり部に作用するトルク [Nm]

$T_{upper}$  : 上部試料たまり部に作用するトルク [Nm]

$T_{bottom.}$  : 試験部に作用するトルク [Nm]

$T$  : 試験部に作用するトルク [Nm]

$T_{exp.}$  : トルクの測定値 [Nm]

$v_z$  : 押し込み方向の速度分布 [m/s]

$v_\theta$  : 回転方向の速度分布 [m/s]

$V$  : ボブの押し込み速度 [m/s]

$\dot{\gamma}$  : せん断速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]

$\dot{\gamma}_{res.}$  : 合成せん断速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]

$\dot{\gamma}_{r\theta}|_{r=R_b}$  : 回転によって生じるボブ壁面せん断速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]

$\dot{\gamma}_{rz}|_{r=R_b}$  : 押し込みによって生じるボブ壁面せん断速度 [ $\text{s}^{-1}$ ]



- $\eta_{r\theta}$  : 回転方向のせん断粘度 [Pa s]  
 $\eta_{rz}$  : 押し込み方向のせん断粘度 [Pa s]  
 $\eta_{steady}$  : 定常粘弾性試験のせん断粘度 [Pa s]  
 $\omega$  : カップの角速度 [rad/s]

## 第 6 章

---

# 過渡的せん断流動場における粒子の姿勢とせん断粘度の同時測定

### 6.1. 緒言

第 5 章では粒子配向が維持された定常状態における粘度異方性について明らかにした。そこで、第 6 章では粒子の姿勢が連続的に変化する過渡的状态における粒子挙動とせん断粘度の相関関係に着目する。そして、粒子配向状態を任意に制御した棒状粒子懸濁液に対して過渡的せん断流れを印加した際の粒子挙動を可視化し、初期粒子配向状態の違いが過渡的せん断流動における粘度の時間的变化に及ぼす影響を明らかにする。可視化手法として、懸濁液中に分散した粒子と分散媒の屈折率を合わせることで、可視化のために少量分散させた屈折率の異なるトレーサー粒子を鮮明に観察する手法を用いる。そして、平行円板流路に充填した棒状粒子懸濁液の粒子の姿勢を円板の上下動および回転によって生じた流れにより周方向、半径方向、無秩序といった任意の方向へ制御する技術について検討する。さらに、この粒子配向制御技術を用いて配向状態を制御した棒状粒子懸濁液に対して過渡的せん断流れを印加し、過渡的状态における粒子の姿勢とせん断粘度の相関関係について議論する。

### 6.2. 実験装置および試料

#### 6.2.1. 実験装置

懸濁液中に分散したトレーサー粒子の可視化およびせん断粘度の同時測定のため応力制御型レオメータ MCR301 (Anton Parr 社) を用いた。流路は可視化用のガラス製平行円板流路 (直径 43  $\mu\text{m}$ ) を使用した。Fig. 6.1 に実験装置の概略図を示す。流路の中心から 15 mm の位置の粒子挙動をマイ

クロスコープ(VW-9000, Keyence 社)によって流路の下側から撮影した。倍率は 100 倍, フレームレートは 30 fps とした。撮影範囲はおよそ  $2.9 \times 2.2$  mm である。室温  $25 \pm 1.5$  °C とした。

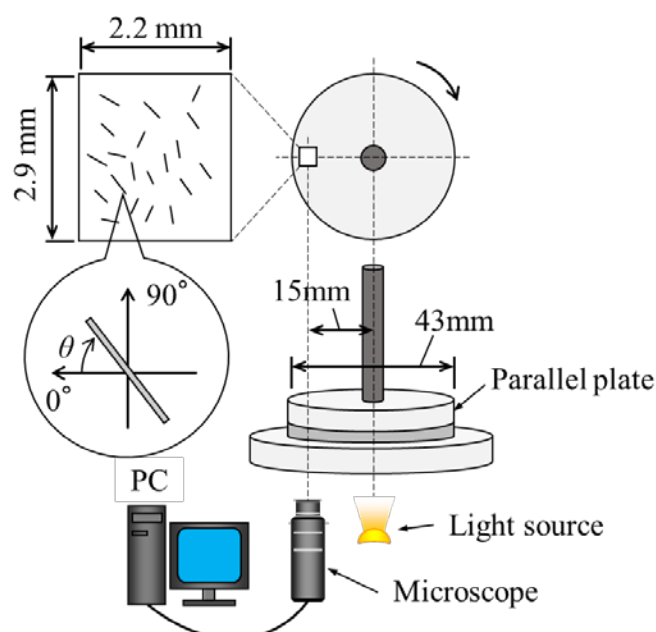


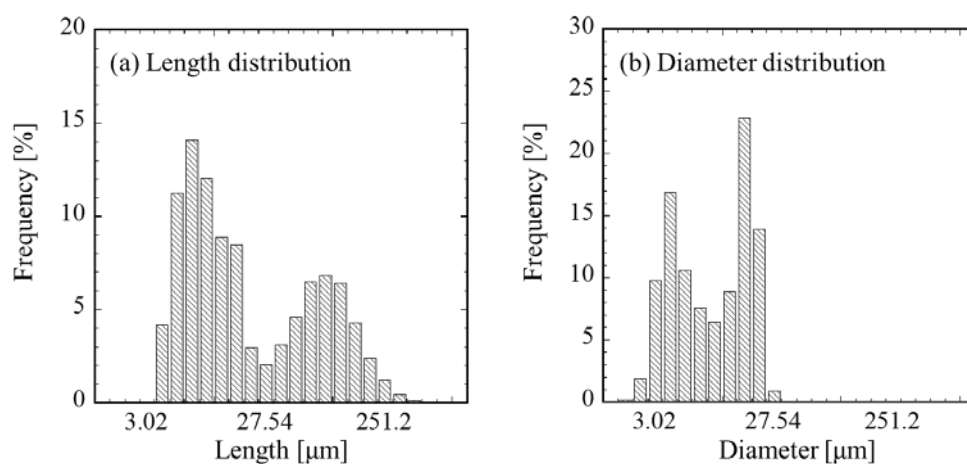
Fig. 6.1. Schematic diagrams of an experimental apparatus.

## 6.2.2. 試料

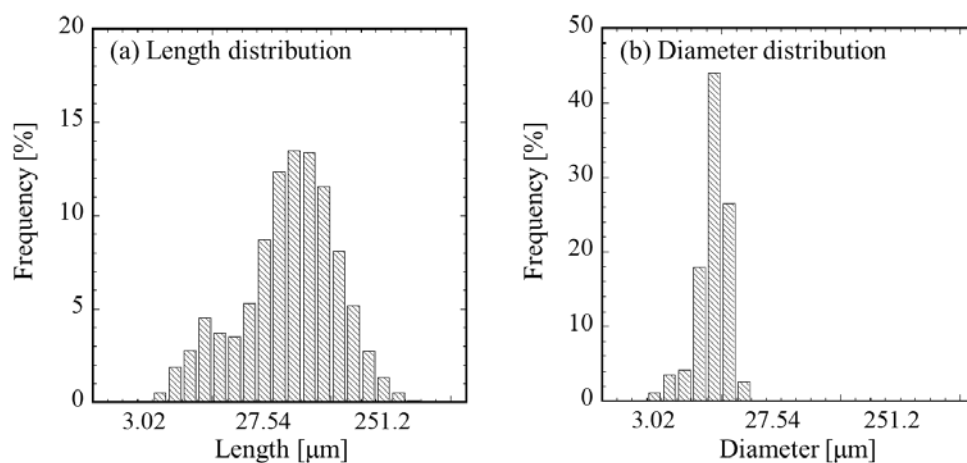
試料としてニュートン流体であるメチルフェニルシリコーンオイル(HIVAC F-4, 信越化学工業,  $\mu=0.035$  Pa s)に棒状のガラス粒子(真比重 2.55)と可視化のためのトレーサー粒子として少量の棒状炭素粒子(真比重 1.8)を分散させた懸濁液を用いた。本研究では分散粒子の体積濃度比が 10, 20, 30vol%の懸濁液を用意した(Table 6.1)。ガラス粒子と炭素粒子の長さおよび粒子径分布を Fig. 6.2 と 6.3 にそれぞれ示す。また, Fig. 6.4 にそれぞれの懸濁液の定常粘弾性試験結果を示す。試験にはガラス製平行円板流路(直径 43  $\mu\text{m}$ )を使用し, 試験中の流路間隔は 1.0 mm とした。Fig. 6.4 より, これらの懸濁液は低せん断速度領域でシアシニング, 高せん断速度領域でシアシックニングを示すことがわかる。また, Fig. 6.5(a) と Fig. 6.5 (b)に分散媒として第 5 章で使用したシリコーンオイル(屈折率 1.403)およびメチルフェニルシリコーンオイル(屈折率 1.55)を用いた懸濁液の可視化画像をそれぞれ示す。Fig. 6.5(a)より, ガラス粒子(屈折率 1.5)と分散媒の屈折率が異なる場合には試料全体が白く濁って見えることがわかる。この状態でもガラス粒子に混ざったトレーサー粒子を確認することはできるが, 粒子の姿勢解析を行うには不明瞭である。これに対し, Fig. 6.5(b)より本章で用いる懸濁液ではガラス粒子と分散媒の屈折率を合わせることでガラス粒子が透明に見え, 少量分散させたトレーサー粒子を鮮明に観察できることがわかる。

**Table 6.1.** Ratio of volume concentration of each suspensions.

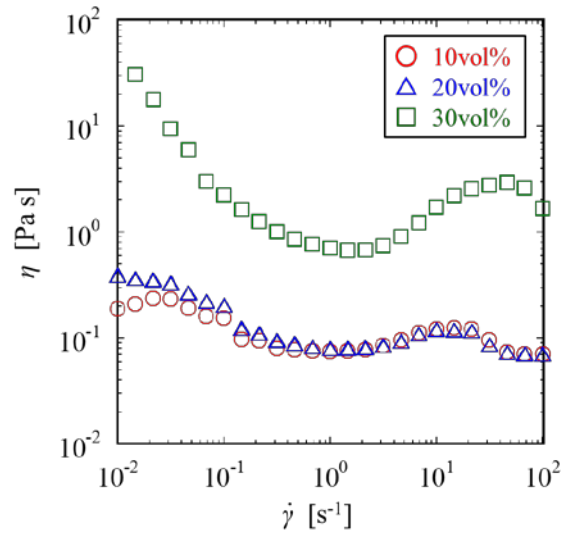
Sample	Ratio of volume concentration [vol%]		
	Glass particle	Carbon particle	Disperse media
10vol%	9.96	0.04	90
20vol%	19.96	0.04	80
30vol%	29.96	0.04	70



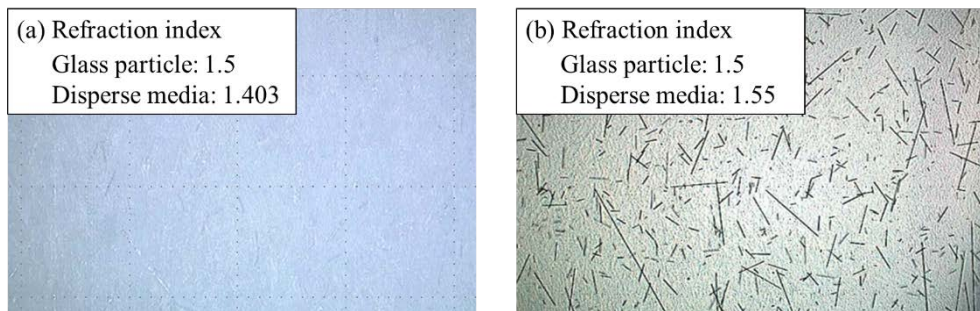
**Fig. 6.2.** Length and diameter distribution of the glass particle.



**Fig. 6.3.** Length and diameter distribution of the carbon particle.



**Fig. 6.4.** Flow property of each suspensions as a function of shear rate  $\dot{\gamma}$



**Fig. 6.5.** Visualized photograph of tracer particles.

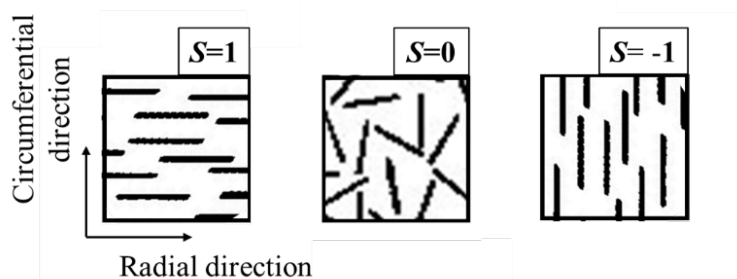
### 6.3. 粒子の姿勢解析

画像処理ソフト(ImageJ)を用いて懸濁液に分散しているトレーサー粒子の姿勢を解析した. マイクロスコープによって撮影した動画に対して二値化処理を行い, 画像解析ソフトによってそれぞれのトレーサー粒子の角度を自動的に求めた. そして, 式(6.1)に示す配向秩序度  $S$ <sup>52)</sup>を用いて粒子の姿勢を定量的に評価した.

$$S = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N 2 \cos^2 \theta_i - 1 \quad (6.1)$$

ここに,  $N$  は動画の 1 フレーム内で解析した粒子の総数,  $\theta$  は平行円板流路の半径方向をゼロ, 周方向を  $90^\circ$ とした粒子の角度である(Fig. 6.1 参照). 配向秩序度  $S$  の概念図を Fig. 6.6 に示す. 本研究で

は粒子が平行円板の半径方向へ揃った場合を  $S=1$ , 無秩序の場合を  $S=0$ , 周方向へ揃った場合を  $S=-1$  とする.



**Fig. 6.6.** Conceptual diagram of the relationship between the particle orientation in the parallel plate and the orientation order  $S$ .

## 6.4. 実験結果および考察

### 6.4.1. 平行円板流路に充填した棒状粒子懸濁液の流動による粒子配向制御

平行円板流路に充填した棒状粒子懸濁液の粒子の姿勢を円板の上下動および回転によって生じた流れにより周方向, 半径方向, 無秩序といった任意の方向へ制御する技術について検討する.

#### 6.4.1.1. 円板の動作と粒子挙動の関係

はじめに流路に与える基本的動作, すなわち円板の回転および上下運動によって形成される配向状態を明らかにする. Fig. 6.7 に実験の手順を示す. 平行円板流路に試料を充填して円板を任意のすき間  $GAP_H$  まで移動させ, およそ 10 秒間静止させる. そして,  $GAP_H$  を保ったまま円板を回転させることによりせん断速度  $\dot{\gamma} = 10 \text{ s}^{-1}$  のせん断流れを 30 秒間印加する. その後, およそ 20 秒かけて円板を任意の  $GAP_L$  まで下降させ, 再び約 20 秒かけて元の  $GAP_H$  へ上昇させる. この一連の過程における粒子挙動を解析し, 配向秩序度  $S$  を求めた.

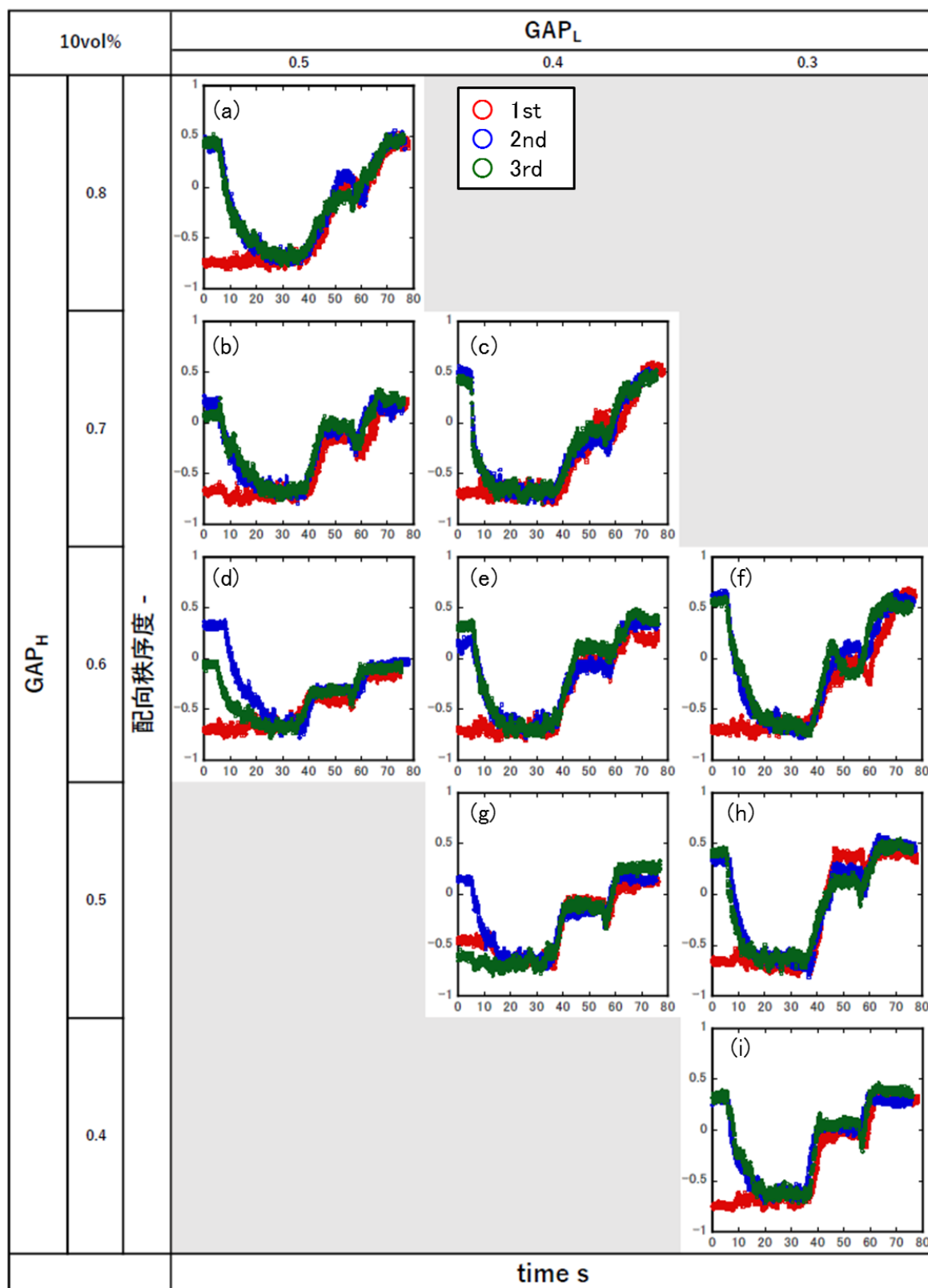
	1. Stop	2. Rotation	3. Down	4. Up
Time:	10 s	30 s	20 s	20 s
Gap:	$GAP_H$	$GAP_H$	$GAP_H \rightarrow GAP_L$	$GAP_L \rightarrow GAP_H$
Shear rate:	$0 \text{ s}^{-1}$	$10 \text{ s}^{-1}$	-	-

**Fig. 6.7.** Schematic diagram of an experimental procedure. The relationship between the orientation order  $S$  and the motion of the upper plate is examined.

Fig. 6.8, 6.9, 6.10 に 10, 20, 30vol% の懸濁液の実験結果をそれぞれ示す. これらの図は  $GAP_H$  と  $GAP_L$  を変更して行った実験結果の一覧であり, 表の中に挿入されている一つ一つの図の縦軸は配向秩序度  $S$ , 横軸は時間  $t$ , 記号の違いは同じ試料に対して行った実験の繰り返し数を表している. また, 表の行と列は円板の上限位置  $GAP_H$  と下限位置  $GAP_L$  をそれぞれ示しており, 移動量は  $(GAP_H - GAP_L)$  より算出することができる. 例えば, Fig. 6.8(a) は  $GAP_H=0.8$  mm,  $GAP_L=0.5$  mm で円板の上下移動量 0.3 mm, そして, Fig. 6.8(f) は  $GAP_H=0.6$  mm,  $GAP_L=0.3$  mm で円板の上下移動量 0.3 mm の実験結果を表している.

Fig. 6.8(f) を用いて円板の動作と粒子挙動の相関関係を解説する. およそ  $0 \leq t < 5$  s は流動が停止している領域であり配向秩序度  $S$  は一定の値を保つ. つまり, 1 回目(記号:  $\odot$ )の実験においては平行円板流路に充填されたときの状態, そして, 2 回目(記号:  $\circ$ ), 3 回目(記号:  $\bigcirc$ )の実験においては 1 つ前の実験で形成された配向状態を示すこととなる. およそ  $5 \leq t < 35$  s は円板の回転によって周方向のせん断流動が加わっている領域である. この動作によって  $S$  は急激に低下し, 約  $S = -0.7$  へ収束する. これは, 周方向のせん断流動によって棒状粒子は周方向へ配向することを表している. およそ  $35 \leq t < 45$  s は円板が  $GAP_H=0.6$  mm から  $GAP_L=0.3$  mm へ下降している領域である. この動作により, 周方向へ配向していた粒子は無秩序な状態 ( $S=0$ ) となる.  $45 \leq t < 60$  s は円板が停止している領域である. そのため, 粒子の姿勢は変化せず, 配向秩序度  $S$  はおよそ一定の値を維持する.  $60 \leq t < 75$  s は円板が  $GAP_L=0.3$  mm から  $GAP_H=0.6$  mm へ再び上昇している領域である. この領域で配向秩序度  $S$  がゼロから 1 に近づくことから, 円板の上昇によって半径方向の配向すなわち放射状の配向が誘起されることがわかる. 最後の  $75 \leq t < 80$  s は円板が停止している領域である.

Fig. 6.8 と 6.9 より, 10 vol% と 20vol% の懸濁液におけるそれぞれの実験結果は上述した傾向を示すことがわかる. 以上から, 円板の回転による周方向へのせん断流れによって棒状粒子は周方向へ揃うこと ( $S = -1$ ), 下降動作によって無秩序となること ( $S = 0$ ), 上昇動作によって半径方向へ揃うこと ( $S = 1$ ), という円板の動作と粒子挙動の相関関係を明らかにすることができた. これに対し, Fig. 6.10 に示す 30vol% 懸濁液では円板を下降・上昇させても配向秩序度が  $S > 0$  とならないことがわかる. 特に,  $GAP_H < 0.7$  mm の実験では  $S$  がほとんど変化しない. 可視化による流れ場の観察より, 30vol% 懸濁液では円板が下降する過程において局所的に粒子の塊が生じ, 周囲の粒子がそれを迂回するように流れることがわかっている. このことから, 30vol% 懸濁液では粒子同士や壁面の干渉が非常に強いいため, 流動による粒子配向が誘起されにくいのだと考えられる. したがって, 本研究では 30vol% 懸濁液に分散した粒子の姿勢制御は困難であると判断した.



**Fig. 6.8.** Relationship between the orientation order  $S$  and the motion of the upper plate of 10vol% suspension.



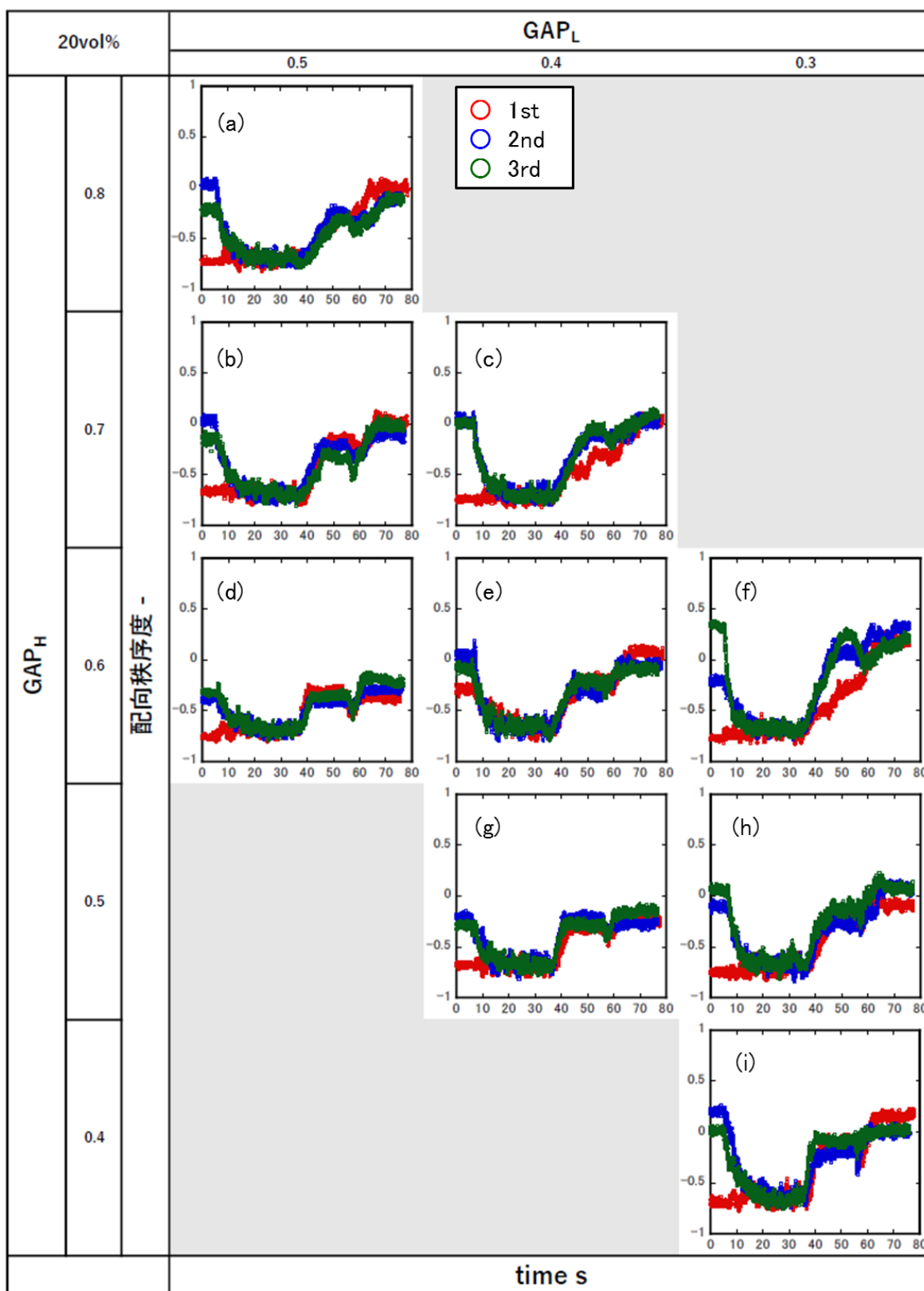


Fig. 6.9. Relationship between the orientation order  $S$  and the motion of the upper plate of 20vol% suspension.

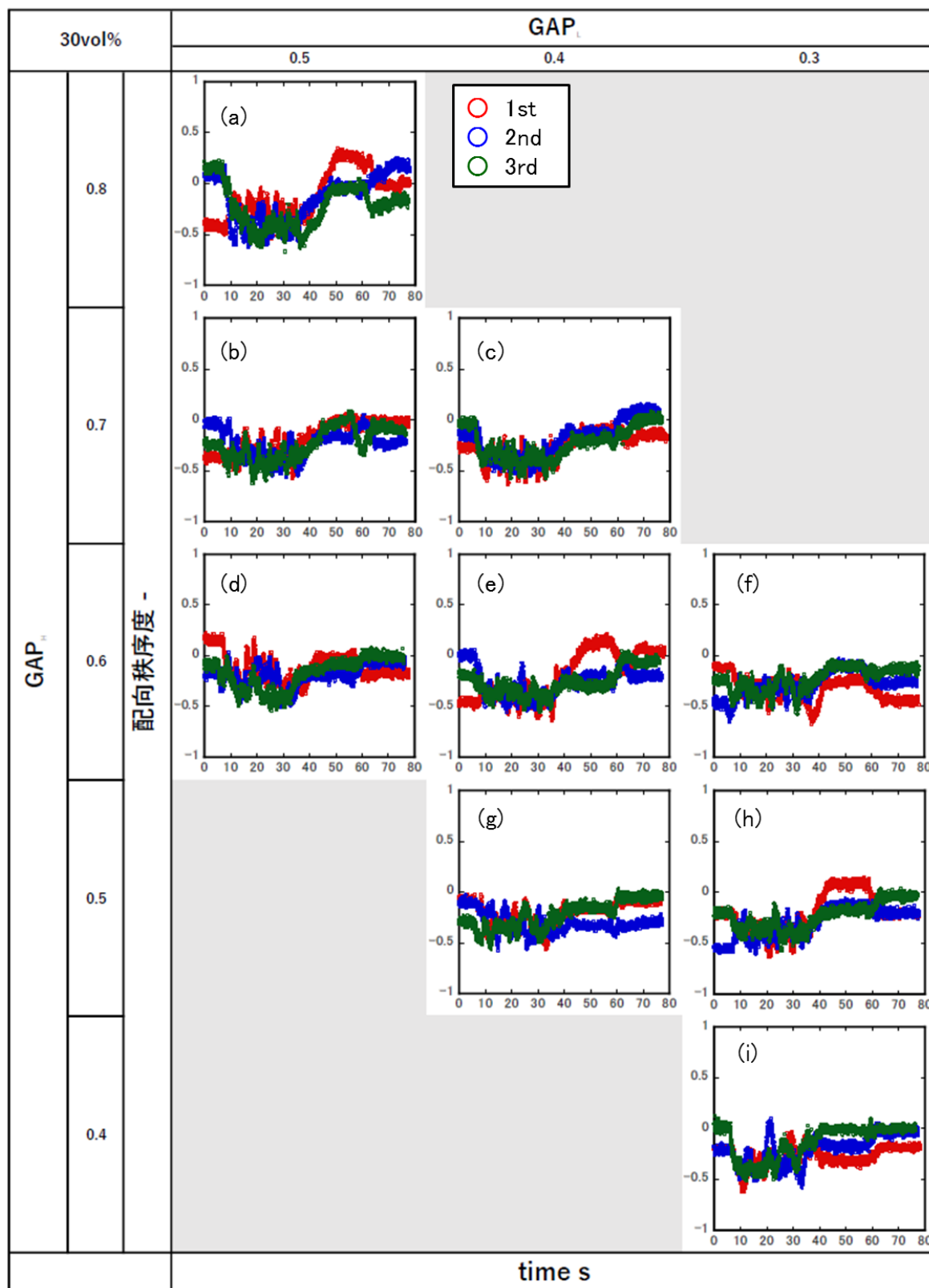


Fig. 6.10. Relationship between the orientation order  $S$  and the motion of the upper plate of 30vol% suspension.

## 6.4.1.2. 最適な円板の上限および下限位置の検討

次に Fig. 6.8, 6.9, 6.10 の結果より, 本手法において棒状粒子を最も半径方向に配向させることができる上限位置  $GAP_H$  と下限位置  $GAP_L$  の組合せを明らかにする. Fig. 6.11 に配向秩序度  $S$  と上限位置  $GAP_H$  および下限位置  $GAP_L$  の関係を示す. Fig. 6.11 における配向秩序度  $S$  は3回行った実験の計測終了直前の  $S$  を求め, 平均を取った値である. Fig. 6.11(a)より, 10vol%懸濁液では  $GAP_H$  が高い位置, そして,  $GAP_L$  が低い位置になるほど  $S$  が大きくなることわかる. すなわち, 円板の移動量 ( $GAP_H - GAP_L$ ) が大きいほど半径方向への配向を生じやすいといえる. さらに, Fig. 6.11(b)に示す20vol%懸濁液では10vol%懸濁液に比べて  $S$  の値が小さいものの, およそ同様の傾向が見て取れる. これらの図より, 10 vol%と20vol%の懸濁液において最も粒子を半径方向に配向させることができる条件は  $GAP_H=0.6$  mm と  $GAP_L=0.3$  mm の組合せであることが明らかとなった. また, Fig. 6.11(c)より30vol%懸濁液では実験を行った全ての条件において配向秩序度を任意に変化させることができなかった. このことから, 30vol%懸濁液の粒子配向を制御するには今回考慮した上限位置  $GAP_H$  では小さすぎるが明らかとなった.

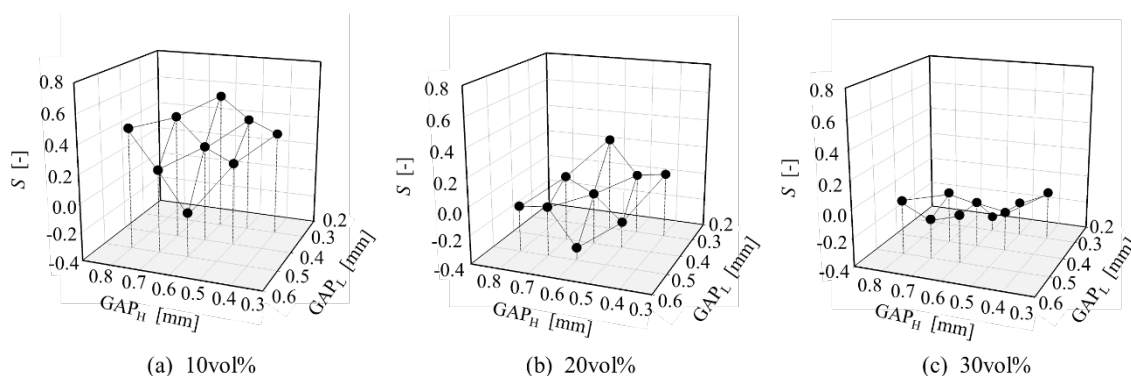


Fig. 6.11. Influence of  $GAP_H$  and  $GAP_L$  on the orientation order  $S$ .

## 6.4.1.3. 上下動の繰り返し数が配向秩序度に及ぼす影響

最後に, 上下動の繰り返し数が配向秩序度  $S$  に及ぼす影響を検討する. Fig. 6.12 に初期流動として  $\dot{\gamma}=10$   $s^{-1}$  のせん断流れを印加した後,  $GAP_H=0.6$  mm から  $GAP_L=0.3$  mm の下降・上昇を6回繰り返したときの配向秩序度  $S$  の様子を示す. Fig. 6.12(a)より, 10vol%懸濁液では1回目の下降・上昇で配向秩序度  $S$  が約  $-0.7$  から  $0.5$  まで上昇し, その後上下動を繰り返すことによって  $S=0.7$  に達することがわかる. さらに, 2回目以降では円板が下降するときに  $S$  が減少し, 上昇するときに増加していることがわかる. また, Fig. 6.12(b)の20vol%懸濁液では繰り返しによる配向秩序度の上昇は見受けられなかったものの, 4回目以降の結果より上下動と  $S$  の間に非常に高い相関性があることが明らかとなった.

これらの実験結果に基づき, 平行円板流路の円板の回転と上下動の移動量や回数, さらに, その移動方向を制御することによってすき間内の粒子配向状態を制御するための最適条件が得られた.

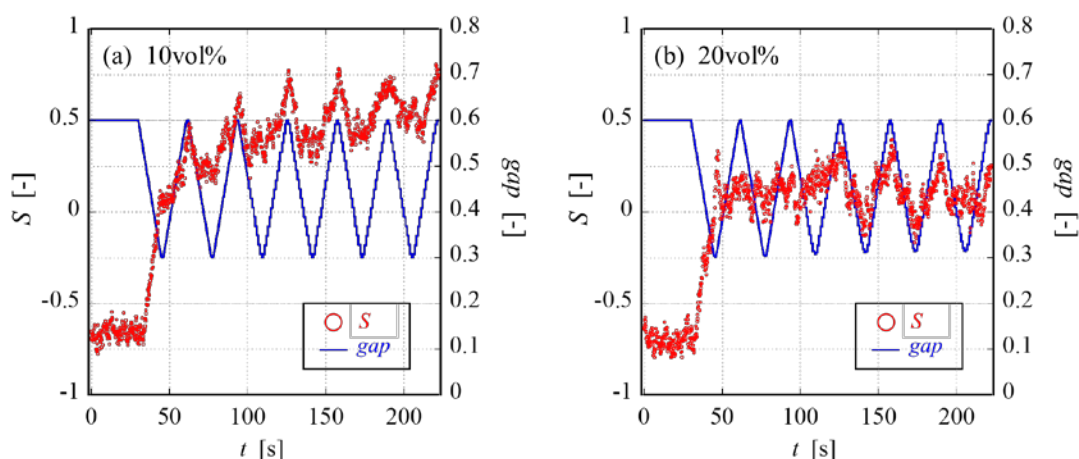


Fig. 6.12. Relationship between the orientation order  $S$  and the number of cycles of the up and down movement.

#### 6.4.2. 過渡的せん断流動場における粒子配向とせん断粘度の関係

前項では平行円板流路に充填した棒状粒子懸濁液において流路の回転および上下動による粒子配向制御の条件を明確にした。そこで、この技術を用いておよそ周方向( $S=1$ )、半径方向( $S=-1$ )、無秩序( $S=0$ )の初期粒子配向状態を形成する。そして、初期粒子配向状態の違いが過渡的せん断流動における粘度の時間的变化に及ぼす影響を明らかにし、過渡的状态における粒子の姿勢とせん断粘度の相関関係について議論する。Fig. 6.13 と Fig. 6.14 に 10vol 懸濁液, Fig. 6.15 と Fig. 6.16 に 20vol 懸濁液の結果をそれぞれ示す。初期粒子配向状態が形成された懸濁液に対してせん断速度  $\dot{\gamma}=10 \text{ s}^{-1}$  の過渡的せん断流動を 300 秒間印加し、流動停止後も 60 秒間計測を続けた。それぞれの図において上段が配向秩序度  $S$ , 下段がせん断粘度  $\eta$  の結果を示す。また、上下に配置されたグラフの組み合わせが同じ実験条件における  $S$  と  $\eta$  の関係を示す。そして、左側が初期配向状態をおよそ周方向としてせん断流れを印加した結果((a)  $S=-1 \rightarrow S=-1$ )、中央が初期配向状態をおよそ無秩序とした結果((b)  $S=0 \rightarrow S=-1$ )、右側が初期配向状態をおよそ半径方向とした結果を((c)  $S=1 \rightarrow S=-1$ )を表す。Fig. 6.14 と Fig. 6.16 は過渡的せん断流動を印加した直後の挙動に着目し、横軸のスケールを拡大したグラフである。

Fig. 6.13 と Fig. 6.15 の結果より、10vol% と 20vol% の懸濁液ともに過渡的せん断流動を加えることで配向秩序度はおよそ  $S=-0.7$  へ収束し、流動停止後( $300 < t < 360 \text{ s}$ )も維持されることがわかる。次に、20vol% 懸濁液の流動開始直後の挙動に注目する。初期配向状態が周方向(Fig. 6.16(a)参照)の場合ではせん断粘度に変化は見られず、終始  $\eta=0.5 \text{ Pa s}$  を保つ。これは、初期配向状態とせん断流動によって形成される配向状態が同じであり、流動を加えても粒子の姿勢が変化しないためと考えられる。初期配向状態が無秩序(Fig. 6.16(b)参照)の場合では、配向秩序度は流動を加えた直後から減少し

始め、粒子の姿勢が無秩序( $S=0$ )から周方向( $S=-0.7$ )へと変化することがわかる。これに対してせん断粘度は時間とともに徐々に増加して極値に達したのち緩やかに定常値まで低下することがわかる。この減少過程における  $S$  と  $\eta$  の挙動はよく一致する。そして、最終的には Fig. 6.16(a)と同様の  $\eta=0.5$  Pa s に達することがわかる。初期配向状態が半径方向(Fig. 6.16(c))の場合では、流動開始後のせん断粘度  $\eta$  の極値が無秩序な状態のときよりも大きくなる。さらに、配向秩序度が流動開始とともに  $0 < t < 10$  s の領域で急激に減少するのに対し、せん断粘度はこの領域で増加したのち緩やかに低下していくことがわかる。このように、配向秩序度の変化に対してせん断粘度の変化には時間的遅れが生じることがわかった。Fig. 6.13 と Fig. 6.14 に示す 10vol%懸濁液では、せん断粘度およびその極値が 20vol%懸濁液よりも小さくなるものの、 $S$  と  $\eta$  の相関関係は同様の傾向を示す。

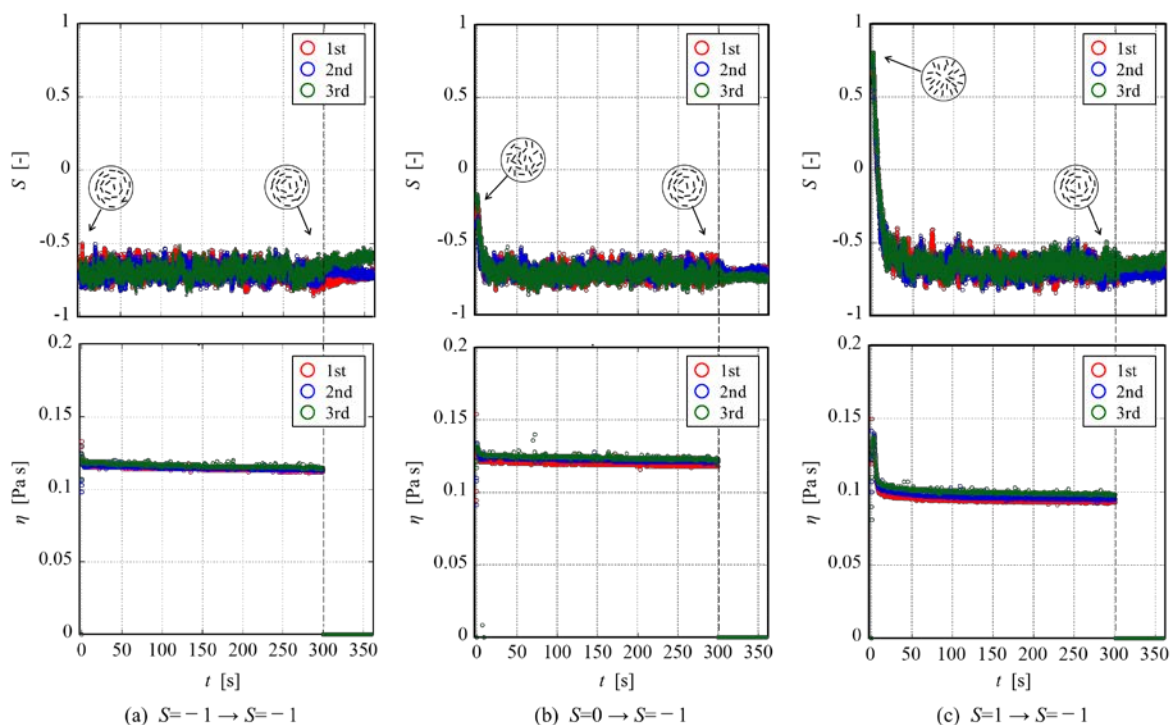
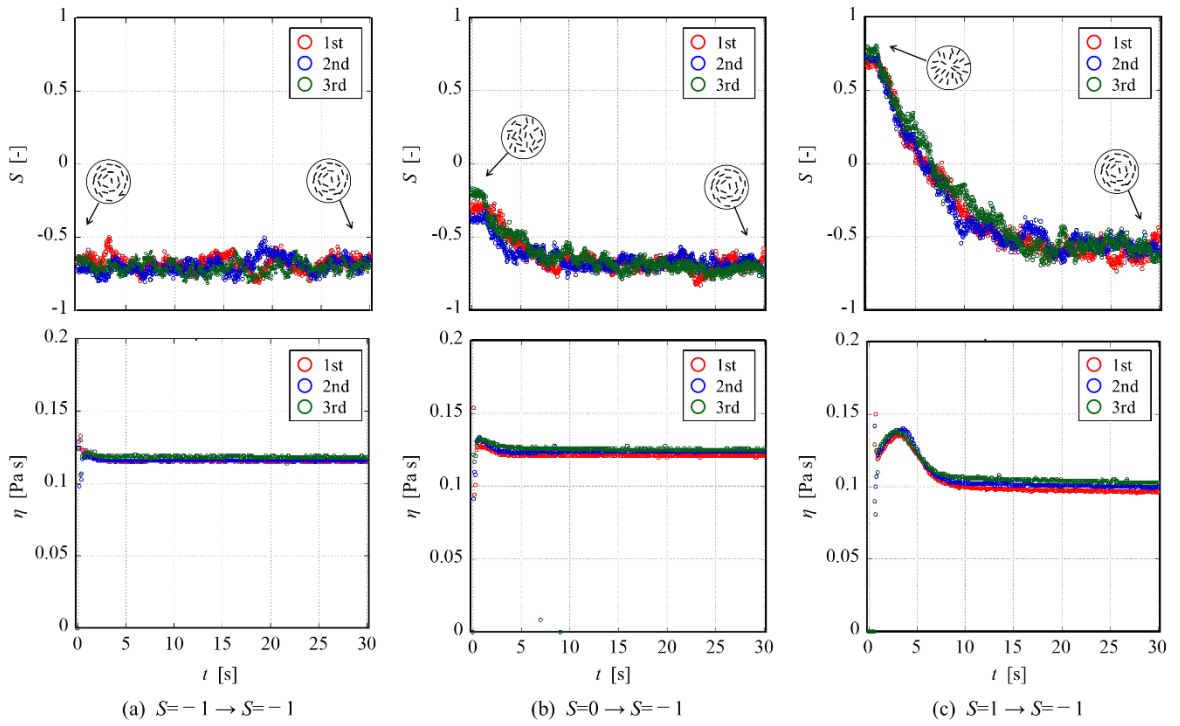
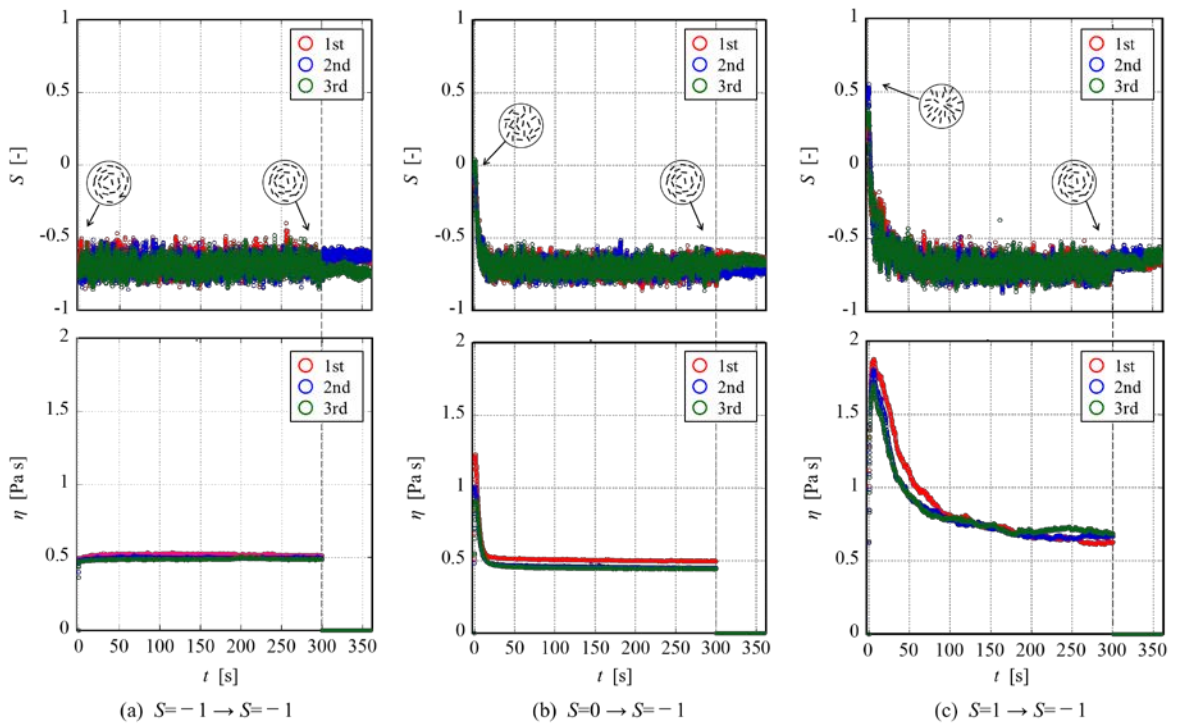


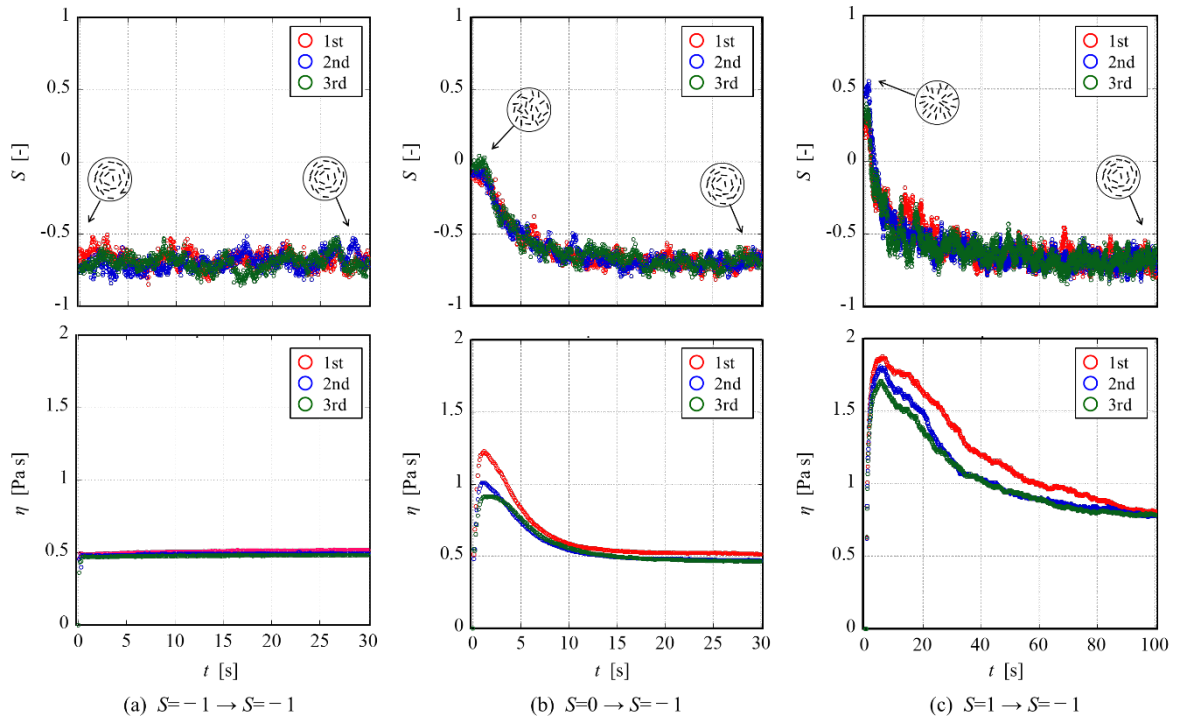
Fig. 6.13. Orientation order  $S$  and the shear viscosity  $\eta$  of 10vol% suspension as a function of time  $t$ .



**Fig. 6.14.** Orientation order  $S$  and the shear viscosity  $\eta$  of 10vol% suspension as a function of time  $t$ . These figure focus on the start-up region of the Fig.6.13.



**Fig. 6.15.** Orientation order  $S$  and the shear viscosity  $\eta$  of 20vol% suspension as a function of time  $t$ .



**Fig. 6.16.** Orientation order  $S$  and the shear viscosity  $\eta$  of 20vol% suspension as a function of time  $t$ . These figure focus on the start-up region of the Fig.6.15.

また, Fig. 6.17 と Fig. 6.18 にせん断粘度  $\eta$  と配向秩序度  $S$  の相関関係を示す. これらの図より, 配向秩序度  $S$  が  $-1$  に近づくにつれてせん断粘度  $\eta$  が小さくなることがわかった. これは, 粒子配向に沿う方向のせん断粘度が粒子配向と直交方向の粘度よりも小さくなることを表しており, 第 5 章で得られたせん断粘度異方性の結果と一致している. このことから, 過渡的せん断流動実験から得られるせん断粘度の極値と定常値の差を用いて粘度異方性の大きさを評価できることが明らかとなった. また, 逆説的に考えると, Fig. 6.17 と Fig. 6.18 の結果は過渡的に変化するせん断粘度の測定を行うだけで内部に分散している粒子の姿勢を予測できる可能性を示している. さらに, 実用上の問題として, せん断粘度の評価に広く用いられている回転型レオメータを使用した定常粘弾性試験の測定結果は粒子が流れ方向に揃ったときの粘度を表していることが明らかとなった. 実際の懸濁液の粘度は内部に分散した粒子の配向状態に合わせて連続的に変化することから, これらを考慮したうえで実際の流れ場に合わせた粘度測定を行う必要があるといえる.

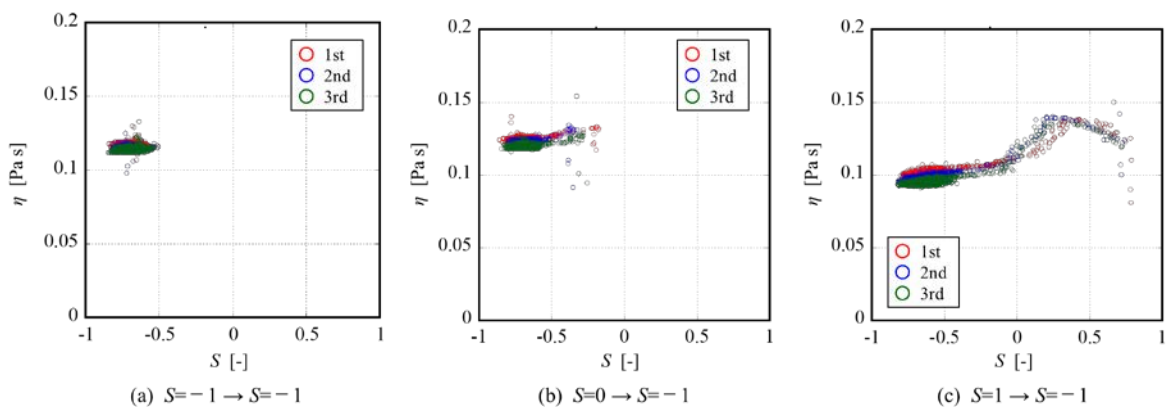


Fig. 6.17. Shear viscosity  $\eta$  of 10vol% suspension as a function of the orientation order  $S$ .

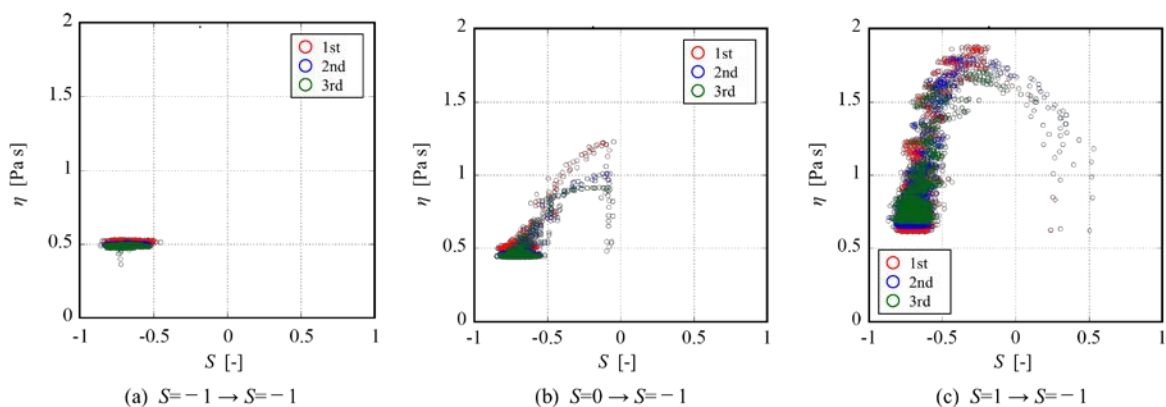


Fig. 6.18. Shear viscosity  $\eta$  of 20vol% suspension as a function of the orientation order  $S$ .



## 6.5. 第 6 章 結言

本章では粒子の姿勢が連続的に変化する過渡的状态における粒子挙動とせん断粘度の相関関係に着目し、まず平行円板流路に充填した棒状粒子懸濁液の粒子の姿勢制御技術について検討した。その結果、平行円板流路の円板の回転による周方向へのせん断流れによって棒状粒子は周方向へ揃うこと、下降動作によって無秩序となること、上昇動作によって半径方向へ揃うことが明らかとなった。そして、円板の回転と上下動の移動量や回数、さらに、その移動方向を制御することによってすき間内に任意の粒子配向状態を形成する技術を確立した。この技術を用いて周方向、半径方向、無秩序といった粒子の初期配向状態を形成し、過渡的せん断流動場における粒子の姿勢とせん断粘度の相関関係を連続的に評価した。これにより、初期配向状態と定常状態における配向状態が異なる条件において過渡的せん断流動の印加直後にせん断粘度の増加現象が生じることが明らかとなった。この現象は初期配向状態を半径方向としたときに最も大きく発現した。さらに、せん断粘度と粒子の姿勢の過渡的な相関関係から、粒子の長軸が流れ方向に揃っていくにつれてせん断粘度の値が小さくなることを明らかにした。この結果は第 5 章で得られたせん断粘度異方性の結果と一致した。これらのことから、過渡的せん断流動の印加直後に生じるせん断粘度の増加現象から粘度異方性の大きさを評価できる可能性を示した。そして、せん断粘度の値から内部に分散している粒子の姿勢を予測できる可能性についても明記した。さらに、回転型レオメータを使用した定常粘弾性試験の測定結果は粒子が流れ方向に揃ったときの粘度を表している恐れがあり、正確な粘度の評価を行うためには実際の流れ場を考慮した測定を行う必要があることを提起した。

## 第6章 使用記号一覧

---

記号 : 概要 [単位]

$N$  : 動画の1フレーム内で解析した粒子の総数 [-]

$S$  : 配向秩序度 [-]

$\dot{\gamma}$  : せん断速度 [ $s^{-1}$ ]

$\theta$  : 粒子と半径方向が成す角 [deg.]

$\eta$  : 粘度 [Pa s]

## 第7章

---

### 結論

本研究は、懸濁液の粒子配向と粘度異方性の関係を明らかにすることを大きな目的とする。このための基盤技術として伸張流動場における形状異方性を有する粒子の流動配向制御および配向状態と粘度の関係性の解明を行い、汎用性の高い平面伸張粘度の機械的測定手法を開発することをもう一つの目的とする。平面伸張粘度の測定に関しては、この分野において標準的に利用される回転型レオメータを押し込み動作で測定するスライド型レオメータに転用し、簡単なパーツをひとつ追加するだけで測定できる手法を検討した。さらに、懸濁液の粒子配向による粘度異方性の実験的な検証として粒子配向を誘起させながら直交する二方向へ制御されたせん断流れを加え、発生した応力をそれぞれの方向に対して独立かつ同時に計測できる技術を構築した。そして、これらの応力から定常状態におけるせん断粘度をそれぞれ評価し、異方性形状の粒子が分散した懸濁液における粘度異方性を明らかにした。また、粒子挙動の可視化とせん断粘度の同時測定を行うことにより、過渡的せん断流れ場における粒子配向状態とせん断粘度の相関関係を定量的に明らかにした。各章において得られた結論を以下にまとめる。

**第1章『序論』**では、ネマチック液晶における粘度異方性や平面伸張粘度の測定手法に関する従来の研究について述べた。そして、懸濁液の粒子配向と粘度異方性の関係の解明と、汎用性の高い平面伸張粘度の機械的測定手法の開発を研究の目的とすることを示した。

**第2章『砲弾ボブを用いた平面伸張粘度の機械的測定手法』**では、流れ場の平面伸張速度が一定となるように設計された砲弾ボブと円筒型カップからなる環状縮小流路を市販の回転型レオメータに取り付けて押し込み反力を測定した。そして、その反力から簡易解析によって平面伸張粘度を算出する手法を提案した。また、数値解析により砲弾ボブ周りの流れ場を検討した。これにより、砲弾ボブと円筒型カップの側面からなるすき間内にほぼ一様な伸張速度分布が形成されることを示した。評

価したニュートン流体および粘弾性流体の平面伸張粘度はせん断粘度のおおよそ  $10^3$  倍大きい値となった。全体の反力に占める平面伸張流れの影響は 1% 以下であり、せん断流れが支配的であることを示した。この結果を鑑み、せん断流れの影響を削減した平面伸張粘度測定に最適な砲弾ボブの形状は、長さの短い円板形状となることを示した。

**第3章** 『ナイフエッジ型円板ボブを用いた平面伸張粘度の機械的測定手法』では、引き続き市販の回転型レオメータに簡単なパーツを追加するだけで測定できるスライド型レオメータ技術を検討し、平面伸張粘度を評価した。第2章で得られたせん断流れの影響を削減できる最適形状に則り、外縁部をナイフエッジとした円板形状のボブを新たに作製した。このボブを用いることにより、評価したニュートン流体の平面伸張粘度は理論値とよく一致した。その相対誤差率が 20% 以下となった。さらに、ナイフエッジ型円板ボブを回転型レオメータに取り付けて測定を行う本手法は、平面伸張粘度  $10^{-1}$  Pa s オーダーの低粘度流体に適用できることを示した。これらの結果は、以下の3つの仮定を導入することで得られた。1つ目に、本手法では試験部近傍で生じる環状急縮小流れを平面伸張流れとみなした。2つ目に、円板ボブに作用する押し込み反力を、①浮力と②試験部におけるせん断流れによって生じた圧力損失による力、③平面伸張流れに起因した圧力損失による力の合力と仮定した。3つ目に、ナイフエッジ型円板ボブの厚さに代わる代表長さとして水力平均深さを用いた。

**第4章** 『同心二重円筒流路の内円筒ボブの押し込みにより発生する流入・流出圧力損失および第一法線応力差の測定』では、同心二重円筒流路の内円筒ボブとカップの側面によって構成されるすき間において発生する流入・流出圧力損失、および、試料が粘弾性流体の場合に生じる第一法線応力差の測定について検討した。これにより、ボブの底面が試料の液面に接しない位置から一定の速度で押し込んでいく過程において、反力の変化パターンは6つの領域に分けられることが明らかとなった。また、バグレイ・プロットを応用し、長さの異なる内円筒ボブで反力の測定を行うことにより、ニュートン流体および粘弾性流体の同心二重円筒流路の押し込み流れにおける流入・流出圧力損失による力を実験によって示した。浮力と流入・流出圧力損失を補正した反力の測定結果と計算結果の比較から、バグレイ・プロットを用いた流入・流出圧力損失の補正方法がニュートン流体に対して有効であること、粘弾性流体に対しては更なる検討が必要であることを示した。さらに、粘弾性流体である PAA0.2wt% の場合、長さ 25mm のボブを用いて評価した  $N_1$  が円錐円板型流路の値と定性的に一致した。さらに、同じレオメータを用いた円錐円板型流路による従来のトータル・スラスト法に対して二桁ほど低い低せん断速度領域における評価が可能となった。これらより、同心二重円筒流路の押し込みを利用した本手法は、既存の装置をそのまま使用するだけで低粘度粘弾性流体の第一法線応力差を測定できる可能性を明らかにした。

**第5章**『流動配向による粒子懸濁液のせん断粘度異方性』では、懸濁液の粒子配向と粘度異方性の関係を明らかにした。まず、市販の回転型レオメータに新設計の同心二重円筒流路を取り付ける簡便な方法により、粒子配向を誘起させながら直交する二方向のせん断粘度を同時に評価できる手法を構築した。レオメータの回転と押し込み動作を同時に行い、流動によって生じたそれぞれの方向に作用するトルクおよびスラスト力の同時測定から、定常状態におけるせん断粘度を評価した。これにより、等方性形状の球状粒子を分散させた懸濁液ではせん断粘度に異方性が生じないことを示した。これに対し、異方性形状の棒状粒子を分散させた懸濁液では、粒子配向方向に対してせん断粘度に異方性が生じることが明らかとなった。粒子配向と直交方向のせん断粘度の方が粒子配向に沿う方向の粘度よりも大きいことがわかった。この結果はネマチック液晶におけるミーソビッツの粘性係数<sup>1,2)</sup>の傾向と一致しており、棒状粒子を高濃度で分散させた懸濁液がネマチック液晶と同様の性質を見せることが示された。さらに、棒状粒子の分散濃度を変更することにより、粒子分散濃度がせん断粘度異方性の発現に及ぼす影響を明らかにした。

**第6章**『過渡的せん断流動場における粒子の姿勢とせん断粘度の同時測定』では、粒子挙動の可視化とせん断粘度の測定を同時に行うことにより、過渡的せん断流れ場における粒子配向状態とせん断粘度の相関関係を定量的に評価した。まず平行円板流路に充填した棒状粒子懸濁液の粒子の姿勢制御技術について検討した。平行円板流路の上板の回転と上下動の移動量や回数、さらに、その移動方向を制御することによって、すき間内に任意の粒子配向状態を形成する技術を確立した。この技術を用いて周方向、半径方向、無秩序といった粒子の初期配向状態を形成し、過渡的せん断流動場における粒子の姿勢とせん断粘度の相関関係を評価した。これにより、初期配向状態と定常状態における配向状態が異なる条件において、過渡的せん断流動の印加直後にせん断粘度の増加現象が生じることが明らかとなった。この現象は初期配向状態を半径方向としたときに最も大きく発現した。さらに、せん断粘度と粒子の姿勢の過渡的な相関関係から、粒子が流れ方向に配向するにつれてせん断粘度の値が小さくなることを明らかにした。この結果は第5章で得られたせん断粘度異方性の結果と一致した。

**第7章**『結論』では本論文の各章で得られた知見をまとめた。

以上に示した結論から、異方性形状の粒子が分散した懸濁液における粒子配向と粘度異方性の関係が明らかとなった。さらに、様々な試料を測定でき、手軽に平面伸張粘度を評価できる手法が示された。

## 参考文献

---

- 1) Chandrasekhar S, “チャンドラセカール 液晶の物理学”, 原書第 2 版, (1995), 吉岡書店, 京都.
- 2) Miesowicz M, “Influence of a magnetic field on the viscosity of para-azoxyanisol”, *Nature*, **136**, 261-261 (1935).
- 3) Larson RG, “Constitutive equations for polymer melts and solutions”, (1988), *AT&T Bell Laboratories*, USA
- 4) Ito H, Doi M, Isaki T, Takeo M, Yagi K, “2D flow analysis of film casting process”, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **31**(3), 157-163 (2003).
- 5) Kwon I, Jung HW, Hyun JC, “Stability windows for draw resonance instability in two-dimensional Newtonian and viscoelastic film casting processes by transient frequency response method”, *J Non-Newton Fluid Mech*, **240**, 34-43 (2017).
- 6) Shiromoto S, Masutani Y, Tsutsubuchi M, Togawa Y, Kajiwara T, “The effect of viscoelasticity on the extrusion drawing in film-casting process”, *Rheol Acta*, **49**(7), 149-155 (2010).
- 7) Lim L-T, Auras R, “Rubino M Processing technologies for poly(lactic acid)”, *Prog Polym Sci*, **33**, 820-852 (2008).
- 8) Balducci AG, Tang J, Doyle PS, “Electrophoretic stretching of DNA molecules in cross-slot nanoslit channels”, *Macromolecules*, **41**(21), 9914-9918 (2008).
- 9) Dylla-Spears R, Townsend JE, Jen-Jacobson L, Sohn LL, Muller SJ, “Single-molecule sequence detection via microfluidic planar extensional flow at a stagnation point”, *Lab Chip*, **10**(12), 1543-1549 (2010).
- 10) Juang Y-J, Wang S, Hu X, Lee LJ, “Dynamics of single polymers in a stagnation flow induced by electrokinetics”, *Phys Rev Lett*, **93**, 268105 (2004).
- 11) Lambert GM, Baird DG, “Evaluating rigid and semiflexible fiber orientation evolution models in simple flows”, *J Manuf Sci Eng*, **139**(3), 031012 (2017).
- 12) Kato M, Shirakashi M, Takahashi T, “Measurement of planar elongation stress and viscosity in step planar elongation flow for mobile viscoelastic fluids”, *Rheol Acta*, **56**, 649-659 (2017).
- 13) Macosko CW, Ocansey MA, Winter HH, “Steady planar extension with lubricated dies”, *J Non-Newton Fluid Mech*, **11**, 301-316 (1982).
- 14) Haward SJ, McKinley GH, “Instabilities in stagnation point flows of polymer solutions”, *Phys Fluids*, **25**(8), 083104 (2013).
- 15) Haward SJ, McKinley GH, Shen AQ, “Elastic instabilities in planar elongational flow of monodisperse polymer solutions”, *Sci Rep*, **6**, 33029 (2016).

- 16) Kato M, Takahashi T, “Mechanical and optical measurements of planar elongational viscosity with two-dimensional opposing jets nozzle elongational rheometer”, *Transactions of the JSME*, **83**(879),1-9 (2017) (in Japanese).
- 17) Pendse AV, Collier JR, “Elongational viscosity of polymer melts: a lubricated skin-core flow approach”, *J Appl Polymer Sci*, **59**(8), 1305-1314 (1996).
- 18) Boukellal G, Durin A, Valette R, Agassant JF, “Evaluation of a tube-based constitutive equation using conventional and planar elongation flow optical rheometers”, *Rheol Acta*, **50**, 547-557 (2011).
- 19) Robert L, Demay Y, Vergnes B, “Stick-slip flow of high density polyethylene in a transparent slit die investigated by laser Doppler velocimetry”, *Rheol Acta*, **43**, 89–98 (2004).
- 20) Robert L, Vergnes B, Demay Y, “Flow birefringence study of the stick-slip instability during extrusion of highdensity polyethylenes”, *J Non-Newton Fluid Mech*, **112**, 27–42 (2003).
- 21) Kelly J, Graessley WW, “Some tests of constitutive equations for entangled polymers based on planar-extension flow histories in a periodically constricted channel”, *Rheol Acta*, **35**, 24-38 (1996).
- 22) Kato M, Takahashi T, Shirakashi M, “Steady planar elongation viscosity of CTAB/Nasal aqueous solutions measured in a 4-roll mill flow cell”, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **30**(5), 283-287 (2002) (in Japanese).
- 23) Kato M, Takahashi T, Shirakashi M, “Development of measurement technique for elongational stress in transient planar elongational flow of low-viscous viscoelastic fluid by flow-induced birefringence method”, *Transactions of the JSME series B*, **68**(676), 3369-3377 (2002) (in Japanese).
- 24) Kato M, Shirakashi M, Takahashi T, “Measurement of planar elongation stress and viscosity in step planar elongation flow for mobile viscoelastic fluids”, *Rheol Acta*, **56**, 649-659 (2017).
- 25) Ahmed R, Mackley MR, “Experimental centerline planar extension of polyethylene melt flowing into a slit die”, *J Non-Newton Fluid Mech*, **56**, 127-149 (1995).
- 26) Shirakashi M, Takahashi T, Maw WS, “Planar elongational rheometry using slit entry flow in Hele-Shaw cell”, *Nihon Reoroji Gakkaishi*, **33**(4), 183-190 (2005).
- 27) Fuller GG, “Optical rheometry of complex fluids”, (1995), *Oxford University Press*, New York.
- 28) Jeffery GB, “The motion of ellipsoidal particles immersed in a viscous fluid”, *Proceedings of the royal society A*, **102**(715), 161-179 (1922).
- 29) 山本智, 松岡孝明, “伸張流動場における繊維分散系の配向シミュレーション”, 成形加工, **11**(6), 510-516 (1999).
- 30) Mose KB, Advani SG, Reinhardt A, “Investigation of fiber motion near solid boundaries in simple shear flow”, *Rheol Acta*, **40**(3), 296-306 (2001).

- 31) Cohen C, Chung B, Stasiak W, “Orientation and rheology of rodlike particles with weak Brownian diffusion in a second-order fluid under simple shear flow”, *Rheol Acta*, **26**(3), 217-232 (1987).
- 32) Bretherton FP, “The motion of rigid particles in a shear flow at low Reynolds number”, *J Non-Newton Fluid Mech*, **14**(2), 284-304 (1962).
- 33) Harris JB, Pittman JFT, “Equivalent ellipsoidal axis ratios of slender rod-like particles”, *Journal of Colloid And Interface Science*, **50**(2), 280-282 (1975).
- 34) 杉原幸信, 久保田航, 吉武裕美子, 高橋勉, 岩田修一, 南雲亮, 森秀樹, “砲弾ボブの押し込み反力による平面伸張粘度の機械的測定手法の開発”, *日本レオロジー学会誌*, **44**(3), 175-183 (2016).
- 35) Yasuda K, Armstrong RC, Cohen RE, “Shear flow properties of concentrated solutions of linear and star branched polystyrenes”, *Rheol Acta*, **20**, 163-178 (1981).
- 36) Debbaut B, Crochet MJ, “Extensional effects in complex flows”, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **30**, 169-184 (1988).
- 37) Giesekus H, “A simple constitutive equation for polymer fluids based on the concept of deformation-dependent tensorial mobility”, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **11**, 69-109 (1982).
- 38) Pendse AV, Collier JR, “Elongational viscosity of polymer melts: A lubricated skin-core flow approach”, *J Appl Polym Sci*, **59**, 1305-1314 (1996).
- 39) Marchal JM, Crochet MJ, “A new mixed finite element for calculating viscoelastic flow”, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **26**, 77-114 (1987).
- 40) 中村喜代治, “非ニュートン流体力学”, (1997), コロナ社, 東京.
- 41) 白樫正高, 増田渉, 高橋勉, “機械工学基礎コース 流体力学の基礎 —乱流・圧縮性流れ・非ニュートン流体—”, (2006), 丸善株式会社, 東京.
- 42) Sugihara Y, Iwata S, Takahashi T, “Evaluation of planar elongation viscosity of low-viscosity liquids using annular abrupt contraction flow around a sliding disk-shaped bob”, *Rheologica Acta*, **57**(2), 97-104 (2018).
- 43) Nguyen DA, Sridhar T, “Preparation and some properties of M1 and its constituents”, *J Non-Newton Fluid Mech*, **35**, 93-104 (1990).
- 44) Binding DM, Jones DM, Walters K, “The shear and extensional flow properties of M1”, *J Non-Newton Fluid Mech*, **35**, 121-135 (1990).
- 45) Ushida A, Hasegawa T, Kawami M, Uchiyama H, Narumi T, Kayaba R, “Flow properties of microbubble/polyethylene glycol mixtures passing through orifices and slits”, *Nihon Reorogi Gakkaishi*, **40**(2), 61-68 (2012).



- 46) 杉原幸信, 山内崇嗣, 高橋勉, “同心二重円筒流路の押し込み流れにおいて内円筒に作用する抗力を利用した第一法線応力差の測定 - 第 1 報: 定常状態における押し込み反力に基づく算出方法 -”, 日本レオロジー学会学会誌, **46**(2), (2018)(掲載決定).
- 47) 日本レオロジー学会編, “講座・レオロジー”, (1992), 高分子刊行会, 京都.
- 48) Münstedt H, Schwarzl FR, “Deformation and Flow of Polymeric Materials”, (2014), *Springer*, DE.
- 49) 鈴木寛一, “非回転二重円筒法による液状食品の粘性および粘弾性の簡易測定”, 日本食品科学工学会誌, **46**(10), 657-663 (1999)
- 50) Suzuki K, Imaoka K, Keawkaika S, Hagura Y, “Two-element model analysis of the viscoelastic behavior of liquid food materials by means of the Non-rotational concentric cylinder method”, *Japan Journal of Food Engineering*, **8**(2), 73-80 (2007).
- 51) Bird RB, Armstrong RC, Hassager O, “Dynamics of polymeric liquids volume1 fluid mechanics”, (1977), *John Wiley & Sons, Inc.*, Canada.
- 52) Watanabe Y, “Evaluation of Fiber Orientation in Ferromagnetic Short-Fiber Reinforced Composites by Magnetic Anisotropy”, *Journal of Composite Materials*, **36**(8), 915-923 (2002).

## 謝辞

---

本研究の遂行ならびに本論文執筆にあたり、懇切かつ非常に的確なご指導、および多くの学会や研究会における発表の機会を賜り、研究遂行を終始支えていただきました。長岡技術科学大学 高橋勉 教授に厚く御礼申し上げます。誠にありがとうございました。

また、時には叱咤激励を賜り、物理学やソフトマターの分野に関して何度も貴重なご教示をくださいました。長岡技術科学大学 吉武裕美子 助教に深く感謝申し上げます。

学会や研究会においても、また研究以外の場でも非常に多くの助言を賜り、大変ご多忙の中、本論文の審査をご快諾してくださいました。名古屋工業大学 岩田修一 准教授に厚く御礼申し上げます。

本論文の審査ならびに本論文執筆に際し、数々の貴重なご教示を賜りました。長岡技術科学大学 山田昇 教授、同 田浦裕生 准教授、同 山崎渉 准教授に厚く感謝致します。

研究を遂行するうえで、貴重な御意見と御理解を賜り、応援して下さった、新潟大学 鳴海敬倫 教授、同 牛田晃臣 助教、同 佐藤大祐 特任助教、大阪電機通信大学 山本剛宏 教授、高知工科大学 辻知宏 教授、名古屋工業大学 玉野真司 准教授、津山工業高等専門学校 加藤学 准教授、北九州市立大学 山本浩二 准教授に深く感謝申し上げます。

人としてあるべき姿勢をご教示くださり、多数の実験装置を設計していただきました、堀田設計事務所 堀田行夫 様に深く感謝致します。

本研究は長岡技術科学大学 流体工学研究室で行われたものであり、研究や学生生活において多くの助言をいただき、大変お世話になりました。長岡技術科学大学 山田修一 技術職員、および、研究室の先輩、同輩、後輩の皆さまに厚く感謝致します。また、流れ場の数値解析をしてくださいました名古屋工業大学 久保田航 様、同 伊藤駿作 様に感謝の意を表します。

最後となりましたが、博士後期課程への進学にご理解いただき、さらに、多くの支援をしていただきました両親、家族、そして、友人の諸氏に深謝いたします。