

論文内容の要旨

氏名 杉原 幸信

本研究は棒状粒子懸濁液に関してこれまで発生が証明できなかった流動配向による粘度異方性の発現を実験的に証明したものである。この証明のために、流動配向状態の定量的評価方法、流動配向を誘起する平面伸張流動場での粘度の測定方法、粒子配向による粘度の異方性測定手法を新たに開発した。本研究で開発した各種の新技术はいずれも市販のレオメータに簡単な部品を加えるだけで測定可能な汎用的なものであり、懸濁液のレオロジー測定において標準的手法となることを目指した。円筒カップ内の試料に砲弾型ボブを押し込み、反力を測定することで低粘度流体の平面伸張粘度を評価した。ボブを円板型とすることでより高精度に平面伸張粘度を評価する手法を示し、円筒ボブを用いることで押し込み流れにおける流入、流出圧損および第一法線応力差の影響を明らかにした。さらに、円筒ボブの押し込みと同時に回転を加えることで粒子の配向状態における流動方向およびその直交方向の粘度を同時に評価し、配向により2つの粘度が異なることを証明した。さらに、粒子の配向秩序度の時間変化を可視化動画から評価する技術を構築し、配向秩序度と粘度の関係を定量的に明らかにした。これにより、これまで不明であった棒状粒子の配向と粘度変化の関係を実験的に明らかにした。本論文は全7章で構成されており、各章において得られた結果を以下にまとめる。

第1章では、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議論し、本研究の目的を述べた。

第2章では、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、その反力から平面伸張粘度を算出する手法を提案した。この手法により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、せん断粘度のおよそ 10^3 倍大きい値となった。この原因として、全体の反力に占める平面伸張流れの影響が1%以下であり、流れ場において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章では、第2章で得られた最適形状に則り、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（相対誤差率20%以下）。さらに、円板ボブを用いる手法は、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、バグレイ・プロットを用いた流入・流出圧力損失の測定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、トータル・スラスト法に対して二桁ほど低いせん断速度領域を評価した。これにより、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示した。

第5章では、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。この手法より、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。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章では本論文の各章で得られた知見をまとめた。

以上から、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した。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。