回転円筒型自動粘度計

坂田 浩伸・野口 悟・植村 迪彦

(旭硝子(株) 研究所)

An Automatic Rotating Cylinder Viscometer

By

Hironobu SAKATA, Satoshi NOGUCHI and Michihiko UEMURA

(Asahi Glass Co. Ltd., Research Laboratory)

A rotating cylinder viscometer was made by using "Rotovisko" torque measuring apparatus, in order to determine the viscosity of glass automatically. With the present viscometer, both viscosity and temperature of the sample could be measured at constant temperature or decreasing temperature continuously. The measurable ranges of viscosity (η) and temperature were $5 \times 10 \sim 10^7$ P and $650^\circ \sim 1500^\circ \text{C}$ respectively. Measurement could be made for $\eta \leq 10^5$ P at different rates of temperature decrease ($130 \sim 390$ deg/h), while constant temperature method was recommended for $\eta \geq 10^5$ P. The relative errors in measured viscosity were $\pm 5\%$ for $\eta = 5 \times 10 \sim 2 \times 10^3$ P and $\pm 15\%$ for $\eta = 2 \times 10^3 \sim 5 \times 10^5$ P. A sample of glass about 250 g was needed for a series of measurements and the measuring time was about 3 hours.

[Received August 22, 1972]

1. 緒 言

ガラスの粘度は、その熔解、成形などにとって重要な物理量であり、従来よりその測定法に関して、多くの検討と改良がなされてきた^{1)~5)}。その中の1法である回転法^{6)~11)}、トルク測定装置、回転駆動装置を必要とするため、装置が複雑になる欠点を有するものの、比較的広範囲の粘度測定 ($10^0 \sim 10^7$ P) が可能であり、測定の自動化、時間の短縮化が容易なこと¹²⁾、精度が良いなどの長所をもっている。

本研究においては、ガラスの高温粘度測定における操作の簡略化、測定の安定化、測定時間の短縮化を目的として、内筒回転型の粘度計を試作した。本装置の特長は、ガラス試料の粘度—温度関係を連続的に、かつ自動的に測定される点であり、装置の特性、精度について検討した。高温における2, 3のガラスの粘度測定を含めて、以下に結果を報告する。

2. 測定原理

共軸の内筒外筒間に粘性流体を満たし、内外筒に異なった角速度を与えた場合、各円筒には流体の粘性抵抗によってトルクが生ずる。回転円筒法はこのトルクを測定することにより流体の粘度を知るものである。理想的な場合として、末端の影響のない共軸の円筒間にニュートン粘性流体が存在している時、粘度 η は次式で表わされ

る。

$$\eta = \frac{M(r_2^2 - r_1^2)}{4\pi h r_1^2 r_2^2 (\omega_1 - \omega_2)} \dots\dots\dots (1)$$

ここで η は粘度、 M はトルク、 h は内筒浸漬深さ、 r_1, r_2 は各々内筒外筒半径、 ω_1, ω_2 は各々内筒外筒角速度である。実際には、円筒は有限の長さであり、円筒の上下端のトルクが加わるため、末端による補正項を加えねばならない。仮に内筒のみを回転させた場合、(1)式は次のようになる。

$$\begin{aligned} \eta &= \frac{M(r_2^2 - r_1^2)}{4\pi(h+f)r_1^2 r_2^2 \omega_1} \\ &= C \cdot M \cdot \frac{1}{\omega_1} \dots\dots\dots (2) \end{aligned}$$

ここで f は末端補正項であり、 C は内外筒の形状、その設定位置により定まる定数である。粘度の絶対測定を行なうためには、同一の試料に対し、長さ h の異なる内筒をいくつか使用してトルクを測定し、外挿して末端補正項を求めなければならない。しかしながら、一定形状の円筒を用いる場合、粘度既知の粘性流体を使用して、(2)式の装置定数 C を求めておけば、トルクの測定により未知の流体の粘度を求めることができる。本測定法は後者の方法を採用した。

3. 装 置

装置は大別して、トルク測定装置、高温電気炉および

① temperature control panel, ② control cabinet of "Rotovisko", ③ gear lever, ④ flexible connecting cable, ⑤ "Rotovisko" torque measuring head, ⑥ brushes to maintain moving contact of thermocouple, ⑦ inner cylinder (rotor), ⑧ outer cylinder (crucible), ⑨ electric furnace, ⑩ scale for detecting position of rotor, ⑪ handle to move rotor vertically

Fig. 1. Schematic diagram of the viscometer.

Fig. 2. General view of the viscometer.

その制御装置, 内外筒移動装置に分かれる。装置の略図および写真を図-1, 2 に示す。

トルク測定装置は, 西ドイツ Haake 社製 "Rotovisko"* を使用した。このトルクメーターは内筒回転型であり, 通常プラスチックやペイントなどの粘度測定に用いられるが, 熔融スラグの測定に使用された例も報告されている¹³⁾。その作動原理は次のようである。コントロールキャビネット内のシンクロナスモーターにより回転を生ぜしめ, フレキシブルケーブルを介して内筒を回転させる。内筒に生ずる粘性抵抗によるトルクは, 内筒の直上に位置する測定頭内にあるバネの振れとなり, バネに連結されたポテンショメーターの抵抗値変化を, トルクの相対値としての電流値 S に変換し, 測定する

ものである。トルク測定の最大値は, $\max 50 \text{ g}\cdot\text{cm}$ と $\max 500 \text{ g}\cdot\text{cm}$ の2段階の切換えが可能である。さらに減速装置を取付けることにより, その $1/100$ の回転数の作動が可能である。"Rotovisko"においては, 回転数はその逆数に比例する Speed Factor U なる定数によって表示される。

内筒にあたる回転子および外筒にあたる坩堝の形状を図-3 に示す。使用用途上の変形をできるだけ避けるため, 材質として Pt(90%)-Rh(10%) 合金を使用した。この回転子の形状は, Tiede¹¹⁾ が使用したそれに近いものである。回転子下端はガラス試料中に沈める時, 空気の泡を巻き込まぬように, また底面の影響を小さくするため円錐形とした。その内部は空洞となっており, ガラス温度測定用の熱電対 (Pt: 6%Rh-Pt: 30%Rh) が挿入され, その先端はほぼ回転子中心部に位置する。坩堝の容量は約 100 cm^3 であり, 測定に必要な試料は板ガラス組成で約 250 g である。

電気炉には両端が密に, 中央が疎に巻かれた白金ヒーターを使用した。所要電力は 3 kW である。さらにその外側に巻かれたカンタル線ヒーターにより, 800°C まで予熱を行なった。制御温度検出用の熱電対は炉心管の内壁に3対設置し, 中央発熱帯を PID 制御し, 上下発熱帯は中央からの温度差分に対し PI 制御した。

試料ガラスの温度は, 上記のごとく内筒に内蔵された熱電対によって検出されるが, その熱電対は回転子の上部に位置する回転刷子を経て, 精密記録計へ結線されている。回転刷子周辺部の写真を図-4 に示す。したがって, 本粘度計は前記の制御装置と組合わせて, 円筒の回転により生ずるトルクとガラス温度の同時連続測定が可能である。

material: Pt(90%)-Rh(10%), dimension unit: mm

Fig. 3. Inner cylinder (a) and outer cylinder (b).

* Gebrüder Haake (Berlin)

④: upper water jacket
 ③: rotating electrical contact
 ②: lower water jacket
 ①: chuck for rotor

Fig. 4. Part of rotating electrical contact (×7/20).

4. 測定方法

測定の手順は次のようである。あらかじめ外筒に約 250 g のガラス試料を入れ、別の電気炉によって熔解し、よく脱泡させたのち、所定温度にセットした粘度計電気炉へ挿入する。外筒を耐火物により造られた台に乗せることにより、その中心軸を内筒回転軸に一致させることができる。後述するごとく回転円筒法においては、試料の液面に対する内筒の設定精度が誤差に影響を及ぼす。そこで内筒挿入時に、内筒先端と試料ガラス間の電気抵抗変化を測定して、内筒が試料液面と接触する位置を、回転子移動装置の変位目盛によって検出する。次に内筒を定められた位置まで浸漬させ、高温にて 30 分程度放置し、測定の準備は完了する。測定は泡の発生をおさえるため、プログラム制御により温度を連続的に下降させながら行なう。測定者は温度の降下と共に適宜、回転子回転速度、トルクメーターの感度の切換えを行なう。精密測定の場合には定値制御で、一定温度において測定する。以上の測定時間はガラス温度、ガラス粘度測定範囲に依存するが、1 試料当たり 1 日必要である。

“Rotovisko” においては、粘度 η は次式によって求められる。

$$\eta = K \cdot U \cdot S \dots \dots \dots (3)$$

ここで K は装置定数であり、粘度既知の物質で定めなければならない。 U は Speed Factor なる係数であり、回転周期に比例する。 S は “Rotovisko” のスケールの読みであり、トルクに比例する電流値である。

K の決定のために、米国度量衡標準局 (NBS) にて検定された 2 種類の粘度標準ガラス No. 710, 711¹⁴⁾ を使用した。また室温における定数決定には、有機物標準粘性液を用いることを試みた。

5. 実験結果

5.1 室温における測定

高温におけるガラス試料の実験に先立って、室温において標準粘性液を用い、内外筒間の偏心、試料液量、内外筒間の距離の変動のトルクへの影響を調べた。実験に使用した標準粘性液は、計量研究所検定の昭和石油 (株) 製 JS 2000 (約 2×10^3 P), 60 H (約 5×10^2 P), 200 H (約 10^3 P) の 3 種の粘度既知の有機物粘性液である。これらは、室温において 0.05°C の温度変化がほぼ 1% の粘度変化をもたらすため、温度制御、温度分布に注意を要した。温度分布を小さくするため、形状が実測用の外筒に比べ深さが 2 cm 深く、他の寸法は同一の真鍮製の外筒を使用し、その回りを室温に近い恒温水を循環させた。標準温度計によって測定した結果、液温は $\pm 0.07^\circ\text{C}$ の精度で制御されることがわかった。

本液の Newton 性を確認するため、回転数とトルクの関係を求めた。結果を図-5 に示す。3 種の粘性液とも原点を通る直線となり、測定に際して、液の Newton 性が保たれていることが認められる。

次に内筒の偏心の影響を調べた。本装置の内外筒の形状は、前述のごとく外筒に対する内筒の径の比が 0.3 であり、偏心量に対し、そのトルクの変化分が 2 次関数的に増加するという近似式¹⁵⁾は適用できない。内筒半径に対する内外筒間の間隔が広いと、偏心による影響は小さいと考えられる。その確認のため標準粘性液 200H, 60H に対し、人為的に回転軸を偏心させる実験を行なった。その時の相対的トルク変化 (一定回転数において、偏心がない場合のトルクに対する、偏心がある場合のトルクの変化量) と偏心量との関係を図-6 に示す。偏心が 3 mm 程度生じて、その相対的トルク変化は約 0.5% である。一方、3 mm の偏心は肉眼によって十分感知され

Fig. 5. Relation between torque and rate of rotation for viscous standard fluids at room temperature.

Fig. 6. Effect of deviation of rotating axis of inner cylinder from central axis of outer cylinder on relative change in torque. (M_{dev} : torque in the deviation, M_0 : torque in co-axial state)

Fig. 7. Influence of distance between inner and outer cylinders on torque.

Fig. 8. Effect of immersing depth of rotor on torque.

るので、これより生ずる誤差は無視されうる値となる。

外筒底面と内筒末端間の距離がトルクに及ぼす影響を調べた。液面に対する回転子の位置は一定にして、この測定を行なった。結果を図-7に示す。内外筒底面間の距離が 10 mm 以上では、トルクはほぼ一定であり、内筒を設定するにあたって、この間隔が 10 mm 以上で少々変動しても、トルクにほとんど影響を及ぼさないことがわかる。

内外筒間の距離を一定として液量を変化させた時のトルク変化を調べた。結果を図-8に示す。液面が高くなるにしたがってトルクは直線的に増加している。これは回転子の直径が 12 mm であるのに対し、その軸の部分の径が、内部に熱電対を挿入する必要から 6 mm であり、この部分のトルクの変動が無視できないためである。すなわち概算によると浸漬量が 5 mm 変化することにより、トルクは約 3% 変化し、実験結果もそれを示している。したがって種々の液量に対して回転子を設定する際、これより生ずる誤差を $\pm 1\%$ 以下にするためには、浸漬深さ ± 1 mm の精度で回転子を設定しなければならない。

以上の室温実験から求めた装置定数 K は、JS 2000, 60 H, 200 H の各粘性液に対し、各々 $K=0.49, 0.45, 0.48$ であった。このばらつきは主として温度分布、温度制御の精度に起因するものと思われる。

5.2 高温における測定

NBS 粘度標準ガラス No. 710, 711¹⁴⁾ を用いて高温における本装置の特性を調べた。回転子設定にあたっては室温実験 (5.1) から判明したごとく、ガラス液面に対する回転子の浸漬位置のばらつきを小さくしなければならない。前述のごとく液面の検出は電気抵抗を測定することにより行なうが、この方法によれば種々の液量のガラス試料に対し、およそ ± 1 mm の精度で、その液面の検出が可能と思われる。測定は内筒をガラス液面より 5 cm 沈めた位置で行なった。

Fig. 9. Temperature distributions on the central axis in the furnace at constant temperature. (The dotted line shows position of upper edge of the crucible.)

Fig. 10. Relation between torque and rate of rotation for viscosity standard glasses at a high temperature.

室温における実験と同様、高温においても試料内の温度分布が問題となる。試料ガラスの入ってない坩堝（外筒）を挿入して、一定温度に保持した時の炉内中心軸上の温度分布を図-9に示す。坩堝内の温度分布は炉温 989°, 1191°, 1392°C において $\pm 2^\circ\text{C}$ であった。

ガラスは一般に Newton 性流体といわれているが¹⁶⁾、NBS No. 710, 711 ガラスについて粘性によるトルクと回転数の関係を調べたところ、図-10に示される結果を得た。これらの結果は No. 710, 711 に対し、温度を各々 1117°, 924°C に保持し、測定して得られたもので、その時の粘度は各々 2.2×10^3 , 7.8×10^3 P であった。トルクと回転数は原点を通る直線関係にあり、これらのガラスの Newton 性が示されている。

これらの標準ガラスについて、一定温度ならびに温度下降時におけるトルク測定を行なった。温度下降速度は 1000°C 以上においては 130 deg/h, 1000°C 以下においては 65 deg/h である。測定結果および NBS 粘度標準ガラス No. 710, 711 の粘度検定値を用い、(3) 式によって求めた装置定数 K を粘度との関数として図-11に示す。高粘度領域になるにしたがって、装置定数が上昇する傾向がみられる。その 1 つの原因としては、白金およびガラス試料の熱膨張の差により、内筒のガラスへの浸漬量に変化が生ずるためと考えられるが、概算による

Fig. 11. Apparatus constant vs. viscosity relationship. (The solid line shows a value ($K=0.49$) employed in this experiment.)

Fig. 12. Viscosity curves of NBS' standard glasses No. 710 and No. 711.

と大きく見積っても 500°C の温度差で 5 mm 程度であり、トルクに 3% 程度の変化を生ずるにすぎない。実際の装置定数の変化はこの値よりも大きく、他の要因もまた存在すると考えられる。

2×10^3 P 以下の粘度領域では、装置定数は $K=0.49$ であった。この値は室温実験において標準粘性液を使用して求めた値 $K=0.45 \sim 0.49$ とほぼ一致している。図-12に No. 710, 711 の $K=0.49$ として計算した実測値と、NBS 検定値を示す。No. 710, 711 は共によく一致し、再現性もよいことが認められる。

本装置のおもな特長は、粘度の連続測定が可能なことであるが、温度を連続的に下降させる時、それに伴って炉内の温度分布が変化することが予想される。温度下降速度の見掛けの粘度への影響を、NBS No. 710 ガラスを用いて調べた。結果を図-13に示す。測定温度降下条件は 390, 260, 130 deg/h および一定温度時の測定である。

2×10^3 P 以下では、粘度測定値および検定値の対数の差 ($\Delta \log \eta$) は 0.02 以下である。しかし 2×10^3 P 以上では、そのばらつきは $\Delta \log \eta = \pm 0.04$ 程度となる。温度下降速度の影響としては一定の傾向は現われず、全

Fig. 13. Effect of rate of temperature decreasing upon the measured viscosity of NBS' standard glass No. 710. ($\Delta \log \eta$ is the discrepancy between the observed log viscosity and the log viscosity approved in NBS.)

体的にトルクに顕著な影響を与えない。

6. 検 討

まず本装置において乱流の起こる可能性を Reynolds 数によって検討する。回転円筒型の粘度計において、その Reynolds 数 R は、

$$R = \frac{\omega(r_2 - r_1)r_1\rho}{\eta} \dots\dots\dots (4)$$

で与えられる。ここに ρ は試料ガラスの密度である。本装置使用の最大の角速度 $\omega = 8.5 \text{ sec}^{-1}$ 、その時の粘度 $\eta = 10 \text{ P}$ 、密度 $\rho = 2.5 \text{ g/cm}^3$ を代入し、計算すると、 R は 2 を超えないことがわかる。一方乱流の生ずる条件として、Couette は $R \geq 1900$ 、Mallock は $R \geq 4200 \sim 32000$ を与えている¹⁷⁾。本装置の測定条件下では、十分それ以下の値であり、乱流は発生し難いと考えられる。

測定精度に関し、内筒外筒の偏心、液量、内筒外筒間距離のばらつきに起因する誤差が考えられるが、これらは室温実験から判明したごとく、2% 以下である。誤差に関与するその他の要因として、内外筒および試料ガラスの熱膨脹率の差から生ずる浸漬深さの変化、試料温度分布、温度測定の影響、記録紙からの読み取り誤差などが考えられる。温度測定による誤差は指数関数的に粘度に影響を及ぼすため、特に低温領域では注意を要する。なお刷子の摩擦抵抗によるトルクへの影響は、低粘度領域、たとえば 10^2 P では全トルクの 5% 程度と無視できないため、測定に先立って摩擦抵抗によるトルクを測定して、ガラスの測定値より差引いた。

以上のごとく精度は不確定な要因が多いため、理論的には算出困難であるが、実験値のばらつき、再現性よりみて、 $\eta = 10^1 \sim 2 \times 10^3 \text{ P}$ の粘度領域で $\Delta\eta/\eta = \pm 5\%$ 、 $\eta = 2 \times 10^3 \sim 5 \times 10^6 \text{ P}$ で $\Delta\eta/\eta = \pm 15\%$ である。

図-13 において、 10^5 P 以上の粘度領域では、連続測定法に比べ、定温測定時の測定値のばらつきが小さいことが示された。低温領域たとえば 950°C 以下で、 10^5 P 以上の高粘度のガラスを測定する場合には、連続測定時に回転速度を切替える際、トルクメーターのばねが平衡の状態になるまでに時間がかかり、真のトルクを示さない。それが誤差の原因ともなるので、 10^5 P 以上の粘度領域における測定では、一定温度における各点測定が適している。

7. 高温におけるガラス粘度の実測例

以上のごとく検討した設定位置、および装置定数 ($K = 0.49$) を使用してパイレックスおよび普通板ガラスの $900^\circ \sim 1400^\circ\text{C}$ における粘度を測定した。結果を図-14 に示す。図において、 10^5 P 以下では 130 deg/h の温度連続下降速度のもとで連続測定、 10^5 P 以上の粘度領域では一定温度における各点測定である。これらの結果を用

Fig. 14. Viscosity vs. temperature relationships of sheet glass and pyrex glass.

いて、最小 2 乗法により求めた各ガラスの Fulcher の式^{18),19)}による粘度—温度の関係は次の通りである。

$$\text{パイレックスガラス: } \log_{10} \eta = \frac{4012.5}{T - 328} - 0.2828$$

$$\text{普通板ガラス: } \log_{10} \eta = \frac{4870.3}{T - 199} - 1.8148$$

ここで T はガラス試料温度 ($^\circ\text{C}$) である。

8. 要 約

ガラスの高温粘度測定の自動化、時間短縮化を目的として、内筒回転型の粘度計を試作した。本装置の特長は一定温度あるいは連続温度降下時に、粘度と温度を同時に、連続的に測定できる点である。粘性抵抗によるトルクは“Rotovisko”トルクメーターにより、電気的に検出される。内筒中に挿入されたガラス試料温度測定用の熱電対の起電力は、回転刷子を経て取出され、記録される。一定温度における測定値と温度連続下降時 ($130 \sim 390 \text{ deg/h}$) における測定値の間に、著しい差異は生じなかった。測定粘度範囲は $\eta = 5 \times 10 \sim 10^7 \text{ P}$ であり、測定温度範囲は $650^\circ \sim 1500^\circ\text{C}$ である。温度連続下降による測定は 10^5 P 以下の粘度で行ない、それ以上では一定温度における測定が適当である。測定の誤差に本データのばらつき、再現性から、 $\eta = 5 \times 10 \sim 2 \times 10^3 \text{ P}$ において $\Delta\eta/\eta = \pm 5\%$ 、 $\eta = 2 \times 10^3 \sim 5 \times 10^6 \text{ P}$ において $\Delta\eta/\eta = \pm 15\%$ であった。測定に必要なガラス試料は約 250 g である。正味の測定時間は 1 試料あたり約 3 時間であり、測定時間の短縮化がなされた。

なお本装置の粘度測定方法は相対測定のため、粘度既知の試料を用いて装置定数を決めなければならない。室温における有機物の標準粘性液によって決められた装置定数の値と、 1450°C の高温において、粘度標準ガラスを使用して定められた値とはほぼ一致し、室温における

装置定数の決定が適切であり、かつ実際であることが示された。

最後に、本研究にご指導、ご援助を賜った当研究所 鈴木由郎主席研究員、および本装置の製作にご協力いただいた英弘精機(株)の方々に感謝いたします。

文 献

- 1) R.G. Hunter, *J. Am. Ceram. Soc.* **17**, 121 (1934).
- 2) J.E. Feustermacher, R.I. Ryder, *Am. Ceram. Soc. Bull.* **43**, 136 (1964).
- 3) W. Müllensiefen, K. Endell, *Glastech. Ber.* **11**, 161 (1933).
- 4) 泉谷徹郎, 守屋喜郎, 大工試季報 **11**, 274 (1960).
- 5) R.L. Tiede, *J. Am. Ceram. Soc.* **38**, 183 (1955).
- 6) S. English, *J. Soc. Glass Technol.* **8**, 205 (1924).
- 7) H.R. Lillie, *J. Am. Ceram. Soc.* **12**, 505 (1929).
- 8) H.R. Lillie, *ibid.* **12**, 516 (1929).
- 9) A. Dietzel, R. Brückner, *Glastech. Ber.* **28**, 455 (1955).
- 10) A. Napolitano et al., *J. Res. Nat. Bur. Stand.* **69 A**, 449 (1965).
- 11) R.L. Tiede, *J. Am. Ceram. Soc.* **42**, 537 (1959).
- 12) 今岡 稔, 生産研究 **11**, 449 (1959).
- 13) 白石 裕, 斎藤恒三, 日本金属学会誌 **29**, 613 (1965).
- 14) A. Napolitano, E.G. Hawkins, *J. Res. Nat. Bur. Stand.* **68 A**, 439 (1964).
- 15) 川田裕郎, “粘度” コロナ社 (1969) p. 110.
- 16) 渡辺宗男, 小山隆三, 窯協 **64**, 263-70 (1956).
- 17) 川田裕郎, “粘度” コロナ社 (1969) p. 101.
- 18) G.S. Fulcher, *J. Am. Ceram. Soc.* **8**, 339 (1925).
- 19) G.S. Fulcher, *ibid* **8**, 789 (1925).

(8/22/1972 受付)