Article

Development of Mechanical Measurement Technique for Planar Elongation Viscosity Using Resistant Force on Pushing Bullet Bob

Yukinobu SUGIHARA^{*}, Wataru KUBOTA^{***}, Yumiko YOSHITAKE^{**}, Tsutomu TAKAHASHI^{**†},
Shuichi IWATA^{***}, Ryo NAGUMO^{***}, and Hideki MORI^{***}

^{*}Department of Energy and Environment Science, Graduate School of Nagaoka University of Technology
1608-1 Kamitomioka, Nagaoka, Niigata 940-2188, Japan

^{**}Department of Mechanical Engineering, Nagaoka University of Technology
1608-1 Kamitomioka, Nagaoka, Niigata 940-2188, Japan

^{***}Department of Materials Science and Engineering, Nagoya Institute of Technology
Gokiso-cho, Showa-ku, Nagoya, Aichi 466-8555, Japan

A noble measurement method for planar elongation viscosity was proposed. A bullet shaped bob was pushed into a sample liquid held in a cylindrical cup with a constant velocity and the resistance force acting on the bullet bob was measured. The bullet bob was designed to generate steady planar elongation flow through the gap between the bob and the cup. The trial experiments were carried out for standard viscous fluids and aqueous polymer solutions. The resistant forces were measured as a function of the planar elongation rate. The forces were compared to flow analysis of Newtonian, non-Newtonian and viscoelastic fluids. These forces were generally consistent with experimental data.

Key Words: Planar elongation viscosity / Rheometry / Bullet bob / Finite element analysis

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

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^{***}

(原稿受理: 2016 年 2 月 9 日)

1. 緒 言

液晶ディスプレイの大画面化, 高機能化に伴い偏光特性や複屈折特性を有する機能性光学フィルムの需要が高まっている。これらのフィルムの品質は画質に直接影響するため厚さや光学特性などが高度に制御される必要がある。フィルム成形やブロー成形では高分子材料の平面伸張変形特性, すなわち, 平面伸張粘度が生産性や品質に大きな影響を及ぼしている。ニュートン流体では平面伸張粘度の値はせん断粘度の 4 倍となるが, 粘弾性特性を示す高分子材料ではこの関係が成り立たず, かつ平面伸張粘度は平面伸張速度の

関数となる。このため, 平面伸張粘度の値を求めるためには, 平面伸張速度と平面伸張応力の関係を実験により明らかにする必要がある。

伸張粘度には一軸伸張粘度, 二軸伸張粘度および平面伸張粘度がある。円柱状の試験片の両端を掴んで細長く引き延ばすことにより, 比較的簡単に一軸伸張変形を形成することができる。一方, 平面伸張変形を形成するためには幅を一定に保った状態で引き延ばす必要がある。また, 引っ張り変形で定常伸張流動状態を形成するには引っ張り速度を指数関数的に増加する必要がある。掴むことができない低粘度の溶融液などの液体に対して伸張速度が一定となる定常伸張流動場を作り出すことはさらに難しい。Macosko¹⁾および Kelly と Graessley²⁾は二次元対向噴流型の流路により, よどみ線上で定常平面伸張流動状態を形成した。Shirakashi³⁾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。Pendse と Collier⁴⁾は二次元縮小流路により平面伸張流動場を形成し, 圧力損失から平面伸張応力を推定することで平面伸張粘度

^{*} 長岡技術科学大学 大学院 工学系研究科 エネルギー・環境工学専攻
〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町 1603-1

^{**} 長岡技術科学大学 大学院 工学研究科 機械創造工学専攻
〒940-2188 新潟県長岡市上富岡町 1603-1

^{***} 名古屋工業大学 大学院 工学研究科 物質工学専攻
〒466-8555 愛知県名古屋市中区御器所町

† ttaka@nagaokaut.ac.jp

を評価した。しかし、曲率を有する壁面に設置した圧力孔で測定した圧力の正当性や伸張応力を導くための仮定の妥当性に問題があった。Takahashi ら⁵⁾は同様な二次元縮小流路において平面伸張応力を流動複屈折により求めた。また、加藤らは4-ロールミル型流路⁶⁾および平面スクイーズ流路⁷⁾を用いて定常平面伸張流動状態を形成し、よどみ線上の流動複屈折から平面伸張応力を求めた。流動複屈折から応力を算出する方法は光弾性則が成立する透明な試料に対しては有効であり、光学測定のため流れ場に影響を与えず測定できて、かつ多点測定により応力分布を求めることもできる。しかし、適用できる試料が限られるため汎用性は低い。

本研究では、汎用性の高い平面伸張粘度の測定技術の開発をめざす。平面伸張流動場の形成には Fig. 1(a) に示す二次元縮小流路を検討する。ただし、この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. 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. 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。環状縮小流路においては、砲弾ボブと円筒型カップの間の隙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すことができる。また、Fig. 1(a) 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、より正確な平面伸張流動を発生させることができる。さらに、円筒型カップ内に試料を満たしておき、その中に砲弾ボブを押し込むことでボブの押し込みにより排除される流体が側面の隙間を通して上部に移動する。すなわち、流れ場を保持するためのポンプなどが不要であり、かつ、押し込み速度を変えることで流量、平面伸張速度を容易に制御できる。余計な流動発生装置が不要なため計測に必要な試料の量も少ない。さらに、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、押し込み速度を制御しつつボブに作用する押し込み反力を同時に求めることができる。ボブに作用する押し込み反力には、ボブ側面を通る流れによって発生する平面伸張応力の効果が含まれるため、その他の原因による反力の大きさを考慮することで平面伸張応力の大きさを見積もることができる。

Fig. 1. Flow cells to generate steady planar elongation flow for mechanical measurement method.

この砲弾ボブによる新たな平面伸張粘度測定技術について、本報告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。簡易的な解析により、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。さらに、数値解析により砲弾ボブのまわりの流れ場を計算し、この手法の正当性について検討する。

2. 砲弾ボブの形状および数値解析の条件

2.1 砲弾ボブの押し込みによる平面伸張流動場の形成

Fig. 1(b) に砲弾ボブの座標系を示す。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 座標、高さ方向を z 座標とする円筒座標系を用いた。砲弾ボブの側面形状 $R_b(z)$ は、カップ内面との隙間を通過する試料の平面伸張速度が一定となるように決定される。狭い隙間であるため壁面摩擦の効果が大きい。本研究の第一段階として壁面での摩擦を無視し、断面平均流速 $\bar{v}(z)$ が流動方向に比例して増加する形状を考える。 $\bar{v}(z)$ は式 (1) で示される。

$$\bar{v}(z) = \dot{\epsilon}_{PE} z + \bar{v}_0 \quad (1)$$

ここに、 $\dot{\epsilon}_{PE}$ は隙間を通過する試料の平面伸張速度、 $\bar{v}_0$ は隙間の入口 ($z = 0$) における平均流入速度である。隙間には砲弾ボブの移動によって排除された流体が流入する。しかし、この段階では砲弾ボブの形状が決定していないため、円筒型カップの底面から砲弾ボブの押し込み速度 V_b と等しい流速の一樣流が流れ込むと仮定して式 (2) により $\bar{v}_0$ を求める。

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

隙間入口と隙間内の任意断面において連続の式を考えることにより、 $R_b(z)$ は式 (3) で表される。

$$R_b(z) = \sqrt{R_c^2 - \frac{(R_c^2 - R_{b0}^2) R_c^2}{e(R_c^2 - R_{b0}^2) + R_c^2}} \quad (3)$$

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

$$\dot{\epsilon}_{PE} = e V_b \quad (4)$$

2.2 数値解析に用いる支配方程式と境界条件

砲弾ボブの平面伸張流動場の粘弾性解析を並行して行い、本測定手法の特性について検討する。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 (5)、式 (6) に示す。

$$\nabla \cdot \mathbf{v} = 0 \quad (5)$$

$$\rho \mathbf{v} \cdot \nabla \mathbf{v} + \nabla p - \nabla \cdot \boldsymbol{\tau} - \rho \mathbf{g} = \mathbf{0} \quad (6)$$

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、 ρ 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 (7) を用いた。式中の粘度 η については、式 (8) の Carreau Yasuda モデル⁸⁾を用いた。

$$\tau = 2\eta S \quad (7)$$

$$\eta = \eta_0 \left[1 + (\lambda \dot{\gamma})^a \right]^{-d/a} \quad (8)$$

ここに、 $\dot{\gamma}$ はせん断速度、 λ 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。 S は変形速度テンソルであり、次式により定義される。

$$S \equiv \left[\nabla \mathbf{v} + (\nabla \mathbf{v})^T \right] / 2 \quad (9)$$

粘弾性流動解析では、単一モード Giesekus モデル⁹⁾ 式 (10)、式 (11) をそれぞれ用いた。

$$\tau = 2\eta_0 s S + E \quad (10)$$

$$E + \lambda \overset{\nabla}{E} + (\alpha/G) E^2 = 2\eta_0 (1-s) S \quad (11)$$

ここに、 E は弾性応力テンソル、 $\overset{\nabla}{E}$ は式 (12) に示す反変型対流微分である。 η_0 はゼロせん断粘度、 G は緩和弾性率、 α と s はモデルパラメータである。

$$\overset{\nabla}{E} \equiv \frac{\partial E}{\partial t} + \mathbf{v} \cdot \nabla E - \left[(\nabla \mathbf{v})^T \cdot E + E \cdot \nabla \mathbf{v} \right] \quad (12)$$

Fig. 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。実験系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て完全発達流れをボブの押し込み速度 V_b 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 を用い、構成方程式には EVSS 法¹⁰⁾ 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¹¹⁾ 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(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。次に、砲弾ボブにかかる反力は式 (13)、(14) を用いて求めた。

Fig. 2. Boundary conditions and mesh profile of numerical simulation.

$$F_N = P A|_{z=0} - P A|_{z=L} + F_{side} \quad (13)$$

$$F_{side} = \int_0^z \int_0^{2\pi} \left[(\mathbf{T} \cdot \mathbf{n}) \cdot \mathbf{e}_z \right] R_b(z) \sqrt{1 + R_b'(z)^2} d\theta dz \quad (14)$$

ここに、 $\mathbf{T} = (-p\delta + \tau)$ は全応力テンソル、 $\mathbf{n}$ はボブ表面における単位法線ベクトルである。ボブ側面に作用する反力 F_{side} は微小反力をボブ側面に渡って積分することにより求めた。また、 $V_b = 0$ mm/s で計算を行い、その計算結果を $V_b \neq 0$ mm/s の結果から差し引くことにより浮力の補正を行った。

3. 実験装置および試料

3.1 測定に使用したプラットフォーム

本測定手法では砲弾ボブを円筒型カップに同心状態を保って一定速度で押し込み、同時に押し込み反力を測定する必要がある。そのため、これらの機能を基本機能として備えている TA Instruments 社製ひずみ制御型レオメータ ARES-LS を測定のプラットフォームとして利用した。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) を流用した。また、砲弾ボブは $V_b = 1.0$ mm/s のときに $\dot{\epsilon}_{PE} = 0.75, 1.0$ s⁻¹ となる二種類のボブを使用した。式 (4) より、これらは名称にあたる伸張速度係数 e に V_b をかけることで隙間内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 I に示す。

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 ($\eta = 1.313$ Pa·s, $\rho = 850$ kg/m³) 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 (PAA) をイオン交換水に 0.2 wt% の割合で溶かした PAA0.2 wt% 水溶液 ($\rho = 1026$ kg/m³) を使用した。Fig. 3 に PAA0.2 wt% 水溶液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。実験は 23 ~ 25 °C で行った。

4. 実験結果および考察

4.1 砲弾ボブの押し込みによる反力の測定結果

Fig. 4 は試料液面に没した状態の砲弾ボブをステップ状に一定速度で降下させ、さらに一定時間後に停止させたときの押し込み反力 F の時間的变化を示している。試料は JS2000 である。流動開始前の状態を統一するために砲弾ボブ

Table I. Dimensions of 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 s ⁻¹	1.0 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	

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 は直線的に大きくなる。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。式 (15) により F_b は幾何学的に算出することができ、この値を F から引くことで流動により発生する押し込み反力 F' (浮力の増加分が補正された値) を得る。

$$F_b = \rho g \pi R_s^2 \left(1 + \frac{R_s^2}{R_c^2 - R_s^2} \right) V_b t \quad (15)$$

Fig. 5 に示す JS2000 の場合、浮力の効果を補正した 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。Fig. 6 は、粘弾性流体である PAA0.2 wt% 水溶液に対して Fig. 5 と同様の実験を行った結果である。ステップ単

純せん断流れと同様に流動開始直後に 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がわかる。これは PAA0.2 wt% 水溶液の緩和時間に依存した挙動と考えられる。また、Fig. 5 および Fig. 6 に見られる押し込み反力の周期的な振動は、砲弾ボブを移動させるモータの駆動による影響と推測される。さらに、JS2000 と PAA0.2 wt% 水溶液で振動の振幅に約 10 倍の差があることがわかる。 $V_b = 0.1$ mm/s におけるボブ壁面せん断速度を概算してそれぞれの試料のせん断粘度を比較すると、PAA0.2 wt% 水溶液のせん断粘度は JS2000 の約 10^{-1} 倍となる。したがって、それぞれの試料における振幅の差は、せん断粘度の大きさの違いによるものであると考えられる。

これらの実験結果よりオーバーシュート領域を除いた流動中における F' の平均値と $\dot{\epsilon}_{PE}$ の関係を調べた。ここで、振動の周期に対して十分に広い範囲の F' の平均値を用いることにより振動による値の変化が測定に影響しないように

Fig. 3. Rheological property of PAA0.2 wt% aqueous solution. Red line is correlation of Carreau-Yasuda model. Black line is correlation of Giesekus model.

Fig. 4. Resistant force F acting on bullet bob.

Fig. 5. Buoyancy corrected resistant force F' for JS2000.

Fig. 6. Buoyancy corrected resistant force F' for PAA0.2 wt% aqueous solution.

している。Fig. 7 より、JS2000 の F' は $\dot{\epsilon}_{PE}$ の 1 次関数で表されることがわかる。ニュートン流体では、せん断粘度と平面伸張粘度が変形速度に依存しない定数であることから、 $\dot{\epsilon}_{PE}$ と F' の比例関係は予想される結果と一致する。一方、PAA0.2 wt% 水溶液の結果は $\dot{\epsilon}_{PE}$ の増加に対して F' の増加率が減少しており、ずり流動化と同様の挙動を示している。また、同じ $\dot{\epsilon}_{PE}$ でも砲弾ボブ $e=0.75$ の方が大きな値となることから、せん断流れによる反力が大きくなったことが考えられる。

4.2 数値解析結果との比較

JS2000 の数値解析による F' を Fig. 8 に示す。図中の白抜き記号は実験によって求めた値、塗り潰し記号は数値解析によって求めた値を意味する。この図から計算値と実験値の定性的傾向は一致していることがわかり、今回の計算における境界条件の設定、および、反力の計算方法は妥当であるといえる。また、実験結果に対して計算結果が低く算出

Fig. 7. Buoyancy corrected resistant force F' as a function of planar elongation rate.

Fig. 8. Comparison of buoyancy corrected resistant force F' for JS2000.

されていることがわかる。実験値に対する相対誤差は、全体を通して、砲弾ボブ $e=0.75$ では -24% 、 $e=1.0$ では -9% 程度である。このような差が生じる原因として、まず、隙間出口における砲弾ボブ側の角で発生した特異点の存在が挙げられる。特異点は境界条件の不連続性によって生じる問題であり、有限要素法では圧力値に乱れが生じる。そのため、ボブに加わる圧力に誤差が加わったことが指摘される。これを踏まえ、 $e=1$ の流路において Fig. 2(a) の L_{out} 領域をなくして特異点を排除した数値解析を行った。その結果を Fig. 9 に示す。実線と■記号は特異点が存在する計算結果、実線と△記号は特異点が存在しない計算結果を表している。この図より、特異点を排除した計算値は実験値に近づき、相対誤差は -3.7% 程度に減少することがわかる。次に、実際の流れ場と数値解析に使用した流れ場のボブ壁面せん断速度の違いが挙げられる。実際の流れ場では砲弾ボブが移動しているのに対し、数値解析は砲弾ボブとカップが静止した条件で行っている。そのため、実際の流れ場はボアズユ流れとクエット流れの複合流れ場となり $\dot{\gamma}_w$ が増加する。後述する簡易解析により JS2000 の F' を算出して比較すると、ボブが移動している場合に対して静止している場合では F' が約 -0.3% 小さくなる。さらに、数値解析には砲弾ボブを支える中心軸を考慮していないことが挙げられる。試料の中に没している中心軸には壁面に作用するせん断応力によって反力が生じる。そのため、ボブを支える中心軸を細くし、壁面せん断速度および側面積を小さくすることで実験値と計算値の差を削減できると考えられる。

次に、PAA0.2 wt% 水溶液の非 Newton 粘性のみを考慮し、弾性を無視した場合の F' の結果を実験結果とともに Fig. 10 に示す。また、粘弾性流動解析より求めた F' を Fig. 11 に示す。Fig. 10 と Fig. 11 より、両者とも V_b の増加に対して F' の増加率が減少しており、ずり流動化の挙動を算出できている。これは実験結果の傾向と定性的に一致しており、流動解析における境界条件の設定および反力の計算方法は妥当であると考えられる。すなわち、非 Newton 粘性しか考慮していない計算では、伸張変形による反力の増加は見込ま

Fig. 9. Comparison of buoyancy corrected resistant force F' between significant point and without significant point for JS2000.

れないために、反力は低めに出ることが考えられる。一方、粘弾性流体の結果 (Fig. 11) を見ると、計算値の方が実験値よりも 2.5 倍ほど大きな値となっている。Fig. 12 のせん断速度分布に注目するとボブとカップの狭い隙間の部分におけるせん断速度はおおよそ $0.1 \sim 1 \text{ s}^{-1}$ 程度の値を示している。これは、Fig. 3 の粘度曲線における単一モード Giesekus モデルの粘度は、実測の粘度値よりも大きいことと、弾性応力の増加に起因した結果と考えられる。しかしながら、弾性応力はせん断変形による弾性と伸張変形による弾性の和であり、これらを定量的に分離することは困難である。Fig. 13 に PAA0.2 wt% 水溶液の流線を示す。この図より、砲弾ボブとカップの隙間によって構成される流路内にはきれいな流れが生じており、ボブとカップの隙間に入る流れは、急激に加速することがわかる。また、Fig. 12 に示す数値解析によるせん断速度の分布から、粘弾性流体ではずり流動化によ

て壁面極近傍のせん断速度が大きな値を示しており、特に隙間が狭くなる流路出口付近においてこの傾向が顕著に現れていることが読み取れる。このことから、せん断変形に伴う弾性の影響は流路出口領域の壁面近傍しか影響を与えないことがわかった。

次に、流れ場の伸張速度に注目する。Fig. 14 にそれぞれの試料における砲弾ボブ $e=1.0$, $V_b=0.1 \text{ mm/s}$ のときの伸張速度分布を示す。伸張速度は式 (16) より算出した。¹²⁾

$$\dot{\epsilon} = 3 \text{III}_d / \text{II}_d \quad (16)$$

ここに、 II_d は変形速度テンソルの第 2 不変量、 III_d は変形速度テンソルの第 3 不変量である。

Fig. 14(a) は Newton 流体の JS2000 であり、Fig. 14(b) は PAA0.2 wt% 水溶液の結果である。試料がカップの液溜り部

Fig. 10. Comparison of buoyancy corrected resistant force F' in PAA0.2 wt% aqueous solution with non-Newtonian fluid flow analysis.

Fig. 11. Comparison of buoyancy corrected resistant force F' in PAA0.2 wt% aqueous solution with viscoelastic fluid flow analysis.

Fig. 12. Shear rate distribution of PAA0.2 wt% aqueous solution. Bullet bob $e=1.0$, $L=7.0$, $V_b=0.1 \text{ mm/s}$.

Fig. 13. Streamline of PAA0.2 wt% aqueous solution. Bullet bob $e=1.0$, $L=7.0$, $V_b=0.1 \text{ mm/s}$.

(a) JS2000

(b) PAA0.2wt% aqueous solution

Fig. 14. Elongation rate distribution. Bullet bob $e=1.0$, $L=7.0$, $V_b=0.1 \text{ mm/s}$.

から隙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、ずり流動化を示す PAA0.2 wt% 水溶液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、壁面摩擦を考慮する流れ場では伸張速度の大きさが理想流体と仮定した設計条件のおおよそ 1/3 程度になるものの、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。これらのことから、砲弾ボブを用いた手法では均一な伸張流れ場を得られることが明らかとなった。

4.3 平面伸張粘度の算出

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 η_{PE} の算出を行う。べき乗則流体における F' を簡易的に式 (17) で表す。

$$F' = F_{ss} + F_{sn} + F_{PE} \quad (17)$$

F_{ss} は砲弾ボブ側面に作用するせん断応力による力、 F_{sn} は試料がボブとカップの隙間においてせん断変形する際の粘性抵抗によりボブ上下に圧力差が生じることで発生する力、 F_{PE} は平面伸張応力による力である。ボブとカップの間の流れを砲弾ボブの移動を考慮した二次元ポアズイユ流れと仮定し、Fig. 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すると、コーシーの運動方程式は式 (18) で表される。

$$0 = \left(-\frac{dp}{dx} \right) + \frac{d\tau}{dy} \quad (18)$$

べき乗則モデルは式 (19) で示される。¹³⁾

$$\tau = K|\dot{\gamma}|^{n-1} \dot{\gamma} \quad (19)$$

ここに、 K は擬塑性粘度、 n は構造粘度指数である。式 (19) を式 (18) に代入することにより、ボブ壁面せん断速度 $\dot{\gamma}_w$ は式 (20) で与えられる。

$$\dot{\gamma}_w = \left\{ \frac{h}{2K} \left(-\frac{dp}{dx} \right) \right\}^{\frac{1}{n}} + \frac{V_b}{h} \quad (20)$$

ここに、 h はカップと砲弾ボブによって構成される隙間の大きさである。また、圧力こう配は式 (21) で与えられる。

$$\left(-\frac{dp}{dx} \right) = K \left[\frac{2n+1}{n} \times \frac{V_b}{8(R_c + R_b)} \times \left(\frac{2}{h} \right)^{\frac{2n+1}{n}} \times \left\{ (R_{b0} + R_{bL})^2 + 2h(R_c + R_b) \right\} \right]^n \quad (21)$$

したがって、 F_{ss} は式 (22) で示される。

$$F_{ss} = \int_0^L \tau \times 2\pi R_b dx = \int_0^L K \dot{\gamma}_w^n \times 2\pi R_b dx \quad (22)$$

また、 F_{sn} は圧力こう配を隙間の入口から出口に渡って積分することにより式 (23) で表すことができる。

$$F_{sn} = \int_0^L \left(-\frac{dp}{dx} \right) dx \times \pi R_{bL}^2 = \Delta P_s \times \pi R_{bL}^2 \quad (23)$$

ニュートン流体の平面伸張粘度はせん断粘度の 4 倍となることが知られている。そこで、べき乗則流体においてもこの関係が成り立つと仮定して F_{PE} を式 (24) により表す。

$$F_{PE} = \tau_{PE} \times \pi R_{bL}^2 = \eta_{PE} \times \dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_{bL}^2 = 4\eta \times \dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_{bL}^2 \quad (24)$$

Fig. 15 と Fig. 16 に式 (17) を用いて簡易的に導いた JS2000 ($K=1.313 \text{ Pa}\cdot\text{s}^n$, $n=1$) および PAA0.2 wt% 水溶液 ($K=0.809 \text{ Pa}\cdot\text{s}^n$, $n=0.399$) の F' の値を実験値とともに示す。これらの図より簡易解析結果と実験結果は定性的に一致していることがわかる。実験値に対する簡易解析値の相対誤差は JS2000 の砲弾ボブ $e=0.75$ では約 -34 %, $e=1.0$ では約 -33 % である。

Fig. 15. Comparison of buoyancy corrected resistant force F' between experiment and simplified analysis for JS2000.

Fig. 16. Comparison of buoyancy corrected resistant force F' between experiment and simplified analysis for PAA0.2 wt% aqueous solution.

Fig. 17. Planar elongation viscosity of JS2000 measured by the Bullet bob.

Fig. 18. Planar elongation viscosity of PAA0.2 wt% aqueous solution measured by the Bullet bob.

Fig. 19. Optimum bullet bob shape.

また、PAA0.2 wt% 水溶液の砲弾ボブ $e = 0.75$ では約 -25% 、 $e = 1.0$ では約 -37% である。このような誤差が生じる原因として流路入口・出口圧力損失によって生じた反力、および、砲弾ボブを支える中心軸に作用する反力による影響が考えられる。本研究ではこれらの影響を無視し、式 (25) より η_{PE} の算出を行う。

$$\eta_{PE} = \frac{F_{PE}}{\dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_{BL}^2} = \frac{F'_M - (F_{ss} + F_{sn})}{\dot{\epsilon}_{PE} \times \pi R_{BL}^2} \quad (25)$$

ここに、 F'_M は浮力の補正を行った押し込み反力の測定値である。

Fig. 17 に JS2000 の平面伸張粘度 η_{PE} の算出結果を示す。この図より、 η_{PE} は $\dot{\epsilon}_{PE}$ に依らず一定の値を保つことがわかる。ニュートン流体では η_{PE} が変形速度に依存しない定数であることから、算出結果はこの特性とよく一致している。また、Fig. 18 に PAA0.2 wt% 水溶液の η_{PE} の算出結果を示す。この図より、 $\dot{\epsilon}_{PE}$ の増加に伴って η_{PE} が減少する elongational-thinning の傾向が読み取れる。しかしながら、算出された η_{PE} はせん断粘度 η の値に対しておおよそ 10^3 倍大きい値を示している。この原因として、 F' に占める F_{PE} の割合が非常に小さいことが考えられる。例えば、砲弾ボブ $e = 1.0$ を $V_b = 1.0$ mm/s で JS2000 の満たされたカップに押し込んだ場合、式 (17) 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。そのため、 F_{PE} の大きさは全体の反力 F' のおおよそ 10^{-3} 倍である。これにより、 F' に対する簡易解析値と実験値の差が数倍であったとしても、平面伸張粘度に換算すると数百～数千倍の差となって表れる。

そこで、全体の反力 F' に対して F_{PE} の影響が大きくなる砲弾ボブの形状を検討する。砲弾ボブ $e = 1$ において R_c を一定とした条件で設計を行うことを考える。Fig. 19 の縦軸は平面伸張応力による力 F_{PE} と押し込み反力 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ことを示している。また、横軸はボブとカップの間の流路における入口と出口の大きさの比であり、1 に近づくほど円筒形状のボブになることを表している。Fig. 19 より $L/R_c < 0.1$ 、かつ、この範囲において $(R_c - R_{b0})/(R_c - R_{BL}) \div 1.7$ となる形状にすることにより、せん断流れによる押し込み反力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。

5. 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、その反力から簡易解析によって平面伸張応力を見積り、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計算し、この手法の正当性について検討した。以下に得られた結果をまとめる。

JS2000 および PAA0.2 wt% 水溶液の測定によって得られた押し込み反力と押し込み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。数値解析により、ボブとカップ間の流路

ではせん断変形に伴う弾性の影響は流路出口領域の壁面近傍に集中すること、また、流路内においてほぼ一様な伸張速度分布が得られることが示された。簡易解析により算出された JS2000 および PAA0.2 wt% 水溶液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。これは押し込み反力に対する平面伸張応力に起因した力の大きさが 10^{-3} 倍程度の小さな値であり、測定反力と簡易解析結果の間の誤差が増幅したためと考えられる。これを踏まえ、平面伸張粘度測定に最適な砲弾ボブ形状はカップの半径に対してボブの長さが 10^{-1} 倍以下であり、かつ、流路入口が出口よりもおおよそ 1.7 倍大きな形状であることを明らかにした。

REFERENCES

- 1) Macosko CW, Ocansey MA, Winter HH, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **11**, 301-316 (1982).
- 2) Kelly J, Graessley WW, *Rheol Acta*, **35**, 24-38 (1996).
- 3) Shirakashi M, Takahashi T, Maw WS, *Nihon Rheoloji Gakkaishi*, **33** (4), 183-190 (2005).
- 4) Pendse AV, Collier JR, *J Appl Polym Sci*, **59**, 1305-1314 (1996).
- 5) Takahashi T, Ohiro H, Shirakashi M, *Proc XIV Int Congr. on Rheology*, Korea (2004), RE26.
- 6) Kato M, Takahashi T, Shirakashi M, *Nihon Rheoloji Gakkaishi*, **30** (5), 283-287 (2002).
- 7) Kato M, Takahashi T, Shirakashi M, *Transactions of the JSME series B*, **68** (676), 3369-3377 (2002).
- 8) Yasuda K, et al., *Rheol Acta*, **20**, 163 (1981).
- 9) Giesekus H, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **11**, 69 (1982).
- 10) Rajagopalan D, et al., *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **36**, 159 (1990).
- 11) Marchal JM, Crochet MJ, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **26**, 77 (1987).
- 12) Debbaut B, Crochet MJ, *J Non-Newtonian Fluid Mech*, **30**, 169 (1988).
- 13) Nakamura K, *Non-Newtonian Fluid Mechanics*, CORONA PUBLISHING CO., LTD. (1997).