論文

The Measurement of Viscosity by Tuning-folk Vibration Mechanism

Shosuke ISHIWATA, Mitsuro HAYASHI, Hideaki OHSHIMA, and Osamu SUZUKI

Central Research Laboratory, Chichibu Cement Co., Ltd.,
1-1, 2-Chome, Tsukimicho, Kumagaya, Saitama, 360 Japan

We developed an unique device for measuring the viscosity of the liquids, using the mechanism of the tuning-folk vibration. This device has a pair of plate springs with a circular plate mounted on the end. When a pair of circular plate is operated in a sample by a resonance vibration in a reverse phase at a constant frequency, its amplitude is inversely proportional to the viscosity of the sample. So the viscosity can be obtained by measuring the amplitude. This device uses the standard liquid for calibration, and stores the calibration curve of the relationship between the amplitude value and the viscosity of standard sample. The rheological complicated materials can also be characterized by using this device.

Key words: Viscosity / Viscometer / Viscidity / Tuning-folk vibration

音叉型振動による粘度測定方法

石渡 章介・林 充郎・大島 秀明・鈴木 脩*

(原稿受理：1990年9月27日)

1. 緒 論

近年、各種工業分野の研究、開発、品質管理等において、液状物質の性状測定および解析の必要性がとみに高まってきている。各種性状の中で、粘度は特に重要であり、粘度を代表特性値として捕えることにより、他の物性を推測することも可能と言われている。筆者らは以前に、音叉型振動系を利用した“まだ固まらないコンクリートの水セメント比の測定方法”¹⁾を開発し、コンクリートの重要な特性値である水セメント比を、粘性要素として捕え、振幅値の関数として求めることを可能とした。

本論文で報告する粘度計は、この測定方法の理論および機構を基に開発した新たな振動式粘度計であり、測定性能、操作性、汎用性の面で優れた特長を有している。

振動を利用した粘度計については、以前より流体中にて円筒を回転振動させ、減衰振動より粘度を求める回転振動式粘度計²⁾、また振動体を流体中にて振動させ、機械的負荷より粘弾性を測定する方法^{3),4)}等が提唱されており、実用化されている^{5),6)}。

本粘度計^{7),8)}、これらの粘度計とは機構を異にしており、安定した正弦振動が得られるよう音叉型振動系を採用し、反力の発生

を抑え測定精度を高めている。

ここでは、本粘度計の測定理論、機構、精度、および粘性解析への適用性について検討した結果を報告する。

2. 理 論

本粘度計の機構は、概略 Fig. 1 に示すとおりであり、先端に

Fig. 1 Outline of vibration mechanism.

* 秩父セメント株式会社中央研究所
〒360 埼玉県熊谷市月見町2-1-1

感応板を取り付けた一対の板バネを一定の振動数で逆位相に共振振動させ、試料中に挿入した感応板と試料との間に生じる粘性抵抗の相違を板バネの振幅値の変化として検出し、振幅値と粘性抵抗との間の逆比例関係より粘度を求める。

自由振動における振動は、抵抗によるエネルギー消失により減衰するが、外部からエネルギーを与えれば一定の振幅を伴った振動を継続する。一般に、調和力 $F = F_0 \sin \omega t$ の作用下にある一自由度の粘性減衰振動系は、式(1)の運動方程式で表せる⁹⁾。

$$F_0 = m \frac{d^2 x}{dt^2} + c \frac{dx}{dt} + Kx \quad (1)$$

F_0 : 加振力, $m \frac{d^2 x}{dt^2}$: 慣性力, $c \frac{dx}{dt}$: 粘性減衰力, Kx : 復元力

この振動系を減衰比率に対応した駆動振動数で共振振動させると、慣性力と復元力とは互いに等しく打ち消しあって釣り合い、強制振動を与える限り式(2)に示す粘性抵抗に応じた振幅値を伴って振動を継続する。

$$x = \frac{F_0}{c \omega_n} \quad (2)$$

x : 振幅値, ω_n : 固有振動数, c : 粘性減衰係数

ここにおいて、振動系の固有振動数と同一、かつ一定の加振力を与え、強制的に共振振動させた場合、振幅値と粘性減衰係数とは逆比例関係にあると言える。粘性減衰係数は加振力に対して速度の係数であり、ずり速度の係数である粘度は振幅値との関係から振幅値を測定することにより求められる。

なお、試料が粘弾性体の場合、振動数の大きさにより粘性減衰係数には弾性成分も含まれるが、本実験は純粘性体である粘度計校正用標準液を用いた。

3. 実験結果

3.1 検出器の機構

本粘度計は、共振振動を利用していることに大きな特長があるが、共振振動は過大なエネルギーを生じさせることから、一般の機械装置では共振をいかに避けるかが設計上の常識となっており、また振動を利用する測定装置では安定した振動が得られるよう反力をどのように減少、吸収するかが重要である。

Fig. 2 に、本粘度計の機構決定のために実験検討した各種振動系検出器の形状模式図を示す。

図中①は片持の振動系であるが、振動可動部の反作用が著しく、支持部を強固に固定して反作用を強制的に抑えないかぎり安定した振動は得られない。

Fig. 2 Various shapes of the detector.

た振動は得られない。

②は可動部を一對にした一般の音叉形状であり、左右の可動部が逆位相に振動するため水平方向の反作用は打ち消し合い消去されるが、音叉上部が湾曲しているため上下方向の反作用が生じる。

③は二枚の板バネを下央のブロックに固定し、②の改良を計ったものであるが、振動可動部の重心位置が板バネの軸心に一致しない場合には、僅かに上下の反作用が生じる。④はこれらの実験結果を基に改良を加えて、本粘度計に採用した検出器の振動機構を表したものであり、②の湾曲部接線方向および重心移動位置による垂直成分である上下方向の反作用もほとんど発生せず安定した正弦振動が得られることが判明した。なお、振動可動部の先端は円弧運動であり、垂直成分の微小な反作用は避けられないため、検出器支持部を弾性支持として吸収するとともに、外部振動の影響も受けないようにした。

Fig. 3 に、本粘度計に採用した検出器の構造を示す。

検出器は感応板、アルミ部材、板バネより成る一對の振動可動部、板バネを固定し、かつ先端に試料容器を取り付ける中央支持材、可動部を励振させる電磁駆動部、板バネの振幅を検出する変位センサ、および温度センサより構成されている。なお、検出器の固有振動数は 30Hz とした。

感応板は腐食されにくいステンレス鋼とし、厚さはこの面が受ける粘性抵抗を極力小さくかつ所要の剛性が得られる範囲内で可能な限り薄くし 0.2mm とした。2枚の板バネは、長期間の連続測定に対しても耐えられるよう、また周囲の温度変化によるバネ常数の変化を小さくするよう恒弾性鋼を使用し、高張力ボルトで中央ブロックに固定した。

電磁駆動部には、振動可動部を効率良く正弦振動させるようにムービングマグネット方式を採用した。

試料容器は、耐熱硝子製で中央支持材下部に取り付けている。また、試料中への感応板の挿入深さを一定に調節できるように、

Fig. 3 Structure of detector.

容器自体をレベル調整つまみにより上下動させられるようにした。なお、本容器は主として恒温水槽中にて試料温度を厳密に管理する場合に用い、通常は操作性の面から付属容器を検出器より取り外し、ピーカ、ガラスビン等を用いる方がよい。感應板の挿入レベルは、専用スタンドにより検出器を上下移動させて合わせる。

温度センサは、分解能 0.1°C の白金測温抵抗体で、両感應板間の中央に設置した。従って、粘度と同時に試料温度の測定も可能である。

3・2 測定方法の確認

本粘度計は、試料中に挿入した感應板と試料との間に生じる粘性抵抗の相違を板バネの振幅値の変化として検出する機構であり、式(1)の運動方程式に対する確認実験を行った。Fig. 4 に、粘度の異なる5種類の粘度計校正用標準液を用いて測定した検出器の共振振動特性を示す。

ここでは、固有振動数 30Hz の検出器に、加振力を駆動電流 5mA 一定とし、外部発信器より駆動振動数を $27\sim 33\text{Hz}$ に変化させて振動させ、板バネの振幅値を測定した。なお、振幅値は変位センサの起電力で示した。

これより、振幅は共振点において最大値を示し、かつ低粘度ほど粘性抵抗が少ないために大きな振幅値となっている。また、共振曲線は低粘度ほどシャープであり、高粘度ではフラットになるとともに共振点も振動系の減衰比率の影響により若干小さな振動数側に移動している。共振点においては慣性力と復元力が互いに等しく釣り合い、打ち消しあって加振力は粘性抵抗に応じた振幅値を伴って振動を継続するとと言える。

次に、共振振動特性実験と同一の試料を用い、駆動振動数を検出器の固有振動数と等しい 30Hz とし、加振力を $0\sim 20\text{mA}$ まで

Fig. 4 Resonance curves.

Fig. 5 Relationship between drive current and amplitude.

連続的に変化させて振幅値を測定した結果を Fig. 5 に示す。

これによると、各試料の振幅値は加振力の変化とほぼ直線の関係にあり、直線の勾配は低粘度ほど大きくなる結果が得られ、試料に用いた粘度計校正用標準液のニュートン粘性を捕えていると言える。

以上の結果より、本粘度計検出器の振動特性は一自由度の粘性減衰振動系として再現性の高い系であり、共振振動時の加振力は、粘性減衰力のみに釣り合っているとと言える。

従って、加振力を一定として振幅値を測定することにより、粘度の相違を加振力振幅比の勾配変化として求めることが可能である。なお、Fig. 5 に示した加振力と振幅値の関係は、粘度が比較的小さい $7.2\sim 135\text{ mPa}\cdot\text{s}$ の範囲で行ったものであるが、これより高粘度域の試料に対しても同様の結果が得られることを確認している。

3・3 基本検量線と回路構成

本粘度計における粘度の測定は、試料に粘度計校正用標準液を用い、 $1\text{ mPa}\cdot\text{s}$ より $100\text{ Pa}\cdot\text{s}$ までの範囲の基本検量線を作成し、測定振幅値より粘度を求める比較測定方法とした。粘度と振幅値との関係を Fig. 6 に示す。

実験は、JS2.5 より JS200H までの粘度計校正用標準液を用い、試料を入れた容器を恒温水槽中に浸漬し、容器内試料に温度むらの無いよう充分時間をおき、所定の平衡温度になった時点で振幅の測定を行った。

加振力は、広粘度範囲において振動による検出器板バネの変形

Fig. 6 Relationship between viscosity and amplitude.

量がバネ材の弾性限界を越えないよう、また粘度の相違による振幅値の差が大きく現れるように、2.5, 7.5, 20, 80および450 mAの5段階とした。なお測定点数を多くするために、粘度計校正用標準液に温度変化を与え、この時の粘度を JIS Z 8009 粘度計校正用標準液・解説による式(3)より算出した。

$$\log \log(V+0.7) = b - m \cdot \log T \quad (3)$$

V : 動粘度(mm²/s), T : 絶対温度(K), m, b : 係数

$$\eta = V \cdot \rho$$

η : 粘度(mPa·s), ρ : 密度(g/cm³)

加振力別の絶対粘度 η (Pa·s) と振幅値 X (mV) とは、両対数にてほぼ線形の関係が得られ、この関係を式(4)に示す放物線式にて回帰分析を行って a, b, c の定数を定め、加振力ごとに粘度測定範囲 1 mPa·s から 100 Pa·s までの5本の基本検量線を作成した。

$$\log \eta = a(\log X)^2 + b \log X + c \quad (4)$$

本粘度計の表示および操作部回路構成の概要を Fig. 7 に示す。

Fig. 7 Circuit block diagram for the viscosimeter.

動作フローは次の通りである。まず駆動電流発生部にて、水晶を原発信とした発信回路より 30Hz の信号を取りだし、整形回路を通して安定した駆動用信号を作り、駆動電力増幅部に送る。ここで試料の粘性抵抗に応じた駆動電流を選択し、検出器の駆動コイルに電流を流して板バネを振動させる。粘性抵抗により減衰を受けた板バネの振幅値は、変位センサにより検出し、変位信号増幅部にて増幅し信号処理演算部に送られる。ここで変位信号は、記憶回路に書き込まれた各測定レンジ別の基本検量線により粘度に演算、表示される。なお、試料温度は白金抵抗温度センサにて検出し表示される。

3・4 再現精度

試料として粘度計校正用標準液を用い、実験は試料を入れた容器を恒温水槽中に浸漬し、十分に温度管理を行った上で粘度を測定し、式(3)により求めた計算粘度との差から精度を求めた。

その結果、1 mPa·s から 100 Pa·s の範囲で繰り返し実験の誤差が2%以内であり、ニュートン性試料を対象とした場合、本粘度計の繰り返し再現精度は2%といえる。

なお、測定精度に直接影響を及ぼす要因として、試料中への感應板の挿入レベルの変動が挙げられる。すなわち、感應板と試料との接触面積が変わることにより感應板が受ける抵抗の変化、および振動可動部の共振振動数の変化により振幅値に差が生じ、正確な粘度を測定することが出来ない。感應板の挿入レベルを変化させ、実際の粘度と測定粘度を比較したところ、挿入レベル 1 mm の変動に対して3%の差が生じることが判った。

このため、本粘度計においては Fig. 3 に示すレベル針を設置

し、レベル針の先端が試料上面に接触する位置を基準の挿入レベルとして変動を防止するものとした。

3・5 各種条件下における性能

本粘度計の実用性を評価するために、相対湿度40~90%の条件下で測定を行った結果、結露が生じるような高湿度下では変位センサの変調、振動部の重量変化による共振の乱れが生じるため好ましくないが、通常の湿度範囲では異常は認められなかった。また、震度3の地震に相当する 20 Gal, 2~60Hz の振動条件下で測定した結果、15, 30Hz および 60Hz にて振動波形に乱れが生じ、30Hz では測定値が大きく変化した。これは検出器の固有振動数が 30Hz であり、検出器自体が倍数振動に共振したことによるものと考えられるが、通常の外部振動条件下においては問題ないと言える。

本粘度計の機能上の特長として、1 mPa·s より 100 Pa·s の粘度測定範囲において感應板の交換が不要であること、また試料温度の同時測定が可能であることが挙げられる。このため温度、時間などに対する粘度の変化を、温度とともに連続的に測定し記録させることができる。

例えば、粘度計校正用標準液 JS500 を110℃まで熱し、その後50℃まで自然冷却、またエチレングリコールを-30℃まで冷却後、+30℃まで加熱し、この間の粘度を連続的に測定したが異常は認められなかった。これは感應板に熱伝導率の小さいステンレス鋼を用い、試料と検出器との間の熱移動を極力抑えたこと、また脚部を放熱効果の大きいアルミ材とし、板バネに弾性変化が生じないようにしたことによるものと思われる。この他、感應板挿入レベルの人為的誤差の程度、繰り返し測定精度、流動状試料および気泡入り試料の測定、粉体および繊維入り試料の測定を行ったが、いずれも満足すべき結果が得られた。

4. 流動解析への適用性の検討

振動を用いた測定方法は、試料に振動的なずり歪を与え、それに対する位相差を測定して粘弾性体の動的粘度、動的ずり弾性率を求める方法が多く用いられているが、本測定方法は流動解析の一方法として、ずり応力は本粘度計検出器への駆動電流を無段階に可変させ、応答振幅値を測定しずり速度を求めることから、試料の流動曲線を求めることを目的とした。

本粘度計検出器の感應板に作用するずり応力 τ (Pa) は、一自由度の粘性減衰振動系として再現性の高い系であり、電磁駆動部のコイル長、磁束密度、感應板の両側面積より式(5)にて求められる。

$$\tau = 1588 \cdot I \quad (5)$$

一般にニュートン流体における粘度は、ずり速度の比例定数として表されており、振動作用下においても振動速度の関数といわれている。

本測定方法においては粘度計校正用標準液を用い、粘度を既知として、ずり応力からずり速度を求めることが可能であるため、感應板面のずり速度を算出した結果を Fig. 8 に示す。

Fig. 8 は基本検量線作成時の測定データを用い、駆動電流別に粘度とずり速度の関係を両対数にて表示したものである。

この結果によると、駆動電流別に-1の勾配をもった線形関係が得られ、粘度が小さいほどずり速度は大きくなり、また粘度が

Fig. 8 Relationship between viscosity and shear rate.

同一の場合、駆動電流が大きいほどずり速度は大きいことを示している。

これは本粘度測定方法では、振動する感応板の両側面に静止面を設けていないため、感応板面から垂直方向の振動距離が粘度の大きさによって異なることによるものと思われる。

感応板面のずり速度 $D_s(\text{s}^{-1})$ は、各回帰式の定数を駆動電流 $I(\text{A})$ の係数として収斂した式(6)として表せ、式(5)の係数にも一致し、ニュートン粘性式を現わしている。

$$D_s = (1588 \cdot I) \eta^{-1} \quad (6)$$

本解析方法において、駆動電流変化過程における測定試料の粘度を連続して求めることができれば、式(6)より連続してずり速度が求まるため、ここでは Fig. 5 に示した直線勾配の変化過程に

Fig. 9 Relationship between drive current/amplitude and viscosity.

おける駆動電流と、その時点における振幅値で除した値を求め、粘度計校正用標準液を用い、粘度との関係を求めた結果を Fig. 9 に示す。

Fig. 9 は基本検量線作成時の測定データを用い、駆動電流 $I(\text{A})$ /振幅 $X(\text{mV})=R$ と粘度 η の関係を両対数で表したものであり、この結果によると両者の間には低粘度から高粘度の範囲において高度な関係が得られた。また、 R は共振振動を用いているためリアクタンス分は0となり、応力・振動速度比である流体の粘性抵抗による機械的インピーダンス抵抗に近似できる。

理論的にはこの変化分の関係は直線線形関係となるべきであるが、精度上粘度と R の関係を式(7)に示す放物線式に回帰分析を行い、装置定数として a, b, c を定め粘度を求めた。なお、この関係は振動系における粘性減衰係数と粘度の関係を表しているものといえる。

$$\log \eta = a \cdot (\log R)^2 + b \cdot \log R + c \quad (7)$$

ここで、機械的インピーダンス抵抗からは粘度×密度として算出されるため、測定試料の密度が粘性液の密度と著しく異なる場合には、密度差の補正を必要とする。

以上のことから、本粘度計検出器の駆動電流を無段階に可変させ、駆動電流および振幅を測定することにより、式(5)よりずり応力、式(7)より応力変化過程時のみかけ粘度を求め、式(6)よりずり速度を算出することができる。

一測定例として、試料に微粉末スラグを混入したセメントペーストを用い、回転二重円筒式と流動曲線を対比した結果¹⁰⁾、両者は良く一致しダイラタント性状が良く捕えられ、試料の物性を定量することができた。ここでは、ハンドクリームの粘性性状の測定方法としての適用性を検討した。測定は駆動振動数を 30Hz とし、最大駆動電流を 400mA、駆動電流変化勾配を 80 mA/min にて連続的に上昇、下降させて求めたずり速度およびずり応力の関係を Fig. 10 に示す。この結果によると、ずり応力の増加に伴って流動変形が大きく現われ、上昇曲線と下降曲線においてヒステリシスループが描かれた。

これは試料のチキソトロピー性に起因していると予想される。

なお、本解析結果はニュートン流体を基に算出したものであり、非ニュートン流体については感応板面のずり速度分布が一定でないため厳密性に欠けるとと思われるが、測定操作が簡単であり、可動部慣性が作用しないため、試料特性を再現性高く測定でき、非

Fig. 10 Relationship between shear rate and shear stress.

ニュートン試料の流動特性を解析する方法として有用と思われる。

5. ま と め

本報告では、新たに開発した音叉型振動式粘度計に関し、測定理論、機構、測定精度および粘性解析への適用性等について述べたが、今後の検討事項も含めてまとめると、以下のとおりである。

(1) 本粘度計は、検出機構に音叉型振動系を採用して反作用の発生を抑えることにより、安定した正弦振動を得られるようにしたこと、また振動系の鋭敏な共振特性を利用したことにより、1~100 Pa·s の測定範囲において、 $\pm 2\%$ の測定再現精度が得られた。

(2) 検出器振動系の共振振動数は、試料の粘性減衰力の大きさにより減衰を受けるため駆動振動数を変化させ、各粘性試料に応じて振動系を共振振動させ、測定振幅値から粘性減衰係数を求め、これより粘度の測定も可能と思われるが、本測定方法においては、気中における検出器の固有振動数に駆動振動数を一致させ固定した。

試料には粘度計校正用標準液を用いて検量線を作成し、測定振幅値より粘度を求める比較測定方法とした。

(3) 流動解析方法として、一定駆動振動数にて駆動電流を無段階に可変させ、応答振幅値を測定し、流動曲線を求め、非ニュートン性流体の粘性性状測定への適用性について、その可能性を検討した。一般に振動作用下のずり速度は、試料のもつ粘度および密度の関数として定義されており²⁾、粘度は機械的インピーダンス抵抗、あるいは気中、試料中の振幅比から求められている。

本測定方法においては応力優先方式であり、また一度自由の共振振動系とした単純解により共振振動時の加振力は、粘性減衰力のみに釣り合っていることから、感應板に作用する応力が再現性高く認められる。したがって、粘度計校正用標準液を用い、ニュートン流体を対象として駆動電流振幅比から回帰式によりみかけ粘度として求め、ずり応力、ずり速度を算出した。

(4) 感應板は無限媒体中での振動であり、平面波の伝播距離が粘度により一定でないため、ずり速度分布は均一でないと考えられ、厳密には非ニュートン流体には一致しないであろう。しかし現在、振動の方法により非ニュートン粘度を求める方法は確立されておらず、したがって本方法は検討の余地がありながらも、試料の流動特性を求める新たな一測定方法として有用と思われる。

なお、本測定方法は駆動電流を制御する応力優先方式としたが、今後は速度優先方式とした振幅制御により、新たな知見を得られればとも考えている次第であり、諸先輩の御教示を賜れば幸いである。

(本研究は、1989年10月18日第37回レオロジー討論会、福岡にて一部発表を行った。)

文 献

- 1) 神田衛, 鈴木脩, 石渡章介, 林充郎, “コンクリート工学”, No. 8, Vol. 19, p. 105 (1981).
- 2) 河田裕郎, “改定粘度”, コロナ社, p. 134 (1983).
- 3) 鳥飼安生, 根岸勝雄, “応用物理”, 第4号, p. 158 (1956).
- 4) 山本京治, 山田良輝, 和田八三久, “応用物理”, 第2号, p. 99 (1958).
- 5) 飯田孝道, 川本正幸, 藤本慎司, 森田善一郎, “鉄と鋼”, 第11号, p. 68 (1985).
- 6) 三浦泰介, “センサ技術”, No. 6, Vol. 8, p. 149 (1988).
- 7) 鈴木脩, 石渡章介, 林充郎, 大島秀明, “計装”, No. 5, Vol. 32, p. 55 (1989).
- 8) 鈴木脩, 石渡章介, 林充郎, 野村郁夫, “センサ技術”, No. 6, Vol. 9, p. 140 (1989).
- 9) 小堀与一, “機械振動入門”, 丸善社, p. 149 (1975).
- 10) 浅賀喜与志, 鄭然植, 鶴見敬章, 大門正機, “石膏と石灰”, No. 224, p. 3 (1990).