ノ ー ト

Measurement of Flow Characteristics of Viscoelastic Fluids by Mach-Zehnder Interferometry

by

Kazumori FUNATSU, Hiroyuki NISHIMURA, and Hisashi SHINOHARA

(Department of Chemical Engineering, Kyushu University, 6-1 Hakozaki, Higashi-ku, Fukuoka 812)

A method for measuring absolute values of normal stresses and stress optical coefficients can be developed by applying the scattered light interferometry for solid materials, the Mach-Zehnder interferometry, to viscoelastic fluids in flow and it can be shown that the difference between interferometric fringe orders for the polarized light in the flow direction and for that in the neutral direction must be equal to the birefringence fringe order. The results of measurements for a polyethylene melt, though not sufficiently accurate to allow evaluation of the normal stress and the stress optical coefficients, seemed compatible with the predictions of the proposed method.

マッハツェンダー光干渉法による粘弾性流体の流動性の測定

船 津 和 守・西 村 寛 之・篠 原 久*

(原稿受理：1978年9月2日)

1. 緒 言

粘弾性流体の一種である高分子溶融体および溶液の流動性を決定することは、成型加工機や重合反応器等の設計・運転の面から重要である。これらの流体の流動性の中で、特に弾性特性（法線応力差）の測定法は、十分広い範囲にわたってはいまだに確立されていない。従来より我々は、光学的測定法の一つである流動複屈折法の種々の場合について測定を進めてきたが、この方法では応力量と光学量の媒介変数（光弾性係数）を別途求めなければならない欠点があった。本報告では、光干渉法を用いた西田ら¹⁾の固体の応力の解析法を参考にして、偏光光干渉法についての基礎式を求めこれを流動場に適用して、法線応力の絶対値を含む量と光弾性係数の和を求める理論式を導出した。更に、試料としてポリエチレン溶融体を用いて、この理論式の実験的検証を試みた。

2. マッハツェンダー光干渉計の概要

Fig. 1 に光学系の構成を示す。光源（He-Ne ガスレーザー、 $\lambda=6238\text{\AA}$ ）を出た光は、ビームスプリッター M_1 でテスト光と参照光とに分割される。参照光は M_1' , M_2' と進み、テスト光は M_2 の後、テストセクション (TS) を通り、 M_2' に到達し、参照光と干渉する。レーザー光は通常、垂直方向の偏光軸を持っているの

で、この偏光軸を 90° ずらすために、2枚の偏光板 P が使用される。

LS: light source L_1, L_2 : objectives
 M_1, M_2' : beam splitter M_1', M_2 : mirror
 TS: test section D: detector
 P: polarizer

Fig. 1. Schematic diagram of the Mach-Zehnder interferometer.

3. 理論式の導出

Fig. 2 は偏光軸とテスト流動部に定めた軸との関係を示したものである。流動形式としては、平行平板間ポアズイユ流れを採

* 九州大学工学部化学機械工学科 福岡市東区箱崎6丁目1番

Fig. 2. Relation between slit structure and direction of polarized lights.

用し、流動方向を1軸、速度分布のある方向を2軸、中立な軸を3軸とする。ここでは1軸、3軸方向にそれぞれ偏光面を持った光がスリット部の2軸方向へ入射する場合を考える。この場合に流動場内に生じる応力および屈折率楕円体を Fig. 3 に示す。この楕円体を1-3平面で切った二次楕円に着目する。1軸、3軸偏光で入射した光は、それぞれ n_1' 、 n_3' 方向の光波として進む。この場合、屈折率と応力との関係には、Maxwell-Neumann の関係式、式(1)が成立するとする。

$$\begin{aligned} n_1' &= n_0 + C_1 \sigma_1' + C_2 (\sigma_2' + \sigma_3') \\ n_3' &= n_0 + C_1 \sigma_3' + C_2 (\sigma_2' + \sigma_1') \end{aligned} \quad (1)$$

Fig. 3. Cross-sectional view of refractive index ellipsoid cut by 1-2 plane and a secondary ellipse cut by 1-3 plane.

3・1 流体が静止している場合の理論式

光波はスリット部の中を等方的に進むから、光の偏光性を考える必要はない。

$$\text{参照光} \quad \psi_r = A_r \sin \left\{ \omega t - \frac{2\pi}{\lambda} n (2H) + \delta' \right\} \quad (2)$$

$$\text{テスト光} \quad \psi_0 = A_0 \sin \left\{ \omega t - \frac{2\pi}{\lambda} n_0 (2H) \right\} \quad (3)$$

ビームスプリッター M_2' で干渉した光の変位および強度は次式で表される。

$$\psi_r + \psi_0 = A \sin(\omega t + \theta) \quad (4)$$

$$J_0 = A^2 = A_r^2 + A_0^2 + 2A_r A_0 \cos \left\{ \frac{2\pi}{\lambda} (n_0 - n) (2H) + \delta' \right\} \quad (5)$$

式(5)の干渉項に着目すると、干渉縞次数は N_0 として

$$2\pi N_0 = \frac{2\pi}{\lambda} (n_0 - n) (2H) + \delta' \quad (6)$$

3・2 流体が流動している場合の理論式

光の偏光軸とスリット内の屈折率および応力楕円体を2軸に直角な平面(1-3平面)で切断してできる二次楕円の主軸方向とが一致するように光の偏光軸を合わせる。

(a) 光源が1軸偏光の場合：光は二次楕円の σ_1' 方向のみ通過できる。この光が参照光と干渉してできた干渉縞の縞次数は、

$$2\pi N_1 = \frac{2\pi}{\lambda} \left[\{ (n - n_0) (2H) + \int_{-H}^H \{ C_1 \sigma_1' + C_2 (\sigma_2' + \sigma_3') \} ds \} + \delta' \right] \quad (7)$$

式(7)の干渉縞 N_1 と流動していない場合の縞次数の差を求めると、

$$\begin{aligned} (N_1 - N_0) &= \frac{1}{\lambda} \int_{-H}^H \{ C_1 \sigma_1' + C_2 (\sigma_2' + \sigma_3') \} ds \\ &= \frac{1}{\lambda} \int_{-H}^H \{ C_1 P_{11} + C_2 (P_{22} + P_{33}) \} ds \\ &= \frac{2H}{\lambda \tau_H} \int_0^{\tau_H} \{ C_1 P_{11} + C_2 (P_{22} + P_{33}) \} d\tau \end{aligned} \quad (8)$$

ただし、 $\sigma_1' = P_{11}$ 、 $\sigma_2' = P_{22}$ 、 $\sigma_3' = P_{33}$ 、 $\tau/\tau_H = s/H$ を用いた。式(8)の右辺の積分項を変形すると、 $C_1 P_{11} + C_2 (P_{22} + P_{33}) = C_1 (P_{11} - P_{22}) - C_2 (P_{22} - P_{33}) + (C_1 + 2C_2) P_{22}$ となる。そこで、法線応力差がせん断応力のみの関数なので、静水圧 P_{22} が τ によらない条件で式(8)を τ で偏微分する。つまり、 P_{22} はスリットの厚さ方向にわたって一定と仮定し、出口圧を無視して x 方向に直線的に変化するとする。また、 $P_{22} = \tau_H x/H$ という関係から、 P_{22} は壁面せん断応力 τ_H より求める。Fig. 4 にこれらのことが説明されている。

式(8)を $P_{22} = \text{一定}$ のもとで τ で偏微分すると、

$$\begin{aligned} \{ C_1 P_{11} + C_2 (P_{22} + P_{33}) \} P_{22} \\ = \frac{\lambda (N_1 - N_0)}{2H} \cdot \frac{\partial \log \{ (N_1 - N_0) \tau_H \} P_{22}}{\partial \log \tau_H} \end{aligned} \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \therefore (C_1 + 2C_2) &= \frac{\lambda}{2H \{ (P_{22})_2 - (P_{22})_1 \}} \cdot \\ &\left[(N_1 - N_0)_{(P_{22})_2} \frac{\partial \log \{ (N_1 - N_0) \tau_H \} (P_{22})_2}{\partial \log \tau_H} \right. \\ &\left. - (N_1 - N_0)_{(P_{22})_1} \frac{\partial \log \{ (N_1 - N_0) \tau_H \} (P_{22})_1}{\partial \log \tau_H} \right] \end{aligned} \quad (10)$$

Fig. 4. Pressure distribution along axis of flow and shear stress distribution across thickness.

(b) 光源が3軸偏光の場合：2板の偏光板を用いて、二次楕円の $\sigma_3'(P_{33})$ 方向に光の偏光軸を合わせると、(a)の場合と同様な手順によって次式が導出される。

$$\{C_1 P_{33} + C_2 (P_{22} + P_{11})\} P_{22} = \frac{\lambda (N_3 - N_1)}{2H} \cdot \frac{\partial \log \{(N_3 - N_0) \tau_H\} P_{22}}{\partial \log \tau_H} \quad (11)$$

3・3 本干渉法と流動複屈折法の関係

光線方向を2軸と一致させた場合の流動複屈折法では次式が得られる。²⁾

$$(C_1 - C_2) (P_{11} - P_{33}) = \frac{\lambda N_b}{2H} \cdot \frac{\partial \log (N_b \tau_H)}{\partial \log \tau_H} \quad (12)$$

流動複屈折法における縞次数 N_b と1軸と3軸方向による干渉縞の移動数の差との関係を求めるために、式(9)から式(10)を差し引

くと、

$$(C_1 - C_2) (P_{11} - P_{33}) = \frac{\lambda (N_1 - N_3)}{2H} \cdot \frac{\partial \{(N_1 - N_3) \tau_H\}}{\partial \log \tau_H} \quad (13)$$

ここで、式(12)と式(13)を比較すると、次式が成立する。

$$N_b = N_1 - N_3 = \{(N_1 - N_0) - (N_3 - N_0)\} \quad (14)$$

式(14)より、流動複屈折法の縞次数は1軸と3軸方向の偏光による干渉縞の移動数に等しいことがわかる。

4. 実験装置及び方法

Fig. 1 で示したマッハツェンダー干渉計のテストセクションに Fig. 5 に示すスリットノズルを入れて光線方向を2軸と一致させた。ディテクターの視野内に基準線を設けて、その視野内にスリットノズル内の観測窓全体が入るように光学系を調整した。次

Fig. 5. Experimental apparatus.

Fig. 6. Fringe order differences vs. apparent shear rate at various distances from exit.

に、スリットノズルのリザーバー内に試料を入れて加熱熔融させたのちにプランジャーに荷重をかけて溶融体を押し出し、そのときの干涉縞の移動本数 ($N_1 - N_0$) または ($N_3 - N_0$) を肉眼で数えた。縞次数の測定点としては、十分発達した流れとみなせる位置として、出口から $x=2, 5, 10, 15, 18\text{mm}$ の5点を選んだ。試料はポリエチレン (Hizex 5000H, $M.I.=0.3$, $\bar{M}_w=7 \times 10^4$) を用いて、測定温度は 200°C とした。

5. 実験結果および考察

得られた見掛けのせん断速度 $\dot{\gamma}_a$ と縞移動数 ($N_1 - N_0$) の1例を Fig. 6 に示す。両者の関係を二次曲線で近似して、横軸の $\dot{\gamma}_a$ を流動曲線によって真のせん断速度 $\dot{\gamma}$ に変換し、次に τ_H に変換した。 $P_{22} = \tau_H x / H$ より、 τ_H をパラメーターとして ($N_1 - N_0$) と P_{22} をプロットしたものが Fig. 7 である。ポリエチレンではこの図に示すように ($N_1 - N_0$) が $P_{22} =$ 一定のもとで τ_H に依存す

るので、 P_{22} をパラメーターとして、 τ_H に関して書き換えると Fig. 8 となる。式(9), (11)の右辺の微分項を求めるために、 Fig. 8 の曲線の接線を求めて、最終的に Fig. 9 が得られた。 Fig. 10 には $\{C_1 P_{11} + C_2 (P_{22} + P_{33})\} / P_{22}$, $\{C_1 P_{33} + C_2 (P_{11} + P_{22})\} / P_{22}$ と P_{22} の関係を示している。 P_{22} が大きくなると応力の異方性が絶対値に比べて小さくなるので、 $P_{11} \div P_{22} \div P_{33}$ とみなせて、縦軸は $(C_1 + 2C_2)$ に近づくはずであるが、ここではまだまだ下降傾向が続いている。次に、式(4)で示された流動複屈折法と干渉法との関係であるが、ポリエチレンの場合 ($N_3 - N_0$) と ($N_1 - N_0$) の差ははっきりせず正負がまちまちで、これらの差から $P_{11} - P_{33}$ を求めることはできなかった。各偏光から求められた ($N_i - N_0$) の絶対値はある程度妥当と思われるが、これらの差は非常に小さくて、干渉法から法線応力差を精度よく求めることは今の時点では無理であった。

Fig. 7. Dependence of fringe order differences on P_{22} at various values of shear stresses at wall.

Fig. 8. Dependence of fringe order differences on shear stress at wall at various values of P_{22} .

Fig. 9. Dependence of local principal values of a secondary refractive index ellipse on shear stress at wall at various values of P_{22} .

Fig. 10. Change in anisotropy of stress distribution by P_{22} .

6. 結 言

流動複屈折法が法線応力差しか求められないのに比べて、干渉法では主軸方向の応力の絶対値の和および光弾性係数が理論的に導出された。応力の絶対値、光弾性係数および法線応力差に関して、実験的検討を試みたが、十分な精度での測定は現時点では困難であった。

Nomenclature

C_1 =primary stress optical coefficient	[cm ² /dyne]
C_2 =secondary stress optical coefficient	[cm ² /dyne]
H =half of the thickness of a slit nozzle	[cm]
N_0 =interference fringe order at rest	[—]
N_b =birefringence fringe order	[—]
N_i =interference fringe order under load for the polarized light in the i -th direction	[—]
n =refractive index of air	[—]
n_0 =refractive index of a test section under no load	[—]

n'_i =principal value in the i -th direction of a secondary refractive index ellipse	[—]
P_{ij} = ij component of stress tensor	[dyne/cm ²]
s =distance from the center plane along the 2 axis	[cm]
δ' =additional phase difference	[rad]
λ =wave length of a laser	[cm]
σ'_i =principal value in the i -th direction of a secondary stress ellipse	[dyne/cm ²]
τ =shear stress at arbitrary point	[dyne/cm ²]
τ_H =shear stress at the wall	[dyne/cm ²]
ψ_0 =wave of test light under no load	[cm]
ψ_r =wave of reference light	[cm]

文 献

- 1) Nishida, M., and H. Saito, *Experimental Mechanics*, **4**, 366 (1964).
- 2) 船津和守, 尾方洋介, 林田晴雄, 篠原 久, 化学工学論文集, **2**, 485 (1976).