

微小すきまにおける機能性流体のスクイーズ流れ
06650198

平成6年度～平成7年度 科学研究費補助金（一般研究（C））
研究成果報告書

平成9年3月

研究代表者 鳴 海 敬 倫
（新潟大学工学部助教授）

はしがき

この小冊子は、平成6年度と平成7年度にわたって交付された文部省科学研究補助金（一般研究C）によってなされた“微小すきまにおける機能性流体のスクイーズ流れ”の研究報告書である。

高分子液晶や液晶などに代表される機能性流体はその応用性から工業的に高い関心が持たれている。また、液晶の薄膜塗布技術、マイクロトライボロジーおよびマイクロマシンの開発等においてはマイクロ流体力学的な流れの解明が重要となる。一方、スクイーズ流れはせん断流的特徴と伸張流的特徴を合わせ持つ非定常流れであり、基本的かつ応用的な流動場である。実際の薄膜の塗布技術でもスクイーズ流れに近い手法がありその際の膜厚が研究されている。また、スクイーズ膜潤滑は工業上の潤滑ばかりでなく生体関節の潤滑にも関連し重要である。このように流れ場としてスクイーズ流れを選ぶことは実際の需要も多く、工業上の応用性が高い。

この様な観点から、本研究では機能性流体である高分子液晶・液晶を用い、境界面に運動変化を与えた場合または電場を印加した場合の微小すきまのスクイーズ流れにおけるこれらの流体の流動特性（機能性）を明らかにすることを目的とした。そして機能性流体のマイクロ構造内での流れの制御とその応用を目指した。本研究内容は供試流体によって大別され、それぞれ次のような観点から検討を加えた。

まず、液晶高分子溶液については、スクイーズ流れおよび放射状流れが実現できる実験装置を用い、比較的狭いすきまにおける配向状態の変化を中心に調べた。特に流動履歴効果に注目し、まず平行二円盤間に放射状流れを発生させ、一旦流れを停止させた後、スクイーズ流れを発生させてその際の液晶高分子の流動状態を調べた。そして、流動履歴効果を利用した配向状態を制御、さらにはその機能の調整が、たとえば、成形過程で可能かどうかなどの点に関して考察を行った。

一方、低分子の液晶に対する微小すきまのスクイーズ流れに関しては、まず、微小すきまにおけるスクイーズ流れで生じる二次元ポアズィユ流れに電場を印加して流動特性を変化させる実験を行い、すきま内の液晶の流れで生じる抵抗測定した。そして、その結果からスクイーズ流れでの電場印加時の効果を算定し、電気粘性効果に関して考察を行った。この点に関しては詳細に説明するため、今後も実験を継続する予定である。

研究組織

研究代表者： 鳴海 敬倫 (新潟大学工学部助教授)

研究分担者： 長谷川 富市 (新潟大学工学部教授)

研究経費

平成6年度	1,300千円
平成7年度	500千円
計	1,800千円

研究発表

1. 板垣伸也・鳴海敬倫・長谷川富市, 液晶高分子溶液の放射状流れに関する実験的研究, 化学工学会新潟大会研究発表講演要旨集, pp. 382-383, (1995. 7)
2. 鳴海敬倫・板垣伸也・長谷川富市, 液晶高分子溶液の平行二円盤間の流れ, 化学工学会第28回秋季大会研究発表講演要旨集, No. 3, p. 212, (1995. 9)
3. 鳴海敬倫・板垣伸也・長谷川富市・反町和則, 液晶高分子溶液の平行二円盤間の放射状流れ, 第43回レオロジー討論会講演要旨集, pp. 367-370, (1995. 10)
4. 鳴海敬倫・熊木稔・板垣伸也・長谷川富市, 液晶高分子溶液のスタートアップ流れに対する初期状態の影響, 日本機械学会関西支部第71期定時総会講演論文集, pp. 409-410, (1996. 3)
5. T. Narumi, S. Itagaki, T. Hasegawa, Radial Flow of Liquid crystalline Polymer Solutions between two Parallel Circular Plates, Proc. XIIth International Congress on Rheology, pp. 151-152, (1996. 8)
6. 前田浩芳・鳴海敬倫・長谷川富市・坂井樹弘, 微小すきまにおける液晶のER効果, 日本機械学会第74期機械学会全国大会講演論文集, Vol. 3, pp. 111-112, (1996. 9)
7. 大根田慶範・鳴海敬倫・長谷川富市, 液晶高分子溶液の平行2円盤間のスクイーズ流れ, 可視化情報, Vol. 16, Suppl. No. 2, pp. 117-120, (1996. 11)

研究報告

本研究で得られた成果は液晶高分子と低分子液晶に関し、各々以下の様に要約される。

1. スクイーズ流れおよび放射状流れが実現できる実験装置を用い、液晶高分子溶液について比較的狭いすきまにおける配向状態の変化を中心に調べた。特に流動履歴効果に注目し、まず平行二円盤間に放射状流れを発生させ、一旦流れを停止させた後、スクイーズ流れを発生させてその際の液晶高分子の流動状態を調べ、以下の点を明らかにした。(1) プレシア(放射状流れ)の強度によりその後続くスクイーズ流れの条件が同じであっても、全く異なった流れの構造を示し、流体中に発生する伝達荷重も様々なパターンを示す。(2) 停止時間の長短によってもスクイーズ流れでの流動状況が影響される。(3) これらの結果から比較的狭いすきまの流れにおいて液晶系の流体では流動履歴効果を利用することにより配向状態を制御でき、機能を調整できる可能性があることが確認された。(4) 実験と並行して行った解析的研究において Carreau モデルを用いた数値解析から、プレシアの強度が弱い場合のスクイーズ流れでの流動状態はこのモデルで予測可能なことが明らかとなった。
2. 低分子の液晶に対する微小すきまのスクイーズ流れに関して、まず、微小すきまにおけるスクイーズ流れで生じる二次元ポアズィユ流れに電場を印加して流動特性を変化させる実験を行った。その結果、数十 μm のすきま内の液晶の流れで生じる抵抗を4～5倍程度増加させることができ、その効果は電界強度の二乗に比例して大きくなることがわかった。この結果からスクイーズ流れでの電場印加時の効果を算定した結果、すきまが狭くなると電界強度が上昇するため、電場印加時の粘度のシアシニングによる荷重保持力の減少傾向が相殺され、スクイーズ運動のすべての範囲で良好な電気粘性効果が得られることがわかった。

この点を詳細に解明するため、今後も実験を継続する予定である。

以下に、第1部として“液晶高分子溶液の比較的狭いすきまにおけるスクイーズ流れ”に関する研究結果を、第2部として“低分子液晶にの微小すきまにおけるスクイーズ流れ”に関する研究結果を報告する。

第1部 液晶高分子溶液の比較的狭いすきまにおけるスクイーズ流れ

第1章 緒論

1.1 緒言

液晶高分子は、液体のような流動性と結晶特有の複屈折性とを合わせ持ち、溶液または熔融状態で分子配向を示す物質である。この配向状態を維持し固めた樹脂は、在来高分子材料と比べて種々の優れた機械的性質を有することが知られており、現在、特に射出成形の分野で研究、開発が進んでいる。例えばこの液晶高分子による成形物は、汎用プラスチックに比べて、

(1) 弾性率が高い、(2) 成形収縮率が小さい、(3) 寸法安定性が優れている、(4) 熱的に安定で、また長期使用にも耐え得る、といったことが挙げられ、実際、これらの特長を生かして、電子・電気関係の精密コネクタや精密ソケット、機械関係ではギアや軸受けなどの材料として使われている。しかし欠点もあり、異方性がでやすく、強度の方向性、フィブリル化などが起こりやすいといった点が挙げられる。この欠点は成形の際の流れの方向に液晶高分子の分子配向が生じることに起因している。例えば引っ張り強度のみを要する繊維などの場合には、このような流動配向により液晶高分子の利点が100%発揮できるものの、実際の成形品となるとこの異方性による割れや裂けといった点がかかなり重要な問題となってくる。実際の射出成形の際には金型の設計や成形条件を適当に選択するなどして、過度の配向を回避する工夫がなされているが⁽¹⁾、レオロジー的な観点からの成形流れにおける液晶高分子の分子挙動の解明および分子配向の制御などといった研究はあまりなされておらず、不明な点が多い。

ところで図1.1.1に示すような円盤中心から流入し、二面間に放射状に広がる流れは、薄板等の成形ではよく見られる流動場である。また射出成形では、型に熔融された樹脂を流し込んだ後、その型の面により圧縮し、樹脂にさらに流動を加えるプレス成形も行われている。このような多段のシアがかかる液晶高分子溶液の流れにおいては、プレシアによりその後続く流れは大きく影響される可能性がある⁽²⁾⁽³⁾。しかし、そのような液晶高分子の非定常流れにおける流動の履歴についての研究例は非常にわずかである。

そこで本研究では、成形流れにおいて重要かつ基礎的な例である、平行二円盤間の流動を取り上げ、まず図1.1.1に示す円盤中心から二円盤間を放射状に流動する流れ場において、二円盤間に発生する伝達荷重の測定と流れの可視化から、このような成形流れにおける液晶高分子溶液の挙動を明らかにすることを目的とする。

さらに、この平行二円盤間の定常放射状流れの後に、図1.1.2に示すような二円盤を接近させる等速スクイーズ運動を加えた場合の液晶高分子溶液の流動の履歴の影響について明らかにし、実際の成形で見られる複雑な流れにおける液晶高分子の挙動の把握、そして分子配向の制御といった研究への基礎的なデータの提供をすることも目的のひとつとする。

1.2 従来の研究

ここでは液晶高分子を用いてレオロジー的な観点に立って行われてきた従来の研究の中でも、特

に本実験において使用したhydroxy propyl cellulose (HPC)水溶液を用いて行った実験的研究, および液晶高分子の流れの数値計算に関する研究について述べる.

・ HPC水溶液を用いた研究

Onogiら⁽²⁾は, 静的, せん断流あるいは伸張流でのHPC水溶液, そしてpoly-p-phenylene terephthalamide(PPD-T)硫酸溶液の複屈折性に関し研究を行っている. そして, コレスティック相を呈しドメイン構造の状態にあるHPC水溶液は, せん断流により方向付けされたネマチック相へと変化し, その流れを止めると, ドメイン構造が再構築し, コレスティック状態へ戻ると報告している.

森ら⁽⁴⁾は, HPC50%水溶液の平行二円盤間におけるスクイーズ流れにより発生する伝達荷重を測定し, その結果とCarreauモデルによる数値計算結果は一致せず, その違いはHPC50%水溶液のディレクタの方向によると示唆している.

SigilloとGrizzuti⁽⁵⁾は分子量の異なる二種類のHPC水溶液を用いて, コーンプレートによる粘度測定および第一法線応力差の測定を行っている. その中で彼らは, HPC水溶液の分子量をパラメータとした粘性モデルを提案し, そのモデルによってHPC水溶液の粘度を表せるとしている. また, 第一法線応力差の測定からは, 高せん断速度域でその値が負になる結果を得ており, その第一法線応力差の符号が変わるせん断速度は, HPCの各分子量に固有な時定数によって整理できると述べている.

Hogladaromら⁽³⁾は, 分子量の異なる二種類のHPC水溶液の, 定常あるいは過渡状態のせん断流での分子の方向付けに関する研究を行っている. この中で彼らは定常せん断流において, せん断速度の変化とともに二つの分子の方向付けの変わり目があることを報告している. すなわち, 一つは弱い方向付けから適度な方向付けへと移行する際に生じ, もう一方は分子のタンブリングから流れにより分子の方向が揃う際に生じるものであろうと指摘している. また, せん断流を停止して, 充分時間をおいた後にせん断流を再開させた場合のせん断応力の測定からは, 停止させる前のせん断流におけるせん断速度(プレシア)が高いものほど, 後のせん断流の立ち上がりにおいてせん断応力が大きくオーバーシュートすることを示している. そして, これは流れを止めた後の静止状態への緩和過程がプレシアの強さによって異なることによる影響であると示唆している.

SmithとMackay⁽⁶⁾は, HPC水溶液のせん断流で発生する応力への粘性力の寄与についての研究を行い, HPC水溶液の粘度曲線におけるregion IIIおよびregion I*においてその寄与は大きいものと報告しており, 前者は分子の粘性抗力によって起こるもので, 後者はドメインあるいは欠陥の間の粘性散逸による超塑性と似た現象のためと説明している. (* この点に関しては第2章参照のこと)

BaleoとNavard⁽⁷⁾は, 拡大, 縮小などのいくつかの複雑な形状をした透明なスリット状の流路を通過するHPC水溶液の流れにおける分子の方向付けに関する研究を行っている. そこで彼らは, 方向付けの不安定性を持った分子の状態を報告している.

以上のように, 本実験において使用したHPC水溶液に関してのレオロジー的な観点からの研究は多くなされているが, 扱っている流れ場が単純せん断流のものが多く, 本研究のような射出流れを想定した複雑な流れにおいてあまり研究がなされていない.

・ 液晶高分子の流動に関する数値計算

Doi⁽⁸⁾は, 分子論的な観点に立って, 個々の棒状分子の配向分布を規定するDoi理論を提案している. この理論によるレオロジー方程式は, 非線形の粘弾性を示し, また, 計算による零せん断粘度に対する分子量あるいは濃度の依存性の検討結果は, 実験結果と良く一致したことを示した.

蝶野ら⁽⁹⁾は, Doi理論を用いて, 単純せん断流中での液晶高分子の非定常特性と配向分布について

数値解析を行っている。その結果、せん断速度が大きい場合、せん断応力と第一法線応力差がオーバシュートすることを報告している。

また、蝶野ら⁽¹⁰⁾は、Doi理論を用いて、平行平板間における液晶高分子の流れを数値解析している。そこにおける速度分布は、ニュートン流体と比較して平坦であり、せん断速度が大きいほど液晶分子は流れ方向に配向しやすく、かつ高配向になると報告している。

この様に液晶高分子の流動に関する数値計算は、Doi理論を用いていくつか行われているが、Doi理論が複雑であり、その取扱いが容易でないことから、対象とする流れ場は先に述べたような平行平板間の流れといった簡単な例しか扱われていない。また、このDoi理論は、分子単体同士の相互作用による流れ、つまり粘度曲線におけるregion IIIに相当する流れのみを表現しており、ドメイン構造を有する静止状態からの流れ、あるいはドメイン同士の滑りによる流れであると示唆されているregion Iでの流れを計算することができない。以上のことから、高分子液晶の流れの数値解析については、未解決の部分が多く残っている。

1.3 第1部の概要

第1部は5章から構成され、その概略は以下のとおりである。

1章「緒論」では、まず本研究の目的と意義を述べ、関連する従来の研究を述べる。また、本論文の概要と使用記号表を付記する。

第2章「供試流体」では、まず一般の液晶高分子が持つ諸性質について述べ、本研究で用いたニュートン流体と液晶高分子溶液の特性、ならびにそれらの粘度測定方法と測定結果を示す。

第3章「二円盤間の放射状流れ」では、円盤中心から二円盤間を放射状に流動する流れ場について、流体が二円盤間を流動した際に発生する伝達荷重の測定装置およびその時の流れを観察するための可視化装置を示す。また、実験結果と比較するために行った粘性モデルによる数値計算方法についても説明する。そして、液晶高分子溶液またはニュートン流体を流した際に二円盤間に発生する伝達荷重の測定結果と粘性モデルによる数値計算結果との比較、そして液晶高分子溶液の流れの可視化の結果を示し、このような射出流れにおける液晶高分子溶液の流動特性について検討する。

第4章「二円盤間のスクイーズ流れ」では、平行二円盤間の定常放射状流れの後に、二円盤を接近させる等速スクイーズ流れを発生させた場合について、スクイーズ運動時に二円盤間に発生する伝達荷重の測定および流れの可視化の実験装置を示す。また、実験結果と比較するために行った粘性モデルによる数値計算方法についても説明する。そして液晶高分子溶液またはニュートン流体のスクイーズ流れの際に二円盤間に発生する伝達荷重の測定結果と粘性モデルによる数値計算結果との比較を行う。また、液晶高分子溶液の流れの可視化結果と伝達荷重の測定結果との比較から、定常放射状流れ（プレシア）の強さおよびプレシア後の経過時間による液晶高分子溶液のスクイーズ流れへの影響について検討する。

第5章「結論」では、本研究から得られた結果を総括して述べる。

1.4 使用記号

d	: 光の進行方向における液晶高分子の厚さ	(m)
E_0	: 液晶高分子に入射の際の電界強度	(V/m)
E_{0x}, E_{0y}	: 真空 0 における光の電気ベクトルの x, y 方向の成分	(V/m)
E_{1x}, E_{1y}	: 真空 1 における光の電気ベクトルの x, y 方向の成分	(V/m)
F	: 二円盤間に発生する伝達荷重	(N)
F_{th}	: ニュートン流体の理想化した流れにより発生する荷重	(N)
F^*	: 無次元力	(-)
h	: 二円盤間の隙間	(mm)
h	: プレートからコーン壁までの高さ	(mm)
h_s	: 定常放射状流れ時の二円盤間の隙間およびスクイーズ流れの初期隙間	(mm)
M	: コーンに加わるトルク	(N・m)
N	: コーンの回転数	(1/s)
n	: Carreau モデル中の定数	(-)
n_0	: 真空 0 での光の波長	(m)
n_e	: 光の電気ベクトルの振動方向が 液晶高分子の光軸に対し平行に入射したときの屈折率	(-)
n_o	: 光の電気ベクトルの振動方向が 液晶高分子の光軸に対し直角に入射したときの屈折率	(-)
p	: 圧力	(Pa)
Q	: 流量	(mm ³ /s)
R	: コーンの半径	(mm)
R_1	: 二円盤間への入口の半径	(mm)
R_2	: 円盤の半径	(mm)
S_{rr} など	: 各応力成分	(Pa)
T	: 供試流体の温度	(°C)
t	: 時間	(s)
t_p	: 停止時間	(s)
U	: 下方円盤の上昇速度	(mm/s)
V	: コーンの周速度	(mm/s)
v_r	: r 方向の速度	(m/s)
v_z	: z 方向の速度	(m/s)
α	: コーンとプレートのなす角度	(rad)
γ	: せん断速度およびひずみ速度	(1/s)
γ_{ws}	: 平均壁面せん断速度	(1/s)
Δn	: 複屈折率	(-)
η	: 粘度	(Pa・s)
η_0	: $\dot{\gamma} = 0$ における粘度	(Pa・s)
η_∞	: $\dot{\gamma} = \infty$ における粘度	(Pa・s)
λ	: Carreau モデル中の定数	(s)
λ_0	: 真空 0 での光の波長	(m)
λ_x, λ_y	: 液晶高分子中における光の x 成分, y 成分の波長	(m)
ρ	: 供試流体の密度	(g/cm ³)
τ_{rr} など	: 各偏差応力成分	(Pa)
τ_w	: せん断速度	(Pa)
ω	: コーンの角速度	(rad/s)
ω	: 光の角周波数	(rad/s)

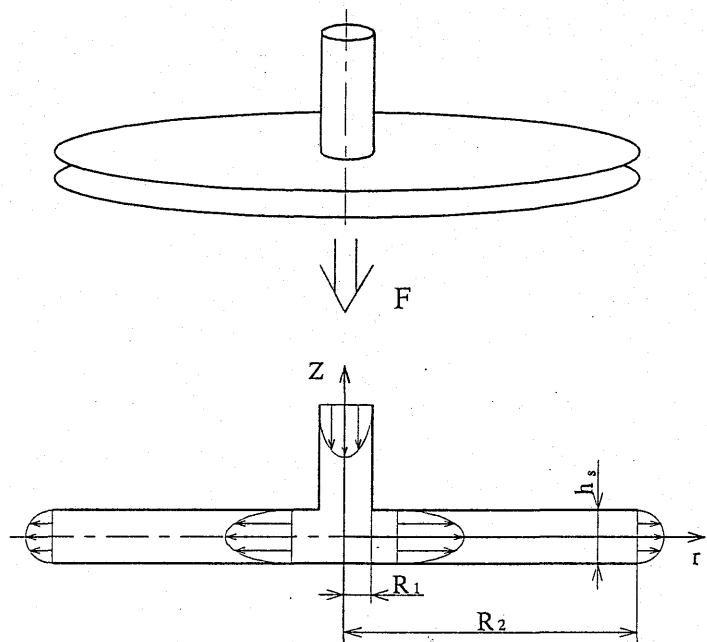


図1.1.1 本研究の流れ場
(放射状流れ)

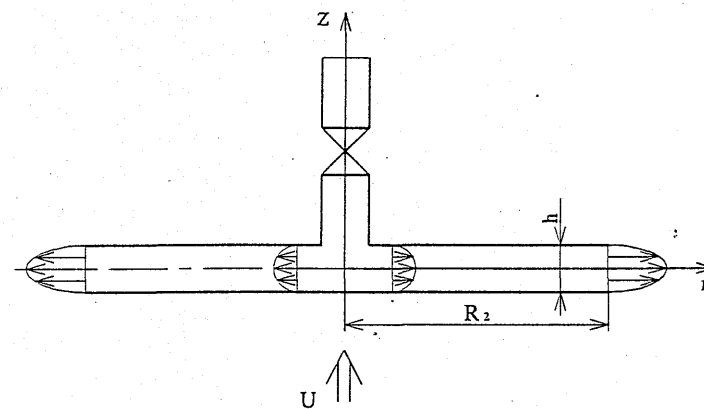


図1.1.2 本研究の流れ場
(スクイズ流れ)

第2章 供試流体

2.1 液晶高分子について

本研究で使用した流体について述べる前に、液晶高分子について概説する。

2.2.1 液晶高分子の分類⁽¹⁾

液晶高分子はサーモトロピック（熱溶融型）とライオトロピック（溶液型）に大別される。サーモトロピック液晶高分子ではポリエステル系が主体をなし、多く製品化がなされている。またライオトロピック液晶高分子ではアラミド系がすでに製品化されている。

一方、化学構造上からの分類では、主鎖型、側鎖型および複合型になる。主鎖型液晶高分子は剛体の棒にたとえられるメソゲン基だけが連なっている全剛直型（図2.1.1(a)）、メソゲン基と屈曲性の分子鎖とから成っている半剛直型（図2.1.1(b)）、主鎖の剛直性ポリマーから屈曲性の分子鎖が髭のように伸びた型（図2.1.1(c)）、十字形に上下左右に伸びたメソゲン基同志あるいは十字型メソゲン基が屈曲性の分子鎖で連結された型（図2.1.1(d)）などが知られている。

側鎖型液晶高分子の骨格鎖にスペーサー（骨格鎖と側鎖メソゲン基との間に入った屈曲性の分子鎖）を介してメソゲン基がついた間接結合型（図2.1.1(e)）と、スペーサーを介しないメソゲン基がついた直接結合型（図2.1.1(f)）、およびスペーサーからメソゲン基を二つぶら下げた型（図2.1.1(g)）などが知られている。複合型液晶高分子は主鎖型液晶高分子のメソゲン基あるいは屈曲鎖にさらにまたメソゲン基を結合したものである（図2.1.1(h)）。

2.1.2 液晶高分子の相構造⁽¹⁾⁽¹¹⁾⁽¹²⁾

液晶高分子の相構造には低分子液晶と同じように、ネマチック、スメクチック、コレステリックおよびディスコチック液晶の4種類が知られている。

ネマチック液晶高分子は図2.1.2(a)のように細長い分子からなり分子長軸方向は全体的には揃っているが、分子の重心の位置はランダムである。

スメクチック液晶高分子は図2.1.2(b)のように分子の重心位置が一平面内で、しかも分子長軸はほぼ一方向に揃った周期構造をとっている。一般にスメクチック液晶高分子はネマチック液晶高分子よりも高い粘性を示す。これはネマチック液晶高分子の各々のドメインは分子の長軸方向に動きやすいからである。

コレステリック液晶高分子は図2.1.2(c)のような層状構造で、それらの隣接層はネマチック液晶に似たような分子配列をしている。しかも各層の分子の平均の配向方向は隣接層のそれに対して一方向にわずかずつねじれている。このねじれ方向が元の方向に一致するまでの距離をピッチ（P）とよぶ。コレステリック液晶ではピッチと可視光の波長が同程度のものが多く、このような場合には、入射する可視光はブラッグ反射と呼ばれる回折現象により虹のように美しい色を呈する。なお本実験で使用するhydroxy propyl cellulose (HPC) 水溶液はこのコレステリック液晶高分子に属する。

ディスコチック液晶高分子は平板状低分子化合物から成っており、円盤状の液晶である。

なお、ネマチック液晶高分子、スメクチック液晶高分子における分子長軸の方向付け、およ

びコレステリック液晶高分子での各層における分子長軸の方向付けは、図2.1.3に示すように完全に平行に並んでいるのではなく、分子自身の熱運動の乱れのため、分子長軸の配向方向を中心にある程度の物理的ゆらぎがある。この平均的な分子長軸方向をディレクタ(n)と呼んでいる。

2.1.3 液晶高分子の物性

ここでは液晶高分子の特異な物性として粘度および複屈折性について述べる。

・液晶高分子の粘度

液晶高分子の典型的な粘度曲線の模式図として図2.1.4に示す。この図において縦軸は粘度、横軸はせん断速度で、両軸とも対数で表してある。この図2.1.4のように液晶高分子は一般的に低せん断速度域および高せん断速度域でシアニングを示し、それらのシアニングの中間部分にニュートン粘性を示すプラトーな部分をもっている。これらの領域はそれぞれ図2.1.5のようにregion I, region II, region III, と名付けられている。液晶高分子は静止状態において、前節で述べたような相構造の小さなかたまり（ドメイン）がランダムに集合した形で構成されている。region Iでは図2.1.5の左のようなドメイン構造を維持しながらのドメイン同志の滑りが流れにおいて支配的であり、region IIIでは図2.1.5の右のような液晶高分子単体同志の滑りが流れで支配的とされ、region IIはregion Iとregion IIIの中間域と解釈されている⁽⁵⁾。

・液晶高分子の複屈折性⁽¹⁾⁽¹¹⁾

液晶の主要な特徴の一つは、光学的1軸性結晶と同様な屈折率異方性に基づく複屈折性を示すことである。光軸が液晶高分子の分子長軸（ディレクタ n ）の方向に相当するネマチック液晶高分子とスメクチック液晶高分子では、光の電気スペクトルの振動方向が光軸に対し直交あるいは平行に入射したときの屈折率を n_o および n_e とすると、空間方向における屈折率の大きさは図2.1.6(a)のような異方性を有する。また、その複屈折率 Δn は、

$$\Delta n = n_e - n_o$$

で与えられる。なお、流れなどにより一方向に揃った液晶高分子においても図2.1.6(a)のような異方性となる。

コレステリック液晶高分子においては、ディレクタ n と直交するヘリカル軸が光軸に相当するため、空間方向における屈折率の大きさは図2.1.6(b)のような異方性となる。

このため、本実験では流れの可視化の際に直交ニコルという、二枚の偏光板でその偏光の方向が互いに直角になるようにして液晶高分子の流れをはさんでその配向状況を観察しているが、この方法は液晶高分子のような液晶高分子の持つ複屈折性によって、液晶高分子に入射する光の偏光状態が変化してしまうという特性を利用したものである。例えば図2.1.7(a)のような、一方向に配向した液晶高分子のディレクタが偏光板1のスリットの方に対して平行あるいは垂直な方向で二枚の偏光板に挟まれている場合を考えると、光は偏光板1によって図2.1.8(a)のような直線偏光の状態、液晶高分子へ入射する。そのとき光の電気ベクトルは、ディレクタに対して垂直あるいは平行であるため、光に影響する屈折率は n_o あるいは n_e のいずれかのみとなる。そのため液晶高分子へ入射した光はその偏光状態を維持したままの直線偏光で液晶高分子を透過し、結局、その直線偏光の偏光方向と直角のスリットの方を持つ偏光板2によってその光は遮られてしまう。また図2.1.7(b)のような、液晶高分子のディレクタが二枚の偏光板のスリットの方に対して平行でも垂直でもない場合には、偏光板1による直線偏光は、その光

の電気ベクトルがディレクタに対してある角度を持って液晶高分子へ入射する。このため光の電気ベクトルをディレクタと垂直あるいは平行の成分に分解すると、それぞれの方向で屈折率が n_o と n_e の異なったものとなる。そのため直線偏光の状態に入射した光は液晶高分子を通過することによって、図2.1.8(a)のような円偏光にその偏光状態を変えられる。そのため偏光板2に遮られることなく光は透過することができる。

ここで、このように直線偏光の状態の光が、液晶高分子を通過することによってその偏光状態を変えられる理由について詳しく説明する。図2.1.9のように、真空中におかれた一方向に配向した液晶高分子に直線偏光が通ると考える。ここでこの図2.1.9では説明を容易にするため、図2.1.7で示した表記法にかえて、図2.1.9中の座標系におけるy軸に液晶高分子の長軸方向、すなわちディレクタが一致するようにし、それに対して直線偏光の偏光方向が斜めになるようにしている。液晶高分子に入る前の真空0において電場の式がx成分、y成分それぞれ

$$E_{0x} = E_0 \exp\left\{i\left(\omega t - \frac{2\pi}{\lambda_0} n_o z\right)\right\} \quad (2.1.1)$$

$$E_{0y} = E_0 \exp\left\{i\left(\omega t - \frac{2\pi}{\lambda_0} n_o z\right)\right\} \quad (2.1.2)$$

ここに E_{0x} , E_{0y} : 0における光の電気ベクトルのx, y方向の成分

E_0 : 入射の際の電界強度

ω : 光の角周波数

λ_0 : 0での光の波長

n_o : 0での屈折率

であるとする。それぞれの電気ベクトルの方向の光が、x方向とy方向とで屈折率が n_o および n_e と異なる液晶高分子にはいることによって、x成分およびy成分の波長 λ_x , λ_y はそれぞれ

$$\lambda_x = \frac{\lambda_0}{n_o}, \quad \lambda_y = \frac{\lambda_0}{n_e}$$

となり、液晶高分子から出るときにはx成分とy成分とで位相差が生じ、液晶高分子から出た真空1における電場の式はx成分、y成分それぞれ

$$E_{1x} = E_0 \exp\left\{i\left(\omega t - \frac{2\pi}{\lambda_0} n_o z + \frac{2\pi}{\lambda_0} n_o d\right)\right\} \quad (2.1.3)$$

$$E_{1y} = E_0 \exp\left\{i\left(\omega t - \frac{2\pi}{\lambda_0} n_o z + \frac{2\pi}{\lambda_0} n_e d\right)\right\} \quad (2.1.4)$$

ここに E_{1x} , E_{1y} : 1における光の電気ベクトルのx, y方向の成分

d : 光の進行方向における液晶高分子の厚さ

と両成分で位相差の生じた形となる。この式(2.1.3)および式(2.1.4)を合成してやると、図2.1.8(b)のような光が進行方向に螺旋状に振動する円偏光となる。また、液晶高分子に光が入った時に減衰があると、液晶高分子から出てくる光は楕円偏光となり、入射時の偏光方向がxあるいはy軸方向であるときには入射時の偏向状況はそのまま維持される。以上のことから直交ニコルによって液晶高分子の流れの状況を観察したとき、図2.1.7のように、二枚の偏光板のいずれかのスリットの方角とディレクタが同じであれば光を通さず(図2.1.7(a))、それ以外の角度であれば光は偏光板を透過してきて(図2.1.7(b))、液晶高分子の配向状況を観察することができる。

2.2 供試流体

ここでは本実験において使用した供試流体について、その粘度および諸性質について述べる。

・水飴

本実験において、後に述べる HPC 水溶液と同程度の粘度をもつニュートン流体として、一般に市販されている水飴を用いた。

なお、この水飴は非常に粘度が高いため、放置しておいただけでは気泡を抜くのにかなりの長時間を必要とするので、図 2.2.1 に示すカートリッジに水飴を入れ、それを遠心分離器で回転させ、その遠心力により脱泡を行った。そして、その溶液が入ったままのカートリッジを 3.2 および 4.2 の図 3.2.1、図 3.2.3 および図 4.2.1 に示す実験装置に組み込み、実験を行った。

・HPC 水溶液

液晶高分子としては、日本曹達（株）製の hidroxy propyl cellose（以後 HPC と略す）の 30 および 50 重量パーセント水溶液を用いた。図 2.2.2 に HPC の構造式を示す。なお、この HPC の分子量は約 6 万程度で⁽⁴⁾、一般の高分子よりもかなり低い分子量である。また、この HPC はセルロースに酸化プロピレンを反応させて製造された非イオン系繊維素誘導体で、フィルム形成能力に優れており、工業上、フィルムコーティングなどに用いられている。また、結合性、増粘性エマルジョン安定性、分散性などにも優れた特性を示し、さらに人体に無害であることから、錠剤の結合剤としても用いられている。

この HPC 水溶液は、溶液の濃度の増加によって液晶性を示すライオトロピック液晶で、30wt%では液晶性を示さない一般的な高分子溶液で、50wt%では液晶性を示す。また、HPC 水溶液の化学構造上からの分類は、主鎖型液晶高分子に属し、相構造からの分類としては、コレステリック液晶高分子に分類される⁽¹¹⁾（2.1 節参照）。

次に HPC 水溶液の作成法について述べる。溶液は重量濃度で 30%および 50%水溶液となるようにビーカーに HPC と蒸留水を入れ、これをよくかき混ぜ、そして一週間程度放置したのち実験を行った。また、水飴と同様に HPC 水溶液も非常に粘度が高いため、放置しておいただけでは気泡を抜くのにかなりの長時間を必要とするので、水飴の場合と同様の方法で脱泡し、実験を行った。

なお本研究において液晶高分子として、HPC30wt%水溶液と HPC50wt%水溶液の二種類の異なった濃度のものを使用したが、上に述べたように、液晶性を示す HPC50wt%水溶液に対して、HPC30wt%水溶液は液晶性を示さない高分子溶液として⁽⁴⁾、比較のために用いた。

2.3 各供試流体の粘度

本研究において、供試流体として2.2で述べたように、水飴、HPCの30wt%および50wt%水溶液を使用するが、ここでは各流体の粘度測定法および粘度測定結果について示す。

2.3.1 粘度測定法

本実験で使用した全流体の粘度はHAAKE社製のレオメータ、レオストレスRS100およびRS50（図2.3.1）により測定した。両レオメータは図2.3.2において試料を上部の円錐（コー

ン)と下部の円盤(プレート)の隙間に満たし、円盤を静止させたままコーンを一定のトルクで回転させたときの角速度を測定し、それにより各せん断速度における粘度またはせん断応力を得ている。

次に、このレオメータの測定原理について説明する。今、コーン(半径 R)が一定角速度 ω ($\omega=2\pi N/60$: N は回転数)で回転しコーンとプレートの角度が α (rad)とする。回転中心から r の位置での周方向速度 V は $V=r\omega$ であり、その位置でのプレートからコーン壁までの高さ h は $h=r\alpha$ である。よって、プレート面でのひずみ速度 $\dot{\gamma}$ は

$$\dot{\gamma} = \frac{V}{h} = \frac{r\omega}{r\alpha} = \frac{\omega}{\alpha} = \frac{2\pi N}{60\alpha} \quad (2.3.1)$$

となり、 r にはよらない。この結果、コーン表面には一様なせん断応力 τ_w が生じる。このせん断応力によってコーンに加わるトルク M は

$$M = 2\pi\tau_w \int_0^R r^2 dr = \frac{2\pi\tau_w R^3}{3} \quad (2.3.2)$$

となる。よって、せん断応力は、

$$\tau_w = \frac{3M}{2\pi R^3} \quad (2.3.3)$$

で得られ、みかけの粘度 η は、

$$\eta = \frac{\tau_w}{\dot{\gamma}} \quad (2.3.4)$$

で算出される。

2.3.2 粘度測定結果

・水飴

ニュートン流体である水飴の粘度を測定した結果を図 2.3.3 と図 2.3.4 に示す。両図の横軸は溶液の温度、縦軸は粘度である。図 2.3.3 は第 3 章の定常放射状流れの実験で使用した水飴の粘度で、平成 6 年に英弘精機で HAAKE 社製のレオメータ、レオストレス RS100 により測定された結果である。また図 2.3.4 は第 4 章のスクイーズ流れの実験で使用した水飴の粘度で、平成 7 年に本研究室で同社製のレオメータ、レオストレス RS50 により測定した結果である。

まず、図 2.3.3 と図 2.3.4 との間で粘度の値が異なった結果が得られている。両者とも同じ容器に入った製品を使用し粘度測定を行ったが、図 2.3.4 の方が図 2.3.3 のものよりも 1 年ほど後に用いたため、その間に水飴に含まれる水分が蒸発し、この図 2.3.3 と図 2.3.4 のように粘度の値に違いがでたものと思われる。そこで本研究において、後に述べる実験結果の無次元化や粘性モデルによる数値計算の際には、定常放射状流れとスクイーズ流れとで、それぞれ対応する図の粘度を用いた。

また、この図 2.3.3 および図 2.3.4 において、水飴の粘度は温度に大きく依存していることがわかる。そこで、本実験は液温がなるべく 20℃となるような一定温度の条件下で行われたが、正確には実験終了時の水飴の温度を測定し、その温度をもとに図 2.3.3 および図 2.3.4 から粘度を決定される粘度を用いて、後述の 3.4 および 4.4 節での伝達荷重の無次元化に用いた。なお、この水飴の密度は $\rho=1.43$ (g/cm³)である。

・HPC水溶液

HPC30 および 50wt%水溶液の粘度の測定結果を図 2.3.5、図 2.3.6 に示す。図 2.3.5 および図

2.3.6 の横軸はせん断速度で、縦軸はみかけの粘度である。また図中の実線は、後の 3.3 および 4.3 節で述べる粘性モデルによる数値計算で用いる、Carreau モデルによるそれぞれの粘度の近似曲線である。図 2.3.5 は定常放射状流れの実験で使用した HPC30 および 50wt%水溶液の粘度で、平成 6 年に英弘精機で HAAKE 社製のレオメータ、レオストレ ス RS100 により測定された結果である。また図 2.3.6 はスクイーズ流れの実験で使用した HPC30 および 50wt%水溶液の粘度で、平成 7 年に本研究室で HAAKE 社製のレオメータ、レオストレ ス RS50 により測定した結果である。なお、両者とも溶液の温度が $T=20$ (°C) の場合の結果である。

図 2.3.5 および図 2.3.6 において各々の濃度ごとの粘度変化は定性的にはよく一致しているが、それぞれ粘度の値が 10~20%程度異なっている。図 2.3.5 と図 2.3.6 では、HPC のロットナンバーは異なるものの同じ製品を用いた結果である。このような粘度の違いが現れた要因としては、HPC の経時変化が考えられる。前者(図 2.3.5)は開封後、長時間経ており、また、高温(夏期)下で保管された。一方、後者(図 2.3.6)は比較的良好な条件下で保管され、比較的フレッシュな状態のうちに測定されたものである。その結果としてこのような粘度の違いが現れたものと思われる。そこで本研究において、後に述べる実験結果の無次元化や粘性モデルによる数値計算の際には、定常放射状流れとスクイーズ流れとで、それぞれ対応する図 2.3.5 または図 2.3.6 の粘度測定結果を用いた。

次に、図 2.3.5 および図 2.3.6 に示した HPC30wt%水溶液と HPC50wt%水溶液の粘度曲線の特徴について述べる。

HPC30wt%水溶液については、2.2 に述べたように HPC 水溶液はライオトロピック液晶であるため、この濃度では液晶性はみられず、一般の高分子溶液のような、低せん断速度域でニュートン粘性を示す部分を有し、高せん断速度域でシアニングを示している。なお、溶液の密度は $\rho=1.05$ (g/cm³) である。

一方、HPC50wt%水溶液については、2.1 で述べたような、低せん断速度域と高せん断速度域においてシアニングを示し、その間にプラトーなニュートン粘性を示す領域をもった、液晶高分子特有の粘度を示している⁽⁴⁾。そして、この HPC50wt%水溶液における前述(2.1 節)の region I ~ III は図中に示した範囲と見積もられる。また、溶液の密度は $\rho=1.11$ (g/cm³) である。なお、Carreau モデルでの近似については後章で述べる。

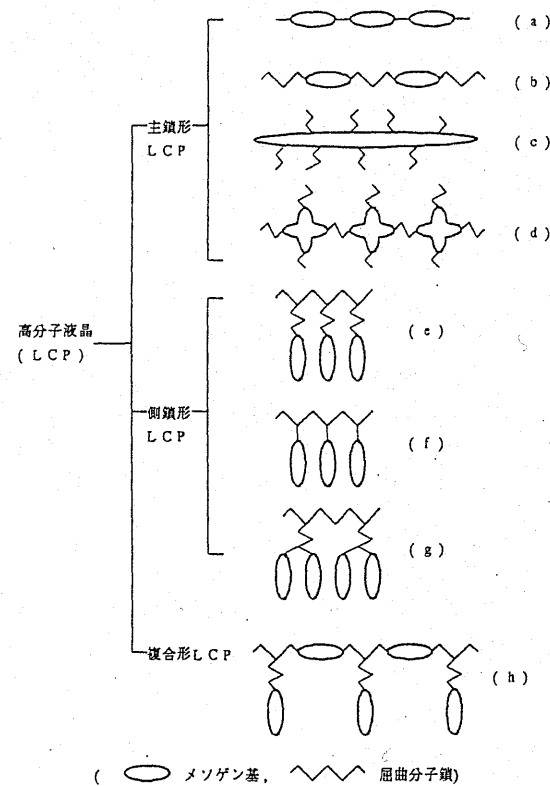


図2.1.1 液晶高分子の分類

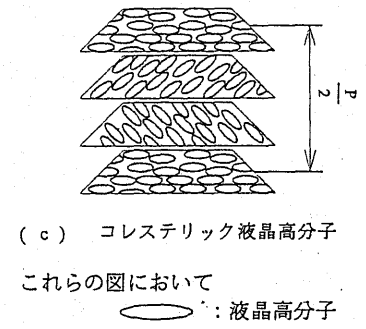
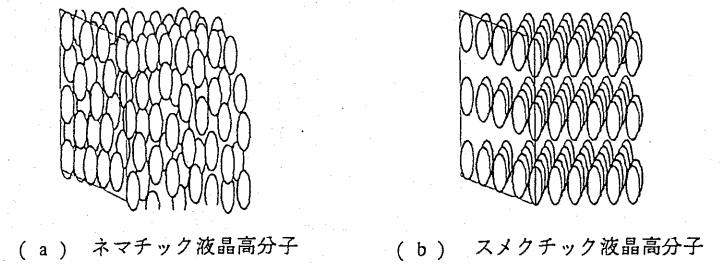


図2.1.2 液晶高分子の相構造からの分類

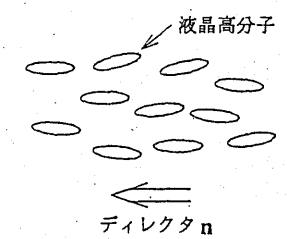


図2.1.3 液晶高分子の配向とディレクタ

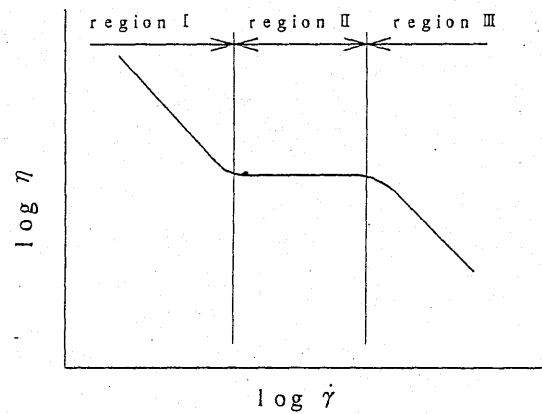


図2.1.4 液晶高分子の粘度曲線の模式図

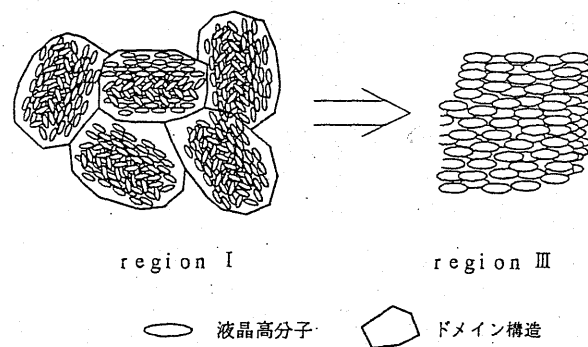
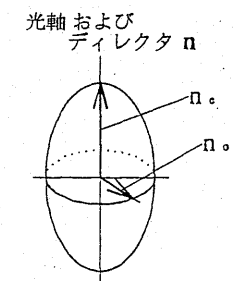
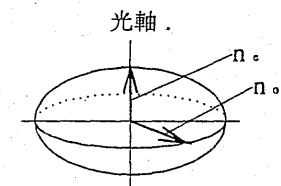


図2.1.5 液晶高分子の粘度曲線における領域とその状況

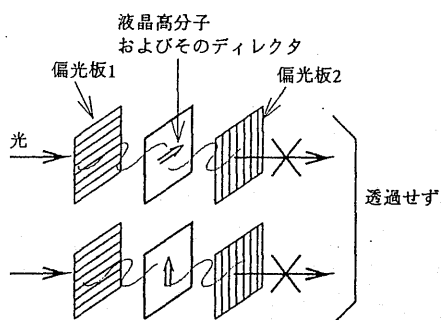


(a) ネマチックおよびスメクチック液晶高分子

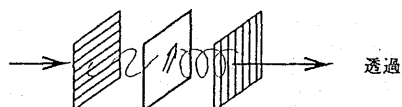


(b) コレステリック液晶高分子

図2.1.6 屈折率楕円体

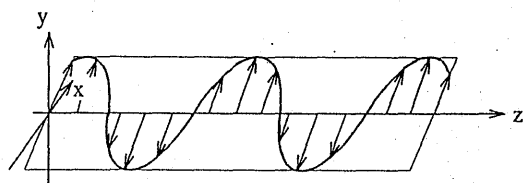


(a) 光が透過しない場合

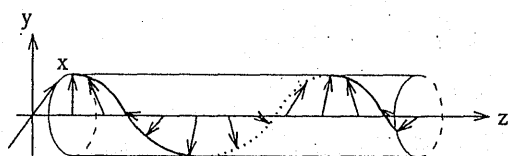


(b) 光が透過する場合

図2 1.7 直交ニコルによる液晶高分子の観察



(a) 直線偏光



(b) 円偏光

図2 1.8 直線偏光および円偏光

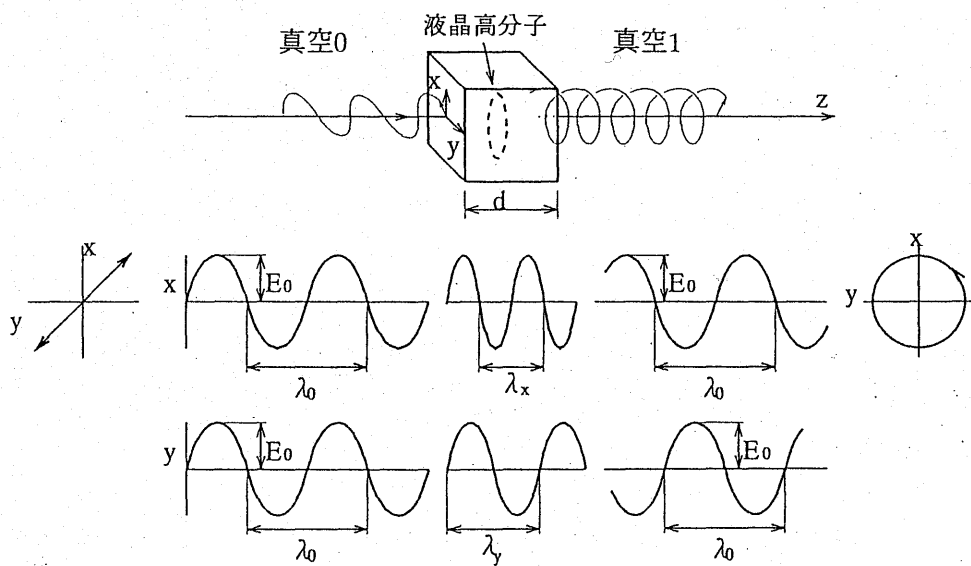


図2 1.9 液晶高分子を通る光の伝播

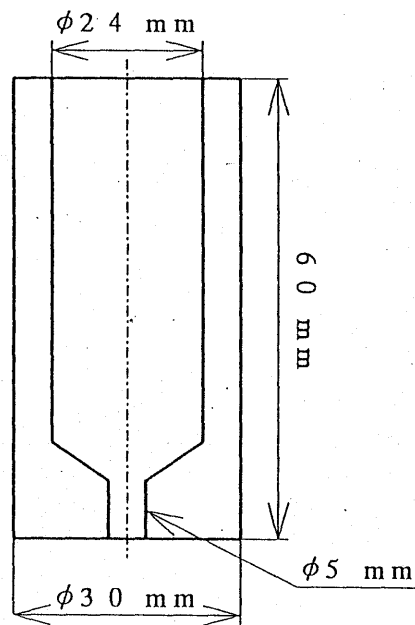
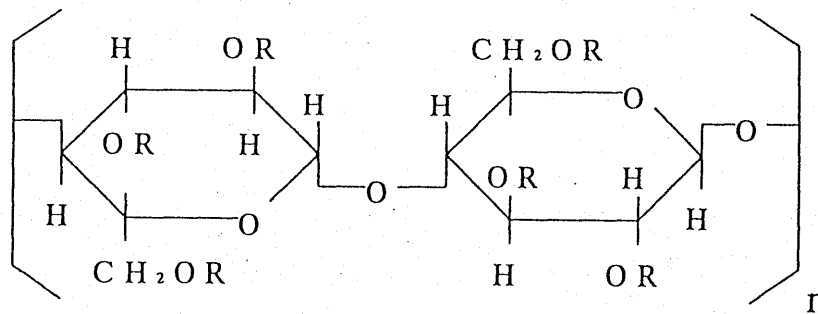


図2.2.1 カートリッジ



- R: Hまたは[- CH₂ - CH(CH₃) - O] mH基を表す.
- m, n は1以上の整数.

図2.2.2 HPCの化学式

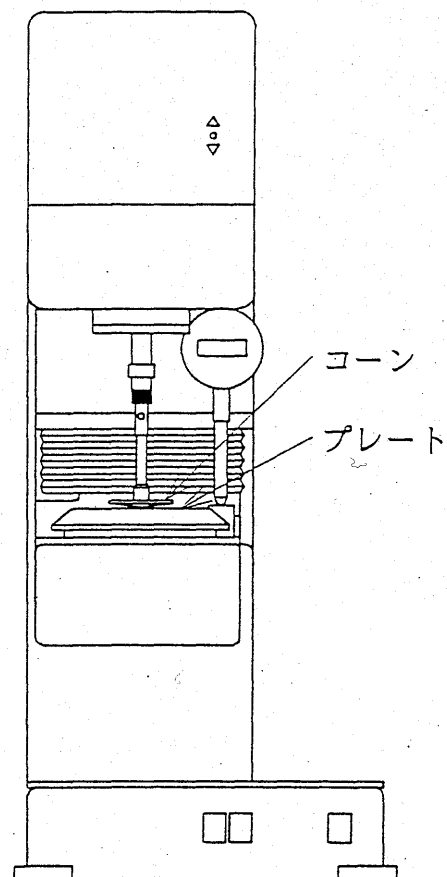


図2.3.1 レオストレスRS50

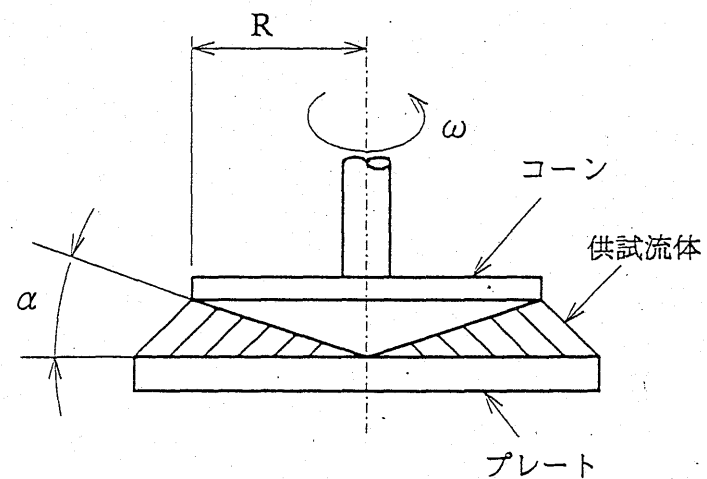


図2.3.2 レオメータによる粘度測定

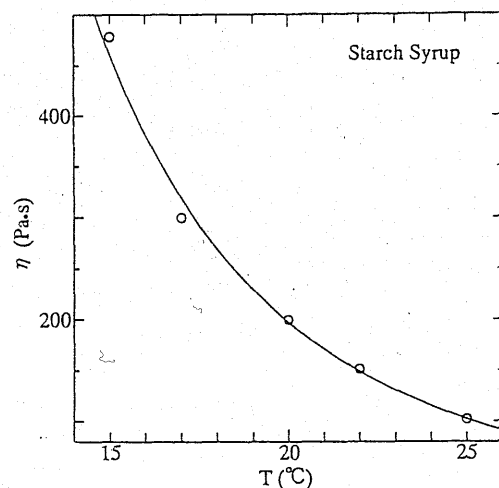


図2.3.3 水飴の粘度に対する温度の依存性
(平成6年 英弘精機(株)にて測定)

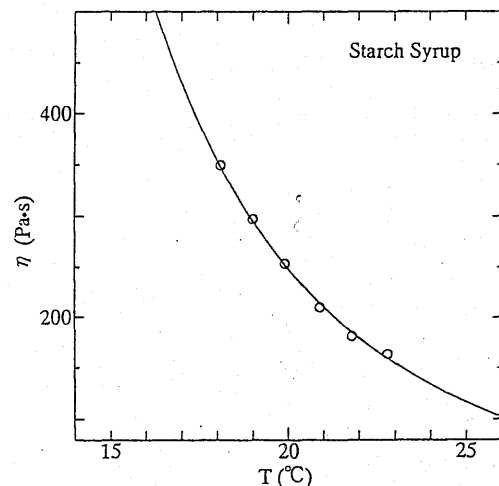


図2.3.4 水飴の粘度に対する温度の依存性
(平成7年 本研究室にて測定)

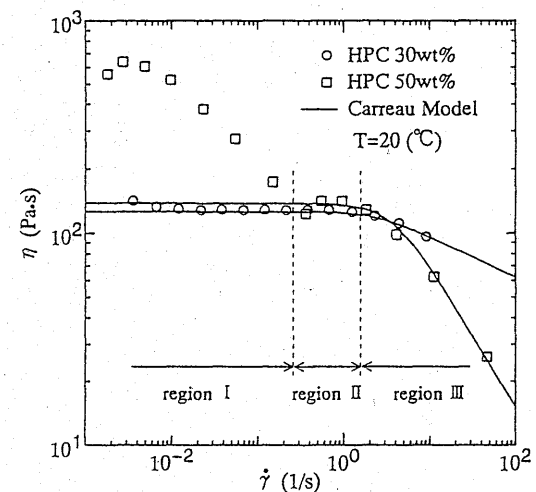


図2.3.5 HPC水溶液各濃度の粘度対せん断速度
(平成6年 英弘精機(株)にて測定)

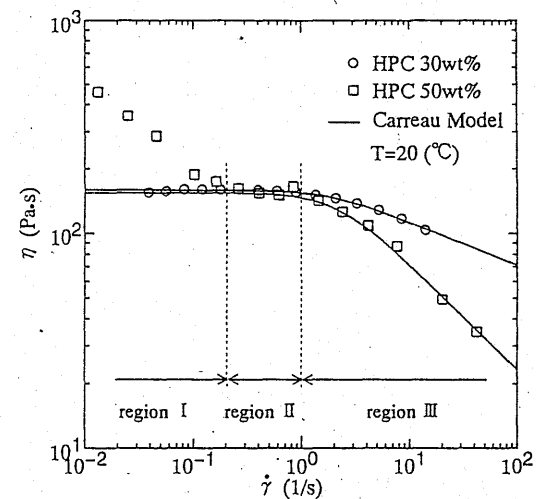


図2.3.6 HPC水溶液各濃度の粘度対せん断速度
(平成7年 本研究室にて測定)

第3章 二円盤間の放射状流れ

3.1 まえがき

成形流れにおいて、第1章の図1.1.1に示すような平行二円盤間の流れは、薄板の成形などに見られ、また複雑な形状をした成形品においても局所的には似た流れが生じ、重要かつ基礎的な流れ場といえる。しかし、このような流れによりできた液晶高分子の成形品は、流れの方向に液晶高分子が揃うことにより強度に異方性が生じ、それによる割れや裂けといった点が重大な問題となっている⁽¹⁾。しかし、レオロジー的な観点からの成形流れにおける液晶高分子の分子挙動の解明および分子配向の制御などといった研究は少ない。例えば、実際の液晶高分子の成形流れを想定した研究として、BaleoとNavard⁽⁷⁾により平行平板間の様々な形状の流路における液晶高分子の挙動を観察した研究などが報告されているが、液晶高分子の成形流れにより発生する応力場の測定といったことはなされておらず、不明な点が多い。

そこで本章では、図1.1.1に示す円盤中心から二円盤間を放射状に流動する流れ場について、液晶高分子溶液またはニュートン流体を流した際に二円盤間に発生する伝達荷重の測定を行い、粘性モデルによる数値計算との比較および液晶高分子溶液の流れの可視化から、このような射出流れにおける液晶高分子溶液の流動特性を検討する。

3.2 実験装置および方法

3.2.1 荷重測定

図3.2.1に二円盤間の放射状流れで発生する荷重を測定する実験装置の概略を示す。装置は溶液を流れ場へ押し出すための圧縮空気を送り出すコンプレッサー①、流量測定のために導圧管の途中に取り付けられた水位計②、溶液供給部および円盤上面となる円筒容器⑤、円盤下面となる光学ガラス円板⑥、発生した荷重を検出するロードセル⑦、隙間の変化を検出する接触式変位計⑧、隙間の調整を行うためのマイクロメータヘッド⑨およびZ軸ステージ⑩、そしてZ軸ステージの操作、およびロードセルと接触式変位計からの出力を記録するためのパーソナルコンピュータ⑪で構成されている。

次に実験方法について説明する。コンプレッサーで発生させた圧縮空気により、導圧管内の水を円筒容器内部に送り込み、ゴム風船③を膨らませる。これによって、円筒容器内のカートリッジ④に入れられた供試流体を、円筒容器下面とガラス円板により構成される二円盤間へと円盤の中心位置から押し出し、放射状流れを発生させる。そして流れにより円盤下面に伝達される荷重および円盤の隙間をロードセル、変位計により測定し、パーソナルコンピュータで記録する。またこのときの流量は水位計の水面の変化量から算出した。なお、本測定システムにおいては、ロードセルおよびA/Dコンバータの分解能のため、トータルで測定される荷重には最大で $\pm 0.5\text{N}$ 程度のばらつきが生じる。そこで定常流での測定のため、時間平均した荷重を用いてデータを整理した。

流れ場の詳細を図3.2.2に示す。円盤の外径は50mm、入り口径は5mmであり、二円盤間の隙間が0.5mm、1.0mm、1.5mmの三通りについて実験を行った。この二円盤間の隙間は、シックネスゲージを用い、そしてマイクロメータヘッドおよびZ軸ステージにより平行を確認しつつ、目標の値に対し

て上限で+0.03mmの範囲で調整を行った。このため、後に示す実験結果において二円盤間の隙間を0.5mm, 1.0mm, 1.5mmと記してあるが、実際にはこれら目標の寸法よりも隙間が大きくなる事と予想されるため、荷重の無次元化などの際には、目標の寸法に0.015mm加えた値を二円盤間の初期隙間（無負荷時の隙間）とた。更に、流れによって発生する荷重によって、ロードセルが変形して隙間が増大するため、その隙間の変化量を接触式変位計で検出し、それにより補正した隙間を用いて実験データの整理を行った。

3.2.2 流れの可視化

図3.2.3に二円盤間の放射状流れを観察するための実験装置の概略を示す。装置において、溶液を流れ場へ押し出すためのコンプレッサー、導圧管、水位計と溶液供給部となる円筒容器②は、荷重測定用の実験装置と同様である。流れ場は二枚の光学ガラス円板⑥で構成されており、円管④で溶液供給部とつながっている。なお、荷重測定用の実験装置では、溶液と導圧管内の水とが直接ふれないようにするため、溶液を押し出すのに風船を用いていたが、溶液と水の拡散する速度が非常に遅く、本実験に対して影響しないことが確認されたため、この流れの可視化の実験装置では導圧管からの水により直接溶液を押し出すことにした。また、光源となる白色電球、ミラー③および偏光面が直交する（直交ニコル）ようにおかれた二枚の偏光板⑦で可視化した。そして流れの撮影を行うカメラ⑧により構成されている。

次に実験方法について説明する。円筒状のカートリッジ①に入れられた供試流体は、コンプレッサーで加圧した空気により送り込まれる導圧管内の水により円管内に流入する。これにより内部の供試流体をカートリッジから押し出す。そして供試流体は、円管を通して二枚のガラス円板により形成された流れ場へ導かれ、その中心から放射状に流れる。またこのときの流量は、3.2.1と同様に水位計の水面の変化量から算出した。そしてこの二円盤間の流れの状態は、光源である白色電球からの光が、直交ニコルの状態の二枚の偏光板で挟まれた流れ場を透過してくる像としてカメラにより撮影された。

図3.2.4に流れ場の寸法の詳細を示す。定常放射状流れの際の荷重測定の実験装置と同様に円盤の外径は50mm, 入り口径は5mmとし、そして二円盤間の隙間は $h_g=1.0\text{mm}$ の条件で観察した。

3.3 粘性モデルによる数値計算

ニュートン流体や複雑な挙動をする液晶高分子溶液において得られる実験結果を判断するには、基準が必要と考えられる。本研究においては粘性のみを考慮して、有限要素法により数値解析した結果を用いて実験結果と比較検討する。

3.3.1 粘性モデルによる有限要素法での数値計算

ここでは、本章で扱う流れについて有限要素法での数値計算の方法を述べる。

・解析領域

本数値計算で用いた要素の形状、および流れ場の数値計算する領域の寸法と要素分割の概略図を図3.3.1, 図3.3.2に示す。解析領域を分割する要素は、図3.3.1のような四角形九節点要素を用いた。また図3.3.2において、数値計算は軸対称問題とし、図中のZ軸を対称軸(e)として回転させ、本実験で

の流れ場を表現している。ここで図の(a)が流体の入口側、(b)が出口側となる。そして要素分割は流体の入口、円管から二円盤間への流入部付近、そして壁面近傍で要素が密となるように分割した。またそれぞれの隙間のときの全節点数および要素数を表3.3.1に示す。境界条件に関しては、図3.3.3に示すとおりで、流体の入口側(a)では、ポアズイユ流で流入するとし、壁面(c)および(d)では速度が零、対称軸(e)上では速度の半径方向成分が零として計算を行った。

・粘性モデル

本数値計算では、水飴の粘性モデルとしてニュートン粘性、HPC30wt%およびHPC50wt%水溶液の粘性モデルとしてCarreauモデルを用いた。Carreauモデルは一般化ニュートン流体のひとつである。一般化ニュートン流体とは、粘度 η をひずみ速度テンソルの不変量の関数で拡張したものである。Carreauモデルでは

$$\eta = \eta_{\infty} + (\eta_0 - \eta_{\infty}) \left(1 + \lambda^2 D^2 \right)^{(n-1)/2} \quad (3.3.1)$$

$$\begin{aligned} \text{ここで } D^2 &= \frac{1}{2} \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \left(\frac{\partial v_i}{\partial x_j} + \frac{\partial v_j}{\partial x_i} \right) \\ &= \frac{1}{2} |\Pi_e| \end{aligned}$$

(x は位置に関する座標成分で、 i および j は和の規約をとる

Π_e : ひずみ速度テンソルの第二不変量)

とされる⁽¹³⁾。単純せん断流中では式(3.3.1)は

$$\eta = \eta_{\infty} + (\eta_0 - \eta_{\infty}) \left(1 + \lambda^2 \dot{\gamma}^2 \right)^{(n-1)/2} \quad (3.3.2)$$

となる。

ここでCarreauモデル中のパラメータの物理的な意味を述べると、まず η_0 および η_{∞} は流体のせん断速度 $\dot{\gamma} = 0$ および $\dot{\gamma} = \infty$ における粘度で、 n はいわゆる構造粘度指数、 λ は粘度曲線上に表れる特性時間に対応し、時間の次元をもっている。次に、実際の計算に用いたニュートン粘性における粘度、および式(3.3.1)中のパラメータの値を表に示す。ニュートン粘性の粘度は図2.3.3において $T=20$ (°C)での値を用いた。Carreauモデルのパラメータの値は図2.3.5中の粘度曲線により決定したが、HPC50wt%水溶液に対しては、高せん断速度域の粘度測定結果を中心として決定しており、 η_0 については、region IIにおけるプラトーな部分の粘度とした。またHPC30wt%およびHPC50wt%水溶液における η_{∞} については、粘度測定装置の関係上、図2.3.5に示された以上のせん断速度での粘度測定ができなかったため、両水溶液ともに $\eta_{\infty} = 0$ として数値計算を行った。最後に λ については、 $\eta_{\infty} = 0$ とすると式(3.3.2)は

$$\eta = \eta_0 \left(1 + \lambda^2 \dot{\gamma}^2 \right)^{(n-1)/2} \quad (3.3.3)$$

となる。ここで式(3.3.3)においてせん断速度が十分に小さい領域については $1 \gg \lambda^2 \dot{\gamma}^2$ となるため、

$$\eta = \eta_0 \quad (3.3.4)$$

となる。また、式(3.3.3)において $1 \ll \lambda^2 \dot{\gamma}^2$ となるような、せん断速度が十分に大きい領域では、

$$\eta = \eta_0 (\lambda \dot{\gamma})^{(n-1)} \quad (3.3.5)$$

と、べき乗則粘性の式と同じ形となり、粘度曲線におけるシアシニングの部分を表している。そして式(3.3.4)と式(3.3.5)より λ を求めると、

$$\lambda = \frac{1}{\dot{\gamma}} \quad (3.3.6)$$

が得られる。つまり本計算における λ は、擬塑性流体において、零せん断粘度からシアシニングを示す領域への変わり目の部分におけるせん断速度の逆数により与えられる。

・基礎方程式および計算手法

次に本数値計算における基礎方程式を示す。まず図3.3.4のような円柱座標系での微小体積要素を考えると、定常流で軸対称の運動方程式は、体積力を無視すると、

$$\rho \left(v_r \frac{\partial v_r}{\partial r} + v_z \frac{\partial v_r}{\partial z} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r S_{rr}) + \frac{\partial}{\partial z} S_{rz} - \frac{S_{\theta\theta}}{r} \quad (3.3.7)$$

$$\rho \left(v_r \frac{\partial v_z}{\partial r} + v_z \frac{\partial v_z}{\partial z} \right) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r S_{rz}) + \frac{\partial}{\partial z} S_{zz} \quad (3.3.8)$$

で与えられる⁽¹³⁾。また連続の式は

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (\rho r v_r) + \frac{\partial}{\partial z} (\rho v_z) = 0 \quad (3.3.9)$$

となる⁽¹³⁾。一般化ニュートン流体の構成方程式は

$$S_{rr} = -p + 2\eta \frac{\partial v_r}{\partial r} \quad (3.3.10)$$

$$S_{\theta\theta} = -p + 2\eta \frac{v_r}{r} \quad (3.3.11)$$

$$S_{rz} = \eta \left(\frac{\partial v_r}{\partial z} + \frac{\partial v_z}{\partial r} \right) \quad (3.3.12)$$

$$S_{zz} = -p + 2\eta \frac{\partial v_z}{\partial z} \quad (3.3.13)$$

となる⁽¹³⁾。ここで式(3.3.10)から式(3.3.13)の構成方程式中の η にニュートン粘性あるいは式(3.3.1)で表されるCarreauモデルを代入し、そして式(3.3.7)から式(3.3.13)を図(3.3.1)に示した四角形九節点要素に基づいて、各要素ごとに離散化を行い、それらを全体系に重ね合わせて支配方程式を作り、そしてその支配方程式を解くことによって、その流れ場の解を得ている。また支配方程式を解く際の繰り返し計算は、繰り返し代入法により行った。以上の作業はFluid Dynamics International(FDI)社製の有限要素解析プログラムFIDAPにより行った。なお、このFIDAPによる計算において、式の離散化の方法がブラックボックスとなっているため、式(3.3.10)から式(3.3.13)の離散化において、Carreauモデルでの η 中のひずみ速度テンソルをどの様に扱い離散化を行ったかは不明である。

3.3.2 実験結果と数値計算結果との比較について

ここでは、実験結果と数値計算結果との比較をするために用いる、無次元化伝達荷重および平均壁面せん断速度の定義について述べる。

・無次元力

まず、測定または算出された力を無次元化して比較するために、ニュートン流体の理想化された二円盤間の定常放射状流れで発生する力 F_h の誘導について述べる。本実験の流れ場において、ニュートン流体の放射状流れが、図3.3.5のように円管から二円盤間に流入した直後に二次元ポアズイユ流に発達していると仮定する。そのときの半径方向の運動方程式は、定常流で軸対称の条件を考慮し、さらに慣性項および体積力を無視すると、

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r \tau_{rr}) + \frac{\partial}{\partial z} \tau_{rz} - \frac{\tau_{\theta\theta}}{r} - \frac{\partial p}{\partial r} = 0 \quad (3.3.14)$$

で与えられる⁽¹³⁾。式(3.3.14)中の τ_{rr} および $\tau_{\theta\theta}$ は、ニュートン流体に対しては、

$$\tau_{rr} = 2\eta \frac{\partial v_r}{\partial r} \quad (3.3.15)$$

$$\tau_{\theta\theta} = 2\eta \frac{v_r}{r} \quad (3.3.16)$$

$$\tau_{rz} = \eta \left(\frac{\partial v_r}{\partial z} + \frac{\partial v_z}{\partial r} \right) = \eta \frac{\partial v_r}{\partial z} \quad (3.3.17)$$

であり⁽¹³⁾, 式(3.3.15), 式(3.3.16)および式(3.3.17)を式(3.3.14)へ代入して,

$$2\eta \frac{1}{r} \left(\frac{\partial v_r}{\partial r} + r \frac{\partial^2 v_r}{\partial r^2} - \frac{v_r}{r} \right) + \eta \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial v_r}{\partial z} \right) - \frac{\partial p}{\partial r} = 0 \quad (3.3.18)$$

となる. これを整理すると,

$$2\eta \frac{\partial}{\partial r} \left[\frac{1}{r} \left\{ \frac{\partial}{\partial r} (rv_r) \right\} \right] + \eta \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} - \frac{\partial p}{\partial r} = 0 \quad (3.3.19)$$

が得られる. ここで連続の式より,

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv_r) + \frac{1}{r} \frac{\partial v_\theta}{\partial \theta} + \frac{\partial v_z}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rv_r) = 0 \quad (3.3.20)$$

であるので⁽¹³⁾, 結局, 式(3.3.14)は,

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \eta \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} \quad (3.3.21)$$

となる. よって, 先程述べたように二次元ポアズイユ流れを仮定すると, 半径方向の速度 v_r は

$$v_r = \left(-\frac{\partial p}{\partial r} \right) \frac{h_s^2}{2\eta} \left\{ \frac{1}{4} - \left(\frac{z}{h_s} \right)^2 \right\} \quad (3.3.22)$$

で与えられる. ここで式(3.3.22)から流量を求めると,

$$\begin{aligned} Q &= \int_{-\frac{h_s}{2}}^{\frac{h_s}{2}} 2\pi r v_r dz \\ &= \frac{\pi r h_s^3}{6\eta} \left(-\frac{\partial p}{\partial r} \right) \end{aligned} \quad (3.3.23)$$

となり, 結局,

$$\frac{\partial p}{\partial r} = -\frac{6\eta Q}{\pi r h_s^3} \quad (3.3.24)$$

となる. ここで, 流量 Q は r について一定であるから, 円盤の出口 ($r = R_2$) で圧力は大気圧 ($p = 0$) の条件で式(3.3.24)を積分すると,

$$p = \frac{6\eta Q}{\pi h_s^3} \ln \left(\frac{R_2}{r} \right) \quad (3.3.25)$$

となる. よって, 図3.3.6のように円盤流入口における圧力分布を半径によらず一定と考えると, 式(3.3.25)を円盤全域にわたって領域積分することにより, 理想化された流れで二円盤間に発生する荷重 F_{th} が得られる.

$$\begin{aligned} F_{th} &= \frac{6\eta Q}{\pi h_s^3} \ln \left(\frac{R_2}{R_1} \right) \pi R_1 + \int_{R_1}^{R_2} 2\pi r p dr \\ &= \frac{3\eta Q}{h_s^3} (R_2^2 - R_1^2) \end{aligned} \quad (3.3.26)$$

本研究においては, 二円盤間の定常放射状流れによって発生する荷重の無次元力 F^* として, 実験あるいは数値計算によって得られた二円盤間に発生する荷重 F を, 式(3.3.26)により与えられる荷重 F_{th} により除した値

$$F^* = \frac{F}{F_{th}} \quad (3.3.27)$$

を定義して, 結果との比較検討を行う.

・平均壁面せん断速度

次に、平均壁面せん断速度 $\dot{\gamma}_{ws}$ の定義について説明する。無次元力の定義の場合と同様に、放射状流れが二次元ポアズイユ流れであると仮定する。円盤間での半径方向の速度 v_r は、式(3.3.22)、式(3.3.23)より

$$\begin{aligned} v_r &= \left(-\frac{\partial p}{\partial r} \right) \frac{h_s^2}{2\eta} \left\{ \frac{1}{4} - \left(\frac{z}{h_s} \right)^2 \right\} \\ &= \frac{3Q}{\pi r h_s} \left\{ \frac{1}{4} - \left(\frac{z}{h_s} \right)^2 \right\} \end{aligned} \quad (3.3.28)$$

となり、壁面 $z = -\frac{h_s}{2}$ におけるせん断速度は

$$\begin{aligned} \left(\frac{\partial v_r}{\partial z} \right)_{z=-\frac{h_s}{2}} &= \left[\frac{3Q}{\pi r h_s} \left(-\frac{2z}{h_s} \right) \right]_{z=-\frac{h_s}{2}} \\ &= \frac{3Q}{\pi r h_s^2} \end{aligned} \quad (3.3.29)$$

となる。よって二次元ポアズイユ流れが $r = R_1$ から R_2 までの全領域で成り立つとして式(3.3.29)を面積積分して、その値をこの領域の面積で除したものを平均壁面せん断速度 $\dot{\gamma}_{ws}$ と定義する。

$$\begin{aligned} \dot{\gamma}_{ws} &= \frac{\int_{R_1}^{R_2} \left(\frac{3Q}{\pi r h_s^2} \right) 2\pi r dr}{\pi(R_2^2 - R_1^2)} \\ &= \frac{6Q(R_2 - R_1)/h_s^2}{\pi(R_2 + R_1)(R_2 - R_1)} \\ &= \frac{6Q}{\pi(R_2 + R_1)h_s^2} \end{aligned} \quad (3.3.30)$$

結局、この平均壁面せん断速度は、半径 $r = R_1$ と R_2 の中点である $r = \frac{R_2 + R_1}{2}$ における壁面せん断速度を意味している。

以上のように定義した無次元力および平均壁面せん断速度を用いて、実験結果および計算結果を整理し、両者の比較を行う。

3.4 実験結果および考察

ニュートン流体である水飴による実験結果を図3.4.1に示す。この図において縦軸および横軸はそれぞれ前節で定義した無次元力 F^* と代表せん断速度 $\dot{\gamma}_{ws}$ をとっている。また、図中の丸印は $h_s = 0.5\text{mm}$ 、四角印は $h_s = 1.0\text{mm}$ 、三角印は $h_s = 1.5\text{mm}$ の場合に対応し、それぞれのマークについて白抜きは実験結果、黒塗りは数値解析結果を表している。なお本章において示す実験結果のグラフについては、すべてこの形式をとっている。

ニュートン流体である水飴については、実験結果および計算結果ともに、 h_s および $\dot{\gamma}_{ws}$ によらず F^* が1で一定となり、前節の流れ場の仮定が妥当であることが確認された。

次にHPC30wt%水溶液の結果を図3.4.2に示す。液晶性を示さないHPC30wt%水溶液については、水飴と同様に実験結果は隙間によらずグラフ上のデータは一本のラインによく乗っており、このデータの整理の方法が妥当であることが確認された。また実験結果と計算結果は共にニュートン流体での予測値である $F^* = 1$ に対して高せん断速度域で低い値となっている。これは図2.2.4で示した粘度曲

線におけるシアニングによる影響と考えられる。また計算結果も実験結果とよく一致しており液晶性を示さないHPC30wt%水溶液についてはCarreauモデルによる数値計算によって、本実験における流れ場での流動状態の予測は可能と考えられる。

図3.4.3にHPC50wt%水溶液の結果を示す。HPC50wt%水溶液の実験結果もHPC30wt%水溶液の結果と似たように、高せん断速度域で $F^* = 1$ からずれ、 $\dot{\gamma}_{ws}$ の増加と共に F^* は減少している。さらに、せん断速度が大きい領域で実験結果は計算結果よりも高い値を示している。このように、高せん断速度域の粘度測定の結果を基にCarreauモデルのパラメータを決定したにも関わらず、HPC50wt%水溶液において高せん断速度域で実験結果と計算結果との間に違いが生じたことになり、この原因としては以下のような点が考えられる。

第一に、粘度を測定した際の流れは単純せん断流（クエット流れ）であり、本実験でのせん断速度に分布を持つ流れとは異なっていた点が挙げられる。

また、本数値解析では弾性の影響を考慮しておらず、実験結果にはこの影響が現れた可能性も考えられる。

まず最初の、せん断速度が分布を有する点に関して、2章で述べたように、せん断速度の範囲によって液晶高分子の挙動は、region I ではドメイン同士の滑り、region III では分子単体同士の滑りが支配的と言われており、region II ではregion I とregion III との中間域と考えられている。このようにせん断速度により液晶高分子の挙動が異なっており、本研究の流れでは、二円盤間の隙間の中心ではregion I で、壁近くではregion III の状態で流れているものと予想される。このため、一概にせん断速度の代表値では十分に流れの状態を表していない可能性がある。また、このようなせん断速度に分布をもつ流れでのCarreauモデルによる計算では、実際の速度分布を十分に表していない可能性もある。しかし、現時点では予測の範囲をこえておらず、今後詳細な検討を要すると考えられる。

次に弾性の影響について考える。この点に関連した研究として、HPC50wt%水溶液のせん断流において、SigilloとGrizzuti⁽⁵⁾は粘度および第一法線応力差の測定を行った。その結果の一例を図3.4.4に示す。この図において縦軸は粘度および第一法線応力差で、横軸はせん断速度、また図中、四角印は粘度、三角印は第一法線応力差で、白抜きは正、黒塗りは負の値を示している。このように彼らは、せん断速度が50 (1/s)の高せん断速度域において第一法線応力差が負になるという実験結果を報告している。そしてこの符号の変化において、第一法線応力差が正の時には液晶高分子の流れの状況がタンブリングと呼ばれる棒状分子が回転しながら流れている状態に、第一法線応力差が負の時には分子の配向が流れの方向に揃った状態に対応すると述べている。図3.4.3において実験結果とCarreauモデルによる計算結果との間に違いが見えはじめるせん断速度が $\dot{\gamma}_{ws} = 10$ (1/s)付近からであり、Sigilloらの結果との関連も考えられる。確かに法線応力効果の増大によりこの違いを説明できる可能性はあるが、その符号の変化との関連は定かではない。ただし、彼らが述べているような、region III の中でもタンブリング状態から高配向状態へ変化する点は興味深く、本実験結果においてもこのような流動状態との相関がないか検討してみた。

図3.4.5～図3.4.6は液晶高分子溶液の流動状況を把握するために行った流れの可視化の実験結果である。図3.4.5は実験結果と計算結果が比較的一致した $\dot{\gamma}_{ws} = 3.33$ (1/s)と $\dot{\gamma}_{ws} = 8.35$ (1/s)のときの流れの写真で、図3.4.6は実験結果と計算結果に違いが見られた $\dot{\gamma}_{ws} = 18.1$ (1/s)と $\dot{\gamma}_{ws} = 46.7$ (1/s)の高せん断速度域での流れの写真である。図3.4.6ではクロス黒いラインが半径方向に明確に現れおり、分子が半径方向に強く配向されていることがわかる。また干渉縞も同心円上に整った形で現れている。こ

れに対して図3.4.5ではクロスの黒いラインは乱れをともっており、干渉縞もかなり乱れた形状となっている。この図3.4.5において液晶高分子のタンブリング状態までは確認することはできないが、図3.4.5と図3.4.6の間には明らかに流れの状態が異なっていることが確認できる。

このように、伝達荷重の変化と流れの状態には相関がみられ、この流れの状態の変化により、速度分布の変化や法線応力効果など何らかの作用が生じ、伝達荷重に影響を与えたと考えられる。

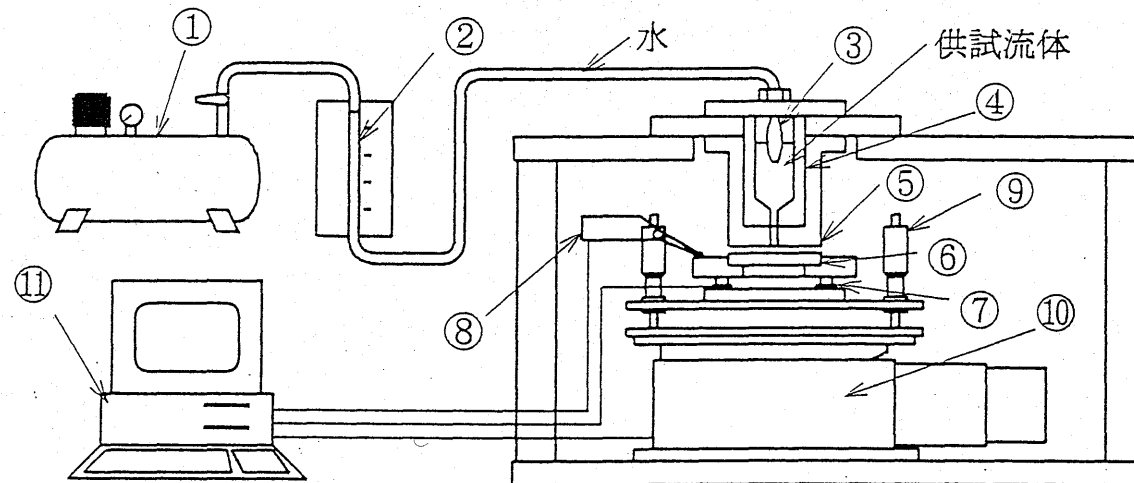
3.5 まとめ

円盤中心から二円盤間を放射状に流動する流れ場について、液晶高分子溶液またはニュートン流体を流した際の二円盤間に発生する伝達荷重の測定、粘性モデルによる数値計算結果との比較および液晶高分子溶液の流れの可視化を行った結果、以下のことが明らかになった。

(1) ニュートン流体である水飴では、伝達荷重に関する実験結果はニュートン粘性を用いた数値計算結果と一致した。

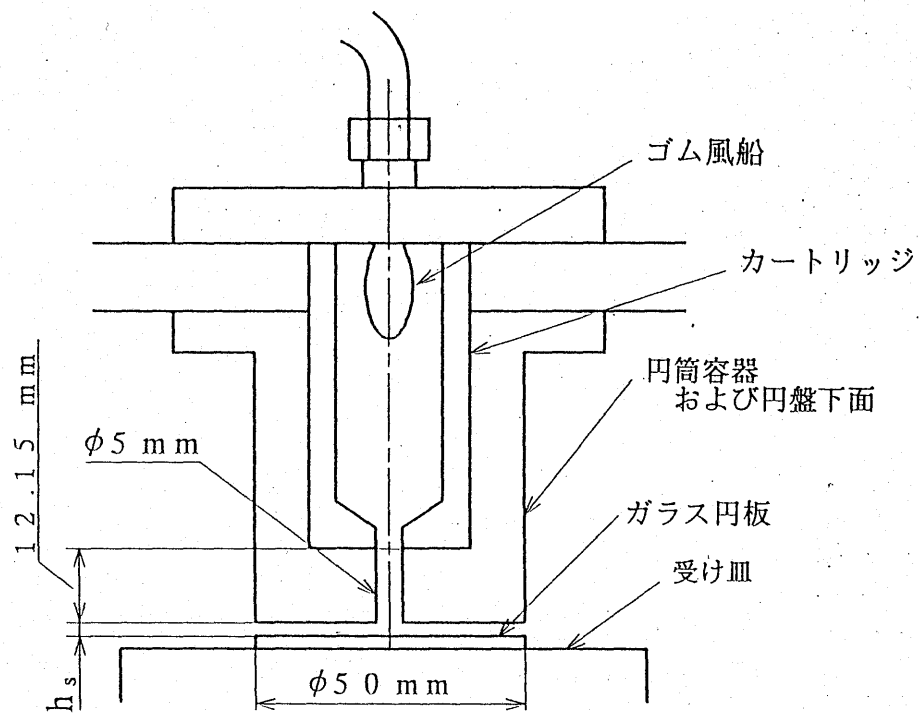
(2) HPC30wt%水溶液では、実験結果と Carreau モデルを用いた数値計算結果から見積もられる無次元伝達荷重 F' は隙間によらず平均壁面せん断速度 $\dot{\gamma}_{ws}$ で整理された。また、実験結果と数値計算結果はよく一致した。このことから液晶性を示さない HPC30wt%水溶液については、Carreau モデルによる数値計算によって本実験における流れ場での流動状態の予測が可能であることがわかった。

(3) HPC50wt%水溶液の場合も HPC30wt%水溶液の場合と同様に、実験および計算結果ともに F' は $\dot{\gamma}_{ws}$ で整理された。しかし、せん断速度が大きい領域で実験結果は Carreau モデルによる数値計算結果よりも高い値を示し、両者の一致は見られなかった。そして、これに関連し、HPC50wt%水溶液の流動状況を観察した結果、実験結果と計算結果が一致した低せん断速度域と両者が一致しなかった高せん断速度域とで分子の流動状況の違いが確認された。



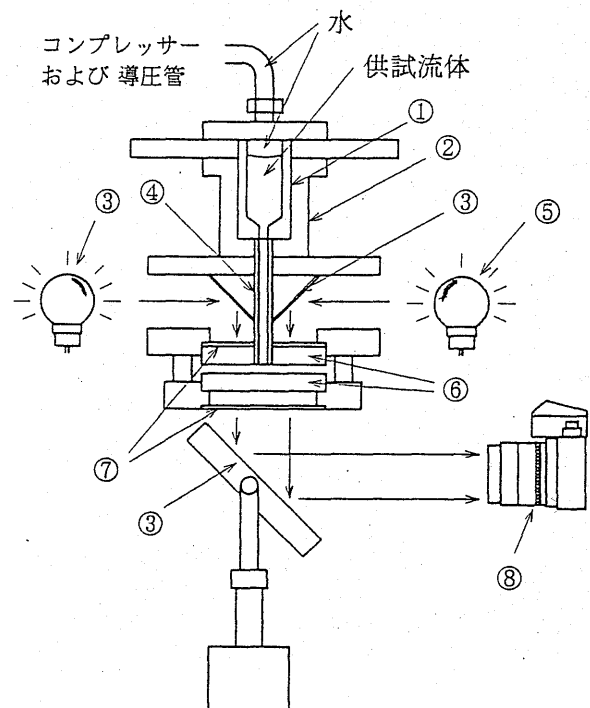
- ①コンプレッサー ②水位計 ③ゴム風船
- ④カートリッジ ⑤円筒容器及び円盤上面
- ⑥ガラス円板 ⑦ロードセル ⑧接触式変位計
- ⑨マイクロメータヘッド ⑩Z軸ステージ
- ⑪A/D変換およびパーソナルコンピュータ

図3.2.1 実験装置の概略図
(放射状流れにおける荷重測定)



二円盤の間隔 $h_s = 0.5 \text{ mm}$
 1.0 mm
 1.5 mm

図3.2.2 流れ場の詳細図
 (放射状流れにおける荷重測定)



①カートリッジ ②円筒容器 ③鏡 ④円管
⑤白色電球 ⑥ガラス円板 ⑦偏光板 ⑧カメラ

図3.2.3 実験装置の概略図
(放射状流れの可視化)

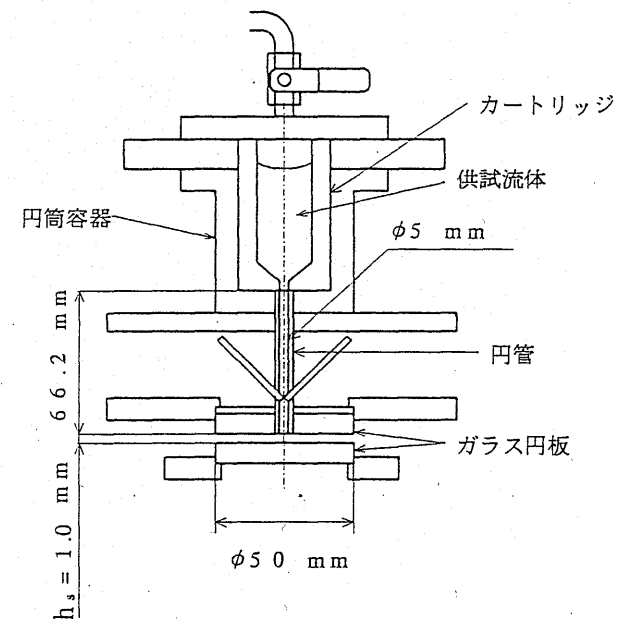


図3.2.4 流れ場の詳細図
(放射状流れの可視化)

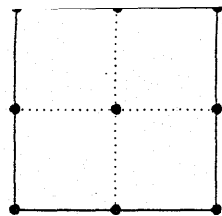


図3.3.1 四角形九節点要素

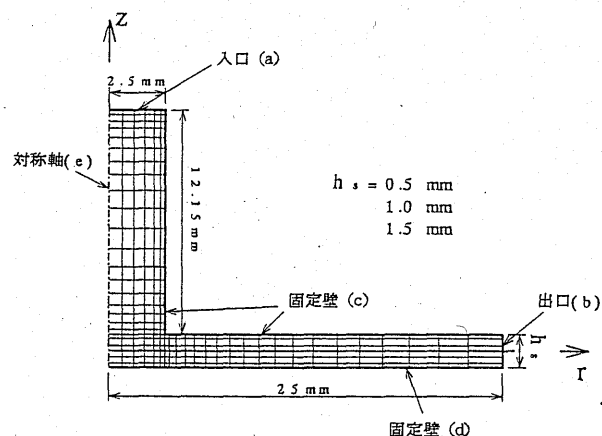


図3.3.2 有限要素法における要素分割
(放射状流れ)

h_s (mm)	要素数	全節点数
0.5	2292	7963
1.0	2448	8659
1.5	1388	4779

表 3.3.1 各隙間の解析要素における要素数および全節点数
(放射状流れ)

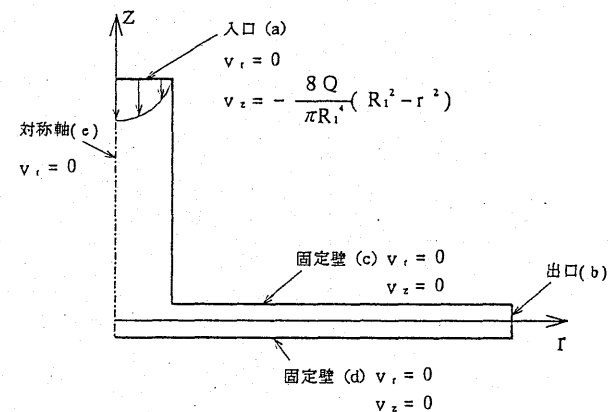


図3.3.3 数値計算における境界条件
(放射状流れ)

供試流体	粘性モデル	η (Pa·s)
水飴	ニュートン粘性	198

供試流体	粘性モデル	η_0 (Pa·s)	η_∞ (Pa·s)	λ (s)	n (-)
HPC30wt%水溶液	Carreau モデル	126	0	0.427	0.811
HPC50wt%水溶液	Carreau モデル	138	0	0.263	0.322

表 3.3.2 各粘性モデルのパラメータ
(放射状流れ)

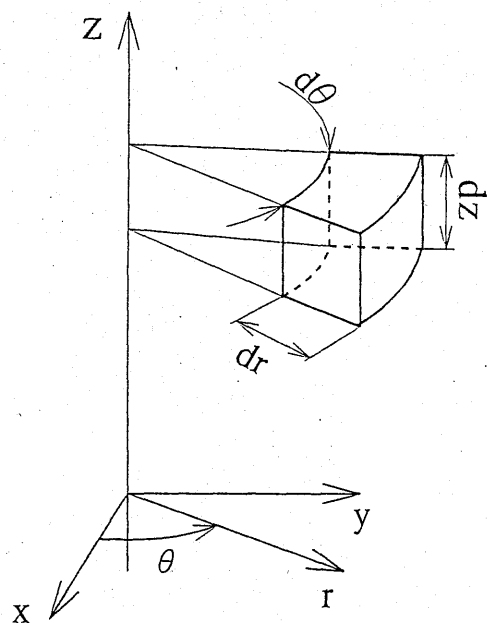


図3.3.4 円柱座標系

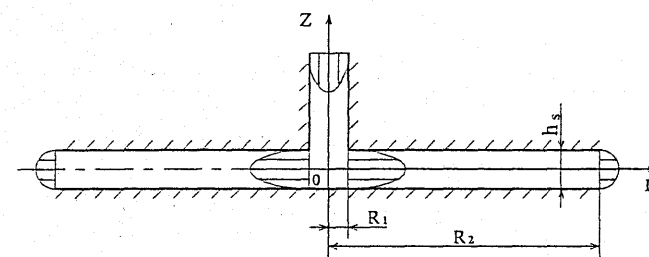


図3.3.5 理想化された流れ (放射状流れ)

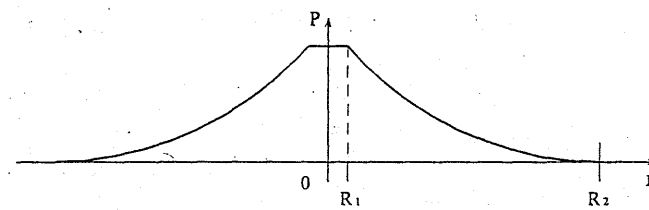


図3.3.6 圧力分布

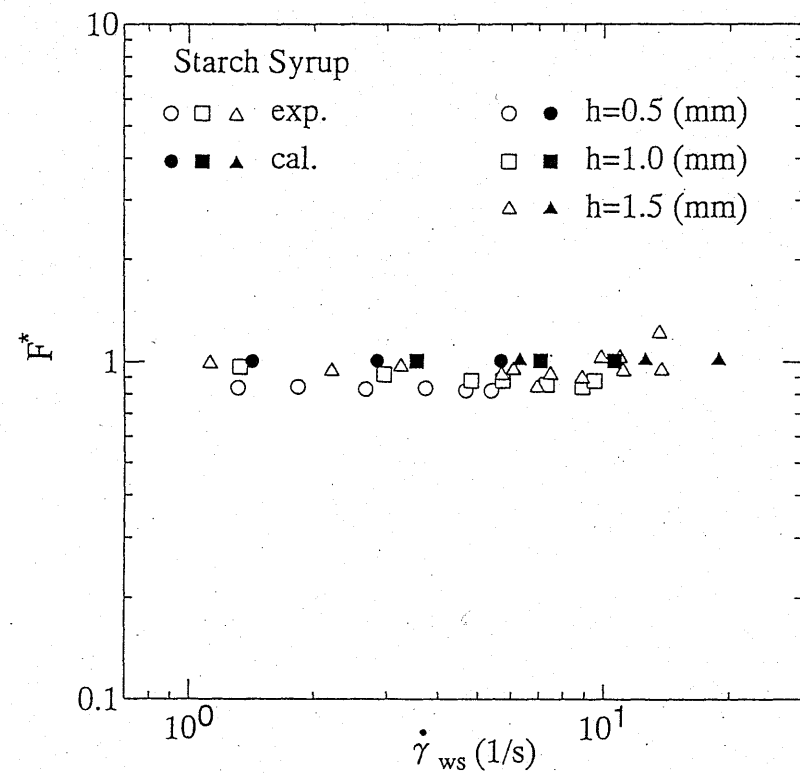


図3.4.1 水飴の定常放射状流れによる伝達荷重

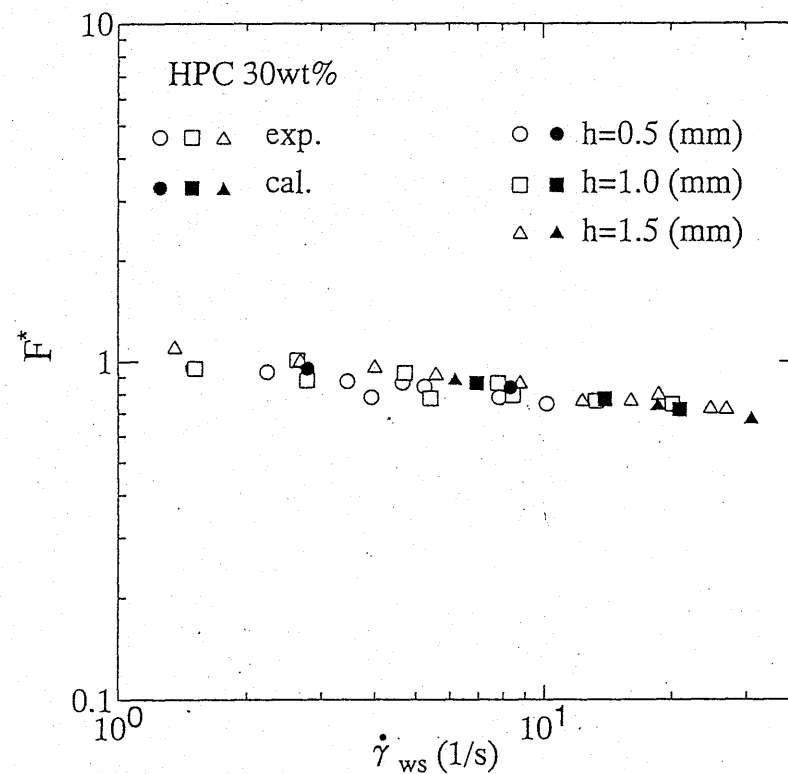


図3.4.2 HPC30wt%水溶液の
定常放射状流れによる伝達荷重

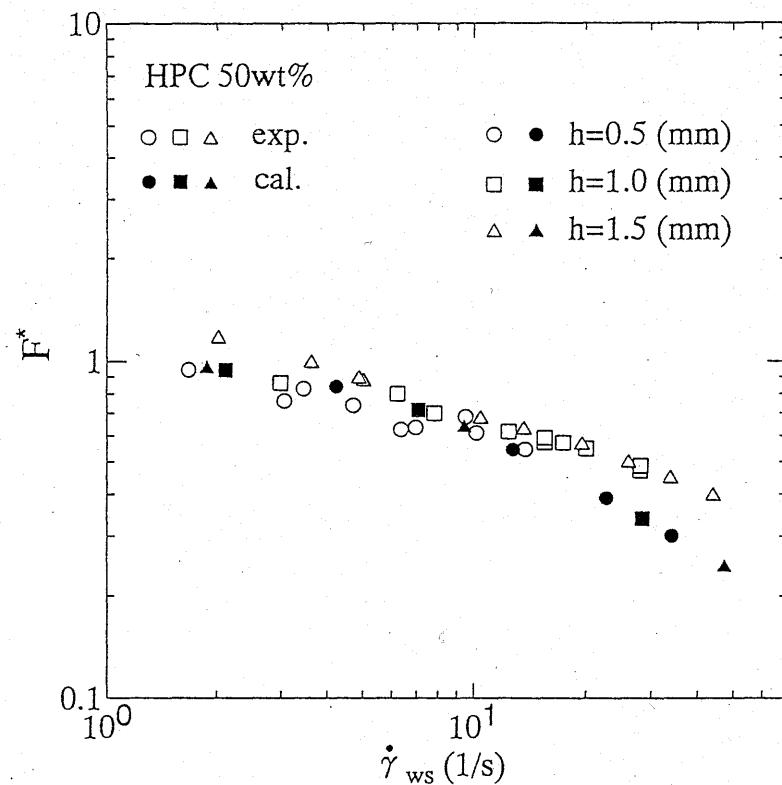


図3.4.3 HPC50wt%水溶液の
定常放射状流れによる伝達荷重

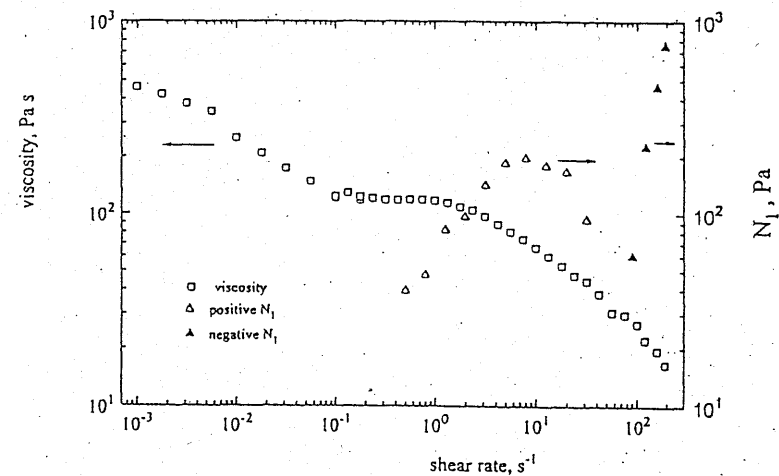
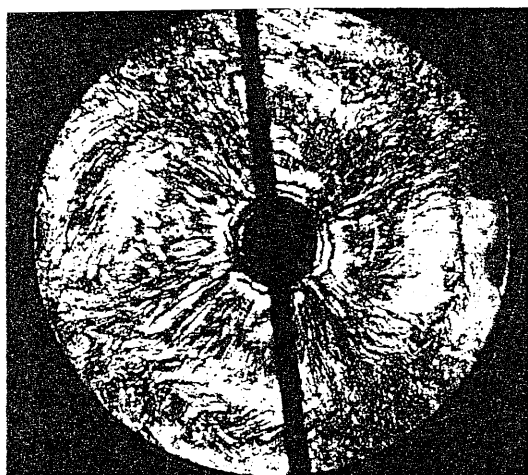
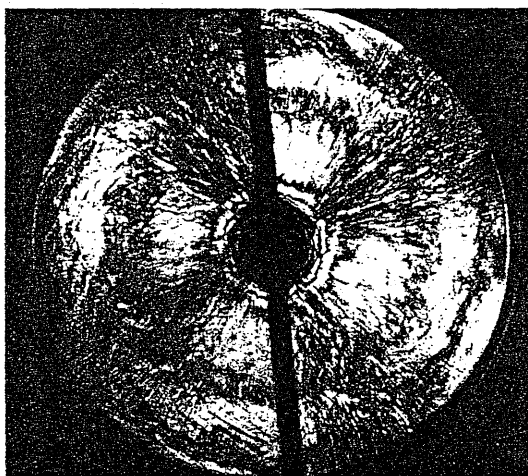


図 3.4.4 HPC50wt%水溶液の粘度および第一法線応力差
(Sigillo と Grizzuti による実験結果)

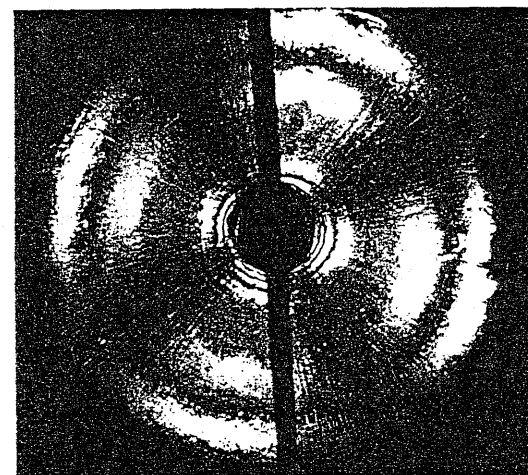


$$\dot{\gamma}_{ws} = 3.33 \text{ (1/s)}$$

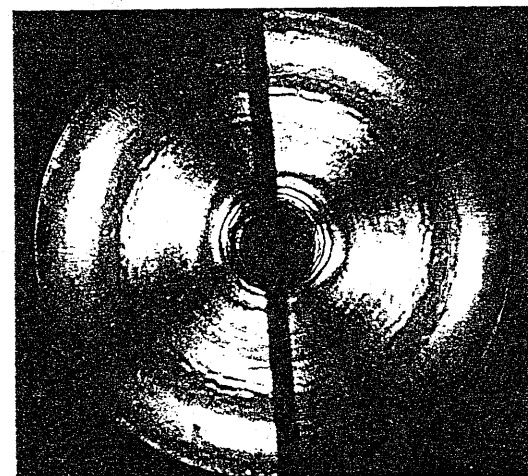


$$\dot{\gamma}_{ws} = 8.35 \text{ (1/s)}$$

図 3.4.5 HPC50wt%水溶液の流動状況
(低せん断速度域)



$$\dot{\gamma}_{ws} = 18.1 \text{ (1/s)}$$



$$\dot{\gamma}_{ws} = 46.7 \text{ (1/s)}$$

図 3.4.6 HPC50wt%水溶液の流動状況
(高せん断速度域)

第4章 二円盤間のスクイズ流れ

4.1 まえがき

第3章においては成形流れにおいて重要かつ基本的な例として、平行二円盤間の定常放射状流れを取り上げ、その流れにおける液晶高分子溶液の挙動について述べた。一方、実際の成形過程では、型に熔融された樹脂を流し込んだ後、その型の面を移動させ、さらに流動を加える、例えばプレス成形などが行われている。このような多段のシアがかかる液晶高分子溶液の流れにおいては、プレシアによりその後続く流れは大きく影響されることも予想される⁽²⁾⁽³⁾。また、プレシアとその後の流れの組み合わせによって液晶高分子の配向状態を調節できる可能性もある。しかし、そのような液晶高分子の流れにおける流動の履歴の影響については研究例も少なく不明な点が多い。

そこで本章では、図 1.1.1 で示した平行二円盤間の定常放射状流れの後に、図 1.1.2 に示すような二円盤を接近させ、等速スクイズ流れを発生させた場合について、二円盤間に発生する伝達荷重の測定を行い、前章と同様に粘性モデルによる数値計算との比較、そして液晶高分子の流れの可視化から、液晶高分子溶液の挙動を明らかにする。特に定常放射状流れ（プレシア）の強さおよびプレシア後の停止時間による液晶高分子溶液のスクイズ流れへの影響について述べる。

4.2 実験装置および方法

図4.2.1に二円盤間のスクイズ流れにより発生する荷重の測定と同時にその流れの可視化を行うための実験装置の概略を示す。

装置の基本的な構成は第3章で述べた実験装置と同じである。すなわち、溶液を圧縮空気により流れ場へ押し出すために用いられる部分はコンプレッサー、導圧管、流量測定のための水位計①、溶液が入れたカートリッジ②と円筒容器③からなる。流れ場は光学ガラス円板⑦で作成されており、下部円盤の台座はロードセル⑩上に置かれ、隙間の調整を行うためのマイクロメータヘッド⑪、スクイズ運動を発生させるためのパルスモーター駆動のZ軸ステージ⑬により支持されている。また、隙間の変化を検出する接触式変位計⑨が図の位置に取り付けられている。そしてZ軸ステージの操作およびロードセルと接触式変位計からの出力を記録するためのパーソナルコンピュータが配置されている。また流れの可視化は、光源となる白色電球⑤、直交ニコルの状態に配置された2枚の偏光板⑥、ミラー⑧、⑩および撮影用のビデオカメラ⑭により行われる。

次に実験方法について説明する。加圧された空気により導圧管内の水をカートリッジ内に送り込むことにより、カートリッジ内部の供試流体が円管を通して二枚のガラス円板の隙間に中心から押し出される。このようにして形成されたプレシアに相当する定常放射状流れを、ある瞬間に円筒容器と導圧管の間のコックを閉じて停止させる。そして適当な停止時間が経過した後、下部ガラス円板をZ軸ステージによって一定速度で上昇させスクイズ流れを発生させる。このとき、円盤下面に伝わる荷重をロードセルで計測し、その円盤の変位を接触式変位計で測定する。これらの信号をパーソナルコンピュータで記録する。また定常放射状流れのときの流量は第3章と同じ方法で算出した。この荷重測定と同時に、二枚の偏光板で挟まれた流れ場を透過してくる白色電球からの光による像をビデオカメラにより撮影した。

ところで、定常放射状流れの際には二円盤間を通過した流体は、ガラス円板が取り付けられた受け皿に流れ出る。その後のスクイーズ運動への移行で停止時間が長い場合には受け皿に流れ出た溶液の表面が乾き、それがスクイーズ運動時の伝達荷重に影響してしまう。そこで本実験では、流れ出た溶液の表面に水滴をかけてやり乾きを回避した。なお、水滴を与えることによる伝達荷重への影響のないことは確認した。

図4.2.2に流れ場の寸法の詳細を示す。第3章の定常放射状流れの実験装置と同様に、円盤の外径は50mm、入り口径は5mmで、二円盤間の初期状態での隙間は $h_0 = 1.5\text{mm}$ とした。なお、二円盤間の隙間の調整法およびデータ整理の際の隙間の補正法は、第3章の実験と同じである。またスクイーズ流れの際の下方円盤の上昇速度を $U=0.1\text{mm/s}$ として実験を行ったが、実際の運動時にはロードセルの変形によりその速度は数%減少する。そこで、荷重の無次元化などの際には変位計のデータにより上昇速度を算出し、それにより実験データの整理を行った。

本章における実験の条件については後の4.3で詳しく示すので、ここでは簡単にその概略を述べる。まず、スクイーズ運動の距離は 0.75mm で、初期状態からその隙間を半分に押しつぶすようにした。プレシアの強さは $\dot{\gamma}_{ws} = 0.59 \sim 124 \text{ (1/s)}$ の条件で実験を行い、停止時間の範囲は $5 \sim 600$ 秒とした。

4.3 粘性モデルによる数値計算

第3章と同様に、本章においても粘性のみを考慮して、有限要素法により数値解析した結果を用いて実験結果と比較検討する。

4.3.1 粘性モデルによる有限要素法での数値計算

ここでは、二円盤間のスクイーズ流れについての、有限要素法での数値計算の方法を述べる。

・解析領域

本数値計算において、流れ場の数値計算する領域の寸法と要素分割の概略図を図4.3.1に示す。解析領域を分割する要素は、第3章の放射状流れと同様に、図3.3.1のような四角形九節点要素を用いた。また図4.3.1による数値計算は軸対称問題とし、図中の z 軸を対称軸(d)として回転させて本実験での流れ場に対応させた。また、計算では上下二面が各々実験時における下面の上昇速度の $1/2$ で接近するとした。そして要素分割は移動壁近傍、および流体の速度が速くなる出口付近で要素が密となるように分割した。本来この種の問題は時間ステップごとに面を移動させて計算を繰り返す非定常問題として解くべきであるが、運動速度が十分小さい点および粘性モデルを対象とした数値計算であることを考慮し、本計算においては準定常問題として、各隙間ごとに解析領域を作成して計算を行った。また、それぞれの隙間のときの全節点数および要素数は表4.3.1に示すようにした。境界条件に関しては、図4.3.2に示すとおりである。

・粘性モデル

本数値計算では、水飴の粘性モデルとしてニュートン粘性、HPC30wt%およびHPC50wt%水溶液の粘性モデルとして第3章と同様にCarreauモデルを用いた。また、水飴の粘度およびCarreauモデルのパラメータの値を表4.3.2に示す。水飴の粘度は図2.3.4において $T=20 \text{ (}^\circ\text{C)}$ での値を用いた。そして、HPC50wt%水溶液における η_0 については、第3章と同様に図2.3.6中のregion IIにおけるプラトーな部分の粘度を用いている。またHPC30wt%およびHPC50wt%水溶液における η_∞ の決定についても、前

章と同じく $\eta_{\infty} = 0$ として数値計算を行った。

・基礎方程式および計算手法

本数値計算における基礎方程式は、3.3.1項で述べたものと同じため、ここではその説明は省略する。また、ここで述べた有限要素法による計算は、3.3.1項と同様にFDI社製の有限要素解析プログラムFIDAPにより行った。

4.3.2 実験結果と数値計算結果との比較について

ここでは、実験結果と数値計算結果との比較をするために行った伝達荷重の無次元化について述べる。

・無次元力

まず、無次元力 F^* を定義するために、ニュートン流体のスクイーズ流れにより発生する力の理論値 F_{th} の誘導について述べる。ニュートン流体のスクイーズ流れにおいて、図4.3.3のように全領域にわたって二次元ポアズイユ流れが発達した準定常状態と仮定する。そのとき、軸対称の条件を考慮し、慣性項および体積力を無視すると、 r 方向の運動方程式(3.3.14)式は、

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \eta \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} \quad (4.3.1)$$

となり (3.3.2 項参照)， r 方向の速度は、二次元ポアズイユ流れを仮定しているので(4.3.1)式より、

$$v_r = \left(-\frac{\partial p}{\partial r} \right) \frac{h^2}{2\eta} \left\{ \frac{1}{4} - \left(\frac{z}{h} \right)^2 \right\} \quad (4.3.2)$$

で与えられる。また、流量は、

$$\begin{aligned} Q &= \int_{-\frac{h}{2}}^{\frac{h}{2}} 2\pi r v_r dz \\ &= \left(-\frac{\partial p}{\partial r} \right) \frac{\pi h^3}{6\eta} \end{aligned} \quad (4.3.3)$$

となる。また、連続の式より、

$$Q = \pi r^2 U \quad (4.3.4)$$

ここで式(4.3.3)と式(4.3.4)を比較して、

$$Q = \left(-\frac{\partial p}{\partial r} \right) \frac{\pi h^3}{6\eta} = \pi r^2 U \quad (4.3.5)$$

となり結局、

$$\frac{\partial p}{\partial r} = -\frac{6\eta r U}{h^3} \quad (4.3.6)$$

が得られる。よって、円盤の出口 $r = R_2$ で圧力は大気圧 $p = 0$ とすれば、スクイーズ流れで二円盤間に発生する圧力は、

$$p = \frac{3\eta U}{h^3} (R_2^2 - r^2) \quad (4.3.7)$$

となる。そして、式(4.3.7)を円盤全域にわたって積分することにより、次式のようにニュートン流体においてスクイーズ流れで、二円盤間に発生する荷重 F_{th} が得られる。

$$\begin{aligned} F_{th} &= \int_0^{R_2} 2\pi r p dr \\ &= \frac{3\pi\eta U R_2^4}{2h^3} \end{aligned} \quad (4.3.8)$$

ここで前章同様に実験あるいは数値計算によって得られた二円盤間に発生する荷重 F を、式(4.3.8)

により与えられるニュートン流体の理想化されたスクイーズ流れで発生する荷重 F_0 により除した値,

$$F' = \frac{F}{F_0} \quad (4.3.9)$$

を定義する. 本章では測定値の F および式(4.3.9)の F' の両者を用いて, 伝達荷重の時間変化について検討を加える.

4.4 実験結果および考察

4.4.1 プレシアによるスクイーズ流れへの影響

実験結果について述べる前に, 実験により得られる荷重値の時間変化について模式図(図4.4.1)を用いて説明する. 第3章で述べたような定常放射状流れの状態(a)から流動を止め, 停止状態(b)にする. ある停止時間を経た後, 円盤下面の上昇運動を開始してスクイーズ流れ(c)を発生させた. またこの実験条件を表4.4.1に示す. 定常放射状流れのせん断速度($\dot{\gamma}_{ws}$), すなわちプレシアの強さは約0.1 (1/s)~約23 (1/s)で, これらはそれぞれ2.1節で示したregion I からregion IIIに相当している. なお表中の $\dot{\gamma}_{ws}$ は3.3.2項で定義した値である. 停止時間 t_p はそれぞれのプレシアについて5秒から600秒の間で条件を変えて実験を行った. スクイーズ流れの際の円盤下面の上昇速度は0.1mm/sであり, このときの3.3.2項に基づいた平均壁面せん断速度はびスクイーズ運動開始後の時間, すなわち隙間によって変化するものの, 本実験でのスクイーズ流れはおおよそ2.3.2項で示されたregion IIIの低せん断速度域に相当すると見積もられる. なお, 4.2節で述べたが, スクイーズ流れの際の下方円盤の移動距離は0.75mmであり, 液膜の厚さを半分にまで押しつぶす運動とした.

それでは, まず, 停止時間を一定としたときの, プレシアの違いによるスクイーズ流れへの影響について述べる. なお, 水飴およびHPC30wt%水溶液については, 伝達荷重の測定では両者ともプレシアによるスクイーズ流れへの影響はみられず, 流れの観察においても分子の配向などはみられず, 等方性流体であると確認された. そこで水飴およびHPC30wt%水溶液については, 4.4.1項と4.4.2項での実測例は示さず, 後の4.4.3項の実験結果と数値計算結果との比較の所でまとめて述べることにする. よって4.4.1項および4.4.2項においては, HPC50wt%水溶液による実験結果のみを示す.

・ $t_p=5$ (s)の場合のプレシアによるスクイーズ流れへの影響

図4.4.2は $t_p=5$ (s)のときのHPC50wt%水溶液にけるスクイーズ流れでの荷重変化を示しており, 縦軸は二円盤間に発生する荷重 F (N), 横軸は時間 t (s)である. なお本節でのグラフはすべてこの形式をとる. そして, それぞれのマークを付したラインは図中の各プレシアを与えた場合に対応している.

$t=0$ (s)以降のスクイーズ流れでの荷重変化において, $\dot{\gamma}_{ws}=0.11$ (1/s)のプレシアがregion Iであるケース(○印)を基準にみれば, $\dot{\gamma}_{ws}=0.79$ (1/s)のregion IIからのケース(□印)では, スクイーズ運動全般にわたってregion Iからのデータより高い荷重が発生している. 一方, $\dot{\gamma}_{ws}=7.16\sim 23.0$ (1/s)のregion IIIからのケースでは, 運動開始時にいずれもregion IIからの荷重より低くなっており, $\dot{\gamma}_{ws}$ が増加するほどその立ち上がりは低くなり, スクイーズ終盤でほぼ同じ値となっている. これは $\dot{\gamma}_{ws}=0.11$ (1/s)のときのみプレシアがregion Iの領域であることから, 放射流れの段階でドメイン構造がある程度維持されたままスクイーズ流れに移行したため, 他のregion IIからregion IIIから移行したものと異なった傾向がでたものと思われる. また, region IIIからのケースにおいて, スクイ

ーズし始めでの違いはプレシアでの液晶高分子の配向状態がある程度維持されたままであることによると予想される。

次に、可視化による結果から、流れの状況について述べる。なお、これ以降示す写真は撮影条件や印刷条件が完全に統一できなかったため、濃淡、色合い等の点でばらつきがある。よって、本論文では色合いなどの違いから直接流動状態への影響を述べるのは避ける。

まず、図4.4.3から図4.4.6における定常放射状流れでの流動パターン(a)は、それぞれregion I (図4.4.3), region II (図4.4.4), region III (図4.4.5~6)と異なった分子挙動を示す流れに相当するため、第3章と同様にプレシアが強いほどその流れは乱れのない整ったパターンを示している。続いて時間経過による流動パターンの変化について述べる。まず、弱いプレシアを受けた図4.4.3および図4.4.4における停止時間を経て5秒後のスクイーズ運動直前の状態(b)は、定常放射状流れの状態からほとんど変化がみられない。また、スクイーズ運動を開始してから1秒後(c)でも、スクイーズ直前の状態(b)に対してほとんど変化はない。続くスクイーズ開始5秒後(d)と7.5秒後(e)では、流れにかなり乱れた状態は残るものの、5秒、7.5秒とその乱れの中に配向が進んだと思われる数本の濃い筋状のラインが明確になってきている。なお、リング状の干渉縞の変化は主に隙間の変化のため生じるが、流動状況と関連付けるのは現時点では困難なため、本研究においてはクロスに現れる放射状の縞模様を中心に検討を加える。先に示した図4.4.2のプレシアがregion I に相当する場合とregion II に相当する場合のスクイーズ流れでの伝達荷重の違いは、プレシアの違いによる液晶高分子の状態の差異から生じたものと思われるが、このように図4.4.3と図4.4.4では流動パターンに顕著な差は見られず、伝達荷重の差との相関は確認できなかった。前章でも述べたようにこの流れは隙間方向にせん断速度の分布を持ち、ここで撮影された像はその平均的な状態を示していると考えられる。よって、伝達荷重の差異の原因を探るためにはもう少しミクロ的な構造を調べる必要があると思われる。

一方、強いプレシアを受けた場合の図4.4.5および図4.4.6では、停止時間を経て5秒後のスクイーズ運動直前の状態(b)が、全体的に白っぽく変化しているが配向状態は保たれている。これは低いプレシアの状態ではドメイン構造をある程度維持したままであったのに対し、この場合はドメイン構造が崩れて分子単体が流れの方向に配向していた状態からのドメインの再構築過程となり、この違いが現れたものと考えられる。次に、スクイーズ運動を開始してから1秒後(c)では、弱いプレシアの場合と同様、スクイーズ直前の状態(b)に対してほとんど変化はない。この点からスクイーズ運動開始直後では、いずれの場合も分子の状態がスクイーズ直前の状態のまま流れているものと思われる。そしてスクイーズ運動が進み、スクイーズ開始5秒後(d)と7.5秒後(e)では、高配向状態で流動していることがわかり、また、プレシアが強くなるに従って、流れの乱れは小さくなっている。この点から、先に示したregion IIIのプレシアからの移行でのスクイーズ開始時の伝達荷重の減少傾向は、本来スクイーズ流れで生じる状態(region IIIの低せん断速度域)より高配向状態から移行した場合に流動抵抗が少なくすすむために生じたと判断される。また、region II およびregion IIIのプレシアからの移行で、スクイーズ後半では伝達荷重がほぼ同程度になっていた。しかし、この点は可視化による結果とスクイーズ流れ後半での伝達荷重との間に相関はみられなかった。

・ $t_p=100$ (s)の場合のプレシアによるスクイーズ流れへの影響

図4.4.7は停止時間 $t_p=100$ (s)の場合のHPC50wt%水溶液によるスクイーズ流れでの荷重変化を表している。記号の分類等は図4.4.2と同様である。また、図4.4.7中のアルファベットで記した状態の流

動状態の撮影結果を図4.4.8から図4.4.11に示す。まず、図4.4.7において、プレシアがregion Iおよびregion IIと見積もられる $\dot{\gamma}_{ws} = 0.12$ (1/s)と 0.86 (1/s)の場合の荷重変化はほぼ一致する結果が得られた。一方、region IIIに相当する $\dot{\gamma}_{ws} = 6.49$ (1/s)と 22.5 (1/s)のプレシアからのスクイーズ流れでも両者ではほぼ同じ荷重変化が生じている。そして、 $\dot{\gamma}_{ws} = 0.12$ (1/s)と 0.86 (1/s)の結果に対して $\dot{\gamma}_{ws} = 6.49$ (1/s)と 22.5 (1/s)の結果はスクイーズ運動の立ち上がりで肩が出たような荷重変化となり、スクイーズの終了時には全ての荷重値は同じ値となる結果が得られた。

次に、可視化の結果から流れの状態との関連について検討するが、ここではスクイーズ運動前の緩和過程とスクイーズ運動時の状態変化を分けて述べる。まず、定常放射状流れの状態(a)から流れを止めて100秒後のスクイーズ運動直前の状態(b)までの緩和過程について述べる。低いプレシアを受けた図4.4.8および図4.4.9においては乱れを含む定常放射状流れの状態とほぼ同じパターンが確認できるが、全体的に色が鮮やかになっている。一方、高いプレシアの図4.4.10、図4.4.11ではどちらも全体が白濁しており、図4.4.10では中心部分に薄いクロスのラインが確認される。これに関連し、Hongladaromら⁽³⁾はHPC水溶液のクエット流れにおける本研究と同様な緩和過程の複屈折率の測定を行っている。そして彼らはプレシアが強い例と弱い例との緩和過程の違いは、流れを止めた後のドメイン構造の再構築の違いとの関連によるものと示唆している。本研究においても、ドメイン構造をある程度維持したままで流れていた弱いプレシアの状態からのドメイン構造の再構築と、ドメイン構造が崩れて分子単体が流れの方向にそろって流れていた強いプレシアの状態からのドメインの再構築とでは、その状況が異なるためこのような違いが現れたと思われる。特に高いプレシアからの例では、隙間の中心付近においては、前章でも述べたようにregion Iに相当するドメインの滑りによる流れが存在すると思われ、そこにおいてはどのような層構造の変化が起こっているか想像することさえも困難ではあるが、比較的壁に近いところでは流動配向していた分子が徐々に回転し螺旋構造へ移行し、どの場所も一様なコレステリック相に変化したために全体が白濁したものと考えられる(図4.4.12)。現時点ではこの状態をコレステリック相と断言できる根拠はないが、ある種一様な相であることは明らかであり、その可能性も高いと考えられる点から本論文においては以後この状態をコレステリック相と呼ぶことにする。

次に、スクイーズ運動時の流動状態の変化について述べる。運動を開始してから1秒後(c)では、全ての例において流動パターンは、スクイーズ直前の状態に対してほとんど変化はなく、この停止時間が100秒の場合も5秒と同様にスクイーズ運動開始直後では、分子の状態はスクイーズ直前の状態が維持されていると思われる。そしてスクイーズ運動が進み、スクイーズ開始5秒後(d)と7.5秒後(e)は、図4.4.8、図4.4.9の弱いプレシアの例では両者ともかなり乱れがあり、そして徐々に濃い筋状のラインが発達していく $t_p = 5$ (s)の場合と同様の結果が得られている。一方、図4.4.10においてはスクイーズが進むにつれて中心部にあったクロスのラインは外側へと広がり、7.5秒後には円盤全域にわたりそのクロスのラインが確認される。しかし、図4.4.11ではクロスのラインの広がり方は図4.4.10ほど大きくなく、7.5秒後でも円盤の半径の1/3程度までしか確認できない。

以上から、停止時間が100秒の場合にregion Iとregion IIのプレシアからのスクイーズ流れでは伝達荷重の変化がほぼ一致し、また、流れの状況もよく似ていた点から、流動停止後100秒程度経過すれば緩和過程が進み、ドメイン構造が両者ともほぼ同じになった結果と思われる。一方、region IIIに相当するプレシアからのスクイーズ流れでは、前述のように断定は出来ないがコレステリック相からの流動配向と予想される。region IIIの中でもより強いプレシアを受けた場合の方が緩和過程に

においてよりしっかりとしたコレステリック相へ移行しており、その結果スクイーズ運動中もある程度コレステリック相が保たれている。しかし、伝達荷重の変化にはこのコレステリック相の強度はあまり影響していないことは図4.4.7から明らかである。region I または II の弱いプレシアを受けたケースより region III のプレシアからの場合の方が全体に低めの荷重が生じている点は $t_p=5$ (s) の場合と同様に流動配向しやすいか否かによる効果と考えられる。

・ $t_p=600$ (s) の場合のプレシアによるスクイーズ流れへの影響

図4.4.13はHPC50wt%水溶液の $t_p=600$ (s) の場合のスクイーズ流れにおけるの荷重変化を示している。また、図4.4.14から図4.4.17は図4.4.13中のアルファベットで記した状態での可視化結果である。まず、図4.4.13において $\gamma_{ws}=0.12$ (1/s) または 0.77 (1/s) の弱いプレシアを受けたケースではどちらもスクイーズ運動全般にわたり、同じ荷重変化を示している。一方、 $\gamma_{ws}=6.84$ (1/s) または 21.1 (1/s) の強いプレシアを受けた場合は、両者は同じ荷重変化を示し、スクイーズ前半で弱いプレシアを受けた場合の結果をオーバーシュートしており、明確な肩を持つ荷重曲線になっている。

次に、可視化結果について示すが、ここでもスクイーズ運動前の緩和過程とスクイーズ運動時の状態変化を別々に述べる。まず、定常放射状流れの状態(a)から流れを止めて600秒後のスクイーズ運動直前の状態(b)への移行において、弱いプレシアを受けた場合である図4.4.14および図4.4.15においては定常放射状流れの状態に対して、細かい乱れが比較的消失し、クロスのラインが明確に現れはじめている。また、強いプレシアを受けた場合である図4.4.16および図4.4.17でもうっすらとクロスのラインと干渉縞が浮き上がったような状態となっている。なお、図4.4.18はregion IIIの中でも強いプレシアの $\gamma_{ws}=22.7$ (1/s) で $t_p=300$ (s) の場合の分子の配向状態であり、スクイーズ運動直前(b)において、非常にかすかではあるがクロスのラインと干渉縞が浮き上がってきている。また、region IIIで弱いプレシアの場合も同様の結果であった。これらの状態はいずれも前述の $t_p=100$ (s) の状態を経て変化した結果であるが、次のように予想される。すなわち、いずれの場合も壁面に近い部分の液晶分子の状態は壁の影響により流動を加えない限りある程度維持されると考えられる。一方、壁から離れたところでは比較的自由に運動できるため、どのプレシア条件の場合も600秒経て壁から離れたところではかなりランダムで微細なポリドメイン構造への変化をしたと考えられる。その結果として透過光はわずかに偏光される程度で中心部を通過する。このため、撮影される像としては壁近傍の影響のみが現れ、クロスのラインが明確になったものと考えられる。ところで、強いプレシアを受けたケースでは $t_p=100$ (s) の一様と見なされた白濁した状態を経てきているわけである。しかし、 $t_p=600$ (s) の結果を踏まえれば、 $t_p=100$ (s) ではやはり壁面では配向状態は維持されており、コレステリック相の影響で配向の影響が隠れたと見るのが妥当と考えられる。

次に、スクイーズ運動時の可視化結果について述べる。運動を開始してから1秒後(c)では、全てのプレシアにおいて分子の配向状況は、スクイーズ直前の状態に対してほとんど変化はなく、この停止時間が600秒の場合も $t_p=5$ (s)、 100 (s) と同様にスクイーズ運動開始直後では、分子の状態はスクイーズ直前の状態が保たれていると考えられる。続いて、スクイーズ運動後半(5秒、7.5秒)において、図4.4.14、図4.4.15の弱いプレシアを受けたケースでは $t_p=5$ (s)、 100 (s) の場合と同様の流動パターンが観察される。また、図4.4.16および図4.4.17のregion IIIのプレシアを受けた場合においては、クロスのラインが徐々に鮮明になってきて流動配向していく過程が明確に現れている。

最後に、停止時間が600秒の場合において伝達荷重の変化と可視化実験の結果との関連を検討する。

プレシアがregion I とregion II に相当する状態からの移行ではスクイズ流れにおける伝達荷重はほぼ一致し、また、スクイズ流れにおける流れの状況もよく一致した。これは $t_p=100$ (s)の場合と同様にスクイズ運動直前の状態が両者ともほぼ同じになっているためと思われる。一方、region III のプレシアからのスクイズ流れでは運動開始時に大きな荷重が発生していた。この点と可視化された像との関連では $t_p=100$ (s)のケースに比べクロスラインが明確になり、コレステリック相の状態がランダムなポリドメインの状態へ移行したことが予想される。この荷重がオーバーシュートすることに関連した研究として前出のHongladaromら⁽³⁾による、クエット流れを停止させ、その後に流れを再スタートさせたときのプレシアの強さによる応力の過渡応答への影響を測定した結果を図4.4.19に示す。このグラフにおいて縦軸はせん断応力、横軸はひずみすなわち流れの再スタート後の経過時間にそのときのせん断速度を乗じた値である。また図中にプロットされた各印はプレシアにおけるせん断速度が0.2 (1/s) (■印), 1.0 (1/s) (●印), 5.0 (1/s) (▲印), 20.0 (1/s) (◆印)に対応し、流れの停止時間は1000秒で、再スタート後のせん断速度は1.0 (1/s)である。この図4.4.19ではプレシアが強くなるに従い再スタートし始めでの応力のオーバーシュードが大きくなっており、本実験結果である図4.4.13と似たような傾向を示している。このオーバーシュードについてHongladaromらはプレシアの強さによる、流れを止めた後のドメインの再構築の違いによるもので、プレシアの強い場合にはプレシアにおいて流れの方向に分子がそろった状態が、流れを停止することによってコレステリック相へと変化したためと示唆している。しかし、このコレステリック相が一様なものであるか微細なポリドメイン状態であるかといったことは報告されていない。本研究ではせん断面に対して垂直な方向から分子の配向状況を観察したが、Hongladaromらの研究では壁面での分子配向の影響を受けない、せん断面に平行な方向で観察を行ったと思われる。そのため本研究では分子配向の緩和の形態で一様なコレステリック相からポリドメインと思われるような状態への変化がみられたものと思われるが、推論の域を脱していない。また、相構造の変化がどのような作用をおよぼし荷重変化に影響したかは現時点では不明であり、ここでは現象論的な対応関係を述べるに止める。

4.4.2 停止時間の影響

前項ではおもにプレシアの強さのスクイズ流れへの影響に関して述べてきたが、ここでは各プレシアにおける停止時間によるHPC50wt%水溶液のスクイズ運動時の荷重変化への影響について述べる。

・region I およびregion II のプレシアを受けた場合

図4.4.20はプレシアの強さがregion I と見積もられる $\gamma_{ws} = 0.11$ (1/s)~0.12 (1/s)で、停止時間が異なる場合のHPC50wt%水溶液におけるスクイズ流れでの荷重変化を示している。それぞれのマークのついたラインが図中の停止時間に対応している。この図では全ての停止時間に対して定性的によく似た荷重変化を示し、停止時間が長くなるに従い、その荷重は若干低くなるが、その差は少ない。また、 $t_p=300$ (s)と600 (s)とではほぼ同じ荷重が発生している。なお、 $t_p \leq 100$ (s)では同じ条件での実験でも測定荷重に若干の違いがみられ、定性的な結論には変わらないものの、定量的にはあまり良い再現性は得られなかった。この点に関しては平行度の調整誤差などの影響がまず考えられる。そして、このregion I に相当するプレシア流れを発生させる際には、4.2節で述べたようにコンプレッサーによる圧力により流体を押し出さずに、水位計内の水のヘッドにより押し出している。よっ

て、これによる流体供給の不安定さも原因の一つと思われる。また、放射状流れからスクイーズ運動へ移行させる際には、図4.2.1における円筒容器上のコックを閉じて放射状流れを停止させる係りと停止時間を測定してパーソナルコンピュータによりZ軸ステージを作動させ、スクイーズ運動を開始する係りの二人で行っている。そのため、 $t_p=5$ (s)の条件では二人の行動のタイムラグによる停止時間の誤差による影響も考えられる。さらにその他にも次の様な点が影響した可能性もある。SigilloとGrizzutiら⁽⁵⁾はHPC水溶液のせん断流において、せん断速度が 10^{-3} (1/s)のregion Iに相当する流れでは、その流れが定常状態に達するのにday orderの時間を要すると指摘している。しかし本実験での $\dot{\gamma}_{ws}=0.11$ (1/s)~ 0.12 (1/s)の放射状流れでは二円盤間にHPC水溶液が流入してから流出するまでの所要時間が高々数分である。 $\dot{\gamma}_{ws}$ は 10^{-3} (1/s)よりも十分に大きい、隙間方向に速度分布を持っておりせん断速度が零になる部分が存在することを考慮すると、このregion Iの放射状流れでは十分に定常状態に達していない可能性もある。よって、このregion Iに相当するプレシアにおいて、停止時間が短いものではあまりよい再現性が得られなかった点は、十分に定常状態に達していないプレシア流れの流動時間の違いなどの影響が停止時間が短い場合に現れた可能性もある。しかし、定性的な結論には問題がないので、本研究では実験で得られた定性的な傾向について考察するものとする。

次にプレシアの強さがregion IIに相当する $\dot{\gamma}_{ws}=0.77$ (1/s)~ 0.86 (1/s)のスクイーズ流れにおける荷重変化を停止時間別に表した結果を図4.4.21に示す。 $t_p=5$ (s)の場合のみ他の停止時間に比べて突出して高い荷重を示している。しかし、その他の実験結果の傾向は図4.4.20のプレシアがregion Iである場合と定性的に一致しており、可視化実験による流動状況も $\dot{\gamma}_{ws}=0.11$ (1/s)~ 0.12 (1/s)の場合(region I)とほぼ同じ状況であった。

これらの点に関連して、図4.4.22にHongladaromら⁽³⁾によるHPC50wt%水溶液の平行平板間のクエット流れで流れを止めた後の複屈折率を測定した結果を示す。この図の横軸は流れを止めてからの経過時間、縦軸は複屈折率、すなわち液晶高分子の配向の度合いで、この値が大きいほど分子は強く方向付けをされていることを表す。この図において、複屈折率は流れの停止から100秒程度でかなり低下し、300秒から600秒ほど経過すると複屈折率はほぼ一定値に落ちついている。図4.4.20、図4.4.21において $t_p=300$ (s)以上の停止時間後のスクイーズ流れでその荷重変化がほぼ一致したことは、このHongladaromらによるこの測定結果と対応づけられる。また、図4.4.20において停止時間による荷重変化の違いは比較的小さかったが、この点も図4.4.22でせん断速度の低い例では、複屈折率の変化の度合いが低いことから、荷重変化においてその差があまり現れなかったためと思われる。また、この複屈折率の変化が少ない点は前項で示した可視化による結果において弱いプレシアを受けたケースではいずれの停止時間の場合もスクイーズ流れでの流動状況にほとんど違いがみられなかった点にも対応していると考えられる。

以上のことから、region Iおよびregion IIに相当するプレシアからのスクイーズ流れへの移行において、ある程度停止時間が長ければ液晶高分子の状態は本質的に同じになると考えられる。すなわち、これらの場合の停止時間中における液晶高分子の状態の緩和では、プレシア流れでのドメイン構造と同程度のポリドメイン構造を徐々に再構築していると考えられる。そして、 $t_p>300$ (s)での液晶高分子の状況はどの場合もほぼ等しくなり、スクイーズ流れに影響が現れなくなったと見なせる。また、プレシアがregion IIに相当する場合で停止時間が短いケース($t_p=5$ (s)程度)と長いケースとの伝達荷重の違いは、 $t_p=5$ (s)では定常放射状流れでの分子状況がほとんど緩和せずスクイーズ流れに引き継がれたためと思われる。

・ region III のプレシアを受けた場合

図4.4.23と図4.4.24にプレシアの強さがregion IIIと見積もられる $\dot{\gamma}_{ws} = 6.49$ (1/s)~7.16 (1/s)と $\dot{\gamma}_{ws} = 21.1$ (1/s)~23.0 (1/s)の場合のHPC50wt%水溶液に対するスクイーズ流れの各停止時間ごとの荷重変化を示す。どちらの図においても $t_p = 5$ (s)の結果に比べ、 $t_p = 100$ (s)の場合の方が低い荷重変化を示す。さらに停止時間が長くなるに従って、スクイーズ前半部分で $t_p = 5$ (s)の荷重曲線をオーバーシュートして肩が現れるような荷重曲線を示す。一方、スクイーズ後半では、停止時間が長くなると伝達荷重が低くなる傾向が見られる。これらの傾向はより強いプレシアを受けた場合の図4.4.24の方が顕著に現れている。また、 $t_p > 300$ (s)では荷重変化はほぼ同じになった。このような結果は定常放射状流れを停止した後の分子の配向状態の変化が、後に続くスクイーズ流れへ影響を及ぼしたためと思われる。例えば、前項で示したように、図4.4.23と図4.4.24に対応する可視化結果では、定常放射状流れでクロスのラインが濃くはっきりと見られ、液晶高分子が流れ方向に強く配向されていた。そして、スクイーズ直前での状態は、停止時間が長くなるに従って一旦全体が白くなってから、徐々に中心部から同心円状の干涉縞と薄いクロスのラインが再び浮かび上がってきた。また、スクイーズ流れにおける流動状況の変化も $t_p < 300$ (s)の範囲で停止時間によってかなりの違いが確認された。

以上のことから、region IIIと見積もられる強いプレシアからのスクイーズ流れへの移行では、 $t_p = 5$ (s)のケースの荷重変化にプレシア時における分子状態が維持されて影響を及ぼしている点などは想像できる。しかし、停止時間が長くなるに従っての液晶高分子の構造変化と特異な荷重変化に関しては、両者の対応関係は述べられても、それらをリンクさせて統一的に原因を説明することは現時点では困難である。これは本実験の情報だけでは液晶高分子のミクロ的な挙動までは正確に把握できないためである。また、この種の研究は始まって間がなく、他の報告例からこの様な点を説明し得る理論的または実験的根拠を得ることははなはだ困難である。

ところで、3章での考察では $\dot{\gamma}_{ws}$ が6.5 (1/s)程度と20 (1/s)程度となる定常放射状流れにおいて、 $\dot{\gamma}_{ws} = 20$ (1/s)付近で実験結果により得られた伝達荷重と計算結果との間に違いがみられ、それぞれ分子の配向状態の違い（分子のタンブリングと流れの方向に分子が揃った状態）によるものと指摘した。しかし、本章の結果ではプレシアの強さが $\dot{\gamma}_{ws} = 6.5$ (1/s)程度のときの放射状流れ停止後の分子の状態の変化およびスクイーズ流れでの荷重変化と流動状況は、 $\dot{\gamma}_{ws} = 20$ (1/s)程度の場合と定性的に一致しており、配向状態の違いによる有為な差は確認できなかった。

4.4.3 数値計算結果との比較

本章の最後として 4.3.2 項で定義した無次元力 F^* によりスクイーズ流れの際に発生する伝達荷重を整理し、実験結果と粘性モデルによる数値計算結果との比較を行う。

・ 水飴

図 4.4.25 に水飴を用いた、プレシア後のスクイーズ流れにより発生する荷重を無次元化した結果を示す。ここで縦軸は無次元力 F^* 、横軸は時間である。白抜き印は図中のプレシアの強さに対応する実験結果、黒塗りの丸印はニュートン粘性による数値解析結果である。なお、この図は定常放射状流れを停止してからスクイーズ運動を開始するまでの停止時間 t_p を5秒とした例である。ここで、この無次元力 F^* は4.3.2項の定義に基づいて算出したが、スクイーズ運動の際の円盤下面上昇速

度は荷重を検出するためのロードセルの変形により若干遅くなる。そこで F' の計算では変位計により検出した隙間の变化から、各瞬間につき±約 0.1 秒間の平均的な速度を算出し、これを円盤下面上昇速度として無次元化を行った。また、二円盤間の隙間についても、変位計により検出した値を用いて計算を行っている。

図 4.4.25 においてプレシアの強さによらずスクイーズ全般にわたって F' はおおよそ 1 で一定であり、数値計算結果も実験結果とよく一致している。なお、図中 $\dot{\gamma}_{ws} = 4.82$ (1/s)のデータが 5 秒までしかプロットされていないが、これはスクイーズ後半での荷重の実測値がロードセルの許容範囲を越えてしまったためである。また、ここには示さないが流動状況の撮影結果では、4.4.1 項および 4.4.2 項において HPC50wt%水溶液の結果で示したような、分子の配向というものとは全く確認されなかった。以上のことから、逆に言えば、4.3.2 項で示した本実験における流れ場の仮定が妥当であることが確認されたことになる。

・ HPC30wt%水溶液

図 4.4.26 に HPC30wt%水溶液を用いたプレシア後のスクイーズ流れにおいて求められた無次元荷重の時間変化を示す。ここで白抜きの印は図中のプレシアの強さに対応した実験結果であり、黒塗りの丸印は Carreau モデルによる数値解析結果である。この図も停止時間 t_p が 5 秒の場合である。この図において液晶性を示さない HPC30wt%水溶液のスクイーズ流れにおける F' の変化はプレシアの強さによらず同一の結果となっている。なお、ここでは示さないが、流動状況の撮影結果では HPC50wt%水溶液の結果のような、分子の配向状態はみられなかった。また、実験結果と数値計算結果はよく一致しており、それらはニュートン流体の予測値である $F'=1$ よりも低い値となっている。本実験でのスクイーズ流れにおける平均壁面せん断速度は表 4.4.1 に示す範囲であり、図 2.3.6 の粘度曲線におけるシアニングを示す範囲に含まれることから、この結果はシアニングによる影響と考えられる。また、この HPC30wt%水溶液は実験結果と粘性のみを考慮している Carreau モデルによる数値計算結果とがよく一致しているが、高分子溶液であれば弾性の影響による粘性モデルによる予測値からのずれも予想される。この点については一般の高分子に比べて、HPC は分子量が約 6 万とかなり低いこと、また本実験におけるスクイーズ流れにおけるせん断速度などが充分低いことによると考えられる。

以上のことから、液晶性を示さない HPC30wt%水溶液のプレシア後のスクイーズ流れは、プレシアによる影響は受けず、Carreau モデルにより予測可能といえる。

・ HPC50wt%水溶液

図 4.4.27 から図 4.4.30 に各プレシアの強さごとの HPC50wt%水溶液のスクイーズ流れにより得られる無次元荷重の時間変化を示す。これらの図では白抜きの印は図中の停止時間に対応し、黒塗りの丸印は Carreau モデルによる数値解析結果を表す。なお各図におけるプレシアの強さは、それぞれ図中に $\dot{\gamma}_{ws}$ の値として示してある。まず、プレシアの強さが region I に相当する図 4.4.27 では、スクイーズ運動し始めて実験結果と数値計算結果との間に違いはみられるものの、大部分の範囲で実験結果と数値計算結果は停止時間によらず比較的近い値を示している。また、プレシアの強さが region II に相当する図 4.4.28 においても、 $t_p=5$ (s)以外は図 4.4.32 と同様に数値計算結果は停止時間によらず実験結果を比較的よく表している。これに対し、図 4.4.29 と図 4.4.30 のプレシアの強さが region III

に相当する場合では、どちらも停止時間が短い場合はスクイーズ運動後半で実験結果は数値計算結果よりも大きな値となる。一方、停止時間の長い場合にはスクイーズ前半で粘性モデルに対する予測値を実験結果がオーバーシュートするが、スクイーズ後半では実験結果の方が数値計算結果より低い値になっている。このようにプレシアの強さが region III に相当する場合にスクイーズ流れにおける荷重変化に実験結果と数値計算結果とで大きな違いが現れたのは、Carreau モデルが実験で得られたような履歴効果を表さないためである。

以上のことから、HPC50wt%水溶液のプレシア後のスクイーズ流れでは、弱いプレシア(region I)から、および、region II のプレシアで停止時間を長くにとってスクイーズ流れへ移行した場合の、流れの状況は Carreau モデルによりある程度予測できることが分かった。しかし、プレシアの強さが region III からのスクイーズ流れでは実験結果と計算結果とでは一致は得られず Carreau モデルでは流れの予測ができない。モノドメイン状態の液晶高分子の挙動を示すモデルとしては、Doi 理論⁽¹⁰⁾等が知られているが、非常にシンプルな流れ場にしか適用されておらず、本章で示した実験結果はこれらのモデルや将来提唱されるであろうより実用的なモデルの適用性を確認するための基礎データになると考えられる。

4.5 まとめ

平行二円盤間の定常放射状流れの後に、二円盤を接近させてスクイーズ流れを発生させた場合について、二円盤間に発生する伝達荷重の測定、流れの可視化および粘性モデルによる数値計算結果との比較を液晶高分子溶液またはニュートン流体に対して行った結果、以下のことが明らかになった。

(1) ニュートン流体である水飴では、スクイーズ流れで生じる伝達荷重にはプレシアの強さによる影響はみられず、また、この実験結果はニュートン粘性を用いた数値計算結果と一致した。

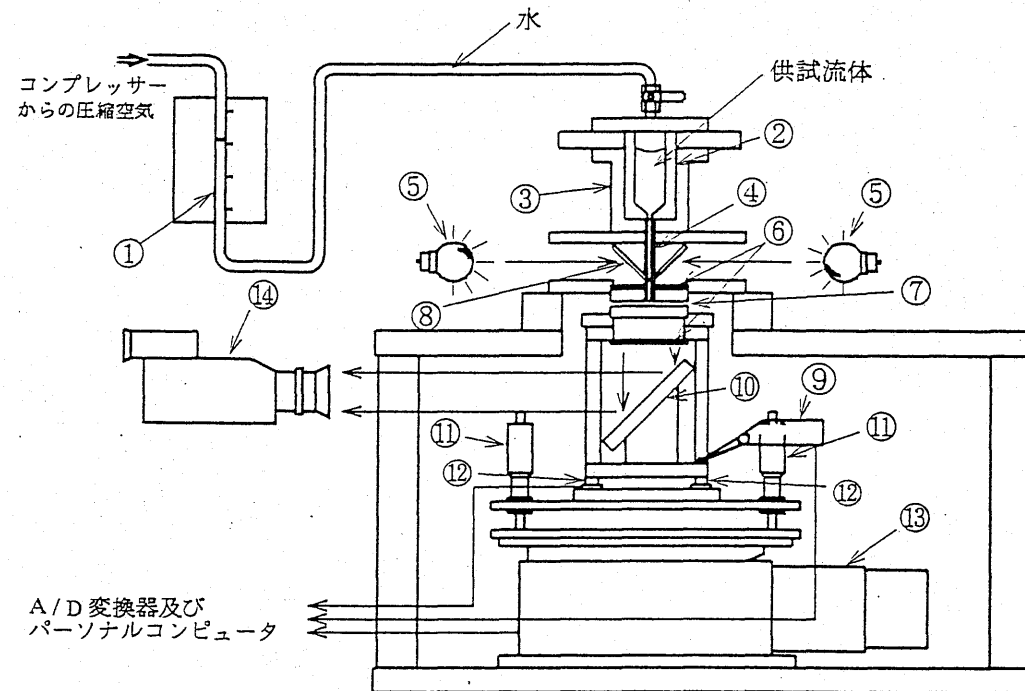
(2) HPC30wt%水溶液に関する実験においても、スクイーズ流れに対するプレシアの強弱の影響はみられなかった。また、実験結果は Carreau モデルを用いた数値計算結果とよく一致した。このことから液晶性を示さない HPC30wt%水溶液については、Carreau モデルによる数値計算によって本実験における流れ場での流動状態の予測が可能であることがわかった。

(3) HPC50wt%水溶液では、弱いプレシア(region I)から、および region II のプレシアで停止時間を長くにとってスクイーズ流れへ移行した場合には、スクイーズ運動時にほぼ等しい荷重変化を示した。また、この場合の実験結果と Carreau モデルを用いた数値計算結果は比較的一致しており、この条件下の流れは Carreau モデルによりある程度予測できる。

(4) HPC50wt%水溶液で停止時間が短い場合、受けたプレシアが強くなるに従い弱いプレシアの場合に比べてスクイーズ運動開始時に発生する荷重が低くなった。この点はプレシアによる流動配向がスクイーズ流れの始めでも維持された影響であることが流れの可視化から確認された。

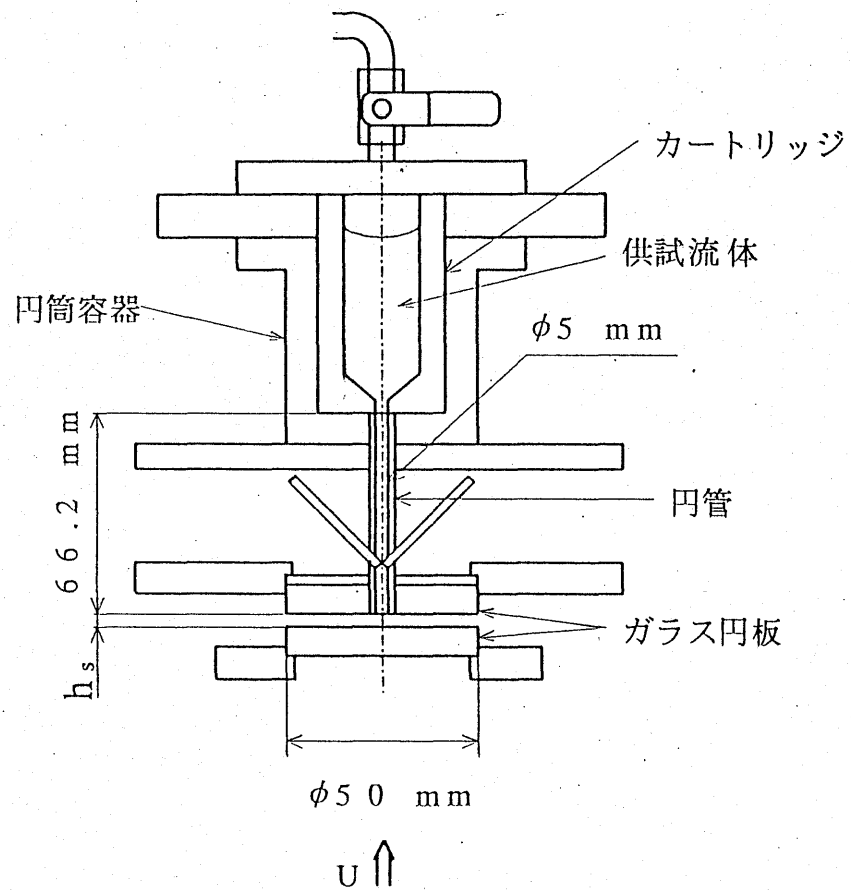
(5) HPC50wt%水溶液においてスクイーズ流れ前の停止時間が長くなるに従い、強いプレシアを受けた場合の荷重変化は運動開始時に荷重が Carreau モデルによる予測値をオーバーシュートした。また流れの可視化から、プレシアの強い場合には停止後にコレステリック相とみられる均一な状態に変化するなどの独特なパターンがみられ、プレシアの強度によって停止後の分子の配向状況の変化が異なっていることが確認された。

以上のように本研究において液晶高分子溶液の特異な流動特性が明らかになった。ここで示した実験結果はより詳細な液晶高分子の挙動を解明するための指標となり、また、液晶系に対する構成方程式を検証するための基礎データとなると考えられる。しかし、プレシア後の液晶高分子の構造変化や流動状態により伝達荷重すなわち応力場の変化を正確に説明するには、よりミクロ的な液晶高分子の挙動を調べる必要がある。この点に関する研究は現時点ではほとんどなされておらず、また、流動時の液晶高分子の局所的な状態を正確に把握する技術は完全には確立していない。今後その方面での発展が期待される。



- ①水位計 ②カートリッジ ③円筒容器 ④円管 ⑤光源 ⑥偏光板
 ⑦ガラス円板 ⑧鏡1 ⑨接触式変位計 ⑩鏡2 ⑪マイクロメータヘッド
 ⑫ロードセル ⑬Z軸ステージ ⑭ビデオカメラ

図4.2.1 実験装置の概略図
 (スクイズ流れ)



初期隙間 $h_s = 1.5 \text{ mm}$
 上昇速度 $U = 0.1 \text{ mm/s}$
 上昇距離 0.75 mm

図4.2.2 流れ場の詳細図
 (スクイズ流れ)

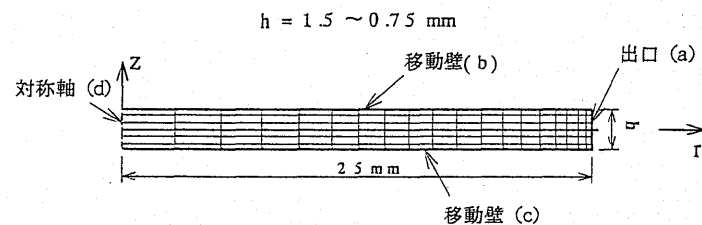


図4.3.1 有限要素法における要素分割
(スクイズ流れ)

h (mm)	要素数	全節点数
$1.1 \leq h \leq 1.5$	1118	3819
$0.75 \leq h \leq 1.1$	1668	5719

表 4.3.1 各隙間の解析要素における要素数および全節点数
(スクイズ流れ)

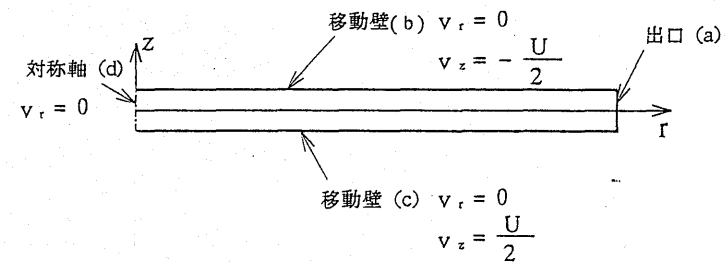


図4.3.2 数値計算における境界条件
(スクイズ流れ)

供試流体	粘性モデル	η (Pa·s)
水飴	ニュートン粘性	247

供試流体	粘性モデル	η_0 (Pa·s)	η_∞ (Pa·s)	λ (s)	n (-)
HPC30wt%水溶液	Carreau モデル	159	0	0.573	0.802
HPC50wt%水溶液	Carreau モデル	154	0	0.481	0.511

表 4.3.2 各粘性モデルのパラメータ
(スクイズ流れ)

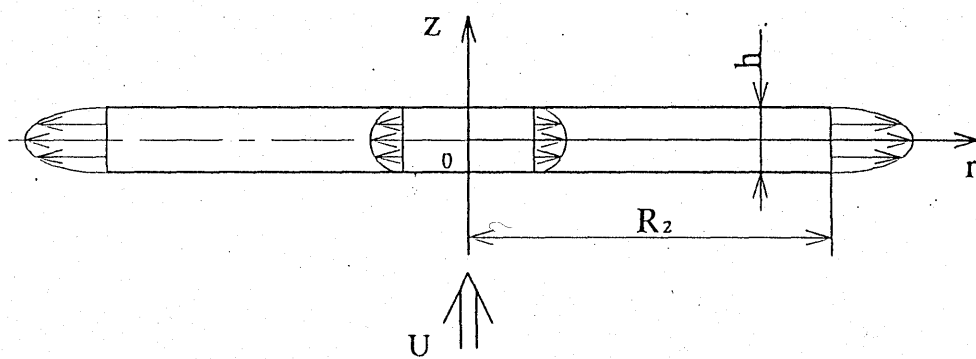


図4 .3 .3 準定常状態の流れ（スクイーズ流れ）

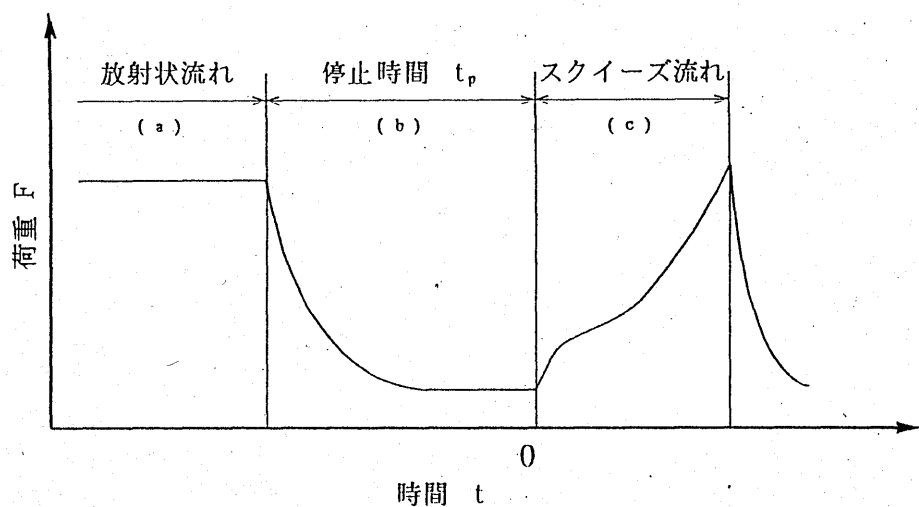


図4.4.1 実験時の荷重変化の模式図

放射状流れでの平均壁面せん断速度	
$\dot{\gamma}_{ws}$ (1/s)	粘度曲線における領域
0.11~0.12	region I
0.77~0.86	region II
6.49~7.16	region III
21.1~23.0	

停止時間
$t_p=5$ (s)~600 (s)

スクイーズ時の円盤上昇速度 $U=0.1$ (mm/s)	
スクイーズ流れでの平均壁面せん断速度	粘度曲線における領域
$\dot{\gamma}_{ws}=2.22\sim8.89$ (1/s)	region III

表4.4.1 本実験における諸条件

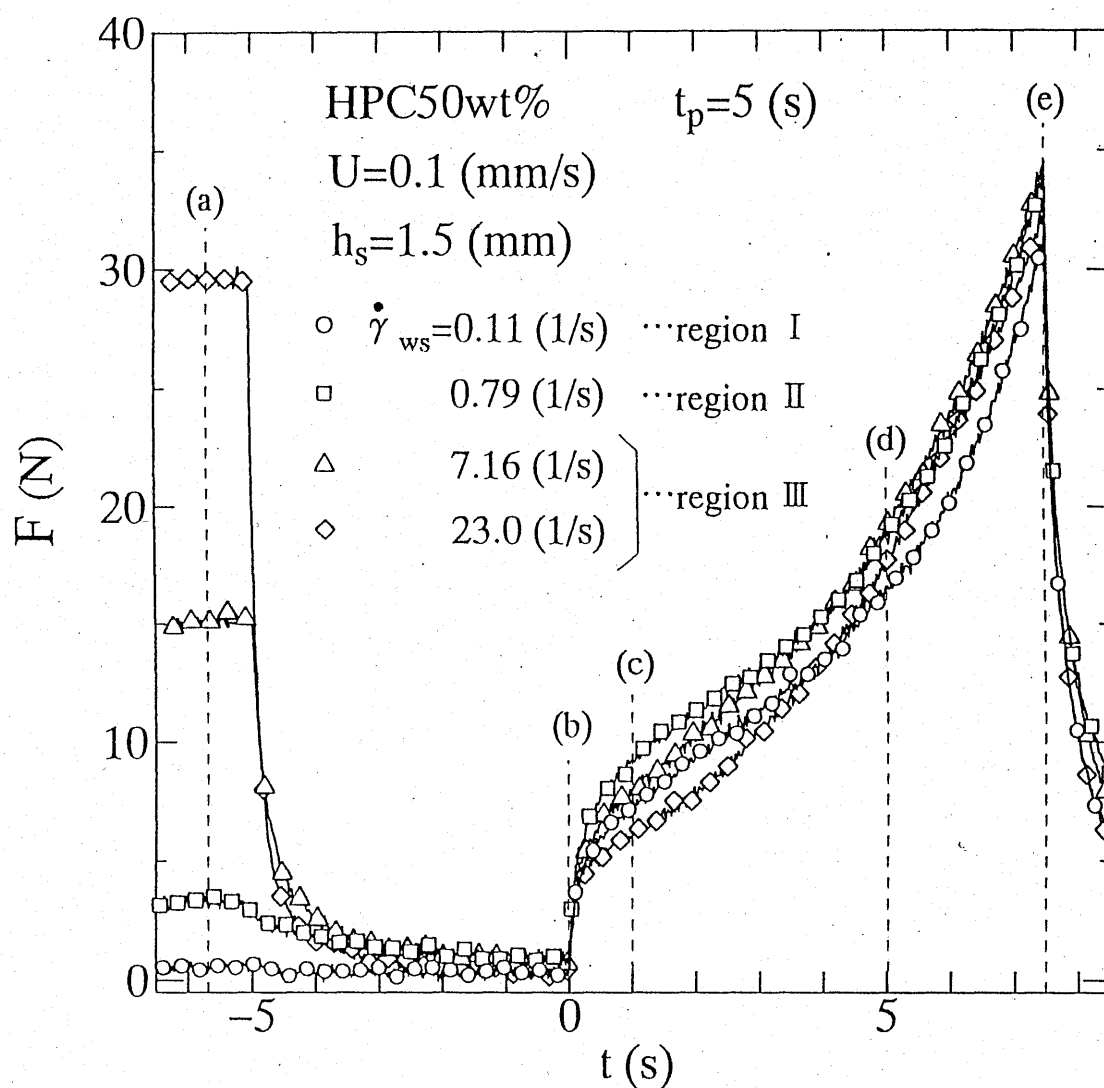
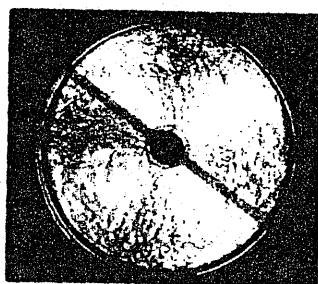
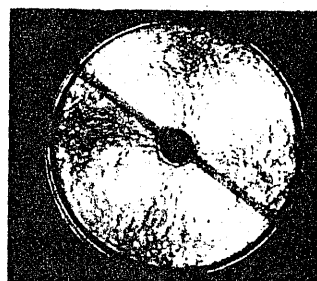


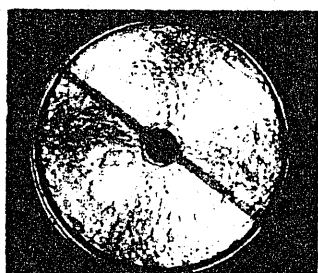
図4.4.2 スクイズ運動時に発生する伝達荷重
 (HPC50wt%水溶液, $t_p=5$ (s))



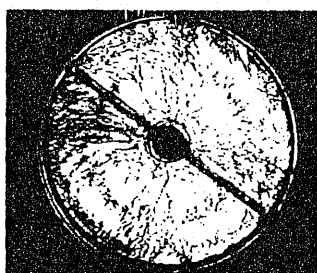
定常放射状流れ(a)



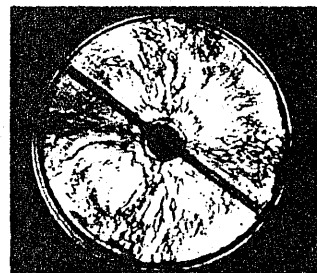
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)

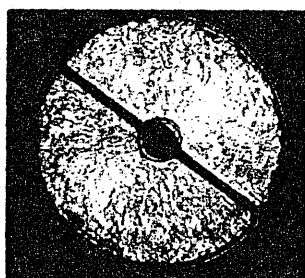


5秒後(d)

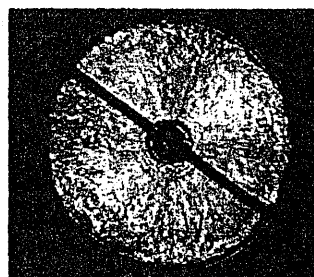


7.5秒後(e)

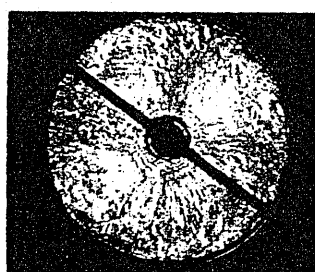
図4.4.3 HPC50wt%水溶液の配向状況
($t_p=5$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=0.11$ (1/s))



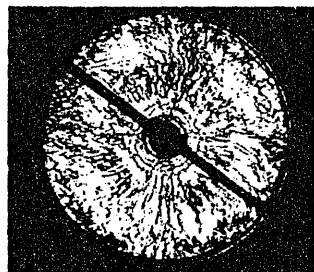
定常放射状流れ(a)



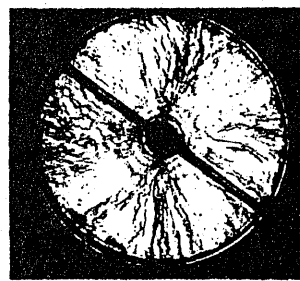
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)

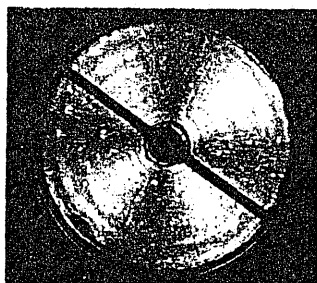


5秒後(d)

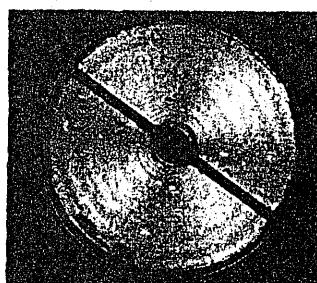


7.5秒後(e)

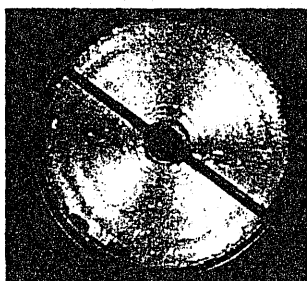
図4.4.4 HPC50wt%水溶液の配向状況
($t_p=5$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=0.79$ (1/s))



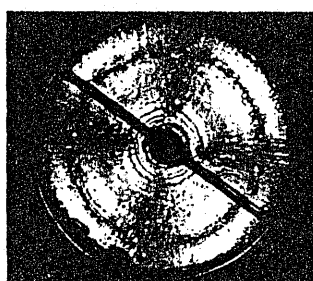
定常放射状流れ(a)



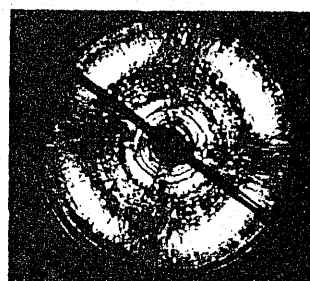
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)



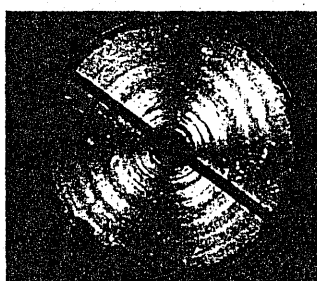
5秒後(d)



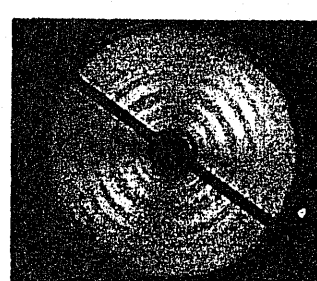
7.5秒後(e)

図4.4.5 HPC50wt%水溶液の配向状況

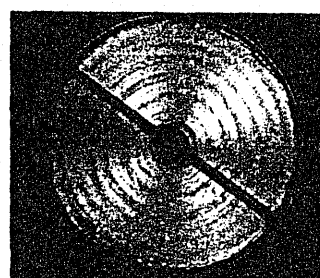
($t_p=5$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=7.16$ (1/s))



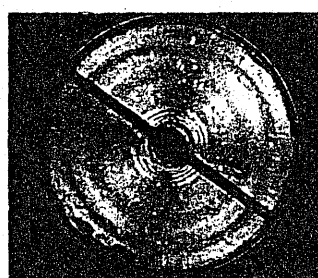
定常放射状流れ(a)



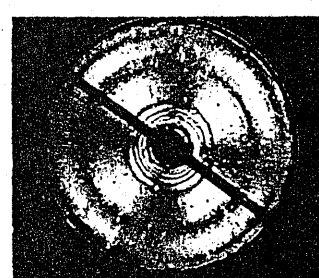
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)



5秒後(d)



7.5秒後(e)

図4.4.6 HPC50wt%水溶液の配向状況

($t_p=5$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=23.0$ (1/s))

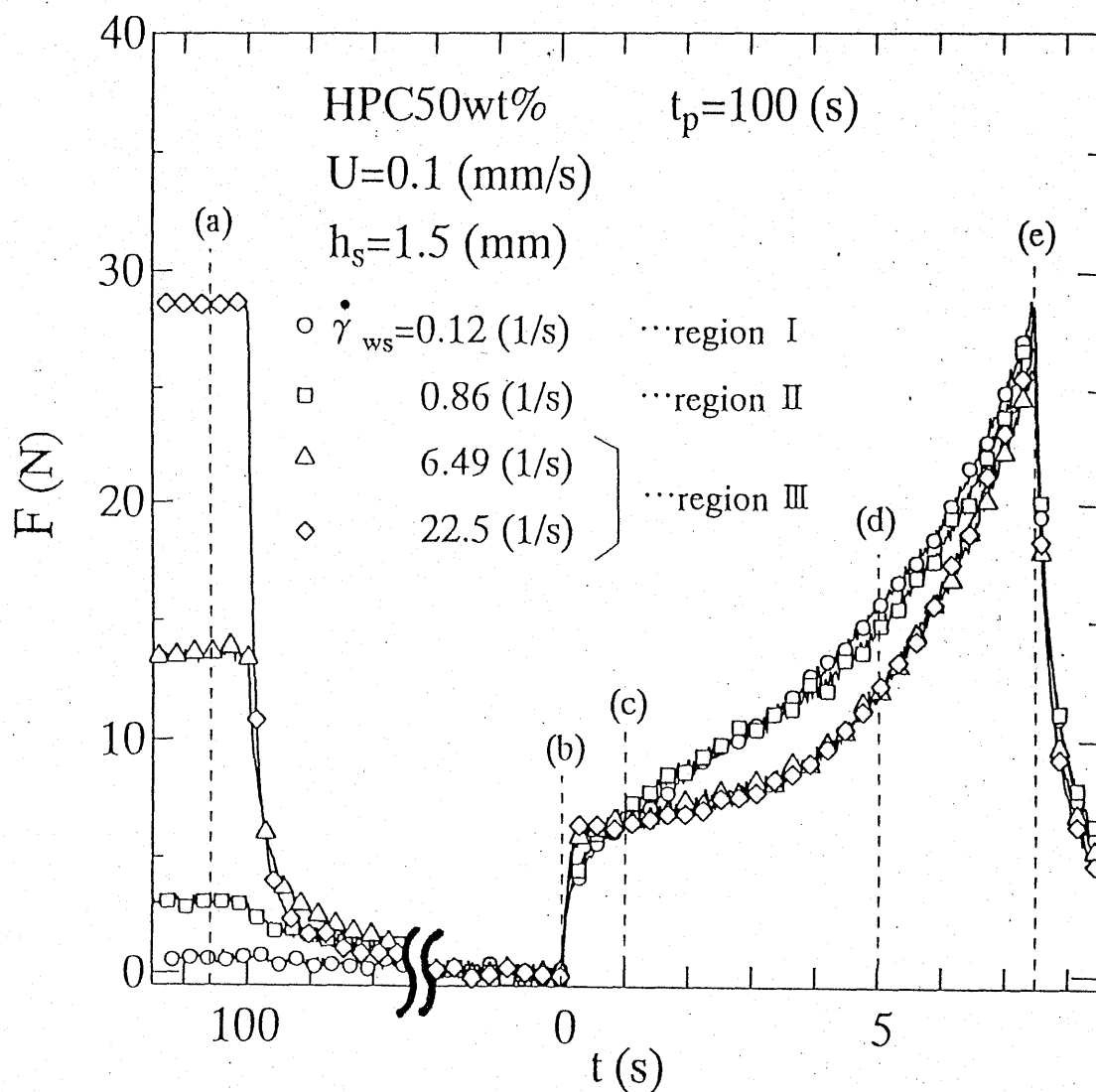
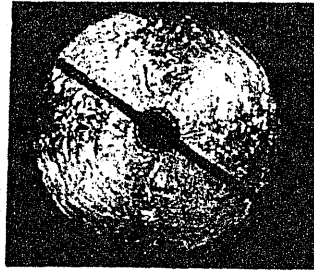
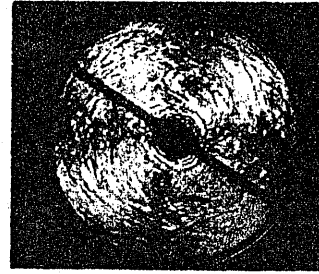


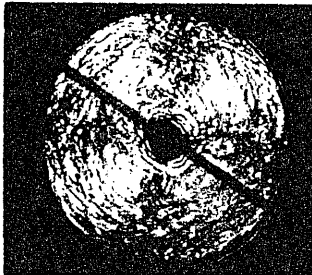
図4.4.7 スクイズ運動時に発生する伝達荷重
 (HPC50wt%水溶液, $t_p=100$ (s))



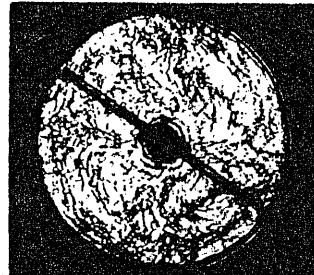
定常放射状流れ(a)



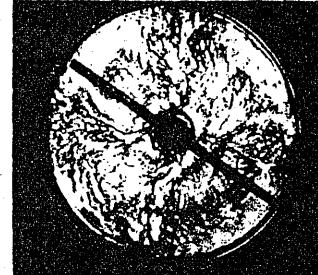
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)



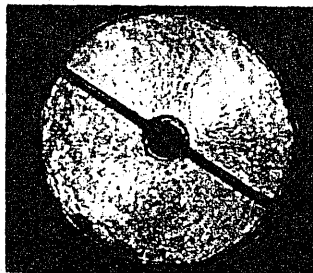
5秒後(d)



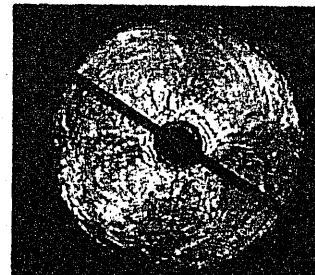
7.5秒後(e)

図4.4.8 HPC50wt%水溶液の配向状況

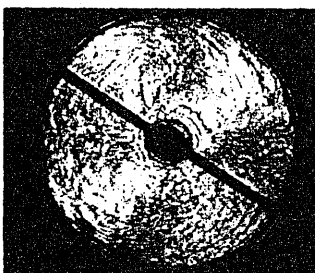
($t_p=100$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=0.12$ (1/s))



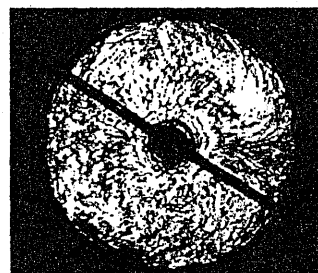
定常放射状流れ(a)



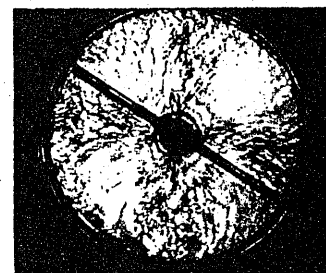
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)



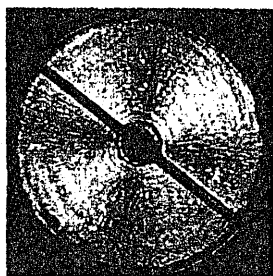
5秒後(d)



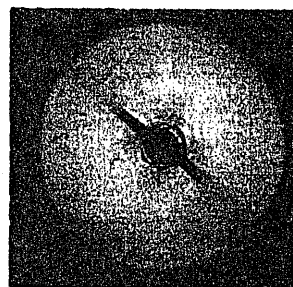
7.5秒後(e)

図4.4.9 HPC50wt%水溶液の配向状況

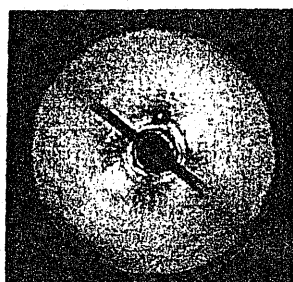
($t_p=100$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=0.86$ (1/s))



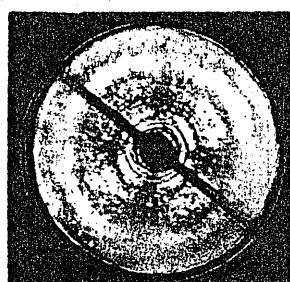
定常放射状流れ(a)



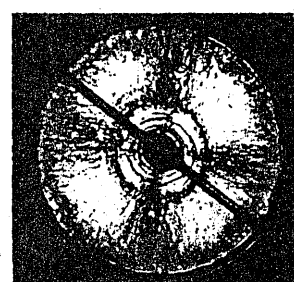
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)

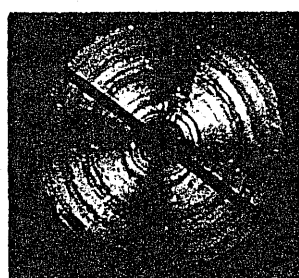


5秒後(d)

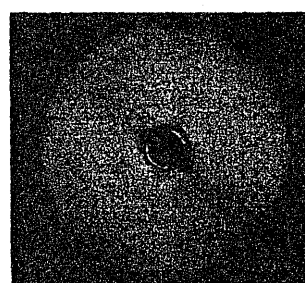


7.5秒後(e)

図4.4.10 HPC50wt%水溶液の配向状況
($t_p=100$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=6.49$ (1/s))



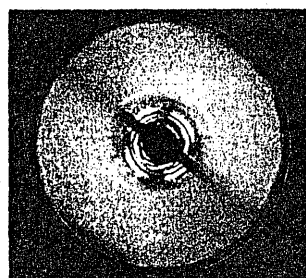
定常放射状流れ(a)



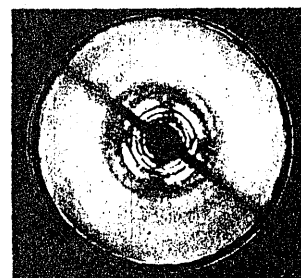
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)



5秒後(d)



7.5秒後(e)

図4.4.11 HPC50wt%水溶液の配向状況
($t_p=100$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=22.5$ (1/s))

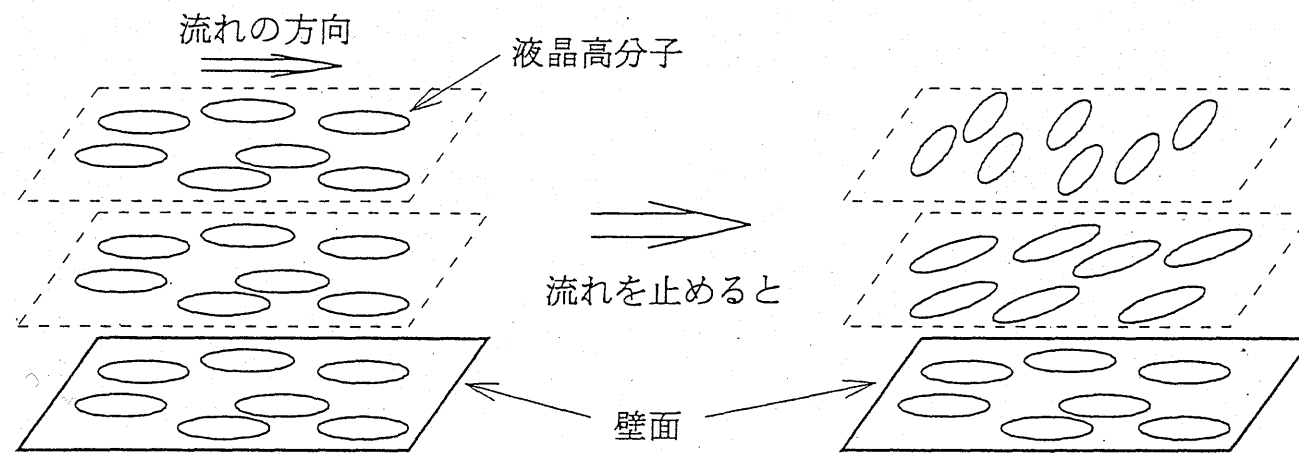


図4.4.12 コレステリック相への移行

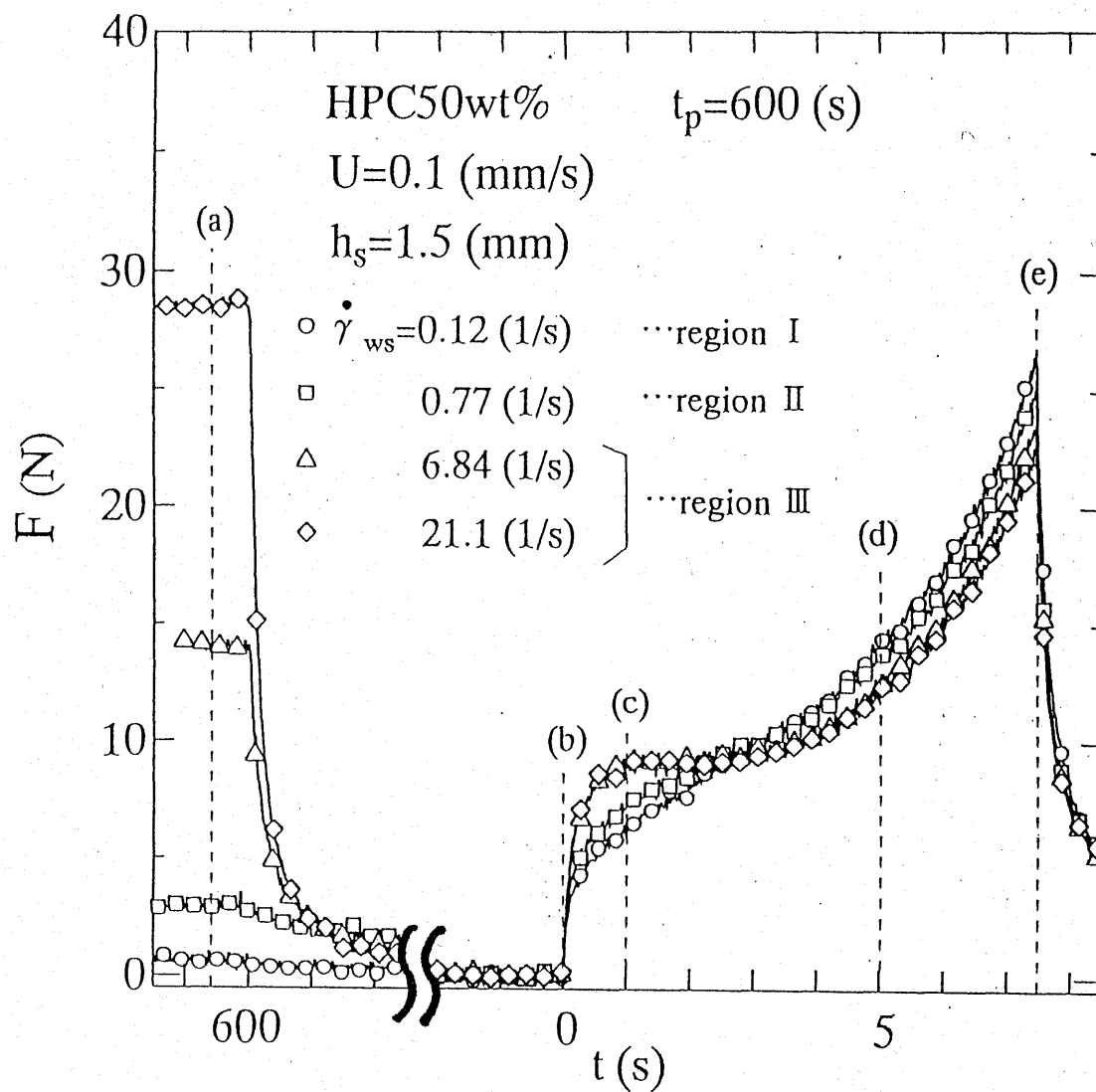
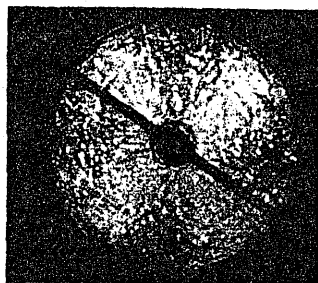
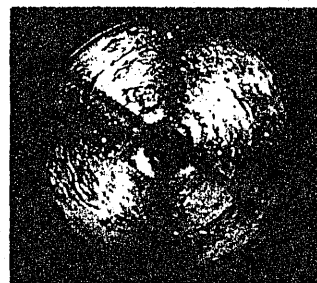


図4.4.13 スクイズ運動時に発生する伝達荷重
 (HPC50wt%水溶液, $t_p=600$ (s))



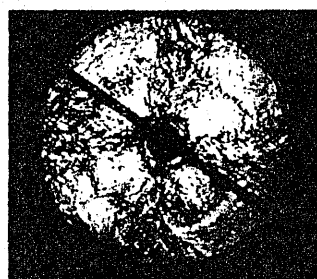
定常放射状流れ(a)



スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)



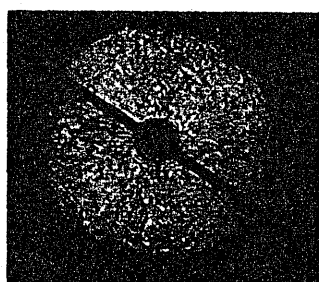
5秒後(d)



7.5秒後(e)

図4.4.14 HPC50wt%水溶液の配向状況

($t_p=600$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=0.12$ (1/s))



定常放射状流れ(a)



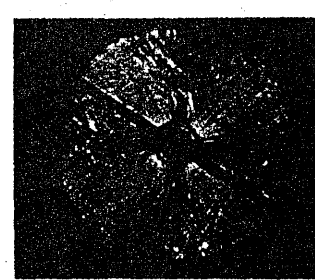
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)



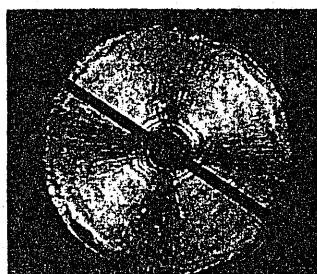
5秒後(d)



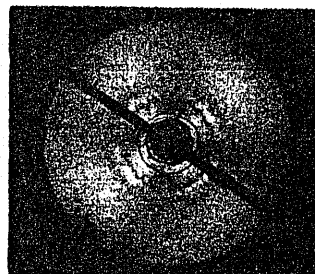
7.5秒後(e)

図4.4.15 HPC50wt%水溶液の配向状況

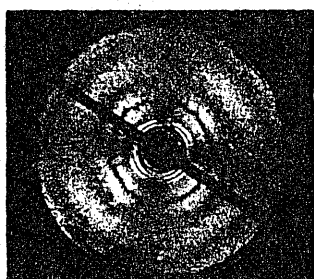
($t_p=600$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=0.77$ (1/s))



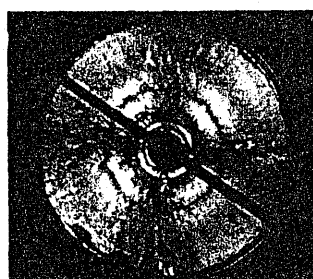
定常放射状流れ(a)



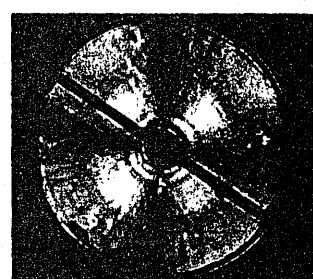
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)



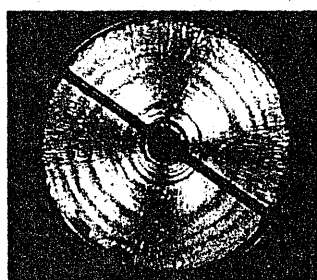
5秒後(d)



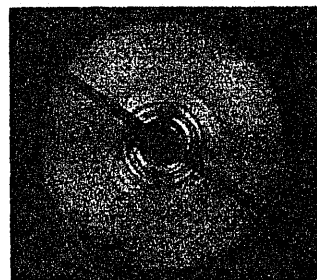
7.5秒後(e)

図4.4.16 HPC50wt%水溶液の配向状況

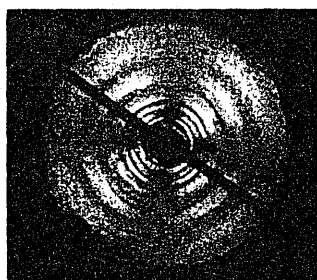
($t_p=600$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=6.84$ (1/s))



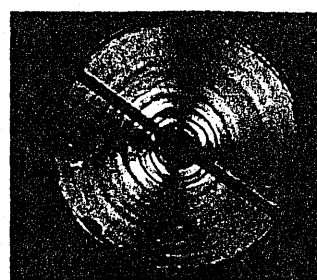
定常放射状流れ(a)



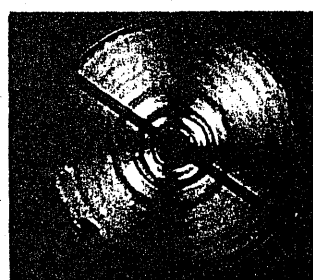
スクイーズ運動直前(b)



運動開始1秒後(c)



5秒後(d)



7.5秒後(e)

図4.4.17 HPC50wt%水溶液の配向状況

($t_p=600$ (s) $\dot{\gamma}_{ws}=21.1$ (1/s))

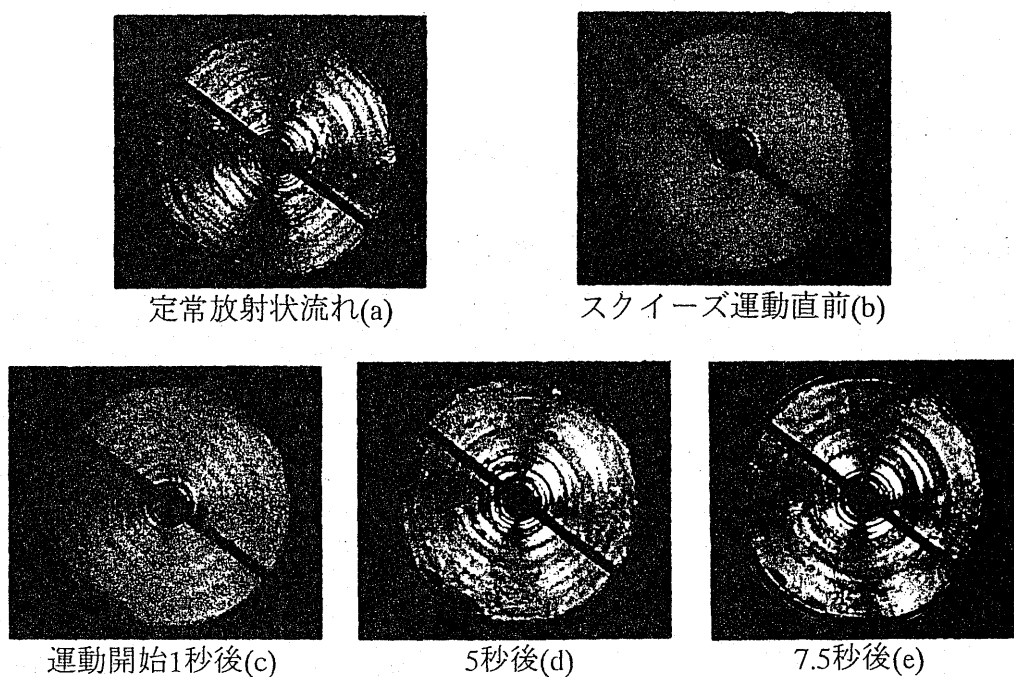


図4.4.18 HPC50wt%水溶液の配向状況
 $(t_p=300 \text{ (s)} \quad \dot{\gamma}_{ws}=22.7 \text{ (1/s)})$

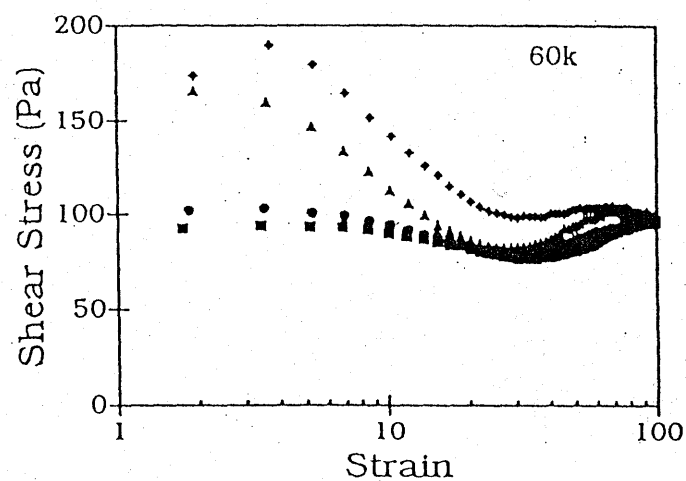


図 4.4.19 クエット流れの再スタート後の応力変化
 (Hongladarom らによる実験結果, HPC50wt%水溶液)

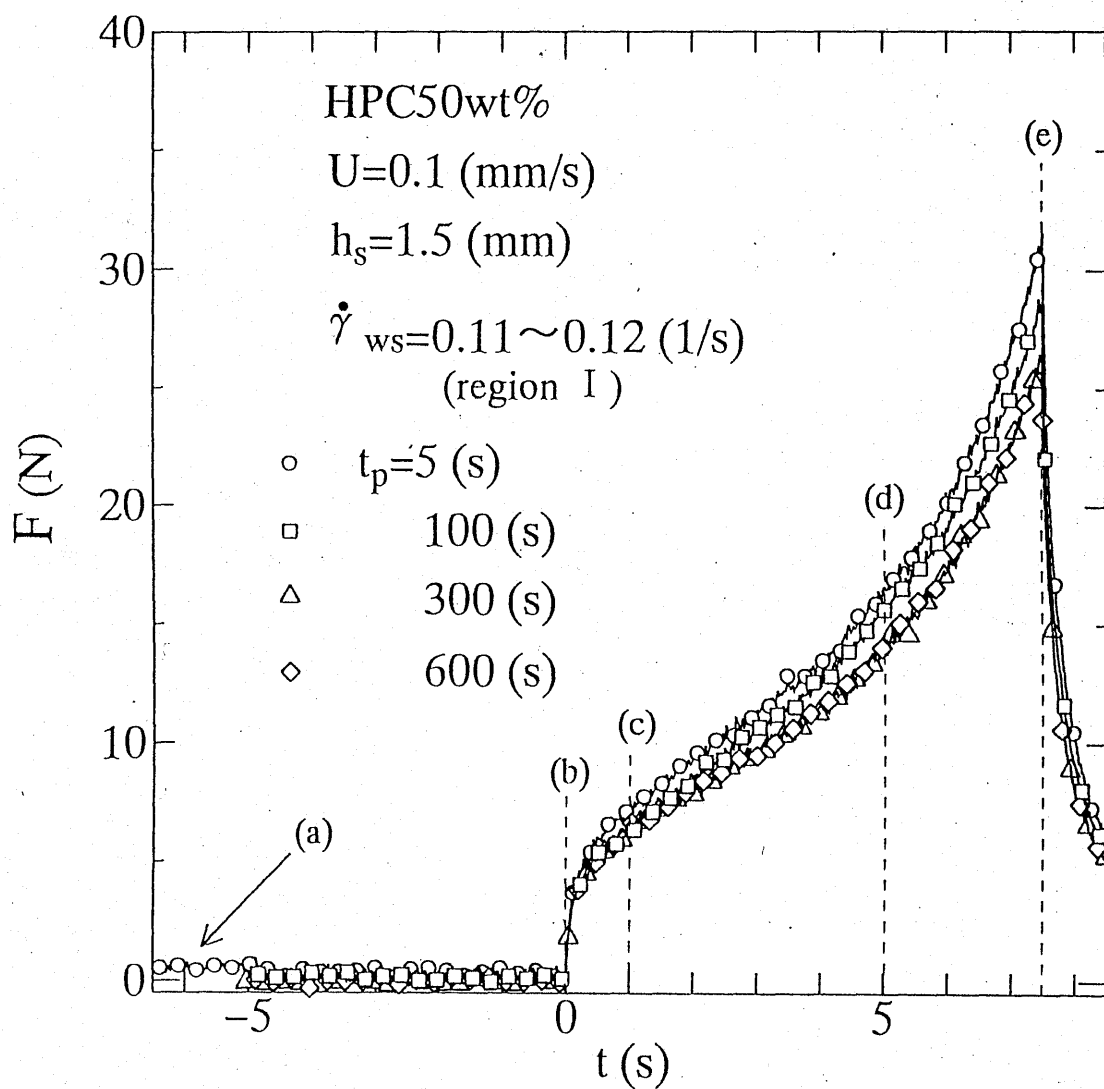


図4.4.20 スクイズ運動時に発生する伝達荷重
 (HPC50wt%水溶液, $\dot{\gamma}_{ws} \approx 0.1$ (1/s))

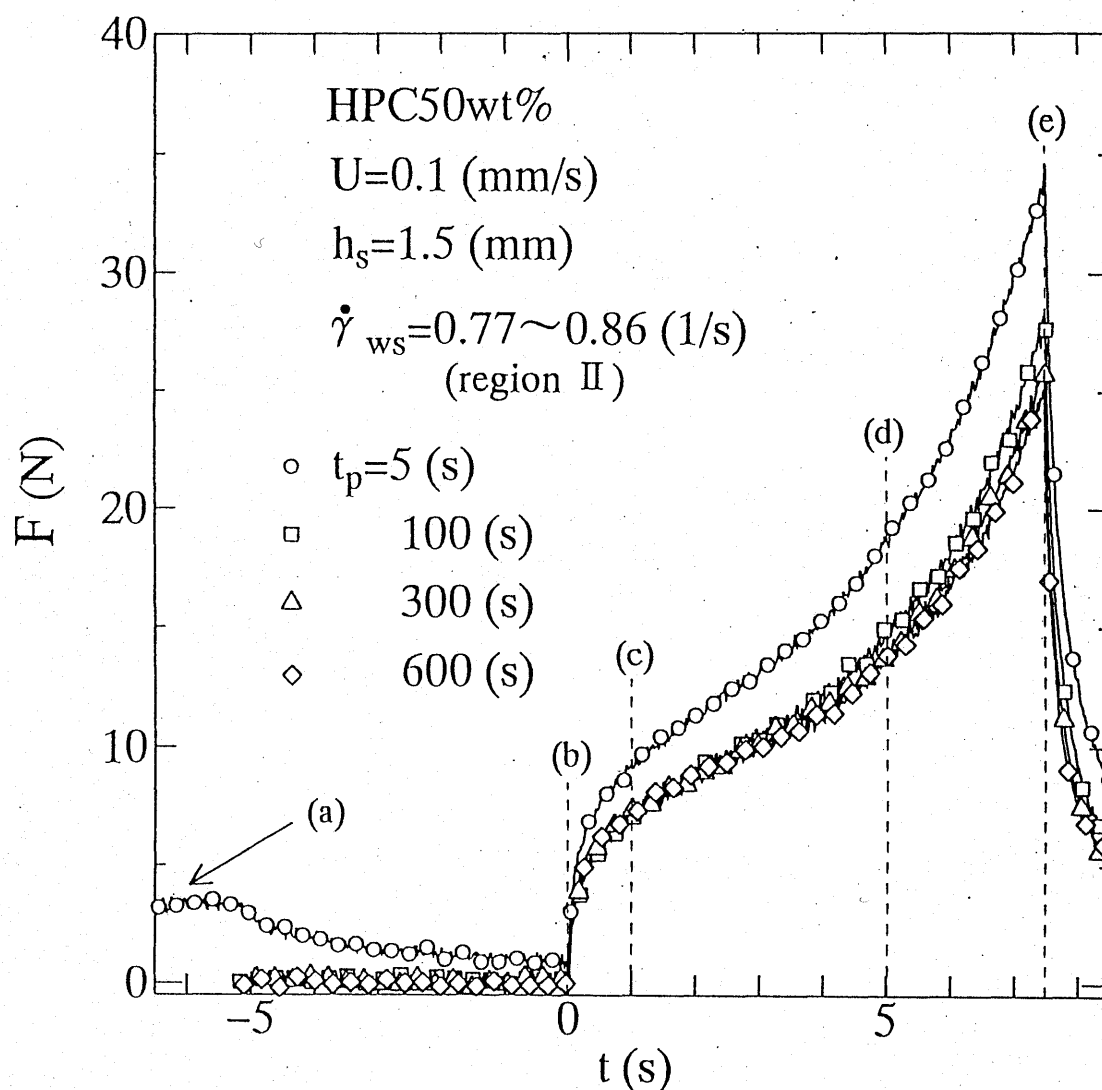


図4.4.21 スクイーズ運動時に発生する伝達荷重
 (HPC50wt%水溶液, $\dot{\gamma}_{ws} \doteq 0.8$ (1/s))

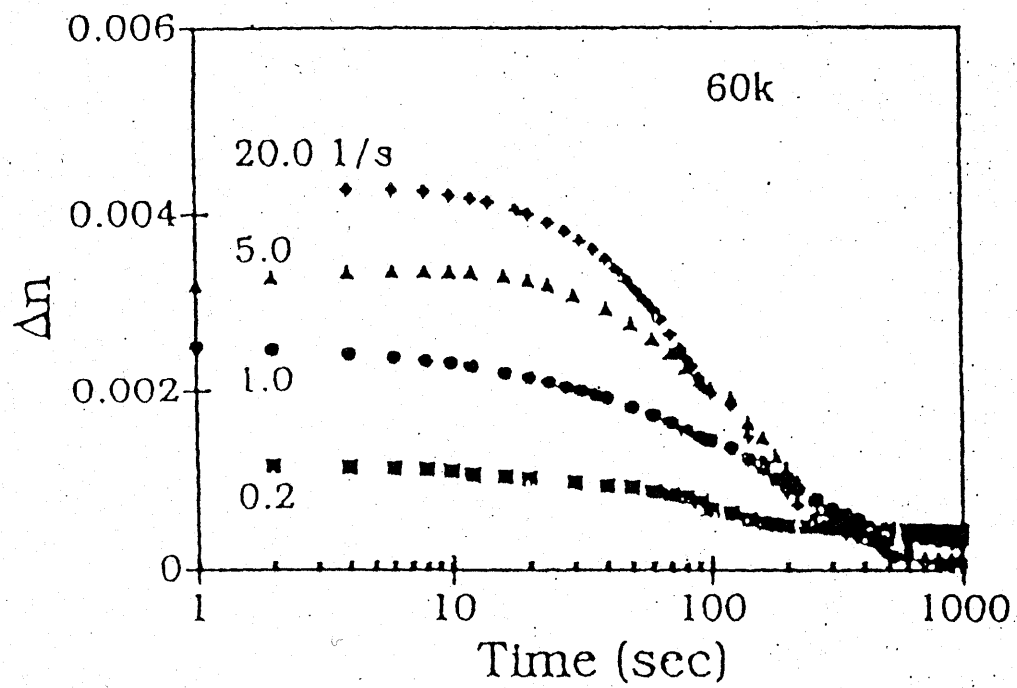


図 4.4.22 クエット流れ停止後の複屈折率の変化
(Hongladarom らによる実験結果, HPC50wt%水溶液)

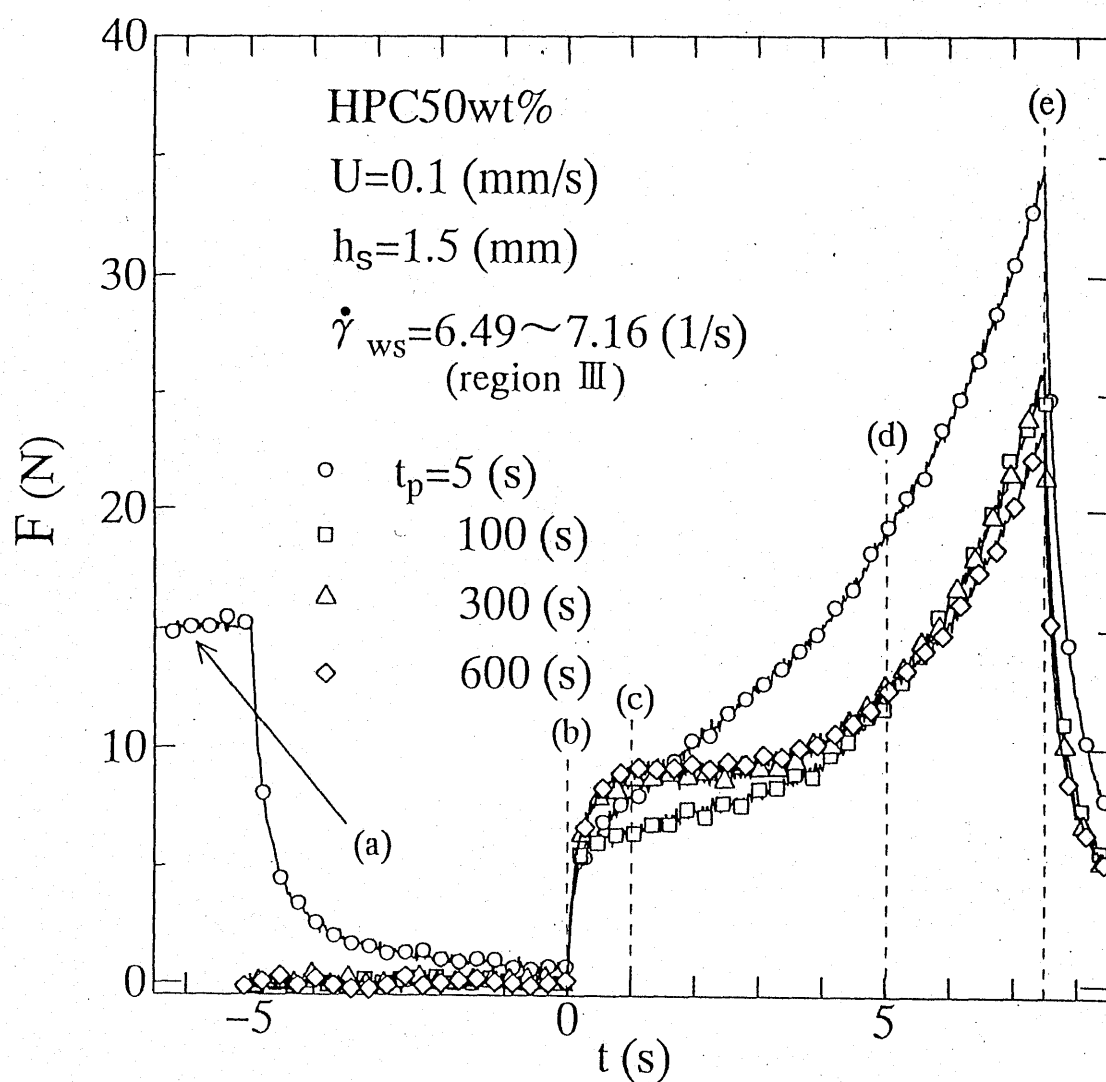


図4.4.23 スクイーズ運動時に発生する伝達荷重
 (HPC50wt%水溶液, $\dot{\gamma}_{ws} \doteq 6.7$ (1/s))

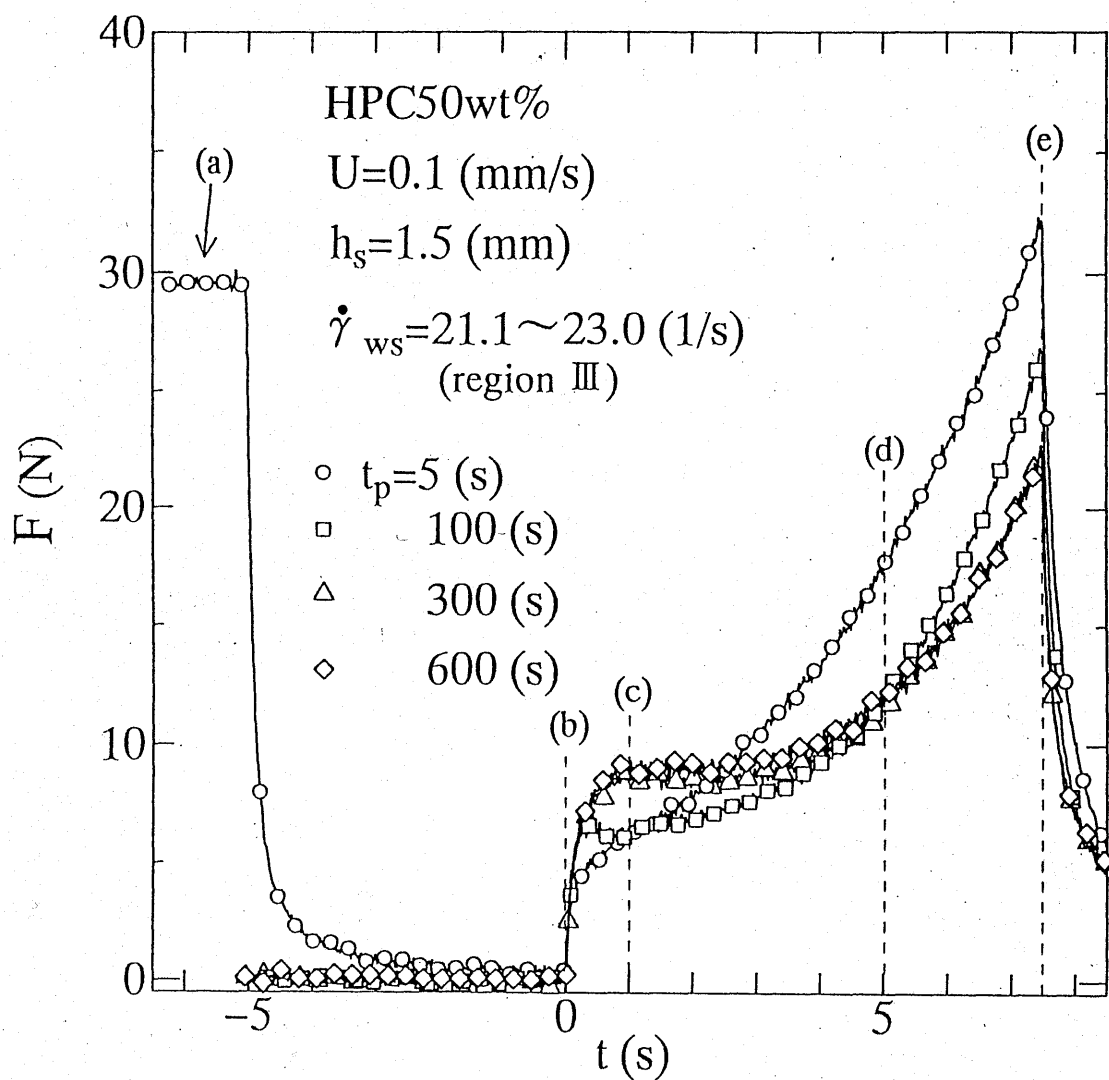


図4.4.24 スクイズ運動時に発生する伝達荷重
 (HPC50wt%水溶液, $\dot{\gamma}_{ws} \approx 22$ (1/s))

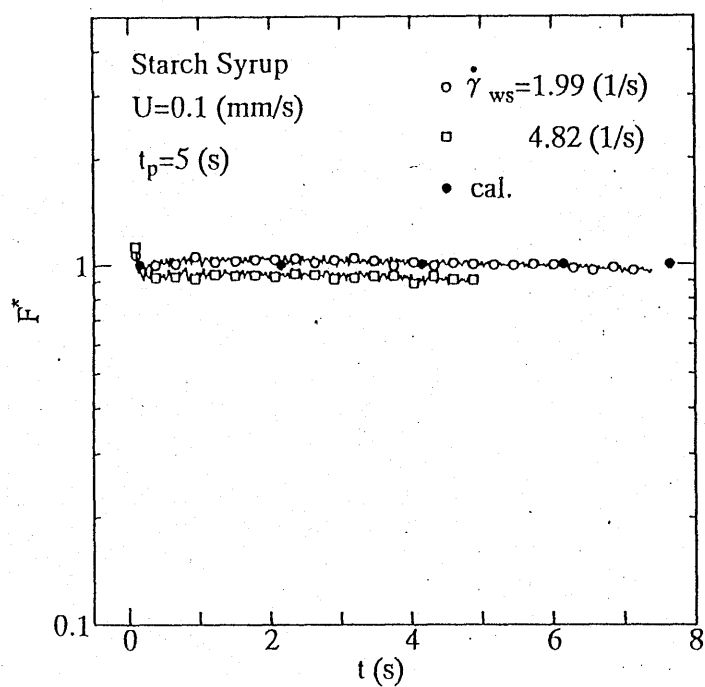


図4.4.25 水飴のスクイズ流れにおける無次元力

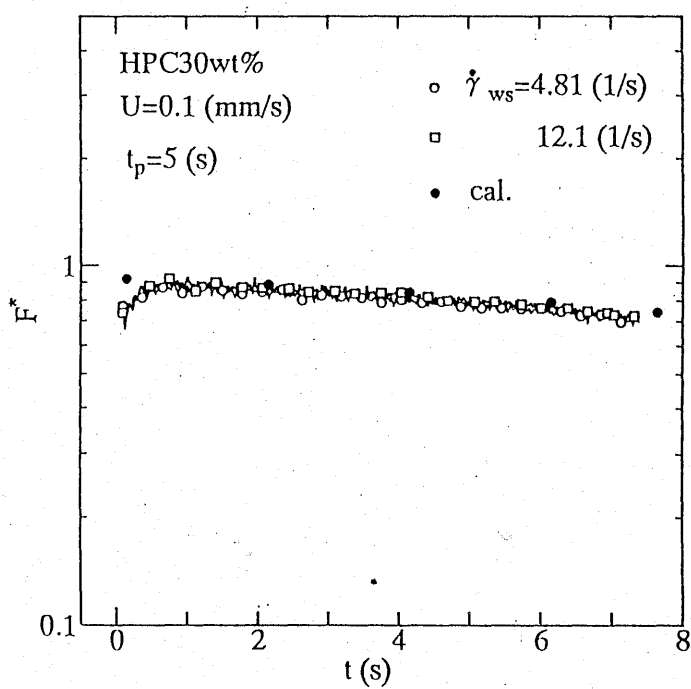


図4.4.26 HPC30wt水溶液の
スクイズ流れにおける無次元力

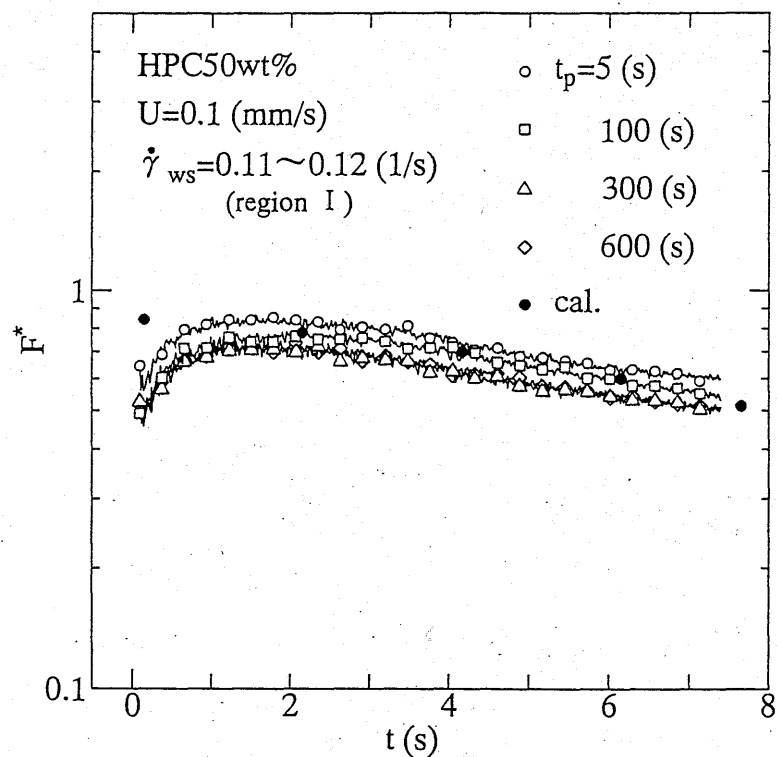


図4.4.27 HPC50wt水溶液のスクイーズ流れ
 における無次元力 ($\dot{\gamma}_{ws} \approx 0.1$ (1/s))

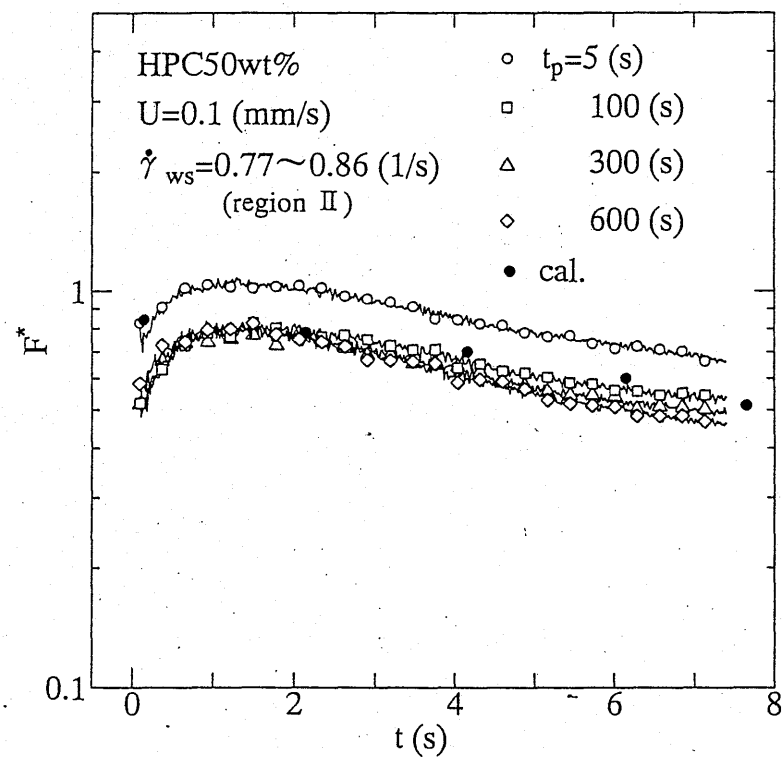


図4.4.28 HPC50wt水溶液のスクイーズ流れ
 における無次元力 ($\dot{\gamma}_{ws} \approx 0.8$ (1/s))

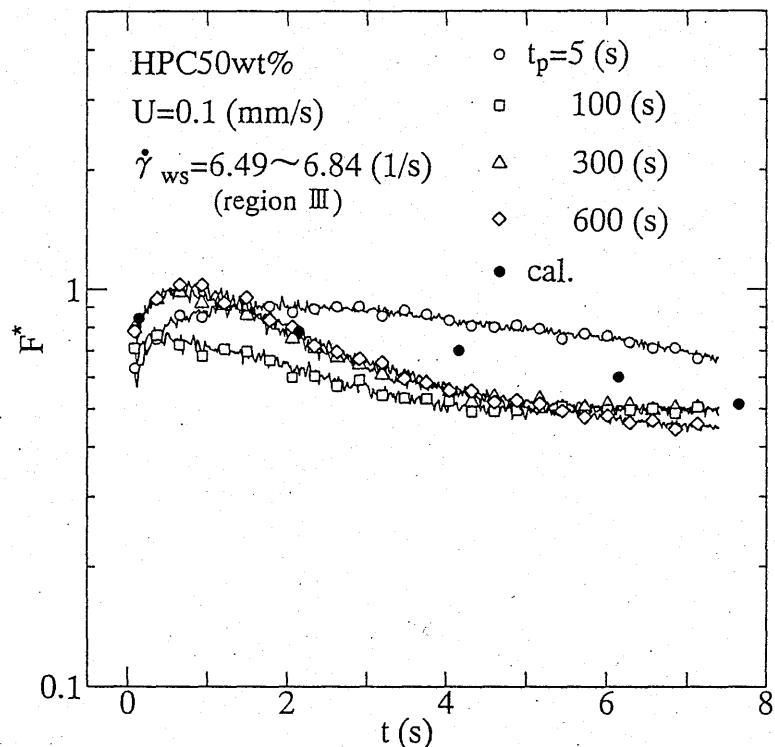


図4.4.29 HPC50wt水溶液のスクイーズ流れ
における無次元力 ($\dot{\gamma}_{ws} \approx 6.7$ (1/s))

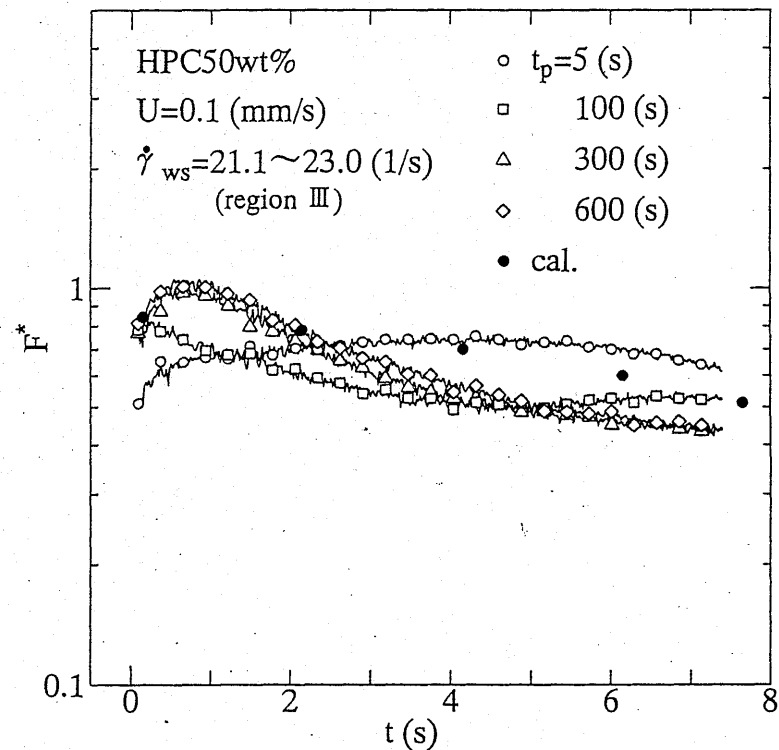


図4.4.30 HPC50wt水溶液のスクイーズ流れ
における無次元力 ($\dot{\gamma}_{ws} \approx 22$ (1/s))

第5章 結論

5.1 二円盤間の放射状流れ

円盤中心から二円盤間を放射状に流動する流れ場について、液晶高分子溶液またはニュートン流体を流した際の二円盤間に発生する伝達荷重の測定、粘性モデルによる数値計算結果との比較および液晶高分子溶液の流れの可視化を行った結果、以下のことが明らかになった。

- (1) ニュートン流体である水飴では、伝達荷重に関する実験結果はニュートン粘性を用いた数値計算結果と一致した。
- (2) HPC30wt%水溶液では、実験結果と Carreau モデルを用いた数値計算結果から見積もられる無次元伝達荷重 F^* は隙間によらず平均壁面せん断速度 $\dot{\gamma}_{ws}$ で整理された。また、実験結果と数値計算結果はよく一致した。このことから液晶性を示さない HPC30wt%水溶液については、Carreau モデルによる数値計算によって本実験における流れ場での流動状態の予測が可能であることがわかった。
- (3) HPC50wt%水溶液の場合も HPC30wt%水溶液の場合と同様に、実験および計算結果ともに F^* は $\dot{\gamma}_{ws}$ で整理された。しかし、せん断速度が大きい領域で実験結果は Carreau モデルによる数値計算結果よりも高い値を示し、両者の一致は見られなかった。そして、これに関連し、HPC50wt%水溶液の流動状況を観察した結果、実験結果と計算結果が一致した低せん断速度域と両者が一致しなかった高せん断速度域とで分子の流動状況の違いが確認された。

5.2 二円盤間のスクイーズ流れ

平行二円盤間の定常放射状流れの後に、二円盤を接近させてスクイーズ流れを発生させた場合について、二円盤間に発生する伝達荷重の測定、流れの可視化および粘性モデルによる数値計算結果との比較を液晶高分子溶液またはニュートン流体に対して行った結果、以下のことが明らかになった。

- (1) ニュートン流体である水飴では、スクイーズ流れで生じる伝達荷重にはプレシアの強さによる影響はみられず、また、この実験結果はニュートン粘性を用いた数値計算結果と一致した。
- (2) HPC30wt%水溶液に関する実験においても、スクイーズ流れに対するプレシアの強弱の影響はみられなかった。また、実験結果は Carreau モデルを用いた数値計算結果とよく一致した。このことから液晶性を示さない HPC30wt%水溶液については、Carreau モデルによる数値計算によって本実験における流れ場での流動状態の予測が可能であることがわかった。
- (3) HPC50wt%水溶液では、弱いプレシア(region I)から、および region II のプレシアで停止時間を長くにとってスクイーズ流れへ移行した場合には、スクイーズ運動時にほぼ等しい荷重変化を示した。また、この場合の実験結果と Carreau モデルを用いた数値計算結果は比較的一致しており、この条件下の流れは Carreau モデルによりある程度予測できる。
- (4) HPC50wt%水溶液で停止時間が短い場合、受けたプレシアが強くなるに従い弱いプレシアの場合

に比べてスクイーズ運動開始時に発生する荷重が低くなった。この点はプレシアによる流動配向がスクイーズ流れの始めでも維持された影響であることが流れの可視化から確認された。

- (5) HPC50wt%水溶液においてスクイーズ流れ前の停止時間が長くなるに従い、強いプレシアを受けた場合の荷重変化は運動開始時に荷重が Carreau モデルによる予測値をオーバーシュートした。また流れの可視化から、プレシアの強い場合には停止後にコレステリック相とみられる均一な状態に変化するなどの独特なパターンがみられ、プレシアの強度によって停止後の分子の配向状況の変化が異なっていることが確認された。

これらの結果から比較的狭いすきまの流れにおいて液晶系の流体では流動履歴効果を利用することにより配向状態を制御でき、機能を調整できる可能性があると考えられる。

参考文献

- (1)小出直之, 坂本国輔 : 液晶ポリマー, 共立出版, (1988)
- (2)YOSHIHIKO ONOGI, JAMES L. WHITE and JOHN F. FELLERS :J.Non-Newtonian Fluid Meck. 7 (1980), 121-151
- (3)K. Hongladarom, V. Secakusuma and W. R. Burghardt : J.Rheol. 38(5) (1994), 1505-1523
- (4)森 教安, 宮本和史, 中村喜代次 : 機講論, No.920-68 (1992), 298-300
- (5)I. Sigillo and N. Grizzuti : J.Rheol. 38(3) (1994), 589-599
- (6)Stuart F. Smyth and Michael E. Mackay : J.Rheol. 38(5) (1994), 1549-1558
- (7)Jean-Noël Baleo and Patrick Navard : J.Rheol. 38(6) (1994), 1641-1655
- (8)MASAO DOI : J.Poly. Sci., Poly. Phys. Ed., 19, (1981), 229-243
- (9)蝶野成臣, 家元良幸, 谷口 聡 : 機講論, No.920-68 (1992), 295-297
- (10)蝶野成臣, 家元良幸, 谷口 聡, 辻 知宏 : 日本機化学会論文集 (B 編) 555(58) (1992), 33-38
- (11)松本正一, 角田市良 : 液晶の基礎と応用, 工業調査会, (1991)
- (12)中田一郎, 堀 文一, 向尾昭夫 : 液晶入門, 幸書房, (1992)
- (13)R. B. Bird, R. C. Armstrong and O. Hassager :DYNAMICS OF POLYMERIC LIQUIDS 2nd Ed., Vol. 1, Wiley-Interscience, (1987)

第2部 低分子液晶にの微小すきまにおけるスクイーズ流れ

1. 低分子液晶の微小すきま間の流れにおける電気粘性効果について

第1部のまとめ方とは異なるが、まず、研究発表覧の6番に記した以下の文献の内容を再掲する。

論文題目：微小すきまにおける液晶のER効果

著 者：前田浩芳・鳴海敬倫・長谷川富市・坂井樹弘、

掲 載 誌：日本機械学会第74期機械学会全国大会講演論文集，Vol. 3, pp. 111-112, (1996. 9)

Abstract

An experimental investigation is conducted on the flow of a nematic liquid crystal in narrow gaps between two circular plates under DC and AC electric fields utilizing a rheometer of a plate-plate type. A pure liquid crystal (LC) and a liquid crystal with a dopant (LC+TBAB) were used to clarify the influence of the electroconvection caused with the electrohydrodynamic instability on the ER effect. The following results are obtained : Under DC electric fields, a larger ER effect in apparent viscosity is obtained in the case with molecular alignment (LC) than that with electroconvection (LC+TBAB). This advantage, however, is diminished in the region of the lower shear rate. Under AC electric fields, the ER effect is caused with the molecular alignment regardless with the addition of dopant. In the case of AC electric fields in high frequency, nearly the same ER effect is obtained as in that of DC electric fields.

緒言

液晶は分子自体が様々な異方性を持ち、液晶ディスプレイだけではなくその独特な特性を利用することで広い分野の応用が検討されている。その特徴の中でも、液晶の分子軸の方向を外部環境によって制御できる点を利用して、電場印加により見かけの粘度を変化させる、いわゆる、電気粘性(ER)流体としての応用が期待されている⁽¹⁾。特に均一系である液晶は極めて狭いすきまへの適用に有効である。しかしこのような場合には、液晶は分子配向の影響ばかりでなく、電気的不安定性によってもER効果が生じる⁽²⁾。しかし、電気的不安定性によるER効果の研究例⁽³⁾は少なく、両者の効果を詳細に比較検討した例はわずかである。そこで本研究は、数十ミクロンオーダーのすきまにおける液晶のER効果の検討および電圧印加時の液晶の状態の偏光顕微鏡観察を行い、微小すきまにおけるER効果の発生機構による影響を明らかにすることを目的とした。

試料

本研究で用いた液晶は、誘電異方性が正であるネマティック液晶で数種類の液晶の混合物である。この試料の主要な物性値を表1に示す。ところで、液晶に電圧を印加するとき、条件によっては電気的不安定性が生じ、液晶分子の乱れた対流(動的散乱状態:DSM)が発生する。この電気的不安定性は比抵抗によって大きく変化するため、液晶に導電性物質を添加し比抵抗を低下さ

せることが行われてきた⁽⁴⁾。本研究においても液晶に導電性物質を微量添加したところ、直流電圧印加時に図 1 のような乱れた対流状態が観察された。そこでこの添加物による電氣的な状態変化が液晶の ER 効果に与える影響を調べるため、DS 効果用導電性ドーパント TBAB(Tetrabutylammonium Bromide)を液晶に 100ppm 添加した試料(LC+TBAB)と添加しない試料(LC only)の 2 種類を用いて実験を行った。なお実験時の液温は 20℃で一定条件のもとで行った。

Table 1. Material constants of liquid crystal used

Phase transition temp. (nematic-isotropic)	72.3 °C
Viscosity (20°C)	29.1 (mPa・s)
Refractive anisotropy	$\Delta n: 0.160$
Dielectric anisotropy	$\Delta \epsilon: 5.6$

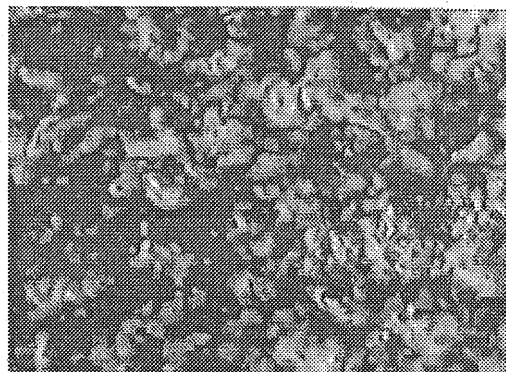


Fig. 1. Convection pattern of LC+TBAB under DC electric field
(gap 50 μ m, DC 500V/mm, size 1.4 \times 1mm)

実験装置

本研究では、平行円盤型回転粘度計(HAAKE 社 RS50)の平行円盤間に電圧を印加して粘度測定を行った。この実験装置の概略図を図 2 に示す。また本研究で用いた円盤の半径、及び電極間距離を表 2 に示す。ここで用いるひずみ速度 $\dot{\gamma}$ は、上部円盤の角速度 ω より算出した円盤外周でのひずみ速度であり、また上部円盤にかかるトルク T より粘度 η を算出する。これらの円盤はステンレス製で電極面は研削加工されている。なお電極面に対する配向処理は行っていない。また、この円盤には、ファンクションシンセサイザの出力を増幅した電圧が、導電性の流体を介して供給される。印加電圧は電界強度で 0 から 1500V/mm、周波数は 0 から 1kHz の範囲である。交流の場合の電界強度は実効値を用いて整理した。

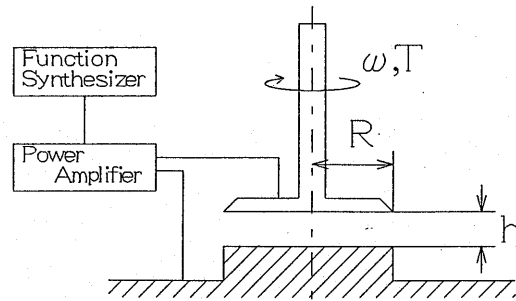


Fig. 2. Experimental apparatus

Table 2. Plate Radius, gap size

Plate Radius: R	17.5mm
gap : h	50 μ m, 30 μ m

また電圧印加時の液晶の挙動の観察は、図には示さないが狭いすきま(50 μ m)をあけて平行に張り合わせた2枚の透明ガラス電極の間に試料を入れ、偏光顕微鏡で観察、ビデオ撮影を行った。

実験結果および考察

図3に電極間距離が50 μ mの場合の直流電圧印加時の、液晶のみの場合とTBABを添加した場合の実験結果を示す。図の横軸 $\dot{\gamma}$ は円盤外周部でのひずみ速度であり、縦軸は電圧印加時の粘度 η を無印加時の粘度 η_0 で割った粘度の増加割合 η/η_0 を示す。また、図中2D flowはガラス電極製平行平板型二次元流路(電極間距離53 μ m)の場合における液晶のみの時の結果⁽²⁾である。電圧を印加した場合、どの条件においても低ひずみ速度域で粘度が約5倍程度まで増加することがわかる。しかし、ひずみ速度によっては液晶のみの場合の方がTBABを添加した場合と比べて粘度増加率が大きくなっている。また二次元流路の結果と比較すると、液晶だけの場合において回転円盤型の方が粘度増加率が大きくなっている。二次元流路の場合では、流動場の観察において、液晶のみの場合でも電氣的な対流による二次流を伴った流れになっていた。またTBABを添加した場合は、先ほどの図1に示したように静止状態であっても対流が発生していた。しかし、液晶のみの場合の静止状態では、先ほど示したような対流は観察されていない。以上のことから一様配向状態にあると考えられる液晶のみの場合の回転円盤型の結果の方がTBAB添加の場合や、平行平板型の場合の乱れた状態での粘度増加より大きくなったと考えられる。しかし低ひずみ速度域ではその差は少ない。

次に直流電圧印加時のTBAB添加による影響を明らかにするため、図4に液晶のみの場合の粘度増加率 $\Delta\eta_{(LConly)} = \eta_{(LConly)} / \eta_0$ に対するTBAB添加時の粘度増加率 $\Delta\eta_{(LC+TBAB)} = \eta_{(LC+TBAB)} / \eta_0$ の比率 $\Delta\eta_{(LC+TBAB)} / \Delta\eta_{(LConly)}$ を示す。図中の高ひずみ速度域で粘度増加比が大きくなっているが、これはこの範囲では粘度増加が起こらないためである。しかし電圧印加により粘度が増加する範囲では、電極間距離によらず、最も両者の差が大きいひずみ速度が存在し、この点は、印加電界強度が大き

くなるほど高ひずみ速度側に移っている。すなわち、TBAB 添加による電氣的対流による ER 効果が高いひずみ速度から生じ始めるようになっている。

図 5 に液晶のみ、および TBAB 添加の場合の交流 1500V/mm 印加時の実験結果を示す。どちらの場合でも周波数が高い方が粘度増加率が大きくなっているが、本研究の範囲では周波数依存性は小さい。また TBAB を添加することによって、低周波数では粘度増加が少なくなったが、高周波数の場合には両者の差は少なく、液晶のみの場合の直流の結果に近い。また図では示さないが交流電圧印加時の偏光顕微鏡観察では、どちらの試料でも一様に電場方向に配向した比較的均一な状態が観測された。これは直流電圧印加によって発生する対流による ER 効果よりも、交流による分子配向による ER 効果の方が大きいことを示す。

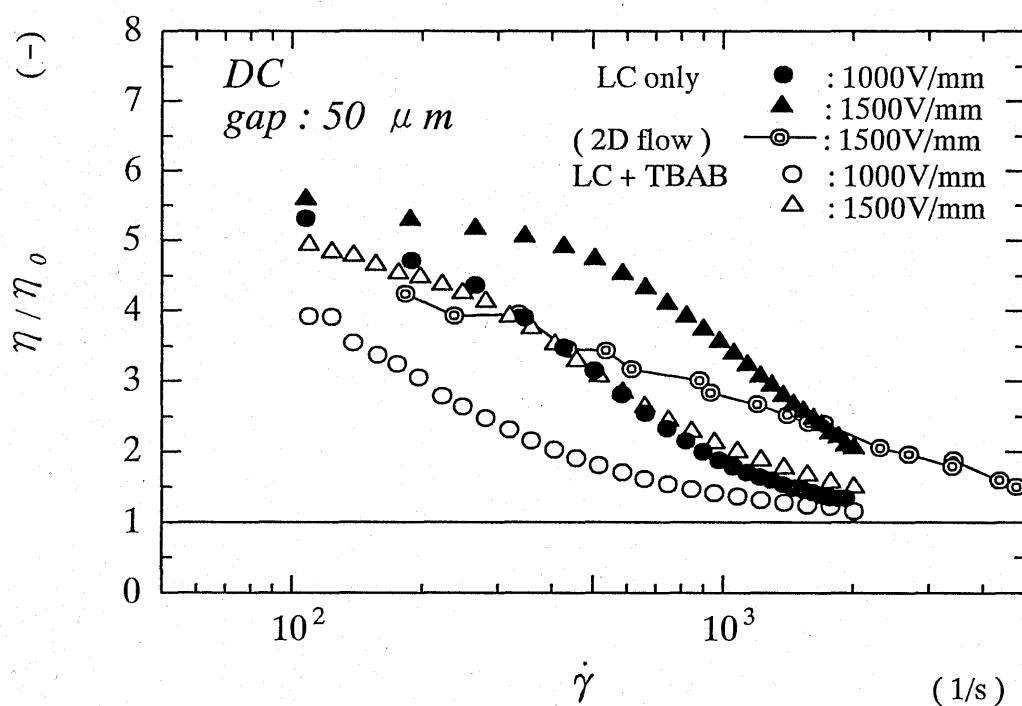


Fig. 3. Apparent relative viscosity of 'LC' and 'LC+TBAB'
under DC electric fields : gap 50 μ m

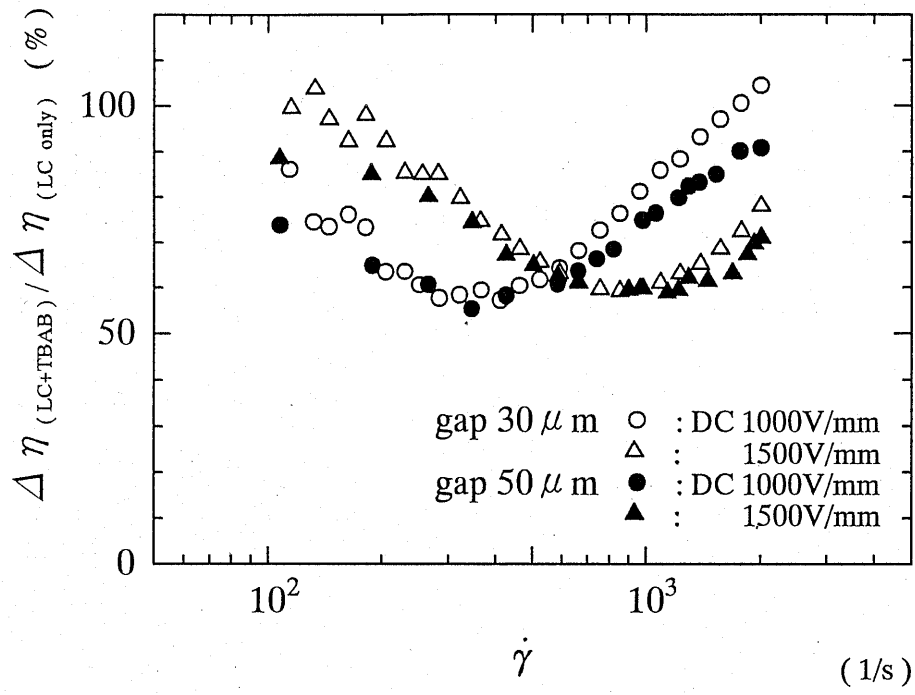


Fig. 4. Difference between 'LC only' and 'LC+TBAB' under DC electric fields

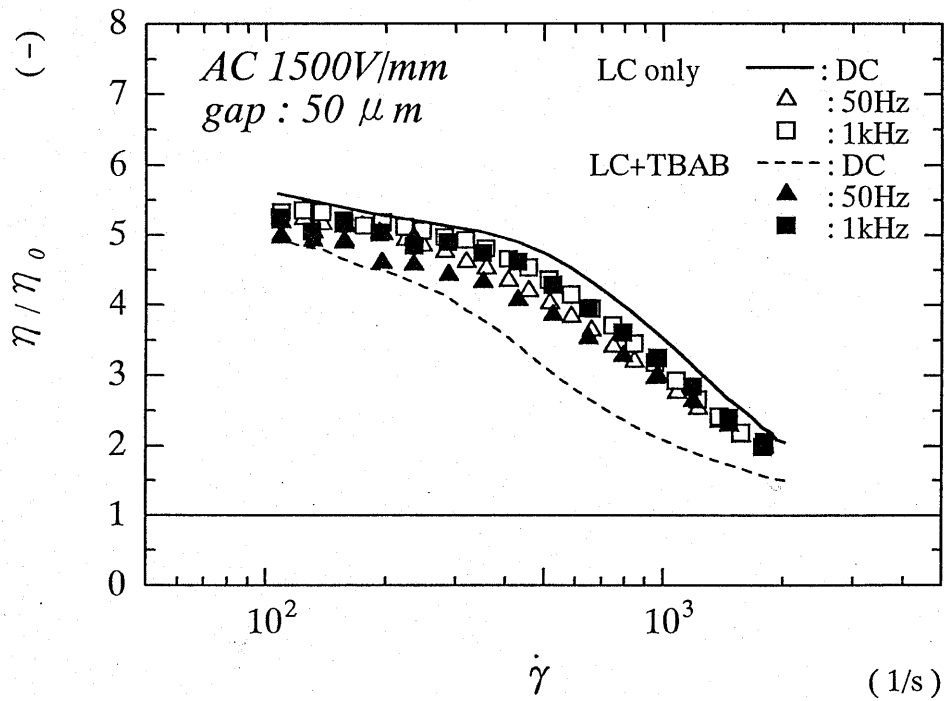


Fig. 5. Apparent relative viscosity of 'LC' and 'LC+TBAB' AC1500V/mm electric fields : gap 50 μm

まとめ

液晶の ER 効果は、液晶のみの場合でも電気的不安定性による対流が生じる場合もあり、面の状態や液晶の純度によっては十分な配向状態が得られない可能性がある。この点を考慮した場合、本実験から直流印加で配向させる場合が最も高い ER 効果の実現できるが、交流印加時の方が安定した ER 効果が期待できることがわかる。

参考文献

- (1) 小山 清人, ER 流体の開発と応用, シーエムシー, (1994), 126
- (2) 鳴海・前田・長谷川, 第 8 回「電磁力関連のダイナクス」シンポジウム講演論文集, (1996), 367
- (3) 笹田・本多, 機械の研究, 33-3, (1981), 483
- (4) 松本・角田, 液晶の基礎と応用, 工業調査会, (1991), 81

2. 液晶の電界強度による粘度曲線の変化

以上の論文に示すように低分子の液晶では、数十 μm のすきま内の液晶の流れで生じる抵抗を 4～5 倍程度増加させることができる。その粘度曲線と電場の強さとの関係を詳細に調べた一例を図 6 に示す。これは上述の平行円盤型回転粘度計を用い、すきま 50mm で直流で電界強度を変えて、そのときの見かけの粘度を測定した結果である。図中の実線は第 1 部で説明した以下の (3.3.2) 式で表される Carreau モデルでフィットさせた結果である。

$$\eta = \eta_{\infty} + (\eta_0 - \eta_{\infty}) \left(1 + \lambda^2 \dot{\gamma}^2 \right)^{(\eta-1)/2} \quad (3.3.2)$$

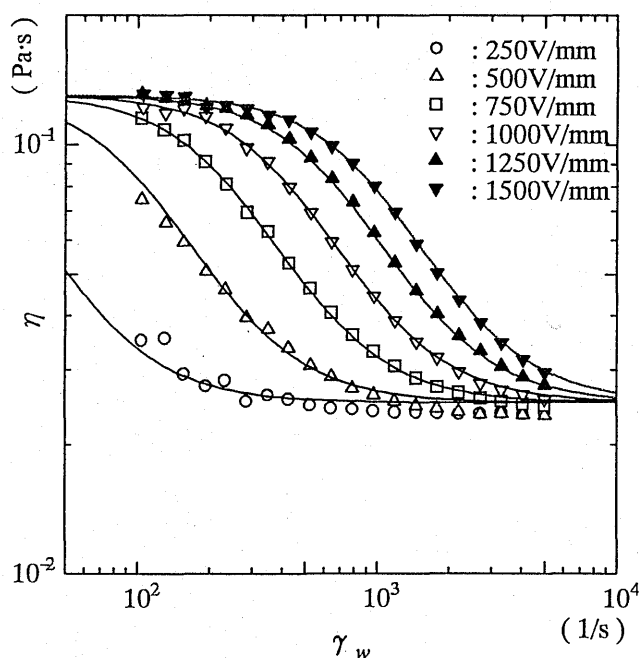


図 6 液晶の電界強度による粘度曲線の変化

これらのデータは配向状態にある場合に相当するが、このときのモデル定数を求めると η_0 , η_∞ および n は

$$\eta_0 = 0.1302 \text{ Pa}\cdot\text{s}$$

$$\eta_\infty = 0.0252 \text{ Pa}\cdot\text{s}$$

$$n = -0.85$$

といずれの場合も同一となり、 λ のみが異なる結果となった。この λ は電界強度が 1500V/mm のとき 0.00105 s であり、その他の場合はちょうどこの値に電界強度の比の二乗を乗じた値となった。すなわち、粘度曲線に現れる電気粘性効果は電界強度の二乗に比例して大きくなることがわかる。また、さらに実際の流れ場では単純なせん断場だけではないため厳密性には欠けるが、Carreauモデルを用い、緩和時間を電界を考慮して補正すれば、電気粘性効果を考慮に入れた液晶の流れを概略シミュレーション可能であることがわかる。

3. 液晶の微小すきま間のスクイーズ流れでの電場印加の効果

そこで、2. の結果を用い、実際にスクイーズ流れにおいて電場を印加した場合の液晶の流体膜による伝達荷重を算定してみた。解析には第1部で扱ったスクイーズ実験装置のちょうど $1/10$ のモデルを想定した。すなわち、直径が 5mm ですきまが 0.15mm の平行二円板を定速で接近させた場合を計算した。印加電圧は二面間にすきま量には関係なく常に 100V の直流電圧が欠けられているとし、接近速度が 0.1mm/s と 2.0mm/s の二つの場合についてすきまと伝達荷重の計算結果を図7に示す。

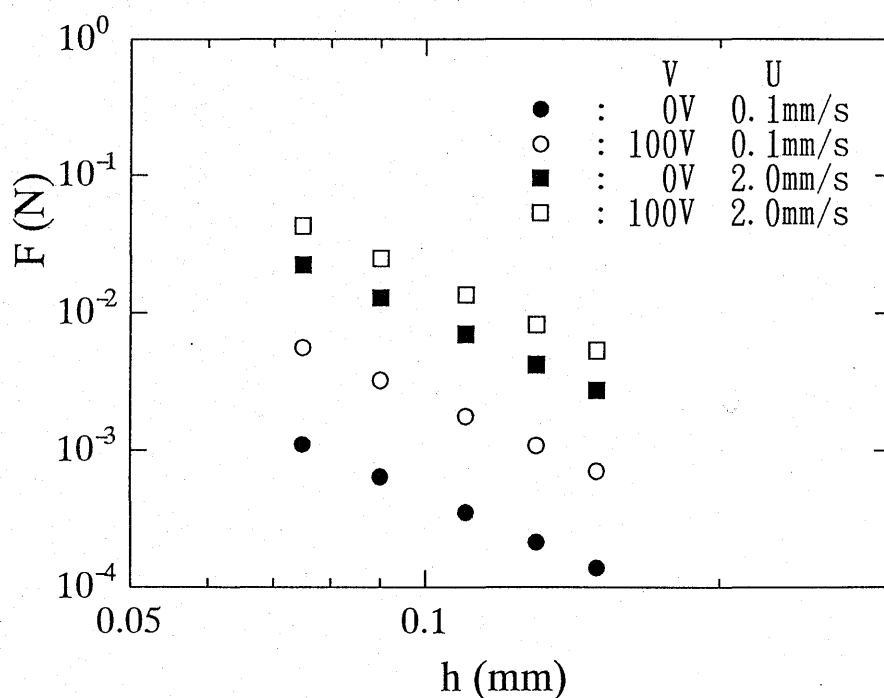


図7 印加電圧一定の下でのスクイーズ流れで発生する伝達荷重

スクイーズ流れでは広いすきまから狭いすきまに変化すると二面間の流れにおけるせん断速度は上昇する。その結果、図6に示すような Carreau モデルのようにシアニングを示す流体ではすきまが狭くなるとせん断速度が上がるため、粘度が下がった様な効果が生じ、荷重保持力の点から考えると好ましくないことになる、しかし、この様に電場を印加した場合にはそのシアニングの影響がすきまが狭くなることによる電界強度の増加による効果で相殺され、図7に示すように常に一定の電気粘性効果が得られることがわかる。すなわち、微小すきま間のスクイーズ流れでは液晶を用いた流動制御が有効であると言える。

この点を詳細に解明するため、今後も実験を継続する予定である。

以上

おわりに

本研究の遂行にあたって有益な助言をいただいた新潟工業短期大学教授 反町和則氏、同大学助手 方 義氏、液晶をご提供下さったチッソ石油化学工業株式会社に心より感謝申し上げます。また、本実験には、新潟大学大学院生の板垣伸也氏、前田浩芳氏、熊木稔氏ならびに大根田慶範氏の協力を得た。ここに謝意を表す。