

高分子溶液の定速スクイーズ流れに関する実験的研究*

(接近運動時および運動終了後の伝達荷重の測定)

鳴海敬倫^{*1}, 関野龍男^{*2}, 長谷川富市^{*1}

Experimental Study on the Constant Speed Squeezing Flow of Polymer Solutions

(Measurement of Forces generated in and after the Approaching motion)

Takatsune NARUMI, Tatsuo SEKINO and Tomiichi HASEGAWA

Transmitting forces were measured during the time when a upper spherical surface was approaching to a lower flat plate at a constant speed and after the movement of the upper surface was stopped. The forces measured for glycerin and PEO solutions were predicted by the theory of viscous fluids. In the case of Separan solutions, however, overshoot of the force was seen at the inception of the squeezing motion and the maximum in magnitude was about 1.5 times larger than the force estimated with the viscous stress. This trend agrees well with those of the stress overshoot in simple shear flows. After the squeezing motion was stopped, the clearance between two surfaces was observed to slowly decrease because of the spring back of the load cell attached to the lower plate. At this stage, the larger transmitting force was maintained for the Separan solution than that for the viscous fluids. This result is considered to be related to the stress relaxation.

Key Words: Viscoelastic Fluid, Non-Newtonian Fluid, Unsteady Flow, Polymer Solution, Squeezing Flow, Stress Overshoot, Stress Relaxation

1. 緒 言

2面を一定荷重で押し付けるタイプのスクイーズ流れの場に粘弾性流体を用いた場合、接近速度が粘性流体の場合よりも遅くなり、潤滑性能が改良されることが知られている⁽¹⁾⁽²⁾。この現象を解明するために法線応力効果などが検討されてきたが⁽³⁾⁽⁴⁾、現在に至るまで十分な解析結果は得られていない。また、最近ストレスオーバーシュートなどの非定常粘弾性特性の影響も検討されてきている⁽⁵⁾。著者らも定荷重下の逆スクイーズ流れに関して非定常粘弾性の影響を実験的に検討した⁽⁶⁾。しかし定荷重下のスクイーズ流れではひずみの履歴を把握し難く、非定常粘弾性の効果を解析するには困難が伴う。この問題の解明には流体に対しひずみを強制的に加えるような条件での検討が効果的であると考えられる。この点から2面の一定速度で押し付けるスクイーズ運動に伴う流動は興味深い問題である。しかし、定速スクイーズ運動の実験例は少なくTichyら⁽⁷⁾とShirodkarら⁽⁸⁾による報告がみられる程度であり、十分な検討がなされたとは言い難い。

一方、実際のスクイーズ膜潤滑においては2面の運動は押付けの後、停止または反転するなど変化するが、このような流動を扱った実験例は著者の知るところ皆無である。実際のスクイーズ膜潤滑における粘弾性流体の効果は押付け運動中の結果だけから論ずることはできずさらに広範な実験および検討をする必要がある。

本研究では定速スクイーズ運動時およびそれに続く非定常運動時のスクイーズ膜潤滑における流体の粘弾性特性の役割、効果を解明することを目的としている。本報では曲率半径の十分大きい球面と平面をある位置から一定速度で接近させ、そのとき2面間の流体により発生する荷重の変化を測定し、オーバーシュートなどの現象を実験的に検討する。また、定速運動を止めた後の荷重の変化を測定し、応力緩和に関連する非定常粘弾性の影響についても検討する。

2. 実験装置および使用流体

2・1 実験装置 実験装置の概略を図1に示す。実験に用いた平面は半径20mmの光学ガラス平板(B)で図1のようにアクリル製の液槽(C)と一体になっている。球面(A)は同じく半径20mm、曲率半径2.00mの凸レンズであり、軸受(F)に支持されたシャフトに

* 原稿受付 平成元年10月27日。

^{*1} 正員、新潟大学工学部 (〒950-21 新潟市五十嵐2の町8050)。

^{*2} 准員、(株)新潟鉄工所 (〒940 長岡市城岡2-5-1)。

取付けられている。このレンズを上下動させるために圧電アクチュエータ(G)が変位の拡大機構(H)に組み込まれており、シャフトはこの拡大機構と点接触している。なお、この圧電アクチュエータに加える電圧はパーソナルコンピュータにより制御される。また、拡大機構全体はリニアウェイ(I)に取り付けられており、マイクロメータ(J)により上下動可能になっている。さらに、実験時の球面-平面間のすきまを測定するために変位計(D)が図1のように取り付けられている。また、液槽全体はロードセル(E)で支持されており、これにより流体により発生する荷重が測定される。

実験では、まずマイクロメータを調整し球面を平面と接触させた状態にする。次に圧電アクチュエータおよびマイクロメータを用い球面を上昇させ、球面と平面の中心のすきまを所定の値(55~180 μm)にする。この状態で十分安定させた後、圧電アクチュエータに加える電圧を制御し、球面を一定速度($V=10\sim 46\ \mu\text{m}/\text{s}$)で約50 μm下降させた後停止させる。そのときの運動開始から球面の運動停止後数秒まで球面平面間のすきまと平面に伝達される荷重を測定した。

2.2 使用流体 本実験には、ニュートン流体としてグリセリン50, 60%水溶液、粘弾性流体として製鉄化学工業社製 Polyethylene oxide (PEO-18, 以下PEOと略す)の500, 1000 ppm水溶液およびダウ・ケミカル社製 Polyacrylamide系高分子 Separan AP 30(以下Separanと略す)の500, 1000 ppm水溶液を用いた。いずれも溶媒は蒸留水であり濃度は重量濃度である。これらの溶液の粘性に関する物性値を表1に示す。高分子溶液は非ニュートン粘性を示すので、粘性にべき乗則を適用したときの構造粘度指数 n と凝塑性粘度 m を示してある。なお、この値はスクイーズ

ズ流れの実験のひずみ速度範囲に近い $10^2\ \text{s}^{-1}$ 近傍で求めたものである。また、すべての実験は溶液温度 $21\pm 1^\circ\text{C}$ で行われた。

3. 実験結果および考察

3.1 粘性により発生する荷重 粘性にべき乗則を適用し、潤滑近似を仮定したときの流体の粘性によりスクイーズ膜中に発生する荷重は既報⁽⁶⁾と同様の手順で求められる。そこで、ここでは結果のみを示すことにする。使用する記号を図2に示すように定めると荷重 F は次式で与えられる。

$$F = 2m\pi \left(\frac{2n+1}{n}\right)^n V^n \int_0^a r^{n+2} \left(\frac{1}{h}\right)^{2n+1} dr \quad \dots\dots\dots (1)$$

ここで V は定速運動時の球面の速度であり下向きの場合を正とした。実験値とこの式を数値積分した結果を比較し弾性による影響を検討する。

3.2 定速運動時の荷重変化 本実験で得られたおのおのの溶液に対する代表例を図3(a)~(c)に示す。横軸は運動開始からの時間であり、左の縦軸はロードセルにより得られた荷重(○印)であり、右の縦軸は球面の変位(破線)を示している。また、図3中実線は式(1)を表している。球面の変位はいずれの場合も運動開始直後と停止付近で直線からわずかにずれるが、その途中は定速運動が実現されているのがわかる。図3には球面の運動停止後の状態も示されており、この範囲でも変位のデータが徐々に減少しており完全に停止するまで2~3 μm程度変化している。これは球面が停止しても荷重が零になるまでロードセルの受感部のたわみが回復するためと考えられる。この領域

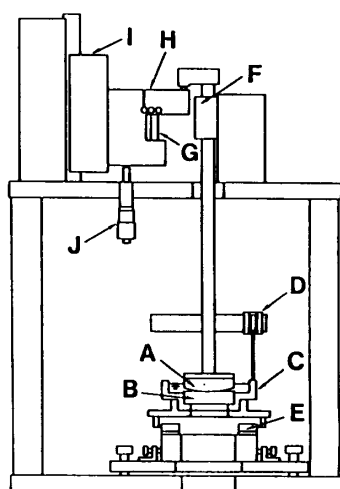


図1 実験装置主要部

表1 使用流体の粘性に関する物性値

Solution	n	m mPa·s ⁿ
Glycerin 50%	1.00	5.75
60%	1.00	10.31
PEO 500ppm	0.890	4.38
1000ppm	0.858	8.89
Separan 500ppm	0.526	93.3
1000ppm	0.477	203.0

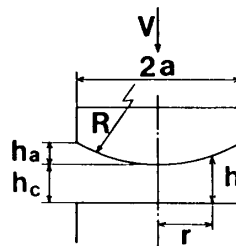
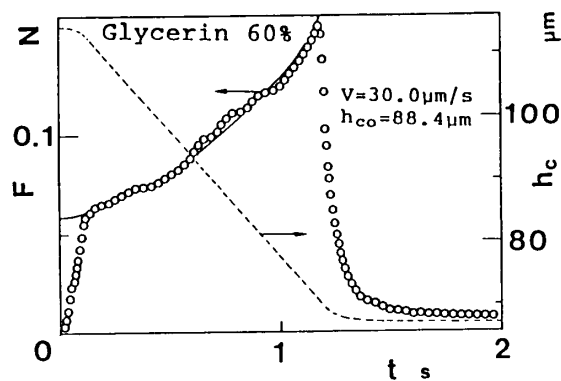


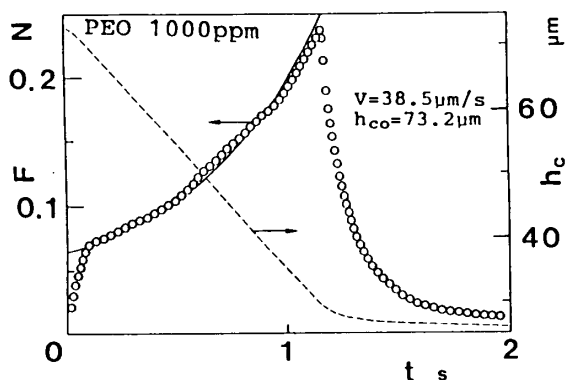
図2 球面平面部の概略図

については節を改めて述べることにする。

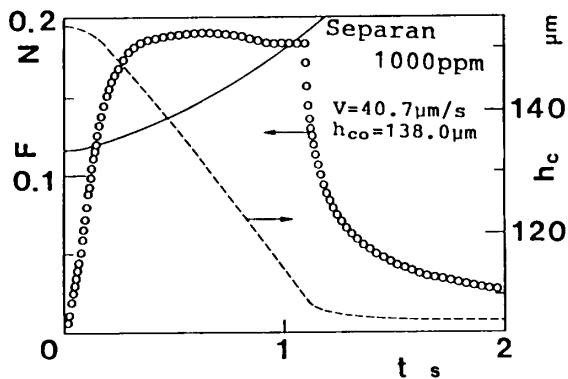
ここではおのこの溶液について定速運動時の荷重の変化を検討する。まず、グリセリン水溶液(a)では実験値は式(1)と一致しており、潤滑近似が妥当であることがわかる。データのうねりは微小な速度変動に対応した形で荷重の変化が現れたものである。次にPEO水溶液の結果(b)を検討する。この溶液は弾性的性質を有する高分子溶液として知られているが、この実験結果では式(1)の値とよく一致しており弾性の影



(a) グリセリン 60%



(b) PEO 1000 ppm



(c) Separan 1000 ppm

図3 球面の変位と荷重の変化

響はみられない。なお、この傾向は濃度にはよらず同じであった。一方、Separan水溶液(c)では荷重がいったんピークを持つオーバーシュート現象を示しているのがわかる。なお、Shirodkar⁽⁸⁾らの実験結果では後の図4に示すような粘性による荷重との比で表した場合オーバーシュートを示すが、図3(c)のような荷重自体のオーバーシュートはみられていない。この荷重の明確なオーバーシュートが現れる実験結果はいままでに報告されていないものである。

PEO水溶液とSeparan水溶液の実験結果の違いは既報⁽⁶⁾で示した単純せん断流におけるストレスオーバーシュート発生の有無の結果と対応している。既報でも述べたように定常粘弾性特性からだけではこのような違いを予想するのは難しく、スクイーズ流れの解析においては非定常粘弾性特性の検討が重要であることがわかる。

Separan水溶液のオーバーシュート後やPEO水溶液での荷重はほぼ式(1)の値を示すが、これより数%下回る場合が多くみられた。これが装置による誤差か溶液の特性によるものかは現時点では説明が困難である。しかし、これが溶液の特性であるとしても潤滑特性に対する影響はSeparan水溶液ではオーバーシュート現象のプラスの効果のほうが十分大きくその後のわずかな違いはあまり問題ではないと考えられる。

3.3 オーバシュート現象の検討 次にSeparan水溶液でみられたオーバーシュート現象を単純せん断流におけるストレスオーバーシュートとの比較から検討する。図4に荷重の測定値を式(1)の値で割った無次元化荷重 \bar{F} を時間に対して表した例を示す。 $\bar{F}=1$ が式(1)に相当する。このときのオーバーシュート量 \bar{F}_p とピークまでの時間 t_p を図4中に示すようにとる。なお、 t_p は運動開始時の速度の変化を考慮して図4に示すような補正をした値を用いた、このようにして得られた \bar{F}_p と t_p をべき乗則流体を仮定したときの $r=a$

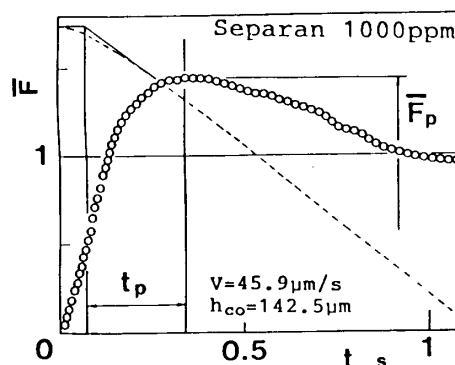


図4 実験値の粘性による荷重との比

におけるひずみ速度 $\dot{\gamma}_{a0}$ で整理した結果を図 5, 6 に示す。添字 0 は定速運動開始時の値であることを示す。なお、図 5, 6 中の記号による分類は速度の近似値で表したもので、実際の V はこの値に対し $\pm 2 \mu\text{m/s}$ 程度ばらつく。ここで $\dot{\gamma}_{a0}$ は次式で与えられるが、式中 V と h_{c0} は独立に変化する点に注意を要する。

$$\dot{\gamma}_{a0} = \frac{2n+1}{n} \cdot \frac{V \cdot a}{(h_{c0} + h_a)^2}$$

実際には、実験に球面平面を用いたことにより壁面でのひずみ速度が r に対し最大値を持つ分布を示す。一方、 F は式(1)で示される積分値であるので F を一つのひずみ速度で整理することは一般的にはできないと思われる。しかし、 F の算出に主要な範囲のひずみ速度は $\dot{\gamma}_{a0}$ と同程度と考えられるので単純せん断流

の結果と比較検討するためにもこの値で流れを代表させることによる。単純せん断流におけるオーバシュート量とそれに要する時間を表 2 に示す。ここには $\dot{\gamma}_{a0}$ に近い範囲の 2 とおりの結果を示してある。

図 5 と表 2 を比較して、まず、オーバシュート量に関して検討する。本実験結果ではオーバシュート量が 1.5 前後の値を示しているのに対し単純せん断流では 2 程度となっている。両者の値は一致しないけれども本実験では運動開始時に徐々に速度が増すため十分なオーバシュートが得られなかった可能性などを考えれば比較的近い値とみなせる。ここで特徴的なことは濃度が 1000 ppm の場合より 500 ppm のほうが図 5、表 2 とともにオーバシュート量が大きくなっている点である。これは \bar{F}_p が粘性力との比になっているため濃度を上げたときの粘性による増分より弾性による増分の割合が少なくなったためと考えられる。この結果は高分子溶液を潤滑剤として使う場合、単純に高分子濃度を上げて弾性効果の割合は増加せず適正な濃度を選ぶ必要があることを表しており興味深い。つぎにオーバシュートの最大値までの時間を検討する。図 6 では濃度の違いによる影響は少なく、その値は表 2 の単純せん断流による結果と同程度であることがわかる。

表 2 単純せん断流によるオーバシュート

	$\dot{\gamma}$ 1/s	$[\tau / \tau_{\infty}]_p$	t_p s
500ppm	50	1.97~1.99	0.26~0.28
	100	2.20~2.22	0.16~0.18
1000ppm	50	1.80~1.82	0.28~0.30
	100	2.08~2.10	0.18~0.20

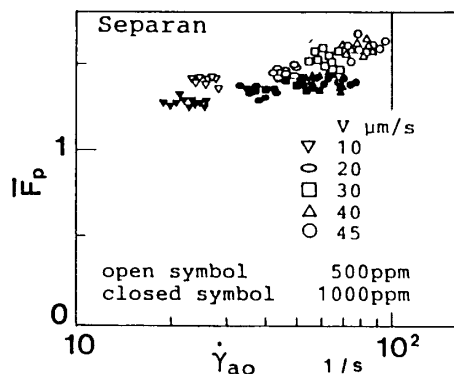


図 5 オーバシュートの最大値

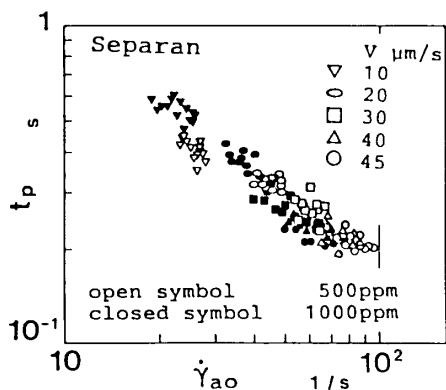


図 6 オーバシュートの最大値までの時間

これらの結果を総合すると、高分子の種類の違いによるオーバシュート発生の有無も含め、本実験への非定常粘弾性の影響は単純せん断流のスタートアップの結果からある程度は予測できることがわかる。換言すれば本実験に対する弾性の影響はせん断流におけるオーバシュートが支配的とみなせることになる。

3.4 球面の運動停止後の荷重の緩和 本実験では、3.1節で述べたとおり、球面の運動を停止させた後も 2 面のすきまは $2 \sim 3 \mu\text{m}$ 減少する。実際の潤滑においても 2 面が接近しその一部が障害物、粗さ、片あたりなどの原因で接触し、2 面の運動が見掛け上停止する場合は考えられる。このとき生体関節のように潤滑面が弾性を有する場合、接触していない他の部分は運動停止によるすきま内の流体圧力(応力)の減少により弾性回復し、すきまが減少することが予想される。この場合のモデルとして本実験における球面の運動停止後の状態をとらえ、以下に下方平面に取付けられたロードセル受感部の弾性回復を考慮して、荷重 F の減少量を求める。球面の運動停止時のすきまの減少速度を $-V$ とし、その後の任意の時間における速度を $\dot{h}_c (< 0)$ で表し、すきまの減少量を $\Delta h (= h_{ce} - h_c)$ 、荷重の減少量を $\Delta F (= F_e - F)$ とおくことにする。なお、添字 e は運動終了時を表している。また、ロードセル受感部のばね定数を $k [= 0.082 \text{ N}/\mu\text{m}$ (実測値)]

とすると、 $\Delta F = k\Delta h$ より

$$F_e - F = k(h_{ce} - h_c) \dots\dots\dots (2)$$

となる、ここに示した変数を用いると式(1)は次のように変形される。

$$F = 2m\pi \left(\frac{2n+1}{n}\right)^n (-\dot{h}_c)^n \times \int_0^a r^{n+2} \left(\frac{1}{h_{ce} - \Delta h + r^2/2R}\right)^{2n+1} dr \dots (3)$$

Δh が h_{ce} と比較して十分小さい場合 ($\Delta h \ll h_{ce}$) は上の積分が一定とみなせ、

$$F = A(-\dot{h}_c)^n \dots\dots\dots (4)$$

$$A = 2m\pi \left(\frac{2n+1}{n}\right)^n \int_0^a r^{n+2} \left(\frac{1}{h_{ce} + r^2/2R}\right)^{2n+1} dr$$

となり、これより次式を得る。

$$F_e - F = A\{V^n - (-\dot{h}_c)^n\} \dots\dots\dots (5)$$

式(2)と式(5)から F と運動終了時からの時間 $t'(=t-t_e)$ の関係を求めると次式を得る。

$$F = AV \cdot \exp(-kt'/A) \quad (n=1)$$

$$F = AV^n \left\{ \frac{kt'}{AV^{n-1}} \left(\frac{1-n}{n}\right) + 1 \right\}^{-\frac{n}{1-n}} \quad (n \neq 1)$$

$$\dots\dots\dots (6)$$

図7(a)~(c)に球面の運動停止時からの荷重変化の代表例を示してある。図7中の実線は式(6)を表している。グリセリン水溶液 [図7(a)] では式(6)の値が実験値に比べ後半やや低めになる傾向がみられる。これは $\Delta h \ll h_{ce}$ とみなし A を一定として計算したが、実際には Δh の増加とともにその影響が現れたためと考えられる。しかし、この場合でも荷重が急激に減少する範囲を式(6)で近似できることがわかる。図7中の破線は各瞬間における h_c と \dot{h}_c の実測値を式(3)に代入して F を求めた結果であり、実験値とよく一致していることがわかる。このことは荷重の減少が粘

性応力だけによることを表す。なお、図7中の一点鎖線は F に対する Δh の影響の度合をみるために、定速スクイーズ運動を h_{ce} より $\Delta h_{Fe} (=F_e/k)$ だけ低い位置で止めた場合を想定し計算した結果である。図7(a)では実線と一点鎖線は大きく違ってない。一方、PEO水溶液 [図7(b)] では実験結果と式(6)との差が図7(a)の場合より大きく現れている。これは h_{ce} が小さいのに対し F_e が大きい (Δh が大きい) ためと考えられる。すなわち、 $\Delta h_{Fe}/h_{ce}$ の値の値が図7(a)では0.03、図7(b)では0.10であるから、式(6)の導出過程中 $\Delta h \ll h_{ce}$ とした仮定が図7(b)では早期に成立しなくなったためと考えられる。以上のことは図7(b)における実線と一点鎖線の差が図7(a)の場合よりも大きいことから確認できる。しかし、破線と実験結果はほぼ一致しており弾性の影響はないことがわかる。一方、Separan水溶液 [図7(c)] では式(6)の計算値および破線は実験値よりかなり下回っており、弾性の影響が現れていることがわかる。

次に弾性の効果と V などの実験条件との関連を定量的に把握するため図7に示すように F_e が $1/2$ に減少するまでの時間 $t_{Fe/2}$ を定義する。式(6)において $F = F_e/2$ と置き、 $t_{Fe/2}$ を無次元化した形で整理すると、

$$\frac{t_{Fe/2} \cdot V}{h_{ce}} = \log(2) \cdot \frac{F_e}{kh_{ce}} \quad (n=1)$$

$$\frac{t_{Fe/2} \cdot V}{h_{ce}} = \frac{n}{1-n} (2^{(1-n)/n} - 1) \cdot \frac{F_e}{kh_{ce}} \quad (n \neq 1) \dots\dots\dots (7)$$

となる。なお、 $n \rightarrow 1$ の極限では両式は等しくなる。縦軸に左辺、横軸に右辺をとり、各溶液ごとにまとめた結果を図8(a)~(c)に示す。なお、式(7)は図8(a)の図に示したような傾き1の直線となる。まず、グリ

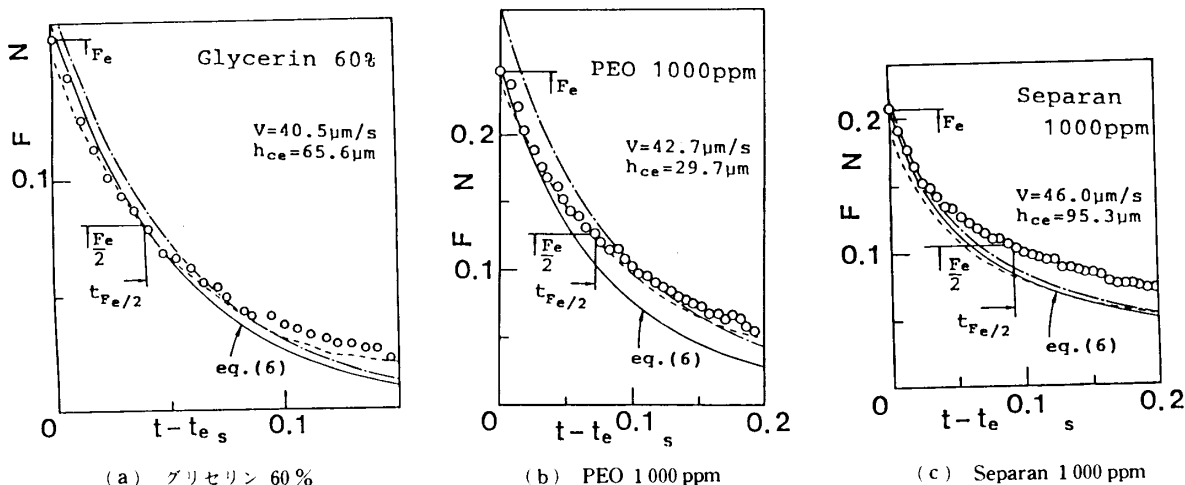
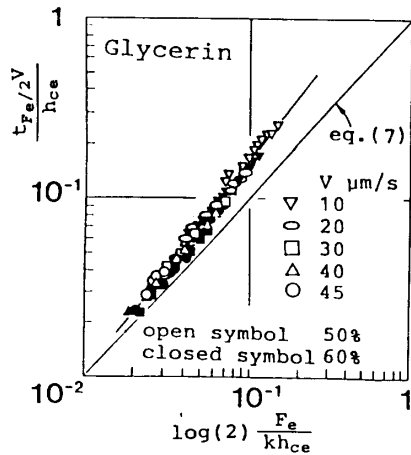
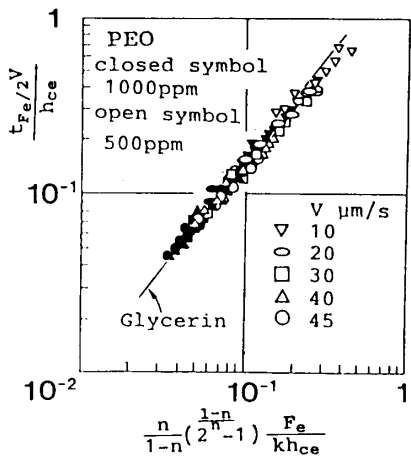


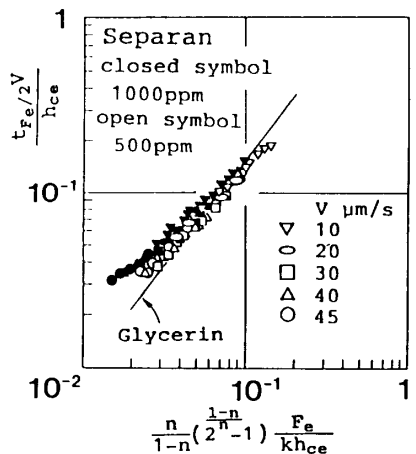
図7 球面の運動停止後の荷重変化



(a) グリセリン水溶液



(b) PEO 水溶液



(c) Separan 水溶液

図 8 荷重緩和時間

セリン水溶液の結果 [図 8 (a)] について、式 (7) の左辺で表した実験結果は式 (7) のより大きな値を示しているが、粘度、速度によらず式 (7) の右辺で整理され、

かつ、1本の直線で近似させるのがわかる。式 (7) と実験値との違いは式導出の過程で h_{ce} に比し Δh を小さいとして省略したことによるものと考えられる。この影響は V の小さい場合に著しく、例えば V が $10 \mu\text{m/s}$ の場合には $\Delta h_{Fe/2}/h_{ce} = 0.05 \sim 0.15$ である。次に PEO 水溶液の実験結果 [図 8 (b)] は直線で表したグリセリン水溶液の結果とよく一致しており、本実験条件下での F の減少は非ニュートン粘性が生じてもそれを含む粘性のみを考慮することにより説明できることがわかる。一方、Separan 水溶液 [図 8 (c)] では V が大きくなるとグリセリン水溶液の結果からはずれて $t_{Fe/2}$ が大きな値を示し、その傾向は濃度が高いほど顕著に現れている。しかし、 V が小さい場合には他の溶液の結果と一致しており弾性の効果はみられない。この場合に V の影響が現れている点を考えると、これはスクイズ流れが停止した(急激に遅くなった)ため応力緩和効果の影響が現れたものとみなせる。このように押付け運動がその後微小運動に変化する場合、Separan 水溶液では押付け時の履歴によりその後も荷重保持力が大きく保たれ 2 面の接近を阻止する効果があることがわかる。

4. 結 論

曲率半径の大きい球面を平面に一定速度で押付けるときに生ずるスクイズ流れの場にグリセリン水溶液と高分子溶液を用いて運動時および運動停止後の流体により生ずる荷重の変化を実験的に求めた結果、次の点が明らかになった。

(1) グリセリンと PEO 水溶液では定速運動時および定速運動終了後のいずれの場合も荷重に弾性の効果は現れず、荷重曲線は粘性のみを考慮してスクイズ流れの仮定ともとで解析を行った結果と概略一致した。

(2) Separan 水溶液では定速運動開始時に荷重のオーバーシュート現象が確認され、粘性による値との比で示したオーバーシュート量は 1.5 程度に達した。ただしこの値の大小は濃度の高低とは一致しない。また、これらの結果は単純せん断流のストレスオーバーシュートの実験結果とほぼ対応することを見いだした。

(3) 定速運動終了後の荷重変化を微小運動を考慮して検討した結果、Separan 水溶液では粘性のみを考慮した場合より荷重の減少が遅くなることがわかった。その傾向は定速運動時の速度が早い場合に大きく現れており、応力緩和効果の影響と考えられる。

終わりに本研究の一部は昭和 63 年度科学研究費によったことを付記し合せて謝意を表す。

文 献

- (1) Leider, P. J. and Bird, R. B., *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, **13**-4(1974), 336.
 - (2) Grimm, R. J., *AIChE J.*, **24**-3(1978), 427.
 - (3) Brindley, G., Davies, J. M. and Walters, K., *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **1**(1976), 19.
 - (4) McClelland, M. A. and Finlayson, B. A., *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **13**(1983), 181.
 - (5) Phan-Thien, N., Sugeng, F. and Tanner, R. I., *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **24**(1987), 97.
 - (6) 鳴海・細川・長谷川, 機論, **55**-520, B (1989), 3691.
 - (7) Tichy, J. A. and Winer, W. O., *Trans. ASME, J. Lubr. Technol.*, **100**(1978), 56.
 - (8) Shirodkar, P. and Middleman, S., *J. Rheol.*, **26**(1982), 1.
-