

## 希薄高分子溶液の逆スクイズ流れに関する実験的研究\*

(第1報, ニュートン粘性を示す流体)

鳴海敬倫<sup>\*1</sup>, 細川喜弘<sup>\*2</sup>, 長谷川富市<sup>\*1</sup>

Experiments of the Reverse Squeezing Flow of Dilute Polymer Solutions

(1st Report, Fluids with Newtonian Viscosity)

Takatsune NARUMI, Yoshihiro HOSOKAWA, and Tomiichi HASEGAWA

The reverse squeezing flow of dilute polymer solutions has been studied utilizing a flat plate and a spherical surface of a large radius of curvature. In this experiment, both surfaces are forced to separate by applying constant forces from a stationary and contacting state. All the liquids used are Newtonian in viscosity. The following points are found by comparing the results of inelastic liquids and viscoelastic liquid. In the case of the viscoelastic liquid, the surfaces separate from each other much more slowly than in the case of the inelastic liquid. This trend is clearly shown when the separation is small. The results predicted by the theory of inelastic fluids with the assumption of the quasi-steady state agree well with the experimental results. The same assumption, however, cannot explain the slow separation effect because of a small contribution of elastic terms.

Key Words: Reverse Squeezing Flow, Squeezing Flow, Dilute Polymer Solution, Viscoelastic Fluid, Experimental Study

## 1. 緒言

接近する二物体間にはさまれた流体の流れ, すなわち, スクイズ流れの解析は潤滑などの問題と関連し, 工業上重要な課題となっている. 特に粘弾性流体をスクイズ流れに用いた場合, 弾性の寄与により潤滑性能の改善がなされる可能性があり, その流動状態の解明が望まれている. また, 理論的立場からもスクイズ流れは伸張, せん断および非定常性を有する流れとして粘弾性流体の構成方程式の検討には興味深い流動場である. このような見地から現在までに粘弾性流体に対するスクイズ流れの実験的ならびに理論的研究がなされている<sup>(1)~(3)</sup>. しかしながら, そのほとんどは比較的高濃度の高分子溶液を用いた平行平板間の押し付け運動を扱ったものである. 代表的な実験結果として一定荷重下の押し付け運動を扱ったBrindleyら<sup>(3)</sup>の結論を引用すれば以下のようにまとめられる. 1) 低

荷重下における流体の挙動は粘性のみを考慮して説明できる. 2) 高荷重にさらされるスクイズ流れでは粘弾性の影響が明確に現れ, よりよい潤滑剤としてふるまう. すなわち, 弾性のない同じ粘性の流体よりも平行平板間の隙間の減少が遅くなる. 3) さらに高荷重のもとではね返り現象がみられる. このような実験結果に対し理論的な解析を加えようとする試みが行われてきており, 各種の構成方程式が用いられてきた. しかし, 多くの場合上記 2)の実験結果と反する結論が得られるなど, 現在に至るまで決定的な解析は導かれていない.

一方, 潤滑特性を考察する場合, 押し付けに引き続いて生ずる二面の引き離しによる影響も重要である. しかし, この逆スクイズ流れに関する研究は非常に少なく, 筆者の知るところOliverら<sup>(4)</sup>およびAvilaら<sup>(5)</sup>による報告がみられる程度である. 後者によれば運動全般では二面は弾性を考慮しない理論より遅く離される結果が得られている. すなわち潤滑特性の改良にはならない結果となっている. ただ, わずかな距離ではあるが運動初期に急速に離れる特異な挙動がみられている.

\* 昭和63年11月11日 北陸信越支部北陸地方講演会において講演, 原稿受付 昭和63年5月25日.

<sup>\*1</sup> 正員, 新潟大学工学部(〒950-21 新潟市五十嵐2の町8050).

<sup>\*2</sup> 准員, 住友スリーエム(株)(〒229 相模原市南橋本3-8-8).

本研究では実験的にも理論的にも研究例の少ない逆スクイズ流れに注目し、その挙動を実験的に明らかにすると共に理論解析に対する基礎データを与えることを目的としている。逆スクイズ流れを発生させる場としては、曲率半径の十分大きい球面と平面を接触させた状態から一定荷重で引き離す運動を用いる。

本報で使用する流体はニュートン流体として水およびグリセリン水溶液、粘弾性流体としてPEO 100ppm程度の希薄高分子溶液である。従来、この程度の高分子溶液はスクイズ流れのもとで弾性の効果が生じないされている<sup>(6)</sup>、逆スクイズ流れに関する本実験では粘性流体と異なる挙動がみられた。また、このような希薄高分子溶液はニュートン粘性を有し、解析が容易であるというばかりでなく、同粘度のニュートン流体と直接比較できるという利点がある。

## 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直径40mmの光学ガラス平板(A)で図のようにアクリル製の液槽(C)と一体となっている。球面(B)には同一直径で曲率半径 $R=1.00, 2.00, 3.00\text{m}$ の3種類の凸レンズを用いた。この凸レンズはサポーターを介しリニアベアリング(E)により支持されているシャフトに接続されており、上下運

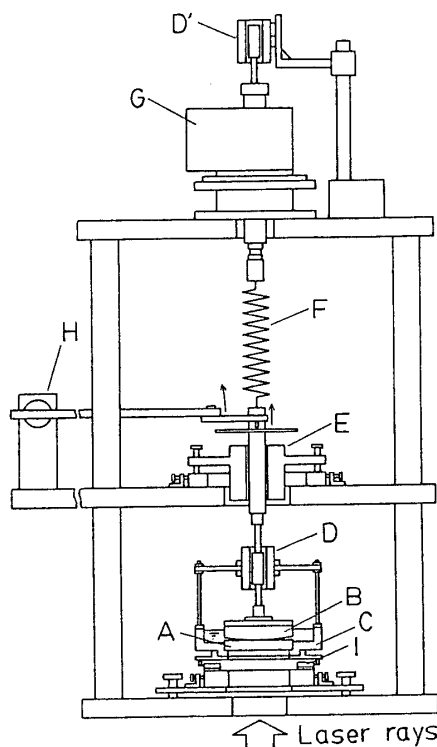


図1 実験装置

動可能である。そしてシャフトの上端にはバネ(F)が接続されている。バネの長さは上部のステッピングリニアモーター(G)および変位計(D')により精密に調整することができる。運動開始前の凸レンズと平面の接触を確実にするために精密天秤を改造したストッパー(H)が取り付けられており、これによりシャフトが下方方向に押し付けられる。また、実験時の球面の変位および平面に伝達される荷重を測定するために変位計(D)とロードセル(I)が図の位置に取り付けられており、これらはいずれもパーソナルコンピュータに接続されている。さらに接触状態の確認、微小変位の光学的測定のために装置下方に光学系装置が設置されており、ガラス平面をHe-Neレーザーの平行光が照射するようになっている。

実験では、まず球面平面間に生ずるレーザー光の干渉縞(ニュートンリング)を確認しながら二面が中心で接するように調節し、ストッパーで確実に接触させる。つぎに運動開始前は下方方向に約0.5N、ストッパー切り離し後は所定の上方向の引き離し荷重(約0.3~1.2N)が加わるようにバネの長さやストッパーの押し付け荷重を調節し充分安定させる。その後ストッパーを瞬間的に引き上げることで運動を開始させ、その後の変位および伝達荷重を変位計、ロードセルにより測定する。なお、変位計の分解能以下の運動初期の変位はニュートンリングの動きを装置下方に設置した高速度カメラにより撮影し、その像を解析することにより求めた。

**2.2 使用流体** 実験には蒸留水(0.957mPa·s)、グリセリン14%(1.41mPa·s)、30%(2.33mPa·s)水溶液(重量濃度)およびPoly-ethylene oxide (PEO-18:製鉄化学社製)の100ppm(1.16mPa·s)、200ppm(1.37mPa·s)水溶液(重量濃度)を用いた。いずれの場合も $21\pm 1^\circ\text{C}$ の範囲で実験を行い、この条件下ではどの溶液もニュートン粘性(上記括弧内)を示すことを細管粘度計により確認した。なお、PEO水溶液は流動による高分子劣化の影響を除くため繰り返し使用することを避けた。

## 3. 実験結果および考察

**3.1 ニュートン流体に関する解析** まず、実験値との比較を行うため弾性を考慮にいない場合の解析を行う。図2のような円柱座標系を用い、 $a, R, h_a, h_0(t)$ および $h$ を図中に示す諸量として定義する。なお、諸量には図の下に示すような関係がある。 $h_0(t)$ は時間の関数であることを示したものであるが、以後省略して $h_0$ と表す。通常の潤滑問題でな

れるように(7), 流れは軸対称の十分狭い隙間内にあると考え, かつ球面の運動は遅く準定常流れとする。これにより  $r, z$  方向の運動方程式は,

$$0 = \frac{\partial S_{rr}}{\partial r} + \frac{\partial S_{zz}}{\partial z} + \frac{S_{rr} - S_{\theta\theta}}{r} \quad \dots\dots\dots (1)$$

$$0 = \frac{\partial S_{rz}}{\partial r} + \frac{\partial S_{zz}}{\partial z} + \frac{S_{rz}}{r} \quad \dots\dots\dots (2)$$

となる。  $S_{rz}$  などは応力テンソルの物理成分である。また、速度場として

$v_r = v_r(r, z), v_\theta = 0, v_z = v_z(r, z)$  と考え運動方程式に代入,  $r \gg z$  としてオーダー比較(潤滑近似)を行うと上式は次のようになる。

$$0 = -\frac{\partial p}{\partial r} + \eta \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$0 = -\frac{\partial p}{\partial z} \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで  $p$  は等方圧力,  $\eta$  は粘性係数である。これらの式は  $v_r \gg v_z$  のため結果的に  $v_z$  を考慮しない場合と同じになっている。式(3)を  $z$  に関して積分し, 境界条件を与えると  $v_r$  は

$$v_r = \frac{1}{2\eta} \frac{\partial p}{\partial r} (z^2 - hz) \quad \dots\dots\dots (5)$$

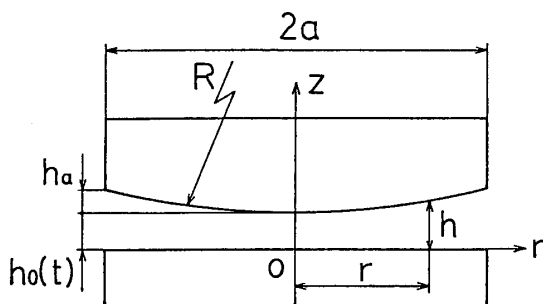
となる。また連続の式より

$$2\pi r \int_0^h v_r dz = -\pi r^2 \dot{h}_0 \quad \dots\dots\dots (6)$$

であり, この式に式(5)を代入すると

$$\frac{dp}{dr} = \frac{6\eta r \dot{h}_0}{h^3} \quad \dots\dots\dots (7)$$

となる。ここでは後の考察のため運動方程式から導いたが, 式(7)は一般に潤滑問題としてレイノルズ方程式(8)から導かれる結果と同じである。ここで境界条件として  $r = a, h = h_0 + h_a$  で  $p = 0$  (大気圧)



$$h_a = \frac{a^2}{2R}, h = h_0(t) + \frac{r^2}{2R}, \dot{h}_0 = \frac{dh_0}{dt}$$

図2 座標および諸量

を与え積分すると

$$p = -3\eta R \dot{h}_0 \left\{ \frac{1}{h^2} - \frac{1}{(h_0 + h_a)^2} \right\} \quad \dots\dots\dots (8)$$

となる。特に平板上では  $z$  方向の偏差応力成分  $\tau_{zz}$  はゼロであり, また他の位置でも  $\tau_{zz}$  は十分小さいので, 球面および平面に伝わる流体力  $F$  は次のようになる。

$$F = -\frac{3\pi\eta a^4 \dot{h}_0}{2h_a^2} \left\{ \frac{h_a}{(h_0 + h_a)^2} - \frac{1}{h_0} + \frac{1}{h_0 + h_a} \right\} \quad \dots\dots\dots (9)$$

ここで  $h_0 = h_a/2$  の時, 時間が  $t = t_{\text{st}}$  であるとして式(9)の速度  $\dot{h}_0$  を時間で積分すると次のようになる。

$$\frac{2h_a^2 F}{3\pi\eta a^4} (t - t_{\text{st}}) = \frac{h_a}{h_0 + h_a} + \log \frac{3h_0}{h_0 + h_a} - \frac{2}{3} \quad \dots\dots\dots (10)$$

3.2 実験結果 図3に変位計およびロードセルにより得られたデータの一例を示す。左右の縦軸が各々平面に伝達される荷重, 球面の変位であり, 時間軸(横軸)に対して描かれている。荷重は引き離し力をプラスとしてある。この図からわかるように瞬間的に引き離し荷重が加えられた後, その荷重は一定値を保ち変位が十分に離れて測定範囲を越えてからから急速に0に近づく。よって本実験は一定荷重下における運動と見なすことができる。なお, この点は全ての場合に共通であった。

つぎに運動開始からの時間  $t$  と中心変位  $h_0$  の関係を検討してみる。その一例として図4, 5にほぼ粘性の等しいグリセリン14%水溶液とPEO200ppm水溶液の結果を示す。これらは  $R = 2.00\text{m}, F = 0.6\text{N}$  の場合であり, 図中白丸は変位計, 黒丸は光学干渉縞による測定値である。実線は式(10)を表し, 実験値と解析値は  $h_0 = h_a/2$  (図中矢印)で一致させてある。

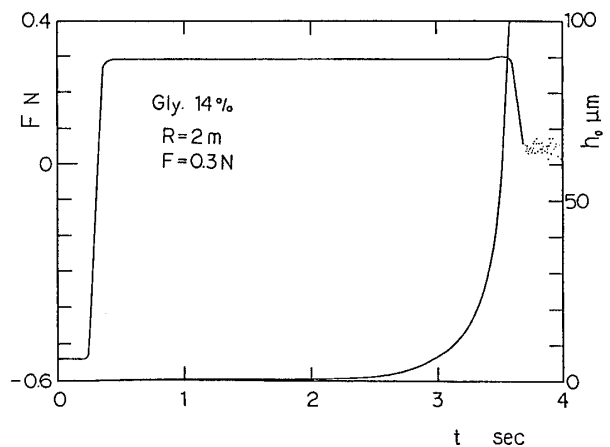


図3 伝達荷重と変位の時間変化

グリセリン14% [図4]では $h_0$ の値が $0.1\mu\text{m}$ 付近から解析値と一致しているのがわかる。変位計による測定値が $1\mu\text{m}$ 以下でずれているのは変位計の取り付け精度などによる誤差と考えられる。この部分のデータは以後の計算には含めていない。これに対しPEO 200ppm [図5]では粘度はグリセリン14%とほぼ同じであるのに測定値と理論値は一致せず $h_0 = h_a/2$ で

交差している。また、運動全体に要する時間もPEO 200ppmの方が長くなっている。

3.3 無次元量による検討 前節で行った式(10)を用いた比較検討では一般性が乏しいため次のような無次元化を考える。

$$p^* = \frac{p \cdot \pi a^2}{F}, \quad r^* = \frac{r}{a}, \quad h_0^* = \frac{h_0}{h_a}$$

と置き、式(7)を無次元表示するように $h_0$ の無次元量を定めると次のようになる。

$$\dot{h}_0^* = 6 \cdot \frac{\eta \cdot \pi a^2}{F \cdot h_a} \cdot \frac{a^2}{h_a^2} \cdot h_0$$

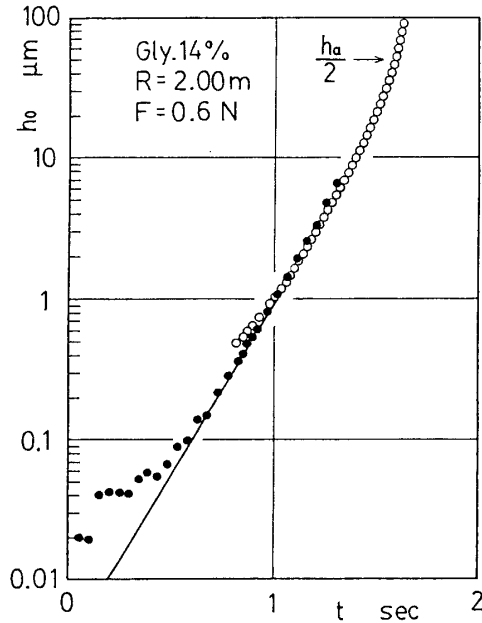


図4 中心変位の時間変化 グリセリン14%

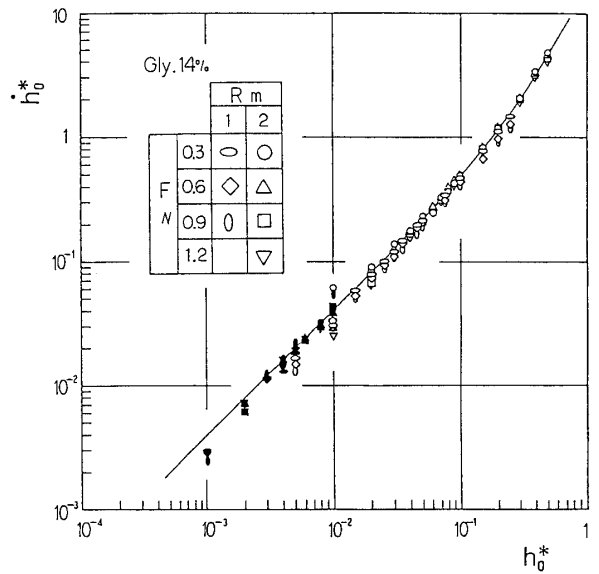


図6 変位と速度の関係 グリセリン14%

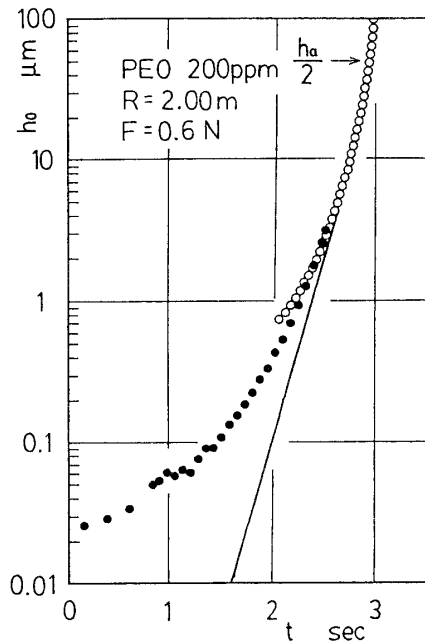


図5 中心変位の時間変化 PEO200ppm

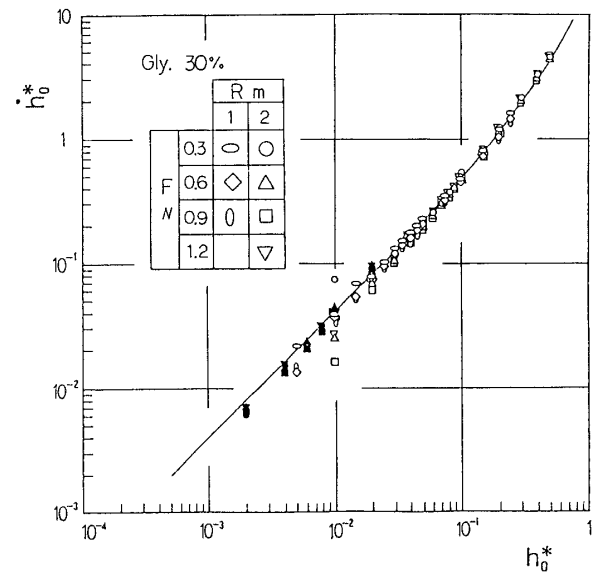


図7 変位と速度の関係 グリセリン30%

これにより式(9)も無次元化され

$$\dot{h}_0^* = -4 \left/ \left\{ \frac{1}{(h_0^*+1)^2} - \frac{1}{h_0^*} + \frac{1}{h_0^*+1} \right\} \right. \quad \dots\dots\dots (11)$$

となる。

そこで実験データから球面上昇速度を算出し、変位に対して各々無次元量で整理してみた。その結果を図6～図9に示す。いずれも横軸が  $h_0^*$ 、縦軸が  $\dot{h}_0^*$  である。各図の表中に示してある記号(○□△▽)は変位計により測定された結果、それと反転してある記号(●■▲▽)は干渉縞による測定結果から算出したものである。実線は式(11)を示す。グリセリン水溶液の結果はどの場合も式(11)とよく一致しており、3・1節での仮定の妥当性がうかがえる。また、紙面の都合でここでは示さないが蒸留水を用いた結果もまったく同様であった。これに対し図8、9に示すようにPEO水溶液の  $\dot{h}_0^*$  は運動初期の隙間が狭い範囲でニュートン流体の解析値より小さくなっており、 $h_0^*$  が大きくなるにしたがい徐々にニュートン流体の結果に近づいているのがわかる。また、荷重、曲率半径などの違いは  $\dot{h}_0^*$  にほとんど影響を与えないが、濃度の影響(すなわち弾性的特性の違い)が現れているのがわかる。

3・4 弾性力の寄与について つぎにニュートン流体の解析で用いた仮定のもとで粘弾性流体の構成方程式を用いた場合、どの程度弾性の効果が期待できるかを検討してみる。構成方程式としては比較的取り扱いが容易なDennモデル(B)を用いることとする。このモデルは

$$\tau_{ij} = 2m \{ 4|\Pi_{e1}| \}^{\frac{n-1}{2}} e_{ij} - 2m\lambda \{ 4|\Pi_{e1}| \}^{\frac{s-1}{2}} \frac{\delta e_{ij}}{\delta t} \quad \dots\dots\dots (12)$$

の様に書ける<sup>(9)</sup>。  $e_{ij}$  はひずみ速度テンソル、  $|\Pi_{e1}|$  はひずみ速度テンソルの第2不変量、  $\delta/\delta t$  は対流微分(オールドロイド微分)、  $n, m, \lambda, s$  は物質定数である。本報中の溶液は  $n=1$  であり、したがって  $m$  は粘性係数  $\eta$  となる。これにより上式はセカンドオーダー流体の構成方程式において第2法線応力差に関する係数を0としたものと同様となる。また、簡略化のため  $s=2$  とする。PEO200ppmでは  $s=1.8$  前後の値を示しており<sup>(10)</sup>、これに近い場合を想定したことになる。この条件で式(12)を計算し、運動方程式(1)に代入すると  $r$  方向では次のようになる。

$$0 = -\frac{\partial p}{\partial r} + \eta \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} + \eta \lambda \left\{ 4 \frac{\partial v_r}{\partial z} \frac{\partial^2 v_r}{\partial r \partial z} - v_r \frac{\partial^3 v_r}{\partial r \partial z^2} - v_z \frac{\partial^3 v_r}{\partial z^3} + 2 \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} \frac{\partial v_z}{\partial z} + \frac{\partial v_r}{\partial r} \frac{\partial^2 v_r}{\partial z^2} - 3 \frac{\partial v_r}{\partial z} \frac{\partial^2 v_z}{\partial z^2} + \frac{2}{r} \left( \frac{\partial v_r}{\partial z} \right)^2 \right\} \quad \dots\dots\dots (13)$$

ここで上式の各項および導出過程におけるオーダーを考えてみる。  $V$  を  $v_r$  の代表速度とし、  $r, z$  のオーダーを各々  $a, h_a$  で代表すれば、(  $\because a \gg h_a$  )  
 $v_r = O(V), v_z = O(h_0) = O(V \cdot h_a / a)$   
 となる。また、本報中のPEO水溶液の  $\lambda$  の実際の値は  $10^{-2} \sim 10^{-3}$  (sec) であるので<sup>(10)</sup> 本実験では  $\lambda = O(h_a / v_r) = O(h_a / V)$  と考えて差し支えない。その結果、式(13)で2項目

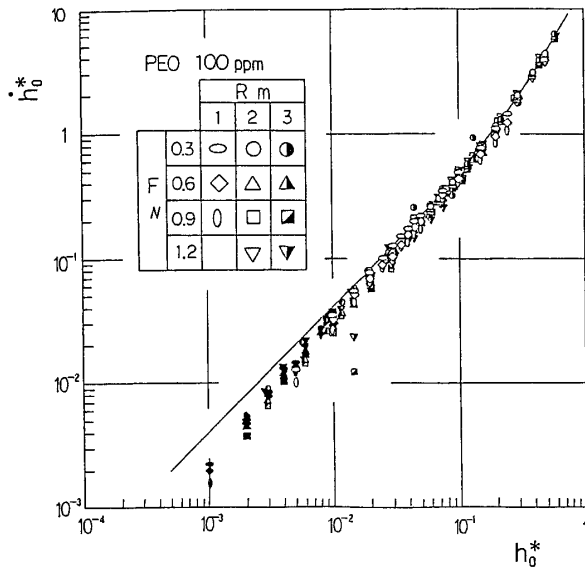


図8 変位と速度の関係 PEO100ppm

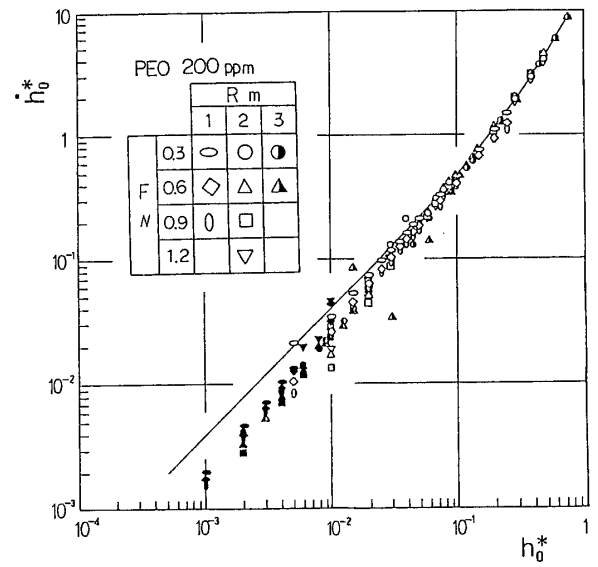


図9 変位と速度の関係 PEO200ppm

以降 $\eta$ は共通であるので除いて考えると、粘性に関する項のオーダーは $O(V/h_a^2)$ であり、弾性に関する項( $\lambda$ の掛かった項)は $O\{V/(a \cdot h_a)\}$ となる。すなわち、弾性に関する項による寄与は粘性による寄与より $O(h_a/a)$ だけ小さいことになる。なお、 $O(V/a^2)$ 以下の項が導出過程で省略されている。一方、ニュートン流体の解析において $z$ 方向の運動方程式(2)から式(4)を導く段階で潤滑近似として $\partial p/\partial z=0$ としたことは、たとえば

$$\frac{1}{r} \frac{\partial v_r}{\partial z} = O\left(\frac{V}{a \cdot h_a}\right) \quad (\because \eta \text{ は省略してある})$$

などの項をすでに無視していることになる。この近似でニュートン流体の実験結果が解析値とよく一致している点を考えると、式(13)における弾性に関する項の寄与はほとんど期待できないものと考えられる。実際、任意の $r$ における流速をその場所の $h$ と同じ隙間を持つ平行平板間の速度分布で近似し、 $\lambda$ に関する摂動法を用いてこの運動方程式を解いてみたが、ニュートン流体の解とほとんど一致する結果を得た<sup>(11)</sup>。

この解析が実験結果を説明できない原因として次のような点があげられる。まず、構成方程式の選定の不適切さの問題が考えられる。しかし、他の多くの構成方程式においても弾性の項の寄与は微小量 $\lambda$ に依存することが予想され、同じ仮定の元で解いても顕著な違いは期待できないと考えられる。つぎにその準定常近似の仮定の問題が考えられる。一般にスクイズ流れでは二面が静止した状態から運動を開始するためその運動開始時に流体は不連続な履歴を受ける。この点に関しては本実験でも同様である。このため、弾性の効果を考える場合ストレスオーバーシュート等の非定常現象が影響する可能性がある。Phan-Thienらはストレスオーバーシュートを考慮した構成方程式を用いスクイズ流れを解析し、弾性の寄与は運動初期のストレスオーバーシュートの影響が主でありその後の流動の影響は少ないことを示している<sup>(12)</sup>。また、上記の解析では流れの場はせん断流が支配的となっているが、運動初期では非常に狭いすきまに瞬間的に荷重が加えられるため伸張的な流れの場が形成されている可能性も考えられる。今後、これらの点に関して検討を進めていく必要があると思われる。

#### 4. 結 言

球面平面間の一定荷重下での逆スクイズ流れの場に希薄高分子溶液を用いて実験を行い、その球面の変位を検討した結果次の点が明らかになった。

(1) 通常のスクイズ流れの実験では弾性の影響がみられない程度の希薄高分子溶液、かつ低荷重下の運動でも二面の分離速度がニュートン流体に比較して遅くなる現象がみられた。そしてその傾向は特に運動初期に大きく現れた。

(2) ニュートン流体の運動を整理し得る同じ無次元数で希薄高分子溶液の結果も整理され、溶液濃度の違い(弾性的特性の違い)が現れた。

(3) ニュートン流体の結果は準定常の仮定を用いた解析とよく一致するが、同じ仮定の元では希薄高分子溶液の結果を十分に説明ができない可能性が高い。

終わりに、本研究に助力いただいた日本IBM(株)の山科昌之氏、いすゞ自動車(株)の菊地学氏(当時、新潟大学学生)らに対し深く感謝いたします。また、本研究の一部は昭和61年度の科学研究費によったことを付記し謝意を表します。

#### 文 献

- (1) Grimm, R.J., AICHE J., 24(3) (1978), 427.
- (2) Phan-Thien, N. and Tanner, R.I., J. Fluid Mech., 129 (1983), 265.
- (3) Brindley, G., Davies, J.M. and Walters, K., J. Non-Newtonian Fluid Mech., 1 (1976), 19.
- (4) Oliver, D.R. and Shahidullah, M., J. Non-Newtonian Fluid Mech., 15 (1984), 331.
- (5) Avila, F. and Binding, D.M., J. Non-Newtonian Fluid Mech., 11 (1982), 111.
- (6) McClelland, M.A. and Finlayson, B.A., J. Non-Newtonian Fluid Mech., 13 (1983), 181.
- (7) Cameron, A., Principle of Lubrication, (1966), 49, Longmans.
- (8) Cameron, A., Principle of Lubrication, (1966), 392, Longmans.
- (9) 富田, レオロジー, (昭50), 178, コロナ社.
- (10) 鳴海・長谷川・細川, 機論, 53-496, B (昭62), 3504.
- (11) 細川, 修論, (昭62), 93, 新潟大学.
- (12) Phan-Thien, N., Sugeng, F. and Tanner, R.I., J. Non-Newtonian Fluid Mech., 24 (1987), 97.