

## 希薄高分子溶液の伸張流に関する研究\* (オリフィス流の圧力降下を利用した伸張応力の算定)

福 富 清\*<sup>1</sup>, 長谷川 富 市\*<sup>2</sup>

### A Study of The Elongational Flow of Dilute Polymer Solutions (Estimation of The Elongational Stresses by Utilizing Pressure Drops with Drifice Flows)

Kiyoshi FUKUTOMI and Tomiichi HASEGAWA

By assuming a uniformly converging radial flow on the upstream side of an orifice and integrating the equation of motion, an expression was derived to estimate elongational stresses for dilute polymer solutions at the orifice exit from pressure drops between the upstream and downstream of the orifice. The expression shown that the dilute polymer solutions usually give lower values of pressure drop than the solvent (water) does. An experiment was carried out to obtain the pressure drops for the orifice flow of water and dilute polyethylené oxide (PEO)-water solutions. It was confirmed that the dilute PEO solutions yield lower pressure drops than water and the elongational stresses were estimated by the above-mentioned relation. The estimated elongational stresses broadly agreed with the ones previously obtained by a jet thrust method.

**Key Words:** Elongational Flow, Dilute Polymer Solution, Elongational Stress, Pressure Drop

#### 1. 緒 論

小孔や細げきを通過する流れや急縮小、急拡大を受ける流れは、細管粘度計や汙過膜、樹脂の射出成形、生命工学における血液流<sup>(1)</sup>などに関連して重要である。また、流体の小孔を通過する流れの伸張応力に関する研究はさまざまな高分子溶液、融液のレオロジーの性質を調べ、構成方程式を検討するという点においても有用である。従来、オリフィス通過流れを利用して伸張応力を実験的に得る方法に、流出するジェット反力を利用する方法、通過時の圧力損失から求める方法がある。著者らは前報において、希薄高分子溶液がオリフィスを通過する際の流れで比較的レイノルズ数が大きい場合でオリフィス上流側にうずを生じない流動場について、流出ジェットの反力から伸張応力を算定する方法を提案した<sup>(2)</sup>。しかし、ジェット反力の測定実験は比較的困難であるため、過去の研究では圧力損失を取り上げている場合が多い。Murchは圧力と物質関数としての伸張応力の関係を理論的に取扱関係式を導いた<sup>(3)</sup>。ただし、これは伸張速度が一定という

条件で行われており、オリフィス通過流の場合とは異なる。また、PhilippoffとGaskinsはBagleyプロットを利用して細管に流入する流れの入口圧力損失と法線応力に関連する実験的研究を行っている<sup>(4)</sup>。さらに、LaNieveとBogueは高分子溶液の細管流における入口出口損失は第1法線応力差に直接比例し、比例定数は物質や設定条件に依存することを述べた<sup>(5)</sup>。HürlimannとKnappe<sup>(6)</sup>やBalakrishnanとGordon<sup>(7)</sup>は高分子溶液のオリフィス流を利用した解析において、入口損失と伸張応力はほぼ一致するとしている。このように、入口損失から流体の弾性力を求めようとする研究はかなり多く行われているが、いずれも入口上流にうずが生じている場合を対象としている。この場合には大きな圧力降下が生じ、測定が容易になるという利点があるが、うずの形状が流量によって複雑に変化するため入口を含めた上流側速度場の規定が難しく、伸張速度の算定が容易ではない。また、測定される圧力降下のうち粘性による降下と弾性による降下とを分離し難いという欠点を有している。

本研究では、オリフィス流のうちで、レイノルズ数が比較的大きく、かつ、オリフィス上流側にうずが生じない場合を取り上げ、上流の速度場をオリフィス下流側の一点に向かう半径流と仮定することから圧力降

\* 昭和63年3月31日 第65期通常総会講演会において講演、原稿受付 昭和62年10月23日。

\*<sup>1</sup> 准員、新潟大学大学院(〒950-21 新潟市五十嵐2の町8050)。

\*<sup>2</sup> 正員、新潟大学工学部。

下と弾性を結び付ける式を導出する。さらに、希薄な PEO (Polyethylene oxide) 水溶液について実験を行い、伸張応力を算定し、これをオリフィスからのジェットのリカから求めた伸張応力と比較する。

2. 伸張応力の算定法

2.1 流れの場 小孔を通過する流体の流動場は、小孔の上流側の境界層や流出ジェットのはく離などに関係して、実際にはかなり複雑であることが予想される。しかしながら、希薄高分子溶液のオリフィス上流にうずが生じない場合の流動場は少なくとも中心速度に関する限り水のそれとほぼ一致しており、かつ、球の中心に向かう半径流で近似できることが前報で示された<sup>(2)</sup>。したがって、本研究においてもオリフィス上流側の流れを半径流で近似し、下流側は縮流の後、一様なジェットとして流出すると仮定する(図1)。ここで、オリフィス面よりもやや下流側の中心軸上( $\theta=0$ )に原点を採り、球座標系( $r, \theta, \phi$ )を適用する。流れは放射状となるので速度成分は  $v_r$  のみ存在し、連続の式より流量を  $Q$  とすれば、

$$v_r = -\frac{Q}{2\pi r^2(1-\cos \theta_0)} \dots\dots\dots(1)$$

となり、ひずみ速度テンソル( $e^{ij}$ )の物理成分は、次式で与えられる。

$$(e^{ij})_p = \begin{bmatrix} \gamma & 0 & 0 \\ 0 & -\gamma/2 & 0 \\ 0 & 0 & -\gamma/2 \end{bmatrix} \dots\dots\dots(2)$$

ここで、

$$\gamma = \frac{Q}{\pi r^3(1-\cos \theta_0)} \dots\dots\dots(3)$$

である。

2.2 伸張応力 2.1節で述べた座標系、速度場における運動方程式は各々  $r, \theta, \phi$  方向について次のよ

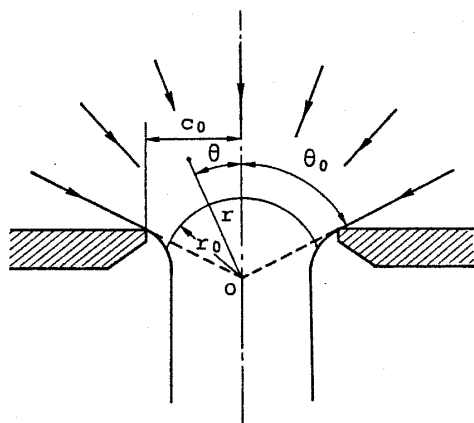


図1 流れのモデル化

うになる。

$$r \text{ 方向: } \frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{1}{2} \rho v_r^2 + p \right) = -\frac{\partial \tau_{rr}}{\partial r} + \frac{2\tau_{rr}}{r} - \frac{\tau_{\theta\theta} + \tau_{\phi\phi}}{r} \dots\dots\dots(4\cdot a)$$

$$\theta \text{ 方向: } \tau_{\theta\theta} = \tau_{\phi\phi} \dots\dots\dots(4\cdot b)$$

$$\phi \text{ 方向: } 0 = 0 \dots\dots\dots(4\cdot c)$$

ここで、 $\rho$  は流体密度、 $p$  は等方圧力、 $\tau_{rr}$  などは偏差応力テンソル( $\tau^{ij}$ )の物理成分を表す。式(4・a)の両辺に  $-(\partial \tau_{\theta\theta} / \partial r)$  を加え、式(4・b)を使うと以下のようになる。

$$\frac{\partial}{\partial r} \left( \frac{1}{2} \rho v_r^2 + p - \tau_{\theta\theta} \right) = -\frac{\partial}{\partial r} (\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta}) + \frac{2(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})}{r} \dots\dots\dots(5)$$

オリフィス通過時の圧力降下を求めるために、積分区間  $r=r_0 \sim \infty$  において、1本の流線上で積分を行えば、

$$\left( \frac{1}{2} \rho v_r^2 + p - \tau_{\theta\theta} \right) \Big|_{r_0}^{\infty} = (\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta}) \Big|_{r_0}^{\infty} + 2 \int_{r_0}^{\infty} \frac{\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta}}{r} dr$$

となり、さらに境界条件

$$r \rightarrow \infty; v_r = \tau_{rr} = \tau_{\theta\theta} = 0$$

を考慮し、オリフィス上流側遠方と下流側  $r_0$  (図1)との間において測定される圧力降下  $\Delta p$  は

$$\Delta p = p_{\infty} - (p - \tau_{\theta\theta})_{r_0}$$

であるので、

$$-\frac{1}{2} \rho v_r^2 + \Delta p = -(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})_{r_0} + 2 \int_{r_0}^{\infty} \frac{\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta}}{r} dr \dots\dots\dots(6)$$

を得る。添え字  $r_0$  は  $r_0$  における値であることを示し、 $p_{\infty}$  はオリフィス上流無限遠方の圧力を表す。ここで、右辺第2項の積分を実行するために  $(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})$  に具体的な関数形を与える。多くの高分子流体はその流動に際して、せん断応力や法線応力差などを適当なひずみ速度の範囲内でべき乗表示できることが知られている<sup>(8)</sup>ので、今、

$$\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta} = \alpha \gamma^{\beta} \dots\dots\dots(7)$$

と置けば、積分は実行できる。ここで、 $\alpha, \beta$  は定数である。すなわち、

$$2 \int_{r_0}^{\infty} \frac{\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta}}{r} dr = \frac{2}{3\beta} (\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})_{r_0} \dots\dots\dots(8)$$

となる。運動方程式に式(8)を代入することによって、最終的に以下の結果を得ることができる。

$$-\frac{1}{2} \rho v_r^2 + \Delta p = \frac{2-3\beta}{3\beta} (\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})_{r_0} \dots\dots\dots(9)$$

この式は、比較的高レイノルズ数域でオリフィス上流

うずを生じない領域における、圧力降下と動圧、伸張応力の関係を示す。

液体が水の場合、ニュートンの粘性則から、 $\tau_{rr} = 2\eta\dot{\gamma}$ ,  $\tau_{\theta\theta} = -\eta\dot{\gamma}$  ( $\eta$  は粘性係数) であるので、

$$(\Delta p)_w = \left(\frac{1}{2}\rho v_{r0}^2\right)_w - \frac{1}{2}\eta\dot{\gamma}_0 \quad \dots\dots\dots(10)$$

を得る。ただし添字  $w$  は水についての値を示す。一方、高分子溶液についての値を添字  $p$  で示すと、

$$(\Delta p)_p = \left(\frac{1}{2}\rho v_{r0}^2\right)_p + \frac{2-3\beta}{3\beta}(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})_{r0} \quad \dots\dots\dots(11)$$

となる。ところで、前述したように  $v_{r0}$  は水と希薄高分子溶液でほぼ等しいことが示唆されている<sup>(2)</sup>ので、 $(v_{r0})_w = (v_{r0})_p$  とすれば、式(10)、(11)から次式を得る。

$$(\Delta p)_w - (\Delta p)_p = \frac{3\beta-2}{3\beta}(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})_{r0} - \frac{1}{2}\eta\dot{\gamma}_0 \quad \dots\dots\dots(12)$$

ここで、

$$\left(\frac{3\beta-2}{3\beta}\right)(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})_{r0} \gg \frac{1}{2}\eta\dot{\gamma}_0$$

の場合を考えると、

$$(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})_{r0} = \frac{3\beta}{3\beta-2}((\Delta p)_w - (\Delta p)_p) \quad \dots\dots\dots(13)$$

となり、高分子溶液の伸張応力は水の圧力降下と高分子溶液の圧力降下との差から算定できることがわかる。

ところで、式(10)の両辺をオリフィス平均流速  $V (= Q/\pi c_0^2; c_0$  はオリフィス半径) による動圧で無次元化すると次式を得る。

$$\frac{2(\Delta p)_w}{\rho V^2} = \left(\frac{v_{r0}}{V}\right)^2 - \frac{\eta}{\rho V^2}\dot{\gamma}_0 \quad \dots\dots\dots(14)$$

$r_0 \cos \theta_0 = k c_0$  (ただし、 $k$  は 1 より小さい定数) とおくと、

$$\frac{\eta}{\rho V^2}\dot{\gamma}_0 = \frac{1}{Re} \cdot \frac{2 \cos^3 \theta_0}{k^3(1 - \cos \theta_0)} \quad \dots\dots\dots(15)$$

ここで、

$$Re = \frac{\rho V D}{\eta} \quad (D = 2c_0; \text{オリフィス直径})$$

となり、これから、 $Re > 10^2$  では式(14)の右辺第 2 項は第 1 項に比較して省略できる。したがって、

$$(\Delta p)_w = \left(\frac{1}{2}\rho v_{r0}^2\right)_w \quad \dots\dots\dots(16)$$

となる。また、式(1)から、

$$v_{r0} = \frac{-Q}{2\pi r_0^2(1 - \cos \theta_0)} \quad \dots\dots\dots(17)$$

であり、

$$\begin{aligned} \frac{2(\Delta p)_w}{\rho V^2} &= \left(\frac{v_{r0}}{V}\right)^2 \\ &= \left\{ \left(\frac{c_0}{r_0}\right)^2 \frac{1}{2(1 - \cos \theta_0)} \right\}^2 \quad \dots\dots\dots(18) \end{aligned}$$

を得る。したがって、前報<sup>(2)</sup>で示したように  $\theta_0 = 70^\circ$  とすると、式(18)から、水の圧力降下から  $r_0$  を決定することができ(表 1)、式(3)によって  $r_0$  における  $\dot{\gamma}$  (これを  $\dot{\gamma}_0$  [式(19)] とする)が求まる。

$$\dot{\gamma}_0 = \frac{Q}{\pi r_0^3(1 - \cos \theta_0)} \quad \dots\dots\dots(19)$$

### 3. 圧力降下

流体のオリフィス通過時の圧力降下を測定する実験および実験装置は、既報<sup>(9)</sup>中において詳細に説明してあるのでここでは簡単に記す。すなわち、く形流路の中央にオリフィスを組み込み、上流側下流側の圧力をマノメータに導き、読取り顕微鏡でその差を読むものである。図 2~4 に水、PEO 50 ppm, 100 ppm 水溶液の圧力降下測定結果をそれぞれ示す。圧力降下  $\Delta P$  をオリフィス平均流速  $V$  による動圧で無次元化した値をレイノルズ数  $Re (= VD/\nu; D$  はオリフィス直径、 $\nu$  は流体の動粘度を示す) に対しプロットした。

図 2 からわかるように、水の無次元圧力降下はどのオリフィス径についても  $Re = 300$  以上の領域ではほぼ一定値を示している。しかしながら、オリフィス径による値の違いが小さいけれども生じており、径の大きいほうが無次元圧力降下の値も大きくなっており、その範囲は 2.5~2.4 程度である。これは実験に用いるオリフィスが十分薄いとはいえ有限の厚さを有し(すべてのオリフィスともその厚さは 0.058 mm である)、いわゆる完全なシャープエッジオリフィスではないためと考えられるが、今後検討する予定である。なお、本研究で水は希薄高分子溶液との比較のためにのみ用いられているため、上述の点は伸張応力を算定する際に大きな影響がないものと考えられる。表 1 に各オリフィス径ごとに無次元圧力の値と、これから式(18)により計算される  $r_0$  の値を示す(ただし、 $c_0$  はオリフィス半径を表す)。この  $r_0$  の値は、前報<sup>(2)</sup>のジェット反力の実験値から求めた  $r_0$  の値とは異なるが、この原因として、前報では本報と異なる厚さのオリフィスを用いていること、あるいは、仮定した速度分布が必ずしも

表 1  $2\Delta p/\rho V^2$  対  $r_0/c_0$

Dmm	2.03	1.765	1.223
$2\Delta P/\rho V^2$	2.5	2.47	2.4
$r_0/c_0$	0.639	0.695	0.70

正確に流れの場合全体を表していないことなどが考えられる。

希薄高分子溶液の実験結果を図3, 4に示す。今、高レイノルズ数域 ( $Re \geq 200$ ) を考えると、各オリフィス径について無次元圧力降下は、50, 100 ppmとも、水より小さい値を示している。また、同一レイノルズ数における値は、ほぼ水、50, 100 ppmの順に大きい。さらに希薄高分子溶液についていえば、無次元圧力降下は  $Re \geq 1000$  付近でほぼ一定値をとり、 $Re$  が減少するにつれてこの値から徐々に減少し、 $Re$  が100から300の間で極小値をとっている。レイノルズ数がほぼ200以下で  $2\Delta p/\rho V^2$  が  $Re$  の減少とともに増加する原因は、流れが遅くなるため粘性の効果が大きくなり、ストークス流の場合の  $2\Delta p/\rho V^2 = K/Re$  ( $K$  は定数) に似た傾向を持つためと考えられる。以上の実験結果に関連して、JamesとSaringerはせばまり流路内を流れるPEOの希薄溶液が水に比べ低い圧力降下を与えることを示している<sup>(10)</sup>。このように、濃厚溶液について通常言われている、高分子溶液はニュートン流体に比較して圧力降下が大きいという事柄は、希薄高分子溶液については必ずしも成立しないことがわかる。著者の知る限り本研究と同様な条件で行われた圧力降下に関連した実験的研究は現時点でほとんど行われていないため、本実験結果はそれ自身一つの意味を持つと考えられる。

#### 4. 伸張応力

2・2節における方法に基づきPEOや50 ppm, 100 ppm水溶液のオリフィス通過流れの伸張応力を求めた。その結果を図5, 6に示す。縦軸には伸張応力  $(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})_{r_0}$ 、横軸には伸張速度  $\dot{\gamma}_0$  をとった。同時に、斜線部により前報<sup>(2)</sup>で述べた反力による結果も示した。本解析法による  $(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})_{r_0}$  は、全実験領域にわたり、 $\dot{\gamma}_0$  により概略整理されていることがわかる。また、濃度による伸張応力値の違いは、100 ppmのほうが50 ppmに比べて絶対値が大きく、傾きもやや大きくなっている。反力による結果と比較しても、 $\dot{\gamma}_0$  のやや低い領域についてはあるが、同程度の値を示している。したがって、本報で述べた伸張応力の算定方は妥当なものと考えられ、これにより、オリフィス流の圧力降下を測定することにより比較的容易に伸張応力を求めることができる。従来、希薄高分子溶液の伸張応力を実験的に求めることはかなり困難であったため、本方法は液体の物性値<sup>(11)</sup>を知るうえで、また、構成方程式を検討するうえでかなり有用であると考えられる。今後は、高分子の濃度が高い場合や、異なった種類

の高分子にみられるオリフィス上流にうずが生じた流動場についても伸張応力を求めるべく、本解析を発展させていく必要があると考えている。

#### 5. 結論

希薄高分子水溶液の高レイノルズ数域におけるオリフィス流に関連して、運動方程式を用いて圧力降下と伸張応力を算定する式を導いた。この式により、通常

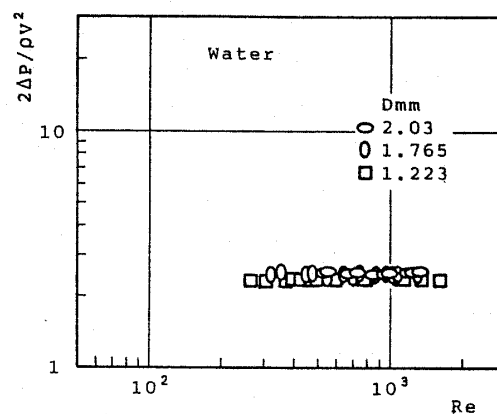


図2 水の無次元圧力降下  $2\Delta P/\rho V^2$  対レイノルズ数  $Re$

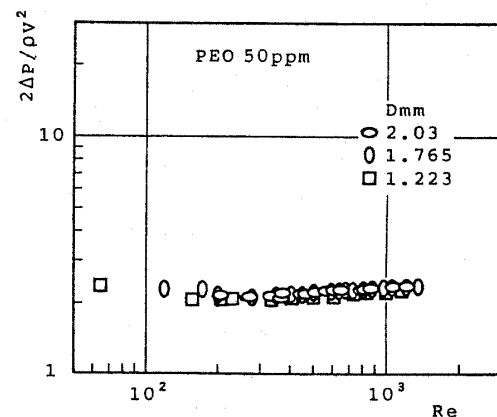


図3 PEO 50 ppmの無次元圧力降下

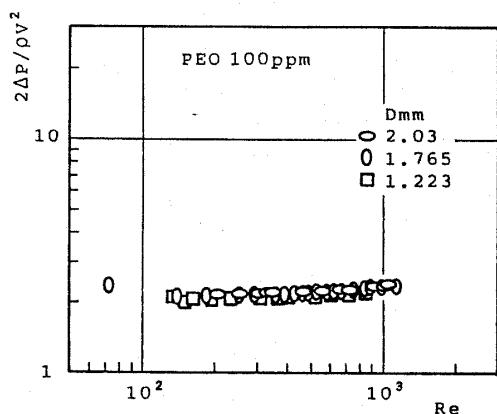


図4 PEO 100 ppmの無次元圧力降下

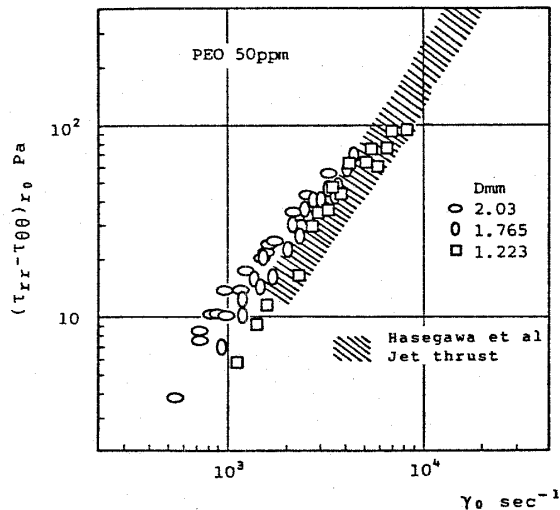
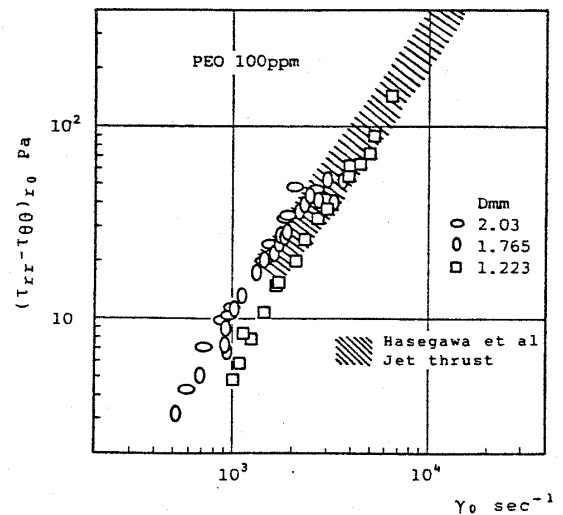
図 5 PEO 50 ppm の伸張応力  $(\tau_{rr} - \tau_{\theta\theta})r_0$  対伸張速度  $\gamma_0$ 

図 6 PEO 100 ppm の伸張応力

の場合、希薄高分子溶液の圧力降下は溶媒のそれより小さくなることが示された。

一方、小オリフィスを用いて水および希薄な PEO 水溶液の圧力降下を測定し、実験結果が定性的に解析結果と一致することを示した。以上の解析と実験の結果を用い伸張応力を算定し、反力から算定された伸張応力と概略一致することを示した。

#### 文 献

- (1) Lee, J. and Fung, Y., *J. Appl. Mech.*, (1970), 9-16.
- (2) 長谷川・福富・鳴海, 機論, 55-492, B (昭 62), 2295-2302.
- (3) Murch, R. E., *I & EC Fundam.*, 9-3 (1970), 498-500.
- (4) Philippoff, W. and Gaskins, F. H., *Trans. Soc. Rheol.*, II

(1958), 263-284.

- (5) LA Nieve III, H. L. and Bogue, D. C., *J. Appl. Polym. Sci.*, 12 (1968), 353-372.
- (6) Hürlimann, von H. P. and Knappe, W., *Rheologica Acta*, 11 (1972), 292-301.
- (7) Balakrishnan, C. and Gordon, R. J., *Proc. VII Int. Cong. Rheol.*, Chalmers Univ. Technol., (1976), 265-267.
- (8) 富田, レオロジー, (昭 50), 202, コロナ社.
- (9) 長谷川・福富・鳴海, 機論, 53-496, B (昭 62), 3510-3515.
- (10) James, D. F. and Saringer, J. H., *J. Fluid Mech.*, 97 (1980), 655-671.
- (11) Oliver, D. R. and Bragg, F. H., *J. Chem. Eng.*, 5 (1973), 1-6.