

平成27年度学位論文

高分子流体の平面急拡大流れにおける  
流動配向に関する研究

指導教員

鳴海 敬倫 教授

新潟大学大学院 自然科学研究科  
材料生産システム専攻

佐藤 大祐

# 目次

<b>第 1 章</b>	<b>緒 論</b>	1
1.1	研究背景 . . . . .	1
1.2	従来の研究 . . . . .	2
1.3	研究の目的 . . . . .	4
1.4	論文の構成 . . . . .	5
1.5	主な使用記号 . . . . .	6
<b>第 2 章</b>	<b>試験流体</b>	7
2.1	試料および作製方法 . . . . .	7
2.2	評価方法 . . . . .	9
	2.2.1 レオメータ . . . . .	9
	2.2.2 Fractional Maxwell Model (FMM) . . . . .	11
2.3	試験流体のレオロジー特性 . . . . .	14
	2.3.1 動的粘弾性特性と緩和時間 . . . . .	14
	2.3.2 せん断粘度特性 . . . . .	16
<b>第 3 章</b>	<b>速度分布および複屈折の測定方法</b>	18
3.1	速度分布測定 . . . . .	18
3.2	複屈折測定 . . . . .	19
	3.2.1 複屈折および配向角について . . . . .	19
	3.2.2 Jones ベクトルと Stokes ベクトル . . . . .	22
	3.2.3 複屈折測定装置 . . . . .	24
	3.2.4 複屈折および配向角の算定方法 . . . . .	28
<b>第 4 章</b>	<b>平面急拡大流路における高分子水溶液の流動誘起配向</b>	32
4.1	緒論 . . . . .	32
4.2	試験流路 . . . . .	32
4.3	実験条件 . . . . .	35

4.4	実験結果および考察 . . . . .	36
4.4.1	平面急拡大流れにおける代表的な流動誘起配向 . . . . .	36
4.4.2	流路断面のアスペクト比による流動誘起配向の影響 . . . . .	42
4.4.3	拡大比による流動誘起配向の影響 . . . . .	55
4.5	結論 . . . . .	66
<b>第 5 章</b>	<b>平面急縮小・急拡大流路における高分子水溶液の流動誘起配向</b>	<b>67</b>
5.1	緒論 . . . . .	67
5.2	試験流路 . . . . .	67
5.3	実験条件 . . . . .	70
5.4	実験結果および考察 . . . . .	71
5.4.1	平面急縮小・急拡大流れにおける代表的な流動誘起配向 . . . . .	71
5.4.2	スリット長による流動誘起配向の影響 . . . . .	74
5.5	結論 . . . . .	88
<b>第 6 章</b>	<b>結論</b>	<b>89</b>
	<b>参考文献</b>	<b>91</b>
	<b>謝辞</b>	<b>96</b>

# 第1章

## 緒論

### 1.1 研究背景

近年、高分子材料を代表とするプラスチック成形加工品は、最先端技術を支える基幹部品となっており広範囲の分野で使用されている。また、化学合成技術や成形加工技術の発達にともない、さまざまな機能的価値を有するプラスチック成形品の開発が続けられており、プラスチック製品の重要性はますます高まっている。

我々の身の回りに数多く見られる生活用品や工業製品として使用される樹脂製品（プラスチック）は、高分子成形加工（polymer processing）によって製造され、通常、射出成形・押し出し成形・ブロー成形といった加工法により成形される。これらの加工法では、一般に固体状の高分子材料が成形機の中で熔融状態にされ、金型、ダイ内を流れて所定の形になり、その後、冷やして固めて成形される。成形過程で生じる流れは、せん断流れや伸長流れ、あるいは、それらが複合して生じる流れとなり、それに伴い、高分子の流動配向状態が大きく変化する。そして、このときの高分子の流動配向状態や成形後の高分子の配向構造は、成形された製品の品質に大きな影響を及ぼす。したがって、成形品の品質管理や成形の高精度化のためには、流動時における高分子の流動配向の変化を知ることが非常に重要となる。また、高分子流体を代表とする粘弾性流体の特異な流動挙動（循環二次流れやバラス効果など<sup>1)</sup>）は、流動によって生じる分子配向や構造変化に起因する。ゆえに、粘弾性流体のさまざまな流動挙動・流動特性を調べ、理解することは工業的にも重要な問題である。成形流れで生じる高分子流体の流動現象や、プラスチックを成形する際に用いられる成形手法および機械等については、Brydson<sup>2)</sup> や White<sup>3)</sup> の著書に詳しく述べられている。

成形流れでは、さまざまな流動場が存在する。例えば、縮小流路や拡大流路などのような流路の形状や断面積が変化するような流れ場が挙げられる。このような流れ場での高分子流体の流動配向は非常に複雑なものとなり、したがって成形した製品の力学的特性

を予測するのは困難である。高分子流体を代表とする粘弾性流体の流動誘起配向は、主に伸長流れによって生じることが知られている。伸長効果によって生じる流動配向を効果的に検討するために、二次元急縮小流れや二次元円柱まわりの流れが多くの研究で扱われてきた。しかしながら、実際の成形流れでは、壁面の両サイドによる拘束から、伸長流れとせん断流れが複合して生じる流れ場がほとんどである。ここで、複雑な流れ場の一つである平面急縮小流れや平面急拡大流れは、平板の成形加工において多く生じる。平面流れのため上下平面間で強いせん断流れが生じ、さらに平面内での伸長流れも生じるため複合的な流れ場が生じている。このような流れ場での流動配向に関しては、平板の成形品を含め、昨今の成形品は軽量化や薄肉化のニーズが高まっていることから、成形品の厚さ、すなわち流路高さによる高分子流体の流動誘起配向への影響も考慮する必要があると考えられる。しかしながら、このような複雑な変形過程を経て生じる高分子流体の流動誘起配向は十分には解明されていない。したがって、複雑な流れ場における高分子流体の流動誘起配向を明らかにすることは工業的に重要な問題であると考えられる。また、実際の流れ場における高分子の流動およびその配向構造を知ることは、解析的アプローチへの検証データとして有意義であるとともに、実験的にも成形時の高分子挙動に関するデータベースとして貢献できると考えられる。

## 1.2 従来の研究

成形加工ではさまざまな流れ場が複合的に生じるため、それに伴い多くの流れ場を対象とした研究が行われている。実験的な研究では、粘弾性流体の流動誘起配向、あるいは、流動誘起構造を調べるために、多くの研究で光学測定（微小角散乱測定や流動複屈折測定、偏光観察など）が行われている。特に複屈折測定は、以下に示すストレス・オプティカル則<sup>4)</sup>によって流れの応力場と複屈折場が直接結びつけられるため、多くの研究で用いられている手法である。

$$n_{ij} = C\sigma_{ij} \quad (1.1)$$

ここで、 $n_{ij}$  は屈折率テンソル、 $\sigma_{ij}$  は応力テンソルの偏差成分、 $C$  は光弾性係数である。式(1.1)より、屈折率テンソルと応力テンソルが単純な比例関係にあるため、複屈折測定で得られる結果から応力場を解析することができる。また、流れ場を可視化し、LDV計測やPIV・PTV計測から速度場を求め、光学測定より得られる応力場と速度場を比較、検討が試みられている。解析的な研究では、粘弾性流体の力学特性を表現するさまざまな構成方程式（モデル）が古くから提案されており、それら構成方程式を用いた数値シミュレーションが行われ、速度場、応力場あるいは複屈折場が数値的に解析されている。以下では、流れ場ごとに過去に行われた研究例をまとめて紹介する。

成形過程でよく見られる円柱形状の邪魔ピンまわりの流れ場に関連して、円柱まわり

あるいは障害物まわりの粘弾性流体の流れに関する研究が行われている<sup>5-8)</sup>。また、矩形流路における円柱まわりの流れは、粘弾性流体の構成方程式のベンチマークテストとしてよく用いられている<sup>9)</sup>。Baaijens ら<sup>5)</sup>は、矩形流路における円柱まわりの高分子融液の流れ場および複屈折場を、PTT モデルを用いた数値シミュレーションによって解析した。さらに、偏光観察により複屈折場も実験的に解析し、数値計算の結果と比較し一致したことを報告した。Mitsoulis<sup>6)</sup>は、構成方程式として積分形の K-BKZ モデルを用いて、Baaijens ら<sup>5)</sup>と同様の円柱まわりにおける高分子融液の複屈折場を数値的に解析した。Baaijens ら<sup>5)</sup>とは異なる構成方程式を採用したが、彼らが報告した実験結果<sup>5)</sup>と良く一致したことを報告した。偏光観察は、複屈折の 2 次元分布を求めるには非常に便利な測定手法であるが、複屈折および配向角の情報が混合して得られるため、配向場が既知でない場合、厳密な定量的評価はできない。そこで保田ら<sup>7)</sup>は、レーザー光を用いた流動複屈折測定によって、平面流路における微小円柱まわりを流動する高分子水溶液の流動配向を検討した。レーザー光を用いた流動複屈折測定は、点計測となるため二次元的測定を行うことは極めて困難であるが、偏光観察と比べ定量的評価を行うことができる。保田ら<sup>7)</sup>は、流路中心線上付近の円柱の上流部で分子はランダム配向に近い状態となった後、流れ方向に対して垂直な方向に分子は配向し、円柱の下流部では、流れ方向に強く配向した分子がかなりの下流域まで存在することを明らかにした。Cinader and Burghardt<sup>8)</sup>は、液晶高分子融液の障害物まわりの流動誘起配向を X 線を用いた広角散乱を行い検討したところ、障害物の上流部で光学異方性が急激に低下し、下流域では高い光学異方性を維持することを報告した。この結果は、保田ら<sup>7)</sup>が報告した例と似ており、障害物まわりの流動配向場は、高分子の屈曲性・剛直性を問わず同様であることを示唆している。

縮小流れ場は、粘弾性流体の流動現象において特異な現象が多く報告されていることから、実験および数値解析ともに数多くの研究が行われている。Quinzani ら<sup>10)</sup>は、急縮小部を通る粘弾性流体の二次元流れにおいて複屈折測定および LDV 計測を行い、伸長流れの影響により急縮小部付近のせん断応力や法線応力差が急激に変化することを確かめた。Azaiez ら<sup>11)</sup>や Favero ら<sup>12)</sup>は、粘弾性流体の二次元急縮小流れにおける速度分布、せん断応力および法線応力差を数値解析から求め、Quinzani ら<sup>10)</sup>による測定結果と比較し、数値解析結果と測定結果が一致することを報告した。Schuberth ら<sup>13)</sup>は、希薄系粘弾性流体の流れにおいて複屈折測定および LDV 計測を行い、複屈折と応力の関係を調べた。Martyn ら<sup>14)</sup>は、高分子融液の二次元急縮小流れにおいて偏光観察を行い、複屈折と応力との関係を検討した。

拡大流れ場も円柱まわりの流れや縮小流れと同様に、成形流れにおいては非常に重要な流れ場であるが研究例は極めて少ない。浅間ら<sup>15)</sup>は、二次元流れにおけるスリット出口付近における界面活性剤水溶液の複屈折測定を行い、出口後の急激な複屈折の減少を

報告した。Cinader and Burghardt<sup>8)</sup> は、平面急拡大流路を流動する液晶高分子融液の分子配向を X 線を用いた広角散乱により検討し、流路中心線上付近では、拡大部後の分子は流れ方向に対し直行する方向に配向することを報告した。

その他の流れ場においては、伸長流れ場における粘弾性流体の力学特性を調べるため、Rothstein ら<sup>16)</sup> は、フィラメントストレッチレオメータを用いて、一軸伸長流れ場における複屈折と応力との関係について検討した。その他、十字流路 (cross flow cell)<sup>17)</sup>、波状流路 (wiggle flow)<sup>18)</sup>、円柱配列流路 (cylinder array channel)<sup>19)</sup> 等を通過する流れや、軸対称よどみ流れ (axisymmetric stagnation flow)<sup>20)</sup> における複屈折測定も行われた。

このように、粘弾性流体の流動に関する研究が多く行われているが、流動配向場に関する研究では、解析の容易さから多くの研究が希薄系粘弾性流体の 2 次元流れ場を対象としており、実際の成形流れにおける複雑な変形過程を経て生じる配向構造に関する実験的な知見は少ない。また、多くの研究で対象とされてきた流れ場は、障害物まわりの流れや縮小流れであり、成形流れで多く見られる拡大流れに関する研究例は少ない。さらに拡大流れでは、拡大部後の流動配向は、上流側の流路断面や流動状態、すなわち、流動履歴によって大きく影響されることが予想される。平面急拡大流路において、流路高さによる粘弾性流体の流動配向への影響を検討した例はあるものの<sup>21)</sup>、様々な条件下における複雑な変形過程を経て生じる高分子の流動配向は十分には解明されていない。一方、解析的研究に関して最近では、分子モデルによる高分子の平均的な配向構造などを明らかにする研究<sup>22)</sup> が行われており、数値シミュレーションにおいて 3 次元流れ場を対象とした研究<sup>23,24)</sup> も行われている。しかしながら、粘弾性流体の複雑な流れ場での数値解析においても、計算方法や構成方程式 (モデル) の検討、計算精度などまだ多くの問題を残している。このように、数値シミュレーションによる複雑な流れ場での解析や配向構造の解明が試みられているが、解析結果を検証するためのデータは十分ではないと言える。

### 1.3 研究の目的

本研究では、成形流れにおける高分子流体の流動場と流動配向場を明らかにすることで、成形品の品質管理や力学的特性の予測への貢献を果たし、さらに、実際的な流れ場における高分子の流動挙動および流動配向の分布や変化に対する知見を提供することで、数値シミュレーションに対する検証データおよび成形時の高分子の流動挙動に関するデータベースとして貢献することを大きな目的とする。そこで本研究では、光学測定の一つである流動複屈折測定および速度分布測定を行い、成形流れにおける高分子流体の流動誘起配向を実験的に明らかにすることを目的とする。実際の成形流れにおいて現れる高分子流体の流動誘起配向を理解するためには、せん断流れや伸長流れが複合して生じる

ような複雑な流れ場を考える必要がある。本研究では、そのような複雑な流れ場における高分子流体の流動配向を解明するための基礎研究として、平面急拡大流路、平面急縮小・急拡大流路を用いて実験を行い、速度分布および複屈折分布の相関を比較することにより、複雑な流れ場における高分子の変形過程の解明を試みる。

## 1.4 論文の構成

本論文は「高分子流体の平面急拡大流れにおける流動配向に関する研究」と題し、その構成は以下の通りである。

第1章「緒論」では、研究背景と従来の研究報告についてまとめ、本研究の目的を述べる。また、本論文の構成についても示す。

第2章「試験流体」では、本研究で用いた流体とその作製方法や物性値などについて述べる。また、物性の評価方法としてレオメーターと Fractional Maxwell Model(FMM)についても述べ、動的粘弾性測定を行うことで試料の粘弾性特性を調べ、FMMを用いて緩和時間を算出し、定常せん断粘度測定より試料のせん断粘度特性を明らかにする。

第3章「速度分布および複屈折の測定方法」では、速度分布測定（PTV計測）や高分子の流動配向を調べるための方法のひとつである流動複屈折測定の方法について述べている。また、流動複屈折測定では、複屈折および配向角の算定に対して理論的に示す。

第4章「平面急拡大流路における高分子水溶液の流動誘起配向」では、第3章で述べた装置を用いて、平面急拡大流路における高分子水溶液の速度分布と流動配向について検討する。また、流路断面のアスペクト比による流動配向への影響を調べるため、流路断面のアスペクト比が異なる流路を用いて実験を行い、さらに拡大比による流動誘起配向への影響も調べるため、拡大比が異なる流路における流動配向も調べる。これらの実験より、拡大部後で生じる分子の流動配向が、アスペクト比あるいは拡大比を変えたことによって大きく影響されることを明らかにする。

第5章「平面急縮小・急拡大流路における高分子水溶液の流動誘起配向」では、平面急縮小・急拡大流路を流動する高分子水溶液の速度分布と流動配向分布をPTV計測および流動複屈折測定によって調べる。また、種々のスリット長を有する流路を用いて、スリット長による流動配向への影響も明らかにする。

第6章「結論」では、全体の総括を行い、本研究の結論を述べる。



## 1.5 主な使用記号

$AR$	アスペクト比 ( $= 2H_1/2H_3$ )	(-)
$ER$	拡大比 ( $= 2H_2/2H_1$ )	(-)
$G'$	貯蔵弾性率	(Pa)
$G''$	損失弾性率	(Pa)
$\mathbb{G}$	<i>quasi-property</i> (FMM のパラメータ)	(Pa · s <sup><math>\beta</math></sup> )
$2H_1$	拡大部上流の流路幅 (第 4 章), スリット部の流路幅 (第 5 章)	(mm)
$2H_2$	拡大部下流の流路幅 (第 4 章) 縮小部上流および拡大部下流の流路幅 (第 5 章)	(mm)
$2H_3$	流路高さ	(mm)
$L_c$	スリット部の長さ	(mm)
$\Delta n'$	複屈折	(-)
$U_{up}$	急拡大上流における平均流速 (第 4 章)	(mm/s)
$U_c$	スリット部における平均流速 (第 5 章)	(mm/s)
$v_x$	速度の流れ方向成分	(mm/s)
$\mathbb{V}$	<i>quasi-property</i> (FMM のパラメータ)	(Pa · s <sup><math>\alpha</math></sup> )
$x, y, z$	直交座標系	(mm)
$\alpha$	FMM のパラメータ	(-)
$\beta$	FMM のパラメータ	(-)
$\gamma$	せん断ひずみ振幅	(-)
$\dot{\gamma}$	せん断速度	(s <sup>-1</sup> )
$\dot{\gamma}_{typ}$	代表せん断速度	(s <sup>-1</sup> )
$\dot{\gamma}_{app}$	見かけのせん断速度	(s <sup>-1</sup> )
$\dot{\epsilon}$	伸長速度	(s <sup>-1</sup> )
$\eta$	せん断粘度	(Pa · s)
$\theta$	配向角	(deg)
$\tau$	代表緩和時間	(s)
$\omega$	角周波数	(rad/s)

## 第2章

# 試験流体

プラスチック成形品の品質管理や成形品の高精度化のためには、実際の成形時の条件を考慮すれば、実験を行うにあたって試験流体は、工業上で使用される高分子融液を用いることが望ましい。しかしながら、融液を扱うためには熱源や安全性の確保などが必要であり、実験的な制約が非常に多い。そこで本研究では、プラスチック融液のモデル流体として、高分子水溶液を試験流体として採用した。本章では、本研究で用いた試験流体の詳細と、その物性および評価方法について示す。

### 2.1 試料および作製方法

本研究では、試験流体としてキサントガム (XG400, Mitsubishi-kagaku Foods Corp., Japan) 水溶液を用いた。キサントガムは、微生物の *Xanthomonas campestris* によって作られる高分子多糖類であり<sup>26-28)</sup>、分子量は300万前後と推定されている<sup>28)</sup>。低濃度での高粘性や耐酸、耐塩、耐熱、耐凍性などに優れているキサントガムは、増粘剤、潤滑剤あるいは食品添加物として幅広い分野で使用されており、分子構造はもちろん、そのレオロジー特性に関しても多くの研究報告がなされている<sup>29-34)</sup>。また、光学測定（複屈折測定や偏光観察）を行ってキサントガム水溶液のレオロジー特性を調べた研究も報告されている<sup>35,36)</sup>。キサントガムは、図2.1に示すような化学構造を有する高分子であり、マンノース、グルコース、グルクロン酸で構成されている。主鎖は、 $\beta$ -1,4結合しているグルコースからなり、側鎖は主鎖のグルコース残基一つにおきマンノース2分子とグルクロン酸が結合している<sup>28)</sup>。静止状態にあるときには、分子同士によるゲル構造に似た三次元的な弱い網目構造を形成していると考えられている。ゆっくりと攪拌すると、この網目構造のため高粘度を示すが、せん断速度の増加に伴い、この網目構造は徐々に破壊され粘度は急激に減少する。しかし再び静止状態にすることで弱い網目構造が再形成され、粘度が回復することが知られている<sup>28)</sup>。また、キサントガム水溶液は

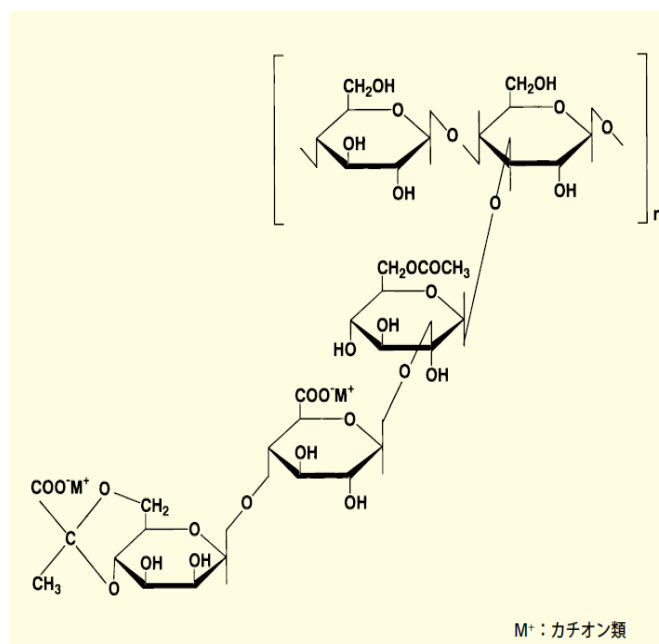


Fig.2.1. Chemical structure of Xanthan gum.

熱に対して非常に安定しており、液温が 40 °C 程度までは、粘度特性の変化がないことが Whitcomb and Macosko<sup>29)</sup> によって報告されている。

キサントングムは通常、粉末状であるため試料を作製するには溶媒に溶かす必要がある。ここでキサントングムは冷水・温水問わずに溶解することができる。本研究では、溶媒として脱イオン水を用いた。脱イオン水を所定の量を用意し、ホットスターラーを用いて約 80 °C 程度まで熱してから、キサントングム水溶液の濃度が 0.5 wt % になる量のキサントングムの粉末を投入した。投入の際は、ダマにならないように少しずつ投下し、約 20 分攪拌した後、4 °C の環境下で少なくとも 12 時間放置<sup>25)</sup> してから実験を行った。また、速度分布測定用として、キサントングム水溶液にトレーサー粒子として平均粒径 10 μm のプラスチック粒子 (EPOSTAR GP-HC109, Nippon Shokubai Co., Ltd., Japan) を重量比 6000 : 1 で混入させた流体も用意した。

## 2.2 評価方法

本研究では，試験流体のレオロジー特性を調べるために，応力制御型レオメーター (HAKKE MARS III, Thermo Fisher Scientific Inc., Germany) を用いて定常粘度測定および動的粘弾性測定を行った．さらに，得られた結果からキサントガム水溶液の緩和時間を，Fractional Maxwell Model (以下，FMM と称す) を用いて見積もった．以下では，レオメーターおよび FMM に関して概説する．

### 2.2.1 レオメーター

#### レオメーターの概略

レオメーター (rheometer) とは，せん断粘度や伸長粘度，法線応力差などの物質のレオロジー特性を測定する装置のことである．レオメーターは，大別してせん断型と伸長型に分類でき，それぞれ流体のせん断特性と伸長特性を測定する．また，せん断型のレオメーターでは，測定する際に用いる治具 (円錐円板，平行平板，同軸二重円筒など) もさまざまな種類のもので用意されている．さらに，制御方式により応力制御型レオメーター，ひずみ制御型レオメーターがある．本研究では，応力制御型 (せん断型) レオメーターを用い，治具としてコーン角  $2^\circ$ ，直径 35 mm の円錐円板を採用した．図 2.2 に示すように，円錐円板型レオメーターは，コーン・プレート型レオメーターとも呼ばれ，円錐と円板の組み合わせによるレオメーターである．このレオメーターにおける最大の特徴は，円錐と円板の間に形成される空間において，一様な単純せん断流れ場が形成されることである．本装置では，一

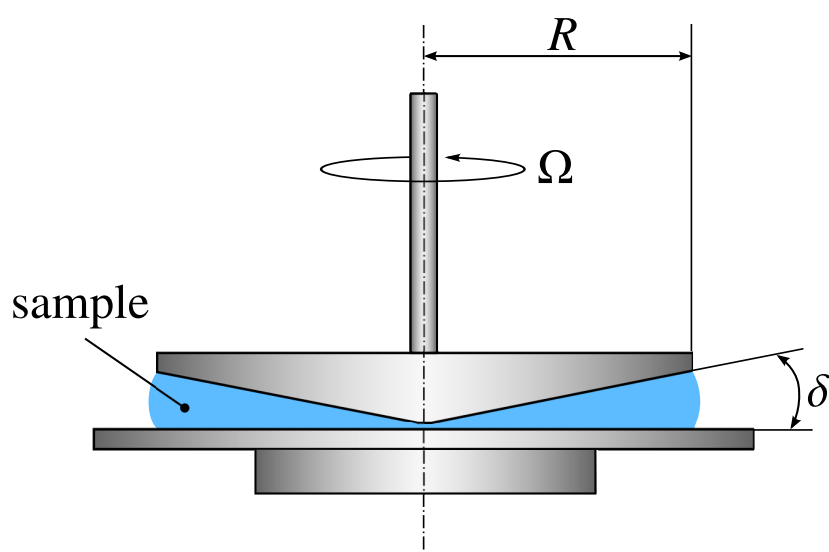


Fig.2.2. Illustration of cone and plate instrument.

定の角速度で円錐あるいは円板を回転させることにより流体にせん断を与え、そのとき、円錐あるいは円板に作用するせん断応力の積分値をトルクとして検出する。レオメータにより得られたトルクや角速度などから、さまざまな物性値を算出することができる。

### レオメータの測定原理

ここでは例として、せん断粘度の算出方法を示す<sup>1)</sup>。せん断粘度を求めるためには、まず流体に作用するせん断速度とせん断応力を計算しなければならない。せん断速度は、円錐あるいは円板に与えられた角速度、つまり流体に与えられた速度場から求められ、せん断応力は、そのときにトルクメータで測定するトルクから求められる。円錐が一定の角速度  $\Omega$  (rad/s) で回転する場合を考える。なお、座標系は図 2.3 に示すように球座標とする。

まず、せん断速度を求めるために円錐と円板の間の流体の速度勾配を考える。円錐の斜辺が円板の平面となす角（コーン角）を  $\delta$  (rad) とおく。円錐上のある点  $r$  における  $\phi$  方向の速度  $v_\phi$  は、

$$v_\phi = r\Omega \quad (2.1)$$

である。この点における円錐と円板との距離は、 $r \tan \delta$  であるので、せん断速度  $\dot{\gamma}$  は、

$$\dot{\gamma} = \frac{v_\phi}{r \tan \delta} \simeq \frac{r\Omega}{r\delta} = \frac{\Omega}{\delta} \quad (2.2)$$

となる。ここで、 $\delta$  が十分に小さいとき、 $\tan \delta \simeq \delta$  であることを用いた。式 (2.2) から、 $\dot{\gamma}$  は  $r$  に依存しないことがわかるので、 $r$  の位置によらず一定であることがわかる。先に述べたように、円錐円板型の治具では、円錐と円板との間に形成される空間において一様

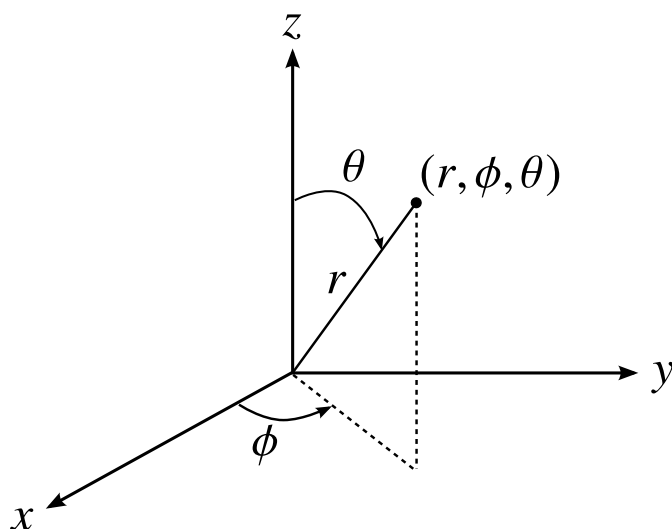


Fig.2.3. Spherical coordinate system.

な単純せん断流れ場が形成される。ただし、コーン角が十分小さい場合のみである。これより、せん断速度  $\dot{\gamma}$  は、角速度  $\Omega$  とコーン角  $\delta$  が分かれば算出できる。

続いて、せん断応力を求める。円板状に作用するトルク  $T$  は次式で計算できる：

$$T = \int_0^R dr 2\pi r^2 \sigma_{\theta\phi} \quad (2.3)$$

ここで、 $\dot{\gamma}$  は  $r$  に依存しないので  $\sigma_{\theta\phi}(\dot{\gamma})$  も  $r$  に依存しない。このことを考慮すれば、

$$T = 2\pi\sigma_{\theta\phi} \int_0^R dr r^2 = \frac{2}{3}\pi R^3 \sigma_{\theta\phi}(\dot{\gamma}) \quad (2.4)$$

となる。これがトルクメーターで検出される。検出されたトルク  $T$  から、応力  $\sigma_{\theta\phi}(\dot{\gamma})$  を次式で算出できる：

$$\sigma_{\theta\phi}(\dot{\gamma}) = \frac{3T}{2\pi R^3} \quad (2.5)$$

したがって、粘度  $\eta(\dot{\gamma})$  は、式 (2.2), (2.5) より、

$$\eta(\dot{\gamma}) = \frac{\sigma_{\theta\phi}(\dot{\gamma})}{\dot{\gamma}} = \frac{3T\delta}{2\pi R^3\Omega} \quad (2.6)$$

のように算出できる。

## 2.2.2 Fractional Maxwell Model (FMM)

### *spring-pot* および FMM の構成方程式

FMM<sup>34,37)</sup> は、図 2.4(a) に示すように、“*spring-pot*” (図 2.4(b) を参照) と呼ばれる要素を二つ直列に繋いだモデルである。*spring-pot* における構成方程式は、非整数階微分 (fractional derivative) を用いて次式のように表現される<sup>38,39)</sup>：

$$\sigma(t) = \mathbb{V} \frac{d^\alpha \gamma(t)}{dt^\alpha} \quad (2.7)$$

ここで、 $\sigma(t)$  は応力、 $\gamma(t)$  はひずみである。また、 $0 < \alpha < 1$  であり、*spring-pot* は式 (2.7) より、バネの働きをする要素 ( $\alpha = 0$ ) とダッシュポットの働きをする要素 ( $\alpha = 1$ ) のそれぞれの応答を補間した応答を示す要素であることがわかる。さらに、モデルパラメータ  $\mathbb{V}$  は“*quasi-property*”と呼ばれており、単位は  $(\text{Pa} \cdot \text{s}^\alpha)$  である。実際の材料特性を示す物理量は、基本次元である空間と時間における整数のべき乗で表されるため、*quasi-property* は一般的な材料特性を示す物理量ではない。*quasi-property* は材料のクリープ試験などの動的過程や、複雑な構造を有する材料の緩和過程において基本的な指標となる数値であると考えられている<sup>34,37)</sup>。*spring-pot* での非整数階微分は、Caputo 微分が用いられており以下のように定義される<sup>40-42)</sup>：

$${}_a^C D_t^\alpha f(t) \equiv \frac{d^\alpha f(t)}{dt^\alpha} = \frac{1}{\Gamma(n-\alpha)} \int_a^t dt' (t-t')^{n-\alpha-1} f^{(n)}(t') \quad (2.8)$$

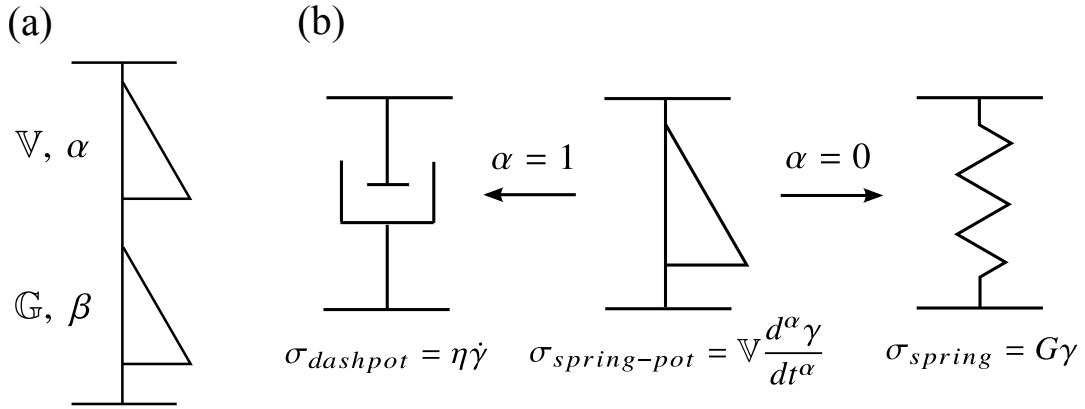


Fig.2.4. (a) Schematic diagram of the fractional Maxwell model (FMM), showing two spring-pots in series. (b) Schematic diagram of a spring-pot as an element that interpolates between a spring ( $\alpha = 0$ ) and a dashpot ( $\alpha = 1$ ).

ここで、 $\Gamma(\cdot)$  は Gamma 関数、 $n$  は整数であり、 $n - 1 < \alpha < n$  であるので、*spring-pot* の場合、 $n = 1$  となる。また、 $f^{(n)}(\cdot)$  は  $n$  階微分を意味している。*spring-pot* において、 $f(t) = \gamma(t)$ 、 $t \leq 0$  の場合  $\dot{\gamma}(t) = 0$  であると仮定したとき、最終的に非整数階微分は、

$${}^C_0 D_t^\alpha \gamma(t) \equiv \frac{d^\alpha \gamma(t)}{dt^\alpha} = \frac{1}{\Gamma(1-\alpha)} \int_0^t dt' (t-t')^{-\alpha} \dot{\gamma}(t') \quad (2.9)$$

となる。したがって、*spring-pot* の構成方程式は次のように記述できる：

$$\sigma(t) = V \frac{d^\alpha \gamma(t)}{dt^\alpha} = \frac{V}{\Gamma(1-\alpha)} \int_0^t dt' (t-t')^{-\alpha} \dot{\gamma}(t') \quad (2.10)$$

FMM は図 2.4(a) に示すように、二つの *spring-pot* を直列に繋いでいるため、モデルパラメータはそれぞれ 4 つ ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $V$ ,  $G$ ) となる。また、FMM の構成方程式は、ひずみ ( $\gamma = \gamma_1 + \gamma_2$ ) を与えたときに応力が各要素で等しい ( $\sigma = \sigma_1 = \sigma_2$ ) と仮定すると次のようになる：

$$\sigma(t) + \frac{V}{G} \frac{d^{\alpha-\beta} \sigma(t)}{dt^{\alpha-\beta}} = V \frac{d^\alpha \gamma(t)}{dt^\alpha} \quad (2.11)$$

### 動的粘弾性測定で得られる $G'$ , $G''$ の FMM による予測

試料のレオロジー特性として、重要な物性値である貯蔵弾性率  $G'$  と損失弾性率  $G''$  は、レオメーターによる SAOS (small-amplitude oscillatory shear) 測定を行うことで得られる。さまざまな角速度  $\omega$  における  $G'(\omega)$  および  $G''(\omega)$  を測定することができれば、試料の代表的な緩和時間を見積もることが可能である。この緩和時間は、粘弾性流体が流動する流れ場で非常に重要な無次元数である Weissenberg 数  $Wi$  や Deborah 数  $De$

を算出する上で重要なパラメータとなる<sup>1)</sup>。しかしながら、実際にはレオメーターで測定可能な角速度の範囲は限られており、緩和時間を算出することは容易ではない。

このような問題に対して、FMMでは、式(2.11)を用いて $G'(\omega)$ 、 $G''(\omega)$ の予測式を導出することができる。まず、式(2.11)をFourier変換<sup>\*1</sup>することで、以下の複素弾性率 $G^*(\omega)$ が得られる<sup>43,44)</sup>：

$$G^*(\omega) = \frac{\mathbb{V}(i\omega)^\alpha \cdot \mathbb{G}(i\omega)^\beta}{\mathbb{G}(i\omega)^\alpha + \mathbb{V}(i\omega)^\beta} \quad (2.12)$$

$G^*(\omega) = G'(\omega) + iG''(\omega)$ より、式(2.12)の右辺の実数部と虚数部から、貯蔵弾性率 $G'(\omega)$ と損失弾性率 $G''(\omega)$ の予測式はそれぞれ、

$$G'(\omega) = \frac{(\mathbb{G}\omega^\beta)^2 \cdot \mathbb{V}\omega^\alpha \cos(\pi\alpha/2) + (\mathbb{V}\omega^\alpha)^2 \cdot \mathbb{G}\omega^\beta \cos(\pi\beta/2)}{(\mathbb{V}\omega^\alpha)^2 + (\mathbb{G}\omega^\beta)^2 + 2\mathbb{V}\omega^\alpha \cdot \mathbb{G}\omega^\beta \cos(\pi(\alpha - \beta)/2)} \quad (2.13)$$

$$G''(\omega) = \frac{(\mathbb{G}\omega^\beta)^2 \cdot \mathbb{V}\omega^\alpha \sin(\pi\alpha/2) + (\mathbb{V}\omega^\alpha)^2 \cdot \mathbb{G}\omega^\beta \sin(\pi\beta/2)}{(\mathbb{V}\omega^\alpha)^2 + (\mathbb{G}\omega^\beta)^2 + 2\mathbb{V}\omega^\alpha \cdot \mathbb{G}\omega^\beta \cos(\pi(\alpha - \beta)/2)} \quad (2.14)$$

となる。FMMにおけるモデルパラメータは、実験で得られる $G'(\omega)$ 、 $G''(\omega)$ の結果と式(2.13)、(2.14)を用いてフィッティングを行うことで得られる。FMMにおける代表緩和時間のスケールは、 $G'(\omega)$ と $G''(\omega)$ が交差( $G'(\omega) = G''(\omega)$ )する角速度 $\omega_c$ の逆数と等しい<sup>37)</sup>。したがって、代表緩和時間 $\tau$ は、

$$\tau \simeq \omega_c^{-1} = \left( \frac{\mathbb{V}}{\mathbb{G}} \left[ \frac{\sin(\pi\alpha/2) - \cos(\pi\alpha/2)}{\cos(\pi\beta/2) - \sin(\pi\beta/2)} \right] \right)^{1/(\alpha-\beta)} \quad (2.15)$$

となり、フィッティングで得られた各モデルパラメータを式(2.15)に代入することで代表緩和時間を見積もることができる。

---

\*1 Caputo 微分に対しては、Schuessel ら<sup>43)</sup>によって以下のFourier変換の式が与えられている：

$$\mathcal{F} \left\{ \frac{d^\alpha}{dt^\alpha} f(t); \omega \right\} = (i\omega)^\alpha \tilde{f}(\omega)$$

ただし、 $\tilde{f}(\omega) = \mathcal{F}\{f(t); \omega\}$ である。



## 2.3 試験流体のレオロジー特性

### 2.3.1 動的粘弾性特性と緩和時間

図 2.5 に、キサントガム水溶液のひずみ依存の動的粘弾性および周波数依存の動的粘弾性の測定結果を示す。また、図 2.5(b) には、式 (2.13), (2.14) を用いてフィッティングを行った結果をそれぞれ実線と破線で示している。なお、図中にフィッティングで得られた各モデルパラメータ ( $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\mathbb{V}$ ,  $\mathbb{G}$ ) と、それらを式 (2.15) に代入することで得られた緩和時間  $\tau$  も合わせて示している。

図 2.5(a) は、角速度が  $\omega \doteq 6.3$  (rad/s) における各せん断ひずみ振幅  $\gamma$  での貯蔵弾性率  $G'$  と損失弾性率  $G''$  を示している。おおよそひずみ振幅  $\gamma$  が 0.4 以上になると、 $G'$  と  $G''$  の値が変化していくことがわかる。すなわち、ひずみ振幅が 0.4 未満までが微小変形領域であると考えられる。したがって、本研究では、周波数依存の動的粘弾性測定 (図 2.5(b)) でのひずみ振幅は、十分に微小である 1 % で行った。

図 2.5(b) は、各角速度における貯蔵弾性率と損失弾性率の結果を示している。幅広い角速度の範囲で貯蔵弾性率が損失弾性率よりも大きいことから、キサントガム水溶液は弾性的性質の強い流体であることがわかる。また、算出されたキサントガム水溶液の代表緩和時間は約 53 秒であった。

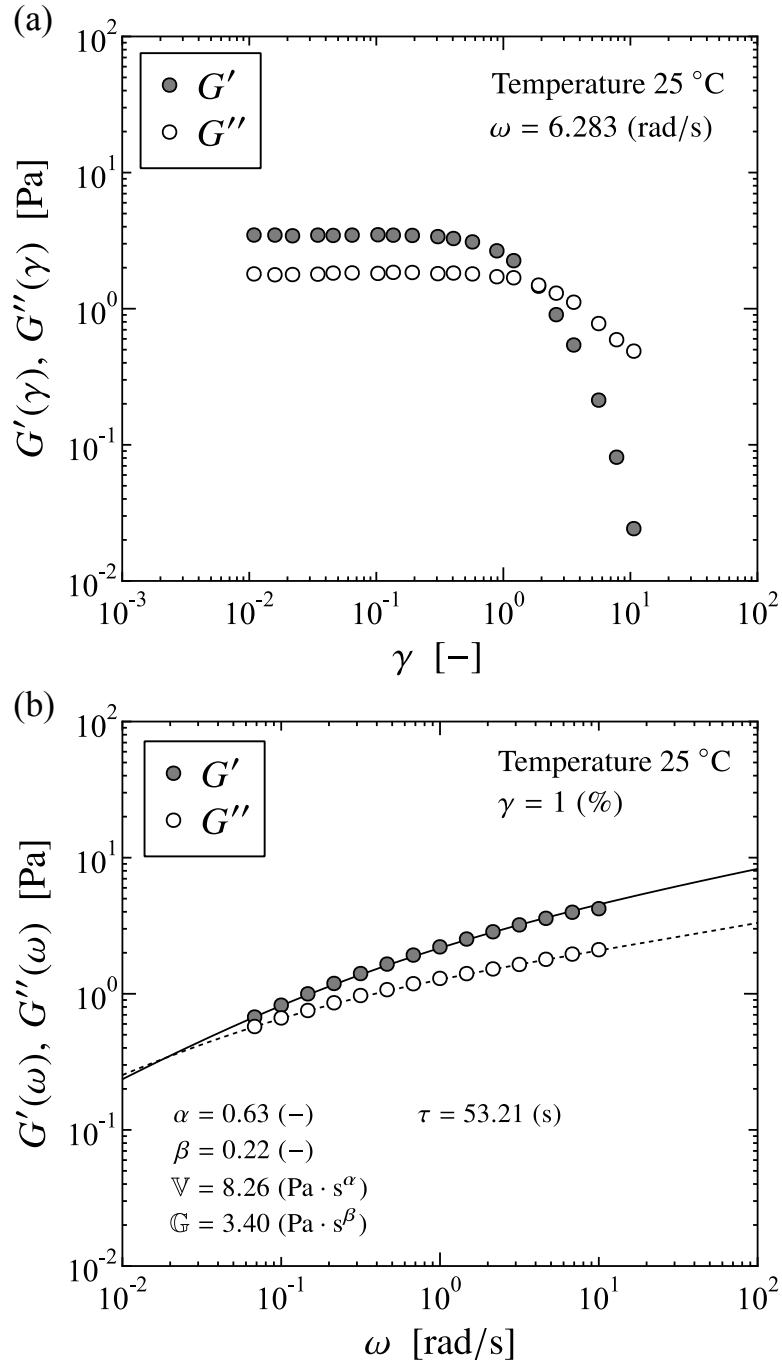


Fig.2.5. Results of small-amplitude oscillatory shear of 0.5 wt % Xanthan gum solution at 25 °C. (a) Strain amplitude sweep performed at  $\omega \doteq 6.3$  rad/s. (b) Frequency sweep performed at a strain amplitude  $\gamma = 1$  %, which lies in the linear regime. The solid line and dashed line are, respectively, predictions of  $G'$  and  $G''$  estimated by equations (2.13) and (2.14).

### 2.3.2 せん断粘度特性

図 2.6 にキサントガム水溶液のせん断粘度特性を示す．縦軸にせん断粘度  $\eta$  を，横軸にせん断速度  $\dot{\gamma}$  をとっている．また図中の実線は，Jaishankar and McKinley<sup>34)</sup> によって示された以下のせん断粘度に関する近似式，

$$\eta(\dot{\gamma}) \approx \mathbb{G} \dot{\gamma}^{\beta-1} \frac{\beta}{\Gamma(1-\beta)} \frac{(\gamma^*)^{1-\beta}}{1-\beta} {}_2F_1\left(1, \frac{1-\beta}{2}; \frac{3-\beta}{2}; -0.3(\gamma^*)^2\right) + \mathbb{V} \dot{\gamma}^{\alpha-1} \frac{\alpha}{\Gamma(1-\alpha)} \frac{(\gamma^*)^{-\alpha-1}}{0.3(1+\alpha)} {}_2F_1\left(1, \frac{1+\alpha}{2}; \frac{3+\alpha}{2}; -\frac{1}{0.3(\gamma^*)^2}\right) \quad (2.16)$$

を用いて予測した結果を示している．ここで， ${}_2F_1(a, b; c; z)$  は超幾何関数と呼ばれる関数であり，

$${}_2F_1(a, b; c; z) = \frac{\Gamma(c)}{\Gamma(a)\Gamma(b)} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\Gamma(a+k)\Gamma(b+k)}{\Gamma(c+k)} \frac{z^k}{k!} \quad (2.17)$$

のように定義されている．また， $\gamma^* = (\mathbb{V}/\mathbb{G})^{1/(\alpha-\beta)} \dot{\gamma}$  であり，式中の  $\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\mathbb{V}$ ,  $\mathbb{G}$  は FMM のモデルパラメータである．

図 2.6 より，キサントガム水溶液は，せん断速度が増加するにつれせん断粘度が低下する shear-thinning 性を有する流体であることがわかる．また，動的粘弾性測定から決

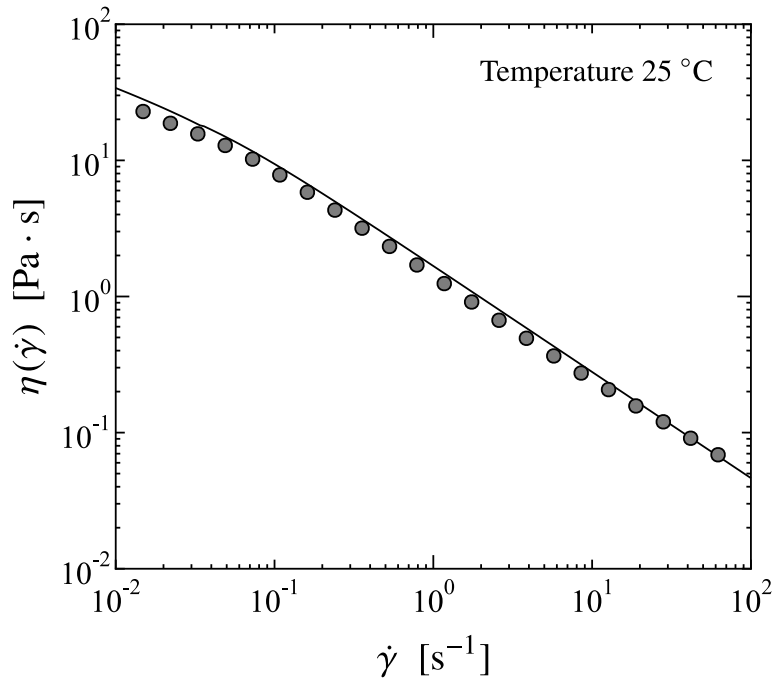


Fig.2.6. Shear viscosity of 0.5 wt% solution of Xanthan gum measured at 25 °C. The solid line predictions of  $\eta(\dot{\gamma})$  estimated by equations (2.16).

定される FMM のモデルパラメータを用いた式 (2.16) による定常せん断粘度の予測は、  
図 2.6 より、よい精度で実験結果を再現していることがわかる。このように線形領域にお  
ける実験で得られるパラメータで、非線形領域の現象を予測することは非常に有意義で  
あると考えられ、今後、数値解析などでも FMM は有効活用されるものと考えられる。

## 第 3 章

# 速度分布および複屈折の測定方法

本研究では、種々の流動場における高分子流体の流動挙動と流動配向を調べるために、速度分布測定 (PTV 計測) と、光学測定 (複屈折測定) を行った。

本章では、速度分布測定と光学測定の方法について示す。

### 3.1 速度分布測定

高分子の配向状態は流動によって変化する。したがって、流体が受ける流れ場を知ることが、高分子の流動誘起配向を考察する際に非常に重要となる。そこで本研究では、種々の流れ場を流動する高分子水溶液の速度分布測定を行った。本研究で用いた速度分布測定用の装置の概略図を図 3.1 に示す。PTV 計測を行うために、図に示すようにハイスピードカメラ (VC-600W, Keyence Corp., Japan) を正立型光学顕微鏡 (BX51, Olympus Optical Co., Ltd., Japan) に設置して測定を行った。速度分布は、ハイスピードカメラによって流動している粒子を撮影し、得られた動画から粒子を追跡することで得た。なお、図 3.1 に示しているように、追跡する粒子は対物レンズによってピントの合った粒子のみを選択した。本研究では、流路によって異なる倍率の対物レンズ (4 倍と 10 倍) を用いた。被写界深度に関して、4 倍の対物レンズでは約  $\pm 84 \mu\text{m}$  であり、10 倍では約  $\pm 15 \mu\text{m}$  である。

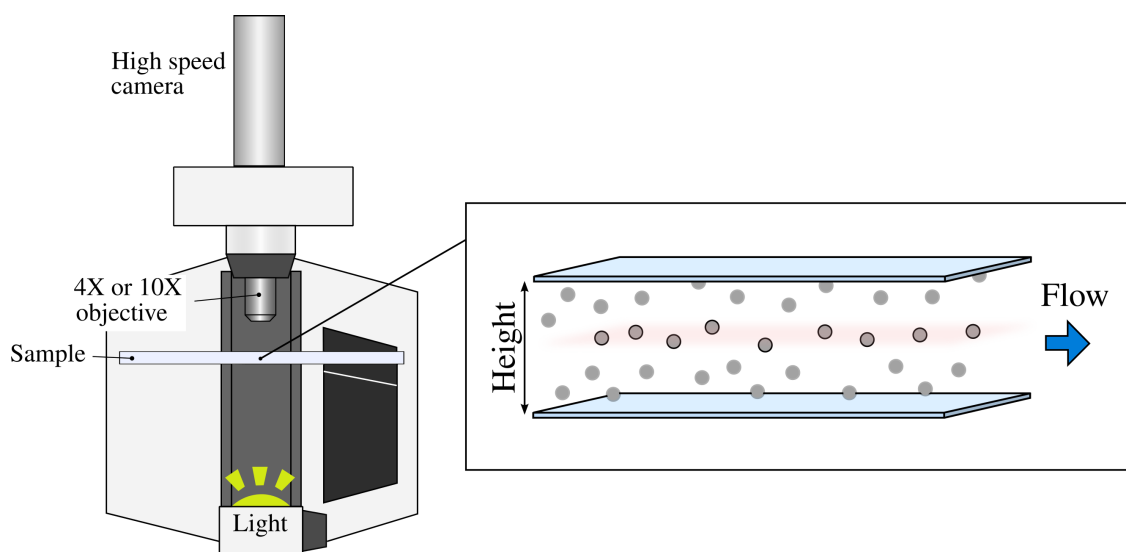


Fig.3.1. Schematic diagram of experimental setup for velocity measurement.

## 3.2 複屈折測定

流体の内部構造，流動誘起構造あるいは流動誘起配向を調べるには光学測定が有効である。光学測定は，光の散乱や干渉を利用したものなど，さまざまな手法が提案されている。本研究では，光の偏光特性を利用した解析の一つである流動複屈折測定を行った。複屈折測定は，流動配向場だけではなく，ストレス・オプティカル則<sup>4)</sup>から応力場を測定することができるため，非常に多くの研究で用いられている手法である。本節では，まず初めに複屈折について概説し，その後，偏光解析で重要な Jones ベクトルと Stokes ベクトルを簡単に示し，実験装置および複屈折と配向角の算定方法を示す。

### 3.2.1 複屈折および配向角について<sup>4, 45)</sup>

高分子のモノマーユニットや，分散する粒子などが誘電異方性を持つ場合，流動により誘起される高分子の配向あるいは構造変化などにより誘電異方性の程度が大きく変化する。これにより複屈折 (birefringence) や二色性 (dichroism) といった光学異方性が発現する。

一般的に，図 3.2 に示すように，高分子流体は静止状態では分子鎖が無秩序に絡まり合っており，光学異方性は平均値を取るとゼロとなる。しかしながら，例えば，せん断流動を与えると分子鎖はある方向へ引き伸ばされ配向し，結果としてレーザーを用いた空間平均的な計測に対しても光学異方性が発生する。図 3.2 に示すように，光学異方性のひとつである複屈折  $\Delta n'$  は，屈折率の異方性の度合いを示す物理量であり，屈折率を幾何的に

表現した屈折率楕円の主値の差 ( $n'_1 - n'_2$ ) として定義されている。また配向角は、屈折率楕円の主軸方向 (図 3.2 では、 $n'_1$  の方向) として定義されている。高分子がある方向へ強く配向すればするほど、屈折率の異方性が大きくなり、すなわち、複屈折の値も大きくなる。逆に、高分子が無秩序に (ランダムに) 配向していれば光学異方性も小さくなり、複屈折の値も小さくなる。換言すれば、屈折率異方性の度合いを示す複屈折の値は、高分子鎖の配向の度合いを示す値として、配向角は高分子鎖の平均配向方向として評価できる。

光学異方性を示す流体に光を透過すると、屈折率の異方性あるいは吸光度の異方性により透過した光の偏光状態が変化する。ゆえに、複屈折の値を算出するには、試料を透過した光の偏光状態を調べればよい。なお、複屈折の値は、上述したように光の透過光を利用して測定するため、図 3.2 に示すように、二次元的かつ透過方向の平均的な情報しか得られない (図では、 $z$  軸方向に透過しているため  $xy$  面内の平均された情報が得られる)。したがって、光の入射方向によって同じ流れ場においても得られる情報は異なるため、三次元的に内部構造あるいは流動誘起配向を知るには、複数の光を用意し同時に計測しなければならない。このため、複雑な流れ場において、3次元空間における複屈折分布あるいは屈折率テンソルの全成分を実験的に測定することは極めて困難である。ただし、単純せん断流れにおいては、複数の光を利用して屈折率テンソルの全成分を測定した報告がある<sup>46,47)</sup>。

本研究で用いる流れ場は、平面流れ (第 4 章以降で詳しく述べる) であるため、例えばせん断流れでは、高分子は図 3.2 に示すような流動配向状態を示すと予測される。すなわち、壁面付近ではせん断による寄与が大きいため流れ方向へと配向し、壁面から離れた位置における高分子は、せん断の寄与が非常に小さいために無配向状態に近い状態であると考えられる。また上述したとおり、得られる複屈折は透過領域の平均値となるために、高分子の流動配向を考察する際には非常に大雑把ではあるが、図 3.2 のように、各領域ごとに分けて高分子の流動配向状態を議論する必要があると考えられる。

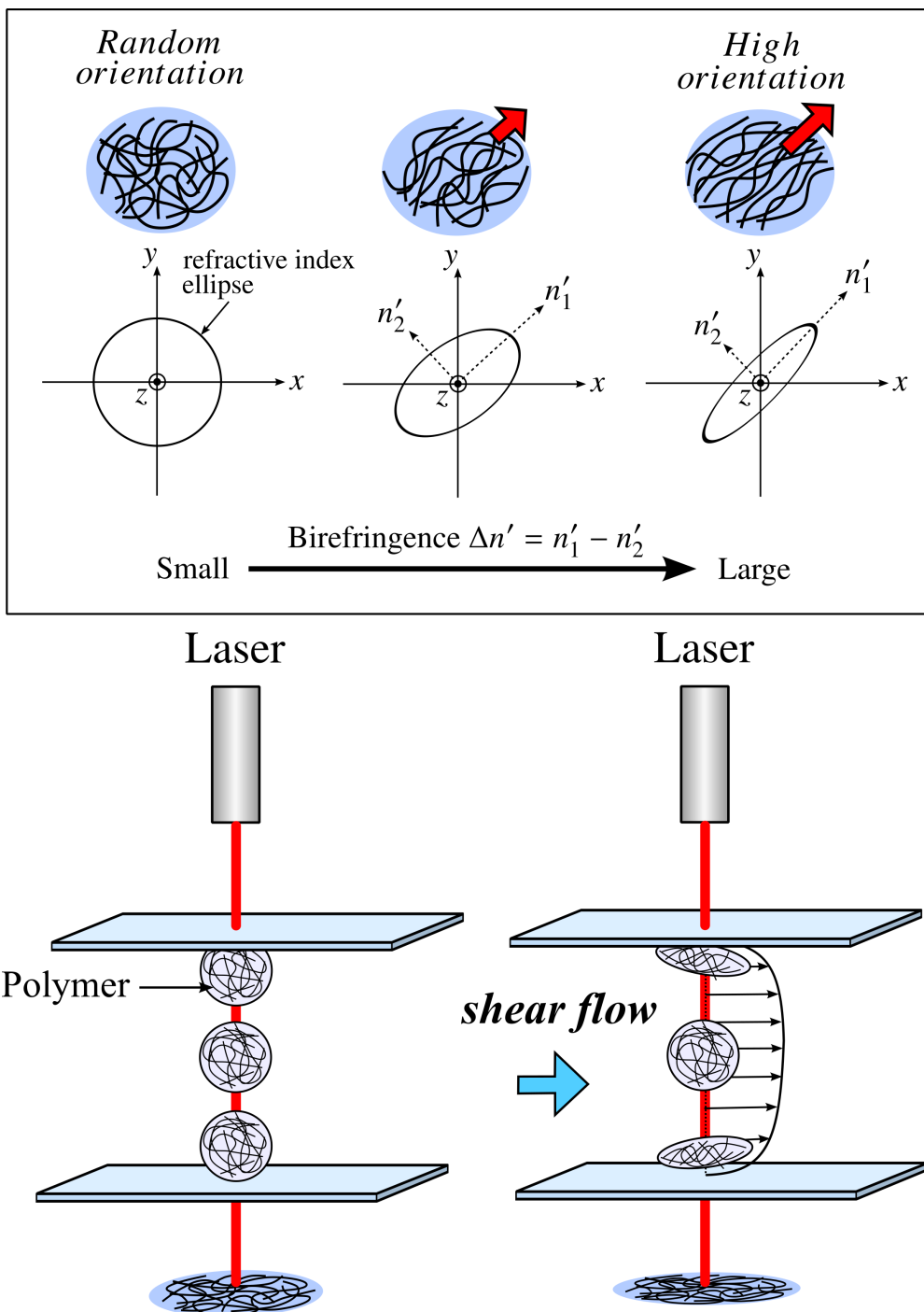


Fig.3.2. Illustration of flow-induced orientation in polymers.



### 3.2.2 Jones ベクトルと Stokes ベクトル <sup>4, 48, 49)</sup>

光は電磁波であり、横波として振る舞う。電場ベクトルと磁場ベクトルは各位置における位相は等しく、かつ、直交関係にあるので、光の性質を議論する場合は電場ベクトルを代表させて考えることができる <sup>49)</sup>。また、簡単のため電磁波は平面波とする。図 3.3 は、光の電場ベクトル（実線）と直交した成分に分解した波（破線）を示している。図 3.3 のように光（実線）はある方向に偏光しており、複屈折測定はこの偏光特性を利用して行われている。ここで、図 3.3 のように  $z$  軸に沿って光が伝播している場合、電場ベクトル  $\mathbf{E}$  は、以下のように表される：

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{E}_x e^{i\delta'_x} \\ \tilde{E}_y e^{i\delta'_y} \end{pmatrix} e^{i(kz - \omega t)} \quad (3.1)$$

ただし、 $\tilde{E}_x, \tilde{E}_y$  は各成分の電場の振幅、 $k = 2\pi n/\lambda$  は波数であり、 $n$  は屈折率、 $\lambda$  は光の波長である。また、 $\delta' = \delta'_x - \delta'_y$  は位相差（リタデーション）と呼ばれ、光学異方性を有する物質を通過すると  $\delta'$  の値は変化する。例えば、異方性を示す物質の光学軸と図 3.3 に示す座標系が一致し、屈折率の主値がそれぞれ  $n'_x, n'_y$  の場合、物質を通過した後の光の位相差  $\delta'$  は次のようになる：

$$\delta' = \delta'_x - \delta'_y = \frac{2\pi(n'_x - n'_y)d}{\lambda} = \frac{2\pi\Delta n'd}{\lambda} \quad (3.2)$$

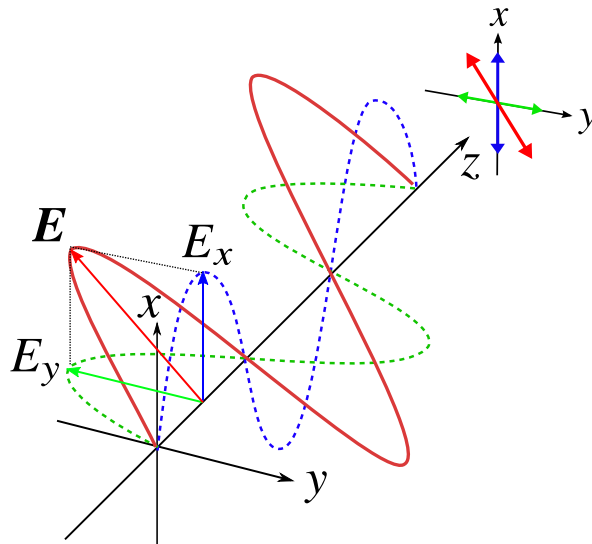


Fig.3.3. Electric field.

ただし、 $d$  は光が光学異方性を示す物質を通過した距離であり、 $\Delta n'$  は複屈折の値である。ここで、式 (3.1) の  $e^{i(kz-\omega t)}$  を取り除いた部分、

$$\mathbf{A} = \begin{pmatrix} A_x \\ A_y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{E}_x e^{i\delta'_x} \\ \tilde{E}_y e^{i\delta'_y} \end{pmatrix} \quad (3.3)$$

を Jones ベクトルといい、光の偏光状態を表すベクトルである。Jones ベクトルは非常にシンプルな記述で光の偏光状態を表現できるが、Jones ベクトルの各成分は実験では測定することができない。ここで、以下に示す Stokes ベクトル  $\mathbf{S}$  は、Jones ベクトルと同様に光の偏光状態を表すベクトルであり、少し複雑にはなるが、各成分を実験によって求めることができる：

$$\mathbf{S} = \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \tilde{E}_x^2 + \tilde{E}_y^2 \\ \tilde{E}_x^2 - \tilde{E}_y^2 \\ 2\tilde{E}_x\tilde{E}_y \cos \delta' \\ 2\tilde{E}_x\tilde{E}_y \sin \delta' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \text{光の全強度} \\ \text{水平/垂直成分の光の強度差} \\ \text{45°/-45°成分の光の強度差} \\ \text{右/左回り円偏光の光の強度差} \end{pmatrix} \quad (3.4)$$

式 (3.4) に示すように、Stokes ベクトルの各パラメータは、透過光の強度を測定すれば求めることができる。したがって、物質を通過した後の光の偏光状態を知るには、光の強度あるいは強度の差を測定すれば良い。

図 3.4 に示すように、偏光特性を有する光学素子や光学異方性を示す物質に光を通すと、透過後の光の偏光状態が変化する。すなわち、Jones ベクトルおよび Stokes ベクトルが入射前  $\mathbf{A}_0, \mathbf{S}_0$  と透過後  $\mathbf{A}_1, \mathbf{S}_1$  で異なる。ここで、光学素子や試料の複屈折などの偏光特性を数値化した  $2 \times 2$  行列および  $4 \times 4$  行列をそれぞれ Jones 行列、Muller 行列という。Muller 行列  $\mathbf{M}$  は、Jones 行列の各成分で表され<sup>4, 48)</sup>、

$$\mathbf{M} = \begin{pmatrix} \frac{(m_1 + m_2 + m_3 + m_4)}{2} & \frac{(m_1 - m_2 - m_3 + m_4)}{2} & (s_{13} + s_{42}) & -(d_{13} + d_{42}) \\ \frac{(m_1 - m_2 + m_3 - m_4)}{2} & \frac{(m_1 + m_2 - m_3 - m_4)}{2} & (s_{13} - s_{42}) & (d_{42} - d_{13}) \\ (s_{14} + s_{32}) & (s_{14} - s_{32}) & (s_{12} + s_{34}) & (d_{34} - d_{12}) \\ (d_{14} + d_{32}) & (d_{14} - d_{32}) & (d_{12} - d_{34}) & (s_{12} - s_{34}) \end{pmatrix} \quad (3.5)$$

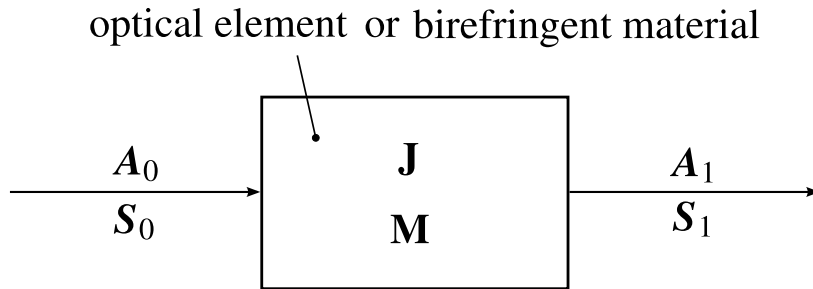


Fig.3.4. Linear transformation of the electric vector<sup>4)</sup>.

となる。ここで、

$$\begin{aligned}m_i &= j_i J_i^* \\s_{ik} &= \text{Re}(j_i J_k^*) \\d_{ik} &= \text{Im}(j_i^* j_k)\end{aligned}$$

であり、 $(i, k) = 1, 2, 3, 4$  および  $(j_1, j_2, j_3, j_4) = (j_{11}, j_{22}, j_{12}, j_{21})$  である。Jones 行列および Muller 行列を用いれば、透過後の偏光状態は以下のように計算できる：

$$\mathbf{A}_1 = \mathbf{J} \cdot \mathbf{A}_0 \quad (3.6)$$

$$\mathbf{S}_1 = \mathbf{M} \cdot \mathbf{S}_0 \quad (3.7)$$

偏光解析では、最終的に試料を通過した後の光の強度を測定するが、基本的には式 (3.7) を利用して試料の光学異方性を算出する。

### 3.2.3 複屈折測定装置

本研究で用いた複屈折測定装置の概略図を図 3.5(a) に、光学系の詳細を図 3.5(b) に示す。一般的にレーザーを用いた光学測定では、その測定領域は用いるレーザーのビーム径によって決定される。このため、測定の空間分解能を高めるために、Quinzani ら<sup>10)</sup> は、複屈折測定装置にレンズとピンホールを追加しレーザー光を集光させて測定を行った。また、保田ら<sup>7)</sup> は、光学装置と光学顕微鏡を組み合わせた装置を開発し、20 倍の対物レンズによってレーザー光を集光させて測定を行った。本研究では、保田ら<sup>7)</sup> と同様に、複屈折測定装置と正立型光学顕微鏡 (BX51, Olympus Optical Co., Ltd., Japan) を組み合わせた装置を作製した。光源として He-Ne レーザー (05-LHP-151, Melles Griot Corp., USA, power: 5 mW, beam diameter: 0.81 mm, wavelength: 632.8 nm) を、偏光変調装置 (PSG) として回転半波長板方式<sup>4,50)</sup> を、偏光解析器 (PSA) として円偏光板<sup>4)</sup> を採用した。レーザーから照射された光は、PSG を通過することで光の偏光面<sup>\*1</sup> が回転する直線偏光となり、その後、20 倍の対物レンズによって集光され、試験流体に入射する。試験流体を通過した光は、偏光解析器 (PSA) を通過し、ディテクターによって光の強度が検出される。得られた情報をオプティカルアナライザー (OAS Ver 4.2, Japan High Tech Co., Ltd., Japan) で解析し、複屈折および配向角を算出する。

20 倍の対物レンズによって絞られたレーザー光の径を測定した結果を図 3.6 に示す。この図では、ビーム径が最も細くなった位置を原点とし、ビーム径を縦軸に、光軸に沿った距離を横軸にとっている。図 3.6 より、この装置によってレーザー光のスポット径は約 6  $\mu\text{m}$  程度まで小さくなっているが、スポット径の位置から離れるに従いレーザー光は大

\*1 光の進行方向と磁場ベクトル  $\mathbf{H}$  を含む面のこと。

きくなっていく。本研究では、レーザー光は図 3.5(a) に示すように流路高さ方向に沿って透過し測定を行った。したがって、本研究で得られる複屈折および配向角はこの透過領域における平均値となる。また、流路は集光された光のスポット径が流路高さ方向の中心に来るように設置した。このため、測定領域においてビーム径は、流路高さの中心で最小となり、流路の上下壁面で最大となる。したがって、このようにビーム径が変化することによる測定結果への影響が考えられる。このことに関しては、第 4 章で議論する。

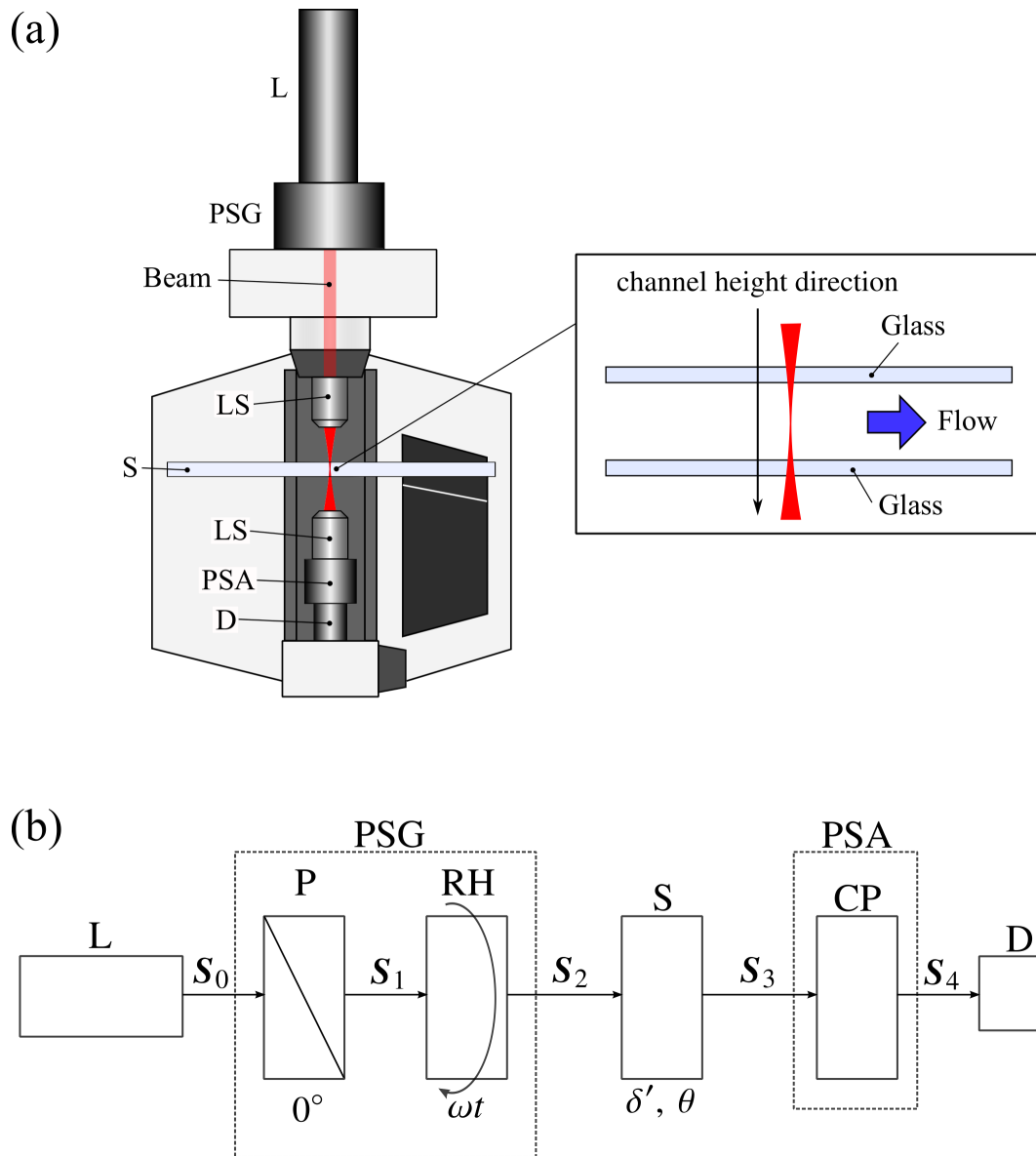


Fig.3.5. (a) Schematic diagram of the experimental setup for birefringence measurement. (b) Block diagram of an optical system used for birefringence measurements. L: He-Ne laser; P: polarizer; RH: rotating half-wave plate; S: sample; D: detector; PSG: polarization state generator; PSA: polarization state analyzer; LS: 20 $\times$  objective lens;  $S_i$ : Stokes vector;  $\delta'$ : retardation of light;  $\theta$ : orientation angle;  $\omega$ : angular velocity of rotational modulation;  $t$ : time.

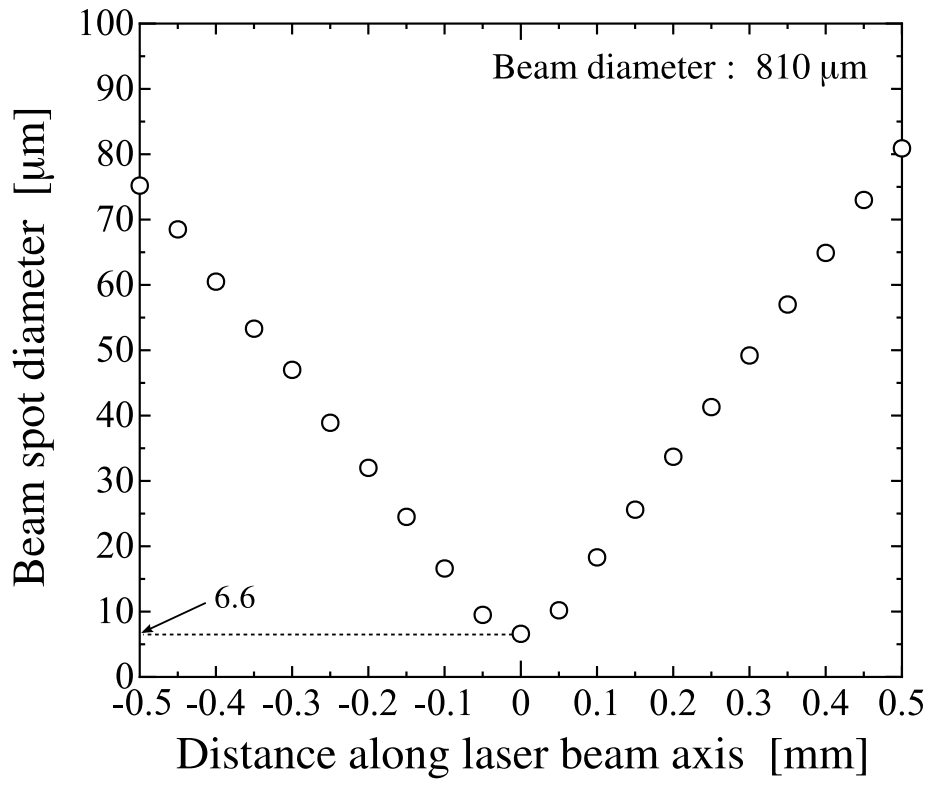


Fig.3.6. Spot diameter distribution of He-Ne laser beam along the laser axis<sup>7)</sup>.

### 3.2.4 複屈折および配向角の算定方法

本小節では，複屈折および配向角の算定方法について示す。

ディテクターで検出される光の強度は，3.2.2節で示した Stokes ベクトルと Muller 行列を用いて理論的に求めることができる。図 3.5(b) に示されている各光学素子および試験流体に関する Muller 行列は以下のようになる<sup>4,50)</sup>。

$$\mathbf{M}_P = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

$$\mathbf{M}_{RH} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos 4\omega t & \sin 4\omega t & 0 \\ 0 & \sin 4\omega t & -\cos 4\omega t & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (3.9)$$

$$\mathbf{M}_S = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \cos^2 2\theta + \sin^2 2\theta \cos \delta' & \sin 2\theta \cos 2\theta (1 - \cos \delta') & -\sin 2\theta \sin \delta' \\ 0 & \sin 2\theta \cos 2\theta (1 - \cos \delta') & \sin^2 2\theta + \cos^2 2\theta \cos \delta' & \cos 2\theta \sin \delta' \\ 0 & \sin 2\theta \sin \delta' & -\cos 2\theta \sin \delta' & \cos \delta' \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

$$\mathbf{M}_{CP} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (3.11)$$

ここで， $\mathbf{M}_P$ ， $\mathbf{M}_{RH}$ ， $\mathbf{M}_S$  および  $\mathbf{M}_{CP}$  はそれぞれ，偏光板（光軸が  $0^\circ$  の場合），回転半波長板，試験流体<sup>\*2</sup> および（左回り）円偏光板の Muller 行列である。

光の偏光状態を解析するために，Stokes ベクトル  $\mathbf{S} = (S_0, S_1, S_2, S_3)^T$  を用いる ( $T$  は転置を示す)。まず初めに，PSG に入射する光の偏光状態を Stokes ベクトル  $\mathbf{S}_0$  を用いて (Fig.3.5(b) を参照)，

$$\mathbf{S}_0 = \begin{pmatrix} I_0 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.12)$$

<sup>\*2</sup> この試験流体に関する Muller 行列は，流体が光学異方性の一つである二色性を示さない場合の行列である。流体によっては，複屈折および二色性の両方を示すものもあり，さらには，複屈折の屈折率テンソル  $\mathbf{n}'$  の主軸方向と二色性の屈折率テンソル  $\mathbf{n}''$  の主軸方向が一致しない場合もある。こういった場合の流体の Muller 行列はより複雑なものとなる<sup>4)</sup>。

とする ( $I_0$  は入射光の光強度). 最終的にディテクターで検出する光の偏光状態を表す  $\mathbf{S}_4$  は, Muller 行列 (式 (3.8)~(3.11)) を用いて,

$$\mathbf{S}_4 = \mathbf{M}_{\text{CP}} \cdot \mathbf{M}_{\text{S}} \cdot \mathbf{M}_{\text{RH}} \cdot \mathbf{M}_{\text{P}} \cdot \mathbf{S}_0 \quad (3.13)$$

となる. 式 (3.13) を計算すれば,

$$\mathbf{S}_4 = \begin{pmatrix} S_0 \\ S_1 \\ S_2 \\ S_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{I_0}{4}(1 + \sin 2\theta \sin \delta' \cos 4\omega t - \cos 2\theta \sin \delta' \sin 4\omega t) \\ \dots \\ \dots \\ \dots \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

が得られる\*3. ここで, 式 (3.14) の  $S_0$  成分はディテクターが検知する光の強度  $I(t)$  と等しい ( $S_0 = I(t)$ ). また, 式 (3.14) からディテクターが検出する光の強度は, これを電気信号に変換した場合, 直流成分 (時間依存しない成分, 右辺第 1 項) と交流成分 (時間依存する成分, 右辺第 2 項および第 3 項) を含んでいることがわかる. この直流成分と交流成分 (の振幅) を以下のように定義する:

$$\begin{aligned} I_{\text{DC}} &\equiv \frac{I_0}{4} \\ I_{C4\omega t} &\equiv I_{\text{DC}} \sin 2\theta \sin \delta' \\ I_{S4\omega t} &\equiv -I_{\text{DC}} \cos 2\theta \sin \delta' \end{aligned} \quad (3.15)$$

式 (3.15) を用いれば, ディテクターが検出する光の強度  $I(t)$  は最終的に,

$$I(t) = I_{\text{DC}} + I_{C4\omega t} \cos 4\omega t + I_{S4\omega t} \sin 4\omega t \quad (3.16)$$

と記述できる.

ここで, 交流成分の振幅である  $I_{C4\omega t}$ ,  $I_{S4\omega t}$  は, 直流成分である  $I_{\text{DC}}$  を含んでいるので (式 (3.15) を参照), これを除した,

$$\begin{aligned} R_{C4\omega t} &\equiv \frac{I_{C4\omega t}}{I_{\text{DC}}} = \sin 2\theta \sin \delta' \\ R_{S4\omega t} &\equiv \frac{I_{S4\omega t}}{I_{\text{DC}}} = -\cos 2\theta \sin \delta' \end{aligned} \quad (3.17)$$

---

\*3 流動中の流体の複屈折をリアルタイムで計測するには 1 ステップで測定を行わないといけない. Stokes ベクトルの残りの成分である  $S_1$ ,  $S_2$  および  $S_3$  は全て光の強度差のパラメータであるため, これらの成分を測定するにはどのようにしても 2 ステップ以上, 手順を踏まなければ測定できない. 複屈折が時間とともに変化しない場合は, 手順が 2 つ以上でもよいが, 流動中の流体の場合では, 時々刻々と複屈折の値は変化するため, 結局のところ  $S_0$  成分のみから複屈折を求めなければならない. このため, さまざまな偏光変調装置 (本研究で採用した回転半波長板など) が開発されており, これらを利用して  $S_0$  成分のみで流動複屈折を算出している.



のように、 $R_{C4\omega t}$  および  $R_{S4\omega t}$  を定義する。ここで本研究で測定する物理量である複屈折  $\Delta n'$  とリタデーション  $\delta'$  には次のような関係がある：

$$\delta' = \frac{2\pi\Delta n' d}{\lambda} \quad (3.18)$$

ここで、 $d$  は光が試料を通過した距離、 $\lambda$  は光 (レーザー) の波長である。

以上より、複屈折および配向角は式 (3.17) を利用して算出される。なお、 $R_{C4\omega t}$  および  $R_{S4\omega t}$  は、実験で得られた光強度  $I(t)$  を電気信号に変換しそれを高速フーリエ変換すれば得られる。したがって、リタデーションは式 (3.17) の両辺を 2 乗して、

$$R_{C4\omega t}^2 = \sin^2 \theta \sin^2 \delta', \quad R_{S4\omega t}^2 = \cos^2 \theta \sin^2 \delta'$$

得られた 2 式の辺々を足し合わせれば、

$$\begin{aligned} R_{C4\omega t}^2 + R_{S4\omega t}^2 &= (\sin^2 \theta + \cos^2 \theta) \sin^2 \delta' \\ &= \sin^2 \delta' \end{aligned}$$

となるので、リタデーション  $\delta'$  は以下のようになる：

$$\delta' = \sin^{-1} \left( \sqrt{R_{C4\omega t}^2 + R_{S4\omega t}^2} \right) \quad (3.19)$$

したがって、式 (3.18) を用いれば、複屈折  $\Delta n'$  は次のように算出される：

$$\Delta n' = -\text{sgn}(R_{S4\omega t}) \cdot \frac{\lambda \sin^{-1} \left( \sqrt{R_{C4\omega t}^2 + R_{S4\omega t}^2} \right)}{2\pi d} \quad (3.20)$$

ここで、 $\text{sgn}(\dots)$  は符号関数である。このように符号関数を導入することによって、流体が有する複屈折の値が正なのか負なのか、その符号を判断することも可能となる<sup>\*4</sup>。

続いて、配向角  $\theta$  は式 (3.17) の 2 式を次のように変形して、

$$\frac{R_{C4\omega t}}{\sin 2\theta} = \sin \delta', \quad -\frac{R_{S4\omega t}}{\cos 2\theta} = \sin \delta'$$

さらに、2 式から  $\sin \delta'$  を消去すれば、

$$\frac{R_{C4\omega t}}{\sin 2\theta} = -\frac{R_{S4\omega t}}{\cos 2\theta} \rightarrow \frac{\cos 2\theta}{\sin 2\theta} = -\frac{R_{S4\omega t}}{R_{C4\omega t}} \rightarrow \tan 2\theta = -\frac{R_{C4\omega t}}{R_{S4\omega t}}$$

<sup>\*4</sup> 符号関数においてパラメータとして  $R_{S4\omega t}$  が用いられている理由は次のように説明できる。流れ場を単純せん断流れとし、レーザーをせん断方向から透過し測定を行えば、高分子流体の場合、定常流れにおいて高分子鎖は空間平均的に流れ方向に配向する。このとき流れ方向を  $\theta = 0^\circ$  とすれば、式 (3.17) の  $R_{S4\omega t}$  の正負は  $\delta'$  に依存するため、式 (3.18) を考慮すれば複屈折の正負がわかる。ここでパラメータとして  $R_{C4\omega t}$  を採用した場合、配向角の値が少しでも負の値になると  $R_{C4\omega t}$  の符号が変化してしまうため (配向角に対してもその正負が依存してしまう)、複屈折の符号を決定する符号関数のパラメータとしては用いることができない。

となるので、配向角  $\theta$  は次のように算出される：

$$\theta = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left( -\frac{R_{C4\omega t}}{R_{S4\omega t}} \right) \quad (3.21)$$

## 第 4 章

# 平面急拡大流路における高分子水溶液の流動誘起配向

### 4.1 緒論

拡大流れは、縮小流れや障害物まわりの流れなどと同様に、プラスチック成形加工においてよくみられる流れである。急拡大流れにおいては、拡大部の出口付近で流体が外側の壁面の方へ大きく膨らむように流れる現象が生じることが知られており、そのような流れ場では分子の配向度が急激に変化することが報告されている<sup>15)</sup>。また、液晶高分子では、スキン層とコア層で異なる流動配向場が形成され、コア層では流れ方向に対して直交する方向へと分子が配向する現象も見出されている<sup>8)</sup>。しかしながら、粘弾性流体の拡大流れでの流動配向に関する研究は、縮小流れや障害物まわりの流れなどと比べると少なく、特に平面急拡大流れは極めて少ないため<sup>8,21)</sup>、拡大流れに対する粘弾性流体の流動配向に関する知見は十分であるとは言いがたい。また、拡大流れでの流動誘起配向に対する拡大比や、平面流路においてはその流路高さの影響に関する知見も少ない。

そこで本研究では、高分子流体の平面急拡大流路における流動誘起配向を調べるとともに、流路高さや拡大比の流動配向への影響も検討した。本章では、平面急拡大流路における高分子水溶液の速度分布と流動複屈折分布の測定を行い、平面拡大流れにおける高分子水溶液の流れ場と流動配向場に考察する。さらに、種々の流路を用意し、拡大流れにおける流動誘起配向に対する流路高さや拡大比の影響も検討する。

### 4.2 試験流路

本研究で用いた平面急拡大流路および座標系の概略図を図 4.1 に示す。流路は、その外形形状に加工されたスペーサーを 2 枚のガラス板 (40 mm × 80 mm, 厚さ 1.1 mm) で挟むことにより形成されている。上流部の流路幅を  $2H_1$ 、下流部の流路幅を  $2H_2$  および

流路高さを  $2H_3$  とした。また、拡大流れでの流動誘起配向に対する流路高さや拡大比の影響を検討するため、流路高さや拡大比の異なる種々の流路を用意した。流路高さの影響を調べるために用意した流路の詳細を表 4.1 に、拡大比の影響に関して用いた流路の詳細を表 4.2 に示す。

流路高さによる流動配向への影響を調べる実験では、表 4.1 に示しているように拡大比は 1:4 と固定した。また、流路の幅を固定した状態で流路高さを変えた場合、流路断面のアスペクト比が変化する。すなわち、流路高さによる影響を検討する場合は、この流路断面のアスペクト比による流動配向への影響も考慮しなければならない。そこで本研究では、流路断面のアスペクト比  $AR$  を  $AR = 2H_1/2H_3$  と定義し、アスペクト比の影響を検討するため、アスペクト比が 1 の流路に関しては、サイズの異なる流路を別途用意した (表 4.1 参照)。本研究で用いる流路はアスペクト比と拡大比が異なるため、アスペクト比を  $AR$ 、拡大比を  $ER$  と略記し、アスペクト比が  $n$ 、拡大比が  $m$  の流路を、「*Channel AR n ER m*」などのように示すべきである。しかしながら、便宜上、表 4.1 に示している流路に関しては全て拡大比が 4 のため、アスペクト比が  $n$  の流路を「*Channel AR n*」と略称する。なお、アスペクト比が 1 の流路では、サイズが小さい流路は *Channel AR S1* と示す。ここで、 $y$  方向において生じる流れ場の二次元性が、流路における上流側の流路断面のアスペクト比によって異なることに注意しなければならない。例えば、アスペクト比が大きい *Channel AR 5* の流路では比較的二次元性が強いと考えられ、一方、アスペクト比が 1 の流路では、上流で生じる流れ場は Hagen-Poiseuille 流れに近い流れ場であると考えられる。したがって、そのような上流側における流れ場の相違が、本研究で得られる結果に大きく影響することが予測される。

拡大比による流動配向への影響を検討する実験では、表 4.2 に示すように流路高さは 0.5 mm (アスペクト比は 2) と固定した。拡大比  $ER (= 2H_2/2H_1)$  はそれぞれ 2, 4 および 8 である。表 4.2 に示している流路に関しては、全てアスペクト比が 2 のため、拡大比が  $m$  の流路を「*Channel ER m*」と略称する。

座標系として、拡大部の流路幅方向および高さ方向の中心に原点を設け、流れ方向を  $x$  軸、流路幅方向を  $y$  軸および高さ方向を  $z$  軸に設定した。また、各測定に対する流路の位置決めは、小型の 2 軸コントローラー (MMC-2, Chuo Precision Industrial Co., Ltd., Japan) を 2 台用いて  $x, y, z$  方向を制御した。位置決め分解能は 2  $\mu\text{m}$  であった。

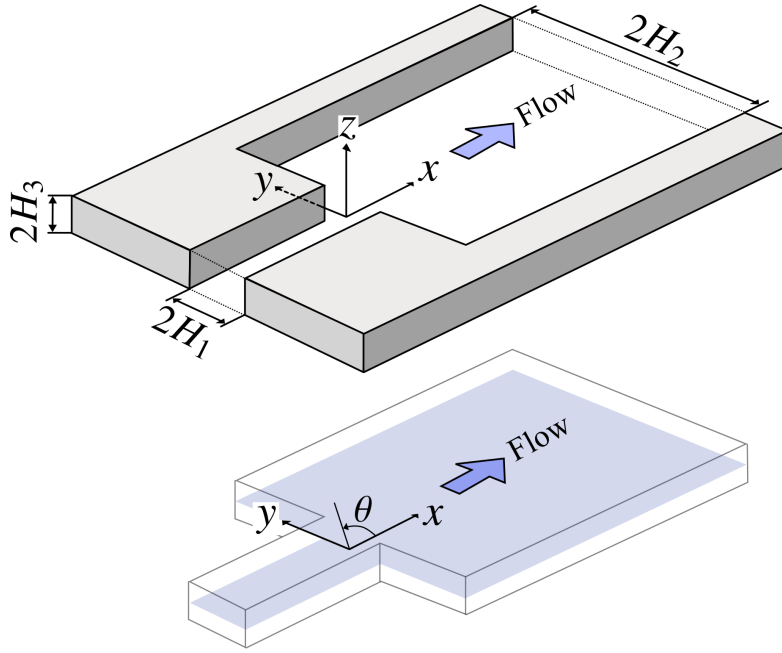


Fig.4.1. Schematic diagram of the test channel and coordinate system.

Table 4.1. Test channel dimensions I.

	$2H_1$ (mm)	$2H_2$ (mm)	$2H_3$ (mm)	Aspect ratio (= $2H_1/2H_3$ )	Expansion ratio (= $2H_2/2H_1$ )
<i>Channel AR 1</i>	1.0	4.0	1.0	1	4
<i>Channel AR 2</i>	1.0	4.0	0.5	2	4
<i>Channel AR 5</i>	1.0	4.0	0.2	5	4
<i>Channel AR S1</i>	0.2	0.8	0.2	1	4

Table 4.2. Test channel dimensions II.

	$2H_1$ (mm)	$2H_2$ (mm)	$2H_3$ (mm)	Aspect ratio (= $2H_1/2H_3$ )	Expansion ratio (= $2H_2/2H_1$ )
<i>Channel ER 2</i>	1.0	2.0	0.5	2	2
<i>Channel ER 4</i>	1.0	4.0	0.5	2	4
<i>Channel ER 8</i>	1.0	8.0	0.5	2	8

### 4.3 実験条件

平面急拡大流路における研究では、代表せん断速度  $\dot{\gamma}_{typ}$  を、

$$\dot{\gamma}_{typ} = \frac{U_{up}}{H_3} \quad (4.1)$$

と定義し、代表せん断速度が 4, 40 および 100 s<sup>-1</sup> となるように流量を調整した。ここで、 $U_{up}$  は上流部での平均流速 (mm/s)、 $H_3$  は流路高さの半分の長さ (mm) である。

試験流体は、シリンジポンプ (CSP-100S, Daiken Medical Co., Ltd., Japan) によって一定流量が流路に供給され、流路出口から排出される。本研究で定めた各代表せん断速度において、シリンジポンプで供給される流量の範囲は、0.3 ml/h から 180 ml/h であった。なお、シリンジポンプの仕様上、0.1 ml/h 未満の流量を調整することができなかったため、*Channel AR S1* では、4 s<sup>-1</sup> における実験は行えなかった。本研究では、試験流体の温度を直接制御することはしておらず、すべての実験は室温 24 ± 1 °C で行った。

流動複屈折測定では、3.2.3 節で示したように、流路高さ方向 (図 4.1 の  $z$  軸方向) に沿って光を透過し測定を行った。したがって、本装置で得られる流動複屈折および配向角は流路高さ方向の平均値となる。また、速度分布測定は、3.1 節で述べたように、流動中のピントの合った粒子を追跡することで速度分布を得た。ここで、被写界深度と流路高さの関係上、流路高さ方向に対して速度勾配が大きい位置での速度分布の計測を精度良く行うことは容易ではない。したがって、本研究では流路高さの中心面 ( $z = 0$ ) の  $xy$  面内における速度分布の測定を行った (図 4.1 参照)。

## 4.4 実験結果および考察

平面急拡大流路における研究では、種々の流路を用いて拡大後の高分子の流動誘起配向を調べた。本研究により、拡大後の高分子の流動配向は、流路高さ（アスペクト比）や拡大比によって大きく異なることが明らかになった。したがって、まずは観測された代表的な流動配向場の結果を二つ示し、その後、流動誘起配向に対するアスペクト比および拡大比の影響を議論する。

### 4.4.1 平面急拡大流れにおける代表的な流動誘起配向

本節では、流動配向の代表例として *Channel AR 1* と *AR 5* の結果について示す。まずは、流れ場全体の流動配向の結果を示し、その後、最も流動配向の変化が顕著に見られた流路中心線上の結果を示す。

#### ***Channel AR 1, AR 5* における流れ場全体の流動誘起配向**

代表せん断速度が  $40 \text{ s}^{-1}$  の *Channel AR 1* および *AR 5* における流路幅方向の流動複屈折の測定結果を、配向楕円を用いて示したものを図 4.2 に示す。なお、流れ場の対称性から、流路幅方向の半分のみを結果として示している。ここで、楕円の扁平度および長軸方向は、各測定位置で得られた複屈折の値および配向角の値にそれぞれ対応している。扁平度は、各測定位置で得られた複屈折  $\Delta n'$  を、各流路で得られた複屈折の最大値  $\Delta n'_{max}$  (例えば、図 4.2(a) では  $x = -1 \text{ mm}$ ,  $y = 0.4 \text{ mm}$  の位置) で規格化した値  $\Delta n' / \Delta n'_{max}$  と定義した。これより、複屈折の値が最も大きな値を示した位置では、楕円は線となり (扁平度は 1)、複屈折の値が 0 を示した位置では、楕円は円となる (扁平度は 0)。また、複屈折の値は分子の配向度と関係しており、複屈折の値が大きいほど分子はある方向に強く配向している状態を、複屈折の値が小さければ分子はランダム配向に近い状態を意味する。なお、4.3 節でも述べているように、本研究で得られた複屈折および配向角は、流路高さ方向の平均値である。

図 4.2 より、拡大部の上流部では、各流路ともに分子は流れ方向に強く配向していることがわかる。これは、流路高さ上下壁面付近のせん断による寄与を反映した結果であると考えられる。一方、下流域では、拡大部による減速流れの影響から分子の配向状態は大きく変化しており、特に流路中心線上 ( $y = 0$ ) 近傍で急激に変化していることがわかる。さらに、流路によって拡大後の流動配向場に大きな違いが見受けられる。

図 4.2(a) より、アスペクト比が大きい *Channel AR 5* では拡大部後、流れ方向に配向していた分子が減速流れによって無配向状態に近い状態となる。その後、下流域に進むと分子は再び流れ方向へと配向する ( $x = 40 \text{ mm}$ )。一方、図 4.2(b) より *Channel AR 1*

の場合、*Channel AR 5*と同様に、拡大部後に分子の配向度が急激に低下しランダム配向状態に近い状態となる ( $x = 0.5 \text{ mm}$ )。しかしながら、その後すぐに分子は平均的に流れ方向に対し直交方向に配向する。また、このような流動誘起配向は、中心軸のみならず流路幅方向に渡って生じていることがわかる。拡大流路によるこのような配向場は、液晶高分子の場合でも同様に生じることが Cinader and Burghardt<sup>8)</sup>によって報告されている。

対照的に各流路において、拡大後の流路側壁面付近における分子の配向場の違いは見受けられない。また、流れ方向に沿っての分子の流動配向の変化もあまりないことがわかる。これは、流路側壁面付近では、側壁面および流路上下壁面によるせん断場が支配的であるためだと考えられる。

以上より図 4.2 の結果から、急拡大部後の流路中心線上付近では、高分子の流動誘起配向は急激に変化することがわかった。さらに、流動誘起配向は各流路において大きく異なっている。そこで本研究では、流路中心線上 ( $y = 0$ ) におけるより詳細な流動複屈折測定を行った。



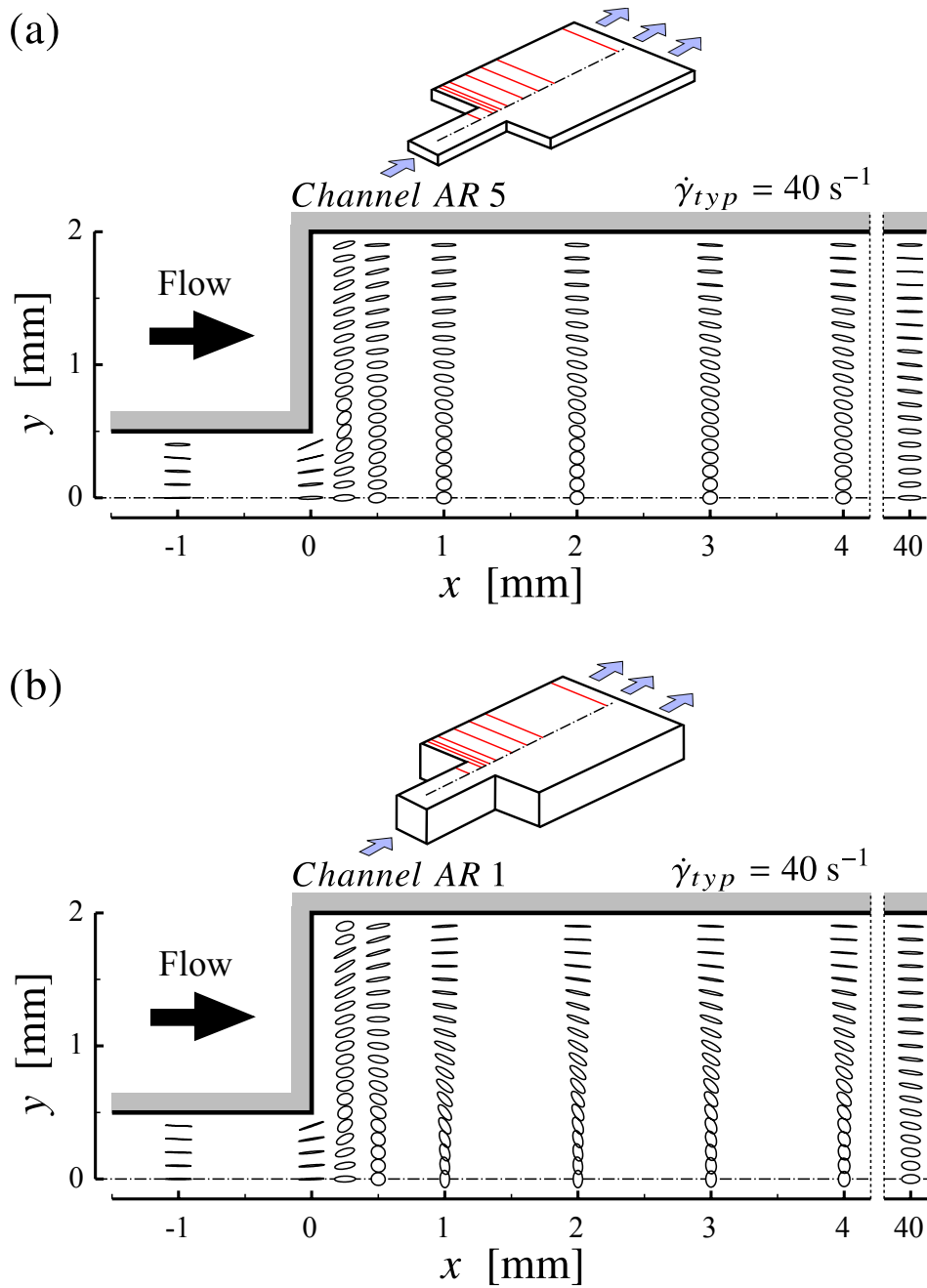


Fig.4.2. Distribution of orientation ellipses at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . The semimajor axes of ellipses are parallel to the mean orientation direction, while ellipticity is proportional to the strength of the orientation.

### Channel AR 1, AR 5 における流路中心線上の流動誘起配向

図 4.3 に、Channel AR 1 および AR 5 における流路中心線上での流動複屈折および配向角の結果を示す。なお、縦軸に複屈折の絶対値  $|\Delta n'|$  あるいは配向角  $\theta$  をとり、横軸に流れ方向の座標位置  $x$  をとっている。ここで、複屈折の正負は高分子の種類によって異なり、本研究で用いたキサントガム水溶液は負の複屈折を示す。本研究では複屈折の絶対値で議論するため、複屈折の値が大きいと称した場合は、複屈折の絶対値が大きいことを意味する。配向角の値は図 4.1 で示すように、 $x$  軸から反時計回りを正とした。また、 $x = 40$  mm の位置が本研究で測定できる最下流位置となる。

3.2.3 節で述べたように、本研究では対物レンズによって光を集光させているため、ビーム径が透過方向 ( $z$  軸方向) によって変化する。これより Channel AR 1 では Channel AR 5 に比べ上下壁面でのビーム径は大きくなるため、ビーム径の変化による結果への影響が生じる場合、代表せん断速度を等しくしても上流部での複屈折の値が流路によって異なることが考えられる。しかしながら、図 4.3(a) の上流部における複屈折の結果は、流路高さに依らず同じ値を示していることがわかる。このことから、本研究で用いた流路高さの範囲 (範囲は、0.2 mm から 1.0 mm) では、ビーム径の変化による測定結果への影響は少ないものと考えられる。

図 4.3 から、拡大部後では流路によって複屈折および配向角の分布に大きな違いが見受けられる。まず、Channel AR 5 の場合、拡大部後に複屈折の値は急激に減少したあと、下流域に進むにつれ複屈折の値は緩やかに増加していく。最下流位置 ( $x = 40$  mm) 周辺では複屈折の値は概ね一定値を示す。配向角に関しては、拡大部後、多少バラツキがあるものの平均的には  $0^\circ$  を示している。すなわち、分子は拡大部後に無配向状態になった後、再び流れ方向へと平均的に配向する。

一方、Channel AR 1 では、拡大部後に複屈折の値は Channel AR 5 と同様に急激に減少するが、その後、一時的に複屈折の値は増加する。複屈折の一時的な増加後は、再び値が減少し、 $x = 10$  mm の位置から複屈折の値が緩やかに増加していく。また、本研究で測定した最下流位置でも複屈折の値が一定値に達したとは言い難い。配向角に関しては、急拡大後、 $0^\circ$  から  $90^\circ$  へとその値が急激に変化する。 $90^\circ$  への配向角の値の変化は、おおよそ  $x = 10$  mm まで続き、その後は再び  $0^\circ$  へと戻る。すなわち、分子は拡大部後に無配向状態になった後、流れ方向に対して直交方向に平均的に配向し、再び無配向状態に近い状態となり、最終的には Channel AR 5 と同様に流れ方向へと配向する。

以上より、同じ拡大比を有する平面急拡大流路であっても、流路高さによって流路中心線上付近における拡大後の分子の流動誘起配向に大きな違いが生じることが明らかになった。対照的に、拡大後の流路側壁面付近の流動誘起配向の流路高さによる違いはあまり見受けられなかった。ここで、4.2 節にも述べたように、流路高さを変えると流路断

面のアスペクト比が変化する。したがって、本研究では流路断面のアスペクト比による流動誘起配向への影響を検討した。なお、図 4.2 に示すように、流路中心線上付近で流動誘起配向の大きな違いが見受けられたため、本研究では流路中心線上 ( $y = 0$ ) における速度分布測定および流動復屈折測定を行った。

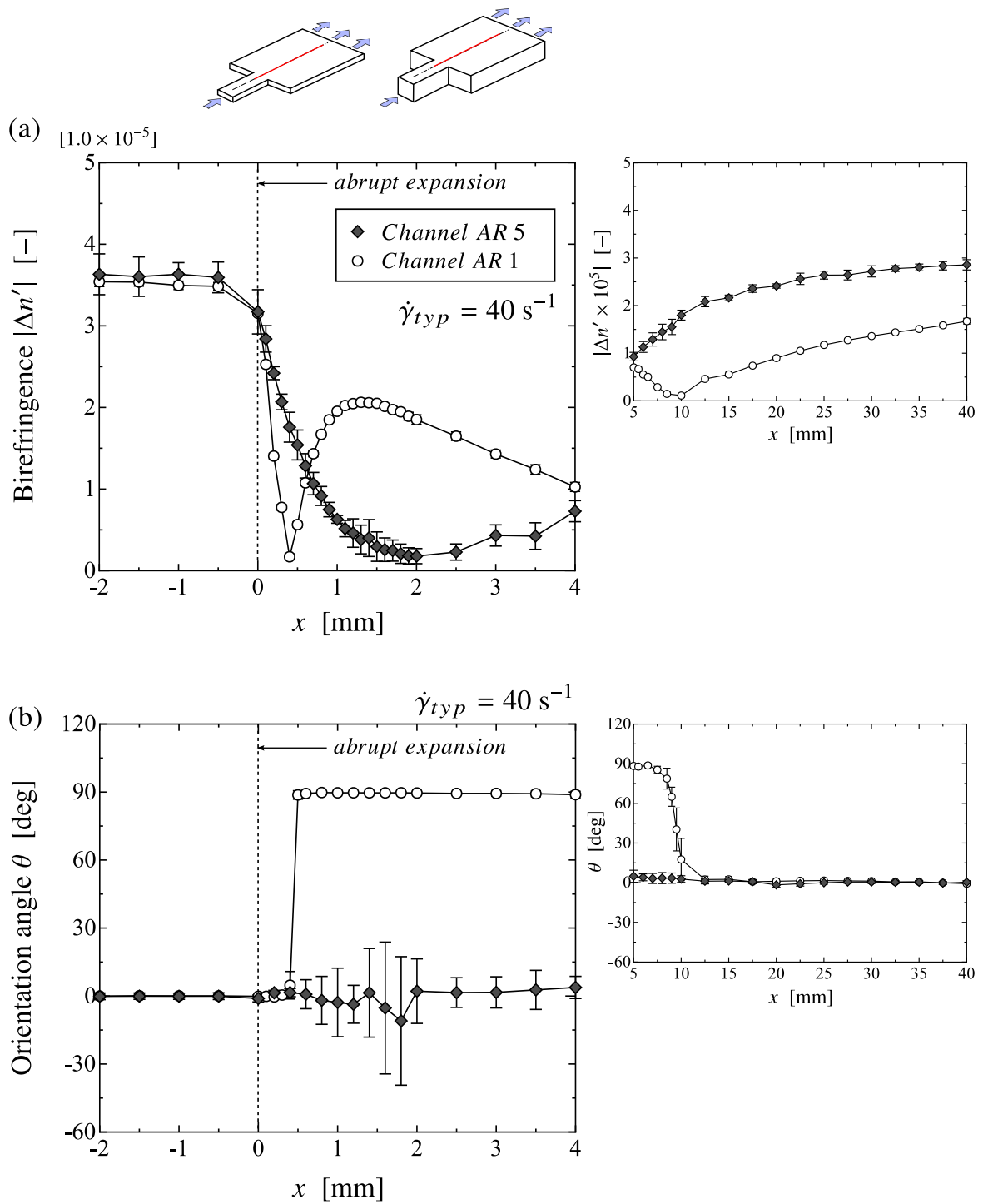


Fig.4.3. Flow directional distribution of birefringence and orientation angle on the centerline of the channel throughout measurement region at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . Orientation angle  $\theta$  is defined from  $x$  axis with counterclockwise direction.

#### 4.4.2 流路断面のアスペクト比による流動誘起配向の影響

##### 種々のアスペクト比を有する流路における流路中心線上の速度場と流動誘起配向

図 4.4 に、各アスペクト比の代表せん断速度が  $40 \text{ s}^{-1}$  における流路中心線上 ( $y = 0$ ) での速度の流れ方向成分  $v_x$  の結果を示す。図中の挿入図は、*Channel AR S1* における結果を示している。すべての流路において、速度  $v_x$  は粘弾性流体の一般的な特徴としてよく知られている現象と一致して、急拡大部よりも上流側から減速し始めていることがわかる。また下流域では、 $v_x$  の値はいずれの流路においても一定値を示す。ここで、*Channel AR 1*, *AR 2* および *AR 5* の場合の測定位置の最下流部は  $x = 4.0 \text{ mm}$  であり、*Channel AR S1* では、 $x = 0.8 \text{ mm}$  である。最下流位置における  $v_x$  の値が一定値となっていることから、非常に大きな速度変化が生じている流路中心線上においても、各流路に

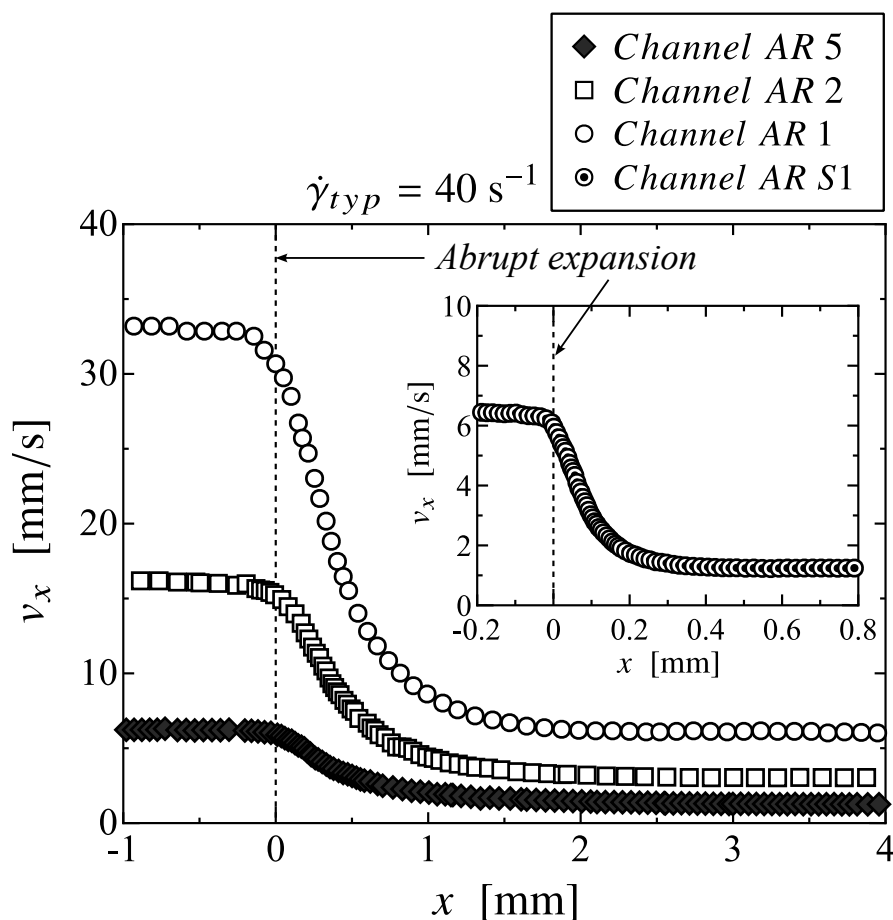


Fig.4.4. Profiles of the axial velocity  $v_x$  along the centerline ( $y = 0$ ) at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion. The inset shows the results for *Channel AR S1*.

対して測定した最下流位置までの領域内で拡大部の影響が消滅し、再び平行平板における速度場へと発達していると考えられる。

本研究で用いた流路では、せん断流れと伸長流れが複合的に生じている。そこで、流路中心線上における速度分布の結果から、局所的な伸長速度  $\dot{\varepsilon}$  と見かけのせん断速度  $\dot{\gamma}_{app}$  を以下の式で定義し算出した：

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_{xx} = \frac{\Delta v_x}{\Delta x} \quad (4.2)$$

$$\dot{\gamma}_{app} = \dot{\gamma}_{zx} = \frac{v_x}{H_3} \quad (4.3)$$

せん断速度に関しては、4.3 節で述べたように、流路高さ方向における速度分布測定を行うことができなかつたため、式 (4.3) のように定義した。この流れは拡大流れ場であり、 $y$  方向への伸長という見方もできるが、 $y$  方向の速度は低く正確に測定することは困難である。また、通常の入り口流れにおける伸長速度の定義と同じ式 (4.2) で負の伸長速度を算定することは、その大小により、 $y$  方向への伸長変形の程度を考察できると考えられる。

式 (4.2) および式 (4.3) で得られた伸長速度  $\dot{\varepsilon}$  および見かけのせん断速度  $\dot{\gamma}_{app}$  の算定結果を図 4.5 に示す。なお、図 4.5 の横軸は、流れ方向の座標位置  $x$  を代表長さ  $H_3$  で無次元化した  $x/H_3$  をとっている。したがって、横軸の値は代表せん断ひずみとみなすことができ、アスペクト比が小さな流路ほど、見かけのせん断速度は急激に減少する。図 4.5(b) より、いずれの流路においても、上流部では速度の変化がないため伸長速度は 0 を示しているが、拡大部後では、急激な減速流れによって伸長速度は負の値を示すようになる。下流域では再び伸長速度は 0 を示す。また、*Channel AR 1* および *AR S1* では、流路高さが異なるものの、見かけのせん断速度、伸長速度の大きさおよび分布は同じ結果となった。さらに、拡大部後で生じる負の伸長速度の絶対値は、アスペクト比によって大きく異なることがわかる。

図 4.6 に各流路の代表せん断速度が  $40 \text{ s}^{-1}$  における流路中心線上 ( $y = 0$ ) の流動複屈折  $\Delta n'$  および配向角  $\theta$  の分布を示す。図 4.6 の横軸は、無次元化位置  $x/H_3$  をとっている。上流部での複屈折の値は、いずれの流路においても概ね同様な値を示していることがわかる。また配向角の値も流路に依らず  $0^\circ$  を示している。

しかしながら、拡大部後の流動誘起配向は、アスペクト比によって大きく異なる結果となった。アスペクト比が大きい *Channel AR 5* の場合は、4.4.1 節で示したように、拡大部後、複屈折の値は急激に減少した後、緩やかに増加する。また、配向角の値は拡大部後も平均的に  $0^\circ$  を示している。対照的に、*Channel AR 1*, *AR S1* および *AR 2* の場合は、拡大部後、複屈折の値が急激に減少した後、一時的に増加し再び減少する。一時的な複屈折の値の増加量は、流路高さではなくアスペクト比によって異なり、アスペクト比が小さいほど増加量は大きくなる。またこの領域では、配向角の値は  $0^\circ$  から  $90^\circ$  へと急

激に変化する。さらに、各流路において複屈折の値が一時的に増加した後、その値が減少していくときの分布は、*Channel AR 5*における複屈折分布と一致する。その後、概ね  $x/H_3 > 20$  以降の下流域では、複屈折および配向角の分布は、いずれの流路においても同様な分布となる。ここで、図 4.5 で示されている速度場で各流路においてそれぞれ発達した位置においても、図 4.6 での結果より複屈折の値は緩やかに変化しており、また配向角の値が  $90^\circ$  から  $0^\circ$  へと変化する位置  $x/H_3$  の値が概ね等しい。これより、代表せん断速度が等しい場合、急拡大後の流動誘起配向の変化は、せん断ひずみのみに依存すると考えられる。また、図 4.5 における速度分布の結果と図 4.6 における複屈折および配向角の結果より、*Channel AR 1* と *AR S1* はともに同じ分布を示した。ここで、4.2 節で述べたように、アスペクト比が変化することにより流れの二次元性が大きく異なることが考えられる。一般的に流路のアスペクト比が流れ場に及ぼす影響を考える場合は、流れ場の二次元性を確保した状態で比較を行うことが多い。しかしながら、アスペクト比が 1 の流路では、上流側の流路断面の形状が正方形であるため円管に近い流れ場となっていることから、三次元性が強い流れ場となっている。このように本研究では、三次元流れと二次元流れの比較を行っていることを留意しなければならない。

以上の結果から、平面急拡大流路における急拡大部後の流路中心線上の流動誘起配向は、流路断面のアスペクト比によって大きく異なることが明らかになった。そこで本研究では、流動誘起配向の変化に対して最も違いが見受けられた *Channel AR 1*, *AR S1* および *AR 5* において、流動誘起配向に対する代表せん断速度、すなわち、流量の影響を検討した。

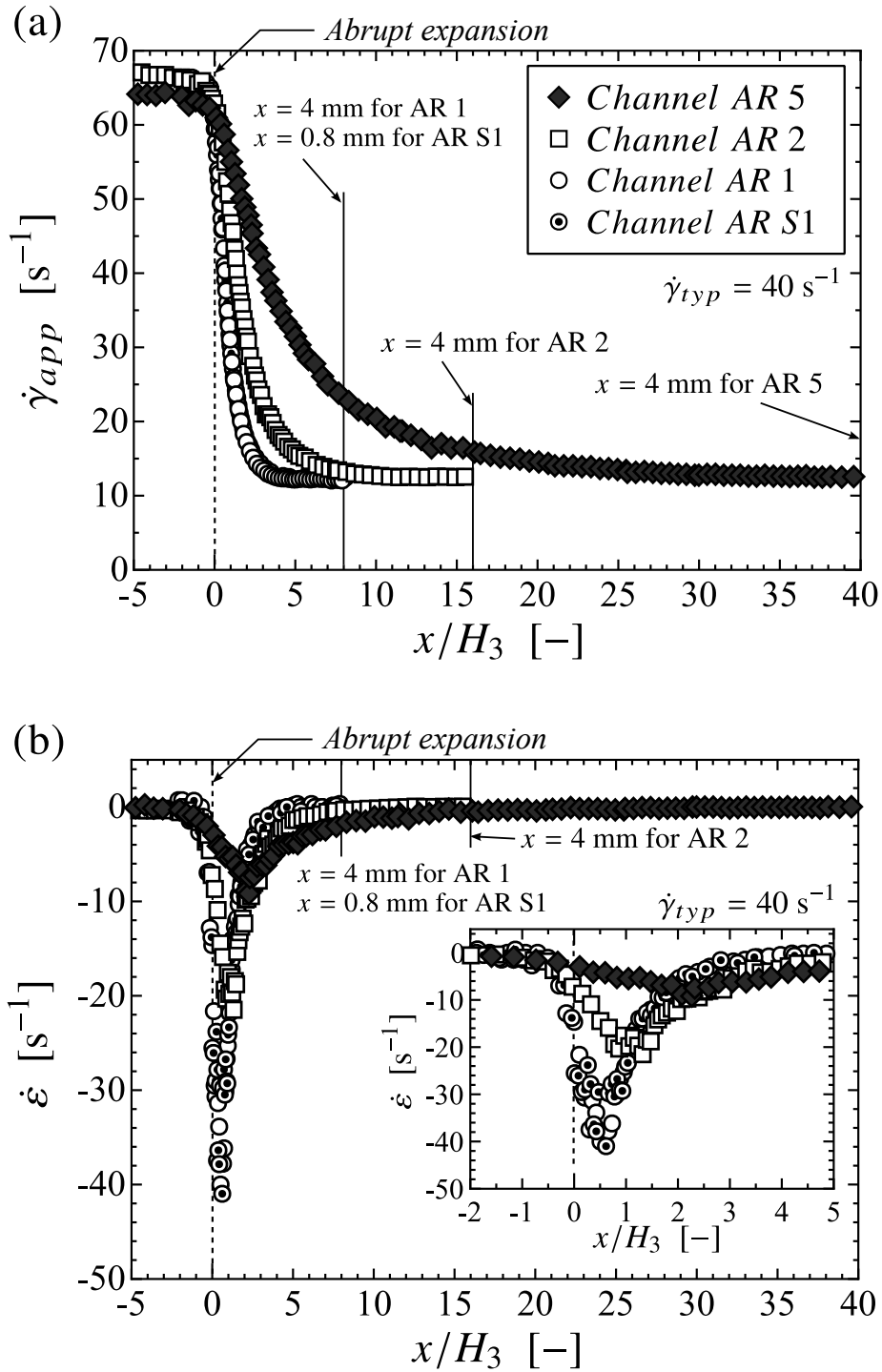


Fig.4.5. Profiles of (a) apparent shear rate  $\dot{\gamma}_{app}$  and (b) elongational rate  $\dot{\epsilon}$  as a function of  $x/H_3$  along the centerline ( $y = 0$ ) at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . The inset shows the results of elongational rate over a range of dimensionless positions from -2 to 5. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.



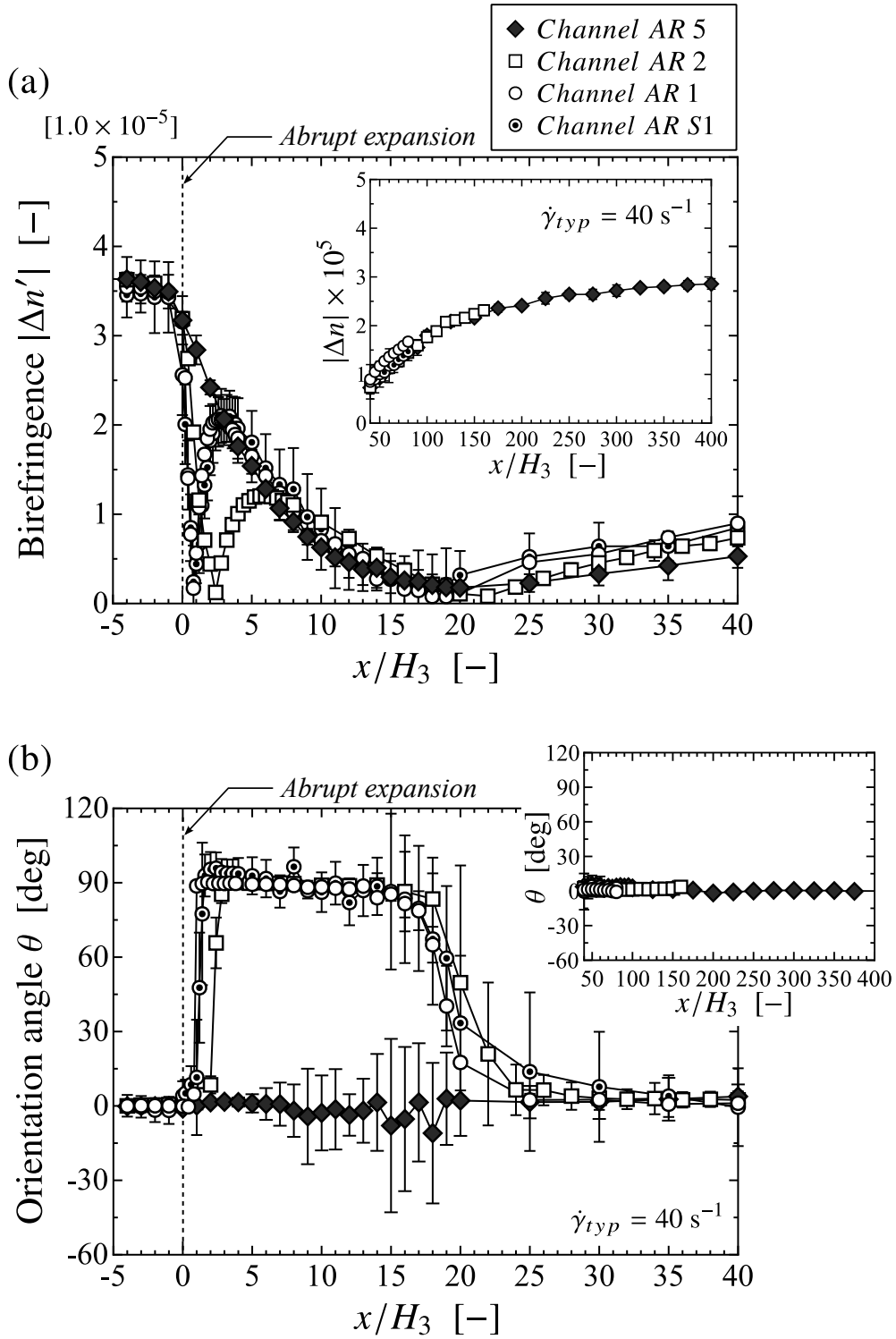


Fig.4.6. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle as a function of  $x/H_3$  along the centerline ( $y = 0$ ) at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . Insets show the results over a range of dimensionless position from 40 to 400. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

### **Channel AR 1, AR S1 および AR 5 における代表せん断速度 (流量) による速度場と流動誘起配向への影響**

図 4.7 に、Channel AR 5 の各代表せん断速度における流路中心線上の伸長速度および見かけのせん断速度を、図 4.8 に流動複屈折および配向角の結果を示す。図 4.7 より、流量によって見かけのせん断速度および伸長速度は異なっているものの、図 4.8 における拡大部後の複屈折および配向角は、流量によらず概ね同様な分布となった。しかしながら、複屈折に関しては、流量によって複屈折の値が一定値を示す  $x/H_3$  の値が異なる。すなわち、代表せん断速度が小さいほど、複屈折の値が一定値に達するまでに要するせん断ひずみは小さいものと考えられる。流量の増加にともない、負の伸長速度の絶対値は大きくなるにもかかわらず、流量による拡大部後の流動誘起配向に変化は見受けられなかった。また、 $x/H_3 = 40$  ( $x = 4$  mm) における見かけのせん断速度および伸長速度の大きさと、最下流位置である  $x/H_3 = 400$  ( $x = 40$  mm) における大きさが一致していることから、本研究で検討した各代表せん断速度においては、 $x/H_3 < 40$  の領域において速度場は平行平板における発達した流れ場になっていると考えられる。

続いて、図 4.9 に、Channel AR 1 および AR S1 の各代表せん断速度における流路中心線上の伸長速度および見かけのせん断速度を、図 4.10 に流動複屈折および配向角の結果を示す。図 4.9 における見かけのせん断速度と伸長速度の結果は、Channel AR 5 と同様な傾向 (図 4.7) を示した。また、複屈折および配向角においても、図 4.10 に示すとおり、流量に依らず同様な分布となった。さらに、Channel AR 1 と AR S1 の結果を比較しても、流路高さが異なるにもかかわらず、各流量において定性的かつ定量的に同様な結果を示した。

Channel AR 1 と AR S1 の代表せん断速度が  $4 \text{ s}^{-1}$  における負の伸長速度のピーク値は、Channel AR 5 の代表せん断速度が  $100 \text{ s}^{-1}$  における負の伸長速度のピーク値よりも小さい。すなわち、拡大部後に生じる伸長流れが強いにもかかわらず、Channel AR 5 では、拡大部後に流れ方向に対して直交方向への流動誘起配向は生じなかった。これらの結果より、拡大部後に生じる流路中心線上における流動誘起配向の変化は、拡大部後に生じる負の伸長速度の大きさだけに依存するわけではないと考えられる。

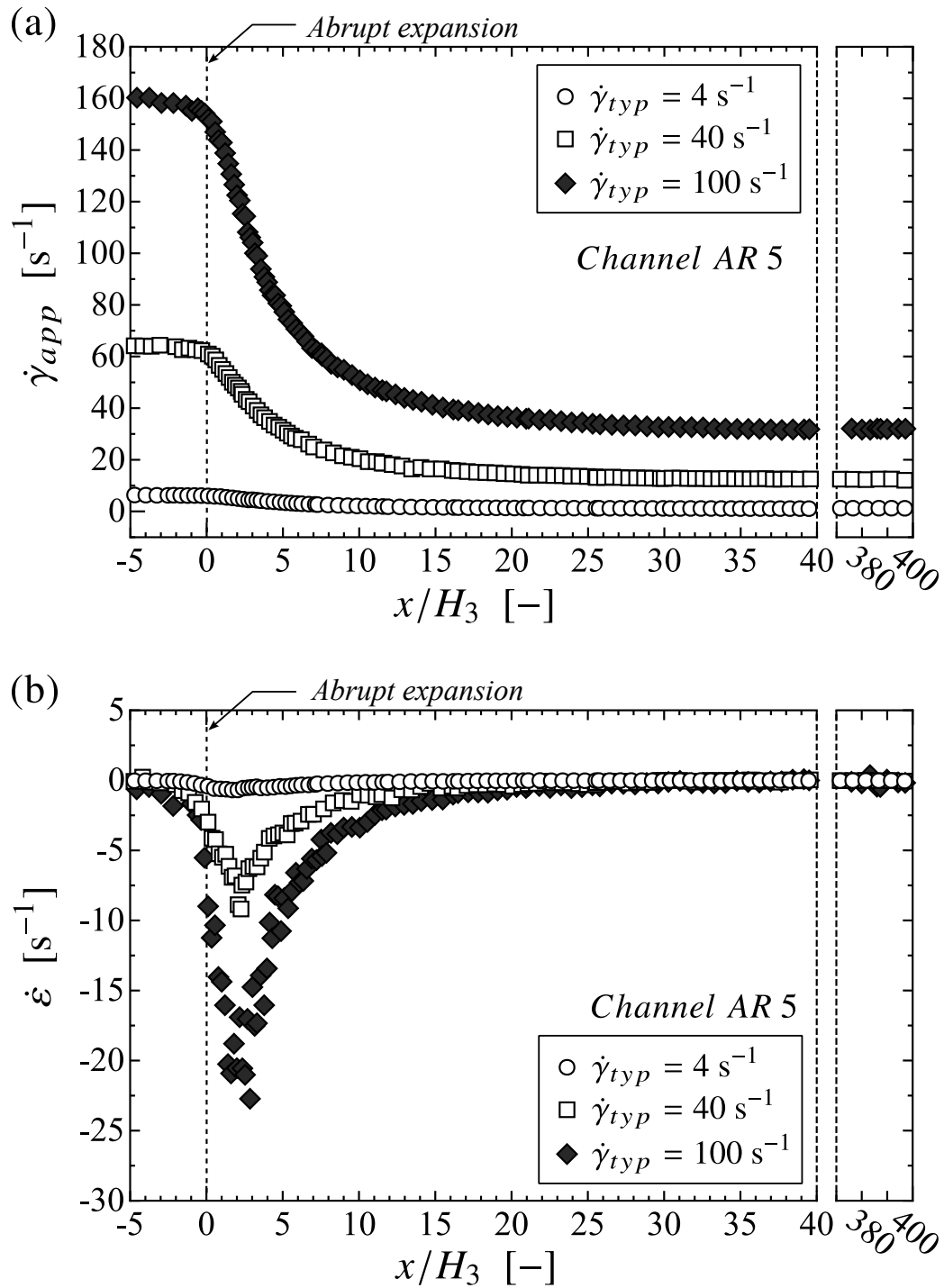


Fig.4.7. Profiles of (a) apparent shear rate  $\dot{\gamma}_{app}$  and (b) elongational rate  $\dot{\epsilon}$  as a function of  $x/H_3$  along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel AR 5*. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

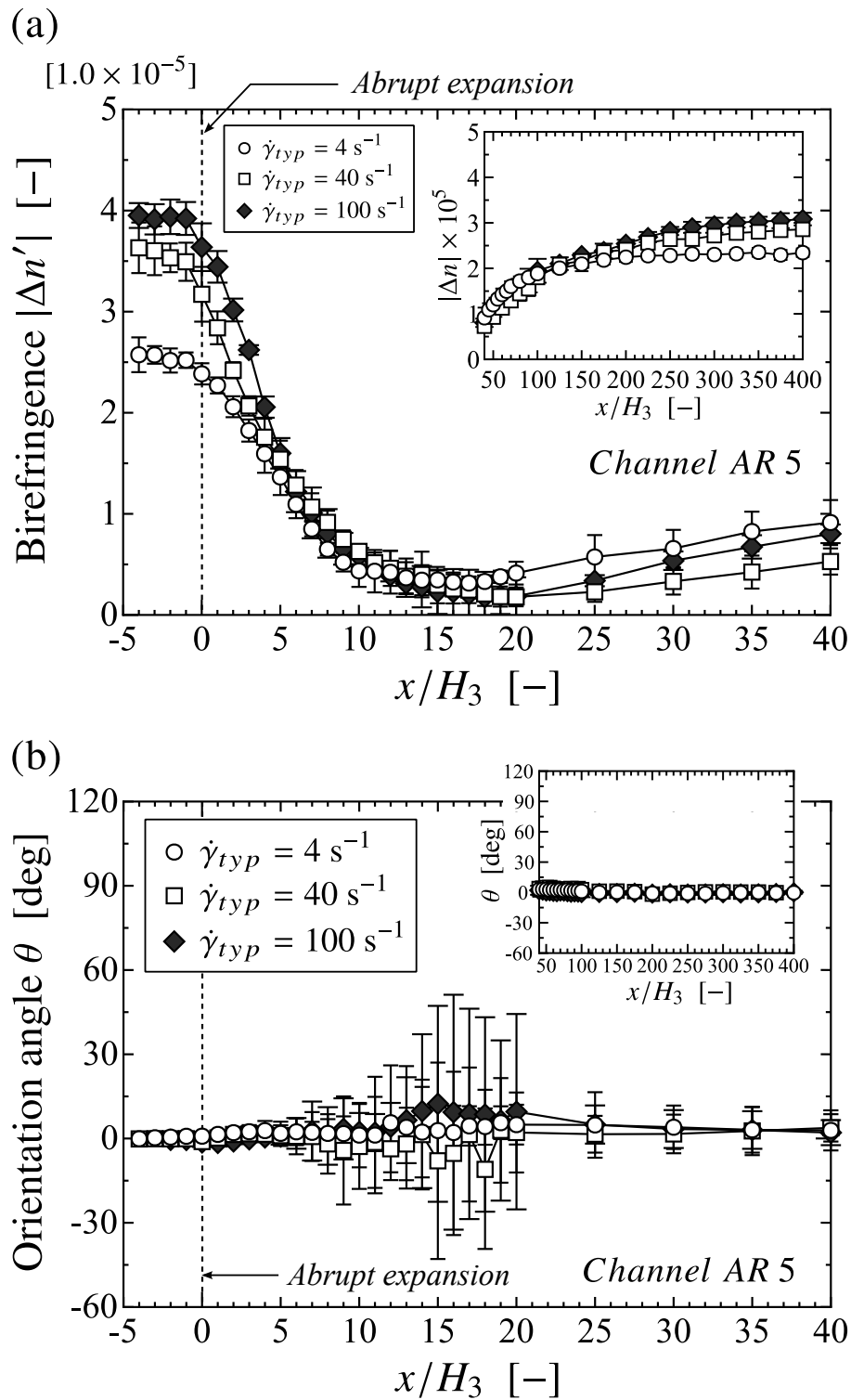


Fig.4.8. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel AR 5*. Insets show the results over a range of dimensionless position from 40 to 400. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

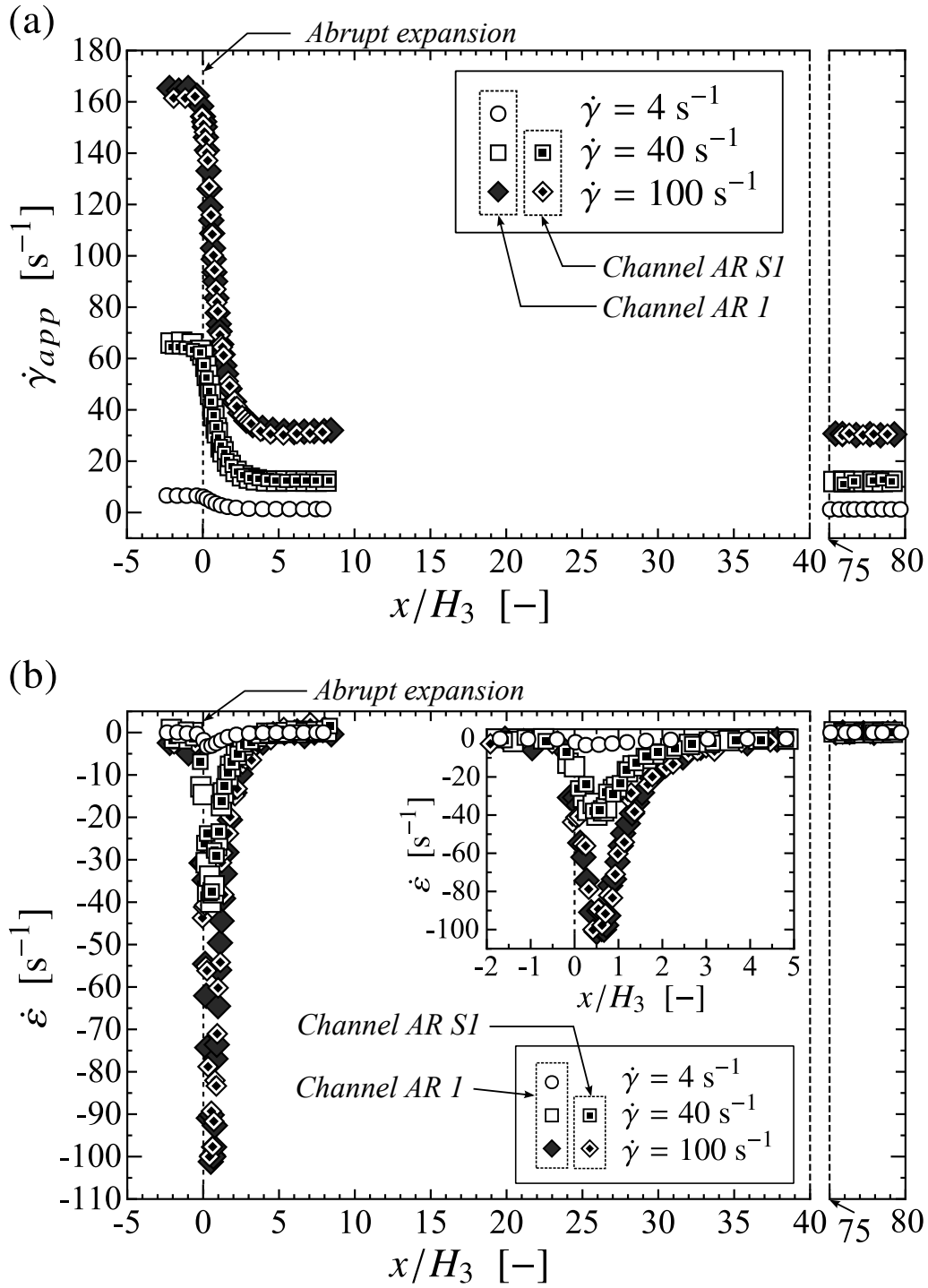


Fig.4.9. Profiles of (a) apparent shear rate  $\dot{\gamma}_{app}$  and (b) elongational rate  $\dot{\epsilon}$  as a function of  $x/H_3$  along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel AR 1* and *AR S1*. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

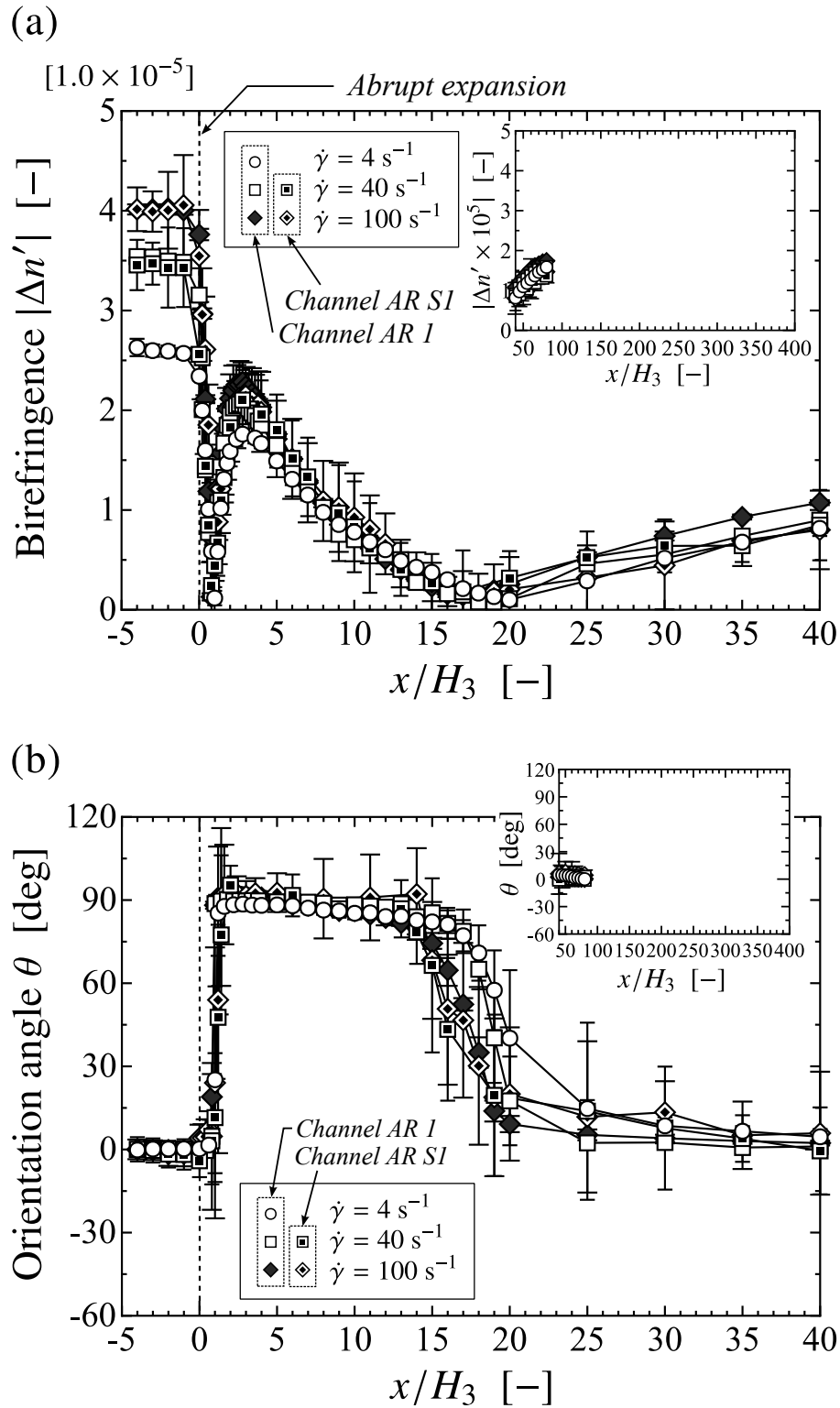


Fig.4.10. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel AR 1* and *AR S1*. Insets show the results over a range of dimensionless position from 40 to 400. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

### アスペクト比による流動誘起配向の変化に対する考察

本研究で用いた平面急拡大流路は、拡大部周辺では伸長流れとせん断流れが複合的に生じていることから、これら二つの流れ場が流動誘起配向に寄与していると考えられる。そこで、速度分布測定から算出した伸長速度の絶対値  $|\dot{\epsilon}|$  と見かけのせん断速度  $\dot{\gamma}_{app}$  の比、すなわち  $|\dot{\epsilon}|/\dot{\gamma}_{app}$  を算出した。図 4.11 に、全ての流路および流量における  $|\dot{\epsilon}|/\dot{\gamma}_{app}$  の結果を示す。図 4.11 より、アスペクト比が 1 である *Channel AR 1* と *AR S1* の結果が一致していることから、 $|\dot{\epsilon}|/\dot{\gamma}_{app}$  はアスペクト比にのみ依存し、代表せん断速度、すなわち流量には依存しないことがわかる。 $|\dot{\epsilon}|/\dot{\gamma}_{app}$  のピーク値で考えると、アスペクト比が最も大きい *Channel AR 5* では伸長流れの寄与が最大でも 20 % であるのに対し、アスペクト比が 1 の流路では伸長流れとせん断流れの寄与は概ね等しい。

*Channel AR 1*, *AR S1* および *AR 5* の結果を踏まえて流動誘起配向のメカニズムを図 4.12 を用いて考察する。一般的に高分子は、伸長速度やせん断速度のような変形速度が生じない場合では、無秩序に配向している。また、平面急拡大流路のような平面流れの場合、流路高さ方向にわたって速度分布が変化することから、分子の流動配向も流路高さ方向にわたって変化していると考えられる。流路上流部では、流路高さ上下壁面付近にお

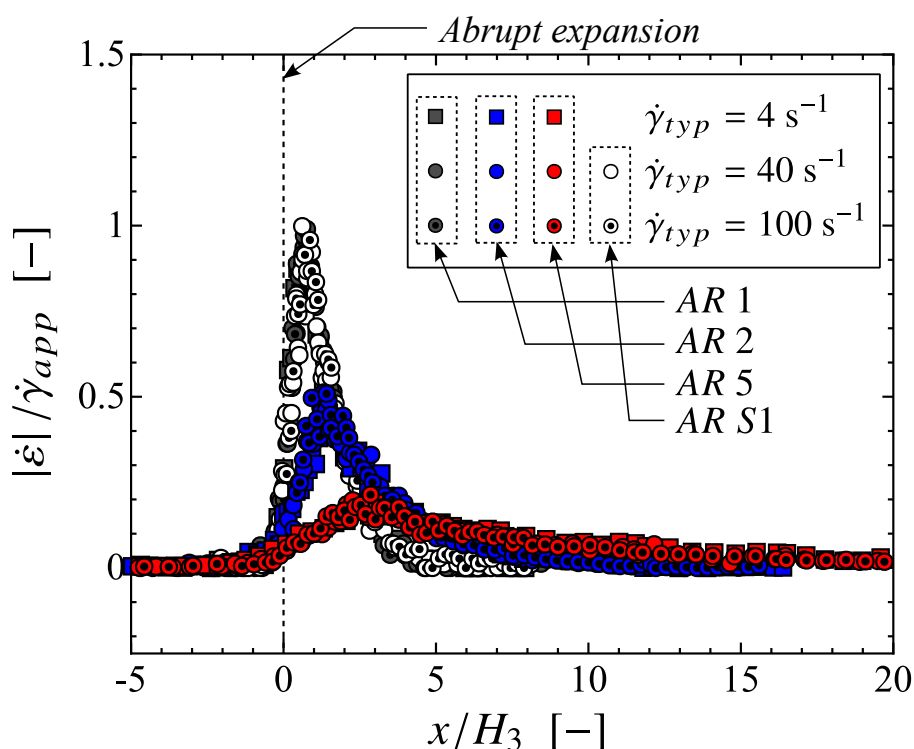


Fig.4.11. Profiles of the ratio of elongational rate to apparent shear rate along the centerline ( $y = 0$ ) for all cases tested.

けるせん断流れによって分子は流れ方向へ強く配向しているため、上流部の流路高さ方向における平均的な分子配向は、流れ方向に配向しているように観測されたと考えられる (図 4.12 を参照)。アスペクト比が大きい *Channel AR 5* の場合、拡大部後に生じる減速流れによって流路高さ上下壁面付近のせん断流れが弱まることで分子の配向度は低下し、また、流路高さ方向中心面付近の分子は負の伸長流れによって、流れ方向に対し直交方向へと変形すると考えられる。これらの寄与によって、流路高さ方向の平均的な分子配向はランダム配向状態に近い状態になったと考えられる。その後、負の伸長流れの寄与が消滅し、直交方向へと配向していた分子は緩和によって再び無秩序に配向し、流路高さ上下壁面付近では、減速流れにより低下した分子の配向度がせん断流れによって再び大きくなると考えられる。この過程によって、流路高さ方向の平均的な分子配向は、再び流れ方向へと配向していくように観測されたと考えられる。一方アスペクト比が1の *Channel AR 1* と *AR S1* の場合、*Channel AR 5* と同じように拡大部後の負の伸長流れによって流路高さ方向の中心面付近の分子は、流れ方向に対して直交方向へと配向する。しかしながら、*Channel AR 5* と比べてせん断流れに対する伸長流れの寄与が大きいことから、図 4.12 に示すように負の伸長流れによってさらに直交方向へと分子は強く配向したため、流路高さ方向における平均的な流動誘起配向も直交方向へと配向したものと考えられる。その後は、伸長流れの寄与がなくなることで、*Channel AR 5* と同様な流動誘起配向が生じたと考えられる。

以上より、平面急拡大流れにおける流路中心線上の流動誘起配向は、拡大比が等しい場合、流路断面のアスペクト比に大きく依存することが明らかになった。また、拡大部後の流動誘起配向は、流量には定性的には影響を受けない。拡大部後に生じる負の伸長速度の大きさは流量によって変化するが、負の伸長速度と見かけのせん断速度の比は流量には依存せず、流路断面のアスペクト比によって比の値が大きく異なることも明らかになった。流動誘起配向の変化に対して、速度場が十分に発達したと見なせる領域においても、高分子の配向変化は続いた。これは、拡大部後の形態の変化した高分子が定常的な平衡状態に移り変わるのに非常に長い時間を要することを表しており、これはキサンタンガム水溶液の緩和時間が 2.3.1 節で示したように約 53 秒と非常に長いことと対応しているものと考えられる。



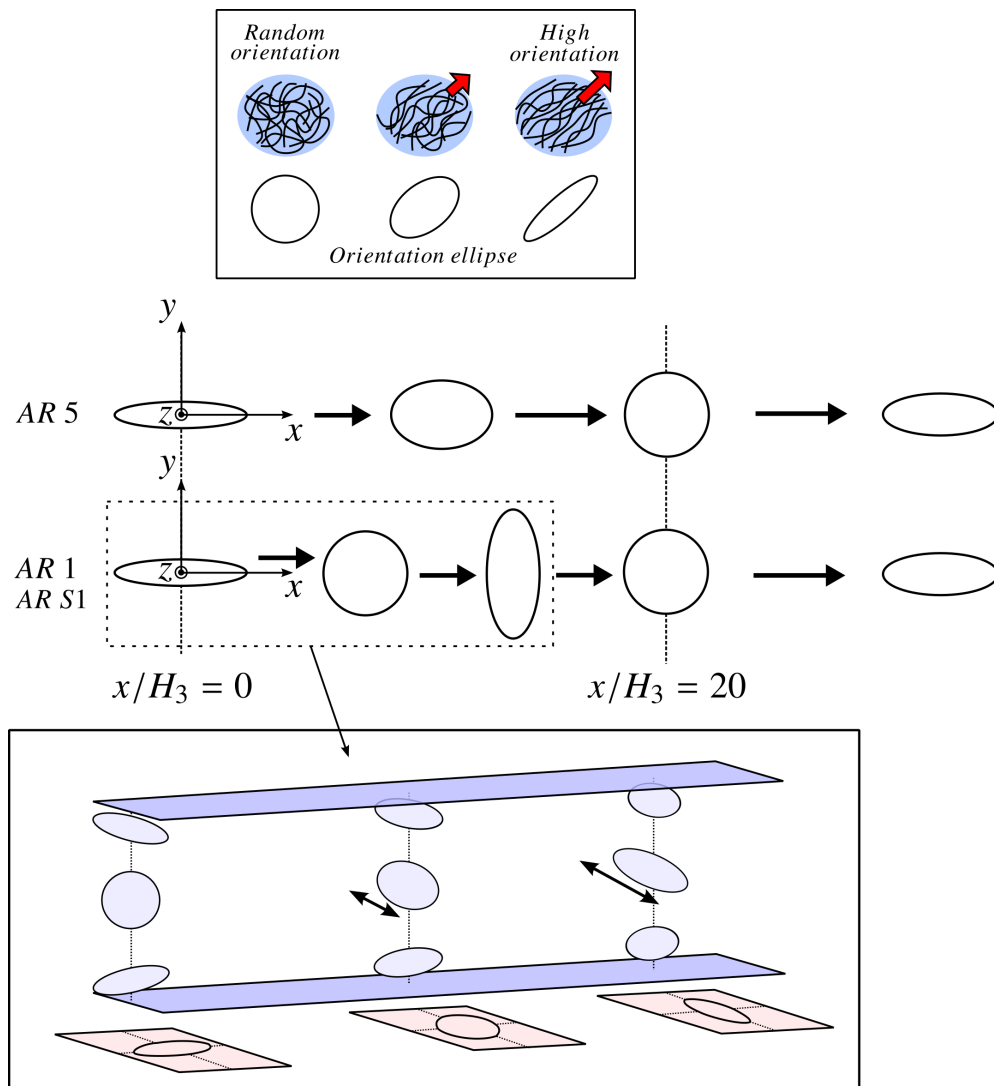


Fig.4.12. Flow-induced orientational changes in the polymers after the abrupt expansion on the centerline represented by orientation ellipses.

### 4.4.3 拡大比による流動誘起配向の影響

4.4.2 節では、拡大比を固定し流路断面のアスペクト比による拡大部後の流動誘起配向への影響を検討した。本節では、流路高さを固定、すなわち、流路断面のアスペクト比を固定し拡大比による流動誘起配向への影響を検討する。

#### 種々の拡大比を有する流路における流路中心線上の速度場と流動誘起配向

図 4.13 に、各拡大比の代表せん断速度が  $40 \text{ s}^{-1}$  における流路中心線上 ( $y = 0$ ) での速度の流れ方向成分  $v_x$  の結果を示す。拡大部後、 $v_x$  の値はいずれの流路においても急激に減少し、その後、一定値を示す。しかしながら、拡大比によって  $v_x$  の値が一定になるまでの距離  $x$  が大きく異なることから、拡大比が大きいほど一定になるまでに要する距離が長くなる。また、*Channel ER 2* と *Channel ER 4* では速度分布は大きく異なるが、*Channel ER 4* と *Channel ER 8* では拡大比が同じように 2 倍と異なっているものの、速度分布に顕著な違いは見受けられない。

4.4.2 節と同様に、拡大比の変化における研究でも、図 4.13 から伸長速度  $\dot{\epsilon}$  と見かけの

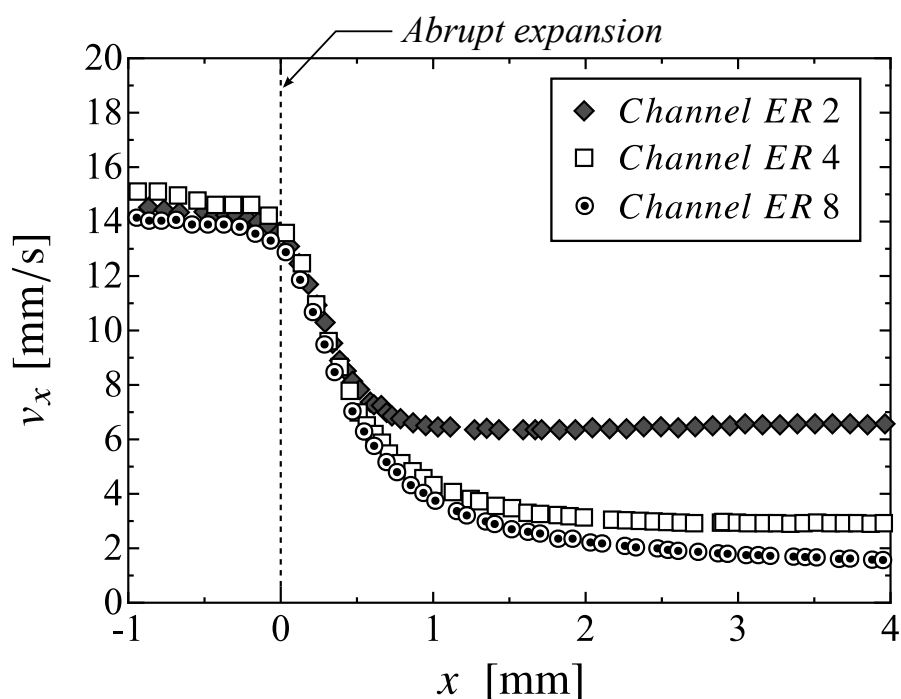


Fig.4.13. Profiles of the axial velocity  $v_x$  along the centerline ( $y = 0$ ) at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

せん断速度  $\dot{\gamma}_{app}$  を式 (4.2) と (4.3) によって算出した。結果を図 4.14 に示す。図 4.14 における横軸は、流れ方向の座標位置  $x$  を代表長さ  $H_3$  で規格化した  $x/H_3$  をとっている。図 4.14(a) より、 $x/H_3 = 16$  の位置における見かけのせん断速度の値は拡大比が 2 倍、4 倍になるにつれ、その値が 1/2 倍、1/4 倍となっている。一方、図 4.14(b) の伸長速度に関して、負の伸長速度のピーク値は拡大比によらず概ね同様な値を示した。これより、拡大部後の流路中心線上における伸長速度のピーク値は、拡大比には依存しないことが考えられる。しかしながら、負の伸長速度が 0 でない値を示している距離は、拡大比によって異なり、拡大比が大きいほど伸長流れが生じている距離が長くなる。

図 4.15 に、各拡大比の代表せん断速度が  $40 \text{ s}^{-1}$  における流路中心線上 ( $y = 0$ ) での流動複屈折  $\Delta n'$  および配向角  $\theta$  の結果を示す。上流部では、いずれの流路においても同様な複屈折および配向角分布を示したが、拡大後の流動誘起配向は拡大比によって大きく異なった。*Channel ER 2* では、複屈折の値が急激に減少した後、その後、緩やかに増加した。配向角の値は拡大部後も  $0^\circ$  を示したまま大きな変化は生じていない。これは、本研究で用いた流路のアスペクト比が最も大きい *Channel AR 5* と同様な流動誘起配向である。対照的に、*Channel ER 4* および *ER 8* では、拡大部後、複屈折の値は *Channel ER 2* と同様に急激に減少するが、その後に複屈折の値が急激に増加し再び減少する。また同様の領域において、配向角の値は  $0^\circ$  から  $90^\circ$  へと大きく変化する。さらに、下流域では複屈折の値が緩やかに増加し、配向角の値が  $0^\circ$  へと変化するが、伸長流れの影響によるこのような流動誘起配向の変化は、拡大比が大きい *Channel ER 8* の方が長く続いていることがわかる。

以上より、拡大部後の流路中心線上における流動誘起配向は、拡大比によって大きく異なることが明らかになった。また、伸長流れによる流動誘起配向への影響は、拡大比が大きいほど長く続くことが明らかになった。これは、速度分布の結果より、流れ場の発達する距離が拡大比によって異なることが原因であると考えられる。本研究ではさらに流動誘起配向の変化に対して *Channel ER 2* および *ER 4* において、流動誘起配向に対する代表せん断速度、すなわち流量の影響を検討した。

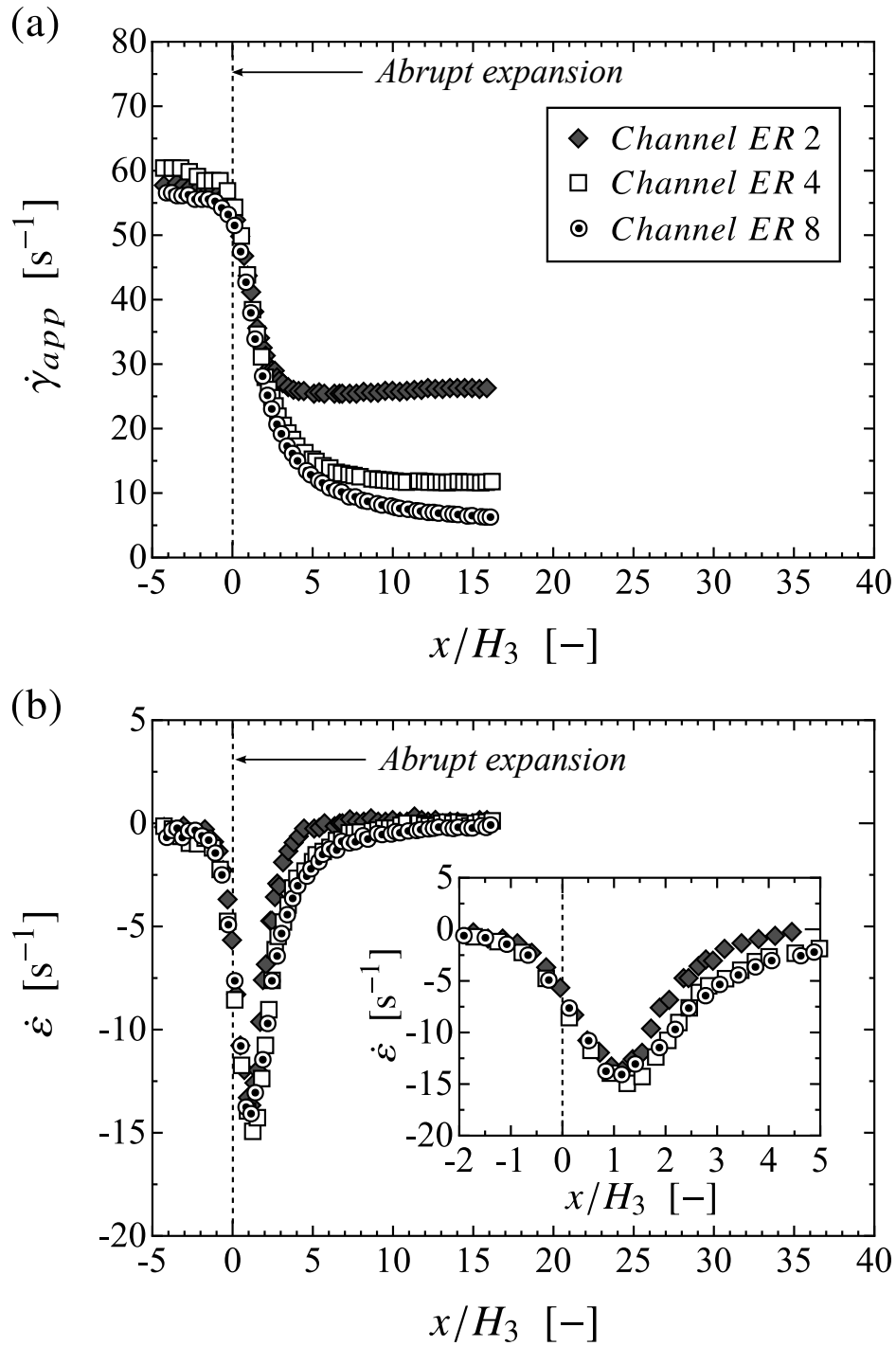


Fig.4.14. Profiles of (a) apparent shear rate  $\dot{\gamma}_{app}$  and (b) elongational rate  $\dot{\epsilon}$  as a function of  $x/H_3$  along the centerline ( $y = 0$ ) at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . The inset shows the results of elongational rate over a range of dimensionless positions from -2 to 5. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

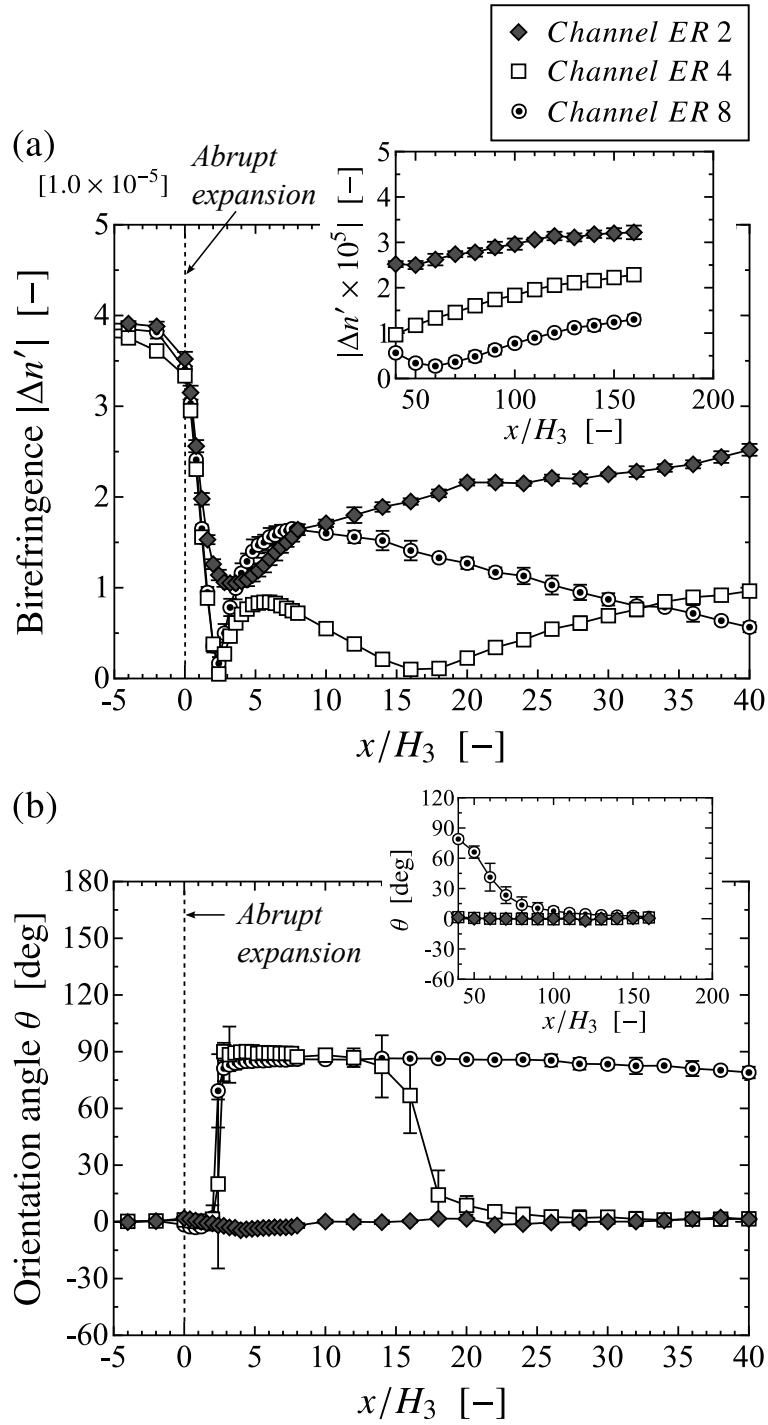


Fig.4.15. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle as a function of  $x/H_3$  along the centerline ( $y = 0$ ) at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . Insets show the results over a range of dimensionless position from 40 to 200. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

### 拡大比 1:2 および 1:4 の流路における代表せん断速度（流量）による速度場と流動誘起配向への影響

図 4.16 に *Channel ER 2* の各代表せん断速度における流路中心線上的見かけのせん断速度  $\dot{\gamma}_{app}$  および伸長速度  $\dot{\epsilon}$  の結果を、図 4.17 に流動複屈折  $\Delta n'$  および配向角  $\theta$  の結果を示す。図 4.16 において、代表せん断速度および負の伸長速度の大きさは流量によって変化する。しかしながら、図 4.17 における流動複屈折および配向角の分布では、*Channel ER 4* および *ER 8* で見られた複屈折の一時的な増加や、それに伴う配向角の値の  $90^\circ$  への変化がいずれの流量においても見受けられない。急拡大部後の複屈折の最小値に少し変化があるものの、流動誘起配向の定性的な変化は流量を変えても見受けられない。

続いて、図 4.18 に *Channel ER 4* の各代表せん断速度における流路中心線上的見かけのせん断速度  $\dot{\gamma}_{app}$  および伸長速度  $\dot{\epsilon}$  の結果を、図 4.19 に流動複屈折  $\Delta n'$  および配向角  $\theta$  の結果を示す。*Channel ER 2* と同様に、図 4.18 に示す見かけのせん断速度と負の伸長速度の大きさは流量によって大きく変化する。また、*Channel ER 2* と *ER 4* における負の伸長速度のピーク値はそれぞれの代表せん断速度において等しい結果となった。流動複屈折および配向角に関しては、図 4.19 に示すようにいずれの流量においても同様な分布を示した。以上より、拡大比がそれぞれ異なっても、拡大部後に生じる流動誘起配向は、定性的には流量に依らず変わらないことが本研究より明らかになった。

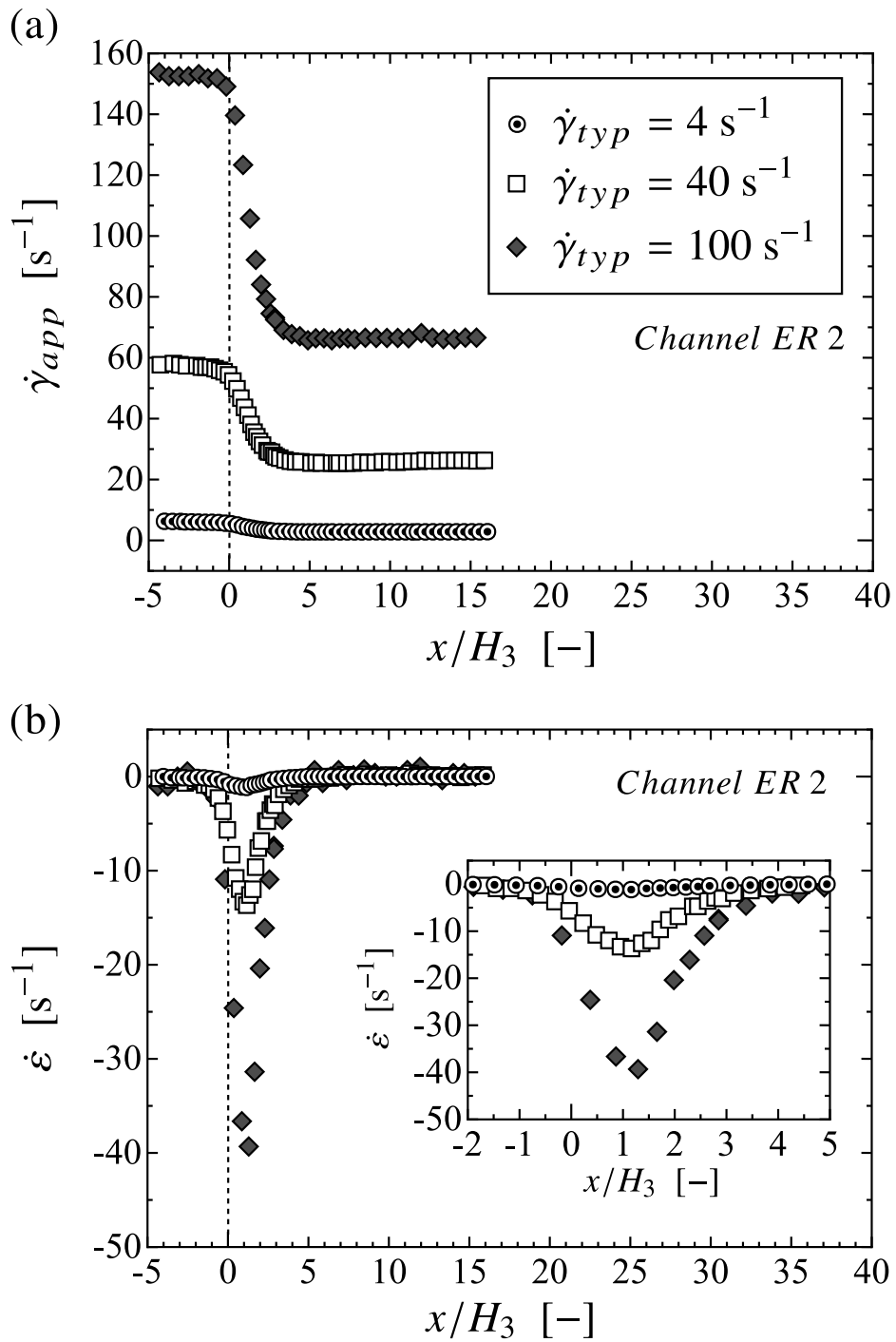


Fig.4.16. Profiles of (a) apparent shear rate  $\dot{\gamma}_{app}$  and (b) elongational rate  $\dot{\epsilon}$  as a function of  $x/H_3$  along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel ER 2*. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

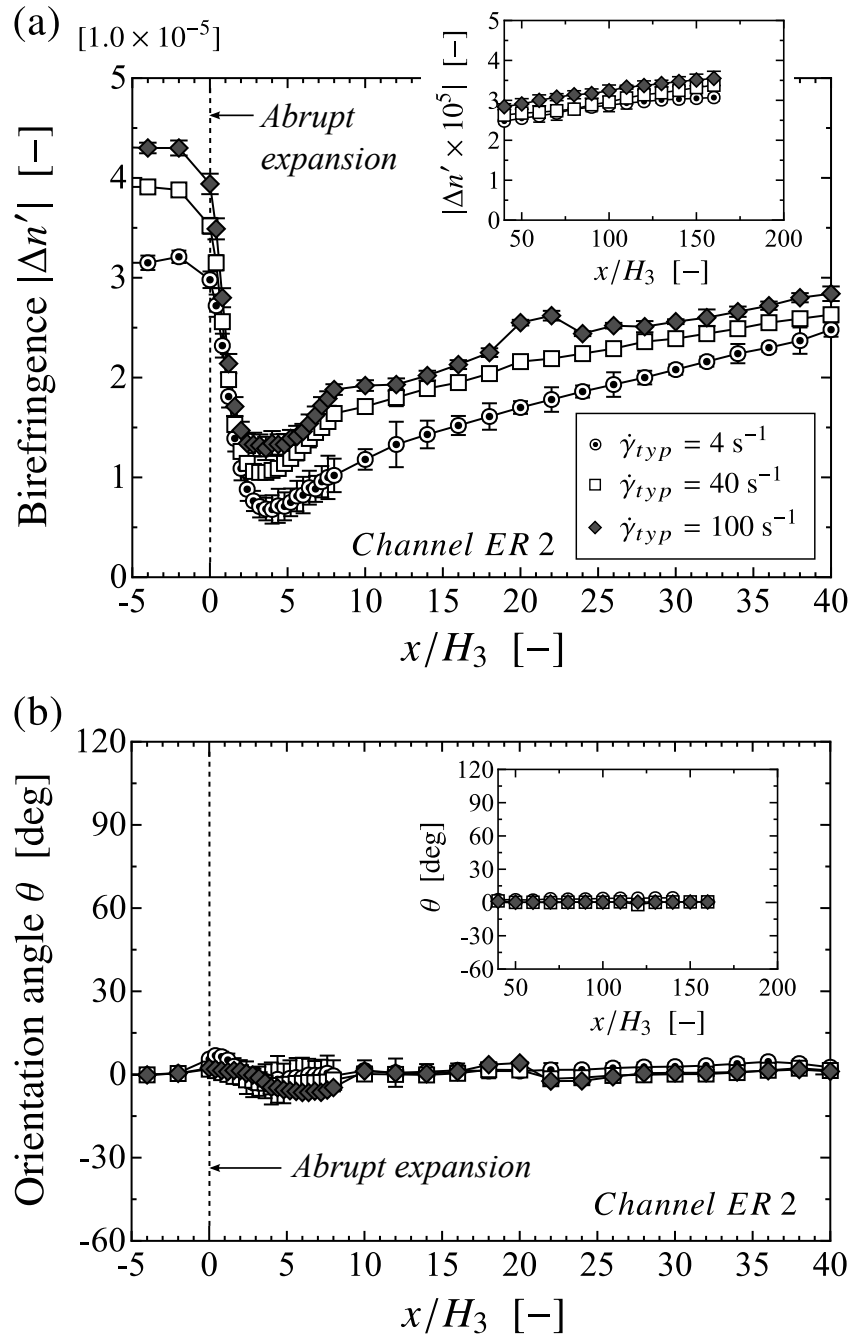


Fig.4.17. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel ER 2*. Insets show the results over a range of dimensionless position from 40 to 200. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.



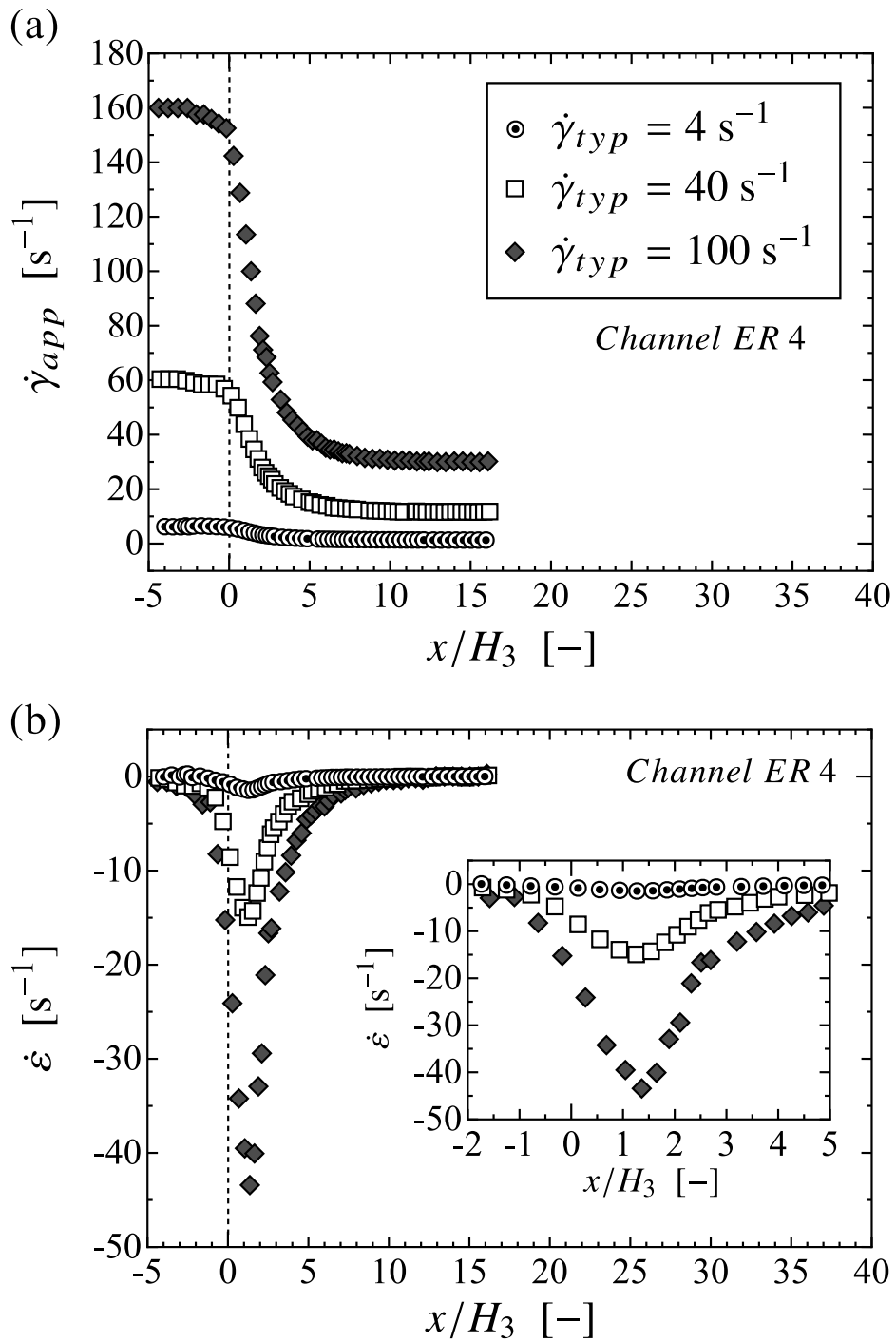


Fig.4.18. Profiles of (a) apparent shear rate  $\dot{\gamma}_{app}$  and (b) elongational rate  $\dot{\epsilon}$  as a function of  $x/H_3$  along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel ER 4*. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

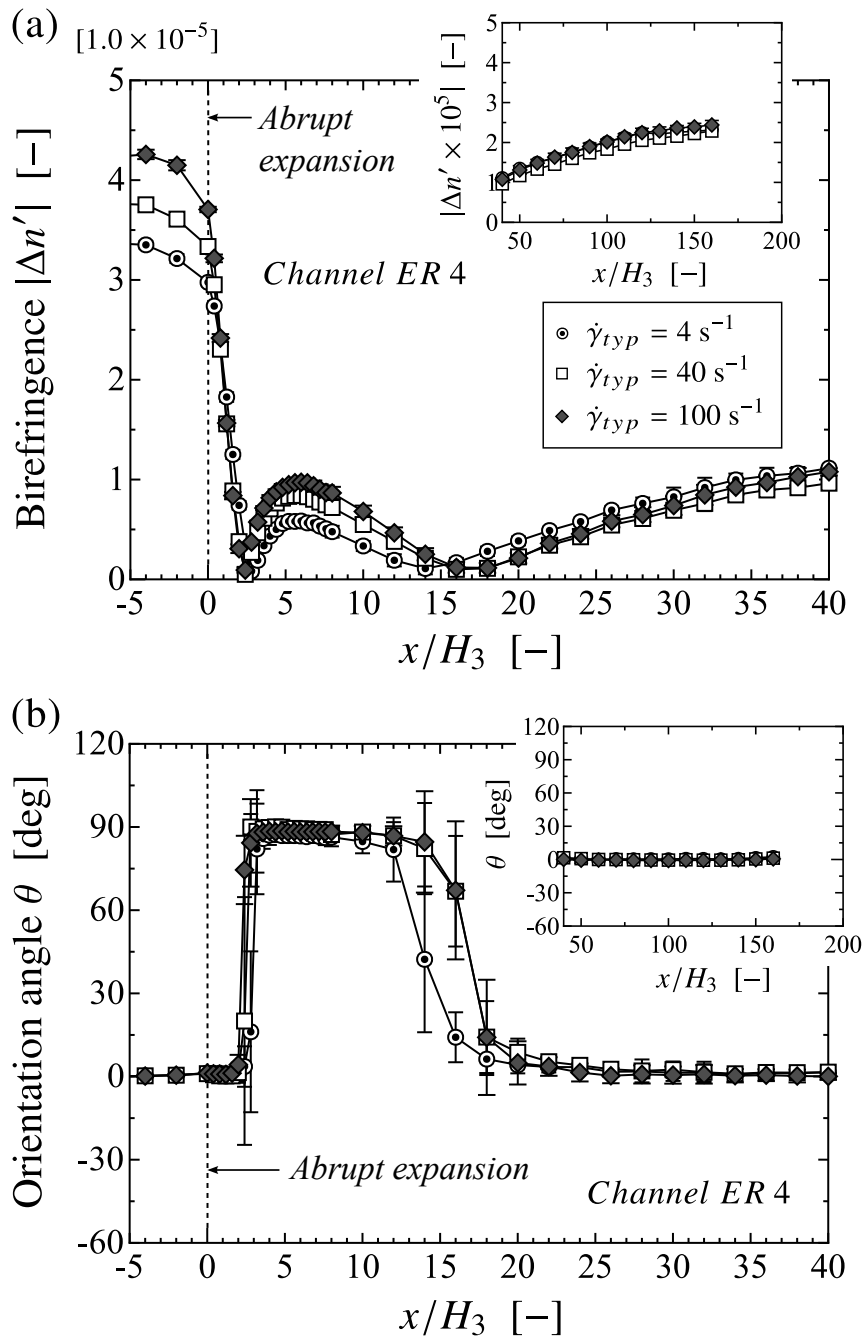


Fig.4.19. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel ER 4*. Insets show the results over a range of dimensionless position from 40 to 200. Dashed lines indicate the position of the abrupt expansion.

### 拡大比による流動誘起配向の変化に対する考察

これまでの結果から、拡大比を変化させても拡大部後に生じる負の伸長速度のピーク値は変化しないにもかかわらず、拡大部後の流動誘起配向の変化は拡大比によって大きく異なることが明らかになった。そこで本研究では、4.4.2節と同様に、伸長速度の絶対値  $|\dot{\epsilon}|$  と見かけのせん断速度  $\dot{\gamma}_{app}$  の比  $|\dot{\epsilon}|/\dot{\gamma}_{app}$  を算出した。得られた結果を図 4.20 に示す。図 4.20 より、 $|\dot{\epsilon}|/\dot{\gamma}_{app}$  のピーク値は、*Channel ER 4* と *ER 8* では概ね等しい値を示したが、*Channel ER 2* では約 0.3 と低い値となった。これより、*Channel ER 2* では他の流路と比べて伸長流れによる分子配向への寄与が小さいと考えられる。また、拡大比が大きくなるにつれ  $|\dot{\epsilon}|/\dot{\gamma}_{app}$  の値が 0 でない距離が長くなる。すなわち、急拡大部で生じる減速流れによる流動誘起配向への影響は、拡大比が大きくなるにつれ大きくなると考えられる。

図 4.20 の結果より、拡大比の変化に伴う流動誘起配向の変化に対するメカニズムは 4.4.2 節と同様であると考えられる。つまり、*Channel ER 2* では、伸長流れの寄与がアスペクト比が大きい *Channel AR 5* と同様に小さく、さらに、減速流れが生じる距離が短いことから流動誘起配向への負の伸長流れの影響が小さいと考えられる。したがって、*Channel ER 4* や *ER 8* で見受けられた、拡大部後の 90° 方向への分子の流動配向が *Channel ER 2* では見受けられなかったと考えられる。

以上、これまでに得られた結果を薄板成形と対応して考えてみる。成形時に見かけ上のせん断速度を一定にして流動を制御しても、急拡大部後の領域の内部構造は、アスペクト比あるいは拡大比を変えたことにより生じるせん断特性と伸長特性の現れ方により大きく影響され、硬化後のその領域の機械的特性も影響されることが考えられる。さらに、試料の緩和時間によっては、平均的な流れ場が発達したと見なされる領域でも構造は発達していない場合もある。したがって、本研究で扱った急拡大部を含むような薄板成形で製作された製品の力学的特性の予測には注意が必要であると考えられる。

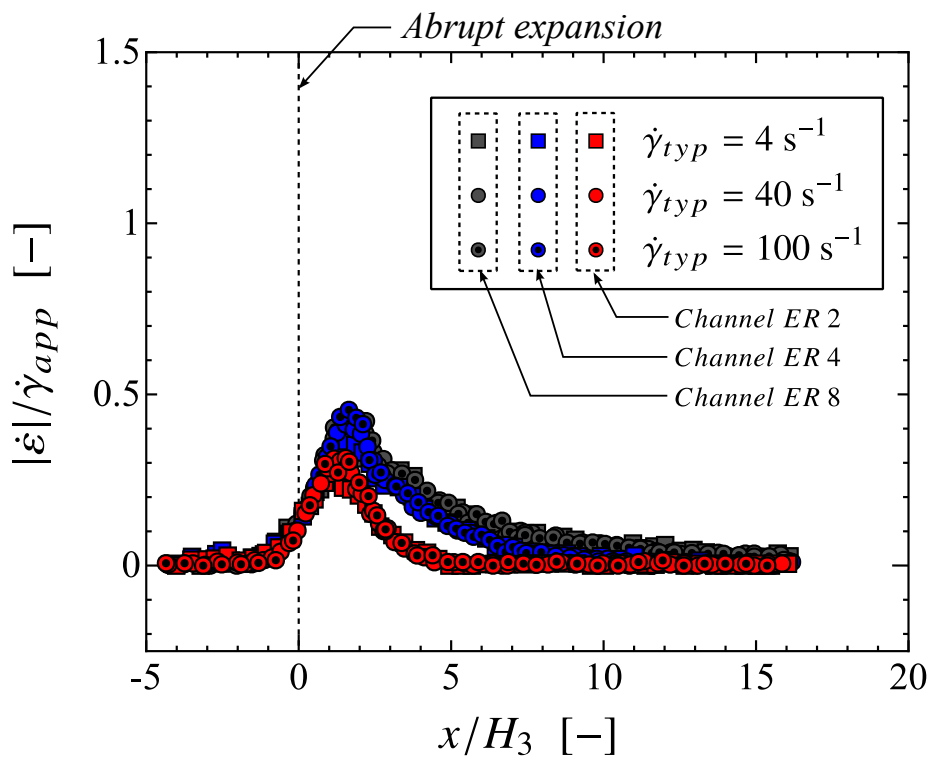


Fig.4.20. Profiles of the ratio of elongational rate to apparent shear rate along the centerline ( $y = 0$ ) for all cases tested.

## 4.5 結論

本研究では、平面急拡大流路におけるキサンタンガム水溶液（濃度は 0.5 wt %）の流れ場と流動誘起配向を調べた。また、流路断面のアスペクト比による流動誘起配向への影響を検討するため、拡大比が 1:4 のアスペクト比がそれぞれ 1, 2 および 5 の流路を用いて実験を行った。さらに拡大比による流動誘起配向への影響を検討するため、アスペクト比が 2 の拡大比がそれぞれ、1:2, 1:4 および 1:8 の流路も用意した。

急拡大部後の流動誘起配向の変化は主に流路中心線上付近で生じた。また、流路断面のアスペクト比や拡大比によって拡大部後に生じる伸長流れ場、せん断流れ場および流動誘起配向に大きな違いが生じた。伸長流れ場とせん断流れ場の程度は、流路のアスペクト比や拡大比によって異なり、アスペクト比が小さい流路、または、拡大比が大きい流路では伸長流れ場の寄与がせん断流れ場の寄与と同程度になった。しかしながら、アスペクト比が大きい流路、あるいは、拡大比が小さい流路では総じてせん断流れ場の寄与が大きくなり、伸長流れによる寄与は小さくなった。流動誘起配向に関しては、定性的に二つの大きな特徴が本研究で観測された。まず一つ目は、上流部で流れ方向に強く配向していた分子は、急拡大後に分子の配向度が急激に低下しランダム配向に近い状態になった後、再び流れ方向に配向する。このような流動誘起配向の変化は、主にアスペクト比が大きい流路や拡大比が小さい流路で見受けられた。二つ目に、上流で流れ方向に配向していた分子は、急拡大後に先ほどと同様に無配向状態に近い状態になった後、分子が流れ方向に対して直交する方向へと配向する。さらに下流域に進むと再び分子は無配向状態に近い状態となり、最終的には流れ方向へと配向する。このような流動誘起配向の変化は、アスペクト比が小さい流路や拡大比が大きい流路で見受けられた。以上より、拡大部後で生じる分子の流動誘起配向は、アスペクト比あるいは拡大比を変えたことにより生じるせん断特性と伸長特性の現れ方により大きく影響されることが本研究より明らかになった。さらに、速度場は発達したと見なされる領域においても、高分子の流動配向の変化は続いており、緩和時間が非常に長い試料に対しては、拡大流れによって変化した分子配向が再び定常状態に戻るには、長い時間あるいは長いひずみを要することが明らかになった。

## 第 5 章

# 平面急縮小・急拡大流路における高分子水溶液の流動誘起配向

### 5.1 緒論

第 4 章では、平面急拡大流路における高分子水溶液の様々な条件下での流動誘起配向について検討し明らかにした。第 4 章における研究も含め、一般的に縮小流れや拡大流れ、あるいは障害物まわりの流れの研究のほとんどが、流入条件として発達した流れ場を前提としている。すなわち、従来の拡大流れにおける研究では、発達した流れから急拡大する場合が検討されてきた。実際の成形流れでは、発達した流れ場だけではなく、縮小流の影響、すなわち、伸長流の影響が消滅せずに拡大部へ流入する流れも多く存在する。しかしながら、拡大流れにおいてこのような流入条件での高分子の流動や流動配向に関する多くの研究は二次元急縮小・急拡大流れを対象としており<sup>51-55)</sup>、平面急縮小・急拡大流路における実験的研究は極めて少ない<sup>21)</sup>。

そこで本研究では、急拡大部後の流動誘起配向に対する上流に縮小流がある場合の影響、すなわち、伸長流の影響が消滅せずに拡大部へ流入する流れ場に注目し、平面急縮小・急拡大流路における高分子水溶液の流れ場と流動誘起配向を検討する。さらに、縮小部のスリット長が異なる流路を複数用意し、スリット長による流動誘起配向への影響も検討する。

### 5.2 試験流路

本研究で用いた平面急拡大流路および座標系の概略図を図 5.1 に示す。流路は、その外形形状に加工されたスペーサーを 2 枚のガラス板 (40 mm × 100 mm, 厚さ 1.1 mm) で挟むことにより形成されている。上流部および下流部の流路幅を  $2H_1$ , 縮小部の流路幅を  $2H_2$ , 流路高さを  $2H_3$  およびスリット長を  $L_c$  とした。また、拡大流れでの流動誘

起配向に対するスリット長の影響を検討するため、スリット長の異なる流路を3種類用意した。表5.1に、流路の寸法を示す。縮小部の上流部および下流部の流路幅は4 mm、縮小部の流路幅は1 mm および流路高さは0.5 mm と固定し、スリット長をそれぞれ0.4 mm, 1.0 mm および10.0 mm とした。第4章のように、本研究で用いる流路はアスペクト比、拡大比およびスリット長がパラメータとして与えている。したがって、アスペクト比  $AR$  が  $n$ 、拡大比  $ER$  が  $m$ 、スリット長  $L_c$  が  $l$  の流路を「*Channel AR n ER m Lc l*」と呼ぶべきであるが、表5.1に示している流路は、アスペクト比が2、拡大比が4と全て同じであるため、便宜上、スリット長が  $l$  の流路を「*Channel Lc l*」と呼ぶこととする。

座標系として、縮小部の流路幅方向および高さ方向の中心に原点を設け、流れ方向を  $x$  軸、流路幅方向を  $y$  軸および高さ方向を  $z$  軸に設定した。また、各測定に対する流路の位置決めは、小型の2軸コントローラー (MMC-2, Chuo Precision Industrial Co., Ltd., Japan) を2台用いて  $x, y, z$  方向を制御した。位置決め分解能は  $2 \mu\text{m}$  であった。

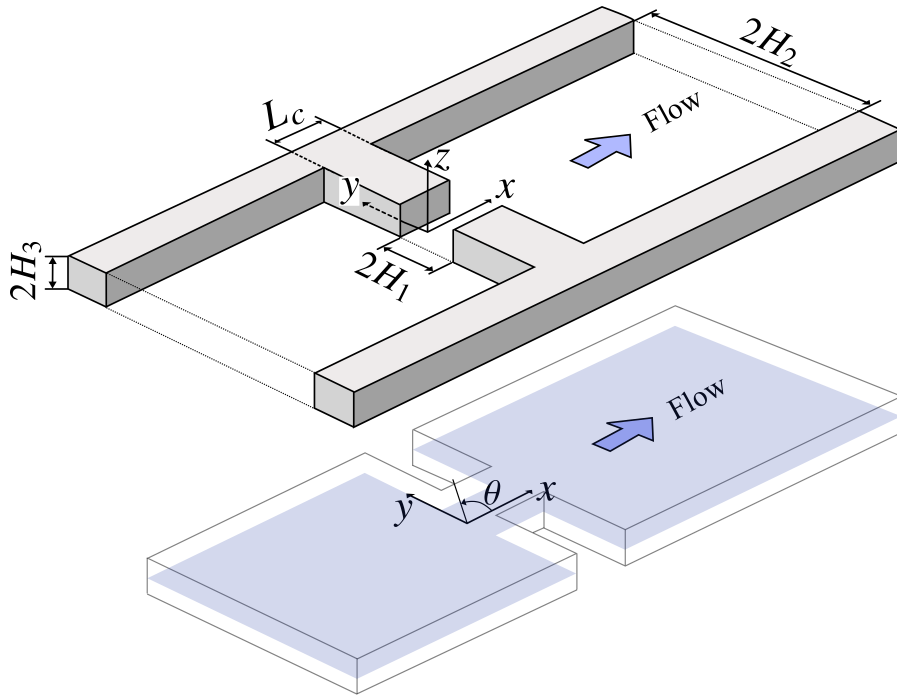


Fig.5.1. Schematic diagram of the test channel and coordinate system.

Table 5.1. Test channel dimensions.

	$2H_1$	$2H_2$	$2H_3$	$L_c$
	(mm)	(mm)	(mm)	(mm)
<i>Channel <math>L_c</math> 0.4</i>	1.0	4.0	0.5	0.4
<i>Channel <math>L_c</math> 1</i>	1.0	4.0	0.5	1.0
<i>Channel <math>L_c</math> 10</i>	1.0	4.0	0.5	10.0

全て  $AR = 2H_1/2H_3 = 2$ ,  $ER = 2H_2/2H_1 = 4$  である.



### 5.3 実験条件

本研究では，第4章と同様に，代表せん断速度  $\dot{\gamma}_{typ}$  を，

$$\dot{\gamma}_{typ} = \frac{U_c}{H_3} \quad (5.1)$$

と定義し，代表せん断速度が 4, 40 および 100  $s^{-1}$  となるように流量を調整した．ここで， $U_c$  はスリット部での平均流速 (mm/s)， $H_3$  は流路高さの半分の長さ (mm) である．

試験流体は，第4章で用いたものと同じシリンジポンプ (CSP-100S, Daiken Medical Co., Ltd., Japan) によって一定流量が流路に供給され，流路出口から排出される．本研究で定めた各代表せん断速度において，シリンジポンプで供給される流量の範囲は，1.8 ml/h から 45 ml/h であった．

第4章と同様に本研究では，試験流体の温度を直接制御することはしておらず，すべての実験は室温  $24 \pm 1$  °C で行った．第4章と同様，流動複屈折測定では，3.2.3 節で示したように，流路高さ方向 (図 4.1 の  $z$  軸方向) に沿って光を透過し測定を行った．したがって，本装置で得られる流動複屈折および配向角は流路高さ方向の平均値となる．また，速度分布測定は，3.1 節で述べたように，流動中のピントの合った粒子を追跡することで速度分布を得た．ここで，被写界深度と流路高さの関係上，流路高さ方向に対して速度勾配が大きい位置での速度分布の計測を精度良く行うことは容易ではない．したがって，本研究では流路高さの中心面 ( $z = 0$ ) の  $xy$  面内における速度分布の測定を行った (図 5.1 参照)．

## 5.4 実験結果および考察

平面急縮小・急拡大流路における研究では、種々の流路を用いて高分子の流動誘起配向を調べた。本研究により、拡大後の高分子の流動配向は、スリット長の長さによって大きく異なることが明らかになった。したがって、まずは観測された代表的な流動配向場の結果を示し、その後、流動誘起配向に対するスリット長および流量の影響を議論する。

### 5.4.1 平面急縮小・急拡大流れにおける代表的な流動誘起配向

本節では、流動配向の代表例として *Channel Lc 1* と *Lc 10* の結果について示す。

#### *Channel Lc 1, Lc 10* における流れ場全体の流動誘起配向

代表せん断速度が  $40 \text{ s}^{-1}$  の *Channel Lc 1* および *Lc 10* における流路幅方向の流動複屈折の測定結果を、配向楕円を用いて示した結果を図 5.2 に示す。なお、流れ場の対称性から、流路幅方向の半分のみを結果として示している。ここで、楕円の扁平度および長軸方向は、各測定位置で得られた複屈折の値および配向角の値にそれぞれ対応している。扁平度は、各測定位置で得られた複屈折  $\Delta n'$  を、各流路で得られた複屈折の最大値  $\Delta n'_{max}$  (例えば、図 5.2(a) の *Channel Lc 1* では、 $x = -0.5 \text{ mm}$ ,  $y = 0.1 \text{ mm}$  の位置で、*Channel Lc 10* でもほぼ同位置で同程度の複屈折を有する) で規格化した値  $\Delta n' / \Delta n'_{max}$  と定義した。これより、複屈折の値が最も大きな値を示した位置では、楕円は線となり (扁平度は 1)、複屈折の値が 0 を示した位置では、楕円は円となる (扁平度は 0)。なお、4.3 節でも述べているように、本研究で得られた複屈折および配向角は、流路高さ方向の平均値である。

拡大部後の流動配向を比較するために、*Channel Lc 10* では縮小部近傍の流動配向場の結果は示していない。流路形状は *Channel Lc 1* と *Lc 10* とともに同じであり、縮小部の流入条件は同条件であるため、流動配向場も同様の結果を示す。これは後で示す流路中心線上における結果で確認する。

図 5.2(a) より、縮小部手前およびスリット部内で分子は流れ方向へ強く配向していることがわかる。拡大部の下流域では、減速流れの影響から分子の配向状態は大きく変化しており、特に流路中心線上 ( $y = 0$ ) 近傍で急激に変化していることがわかる。さらに、流路によって拡大後の流動配向場に大きな違いが見受けられる。図 5.2(a) より、*Channel Lc 1* では拡大部後、流れ方向に配向していた分子が減速流れによって無配向状態に近い状態となる。その後、下流域に進むと分子は再び流れ方向へと配向する ( $x = 40 \text{ mm}$ )。このような流動配向場は、第 4 章で示した流路断面のアスペクト比が大きい流路あるいは拡大比が小さい流路における配向場と同様である。一方、図 5.2(b) よ

り *Channel Lc 10* の場合, *Channel Lc 1* と同様に, 拡大部後に分子の配向度が急激に低下しランダム配向状態に近い状態となる ( $x = 10.5$  mm). しかしながら, その後すぐに分子は平均的に流れ方向に対し直交方向に配向する. これは, 流路断面のアスペクト比が小さい流路あるいは拡大比が大きい流路における流動配向場と同様であり, すなわち, 発達した流れ場が流入する平面急拡大流路と同じ流動配向場が形成されている. また, 拡大後の流動配向の急激な変化は, 流路中心線上のみならず, その近傍でも生じていることがわかる.

流路中心線上とは対照的に, 各流路ともに, 拡大部後の流路側壁面付近における流れ方向への流動配向の変化はあまり見受けられない. また, 両流路ともに側壁面付近では同様な流動配向分布となった.

以上より, 図 5.2 の結果から, 平面急縮小・急拡大流路ではスリット長によって拡大部後の流動配向の分布に大きな違いが見受けられた. そこで本研究では, 流路中心線上 ( $y = 0$ ) におけるより詳細な流動複屈折測定を行った.

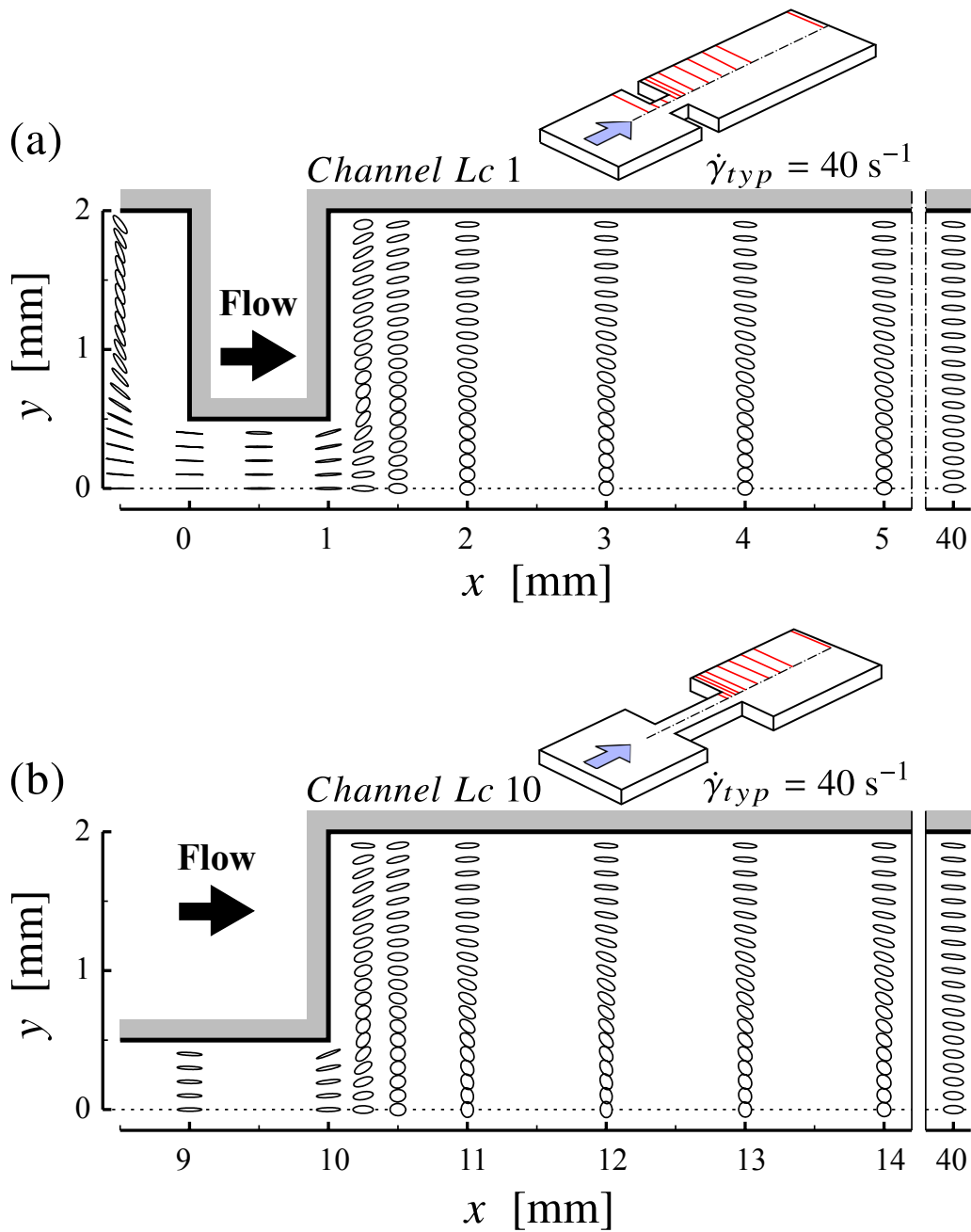


Fig.5.2. Distribution of orientation ellipses at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . The semimajor axes of ellipses are parallel to the mean orientation direction, while ellipticity is proportional to the strength of the orientation.

## 5.4.2 スリット長による流動誘起配向の影響

### 種々のスリット長を有する流路における流路中心線上の速度場と流動誘起配向

図 5.3 に、各流路の代表せん断速度が  $40 \text{ s}^{-1}$  における流路中心線上 ( $y = 0$ ) での速度の流れ方向成分  $v_x$  の結果を示す。図 5.3(a) は縮小部に原点を設定した場合を、図 5.3(b) は拡大部に原点を設定した場合の結果を示している。図 5.3(a) よりいずれの流路においても縮小部に近づくにつれ  $v_x$  の値は急激に大きくなる。また、全ての流路において縮小部上流での  $v_x$  の分布は一致している。縮小部後のスリット部では、*Channel Lc 1* と *Lc 10* において速度は一定となる。*Channel Lc 0.4* の場合は、スリット部が短くすぐに拡大部へと流入するため、速度が一定なる距離は極めて短いと予測される。図 5.3(b) より、拡大部後ではいずれの流路においても  $v_x$  の値が急激に減少していることがわかる。また、縮小部上流と同様に、スリット長によらず  $v_x$  の分布は全ての流路で一致している。

本研究では、第 4 章と同様に図 5.3 で得られた速度分布から、伸長速度  $\dot{\epsilon}$  を次式によって定義し算出した：

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_{xx} = \frac{\Delta v_x}{\Delta x} \quad (5.2)$$

式 (5.2) によって算出した伸長速度の結果を図 5.4 に示す。図 5.4(a) は縮小部に原点を設定した場合を、図 5.4(b) は拡大部に原点を設定した場合の結果を示している。速度分布測定の結果が縮小部上流および拡大部下流においていずれの流路においても同様な分布を示したため、図 5.4 に示すように、伸長速度も同様の領域において分布は一致した。しかしながら、スリット部では、*Channel Lc 1* と *Lc 10* の場合、伸長速度が 0 を示す位置がしばらく続く領域が存在するが、*Channel Lc 0.4* の場合はそのような領域はほとんどない。また、縮小部上流での伸長速度のピーク値が約  $10 \text{ s}^{-1}$  であり、拡大部下流での伸長速度のピーク値が約  $20 \text{ s}^{-1}$  であり、拡大部後の伸長速度のピーク値は縮小部上流に比べて 2 倍程大きい。これは、粘弾性流体における縮小流れでは、縮小部角部で循環二次流れが生じることで、見かけ上、流路幅が狭くなり早い段階から加速流れが発生する。一方、拡大流れはバラス効果により流体は急激に流路幅方向に広がるように流れるため、流速が急減速する。このため、伸長速度のピーク値が縮小部上流と拡大部下流で異なったものと考えられる。

以上の結果より、平面急縮小・急拡大流路における速度分布は、スリット長によらず同じ結果となった。このことから、急拡大部で生じる減速流れによる高分子の流動誘起配向への影響は、スリット長の長さに依らず同じであると考えられる。

図 5.5 に、各流路の代表せん断速度が  $40 \text{ s}^{-1}$  における流路中心線上 ( $y = 0$ ) での流動複屈折  $\Delta n'$  および配向角  $\theta$  の結果を示す。配向角  $\theta$  の値は、図 5.1 に示すように反時計回りを正とした。図 5.5 より、いずれの流路においても縮小部上流での複屈折および配向

角の値は同様な分布を示している。また、上流 ( $x = -7$  mm 付近) で、複屈折の値が 0 でない値を示しているが、この結果は、主に流路上下壁面付近で生じるせん断により、分子が流れ方向に配向している影響を反映していると考えられる。縮小部 ( $x = 0$  mm) に近づくとつれ、複屈折の値が急激に増加していき、配向角の値は  $0^\circ$  を維持している。これは、縮小部付近で生じる正の伸長流れによって、分子が流れ方向に強く引き伸ばされたためだと考えられる。

上流部とは対照的に、急縮小部後の流動配向の変化は、縮小部のスリット長によって大きく異なった。スリット長が一番長い *Channel Lc 10* では、スリット内で複屈折の値が緩やかに減少していき、拡大部手前で概ね一定値を示す。急拡大部後 ( $x = 10$  mm 以降) に急激にその値が減少し、その後、複屈折の値が一時的に増加し、再び減少、そして  $x = 15$  mm 以降は単調増加していく。また、配向角の値は、急拡大部までは  $0^\circ$  を示すが、拡大部後では  $90^\circ$  を示す。 $x = 20$  mm 以降の下流域では、再び配向角の値は  $0^\circ$  を示すようになる。このような流動配向の変化は、第 4 章で示した平面急拡大流路において流路断面のアスペクト比が小さい流路あるいは拡大比が大きい流路の場合と同様である。すなわち、発達した流れが拡大部へ流入する場合と同様である。

一方、スリット長が短い二つの流路では、急縮小後のスリット部において複屈折の値は減少するが、*Channel Lc 10* のように複屈折の値が一定になる前に拡大部へと流入する。拡大部後 ( $x = 0.4$  mm あるいは  $x = 1$  mm 以降)、同様に複屈折の値が急激に減少するものの、一時的な複屈折の値の増加は見受けられない。また、配向角の値が  $90^\circ$  へと変化せず、バラツキはあるが平均的に概ね  $0^\circ$  の値を維持している。下流域では、*Channel Lc 10* と同様に、複屈折の値が増加していく。

本研究で用いた平面急縮小・急拡大流路におけるスリット部での流路断面のアスペクト比は 2 であり、これは第 4 章における研究結果より発達した流れが拡大部へと流入する場合は、*Channel Lc 10* で見られたような流動配向となる。しかしながら、*Channel Lc 0.4* と *Lc 1* ではそのような流動配向とは異なる結果となった。以上より、流路中心線上における速度分布はスリット長に依らず同様な分布を示したが、拡大部後の流動誘起配向はスリット長に大きく依存すると考えられる。

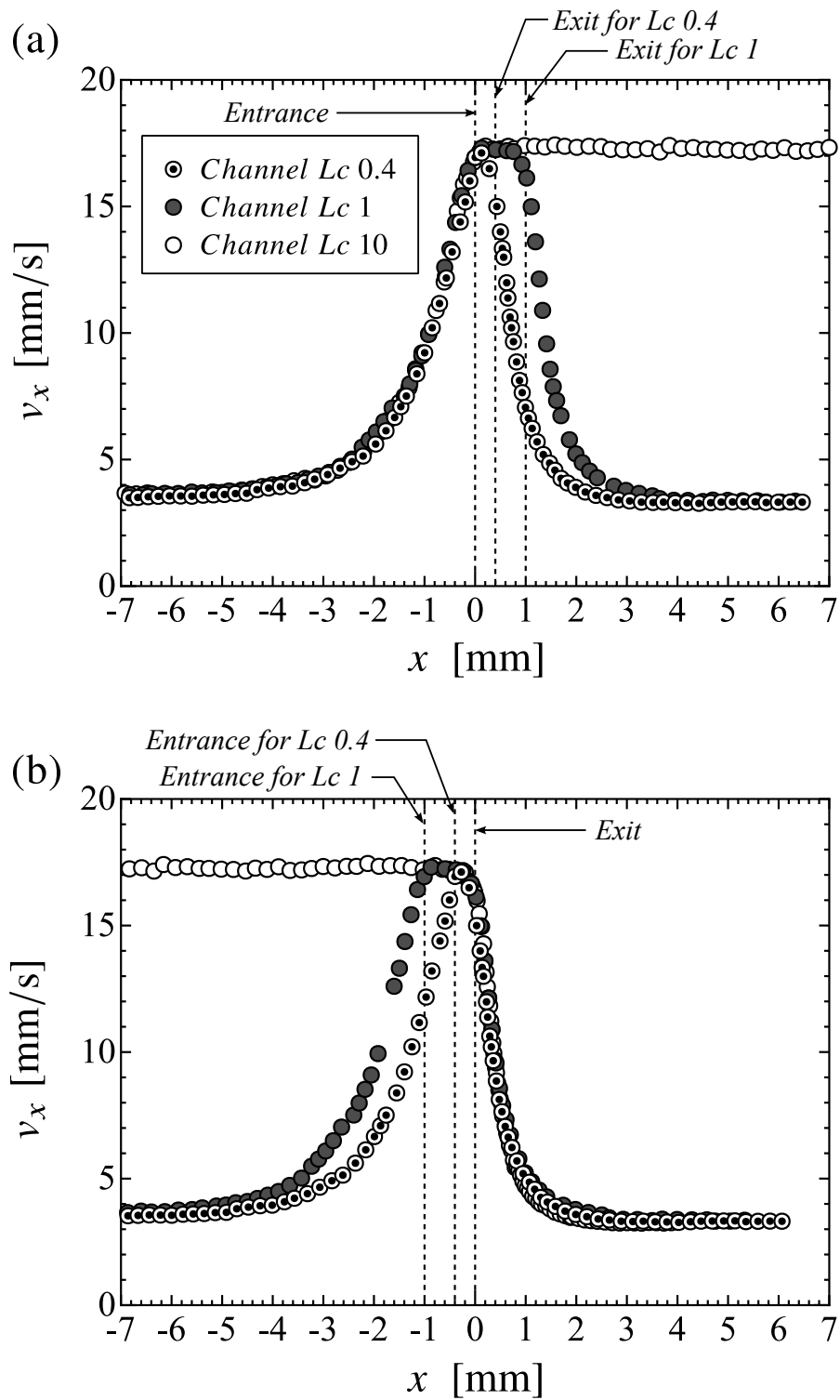


Fig.5.3. Profiles of the axial velocity  $v_x$  along the centerline ( $y = 0$ ) at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . (a) The origin of the Cartesian coordinate system is located at the abrupt contraction. (b) The origin of the Cartesian coordinate system is located at the abrupt expansion.

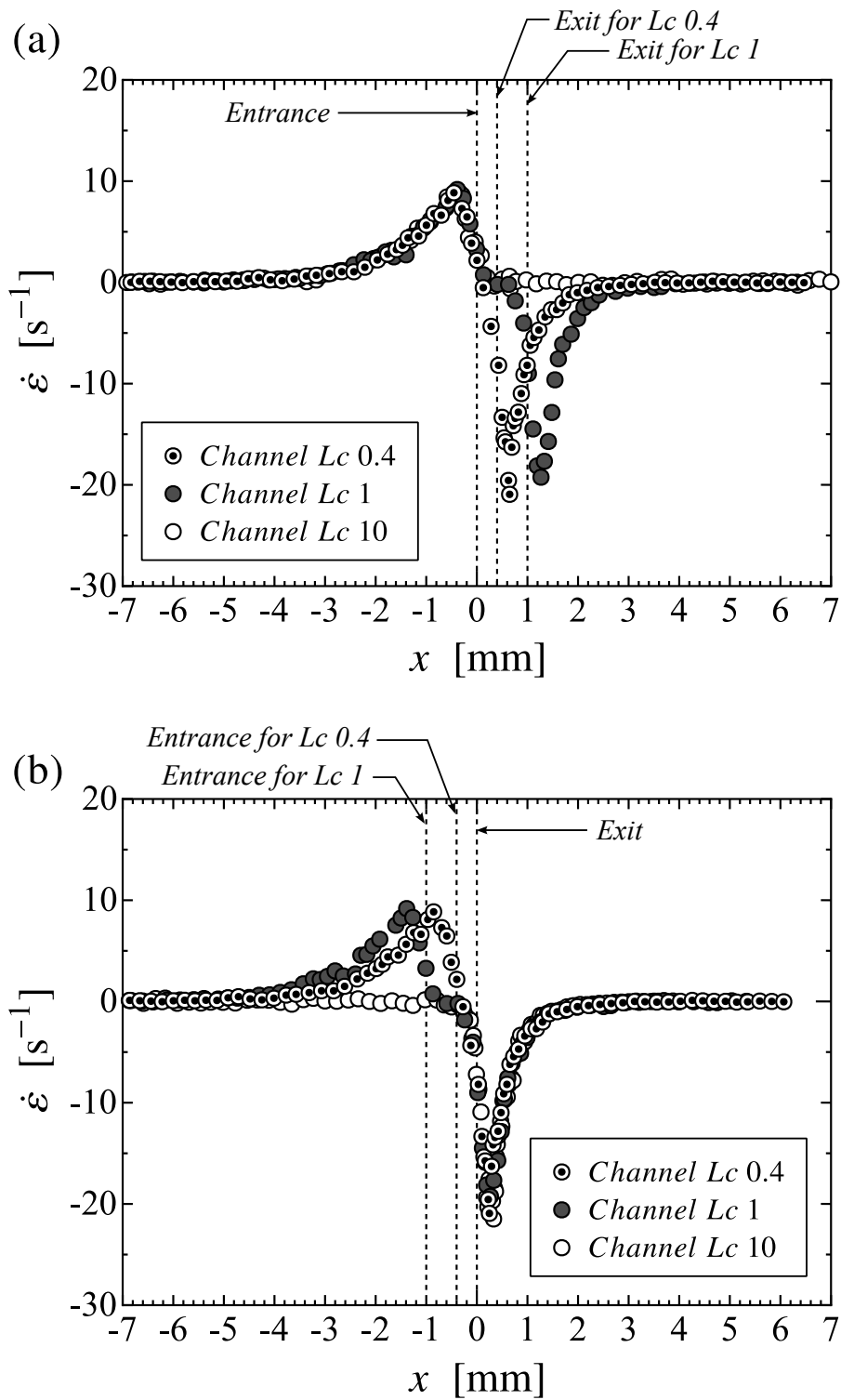


Fig.5.4. Profiles of the elongational rate  $\dot{\epsilon}$  along the centerline ( $y = 0$ ) at the typical shear rate of  $40 s^{-1}$ . (a) The origin of the Cartesian coordinate system is located at the abrupt contraction. (b) The origin of the Cartesian coordinate system is located at the abrupt expansion.



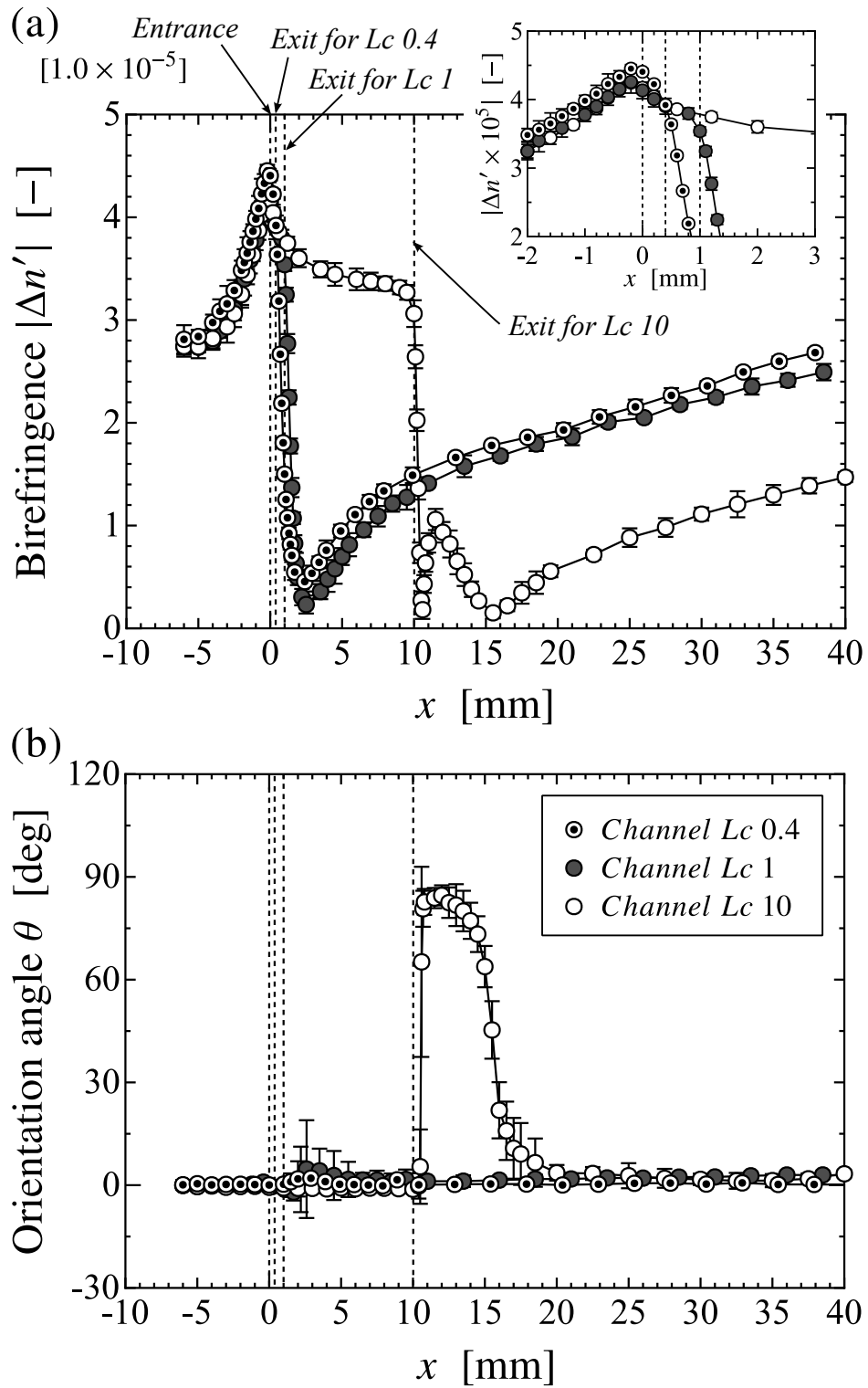


Fig.5.5. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle along the centerline ( $y = 0$ ) at the typical shear rate of  $40 \text{ s}^{-1}$ . The inset shows the results of birefringence over a range of  $x$  from -2 to 3.

### **Channel Lc 1 および Lc 10 における代表せん断速度（流量）による速度場と流動誘起配向への影響**

各代表せん断速度における流路中心線上の速度分布の結果について、Channel Lc 1 の場合を図 5.6 に、Channel Lc 10 の場合を図 5.7 に示す。代表せん断速度によって縮小部で生じる正の伸長速度および拡大部で生じる負の伸長速度は大きくなるが、各流路ともに同様な分布を示した。すなわち、各代表せん断速度における伸長速度のピーク値および位置は、スリット長に依らない。これより、平面急縮小・急拡大流路における速度分布はスリット長には依存しないと考えられる。

各代表せん断速度における流路中心線上の流動複屈折  $\Delta n'$  および配向角  $\theta$  の結果について、Channel Lc 1 の場合を図 5.8 に、Channel Lc 10 の場合を図 5.9 に示す。図 5.8、5.9 より、いずれの流路においても、流動配向の代表せん断速度による定性的な変化は見受けられない。縮小部上流では、代表せん断速度によって複屈折の値が増加するものの、拡大部下流における伸長流動場が生じる領域では、複屈折の値に大きな違いは見られない。図 5.9(a) の代表せん断速度が  $100 \text{ s}^{-1}$  におけるスリット部での複屈折の値に関して、拡大部手前で一定値になったとは言い難いが、拡大部後の流動配向の分布が他の代表せん断速度と同様であることから、スリット部内で縮小流の影響は概ね消滅したものと考えられる。Channel Lc 10 の場合ではより大きな代表せん断速度においても同様な流動配向になるかどうか、また、Channel Lc 1 の場合ではより小さな代表せん断速度においても同様な流動配向になるかどうか、現時点では不明ではあるが、本研究で定めた代表せん断速度内においては、拡大部後の流動配向は代表せん断速度には依存しないことが明らかになった。

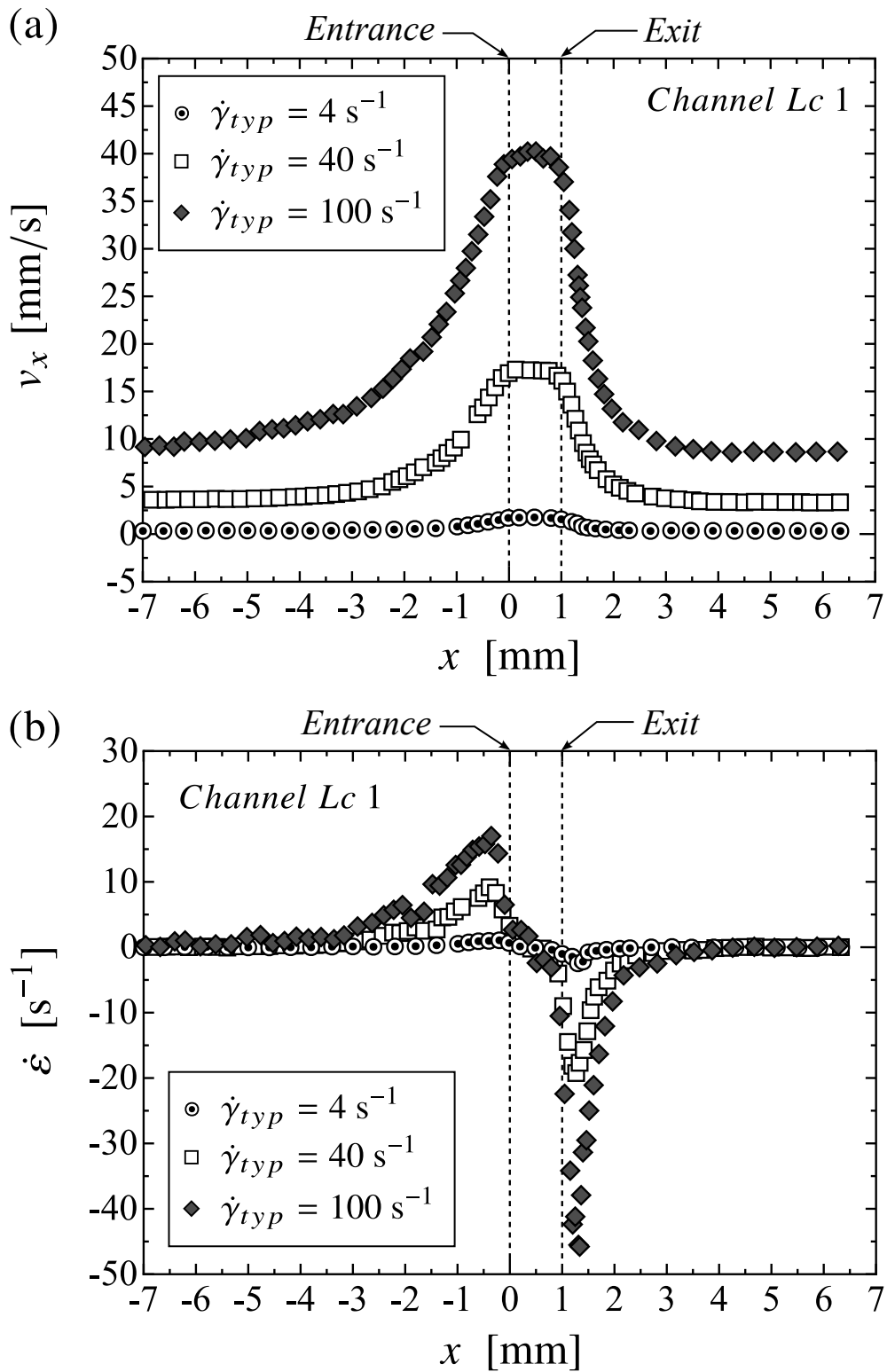


Fig.5.6. Profiles of (a) the axial velocity  $v_x$  and (b) the elongational rate  $\dot{\epsilon}$  along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel Lc 1*.

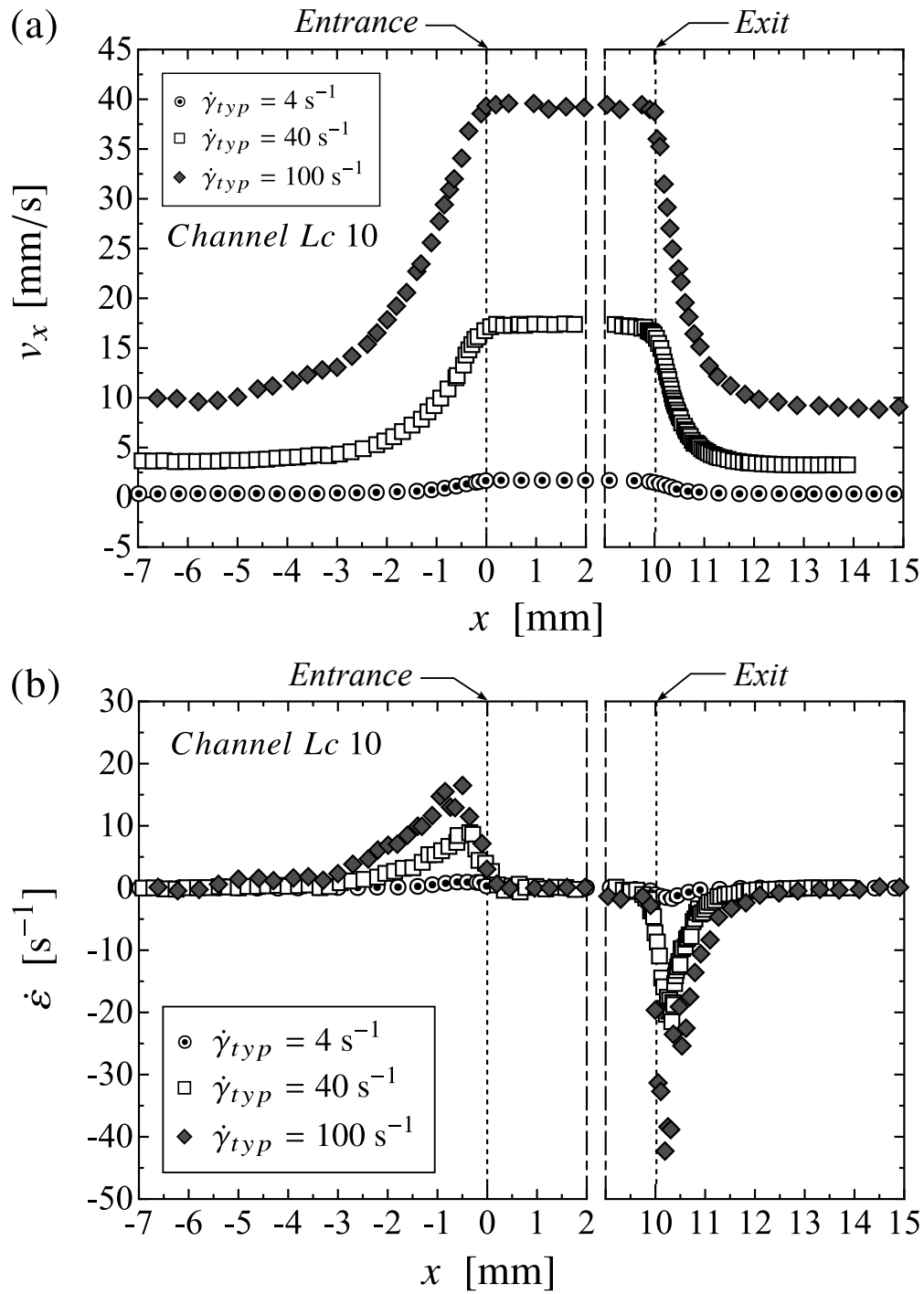


Fig.5.7. Profiles of (a) the axial velocity  $v_x$  and (b) the elongational rate  $\dot{\epsilon}$  along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel Lc 10*.

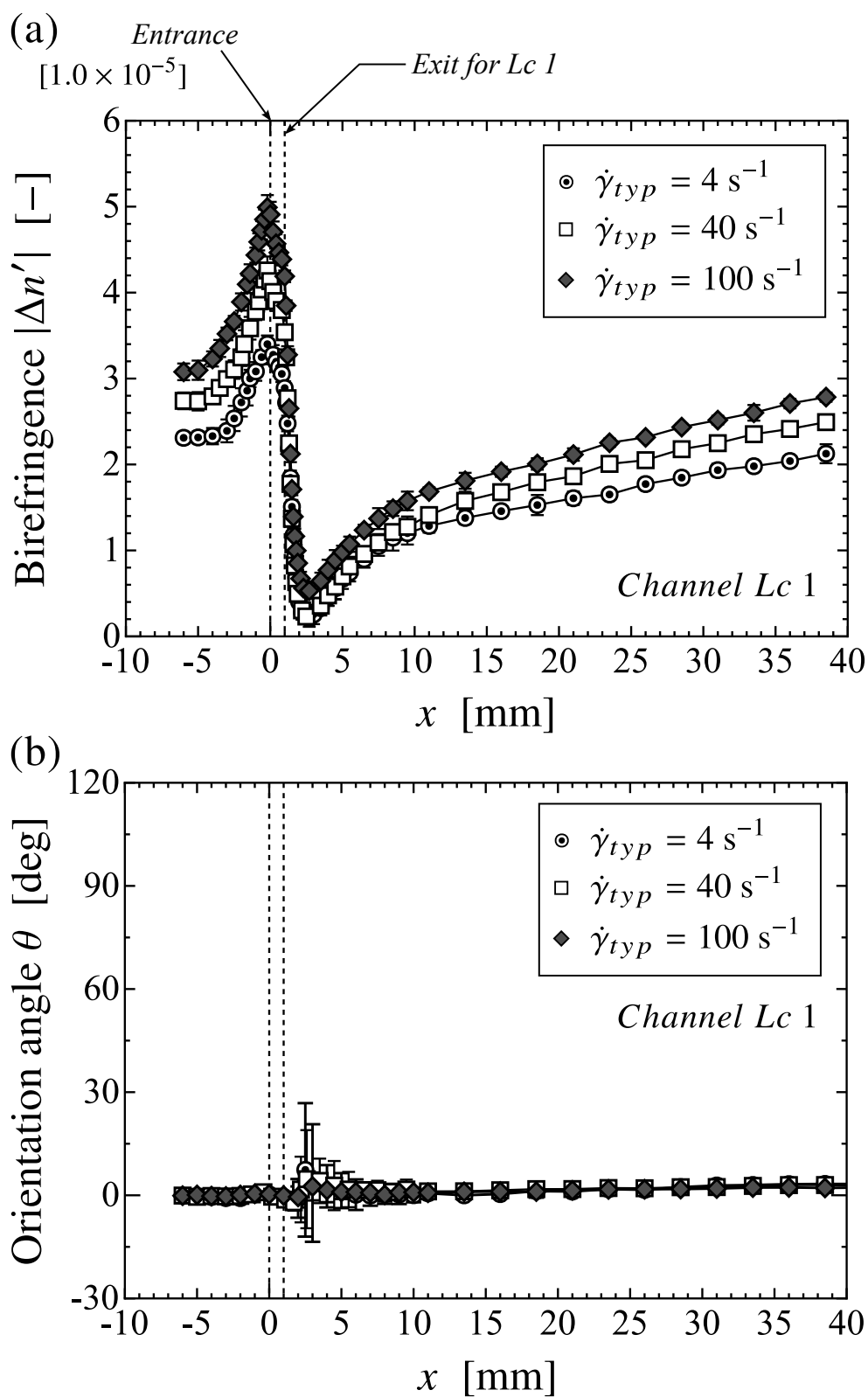


Fig.5.8. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle along the center-line ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel Lc 1*.

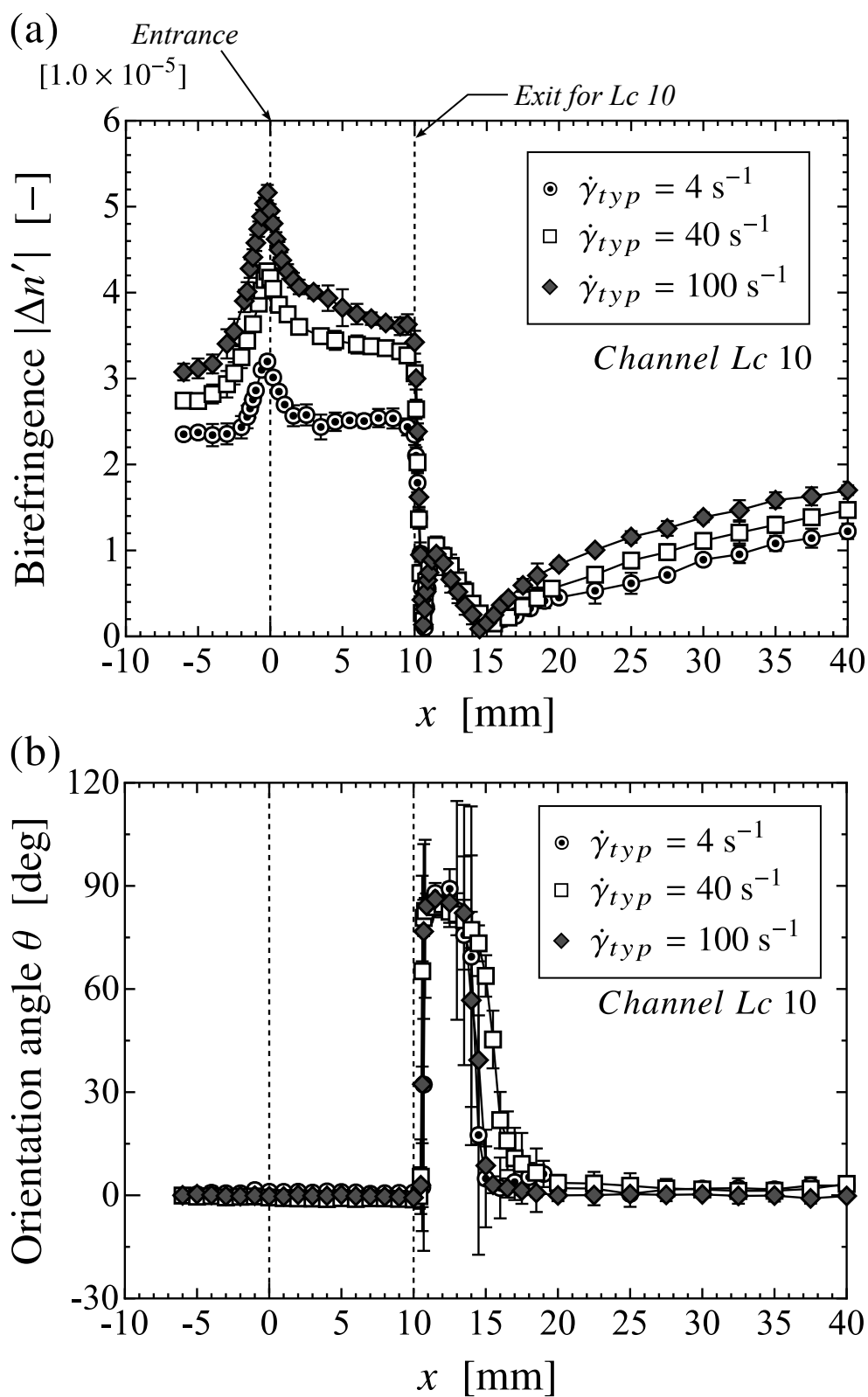


Fig.5.9. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle along the center-line ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel Lc 10*.

### スリット長による流動誘起配向の変化に対する考察

第4章と同様に、本研究においても速度分布測定から算出した伸長速度の絶対値  $|\dot{\epsilon}|$  と見かけのせん断速度  $\dot{\gamma}_{app}$  の比  $|\dot{\epsilon}|/\dot{\gamma}_{app}$  を算出した。結果を図5.10に示す。図5.10は原点を急拡大部に設定した場合を示している。いずれの流路および代表せん断速度においても、すべて同様な分布を示していることがわかる。すなわち、拡大部後で生じる伸長特性とせん断特性の流動配向への影響は、スリット長の長さに依らず等しいことがわかる。

スリット長が最も長い *Channel Lc 10* では、図5.9より縮小部後に緩やかな複屈折の減少が見られた。これは、縮小部で生じた伸長流れの寄与がスリット部ではなくなり、引き伸ばされた分子が緩和していく過程で複屈折の減少が生じたと考えられる。特に代表せん断速度が  $100 \text{ s}^{-1}$  においては、急拡大部 ( $x = 10 \text{ mm}$ ) までに複屈折の値が完全に一定になったとは考え難いが、図5.12(a)に示すように縮小部より生じた伸長流れによる分子配向への影響は、拡大部までには概ね消滅したと考えられる。図5.11に、*Channel Lc 10* と *Channel AR 2* の代表せん断速度が  $40 \text{ s}^{-1}$  における流路中心線上の複屈折および配向角の結果を示す。図5.11より、拡大部後の流動複屈折と配向角の分布が各流路ともによく一致していることがわかる。これより、*Channel Lc 10* における拡大部後の流動配向の変化は、発達した流れ場が拡大部へ流入する *Channel AR 2* における流動配向の変化と同様であると考えられる。したがって、*Channel Lc 10* で生じた流動配向のメカニズムは、第4章で考察した *Channel AR 2* のケースと同じであると考えられる。

続いて、*Channel Lc 0.4* と *Lc 1* について考察する。図5.12(b)に示すように、縮小部によって生じる加速流れによって分子は流れ方向に強く配向する。縮小部後のスリット部では加速流れがなくなり、縮小部より生じた伸長流れによる分子配向はスリット部で緩和すると考えられる。しかしながら、拡大部までに複屈折の値が一定にならないことから、正の伸長流れで生じた分子配向が完全に緩和することなく拡大部へと流入すると推測できる。また、拡大部後に生じる減速流れはスリット長に依らず同じように生じる。すなわち、減速流れによる分子の流動配向への影響は、スリット長に依存しない。このため、加速流れによって生じた分子配向が発達した状態へと緩和せずに拡大部へと流入する *Channel Lc 0.4* と *Lc 1* では、減速流れによる分子配向の影響が *Channel Lc 10* のような流動配向の変化が生じるほど及ばなかったと考えられる。つまり、図5.12(b)に示すように、減速流れによって流路高さ方向中心面付近の分子は流れ方向に対して直交方向へと配向せず、流れ方向に配向していた分子は無配向状態に近い状態になったと推測される。したがって、流路高さ方向における平均的な分子の流動配向は無配向状態に近い状態として観測されたものと考えられる。

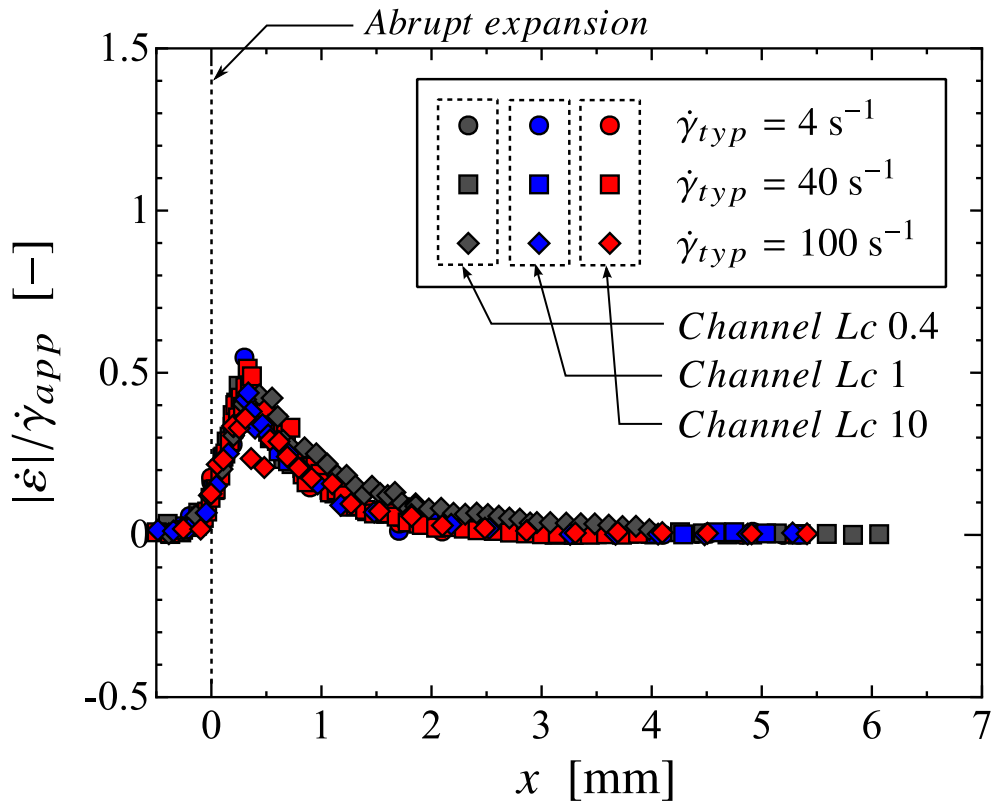


Fig.5.10. Profiles of the ratio of elongational rate to apparent shear rate along the centerline ( $y = 0$ ) for all cases tested.

以上より、スリット長が短い流路のように、急縮小部の伸長流れの影響が急拡大部までに消滅しない流路では、急拡大部後の流動誘起配向の分布が、発達した流れ場が拡大部へ流入する場合の拡大流れと大きく異なることが本研究で明らかになった。対照的に速度場に関しては、スリット長の長さに関わらず、同様な分布を示した。これより、本研究で扱った急縮小・急拡大流れが生じる流れ場で成形する成形品の品質管理や力学的特性を予測する場合、速度場などのマクロな情報だけでは不完全であり、高分子の流動配向のようなミクロな内部構造の情報も必要であると言える。あるいは、スリット長を変えることによって、高分子の流動配向を制御することも可能になるかもしれない。



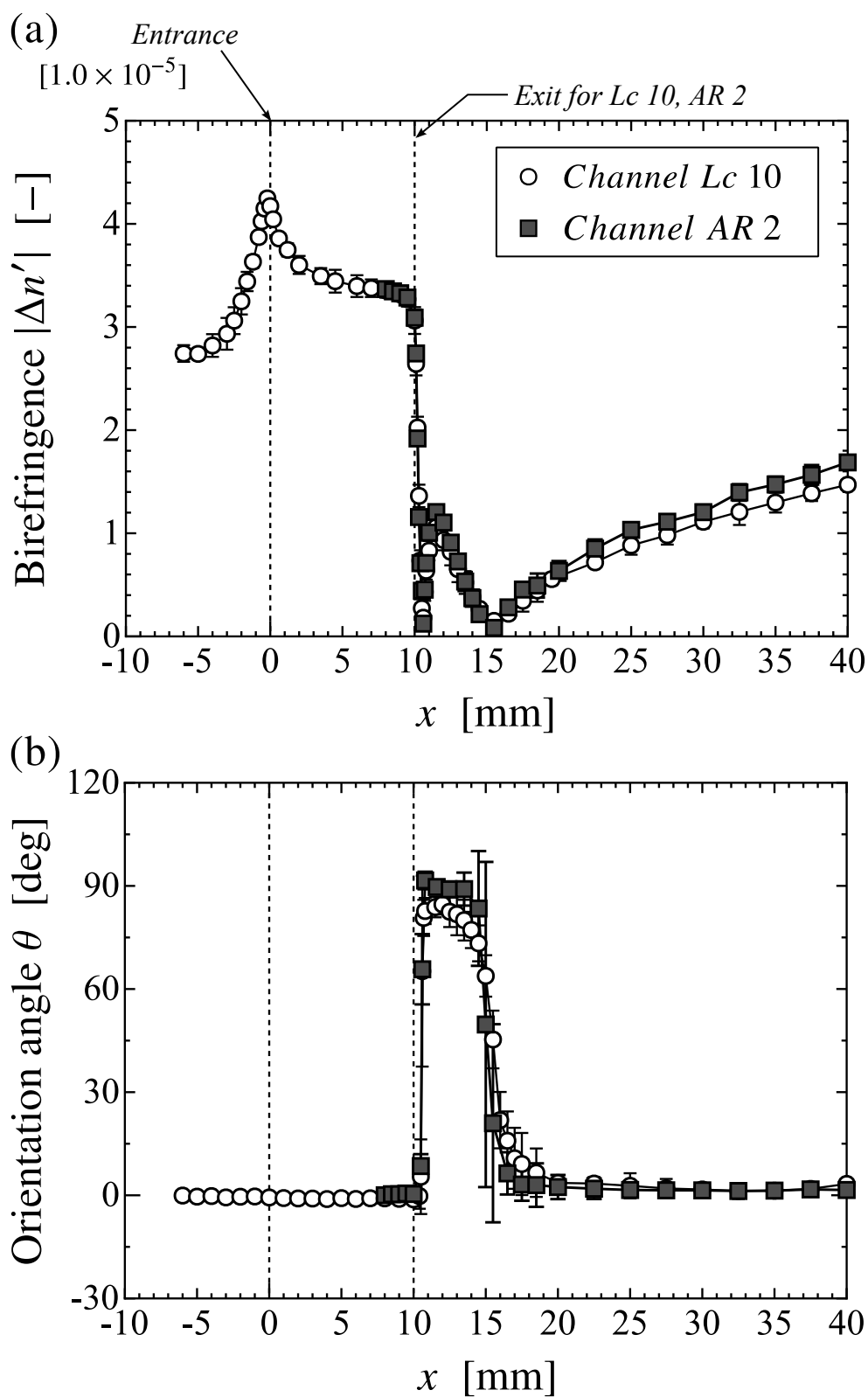


Fig.5.11. Distributions of (a) birefringence and (b) orientation angle along the centerline ( $y = 0$ ) for all flow rates for *Channel Lc 10* and *Channel AR 2*.

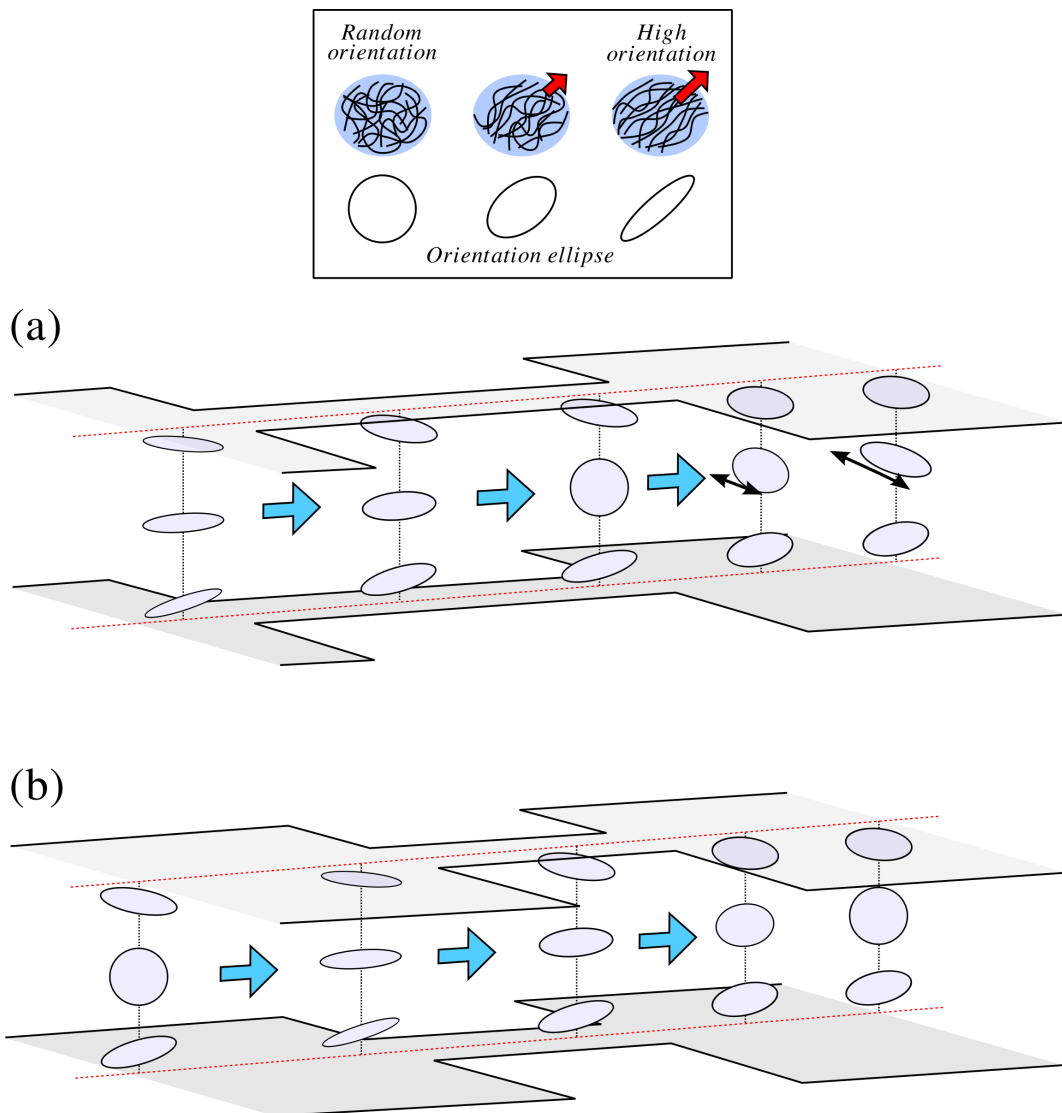


Fig.5.12. Flow-induced orientational changes in the polymers represented by orientation ellipses (a) for the case of *Channel Lc 10* and (b) for the cases of *Channel Lc 0.4* and *Lc 1*.

## 5.5 結論

本研究では、平面急縮小・急拡大流路を流動するキサンタンガム水溶液（濃度は 0.5 wt %）の流れ場と流動誘起配向を、速度分布測定および流動複屈折測定を行うことで調べた。また、拡大部後の流動誘起配向に対するスリット長の影響を検討するため、スリット長がそれぞれ 0.4 mm, 1.0 mm および 10 mm の流路を用意した。得られた結果を以下にまとめる。

流路中心線上における速度分布は、スリット長に依らず同様な分布となった。これより、拡大部で生じる減速流れによる分子の流動配向への影響はスリット長に依存しないと考えられる。流路中心線上付近において、いずれの流路においても縮小部に近づくとつれ、複屈折の値が急激に増加した。これは縮小部付近で生じる正の伸長流れにより分子が流れ方向に強く配向したためと考えられる。縮小部後のスリット部では、加速流れによる寄与が消滅し、流れ方向へと強く配向した分子は緩和することで複屈折の値は減少した。スリット長が 10 mm の流路では、拡大部までに概ね複屈折の値は一定となり急拡大部へと流入した。また、スリット長が 10 mm の流路における拡大部後の流動誘起配向の分布は、発達した流れ場が流入する平面急拡大流路と同様な分布を示した。すなわち、拡大部後に分子の配向度が急激に減少し、無配向状態へと変形した後、分子は流れ方向に対して直交方向へと配向した。その後、分子は再び流れ方向へと配向した。一方、スリット長が 0.4 mm と 1.0 mm の流路では、スリット部において複屈折の値が一定になる前に拡大部へ到達した。急拡大部後の流動誘起配向の分布は、スリット長が 10 mm の流路とは異なり、流れ方向に対して直交方向への分子配向は生じなかった。これは、縮小部による伸長流れによって流れ方向に強く配向した分子が完全に緩和しないことにより、減速流れによって流路高さ方向中心面付近の分子は流れ方向に対して直交方向へと配向せず、流れ方向に配向していた分子は無配向状態に近い状態になったためと考えられる。

以上より、スリット長が短い流路のように、急縮小部の伸長流れの影響が急拡大部までに消滅しない流路では、急拡大部後の流動誘起配向の分布が一般的な拡大流れと大きく異なることが本研究で明らかになった。

## 第 6 章

# 結論

本研究は、高分子水溶液の流れ場と流動配向との関係を明らかにすることを目的として行われたものである。本論文では、高分子水溶液の流れ場と流動配向を測定するために速度分布測定と流動複屈折測定を行った。また、成形流れで重要な流れ場である平面急拡大流れに着目し、流路断面のアスペクト比や拡大比による流動配向への影響について検討した。さらに、実際の成形流れでは、発達した流れ場だけではなく、縮小流の影響、すなわち、伸長流の影響が消滅せずに拡大部へ流入する流れも多く存在する。このため、平面急縮小・急拡大流路における高分子の流動配向も調べた。ここで、本研究で得られた結果についてまとめ、結論を述べる。

第 1 章において、成形流れで重要な障害物まわりの流れ、急縮小流れあるいは急拡大流れにおける粘弾性流体の流動配向に関する研究の動向および本研究の目的について述べた。

第 2 章では、使用する流体とその作製方法について述べたあと、試料流体の評価方法について示し、レオロジー特性を調べた。その結果、本論文で使用したキサントガム水溶液は、動的粘弾性の結果から弾性的性質の強い流体であることや Fractional Maxwell Model を用いて緩和時間を算出し、長い緩和時間を有することがわかった。また、定常せん断粘度測定からキサントガム水溶液は shear-thinning 性を有する流体であることを示した。

第 3 章では、速度分布測定装置や高分子の流動配向を調べるための方法のひとつである流動複屈折測定装置とその方法について示した。また、流動複屈折測定に関しては、複屈折および配向角の算定に関して理論的に示した。

第 4 章では、第 3 章で述べた装置を用いて、平面急拡大流路における高分子水溶液の速度分布と流動配向について検討した。また、流路断面のアスペクト比による流動配向への影響を調べるため、流路断面のアスペクト比が異なる流路を用いて実験を行った。さらに拡大比による流動誘起配向への影響も調べるため、拡大比が異なる流路も用意した。

流路断面のアスペクト比や拡大比によって拡大部後に生じる伸長流れ場、せん断流れ場および流動配向に大きな違いが生じることがわかった。さらに伸長流れ場とせん断流れ場の程度は、流路のアスペクト比や拡大比によって異なり、アスペクト比が小さい流路または拡大比が大きい流路では、伸長流れ場の寄与がせん断流れ場の寄与と同程度になり、アスペクト比が大きい流路あるいは拡大比が小さい流路では、総じてせん断流れ場の寄与が大きくなり、伸長流れによる寄与は小さくなった。流動誘起配向に関しては、定性的に二つの大きな特徴が本研究で明らかになった。一つ目は、急拡大後に分子の配向度が急激に低下しランダム配向に近い状態になった後、再び流れ方向に配向した。このような流動配向の変化は、主にアスペクト比が大きい流路や拡大比が小さい流路で見受けられた。二つ目に、急拡大後に一つ目と同様に無配向状態に近い状態になった後、分子が流れ方向に対して直交する方向へと配向し、さらに下流域に進むと再び分子は無配向状態に近い状態となり、最終的には流れ方向へと配向した。このような流動配向の変化は、アスペクト比が小さい流路や拡大比が大きい流路で見受けられた。以上より、拡大部後で生じる分子の流動配向は、アスペクト比あるいは拡大比を変えたことにより生じるせん断特性と伸長特性の現れ方により大きく影響されることが本研究より明らかになった。さらに、速度場は発達したと見なされる領域においても、高分子の流動配向の変化は続いており、緩和時間が非常に長い流体に対しては、拡大流れによって変化した分子配向が再び定常状態に戻るには、長い時間あるいは長いひずみを要することが明らかになった。

第5章では、平面急縮小・急拡大流路における高分子水溶液の速度分布と流動配向について検討した。また、スリット部による流動配向への影響を調べるため、スリット長の異なる流路を用いて実験を行った。流路中心線上における速度分布に関しては、スリット長に依らず同様な分布を示した。拡大部後の流動配向に関しては、縮小部後のスリット部内で縮小流の影響が消滅する場合としない場合で大きく異なることがわかった。スリット部で縮小流の影響が消滅した場合は、発達した流れ場が流入する平面急拡大流路と同様な流動配向を示した。一方、スリット部で縮小流の影響が消滅しない場合では、減速流れによって無配向状態に近い状態へと配向し、流れ方向に対して直交方向へ配向することはなく、再び流れ方向へと配向した。以上より、スリット長が短い流路のように、急縮小部の伸長流れの影響が急拡大部までに消滅しない流路では、急拡大部後の流動誘起配向の分布が、発達した流れ場が拡大部へ流入する場合の拡大流れと大きく異なることが本研究で明らかになった。

## 参考文献

- 1) R. B. Bird, R. C. Armstrong, and O. Hassager, *Dynamics of polymeric liquids: Vol. I Fluid mechanics*, 2nd ed. (John Wiley & Sons, New York, 1987).
- 2) J. A. Brydson, *Flow Properties of Polymer Melts* (Ilfle Books, London, 1970).
- 3) J. L. White, *Principles of Polymer Engineering Rheology* (Wiley, New York, 1988).
- 4) G. G. Fuller, *Optical Rheometry of Complex Fluids* (Oxford University Press, New York, 1995).
- 5) F. P. T. Baaijens, S. H. A. Selen, H. P. W. Baaijens, G. W. M. Peters, and H. E. H. Meijer, “Viscoelastic flow past a confined cylinder of a low density polyethylene melt,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **68**, 173–203 (1997).
- 6) E. Mitsoulis, “Numerical simulation of confined flow of polyethylene melts around a cylinder in a planar channel,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **76**, 327–350 (1998).
- 7) 保田和則, 中村洋祐, 村上玄明, 千葉訓司, “高分子水溶液の微小円柱まわりの流れ中における流動複屈折分布,” *日本機械学会論文集 B 編* **75**(753), 937–944 (2009).
- 8) D. K. Cinader, and W. R. Burghardt, “Molecular orientation in channel flows of main-chain thermotropic liquid crystalline polymers,” *Rheol. Acta* **39**, 247–258 (2000).
- 9) R. A. Brown, and G. H. McKinley, “Report on the VIIIth international workshop on numerical methods in viscoelastic flows,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **52**, 407–413 (1994).
- 10) L. M. Quinzani, R. C. Armstrong, and R. A. Brown, “Birefringence and laser-Doppler velocimetry (LDV) studies of viscoelastic flow through a planar contraction,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **52**, 1–36 (1994).
- 11) J. Azaiez, R. Guénette, and A. Ait-kadi, “Numerical simulation of viscoelastic flows through a planar contraction,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **62**, 253–277 (1996).

- 12) J. L. Favero, A. R. Secchi, N. S. M. Cardozo, and H. Jasak, “Viscoelastic flow analysis using the software OpenFOAM and differential constitutive equations,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **165**, 1625–1636 (2010).
- 13) S. Schuberth, and H. Münstedt, “Simultaneous measurements of velocity and stress distributions in polyisobutylenes using laser-Doppler velocimetry and flow induced birefringence,” *Rheol. Acta* **47**, 111–119 (2008).
- 14) M. T. Martyn, C. Nakason, and P. D. Coates, “Stress measurements for contraction flows of viscoelastic polymer melts,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **91**, 123–142 (2000).
- 15) 浅間英夫, 長谷川富市, 鳴海敬倫, “スリット出口付近における界面活性剤水溶液の流動複雑折拳動,” *Nihon Reoroji Gakkaishi (J Soc Rheol,Jpn)* **31**, 99–104 (2003).
- 16) J. P. Rothstein, and G. H. McKinley, “A comparison of the stress and birefringence growth of dilute, semi-dilute and concentrated polymer solutions in uniaxial extensional flows,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **108**, 275–290 (2002).
- 17) O. Scrivener, C. Berner, R. Cressely, R. Hocquart, R. Sellin, and N. S. Vlachos, “Dynamical behaviour of drag-reducing polymer solutions,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **5**, 475–495 (1979).
- 18) M. Arikol, “Kinematics and normal stress differences of a viscoelastic fluid undergoing wiggle flow,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **19**, 209–227 (1985).
- 19) N. E. Dyakonova, J. A. Odell, Yu. V. Brestkin, A. V. Lyulin, and A. E. Saez, “Macromolecular strain in periodic models of porous media flows,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **67**, 285–310 (1996).
- 20) Li. J. Ming, B. R. Wesley, Y. Bin, and K. Bamin, “Birefringence and computational studies of a polystyrene Boger fluid in axisymmetric stagnation flow,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **91**, 189–220 (2000).
- 21) V. Lutz-Bueno, J. Kohlbrecher, and P. Fischer, “Micellar solutions in contraction slit-flow: Alignment mapped by SANS,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **215**, 8–18 (2015).
- 22) 山本剛宏, “複雑流体の内部構造を考慮した流動シミュレーション,” *ながれ*, **29**(5), 313–318 (2010).
- 23) Y. Mu, G. Zhao, X. Wu, and J. Zhai, “Modeling and simulation of three-dimensional planar contraction flow of viscoelastic fluids with PTT, Giesekus and FENE-P constitutive models,” *Appl. Math. Comput.* **218**(17), 8429–8443 (2012).
- 24) F. Habla, A. Obermeier, and O. Hinrichsen, “Semi-implicit stress formulation

- for viscoelastic models: Application to three-dimensional contraction flows,” *J. Non-Newtonian Fluid Mech.* **199**, 70–79 (2013).
- 25) C. Sanchez, D. Renard, P. Robert, C. Schmitt, and J. Lefebvre, “Structure and rheological properties of acacia gum dispersions,” *Food Hydrocolloids* **16**, 257–267 (2002).
  - 26) D. A. Rees, and E. J. Welsh, “Secondary and tertiary structure of polysaccharides in solutions and gels,” *Angew. Chem.* **16**, 214–224 (1977).
  - 27) R. Lapasin, and S. Pricl, *Rheology of Industrial Polysaccharides: Theory and Applications* (Blackie Academic and Professional, Glasgow, 1995).
  - 28) 西成勝好, 松本孝芳, 高橋亮, 佐藤清隆, 中嶋光敏, 水越正彦, 井ノ内直良, 平島円, 武政誠, 大本俊郎, 余川丈夫, 柴克宏, 新田陽子, 船見孝博, 白川真由美, 小笠原健, 佐々木泰司, 吉村美紀, 清水寿夫, 宮島千尋, 深澤美由紀, 吉村圭司, 高橋幸資, 長野隆男, 北畠直文, 前田竜郎, 三浦靖, 鈴木良雄, 食品ハイドロコロイドの開発と応用 (株式会社シーエムシー出版, 2007).
  - 29) P. J. Whitcomb, and C. Macosko, “Rheology of xanthan gum,” *J. Rheol.* **22**, 494–505 (1978).
  - 30) S. B. Ross-Murphy, V. J. Morris, and E. R. Morris, “Molecular viscoelasticity of xanthan polysaccharide,” *Faraday Symp. Chem. Soc.* **18**, 115–129 (1983).
  - 31) G. Cuvelier, and B. Launay, “Concentration regimes in xanthan gum solutions deduced from flow and viscoelastic properties,” *Carbohydr. Polym.* **6**, 321–333 (1986).
  - 32) W. E. Rochefort, and S. Middleman, “Rheology of xanthan gum: Salt, temperature, and strain effects in oscillatory and steady shear experiments,” *J. Rheol.* **31**, 337–369 (1987).
  - 33) K. W. Song, H. Y. Kuk, and G. S. Chang, “Rheology of concentrated xanthan gum solutions: Oscillatory shear flow behavior,” *Korea-Australia Rheol. J.* **18**(2), 67–81 (2006).
  - 34) A. Jaishankar, and G. H. McKinley, “A fractional K-BKZ constitutive formulation for describing the nonlinear rheology of multiscale complex fluids,” *J. Rheol.* **58**, 1751–1788 (2014).
  - 35) A. W. Chow, and G. G. Fuller, “Response of moderately concentrated xanthan gum solutions to time-dependent flows using two-color flow birefringence,” *J. Rheol.* **28**, 23–43 (1984).
  - 36) T. Lim, J. T. Uhl, and R. K. Prud’homme, “Rheology of self-associating concentrated xanthan solutions,” *J. Rheol.* **28**, 367–379 (1984).



- 37) A. Jaishankar, and G. H. McKinley, “Power-law rheology in the bulk and at the interface: Quasi-properties and fractional constitutive equations,” *Proc. R. Soc., A* **469**, 20120284 (2013).
- 38) P. J. Torvik, and R. L. Bagley, “On the appearance of the fractional derivative in the behavior of real materials,” *J. Appl. Mech.* **51**, 294–298 (1984).
- 39) R. C. Koeller, “Applications of fractional calculus to the theory of viscoelasticity,” *J. Appl. Mech.* **51**, 299–307 (1984).
- 40) M. Caputo, “Linear models of dissipation whose  $Q$  is almost frequency independent—II,” *Geophys. J. Int.* **13**, 529–539 (1967).
- 41) T. Surguladze, “On certain applications of fractional calculus to viscoelasticity,” *J. Math. Sci.* **112**, 4517–4557 (2002).
- 42) S. W. Katicha, and G. W. Flintsch, “Fractional viscoelastic models: Master curve construction, interconversion, and numerical approximation,” *Rheol. Acta* **51**, 675–689 (2012).
- 43) H. Schiessel, R. Metzler, A. Blumen, and T. Nonnenmacher, “Generalized viscoelastic models: Their fractional equations with solutions,” *J. Phys., A* **28**, 6567–6584 (1995).
- 44) C. Friedrich, “Relaxation and retardation functions of the Maxwell model with fractional derivatives,” *Rheol. Acta* **30**, 151–158 (1991).
- 45) 高橋勉, “複雑流体のレオロジーに対する実験的アプローチ,” *ながれ* **29**, 329–336 (2010).
- 46) T. Takahashi, and G. G. Fuller, “Stress tensor measurement using birefringence in oblique transmission,” *Rheol. Acta* **35**, 297–302 (1996).
- 47) T. Takahashi, M. Shirakashi, K. Miyamoto, and G. G. Fuller, “Development of a double-beam rheo-optical analyzer for full tensor measurement of optical anisotropy in complex fluid flow,” *Rheol. Acta* **41**, 448–455 (2002).
- 48) R. M. A. Azzam, and N. M. Bashara, *Ellipsometry and Polarized light* (Elsevier Science Publish, New York, 1977).
- 49) E. Hecht, *Optics*, 4th ed. (Pearson Education, New York, 2002).
- 50) G. G. Fuller, and K. J. Mikkelsen, “Optical rheometry using a rotary polarization modulator,” *J. Rheol.* **33**(5), 761–769 (1989).
- 51) 山本剛宏, 中村喜代次, “スリット部を通過する粘弾性流体のスタートアップ流れの数値計算 第1報: 速度場と応力場の時間的变化,” *Nihon Reoroji Gakkaishi (J Soc Rheol, Jpn)* **24**(4), 183–187 (1996).
- 52) 山本剛宏, 中村喜代次, “スリット部を通過する粘弾性流体のスタートアップ流れの数

- 値計算 第2報：応力緩和に対するスリット長の影響,” Nihon Reoroji Gakkaishi (J Soc Rheol, Jpn) **24**(4), 189–193 (1996).
- 53) J. P. Rothstein, and G. H. McKinley, “Extensional flow of a polystyrene Boger fluid through a 4:1:4 axisymmetric contraction/expansion,” J. Non-Newtonian Fluid Mech. **86**, 61–88 (1999).
- 54) J. P. Rothstein, and G. H. McKinley, “Axisymmetric flow-induced birefringence measurements for the flow of a polystyrene Boger fluid into an abrupt contraction-expansion,” Proc. of the XIIIth International Congress on Rheology (2000).
- 55) M. W. Collis, and M. R. Mackley, “The melt processing of monodisperse and polydisperse polystyrene melts within a slit entry and exit flow,” J. Non-Newtonian Fluid Mech. **128**, 29–41 (2005).

# 謝辞

本研究の遂行ならびに本論文の作成にあたり，懇切なご指導とご鞭撻を賜り，研究遂行を終始支えて頂いた新潟大学 鳴海敬倫教授に心から感謝申し上げます。

学部から博士前期課程において指導教員であり，博士後期課程においても激励を頂くとともに，何度も貴重なご指摘をくださった，愛媛大学 保田和則教授に深く感謝申し上げます。

本研究の遂行にあたり，数々の御助言と御協力を頂きました新潟大学 牛田晃臣助教に感謝致します。

本論文の作成にあたり，大変ご多忙の中，本論文の審査ならびに貴重なご教示を賜りました新潟大学 藤澤延行教授，同 松原幸治教授，同 山内健教授に深く感謝申し上げます。

また，新潟大学 流体工学研究室在籍期間中，常に明るく親切に接して頂くとともに，実験装置の設計・製作に御協力頂いた技術職員の萱場龍一氏，ならびに研究室の学生皆様に深く感謝申し上げます。

博士後期課程の同期である長岡技術科学大学 伊藤雅利氏には，同じ研究分野で共に切磋琢磨し，また研究上のさまざまな相談に乗っていただきました。心から感謝申し上げます。

学位取得に向け，終始応援して下さった祖父・祖母，ならびに終始暖かく見守り，育てて下さった両親に深く感謝申し上げます。

応援して下さった妹，親族，ならびに友人皆様に深く感謝申し上げます。

最後に，博士前期課程から現在に至る長い期間，辛抱強く応援し続け，経済的，精神的に支えてくれた妻に，心から感謝申し上げます。