

# 平行板粘度計の試作

白石 裕\* R. MEISTER\*\*

Parallel Plate Viscometer and Its Characteristic. By Yutaka SHIRAIISHI and Robert MEISTER.

A parallel plate viscometer was constructed by utilizing the combination of linear variable transformer and a microcomputer. The characteristic of this viscometer was determined by measurement of viscosity of a NBS standard glass 711. The experimental results show that the applicability of this viscometer for the viscosity range from  $10^6$  to  $10^{10}$  poises. There are two methods of measurement using the parallel plate viscometer. Namely, one is the static method in which temperature stays constant during each measurement and the other is the dynamic method in which temperature varies continuously through the measurement. From the comparison of two methods, it is concluded that the dynamic method gives a higher value of viscosity than that of the static method.

The experimental errors due to temperature, the expansion of the mullite reference rod, and the expansion of the sample are discussed.

(Received June 3, 1982)

## 1. 緒 言

Fontana<sup>1)</sup>によれば、平行板粘度計は  $10^5 \sim 10^9$  poise 粘度範囲を動的測定法により 2h で測定でき、測定試料の作製が容易なこととあいまってガラスに対する粘度計として優れていると結論されている。この測定法の基礎は Gent<sup>2)</sup>により次式で与えられている。

$$\eta = \frac{2\pi MgH^5}{3V(dH/dt)(3\pi H^3 + V)} \quad (1)$$

ここで、 $\eta$ =粘度 (poise),  $M$ =荷重 (g),  $H$ =円柱状試料の高さ (cm),  $g$ =重力加速度 ( $\text{cm/s}^2$ ),  $V$ =試料体積 ( $\text{cm}^3$ ),  $dH/dt$ =試料変形速度 ( $\text{cm/s}$ ) である。この式は、試料が非圧縮性で、常に円柱形状を保ちながら変形することを前提としている。そこで、2枚の平行板の間に円柱状試料を挟み、所定の温度で荷重をかけて変形させると、その試料の高さの時間的変化を測定すれば粘度が求められることになる。

いま、試料は直径 10mm、高さ 5mm の円柱状であるとし、その粘度が  $10^5$  または  $10^9$  poise である場合を考えてみよう。200g の荷重をこの試料にかけたとすると(1)式により、 $10^5$  poise では変形速度が 2.77mm/s、 $10^9$  poise では  $2.77 \times 10^{-4}$  mm/s となる。そこで、もし Fontana の結論したこの粘度範囲を精度良く測定しようとするならば、変形速度の大きな粘度域では測定の迅速性を、また、変形速度の小さい高粘度範囲では高感度な測定を必要とする。この両極端な条件を満たす方法として、直線型差動トランス (LVDT) とマイクロコンピュータ (M. C.) を組合せることが賢明である。LVDT は高感度の測定を可能とし、M. C. はデータの迅速な採集と記憶を行ってくれる。このような観点から平行板粘度計を試作し、その特性を測定法と共に検討した。

選鉱製錬研究所報告 第 868 号 昭和 57 年 4 月 日本金属学会第 90 回大会にて発表

\* 東北大学選鉱製錬研究所

\*\* Vitreous State Laboratory, The Catholic University of America

1) Fontana, E. H.: J. Amer. Ceram. Soc., **49** (1970), 594.

2) Gent, A. N.: Brit. J. Appl. Phys., **11** (1960), 85.

## 2. 実 験

### 2-1 実 験 装 置

試作した平行板粘度計の主要部分を Fig.1 に模式的に示した。試料をムライト製の固定板と可動板の間に置く。可動板はムライト棒、ステンレス棒を経て LVDT のコアと連結しており、その中間に荷重のホルダーをもっている。他方、LVDT のコイルは可動棒と相似の形状をした参照棒によって固定板を支点にして支えられており、この両者の差動運動が試料高さの変化として観測される。固定板はムライト管を介して装置の基板に固定されている。試料の加熱にはカンタル巻き線炉を用い、Fig.2 のようにガイド支柱と釣り合い錘りにより円滑に上下に動かせる。熱電対を固定板の上、下面に接して設置し、上面の試料に隣接する Pt/10% Rh•Pt 熱電対で試料温度を、下面に接する熱電対 (C. A.) で炉の温度制御を行った。LVDT の出力、測温用熱電対の起電力は Fig.3 のブロックダイアグラムに従って M. C. に読み込まれ、また、プログラムされた M. C. の制御出力と制御用熱電対の出力を比較して炉の温度を制御している。

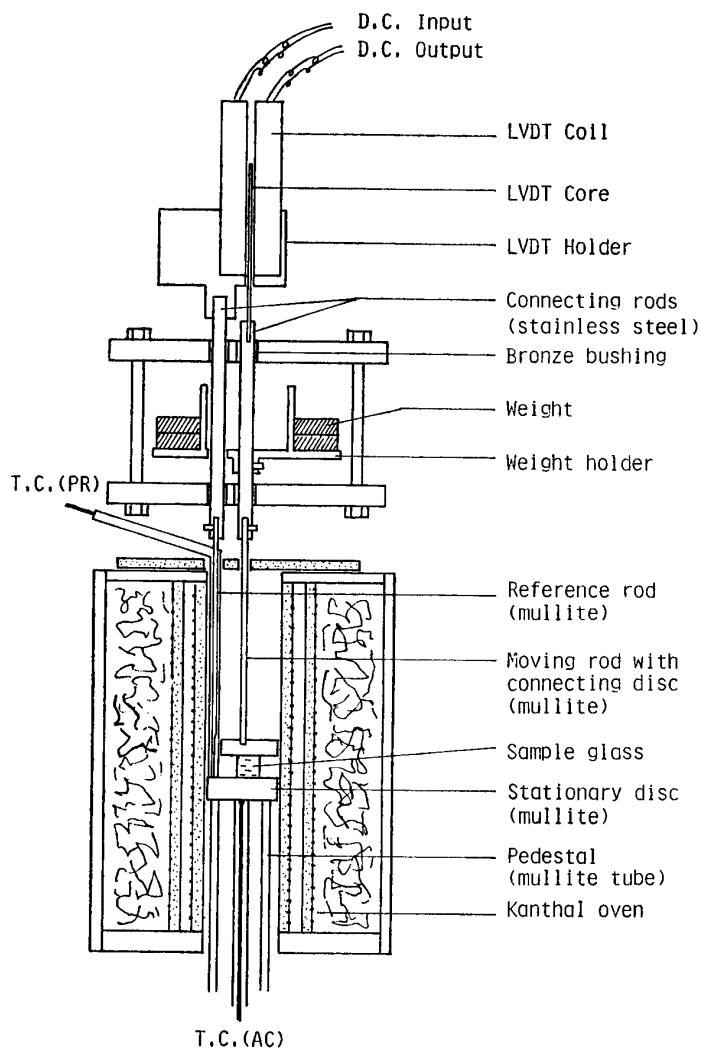


Fig.1 Schematic diagram of experimental apparatus.

### 2-2 予 備 実 験

2-2-1 LVDT: 本実験に使用した Transtek 社製 LVDT の直線性と感度を求めるため、コイルを固定しコアをマイクロメータで動かし、移動距離と出力電圧の関係を調べた。使用した LVDT は発振・検波部分を含めた全長 75mm (3") であるが、移動距離—出力電圧の直線範囲は 18mm (0.7") であり本実験の測定条件は充分この直線範囲に入る。24 ± 0.001 V D.C. を LVDT に供給したとき、直線範囲での感度は  $1.677 \pm 0.001 \times 10^{-3} \text{ mm/mV}$  であった。実際の使用条件下では炉温の上昇に伴いコイルの温度も上昇する。したがって、LVDT の温度特性も知っておく必要があり、実測の結果、LVDT の温度の上昇により出力は減少し、室温 (24°C) に比し、55°C (ケース温度) では 1.6%、70°C (本実験での最高値) では 2.0% 減少した。しかし、実際の測定では連続した一連の測定値において、隣り合う値の差額のみを必要とするため、LVDT 温度の差による個々の測定値の補正は行わず、平均的温度による感度補正のみを行った。

2-2-2 温度分布: この種の実験で最も重要な測定条件の一つは温度であり、試料はなるべく均一な温度分布をもつ空間で加熱される必要がある。本実験で内径 25mm の比較的細い加熱炉

を用いたのは半径方向の温度分布を良くするためである。Fig. 4 に温度分布の測定法と測定結果の一例を示した。線径 0.2mm の C. A. 熱電対を参照棒の代りに炉に挿入し、固定板上面 (Fig. 4 (A)) または可動板上面 (Fig. 4 (B)) に接触させながら約 1/4 回転させ、熱電対を所定位置 (炉中心を 90° とした回転角度で表示) において测温した。990°C 近傍での測定結果は Fig. 4 に示すように炉中心部で温度が低く、炉壁で高い。この傾向は可動板上面を測定した図 (B) において著しい。図 (A), (B) において × 印は実測定において熱電対が置かれる位置に相当し、点線で示した同心円は初期および測定終了時の試料断面を表わす。このような幾何学的形状と測定された温度分布から炉中の温度分布に軸対称を仮定して測定中の試料内温度分布を見積ってみると、試料下面が接触する固定板上では図 (A) より  $-1.7 \sim 0^\circ\text{C}$ 、試料上面が接触する可動板の上表面では図 (B) より  $-1.8 \sim 1.0^\circ\text{C}$  と推定される。現実に試料が接触するのは可動板の下表面であり、図 (B) の温度分布とは異なる。可動板上表面が放射に対するシールドをもたないのに反し、下面に対しては固定板が放射のシールドとして働くため、可動板下面における温度分布が上面におけるものより悪くなるとは考えられない。さらに、測定中の試料の変形により、測定終了時には試料は 2~3 mm 厚さの円板状になっており、その試料内温度分布はほとんど図 (A) のものに等しくなっていると考えられる。粘度測定中、試料高さの大きいときは比較的溫度が低く、温度分布が悪化する高温範囲では試料高さが変形により低くなることを考えあわせると、実際の測定中の試料内温度分布は  $2^\circ\text{C}$  以内におさまっていると考えて差支えない。

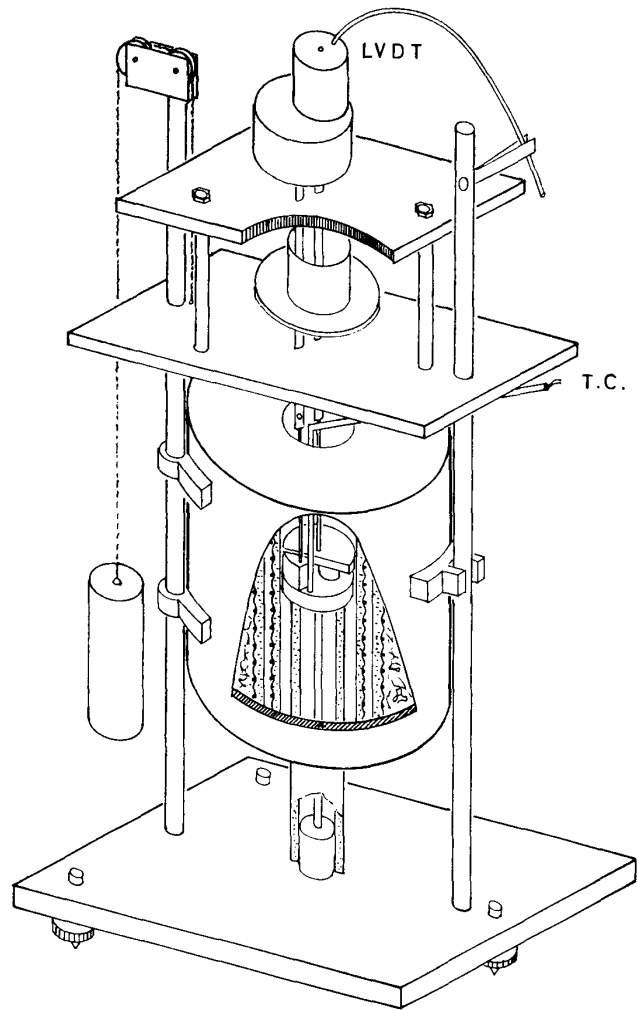


Fig. 2 Illustration of the viscometer.

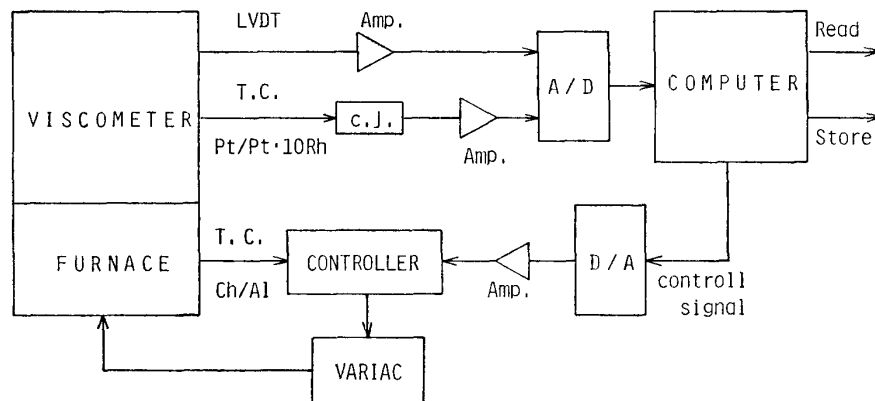


Fig. 3 Block diagram of measuring system.

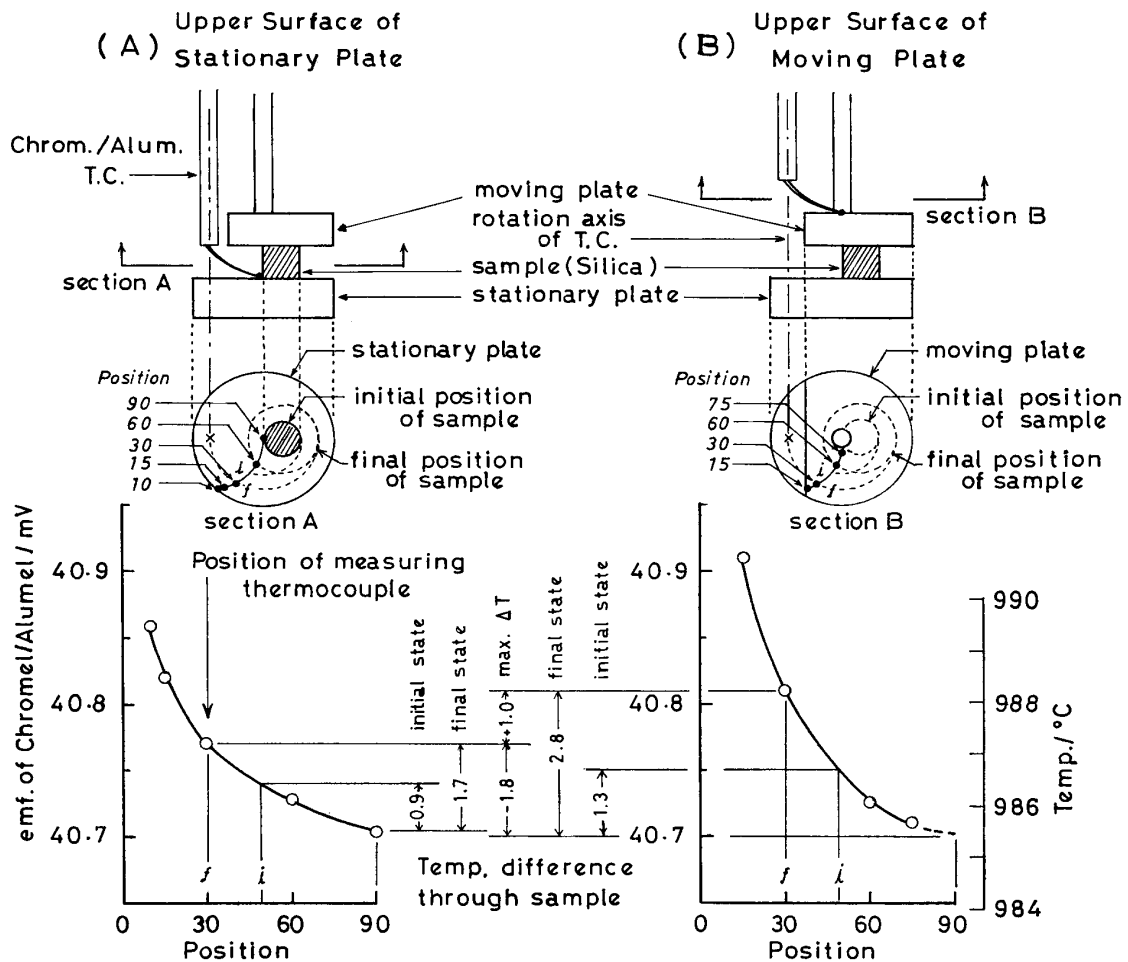


Fig. 4 Temperature distribution around the sample.

2-2-3 ムライトの熱膨張：すでに述べたように、試料の変形は参照棒に対する可動板の差動量として観測される。したがって、参照棒と試料の熱膨張率の差を試料の変形量に対して補正する必要があり、そのため、ムライトの熱膨張率を予め見積っておかねばならない。本実験においては溶融石英棒を規準としてムライトの見掛けの膨張率を測定した。Fig. 5 に測定結果の一例を示す。左端の縦軸はLVDTの出力であり（符号は試料高さの増減に合わせてある）、参照棒の膨張は見掛け上試料高さの減少を与える。右端の縦軸は試料温度であり、横軸は実験時間である。この測定では500°Cまで約15minで加熱し、以後100°Cごとの階段状に温度を上昇させ参照棒の伸びを調べている。1000°Cから1100°Cに昇温するとムライトの伸びは異常に大きくなり、また温度が一定に保たれた後もなかなか伸びが一定値に到達しない。Fig. 5では1100°Cに15min保持しているが、ムライトはこの間伸びつつけている。他の測定で30min程度まで1100°Cに保持してみたが、やはりムライトの伸びは徐々に減少はするものの一定値には達しなかった。この現象の原因として(i)参照棒と可動板の熱的非対称性による定常状態への不到達、(ii)多結晶質ムライトの結晶粒粗大化、(iii)ムライトの相変態、(iv)規準とした溶融石英のごく微量の結晶化、などが考えられるが詳細は不明である。本研究ではこの現象をできるだけ軽減するため、炉のスペースの許す範囲で可動板の重量に匹敵する大きさのムライトブロックを可動板と同一ロットから切り出し、参照棒と固定板の間に挿入して可動板と熱的相似性を高め、あわせて、(ii)、(iii)の原因に対しても同一材質を用いることによる補償効果を狙った。その結果、完全な

補償効果は得られなかったが、Fig.6 のようにある程度の改善がなされた\*。Fig.6 をもとにムライトの見掛けの膨張率を求めると Fig.7 が得られ、温度の3次式で表現すると図の実線のようになる。

$$\alpha_{\text{mullite}} = -3.00 \times 10^{-10} T^3 + 1.19 \times 10^{-6} T^2 + 1.73 \times 10^{-4} T \quad (H = 6.8 \pm 1.1 \text{mm}) \quad (2)$$

なお、Fig.7 に示す誤差の最大値に適合する表式を作り(2)式の代りに用いて実測データより粘度を求めてみたが、(2)式を用いたときとの差は高々1%であったので、試料高さの補正にはすべて(2)式を用いた。

2-2 測定操作：厚板状の試料からコアードリルを用いて円柱状試料をくり抜き、ダイヤモンドカッターで適当な長さに切断し、端面を #2000 まで研磨して測定試料を作製した。これを白金箔を敷いた固定板と可動板で挟み、適当な荷重を加えてから加熱する。予め指定した昇温パターンに従って加熱し、所定時間後、すなわち所定温度に到達後にデータ(時間、温度、LVDT 出力)を M.C. にストアする。また試料の変形速度がある程度大きくなったとき、並列に接続したペンレコーダを作動させ、変形-時間曲線を得、これからも粘度を計算した。一回の測定に要した時間は 2~3h であった。

この粘度計による測定に2通りの方法が考えられる。1つは試料温度を一定に保持し、充分にその温度における平衡を得てから測定する静的法、他は温度を緩やかに変えながら(この場合は昇温させながら)連続的に測定を行う動的法である。前者は粘度と温度の正しい対応が得られる反面、平衡に

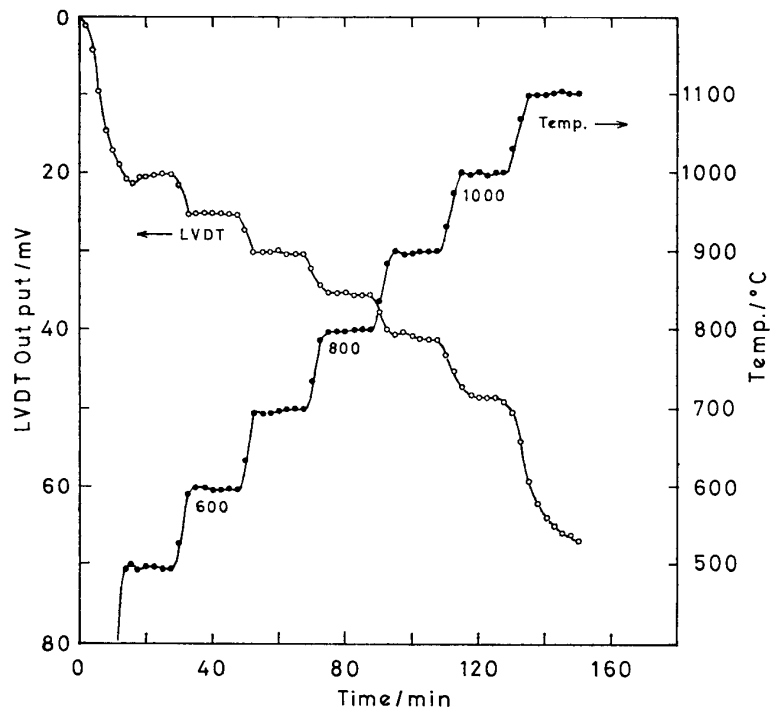


Fig.5 An example of mullite expansion.

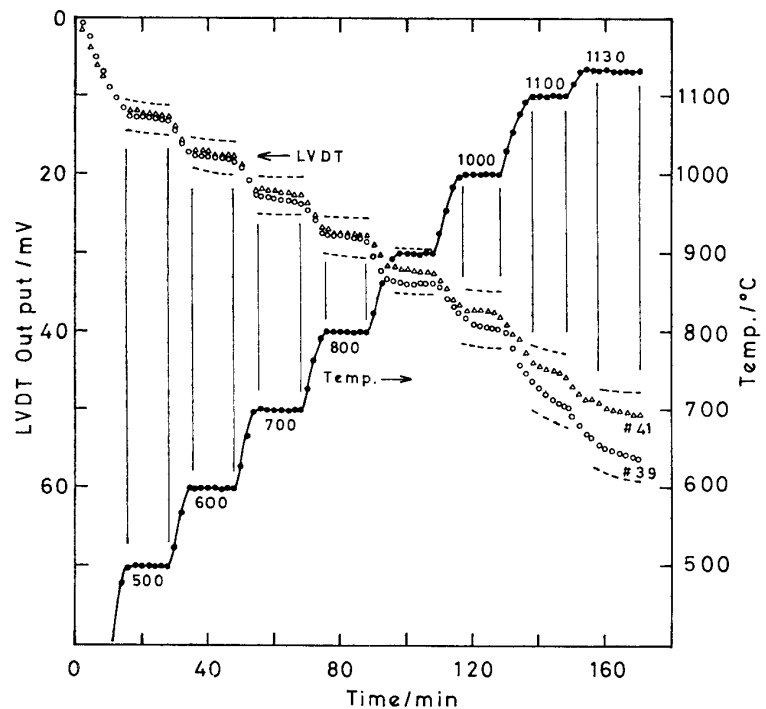


Fig.6 Expansion of mullite disc.

\* 図中の #39, #41 は同一条件で独立に測定した結果を示している。また図中の点線は規準とした SiO<sub>2</sub> 試料の高さ H を (2) 式の適用条件で示される範囲で変化させたときに得られた結果のバラツキの範囲を示す。

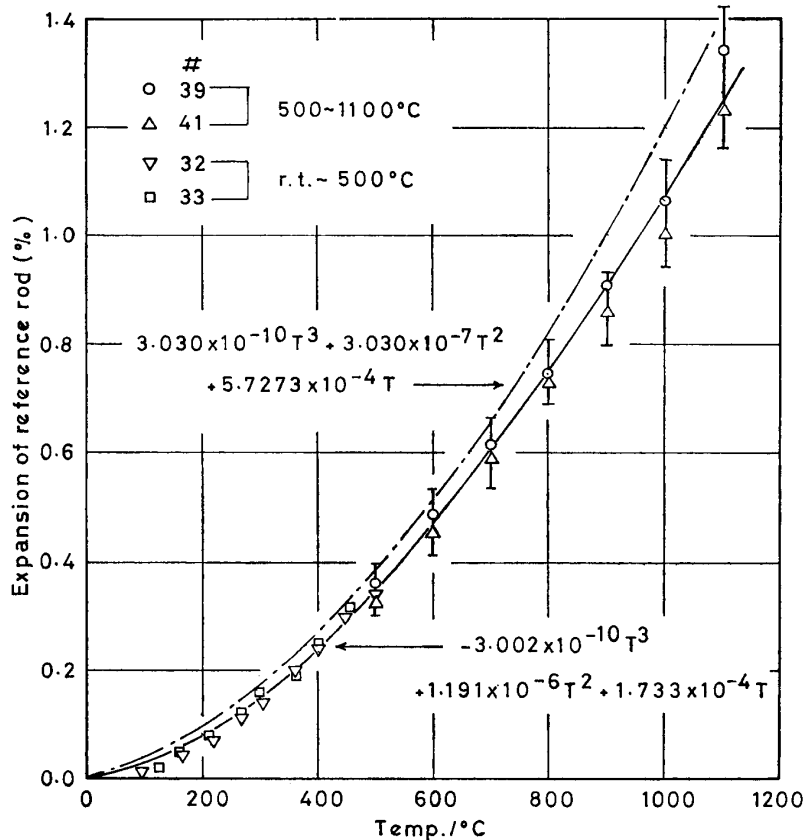


Fig.7 Apparent expansivity of mullite.

達するまでの待ち時間の間にも試料が変形するため1ヒートで測定できる粘度範囲が狭められる欠点を持っている。後者は粘度の温度依存性に不確かさを持ち込むものの、1ヒートでの測定粘度範囲は広くとれる。このようにそれぞれの測定法には得失があり、測定目的によって使い分ける必要がある。本報では、粘度の標準試料としてNBS-711を用い、装置の特性を調べる目的も含め静的法、動的法の双方で粘度測定を試みた。

### 3. 実験結果および考察

#### 3-1 NBS-711の粘度

鉛シリケート系の粘度標準ガラスNBS-711はTable 1のような粘度値をもつと発表されている\*。同表中にソーダライム

シリカ系710およびボロシリケート系717の粘度標準値も参考のために併記した。これらの値は回転粘度計, fiber elongation, beam bending および平行板粘度計などによる測定値を統計的に処理して得たものである。NBS-711の粘度を試作平行板粘度計を用いて測定した結果をFig. 8, Fig. 9に示した。Fig. 8は静的測定法, Fig. 9は動的測定法によって得られた結果である。いずれも3回の独立した測定結果に基づいて粘度-温度曲線を引いてある。図中の鎖線はNBS-711の標準値を示し、静的法の測定結果は標準値より低目、動的法ではFig. 9のように標準値より高目の値を示すが、いずれの場合も高温となって粘度が低下すると標準値と一致する傾向を示している。Fig. 8, とくにFig. 9において顕著にみられるように、低温域において測定値の低粘度側への偏倚がある。これは試料端面の非平行性に由来している。円柱状試料を作製する際、試料の上下端面を完全に平行に仕上げることは困難で、直径6.35mmの円柱試料で0.02mm程度

Table 1 Viscosity of NBS Standard Reference Materials.  
(Temperature, °C at Viscosity, poises)

SRM	10 <sup>2</sup>	10 <sup>3</sup>	10 <sup>4</sup>	10 <sup>5</sup>	10 <sup>6</sup>	10 <sup>7</sup>	10 <sup>8</sup>	10 <sup>9</sup>	10 <sup>10</sup>	10 <sup>11</sup>	10 <sup>12</sup>	Soft. Pt.
710	1434.3	1181.7	1019.0	905.3	821.5	757.1	706.1	664.7	630.4	601.5	576.9	724
711	1327.1	1072.8	909.0	794.7	710.4	645.6	594.3	552.7	518.2	489.2	464.5	602
717	1545.1	1248.8	1059.4	927.9	831.2	757.1	698.6	651.1	611.9	579.0	550.9	720

\* NBS Standard Reference Materials, Glass for Science and Industry Catalogue (1980), U. S. Dept. of Commerce.

の傾斜は避け難かった。このように傾斜した端面をもつ試料が荷重下で加熱されて流動変形を起こすとき、最初は局部的に全荷重がかかることになり試料の局所変形を生じる。試料の変形が進行して試料端面が平行板に密着すると試料全体の粘性流動が起る訳で、そこに至るまでの部分

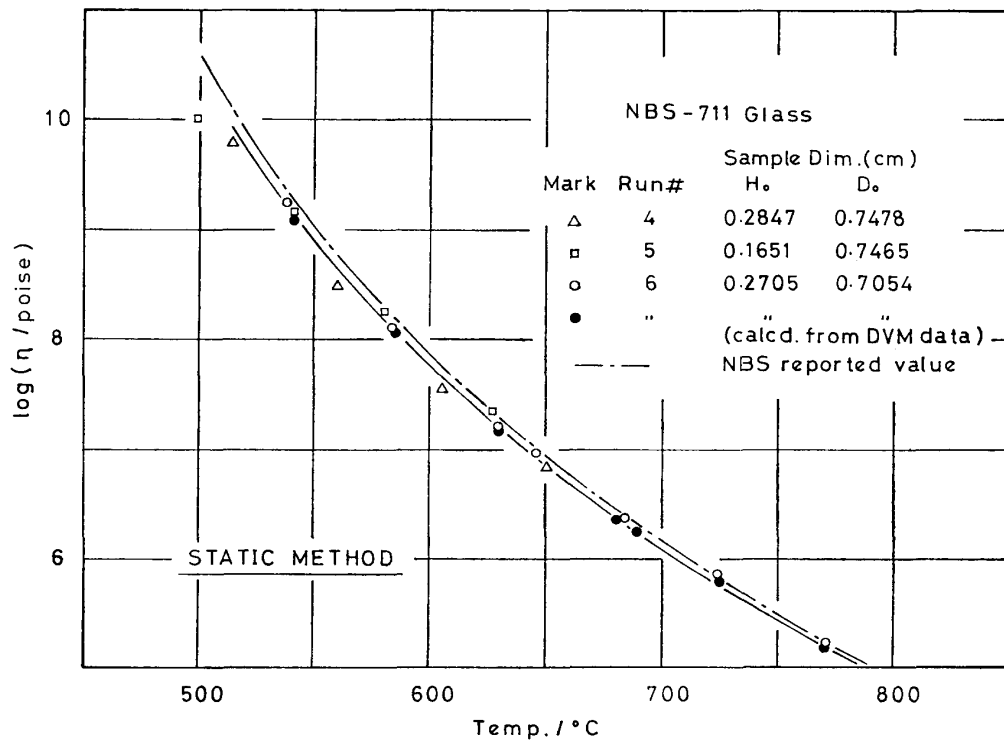


Fig.8 Viscosity of NBS-711 measured by *static* method.

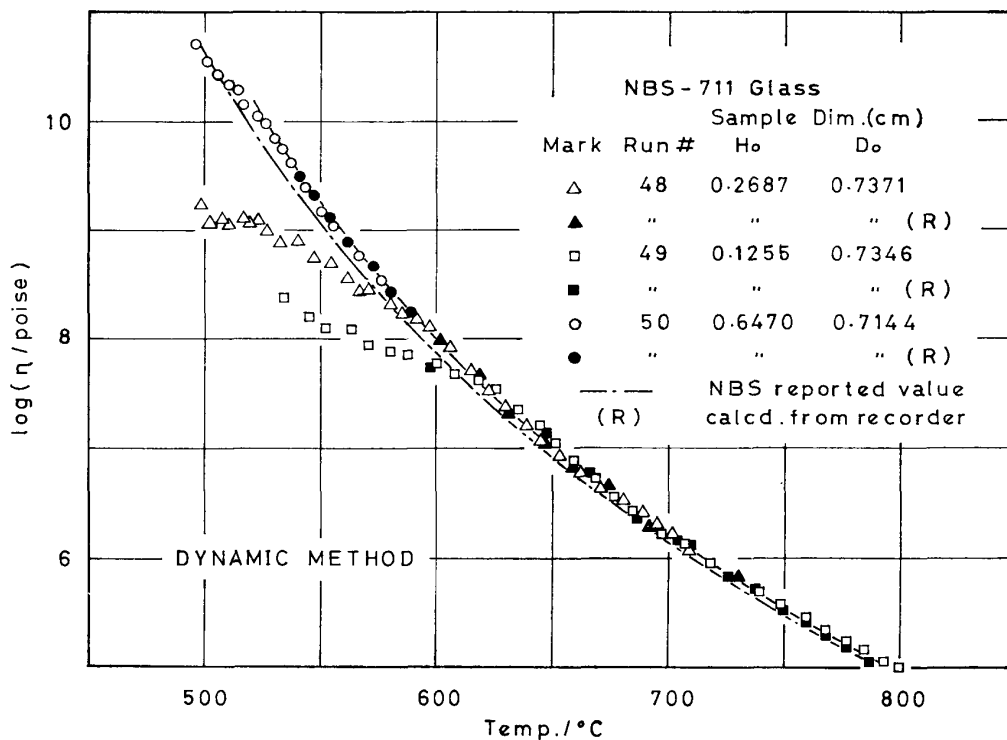


Fig.9 Viscosity of NBS-711 measured by *dynamic* method.

的変形領域では見掛け上粘度値が低くなる。この効果は動的測定ではもろに測定値に入ってくる。Fig. 8 と比較して Fig. 9 における低温域での粘度の低値への偏倚が著しいのは上述のことを反映している。なお、試料のバルク流動が起るのは、おおよそ傾斜面の平均高さ付近まで試料が変形してからであることが他の試料の測定で確かめられており、試料の変形初期に現われる見掛け粘度の異常値の棄却について指針を与えてくれる。

多くのガラスについて、その粘度の温度依存性は Fulcher の経験式に従うことが知られている。

$$\log \eta = A + B / (T - T_0)$$

NBS-711 については次の Fulcher パラメータが与えられている。

$$A = -1.622, B = 4255 \text{ (}^\circ\text{C)}, T_0 = 152.1 \text{ (}^\circ\text{C)}$$

Fig. 10 は NBS-711 に対する Fulcher パラメータを用い、横軸に Fulcher 温度をとって図示したもので、標準値に対する動的測定結果、静定測定結果の関係がよく判る。本実験の動的測定は加熱過程での測定\* であるので、試料の粘度値は高い値より真値に接近する。そこで平衡状態が実現しない限り常に測定された粘度値は真値より高い。一方、静的測定では所定温度に保持されて平衡に達している筈で、原理的には真値を示さなければならない。Fig. 10 に見られる標準値と静的測定値との差は、見掛け上粘度低下をもたらすような要因が働いている可能性を示唆している。測定後の試料ならびに測定途中の試料についてその形状をみると、試料の変形過程では完

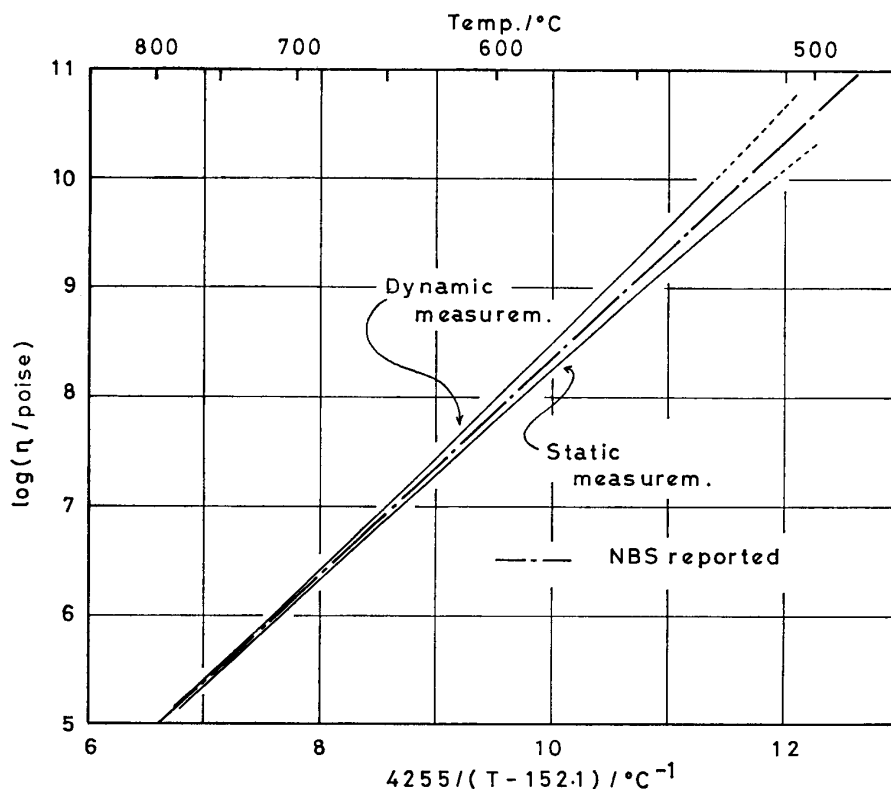


Fig. 10 Comparison of viscosity values measured by *static* and *dynamic* methods on the Fulcher scale of NBS-711.

\* 本測定の性質上、降温過程の測定は難しい。またガラス試料場合、熱履歴がその物性に大きな影響を与えるので一旦加熱したのちの降温過程では試料の状態はヴァージン試料の昇温過程の状態とは異なるものと考えなければならない。



全な円柱状を保たず、多かれ少なかれビヤ樽形に高さ方向の中央が膨らんだ変形挙動を示していた。(1)式では円柱状の試料形状を仮定しており、現実の変形過程の試料形状はこの条件を満たしていない。このことは(1)式において形状因子の補正を必要とすることを示しているが、現実的にもっと重要なことは、全変形量が同一でも円柱状の変形で期待されるよりも大きな  $dH/dt$  の値がビヤ樽形変形によって持ち込まれていることで、粘度を低目に見積ってしまう主因をなしていると考えられる。なお、試料の直径対高さの比が大きくなれば同一荷重に対してこの効果は減少するから、Fig.10のように測定の終りに近く試料の変形量が大きくなった低粘度域では、標準値に近づく傾向を示すのは当然である。

### 3-2 測定誤差について

試作した粘度計による測定誤差として (i) M.C. の分解能に基づく LVDT 出力、熱電対起電力の読み取り誤差、本測定法に付随する誤差として (ii) 試料の熱膨張による誤差、(iii) 試料形状に由来する誤差が挙げられる。このうち (iii) については定性的ではあるがすでに論じたので、ここでは (i)、(ii) について考察する。

本装置で最も分解能の低いものは Fig.3 のブロックダイアグラムにある A/D 変換で 12bit である。用いた M.C. の最大入力 が 1000mV であるため本 M.C. 測定の分解能は電圧で 0.244 mV、LVDT コアの変位量として約  $0.4 \mu\text{m}$  である。測温についても同様であるが、熱電対起電力と温度の関係は直線的でないから温度域によって測温精度が異なる。大雑把にいて 800°C 付近で 1.0°C、1100°C では 0.9°C 程度の分解能に相当する。すでに述べたように、試料の周りの温度分布には 2°C 程度の巾があるから測温の分解能は本装置ではこれ以上を必要としないが、LVDT に関しては分解能が不十分で、前置増幅器の利得を可変として変形量の小さい高粘度側では利得を1桁上げて感度を増し\*、一方低粘度域の測定では利得を下げて試料変形量の大きなところまで測定範囲を拡げるよう改良する必要がある。

(1)式には試料の体積  $V$  が含まれている。通常この  $V$  の値は室温における試料形状から求められている。しかし、ガラスの種類によっては軟化直前に大きな膨張を示すことがあり、室温における体積値をそのまま用いることは危険である。いま、試料の測定温度における線膨張率を  $\alpha$  とすると体積膨張による粘度の変化率は次のように表わされる。

$$\begin{aligned} \frac{\eta + \Delta \eta}{\eta} &= \frac{3V(2\pi H^3 + V)}{3(V + \Delta V)[2\pi(H + \Delta H)^3 + V + \Delta V]} \\ &\simeq \frac{3V(2\pi H^3 + V)}{3V(2\pi H^3 + V)(1 + 3\alpha T)^2} \\ &= 1/(1 + 6\alpha T) \end{aligned} \quad (3)$$

そこで、試料の変形が起る直前の測定値から試料の平均の線膨張率を求め、その値により(3)式から  $\eta$  値を補正することができる。もちろん軟化点以上でも試料の熱膨張が生じる訳であるが、本測定法ではその値を観測することはできない。

## 4. 結 論

平行板粘度計は  $10^6 \sim 10^{10}$  poise 域の粘度の測定に非常に使い易い。この測定で重要なポイントは形状の整った試料を作製することであり、とくに上下端面の平行性に注意を払う必要がある。試料の直径と高さの比を適当に選んだ数種の試料を用意することにより、広い粘度範囲を数

\* ノイズレベルからみて 0.02mV ( $0.04 \mu\text{m}$ ) が本装置での LVDT の測定限界である。

回の測定によってカバーすることができる。動的測定法はやや高目の測定結果を与えるが、1回の測定で比較的広い粘度範囲をカバーでき、実用上からは静的測定法より便利である。

この粘度計はガラス粘度の測定のみならず、耐火物の軟化温度の測定、ガラスの結晶化、分相など\*の高温における相変化挙動の検出にも利用できる。

本研究は Vitreous State Laboratory, The Catholic University of America において行われた。著者の1人(白石)は在外研究員として研究の機会を与えられたことに関し、文部省に感謝の意を表します。また、本研究の計算機プログラム作製にあたり協力された同学博士課程大学院学生 M. Penafiel 氏に感謝いたします。

---

\* 5th Intern. Cong. "Phys. of Non Cryst. Solids", July 1982 (Montpellier, France) 発表予定, J. Physique, Special Number に収録予定.