

氏 名（本籍）	いそ だ たい のぶ （群馬県） 磯 田 武 信
学 位 の 種 類	工 学 博 士
学 位 記 番 号	工 第 1 7 1 号
学 位 授 与 年 月 日	昭 和 4 7 年 1 0 月 4 日
学 位 授 与 の 要 件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
最 終 学 歴	昭 和 3 5 年 3 月 東 北 大 学 工 学 部 金 属 工 学 科 卒 業
学 位 論 文 題 目	分 散 系 の 流 動 パ タ ー ン に 関 す る 研 究

（主査）

論 文 審 査 委 員	教 授 梅 屋 薫 教 授 前 田 四 郎
	教 授 大 谷 茂 盛 教 授 斎 藤 正 三 郎

論 文 内 容 要 旨

第 1 章 緒 論

日常生活の種々の面や産業の広い分野にわたって多種多様の分散系液体が取扱われている。この分散系液体は非Newton流動を呈するため通常の液体に較べて解析的な取扱いが困難である。分散系液体の流動特性をレオロジー的見地から解析するには横軸に剪断応力、縦軸に剪断速度をとった、いわゆる流動曲線の形、すなわち流動パターンで示すのが最も便利であるので、本論文においても流動パターンにおける非線型流動特性より分散系液体の流動特性を検討することにした。

分散系液体の流動パターンは図1に示した6種類に分類され、従来その各々は独立であり相互

の関係は無いと考えられてきていたが、その後高分子物質の分子分散系において図1の6形式のいずれにも合致しない図2に示す如き形状の流動パターンが存在することが明らかになった。この流動パターンはOstwald流動と呼ばれ、低剪断部と高剪断部における二つのNewton流の間を一つの非Newton流が結んだ形式の流動パターンとなっている。

このOstwald流動パターンは外力による液体構造の変化によるものと考えられているが、その内容としては

- (1) 分散質粒子の配向
- (2) 分散質粒子の変形
- (3) 分散質粒子の凝集
- (4) 溶媒の不動化

等の四つの主要な機構が挙げられている。液体構造の変化が生じない剪断速度範囲と、上記4種類の内部構造変化が終わってしまう剪断速度範囲においてNewton流を呈し、剪断速度と内部構造変化が動的に平衡を保っている領域が非Newton挙動を呈する部分であると解釈されている。

上記したように液体構造の変化がOstwald流の発生原因であると考えるとき、このような剪断による液体構造の変化は、分子分散系固有の現象ではなく、固一液分散系や液一液分散系の液体構造に関しても存在し得るので、懸濁系や乳濁系においてもOstwald流動は当然推定し得られるものである。

しかし従来行われていた懸濁系乳濁系の流動挙動の検討においてはこれらの系がOstwald流を呈することを立証するに足るものは殆んど無い。これについて著者は従来の測定例においては剪断範囲が狭いため(2~4オーダー) Ostwald流動パターンの全容を観察し得なかったものであるという解釈を行なった。

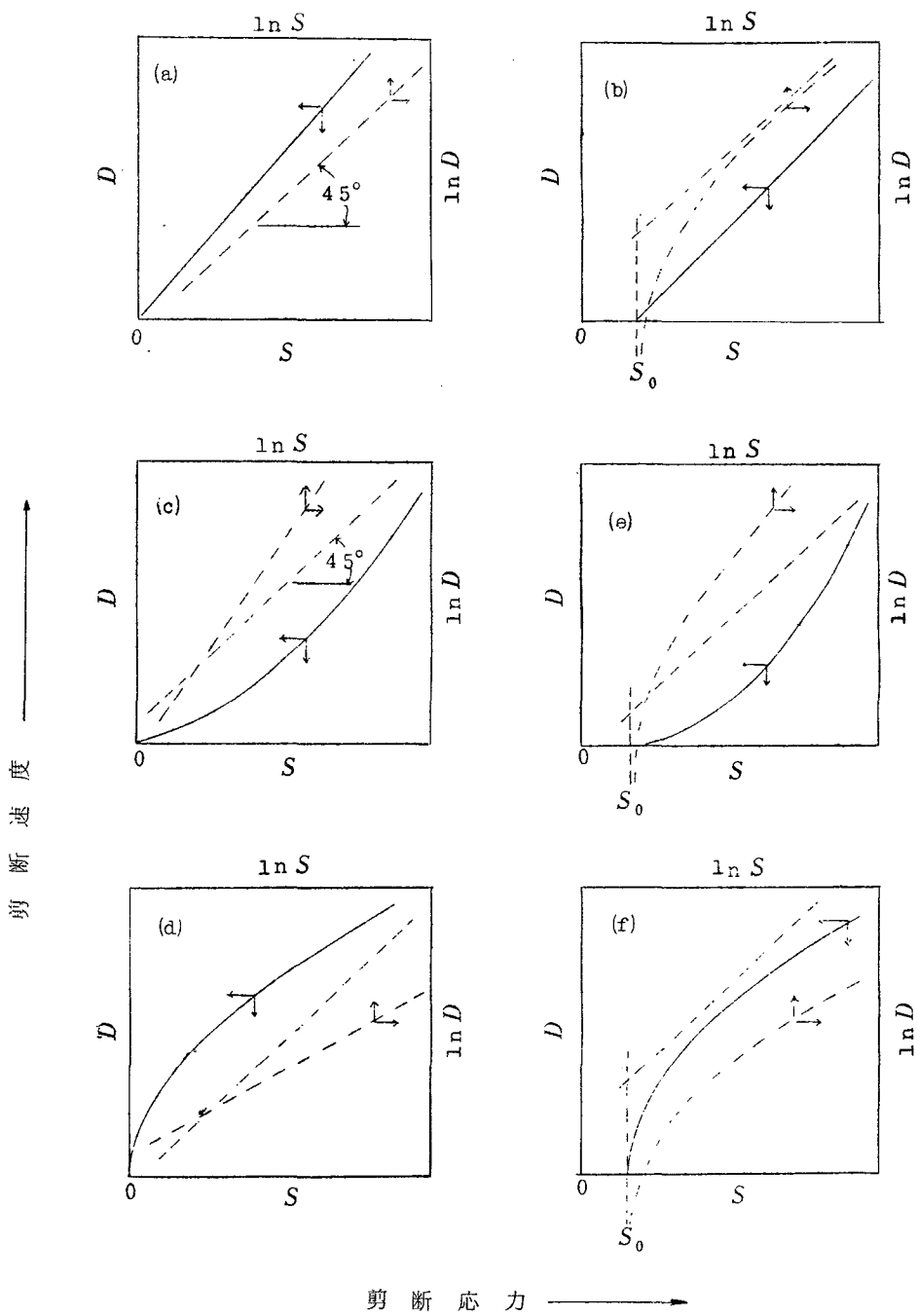


図1 流動曲線の種類

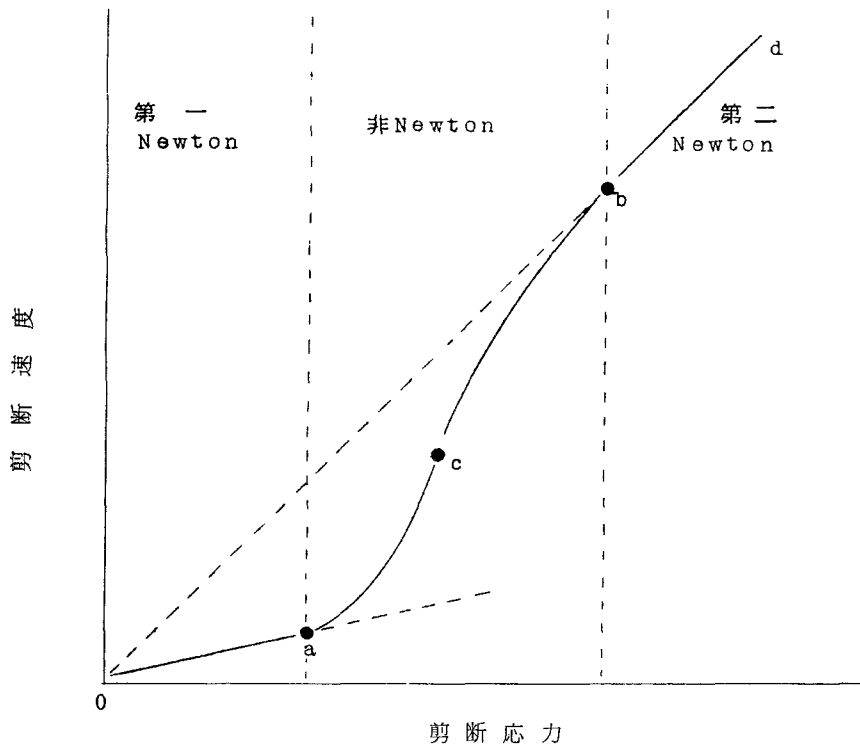


図2 Ostwald流動曲線

第2章 粘度測定用諸機器の試作とその特徴

第1章において分散系液体の流動挙動を広い剪断速度範囲において測定することの必要性を述べた。

本章では前章の推定を立証するために広範囲にわたる流動特性の測定を実現する上に必要な粘度計の種類、使用法および特徴について述べた。使用した粘度計は下記の5種である。

- 2-1 回転二重用筒型粘度計
- 2-2 液頭圧毛管粘度計
- 2-3 高圧毛管粘度計
- 2-4 液頭圧管内流動形粘度計
- 2-5 高圧管内流動形粘度計

この5種の粘度計を使用することにより $10^{-4} \sim 10^6 \text{ sec}^{-1}$ の剪断速度範囲における流動特性の測定が可能である。

第3章 Ostwald 流動曲線

分散系液体の流動パターンを第2章に記した粘度計を使用して測定した。測定範囲は主に $10^{-2} \sim 10^6 \text{ sec}^{-1}$ である。

懸濁系液体としてシリカゲル水系，粘土水系，酸化亜鉛水系および二酸化チタン水系を試料に使用した。シリカゲル水系においては低剪断部と高剪断部はNewton流動でありその間に非Newton流動が介在するOstwald流動パターンの全容が観察された。粘土水系および酸化亜鉛水系では第I Newton部は確認されなかったが，第I Newton流の存在を推定するに足る流動挙動を示した。粘土水系では非Newton部が，酸化亜鉛水系では第II Newton部が広い範囲にわたって表われた。

乳濁系のベンゼン水系，ニトロベンゼン水系および流動パラフィン水系においても分散

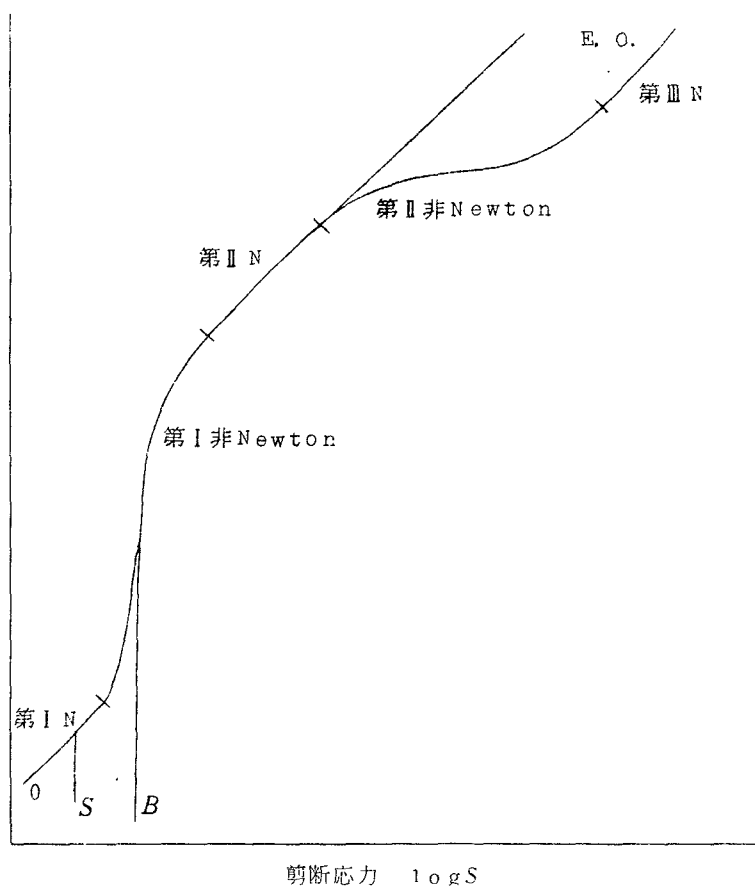


図3 拡張 Ostwald 流動の概念図

質濃度が増加するにつれて非Newton挙動が顕著になるが結局はOstwald流として包括することの出来る流動パターンを示した。

つぎに懸濁系液体の測定結果において二酸化チタン-水系は前記3種の懸濁系と挙動が異なっている。この系では流動曲線の中央部にNewton流が存在してその前後は非Newton流に変化している。さらに高剪断部の非Newton流は剪断速度の増加につれて再々度Newton流に復帰する傾向が表われている。この実験事実を説明するために図3に示す拡張Ostwald流という新しい流動パターンの存在を提唱した。

第4章 拡張Ostwald流動曲線

拡張Ostwald流を構成する第Ⅱ非Newton部は従来の区分によるdilatant流であり、このdilatant流が低剪断部でOstwald流を呈し、高剪断部で再々度Newton流(第ⅢNewton)に復帰する。また第Ⅰ非Newton部以下の低剪断部における挙動は第Ⅰ非Newton流がそのまま降伏性に移行するBingham降伏性を示す場合と第ⅠNewton流の途中から降伏性に移行する流動挙動の存在することも確めた。

つぎに拡張Ostwald流について層流域における流動特性と乱流転移との関係を検討した。その結果乱流の発生は測定装置の寸法に依存するが、Ostwald流においては装置寸法(ここでは粘度計の管径)を変えることにより乱流発生点を変えることが出来ることを観察した。しかしこの際拡張Ostwald流においては第Ⅱ非Newton部(dilatant流)からは乱流の発生しないことを明らかにした。

第5章 分散系の流動曲線の時間依存性

本章は本論文の内容の大半を占めているので各節ごとに要約した。

5-1 緒言

揺変性あるいはチキソトロピーと呼ばれている時間によって変化する流動挙動の測定には回転形式の粘度計が最も適している。回転形式の粘度計による揺変性の測定法には応力緩和法と履歴面積法があるが、この二種の測定法によって得た二つの流動パターンは一つの流動特性を異った面から観察したものであるから両者の間には当然相関々係が存在すると推定できる。

本節では応力緩和法による「トルク-時間曲線」と履歴面積法による「履歴曲線」との相関々係を考察した。その結果思考実験的に誘導した任意時間における流動曲線によって揺変性を表すことが最も一般性のある表現法であることを明らかにした。また実測した「トルク-時間曲線」から任意時間における流動曲線を導く方法およびこの曲線を介した「トルク-時間曲線」と「履歴曲線」との関連について述べた。

5-2 履歴曲線の粘弾性模型による検討

Bird-Carreauらは一般化Maxwell模型を使って揺変性を表現し、境界条件を変えることにより9種の履歴曲線を得ている。この解析は一般性を有する優れたものであるが、9種の履歴曲線の出現順序の測定条件による変化および曲線相互の関連は明らかにされていない。しかし揺変性を履歴曲線の形状によって検討する場合には測定の時間尺度や剪断速度などの測定条件の変化による履歴曲線の発生順序および形状変化を知ることは極めて重要なことである。

本節では測定条件による履歴曲線の形状変化を知るために電気回路によって非線型粘弾性模型を構成し、この模型によるシミュレーションを行ない履歴曲線の発生順序および形状変化の検討を行なった。

5-3 履歴曲線の測定

5-2の結果を確認するため低剪断速度域の測定と履歴曲線の測定に適する特殊な回転二重円筒型粘度計を開発した。この粘度計を使用して懸濁系の履歴曲線を測定し、固体粒子の濃度、粒子の形状異方性、粒子に吸着するイオン種とその濃度に支配される懸濁系液体の構造、ならびに測定的时间尺度や剪断速度等によっても履歴曲線の形状が変化することを確かめた。

さらにトルク-時間曲線の測定結果においても液体構造との関連を検討した。

5-4 揺変性に関する考察

揺変性の表現は「トルク-時間曲線」や「履歴曲線」による表現のみでは不十分であり、液体構造の「静止状態」と「動的平衡状態」の両者を測定の基準にとって誘導した任意時間における流動曲線が揺変性の全容を表わすものであることを結論した。

第6章 結 論

分散系液体の流動特性を流動パターンによって分類し、且つその非線型挙動の検討を行なった。分散系液体の流動パターンは広範囲にわたって観測すると拡張Ostwald流を呈する。また揺変性は任意時間における流動曲線なる概念を新らしく導入することによって、従来は個別的に観測されていた現象を一元的に解釈できることを解明した。

審査結果の要旨

分散系の非ニュートン流動に関する研究は従来かなり行なわれているが、それらはすべてある限られた剪断速度範囲内の流動特性に関して行なわれたものである。ところが近年化学工業の進歩に伴いかかる狭少な範囲内の流動特性のみを扱って得られた材料物性値のみでは、諸種の装置設計上不便を来たすようになったため、つとに広範囲流動特性の研究の必要性が叫ばれていた。

本論文はこのような粒子分散系の広範囲流動特性を扱ったもので6章より構成されている。第1章は緒論であり、従来の狭少な剪断速度範囲での流動曲線は結局は6種類に要約されることを示し、広範囲流動曲線はこの6種類の基本パターンの直列結合として記述できる（これはOstwald流動と呼ばれている）が、分子分散系以外の粒子分散系ではOstwald流動は未だ実証されていないことに言及している。

第2章では、粒子分散系の広範囲流動特性を実験的に検証するために、剪断速度範囲の異なる5種の粘度計を試作し、かつそれぞれの特徴につき記述している。第3章ではこれらの測定装置を駆使することにより、粒子分散系においても、広域剪断特性としてOstwald流動パターンの存在し得ることを実証することに成功を収めている。

この粒子分散系における広域流動特性測定中に、Ostwald流動パターンより低剪断側にBingham降伏に先行するSchwedoff降伏の存在を確認している。これはRehbinderらにより予言されながらも、実験的困難さのために今日まで実証を欠いていた事であり、本論文により初めて実験的根拠を得たものである。更にOstwaldパターンの高剪断部に新に第Ⅱ非ニュートン部、更にその上に第Ⅲニュートン部の存在することを見つけている。

著者はこの低剪断域ならびに高剪断域での新しい事実を盛りこみ、これを拡張Ostwald流と命名し、第4章の内容としている。

第5章は平衡流動曲線に達するまでに経過時間を要する系（チクソトロピー系として要約されている）について、時間効果記述上の学問的基礎について言及している。また電気回路モデルによるシミュレーションにより、流動パターンに表われる履歴曲線の発生順序の解明に成功を収めている。更に特殊回転二重円筒型粘度計を新設計することにより、シミュレーションモデル解析から得られた結果の直接的実証を行なっている。その結果従来不明とされていたチクソトロピー軟硬化さらにはレオペキシー硬化現象等につきレオロジーの意味づけを可能にしている。第6章は結論である。

以上要するに本論文は、流動曲線を広範囲に求めることにより、また時間効果を精密に測定することにより、粒子分散系の流動物性を明らかにし、装置設計に寄与する諸種材料物性値を明らかにした点、材料工学、化学工学に寄与するところ極めて大である。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。