

# 高感度共軸二重円筒形回転粘度計の開発と性能評価

菜嶋 健司\*

(平成16年2月5日受理)

## Development and Evaluation of New Sensitive Coaxial-cylinder Rotational Viscometer

Takeshi NASHIMA

### Abstract

A coaxial-cylinder rotational viscometer of the outer cylinder rotation type which is suitable for a precise measurement in regard to the geometry was developed, and the performance was tested. The viscometer introduced an original structure and a torque measurement method, which produces excellent sensitivity and easy handling. As to the structure of the viscometer, a collet chuck system which grasps the outer cylinder surface, that can tolerate slight error of the diameter, brings about an important advantage that the transparent glass outer cylinders are usable. About the torque measurement system, the principle that the torque generated by the coil is precisely proportional to the current value was utilized, so that the very wide dynamic range was attained.

It was demonstrated that the new viscometer is applicable to such as the creep measurement besides the measurements under the steady rotation. The torque sensitivity of the viscometer was  $1.5 \times 10^{-8}$  Nm. The expanded uncertainty were 0.31% for the most small uncertainty case that the inner and outer cylinders do not change their relative position and 2.5% when it is necessary to ensure the traceability to the viscosity standard. It was manifested that the viscometer presents relatively sensitive and fairly precise measurements.

### 1. 序

共軸二重円筒回転粘度計は、回転軸を共有する二円筒の間に測定試料を入れ、片方の円筒を回転させた時、トルク応力と回転速度の関係から粘度を求める測定法である。ずり速度がほぼ一定で測定できる方法で、粘度のずり速度依存性を求めることができる。共軸二重円筒回転粘度計には外筒回転型(Couette型)と内筒回転型(Searle型)があるが、テイラー渦<sup>1)</sup>が発生しないという点に於いて、外筒回転形が優れている。

粘度( $\eta$ )は、ずり応力( $\sigma$ )/ずり速度(D)で求められるが、回転粘度計では、回転(回転の角速度 $\omega$ )によってずり速度が、トルク応力( $\tau$ )によってずり応力が求められる。即ち、装置の形状によって定まる係数C(装置定数)により次のように書くことができる。

$$\eta = \sigma/D = C\tau/\omega \quad \dots\dots\dots(1)$$

尚、共軸二重円筒回転粘度計では、ずり応力及びずり速度

は、内外筒の間で一定ではなく回転軸からの半径 $r$ の関数である。 $r$ の位置におけるずり応力、ずり速度は、次の式から求められる。

$$\sigma = \tau / (2\pi h_e r^2) \quad \dots\dots\dots(2)$$

$$D = 2\omega / r^2 \times 1 / ((1/r_1^2) - (1/r_0^2)) \quad \dots\dots\dots(3)$$

ここで、 $\pi$ は円周率、 $h_e$ は有効内筒長さ、 $r_1$ 、 $r_0$ はそれぞれ内筒及び外筒の半径である。

ずり速度依存性が測定できる粘度計には、同じく、トルク応力と回転速度の関係から粘度を求める測定法である円錐-平板型の回転粘度計もあるが<sup>2)</sup>、共軸二重円筒回転粘度計は外筒が円筒容器となるため流動性の高い(粘度が低い)試料の測定に都合がよい。また、試料の量の影響が比較的少ないため、揮発性の物質の測定にも有利である。共軸二重円筒回転粘度計は低粘度物質の粘度を簡便に測定するのに向いている粘度計であるといえる。しかし、本研究を開始した時点では、トルクの分解能もさほど高くはなく、また、あまり簡便に測定できるとはいえない装置しか存在しなかった。そこで、これらを満たすべく、外筒回転形の共軸二重円筒回転粘度計の開発を行った。トルク感度の向上のためには磁場中の電流が受ける作用を利用し、外筒の着脱が容易となるよう外筒の保

\*計測標準研究部門 物性統計科

持方法を工夫した<sup>3)</sup>。開発した回転粘度計の概要については論文の一部として既に報告しているが<sup>4)</sup>、ここではその詳細と性能、及び不確かさ評価について述べる。

## 2. ハードウェア

### 2.1 装置の構成

本装置は、トルク測定部と回転機構を1つのベース台の上に乗せ、双方とも試料を入れる二重円筒部の上部に配置する新しい構成の粘度計とした。これにより、試料のセットが容易になることに加え、測定部が固定台に乗ることで微小なトルク測定に有利になると考えられる。

トルク測定部と回転装置を同じ側にするために、回転装置の軸を中空とし、その中に測定系の回転軸を通す構造にした。機械精度を確保するために回転軸は短い必要があるが、軸長の短い中空軸のモータは存在しなかったため、駆動モータは、軸の外側に配置し、ベルトを使った駆動方式にした。

内筒及び外筒はそれぞれ上部から支持されるが、軸心の精度が比較的容易に再現できる方法として双方ともいわゆるコレットチャックを用いることにした。内筒用には市販のものが適用できるが、外筒には適当なものが無く専用のものを製作した。コレットチャックを用いることによって、外筒は単純な円筒構造で良く、コレットの材質をナイロンとすることで割れやすいガラスの外筒を使うことが可能になった (Photo 1)。ガラスの外筒を使えることは試料が目視確認できるという点で計り知れないほど大きな利点となる。Fig. 1に装置の模式図、また、Fig. 2には使用したISO規格<sup>5)</sup>の内筒の寸法図、さらに、Fig. 3に内外筒の保持機構の詳細を示す。

内外筒の温度制御は、昇降台の上に乗せられた恒温ジャケットを用いて行う。恒温ジャケットはペルチェ素子を使用し

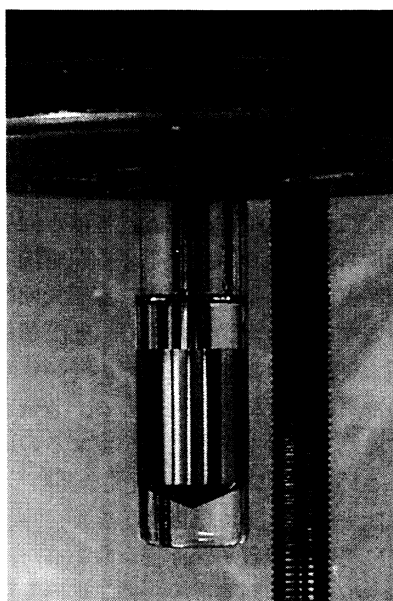


Photo 1 The inner cylinder (stainless steel) and the outer cylinder (Pyrex glass) used for the experiments.

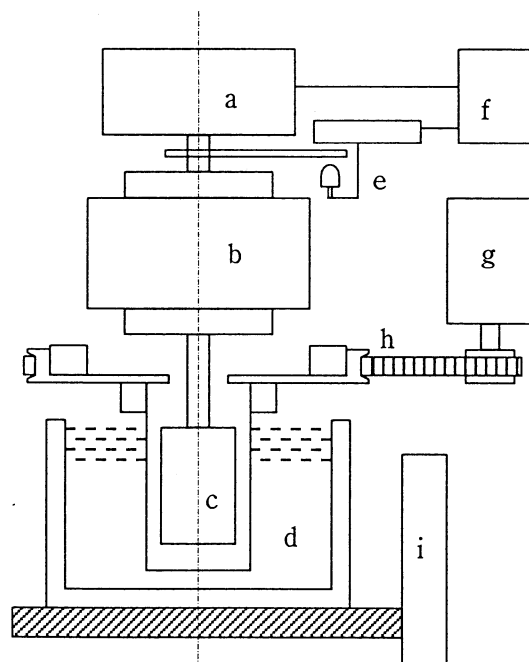


Fig. 1 Schematic diagram of the viscometer: a. torque generator, b. air bearing, c. inner and outer cylinders, d. thermostat bath, e. position sensor, f. PID feedback circuit, g. AC servo motor, h. wide aperture bearing with cogged belt, i. elevation unit.

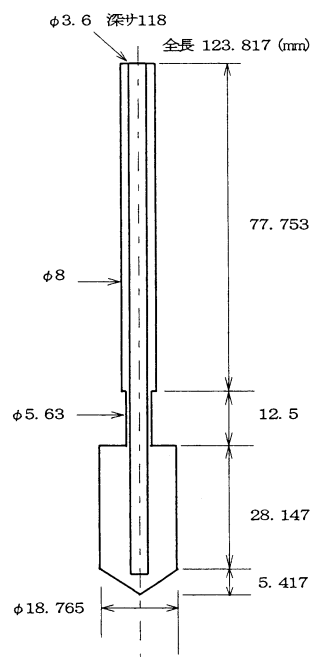
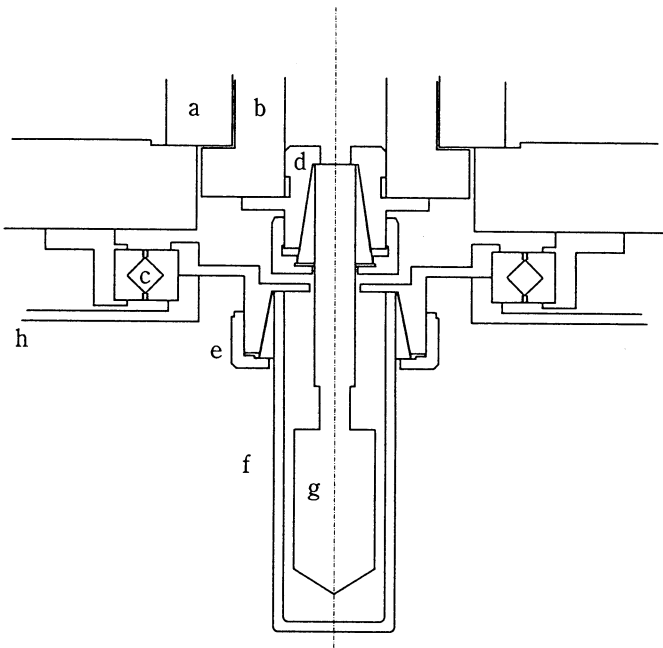


Fig. 2 ISO Standard inner cylinder used for the measurements<sup>4)</sup>, the dimensions of which are determined after the ISO Standard by referring to the inside radius of the outer cylinder  $R_o$  ( $r_o = 10.177$ ): radius of inner cylinder ( $r_i$ ) =  $R_o / 1.0847 = 9.3823$ , radius of the shaft ( $r_s$ ) =  $0.3$   $r_i = 2.8147$ , cylinder length ( $L$ ) =  $3 r_i = 28.147$ , height of the cone-shape bottom ( $L_c$ ) =  $\tan(30) r_i = 5.417$ .



**Fig. 3** Chucking of inner cylinder and outer cylinder.  
 a: air bearing-rotor, b: air bearing-stator, c: cross roller bearing, d, e: chucking units for inner cylinder, and for outer cylinder, f, g: outer and inner cylinders, h: driving wheel.

た循環恒温装置につなが制御する構成になっている。循環恒温装置は、熱媒体に水を使う 0～70°Cの範囲で温度調節が可能である。

装置は温度制御以外は全てコンピュータコントロールされる。

### 2.2 回転機構

外筒の回転軸は大口径のクロスローラーベアリング (THK) を用いて確保し、その中に内筒軸を通すことが出来るようになっている。モータからの動力は歯付きのベルトを用いて5分の1に減速して外筒軸に伝えられる。モータには AC サーボモータ (オリエンタルモータ EX4100-ALZ) を用いた。このモータは1000パルス/回転のパルス列駆動であるため回転の累積誤差は発生しない。最高回転数は3000rpm である。低回転数ではパルス列駆動のため滑らかな回転は出来ないが、外筒の回転数にして、0.01～600rpm を駆動範囲とした。駆動用パルスはステッピングモータコントロールボード (コンテック PMC-1C(98)) を用いて創出した。回転機構の中心部分の詳細は Fig. 3 に示されている。

### 2.3 トルク測定機構

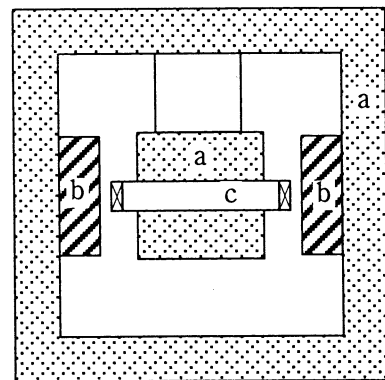
回転粘度計のトルク測定では非常に小さいトルクの測定能力が要求される。これまでの多くはストレインゲージを用いていた。しかし、ストレインゲージでは、トルクの分解能だけでなく、一つのゲージのダイナミックレンジが狭いため

測定する粘度領域に合わせてセンサーを取り替える必要があった。これを解消する方法として、ここでは、磁場中の電流が受ける力を用いる手法を開発した。

磁場中の電流は磁場及び電流のベクトルに垂直な方向に力を受ける。即ち、磁場中にコイルがあると、コイルを周回する電流によってコイルがトルクを発生するようにすることができる。この時、コイルが磁場を渡る面積を  $S$  とし、磁場を  $B$ 、電流を  $I$ 、コイルの巻き数を  $N$  とすれば、トルクの大きさは、 $NBSI$  で求められる。磁場が一様であるかコイルが動かない場合は、電流に対してトルクは非常によい比例関係になると予想される。開発した装置は、コイルをフィードバックによって動かないように制御し、内筒の応力トルクと電流によるトルクを釣り合わせ、そのときの電流値を読みとることで、応力トルクを測定するしくみになっている。

この方法は電流を測定する方法であるため、測定器のダイナミックレンジは非常に広く、フィードバックアンプのダイナミックレンジが測定可能な範囲を決めると考えられる。データは後に示すが、開発したトルクメータは、最大約0.04Nm (0.8A) で、分解能が約  $2 \times 10^{-8}$ Nm となり、センサーを取り替える必要のない装置にすることが出来た。

開発したトルクメータは Fig. 4 に示すような磁気回路の中に100巻きのセラミック系の接着剤で固めたコイルを置く構造になっている。磁石によって作られる磁場は一般的に温度によって変化し、温度が上昇するに従って磁場が低下する。そのため、本装置の磁気回路は温度係数の小さい CORMAX 磁石を用いて作り、更に整磁鋼を用いて温度補償をした。磁場の強さは約5 kGであった。フィードバック用のコイルの方位計測には遮光板によって遮られた左右の光量の差を測り、PIDアンプを通して、電流増幅しコイルを駆動し、光量の差が0になるようにフィードバック制御した。これらの電気回路は自作した。制御電流は電力用高精度抵抗 (アルファエレクトロニクス 5  $\Omega$ , 2.5ppm/°C) をシャント抵抗として電圧に変換



**Fig. 4** Magnetic circuit torque generator, a: CORMAX magnet with temperature compensation ( $30 \times 30 \times 10\text{mm}^3$ ), b: coil connected on inner cylinder axis being perpendicular to the paper at the center of the figure, c: high permeability steel.

し、デジタルボルトメータ (Solartron 7061) で測定した。また、比較的粘度で且つ応答速度が必要でない場合に、ノイズを減らす目的で、フィードバックの時定数を遅く切り替えることが出来るように設計されている。装置立ち上げ時にエアベアリングの空気が供給されていない等の理由により内筒が動かない場合、トルクメータは最大出力になり、装置に悪影響を及ぼすのを避けるため、電源投入時に自動的にフィードバックアンプ出力を切る回路を設けた。

微小なトルクを測定するため、内筒の軸受けにはエアベアリング (NSK GBS70) を使用している。エアベアリングは空気を流しているため、空気の流れによる若干のトルクが発生する。その他、装置の傾き、地磁気などの外部磁場によってもトルクが発生する。これがドリフト、感度低下の原因になる他、トルクのゼロ点を定めることを困難にする。ゼロ点の決め方は、別に述べる。

## 2.4 恒温槽と温度測定

恒温槽はジャケット方式で、循環式恒温槽によって温調された水をジャケットに循環させることによって内外筒の温度制御を行う。循環式恒温槽 (ヤマト CTR42WS) はペルチェ素子を用いた熱交換ユニットを持った装置で、 $0.1^{\circ}\text{C}$  単位で温度を設定できる。昇降台は、昇降用のステッピングモータを用いて昇降させる。この時使用するコントローラは AC サーボモータ用のパルスが発生させるのと同じボードで、パルスの出力先を切り替えて用いる仕様とした。これにより、不意なジャケットの昇降やモータの回転を防止している。

温度の測定には、4 線式の工業用白金抵抗体 (Netsusin,  $100\Omega$ ) を用い、内筒内部と、恒温ジャケット内の外筒外側近傍で温度を測定するようにした。抵抗測定には、デジタルボルトメータ (Solartron 7061) を用いた。測温用の白金抵抗体の校正は、より正確と考えられる水晶共振式の温度計を用いて  $R_0$ ,  $R_{100}/R_0$  の値付けを行った。温度  $0^{\circ}\text{C}$ ,  $100^{\circ}\text{C}$  で直接測定を行ったのではなく、室温付近の温度の抵抗値の関係から、最適値を割り出す手法を取った。測定抵抗値から温度を算出するためには ITS90 の計算式<sup>9)</sup>を用いた。

## 2.5 制御系

装置は、NEC, PC9801 及びその互換機のコンピュータで制御するように作られた。測定のほぼ全てがコンピュータから制御される。コンピュータで設定・制御しないのは、循環恒温槽の管理、エアベアリングの空気圧、トルクメータのフィードバック時定数の変更である。

制御系の接続は、Fig. 5 に示すようになっており、制御する項目は、モータの初期化と速度コントロール、モータのパルス駆動、昇降用モータの駆動とパルス出力先の切り替え、タイマーボードの制御、及び、計測機器等の GPIB 制御である。入力としては、昇降台のリミット入力、AC サーボモータのエンコーダ入力、の他に、GPIB 機器を通して、上記記載の 2 点と室温の計 3 点、内筒の変位データ、フィードバック電

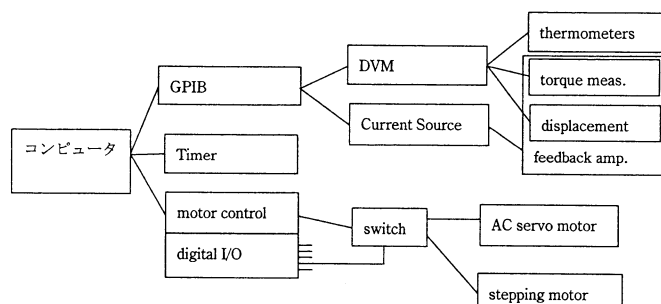


Fig. 5 Diagram of the control system

流を観測するようになってい

る。本装置はデジタルボルトメータを用いる測定のため余り高速な測定は不可能であるが、GPIB で制御されるため、プログラムが比較的分かり易く、また、高精度な計測が容易であるという利点がある。

Fig. 5 に示されているコンピュータに接続する装置、ボードの中で、この章で触れられていないものは、付加的な機能を提供するもので、以下のソフトウェアの章で取り上げる。

## 3. ソフトウェア

### 3.1 プログラム体系とデータ

制御測定プログラムは、Quick C をプログラミング言語として書かれた。実行プログラムは、MD-DOS 上で動作する。実際には、Windows95 の上の MS-DOS プログラムとして実行させている。MS-DOS の制限のため、データ領域に上限が生じ以下に示す測定モードの幾つかで制約が発生している。データ領域をダイナミックに確保することにより制限が緩和できるが現在の所対応していない。

プログラムの起動時には、GPIB 装置接続の確認を行った後、装置の校正データや内筒、外筒の寸法等各種設定を特定のファイルから読み込む仕組みになっている。その後、データを保存するファイル名を日時データから自動的に作成する。データの保存形式は、テキストファイル形式とし、表計算ソフトウェアで扱いやすい様にタブ区切りのデータとした。

プログラムは試料のセットを行う画面を基本ページとして、各種測定画面にキーボードから切り替えるようになってい

る。基本ページでは恒温ジャケットの昇降が可能であるが、外筒を駆動するモータを回転させることは出来ない。測定画面では測定固有の設定を行い、測定を開始する。測定が開始されると、測定実行中の画面に切り替わり、測定の中断等に対処できるようにした。以下では、各測定モードの機能について説明する。

### 3.2 定常流粘度

このモードは、基本的には装置の性能を確認し次に示すプログラムモードの基本要素を提供するために開発された。このモードでは、回転数を設定して駆動すること、データの取得方法を、DVM の通常積分時間か外筒が 1 周する時間積分

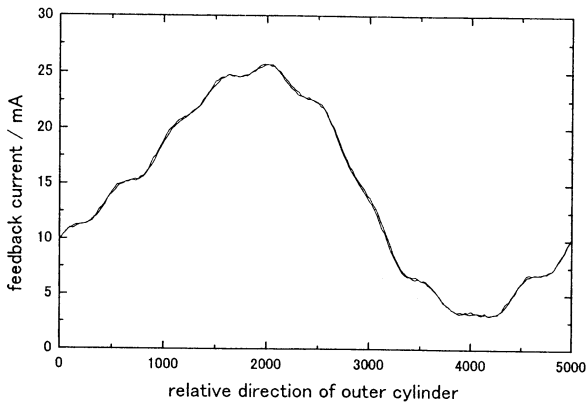


Fig. 6 Variation of the zero point torque with rotation angle of the outer cylinder

するか、及び、測定のトリガを手動か、連続か、DVM に搭載されているタイマーを用いるかの設定と、測定データの保存を行うことが出来る。ここまでの機能で、試料の粘度を求めることが可能である。

一周積分は、モータや回転系の磁気トルクメータが影響され外筒の回転角によってゼロ点トルクが変動することをキャンセルする目的で用いられる。Fig. 6 は、ゼロ点トルクが外筒の回転角度によって変動することを示したものである。このトルク変動は非常に良く再現するため、回転を一周積分してトルクを計測することにより、繰り返し再現性の良いトルク測定が可能である。尚、Fig. 6 の細かい波は一周につき10周期あることから、AC サーボモータの回転をベルトで1/5に回転数を落として使用していることを考慮すると、この影響であると推察される。

回転数の制御にはコントロールボードのパルス速度レジスタと倍率レジスタを用いているため、発生可能な回転速度は離散的になる。また、DVM の積分時間の設定も0.1秒単位であるため、発生可能な速度と設定可能な積分時間が常に合致するとは限らない。0.1秒の不一致も無視できない影響を与えるので、両者が合致する回転数をオペレータが設定した回転数近くに見出し、それを測定の回転数とするようにプログラムし、正確な一周積分がなされるようにした。

### 3.3 マクロプログラム

上に説明したところまでで、粘度測定が一応可能となるが、まだ余り使いやすいものではない。それは、オペレータが常に回転数の変更等の、粘度計の次の動作を決める操作を行う必要があるからである。通常測定では、必要な回転数は予め決められることが出来るので、測定手順のプログラムに従って順次測定されるようにするのが望ましい。そこで、本装置は、測定手順をテキストファイルにしたマクロプログラムを用いて制御できるようにされている。このマクロプログラムは、回転数の他、測定回数、トルクの測定の回転モード、トリガモード、測定の待ち時間、データの出力先の設定、及び、ネストが2重の繰り返し設定ができるプログラム仕様になっている。

トルク測定の回転モードというのは、3.2項で積分時間について述べたが、これとゼロ点決定のための逆回転をするかしないかを設定するもので、一周積分をするかしないかの他に、所定の回数測定した後、回転数を反転させて同じ回数測定してから次のプログラムステップに移るモードも提供する。精密な測定を行う場合は、多くの場合、この回転モードを使用する。

決められた手順で測定したデータは粘度の計算もプログラム出来るので、マクロプログラムモードで測定したデータは自動的に粘度の計算がされて出力される。

### 3.4 クリープ測定

この項及び次の項の内容は、上記の定常流粘度を測定するのが不向きな場合や不十分な場合に用いる手法として開発された。弾性体を試料としたとき、定常流での測定では流体構造が破壊されて値が不安定になったり、求める測定が出来なくなることが多い。この測定法は、大きくない変形の範囲で試料にずり応力を与え、その変形応答を見る方法を提供する。

本装置は、内筒の変位を見るためにフォトダイオードが使われており、その出力は範囲内ではFig. 7に示すように内筒の変位角度に比例する。これを用いて試料の変形量を測定する。応力の発生はフィードバック測定用のコイルに所定の電流を流すことによって行うことが可能である。フィードバック制御を行っているときは内筒の変位角はゼロであり、外筒が静止しており試料の応力もゼロと出来るならば、電流は外的要因によるトルクに釣り合うものである。フィードバック制御を止めた上でこの電流をオフセット電流としてこれに適切な電流を加えれば、目的の応力を試料に与えることが出来る。電流の印加には高精度直流電圧電流発生器(アドバンテス TR6150)を GPIB で制御して用いた。

Fig. 8 はこの方法で高粘度の標準液を測定したもので、こ

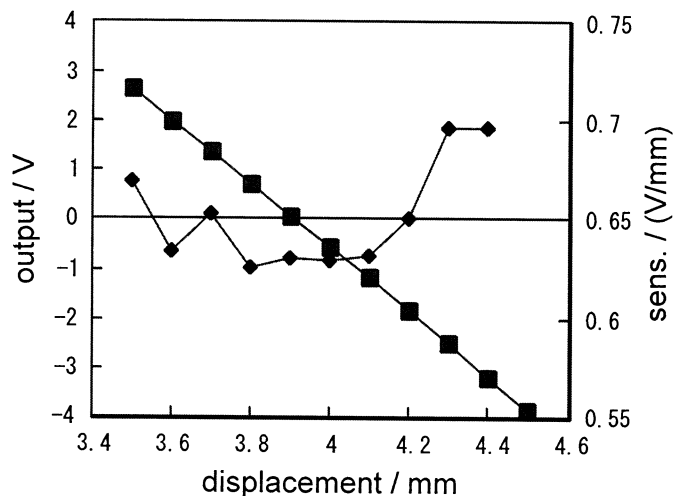


Fig. 7 Output voltage of the sensor against the displacement of the inner cylinder (calibration data of the optical sensor output; result = 6.3 V/mm).

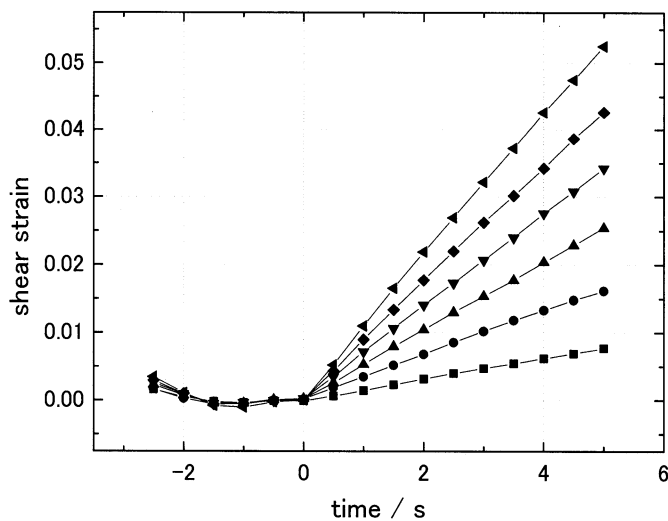


Fig. 8 Test measurement of the Standard Liquid using the creep mode: showing increase of strain amount with time under the shear stress ■ 0.192, ● 0.383, ▲ 0.575, ▼ 0.767, ◆ 0.958, ◀ 1.150 (Pa) loaded after the time zero; shear rate is obtained from the gradient of straight line to calculate viscosity values.

Table 1 Results of viscosity measurement by the creep-mode. sample: JS200H (Standard Liquid for Calibrating Viscometers), temperature: room temperature=21.7°C (viscosity of JS200H=110Pa s)

shear rate	shear stress (Pa)	viscosity (Pa s)
0.00157	0.192	121.8
0.00324	0.383	118.4
0.00503	0.575	114.2
0.00680	0.767	112.7
0.00850	0.958	112.7
0.01051	1.150	109.4

の方法で粘度が正しく測定されることを示したものである。実験は、数点のずり応力で測定を開始し、内筒の変位の時間変化からずり速度を求めたもので、結果は Table 1 に示した。

### 3.5 その他の測定手法

試料が弾性体であれば、与えられたある一定の変形量に対し、弾性係数で定まる一定応力を示す。粘弾性体の場合は、時間的に応力が減少する応力緩和が起こる。本装置は、この応力緩和曲線を解析することによって、粘弾性体の性質を調べることが可能である。前項の応力を与えて試料の変形を測定するクリープモードの測定とは対称的な関係にある。

また、本装置には回転数を連続的に昇降させて流動曲線を求める、いわゆるチクソトローピー測定を行う手段も実装した。これは、モータの速度をタイマーボードによる割り込み制御によって細かく設定してゆき、滑らかな回転数変化を実現したものである。

これらの測定手法は性能評価の対象とはしないので紹介のみに留める。

## 4. 性能と不確かさ評価

### 4.1 粘度の計算方法

本粘度計に於いては、トルクに比例する電流 ( $i$ )、パルス速度によって決まる回転数 ( $n$ ) が測定量である。これと使用した内外筒の幾何寸法によって定まる係数から粘度 ( $\eta$ ) を求める。幾何寸法は、内外筒の半径及び内筒の長さであるが、内筒の両端面が受ける応力トルク<sup>7)</sup>も測定されるトルクに含まれているので、その大きさを内筒長さの補正量として加算する。すると、ずり速度 ( $D$ ) は、

$$D = (\pi r^2 / 15 S_d) n, \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで内筒及び外筒の半径  $r_i$ ,  $r_o$ , 端面補正後の内筒長さ  $h_e$  とし、

$$r = (r_i \cdot r_o)^{1/2}, \quad S_d = (r_o^2 - r_i^2) \quad \dots\dots\dots (5)$$

とおく。式の係数を  $f_d = \pi r^2 / 15 S_d$  とおけば、 $f_d$  は幾何学的に定まる量で、

$$D = f_d n \quad \dots\dots\dots (6)$$

となる。一方、トルク ( $\tau$ ) は、

$$\tau = 4\pi^2 h_e \eta r^4 n / 30 S_d \quad \dots\dots\dots (7)$$

$$= 2\pi h_e \eta r^2 n \cdot f_d \quad \dots\dots\dots (8)$$

と表すことが出来る。トルクは電流  $i$  に比例するので係数を  $f_i$  とし、 $\tau = f_i i$  と書くと、 $F = \text{電流} / \text{回転数} / \text{粘度}$ 、で与えられるキャリブレーションの実測値として、

$$f_i = 2\pi h_e r^2 \cdot f_d / F \quad \dots\dots\dots (9)$$

が得られる。この  $f_i$  が内外筒の幾何寸法によらない装置定数である。そして、ずり応力  $\sigma$  は、 $\sigma = \tau / 2\pi h_e r^2$  であるから電流-ずり応力変換係数  $f_s$  として、

$$f_s = f_i / 2\pi h_e r^2 \quad \dots\dots\dots (10)$$

が得られる。よって、 $i/n$  を測定値とする粘度の計算方法は次のようにまとめられる。

$$\eta = \sigma / D = f_s / f_d \cdot i / n \quad \dots\dots\dots (11)$$

### 4.2 トルク測定

#### 4.2.1 トルクのゼロ点

測定対象物質の応力トルクを求めるためにはゼロ点トルクを差し引く必要がある。ゼロ点トルクは3.2の Fig. 6 に示したように変動するので一周積分して求める必要があるため、ゼロ点トルクを回転速度をゼロにして定めることができない。そこで、本装置では、ゼロ点は、測定する回転数と同じ回転

数で逆向きに回転させた測定を直後に行うことによって求める方法（反転法）を使って求めることを基本にしている。ゼロ点は、反転前後の二つの測定値の平均値として求められる。こうすることにより、非ニュートン性（時間依存性のないもの）の測定対象でもゼロ点を正しく求められる。また、測定毎に時間的に近いデータを用いてゼロ点を取っていることとなるのでゼロ点の変動にも対処していることになる。

4.2.2 一周積分及び反転法による測定

本装置の基本となる反転法を用い、装置の測定能力を水を試料として調べた。Table 2 には、ずり速度を変えて粘度を連続測定した時の結果を示した。トルクの大きい、高ずり速度の測定ほど粘度の標準偏差が小さくなった。ずり応力に換算するとほぼ一定であることから、この標準偏差がトルク測定の感度を表していると考えられる。即ち、この表からずり応力の標準偏差の平均値は0.298mPa となるが、これからトルクセンサーの感度として、 $5.4 \times 10^{-9}$  Nm が得られる。平均値の代わりに最大の標準偏差を用いれば感度は  $8.5 \times 10^{-9}$  Nm という結果になる。

高ずり速度と低ずり速度域で粘度が大きく測定される傾向がある。この内、高ずり速度域の方は円筒端面部分での2次流れの発生によるものと考えられる<sup>8)</sup>。低ずり速度域の上昇はトルクメータの問題であると考えられ、不確かさに影響を与える量として考慮する必要がある。Table 2 に表示された粘度の値は電流-トルク変換係数( $f_t$ )を校正していないものであるため水の正しい粘度値と異なるが、測定されるべき粘度の標準値を1.06としてこれに対する偏差から、トルク測定の偏差を見積もることとする。ずり速度が9.62以下のデータを元に平均を取ると、トルクの偏差は、 $1.0 \times 10^{-8}$  Nm となる。これは、トルクの感度より大きな値である。別のデータセットを用い、グラフ上で低ずり速度で粘度が一定になるように補正する方法で求めた結果では、約  $1.5 \times 10^{-8}$  Nm になった。このオフセットが発生する原因は、現在の所不明である。このオフセットとして現れる  $1.5 \times 10^{-8}$  Nm が本装置の感度とするのが妥当であろう。

4.2.3 ゼロ点トルクの安定性

トルクメータが測定するトルクは上に述べたように、試料の応力トルク以外の環境要因のトルクも含まれている。従って、環境要因のトルクの安定性は非常に重要である。本回転粘度計では上記のように、反転法でその都度ゼロ点を求めているが、反転するまでの間の変動は不確かさの原因となる。そこで、長時間の測定を行ったデータを元に、ゼロ点トルクの変動を調べてみた。

Fig. 9 に示したのは、JS100を試料として室温をコントロールしないで連続測定し、室温とゼロ点トルク（オフセット電流）の関係をプロットした結果である。決して小さくないゼロ点の変化が有ることが分かる。ゼロ点が室温の影響を受ける原因として、エアベアリングの空気温度が変動する等いく

Table 2 Average values and standard deviations of repeated measurement.

repeat number: 15, sample: water, measurement routine of shear rate: starting from 1.71 (1/s), increasing with every two lines of the table up to the highest value, and decreasing with the rest in the order; repeating this routine continuously.

shear rate 1/s	viscosity (mean) mPa s	std. dev. ←	S.D. As shear stress
			mPa
1.71	1.417	0.277	0.475
2.284	0.998	0.170	0.388
3.042	1.355	0.113	0.344
4.051	1.153	0.0499	0.202
5.42	1.244	0.0468	0.254
7.193	1.111	0.0371	0.267
9.62	1.149	0.0341	0.328
12.827	1.065	0.0130	0.167
17.102	1.078	0.0167	0.285
22.636	1.057	0.0158	0.358
30.784	1.058	0.0152	0.466
40.506	1.059	0.00515	0.209
54.972	1.068	0.00507	0.279
72.151	1.076	0.00378	0.273
96.202	1.088	0.00334	0.322
128.269	1.105	0.00169	0.217
171.025	1.124	0.00178	0.304
228.033	1.147	0.00115	0.262
307.845	1.173	0.00088	0.272

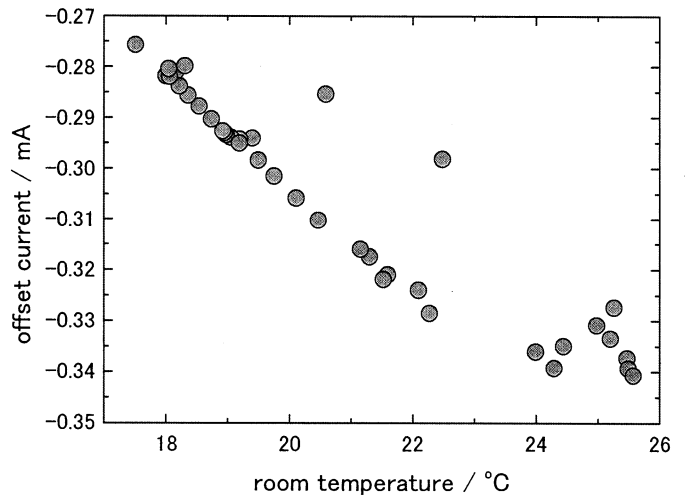


Fig. 9 Relation between the offset current and room temperature; the points plotted at 20.6°C and 22.5°C with discrepancy were measured when room temperature was going up, while many other points were measured when the room temperature was going slowly down.

つか考えられるが、検証は行っていない。測定された多くの点は、図中で右下がりの直線上に乗っているが、2点だけ目立ってこれらと離れた測定点がある。これは重要であり、詳しく調べると、上端、下端の温度範囲を除けば、この2点だけ室温が上昇している時に測定されたものであった。これに

より、この2点の挙動は室温の変化に対する応答遅れとして解釈することが可能である。

ゼロ点トルクは室温に依存するが、応答遅れがあるため、室温を測定して補正する方法を採ることができない。従って、測定毎に時間を空けずにゼロ点の測定を行う上記の反転法が最善であると結論することができる。

### 4.3 試料温度

試料の粘度は温度によって変化するため、試料の温度を求めることが必要である。試料には温度分布があると考えられるので、試料の温度を直接測定することは余り重要ではない。ここでは、測定した内筒の温度と恒温槽の温度から試料の平均温度を推算する方法を示す。

試料の温度は試料内部からの発熱<sup>9)</sup>を無視できる場合、内筒の温度と恒温槽の温度の間にあるとすることができる。そして、試料の温度は測定される粘度に反映するので、温度係数の大きい試料を用いると、逆に、粘度から試料の温度を求めることが可能である。即ち、内筒の温度が恒温槽の温度から離れたときの粘度を測定することによって、試料の平均温度を粘度から推量し、内筒の温度と、恒温槽の温度の試料温度に対する寄与率を算出する。実際は、装置が校正されていないため、粘度-温度関係の変化率を用いて算出する。Fig. 10は、このようにして寄与率を求めるためのデータを示したものである。Fig. 10の試料の粘度-温度関係の傾きを $a$ 、内筒温度、及び、恒温槽温度の粘度の対する傾きを $b$ 、 $c$ とすれば内筒温度の寄与率は、 $(a-b)/(c-b)$ で求められる。Fig. 10の二つの測定値データは、最小二乗法により傾きがそれぞれ、 $-0.487$ 、 $-0.0385$ と求められ、試料の粘度-温度関係の傾きが $-0.2056$ であるので、内筒温度、恒温槽温度の試料温度に対する寄与率はそれぞれ $0.3725$ 、 $0.6275$ となった。

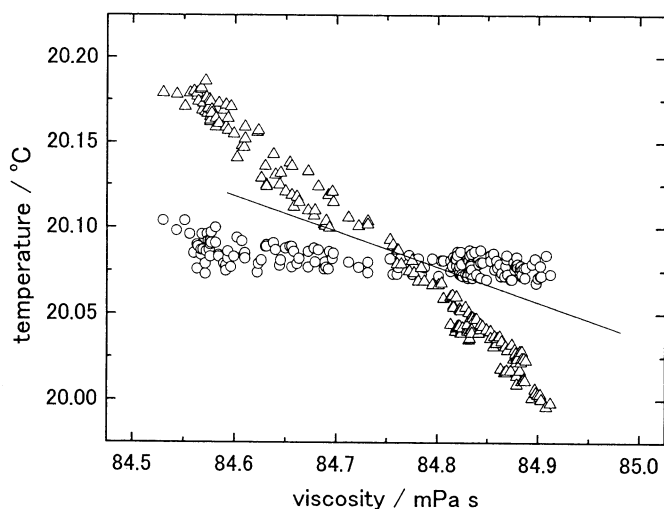


Fig. 10 Dependence of the viscosity on temperature of thermostat bath  $\circ$ , and inner cylinder  $\Delta$ , and the sample (line) obtained from the temperature-viscosity relation of the sample (JS100).

### 4.4 不確かさ評価

#### 4.4.1 幾何学的要因がない場合

幾何学的要因及び温度の影響がない場合は、測定値の不確かさはトルク及び回転数測定の不確かさのみである。トルクの不確かさには、磁場の安定性、電流測定のためのシャント抵抗の抵抗値の安定性、電圧計の安定性、及び、振動等の外部ノイズが含まれる。これらを総合した不確かさを実験的に求めた結果を以下に示す。

幾何学的要因を排除するために、全てのデータは外筒に試料を入れてセットした後は一切相対位置を動かさずに測定を行った。温度は上記で求めた内筒温度と恒温槽温度の寄与率から、試料温度を求め、粘度の値に補正を加える。繰り返し測定の標準偏差が測定を行った環境の外部ノイズを含めた不確かさを表すことになる。測定は、JS100 lot147を $20^{\circ}\text{C}$ で制御し（実測値としては平均 $20.08^{\circ}\text{C}$ ）、4つの回転数（56.3, 177.7, 100, 31.5rpm）を順次変えながら断続的に行った。Table 3はその中から、100rpm ( $128\text{s}^{-1}$ )での176点の測定値の平均と標準偏差を求めた結果を示す。前節で求めた内外筒の寄与率を用いて温度補正をすれば、幾何学的要因がない場合の不確かさが非常に小さくなることが分かった。尚、Table 3の標準偏差の値は、ずり応力の値としては $2.4\text{mPa}$ 程度でありトルク分解能より充分大きいいためトルク分解能のノイズ成分のこと

Table 3 Effect of temperature correction  
sample: JS100 lot147, measurement number: 176, shear rate: 128 1/s

粘度	温度補正無し ( $20.08^{\circ}\text{C}$ )	温度補正 ( $20^{\circ}\text{C}$ )
平均	84.75	85.15
標準偏差	0.119	0.0189
百分率 (%)	0.140	0.022

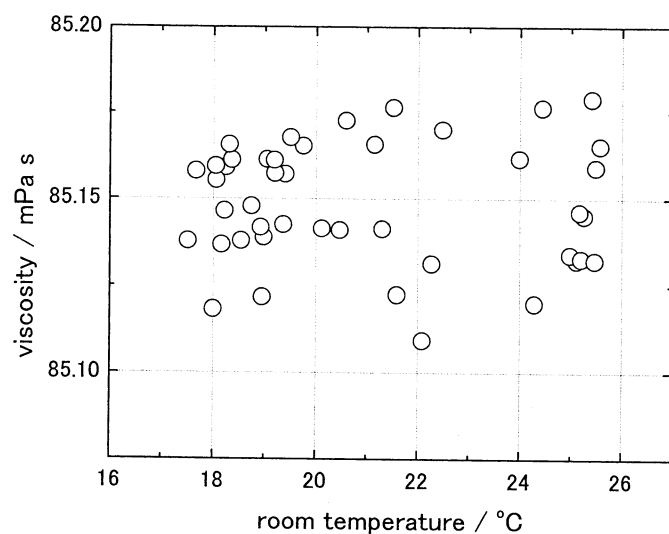


Fig. 11 Dependence of measured viscosity values of JS100 lot147 after temperature correction (Table 3) on room temperature.



を考慮する必要はない。また、Fig. 11 に示すように室温に対する依存性も見られず、磁気回路の温度依存性も小さいことが分かる。

上記のトルク測定の不確かさ要因の内、トルクの絶対値に比例しない成分は、即ち、常に存在する成分であるわけであるから、これはトルクの分解能を調べたときのノイズ成分と同じと言うことになる。トルクの真値  $\tau_0$  は観測値  $\tau_a$  に対して  $\tau_0 = \tau_a (1 \pm \delta) \pm \tau_s$  の様に表現できるが、 $\tau_s$  が上記ノイズ成分で、既に求めた分解能に相当する。しかし、ここで得られた標準偏差は、 $\tau_s$  に対して充分大きく  $\delta$  に相当する成分である。以下では、感度が影響しない程度に充分なトルクがある場合について議論を進める。即ち、測定値に対して、百分率で表される不確かさを考える。

#### 4.4.2 幾何学的要因

不確かさの幾何学的要因としては、以下の項目が考えられる。

- 1) 寸法精度：外筒、或いは内筒の直径が装置の校正を行った組み合わせと異なった時、寸法の誤差が測定誤差となる。
- 2) 軸ぶれ：内筒と外筒の軸が一致しない状態になったとき、測定値が影響を受ける。測定値は、軸が一致しているときに最も小さいと予想できる。
- 3) 試料量：試料の量が多いと測定値は若干大きくなると予想される。
- 4) 端面補正量：校正時と幾何学的に相似でない内外筒の組み合わせを使う場合は、端面補正量を正確に与える必要がある。

以上の1)～4)はそれぞれ系統誤差をもたらすものである。このタイプの誤差は評価と校正を行うことで取り除くことができる場合がある。但し、2)及び3)は試料を取り替えるたびに同じ状態が再現できないことによる確率的要素も存在することを考慮する必要がある。即ち、試料を取り替える度に外筒が外され再び内筒と組み合わされると言う作業が行われるので、この時の回転軸を一致させる再現性を確保できないため、不確かさが発生する。

そこで、外筒の脱着を繰り返したときの測定値の再現性を調べ、軸ぶれによる粘度測定値の不確かさを実験的に調べてみた。実験では、正確ではないが外筒を取り付ける向きを90度単位で変化させた。但し、外筒の締結には、上記のようにコレットと呼ばれる治具が使用されているが、この向きは必ずしも一定ではないので外筒を取り付ける向きを制御しても不確定な要因が残っていることに注意する必要がある。

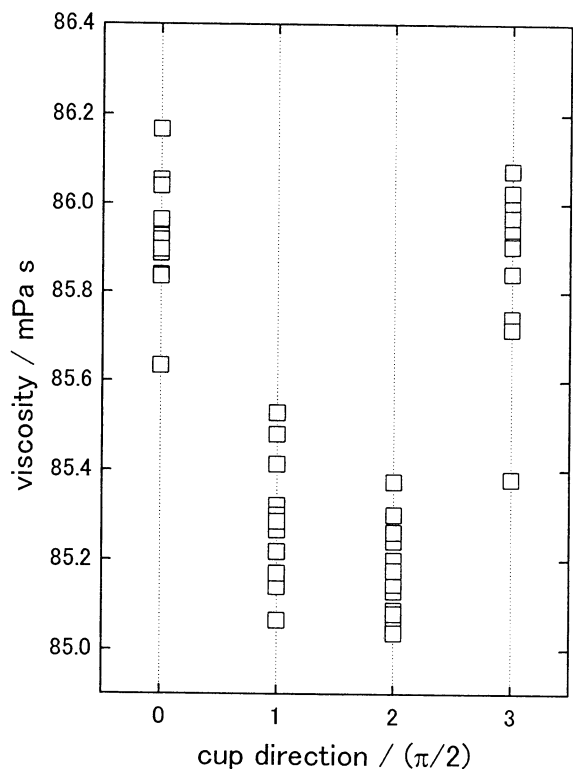
測定はJS100を試料として、4つの回転数(56.3, 177.7, 100, 31.5rpm)を順次変え、これを4回繰り返して1つの測定とした。測定が完了すると試料は入れ替えないで外筒の脱着のみを行い、その際通常は外筒の方向を90度変えた。上で述べたように、外筒の脱着を行わない繰り返し測定の再現性は良好で、4回の繰り返しで測定値の振れ幅が0.1%を超える

ことはなかった。また、4つの回転数間の差も同様に各測定では0.1%以内に収まっているため、100rpmのデータのみを示すことにするが、Fig. 12 に各方向毎の測定値をまとめてプロットした。また、Table 4 には全体を総合したデータ、及び、各方向のそれぞれについて求めた平均と標準偏差をまとめた。尚、温度の影響をなくすため、データには測定温度による補正を施してある。Fig. 12 から、明らかに外筒の取り付け方向に対する依存性があることが分かる。上に述べたように外筒の取り付け方向を決めるだけでは取り付け状態を完全には制御できていないが、取り付け状態が測定値にかなり大きな影響を与えていることは明らかである。

試料量の影響に関しては、PEG400を試料として、天秤を用いて試料の質量を測り、試料量を数点変えて粘度を測定する実験を行った。Fig. 13 にその結果を示す。Fig. 13 に引かれた線は、試料量の多い方の4点の測定点の傾きを求めたものである。尚、最も少量での測定については、液面が内筒の上

**Table 4** Error of resetting the outer cylinder: (repeatability test with resetting) sample: JS100 lot147, shear rate: 128 1/s

setting direction of outer cylinder	over all	0	90	180	270
average value of viscosity (mPas)	85.54	85.92	85.25	85.16	85.82
standard deviation (mPas)	0.37	0.12	0.14	0.09	0.22
percentage	0.43	0.14	0.16	0.10	0.26



**Fig. 12** Repeatability measurement of JS100 lot147 with resetting the outer cylinder; shear rate: 128 1/s. Outer cylinder (cup) direction is changed by 90° step.

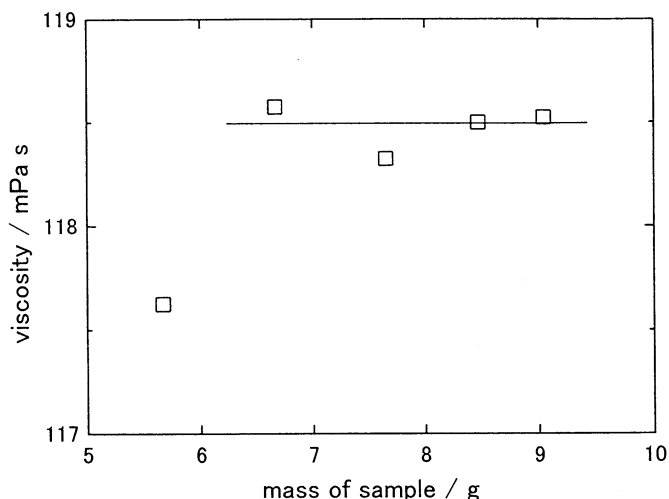


Fig. 13 Dependence on sample amount; sample: PEG400 (poly-ethylene-glycol), shear rate: 12.8 1/s.

端にはほぼ一致する程度まで下がっており、通常の測定状態とすることは出来ないためデータを除外した。直線の傾きとして得られた値は、 $-0.005 \pm 0.074 \text{ mPa s/g}$ であった。この測定は上記の外筒の着脱による誤差を含んでしまうため、正確な測定は困難である。しかし、この結果から試料量の影響は余り大きくないであろうと考えて良いことは確かである。粘度計の不確かさを評価するための試料量の影響としては、傾きの標準偏差の2倍を採用することにする。

#### 4.4.3 温度

温度の不確かさが粘度の不確かさに与える影響は、測定する試料の粘度-温度の関係によって異なるため、一概に議論することはできない。ここでは、参考として標準液について考えてみることにする。標準液のある温度  $T$  における粘度  $\eta(T)$  (mPa s)は、

$$\eta(T) = \exp(\log_{10} \exp(A \log_{10} - B \log(T))) - C \quad \dots\dots\dots (12)$$

のように整理されている。ここで、 $A, B, C$  は、パラメータである。温度が  $\Delta T$  だけ変化したときの粘度変化の割合は、 $(\eta'(T)/\eta(T)) \cdot \Delta T$  である。本報告の実験に使用した JS100 の  $A, B, C$  の概略の値は、それぞれ、9.4, 3.7, 1.6 であるが、 $\eta$  は、 $20^\circ\text{C}$  で85程度になるので、 $C$  を小さいとして無視すれば、式を簡略化できて、

$$\eta'/\eta = (\log \eta)' = \log_{10} \cdot f'(T) \quad \dots\dots\dots (13)$$

ここで、

$$f(T) = \exp(A \log(10) - B \log(T))$$

$$f'(T) = -\exp(A \log(10) - B \log(T)) B/T$$

となる。

この式は温度  $1^\circ\text{C}$  当たりの粘度の変化率であるので、これ

Table 5 Temperature coefficient of viscosity of the Standard Liquids around room temperature.

標準液	$\log_{10} \cdot f(T)$
JS50	0.051
JS100	0.058
JS200	0.062
JS500	0.071
JS1000	0.076
JS2000	0.081
JS14000	0.099
JS52000	0.101

に温度の不確かさを掛けると温度の不確かさによる粘度の不確かさが得られる。Table 5 には  $C/\eta$  が大きくなる低粘度の標準液を除き、式(13)から計算した標準液の  $20^\circ\text{C}$  での温度係数を示す。

#### 4.5 まとめ

不確かさを評価するに当たって、端面効果がレイノルズ数に依存しない、即ち、レイノルズ数が充分低いと想定する。また、試料の温度係数は個々の試料毎に異なるものであるが、上記の表の中から、JS1000を一例として取り上げ評価を行ってみた。

粘度を求める基本式は、式(11)であるが、この  $i/n$  の不確かさに相当するのが幾何学的要因がない場合として求められた標準偏差の値である。尚、回転数  $n$  の不確かさは十分に小さいと考える。幾何学的要因の内、寸法制度の問題は、式(11)を偏微分することによって見積もることができる。まず、 $r_1$  については、最終的に

$$(\partial\eta/\partial r_1)/\eta = -2r_0^2/(r_0^2 - r_1^2) r_1 \quad \dots\dots\dots (14)$$

が得られる。同様に、 $r_0$  に関しては、

$$(\partial\eta/\partial r_0)/\eta = 2r_1^2/(r_0^2 - r_1^2) r_1 \quad \dots\dots\dots (15)$$

となる。また、 $h_e$  に関しては、

$$(\partial\eta/\partial h_e)/\eta = -1/h_e \quad \dots\dots\dots (16)$$

である。内外筒の組み合わせが ISO 規格に近いとすると、端面の効果が内筒長に対して一定の比率であるとして見積もることができ、寸法精度に関する不確かさを見積もるのに、これらの3式で足りることになる。

Table 6 は、不確かさを求める表であるが、本報の粘度計の内外筒の寸法を実際に用い、各寸法の不確かさを想定して計算したものである。Table 6 の  $i/n$  と chucking に関しては、上述の実験で求めた結果を使用している。温度に関しては粘度の絶対値が必要な場合と相対値でよい場合で考え方が異なってくる。校正時のように粘度の絶対値が必要な場合は温度も絶対値が必要で、JIS に準拠すれば  $0.1^\circ\text{C}$  が妥当である。一

Table 6 Evaluation of uncertainty

source	unit	(a) error	(b) factor(%)	(a·b)	situation, (a <sup>2</sup> ·b <sup>2</sup> )			
					A	B	C	D
$r_o$	mm	0.005	111.3	0.556	0.3097			
$r_i$	mm	0.005	142.0	0.710	0.5044			
$h$	mm	0.02	2.7	0.055	0.0030			
$i/n$	%	0.022	1	0.022	0.0005	0.0005	0.0005	0.0005
chucking	%	0.43	1	0.430	0.1849	0.1849	0.1849	
sample volume	cm <sup>3</sup>	0.2	0.125	0.025	0.0006	0.0006	0.0006	
offset torque	Nm	1.5×10 <sup>-8</sup>	-	-	-	-	-	-
temperature	°C	0.1	7.6	0.760	0.5776	0.5776		
		0.02	7.6	0.152			0.0231	0.0231
total (square)					1.581	0.764	0.209	0.024
expanded uncertainty(%)					2.51	1.75	0.91	0.31

方、相対値でよい場合には、温度制御の安定性が不確かさに寄与するとすることができ、この場合、0.02°Cを採用することにした。このため、温度に関して Table 6 は 2 段になっている。

このように、不確かさの評価は、A) 装置の校正を行って、粘度の絶対値を求める場合で、内外筒の組み合わせが校正時と異なる場合、B) 装置の校正を行って、粘度の絶対値を求める場合で、内外筒の組み合わせが校正時と同一の場合、C) 試料間の相対的な粘度の比を求める場合、D) 試料の測定中の変化を求める場合によって違ってくる。後者ほど要因が少なくなり、不確かさが減少する。Table 6 には、それぞれの場合について、各要因が寄与する場合のみ数値を記入している。尚、総合した不確かさは、包含係数を 2 の拡張不確かさとして計算されている。実験で求めたもの以外の要素成分の誤差の大きさに関しては、根拠が充分にあるとは言い難いが、おおよその値として受け入れることができると考えている。

Table 6 を見ると、内外筒の寸法精度の不確かさへの寄与が大きいことが分かる。これは、正確に測定すれば縮小できる問題である。次に大きいのは、外筒の保持に関する不確かさで、この縮小には機械加工の精度向上が要求される。本装置は、こういった事柄を達成することにより、さらに高精度の測定ができるポテンシャルを持っていると言うことができる。

#### 参考文献

1) H. Kobayashi and T. Nashima: Viscosity Measure-

ment and Flow in a Coaxial Cylindrical Viscometer, *High Temperature and High Pressure* **23** (1991) 485-488.

- 2) JIS Z8803-1991: 粘度測定方法, 日本規格協会 (1997).
- 3) 菜嶋健司: 外筒回転粘度計, 特許第2090569号 (1996).
- 4) T. Nashima: Rheological Investigation of Latex Dispersions Flocculated by Depletion Effect, 計量研究所報告 **45-Suppl.** (1996).
- 5) ISO 3219: Plastics - Polymers/resins in the liquid state or as emulsions or dispersions - Determination of viscosity using a rotational viscometer with defined shear rate, (1993).
- 6) H. Preston-Thomas: The International Temperature Scale of 1990 (ITS-90), *Metrologia* **27** (1990) 3-10.
- 7) H. Kobayashi, T. Nashima, Y. Okamoto and F. Kaminaga: End effect in a coaxial cylinder viscometer, *Review of Scientific Instruments* **62-11** (1991) 2748-2750.
- 8) 菜嶋健司, 小林比呂志, 吉田清: 低粘度域での回転粘度計の端面効果, 第9回日本熱物性シンポジウム講演論文集 **9** (1988) 203-206.
- 9) 菜嶋健司, 吉田清: 共軸二重円筒型回転粘度計における流動発熱とその補正, 計量研究所報告 **35-3** (1986) 224-227.