

# 2 GPa までの潤滑油高圧粘度 簡易測定のための基礎実験

平成 19 年 度

三重大学大学院工学研究科  
博士前期課程 物理工学専攻

池 田 崇

# 2GPa までの潤滑油 高压粘度 簡易測定のための基礎実験



指導教員 中村 裕一 准教授

平成19年度

三重大学大学院工学研究科博士前期課程物理工学専攻

ナノプロセッシング研究室

池田 崇

## 目次

第 1 章	緒論	1
第 2 章	潤滑油の粘度理論および表示式	
2. 1	絶対反応速度論による粘度	3
2. 2	粘度－圧力関係式	8
第 3 章	実験装置及び実験方法	
3. 1	ダイヤモンドアンビルセル高圧装置	13
3. 2	DAC加圧装置	20
3. 3	落球法による粘度測定	21
3. 4	圧力－加圧ねじ回転角関係と圧力較正図	25
3. 5	実験条件及び高圧粘度実測値からの圧力決定法	31
3. 6	高圧粘度未知油の圧力決定法	34
第 4 章	実験結果及び考察	
4. 1	既知液体としての空加圧ねじ回転角と粘度勾配	36
4. 2	DOS, iPAを既知液体としての圧力較正図	44
4. 3	未知液体としての高圧粘度評価	45
4. 4	全試料液体を既知液体としての圧力較正図	48
第 5 章	結論	54
	謝辞	55
	参考文献	56
	付録	58
	付録 1 粘度算出プログラム	
	付録 2 WLF 式による圧力算出プログラム	
	付録 3 圧力室の様子	

付録 4 実験詳細データ例

付録 5 PAO4 の Roelands 式

## 第 1 章 緒論

潤滑油の高圧力下の粘度，密度などの物性データは歯車，転がり軸受，エンジン動弁系およびトラクションドライブなどの EHL(弾性流体潤滑)解析，転がり疲れの評価に必要な基礎データで，特に粘度-圧力特性が最も重要である．最近では自動車エンジン内のすべり軸受の熱弾性流体潤滑(TEHL)解析でも粘度-圧力特性を考慮しているものも見られる[1]．

潤滑油のレオロジー特性に対する圧力増加はほぼ温度低下と同じ効果があり，したがって油(液体)は圧力上昇とともに粘度が増大し，いずれ固化(ガラス化)する．EHL，トラクション下の潤滑油の力学状態は粘性域，粘弾性域，弾塑性域など非ニュートン固化域へと遷移すると考えられ，各領域の境界線は圧力×粘度-圧力係数によって決まり[2][3]，したがって固化域においても，ニュートン粘度は重要となる．

通常の高圧粘度測定装置は金属製の圧力容器を用いており，多くの装置で油漏れなどにより安定した発生圧力は数百 MPa 程度，高くとも 1GPa 程度で，高圧粘度測定技術は特殊で困難な技術と考えられている．

中村らはこれまで，数 GPa が容易に発生できるダイヤモンドアンビルセル高圧装置(Diamond- Anvil pressure Cell, DAC)という小型装置を用いて潤滑油の粘度[4][5]，粘弾性特性[6]および弾性係数(密度)[7]などの高圧力下の物性測定を行ってきた．

しかしながら DAC では通常圧力測定にルビー蛍光法を用いているため，この方法の習得および測定には時間がかかり，また高精度の分光システムも必要である．物質の相転移で圧力を決める圧力定点も利用されているが，較正物質が少なく任意の圧力を設定できない．従って，簡単な方法で圧力が定まれば DAC による簡便な高圧粘度測定が可能となるため，DAC の普及が期待される．また金属製高圧粘度計に比べ，油一滴で測定できるマイクロ計測の利点を持つ．

そこで最近の研究では，DAC の加圧ねじ回転角と圧力の関係が，高圧粘度既知のいくつかの油種で 0.8GPa まで再現性 20MPa 程度でほぼ一本の圧力較正図となり，通常のルビー蛍光法より簡単に圧力を決定できることを示した[8]．

本研究では，すでに確立されている 0.8GPa までの潤滑油の簡便な高圧粘度

測定法を 2GPa まで拡張するため、圧力室体積を小さくし、2GPa 程度までこの方法で高圧粘度測定が可能かどうかを検討する。まずエステル油のジ-2-エチルヘキシルセバケート(DOS)、Bridgman によって 3GPa まで高圧粘度が報告されているアルコール類[9]を高圧粘度標準液と考え、室温、2GPa まで空加圧ねじ回転角と対数粘度勾配の関係、圧力較正図の再現性を検討し構築する。そしてポリ- $\alpha$ -オレフィン(PAO4)といくつかのアルコールを未知液体と仮定して圧力較正図から高圧粘度を求め、既知データと比較するなどして本方法の 2GPa までの拡張可能性を検討する。

## 第2章 潤滑油の粘度理論および表示式

### 2. 1 絶対反応速度論による粘度

絶対反応速度論の自由体積理論[10]によると，液体内には空孔が存在し，その空孔を埋めるようにして分子が移動することにより液体の流動が発生する．そして，分子が移動する際の抵抗により粘性が発生するとしている．そこで，図2-1のような液体中の分子モデルを考える．

図中の二つの分子層は距離  $\lambda$  だけ離れており，その一方が応力の作用で他方を追い越してすべるものとする．また， $1\text{cm}^2$  当たりのせん断力を  $f$  とし，せん断速度を  $\Delta u$  とする．このとき定義より粘度は次式で表される．

$$\eta \equiv \frac{f\lambda}{\Delta u} \quad (2-1)$$

ここで，他方に対する一方の層の運動は，一分子がある平衡状態位置から同じ層内の平衡状態位置に移動することを意味すると仮定すると，この運動が起こるには，適当な空孔を発生させる必要があり，このため他の分子を押しやるための仕事をしなければならないので，エネルギーの消費が起こる．すなわち，この運動が起こるということは，系がポテンシャルエネルギー障壁を乗り越えることと同等であると考えられ，この抵抗が粘度に寄与することになる．図2-1の  $\lambda$  は二つの平衡状態位置間の距離で，同じ方向の隣接分子間の距離を  $\lambda$  とし，近似的に  $\lambda$  に等しいとする．また，同じ方向と垂直な方向に隣接する分子間の距離を  $\lambda$  とする．これらの条件のもとに分子の流れに対するポテンシャルエネルギーの様子を図2-2に示す．

一つの分子がポテンシャルエネルギーの壁をのり越えて行くとき，その分子にかかる応力は次に示す式で計算される．

$$F = f\lambda_2\lambda_3 \quad (2-2)$$

(ポテンシャルを乗り越える応力 = 単位面積あたりにかかる力  $\times$  有効面積)

そして，一分子の移動の前後におけるエネルギー差は， $F$ に移動量をかけることにより求められ，次に示す式のようなになる．

$$E = F\lambda = f\lambda_2\lambda_3\lambda \quad (2-3)$$

図 2-2 の中の  $\varepsilon_0$  は 0 K における活性化エネルギー（ポテンシャルエネルギーの壁の高さ）といわれている．これを用いて，ある分子が 1 秒間に壁を乗り越える回数を表すと次式のようなになる．

$$k = \frac{\kappa T}{h} \frac{F''}{F} \exp\left(-\frac{\varepsilon_0}{\kappa T}\right) \quad (2-4)$$

$\kappa$  : 透過係数，今回は  $\kappa = 1$  とする

$F''$  : 活性化状態に於ける分子の単位体積当たりの分配関数

$F$  : 始めの状態に於ける分子の単位体積当たりの分配関数

次に液体の流動を起こす力が働く時（せん断）のことを考える．この時，エネルギーの壁前後で高さ  $(f\lambda_2\lambda_3\lambda)/2$  がだけ変化するから，力を受けた方向（前方）へ分子が移動する回数は次式で示される．

$$\begin{aligned} k_f &= \frac{\kappa T}{h} \frac{F''}{F} \exp\left[-\left(\varepsilon_0 - \frac{1}{2}f\lambda_2\lambda_3\lambda\right)/\kappa T\right] \\ &= k \exp\left(\frac{1}{2}f\lambda_2\lambda_3\lambda/\kappa T\right) \end{aligned} \quad (2-5)$$

また，それと同時に後方へ分子が移動する回数も次式の様に示される．

$$k_b = k \exp\left(-\frac{1}{2}f\lambda_2\lambda_3\lambda/\kappa T\right) \quad (2-6)$$



以上の式により，前方または後方への分子がある平衡状態位置から他の平衡状態位置へと移動する回数が求まった．これに距離  $\lambda$  をかけると分子が毎秒移動する距離，即ち運動速度となり，前方へは  $k_f\lambda$ ，後方へは  $k_b\lambda$  となる．結果として応力  $f$  が作用した結果，前方へ移動する正味の速度は  $(k_f - k_b)\lambda$  となり，これは定義によって  $\Delta u$  であるので 式(2-5) および 式(2-6) により以下のように導かれる．

$$\begin{aligned}\Delta u &= \lambda k \left[ \exp \left( \frac{1}{2} f \lambda_2 \lambda_3 \lambda / \kappa T \right) - \exp \left( -\frac{1}{2} f \lambda_2 \lambda_3 \lambda / \kappa T \right) \right] \\ &= 2 \lambda k \sinh \frac{f \lambda_2 \lambda_3 \lambda}{2 \kappa T}\end{aligned}\quad (2-7)$$

ここで， $f$  は通常の液体に於いては  $1 \text{ dyne/cm}^3$  程度であり， $\lambda_2$ ， $\lambda_3$ ，および  $\lambda$  もほぼ分子の大きさの  $10^{-8} \text{ cm}$  程度であるので， $2 \kappa T \gg f \lambda_2 \lambda_3 \lambda$  となる．このことから，式(2-7)を展開する時に第一項以外の項を全て省略することができる．とすると，式(2-1)は以下の様に書き換えることができる．

$$\eta = \frac{\lambda \kappa T}{\lambda_2 \lambda_3 \lambda^2 \kappa} \quad (2-8)$$

この式に，式(2-4)で得られる  $k$  を代入すると，次式が得られる．

$$\eta = \frac{\lambda h}{\lambda_2 \lambda_3 \lambda^2} \frac{F}{F''} \exp \left( \frac{\varepsilon_0}{\kappa T} \right) \quad (2-9)$$

この式において厳密ではないが  $\lambda = \lambda_1$  と近似すれば，以下の式となる．

$$\eta = \frac{\lambda h}{\lambda_2 \lambda_3 \lambda_1} \frac{F}{F''} \exp \left( \frac{\varepsilon_0}{\kappa T} \right) \quad (2-10)$$

$\lambda_2 \lambda_3 \lambda_1$  は近似的に液体状態における一分子の占める容積であり，これを  $V/N_0$  としてもよい．ただし  $V$  はモル容積， $N_0$  はアボガドロ定数である．式(2-10)

に代入すると

$$\eta = \frac{hN_0}{V} \frac{Z}{Z''} \exp\left(\frac{\varepsilon_0}{k_B T}\right) \quad (2-11)$$

となる。ここで、はじめの状態と活性化状態の平衡定数を  $K$  とすると

$$K = \frac{Z''}{Z} \exp\left(-\frac{\varepsilon_0}{k_B T}\right) \quad (2-12)$$

であり、また、熱力学の関係式より

$$K = \exp\left(-\frac{\Delta F}{RT}\right) \quad (2-13)$$

なので、この式 (2-12) と式 (2-13) を用いて式 (2-11) を以下の式のように書くことができる。ただし、 $\Delta F$  は 1mol 当たりの活性化自由エネルギーである。

$$\eta = \frac{hN_0}{V} \exp\left(\frac{\Delta F}{RT}\right) \quad (2-14)$$

さらに、 $\Delta F$  は熱力学的に以下のように表される。

$$\Delta F = \Delta U - T\Delta S + P\Delta V \quad (2-15)$$

ここで、 $\Delta U$  は活性化エネルギー、 $P$  は圧力、 $\Delta V$  は活性化体積、 $\Delta S$  は活性化エントロピーである。これを式 (2-14) に代入して、

$$\eta = \frac{hN_0}{V} \exp\left(\frac{\Delta U}{RT}\right) \exp\left(-\frac{\Delta S}{R}\right) \exp\left(\frac{P\Delta V}{RT}\right) \quad (2-16)$$

以上から、温度が上昇すると式 (2-4) により、分子が 1 秒間に壁を乗り越える回数が増大し、それにより液体の流動が活発となり、これらの現象により粘度が減少することが分かる。また、式 (2-10) からこの温度増加に伴い、粘度が減少していくことが分かる。

また、 $V$ を液体の分子容、 $V_s$ を膨張していない固体の分子容とすると、その差  $V-V_s$  は液体中の空孔の数となり、それは液体の流動性に比例する。粘度は流動性の逆数で表されるため次のようになる。

$$\eta = \frac{C}{V-V_s} \quad (2-17)$$

ここで、 $C$ は定数を表す。上式より、空孔の数が増えれば増えるほど動ける分子の数が多くなり、流体の流動性が増加し、粘度が下がることが分かる。また、流体が高圧力状態におかれた場合、流体の分子容が縮むことになるので流動性が減少し、粘度が増加することになる。

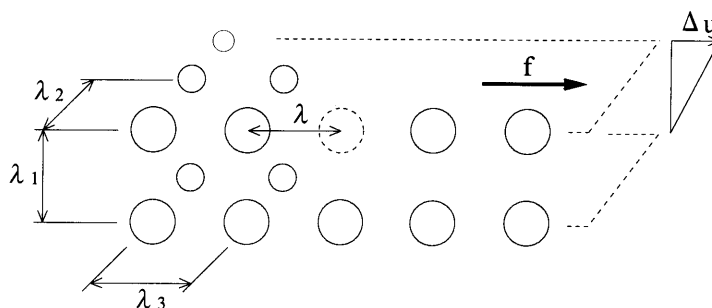


図 2-1 液体中の分子モデル

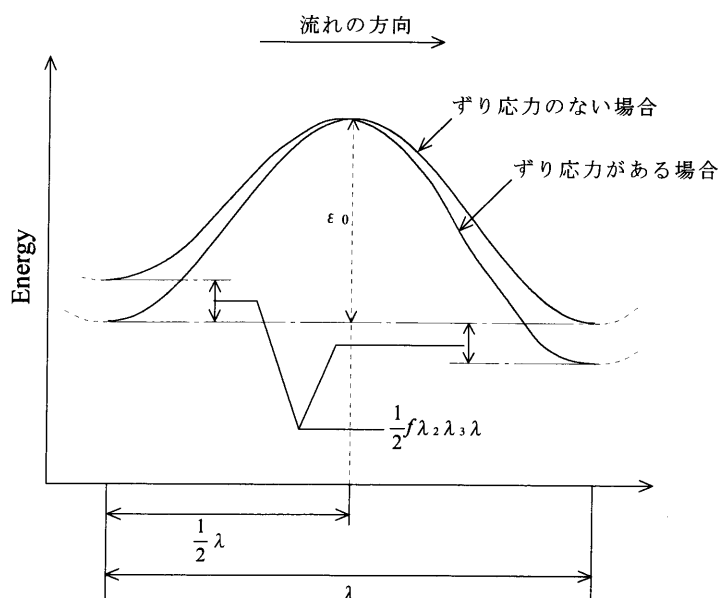


図 2-2 ずり応力がある場合と無い場合との粘性流動に対するポテンシャルエネルギー

## 2. 2 粘度－圧力関係式

弾性流体潤滑（EHL）理論では，潤滑油粘度の圧力による増加は圧力の指数関数として次式で近似されている（Barus の式）．

$$\eta = \eta_0 \exp(\alpha P) \quad (2-18)$$

$\eta_0$  は常圧における潤滑油の粘度， $\eta$  は圧力  $P$  における潤滑油の粘度， $\alpha$  は粘度－圧力係数をあらわす．

So と Klaus は，鉱油やポリマーおよびレジンを含む油，純炭化水素を対象とした油の  $\alpha$  を，動粘度と密度および Walther の式における  $m$  の関数で表している．

$$\alpha = 1.216 + 4.143 (\log \nu)^{3.0627} + 2.848 \times 10^4 \text{ m}^{5.1903} \times (\log \nu)^{1.5967} - 3.999 (\log \nu)^{3.0975} \cdot \rho^{0.1162} \quad (2-19)$$

ここで， $\nu$  は動粘度であり  $\rho$  は密度である．

また，Walther の式を以下に示す．

$$\log \log (\nu + k) = -m \log T + e \quad (2-20)$$

$\nu$  は油の動粘度， $T$  は絶対温度， $m$ ， $e$  は油により決定する定数である． $k$  は定数で，ASTM（アメリカ材料試験協会規格）では  $\nu \geq 1.5 \text{ cSt}$  のとき  $0.6$ ， $\nu < 0.7 \text{ cSt}$  のとき  $0.75$  とする．式（2-19）によると，計算値は  $0.07 \text{ GPa}$  以下の圧力範囲で実測値と  $15\%$  以内の精度で一致すると述べている．Roelands らはポリマーを含まない鉱油の  $25 \sim 90^\circ\text{C}$  の温度範囲， $0.1 \text{ GPa}$  以下の圧力範囲の実測粘度をもとにして，高圧粘度と環分析値を関係づけた式を提案している．

$$\begin{aligned} \log (\eta / \eta_0) &= (P / 5.566 \times 10^7)^y \times \{(0.002\text{CA} + 0.003\text{CN} + 0.055) \log \eta_0 + 0.228\} \\ \log (y - 0.890) &= 0.00855 (\text{CA} + 1.5\text{CN}) - 1.930 \end{aligned} \quad (2-21)$$

CA，CN はそれぞれ全炭素数に対する芳香族とナフテン環を構成する炭素数

の比を百分率で表したものである．式（2-18）と式（2-21）の違いは油の組成により決まる  $y$  により表されている．

粘度は圧力の増加に伴い指数関数的に増加するが，高压になるにつれて粘度増加は次第に鈍化し，また温度の上昇によっても粘度変化は小さくなる．このことを補正するために Roelands は，次式も提案している．

$$\alpha P = (\ln \eta_0 + 9.67) \times \left\{ \left\{ \frac{(T+135)}{(T_0+135)} \right\}^{-S_0} \right\} \times (1 + 5.1 \times 10^{-9} P)^Z - 1 \quad (2-22)$$

ここで， $T_0$  は基準温度， $S_0$ ， $Z$  は油に固有のパラメータである．（PAO4 では  $S_0=1.047$ ， $Z=0.570$ ， $T_0=30^\circ\text{C}$ ， $\eta_0=19\text{mPa}\cdot\text{s}$  である [11]，付録 5 参照）

また，Bridgman は，液体の圧力の指数と粘度の関係は，低粘度時には圧力軸に対して上に凸，高粘度時には下に凹となり，その変曲点は複雑な分子構造をもつ液体では低圧力時に，単純な分子構造では 1.2 GPa 以上の高压であらわれると述べている．計量研では次式に示す最も簡単にその傾向をあらわす式も提案している [12]．

$$\eta = \eta_0 \exp (aP^3 + bP^2 + cP) \quad (2-23)$$

上式の  $a$ ， $b$  および  $c$  は液体固有の定数である．

高压力下における潤滑油の粘度－温度関係式として Crook は式（2-18）から油膜厚さを求める熱的解析に次式を用いる．

$$\eta = \eta_0 \exp (\alpha P - \beta \Delta T) \quad (2-24)$$

$\beta$  は粘度－温度係数， $\Delta T$  は基準温度からの上昇温度である．

この式において村木らは粘度－温度係数  $\beta$  を圧力の一次関数と仮定し，トラクション係数の解析に用いている．

自由体積理論から潤滑油粘度  $\eta(T, P)$  をガラス転移温度と自由体積の熱膨張の圧力依存の項で与えられる安富らの式がある．式 (2-25) に安富らの式を示す [13] [14]．

$$\log \eta(T,P) = \log \eta_g - \frac{C_1 \cdot (T - T_g(P)) \cdot F(P)}{C_2 + (T - T_g(P)) \cdot F(P)} \quad (2-25)$$

ここで、 $C_1$ 、 $C_2$ は WLF 定数で、 $\eta_g$ はガラス転移温度における粘度 ( $\eta_g = 10^{12} \text{ Pa} \cdot \text{s}$ ) である。 $T_g(P)$ 、 $F(P)$  はそれぞれ圧力の関数で表されるガラス転移温度と熱膨張係数で以下のように表される。

$$T_g(P) = T_g(0) + A_1 \ln(1 + A_2 P) \quad (2-26)$$

$$F(P) = 1 - B_1 \ln(1 + B_2 P) \quad (2-27)$$

この式では物理的意味の明確なガラス転移点、熱膨張係数などをパラメータとしている。しかし式(2-25)を用いるにはガラス転移温度の測定が必要なため、 $T_g(P)$ の代わりに  $10^7 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ を基準粘度として  $h = h_s$ になる温度を基準温度  $T_s(P)$ とした式(2-28)を用いる。

$$\log \eta(T,P) = \log \eta_s - \frac{C_1 \cdot (T - T_s(P)) \cdot F(P)}{C_2 + (T - T_s(P)) \cdot F(P)} \quad (2-28)$$

また、試料液体 SN50, KTF1, DOS, DOP において、関係式に使われている係数  $A_1$ ,  $A_2$ ,  $B_1$ ,  $B_2$ ,  $C_1$ ,  $C_2$ を表 2-1 に示す。

KTF1 に関して、WLF 式と Bair データの比較を図 2-3 に、DOS, DOP の WLF 式と ASME データの比較を図 2-4, 2-5 に示す[15][16]。

表 2-1 文献値による各試料液体の係数

Liquid	$T_s(0)$	$A_1$	$A_2$	$B_1$	$B_2$	$C_1$	$C_2$
SN50	-54.7	76.77	3.348	0.282	17.47	10.96	26.59
KTF1	-68.6	160.5	1.816	0.3024	12.64	10.94	28.97
DOS	-89.7	111.5	0.558	0.217	20.3	11.17	31.69
DOP	-55.7	246.4	0.32	0.212	25.43	11.03	27.21

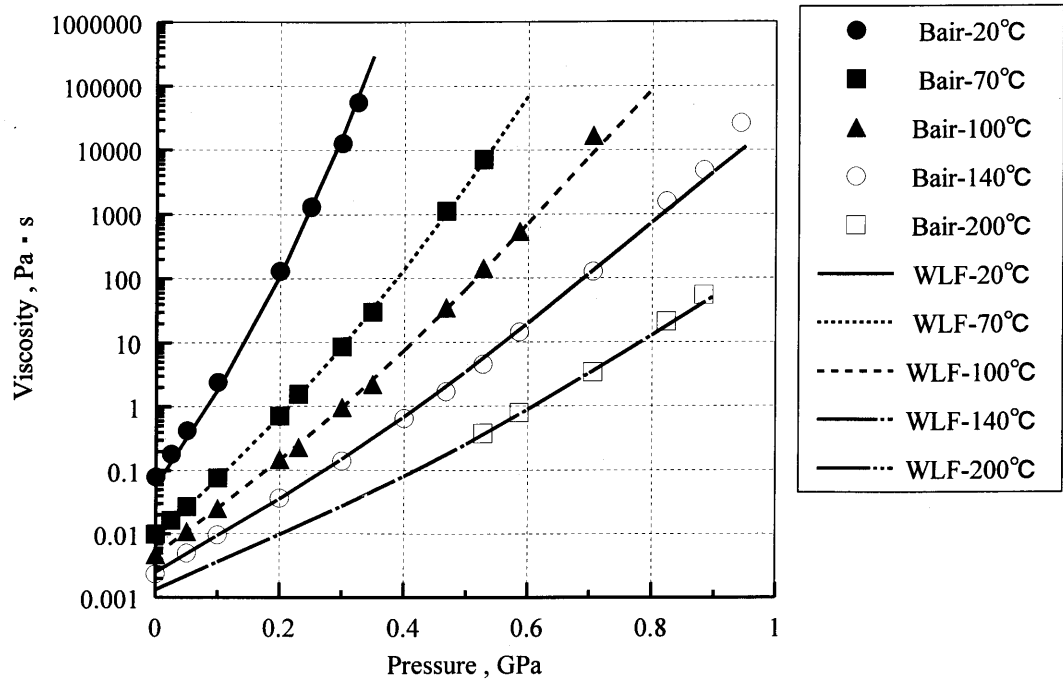


図 2-3 WLF-Bair 関係 (KTF1)

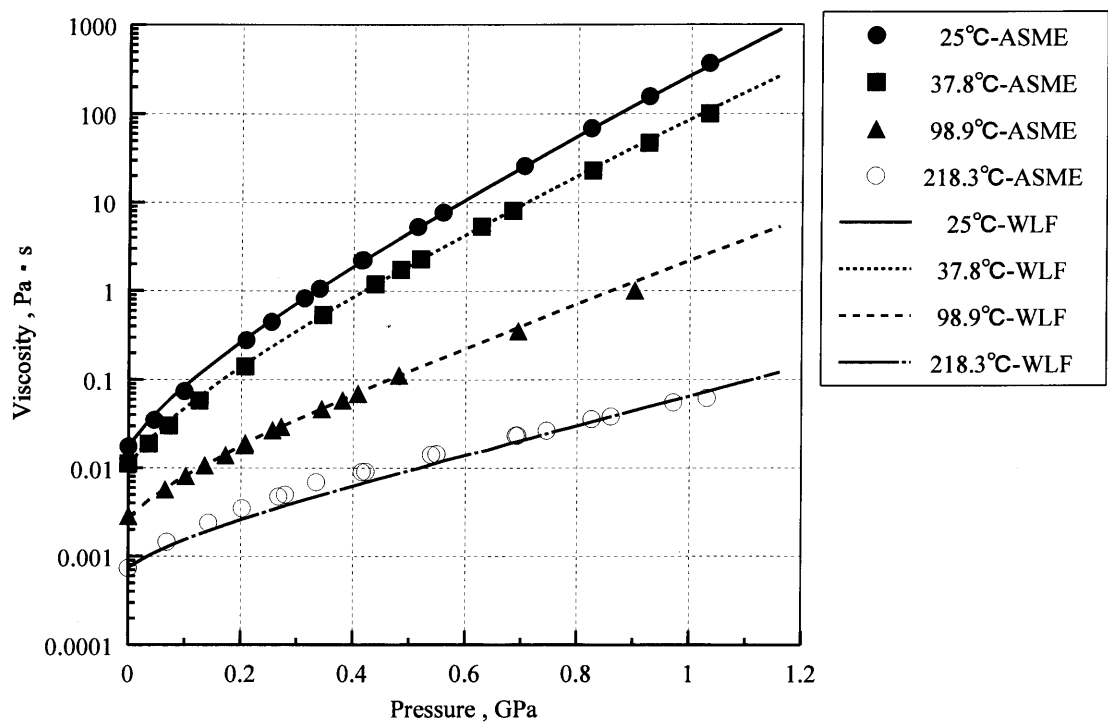


図 2-4 WLF-ASME 関係 (DOS)

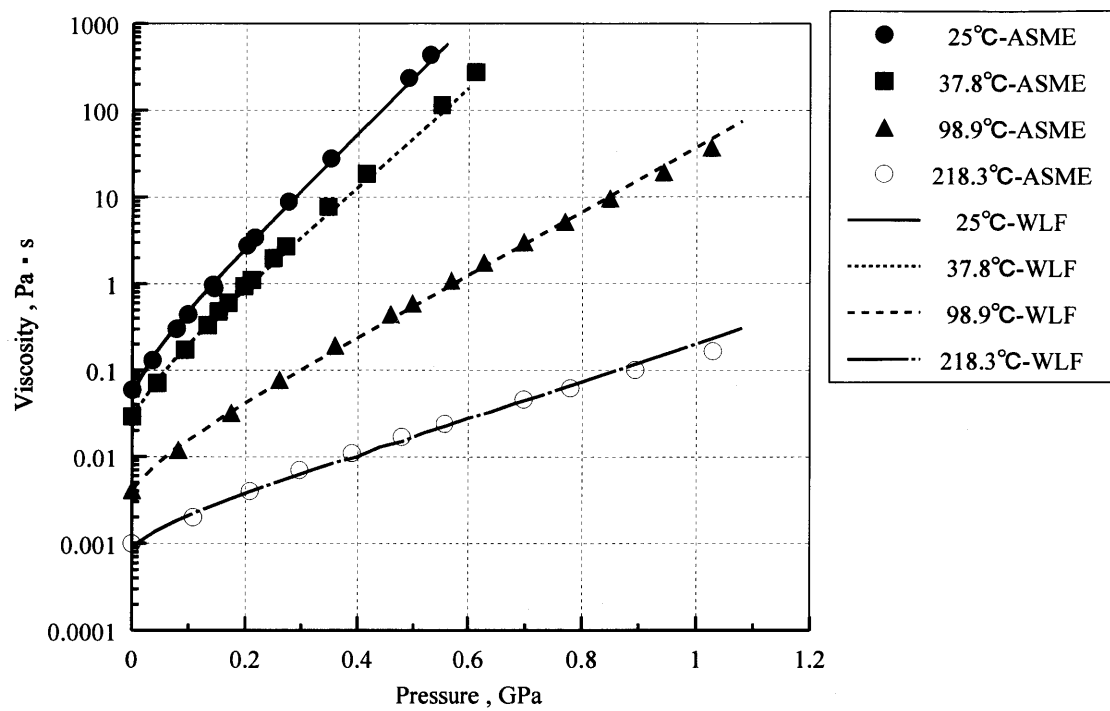


図 2-5 WLF-ASME 関係 (DOP)



### 第 3 章 実験装置及び実験方法

#### 3. 1 ダイヤモンドアンビルセル高圧装置(DAC)

試料油の圧力発生装置として、ステンレス製のダイヤモンドアンビルセル (Diamond-anvil-cell 以下 DAC) 高圧装置 (清水製作所, □ 50) を用いた. 図 3-1 に DAC (No.2) の模式図を示す. また, DAC の表面と裏面の写真をそれぞれ図 3-2, 3-3 に示す. この装置は加圧ねじによる加圧タイプのもので, 圧縮前の加圧ねじ回転角度を 0 度とし, そこからの角度の増分を加圧ねじ回転角とする. 円盤状加圧ねじ (M38X1) を回転させてピストンを前進させ, 先端のダイヤモンドがガスケットとともに油を圧縮し高圧を発生させる. 小さい圧力室のため, 試料油が一滴ほどの少量でよいこと, ダイヤモンドが光学的に透明で, 赤外線, 可視光, X 線などにより種々の計測ができることなどの特徴を持つ [17]. 本研究では, 低圧での圧力制御のため, 皿ばねを一つ挿入した. 圧力室内には, 試料油と粘度測定用の落下球 (銅球) を封入する.

以下に銅球選びの手順を示す.

1. 銅球をストックしておくためのスライドガラスを用意し, 球を置いておく場所には球を見失わないようにペンで裏から数箇所丸印をつけておく.
2. スライドガラスにつけられた印の中から, 今回拾った球を置いておく場所をあらかじめ選んでおく.
3. 銅球の入ったシャーレを軽く動かし, 球を散乱させる.
4. 顕微鏡でシャーレの中を覗き, デジタルマイクロメーターを用いて 50 ~ 60  $\mu\text{m}$  程度で真球度の高そうな球を探す.
5. アルコールで洗浄した針を近づけ, 球が針にはりついたら顕微鏡の台の上にあるシャーレをスライドガラスに置き換えて球を移動させる.
6. 2 ~ 5 を繰り返し, 実験で使うことのできる球が複数個ある状態にしておく. 保管の際にはケースに入れ, ほこりや風の影響を受けないようにしておく.

7. 実験の際には、ストックしてある球の中からサイズと真球度のよいものを選んで使用する。ストックの中に条件から外れる球が見つかった場合は処分する。

金属ガスケットは厚さ 0.5mm 程度のリン青銅板を用いた（3. 5 参照）。回転ねじ角度の測定は、DAC 専用の角度目盛り付き加圧装置（3. 2 参照）により行う。これは、最小目盛り  $0.144^{\circ}$  で高精度に回転角を読める。

以下に DAC のセット手順と注意事項を示す。DAC をセットする前に作業場のゴミをブローで取り除き、手をよく洗う。

1. セットの前に DAC の平行度のチェックを行う。
2. DAC の下部締め付けねじ（以下、加圧ねじ）を減圧側に回しピストンを下げる。摩擦でピストンが下がっていないときもあるので、横穴からもピストンを指で押し下げる。上下のダイヤモンド同士が接触していないことを横穴から確認して上蓋をはずす。なお、保管時はダイヤモンド面が上になるように上蓋を DAC 本体に取り付けて置いておく。  
上下のダイヤモンドコレット面を一度綿棒で乾拭きし、その後、エタノール（アセトン厳禁）を綿棒に含ませる。エタノールを多く含むとききれいに掃除しにくいいため、その場合ティッシュで少し拭き取りその後で掃除する。綿棒は 3,4 回使用したら交換するようにする。この時、顕微鏡で見ながら十分きれいになるまで行う。この作業を 2,3 回行った後、仕上げにもう一度拭き取る。側面や台座の周りも以前の実験での接着剤やゴミを爪楊枝、綿棒などを使って十分掃除しておく。
3. 選んだガスケットをアルコールの入った容器に入れ、超音波洗浄機で洗浄する。位置調整用のセロハンテープを 4 つ作る。長さは、DAC の側面の穴から出て後に調整しやすいものが好ましい（作り方は後の図 3-4 を参照）。この時、セロハンテープはできるだけ粘着力の強いものを使う。これらガスケットに貼り付ける（図 3-5 参照）。貼り付ける際は、手の油などがガスケットに付着するのを防ぐため、ピンセットを

使用し，ガスケットに手が触れないよう注意する．

- 4． ガスケットが上のダイヤモンド面に当たらないように横穴から注意して見ながら，上蓋ねじをゆるみのないようきつく締める（上蓋ねじは以下同様）．DAC の下の加圧ねじを上蓋のダイヤモンドに軽く接するまで加圧側にゆっくり回し，顕微鏡で確認しながら，ガスケットの穴の中心がダイヤモンドの中心に正確にくるようにセロハンテープを使って移動させる（図 3-6, 3-7 参照）．中心にきたら，いったんガスケットを挟み込み，中心を再確認して加圧ねじを強く締め付る．ずれていれば再調整する．そして，ガスケットにダイヤモンドの圧痕をつけ，密封性を向上させる（圧力室の厚さが元の 90 % 程度になるまでレーザーフォーカス変位計で確認しながら慎重に行う）．セロハンテープを外し，その後，DAC の側面の穴から測定顕微鏡で確認しながら，ダイヤモンドアンビルの台座とガスケットの 4 隅に瞬間接着剤をつける（図 3-8 参照）．接着剤がしっかりついたのを確認した後，硬化剤を使い接着させる．
- 5． 試料油を圧力室の中に封入する前に加圧ねじをゆるめる．再び加圧し，ダイヤモンドコレット面とガスケットが軽くあたっている状態での圧力室の油無しの時の厚さを，レーザーフォーカス変位計を用いて測定しておく．
- 6． 加圧ねじを緩めてピストンを指で押し下げ，完全にガスケットとダイヤモンドコレット面が離れたことを十分確認してから上蓋を外す．ガスケットの表面の穴の横に，試料油を太針（アルコールなど粘度が低い場合はプラスドライバー）で一滴落とす．それを細針で誘導しながら穴の中に流し込む．時間とともに気泡は浮いて出ていくが，それでも抜けない場合は先端の平らな針金で気泡を押しつぶすようにして，気泡を押し出す（図 3-9 参照）．この時，穴にゴミなどが入らないように注意する．
- 7． あらかじめ選んでおいた金属球（銅球）を針でとり，ガスケット表面上の試料油で十分なじませた後，穴の中に挿入する．球が穴またはダイヤモンドのコレット面に付着せずに落下するのを顕微鏡で確認する．上蓋のダイヤモンド面にも試料油をたらしておく．ダイヤモンドとガ

スケットが当たらないよう横から慎重に確認しながら上蓋を完全に締める．加圧ねじを圧力が加わらないように軽くしめて密封する．アルコール類は揮発性が高く，常圧では圧力室内に気泡が発生してしまうため，アルコール類で実験を行う際には気泡が発生しないように加圧ねじを強めに締める．最後に圧力室内に気泡などの問題が生じてないかを顕微鏡で確認し，DAC のセットが完了する．屈折率  $n=1$  とおいた場合の常圧の圧力室厚さを測定し，それから常圧屈折率を決定する．保管するときは球が圧力室の中心付近にくるようにし，倒立させて保管する．DAC のセットの際に何度も細針や太針を使用するが，一回使うごとにアルコールで洗浄する．DAC，針，加圧装置などは机から不意に落とさないように机の真ん中付近に置くようにする．

なお，実験中に球がガスケットやダイヤモンドにはりついて動かなくなる場合がある．それを避けるために，加圧の際には球が圧力室直径方向真ん中付近，高压では厚さ方向でも真ん中付近にある状態になるよう気をつける．はりついてしまった場合には，DAC を球が上にある状態にセットし，プラスチックハンマーで叩いて衝撃を与える．またはしばらく時間を置くことで解決する場合もあるが，動く見込みのない場合は DAC の減圧を行う．減圧角は実験条件にもよるが，本研究では 9 度ずつ減圧して球の様子を確かめた．

ちなみに，加圧の際にガスケットが圧縮されているため，減圧を行うと圧力室内の液体が漏れてしまって圧力低下の要因となる．はっきりとした差が見られない場合でも実験結果の信頼性は落ちてしまうので，減圧量が大きくなるような場合はセッティングからやり直す方がよい．

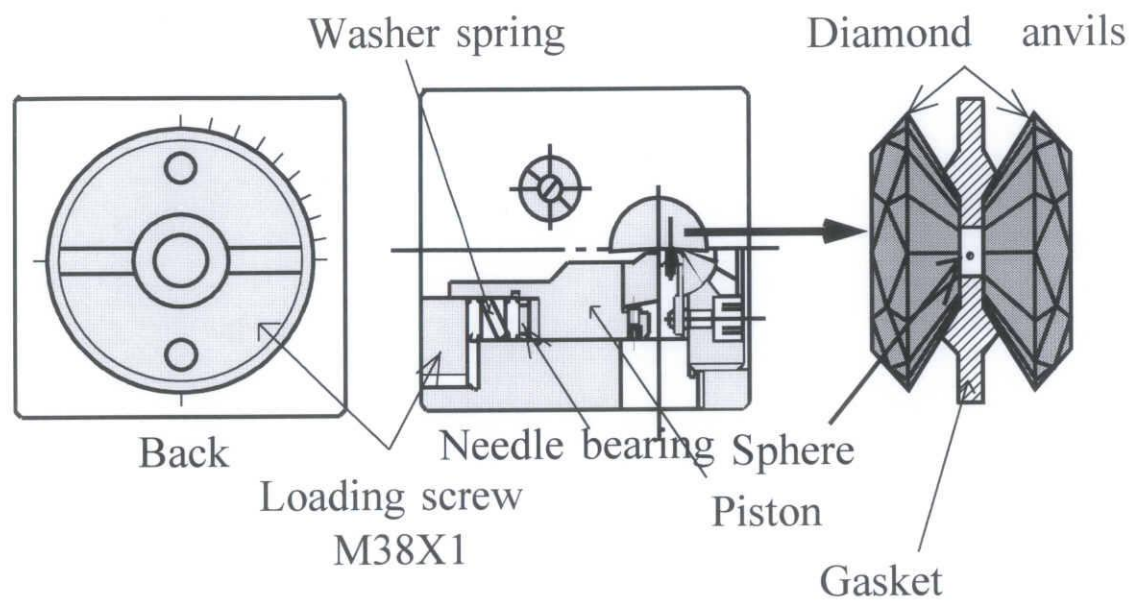


図 3-1 DAC の模式図 (No.2)

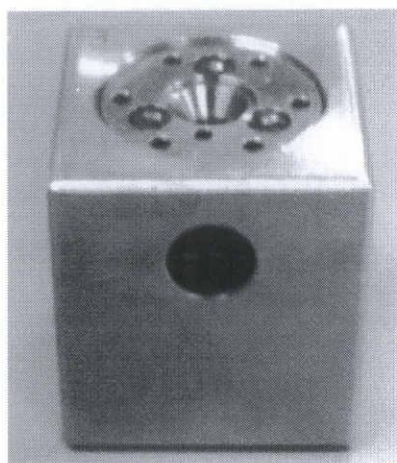


図 3-2 DAC の表面

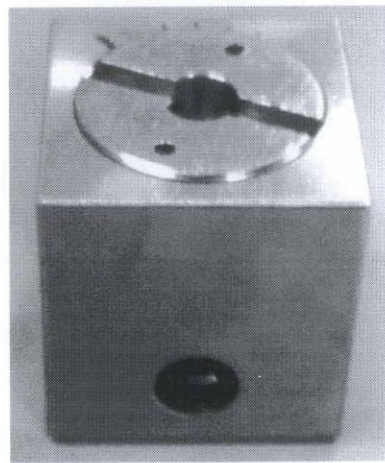
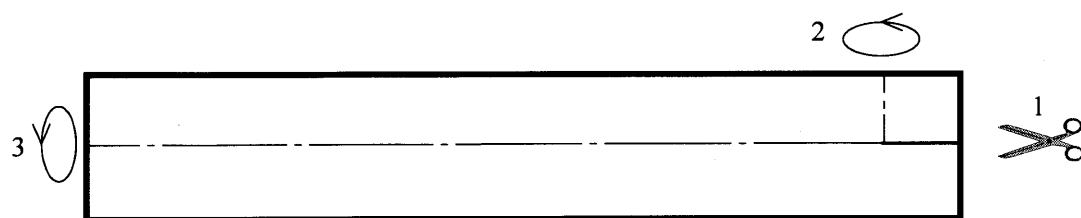


図 3-3 DAC の裏面



1. セロハンテープに切り込みを入れる
2. 切り込みを入れた側の半分を折り曲げる
3. 縦に半分に折る

図 3-4 ガスケット位置調整用セロハンテープ

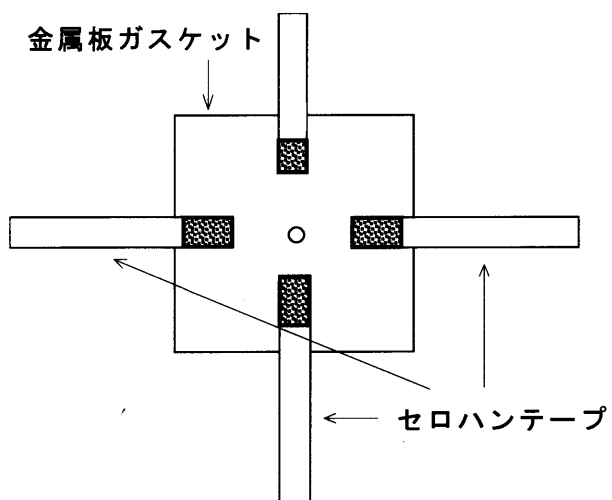


図 3-5 位置調整セロハンテープの取り付け

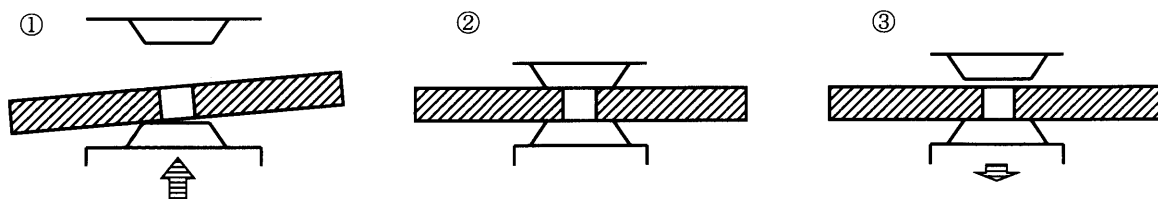
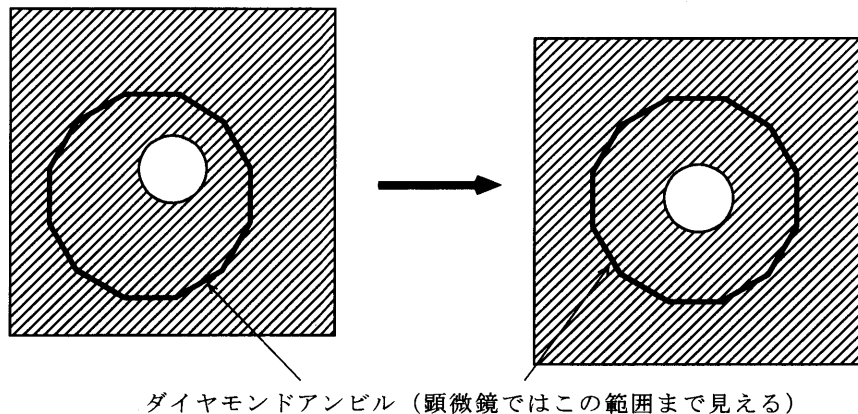
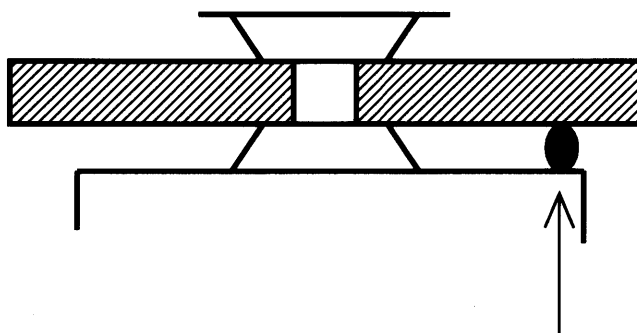


図 3-6 ガスケットの取り付け方



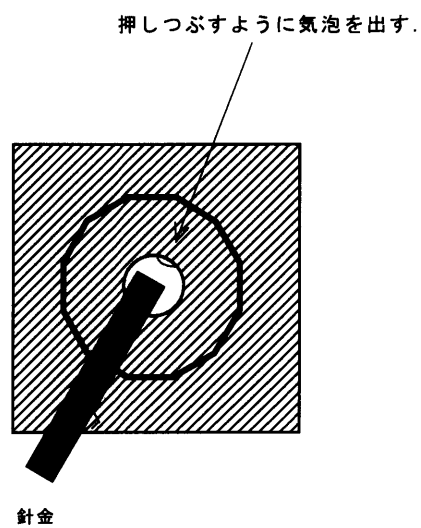
ダイヤモンドアンビル（顕微鏡ではこの範囲まで見える）

図 3-7 ガスケット穴の位置調整



DACの側面の穴から光学顕微鏡で見ながら接着剤をたらしていく。

図 3-8 接着剤の付け方



針金

図 3-9 気泡の流入防止法

### 3. 2 DAC 加圧装置

DAC の加圧装置（協和製作所，WG－KY01－4 型）を図 3-10 に示す．DAC をギア・ボックスにはめ込み，つまみを回して加圧を行う．カウンタの目盛りが細かくついており，最小  $0.144^{\circ}$  まで読みとることが可能であり，精度良く加圧ねじ回転角が測定できる．50:1 に減速され加圧の際のつまみの回転力が小さく，発生圧力のコントロールも容易である．以下に測定手順を示す．

1. ギア・ボックスの中に DAC をはめ込む．この時，あらかじめ溝の位置を確認しておき，ゆっくり DAC を近づけ，つまみを回しながらはめ込む．
2. きっちりハマったことを確認したら，そのときのカウンタに表示されている目盛りを読みとる．
3. つまみを回して加圧を行う．この時，あまり早く回したり，無理な加圧は行わないように注意する．あらかじめ加圧する前に回したい角度を決めておき，目盛りに置き換え計算しておく．
4. 決めた目盛りまで加圧し終了したら，DAC をボックスからゆっくりとはずす．

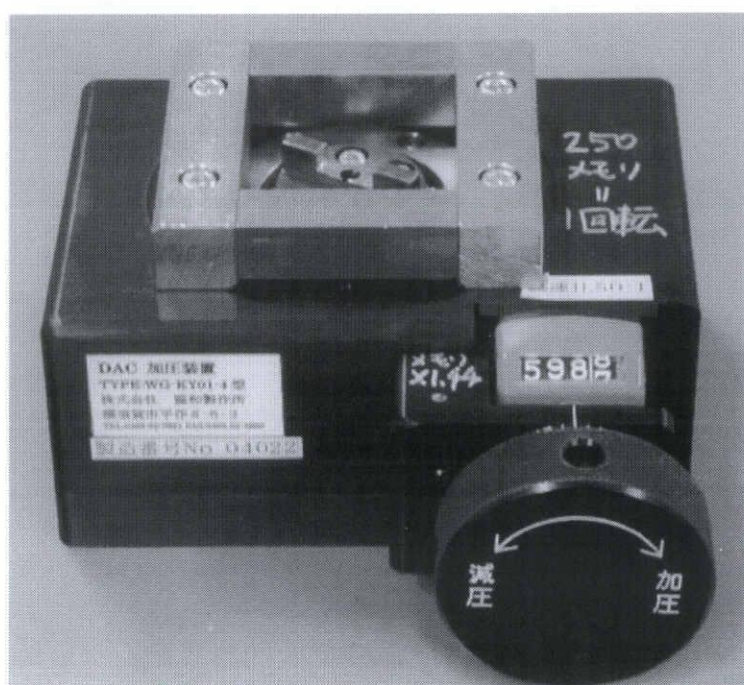


図 3-10 DAC 加圧装置



### 3. 3 球落下法による粘度測定

本研究では、圧力室内に入れた落下球が一定距離を落下するのに要する時間から試料油の粘度を求める球落下法を用いた。試料油が非圧縮性 Newton 流体で無限に広がっているとき、落下球が受ける抵抗  $f_1$  は次式により表される。

$$f_1 = 6\pi\eta_0 a v \quad (3-1)$$

ここで  $\eta_0$  は見かけの粘度、 $a$  および  $v$  は球の半径及び落下速度である。この関係を Stokes の粘性抵抗法則という。また、球が重力により下に引っ張られる力  $f_2$  は、浮力を考慮し次式で表される。

$$f_2 = \frac{4}{3}\pi a^3 \rho_s g - \frac{4}{3}\pi a^3 \rho_L g \quad (3-2)$$

$\rho_s$ ,  $\rho_L$  は球、試料油の密度、 $g$  は重力加速度である。球が一定速度で落下しているならば  $f_1 = f_2$  となり、 $\eta_0$  は以下のようなになる。

$$\eta_0 = \frac{2ga^2(\rho_s - \rho_L)}{9v} \quad (3-3)$$

(3-3) 式が成り立つのは、レイノルズ数が 1 に比べて非常に小さい場合である [18]。また、高圧下においては、液体の密度は常圧下のそれより上昇するので、 $\rho_L$  の値は圧力により補正した次式を使用した [19]。

$$\rho_L = \rho_0 \times \left( 1 + \frac{0.00059 \times P}{1 + 0.00171 \times P} \right) \quad (3-4)$$

ここで  $\rho_0$  は常圧下での試料油密度、 $P$  は高圧圧力 (MPa) を表す。しかし、本実験のように有限の大きさの圧力セル内では、球は両壁面の影響を受けて減速するため、壁効果の補正が必要になる。そこで Munro らの壁補正係数  $\gamma$  を用いる。壁補正係数  $\gamma$  を用いた粘度  $\eta$  は次式で与えられる [20]。

$$\eta = \gamma \times \eta_0 \quad (0 < \gamma < 1) \quad (3-5)$$

ここで  $h_a$  は見かけの粘度である．壁補正係数  $\gamma$  は，ガスケット厚さやガスケット穴直径，落下球直径の関数であり本実験では 0.8 程度であった．

粘度測定装置の光学系の模式図および全体写真を図 3-11 および図 3-12 に示す．装置は接眼スケールつきベローズ接写装置，タイマーつきビデオカメラ（OLYMPUS VX-301）で構成されている．ベローズの DAC 側は X ステージ上に取り付けてある．録画には HDD ビデオレコーダー（Panasonic DMR-E90H）を，照明にはライトガイド（中央精機㈱ LGN-500W）およびライトガイド照明装置（中央精機㈱ SPH-50N）を使用した．DAC を固定する回転ステージは Y-Z ステージにとりつけてある．Y-Z ステージおよび光学系はすべて H 型钢材上に固定した．

粘度測定の全体の流れは，試料油を圧力室内に封入後は加圧せず常圧状態で圧力室寸法，粘度を測定し，その後加圧を行う．加圧するたびに粘度測定装置に取り付け，実際の球落下の速さを目安にして次の加圧を行う．

粘度測定の手順を以下に示す．

1. 加圧後，デジタル顕微鏡（Nikon OPTIPHOT-2）でガスケット穴直径を測定する．常圧，最高圧を測定する際にはガスケットの写真を撮っておく．
2. レーザフォーカス変位計で圧力室厚さ 5 箇所を測定する．
3. セットした DAC を，回転ステージ上に固定用の金具で固定する．
4. ビデオカメラ，HDD ビデオレコーダー，モニター用のテレビ，照明の電源を入れ，圧力室内の様子を映し出す．そして回転ステージを回転させたときにも圧力室がビデオカメラの撮影範囲から大きくはみ出さないよう，圧力室の中心と回転ステージの回転軸とがなるべく一致し，かつ光軸に来るように，回転ステージの位置を調節する．
5. 前述したように，球が落下する時には壁の影響を受けるため，落下球はコレット面間の中央に位置しなければならない．そのため，ベローズの下に取り付けられているマイクロメーターで，コレット面のふた側，加圧ねじ側，および球にピントを合わせ，それぞれの時のマイクロメーターの値を読み取り，球のピントと両コレット面のピントの距

- 離が等しくなるよう、球を移動させたい方向に装置全体を傾ける。
6. タイマーを作動させ、モニターにうつされた時間表示が動いているのを確認する。
  7. HDD ビデオレコーダーの録画を開始し、回転ステージを回転させて球を持ち上げる。その際、球を圧力室の中心付近で落下するように調整する。球が下まで落下したら回転ステージを回転させて、再び球を落下させる。これを低粘度時では 6 回程度、高粘度時では 3 回程度繰り返す。
  8. 7 を繰り返し、録画を停止してから録画ファイル名を入力する。
  9. 録画したビデオを再生し、ひと目盛りの落下時間を測定する。粘度算出には、落下時間がもっともはやい値を用いる。
  10. パソコンの Mathcad 7 による粘度算出プログラム（付録 1 参照）で粘度を求め、同ソフトの WLF 式による圧力算出プログラム（付録 2 参照）により圧力を求める。

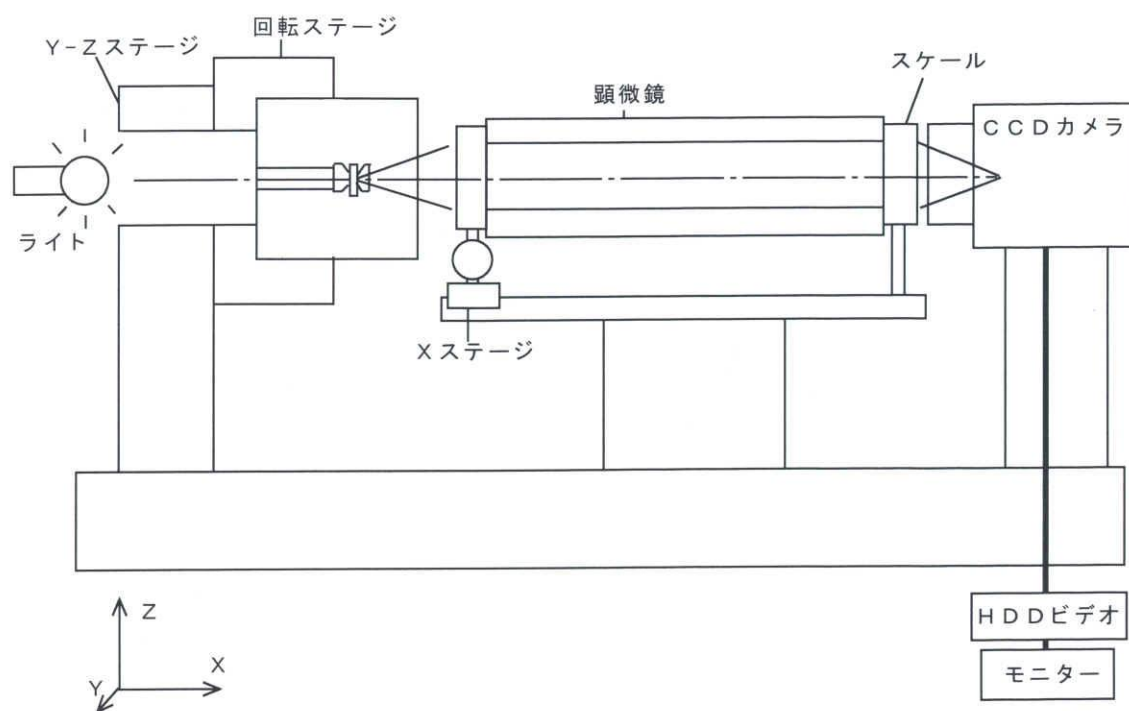


図 3-11 粘度測定装置の光学系模式図

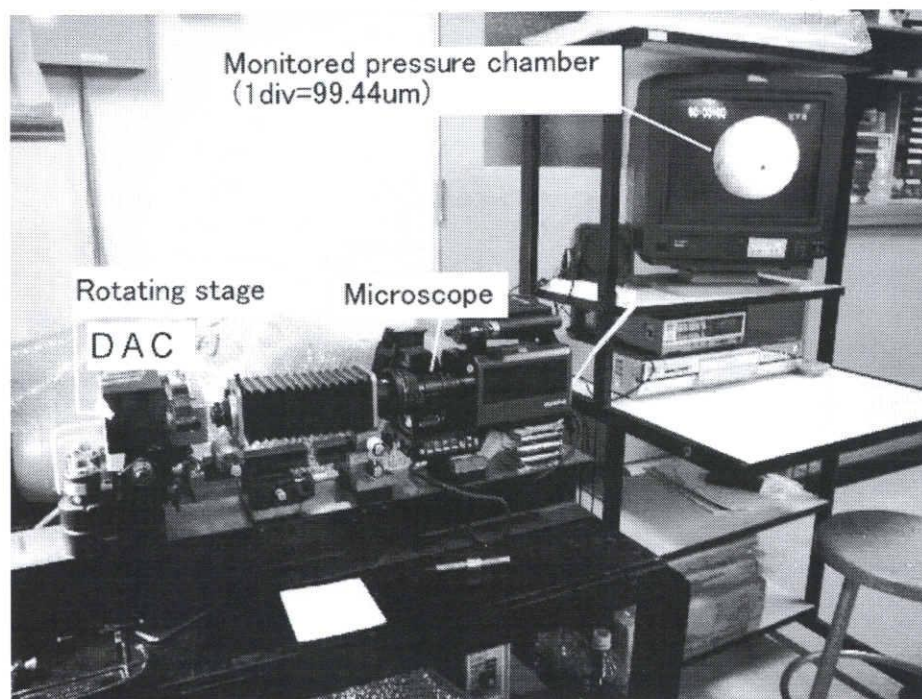


図 3-12 粘度測定装置の全体写真

### 3. 4 圧力－加圧ねじ回転角関係と圧力校正図

中村らの DAC の加圧ねじ回転角による圧力決定法を以下に示す[21].

0.3GPa までの低圧実験として測定粘度値を式 2-28 に代入して逆算した三つの独立した実験の圧力と加圧ねじ回転角(見かけ)  $\theta$  との関係図(以降「圧力変化図」と記述)を図 3-13 に示す. 圧力が発生し始める角度は個々の実験で異なり, 再現性はないが上昇後の曲線の形状に類似性が見られる. 角度の差異はダイヤモンドと金属板(ガスケット)の間の密封が完成する角度が個々の実験で異なるためと考えられる. そこで各曲線を圧力 0 (横軸)まで外挿してそこまでを空加圧ねじ回転角  $\theta_{dp}$ , そこからを有効加圧ねじ回転角  $\theta_{eff}(=\theta - \theta_{dp})$  と定義し, 有効加圧ねじ回転角を横軸に書き直したものが図 3-14 である. 三曲線はほぼ一致し,  $\theta_{eff}$  から圧力を決定することができるといえる.

1GPa までの加圧を目指し, ガスケット材料を銅から高強度のりん青銅に変更, 圧力室を若干薄くした実験結果を図 3-15 に示す. 図 3-14 が頭打ちの曲線となったのに比べ直線性が見られ, 油種による差異はほとんどない. これは DAC 装置の圧力発生に関係する油の圧縮率(あるいは相対高圧密度)が Dowson らの式で近似されるように油種にほとんど依存しないことによると考えられる. これを室温の圧力校正図とする. ばらつきは標準偏差で  $\pm 15\text{MPa}$  程度と考えられる. なおこの校正図は装置係数と考えられ, DAC の構造, 圧力室寸法, アンビル形状(図 3-1)など同一実験条件下で使用する事ができる.

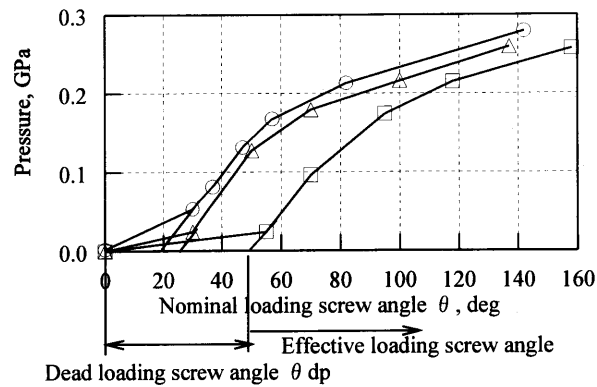


図 3-13 SN50 の三回の測定粘度値で調整された加圧ねじ回転角-圧力関係と，  
有効加圧ねじ回転角  $\theta_{\text{eff}} (= \theta - \theta_{\text{dp}})$  決定法

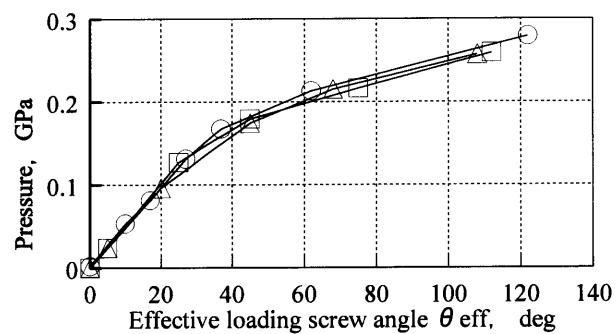


図 3-14 SN50 のデータ三つの有効加圧ねじ回転角  $\theta_{\text{eff}}$ -圧力関係

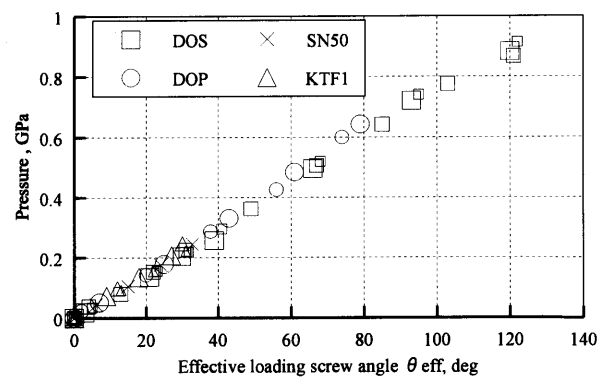


図 3-15 粘度測定値によって調整された有効加圧ねじ回転角-圧力関係(圧力較正図). 各油での再現性が確認された(記号サイズが違うのは, 独立した実験).

油種が異なっても加圧ねじ回転角で圧力が決定できると考えられている理由を以下に述べる．これまで報告されている固化油高压密度式から求められた高压相対密度（常圧密度を基準）を図 3-16 に示す[22]．トラクション係数が比較的高く 1GPa 以下の低压で固化するシクロヘキサン環あるいはベンゼン環を持つ分子構造の #7149（トラクション試作油），DMP（トラクション油／サントトラックの基油），5P4E（ポリフェニルエーテル），TN68（タール水添油）の四種類の油である．固化圧力の差異により，その圧力以上では差異が見られるが，固化圧力（0.2 ～ 0.5 GPa）まで全ての油は同一線上にのり Dowson らの式ともほぼ一致している．また，高温下で DOS，DOP，G31（パラフィン系鉱油，ASME データ），G36（ナフテン系鉱油，ASME データ）と Dowson らの式と比較したグラフを図 3-17，3-18，3-19，3-20，3-21 に示す．こちらは温度が高くなるにつれ，Dowson の式とずれている．このことから，室温では，圧力上昇に関与する潤滑油の高压下の圧縮率はほとんど影響を受けず，ガスケット（材質，寸法）DAC コレット径などの実験条件が同じなら，有効加圧ねじ回転角－圧力の関係は，100℃程度で 1GPa 程度まで油種によりほとんど変わらず，図 3-14 のような関係図となり 1 本の校正図から圧力が決定できると期待される．

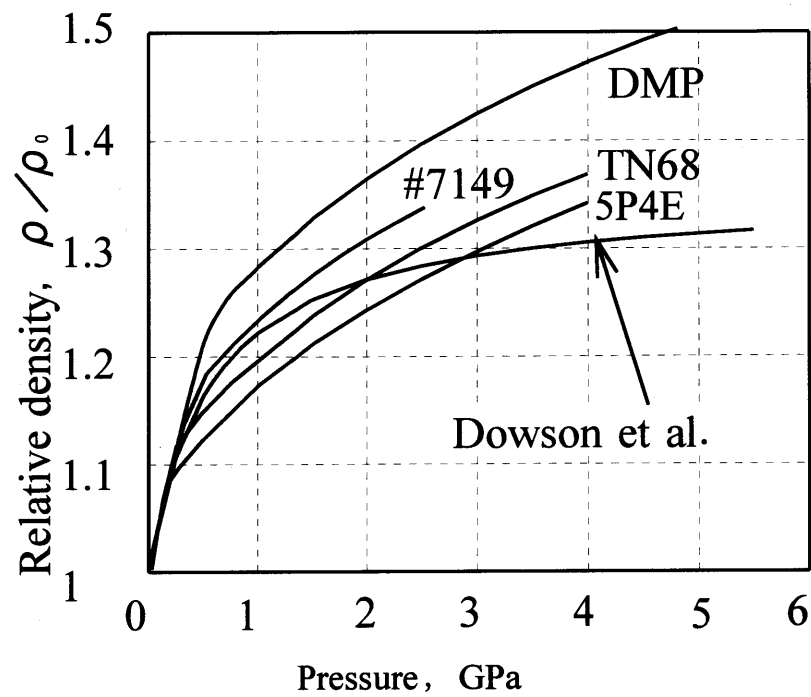


図 3-16 種々の油の圧力－相対密度関係

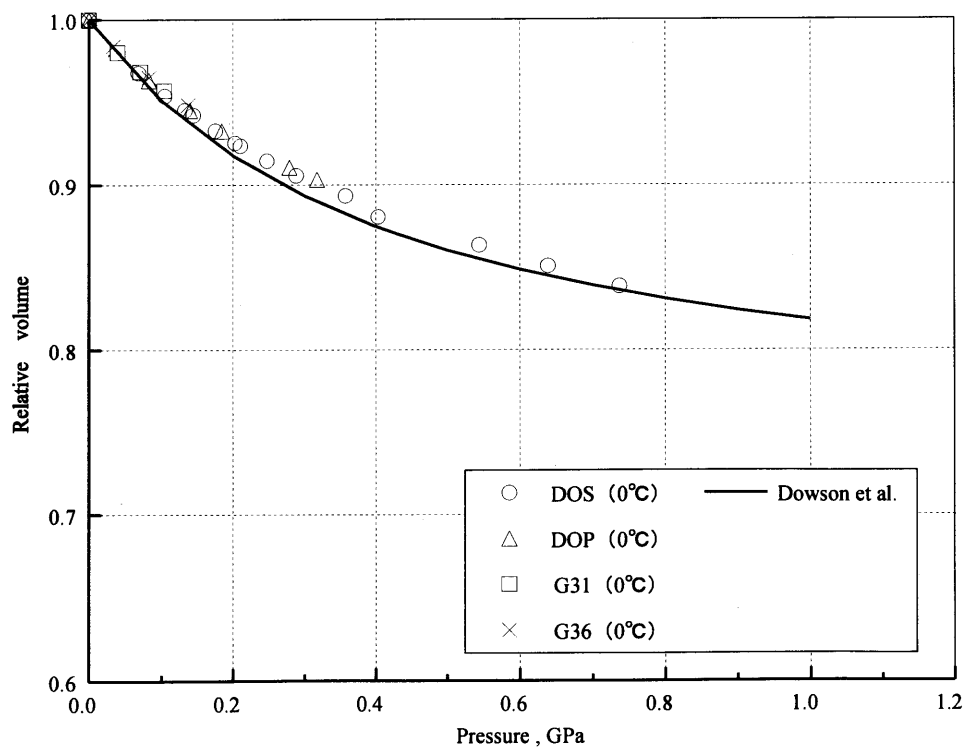


図 3-17 四つの油 (ASME の値) と Dowson らの値との比較 (0 °C)



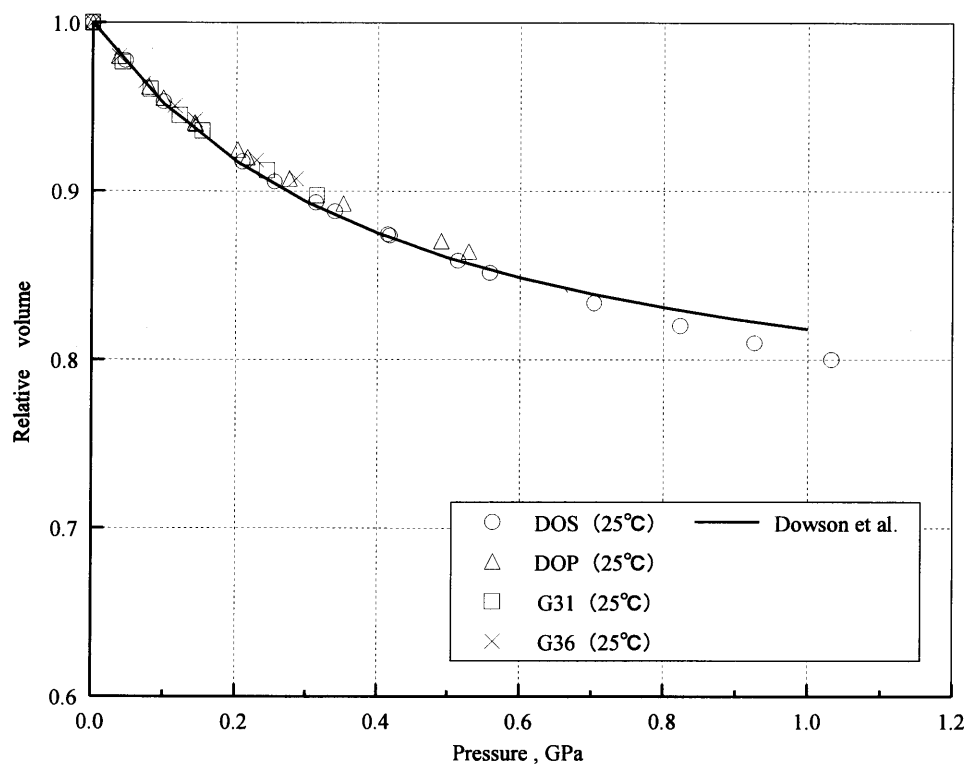


図 3-18 四つの油 (ASME の値) と Dowson らの値との比較 (25 °C)

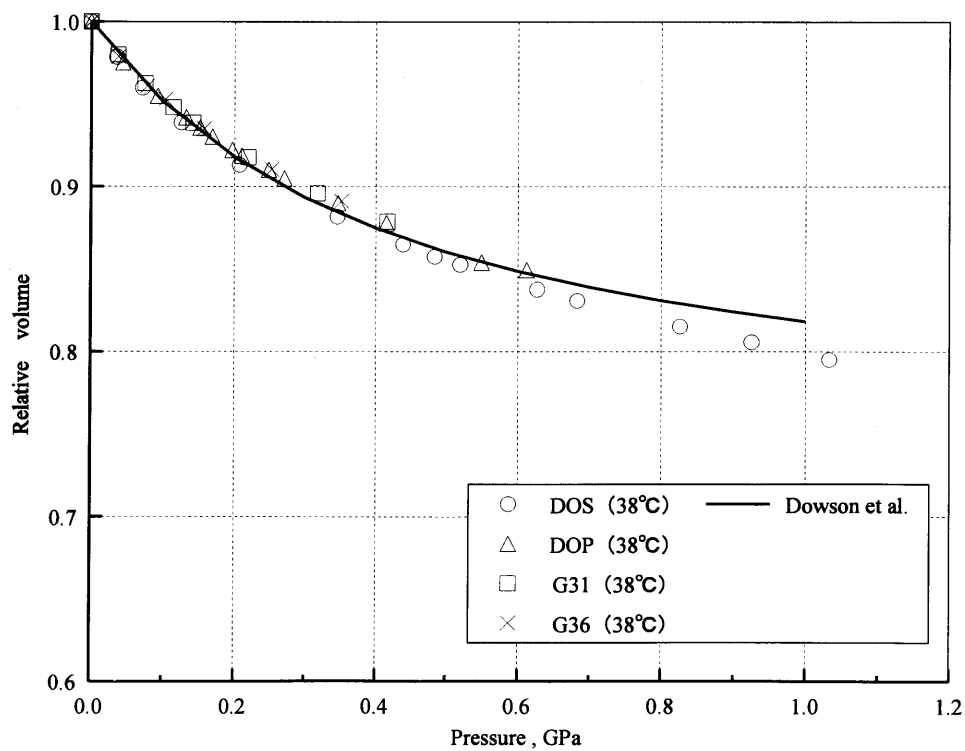


図 3-19 四つの油 (ASME の値) と Dowson らの値との比較 (38 °C)

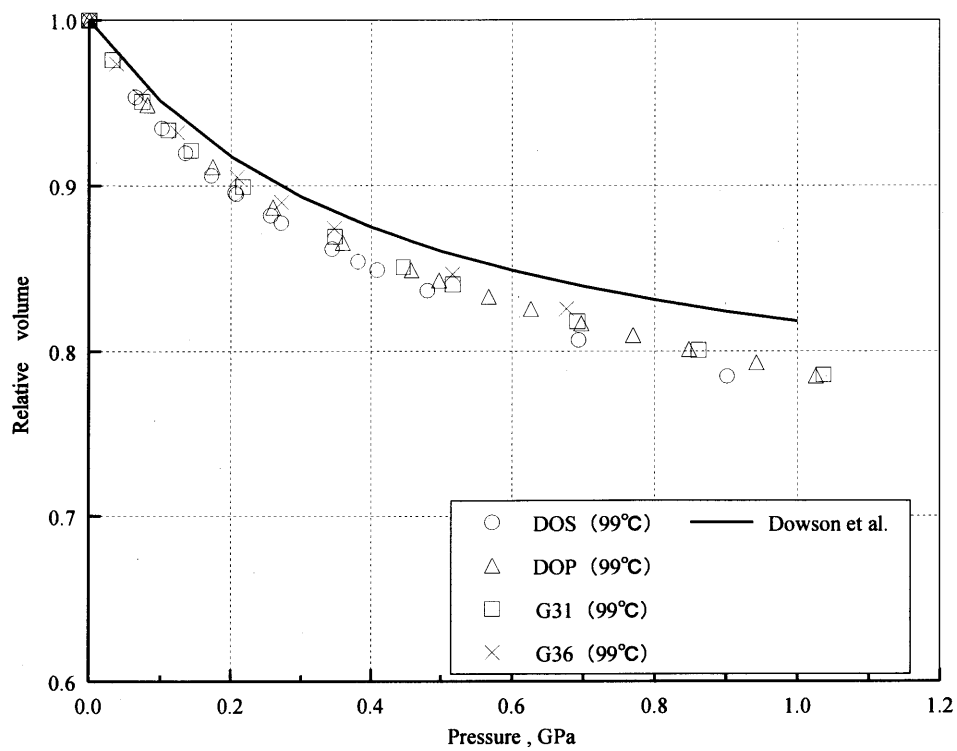


図 3-20 四つの油 (ASME の値) と Dowson らの値との比較 (99 °C)

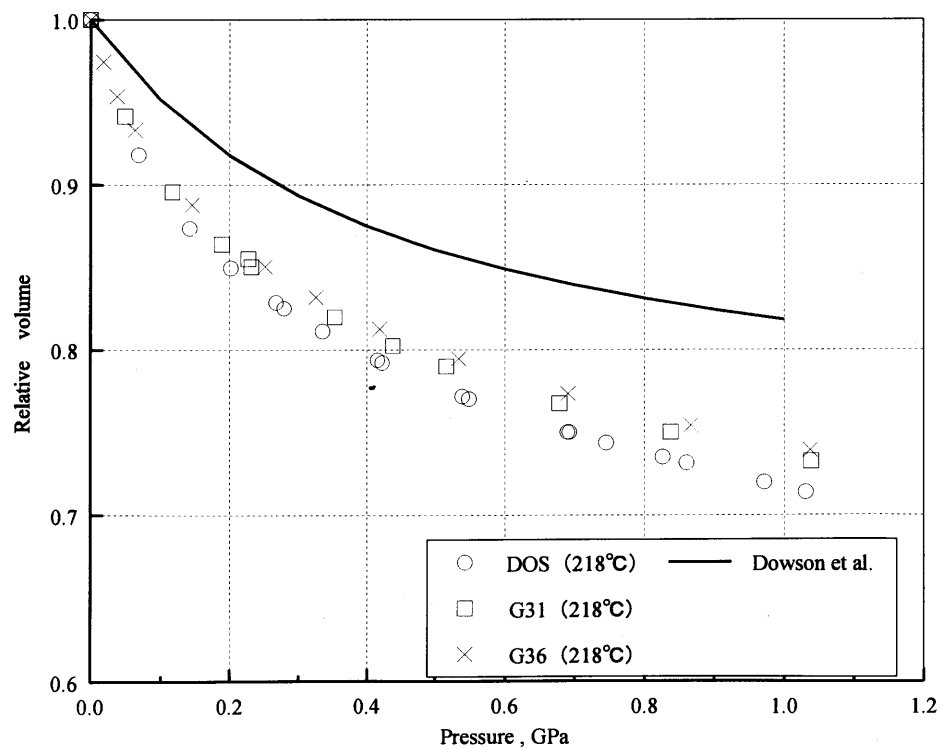


図 3-21 四つの油 (ASME の値) と Dowson らの値との比較 (218 °C)

### 3. 5 実験条件及び高圧粘度実測値からの圧力決定法

本研究では，本実験では，試料液体として直鎖状の分子構造を持つエステル油であるジオクチルセバケート (DOS)，合成鎖状油のポリアルファオレフィン (PAO4)，イソプロピルアルコール (iPA，別名 2 プロパノール)，n アミルアルコール (nAA，別名 1 ペンタノール)，n プロピルアルコール (nPA，別名 1 プロパノール) を用いた．試料油の物性を表 3-1 に，文献値による各試料油の係数を表 3-2 に，iPA，nAA，nPA における Bridgman と WLF 値の比較をそれぞれ図 3-22，3-23，3-24 に示す．以下に用いる実験番号は表 3-3 に基づくものである．

また試料液体を封入する圧力室を形成する金属板ガスケットとして，リン青銅 (PCu， $\phi 0.7$ ， $t 0.5$ ) を使用した．実験温度は通常 23 ～ 25 °C．DAC はダイヤモンドのコレット面の大きさが  $\phi 1.1$  の No.2 を用いた．

高圧粘度実測値からの圧力決定法は，粘度測定から求めた粘度と測定温度 (24 °C) から WLF 式 (2-28) を用いて圧力  $P$  を決定する．具体的には， $P$  の初期値を少しずつ変え測定粘度に収束した値を  $P$  とする．

表 3-1 試料液体の物性

Sample liquid	Density, g/cm <sup>3</sup>	Viscosity, mPa · s	Refractive index at atmospheric pressure
Diocetylsebacate(DOS)	0.912(25°C)	17.6(25°C)	1.448
poly- $\alpha$ -olefin(PAO4)	0.814(25°C)	24(25°C)	1.425
i-Propyl alcohol(iPA)	0.7887(25°C)	2.14(25°C)	1.380
n-Amyl alcohol(nAA)	0.804(24°C)	3.654(25°C)	1.410
n-Propyl alcohol(nPA)	0.805(24°C)	2.008(25°C)	1.384

表 3-2 文献値による各試料油の係数

Liquid	Ts(0)	A1	A2	B1	B2	C1	C2
DOS	-89.7	111.5	0.558	0.217	20.3	11.17	31.69
iPA	-165	134.36	0.899	0.092	101.743	11	26
nAA	-165	96.08	1.367	0.071	6.956	13.27	74.68
nPA	-165	118.18	0.729	0.043	164.509	12.48	54.22

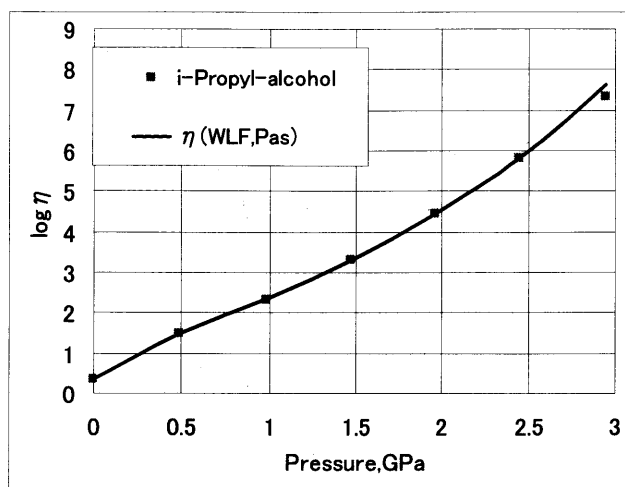


図 3-22 iPA における Bridgman と  
WLF 値の比較

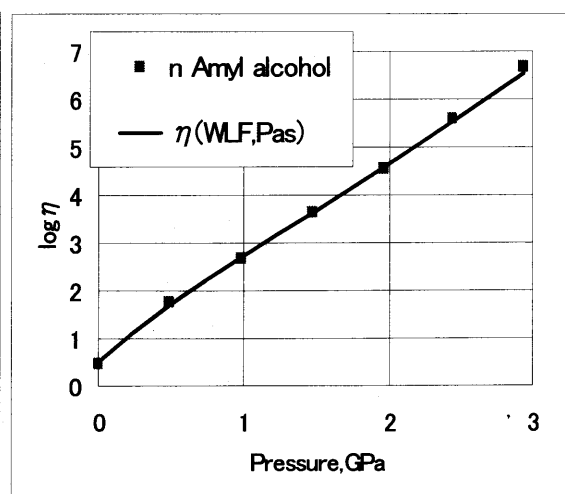


図 3-23 nAA における Bridgman と  
WLF 値の比較

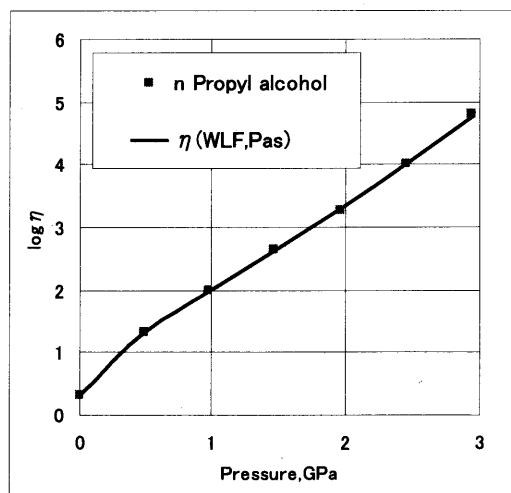


図 3-24 nPA における Bridgman と WLF 値の比較

表 3-3 実験条件

Exp. notation	DAC number Diamond size, mm	Sample liquid	Gasket		Sphere	
			Material	Initial size, mm	Material	Diameter, $\mu\text{m}$
DOS(5)	DAC No2 $\phi$ 1.1	DOS	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	61
DOS(6)	DAC No2 $\phi$ 1.1	DOS	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	61
iPA(1)	DAC No2 $\phi$ 1.1	iPA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	56
iPA(2)	DAC No2 $\phi$ 1.1	iPA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	58
iPA(3)	DAC No2 $\phi$ 1.1	iPA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	62
iPA(4)	DAC No2 $\phi$ 1.1	iPA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	62
nAA(1)	DAC No2 $\phi$ 1.1	nAA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	55
nAA(2)	DAC No2 $\phi$ 1.1	nAA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	60
nAA(3)	DAC No2 $\phi$ 1.1	nAA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	62
nPA(1)	DAC No2 $\phi$ 1.1	nPA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	59
nPA(2)	DAC No2 $\phi$ 1.1	nPA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	66
nPA(3)	DAC No2 $\phi$ 1.1	nPA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	68
nPA(4)	DAC No2 $\phi$ 1.1	nPA	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	53
PAO4(1)	DAC No2 $\phi$ 1.1	PAO4	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	54
PAO4(2)	DAC No2 $\phi$ 1.1	PAO4	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	65
PAO4(3)	DAC No2 $\phi$ 1.1	PAO4	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	58
PAO4(4)	DAC No2 $\phi$ 1.1	PAO4	Phosphor Bronze (PCu)	$\phi$ 0.7 t 0.5	Copper	53

### 3. 6 高圧粘度未知油の圧力決定法

高圧粘度未知油で3. 4で構築した圧力較正図から圧力を決定するには、図3-13のように圧力変化図にて空加圧ねじ回転角 $\theta_{dp}$ を決定する必要がある。決定手順をその構築過程とともに以下に示す。まず圧力未知のまま粘度測定をおこない、対数粘度と加圧ねじ回転角の関係図(対数粘度変化図)を作成し、常圧粘度に外挿して空加圧ねじ回転角 $\theta_{d\eta}$ を求める。 $\theta_{dp}$ と $\theta_{d\eta}$ の関係を見るため、圧力較正標準油の実験からの圧力変化図、対数粘度変化図の一例をそれぞれ図3-25、3-26に示す。両者間に若干の差異が見られ、回転角の差 $\Delta\theta_d(=\theta_{dp}-\theta_{d\eta})$ はDOSで約 $5^\circ$ (=50-45), KTF1で約 $-2^\circ$ (=50-52)と油種依存となっている。対数粘度変化図では勾配 $\beta(=\log \Delta\eta / \Delta\theta)$ も示してあるが、これが油種で異なることが $\Delta\theta_d$ の油種依存の原因と考えられる。そこで4つの試料油で $\beta$ と空加圧ねじ回転角の間の差 $\Delta\theta_d$ との関係図を作成し図3-27に示す。各点はそれぞれの油での数回の実験の平均値である。 $\Delta\theta_d$ は $\beta$ に対しほぼ直線的に低下しており相関があるといえ、この線図を用いて未知油での対数粘度変化図の勾配 $\beta$ から圧力較正に必要な $\theta_{dp}(=\theta_{d\eta}+\Delta\theta_d)$ 、 $\theta_{eff}(=\theta-\theta_{dp})$ を算出する。得られた $\theta_{eff}$ と室温の図3-15の圧力較正図より室温圧力を決定する。

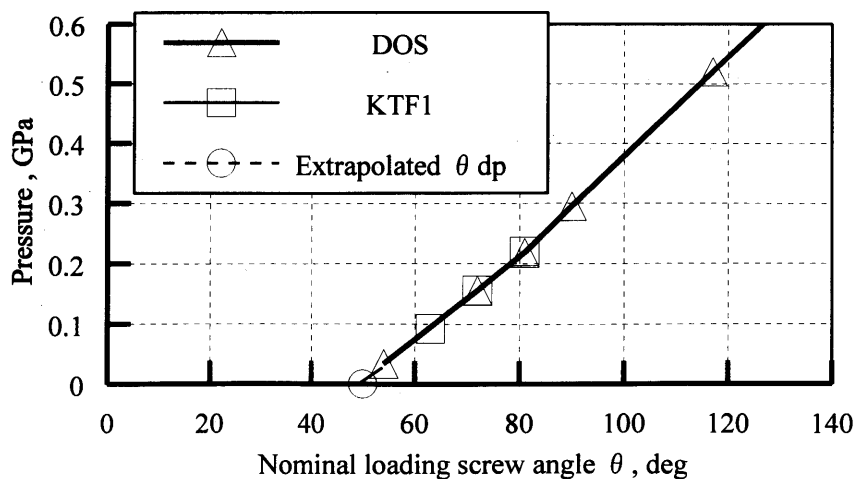


図 3-25 圧力から決定した空加圧ねじ回転角  $\theta_{dp}$

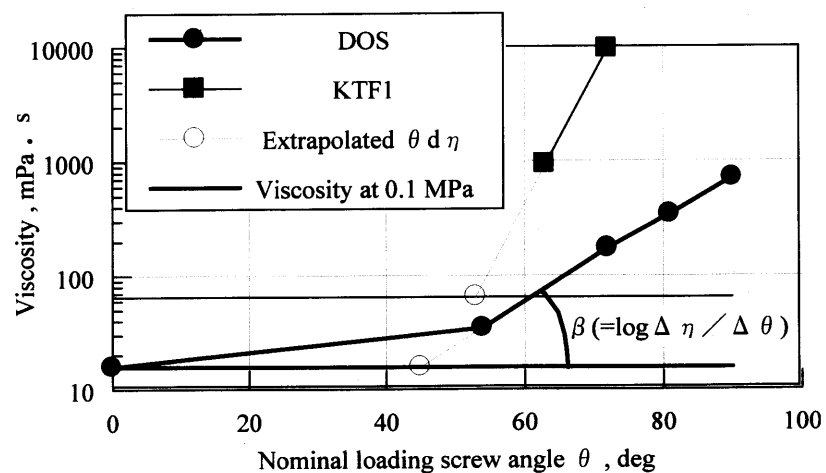


図 3-26 対数粘度から決定した空加圧ねじ回転角  $\theta d \eta$

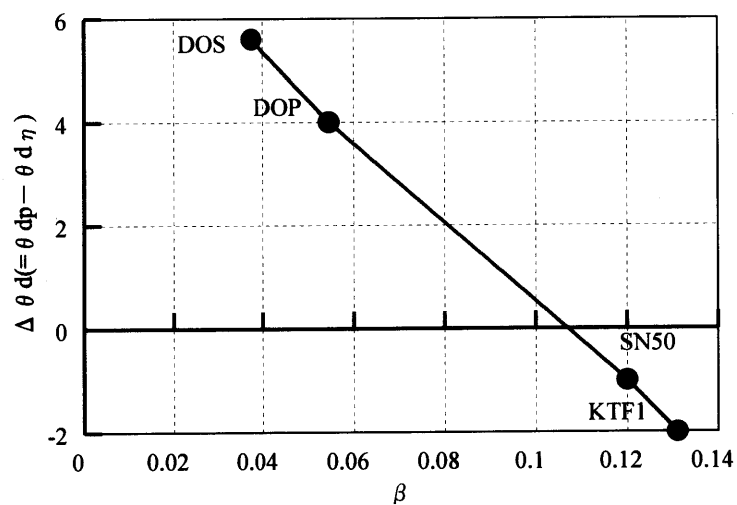


図 3-27  $\theta dp - \theta d \eta$  間の空加圧ねじ回転角の差  $\Delta \theta d$  と対数粘度勾配勾配  $\beta$  の依存

## 第4章 実験結果及び考察

### 4.1 既知液体としての空加圧ねじ回転角と粘度勾配

DOS, iPA, nPA, nAA を用いた実験の見かけの加圧ねじ回転角-圧力関係, 見かけの加圧ねじ回転角-粘度関係をそれぞれ図 4-1 ~ 4-8 に示す. さらに, PAO4 の見かけの加圧ねじ回転角-圧力関係, 見かけの加圧ねじ回転角-粘度関係を図 4-9, 4-10 に示す.

空加圧ねじ回転角を粘度及び圧力から求めたものを表 4-1 に示す. どの液体においても, 圧力変化図より求めた値と対数粘度変化図から求めた値で若干の差がある. 圧力変化図から求めた空加圧ねじ回転角の方が大きくなる傾向が見られる.

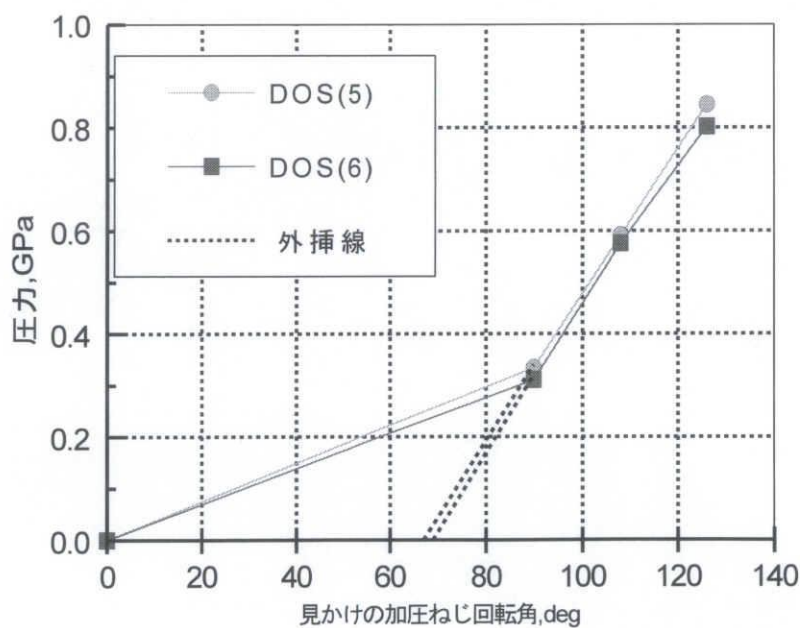


図 4-1 DOS の見かけの加圧ねじ回転角-圧力関係



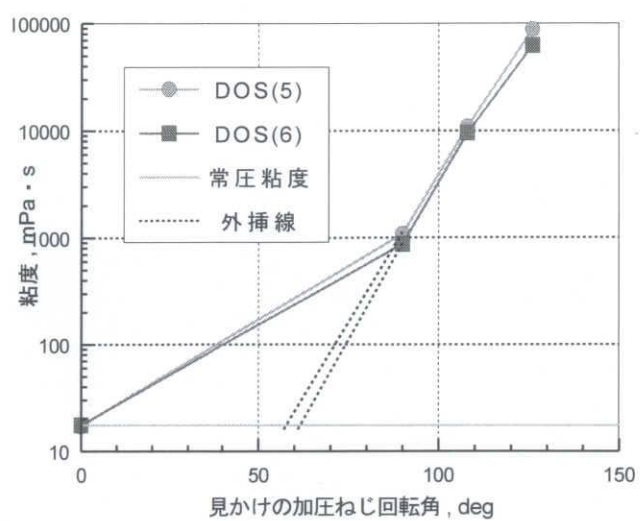


図 4-2 DOS の見かけの加圧ねじ回転角-粘度関係

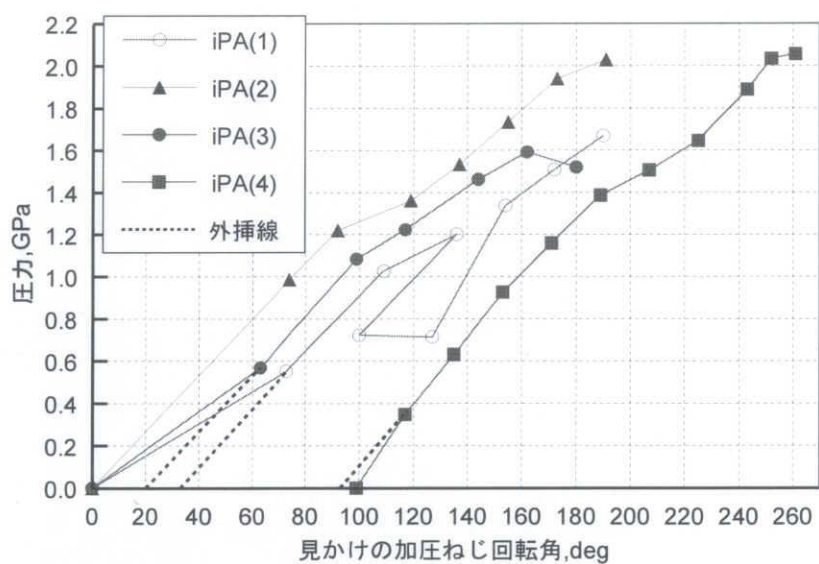


図 4-3 iPA の見かけの加圧ねじ回転角-圧力関係

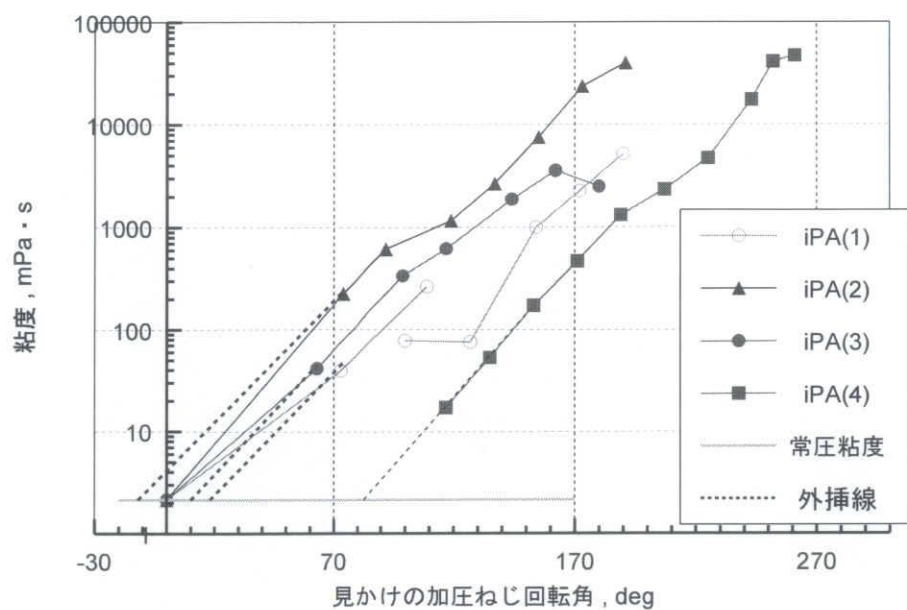


図 4-4 iPA の見かけの加圧ねじ回転角-粘度関係

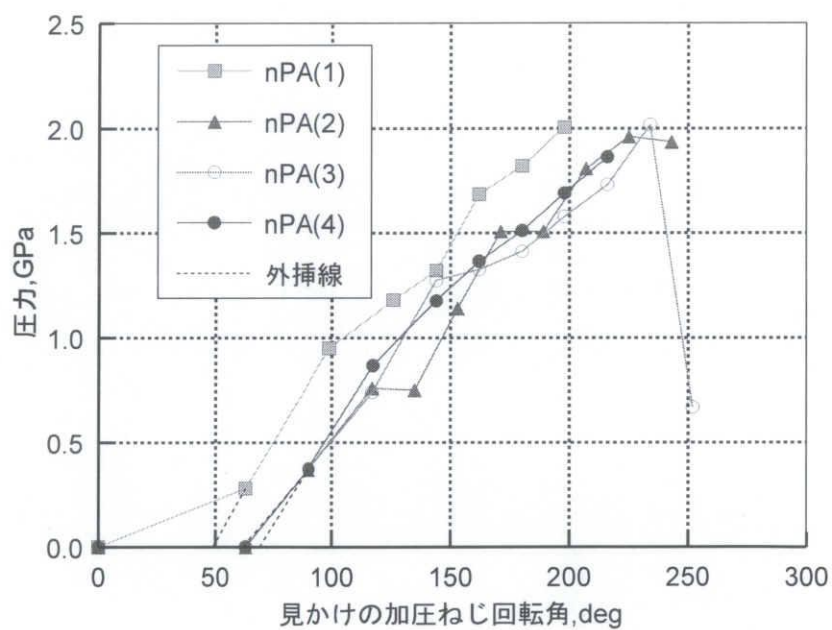


図 4-5 nPA の見かけの加圧ねじ回転角-圧力関係

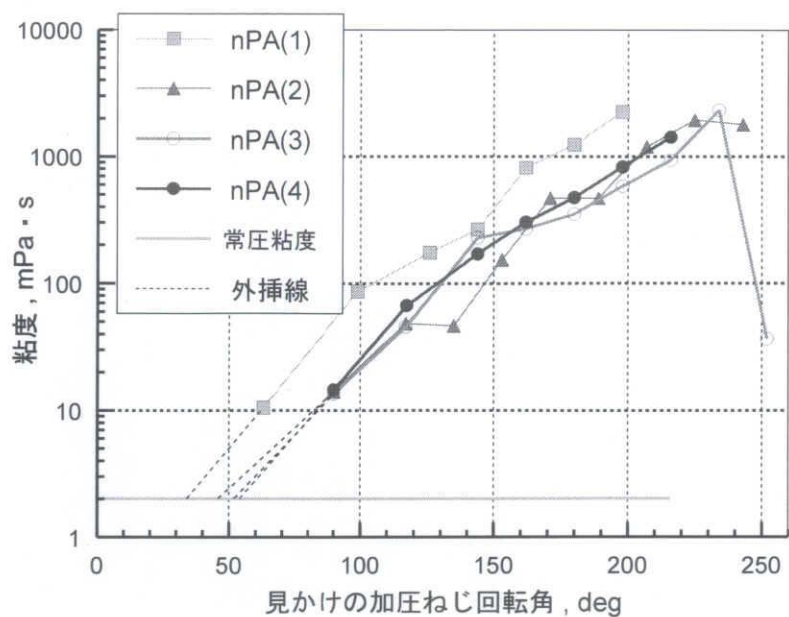


図 4-6 nPA の見かけの加圧ねじ回転角-粘度関係

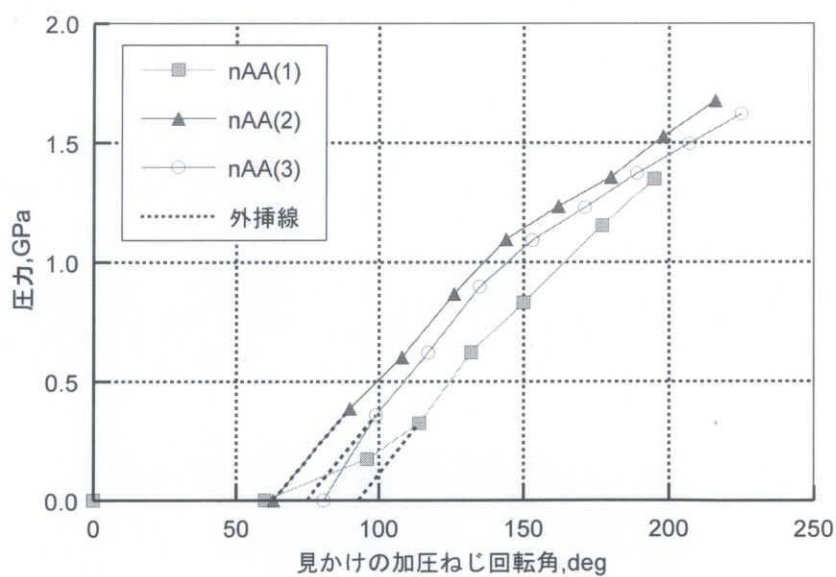


図 4-7 nAA の見かけの加圧ねじ回転角-圧力関係

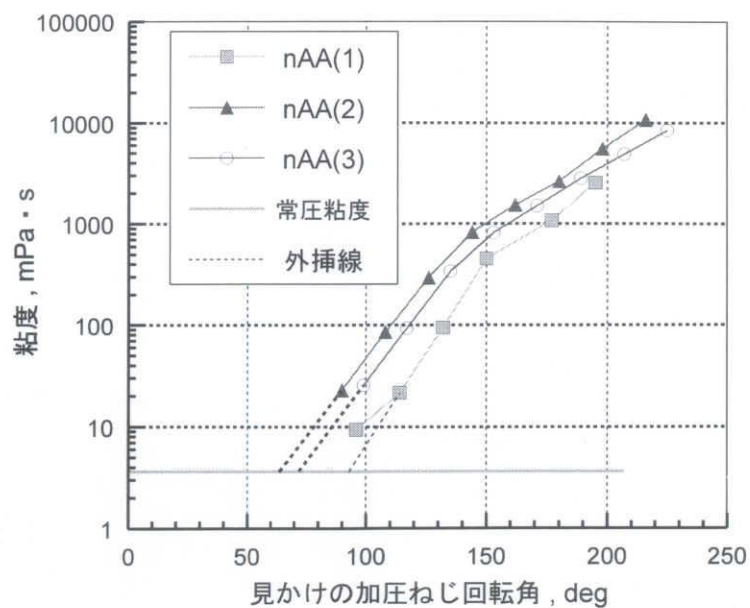


図 4-8 nAA の見かけの加圧ねじ回転角-粘度関係

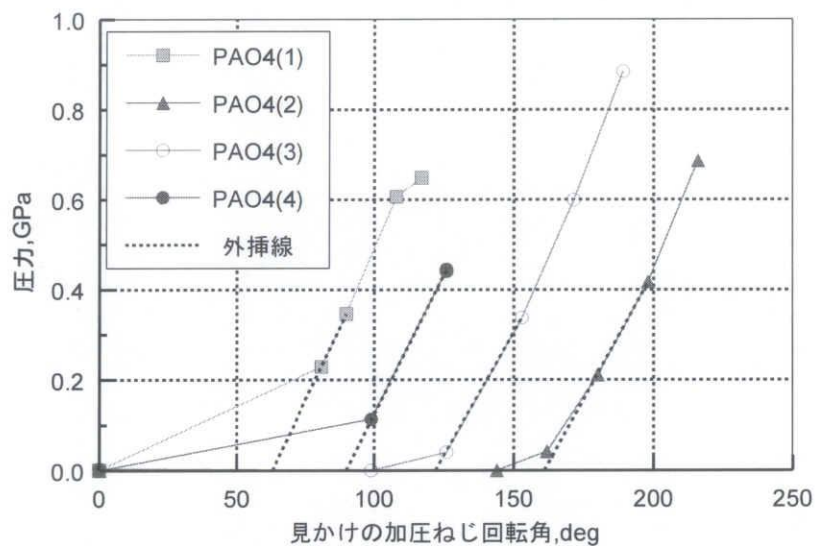


図 4-9 PAO4 の見かけの加圧ねじ回転角-圧力関係

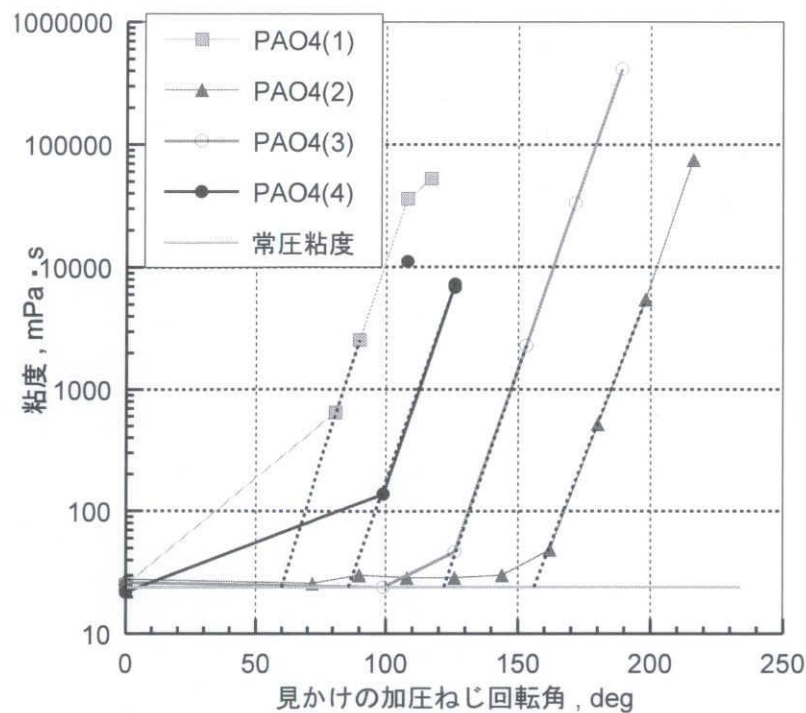


図 4-10 PAO4 の見かけの加圧ねじ回転角-粘度関係

表 4-1 それぞれの実験における空加圧ねじ回転角

実験番号	実験最終日	対数粘度勾配	空加圧回転角 $\theta_d$ , deg		差 $\theta_{dp} - \theta_{d\eta}$
			対数粘度からの 外挿値 $\theta_{d\eta}$	圧力からの 外挿値 $\theta_{dp}$	
DOS(5)	2006/9/21	0.053	57	67	10
DOS(6)	2006/10/16	0.056	61	69	8
平均		0.054			9.0
PAO4(1)	2006/11/21	0.065	59	63	4
PAO4(2)	2006/12/6	0.056	156	161	5
PAO4(3)	2007/7/10	0.065	122	122	0
PAO4(4)	2007/8/4	0.065	86	90	4
平均		0.062			3.3
iPA(1)	2006/12/21	0.023	18	33	15
iPA(2)	2007/1/17	0.024	-12	0	12
iPA(3)	2007/1/25	0.024	10	20	10
iPA(4)	2007/11/8	0.027	83	93	10
平均		0.025			11.8
nAA(1)	2007/3/28	0.036	93	93	0
nAA(2)	2007/10/2	0.027	64	63	-1
nAA(3)	2007/10/23	0.031	72	75	3
平均		0.031			0.7
nPA(1)	2007/4/6	0.026	34	49	15
nPA(2)	2007/4/23	0.021	46	62	16
nPA(3)	2007/5/22	0.023	52	62	10
nPA(4)	2007/6/15	0.022	54	69	15
平均		0.023			14.0

本研究の簡易圧力評価法では，空加圧ねじ回転角を決定する必要がある．実験により圧力と粘度の関係が明らかになっている既知液体については圧力変化図から空加圧角ねじ回転角を求めることができるが，粘度と圧力関係がわからない未知液体については対数粘度の変化から空加圧ねじ回転角を求める必要がある．

しかし，表 4-1 のように，圧力から外挿した空加圧角  $\theta_{dp}$  と対数粘度から外挿した空加圧角  $\theta_{d\eta}$  の間には差があるため，その差  $\theta_{dp} - \theta_{d\eta}$  を補正することができれば圧力評価の精度を高めることができる．

本研究室のこれまでの実験により，各油の補正角  $\theta_{dp} - \theta_{d\eta}$  と対数粘度の勾配  $\log \Delta\eta / \Delta\theta$  との間に相関関係のある可能性が報告されている[23]．この相関関係が確認できれば，データの蓄積によって未知油の補正角を推測することができるようになる．

図 4-11，表 4-2 に対数粘度勾配と補正角の関係を示す．圧力室体積が大きい場合，DAC No.3 を用いた実験結果の方が粘度勾配は小さく， $\theta_{dp} - \theta_{d\eta}$  は同等か大きくなることが予想される．同種の油は一種しかないが，勾配の予想を裏付ける結果を得ることができた．さらに，まだ精度において課題は残るが，圧力から外挿した空加圧角  $\theta_{dp}$  と対数粘度から外挿した空加圧角  $\theta_{d\eta}$  との差に一定の傾向があることを示唆している．まだ厳密な補正角が得られるものではないが，空加圧角の決定においての精度向上には有効だと思われる．ただしこの結果を元に角度の補正を行う際には，圧力室体積などの実験条件を同じにする必要があるとともに，SN50 のデータは一つしかない点に注意する．

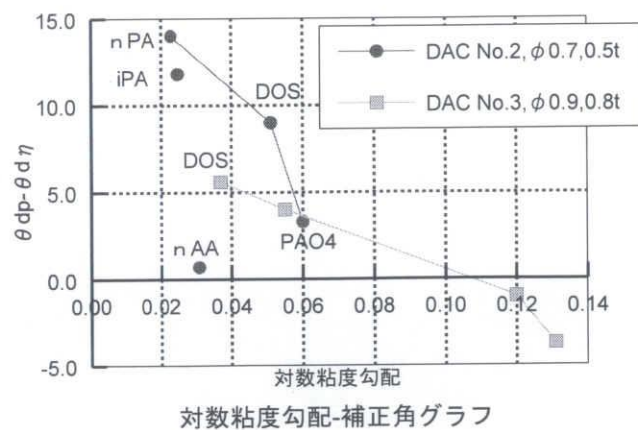


図 4-11 対数粘度勾配と補正角の関係

表 4-2 対数粘度勾配と補正角の関係

		勾配	補正角	有効データ数
DAC No. 2 φ 0.7, 0.5t	nAA	0.031	0.7	3
	PAO4	0.060	3.3	4
	DOS	0.051	9.0	2
	nPA	0.023	14.0	4
	iPA	0.025	11.8	4
DAC No. 3 φ 0.9, 0.8t	KTF1	0.131	-3.7	3
	SN50	0.120	-1.0	1
	DOP	0.055	4.0	3
	DOS	0.037	5.6	5



#### 4. 2 DOS, iPA を既知液体としての圧力校正図

DOS 及びイソプロピルアルコール (iPA) の圧力と有効加圧ねじ回転角の関係を図 4-12 に示す. iPA (1) の実験では, 加圧過程で球がガスケットに貼り付いたため一度減圧を行い再度加圧した.

iPA の実験で圧力校正図を 2GPa 程度まで求めた結果, 除荷過程を含む四つの実験でほぼ再現性が見られた. iPA (3) の実験では 1.5GPa あたりから圧力が低下しているが, これはガスケットの変形が進み, ダイヤモンド面と圧力室の間に隙間ができそこから圧力がもれたと考えられる. 一方 iPA (4) の圧力が若干高めになっているのは, 表 4-1 にあるように実験時期が他の三つと異なり, 種々の実験条件が異なるためと考えられる.

iPA を用いた実験結果は 0.8GPa までの DOS の圧力校正図に一致し, 試料液体としてアルコールを用いた場合でも, 加圧ねじ回転角と逆算圧力の関係は液種によらず一定となった. 1.2GPa 付近から勾配がゆるくなっているのは, ちょうどその付近で圧力室が大きく変形したためだと考えられる.

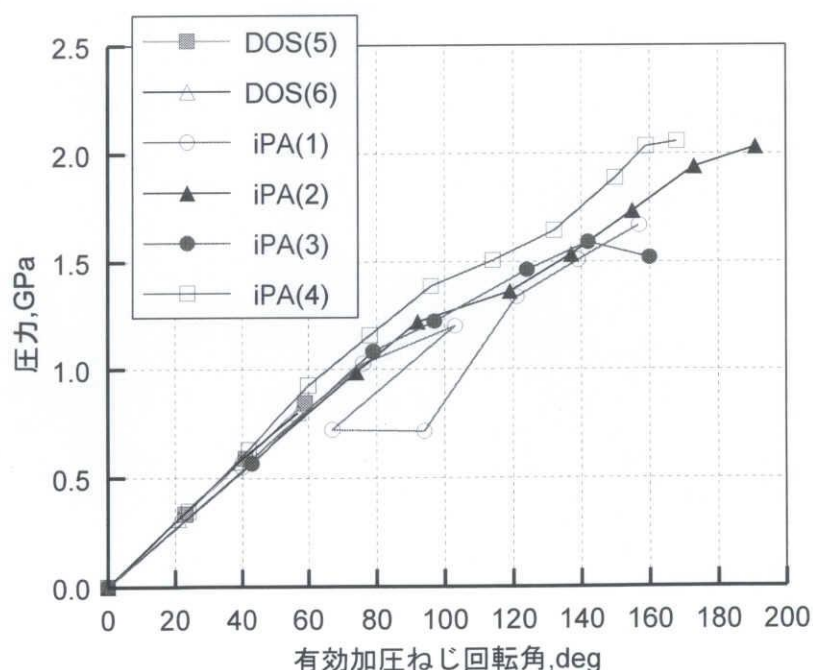


図 4-12 iPA の有効加圧ねじ回転角-圧力関係



#### 4. 3 未知液体としての高圧粘度評価

空加圧ネジ回転角から有効加圧ねじ回転角を求め、図 4-12 の DOS, iPA の圧力較正図から PAO4 の圧力を推定した。なお、iPA は実験 (1) ~ (3) の平均値を用いた。推定した圧力と粘度の関係を図 4-13 に示す。PAO4 (4) の結果に見られるローランズの式から離れた一点は、球がはりついて動かなくなったため減圧した事によるものと考えられる。

また、同様に図 4-12 を用いて、低粘度の液体として nAA (n アミルアルコール), nPA (n プロピルアルコール) を未知油として粘度測定を行った。PAO4 では圧力に対して粘度が低い値を示しているのに対して、アルコールの圧力-粘度関係を示した図 4-14, 4-15, 4-16 では、同等か逆に圧力に対して粘度が高く出る傾向にある。理由としては、加圧によってガスケットの変形が進むことで圧力室の形状が複雑化し、圧力室体積の精度が低下することなどが考えられる。現在圧力室の直径は外円と内円の直径の平均で求めているが、実際には端が崩れながら円弧状のせり出しが発生していると思われる。そのため、高圧になるにつれて、実際には圧力がもう少し高い値を示す可能性がある(せり出しの端は形が崩れていくため、逆に低い値を示す可能性もある)。

なお、50  $\mu$  m 前後のより小さい球を使用した実験では、ガスケットやダイヤモンド面に球がはりついて動かなくなる問題がよく起こるようになった。対策としては、 $\phi$  1.2 を超える直径の大きなダイヤモンドを使った DAC を使用し、圧力室と球直径を大きくすることができれば、高圧下における問題を軽減することができる可能性がある。ただしその場合、較正図や 4. 1 で述べた補正角は、新しい条件に合わせて決定する必要がある。

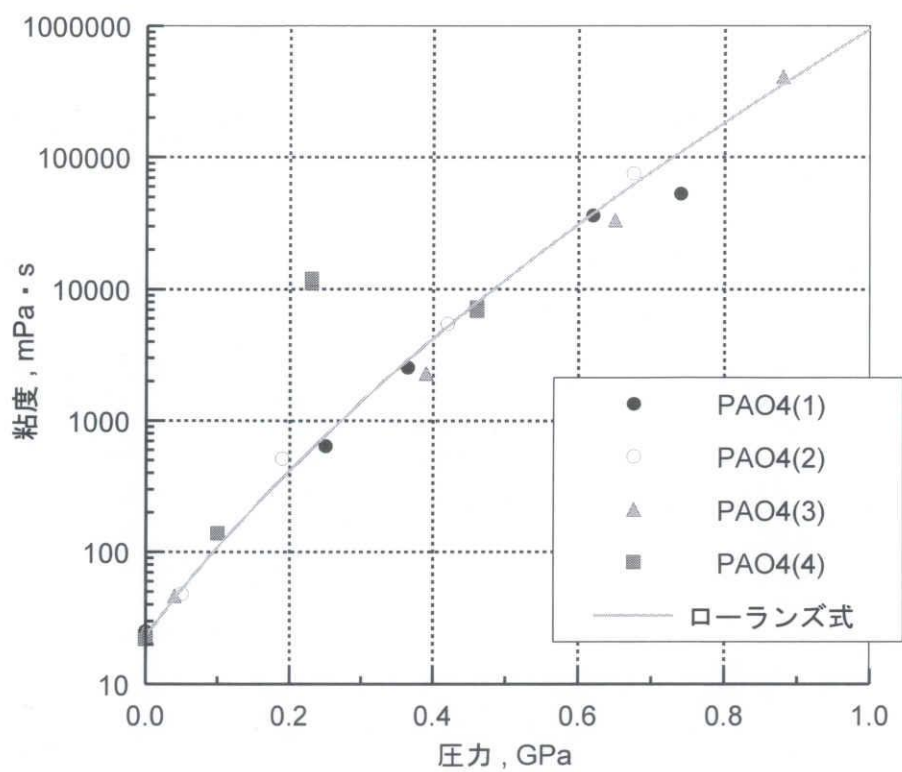


図 4-13 PAO4 の圧力-粘度関係

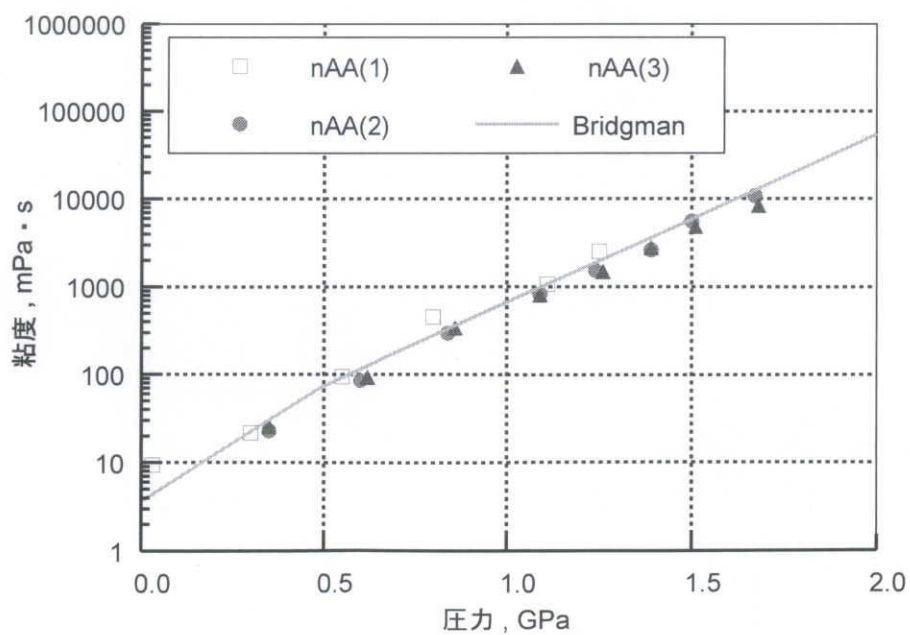


図 4-14 nAA の圧力-粘度関係

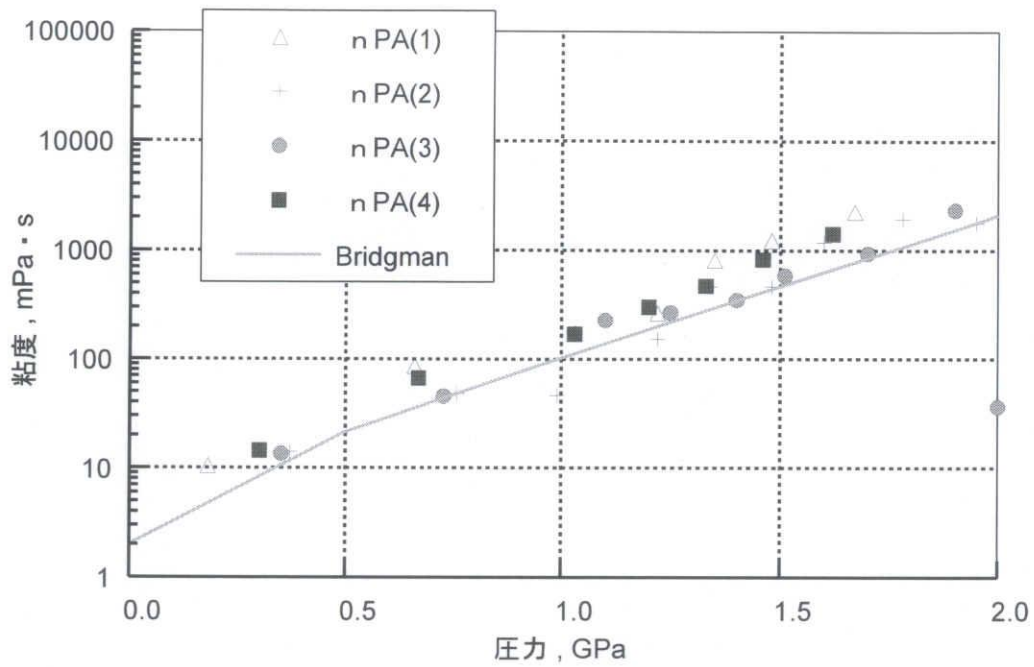


図 4-15 nPA の圧力-粘度関係

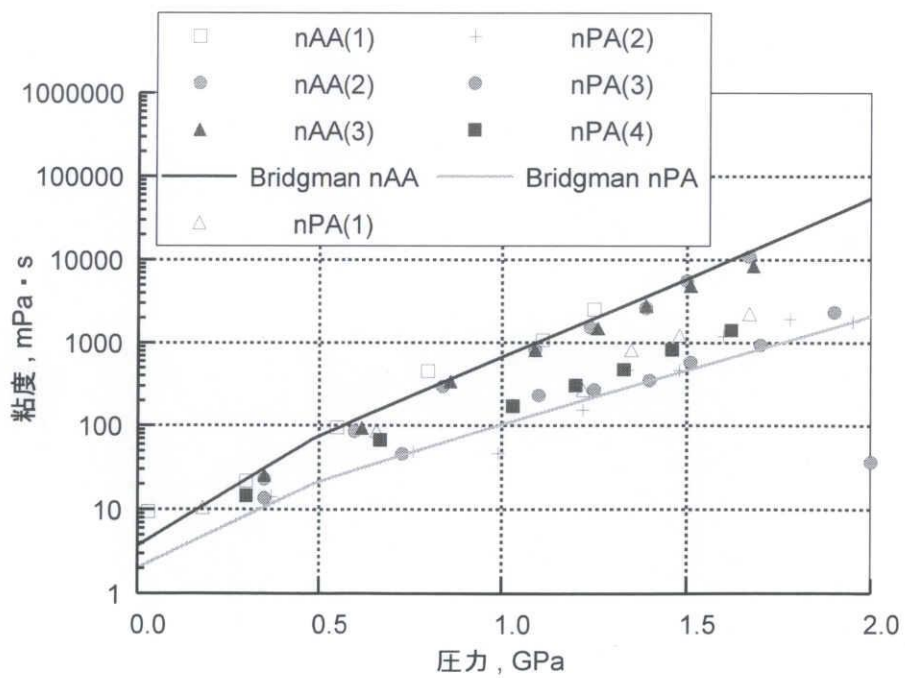


図 4-16 nAA, nPA の圧力-粘度関係

#### 4. 4 全試料液体を既知液体としての圧力較正図

nAA, nPA, PAO4 の各試料液体を既知液体として測定し、有効加圧ねじ回転角と逆算した圧力との関係(圧力較正図)をあらわしたのが図 4-17, 4-18, 4-19 である。そして、それぞれの試料液体から 1 本ずつ代表の実験を選んでを表示したものが図 4-20 になる。代表の実験を選ぶ基準は、圧力の不自然な上下がなく高圧まで測定できたことである。

図を見ると、nPA の圧力が 0.1GPa 程度高いが、四本とも同様の勾配を示している。最高圧の値には差があるが、それはこれらの実験で、最高圧(2GPa)が近づいてくるとガスケットが変形に耐えられなくなって圧力がもれてしまったり、液体が固化してしまったりする場合があるためである。図 4-21, 4-22 に nAA が固化した際の圧力室の写真を示す。

図 4-21 の実験は、加圧前の状態で Bridgman のデータから逆算した圧力が 1.676GPa, 固化も圧力もれもせずに加圧できた場合、1.82GPa 程度の圧力が発生するはずであった。そして図 4-22 の実験は、加圧前の状態で圧力 1.620GPa, 加圧できた場合は 1.75GPa 程度の圧力が発生するはずであった。素早く加圧を行うことで、液体の固化が起こりにくくなる可能性がある。

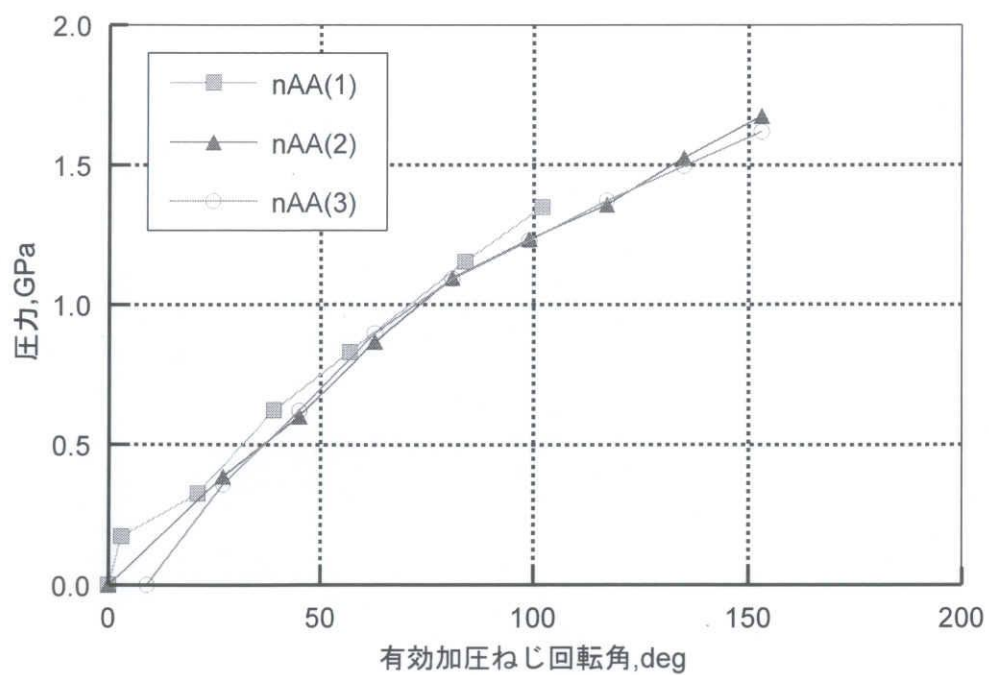


図 4-17 nAA の有効加圧ねじ回転角-逆算圧力関係

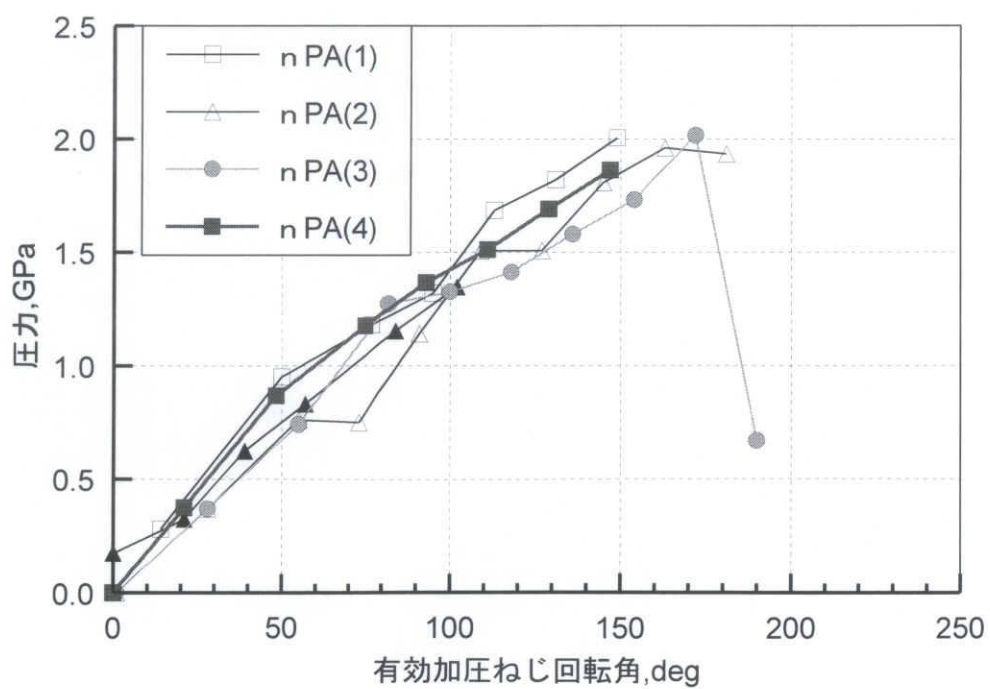


図 4-18 nPA の有効加圧ねじ回転角-逆算圧力関係

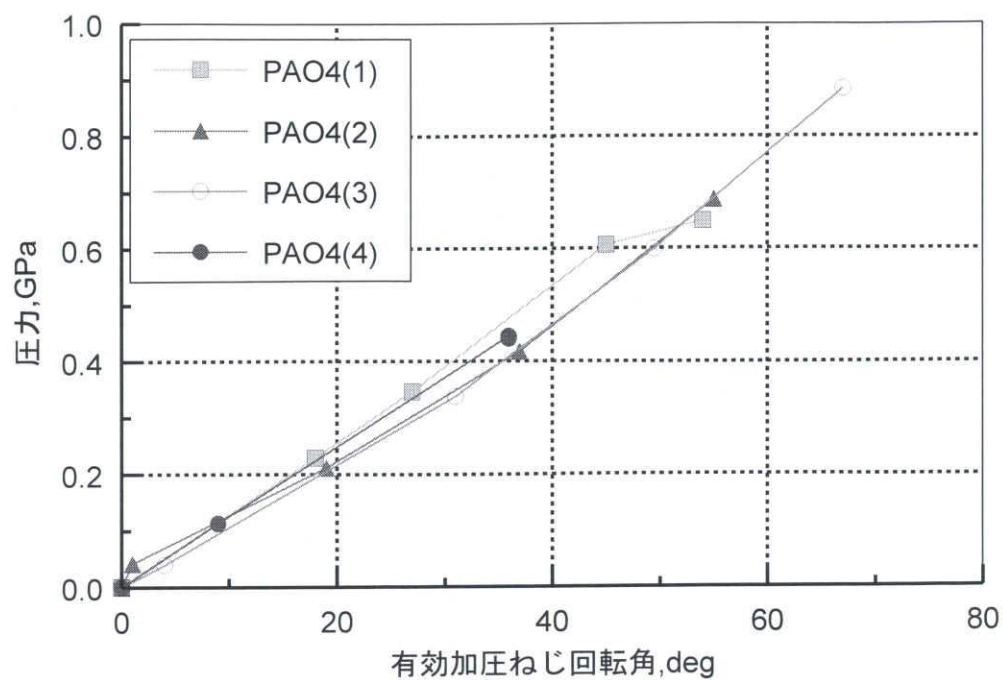


図 4-19 PAO4 の有効加圧ねじ回転角-逆算圧力関係

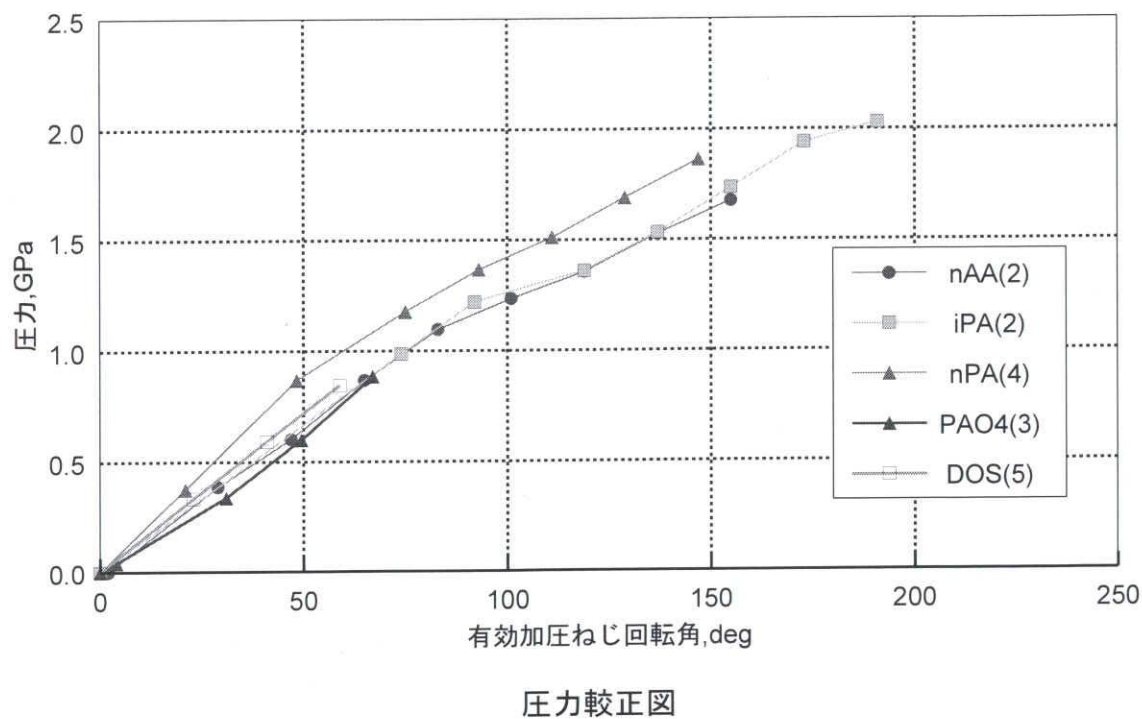


図 4-20 各試料液体から 1 実験ずつを抜粋した圧力較正図



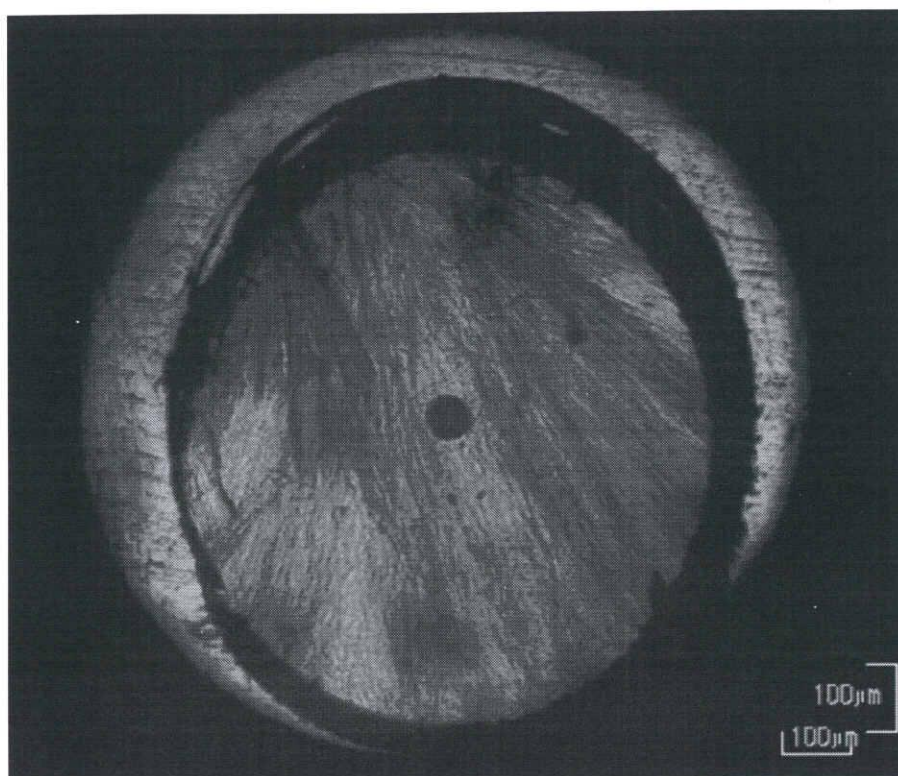


図 4-21 nAA (2) で 1.82GPa 前後を目標に加圧した際の圧力室



図 4-22 nAA (3) で 1.75GPa 前後を目標に加圧した際の圧力室

球が落下する際に壁からうける影響を表す壁係数の変化をまとめたものが図 4-23 である。加圧によって圧力室が小さくなるほど、壁係数が、0.8 から徐々に減少している。最高圧付近で圧力漏れが発生しない限りは、実験の最初から最後まで同じ傾向で壁係数が変化しているのがわかる。

また、圧力-ガスケット厚さ(圧力室の厚さ)の関係を図 4-24 に、圧力-ガスケット穴直径(圧力室の直径)の関係を図 4-25 に示す。これらを見ると、圧力 1.2GPa 付近からグラフの勾配が変わっていることがわかる。これは上で述べた、圧力室の急激な変形によって 1.2GPa 付近から圧力上昇の勾配がゆるくなるという考えを裏付けるものである。

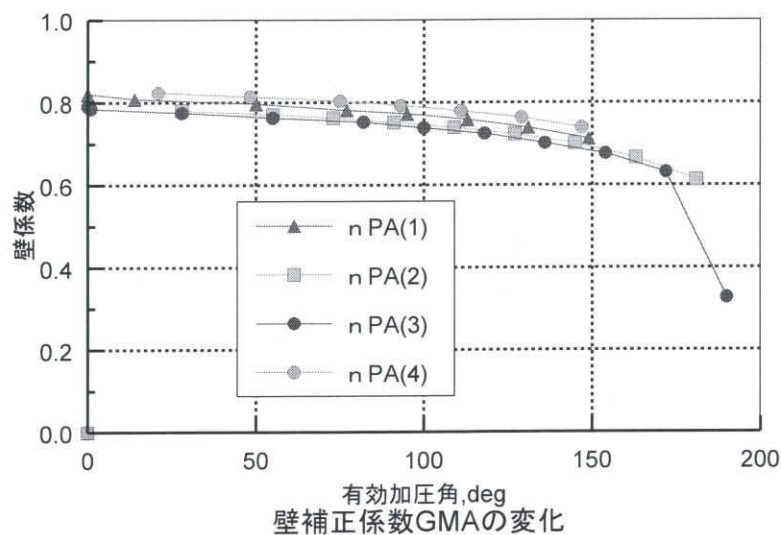


図 4-23 有効加圧ねじ回転角-壁係数関係



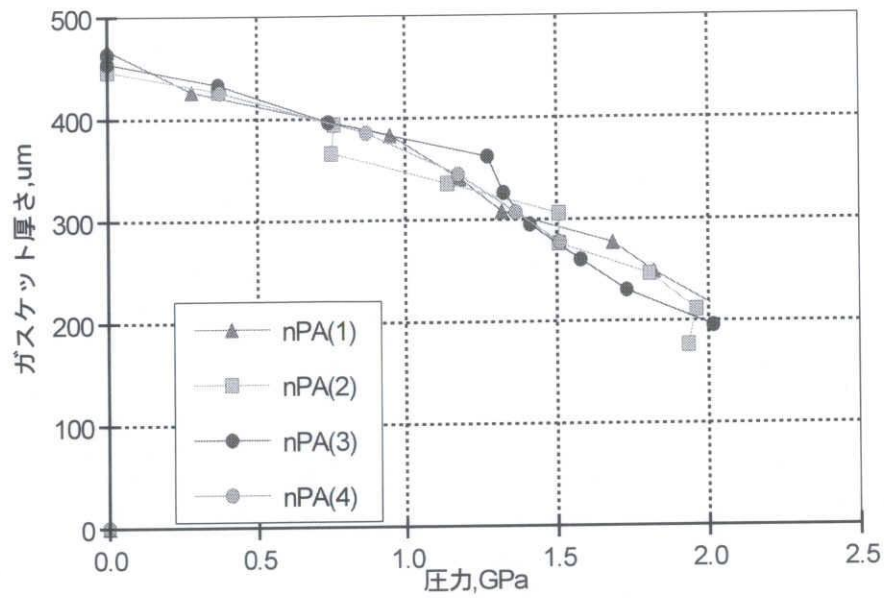


図 4-24 圧力-ガスケット厚さ関係

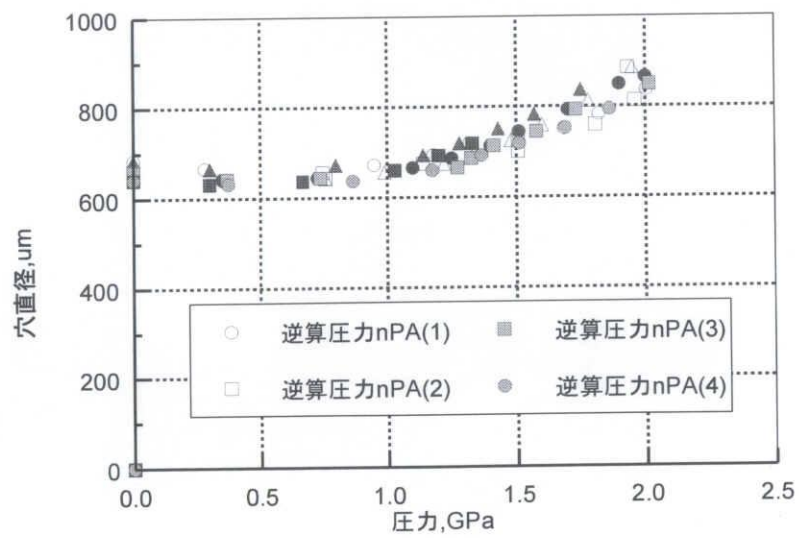


図 4-25 圧力-穴直径関係

## 第 5 章 結 論

すでに確立されている 0.8GPa までの潤滑油の簡便な高圧粘度測定法を 2GPa まで拡張するため，Bridgman による高圧粘度データのあるアルコール類などを用いた基礎実験を行った．結果を以下にまとめる．

- (1) 空加圧ねじ回転角の再現実験において，従来のデータに比べばらつきが大きかった．これは本装置ではアルコール類の低圧，低粘度のデータ測定が不可能なことによると考えられる．また，2GPa に達した実験は少なく実験条件の変更が必要である．
- (2) エステル油の DOS，イソプロピルアルコールを既知液体として求めた 2GPa までの圧力較正図は両液体間で一致し，再現性も確認することができた．
- (3) 他のアルコールを未知液体として，既知液体としての空加圧ねじ回転角と上記の圧力較正図を用いて 2GPa までの高圧粘度を評価した結果，ばらつきながらも 2GPa まで Bridgman の値とほぼ一致した．このことは，本法が 2GPa まで拡張可能であることを示す．ただし未知油にて空加圧ねじ回転角を求めるためには，(1) よりその再現性向上が必要と考えられる．

## 謝 辞

最後に，本研究を遂行するにあたり始終懇切丁寧なご指導を賜った中村裕一准教授，松井正仁准教授に深く感謝いたします．そして，数多くの御協力をいただいたナノプロセッシング研究室・村井健一技術専門員に心からお礼申し上げます．さらに，実験に際し数多くのご協力をいただいた田中祐介氏，岩崎辰哉氏ならびにナノプロセッシング研究室諸氏に心からお礼申し上げます．

## 参考文献

- (1) Y.Okamoto : Numerical Analysis of Lubrication in a Journal Bearing by a Thermelastohydrodynamic Lubrication (TEHL) Model, Int. J. Engine Res., 6 (2005) 95.
- (2) C. R. Evans & K. L. Johnson : Regimes of Traction in Elastohydrodynamic Lubrication, Proc. Instn. Mech. Eng., 200, C5 (1986) 313.
- (3) 大野信義・服部信祐・桑野則行・平野富士夫：高圧下の限界せん断とトラクション特性(第1報)，潤滑，33，12(1988) 922.
- (4) Y. Nakamura, M. Tsunoda, T. Matsui & I. Fujishiro : Evaluation of High Viscosity of Solidified Lubricants at High Pressure by Rayleigh Light Scattering and Photon Correlation Technique, JSME Int. J., C, 44, 1 (2001) 237.
- (5) 中村裕一・三田和之・松保英紀：2GPa，200℃までのトラクション油の高圧粘度測定，トライボロジスト，50，4(2005) 354.
- (6) Y. Nakamura, I. Fujishiro & Y. Masui : High-Pressure Viscoelastic Measurement of Lubricants by Stress Relaxation, JSME Int. J., III, 33, 2 (1990) 206.
- (7) Y.Nakamura, I. Fujishiro, K. Nishibe & H. Kawakami : Measurement of Physical Properties of Lubricants under High Pressure by Brillouin Scattering in a Diamond Anvil Cell, ASME J. Trib. 117 (1995) 519.
- (8) 中村裕一・伊藤貴司・松井正仁：ダイヤモンドアンビルセル高圧装置の簡易圧力評価法確立と潤滑油の高圧粘度測定，トライボロジスト投稿中．
- (9) P.W.Bridgman, VISCOSITIES TO 30,000 kg/cm<sup>2</sup>, Proc. Am. Acad. Arts. Sci.,77(1949) p.124.
- (10) アイリング：絶対反応速度論(下)，吉岡書店，(1964)，p.496.
- (11) 中村 健太，村木 正芳：低粘性 EHL 油膜の熱的分析，トライボロジー会議予稿集，(2004-5)，181-182.
- (12) 通商産業省工業技術院編，特別研究報告集，日本産業技術振興協会，(1983)，p.177.
- (13) S.Yasutomi,他2名，Trans.ASME,J.Trib,106(1984) 291.
- (14) 安富 清治郎：潤滑油のレオロジー，潤滑，32，6，(1987)，p.394.
- (15) Scott Bair・Jacek Jarzynski・Ward O. Winer：The temperature, pressure and time dependence of lubricant viscosity ,Tribology International 34 (2001) 461-468.
- (16) 中村裕一・三田 和之・松保 英紀：2GPa,200℃までのトラクション油の

- 高圧粘度測定, トライボロジスト, 50, 4 (2005), 354-359.
- (17) 中村 裕一: 高圧粘度とトラクション特性, トライボロジスト, 46, 5, (2001), p.369.
- (18) 松弘 智: 昭和 59 年度修士論文 (三重大学工学部) (1985).
- (19) 藤城ら: 機械学会論文集, 53-494, (1987), p.2121.
- (20) R.G.Munro・S.Block・G.J.Piermarini, "Wall Effects in a Diamond-Anvil Pressure-Cell Falling-Sphere Viscometer," J.Appl. Phys., Vol.50, No.5, (1979), p.3180.
- (21) 奈良 俊樹: 平成 17 年度修士論文 (三重大学工学部) (2005).
- (22) 中村・黒崎・大野: 潤滑油の高圧レーザー光散乱測定と力学特性評価 (第 5 報), 日本機械学会論文集 (C 編), 68,673 (2002).
- (23) 伊藤 貴司: 平成 18 年度修士論文 (三重大学工学部) (2006).

付録1 粘度算出プログラム (yn.n 粘度計算 (nPA) 常圧 .mcd)

球落下法 黄緑色：各実験で変更 ピンク：各セッティングで変更 黄色：油で変更

実験番号 (油名など) = PA04 (2)

PMA := 0

圧力 (MPa)

$n_0 := 1.43$

常圧屈折率 1.45

トラクション油 1.5

$$A := \frac{53.16}{2}$$

球半径 ( $\mu\text{m}$ )

$$L1 := \frac{331.28}{2}$$

圧力室厚さ/2 ( $\mu\text{m}$ )

屈折率1の時

$$\text{REF1} := \frac{(n_0)^2 - 1}{(n_0)^2 + 2} + \frac{0.0005 \cdot \text{PMA}}{1 + 0.0017 \cdot \text{PMA}} \cdot \frac{(n_0)^2 - 1}{(n_0)^2 + 2}$$

$$R := \frac{665.36}{2}$$

ガスケット穴半径 ( $\mu\text{m}$ )

$$\text{REF} := \frac{\sqrt{2 \cdot \text{REF1} + 1}}{\sqrt{1 - \text{REF1}}}$$

T := 273 + 24

温度 (K)

V0 := 2.008

常圧粘度 (mPas)

L := REF · L1

REF = 1.43

高圧屈折率

ROLO1 := 0.8053

常温試料油密度 (g/cm<sup>3</sup>)

KTF1のみ 0.96

L = 236.865

圧力室厚さ/2 ( $\mu\text{m}$ )

$$\text{AL} := \frac{A}{L}$$

AL = 0.112

ROS := 8.471534

球密度 (g/cm<sup>3</sup>)

$$\text{ROLO} := \text{ROLO1} \cdot \frac{1}{1 + 6.61210^{-4} \cdot (T - 297)}$$

$$\text{ROL} := \text{ROLO} \cdot \left( 1 + 0.00059 \cdot \frac{\text{PMA}}{1 + 0.0017 \cdot \text{PMA}} \right)$$

高圧試料油密度

ROL = 0.805

(g/cm<sup>3</sup>)

ROLO = 0.805

SEC := 0.03

(s)

落下時間

DIV := 99.44

( $\mu\text{m}$ )

$$V := \frac{\text{DIV}}{\text{SEC}}$$

V = 3.31510<sup>3</sup>

( $\mu\text{m/s}$ )

$$\text{GAL1} := (1 - 1.695\text{AL} + 2.719\text{AL}^2 - 4.359\text{AL}^3 + 2.195\text{AL}^4 + 0.140\text{AL}^5)$$

$$\text{GAL2} := \exp(-2.719\text{AL}^2)$$

$$\text{GAL} := \text{GAL1} \cdot \text{GAL2}$$

$$\text{AAL} := 1.197 - 1.344\text{AL} + 0.313\text{AL}^2$$

$$\text{LGAL} := 1 - \text{AL} - \text{GAL}$$

$$\text{GMA} := \text{LGAL} \cdot \left[ 1 - \exp\left(-\text{AAL} \cdot \left(\frac{R}{L} - 1\right)\right) \right] + \text{GAL}$$

GMA = 0.837

$$\text{VISa} := \frac{(\text{ROS} - \text{ROL}) \cdot 9.812 \cdot A^2}{9 \cdot V}$$

VISa = 3.562

見かけの粘度

$$\text{VIS} := \text{GMA} \cdot \text{VISa}$$

VIS = 2.981

(mPas)

$$\text{ALPHA} := \frac{\ln\left(\frac{\text{VIS}}{V0}\right)}{\text{PMA} \cdot 10^{-3}}$$

ALPHA =

1/GPa

付録2 WLF式による圧力算出プログラム  
(WLF-DOS-室温.mcd)

T0 := -89.7      A1 := 111.5      A2 := 0.558  
B1 := 0.217      B2 := 20.32      C1 := 11.17      C2 := 31.69

P := 0, 0.04, 0.32    圧力 (GPa)

T := 24      温度 (°C)

$\eta_{REF} := 10^7 \text{ Pa} \cdot \text{s}$

$TP(P) := T0 + A1 \cdot \ln(1 + A2 \cdot P)$

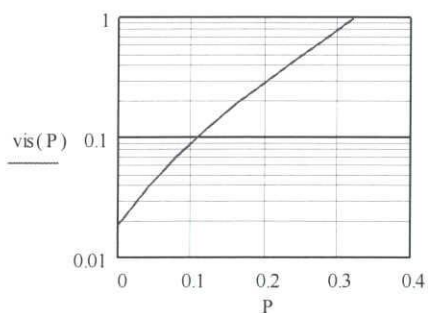
$FP(P) := 1 - B1 \cdot \ln(1 + B2 \cdot P)$

$\log \eta(P) := \log(\eta_{REF}) - \frac{C1 \cdot (T - TP(P)) \cdot FP(P)}{C2 + (T - TP(P)) \cdot FP(P)}$

$\eta(P) := 10^{\log \eta(P)}$   
pp := 0.721 (GPa)    P     $\eta(P)$   
 $\eta(pp) = 32.305 \text{ (Pa} \cdot \text{s)}$   
ALPHA :=  $\frac{\ln \left( \frac{\eta(pp)}{\eta(0)} \right)}{pp}$   
ALPHA = 10.362  
1/GPa

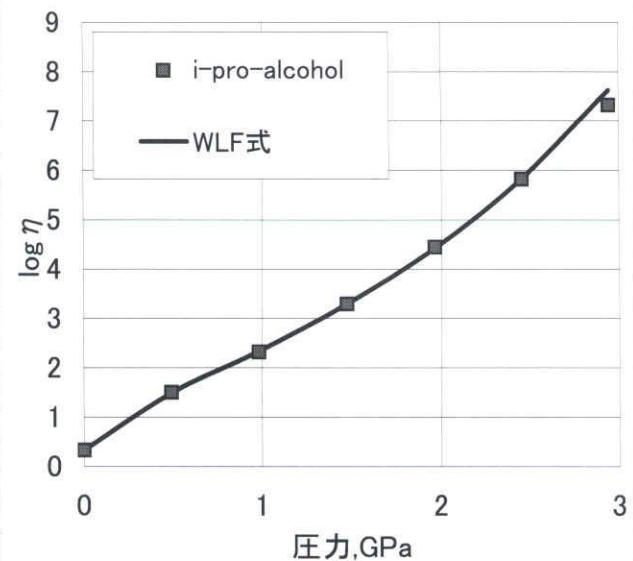
P	$\eta(P)$
0	0.018
0.04	0.038
0.08	0.069
0.12	0.115
0.16	0.183
0.2	0.283
0.24	0.43
0.28	0.642
0.32	0.948

粘度 (Pa·s)



## iPA BridgmanWLF圧力逆算プログラム

	Mug/Pas	Tgo/C	A1/C	A2/1/GPa	B1	B2/1/GPa	C1	C2/C				
			114.52	0.292	0.117	31.630	11.47	14.69				
DOS	10 <sup>7</sup>	-89.7	111.50	0.558	0.217	25.300	11.17	31.69				
SN50	10 <sup>7</sup>	-54.7	76.77	3.348	0.282	17.47	10.96	26.59				
i-pro-alcohol	10 <sup>7</sup>	-165	134.36	0.899	0.092	101.743	11.00	26.00				
i-pro-alcohol			156.5249	2.29036956	0.781255	10.9634581		5.25752299				
$\eta$ (exp)/ $\eta$ (WLF)			in Pa.s	log $\eta$ (exp)	log $\eta$ (WLF)			$\eta$ (WLF, Pas)				
error	T, C	p/GPa	$\eta$ (exp)	mPas	mPas	square error	重み					
	24	0										
	24	0.4905										
0.99948238	24	0	0.002138	0.3300077	0.330233	5.0561E-08		0.00213911				
1.0282261	24	0.4905	0.031478	1.49800768	1.485919	0.00014613	1	0.03061393				
0.95580154	24	0.981	0.208933	2.32000771	2.33964	0.00038543	1	0.21859488				
0.99070678	24	1.4715	1.949879	3.2900077	3.294063	1.6442E-05	1	1.96816981				
1.044171	24	1.962	27.92593	4.4460077	4.427236	0.00035237		26.744598				
0.98413306	24	2.4525	660.7052	5.8200077	5.826954	4.8249E-05		671.357553				
0.49286348	24	2.943	20701.78	7.3160077	7.623281			42003.0724	15.17356	0.472271		
						0.00094868						
		逆算圧力 入力(Gpa)						比較する粘 度(mPas)				
	24	0.981	0.208933	2.32000771	2.33964	0.00038543	1	218.595	104.0297	0.573278		



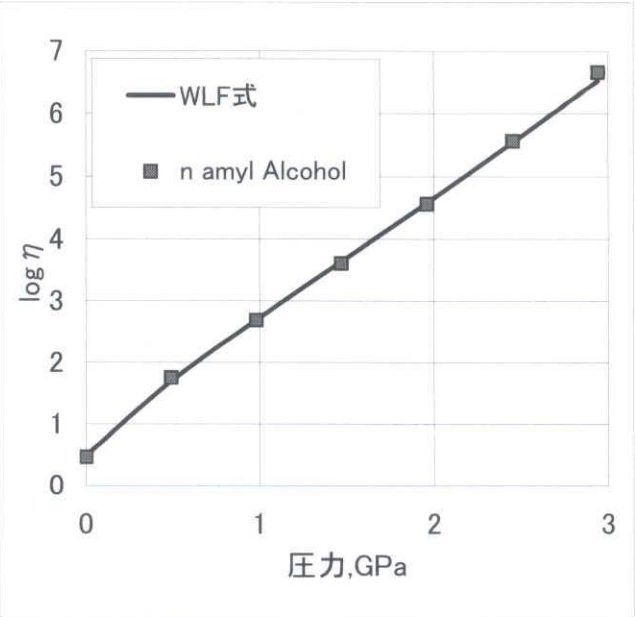


nAA BridgmanWLF圧力逆算プログラム

	Mug/Pas	Tgo/C	A1/C	A2/1/GPa	B1	B2/1/GPa	C1	C2/C
i-pro-alcohol	0	-165	114.52	0.292	0.117	31.630	11.47	14.69
DOS	10^7	-89.7	134.36	0.899	0.092	101.743	11.00	26.00
SN50	10^7	-54.7	111.50	0.558	0.217	25.300	11.17	31.69
n-amyl Alcoh	10^7	-165	76.77	3.348	0.282	17.47	10.96	26.59
			96.08	1.367	0.071	6.956	13.27	74.68

n-amyl Alcohol ( 1 ペンタノール ) 156.525 2.29037 0.78125 10.9635 5.25752

$\eta$ (exp)/ $\eta$ (WLF)		in Pa.s		$\log \eta$ (exp)		$\log \eta$ (WLF)		$\eta$ (WLF,P
error	T, C	p/GPa	$\eta$ (exp)	mPas	mPas	square err	重み	
	24	0						
	24	0.4905						
0.94338313	24	0	0.00291	0.4633	0.48861	0.00064		0.00308
1.1410052	24	0.4905	0.05666	1.7533	1.69601	0.00328	1	0.04966
0.98631186	24	0.981	0.48674	2.6873	2.69328	3.6E-05	1	0.49349
0.93811417	24	1.4715	4.10483	3.6133	3.64104	0.00077	1	4.37562
0.94904671	24	1.962	36.249	4.5593	4.58201	0.00052		38.1951
1.05871035	24	2.4525	365.844	5.5633	5.53852	0.00061		345.556
1.34702758	24	2.943	4521.64	6.6553	6.52592			3356.75
						0.00586		33.9133 0.78102



逆算圧力  
入力(Gpa)

24 1.347

比較する  
粘度

1 2525

0.20893 2.32001 3.40227 1.1713 88.6582 0.83299

nPA BridgmanWLF圧力逆算プログラム

	Mug/Pas	Tgo/C	A1/C	A2/1/GPa	B1	B2/1/GPa	C1	C2/C
i-pro-alcohol	0	-165	114.52	0.292	0.117	31.630	11.47	14.69
DOS	10 <sup>7</sup>	-89.7	134.36	0.899	0.092	101.743	11.00	26.00
SN50	10 <sup>7</sup>	-54.7	111.50	0.558	0.217	25.300	11.17	31.69
n-propyl alco	10 <sup>7</sup>	-165	76.77	3.348	0.282	17.47	10.96	26.59
			118.18	0.729	0.043	164.509	12.48	54.22

n-propyl alcohol(1プロパノール) 156.5249 2.29036956 0.781255 10.9634581 5.25752299

$\eta$ (exp)/ $\eta$ (WLF) error	T, C	p/GPa	in Pa.s $\eta$ (exp)	log $\eta$ (exp) mPas	log $\eta$ (WLF) mPas	square error	重み	$\eta$ (WLF, Pas)
0.99836906	24	0	0.002008	0.30276371	0.303473	5.0252E-07		0.00201128
0.98672854	24	0.4905	0.020738	1.31676373	1.322566	3.3667E-05	1	0.02101677
1.02646794	24	0.981	0.096998	1.98676372	1.975418	0.00012872	1	0.09449707
1.02104884	24	1.4715	0.42733	2.63076371	2.621717	8.1839E-05	1	0.41852094
0.95051534	24	1.962	1.856794	3.26876371	3.290805	0.0004858		1.95346024
1.02731995	24	2.4525	10.25094	4.01076371	3.999058	0.00013702		9.97833287
1.10281846	24	2.943	63.49854	4.80276371	4.76026			57.5784118

0.00086755

逆算圧力  
入力(Gpa)

24

1.934

0.208933

2.32000771

3.251691

0.8680344

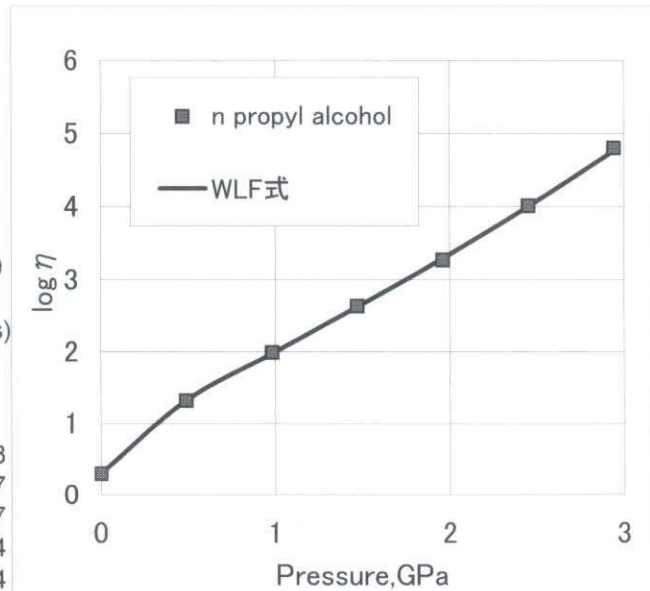
比較する粘  
度(mPas)

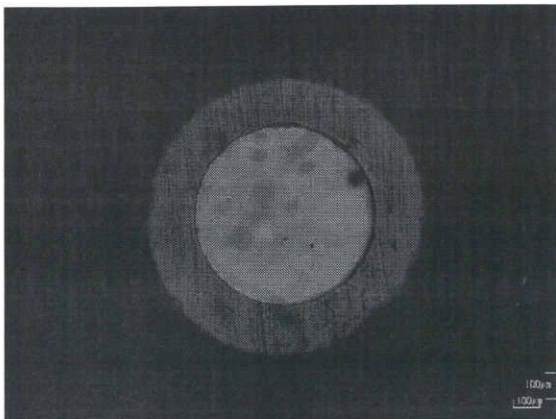
1

1785.22

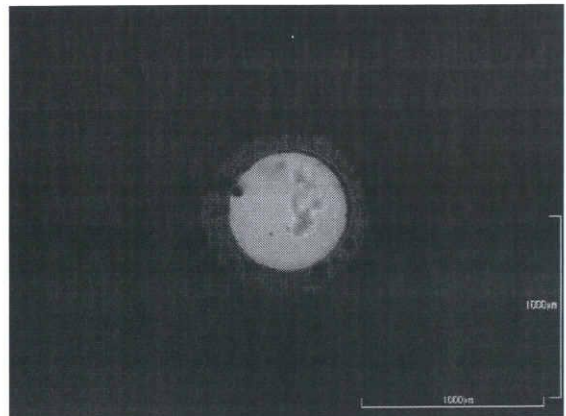
85.04349

0.750892

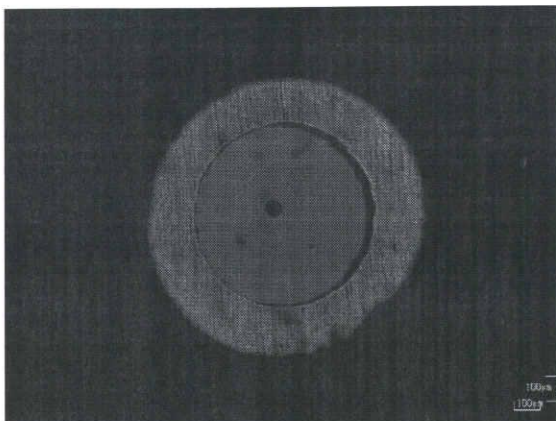




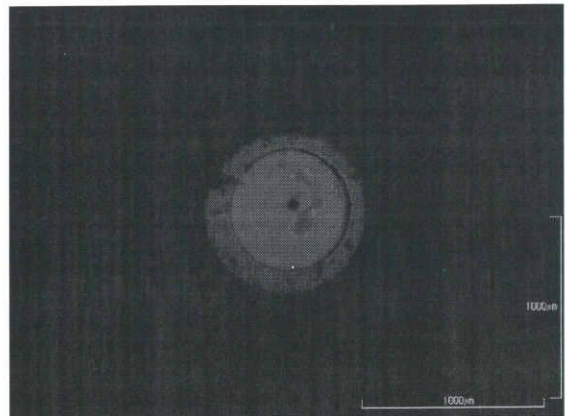
060905D0Sダイヤモンド5PCu常圧表. JPG



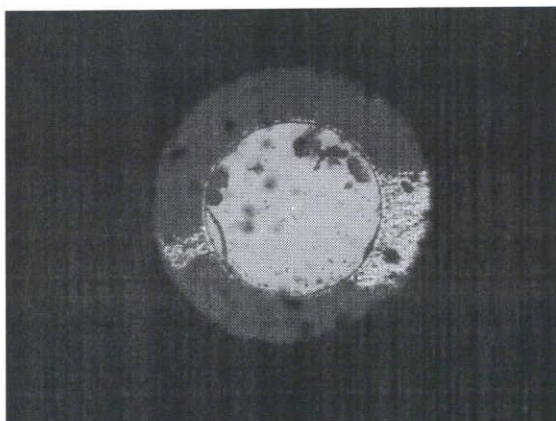
060905D0Sダイヤモンド5PCu常圧裏. JPG



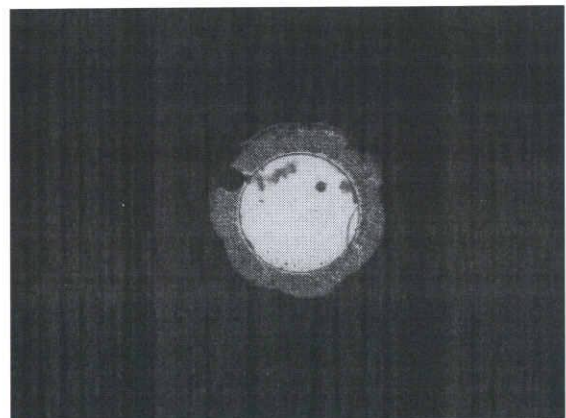
060921D0Sダイヤモンド5PCu最高圧表. JPG



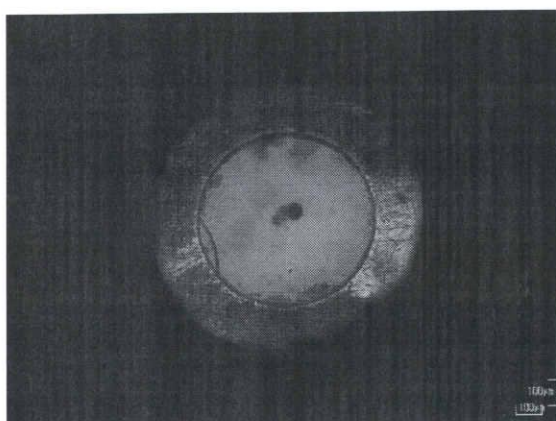
060921D0Sダイヤモンド5PCu最高圧裏. JPG



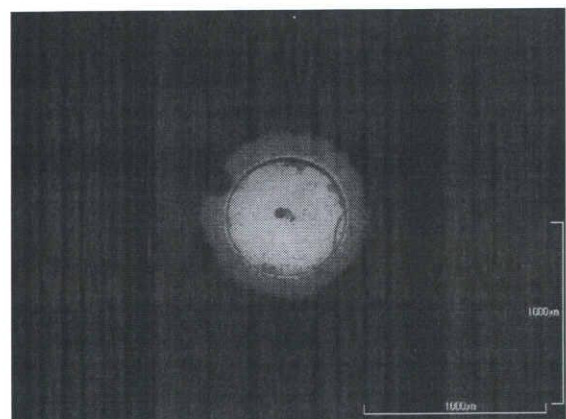
070702PA04 (3) ダイヤモンド常圧表. JPG



070702PA04 (3) ダイヤモンド常圧裏. JPG

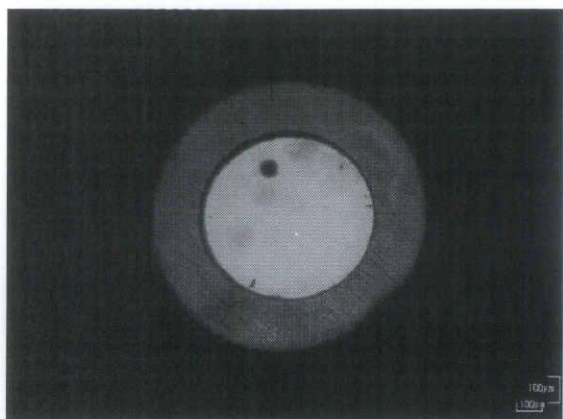


070710PA04 (3) ダイヤモンド最高圧表. JPG

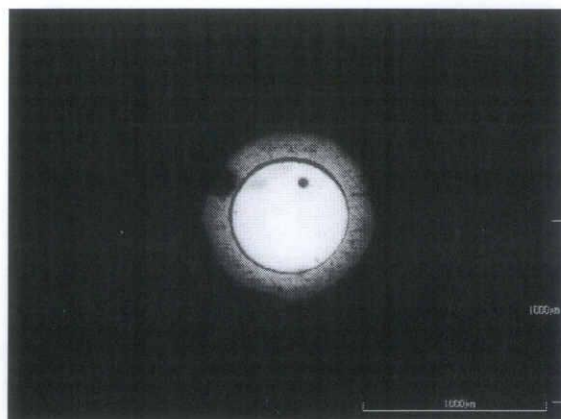


070710PA04 (3) ダイヤモンド最高圧裏. JPG

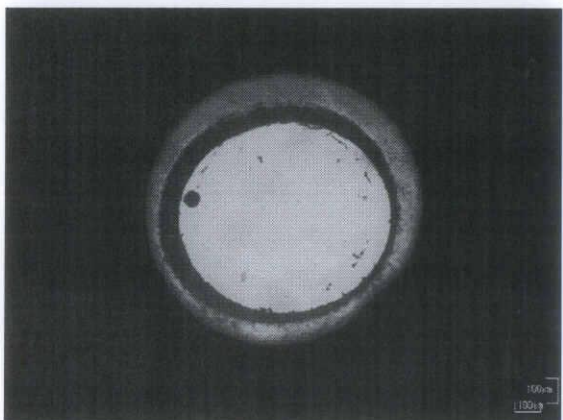




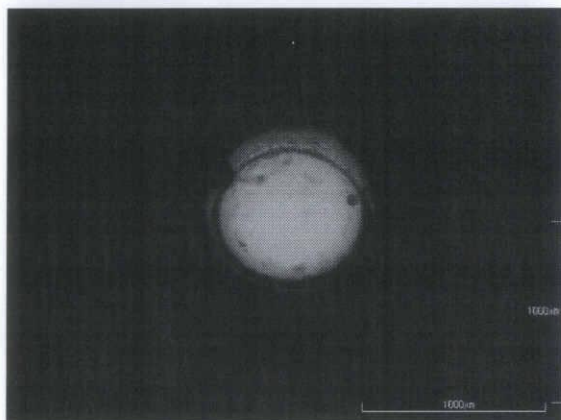
070110iPA(2) ダイヤモンド1回目表. JPG



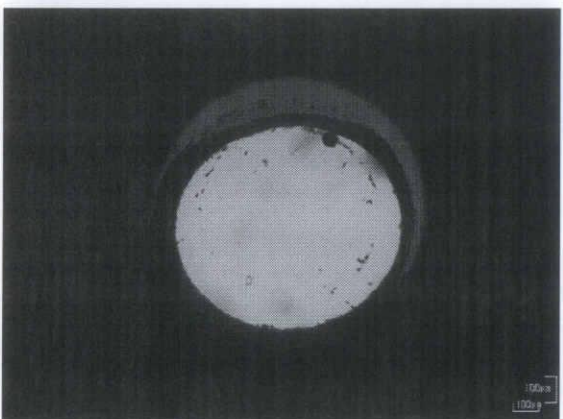
070110iPA(2) ダイヤモンド1回目裏. JPG



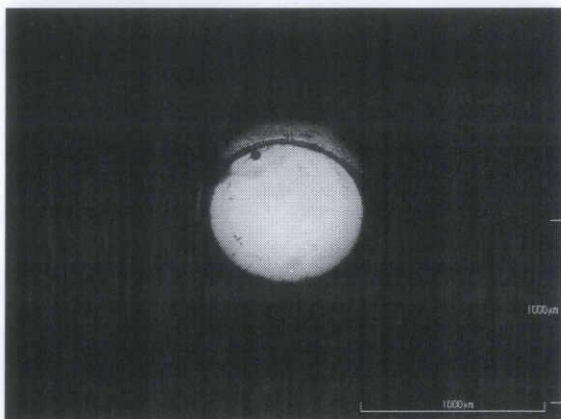
070117iPA(2) 2G付近表. JPG



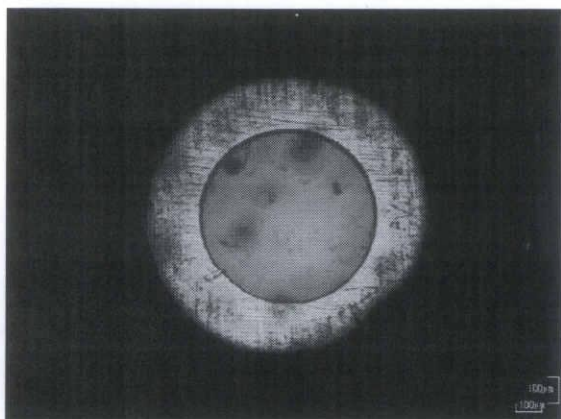
070117iPA(2) 2G付近裏. JPG



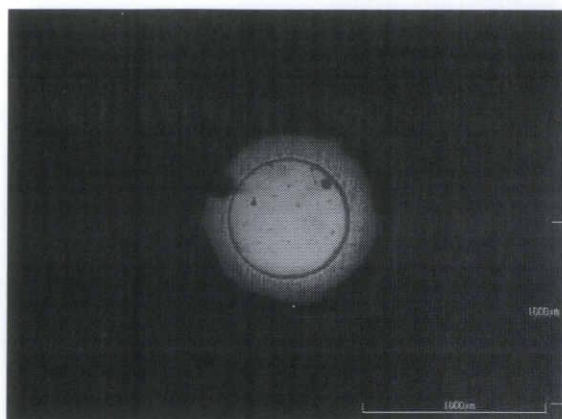
070117iPA(2) 最高圧表. JPG



070117iPA(2) 最高圧裏. JPG



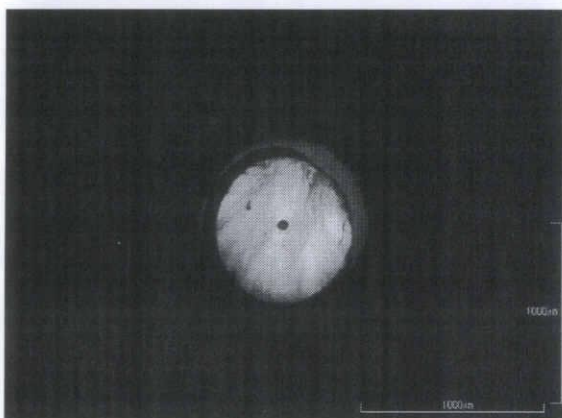
071003nAA (2) ダイヤモンド1回目表. JPG



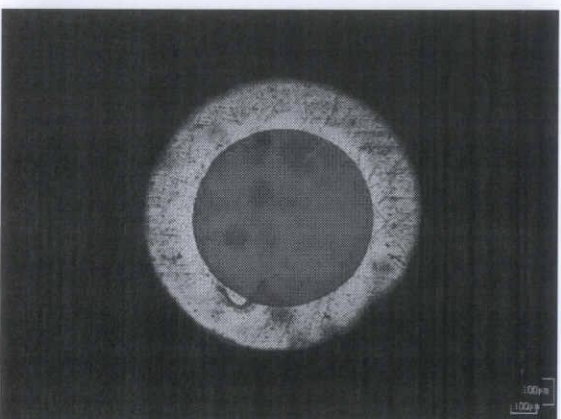
071003nAA (2) ダイヤモンド1回目裏. JPG



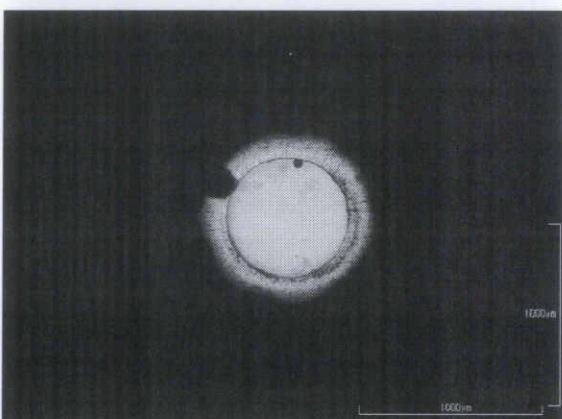
071003nAA (2) ダイヤモンド最高圧表. JPG



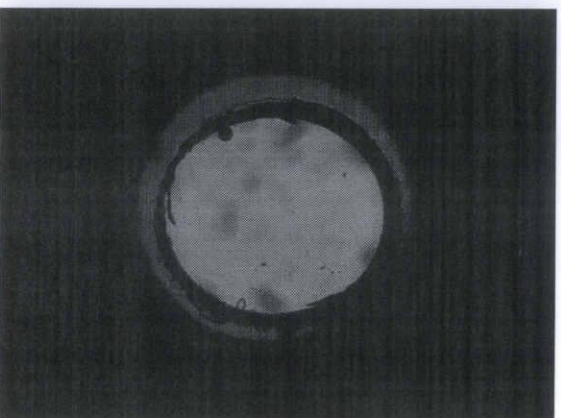
071003nAA (2) ダイヤモンド最高圧裏. JPG



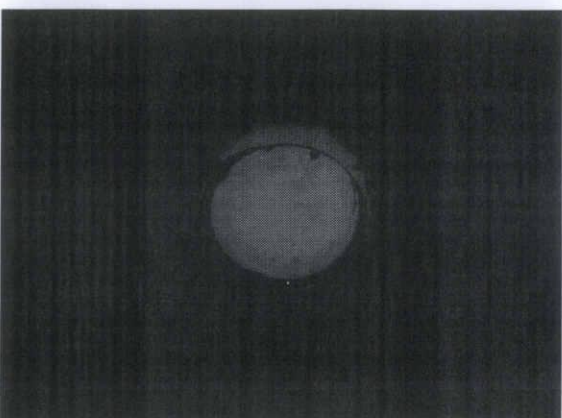
070528nPA (4) ダイヤモンド常圧表. JPG



070528nPA (4) ダイヤモンド常圧裏. jpg



070619nPA (4) ダイヤモンド最高圧表. JPG



070619nPA (4) ダイヤモンド最高圧裏. JPG



付録4 実験詳細データ例 DOS

070612DOS(5).jsd

空加圧回転角

67 46.52778 PCu  $\Phi$ 0.7 0.5t

DOSダイヤモンド

球直径= 60.525 ←

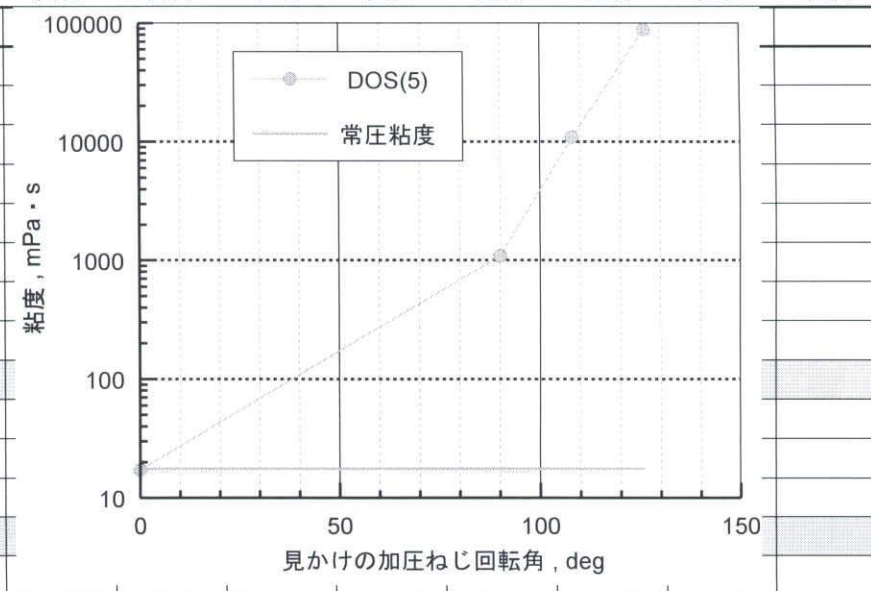
60.17 60.88

屈折率逆算 常圧

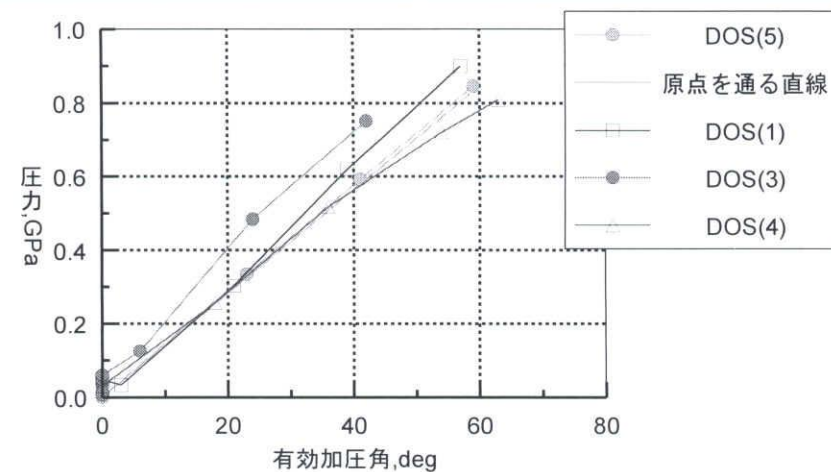
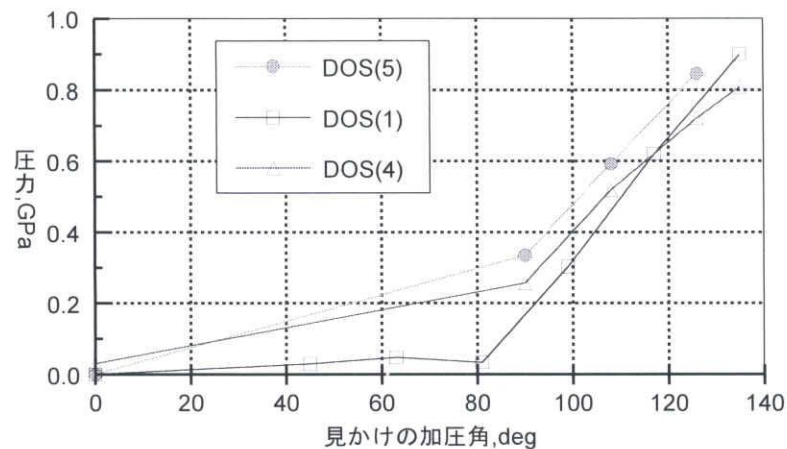
1回目 2回目 3回目 4回目

5回目 6回目 7回目 8回目 9回目 10回目 11回目 12回目

日付		9/5	9/12	9/14	9/21
測定温度 (°C)		24	24	24	24
メモリ増加分		0	62.5	12.5	12.5
見かけの加圧角 (°)	0	0	90	108	126
有効加圧角 (°)		0	23	41	59
等価円筒直径 ( $\mu\text{m}$ )		665.37	651.17	650.13	655.49
1目盛 ( $\mu\text{m}$ )		99.44	99.44	99.44	99.44
落下時間(s)		0.14	9.05	92.26	754.46
常圧粘度文献値 ( $\text{mPa}\cdot\text{s}$ )		17.6	17.6	17.6	17.6
粘度 $\eta$ . nVIS ( $\text{mPa}\cdot\text{s}$ )		17.186	1082	10890	87980
N=1 厚さ ( $\mu\text{m}$ )		311.87	279.20	262.83	245.20
高圧屈折率REF	1.393	1.448	1.514	1.541	1.558
実際の厚さ ( $\mu\text{m}$ )	434.4	451.58	422.71	405.02	382.02
推定圧力PP (GPa)		0.000	0.334	0.591	0.844
圧力-粘度係数 (1/GPa)			12.331	10.869	10.086



備考

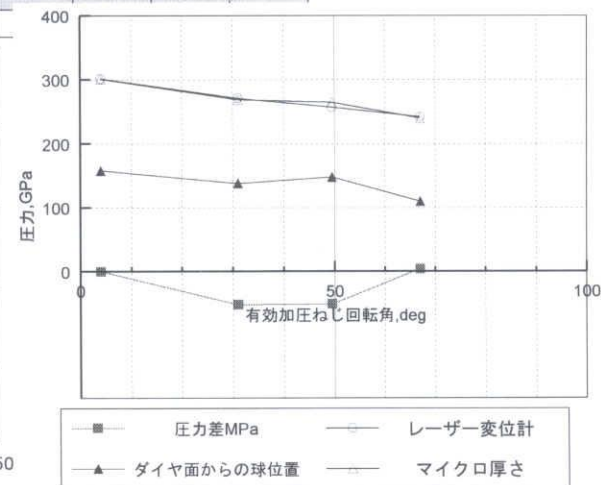
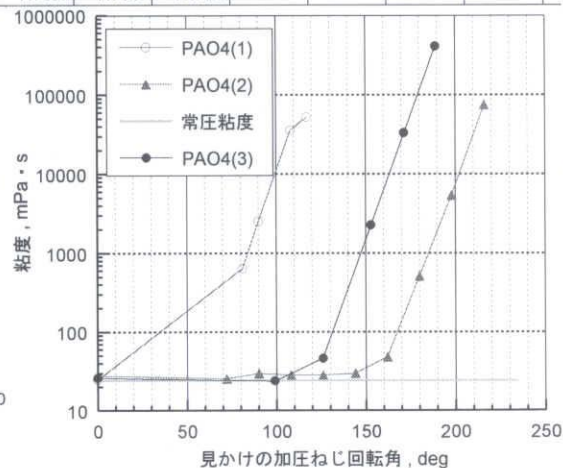
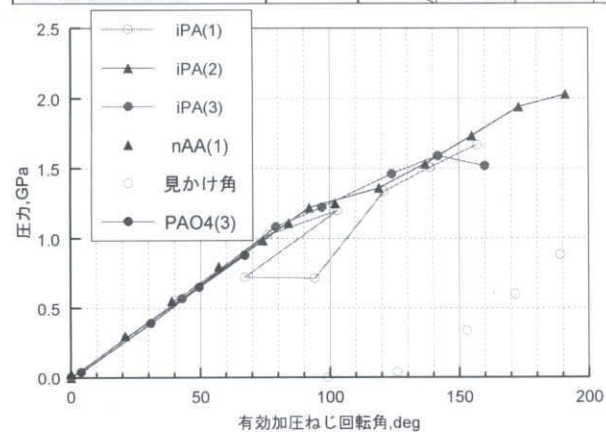
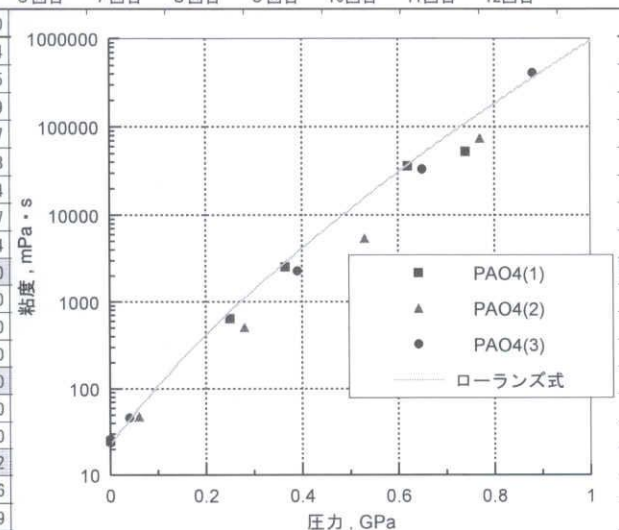


## 実験詳細データ例 PA04

071116PA04 (3). jsd

空加圧回転角	122	84.72	PGu	Φ0.7	0.5t		PA04DAC		球直径=	57.77	←	58.11	57.42
PA04	屈折率逆算 常圧	1回目	2回目	3回目	4回目	5回目	6回目	7回目	8回目	9回目	10回目	11回目	12回目

日付	7/2	7/3	7/5	7/6	7/9	7/10
測定温度 (°C)	24	24	24	24	24	24
メモリ増加分	0	68.75	87.50	106.25	119.10	131.25
見かけの加圧角 (°)	0	99	126	153	171.504	189
有効加圧角 (°)			4	31	49.504	67
等価円筒直径 (μm)	651.57	645.77	646.04	630.51	631.57	640.38
1目盛 (μm)	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44
落下時間 (s)	0.23	0.21	0.41	20.62	302.86	3791.37
常圧粘度文献値 (mPa・s)	14.8 (40°C)	24	24	24	24	24
粘度 $\eta$ . nVIS (mPa・s)	26.212	23.874	46.469	2283	33180	411400
ダイヤ1 ごみピント (μm)	5178.00	3539.00	4980.00	4723	4960	5010
ダイヤ2 ごみピント (μm)	5460.00	3847.00	5281.00	4992	5225	5250
球ピント位置 (μm)	5318	3692	5138	4861	5108	5120
ダイヤ1 から球ピント位置 (μm)	140	153	158	138	148	110
ダイヤ間半分距離 (N=1)	141	154	150.5	134.5	132.5	120
ダイヤ間距離 (N=1)	282	308	301	269	265	240
レーザーN=1 厚さ (μm)	309.36	305.52	301.44	271.04	257.20	241.92
高圧屈折率REF	0.000	1.517	1.516	1.441	1.546	1.519
実際の厚さ (μm)	469.30	463.17	434.38	419.03	390.69	371.59
推定圧力PP (GPa)			0.040	0.390	0.650	0.880
Roelands逆算圧力PP (GPa)		0.004	0.000	0.338	0.599	0.884
推定逆算圧力差 (MPa)		0.000	0.000	0	-52.5	-51.4
圧力-粘度係数 (1/GPa)			16.518	11.680	11.126	11.079



## 実験詳細データ例 iPA

070118iPA(2). jsd

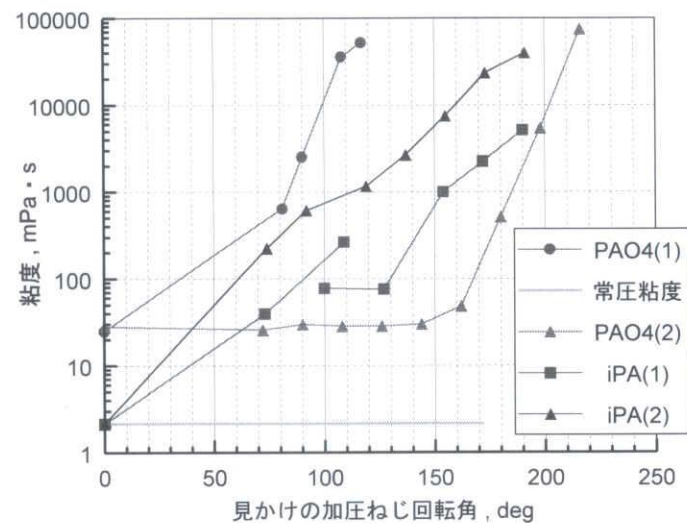
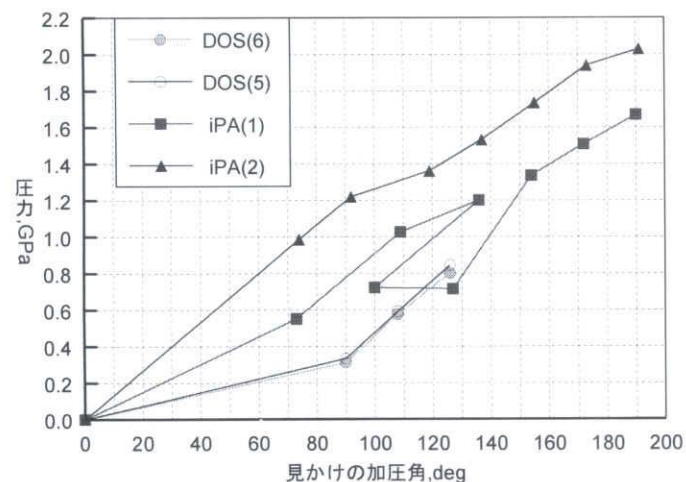
空加圧回転角 0 0.00 PCu  $\Phi 0.7$  0.5t DOSダイヤモンド 球直径= 58.14 ← 58.83 57.45  
 2プロパノール(2) 屈折率逆算 常圧 1回目 2回目 3回目 4回目 5回目 6回目 7回目 8回目 9回目 10回目 11回目 12回目

日付		1/10	1/10	1/10	1/11	1/11	1/15	1/15	11/17
測定温度 (°C)		24	24	24	24	24	24	24	24
メモリ増加分		0	51.389	63.889	82.639	95.139	107.639	120.139	132.639
見かけの加圧角 (°)		0	74	92	119	137	155	173	191
有効加圧角 (°)		0	74	92	119	137	155	173	191
等価円筒直径 ( $\mu\text{m}$ )			626.68	635.74	669.91	695.17	728.88	770.96	829.21
1目盛 ( $\mu\text{m}$ )			99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44
落下時間 (s)			1.86	5.35	10.39	24.19	69.82	228.5	409.66
常圧粘度文献値 ( $\text{mPa}\cdot\text{s}$ )			2.14	2.14	2.14	2.14	2.14	2.14	2.14
粘度 $\gamma_n$ . nVIS ( $\text{mPa}\cdot\text{s}$ )			2.14	223.416	611.316	1162	2654	7478	23400
N=1 厚さ ( $\mu\text{m}$ )			314.00	243.60	223.92	194.40	175.60	157.32	137.44
高圧屈折率REF	1.406		1.511	1.525	1.532	1.539	1.547	1.554	1.556
実際の厚さ ( $\mu\text{m}$ )	441.60		368.08	341.48	297.82	270.25	243.37	213.58	181.62
Bridgman逆算圧力PP (GPa)			0.000	0.986	1.220	1.361	1.533	1.734	1.939
圧力-粘度係数 (1/GPa)				4.713	4.637	4.628	4.648	4.705	4.795

備考

2プロパノール

イソプロピルアルコール





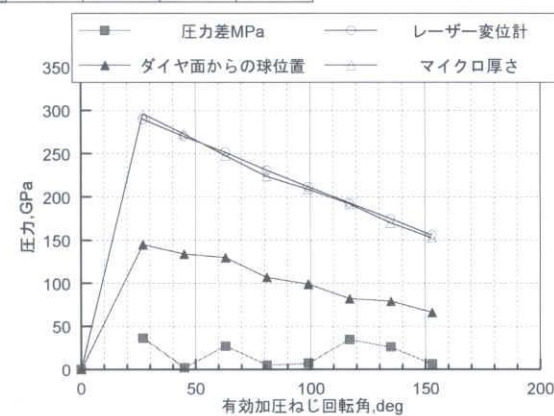
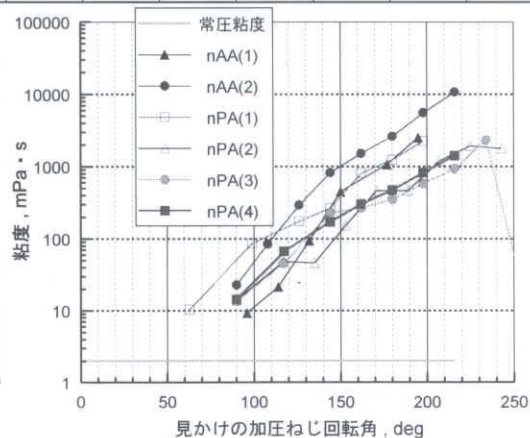
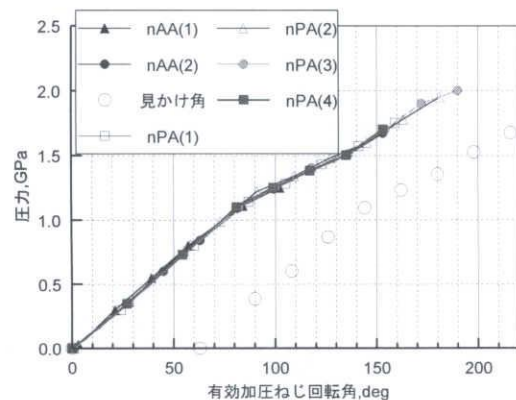
## 実験詳細データ例 nAA

071116nAA(2).jsd

空加圧回転角 対数粘度が =64-1 43.75 PCu  $\Phi$  0.7 0.5t nAA(2) 球直径= 60.20 ← 60.88 59.51  
 nプロピルアルコール 屈折率逆算 常圧 1回目 2回目 3回目 4回目 5回目 6回目 7回目 8回目 9回目 10回目 11回目 12回目

日付		9/13	9/13	9/13	9/25	9/28	10/1	10/1	10/1	10/1	10/2				
測定温度 (°C)		24	24	24	24	24	24	24	24	24	24				
メモリ増加分		0	0.00	62.50	75.00	87.50	100.00	112.50	125.00	137.50	150.00				
見かけの加圧角 (°)	0	0	63	90	108	126	144	162	180	198	216				
有効加圧角 (°)		0	0	27	45	63	81	99	117	135	153				
等価円筒直径 ( $\mu$ m)				634.21	627.56	634.00	647.06	667.99	692.22	722.28	761.31				
1目盛 ( $\mu$ m)		99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44				
落下時間 (s)		-	-	0.19	0.72	2.53	7.13	13.37	23.34	50.51	100.45				
常圧粘度文献値 (mPa・s)	3.645 (24°C)	3.645	3.645	3.645	3.645	3.645	3.645	3.645	3.645	3.645	3.645				
粘度 $\eta$ , nVIS (mPa・s)		-	-	22.814	85.214	293.651	823.249	1524	2620	5560	10770				
ダイヤ1ごみピント ( $\mu$ m)				4682.00	5238	4080	4028	4041	5160	5142	4989				
ダイヤ2ごみピント ( $\mu$ m)				4978.00	5511	4328	4252	4250	5352	5312	5142				
球ピント位置 ( $\mu$ m)				4827	5372	4210	4135	4140	5242	5221	5055				
ダイヤ1から球ピント位置 ( $\mu$ m)		0	0	145	134	130	107	99	82	79	66				
ダイヤ間半距離 (N=1)		0	0	148	136.5	124	112	104.5	96	85	76.5				
ダイヤ間距離 (N=1)		0	0	296	273	248	224	209	192	170	153				
レーザーN=1 厚さ ( $\mu$ m)				289.60	270.00	251.76	231.04	211.92	193.12	174.80	155.92				
高圧屈折率REF	1.398			1.470	1.494	1.509	1.519	1.524	1.527	1.531	1.535				
実際の厚さ ( $\mu$ m)	459.2	0.00	0.00	425.71	403.38	379.91	350.95	322.97	294.89	267.62	239.34				
推定圧力PP (GPa)		0.000	0.000	0.350	0.600	0.840	1.090	1.240	1.390	1.500	1.670				
Bridgman逆算圧力PP (GPa)		0.000	0.000	0.386	0.602	0.867	1.095	1.233	1.356	1.526	1.676				
推定逆算圧力差 (MPa)		0.000		36.4	2.0	27.0	5.0	7.0	34.5	25.8	6.0				
圧力-粘度係数 (1/GPa)				! 引数不正	5.240	5.253	5.225	4.972	4.868	4.732	4.887	4.785			

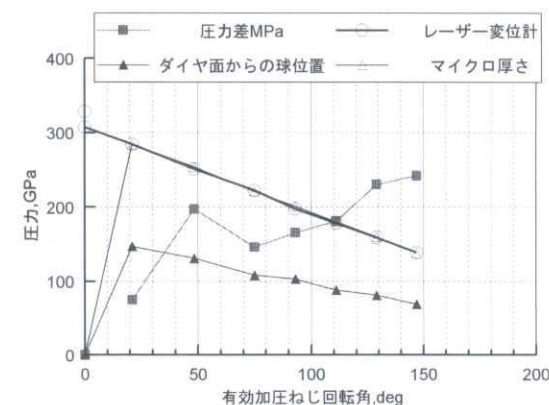
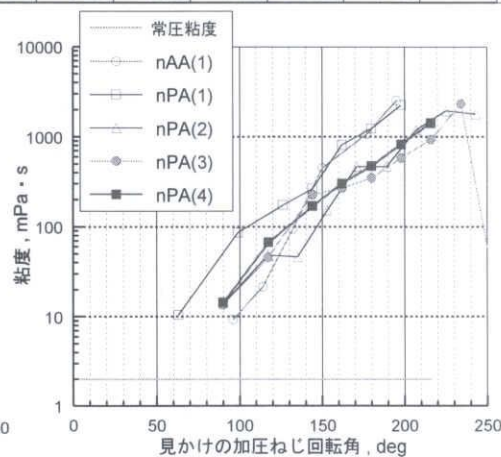
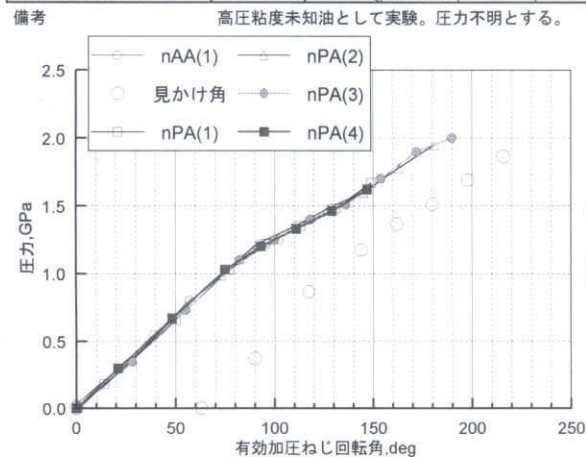
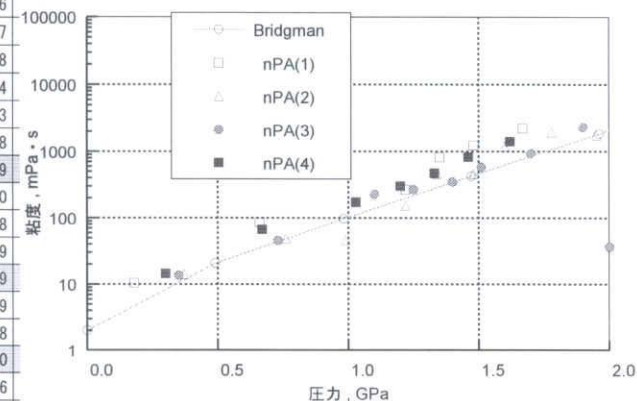
備考



# 実験詳細データ例 nPA

070605nPA(4). jsd

空加圧回転角	対数粘度か =54+15	47.92	PCu	Φ0.7	0.5t	DOSダイヤモンド	球直径=	53.16	←	52.3	54.02		
nプロピルアルコール	屈折率逆算 常圧	1回目	2回目	3回目	4回目	5回目	6回目	7回目	8回目	9回目	10回目	11回目	12回目
日付		5/28	5/28	5/29	5/30	5/31	6/8	6/8	6/15	6/15			
測定温度 (℃)		24	24	24	24	24	24	24	24	24			
メモリ増加分		0	43.75	62.50	81.50	100.00	112.50	125.00	137.50	150.00			
見かけの加圧角 (°)	0	0	63	90	117.36	144	162	180	198	216			
有効加圧角 (°)		0	0	21	48.36	75	93	111	129	147			
等価円筒直径 (μm)		656.21	640.94	631.05	636.65	659.60	691.84	718.26	752.04	793.98			
1目盛 (μm)		99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44	99.44			
落下時間(s)		-	-	0.15	0.71	1.83	3.30	5.24	9.35	16.63			
常圧粘度文献値(mPa・s)	2.008 (24℃)	2.008	2.008	2.008	2.008	2.008	2.008	2.008	2.008	2.008			
粘度 <sub>yn, nVIS</sub> (mPa・s)		-	-	14.443	67.05	170.196	302.301	472.156	824.379	1419			
ダイヤ1 ごみピント(μm)				4861.00	5258	6501	760	1221	5600	6520			
ダイヤ2 ごみピント(μm)				5145.00	5512	6722	961	1401	5760	6658			
球ピント位置(μm)				5008	5389	6609	863	1309	5681	6589			
ダイヤ1 から球ピント位置(μm)		0	0	147	131	108	103	88	81	69			
ダイヤ間半分距離 (N=1)		0	0	142	127	110.5	100.5	90	80	69			
ダイヤ間距離 (N=1)		0	0	284	254	221	201	180	160	138			
レーザーN=1 厚さ(μm)		328.48	307.28	284.16	251.12	222.24	197.52	178.00	158.72	138.40			
高圧屈折率REF	1.398			1.498	1.535	1.549	1.555	1.558	1.563	1.566			
実際の厚さ(μm)	459.2	0.00	0.00	425.67	385.47	344.25	307.14	277.32	248.08	216.73			
推定圧力PP(GPa)		0.000	0.000	0.300	0.670	1.030	1.200	1.330	1.460	1.620			
Bridgman逆算圧力PP(GPa)		0.000	0.000	0.375	0.867	1.176	1.365	1.511	1.690	1.862			
推定逆算圧力差(MPa)		0.000		74.9	197.32	146	165.23	181	230.19	242.3			
圧力-粘度係数(1/GPa)			!引数不正	6.577	5.236	4.310	4.179	4.105	4.122	4.050			



備考 高圧粘度未知油として実験。圧力不明とする。

$$s0 := 1.047$$

$$\text{vis0R} := 0.019$$

$$z := 0.57$$

$$T0 := 30$$

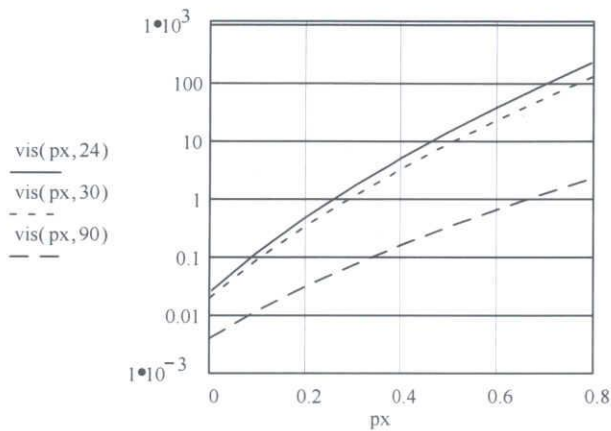
$$T := 30$$

$$px := 0, 0.1 \dots 0.8$$

$$\text{alphasp}(px, T) := (\ln(\text{vis0R}) + 9.67) \cdot \left[ \left( \frac{T + 135}{T0 + 135} \right)^{-s0} \cdot (1 + 5.1 \cdot px)^z - 1 \right]$$

Pas

$$\text{vis}(px, T) := \text{vis0R} \cdot \exp(\text{alphasp}(px, T))$$



px	vis(px, 24)	vis(px, 30)	vis(px, 90)
0	0.024	0.019	$3.904 \cdot 10^{-3}$
0.1	0.115	0.086	0.012
0.2	0.443	0.317	0.03
0.3	1.491	1.017	0.069
0.4	4.529	2.96	0.15
0.5	12.73	7.999	0.308
0.6	33.622	20.361	0.605
0.7	84.368	49.335	1.146
0.8	202.75	114.67	2.108

vis(圧力(GPa), 温度(°C))

$$\text{vis}(0.05, 24) = 0.054$$

$$\text{vis}(0.05, 24) = 0.054$$

$$\text{vis}(0.05, 24) = 0.054$$

$$\alpha_{25} := \ln \left( \frac{\text{vis}(0.8, 25)}{\text{vis}(0, 25)} \right) \cdot \frac{1}{0.8} \quad \alpha_{25} = 11.238$$

$$\text{Pep} := \frac{25}{\alpha_{25}}$$

$$\text{Pep} = 2.225$$