

ガラス用自記回転粘度計について

今 岡 稔

1. ガラスの粘性

このガラスは何度でとけるかといったことが問題になるが、一般にガラス状の物質は水飴と同じように、温度が高くなるにしたがって軟らかくなり、いつとはなしにとけてしまうのであるから、その溶融点といったものはぜんぜん出てこない。したがってガラスについて、その溶融温度の高いとか低いとかを問題にする場合、ガラスの粘性を測って、ある一定の粘度に達したときの温度をもって、比較してゆく以外に方法がない。そこでガラスが溶融状態に達するまでの間のいろいろな点、その測定上の面から、あるいはガラス製造の面から定義づけられ、その点に対応する粘度が測定されている。

まずガラスの熱膨張曲線をつくった場合にあらわれる点として、転移点と変形点(軟化点)がある。前者はガラスが異状膨張をはじめる温度で、転移点付近のガラスの粘度は 10^{13} ~ $10^{13.5}$ ポイズである。後者は熱膨張曲線が下がりをはじめる温度、屈伏点で、その付近の粘度は 10^{11} ~ 10^{12} ポイズである。この二つは最も測定しやすい。またこの付近の温度でガラスの徐冷が行なわれるが、そのことに関連して Lillie²⁾ は次の 2 点を定義した。一つはガラスの粘度が 4×10^{14} ポイズの点で、これを歪点とした。すなわちこの温度以下ではガラスの粘性流動が事実上起こらないと考えられ、したがってすでに残っている歪を取り除くことはできない。しかしまたこの温度以下では急冷しても新しく永久歪を生ずるということはないわけで、徐冷温度の下の限界点である。他の一つはガラスの粘度が 2.5×10^{13} ポイズの点で、これは徐冷点と呼ばれ、その温度に 15 分保てば歪が完全に消える点として定義されている。これは当然徐冷温度の上の限界点ということである。次に Littleton の軟化点と呼ばれる点であるが、これは熱膨張曲線にあらわれる軟化点(変形点)は余りに低すぎ、本来の意味での軟化点としては不適當であるので、その測定方法とともに Littleton³⁾ によって定義された点である。すなわち Littleton の軟化点は、径 0.55~0.75 mm、長さ 23 cm のガラスの糸を、外径 2.5 cm、長さ 9.5 cm の鉄芯の中心を貫いた内径 4 mm の穴を通して吊るし、電気炉を調節して鉄芯の温度が毎分 6~8°C の速さで上がるようにし、糸の先端の伸びが 1 mm/分の速さに達したときの温度をもってすると定義されている。またこの時の粘度は 4.5×10^7 ポイズである。これも粘度計などのめんどうがなく、比較的簡便

に測定できるので、わたくしのところでもテルライトガラスについて少し測定した。また Lillie²⁾ が流動点として、 10^5 ポイズの粘度をもつ点を定義しているが、これはガラスの成形作業の上での目安となる。一般にガラスの成形の行なわれる作業温度範囲は、 10^{3-4} ポイズから Littleton の軟化点付近までといわれている。またこの温度範囲の狭いものを短いガラス、広いものを長いガラスと呼びならわしている。また溶融ガラスの粘性は 10^2 ポイズからそれ以下に及んでいる。

2. その測定方法

さてガラスの粘性係数については古くからいろいろの人により、いろいろな方法で測定されている。まず 10^8 ポイズ付近の粘度を境として、低温側と高温側にわけると、低温側すなわち 10^8 ポイズより粘度の高い側では、ガラス糸を電気炉中に吊るし、その先端に加重をかけて一定温度における伸びの速さを測り、次の式から

$$\eta = \frac{wl}{3\pi vr^2}$$

r =糸の半径、 l =糸の長さ、 v =糸の伸びの速さ、 w =荷重。

計算される Fiber-elongation 法がもっぱら用いられ、English⁴⁾、Stott⁵⁾、Lillie⁶⁾、Boov および Turner⁷⁾ などがこの方法を使って測定している。測定可能な範囲は大体 10^8 ~ 10^{15} ポイズで、前に述べた Littleton の軟化点の測定は、この方法の低粘性側の測定限界を示している。一方高温側すなわち 10^8 ポイズより粘度の低い方では、Stokes 法や回転円筒法などがある。前者は溶融ガラスの中を球体を落下させた場合(あるいは一定の力で引き上げた場合)の、球体の運動速度(実際には一定距離動く間の時間)を測定して、Stokes の法則からその粘度を計算する。

$$\eta = \frac{2}{9} \cdot g r^2 (\sigma - \rho) / v$$

r =球体の半径、 σ =同比重、 v =同速度、 ρ =溶融ガラスの比重。

Cohn⁸⁾、Hunter⁹⁾、(引き上げる方法では) Heidtkamp および Endell¹⁰⁾ などがこの方法を使って測定しており、測定可能な範囲は大体 10^2 ~ 10^6 ポイズである。後者は二重円筒の間に溶融ガラスを入れ、いずれか一方の円筒を回転させるもので、内筒回転法と外筒回転法とがある。内筒を回転する場合はその軸に滑車を付け、それを通して錘りをつけて軸を回転させ、錘りの目方や回転速度から次式によって計算する。

$$\eta = \frac{Ct}{8\pi^2(l+f)} \left\{ \frac{1}{r_1^2} - \frac{1}{r_2^2} \right\}$$

r_1, r_2 = 内, 外筒の半径, l = 内筒の溶融ガラス中に入っている長さ, f = 内筒の末端補正, t = 内筒 1 回転に要する時間, C = 内筒の軸に働くトルク

ただしこの場合 $C = wrg$ (w = 錘りの目方, r = 滑車の半径) である。English¹¹⁾, Preston¹²⁾ などがこの方法を使って測定しており, 測定可能な範囲は大体 $10^2 \sim 10^5$ ポイズである。外筒を回転する方法は Lillie¹³⁾ が行なったもので, 内筒を鋼線などで吊り, 外筒の回転にともなう内筒のよじれを, 鏡とランプスケールで測り前の式で計算する。なおこの外筒を定速度で回転させた場合は, $10^2 \sim 10^5$ ポイズの範囲の測定が可能であるが, 外筒を一定角回転させて止め, それに伴って回転した内筒がはじめの位置まで戻る時間を測る, 一時回転法をとれば 10^8 ポイズ程度まで測定できる。以上のようなオーソドックスな方法以外に, 精度はともかくとして簡単に測れる方法, といった試みもいろいろある。例えば溶融ガラスから引き上げた棒の表面に, 付着したガラスの厚さから粘度を測るといった, Stott, Turner および Sloman¹⁴⁾ の研究とか, 球体の代りに滑車を通して糸で吊った棒が, 溶融ガラス中に沈んでゆく時間を測って求める大河原氏¹⁵⁾ の研究, あるいは Tiede¹⁶⁾ の提案した, ノズルから一定速度である時間の間に引き出されるガラス量を比較して, 粘度を出そうとする試みなどがある。これらはそれぞれに装置なり, 方法が簡単であるとか, 少量の測定試料ですむなどの利点もあるが, 半面精度の点や, 他の外的条件を同一に保つための測定技術が必要だったり, 比較的限られた範囲 (ある狭い粘度範囲とか, 組成の近いガラスの間に限られるとか) にしか適当できないなどの不便もまぬかれない。しかしまたある温度範囲にわたって粘度をいろいろ測定するかわりに, 目的に応じてある特定な点を測定する, あるいはいくつかのそうした点を求めて

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

A, B = 常数, T, T_0 = 温度

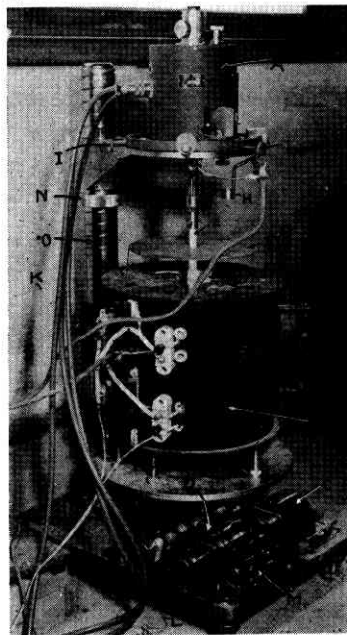
式から全体を内挿する, といった考え方もある。特定な点としては前にあげた転移点 ($\eta = 10^{12} \sim 10^{13.5}$ ポイズ), Littleton の軟化点 (4.5×10^7 ポイズ) のほかに, Dietzel および Brükner¹⁷⁾ の提案する Einsinkpunkt (沈降点), すなわち直径 0.5 mm, 長さ 20 cm の白金-ロジウム (20%) の針が, 2分間で液面から 2 cm の深さまで沈む時の温度と定義された点 (10^4 ポイズ), などがある。

3. 自記粘度計の試作

ガラスを取り扱うといった場合, すぐその作業温度とか徐冷温度が問題になるはずで, そのためには粘度の測定がまず必要なわけである。しかし実際はそうした大事な量であるにもかかわらず, 案外測定されていない。それは一つには実用ガラスの組成範囲が割にせまい, とい

うこともあるがそれ以上に, 粘度の測定がめんどうだという事実が大きい。前項の測定方法に関するこれまでの経過からもうかがわれるところである。そこで自記式の粘度計を思い立ったわけであるが, 自記式になれば測定時間が長いとか, 準備に多少手間どる位のことは問題にならなくなる。そこでまず測定範囲であるが, わたくしのところの差当りの目的その他から考えて, 10^8 ポイズより低粘性側を対象とすることにした。次に測定方法であるが, 広い範囲にわたって連続的に測れる方法としては, 外筒回転法が最も都合よく, 内筒の軸にかかるトルク C の測定には, ストレンゲージを利用したトルク計を使うことにした。これはやはりストレンゲージを使った自記式熱膨脹計を作った関係で, その記録装置を共用する必要から起こったことでもある。なおその記録計は横河の熱電記録温度計 ($0 \sim 1000^\circ \text{C}$) ER-22 型と, 記録直流電位差計 ($0 \sim 4 \text{ mV}$) ER-122 型とを組み合わせたもので, 6点のうち3点が温度, 3点がストレンゲージの出力を記録するようになっている。

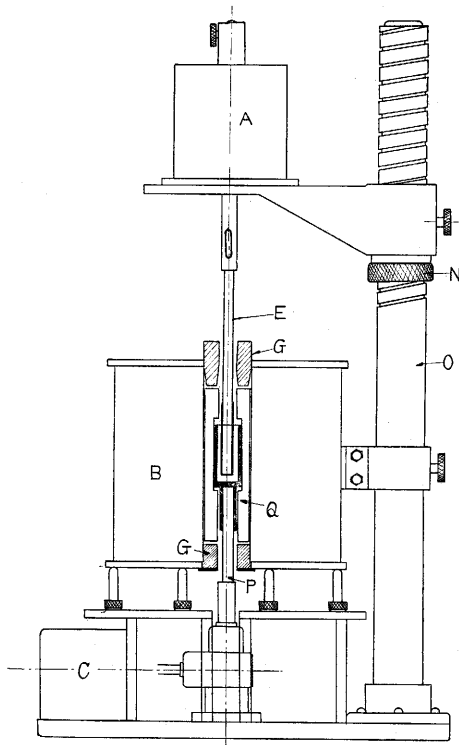
さて粘度計の設計に際して基本的なことの一つは, 内外円筒の寸法である。これはできるだけ少量の試料で測定したいことから, なるべく小さくしたのであるが, 従来の測定とあまりかけ離れた大きさにすることにも不安があって, 結局内筒の外径 12 mm, 長さ 90 mm, 外筒の内径 22 mm, 長さ 70 mm とし, 内筒の下端は外筒の底より 10 mm あげ, 溶融ガラスは外筒の上端より 10 mm 下まで入れることにした (ガラス量は約 18 cc)。次に外筒の回転速度については, 最高を 10 秒 1 回転とした。一方トルク計の方は最も感量の小さいもので 10 g·cm であるが, この組合せで 10^2 ポイズ (10 ポイズの桁) ま



- A トルク計
- B 電気炉
- C 同期電動機
- D 減速装置
- E 内筒とトルク計の軸をつなぐ磁製管
- F 熱遮断用金属板
- G 断熱用耐火物
- H 水銀だめ
- I トルク計の位置修正用ねじ
- J 熱電対 (内筒中に挿入)
- K 熱電対 (側筒内側に挿入)
- L 熱電対 (外筒の底に挿入)
- M 速度計
- N 内筒の位置調節用のリング (目盛つき)
- O 支柱

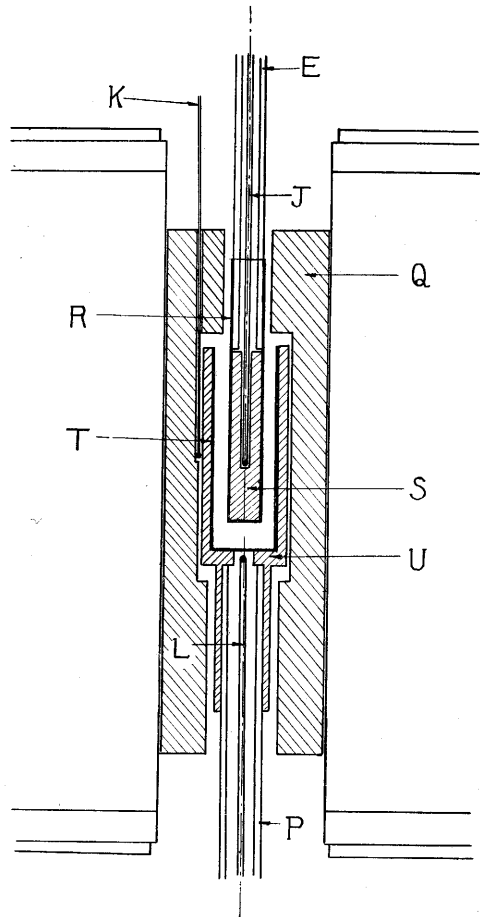
第 1 図 回転粘度計の外観

で測れる計算になる。一方粘度の高い方は、定速度回転では 10^5 ポイズまでという Lillie の言葉もあるので（絶対的なものでももちろんない）、一応 10^7 ポイズまで測ることとし、回転速度の方は最低 10^4 秒 1 回転で 10^3 秒 1 回転から $10^2, 10^3, 10^4$ 秒 1 回転と 4 段階にした。またトルク計も最高感量 $1\text{kg}\cdot\text{cm}$ のものまで、 10 および $100\text{g}\cdot\text{cm}$ と 3 段に切り換えられるようにした。これでトルク計と回転速度の組み合わせを適当にかえて、 $10\sim 10^7$ ポイズにわたって常に同じ精度でガラスの粘度が測れる勘定になる。



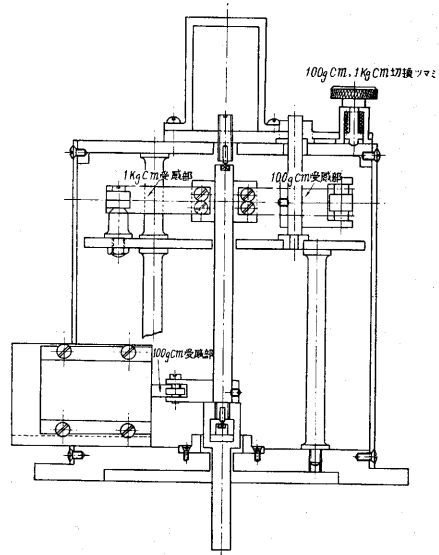
第 2 図 回転粘度計の構造

測定装置の概要については第 1~4 図に示した。温度については熱電対を内筒の中と外筒の底に近いところ、および外筒の側面(第 3 図参照)に入れて測ったが、最後の分だけがステンレスのさやの外側にあるためか、 $4\sim 6^\circ\text{C}$ 程度の温度差が出たが、残りの二つにはほとんど差はなかった。それで実際には記録計(6点式)を熱膨脹計と共用している関係もあって、温度はこのうち 2 点だけを記録させている。電気炉は縦型二つ割れの管状炉で、ニクロム線を 2 本並列に巻いてあり、スライダックと温度調節器で $25^\circ\text{C}/\text{hr}$. 位の速度で下げている。また内筒の位置は、それを支える支柱とリングに目盛がしてあり(0.5mm まで)、 0.1mm 位の精度で合わせることができる。なお記録計には簡単な接点とブザーからなる警報装置をつけ、記録値がある値に達した時、それがなるようにし

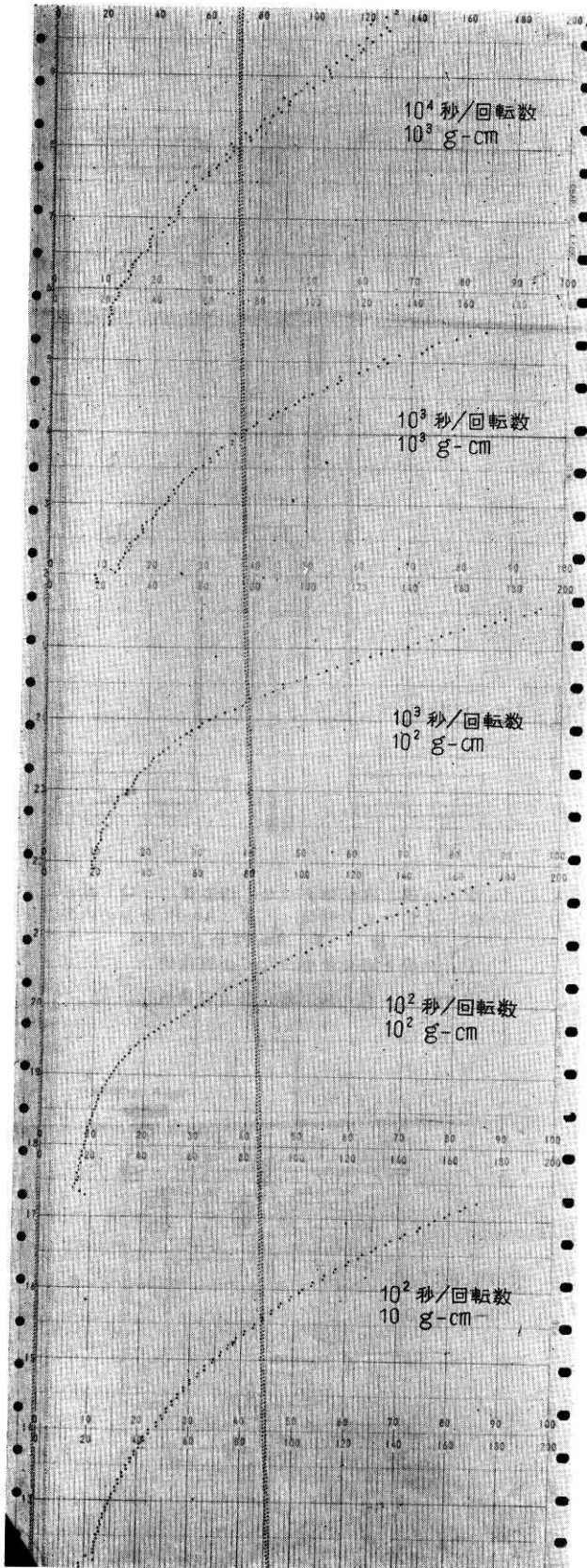


P 外筒と回転軸をつなぐ磁製管, Q 熱の均一化のための側筒, R Au-Pt 合金の内筒, S Pt の錘, T Au-Pt 合金の外筒, U 外筒と磁製管をつなぐ金属円筒

第 3 図 測定部分の構造



第 4 図 トルク計の構造



である。したがって測定準備をしてスタートさせれば、測定時間はかなりかかるが、その間特に注意を払う必要はなく、ただブザーがなった時回転速度やストレンゲージを切り換えればよい。

4. 粘度の測定

第5図はこの装置による粘度測定データの1例である。回転速度 $10^2 \sim 10^4$ 秒1回転、 $10 \sim 10^8$ g-cm のトルク計で測定しているデータで、遊んでいる2本の線は熱膨張計の温度と変位用のものである。粘性値を示すトルク計の方の打点は、やや乱れがあるが（とくに高粘度で）、これは内、外筒の不平行性、芯のずれ、あるいは回転速度のむら、などからくるものであろうが、この程度はいたしかたないし、粘性のデータとしては十分というべきではなからうか。また温度の線が2本になっているのは、外筒の底に入れた熱電対の入り方が悪かったため、この分が少し低く出ている。

はじめての試みであるためいろいろ失敗もあり、現在でもまだ十分ではない点多々あるが、一応動き出したのでここにご紹介した次第である。なおこの装置の設計、試作については当研究所の試作工場の鈴木工場長や、とくに白石主任には非常に骨をおっていただき、またトルク計については、東洋測器KKの結城技師長にいろいろごめんどうをお願いした。ここに感謝の意を表わす。（1959. 7. 22）

文 献

- 1) H. R. Lillie, J. Am. Ceram. Soc., **14**, 502 (1931)
- 2) J. Littleton, 同上, **10**, 259 (1927)
- 3) H. R. Lillie, 同上, **35**, 149 (1953)
- 4) S. English, J. Glass Tech., **7**, 25 (1923)
- 5) V. H. Stott, J. Glass Tech., **9**, 207 (1925)
- 6) H. R. Lillie, J. Am. Ceram. Soc., **12**, 505 (1929), 同 **14**, 502 (1931)
- 7) J. Boow, W. E. S. Turner, J. Glass Tech., **26**, 215 (1942)
- 8) W. M. Cohn, Ann. Physik, **21**, 761 (1934)
- 9) R. G. Hunter, J. Am. Ceram. Soc., **17**, 121 (1934)
- 10) G. Heidtkamp, K. Endell, Glastechn. Ber., **14**, 89 (1936)
- 11) S. English, J. Glass Tech., **8**, 205 (1924), **12**, 107 (1928)
- 12) E. Preston, 同上, **22**, 45 (1938)
- 13) H. R. Lillie, J. Am. Ceram. Soc., **12**, 516 (1929)
- 14) V. H. Stott, D. Turner, H. A. Sloman, Proc. Roy. Soc., (London), **A**, 112, 499 (1926)
- 15) 大河原晋, 窯協誌, **58**, 87 (1950)
- 16) R. L. Tiede, J. Am. Ceram. Soc., **38**, 183 (1955)
- 17) A. Dietzel, R. Brückner, Glastechn. Ber., **30**, 73 (1957)

横軸：温度（0～1000°C）およびトルク計出力（0～ 10×10^8 g-cm）

縦軸：時間（1区間7.5分）

第5図 粘度測定データ