

粘度測定における繰り返し精度と再現性（測定機器の特性）

清水 正高*1・佐藤 文則*2

Repeatability and Reproducibility on Measuring of Viscosity (Properties of Instruments)

Masataka SHIMIZU and Fuminori SATO

粘度は、原料や製品の品質モニターに利用されることが多く、工業技術センターにおいても粘度測定装置に対する設備利用や技術相談件数が少なくない。そこで、これらのバックデータを得るため、毛細管方式、回転式および音叉振動式に基づく4種類の測定装置を使用し、粘度が既知のニュートン流体を用いて粘度測定の繰り返し精度と再現性精度を比較した。その結果、いずれの精度も毛細管粘度計が最も優れ、確度も高く、極めて信頼性が高かった。次いで、相対的にコーン・プレート型粘度計、音叉振動式粘度計、内円筒回転粘度計の順であった。汎用性がある回転粘度計は本来非ニュートン流体の見かけ粘度測定に特徴があり、ニュートン流体は避けるべきと判断された。

キーワード：粘度，精度，再現性，確度，ニュートン流体

1 はじめに

何らかの力が加わって流体が移動するとき、必ずそれに抵抗しようとする内部摩擦力が働く。この力の指標が「粘度 viscosity」¹⁾（粘性率や粘性係数とも呼ばれる）であり、粘度の低い流体はサラサラ、高い流体はドロドロ、ネバネバとした感覚がある。単位「Pa・s」に時間項があるように流体を一定速度で移動させなければこの粘度は求められない。あるいは、流体が動かなければ「粘り」は発生しないことになる。

粘度測定は、原料や製品の品質をモニターする手段として利用されることが多く、当工業技術センターにおいても同測定装置に対する設備利用や技術相談件数が少なくない。測定対象物がニュートン流体である場合、粘度は流体固有の性質を表す物理量であるためシンプルに評価できる。しかし、非ニュートン流体が測定対象となる場合は、下記で記載するように流体の移動速度、すなわち剪断速度に粘度の値が依存するため解釈は難しくなる。

粘度測定装置には多種多様のものが存在する。これは 1×10^{-3} 前後から数 $100 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ に至る広範囲の粘度測定に対応できるように工夫されたためであり、また、できるだけ簡便で試料量の少ない方法を追求し、さらに非ニュートン流体も測定できるように機能向上を図った結果である。

しかし、上記のように粘度は物理量であることから、同一試料であるならいかなる方法で測定しても等しくなければならない。ところが現実には必ずしも素直な一致はなく、装置間に差が生じる。また、同一機種であっても再現性が乏しいケースが見られ、信頼性を疑われることも多い。こうしたことは測定条件が最適で操作が完璧であっても避けられない変動であり、装置自体の特性に依存した問題であると想像される。

そこで本報では、毛細管方式、回転式および音叉振動式に基づく4種類の測定装置を使用し、粘度が既知のニュートン流体を用いて粘度測定における実用上の繰り返し精度と再現性精度を比較した。また、それらの結果から、各測定方式や装置の特色を明らかにし、当工業技術センターの設備利用や技術相談対応のバックデータとした。なお、一部の装置では参考のため非ニュートン流体の粘

*1 材料開発部

*2 材料開発部（現 南九州化学工業株式会社）

度も測定した。

2 方法

2-1 毛細管粘度計

厳密には、気体、液体および固体のいずれにも粘度が存在する。本報では、粘度測定のために最も多い「液体」を測定対象にした。以後、「流体」と「液体」は同義語として併用した。

液体と接している壁を一定速度 v で動かした場合、壁に平行の速度勾配、すなわち、剪断速度 $D = dv/dy$ [s^{-1}] が液体に発生する。ここで y は壁からの垂直距離。その際、壁には剪断応力 S [$N/m^2 = Pa$] が作用し、 D との間に次の関係が成立する。

$$S = \eta D = \eta dv/dy \quad (1)$$

(1)式の比例定数 η が粘度 [$Pa \cdot s$] であり、ニュートン流体では液体固有の値をとる。一般に、単一成分の液体、あるいは、それに分子量の小さな溶質が完全溶解した溶液などがニュートン流体である。

ニュートン流体は、毛細管管内を流れる場合、Hagen-Poiseuille 則に基づく円管内層流速度分布に従って流動する。ここで粘度 η は、

$$\eta = \pi r_0^4 / (8QL) \Delta P \quad (2)$$

の関係となる。すなわち、内半径 r_0 [m]、長さ L [m] の毛細管管に圧力差 ΔP [Pa] で試料液体を流した時、その透過流量 Q [m^3/s] の測定値から η が求



図1 毛細管粘度計の写真
右はキャノンフェンスケ、左はオストワルド。

められる。

図1に例示した毛細管粘度計²⁾は、この(2)式を利用してニュートン流体の粘度を測定するためのガラス器具であり、垂直に置かれた毛細管管を一定量の液体が自重で落下する時間から Q を求めて η に換算する。液体の特性に応じてキャノンフェンスケ形、オストワルド形、ウベローデ形など形状が異なる多種のものが用意されており、測定範囲ごとに r_0 と L を変えて使い分ける必要がある。

本研究では、最も汎用的なキャノンフェンスケ形(柴田科学株)を使用した。すでにメーカーによって正確な校正が行われており、直接絶対値を測定できる。一方、非ニュートン流体の粘度は測定できない。非ニュートン流体は、液液分散系エマルション、固液分散系サスペンション、高分子物質の融液や溶液などであり、剪断応力 S と剪断速度 D の関係が(1)や(2)式ほど単純ではなく、粘度は剪断速度の関数 $\eta(D)$ となる。このため $\eta(D)$ は「見かけ粘度」と呼ばれ区別される。

2-2 内円筒回転粘度計

図2に示す共軸内円筒回転方式では、回転円筒面における剪断速度 $D = -r d\theta^*/dr$ と剪断応力 S は次式のように表すことができる。

$$D = 2\omega / \{1 - (R_b/R_c)^2\} \quad (3)$$

$$S = T / (2\pi R_b^2 H) \quad (4)$$

ここで r は軸からの距離[m]、 θ^* は角速度[rad/s]、

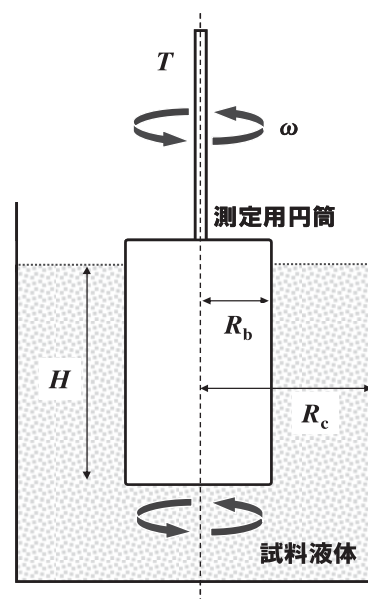


図2 内円筒回転粘度計の概念図

ω は距離 R_b [m]にある内円筒面の角速度[rad/s], R_c は外円筒面までの距離[m], T は内円筒に作用するトルク[N・m], H は液に浸漬した内円筒高さ[m]である.

(3)と(4)式を(1)式に代入すると、共軸内円筒回転方式の粘度 η は次式によって算出される.

$$\eta = T(1/R_b^2 - 1/R_c^2)/(4\pi\omega H) \quad (5)$$

この型式は、B型粘度計と呼ばれることが多く、本報では東機産業(株)DVL-B形を使用した.

下記で取り上げるコーン・プレート式を含めて、回転粘度計は、回転速度や回転部位のサイズを変えることができる。このことは、剪断速度 D を変数にした非ニュートン流体の粘度測定ができることを意味している.

2-3 コーン・プレート式回転粘度計

内円筒回転粘度計の内円筒をコーン、外筒をプレートに置き換えた図3のコーン・プレート型粘度計は汎用的に使用され、E型粘度計という通称で呼ばれることが多い。本報では東機産業(株)EHD形を使用した.

最も大きな特徴は、試料液体量が1 ml以下の少量で済み、B型粘度計よりも高い剪断速度が得られることである。剪断速度 D 、剪断応力 S および粘度 η は次式に従う.

$$D = \omega / \sin \phi \approx \omega / \phi \quad (6)$$

$$S = 3T / (2\pi R_{co}^3) \quad (7)$$

$$\eta = 3T\phi / (2\pi\omega R_{co}^3) \quad (8)$$

ここで ϕ はコーンとプレート間の角度[rad], R_{co} はコーン半径[m]である.

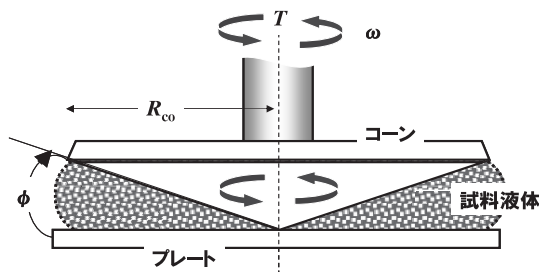


図3 コーン・プレート型粘度計の概念図

2-4 音叉振動式粘度計

液体中に対向する2つの振動子を挿入し、変位量一定の条件で加振する。その振動を発生維持させるために必要な力（電磁力）を検出することに

より粘度が測定できる^{3), 4)}。すなわち、

$$\eta = F/(x\omega_n) \quad (9)$$

の関係が成立する。ここで F は加振力[N], x は変位量（振幅）[m], ω_n は振動子の固有振動数[Hz]である。音叉振動式粘度計検出部の構成を図4に示す.

本報では図5に示す(株)エー・アンド・デイ SV-1Aを使用しており、この機種には、測定が非常に簡便で測定時間が短く、粘度測定だけでなく反応プロセスのモニタリングなどにも応用できる特徴がある。一方、測定対象はニュートン流体に限定される.

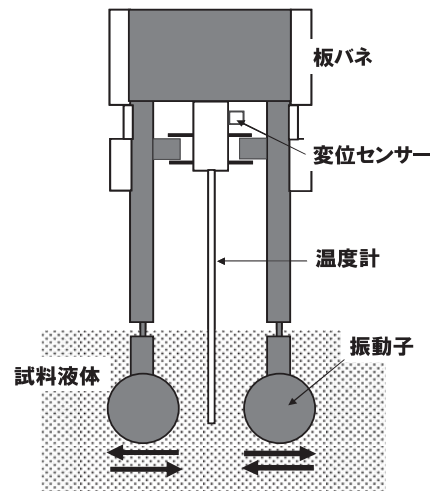


図4 音叉振動式の粘度検出部の概念

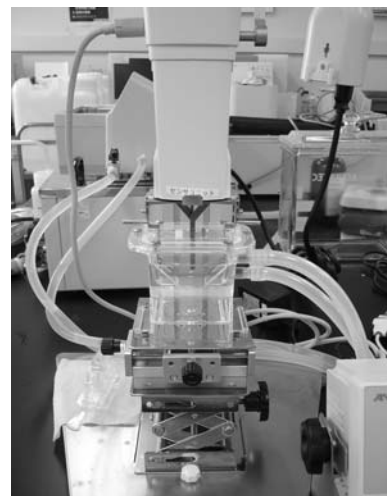


図5 音叉振動式粘度計の測定部写真

2-5 測定試料と条件

測定の「不確かさ Uncertainty」⁵⁾ は、装置、試

料、環境、作業員など多くの要因によって引き起こされ、これらを定量的に表記することは現実的には非常に難しい。そこで本報では、試料、環境、作業員および測定時刻が同じ条件下で粘度を測定する繰り返し精度 Repeatability および異なる条件下（本報では試料と作業員は同じ）で粘度を測定する再現性精度 Reproducibility を明らかにし、測定方法および装置間の測定信頼性、すなわち、不確かさを比較した。

作業員は、初めて各粘度測定装置を扱う初心者を選んだ。繰り返し精度は連続 10 回の測定結果をもとに解析した。再現性試験は、繰り返し試験終了ごとに試料を破棄、装置を再起動、さらにランダムに測定日を変え、計 10 回の測定結果から解析した。

試料は、ニュートン流体の場合、粘度標準液⁶⁾ JS50（昭和シェル石油㈱、30℃で 26.4 mPa・s）、JS100（30℃で 51 mPa・s）および JS52000（30℃で 18000 mPa・s）、非ニュートン流体では食用マヨネーズ 500 ml（キューピー㈱）を使用した。測定は全て 30℃で実施した。

3 結果

3-1 ニュートン流体粘度測定 of 繰り返し精度と再現性精度

毛細管粘度計の繰り返し精度は、粘度標準液 JS50 を試料にした場合、平均値が 26.5~26.7 mPa・s、標準偏差が ±0.02~±0.06% であった。JS100 の場合、平均値が 51.0~51.3 mPa・s、標準偏差が ±0.01~±0.07% であった。標準液の粘度が真値に近似しているとすれば毛細管粘度計の精度は高い。また、繰り返し精度と再現性精度のいずれも非常に優れていた。結果をまとめて図 6 に示す。

内円筒回転粘度計を用いた JS50 測定の繰り返し精度は、平均値が 24.3~28.0 mPa・s、標準偏差が ±0.13~±3.5% であった。精度は得られていると判断されるが、繰り返し精度と再現性精度のいずれも乏しく、図 7 から明らかなように毛細管粘度計よりも精度は 2 桁悪く、再現性は 6~8% の変動を覚悟する必要がある。

コーン・プレート型粘度計を用いた JS52000 測定の繰り返し精度は、平均値が 16,500~17,500

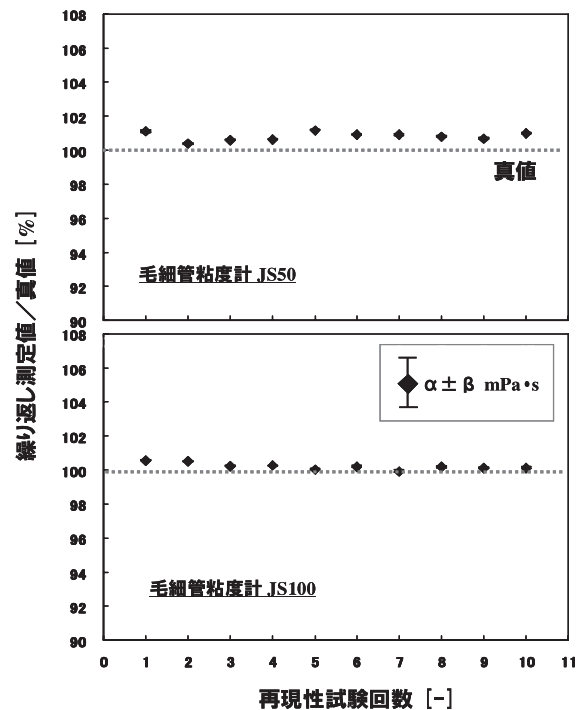


図 6 毛細管粘度計の再現性精度

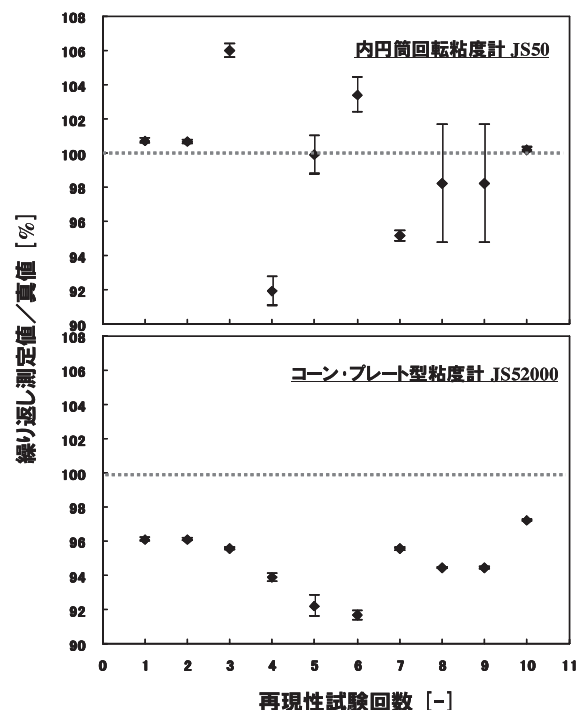


図 7 回転粘度計類の再現性精度

mPa・s、標準偏差が ±0~±0.62% であった。精度に信頼性が欠けるが、繰り返し精度は比較的高い。しかし、再現性精度に乏しく、3~8% の変動があった。

音叉振動式粘度計を用いた JS50 測定の繰り返し精度は、平均値が 24.1~27.1 mPa・s、標準偏差が $\pm 0 \sim \pm 1.4\%$ であった。確度は得られていると判断されるが、繰り返し精度と再現性精度のいずれも乏しく、図 8 から明らかなように毛細管粘度計より精度は 2 桁悪く、再現性は 6~7% の変動を考慮する必要がある。

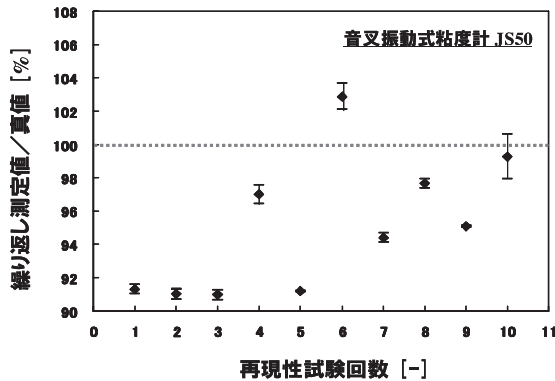


図 8 音叉振動式粘度計の再現性精度

繰り返し精度と再現性精度のいずれも毛細管粘度計が最も優れ、確度も高く、極めて信頼性が高かった。次いで、コーン・プレート型粘度計の成績が良いが確度に不安があった。そして音叉振動式粘度計、内円筒回転粘度計の順となった。回転粘度計類は本来非ニュートン流体を得意としており、妥当な結果ではないかと考えられる。安易にニュートン流体の高精度粘度測定に使用することは避けるべきであると考えられる。

3-2 非ニュートン流体粘度測定の繰り返し精度と再現性精度

非ニュートン流体である食用マヨネーズを試料にコーン・プレート型粘度計の信頼性を調べた。すなわち、コーンの回転数を変えて剪断速度に依存する見かけ粘度の変化と繰り返し精度ならびに再現性精度を調べた。なお、食用マヨネーズであることから真値は不明である。

繰り返し試験の結果、剪断速度 $D = 1.92 \text{ s}^{-1}$ における見かけ粘度 $\eta(D)$ の標準偏差は、平均値の $\pm 0.3 \sim \pm 13.1\%$ 、 3.83 s^{-1} では $\pm 0.2 \sim \pm 9.3\%$ 、 9.6 s^{-1} では $\pm 0.2 \sim \pm 8.0\%$ 、 19.2 s^{-1} では $\pm 0.3 \sim \pm 18.0\%$ 、 38.3 s^{-1} では $\pm 0.7 \sim \pm 13.1\%$ であった。精度そのものは先のニュートン流体と比べ、2 桁近く悪化し

ており、10~20% の誤差は覚悟しておくべきであると考えられる。しかし、剪断速度は繰り返し精度に影響を与えていなかった。

繰り返し試験の平均値を 10 回の再現性試験において再平均化し、その標準偏差を求めて図 9 に示した。両対数でプロットしているため誤差が圧縮されているものの、比較的再現性精度も良好であった。剪断速度 $D = 1.92 \text{ s}^{-1}$ における再現性試験の見かけ粘度標準偏差は、平均値の $\pm 6.9\%$ 、 3.83 s^{-1} では $\pm 6.0\%$ 、 9.6 s^{-1} では $\pm 5.6\%$ 、 19.2 s^{-1} では $\pm 5.6\%$ 、 38.3 s^{-1} では $\pm 6.0\%$ であり、ほぼ一定であった。コーン・プレート型粘度計では再現性に 5.5~7.0% 程度の変動を想定しておく必要があると考えられた。

一方、ニュートン流体で繰り返し精度と再現性精度のいずれも悪かった内円筒回転粘度計は、非ニュートン流体でもさらに変動幅が大きくなることが予想される。非ニュートン流体に対する測定機器の精度と再現性に関する考察は、別の機会に報告したい。

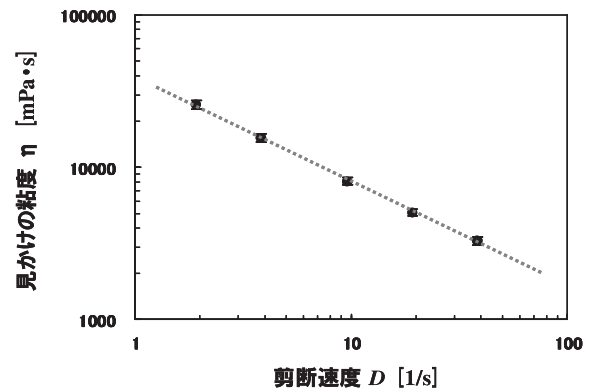


図 9 コーン・プレート型による非ニュートン流体の見かけ粘度測定と再現性精度

4 まとめ

粘度測定機器の特性を繰り返し精度と再現性精度の観点から調べた。その結果、以下のことが明らかになった。

- 1) 毛細管粘度計は、本報で調べた測定方式の中で最も優れた繰り返し精度と再現性精度を示した。確度も高く、粘度測定の基準になる方法であると考えられた。
- 2) 内円筒回転粘度計では、確度は得られたと推測

されるが、繰り返し精度は毛細管粘度計より2桁悪く、再現性精度も6~8%の大きな変動を示した。

- 3) コーン・プレート型粘度計では、確度に信頼性が欠けるものの繰り返し精度は比較的高かった。しかし、再現性精度に乏しく、3~8%の変動があった。非ニュートン流体を測定した場合には、ニュートン流体と比べて2桁近く精度が悪化した。
- 4) 音叉振動式粘度計では、確度は得られていると判断された。しかし、繰り返し精度と再現性精度はいずれも乏しく、毛細管粘度計より精度は2桁悪く、再現性は6~7%の変動があった。

5 参考文献

- 1) 川崎種一, *NEW FOOD INDUSTRY*, **22**, 4-6 (1980)
- 2) 日本工業規格 JIS K2283 「原油および石油製品の動粘度試験方法並びに石油製品粘度指数算出方法」
- 3) 出雲直人; 振動式粘度計で測定される物理量について, 第23回センシングフォーラム (2006)
- 4) 出雲直人, 小岩井淳志; 静粘度と振動式粘度計について, 第24回センシングフォーラム (2007)
- 5) 独立行政法人製品評価技術基盤機構認定センター 「不確かさの入門ガイド」
- 6) 日本工業規格 JIS Z 8809 : 2000 「粘度計校正用標準液」