

A New Microscopic Method for Measuring the Viscosity of a Liquid.

By

Fumio Hirata.

(Laboratory of Colloidal Chemistry, Kirii Higher Technical School.)

Abstract.

The purpose of this article is to present a new method for the measurement of the viscosity of liquids, with special application to the viscosity of thick colloidal solutions.

I. Theoretical.

Given the linear flow of a liquid in a capillary tube with a radius of R and a length of l under a pressure of P , the following equation is used to express the velocity of the flow v , at a distance r , from the axis of the capillary tube :

$$v = \frac{P}{4l\eta} (R^2 - r^2)$$

where η is the viscosity.

Putting $r=0$, we have the viscosity of the flow on the axis of the tube, v_0 ,

$$v_0 = \frac{P}{4l\eta} R^2$$

and therefore,

$$\eta = \frac{PR^2}{4lv_0}$$

Now η will be determined by the measurement of v_0 if R , l and P are known. The new method of the measurement of η is based on the direct measurement of v_0 by a microscope. To determine the viscosity of a liquid, we mix with it a certain number of fine particles of a solid substance that does not chemically react on the liquid, and, by means of a microscope, measure the velocity of the particle moving with the liquid along the axis of a capillary tube. The velocity of the particle thus obtained must represent the velocity of the liquid on the axis of the capillary tube.

There the following points were discussed :

- (1) The measurability of the magnitude of v_0 .
- (2) The measurable range of η by this new method.
- (3) The method of the measurement.
 - (a) Selection of a particle in the field of a microscope.
 - (b) Quantity of the mass of the particles to be mixed.
 - (c) Radius and number of the particles mixed.
 - (d) Distance of falling of the particles during the measurement.

And then it was concluded that this microscopic method of the measurement is possible.

II. Experimental.

1. Apparatus.

A measuring tube to be filled with a liquid is given in Fig. 1, and the whole arrangement of the apparatus in Fig. 2. In Fig. 2, AB is the measuring tube, M a microscope equipped with an ocular micrometer, and P and Q equipment to produce the pressure.

2. Procedure.

After a sample with fine particles is placed in the measuring tube, the arrangement is set up as shown in Fig. 2. Then the microscope is focussed on the axis of the tube so that the image of the axis comes just upon the scale of the ocular micrometer in the field. Turning the stop cock, H, we lead the pressure, p , which is previously prepared by the equipment, P and Q, to the tube. After the selection of a particle moving along the axis in the field of the microscope, the velocity of the particle is measured by means of the scale of the ocular micrometer and a stop watch. In the same manner, the determination of the velocity is repeated at different pressures. By plotting the pressure, p , and the velocity, v_0 , on the rectangular co-ordinates, we get a straight line as in Fig. 3—9. If we put an equation $p=a+b$ for this straight line, the coefficient, b , will be expressed by the principle of the method of the least squares, as follows;

$$b = \frac{n \sum_{i=1}^n p_i v_{0i} - \sum_{i=1}^n p_i \sum_{i=1}^n v_{0i}}{n \sum_{i=1}^n v_{0i} - \left(\sum_{i=1}^n v_{0i} \right)^2}$$

From this value of b , the value of η is given by the following equation:

$$\eta = \frac{R^2}{4l} \cdot \frac{P}{v_0} = \frac{R^2}{4l} \cdot b = \frac{R^2}{4l} \frac{n \sum_{i=1}^n p_i v_{0i} - \sum_{i=1}^n v_{0i} \sum_{i=1}^n p_i}{n \sum_{i=1}^n v_{0i} - \left(\sum_{i=1}^n v_{0i} \right)^2}$$

where n is the number of measurements.

The result of the test shows that this new method can be employed for the measurement of viscosity—especially of a liquid of very high viscosity.

The following advantages were claimed for this new method:

- (1) A small quantity, only a few cc. of the sample is required.
- (2) The measurable range is ample.
- (3) This method requires no determination of the density of the sample.
- (4) No special apparatus is needed.
- (5) Since the viscosity anomaly and the eddy flow, if existent, are recognized during the measurement, the normal viscosity is obtained.

Jan., 1934.

顕微鏡的方法による液体粘度測定法

平 田 文 夫

既に文献に現はれて居る液体粘度の測定方法, 測定装置は甚だ多種多様であるが, 大別すれば水平又は垂直毛细管よりの液の流出速度の測定によるもの,^{1)~4)} 球體或は圓筒狀の物體の, 液中に於ける運動速度の測定によるもの,^{4)~56)} 共軸の二圓筒間に液を充し其の一つを廻轉せしむることによりて起る他の圓筒の廻轉角度の測定によるもの,^{57)~64)} 液中に球, 圓筒或は圓盤を垂下し其の液中に於ける廻轉振動を測定するもの,^{65)~74)} 及び其他特殊な方法,^{75)~87)} が用ひられて居る。此處に提出せ

- 1) Poiseuille, *Compt. rendu.*, 15, 1167 (1842).
- 2) Wiedemann, G., *Pogg. Ann.*, 99, 221 (1856).
- 3) Sprung, A., *Pogg. Ann.*, 159, 1 (1876).
- 4) Meyer, O. E., & Hosencranz, A., *Wied. Ann.*, 2, 337 (1877).
- 5) Giotrian, O., *Wied. Ann.*, 160, 238 (1877).
- 6) Pribram, R. & Handl, A., *Wien. Ber.* (2A) 78, 113 (1878).
- 7) Slotte, K., *Wied. Ann.*, 14, 13 (1881).
- 8) Koch, K. R., *Wied. Ann.*, 14, 1 (1881).
- 9) Stephan, C., *Wied. Ann.*, 17, 673 (1882).
- 10) Engler, C., *Chem. Ztg.*, 9, 189 (1885).
- 11) Fousseau, G., *Ann. chim. phys.*, (6) 5, 348 (1885).
- 12) Arrhenius, S., *Z. f. Physik. Chem.*, 1, 285 (1887).
- 13) Couette, M., *Journ. de physique*, (2) 9, 414 (1890).
- 14) Ostwald, W., *Physiko-chemische Messungen*, 3 Aufl. 232.
- 15) Gartenmeister, R., *Z. f. Physik. Chem.*, 6, 524 (1890).
- 16) Brückner, H., *Wied. Ann.*, 42, 287 (1891).
- 17) Thorpe, T. E. & Roger, J. W., *Phil. Trans. A.*, 185, 397 (1894).
- 18) Heydewiller, A., *Wied. Ann.*, 55, 561 (1895).
- 19) Friedlander, J., *Z. f. Physik. Chem.*, 38, 388 (1901).
- 20) McIntosh, D. & Steel, B., *Proc. Roy. Soc. London*, (A) 73, 450 (1904).
- 21) Jones, H. C. & Veasey, W. R., *Z. f. Physik. Chem.*, 61, 641 (1905).
- 22) Scarpa, *Gazzetta*, 40, 271 (1910).
- 23) Ubbelohde, L., *Handb. d. Chem. u. Tech. d. Oele*, I, 340.
- 24) Bingham, E. C. & White, G. F., *Z. f. Physik. Chem.*, 80, 670 (1912).
- 25) Phillips, P., *Proc. Roy. Soc. London*, (A) 87, 49 (1912).
- 26) Davis, P. B. & Harry C. Jones, *Z. f. Physik. Chem.*, 81, 68 (1913).
- 27) Washburn, E. W. & Williams, G. V., *Journ. Amer. Chem. Soc.*, 35, 737 (1913).
- 28) Appleby, M. P., *Journ. Chem. Soc.*, 97, 2000 (1910).
- 29) Bousfield, W. R., *Journ. Chem. Soc.*, 107, 1781 (1915).
- 30) Bingham, E. C. & Jackson, R. F., *Scienc. Pap. Bur. Stand.*, No. 298 (1917).
- 31) Kirchhof, F., *Koll-Z.*, 15, 30 (1914).
- 32) Hess, W. R., *Koll-Z.*, 27, 154 (1920).
- 33) Vogel, *Physik. Zeitschr.*, 22, 645 (1921).
- 34) Martin, *Bull. Soc. Chim. Belg.*, 34, 81 (1925).
- 35) Lewis, J. R., *Journ. Amer. Chem. Soc.*, 47, 626 (1925).
- 36) Duclaux, J. & J. Erera, *Journ. de Phys. et Radium*, (6) 6, 202 (1925).
- 37) Walden, P., Ulich, H. & E. J. Birr, *Z. f. Physik. Chem.*, 131, 22 (1927).
- 38) Köhler, R., *Koll-Z.*, 43, 187 (1927).
- 39) Ostwald, W. & R. Auerbach, *Koll-Z.*, 41, 56 (1927).
- 40) Titani, I., *Bull. Chem. Soc. Japan*, 2, 95 (1927).
- 41) Rogers, S. M. & L. R. Adkins, *Ind. Eng. Chem.*, 20, 742 (1928).
- 42) Tsuda, S., *Koll-Z.*, 45, 325 (1928).
- 43) Kroepelin, H., *Z. f. Physik. Chem.*, (A) 149, 291 (1930).
- 44) Stokes, G. G., *Trans. Camb. Phil. Soc.*, 9, 8 (1851).
- 45) Pisati, G., *Gazz. Chim. Ital.*, 6, (1876).
- 46) Schödtner, F., *Wien. Ber.*, (2A) 77, 682 (1878).
- 47) de Heen, P., *Bull. de l'Acad. Roy. Belg.*, (2) 45, 798 (1878).
- 48) Jones, P. G., *Phil. Mag.*, (5) 27, 451 (1894).
- 49) Daff, W., *Physik. Rev.*, 4, 23 (1896).
- 50) Tammann, G., *Z. f. Physik. Chem.*, 28, 17 (1898).
- 51) Allen, E. T., *Phil. Mag.*, (5) 50, 323 (1900).
- 52) Ladenburg R., *Ann. d. Physik.*, 22, 287 (1907).
- 53) Arnold, H. D., *Phil. Mag.*, (6) 22, 755 (1911).
- 54) Gibson, W. H. & Jacobs, L. M., *Trans. Chem. Soc.*, 117, 973 (1920).
- 55) Busse, W. F. & Dogget, W. B., *Ind. Eng. Chem., Analyt. Ed.*, 314 (1930).
- 56) Moore, L. P. & Cuthbertson, A. G., *Ind. Eng. Chem., Analyt. Ed.*, 419 (1930).
- 57) Couette, M., *Compt. rend.*, 107, 388 (1888).
- 58) Searle, G. F. C., *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 16, 7 (1912).
- 59) Gurney, I. E., *Phys. Rev.*, 26, 98 (1908).
- 60) Hatschek, E., *Koll-Z.*, 13, 88 (1913).
- 61) Leroux, P., *Ann. de Phys.*, (10) 4, 160 (1925).
- 62) Kampff, A., *Koll-Z.*, 51, 165 (1930).
- 63) Lillie, H. R., *Phys. Rev.*, (2) 36, 347 (1930).
- 64) Lecomte du Nouy, P., *Rev. Scient.*, 65, 105 (1931).
- 65) Moritz, A., *Pogg. Ann.*, 20, 74 (1847).
- 66) Stokes, G., *Trans. Camb. Phil. Soc.*, 9, 8 (1851).
- 67) Coulomb, C. A., *Mém. de l'Inst. (Savants étrangers)*, 246 (1801).
- 68) Meyer, O. E., *Pogg. Ann.*, 113, 193 (1861).
- 69) Grotian, O., *Pogg. Ann.*, 175, 130; 237 (1876).
- 70) Oberbeck, A., *Wied. Ann.*, 11, 634 (1880).
- 71) Schmidt, T. S., *Wied. Ann.*, 16, 635 (1882).
- 72) Fawsitt, C. E., *Proc. Roy. Soc. London*, (A) 80, 290 (1908).
- 73) König, W., *Wied. Ann.*, 25, 618 (1885).
- 74) Stables, W. & Wilson, A., *Phil. Mag.*, (5) 15, 406 (1883).
- 75) Lampel, A., *Wien. Ber.*, (2A) 93, 291 (1886).
- 76) Helmholtz, H. & Piotrowski, G., *Wien. Ber.*, (2A) 40, 607 (1868).
- 77) 同様の測定による。
- 78) Ladenburg, R., *Ann. d. Physik*, (4) 27, 157 (1908); (液を球體中に満し之れを釣下げ撻振動を行はしめ其の測定によるもの)
- 79) Mützel, K., *Wied. Ann.*, 43, 15 (1891); (圓筒中に液を満して同上の測定を行へるもの)
- 80) Subrahmaniam, *Indian Journ. of Physics*, 1, 267 (1926); (U字管中の液の振動の減衰の測定によるもの)
- 81) Stokes, G., *Phil. Mag.*, (4) 1, 337 (1851); (液の表面に於ける波動の減衰の測定より)
- 82) Watson, F., *Phys. Rev.*, 15, 20 (1902); (同上)
- 83) Guye, C. E. & Mintz, S., *Arch. Scienc. Phys. Nat.*, (4) 26, 136, (1908); (液中に於ける振動の減衰の測定より)
- 84) Gümbel, Z. f. Tech. Physik, 1, 72 (1920); (2平面間に於ける液の流動によるもの)
- 85) Roswall, R. O., *Phil. Mag.*, (7) 3, 994 (1927); (2曲面間に於ける液の流動によるもの)
- 86) Richardson, E. G., *Journ. of Scient. Instrument*, 6, 337 (1927); (加熱された針金を取りまく液の熱傳導度測定によるもの)
- 87) Wilson, H. A., *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 10, 25 (1900); (結晶速度の測定によるもの)
- 88) Fürth, R., *Z. f. Physik*, 60, 313 (1903); (液中の微粒子の示す Brown 運動の測定によるもの)

んとする新測定法は其の原理に於てこれ等とは異り且つ種々の點に於て特徴を持ち、濃厚膠質溶液の如き粘稠なる液体の粘度測定には、特に有效なものと考へられるものである。

理 論

新測定法の原理は簡單である。測定せんとする液体を一定長の毛細管中に、一定の壓力によつて流動せしめ、該毛細管の軸に於ける流動速度を直接顕微鏡下に測定し該液の絶対粘度を決定するにある。理論式の誘導は Poiseuille の法則の誘導と同一であつて、即ち、迂りもなく、又渦流も起さない状態で液が毛細管内を流動する時、管の半径を R とし、其の長さを l 、軸より r の距離に於ける液の流動速度を v 、流動を起さしめて居る、毛細管兩端の壓力の差を P とすれば此等の間には次の關係が與へられる。⁸⁸⁾

$$v = \frac{P}{4\eta} (R^2 - r^2) \dots \dots (1)$$

但し η は液の粘度である。従つて $r=0$ とすれば毛細管軸上の流動速度が與へられる、之れを v_0 で示せば、

$$v_0 = \frac{PR^2}{4l\eta}$$

従つて、

$$\eta = \frac{PR^2}{4lv_0} \dots \dots (2)$$

若し P, R, l を知り、 v_0 を測定し得れば η の値は決定し得る筈である。實際に、 P, R, l の値の測定には問題は起らない。唯、 v_0 は如何にして測定するか、或は又、 v_0 は測定可能な値であるか如何かと問題である。此等の點に就き吟味する必要があるであらう。

I. v_0 は測定可能な値である 今液の粘度を 10 (絶対單位) とする。これはグリセリンの常溫に於ける粘度の程度である。毛細管の半径を 0.05 cm、其の長さを 10 cm とし此等の値を (3) 式に入れれば $v_0 = 0.0000625 \cdot P$ となる。 P を水柱で加壓したとして、其の高さ h とすれば $v_0 = 0.0613h$ となり v_0 と h との關係を求めると第 I 表となる。これによれば水柱 1/100 mm より 100 cm 迄の壓力の下で

Table I

h cm	v cm/sec
0.001	0.0000613
0.01	0.000613
0.1	0.00613
1	0.0613
10	0.613
100	6.13

は、若し顕微鏡を用ひ其の接眼マイクロメーターによつて測定を行へば速度の測定は可能であることが知れる。何となれば顕微鏡視野中での移動距離は $v_0 t$ であるから、(但し t は移動に要する時間) 今 $= 1000 \text{ sec}$ とすれば v_0 の最小の値さへ測定は可能である。 v_0 の大きい値に對しても、 l を小さくすれば同じ正確度で $h = 0.1$ 程度迄は測定し得られる要するに、半径 0.05 cm の程度で既に測定可能な値であるから半径、及び長さ、を加減し、加壓を加減することによつて v_0 の値は常に測定可能な範圍にもたらしことが出来る。即ち顕微鏡的方法によれば v_0 は測定し得らるゝ値であることが分かる。

II. η の測定可能な範圍

(3) 式中 P, R, l のに對し裝置並に操作上許容される値の極限を導入することにより測定可能な η の範圍を決定して見る。

88) Brillouin, M., "Leçons sur la viscosité des liquides et gaz", (1907), t. 1, p. 75.

(平田) 顕微鏡的方法による液体粘度測定法

	(極小値)	(極大値)
R	0.01cm	0.5cm
l	5cm	20cm
P	1cm(水柱)	150cm(水銀柱)
v_0	0.00005cm/sec	0.005cm/sec

以上の条件の下で測秒計を用ひて測定するとして正確度0.001以内で決定し得る η の値は次の数字を與へる。

極小値	2.4×10^{-1}	(絶対單位)
極大値	5.0×10^8	(絶対單位)

故に範圍は 10^9 である。

試みに同一条件の下で Ostwald 型毛細管粘度計により測定し得る範圍を求めて見る。流出液量を5cc とし流出時間を極小値50sec とし極大値1000sec とすると、次の數値を與へる。

極小値	3.9×10^{-6}	(絶対單位)
極大値	1.9×10^2	(絶対單位)

又、球體落下法の場合、次の条件とすれば、

	(極小値)	(極大値)
球の半径	0.1cm	0.5cm
落下に要する時間	100sec	1000sec
球の密度	1.06	16.6

尚、液の密度を1, 落下距離10cm とし Ladenburg の補正式⁸⁹⁾ によつて計算すると次の數字を與へる。

極小値	1.4×10^0	(絶対單位)
極大値	6.5×10^6	(絶対單位)

尚實際上、球體落下法に於ては密度の異なる完全な球體を得ることは困難である。故に、市場に容易に得られるボールベアリング用鋼鉄球を用ひるとすれば

極小値	1.6×10^2	(絶対單位)
極大値	2.8×10^6	(絶対單位)

以上を比較すると毛細管粘度計は低粘度の液体の粘度測定に便であり顕微鏡的方法によれば高粘度のものに便であること、範圍は後者は最も大であることがわかる。

III. v_0 の測定法

v_0 を顕微鏡的方法によつて測定する實際的方法是次の如くする。豫め液中に微粒子を混和し充分均一に分散せしめ之れを毛細管中に充し粒子中毛細管の軸上にあるものを顕微鏡中にて選定しこれを目標とし接眼マイクロメーターと測秒計により移動速度を測定する。從つて添加される微粒子の性質、分量、並に其の半径につき吟味する必要がある。

(a) 粒子の選擇 試料の液体と化學作用の全く起さなく又溶解作用を受けない固体物質の微粒子を使用すべきであつて例へば、Carbon, Platinum, SiO_2 , Glass, Al_2O_3 , SiC 等の微粒子は之の目的にそふものである。其他試料の種類によつて適當な微粒子を選定すればよい。尚粒子による吸着作用も考へられるが、後述の如く、添加量が微量であるから此の問題は無視出来る。試料が純粹液体であ

89) Ladenburg, R., *Ann. d. Physik.*, 22, 287 (1907).

る場合は勿論此の心配は不要である。尚粒子は膨潤作用をも受けないものでなければならない。

(b) 微粒子の添加量 微粒子の添加により粘度に及ぼす影響については次の如き結果になる。假に今試料の粘度 η が微粒子の添加の爲に η' に變じたとすれば、同一の毛細管、同一の壓力によつて測定を行ふとすれば式(2)により次の二式を得る。

$$\eta = \frac{R^2}{4lv_0} \dots\dots\dots (3)$$

$$\eta' = \frac{R^2}{4lv_0'} \dots\dots\dots (4)$$

然るに分散系の η' と分散媒の η との間に Einstein の與へた關係⁹⁰⁾が成立するから、

$$\eta' = \eta (1 + 2.5\phi)$$

式中 ϕ は分散系全容積で分散粒子の占むる總容積を割つた値である。(3), (4), (5)により

$$v_0 = (1 + 2.5\phi) v_0'$$

従つて

$$v_0' = v_0 \left(\frac{1}{1 + 2.5\phi} \right)$$

故に

$$v_0' = v_0 (1 - 2.5\phi)$$

$$\frac{v_0' - v_0}{v_0} = -2.5\phi$$

$$\frac{\Delta v_0}{v_0} = -2.5\phi$$

分散系100c.c. 中にある微粒子の量を mg とし、其の密度を ρ とすれば、

$$\frac{\Delta v_0}{v_0} = -0.025 \frac{m}{\rho}$$

$m=0.01g$ とすれば第2表の示す關係となる。

Table II

ρ	$\frac{\Delta v_0}{v_0}$
0.5	0.0005
1	0.00025
2	0.00013
3	0.00008
4	0.00006
5	0.00005

v_0 の測定が既に述べたる如く 1/1000 の正確度で行なはるゝものとすれば $m=0.01g$ にて既に第2表に於ける ρ の値のいづれに對しても正確度以下の $\frac{\Delta v_0}{v_0}$ となるを以て、粒子の速度を粒子のなき時の速度と探つて差支へない。若し $\rho=3$ とするとすれば $m=0.1g$ にても、既に測定誤差の範圍内となるのであるから此の量まで使用は許されることになる。

(c) 粒子の半徑並に其の個數 添加される粒子は顕微鏡下にて目標とするに足る半徑を必要とし、且つ粒子數は毛細管軸上に選擇するに充分なる粒子數を含むべきである。今 $1mm^3$ 中に100個の粒子が散在するとすれば軸上 $1mm$ 上に10個の割の確率を以て粒子は存在する筈であるから目標の選定には充分な個數である。斯かる密度に分布させるには次の如き半徑の粒子を使用すべきである。

$$r = \sqrt[3]{\frac{3}{4} \frac{m}{\pi \rho n}}$$

式中 n は $1cm^3$ 中の粒子數、 r は粒子の半徑、 m は粒子の總質量、 ρ は其の密度を示す。

90) Einstein, A., *Ann. d. Physik*, (4), 19, 289 (1906).

$m=0.01g$, $\rho=1$, $n=10^6$ とすれば, $r=0.0029cm$, となる。即ち粒子の半径 $3/100mm$ 程度のものを $0.01g/100cc$ の割に添加すれば十分に粒子数が含まることとなる, 又前項 (b) の条件も満足することとなる。尚實際に於ては液を流動させつゝ選定し得らるゝ故粒子数は此の計算より遙かに少くとも實測には不便はない。

(d) 測定時間中に起る目標粒子の沈降距離 測定時間中目標粒子が重力の爲に沈下する結果顕微鏡明視距離外に逸する可能性につき吟味を必要とする。密度 ρ_1 粘度 η の液中で密度 ρ_2 半径 r の球體が t 秒間に沈降する距離 x は Stokes の法則により次式で示される。

$$x = \frac{2}{9} \frac{r^2}{\eta} (\rho_2 - \rho_1) g t$$

今水中に於けるカーボランダム粒子の場合として $\rho_2=3.5$, $\rho_1=1$, $\eta=0.01$, $r=0.0005cm$ とすれば $t=1000sec$ 中に沈降する距離 $x=0.014cm$ を與へる。 $r=0.0001cm$ ならば $x=0.0003cm$, 故に此の場合粒子の半径は $0.0001cm$ 即 1μ のものを使用する必要がある。液が Glycerine の程度の η であれば粒子は $0.01cm$ 程度で充分である。甚しく粘潤な液体では此の問題は考慮に入れる必要のない程度である。

以上の吟味により微粒子を目標とする顕微鏡的方法による液体粘度の測定は可能な方法であると結論し得られる。

尚實驗方法測定結果につき述べる前に、此の測定方法の特徴とすべき諸点を列挙すれば下の通りである。

- (1) 少量の試料で測定し得られること、適当な装置によれば數立方厘の試料で充分である。
- (2) 測定の可能な粘度の範囲は廣い。
- (3) 試料自體の密度の測定を必要とせない。元來粘潤な液の密度の測定は甚だ實驗的に困難であるから、此の見地から見て此の測定法は甚だ有效な方法と云ひ得られる。
- (4) 特殊の測定器械を必要とせない。
- (5) 測定中に粘度の異狀性、渦流の存否を直接に認め得らるゝ故従つて正規な粘度を得られる。等の點である。

實 驗

I. 測定装置

測定用容器は硝子製にて第1圖に示すが如きものである。水平部分は長さ約 $10cm$ の毛細管、垂直側管は内徑 $15mm$ 高さ約 $5cm$ である。測定装置全體の略圖は第2圖に示した。圖中 AB は測定用容器、M は接眼マイクロメーターを設けた顕微鏡である。S は光源であつてライツ製、顕微鏡寫眞撮影用白熱電球使用の光源を用ひた。F は前記光源用綠色フィルターであつて熱線吸収を兼ね目標粒子の陰影を濃厚にし鮮明な像を作る目的で使用した。毛細管 AB の中央部 C はバルサムを以て小硝子片を毛細管の上下部に糊着せしめた部分であつて毛細管の表面の曲面の爲に光源より導びいた平行光線が其の平行性を亂さるゝを防ぐ目的であり、目標粒子の輪廓を明瞭にせんが爲に使用した。D は硝子製三路活栓、N は液柱壓力計、P, Q は加壓用の水溜であつて P は固定され、Q は微動螺旋により上下せしめ得るものである。E₁, E₂ は試料の蒸發濃縮或は吸濕を防ぐ目的のもので試料と同一液を容るゝ硝子球である。Glycerine を試料として行つた 第1回、第2回の實驗は容器は室内溫度下にて行つたが、第3回の實驗では測定容器は恆溫槽中に入れて行つたが其の場合、顕微鏡の對物レンズは平面な底面を持つ硝子製小形圓筒、K、をかぶせて恆溫槽中に浸して測定を行つた。

示す原点からの距離が、丁度、前記液自體の水準差に原因する壓力の大きさを示すのであつて、測定中は、之の値は、實際上、一定であると認められる。簡単な計算で、之の値が一定をとつてよい事が容易く分かる。即ち假りに毛細管の半径を 0.05cm, 側管の半径を 1.5cm とし測定回数は10回とし各一回の測定に 1分を要したとすると、全測定時間中に液が一方方向にのみ移動すると假定しても、其の移動容積は $V = \frac{\pi r^4 P l}{8 l \eta}$ であるから $R = 0.05\text{cm}$, $P = 10^3 \text{ dyne/cm}^2$, $l = 10\text{cm}$, $\eta = 10$, $t = 600 \text{ sec}$ とすれば $V = 1.47 \times 10^{-2} \text{ cm}^3$ となる。従つて側管に起る液の水準差の増減 $\Delta h = 2.00 \times 10^{-3} \text{ cm}$ となり壓力計讀取りの際の測定誤差の程度となる。實際には、液の移動は兩方向に行はれるから、之の値は尙小さくなる。即ち側管水準差による壓は測定中變化なしと取り扱つてよいのである。

さて、前述の如く p, v_0 の關係は直線となるが(勿論式(2)の示す如く理論的にも然るべきであるが)式(2)に於ける P は次の二つの壓力の代數和である。即ち

$$P = p + p_{\text{liq.}}$$

p は壓力計の示す値であり $p_{\text{liq.}}$ は液の水準差による値である。 p 及 $p_{\text{liq.}}$ の±の記號の採り方は目標粒子を同方向に動かす様に作用するものを同じ記號とすればよい。今實驗結果より計算を進むる式を求めて見る。 p, v_0 の關係を一般の直線式をとり、

$$p = a + bv_0$$

と置く。但し此の際 a は $p_{\text{liq.}}$ に相當するものであり恆數と置き得らるゝ。 b も恆數であつて之の値は測定値より決定する必要があるものである。最小二乗法によつて條件式を造る。

$$\left. \begin{aligned} \frac{\partial}{\partial a} (p - a - bv_0)^2 &= 0 \\ \frac{\partial}{\partial b} (p - a - bv_0)^2 &= 0 \end{aligned} \right\}$$

従つて、

$$\left. \begin{aligned} p - a - bv_0 &= 0 \\ pv_0 - av_0 - bv_0^2 &= 0 \end{aligned} \right\}$$

h 個の測定値によつて次の式を得る。

$$\left. \begin{aligned} \sum_{i=1}^h p_i - na - \sum_{i=1}^h v_{0i} &= 0 \\ \sum_{i=1}^h p_i v_{0i} - a \sum_{i=1}^h v_{0i} - b \sum_{i=1}^h v_{0i}^2 &= 0 \end{aligned} \right\}$$

これより b を求めて、

$$b = \frac{\sum_{i=1}^h p_i \sum_{i=1}^h v_{0i} - n \sum_{i=1}^h p_i v_{0i}}{\left(\sum_{i=1}^h v_{0i} \right)^2 - n \sum_{i=1}^h v_{0i}^2}$$

斯くして b が與へられれば求むる粘度 η は、式(2)によつて、

$$\eta = \frac{R^2}{4l} \frac{P}{v_0} = \frac{R^2 (p - a)}{4lv_0} = \frac{R^2}{4l} b$$

であるから、

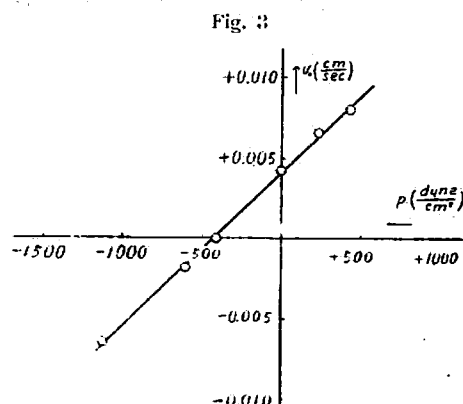
$$\eta = \frac{R^2}{4l} \frac{\sum_{i=1}^h p_i \sum_{i=1}^h v_{0i} - n \sum_{i=1}^h p_i v_{0i}}{\left(\sum_{i=1}^h v_{0i} \right)^2 - n \sum_{i=1}^h v_{0i}^2}$$

として計算決定される。

III. 実験材料及び測定条件

実験の試料として用いた液体はグリセリン、及び醋酸纖維素アセトン溶液であつて前者は市販のプライス製最純グリセリンを用いた。実験番号(1), (2)に用いたものは $D_{20}^{20}=1.2506$ の密度のもの、実験番号(3)で使したグリセリン No. II は $D_{20}^{20}=1.2532$ の密度をもつ。醋酸纖維素アセトン溶液は市販の醋酸纖維素(Cellit L: 低粘度)(獨逸製)を乾燥せるものを使用す。之を再餾脱水せるアセトン中に適量溶解せしめ遠心機に約5時間かけ、固形物を除きたるものを使用した。濃度はこの溶液より一定量を探り減壓乾燥せしめ秤量して決定した。実験番号(4), (5), (6), (7) に使用したものは此の溶液であつて、濃度は 15.90%である。

目標粒子として使用したものは炭素粒子とカーボラングム粒子であつて、前者はベンゼンを燃焼せしめて作った煤煙を二硫化炭素にて洗滌脱脂し、約300°Cにて減壓乾燥したものを使用した。粒



子の大きさは直径、約 1/10mm~1/100mm の程度である。後者カーボラングム粒子は市販の研磨用カーボラングム粉末を水中に懸垂せしめ適当な時間の後中間液層を集め粒子の直径 1/50mm~1/500 mm の附近のものをつた。之の粒子は濃鹽酸、稀鹽酸を用ひて洗滌し、遠心機により液と分離し、再びアンモニアにて弱アルカリ性とし遠心機を使用しつゝ水洗して乾燥せしめて使用した。

其他の実験条件は次の 第3表に記載した通りである。

Table III 測定条件

実験番号	1	2	3	4	5	6	7
試料	グリセリン No. 1	グリセリン No. 1	グリセリン No. 2	醋酸纖維素 アセトン溶液	4と同一溶液	同 左	同 左
毛細管	第1號 R=0.040cm l=9.96cm	同 左	同 左	同 左	同 左	第2號 R=0.0545cm l=9.91cm	第3號 R=0.0965cm l=9.94cm
目標粒子	炭素粒子	同 左	同 左	カーボラングム 粒子	同 左	同 左	同 左
同上添加量	0.1g/100cc	0.01g/100cc	0.1g/100cc	0.2g/100cc	0.2g/100cc	0.2g/100cc	0.2g/100cc
測定温度	室内温度下	同 左	25.00°C±0.01	30.0°C±0.1	26.4°C±0.1	26.4°C±0.1	26.4°C±0.1
室内温度	30°C	30°C	20.0°C	25.0°C	29.5°C	29.5°C	28.0°C
備考			恒温槽中にて 測定	簡單なる水槽 中にて測定	同 左	同 左	同 左
實測數値表	第 4 表	第 5 表	第 6 表	第 7 表	第 8 表	第 9 表	第 10 表
P-V. 圖表	第 3 圖	第 4 圖	第 5 圖	第 6 圖	第 7 圖	第 8 圖	第 9 圖

III. 測定結果並に其の吟味

I. 目標粒子の添加量の粘度に及ぼす影響

前述理論の項 III. 6) に於て吟味せる點即ち目標粒子の添加量の液の粘度に及ぼす影響に就き次の如き測定を行ひ次の結果を得た。

(i) 目標粒子を添加しないブライス製グリセリン No. 2 を使用し普通の毛細管粘度計を用ひて流出時間を測定した。其の結果は次の通りの數を與へた。

測定温度: $25.00^{\circ}\text{C} \pm 0.01$ (恒温槽中)

流出に要した時間: ① 19.34.1
② 19.35.7
③ 19.35.9
④ 19.35.5

以上の平均値 19.35.3

(ii) 同一のグリセリンに、ベンゼンより製し CS_2 で脱脂し 300°C で減壓乾燥したる煤粉を100ccのグリセリンに對し 0.1g 添加せる分散系を同一の毛管粘度計によつて流出時間を測定したるに次の數値を與へた。

測定温度 $25.00^{\circ}\text{C} \pm 0.01$

流出時間: ① 19.36.2
② 19.33.9
③ 19.35.0
④ 19.37.7

以上の平均値 19.35.7

添加の爲に増加した時間は0.4秒であつて流出時間1175.93に對しては0.04%に當る。即ち目標粒子の添加の影響は此の場合粘度の測定誤差範圍であり充分無視し得る事を示して居る。

II. 顕微鏡的方法による粘度測定結果

(1) 室内温度下に於ける測定

これは試験的に行つた測定である。實驗番號(1)及び(2)と示したもので第4表、第5表に其の結果を示した。平均値として $\eta^{30} = 4.36$ (絶対單位)を得た。同一試料を用ひ Ostwald 式毛管粘度計により比粘度を測定し絶対粘度を求めて見ると $\eta^{30} = 4.54$ を與へる。後者の測定は 30.0°C の恒温槽中で測定した値である。兩測定値を比較すると、温度の點で正確さは缺けるから數値の上では比較は無理であるが此の顕微鏡的方法が測定方法として可能なものであることを示して居る。

(2) 恒温槽中での測定

前項試験的測定によつて此の測定法の可能なることを認めたから確定的に行つた測定である。可及的正確を期し、測定管を $25.00^{\circ}\text{C} \pm 0.01$ の恒温槽中に入れ、壓力計は觀測顯微鏡を用ひ0.01mmの桁まで讀取つた。試料はグリセリン No. II を使用した。測定結果は實驗番號(3)として第6表に示した。測定値は $\eta^{25} = 5.93$ (絶対單位)である。

同一試料を同じ恒温槽中にて前項と同様に普通に、使用される毛管粘度計によつて水に對する比粘度を測定し水の絶対粘度の値により計算して $\eta^{25} = 5.93$ (絶対單位)を得た。此の場合、水の流出時間は 24.8秒(平均値)、試料の流出時間は13120秒(平均値)、試料の密度は 1.2532 であり、水の密度 $D_4^{25} = 0.99707$ を用ひ水の絶対粘度は $\eta_{H_2O}^{15} = 0.008941$ の値⁹¹⁾を採つて決定した。

91) Bingham, E. C., "Fluidity and Plasticity", (1922), p. 339.

兩數値を比較するに其の一致は完全である。但し小數位第二位の一致は偶然であると認められる。兩者の測定法共に時間の測定値の誤差は此の桁に於て現はるゝ筈である。其他の點に於ては誤差は第四位にある筈であり従つて時間の測定値の測定秒數を増加せしむる様にすればより以上正確度を増し得るのであつてこれは至難ではない。

此の確定的測定實驗によつて新測定法は其の正確さに於て粘度測定法として満足な結果を與ふるものと認め得られる。

(3) 醋酸纖維素のアセトン溶液の粘度測定

新測定法を用ひて膠質溶液の絶対粘度の測定を醋酸纖維素アセトン溶液に就て行つた。使用した溶液の調製、濃度は「實驗材料」の項に於て述べたものである。測定は實驗番號 (4) と示したもので結果は第7表に與へた。

III. 測定管の毛細管部内徑と粘度測定値との關係に就ての實驗結果

測定器の毛細管部の内徑が異なる時理論的には半径の二乗として關係して來る筈であるが、(3) 式によつて $\eta = \frac{R^2}{4l} \frac{P}{v_0}$ 同一液を用ひ、異つた半径を持つ測定器を使用して此の關係が成立するや否やにつき實驗を試みた。實驗番號 (5) (6) (7) はこれであつて結果は第8表、第9表、第10表、第11表に示した。試料は醋酸纖維素アセトン溶液で前項と同一のものである。簡單なる水槽中に於ける測定故完全な結果を得られなかつたが第11表によつて認めらるゝ如く $\frac{R^2}{l}$ と b の積はいづれの毛細管に對しても略一定數となり理論の要求する關係を示して居る。此の實驗も又顕微鏡的粘度測定法の可能なることを示して居る。

Table IV

N ₀	v ₀ (厘/秒)	$\frac{P}{(ダイン/平方厘)}$	v ₀ ²	Pv ₀	備 考
1	-0.006413	-1133.0	0.00004113	+0.266	$\sum_{i=1}^n P_i \sum_{i=1}^n v_{0i} = -15.73$
2	-0.001914	-805.4	0.00000366	+1.159	$n \sum_{i=1}^n P_i v_{0i} = +81.34$
3	-0.000161	-410.1	0.00000003	+0.066	$\left(\sum_{i=1}^n v_{0i} \right)^2 = +0.0001126$
4	+0.004275	± 0.000	0.00001828	± 0.000	$n \sum_{i=1}^n v_{0i}^2 = +0.001044$
5	+0.006678	+234.4	0.00004460	+1.565	$\frac{R^2}{4l} = 0.00004016$
6	+0.008144	+429.7	0.00006632	+3.500	$b = 1.043 \times 10^5$
$\sum_{i=1}^n$	+0.01061	-1484	+0.0001740	+13.56	$\eta = 4.187$
粘 度 測 定 値		1. 顕微鏡法による値	$\eta = 4.187$	(絶対單位)	
		2. 毛管粘度計による値	$\eta = 4.541$	(絶対單位)	

(平田) 顕微鏡的方法による液体粘度測定法

Fig. 4

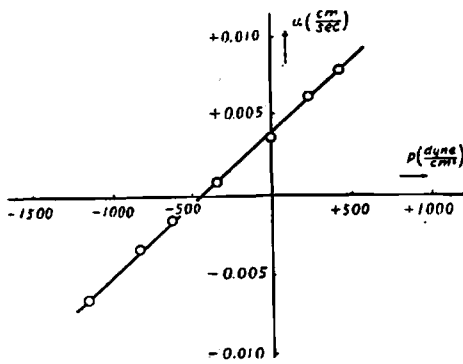


Fig. 5

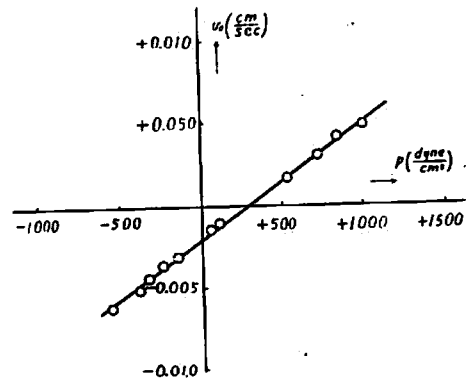


Fig. 6

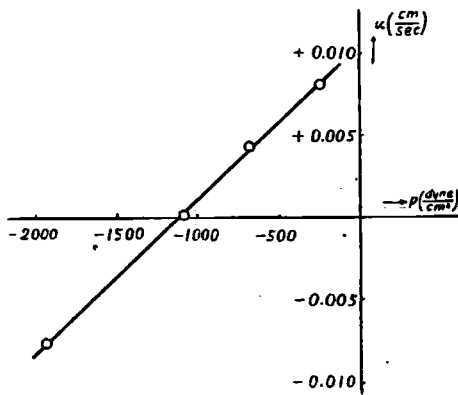


Fig. 7

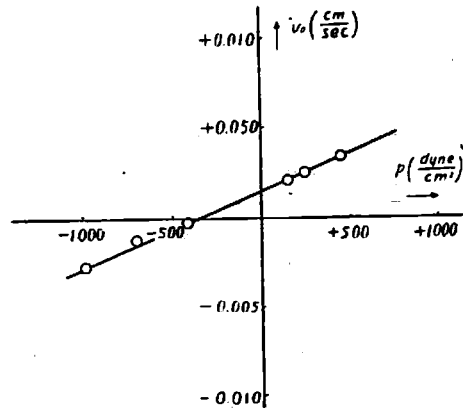


Fig. 8

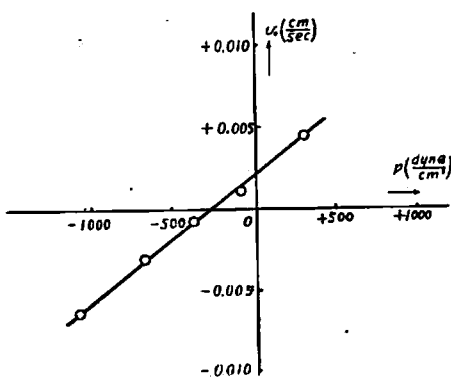
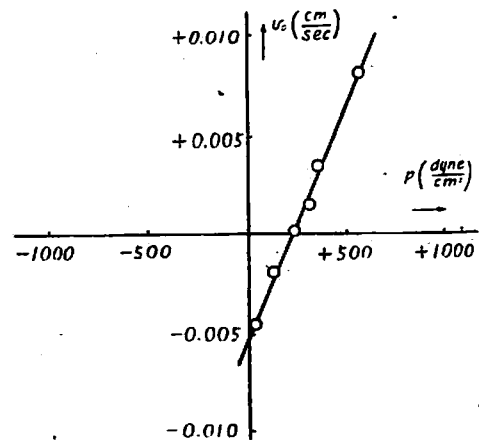


Fig. 9



(平田) 顕微鏡的方法による液体粘度測定法

Table V

N_0	v_0 (極/秒)	$\frac{P}{(\text{ダイン/平方極})}$	v_0^2	Pv_0	備 考
1	+0.007895	+429.7	0.00006233	+3.393	$\sum_{i=1}^n p_i \sum_{i=1}^n v_{0i} = -17.50$
2	+0.006256	+234.3	0.00003914	+1.466	$n \sum_{i=1}^n p_i v_{0i} = +110.18$
3	+0.003620	± 0.000	0.00001310	± 0.000	$\left(\sum_{i=1}^n v_{0i} \right)^2 = +0.00005664$
4	+0.000862	-351.5	0.00007430	-0.3030	$n \sum_{i=1}^n v_{0i}^2 = +0.001187$
5	-0.001496	-624.9	0.00000224	+0.9348	$\frac{R^2}{4l} = 0.00004016$
6	-0.003268	-839.8	0.00001068	+2.732	$b = 1.130 \times 10^5$
7	-0.006413	-1172	0.00004113	+7.516	$\eta = 4.53s$
$\sum_{i=1}^n$	+0.007526	-2324	0.0001695	+15.74	
粘 度 測 定 値		1. 顕微鏡法による値	$\eta = 4.53s$	(絶対単位)	
		2. 毛管粘度計による値	$\eta = 4.54s$	(絶対単位)	

Table VI

N_0	v_0 (極/秒)	$\frac{P}{(\text{ダイン/平方極})}$	v_0^2	Pv_0	備 考
1	-0.001394	+59.71	0.00000194	-0.08384	$\sum_{i=1}^n p_i \sum_{i=1}^n v_{0i} = -17.47$
2	-0.003000	-152.7	0.00000300	+0.4581	$n \sum_{i=1}^n p_i v_{0i} = +214.35$
3	-0.003538	-243.7	0.00001252	+0.8623	$\left(\sum_{i=1}^n v_{0i} \right)^2 = +0.0001184$
4	-0.004275	-331.8	0.00001828	+1.4185	$n \sum_{i=1}^n v_{0i}^2 = +0.0016874$
5	-0.005130	-394.5	0.00002633	+2.0236	$\frac{R^2}{4l} = 0.00004016$
6	-0.006181	-560.9	0.00003820	+3.4666	$b = 1.478 \times 10^5$
7	-0.001016	+112.6	0.00000103	-0.1143	$\eta = 5.93s$
8	+0.001676	+533.5	0.00000281	+0.8944	
9	+0.003054	+723.4	0.00000933	+2.2088	
10	+0.004171	+832.0	0.00001740	+3.4701	
11	+0.004750	+1028.0	0.00002256	+4.8820	
$\sum_{i=1}^n$	-0.010884	+1605.6	0.0001534	+19.486	
粘 度 測 定 値		1. 顕微鏡法による値	$\eta = 5.93s$	(絶対単位)	
		2. 毛管粘度計による値	$\eta = 5.93s$	(絶対単位)	

(平田) 顕微鏡的方法による液体粘度測定法

15

Table VII

N_0	v_0 (極/秒)	$\frac{P}{(\text{ダイン/平方極})}$	v_0^2	Pv_0	備 考
1	+0.008143	-254.2	0.00006631	-2.070	$\sum_{i=1}^n p_i \sum_{i=1}^n v_{0i} = -7.919$
2	+0.004385	-684.5	0.00001928	-3.001	$n \sum_{i=1}^n p_i v_{0i} = +76.80$
3	+0.005109	-1085	0.00000026	-0.5543	$\left(\sum_{i=1}^n v_{0i} \right)^2 = +0.000002048$
4	-0.007600	-1946	0.00005776	+14.79	$n \sum_{i=1}^n v_{0i}^2 = +0.0007980$
5	-0.004008	-1564	0.00001606	+6.196	$\frac{R^2}{4l} = 0.00004016$
$\sum_{i=1}^n$	+0.001431	-5534	0.0001596	+15.36	$b = 1.064 \times 10^5$
				粘度測定値	$\eta = 4.274$ (絶対単位)

Table VIII

N_0	v_0 (極/秒)	$\frac{P}{(\text{ダイン/平方極})}$	v_0^2	Pv_0	備 考
1	+0.003466	+449.3	0.00001201	+1.5573	$\sum_{i=1}^n p_i \sum_{i=1}^n v_{0i} = +32.70$
2	+0.002559	+253.9	0.00000256	+0.6497	$n \sum_{i=1}^n p_i v_{0i} = +295.60$
3	+0.002129	+156.3	0.00000453	+0.3328	$\left(\sum_{i=1}^n v_{0i} \right)^2 = +0.00005663$
4	-0.0002392	-420.0	0.00000006	+0.1005	$n \sum_{i=1}^n v_{0i}^2 = +0.001151$
5	-0.001207	-713.0	0.00000146	+0.8606	$\frac{R^2}{4l} = 0.00004016$
6	-0.002788	-986.5	0.00000777	+2.7504	$b = 2.403 \times 10^5$
7	-0.01166	-3086	0.00013596	+35.983	
$\sum_{i=1}^n$	-0.007525	-4346	0.00016435	+42.23	
				粘度測定値	$\eta = 9.651$ (絶対単位)

Table IX

N_0	v_0 (極/秒)	$\frac{P}{(\text{ダイン/平方極})}$	v_0^2	Pv_0	備 考
1	-0.006334	-1104.0	0.00004012	+6.993	$\sum_{i=1}^n p_i \sum_{i=1}^n v_{0i} = +8.765$
2	-0.003109	-693.5	0.00000967	+2.156	$n \sum_{i=1}^n p_i v_{0i} = +52.10$
3	-0.0006503	-390.7	0.00000042	+0.2541	$\left(\sum_{i=1}^n v_{0i} \right)^2 = +0.00001934$

(平田) 顕微鏡的方法による液体粘度測定法

4	+0.001196	-97.67	0.00000143	-0.1168	$n \sum_{i=1}^n v_{0i}^2 = + 0.0003595$
5	+0.004500	+293.0	0.00002025	+1.1318	$\frac{R^2}{4l} = 0.00007593$
$\sum_{i=1}^n$	-0.004398	-1992.9	0.00007189	+10.42	$b = 1.274 \times 10^5$
				粘度測定値	$\eta = 9.676$ (絶対単位)

Table X

N_0	v_0 (極/秒)	P_0 (ダイ/平方極)	v_0^2	Pv_0	備 考
1	-0.004499	+29.31	0.00002024	-0.1319	$\sum_{i=1}^n p_i \sum_{i=1}^n v_{0i} = + 11.036$
2	-0.001936	+136.8	0.00000375	-0.2649	$n \sum_{i=1}^n p_i v_{0i} = + 35.598$
3	+0.0001494	+234.5	0.00000002	+0.03503	$\left(\sum_{i=1}^n v_{0i} \right)^2 = + 0.00004629$
4	+0.001560	+302.9	0.00000243	+0.4725	$n \sum_{i=1}^n v_{0i}^2 = + 0.0006186$
5	+0.003514	+342.0	0.00001235	+1.202	$\frac{R^2}{4l} = 0.0002342$
6	+0.008016	+576.4	0.00006426	+4.620	$\eta = 4.222 \times 10^4$
$\sum_{i=1}^n$	+0.006804	+1622	0.0001031	+5.933	
				粘度測定値	$\eta = 9.887$ (絶対単位)

Table XI

毛细管番號	l(毛细管の長さ)	R(毛细管半径)	R^2/l	b	$K(=R^2/l \cdot b)$
1	9.96	0.0400	0.0001606	2.403×10^5	38.6
2	9.91	0.0545	0.0003037	1.274×10^5	38.7
3	9.94	0.0965	0.0009368	4.222×10^4	39.6

總 括

(1) 液体粘度の測定法に關し從來の方法と異なる顕微鏡的測定法を提出し其の可能性に就き吟味した。

(2) 該測定法に就き測定上の利點を列記した。

(3) 該測定法の測定装置並びに測定操作に就き記述した。

(4) 微粒子添加による粘度に及ぼす影響に就き理論的關係につき實驗的に確めた。

(5) グリセリン及び醋酸纖維素アセトン溶液の粘度を新測定法により測定した。

(6) グリセリンの粘度に就き新測定法による測定値と Ostwald 型毛管粘度計による測定値とを比

較吟味し新測定法の正確度を示した。

(7) 醋酸纖維素アセトン溶液の粘度測定により、粘度と測定管毛管部半径との関係が理論と一致する事を實驗により示した。

終りに臨み常に懇篤なる指導を賜れる堀場信吉教授に對し深厚なる感謝の意を表す。

尙本研究の費用は著者に與へられたる文部省自然科学奨励金によるものなり。記して感謝の意を表す。

又實驗につきて大門徹氏の助力に感謝す。

昭和9年1月7日

相生高等工業學校應川化學教室