特集記事

超音波流速分布計を用いたレオメトリについて* — 流れ計測の重要性と課題 —

田坂 裕司**, 白鳥 貴久**, 芳田 泰基***, 村井 祐一**

Rheometry Utilizing Ultrasonic Velocity Profiler — Importance of Flow Measurement and Propositions —

Yuji TASAKA, Takahisa SHIRATORI, Taiki YOSHIDA and Yuichi MURAI

1. 緒 論

河川から湾内に流れ込む土砂が、数 100km の長距離に渡り輸送されるのは何故か？流動食品の食べやすさは評価できるか？無数の微細な気泡が混じった場合の液体粘度はどのように扱えば良いか？一見全く異なるこれらの疑問を解決する共通のキーワードがレオロジーである。レオロジーとは連続体における応力と歪み、歪み速度の関係を扱う学問であり、100 年以上の歴史を持っている。その守備範囲は広く、高分子溶液からゲル、エマルションやフォームまで、混相体を含む様々な状態が扱われ、ミクロな視点から物質の難解なレオロジー特性をモデル化し、構成方程式が構築される。

一方、そのようなレオロジー物性を数値的に与える手法はレオメトリ、それを元にした計測機器はレオメータと呼ばれる。ニュートン流体を仮定した落球式粘度計もその一つである。高分子など複雑なレオロジー物性を持つ物質に対しレオメトリを適用し、構成方程式との比較からレオロジーを記述する各種係数が得られる。市販の代表的なレオメータとして、円筒型、コーン型、円盤型などの回転子と、容器の相対運動によってそれらの間隙に満たした試料にせん断を加え、その応答を調べる回転式レオメータがある。この手法は、回転速度とその時間変化を制御することにより、幅広い領域のレオロジー物性を調べることができる一方、間隙での流動にクエット流れの線形速度分布を仮定しており、例えば間隙内でレオロジー物性が分布を持つ場合や、試料に $O(10\mu\text{m}\sim\text{mm})$ の分散体が混入する場合には、不可避な誤差を発生させる。近年、レオメータ開発大手の Anton Paar 社が大きな固形物を含む場合にも適用できる手法として Ball measuring system を開発したが、普遍的な方法では無い。

クエット流れからのずれを評価するための逆解析などが行われている一方、著者らは不透明液体の瞬時流速分布計測が可能な超音波流速分布計 (Ultrasonic velocity profiler; UVP) の応用技術として、回転円筒内流れに UVP を適用したレオメトリを開発してきた¹⁻⁴⁾。速度分布にはレオロジー物性が反映されること、および UVP は上記サイズの分散体を含む流れも原理的に計測可能であることから、この手法は分散混相流体用レオメトリに発展する可能性がある。同様に、PIV および UVP により計測した速度分布からレオロジー物性を推定する手法が、他の研究グループからも提案されている⁵⁻⁷⁾。主に、歪み速度により変化する粘性を対象として、既存の構成方程式に境界条件を与えて得られる定常流れの速度分布と計測結果を照合し、最も良い近似を与える条件からレオロジー物性が得られる。

本解説記事では、UVP を用いたレオメトリの概念を説明するとともに、分散気泡液体の実効粘度評価を試みた例^{1,2)}、時間とともに変化する、粘土鉱物溶液のレオロジー物性を評価した例を用いて本手法の有用性を示す。さらに、構成方程式を使用せず、歪み、歪み速度と応力の関係を表すデータ群を直接扱うモデル・フリーレオメトリの取り組み⁴⁾を紹介する。

2. UVP およびそれを用いたレオメトリの概要

2.1 超音波流速分布計 (UVP) について

UVP はすでに確立された計測技術であり、成書⁸⁾もあるためここでは要点のみまとめる。UVP は、超音波パースト信号の送受信により、超音波伝播線上の瞬時速度分布を計測する手法であり、得られる速度成分は伝播線方向への投影成分である。液体の透明性を問わないため、液体金属や牛乳など種々の液体に使用可能である。著者らのグループでは、レオメトリの他にも高分子溶液の流れにこれを適用し、時空間速度場によるレオロジーの定性的な可視化を行っている^{9,10)}。測定範囲、速度レンジ、時間分解能は、使用する超音波の周波数や測定対象にもよるが、それぞれ $O(100\text{mm})$ 、 $O(100\text{mm/s})$ 、 $O(10\text{ms})$ 程度となる。測定体積は他の手法に比べて比較

* 原稿受付 2016 年 4 月 19 日

** 正会員 北海道大学大学院 工学研究院
(〒060-8628 札幌市北区北 13 条西 8 丁目,
E-mail: tasaka@eng.hokudai.ac.jp)

*** 非会員 北海道大学大学院 工学院

的大きく、おおよそ超音波振動子 (TXD) の径と測定対象の液体を伝播する超音波の波長で見積もることができる。例えば、径 5 mm の振動子で周波数 4 MHz の超音波を発生させ、水の流れを計測する場合、バースト信号に含まれる波の数を 4 とすると、測定体積はおおよそ直径 5 mm、厚さ 0.74 mm の円盤状になる。この測定体積中に、超音波を散乱させる粒子が混入している場合、そのエコー信号の受信時間から測定体積の位置が、信号に含まれるドップラーシフトの情報から粒子の移動速度がそれぞれ算出される。

2.2 UVP による回転式レオメトリ

UVP を用いた回転式レオメトリの装置構成図を Fig. 1 に示す。半径 R の円筒容器に流体を満たし、円筒を振動させるとその運動が流体内部に伝播する。ここで、円筒底面および上部の影響が無視できるならば、理想的には周方向速度成分のみを持つ、非定常軸対称 2 次元一方向流れ、 $u_\theta(r, t)$ が円筒内に形成される。流れを支配する運動方程式は簡略化され、 u_θ とせん断応力 $\tau(r, t)$ を用いて

$$\rho \frac{\partial u_\theta}{\partial t} = \frac{\partial \tau}{\partial r} + \frac{2\tau}{r} \quad (1)$$

のように表される。ここで ρ は流体の密度である。一方向流れの仮定が成り立つ場合、 $u_\theta(r, t)$ は UVP により得られる計測線方向速度分布、 $u_\xi(\xi, t)$ を変換することで導出できる。ここで ξ は TDX からの距離である。

せん断応力 τ は、粘性と弾性を考慮したレオロジーモデルにより速度 $u_\theta(r, t)$ の空間勾配と結びつけられる。仮に、粘弾性流体の最も単純なレオロジーモデルである、Maxwell のバネ・ダンパー直列モデル

$$\tau + \frac{\mu}{E} \frac{\partial \tau}{\partial t} = \mu \left(\frac{\partial u_\theta}{\partial r} - \frac{u_\theta}{r} \right) \quad (2)$$

を採用する。上式において、 μ は流体の粘度、 E は弾性率であり、これらがこのモデルにおけるレオロジー物性を表している。 $u_\theta(r, t)$ に実験値を代入し、式 (1) を拘束条件として、式 (2) を満たすような最適値として μ と E が求まる。この過程を τ についての差分式で表すと、

Fig. 1 Configuration of ultrasonic spinning rheometry.

$$\min_{\tau, \mu, E} \sum_i \sum_j \left[\tau_{i,j} + \frac{\mu}{E} \frac{\tau_{i+1,j} - \tau_{i,j}}{\Delta t} - \mu \left(\frac{\partial u_\theta}{\partial r} \Big|_{i,j} - \frac{u_{i,j}}{r_j} \right) \right]^2, \quad (3)$$

$$\text{s.t.: } \rho \frac{\partial u_\theta}{\partial t} \Big|_{i,j} - \frac{\tau_{i,j+1} - \tau_{i,j}}{\Delta r} - \frac{2\tau_{i,j}}{r_j} = 0,$$

となる。UVP で計測される時空間速度分布には、レオロジー物性を反映した高密度の情報が詰まっており、理想化された運動方程式にレオロジーモデルを導入することで、レオロジー物性が得られる、という概念が UVP を用いた回転式レオメトリである。基本的に、UVP の測定可能な範囲で円筒の振動条件を調整できるため、モデルが適合する条件での解析が可能となる。

3. 分散気泡液体の実効粘度計測

具体的なレオメトリの例として、分散気泡液体の実効粘度評価について説明する。液体が微細な気泡群を含む場合、バルクの密度は液体と気体の体積平均となるが、実効的な粘度はそうのように単純には求まらない。液体と気泡との間に界面張力が存在し、それらの混相流体塊に応力が増えられたときにその変形を妨げるからである。著者らのグループでは、気泡を用いた摩擦抵抗低減現象のメカニズムを明らかにするための、一つの重要な物理としてその実効粘度評価を行っている。

UVP を用いた回転式レオメトリによる実効粘度評価の概念図を Fig. 2 に示す。気泡の変形 (Fig. 3) や非一様分布などを考慮すると、対応する様々なレオロジー物性が考えられるが、ここではそれらのすべてがニュートン流体における粘度として評価されるとする。UVP の測定体積に複数の微小な気泡が含まれる条件を想定し、円筒壁面振動の流体中の伝播を解析することにより、実効ニュートン粘性の半径方向分布を計測する。

Fig. 2 Concept of effective viscosity measurement by ultrasonic spinning rheometry²⁾.

Fig. 3 Pictures of bubbles dispersed in viscous oil filled in a moving cylinder: (a) stationary and (b) in a fast cylinder motion¹⁾.

Fig. 1 の円筒を周波数 f で振動回転させる．振動変位を Θ とすると，壁面での変動速度は $u_\theta(R, t) = U \sin 2\pi f t$, $U = 2\pi f \Theta$ となる．式 (1) においてニュートン流体を仮定すると，周方向の運動量に関する方程式は簡略化され

$$\frac{\partial u_\theta}{\partial t} = \nu \left(\frac{\partial^2 u_\theta}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u_\theta}{\partial r} - \frac{u_\theta}{r^2} \right) \quad (4)$$

となる．ここで ν は動粘性係数 ($=\mu/\rho$) である．これは $u_\theta(r, t)$ に関する 2 数の線形偏微分方程式であるため，変数分離法とベッセル級数を用いて先に示した壁面速度の条件を満たす特解が解析的に得られる²⁾．解は無限級数の形で表され，書き下すと非常に長いのでここでは割愛する．

Fig. 4 (a) に上記の解析解，(b) に UVP による単相流体での実験結果，それぞれから求めた時空間速度分布を示す．実験には $\nu = 1000 \text{ mm}^2/\text{s}$ のシリコンオイルを用いたため，解析解でもこの動粘性係数を設定している．なお，円筒の振動周波数は $f = 1 \text{ Hz}$ である．図から分かるように，両者は定量的によく一致している．実験では $t = 0$ で静止流体からの計測を行っているため，初期での差が多少みられる．しかしながら 2 サイクル目以降にはすでに初期条件の影響による差は見られなくなっている．この比較から，本計測で設定した軸対称 2 次元一方向流れの過程が十分に満たされていることが確認できる．分散気泡液体の実効粘度計測では，すべての効果をニュートン粘性に落とし込んで評価する．2.2 節で説明したように，得られた時空間速度分布を式 (4) に代入して粘度を求めても良いが，ここでは差分による計測誤差の増幅を避けるため，フーリエ変換することで位相の r 方向分布を算出する．いくつかの r 方向位置について，解析解に種々の ν の値を代入して求めた位相差との比較を行うことで，実効粘度を求める．

Fig. 4 Comparison of spatio-temporal velocity map between (a) analytical exact solution and (b) measurement result by UVP²⁾.

先に示した手順で求めた，ボイド率 $\alpha \sim 2.0\%$ の分散気泡液体の実効粘度分布を Fig. 5 に示す．ここでは振動周波数を $f = 0.5, 1.0, 2.0, 2.5 \text{ Hz}$ と変化させ，歪み速度の実効粘度における影響を調べている．振動の振幅はいずれも $\Theta = 90^\circ$ である．実効粘度は通常，粘度比の形で示されるため，同様に粘度比を $\eta = (1 - \alpha) \nu_s / \nu$ として定義しこれを評価に用いる．ここで ν_s は実験により見積もられた分散気泡液体の実効粘度である．

Fig. 5 Radial variation of the effective viscosity of bubble suspensions ($\alpha = 2.0\%$) for various oscillation frequency f ²⁾.

図から分かるように， η は壁面付近で小さな値を取り，円筒中央に向けて徐々に増加している．また，振動周波数が大きい場合，すなわちせん断速度が大きい場合には，壁面付近で実効粘度が減少している．これは，Frankel & Acrivos¹¹⁾により示された定常せん断流れにおける実効粘度の式，

$$\eta = 1 + \frac{1 - 12Ca^2/5}{1 + (6Ca/5)^2} \alpha, \quad Ca = \frac{\mu d}{\sigma} \dot{\gamma} \quad (5)$$

と同じ傾向を示している．ここで， Ca はキャピラリー数， d, γ, σ はそれぞれ，気泡の直径，歪み速度，表面張力である．Llewellyn & Manga¹²⁾は非定常流中の分散気

泡液体に対して, Ca と動的キャピラリー数,

$$Cd = \frac{\mu d}{\sigma} \frac{\dot{\gamma}}{\dot{\gamma}} \quad (6)$$

を用いて実効粘度を見積もるスキームを提案している。これによれば, $Cd > 1$ の場合には $\mu d / \sigma$ で評価される気泡変形の緩和時間に対して変形の変化が早く, 非定常流れに固有の実効粘度となる。本実験の条件, $d \sim 1$ mm, $\mu = 0.97$ Pa·s, $\sigma = 0.021$ Nm ならびに理論式から求められる歪み速度とその時間微分を用いて算出した値は $Cd < 1$ となり, せん断速度の非定常生が無視され実効粘度が式(5)で評価される条件に分類される。しかしながら, Fig. 3 に実線で示すように, 仮に式(5)の Ca に各半径位置で取り得る最大の Ca を代入しても, 得られる結果は定量的にも定性的にも一致しない。特に $\eta = 1$ となる半径位置は, 実験値と大きく異なる。この点を重視し, η の定性的変化を記述できる統計量を模索した結果, 変動する Ca の実効値, Ca_{rms} が最も良い結果を示した。式(5)では $\eta < 1$ となる臨界 Ca , $Ca_c = 0.65$ が存在する。 $Ca_{rms} > Ca_c$ が満たされる場合, 気泡は実効的に降伏した状態であり, Llewellyn & Manga¹²⁾ が示すところの大きく実効粘度が低下する Regime 2 に類する。他方, $Ca_{rms} \sim Ca_c$ の場合には, 実効粘度が増加する Regime 1 に分類が可能である。これを拡張したスキームとして適用した場合, Fig. 5 の縦棒で示すようにおおよそその実効粘度が定量的に評価できるようである。

4. 時間依存するレオロジー物性の評価とモデル・フリーレオメトリの試み

UVP は計算機処理の負荷が小さく実時間計測が可能であるため, 時々刻々とレオロジー物性が変化する流体を評価することが可能である。ここではその例として, 粘土鉱物の懸濁液における粘度解析を紹介する。

粘土鉱物であるモンモリロナイトの粉末を塩水に混入させた場合, 懸濁液のイオン濃度に応じてカードハウス構造と呼ばれる凝集体を形成しゲル化する。粒子間のクーロン力により保たれているこの構造は, せん断応力の印加により崩壊し, より小さな凝集体に分散し流動性を持つようになる。せん断力の大きさにより崩壊の度合いが異なり, それにより懸濁液の粘度が変化する。一方, せん断応力を開放して懸濁液を静置すると, 構造が回復して粘度が増加し, やがて元のゲル状態に戻る。このような流体の性質をチキソトロピー性と呼ぶ。

懸濁液を Fig. 1 に示した円筒内に静置し, 十分にゲル化させた後に円筒を 1 Hz で振動回転させ, UVP により流れの計測を行った。得られた時空間速度分布を短時間フーリエ変換し, 種々の振動サイクルステップ n について, 1 Hz の振動モードが持つ壁面振動との位相差を半径方向にプロットした結果が Fig. 6 である。図中の破線は, 3 節で導出したニュートン流体における解析解に適当な粘度を代入し, プロットした位相差の半径方

向分布である。図から分かるように, 位相差の分布は 2 つの領域に分けることができる。流体層の内側では位相差がほぼ一定値を取っており, 懸濁液がゲル化したまま剛体回転している様子が分かる。一方壁面近傍では, 位相差がニュートン流体と同様に線形的に減少しており, せん断応力により流動化した懸濁液がほぼニュートン流体的に振る舞っている様子が分かる。それらの境界は時間とともに円筒内側に進展するが, $n = 3600$ サイクル目には変化がほぼ漸近しそれ以上進展しない。これは, それら 2 つの領域の境目となる緩衝領域において粘弾性的な層が形成され, 構造を破壊するために十分な瞬時応力が得られないためであると考えている。

Fig. 6 Radial profiles of phase delay of velocity fluctuation against cylinder oscillation at each cycle step n .

最後に, レオロジーモデルを使わずにレオロジー特性を評価する取り組み⁴⁾について紹介する。構成方程式であるレオロジーモデルは, 物質の特徴毎に異なるモデルが提案されている。2.2 節で紹介したレオメトリにおいて, 3 節で紹介した実効粘度評価を含め, 結果はレオロジーモデルの選択に大きく依存する。よって, 万能なレオロジーモデルが提案されない限り, 未知の物質に対するレオロジー物性評価は試行錯誤で行われることになる。これに対して, Fig. 1 の振動回転円筒にトルク計を加えて流体に働く応力を計測し, 速度分布から得られた歪み速度とそれを時間積分した歪みを元に, データ群としてレオロジーを評価することができる。応力と歪み速度の関係をフローカーブと呼ぶことから, 我々はこの 3 次元曲面をフローサーフェスと呼んでいる (Fig. 7)。実際にこれをどう活用するか, など課題は多いが, ビッグデータ解析が多分野に活用される現代, レオロジー物性をこのようなデータ群として表す試みは, ブレークスルーを生むきっかけになるかもしれない。

5. 結 論

超音波流速分布計 (UVP) による速度分布計測を元にしたレオメトリの紹介を行った。時空間速度分布には, レオロジー物性が反映されるため, レオロジーモデルと

運動方程式を元にそれを解析することで、レオロジー物性を評価することができる。この手法は未だ発展途上であり、今回紹介したモデル・フリーレオメトリだけではなく、いくつかのアイデアを取り込んで発展することが可能である。既存の完成された回転式レオメトリには無い、アラもあるが大きな可能性を持つこの手法に少しでも興味を持っていただけたなら幸いである。

参考文献

- 1) 桜井康介, 田坂裕司, 村井祐一: 過渡的気泡変形を伴う分散気泡流の実効粘度変化, 日本機械学会論文集 B 編, Vol. 79, No. 797, (2013) pp.1-11.
- 2) Tasaka, Y., Kimura, T. and Murai, Y.: Estimating the effective viscosity of bubble suspensions in oscillatory shear flows by means of ultrasonic spinning rheometry, Exp. Fluids, Vol. 56, (2015) 1867.
- 3) Shiratori, T., Tasaka, Y., Oishi, Y. and Murai, Y.: Ultrasonic velocity profiling rheometry based on a widened circular Couette flow, Meas. Sci. & Technol., Vol. 26, (2015) 085302.
- 4) Shiratori, T., Tasaka, Y. and Murai, Y.: Rapid rheological characterization of a viscoelastic fluid based on spatiotemporal flow velocimetry, Exp. Thermal & Fluid Sci., Vol. 71, (2016) pp.1-13.
- 5) Ouriev, B. and Windhab, E.: Novel ultrasound based time averaged flow mapping method for die entry visualization in flow of highly concentrated shearthinning and shear-thickening suspensions, Meas. Sci. Technol., Vol. 14, (2003) pp.140-147.
- 6) Derakhshandeh, B. and Vlassopoulos, D.: Thixotropy, yielding and ultrasonic Doppler velocimetry in pulp fiber suspensions. Rheol. Acta, vol. 51, (2012) pp.201-214.
- 7) Wiklund, J. *et al*: An integrated in-line fluid characterization system for industrial applications, ながれ, Vol. 32, (2015) pp.241-248.
- 8) Takeda, Y., ed.: Ultrasonic Doppler velocity profiler for fluid flow, (2012) Springer, Germany.
- 9) Shiratori, T., Tasaka, Y., Murai, Y. and Takeda, Y.: Development of ultrasonic visualizer for capturing characteristics of viscoelastic fluids, J. Vis., Vol. 16, (2013) pp.275-286.
- 10) Nakashima, T., Shiratori, T., Murai, Y., Tasaka, Y., Takeda, Y. and Windhab, E. J.: Viscoelastic responses of flow driven by a permeable disk investigated by ultrasound velocity profiling technique, Flow Meas. & Instr., Vol. 48, (2016) pp.97-103.
- 11) Franke, I. N. A., Acrivos, A.: The constitutive equation for a dilute emulsion, J. Fluid Mech., Vol. 44, (1970) pp.65-78.
- 12) Llewellyn, E. W., Manga, M., J.: Bubble suspension rheology and implications for conduit flow, Volcanology and Geothermal Res., Vol. 143, (2005) pp.205-217.

Fig. 7 Examples of 'flow surface', relation among shear rate, strain and strain rate: (a)silicone oil and (b)-(d) PAA solution from different viewpoints⁴⁾.