非ニュートン流動の諸問題*

吉岡 直哉**・足立毅太郎**

緒 言

近年高分子化学工業の発展に伴ない高分子溶液、融液などの非ニュートン流体を取り扱う機会が増加し、非ニュートン流体の輸送、伝熱、混合、物質移動、反応などの諸操作について従来ニュートン流体について作られた化学工学の体系を書き変えて行く必要が感ぜられる。ところで非ニュートン流体はその流れの特性がニュートン流体に比して複雑であり、その物性の表現自体に多くの問題があり、流動モデルを使って流れを解析し、その基礎の上に熱移動、物質移動の機構を明らかにするには多くの困難がある。非ニュートン流動に関する研究分野としては、i) 構成方程式に関する研究（流動特性を表現するモデルの考案）、ii) それらの流動モデルを使って種々の流れを解析する方向の研究、iii) 実際的な非ニュートン流体の流れについて流線、速度分布、抗力、圧力分布などを実測し、非ニュートン流動の特徴と構成式の適用範囲を明らかにする研究が考えられ、これらの研究結果の総合から始めて非ニュートン流動のよりよい理解が得られる。今後多くの研究者の地道な努力の蓄積がのぞまれる。

さて一般に非ニュートン流体といわれるものには、弾性効果をもたない非ニュートン粘性流体（粘塑性を含めて）と粘弾性流体があり、それぞれに対して多くの流動モデルが提案されている。高分子液は一般に粘弾性を示すことが多いが、ある種の条件下では弾性効果が無視でき非ニュートン粘性流体として取り扱うことができる。

次に流れの場として、円管内の流れや回転二重円筒間隙の流れなどのような断面変化のない単純な流れはいわゆる Viscometric flow として種々の非ニュートン流体モデルに対して解析されている。一方大きな速度変化を

伴なう流れは一般に解析が困難であって非ニュートン流体については研究が進んでいない。しかしながら弾性効果が顕著に現われるのはこのような場合であり、構成式の適合性の判定にはこのような場合における解析と実測との比較が必要である。このような流れの例として最も簡単な場合が、球、円筒、平板などを過ぎる流れであり、簡単な構成式に対しては解析的にまたは数値計算により流れを求めることができる。またこれらは流体力学の基礎および化学工学の応用面において重要な意義をもっている。本講ではその中の球のまわりの流れに限っていくつかの簡単な構成式による解析結果を示す。特に弾性を考慮しない非ニュートン粘性モデルについて主として述べる。これは粘弾性体としての解析が一般にきわめて困難であることと、非ニュートン粘性流体としての解析結果と実験との比較によって弾性効果の寄与を判別することができるという点で意義がある。

1. 非ニュートン粘性流体の流れ

1.1 指数モデルによる解析

実際的な問題においては指数モデル ($\tau = m\dot{\gamma}^n$) が一番よく使われるので、球を過ぎる流れに対する指数モデルの有効性を検討してみよう。

Wasserman & Slattery¹⁾ は、変分法を用いて、 $Re_0 \equiv D^n V^{2-n} \rho / m = \text{一定の時の}$

$X \equiv C_D (\text{非ニュートン流体}) / C_D (\text{ニュートン流体})$ (1)
特に遅い流れでは

$$X = C_D (\text{非ニュートン}) \cdot Re_0 / 24 \quad (2)$$

について、図1に示されるような二つの曲線①・②の間に補正係数 X の真の値があることを示した。ここで計算を一部変更すると、 X の下限を与える曲線②は③に改良される。一方慣性力を無視できない流れの場合には、 $Re_0 = 60$, $1.0 \geq n \geq 0.8$ なる条件の下での、モーメント法による解析的近似解がある²⁾。この結果として、指数 n が減少するにつれて、1) 全抗力 C_D は増大する

* 昭和49年6月13日受理
化学工学協会第7回秋季大会(1973年10月14日、名古屋)における研究講演の内容を一部省略し加筆した。

** Naoya Yoshioka (正会員), Kitaro Adachi (正会員) 京都大学工学部 化学工学科

表 1

n	1.00	0.95	0.90	0.85	0.80	0.75	0.70	0.65	0.60	0.55	0.50
A	3.02	—	3.90	—	5.14	—	6.92	—	6.72	—	14.30
B	0.176	0.190	0.204	0.220	0.235	0.234	0.272	—	—	—	—

図 1 X と n の関係 ($Re_0 \leq 0.1$) 図 2 X と n の関係 ($Re_0 \geq 10$)

(図2の曲線④), 2) 摩擦係数は減少する, 3) 圧力係数は増大する, 4) 剝離点は流れに対して前進する, 5) 定常双子渦の長さは長くなる, などのことがわかった。また, Bizzell & Slattery⁴⁾ は, 圧力分布としてポテンシャル流のそれを使って境界層流れを計算し, 摩擦抗力係数が減少することおよび剝離点が後退するという結果を得た。CMC 水溶液を使って落球実験を行ない, 理論と比較した。その際できるだけ良好な一致が得られるように, 一回の落球実験ごとに, 先述の理論から最高ずり速度 $\dot{\gamma}_{\max}$ を次式で推算し,

$$\dot{\gamma}_{\max} = [A^{0.6} + \{B \cdot Re_0^{1/(1+n)}\}^{0.6}]^{1/0.6} \quad (3)$$

レオロジー曲線の $\dot{\gamma}_{\max} \sim \dot{\gamma}_{\max}/10$ の間で指数モデルの物性定数 m, n を決めた。定数 A, B の値を表 1 に示す。補正係数 X についての実験結果のうち, $Re_0 \leq 0.1$ の場合には Faxen の壁補正を施した結果を図 1 に, Re_0

図 3 球面上での圧力分布

図 4 球面上での温度分布

≥ 10 の場合には壁補正を施さない結果を図 2 に示した。一つの液に対して一定の物性値を使うとナイロン球のデータと他種球のそれとが一つにまとまらなかったことを考慮すると, ここに示された結果は満足すべきものである。図 1 において, X の真の値は上限①と下限②の間にあるという理論的予測が検証されたとはいいがたい。理論と実験におけるこの不一致は, 実験に使われた CMC 水溶液が有限の零ずり粘度をもつのに, 指数モデルのそれは無限大になるという相違から来ており, これは変分原理を用いて定性的に証明された¹³⁾。ゆえに, 高分子水溶液の遅い流れを指数モデルを使って解析することは厳密には正しくない。しかしながら, 図 1, 図 2 の結果において n の変化に対して X の実測値はあまり変化せず, しかもほぼ 1 であるために, 工学的に指数モデ

ルがよく使われ一定の成功をおさめているのだと思われる。さらに $X \simeq 1$ となるのは、 Re_0 を定義するときの粘度として球面上で分布する粘度の平均値的なものを使っているためであろう。

$$Re_0 \equiv D^n V^{2-n} \rho / m = DV \rho / m (V/D)^{n-1} \\ \propto DV \rho / m \dot{\gamma}^{n-1} = DV \rho / \mu_a \quad (4)$$

1・2 Extended Williamson モデルによる解析

実験データをまとめるに際して、平均粘度 η を実験で厳密に決めることはできないから、それよりも零ずり粘度 η_0 を用いるほうが、理論と実験とを比較するのに適している。

表 2

Re	0.1	1.0	20	60
$C_D(N.)$	259.1 262 ^{††}	27.65 27.5 ^{††}	2.871 2.946 [†]	1.472
$C_D(N.N.)$	197.6	21.27	2.307	1.118
$C_D(N.N.)/C_D(N.)$	0.763	0.769	0.804	0.760
$C_p(N.)$	83.08	8.886	1.051 1.089 [†]	0.620
$C_p(N.N.)$	52.25	5.941	0.977	0.529
$C_p(N.N.)/C_p(N.)$	0.629	0.669	0.930	0.853
$C_f(N.)$	176.0	18.76	1.820 1.857 [†]	0.852
$C_f(N.N.)$	145.3	15.33	1.330	0.589
$C_f(N.N.)/C_f(N.)$	0.826	0.817	0.731	0.691
$S/2R(N.)$	—	—	—	0.458 0.57*
$S/2R(N.N.)$	—	—	—	0.586
$\theta_S(N.)$	—	—	—	43.4° 45°*
$\theta_S(N.N.)$	—	—	—	47.4°

* Taneda's experimental results

(注) (N.) ニュートン流体

† Jenson's theoretical results

(N.N.) 非ニュートン流体 (Extended Williamson モデル流体)

†† Hamielec's theoretical results

 $\eta_\infty/\eta_0=0.5$ の場合の計算結果

ートン流れの方がニュートン流れよりもより非対称的—前面で球により近づきその結果として後面で球からより遠ざかる—結果となる。図7は、ニュートン流れの場合より非ニュートン流れの場合の方が剝離角および渦の長さが大きいことを示している。これは、非ニュートン流れの方が球面上でより強い渦度を作るという図4に示されたことから生ずるのかも知れない。また非ニュートン流れの場合渦の中心よりも周辺の粘度が低いので、もし渦の大きさが同じとすれば渦の回転による散逸エネルギーはニュートン流れのそれと較べて少なくて済むためかも知れない。表2は計算結果であって、全抗力係数 C_D 、圧力係数 C_p 、摩擦抗力係数 C_f 、渦の長さ S 、剝離角 θ_S を示す。ニュートン流れの場合に較べて非ニュートン流れの C_D 、 C_p 、 C_f はすべて小さい。以上ニュートン流れと非ニュートン流れの比較は同一 Re 数 ($\equiv DV\rho/\eta_0$) においてなされており、その比較において非ニュートン流れがニュートン流れよりも一見より大きな Re 数にあるがごとき現象を呈しているのは、非ニュートン流れの球近傍での粘度が η_0 より小さいためである。したがって、ニュートン流れと非ニュートン流れとを同一 Re 数において比較するときには、 Re 数の定義式中の粘度として指数モデルの場合のように球面上での平均粘度を用いた方がより妥当かも知れない。

例えば、図5より、 $Re=0.1$ および60の場合の球面上の平均粘度 $\bar{\eta}$ はそれぞれ約0.7および0.6であるから、平均粘度を使って定義される Re 数はそれぞれ0.14および100となる。これらの Re 数に対応するニュートン流れにおける抗力係数 C_D はそれぞれ 0.7×260 (計算誤差を含む) および1.0 (既往の実験データから) であり、それらと比較される非ニュートン流れに対する抗力係数 C_D はそれぞれ197.6および1.118であるから、(1) 式で定義された無次元数は両者ともに約1.1とな

り、指数モデルとして解析された実験結果 (図1, 2) とほぼ一致する。理論計算がなされていない場合、ニュートン流れに対する歪速度分布 Π を (5) 式に代入し、その平均をとることによって、非ニュートン流れに対する平均粘度がほぼ推算される (図5参照)。ここで述べたことは、実験データを整理する際に使われる見掛相似則に対して、理論の側からの支持の一例になるものと思われる。

2. 粘弾性流体の流れ

前節の議論は、物体を過ぎる粘弾性流体の流れを解析するのに、非ニュートン粘性の効果のみを考えた結果でもある。そして、物体が受ける抗力に関しては、 $Re \leq 100$ ではそれ以外の粘弾性効果を考える必要はなさそうである。ところが、物体まわりの流れ自体には、非ニュートン粘性効果だけでは説明できない点がある。Ultman & Denn⁹⁾ は球を過ぎる一般化された Maxwell 流体の遅い流れを Oseen 近似を使って解いた。そして、抗力に関する前述の点を確認し、さらに粘弾性流体の流線はニュートン流体や非ニュートン粘性流体よりも物体の存在によって早くから曲り始め、そして物体を過ぎた後は一樣流により早く戻ることを見出した。これは物体を過ぎるニュートン流体や非ニュートン粘性流体の遅い流れは物体の前後で対称になるという粘性効果、あるいは慣性効果では説明されえない。

種子田⁸⁾ は静止したニュートン流体中で球を定速で動かし、その際生ずる流れをアルミ箔を使って可視化し、写真撮影した。そして定常双子渦の長さや剝離角を調べた。この研究を参考にして、筆者は同じ実験を水、グリセリン水溶液 (ニュートン流体) およびポリアクリル酸ナトリウムの希薄水溶液 (非ニュートン流体) について

図9 渦の長さ

行なった。ニュートン流体の定常双子渦に関するすべての結果は種子田の該当する結果と一致した。図9は非ニュートン流体の渦の長さとニュートン流体のそれとを比較したものである。渦の長さ $S/\text{球径 } D$ の値は、零ずり粘度を使って定義された Re 数の同じ値において、溶液濃度が高くなるほど小さくなる。また渦が発生する臨界 Re 数も高くなる。同様に非ニュートン流体の剝離角はニュートン流体のそれより小さくなった。定常双子渦を有する流れに関する以上の結果は、非ニュートン粘性流体モデルについて前節で得られた結果とは全く逆である。したがって粘弾性効果が大きいほど物体背後の定常双子渦はできがたいと言える。

同じ方法を使って、渦を有しない遅い流れについて、球近くの流れの球前後の対称性を調べた。流れの写真から一本の流線を選び、その流線の前後非対称性を定量化するために、図10において、 L_1, L_2 を与えて L_3 を求め、 L_3/L_2 と球の運動速度 V との関係を示した。同図の右の部分で $L_3/L_2 \geq 1$ となるのは慣性効果のためである。純粘性流体の遅い流れの場合 $L_3/L_2 = 1$ であるから図の左の部分で $L_3/L_2 < 1$ となるのは粘弾性効果のためであろう。 $L_3/L_2 < 1$ は Ultman & Denn の流れ模様に関する理論的予測と一致している。しかしながら、速度が高くなるほど粘弾性による非対称性が顕著になるという彼らの予想に反して、実験結果は測定範囲内でその逆になっている。この結果は、速度を遅くしても、考えられているように流体は零ずり粘度をもつニュートン流体にはならないことを示している。遅い流れにおけるこの粘弾性現

図10 L_3/L_2 対 V ($L_1/D=0.709$, $L_2/D=0.480$)

図11 X と N_B の関係

象は、粘弾性流体の固体的挙動と関連していると思われるが、塑性流れは球の前後で対称であることを考慮すると、現在の段階でそのメカニズムを推定することは困難である。

3. 粘塑性流体の流れ

粘塑性流体の慣性力を無視できるような流れを考えよう。この流れは純粘性流体の流れと全く異なる二つの面を持っているように思える。一つは Re 数 ($=DV\rho/\mu_B$) が大きくてもビンガム数 $N_B(=\tau_y D/\mu_B V)$ がさらに大きければ慣性効果を塑性効果に比して無視できる点であり、他の一つは閉物体のみならず無限に長い柱状体の場合にも物体の存在による流れの擾乱が物体の近傍に限ら