落球法による気泡を含む液体の実効粘度の計測*

大岩 浩 司^{*1}, 村 井 祐 一^{*2}, 山本 富士夫^{*3}Measurement of Effective Viscosity in Bubbly Liquid
By Falling Sphere MethodHiroshi OIWA^{*4}, Yuichi MURAI and Fujio YAMAMOTO^{**} Fiber Amenity Engineering Course, University of Fukui,
3-9-1 Bunkyo, Fukui-shi, Fukui, 910-8507 Japan

The effective viscosity of bubbly liquid is measured by means of falling sphere method in Stokes drag region. The method can evaluate the influence of bubble's transient deformation around the falling sphere. The relative viscosity, which is defined by the effective viscosity divided by the single-phase viscosity, is directly obtained by the ratio of the terminal falling velocity of the sphere. The results have shown the following points. 1) The relative viscosity at low capillary number agrees to the theoretical formula for the spherical bubble dispersion. 2) The relative viscosity drops down to less than unity as the capillary number gets higher than a critical value. 3) The critical capillary number is around 3.5 for the falling sphere method, and is much larger than that for simple shear flow. 4) The effective viscosity increasing mechanism by bubble's transient deformation is discussed with visualization results and some theoretical works done in the past.

Key Words: Multiphase Flow, Effective Viscosity, Bubble Dynamics, Falling Sphere Method

1. 緒 論

気泡、液滴、粒子などの分散体を含む流体の実効粘度は、分散相の体積率によって変動することが知られている。Einstein⁽¹⁾は、微小な固体粒子をわずかに含む流体の実効粘度 μ^* が、

$$\eta = \mu^* / \mu_c = 1 + \frac{5}{2} \alpha \quad \dots\dots\dots (1)$$

で近似されることを理論的に導出している。ここで、 μ_c は媒体となる連続相の粘度、 α は分散相の体積率である。 η は実効粘度を媒体の粘度で除した相対粘度である。Taylor⁽²⁾は、固体粒子だけでなく、気泡や液滴などが分散相となる場合にも適用できるように整理した次式を提唱している。

$$\eta = \mu^* / \mu_c = 1 + \frac{\mu_c + (5/2)\mu_D}{\mu_c + \mu_D} \alpha \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここで μ_D は分散体の粘度である。液体中に気泡が分散する場合、多くの場合、 $\mu_D \ll \mu_c$ すなわち $\mu_c \ll \mu_L$ で

あり、式(2)は、

$$\eta = \mu^* / \mu_L = 1 + \alpha \quad \dots\dots\dots (3)$$

として近似される。実際、式(3)は、気泡流における実効粘度の第1近似式として、種々の数値解析で利用されてきた⁽³⁾⁽⁴⁾。しかしながら、式(3)が妥当であるのは、理論的導出のための仮定として、以下の条件が同時に満足されたときだけである。すなわち、(1)ボイド率が十分に小さいこと、(2)気泡は球形であること、(3)気泡は周囲液体に対して相対速度をもたないこと、である。このような条件は自然界および工業上、極めてまれであり、これらの条件のうちいずれかが満足しないとき、実効粘度がどのように振る舞うかを調べる必要がある。

(1)については気泡界面の接近により界面近傍の流れが干渉し、式(3)より大きな実効粘度を呈する。例えば、気泡が高密度に配置したフォーム(foam)では、液相が無数の液膜から構成され、このとき実効粘度は、液膜の表面張力によって支配され、粘弾性流体としての振る舞いをもつようになる⁽⁵⁾。(2)は、気泡の変形の問題であり、速いせん断ひずみ速度が与えられた場合、せん断応力が増加することが知られている。気泡の変形率は気泡のキャピラリー数；

* 原稿受付 2004年2月19日。

^{*1} 正員、福井大学大学院工学研究科(☎910-8507 福井市文京3-9-1)。^{*2} 正員、北海道大学工学研究科(☎060-8628 札幌市北区北13条西8)。^{*3} 正員、福井大学工学研究科。

E-mail: oiwa@fv.mech.fukui-u.ac.jp

$$Ca = \frac{r_c G \mu_L}{\sigma} \dots\dots\dots (4)$$

によって見積もられ、二次元クエット流れにおける変形率と Ca 数の関係は Rust-Manga⁽⁶⁾ によって計測されている。ここで σ は表面張力、 r_c は気泡半径、 G はせん断ひずみ速度である。粘度の高い流体ではせん断ひずみ速度が小さくても Ca 数が増大しやすく、地球物理学の分野では、発泡したマグマの実効粘度についても研究がなされている⁽⁷⁾。(3)の条件は、均質流体としての近似性の問題である。例えば、気液の相対速度によって定義された気泡レイノルズ数が大きいと、流れ場は気泡の伴流に支配され、疑似的乱流化に伴うレイノルズせん断応力を発生する⁽⁸⁾。このように相対速度が大きい場合では、運動量拡散係数は時空間で変動する量となり、単一の実効粘度として整理できなくなる。

本研究は気液の相対速度がない均質な気泡流の実効粘度を対象とするものである。Frankel-Acrivos⁽⁹⁾ は、多数の不混和な液滴を含む流体、すなわちエマルジョンの実効粘度を理論的に導出している。彼らの式で、液滴を気泡として読み替えれば、つまり $\mu_D \ll \mu_C$ とおけば、変形する気泡を含む液体の実効粘度は、相対粘度による表記として、

$$\eta = 1 + \frac{1 - (12/5)Ca^2}{1 + (6/5)Ca^2} \alpha \dots\dots\dots (5)$$

で与えられる。この式より、相対粘度は $Ca \geq 0.65$ で 1 以下となることがわかる。すなわち、気泡の変形によって実効粘度は単相時より低下する。これは、球形気泡における式(3)だけで評価することに比べ根本的に異なる。例えば、境界層流れにおいて気泡を混入させると実効粘度の増加により境界層が厚くなることが論じられているが⁽¹⁰⁾、変形を考慮した場合にはむしろ薄くなる。すなわち shear-thinning が生じる。一方、Choi-Schwalzer⁽¹¹⁾ はボイド率 α に対してより高次の項を考慮して、気泡流における相対粘度を次のように導いた。

$$\eta = \frac{1 + \left(\frac{6}{5}Ca\right)^2 \left(1 + \frac{20}{3}\alpha\right)(1 + 4\alpha)}{1 + \left(\frac{6}{5}Ca\right)^2 \left(1 + \frac{20}{3}\alpha\right)^2} \left(1 + \alpha + \frac{5}{2}\alpha^2\right) \dots\dots\dots (6)$$

この式を $\alpha = 0$ でマクローリン展開すれば、 α の一次の項までの近似式は式(5)に符合する。いずれの式も、相対粘度が 1 となる Ca 数(これを以下では臨界 Ca 数と呼ぶ)は 0.65 である。これらの理論式について最近、Rust-Manga⁽¹²⁾ は、円心クエット流れによる実験的検証を実施した。彼らの結果によれば、相対粘

度は式(5)、(6)により良好に近似されとの結論である。ここで注意を要するのは、それらの理論と実験が、すべて平衡状態にある単純せん断流を対象としていることである。すなわち、あらゆる流れ場において普遍的に成立する式ではない。具体的には、以下の二つの点に留意すべきである。

(1) 単純せん断流に対してのみ妥当である、すなわち、せん断粘度の実効値を論じたものである。

(2) 気泡の変形はせん断応力に対して平衡状態にある、すなわち、気泡の変形の進展・後退が非定常に生じる流れ場には適用できない。

一方、粘度の計測において旧来から採用されてきた基本原理として、落球法(falling sphere method)がある。落球法は、球の終端速度からストークス抗力の式を用いて周囲流体の粘度を割り出す方法である。落球法による実効粘度の計測は実際に、石油、食品、液体金属、液晶、化学溶液など種々の液体を対象として採用されている。例えば、混相状態にある沈殿池や溶液における粒子沈降速度の推定では、せん断粘度だけでは予測できない。これは、落球の表面近傍で流れの変形速度に分布をもつため、ならびに、気泡が分散する際、球の通過によって気泡に非定常な変形を伴うからである。このように、上述の(1)、(2)の条件を満足しないとき、同じ気泡含有流体でも、せん断粘度と異なる値が計測されると考えられる。また、このような気泡の過渡的変形を含む状態での実効粘度の計測は過去に実施されていない。本報では、落球法による気泡を含む流体の実効粘度の計測を実施し、式(5)とは大きく異なる相対粘度特性をもつことが発見されたことについて述べる。

2. おもな記号

Ca : 気泡キャピラリー数 $= r_c G \mu_L / \sigma$

C_D : 球の抗力係数

d : 直径 m

f : 相対粘度の式中のボイド率の係数

g : 重力の加速度 m/s^2

G : せん断ひずみ速度 s^{-1}

r : 半径 m

Re_s : 落球レイノルズ数 $= \bar{\rho} U d_s / \mu_L$

U : 落球終端速度 m/s

α : ボイド率

β : 粘度の温度補正係数

γ : 密度比

η : 相対粘度

λ : 平均気泡間距離 m

Fig. 1 Schematic diagram of experimental apparatus

μ : 粘度 Pa·s

ρ : 密度 kg/m³

$\bar{\rho}$: 空間平均密度 kg/m³ = $\rho_L(1-\alpha) + \rho_{ca}$

σ : 表面張力 N/m

添字

G, L, S: 気相(気泡)/液相/固相(球)

C, D: 連続相/分散相

0, α : 单相/二相条件

3. 実験方法

前に述べたとおり、粘度の計測原理として落球法を利用する。落球法は対象とする流体を静止させたまま粘度を計測できるという利点がある。例えば、円心クエット流れで代表される各種回転式粘度計では遠心加速度が作用し、ボイド率分布が偏るが、落球法は一樣な気泡分布を実現し、均質性を保ちやすい。

3.1 実験装置および実験条件 図1に実験装置の概略図を示す。実験容器は一辺100mmの正方形断面をもつ高さ700mmの透明アクリル樹脂製直方体である。液体は高粘度シリコンオイル(動粘度 5×10^{-3} m²/s, 25°C)である。気泡発生法には多孔質プレートを用いる。ボイド率の制御は気泡吹込み時間を変えることで行い、吹込み後、機械的にかくはんする。容器内の平均ボイド率の計測は、上部の液位変化から測定した。平均気泡径の計測は撮影画像からは用ソフトにより構成画素数を計測することで行った。なお気泡径の計測誤差の影響は結論において相対的に重要でないことを断っておく。試験用の球は、直径6~16mmの5種類の鉄球(密度 7.8×10^3 kg/m³)である。球は容器上部の液面より下の位置からリリースされる。ここでリリース時に球に初速および回転を与えないよう、電磁石による制御を行った。

Table 1 Experimental conditions

Density	ρ_L	973 kg/m ³
Kinematic viscosity	μ_L	5×10^{-3} m ² /s (at 298K)
Surface tension	σ	21.3 mN/m
Tank horizontal width	W	100mm
Sphere diameter	d_s	6mm to 16mm
Sphere density	ρ_s	7810 kg/m ³
Sphere Re number	Re _s	0.0017 to 0.430
Bubble diameter	d_b	2.0mm $\pm$ 0.3mm
Max. void fraction	α	0.025

Fig. 2 Consecutive images of a falling sphere in bubbly liquid

表1に具体的な実験条件を示す。図2は、直径が $d_s = 16$ mmの球が気泡を含む液体中を落下するときの時系列画像である。図2の丸い影が落下球、その周囲は多数の気泡を含む液体である。落球速度の計測は、図2を画像処理することにより実施した。この画像は、ハロゲンライト(400 W)とCCDカメラ(フレームレート 30 fps, 露光時間 1/60 s)によるバックライト撮影によって記録されたものである。なお、実験では容器内に多少のボイド率の変動が含まれ落球速度にわずかな変動が生じると考えられるが、ストークス抗力域では終端速度と粘度の関係が線形であり、平均終端速度から換算される粘度は容器全体のボイド率の関数として整理してよい。対象とする液体は高粘度のものを選定し、落球レイノルズ数は1未満である。このとき気泡の浮上速度はほとんど無視できるほど小さく、気泡レイノルズ数 ($Re_b = \rho_L u_{cb} d_b / \mu_L$) は1/500未満である。また、落球の直径に対する平均気泡直径の比は0.1~0.3であり、ストークス流れのもつ流れ場

の波長に対してはさらに小さい。すなわち気泡を含む流体をほぼ均質な流体とみなして、その実効粘度を論じることができる。

3・2 抗力係数・相対粘度の計測方法 落球の抗力係数は、終端速度到達時の力の釣り合いより、

$$\frac{4}{3}\pi r_s^3(\rho_s - \bar{\rho})g = C_D \pi r_s^2 \frac{1}{2} \bar{\rho} U_a^2 \quad \cdots (7)$$

ただし球まわりの流体の平均密度は、

$$\bar{\rho} = \rho_L(1 - \alpha) + \rho_G \alpha \quad \cdots (8)$$

したがって抗力係数は、次式で計測される。

$$C_D = \frac{8}{3} \left(\frac{\rho_s}{\bar{\rho}} - 1 \right) \frac{g r_s}{U_a^2} \quad \cdots (9)$$

次に、ストークス抗力の式より、

$$C_D = \frac{A}{Re} = \frac{A\mu}{2\bar{\rho} r_s U} \quad \cdots (10)$$

ここで μ は実効粘度、定数 A はストークス則において $A=24$ である。式(9)、(10)より、実効粘度 μ^* を与える式は次式となる。

$$\mu^* = \frac{16(\rho_s - \bar{\rho})g r_s^2}{3A U_a} \quad \cdots (11)$$

一方、ボイド率 $\alpha=0$ のときの μ は式(8)と式(11)より、

$$\mu_0 = \frac{16(\rho_s - \rho_L)g r_s^2}{3A_0 U_0} \quad \cdots (12)$$

ここで U_0 は単相媒体における落球の終端速度である。

式(11)と式(12)の A および A_0 については、 $A=A_0$ が成り立つものとする。なぜならば、気泡を含ませることによる抗力係数の変化を、すべて実効粘度の変化として換算するという実効粘度の定義による。すなわち A は境界条件に依存するものであり、流体の物性に依存しない。例えば、球表面が自由界面の場合は $A=16$ である。当実験では球表面が常時、液体で覆われており、抗力係数の変化を A の変化として解釈する必要はない。これより、式(11)と式(12)から、相対粘度は次式で与えられる。

$$\eta = \frac{\mu}{\mu_0} = \beta \left(\frac{U_a}{U_0} \right)^{-1} \frac{\rho_s - \bar{\rho}}{\rho_s - \rho_L} \quad \cdots (13)$$

ここで β は単相時と二相時の間で温度差が生じた場合の単相時に換算するための温度補正係数で、 t を温度(°C)とすると、

$$\beta = \frac{\mu_t}{\mu_{t0}} = \frac{\mu_0 - a \log_{10} t}{\mu_0 - a \log_{10} t_0} \quad \cdots (14)$$

本実験で利用した液体では $a=5.74$ 、 $\mu_0=12.65 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ である。次に、密度比を

$$\gamma_s = \frac{\rho_s}{\rho_L}, \gamma_G = \frac{\rho_G}{\rho_L} \quad \cdots (15)$$

と記せば、式(8)、(13)、(15)より

Fig. 3 Linearity in falling distance of the sphere ($d_s=16 \text{ mm}$, $\alpha=2.1\%$)

$$\eta = \frac{\mu_a}{\mu_0} = \beta \left(\frac{U_a}{U_0} \right)^{-1} \left(1 + \frac{1 - \gamma_G}{\gamma_s - 1} \alpha \right) \quad \cdots (16)$$

式(16)におけるボイド率 α の係数は物性値で、本実験では 0.147 である。式(16)より、落球速度と平均ボイド率、ならびに温度を計測すれば相対粘度が求まる。

3・3 落球の終端速度の計測方法 終端速度到達位置は、球の並進運動方程式(慣性力、付加慣性力、重力、抗力、浮力、履歴力の平衡)から推定される。最も終端速度到達位置が下方にくる条件、すなわち $d_s=16 \text{ mm}$ の球でも、リリース後の 35 mm の位置で終端速度の 99.99% の速度をもつことが解析的に確認できる。したがって落下速度の計測位置は、リリース点から 35 mm 下方であれば誤差が 0.01% 以内である。実際の計測位置は、リリース点から 200 mm 下方である。

落球の重心座標は、単相時の落球の陰影画像をテンプレートとして記録し、二相時の落球の位置を相互相関法で検察することで計測される。落球は投影面積が 2000 pix 以上かつ単純な直線運動しかもたないため、重心座標に大きな誤差が生じることはない。本実験では計測可能な最大ボイド率が $\alpha=2.5\%$ であった。それ以上のボイド率ではすべてのバックライトが遮断され落球を光学的に抽出することはできない。

図3は、最も終端速度到達位置が長い $d_s=16 \text{ mm}$ 、 $\alpha=2.1\%$ における撮影領域内の落下距離の時間変化の実測値である。時間と落下距離の相関係数は 0.9999 以上であり、本実験装置において終端速度を十分に捕獲できることが確認される。ただし、画像処理の解像度に制約があるため、重心座標の時間微分で終端速度を求めると誤差が大きい。よって、計測領域全体で最小二乗法による線形補間式を求め、その傾きを終端速度として扱う。

3・4 容器壁面拘束効果 落球のレイノルズ数は

Fig. 4 Drag coefficient and Reynolds number in single-phase condition

Fig. 5 Viscosity and shear rate in single-phase measurement

最も高い条件 ($d_s=16$ mm) で, $Re_s=0.43$ で, ストークス流れとみなせる。一方, 球まわりのストークス流れは, 容器壁面による拘束を受け, 無限流体中のそれに対して差異を生じる。そこで単相流体で抗力係数の検証を行った。図4に式(9)によって計測された抗力係数の実測値を示す。図4で, ◆が実測値, 直線が無限流体中の球のストークス抗力, 破線がおなじくオゼン抗力の理論値である。結果より, 本実験では容器壁面拘束により, ストークス抗力よりやや高めとなる。また, レイノルズ数が1に近いほど理論値との差が広がる。これは, 落球の直径が大きいほど相対的に壁面拘束の影響が増大するからである。

次に容器壁面拘束による相対粘度への影響について述べる。結論からいえば, 相対粘度にはまったく影響しない。これは, 3・2節で述べたように, 抗力係数が, 単相および二相でともに, 式(10)の形式で与えられるとき, 相対粘度は A の値に無関係になるためである。落球法の場合, 容器壁面拘束による抗力係数の増加は流体の物性の変化ではなく A の増加に対応づけられる。なお, 落球のレイノルズ数が $Re_s>1$ の条件(アレン領域やニュートン領域)では抗力係数が式(10)の形式で与えられない。これに対し, ストークス領域での落球法は, 流れ場自体が容器壁面拘束の影響を含んで

Fig. 6 Relative viscosity as function of void fraction

いても, 相対粘度に影響が伝ばしないという長所がある。

図5に, 単相条件においてストークスの抗力係数から換算される粘度の実測値とせん断ひずみ速度の関係を示す。ここでせん断ひずみ速度は球まわりで分布をもつため, その代表値として次式を使った。

$$G = \frac{du}{dy} = \frac{U}{r_s} \quad (17)$$

結果より, せん断ひずみ速度が大きいほど高粘度を示していることがわかる。一見, これは高粘度のシリコンオイルがもつ非ニュートン性に基づくかのようなのであるが, 実際は, 落球のサイズが大きくなると抗力係数が増大するという, 容器壁面拘束効果にすぎない。これは, 図5の実測点を $du/dy=0$ まで外挿すると使用した液体の粘度である $4.9 \text{ Pa}\cdot\text{s}$ にほぼ符合すること, ならびに, そこからの増加分は落球の半径比に比例していることから説明できる。なお仮に非ニュートン性が含まれていたとしても, 同じせん断ひずみ速度で求められた相対粘度は, 非ニュートン性の影響をほとんど含まない。

4. 実験結果および考察

以下では, 落球法による相対粘度の計測結果を述べる。なお, 単相の抗力係数と二相時の抗力係数の比は, 式(10)と式(16)より次式のように導かれる。

$$\frac{D_{Da}}{C_{D0}} = \eta^2 \frac{(\gamma_s - 1)\{1 - \alpha(1 - \gamma_c)\}}{\gamma_s - 1 + \alpha(1 - \gamma_c)} \quad (18)$$

ここでは相対粘度 η の結果のみを記載し, 抗力係数の増減については式(18)で即座に換算できるものとして論述を省略する。

4・1 相対粘度とボイド率の関係 図6に, 式(16)により計測された相対粘度の実験結果を示す。図

Fig. 7 Increment ratio of relative viscosity versus Ca number

6では横軸にボイド率をとり、落球サイズごとにそれぞれの記号でプロットした。一つのプロットは1回の落球実験に対応し、全体の傾向を見やすくするため三次関数補間による曲線も併記した。淡太線は式(3)による球形気泡の場合の相対粘度の理論値である。図6より、以下のことがわかる。(1)直径 d_s が8mm以下の小さい球の場合、相対粘度はボイド率に対して単調増加する。またボイド率に対するこう配 $d\eta/da$ は、およそ1前後である。このことは、式(3)による球形気泡時の相対粘度の振る舞いとよく類似している。(2)落球の直径が $d_s=10$ mmより大きな場合、相対粘度はボイド率に対して単調増加ではなくなる。むしろ、相対粘度はボイド率の増加により1を下回る。

ところで、図6では同じ落球サイズでも相対粘度の値に分散が大きい。これは終端速度の計測誤差によるものではなく、分散性混相流としての避けられない本質による。すなわち、球近傍の気泡の数が有限であり、完全な均質流体でないことによる。ボイド率 α 、気泡半径 r_c の様な気泡分布では、平均気泡間距離 λ は、

$$\alpha\lambda^3 = \frac{4}{3}\pi r_c^3 \dots\dots\dots (19)$$

球表面から厚さ λ の範囲に存在する気泡数は、

$$N = 4\pi r_s^2 \lambda \alpha \left(\frac{4}{3}\pi r_c^3\right)^{-1} \\ = 3\left(\frac{4}{3}\pi\right)^{1/3} \left(\frac{r_c}{r_s}\right)^{-2} \alpha^{2/3} \dots\dots\dots (20)$$

代表的な実験条件として、 $r_s=5$ mm、 $r_c=1$ mm、 $\alpha=1\%$ を代入すると $\lambda=7.5$ mmとなり球半径 r_s より気泡間距離が大きい。このとき $N=5.6$ であり、一つの気泡の有無により球近傍では $1/N=18\%$ の気泡数の変動が生じる。著者らはこの分散性については回避不能

Table 2 Coefficients of fitting function

	3 rd Order Function, Eq.23	Gaussian Function, Eq.24
A	1.455	3.818
B	-0.7512	3.796
C	7.749×10^2	1.386

な問題であると認識し、以下では平均的特性のみを評価する。

4.2 キャピラリー数による整理 図6は縦軸と横軸が無次元数であるのに対して落球サイズは有次元のままである。そこで、 Ca 数を用いて相対粘度の振る舞いを整理する。式(4)のせん断ひずみ速度に、式(17)による代表値を採用すると、落球法における気泡 Ca 数は、次式で与えられる。

$$Ca = \frac{r_c G \mu_L}{\sigma} = \frac{r_c \mu_L}{\sigma} \frac{U_a}{r_s} \dots\dots\dots (21)$$

次に、相対粘度を次のようにおく。

$$\eta = 1 + f\alpha \leftrightarrow f = \frac{\eta - 1}{\alpha} \dots\dots\dots (22)$$

ここで f は無次元のこう配であり、 $f>0$ のとき気泡混入による相対粘度の増加を、 $f<0$ のとき減少を意味する。以下、 f を相対粘度増加係数と呼ぶ。

図7に、相対粘度増加係数 f の Ca 数に対する変化を示す。実験点は各50回の落球試験の平均値であり、エラーバーは標準偏差である。太線はFrankel-Acrivosの式(5)、細線は実験データの三次関数による補間、破線は同じくガウス関数による補間である。ここで $Ca=0$ のとき $f=1$ であることが理論的に既知であるため、補間関数はそれぞれ次式で与えた。

$$f = 1 + ACa + BCa^2 + CCa^3 \dots\dots\dots (23)$$

$$f = 1 + A\{e^{-(Ca-C)^2/B} - e^{-C^2/B}\} \dots\dots\dots (24)$$

ここで A, B, C は最小二乗法で決定され、それぞれ表2のような値を得た。これを落球法における相対粘度増加係数の相関式として提案する。

図7および表2より、以下のことがいえる。(1) Ca 数が0~3の間では $f>1$ となり、球形気泡($Ca=0$)よりも相対粘度増加係数が高い。(2) Ca 数がある値を超えて増加すると、相対粘度増加係数は正から負に変わる。すなわち臨界 Ca 数が存在する。(3)臨界 Ca 数は、式(5)の場合、0.65であるのに対し、落球法の場合、約3.5と大きく異なる。(4) Ca 数が4以上では f は Ca 数依存性がなくなる。 Ca が十分に大きいとき、式(5)の場合、 $f=-5/3$ に漸近し、落球法の場合では $f=-1.3$ である。このように変形が非常に顕著な場合では、 f の値に顕著な差異は見られなく

Fig. 8 Theoretical bubble deformation in two ultimate states

なる。

4・3 球まわりの気泡の変形応答 球まわりのストークス流れの流速分布は、半径方向と周方向につき以下の式で与えられる。

$$u_r = U \cos \theta \left(1 - \frac{3}{2} \frac{r_s}{r} + \frac{1}{2} \frac{r_s^3}{r^3} \right) \quad \dots\dots\dots (25)$$

$$u_\theta = U \sin \theta \left(1 - \frac{3}{4} \frac{r_s}{r} - \frac{1}{4} \frac{r_s^3}{r^3} \right) \quad \dots\dots\dots (26)$$

ここで r は球の重心からの半径、 θ は球の前縁からの角度である。式(26)より球表面 $r=r_s$ での半径方向速度こう配 G_w は、

$$G_w = \left. \frac{\partial u_\theta}{\partial r} \right|_{r=r_s} = \frac{8}{3} \frac{U}{r_s} \sin \theta \quad \dots\dots\dots (27)$$

$\theta = \pi/2$ で最大せん断ひずみ速度 $(8/3)(U/r_s)$ をもち、これは式(17)または式(21)で与えた G の代表値より大きい。一方、式(27)を球表面全体で平均した値は、

$$\bar{G}_w = \frac{\int_0^\pi \frac{4}{3} \frac{U}{r_s} \sin \theta (2\pi r_s^2 \sin \theta) d\theta}{4\pi r_s^2} = \frac{\pi}{3} \frac{U}{r_s} \quad \dots\dots\dots (28)$$

すなわち式(17)または式(21)で代表化した G とほとんど差異はない。よって、4・2節で述べた臨界 Ca 数の顕著な違いは、 Ca 数の代表値の選定によるものではないといえる。

図8に、ストークス流れにおける球まわりの気泡形状分布について、二つの極限的なケースの理論解を示す。図8(a)は、気泡変形がその場の局所的なせん断ひずみ速度だけで決まる場合である。すなわち気泡変形速度をもたない平衡変形を仮定したもので、変形率と配向角度は、Rust-Manga⁽⁶⁾ のデータを用いた。この場合では、球の上流(下方)で変形が早い段階から生じ、球表面近傍で最も変形が大きくなる。また、変形

Fig. 9 Experimental observation of bubble deformation

率は球の水平位置に対して対称である。一方、図8(b)は、表面張力が零、すなわち Ca 数が無限大の気泡の変形の解である。上流において球形であった気泡は、下流ほど変形が進展する。これはちょうど流体粒子の変形に一致する。このように球まわりの液相の流れ場が定常であっても、 Ca 数が大きいと気泡の変形には時間変化を伴う。

図9は気泡の変形をとらえた実験の写真である。図9(a)は、式(25)、(26)より得られる主せん断ひずみ速度の等高線、図9(b)は、 $Ca=3.3$ における単一気泡の変形過程をとらえた実験画像である。この結果より、主せん断ひずみ速度が球に対して上下流で対称であっても、気泡の変形は下流ほど進展することがわかる。したがって、球の上流側では球形気泡のもつ実効粘度が、下流側では変形気泡のもつ実効粘度が作用すると考えられる。また、変形が進展する間は、瞬間の形状だけでなく変形速度に依存したせん断応力の増減が生じ、この結果、落球法における臨界 Ca 数が平衡変形時よりも大きく異なる結果を導いたと考えられる。

Frankel-Acrivos⁽⁹⁾ は、微小変形を仮定し、エマルジョン液滴が過渡的な変形速度をもつ流れ場に存在したときのせん断応力について理論的な考察を行っている。彼らの理論に基づいて、分散体の対象を液滴から気泡に読み替え、回転テンソルを無視し、かつ、せん断ひずみ速度 G の式に書き換えれば、局所瞬時せん断応力 τ と局所瞬時せん断ひずみ速度 G の関係は、次の方程式で与えられる。

$$\tau + \Lambda \frac{d\tau}{dt} = \mu_L \left\{ (1 + \alpha)G + \left(1 - \frac{5}{3}\alpha\right) \Lambda \frac{dG}{dt} \right\} \quad \dots\dots\dots (29)$$

ここで d/dt は実質微分, Λ は変形時定数であり,

$$\Lambda = \frac{6}{5} \frac{\mu_L r_c}{\sigma} = \frac{6}{5} \frac{Ca}{G} \quad \dots\dots\dots (30)$$

ここで Ca 数は局所瞬時値である。式(29)の左辺は、気泡が球形であるときのせん断応力 τ から、 Λ だけ時間経過したときのせん断応力を意味する。これより時間幅 Λ 内での実効粘度を求めて相対粘度で表現すると、

$$\eta = \frac{1}{\mu_L} \left(\frac{\bar{\tau}}{G} \right) = 1 + \alpha + \Lambda \left(1 - \frac{5}{3}\alpha \right) \frac{6}{5} \frac{dCa}{dt} \dots\dots\dots (31)$$

すなわち変形時定数 Λ 内で Ca 数が増大する間、相対粘度は増加する。式(17)と式(30)より、式(31)が成り立つ無次元時間は、

$$\Lambda^* = \Lambda \left(\frac{r_s}{U_a} \right)^{-1} = \frac{6}{5} Ca \leq 1 \quad \dots\dots\dots (32)$$

すなわち $Ca < 5/6$ では、球まわりの気泡はすべて変形進展段階にあり、相対粘度は増加する。 Ca が 1~3 では、変形進展段階にある気泡は球の上流側のみとなり、相対粘度の増加は緩和される。このような機構が図7の臨界 Ca 数の増大をもたらしingと考えられる。

5. 結 論

本研究は、過渡的に変形する気泡を含んだ液体の実効粘度を、落球法によって調べたものである。本報では、単相液体時の粘度に対する相対粘度を、落球の終端速度から計測し、以下のことを明らかにした。

(1) 落球がもたらすせん断ひずみ速度に依存して相対粘度は変動する。せん断ひずみ速度が小さいと、従来の球形気泡の相対粘度の理論にほぼ一致する。せん断ひずみ速度が大きいと、相対粘度は1を下回る。

(2) 式(22)により定義した相対粘度増加係数 f が零となる臨界キャピラリー数は落球法の場合、約3.5であり、せん断ひずみ速度と気泡変形が平衡な状態にある定常な単純せん断流の場合の0.65より大幅に大きい。

(3) 臨界キャピラリー数が増大する理由は、落球まわりの気泡が過渡的変形を伴うことによる。すなわち、変形が進展する過程では相対粘度が増加する。なお、本実験で得られた相対粘度の平均値は、式(23)、(24)および表2の補間式のとおりである。

本研究は日本学術振興会科研費補助金(No. 15560135, No. 15760104)による助成を受けた。ここに謝意を示す。

文 献

- (1) Einstein, A., *Ann. Phys.*, **19** (1904), 289-306.
- (2) Taylor, G. I., *Proc. R. Soc., London, Ser. A*, **138** (1932), 41-48. または Batchelor, G. K., *An Introduction to Fluid Dynamics*, (1967), 246-255, Cambridge Univ. Press.
- (3) Kuwagi, K. and Ozoe, H., *Int. J. Multiphase Flow*, **25** (1999), 175-182.
- (4) Kitagawa, A., Murai, Y. and Yamamoto, F., *Int. J. Multiphase Flow*, **27** (2001), 2129-2153.
- (5) Tisne, P., Aloui, F. and Doublier, L., *Int. J. Multiphase Flow*, **29** (2003), 841-854.
- (6) Rust, A. C. and Manga, M., *J. Colloid Interface Sci.*, **249** (2002), 476-480.
- (7) Pal, R., *Earth Planet. Sci. Lett.*, **207** (2003), 165-179.
- (8) Tokuhiro, A., Maekawa, M., Iizuka, K., Hishida, K. and Maeda, M., *Int. J. Multiphase Flow*, **24** (1998), 1383-1406.
- (9) Frankel, N. A. and Acrivos, A., *J. Fluid Mech.*, **44** (1970), 65-78.
- (10) Marie, J. L., *J. Phys. Chem. Hydrodyn.*, **8** (1987), 213-220.
- (11) Choi, S. J. and Schowalter, W. R., *Phys. Fluids*, **18** (1974), 420-427.
- (12) Rust, A. C. and Manga, M., *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **104** (2002), 53-63.