論 文

Hybrid Expression for Rheological Property of Concentrated Suspension of Uniform Particles at Relatively Low Shear Rate.

by

Naoshi OTOTAKE and Tsuyoshi KINOSHITA

(Department of Chemical Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology)

In this paper, it is proposed to interconnect the hydrodynamic methods with the free volume theory for analysis of rheological property of concentrated suspension composed of uniform particles and Newtonian liquid.

The hydrodynamic methods have fairly succeeded in representation of Newtonian viscosity but have had difficulty to account for non-Newtonian behavior.

As the free volume theory has not yet been developed for these problems, a simple model is proposed here for the convenience of application of the theory on concentrated system. The system expressed by this model is made up from two parts, "visco-plastic part" and "viscous part". The visco-plastic part consists of particles restricted by the surrounding particles. The other part is occupied by the particles which are able to move instantaneously. The volume of this part is assumed to be expressed by a function deduced from the usual statistic discussions on the probability of finding free volume nearby.

In this study, two methods of approach mentioned above, are reconciled by combining the both aspects, and a series of hybrid expressions for the apparent viscosity of concentrated suspension has been given as function of solid concentration and of shear force applied to the systems.

Newtonian and non-Newtonian viscosities calculated by these new equations agree reasonably well with the data reported by Gay-Nelson-Armstrong (1969), Thomas (1965), Papir-Krieger (1970) and others.

比較的低ひずみ速度下の濃厚サスペンション の流動特性に対する混成的表式

乙 竹 直・木 下 剛*

(原稿受理：1975年5月28日)

1. 緒 言

高濃度サスペンションに対する理論的取り扱いの困難は粒子間の干渉により生ずる。干渉は液体を介する粘性的干渉と、粒子相互の接触や、界面に生ずる特殊な層などを介する接触のようないわば塑性的干渉に分けられようが、両者を定量的にどのように表式に導入するかは未開拓な問題である。

このような干渉に大きく影響を及ぼすと思われるものに粒子群

の分布がある。筆者らはここで、分布には巨視的分布と微視的分布とも言うべき二種類の分布があると考えた。凝集、フロックなどは巨視的分布の著しいかたよりにより生じた状態で、分散系内に流動性の巨視的分布が生じる。微視的分布は粒子の配列に関係がある。巨視的には均一な濃度分布であっても粒子近傍の間隙の分布に種類があり、微視的な特性の分布を生じる。例えば、同一の平均濃度状態でも微視的には粘性的干渉の場にある部分もあれば、塑性的干渉の場にある部分もあるということになる。一般のサスペンションではこれらの両分布が共に系全体の流動特性に影

* 東京農工大学工学部化学工学科 東京都小金井市中町2-24

響を与えていると思われるが、本論では巨視的には均一とみなしうる系に対し、微視的分布の影響を重視した模型を用いて、巨視的流動特性の定量的表現へのアプローチを試みる。

従来、粒子間干渉の表現に、反射模型、衝突模型およびセル模型などが用いられたが、いずれの場合にも粒子流体間または粒子相互間に相対速度が前提された上で流体力学的取り扱いがなされている。しかし、粒子群の中には周囲の粒子群の束縛のために運動する自由を持っていないように配置されているものもあると思われるので、系中のすべての粒子が相対速度の場にあると仮定することはできないであろう。ここにサスペンションは、自由に移動しうる自由な粒子群よりなる部分（粘性部分と呼ぶ）と移動するためには、周囲の束縛を解きほぐすため何らかの静的な力を要する部分（粘塑性部分と呼ぶ）の二部分から構成され、これら二つの部分の体積分率は微視的分布から定まると考える。ただし、定常状態を対象とし、粒子群は均一な形の剛体で液体は Newton 流体とする。

2. 模型理論

2・1 粘性部分と粘塑性部分

2・1・1 自然状態にある自由粒子の存在確率

体積 v_i の多数の粒子 N 個がほぼ均一に分散する全体積 V の高濃度サスペンションを考える。 v_f は粒子 1 個当たり平均の自由空隙体積（以下自由体積とかく）を表す。

$$Nv_f = V_f = V - V_0 \quad (1)$$

V_0 は N 個の粒子よりなる最密充填層の体積、 V_f は全自由体積である。 V_f は種々の大きさが異なる局所的自由空隙体積の和であり、系中の一個の粒子に着目すると、その周囲の自由体積は種々の大きさを持つ微視的自由空隙体積に分割され、それぞれの体積の空隙の存在確率は系全体における確率に等しい。いま、 V_f は i 種の大きさの自由空隙に分けられ、そのうち n_i 個が v_i の体積をもつとすれば、

$$V_f = n_1v_1 + n_2v_2 + \cdots = \sum_i n_i v_i \quad (2)$$

$$n = n_1 + n_2 + \cdots = \sum_i n_i \quad (3)$$

ここに、 n は自由空隙の総数である。これらの空隙を並べ換える仕方の数 W は、

$$W = \frac{n!}{n_1! \cdot n_2! \cdot n_3! \cdots} = \frac{n!}{\prod_i n_i!} \quad (4)$$

最大の W を示す系が最も自然にありうる系とみなし、式(2)、(3)の条件のもとに定める。 n は大きい数とし Stirling の公式を用いて求めれば、

$$n_i = \exp[-(\alpha + \beta v_i)] \quad (5)$$

と書ける。Lagrange の定数 α, β を求めることにより、粒子周囲で v と $v+dv$ の間の大きさの自由空隙を見いだす確率は次式で求まる¹⁾²⁾。

$$P(v)dv = \frac{1}{v_f} \exp\left(-\frac{v}{v_f}\right) dv \quad (6)$$

すなわち、系中の粒子がその周囲に v より大きい体積を持つ自由空隙を見いだす平均の確率は次式で計算できる。

$$p(v) = \int_v^\infty P(v) dv = \exp\left(-\frac{v}{v_f}\right) \quad (7)$$

粒子が自由に移動しうるためには、その周囲に v_K 以上の体積

の自由空隙の存在が必要であるとすれば、 v_K 以上の自由空隙を見いだす確率は、

$$p(v_K) = \exp\left(-\frac{v_K}{v_f}\right) \quad (7')$$

すなわち、自由空隙の微視的分布を考慮すると、濃度一定 (v_f 一定) の系の中に存在する粒子の自由さは (7)' 式で表される。

いま、サスペンション中のどの粒子にも (7)' 式が適用でき、且つ自由空隙の数 n は粒子数 N に等しいと仮定すれば、全粒子のうちその周囲に v_K 以上の体積の自由空隙を持つ粒子、すなわち自由な粒子の平均的存在割合も (7)' 式で与えられることになる。

巨視的には全系は均一の濃度と考えているので、粒子数の割合はそのような粒子で占められている体積の割合に等しい。すなわち、粘性部分および粘塑性部分の体積分率は、それぞれ

$$\left. \begin{aligned} V_{vis}/V &= p(v_K) & (i) \\ V_{pl}/V &= 1 - p(v_K) & (ii) \end{aligned} \right\} \quad (8)$$

と表されることとなる。したがって、 v_K の値を定めることができれば (8) 式から粘性、粘塑性の両部の体積割合を具体的に算出する。

粗粒子サスペンションでは、最疎充填状態で粒子一個分の占める体積 $v_1 = V_1/N$ 、以上の空隙がその周囲に見いだされれば粒子は自由に動きうるであろうから、ここで v_K に $v_1 - v_0$ をとるのは自然であろう。すなわち、(7)' 式の右辺は次のように書き直される。

$$\left. \begin{aligned} \exp\left(-\frac{v_K}{v_f}\right) &= \exp\left(-\frac{v_1 - v_0}{\bar{v} - v_0}\right) = \exp\left(-\frac{\varphi_1^{-1} - \varphi_0^{-1}}{\bar{\varphi}^{-1} - \varphi_0^{-1}}\right) \\ &= \exp(-Y) & (i) \\ Y &= (\varphi_1^{-1} - \varphi_0^{-1}) / (\bar{\varphi}^{-1} - \varphi_0^{-1}) & (ii) \end{aligned} \right\} \quad (7'')$$

ここに、 $\bar{v} = V/N$ 、 $v_0 = V_0/N$ 、 φ_1 、 φ_0 、 $\bar{\varphi}$ はそれぞれ最疎充填状態、最密充填状態および与えられたサスペンションの粒子の体積濃度である。 φ_1 、 φ_0 は粒子、液体が定まれば定まる特性値であるから、上記の考え方が正しいければ特定のサスペンションでは、濃度が定まれば (8) 式の左辺を定めることができる。

2・1・2 両部分の流動特性と構成モデル

2・1・2・1 両部分の流動特性 粘性部分では粒子流体間の相対速度を前提できるので、従来報告されている流体力学的理論結果が使用できよう。ここでは反射法により得られた Vand の原式¹⁰⁾を使用する。

$$\mu_v = \mu_e \exp\left(\frac{k_E}{y - Q}\right), \quad y \equiv \frac{1}{\bar{\varphi}} \quad (9)$$

μ_v 、 μ_e は粘性部分および分散媒の粘度、 k_E は Einstein の係数、 Q は流体力学的干渉係数である。Vand は粒子会合の効果を考えて式 (9) を補正し、いわゆる Vand の粘度式を提出しているが、ここでは補正する前の式を使用するので、Vand の原式と呼ぶことにする。

緒言にも述べたように、粘塑性部分の流動には粘性力の他に何らかの静的な力—組織力と呼ぶ⁶⁾—を要する。この場合、組織力 $K(v)$ は体積 $v(v \leq v_1)$ の自由空隙の部分に粒子が移動しようとするとき受ける抵抗で、 v の関数である。 $K(v)$ 以上のひずみ応力では粘塑性部分にも流動を生じるが、全系は巨視的に均一な濃度にあると考えていることから、流動状態での粘度は粘性部分の粘度に等しい。すなわち、自由空隙 v と粒子よりなる微視的部分の流動特性を式 (10) のように置く。

Fig. 2. Schematic illustration for Eqs. (12), (14), (15) and (16).

$$\exp\left[\frac{\tau}{k_s v_s (\bar{\varphi}^{-1} - \varphi_0^{-1})}\right] = 1 + \frac{\mu_c \dot{\gamma}}{k_s v_s (\bar{\varphi}^{-1} - \varphi_0^{-1})} \exp\left[\left(\frac{k_E}{Y - Q}\right) + Y\right], \quad 0 \leq \tau \leq K(0) \quad (16)$$

$K(0)$ が非常に大きいときは、(16) 式が広い範囲のひずみ応力の範囲で成立し、準粘性流体流動の 1 つの表現式となる。

定濃度系に対し、式 (15)、(16) はそれぞれ次の形となる。

$$\tau = A_1 + B_1 \dot{\gamma}, \quad \tau \geq K(0) \quad (15)'$$

$$\tau = A_2 \ln(1 + B_2 \dot{\gamma}), \quad 0 \leq \tau \leq K(0) \quad (16)'$$

ここに、 $K(0)$ は Bingham 体の上限の降伏点に相当する。上限降伏点応力を K_{BU} 、同ひずみ速度を $\dot{\gamma}_{BU}$ とし、 $\tau^* = \tau/K_{BU}$ 、 $\dot{\gamma}^* = \dot{\gamma}/\dot{\gamma}_{BU}$ を用いて諸式を無次元化すれば、

$$\left. \begin{aligned} \tau^* &= (\exp Y - 1) \dot{\gamma}^*, \quad \text{for } \tau^* \sim 0 & (i) \\ \exp(Y \cdot \tau^*) &= 1 + (\exp Y - 1) \dot{\gamma}^*, \quad \text{for } 0 \leq \tau^* \leq 1 & (ii) \\ Y(\tau^* - 1) &= [1 - \exp(-Y)](\dot{\gamma}^* - 1), \quad \text{for } \tau^* \geq 1 & (iii) \end{aligned} \right\} \quad (17)$$

Fig. 3. Effect of parameter, Y , on shear stress-shear rate relation predicted by Eq. (17). K_B is Bingham yield stress.

Fig. 4. Relative Newtonian viscosity of suspensions of spherical particles.

ここに、 $K_{BU} = K(0) = k_s v_s (\varphi_1^{-1} - \varphi_0^{-1})$ 、 $\dot{\gamma}_{BU} = (K_{BU}/\mu_0)[(\exp Y - 1)/Y]$ である。Fig. 3 に Y をパラメータとする式 (17) の曲線群を示す。

3. 実測値との比較

3・1 高濃度均一球粒子サスペンションの Newton 粘度

報告されている主要文献値¹⁾⁵⁾を Fig. 4 に示したが広い散乱がある。1955 年、Thomas⁹⁾ はポリスチレン、ポリメタクリレート、ゴムおよびガラスの球粒子に対し与えられた 16 種の文献値につき、粒子径と変形速度に着目し再検討を行った結果、妥当なものとして、Fig. 3 に白丸で示す一連のデータを選択し、 $0.02 < \bar{\varphi} < 0.6$ の体積濃度範囲でほぼ普遍的な整理実験式として式 (18) を得ている。

$$\mu_r = \mu_0/\mu_c = 1 + 2.5\bar{\varphi} + 10.05\bar{\varphi}^2 + 0.00273\exp(16.6\bar{\varphi}) \quad (18)$$

一方、1970 年 Papir および Krieger⁷⁾ は、ポリスチレン微粒子の非水分散系の低ひずみ速度域の粘度は式 (19) で表されると報じた。

$$\mu_r = \frac{\mu_0}{\mu_c} = \left(1 - \frac{\bar{\varphi}}{0.57}\right)^{-(2.672)(0.57)} \quad (19)$$

(18)、(19) の両式は、 $\bar{\varphi} \leq 40\%$ の領域でよく一致した計算値を与える。ここに 0.57 は φ_0 と同様の意味を持つ量と思われる。

等径球粒子系に対し、式 (12) の係数は次の各値をとるのが適当と思われる。すなわち、

$$\varphi_1 = 0.524, \quad \varphi_0 = 0.7405, \quad k_E = 2.5 \quad \text{および} \quad Q = 39/64 = 0.609$$

Fig. 4 の実線 2 は $\varphi_1 = 0.524$ 、 $\varphi_0 = 0.7405$ 、 $k_E' = k_E = 2.5$ および $Q' = Q = 0.609$ を式 (11) に代入した計算結果である。粘塑性塊の k_E' 、 Q' は実際は共に k_E および Q より大であると推測されるから、計算結果は実測値より小さい値を与えると予測されたにもかかわらず、曲線 2 は実測値より大幅に大きい値を与え、且つ濃度に対する依存性も実測値と異なる。このことから 2・1・2・2 の a) の分散的構成模型によってサスペンションの流動特性を説明することは困難と思われる。

一方、上に記した諸数値を式 (12) に代入すれば、式 (20) が得られる。

Table 1. Relative viscosity calculation by various equations for system of uniform spherical particles

Volume fraction of solid	Fraction of viscous part	Fraction of plastic part	Equation (11) with $k_E = k_E' = 2.5$ $Q = Q' = 0.609$	Equation (20)	Vand's original equation (11-ii)	Papir, Krieger's equation (19)	Thomas's equation (18)	Happel's equation
0.00	1.000	0.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000	1.000
0.05	0.930	0.070	1.365	1.172	1.138	1.150	1.156	1.280
0.10	0.855	0.145	1.626	1.392	1.305	1.341	1.365	1.610
0.15	0.776	0.224	2.136	1.678	1.511	1.592	1.634	2.00
0.20	0.691	0.309	2.677	2.060	1.767	1.930	1.978	2.49
0.25	0.600	0.400	3.841	2.580	2.090	2.408	2.426	3.12
0.30	0.506	0.494	5.313	3.317	2.503	3.118	3.052	3.94
0.35	0.408	0.592	7.492	4.403	3.041	4.258	4.017	5.06
0.40	0.308	0.692	10.751	6.095	3.751	6.304	5.697	6.62
0.45	0.212	0.788	15.636	8.933	4.710	10.710	8.950	8.86
0.50	0.125	0.875	22.875	14.243	6.033	24.33	15.948	12.20
0.55	0.055	0.945	33.278	26.060	7.905	163.75	30.608	18.29
0.60	0.014	0.986	47.712	62.061	10.630	—	63.892	—
0.65	0.001	0.999	67.435	286.361	14.728	—	139.366	—

$$\ln \mu_r = \ln \frac{\mu_0}{\mu_c} = \frac{2.5}{\mu_c} \frac{0.558}{y - 0.609} + \frac{0.558}{y - 1.350} \quad (i) \quad (20)$$

$$\text{または, } \mu_r = 1 + 3.058\bar{\varphi} + 6.952\bar{\varphi}^2 + 13.312\bar{\varphi}^3 + \dots \quad (ii)$$

式 (11), (12) および文献⁽⁴⁾⁽⁷⁾⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾の諸式の計算結果を Table 1 に示す. 式 (20) は式 (18) とよい対応を示し, $\bar{\varphi} < 0.6$ の範囲で最大偏差は約 10%, 平均偏差は 1.7% にすぎない. 式 (19) はミクロン以下の微粒子に対するもので Brown 運動の効果を含み, 式 (20) と比較することに疑問があるけれども, 両者がよい一致を示したのは, Brown 運動のため式 (12) 右辺かっこ内第一項は増

大, 第二項は減少してこれらの効果がほぼ相殺した結果と解釈できる. なお, 筆者の一人が先に提出した式⁽⁴⁾⁽⁵⁾とは, $\bar{\varphi} \leq 40\%$ の範囲でよく一致する.

非球形粒子系は資料に乏しいが, 粘度の濃度依存性は式 (21) で表されると考える.

$$\ln \mu_r = \ln \frac{\mu_0}{\mu_c} = \frac{b}{y-a} + \frac{d}{y-c} \quad (21)$$

ここに, a, b, c, d は系に関する定数で, 右辺第一項は粒子存在による流体力学的効果, 第二項は自由空隙体積の効果を表す.

3・2 サスペンションの非 Newton 流動

高濃度サスペンションの非 Newton 性に関する測定値の報告は多いが, 正しく流動曲線を求めたものは少ない. 今後資料の蓄積が望まれる.

ここで報告する理論結果は定濃度系に対し, 式 (15)', (16)' の

Fig. 5. Comparison between experimental data and calculated results for suspensions composed of glass beads and glycerin.

Fig. 6. Comparison between experimental data and calculated results for alumina particles-glycerin slurry.

Fig. 7. Effect of relative shear stress on relative apparent viscosity of non-Newtonian slurry of sub-micron spherical particles, where κ is Boltzmann's constant, T is absolute temp. and a is particle diameter.

関数形を与える。 A_1, A_2, B_1, B_2 はそれぞれ $\bar{\phi}, K_{BU}, k_E, \phi_0, \phi_1$ および Q の関数である。広い領域の $\tau \sim \dot{\gamma}$ 関係が求められていると式 (15)', (16)' の係数が共に決定でき、 K_{BU} の値も推定しうる。したがって、特定物質系においては、二種類の濃度について十分な情報が与えられれば、その物質系の $\phi_1, \phi_0, k_E, K_{BU}, Q$ を決定できるから、全濃度域の流動曲線を推算しうることになる。

Fig. 5, 6 および 7 に示す実測値と計算線（曲線）との関係に見るように式 (15)', (16)' の関数形は、4 係数を適宜に定めることにより実測値をよい精度で再現する能力を持つと思われる。ちなみに、Fig. 5 の実線は次の諸式を表す。

$$51 \text{ vol\%} \begin{cases} \tau = 1270 \ln(1 + 0.473\dot{\gamma}) & \text{for } \tau \leq K_{BU} = 1350 \text{ (i)} \\ \tau = 519 + 207\dot{\gamma} & \text{for } \tau \geq K_{BU} = 1350 \text{ (ii)} \end{cases} \quad (22)$$

$$55 \text{ vol\%} \begin{cases} \tau = 926 \ln(1 + 1.38\dot{\gamma}) & \text{for } \tau \leq K_{BU} = 1350 \text{ (i)} \\ \tau = 639 + 298\dot{\gamma} & \text{for } \tau \geq K_{BU} = 1350 \text{ (ii)} \end{cases} \quad (23)$$

ここに、 τ および $\dot{\gamma}$ の次元は $[\text{dyne/cm}^2]$ および $[\text{sec}^{-1}]$ である。この両式の実測値に対する偏差は、それぞれ最大 -3.5% および -4.6% 、平均 -1.2% および -0.5% である。

Fig. 5, 6, 7 の諸曲線および Fig. 8 の破曲線より求めた物質系に関する定数、 Q, k_E, ϕ_1 および ϕ_0 の値を Table 2 にまとめた。この結果を見ると、ガラス球-グリセリン系では、 k_E 以外はわれわれが予想した各数値に近い値となっている。また、ミクロン以下の微粒子非水分散系では Q の値が大となり、 ϕ_1 と ϕ_0 の差が小となっているのは Newton 粘度の検討の項でも述べた Brown 運動の影響と思われる。

非球形粒子系について各係数値の検討は難しいが、アルミナ粒子-グリセリン系では、 k_E 以上はほぼ妥当な値と思われる。

以上いずれも媒体がグリセリンの場合であるが、 k_E の値には問題があり、今後の検討が必要と思われる。炭酸カルシウム粉末-水系の測定値¹¹⁾は Table 2 の値を使用することにより、ほぼ全濃度域に対し整理が可能であることを Fig. 8 は示している。

4. 結 論

平均的濃度の影響と、粒子周囲の微視的な自由空隙の分布の影響を共に考慮して高濃度サスペンションの流動特性を表現しよう

Table 2. Parameters used in calculation for various systems referred in this paper as their material constants

Systems	K_{BU} (dyne/cm ²)	$K_{BU}/k_E v_s$ (%)	k_E (%)	Q (%)	ϕ_1 (%)	ϕ_0 (%)
Glass beads in glycerin at 25°C ³⁾	1350	0.57	4.17	0.606	0.501	0.699
Polystyrene spheres in benzyl-OH and in <i>m</i> -cresol ⁷⁾	0.8(Kr)	0.154	2.248	0.971	0.512	0.556
Alumina particles (non-spherical) in glycerin at 25°C ³⁾	4.8(10 ³)	1.089	1.95	1.63	0.391	0.680
Fine CaCO ₃ powder in water at 50°C ¹¹⁾	350	2.28	3.65	2.15	0.18	0.305
Ideal suspensions composed of inert and spherical particles	—	0.56	2.50	0.609	0.524	0.741

Fig. 8. Effect of solid concentration on flow curve for fine CaCO_3 -water slurry.

と試みた。すなわち、流体力学理論結果である Vand の原式¹⁰⁾と、統計的方法による自由体積理論結果を組み合わせ、(12)、(20)、(15) および (16) の諸式を導いた。

等径球 サスペンションの Newton 粘度に関する式 (20) は Thomas⁹⁾ の再整理した結果とよく対応し、多くの測定値⁵⁾⁸⁾⁹⁾とも数値的に、また濃度依存性においてもよい一致を示す。今回用いたモデルを低濃度域にまで適用することは無理があると思われるが、実測値との比較結果を見ると広い濃度範囲で実用しうと思われる。

非 Newton 的挙動について、式 (15)、(16) と Gay ら³⁾、Papir ら⁷⁾、山崎ら¹¹⁾の測定値との比較検討を行った結果、Einstein 係数、Vand の流体力学的干渉係数、最疎および最密充填濃度などの物質系の係数値については数値的に問題を残すが、式 (16)'、(15)' の関数形は実測値を精度よく表現することを示した。

特定の固体粒子-Newton 液体系の サスペンションでは、二種類の濃度の系について広い $\tau-\dot{\gamma}$ 関係が明らかな場合、式 (15)、

(16) の各係数、すなわち K_{BU} 、 k_E および Q 、 ϕ_1 、 ϕ_0 は決定できる。したがって、他の任意の濃度の流動曲線の推算が可能となる。これら係数相互間に関数関係が明らかとなれば、必要とする情報量は更に少くなるであろう。

ここに提出した考え方からは、サスペンションは低濃度でもひずみ速度が大きい場合には非 Newton 的挙動を示すこと、反面極めて高い濃度でもひずみ速度が非常に小さい場合は Newton 的挙動を示すことが推測されることは興味深いと思われる。

謝辞 本研究は著者の一人が Delft 工科大学および Cambridge 大学に滞在中始めたものである。その際便宜を与えられた J.M. Smith および P.V. Danckwerts 両教授に謝意を表す。

(昭和49年10月2日、第22回レオロジー討論会にて講演)

参 考 文 献

- 1) Chung, H.S., *J. Chem. Phys.*, **44**, 1362 (1966).
- 2) Cohen, M.H., and D. Turnbull, *J. Chem. Phys.*, **31**, 1164 (1959).
- 3) Gay, E.C., P.A. Nelson and W. Armstrong, *A.I.Ch.E.J.*, **15**, 815 (1969).
- 4) Happel, J., "Low Reynolds Number Hydrodynamics", Chap. 9 (1965), Prentice Hall, New York.
- 5) 森 芳郎, 乙竹 直, 化学工学, **20**, 488 (1956).
- 6) 乙竹 直, 化学工学, **31**, 605 (1967).
- 7) Papir, Y.S., and I.M. Krieger, *J. Colloid and Interface Sci.*, **34**, 126 (1970).
- 8) Rutgers, R., *Rheologica Acta*, **B2**, 202, 305 (1962).
- 9) Thomas, D.G., *J. Colloid Sci.*, **20**, 267 (1965).
- 10) Vand, V., *J. Phys. Colloid Chem.*, **52**, 277 (1948).
- 11) 山崎弥三郎他, 研究発表会前刷, 化学工学協会年会, 1966年4月, 東京.