

高濃度懸濁液の流動特性について*

RHEOLOGICAL CHARACTERISTICS OF CONCENTRATED SUSPENSIONS

大垣真一郎**・松尾友矩***
By Shin-ichiro Ohgaki and Tomonori Matsuo

1. 緒 言

衛生工学の対象としている流体の多くは汚泥と呼ばれる固液高濃度懸濁液であるが、その流動特性は複雑で諸現象の整理と解析は遅れている。

懸濁液は、化学工業の諸プロセスで取り扱われることから、化学工学分野において多くの研究がなされている。土木工学分野においても、衛生工学のほか、土質工学、河川工学、海岸工学などで固液混相流の現象としての解明が進められている。

一般に、均一系に対して分散系は特性が複雑である。これは、分散相が連続相である溶媒に不連続的に容積を占め、かつ系中に両相の大きな界面が存在し、その界面上での諸特性が全体の系に影響を与えるためと考えられている。廃水処理や浄水工程から生じる汚泥の固形分は、多くの場合、成分として種々の物質を含み、凝集性がある。またその粒度分布は広く、形状は不定形で、もろく不安定である。このため分散系の複雑さがさらに増すことになり、物理化学的特性の解析が困難となっている。Chou¹⁾は汚泥の物性を含水率で整理しているが、普遍的な説明にはなっていない。

球体を含む懸濁液の流動特性の理論的研究は、Einsteinの流体力学的研究にはじまり、その拡張として多くの理論、半理論式が提出されている²⁾。しかし、粒子間相互干渉が生じるような高濃度域や不定形粒子についての理論は確立されていない。理論化のためには実験データの蓄積が必要である。しかし、懸濁液の流動の力学機構は濃度、温度、粒径、粒度分布、粒子形状、粒子比重、凝集性など多数の因子によって支配されており、その複雑さのために実験結果の相互比較や体系的整理が困難となっている。特に、層流流動から得られる物性値と乱流流動実験の示す結果の相互関係の説明は不明確であ

る^{3), 4)}。

本報告では、高濃度懸濁液のレオロジカルな物性と、その固液混相流体としての内部力学機構との関係を探る目的から、懸濁液の層流流動に焦点を合せ、その流動特性を実験的に考察した。具体的な実験手法としては、粒子性状の相異なる3つの懸濁液——ミルク活性汚泥、カオリン、カオリンフロック——を用い、それについて温度条件および濃度条件を変化させて、そのビンガム流体としての粘度と降伏値を測定した。特に、温度条件の変化は、固液系の固体部分と液体部分とでは、その影響が異なることから、内部力学機構に部分的変化を生じ、その結果が物性値の変化として現われることを予想して行なったものである。

このように、異なる条件のもとで、特定の懸濁液についてだけではなく、種々の懸濁液について流動特性を測定することにより、懸濁液一般を通じて共通する内部力学機構を体系的に整理考察することができる。粘度と降伏値に関して、粒子性状の影響、温度依存性および濃度依存性について実験的にいくつかの知見を得たので、若干の考察を加えてここに報告する。

2. 実験装置と実験方法

(1) 粘 度 計

流動特性の測定装置は、毛細管型粘度計や同心円筒回転型粘度計などがあるが、力学的な単純さ、管路流動との比較の便利さ、温度コントロールの容易さ、および試料を多量に作成することが可能であったことなどから次に示すような大型の水平細管型の粘度計を作成した。流動部分を約1mと大型化することによって安定した高い精度を得ることができた。

粘度計の概略をFig. 1に示す。細管はガラス製で、内径は0.2558cm、管長は101.2cmである。両端部とも直角に切り落としてある。貯留槽は耐熱塩化ビニール製で、高さ60cm、断面は1辺25cmの正方形であり、容量は約37lである。底部に温度調節および加温用の

* 第27回土木学会年次学術講演会で一部発表(1972年10月)

** 学生員 工修 東京大学大学院工学系研究科都市工学D.C.

*** 正会員 工修 東京大学講師 工学部都市工学科

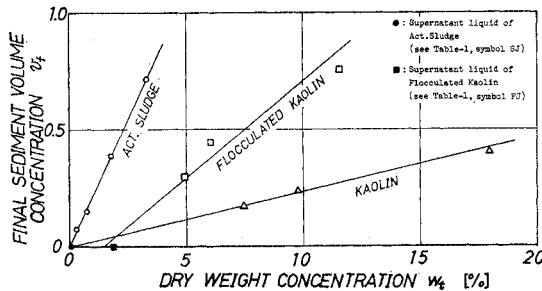


Fig. 2 Final sediment volume concentration vs. Dry weight concentration

量的には大きな変化はなかった。

各試料の濃度指標としては、乾燥重量濃度と最終沈降体積率を用いた。乾燥重量濃度は、JIS K 0101 の全蒸発残留物を求める方法によった。最終沈降体積率は、500 ml メスシリンドラーで 20 時間静置した時、沈降した懸濁粒子が示す沈降高さの全高に対する比をもってその値とした。乾燥重量濃度 w_t と最終沈降体積率 ψ_f の関係を Fig. 2 に示す。

活性汚泥上澄液およびカオリンフロック上澄液は、懸濁液を約 4 時間静置沈降させたものの上澄液である。この 2 つのサンプル (Fig. 2 の ●印と ■印) は、上澄液であるから、最終沈降体積率は 0 であるが、乾燥重量濃度は活性汚泥上澄液が 0.0239%，カオリンフロック上澄液が 1.93% であった。この乾燥重量濃度の成分は静置沈降では沈降しない溶存系の物質であろう。ただし、両上澄液とも外観は清澄であった。

比重は、ピクノメーターにより測定した。

3. 解析の方法

(1) 細管内流動式

細管内の層流流動は、せん断応力とせん断変形速度の関係を仮定することによって、平均流速と壁面せん断応力の関係を示す流動式の形に表現できる。ニュートン (Newton) 流体とビンガム (Bingham) 流体の場合について、その流動式を以下に示す^{6)~8)}。

ニュートン流体の場合は、せん断応力 τ と半径方向のせん断変形速度 dv/dr の関係は、

$$\tau = \mu (-dv/dr) \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここに、 μ はニュートン流体の粘度である。細管内流動方程式は、この式 (1) より

$$8V/D = \tau_w/\mu \quad \dots \dots \dots (2)$$

となる。ここに、 D は管径、 V は管内断面平均流速、 τ_w は壁面せん断応力である。ニュートン流体の場合、変数 $8V/D$ は壁面におけるせん断変形速度を直接あらわして

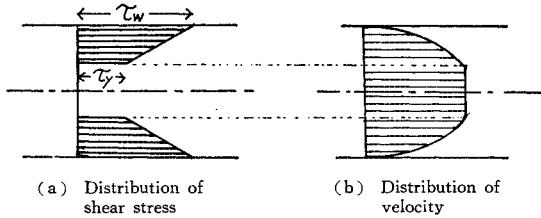


Fig. 3 Plug flow

いる。

ビンガム流体の場合の基本式は、ビンガム流体の粘度 η と降伏値 τ_y を用いて、

$$\tau - \tau_y = \eta(-dv/dr) \quad \dots \dots \dots (3)$$

と表わせる。

ビンガム流体についても、その流動式を平均流速を用いた変数 $8V/D$ と壁面せん断応力 τ_w との関係で表わすことができる。せん断応力の分布を Fig. 3 (a) のように仮定すれば、細管内流速分布は、Fig. 3 (b) のような栓流 (plug flow) を形成する。この流速分布と平均流速との関係より、ビンガム流体の流動式は、

$$\frac{8V}{D} = \frac{\tau_w}{\eta} \left[1 - \frac{4}{3} \cdot \frac{\tau_y}{\tau_w} + \frac{1}{3} \cdot \left(\frac{\tau_y}{\tau_w} \right)^4 \right] \quad \dots \dots \dots (4)$$

と表わすことができる。

したがって、原理的には平均流速と壁面せん断応力を測定することによって、ニュートン流体とビンガム流体の粘度および降伏値を求めることができる。

実験解析上は、ビンガム流体の流動式 (4) は、 $1/3(\tau_y/\tau_w)^4$ 項を無視して単純化できる。いま、 $\tau_y/\tau_w = \psi$ として、これを比栓半径 ψ の関与している項は、 $[(1-4/3\cdot\psi) + 1/3\cdot\psi^4]$ であり、 $(1-4/3\cdot\psi)$ に対する $1/3\cdot\psi^4$ の相対的大さは、Fig. 4 に示すように、 $\psi < 0.4$ であれば、 $1/3\cdot\psi^4$ 項を近似的に無視しうる。したがって、近似式として、

$$\frac{8V}{D} = \frac{1}{\eta} \cdot \tau_w - \frac{4}{3} \cdot \frac{\tau_y}{\eta} \quad \dots \dots \dots (5)$$

を得る。以下の実験データ解析においては、 $\psi < 0.4$ の条件のもとで、この式 (5) を用いて η および τ_y を決定する。

変数 $8V/D$ は、吐出流量から平均流速 V を計算することにより簡単に求められる。壁面せん断応力 τ_w については次節に述べる。

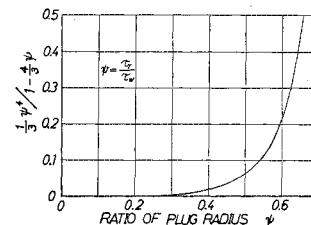


Fig. 4 Order estimation of $1/3 \cdot \psi^4$

(2) 粘度計の補正

一般に毛細管型粘度計は、動水勾配と流量から粘度を決定するために補正を必要とする。

本実験に用いた粘度計も基本的には同じような補正が必要である。第一に、管の両端部での流入と流出時の乱れと形状損失の補正がある。これは、一般に管長 L が見掛け上長くなるとして、

$$L' = L + nr$$

と表現される。ここに、 L' は見掛け管長、 n は補正係数、 r は管の半径である。両端が直角に切り落とされた管については、 $n=0 \sim 1.2^9)$ という値が使われている。本報告で用いた粘度計について考えると、 $L=101.2\text{ cm}$ 、 $r=0.128\text{ cm}$ であるから、 $n=1.2$ としても相対誤差の程度は 0.15% であるので、データ処理の際にはこの補正を無視できる。

第二の補正は、圧力損失が摩擦抵抗のみに消費されるのではなく、運動エネルギーを作るためにも消費するために必要となる補正である。壁面せん断応力 τ_w は、細管内の力のつり合い条件より、次式によって算出される。

$$\tau_w = \frac{D \cdot \rho_w \cdot g}{4} \cdot I = \frac{D \cdot \rho_w \cdot g}{4} \cdot \frac{h_a}{L} \quad \dots \dots \dots (6)$$

ここに、 D は管径、 ρ_w は水の密度、 g は重力加速度、 I は動水勾配、 h_a は圧力損失水頭、 L は管長である。密度 ρ_s の試料の測定時における水位を h とすれば、運動エネルギー補正も考慮して h_a は、

$$h_a = \frac{\rho_s}{\rho_w} \cdot h - \theta \cdot \frac{\rho_s}{\rho_w} \cdot \frac{V^2}{2g} \quad \dots \dots \dots (7)$$

となる。ここに、 θ は補正係数、 V は断面平均流速である。 θ は平均流速を用いることによる運動エネルギー補正（水力学で一般に係数 α と呼ばれているもの）のほかに装置としての補正も含めた形で考える。

毛細管型粘度計のための補正係数としては、 $\theta=2.0 \sim 2.24^9)$ などが知られている。ここでは、実験的に得た水道水の粘度を、一般に知られている水の粘度に合わせることにより、この θ を実験定数として求めた。その結果は $\theta=2.8$ であった。この値は、両端部直角切り落とし管における流入部縮流を含む Hagen¹⁰⁾ の実験値 2.7 に近い。

ビンガム流体が栓流を形成して流れているとき、その補正係数は、ニュートン流体の放物線流速分布の運動エネルギー補正係数 $\alpha=2.0$ とは少々異なる。栓流分布を仮定して、運動エネルギー補正係数 (α_B とする) を計算すると、比栓半径 ψ の関数として、

$$\alpha_B = \frac{54 \cdot (47\psi^2 + 58\psi + 35)}{35 \cdot (\psi^2 + 2\psi + 3)^3}$$

を得る。この関数は

Fig. 5 に示すような形をしており、 $\psi=0$ のときは、放物線流速分布となり、 $\alpha_B = \alpha = 2.0$ となる。原理的には、ビンガム流体の栓流形成時の θ を求める必要がある。しかし、 $0 < \psi < 0.4$ の範囲

であれば、 $\alpha_B = 2.0 \sim 1.64$ であり、かつ、補正量 $\theta \cdot \rho_s / \rho_w \cdot V^2 / 2g$ の $\rho_s / \rho_w \cdot h$ に対する相対的な大きさが小さい (10% 以下) ことから、ビンガム流体に対しても、水について求められた実験定数 $\theta=2.8$ を用いてもよいであろう。

したがって、すべての試料について τ_w は、式 (6)、(7) より得られる次式

$$\tau_w = \frac{D \cdot \rho_w \cdot g}{4} \cdot \frac{1}{L} \left(\frac{\rho_s}{\rho_w} \cdot h - 2.8 \cdot \frac{\rho_s}{\rho_w} \cdot \frac{V^2}{2g} \right) \quad \dots \dots \dots (8)$$

によって計算を行なった。

(3) 既存の研究

実験結果の解析に必要ないくつかの既存の研究について述べる。

懸濁液の温度依存性についての研究は少ない。均一流体の粘度依存関係については、Andrade の粘度式¹¹⁾が知られており次式の形で表現される。

$$\eta = A \cdot e^{B/T} \quad \dots \dots \dots (9)$$

ここに、 A, B は定数、 T は絶対温度 [°K] である。これは粘度が温度の上昇に伴い指数的に減少することを示しており、低分子の液体にはほぼ適用できることが知られている。常用対数をとれば、

$$\log \eta = \log A + 0.4343 \cdot B/T \quad \dots \dots \dots (10)$$

となり、 $\log \eta$ と $1/T$ は直線関係を示す。

懸濁液の濃度依存性については、Einstein の式を中心として諸種の式が提出されている。Einstein の式自体は等径剛体球の均一分散系で粒子の相互作用を無視しうる稀薄溶液についてである。ここで用いた懸濁液のような粒度分布が広く、形状が球でなく不定形で、こわれやすい粒子の高濃度の場合については、理論的に解き得ない。しかし、球形で粒度分布が広い、やや高濃度の液については、理論式として Brinkman の式¹²⁾や、半理論式としての森・乙竹の式¹³⁾が提出されている。

一般に、懸濁液の粘度表現式では相対粘度 η_r が用いられる。相対粘度とは、粘度 η_0 をもったニュートン流

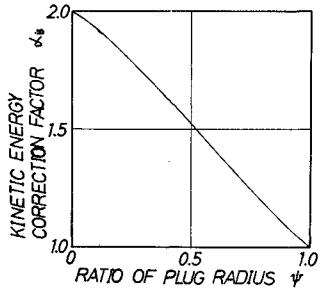


Fig. 5 Kinetic energy correction factor for plug flow

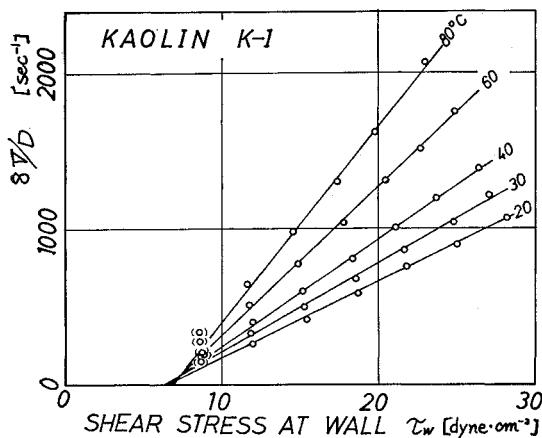


Fig. 6 (b) Flow curve of Kaolin K-I

上澄液 (SJ), カオリンフロック上澄液 (FJ) について, 温度を変えてそれぞれ 4 種類および 2 種類の測定を行なった。

各懸濁液の各濃度について, Fig. 6 (a), (b), (c) のような流動曲線を得ることができる。式 (8) にしたがって, この直線の傾きと τ_w 軸切片から粘度 η と降伏値

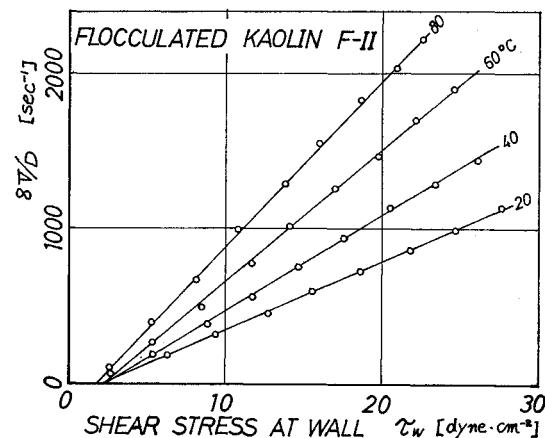


Fig. 6 (c) Flow curve of Flocculated Kaolin F-II

τ_y を計算できる。Fig. 6 (a) の S-III のグラフの内, カッコを付けたプロットは乱流域に入っているものと考えられる。また, Fig. 6 (b) の K-I のカッコ付きプロットは, 低壁面せん断応力部分において, 比栓半径 ψ が $\psi > 0.4$ となり, 式 (4) の $1/3 \cdot (\tau_y/\tau_w)^4$ 項が無視できない部分のものである。どちらのデータも, 式 (8)

Table 1 Experimental results

Sample*	Temper- ature	Dry weight concen- tration	Final sedi- ment volume concen- tration	Volume fraction of solids	Specific gravity	pH	Plastic viscosity	Relative viscosity		Yield value	
									mean		mean
	°C	%	[-]	[-]	[-]		poise	η_r		τ_y	
W	20 60	0	0	0	1	—	0.00990 0.00485	0.985 1.035	1.010	0.2081 0.2736	0.2408
SJ	20 40 60 80	0.0239	0	0	1.0	—	0.00976 0.00630 0.00460 0.00394	0.971 0.961 0.981 1.103	1.004	0.2336 0.2520 0.3119 0.1687	0.2415
FJ	22 40	1.93	0	0	1.0135	3.12	0.00940 0.00656	0.981 0.999	0.990	0.3729 0.3809	0.3769
S-I	20 30 40 60					—	0.03465 0.03004 0.02580 0.02123	3.448 3.709 3.933 4.526	(3.904)	0.9726 0.8973 0.8706 0.8862	0.9067
S-II	20 30 40 60 80					—	0.01736 0.01394 0.01178 0.00761 0.00712	1.727 1.721 1.796 1.623 1.993	1.772	0.5791 0.6833 0.6851 0.7289 0.7357	0.6824
S-III	20 30 40 60 80					—	0.01159 0.00939 0.00770 0.00578 0.00504	1.153 1.159 1.174 1.232 1.412	1.226	0.4216 0.4350 0.4945 0.3991 0.3242	0.4089
S-IV	20 30 40 60 80	0.308	0.0766	0.0401	1.001	—	0.01045 0.00824 0.00694 0.00506 0.00445	1.040 1.017 1.058 1.078 1.246	1.089	0.2910 0.3590 0.3357 0.3573 0.2085	0.3103

	21						0.02008	2.047		5.038	
	30						0.01727	2.131		4.917	
K-I	40	17.94	0.405	0.212	1.1135	—	0.01431	2.180	2.156	4.916	5.019
	60						0.01036	2.208		5.078	
	80						0.00791	2.216		5.143	
	20						0.01432	1.423		2.545	
	30						0.01176	1.452		2.339	
K-II	40	9.75	0.241	0.126	1.062	5.46	0.00973	1.484	1.512	2.438	2.308
	60						0.00749	1.596		2.111	
	80						0.00573	1.606		2.109	
	20						0.01136	1.113		1.624	
	30						0.00993	1.226		1.258	
K-III	40	7.45	0.173	0.0907	1.0475	—	0.00824	1.256	1.253	1.187	1.346
	60						0.00636	1.357		1.194	
	80						0.00463	1.297		1.466	
	20						0.2666	26.52		3.716	
F-I	40	11.54	0.756	0.396	1.0802	3.60	0.2220	33.84	(34.10)	3.194	
	60						0.1709	36.44		3.592	
	80						0.1413	39.58		3.125	
	24						0.02249	2.459		1.616	
F-II	40	6.02	0.444	0.233	1.042	3.12	0.01617	2.465	2.512	1.796	
	60						0.01179	2.514		1.683	
	80						0.00932	2.610		1.364	
	20						0.01479	1.472		0.7173	
F-III	40	4.92	0.296	0.155	1.035	—	0.00952	1.451	1.506	0.9820	
	60						0.00719	1.534		1.071	
	80						0.00560	1.569		1.236	

* W : Tap water

SJ : Supernatant liquid of Activated Sludge suspension

FJ : Supernatant liquid of Flocculated Kaolin suspension

S : Milk Activated Sludge suspension

K : Kaolin suspension

F : Flocculated Kaolin suspension

の直線を求める最小二乗法の適用から除いた。得られた結果を **Table 1** に示す。

(2) 粘度の温度依存性

まず、温度と相対粘度 η_r の関係について調べてみた。相対粘度の算出に当たって、各懸濁液の上澄液をその溶媒と考え、活性汚泥上澄液とカオリンフロック上澄液の粘度を測定したが、**Table 1** に示されているように、一般に得られている水の粘度 (**Table 2**)¹⁸⁾ と数値的に同じと見なせる。また、カオリン懸濁液は水道水に分散させただけであるから溶媒は水道水である。したがって、各懸濁液の溶媒側の粘度 η_0 として **Table 2** の水の粘度を使用した。

Table 2 Viscosity of Water (Reference (18))

Temperature [°C]	Viscosity [poise]
20	0.01005
21	0.00981
22	0.00958
24	0.00914
30	0.00810
40	0.00656
60	0.00469
80	0.00357

温度変化による相対粘度の変化を **Fig. 7 (a), (b)** に示す。図から、どの懸濁液においても濃度が小さいとこ

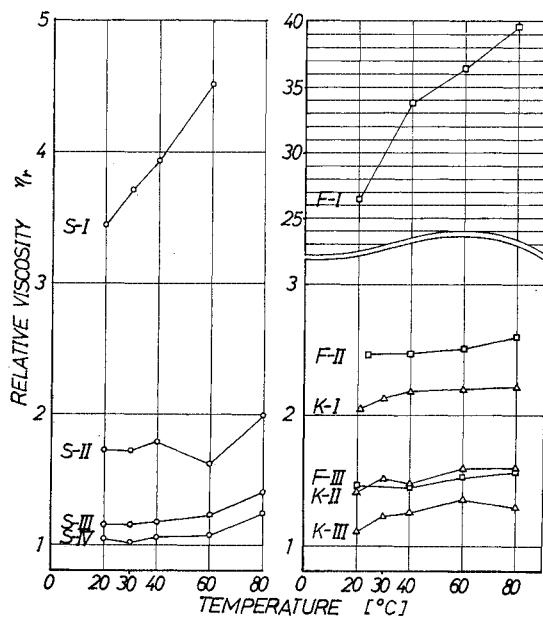


Fig. 7 Change of relative viscosity with temperature

ろでは、相対粘度は温度によらず一定であることがわかる。これは、温度の上昇による懸濁液の粘度の低下はその溶媒の粘度低下と同比率であることを意味する。すなわち、体積分率のあまり高くない部分において、懸濁液の粘度の温度依存性は、溶媒部分の温度依存性に従うということである。

ただし、活性汚泥の S-II, III, IV は、80°Cにおいて60°C以下のものより相対粘度が大きくなっている。この現象はカオリンおよびカオリンフロックには認められないことから、活性汚泥粒子の有機質が熱によって分解または変質したためと考えられる。しかし、後節で示す降伏値は 80°Cにおいて特別の変化を示していない。

体積分率の高い活性汚泥の S-I とカオリンフロックの F-I は他の試料と異なり、温度の上昇にしたがって相対粘度は増加する。この増加率はほぼ一定である。粘度の絶対値そのものは温度の上昇に伴って減少しているのであるが、その程度が水の粘度の減少ほど大きくはないわけである。

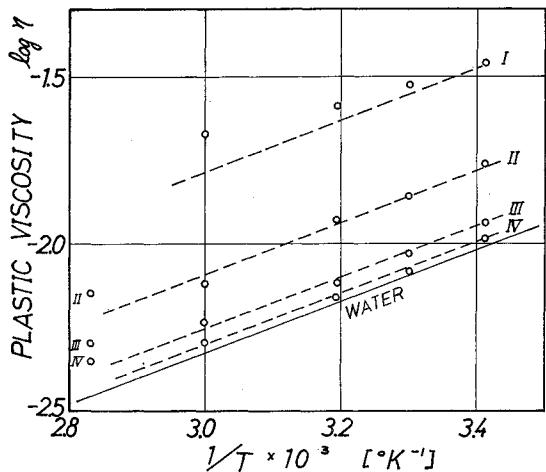


Fig. 8 (a) Andrade's relationship of Act. sludge

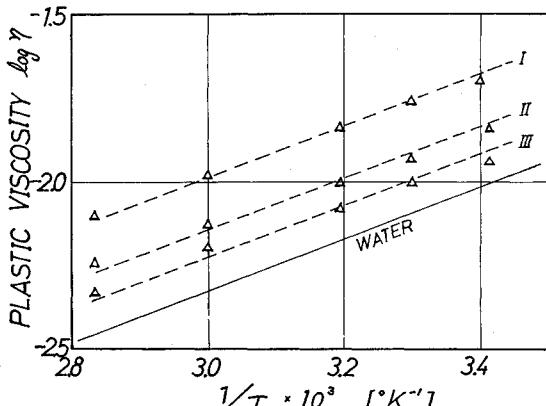


Fig. 8 (b) Andrade's relationship of Kaolin

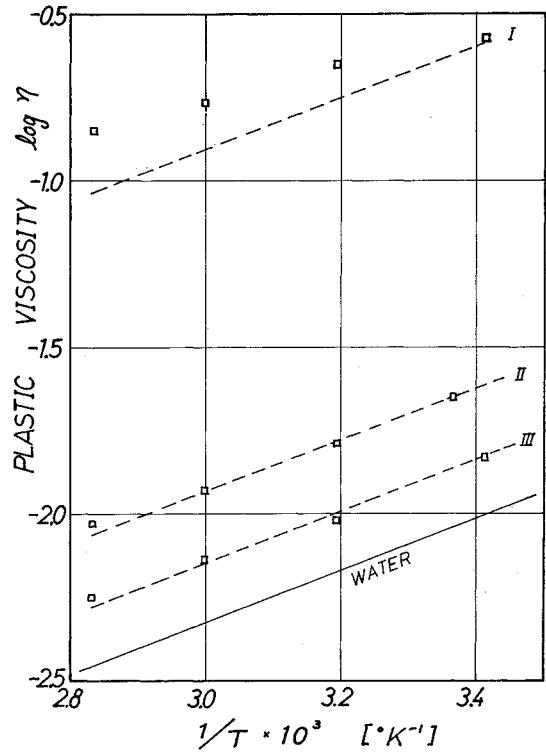


Fig. 8 (c) Andrade's relationship of Flocculated Kaolin

粘度の絶対値の変化を Andrade の式 (10) の形で整理したものが、Fig. 8 (a), (b), (c) である。水の粘度変化を示す直線を対照として示しておいた。相対粘度の結果から明らかなように、各懸濁液の粘度が溶媒の粘度の温度依存性に従うことから、Fig. 8 の各プロットの勾配はほぼ水の勾配（図中の点線）と一致する。したがって、体積分率のあまり高くない懸濁液については、その粘度を温度の関数として次式の形で表現できる。

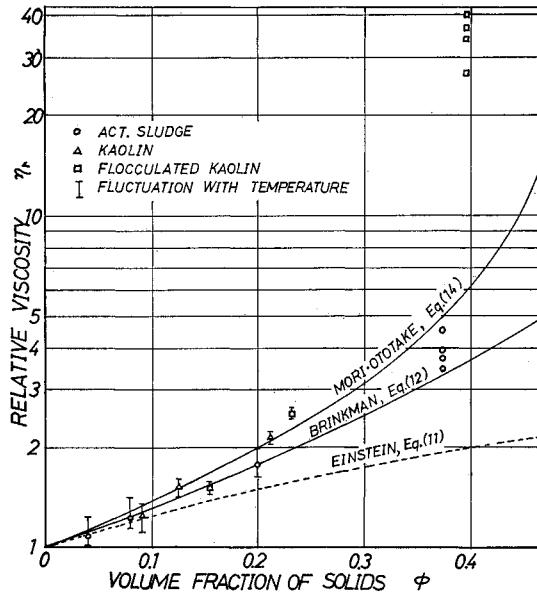
$$\eta = A \cdot e^{1.79 \times 10^5 / T} \quad (15)$$

ここに、 η の単位は [poise]、 A は定数で、水の場合は $A = 2.22 \times 10^{-5}$ となる。

しかし、体積分率の大きな S-I と F-I には、相対粘度に関して観察された結果が明らかな形で現われており、見かけ上 Andrade 式 (10) の B の値が小さくなっている。この現象は、乾燥重量濃度の高い K-I には現われていない。濃度依存性と関連させて、後の考察において検討する。

(3) 粘度の濃度依存性

各試料の体積分率 ϕ を Table 1 に示しておいた。この体積分率に対して、相対粘度をプロットすると Fig. 9 を得る。Brinkman, 森・乙竹の両式を図中の実線で示す。また、Einstein の式の適用範囲は $\phi < 0.02$ であ

Fig. 9 Change of relative viscosity with ϕ

るが、参考として図中に点線で示しておいた。高濃度の S-I, F-I を除いて数値的には Brinkman, 森・乙竹の両式とかなり一致する。このように、活性汚泥やカオリンなど懸濁液の種類によらず、最終沈降体積率から求めたみかけの体積分率 η_r によって懸濁液の粘度を統一的に表現できるようである。また、前節の結果からも明らかであるが、 ϕ に対する η_r の関数関係は、温度によって影響を受けていない。

体積分率 $\phi = 0.374$ の S-I と $\phi = 0.396$ の F-I は大きく変動し、F-I は Brinkman, 森・乙竹両式からは離れている。この両試料は、前節で示したようにその相対粘度に温度依存性が現われているものである。温度依存性との関係は次章において考察する。

(4) 降伏値の温度依存性

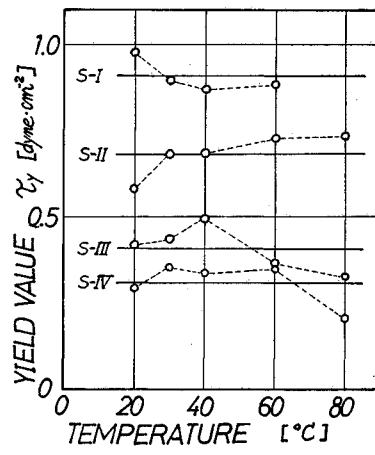
本章の第 1 節の流動図 (Fig. 6) からも明らかなように、降伏値は懸濁液の種類および濃度によらず温度変化に対して独立である。Fig. 10 (a), (b), (c) に示す。

(5) 降伏値の濃度依存性

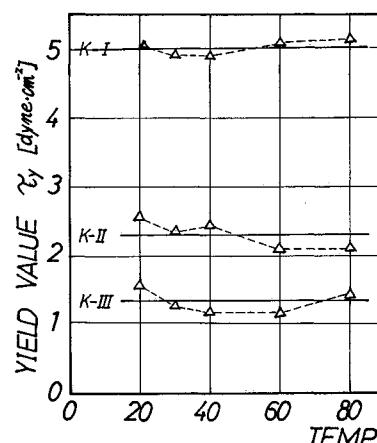
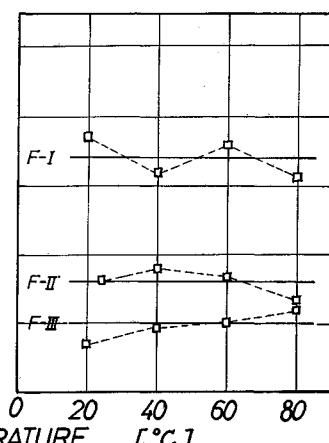
降伏値と体積分率の関係を Fig. 11 に、乾燥重量濃度との関係を Fig. 12 に示す。Fig. 11 に示されるように、各懸濁液の降伏値は個々別々には体積分率に比例した。しかし、勾配はそれぞれ異なり、カオリン、カオリンフロ

ック、活性汚泥の順に大きくなり、同じ体積分率であっても異種懸濁液間ではその降伏値は大きく異なる。これに対して、Fig. 12 のように乾燥重量濃度で降伏値を整理すると、懸濁液の種類によらず、すなわち、粒子の径、性状や粒度分布などには関係なく、両者はほぼ比例した。また、前節から明らかなように、温度による影響は受けない。

結局、この両濃度指標の降伏値に対する結果の相違から考えると、特定の懸濁液についてではなく、3 種類の懸濁液に共通する降伏値に関する統一的な関係は乾燥重量濃度であらわすことができるようである。したがって、懸濁液一般の降伏値の発生機構には、体積分率よりは乾燥重量濃度であらわされるような物理的性質の方がより強く関係していると推測できるであろう。乾燥重量濃度の物理的意味および降伏値発生機構については次章で考察する。



(a) Act. Sludge

(b) Kaolin
Fig. 10 Change of yield value with temperature

(c) Flocculated Kaolin

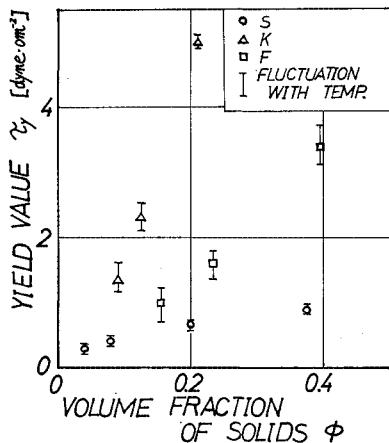


Fig. 11 Yield value vs. Volume fraction of solids

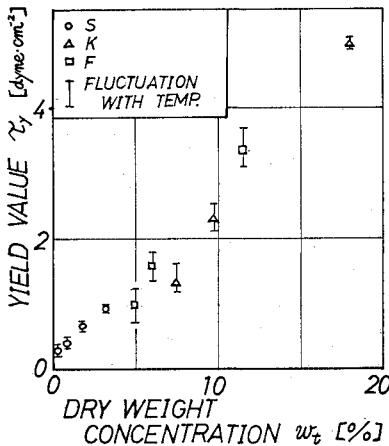


Fig. 12 Yield value vs. Dry weight concentration

(6) まとめ

以上の実験結果は、懸濁液のビンガム流体としての粘度と降伏値が相互に独立した物理定数であることを示している。また、濃度および温度に対するそれぞれの依存性は相互に独立であり、その関係は Table 3 のようにまとめることができる。

特に、粘度に関しては、Brinkman 式 (12) と Andrade 式 (15) を積の形でまとめれば、温度と濃度の両依存性を含む粘度表現式 (16) を得る。

$$\eta = 2.22 \times 10^{-5} \cdot (1-\phi)^{-2.5} \cdot e^{1.79 \times 10^3/T} \quad \dots \quad (16)$$

ここに、 η の単位は [poise] であり、 $\phi=0$ のとき、この式は水の温度依存性を表わす式

$$\eta_0 = 2.22 \times 10^{-5} \cdot e^{1.79 \times 10^3/T}$$

となる。ただし、式 (16) は、 $293^\circ\text{K} < T < 353^\circ\text{K}$ の実験について得られたものである。また、 80°C に加熱した時の活性汚泥のように、温度変化によって粒子自身に変化が生じるような懸濁液や、S-I, F-I のように

Table 3 Dependency of two characteristics on concentration and temperature

	Concentration	Temperature
Plastic viscosity*	Volume fraction of solids ϕ $\eta_r = (1-\phi)^{-2.5} **$	Absolute temperature T $\eta = Ae^{B/T}$
Yield value	Dry weight concentration w_t $\tau_y \propto w_t$	$\tau_y = \text{constant}$

* $\phi < 0.35$

** or, $\eta_r = 1 + \frac{3}{1/\phi - 1/0.52}$

体積分率が大きい ($\phi > 0.35$) 懸濁液に関しては成立しない。

5. 考 察

(1) 粘度について

粘土懸濁液の粘度とその濃度の関係づけにあたって、粘土粒子間に働く電気化学的な力を含みこんだ「団粒」という概念により、最終沈降体積率の最疎充填から求めたみかけ体積分率が有効性であることを大同¹⁵⁾が示したことはすでに 3. で述べたが、ここで用いたカオリンや活性汚泥、カオリンフロックなど凝集性フロック粒子に対しても同様に、粒子の占める容積の濃度である体積分率が、有効な説明因子であるということが明らかになったと言えるであろう (Fig. 9)。このような体積分率を指標として使う限り、粒子の絶対径、粒度分布、粒子形状、粒子比重などは直接的には粘度と無関係となる。これは重力場での圧密沈降に関する物理化学的諸作用が、層流流動においても体積分率という形を介して作用していることを意味し、懸濁液の粘度とその圧密沈降の相互関係を示すものとして興味深い。

体積分率の大きな S-I と F-I は、その相対粘度の温度依存性や Brinkman 式、森・乙竹式による濃度依存性に関して、他の体積分率の小さな試料と異なる挙動を示したが (Fig. 7, 8, 9)，両依存性を考え合わせれば、S-I, F-I のような異常な挙動を示す力学機構として次のような機構を考えることができる。

乾燥重量濃度が S-I や F-I より大きな K-I には異常性が現われていないことから、この異常性は粒子の占める容積に関連した機構から生じるものであろう。Brinkman 式と森・乙竹式の導出方法から明らかなように、両式は粒子間の直接の相互作用（衝突など）をその前提条件から除いている。しかし、S-I や F-I のように体積分率が 0.4 近くの高濃度になると、粒子間に直接の相互干渉が生じ、両粘度表現式の前提を満足しなくなり、結果として両式では表現できなくなる。この直接

の相互干渉が温度依存性にも現われ、温度上昇によって溶媒の粘度が低下しても懸濁液としての粘度はそれほど減少しないことになる。すなわち、懸濁液内の運動量輸送において、溶媒の分子粘性による部分のほかに粒子間の直接の衝突などによる部分（これは温度変化の影響を受けないであろう）が現われるためであろう。粒子間の直接の干渉が問題となれば、その粒子の硬さや凝集の強度などの因子が粘度発生機構に関与するようになる。したがって、懸濁液の種類による差が顕著となり、体積分率だけでは粘度を表現できなくなる。これが、ほぼ同じ体積分率である S-I と F-I の粘度の差となって現われたものと考えられる。体積分率が小さい懸濁液に対して、このように体積分率の大きい懸濁液についてはこれらの因子を含む形での粘度表現式が必要である。

（2）降伏値について

温度と濃度に関する関係から、降伏値は粘度とはまったく異なる内部力学機構から形成されているらしいことがわかる。体積分率によっては、3 種類の懸濁液の降伏値を統一的に関係づけられないこと、および、高濃度域においてもまったく温度の影響を受けないことを考え合わせると、粘度の発生機構のように固体粒子と自由液部分との相互作用ではなく、基本的には自由液部分はほとんど関与していない機構であろう。

降伏値と強く関係づけられたところの乾燥重量濃度の物理的な解釈は明らかではないが、乾燥重量濃度は懸濁液全体の比重とほぼ比例する。また、粒子の比重はカオリン > カオリンフロック > 活性汚泥の順であり、降伏値というものが粒子自身を動かす力に関係しているものと考えられる。細管内の層流のエネルギーバランスという観点からは、中立浮遊粒子に近い活性汚泥が他の 2 種の懸濁液に比べてはるかに小さな降伏値を示していることから、粒子を浮遊させるエネルギーに関係するものとも考えられる。

降伏値の発生機構に関しては 3. で述べたように、一般に粒子間のネットワークの形成とその結合の力によるものと説明されている。この概念から、懸濁液は凝集状態のときの方が、解膠状態の時よりもその降伏値が大きいという Olphen の説明になるのである。しかし、本実験結果から考えると、カオリンとカオリンフロックを解膠状態と凝集状態として考えれば、同量のカオリン粒子を含む液はほぼ同じ乾燥重量濃度となるはずであるから、降伏値は変化しないことになる。凝集によるカードハウス状構造などは圧密現象において顕著なものであり、これはみかけの体積分率に直接関係する。したがって、凝集-解膠の状態変化は、むしろ粘度の増加-減少に対応し、降伏値は変化しないことになるであろう。

3. で述べたように降伏値を体積分率によって説明しようとする大同らの試みは困難で普遍性に乏しいこと、また上記の乾燥重量濃度との相関性も考え合わせると、降伏値を粒子のネットワーク構造だけで説明するのは困難なようである。流動特性を測定するという操作そのものに立ち戻って考えれば、降伏値も一つの流動状態を示す指標であるから、懸濁液の層流流動を記述する二物理定数の一つとして、その意味を問い合わせることが必要である。

（3）総括

実験結果は懸濁液の粘度と降伏値が相互独立であることを示した。もちろん、同一の懸濁液については体積分率（最終沈降体積率 × 0.524）と乾燥重量濃度は比例する（Fig. 2）から、濃度が高ければ粘度も降伏値もともに大きくなる。しかし、異種の懸濁液間にわたる普遍的な相互関係はまったく独立であることがわかった。

懸濁液の流動を統一的に取り扱うためには、乱流の場合にこの相互独立な二つの物理定数がどのように関与するか考察する必要がある。しかし、降伏値と粘度が乱流構造にどのように関係しているかは明らかにされていない。特に、降伏値の乱流構造への影響についての研究は少なく、伊藤¹⁹⁾の見掛け レイノルズ数への導入、Thomas²⁰⁾の降伏値の大小による摩擦係数とレイノルズ数の関係の変化についての研究などが主なものである。

本実験で用いたものと同種類の活性汚泥を含む懸濁液に関する著者らの乱流管路実験^{21), 22)}によれば、Prandtl の円管内滑面乱流抵抗則を適用してカルマン定数 κ と粘性底層の厚さを示す係数 β を求めると、濃度の増加により κ は減少し、 β は増加した。この結果は、降伏値が存在すると粘性力が相対的に大きい管壁近傍では、ニュートン流体に比べ乱れが一層抑えられ、この領域における速度分布が変化し、粘性底層の厚さが増加するという北浦ら²⁴⁾の説明と現象的には一致する。しかし、Thomas²⁰⁾は、この粘性底層の厚さの増加を相対粘度の増加によって説明している。また、本実験によれば、活性汚泥懸濁液の場合、降伏値の絶対値は小さく、降伏値のみによって粘性底層の変化を説明するのは困難なようである。

高濃度懸濁液の乱流流れとその層流流動特性との関係は、粘弾性的性質の問題も含めて今後の課題である。

6. 結論

大型の細管型粘度計を作成し、活性汚泥、カオリン、カオリンフロックの 3 種類の高濃度懸濁液のビンガム流体としての特性を測定した。得られた実験結果を以下に要約して示す。

(1) 粘度の濃度依存性は、ここで試料として用いた活性汚泥やカオリソフロックなどの凝集性懸濁液においても、最終沈降体積率を等径球の立方充填とみなして求めた体積分率 ϕ によって統一的に表わすことができる。その依存性は、 $\phi < 0.35$ の範囲において数値的に Brinkman 式(12) や森・乙竹式(14) で表現できる。

(2) しかし、体積分率の大きい($\phi \approx 0.4$) 懸濁液の粘度は、両式と適合しない。以下の(4)に示す相対粘度の温度依存性にも現われているように、粒子の相互干渉が生じているためと考えられる。このように体積分率が大きい場合には、より小さい体積分率の時とは異なる内部機構が生まれ、粘度は体積分率だけでは表現できなくなり、粒子自体の性状など他の因子も考慮することが必要となる。

(3) 体積分率 ϕ があまり大きくなれない($\phi < 0.35$) 範囲においては、懸濁液の相対粘度は種類と濃度によらず、温度変化に対して独立である。すなわち、懸濁液の粘度の温度依存性は溶媒の温度依存性に従う。したがって、その依存性を均質の液体と同様、Andrade の式(9)と同形式で表現することができる。

(4) しかし、体積分率が大きい($\phi \approx 0.4$) 懸濁液では、相対粘度は温度の上昇に伴い増加する。これは Andrade 型の式の指數部の値を小さくすることになり、温度が高くなても、粘度は溶媒の粘度ほど減少しない。

(5) 活性汚泥懸濁液の粘度に限り、80°Cになると Andrade 型の式に従わなくなり、粘度は大きな値を示した。活性汚泥粒子の温度による変質のためと考えられる。

(6) $\phi < 0.35$ においては、粘度の温度と濃度の両依存性が相互に独立なことから、両依存性を積の形で1つにまとめることが可能、3種類の懸濁液に共通する粘度表現式として式(16)を得た。

(7) 懸濁液の降伏値は、懸濁液の種類、濃度によらず温度変化に対して独立である。

(8) 降伏値の濃度依存性は粘度の場合と異なり、3種類の懸濁液を通じて体積分率とは共通した相關性を示さず、懸濁液の種類によらず乾燥重量濃度に比例する。

(9) 以上の結果から懸濁液のビンガム流体としての粘度と降伏値は、温度および濃度依存性に関して相互独立であることが明らかになった。たとえば、粘度と降伏値の両者を、体積分率や含水率などのような1つの指標で表現するのは困難である。それぞれ相異なる内部力学機構から形成されるものと考えられる。

実験結果の確定とその理論化、および、工学的実用化のためには、今後実験データの蓄積が必要であるが、本実験研究により、汚泥などの高濃度懸濁液の流動特性あるいは物性の内部機構解明への1つの手がかりが得られたと思われる。

なお、本研究は昭和46年度文部省科学研究費試験研究から一部補助を受けたものであることを付記する。

参考文献

- Chou, T. : Resistance of sewage sludge to flow in pipes, Proc. of ASCE, Vol. 84, No. SA 5, Sept., 1958.
- Happle, J. and H. Brenner : Low Reynolds Number Hydrodynamics, Prentice-Hall, Inc., Chap. 9, 1965.
- Daily, J.W. (日野幹雄訳) : 粒子を懸濁した水の流れ, 土木学会誌, 49巻, 6号, pp. 42~47, 1964-6.
- 北浦嘉之・長瀬洋一 : 凝集性懸濁液の粘度と管内乱流, 化学工学, 31巻, 12号, pp. 15~20, 1967.
- 石橋多聞・染野貢一 : 保存性の良い活性ケイ酸の研究, 水道協会雑誌, 447号, pp. 23~28, 1971-12.
- Behn, V.C. : Flow equations for sewage sludges, Jour. of WPCF, Vol. 32, No. 7, Jul., 1960.
- Behn, V.C. : Derivation of flow equations for sewage sludges, Proc. of ASCE, Vol. 86, No. SA 6, Nov., 1960.
- 川島 普 : 下水汚泥の管内塑流機構に関する考察, 大阪工業大学紀要, 工理工編, 8巻, 2号, 1962.
- 石川鉄彌 : 混合液粘度の理論, 丸善, p. 48, 1968.
- 岡本哲史 : 応用流体力学, 誠文堂新光社, p. 108, 1964.
- 後藤廉平・平井西夫・花井哲也 : レオロジーとその応用, 共立出版, pp. 49~53, 1962, など。
- Brinkman, H.C. : The viscosity of concentrated suspensions and solutions, Jour. of Chem. Phys., Vol. 20, No. 4, p. 571, Apr., 1952.
- 森 芳郎・乙竹 直 : 懸濁液の粘度について, 化学工学, 20巻, 9号, pp. 16~22, 1956.
- 井伊谷鋼一編 : 粉体工学ハンドブック, 朝倉書店, p. 94, 1965.
- 大同淳之 : 粘土を多量に含む流体の粘土と降伏値, 第15回水理講演会講演集, pp. 1~6, 1971-2.
- 水渡英二・荒川正文・馬場靖夫 : 粉体粒度の沈降分析における分散剤の影響, 工業化学雑誌, 59巻, 3号, pp. 303~306, 1956.
- van Olphen, H. : An Introduction to Clay Colloid Chemistry, John Wiley & Sons, New York, pp. 137~139, 1963.
- 土木学会編 : 水理実験指導書, 土木学会, p. 38, 1969.
- 伊藤四郎 : 塑性流体の流れ, 日刊工業新聞社.
- Thomas, D.G. : Transport characteristics of suspensions part IV, A.I.Ch.E. Jour., Vol. 8, No. 2, pp. 266~271, May, 1962.
- 大垣真一郎 : 汚泥を含む固液混相流の力学的特性について, 東京大学修士論文, 1971-2.
- 大垣真一郎・松尾友矩 : 汚泥の管路流動に関する基礎的実験, 第26回土木学会年次学術講演会講演集, II-203, 1971-10.

(1972.9.13・受付)