報 文

濃縮懸濁系의 粘度

徐 文 濩·李 基 俊

서울大學校 工科大學 化學工學科

(접수 1975. 1. 22)

Viscosity of Concentrated Suspensions of Spheres -Hexagonal Lattice Model-

Moon Ho Suh and Ki Jun Lee

Department of Chemical Engineering, College of Engineering
Seoul National University, Seoul 130-02, *Korea*

(Received January 22, 1975)

요 약

複數粒子 懸濁系에 관한 統計力學的 硏究의 一環으로서 dynamical state의 configuration에 대한 model로 hexagonal lattice system을 잡고, 粒子의 濃度와 系의 粘度函數와의 關係를 규명하였다. 이 model system에서 任意의 代表粒子는 8個의 最近接 周圍粒子를 가지며 最高濃度는 60.4%로서 이들은 random packing의 實際 system과 近似하다. 本 model을 使用하여 統計力學的으로 計算된 粘度函數는 이미 硏究된 simple cubic model[1]에 비하여 實測値들과 보다 좋은 一致를 보였다. 以上의 硏究에서 粒子의 configuration을 考慮한 model이 濃縮 懸濁系의 流動變形特性을 計算하는데 效果的임을 確認하였다.

Abstract

The viscosity of suspensions of rigid spheres is obtained using the model system of hexagonal lattice configuration by means of statistical mechanics. The number of nearest neighbors of a representative sphere in this arrangement is eight which is quite close to the measured coordination number of about seven to eight for randomly packed spheres. The maximum attainable concentration of the system is 60.4 percent which is comparable with that obtained for the real system of random packing. The viscosity-concentration relationship calculated from the present model is compared with that of earlier work[1] for simple cubic arrangement and found to be in better agreement with the compilations of experimental data of Rutgers and Thomas. It is known from the above analysis that a model dealing with particle configurations is essential to predict the rheological properties of concentrated suspensions.

1. 序 論

Einstein의 선구적인 研究[2]以後 懸濁系의 粘度에 관해 相當한 研究가 進行되어 粒子들의 相互衝突作用을 考慮할 必要가 없는 低濃度系로부터 둘 혹은 셋이상의 粒子들이 相互衝突하는 現象이 系의 流動特性에 미치는 影響이 研究되어왔다.

그러나 高濃度系에 대해서는 그 移動現象과 粒子相互間의 衝突現象이 複雜하여 流動變形特性을 豫測하기가 어렵게 되므로 주어진 粒子配列狀態에서 速度分布를 조사하는 일과 粒子配列에 관한 統計的 處理가 低濃度시스템에서와 같은 正確한 方法으로는 不可能하게 된다. 따라서 濃縮시스템에 대한 研究를 위해서는 理論的으로 取扱될 수 있고 實際시스템의 要件을 갖춘 모델을 設定할 必要가 있게된다. Cell 或은 Lattice model에 관한 理論도 이러한 研究의 一環이다.

또한 Thomas[3]나 Rutgers[4]에 의해 구해진 平均値 粘度曲線과 Frankel과 Acrivos[5]에 의해 研究된 最高濃度에 接近할 때의 漸近値에 重點을 둔 研究 등도 高濃度範圍에서의 粘度計算을 위한 努力이다.

最近에 와서는 粘度計算에 보편적으로 選擇되었던 모양이 一定하고 크기가 同一한 球狀粒子라는 制限을 벗어나 任意의 모양을 갖는 粒子 또는 크기들이 서로 다른 粒子를 考慮하는 研究가 一部 進行되어 왔으나 아직은 高濃度範圍에서의 取扱은 어려운 狀態이다.

이 以外에도 여러가지 다른 方法으로 懸濁系의 粘度問題를 取扱한 事例들이 있긴 하지만 그 어느하나도 粒子들의 配列狀態를 取扱한 것은 없었으나 最近에 濃縮懸濁系에 관한 모델로 simple cubic lattice配列을 擇하여 粒子의 分布函數를 誘導하고 系의 粘度函數와 粒子濃度와의 關係를 규명코저하는 시도가 이루어졌다.

이 關係式은 全濃度範圍에서 實測値들과 比較的 좋은 一致를 보이고 있으나 이 모델의 最高濃度가 52.4%로서 random packing의 경우에 測定된[6,7] 62~64% 보다는 相當히 작고, 粘度値가 高濃度範圍에서 實驗値와의 偏差가 심하므로 random packing의 62~64%에 近似한 最高濃度를 가질수 있는 configuration을 dynamical state의 모델로 設定하여 simple cubic configuration의 경우와 比較함이 意義있다고 하겠다.

本 研究에서는 周圍粒子數가 8이고 ϕ_{max}이 60.4%인 *Fig.* 1과 같은 hexagonal lattice system을 모델로 設定하여 粘度函數를 구하고 simple cubic lattice의 경우 및 其他 實驗値들과 比較하였다.

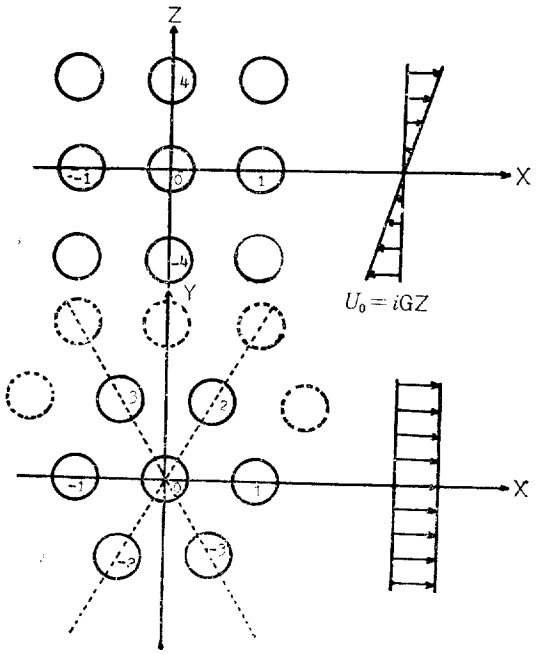

Fig. 1. Hexagonal lattice model.

2. 濃縮懸濁系

2-1. 모델設定

N個의 서로 均一하고 硬質인 球狀粒子가 非壓縮性 Newton液體中에 *Fig.* 1과 같이 分散되어 있고 粒子와 液體와는 比重의 差異가 없는 hexagonal lattice system을 設定한다. 이 모델에서 任意의 代表粒子는 最近接周圍에 8個의 粒子를 갖게 되어 random packing의 경우에 測定[8]된 周圍粒子數(coordination number) 7~8과 近似하다. 本 모델시스템의 경우 粒子間의 距離는 粒子의 濃度에 따라 一定한 값을 갖는 變數로서 粒子中心間距離 d와 濃度 ϕ사이의 關係式은

$$\phi = \sqrt{3}\,\pi/9 \cdot (2a/d)^3 \qquad (1)$$

와 같이되며 a는 球狀粒子의 半徑이다. 한편 最高濃度는 $d=2a$인 경우 이므로 (1)式에서 60.4%가 되어 均一粒子 random close packing의 62~64% 보다는 약간 적다.

2-2. 速度場

(1) 單一粒子系

Low velocity의 simple shear field에서 濃縮系를 取扱하기 위하여 먼저 單一粒子系의 速度場을 구하기로

한다.

Local velocity 및 壓力場을 각기 $\boldsymbol{u}$와 p로 表示하고 粒子가 存在하지 않을 경우의 速度와 壓力을 $\boldsymbol{u}_0$와 p_0로 表示하면 相對速度 $\boldsymbol{v}=\boldsymbol{u}-\boldsymbol{u}_0$와 相對壓力 $q=p-p_0$는 Stokes의 creeping motion equation

$$\mu_0\nabla^2\boldsymbol{v}=\nabla q$$

및 $$\nabla\cdot\boldsymbol{v}=0$$

의 解이며 粒子上에서의 境界條件

$$\boldsymbol{v}(a)=\Omega\times(\frac{\boldsymbol{r}}{r}a)-\boldsymbol{u}_0(\frac{\boldsymbol{r}}{r}a)$$

를 만족시켜야 한다. Free motion condition에서 순간적인 힘과 torque가 存在하지 않으므로 粒子의 移動 및 回轉速度는 各各 $\boldsymbol{u}_0=\boldsymbol{i}Gz$ 및 $\frac{1}{2}\nabla\times\boldsymbol{u}_0=\boldsymbol{j}G/2$가 되어 單一粒子系의 境界條件을 直交座標로 表示하면 (2)式과 같다.

$$v(a)=\boldsymbol{i}(-\frac{G}{2}a\cos\theta)+\boldsymbol{k}(-\frac{G}{2}a\sin\theta\cos\phi)$$

및 $\boldsymbol{v}\to 0$ as $r\to\infty$. (2)

速度場 $\boldsymbol{v}(\boldsymbol{r})$을 구하기 위하여는 (3)式으로 表示되는 Lamb의 一般解[9,10]를 使用함이 便利하며 이때 $\boldsymbol{r}=(r,\theta,\phi)$는 原點이 粒子의 中心에 놓여있는 球面座標로 表示된 position vector이다.

$$\boldsymbol{v}=\sum_{n=-(K+1)}^{K}\left\{\nabla\times(\boldsymbol{r}\chi_n)+\nabla\Phi_n+\frac{(n+3)r^2}{2(n+1)(2n+3)\mu_0}\nabla p_n-\frac{n}{(n+1)(2n+3)\mu_0}\boldsymbol{r}p_n\right\},\quad q=\sum_{n=-(K+1)}^{K}p_n \text{ as } K\to\infty. \tag{3}$$

여기서 χ_n, Φ_n 및 p_n은 一般式이

$$\Phi_n=r^n[A_n^m\cos m\phi+B_n^m\sin m\phi]P_n^m(\cos\theta)$$

및 $\Phi_{-(n+1)}=r^{-(n+1)}[A_n^m\cos m\phi+B_n^m\sin m\phi]\,P_n^m(\cos\theta)$ for $0\leqq m\leqq n$ 인 球狀調和函數 (solid spherical harmonic function)이며 P_n^m은 order가 m이고 degree가 n인 associated Legendre polynomial이다.

Lamb의 一般解에 單一球狀粒子에 關한 境界條件 (2)式을 代入하여 整理하면 速度函數는 (4)式과 같은 形態가 된다.

$$\boldsymbol{v}=\nabla\Phi_{-3}+\frac{1}{2\mu_0}\boldsymbol{r}p_{-3} \tag{4}$$

where $\Phi_{-3}=(-Ga^5/6)r^{-3}\cos\phi\ P_2^1(\cos\theta)$

$p_{-3}=(-5Ga^3/3)\mu_0 r^{-3}\cos\phi P_2^1(\cos\theta)$.

이 調和函數를 (4)式에 代入하면 速度函數의 直交座標成分들은 (5)式과 같다.

$$v_x=\cos(-Ga^5r^{-4}/2)+\cos\theta\sin^2\theta\cos^2\phi\ (-\frac{5Ga^5}{2}r^{-4}-\frac{5Ga^3}{2}r^{-2}) \tag{5-1}$$

$$v_y=\sin^2\theta\cos\theta\sin\phi\cos\phi(\frac{5}{2}Ga^5r^{-4}-\frac{5}{2}Ga^3r^{-2}) \tag{5-2}$$

및 $$v_z=\sin\theta\cos^2\theta\cos\phi\ (\frac{5Ga^5}{2}r^{-4}-\frac{5}{2}Ga^3r^{-2})-\sin\theta\cos\phi\ (\frac{Ga^5}{2}r^{-4}). \tag{5-3}$$

(2) 濃縮系

濃縮系의 相對速度와 相對壓力은 單一粒子系의 式과 同一한 形態이며 中心粒子 및 最近接周圍 8個 粒子上에서의 境界條件은 (6)式이 된다.

$$\boldsymbol{v}(\boldsymbol{r}_i)=\boldsymbol{U}_i+\Omega_i\times\boldsymbol{r}_i-\boldsymbol{u}_0(\boldsymbol{r}_i),\quad i=1\sim 9 \tag{6}$$

그러나 이와같은 條件을 모두 만족시키는 速度場은 實際로 解析的으로 구할 수가 없으므로 近似的인 方法을 擇할수 밖에 없게된다. 本硏究에서는 method of weighted residuals[11]의 한 方法인 소위 boundary collocation method를 使用하여 中心粒子上에서는 境界條件을 完全히 만족시키고, 周圍粒子上에서는 選擇된 有限한 數의 點에서 境界條件을 만족시키는 近似解를 구하기로 한다. 이러한 方法으로는 $\boldsymbol{v}(\boldsymbol{r})$의 球狀調和函數의 無限展開에서 制限된 數의 係數만을 決定할 수 있으며 $K=0$와 1까지를 擇해서 얻은 速度函數는 주어진 시스템의 速度場을 說明하기에 부족하고 또 粘度函數에 기여하는 바가 전혀 없어 無意味하므로 우선 一次的으로 K=2까지만을 考慮하는 trial solution을 試圖해 보기로 한다. 이 first trial 速度函數는 다음 (7)式의 形態가 된다.

$$\boldsymbol{v}_{1st}=\nabla\times(\boldsymbol{r}\chi_1)+\nabla\times(\boldsymbol{r}\chi_{-2})+\nabla\Phi_2+\nabla\Phi_{-3}+\frac{5r^2}{42\mu_0}\nabla p_2-\frac{2}{21}\frac{1}{\mu_0}\boldsymbol{r}p_2+\frac{1}{2}\frac{1}{\mu_0}\boldsymbol{r}p_{-3} \tag{7}$$

where $\chi_1=A_1^1r\sin\phi P_1^1(\cos\theta)$

$\chi_{-2}=A_{-2}^1r^{-2}\sin\phi P_1^1(\cos\theta)$

$\Phi_2=B_2^1r^2\cos\phi P_2^1(\cos\theta)$

$\Phi_{-3}=B_{-3}^1r^{-3}\cos\phi P_2^1(\cos\theta)$

$p_2=C_2^1r^2\mu_0\cos\phi P_2^1(\cos\theta)$

and $p_{-3}=C_{-3}^1r^{-3}\mu_0\cos\phi P_2^1(\cos\theta)$

이들 調和函數를 (7)式에 代入하면 直交座標成分들은 (8)式과 같다.

$$v_x^*=\cos\theta[A_1^1r+A_{-2}^1r^{-2}+3(B_2^1r+B_{-3}^1r^{-4})+\frac{5}{14}C_2^1r^3]+\cos\theta\sin^2\theta\cos^2\phi[-15B_{-3}^1r^{-4}-\frac{2}{7}C_2^1r^3+\frac{3}{2}C_{-3}^1r^{-2}] \tag{8-1}$$

$$v_y^*=\cos\theta\sin^2\theta\cos\phi\sin\phi\ [-15B_{-3}^1r^{-4}-\frac{2}{7}C_2^1r^3+\frac{3}{2}C_{-3}^1r^{-2}] \tag{8-2}$$

and $v_z^*=sin\theta cos\phi\ \{-A_1^1 r-A_{-2}^1 r^{-2}+3(B_2^1 r+B_{-3}^1 r^{-4})+\frac{5}{14}C_2^1 r^3\}+cos^2\theta sin\theta cos\phi\ \{-15B_{-3}^1 r^{-4}-\frac{2}{7}C_2^1 r^3+\frac{3}{2}C_{-3}^1 r^{-2}\}$. (8-3)

$K=4$까지의 second trial 速度函數도 같은 方法으로 整理하면

$$v^*_{2nd}=v^*_{1st}+\nabla\times(r\chi_3)+\nabla\times(r\chi_{-4})+r\nabla\Phi_4+r\nabla\Phi_{-5}+\frac{7}{110}\frac{r^2}{\mu_0}\nabla p_4-\frac{1}{28}\frac{r^3}{\mu_0}\nabla p_{-5}-\frac{4}{55}\frac{r}{\mu_0}p_4+\frac{5}{28}\frac{r}{\mu_0}p_{-5} \quad (9)$$

where $\chi_3=r^3\{A_3^1 sin\phi P_3^1(cos\theta)+A_3^3 sin3\phi P_3^3(cos\theta)\}$

$\chi_{-4}=r^{-4}\{A_{-4}^1 sin\phi P_3^1(cos\theta)+A_{-4}^3 sin3\phi P_3^3(cos\theta)\}$

$\Phi_4=r^4\{B_4^1 cos\phi P_4^1(cos\theta)+B_4^3 cos3\phi P_4^3(cos\theta)\}$

$\Phi_{-5}=r^{-5}\{B_{-5}^1 cos\phi P_4^1(cos\theta)+B_{-5}^3 cos3\phi P_4^3(cos\theta)\}$

$p_4=r^4\{C_4^1/\mu_0 cos\phi P_4^1(cos\theta)+C_4^3/\mu_0 cos3\phi P_4^3(cos\theta)\}$

and $p_{-5}=r^{-5}\{C_{-5}^1/\mu_0 cos\phi P_4^1(cos\theta)+C_{-5}^3/\mu_0 cos3\phi P_4^3(cos\theta)\}$

이며 直交座標成分들은 훨씬 複雜한 數式이 얻어진다.

以上에서 誘導된 first 및 second trial 速度函數에는 各各 6個와 18個의 未知의 常數가 包含되어 있는데 이들이 決定되어야 비로서 速度函數가 有效하게 되는 바, 이들 未知의 常數는 選擇된 點에서 境界條件을 만족시키므로써 決定된다. 周圍粒子上에서의 點들을 選擇하는데 特別한 法則은 없으나 stress tensor를 計算하기 위해서는 中心粒子 表面에서의 解를 必要로 하므로 中心粒子와 가장 가까운 距離에 있는 點들을 選擇함이 適當하다고 생각되어 本研究에서는 *Fig.* 2와 같이 選擇하기로 하였다.

이렇게 하여 選擇된 12個 및 28個의 點과 中心粒子上의 境界條件들로 부터 6個 및 18個의 線型 連立方程式이 얻어지는데 이들을 computer를 使用하여 수치해석적으로 풀었다.

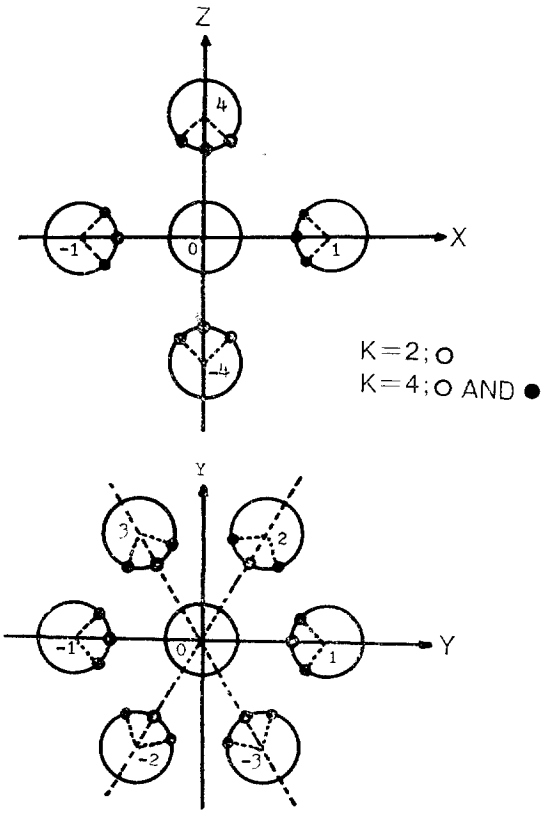

Fig. 2. Collocation points on spheres.

Table 1과 *Table* 2에는 粒子濃度의 變化에 따른 이들 常數값이 구해져있다.

Table 1. Evaluated constants of spherical harmonics ($K=2$)

ϕ	0.10	0.20	0.30	0.40	0.50	0.60
$A_1^1=-A_{-2}^1$	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000	0.0000
B_2^1	-1.2535×10^{-3}	4.3851×10^{-2}	1.1893×10^{-1}	2.8774×10^{-1}	8.6126×10^{-1}	2.9340×10
B_{-3}^1	1.7481×10^{-1}	-2.2548×10^{-1}	-2.9680×10^{-1}	-4.2986×10^{-1}	-8.1395×10^{-1}	-1.7885×10
C_2^1	7.8913×10^{-2}	1.2566×10^{-1}	9.4074×10^{-2}	-2.0621×10^{-1}	-1.7974	-9.7618×10
C_{-3}^1	-1.7330	-2.2308	-2.9501	-4.3379	-8.4819	-1.9745×10^2

Table 2. Evaluated constants of spherical harmonics ($K=4$)

ϕ	0.10	0.20	0.30	0.40	0.50	0.60
$A^1_1=-A^1_2$	5.6658×10^{-6}	4.1632×10^{-7}	-1.5142×10^{-7}	-1.1588×10^{-6}	6.6860×10^{-2}	6.5012×10^{-4}
$A^1_3=-A^1_4$	5.1940×10^{-3}	8.1888×10^{-3}	1.0561×10^{-2}	1.3232×10^{-2}	9.6498×10^{-3}	2.7772×10^{-1}
$A^3_3=-A^3_4$	-5.1942×10^{-4}	-8.1888×10^{-4}	-1.0561×10^{-3}	-1.3232×10^{-3}	-2.1501×10^{-3}	-2.7781×10^{-2}
B^1_2	5.3580×10^{-2}	7.9513×10^{-2}	1.3736×10^{-1}	2.8593×10^{-1}	8.0870×10^{-1}	2.7690×10
B^1_3	-2.1591×10^{-1}	-2.4112×10^{-1}	-2.9582×10^{-1}	-4.1386×10^{-1}	-7.8440×10^{-1}	-1.7090×10
$B^1_4=-\frac{7}{110}C^1_4$ $=-\frac{5}{32}C^1_5$ $=-\frac{35}{8}B^1_5$	2.2280×10^{-4}	8.0755×10^{-4}	1.9465×10^{-3}	4.2945×10^{-3}	1.2713×10^{-2}	3.1266×10^{-1}
$B^3_4=-\frac{7}{110}C^3_4$ $=-\frac{5}{32}C^3_5$ $=-\frac{35}{8}B^3_5$	3.7133×10^{-5}	1.3459×10^{-4}	3.2441×10^{-4}	7.1581×10^{-4}	-2.0641×10^{-3}	5.2109×10^{-2}
C^1_2	3.6429×10^{-2}	-3.4128×10^{-2}	-6.8921×10^{-2}	-3.2538×10^{-1}	-1.6041	-9.0439×10
C^1_3	-2.1660	-2.4277	-2.9713	-4.2006	-8.1496	-1.8813×10^2

2-3. 粒子의 分布函數

粒子의 配列狀態를 說明하기 위해서는 粒子의 分布函數를 알아야 하는데 두 粒子에 관한 分布函數는 Liouville式을 풀어 理論的으로 計算된 바 있으나 濃縮系에 대한 分布函數를 Liouville式으로 푼다는 것은 극히 힘든일이다. 따라서 一次的으로 濃縮系의 分布函數를 確率的으로 誘導할 必要가 있게된다.

設定된 모델에서와 같이 硬質球狀인 8個의 最近接周圍粒子들에 해당하는 分布函數는 $g^{(8)}(r)$로서 表示할 수있는데 이는 中心粒子로 부터 r과 $r+dr$의 距離사이에 粒子가 올 確率 $g^{(8)}(r)dr$로서 定義될 수 있다. 이때 $g^{(8)}(r)$은 中心粒子에서 距離 r인 球面上의 모든곳에 대한 確率이므로 粒子의 position vector $\boldsymbol{r}$의 函數가 아니고 다만 距離 r만의 函數이므로 radial distribution function이 된다.

우선 D를 粒子의 直徑이라하고 (D,r)에는 粒子가 놓여있지 않은채로 $(r,r+dr)$에 粒子가 하나 올수있는 確率을 $w^{(1)}(r)dr$로 表示하고, 같은 方法으로 (D,r)에 $(m-1)$個의 粒子가 있을때 $(r,r+dr)$에 粒子하나가 올 確率을 $w^{(m)}(r)dr$라 하면,

$$w^{(m+1)}=h[1-\int_D^r w^{(m+1)}dr/\int_D^r w^{(m)}dr]\int_D^r w^{(m)}dr$$

이 되는데 여기서 $m=1,2,\cdots$이며 $h(r)dr$은 아무 條件없이 $(r,r+dr)$에 粒子가 하나올 確率로서 이 式을 풀면

$$w^{(m+1)}=w^{(1)}\int_D^r e^H w^{(m)}dr=\frac{1}{m!}H^m he^{-H} \tag{10}$$

이고 여기서 $H(r)=\int_D^r h(r)dr$은 (D,r)에 粒子가 하나올 確率을 나타낸다.

各各의 m값에 대해 $w^{(m)}(r)$은 서로 排反事象이므로 確率의 定義에서 粒子의 radial distribution function은

$$\begin{aligned}g^{(8)}(r)&=\sum_{m=1}^{8}w^{(m)}\\&=he^{-H}\{1+H+\frac{H^2}{2!}+\frac{H^3}{3!}+\frac{H^4}{4!}+\frac{H^5}{5!}\\&\quad+\frac{H^6}{6!}+\frac{H^7}{7!}\}\end{aligned} \tag{11}$$

와 같이 $w^{(m)}$의 合으로 表示되며 이 分布函數 $g^{(8)}(r)$을 完全하게 決定하기 위해서는 $h(r)$의 誘導가 先行되어야 하겠다.

全體부피 V중에 N個의 粒子가 있으므로 $(r,r+dr)$

의 부피 $4\pi r^2dr$에는 $4\pi Nr^2dr/V$個의 粒子가 올수 있으며 $n=N/V$인 number density를 定義하면 $(r, r+dr)$에 粒子가 올 確率은 $4\pi nr^2dr$이 된다.

따라서 $h(r)=4\pi nr^2$이 되는데 이에 의하면 $r=D$인 경우 $g^{(2)}(D)=4\pi nD^2>0$이 되어 두 粒子가 接해있을 確率도 存在할 것으로 보이나, 두 粒子가 相互作用하고 있을때 permanent doublet의 경우를 除外하면 실제의 接觸이 일어나지 않는다는 硏究報告[12]와는 어긋나고 또 粒子가 한 平面에 接近할때 流體力學的인 힘이 反射的으로 대단히 커진다는 事實[12,13]과 一致하지 않으므로 $r=D$와 $r=D'$이 되는 距離에서는 確率 $h(r)$이 存在하지 않는다는 條件을 받아들이기로 한다. 이때 D'은 中心粒子로 부터 두번째의 周圍粒子들로 構成되는 球面까지의 平均距離로서 粒子間의 平均距離를 H_m이라면 $D'=2H_m-D$이다. 그러므로 $h(r)=4\pi n(r-D)(D'-r)$ 같이 간단한 形態의 式을 設定하면 以上의 要件을 갖춘것이 된다. 이때 $h(r)$을 積分하면 (12)式이 된다.

$$H(r)=\frac{4}{3}\pi n(r-D)^3\left[\frac{3}{2}\left(\frac{D'-D}{r-D}\right)-1\right] \qquad (12)$$

以上에서 誘導된 (12)式을 利用하여 各濃度에서의 粒子分布函數를 計算하였는데 $H_m=2.295a$인 $\phi=0.40$에서의 分布函數를 *Fig.* 3에 表示하였다.

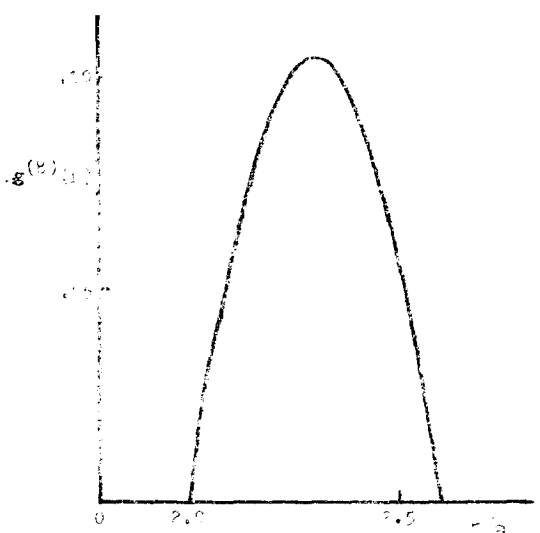

Fig. 3. Calculated radial distribution function for $\phi=0.40$.

2-4. 結果 및 檢討

速度函數와 粒子의 分布函數가 計算되었으므로 이제 巨視的 stress tensor를 구하기 위하여 macroscopic field에 관한 통계역학적인 정의를 導入하면 macroscopic stress tensor는

$$\boldsymbol{P}(\boldsymbol{x})=(N!)^{-1}\int\cdots\int\boldsymbol{P}_N(\boldsymbol{x};\boldsymbol{x}^N)f^{(N)}(\boldsymbol{x}^N)d\boldsymbol{x}^N \qquad (13)$$

이므로 이 式에서 液相과 粒子相을 分離시키면

$$\boldsymbol{P}(\boldsymbol{x})=-P\boldsymbol{U}+2\mu_0\boldsymbol{S}+N(N!)^{-1}n^N\int_{r_{j1}\geq 2a}\cdots\int\{\int_{r=a}\boldsymbol{r}\cdot\boldsymbol{P}''_N(\boldsymbol{r})_{r=a}\,dS\}\,g^{(N)}(\boldsymbol{r}_{j1}^{N-1})d\boldsymbol{r}_{j1}^{N-1} \qquad (14)$$

와 같이 된다. 그런데 液相에서 stress tensor는 $\boldsymbol{P}'_N=-P'_N\boldsymbol{U}+2\mu_0\boldsymbol{S}'_N$이고 粒子를 硬質의 球狀粒子로 가정하였으므로 粒子相에서의 shear rate tensor $\boldsymbol{S}''_N=0$이 되어 粒子相에서의 stress tensor는 (15)式이 된다.

$$\boldsymbol{P}''=\frac{3}{4\pi a^3}\int\!\!\int_{Si}g^{(2)}(r)\;\boldsymbol{r}\;\boldsymbol{P}''_N\cdot d\boldsymbol{S}\;d\boldsymbol{r}$$
$$=(\boldsymbol{ki}+\boldsymbol{ik})\;P_{ZX} \qquad (15)$$

粒子와 液體에 미치는 inertia force의 影響을 無視했으므로 이 懸濁系는 Newton性이며 따라서 normal stress tensor는 存在하지 않게되고 $\boldsymbol{P}$와 $\boldsymbol{S}$는 constant shear rate G의 一次線型函數가 되며 粒子上에서의 速度場으로 부터 stress tensor의 ZX 成分은 (16)式과 같이 誘導된다.

$$P_{ZX}=\mu_0G\int\{1-\frac{19}{35}C_2^1-\frac{9}{10}C_{-\frac{1}{3}}\}g^{(2)}d\boldsymbol{r}\{\int g^{(2)}d\boldsymbol{r}\}^{-1} \qquad (16)$$

그리고 巨視的 shear rate tensor는 粒子相에서 $\boldsymbol{S}''_N=0$이었으므로

$$\boldsymbol{S}=\boldsymbol{S}_0(1-\phi)=\frac{G}{2}(\boldsymbol{ki}+\boldsymbol{ik})(1-\phi) \qquad (17)$$

가 되며 以上의 式들과 粘度式 $\boldsymbol{P}=-P\boldsymbol{U}+2\mu\boldsymbol{S}$로부터 相對粘度函數는 最終的으로

$$\mu/\mu_0=1+\frac{\phi}{1-\phi}\{P_{ZX}/\mu_0G\} \qquad (18)$$

와 같이 誘導된다.

Hexagonal lattice配列을 하고있는 粒子들이 粒子中心間 距離 $r=H_m$의 간격으로 位置하고 있을때의 粒子分布函數는 $g^{(2)}(r)=\delta(r-H_m)$ 이므로 이 分布函數를 利用하여 stress tensor를 구하고 相對粘度를 計算하면 濃度 ϕ에 대한 相對粘度의 計算値는 *Fig.* 4에 表示된 曲線 B와 같이 된다.

여기에서 實線은 second trial, 點線은 first trial速度函數에서 計算된 粘度인데 second trial의 경우가 first trial의 경우보다 더 많은 周圍粒子上의 選擇된 點에서

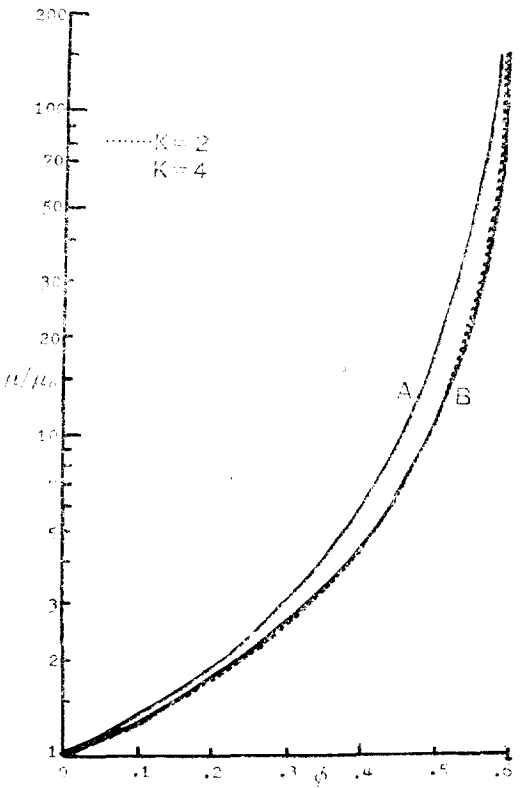

Fig. 4. Calculated viscosity data.

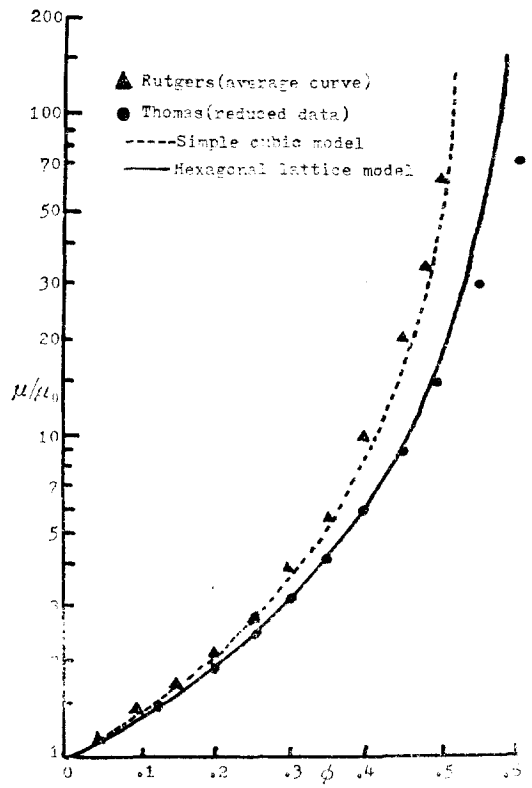

Fig. 5. Relative viscosity data.

境界條件을 만족시켰으므로 보다 좋은 近似解일 것으로 보이나 本研究에서 關心이 있는 粘度計算에서는 이들 사이에 불과 5% 미만의 誤差만이 存在하므로 이들의 收斂現象은 대단히 좋다고 보아서 粘度計算에서는 $K=4$까지의 second trial solution이면 충분할 것으로 판단된다.

한편 懸濁系의 粒子들이 free motion을 하고 있을때는 粒子分布가 固定되어있지 않으므로 delta function으로 그 分布函數를 表示할수 없게된다. 따라서 本研究에서는 確率理論으로 誘導된 分布函數의 計算値를 利用하여 系의 粘度函數를 구하였는데 *Fig.* 4의 A曲線으로 表示하였다.

本 研究結果를 다른 實驗値들과 比較하기 위하여 *Fig.* 5에 Rutgers[4] 및 Thomas[3] data를 圖示하였는데 Thomas의 data의 경우 最高濃度는 62.5%로서 本 hexagonal lattice model의 60.4%보다 조금 크므로 그 粘度値는 本 모델에서 보다 약간작다.

參考로 前述한 simple cubic model에 대한 計算結果가 역시 *Fig.* 5에 點線으로 表示되어 있는데 이 경우의 ϕ_{max}은 52.4%로서 ϕ_{max}이 53.5%인 Rutgers data와 比較되어있다. 이 경우 simple cubic model에서의 ϕ_{max}이 Rutgers의 경우보다 조금 적으므로 粘度값은 약간 커야하는데 오히려 高濃度로 갈수록 값이 밑어지고 있다.

이들 粘度値들은 ϕ_{max}이 相異하므로 ϕ/ϕ_{max}에 대한 圖示로 바꾼것이 *Fig.* 6이다. 여기에서는 Einstein[2]과 Frankel等[5]의 粘度値도 함께 比較하였는데 그림에서와 같이 hexagonal lattice model의 相對粘度는 simple cubic model에서보다 實測値에 잘 부합되며 특히 ϕ/ϕ_{max}가 0.5~0.8에서 훨씬 좋은 結果를 보여준다.

3. 結論 및 檢討

Hexagonal lattice model에 對한 濃縮系의 粘度와 粒子濃度間의 關係가 計算되었는데 粒子濃度 全區間에 걸쳐 實測値와 좋은 一致를 보였고, simple cubic model

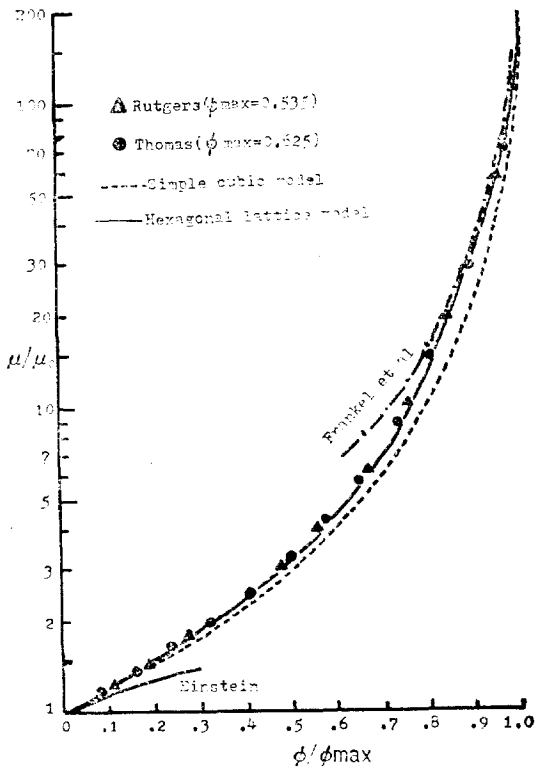

Fig. 6. Relative viscosity data versus ϕ/ϕ_{max}.

과의 比較가 이루어지므로써 濃縮系의 流動變形論的 취급에 있어서 random packing의 實際시스템과 비교적 가까운 最高濃度값을 갖는 model이 좀더 正確한 粘度函數를 計算할 수 있게 되었다. 本 硏究에서 使用한 分布函數에 관한 계속적인 연구와 아울러 濃縮系에서의 粒子分布函數의 규명은 현탁계의 이론적 해석을 위해서 긴하게 요구된다고 본다. 最高濃度範圍에서는 實測粘度값이 많은 偏差를 보이므로 앞으로 보다 正確한 實驗데이터가 要求되며, 本 硏究에서 無視한 inertia term을 고려하면 懸濁系는 非 Newton 特性을 나타내게 되므로 inertia term을 고려하고, 硬質球狀粒子가 아닌 方向性이 있고 粒子間에 親和力이 있으며, 球形이 아닌 粒子거나 mono disperse system이 아닌 경우에 관한 硏究가 계속되어야 겠다.

끝으로 本 硏究를 위해서 財政支援을 하여준 科學技術處 當局에 感謝드린다.

參 考 文 獻

1. K. J. Lee and N. F. Sather, *Seoul National Univ. Faculty Papers*, **2** (C) (1973), 35; also *Progress in Heat and Mass Transfer*, Pergamon Press, **6** (1972), 575.
2. A. Einstein, *Ann. Physik*, **19**(1906), 289.
3. D. G. Thomas, *J. Colloid Sci.*, **20**(1965), 267.
4. I. R. Rutgers, *Rheol. Acta*, **2**(1962), 202, 305.
5. N. A. Frankel and A. Acrivos, *Chem. Eng. Sci.*, **22**(1967), 847.
6. R. D. Scott, *Nature*, **188**(1960), 908.
7. I. R. Rutgers, *Nature*. **193**(1962), 465.
8. J. D. Bernal and J. Mason, *Nature*, **188**(1960), 910.
9. H. Lamb, "Hydrodynamics", 6th ed. Cambridge Univ. Press, London, 1933; Dover, New York, 1945.
10. J. Happel and H. Brenner, "*Low Reynolds Number Hydrodynamics*," Prentice-Hall, Englewood Cliffs, N. J., 1965.
11. W. F. Ames, "Nonlinear Partial Differential Equations in Engineering," Academic Press, New York, 1965.
12. C. Lin, K. J. Lee and N. F. Sather, *J. Fluid Mech.*, **43**(1970), 35.
13. G. D. M. Mackay, M. Suzuki and S. G. Mason, *J. Colloid Sci.*, **18**(1963), 103.