強磁性棒状粒子からなる分散系の粒子の配向特性と粘度に 及ぼすクラスタ間の相互作用の影響*

(平均場近似によるせん断流を対象とした解析)

佐藤 明^{*1}

Influence of Cluster-Cluster Interactions on Particle Orientational Characteristics and Viscosity of a Colloidal Dispersion Composed of Ferromagnetic Spherocylinder Particles (Analysis by Means of Mean Field Approximation for a Simple Shear Flow) Akira SATOH^{*2}

^{*2} Department of Machine Intelligence and System Engineering, Akita Prefectural University,
84-4 Ebinokuchi, Tsuchiya-aza, Honjo-shi, Akita, 015-0055 Japan

We have theoretically investigated the particle orientational distribution and viscosity of a dense colloidal dispersion composed of ferromagnetic spherocylinder particles under circumstances of an applied magnetic field. The mean field approximation has been applied to take into account the magnetic interactions of the particle of interest with the other ones which belong to the neighboring clusters, besides its own cluster. The basic equation of the orientational distribution function, which is the integro-differential equation, has approximately been solved by Galerkin's method and the method of successive approximation. Some of main results obtained here are summarized as follows. Even when the magnetic interaction between particles is of the order of the thermal energy, the effect of particle-particle interactions on the orientational distribution comes to appear more significantly with increasing the volumetric fraction of particles; the orientational distribution function exhibits a sharper peak in the direction nearer to the magnetic field one as the volumetric fraction increases. Such a significant inclination of the particle in the field direction induces the large increase in the viscosity in the range of larger values of the volumetric fraction. The above-mentioned characteristics of the orientational distribution and viscosity come to appear more significantly when the influence of the applied magnetic field is not relatively so strong compared with magnetic particle-particle interactions.

Key Words: Ferromagnetic Colloidal Dispersion, Mean Field Approximation, Simple Shear Flow, Spherocylinder, Orientational Distribution Function, Viscosity, Galerkin's Method

1. 緒言

ある条件下で所望の機能性を発揮する流体を機能性流体といい、代表的なものとして、磁性流体⁽¹⁾やER流体ならびにMRサスペンション⁽²⁾などがある。これらは母液にある条件下で機能性を発揮する機能性微粒子を懸濁したものであり、純粋な液体ではないが、あたかも機能性を有する液体のように振る舞うのが特徴である。微視的に見た場合、このような流体は懸濁された粒子の凝集などによる局所的な内部構造形成が大きな特徴的であり、この現象が期待する機能性に大きな影響を及ぼすことが、従来の研究から明らかになっている。流れ湯中でその機能性を発揮させる場合には、ダンパーやアクチュエータなどの流体力学的な応用が考えられるが、高機能磁気記録材料⁽³⁻⁵⁾や物質の表面改質の技術の開発においては、機能性粒子の内部構造を制御しなければならない懸濁液の過程も、一種の機能性

流体と見なせる。従って、懸濁された機能性粒子の凝集による内部構造発現現象のコロイド物理工学的な研究は、非常に重要な研究課題となっている。

機能性粒子として従来は球状粒子を主に用いていたが、例えばER流体の場合には、液晶など非球形粒子を用いることにより、より大きな効果が期待できることがわかっている⁽⁶⁾。

以上のような背景から、我々の研究グループでは磁場の環境下で機能性を発揮する強磁性コロイド分散系を対象にして、ミクロな解析を進めてきた⁽⁷⁾。強磁性棒状粒子からなる分散系を対象に、まず、非常に希釈な系を取り上げ、粒子の配向分布とレオロジー特性に及ぼす磁場ならびに粒子形状(アスペクト比)の影響を詳細に検討した⁽⁸⁻¹⁰⁾。次に、希釈とは見なせない分散系を対象に、粒子間の相互作用を考慮した近似理論を展開し、同様の検討と粒子間の磁気的な相互作用の影響も詳細に明らかにした^(11,12)。

本研究では以上の研究をさらに発展させ、クラスタ内の粒子間相互作用に加え、異なるクラスタに属する粒子間の相互作用も考慮した非希釈な分散系の解析を

* 原稿受付 2004年6月17日。

^{*1} 正員、秋田県立大学システム科学技術学部(☎015-0055 本荘市土谷字海老ノ口84-4)。

E-mail: asatoh@akita-pu.ac.jp

行うことが目的である。まず、平均場近似によるまわりの粒子からの相互作用も考慮した粒子の配向分布関数の基礎方程式を導出する。次に、その微積分方程式を逐次近似法とガラーキン法により求め、この近似解を用いて、前報の理論では明らかにできなかった粒子の体積分率の影響を詳細に明らかにすることを試みる。

2. 粒子モデル

前報と同様に、強磁性棒状粒子のモデルとして、円柱の両端が半球状の形状を有するspherocylinder(球冠円柱)モデルを用いる。磁荷 $\pm q$ はそれぞれの半球を形作る球(直径 d)の中心点にあるものとする。このような粒子モデルの場合、一様磁場 $\mathbf{H}$ 中における粒子と磁場との相互作用のエネルギー U と、粒子に作用するトルク $\mathbf{T}^m$ は、それぞれ、 $U = -\mu_0 \mathbf{m} \cdot \mathbf{H}$, $\mathbf{T}^m = \mu_0 \mathbf{m} \times \mathbf{H}$ のように書ける。ここに、 $\mathbf{m}$ は磁気モーメントで、磁荷 q と円柱部の長さ l との積をその大きさに持ち、方向は粒子の方向(回転軸の方向)を表す単位ベクトル $\mathbf{e}$ と一致する。 μ_0 は真空の透磁率である。

このモデル粒子が単純せん断流中において、せん断流の局所的な流れの速度と同一速度で移動しながら回転運動している場合を考える。希釈な分散系の場合、粒子に作用するトルクは、印加磁場に起因する磁気力によるトルク $\mathbf{T}^m$ 、回転ブラウン運動によるトルク $\mathbf{T}^{Br}$ 、せん断流に起因して流体が粒子に作用するトルク $\mathbf{T}^J$ が考えられる。 $\mathbf{T}^{Br}$ と $\mathbf{T}^J$ の表式はそれぞれ次のように表される^(8,13)。

$$\mathbf{T}^{Br} = -kT\mathbf{e} \times \frac{\partial}{\partial \mathbf{e}} (\ln \Psi) \quad (1)$$

$$\mathbf{T}^J = \eta_s \{ \mathbf{X}^C \mathbf{e} \mathbf{e} + \mathbf{Y}^C (\mathbf{I} - \mathbf{e} \mathbf{e}) \} \cdot (\boldsymbol{\Omega} - \boldsymbol{\omega}) - \eta_s \mathbf{Y}^H (\mathbf{e} \cdot \mathbf{e} \mathbf{e}) : \mathbf{E} \quad (2)$$

ここに、 Ψ は後に定義される配向分布関数、 k はボルツマン定数、 T は系の温度である。また、 $\boldsymbol{\Omega}$ と $\mathbf{E}$ は単純せん断流の回転角速度ベクトルと変形速度テンソル、 $\boldsymbol{\omega}$ は粒子の角速度ベクトルである。さらに、 η_s は母液の粘度、 $\mathbf{e}$ は先に定義したとおり粒子の方向を表す単位ベクトル、 $\mathbf{e}$ はEddingtonのイプシロンで3階のテンソル、 $\mathbf{I}$ は単位テンソル、 $\mathbf{X}^C, \mathbf{Y}^C, \mathbf{Y}^H$ は抵抗関数で粒子の幾何学形状のみに依存する量^(8,13)である。

本研究では非希釈なコロイド分散系を対象としているので、まわりの粒子からの磁気的な相互作用も考慮しなければならない。ただし、前報と同様に、粒子間の多体流体力学的な相互作用はその取り扱いの困難さから無視することにする。粒子間の磁気力が十分大きい場合には、粒子同士は凝集して磁場方向に配向することが球状粒子系の研究からわかっている⁽⁷⁾、そのような環境下での解析をここでは行う。着目する粒子

が属するクラスタ内の他の粒子からの磁気的な相互作用は、前報⁽¹¹⁾で詳細に論じているので、そちらを参照されたい。本研究では、異なるクラスタに属する粒子との磁気的な相互作用を考慮した解析を行うことが主たる目的である。この目的のために、前報の平均場近似を、まわりのクラスタとの相互作用に拡張・適用して用いる。

3. 平均場近似

前報⁽¹¹⁾でも指摘したように、強磁性コロイド分散系の場合、磁場中において磁場方向に凝集する現象が生じるので、固体とは異なり、まわりの粒子の位置が前もってわからない。従って、前報と同様に本研究でも、物理的に妥当な凝集構造を仮定し、その凝集モデルに対して平均場近似を適用する。

印加磁場が強く、粒子が凝集した場合直線状の凝集構造を取るものと仮定する。磁場が弱い場合はループやネックレス状の凝集構造を取るが、磁場が強い場合には、粒子と磁場との相互作用により直線状の凝集構造を取ることがエネルギーの解析からわかるので、このような仮定は物理的に妥当である。鎖状のクラスクモデルを用いた場合の平均場近似を、模式的に描いた図1を用いて説明する。

粒子はせん断流の影響で流れ方向に傾き、さらにブラウン運動の影響で、平均的な方向を中心に分散した配向分布を示すことになる。いま、着目する棒状粒子の重心を直交座標系の原点に取ると、粒子配向の平均的な方向に沿って、距離 $(l+d)$ の粒子間隔で凝集し、各粒子はそれぞれの中心点で、原点の粒子と同じ配向分布を有しているとするクラスタのモデルを用いる。前報^(11,12)ではこのクラスタに属する他の粒子との相互作用を平均場近似で考慮したが、本研究では、この他にまわりに同様のクラスタが存在するとして、そのクラスタに属する粒子との相互作用も平均場近似で考慮しようとするものである。クラスタがまわりにどのような配置で存在するかは、それ自体分子動力学法的方法によるシミュレーションで解明すべき問題なので、ここでは物理的に、より妥当な配置を仮定して議論を進めることにする。

粒子数密度が大きい場合、球状の強磁性粒子が磁場中で正六角形の配置を示すことから、ここでは同様にクラスタがその平均的な配向方向から見た場合正六角形の配置を取るものとする。この場合、まわりのクラスタがクラスタの方向と垂直な方向にそのまま平行移動したクラスタの配置(平行配置)と、粒子長の半分の長さ $((l+d)/2)$ ほど軸方向にずれた位置に移動した配置(千鳥配置)が考えられる。図1の右側のクラスタが前

者の場合、図1の左側のクラスタが後者の場合である。図2はクラスタの正六角形の配置を理解しやすいように3次的に描いたものである。まわりの6個のクラスタをどのように配置するかの問題であるが、対称性がある程度考慮すると、まわりの6個のクラスタがすべて平行配置の場合と、3個の平行配置と3個の千鳥配置が交互に並んだ配置の2通りが、まわりのクラスタの配置の第ゼロ近似として妥当と考えられる。これら二つのクラスタの配置に対して、粒子がすべてクラスタの軸方向を向いていると仮定して、中心のクラスタと正六角形に位置するまわりのクラスタの軸間の距離を a とした場合、中心の粒子とまわりのクラスタ間のポテンシャル曲線を図3に示す。図中のparaがすべてのクラスタが平行配置の場合、stag+paraが混合型のクラスタ配

Fig.1 Mean field approximation for cluster-cluster interactions

Fig.2 Equilateral-hexagonal arrangement of neighboring clusters

置の場合を意味し、粒子のアスペクト比 $r_p(=l/d)$ を $r_p=3, 10$ と取った結果が示してある。なお、粒子間の磁気力の大きさを表す無次元パラメータ λ_0 は第4節の最後に示すとおりである。図3のポテンシャル曲線から明らかに、平行配置と千鳥配置が交互に並んだ配置の方がすべて平行配置よりも常に低いエネルギー状態を与えるので、以下においては、前者の混合型のクラスタ配置を採用し、解析を進めることにする。図2は以上のことを考慮して描いた本解析で用いるクラスタ配置の模式図である。

原点に位置する着目する粒子に作用する他の粒子からの寄与は、他の粒子が原点の粒子に作用する磁場として取り入れられ、この磁場が平均場である。粒子とこの磁場との磁気的な相互作用を考慮することで、他の粒子の配向状態と直接連成することなく、単独で粒子間相互作用を考慮した計算が可能となる。前報の自クラスタに属する処理の他に、まわりの6個のクラスタに属する粒子からの影響も平均場で表されることになる。従って、本理論の場合、クラスタ同士が十分接近し得る数密度が非常に大きい濃厚な分散系にも第1近似として適用できる。なお、より厳密な解析を行うには、さらに外側に位置するクラスタとの相互作用も考慮する必要があるが、これは今後の検討課題である。

前報^(11,12)と同様に、他の粒子が着目する粒子の正負の磁荷の位置に作る磁場を平均場として、この平均場をすべての配向に対して適用する。このような処理は、粒子がクラスタの軸方向に鋭いピークを有する配向分布が期待できる、比較的強い磁場が印加されている場合に妥当である。同じクラスタ内の他の粒子が作る平均場はすでに前報で示したので、ここではまわりのクラスタに属する粒子からの平均場の式を示す。

Fig.3 Potential curves for two different arrangements of neighboring clusters with $\lambda_0=1$

粒子の平均的な方向（クラスタの方向）を表す単位ベクトルを δ_{av} で表し、まわりの6個のクラスタをクラスタ1,2,3,...,6と名付け、クラスタ1,3,5が平行配置、クラスタ2,4,6が千鳥配置であるとする(図2を参照のこと)。着目する粒子の中心と、まわりの任意のクラスタ*i*との位置関係を、クラスタの軸に垂直な方向での相対位置ベクトルで表すことにし、ベクトル $\mathbf{a}_i$ で定義する。いま、クラスタ*i*を平行配置とすれば、クラスタ*i*内の粒子名をクラスタの方向に従って、..., -2, -1, 0, 1, 2,...のように名付けると、クラスタ*i*内の粒子*j*の正の磁荷の位置 $\mathbf{r}_j^+$ と負の磁荷の位置 $\mathbf{r}_j^-$ は次のように表される。

$$\left. \begin{aligned} \mathbf{r}_j^+ &= \mathbf{r}_j + (l/2)\mathbf{e}_j = \mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} + (l/2)\mathbf{e}_j \\ \mathbf{r}_j^- &= \mathbf{r}_j - (l/2)\mathbf{e}_j = \mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} - (l/2)\mathbf{e}_j \end{aligned} \right\} \quad (3)$$

ここに、 $\mathbf{r}_j$ は粒子*j*の中心の位置ベクトル、 $\mathbf{e}_j$ は粒子*j*の方向を表す単位ベクトルである。従って、粒子*j*の正負の磁荷が、原点の粒子の正の磁荷のある $(l/2)\delta_{av}$ に発生させる磁場 $\mathbf{H}_j^*$ は次のようになる。

$$\mathbf{H}_j^* = \frac{q}{4\pi} \left\{ \frac{-\mathbf{a}_i - j(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})}{|- \mathbf{a}_i - j(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})|^3} - \frac{-\mathbf{a}_i - j(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})}{|- \mathbf{a}_i - j(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})|^3} \right\} \quad (4)$$

クラスタ*i*に属する全ての粒子からの寄与を加え合わせると、着目する粒子の正の磁荷の位置に生じる磁場 $\mathbf{H}_{ai}^{+(int)}$ ($i=1,3,5$)が、次のように得られる。

$$\mathbf{H}_{ai}^{+(int)} = \sum_j \mathbf{H}_j^* = \sum_{j=-\infty}^{\infty} \frac{m}{4\pi d^3} \cdot \frac{d^2}{r_p} \left\{ - \frac{\mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})}{|\mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})|^3} + \frac{\mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})}{|\mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})|^3} \right\} \quad (5)$$

ここに、 $m=|m|$ 、 r_p は粒子のアスペクト比で $r_p=l/d$ である。同様に、着目する粒子の負の磁荷の位置に生じる磁場 $\mathbf{H}_{ai}^{-(int)}$ ($i=1,3,5$)が、次のように得られる。

$$\mathbf{H}_{ai}^{-(int)} = \sum_j \mathbf{H}_j^- = \sum_{j=-\infty}^{\infty} \frac{m}{4\pi d^3} \cdot \frac{d^2}{r_p} \left\{ - \frac{\mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})}{|\mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})|^3} + \frac{\mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})}{|\mathbf{a}_i + j(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})|^3} \right\} \quad (6)$$

千鳥配置に対しても同様に計算でき、着目する粒子の正負の磁荷の位置に生じる磁場 $\mathbf{H}_{ai}^{+(int)}$ および $\mathbf{H}_{ai}^{-(int)}$ ($i=2,4,6$)は次のように書ける。

$$\mathbf{H}_{ai}^{+(int)} = \sum_{j=-\infty}^{\infty} \frac{m}{4\pi d^3} \cdot \frac{d^2}{r_p} \left\{ - \frac{\mathbf{a}_i + (j-1/2)(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})}{|\mathbf{a}_i + (j-1/2)(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})|^3} + \frac{\mathbf{a}_i + (j-1/2)(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})}{|\mathbf{a}_i + (j-1/2)(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})|^3} \right\} \quad (7)$$

$$\mathbf{H}_{ai}^{-(int)} = \sum_{j=-\infty}^{\infty} \frac{m}{4\pi d^3} \cdot \frac{d^2}{r_p} \left\{ - \frac{\mathbf{a}_i + (j-1/2)(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})}{|\mathbf{a}_i + (j-1/2)(l+d)\delta_{av} + (l/2)(\mathbf{e}_j + \delta_{av})|^3} + \frac{\mathbf{a}_i + (j-1/2)(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})}{|\mathbf{a}_i + (j-1/2)(l+d)\delta_{av} - (l/2)(\mathbf{e}_j - \delta_{av})|^3} \right\} \quad (8)$$

以上の式を考慮すると、まわりの6個のクラスタに属する全ての粒子からの正および負の磁荷の位置での誘起磁場を加算し、それを配向分布関数 Ψ で平均すれば、磁場すなわち平均場 $\mathbf{H}_{neib}^{+(mean)}$ および $\mathbf{H}_{neib}^{-(mean)}$ を得ることができる。これを式で表せば次のとおりである。

$$\mathbf{H}_{neib}^{+(mean)} = \left\langle \sum_{i=1}^6 \mathbf{H}_{ai}^{+(int)} \right\rangle, \quad \mathbf{H}_{neib}^{-(mean)} = \left\langle \sum_{i=1}^6 \mathbf{H}_{ai}^{-(int)} \right\rangle \quad (9)$$

右辺の $\langle \dots \rangle$ は配向分布関数での平均を意味する。

以上の平均場近似を用いると、方向が $\mathbf{e}$ で表される原点の棒状粒子とまわりのクラスタによる平均場との磁気的な相互作用により、粒子に作用するトルク $\mathbf{T}_{neib}^{(mean)}$ は、次のようになる。

$$\begin{aligned} \mathbf{T}_{neib}^{(mean)} &= \frac{l}{2} \mathbf{e} \times \mu_0 q \mathbf{H}_{neib}^{+(mean)} + \frac{l}{2} \mathbf{e} \times \mu_0 q \mathbf{H}_{neib}^{-(mean)} \\ &= \mu_0 m \mathbf{e} \times \mathbf{H}_{neib}^{(mean)} \end{aligned} \quad (10)$$

ここに、 $\mathbf{H}_{neib}^{(mean)} = (\mathbf{H}_{neib}^{+(mean)} + \mathbf{H}_{neib}^{-(mean)})/2$ とした。

自クラスタに属する他の粒子からの平均場 $\mathbf{H}_{self}^{+(mean)}$ および $\mathbf{H}_{self}^{-(mean)}$ によるトルク $\mathbf{T}_{self}^{(mean)}$ はすでに前報⁽¹¹⁾で示したので、そちらを参照されたい。

4. 分布関数の方程式

通常コロイド粒子の場合慣性項は無視できるオーダーなので、粒子は $\mathbf{T}^H + \mathbf{T}^{Br} + \mathbf{T}^m + \mathbf{T}_{self}^{(mean)} + \mathbf{T}_{neib}^{(mean)} = 0$ なるトルクの釣り合い式を満足する。

前報とほぼ同様にして、配向分布関数の基礎方程式を次のように導出することができる。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Psi}{\partial t} &= 3(\mathbf{E} : \mathbf{e}\mathbf{e})\Psi - (\boldsymbol{\Omega} \times \mathbf{e} + \mathbf{E} \cdot \mathbf{e}) \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial \mathbf{e}} + D_r \left(\frac{\partial}{\partial \mathbf{e}} \cdot \frac{\partial}{\partial \mathbf{e}} \right) \Psi \\ &\quad + \frac{\mu_0 m H}{\eta_s Y^C} \left\{ 2(\mathbf{e} \cdot \mathbf{h})\Psi - \mathbf{h} \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial \mathbf{e}} \right\} \\ &\quad + \frac{\mu_0 m}{\eta_s Y^C} \left\{ 2\mathbf{e} \cdot (\mathbf{H}_{self}^{(mean)} + \mathbf{H}_{neib}^{(mean)})\Psi - (\mathbf{H}_{self}^{(mean)} + \mathbf{H}_{neib}^{(mean)}) \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial \mathbf{e}} \right\} \end{aligned} \quad (11)$$

ただし、 $H=|\mathbf{H}|$ 、 $\mathbf{h}=\mathbf{H}/H$ 、 $D_r=kT/\eta_s Y^C$ は回転拡散係数であり、ここではアスペクト比 $r_p=l/d$ が $r_p \gg 1$ の場合を想定し $Y^H/Y^C \approx 1$ とおいた⁽¹⁴⁾。右辺の平均場の評価に際して Ψ 自身の積分項が含まれるので、式(11)は微積分方程式である。

粒子の方向を、 z 軸方向から取った天頂角 θ と x 軸方向から取った方位角 φ で表すと、粒子の配向に依存する任意の物理量 $G(\theta, \varphi)$ の平均値 $\langle G \rangle$ は、配向分布関数 Ψ を用

いて $\langle G \rangle = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi G(\theta, \varphi) \Psi(\theta, \varphi, t) \sin\theta d\theta d\varphi$ のように表される。

次に具体例として、ずり速度 $\dot{\gamma}$ の x 軸方向のせん断流および y 軸方向に印加された磁場の場合を仮定すると、粒子が存在する前の流れ場の流速 U 、回転角速度ベクトル Ω 、変形速度テンソル E は次のようになる。

$$U = \dot{\gamma} \delta_x, \quad \Omega = -\frac{\dot{\gamma}}{2} \delta_z, \quad E = \frac{\dot{\gamma}}{2} \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (12)$$

ここに、 $(\delta_x, \delta_y, \delta_z)$ は直交座標系の基本ベクトル、 $h = \delta_y$ である。 y 軸方向の印加磁場の場合、平均場は z 軸方向の成分を有さないで、まわりのクラスタに属する粒子からの平均場 $H_{neib}^{(mean)}$ は次のように表すことができる。

$$H_{neib}^{(mean)} = -\frac{m}{4\pi d^3} (a_x^{(neib)} \delta_x + a_y^{(neib)} \delta_y) \quad (13)$$

自クラスタ内の他の粒子からの平均場 $H_{self}^{(mean)}$ も同様に表すことができ、式(13)において $a_x^{(self)}, a_y^{(self)}$ に置き換えれば、 $H_{self}^{(self)}$ の式が得られる。以上の式を考慮すると、 Ψ の満足すべき方程式が次のように得られる。

$$\Lambda(\Psi) - Pe \Omega_x(\Psi) + \xi \Omega_{my}(\Psi) + \lambda \left\{ (a_y^{(self)} + a_y^{(neib)}) \Omega_{my}(\Psi) + (a_x^{(self)} + a_x^{(neib)}) \Omega_{mx}(\Psi) \right\} = 0 \quad (14)$$

ここに、演算子 $\Lambda, \Omega_x, \Omega_{my}$ は文献(8)、 Ω_{mx} は文献(10)に示したとおりである。式(14)に現れた無次元数 Pe, ξ, λ は、 $Pe = \dot{\gamma}/D_r, \xi = \mu_0 m H / kT, \lambda = \mu_0 m^2 / 4\pi d^3 kT$ である。 Pe はベクレ数と呼ばれ、回転ブラウン運動に対するせん断流の影響の大きさを表す無次元数、 ξ は回転ブラウン運動に対する磁場の影響の大きさを、 λ はブラウン運動に対する粒子間磁気力の影響の大きさを表す無次元パラメータである。なお、 $\lambda_0 = \mu_0 (qd)^2 / 4\pi d^3 kT$ とする。

5. 逐次近似法とガラーキン法による解法

$a_x^{(self)}, a_y^{(self)}, a_x^{(neib)}, a_y^{(neib)}$ の評価には配向分布関数自身による積分計算が含まれるので、式(14)は逐次近似法とガラーキン法で解く。逐次近似法による n 番目の解を $\Psi^{(n)}$ とすると、式(14)は次のように書ける。

$$\Lambda(\Psi^{(n)}) - Pe \Omega_x(\Psi^{(n)}) + \xi \Omega_{my}(\Psi^{(n)}) + \lambda \left\{ (a_y^{(self)(n-1)} + a_y^{(neib)(n-1)}) \Omega_{my}(\Psi^{(n)}) + (a_x^{(self)(n-1)} + a_x^{(neib)(n-1)}) \Omega_{mx}(\Psi^{(n)}) \right\} = 0 \quad (15)$$

ここに、 $a_x^{(neib)(n-1)}, a_y^{(neib)(n-1)}$ など是一つ前の $(n-1)$ 番目の近似解 $\Psi^{(n-1)}$ を用いて計算した、 $a_x^{(neib)}, a_y^{(neib)}$ などである。 $\Psi^{(n)}$ を球関数からなる直交関数系で展開し、その近似解をガラーキン法によって解けば近似解が求まるが、前報⁽¹¹⁾で詳細に論じたので、そちらを参照されたい。

このようにして求めた結果を次に示すが、前報まではまわりの粒子の影響を検討していないので、粒子の数密度の影響を検討することができず、ブラウン運動、せん断流、印加磁場の強さ、自クラスタ内の粒子間磁気力の影響を明らかにしたのみであった。よって、本論文では、まわりの粒子との磁気的な相互作用の影響を粒子の体積分率(数密度)をパラメータとして詳細に明らかにすることを試みる。なお、体積分率(数密度)が大きくなるとは、本モデルの場合、クラスタ間の距離 a が短くなり、クラスタ同士がより近接状態になることを意味する。

6. 結果と考察

6.1 粒子の配向分布 粒子の配向分布に及ぼすブラウン運動、せん断流、印加磁場の強さ、粒子間磁気力、体積分率の影響を種々の値を用いて調べたが、ここでは体積分率の影響を主に検討する。特に断らない限り、アスペクト比は $r_p = 10$ と取った結果である。図4と図5は $\xi = 20$ と強磁場の場合で、粒子間相互作用の大きさ λ_0 が $\lambda_0 = 1$ で熱エネルギー kT と同程度の場合の結果である。図4は $Pe = 10$ の場合、図5は $Pe = 1$ の場合である。各図は $\varphi_i = 0.05, 0.2, 0.6$ の3通りの配向分布関数の作図結果が示してある。図6と図7は磁場を $\xi = 5$ と弱くした場合の結果である。

$\xi = 20$ は強磁場を意味するが、せん断流も同程度の影響を及ぼすので、粒子間磁気力がほぼ無視できる $\varphi_i = 0.05$ の場合、配向分布の鋭いピークは磁場方向から若干せん断流の方向へと移動した $\varphi = 70^\circ$ 付近に生じていることがわかる。磁気的な粒子間相互作用のエネルギーが熱エネルギー kT 程度であるので、 $\varphi = 70^\circ$ 付近に生じる鋭いピークは磁場との相互作用に起因するものである。粒子の体積分率 φ_i が増加し $\varphi_i = 0.6$ になると、まわりのクラスタとの距離が $a = 1.21d$ となり、かなり近接するようになる。このような状況下では、まわりのクラスタとの相互作用により、配向分布関数のピークが非常に鋭くなり、またその方向も磁場方向へと近づくことが、図4(c)の $\varphi_i = 0.6$ の結果から見て取れる。 $\varphi_i = 0.2$ の図4(b)の場合、 $\varphi_i = 0.05$ の結果と比較して、約2割程度ピーク値が大きくなるが、 $\varphi_i = 0.6$ の場合ほど著しいピーク値の増加を示していない。以上の結果で注意しなければならないことは、粒子間の磁気的な相互作用の大きさ λ_0 が $\lambda_0 = 1$ と熱エネルギー kT と同程度の大きさの場合でさえ、粒子間磁気力の影響が配向分布関数に顕著に現れていることである。球状粒子で $\lambda_0 = 1$ の場合には、粒子間磁気力が熱運動を引き起こすランダム力と同程度なので、粒子の凝集現象は生じない。換言すると、内部構造は粒子間磁気力によって顕著な影響

は受けないということである。強磁性球状粒子の場合、粒子が顕著に凝集するのは $\lambda_0=4$ ぐらいからである。本研究の場合、 $\lambda_0=1$ であっても、まわりの6個のクラスタに属する粒子からの影響を加算すれば、結果的に着目する粒子には、クラスタ同士が近接した状態では、 $\lambda_0=3\sim 4$ に相当する状態になることは十分考えられる。 $\lambda_0=1$ の場合でも、 $\phi_f=0.6$ のときにクラスタ間の磁気的な相互作用の影響が顕著に現れるのはこのためであると考えられる。 $Pe=1$ の図5の場合、磁場の影響がブラウン運動やせん断流の影響よりも支配的なので、粒子間相互作用がほとんど無視できる $\phi_f=0.05$ の場合でさえ、粒子はほぼ磁場方向を向いて鋭いピークを示している。 $Pe=1$ の場合も、体積分率 ϕ_f の値が増加しクラスタ間の

距離が短くなると、クラスタ間の相互作用が粒子の配向に顕著に影響を及ぼすことになる。

$\xi=5$ と磁場が比較的弱い図6や図7の場合には、前と比較して磁場の影響が相対的に低下し、せん断流やブラウン運動の影響がより顕著に現れるようになる。分布が広くなだらかなるものは、主にブラウン運動の影響で、ピーク値が流れ方向にずれるのはせん断流の影響によるものである。 ϕ_f の値を大きくすると、分布がより鋭くなり、磁場方向に方向を変えるのは、前の結果と同様に、クラスタ間の磁気的な相互作用による影響である。たとえ磁場が比較的弱い場合でも、先の結果の考察で見たように、まわりのクラスタからの影響が加算された状態では粒子間磁気力の影響が顕著に現れ

Fig.4 Orientational distribution function for $Pe=10$, $\xi=20$, and $\lambda_0=1$ ((a) $\phi_f=0.05$, (b) $\phi_f=0.2$, and (c) $\phi_f=0.6$)

Fig.5 Orientational distribution function for $Pe=1$, $\xi=20$, and $\lambda_0=1$ ((a) $\phi_f=0.05$, (b) $\phi_f=0.2$, and (c) $\phi_f=0.6$)

ることがわかる．なお、 $\lambda_0=0.1$ のような十分小さな相互作用の場合には、クラスタ同士が十分接近しても、粒子間磁気力の影響はほとんど現れないことを確認している．

6.2 磁気力に基づく粘度 前報⁽¹¹⁾を参考にすれば、粒子の磁性に起因する粘度 $\eta_{yx}^{(m)}$ は容易に導け、次のように表される．

$$\eta_{yx}^{(m)*} = \eta_{yx}^m / \eta_s = \varphi_V \frac{\xi}{2Pe} \cdot \frac{Y^C}{V_p} \left[\left\{ 1 + (a_y^{(self)} + a_y^{(neib)}) \frac{\lambda}{\xi} \right\} \times \langle \sin\theta \cos\varphi \rangle - (a_x^{(self)} + a_x^{(neib)}) \frac{\lambda}{\xi} \langle \sin\theta \sin\varphi \rangle \right] \quad (16)$$

ただし、 V_p は粒子の体積で $V_p = (\pi/12)d^3(3l/d+2)$ である． Y^C/V_p は粒子のアスペクト比 r_p に依存する量であるが、 $r_p \gg 1$ の場合の表式が、円柱状粒子に対して文献(8)に示してある．本研究でもこの表式を用いている．

前項と同様に、アスペクト比 r_p を $r_p=10$ と取った場合の、粒子の体積分率 φ_V が粘度に及ぼす影響を、 $Pe=10$ および $Pe=1$ の場合に対して、それぞれ図8と図9に示す．各図には磁場を $\xi=20$ と $\xi=5$ の2通りの場合の結果が示してある．

図8と図9のどの場合も、 $\lambda_0=0.1$ のときには、粘度は体積分率の増加とともにほぼ線形に増加していることが

わかる．これは式(16)を見ればわかるように、 $\lambda_0=0.1$ の値が粒子間磁気力が十分無視できる状態に相当することを意味しており、粒子の配向分布関数においても、その特性が体積分率にほとんど依存しなかったことと符合している．体積分率の増加とともに、粘度の曲線が $\lambda_0=0.1$ の直線から離れれば離れるほど、まわりのクラスタからの磁気的な相互作用が顕著に影響を及ぼしていることになる．図8(a)の $\xi=5$ の場合、粒子間磁気力の影響が顕著に現れているが、先の配向分布関数の結果からわかるように、体積分率が $\varphi_V=0.2$ から $\varphi_V=0.6$ に増加すると、配向分布関数はまわりの粒子との磁気的な相互作用により、そのピーク値は顕著に増加し、しかもそのピーク値の方向は磁場方向へとかなり漸近するようになる．粒子のこのような磁場方向への顕著な配向は、流れ場中で大きな抵抗となるので、体積分率が大きいほど粘度の大きな上昇を与えるようになる．図8(b)の $\xi=20$ の場合、磁場自体が非常に強く、磁場との相互作用だけで配向分布も磁場方向に鋭いピークを有するので、 $\lambda_0=0.1$ の場合でさえ体積分率の増加とともに大きく上昇していることがわかる．このように $\xi=20$ の場合、粒子間磁気力の影響が磁場と粒子との相互作用に対して相対的に低下するので、 $\lambda_0=1$ の場合の曲線は、

Fig.6 Orientational distribution function for $Pe=10$, $\xi=5$, and $\lambda_0=1$ ((a) $\varphi_V=0.2$, and (b) $\varphi_V=0.6$)

Fig.7 Orientational distribution function for $Pe=1$, $\xi=5$, and $\lambda_0=1$ ((a) $\varphi_V=0.2$, and (b) $\varphi_V=0.6$)

Fig.8 Viscosity as a function of the volumetric fraction of particles for $Pe=10$ ((a) $\xi=5$, and (b) $\xi=20$)

Fig.9 Viscosity as a function of the volumetric fraction of particles for $Pe=1$ ((a) $\xi=5$, and (b) $\xi=20$)

Fig.10 Viscosity as a function of the aspect ratio of particles for $Pe=10$, $\xi=20$, and $\lambda_0=1$

図8(a)ほど大きな $\lambda_0=0.1$ の曲線からのかい離は生じない。図9の $Pe=1$ の場合、図8よりずり速度の影響が磁場の影響より相対的に低下するので、粒子間磁気力の影響が無視できる $\lambda_0=0.1$ の曲線は、対応する図8の曲線と比較して、大きな増加特性を示している。先の配向分布関数の結果からも、 Pe 数の値が小さいと、より顕著なより磁場方向に近い方向に粒子が配向するようになるので、このような状況下でより顕著な粘度の増加を与える。以上のように、磁場と粒子との相互作用が粒子間相互作用と比較して、著しく大きくない場合、粒子間

磁気力の影響が顕著に現れ、粘度の大きな上昇効果が得られる。

最後に、粘度が粒子のアスペクト比にどのように依存するかを図10に示す。図10は $Pe=10$, $\xi=20$, $\lambda_0=1$ とした場合の結果である。粒子数密度が小さい $\phi_v=0.05$ の場合でも、アスペクト比が増すと粘度の増加は認められるが、やはり懸濁する粒子の濃度が増せば、アスペクト比とともにより顕著な粘度の増加を示す。すなわち、強磁場の環境下で、アスペクト比の大きな粒子を濃厚な状態で懸濁すれば、より大きな粘度の増加が期待できる。

7. 結 言

強磁性棒状粒子を懸濁した分散系を対象に、単純せん断流中での粒子の配向特性と粘度の粒子数密度への依存性を詳細に明らかにした。濃厚な分散系にも適用できるように、着目する粒子が属するクラスタ内の他の粒子との相互作用に加え、まわりのクラスタに属する粒子との磁気的な相互作用も平均場近似を用いて考慮した解析を行った。まず、平均場近似によるまわりの粒子からの相互作用も考慮した粒子の配向分布関数の基礎方程式を導出した。次に、その微積分方程式を

逐次近似法とガラーキン法により求め、この近似解を用いて、前報の理論では明らかにできなかった粒子の体積分率の影響を詳細に明らかにした。得られた結果を要約すると次のようになる。粒子間の磁気的な相互作用が熱エネルギー程度であっても、粒子の体積分率が増加すると、粒子間磁気力の影響が顕著に現れ、粒子が磁場方向に顕著な配向特性を示すようになる。このような粒子間相互作用による磁場方向への顕著な配向により、粘度の大きな増加が見られる。粒子間磁気力の影響は印加磁場の影響が相対的に大きくない場合に顕著に現れる。磁気力に起因する粘度は、強磁場の環境下で、アスペクト比の大きな粒子を濃厚な状態で懸濁すれば、大きな粘度の増加が期待できる。

文 献

- (1) 神山, 磁性流体, (1989), 産業図書.
- (2) Bullough, W.A.(Ed.), *Electro-Rheological Fluids, Magneto-Rheological Suspensions and Associated Technology*, (1996), World Scientific.
- (3) Coverdale · Chantrell · Hart · Parker, J.Magn.Magn.Mater., **120**(1993), 210.
- (4) Coverdale · Chantrell · Satoh · Vietch, J. Appl. Phys., **81**(1997), 3818.
- (5) Coverdale · Satoh · Gilson · Chantrell, J.Magn.Magn.Mater., **193**(1999), 322.
- (6) Chrzanoska · Kroger · Sellers, Phys. Rev. E, **60**(1999), 4226.
- (7) Satoh, A., *Introduction to Molecular-Microsimulation of Colloidal Dispersions*, (2003), Elsevier Science.
- (8) 佐藤, 機論, **67**-653, B(2001), 112.
- (9) 青島 · 佐藤, 化学工学論文集, **27**-4, (2001), 528.
- (10) 青島 · 佐藤, 化学工学論文集, **27**-6, (2001), 799.
- (11) 佐藤, 機論, **68**-673, B(2002), 2564.
- (12) 渡辺 · 青島 · 佐藤 · 間島, 機論, **70**-691, B(2004), 657.
- (13) 神山 · 佐藤, 流体ミクロ・シミュレーション, (1997), 朝倉書店.
- (14) Brenner, J. Multiphase Flow, **1**(1974), 195.