ヘマタイト粒子の単純せん断流中での配向分布と 輸送係数に関する研究*

(せん断面に垂直な方向に磁場が作用する場合の解析)

佐藤 明^{*1}, 尾崎 正孝^{*2}, 安藤 努^{*3}

Transport Coefficients and Orientational Distributions of a Hematite Particle under Circumstances of a Simple Shear Flow (Analysis for an Applied Magnetic Field Normal to the Shear Plane)

Akira SATOH^{*4}, Masataka OZAKI and Tsutomu ANDO

^{*4} Faculty of Systems Science and Technology, Akita Prefectural University,
84-4 Ebinokuchi, Tsuchiya-aza, Yurihonjo-shi, Akita, 015-0055 Japan

We have investigated the influences of the magnetic field strength, shear rate, and rotational Brownian motion on transport coefficients such as viscosity and diffusion coefficient, and also on the orientational distributions of rodlike particles of a dilute colloidal dispersion. This rodlike particle is modeled as a magnetic spheroidal particle which has a magnetic moment normal to the particle axis; such a particle may typically be a hematite particle. In the present study, an external magnetic field is applied in the direction normal to the shear plane of a simple shear flow. The basic equation of the orientational distribution function has been derived from the balance of the torques and solved numerically. The results obtained here are summarized as follows. Although the orientational distribution function shows a sharp peak in the flow direction for a very strong magnetic field, such a peak is not restricted to the flow direction, but continues in every direction of the shear plane. This is due to the characteristic particle motion that the particle can rotate around the axis of the magnetic moment in the shear plane, although the magnetic moment nearly points to the magnetic field direction. This particle motion in the shear plane causes negative values of the viscosity due to the magnetic field. The viscosity decreases, attains a minimum value, and then converges to zero as the field strength increases. Additionally, the diffusion coefficient is significantly influenced by such characteristic particle motion in the shear plane for a strong magnetic field.

Key Words: Ferromagnetic Colloidal Dispersion, Aggregation Phenomena, Simple Shear Flow, Spheroidal Particle, Orientational Distribution Function, Rheological Properties, Viscosity, Diffusion Coefficient

1. 緒言

磁性を有する棒状粒子などの非球形粒子を母液に懸濁しサスペンションやコロイド状態とすることで、ある条件下で機能性を発揮させることが可能である^(1,2)。機能性を外部磁場により効果的に制御できれば、所望の磁気粘性効果や懸濁粒子の配向特性を得ることが原理的に可能である。

磁性棒状粒子がどのような方向に磁化されているかで、磁場中での棒状粒子の挙動が大きく異なる。粒子軸方向に磁化されている場合には、粒子は磁場方向に配向しやすく、その傾向は磁場の強さの増加とともに顕著になる。一方、粒子軸と垂直な方向に磁化されている場合には、粒子は磁場に垂直に配向するようにな

る。このように、粒子の磁気特性により、流れ場および磁場中での粒子の挙動は全く異なることになる。粒子の配向特性は分散系の非ニュートン粘性や拡散係数などの輸送係数に大きな影響を及ぼす。従って、磁性棒状粒子を機能性流体の開発に応用する場合や、物質表面に効果的に配向制御・付着させるような表面改質技術への応用を計る上でも、流れ場や磁場中での粒子の挙動を詳細に検討することは非常に重要である。

以上のような背景から、本研究グループでは、まず粒子軸方向に磁気モーメントを有する強磁性棒状粒子を懸濁した分散系を対象に、希釈分散系の解析⁽³⁻⁵⁾、自クラスタに属する他の粒子からの相互作用を考慮した解析⁽⁶⁻⁸⁾、まわりのクラスタの属する粒子との相互作用も考慮した濃厚な分散系の解析⁽⁹⁾、というような系統的な研究を行い、粒子の配向分布とレオロジー特性との関係を詳細に明らかにしてきた。さらに前報⁽¹⁰⁾では、粒子軸に垂直な方向に磁気モーメントを有するヘマタイト粒子⁽¹¹⁻¹⁸⁾を念頭に置いた磁性棒状粒子の希釈分散系を対象とした解析へと研究を展開した。なお、その

* 原稿受付 2005 年 4 月 15 日。

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

^{*2} 横浜市立大学大学院総合理学研究科(☎236-0027 横浜市民区瀬戸 22-2)。

^{*3} 正員, (独)物質・材料研究機構強磁場研究センター(☎305-0003 つくば市桜 3-13)。

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

研究においては、単純せん断流の方向と同方向に外部磁場を作用させた場合を対象としたものであった。

本研究は、前報⁽¹⁰⁾で行った粒子軸に垂直な方向に磁気モーメントを有する希釈分散系を対象とした研究の続報であり、単純せん断流のせん断面と垂直な方向に外部磁場を作用させた場合の、粒子の配向分布やレオロジー特性、拡散係数などを詳細に検討することがその目的である。

2. 粒子モデル

実験的に観察されたヘマタイト粒子の形状が、回転楕円体粒子に近い針状の形状をしていることを考慮して⁽¹⁶⁾、前報と同様に、粒子モデルとして図1に示ような回転楕円体粒子を用いる。粒子の方向を表す単位ベクトルを e 、粒子軸に垂直な方向の磁気モーメントを m ($=me_m$)、その方向を表す単位ベクトルを e_m とする。このようなモデルを用いると、一様磁場 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 T^m はそれぞれ次のように表される。

$$U = -\mu_0 m \cdot H, \quad T^m = \mu_0 m \times H \quad (1)$$

ここに、 μ_0 は真空の透磁率である。

前報⁽¹⁰⁾で論じたように、ヘマタイト粒子の大きな特徴は、粒子軸と垂直な方向に磁気モーメントを有することである。従って、粒子の方向を表す単位ベクトル e の他に、磁気モーメントの方向を表す単位ベクトル e_m が必要となってくる。このように、粒子軸に垂直な方向に磁気モーメントを有する粒子の場合、磁気モーメントは、与えられた粒子方向に対して、粒子軸まわ

りに回転することで、方向を変える自由度を有している。前報⁽¹⁰⁾では、粒子軸まわりの回転の特性時間が粒子軸に垂直な方向まわりのそれと比較して十分短いと仮定して、磁気モーメントの方向を規定したが、本研究でもこのような仮定を採用する。なお、この仮定は球形から十分離れた回転楕円体粒子の場合には十分妥当な近似である。以上の仮定の下に、与えられた粒子方向において、磁場との相互作用のエネルギーが最小となるような磁気モーメントの方向 e_m は次のように得られる⁽¹⁰⁾。

$$e_m = \frac{1}{\sqrt{C^2 s^2 + c^2}} \left\{ -S^2 s c \delta_x + (1 - S^2 s^2) \delta_y - S C s \delta_z \right\} \quad (2)$$

ここに、 $(\delta_x, \delta_y, \delta_z)$ は直交座標系の基本ベクトルで、 $S = \sin \theta, C = \cos \theta, s = \sin \phi, c = \cos \phi$ なる簡略表現を用いた。なお、本研究では磁場が y 軸方向に印加されていると仮定し、 $H = H \delta_y$ として上式を導いている。

3. 単純せん断流中における粒子の回転運動

粒子に作用するトルクとして、磁気力によるトルク T^m 、回転ブラウン運動によるトルク T^{Br} 、せん断流に起因して流体が粒子に作用するトルク T^f が考えられる。コロイド粒子の場合通常慣性項は無視できるオーダーなので、粒子の回転運動を支配する方程式はトルクの釣り合い式 $T^f + T^{Br} + T^m = 0$ より求まる。なお、 T^{Br} および T^f は次のように書ける⁽¹⁹⁾。

$$T^{Br} = -kT e \times \frac{\partial}{\partial e} (\ln \Psi) \quad (3)$$

$$T^f = \eta_s \{ X^C e e + Y^C (I - e e) \} \cdot (\Omega - \omega) - \eta_s Y^H (e \cdot e e) : E \quad (4)$$

ここに、 Ψ は後に定義する配向分布関数、 k はボルツマン定数、 T は系の温度、 Ω は単純せん断流の回転角速度、 E は変形速度テンソル、 ω は粒子の角速度ベクトル、 η_s は母液の粘度、 e はEddingtonのイプシロンで3階のテンソル、 I は単位テンソル、 X^C, Y^C, Y^H は抵抗関数で粒子の幾何学形状のみに依存する量である⁽¹⁹⁾。

前報⁽¹⁰⁾と同様に、トルクの釣り合いの式に各トルクの表式を代入し、 $\omega \times e$ を評価することで、粒子の方向の時間変化 $\dot{e}$ を与える式が次のように得られる。

$$\begin{aligned} \dot{e} = & \Omega \times e + \frac{Y^H}{Y^C} \{ E \cdot e - (E : e e) e \} - \frac{kT}{\eta_s Y^C} \frac{\partial}{\partial e} (\ln \Psi) \\ & - \frac{\mu_0 m H}{\eta_s Y^C} (e \cdot h) e_m \end{aligned} \quad (5)$$

ただし、先に定義したように $m = |m|$ 、 $H = |H|$ 、 $h = H/H(= \delta_y)$ である。

Fig.1 Particle model and system of coordinates

4. 粒子の配向分布の方程式

図1に示したような座標系を用いると、粒子の方向が (θ, φ) から $(\theta+d\theta, \varphi+d\varphi)$ の微小範囲内に見出される確率が $\Psi(\theta, \varphi, t) \sin\theta d\theta d\varphi$ で表されるとき、この Ψ を配向分布関数と定義される。この配向分布関数を用いると、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、次のように書ける。

$$\langle G \rangle = \int_0^{2\pi} \int_0^\pi G(\theta, \varphi) \Psi(\theta, \varphi, t) \sin\theta d\theta d\varphi \quad (6)$$

式(6)は後に粘度や拡散係数の値を求めるときに用いられる。

配向分布関数 Ψ は、連続の式⁽¹⁹⁾と先に求めた ϵ の式(5)を用いると次のように得られる⁽¹⁰⁾。

$$\begin{aligned} \frac{\partial \Psi}{\partial t} = & 3 \frac{Y^H}{Y^C} (E:ee) \Psi - \left\{ \Omega \times e + \frac{Y^H}{Y^C} (E \cdot e) \right\} \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial e} \\ & + \frac{kT}{\eta_s Y^C} \left(\frac{\partial}{\partial e} \cdot \frac{\partial}{\partial e} \right) \Psi \\ & + \frac{\mu_0 m H}{\eta_s Y^C} \left\{ \Psi \frac{\partial}{\partial e} \cdot ((e \cdot h) e_m) + ((e \cdot h) e_m) \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial e} \right\} \end{aligned} \quad (7)$$

なお、式(7)において、 $D_r = kT/\eta_s Y^C$ を回転拡散係数という。

本研究で対象としている、ずり速度 $\dot{\gamma}$ の x 軸方向のせん断流、および、磁場が y 軸方向に印加されている場合には、式(7)は最終的に次のように表される。

$$\Lambda(\Psi) - Pe \Omega_s(\Psi) + \xi \Omega_{my}(\Psi) = 0 \quad (8)$$

この式の導出に際しては、粒子が軸対称粒子でアスペクト比 $r_p = l/d$ が $r_p \gg 1$ の場合 $Y^H/Y^C = 1$ となることを考慮している。なお、演算子 Λ 、 Ω_s は文献(19)に定義式が載っており、 Ω_{my} は次のように定義される。

$$\Omega_{my}(\Psi) = \frac{1}{\sqrt{1-S^2 S^2}} \left\{ (1-2S^2 S^2) \Psi + S C S^2 \frac{\partial}{\partial \theta} + S S C \frac{\partial}{S \partial \varphi} \right\} \Psi \quad (9)$$

式(8)に現れた無次元数 Pe, ξ は $Pe = \dot{\gamma}/D_r$ 、 $\xi = \mu_0 m H / kT$ のとおりである。ここに、 Pe はペクレ数と呼ばれ、回転ブラウン運動に対するせん断流の影響の大きさを、 ξ は回転ブラウン運動に対する磁気力の影響の大きさを表す無次元数である。

前報⁽¹⁰⁾と同様に、式(8)が正弦関数や余弦関数の無理数を含むなどかなり複雑な形なので、差分法による数値解析法により配向分布関数の解を求める。詳細は文献(10)を参照されたい。

5. 結果と考察

5・1 粒子の配向分布

粒子の配向分布を調べた結果を図2から図4に示す。図2はペクレ数が $Pe=1$ の場合、図3は $Pe=5$ の場合、図4は $Pe=20$ の場合の結果である。各図には、磁場の強さを $\xi=1, 5, 20$ の3通りに取った場合が示してある。また、図5は、 $\theta=90^\circ$ での配向分布関数の最大値を与える φ の値 φ_{max} を調べた結果である。以上

Fig.2 Orientational distribution function for $Pe=1$:

(a) $\xi=1$; (b) $\xi=5$; (c) $\xi=20$

の結果は、特に断らない限り、アスペクト比を $r_p=5$ とした場合の結果である。なお、せん断流が x 軸方向、磁場がせん断面に垂直な方向である y 軸方向に作用しているので、 $\theta=90^\circ$ 、 $\varphi=0^\circ$ に生じるピークが鋭いほど、磁気モーメントは磁場方向に配向し、粒子はせん断流方向により顕著に配向することを意味している。

図2は粒子の回転ブラウン運動を引き起こすランダム力とせん断流による粘性力の影響が同程度 ($Pe=1$) の場合の結果である。磁場の影響も同程度 ($\xi=1$) の図2(a)の場合、粒子は特に顕著な配向特性を示さず、熱力学的平衡状態に近い分布を示している。図2(b)や図2(c)のように磁場の強さが増すほど、すなわち、 ξ の値が大き

Fig.3 Orientational distribution function for $Pe=5$:

(a) $\xi=1$; (b) $\xi=5$; (c) $\xi=20$

Fig.4 Orientational distribution function for $Pe=20$:

(a) $\xi=1$; (b) $\xi=5$; (c) $\xi=20$

Fig.5 Angular Position ϕ_{max} giving rise to a maximum of the orientational distribution function at $\theta=90^\circ$

なるほど、粒子は流れ方向(磁気モーメントは磁場方向)により近い位置で顕著なピークが生じるようになる。せん断流と同方向に磁場を印加した前報⁽¹⁰⁾の結果と同様に、印加磁場が強い図2(c)の場合、粒子の方向が $\theta=90^\circ$ 付近のみに限定される一点集中型の分布とはならず、 $\phi=0^\circ, \theta=0\sim 180^\circ$ で大きな指向性を有する連続型の分布となっている。前報⁽¹⁰⁾で考察したことを本研究に当てはめて述べれば、このような強磁場での特徴的な分布は次のようにして生じる。すなわち、磁気モーメントは磁場方向(y軸方向)に強く拘束されるが、そのような拘束下でも、せん断流の影響が支配的でなければ、粒子はy軸まわりに自由に回転できる。

ずり速度を大きくした図3の場合($Pe=5$)、磁場が弱い $\xi=1$ のとき、せん断流の影響が現れ、 $\phi=23^\circ, \theta=90^\circ$ 付近にピークが生じるようになる。磁場を $\xi=20$ と非常に強くすると、磁場の影響がせん断流や回転ブラウン運動よりも圧倒的に支配的となるので、配向分布関数の最大値を与える ϕ_{max} の値も含めて、図2(c)に示した連続型の分布形状とほぼ一致するようになる。

図4はさらにずり速度を大きくした $Pe=20$ の結果である。図4(a)はせん断流の影響が磁場や回転ブラウン運動よりも圧倒的に支配的な場合であるので、 $\phi=17^\circ$ とかなり流れ方向に傾いた位置で顕著な鋭いピークが生じている。ただし、磁場による磁気モーメントの拘束はほとんどないので、磁性を有さない高分子の配向特性⁽²⁰⁾で見られるような一点集中型の配向分布となっている。磁場を $\xi=5, 20$ のように強くしていくと、ピークは流れ方向である $\phi=0^\circ, \theta=90^\circ$ により近い位置で生じるようになり、その分布形状も、一点集中型から、 $\theta=0\sim 180^\circ$ で大きな指向性を有する連続型の分布形状へと移行するようになる。このような分布形状となる理由は、図

2(c)のところですでに述べたように、磁気モーメントの磁場方向への拘束下でも粒子自体は磁場方向まわりに回転する自由度を有することに起因している。

5.2 前報の結果との比較検討 前報⁽¹⁰⁾の場合と今回の場合の配向分布関数の顕著な相違は、印加磁場方向の違いによる粒子配向の方向の相違であるが、それに起因して次のような相違が見て取れる。まず、磁場の影響が顕著になるほど、ピーク値が前報の場合の同条件の結果よりも小さくなることである。例えば、図4(c)の Ψ の最大値は $\Psi=0.3$ であるが、前報の場合は $\Psi=0.4$ である。しかも、前報の分布形状は、 $\theta=90^\circ$ から $\theta=0^\circ$ への変化に対して、なだらかに減小しているが、図4(c)の分布はほぼ一定の値で推移し、そのような顕著な減小は見られない。さらに、せん断流が支配的な場合において、配向分布関数のピーク値の現れる位置への磁場の影響の相違が見て取れる。例えば、図4(c)の場合、磁場の強さを非常に強くした場合に生じるであろう $\phi=0^\circ$ に非常に近い位置($\phi=4^\circ$)でピークが生じている。一方、前報の同条件の結果においては、磁場の強さを非常に強くした場合に生じるであろう $\phi=90^\circ$ よりもかなり離れた位置($\phi=64^\circ$)でピークが生じている。前報の結果⁽¹⁰⁾とのこれらの相違は、磁場を強くした環境下での粒子の配向の相違に起因している。すなわち、本設定条件下の強磁場中では、棒状粒子はせん断面内を回転することが可能であり、前報のようなせん断面に垂直な配向よりも、せん断流の影響を受け難くなっていることが大きな特徴である。

次に、磁気モーメントが粒子軸方向と一致する強磁性棒状粒子のx軸方向磁場の結果⁽⁴⁾と本結果との比較を行ってみる。なお、前報の粒子も、本研究と同様に、強磁場下ではせん断流方向に配向することに注意しなければならない。前報の粒子の場合、磁場が強くなると、棒状粒子はせん断流の方向から若干下向きの方角(ϕ が小さな負の値の方角)に強い一点集中型のピークを有する配向特性を示す。一方、本研究の場合には、磁場が強くなっても、棒状粒子は ϕ の小さな正の値の方角に連続型のピークを有する配向特性を示すのみで、決して ϕ の負の値の方角にピークを生じる配向特性とはならない。このような顕著な相違は、次項で述べるレオロジー特性の著しい相違となって現れる。

5.3 レオロジー特性 一連の研究⁽³⁻¹⁰⁾と同様に、粒子の磁性に起因する粘度に着目する。磁場と粒子との相互作用に基づくトルクに起因する応力テンソル τ^m は次のようにかける⁽¹⁹⁾。

$$\tau^m = -\frac{n}{2} \langle \mathbf{e} \cdot \mathbf{T}^m \rangle = -\frac{n}{2} \mu_0 m H \langle \mathbf{e} \cdot (\mathbf{e}_m \times \mathbf{h}) \rangle \quad (10)$$

ここに、 T^m は先に定義したように磁場に起因して粒子に作用するトルク、 n は粒子の数密度である。本研究の場合、せん断応力 τ_{yx}^m は次のように導ける。

$$\tau_{yx}^m = \frac{n}{2} \mu_0 m H \left\langle -\frac{S^2 s c}{\sqrt{C^2 s^2 + c^2}} \right\rangle \quad (11)$$

従って、粘度 η_{yx}^m の表式は $\eta_{yx}^m = \tau_{yx}^m / \dot{\gamma}$ の定義式より簡単に得られる。このせん断粘度 η_{yx}^m を母液の粘度 η_s で無次元化した粘度を η_{yx}^{m*} とし、 η_{yx}^{m*} をさらに nV_p で除した η_{yx}^M を評価する^(3-8,10)。この表式は次のようになる。

$$\eta_{yx}^M = \eta_{yx}^{m*} / nV_p = \frac{\xi}{2Pe} \cdot \frac{Y^C}{V_p} \left\langle -\frac{S^2 s c}{\sqrt{C^2 s^2 + c^2}} \right\rangle \quad (12)$$

ここに、 V_p は回転楕円体粒子の体積である。 Y^C/V_p は粒子のアスペクト比 r_p に依存する量であり、その表式は前報⁽¹⁰⁾に載っているのでこちらを参照されたい。

ペクレ数を $Pe=1, 5, 20$ の3通りに取った場合に対して、磁場の強さが粘度に及ぼす影響を調べた結果を図6に示す。前報⁽¹⁰⁾の場合、磁場の増加とともに、磁気力に基づく粘度は単調に著しく増大したが、粒子がせん断流の方向に配向しやすい本研究の場合、磁気力は粘度を増大させるのではなく減小させるという、非常に異なった結果を与えることがわかる。図6が示すように、粘度は磁場の増加とともに減小し、最小値を経て、ゼロへと漸近するようになる。このような特徴はペクレ数の値が小さい場合ほどより顕著に表れる。すなわち、ペクレ数が小さい場合ほどより大きな粘度減小を示している。以上のように、磁気力に基づく粘度が負になることが本研究の場合の大きな特徴である。

前項の最後で論じたように、磁気モーメントが粒子軸方向と一致する強磁性棒状粒子のx軸方向磁場の場合には、決して粘度が負になることはなく、粘度増加を与えた^(4,7)。このように、せん断流方向に粒子が配向しやすい場合でも、磁気力に基づく粘度が正の場合と負の場合に分かれるのは、粒子の配向分布に大きく依存している。先に指摘したように、前報^(4,7)の場合は、棒状粒子は、せん断流の方向から若干下方向(φ が小さな負の値の方向)に強い方向性(一点集中型)を有するので、磁気力に基づくトルクが必ずせん断流に抵抗するように作用する。すなわち、正の粘度を与える。一方、本研究の場合ように、一点集中型でない連続型の指向性を有し、しかも、 φ の小さな正の値の方向にその指向性を有する場合、せん断流に対して抵抗となるよりはせん断流を加速するように働き、その結果負の粘度を与えることになる。ペクレ数が小さいほど大きな負の粘度の与えるのは、次のように考えられる。棒状粒子が φ

の値が大きい方向(ただし $0 < \varphi < 90^\circ$)に配向すればするほど、大きな粘度減小を与える。一方、磁場が強くなればなるほど、粒子はせん断流の方向($\varphi=0$)に配向しやすくなる。このせん断流と磁場の影響の相殺関係で最小値を有する曲線となる。最小値がペクレ数が大きいほど小さな値を与えるのは、同じ磁場の強さの条件下では、ペクレ数の大きい場合ほどせん断流の影響が顕著に表れ、粒子はよりせん断流方向に近い方向($\varphi=0$)に配向し、流れ場への影響が減少するためである。

図7は、ペクレ数を $Pe=10$ として、粒子のアスペクト比が粘度に及ぼす影響を調べた結果であり、 $r_p=5, 10, 15$ の3通りの場合の結果が示してある。図7より、アスペクト比を大きくしても、粘度は負であり、磁場の増加とともに最小値を有する曲線となることは変わらない。アスペクト比が大きくなるほど、すなわち、細長い棒状粒子になるほど、粘度減小の効果が顕著に表れている。これはアスペクト比が大きい粒子ほどまわりの流体との相互作用が大きくなることから、容易に理解できることである。

Fig.6 Viscosity as a function of ξ

Fig.7 Influences of particle aspect ratio on viscosity for $Pe=10$

Fig.8 Influences of magnetic field strength on diffusion coefficients

粘度の結果の考察の最後として、次の点を指摘しておく。磁気力に基づく粘度は、本研究の場合には負になるけれども、母液や応力極⁽¹⁹⁾による寄与を加味した正味の粘度は負になることはなく、正の値を取る。また、粘度減少の絶対値は、前報⁽¹⁰⁾の粘度増加の値と比較して非常に小さいが、これは、本研究の場合、磁場がある程度強くなると、粒子の磁気モーメントを磁場方向にある程度一致させながら、ほぼ $\varphi=0$ 付近のせん断面内を主に回転するためである。このようなせん断面内の粒子の回転は、 $\varphi=90^\circ$ 付近の平面内で運動を行う前報⁽¹⁰⁾の場合と比較して、せん断流に与える影響という意味では、はるかにまわりの流体に与える影響は少ない。

なお、発生メカニズムは異なるが、強磁性球状粒子からなる磁性流体に交流磁場を印加すると、ある周波数領域で磁気力に基づく粘度が負になることが報告されている⁽²¹⁾。

5・4 拡散係数 前報⁽¹⁰⁾と同様に、表面改質技術への応用の観点から、粒子の磁場中および重力場中での移動を特徴付ける拡散係数を検討する。

回転楕円体粒子がブラウン運動せず、粒子軸方向に移動する場合の拡散係数を $D_{||}^T$ 、粒子軸に垂直な方向に移動する場合の拡散係数を $D_{\perp}^T$ とすれば、これらの表式は次のように表される⁽¹⁹⁾。

$$D_{||}^T = \frac{kT}{\eta_s} (X^A)^{-1}, \quad D_{\perp}^T = \frac{kT}{\eta_s} (Y^A)^{-1} \quad (13)$$

拡散係数を $kT/(6\pi\eta_s a) = l/2$ で無次元化した $D_{||}^{T*}, D_{\perp}^{T*}$ は、 X^A と Y^A の表式⁽¹⁹⁾を代入することで次のように書ける。

$$D_{||}^{T*} = \frac{3}{8} \cdot \frac{-2s + (1+s^2)L}{s^3}, \quad D_{\perp}^{T*} = \frac{3}{16} \cdot \frac{2s + (3s^2-1)L}{s^3} \quad (14)$$

ここに、 s と L は次のとおりである。

$$s = \sqrt{1 - 1/r_p^2}, \quad L = \ln \left(\frac{1+s}{1-s} \right) \quad (15)$$

前報⁽¹⁰⁾と同様に、本研究の場合も、棒状粒子が回転ブラウン運動しながら、 x 軸方向に沈降する場合を考える。 y 軸方向に磁場が作用し、ある配向分布を有しながら x 軸方向に沈降する場合の拡散係数 D_{ave}^{T*} は次のように書ける⁽¹⁹⁾。

$$D_{ave}^{T*} = (D_{||}^{T*} - D_{\perp}^{T*}) \langle (e \cdot \delta_x)^2 \rangle + D_{\perp}^{T*} \quad (16)$$

この式の $\langle \dots \rangle$ は配向分布関数による平均を意味する。もし磁場が作用せず、熱力の平衡状態の配向分布($\Psi=1/4\pi$)のときには、式(16)は $D_{eq}^{T*} = (D_{||}^{T*} + 2D_{\perp}^{T*})/3$ を与える。本研究の場合、 $Pe \rightarrow 0$ として、配向分布関数を求めて、この解を用いて式(16)の平均値を評価すれば、拡散係数 D_{ave}^{T*} を得ることができる。なお、以上の議論は回転ブラウン運動の特性時間が重力による沈降の特性時間より十分短いときに適用できることに注意しなければならない。

図8は式(16)より計算した拡散係数の結果である。 $\xi=0$ の場合、配向分布関数は平衡分布 $\Psi=1/4\pi$ なので、このときには D_{ave}^{T*} は D_{eq}^{T*} と一致することは前報⁽¹⁰⁾と同様である。磁場が強くなるに従って、粒子は x 軸方向に顕著に配向しやすくなるので、拡散係数は単調に増加するようになる。しかしながら、 $\xi=20$ のように、磁場の影響が回転ブラウン運動よりも圧倒的に支配的な場合でさえ、粒子軸を運動方向(x 軸方向)に平行にして移動する場合の拡散係数である $D_{||}^{T*}$ の値から大きく隔たっている。これは図4(c)などで見たように、強磁場下においては、粒子は磁気モーメントを磁場方向にほぼ一致させながら、 $\varphi=0$ 付近のせん断面内を自由に回転することが可能なため、運動方向に垂直な方向にも向きながら移動するためである。このことにより、大きな拡散係数の値を得ることができなくなる。すなわち、運動方向に移動しやすい配向と移動しにくい配向を同時に含んでしまうため、大きな拡散係数の値が得られなくなる。このことは磁場によって磁性棒状粒子の沈降特性を制御する上で重要な特性となる可能性がある。

6. 結 言

粒子軸に垂直な方向に磁気モーメントを有するヘマタイト粒子を想定した希積分散系を対象に、回転ブラウン運動を考慮した解析を行い、粒子の配向分布および粘度や拡散係数に及ぼす磁場の強さ、ずり速度、ラ

ンダム力の影響を詳細に検討した。得られた主たる結果を要約すると次のようになる。強磁場の環境下では、配向分関数は流れ方向に顕著なピークを有する分布となる。ただし、その方向付近にのみピークを示す一点集中型の分布ではなく、せん断面内にほぼ一様にピークの分布を有する連続型の分布を有する。これは、磁気モーメントを磁場方向へ揃えつつ、粒子自体はそのまわりに回転する自由度を有することに起因している。このようなせん断面内の粒子の回転運動に起因して、磁場に基づく粘度は正の値とはならず負の値を示すが、磁場の強さの増加とともに最小値を有する曲線で表される粘度減少の特性を示す。さらに、棒状粒子が沈降方向に平行になるように磁場を作用させた場合でも、運動方向に移動しやすい配向と移動しにくい配向を同時に含んでしまうため、大きな拡散係数の値が得られなくなる。

文 献

- (1) Bullough, W.A. (Ed.), *Electro-Rheological Fluids, Magneto-Rheological Suspensions and Associated Technology*, (1996), World Scientific.
- (2) Chrzanowska, A., Kroger, M., and Sellers, S., *Phys. Rev. E*, **60**(1999), 4226.
- (3) 佐藤, 機論, **67-653**, B(2001), 112.
- (4) 青島・佐藤・Coverdale・Chantrell, 化論, **27-6**, (2001), 799.
- (5) 青島・佐藤・Coverdale・Chantrell, 化論, **27-4**, (2001), 528.
- (6) 佐藤, 機論, **68-673**, B(2002), 2564.
- (7) 渡辺・青島・佐藤・間島, 機論, **70-691**, B(2004), 657.
- (8) 渡辺・青島・佐藤, 化論, **31-4**, (2005), 231.
- (9) 佐藤, 機論, **71-702**, B(2005), 487.
- (10) 佐藤・尾崎・石川・間島, 機論, **71-708**, B(2005), 2038.
- (11) Ozaki, M., Kratochvil, S., and Matijevic, E., *J. Colloid Inter. Sci.*, **102**, (1984), 146.
- (12) Ozaki, M., Ookoshi, N., and Matijevic, E., *J. Colloid Inter. Sci.*, **137**, (1990), 546.
- (13) Sugimoto, T., Itoh, H., and Mochida, T., *J. Colloid Inter. Sci.*, **205**, (1998), 42.
- (14) 尾崎, 横浜市立大学論叢自然科学系列, **47-1**, (1996), 19.
- (15) Ozaki, M., Senna, M., Koishi, M., and Honda, H., *Particles of Specific Functions*, in *Fine Particles* (edited by T. Sugimoto), pp. 662-682, (2000), Marcel Dekker.
- (16) 石川・尾崎, 第57回コロイドおよび界面化学討論会講演要旨集, (2004), 105.
- (17) Muench, G.J., Arais, S., and Matijevic, E., *J. Appl. Phys.*, **52**, (1981), 2943.
- (18) Raming, T.P., Winnubst, A.J.A., van Kats, C.M., and Philipse, A.P., *J. Colloid Inter. Sci.*, **249**, (2002), 346.
- (19) Satoh, A., *Introduction to Molecular-Microsimulation of Colloidal Dispersions*, (2003), Elsevier Science.
- (20) Bird, R.B., Curtiss, C.F., Armstrong, R.C., and Hassager, O., *Dynamics of Polymeric Liquids, Kinetic Theory (Dynamics of Polymer Liquids Vol. 2)*, 2nd Ed., pp. 138-143, (1987), Wiley-Interscience.
- (21) Shliomis, M.I., and Morozov, K.I., *Phys. Fluids*, **6**, (1994), 2855.