印加磁場が流れ場中にある強磁性棒状粒子の 配向分布に及ぼす影響*

渡 辺 知 規^{*1}

Orientational Distributions of Ferromagnetic Spherocylinder Particles Influenced by External Magnetic Field

Tomonori WATANABE^{*2}

^{*2} Graduate School of Science & Technology, Chiba University,
1-33 Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba-shi, Chiba, 263-8522 Japan

We have analyzed the time-dependent behaviors of the orientational distributions of a dilute colloidal dispersion composed of the ferromagnetic spherocylinder particles influenced by the external magnetic field. A basic equation is derived for the orientational distributions of the particles in steady two dimensional flow by using the perturbation expansion method. An exact solution of the basic equation is obtained theoretically by considering the inverse matrix composed of the functions for the solvable condition. By using the solution, the relevant statistical quantities for an ensemble of the particles are calculated. It is shown that the steady flow causes a distortion of the orientational distribution and can not bring about the steady state of the distribution without the external magnetic field. However, we find the external magnetic field can not always create the steady state of the distribution. We have derived the condition that the steady state of the distribution is made by the external magnetic field and the steady flow. In order to estimate the response of the particles for the magnetic field, the reference time is obtained from the rate of the convergence to the steady state.

Key Words: Diffusion, Magnetic Fluid, Cluster, Ferromagnetic Colloidal Dispersion, Spherocylinder, Orientational Distribution Function, Exact Solution

1. 緒 言

知能材料としての利用を目的として、強磁性コロイド分散系に関する研究が活発に行われている⁽¹⁾⁽²⁾。強磁性コロイド分散系とは、強磁性微粒子を母液に懸濁しコロイド状態とすることによって、印加した外部磁場に応答し、機能性を発揮する磁性流体がなす系のことである。この系の主な特徴は、外部磁場の下で粒子が凝集して巨大クラスターを形成することである⁽¹⁾⁻⁽³⁾。この巨大クラスターは、流れ場中では大きな抵抗となり、見かけの粘度の著しい増加をもたらす。流体工学の分野では、この外部磁場による粘度増加の特徴を応用し、粘度の制御が可能なダンパーの開発をはじめ、さまざまな工学的応用の試みがなされている⁽¹⁾⁽²⁾。

強磁性コロイド分散系の解析には、現在、分子動力学法をはじめとする種々の計算力学的手法が応用され、コロイド粒子の力学的挙動や凝集構造発生のメカニズ

ムについて次第に明らかになりつつある⁽³⁾。最近では、一端に正、他端に負の磁荷をもつ棒状のコロイド粒子を単純せん断流中に分散させた系に対し、定常状態での特性が詳しく調べられ、外部から印加した磁場が、コロイド粒子の配向分布とレオロジー特性に及ぼす影響が定性的に明らかにされている⁽⁴⁾⁻⁽⁷⁾。これらの研究をふまえ、強磁性コロイド分散系の工学的応用として、磁場による粒子の配向制御を行うためには、磁場に対する応答性として、系の時間挙動を明らかにし、さらに、磁場と流れ場が配向分布にもたらす影響を定量的に評価する必要がある。そこで、本研究では、強磁性棒状粒子からなるコロイド分散系での粒子の配向分布に磁場が及ぼす影響を時間を含めて解析的に明らかにすることを目的とする。

これまで、Kim らは、軸対称粒子についての配向挙動を明らかにするために、TPA (Tangent Plane Approximation) を用いた配向分布が満たす相似解の導出を試みている⁽⁸⁾。しかし、相似解を導出する際の条件式が非線形の微分方程式系になるために、Kim らの解析結果は、定常状態と微小時間挙動に限られたも

* 原稿受付 2006年9月26日。

*¹ 正員、千葉大学大学院自然科学研究科(〒263-8522 千葉市稲毛区弥生町1-33)。

E-mail: nabe@meneth.tn.chiba-u.ac.jp

のになっている。また、磁場の方向についても二次元流れ場がなす平面に垂直な方向に限定している。

本研究では、まず、支配方程式に対し、適切な変数変換と摂動展開を用いることにより、本研究での基礎方程式を導出する。この方程式の厳密解を得るためには、Kim らが相似解を導出する際に得た非線形の微分方程式系と同等の方程式系を解く必要がある。そこで、本研究では、条件式から導かれる行列の逆行列に着目することにより、可解条件としての微分方程式系を解き、基礎方程式の厳密解を導出する。これにより、解析的に、配向分布の特徴と時間挙動について定量的な評価を行う。また、磁場方向としては、二次元流れ場がなす平面に垂直な方向が支配的な条件のもと、任意の磁場方向に対して解析を行う。

2. 支配方程式

母液に懸濁された強磁性棒状粒子のモデルには、これまでの研究⁽⁴⁾⁻⁽⁷⁾と同様に、自由な回転が可能な、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 (図 1)。モデルでは、円柱部の長さを l 、直径を d とし、粒子のアスペクト比 r_p を、 $r_p \equiv l/d$ とする。また、磁荷 $\pm q$ は、それぞれの半球を形づくる球の中心点にあるものとする。このような棒状粒子は、球状粒子に比べ大きな磁気粘性効果が得られると期待され、活発に研究が行われている⁽⁹⁾。特に、近年では、粒子の大きさや磁気的性質を精密に制御した粒子の生成法が提案され、さまざまな大きさをもつ粒子の生成が可能になっている⁽⁹⁾。本研究では、粒子の長さのオーダーについては、典型的なものを想定し、 10^{-7}m 程度とする。

本研究では、希釈系の取り扱いについては、従来の研究⁽⁴⁾⁽⁵⁾に従い、希釈系を、コロイド粒子が、粒子同士のクーロン相互作用を無視できる程度に分散している系として定義し、粒子に作用するトルクには、粒子間相互作用に起因するトルクは考慮せず、印加磁場に起因する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} 、および、せん断流に起因して流体が粒子に作用するトルク T^{fl} のみを考慮するものとする。よって、流れ場中における粒子の回転運動は、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、以下のトルクのつりあい方程式によって得ることができる⁽⁴⁾。

$$0 = T^m + T^{\text{Br}} + T^{\text{fl}}. \quad (1)$$

ただし、各項は、

$$T^m = \mu_0 m \times H, \quad (2)$$

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

Fig. 1 Particle model and coordinate system.

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

であり、式中の各記号は以下で与えられる⁽⁴⁾⁽¹⁰⁾。 μ_0 は、真空の透磁率であり、磁気モーメント: m ($m = |m|$) は、 $m \equiv q l e$ で定義される量である。 k_B はボルツマン定数、 T は系の温度、 Ψ は粒子の配向分布関数である。また、 Ω と E は、流れ場の回転角速度ベクトルと変形速度テンソル、 ω 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、 ϵ は3階のテンソルであるエディントンのイプシロン、 I は単位テンソルである。 X^C 、 Y^C および Y^H は、抵抗関数で粒子の幾何学的形状のみに依存する量である⁽¹¹⁾。また、 H ($H = |H|$, $h \equiv H/H$) は、外部から印加される磁場である。

一方、粒子の配向分布関数 Ψ は、保存則、すなわち、連続の式:

$$\frac{\partial \Psi}{\partial t} = - \frac{\partial}{\partial e} \cdot (\dot{e} \Psi), \quad (5)$$

を満たす⁽⁴⁾。そこで、トルクのつりあい方程式 (1) から得られる $\dot{e}$ を代入し、整理すると配向分布関数が満たす方程式として、

$$\frac{\partial \Psi}{\partial t} = 3\rho (E : e e) \Psi - \{ \Omega \times e + \rho (E \cdot e) \} \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial e} + D_r \left(\frac{\partial}{\partial e} \cdot \frac{\partial}{\partial e} \right) \Psi + \frac{\mu_0 m H}{\eta_s Y^C} \left\{ 2(e \cdot h) \Psi - h \cdot \frac{\partial \Psi}{\partial e} \right\}, \quad (6)$$

を得ることができる。ただし、ここで、回転拡散係数 D_r を $D_r \equiv k_B T / (\eta_s Y^C)$ 、また、 $\rho \equiv Y^H / Y^C$ とした。

本研究では、系の基本的特性を解析的に調べるのが目的であるので、流れ場については、コロイド粒子が単純せん断流中にある場合についてのこれまでの研究結果⁽⁴⁾⁻⁽⁷⁾との対比を考慮し、二次元流れ場とする。また、磁場については、対称性による系の取り扱い易さから、磁場方向として、二次元流れ場がなす平面に垂直な方向が支配的であるとした場合での、任意の磁場方向に対して解析を行うことにする。具体的には、

直交座標系の基本ベクトルを $(\delta_x, \delta_y, \delta_z)$ とすると、粒子が存在する前の二次元流れ場の流速 $\mathbf{U} \equiv u\delta_x + v\delta_y$ 、回転角速度ベクトル $\mathbf{\Omega}$ および変形速度テンソル $\mathbf{E}$ を、

$$\begin{pmatrix} u \\ v \end{pmatrix} = \dot{\gamma} \begin{pmatrix} E_{11} & E_{12} - G_3 \\ E_{12} + G_3 & E_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ y \end{pmatrix}, \quad (7)$$

$$\mathbf{\Omega} = \dot{\gamma} \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ G_3 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{E} = \dot{\gamma} \begin{pmatrix} E_{11} & E_{12} & 0 \\ E_{12} & E_{22} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (8)$$

として与える。ただし、ここで、 $\dot{\gamma}$ は、ずり速度をあらわすものとし、 $-1 \leq G_3 \leq 1$ 、および、 $\text{Tr}(\mathbf{E}) = 0$ とする。また、磁場 $\mathbf{h}$ については、一般的な表式として、 $\mathbf{h} \equiv h_x\delta_x + h_y\delta_y + h_z\delta_z$ 、 $(h_x^2 + h_y^2 + h_z^2 = 1)$ と書くことにする（ただし、各成分間の関係については、次章の式 (24) で定める）。

以上の条件を式 (6) に代入すると、配向分布関数 Ψ が満たす方程式として、

$$\frac{1}{\dot{\gamma}} \frac{\partial \Psi}{\partial t} = \frac{1}{P_e} \Lambda(\Psi) - \Omega_s(\Psi) + \frac{1}{P_e} (\xi h_x) \Omega_{mx}(\Psi) + \frac{1}{P_e} (\xi h_y) \Omega_{my}(\Psi) + \frac{1}{P_e} (\xi h_z) \Omega_{mz}(\Psi), \quad (9)$$

を得ることができる。この方程式が、本研究での支配方程式になる。ただし、ここで、各項と記号は、

$$\Lambda(\Psi) := \frac{1}{S} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(S \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{S^2} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \varphi^2}, \quad (10)$$

$$\Omega_{mx}(\Psi) := 2Sc\Psi - Cc \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} + \frac{s}{S} \frac{\partial \Psi}{\partial \varphi}, \quad (11)$$

$$\Omega_{my}(\Psi) := 2Ss\Psi - Cs \frac{\partial \Psi}{\partial \theta} - \frac{c}{S} \frac{\partial \Psi}{\partial \varphi}, \quad (12)$$

$$\Omega_{mz}(\Psi) := 2C\Psi + S \frac{\partial \Psi}{\partial \theta}, \quad (13)$$

であり、

$$\Omega_s(\Psi) := \rho E_{12} \Omega_{E12} + \rho E_{11} \Omega_{E11} + \rho E_{22} \Omega_{E22} + G_3 \Omega_{G3}, \quad (14)$$

$$\Omega_{E12} := \frac{2sc}{S} \frac{\partial}{\partial \theta} (S^2 C\Psi) - 2 \frac{\partial}{\partial \varphi} (s^2 \Psi) + \frac{\partial}{\partial \varphi} \Psi, \quad (15)$$

$$\Omega_{E11} := \frac{c^2}{S} \frac{\partial}{\partial \theta} (S^2 C\Psi) - \frac{\partial}{\partial \varphi} (sc\Psi), \quad (16)$$

$$\Omega_{E22} := \frac{s^2}{S} \frac{\partial}{\partial \theta} (S^2 C\Psi) + \frac{\partial}{\partial \varphi} (sc\Psi), \quad (17)$$

$$\Omega_{G3} := \frac{\partial}{\partial \varphi} \Psi, \quad (18)$$

および、 $S \equiv \sin \theta$ 、 $C \equiv \cos \theta$ 、 $s \equiv \sin \varphi$ 、 $c \equiv \cos \varphi$ を意味する。また、 P_e 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表し $P_e \equiv \dot{\gamma}/D_r$ で与えられる。 ξ は、回転ブラウン運動に対する磁場の影響の大きさを表し、 $\xi \equiv \mu_0 mH/(k_B T)$ で与えられる。また、対象が棒状粒子であるので、アスペクト比を $r_p \gg 1$ とし、以下では $\rho (= Y^H/Y^C) \approx 1$ とする。

3. 摂動展開の方法

本研究では、支配方程式 (9) を、変数変換と摂動展開の方法を用いて直接的に解析することを試みる。摂動展開にあたっては、各項のバランスを適切にみきわめることが重要な問題となる。そのため、適切な変数変換と摂動展開を定めることが必要となる。本研究では、以下に示す変数変換と摂動パラメータ ε を用いた摂動展開を行う。この変換と展開の妥当性については、後の考察にて検討を行う。まず、変数変換 $(\theta, \varphi) \rightarrow (x, y)$;

$$\sin \theta = \sqrt{x^2 + y^2}, \quad \cos \theta = \sqrt{1 - x^2 - y^2}, \quad (19)$$

$$\sin \varphi = \frac{y}{\sqrt{x^2 + y^2}}, \quad \cos \varphi = \frac{x}{\sqrt{x^2 + y^2}}, \quad (20)$$

を行う。つぎに、摂動展開として、

$$x = \varepsilon \tilde{x}, \quad y = \varepsilon \tilde{y}, \quad t = \dot{\gamma}^{-1} \tilde{t}, \quad (21)$$

$$\Psi(x, y, t) = \Psi^{(0)}(\tilde{x}, \tilde{y}, t) + \varepsilon \Psi^{(1)}(\tilde{x}, \tilde{y}, t) + \dots, \quad (22)$$

$$P_e = \varepsilon^{-2} \tilde{P}_e, \quad \xi = \varepsilon^{-2} \tilde{\xi}, \quad (23)$$

$$h_x = \varepsilon \tilde{h}_x, \quad h_y = \varepsilon \tilde{h}_y, \quad h_z = \sqrt{1 - (h_x^2 + h_y^2)}, \quad (24)$$

を行う。ただし、ここでは、変換後の変数には、チルダをつけて表しているが、以後の式では、便宜上、チルダをとって表記するものとする。このような変数変換と摂動展開を行うと、摂動パラメータ ε の最低次数の式として、

$$\Psi_t^{(0)} = \frac{1}{P} (\Psi_{xx}^{(0)} + \Psi_{yy}^{(0)}) + (1 - \beta) M(x - \mu_x) \Psi_x^{(0)} + \tilde{G}(y - \mu_y) \Psi_y^{(0)} + \alpha \tilde{G}(x - \mu_x) \Psi_y^{(0)} + (1 + \beta) M(y - \mu_y) \Psi_y^{(0)} + 2M \Psi^{(0)}, \quad (25)$$

を得ることができる。ただし、式中の、 $\tilde{G}$ 、 α 、 β 、 M 、 μ_x 、および、 μ_y は以下によって与えるものとする。

$$\tilde{G} := G_3 - E_{12}, \quad \alpha := -(G_3 + E_{12})/(G_3 - E_{12}), \quad (26)$$

$$M := \xi/P_e, \quad \beta := E_{11}/(\xi/P_e), \quad (27)$$

$$\mu_x := \frac{\xi \{ (E_{12} - G_3) h_y P_e + h_x (\xi + E_{11} P_e) \}}{\xi^2 - (E_{11}^2 + E_{12}^2 - G_3^2) P_e^2}, \quad (28)$$

$$\mu_y := \frac{\xi \{ (E_{12} + G_3) h_x P_e + h_y (\xi - E_{11} P_e) \}}{\xi^2 - (E_{11}^2 + E_{12}^2 - G_3^2) P_e^2}. \quad (29)$$

以上のようにして得た式 (25) が本研究での基礎方程式である。次章では、式 (25) の厳密解を導出する。

4. 方程式の解

これまで、単純せん断流下での定常状態においては、ガラーキン法を応用した数値解析によって、ひとつのピークをもち、遠方では、零となる配向分布が存在することが知られている^{(4)~(7)}。このことを考慮し、方程式 (25) に対して、規格化した解を定めると、

$$\Psi^{(0)}(x, y, t) = \frac{\sqrt{B_{xx}B_{yy} - B_{xy}^2}}{2\pi} \exp \left[-\frac{1}{2} \left\{ B_{xx}(t)(x - \mu_x)^2 + 2B_{xy}(t)(x - \mu_x)(y - \mu_y) + B_{yy}(t)(y - \mu_y)^2 \right\} \right], \quad (30)$$

を得ることができる。ただし、ここで、時間についての関数 $B_{ij}(t)$ ($i, j = x, y$) は、任意の時間 t に対して、

$$B_{xx} \geq 0, \quad B_{yy} \geq 0, \quad B_{xx}B_{yy} \geq B_{xy}^2, \quad (31)$$

を満たすとする。また、関数 $B_{ij}(t)$ は、解 (30) が方程式 (25) を満たすように定まるものとする。この場合、方程式 (25) の可解条件は、 $B_{ij}(t)$ についての非線形連立方程式系で与えられ、直接解を求めることは、一般的に非常に難しい。事実、Kim らは、伸張流下において TPA を用いて方程式 (25) と同等の式を導出し、相似解を求めることを試みているが、条件として得られる非線形連立方程式系を厳密には解かず、微小時間に近似をした解析を行っている⁽⁸⁾。

そこで、本研究では、方程式 (25) の厳密解を得るために、関数 $B_{ij}(t)$ がつくる行列の逆行列に注目する。すなわち、行列 $B(t)$ と、逆行列 $B^{-1}(t)$ を、

$$B(t) \equiv \begin{pmatrix} B_{xx}(t) & B_{xy}(t) \\ B_{xy}(t) & B_{yy}(t) \end{pmatrix}, \quad B^{-1}(t) \equiv \begin{pmatrix} B_{xx}^{-1}(t) & B_{xy}^{-1}(t) \\ B_{xy}^{-1}(t) & B_{yy}^{-1}(t) \end{pmatrix}, \quad (32)$$

とし、関数 $B_{ij}(t)$ が満たす可解条件としての非線形連立方程式系に対し、 $B^{-1}(t)$ を用いた解析を行う。この方法を用いると、 $B^{-1}(t)$ について厳密に解くことができる。実際に、初期値を、 $B_{xx}^{-1}(0) = 0$ 、 $B_{xy}^{-1}(0) = 0$ および $B_{yy}^{-1}(0) = 0$ としたときの特解と行列式 $\det B^{-1}$ を以下に示す。

$$B_{xx}^{-1}(t) = \frac{(1/P_e)}{2AM(M^2 - A)} \left[A \left\{ 2M^2(1+\beta) + (1-\alpha)\tilde{G}^2 \right\} - e^{-2Mt} M^2 \left\{ 2A(1+\beta) + (1-\alpha)\tilde{G}^2 \right\} \cosh(2\sqrt{A}t) - \sqrt{A} e^{-2Mt} M \left\{ (1+\alpha)\tilde{G}^2 + 2\beta(1+\beta)M^2 \right\} \sinh(2\sqrt{A}t) + (1-\alpha)\tilde{G}^2 (M^2 - A) e^{-2Mt} \right], \quad (33)$$

$$B_{xy}^{-1}(t) = \frac{(\tilde{G}/P_e)}{2A(M^2 - A)} \left[A \left\{ \beta(1-\alpha) - (1+\alpha) \right\} + e^{-2Mt} \left\{ A(1+\alpha) - (1-\alpha)\beta M^2 \right\} \cosh(2\sqrt{A}t) - \sqrt{A} \left\{ \beta(1-\alpha) - (1+\alpha) \right\} e^{-2Mt} M \sinh(2\sqrt{A}t) + \beta(1-\alpha) (M^2 - A) e^{-2Mt} \right], \quad (34)$$

$$B_{yy}^{-1}(t) = \frac{(1/P_e)}{2AM(M^2 - A)} \left[A \left\{ 2M^2(1-\beta) - \alpha(1-\alpha)\tilde{G}^2 \right\} - e^{-2Mt} M^2 \left\{ 2A(1-\beta) - \alpha(1-\alpha)\tilde{G}^2 \right\} \cosh(2\sqrt{A}t) - \sqrt{A} e^{-2Mt} M \left\{ \alpha(1+\alpha)\tilde{G}^2 - 2\beta(1-\beta)M^2 \right\} \sinh(2\sqrt{A}t) - \alpha(1-\alpha)\tilde{G}^2 (M^2 - A) e^{-2Mt} \right], \quad (35)$$

$$\det B^{-1}(t) = \frac{(1/P_e)^2}{4AM^2(M^2 - A)} \left[2(1-\alpha)^2 e^{-2Mt} \tilde{G}^2 M^2 + A \left\{ (1-\alpha)^2 (1 - e^{-2Mt})^2 \tilde{G}^2 + 4(1 + e^{-4Mt}) M^2 \right\} - 2e^{-2Mt} M^2 \left\{ 4A + (1-\alpha)^2 \tilde{G}^2 \right\} \cosh(2\sqrt{A}t) \right]. \quad (36)$$

ただし、ここで、 A は、 $A := \beta^2 M^2 + \alpha \tilde{G}^2$ とした。よって、この逆行列 $B^{-1}(t)$ と、 $\det B(t) \cdot \det B^{-1}(t) = 1$ などの関係式を用いると、厳密解として、解 (30) をあらわに得ることができる。事実、解 (30) が上記の $B_{ij}^{-1}(t)$ のもとで、方程式 (25) を満たすことは、代入をして確かめることができる。

厳密解 (30) を用いると、さまざまな統計平均量を計算することができる。実際に、配向分布関数 $\Psi^{(0)}$ を用いた統計平均を、

$$\langle 1 \rangle^{(0)} := \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} dy 1 \cdot \Psi^{(0)}(t, x, y) = 1, \quad (37)$$

とし、代表的なものを計算すると、

$$\langle x \rangle^{(0)} = \mu_x, \quad \langle y \rangle^{(0)} = \mu_y, \quad (38)$$

$$\langle x^2 \rangle^{(0)} = \mu_x^2 + B_{xx}^{-1}(t), \quad (39)$$

$$\langle xy \rangle^{(0)} = \mu_x \mu_y + B_{xy}^{-1}(t), \quad (40)$$

$$\langle y^2 \rangle^{(0)} = \mu_y^2 + B_{yy}^{-1}(t), \quad (41)$$

となる。これらの量の特徴については、次章にて考察を行う。

5. 結果と考察

5.1 流れ場が粒子の配向分布に及ぼす影響 考察を行うにあたり、まず、配向分布の基本的特徴をおさえるために、磁場の影響が無い場合 ($\xi \rightarrow 0$) について考察を行う。つぎに、磁場を含めた分布についての議論を行うことにする。また、配向分布のピーク的位置 (μ_x, μ_y) は、分布形状には影響を及ぼさないので、便宜上、 $(\mu_x, \mu_y) = (0, 0)$ とする。以上のことをふまえ、まず、流れ場として、回転角速度ベクトル Ω と変形速度テンソル E が粒子の配向分布に及ぼす影響について考察を行う。流れ場が分布におよぼす影響は、方程式 (25) を見ると、方程式の係数 (α , $\tilde{G}$ および E_{11}) を通して現れていることがわかる。そこで、方程式の係数の代表的な例⁽¹²⁾として、以下の5つの場合：

1. $E_{11} = 0, G_3 = \tilde{G}, E_{12} = 0, (\alpha = -1)$.
2. $E_{11} = 0, G_3 = \tilde{G}/2, E_{12} = -\tilde{G}/2, (\alpha = 0)$.
3. $E_{11} = 0, G_3 = 0, E_{12} = -\tilde{G}, (\alpha = 1)$.
4. $E_{11} = 0, G_3 = E_{12}$.
5. $G_3 = 0, E_{12} = 0$.

について考える。すなわち、方程式の係数 (α , $\tilde{G}$ および E_{11}) のうち、場合 1 から 4 までは、 $E_{11} = 0$ とし

Table 1 Statistical quantities for the case 1 to 5. $Sh(x) := \sinh(2\sqrt{x^2}\dot{\gamma}t)$, $Ch(x) := \cosh(2\sqrt{x^2}\dot{\gamma}t)$.

	$\langle x^2 \rangle^{(0)}$	$\langle xy \rangle^{(0)}$	$\langle y^2 \rangle^{(0)}$
1	$2P_e^{-1}\dot{\gamma}t = 2D_r t$	0	$2P_e^{-1}\dot{\gamma}t = 2D_r t$
2	$(2\dot{\gamma}t)(3P_e)^{-1}(3+4E_{12}^2(\dot{\gamma}t)^2)$	$2P_e^{-1}E_{12}(\dot{\gamma}t)^2$	$2P_e^{-1}\dot{\gamma}t = 2D_r t$
3	$Sh(E_{12})\left(P_e\sqrt{E_{12}^2}\right)^{-1}$	$(Ch(E_{12})-1)(P_eE_{12})^{-1}$	$Sh(E_{12})\left(P_e\sqrt{E_{12}^2}\right)^{-1}$
4	$2P_e^{-1}\dot{\gamma}t = 2D_r t$	$2P_e^{-1}E_{12}(\dot{\gamma}t)^2$	$(2\dot{\gamma}t)(3P_e)^{-1}(3+4E_{12}^2(\dot{\gamma}t)^2)$
5	$\left(-E_{11}+E_{11}Ch(E_{11})+\sqrt{E_{11}^2}Sh(E_{11})\right)$ $\times(P_eE_{11}^2)^{-1}$	0	$\left(E_{11}-E_{11}Ch(E_{11})+\sqrt{E_{11}^2}Sh(E_{11})\right)$ $\times(P_eE_{11}^2)^{-1}$

て、 α と $\tilde{G}$ を変化させた場合であり、場合5は、 $\tilde{G}=0$ ($\alpha=0$)として、 E_{11} を与えた場合を意味する。これらの五つの場合について、統計平均量を計算した結果を、表1に示す。

まず、場合1では、 $\langle x^2 \rangle^{(0)}$ と $\langle y^2 \rangle^{(0)}$ のみが値を持ち、ともに同じ値であった。このことから、場合1では、流れ場は回転的性質を示し、配向分布は x 方向と y 方向ともに均等に拡散していくことがわかる。また、拡散の程度としては、二乗平均値が、Brown運動について知られているEinsteinの関係式に対応する形になっている。このことから、粒子は、Brown運動の典型的な挙動を示すことがわかる。

一方、場合2から5については、表1から、方程式の係数の違いによって、分布にゆがみが発生することがわかる。また、ゆがみの成長の仕方には場合によって、違いがあることもわかる。そこで、配向分布のゆがみの特徴を捉えるために、配向分布関数を極座標表示し、動径方向に積分した関数： $p(\phi, t)$ (ϕ は、極座標表示をした時の角度)。

$$p(\phi, t) := \int_0^\infty r dr \Psi^{(0)}(r \cos \phi, r \sin \phi, t) \\ = \frac{\sqrt{\det B^{-1}}}{2\pi \left(\cos^2 \phi B_{yy}^{-1} - 2 \sin \phi \cos \phi B_{xy}^{-1} + B_{xx}^{-1} \sin^2 \phi \right)}, \quad (42)$$

を定義し⁽¹²⁾、考察を行う。

図2から4に、 $p(\phi, t)$ の時間発展の様子を示す。時間は、それぞれ、 $\dot{\gamma}t = 0.5, 2, 4, 20$ とした。条件としては、図2は、場合2に対応するものとして、流れ場を $(E_{11}, G_3, E_{12}) = (0, -1/2, 1/2)$ 、図3は、場合3に対応するものとして、流れ場を $(E_{11}, G_3, E_{12}) = (0, 0, 1)$ 、図4は、場合5に対応するものとして、流れ場を $(E_{11}, G_3, E_{12}) = (1, 0, 0)$ とした。

まず、図2によると、配向分布は、時間の発展とともに、徐々にゆがみの方向をかえながら、最終的には一方向に成長をしていくことがわかる。このことから、場合2については、流れ場は、単純せん断としての性質を示しており、分布は、流れがつくる方向に徐々に

ゆがめられながら拡散していくことがわかる。以上の特徴は、場合4においても同様に見られた。

つぎに、図3によると、図2の傾向とは異なり、配向分布は、はじめから特定の一方方向のみが成長をし、その方向から $\pi/2$ ずれた方向では、逆に縮んでいくことがわかる。このことから、場合3については、流れ場は、単純せん断としての性質を示しており、分布は、流れによって伸張と圧縮をともなって拡散していくことがわかる。また、図4では、図3の場合と同様の傾向をもつことがわかる。よって、場合5では、流れ場は、 E_{11} によって伸張(圧縮)的性質を示し、分布は、流れによって伸張と圧縮をともなって拡散していくことがわかる。

以上のことから、方程式の係数による分類によって得られた流れ場の特徴は、回転角速度ベクトル Ω と変形速度テンソル E がもつ本来の意味と合致することがわかる。このことから本研究での解析手法の妥当性を確認することができる。さらに、流れ場がもたらす配向分布のゆがみの特徴として重要なことは、磁場がはたらかない場合($\xi \rightarrow 0$)では、配向分布は必ず拡散してしまうということである。事実、 $\lim_{t \rightarrow \infty} \lim_{\xi \rightarrow 0} \det B(t)^{-1} = \infty$ であるので、

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \lim_{\xi \rightarrow 0} \Psi^{(0)}(x, y, t) = 0, \quad (43)$$

となり、必ず分布は拡散する。すなわち、このことは、流れ場だけでは、粒子の配向を維持させることは不可能であり、配向分布を制御するためには、磁場が必要であることを意味している。

5.2 磁場が粒子の配向分布に及ぼす影響

前節では、流れ場が配向分布に及ぼす影響を調べ、流れ場だけでは、配向分布は拡散してしまうことを明らかにした。このことから、配向分布を維持するためには、磁場が必要であることがわかった。では、逆に、磁場が印加されれば、必ず粒子の配向は維持され、配向分布を制御することができるのであろうか?

まず、磁場 ξ が印加された場合での、配向分布形状の特徴を明らかにするために、二次形式の標準形を用

Fig. 2 Polar plots of the probabilities $p(\phi, t)$ for the case 2 ($\alpha = 0$) under the condition that $E_{11} = 0$, $G_3 = -1/2$ and $E_{12} = 1/2$. $\dot{\gamma}t = 0.5, 2, 4$ and 20 .

いて、配向分布関数を以下のように変形する.

$$\Psi^{(0)} = \frac{P_e}{\pi a(t)b(t)} \exp \left[-P_e \left(\frac{\hat{x}(t)^2}{a(t)^2} + \frac{\hat{y}(t)^2}{b(t)^2} \right) \right], \quad (44)$$

$$\hat{x}(t) := x \cos \psi(t) + y \sin \psi(t), \quad (45)$$

$$\hat{y}(t) := -x \sin \psi(t) + y \cos \psi(t), \quad (46)$$

$$Z(t) := \tan \psi(t). \quad (47)$$

ここで、 $a(t)$, $b(t)$, および、 $Z(t)$ は、

$$N(t) := (B_{xx}^{-1} + B_{yy}^{-1})^2 - 4 \det B^{-1}, \quad (48)$$

とおくと、具体的には、以下となる.

$$a(t) = \sqrt{P_e (B_{xx}^{-1} + B_{yy}^{-1} + \sqrt{N})}, \quad (49)$$

$$b(t) = \sqrt{P_e (B_{xx}^{-1} + B_{yy}^{-1} - \sqrt{N})}, \quad (50)$$

$$Z(t) = \frac{-(B_{xx}^{-1})^2 - (B_{yy}^{-1})^2 + \det B^{-1} + B_{xx}^{-1} \sqrt{N}}{B_{xy}^{-1} (B_{xx}^{-1} + B_{yy}^{-1} - \sqrt{N})}. \quad (51)$$

これまでの定常状態に対する数値解析結果では、磁場がはたらく場合には、配向分布は拡散しない⁽⁴⁾⁻⁽⁷⁾. 本研究での解析結果においても、 B^{-1} をみると、定常状態が存在することがわかる. 事実、定常状態について配向分布をもとめると、

$$a = \left\{ \frac{N_1 + \sqrt{N_1 N_2}}{2M(M^2 - E_{11}^2 - \alpha \tilde{G}^2)} \right\}^{1/2}, \quad (52)$$

$$b = \left\{ \frac{N_1 - \sqrt{N_1 N_2}}{2M(M^2 - E_{11}^2 - \alpha \tilde{G}^2)} \right\}^{1/2}, \quad (53)$$

$$Z = Z_1/Z_2, \quad (54)$$

となる. ただし、

$$N_1 := (1 - \alpha)^2 \tilde{G}^2 + 4M^2, \quad (55)$$

$$N_2 := 4E_{11}^2 + (1 + \alpha)^2 \tilde{G}^2, \quad (56)$$

$$Z_1 := \left\{ 2E_{11}^2 + 2E_{11}M + (1 + \alpha)\tilde{G}^2 \right\} \sqrt{N_1} - \left\{ 2M^2 + 2E_{11}M + (1 - \alpha)\tilde{G}^2 \right\} \sqrt{N_2}, \quad (57)$$

$$Z_2 := \tilde{G} \left\{ (1 + \alpha)M - (1 - \alpha)E_{11} \right\} \left(\sqrt{N_1} - \sqrt{N_2} \right), \quad (58)$$

Fig. 3 Polar plots of the probabilities $p(\phi, t)$ for the case 3 ($\alpha = 1$) under the condition that $E_{11} = 0$, $G_3 = 0$ and $E_{12} = 1$. $\dot{\gamma}t = 0.5, 2, 4$ and 20 .

Fig. 4 Polar plots of the probabilities $p(\phi, t)$ for the case 5 under the condition that $E_{11} = 1$, $G_3 = 0$ and $E_{12} = 0$. $\dot{\gamma}t = 0.5, 2, 4$ and 20 .

とした. また、配向分布のピークの大きさも厳密に求めることができ、

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \Psi^{(0)}(0, 0, t) = \frac{\xi}{2\pi} \left\{ \frac{\xi^2 - (E_{11}^2 + E_{12}^2 - G_3^2) P_e^2}{\xi^2 + G_3^2 P_e^2} \right\}^{1/2}, \quad (59)$$

となる.

図5に、単純せん断流の条件下: $(E_{11}, G, E_{12}, \xi, P_e) = (0, -1/2, 1/2, 70, 50)$ および $\dot{\gamma}t = 40$ での極座標表示した場合の配向分布関数を示す. 図5から、角度 ϕ について分布は均質にはならず、分布にゆがみが生じていることがわかる. この分布のゆがみは、定常状態に対する数値解析の結果⁽⁵⁾⁽⁷⁾と定性的に合致し、さらに、そのゆがみは、前節の結果をふまえると、流れ場に起因するものであることが分かる. また、分布のピーク値についても、この場合、

$$\lim_{t \rightarrow \infty} \Psi^{(0)}(0, 0, t) = \frac{490}{\sqrt{221}\pi}, \quad (60)$$

と具体的に求めることができ、この値も、数値解析によって示されている結果⁽⁵⁾とよい精度で合致する. よって、以上のことは、本解析結果が妥当であることを示しており、本解析結果が、粒子の配向分布を定性的にも定量的にもよく評価できるものであることがわかる.

では、上で求めたような定常状態は常に存在するのだろうか? 定常状態の配向分布を決定づける式(52)から式(58)をみると、物理的に意味のある定常状態が存在するための条件があることがわかる. すなわち、

Fig. 5 Polar plot of the orientational distribution function $\Psi^{(0)}(r \cos \phi, r \sin \phi, \dot{\gamma}t)$ under the condition that $E_{11} = 0$, $G_3 = -1/2$, $E_{12} = 1/2$, ($\alpha = 0$), $\xi = 70$, $P_e = 50$ and $\dot{\gamma}t = 40$.

定常状態を実現するための条件として、

$$M^2 - E_{11}^2 - \alpha \tilde{G}^2 > 0, \quad (61)$$

を導くことができる。具体的には、条件 (61) から得られる一葉双曲面 (図 6) がなす領域に、さらに、 $-1 \leq G_3 \leq 1$ であることを考慮すると、磁場と流れ場の大きさが、一葉双曲面と $-1 \leq G_3 \leq 1$ によってつくられる原点を含む領域を満たす場合に、粒子の配向が維持されることがわかる。このことは、言い換えると、磁場を印加したとしても、流れ場の大きさによっては、粒子の配向が維持されない場合が存在することを意味している。実際に、配向が維持されない条件として、磁場と流れ場がつくる一葉双曲面がなす領域を示すと、

$$\left(\frac{E_{11}}{\xi/P_e}\right)^2 + \left(\frac{E_{12}}{\xi/P_e}\right)^2 - \left(\frac{G_3}{\xi/P_e}\right)^2 \geq 1, \quad (62)$$

となる。ここで、条件 (62) を物理的に解釈するために、一葉双曲面をなす各軸に着目すると、たとえば、

$$\frac{G_3}{\xi/P_e} = \frac{\eta_s \dot{\gamma}^C}{\mu_0 m H} \Omega_3, \quad (\Omega_3 := \dot{\gamma} G_3), \quad (63)$$

となることなどから、各軸は、流れ場の各成分と磁場との割合から成っていることがわかる。したがって、条件 (62) は、磁場に対し、流れ場の大きさと成分がともに支配的になる場合には、磁場によって粒子の配向を維持できないことを意味している。

実際に、磁場を印加したにもかかわらず配向分布が拡散することを確認するために、条件 (62) を満たす例を、図 7 に示す。図 7 では、図 5 の単純せん断流の条件において E_{12} のみを変更した条件下 ($E_{11}, G_3, E_{12}, \xi, P_e$) = (0, -1/2, 3/2, 70, 50) での配向分布関数を示す。時間としては、 $\dot{\gamma}t = 0.5, 4, 20$ とした。図 7 から、磁場が印加されているにもかかわらず、 E_{12} の値が 1/2 から 3/2 になるだけで、配向分布が拡散する様子がわかる。

以上のことから、磁場を印加したとしても必ずしも

Fig. 6 Hyperboloid of one sheet for the condition.

配向するとは限らず、定常状態を実現するためには、条件 (61) を満たす必要があることが明らかになった。

最後に、印加した磁場に対する粒子配向の応答性について考察を行う。そのため、磁場が印加された場合において、分布のピークの大きさが定常状態に至るまでの時間を考える。そこで、分布のピークの大きさを決定する量である行列式 $\det B^{-1}$ に着目する。行列式 $\det B^{-1}$ の収束にかかわる因子として、式 (36) 中の、

$$\exp \left[-2 \left(\xi/P_e - \sqrt{E_{11}^2 + E_{12}^2 - G_3^2} \right) \dot{\gamma}t \right],$$

に注目すると、定常状態に至るまでの時間を評価する量として、

$$t_s \sim \left[2 \dot{\gamma} \left(\xi/P_e - \sqrt{E_{11}^2 + E_{12}^2 - G_3^2} \right) \right]^{-1}, \quad (64)$$

を得ることができる。この評価量は、磁場と流れ場の大きさによって決定される量であり、適切な値を得るためには、粒子が配向するための条件 (61) を満たしている必要があることがわかる。このことは、この評価量が、整合性のある量であることを示しているだけでなく、粒子が配向するための条件をどの程度満たしているかの指標を意味していることもわかる。実際に、図 5 と図 7 の場合について算出をすると、図 5 の場合では、 $\dot{\gamma}t_s = 5/14$ 、となり正の値を示すのに対し、図 7 の場合では、 $\dot{\gamma}t_s = -5/(10\sqrt{2} - 14)$ となり負の値を示し、不適であることがわかる。また、磁場に対する応答性を見るために、図 2 を参考にして、配向分布のゆがみの時間変化に着目すると、図 5 では、磁場の影響により、ゆがみは成長しつづけることはなく、ゆがみが $\dot{\gamma}t \approx \dot{\gamma}t_s$ に達したときに、分布が定常状態に至っていることがわかる。

6. 結 言

本研究では、棒状の強磁性微粒子を母液に懸濁した希釈なコロイド分散系を対象にして、磁場および二次元流れ場中における粒子の配向分布を理論的に検討した。特に、流れ場がなす平面に垂直な方向に磁場が支

Fig. 7 Orientational distribution function $\Psi^{(0)}$ for $E_{11} = 0$, $G_3 = -1/2$, $E_{12} = 3/2$, $\xi = 70$ and $P_e = 50$. (a) $\dot{\gamma}t = 0.5$, (b) $\dot{\gamma}t = 4$, (c) $\dot{\gamma}t = 20$.

配的である場合に着目し、磁場が任意の方向に与えられた場合に対して、配向分布関数が満たす支配方程式に、適切な変数変換と摂動展開を与えることにより、時間を含む基礎方程式を導出する方法を示した。この方法によって得た基礎方程式に対し、可解条件から得られる関数がつくる行列の逆行列に着目することにより、厳密解を導いた。実際に、この厳密解を用いて、配向分布関数を用いた統計平均量を算出した。さらに、解析的に、配向分布の特徴と時間挙動についての定量的評価を行った。流れ場が配向分布に及ぼす影響として、流れ場がもたらす、配向分布のゆがみの特徴を明らかにし、磁場が働かない場合は配向分布は必ず拡散してしまうことを示した。しかし、たとえ、磁場を印加したとしても必ずしも配向分布の定常状態を実現できるとは限らないことも解析的に示し、実際に定常状態を実現するための条件が、磁場と流れ場の大きさか

らなる一葉双曲面がなす領域によって与えられることを示した。最後に、印加した磁場に対する配向の応答性として、定常状態に収束する速さに関する評価量を導出した。

本研究の一部は、文部科学省科学研究費の援助を受けてなされたことを記し、感謝の意を表す。

文 献

- (1) For example; Bullough, W. A. ed., *Electro-Rheological Fluids, Magneto-Rheological Suspensions and Associated Technology*, (1996), World Scientific, and references therein.
- (2) Rosensweig, R.E., *Ferrohydrodynamics*, (1985), Cambridge University Press.
- (3) Aoshima, M. et al., Two-Dimensional Monte Carlo Simulations of a Colloidal Dispersion Composed of Polydisperse Ferromagnetic Particles in an Applied Magnetic Field, *Kagaku Kogaku Ronbunshu*, Vol.30, (2004), pp.771-777.
- (4) Satoh, A., Rheological Properties and Orientational Distributions of Dilute Ferromagnetic Spherocylinder Particle Dispersions, *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol.234, (2001), pp.425-433.
- (5) Aoshima, M. et al., Rheological Properties and Orientational Distributions of Dilute Ferromagnetic Spherocylinder Particle Dispersions (PartII. Analysis for the Two Typical Magnetic Field Directions), *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol.253, (2002), pp.455-464.
- (6) Satoh, A., Rheological Properties and Particle Behaviors of a Nondilute Colloidal Dispersion Composed of Ferromagnetic Spherocylinder Particles subjected to a Simple Shear Flow (Analysis by Means of Mean-Field Approximation), *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol.262, (2003), pp.263-273.
- (7) Watanabe, T. et al., Rheological Properties and Particle Behaviors of a Nondilute Colloidal Dispersion composed of Ferromagnetic Spherocylinder Particles subjected to a Simple Shear Flow (Analysis by Means of Mean-field Approximation for the Two Typical External Magnetic Field Directions), *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol.302, (2006), pp.347-355.
- (8) Kim, S. & Lawrence, C., Similarity solutions for the orientation distribution function and rheological properties of suspensions of axisymmetric particles with external couples, *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, Vol.24, (1987), pp.297-310.
- (9) Itoh, H. and Sugimoto, T., Systematic control of size, shape, structure, and magnetic properties of uniform magnetite and maghemite particles, *Journal of Colloid and Interface Science*, Vol.265, (2003), pp.283-295.
- (10) Brenner, H., Rheology of a Dilute Suspension of Axisymmetric Brownian Particles, *International Journal of Multiphase Flow*, Vol.1, (1974), pp.195-341.
- (11) Kim, S. and Karrila, S.J., *Microhydrodynamics*, (2005), pp.61-65, Dover Publications, Inc.
- (12) Foister, R. T. & Van De Ven, T.G.M., Diffusion of Brownian particles in shear flows, *Journal of Fluid Mechanics*, Vol.96, (1980), pp.105-132.