格子ボルツマン法の多粒子分散系への適用*

佐藤 明^{*1}, Roy W. CHANTRELL^{*2}

Application of the Lattice Boltzmann Method to Many Particle Dispersions

Akira SATOH^{*3} and Roy W. CHANTRELL^{*3} Faculty of Systems Science and Technology, Akita Prefectural University,
84-4 Ebinokuchi, Tsuchiya-aza, Yuri-honjo-shi, Akita, 015-0055 Japan

We have discussed the feasibility of the lattice Boltzmann method as a simulation technique with multi-body hydrodynamic interactions for many particle dispersions, by considering aggregation phenomena in a two-dimensional suspension composed of magnetic particles. The results obtained here are summarized as follows. The density ratio between magnetic particles and the ambient liquid does not significantly influence the cluster formation. If relatively coarse lattices are used, physically reasonable aggregate structures can be obtained, but if fine lattices are adopted, the particle Brownian motion cannot be activated properly, which causes invalid aggregate formation of particles. We may conclude that, if relatively coarse lattice systems are used, the translational and rotational Brownian motion of particles is reasonably activated, but if fine lattice system are adopted, the lattice Boltzmann method cannot give rise to physically reasonable results.

Key Words: Lattice Boltzmann Method, BGK Collision Model, Particle Dispersions, Boundary Conditions, Aggregation Phenomena, Pair Correlation Function

1. 緒 言

高分子溶液⁽¹⁾や微粒子が分散した粒子サスペンション系^(2,3)を対象とした場合, 高分子や懸濁粒子の多体流体力学的な相互作用を考慮したシミュレーションを行うことは現在でもかなり困難である。これは溶媒分子と高分子や懸濁粒子の運動の特性時間の著しい相違に主に基づいている。溶媒分子の特性時間ははるかに短いので, 分子動力学法^(4,5)を用いる場合には, シミュレーションの時間きざみを分子の特性時間に合わせる必要があるので, 高分子や懸濁粒子の運動を追跡することはほぼ不可能になる。従って, 溶媒分子を一樣流体と見なし, 高分子や微粒子の運動方程式に組み込む方法が用いられる。これがブラウン動力学法^(3,4)であり, この場合, 流れ場を解くことはできず, 単純せん断流や伸張流などの与えられた線形流れ場での微粒子などの挙動を解明することになる⁽³⁾。固体球状粒子などの単純な微粒子のサスペンションでは, 多体流体力学的な相互作用を考慮したブラウン動力学シミュレーションが可能であるが⁽³⁾, 棒状粒子などの非球状粒子分散系のシミュレーションは非常に困難となる。いずれにしても, この方法では

流れ場と粒子の挙動を同時に解くことは基本的に不可能である。

流体の流れ場と粒子の挙動を同時に追跡する従来の方法として, まわりの流体を連続体として Navier-Stokes 方程式を解き, 粒子まわりの流れ場の解から粒子に作用する力とトルクを計算し, 粒子の運動を追跡する方法がある⁽⁶⁻⁸⁾。しかしながら, この方法では, 粒子表面でのすべり無しの条件を満足させること, 粒子に作用する力およびトルクを流れ場の解から計算すること, ならびに, 粒子のブラウン運動の誘起に関して, 非常に大きな難点があると言わざるを得ない。

一方, 溶媒分子をある程度一まとめにして, その仮想流体粒子の運動の特性時間が懸濁粒子のそれと同程度にする方法も考えられている。代表的な例は散逸粒子動力学法⁽⁹⁻¹³⁾で, この方法の場合, このような仮想流体粒子を散逸粒子と呼び, 散逸粒子同士は互いに運動量を交換しながら近距離オーダーの斥力で相互作用し, ブラウン運動と類似のランダム運動を行う。

仮想流体粒子の概念を用いるもう一つの代表的な方法は格子ボルツマン法^(14,15)であり, 散逸粒子動力学法との大きな違いは, 格子ボルツマン法では, 仮想流体粒子は与えられた速度で格子点上を移動し, 各格子点での仮想流体粒子の粒子分布関数を求めるというもので, 仮想流体粒子の速度を直接解くというものではない。このような格子ボルツマン法は連続体の解析法として提案さ

* 原稿受付 2009年2月23日。

^{*1} 正員, 秋田県立大学システム科学技術研究科(〒015-0055 由利本荘市土谷字海老ノ口84-4)。^{*2} Physics Department, The University of York (Heslington, York YO10 5DD, UK)。

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

れ発展してきたが、粒子サスペンション系の場合、仮想流体粒子の運動を介して懸濁粒子同士の流体力学的相相互作用が実現できることが大きな特徴である。ただし、懸濁粒子のブラウン運動が物理的に十分妥当なレベルで誘起されるかどうか重要な問題である。

本研究では、粒子の多体流体力学的相互作用を考慮したシミュレーション法としての格子ボルツマン法の可能性を詳細に検討することを目的とする。具体的には、熱力学的平衡状態にある磁性粒子からなるコロイド分散系の凝集現象を取り上げ、微粒子のブラウン運動が物理的に妥当な形で誘起されるかを、用いる格子の粗さや仮想粒子と懸濁粒子の密度比などを種々に変えて検討する。結果の妥当性は、モンテカルロ法やブラウン動力学法で得た結果と比較することで行う。

2. 格子ボルツマン法

2・1 BGK 格子ボルツマン法

格子ボルツマン法 格子ボルツマン法では、シミュレーション領域を図1(a)に示すように格子状に見立て、仮想流体粒子が移動する場合必ず格子点から格子点へと移動するようにする。本研究では、2次元の多粒子分散系の凝集現象を対象とするので、図1(b)に示すD2Q9モデル^(14,15)を用いることにする。すなわち、仮想流体粒子は8通りの速度を持って近接格子点へ移動することが可能であり、静止状態も含めれば、 $\alpha=0, 1, \dots, 8$ の9通りの速度が可能である。格子ボルツマン法における基礎方程式で最も重要な項は仮想流体粒子の衝突処理の項である。この処理法によっていくつもの基礎方程式が存在するが、希薄気体のボルツマン法でも有名なBGKモデルを採用したBGK格子ボルツマン法をここでは採用する。 α 方向の粒子分布関数は、反対方向の隣接格子点の α 方向の分布関数にのみ依存し、他の格子点の分布関数には依存しない。任意の格子点の位置ベクトルを $\mathbf{r}$ とし、時間 t における α 方向の粒子分布関数を $f_\alpha(\mathbf{r}, t)$ とすると、 Δt 時間後の粒子分布関数 $f_\alpha(\mathbf{r} + \mathbf{c}_\alpha \Delta t, t + \Delta t)$ は次式から求まる^(14,15)。

Fig.1 D2Q9 Model for Two-dimensional Lattice Boltzmann Simulations: (a) Lattice Model, and (b) Unit Cell for D2Q9 Model

$$\left. \begin{aligned} f_\alpha(\mathbf{r} + \mathbf{c}_\alpha \Delta t, t + \Delta t) &= \tilde{f}_\alpha(\mathbf{r}, t) \\ \tilde{f}_\alpha(\mathbf{r}, t) &= f_\alpha(\mathbf{r}, t) + \frac{1}{\tau} \{ f_\alpha^{(0)}(\mathbf{r}, t) - f_\alpha(\mathbf{r}, t) \} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

ここに、 τ は衝突の緩和時間であり、 $f_\alpha^{(0)}$ は平衡分布で、その点における巨視的な流体速度を $\mathbf{u}$ 、密度を ρ とすれば、次のようになる。

$$f_\alpha^{(0)} = \rho w_\alpha \left\{ 1 + 3 \frac{\mathbf{c}_\alpha \cdot \mathbf{u}}{c^2} - \frac{3u^2}{2c^2} + \frac{9}{2} \frac{(\mathbf{c}_\alpha \cdot \mathbf{u})^2}{c^4} \right\} \quad (2)$$

上式で、 w_α は重み係数、 $\mathbf{c}_\alpha$ は格子速度でD2Q9モデルでは次のようになる。

$$w_\alpha = \begin{cases} 4/9 & \text{for } \alpha=0 \\ 1/9 & \text{for } \alpha=1,2,3,4 \\ 1/36 & \text{for } \alpha=5,6,7,8 \end{cases} \quad \left| \mathbf{c}_\alpha \right| = \begin{cases} 0 & \text{for } \alpha=0 \\ c & \text{for } \alpha=1,2,3,4 \\ \sqrt{2}c & \text{for } \alpha=5,6,7,8 \end{cases} \quad (3)$$

この式において、 c は格子点間の移動速度で、単位格子の一辺の長さを Δx 、時間きざみを Δt とすれば、 $c = \Delta x / \Delta t$ である。もし、各格子点における粒子分布関数 f_α ($\alpha=0, 1, 2, \dots, 8$)が得られているなら、巨視的な密度と運動量が次式から評価できる。

$$\rho(\mathbf{r}, t) = \sum_{\alpha=0}^8 f_\alpha(\mathbf{r}, t), \quad \rho(\mathbf{r}, t) \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\alpha=0}^8 f_\alpha(\mathbf{r}, t) \mathbf{c}_\alpha \quad (4)$$

2・2 境界条件

取り扱うべき境界面は、領域境界面と粒子表面上の境界面である。本研究の場合、熱力学的平衡状態にある2次元系を対象としているので、分子動力学法で用いられる周期境界条件^(4,5)を用いることができる。すなわち、図1(a)を用いると、任意の時間 t において、例えば、左側の境界での粒子分布関数 $f_\alpha(x, y, t)|_{\text{left}}$ ($\alpha=0, 1, 2, \dots, 8$)が右側の境界面での粒子分布関数 $f_\alpha(x, y, t)|_{\text{right}}$ に等しいとする。同様の処理を上下の境界面で行う。

次に最も重要な粒子表面上の処理法について示す。前報⁽¹⁸⁾では、多粒子分散系の境界モデルとして有用と思われるいくつかの境界条件、すなわち、YLMS法⁽¹⁶⁾とBFL法⁽¹⁷⁾を取り上げ、さらに、平衡線形YLMS法⁽¹⁸⁾を提案して検討を行った。この結果、多粒子分散系で有利と思われる平衡線形YLMS法の有用性が明らかになった。従って、本研究ではこの平衡線形YLMS法を粒子との境界モデルとして採用することにする。

Fig.2 Equilibrium Linear Binder Model

図2を用いて、格子点上のある方向の粒子分布関数について考える(図2の場合、 $\alpha=2$ の方向)。図中の r_w は粒子表面上の点、その隣の粒子内の点を r_p 、流体側の点を r_l 、その隣の格子点を r_l とすれば、点 r_l の右側の格子点が物体内部になってしまうので、 $f_2(r_l, t+\Delta t)$ の値が式(1)からは求まらない。もし、 r_w の位置での粒子分布関数 $f_2(r_w, t+\Delta t)$ が既知であるとするならば、 r_l の位置での $f_2(r_l, t+\Delta t)$ を用いて、 r_l の位置での粒子分布関数 $f_2(r_l, t+\Delta t)$ が、直線を用いた内挿法により次のように得られる。

$$f_2(r_l, t+\Delta t) = \frac{\Delta_w}{1+\Delta_w} f_2(r_l, t+\Delta t) + \frac{1}{1+\Delta_w} \times f_2(r_w, t+\Delta t) \quad (5)$$

ここに、 $\Delta_w = |r_l - r_w|/|r_l - r_p|$ である。図2の場合、 $\alpha=1$ に対する $\bar{\alpha}=2$ ($\alpha=1$ の反対方向)を対象としたものであるが、境界をまたぐ任意の方向 α に対する $\bar{\alpha}$ 方向に関し、式(5)がそのまま成り立つ。さて、式(5)より $f_2(r_l, t+\Delta t)$ を求めるためには、 $f_2(r_w, t+\Delta t)$ が必要であるが、平衡線形 YLMS 法では、 $f_2(r_w, t+\Delta t)$ として式(2)で示した平衡分布を用いる。

2・3 粒子に作用する力とトルク いま、粒子のすぐ外側にある任意の格子点 r_l^{cyl} に着目すると、 $\alpha=\alpha_l^{cyl}$ 方向の隣の格子点が粒子内部にあるとする。時間 t において粒子に向かう運動量は $c_{\alpha_l^{cyl}} \tilde{f}_{\alpha_l^{cyl}}(r_l^{cyl}, t) \Delta x \Delta y$ であり、時間 $(t+\Delta t)$ において粒子と衝突後の運動量は $-c_{\alpha_l^{cyl}} \tilde{f}_{\alpha_l^{cyl}}(r_l^{cyl}, t+\Delta t) \Delta x \Delta y$ である。運動量の変化は力積 $F_{\alpha_l^{cyl}} \Delta t$ に等しいので、この場合に粒子に作用する力 $F_{\alpha_l^{cyl}}$ は次のように得られる。

$$F_{\alpha_l^{cyl}} = \{c_{\alpha_l^{cyl}} \tilde{f}_{\alpha_l^{cyl}}(r_l^{cyl}, t) \Delta x \Delta y + c_{\alpha_l^{cyl}} \tilde{f}_{\alpha_l^{cyl}}(r_l^{cyl}, t+\Delta t) \Delta x \Delta y\} / \Delta t \quad (6)$$

同様に、粒子に作用するトルク $T_{\alpha_l^{cyl}}$ は次のように書ける。

$$T_{\alpha_l^{cyl}} = (r_w - r_c) \times \left\{ c_{\alpha_l^{cyl}} \tilde{f}_{\alpha_l^{cyl}}(r_l^{cyl}, t) \Delta x \Delta y + c_{\alpha_l^{cyl}} \tilde{f}_{\alpha_l^{cyl}}(r_l^{cyl}, t+\Delta t) \Delta x \Delta y \right\} / \Delta t \quad (7)$$

ここに、 r_c は粒子の重心の位置ベクトル、 r_w は流体内の格子点 r_l^{cyl} から α 方向に延ばした直線上の粒子表面の位置ベクトルである。また、 α に関する和は、物体表面をまたぐ方向のみを対象とする。

ゆえに、流体が粒子 i に作用する力 $F_i^{(lnc)}$ および粒子の重心まわりのトルク $T_i^{(lnc)}$ は、粒子 i と相互作用するすべての近接格子点での和を取り、次のように得られる。

$$F_i^{(lnc)} = \sum_l \sum_{\alpha_l^{cyl}} F_{\alpha_l^{cyl}}, \quad T_i^{(lnc)} = \sum_l \sum_{\alpha_l^{cyl}} T_{\alpha_l^{cyl}} \quad (8)$$

3. 多粒子分散系の格子ボルツマン・シミュレーション

3・1 磁性粒子モデル

磁性粒子のモデルとしては、中心に磁気双極子を有し、その表面を界面活性剤によって一様に被覆された球状粒子を考える。粒子固体部の直径を D 、界面活性剤層の厚さを δ とすれば、同一径を有するこのような粒子 i, j 間の磁気的な相互作用のエネルギー $u_{ij}^{(m)}$ 、粒子 i と印加磁場 H ($H=|H|$)との相互作用のエネルギー $u_i^{(H)}$ 、および、界面活性剤層の重量に起因する粒子間相互作用のエネルギー $u_{ij}^{(v)}$ は、文献(3)に書かれているとおりである。これらのエネルギーの式より、粒子間磁気力と印加磁場および界面活性剤による粒子 i に作用する力とトルクが次のように得られる。

$$F_{ij}^{(m)} = -kT\lambda \frac{3}{D(r_{ij}/D)^4} \left[-(n_i \cdot n_j) t_{ij} + 5(n_i \cdot t_{ij}) \times (n_j \cdot t_{ij}) t_{ij} - \{(n_j \cdot t_{ij}) n_i + (n_i \cdot t_{ij}) n_j\} \right] \quad (9)$$

$$F_{ij}^{(v)} = \frac{kT}{\delta} \lambda_v t_{ij} \ln(D_1/r_{ij}) \quad \text{for } D \leq r_{ij} \leq D_1 \quad (10)$$

$$T_{ij}^{(m)} = -kT\lambda \frac{1}{(r_{ij}/D)^3} \{n_i \times n_j - 3(n_j \cdot t_{ij}) n_i \times t_{ij}\} \quad (11)$$

$$T_i^{(H)} = kT\xi n_i \times h \quad (12)$$

ここに、 $F_{ij}^{(m)}$ は粒子 j が粒子 i に作用する磁気力、 $F_{ij}^{(v)}$ は粒子 j との界面活性剤の重なりにより生じる斥力、 $T_{ij}^{(m)}$ は粒子 j が磁気力によって粒子 i に作用するトルク、 $T_i^{(H)}$ は磁気モーメントが印加磁場の方向からずれることによって生じるトルクである。また、 n_i は磁気モーメント m_i の方向を表す単位ベクトルで、 $n_i = m_i / m$ ($m=|m_i|$)、 t_{ij} は粒子 i, j 間を結ぶベクトル $r_{ij} (=r_i - r_j)$ の単位ベクトル表現で、 $t_{ij} = r_{ij}/r_{ij}$ 、 $r_{ij} = |r_{ij}|$ 、 $h = H/H$ 、 k はボルツマン定数、 T は液温、 D_1 は界面活性剤層を含めた粒子の直径で $D_1 = D+2\delta$ 、 t_δ は粒子固体部の半径と界面活性剤層の厚さ δ との比で、 $t_\delta = 2\delta/D$ である。上式に現れた無次元パラメータ λ, ξ, λ_v は、 $\lambda = \mu_0 m^2 / (4\pi D^3 kT)$ 、 $\xi = \mu_0 m H / kT$ 、 $\lambda_v = \pi D^2 n_s / 2$ である。ここに、 λ と ξ はそれぞれ粒子と粒子、粒子と磁場との磁気的な相互作用の大きさを表す無次元パラメータ、 λ_v は界面活性剤層の重量に起因する斥力の大きさを表す無次元パラメータ、 μ_0 は真空の透磁率、 n_s は粒子表面の単位面積当たりの界面活性剤分子の数である。

結局、任意の粒子 i に作用する力とトルクは次のようになる。

$$F_i = \sum_{j \neq i} (F_{ij}^{(m)} + F_{ij}^{(v)}) + F_i^{(lnc)} \quad (13)$$

$$T_i = \sum_{j \neq i} (T_{ij}^{(m)} + T_{ij}^{(H)}) + T_i^{(lnc)} \quad (14)$$

3・2 磁性粒子の運動方程式

磁性粒子の質量を M 、慣性モーメントを I とすると、ニュートンの運動方程式より、任意の粒子 i の位置ベクトル $\mathbf{r}_i$ および速度 $\mathbf{v}_i$ は次式のように得られる。

$$\mathbf{r}_i(t+\Delta t) = \mathbf{r}_i(t) + \Delta t \mathbf{v}_i(t) + \frac{(\Delta t)^2}{2M} \mathbf{F}_i(t) \quad (15)$$

$$\mathbf{v}_i(t+\Delta t) = \mathbf{v}_i(t) + \frac{\Delta t}{M} \mathbf{F}_i(t) \quad (16)$$

同様に、角速度 $\boldsymbol{\omega}_i$ および粒子方向(磁気モーメントの方向) $\mathbf{n}_i$ は次のようになる。

$$\mathbf{n}_i(t+\Delta t) = \mathbf{n}_i(t) + \Delta t \boldsymbol{\omega}_i(t) \times \mathbf{n}_i(t) \quad (17)$$

$$\boldsymbol{\omega}_i(t+\Delta t) = \boldsymbol{\omega}_i(t) + \frac{\Delta t}{I} \mathbf{T}_i(t) \quad (18)$$

3・3 無次元化

シミュレーションに際しては、諸量を無次元化した無次元系を対象とする。時間を Δt 、距離を Δx 、速度を $c(=\Delta x/\Delta t)$ 、粒子分布関数を ρ_0 、力を $\rho_0(\Delta x)^2 \Delta x/(\Delta t)^2$ など無次元化する。粒子分布関数の基礎方程式(1)に関する無次元表示は容易に表せるので、ここでは磁性粒子に関係する無次元表示を示す。

磁性粒子関係の無次元表示は次のように書ける。

$$\mathbf{F}_{ij}^{(m)*} = -R_m \frac{1}{\tilde{r}_{ij}^4} \left[-(\mathbf{n}_i^* \cdot \mathbf{n}_j^*) \mathbf{t}_{ij} + 5(\mathbf{n}_i^* \cdot \mathbf{t}_{ij}) \times (\mathbf{n}_j^* \cdot \mathbf{t}_{ij}) \mathbf{t}_{ij} - \{(\mathbf{n}_j^* \cdot \mathbf{t}_{ij}) \mathbf{n}_i + (\mathbf{n}_i^* \cdot \mathbf{t}_{ij}) \mathbf{n}_j\} \right] \quad (19)$$

$$\mathbf{F}_{ij}^{(V)*} = R_V \mathbf{t}_{ij} \ln(\tilde{D}_1 / \tilde{r}_{ij}) \quad \text{for } 1 \leq \tilde{r}_{ij} \leq \tilde{D}_1 \quad (20)$$

$$\mathbf{T}_{ij}^{(m)*} = -R_m \frac{D^*}{3} \cdot \frac{1}{\tilde{r}_{ij}^3} \{ \mathbf{n}_i \times \mathbf{n}_j - 3(\mathbf{n}_j \cdot \mathbf{t}_{ij}) \mathbf{n}_i \times \mathbf{t}_{ij} \} \quad (21)$$

$$\mathbf{T}_i^{(H)*} = R_H \mathbf{n}_i \times \mathbf{h} \quad (22)$$

ここに、*を付した量が無次元量、 $\tilde{r}_{ij} = r_{ij}/D$ 、 $\tilde{D}_1 = D_1/D$ 、無次元パラメータ R_m, R_V, R_H の表式は後に示す。

磁性粒子の運動方程式の無次元表示は次のようになる。

$$\mathbf{r}_i^*(t^*+1) = \mathbf{r}_i^*(t^*) + \mathbf{v}_i^*(t^*) + \frac{2}{\pi \rho_p^* D^{*2}} \mathbf{F}_i^*(t^*) \quad (23)$$

$$\mathbf{v}_i^*(t^*+1) = \mathbf{v}_i^*(t^*) + \frac{4}{\pi \rho_p^* D^{*2}} \mathbf{F}_i^*(t^*) \quad (24)$$

$$\mathbf{n}_i^*(t^*+1) = \mathbf{n}_i^*(t^*) + \boldsymbol{\omega}_i^*(t^*) \times \mathbf{n}_i^*(t^*) \quad (25)$$

$$\boldsymbol{\omega}_i^*(t^*+1) = \boldsymbol{\omega}_i^*(t^*) + \frac{32}{\pi \rho_p^* D^{*4}} \mathbf{T}_i^*(t^*) \quad (26)$$

式(23),(24),(26)の導出に際して、円形粒子を仮定することで、磁性粒子の質量 M と慣性モーメント I を磁性粒子の密度と直径の関数で表した。すなわち、 $M = \rho_p \pi D^2/4$ 、 $I = \rho_p \pi D^4/32$ として、支配要因を一つ減らして単純化したことになる。

最後に、無次元パラメータ R_m, R_V, R_H の表式を示す。本研究では熱力学的平衡状態を対象としているので、エネルギー等分配則より、仮想流体粒子の運動エネルギーの平均値を系の温度 T と関係付けることができる。格子ボルツマン法の理論より、 $kT = m_0 c^2/3$ (m_0 は 1 格子当たりの仮想流体粒子の質量)なる関係があることがわかるので、この関係式を考慮すると、無次元パラメータの表示が次のように得られる。

$$R_m = \frac{1}{D^*} \lambda, \quad R_V = \frac{1}{3\delta^*} \lambda_V, \quad R_H = \frac{1}{3} \xi \quad (27)$$

4. シミュレーションのための諸量の設定

シミュレーションで詳細に検討するために、以下のような諸量の値を設定した。磁性粒子の無次元密度 ρ_p^* を $\rho_p^* = 3, 5, 7, 10$ の 4 通りに、無次元直径 D^* を $D^* = 4, 6, 8, 15$ の 4 通りに取っている。緩和時間 τ は $\tau = 0.7$ とし、磁性粒子の体積分率 ϕ_v は $\phi_v = 0.2$ の一通りとし、磁性粒子の粒子数 N_p は、 $D^* = 15$ という非常に細かい格子も検討するので、 $N_p = 100$ という比較的小きな系を対象とした。過去のモンテカルロ法やブラウン動力学法の結果⁽¹⁹⁻²¹⁾と比較するために、界面活性剤による相互作用の大きさ λ_v を $\lambda_v = 150$ 、粒子間の磁気的な相互作用の大きさ λ を $\lambda = 0 \sim 15$ 、磁性粒子と磁場との相互作用の大きさ ξ を $\xi = 0 \sim 20$ と幅広く設定した。磁性粒子間の力を求めるためのカットオフ距離 $\tilde{r}_{\text{cutoff}} (= r_{\text{cutoff}}/D)$ は $\tilde{r}_{\text{cutoff}} = 7.0$ を採用し、総時間ステップ数 $N_{\text{time}}^{\text{max}}$ は $N_{\text{time}}^{\text{max}} = 200,000$ として、初期の 1 割のステップ数での値を除いた値を用いて平均操作を行った。

5. 結果と考察

5・1 凝集構造の密度比への依存性

図 3 には、まわりの流体粒子と磁性粒子の密度比 ρ_p^* が磁性粒子の凝集構造にどのように影響するかを見るために、粒子直径(格子粗さ)を $D^* = 8$ として、磁場の強さを $\xi = 5$ 、粒子間の磁気的な相互作用の大きさを $\lambda = 5$ とした場合の凝集構造の結果が示してある。図 3(a)は密度比を $\rho_p^* = 3$ とした場合、図 3(b)は $\rho_p^* = 10$ とした場合の結果である。 $\xi = 1, \lambda = 1$ の凝集構造は、後に示す図 4(a)とほとんど定性的に同じスナップショットなので図には示していない。 $\xi = \lambda = 1$ の場合、磁場も粒子間磁気力もブラウン運動を誘起するランダム力と同程度なので、粒子は単独で運動し、顕著な凝集体を形成していない。図 3 の $\xi = \lambda = 5$ の場合、磁場方向に細い鎖状クラスタを形成しており、この環境下では粒子間磁気力も印加磁場の影響もランダム力よりもかなり支配的なので、鎖状クラスタの形成は物理的に妥当な結果である⁽¹⁹⁻²¹⁾。ま

Fig.3 Dependence of Aggregate Structures on Density Ratio ρ_p^* for $\zeta=\lambda=5$ ($D^*=8$): (a) $\rho_p^*=3$ and (b) $\rho_p^*=10$

Fig.4 Dependence of Aggregate Structures on the Fineness of the Lattice for $\zeta=\lambda=1$ ($\rho_p^*=5$): (a) $D^*=8$ and (b) $D^*=15$

Fig.5 Dependence of Aggregate Structures on the Fineness of the Lattice for $\zeta=\lambda=10$ ($\rho_p^*=5$): (a) $D^*=8$ and (b) $D^*=15$

た、先の $\zeta=\lambda=1$ の場合と同様に、密度比に依存して凝集構造が大きく異なることはない。このように、ブラウン運動は妥当なレベルで誘起されている。

5・2 凝集構造の格子粗さへの依存性 前項での結果から、凝集構造は密度比にほとんど依存しないことがわかったので、磁性粒子が金属粒子であることを考慮して $\rho_p^*=5$ に限定し、凝集構造に及ぼす格子粗さの影響を検討する。図4は $\zeta=\lambda=1$ の場合の凝集構造の結果であり、 $D^*=8, 15$ の2通りの格子粗さの結果が示してある。なお、無次元粒子直径 D^* の値が小さいほど格子は粗くなる。同様の結果を $\zeta=\lambda=10$ に対して図5に示す。 $\zeta=\lambda=1$ の場合、粒子間磁気力や印加磁場の影響がブラウン運動と同程度なので、粒子の凝集は生じないはずである⁽¹⁹⁻²¹⁾。図4(a)の $D^*=8$ の場合には、粒子の凝集は生じておらず、物理的に妥当な結果を与えている。ところが、 $D^*=15$ のように非常に緻密な格子を用いた結果は、粒子が凝集し大きな塊のクラスタをいくつか形成するという、物理的にあり得ない凝集構造を与えてしまっている。このことは、 $D^*=15$ のような緻密な格子を用いると、粒子のブラウン運動が誘起されないことを如実に示している。また、これは粒子間磁気力と印加磁場が熱運動よりも十分支配的な図5においてもはっきりと示されている。強磁場中において、

Fig.6 Pair Correlation Function for $\rho_p^*=5$: (a) $\zeta=\lambda=1$ and (b) $\zeta=\lambda=10$

Fig.7 Comparison of Lattice Boltzmann (LB) Results with Monte Carlo (MC) and Brownian Dynamics (BD) ones:
 (a) $\xi=\lambda=1$, LB; (b) $\xi=1$ and $\lambda=10$, LB; (c) $\xi=20$ and $\lambda=10$, LB; (d) $\xi=1$ and $\lambda=10$, MC; (e) $\xi=20$ and $\lambda=10$, MC;
 (f) $\xi=\infty$ and $\lambda=10$, BD

粒子間磁気力がランダム力と比較してそれほど圧倒的に大きくない場合、磁場方向に太い鎖状クラスタを形成することが、モンテカルロ法やブラウン動力学法によってすでに指摘されているが⁽¹⁹⁻²¹⁾、 $D^*=8$ の場合の結果は、まさしくこのような太い鎖状クラスタの形成を妥当な形で再現することに成功している。ところが、図 5(b)の $D^*=15$ の場合、先の図 4(b)と同じように、大きな一塊のクラスタの形成を与えてしまっており、全く正しくない凝集構造の結果となっている。

5・3 2 体相関関数の格子粗さへの依存性 前項の凝集構造を 2 体相関関数を用いて定量的に議論する。格子粗さを $D^*=4, 6, 8, 15$ と取って得た磁場方向の 2 体相関関数の結果を図 6 に示す。図 6(a)は $\xi=\lambda=1$ の場合の結果、図 6(b)は $\xi=\lambda=10$ の場合の結果である。図 6(a)からわかるように、 $D^*=4, 6, 8$ の場合はほぼ一致しており、気体的な特徴を示している。すなわち、粒子が凝集しないことを定量的に裏付けている。一方、 $D^*=15$ の結果は粒子直径のほぼ整数倍の位置に非常に高いピークを有して、その間はほぼゼロの値を取っていることから、まさしく固体的な特徴を有している。ゆえに、図 4(b)に示した凝集構造の内部構造は固体のように結合して非常に安定しているということになる。このように、 $D^*=15$ の場合ブラウン運動が誘起されない

ことが、2 体相関関数の結果からも裏付けられた。図 6(b)の場合、磁場方向に太い鎖状クラスタを形成するので、 D_1^* のほぼ整数倍の位置にピークが生じるのは物理的に妥当な結果であり、 $D^*=4, 6, 8$ の場合、ほぼ同じ位置にピークが生じるという満足できる一致を示している。ただし、粒子が近接状態に近くなる第 1 ピークは、 D^* の値によってばらつきがあり、 D^* の値が増すほどピーク値が高くなる傾向があるように見受けられる。 $D^*=15$ の場合は、図 5(b)からわかるように、磁場方向に鎖状クラスタを形成せず、大きな一塊のクラスタを形成するので、他の場合と異なる位置でピーク値を与えている。すなわち、ブラウン運動が誘起されないの、このような間違った 2 体相関関数の結果を当然与えてしまうことになる。なお、 D^* のどのくらいの値まで、ブラウン運動が物理的に妥当なレベルで誘起されるかは、Landau-Lifshitz の理論に基づいた基礎式の修正を行うことで、現在研究が進展している段階である。

5・4 凝集構造のモンテカルロ法およびブラウン動力学法との比較 ここから、格子ボルツマン法の結果をモンテカルロ法とブラウン動力学法により得た結果と比較することにより、多粒子分散系に対する格子ボルツマン法の有効性を検討する。前項までの結果から、格子ボルツマン法の結果としてはすべて $\rho_p^*=5$,

Fig.8 Pair Correlation Function for (a) $\xi=20$, LB, (b) $\xi=20$, MC, and (c) $\xi=\infty$, BD

$D^*=8$ の場合に得た結果を対象とする。図 7 は凝集構造のスナップショットで、図 7(a),(b),(c) は格子ボルツマン法の結果であり、図 7(a) は $\xi=\lambda=1$ の場合の結果である。図 7(b),(c) はそれぞれ $\xi=1, \lambda=10$ の場合と $\xi=20, \lambda=10$ の場合で、同様の条件下におけるモンテカルロ法の結果⁽¹⁹⁾が、図 7(d),(e) に相当する。図 7(f) は $\xi=\infty, \lambda=10$ の場合に対するブラウン動力学法の結果⁽²¹⁾である。

まず、 $\xi=1$ の場合の結果である図 7(a) はモンテカルロ法の結果(図には示していない)と定性的にまったく一致する。同様に、図 7(b) と図 7(d) を比較すると、定性的に非常によい一致を示していることがわかる。すなわち、粒子間相互作用が弱い $\lambda=1$ の場合には粒子は凝集せず単独で運動しているが、 λ の値が増すに従って、粒子が顕著に凝集するようになり、 $\lambda=10$ の場合のよう

Fig.9 Magnetization Curves for (a) LB and (b) MC

にブラウン運動に対して粒子間磁気力が非常に支配的な場合には、ネックレス状の凝集体が形成されている。このように格子ボルツマン法でも磁性粒子のブラウン運動が適切に誘起されていることがわかる。

次に、強磁場の場合である図 7(c),(e),(f) のスナップショットを考察する。この場合も結果は比較的良好に一致するが、先の磁場の弱い場合ほどではない。 $\lambda=10$ のように粒子間磁気力が大きくなるほど、太い鎖状クラスタを形成するようになるが、格子ボルツマン法とブラウン動力学法の結果は、ほぼ定性的に一致するクラスタ形成を得ている。一方、モンテカルロ法の太い鎖状クラスタは他の方法の結果ほど密な状態とはなっていない。これは格子ボルツマン法やブラウン動力学法が、モンテカルロ法よりも精度が落ちる結果を与えているものではなく、逆にモンテカルロ法の弱点を示しているものである。すなわち、格子ボルツマン法やブラウン動力学法は粒子の多体流体力学的な相互作用を考慮した方法であるのに対して、モンテカルロ法はそのような流体力学的な相互作用を考慮したシミュレーション法ではない。

5・5 2 体相関関数および磁化曲線のモンテカルロ法およびブラウン動力学法との比較

最後に、前項の凝集構造を 2 体相関関数および磁化曲線を用いて定量的な議論を行う。図 8(a), (b), (c) はそれぞれ格子ボルツマン法、モンテカルロ法、ブラウン動力学法により得た磁場方向の 2 体相関関数の結果である。図 8(a),(b) は $\xi=20$ 場合の結果であり、図 8(c) は $\xi=\infty$ の場合の結果である。粒子間相互作用を $\lambda=5, 10, 15$ のように比較的大きく取っているため、磁場方向に鎖状クラスタを形成することは、前項の凝集構造のスナップショット

で見たとおりである。ゆえに、3者とも、粒子直径 D_1^* の整数倍の位置(厳密には少しそれより近距離)でピークが生じている。ピークの高さも、満足できる一致を示していると言うこともできるが、傾向として、モンテカルロ法の結果が各ピークとも一番低く、次がブラウン動力学法の結果、格子ボルツマン法の結果が各ピークとも最も高いピーク値を示している。先のスナップショットの結果から、モンテカルロ法では粒子の流体力学的な相互作用を考慮していないので、流体力学的な相互作用を考慮すると、より安定した太い鎖状クラスタを形成するはずである。ゆえに、格子ボルツマン法やブラウン動力学法の結果がモンテカルロ法よりも高いピーク値を示すのは物理的に妥当である。また、ブラウン動力学法の結果⁽²¹⁾は遠距離の流体力学的な相互作用を考慮していないことから、格子ボルツマン法の結果がブラウン動力学法の結果より高いピーク値を示すのも納得できる。以上を考慮すると、本格子ボルツマン法は物理的に最も道理にかなった結果を与えているものと結論付けられる。

最後に、磁化曲線の結果である図9を考察する。図9(a)は格子ボルツマン法の結果で、図9(b)はモンテカルロ法の結果である。 $\lambda=1$ の磁化曲線を見ると、格子ボルツマン法の結果はモンテカルロ法の結果とよく一致しており、特に $\xi=0$ で磁化の強さがゼロとなっている。これは、格子ボルツマン法が粒子の回転ブラウン運動を物理的に妥当な形で誘起することを示すものである。粒子間相互作用が増し、 $\lambda=15$ のように大きい場合でも、モンテカルロ法とよく一致している。このように、粒子間相互作用が大きくなっても、粒子の回転ブラウン運動が正しく誘起されることがわかる。

6. 結 言

本研究では、粒子の多体流体力学的相互作用を考慮したシミュレーション法としての格子ボルツマン法の可能性を、2次元系の磁性粒子からなるサスペンション系の凝集現象に着目して検討した。得られた結果を要約すると以下ようになる。比較的粗い格子を用いた場合、通常の格子ボルツマン法でも、粒子の並進および回転のブラウン運動が物理的に妥当な形で誘起される。一方、緻密な格子を用いた場合、粒子のブラウン運動が誘起されず、間違った凝集構造を与えてしまう。従って、緻密な格子を用いる場合、従来の格子ボルツマン法の基礎方程式に何らかの修正が必要である。

本研究の一部は文部科学省の科学研究費補助金・基盤研究B(20360048)の補助を受けてなされた。ここに付記して謝意を表する。

文 献

- (1) R.B. Bird, R.C. Armstrong and O. Hassager, *Dynamics of Polymeric Liquids, Vol. I, Fluid Mechanics*, (1987), John Wiley & Sons.
- (2) W.B. Russel, D.A. Saville and W.R. Schowalter, *Colloidal Dispersions*, (1989), Cambridge University Press.
- (3) A. Satoh, *Introduction to Molecular-Microsimulation of Colloidal Dispersions*, (2003), Elsevier Science.
- (4) M.P. Allen and D.J. Tildesley, *Computer Simulation of Liquids*, (1987), Clarendon Press.
- (5) S. Kamiyama and A. Satoh, *Molecular Dynamics Simulation*, (1997), Asakura Shuppan. (Japanese)
- (6) H.G. Choi and D.D. Joseph, University of Minnesota Supercomputing Institute Research Report, UMSI 2000/17, February 2000.
- (7) R. Glowinski, T.W. Pan, T.I. Hela, D.D. Joseph and J.A. Priaux, University of Minnesota Supercomputing Institute Research Report, UMSI 2000/68, April 2000.
- (8) C. Diaz-Goano, P.D. Mineev and K. Nandakumar, *J. Comp. Phys.*, Vol. 192, (2003), pp. 105-123.
- (9) P.J. Hoogerbrugge and J.M.V. A. Koelman, *Europhysics Letters*, Vol. 19, (1992), pp.155-160.
- (10) P. Espanol and P. Warren, *Europhysics Letters*, Vol. 30 (1995), pp. 191-196.
- (11) A. Satoh and T. Majima, *Transaction of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 70, No. 694 (2004), pp. 1473- 480.
- (12) A. Satoh and T. Majima, *Transaction of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 70, No. 695 (2004), pp. 1657-1664.
- (13) A. Satoh and R.W. Chantrell, *Transaction of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol. 72, No. 721 (2006), pp.2226-2234.
- (14) S. Succi, *The Lattice Boltzmann Equation for Fluid Dynamics and Beyond*, (2001), Clarendon Press.
- (15) D.H. Rothman and S. Zaleski, *Lattice-Gas Cellular Automata, Simple Models of Complex Hydrodynamics*, (1997), Cambridge University Press.
- (16) D. Yu, R. Mei, L.-S. Luo and W. Shyy, *Prog. Aerospace Sci.*, Vol. 39, (2003), pp.329-367.
- (17) M. Bouzidi, M. Firdaouss and P. Lallemand, *Phys. Fluids*, Vol.13, (2001), pp. 3452-3459.
- (18) A. Satoh and R.W. Chantrell, *Transaction of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*. (submitted)
- (19) A. Satoh, R.W. Chantrell, S. Kamiyama and G.N. Coverdale, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.61, No.583, (1995), pp.926-932.
- (20) A. Satoh, R.W. Chantrell, S. Kamiyama and G.N. Coverdale, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.61, No.588, (1995), pp.2961-2967.
- (21) A. Satoh, R.W. Chantrell and G.N. Coverdale, *Transactions of the Japan Society of Mechanical Engineers, Series B*, Vol.64, No.620, (1998), pp.1033-1040.