磁性流体中における微粒子の均一分散とその評価

堀 添 昌 則*, 伊 藤 隆 造*, 後 藤 圭 司*

Uniform Dispersion of Fine Particles in a Magnetic Fluid and its Evaluation

by

Masanori HORIZOE[†], Ryuzo ITOH[†] and Keishi GOTOH[†]

Particles confined in a thin horizontal layer of magnetic fluid were uniformly dispersed by applying a vertical magnetic field. The particle arrangements were observed both in experiments and in computer simulations of two dimensions. The regularity of particle dispersion was defined by the mean value of areas of the Voronoi polygons and its variance, $R = \langle a \rangle^2 / \sigma^2$, for the evaluation of the particle arrangements. The clusters of particles were virtually made by uniformly swelling all of the particles. The distribution of the cluster size can be utilized for detail evaluation of the particle arrangement. The regularity of the particle dispersion depends on the repulsive force acting between the particles. The uniformity of particle dispersion increases with the intensity of the magnetic field and the initial concentration of the particles.

Key Words : Uniform Dispersion, Evaluation of Regularity, Magnetic Fluid, Fine Particles

1. 緒 言

磁性流体中に非磁性微粒子が平板状に単層で分散している系に外部から磁場をかけると、印加方向に応じて分散粒子は鎖状や格子状の配列構造を形成する^{1,2)}。これと類似の現象を呈するものとして電気粘性流体がある^{3,4)}。この現象は固体から液体への相転移に対する原子の配列構造や、コロイド粒子の凝集状態などの可視化モデルとして考察されている。また電磁波や音波のフィルター、回折格子あるいは偏光板などへの応用も考えられている^{5,6)}。筆者らは微粒子の充填操作や計測への応用研究の一貫として微粒子の鎖状凝集を考察し、報告を行った⁷⁾。

磁性流体中に非磁性微粒子が平板状に単層で分散している系に磁場を垂直方向に印加すると、粒子間に反発力が作用し合うために粒子は均一な分散状態となる。Davies⁸⁾らは空間分布関数を用いて、またSkjeltorp⁹⁾は着目中心粒子からの距離と回転角方向に対する相関関数を用いて粒子分散構造の規則性を評価した。これらの評価法ではそれぞれ2個のパラメータを必要としている。本研究では各分散粒子1個を含むボロノイ多角形を考え、その面積の平均値の2乗と分散との比を粒子分散構造の規則性の尺度とする方法¹⁰⁾を採用した。

本研究では磁性流体中に非磁性微粒子を平板状に単層で分散させ、磁場を垂直方向に印加することによって粒子の均一分散化を試みた。また数値シミュレーションによる計算機実験も併せて行い、粒子分散構造の規則性に及ぼす外部磁場強度や粒子濃度との関係を調べた。また、「各粒子を一樣に膨張させた」と仮想した場合に、連結してできる凝集体の大きさの分布を考察することによって、粒子の分散状態を評価する方法を新たに考察する。

1993年 8月 31日 受付
粉体工学会第29回夏期シンポジウム(1993年 7月, 函南)にて発表

* 豊橋技術科学大学エネルギー工学系
(〒441 愛知県豊橋市天伯町字雲雀ヶ丘 1-1)

TEL. 0532-47-0111

[†] Dep. of Energy Eng., Toyohashi Univ. of Technology,
(1-1 Hibarigaoka, aza., Tenpaku-cho, Toyohashi-shi 441)

Fig. 1 Main section of experimental apparatus

2. 実験装置と方法

実験装置の全体図は前報⁷⁾で示したものと同じで、Fig. 1(a)に示すようなスライドガラスとカバーガラスの間に5μmのスペーサーを挿入することによってできた間隙を磁性流体で満たし、その中に直径3μmの球状シリカ粒子を平板状に単層で分散させ、所定の粒子濃度に調整したものを試料とした。この試料をFig. 1(b)のように光学顕微鏡のステージに固定し、外部から垂直方向に一様磁場を印加した。磁場印加前後の粒子移動の様子を光学顕微鏡に接続したビデオカメラで連続撮影し、ビデオテープに録画した。平衡に達した画像から各粒子中心のx, y座標を読み取り、初期位置から最終平衡位置に至る粒子の移動を追跡した。

3. 粒子に作用する力と数値シミュレーションの概要

磁性流体中に非磁性微粒子が平板状に単層で分散している2次元系を考える。その際に粒子の熱運動は無視し、粒子が動くことによって周囲の流体場が乱されることはないものとする。

外部磁場を印加すると、粒子には磁場とは反対方向に反磁気モーメント m が作用する。

$$m = -x_{\text{eff}}\mu_f V_p H \quad (1)$$

ここで、 μ_f は磁性流体の透磁率、 H は外部磁場、 V_p は粒子の体積である。また x_{eff} は有効体積磁化率で次式で与えられる。

$$x_{\text{eff}} = \frac{x}{1 + (N_s - N_p)x} \quad (2)$$

ただし、 x は磁性流体の磁化率である。 N_s は磁性流体試料の容器形状によって定まる反磁場係数、 N_p は粒子の形状によって定まる反磁場係数である。本研究のように試料が平板状で磁場 H と垂直な場合には $N_s=1$ 、球状粒子の場合には $N_p=1/3$ である¹¹⁾。距離 s 離れた2個の粒子の磁気双極子間の相互作用エネルギー U_d は次式で与えられる。

$$U_d = \frac{m^2}{4\pi\mu_f s^3} (1 - 3\cos^2\theta) = -\frac{m^2}{4\pi\mu_f s^3} \quad (3)$$

ここで、 θ は2個の粒子中心を結ぶ線と印加磁場方向とのなす角度であり、本研究では $\theta=\pi/2$ である。このとき、粒子間に作用する磁気的な相互作用の斥力 F_d は次式で与えられる。

$$F_d = -\nabla U_d = F_c \frac{d^4}{s^4} [(1 - 3\cos^2\theta)\mathbf{e}_r - (\sin 2\theta)\mathbf{e}_t] = F_c \frac{d^4}{s^4} \mathbf{e}_r \quad (4)$$

$$\text{ただし } F_c = \frac{\pi\mu_f}{48} x_{\text{eff}}^2 d^2 H^2 \quad (5)$$

ここで、 $\mathbf{e}_r$ と $\mathbf{e}_t$ はそれぞれ半径方向と円周方向の単位ベクトル、 d は粒子直径である。

粒子が磁性流体中を移動する際に受ける流体抵抗 F_f にはストークスの法則を適用する。

$$F_f = -3\pi\eta d \frac{dr_i}{dt} \quad (6)$$

ここで η は磁性流体の粘性係数、 r_i は着目粒子 i の位置ベクトルである。

本実験は理想的な2次元系ではなく、粒子と壁面間には常に付着力が作用していると考えられる。これを F_a とし、そのベクトルの方向は粒子移動方向に対し逆方向である。上記の条件のもとに磁性流体中に分散する着目粒子 i の運動方程式は次式で与えられる。

$$m_p \frac{d^2 r_i}{dt^2} = \sum_{j \neq i}^N F_d + F_f + F_a \quad (7)$$

ただし粒子間の相互作用は2体間のみの作用の総和をとるものとする。また粒子間の相互作用の総和が粒子と壁面間の付着力より小さいときには粒子は移動せず、大きいときに粒子の移動が起こるものとする。ここで m_p は粒子の質量である。次に以下の無次元変数を定義する。

Table 1 Numerical constants

Particle diameter	$d(\text{m})$	3.0×10^{-6}
Particle density	$\rho_p(\text{kg}/\text{m}^3)$	2.0×10^3
Adhesion force	$F_a(\text{N})$	7.2×10^{-11}
Susceptibility	$\chi(-)$	2.14
Viscosity	$\eta(\text{Pa} \cdot \text{s})$	0.03
Permeability	$\mu_f(\text{H}/\text{m})$	3.94×10^{-6}

$$r_i^* = \frac{r_i}{d} \quad s^* = \frac{s}{d} \quad F^* = \frac{F}{F_c} \quad t^* = \frac{t}{t_c} \quad t_c = \frac{3\pi\eta d^2}{F_c}$$

これらをEq.(7)に代入し整理すると次式となる。

$$G \frac{d^2 r_i^*}{dt^{*2}} = \sum_{i \neq j}^N F_{ij}^* + F_i^* + F_a^* \quad (8)$$

$$G = \frac{m_p F_c}{9\pi^2 \eta^2 d^3}$$

ここで $H=40000\text{A}/\text{m}$ とした場合、 $G \sim 3.8 \times 10^{-5}$ 、右辺の各項は $F_{ij}^* \geq 1.6 \times 10^{-3}$ 、 $F_a^* \sim 2.5 \times 10^{-2}$ となる。本研究では長時間経過して定常に達した後の粒子配列状態を問題とするからEq.(8)の左辺を0とすれば次式を得る。

$$\frac{dr_i^*}{dt^*} = \sum_{i \neq j}^N F_{ij}^* + F_a^* \quad (9)$$

この粒子の運動方程式をオイラー法を用いて解く。

数値シミュレーションでは、一辺が粒子直径の40倍の大きさの正方形セル中に、粒子同士が互いに重複しない条件で所定の数の粒子をランダムに分散させ、これを初期状態とした。セルの境界には周期境界条件を設けた。粒子間の相互作用力は、着目中心粒子から粒子直径の5倍の距離を半径とする円形領域に存在する粒子についてのみ計算し、遠距離相互作用は無視した。無次元の刻み時間は $\Delta t^* = 0.005(-)$ 、平衡状態を得るために計算回数は20000回とした。数値計算に使用した各定数はTable 1のようであり、 F_a は H を徐々に増大させ、粒子が移動し始める磁場強度から求めた実測値である。

4. 結果と考察

粒子濃度が $c=0.10(-)$ (正方形セル中の粒子個数 $N=204$) の場合と $c=0.30(-)$ ($N=611$) の場合に対する数値シミュレーション結果をそれぞれFigs. 2と3に示した。(a)図はそれぞれの初期粒子配置、(b)図は磁場 $H=25200\text{A}/\text{m}$ 印加後の最終平衡粒子配置、(c)図は磁場 $H=40000\text{A}/\text{m}$ 印加後の最終平衡粒子配置を示す。粒子濃度が $c=0.10(-)$ の場合は各粒子間距離が大

きいので反発力の作用が小さく、磁場の印加による粒子配置の規則性はあまり向上してないが、 $c=0.30(-)$ の場合には規則性がかなり向上していることがわかる。

粒子配列構造の規則性を詳細に調べるためにボロノイ多角形解析を行った。これは各粒子1個だけを含むボロノイ多角形の面積の平均値 $\langle a \rangle$ と分散 σ^2 から粒子配列構造の規則性の尺度 R を次式によって定義する¹⁰⁾。すなわち

$$R = \langle a \rangle^2 / \sigma^2 \quad (10)$$

種々の粒子濃度の分散系について磁場 $H=25200\text{A}/\text{m}$ 、 $40000\text{A}/\text{m}$ を印加し、最終平衡状態に達した後の粒子配置構造を実験及び数値シミュレーションから求め、ボロノイ多角形解析を行った。磁場 $H=25200\text{A}/\text{m}$ を印加した場合の実験結果と数値シミュレーション結果の比較をFig. 4に示した。両者はよく一致しており、数値シミュレーションの妥当性が評価できる。数値シミュレーションによって求めた印加磁場強度 H と粒子配置の規則性 R との関係をFig. 5に示した。なお粒子がランダムに分散している初期状態については、 R と粒子濃度 c の関係は図中に実線で示した前報¹⁰⁾の結果とよく一致している。したがって初期粒子配置はランダムであったと言える。磁場を印加した後の規則性について、 $c=0.10(-)$ 以下の比較的低い粒子濃度では R はさほど増大していないが、粒子濃度が高いほど R の値は急激に大きくなっている。これは高濃度の場合ほど粒子間距離が小さいので、粒子同士の斥力がより大きくなるためである。また印加磁場強度を大きくすると R が大きくなるのは当然である。

ボロノイ多角形解析に基づく粒子配置の規則性の尺度はパラメータが1個で実用上便利であるが、対象とする全領域についての平均であり、これによって粒子の分散状態の詳細を把握することはできない。そこで粒子の分散状態をより詳細に把握するために以下のような考察を行った。まず、Fig. 6に示したように分散しているすべての粒子の直径を仮想的に一樣に任意の大きさに膨張させる。膨張によって重なり、 i 個の粒子が連結してできる凝集体をサイズ i のクラスターと呼ぶことにする。サイズ i のクラスターが n_i 個できれば総粒子個数 N は次式となる。

$$N = \sum_i i \cdot n_i \quad (11)$$

(a) Initial random configuration

(b) Final configuration, $H=25200\text{A/m}$

(c) Final configuration, $H=40000\text{A/m}$

Fig. 2 Particle arrangement, $c=0.10$ (—)

(a) Initial random configuration

(b) Final configuration, $H=25200\text{A/m}$

(c) Final configuration, $H=40000\text{A/m}$

Fig. 3 Particle arrangement, $c=0.30$ (—)

ここで平均クラスターサイズ k を次式で定義する。

$$\sum_{i=1}^k i \cdot n_i = N/2 \quad (12)$$

この平均クラスターサイズ k を総粒子個数 N で割ることによって規格化し、膨張粒子の直径 d_c を平均粒子間距離 (= 正六角形で均一に分割した領域の中心に各粒子を置いたときに隣接する粒子中心間の距離) で割ることによって規格化した膨張係数 SF との関係を図 7 に示した。これは先に Fig. 3 で示した粒子配置に対する結果である。この図中で曲線が立ち上がり始める

点、すなわちクラスターが形成され始める点の横軸の値と、すべての粒子が連結して 1 個のクラスターを形成し $k/N=1$ となる点の横軸の値との幅から粒子の分散状態の度合を知ることができる。曲線の傾きが急激な膨張係数の箇所ほど、対応する粒子間隔で局所的に多くの粒子が分散しているといえる。磁場の印加前後の粒子分散状態を比較してみると、粒子濃度が高いために粒子間距離が小さく、すべての粒子が磁場の作用を受けて規則配置化している。また印加磁場強度が大きいほど規則化が顕著である。 k/N の差分値と膨張係数 SF との関係を求めることによって、どの粒子間

Fig. 4 Comparison between simulation and experiment for $H=25200\text{A/m}$

Fig. 5 Regularity in relation to coverage for various magnetic fields by numerical simulation

Fig. 6 Schematic of uniformly expanded particles

隔で多くの粒子が分散しているかを知ることができる。その結果をFig. 8に示した。これより印加磁場強度が大きいほど $\Delta(k/N)$ のピークは $SF=1$ に近づく、分布幅も狭まって規則配列化へと向かっていることがわかる。種々の分布関数¹²⁾と比較した結果、これらはガンマ分布でよく表せることがわかり、図中に実線で示した。

Fig. 7 Average-cluster-size in relation to swelling factor, $c=0.30$ (-)

Fig. 8 Differential average-cluster-size in relation to swelling factor, $c=0.30$ (-)

5. 結 言

磁性流体中に非磁性微粒子が平板状に単層で分散している系に、外部から垂直に磁場を印加することによって粒子の均一分散化を試み、粒子配置の実験と数値シミュレーションの両面から粒子の分散状態を考察した。粒子分散状態の規則性に及ぼす外部磁場強度や粒子濃度の影響は、粒子間に作用する斥力に大きく依存しており、印加磁場強度が大きく、粒子濃度が高いほど規則性の向上が顕著であることがわかった。さらに各粒子を仮想的に一樣に膨張させた場合、連結してできる凝集体の大きさの分布を考察することによって、外部磁場の印加前後の粒子分散状態の評価を行った。粒子濃度が高い場合には、粒子間距離が小さいので、すべての粒子が磁場の作用で規則配置化する。また外部磁場強度が大きいほど規則配置化へと向かうことを確かめた。

Nomenclature

d : particle diameter	(m)	N_s : demagnetizing factor for magnetic fluid	(-)
V_p : volume of single particle	(m ³)	N_p : demagnetizing factor for particles	(-)
m_p : mass of single particle	(kg)	e_r : unit vector in the radial direction	(-)
N : number of particles	(-)	e_t : unit vector in the circumferential direction	(-)
c : coverage or bulk-mean area fraction of particles	(-)	U_d : magnetic interaction energy of particle i	(J)
H : magnetic field	(A/m)	F_d : magnetic repulsion force of particle i	(N)
s : distance between two particle centers	(m)	F_f : drag force of particle i	(N)
r_i : position vector of particle i	(m)	F_a : adhesion force between particle and wall	(N)
t : time	(s)	F_d^* : F_d divided by F_c	(-)
θ : angle between magnetic moment of particle and applied magnetic field	(rad)	F_a^* : F_a divided by F_c	(-)
m : diamagnetic moment	(Wb · m)	$\langle a \rangle$: average area of Voronoi polygons	(-)
χ : susceptibility of magnetic fluid	(-)	σ^2 : variance of areas of Voronoi polygons	(-)
χ_{eff} : effective susceptibility of magnetic fluid	(-)	R : regularity	(-)
μ_f : permeability of magnetic fluid	(H/m)	k : average size of clusters	(-)
η : viscosity of magnetic fluid	(Pa · s)	n_i : number of clusters of size i	(-)
		SF : swelling factor	(-)

References

- 1) Chantrell, R. W., A. Bradbury, J. Popplewell and S. W. Charles : *J. Phys. D*, **13**, 123(1980)
- 2) Skjeltrop, A. T. : *J. Appl. Phys.*, **57**, 3285(1985)
- 3) Klingengerg, D. J., Frank van Swol and C. F. Zukoski : *J. Chem. Phys.*, **91**, 7888(1989)
- 4) Tamura, H. and M. Doi : *J. Phys. Soc. Jpn.*, **61**, 3984(1992)
- 5) Skjeltrop, A. T. : *J. Appl. Phys.*, **55**, 2587(1984)
- 6) Skjeltrop, A. T. : *Phys. Rev. Lett.*, **51**, 2306(1983)
- 7) Inagaki Y., M. Furuuchi and K. Gotoh : *J. Soc. Powder Tech. Japan*, **30** 34(1993)
- 8) Davies, P., J. Popplewell, G. Martin, A. Bradbury and R. W. Chantrell : *J. Phys. D : Appl. Phys.*, **19**, 469(1986)
- 9) Skjeltrop, A. T. : *J. Magn. Magn. Mater.*, **65**, 195 (1987)
- 10) Gotoh, K. : *Phys. Rev. E*, **47**, 316(1993)
- 11) Chikazumi, S. : "Kyoujiseitai no Buturi(jyou)", p.14, Syoukabou(1987)
- 12) Nakayama, M. and T. Makabe : "Kakuritsu Katei", p.41, Baifuukan(1989)