

令和元年6月21日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K05831

研究課題名(和文)高磁場による流体の挙動制御に関する研究

研究課題名(英文)Control of the behavior of feeble magnetic fluids using high magnetic fields

研究代表者

廣田 憲之(HIROTA, NORIYUKI)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・機能性材料研究拠点・主幹研究員

研究者番号：10302770

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,800,000円

研究成果の概要(和文)：物質に対して非接触で力学的影響を及ぼす磁場の特徴を利用して、弱磁性流体および流体中での物質の挙動を制御する手法について研究した。高磁場中における流体挙動の可視化から、導電性流体ではローレンツ力に起因した対流の抑制効果と磁気力の効果が重畳すること、空間磁場分布の選択によりそれらの寄与を分離して評価できること、プロセスの適切な設計により、自在な制御が可能になることがわかった。シミュレーションから、空間磁場分布が流体の挙動に与える影響を体系的に評価できた。流体や物質の分布、空間磁場分布や、それらの時間的な組み合わせを選択することで高磁場を利用した物質挙動の非接触制御法を高度に設計できることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、光学的可視化とシミュレーションにより、高磁場下での弱磁性流体挙動について理解を深めることができた。本研究で得られた知見を活用すると、空間磁場や温度・濃度の分布、磁場との時間的な組み合わせで自在な制御が可能であることを示した。これらの知見を基にすれば、タンパク質の結晶生成や、マイクロ流体セル中での各種反応・物質分離・分析など材料プロセスの最適化への応用展開が可能となると考えられ、高磁場の産業応用を加速すると期待される。

研究成果の概要(英文)：Using the high magnetic fields, the force can be exerted on materials without any direct contact with the matter. Utilizing this feature, the way of control of the behavior of feeble magnetic fluids and materials has been investigated. From the results obtained by in-situ optical observation under high magnetic fields, it was confirmed that the effects of the Lorentz force and the magnetic force were combined in the convection of feeble magnetic electrolytes solutions. Contributions of the Lorentz force and the magnetic force on the convection were separately evaluated. The effects of spatial distribution of magnetic fields were systematically evaluated from the simulations. Information obtained here indicates that the magnetic control of the behavior of feeble magnetic fluids and materials without any contact can be designed by setting the conditions such as the distributions of materials and magnetic fields with appropriate selection of the orders of the operations.

研究分野：磁気科学

キーワード：高磁場 可視化 熱対流 磁気力 ローレンツ力 弱磁性物質 弱磁性流体

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19（共通）

1. 研究開始当初の背景

磁性はすべての物質が有する性質である。したがって、物質により大小の差はあるものの、磁場を用いることで、全ての物質に対して力学的な作用を物質に接触することなく与えることができる。空間的に磁場が変化する場に置かれた物質に対しては「磁気力」が作用する。高磁場を用いると、水や一般的な溶媒等に対しても重力と釣り合う程度の大きな力を作用させることができる。また、物質が磁氣的性質において異方性を有する場合には、磁場中で「磁気トルク」が作用し、配向現象が起こる。また、よく知られるように、電場と磁場を直交して作用させることにより、「ローレンツ力」が働く。これら物質に対して非接触で作用する力学的効果の大きさはそれぞれの物質の物性に依存する。

一方、様々なプロセスにおいて、物質供給の制御は、反応量・反応時間や反応生成物の種類さえも変化させてしまう重要なファクターである。例えば、極少量の物質に関する分離・分析に用いられるマイクロ流体セル中での物質挙動の制御に磁気力を適用すれば、新規の分離・分析・反応制御のパラメータとして利用できると期待される。また、創薬や産業的利用のための酵素開発に不可欠なタンパク質結晶の生成においては、溶液からの結晶生成に際して溶液内で生ずるわずかな対流が結晶品質に大きな影響を与えると考えられているため、これを制御できれば、高品位のタンパク質結晶生成が期待される。

ほとんどの物質は磁性の小さな反磁性・常磁性の物質(弱磁性物質)であるが、流体中に存在する弱磁性物質の高磁場下での挙動については、まだ十分に理解されているとは言えない状況であった。そもそも、結晶生成過程など高磁場下の流体中で進行するプロセスにおいて、物質の移動がどのように起こっているのかについてもよくわかっていないことが多いのが現状であった。このため、各種材料プロセスで本来必要とされる条件以上の過剰な磁場条件が適用されたり、原理的によく理解されないまま、一定の効果が見られるから、という理由で磁場が利用されたりする例が散見されていた。

そこで本研究では、高磁場中での流体挙動に関する理解を深め、高磁場を利用した弱磁性流体挙動の制御技術の確立に資することを目指した。

2. 研究の目的

本研究では、物質に対して非接触で力学的影響を与えることのできる磁場の特徴を利用して、流体中での物質の流れを制御する技術を研究する。流体中における物質の流れは、結晶成長や化学分析・反応など流体中で進行するプロセスにおいて、その生成物の品質や結果に影響を与える重要な要素過程であることから、本研究を通して、分析技術や各種プロセスの高度化へつなげることに資する知見の集積を目指す。高磁場中での流体挙動に関する理解を深めるため、流体挙動の可視化と流体挙動のシミュレーション、及び、空間磁場の影響の考察を行なうことで、高磁場を利用した弱磁性流体挙動の制御技術を確立する。

3. 研究の方法

本研究では、高磁場下における流体挙動についての理解を深めるために、高磁場中での流体挙動の可視化、流体挙動のシミュレーション、及び、空間磁場の影響に関する検討を行なった。

流体挙動の可視化では、最大 13 T の超伝導磁石中で利用可能な光学系(シャドウグラフ光学系、シュリーレン光学系、CCD カメラ等)を利用して、溶液中で弱磁性物質の結晶溶解・結晶生成のプロセスが進む過程において流体中の屈折率の不均一を利用した物質流れの可視化を行ない、それらのプロセスにおける磁気力・ローレンツ力の作用について評価した。また、弱磁性流体中に分散する粒子の挙動について、空間磁場の与える影響を観測する。

実験条件に即したパラメータを用いて流体挙動シミュレーションを行なう。実験との対比を行ない、高磁場による弱磁性流体挙動への影響について理解を深める。これらの過程で、弱磁性流体と粒子の挙動に与える空間磁場分布の影響についても考察し、種々の現象における最適磁場分布についても検討する。

以上の検討を通して、物質に対して非接触で力学的影響を与えることのできる磁場の特徴を利用するうえで必要となる知見を集積し、流体中で物質の移動・挙動を制御する手法について提案する。

4. 研究成果

流体内の屈折率の空間分布を可視化することのできるシュリーレン法、シャドウグラフ法によって高磁場下での流体挙動の可視化を行なった。流体内の温度が均一で、流体中に存在する

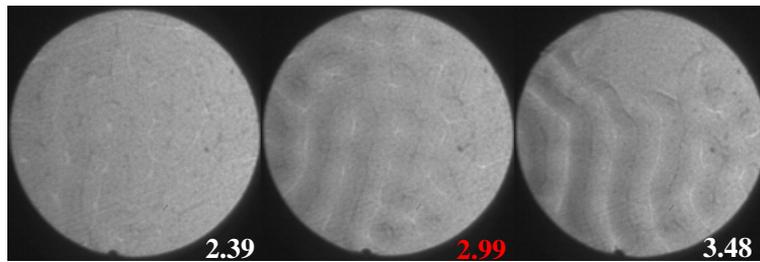


Fig. 1 シャドウグラフ法により可視化した高磁場下における熱対流パターン
 上下間の温度差がつくことで熱対流が発生し、相対的に高温の上昇流と低温の下降流が起こっているところで屈折率の違いにより明暗が現れる。図は 12.0 T 印加の下、硫酸アンモニウム 25% 水溶液を用いて上下面の温度差を次第に大きくしていった際の観測パターンの変化。右下の数字が上下面の温度差。

結晶の成長・溶解に伴って濃度に分布があるケースについてシュリーレン法で可視化した。屈折率は溶液の濃度に依存するため、可視化できる。いくつかの結晶成長・溶解過程において、高濃度で、相対的に高密度の溶液の下降流が生ずるケースでは、水平方向の空間磁場分布により流れの方向が磁気力の影響を受け変化することを確認した。

単一成分の流体で空間的な濃度分布がなく、流体中に温度分布が存在するケースについてはシャドウグラフ法で可視化を行なった。流体の屈折率が温度に依存するため、この場合も可視化が可能となる。流体の上下に温度差をつけてゆくとその温度差がある値を超えた際に熱対流が生ずる (Fig. 1)。上下方向に空間磁場分布が存在し、流体に対して磁気力が作用するケースでは、磁気力の向きによって熱対流の発生が抑制・促進されることが知られるが、空間磁場がほぼ均一なケースでもローレンツ力の効果により弱磁性流体の熱対流の抑制効果が観測された。また、その程度が印加磁場強度に依存すること、勾配磁場においてはこの抑制効果に加えて磁気力の効果が重畳して観測されることを確認した。さらに試料が置かれる環境の空間磁場分布を制御することで、磁気力一定条件下で磁場依存を評価し、流体挙動に対する磁気力とローレンツ力の効果をそれぞれ評価することに成功した。これらの知見をもとに、流体挙動の非接触制御を行なった例を Fig. 2 に示す。はじめは磁場を印加せず、通常の手順で流体上下の温度差を大きくしてゆくと、温度差が 1.6 度程度になった時点で熱対流が発生する。その後、磁場を 12 T 印加すると、熱対流が停止して再び伝導伝熱に戻り、温度差が 2.7 度程度になったところで熱対流に移行していることがわかる。このように、流体が置かれる環境の空間磁場や、磁場を印加するタイミングをコントロールすることで、流体の挙動を高磁場により非接触で自在に制御できることを明らかにした。

流体中に分散する粒子の挙動についても可視化した。超伝導磁石により印加する高磁場中に、強磁性のワイヤーを置くと、その磁化により周囲に急峻な磁場勾配が形成され、ワイヤー近傍で粒子に対して大きな力を作用させることができる。フェライト粒子を分散させた流体を強磁性ワイヤーで構成された網の周囲に流してゆくと、分散している粒子が網の上に堆積してゆく。この過程を種々の条件で観測したところ、粒子堆積により形成されるスパイク状の構造が印加磁場強度が増加するにつれて短くなること、流速に依存して変化することを観測した。これらの知見は、高磁場を利用した高勾配磁気分離において条件の最適化の際に有用であると考えられる。

弱磁性流体の磁場中挙動のシミュレーションに関しては、Navier-Stokes の式、熱伝導方程式、拡散方程式を連立させたモデルにより評

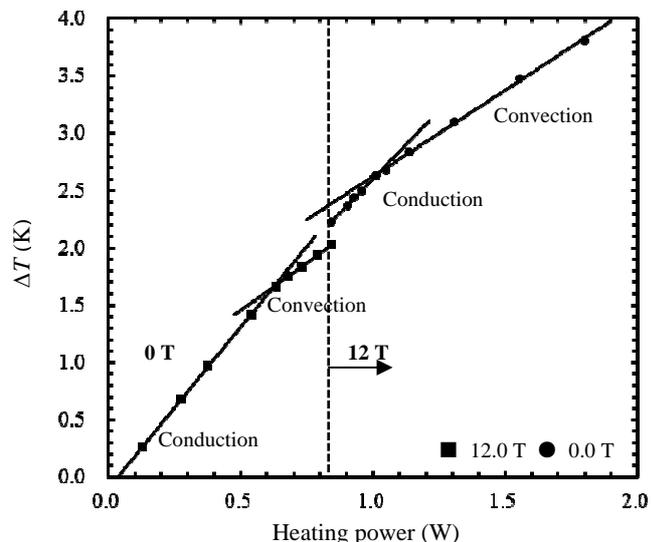


Fig. 2 高磁場を利用した流体挙動制御の例
 流体の下面から加熱し流体の上下に温度差をつけてゆくと、はじめは伝導で熱が運ばれるが、ある温度差になると対流が起こる。無磁場で対流を起こしたのちに磁場を印加すると再び伝導伝熱に戻り、さらに温度差をつけると対流が起こる様子を上下の温度差計測により観測した。

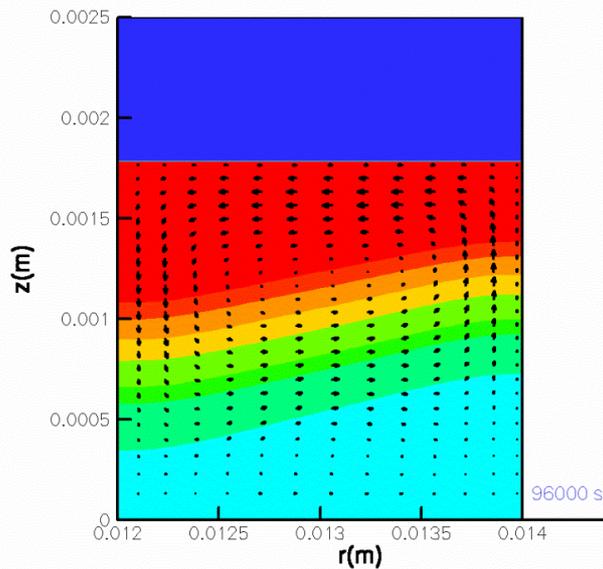


Fig.3 3次元的に空間磁場分布が変化する環境下における流体挙動のシミュレーション結果
この磁場条件下では、鉛直方向の磁気力で密度差対流が抑制されているが、水平方向の磁場勾配により非対称な流れが生じている。平均流速 3.5×10^{-8} m/s
 $(\mathbf{B} \cdot \nabla) B_z = -1350$ $(\mathbf{B} \cdot \nabla) B_r = 148$

価した。単一液相系で温度勾配・濃度勾配が存在するケースや、固液が共存する系において固液界面近傍での濃度勾配に着目したシミュレーション、流体中に分散した固相粒子の挙動について空間磁場の影響を含めて評価するシミュレーションを実施した。計算結果の一例を Fig. 3 に示す。このシミュレーションでは、単一液相系で表面からの蒸発により、溶液中に濃度勾配が生成し、そのために溶液内に密度差が生ずる場合を扱った。この磁場条件下では、鉛直方向に作用する大きな磁気力のため、密度差対流が抑制されるが、水平方向の磁場分布のために非対称な流れが生じていることがわかる。このほか、同様の磁場条件下では、面内の温度分布があると、大きな対流が誘起されてしまうことなどが定量的に評価できた。本シミュレーションモデルを活用すれば、溶液対流をできる限り抑制するために必要な条件、など、ニーズに応じた、空間磁場をはじめとする実験条件の検討や、実際に行われている磁場中でのプロセスにおける流体の挙動を

知ることができ、実プロセスの最適化を容易にするための知見となったと考える。

このほか、フランスの CNRS-LNCMI と共同で、高磁気力環境下において無容器で保持された流体の力学的挙動の実験的検討を行なった。高時間分解能光学的可視化および表面の精密計測によって興味深い挙動を観測した。

以上のように、可視化によって得られた弱磁性流体および流体中に存在する粒子の高磁場下での挙動に関する知見と、シミュレーションの結果を合わせて、流体や物質の分布、空間的な磁場分布や、それらの時間的な組み合わせを選択することで高磁場を利用した物質挙動の非接触制御手法を設計できることを示すことができた。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① Noriyuki Hirota, Tsutomu Ando, Tadamitsu Takano, Hidehiko Okada, *In-situ* observation of particle deposition process on ferromagnetic filter during high-gradient magnetic separation process, J. Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 427 (2017) 296-299. 査読有

[学会発表] (計 8 件)

- ① Noriyuki Hirota, Tsutomu Ando, Hidehiko Okada, *In-situ* observation of particle deposition process on a magnetic filter during high gradient magnetic separation process, 8th International Workshop on Materials Analysis and Processing in Magnetic Fields, 2018/6/27-29, Grenoble, France.
- ② Noriyuki Hirota, Tsutomu Ando, Hidehiko Okada, *In-situ* orthogonal observation of particle deposition process on a ferromagnetic filter during high gradient magnetic separation process, Magnetic Carrier Meeting 2018, 2018/5/22-26, Copenhagen, Denmark.
- ③ 廣田憲之、高磁場下における弱磁性物質挙動のその場観察、電気学会 基礎・材料・共通部門大会 2017/9/19-20、室蘭
- ④ Noriyuki Hirota, Effects of high magnetic fields on the behavior of feeble magnetic fluids, 8th International Forum on Magnetic Force Control, 2017/9/4-6, Beijing China.
- ⑤ 廣田憲之、高磁場下における物質挙動のその場観察、低温工学・超電導学会 第3回高温超伝導バルク体の磁氣的挙動に関する応用調査専門委員会 2017/1/16、東京 (招待講演)

- ⑥ 廣田憲之、弱磁性物質挙動の高磁場中その場観察、応用物理学会 第 77 回秋季学術講演会 2016/9/13-16、新潟 (招待講演)
- ⑦ Noriyuki Hirota, *In-situ* observation of behavior of feeble magnetic materials under high magnetic fields, International Workshop on Materials Analysis and Processing in Magnetic Fields, 2016/6/15-18, Providence, USA (Invited).
- ⑧ Noriyuki Hirota, Control of fluid flow in crystal growth process using high magnetic force, International Symposium on Cutting Edge of Computer Simulation of Solidification, Casting, and Refinement, 2016/5/11-15, Xi'an, China (Invited).

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。