

令和 5 年 6 月 5 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K14614

研究課題名（和文）粉粒体の相分離による散逸構造：レオロジーと界面力学のクロストーク

研究課題名（英文）Dissipative structure in granular segregation: cross-talk between rheology and interface dynamics

研究代表者

江端 宏之（Ebata, Hiroyuki）

九州大学・理学研究院・助教

研究者番号：90723213

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では新規に構築した擬二次元容器の水平加振実験系を用い、粉粒体の相分離による構造形成のメカニズムの解明を目指した。新規実験系において、回転ドラムと同様のバンド形成現象に加え、自己複製パターンを発見した。自己複製パターンは粉粒体の相分離現象では初めての報告である。また、使用している粉体の流動性を測定した結果、複雑な相分離パターンの出現には流動性に強いヒステリシスを持つ必要があることが分かった。実験から得られた結果に基づき、相分離と粉体層表面の流動、粉体の流動性を考慮した数理モデルを提案した。これにより、相分離パターンの分岐などの実験結果を再現することが出来た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

異なる種類の粉体粒子は機械的駆動力により相分離することがある。しかし、粉体層内部の相分離の経時変化の測定が難しいことから、分離現象のメカニズムは解明されておらず、混合・分離を予測するために必要な物理量は分かっていなかった。本研究では、粉体層内部の相分離の時間発展を直接観察できる実験系を構築した。新規実験系を用いることで、表面流により駆動される相分離パターンは、サイズ分離現象・表面流・流動性のヒステリシスが相互に影響することで駆動されることを示した。回転ドラムにおけるバンド形成においても同様のメカニズムが存在する可能性があり、粉粒体の一般的な相分離現象のメカニズム解明に寄与する知見が得られた。

研究成果の概要（英文）：When granular mixtures of different sizes are fluidized, each species spontaneously separates and condenses to form patterns. Although granular segregation has been extensively studied, the inability to directly observe the time evolution of the internal structure hinders the understanding of the mechanism of segregation dynamics driven by surface flow. In this project, we found rich band dynamics, including a replicating band, in a horizontally shaken granular mixture in a quasi-two-dimensional container where the granules formed steady surface waves. By using the newly developed systems, we performed direct observation of surface flow and segregated internal structure. We found that coupling among segregation, surface flow, and hysteresis in the fluidity of granules is key to understanding complex band dynamics. Based on the experimental observation, we proposed a phenomenological model that reproduced bifurcation from stable band to oscillatory pattern through replicating band.

研究分野：非平衡物理学

キーワード：粉粒体 パターン形成 相分離

1. 研究開始当初の背景

粉粒体とは砂や小麦粉など、粒子の直径が 0.1mm 以上の粒子の集まりである。粉粒体は熱揺らぎの影響を受けず、粒子同士の摩擦や非弾性衝突により系全体が散逸的であることが大きな特徴である。粉粒体では熱拡散が起こらないため、異なる種類の粉粒体を混合するには振動などの非熱揺らぎによりエネルギーを加える必要がある。この時、粉粒体は系全体が散逸的であるため、混合するのではなくむしろ相分離現象のように同じ種類の粒子同士が集まって分離し、自発的に構造形成をする性質がある。

粉粒体の分離現象の典型的な系の一つが、回転する円筒容器内のバンド形成現象である(図1)。大きさや流動性が異なる2種類の粒子を同じ割合で円筒容器に充填し、水平に置いた円筒容器を回転することで、粉体層表面に定常的な雪崩を駆動する。まず、回転開始直後に、雪崩面に垂直な深さ方向に分離が起こり、粉体層表面が粒径の大きい粒子で覆われる。その後、回転容器軸方向に分離を起こし、縞模様(バンド)が現れる[Frette et al., *Phys. Rev. E* **56**, 6981 (1997)]。バンド形成の機構として、深さ方向への粒子の分離により、粉体層に内部構造が生まれ、その内部構造が不安定化することでバンドが形成されるのではないかという予測がある[Taberlet et al., *J. Stat. Mech. Theory Exp.*, P07013 (2006)]。しかし、粉体層内部の時間変化を直接観察することが難しいため、内部構造の不安定化は実験的に実証されていない。また、なぜ内部構造が不安定化するのか、を決める物理量は明らかでなかった。

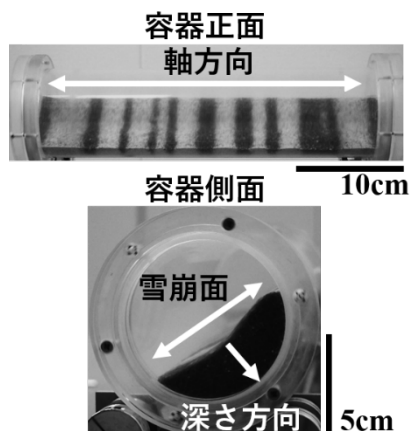


図1：回転ドラムにおけるバンド形成時の容器正面と側面からの写真。黒が大粒子。白が小粒子。

2. 研究の目的

粉粒体の分離現象において、粒子の大きさや表面摩擦の違いが混合・分離の決定に重要であると考えられている。先行研究では、粒子の大きさと動的安息角(雪崩面の水平からの角度)の組み合わせから、粉粒体のバンド形成を予測する式が提案されている[Hiil et al., *Phys. Rev. E* **52**, 4393 (1995)]。しかし、この式に従わない例も多く、一般的な予測は困難である。動的安息角は流動性を表す指標の一つと考えられるが、散逸の強さを定量的に評価するパラメータとして十分ではない可能性がある。粉粒体の分離現象を本質的に理解するためには、粉粒体の散逸の強さと力学的駆動力のバランスの定量評価に基づき、自発的構造形成のメカニズムを明らかにする必要がある。また、粉粒体の相分離現象のメカニズムの解明を困難にしている原因の一つとして、粉体層内部の相分離の経時変化の測定が難しいことがある。そこで、粉体層に相分離を駆動する流れを加えつつ、内部構造の非侵襲的・連続的な測定が出来る新規実験系の構築を目指す。また、粉粒体の相分離ダイナミクスと、粉粒体の流動特性測定結果を取り入れた数理モデルから、粉粒体の相分離による自発的構造形成のメカニズムを解明することを目指す。

3. 研究の方法

装置：本研究では、擬二次元的容器にいた粉体層を水平方向に振動させる実験系を新たに構築した(図2)。ここでは、容器の厚さを超える振幅で水平に加振することで、粉体層に定常的な表面流を駆動する。この表面流を用いて相分離を誘起する。また、容器を擬二次元的にすることで、容器側面から粉体層内部の相分離の時間発展を非侵襲・連続的に測定することが可能である。

測定方法：加振に垂直な容器側面に鏡を配置し、鉛直上方からカメラで撮影することで、粉体表面と深さ方向の相分離を同時測定する。この時、位置センサーを用いて、容器が振動の中心を通過するタイミングでストロボ撮影する。これにより、相分離のゆっくりとした時間発展を測定できる。また、加振の方向に平行な側面側から高速カメラで粉体層を撮影し、粉体層表面に誘起される波の振幅から粉体層の流動性を評価する。本研究では加振の振幅を固定し、加振の振動数を変えることで、粉体層表面に誘起する波の振幅を変えている。

使用粒子：本研究では主にガラスビーズとガラスフリットを使用している。これら2種類の粉粒体はほぼ比重が等しく、比重差の影響を無視できる。ガラスビーズは球状であり、ガラスフリットは不規則形状をしている。そのため、二つの粉粒体の流動性には大きな差がある。実験ではガラスビーズとガラスフ

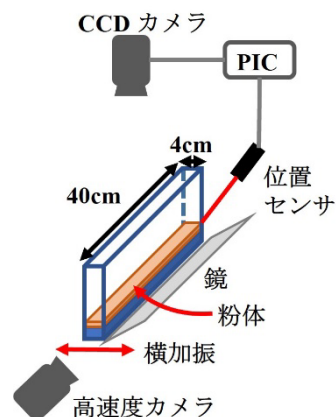


図2：実験のセットアップ。

リットの粒径の組み合わせを系統的に変えている。

数理モデル：実験で得られた知見に基づき、数理モデルを作成する。モデルでは、相分離と粉粒体層の流動性が相互作用することを仮定している。

4. 研究成果

1) 粉体層内部の相分離の時間発展の直接観察

粒径の大きいガラスビーズと粒径の小さいガラスフリットを均一に混ぜた混合物を擬二次元的容器に入れ、水平方向に加振した。加振の振動数が十分小さい条件では粉粒層は固体状であるが、振動数がある閾値以上になると流動化し、粉粒層表面に波が伝搬する。この表面流により、粉体層表面にはバンド状の相分離パターンが現れる (図3 (a))。粉体層側面からの観察により、表面波により深さ方向と水平方向への相分離が同時に進行することが分かった (図3 (a, b))。加振開始の初期はまず、大きい粒子が粉体層表面を覆い、上下方向への相分離が起こる。相分離により現れた分離界面は水平ではなく、形状の揺らぎ (小さな凸凹) を持つ。相分離が進行すると、分離界面の凸凹の振幅が成長し、波打つ形状になる。そして、分離界面の凸凹が粉体層表面に達することでバンド状のパターンが形成されることが分かった。結果として、粉体層表面の相分離パターンの時間発展と、分離界面の形状の時間発展は高い相関を持つ (図3 (c, d))。以上のような相分離界面のダイナミクスは、密度の異なる2流体の界面で現れるレイリーテイラー不安定性に類似している [G. I. Taylor, *Proc. R. Soc. London, A* **201**, 192 (1950).]。また、このような相分離のプロセスは、回転ドラムにおける相分離バンド形成において予測されていた [Taberlet et al., *J. Stat. Mech. Theory Exp.*, P07013 (2006)]。本研究は、深さ方向の相分離プロセスを直接観測した初めての例となる。

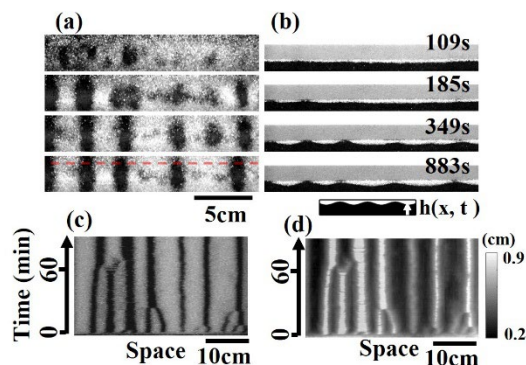


図3：(a) 粉体層表面の相分離パターンの時間発展。(b) 粉体層内部の相分離の時間発展。(c) 粉体層表面の相分離パターンの時空間プロット。(d) 相分離界面の形状の時空間プロット。

2) 新規相分離パターンの発見

回転ドラムにおいて相分離によりバンドパターンが形成されるかどうかは、2種類の粉体の粒径の差に依存することが分かっている。そこで、水平加振系でもガラスビーズとガラスフリットの粒径の組み合わせが相分離パターンに与える影響を調べた (図4 (a))。まずは、ガラスビーズの粒径がガラスフリットの粒径よりも大きい場合の結果を示す。2つの粉体の粒径の比が小さい場合は、回転ドラムと同様のバンドパターンの融合による単調緩和過程が現れた (図4 (b-1))。回転ドラムでは単調緩和により最終的に大粒子と小粒子が完全に分離すると予想されているが、本研究の水平加振系では振動数が大きいほど最終的に残るバンドの本数が多くなることが分かった。

粒径比がある閾値以上に大きくなると、単調緩和過程はバンドの自己複製パターンへと分岐する (図4 (c))。このような自己複製パターンは化学反応系や垂直加振された濃厚懸濁液界面で発見されていた [J. E. Pearson, *Science* **261**, 189 (1993), H. Ebata and M. Sano, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 088301 (2011)]、粉粒体の相分離現象では初めての報告である。また、自己複製バンドの時空間プロットを作成したところ、1次元反応拡散系の数値計算で報告されていた [Y. Hayase and T. Ohta, *Phys. Rev. Lett.* **8**, 1726 (1998)]、シルピンスキー・

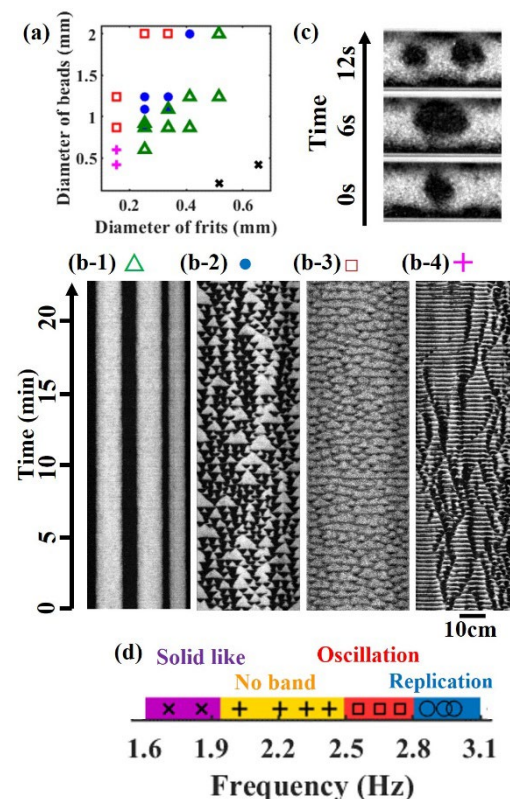


図4：(a)相分離パターンの相図。△：緩和過程。○：自己複製。□：振動。+：乱流。(b)各パターンの時空間プロット。(c) 自己複製バンドのスナップショット。(d) 相分離パターンの加振振動数依存性。

ギャスケットパターンになることが分かった (図4 (b-2))。これは、自己複製バンドが1次元的に振る舞っていることを示唆している。また、シルピンスキー・ギャスケットパターンの実験での初めての報告となる。

粒径比が非常に大きくなると、自己複製パターンから振動パターンへと分岐する (図4 (b-3))。また、ガラスビーズとガラスフリットの粒径がどちらも小さい場合は加振により粉体層全体が激しくかき混ぜられ、乱れた状態になる (図4 (b-4))。このように、ガラスビーズの粒径がガラスフリットの粒径よりも大きい場合は様々な相分離パターンが現れる。一方で、ガラスフリットの粒径がガラスビーズより大きい場合は相分離パターンが現れないことも明らかになった。これは、深さ方向への相分離により表層に現れる粒径の大きい粉体の流動性が大きいことが、水平方向の相分離パターンの形成に重要であることを示している。

本実験系においては、加振により系にエネルギー注入をしている。そこで、加振の強さに対する相分離パターンの依存性を明らかにするために、加振振動数を変えながら実験を行った (図4 (d))。振動数が十分に小さいと粉体層は固体状になっており、表面波は現れない。振動数が大きくなると表面波が駆動されるようになるが、臨界振動数以下では相分離パターンは誘起されない。振動数が臨界値を超えると振動パターンが現れ、さらに自己複製バンドへと分岐する。以上の結果から、水平加振により十分大きな表面波が駆動されることで相分離パターンが現れると分かる。

3) 粉体層表面波の流動性評価

相分離パターンの振動数依存性から、表面波の強さがパターン形成にかかわることが示唆された。また、相分離パターンの粒径依存性から、使用している粉体の流動性が重要であることが示唆される。そこで、ガラスビーズとガラスフリットそれぞれの流動性を評価した。ここでは、1種粒子を擬二次元的容器に入れ、加振により誘起される表面波の振幅を高速カメラにて測定した (図5 (a, b))。また、加振に対するヒステリシスを調べるために、振動数を下降もしくは上昇させながら測定した。ガラスビーズはより小さい振動数から表面波が現れ、振動数を下降もしくは上昇したどちらの場合も同じ結果が得られた。これは、ガラスビーズは流動性が高く、流れにヒステリシスを持たないことを示す。一方、ガラスフリットの場合は、より高い振動数から表面波が現る。また、振動数を下降もしくは上昇した2つの場合で、表面波が現れる振動数も、表面波の大きさも異なることが分かった。これは、ガラスフリットの流動性が低く、大きなヒステリシスを持つことを示す。また、流動している状態でも、波の振幅が大きい状態と小さい状態の2状態を取ることを示している。

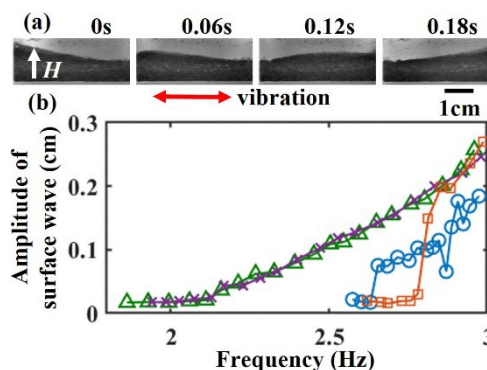


図5 : (a) 一種粒子粉体層の表面波。(b)表面波の振幅の振動数依存性。 Δ :ガラスビーズで周波数を下げた場合。 \times :ガラスビーズで周波数を上げた場合。 \circ :ガラスフリットで周波数を下げた場合。 \square :ガラスフリットで周波数を上げた場合。

次に、ガラスビーズとガラスフリットを混ぜ、自己複製バンドが現れている状態での表面波の振幅を測定した。その結果、バンドが現れると粉体層表面の波の振幅が低下することが分かった。相分離により現れるバンド (図3 (a)) はガラスフリットで主に構成されており、流動性の低いガラスフリットが表面の波に多く含まれることで振幅が小さくなると考えられる。

これら実験結果をまとめると、振動や自己複製パターンが現れるメカニズムとして以下のものが考えられる。まず、水平加振により深さ方向の相分離が駆動され、表面に流動性の高いガラスビーズからなる層が形成される。一方で、ガラスビーズの層の下にはガラスフリットの層が形成される。その結果、ガラスビーズとガラスフリットの層の間には界面が形成される。ガラスビーズの層が表面波を作り、界面からガラスフリットを巻き上げる。ガラスビーズ層の中に混ざったガラスフリットが相分離により凝集しバンドを形成する。ガラスフリットの比率の高いバンド領域は、流動性が低下し表面波の振幅が小さくなる。その結果、表面波によるガラスフリット層からの粒子の巻き上げ量が低下する。深さ方向の相分離により、ガラスフリットが沈降する量が巻き上げ量を上回り、バンドが消滅する。以上のことが繰り返されることで、非定常な相分離パターンが現れると考えられる。

4) 相分離パターンの現象論的モデル提案

実験で得られた知見を用いて相分離パターンの現象論的モデルを作成した。モデルでは水平方向の相分離パターンを記述するために、1次元のダイナミクスを考える。また、変数として粉

体層表面の状態を表す変数 ϕ と、表面波の流動状態を表す変数 ψ を導入する。 ϕ が負の値を持つときにガラスビーズの割合が多い状態、 ϕ が正の値を持つときにガラスフリットの割合が多い状態を示す。一方、 ψ が大きいほど表面波は流動が強く、 $\psi \ll 0$ で流動が停止しているとする。粉体層の表面では、表面波の流動が強いほどガラスフリットの割合が増加し、流動が弱いとガラスビーズの割合が大きくなる。そこで、 ϕ の時間発展方程式として

$$\tau_\phi \dot{\phi} = \psi - \gamma\phi + I + D_\phi \nabla^2 \phi$$

とした。

表面波の流れの強さ ψ については、ガラスフリットの量が多いほど ($\phi > 0$) 流れが弱くなる ($\psi < 0$)。また、流動の強さはヒステリシスを

持ち、2状態を取る。そこで、 ψ の時間発展方程式には3次の非線形項を入れた。

$$\tau_\psi \dot{\psi} = \alpha\psi(1+\psi)(1-\psi) + c - d\phi + D_\psi \nabla^2 \psi$$

これらの時間発展方程式は、自己複製パターンの現れる Bonhoeffer-van der Pol 型の反応拡散方程式と等価になっている。

モデルの数値計算結果を図6に示している。実験と同様にモデルでも、相分離の強さ γ が小さくなるにつれて、定常パターンから自己複製パターンを経て振動パターンに分岐することが分かった。また、自己複製パターンの時空間プロットは実験で見られたものと同様のシルピンスキーギャスケットパターンを示す (図6 (b)) [Y. Hayase and T. Ohta, *Phys. Rev. Lett.* **8**, 1726 (1998)]。このように、実験結果をモデルにより定性的に再現することが出来た。

5) 結言

本研究の粉体層内部相分離の直接観測、流動性の評価、数理モデルの計算により、水平加振系での相分離ダイナミクスはサイズ分離現象・表面流・流動性のヒステリシスが相互に影響することで駆動されることが分かった。回転ドラムにおけるバンド形成においても同様のメカニズムが存在する可能性があり、粉粒体の相分離現象のメカニズム解明に寄与する知見が得られた。

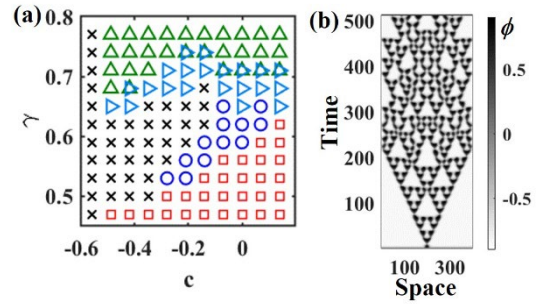


図6 : (a) 現象論的モデルの相図。 \triangle : 定常パターン。 \diamond : 脈動パターン。 \circ : 自己複製パターン。 \square : 振動パターン。(b) 現象論的モデルで現れる自己複製パターンの時空間プロット。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 0件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Hiroyuki Ebata, Shio Inagaki	4. 巻 2303.17145
2. 論文標題 Self-replicating segregation patterns in horizontally vibrated binary mixture of granules	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 arXiv	6. 最初と最後の頁 1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.48550/arXiv.2303.17145	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Kurumi Kondo, Hiroyuki Ebata, Shio Inagaki	4. 巻 2306.01548
2. 論文標題 The segregation pattern in a rotating cylinder determined by size difference, density ratio, and the cylinder diameter	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 arXiv	6. 最初と最後の頁 1-19
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.48550/arXiv:2306.01548	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計5件（うち招待講演 0件/うち国際学会 0件）

1. 発表者名 江端 宏之、稲垣 紫緒
2. 発表標題 表面波に駆動された粉粒体の相分離パターン
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 江端宏之
2. 発表標題 多様な粒子による動的構造形成の普遍性 -粉粒体のパターン形成から細胞運動まで-
3. 学会等名 大阪大学 宇宙地球科学専攻 宇宙地球科学セミナー
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hiroyuki Ebata, Shio inagaki
2. 発表標題 Mechanism of self-replicating band driven by granular segregation
3. 学会等名 アクティブマター研究会2021
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 江端宏之
2. 発表標題 自己駆動・自己複製の一般的モデルー粉体のパターン形成から細胞運動までー
3. 学会等名 第1回研究会「非線形・非平衡系の数理と物理」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hiroyuki Ebata, Shio inagaki
2. 発表標題 Self-replicating pattern driven by granular segregation
3. 学会等名 アクティブマター研究会2020
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------