

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 21 日現在

機関番号：21401

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2014

課題番号：23360049

研究課題名(和文)ヘマタイト粒子サスペンションの特異的機能性発現現象の解明とその制御法の構築

研究課題名(英文) Investigation of the peculiar functional characteristics of hematite particle suspensions and development of the method of controlling the characteristic properties

研究代表者

佐藤 明 (SATO, Akira)

秋田県立大学・システム科学技術学部・教授

研究者番号：50211941

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,900,000円

研究成果の概要(和文)：ヘマタイト粒子サスペンションにおける逆磁気粘性効果に関する実験的な研究、配向分布関数に基づいた理論解析、ブラウン動力学法による逆磁気粘性効果の解明のための理論的研究を推進した。実験的研究においては、磁場中での凝集構造の相転移現象や逆磁気粘性効果の諸因子への依存性を詳細に解明した。ブラウン動力学シミュレーションにおいては、スピン回転ブラウン運動を考慮した分子動力学シミュレーション法を構築するとともに、逆磁気粘性効果に及ぼす諸因子の影響を詳細に解明した。以上の実験および理論解析より、逆磁気粘性効果を磁場および流れ場により、効果的に制御する方法の知見を得ることに成功するに至った。

研究成果の概要(英文)：We have investigated the effects of the various factors on the negative magneto-rheological properties of hematite particle suspensions theoretically and experimentally. Brownian dynamics simulations have been performed in order to investigate the relationship between the magneto-rheological properties and the phase change of aggregates. From the experimental study, we have verified that the negative magneto-rheological effect surely arises in an actual hematite particle suspension. From the theoretical analysis, we have developed the Brownian dynamics simulation method that takes into account the spin Brownian motion and clarified in detail the influence of the various factors on the negative magneto-rheological properties. From these studies, we have succeeded in obtaining the valuable information for controlling the negative magneto-rheological properties of hematite particle suspensions by means of an external magnetic and flow field.

研究分野：工学

キーワード：磁性粒子サスペンション 機能性サスペンション ミクロ流体科学 凝集現象 ヘマタイト粒子 逆磁気粘性効果 ブラウン動力学法 配向特性

1. 研究開始当初の背景

弱い磁気モーメントを有するヘマタイト粒子分散系は従来の強磁性微粒子分散系とは全く異なる、数々の非常に興味深い特性を示すことが明らかになっている。例えば、ヘマタイト粒子はある条件下で自己組織化によりチューブ状のクラスタが形成されることが実験的におよび分子シミュレーションによって明らかとなっている。また、流れ方向に磁場を印加すると通常軸方向に磁化された強磁性棒状粒子のように粘度の大きな増加をもたらすが、せん断面に垂直な方向に磁場を印加すると磁性に基づく粘度が減少するという逆磁気粘性効果を示す。このように自己組織化構造や磁場の印加による複雑なヘマタイト粒子の流れ場中での挙動が、非常に特異なレオロジー特性を与えることになる。

以上の理論的予測は単純化したモデルを用いて粒子の配向分布の特性を解明することで世界で初めて得られたものである。従って、粒子間の相互作用を考慮したより現実的な分子シミュレーションによる研究や、強磁場に影響されないで精密な粘度が低ずり速度領域から高ずり速度領域まで測定可能な実験装置の構築とその実験装置を用いた実験的な検証が切に望まれるところである。このような現実的な系での分子シミュレーションおよび実験的な研究による逆磁気粘性効果の詳細な解明により、通常磁気粘性効果を有する棒状粒子や扁平粒子と最適に混合することにより、今までにない効果的な磁気粘性効果を発現させることが可能となる。このような新規機能性サスペンションの開発に大きく道を開く重要性を本研究は有している。

2. 研究の目的

粒子軸に垂直な方向に磁化された棒状ヘマタイト粒子サスペンションは、印加磁場方向によって磁気力に基づくサスペンションの粘度が負になることが、比較的単純なモデルの理論解析から予測されている。通常棒状粒子は粘度を増加するように働くが、磁場の方向に依存してこのような逆磁気粘性効果を示すことを世界で初めて理論的に示したのは申請者であり、この効果を有効に利用できれば、従来の非球状粒子と混合することで、より効果的な磁気粘性効果を発揮する新規機能性サスペンションの開発が可能となる。

本研究の目的：

(1) 逆磁気粘性効果の実験的な検証を推進するために、まず、より現実的な特性を把握できるブラウン動力学シミュレーション法

の構築をすることと、粒子のブラウン運動および粒子間の相互作用を考慮した分子シミュレーションを実行することで、逆磁気粘性特性を詳細に解明する。

(2) 磁場下で精密なレオロジー特性を測定できるコーン型回転粘度計を主構成要素とするレオロジー測定装置システムを構築し、詳細な実験を行うことで、理論的に予測されている逆磁気粘性効果の実験的検証を行う。

以上の研究結果においては、ポイント絞った緻密な実験およびブラウン動力学シミュレーションを行うことにより、逆磁気粘性効果の効果的な制御法の構築を目指す。

3. 研究の方法

(1) より現実的な系を対象として、逆磁気粘性効果を理論的に詳細に解明することを目指す。逆磁気粘性効果の理論的予測は単純化したモデル理論により得られたものなので、まず、より現実的な3次元系の多粒子サスペンションを対象に、ヘマタイト粒子の並進および回転のブラウン運動を考慮したブラウン動力学法によるシミュレーション・プログラムの開発を行う。このシミュレーション・プログラムを用いて、逆磁気粘性効果の発生する印加磁場の強さやせん断流のずり速度の大きさの領域、磁性粒子の磁気特性ならびに粒子間相互作用の影響を詳細に検討する。単純化したモデル解析による理論的な予測では、磁場方向に対する粒子の配向の特徴的な分布がその主要なメカニズムであることが指摘されているので、粒子間の多体相互作用が逆磁気粘性効果にどのような影響及ぼすかを解明することは、後の応用展開を計る上で、また最適濃度を有する機能性サスペンションを開発する上でも非常に重要となる。さらに、広範囲なずり速度領域での粒子の磁場特性に基づく粘度の特性を解明する。

(2) 逆磁気粘性効果を実験的に検証するためのレオロジー測定装置システムの構築とその実験装置を用いて逆磁気粘性効果を詳細に解明することを目指す。シミュレーションで得られた基礎データを用いて、磁場中で作動可能なコーン型回転粘度計を基本にしたレオロジー測定装置システムの構築を行う。通常、強磁場中で作動する粘度計は磁気遮蔽や軸の伸長化など、特別な処理が必要になるので、予備実験を繰り返しながら、逆磁気粘性効果を捕獲できるようなレオロジー測定装置システムの構築を行う。ヘマタイト粒子の調製法は既存の調製法を拡張しながら、逆磁気粘性効果の効率的な観察が可能な分散系を調製すること試みる。このレオロジー

一測定装置システムを用いて、ブラウン動力学シミュレーションで得られた、ヘマタイト粒子の磁性に基づく粘度の単純せん断流のずり速度の強さや印加磁場の強さへの依存性、ならびに、粒子密度の変化による粒子間相互作用への依存性を実験で検証し、逆磁気粘性効果のメカニズムを明確にする。

以上の実験および理論解析を複合的に遂行し、逆磁気粘性効果を効果的に制御する方法の確立を目指す。

4. 研究成果

(1) 粒子軸に垂直に磁化された棒状ヘマタイト粒子の希釈分散系を対象として、一様磁場の影響下での単純せん断流中での粒子の配向に関する配向分布関数の基礎方程式を示すとともに、その基礎方程式を数値解析法で解くことで配向分布関数の数値解を得た。この配向分布関数の解より、粒子の配向特性、逆磁気粘性効果および磁化特性に及ぼすスピン回転ブラウン運動の影響を主として、印加磁場の強さならびにせん断流の強さの影響も詳細に明らかにした。スピン回転ブラウンの影響により、負の粘度の効果がかかなり減少することを明らかにした。本研究ではスピン回転ブラウン運動を考慮した理論を構築したことに世界的に見ても大きな意義がある。

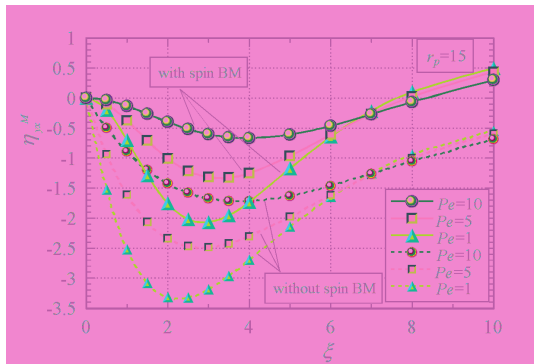


図1 逆磁気粘性効果のせん断流のずり速度への依存性 (スピン回転ブラウン運動の影響が非常に大きい)

(2) せん断流に対し同方向に磁場を印加した場合に対して、配向分布関による解析を行った。このような磁場方向の場合、印加磁場の影響が支配的になると、粒子はせん断流方向に対して垂直に配向し、スピン回転ブラウン運動に起因してせん断面に垂直な面に配向する傾向が強くなる。このような配向特性により、磁気力に基づく粘度は正の値になり、印加磁場の増加に伴い増加する。また、粒子アスペクト比が増加するにつれて、磁気粘性効果は顕著になる。さらに、せん断流の回転角速度方向に磁場を印加した場合の解析を

行った。この場合、磁気粘性効果は発生しないことを明らかにした。本研究での詳細で緻密な検討は、今後の研究展開に際しても、貴重な基礎データを提供するものである。

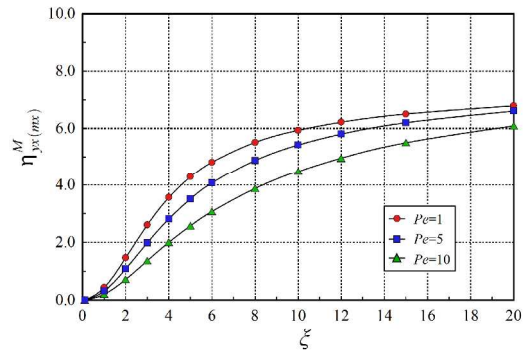


図2 せん断流に対し同方向に磁場を印加した場合の粘度の磁場の強さへの依存性(せん断流の回転角速度方向に磁場を印加した場合には逆磁気粘性効果は発生しない)

(3) 針状ヘマタイト粒子分散系の逆磁気粘性効果について実験的検証を行った。針状ヘマタイト粒子を調製し、母液をグリセリン水溶液とする針状ヘマタイト粒子分散系を作製した。具体的にはコンプレート型粘度計およびヘルムホルツコイルを用いて、せん断流および一様印加磁場中における針状ヘマタイト粒子分散系の粘度測定を行い検討した。印加磁場中における針状ヘマタイト粒子分散系の粘度は、磁場を印加する前の粘度よりも減少する。また、印加磁場の増加とともに、逆磁気粘性効果は顕著になる。一方、せん断流の影響が支配的になると、逆磁気粘性効果は減少する。以上のように、理論的に指摘されていた逆磁気粘性効果を、世界で初めて実験的な検証に成功した研究である。

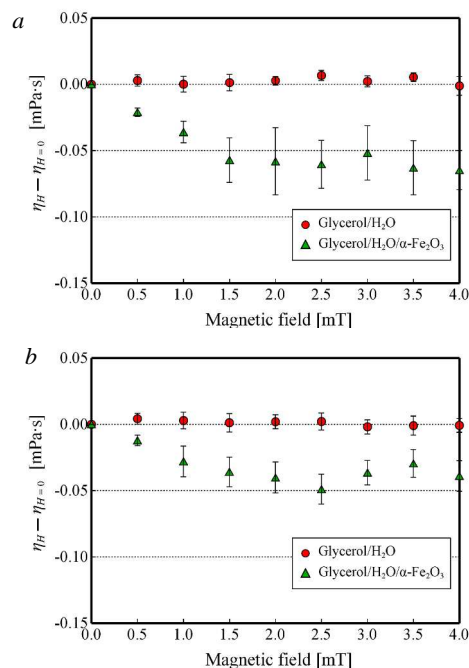


図3 相対粘度($\eta_H - \eta_{H=0}$)の磁場の強さへの依存性: (a) $\dot{\gamma} = 3s^{-1}$ (ずり速度小) and (b) $\dot{\gamma} = 10s^{-1}$ (ずり速度大) (負の粘度が実際のサスペンションでも生じることを検証した実験)

(4) ブラウン動力学法の適用に際しての種々の問題点の検討を行った. 配向分布関数の基礎方程式を数値的に解いた理論解と比較することにより, ブラウン動力学法により得た解の精度および理論解からの乖離の原因の探求を試みた. 理論的な逆磁気粘性効果の特徴は, 本シミュレーションの結果も定性的に非常によく再現する. 磁場の強い領域での負の粘度の理論解からの乖離は, 2次や4次のルンゲクッタ型アルゴリズムも用いても改善しない. すなわち, 理論解との不一致は, 計算アルゴリズムに起因するものではない. 磁化曲線が理論値とよく一致することから, スピン回転ブラウン運動は物理的に妥当なレベルで誘起される. 本シミュレーション法はスピン回転ブラウン運動を考慮した画期的なブラウン動力学シミュレーション法であり, 今後の研究の進展を大いに可能にするものである.

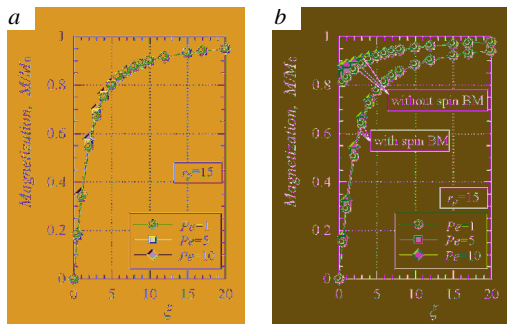


図4 磁化曲線に関する本シミュレーション結果(左側)と従来の理論(右側)の比較による妥当性の証明 (理論の磁化曲線と非常によく一致することにより, 本シミュレーション法の妥当性を明らかにした)

(5) 棒状ヘマタイト粒子分散系の単純せん断流中での凝集現象を, ブラウン動力学シミュレーションにより詳細に検討した. まず, 粒子軸まわりのスピン回転ブラウン運動を考慮した本シミュレーション法の妥当性を, モンテカルロ法の結果と比較することで明らかにした. ついで本シミュレーションにより, 凝集現象に及ぼす粒子間磁気力, 印加磁場の強さ, ずり速度の大きさ, 粒子の体積分率の影響を詳細に検討した. アスペクト比の大きな棒状粒子のクラスタ形成は, 粒子のブラウン運動特に回転のブラウン運動の影響により, 球状磁性粒子の場合と比較して, かなり大きな粒子間相互作用の大きさの値で

ないと, 顕著ないかだ状クラスタを形成することはない. スピン回転ブラウン運動を考慮したシミュレーション法は世界的に見ても画期的である.

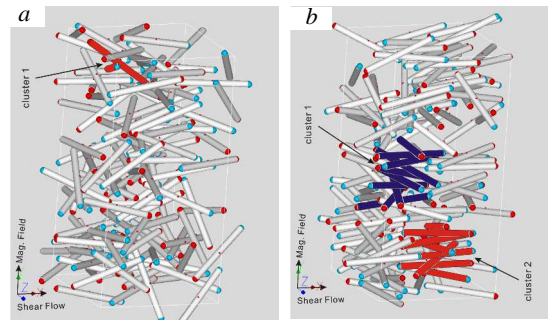


図5 凝集構造の粒子間磁気力の大きさへの依存性: (a) $\lambda=8$ (磁気力小) and (b) $\lambda=10$ (磁気力大) (いかだ状凝集構造が劇的に生じる)

(6) 単純せん断流中での粒子の挙動に関するブラウン動力学シミュレーションを実行することにより, 粒子の凝集構造ならびに配向分布が及ぼす逆磁気粘性効果への影響を詳細に検討した. 粘度をその構成要素である磁場と磁気モーメントの相互作用に基づくトルクから生じる粘度, 粒子間相互作用に起因して生じる力およびトルクに基づく粘度の3つの要素に分解して, より詳細に検討した. 粒子間相互作用がある値より大きくなると, 粒子がいかだ状クラスタを形成するため, 磁場に基づく粘度や粒子間相互作用に基づく粘度が急激に変化ようになる. 逆磁気粘性効果は粒子の体積分率が増すほど減少し消失するようになる. スピン回転ブラウン運動を考慮したシミュレーション法は世界的に見ても画期的である.

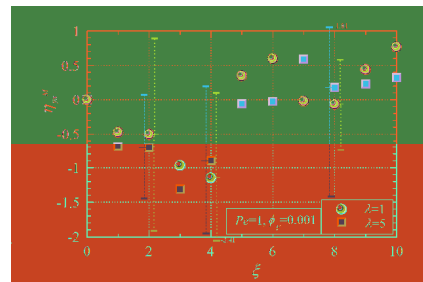


図6 逆磁気粘性効果の磁場の強さへの依存性 (粒子のスピン回転ブラウン運動を考慮した本ブラウン動力学シミュレーションにより, 逆磁気粘性効果が生じることを示した)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計8件)

(1) Satoh, A. and Sakuda, Y.

Theoretical Analysis on the Orientational Characteristics and Rheological Properties of a Rod-like Hematite Particle Suspension in a Simple Shear Flow, Colloids and Surfaces A, 査読あり, Vol. 460, No. 20, pp. 473-482, 2014.

DOI: 10.1016/j.colsurfa.2014.03.031

(2) Satoh, A.

Brownian Dynamics Simulations with Spin Brownian Motion on the Negative Magneto-Rheological Effect of a Rod-like Hematite Particle Suspension, Molecular Physics, 査読あり, Vol. 113, pp. 656- 670, 2015.

DOI: 10.1080/00268976.2014.968647

(3) Satoh, A.

On Aggregate Structures in a Rod-like Hematite Particle Suspension by Means of Brownian Dynamics Simulations, Molecular Physics, 査読あり, Vol. 112, No. 16, pp. 2122-2137, 2014.

DOI: 10.1080/00268976.2014.888101

(4) Satoh, A.

Application of the Brownian Dynamics Method to a Rod-like Hematite Particle Dispersion, Molecular Physics, 査読あり, Vol.112, No.7, pp. 1002-1011, 2014.

DOI: 10.1080/00268976.2013.826393

(5) Satoh, A.

Influence of the Spin Brownian Motion on the Negative Magneto-Rheological Effect in a Rod-like Hematite Particle Suspension, Molecular Physics, 査読あり, Vol. 111, pp. 1042-1052, 2013.

DOI: 10.1080/00268976.2013.764025

(6) 佐藤 明

棒状ヘマタイト粒子分散系へのブラウン動力学法の適用に際しての問題点の検討, 日本機械学会論文集(B編), 査読あり, 78巻, 793号, 1495-1511頁, 2012年.

DOI: 10.1299/kikaib.78.1495

(7) 佐藤 明

棒状ヘマタイト粒子分散系の逆磁気粘性効果に及ぼすスピン回転ブラウン運動の影響, 日本機械学会論文集(B編), 査読あり, 78巻, 786号, 231-243頁, 2012年.

DOI: 10.1299/kikaib.78.231

(8) Sakuda, Y., Aoshima, M., and Satoh, A.

Negative Magneto-rheological Effect of a Dispersion Composed of Spindle-like Hematite Particles, Molecular Physics, 査読あり, Vol. 110, No.13, pp. 1429-1435, 2012.

DOI: 10.1080/00268976.2012.656149

[学会発表] (計 18件)

(1) Satoh, A.

An Experimental Study for Clarifying the

Mechanism of a Microjet in an Electro-Conjugate Fluid, ASME 2014 International Mechanical Engineering Congress & Exposition (IMECE2014), Montreal, Canada, 11月14日 - 11月20日, 2014.

(2) Satoh, A.

On the Negative Magneto-Rheological Effect of a Rod-like Hematite Particle Suspension by means of Brownian Dynamics Simulations, The Society of Rheology 86th Annual Meeting, Philadelphia, U.S.A., 10月5日 - 10月9日, 2014.

(3) Satoh, A.

On the Hybrid-Type Method of Brownian Dynamics and Lattice Boltzmann for a Magnetic Colloidal Suspension, 10th European Fluid Mechanics Conference (EFMC10), Copenhagen, Denmark, 9月14日 - 9月18日, 2014.

(4) Satoh, A.

Brownian Dynamics Simulations on the Orientational Distribution and the Rheological Properties of a Suspension Composed of Disk-Like Hematite Particles, The 28th Conference of the European Colloid and Interface Society (ECIS2014), Limassol, Cyprus, (Haifa, Israel (cancellation)), 9月7日 - 9月12日, 2014.

(5) Yokoyama, H., and Satoh, A.

On the behavior of an oblate spheroidal hematite particle in a simple shear flow under a uniform magnetic field applied in the flow direction, ASME 2013 International Mechanical Engineering Congress & Exposition (IMECE2013), San Diego, CA, U.S.A., 11月15日 - 11月21日, 2013.

(6) Satoh, A.

On aggregation phenomena in a disk-like hematite particle suspension in a simple shear flow by means of Brownian dynamics method, 2013 AIChE Annual Meeting, San Francisco, CA, U.S.A., 11月3日 - 11月8日, 2013.

(7) Satoh, A.

Aggregation phenomena in a rod-like hematite particle suspension in a simple shear flow under a uniform applied magnetic field, 46th Biennial Meeting of the German Colloid Society, Paderborn, Germany, 9月23日 - 9月25日, 2013.

(8) Satoh, A. and Sakuda, Y.

Theoretical Analysis on the Orientational Characteristics and Rheological Properties of a Rod-like Hematite Particle Suspension in a Simple Shear Flow, The 27th Conference of the European Colloid and Interface Society

- (ECIS), Sofia, Bulgaria, 9月1日 - 9月6日, 2013.
- (9) Tamura, S. and Satoh, A.
Brownian Dynamics Simulations of a Dispersion Composed of Two-types of Charged Spherical Particles (For Development of a New Technology to Improve the Visibility of Rivers and Lakes), 2012 ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition, Houston, U.S.A., 11月9日 - 11月15日, 2012.
- (10) Ito, K. and Satoh, A.
On the Hybrid-type Method of Brownian Dynamics and Lattice Boltzmann for Activating the Brownian Motion of Magnetic Particles, 2012 ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition, Houston, U.S.A., 11月9日 - 11月15日, 2012.
- (11) Satoh, A.
Influence of the Spin Rotational Brownian Motion on the Magneto-Rheological Effect in a Rod-like Hematite Particle Suspension in a Simple Shear Flow, 2012 AIChE Annual Meeting, Pittsburgh, U.S.A., 10月28日 - 11月2日, 2012.
- (12) Satoh, A.
Orientational Distributions and Viscosity of an Oblate Spheroidal Hematite Particle in a Simple Shear Flow, 9th European Fluid Mechanics Conference (EFMC9), Rome, Italy, 9月9日 - 9月13日, 2012.
- (13) Satoh, A.
On the Viscosity-Modifying Method for Generating the Brownian Motion of Dispersed Particles in a Magnetic Suspension, 26th Conference of the European Colloid and Interface Society (ECIS 2012), Malmo, Sweden, 9月2日 - 9月7日, 2012.
- (14) Satoh, A.
Theoretical Analysis of the Negative Magneto-Rheological Effect of a Rod-like Hematite Particle Dispersion, International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference 2012 (IACIS 2012), Sendai, Japan, 5月13日 - 5月18日, 2012.
- (15) Satoh, A.
Lattice Boltzmann Simulation of a Two-Dimensional Poiseuille Flow of a Magnetic Suspension Between the Two Parallel Walls, 2011 AIChE Annual Meeting, Minneapolis, Minnesota, U.S.A., 10月16日 - 10月21日, 2011.
- (16) Satoh, A.
Experimental Study on Negative Viscosity of a Dispersion Composed of Spindle-like Hematite Particles in an Applied Magnetic

Field, The Society of Rheology, 83rd Annual Meeting, Cleveland, Ohio, U.S.A., 10月9日 - 10月13日, 2011.

- (17) 佐藤 明
格子ボルツマン・シミュレーションにおける磁性粒子のブラウン運動誘起のための粘度修正法, 日本機械学会 2011 年度年次大会, 東京工業大学, 2011年9月11日 - 9月14日.
- (18) Satoh, A.
Lattice Boltzmann Simulations of a Magnetic Suspension by Means of the Viscosity-Modifying Method, European Colloid and Interface Society (25th ECIS), Berlin, Germany, 9月4日 - 9月9日, 2011.

[図書] (計1件)

- (1) 佐藤 明
朝倉書店, 「Brown 動力学」 in 「粉体工学ハンドブック」, 2.23.3.1 項, 2014.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐藤 明 (SATO, Akira)
秋田県立大学・システム科学技術学部・教授
研究者番号: 50211941

(2) 研究分担者(平成23-25年度)

青島 政之 (AOSHIMA, Masayuki)
秋田県立大学・システム科学技術学部・助教
研究者番号: 20315625

(3) 連携研究者

なし