

機関番号：21401

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2008 ～ 2010

課題番号：20360048

研究課題名（和文） 磁性粒子のブラウン運動誘起を可能にする格子ボルツマン法の構築と粒子分散系への応用

研究課題名（英文） Development of the method of activating the Brownian motion and its application to a magnetic particle dispersion

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

研究成果の概要（和文）： 微粒子スuspensionにおける粒子のブラウン運動の誘起法の構築とその誘起法に基づく格子ボルツマン・シミュレーション法の開発を行った。本シミュレーション法を磁性粒子分散系の非一様磁場中の流れの問題に適用し、磁性粒子間の流体力学的相互作用を考慮した粒子の運動とまわりの流れ場の解析を同時に解析できるシミュレーション法を構築した。本シミュレーション法を用いて、非一様磁場中における磁性粒子の凝集現象を詳細に解明することに成功した。

研究成果の概要（英文）： We have developed the method of activating the Brownian motion of magnetic particles in a particle suspension and have applied the lattice Boltzmann simulation method based on this activation technique to a flow problem of a magnetic particle dispersion in order to develop a simulation method that can simulate the particle Brownian motion in conjunction with the multi-body hydrodynamic interactions and the flow field around the dispersed particles simultaneously. This simulation method has succeeded in clarifying the aggregation phenomena of magnetic particles in a non-uniform external magnetic field.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2009年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2010年度	2,800,000	840,000	3,640,000
総計	6,400,000	1,920,000	8,320,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎

キーワード：分子シミュレーション、機能性サスペンション、マイクロ流体科学、格子ボルツマン、ブラウン運動、粒子間の多体流体力学的相互作用

## 1. 研究開始当初の背景

格子ボルツマン法は、主に気体や液体などの純粋な流体を対象とし、その仮想流体粒子の各速度成分に対する密度分布を追跡することにより、流れ場を得ようとする分子シミュレーション法の一つである。従って、この方面での研究は活発に行われ始めている。しかしながら、微粒子が分散したコロイド分散系やサスペンション系に対する研究展開は

ほとんど行われていない。特に、粒子がブラウン運動するような多粒子系への適用は全く不十分である。一方、磁性微粒子などからなる多粒子分散系の流れ場中での挙動は、その取り扱いの困難さから、単純せん断流などの線形流れ場を前もって仮定し、その環境下での粒子の凝集現象やレオロジー特性を検討する研究が主に行われてきたに過ぎない。ただし、このような単純な流れ場の場合でも、

流体力学的な相互作用は力加算近似や速度加算近似などの近似レベルで考慮しているに過ぎない。

工学的な応用を念頭に置いた場合、凝集現象も含めた粒子挙動と流れ場を同時にシミュレートできるようなシミュレーション法の構築が必要不可欠である。流れ場中での粒子の凝集現象や、表面改質技術開発で重要な重力場中での粒子の沈降現象は、粒子間の流体力学的な相互作用が非常に大きな役割を担っている。粒子のブラウン運動を誘起させるような格子ボルツマン法を構築できれば、重力場中や複雑な流れ場中での、流体力学的な相互作用を考慮した粒子の運動と、その間を流れる流体の流れ場を、同時に解析できることになる。従って、コロイド物理工学の流体力学科学的な面の研究は飛躍的に進展することになる。

## 2. 研究の目的

磁性を有する球状微粒子や棒状微粒子を母液に懸濁しサスペンションとすることで、磁場下で所望の機能性を発揮する機能性サスペンションを開発することや、材料表面に磁性粒子を所望の機能性を発揮するように効果的に粒子配向を制御し付着させることで、表面改質技術への磁性微粒子の応用が可能となる。このようなサスペンションの工学的応用に際しては、粒子の配向・凝集に及ぼす流れ場の詳細な解明が必要不可欠であり、粒子の運動と流れ場の両方を同時に解くシミュレーション法が必要となるが、現在、多粒子系を対象としたそのようなシミュレーション法は皆無である。

本研究の目的：

(1) サスペンションの流れの問題を、微粒子の運動と流れ場を同時に解くことのできるような、格子ボルツマン法を構築する。換言すると、従来の格子ボルツマン法は主に純粋な気体・液体の流れをシミュレートする方法であるので、粒子のブラウン運動を誘起するような、磁性粒子の凝集現象を正しくシミュレートできる格子ボルツマン法を構築することで、流体力学的な多体相互作用を考慮したシミュレーションが初めて可能となる。

(2) ブラウン運動を考慮した本格子ボルツマン・シミュレーション法を、重力場などの非平衡場中における磁性微粒子の凝集現象の解明に応用し、凝集現象に及ぼす磁性粒子の挙動を詳細に解明する。さらに、環境工学への応用を念頭に置いて、磁性粒子の沈降現象を対象に、その現象の解明と本シミュレーション法の現実問題への適用に関する妥当性も併せて検討する。

## 3. 研究の方法

(1) Landau-Lifshitz の揺動流体力学に基づく理論を検討し、多粒子分散系に適用できる、格子ボルツマン方程式に付加すべきランダム項の理論的な検討を行う。さらに、従来のブラウン動力学法で用いられる、母液を一樣媒体と見なしてランダム変位を誘起させる確率変数を導入する解析も行う。以上の理論解析の後、シミュレーション・プログラムの開発を行う。そのシミュレーション・プログラムを用いて、磁性粒子分散系を対象に、磁気力による粒子の凝集現象の妥当性を、従来の方法であるモンテカルロ法による結果と比較検討することで、理論の検証または理論の修正点を明らかにする。

(2) 次に、以上で開発したプログラムを修正し、重力場などの非一樣場に起因する粒子への体積力を考慮した磁性粒子サスペンションの凝集現象をシミュレートできるプログラムを開発する。このプログラムを用いて、粒子の凝集現象と粒子間の流体力学的な相互作用の影響、粒子まわりの流れ場など、流体力学的な観点から詳細に研究する。さらに、磁性粒子の沈降現象を対象に、メスシリンダーでの沈降速度の実験やレーザーによる可視化実験により実験的に検証を行う。

## 4. 研究成果

(1) 多粒子分散系への適用を主眼として、2次元円形粒子(円柱)まわりの流れを取り上げ、格子ボルツマン法に関して、多粒子分散系に有用な境界条件や格子粗さなどの影響を詳細に検討した。多粒子分散系に対して有用と思われる少ない格子点で処理が可能な平衡線形 YMLS 法を提案し、その有効性を明らかにした。本研究結果は、格子ボルツマン法の多粒子分散系への適用を推進するための貴重な基礎研究である。

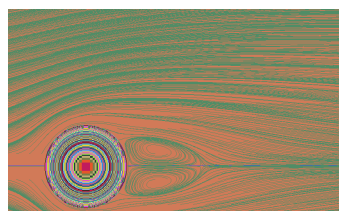


図 1.1 平衡線形 YMLS 法の有効性 (本境界条件を用いるとの円柱背後の双子渦が理論解と非常によく一致する)

(2) 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の凝集現象に着目して検討し、以下のような主要な結果を得た。比較的粗い格子を用いた場合、通常の格子が

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ランダム力を発生させる新たな項を包含させる必要があることを明らかにした。本研究は、磁性粒子分散系の特有の問題を指摘した世界的に貴重な研究成果を与えるものである。

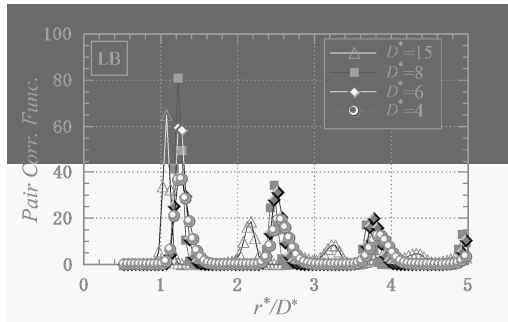


図 2.1 凝集構造(2 体相関関数)への格子粗さの影響 (粗い格子系を用いると理論解とよく一致するが緻密な格子系を用いると凝集構造が正しく捕獲できないことを明らかにした)

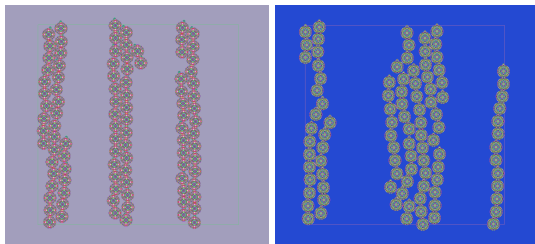


図 2.2 凝集構造の妥当性の証明 (左側の格子ボルツマン法の結果は右側のブラウン動力学法の結果とよく一致することを明らかにした)

(3) 格子ボルツマン法の粒子分散系への適用に際して重要な点は、懸濁粒子のブラウン運動の誘起法の構築である。懸濁粒子間に磁気力が作用し界面活性剤層が存在する磁性粒子分散系に対して、揺動流体力学の理論の妥当性、ならびに、ランダム力を懸濁粒子の基礎方程式に組み込んだブラウン動力学法と格子ボルツマン法のハイブリッド型のシミュレーション法の理論的背景ならびにその有効性を主に検討した。その結果、速度スケールリング法を両方法に組み込んだ場合、揺動流体力学型は、厳密解とほぼ一致する結果を与えることがわかった。一方、ハイブリッド型は、ブラウン動力学法的なランダム力を付加するだけでは、物理的に妥当な磁性粒子の凝集構造を高精度で再現することは困難であるということを示した。本研究より、

従来の揺動流体力学に基づいたランダム変位の発生法では精度が不十分で、揺動流体力学の理論と速度スケールリング法を併用した格子ボルツマン・シミュレーション法が、磁性粒子分散系の場合非常に有効であることを世界で初めて明らかにした。ゆえに、本シミュレーション法を用いれば、磁性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が可能になるという世界的にも大きな研究成果が得られたことになる。

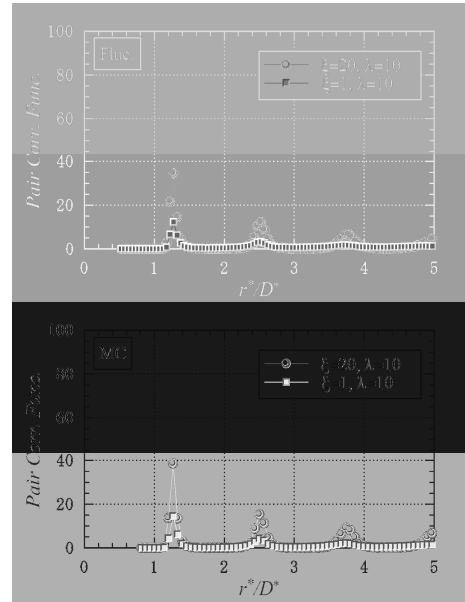


図 3.1 凝集構造(2 体相関関数)のモンテカルロ法の結果との比較 (速度スケールリング法を組み込んだ本シミュレーション法の結果(上図)が理論解(下図)とほぼ完全に一致することを明らかにした)

(4) 環境工学への応用を念頭に置いた、重力場および磁場勾配中の熱力学的非平衡状態での流れ場に適用できる格子ボルツマン法の構築を行った。速度スケールリング法を参考にし、粘度を修正することでランダム力を最適化する粘度修正法の構築を行い、その有効性を詳細に明らかにした。この方法を揺動流体力学に基づく格子ボルツマン法に組み込むことで、熱力学的非平衡状態の粒子分散系の流れ場と粒子の運動を同時に解析することを可能にした。磁性粒子の太い鎖状クラスターの形成やネットワーク構造などの凝集構造の定性的な一致、ならびに、2 体相関関数や磁化曲線など定量的な一致により、その妥当性を証明した。本シミュレーション法が非一様磁場の環境下での磁性粒子の流体問題をシミュレートする方法として、非常に可能性のある方法であることを、本研究が世界に先駆けて提示した先駆的な研究であり、今後の磁性粒子の流れ問題の研究の進展に大きく寄与するものである。



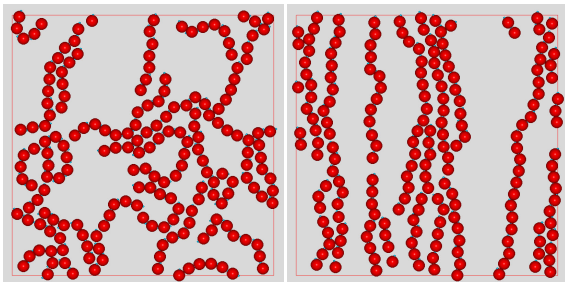


図 4.1 弱磁場中(左側)および強磁場中(右側)による凝集構造の相違 (粘度修正法によるこれらの凝集構造の定性的および定量的な特徴は理論解とほぼ完全に一致することを明らかにした)

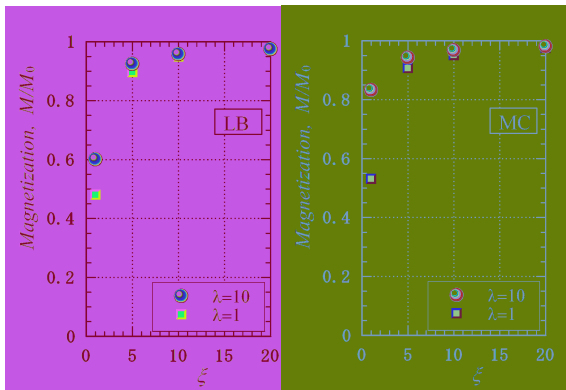


図 4.2 磁化曲線に関する本結果(左側)とモンテカルロ法の結果との比較による妥当性の証明 (磁化曲線が非常によく一致することにより、回転ブラウン運動が妥当なレベルで誘起されることを明らかにした)

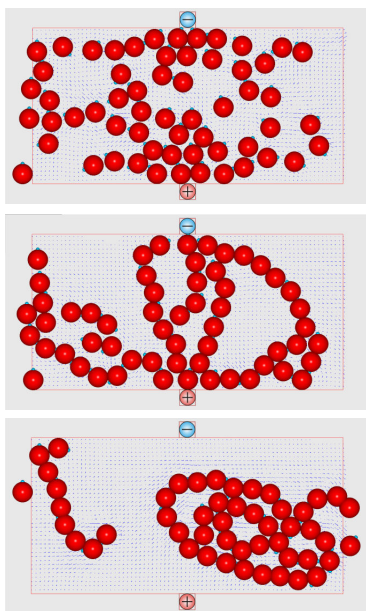


図 5.1 粒子間磁気力および磁場の強さに依存した磁性粒子の流れ場中での挙動の変化 (強磁場で弱粒子間力の場合(最上図)粒子は磁極まわりに単純に凝集, 強磁場・強粒子間力の場合(中間図)磁極間に鎖状クラスタを形成, 粒子間力が圧倒的に支配的な場合(最下図)凝集体を形成し磁極まわりに凝集することなしに下流に流れ去る)

(5) 粘度修正法を組み込んだ格子ボルツマン法を磁場勾配下の磁性粒子分散系の2次元ポアズイユ流に適用し、磁性粒子間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により、粒子の挙動に及ぼす磁場勾配、粒子間磁気力、ポアズイユ流の流速などの影響を詳細に解明した。磁性粒子の平行平板間の挙動は、粒子間磁気力と磁場勾配による体積力の影響の大小関係で、粒子の挙動は劇的に変化することを解明した。本研究は、磁性粒子間の多体流体力学的相互作用を考慮し、粒子の非平衡場中での流れ問題を本格的に解明した世界的に非常に先駆的な研究である。

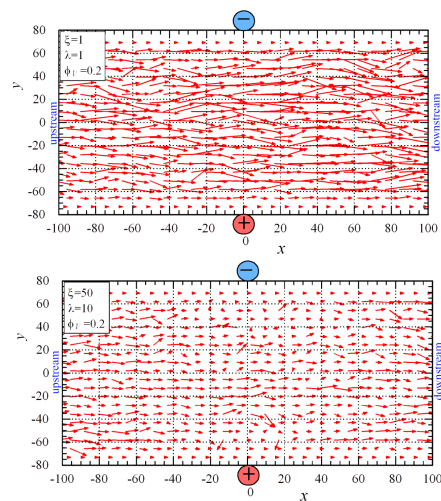


図 5.2 平板間の粒子の流れの相違 (弱磁場・弱粒子間力の場合(上図) 粒子の移動速度は流体の速度にほぼ左右されるが、強磁場・強粒子間力の場合(下図)磁極間に形成された鎖状クラスタのため移動速度がゆっくりとなり、見かけ粘度の顕著な増加を引き起こすことを明らかにした)

(6) 粘度修正法に基づく格子ボルツマン法の適用を計るために、強磁性球状粒子からなるコロイド分散系における粒子の沈降現象を、ブラウン動力学シミュレーションにより検討した。粒子間磁気力と磁場の影響の大小関係により、段階的な層をもった積層構造や磁場方向に直立したクラスタの形成ならびに沈降した粒子の底面で新たなクラスタ形成など、特徴的な沈降構造を示すことを解明した。本研究は磁性粒子の重力場中での沈降現象を本格的に取り扱った世界的に先進的な研究である。

(7) さらに粘度修正法に基づく格子ボルツマン法の環境工学分野への適用を計るために、2種粒子分散系を対象として粒子の沈降現象を、ブラウン動力学シミュレーション

により検討した。本研究は河川・湖沼の透視度改善技術の構築を最終目標とするものである。本研究において特に着目するのは、浮遊物質を直接、吸着・凝集させることのできる凝集沈殿法である。水中に存在する粒子の運動をブラウン動力学法で解析することにより、投入物質の最適な状態、すなわち、粒子径、投入量、投入方法などを詳細に明らかにした。本研究はサスペンション物理学の環境工学への展開として非常に先駆的な研究であり、今後の格子ボルツマン法による粒子間の多体流体力学的な相互作用を考慮した解析への重要な第一段階の基礎研究となる。

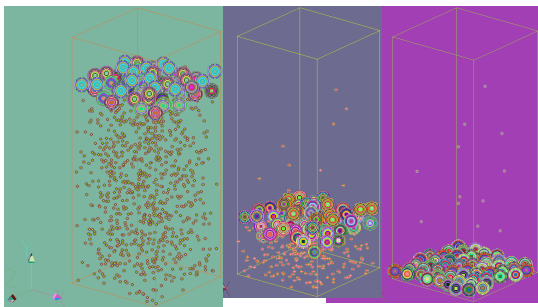


図 7.1 捕獲粒子による汚濁粒子の捕獲および沈降過程のシミュレーション (適切に粒子径と投入分量を選択すると効果的に汚濁粒子を捕獲できることを明らかにした (左から右に行くに従って時間が進む))

次に、捕獲粒子による汚濁粒子の捕獲沈降の有効性を実験的に検証するために、濁度計による実験的な研究を遂行し、粒子径・粒子径分布・粒子の体積分率などの影響を詳細に検討し、本法の有効性を明らかにした。

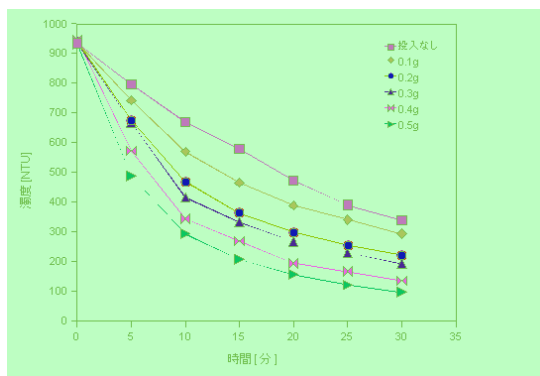


図 7.2 鹿沼土を濁水に投入した場合における透視度改善の有効性 (鹿沼土を投入することにより速やかに透視度が改善することを明らかにした)

(8) レーザー光に基づいた可視化実験装置システムの構築を行い、今後の実験的研究を精

力的に推進する上での基礎となるデータ取得を目的に、電界共役流体(デカンニ酸ニブチル)を対象とした、流れ場の解析を行った。流れ場を解明するためにトレーサー粒子を懸濁し、そのトレーサー粒子をレーザー光で可視化し、画像処理することで流れ場を解明した。本研究は重力場および磁気力の影響下での磁性粒子の挙動の研究に展開できる第一段の基礎研究と位置づけられる。電極間距離、印加電圧の変化が電界共役流体効果によって生じるジェットの流れ場に与える影響およびジェットが発生してから定常状態に至るまでの過程について詳細に解明した。本研究はマイクロジェットの発生メカニズム解明のための貴重で基礎データであり、今後の理論研究の活発な展開を可能にするものである。

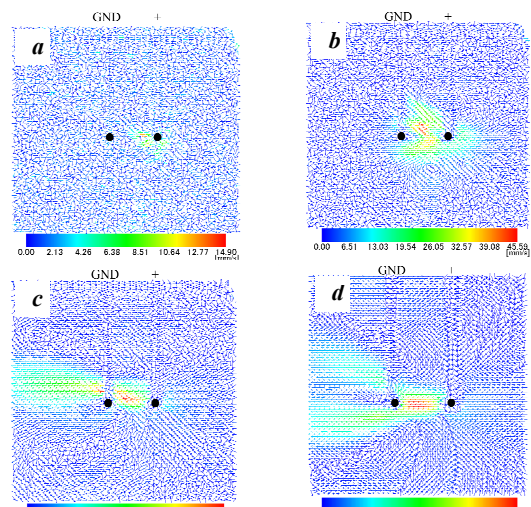


図 8.1 電極間に生じるマイクロジェットの可視化 ((a)~(d)と時間の進行とともに左向き(陽極から陰極方向)にマイクロジェットが発生することを実験的に明らかにした)

## 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 2 3 件)

(1) Satoh, A. and Chantrell, R., W.

Application of the Lattice Boltzmann Method to Many Particle Dispersions, Journal of Fluid Science and Technology, 査読あり, Vol. 6, 2011, pp. 114-127.

(2) 佐藤 明

格子ボルツマン法の磁性粒子分散系への適用のためのブラウン運動誘起法の検討, 日本機械学会論文集(B編), 査読あり, 76 巻, 2010, pp. 1534-1542.

(3) 佐藤 明, Chantrell, R., W.

格子ボルツマン法の多粒子分散系への適用,

日本機械学会論文集 (B 編), 査読あり, 75 巻, 2009, pp. 2011-2018.

(4) 佐藤 明, Chantrell, R., W.

多粒子分散系への適用のための格子ボルツマン法の基礎研究 (2 次元円形粒子まわりの一様流を対象とした検討), 日本機械学会論文集 (B 編), 査読あり, 75 巻, 2009, pp. 1734-1741.

(5) Satoh, A. and Taneko, E.

Brownian Dynamics Simulations of a Dispersion composed of Two-Types of Spherical Particles (For Development of a New Technology to Improve the Visibility of Rivers and Lakes), Journal of Colloid and Interface Science, 査読あり, Vol.338, 2009, pp.236-242.

(6) 早坂 良, 佐藤 明

強磁性球状粒子からなるコロイド分散系の重力場中での沈降現象に関するブラウン動力学シミュレーション, 日本機械学会論文集 (B編), 査読あり, 2008, 74巻, pp.2508-2515.

[学会発表] (計 19 件)

(1) Satoh, A.

On the Feasibility of the Lattice Boltzmann Method for a Magnetic Particle Dispersion, International Conference on Nanoscopic Colloid and Surface Science (NCSS2010), 9 月 19 日 - 9 月 22 日, 2010, Makuhari Messe, Chiba, Japan.

(2) Satoh, A.

Application of the Lattice Boltzmann Method to Magnetic Particle Dispersions, The Euromech Fluid Mechanics Conference(EFMC8), 9 月 13 日 - 9 月 16 日, 2010, Bad Reichenhall, Bavaria, Germany.

(3) 佐藤 明, Roy W. Chantrell

多粒子分散系への適用のための格子ボルツマン法の基礎研究 (2 次元円形粒子まわりの一様流を対象とした検討), 流体工学部門講演会, 2009 年 11 月 7 日 - 11 月 8 日, 名古屋市.

(4) 佐藤 明, Roy W. Chantrell

格子ボルツマン法の磁性サスペンションへの適用, 第 62 回コロイドおよび界面化学討論会, 2009 年 9 月 17 日 - 9 月 19 日, 岡山市.

(5) Satoh, A. and Chantrell, R. W.

Application of the Lattice Boltzmann Method to Many Particle Dispersions, 2009 AIChE Annual Meeting, 11 月 8 日-11 月 13 日, 2009, Nashville, U.S.A.

(6) Satoh, A. and Chantrell, R. W.

Basic Study on the Lattice Boltzmann Method for Application to Many Particle Dispersions (A Uniform Flow past a Two-dimensional Circular Particle), 13th IACIS International Conference on Surface & Colloid Science and the 83rd ACS Colloid & Surface Science Symposium, 6月14-6

月19日, 2009, New York, U.S.A.

(7) Hayasaka, R., and Satoh, A.

Brownian Dynamics Simulations of Sedimentation Phenomena of Ferromagnetic Spherical Particles in a Colloidal Dispersion, IMECE 2008 ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition, 10 月 31 日-11 月 6 日, 2008, Boston, U.S.A.

(8) Satoh, A., Taneko, E., and Hayasaka, R.

Brownian Dynamics Simulations of a Dispersion composed of Two-Types of Spherical Particles (for Development of a New Technology of Improving the Visibility of Rivers and Lakes), IMECE 2008 ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition, 10 月 31 日-11 月 6 日, 2008, Boston, U.S.A.

[図書] (計 4 件)

(1) 佐藤 明

朝倉書店, 「Brown 動力学 (Overdamped Langevin)」 in 「粉体工学ハンドブック」, 2011, 第 2.23.3.1 項, (編集中).

(2) 佐藤 明

丸善, 「分子シミュレーション」 in 「現代界面コロイド科学の事典」, 2010, pp.92-93.

(3) Satoh, A.

Elsevier, Introduction to Practice of Molecular Simulation (Molecular Dynamics, Monte Carlo, Brownian Dynamics, Lattice Boltzmann and Dissipative Particle Dynamics), 2010, 322 頁.

(4) 佐藤 明

(株) プイソーソリューション, 「分子シミュレーション アドバンス実践編—分子動力学法, モンテカルロ法, 格子ボルツマン法—」, 2009, 170 頁.

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐藤 明 (SATOH 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

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