

微粒子分散系の動的特性

北海道大学大学院 工学研究科 原田 周作¹

一般に、懸濁液中における微粒子の沈降、拡散挙動は粒子の体積濃度に依存することが知られているが、ここではより微視的に、個々の粒子の配置関係が引き起こす抵抗変化に着目して粒子の拡散挙動を調べた。有限幅を持つ微粒子層の沈降と、それに伴って生じる流体力学的拡散について調べた結果、粒子層端部の抵抗変化は層内部の粒子配置に依存し、また層全体の拡散挙動に大きく影響を及ぼすことがわかった。

1 はじめに

静止液体中における微粒子の沈降は、粒子状物質の濃縮・集積化、分級・選別、固-液分離操作など、材料、電子、環境関連の多くのプロセスで重要となる現象である [1]。一般に、一様な懸濁液中における微粒子の平均沈降速度は粒子濃度の増加に伴って減少することが知られている。この沈降速度の減少は、近傍粒子の影響による流れ場の変化に起因するものであり、このような流体を介した粒子間の力学的相互作用は流体力学的相互作用とよばれる。微粒子の沈降過程において、粒子間の流体力学的相互作用は平均沈降速度を変化させるだけでなく、粒子の相対運動にも大きく影響を与え、沈降速度の変動や粒子クラスタの形成、流体力学的拡散など複雑な現象を引き起こす [2]。

本研究では、微粒子層の沈降挙動と、それに付随して生じる流体力学的拡散現象に関する知見を得るために、1方向の空間スケールが粒子の大きさと同程度の幅を有する粒子層の運動に着目した解析を行った。特に、微粒子層の沈降過程において、微視的な粒子間の流体力学的相互作用が層全体の挙動にどのように影響を及ぼすかについて調べた。

2 解析手法

解析の対象は、一様に粒子が分布した有限幅を有する粒子層の沈降と、それに伴って生じる周囲流体の運動である。粒子層に含まれる粒子は十分小さいが、熱運動の影響は無視できるように流体力学的条件が定められているとする。作用する流体力の相違によって生じる粒子間の相対運動が、層全体の挙動をどのように変化させるかを調べる。

粒子層高は鉛直方向(沈降方向)に有限とし、水平方向は無限(周期境界条件)とする。流れ場の Stokes 近似が成り立つとし、Rotne-Prager tensor の 2 方向格子和を Ewald の方法により求める。

¹E-mail: harada@eng.hokudai.ac.jp

本解析では x, y 方向に周期境界条件を適用し、各方向の格子幅をそれぞれ L_1, L_2 とする。この場合、格子ベクトルは $\mathbf{r}_\gamma = (n_1 L_1, n_2 L_2, 0)$ と定義される (n_1, n_2 : 整数)。

2 方向周期系における各粒子の速度と力の関係は、次式で与えられる。

$$\begin{aligned}
 6\pi\mu a U_i^\alpha &= F_i^\alpha + \sum_{n_1, n_2} \sum_{\substack{\beta=1 \\ (\beta \neq \alpha)}}^N M_{ij}^{(1)}(\mathbf{x}^\alpha - \mathbf{x}^\beta + \mathbf{r}_\gamma) F_j^\beta \\
 &+ \frac{1}{L_1 L_2} \sum_{\substack{m_1, m_2 \\ (\mathbf{k} \neq 0)}}^N \cos(k_1(x^\alpha - x^\beta) + k_2(y^\alpha - y^\beta)) \tilde{M}_{ij}^{(2)}(k_1, k_2; z^\alpha - z^\beta) F_j^\beta \\
 &- M_{ij}^{(2)}(\mathbf{r} = 0) F_j^\alpha
 \end{aligned} \tag{1}$$

ここで、 a は粒子半径、 μ は粘性係数、 $U^{\alpha, \beta}$, $F^{\alpha, \beta}$, $\mathbf{x}^{\alpha, \beta}$ はそれぞれ粒子 α, β の速度、作用力および位置ベクトルであり、また $k_1 = 2\pi m_1 / L_1$, $k_2 = 2\pi m_2 / L_2$ (m_1, m_2 : 整数) である。 $M_{ij}^{(1)}(\mathbf{r})$, $M_{ij}^{(2)}(\mathbf{r})$ および $\tilde{M}_{ij}^{(2)}(k_1, k_2; z)$ はそれぞれ次式で与えられる。

$$M_{ij}^{(1)}(\mathbf{r}) = \left(\frac{3}{4}a + \frac{1}{4}a^3 \nabla^2 \right) \left(\nabla^2 \delta_{ij} - \frac{\partial^2}{\partial r_i \partial r_j} \right) (r \operatorname{erfc}(\xi r)) \tag{2}$$

$$M_{ij}^{(2)}(\mathbf{r}) = \left(\frac{3}{4}a + \frac{1}{4}a^3 \nabla^2 \right) \left(\nabla^2 \delta_{ij} - \frac{\partial^2}{\partial r_i \partial r_j} \right) (r \operatorname{erf}(\xi r)) \tag{3}$$

$$\tilde{M}_{ij}^{(2)}(k_1, k_2; z) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} M_{ij}^{(2)}(\mathbf{r}) e^{i(k_1 x + k_2 y)} dx dy \tag{4}$$

ここで ξ は格子和の分離パラメータを表す。式 (1) の右辺第 2 項で表される実空間の格子和は、Beenakker[3] と同様の方法で求める。また右辺第 3 項で表される波数空間の格子和は、Ichiki[4] と同様に計算する。また Durlinsky *et al.*[5] による Stokesian dynamics の解析手法と同様に、単一格子内および隣接する格子に存在する粒子間に対して近接効果の補正を行う。近接効果を表す抵抗行列として Jeffery and Onishi[6] の解を用いる。

3 結果および考察

3.1 規則構造を有する粒子層の抵抗係数

まず、単純な内部構造を有する有限幅の粒子層を考え、層内部の構造が個々の粒子に作用する流体抵抗をどのように変化させるかを調べる。粒子配置は、(a) 単純立方構造 (SC), (b) 体心立方構造 (BCC), および (c) 面心立方構造 (FCC) とする。これらの配列を有する粒子群の抵抗係数は、これまで無限粒子系 [7, 8] および半無限粒子系 (粒子層端面が片側にのみ存在する系)[9, 10] において求められている。

図 1 に、希薄条件における有限粒子層 (層上下部に端面を有する粒子層) の抵抗分布を示す。層数は全ての配列において 15 層とし、本解析では基本粒子間隔 $h/a = 1000$ とした (h の定義は挿図

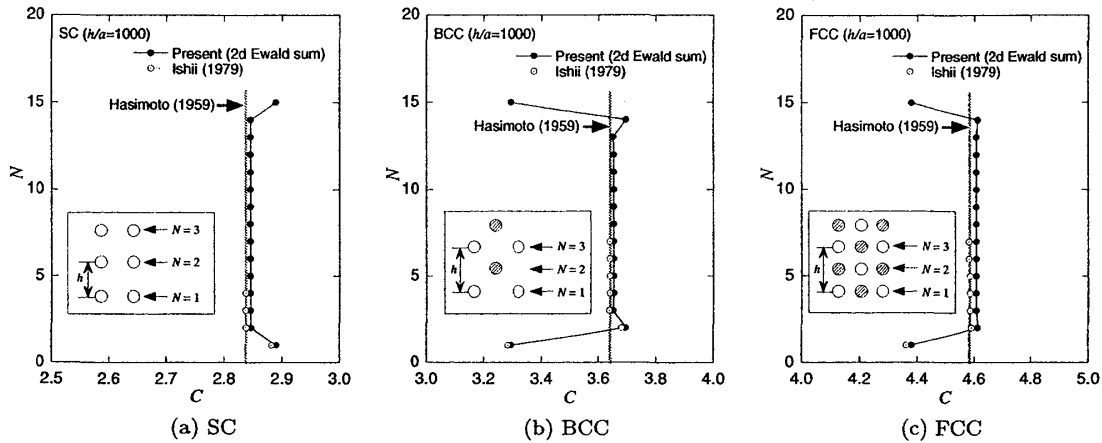


図 1: 希薄有限幅粒子層の流体抵抗分布. 流体抵抗を $F = 6\pi\mu aU(1 + C \cdot a/h)$ と表した場合の係数 C の分布を示している. 本解析では基本粒子間隔 $h/a = 1000$ とした.

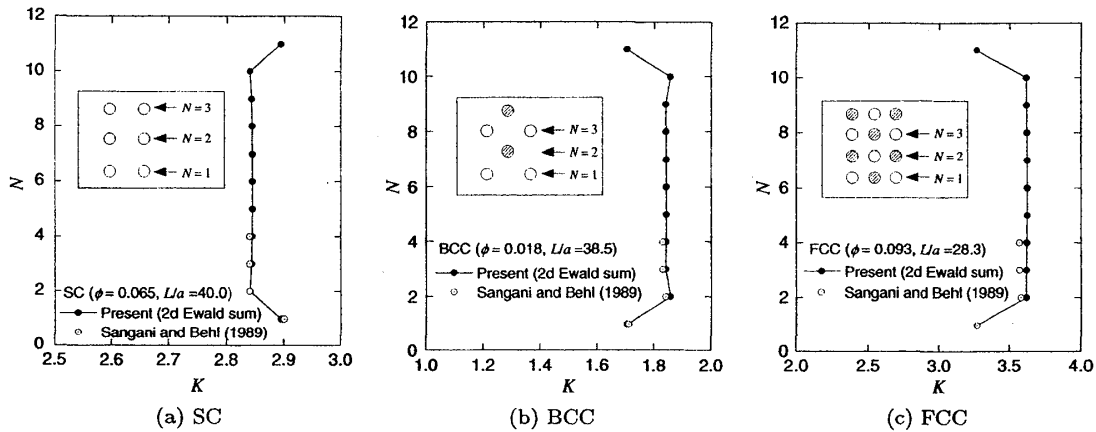


図 2: 非希薄系の有限幅粒子層の抵抗係数 $K = F/6\pi\mu aU$. Sangani and Behl(1989) による固定粒子層の透過流動に対する Stokes 方程式の planar singular solution との比較.

参照). 図中の N は片側の粒子層端面を 1 とした粒子番号を表し, また C は次式で与えられる係数である.

$$F = 6\pi\mu aU(1 + C \cdot a/h) \tag{5}$$

図中には併せて, 希薄条件における Hasimoto(1959) の無限粒子系の結果², および Ishii(1979) による半無限系の結果を示している. 図 1 に示されるように, 抵抗係数は層上下部で対称となり, 端部近傍の抵抗係数は全ての粒子配列において半無限系の解析結果と一致する. また層中心部の抵抗係数は無限粒子系の結果とほぼ一致することがわかる. 粒子層端部の抵抗変化に関して各粒子配置の比較を行うと, 単純立方構造 (SC) では端部の抵抗は中心部よりも大きくなるのに対して, 体心 (BCC) および面心立方構造 (FCC) では SC とは逆の傾向を示し, 端部の抵抗は小さくなるのがわかる. この相違は, 前 (後) の粒子の存在による流れ場の変化が端部の粒子に与える影響が, 粒子の位置関係によって異なることに起因する.

この粒子層端部の流体抵抗に関する特徴的な傾向は, 非希薄条件でも同様の傾向を示す. 図 2

²Hasimoto(1959) の無限粒子系の解は, Ishii(1979) の結果との比較を考慮してここでは $O(a/h)$ の解を示している.

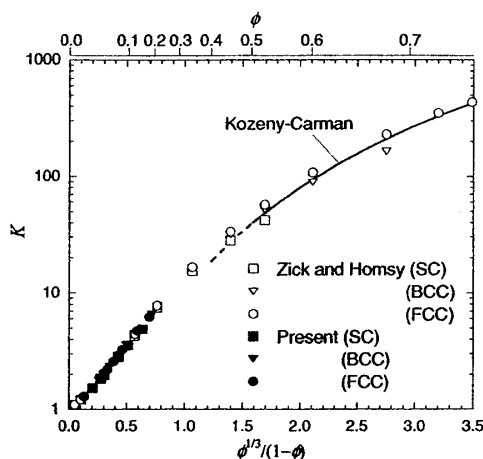


図 3: 有限幅を有する規則配列粒子層の中心部の抵抗係数 $K = F/6\pi\mu aU$. Zick and Homsy(1982) による無限粒子系の数値解を併せて示す. 実線は良く知られた Kozeny-Carman の透過抵抗を 1 個の粒子の抵抗係数に換算した $K = 10\phi/(1 - \phi)^3$ を表す.

は、粒子濃度が ~10% 程度の規則配列粒子層の抵抗係数 $K = F/6\pi\mu aU$ を示している. 図中には、Sangani and Behl(1989) による固定粒子層を対象とした Stokes 方程式の解を併せて示している. 希薄系と同様に、端部の抵抗は内部配置に依存して変化するが、比較的高濃度の条件でも抵抗変化は端部のごく近傍に限定されることがわかる. このような粒子層端部の抵抗変化は、高濃度極限においても粒子数個分程度の距離で減衰することが固定粒子層の解析から明らかにされている [10].

次に、各粒子構造における層中心部の抵抗係数を図 3 に示す. 図に示されるように、有限幅を有する粒子層中心部の抵抗係数は、無限粒子系の抵抗係数 [11] と一致し、高濃度条件では透過抵抗として良く知られている Kozeny-Carman 式に漸近する. すなわち層中心部付近の粒子に作用する流体抵抗は、内部構造や層高にはほとんど依存せず、粒子濃度のみによって決まる (これは規則配列を有する粒子層同士の比較だからであって、実際には無限粒子系の抵抗係数も内部構造に対する依存性がある. 詳しくは後述).

以上の結果から、粒子層が端部を有する場合、1) 端部近傍の粒子に作用する流体力は層中心部とは異なり、内部の粒子配置によってその大小が決定される、2) しかしながらこのような端部の効果は短距離で減衰し、層内部の粒子に作用する流体抵抗は濃度に依らず無限粒子系の抵抗と一致する、ということがわかる.

3.2 規則構造を有する粒子層の沈降挙動

前節で示した抵抗係数の分布のみから考察すれば、沈降過程において層内部の粒子構造がある程度保たれている限り、端部付近の濃度分布は単純立方構造では上部が疎・下部で密、また体心および面心立方構造では上部が密・下部で疎となる傾向にある. 実際の沈降過程において、粒子層内部の濃度分布がこのような傾向になるかどうかを調べるため、粒子の相対位置を固定しない場合の粒

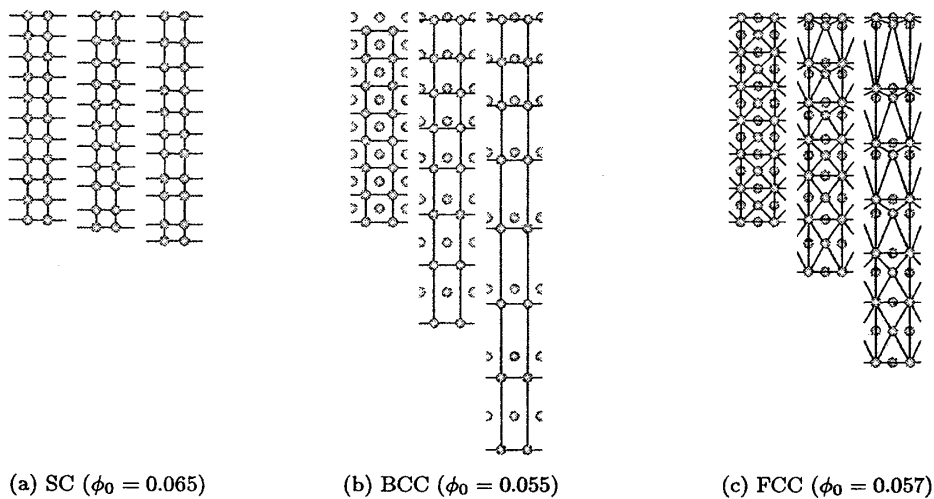


図 4: 規則配列を有する有限幅粒子層の拡散挙動 (相対座標系, 同時刻におけるスナップショット). 全ての粒子配置で初期層高 $L_0/a = 40$, 初期体積濃度 ϕ_0 はいずれも 0.06 程度としている.

子層の沈降挙動を調べた. 図 4 に, 各規則配置を有する粒子層の同時刻における相対位置の変化を示す. 初期層高 L_0 は粒子半径の 40 倍とし, 全ての粒子配置において体積濃度は $\phi_0 = 0.06$ 程度になるように初期粒子間隔を設定している. 図より, 層内部の粒子相対位置は沈降過程において複雑に変化することがわかる. また初期濃度がほぼ同じであるにもかかわらず, 層高の変化は各粒子構造で大きく異なり, 体心立方構造が最も層高の変化が大きいことがわかる. 以上の結果は, 粒子径と比較し得る程度の層高を有する粒子層の場合, 層全体としての流体力学的拡散 (hydrodynamic diffusion) は初期粒子濃度のみでは決定されず, 単純な勾配拡散としてのモデル化は適切ではないことを示唆している.

このように, 粒子層端部の抵抗変化は短距離で減衰するにもかかわらず, 沈降過程における層内部の濃度分布や層高の変化には大きく影響を与える. しかしながら, 拘束力のない規則粒子層の流体力学的な不安定 (clumping instability)[12], および重力方向に負の濃度勾配を有する懸濁流体の水平方向不安定 (gravity-induced instability)[13] によって, 実際には本節で示したような規則構造は長期間維持することができない. したがって本節で示した結果は有限幅粒子層の長期間の沈降・拡散挙動を直接表したものではないが, 次節で述べる不規則構造を有する粒子層の拡散挙動を考察する上では重要となる.

3.3 ランダム構造を有する粒子層の沈降挙動

次に, 層内部の粒子がランダムな構造を有する粒子層の沈降・拡散挙動について述べる. 図 5 は解析結果の一例であり, 初期層高および粒子濃度は前節で示した規則構造の解析とほぼ同条件としている. なお, 図には水平方向 3 周期分 ($n_1 = -1, 0, 1$) の粒子挙動を示している. 本解析条件の範囲内では, ランダムな構造を有する粒子層は上部が密・下部が疎の濃度分布になり, 図 4(b) に示した体心立方構造の沈降挙動と類似した傾向を示す.

また図 6 に, 異なる 3 条件のランダム構造を有する粒子層の沈降距離に対する層高および平均



図 5: ランダム配置を有する有限粒子層の拡散挙動 (絶対座標系). 初期層高および初期体積濃度は図 4 で示した規則粒子層の場合と同じ $L_0/a = 40$, $\phi_0 = 0.064$ とした.

濃度変化を示す. 図中には, ほぼ同じ初期条件の規則粒子層の結果を併せて示している. 図より, いずれの条件においても, 沈降に伴う層高および層内部の濃度変化は体心立方構造に近い傾向を示すことがわかる. 以上の結果より, ランダム構造を有する有限幅粒子層の拡散は, 体心立方構造に類似した流体力学的効果によって生じると推察される.

また図 7 は, ランダム構造を有する有限幅粒子層の沈降過程における平均沈降速度と層平均濃度の関係を表したものである. 無限粒子系の平均沈降速度は, 粒子がランダム配置を有する場合と規則配列を有する場合は異なることが知られており, 希薄条件ではそれぞれ次の形で与えられる [14].

$$\frac{U}{U_0} = 1 - \alpha\phi \quad (6)$$

$$\frac{U}{U_0} = 1 - \beta\phi^{1/3} \quad (7)$$

ここで U_0 は単一粒子の Stokes 沈降速度を表す. 図 7 には参考のために, Batchelor(1972)[15] による希薄極限におけるランダム系の平均沈降速度 ($\alpha = 6.55$), および規則配列を有する希薄無限粒子系の沈降速度 ($\beta = 1.74$)[16] を併せて示している.

図 6 に示すように, 粒子層は沈降に伴って層高が大きくなるため, 平均濃度が減少すると同時に沈降速度は増加するが (すなわち図 7 中のプロットは, 右から左に時間進行する), 本解析により得られた粒子層の平均沈降速度は, ランダム配置と規則配置の沈降速度の中間値を示すことがわかる. これは, 流体力学的相互作用の遠距離性により粒子配置の不規則性が解析上では十分に実現されない「周期的ランダム配置」によるものであると考えられ, 同じ手法を用いた無限粒子層の解析でも同様の結果が得られている (Phillips *et al.*[17]. 図 7 中の + が同手法による解析結果). したがって現段階の解析では, 十分に不規則である粒子系を対象としているとはいえない. しかしながら鉛直方向の拡散挙動に対しては, 前節までに述べた粒子層端部の影響は不規則構造を有する粒子層にも同様の効果をもたらすであろうと考えられる.

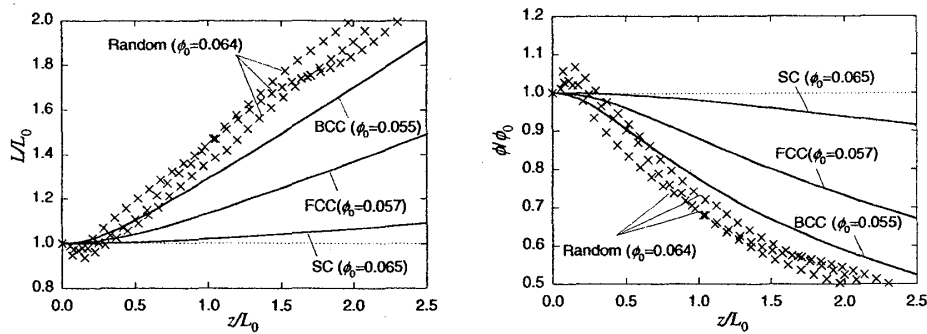


図 6: 規則配置およびランダム配置粒子層の層高 L と体積濃度 ϕ の変化. ランダム配置は異なる 3 条件の結果を示している.

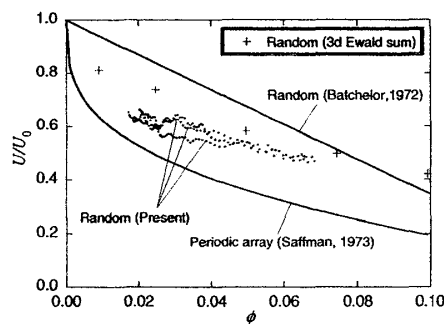


図 7: ランダム配置粒子層の沈降速度 U および体積濃度 ϕ の変化. 異なる 3 条件の結果を示している.

4 結言

粒子の大きさと同程度の幅を有する粒子層の流体力学的拡散について調べた. その結果, 規則構造を有する粒子層では, 層端部の存在や層内部の粒子配置に沈降挙動が大きく影響を受けることを明らかにした. ランダムな配置を有する粒子層の沈降に関しては, 現段階では十分な不規則性を有する粒子系を対象としているとはいえ定量的な議論は出来ないが, 規則配置の場合と同様に, 粒子層端部の濃度不連続面の存在が層全体の沈降挙動に影響を及ぼすであろうと推察される.

参考文献

- [1] Y. Xia, B. Gates, Y. Yin and Y. Lu, *Adv. Mater.* **12** (2000), 693.
- [2] R. H. Davis, *J. Fluid Mech.* **310** (1996), 325.
- [3] C. W. J. Beenakker, *J. Chem. Phys.* **85** (1986), 1581.
- [4] K. Ichiki, Master Thesis, Tohoku University (1993).
- [5] L. Durlofsky, J. F. Brady and G. Bossis, *J. Fluid Mech.* **180** (1987), 21.

- [6] D. J. Jeffery and Y. Onishi, *J. Fluid Mech.* **139** (1984), 261.
- [7] H. Hasimoto, *J. Fluid Mech.* **5** (1959), 317.
- [8] A. S. Sangani and A. Acrivos, *Int. J. Multiphase Flow* **8** (1982), 343.
- [9] K. Ishii, *J. Phys. Soc. Japan* **46** (1979), 675.
- [10] A. S. Sangani and S. Behl, *Phys. Fluids A* **1** (1989), 21.
- [11] A. A. Zick and G. M. Homsy, *J. Fluid Mech.* **115** (1982), 13.
- [12] J. M. Crowley, *J. Fluid Mech.* **45** (1971), 151; J. M. Crowley, *Phys. Fluids* **19** (1976), 1296; S. Ramaswamy, *Adv. Phys.* **50** (2001), 297.
- [13] C. Völtz, M. Schröter, G. Iori, A. Betat, A. Lange, A. Engel and I. Rehberg, *Phys. Rep.* **337** (2000), 117; C. Völtz, W. Pesch and I. Rehberg, *Phys. Rev. E* **65** (2001), 011404; C. Völtz, *Phys. Rev. E* **68** (2003), 021408.
- [14] R. H. Davis and A. Acrivos, *Ann. Rev. Fluid Mech.* **17** (1985), 91.
- [15] G. K. Batchelor, *J. Fluid Mech.* **52** (1972), 245.
- [16] P. G. Saffman, *Stud. Appl. Math.* **52** (1973), 115.
- [17] R. J. Phillips, J. F. Brady and G. Bossis, *Phys. Fluids* **31** (1988), 3462.