

氏名	岡田 和也
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	令和 3年 3月 23日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科専攻	秋田県立大学大学院システム科学技術研究科 博士後期課程総合システム科学専攻
学位論文題目	Aggregate Structures and Magnetorheological Characteristics of a Suspension Composed of Magnetic Cubic Particles (Monte Carlo and Brownian Dynamics Simulations) (キューブ状磁性粒子分散系の凝集構造と磁気粘性効果(モンテカルロおよびブラウン動力学シミュレーション))
指導教員	教授 <u>佐藤 明</u>
論文審査委員	主査 教授 <u>佐藤 明</u> 副査 主幹研究員 <u>廣田 憲之</u> (<u>国立研究開発法人 物質・材料研究機構</u>) 教授 <u>安藤 努</u> (<u>日本大学・生産工学部・機械工学科</u>) 准教授 <u>小方 聡</u> (<u>東京都立大学・システムデザイン学部・機械システム工学科</u>)

論文内容要旨

磁性を有する微粒子を母液に懸濁して得られる磁性粒子サスペンションは、様々な工学分野において大きな応用の可能性を秘めており、現在に至るまで多くの研究がなされている。具体的な応用例としては、外部磁場を用いることにより磁性粒子分散系のレオロジー特性を制御する磁気制御型ダンパーやアクチュエータなどが挙げられる。また、磁性粒子の自己組織化ならびに配向特性を制御し、材料表面に所望のマイクロ構造を発現させることにより、磁気・電気デバイスへの応用が可能になる。磁性粒子の調製法の技術開発の進展により、現在では、様々な幾何学的形状を有する非球状粒子の創製が可能となっている。そのため、新規機能性流体および新規機能性材料の開発に際して、非球状磁性粒子からなる分散系の内部構造およびレオロジー特性に関する研究が必要とされる。

比較的容易に様々な幾何学的形状に調製することが可能な磁性粒子として、ヘマタイト粒子が挙げられる。ヘマタイト粒子は、棒状、扁平、キューブ状、ピーナッツ状粒子などの様々な粒子形状に調製することが可能である。キューブ状粒子は、凝集構造を形成する際に、粒子同士が互いに面接触をするという非常に特徴的な性質を持っているため、より密で強固な凝集体が形成される。そのため、点接触によりクラスタを形成する球状粒子などと比較して、異なるレオロジー特性が得ることができると期待される。磁性粒子分散系のレオロジー特性は、ブラウン動力学法を用いることにより検討することが可能である。現段階において、球状粒子、棒状粒子および扁平粒子などの軸対称粒子を対象としたブラウン動力学法は確立されているが、非軸対称粒子であるキューブ状粒子を対象としたブラウン動力学法は確

立されるに至っていない。これは、シミュレーションに必要とされるキューブ状粒子の拡散係数の値が不明瞭であることと並進運動および回転運動の取り扱いの難しさが原因である。そのため、キューブ状ヘマタイト粒子分散系のレオロジー特性を検討するためには、キューブ状粒子を対象としたブラウン動力学法を構築する必要がある。

従って本論文は、キューブ状磁性粒子の表面改質技術への応用のための基礎研究、キューブ状粒子分散系を対象としたブラウン動力学法の構築、キューブ状磁性粒子の磁気制御型流体デバイスへの応用のための基礎研究の3本柱から成り立っている。本論文から得られた結果を総括すると以下のようになる。まず、材料の表面改質技術への応用を念頭においた基礎研究として、材料表面上のキューブ状ヘマタイト粒子を対象とし、熱力学的平衡状態における粒子の凝集構造の形成メカニズムおよび相転移現象の解明を行った。さらに、異なる方向の磁気モーメントを有するキューブ状粒子の組成比率に着目することにより、2次元平面上での凝集構造をより高度に制御できることを明らかにした。これらの表面改質技術への応用を念頭に置いた研究は、磁気・電気デバイスなどの新規機能性材料への応用に際して基礎データを提供するものである。また、立方体まわりの流れ場の解析を行うことにより、キューブ状粒子の拡散係数の値を推定し、独自の斥力層モデルの提案を行うことによりキューブ状粒子分散系を対象としたブラウン動力学法の構築を行った。構築したブラウン動力学法を単純せん断流中におけるキューブ状磁性粒子分散系に適用することにより、キューブ状磁性粒子の凝集形態の内部構造とレオロジー特性の関係性を解明した。キューブ状粒子のレオロジー特性に関する研究は、キューブ状ヘマタイト粒子分散系を用いた新たな磁気制御型デバイスへの応用に際して重要な知見を与えるとともに、サスペンション物理工学の学問的な体系化に大きく寄与するものである。

第1章の「Introductory remarks」では、本論文の研究背景とともに、磁性粒子の特性、工学的応用、ならびに、研究目的について論じている。

第2章の「Phase change phenomena of a cubic hematite particle suspension in a two-dimensional system from 2D Monte Carlo simulations」では、2次元系におけるキューブ状ヘマタイト粒子分散系を対象とし、モンテカルロ法を用いて熱力学的平衡状態における粒子の凝集構造の形成メカニズムを解明した。本研究では、粒子が十分に大きく重力によって沈降し、キューブ状粒子の一面が底面に接しているとの仮定の下で、粒子は重力方向に垂直な2次元平面でのみ並進運動と回転運動を行うという制限された運動を取り扱った。粒子間相互作用が比較的小さい場合には、崩壊と形成を繰り返す小さな鎖状クラスタを形成する。磁場を増していくと、粒子間相互作用が比較的小さい場合でも、太い鎖状クラスタへと成長するようになる。これは、粒子の磁気モーメントが磁場方向に拘束されることにより、細い鎖状クラスタが安定的に形成されるためである。安定的に形成された細い鎖状クラスタが互いに連結し合うことにより、格子構造を有する太い鎖状クラスタへと成長するようになる。粒子間相互作用の大きさが熱エネルギーに対して十分に支配的な場合には、隣接する粒子の面同士が互いに面接触をすることにより、非常に密な凝集体が形成される。この状態から、磁場の強さを増していくと、磁場方向に配向する格子構造を持つ太い鎖状クラスタへと凝集形態が転移する。これは、外部磁場の影響により粒子の磁気モーメントが磁場方向に強く拘束されるためである。以上のように、凝集体の内部構造の転移現象が、外部磁場の影響や粒子間相互作用の要因により複雑に生じることが明らかになった。

第3章の「Dependence of a regime change on the composition ratio of cubic particles with different magnetic moment directions via 2D Monte Carlo simulations」では、異なる方向の磁気モーメントを有するキューブ状ヘマタイト粒子の組成比率に着目し、2次元平面上における凝集形態の転移現象について検討した。第2章と同様に粒子の一面が底面に接しているという仮定の下でシミュレーションを実行した。キューブ状ヘマタイト粒子は、対角線方向に磁気モーメントを有している。そのため、キューブ状ヘマタイト

粒子の磁気モーメントが材料平面に対して上向き斜め方向の粒子と下向き斜め方向の粒子が存在する。これら 2 種類の粒子の組成比率が粒子の凝集形態の内部構造にどのような影響を与えるのか検討した。第 2 章で得られた結果と同様に、磁場が作用しない状況下では、粒子間相互作用を増加させると格子構造を有する密な凝集体が形成される。しかしながら、組成比率が小さい場合には、密な凝集体の大きさは小さくなり、まわりには多数の小さいクラスタが形成される。印加磁場を作用させると、格子構造を有する密な凝集体は磁場方向に沿った太い鎖状クラスタへと凝集形態が転移する。しかしながら、組成比率が小さい場合には、磁場方向に沿った太い鎖状クラスタの大きさは小さくなり、多数の小さな鎖状クラスタが磁場方向に沿って形成される。以上の結果から、組成比率を変化させることにより、印加磁場の作用下においても系内に形成される主要なクラスタの大きさをより高度に制御できることを明らかにした。

第 4 章の「Internal structures of the particle aggregates of a suspension composed of cubic hematite particles from 3D Monte Carlo simulations」では、3 次元系におけるキューブ状ヘマタイト粒子分散系を対象とし、モンテカルロ法を用いて解析を行い、熱力学的平衡状態における内部構造発現現象および相転移現象を解明した。印加磁場が作用していない場合、粒子間相互作用を増加させると、隣接するキューブ状粒子の面同士が互いに面接触を行うことにより、立体的な格子構造を有する密な凝集体が形成されるようになる。この状態で磁場の強さを増加させると密な凝集体は崩壊し、構成粒子の磁気モーメントが印加磁場方向に配向した壁面状のクラスタへと凝集形態が転移する。これは、外部磁場の影響が支配的になることにより、粒子の磁気モーメントが磁場方向に強く拘束されるためである。

第 5 章の「The translational and rotational friction coefficients of a cubic particle」では、キューブ状粒子のブラウン動力学シミュレーションを実行するために必要とされるキューブ状粒子の摩擦係数および拡散係数を、汎用有限要素ソフトウェア ANSYS を用いて立方体まわりの流れ場の解析を行うことにより求めた。レイノルズ数が小さい場合、一樣な流れ場の状況下においては、キューブ状粒子に一定の力が流れ場方向に作用し、キューブ状粒子には特定のトルクが作用することはない。また、回転する流れ場の状況下においては、キューブ状粒子には特定の力が作用することなく、角速度が生じる同じ軸に対してのみトルクが発生する。すなわち、キューブ状粒子に関しても、レイノルズ数が非常に小さい状況下では、球状粒子と同様に並進運動と回転運動の間には、カップリングが生じないことを明らかにした。また、キューブ状粒子の拡散係数は、キューブ状粒子の内接球と外接球の直径を平均した直径の球の拡散係数を用いることにより、第 1 近似として表現することができることを明らかにした。以上の結果から、キューブ状粒子からなる分散系を対象としたブラウン動力学シミュレーションを実行する場合には、キューブ状粒子を球状粒子と同様に取り扱うことができることが明らかになった。

第 6 章の「Brownian dynamics simulations of a suspension composed of cubic hematite particles in the equilibrium situation」では、斥力層により被覆されたキューブ状粒子を独自の球連結モデルによりモデル化し、熱力学的平衡状態におけるキューブ状粒子分散系を対象としたブラウン動力学法の構築を行った。現在に至るまで、他の研究者によって様々な斥力層モデルが提案されているが、より少ない計算時間で高い精度の結果が期待できるモデルを提案した。また、ブラウン動力学法のキューブ状磁性粒子分散系への適用の妥当性を検討するために、熱力学的平衡状態におけるキューブ状粒子分散系を対象とし、粒子の凝集構造の転移現象に関して、ブラウン動力学法およびモンテカルロ法を用いて比較検討を行った。独自の斥力層モデルを用いて得られたシミュレーション結果は、他の研究者によって提案されたモデルより非常に少ない計算時間で高い精度の結果を得ることが示され、ブラウン動力学法のキューブ状粒子分散系への適用の妥当性が示された。

第 7 章の「Magnetorheological characteristics of a cubic hematite particle suspension by means of Brownian

dynamics simulations」では、構築したブラウン動力学法を単純せん断流中におけるキューブ状ヘマタイト粒子分散系に適用することにより、流れ場中で形成される凝集体と磁気粘性効果との関係性を解明した。まず、印加磁場の影響が弱い領域において、粒子間の磁気的な相互作用の影響が強い場合には、系内には完全な面接触を有する密な凝集体が形成される。この状態から、印加磁場の強さを増加させると、密な凝集体は崩壊し印加磁場方向から流れ場方向へと傾斜した鎖状クラスタが形成されるようになる。さらに印加磁場の強さを増加させると、構成粒子の磁気モーメントが印加磁場方向に強く拘束された壁面状クラスタへと凝集形態が転移する。系内に形成される主要なクラスタが流れ場方向に傾斜した鎖状クラスタである場合、単純せん断流に対して抵抗となるため、正味の粘度が増加する特徴を示す。しかしながら、壁面状クラスタが主要なクラスタとして形成される場合、壁面状クラスタ内の粒子配置の特徴により、流れ場を加速される方向に粒子間相互作用による力が作用する。その結果、壁面状クラスタが形成される場合には、正味の粘度が減少する特徴を示す。以上のように、凝集形態の内部構造の相違により、非常に特徴的な磁気粘性効果が得られることが明らかになった。また、ある条件下において、キューブ状ヘマタイト粒子分散系は、負の磁気粘性特性を有する可能性を示した。

第8章の「Summary and concluding remarks」では、本研究で得た結果を総括するとともに、今後の研究展望を論じている。

論文提出者氏名	岡田 和也
論文題目	Aggregate Structures and Magnetorheological Characteristics of a Suspension Composed of Magnetic Cubic Particles (Monte Carlo and Brownian Dynamics Simulations) (キューブ状磁性粒子分散系の凝集構造と磁気粘性効果(モンテカルロおよびブラウン動力学シミュレーション))
指導教員	佐藤 明
論文審査委員	<p>主査 教授 佐藤 明 </p> <p>副査 主幹研究員 廣田 憲之  (国立研究開発法人 物質・材料研究機構)</p> <p>教授 安藤 努  (日本大学・生産工学部・機械工学科)</p> <p>准教授 小方 聡  (東京都立大学・システムデザイン学部・機械システム工学科)</p>

論文審査結果要旨

本博士論文は、キューブ状磁性粒子分散系の凝集形態の内部構造とレオロジー特性に関して、分子シミュレーションにより解析したものである。本論文は緒論ならびに結論を含めて8章より構成される。

第1章では、本論文の研究背景とともに、磁性粒子の特性、工学的応用例、ならびに、研究目的について論じている。第2章では、2次元系でのキューブ状ヘマタイト粒子分散系を対象とし、モンテカルロ法を用いて熱力学的平衡状態における粒子の凝集構造の形成メカニズムを解明している。第3章では、異なる方向の磁気モーメントを有するキューブ状粒子の組成比率に着目し、2次元平面上での凝集構造をより高度に制御できることを明らかにしている。第4章では、3次元系におけるキューブ状ヘマタイト粒子分散系を対象に、モンテカルロ法を用いて解析を行い、熱力学的平衡状態における内部構造発現現象および相転移現象を解明している。第5章では、立方体まわりの流れ場の解析を行うことにより、キューブ状粒子の並進および回転の拡散係数の推定を行っている。第6章では、斥力層により被覆されたキューブ状粒子を独自の球連結モデルによりモデル化し、熱力学的平衡状態におけるキューブ状粒子分散系を対象としたブラウン動力学法の構築を行っている。第7章では、単純せん断流中におけるキューブ状ヘマタイト粒子分散系を対象とし、流れ場中で形成される凝集体と磁気粘性効果との関係性を解明している。第8章では、本研究で得た結果を総括するとともに、今後の研究展望を論じている。

本研究は、キューブ状ヘマタイト粒子分散系の凝集形態の内部構造とレオロジー特性をモンテカルロ法およびブラウン動力学法を用いて詳細に解明したものであり、キューブ状ヘマタイト粒子分散系を用いた新たな磁気制御型デバイスへの応用に際して、重要な知見を与えるとともに、サスペンション物理学の学問的な体系化に大きく寄与するものと考えられる。なお、本論文の研究成果は、International Journal に5編、和文論文集に6編、国際会議に6件、国内学会に4件として既に公表されている。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。