

2相系の界面ダイナミクスによって引き起こされる粉粒体の集団運動について

早稲田大学大学院理工学研究科 小村真也 (Shin-ya Komura)
 山崎義弘 (Yoshihiro Yamazaki)
 Faculty of Science & Engineering, Waseda University

1 目的

2枚のガラス板に挟まれた水と粉体の混合液(図1)を乾燥させたとき、水-空気界面の運動が粉体の存在によって不安定化し、乾燥後に残った粉体領域が迷路のようなパターンを生じることが確認されている(図2)[1]。

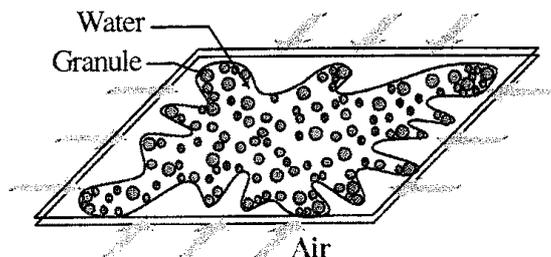


図 1: 実験の概略図

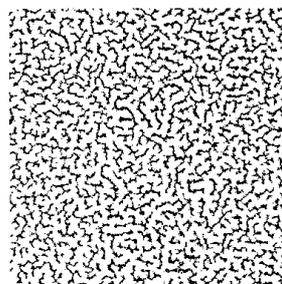


図 2: 実験で得られる迷路状のパターン
 (実際のサイズは 21.8mm × 21.8mm)

この現象のダイナミクスにおいて以下の3つの基本的なプロセスが見られる。

- (a) 水-空気界面の進行に伴い、界面近くの水領域の部分で粉粒体が押し流され、集まる。
- (b) 粉粒体がガラス板からの摩擦抵抗によって、界面の移動による力に対して抵抗し、stick-slip 的な動きをする。また、特に大きな粉粒体は2枚のガラス板で挟まれて固定されるため、初期位置から動かないことがある(ピンニング効果)。
- (c) 互いに反対の方向から近づいてきた2つの界面が接触し、水領域を分断する。

この現象においては、粉粒体の集団運動と水-空気界面運動の間の相互作用が重要な役割を果たしている。そこで、この系の現象を参考にして、粉粒体の集団運動と界面運動が相互作用する系のダイナミクスについてのモデルを考察する。

2 方法

2.1 モデル化

水と粉体の混合液における迷路パターン形成を扱ったモデルとして、乾燥過程を time dependent Ginzburg-Landau 方程式で解き、自由エネルギーを仲介にして粉粒体と界面の間の相互作用を取り入れたモデル [2] が研究されている。今回は実験で観られる stick-slip のダイナミクスを考慮して、さらに摩擦抵抗を取り入れたモデルを考え、数値シミュレーションによって乾燥パターンや水-空気界面のダイナミクスを調べた。

実験でのパターン形成は、狭い間隔の 2 枚のガラス板の間で起こる 2 次元的なものである。そこでガラス板に鉛直な方向を無視し、2 次元の系として扱った。

2.2 モデルについて

モデルの系を S とする。系 S の内部に存在する粉体粒子の個数を N とすると、外部との粉体粒子のやり取りは行なわれないので、 N は保存される。

粉体粒子の形状は円盤状であるとし、粉体領域の密度 Φ は

$$\Phi = \frac{\sum_{j=0}^N \pi a_j^2}{\int_S dr} \quad (1)$$

で与えられる。但し、 a_j は粉体粒子 j の半径である。

ここで、粉体粒子の運動方程式を

$$m_i \frac{d^2 \mathbf{r}_i}{dt^2} = \mathbf{f}_j^{\text{fri}} + \mathbf{f}_j^{\text{col}} + \mathbf{f}_j^{\text{int}} \quad (2)$$

と仮定する。但し、 \mathbf{r}_j は粉体粒子 j の重心座標である。 $\mathbf{f}_j^{\text{fri}}$ は動摩擦抵抗、 $\mathbf{f}_j^{\text{col}}$ は粉体間での衝突による力、 $\mathbf{f}_j^{\text{int}}$ は水-空気界面との相互作用による力を表す。

水-空気界面の進行には phase-field モデル [3] を適用し、時間発展の方程式を

$$\tau \epsilon^2 \frac{\partial}{\partial t} P(\mathbf{r}, t) = \epsilon^2 \nabla^2 P + P(1-P) \left(P - \frac{1}{2} + h(\mathbf{r}, \{\mathbf{r}_j\}, t) \right) \quad (3)$$

とする。但し、 $P(\mathbf{r}, t)$ は位置 \mathbf{r} における状態を表す変数であり、 $P=1$ は水の状態、 $P=0$ で空気の状態を表すものと仮定する。 $h(\mathbf{r}, \{\mathbf{r}_j\}, t)$ は位置 \mathbf{r} における水の安定性を表す。粉体から水-空気界面への作用はこの関数のみによって表されるものと仮定した。また、

τ は乾燥過程の特徴的な時間スケール、 ϵ は水-空気界面の特徴的な空間スケールを表すパラメータである。

粉体粒子が系 S と外部との境界 ∂S 上を通過しないとすると、

$$\forall j, \mathbf{r} \in \partial S \Rightarrow |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j| > a_j \quad (4)$$

が成り立つ。今回のモデルは外部との粉体粒子のやり取りを行わないので、この仮定は自然である。

$h(\mathbf{r}, \{\mathbf{r}_j\}, t)$ は

$$h(\mathbf{r}, \{\mathbf{r}_j\}, t) = h_0 + (h_g - h_0) \sum_i \Theta(a_i - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_i|) \quad (5)$$

$$\Theta(x) \equiv \begin{cases} 1 & (x \geq 0) \\ 0 & (x < 0) \end{cases} \quad (6)$$

とした。但し、 h_g は粉体の存在する領域での、 h_0 は粉体の存在しない領域での $h(\mathbf{r}, \{\mathbf{r}_j\}, t)$ の値であり、それぞれ定数とした。このモデルでは粉体の存在する領域における水の安定性を変化させている。

式(3)は自由エネルギー F を用いて書き直すと、

$$\tau \epsilon^2 \frac{\partial P}{\partial t} = -\frac{\delta F}{\delta P} \quad (7)$$

$$F = \int_S d\mathbf{r} \left\{ \frac{\epsilon^2}{2} (\nabla P)^2 + g(P, h) \right\} \quad (8)$$

$$g(P, h) = \frac{1}{4} P^4 + \left(\frac{1}{3} h - \frac{1}{2} \right) P^3 - \frac{1}{2} \left(h - \frac{1}{2} \right) P^2 \quad (9)$$

と書ける。

これによって、粒子 j が界面から受ける力を次のように計算することができる。

$$\begin{aligned} \mathbf{f}_j^{\text{int}} &= -\frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_j} F \\ &= -\int_S d\mathbf{r} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_j} g(P, h) \\ &= -\int_S d\mathbf{r} \frac{\partial g}{\partial h} \frac{\partial h}{\partial \mathbf{r}_j} \end{aligned} \quad (10)$$

式(9)より、

$$\frac{\partial g}{\partial h} = \frac{1}{3} P^3 - \frac{1}{2} P^2 \quad (11)$$

式(5)より、

$$\begin{aligned}\frac{\partial h}{\partial \mathbf{r}_j} &= (h_g - h_0) \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_j} \Theta(a_j - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|) \\ &= -(h_g - h_0) \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}} \Theta(a_j - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|)\end{aligned}\quad (12)$$

が得られるので、式(10)は、

$$\begin{aligned}\mathbf{f}_j^{\text{int}} &= \int_{\mathbf{S}} d\mathbf{r} \left(\frac{1}{3} P^3 - \frac{1}{2} P^2 \right) (h_g - h_0) \nabla \Theta(a_j - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|) \\ &= (h_g - h_0) \left[\int_{\mathbf{S}} d\mathbf{r} \nabla \left\{ \left(\frac{1}{3} P^3 - \frac{1}{2} P^2 \right) \Theta(a_j - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|) \right\} \right. \\ &\quad \left. - \int_{\mathbf{S}} d\mathbf{r} \left\{ \nabla \left(\frac{1}{3} P^3 - \frac{1}{2} P^2 \right) \right\} \Theta(a_j - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|) \right] \\ &= (h_g - h_0) \left[\int_{\partial \mathbf{S}} d\mathbf{n} \left(\frac{1}{3} P^3 - \frac{1}{2} P^2 \right) \Theta(a_j - |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j|) \right. \\ &\quad \left. - \int_{\mathbf{D}_j} d\mathbf{r} \nabla \left(\frac{1}{3} P^3 - \frac{1}{2} P^2 \right) \right] \\ &= -(h_g - h_0) \int_{\mathbf{D}_j} d\mathbf{r} \nabla \left(\frac{1}{3} P^3 - \frac{1}{2} P^2 \right)\end{aligned}\quad (13)$$

$$(14)$$

と計算できる。但し

$$\mathbf{D}_j \equiv \{ \mathbf{r} \mid \mathbf{r} \in \mathbf{S}, |\mathbf{r} - \mathbf{r}_j| \leq a_j \} \quad (15)$$

である。

粉粒体がガラス板との摩擦抵抗によって受ける力は、粉粒体の速度に影響しないものとして、

$$\mathbf{f}_j^{\text{fri}} = \begin{cases} -\mu m_j g \frac{\mathbf{v}_j}{v_j} & (v_j > 0) \\ 0 & (v_j = 0) \end{cases} \quad (16)$$

$$\mathbf{v}_j \equiv \frac{\partial \mathbf{r}_j}{\partial t} \quad (17)$$

$$v_j \equiv |\mathbf{v}_j| \quad (18)$$

とした。但し、 μ は動摩擦係数、 g は重力加速度である。

また、粉体粒子が他の粉体粒子との衝突によって受ける力は

$$f_j^{\text{col}} = K \sum_{s_{ij} \leq a_i + a_j} (a_i + a_j - s_{ij}) \frac{s_{ij}}{s_{ij}} \quad (19)$$

$$s_{ij} \equiv r_i - r_j \quad (20)$$

$$s_{ij} \equiv |s_{ij}| \quad (21)$$

と仮定した。但し、 K はばね定数を表している。

2.3 パラメータ

今回のシミュレーションでは、コントロールパラメータとして Φ, h_0, μ の値を変化させた。また、残りのパラメータは $g = 1, \epsilon = 1.0 \times 10^{-2}, \tau = 1.0, a_i = 5.0 \times 10^{-2}, m_i = 1.0 \times 10^{-2}, K = 0.3, h_g = 0.5, \Delta t = 5.0 \times 10^{-5}, \Delta x = 2.0 \times 10^{-2}$ とした。

2.4 初期条件

実験の開始時は、系全体にランダムに粉粒体が分布し、残りの領域は水で満たされている。そこで、シミュレーションの初期条件は

$$P(\mathbf{r}, t) = 1 \quad \text{in } S$$

であるとし、与えられた Φ と式 (1) から求めた個数 N の粉粒体をランダムに分布させた。

3 シミュレーション結果

3.1 乾燥パターン

系 S のシステムサイズは一辺の長さ $L\Delta x$ の正方形とした。

実験に近い条件でパターンを得るために境界条件を以下の式のようにした。

$$P(\mathbf{r}, t) = 0 \quad \text{on } \partial S$$

シミュレーションにおいて、図 3(b) 及び図 4(b) のようなパターンを得ることが出来た。

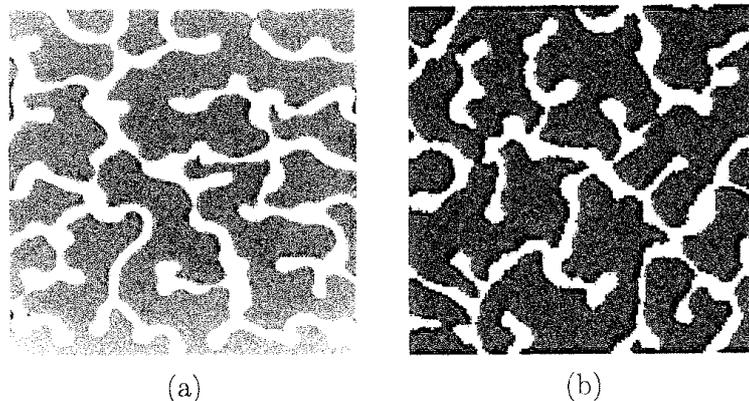


図 3: 摩擦抵抗が小さいときのパターン
 (白い部分が粉体、黒い部分が空気の占める領域を表す。(a)は実験のパターン。水 100g にコーンスターチ 10g でガラス板の間隔が 0.1mm の場合。(b) はシミュレーションのパターンで $\Phi = 0.20$, $h_0 = -0.13$, $\mu = 50$ の場合)

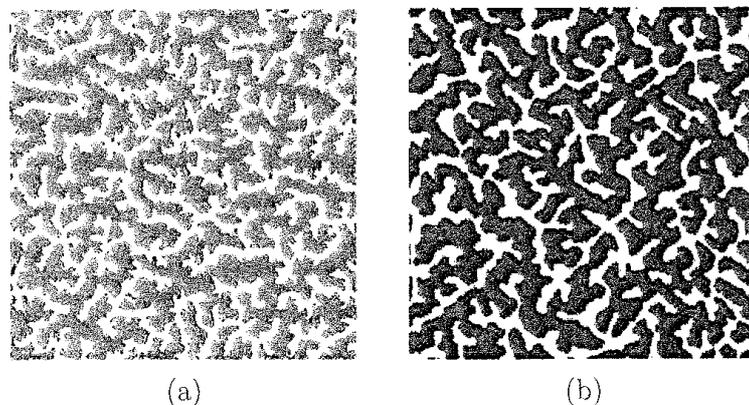


図 4: 摩擦抵抗の大きいときのパターン
 (白い部分が粉体、黒い部分が空気の占める領域を表す。(a)は実験のパターン。水 100g にコーンスターチ 15g でガラス板の間隔が約 $30 \mu\text{m}$ の場合。(b) はシミュレーションのパターンで $\Phi = 0.30$, $h_0 = -0.13$, $\mu = 200$ の場合)

図3は粉粒体の量が比較的少なく、摩擦抵抗が小さい場合に得られたパターンである。図3(a)が実験、図3(b)がシミュレーションによるものであるが、粉体領域の先端が丸みを帯びている点など、見た目にはパターンが良く再現されているように見える。

図4は粉粒体の量が比較的多く、摩擦抵抗が大きい場合のものである。シミュレーションのパターン（図4(b)）の方が実験のパターン（図4(a)）と比べて、孤立した小さな粉体領域が多く現れる結果となった。

パターン形成の過程に注目すると、図5のように、水-空気界面の進行が停止したように見えた部分から再び進行が始まるような stick-slip 的な挙動が現れていることがわかった。

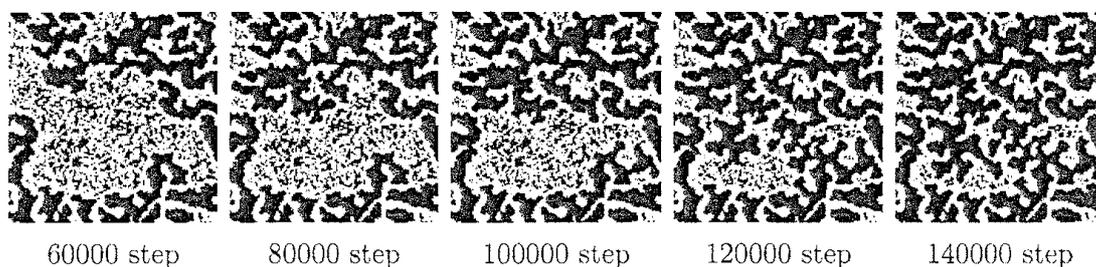


図5: 界面進行に見られる stick-slip 的な挙動 (シミュレーション結果)
 (白い部分が粉体、黒い部分が空気の占める領域を表す。 $\Phi = 0.30$, $h_0 = -0.13$, $\mu = 200$ の場合。60000~140000 step の間の水-空気界面の進行の様子を表したもの。70000step 程度で図の中央の水領域の上方向から水-空気界面がいったん静止するが、10000step を過ぎたところで再び進行が始まっている。)

3.2 水-空気界面のダイナミクス

系 S のシステムサイズは一辺の長さが $L_x \Delta x$ 及び $L_y \Delta x$ の長方形とした。

x の負の方向からのみ界面が進行するように、 x の負の方向の境界を空気、正方向の境界を水の固定端とし、 y の方向を周期境界とした。

$$\begin{cases} P(\mathbf{r}, t) = 0, & \text{at } r_x = 0 \\ P(\mathbf{r}, t) = 1, & \text{at } r_x = L_x \Delta x \\ P(\mathbf{r} + L_y \Delta x \mathbf{e}_y, t) = P(\mathbf{r}, t) \end{cases}$$

界面の平均位置は y 方向に並んだ列ごとに、 x 方向に線形補間して、 $P(r, t) = 0.5$ となる点の x 座標を求め、平均した値とした。

界面の平均位置の時間変化を調べたところ、粉粒体領域の密度 Φ が小さい場合には界面の進行速度はほぼ一定となるが、 Φ が大きくなると界面が進行速度が変動するようになり、stick-slip 的な挙動がはっきりと確認された (図 6)。 Φ が特に大きい場合には界面進行がほぼ停止した状態が長く続いた (図 7)。図 8 のように Φ が小さい値のときは、平均速度が Φ に対してほぼ線形に減少した。

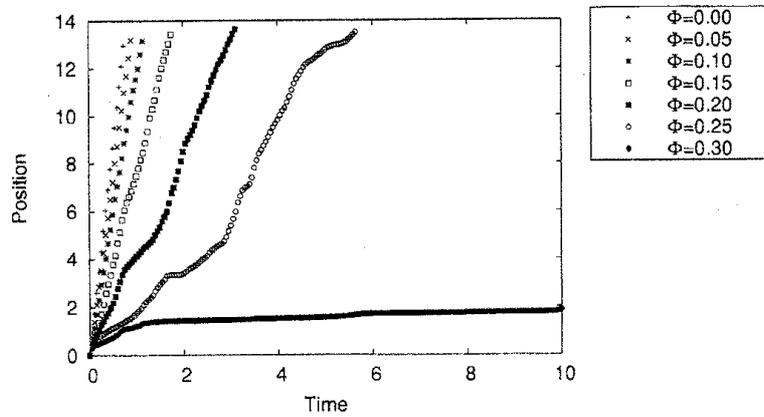


図 6: Φ と界面進行

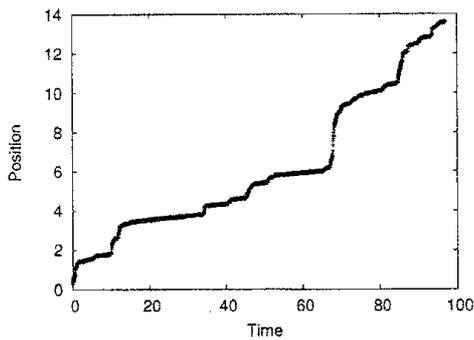


図 7: $\Phi = 0.30$ での界面進行

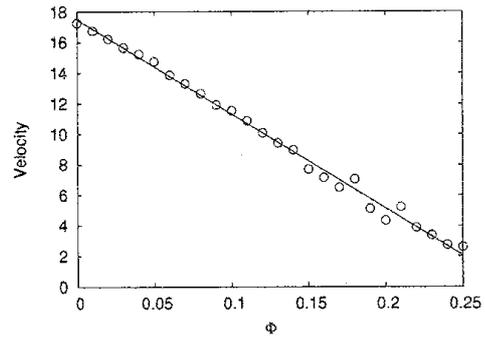


図 8: Φ と界面の進行速度

4 考察

4.1 乾燥パターン

我々は、粉粒体と界面の運動の相互作用を考察したモデルで迷路パターンの形成を再現することが出来た。特に摩擦の小さい場合において、粉体領域の形状の持つ特徴がよく似ているように見える。しかし、この場合のパターンに関する統計学的特徴が実験において確認されていないため、パターンの類似性を検証することは出来なかった。

摩擦の大きい場合には実験とシミュレーションでパターンにはっきりとした違いが見られた。実験ではガラス板の間隔が狭いときに粉体領域に先端が尖った部分が現れる。これは大きな粉粒体が2枚のガラス板に挟まれて固定したピンニング効果によるものである。ガラス板の間隔を狭めたことによる効果を、シミュレーションでは摩擦係数を大きくするという形で表現したが、実際にはガラス板と粉粒体の間にかかる力が増大していると考えられる。今回のシミュレーションでは粉粒体の粒径は全て同じであるものとしたが、実験では粉粒体として使ったコーンスターチの粒径にばらつきがあり、ガラス板の間隔を狭めたことによる摩擦抵抗の増大が特に大きな粒径の粉粒体に対してのみ起こることで、ピンニング効果が現れる。今回のモデルにおいてこの効果を考慮しなかったことが、実験とシミュレーションのパターンの間に違いが現れた原因として挙げられる。

4.2 水-空気界面のダイナミクス

水-空気界面の進行を観ることで、シミュレーションでstick-slip的な振る舞いが起こっていることが確認された。

今回のモデルでは式(16)のように、摩擦抵抗に静止摩擦と動摩擦の違いを取り入れていない。そのため、界面進行の停止は粉粒体の集団が大きな塊を作ることによって界面から受ける力に抵抗しているためであると思われる。

参考文献

- [1] Y. Yamazaki and T. Mizuguchi, J. Phys. Soc. Jpn. **69** (2000) 2387-2390.
- [2] 竹内佐織, 奈良女子大修士論文 (2000).
- [3] R.Kobayashi, Physica D. **63** (1993) 410-423.