

博士論文（要約）

非ブラウン粒子懸濁液のダイナミクス
における流体力学的相互作用

山中 貞人

固体になる寸前の極めて粘性の高い液体、外力で簡単に流動化する固体は、食品、化粧品、ペイント、セメント、地盤など我々の身の回りに数多く存在する。これらの系のレオロジー特性の理解は、製品などそのものの特性のみならず、効率的な輸送といったプロセッシングの理解、ひいては地盤の液状化など自然現象の理解にも不可欠である。剛体的な微粒子が単純粘性流体に分散した剛体球粒子懸濁液は、これらの系の本質を捉えたもっとも単純なモデル系であるといえ、そのレオロジー挙動の基本的な理解は、上記の様な物質のレオロジーの理解に不可欠である。剛体球粒子懸濁液においては、粒子間の排除体積相互作用と流体力学的相互作用という二つの相互作用だけにより、マクロなレオロジー特性が記述されるはずであり、一見単純な系に見える。しかしながら、長年の研究にもかかわらず、濃厚領域での粒子懸濁液における流体力学的相互作用の役割は十分に理解されているとはいえず、その結果、そのレオロジーの理論的理解も十分とはいえず。その主な原因は、これまで多くの場合、流体のもたらす長距離に及ぶ多体効果は周りの粒子により遮蔽されるとの仮定の下に、議論が行われてきたことにある。しかしながら、液体の非圧縮性を考えると、濃厚領域においても流体を介した相互作用により粒子の運動は長距離にわたって強い制約を受けると予想され、上記の仮定の妥当性は疑わしいと言わざるを得ない。このような問題意識の下に、本学位論文では、単一の粒子の運動に対する周囲の構造的・力学的応答を調べるマイクロレオロジーの手法を用いて数値シミュレーションにより、この未解決問題に迫った。

第1章では上記の研究背景と流体力学的相互作用の性質、さらにマイクロレオロジー実験の先行研究について論じられている。

第2章では、数値モデルの設定と数値計算手法について説明されている。本研究では非ブラウン粒子のモデル懸濁液において、プローブ粒子に一定外力を印可することで定常状態における抵抗係数を計算している。ここで、濃厚領域における結晶化を避けるために、粒径の異なる2種類の粒子の混合系を用いた。また、熱ゆらぎの効果と粒子間摩擦は考慮しないものとした。このような系について、流体の自由度の有無による抵抗係数の違いを調べるため、次の2つの数値計算手法を用いてシミュレーション結果を比較した。一つは、流体の自由度を直接取り入れた流体粒子ダイナミクス法 (Fluid Particle Dynamics 法、以下 FPD 法とよぶ: H. Tanaka and T. Araki, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1338 (2000).) であり、もう一つは、流体力学的相互作用を完全に無視した緩和ダイナミクス法 (Relaxation Dynamics 法、以下 RD 法とよぶ) である。FPD 法は、剛体粒子に関する運動方程式と、流体に関するナビエ-ストークス方程式を組み合わせることで、流体の自由度を陽に取り入れたコロイド懸濁液についてのハイブリッドなシミュレーション手法である。その際、剛体粒子を流体に比べて非常に粘性の高い流体と見なし、粒子部分と流体部分の粘性が滑らかにつながる粘性場を用いることで、剛体粒子と流体との間の境界条件を効率よく計算に取り込むことができる。粒子内部の粘性率が流体の粘性率に比べて十分大きい場合、粒子の大きさが粒子と流体間の界面幅よりも十分大きい場合に、粒子を剛体球的であるとみなすことができる。一方で RD 法は、流体の効果は摩擦のみであると

の近似の下に、粒子の運動を粒子速度に比例して減衰する運動方程式により記述する。ここで、FPD 法と比較するため、その緩和係数は一定とし、その値として FPD 法によって計算した 1 粒子系における抵抗係数を用いた。

第 3 章と第 4 章とでは、上記の数値シミュレーションの結果が示されている。いま、レオロジーの振る舞いを大きく変化させうる主要なパラメータは、粒子の体積分率とプローブ粒子に印可するドラッグ外力の強さであると考えられる。まず第 3 章では、ドラッグ外力が一定の下で広い範囲にわたって体積分率を変化させたときの結果が示されている。FPD 法と RD 法で共に体積分率がおおよそ 72% のときに抵抗係数が発散するものの、FPD 法では RD 法よりも低い体積分率で抵抗係数の有意な増加が始まり、発散の直前では抵抗係数が顕著に増加することが明らかになった。また、濃厚領域における粒子変位の相関や粒子圧力分布についての詳しい解析により、近接の斥力を通じて相互作用する RD 法とは異なり、FPD 法では流体の非圧縮性を反映して、平均としてプローブ粒子を中心とした双極子型の渦状の流れが空間全体に広がること、さらにプローブ粒子の前方で応力鎖が長距離にわたって形成されることがわかった。さらに、流体部分のせん断や運動量散逸の様子を調べることで、応力鎖の間の狭い領域に拘束されたチャンネル状の流れが頻繁に発生し、強い運動量散逸が誘発されることが明らかになった。これらのことから、応力鎖の長距離にわたる安定化とチャンネル領域での運動量散逸の増大が、流体がもたらす抵抗係数の顕著な増大の起源であることが明らかとなった。

第 4 章では、濃厚領域でドラッグ外力の強さを変化させたときの、非線形レオロジーについての結果が示されている。FPD 法と RD 法で共に、外力が強くなるにつれて抵抗係数が有意に減少するシニングが起こることが明らかとなった。RD 法では、外力が強くなると、プローブ粒子後方でホスト粒子が排除された領域が広がることで、周期境界条件によって実質的にプローブ粒子前方の応力鎖が短くなることがシニングの原因であることがわかった。一方で FPD 法では、プローブ粒子の周りの平均的な速度場は外力によらず渦状の構造を保つものの、平均の流れ場からの時間揺らぎは外力の増加とともに減少することが示された。プローブ粒子前方の速度場の揺らぎは、応力鎖の形成によって平均的な流れが阻害されることによって起こると思われる。これらのことから、プローブ粒子が強くドラッグされたとき、その運動に伴う流れ場の急速な時間変化に応力鎖が追従できず、応力鎖の軸に対して垂直方向に流体から力が働き、その結果応力鎖が不安定化されることが、外力の増加に伴う流動化の起源であると結論付けられた。

第 5 章では、上記の結果を受けて、まとめと議論、さらに今後の課題が述べられている。

これまでは、濃厚領域においては遮蔽効果のために流体力学的自由度はそれほど重要でないと考えられてきたが、本研究により、流体の非圧縮性に起因した大域的な渦状の流れと応力鎖の非自明な動的結合が、レオロジー的性質に決定的な影響を与えることが明らかとなった。本研究の成果は、濃厚な懸濁液の流動挙動・ジャミング現象の基礎的な理解を大きく進めるものと期待される。