

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 館野 道雄

コロイド懸濁液とは、数十 nm \sim μ m 程度粒子が溶媒中に分散した系の総称であり、固体・液体微粒子の懸濁液、タンパク質溶液、エマルジョンなど、ソフトマター物理学、生命科学分野で見られる系を広く含む。コロイド懸濁液は、大きなコロイド粒子と小さな溶媒分子という全く異なる長さ・時間スケールをもつ成分の混合系であり、熱平衡状態を対象とする理論では無視できる溶媒の自由度が、その動力学においては重要な役割を演じる。しかしながら、コロイド粒子・溶媒分子という時空間スケールの全く異なる物質の運動がどのように結合するのかを物理的に把握することは難しく、コロイド懸濁液のダイナミクスを記述する構成方程式(コロイド・溶媒両者を粗視化したモデル)として決定的なものは得られていないのが現状である。そこで、本研究は、コロイド・溶媒間の動的結合に着目し、コロイド懸濁液の相分離ダイナミクス、剛体球コロイドの結晶化過程という、二つの基本的な自己組織化現象に着目し、実験、数値計算により、コロイド・溶媒間の動的結合について明確な物理的描像を得ることを目的とした行われた。

第一章では、研究背景と目的について述べられている。

第二章では、基礎的な理論について記されている。

第三章では、実験方法について述べられている。コロイドのダイナミクスを、共焦点顕微鏡により 1 粒子レベルで 3 次元的に追跡することにより、コロイドの自己組織化プロセスを実験的に研究するために開発された二つの方法、コロイドの中心部だけに色素を導入したコア・シェル型のコロイドの合成法、セルへの封入時に誘起される流れによる擾乱の影響を排除するための実験方法が記されている。これらの手法の開発により、コロイドの相分離過程を凝集開始時刻から一粒子分解能で追跡することが初めて可能となり、これにより実験とシミュレーションとの直接比較が可能となった。

第四章では、数値シミュレーション手法として用いた流体粒子動力学(FPD)法とその有効性の検証について記されている。特に、この方法と揺動流体力学という理論体系を結合することにより、熱揺動下でコロイド・溶媒それぞれに対して要請される統計力学上の諸法則を矛盾なく満足させ、コロイドの熱運動をシミュレーションする方法を確立した。また、その GPU-MPI ハイブリッド並列化による高速化についても記されている。

第五章では、コロイド分散系の相分離ダイナミクスに関するスケール普遍性の実験・シミュレーションによる検証、さらには、FPD 法に基づく任意パラメータなしでの実験データの再現可能性について記されている。詳細な研究の結果、シュミット数(運動量拡散係数/物質拡散係数)と呼ばれる無次元量が 1 以上であれば、実験結果を正確に再現・予測可能なことが示された。また、コロイドの相分離ダイナミクスがスケール不変であること、また、この過程において流体力学的相互作用が極めて重要な役割を演じることが示された。

第六章では、相分離過程の粗大化の指数が、組成にどのように依存するかが調べられ、低体積分率では、指数 1/3 で特徴づけられるクラスターの構造形成、一方、高体積分率では、指数 1/2

で特徴づけられるネットワーク構造形成が起きることが見出された。

第七章では、ネットワーク構造形成型の相分離で発見された指数 $1/2$ の普遍性とその理論的な解析について記されている。まず、この指数則の背景に、自己相似性があることが示された。次に、コロイド・溶媒双方の自由度を扱える粗視化モデルである 2 流体モデルを基礎に、指数 $1/2$ の起源について論じている。コロイド・溶媒間の運動性の非対称性を反映して、コロイドリッチ相が弾性的にふるまい、その変形が、ドメイン内の溶媒の輸送により律速されていることから、粗大化指数 $1/2$ が導出されることが示された。また、この粗大化指数は、コロイド分散系の相分離のみならず、単成分液体の気体・液体相分離においても、動的非対称性が強い条件下では普遍的にみられることが示された。

第八章では、剛体球コロイドの結晶化に対する流体力学的効果について記されている。具体的には、実験とブラウン動力学シミュレーション法(BD 法)の間に存在する何桁にもわたる結晶核形成頻度の差が、流体起因のものか否かを明らかにすべく、FPD 法を用いた数値計算を行い BD 法の結果との比較を行った。その結果、BD・FPD 間に見られる相違は、54.5%程度の体積分率では 10%程度で、有意な差は認められなかった。しかし、実験・シミュレーション間の結晶化頻度の劇的な乖離は、これよりも数%低い体積分率領域で見られることから、今後より詳細な研究を行う必要があると結論付けられている。

本研究の成果は、溶媒の存在によりもたらされる局所的な多体的流体力学的相互作用が、コロイドの秩序化に多大な影響を与えることを強く示唆しており、コロイド分散系、ひいてはソフトマター系の秩序化における多体的な流体力学的相互作用の重要性を明確な形で示した点で、物理工学上も重要なものである。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。