論 文 の 内 容 の 要 旨

論文題目　　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

氏　　名　　山中　貞人

コロイド粒子懸濁液は、食品、化粧品，ペイント、セメントなど多種多様な形で実生活と深い関わり合いをもつ。特に、それらのレオロジー特性は製品そのものの特性や、いかに効率的に輸送するかといったプロセシングの問題に対して本質的な役割を果たす。コロイド粒子の懸濁液は基本的に、微小な粒子が単純粘性流体に分散した媒質とみなすことができるため、粒子間の排除体積相互作用と流体力学的相互作用の役割を解明することで、マクロなレオロジー特性を理解できると考えられる。しかし、長年の研究が重ねられているにもかかわらず、輸送過程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言い難い。例えば、溶媒は非圧縮性条件を満たさなければならないため、長距離の相互作用を誘起するだけでなく、近接して運動する粒子の間に特異的な潤滑効果をもたらす。また、希薄なコロイド懸濁液では、粒子が粘性に果たす寄与はアインシュタインの粘度式によって表されるのに対して、濃厚な系では複雑な多体相互作用を誘起し、粒子の運動学的経路に対して強い制限をもたらすと考えられる。これらのことから、非線形レオロジーの物理的理解を得るためには流体力学的相互作用の役割を明らかにすることが必要不可欠である。

そこで我々は、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る研究を行った。具体的には、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する。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種類の粒子を用いた。また、熱揺らぎの効果と粒子間摩擦は考慮しないものとした。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。一つ目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　(H. Tanaka and T. Araki, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1338 (2000)) （以下、FPD法とよぶ）であり、二つ目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（以下、RD法とよぶ）である。FPD

法とは、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込んだ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か、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、RD法は、流体の効果は摩擦のみであるとの近似の下に、粒子の運動を粒子が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、その緩和係数は一定とし、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ることとした。これら二つの手法を比較することにより、体積分率や外力の強さに応じて抵抗係数がどのように変化するのか、その背景にある流体力学的効果の役割は何かを明らかにすることが本研究の目標である。

数値シミュレーションの結果、抵抗係数の体積分率依存性をFPD法とRD法とで比較したとき、両者でほぼ同じ体積分率で抵抗係数が発散することがわかった。興味深いのは、FPD法の場合にはRD法の場合よりも低い体積分率で抵抗係数の増加が始まり、発散の直前では抵抗係数が約25倍も大きくなることである。粒子間に流体が介在することにより、顕著な抵抗係数の増大が起こるのは、応力鎖の発達と大域的な流れの形成が主要な原因となっていると考えられる。この原因を調べるために、まず、粒子間の斥力相互作用に起因する圧力の空間分布を調べることで、プローブ粒子の運動によって現れる応力鎖の構造を流体がある場合とない場合とでどのように異なるかを比較した。RD法の場合には、圧力の高い領域がプローブ粒子前方の２−３粒子程度までしか現れないのに対して、FPD法の場合には、プローブ粒子の前方でより長距離にまで伝搬した圧力分布が現れることがわかった。このことは、FPD法ではRD法の場合よりも長い応力鎖が安定的に形成されることを示している。言い換えれば、粒子間の狭い領域に介在する流体が応力鎖を安定化させる役割を果たし、抵抗係数の急激な増大に対して支配的な役割を担っていることが示唆される。次に、粒子の運動に伴う変位の相関を計算することで、プローブ粒子の運動が周囲にどのように伝搬してゆくかを調べた。流体なしの場合には、粒子同士は近距離斥力によって相互作用するため、プローブ粒子の運動は直前の限られた数のホスト粒子にしか伝搬しない。しかし、流体ありの場合には、プローブ粒子の運動が流体を介すことで短時間に遠方にまで影響することがわかった。その結果、流体が非圧縮性を満たすように、周りの粒子がプローブ粒子の後方に回り込むような渦状の流れ（back flow）が現れる。このような広範囲にわたる協同的なダイナミクスにより、プローブ粒子が進むためには流体がない場合よりも強い外力が必要となることがわかる。このように応力鎖が長距離にまで伝搬し、大域的な流れが形成されることから、粒子間に介在する流体が応力鎖の形成をアシストする役割を担っており、その結果として応力鎖が安定

化されるということを示唆している。

流体力学的効果による応力鎖の安定化は、流体の非圧縮性の観点から次のように理解できる。まず、希薄な懸濁液では、流体の長距離相互作用によりプローブ粒子は渦状の流れを作りながら運動する。しかし濃厚な懸濁液では、周りのホスト粒子との直接の接触による応力鎖を作っては壊しながらスティック-スリップ的な塑性変形を行う。このとき、粒子間の流体は遮蔽されるものの、非圧縮性を満たさなければならないことから、粒子と流体の長距離の協同的な運動が生じる。このことから、平均的にみれば濃厚な領域でもやはり渦状の流れを満たさなければならない。しかし、希薄な場合とは異なり、流れに強い不均一性があるために細い流路が自発的に形成され、それに沿って粒子の接触が伝搬することで長距離化された安定な応力鎖が現れると考えることができる。

また、プローブ粒子をドラッグするための外力の強さを変化させたとき、FPD 法と RD 法ともに、外力が強くなるにつれて抵抗係数が減少するシニング現象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の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ると考えられる。一方で、FPD 法ではシニングのメカニズムは大きく異なる。流体がある場合には、プローブ粒子が強くドラッグされたときに、強い定常的な流れ場が応力鎖を不安定させることで流動化が起こる。したがって、応力鎖の流体力学的安定化は、流れの強さと応力鎖の強度がバランスすることにより起こることが帰結される。

以上の結果は、非圧縮性により形成される渦的な流れ場の下で、流れ場に沿って粒子の鎖状の構造が形成されること、すなわち、流れ場により応力鎖が自己組織的に形成されることを示唆している。また、流体の非圧縮性に起因するこのような流体の役割は、濃厚な懸濁液のレイノルズ数が低く遅いダイナミクスにおいて成り立つ一般的な効果だと考えられる。また、以上に説明した流体力学的相互作用の役割は、濃厚な懸濁液では流体力学的効果が遮蔽効果により弱くなるというこれまでの常識に反する新たな描像を提示するものであり、また、コロイド懸濁液のレオロジーにおいて普遍性をもつ重要な知見であると考えられる。