

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 清水 涼太郎

論文題目 ソフトマターの構造形成における流体力学的効果

本研究は、相分離過程、結晶化過程というソフトマターの基本的な構造形成過程における流体力学的効果の役割を明らかにすることを目的として行われた。手法としては、数値シミュレーションを用いている。

第 1 章では、上記研究背景と目的について記されている。相分離過程、結晶化過程に関する従来の研究について簡潔にまとめられている。従来は十分考慮されてこなかった構造形成過程における流体力学的効果の役割を明らかにしようという本論文の中心的な目的が記されている。

第 2 章では、2 成分流体混合系のドロップレット型のスピノーダル分解の粗大化過程の数値シミュレーションによる研究について記されている。熱揺らぎを含むモデル H 方程式を 3 次元で数値計算した研究はこれが世界で初めてであると考えられる。転移過程における液滴の粗大化則を調べた結果、理論、光散乱実験と整合する $1/3$ 乗の指数の粗大化を再現することができたが、係数倍だけ従来の Siggia の理論で予想されていたものより速く粗大化が進むことがわかった。相分離過程における液滴の運動を解析したところ Siggia の理論で想定されている単純な Brown 運動より速い直線的な運動が見出された。この新規な運動により Siggia の理論で想定されるより粗大化が加速されていることが示された。これは過去に実験で観察されている液滴の特異な運動と整合している。溶媒中に分散する液滴間の濃度相関を調べ、この運動が液滴間の濃度相関によって生じる界面張力の勾配によって駆動されるものであることが明かとなった。これまで液滴のランダムなブラウン運動だけを考えればよいとされていたが、これは正しくなく、濃度場と流動場との結合によって生じる液滴の決定論的な運動が重要であることが明かとなった。この成果は、これまで長年信じられてきたドロップレット相分離の常識を覆す重要な成果と考えられる。

第 3 章では曲率解析を行い、相分離過程におけるドメイン構造の 2 成分の体積分率による変化を系統的に調べた結果について記されている。固体系、流体系ともに孤立ドメインを形成する体積分率においても曲率分布関数のスケールリングがほぼ成り立つことを示した。ガウス曲率の空間平均の時間変化から固体系、流体系において双連結構造と液滴分散構造とが移り変わる体積分率を求めた。固体系と比較して流体系においてはより高い体積分率で双連結構造が切断され液滴分散構造に転移することが明かとなった。これはラプラス圧が効くことで流体系においてはよりコンパクトなドメイン構造をとりやすくなるためであると論じている。従来の体積分率非対称系に関する研究では界面運動に伴って生じる流れ場の働きによって双連結構造が維持されやすくなり流体系においてより低い体積分率まで双連結構造をとると考えられていたがこれとは反する結果を得た。本研究により、液

滴分散構造と双連結構造との境界は2成分の組成だけでは決まらず動的な因子も重要となることが明らかとなった。

第4章では剛体球コロイド分散系の結晶化過程における流体力学的効果に着目し、流体粒子ダイナミクス法を用いた数値シミュレーションを行った結果について記されている。剛体球コロイドの結晶化については、その結晶核形成頻度に実験とシミュレーションの間で何桁にもわたる不一致があり、長年の謎となっている。ここでは、その要因の一つとなり得る流体力学的効果について研究を行った。溶媒の運動量拡散係数（動粘性係数）と粒子の拡散係数との比により定義されるシュミット数によりコロイド粒子分散系における流体力学的相互作用の強さが決まる。数値計算コストの問題から、実際のコロイド分散系より小さいシュミット数を用いて、すなわち流体の効果がはるかに弱い系で計算を行っている。結晶構造の解析にはSteinhardtらによって導入された局所ボンド秩序解析を行った。コロイド粒子の直径、自己拡散係数を用いて核生成レートの規格化を行い異なるシュミット数における核生成レートの比較を行ったが、今回用いたパラメータの範囲でシュミット数の増大に伴い核生成レートの上昇傾向はみられたものの、決定的な確証を得るには至らなかった。また結晶化過程における粒子の流れ場の様子について速度分布関数を計算することで調べたが、結晶化に伴ってランダムでない協同的な流れ場が生じている様子は見られなかった。結晶化に対する流体力学的相互作用の役割を明らかにするには、今後、よりシュミット数の高い領域までより詳細に調べることが必要である。

以上のように、本研究で得られた成果は、ソフトマターの構造形成ダイナミクスについて新しい視点を提示しており、物理工学上非常に重要なものである。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。