

博士論文（要約）

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

氏名 清水 涼太郎

本論文では相分離過程、結晶化という基本的な相転移ダイナミクスにおける流体力学的効果に関する数値シミュレーションによる研究についてまとめた。

第2章では2成分流体混合系のドロップレット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を行った。我々の知る限り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。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粗大化指数 $1/3$ の成長則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分かった。相分離過程における液滴の運動を観察したところ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を示した。この新奇な運動によりSiggiaの理論で想定されるより粗大化が加速されていると考えられる。これはいくつかの実験で観察されている液滴の特異な運動と整合である。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と結論付けた。特別な場合として粘性が低く、流れ場の寄与が大きい場合、粗大化指数が $1/2$ という大きい値を示すことが分かった。 $1/3$ と異なる指数となる理論的な根拠は現時点で不明であるがこれはドロップレットスピノーダル分解の動的スケーリング則が流動性のパラメータに依存することを示しており興味深い結果と思われる。

従来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を示すことができた。

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。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わかった。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と考えられる。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。液滴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おこなった。粒子の拡散係数と溶媒の運動量拡散係数（動粘性係数）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。実際のコロイド分散系においては0.00001程度の値となるが数値計算コストの問題から100程度の値を用いて、すなわち実際より流体の効果がはるかに弱い系で計算を行った。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は核生成レートの変化は小さく、有意な変化を認めることはできなかった。また結晶化過程における粒子の流れ場の様子を、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流れ場が生じている様子は見られなかった。

今回用いたシュミット数の値は実際のコロイド粒子分散系に比べて非常に大きくコロイド粒子間の流体力学的相互作用は強く働かない。またシステムサイズも粒子数202個と非常に小さい。今後より小さいシュミット数を用いてより多数の粒子系の数値シミュレーションを行うことは非常に興味深いと思われる。