

二成分液体のスピノーダル分解

九大理 古賀 毅、川崎 恭治

流体系の秩序形成過程では、流体力学的な効果のために様々な動的性質が問題となるが、特にスピノーダル分解の後期過程に於いては流体力学的効果が重要である事が指摘されている。¹⁾ 本講演では、流体力学的効果を長距離の流体力学的相互作用の形で取り入れた時間に依存するギンツブルグーランダウ (TDGL) 方程式の計算機シミュレーションに有効な方法を提案し、その方法を用いて行った三次元での二成分液体のスピノーダル分解の計算機シミュレーションの結果²⁾ について報告した。

ここでは、非圧縮の二成分液体を記述する局所秩序変数 $S(\mathbf{r})$ に対する次の TDGL 方程式を出発点にする³⁾：

$$\frac{\partial}{\partial t} S(\mathbf{r}, t) = L \nabla^2 \mu(\mathbf{r}) - \nabla S(\mathbf{r}) \cdot \int \mathbf{T}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \cdot \nabla S(\mathbf{r}') \mu(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad (1)$$

ここで、 $\mu(\mathbf{r}) \equiv \delta H\{S\} / \delta S(\mathbf{r})$ は化学ポテンシャル、 $H\{S\}$ は Ginzburg-Landau 型の自由エネルギー汎関数、 L はオンサガー係数、そして $\mathbf{T}(\mathbf{r})$ は次式で与えられる Oseen テンソルである：

$$\mathbf{T}(\mathbf{r}) = \frac{1}{8\pi\eta} \left(\frac{1}{r} + \frac{\mathbf{r}\mathbf{r}}{r^3} \right), \quad (2)$$

ここで η はずれ粘性係数、 1 は単位テンソルである。尚、ここでは長時間の漸近的な振舞いのみに興味があるので、(1) 式でノイズ項を無視した。

(1) 式を用いて計算機シミュレーションを行う際には、(1) 式の第一項には大野等のセル法⁴⁾ をそのまま用いることができるが、長距離の流体力

学的相互作用を表している第二項の計算を実空間で行うと膨大な計算機資源を要することになる。そこで第二項の積分が畳み込み積分の形になっており、波数空間では”局所”的な形に書けることに注目し、高速フーリエ変換を用いてその値を計算した (FFT 法)。²⁾

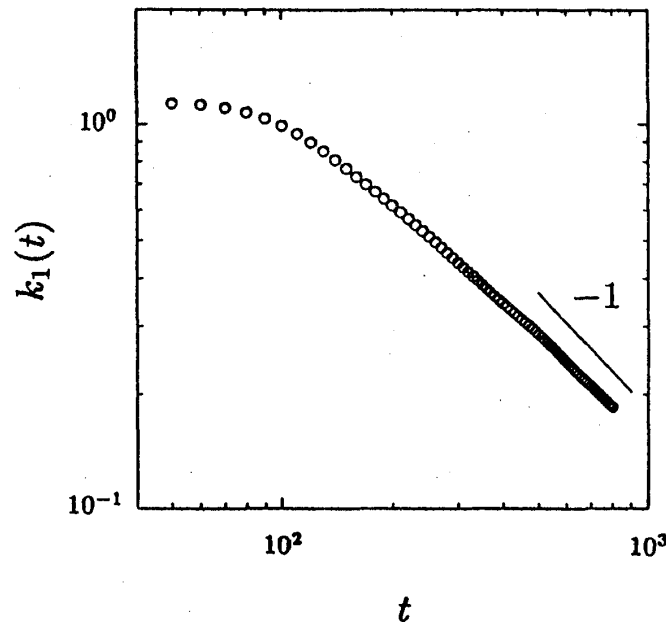


図1 $k_1(t)$ と t の log-log プロット。

図1に、特徴的な波数 $k_1(t)$ (散乱関数 $I_k(t)$ の一次のモーメントで定義した) と時間 t の log-log プロットを示している。この図の傾きから特徴的な波数の時間に対するべき指数 z : $k_1(t) \sim t^{-z}$ がわかる。図1から初期過程 (~ 100 time steps) の後、急激に指数の値が増加して、最も後期の過程では指数は $z=1$ (図中の実線) に漸近している事が分かる。指数 $z=1$ は流体系に特有の指数であり、これは後期過程に於いてドメインの成長が表面張力により引き起こされた流れに依って進行していることを示している。

¹⁾ この振舞いは液体⁵⁾ やポリマーブレンド⁶⁾ の実験で得られている結果と良く一致している。

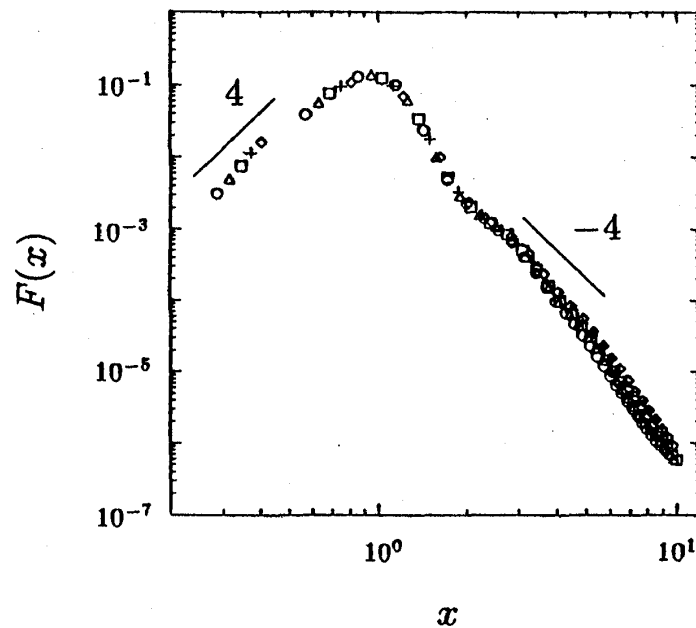


図2 $F(x)$ と $x \equiv k/k_1(t)$ の log-log プロット。

シンボル $\circ, \Delta, \square, +, \diamond$ はそれぞれ $t = 400, 450, 500, 550, 600$ time steps に対応している。

図2には、後期過程に於けるスケーリング関数 $F(k/k_1(t)) \equiv k_1(t)^d I_k(t)$ の log-log プロットを示している。この図から次の三つの特徴が分かる：

- (i) $x \equiv k/k_1$ の大きな領域では、ポロッド則から期待される振舞い $F(x) \sim x^{-4}$ に近づいている。
- (ii) $x \rightarrow 0$ の極限での $F(x)$ の漸近形は $F(x) \sim x^4$ に漸近している。
- (iii) $k \sim 3k_1$ 付近に"こぶ"が見えている。

この三つの特徴は最近高分子ブレンド⁷⁾の実験で得られた結果と一致している。更に、図2のスケーリング関数はこの実験結果と $x \gtrsim 1$ の領域では定量的にも一致している。 $x < 1$ での実験結果とのずれは有限サイズの効果であると考えられる。

現在、更に定量的な解析を行うためにより大きなシステムを用いたシミュレーションを実行中である。FFT法の詳細な内容とここで無視したノイズの効果も含めた定量的な解析結果は別に発表する予定である。⁸⁾

[参考文献]

- 1) E. D. Siggia, Phys. Rev. A **20**, 595 (1979).
- 2) T. Koga and K. Kawasaki, Phys. Rev. A (in press).
- 3) K. Kawasaki, Prog. Theor. Phys. **57**, 826 (1977); K. Kawasaki and T. Ohta, *ibid.* **59**, 362 (1978); Physica **118A**, 175 (1983).
- 4) Y. Oono and S. Puri, Phys. Rev. A **38**, 434 (1988)
- 5) P. Guenoun, R. Gastaud, F. Perrot and D. Beysens, Phys. Rev. A **36**, 4876 (1987); D. Beysens, P. Guenoun and F. Perrot, *ibid.* **38**, 4173 (1988).
- 6) T. Izumitani, M. Takenaka and T. Hashimoto, J. Chem. Phys. **92**, 3213 (1990).
- 7) T. Hashimoto and M. Takenaka, preprint.
- 8) T. Koga and K. Kawasaki (unpublished).