

2 次元セル系のレオロジーに関する計算機実験

九大・理 奥 蘭 透、川崎 恭治、九州共立大・工 長井達三

1. はじめに

粘性流体中にそれとは異なる相が分散している系では、見かけ上の粘性率はその溶媒のそれに比べて大きくなる。一般に分散相の体積分率 ϕ が変わればそのレオロジーも異なり、 ϕ が大きくなるとより複雑になる。特に ϕ が1に近づくとそのレオロジカルな性質は著しく異なり、有限の降伏応力を持つようになる。分散相が界面活性剤により安定化されているフォームやエマルジョンのような物質の多くは、そのような領域においてランダムなセル構造をなしている。これらのセルの大きさは $10\mu \sim 1cm$ ぐらいで熱的揺らぎの無視できるマクロな構造である。しかしそれよりはるかに大きなスケールでは、これらの系は一様な媒質とみることができ、そのような系の外場に対する応答は一般に複雑である。

これらの物質は有限の降伏応力をもつことが特徴的である。即ち、外部から加える応力がある値 τ_0 以下では弾性的でありそれを超えると流れを生じる。このような性質を記述する現象論的なモデルとして Bingham 流体モデルがあるが、ミクロなメカニズムから導出されたものではない。セル構造を考慮したモデルもいくつか提案されている^{1,2}が現実的なダイナミクスを記述するには充分でない。ここでは、従来セルパターン成長の問題に適用されてきたバーテックスモデルを用いて、ランダムなセル系のレオロジーについて計算機実験を行う。

2. モデル³

ここで用いるバーテックスモデルとは、複雑なセルパターンの時間発展を、界面がつくるネットワークの頂点（バーテックス）の運動とそれらのバーテックスのつながりの情報で記述したものである。^{3(a),(b)} バーテックスに対する運動方程式は、‘摩擦力’と界面張力の釣合の式で書かれる。即ち、バーテックス i の位置を r_i 、速度を v_i として、

$$\frac{\partial \mathcal{R}}{\partial v_i} + \frac{\partial \mathcal{F}}{\partial r_i} = 0 \quad (1)$$

ここで $\mathcal{R}$ は散逸関数、 $\mathcal{F}$ は界面自由エネルギーである。

今の場合、散逸の過程には次の二つが考えられる。ひとつは、パターンの粗視化に伴う物質の拡散によるもので、これに対応する散逸関数を $\mathcal{R}_D$ とする。従来のバーテックスモデルではこれのみである。もうひとつは、流体中に生じる粘性流に伴うエネルギー散逸でレオロジカルな性質に影響を及ぼすと考えられる。そこで次のような状況を考える。

今、分散相は非粘性、非圧縮流体とし、それを取り囲む粘性率 μ の連続相の大部分が Plateau borders（我々のモデルのバーテックスに対応する）に集中しているとすると、界面は安定であり、界面張力 σ は常に一定に保たれるとする。（実際、実験ではサーファクタント濃度が C.M.C.(Critical Micelle Concentration) より高くこの条件は満たされる。⁴）

Schwartz & Princen⁵ は上のような状況において、Plateau border が膜に沿って速さ U で動いているときの流体中でのエネルギー散逸の表式を得た。それによると、capillary number $Ca \equiv \mu |U| / \sigma$ が小さいときそのエネルギー散逸は $\mu U^2 / Ca^{1/3}$ に比例する。この結果を用いて我々のモデルに対する散逸関数を書き下すことができる。それを $\mathcal{R}_P$ とする。（具体的な表式は文献 3(c) を参照）

$\mathcal{R}_D$ と $\mathcal{R}_P$ の大きさを典型的な値を用いて見積ってみると $\mathcal{R}_P / \mathcal{R}_D \ll 1$ であることがわかる。このことは、レオロジカルな振舞いに特徴的な時間内には、拡散によるパターンの粗視化は殆ど起こらないことを意味する。即ち、そのような時間内には各セルの面積は殆ど一定

に保たれる。したがって我々は、(1)式において $\mathcal{R} = \mathcal{R}_P$ とし、さらに各セルの面積が変化しないという拘束を課す。こうして各バーテックスに対する運動方程式が得られる。

3. シミュレーションとその結果^{3(c),(d)}

ここでは単純すり流動下でのレオロジーについて調べる。そのためにマクロな速度場 $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ ($\mathbf{r} = (x, y)$) を導入し、前節の運動方程式中の $\mathbf{v}_i$ を $\mathbf{v}_i - \mathbf{u}(\mathbf{r}_i)$ で置き換える。今の場合、

$$\mathbf{u}(\mathbf{r}) = \dot{\gamma} y \hat{x} \quad (2)$$

である。ここで $\dot{\gamma}$ はすり速度 (shear rate)、 $\hat{x}$ は x 方向の単位ベクトルである。境界条件は Lees-Edwards の境界条件⁶を用いる。

初期状態には、従来のバーテックスモデルにより成長させた、スケーリング領域にあるパターンを選んだ。そのときのセルの総数は 459 個であった。この同一の初期状態で 13 の $\dot{\gamma}$ の値に対してシミュレーションを実行した。

図 1 は変形中のセルパターンのスナップショットである。図 2 にはすり応力 (shear stress) をすり歪 (shear strain) $\dot{\gamma}t$ に対してプロットした。(3つの shear rate に対して示してある。) この図から系が弾性的領域をこえて定常状態に達していることがわかる。

次に定常状態での shear stress $\tau(\dot{\gamma})$ の shear rate 依存性について調べた。結果を図 3 に示す。これを見る限り、系は Bingham 流体的な振舞い ($\tau(\dot{\gamma}) - \tau_0 \propto \dot{\gamma}$) を示しており、有限の降伏応力 τ_0 ($\equiv \lim_{\dot{\gamma} \rightarrow 0} \tau(\dot{\gamma})$) が存在することを示唆している。ところがこの図から外挿によって求めた τ_0 の値とフォームまたはエマルジョンによる実験値^{7,8}とを比較してみると、前者の方が 1 桁近く大きい。この違いの理由として、系の次元の相違 (実験は 3 次元系である)、体積分率 ϕ の違いによる効果などが考えられる。

ところで、この系の運動に関してひとつの重要な要素としてトポロジー変化がある。ある隣合ったバーテックスが接近してある小さな距離 Δ 以下になると、辺の繋ぎ換えをして界面がつくるネットワークはそのトポロジーを変える。この過程を T1-プロセスと呼ぶ。流動状態では絶えずこの T1-プロセスが起こっている。それに対し、弾性的な領域ではそれは起こらない。^{3(d)} この様子を応力-歪曲線とともに図 4 に示す。図中のヒストグラムが T1-プロセスのセル 1 個あたりの頻度を strain $\dot{\gamma}t$ に対する密度として表した量 f_{T1} である。

図 5 は定常状態にある系を急に $\dot{\gamma} = 0$ として界面エネルギーの緩和過程をみたものである。曲線が折れ曲がっているところは T1-プロセスの起こっているところである。同じトポロジー内では速やかに緩和し、T1-プロセスを起こして次のトポロジーに遷移し、そこでまた緩和する。このような過程を繰り返しながら全体として緩和していく。このようなタイプの緩和においては、トポロジーの変化が重要であるが、その定量的な評価はまだできていない。この問題に限らず、系のトポロジカルな変化が物理量に影響を及ぼす場合それをどのように定量化していくかは今後の課題である。

4. まとめ

我々はランダムなセル系のシミュレーションに有効なバーテックスモデルにレオロジカルに重要だと思われる粘性流の効果を取入れ、一様なすり流動下でのシミュレーションを行い、セル系のレオロジーについて調べた。

その結果、定常的な流動状態が得られた。今回のシミュレーションで実行した shear rate の範囲では、その定常状態において Bingham 流体的に振舞い、有限の降伏応力が存在することがわかった。

REFERENCES

- [1] A.M.Kraynik, *Ann.Rev.Fluid.Mech.* **20** (1988),325.
- [2] D.Weaire and J.P.Kermode, *Phil.Mag.* **B50** (1984), 379.
D.Weaire and T-L.Fu, *J.Rheol.* **32** (1988), 271.
- [3] (a)K.Kawasaki, T.Nagai and K.Nakashima, *Phil.Mag.* **B60** (1984), 399.
(b)K.Kawasaki, T.Nagai and S.Ohta, in *Simulation and Theory of Evolving Microstructures*, eds. M.P.Anderson and A.D.Rollett (T.M.S. Publication, Warredale, 1990).
(c)K.Kawasaki, T.Okuzono, T.Kawakatsu and T.Nagai, in *Proceedings of International Workshop on Physics of Pattern Formation*, ed. S.Kai (World Scientific, Singapore, 1992).
(d)K.Kawasaki, T.Okuzono and T.Nagai, *J.Mech.Behav.Mater.*, to be published.
- [4] H.M.Princen, *J.Colloid.Interface Sci.* **105** (1985), 150.
- [5] L.W.Schwartz and H.M.Princen, *J.Colloid.Interface Sci.* **118** (1987), 201.
- [6] M.P.Allen and D.J.Tildesley, *Computer Simulation of Liquids* (Clarendon Press, Oxford, 1987).
- [7] S.A.Khan,C.A.Schnepper and R.C.Armstrong, *J.Rheol.* **32** (1988), 69.
- [8] H.M.Princen and A.D.Kiss, *J.Colloid.Interface Sci.* **128** (1989), 176.

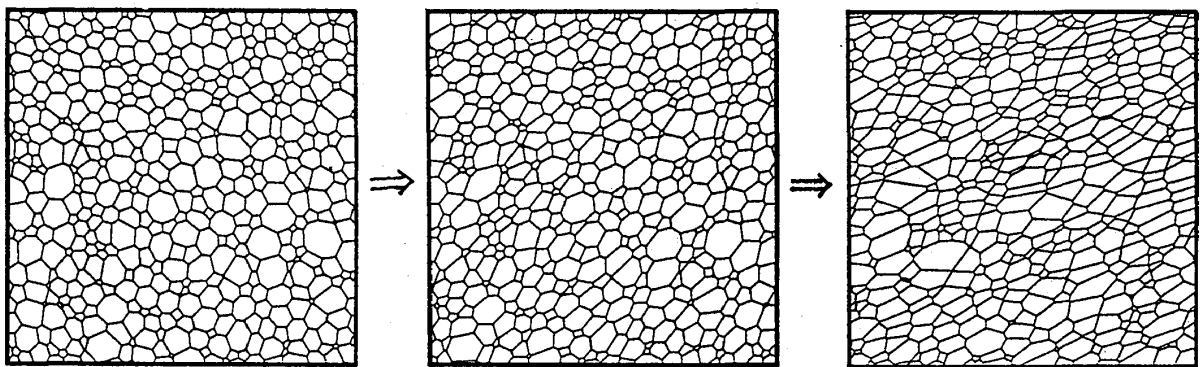


図 1

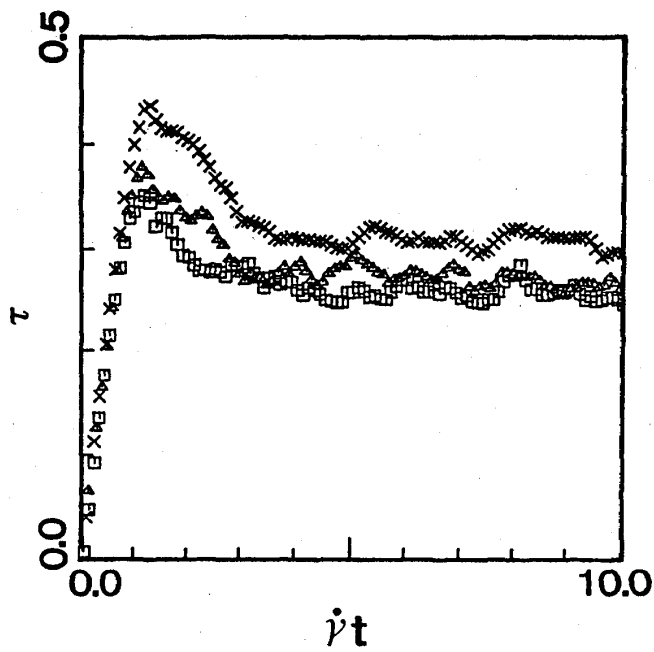


図 2

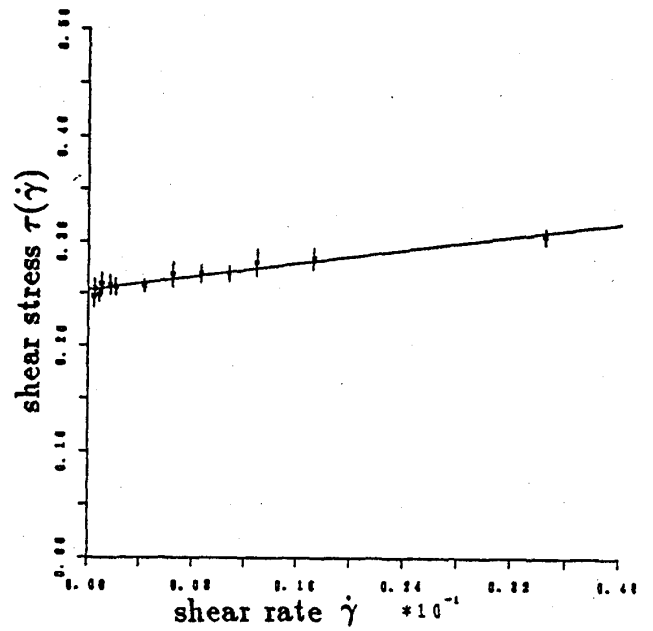


図 3

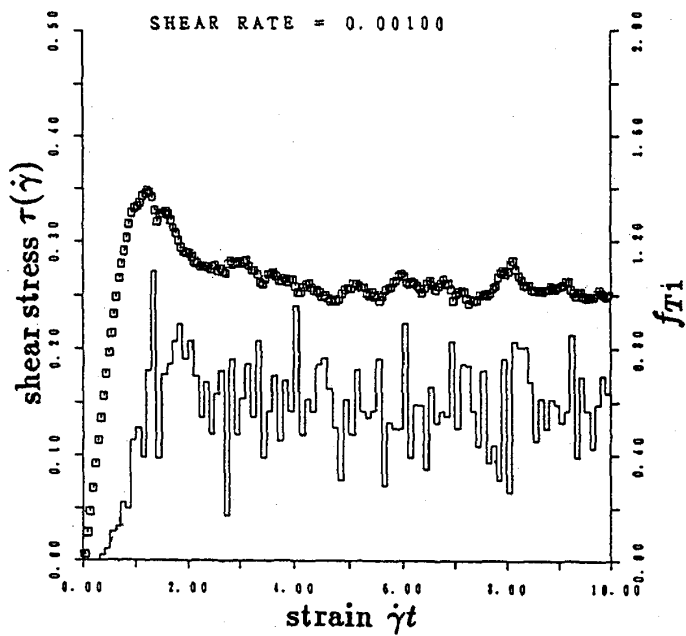


図 4

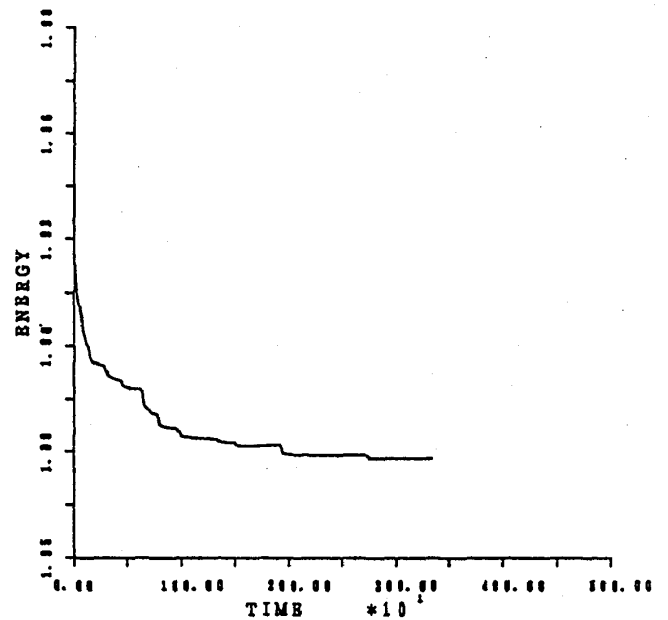


図 5