九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

直接数値計算による粘弾性流体ー粒子分散系のShear-thickening現象に関する研究

松岡，佑樹

https://hdl.handle.net/2324/4475088

出版情報：九州大学，2020，博士（工学），課程博士
バージョン：
権利関係：やむを得ない事由により本文ファイル非公開（3）

（様式２）

氏　　名　：松岡　佑樹

論 文 名　：直接数値計算による粘弾性流体－粒子分散系の
Shear-thickening 現象に関する研究

区　　分　：甲

論　文　内　容　の　要　旨

高分子溶液や高分子溶融体などの高分子流体中に粒子が分散した系は，工業材料として幅広く用いられており，その流動性を制御する技術は，製造プロセス中の材料流動に関係する様々な不具合を回避しつつ迅速にその成形プロセスを達成する上で，必要不可欠である．しかし粒子分散系レオロジーの研究において，Newton 流体-粒子分散系のレオロジーについての体系的な理解が進む一方で，高分子流体-粒子分散系のレオロジーの基礎的な理解はまだ十分とは言えない．その大きな理由として，高分子流体自体が高分子のミクロな構造変化に起因する複雑なレオロジー特性を示すことが挙げられる．高分子流体自体のレオロジー特性がその分散系のレオロジー特性に及ぼす影響を理解し適切な材料及びプロセス設計をすることは，工学上の大きな目標である．

このような高分子流体－粒子分散系の一つのモデルとして，一定粘度/有限弾性を有する Boger 流体と呼ばれる粘弾性流体中に非 Brown 粒子を分散させた系のレオロジー特性の研究が進んでいる．この分散系では，Newton 流体分散系とは異なり，粒子間相互作用の影響が小さな希薄粒子分散系においても，せん断速度の増加とともに分散系粘度が増加する shear-thickening 現象を起こすことが報告されている．このような分散系の複雑なレオロジー特性の発現メカニズムを原理的に解明する上で，粘弾性流体と粒子の相互作用を近似無しに直接的に計算し再現できるメソスケールの直接数値計算（Direct Numerical Simulation，以下 DNS）は，非常に有効である．本論文は，高分子溶液材料系に対応する粘弾性流体の粒子分散系を対象とし，DNS を用いて，分散系の shear-thickening 現象に関する体系的な知見を得ることを大きな目標として行った研究結果をまとめたものであり，以下の 7 つの章から構成されている．

第１章の序論では，粘弾性流体-粒子分散系の shear-thickening 現象に関する既往の実験/理論/数値計算による研究を概観し，本研究の課題をまとめた．

第２章では，粘弾性流体-粒子分散系のバルクレオロジー特性を評価可能な DNS 手法を得ることを目的に，粒子分散系の直接数値計算法の一つである Smoothed Profile Method（以下 SPM）を基にした新たな DNS 手法の開発を行った． SPM における場の変数として新たに高分子のコンフォメーションテンソルを導入し，その時間発展を粘弾性流体の微分型構成方程式を解くことで求めた．また斜交座標系を用いることで計算システムの全ての境界面に周期境界条件を適用することが可能となり，粒子運動に対する Lees-Edwards 周期境界条件と組み合わせることで，壁面の影響を排した粘弾性流体-粒子分散系のバルクせん断レオロジー特性を直接的に算出することが初めて可能となった．この新規 DNS 手法を用いて，単純せん断流れ下における粒子近傍の高分子応力分布，粒子回転運動，希薄分散系のせん断レオロジーの評価を実施し，DNS 手法の妥当性を確認した．

第３章では，粘弾性流体-粒子分散系の shear-thickening に対する流体弾性の影響を把握するこ

とを目的とし，２章において開発した DNS 手法を用いて，Oldroyd-B 流体-粒子分散系の１粒子 DNS 計算を実施した．その結果,「高分子濃度に対応する高分子応力の寄与の増加とともに高分子応力と流動場の結合が促進され，それが流動場の変調と粒子周辺の高分子応力の応力集中の抑制を引き起こすこと」そしてこの「粒子周辺の高分子応力分布の変化が，バルクの分散系粘度及び第 1 法線応力差係数に対して非自明なせん断速度依存性の変化をもたらすこと」などの，粘弾性流体中の１粒子が引き起こす shear-thickening の素過程に関する新たな知見を見出した．

第４章では，粘弾性流体-粒子分散系における shear-thickening を定量予測し，DNS モデリングの指針を得ることを目的とし,粒子体積分率１０％までの希薄～準希薄粒子条件での多粒子系 DNS 計算を実施した． 多粒子/複数緩和モードを用いた DNS により，既往の報告では DNS と定量的な一致をみていなかった Boger 流体-準希薄粒子分散系の shear-thickening 挙動を定量的に再現することに初めて成功した.結果として,「Boger 流体-粒子分散系の shear-thickening の立ち上がりが，Oldroyd-B モデルを用いた DNS により予測可能であること」,「定量予測には粘弾性流体の弾性（第一法線応力差）と多粒子系による分散系内の微視的構造（microstructure）を適切に考慮することが必要であること」といった Boger 流体-粒子分散系の shear-thickening 現象に対する DNS によるモデリング指針と shear-thickening メカニズムに対する新たな知見を得た. また, 得られた DNS 結果をもとに，分散系のバルクせん断レオロジー特性の粒子体積分率依存性を確認し，分散系内部でのミクロな流動パターン及び高分子伸長/弾性応力の発達との関連について考察を行った．

第５章では，粘弾性流体-粒子分散系の shear-thickening に対する流体の非線形性の影響を把握することを目的とし,実験及び多粒子 DNS 計算による検討を実施した.実験では,shear-thickening に対する流体の非線形性の影響を強めた粘弾性流体を調製し，粘弾性流体及びその準希薄粒子分散系のレオロジー測定を実施した．得られた実験結果に対して，第４章で確認した粘弾性流体のモデリング手法を適用し, 複数緩和モードを有する Oldroyd-B モデル及び流体の非線形性を考慮可能な Giesekus モデルによるモデリングを行った．分散系の DNS の結果，Oldroyd-B モデルでは実測に比べ過大な shear-thickening を示し，Giesekus モデルでは実測に近い shear-thickening 挙動を得た． 実験と良好な一致をみた Giesekus モデルによる DNS 結果を詳細に分析した結果，非線形性を有する粘弾性流体-粒子分散系の shear-thickening には,「shear-thickening に寄与する緩和モードとそうでない緩和モードが存在し, 流体の非線形領域における分散系の shear-thickening の起源は，粘弾性流体の非線形性の弱い非 thinning 性の緩和モードである」ことを見出した．

第６章では，粘弾性流体中のサブミクロン粒子の Brown 運動を適切に考慮できる DNS 手法の確立を目指し，第２章で開発した DNS 手法のさらなる拡張を試みた．流体への熱揺らぎの導入に関し，従来の粒子へ揺動力を導入する手法ではなく，流体自体へ揺動力を導入する Fluctuating Hydrodynamics 理論を新たに SPM に適用した．得られた DNS 結果は一般化ランジュバン理論と良好に一致し, Newton 流体分散系の粒子 Brown 運動を幅広い時間スケールで良好に再現できることが確認された．このことから開発した DNS 手法は，厳密に粒子の Brown 運動を再現できる点において従来の熱揺らぎを考慮した DNS 手法に対して優位性を持つことが示された．さらに，Fluctuating Viscoelasticity 理論に基づいた Oldroyd-B モデルを用い，揺動散逸定理に基づいて粘弾性流体中へ適切に熱揺らぎを導入した．この DNS 手法を用いて，流体の弾性の強まりに伴い粘弾性流体中の Brown 粒子の運動性が抑制される特徴的な現象を再現することに成功した．本研究で得られた DNS 手法により，流体の粘弾性と粒子 Brown 運動の関連する幅広い物理現象の解析が可能となった．

第７章の結論では，これまで得られた研究成果を総括し，今後の課題と展望について述べた．