

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 30 日現在

機関番号：14301

研究種目：挑戦萌芽

研究期間：2011～2012

課題番号：23654131

研究課題名（和文）沸騰現象の数値解析

研究課題名（英文）Numerical analysis of boiling phenomena

研究代表者

小貫 明 (ONUKI AKIRA)

京都大学・理学研究科・名誉教授

研究者番号：90112284

研究成果の概要（和文）：相転移と流体運動の結合する現象を時間・空間に依存した数理モデルを構築しその数値解析を行なった。ミクロな大規模分子動力学計算も複雑な現象の理解のために遂行した。具体的な研究対象としては、蒸発・気化が起こる濡れ層の動力学、水・アルコール混合溶液に選択的水和効果の著しい不純物が混入した場合の相分離現象、水・アルコール混合溶液中のコロイド粒子間相互作用、異方的粒子から構成されたガラス転移の動力学、多孔性物質中の液晶相転移である。これらの問題に対し代表者及び分担者の英文論文が査読付き雑誌に掲載された。また当研究は現在も続行中であり成果を生みだしている。

研究成果の概要（英文）：We have constructed mathematical models on effects where phase transitions and hydrodynamics are coupled. We have then performed numerical simulations on the basis of these models. Coarse-grained phenomenological models and microscopic molecular dynamics models have both been used, depending on the nature of the problems. We have treated dynamics of wetting layers with evaporation and condensation, phase separation in aqueous mixtures induced by selective impurities, colloid interactions in aqueous mixtures, glass transition dynamics in anisotropic molecular systems, and liquid crystal dynamics in porous media. We have published a number of papers on these problems in journals with referees, but we are still working on these problems.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,600,000	780,000	3,380,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：物理学・数理物理・物性基礎

キーワード：非平衡非線形物理学・沸騰現象

1. 研究開始当初の背景

相転移の関与する流体現象は自然界に広く知られているが、物理学からの理解は不十分な状況であったので研究を開始した。代表者は研究計画申請時には「動的 van der Waals 理論」を既に提出しており潜熱の関与する流体現象の研究をしていた。そこでは蒸発と気化が気体・液体

界面で起こり流体運動が引き起こされることを数値的に示した。その成果を踏まえ、代表者はこれらの現象に対して強い問題意識を持つに至った。

2. 研究の目的

相転移が界面で起こり周囲の流体運動を引き起こす効果の解明をする。動的

van der Waals 理論をさらに発展させる。また液晶系での相転移と流体運動が結合して起こる現象の解明もする。これら界面や欠陥の存在する複雑多様な自然界の現象の理解を目指す。また将来の研究発展にむけて、なるべく過去に余り研究されていない問題を野心的に取り組む姿勢をとる。

3. 研究の方法

粗視化された現象論的数理的モデルの構築を行う。そこには相転移に伴う秩序変数・流体的保存変数・速度場が導入される。エントロピー及び温度をこれら変数で表し一次転移に伴う潜熱や密度変化も導入する。我々のモデルに基づく数値解析を行う。また院生・研究生の方々にはマイクロな統計物理モデルに基づく大規模計算機実験を手がけてもらう。現象論では歯が立たない難問でもマイクロの計算によって理解が深まると考えたからである。

4. 研究成果

代表者及び分担者は、院生・研究生の方々と協力して、いくつかのモデル動力学方程式を構築し数値解析を遂行した。まず第一は液体中に疎水性壁がある系における乾燥転移についての理論を展開し数値解析を行なった。ここで壁付近では、流体は床によって撥ね付けられ、バルク液体の密度よりも小さい密度をとる。この撥ね付けられる度合いは、バルクの熱力学的状態や床の撥水性の強さによって決まる。ここで流体が撥ね付けられる結果、壁付近で比較的高密度でバルク液体より低密度の薄膜を形成する場合と、壁付近で比較的低密度をとり厚い膜が形成される場合があるが、この2状態は一次相転移として移り変わることを見出した。即ち、圧力や温度の微小変化に対し2状態の間に不連続的变化が起こりうる。この現象を predrying (乾燥) 転移と呼んだ。圧力・温度相図の中で predrying 転移線を計算しその線が predrying 臨界点で終わることを見つけた。さらに動的 van der Waals モデルを用いて疎水性壁上の低密度膜のダイナミクスを調べた。我々の温度範囲では気体の密度は液体の密度の 25 から 30% 程度であり、気体の平均自由行程はそれ程は長くなく計算機により流体現象を記述できた。特に不連続な膜厚変化そのものは時間的に突然起こり、その際にかかなりの潜熱吸収もしくは放出が起こり周囲に複雑な対流が発生する

ことが見い出された。この物理過程は音波や熱流の関与する極めて複雑なものである。相転移直後の薄膜周囲の温度の不均一性は顕著であり、熱移送は音波によるもの熱伝導によるもの熱対流によるものに分けられる。これらの相転移の関与する流体現象は余りにも複雑で具体的に調べられた例がない。我々の成果は Physical Review 誌に掲載された。

第二に水・アルコール混合溶液にイオンや疎水性不純物をわずかに混入した場合の相分離現象を解析した。水などの高い電気的極性をもつ溶媒中の混入物(特にイオン)の水和効果は化学物理の主要な研究対象である。物理学でも重要な概念であるはずだが認識は不十分である。例えば水を含んだ混合溶液においては、イオンは水分子と他の分子と選択的に相互作用し数十 kT のエネルギーの損得がある。このようなイオンと溶媒との強い選択的な相互作用(選択的溶媒和)により、少量のイオンが系の性質を劇的に変化させる。主な結果は次のようになる。(1)イオンがない場合の相分離領域からはるかに離れた条件下(温度、組成)における少量塩が誘起する相分離を調べた。(2)コロイド表面における塩が誘起する濡れによる強いコロイド間引力を調べた。今後の課題としては、この方向でのコンピュータシミュレーションを中心とした研究が計画できる。混合溶液中のコロイド凝集に関する実験は数多いが、溶媒和効果という観点から調べたものはまだ無いと思われる。成果は Physical Review, J. Chem. Phys. 誌などに掲載された。このような実験的研究の進展にも期待したい。またコロイド表面の濡れがコロイド間相互作用に大きな影響を与える事からもわかるように、より基本的な問題として濡れ(転移)における溶媒和効果・電荷効果は重要であり将来の問題が山積している。さらに問題を発展させ、生体系のタンパク質などの周囲でも同じような選択的相分離が起こると考えている。

上記の問題では 2 成分流体における液・液相分離を考えたが、現在は水などの 1 成分流体に選択的(疎水性)不純物(例えばシクロヘキサン)を微量に混入した場合に起こる相分離現象について考えている。これは所謂ナノバブルの問題であり工業的にも重要であるが基礎となる物理・化学からの理解が進んでいない。特に熱力学的に安定なナノバブルは疎水性個体壁で発生しやすいことがわかった。代表者はそのような壁が疎水性不純物によって気体膜で覆われる現

象を数値計算により発見しており論文を準備中である。この様なナノバブルは流体の僅かな圧力変化で1次転移として引き起こされる効果などが予言できる。

第三にガラス転移の問題を研究した。分子サイズのかかなり異なる2種の分子を混ぜ冷却すると結晶になりえず所謂ガラス状態となる。ここでは無秩序化・結晶化が拮抗し興味ある現象が起こり近年では世界的に多くの研究がある。代表者は若手研究者と協力しながらガラス状態での集団的動力学を大規模計算機実験に基づき調べた。この様な系のメゾスケールの動力学不均一性とミクロな分子振動の不均一性を結びつけた。またさらに分子が異方性を持つ場合には、方向秩序化がおこり構造相転移がガラス転移と拮抗する。この場合の動力学を調べた。この様な現象(所謂 orientational glass) は自然界でよく見られるが、理論的研究は過去には殆どないと言える。成果は Physical Review, J. Chem. Phys., Europhysics Letters 誌などに掲載されている。

現在は異方的分子が電気的雙極子を持つ場合の方向秩序化が強誘電相転移を引き起こす効果やさらに不純物混入による強誘電ガラス形成の研究を始めた。メゾスケールの配向秩序が巨大電場応答・ピエゾ効果などを引き起こすことがわかった。これらの分極した不均一な空間領域(nanopolar domain)は不純物によりピン止めされ時間的には極めて遅いガラス的緩和をする。これらの結果は論文にまとめつつある。またミクロな荷電粒子系や電気雙極子系に外部電場を与えするのは計算機の手法として難しいが、代表者は最近になりその一般手法を開発しその内容は投稿中である。

第四に分担者は液晶系での相転移と流体運動の結合効果を集中的に調べた。特に液晶分子がエアロゲルのような多孔性物質中に存在する場合は興味深い。そこでは壁による液晶分子配向のピン止めが起こり大量の欠陥が誘起される。流動状態での欠陥の非線形動力学は極めて複雑かつ集団的であり興味深い。ここでは大規模計算機手法が有力あり問題の本質が明らかになりつつある。その知見の一部は Physical Review Letter 誌に掲載された。また分担者は高分子性の長い棒からなる液晶系での非線形動力学について大規模計算機実験に基づく研究を發表している。液晶性高分子は工学的に重要であるが、その動力学の理解は極めて難しい。分担者の研究はこの

問題の研究の嚆矢となるものである。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 10 件)

1. S. Yabunaka, R. Okamoto, and A. Onuki, “Phase separation in a binary mixture confined between symmetric parallel plates: Capillary condensation transition near the bulk critical point”, Phys. Rev. E 87 (2013) 032405 -1-10 (査読有).
2. T. Kawasaki and A. Onuki, “Dynamics of thermal vibrational motions and stringlike jump motions in three-dimensional glass-forming liquids” J. Chem. Phys. 138 (2013) 12A514-1-9 (査読有).
3. T. Kawasaki and A. Onuki, “Slow relaxations and stringlike jump motions in fragile glass-forming liquids: Breakdown of the Stokes-Einstein relation” Phys. Rev. E 87 (2013) 012312 -1-10 (査読有).
4. A. Onuki and T. Araki, “Selective Solvation in Aqueous Mixtures: Interface Deformations and Instability”, J. Phys. Soc. Jpn, 81 (2012) SA004-1-12 (査読有).
5. R. Okamoto and A. Onuki, “Casimir amplitudes and capillary condensation of near-critical fluids between parallel plates: Renormalized local functional theory”, J. Chem. Phys. 136 (2012) 114704-1-15S (査読有).
6. H. Shiba, T. Kawasaki, and A. Onuki, “Relationship between bond-breakage correlations and four-point correlations in heterogeneous glassy dynamics: Configuration changes and vibration modes” Phys. Rev. E 86 (2012) 041504-1-14 (査読有).
7. Y. Uematsu and T. Araki, “Effects of strongly selective additives on volume phase transition in gels” J. Chem. Phys. 137 (2012) 024902 -1-9 (査読有).

8. T. Araki, “Dynamic coupling between multistable defect pattern and flow in nematic liquid crystals confined in a porous medium”, Phys. Rev. Lett. 109, 257801 (2012) (査読有).
9. R. Teshigawara and A. Onuki, “Predrying transition on a hydrophobic surface: statics and dynamics”, Phys. Rev. E 84 (2011) 041602-1-14 (査読有).
10. R. Okamoto and A. Onuki, “Casimir amplitudes and capillary condensation of near-critical fluids between parallel plates: Renormalized local functional theory”, Phys. Rev. E 84 (2011) 041602-1-14 (査読有).

[学会発表] (計 4 件)

1. T. Araki and A. Onuki, “A Ginzburg-Landau mean-field model describing phase transitions in liquid crystals: Isotropic-nematic-smectic A-smectic C”, Core to Core meeting on liquid crystals (招待講演) Mainz, Germany, 8月25日 (2012)
2. T. Araki, “Flow induced re-configuration of topological defects of nematic liquid crystal in porous media”, 24th International Liquid Crystal Conference, Mainz, Germany, 8月19日 (2012)
3. A. Onuki, “Dynamic van der waals theory: Evaporation and Condensation”, 18 th Symposium on Thermophysical Properties (招待講演) Boulder, USA, 6月25日 (2012)
4. A. Onuki, “Selective Solvation in Soft

Matters”, Discussions on Hydration Forces (招待講演)
Sofia, Bulgaria, 4月2日 (2012)

[その他]

ホームページ等：
<http://www016.upp.so-net.ne.jp/onukiakira/>
<http://stat.scphys.kyoto-u.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小貫 明 (ONUKE AKIRA)
京都大学・大学院理学研究科・名誉教授
研究者番号：90112284

(2) 研究分担者

荒木 武昭 (ARAKI TAKEAKI)
京都大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：20332596

(3) 連携研究者

()

研究者番号：