一様せん断下での引力を持つ散逸粒子のパターン形成

高田智史

2013 年 1 月 21 日
2014 年 2 月 10 日 修正

概 要

サブミクロンオーダーの微細粒子ではマクロな粉体粒子とは異なり、粒子間に斥力・散逸力だけでなく引力相互作用が働く。この系では引力の存在により、気液相転移と散逸構造の競合が起きる。平衡近傍系での核生成過程についてはよく調べられているが、一様外力と散逸力が釣り合った非平衡定常状態下ではまだ十分に理解されていない。そこで本研究では粒子間相互作用が Lennard-Jones ポテンシャルとダッシュポットで記述できる粒子系にせん断を加えて、3 次元分子動力学シミュレーションによって非平衡パターン形成を調べた。

第 6 章では、x 軸方向にせん断をかけ、せん断速度が y 軸方向に線形であり、せん断平面に広く奥行きの狭い擬二次元系を考え、せん断率と散逸率を変化させた場合の定常パターンについて調べた。その結果、(I) 一様せん断相、(II) せん断方向に平行に粒子が集積したシアバンドと呼ばれる相と気相の共存状態、(III) 結晶相という 3 つの異なる定常相が得られた。また、シミュレーションより相 (II) と (III) の境界は近似的に $\zeta = \alpha \exp(\beta\dot{\gamma}L_y)$ と表すことができ、またこのメカニズムが現象論的に説明できることも示した。ここで $\zeta,\ \dot{\gamma},\ L_y$ はそれぞれ散逸率、せん断率、y 軸方向のシステムサイズであり、$\alpha,\ \beta$ は定数である。

次に第 7 章では立方体の系を考え、密度を変化させたときに粒子が集積したクラスターの概形がどのように変化するかを調べた。その結果、(a) 液滴、(b)2 次元プラグ、(c)2 次元平面、(d) 逆 2 次元平面、(e) 逆 2 次元プラグ、(f) 一様状態という 6 つの異なるクラスターの形が得られた。また密度が稀薄な系において、散逸率 ζ がある臨界散逸率 $\zeta_{\rm cr}$ より大きい場合には、ある時刻において粉体温度が急減少を始め、この時刻 $t_{\rm cl}$ と散逸率との間に $t_{\rm cl} = \alpha'(\zeta - \zeta_{\rm cr})^{-\beta'}$ (α'、β' は定数) という関係が成り立つことが分かった。

また、第 8,9 章では一様せん断相が不安定化する条件について、Lennard-Jones 流体の線形安定性解析が適用可能かについても調べた。

目 次

第1章　はじめに

1.1　本研究の背景

接触した際にエネルギー散逸のある粒子集団 [1] である粉体 [2] は我々の周りに溢れており、粉体の性質を理解することは理論的に興味深いだけでなく、工業的・産業的にも重要である。また、粉体物理の対象は砂や顆粒だけでなく交通流 [3,4] なども含まれており、応用分野は幅広い。

粉体を粉体たらしめているこのエネルギー散逸は摩擦や非弾性衝突に起因するが、これらの現象については、未だにホットな研究対象になっている。例えば 2 粒子の非弾性衝突でも最近になって跳ね返り係数が負になる事例などについて報告されている [5–9]。

砂や顆粒などのマクロな粒子の間に働く相互作用は上述の散逸力に加え斥力により特徴づけられる。非弾性衝突に起因するエネルギー散逸により、

$$
\begin{array}{ll}
 & \boxed{\text{局所的に粒子が集まる}} \\
\rightarrow & \boxed{\text{衝突頻度が高まりエネルギーが低下する}} \\
\rightarrow & \boxed{\text{圧力勾配ができる}} \\
\rightarrow & \boxed{\text{局所的に粒子が集まる}}
\end{array}
$$

を繰り返すことで図 1.1 のようなクラスターが生じることが知られている [10,11]。またこの系は衝突に伴う温度冷却の効果を考えた流体方程式を用いて記述できることが知られている [12–16]。

この系に対する典型的なアプローチでは、衝突項に非弾性の効果を取り入れた非弾性 Boltzmann 方程式を基礎方程式として Chapman-Enskog 法を適用した粉体系の流体方程式の導出や輸送係数の見積もり [17–19] などを行っている。有限濃度系に対しては粒子間衝突の際の粒子同士の大きさを考慮した非弾性 Enskog 方程式 [20] があり、長距離相関が重要でない系に対しては半定量的に正しい結果 [21–23] を与えることが知られている。また、流体方程式を用いた安定性解析 [24–33] などもよく研究されており、系の有限サイズ効果や境界壁が系全体の性質に与える影響などが調べられている。

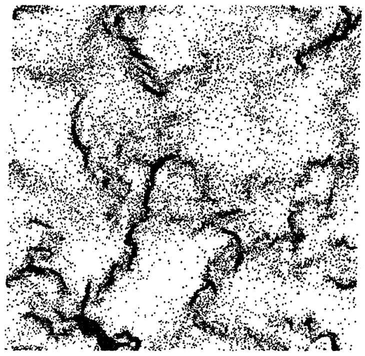

図 1.1: 先行研究 [10] で報告されているクラスター。非弾性衝突により一様状態が不安定になりクラスターが形成される。

この粉体系にせん断をかけた際には 2 次元ではシアバンドと呼ばれる高密度領域 [34] が、3 次元では図 1.2 のように 2 次元プラグ、2 次元波、3 次元波などの様々な形のクラスター [35,36] が見られることが報告されている。

1.2 本研究の目的

上記のようなマクロな粉体に対し、トナー粒子や星間塵のような粒径がサブミクロンオーダーの微細粒子になると、粒子間に静電気力のような引力を持つようになる [37]。すなわち粒子間の相互作用は斥力・引力・散逸力によって特徴づけられるようになる。マクロな粉体と本研究の対象の粒子との違いをまとめると

$$\begin{aligned}\boxed{\text{マクロな粉体}} &= \boxed{\text{斥力}} + \boxed{\text{散逸力}} \\ \boxed{\text{微細粒子}} &= \boxed{\text{斥力}} + \boxed{\text{引力}} + \boxed{\text{散逸力}}\end{aligned}$$

で表せる。このような系では引力の影響による気液相転移 [38,39] と衝突の際のエネルギー散逸に起因する散逸構造 [34] とが競合し、マクロな系では見られなかった新しい特徴が生まれる。この競合は理論的に興味深いだけでなく、工業的にも重要な系であるにもかかわらず、このような系に対する理論はまだ作られていないのが現状であり、分子動力学法やモンテカルロ法を用いた分子シミュレーションや現象論的なモデルを用いた研究が中心となっている。例えば分子動力学法によって、熱浴に接した平衡近傍の系の核生成過程 [40–44] に関してはよく理解されており、シミュレーション結果と古典核生成理論 [45–48] との比較などを論じられている。また、Smolchowski 方程式 [49] を用いた凝集現象 [50–58] やオーダーパラ

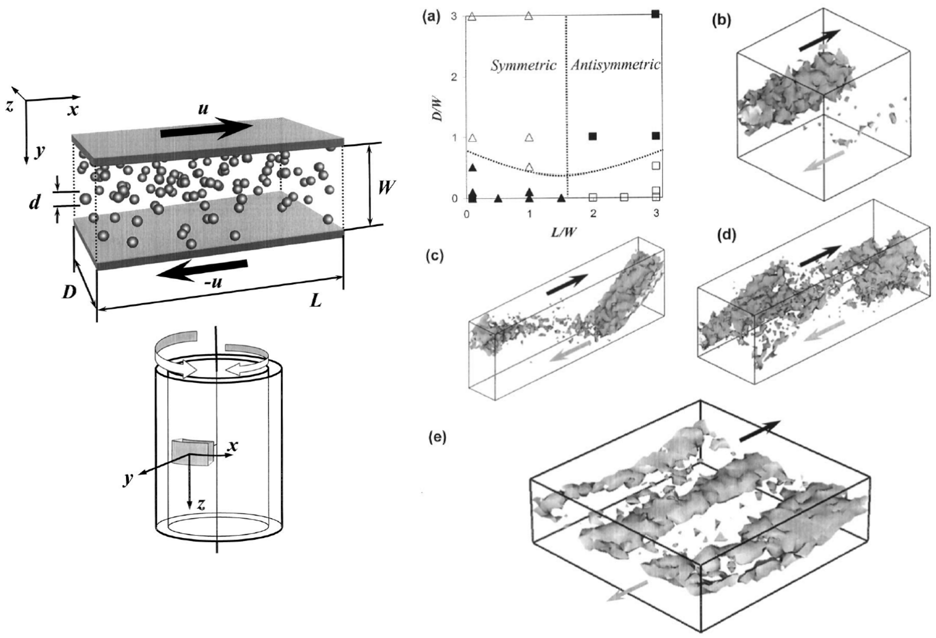

図 1.2: 先行研究 [35] で報告されている特徴的なクラスターの形 ((b)–(e))。これらは Conway クラスターと呼ばれている。左側の 2 つの図はシミュレーションのセットアップを表し、(a) は L/W および D/W を変化させたときのクラスターの形に関する相図である。

メータ方程式を用いた相転移現象 [59–65] のモデル計算なども行われている。しかしコピー機の中のトナー粒子の流れのような、せん断下での核生成過程・パターン形成についてはまだ十分に調べられていない。本研究では 3 次元の分子動力学法を用いて一様せん断下での引力を持つ粉体粒子の核生成・パターン形成について調べていき、密度・せん断率・散逸率などのパラメータが系の性質に与える影響について明らかにしていくことを目的とする。

第2章　分子動力学法

分子動力学（MD）法とは多粒子系の運動を、個々の粒子の運動方程式を解くことによって追跡していくシミュレーション方法である。古典系では Newton 方程式を解くことによって粒子の位置と運動量の時間発展を求めていく [66–71]。以下で分子動力学法について簡単にまとめることにする。

2.1　解くべき方程式

各粒子の位置 $\{\boldsymbol{r}_i\}$、運動量 $\{\boldsymbol{p}_i\}$ の時間発展は Newton 方程式

$$\frac{d\boldsymbol{r}_i}{dt} = \frac{\boldsymbol{p}_i}{m_i} \tag{2.1}$$

$$\frac{d\boldsymbol{p}_i}{dt} = \boldsymbol{F}_i \tag{2.2}$$

で与えられる。ここで m_i は i 番目の粒子の質量、$\boldsymbol{F}_i$ は i 番目の粒子に働く外力であり、系の性質によって $\boldsymbol{F}_i$ のモデルを考えていく必要がある。

2.2　代表的な時間発展アルゴリズム

系の時間発展を知るためにはすべての粒子について式 (2.1)、(2.2) を時間刻みごとに解いていけばいいが、時間発展の仕方については種々の方法がある。ここではソフトコアポテンシャルを持つ粒子の MD の代表的なものを列挙することにする。ソフトコアポテンシャルを持つ粒子の MD では、時間刻み Δt を決めて、粒子の位置と運動量の時間的更新を行う。ここではその代表的なアルゴリズムとして以下の 5 つの方法を紹介する。

- Leap-Frog 法

$$r(t+\Delta t) = r(t) + v\left(t+\frac{\Delta t}{2}\right)\Delta t \tag{2.3}$$

$$v\left(t+\frac{\Delta t}{2}\right) = v\left(t-\frac{\Delta t}{2}\right) + \frac{F(t)}{m}\Delta t \tag{2.4}$$

- Verlet 法

$$r(t+\Delta t) = 2r(t) - r(t-\Delta t) + \frac{F(t)}{m}\Delta t^2 \tag{2.5}$$
$$v(t) = \frac{r(t+\Delta t) - r(t-\Delta t)}{2\Delta t} \tag{2.6}$$

- 速度 Verlet 法

$$r(t+\Delta t) = r(t) + v(t)\Delta t + \frac{F(t)}{2m}\Delta t^2 \tag{2.7}$$
$$v(t+\Delta t) = v(t) + \frac{F(t)+F(t+\Delta t)}{2m}\Delta t \tag{2.8}$$

- ラーマンの予測子修正子法
  予測子

$$r^p(t+\Delta t) = r(t-\Delta t) + 2v(t)\Delta t \tag{2.9}$$
$$v^p(t+\Delta t) = v(t) + \frac{F(t)+F(t+\Delta t)}{2m}\Delta t \tag{2.10}$$

  修正子

$$r^c(t+\Delta t) = r(t) + \frac{v^p(t+\Delta t)+v(t)}{2}\Delta t \tag{2.11}$$

  $r^p(t)$ と $r^c(t)$ とを比較し、期待した精度内で一致していれば時刻 $t+\Delta t$ での値として採用する。一致していない場合は修正子を予測子と考えて上のプロセスを繰り返す。

- ギアの予測子修正子法
  予測子

$$r^p(t+\Delta t) = r(t) + v(t)\Delta t + \frac{1}{2}a(t)\Delta t^2 + \frac{1}{3!}b(t)\Delta t^3 \tag{2.12}$$
$$v^p(t+\Delta t) = v(t) + a(t)\Delta t + \frac{1}{2}b(t)\Delta t^2 \tag{2.13}$$
$$a^p(t+\Delta t) = a(t) + b(t)\Delta t \tag{2.14}$$
$$b^p(t+\Delta t) = b(t) \tag{2.15}$$

$$\Delta a(t+\Delta t) = a^c(t+\Delta t) - a^p(t+\Delta t) \tag{2.16}$$

  修正子

$$r^c(t+\Delta t) = r^p(t+\Delta t) + c_0\Delta a(t+\Delta) \tag{2.17}$$
$$v^c(t+\Delta t) = v^p(t+\Delta t) + c_1\Delta a(t+\Delta) \tag{2.18}$$
$$a^c(t+\Delta t) = a^p(t+\Delta t) + c_2\Delta a(t+\Delta) \tag{2.19}$$
$$b^c(t+\Delta t) = b^p(t+\Delta t) + c_3\Delta a(t+\Delta) \tag{2.20}$$

ここで係数 c_0, c_1, c_2, c_3 は運動方程式が 1 次の微分方程式の場合はそれぞれ $3/8, 1, 3/4, 1/6$、2 次の微分方程式の場合は $1/6, 5/6, 1, 1/3$ となる [71]。

ハードコアポテンシャルを持つ粒子の場合は、時間刻みを固定して位置と運動量の更新をすることはできない。そのため、ソフトコアの場合と異なるアルゴリズムが必要になる。これに関しては付録 A で紹介する。

2.3 代表的な 2 体ポテンシャル

一般に粒子に働く力 $\boldsymbol{F}$ は保存力と非保存力に分解できる。保存力はポテンシャルエネルギー $\phi(r)$ を用いて $\boldsymbol{F} = -\boldsymbol{\nabla}\phi(r)$ と書ける。ここでは代表的な 2 体ポテンシャルを列挙することにする。

- ハードコアポテンシャル

$$\phi^{\mathrm{HC}}(r) = \begin{cases} \infty & (r \leq \sigma) \\ 0 & (r > \sigma) \end{cases}, \tag{2.21}$$

- ソフトコアポテンシャル

$$\phi^{\mathrm{SC}}(r) = \varepsilon \left(\frac{\sigma}{r}\right)^n, \tag{2.22}$$

- 井戸型ポテンシャル

$$\phi^{\mathrm{SW}}(r) = \begin{cases} \infty & (r \leq \sigma_1) \\ -\varepsilon & (\sigma_1 < r \leq \sigma_2) \\ 0 & (r > \sigma_2) \end{cases}, \tag{2.23}$$

- Lennard-Jones ポテンシャル [72]

$$\phi^{\mathrm{LJ}}(r) = 4\varepsilon \left\{ \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6 \right\}, \tag{2.24}$$

- WCA(Weeks-Chandler-Andersen) ポテンシャル [73]

$$\phi^{\mathrm{WCA}}(r) = \begin{cases} 4\varepsilon \left\{ \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6 \right\} + \varepsilon & (r \leq 2^{1/6}\sigma) \\ 0 & (r > 2^{1/6}\sigma) \end{cases}, \tag{2.25}$$

- 湯川ポテンシャル [74]

$$\phi^{\mathrm{Yukawa}}(r) \propto \frac{\exp(-\kappa r)}{r}, \tag{2.26}$$

このポテンシャルは元々は核力の説明のために導入されたものであるが、物性物理においてはコロイド系で静電遮蔽が起こっている場合のシミュレーションで用いられることが多い。

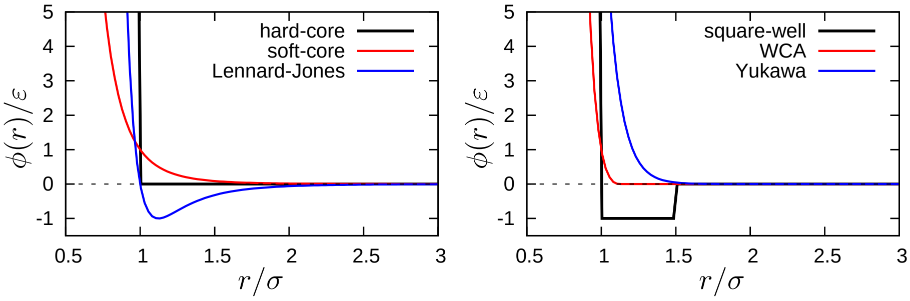

図 2.1: 様々なポテンシャルの概形。

また、Lennard-Jones ポテンシャルの場合、実際のシミュレーションにおいては計算の効率化のためにカットオフを導入することが多い。いくつかの代表的なものを以下に示す。ここで r_{c} はカットオフ距離と呼ばれ、$r_{\mathrm{c}} = 2.5\sigma$–$5\sigma$ を用いることが多い [75]。

- truncated Lennard-Jones ポテンシャル

$$\phi(r) = \begin{cases} 4\varepsilon\left[\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{6}\right] & (r \le r_{\mathrm{c}}) \\ 0 & (r > r_{\mathrm{c}}) \end{cases}, \tag{2.27}$$

- truncated and shifted Lennard-Jones ポテンシャル

$$\phi(r) = \begin{cases} 4\varepsilon\left[\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{6} - \left(\frac{\sigma}{r_{\mathrm{c}}}\right)^{12} + \left(\frac{\sigma}{r_{\mathrm{c}}}\right)^{6}\right] & (r \le r_{\mathrm{c}}) \\ 0 & (r > r_{\mathrm{c}}) \end{cases}, \tag{2.28}$$

- 2 つの余分な項を追加したポテンシャル [76, 77]

$$\phi(r) = \begin{cases} 4\varepsilon\left[\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{6} + c_2\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{2} + c_0\right] & (r \le r_{\mathrm{c}}) \\ 0 & (r > r_{\mathrm{c}}) \end{cases}, \tag{2.29}$$

2 つの係数 c_2、c_0 は $\phi(r_{\mathrm{c}}) = \phi'(r_{\mathrm{c}}) = 0$ という条件を満たすように選ぶ。例えばカットオフ距離を $r_{\mathrm{c}} = 3.0\sigma$ に選んだ場合、c_2, c_0 はそれぞれ

$$c_2 = \frac{1}{3^3} - \frac{2}{3^6}, \quad c_0 = -\frac{2}{3^6} + \frac{5}{3^{12}}, \tag{2.30}$$

となる。

第3章　跳ね返り係数と散逸率との関係

非弾性衝突を特徴づける跳ね返り係数 e は、粉体のモデル化の中で現れるダッシュポットの散逸率と密接に関係している。そこで以下では 2 つのモデルについて散逸率 ζ と跳ね返り係数 e との間に成り立つ関係 $e = e(\zeta)$ を調べていくことにする。

3.1　線形バネ＋線形抵抗系での跳ね返り係数

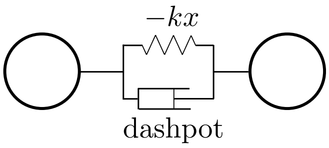

図 3.1: 2 粒子間の接線方向に線形バネと線形抵抗で記述できる相互作用が働くモデル

線形バネによる弾性力と線形抵抗による粘性力の場合、相対変位の従う方程式は以下で与えられる：

$$M\ddot{u} + \eta\dot{u} + ku = 0, \tag{3.1}$$

ここで u は相対変位であり、$M = m/2$ は換算質量である。一般に減衰振動の方程式 (3.1) の解は条件により次の 3 つに分けられる [78]。

1. $\eta^2 - 4Mk < 0$ の場合 $a = \frac{\eta}{2M}$、$b = \frac{\sqrt{4Mk-\eta^2}}{2M}$ として

$$u(t) = \frac{u(0)}{b}e^{-at}\sin(bt), \tag{3.2}$$

$$\dot{u}(t) = u(0)e^{-at}\left(\cos(bt) - \frac{a}{b}\sin(bt)\right), \tag{3.3}$$

2. $\eta^2 - 4Mk = 0$ の場合

$$u(t) = u(0)te^{-at}, \tag{3.4}$$

$$\dot{u}(t) = (1-at)u(0)e^{-at}, \tag{3.5}$$

3. $\eta^2 - 4Mk > 0$ の場合 $b' = \frac{\sqrt{\eta^2-4Mk}}{2M}$ として

$$\begin{aligned} u(t) &= \frac{u(0)}{b'} e^{-at} \sinh(b't), & (3.6)\\ \dot{u}(t) &= u(0) e^{-at} \left(\cosh(b't) - \frac{a}{b'} \sinh(b't) \right), & (3.7) \end{aligned}$$

跳ね返り係数は初期速度と衝突後の速度との比で求められるから、

$$e = -\frac{\dot{u}(t_p)}{\dot{u}(0)}, \tag{3.8}$$

で与えられる。ここで t_p は $u(t) = 0$ となる時刻である。例えば $\eta^2 - 4Mk < 0$ の場合にこれを解くと

$$e = \exp\left(-\frac{\pi\eta}{\sqrt{2mk - \eta^2}} \right), \tag{3.9}$$

という関係式が得られる [78–80]。

3.2 Lennard-Jones ＋線形抵抗系での跳ね返り係数

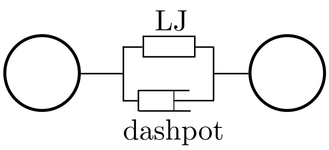

図 3.2: 2 粒子間の接線方向に働く相互作用のモデル

それに対し、保存力が Lennard-Jones ポテンシャルで表される場合には 2 粒子間の距離が従う方程式は以下で与えられる：

$$M\ddot{r} + \eta\dot{r} + 24\varepsilon \left[2\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^{6} \right] \frac{1}{r} = 0. \tag{3.10}$$

この方程式を初期条件

$$r(0) = \sigma, \quad \dot{r}(0) = -v, \tag{3.11}$$

の下で解いていくことで、原理的には跳ね返り係数と散逸率との関係を求めることができる。ここで r は 2 粒子間の距離であり、M は換算質量、v は初期相対速度である。ところがこの微分方程式 (3.10) は解析的に解くことはできない。したがって本研究では分子動力学シミュレーションにより 2 粒子を正面衝突させ、それにより数値的に跳ね返り係数と散逸率との

関係を得た。ここで Lennard-Jones 系の場合、跳ね返り係数は散逸率だけでなく衝突速度にも依存する。本研究では初期相対速度を $T = 1.4\varepsilon$ の相対熱速度として与え、その場合の跳ね返り係数を採用することにした。結果は図 3.3 のようになり、関数形

$$e = C_1\zeta^2 - C_2\zeta + C_3, \tag{3.12}$$

でフィッティングできる。この係数 C_1, C_2, C_3 を Levenberg-Marquardt アルゴリズム [81,82] により求めると、表 3.1 のようになる。

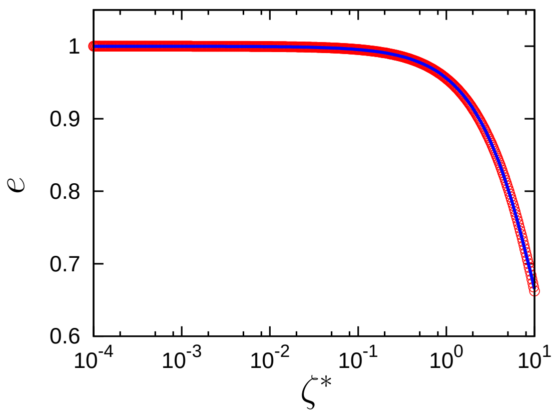

図 3.3: 跳ね返り係数 e と散逸率 ζ との関係（○印）と関数形でフィッティングしたもの（実線）。ここで初期の相対速度は相対熱速度を用いている。

係数	値
C_1	$0.00115896 \pm 3.763 \times 10^{-6}$
C_2	$0.045069 \pm 2.829 \times 10^{-5}$
C_3	$0.999856 \pm 2.078 \times 10^{-5}$

表 3.1: Levenberg-Marquardt アルゴリズムにより求めた C_1、C_2、C_3 の値。

第4章　せん断系の分子動力学法

系にせん断をかけるには大まかに 2 つの方法 : (I) 境界の壁を物理的に動かす方法 [83–85]、(II) 周期境界条件を用い一様せん断をかける方法 [86,87] がある。

4.1　物理的に壁を動かす方法

せん断をかけたシミュレーションを行う際、もっとも直感的な方法は図 4.1 のように系の境界に物理的な壁を作り、その壁を左右に動かすことによってせん断を作り出 す方法である [83–85]。しかしこの方法では壁の作り方が一意ではなく、壁の作り方によって系全体の性質が変化することが知られている。

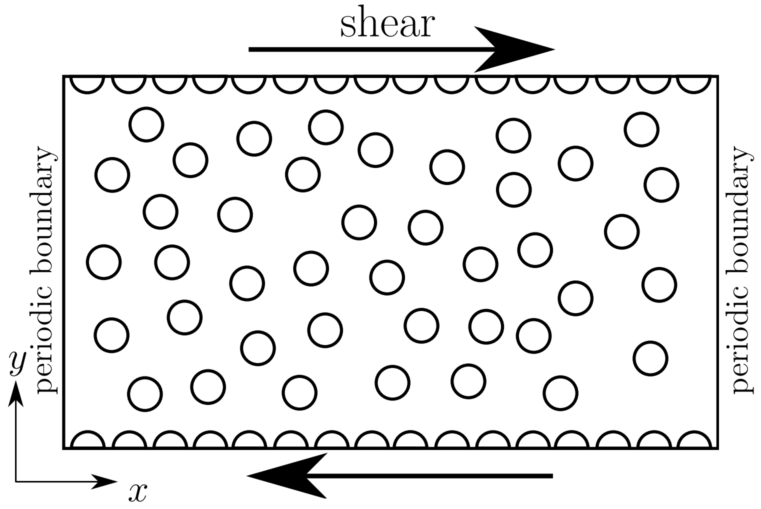

図 4.1: 物理的な壁の例。ここでは粒子を一列に並べることで壁を構成し、それを左右に一定の速度で動かすことでせん断を実現する。

4.2　一様せん断をかける方法

境界条件として周期境界条件を考え、それにより一様せん断を実現する方法を用いることで [86, 87]、大きな系の、壁から十分離れた一部分をシミュレーションしていると考えることができる。その際、以下で述べる SLLOD 法 [88, 89] と Lees-Edwards 周期境界条件 [89, 90] を用いてシミュレーションを行う。

- SLLOD 法
  この方法は Evans と Morriss によって提唱されたシミュレーション方法で、運動量の変わりに一様せん断からのずれとして peculiar momentum $\{\boldsymbol{p}_i\}$ を定義し、

$$\frac{d\boldsymbol{r}_i}{dt} = \frac{\boldsymbol{p}_i}{m_i} + \dot{\gamma} y \hat{\boldsymbol{e}}_x, \tag{4.1}$$

$$\frac{d\boldsymbol{p}_i}{dt} = \boldsymbol{F}_i - \dot{\gamma} p_{yi} \hat{\boldsymbol{e}}_x, \tag{4.2}$$

  を解くことによって系の時間発展を追跡していく方法である。ここでせん断は yz 平面に垂直、x 軸方向に平行な方向へ単位時間あたり $\dot{\gamma}$ の割合でかけていると考えている。この方法は平衡近傍の系では一様せん断状態を実現する方法として知られている [88, 89]。

- Lees-Edwards 周期境界条件
  x, z 方向については一般の周期境界条件を採用し、y 軸方向については上側から出る場合は $\boldsymbol{r}^{\mathrm{new}} = \boldsymbol{r} - \dot{\gamma} L_y t \hat{\boldsymbol{e}}_x$、下側から出る場合は $\boldsymbol{r}^{\mathrm{new}} = \boldsymbol{r} + \dot{\gamma} L_y t \hat{\boldsymbol{e}}_x$ と新しい位置を決定する。速度については平均流速 $\boldsymbol{u}(\boldsymbol{r}, t) = \dot{\gamma} y \hat{\boldsymbol{e}}_x$ とそこからのずれとして定義した peculiar velocity $\boldsymbol{c}$ とに分解し、境界を越える際に $\boldsymbol{c}$ は変更されないと考える。

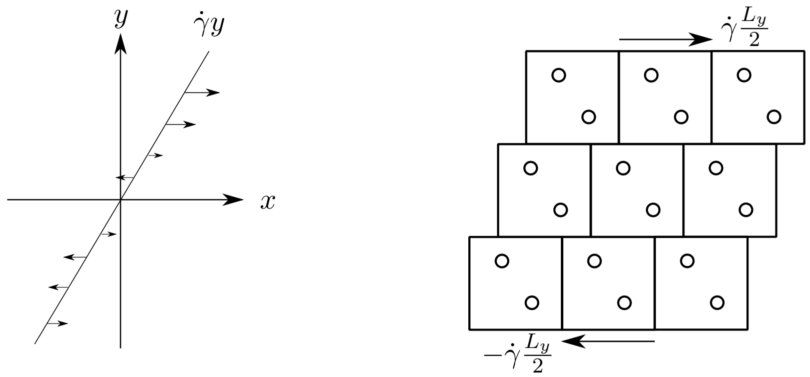

図 4.2: SLLOD アルゴリズム（左）と Lees-Edwards 周期境界条件の概念図（右）。SLLOD アルゴリズムでは Couette 流からのずれとして運動量を定義し、Lees-Edwards 周期境界条件では y 軸方向のミラーを左右にせん断速度 $\pm\dot{\gamma}L_y/2$ で動かす。

第 5 章　モデルと問題設定

本研究では $N(=10,000)$ 個の同一種類の球形粒子（質量 m、直径 σ）からなる系を考える。系の大きさを $L_x \times L_y \times L_z$ とし、図 5.1 のように x 軸をせん断方向、y 軸方向を速度勾配方向に選ぶ。

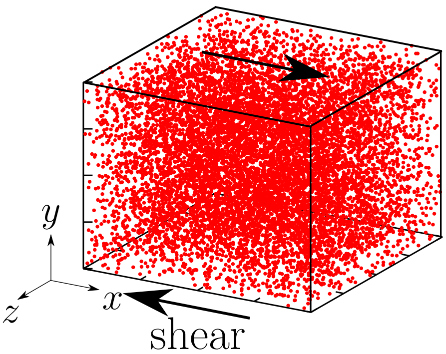

図 5.1: x 軸をせん断の方向、y 軸を速度勾配の方向に選ぶ。

粒子間に働く相互作用は 2 体相互作用の重ね合わせで記述でき、保存力と散逸力の和に分解できるとする。保存力ポテンシャルには truncated Lennard-Jones ポテンシャル

$$U^{\mathrm{LJ}}(\boldsymbol{r}_{ij}) = \begin{cases} 4\varepsilon\left\{\left(\frac{\sigma}{r_{ij}}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r_{ij}}\right)^{6}\right\} & (r_{ij} \le r_{\mathrm{c}}) \\ 0 & (r_{ij} > r_{\mathrm{c}}) \end{cases}, \tag{5.1}$$

を用いる。ここで、ε はポテンシャル井戸の深さ、$r_{ij} = |\boldsymbol{r}_{ij}|$ は i 番目の粒子と j 番目の粒子 $(1 \le i, j \le N)$ 間の距離、r_{c} はカットオフ距離（本研究では $r_{\mathrm{c}} = 3\sigma$ を用いた）である。ここでカットオフ距離 r_{c} においてポテンシャルが不連続となっているが、相互作用の強さは十分小さい値に減衰しているので、この不連続性が系の性質に大きな影響を与えることはないと考える。また散逸力はダッシュポット

$$\boldsymbol{F}^{\mathrm{vis}}(\boldsymbol{r}_{ij}, \boldsymbol{v}_{ij}) = -\zeta\Theta(\sigma - r_{ij})(\boldsymbol{v}_{ij} \cdot \hat{\boldsymbol{r}}_{ij})\hat{\boldsymbol{r}}_{ij}, \tag{5.2}$$

を用いる。ここで、ζ は散逸率、$\boldsymbol{v}_{ij} = \dot{\boldsymbol{r}}_{ij}$ は i 番目の粒子と j 番目の粒子の相対速度、$\Theta(r)$ は $r > 0$ で 1、それ以外で 0 の値をとるステップ関数、$\hat{\boldsymbol{r}}$

は $\boldsymbol{r}$ 方向の単位ベクトルである。散逸率 ζ は跳ね返り係数 e と関係するパラメータであり、その依存性は近似的に式 (3.12) のように書け、例えば温度 $T = 1.4\varepsilon$ の場合には $\zeta^* = 0.1$ では $e = 0.998$、$\zeta^* = 1.0$ では $e = 0.983$ になる。もともとこのモデルでは微小粒子を扱っており、内部散逸は小さく殆どの場合では無視できる。ここでの衝突散逸は熱浴のモデルとも見なす事が可能であるように、定常状態を実現するための必要最小限の大きさにしている。最終的に、i 番目の粒子に働く外力 $\boldsymbol{F}_i$ は

$$\boldsymbol{F}_i = -\sum_{j \neq i} \boldsymbol{\nabla}_i U^{\mathrm{LJ}}(\boldsymbol{r}_{ij}) + \sum_{j \neq i} \boldsymbol{F}^{\mathrm{vis}}(\boldsymbol{r}_{ij}, \boldsymbol{v}_{ij}), \tag{5.3}$$

と書ける。

本研究では第 4 章で述べた理由から、周期境界条件を用いて一様せん断をかける方法を採用することにし、Lees-Edwards 周期境界条件 [89,90] と SLLOD アルゴリズム [88,89] を用いることにする。

ここで $t^* = t(\varepsilon/m\sigma^2)^{1/2}$ とし、$t^* = 0$ からシミュレーションを開始し、$t^* = 200$ まで系を緩和させ、そこで系にせん断および散逸を入れる。

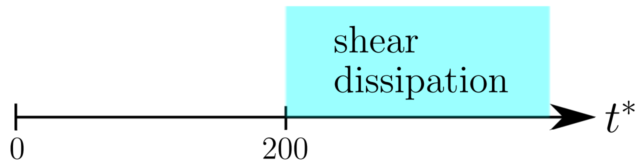

図 5.2: $t^* = 200$ にせん断・散逸を入れる。

また、相境界上での粒子のパターン形成について調べるため、初期温度を平衡系の truncated Lennard-Jones ポテンシャルの平衡相図 [38,39,75,91,92] において対応する密度での相転移温度よりもわずかに上の値を選びシミュレーションを行うことにする。

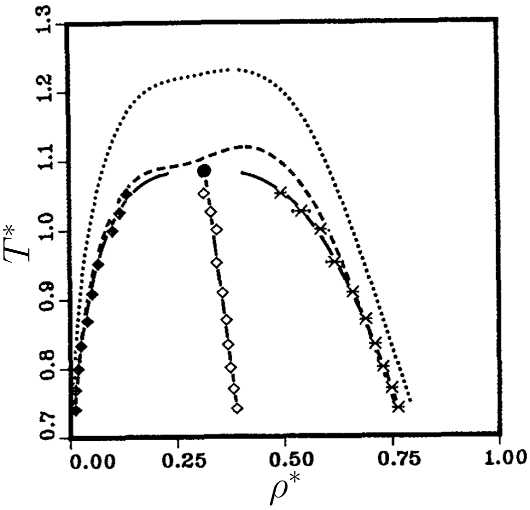

図 5.3: Lennard-Jones 流体の平衡相図 [39]。点線が本研究で用いた truncated Lennard-Jones 流体の相境界であり、実線が truncated and shifted Lennard-Jones 流体の相境界である。

第6章　擬二次元系での結果

6.1　定常相

本章では、せん断平面に広く奥行きの狭い擬二次元系 ($L_x = L_y \gg L_z$) を考え、パラメータと系のパターンにどのような関係が成り立つかについて調べた [93]。

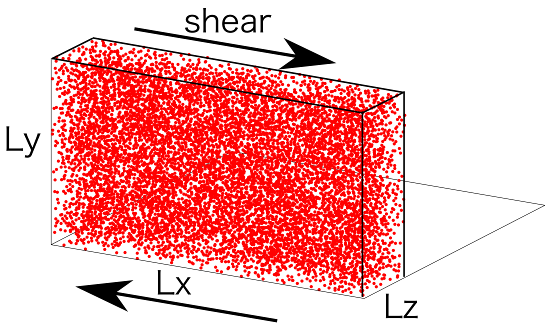

図 6.1: 系の概形とせん断の方向の概形。x 軸をせん断の方向、y 軸を速度勾配の方向に選ぶ。

$L_x = L_y = 52\sigma,\ L_z = 12\sigma\ (\bar{\rho} = 0.308)$ としたときのせん断率、散逸率と系のパターンとの関係について調べた。ここで $\bar{\rho} = N\sigma^3/L_xL_yL_z$ であり、密度 $\bar{\rho} = 0.308$ は 図 5.3 の truncated Lennard-Jones 流体の平衡相図 [38,39] の共存線の臨界値にほぼ対応している。また、この密度に対応する初期温度として $T = 1.4\varepsilon$ を選んだ。

この系では 3 つの異なる特徴的な相 : (I) 一様せん断相、(II) シアバンドと気相の共存状態、(III) 結晶相が得られた。せん断率が大きい場合にはせん断一様相、せん断率が小さい場合には結晶相、それらの中間の場合にはシアバンドと呼ばれる高密度領域と気相の共存状態が得られた。各相での典型的な粒子配置は図 6.2 のようになる。ここで $x^* = x/\sigma$、$y^* = y/\sigma$、$t^* = t(\varepsilon/m\sigma^2)^{1/2}$、$\dot{\gamma}^* = \dot{\gamma}(m\sigma^2/\varepsilon)^{1/2}$、$\zeta^* = \zeta(m\sigma^2/\varepsilon)^{1/2}$ である。また、せん断率 $\dot{\gamma}$ と散逸率 ζ に関する相図は図 6.3 のようになる。

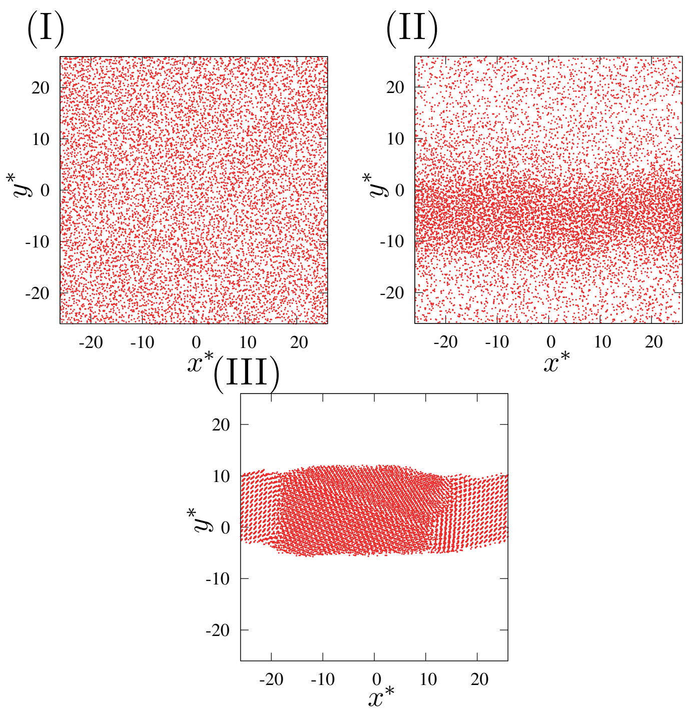

図 6.2: 3 つの特徴的な相の典型的な粒子配置。(I) 一様せん断相 ($\dot{\gamma}^* = 0.88$、$\zeta^* = 1.0$)、(II) シアバンドと気相の共存状態 ($\dot{\gamma}^* = 0.66$、$\zeta^* = 1.0$)、(III) 結晶相 ($\dot{\gamma}^* = 0.355$、$\zeta^* = 1.0$)。

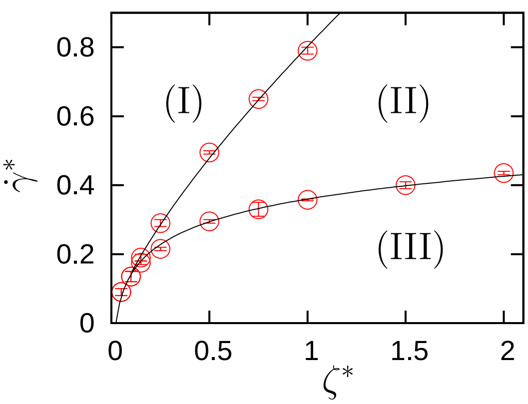

図 6.3: 密度 $\bar{\rho} = 0.308$ のときのせん断率 $\dot{\gamma}$ と散逸率 ζ に関する相図。

6.2 粉体温度の導入

系を特徴づけるために考えている系全体の粉体温度 [94,95] を

$$T_{\mathrm{g}}(t) = \frac{m}{3N}\sum_{i=1}^{N}|\boldsymbol{v}_i - \bar{\boldsymbol{v}}|^2, \tag{6.1}$$

で導入する。ここで $\bar{\boldsymbol{v}} = \bar{\boldsymbol{v}}(y,t)$ は y 軸に関する速度場である。また、粉体温度の空間揺らぎは考えない。この粉体温度を用いてせん断率 $\dot{\gamma}$ を変化させたときの $T_{\mathrm{g}}(t)$ の時間平均 $\bar{T}_{\mathrm{g}}$ を測定する。せん断がない状態では $\bar{\boldsymbol{v}} = 0$ であるので粉体温度は平衡系での温度の定義と一致する。

散逸率 ζ を変化させたときの平均粉体温度 $\bar{T}_{\mathrm{g}}$ とせん断率 $\dot{\gamma}$ との関係は図 6.4 のようになる。ここで $\bar{T}^*_{\mathrm{g}} = \bar{T}_{\mathrm{g}}/\varepsilon$ である。相 (I) では平均粉体温度は $\bar{T}_{\mathrm{g}} \propto \dot{\gamma}^2$ となり、これは次元解析の結果と一致する [95,96]。また相 (III) では時間が発展するにつれて粉体温度 T_{g} は 0 に収束する、すなわち $\bar{T}_{\mathrm{g}} \to 0$ となる。

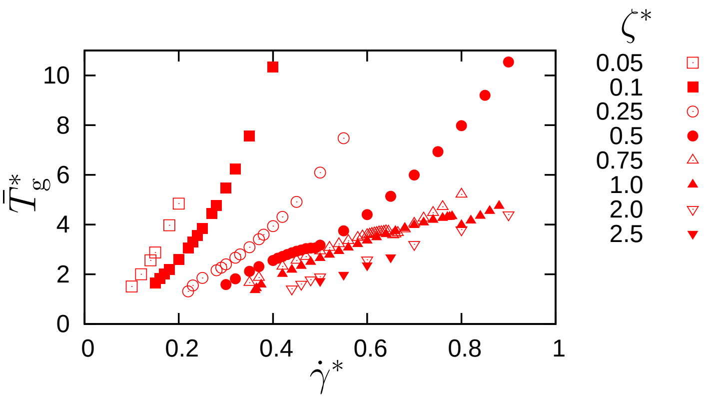

図 6.4: 密度 $\bar{\rho} = 0.308$ の場合の相 (I), (II) での平均粉体温度 $\bar{T}_{\mathrm{g}}$ とせん断率 $\dot{\gamma}$ との関係。

6.3 共存相 (II) の解析

共存相 (II) が実現するパラメータ領域での典型的な時間発展の様子を図 6.5–6.7 に示す。以下では、共存相 (II) での定常粉体温度 $\bar{T}_{\mathrm{g}}$ とせん断率 $\dot{\gamma}$ との関係を調べていく。

共存相 (II) での典型的なパターンは図 6.8 のようになる。そこで系を y 軸に垂直に幅 σ の領域に分割し、領域 $\Delta_j : (j-1)\sigma < y < j\sigma$ (j : 整数) での密度 ρ_j を求める。そして ρ_j と系の平均密度 $\bar{\rho}$ との大小を比較し、

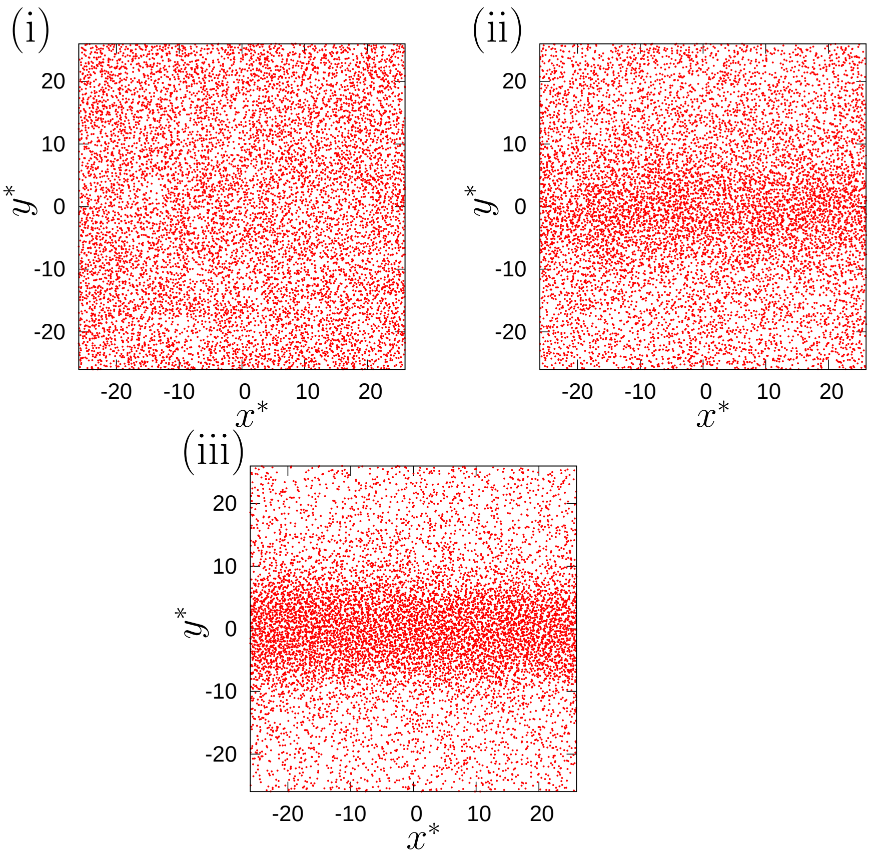

図 6.5: 相（II) での典型的な時間発展の様子 (1)($\bar{\rho} = 0.308$、$\dot{\gamma}^* = 0.6$、$\zeta^* = 1.0$。(i)$t^* = 0$、(ii)$t^* = 550$、(iii)$t^* = 1,000$。

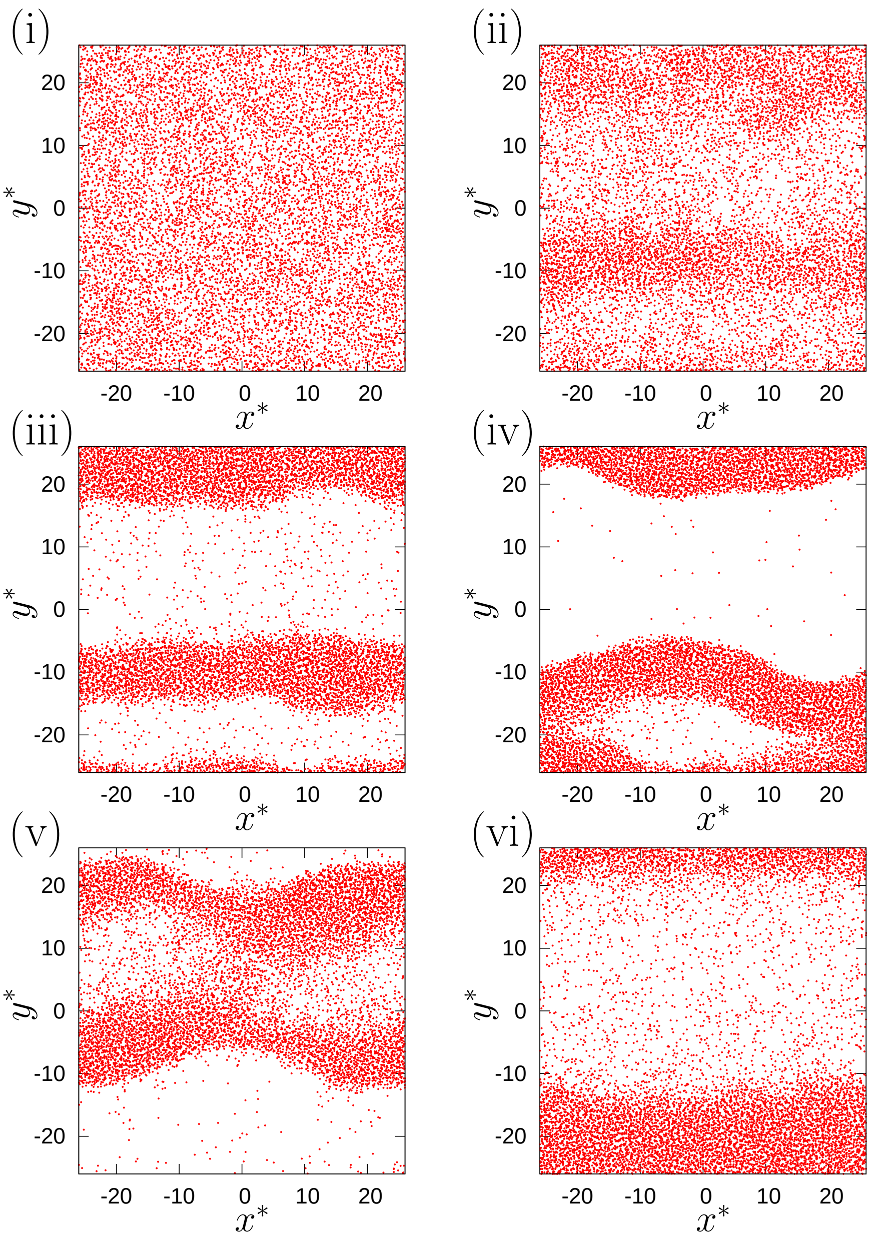

図 6.6: 相 (II) での典型的な時間発展の様子 (2)（$\bar{\rho} = 0.308, \dot{\gamma}^* = 0.42, \zeta^* = 1.0$）。(i)$t^* = 0$、(ii)$t^* = 80$、(iii)$t^* = 150$、(iv)$t^* = 200$、(v)$t^* = 220$、(vi)$t^* = 500$。

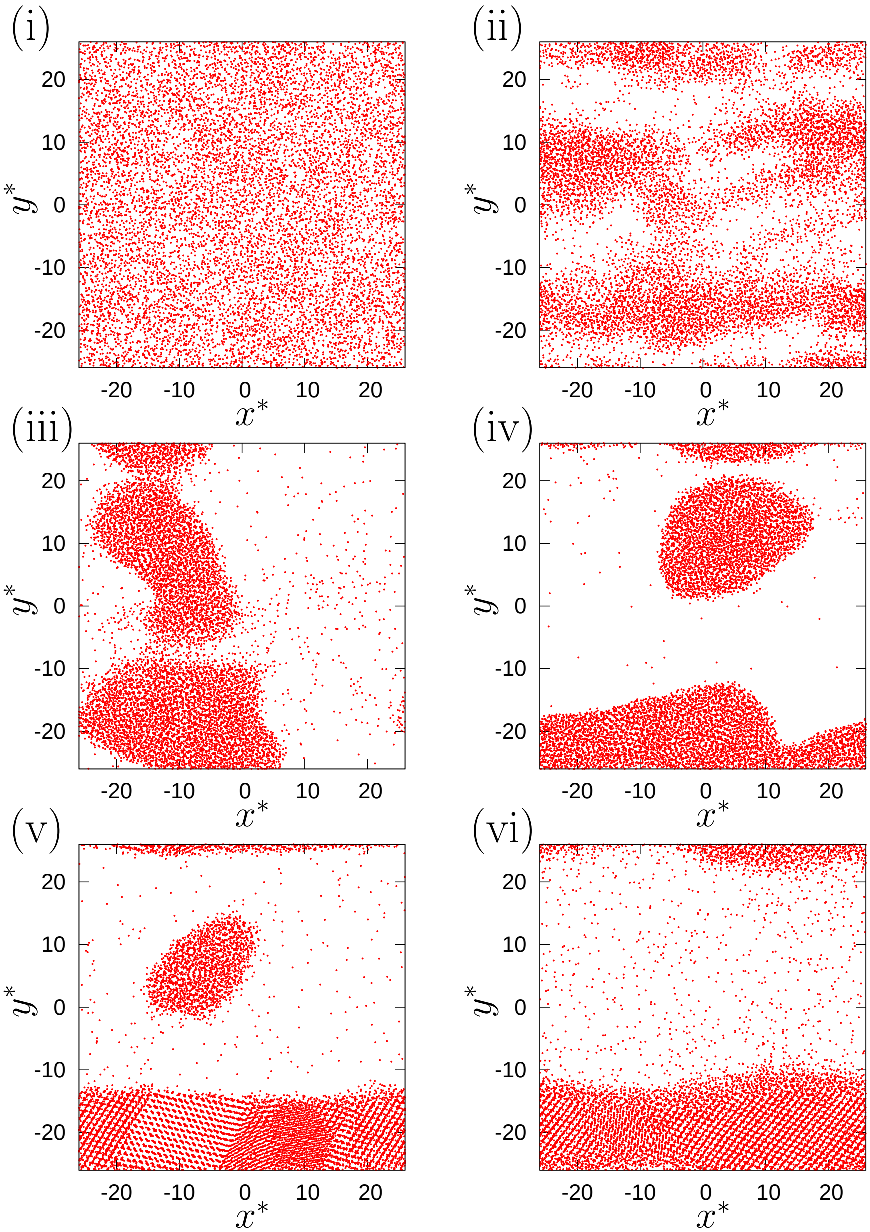

図 6.7: 相 (II) での典型的な時間発展の様子 (3)（$\bar{\rho} = 0.308, \dot{\gamma}^* = 0.46, \zeta^* = 2.0$）。(i)$t^* = 0$、(ii)$t^* = 40$、(iii)$t^* = 230$、(iv)$t^* = 450$、(v)$t^* = 1780$、(vi)$t^* = 8000$。

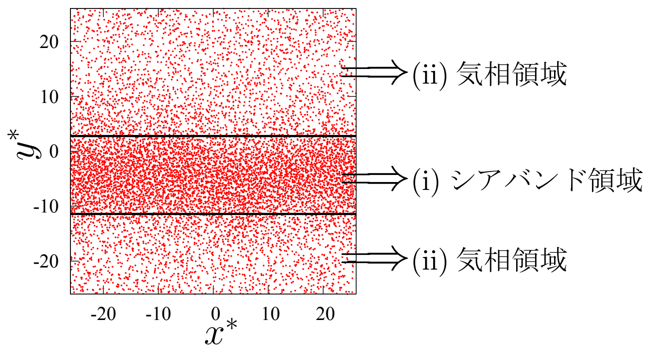

図 6.8: 共存相（II) での典型的な粒子配置（$\bar{\rho} = 0.308$, $\dot{\gamma}^* = 0.66$, $\zeta^* = 1.0$）。系を y 軸に垂直な幅 σ の領域で区切り、その局所密度 $\rho(y)$ を求める。$\rho(y)$ と平均密度 $\bar{\rho}$ とを比較し、その大小によって系を 2 つの領域 (i) シアバンド領域と (ii) 気相領域に分割する。

$\rho_j > \bar{\rho}$ の場合には Δ_j はシアバンド領域、$\rho_j < \bar{\rho}$ の場合には気相領域に属すると考える。

気相領域に含まれる粒子数 n_{u} とせん断率 $\dot{\gamma}$ との関係は図 6.9 のようになり、また 2 つの領域の粒子数の和が N になることを用いると、それぞれ

$$
\begin{aligned}
n_{\mathrm{u}} &\simeq a_n\dot{\gamma}^* + b_n, &(6.2)\\
n_{\mathrm{sb}} &= N - n_{\mathrm{u}} \\
&\simeq (N - b_n) - a_n\dot{\gamma}^*, &(6.3)
\end{aligned}
$$

と近似できる。ここで a_n、b_n は散逸率 ζ には依存するが、せん断率 $\dot{\gamma}$ には独立な係数である。

それに対し、それぞれの領域における平均粉体温度 $\bar{T}_{\mathrm{u}}$, $\bar{T}_{\mathrm{sb}}$ とせん断率 $\dot{\gamma}$ との関係は図 6.10 のようになり、

$$
\begin{aligned}
\bar{T}^*_{\mathrm{u}} &\simeq b_{\mathrm{u}}, &(6.4)\\
\bar{T}^*_{\mathrm{sb}} &\simeq a_{\mathrm{sb}}\dot{\gamma}^* + b_{\mathrm{sb}}, &(6.5)
\end{aligned}
$$

と近似できる。ここで $\bar{T}^*_{\mathrm{u}} = \bar{T}_{\mathrm{u}}/\varepsilon$, $\bar{T}^*_{\mathrm{sb}} = \bar{T}_{\mathrm{sb}}/\varepsilon$ であり、a_{sb}, b_{u}, b_{sb} は散逸率 ζ には依存するが、せん断率 $\dot{\gamma}$ には独立な係数である。

シアバンド領域・気相領域それぞれで粉体温度が一様であると考えると、系全体の平均粉体温度 $\bar{T}_{\mathrm{g}}$ は

$$
\begin{aligned}
\bar{T}^*_{\mathrm{g}} &\simeq \frac{n_{\mathrm{sb}}}{N}\bar{T}^*_{\mathrm{sb}} + \frac{n_{\mathrm{u}}}{N}\bar{T}^*_{\mathrm{u}} \\
&= \frac{(N - b_n) - a_n\dot{\gamma}^*}{N}(a_{\mathrm{sb}}\dot{\gamma}^* + b_{\mathrm{sb}}) + \frac{a_n\dot{\gamma}^* + b_n}{N}b_{\mathrm{u}} \\
&= a\dot{\gamma}^* - b\dot{\gamma}^{*2} + c, &(6.6)
\end{aligned}
$$

と書くことができる。ここで a、b、c は

$$a = \frac{(N - b_n)a_{\mathrm{sb}} + (b_{\mathrm{u}} - b_{\mathrm{sb}})a_n}{N},$$
$$b = \frac{a_{\mathrm{u}}a_{\mathrm{sb}}}{N}, \quad c = \frac{(N - b_n)b_{\mathrm{sb}} + b_n b_{\mathrm{u}}}{N}, \tag{6.7}$$

と書ける。

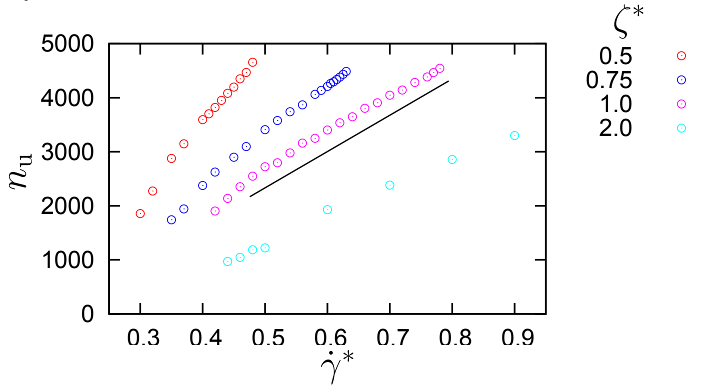

図 6.9: 散逸率 ζ を変化させたときの気相領域に含まれる粒子数 n_{u} とせん断率 $\dot{\gamma}$ との関係。

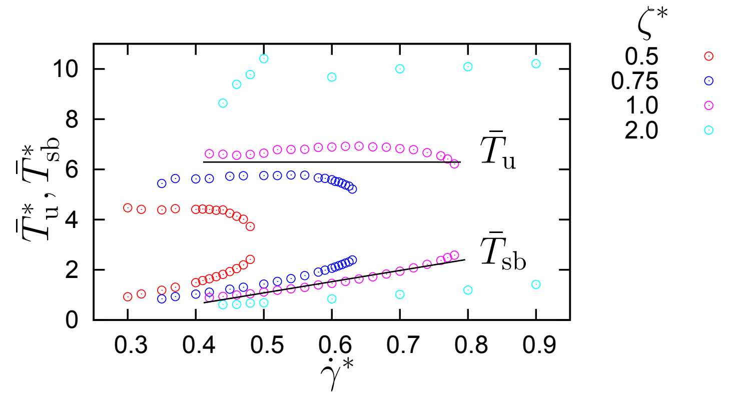

図 6.10: 散逸率 ζ を変化させたときに得られる、シアバンド領域・気相領域での定常粉体温度 $\bar{T}_{\mathrm{sb}}$、$\bar{T}_{\mathrm{u}}$ とせん断率 $\dot{\gamma}$ との関係。

式 (6.7) を用いて各散逸率 ζ に対して a、b、c を計算し、式 (6.6) に代入して求めた $\bar{T}_{\mathrm{g}}$ と、シミュレーションにより直接求めたものとを比較すると、図 6.11 のようになり、各領域で粉体温度が一様であるとしたこの近似が系の定常粉体温度をよく再現できていることがわかる。

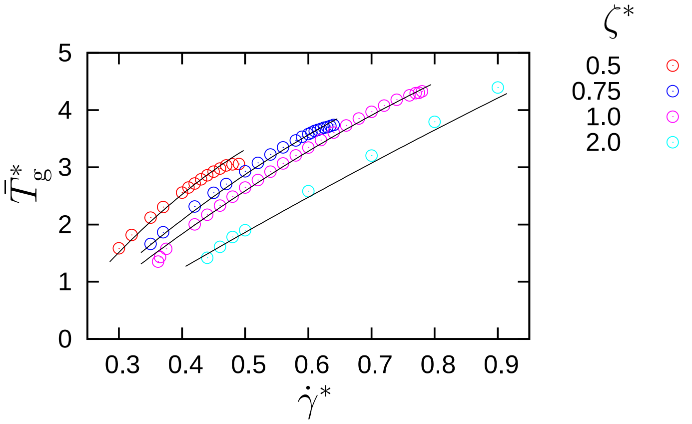

図 6.11: シミュレーションを用いて式 (6.1) により測定した定常粉体温度（点）と系を 2 つの領域に分け、各領域で温度が一様と近似した式 (6.6) により求めた値（実線）との比較。

L	88σ	72σ	60σ	52σ	48σ	44σ	40σ
$\bar{\rho}$	0.108	0.161	0.231	0.308	0.362	0.430	0.521

表 6.1: シミュレーションに用いた系の x、y 軸方向の大きさ L と密度 $\bar{\rho}$ の値。z 軸方向は $L_z = 12\sigma$ に固定している。

6.4 相 (II) と (III) の相境界

z 軸方向の大きさを一定 ($L_z = 12\sigma$) に保ったままで、x 軸および y 軸方向の大きさを $L_x = L_y (\equiv L)$ の下で変化させ、系の密度 $\bar{\rho}$ を変化させる。ここでシミュレーションに用いた系のサイズおよび密度は表 6.1 である。

これらの密度の場合に共存相 (II) と結晶相 (III) との間の相境界を求めると図 6.12 が得られ、せん断率 $\dot{\gamma}$ と ζ との間には近似的に

$$\zeta^* = \alpha \exp(\beta \dot{\gamma}^* L_y^*), \tag{6.8}$$

という関係が成り立っていることがわかる。ここで α、β はせん断率と散逸率に対しては独立な定数であり、$L_y^* = L_y/\sigma$ である。ただし、α は密度に依存し、$\alpha = \alpha(\bar{\rho})$ は

$$\begin{aligned}\alpha(\bar{\rho}) \simeq\ & 453.66\bar{\rho}^5 - 721.97\bar{\rho}^4 + 425.66\bar{\rho}^3 \\ & -114.02\bar{\rho}^2 + 13.62\bar{\rho} - 0.3746,\end{aligned} \tag{6.9}$$

と近似できる。

式 (6.8) が現れるメカニズムは以下のように理解できる：
せん断によるエネルギー流入 δE は $\dot{\gamma}^2 L_y^2$ に比例する。またシアバンド領域

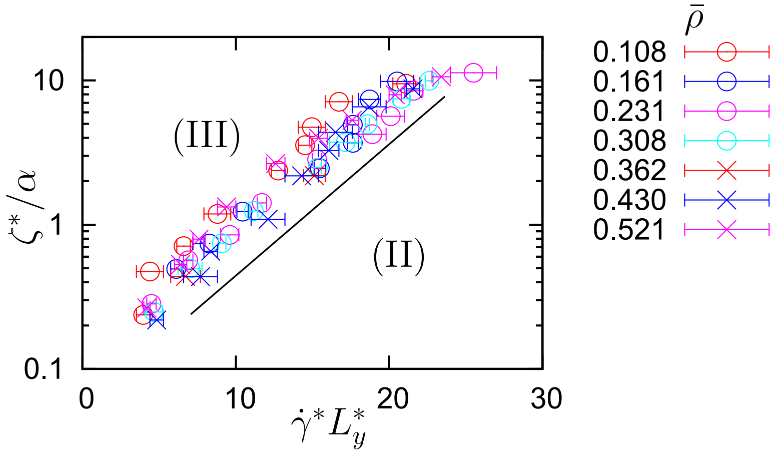

図 6.12: 密度を $\bar{\rho} = 0.108$ から 0.521 まで変化させたときの相 (II) と (III) との相境界曲線。$\zeta^* = \alpha \exp(\beta \dot{\gamma}^* L_y^*)$ という関係が成り立つことがわかる。

での粉体温度は式 (6.5) より $\dot{\gamma} L_y$ に比例する（したがって逆温度は $(\dot{\gamma} L_y)^{-1}$ に比例する）。これらの関係より、粒子がシアバンドのポテンシャルから飛び出す確率 p は $p \sim \exp(-\delta E/T) \sim \exp(-\beta \dot{\gamma} L_y)$ ($\beta = \mathrm{const.}$) を満たす。よって粒子がシアバンド領域から飛び出す特徴的な時間スケールを τ、散逸の特徴的な時間スケールを $(\zeta t^*)^{-1}$ とすると、$1/\tau \sim \zeta t^* \exp(-\beta \dot{\gamma} L_y)$ が成り立つ。これより $\zeta \propto \exp(\beta \dot{\gamma} L_y)$ が得られる。

第7章　三次元系での密度とパターンの関係

本章ではシステムサイズを $L_x = L_y = L_z (\equiv L)$ にとり、密度と定常パターンの関係について調べた [97]。ここでせん断の方向は図 6.1 と同様にとる。

7.1　稀薄状態での典型的な時間発展

まず、稀薄状態（$\bar{\rho} = 0.0463$、$L = 60\sigma$）での系の典型的な時間発展の様子を調べた。ここで、初期粉体温度として $T_{\mathrm{g}} = 1.0\varepsilon$ を選んだ。これは平衡系の truncated Lennard-Jones 流体の対応する密度での相転移温度より 0.1ε 程度高い温度となっている。シミュレーションの結果、2 つの異なる定常状態 : (I) 一様せん断状態、(II) 粒子が集積したクラスター状態が得られた。(II) の典型的な時間発展の様子は図 7.1 のようになり、ある時刻を境に急激に粒子の集積が起こることが分かった。

7.2　粉体温度の時間発展

密度 $\bar{\rho} = 0.0463$、せん断率 $\dot{\gamma}^* = 0.01$ の場合に、系の粉体温度 T_{g} を測定する。この時間発展は図 7.2 のようになる。これより、ある臨界散逸率 ζ_{cr} が存在し、

- $\zeta < \zeta_{\mathrm{cr}}$ の場合、$T_{\mathrm{g}} \to \bar{T}_{\mathrm{g}} (> 0)$
- $\zeta > \zeta_{\mathrm{cr}}$ の場合、$T_{\mathrm{g}} \to 0$

となることがわかる。

$\zeta < \zeta_{\mathrm{cr}}$ の場合、「一様せん断によるエネルギー流入」と「非弾性衝突によるエネルギー散逸」が釣り合う。その結果、せん断率に対応する定常粉体温度が存在し、系はその粉体温度で定常化する。このとき系は一様せん断状態が達成されている。

$\zeta > \zeta_{\mathrm{cr}}$ の場合、「一様せん断によるエネルギー流入」に比べて「非弾性衝突によるエネルギー散逸」の方が大きい状態が実現されている。時間発

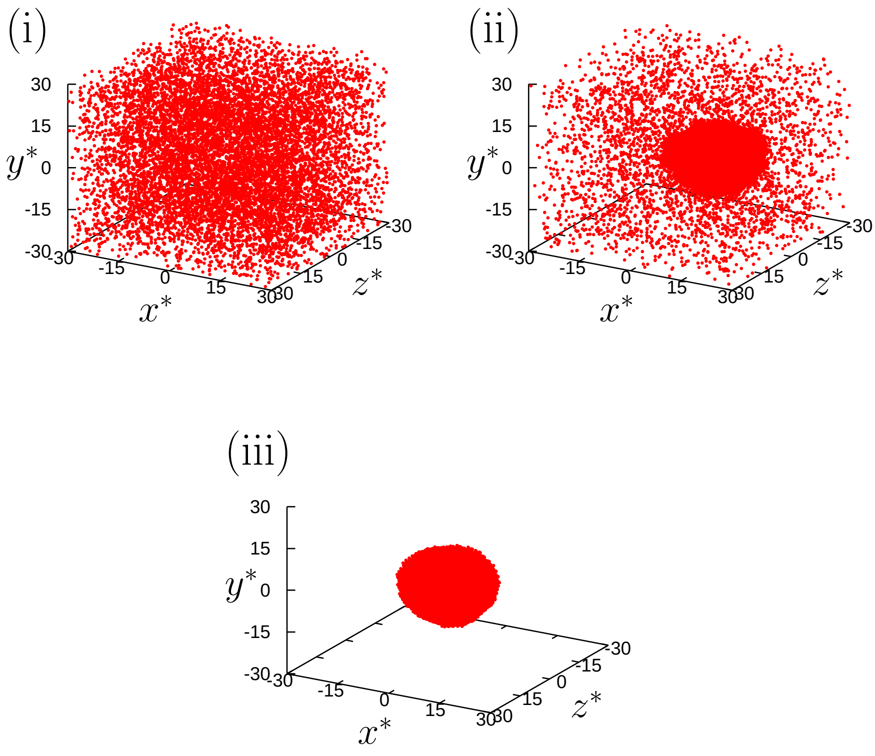

図 7.1: $\bar{\rho} = 0.0463$、$\dot{\gamma}^* = 0.01$、$\zeta^* = 0.0173$ の場合の系の時間発展の様子。(i) 初期状態 ($t^* = 0$)、(ii) 集積過程 ($t^* = 65,500$)、(iii) 緩和過程 ($t^* = 92,000$)。

展の初期段階では系は一様であり粉体温度 T_{g} は T_0 から徐々に減少していく。そしてある温度 T_{cr} に達すると、粒子が急激に集まり始めその結果粒子衝突の回数が増加し、運動エネルギーが散逸する。その結果さらに粒子は集まりやすくなる。この過程で一気にクラスター化が進行し、T_{g} は急減少する。この過程で系の粒子は最大のクラスターにすべて引き寄せられる。その後球状のクラスターが形成され T_{g} は 0 に向かってゆっくり減少していく。

また、密度 $\bar{\rho} = 0.0463$ での臨界散逸率に対応する臨界温度 T_{cr} は $T_{\mathrm{cr}} \simeq 0.9\varepsilon$ であり、平衡系の truncated Lennard-Jones 流体 [39] の臨界温度にほぼ一致している。

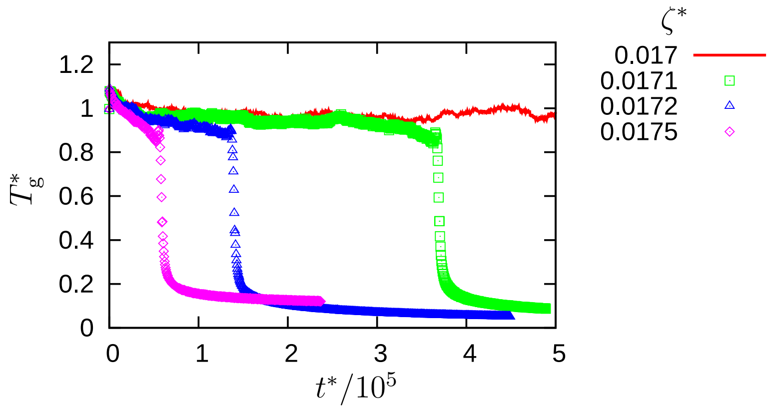

図 7.2: 密度 $\bar{\rho} = 0.308$、せん断率 $\dot{\gamma}^* = 0.01$ で、散逸率 ζ を変化させたときのシステムの粉体温度 T_{g} の時間発展の様子。

7.3 クラスター化する特徴的な時間と散逸率との関係

$\zeta > \zeta_{\mathrm{cr}}$ におけるクラスター化における散逸率の役割を調べるため、クラスター化に特徴的な時間と散逸率 ζ との関係を調べていく。

粉体温度の時間発展の仕方から、系の特徴的な時間として、粉体温度が急減少を始める時刻を選び t_{cl} とおく。この時刻は核生成が起こる時刻に対応している。このとき、時刻 t_{cl} と散逸率 ζ との関係は図 7.3 のようになり、

$$t_{\mathrm{cl}} \quad \propto \quad (\zeta - \zeta_{\mathrm{cr}})^{-\beta}, \tag{7.1}$$

と書けることがわかる。ここで β, ζ_{cr} はそれぞれべき指数、臨界散逸率であり、Levenberg-Marquardt アルゴリズム [81, 82] を用いて表 7.1 のように求まる。この結果、指数の値はせん断率によらずほぼ $\beta \simeq 0.8$ となることがわかる。

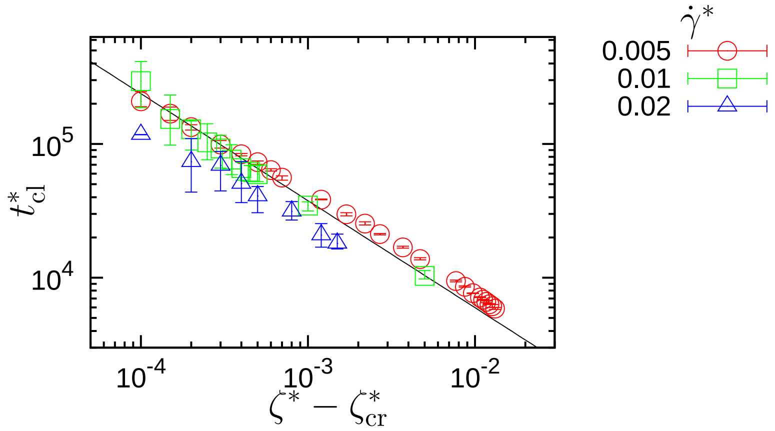

図 7.3: 液滴が急成長を始める特徴的な時間 $t_{\rm cl}$ と散逸率 ζ との関係。近似的に $t_{\rm cl} \propto (\zeta - \zeta_{\rm cr})^{-\beta}$ と書ける。

$\dot{\gamma}^*$	$\zeta^*_{\rm cr}$	β
0.005	0.00427	0.748 ± 0.017
0.01	0.0170	0.823 ± 0.141
0.02	0.0679	0.808 ± 0.135

表 7.1: Levenberg-Marquardt アルゴリズムにより求めた各せん断率 $\dot{\gamma}$ に対するべき指数 β、臨界散逸率 $\zeta_{\rm cr}$ の値。

L	60σ	40σ	32σ	24σ	23.4σ	22.32σ
$\bar{\rho}$	0.0463	0.156	0.305	0.723	0.780	0.899

表 7.2: シミュレーションに用いた系の大きさ L と密度 $\bar{\rho}$ の値。

7.4 密度とパターンとの関係

次に、散逸率が臨界値よりもわずかに大きい $\zeta > \zeta_{\rm cr}$ の場合を考え、粒子数を一定にしたままシステムサイズを変化させることで密度を変化させたときに、クラスターの形がどのように変化するかについて考えることにしよう。系の大きさと密度は表 7.2 の値を用いることにする。

このとき密度に応じて図 7.4 のように様々な形のクラスターが得られ、密度が小さい方から液滴（図 7.4(a))、2 次元プラグ（図 7.4(b)、2 次元平面（図 7.4(c))、2 次元逆平面（図 7.4(d))、2 次元逆プラグ（図 7.4(e)）が得られる。また高密度領域では粒子と空隙の役割が稀薄領域と入れ替わっている。したがって系は図 7.4(b) と図 7.4(e)、図 7.4(c) と図 7.4(d) のように密度に関して粒子-空隙対称性を持っていることがわかる。

7.5 強散逸の場合の初期条件依存性

最後に、散逸率が臨界散逸率よりもずっと大きい場合 ($\zeta \gg \zeta_{\rm cr}$) について示す。定常状態で得られるクラスターの形が粒子の初期配置に強く依存し、図 7.4 の臨界散逸率付近の場合（$\zeta \simeq \zeta_{\rm cr}$）とは異なる形状のクラスターが得られる。このときの典型的な時間発展の様子を図 7.5 に示し、同じパラメータでも初期条件によって異なる形のクラスターが得られる様子を図 7.6 に示す。これは一回の衝突でのエネルギー散逸が大きいため、少ない衝突回数で粒子の運動エネルギーの散逸が起こり、その結果系の至る所でクラスターが形成されて、クラスター同士が衝突してより大きなクラスターが形成されるためである。その過程でクラスターの運動エネルギーは散逸し、いびつな形で定常化することになる。これらの詳細については未だ分かっておらず、今後のさらなる研究が必要である。

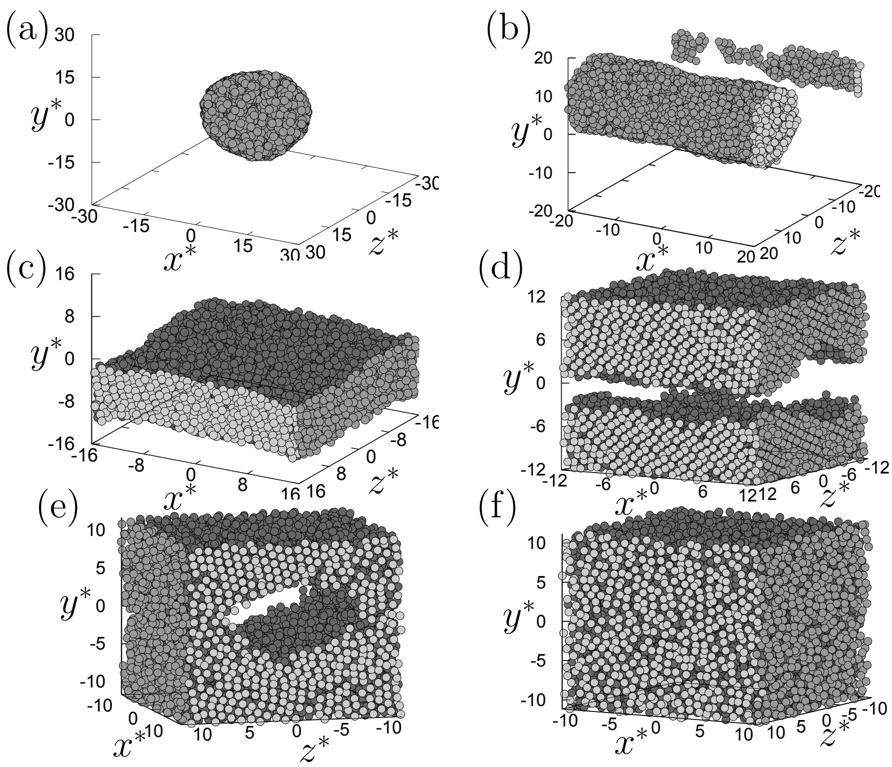

図 7.4: 密度を変化させたときのクラスターの概形の一覧。順に (a) 液滴（$\bar{\rho} = 0.0463,\ \dot{\gamma}^* = 0.01,\ \zeta^* = 0.0173$）、(b)2 次元プラグ（$\bar{\rho} = 0.156,\ \dot{\gamma} = 0.1,\ \zeta^* = 0.16$）、(c)2 次元平面（$\bar{\rho} = 0.305,\ \dot{\gamma} = 0.1,\ \zeta^* = 0.062$）、(d) 逆 2 次元平面（$\bar{\rho} = 0.723,\ \dot{\gamma} = 0.1,\ \zeta^* = 1.0$）、(e) 逆 2 次元プラグ（$\bar{\rho} = 0.780,\ \dot{\gamma} = 0.1,\ \zeta^* = 1.0$）、(f) 一様状態（$\bar{\rho} = 0.899,\ \dot{\gamma} = 0.1,\ \zeta^* = 0.1$）。

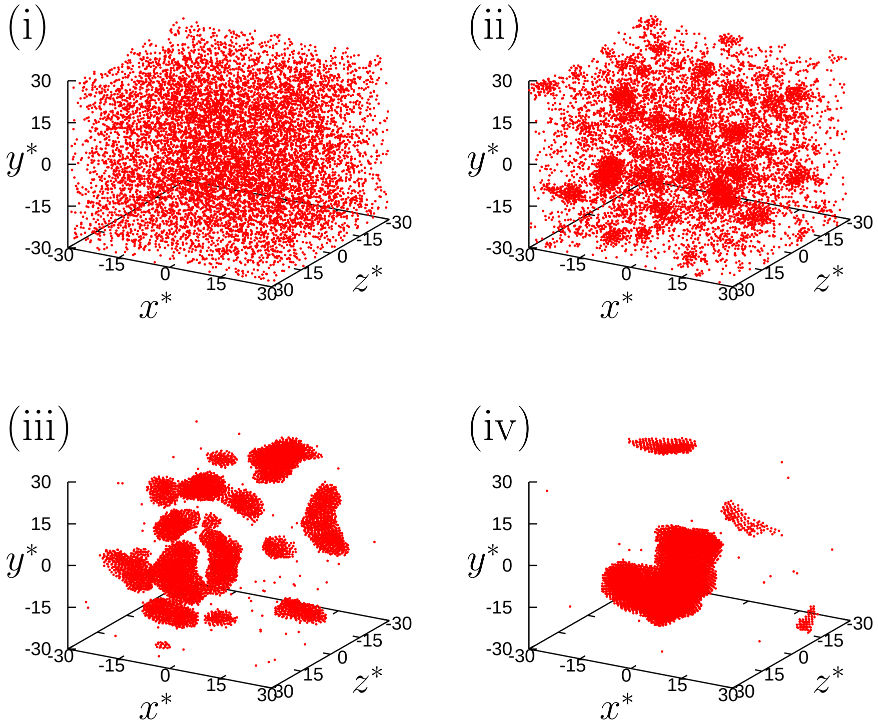

図 7.5: $\bar{\rho} = 0.0463,\ \dot{\gamma}^* = 0.1,\ \zeta^* = 3.0$ の場合の時間発展の例。この場合 $\zeta^*_{\rm cr} = 1.44$ である。(i)$t^* = 0$、(ii)$t^* = 90$、(iii)$t^* = 220$、(iv)$t^* = 770$。系の至る所でクラスターが形成され、それらが衝突により大きなクラスターに成長していく。

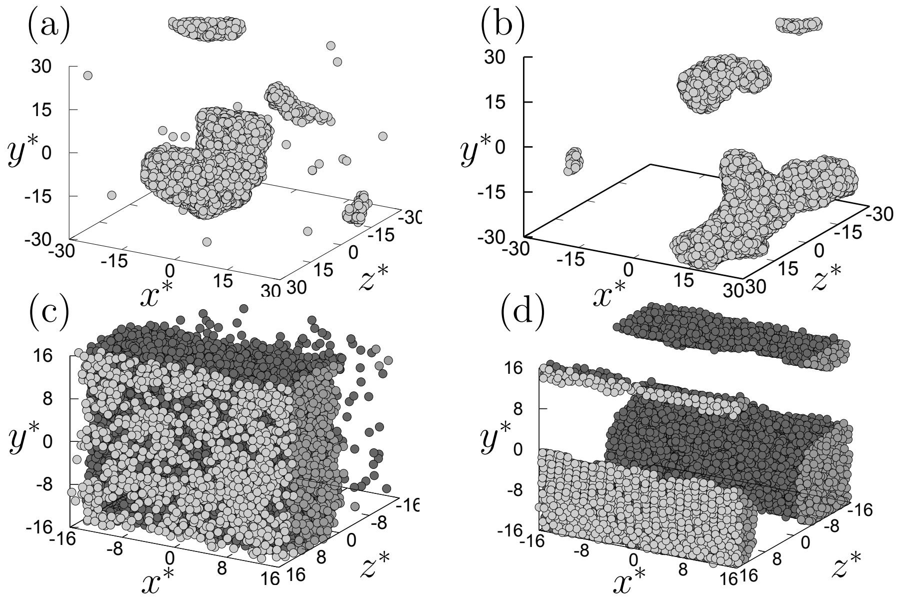

図 7.6: クラスターの形の初期配置依存性の例。上段は $\bar{\rho} = 0.0463,\ \dot{\gamma}^* = 0.1,\ \zeta^* = 3.0$、下段は $\bar{\rho} = 0.305,\ \dot{\gamma}^* = 0.1,\ \zeta^* = 0.1$。他にも初期条件により様々な形のクラスターが形成される。

第8章　Lennard-Jones系の線形化流体方程式

第8, 9章ではLennard-Jones系で知られている輸送係数 [120]– [128] を用いて流体方程式を導出し、線形安定性解析を行うことで、相 (I) と相 (II) の境界が説明可能であるかどうかを論じる。この章ではその準備として、Lennard-Jones系の流体方程式の導出を行う。また線形安定性解析の準備に必要な解析を行う。

8.1　直交座標系での流体方程式

粉体系で密度 $\rho(\boldsymbol{r},t)$、流速 $\boldsymbol{u}(\boldsymbol{r},t)$、粉体速度 $T(\boldsymbol{r},t))$ が満たす流体方程式は

$$\left(\frac{\partial}{\partial t}+\boldsymbol{u}\cdot\boldsymbol{\nabla}\right)\rho \quad = \quad -\rho\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{u}, \tag{8.1}$$

$$m\rho\left(\frac{\partial}{\partial t}+\boldsymbol{u}\cdot\boldsymbol{\nabla}\right)\boldsymbol{u} \quad = \quad -\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{P}, \tag{8.2}$$

$$\frac{3}{2}\rho\left(\frac{\partial}{\partial t}+\boldsymbol{u}\cdot\boldsymbol{\nabla}\right)T \quad = \quad -\boldsymbol{P}:\boldsymbol{\nabla}\boldsymbol{u}-\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{q}-\chi, \tag{8.3}$$

で与えられる。ここで、

$$\begin{cases} \boldsymbol{P}=(p-\zeta\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{u})\boldsymbol{I}-2\mu\boldsymbol{S}, \\ \boldsymbol{q}=-\kappa\boldsymbol{\nabla}T, \\ \chi=3\rho\gamma_0\omega T. \end{cases} \tag{8.4}$$

であり [1, 98, 99]、$\boldsymbol{P}:\boldsymbol{\nabla}\boldsymbol{u}=\sum_{i,j}P_{ij}\partial_i u_j$ である。また、$\boldsymbol{I}$, $\boldsymbol{S}$, p, μ, ζ、κ はそれぞれ2階の単位テンソル、$\boldsymbol{S}=1/2(\partial_i u_j+\partial_j u_i)-1/3(\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{u})\boldsymbol{I}$ で定義される変形速度テンソル、圧力、せん断粘性率、体積粘性率、熱伝導率である。さらに

$$\gamma_0 \quad = \quad \frac{1}{4}(1-e^2), \tag{8.5}$$

$$\omega \quad = \quad \rho\sigma^2\sqrt{\frac{\pi T}{m}}, \tag{8.6}$$

が成り立つ [1,100]。（註）この γ_0 は速度分布がガウス分布に従う時のもので、一般にはもっと複雑な形をしている。

8.2 一様解

まず一様せん断解がどのようなものであるかを掴むために、陽に一様せん断解を求めてみよう。時間に依存しない一様せん断解 ρ_0, $\hat{\boldsymbol{u}}_0(=\dot{\gamma}y\hat{\boldsymbol{e}}_x)$, T_0 を仮定し、それを式 (8.1)–(8.3) に代入すると、式 (8.3) は

$$0 = \mu_0\dot{\gamma}^2 - 3\rho_0\gamma_0\omega T_0, \tag{8.7}$$

である。そこに式 (8.5), (8.6) を代入すると、

$$\frac{3}{4}(1-e^2)\rho_0^2\sigma^2\sqrt{\frac{\pi T_0}{m}}T_0 = \mu_0\dot{\gamma}^2, \tag{8.8}$$

を得る。ただし、添字 0 は一様せん断状態での流体変数を特徴づけるものとして用いている。これを T_0 について解くと、

$$T_0 = \left[\frac{4\mu_0\dot{\gamma}^2}{3(1-e^2)\rho_0^2\sigma^2}\sqrt{\frac{m}{\pi}}\right]^{2/3}, \tag{8.9}$$

が得られる。このように一様温度 T_0 は平均密度 ρ_0 とせん断率 $\dot{\gamma}$, μ_0 の関数として書ける。ここでせん断粘性率 μ_0 は後述するように ρ_0, T_0 の関数なので、T_0, μ_0 をセルフコンシステントに決める必要がある。

$\rho_0 = 0.4\sigma^{-3}$, $\dot{\gamma} = 0.1(\varepsilon/m\sigma^2)^{1/2}$ の場合に式 (8.9) をセルフコンシステントに解いたときの一様状態での温度 T_0 と跳ね返り係数 e との関係は、図 8.1 のようになる。

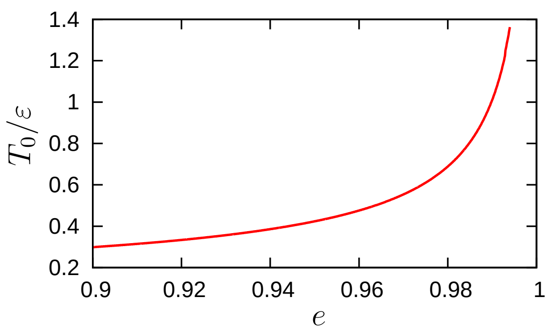

図 8.1: 式 (8.9) をセルフコンシステントに解いて得られた一様状態での温度 T_0 と跳ね返り係数 e との関係。

8.3　線形化流体方程式

流体変数 $\rho(\boldsymbol{r},t)$, $\boldsymbol{u}(\boldsymbol{r},t)$, $T(\boldsymbol{r},t)$ を一様せん断解 ρ_0, $\hat{\boldsymbol{u}}_0(=\dot{\gamma}y\hat{\boldsymbol{e}}_x)$, T_0 とそこからのずれ $\hat{\rho}$, $\hat{\boldsymbol{u}}$, $\hat{T}$ に分解し、そのずれが満たす連続方程式を考える。ここでは Gayen と Alam の方法 [28] に従って、まず以下のように物理量を平均値とそこからのずれに分解する：

$$
\begin{aligned}
g &= g_0 + \hat{g}, && (8.10)\\
\boldsymbol{S} &= \boldsymbol{S}_0 + \hat{\boldsymbol{S}} && (8.11)\\
p &= p_0 + \hat{p}, && (8.12)\\
\zeta &= \zeta_0 + \hat{\zeta}, && (8.13)\\
\mu &= \mu_0 + \hat{\mu}, && (8.14)\\
\chi &= \hat{\chi}. && (8.15)
\end{aligned}
$$

ここで g は動径分布関数である。(8.10)–(8.15) の揺らぎを表す任意の関数 $\hat{A}$ も ρ, T に関して 1 次の展開

$$\hat{A} = A_\rho\hat{\rho} + A_T\hat{T} \quad A_\rho = \left(\frac{\partial A}{\partial \rho}\right)_T, A_T = \left(\frac{\partial A}{\partial T}\right)_\rho, \tag{8.16}$$

ができると仮定する。

このとき圧力テンソル $\boldsymbol{P} = \boldsymbol{P}_0 + \hat{\boldsymbol{P}}$ は

$$
\begin{aligned}
\boldsymbol{P}_0 &= (p_0 - \zeta_0\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{u}_0)\boldsymbol{1} - 2\mu_0\boldsymbol{S}_0\\
&= \begin{bmatrix} p_0 & -\mu_0\dot{\gamma} & 0 \\ -\mu_0\dot{\gamma} & p_0 & 0 \\ 0 & 0 & p_0 \end{bmatrix}, && (8.17)
\end{aligned}
$$

$$\hat{\boldsymbol{P}} = (\hat{p} - \hat{\zeta}\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{u}_0 - \zeta_0\boldsymbol{\nabla}\cdot\hat{\boldsymbol{u}})\boldsymbol{1} - 2\hat{\mu}\boldsymbol{S}_0 - 2\mu_0\hat{\boldsymbol{S}},$$

となる。したがってストレステンソルの揺らぎの各成分は

$$
\begin{cases}
\hat{P}_{xx} = \hat{p} - (\zeta_0 - \frac{2}{3}\mu_0)(\boldsymbol{\nabla}\cdot\hat{\boldsymbol{u}} - 2\mu_0\partial_x\hat{u}_x)\\
\hat{P}_{yy} = \hat{p} - (\zeta_0 - \frac{2}{3}\mu_0)(\boldsymbol{\nabla}\cdot\hat{\boldsymbol{u}} - 2\mu_0\partial_y\hat{u}_y)\\
\hat{P}_{zz} = \hat{p} - (\zeta_0 - \frac{2}{3}\mu_0)(\boldsymbol{\nabla}\cdot\hat{\boldsymbol{u}} - 2\mu_0\partial_z\hat{u}_z)\\
\hat{P}_{xy} = -\hat{\mu}\dot{\gamma} - \mu_0(\partial_x\hat{u}_y + \partial_y\hat{u}_x)\\
\hat{P}_{xz} = -\mu_0(\partial_x\hat{u}_z + \partial_z\hat{u}_x)\\
\hat{P}_{yz} = -\mu_0(\partial_y\hat{u}_z + \partial_z\hat{u}_y)
\end{cases} \tag{8.18}
$$

で表される。

8.3.1　連続の式

連続の式 (8.1) の線形化方程式は

$$\partial_t\hat{\rho}+\partial_x\{(\rho_0+\hat{\rho})(\dot{\gamma}y+\hat{u}_x)\}+\partial_y\{(\rho_0+\hat{\rho})\hat{u}_y\}+\partial_z\{(\rho_0+\hat{\rho})\hat{u}_z\}=0, \tag{8.19}$$

である。これを整理して

$$(\partial_t+\dot{\gamma}y\partial_x)\hat{\rho}=-\rho_0\partial_x\hat{u}_x-\rho_0\partial_y\hat{u}_y-\rho_0\partial_z\hat{u}_z, \tag{8.20}$$

が得られる。

8.3.2　運動量保存則

次に運動量保存則を考える。式 (8.2), (8.4), (8.18) より左辺を 1 次の項までとると

$$\begin{aligned}&m(\rho_0+\hat{\rho})\{\partial_t+(\dot{\gamma}y+\hat{u}_x)\partial_x+\hat{u}_y\partial_y+\hat{u}_z\partial_z\}(\boldsymbol{u}_0+\hat{\boldsymbol{u}})\\&\simeq m\rho_0(\partial_t+\dot{\gamma}y\partial_x)\hat{\boldsymbol{u}}+m\rho_0\dot{\gamma}\hat{u}_y\hat{\boldsymbol{e}}_x\end{aligned} \tag{8.21}$$

となり、それに対して右辺は

$$\begin{aligned}-(\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{P})_x &= -\partial_xP_{xx}-\partial_yP_{xy}-\partial_zP_{xz}\\&= -\partial_x\hat{P}_{xx}-\partial_y\hat{P}_{xy}-\partial_z\hat{P}_{xz}\\&= (-p_\rho\partial_x+\dot{\gamma}\mu_\rho\partial_y)\hat{\rho}+\{(\lambda_0+2\mu_0)\partial_x^2+\mu_0(\partial_y^2+\partial_z^2)\}\hat{u}_x\\&\quad+(\lambda_0+\mu_0)\partial_x\partial_y\hat{u}_y+(\lambda_0+\mu_0)\partial_x\partial_z\hat{u}_z\\&\quad+(-p_T\partial_x+\dot{\gamma}\mu_T\partial_y)\hat{T},\end{aligned} \tag{8.22}$$

$$\begin{aligned}-(\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{P})_y &= (-p_\rho\partial_y+\dot{\gamma}\mu_\rho\partial_x)\hat{\rho}+(\lambda_0+\mu_0)\partial_x\partial_y\hat{u}_x\\&\quad+\{(\lambda_0+2\mu_0)\partial_y^2+\mu_0(\partial_x^2+\partial_z^2)\}\hat{u}_y\\&\quad+(\lambda_0+\mu_0)\partial_y\partial_z\hat{u}_z+(-p_T\partial_y+\dot{\gamma}\mu_T\partial_x)\hat{T},\end{aligned} \tag{8.23}$$

$$\begin{aligned}-(\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{P})_z &= -p_\rho\partial_z\hat{\rho}+(\lambda_0+\mu_0)\partial_x\partial_z\hat{u}_x+(\lambda_0+\mu_0)\partial_y\partial_z\hat{u}_y\\&\quad+\{(\lambda_0+2\mu_0)\partial_z^2+\mu_0(\partial_x^2+\partial_y^2)\}\hat{u}_z-p_T\partial_z\hat{T},\end{aligned} \tag{8.24}$$

となる。ここで

$$\lambda_0\equiv\zeta_0-\frac{2}{3}\mu_0, \tag{8.25}$$

を導入した。

したがって、運動量保存則の式は

$$
\begin{aligned}
& m\rho_0(\partial_t + \dot{\gamma} y \partial_x)\hat{u}_x \\
& = (-p_\rho \partial_x + \dot{\gamma}\mu_\rho \partial_y)\hat{\rho} + \{(\lambda_0 + 2\mu_0)\partial_x^2 + \mu_0(\partial_y^2 + \partial_z^2)\}\hat{u}_x \\
& \quad + \{-\rho_0\dot{\gamma} + (\lambda_0 + \mu_0)\partial_x\partial_y\}\hat{u}_y + (\lambda_0 + \mu_0)\partial_x\partial_z\hat{u}_z \\
& \quad + (-p_T\partial_x + \dot{\gamma}\mu_T\partial_y)\hat{T}, \qquad (8.26) \\
& m\rho_0(\partial_t + \dot{\gamma} y \partial_x)\hat{u}_y \\
& = (-p_\rho \partial_y + \dot{\gamma}\mu_\rho \partial_x)\hat{\rho} + (\lambda_0 + \mu_0)\partial_x\partial_y\hat{u}_x \\
& \quad + \{(\lambda_0 + 2\mu_0)\partial_y^2 + \mu_0(\partial_x^2 + \partial_z^2)\}\hat{u}_y \\
& \quad + (\lambda_0 + \mu_0)\partial_y\partial_z\hat{u}_z + (-p_T\partial_y + \dot{\gamma}\mu_T\partial_x)\hat{T}, \qquad (8.27) \\
& m\rho_0(\partial_t + \dot{\gamma} y \partial_x)\hat{u}_z \\
& = -p_\rho\partial_z\hat{\rho} + (\lambda_0 + \mu_0)\partial_x\partial_z\hat{u}_x + (\lambda_0 + \mu_0)\partial_y\partial_z\hat{u}_y \\
& \quad + \{(\lambda_0 + 2\mu_0)\partial_z^2 + \mu_0(\partial_x^2 + \partial_y^2)\}\hat{u}_z - p_T\partial_z\hat{T}, \qquad (8.28)
\end{aligned}
$$

となる。

8.3.3 エネルギーの連続の式

次にエネルギーの連続の式 (8.3) を考える。左辺を線形化すると

$$
\begin{aligned}
& \frac{3}{2}(\rho_0 + \hat{\rho})\{\partial_t + (\dot{\gamma}y + \hat{u}_x)\partial_x + \hat{u}_y\partial_y + \hat{u}_z\partial_z\}(T_0 + \hat{T}) \\
& \simeq \frac{3}{2}\rho_0(\partial_t + \dot{\gamma}y\partial_x)\hat{T}, \qquad (8.29)
\end{aligned}
$$

となる。ここで

$$
\boldsymbol{\nabla}\boldsymbol{u}_0 = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 \\ \dot{\gamma} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}, \quad (\boldsymbol{\nabla}\hat{u})_{ij} = \partial_i \hat{u}_j, \qquad (8.30)
$$

$$
\begin{aligned}
-\boldsymbol{P}:\boldsymbol{\nabla}\boldsymbol{u} &= -\boldsymbol{P}_0:\boldsymbol{\nabla}\hat{\boldsymbol{u}}-\hat{\boldsymbol{P}}:\boldsymbol{\nabla}\boldsymbol{u}_0 \\
&= -P_{0ij}\partial_i\hat{u}_j-\hat{P}_{ij}\partial_i u_{0j} \\
&= -p_0(\partial_x\hat{u}_x+\partial_y\hat{u}_y+\partial_z\hat{u}_z)+\mu_0\dot{\gamma}(\partial_x\hat{u}_y+\partial_y\hat{u}_x) \\
&\quad +\{\hat{\mu}\dot{\gamma}+\mu_0(\partial_x\hat{u}_y+\partial_y\hat{u}_x)\}\dot{\gamma} \\
&= \mu_\rho\dot{\gamma}^2\hat{\rho}+(-p_0\partial_x+2\mu_0\dot{\gamma}\partial_y)\hat{u}_x+(-p_0\partial_y+2\mu_0\dot{\gamma}\partial_x)\hat{u}_y \\
&\quad -p_0\partial_z\hat{u}_z+\mu_T\dot{\gamma}^2\hat{T}, \qquad (8.31) \\
-\boldsymbol{\nabla}\cdot\boldsymbol{q} &= -\boldsymbol{\nabla}\cdot(-\kappa\nabla\rho) \\
&= \kappa\boldsymbol{\nabla}^2T=\kappa_0\boldsymbol{\nabla}^2\hat{T} \\
&= \kappa_0(\partial_x^2+\partial_y^2+\partial_z^2)\hat{T}, \qquad (8.32) \\
-\chi &= -\chi_\rho\hat{\rho}-\chi_T\hat{T}, \qquad (8.33)
\end{aligned}
$$

となるから、エネルギーの連続の式は

$$
\begin{aligned}
\frac{3}{2}\rho_0(\partial_t+\dot{\gamma}y\partial_x)\hat{T} &= (\mu_\rho\dot{\gamma}^2-\chi_\rho)\hat{\rho}+(-p_0\partial_x+2\mu_0\dot{\gamma}\partial_y)\hat{u}_x \\
&\quad +(-p_0\partial_y+2\mu_0\dot{\gamma}\partial_x)\hat{u}_y-p_0\partial_z\hat{u}_z \\
&\quad +\{\mu_T\dot{\gamma}^2+\kappa_0(\partial_x^2+\partial_y^2+\partial_z^2)-\chi_T\}\hat{T}, \qquad (8.34)
\end{aligned}
$$

となる。

8.3.4 線形化連続方程式

式 (8.20), (8.26)–(8.28), (8.34) をまとめると、流体揺らぎ $\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r},t)=(\hat{\rho}(\boldsymbol{r},t),\hat{\boldsymbol{u}}(\boldsymbol{r},t),\hat{T}(\boldsymbol{r},t))$ が満たす線形化連続方程式は

$$
(\partial_t+\dot{\gamma}y\partial_x)\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r},t)=\boldsymbol{L}(\boldsymbol{r},t)\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r},t), \qquad (8.35)
$$

となる。ここで $\boldsymbol{L}=[L_{ij}]$ は 5×5 の行列で、具体的な形は式 (B.1) で与えられる。この結果は Gayen, と Alam (2006) [28] の結果で回転の自由度を無視したものと一致している。

8.4 sheared frame への変換

方程式 (8.35) は左辺に y を含んだ項があるため、このままの形では Fourier 変換を行って線形安定解析を行うことができない。そこで Hayakawa と Otsuki (2008) [101] の方法に従って sheared frame への変換 [101, 102] を行う。

直交座標系 $(t, \boldsymbol{r})$ から sheared frame での座標系 $(t', \boldsymbol{r}')$ へ

$$\begin{cases} t' = t \\ \boldsymbol{r}' = \boldsymbol{r} - \dot{\gamma} y t \hat{\boldsymbol{e}}_x \end{cases} \tag{8.36}$$

で変換する。このとき

$$\begin{cases} \hat{\boldsymbol{X}}'(\boldsymbol{r}', t') = \hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r}, t) \\ \boldsymbol{L}'(\boldsymbol{r}', t') = \boldsymbol{L}(\boldsymbol{r}, t) \end{cases} \tag{8.37}$$

で定義すると

$$\begin{cases} \partial_{t'} = \partial_t + \dot{\gamma} y \partial_x, \quad \partial_{x'} = \partial_x, \\ \partial_{y'} = \partial_y + \dot{\gamma} t \partial_x, \quad \partial_{z'} = \partial_z, \end{cases} \tag{8.38}$$

が成り立つから、式 (8.35) は

$$\partial_{t'} \hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r}', t') = \boldsymbol{L}'(\boldsymbol{r}', t') \hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r}', t'), \tag{8.39}$$

と変換される。以下では、表記を簡単にするため $'$ を省略することにし、式 (8.39) を改めて

$$\partial_t \hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r}, t) = \boldsymbol{L}(\boldsymbol{r}, t) \hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r}, t), \tag{8.40}$$

と書くことにする。ここで $\boldsymbol{L}$ の各成分は、式 (B.1) で $\partial_y \to \partial_y - \dot{\gamma} t \partial_x$ と置き換えればよく、具体的には式 (B.2) となる。

8.5 Fourier 変換

式 (8.40) を Fourier 変換し、各波数について安定性を見ていくことにする。ここでも先行研究 [101] の方法に従い、流体変数 $\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r}, t)$ を

$$\begin{aligned} \hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) &\equiv \int d\boldsymbol{r} \exp(i\boldsymbol{q} \cdot \boldsymbol{r}) \hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r}, t) \\ \Longleftrightarrow \hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r}, t) &= \int d\boldsymbol{q} \exp(-i\boldsymbol{q} \cdot \boldsymbol{r}) \hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t), \end{aligned} \tag{8.41}$$

を用いて $\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t)$, $\boldsymbol{q} = (q_x, q_y, q_z)$ に変換する。

このとき、式 (8.40) は

$$\partial_t \hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) = \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}}(\boldsymbol{q}, t) \hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \tag{8.42}$$

と変換される。$\boldsymbol{L_q}$ は式 (B.4) で与えられる。ここで

$$q_y(t) \equiv q_y - \dot{\gamma} t q_x \tag{8.43}$$

を用いた。この $\boldsymbol{L_q}$ は実数成分と虚数成分を持っており、固有値計算が煩雑になる。そのためここでは計算の便宜のため、$\hat{\boldsymbol{X}} = (\hat{\rho}, \hat{\boldsymbol{u}}, \hat{T}), \hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}$ の代わりに $\tilde{\boldsymbol{X}} = (\hat{\rho}, i\hat{\boldsymbol{u}}, \hat{T}), \tilde{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}$ を用いることにすると、 式 (8.42) は

$$\partial_t \tilde{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) = \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}}(\boldsymbol{q}, t) \tilde{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t), \tag{8.44}$$

となり、係数行列 $\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}}(\boldsymbol{q}, t)$ の各成分をすべて実数にすることができる。その各成分については式 (B.2.2) を参照のこと。ここで、$\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}}(t)$ は時間について

$$\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}}(\boldsymbol{q}, t) = \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0}(\boldsymbol{q}) + t\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1}(\boldsymbol{q}) + t^2 \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2}(\boldsymbol{q}) \tag{8.45}$$

と展開でき各 $\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}i}$ $(i = 0, 1, 2)$ は式 (B.7)–(B.9) で与えられる。

以下では式 (8.44) の安定性を調べていくが、その際に本研究では Saitoh と Hayakawa (2011) [24] に従って、式 (8.41) を

$$\begin{aligned}
\tilde{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r}, t) &= \int dq_y dq_z \exp[-i(q_y y + q_z z)] \tilde{\boldsymbol{X}}^{\mathrm{L}}_{\boldsymbol{q}} \\
&\quad + \int d\boldsymbol{q} \exp(-i\boldsymbol{q}(t) \cdot \boldsymbol{r}) \tilde{\boldsymbol{X}}^{\mathrm{NL}}_{\boldsymbol{q}}(t),
\end{aligned} \tag{8.46}$$

と $q_x = 0$ の項 (layering mode) と $q_x \neq 0$ の項 (non-layering mode) に分け、それぞれの項の安定性を考えていく。

8.6 layering mode

Layering mode では時間に依存する波数の混合はなくなり式 (8.44) は固有値問題

$$\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0}(0, q_y, q_z) \tilde{\boldsymbol{X}}^{\mathrm{L}}_{\boldsymbol{q}} = \sigma \tilde{\boldsymbol{X}}^{\mathrm{L}}_{\boldsymbol{q}}, \tag{8.47}$$

に帰着できる。

有限系の場合、y 軸、z 軸方向の波数は離散的な値しかとることができず、

$$\boldsymbol{q} = \left(0, \frac{2\pi n_y}{L_y}, \frac{2\pi n_z}{L_z}\right) \quad (n_y, n_z \text{は整数}), \tag{8.48}$$

である。すべての $\boldsymbol{q}$ で固有値の実部が負になれば系の一様状態が安定であり、逆に固有値の実部が正になる波数が存在すれば不安定であると考えることができる。

8.7 non-layering mode

このモードは各時刻 t について

$$\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}}(\boldsymbol{q},t)\tilde{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}^{\mathrm{NL}} = \sigma\tilde{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}^{\mathrm{NL}}, \tag{8.49}$$

の固有値を求め、時間発展していく中で layering mode の場合と同様に固有値の実部の正負を判別していく。

8.8 有限系での発展行列

以上の議論は全て無限系の場合であり、任意の大きさの波数 $\boldsymbol{q}$ が存在することを仮定していた。しかしシミュレーションの場合は系の大きさを無限にとることができず、有限の大きさ L_x, L_y, L_z に対応する最小波数 $2\pi/L_x, 2\pi/L_y, 2\pi/L_z$ の倍数しかとることができない。したがってそれに伴い微分を差分に変更する必要がある [103]。無限系では

$$\partial_j\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r},t) \iff -iq_j\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \tag{8.50}$$
$$\partial_j^2\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r},t) \iff -q_j^2\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \tag{8.51}$$

であった対応関係がどのようになるかを考えていく。

まず、位置をサイトと考えて $\boldsymbol{r}\to\boldsymbol{n}=(n_xd,n_yd,n_zd)$ とし $\boldsymbol{n}_\pm=((n_x\pm 1)d,n_y,n_z)$ とすると

$$\begin{aligned}
\partial_x\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r},t) &= \frac{\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{n}_+,t)-\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{n}_-,t)}{2d} \\
&= \frac{1}{2d}\int d\boldsymbol{q}\left\{\exp(-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{n}_+)-\exp(-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{n}_-)\right\}\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \\
&= \frac{1}{2d}\int d\boldsymbol{q}\left\{\exp(-iq_xd)-\exp(iq_xd)\right\}\exp(-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{n})\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \\
&= -\frac{i}{d}\int d\boldsymbol{q}\sin(q_xd)\exp(-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{n})\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \\
&= -\frac{i}{d}\int d\boldsymbol{q}\sin(q_xd)\exp(-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{r})\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t)
\end{aligned} \tag{8.52}$$

となるから

$$\partial_j\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(\boldsymbol{r},t) \iff -i\frac{\sin(q_jd)}{d}\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \tag{8.53}$$

という対応関係が得られる。

同様にして

$$\begin{aligned}
\partial_x^2 \hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{r},t) &= \frac{\{\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{n}_+,t)-\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{n},t)\}-\{\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{n},t)-\hat{\boldsymbol{X}}(\boldsymbol{n}_-,t)\}}{d^2} \\
&= \frac{1}{d^2}\int d\boldsymbol{q}\{\exp(-iq_x d)+\exp(iq_x d)-2\}\exp(-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{n})\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \\
&= \frac{2}{d^2}\int d\boldsymbol{q}\{\cos(q_x d)-1\}\exp(-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{n})\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \\
&= -\frac{4}{d^2}\int d\boldsymbol{q}\sin^2\left(\frac{q_x d}{2}\right)\exp(-i\boldsymbol{q}\cdot\boldsymbol{n})\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \qquad (8.54)
\end{aligned}$$

となるから

$$\partial_j^2 \hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(\boldsymbol{r},t) \quad\Longleftrightarrow\quad -\frac{4}{d^2}\sin^2\left(\frac{q_j d}{2}\right)\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}(t) \qquad (8.55)$$

という対応関係が得られる。

したがって、(B.7)–(B.9) で $q_j \to \sin q_j$ と置き換えれば有限系での発展行列が得られ、具体的には式 (B.10)–(B.13) のように書ける。

第9章 Lennard-Jones系での線形安定性解析

9.1 Lennard-Jones系での圧力・動径分布関数・輸送係数

線形安定性解析を行うには式(B.2.2)などに出てくるp_0, p_ρ, p_Tなどを具体的に求める必要がある。本研究では先行研究で与えられた形を用いる。

$$\phi(r) = 4\varepsilon\left\{\left(\frac{\sigma}{r}\right)^{12} - \left(\frac{\sigma}{r}\right)^6\right\} \tag{9.1}$$

$$g(r,\rho,T) = \begin{cases} 1 + x^{-m}[g(d) - 1 - \lambda] \\ \qquad + \frac{(x-1+\lambda)}{x}\cos[\beta(x-1)]\exp[-\xi(x-1)] & (x \geq 1) \\ g(d)\exp[-\theta(x-1)^2] & (x < 1) \end{cases}$$
$$(x = r/d) \tag{9.2}$$

$$p(\rho,T) = \rho T - \frac{2\pi}{3}\rho^2\int_0^\infty drr^3\phi'(r)g(r,\rho,T) \tag{9.3}$$

$$D_0(\rho,T) = 1.019\cdot\frac{3}{8\rho\sigma^2}\sqrt{\frac{T}{\pi m}} \tag{9.4}$$

$$D_{\mathrm{LJ}}(\rho,T) = \frac{3}{8\rho\sigma^2}\sqrt{\frac{T}{\pi m}}\exp\left[-\frac{1.1\pi\sigma^3}{6T}\left(p + A(\rho,T)\rho^2\right)\right] \tag{9.5}$$

$$\mu(\rho,T) = cm\rho D_0(T) + \frac{\pi\rho^2}{45D_{\mathrm{LJ}}(\rho,T)}\bar{\omega}(\rho,T)\exp[-\hat{\zeta}(\rho,T)] \tag{9.6}$$

$$\zeta(\rho,T) = \frac{2\pi\rho^2}{135D_{\mathrm{LJ}}(\rho,T)}\bar{\omega}(\rho,T)\exp[-\hat{\zeta}(\rho,T)] \tag{9.7}$$

$$\kappa(\rho,T) = f_{\mathrm{E}}c_v\mu_k(\rho,T) + \frac{\rho^2}{6D_{\mathrm{LJ}}(\rho,T)}\langle\chi(\rho,T)\rangle\exp[-\hat{\zeta}(\rho,T)] \tag{9.8}$$

を用いる。ここでcはChapman-Enskog法[104]の第一近似で現れるcollision bracket integralにより決まる定数であり、f_{E}はEucken factorである。各輸送係数の具体的な形は付録Dで議論する。

9.2 無次元化

数値計算と比較するためには何らかの無次元化が必要となる。本論文では、任意の変数を質量 m、粒径 σ、井戸の深さ ε で無次元化する。その結果、

$$\phi(r) = \varepsilon \phi^*(r^*), \tag{9.9}$$

$$p(\rho, T) = \frac{\varepsilon}{\sigma^3} p^*(\rho^*, T^*), \tag{9.10}$$

$$D_0(\rho, T) = \sigma \sqrt{\frac{\varepsilon}{m}} D_0^*(\rho^*, T^*), \tag{9.11}$$

$$D_{\mathrm{LJ}}(\rho, T) = \sigma \sqrt{\frac{\varepsilon}{m}} D_{\mathrm{LJ}}^*(\rho^*, T^*), \tag{9.12}$$

$$\bar{\omega}(\rho, T) = \varepsilon \sigma^5 \bar{\omega}^*(\rho^*, T^*), \tag{9.13}$$

$$\mu(\rho, T) = \frac{\sqrt{m\varepsilon}}{\sigma^2} \mu^*(\rho^*, T^*), \tag{9.14}$$

$$\zeta(\rho, T) = \frac{\sqrt{m\varepsilon}}{\sigma^2} \zeta^*(\rho^*, T^*), \tag{9.15}$$

$$\langle \chi(\rho, T) \rangle = \frac{\sigma^5 \varepsilon}{m} \langle \chi^*(\rho^*, T^*) \rangle, \tag{9.16}$$

$$\kappa(\rho, T) = \frac{1}{\sigma^2} \sqrt{\frac{\varepsilon}{m}} \kappa^*(\rho^*, T^*), \tag{9.17}$$

$$\boldsymbol{S} = \frac{1}{\sigma} \sqrt{\frac{\varepsilon}{m}} \boldsymbol{S}^*, \tag{9.18}$$

$$\omega(\rho, T) = \frac{1}{\sigma} \sqrt{\frac{\varepsilon}{m}} \omega^*(\rho^*, T^*), \tag{9.19}$$

$$c_v = \frac{1}{m} c_v^*, \tag{9.20}$$

といった $*$ 付きの無次元変数を導入できる。これより

$$\boldsymbol{P} = \frac{\varepsilon}{\sigma^3} \boldsymbol{P}^*, \tag{9.21}$$

$$\kappa \boldsymbol{\nabla} T = \frac{1}{\sigma^3} \sqrt{\frac{\varepsilon^3}{m}} \kappa^* \boldsymbol{\nabla}^* T^*, \tag{9.22}$$

$$3\gamma_0 \omega T = \frac{1}{\sigma} \sqrt{\frac{\varepsilon^3}{m}} 3\gamma_0 \omega^* T^*, \tag{9.23}$$

および

$$\phi^*(r^*) = 4\left(\frac{1}{r^{*12}} - \frac{1}{r^{*6}}\right), \tag{9.24}$$

$$p^*(\rho^*, T^*) = \rho^* T^* - \frac{2\pi}{3}\rho^{*2}\int_0^\infty dr^* r^{*3}\phi^{*\prime}(r^*) g^*(r^*, \rho^*, T^*), \tag{9.25}$$

$$D_0^*(\rho^*, T^*) = 1.019 \cdot \frac{3}{8\rho^*}\sqrt{\frac{T^*}{\pi}}, \tag{9.26}$$

$$D_{\mathrm{LJ}}(\rho^*, T^*) = \frac{3}{8\rho^*}\sqrt{\frac{T^*}{\pi}}\exp\left[-\frac{1.1\pi}{6T^*}\left(p^* + A^*(\rho, T)\rho^{*2}\right)\right], \tag{9.27}$$

$$\begin{aligned} \mu^*(\rho^*, T^*) &= c\rho^* D_0^*(\rho^*, T^*) \\ &\qquad + \frac{\pi\rho^{*2}}{45 D_{\mathrm{LJ}}^*(\rho^*, T^*)}\bar{\omega}^*(\rho^*, T^*)\exp[-\hat{\zeta}^*(\rho^*, T^*)], \end{aligned} \tag{9.28}$$

$$\zeta^*(\rho^*, T^*) = \frac{2\pi\rho^{*2}}{135 D_{\mathrm{LJ}}^*(\rho^*, T^*)}\bar{\omega}^*(\rho^*, T^*)\exp[-\hat{\zeta}^*(\rho^*, T^*)], \tag{9.29}$$

$$\begin{aligned} \langle\chi^*(\rho^*, T^*)\rangle &= 4\pi\bar{\kappa}\left[-\int_0^3 dr^* r^{*4}\phi^*(r^*) g^*(r^*, \rho^*, T^*)\right. \\ &\qquad \left. + \frac{1}{5}\int_0^3 dr^* r^{*5}\phi^{*\prime}(r^*) g^*(r^*, \rho^*, T^*)\right], \end{aligned} \tag{9.30}$$

$$\begin{aligned} \kappa^*(\rho^*, T^*) &= f_{\mathrm{E}}^* c_v^* \mu_k^*(\rho^*, T^*) \\ &\qquad + \frac{\rho^{*2}}{6 D_{\mathrm{LJ}}^*(\rho^*, T^*)}\langle\chi^*(\rho^*, T^*)\rangle\exp[-\hat{\zeta}^*(\rho^*, T^*)], \end{aligned} \tag{9.31}$$

$$\omega(\rho^*, T^*) = \rho^*\sqrt{\pi T^*}, \tag{9.32}$$

となる。

9.2.1 連続の式の無次元化

連続の式 (8.1) を無次元化してみよう。

$$\begin{aligned} (\text{式 (8.1) の左辺}) &= \frac{1}{\sigma^3\tau}\left(\frac{\partial}{\partial t^*} + \boldsymbol{u}^* \cdot \boldsymbol{\nabla}^*\right)\rho^* \\ &= \frac{1}{\sigma^4}\sqrt{\frac{\varepsilon}{m}}\left(\frac{\partial}{\partial t^*} + \boldsymbol{u}^* \cdot \boldsymbol{\nabla}^*\right)\rho^*, \end{aligned} \tag{9.33}$$

$$(\text{式 (8.1) の右辺}) = -\frac{1}{\sigma^4}\sqrt{\frac{\varepsilon}{m}}\rho^*\boldsymbol{\nabla}^* \cdot \boldsymbol{u}^*, \tag{9.34}$$

であるから、無次元化した連続の式は

$$\left(\frac{\partial}{\partial t^*} + \boldsymbol{u}^* \cdot \boldsymbol{\nabla}^*\right)\rho^* = -\rho^*\boldsymbol{\nabla}^* \cdot \boldsymbol{u}^*, \tag{9.35}$$

となる。

9.2.2 運動量保存則の無次元化

運動量保存則 (8.2) は無次元化によって

$$
\begin{aligned}
(\text{式 (8.2) の左辺}) &= \frac{m}{\sigma^2\tau^2}\rho^*\left(\frac{\partial}{\partial t^*}+\boldsymbol{u}^*\cdot\boldsymbol{\nabla}^*\right)\boldsymbol{u}^* \\
&= \frac{\varepsilon}{\sigma^4}\rho^*\left(\frac{\partial}{\partial t^*}+\boldsymbol{u}^*\cdot\boldsymbol{\nabla}^*\right)\boldsymbol{u}^*, \qquad (9.36) \\
(\text{式 (8.2) の右辺}) &= -\frac{\varepsilon}{\sigma^4}\boldsymbol{\nabla}^*\cdot\boldsymbol{P}^*, \qquad (9.37)
\end{aligned}
$$

となり、無次元化した運動量保存則は

$$
\rho^*\left(\frac{\partial}{\partial t^*}+\boldsymbol{u}^*\cdot\boldsymbol{\nabla}^*\right)\boldsymbol{u}^* = -\boldsymbol{\nabla}^*\cdot\boldsymbol{P}^*, \qquad (9.38)
$$

となる。

9.2.3 エネルギーの連続の式の無次元化

エネルギーの連続の式 (8.3) も、同様の手続きで無次元化できる。

$$
\begin{aligned}
(\text{式 (8.3) の左辺}) &= \frac{\varepsilon}{\sigma^3\tau}\frac{3}{2}\rho^*\left(\frac{\partial}{\partial t^*}+\boldsymbol{u}^*\cdot\boldsymbol{\nabla}^*\right)T^* \\
&= \frac{1}{\sigma^4}\sqrt{\frac{\varepsilon^3}{m}}\frac{3}{2}\rho^*\left(\frac{\partial}{\partial t^*}+\boldsymbol{u}^*\cdot\boldsymbol{\nabla}^*\right)T^*, \qquad (9.39) \\
(\text{式 (8.3) の右辺}) &= -\frac{\varepsilon}{\sigma^3\tau}\boldsymbol{P}^*:\boldsymbol{\nabla}^*\boldsymbol{u}^* + \frac{1}{\sigma^4}\sqrt{\frac{\varepsilon^3}{m}}\boldsymbol{\nabla}^*\cdot(\kappa^*\boldsymbol{\nabla}^*T^*) \\
&\qquad -\frac{1}{\sigma^4}\sqrt{\frac{\varepsilon^3}{m}}3\rho^*\gamma^*\omega^*T^* \\
&= \frac{1}{\sigma^4}\sqrt{\frac{\varepsilon^3}{m}}\left(-\boldsymbol{P}^*:\boldsymbol{\nabla}^*\boldsymbol{u}^* + \boldsymbol{\nabla}^*\cdot(\kappa^*\boldsymbol{\nabla}^*T^*)\right. \\
&\qquad \left. + 3\rho^*\gamma^*\omega^*T^*\right), \qquad (9.40)
\end{aligned}
$$

であるから、無次元化したエネルギーの連続の式は

$$
\begin{aligned}
&\frac{3}{2}\rho^*\left(\frac{\partial}{\partial t^*}+\boldsymbol{u}^*\cdot\boldsymbol{\nabla}^*\right)T^* \\
&= -\boldsymbol{P}^*:\boldsymbol{\nabla}^*\boldsymbol{u}^* + \boldsymbol{\nabla}^*\cdot(\kappa^*\boldsymbol{\nabla}^*T^*) + 3\rho^*\gamma^*\omega^*T^*, \qquad (9.41)
\end{aligned}
$$

となる。

9.3 具体的な値

Lennard-Jones 系の輸送係数の表式より密度、跳ね返り係数、せん断率を決めると各係数を計算することができる。$\rho^* = 0.4, e = 0.9930, \dot{\gamma}^* = 0.1$ の場合における各係数を計算すると表 9.1 の値が得られる。

T_0^*	1.250	D_0^*	0.6026	$D_{\rm LJ}^*$	0.3620
p_0^*	0.04211	p_ρ^*	1.253	p_T	1.634
μ_0^*	0.4148	μ_ρ^*	2.262	μ_T	-0.09466
ζ_0^*	0.1705	ζ_ρ^*	1.508	ζ_T^*	-0.1055
κ_0^*	1.921	λ_0^*	-0.1061		

表 9.1: 輸送係数の表式 (9.24)–(9.32) から計算した $\rho^* = 0.4$, $e = 0.993$, $\dot{\gamma}^* = 0.1$ の場合における各係数の無次元での値。

9.4 Lennard-Jones 系での結果

前章および付録 D で求めた線形安定性解析の表式 (8.44), (B.6)–(B.9) に Lennard-Jones 系の係数 (9.24)–(9.32) を代入し、固有値が安定かを判定していく。なお、本研究では主に無限系での解析を有限系に援用するに留め、8.8 節で紹介した有限系の解析の適用については今後の課題とした。

また、擬二次元系での (I) 一様せん断相と (II) 共存相との相境界との比較を行うため、システムサイズを $L_x = L_y > L_z$ ととることにし、密度に関わらず $L_z^* = 12$ と固定することにする。

9.4.1 layering mode

式 (8.47) に Lennard-Jones 系での係数の値を代入し、q_y^*, q_z^* と固有値の実部との関係を調べる。まず、密度 $\rho^* = 0.4, \dot{\gamma} = 0.1$ の場合に二つの跳ね返り係数の場合について調べた。固有値の実部が正となる領域を図 9.1 に示す。順に $e = 0.9911$ ($T^* = 1.078$)、$e = 0.9912$ ($T^* = 1.084$)、$e = 0.9913$ ($T^* = 1.091$) の場合の結果である。温度が低くなると固有値の実部が正の領域が大きくなり、したがって系が不安定になりやすいことがわかる。これはシミュレーションの傾向とも一致する。このとき

$L_y^* = 45.64,\ L_z^* = 12$ になるから、系が取り得る波数は

$$
\begin{aligned}
(q_y^*, q_z^*) &= \left(\frac{2\pi n_y}{L_y^*}, \frac{2\pi n_z}{L_z^*}\right) \\
&= (0.138 n_y, 0.524 n_z), \qquad (9.42)
\end{aligned}
$$

となる。ここで n_y, n_z は正の整数である。$T_0^* = 1.084$ の場合に、式 (9.42) を満たし、固有値の実部が正となる波数が現れることがわかる。したがって、この温度が臨界温度 T_{cr}^* であると考えることができる。$T_0^* < T_{\mathrm{cr}}^*$ の場合には図 9.1(a) のように、臨界温度から離れるにつれて急激に不安定な領域が大きくなっていくことがわかった。

また逆に、温度 T_0^* を固定した際に、固有値の実部が正から負に点 (q_y^*, q_z^*) を求め、そこから一様状態が不安定になる臨界システムサイズを求めることもできる。

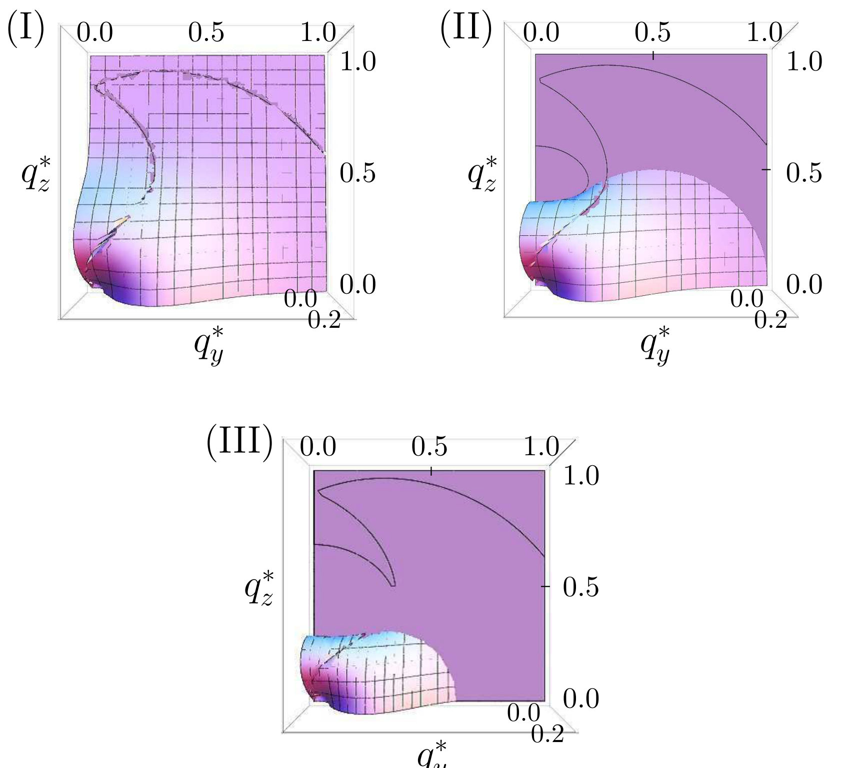

図 9.1: (I)$e = 0.9911$ ($T_0^* = 1.078$)、(II)$e = 0.9912$ ($T_0^* = 1.084$)、(III)$e = 0.9913$ ($T_0^* = 1.091$) の場合の layering mode の固有値の実部と q_y、q_z との関係。紙面垂直方向が固有値の実部方向であり、メッシュ状の部分が正の領域であることを示す。

9.4.2　シミュレーションにより得られた相図との対応

第 6 章でシミュレーションにより得られた相 (I) と相 (II) の相境界のせん断率 $\dot{\gamma}$ と散逸率 ζ の関係式と第 3 章で得られた跳ね返り係数 e と散逸率 ζ の関係式 (3.12) とをあわせることで、せん断率と跳ね返り係数に関する相境界曲線が書ける。これを式 (8.47) に線形安定性解析を行うことで得られた相境界曲線と比較すると図 9.2 が得られる。せん断率が大きくなるにつれて相境界曲線に対応する跳ね返り係数が小さくなるという傾向が一致していることがわかる。数値的に値が異なっている原因としてはシミュレーションで用いた密度と線形安定性解析で用いた密度とが異なること、また跳ね返り係数と散逸率との関係を求める際に、粒子同士が相対熱速度で衝突する際の値に固定して計算していることがあげられる。これらに関しては今後の研究の課題である。

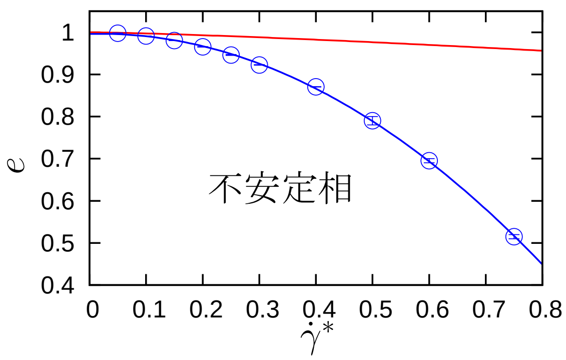

図 9.2: せん断率 $\dot{\gamma}$ と跳ね返り係数 e との関係（実線赤）および $\rho^* = 0.4$, $L^* = 45.64$, $L_z^* = 12$ である系に線形安定性解析を行うことで得られた相図（$\circ$ 印）とその近似曲線（実線青）。

9.4.3　non-layering mode

式 (8.49) の固有値を各時刻 t^* について数値的に求め、固有値の実部が時間発展により正負どちらの値をとるかについて追跡していく。$q_z^* = 2\pi/12$ に固定したときの q_x^*, q_y^* と固有値の実部の関係を図 9.3 に示す。$e = 0.9920$ ($T_0^* = 1.144$) の場合には全ての $\boldsymbol{q}$ に対して系は安定であることがわかる。より詳細な議論については、今後のさらなる研究が必要である。

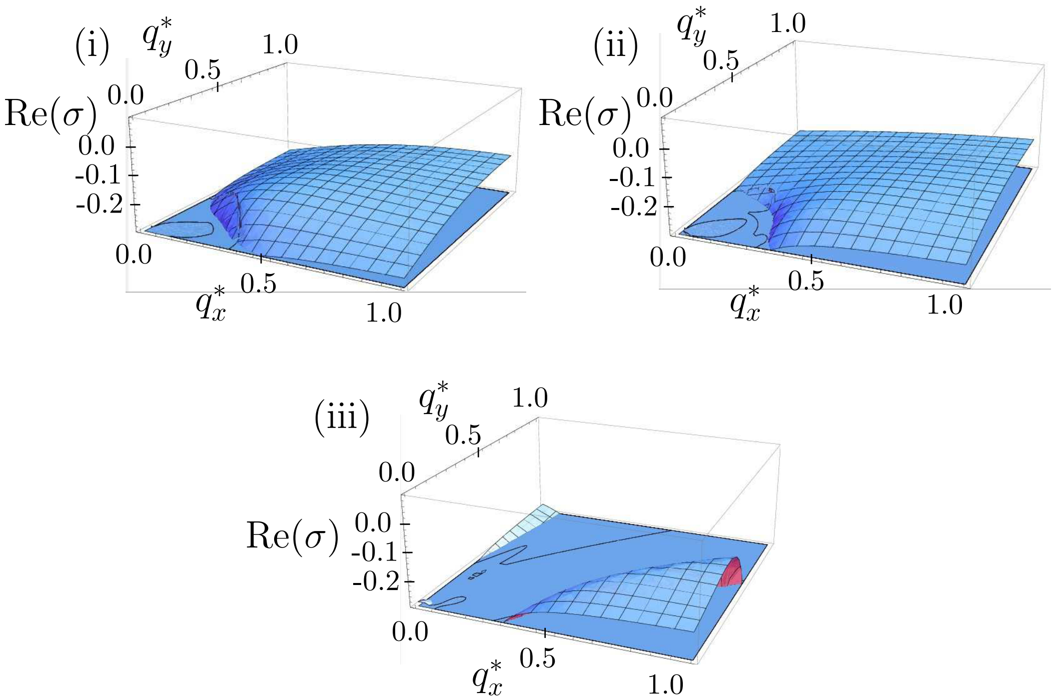

図 9.3: $e = 0.9920$ ($T_0^* = 1.144$), $q_z^* = 2\pi/12$ と選んだときの各時刻における non-layering mode の固有値の実部と q_x^*, q_y^* との関係。(i)$t^* = 0$、(ii)$t^* = 1$、(iii)$t^* = 5$。全ての $\boldsymbol{q}$ に対して系は安定であることがわかる。

第10章　まとめと展望

10.1　まとめ

本研究では3次元の分子動力学シミュレーションを行い、引力を持つ粉体粒子の核生成・パターン形成について調べた。

その結果、擬二次元系の場合には3つの特徴的な定常相 (I) 一様せん断相、(II) シアバンドと気相の共存状態、(III) 結晶相が得られ、せん断率・散逸率に関する相図が得られた。また、相 (II) と (III) の相境界についてのメカニズムを現象論的に説明できることも示した。さらに、相 (I) と (II) の相境界について一様せん断流の線形安定性解析からの説明を試みた。

立方体の系の場合には粉体温度が急激に減少する時刻と散逸率との関係を調べ、冪で関係づけられることを発見した。また、密度とクラスターの形の関係についても調べ、密度に関して、粒子と空隙の対称性があることがわかった。

Lennard-Jones 系での流体方程式を導出し、無限系の場合の系の安定性について線形安定性解析を行い、系の安定性と分子動力学シミュレーションの結果との比較を行った。

10.2　展望と課題

3次元系の場合のクラスターの初期状態依存性について、散逸率が臨界散逸率からどれくらい離れたところでクラスターの形が変化するかについて、また密度とクラスターの形の相図について今後議論を行っていく必要がある。また、今回は粒子数を固定しシステムサイズを変化させることで密度を変化させたが、システムサイズによるクラスターの性質の依存性についても調べていく必要がある。

Lennard-Jones 系への流体方程式が適用が可能かどうかについては有限系での解析が今後の研究対象である。また、本研究では数値的に固有値を求めたが、解析的な形での議論が可能かどうかについて十分検討していかなくてはならない。

付 録 A　ハードコアポテンシャルの場合のアルゴリズム

ソフトポテンシャルを持つ粒子の場合と異なり、粒子同士が衝突した場所でポテンシャルが無限大となるため時間刻みを固定して位置と運動量を更新していくことができない。そこで衝突をメインに考え、全ての粒子の組に対して次の衝突が起こるまでの時間を計算し、その中で最小のものを選びその分だけ時間を更新するというアルゴリズム [15, 105–107] を採用する。

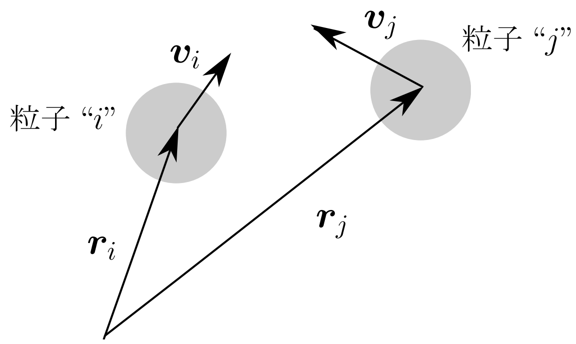

図 A.1: ハードコアポテンシャルを持つ粒子の場合の時間発展の計算方法。i 番目の粒子と j 番目の粒子が衝突する時刻を求める。衝突をメインに考えるため、event-driven な分子動力学法と呼ばれる。

i 番目の粒子と j 番目の粒子が時刻 Δt_{ij} 後に衝突すると考えると、

$$\begin{aligned} & |(\boldsymbol{r}_i + \boldsymbol{v}_i \Delta t_{ij}) - (\boldsymbol{r}_j + \boldsymbol{v}_j \Delta t_{ij})| = R_i + R_j \\ \Longrightarrow \quad & \Delta t_{ij}^2 + 2\frac{\boldsymbol{r}_{ij}\cdot\boldsymbol{v}_{ij}}{\boldsymbol{v}_{ij}^2}\Delta t_{ij} + \frac{\boldsymbol{r}_{ij}^2 - R_{ij}^2}{\boldsymbol{v}_{ij}^2} = 0 \end{aligned} \tag{A.1}$$

が成り立つ。ここで、$\boldsymbol{r}_{ij} = \boldsymbol{r}_i - \boldsymbol{r}_j, \boldsymbol{v}_{ij} = \boldsymbol{v}_i - \boldsymbol{v}_j, R_{ij} = R_i + R_j$ である。これらの粒子が衝突する条件

$$\text{衝突条件：} \quad \boldsymbol{r}_{ij}\cdot\boldsymbol{v}_{ij} < 0 \tag{A.2}$$

の下で式 (A.1) を解くと、

$$
\begin{aligned}
\Delta t_{ij} &= -\frac{\boldsymbol{r}_{ij}\cdot\boldsymbol{v}_{ij}}{\boldsymbol{v}_{ij}^2} - \sqrt{\left(\frac{\boldsymbol{r}_{ij}\cdot\boldsymbol{v}_{ij}}{\boldsymbol{v}_{ij}^2}\right)^2 + \frac{R_{ij}^2 - \boldsymbol{r}_{ij}^2}{\boldsymbol{v}_{ij}^2}} \\
&= -\frac{\boldsymbol{r}_{ij}^2 - R_{ij}^2}{-\boldsymbol{r}_{ij}\cdot\boldsymbol{v}_{ij} + \sqrt{(\boldsymbol{r}_{ij}\cdot\boldsymbol{v}_{ij})^2 + \boldsymbol{v}_{ij}^2(R_{ij}^2 - \boldsymbol{r}_{ij}^2)}} \qquad \text{(A.3)}
\end{aligned}
$$

が得られる。全ての (i,j) の組について式 (A.3) により Δt_{ij} を求め、最小のもの Δt_{min} を求める。この Δt_{min} を用いて各粒子の時刻 Δt_{min} 後の位置、速度を

$$\boldsymbol{r}_i(t+\Delta t_{\mathrm{min}}) = \boldsymbol{r}_i(t) + \boldsymbol{v}_i(t)\Delta t_{\mathrm{min}} \qquad \text{(A.4)}$$

$$\boldsymbol{v}_i(t+\Delta t_{\mathrm{min}}) = \boldsymbol{v}_i(t) + \frac{\boldsymbol{F}_i(t)}{m}\Delta t_{\mathrm{min}} \qquad \text{(A.5)}$$

で更新していく。

以上まとめると

1. 各 (i,j) の組について衝突条件の下で Δt_{ij} を求める
2. 全ての (i,j) の組の中で最小の Δt_{min} を求める
3. Δt_{min} 後の位置、速度を求める
4. 1. に戻る

により系の時間発展を計算していく。

付 録B　線形安定性解析に現れる発展行列の具体的な形

B.1　実空間

B.1.1　直交座標系での $\boldsymbol{L}$

式 (8.20), (8.26)–(8.28), (8.34) より、式 (8.35) を満たす $\boldsymbol{L}(\boldsymbol{r},t)$ の各成分は

$$
\begin{cases}
L_{11} = 0, \quad L_{12} = -\rho_0\partial_x, \quad L_{13} = -\rho_0\partial_y, \quad L_{14} = -\rho_0\partial_z, \quad L_{15} = 0, \\
L_{21} = \frac{1}{\rho_0}(-p_\rho\partial_x + \dot{\gamma}\mu_\rho\partial_y), \quad L_{22} = \frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)\partial_x^2 + \mu_0(\partial_y^2 + \partial_z^2)\}, \\
L_{23} = \frac{1}{\rho_0}(-\rho_0\dot{\gamma} + (\lambda_0 + \mu_0)\partial_x\partial_y), \quad L_{24} = \frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\partial_x\partial_z, \\
L_{25} = \frac{1}{\rho_0}(-p_T\partial_x + \dot{\gamma}\mu_T\partial_y), \\
L_{31} = \frac{1}{\rho_0}(-p_\rho\partial_y + \dot{\gamma}\mu_\rho\partial_x), \quad L_{32} = \frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\partial_x\partial_y, \\
L_{33} = \frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)\partial_y^2 + \mu_0(\partial_x^2 + \partial_z^2)\}, \\
L_{34} = \frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\partial_y\partial_z, \quad L_{35} = \frac{1}{\rho_0}(-p_T\partial_y + \dot{\gamma}\mu_T\partial_x), \\
L_{41} = -\frac{1}{\rho_0}p_\rho\partial_z, \quad L_{42} = \frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\partial_x\partial_z, \quad L_{43} = \frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\partial_y\partial_z, \\
L_{44} = \frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)\partial_z^2 + \mu_0(\partial_x^2 + \partial_y^2)\}, \quad L_{45} = -p_T\partial_z, \\
L_{51} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_\rho\dot{\gamma}^2 - \chi_\rho\}, \quad L_{52} = \frac{2}{3\rho_0}(-p_0\partial_x + 2\mu_0\dot{\gamma}\partial_y), \\
L_{53} = \frac{2}{3\rho_0}(-p_0\partial_y + 2\mu_0\dot{\gamma}\partial_x), \quad L_{54} = -\frac{2}{3\rho_0}p_0\partial_z, \\
L_{55} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_T\dot{\gamma}^2 + \kappa_0(\partial_x^2 + \partial_y^2 + \partial_z^2) - \chi_T\},
\end{cases}
\tag{B.1}
$$

で与えられる。

B.1.2 sheared frame 系での $\boldsymbol{L}'$

sheared frame での時間発展方程式 (8.40) を満たす $\boldsymbol{L}'$ は、式 (B.1) において式 (8.38) で与えられる置き換えにより得られ、

$$
\begin{cases}
L_{11}=0, \quad L_{12}=-\rho_0\partial_x, \quad L_{13}=-\rho_0(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x), \quad L_{14}=-\rho_0\partial_z, \quad L_{15}=0, \\
L_{21}=\frac{1}{\rho_0}\{-p_\rho\partial_x+\dot{\gamma}\mu_\rho(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)\}, \\
L_{22}=\frac{1}{\rho_0}[(\lambda_0+2\mu_0)\partial_x^2+\mu_0\{(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)^2+\partial_z^2\}], \\
L_{23}=\frac{1}{\rho_0}\{-\rho_0\dot{\gamma}+(\lambda_0+\mu_0)\partial_x(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)\}, \quad L_{24}=\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0+\mu_0)\partial_x\partial_z, \\
L_{25}=\frac{1}{\rho_0}\{-p_T\partial_x+\dot{\gamma}\mu_T(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)\}, \\
L_{31}=\frac{1}{\rho_0}\{-p_\rho(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)+\dot{\gamma}\mu_\rho\partial_x\}, \quad L_{32}=\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0+\mu_0)\partial_x(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x), \\
L_{33}=\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0+2\mu_0)(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)^2+\mu_0(\partial_x^2+\partial_z^2)\}, \\
L_{34}=\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0+\mu_0)(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)\partial_z, \\
L_{35}=\frac{1}{\rho_0}\{-p_T(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)+\dot{\gamma}\mu_T\partial_x\}, \\
L_{41}=-\frac{1}{\rho_0}p_\rho\partial_z, \quad L_{42}=\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0+\mu_0)\partial_x\partial_z, \quad L_{43}=\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0+\mu_0)(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)\partial_z, \\
L_{44}=\frac{1}{\rho_0}[(\lambda_0+2\mu_0)\partial_z^2+\mu_0\{\partial_x^2+(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)^2\}], \quad L_{45}=-p_T\partial_z, \\
L_{51}=\frac{2}{3\rho_0}[\mu_\rho\dot{\gamma}^2+\partial_z^2\}-\chi_\rho], \\
L_{52}=\frac{2}{3\rho_0}\{-p_0\partial_x+2\mu_0\dot{\gamma}(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)\}, \\
L_{53}=\frac{2}{3\rho_0}\{-p_0(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)+2\mu_0\dot{\gamma}\partial_x\}, \quad L_{54}=-\frac{2}{3\rho_0}p_0\partial_z, \\
L_{55}=\frac{2}{3\rho_0}[\mu_T\dot{\gamma}^2+\kappa_0\{\partial_x^2+(\partial_y-\dot{\gamma}t\partial_x)^2+\partial_z^2\}-\chi_T],
\end{cases}
\tag{B.2}
$$

となる。

B.2 波数空間

B.2.1 $\hat{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}$ に関する発展行列 $\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}}$

波数空間での時間発展方程式 (8.42) を満たす $\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}}$ は Fourier 変換の定義式 (8.41) より式 (B.2) で

$$\partial_x\to -iq_x, \quad \partial_y\to -iq_y(t), \quad \partial_z\to -iq_z, \tag{B.3}$$

と置き換えることで得られ、各成分は

$$
\begin{cases}
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}11} = 0, \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}12} = i\rho_0 q_x, \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}13} = i\rho_0 q_y(t), \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}14} = i\rho_0 q_z, \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}15} = 0, \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}21} = \frac{i}{\rho_0}(p_\rho q_x - \dot{\gamma}\mu_\rho q_y(t)), \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}22} = -\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)q_x^2 + \mu_0(q_y(t)^2 + q_z^2)\}, \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}23} = -\frac{1}{\rho_0}\{\rho_0\dot{\gamma} + (\lambda_0 + \mu_0)q_x q_y(t)\}, \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}24} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_x q_z, \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}25} = \frac{i}{\rho_0}(p_T q_x - \dot{\gamma}\mu_T q_y(t)), \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}31} = \frac{i}{\rho_0}(p_\rho q_y(t) - \dot{\gamma}\mu_\rho q_x), \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}32} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_x q_y(t), \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}33} = -\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)q_y(t)^2 + \mu_0(q_x^2 + q_z^2)\}, \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}34} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_y(t)q_z, \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}35} = \frac{i}{\rho_0}(p_T q_y(t) - \dot{\gamma}\mu_T q_x), \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}41} = \frac{i}{\rho_0}p_\rho q_z, \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}42} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_x q_z, \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}43} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_y(t)q_z, \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}44} = -\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)q_z^2 + \mu_0(q_x^2 + q_y(t)^2)\}, \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}45} = \frac{i}{\rho_0}p_T q_z, \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}51} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_\rho\dot{\gamma}^2 - \chi_\rho\}, \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}52} = \frac{2i}{3\rho_0}(p_0 q_x - 2\mu_0\dot{\gamma}q_y(t)), \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}53} = \frac{2i}{3\rho_0}(p_0 q_y(t) - 2\mu_0\dot{\gamma}q_x), \quad \boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}54} = \frac{2i}{3\rho_0}p_0 q_z, \\
\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}55} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_T\dot{\gamma}^2 - \kappa_0(q_x^2 + q_y(t)^2 + q_z^2) - \chi_T\},
\end{cases}
\tag{B.4}
$$

となる。

B.2.2 $\tilde{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}$ に関する発展行列 $\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}}$

$\tilde{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}$ の時間発展方程式 (8.44) が満たす $\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}}$ は、$\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}}$ の各成分 $\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}\mu\nu}$ において μ, ν のどちらか一方だけが 2,3,4 の値をとる項のみ $\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}\mu\nu} \to -i\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}\mu\nu}$ と置き換えることによって得られ、

$$
\begin{cases}
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}11} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}12} = \rho_0 q_x, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}13} = \rho_0 q_y(t), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}14} = \rho_0 q_z, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}15} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}21} = -\frac{1}{\rho_0}(p_\rho q_x - \dot{\gamma}\mu_\rho q_y(t)), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}22} = -\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)q_x^2 + \mu_0(q_y(t)^2 + q_z^2)\}, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}23} = -\frac{1}{\rho_0}\{\rho_0\dot{\gamma} + (\lambda_0 + \mu_0)q_x q_y(t)\}, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}24} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_x q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}25} = -\frac{1}{\rho_0}(p_T q_x - \dot{\gamma}\mu_T q_y(t)), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}31} = -\frac{1}{\rho_0}(p_\rho q_y(t) - \dot{\gamma}\mu_\rho q_x), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}32} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_x q_y(t), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}33} = -\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)q_y(t)^2 + \mu_0(q_x^2 + q_z^2)\}, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}34} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_y(t)q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}35} = -\frac{1}{\rho_0}(p_T q_y(t) - \dot{\gamma}\mu_T q_x), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}41} = -\frac{1}{\rho_0}p_\rho q_z, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}42} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_x q_z, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}43} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_y(t)q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}44} = -\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)q_z^2 + \mu_0(q_x^2 + q_y(t)^2)\}, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}45} = -\frac{1}{\rho_0}p_T q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}51} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_\rho\dot{\gamma}^2 - \chi_\rho\}, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}52} = \frac{2}{3\rho_0}(p_0 q_x - 2\mu_0\dot{\gamma}q_y(t)), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}53} = \frac{2}{3\rho_0}(p_0 q_y(t) - 2\mu_0\dot{\gamma}q_x), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}54} = \frac{2}{3\rho_0}p_0 q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}55} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_T\dot{\gamma}^2 - \kappa_0(q_x^2 + q_y(t)^2 + q_z^2) - \chi_T\},
\end{cases}
\tag{B.5}
$$

となる。これを $\boldsymbol{L}_{\boldsymbol{q}}$ を時間 t について

$$\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}} = \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0} + t\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1} + t^2\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2}, \tag{B.6}$$

と展開すれば、

$$\begin{cases} \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,11} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,12} = \rho_0 q_x, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,13} = \rho_0 q_y, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,14} = \rho_0 q_z, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,15} = 0, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,21} = -\frac{1}{\rho_0}(p_\rho q_x - \dot{\gamma}\mu_\rho q_y), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,22} = -\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)q_x^2 + \mu_0(q_y^2 + q_z^2)\}, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,23} = -\frac{1}{\rho_0}\{\rho_0\dot{\gamma} + (\lambda_0 + \mu_0)q_x q_y\}, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,24} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_x q_z, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,25} = -\frac{1}{\rho_0}(p_T q_x - \dot{\gamma}\mu_T q_y), \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,31} = -\frac{1}{\rho_0}(p_\rho q_y - \dot{\gamma}\mu_\rho q_x), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,32} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_x q_y, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,33} = -\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)q_y^2 + \mu_0(q_x^2 + q_z^2)\}, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,34} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_y q_z, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,35} = -\frac{1}{\rho_0}(p_T q_y - \dot{\gamma}\mu_T q_x), \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,41} = -\frac{1}{\rho_0}p_\rho q_z, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,42} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_x q_z, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,43} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)q_y q_z, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,44} = -\frac{1}{\rho_0}\{(\lambda_0 + 2\mu_0)q_z^2 + \mu_0(q_x^2 + q_y^2)\}, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,45} = -\frac{1}{\rho_0}p_T q_z, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,51} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_\rho\dot{\gamma}^2 - \chi_\rho\}, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,52} = \frac{2}{3\rho_0}(p_0 q_x - 2\mu_0\dot{\gamma}q_y), \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,53} = \frac{2}{3\rho_0}(p_0 q_y - 2\mu_0\dot{\gamma}q_x), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,54} = \frac{2}{3\rho_0}p_0 q_z, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,55} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_T\dot{\gamma}^2 - \kappa_0(q_x^2 + q_y^2 + q_z^2) - \chi_T\}, \end{cases} \tag{B.7}$$

$$\begin{cases} \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,11} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,12} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,13} = -\rho_0\dot{\gamma}q_x, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,14} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,15} = 0, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,21} = -\frac{1}{\rho_0}\dot{\gamma}^2\mu_\rho q_x, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,22} = \frac{2}{\rho_0}\mu_0\dot{\gamma}^2 q_x q_y, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,23} = \frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\dot{\gamma}q_x^2, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,24} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,25} = -\frac{1}{\rho_0}\mu_T\dot{\gamma}^2 q_x, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,31} = \frac{1}{\rho_0}p_\rho\dot{\gamma}q_x, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,32} = \frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\dot{\gamma}q_x^2, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,33} = \frac{2}{\rho_0}(\lambda_0 + 2\mu_0)\dot{\gamma}q_x q_y, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,34} = \frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\dot{\gamma}q_x q_z, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,35} = \frac{1}{\rho_0}p_T\dot{\gamma}q_x, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,41} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,42} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,43} = \frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\dot{\gamma}q_x q_z, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,44} = \frac{2}{\rho_0}\mu_0\dot{\gamma}q_x q_y, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,45} = 0, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,51} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,52} = \frac{4}{3\rho_0}\mu_0\dot{\gamma}^2 q_x, \\ \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,53} = -\frac{2}{3\rho_0}p_0\dot{\gamma}q_x, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,54} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,55} = \frac{4}{3\rho_0}\kappa_0\dot{\gamma}q_x q_y, \end{cases} \tag{B.8}$$

$$
\begin{cases}
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,11} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,12} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,13} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,14} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,15} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,21} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,22} = -\frac{1}{\rho_0}\mu_0\dot{\gamma}^2 q_x^2, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,23} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,24} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,25} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,31} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,32} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,33} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + 2\mu_0)\dot{\gamma}^2 q_x^2, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,34} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,35} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,41} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,42} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,43} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,44} = -\frac{1}{\rho_0}\mu_0\dot{\gamma}^2 q_x^2, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,45} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,51} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,52} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,53} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,54} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,55} = -\frac{2}{3\rho_0}\kappa_0\dot{\gamma}^2 q_x^2,
\end{cases}
\tag{B.9}
$$

が得られる。

B.2.3 有限系の場合の $\tilde{\boldsymbol{X}}_{\boldsymbol{q}}$ に関する発展行列 $\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}}$

有限系での発展行列 $\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{qi}}(i = 0, 1, 2)$ は、無限系での式 (B.7)–(B.9) に式 (8.53), (8.55) の置き換えを行うことで得られ、各成分は

$$
\begin{cases}
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,11} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,12} = \rho_0 \sin q_x, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,13} = \rho_0 \sin q_y, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,14} = \rho_0 \sin q_z, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,15} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,21} = -\frac{1}{\rho_0}(p_\rho \sin q_x - \dot{\gamma}\mu_\rho \sin q_y), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,22} = -\frac{1}{\rho_0}\{2(\lambda_0 + 2\mu_0)(\cos q_x - 1) + 2\mu_0(\cos q_y + \cos q_z - 2)\}, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,23} = -\frac{1}{\rho_0}\{\rho_0\dot{\gamma} + (\lambda_0 + \mu_0)\sin q_x \sin q_y\}, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,24} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\sin q_x \sin q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,25} = -\frac{1}{\rho_0}(p_T \sin q_x - \dot{\gamma}\mu_T \sin q_y), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,31} = -\frac{1}{\rho_0}(p_\rho \sin q_y - \dot{\gamma}\mu_\rho \sin q_x), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,32} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\sin q_x \sin q_y, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,33} = -\frac{1}{\rho_0}\{2(\lambda_0 + 2\mu_0)(\cos q_y - 1) + 2\mu_0(\cos q_x + \cos q_y - 2)\}, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,34} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\sin q_y \sin q_z, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,35} = -\frac{1}{\rho_0}(p_T \sin q_y - \dot{\gamma}\mu_T \sin q_x), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,41} = -\frac{1}{\rho_0}p_\rho \sin q_z, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,42} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\sin q_x \sin q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,43} = -\frac{1}{\rho_0}(\lambda_0 + \mu_0)\sin q_y \sin q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,44} = -\frac{1}{\rho_0}\{2(\lambda_0 + 2\mu_0)(\cos q_z - 1) + 2\mu_0(\cos q_x + \cos q_y - 2)\}, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,45} = -\frac{1}{\rho_0}p_T \sin q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,51} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_\rho\dot{\gamma}^2 0 - \chi_\rho\}, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,52} = \frac{2}{3\rho_0}(p_0 \sin q_x - 2\mu_0\dot{\gamma}\sin q_y), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,53} = \frac{2}{3\rho_0}(p_0 \sin q_y - 2\mu_0\dot{\gamma}\sin q_x), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,54} = \frac{2}{3\rho_0}p_0 \sin q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0,55} = \frac{2}{3\rho_0}\{\mu_T\dot{\gamma}^2 - 2\kappa_0(\cos q_x + \cos q_y + \cos q_z - 3) - \chi_T\},
\end{cases}
\tag{B.10}
$$

$$\begin{cases}
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,11} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,12} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,13} = -\rho_0 \dot{\gamma} \sin q_x, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,14} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,15} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,21} = -\frac{1}{\rho_0} \dot{\gamma}^2 \mu_\rho \sin q_x, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,22} = \frac{2}{\rho_0} \mu_0 \dot{\gamma}^2 \sin q_x \sin q_y, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,23} = \frac{1}{2\rho_0} (\lambda_0 + \mu_0) \dot{\gamma} (\cos q_x - 1), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,24} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,25} = -\frac{1}{\rho_0} \mu_T \dot{\gamma}^2 \sin q_x, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,31} = \frac{1}{\rho_0} p_\rho \dot{\gamma} \sin q_x, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,32} = \frac{1}{2\rho_0} (\lambda_0 + \mu_0) \dot{\gamma} (\cos q_x - 1), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,33} = \frac{2}{\rho_0} (\lambda_0 + 2\mu_0) \dot{\gamma} \sin q_x \sin q_y, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,34} = \frac{1}{\rho_0} (\lambda_0 + \mu_0) \dot{\gamma} \sin q_x \sin q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,35} = \frac{1}{\rho_0} p_T \dot{\gamma} \sin q_x, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,41} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,42} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,43} = \frac{1}{\rho_0} (\lambda_0 + \mu_0) \dot{\gamma} \sin q_x \sin q_z, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,44} = \frac{2}{\rho_0} \mu_0 \dot{\gamma} \sin q_x \sin q_y, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,45} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,51} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,52} = \frac{4}{3\rho_0} \mu_0 \dot{\gamma}^2 \sin q_x, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,53} = -\frac{2}{3\rho_0} p_0 \dot{\gamma} \sin q_x, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,54} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1,55} = \frac{4}{3\rho_0} \kappa_0 \dot{\gamma} \sin q_x \sin q_y,
\end{cases} \tag{B.11}$$

$$\begin{cases}
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,11} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,12} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,13} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,14} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,15} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,21} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,22} = -\frac{2}{\rho_0} \mu_0 \dot{\gamma}^2 (\cos q_x - 1), \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,23} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,24} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,25} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,31} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,32} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,33} = -\frac{2}{\rho_0} (\lambda_0 + 2\mu_0) \dot{\gamma}^2 (\cos q_x - 1) x, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,34} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,35} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,41} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,42} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,43} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,44} = -\frac{2}{\rho_0} \mu_0 \dot{\gamma}^2 (\cos q_x - 1), \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,45} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,51} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,52} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,53} = 0, \\
\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,54} = 0, \quad \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2,55} = -\frac{4}{3\rho_0} \kappa_0 \dot{\gamma}^2 (\cos q_x - 1),
\end{cases} \tag{B.12}$$

で与えられる。また、$\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}}$ は

$$\tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}} = \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}0} + t \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}1} + t^2 \tilde{\boldsymbol{L}}_{\boldsymbol{q}2}, \tag{B.13}$$

を計算することにより得られる。

付 録C　Lennard-Jones系での動径分布関数

第9章でLennard-Jones系の輸送係数を求める際、動径分布関数が必要となる。しかし理論的な表式が求められていないため、MDシミュレーションやMCシミュレーションを実際に行なって具体的な密度・温度での値を求めるか [108]、PY近似などを用いて近似値を求める必要がある [109]–[111]。本研究では線形安定性解析を行なうに当たってシミュレーションで求めた値を使って幅広いパラメータ領域でフィッティングした関数形を用いることにする。以下では粒径 σ、ポテンシャル井戸の深さ ε で無次元化した値 $r^* = r/\sigma$、$\rho^* = \rho\sigma^3$、$T^* = T/\varepsilon$ を用いることにする。

C.1　Goldmanの動径分布関数

Goldman (1979) [112] は $0.35 \le \rho^* \le 1.10,\ 0.50 \le T^* \le 5.0$ の範囲で動径分布関数 $g(r^*, \rho^*, T^*)$ を

$$g(r^*, \rho^*, T^*) = g_a(r^*, \rho^*, T^*) + g_b(r^*, \rho^*, T^*) + g_c(r^*, \rho^*, T^*), \tag{C.1}$$

と分解し、それぞれ

$$g_a(r^*, \rho^*, T^*) = \begin{cases} 0 & (r^* \le B_1(\rho^*, T^*)) \\ \frac{B_2(\rho^*, T^*)}{r^* - B_1(\rho^*, T^*)} \exp(-[B_3(\rho^*, T^*)\{\ln(r^* - B_1(\rho^*, T^*)) + B_4(\rho^*, T^*)^2)\}]) & \\ & (r^* > B_1(\rho^*, T^*)) \end{cases}, \tag{C.2}$$

$$g_b(r^*, \rho^*, T^*) = \begin{cases} C(\rho^*, T^*) \exp(-\beta u(r^*)) & (r^* < B_9(\rho^*, T^*)) \\ \exp\left\{-\frac{[r^* - B_5(\rho^*, T^*)]^2}{B_6(\rho^*, T^*)}\right\} & (B_9(\rho^*, T^*) \le r^* \le B_5(\rho^*, T^*)) \\ 1.0 & (r^* > B_5(\rho^*, T^*)) \end{cases}, \tag{C.3}$$

TABLE I: Constants $A_{jk}^{(i)}$ for Eq 2 and 3[a]

(i)	1	1	1	1	2	2	2	2	3	3	3	3
j	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4
k												
1	1.135+0	-2.548-1	8.465-2	-9.357-3	7.926-1	-6.329-1	3.342-1	-5.530-2	1.700+0	-1.020+0	5.913-1	-1.175-1
2	-2.789-1	3.243-1	-1.177-1	1.307-2	-3.394-1	7.190-1	-4.729-1	8.807-2	-8.655-1	1.815-1	-4.322-1	1.436-1
3	8.539-2	-1.485-1	5.137-2	-5.353-3	2.803-1	-2.318-1	1.708-1	-3.535-2	2.311+0	-1.312-1	7.617-2	-4.679-2

(i)	4	4	4	4	5	5	5	5	6	6	6	6
j	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4
k												
1	1.868+0	-8.961-1	2.378-1	-2.853-2	2.057+0	1.589-1	0	0	1.471+0	-8.701-1	3.108-1	-1.869-2
2	-1.090+0	1.249+0	-2.757-1	3.198-2	4.022-1	-3.413-1	0	0	-2.291+0	2.315+0	-8.149-1	5.864-2
3	1.011+0	-6.535-1	1.182-1	-1.109-2	-4.952-1	1.753-1	0	0	1.023+0	-1.342+0	4.783-1	-3.765-2

(i)	7	7	7	7	8	8	8	8	9	9	9	9
j	1	2	3	4	1	2	3	4	1	2	3	4
k												
1	1.107+0	-1.769-1	0	0	2.382+0	3.394-2	4.569-1	-5.133-2	-3.289-1	1.355+0	-3.584-3	-4.227-2
2	6.541-3	2.951-1	0	0	-3.790+0	1.010+0	-1.069+0	1.128-1	7.560-1	-1.226+0	1.007-1	6.798-2
3	-1.805-1	-1.208-1	0	0	1.797+0	-7.930-1	5.757-1	-5.926-2	-3.908-1	6.915-1	-8.409-2	-2.836-2

[a] The notation $+n$ $(-n)$ means that the preceding number is to be multiplied by 10^n (10^{-n}).

図 C.1: 式 (C.5), (C.6) 中の係数 $A_{jk}^{(i)}$ の値 [112]

$$g_c(r^*, \rho^*, T^*) = \begin{cases} 0 & (r^* \le [B_5(\rho^*, T^*) - 0.25B_7(\rho^*, T^*)]) \\ \exp(-B_8(\rho^*, T^*)r) \sin\left[\frac{2\pi(r^* - B_5(\rho^*, T^*) + 0.25B_7(\rho^*, T^*))}{B_7(\rho^*, T^*)}\right] & \\ & (r^* > [B_5(\rho^*, T^*) - 0.25B_7(\rho^*, T^*)]) \end{cases}, \tag{C.4}$$

と与えた。ここで $\beta = T^{*-1}$ であり、各係数 $B_i(\rho^*, T^*), C(\rho^*, T^*)$ は

$$B_i(\rho^*, T^*) = \sum_{j=1}^{4} T^{*j-1} \sum_{k=1}^{3} A_{jk}^{(i)} \rho^{*k-1} \qquad (i = 1, \cdots, 8), \tag{C.5}$$

$$B_9(\rho^*, T^*) = T^{*-2} \sum_{k=1}^{3} A_{1k}^{(9)} \rho^{*k-1} + \sum_{j=2}^{4} T^{*j-2} \sum_{k=1}^{3} A_{jk}^{(9)} \rho^{*k-1}, \tag{C.6}$$

$$C(\rho^*, T^*) = \exp\left(\frac{4}{T^*}\left\{B_9(\rho^*, T^*)^{-12} - B_9(\rho^*, T^*)^{-6}\right\} - \frac{[B_9(\rho^*, T^*) - B_5(\rho^*, T^*)]^2}{B_6(\rho^*, T^*)}\right), \tag{C.7}$$

で与えられ、各係数 $A_{jk}^{(i)}$ は図 C.1 のように書けることを報告している。

C.2 Morsali らの動径分布関数

Morsali ら (2005) [114] は $0.35 \leq \rho^* \leq 1.10,\ 0.50 \leq T^* \leq 5.1$ の範囲で動径分布関数 $g(r^*, \rho^*, T^*)$ を

$$g(r^*, \rho^*, T^*) = \begin{cases} 1 + r^{*-2}\exp[-(ar^* + b)]\sin(cr^* + d) & \\ \qquad +r^{*-2}\exp[-(gr^* + h)]\cos(kr^* + l) & (r^* > 1)\,, \\ s\exp[-(mr^* + n)^4] & (r^* < 1) \end{cases} \tag{C.8}$$

で与えた。ここで a, b, c, d, g, h, k, l, m, n, s は ρ^* と T^* の関数であり、関数形はそれぞれ

$$\begin{aligned}
a(\rho^*, T^*) &= 9.24792 - 2.64281\exp[-0.133386T^*] - 1.35932\exp[-1.25338T^*] \\
&\quad + \frac{0.45602}{\rho^*} - \frac{0.326422}{\rho^{*2}} + \frac{0.045708\exp[-0.133386T^*]}{\rho^{*3}} \\
&\quad - \frac{0.0287681\exp[-1.25338T^*]}{\rho^{*4}}, && \text{(C.9)} \\
b(\rho^*, T^*) &= -8.33289 + 2.1714\exp[-1.00063\rho^*], && \text{(C.10)} \\
c(\rho^*, T^*) &= -0.0677912 - 1.39505\exp[-0.512625T^*] + 36.9323\rho^* \\
&\quad -36.8061\rho^{*2} + 21.7353\rho^{*3} - 7.76671\rho^{*4} + 1.36342\rho^{*5}, && \text{(C.11)} \\
d(\rho^*, T^*) &= -26.1615 + 27.4846\exp[-1.68124\rho^*] + 6.74296\rho^*, && \text{(C.12)} \\
g(\rho^*, T^*) &= 0.663161 - 0.243089\exp[-1.24749T^*] - 2.059\exp[-0.04261T^*] \\
&\quad + \frac{1.65041}{\rho^*} - \frac{0.343652}{\rho^{*2}} - \frac{0.037698\exp[-1.24749T^*]}{\rho^{*3}} \\
&\quad + \frac{0.008899\exp[-0.04261T^*]}{\rho^{*4}}, && \text{(C.13)} \\
h(\rho^*, T^*) &= 0.0325039 - 1.28792\exp[-2.5487\rho^*], && \text{(C.14)} \\
k(\rho^*, T^*) &= 16.4821 - 0.300612\exp[-0.0937844T^*] - 61.744\rho^* + 145.285\rho^{*2} \\
&\quad -168.087\rho^{*3} + 98.2181\rho^{*4} - 23.0583\rho^{*5}, && \text{(C.15)} \\
l(\rho^*, T^*) &= -6.7293 - 59.5002\exp[-10.2466\rho^*] - 0.43596\rho^*, && \text{(C.16)} \\
s(\rho^*, T^*) &= \left(1.25225 - 1.0179\rho^* + \frac{0.358564}{T^*} - \frac{0.18533}{T^{*2}} + \frac{0.0482119}{T^{*3}}\right) \\
&\quad \times \left(1.27592 - 1.78785\rho^* + 0.634741\rho^{*2}\right)^{-1}, && \text{(C.17)} \\
m(\rho^*, T^*) &= -5.668 - 3.62671\exp[-0.680654T^*] + \frac{0.294481}{T^*} \\
&\quad +0.186395\rho^* - 0.286954\rho^{*2}, && \text{(C.18)} \\
n(\rho^*, T^*) &= 6.01325 + 3.84098\exp[-0.60793T^*], && \text{(C.19)}
\end{aligned}$$

で与えられる。

C.3 Matteori と Mansoori の動径分布関数

Matteori と Mansoori (1995) [115] は

$$g(r^*,\rho^*,T^*)=\begin{cases}1+\frac{1}{(r^*/h)^m}[g(d)-1-\lambda]+\frac{(r^*/h)-1+\lambda}{(r^*/h)} & \\ \qquad\times\cos[\beta((r^*/h)-1)]\exp[-\xi((r^*/h)-1)] & (r^*/h\geq 1)\\ g(d)\exp[-\theta((r^*/h)-1)^2] & (r^*/h<1)\end{cases}, \tag{C.20}$$

ここで h, m, $g(d)$, λ, ξ, β, θ はフィッティングパラメータであり ρ^* と T^* の関数となる。具体的な表式は Laghaei ら (2005) [116] によって

$$h(\rho^*,T^*) = 1+\frac{1}{1000}\left[403.5-371.7\exp\left(-\frac{1}{T^*}\right)\right]\exp(-1.552\rho^*), \tag{C.21}$$

$$m(\rho^*,T^*) = \left[22.79-17.54\exp\left(-\frac{1}{T^*}\right)\right]\frac{\rho^{*2}-0.0508}{\rho^*}, \tag{C.22}$$

$$g(d)(\rho^*,T^*) = \left[1.708-0.8569\exp\left(-\frac{1}{T^*}\right)\right]\exp(0.8196\rho^*), \tag{C.23}$$

$$\lambda(\rho^*,T^*) = \left[0.5644-0.3057\exp\left(-\frac{1}{T^*}\right)\right]\exp(0.8579\rho^*), \tag{C.24}$$

$$\xi(\rho^*,T^*) = \left[0.2411+0.1387\exp\left(-\frac{1}{T^*}\right)\right]\frac{\rho^{*2}+4.216}{\rho^*}, \tag{C.25}$$

$$\beta(\rho^*,T^*) = \left[5.289-1.180\exp\left(-\frac{1}{T^*}\right)\right]\exp(0.3996\rho^*), \tag{C.26}$$

$$\theta(\rho^*,T^*) = \left[71.44-46.68\exp\left(-\frac{1}{T^*}\right)\right]\exp(1.100\rho^*), \tag{C.27}$$

と与えられている。本研究では輸送係数の計算に Laghaei らの理論を用いているため、この動径分布関数の表式を用いることにする。

付 録 D　Lennard-Jones 系での輸送係数

Lennard-Jones 流体系での輸送係数（自己拡散係数 D_{LJ}、せん断粘性率 μ、体積粘性率 ζ、熱伝導率 κ）は先行研究 [117–119] などにより数表で求められている。ここでは解析的な形で与えている先行研究 [120–130] の関数形を用いることにする。また、同じグループによって WCA 系の輸送係数も求められている [131]。

D.1 自己拡散係数

Rah と Eu (1999) [122] は希薄気体での自己拡散係数 [104]

$$D_0(\rho, T) \quad = \quad 1.019 \cdot \frac{3}{8\rho\sigma^2}\sqrt{\frac{T}{\pi m}}, \tag{D.1}$$

を用いて、Lennard-Jones 系の自己拡散係数を

$$D_{\mathrm{LJ}}(\rho, T) \quad = \quad \frac{3}{8\rho\sigma^2}\sqrt{\frac{T}{\pi m}}\exp\left(-\frac{\alpha v^*}{T}(p + A\rho^2)\right), \tag{D.2}$$

と求めた。ここで αv^* は

$$\alpha v^* = 1.1 \cdot \frac{\pi\sigma^3}{6} \tag{D.3}$$

で与えられる。

D.2 圧力

一般に、動径分布関数 $g(r, \rho, T)$ が与えられたときに圧力 p はビリアル方程式 [132] によって

$$p = \rho T - \frac{2\pi}{3}\rho^2\int_0^\infty drr^3\phi'(r)g(r, \rho, T), \tag{D.4}$$

で与えられる。これより $p_\rho = (\partial p/\partial \rho)_T$, $p_T = (\partial p/\partial T)_\rho$ も計算できて、

$$
\begin{aligned}
p_\rho &= T - \frac{2\pi}{3}\rho \int_0^\infty dr r^3 \phi'(r) \left(2g(r,\rho,T) + \rho \frac{\partial g(r,\rho,T)}{\partial \rho} \right), \qquad \text{(D.5)} \\
p_T &= \rho - \frac{2\pi}{3}\rho^2 \int_0^\infty dr r^3 \phi'(r) \frac{\partial g(r,\rho,T)}{\partial T}, \qquad \text{(D.6)}
\end{aligned}
$$

が得られる。これらの表式に Lennard-Jones 系の動径分布関数を代入することで、Lennard-Jones 系の圧力を求めることができる。

D.3 せん断粘性率

せん断粘性率 μ は稀薄気体での値 $\mu_k(T)$ と Lennard-Jones ポテンシャルによる補正項 $\mu_p(\rho,T)$ との和

$$
\mu(\rho,T) = \mu_k(T) + \mu_p(\rho,T), \qquad \text{(D.7)}
$$

で与えられる [120, 121]。ここで

$$
\begin{aligned}
\mu_k(T) &= cm\rho D_0(\rho,T), \qquad \text{(D.8)} \\
\mu_p(\rho,T) &= \frac{\pi\rho^2}{45D}\bar{\omega}(\rho,T)\exp[-\hat{\zeta}(\rho,T)], \qquad \text{(D.9)}
\end{aligned}
$$

であり、

$$
\begin{aligned}
c &= \frac{3}{5}, \qquad \text{(D.10)} \\
\bar{\omega}(\rho,T) &= \int_0^{3\sigma} dr r^5 \phi'(r) g(r,\rho,T), \qquad \text{(D.11)} \\
\hat{\zeta}(\rho,T) &= \begin{cases} 0 & (T \geq T_\mathrm{c}) \\ -0.36 + \rho^* & (T < T_\mathrm{c}) \end{cases}, \qquad \text{(D.12)}
\end{aligned}
$$

である。

D.4 体積粘性率

体積粘性率 $\zeta(\rho,T)$ はせん断粘性率の Lennard-Jones ポテンシャル部分 $\mu_p(\rho,T)$ を用いて

$$
\zeta(\rho,T) = \frac{2}{3}\mu_p = \frac{2\pi\rho^2}{135D}\bar{\omega}(\rho,T)\exp[-\hat{\zeta}(\rho,T)] \qquad \text{(D.13)}
$$

で与えられる [121]。

D.5 熱伝導率

熱伝導率 κ は稀薄気体での値 $\kappa_k(T)$ と Lennard-Jones ポテンシャルによる補正項 $\kappa_p(\rho, T)$ との和

$$\kappa(\rho, T) = \kappa_k(T) + \kappa_p(\rho, T), \tag{D.14}$$

で与えられる [123]。ここで $\kappa_k(T)$ とせん断粘性率 $\mu_k(T)$ の間には、

$$\kappa_k(T) = f_{\mathrm{E}} c_v \mu_k(T), \tag{D.15}$$

という関係が成り立つ [104, 123]。ここで f_{E} は Eucken factor、c_v は定積比熱である。また $\kappa_p(\rho, T)$ は

$$\kappa_p(\rho, T) = \frac{\rho^2}{6D} \langle \chi(\rho, T) \rangle \exp[-\hat{\zeta}(\rho, T)], \tag{D.16}$$

で与えられる。ここで、

$$\begin{aligned} \langle \chi(\rho, T) \rangle &= \frac{4\pi k_{\mathrm{B}} \bar{\kappa}}{m} \left[- \int_0^{3\sigma} dr r^4 \phi(r) g(r, \rho, T) \right. \\ &\qquad \left. + \frac{1}{5} \int_0^{3\sigma} dr r^5 \phi'(r) g(r, \rho, T) \right], \\ \bar{\kappa} &= a_0 \frac{\alpha T}{1 + 2\alpha T}, \qquad (D.17) \\ a_0 &\simeq 0.7, \qquad (D.18) \\ \alpha &= -\frac{1}{\rho} \left(\frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_p, \qquad (D.19) \end{aligned}$$

である。式 (D.19) の α は、Generic van der Waals equation [133]

$$[p + A(\rho, T)\rho^2][1 - B(\rho, T)\rho] = \rho T, \tag{D.20}$$

により計算することができる。ここで $A(\rho, T), B(\rho, T)$ は

$$\begin{aligned} A(\rho, T) &= \frac{2\pi}{3} \int_\sigma^\infty dr r^3 \phi'(r) g(r, \rho, T), \qquad (D.21) \\ B(\rho, T) &= -\frac{\frac{2\pi}{3} \int_0^\sigma dr r^3 \phi'(r) g(r, \rho, T)}{T - \frac{2\pi}{3} \rho \int_0^\sigma dr r^3 \phi'(r) g(r, \rho, T)}, \qquad (D.22) \end{aligned}$$

で与えられる。これより

$$\alpha = \frac{(A'B + AB')\rho^2 - A'\rho + (B'p + 1)}{3AB\rho^2 - 2A\rho + (Bp + T)}. \tag{D.23}$$

を得る。ここで A', B' はそれぞれ A, B の T 微分 $(\partial A/\partial T)_\rho, (\partial B/\partial T)_\rho$ を表す。

謝辞

本研究テーマの遂行、本修士論文の執筆にあたり、指導教員である早川尚男先生には手厚いご指導をいただきました。ここに深く感謝申し上げます。

研究室 OB の齊藤国靖さんには渡欧前のお忙しい時期にも関わらず、分子動力学法の基礎を丁寧に教えていただきました。金澤輝代士さん、佐野友彦君には日々の議論・自主ゼミを通じて研究に取り組む姿勢を、杉本高大さんには趣味を持つことの重要性を教えていただきました。この方々には特に感謝しております。また、研究室メンバーの皆様、基礎物理学研究所の皆様、物理学教室の皆様、大槻道夫さん、観山正道さんをはじめ学会・研究会などで議論していただいた皆様にも深くお礼を申し上げます。

最後にこれまで支えてくれた家族に心から感謝するとともに、これからも私の生き方へのご理解をよろしくお願い申し上げます。

参考文献

[1] 早川 尚男 『散逸粒子系の力学』 岩波講座 物理の世界 物理と数理 4 (岩波書店, 2003).

[2] R. A. Bagnold, "The Physics of Blown Sand and Desert Dunes", Dover Publications, New York, 2005.

[3] D. A. Kurtze, and D. C. Hong, *Phys. Rev. E* **52**, 218–221 (1995).

[4] D. Helbing, *Physica A* **233**, 253–282 (1996).

[5] R. Ramírez, T. Pöschel, N. V. Brilliantov, and T. Schwager, *Phys. Rev. E* **60**, 4465–4472 (1999).

[6] R. Murakami, and H. Hayakawa, in preparation.

[7] H. Kuninaka, and H. Hayakawa, *Phys. Rev. E* **79**, 031309 (2009).

[8] K. Saitoh, A. Bodrova, H. Hayakawa, and N. V. Brilliantov, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 238001 (2010).

[9] H. Kuninaka, and H. Hayakawa, *Phys. Rev. E* **86**, 051302 (2012).

[10] I. Goldhirsch, and G. Zanetti, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 1619–1622 (1993).

[11] I. Goldhirsch, M.-L. Tan, and G. Zanetti, *J Sci. Comput.* **8**, 1–40 (1993).

[12] S. McNamara, *Phys. Fluid A* **5**, 3056–3070 (1993).

[13] S. McNamara, and W. R. Young, *Phys. Rev. E* **53**, 5089–5100 (1996).

[14] S. A. Hill, and G. F. Mazenko, *Phys. Rev. E* **67**, 061302 (2003).

[15] N. V. Brilliantov, and T. Pöschel, "Kinetic Theory of Granular Gases", Oxford University Press, New York, 2004.

[16] N. Brilliantov, C. Salueña, T. Schwager, and T. Pöschel, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 134301-1–4 (2004).

[17] J. F. Lutsko, *Phys. Rev. E* **72**, 021306 (2005).

[18] V. Garzó, and J. W. Dufty, *Phys. Rev. E* **59**, 5895–5911 (1999).

[19] N. Sela, I. Goldhirsch, and S. H. Noskowicz, *Phys. Fluids* **8**, 2337–2353 (1996).

[20] P. Résibois, and M. De Leener, "Classical Kinetic Theory of Fluids", John Wiley & Sons, New York, 1977.

[21] J. T. Jenkins, and S. B. Savage, *J. Fluid Mech.* **130**, 187–202 (1983).

[22] C. K. K. Lun, S. B. Savage, D. J. Jeffrey, and N. Chepurniy, *J. Fluid Mech.* **140**, 223–256 (1984).

[23] J. M. Montanero, V. Garzó, A. Santos, and J. J. Brey, *J. Fluid Mech.* **389**, 391–411 (1999).

[24] K. Saitoh, and H. Hayakawa, *Granul. Matter* **13**, 697–711 (2011).

[25] M. Alam, and P. R. Nott, *J. Fluid Mech.* **343**, 267–301 (1997).

[26] M. Alam, and P. R. Nott, *J. Fluid Mech.* **377**, 99–136 (1998).

[27] P. R. Nott, M. Alam, K. Agrawal, R. Jackson, and S. Sundaresan, *J. Fluid Mech.* **397**, 203–229 (1999).

[28] B. Gayen, and M. Alam, *J. Fluid Mech.* **567**, 195–233 (2006).

[29] M. Alam, *Proc. of 12th Asian Congress of Fluid Mechanics*, Korea (2008).

[30] M. Alam, *Prog. Theor. Phys. Supp.* **195**, 78–100 (2012).

[31] S. B. Savage, *J. Fluid Mech.* **241**, 109–123 (1992).

[32] P. J. Schmid, and H. K. Kytömaa, *J. Fluid Mech* **264**, 255–275 (1994).

[33] V. Garzó, *Phys. Rev. E* **73**, 021304 (2006).

[34] K. Saitoh, and H. Hayakawa, *Phys. Rev. E* **75**, 021302 (2007).

[35] S. L. Conway, and B. J. Glasser, *Phys. Fluids* **16**, 509–529 (2004).

[36] M. E. Lasinski, J. S. Curtis, and J. F. Pekny, *Phys. Fluids* **16**, 265–273 (2004).

[37] A. Castellanos, *Adv. Phys.* **54**, 263–376 (2005).

[38] J.-P. Hansen, and L. Verlet, *Phys. Rev.* **184**, 151–161 (1969).

[39] B. Smit, *J. Chem. Phys.* **96**, 8639–8640 (1992).

[40] M. Rao, B. J. Berne, and M. H. Kalos, *J.Chem. Phys.* **68**, 1325–1336 (1978).

[41] K. Yasuoka, and M. Matsumoto, *J. Chem. Phys.* **109**, 8451–8462 (1998).

[42] P. R. ten Walde, M. J. Ruiz-Montero, and D. Frenkel, *J. Chem. Phys.* **104**, 9932–9947 (1996).

[43] P. R. ten Walde, and D. Frenkel, *J. Chem. Phys.* **109**, 9901–9918 (1998).

[44] H. Vehkamäki, and I. J. Ford, *J. Chem. Phys.* **112**, 4193–4202 (2000).

[45] J. W. P. Schmelzer, "Nucleation Theory and Applications", Wiley-VCH, Weinheim, 2005.

[46] Y. C. Shen, and D. W. Oxtoby, *J. Chem. Phys.* **105**, 6517–6524 (1996).

[47] R. Blaak, S. Auer, D. Frenkel, and H. Löwen, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 068303 (2004).

[48] R. Blaak, S. Auer, D. Frenkel, and H. Löwen, *J. Phys.: Condens.* **16**, S3873–S3884 (2004).

[49] M. V. Smoluchowski, *Z. Phys.* **17**, 557–585 (1916).

[50] 早川 尚男, 数理科学 **291**, 42–49 (1987).

[51] W. H. White, *Proc. Amer. Math. Soc.* **35**, 273–276 (1980).

[52] W. H. White, *J. Colloid Interf. Sci.* **87**, 204–208 (1982).

[53] R. L. Drake, and T. J. Wright, *J. Atmos. Sci.* **29**, 548–556 (1972).

[54] R. M. Ziff, *J. Stat. Phys.* **23**, 241–263 (1980).

[55] R. M. Ziff, E. D. McGrady, and P. Meakin, *J. Chem. Phys.* **82**, 5269–5274 (1985).

[56] J. B. McLeod, *Quart. J. Math. Oxford* **13**, 119–128 (1962).

[57] J. Struckmeier, *Numer. Algorithms* **40**, 233–249 (2005).

[58] S. K. フリードランダー, 早川 一也, 芳住 邦雄訳 『エアロゾルの科学』, (産業図書, 1983).

[59] Y. Oono, and S. Puri, *Phys. Rev. A* **38**, 434–453 (1988).

[60] P. C. Hohenberg, and B. I. Halperin, *Rev. Mod. Phys.* **49**, 435–479 (1977).

[61] A. Onuki, "Phase Transition Dynamics", Cambridge University Press, Cambridge, 2002.

[62] 土井 正男, 小貫 明 『高分子物理・相転移ダイナミクス』 岩波講座現代の物理学 19 (岩波書店, 1992).

[63] L. Berthier, *Phys. Rev. E* **63**, 051503 (2001).

[64] T. Imaeda, A. Furukawa, and A. Onuki, *Phys. Rev. E* **70**, 051503 (2004).

[65] A. Onuki, *J. Phys.: Condens. Matter* **9**, 6119–6157 (1997).

[66] 大澤 映二 編, 片岡 洋右 著 『分子動力学法とモンテカルロ法』 計算化学シリーズ (講談社サイエンティフィク, 1994).

[67] 佐藤 明 『HOW TO 分子シミュレーション -分子動力学法、モンテカルロ法、ブラウン動力学法、散逸粒子動力学法-』 (共立出版, 2004).

[68] D. C. Rapaport, "The Art of Molecular Dynamics Simulation Second Edition", Cambridge University Press, Cambridge, 2004.

[69] D. Frenkel, and B. Smit, "Understanding Molecular Simulation From Algorithm to Applications Second Edition", Academic Press, London, 2002.

[70] M. Griebel, S. Knapek, and G. Zumbusch, "Numerical Simulation in Molecular Dynamics Numeric, Algorithm, Parallelization, Applications" Texts in Computational Science and Engineering, Springer-Verlag, Berlin, 2007.

[71] M. P. Allen, and D. J. Tildersley, "Computer Simulation of Liquids", Oxford University Press, Oxford, 1987.

[72] J. E. Jones, *Proc. R. Soc. Lond. A* **106**, 441-462 (1924).

[73] J. D. Weeks, D. Chandler, and H. C. Andersen, *J. Chem. Phys.* **54**, 5237–5247 (1971).

[74] H. Yukawa, *Proc. Phys.-Math. Soc. Japan* **17**, 48–57 (1935).

[75] E. A. Mastny, and J. J. de Pablo, *J. Chem. Phys.* **127**, 104504 (2007).

[76] B. L. Holian, A. F. Voter, N. J. Wagner, R. J. Ravelo, S. P. Chen, W. G. Hoover, C. G. Hoover, J. E. Hammerberg, and T. D. Dontje, *Phys. Rev. A* **43**, 2655–2661 (1991).

[77] H. Watanabe, M. Suzuki, and N. Ito, *Prog. Theor. Phys.*, **126**, 203–235 (2011).

[78] 齊藤 国靖, 修士論文 "粉体せん断流の理論的および数値的研究", 2007.

[79] Y-h. Taguchi, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1367–1370 (1992).

[80] M. Otsuki, H. Hayakawa, and S. Luding, *Prog. Theor. Phys. Supp.* **184**, 110–133 (2010).

[81] W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, and B. P. Flannery, "Numerical Recipes The Art of Scientific Computing Third Edition", Cambridge University Press, Cambridge, 2007.

[82] M. Otsuki, and H. Hayakawa, *Phys. Rev. E* **86**, 031505 (2012).

[83] R. N. Dave, A. D. Rosato, and K. Bhaswan, *Mech. Res. Commun.* **22**, 335–342 (1995).

[84] A. Karison, and M. L. Hunt, *J. Heat Transf.* **121**, 984–991 (1999).

[85] M. W. Richman, and C. S. Chou, *Z. Angew. Math. Phys.* **39**, 885–901 (1988).

[86] C. S. Campbell, *J. Fluid Mech.* **348**, 85–101 (1997).

[87] M.-L. Tan, and I. Goldhirsch, *Phys. Fluids* **9**, 856–869 (1997).

[88] D. J. Evans, and G. P. Morriss, *Phys. Rev. A* **30**, 1528–1530 (1984).

[89] D. J. Evans, and G. P. Morriss, "Statistical Mechanics of Nonequilibrium Liquids Second Edition", Cambridge University Press, Cambridge, 2008.

[90] A. W. Lees, and S. F. Edwards, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **5**, 1921–1929 (1972).

[91] A. Lotfi, J. Vrabec, and J. Fischer, *Mol. Phys.* **76**, 1319–1333 (1992).

[92] H. Watanabe, N. Ito, and C. -K. Hu, *J. Chem. Phys.* **136**, 204102 (2012).

[93] S. Takada, and H. Hayakawa, *Slow Dynamics in Complex Systems*, edited by M. Tokuyama, and I. Oppenheim (AIP Publ., New York) to be published, arXiv:1211.3806.

[94] I. Goldhirsch, *Powder Technol.* **182**, 130–136 (2008).

[95] I. Goldhirsch, *Annu. Rev. Fluid Mech.* **35**, 267–293 (2003).

[96] P. K. Haff, *J. Fluid Mech.* **134**, 401–430 (1983).

[97] S. Takada, and H. Hayakawa, submitted to Powders & Grains 2013, arXiv:1211.3801.

[98] 今井 功 『流体力学 前編』 物理学選書 14 (裳華房, 1973).

[99] L. D. Landau, and E. M. Lifshitz, "Fluid Mechanics Second Edition", Volume 6 of Course of Theoretical Physics, Pergamon Press, 1987.

[100] 早川 尚男 『非平衡統計力学』 臨時別冊・数理科学 SGC ライブラリ–54 (サイエンス社, 2007).

[101] H. Hayakawa, and M. Otsuki, *Prog. Theor. Phys.* **119**, 381–402 (2008).

[102] K. Suzuki, and H. Hayakawa, *Phys. Rev. E* **87**, 012304 (2013).

[103] H. Hayakawa, and T. Koga, *J. Phys. Soc. Jpn.* **59**, 3542–3552 (1990).

[104] S. Chapman, and T. G. Cowling, "The Mathematical Theory of Non-uniform Gases Third Edition", Cambridge University Press, Cambridge, 1970.

[105] B. J. Alder, and T. E. Wainwright, *J. Chem. Phys.* **31**, 459–466 (1959).

[106] D. C. Rapaport, *J. Comput. Phys.* **34**, 184–201 (1980).

[107] B. D. Lubachevsky, *J. Comput. Phys.* **94**, 255–283 (1991).

[108] J. G. Kirkwood, V. A. Lewinson, and B. J. Alder, *J. Chem. Phys.* **20**, 929–938 (1952).

[109] J. K. Percus, and G. J. Yevick, *Phys. Rev.* **110**, 1–13 (1958).

[110] M. S. Wertheim, *Phys. Rev. Lett.* **10**, 321–323 (1963).

[111] D. A. McQuarrie, and J. L. Katz, *J. Chem. Phys.* **44**, 2393–2397 (1966).

[112] S. Goldman, *J. Phys. Chem.* **83**, 3033–3037 (1979).

[113] N. F. Carnahan, and K. Starling, *J. Che. Phys.* **51**, 635–636 (1969).

[114] A. Morsali, E. K. Goharshadi, G. A. Mansoori, and M. Abbaspour, *Chem. Phys.* **310**, 11–15 (2005).

[115] E. Matteori, and C. A. Mansoori, *J. Chem. Phys.* **103**, 4672–4677 (1995).

[116] R. Laghaei, A. E. Nasrabad, and B. C. Eu, *J. Phys. Chem.* **109**, 21375–21379 (2005).

[117] H. Liu, C. M. Silva, and E. A. Macedo, *Chem. Eng. Sci.* **53**, 2403–2422 (1998).

[118] K. Meier, "Computer Simulation and Interpretation of the Transport Coefficients of the Lennard-Jones Model Fluid", Thermodynamik, Shaker Verlag GmbH, Germany, 2002.

[119] K. Tankeshwar, K. N. Pathak, and S. Ranganathan, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **21**, 3607–3617 (1988).

[120] K. Rah, and B. C. Eu, *Phys. Rev. E* **60**, 4105–4116 (1999).

[121] K. Rah, and B. C. Eu, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4566–4569 (1999).

[122] K. Rah, and B. C. Eu, *J. Chem. Phys.* **115**, 2634–2640 (2001).

[123] K. Rah, and B. C. Eu, *J. Chem. Phys.* **115**, 9370–9381 (2001).

[124] R. Laghaei, A. E. Nasrabad, and B. C. Eu, *J. Chem. Phys.* **123**, 234507 (2005).

[125] R. Laghaei, A. E. Nasrabad, and B. C. Eu, *J. Phys. Chem.* **109**, 5873–5883 (2005).

[126] A. E. Nasrabad, R. Laghaei, and B. C. Eu, *J. Chem. Phys.* **124**, 084506 (2006).

[127] R. Laghaei, A. E. Nasrabad, and B. C. Eu, *J. Chem. Phys.* **124**, 154502 (2006).

[128] B. C. Eu, “Transport Coefficients of Fluids”, Springer Series in Chemical Physics 82, Springer, Heidelberg, 2006.

[129] B. C. Eu, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **9**, 6171–6186 (2007).

[130] J. S. Hunjan, and B. C. Eu, *Mol. Phys.* **109**, 2385–2394 (2011).

[131] A. E. Nasrabad, *J. Chem. Phys.* **129**, 244508 (2008).

[132] J. -P. Hansen, and I. R. McDonald, “Theory of Simple Liquids 3rd Edition”, Academic Press, London, 2006.

[133] スタンリー『相転移と臨界現象』(東京図書, 1974).