

## 水-粉体混合系の乾燥過程で観られる 2 次元パターン形成 —実験と解析—

京都大学 大学院 理学研究科 物性理論

山崎義弘†

### 1. 研究動機

泥や粘土という言葉で代表される液体(水)-粉体混合系はその物性に関して未だ不明瞭な点が多く、特にパターン形成やレオロジーには物理学として興味深い問題が多く残っているように思われる。従来、泥を用いたパターン形成に関する研究はいくつか行われており、大きく分けると水分含有率の時間変化に応じて2種類に分類することができるであろう。

(i) 水分含有率が一定の状況で起こるパターン形成。

→ ヴィスカス・フィンガリング、侵入型パーコレーション、コロイド凝集 [1]。

(ii) 水分含有率の時間変化に伴うパターン形成。

→ 乾燥亀裂 [2]。

最近、我々は泥の乾燥過程において乾燥亀裂とは異なる機構によって形成されるパターンを見出し、泥中における粉体の初期含有率 $\phi_g$ に応じて、そのパターンがどのように変化していくのかに着目して実験を行ってきた。この研究会では、実際我々が行ったパターン形成の観察実験によって得られた知見を紹介し、パターンに関する主に静的な構造について解析した結果を発表する。

### 2. 実験方法

我々は、水と粉体の混合液を2枚のスライド・ガラス(76[mm]×26[mm])に挟み、上のスライド・ガラスの自重以外の加重を行わずに水平な場所に置いて乾燥させるという実験を行った(図2-1参照)。粉体として、粒径が10~20[ $\mu\text{m}$ ]程度のコーン・スターチを用いた。混合液を作るとき、水の量は常に50[g]とし、混ぜる粉体の量 $c$ [g]によって $\phi_g$ を変化させた( $\phi_g = \frac{c}{c+50}$ )。実際、 $c = 0.1 \sim 30.0$ [g]の範囲内で実験は行われている。パターンの形成過程は、実体顕微鏡およびビデオによって観察し、乾燥後に得られたパターンの画像解析にはスキャナ(光学解像度600×600[ $\text{dpi}^2$ ])を用いた。

†email: yamazaki@ton.scphys.kyoto-u.ac.jp

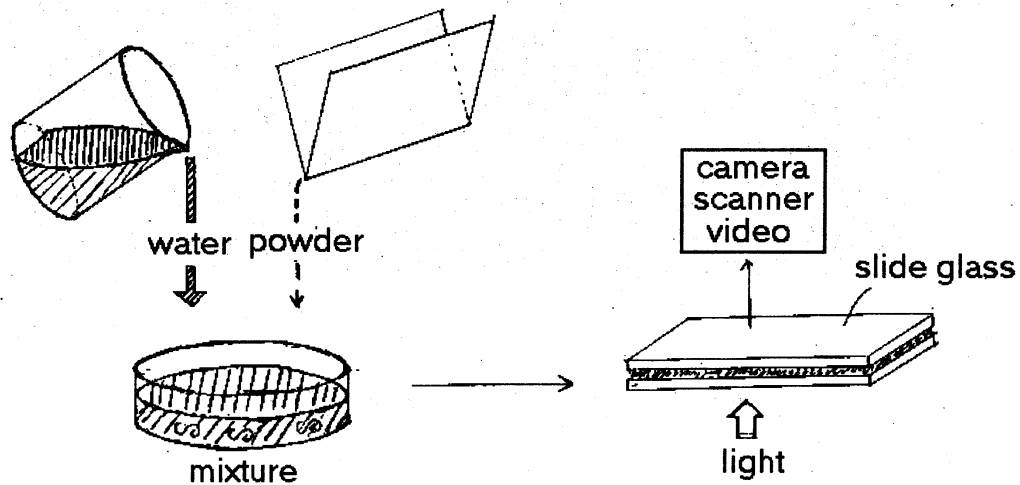


図 2-1：実験装置の模式図。

### 3. 実験結果

図 3-1は乾燥後のスライド・ガラス間に現れたパタンの全体像である。灰色の部分コーン・スターチの凝集した領域であり、白色の部分空気の侵入領域を表している。また、図 3-2は粉の量  $c$  に応じて、スライド・ガラスに現れるパターンがどのように変化するかを示している (表示領域は  $12.7[\text{mm}] \times 12.7[\text{mm}]$ )。実体顕微鏡およびビデオ観察によって認められるパターン形成における特徴は次のようにまとめることができる。

- (i) 図 3-1から分かるように、パターンはスライド・ガラス全体に一様に形成されており、境界の影響をほとんど受けていない。さらに、乾燥がガラスの4辺から行われているにもかかわらず、最終的に得られるパターンは等方的である (つまり、乾燥に対する異方性がパターン形成には影響していない)。
- (ii) 粉の量が少ない場合、粉体どうしが凝集しクラスターを構成して存在していることがわかる (図 3-2)。そして、粉の量が多くなるにつれてクラスターどうしがつながり始め、迷路状のパターンへと変化している。迷路状のパターンにおいては、粉の量に応じて迷路幅に特徴的なサイズが存在しているように見える。
- (iii) 乾燥後のスライド・ガラス間隔を測定したところ、図 3-3に示されているように  $c = 5.0 \sim 30.0[\text{g}]$  で間隔は  $20 \sim 30[\mu\text{m}]$  であった。粉体の特徴的なサイズが  $10 \sim 20[\mu\text{m}]$  であることからパターンは2次元的に形成されていると考えてもよいであろう。

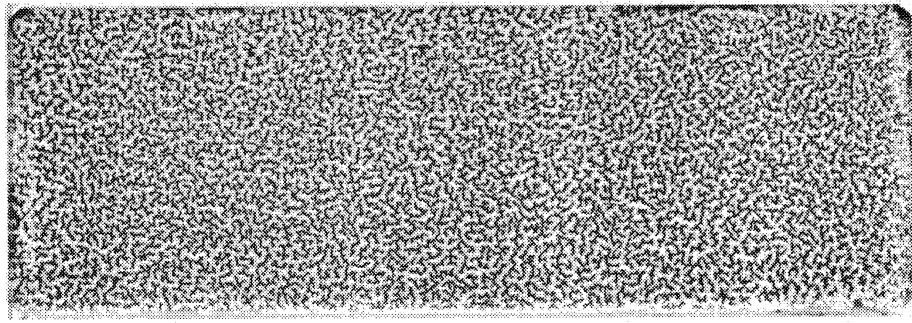


図 3-1：スライド・ガラスに現れたパタンの全体像.

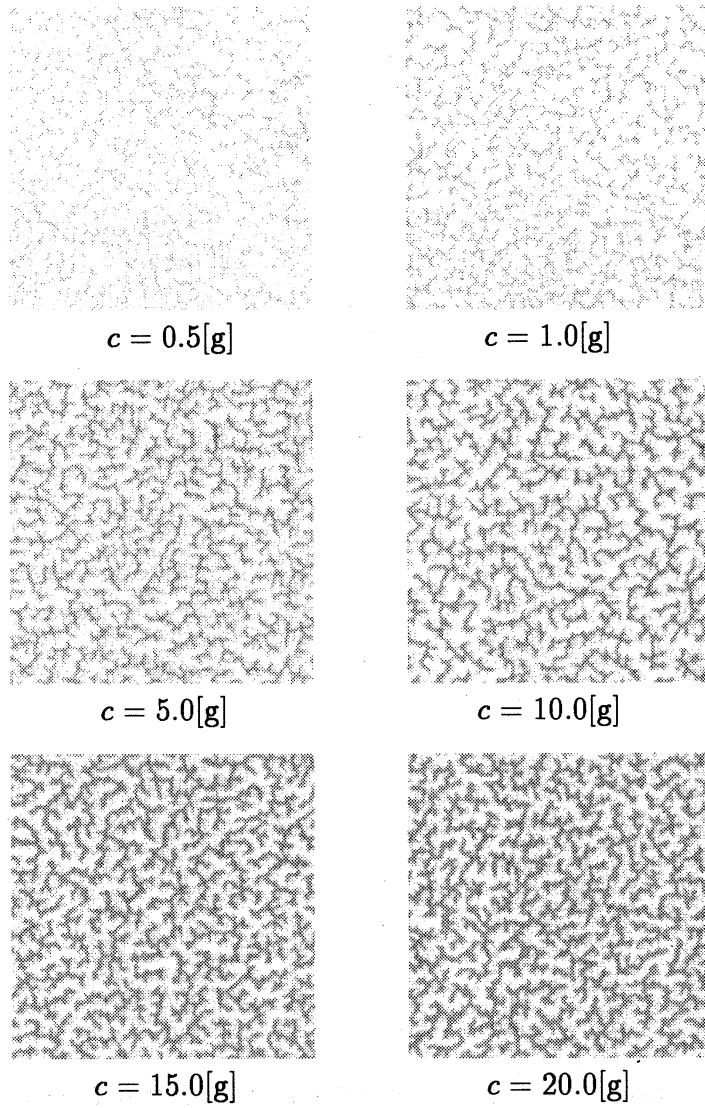


図 3-2：粉の量  $c$  に対するパタンの変化.

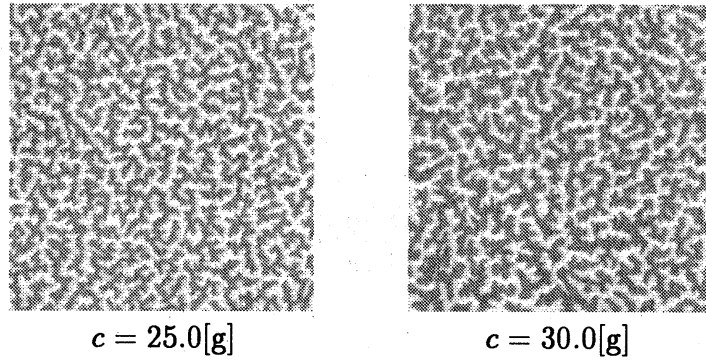


図 3-2：粉の量  $c$  に対するパタンの変化(つづき).

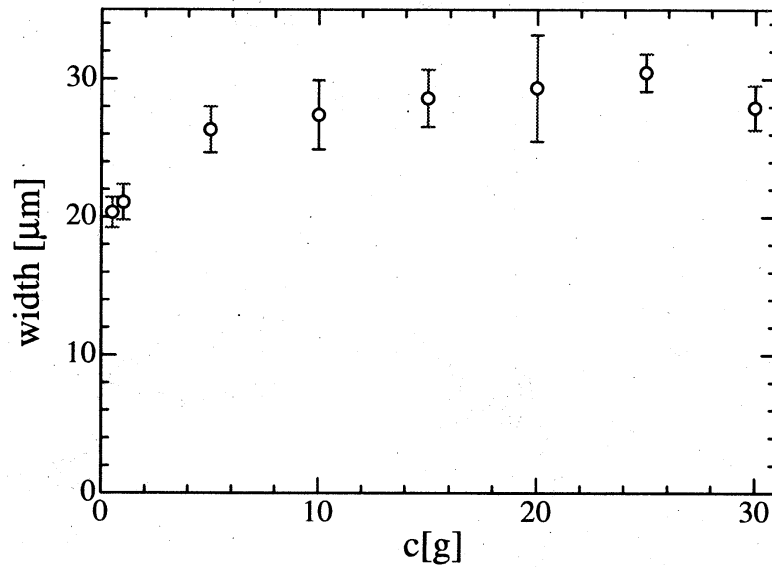


図 3-3：粉の量  $c$  と乾燥後のスライド・ガラス間隔の関係.

- (iv) 図 3-4はパタンの形成過程における水と空気の界面の実体顕微鏡観察像である。界面のなめらかさを界面の曲率半径で特徴付けるとすれば、この図より典型的な曲率半径は  $100[\mu\text{m}]$  程度であるので粉体の特徴的なサイズに対して界面はなめらかであるといえる。
- (v) クラスター化の原因はパタン形成における次の2つの過程に帰着できる。(a) 粉の凝集は水-空気界面の移動に伴って掃き集められることで起こっており、コロイドのような粒子間にはたらく力によって凝集しているのではない。したがって、粉体は水-空気界面の近傍でのみ動くことができる。(b) 2つの水-空気界面が粉体領域を挟むように存在し近づいてきた場合、界面が接近している領域に粉体が存在しなければ界面どうしが接触し、表面張力のために粉体領域が分離されることになる。実際、粉体領域の分離が起こる瞬間を捉えた様子が図 3-5に示されている。

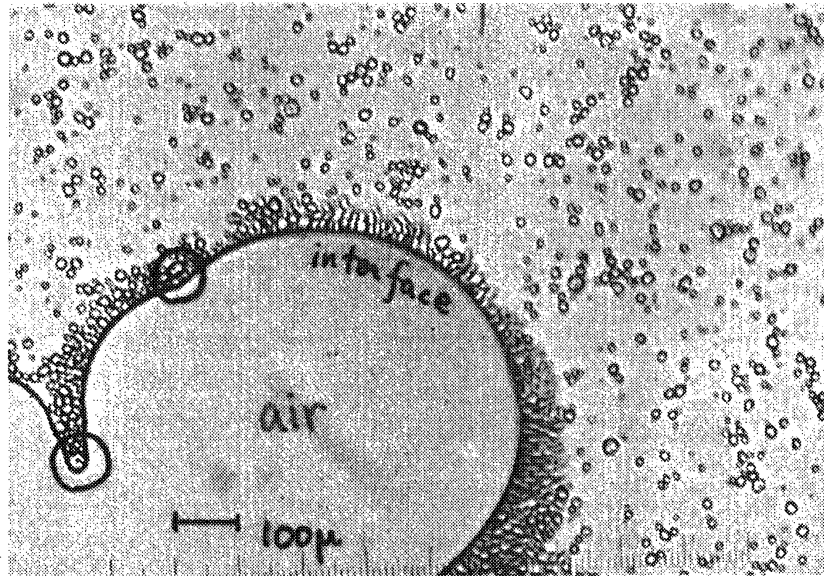
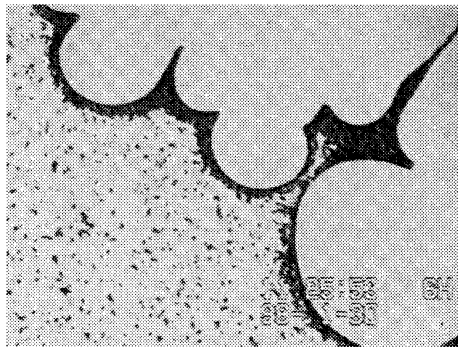
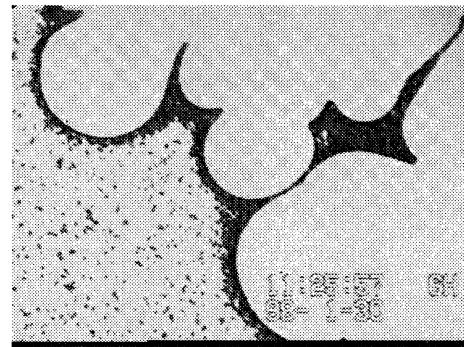


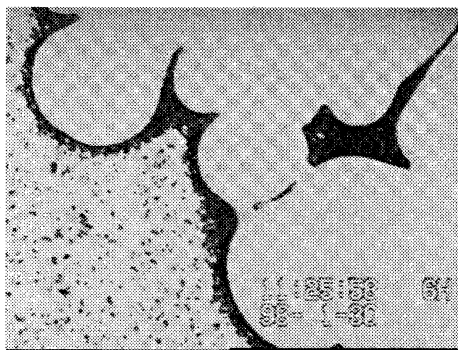
図 3-4：実体顕微鏡で観察された水-空気界面。



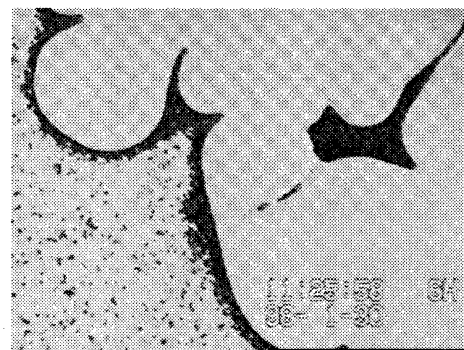
(a)



(b)



(c)



(d)

図 3-5：クラスター化 (粉体領域の分離)。(a) から (d) へと時間が推移している。

#### 4. パタンの解析

3.で見てきたように、スライド・グラスに挟まれた水-粉体混合系の乾燥によって得られるパタンはクラスターで特徴づけられている。さらに、粉の量を変化させることによってクラスターのつながりが変化することから、パーコレイションしきい値の存在が予想できる。また、クラスターがつながってできた迷路状態については粉の量に応じて迷路の幅(通路と壁の幅)が決まっているように思われる。そこで、パーコレイションおよび迷路の幅に着目してパタンの解析を行う [3]。

- (i) スライド・グラスからスキャナで取り込んだパタンの画像を2値化し、境界の影響を受けていない  $512 \times 512$  [dots<sup>2</sup>] の領域を切り出し、パーコレイション確率を求めるときのシステム・サイズとして考える。各  $c$  の値に対してスライド・グラスから切り出した画像を何枚か用意し(例えば  $N$  枚)、 $n$  番目の画像において上下または左右の境界にまたがるクラスターが存在する場合  $p(n) = 1$ 、存在しない場合には  $p(n) = 0$  を割り当てるような変数  $p(n)$  を用いてパーコレイション確率  $P(c)$  を次のように定義する。

$$P(c) = \frac{1}{N} \sum_{n \in N} p(n)$$

図 4-1は粉の量  $c$  とパーコレイション確率の関係を表しており、パーコレイションしきい値を  $P(c) = \frac{1}{2}$  となる  $c$  の値  $c^*$  で見積もると  $c^* \simeq 13$  [g] でパーコレイションが起こっていると考えられる。

- (ii) 実際に (i) で求めたパーコレイションしきい値  $c^*$  でパーコレイション転移が起こっているのであれば、 $c$  を固定したときの画像に存在するクラスターの全数を  $M$  として、 $m$  番目のクラスターのサイズを  $s(m)$  としたとき、各  $c$  における平均クラスターサイズ  $S(c)$

$$S(c) = \frac{\sum_{m \in M} s^2(m)}{\sum_{m \in M} s(m)}$$

は、 $c = c^*$  近傍で非常に大きくなる(無限系では発散する)であろう。実際、図 4-2は粉の量  $c$  と  $S(c)$  の関係を表しており、確かに  $c^* \simeq 13$  [g] 近傍で  $S(c)$  が大きくなっている。

- (iii)  $c \geq 15.0$  [g] における画像ではクラスターがシステム・サイズ程度の大きさになり迷路状のパタンが形成されているとみなすことができる。そこで迷路を構成している空気の領域(通路)と粉体領域(壁)の幅を  $c = 5.0 \sim 30.0$  [g] の範囲で測定した結果が図 4-3である。この図より、 $c = 5.0 \sim 30.0$  [g] の範囲では、粉の量の増加に伴ってほぼ線形に通路の幅は細くなり、壁の幅は太くなっているが、通路の幅と壁の幅との和は  $c$  の値によらず一定であるという結果が示されている。

(iv) 次に、クラスタの入り組み具合の指標としてクラスタサイズ  $s$  とクラスタの慣性半径  $R_g$  の関係を各  $c$  に対して求める。一般に、 $R_g$  と  $s$  の間には  $R_g \sim s^\nu$  という関係が成り立っている。実際、図 4-4 は各  $c$  に対する  $R_g$  と  $s$  の関係を示しており、確かに  $R_g \sim s^\nu$  が成り立っていることがわかる。また、図 4-5 は  $c$  と指数  $\nu$  の関係を表した図であり、粉の量の増加に伴ってほぼ線形に  $\nu$  が小さくなっている。

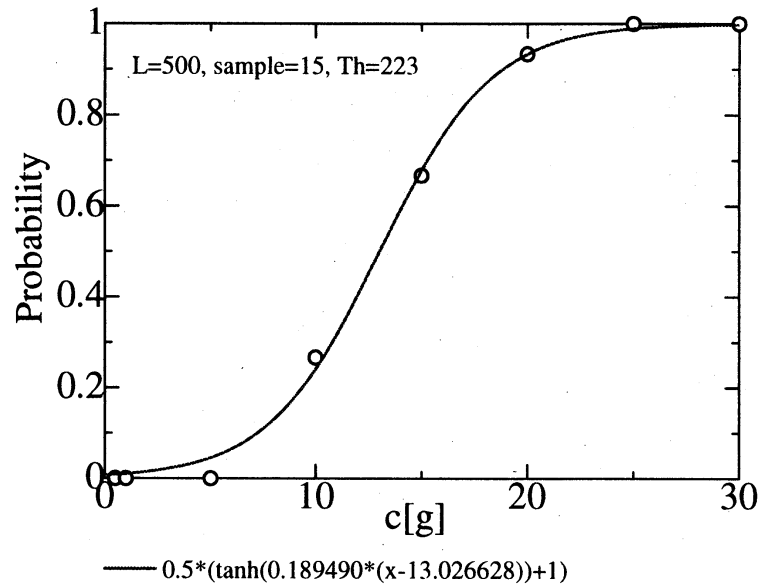


図 4-1：粉の量  $c$  とパーコレーション確率  $P$  の関係.

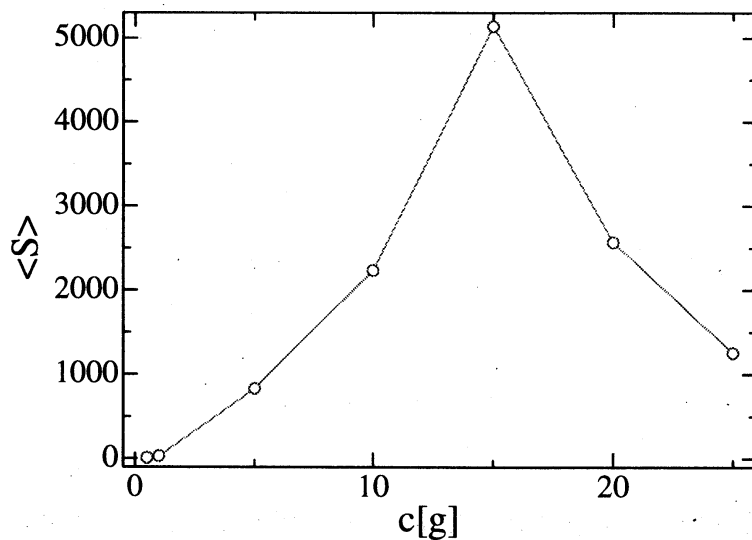
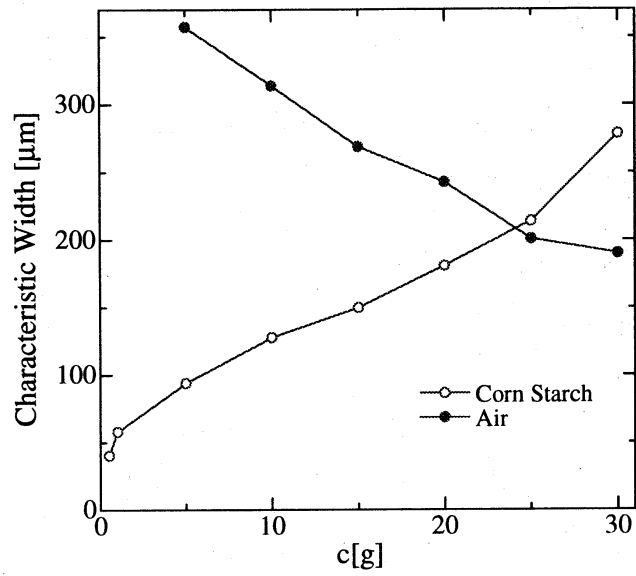
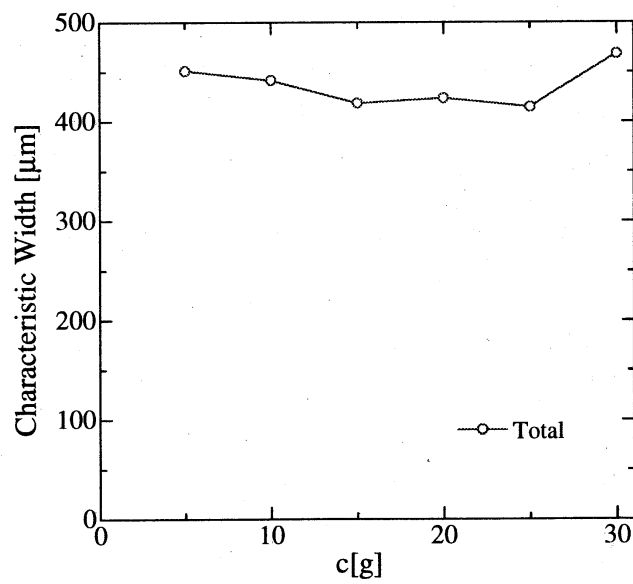


図 4-2：粉の量  $c$  と平均クラスタサイズ  $S(c)$  との関係.



(a)



(b)

図 4-3 : 粉の量  $c$  と迷路の幅. (a) 空気の領域 (通路) の幅と粉体領域 (壁) の幅。

(b) 通路の幅と壁の幅との和。



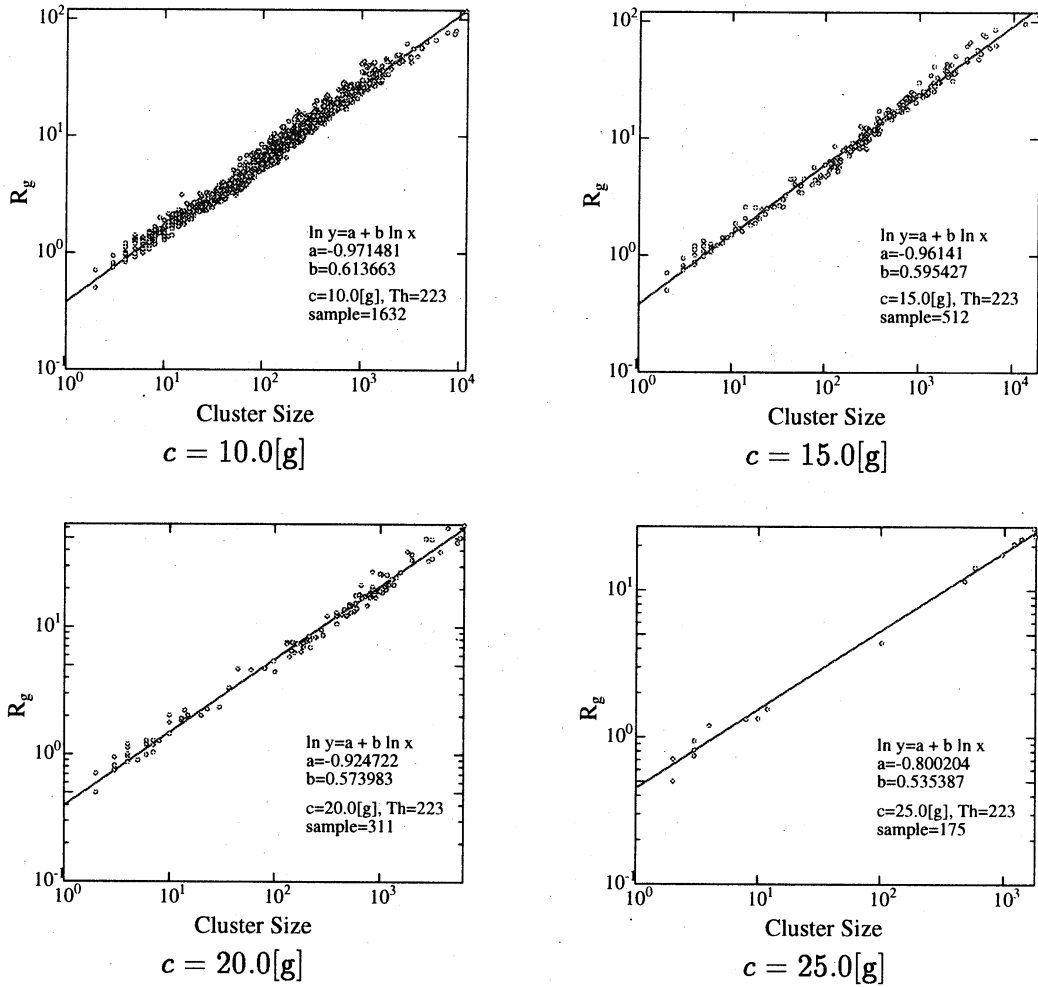


図 4-4: 各  $c$  に対するクラスターサイズ  $s$  と慣性半径  $R_g$ .

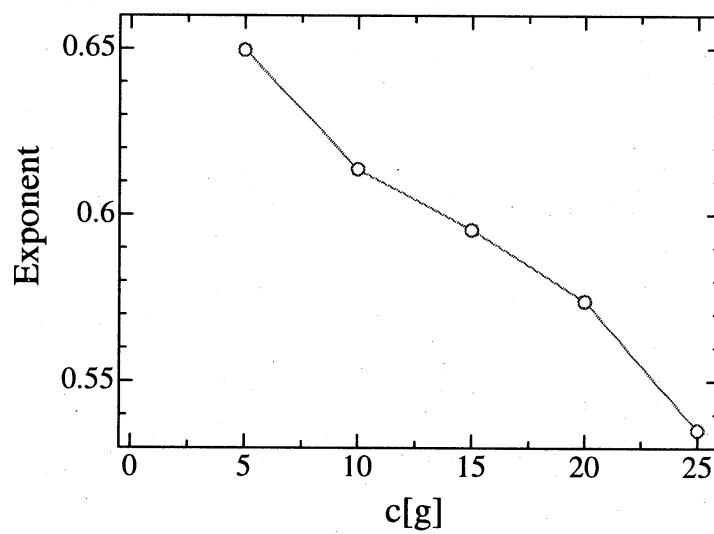


図 4-5: 粉の量  $c$  と指数  $\nu$  の関係.

## 5. 総括と議論

我々は、スライド・ガラスで挟まれた水-粉体混合系の乾燥実験を行い、乾燥過程で出現するパタンの形成過程を観察して特徴付け、さらに解析を行ってきた。パタン形成に対する現時点での要点は次のようにまとめられるであろう。

- (i) 水-空気界面による粉体の掃き集めと表面張力による粉体領域の分断
- (ii) パーコレーションの存在
- (iii) 迷路の幅の  $c$  依存性

我々が着目してきた粉体のクラスター化によるパタン形成は、領域が分断するという点でヴィスカス・フィンガリングとは異なり、乾燥によって空気が侵入する際に粉体が移動するという点で侵入型パーコレーションとは異なり、さらに粉体の凝集が水-空気界面による掃き集めのために起こるという点でコロイド凝集とは異なったパタン形成であると考えられる。現在、我々はこのパタン形成を記述することのできるモデルを構築し、理論的に説明することを試みている。また、より精密な実験を継続して行っている。(現在のところ、炭酸マグネシウムでも同様のパタンが現れることが分かっている。)

## 謝辞

本研究は水口毅博士(京都大学大学院理学研究科)との共同研究である。宮地英紀博士(京都大学大学院理学研究科)、田中良巳博士(京都大学大学院人間環境学研究科)には実体顕微鏡を貸していただきました。この場を借りてお礼申し上げます。

## 参考文献

- [1] T. Vicsek: *Fractal Growth Phenomena* (World Scientific, Singapore, 1989).
- [2] H. Ito and Y. Miyata: *Jour. Geol. Soc. Japan*, **104** (1998) pp.90-98.
- [3] T. Odagaki: *Introduction to Percolation Physics* (Shokabo, Tokyo, 1993).