

氏名	池田 高浩
学位(専攻分野)	博士(工学)
学位記番号	博 1 2 1 2 号
学位授与の日付	令和 8 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
研究科・専攻	工芸科学研究科 設計工学専攻
学位論文題目	粗視化分子シミュレーションによるパッチ粒子の自己集合構造と熱輸送特性の発現メカニズム解明に関する研究
審査委員	(主査) 教授 山川 勝史 教授 巽 和也 教授 北川 石英

論文内容の要旨

本論文は、粗視化分子シミュレーションを用いてパッチ粒子の自己集合構造と熱輸送特性の発現メカニズムを解明し、粒子デザイン（粒子形状・表面特性）-懸濁液内部構造-巨視的物性を相互に関連付けることを目的としている。対象とする巨視的物性として粘度および熱伝導率を取り上げ、両親媒性立方体パッチ粒子懸濁液と Janus 粒子を含むナノ流体を例に、自己集合構造の変化がレオロジーおよび熱輸送へ及ぼす影響を分子論的に明らかにしている。

第 1 章序論で研究背景と目的を述べた後、第 2 章では、本研究で用いる分子動力学法 (MD) および多粒子衝突動力学法 (MPCD)、ならびに両者を組み合わせたハイブリッドシミュレーションの概要を示し、reverse perturbation method によるせん断流れの生成と粘度評価、Green-久保法に基づく熱伝導率算出手順を記述している。

第 3 章では、バルク条件下の両親媒性立方体パッチ粒子懸濁液について、1 パッチ単分散系および 1 パッチ粒子と 2 パッチ粒子の混合系を対象に、体積分率を変化させながらせん断下の自己集合構造と粘度変化の関係を解析している。1 パッチ系では、二量体クラスターの流動方向配向に起因するシアシニング、配向飽和後のニュートンの挙動、高せん断での二量体分解と平均会合数に強く関連した再シアシニングという、3 領域の整理が示されている。また混合系では、2 パッチ粒子のパッチ配置により棒状/フラクタル状等の自己集合構造が制御可能であることを示している。

第 4 章では、ナノスリットに閉じ込めた立方体パッチ粒子懸濁液を扱い、スリット厚さ（閉じ込め度）やせん断速度に応じた自己集合・流動挙動の変化を検討している。バルクではパッチ配置によらず類似であったクラスター分布が、閉じ込め下では Type I と Type II で顕著に異なり、Type I では閉じ込め強化に伴って壁面に平行な棒状クラスターが成長し平均会合数が増加（約 15%）する一方、Type II では依存性が小さいことを明らかにしている。さらに、せん断誘起クラスター成長や空間分布の変化など、閉じ込め特有の動的挙動が示されている。

第 5 章では、濡れ性が異方的な球状 Janus 粒子を導入したナノ流体を対象に、濡れ性の強さと濡れ表面サイズ (Janus バランス JB) が熱伝導率に与える影響とその機構を、平衡 MD と Green-久保法により解析している。濡れ性を強めると熱伝導率は上昇し、JB の増加でも概ね向上するが、

濡れ領域がほぼ全体を占める $JB=90$ では $JB=82$ より低下するなど、 JB 依存性が単調ではないことを示している。同一の平均濡れ性をもつ等方性ナノ粒子と比較して、 $JB=90$ を除く Janus 粒子は熱伝導率を上回り、Janus 粒子導入が熱輸送向上に有効であることを示している。また向上機構として、自己拡散係数との単純な正の相関は成立せず、Janus 粒子周囲のナノレイヤーにおける溶媒密度増加が熱伝導率増加に対応することを指摘している。

第 6 章では、温度 T^* 、 JB 、疎水面-溶媒相互作用（疎水性）を系統的に変化させ、自己集合（ミセル）構造の温度依存が熱伝導率の温度依存へ及ぼす影響を検討している。 $JB \leq 30$ では温度上昇に伴い熱伝導率が約 4%増加する一方、 $JB \geq 44$ では増加が約 1%と小さく、最大値は $JB=44$ かつ $T^*=1.0$ で観察されることを示している。これらの挙動を、低温側で支配的となる界面熱抵抗 (ITR) と高温側で重要性が増す Brown 運動の寄与から説明し、条件に応じて自己集合と熱輸送を調整できる可能性を示している。そして第 7 章結言では、パッチ粒子デザインにより内部構造を介して粘度・熱伝導率を制御し得ることを総括し、将来的課題としてナノ流体の熱伝導率における強い表面相互作用、ITR、Brown 運動の複合効果等の検討のほか、粘度・熱伝導率といった熱輸送特性の個別の議論に加えて、これら複数の物性値を複合的に議論する必要性について言及している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、粗視化分子シミュレーションを用いて、パッチ粒子の形状および表面異方性が自己集合構造を介して懸濁液の粘度やナノ流体の熱伝導率といったマクロ物性をどのように発現させるかを、分子論的観点から体系的に解明した研究である。立方体パッチ粒子を対象とした解析では、せん断流れ下およびナノスリット内という非平衡・閉じ込め条件において形成される棒状およびフラクタル状クラスターの構造と配向挙動を詳細に評価し、それらがシアシニング挙動や粘度変化を支配する主要因であることを明確に示している。特に、クラスターの形状異方性と流動方向への配向が粘性応答に直結することを定量的に示した点は、従来の球状粒子中心の研究を発展させる重要な成果である。さらに、Janus 粒子を導入したナノ流体については、濡れ性異方性、パッチサイズ、温度条件を系統的に変化させ、自己集合構造、界面熱抵抗、Brown 運動の競合が熱伝導率の発現機構を決定することを明らかにした。熱伝導率向上が単純な粒子拡散ではなく、粒子周囲の液体構造や界面熱抵抗と強く結び付いていることを示した点は、既存の理解を深化させるものである。以上より、本論文は、粒子設計と自己集合構造を通じてマクロ物性を制御する明確な指針を与える、新規性と完成度の高い研究であると言える。

なお、本論文の基礎となっている学術論文は学術雑誌に掲載された以下 4 編であり、全て申請者が筆頭著者である。またこれらの IF は 3.1~5.2 である。

1. Takahiro Ikeda, Yusei Kobayashi, Masashi Yamakawa, Shear-induced structural and viscosity changes of amphiphilic patchy nanocubes in suspension, *Molecular Systems Design & Engineering*, Vol. 9 (3), pp.237-325, 2023
2. Takahiro Ikeda, Yusei Kobayashi, Masashi Yamakawa, Structure and dynamics of amphiphilic patchy cubes in a nanoslit under shear, *The Journal of Chemical Physics*, Vol.

161(2), 024901, 2024

3. Takahiro Ikeda, Yusei Kobayashi, Masashi Yamakawa, Effect of Janus balance on the thermal conductivity of nanofluid, *Chemical Physics Letters*, Vol. 867, 141969, 2025
4. Takahiro Ikeda, Yusei Kobayashi, Masashi Yamakawa, Tunable thermal conductivity in nanofluids through self-assembly of amphiphilic Janus nanoparticles, *Journal of Molecular Liquids*, Vol. 440, 128958, 2025