

審査の結果の要旨

論文提出者氏名 荒木 武昭

本論文は、複雑流体混合系の相分離に対するソフトな力学的性質の影響に関する研究について述べたものである。複雑流体とは、高分子や液晶などの物質群の総称であり、一般的に柔らかく非常に複雑な力学特性を示すことが知られている。液晶や高分子などの混合系は工業的にも重要な性質を持ち、多くの相転移・相分離ダイナミクスの研究がなされてきたが、そのほとんどは系の熱力学的挙動に基づくものであり、粘弾性や弾性といった力学的性質の影響はあまり考慮されていなかった。本研究は、相分離に対する複雑流体固有の力学的性質の影響を明らかにすべく数値シミュレーションを用いて行われたものである。

第1章の序論に続き第2章では、動的に非対称な系における相分離現象について述べている。高分子溶液を深くクエンチした場合などにおいて、粘弾性相分離現象と呼ばれる既知の相分離モデルでは説明できない特異な相分離現象が観測されることがある。本論文では、粘弾性相分離は動的に非対称な系において普遍的に起こりうる現象であり、相分離初期における過渡的なゲル状態とその破壊による応力緩和こそが粘弾性相分離の本質であるという考えに基づき、三種類の異なる手法を用い、その相分離ダイナミクスに関して研究を行っている。1つめは、粗視化した濃度場や粘弾性応力に関する二流体モデルを用いたものであり、相分離における粘弾性の影響について述べている。通常の二流体モデルで考えられている通り変形応力に加え、過渡的なゲル状態を記述するため、ゲルの体積相転移で重要となる体積変形応力が新たに導入された。その結果、実験的に観測されている少数相からなるネットワーク構造の形成を初めて再現することに成功し、また、その二種類の応力の役割を明らかにした。2つめとして、粘弾性相分離の発現機構とその普遍性について明らかにすべく、流体力学的相互作用を取り入れた流体粒子ダイナミクス法という数値シミュレーション法を開発し、最も単純な動的非対称系であるコロイド分散系の凝集過程について研究を行っている。流体力学的相互作用を考慮すると、潤滑効果によって粒子は数珠状に連結するようになる。その数珠状構造がさらに連結していくとネットワーク構造を形成する。このような構造が粗大化するためにはある部分のネットワークを切らなければならず、このことは系全体の凝集の進行を抑制する効果を持つ。この状態こそが、巨視的に見た過渡的ゲル状態であると述べられている。最後に、過渡的なネットワーク構造が形成された場合、系全体がどのような相分離構造を示すかを調べるべく、その過渡的ゲル状態を長さに依存した確率で切断するバネを用いてモデル化し数値シミュレーションが行なわれた。その結果、粘弾性相分離の相分離パターンは、核の生成頻度と成長速度の比とバネのもろさを記述する二つの因子によって決まることが示された。以上、三種類の数値シミュレーションを用いた研究により、動的に非対称な混合系における相分離現象では、過渡的ゲルが形成され、その力学的な性質が相分離パターンに大きく影響することが示さ

れた。その中で、微視的手法から巨視的手法へのそれぞれのレベルで仮定されていたモデルの物理的意味と役割について論じられている。また、この知見をもとに、粘弾性相分離を用いた任意の構造を持つ複合材料作製の可能性についても述べられている。

第3章では、光学デバイスなどに用いられる高分子・液晶混合系の相分離現象に対し液晶相の持つFrank弾性が、どのように影響するかについての研究が報告されている。また、この系の相分離ダイナミクスに関して流れ場を初めて導入し、その影響についても研究がなされている。液晶の弾性場は相分離構造に大きく影響し、例えば、マトリックス相の配向場に依存し、三角形や涙形など様々な形状のドメイン構造が形成することが示された。また、液晶配向の欠陥に誘起された新しいタイプの相分離パターン出現の可能性について論じられている。相分離と液晶化の競合により、二種類のスピノーダル分解が起こりうるが、その中でも液晶化が先に起こる場合には、液晶場の配向状態が相分離構造に特に大きく影響する。この結果を踏まえ、磁場などの外場を与えて配向場を制御することにより、液晶複合系の相分離構造を任意に制御することが可能になると述べている。

上記の通り、本研究では相分離における複雑流体混合系特有の構造形成の物理的メカニズムを明らかにするとともに、複雑流体を用いた複合材料の構造制御に関する有益な情報を与えていると考えられる。

このように、本研究で得られた成果は、物理工学上非常に重要なものである。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。