

論文審査の結果の要旨

氏名 和田 浩史

本論文が扱う流体と高分子は、いずれも系内部におけるメソスケールのゆらぎや構造が遅い緩和を示すという特徴を持っている。このような遅いダイナミクスをもたらす系の「柔らかさ (ソフトさ)」は、系が流動や変形に対して敏感であり、容易に非線形・非平衡領域での現象が見出されることを可能にする。本論文では、非平衡状態における流体および高分子の非線形応答を、理論・シミュレーションの両面から研究した。

本論文は 6 章からなる。第 1 章はイントロダクションであり、非平衡系の特徴、非平衡定常状態の流体、電解質溶液での輸送、単一高分子の非線形弾性、に関する基本的事項がまとめられている。そして、論文全体の構成がまとめられている。

第 2 章では、定常的なシア (ずれ) 流での単純液体のゆらぎと輸送特性が考察されている。揺らぎを入れた流体力学 (**Fluctuating hydrodynamics**) を用いて、定常状態の速度相関を計算し、充分長いスケールでは長距離相関が強く減衰することを示した。また、定常的な濃度勾配とシア流が共存する二成分溶液のゆらぎを解析し、濃度勾配による長距離相関はシアによって、長距離のスケールで変形されることを示した。

第 3 章では、電解質溶液の希薄領域での輸送特性が調べられている。2 成分希薄強電解液を **Fluctuating hydrodynamics** (揺動を入れた流体力学) により記述し、電解質溶解に伴う溶液の粘性係数の増加を表す **Falkenhagen-Onsager-Fuoss** の古典的極限式を再導出した。そして、その極限式を任意のシアに対する表式に拡張し、強いシア領域での著しい変形を指摘した。これは、各イオンを遮蔽する雰囲気がシアによって大変形をうけることで生じる。

第 4 章と第 5 章では、高分子電解質一分子の力学物性についての解析が行われている。まず、第 4 章では、**Ginzburg-Landau** 型の現象論モデルを提案し、高分子鎖の張力曲線が最近の実験結果をほぼ定量的に再現されることを示した。凝縮が弱い場合のプラトー相 (変化の広い範囲にわたって張力が一定) の出現、

凝縮が強い場合の **stick-release pattern**(張力が急激な変化を繰り返す) の出現などである。伸張過程における一分子内部の構造変化を明らかにするとともに、張力曲線の履歴現象が有限速度の伸張過程における特異な現象であることを示した。第 5 章では、対イオンの効果を取り入れた、バネ-ビーズ高分子模型にもとづくブラウン動力学シミュレーションを行った。その結果、静電相互作用の強さを大きくするにつれ、力学応答が **semi-flexible** 状態、凝縮状態、プラトー相、のこぎり状の **stick-release pattern**、と順次遷移することが示された。プラトー、**stick-release pattern** の出現は、イオン凝縮体がそれぞれ液体的および固体的（より正確にはガラス的）構造であることを示唆している。これらの原因として、同符号間引力のメカニズムと高分子のマクロな非線形弾性を結びつけるシナリオが提唱されている。最近、このような描像がしばしば発表されているが、まだ議論すべき問題も多く、今後の研究のさらなる発展が望まれる。第 6 章は、まとめと将来への展望が述べられている。

以上のように、理論解析とシミュレーションを用いて、定常的シア流での速度ゆらぎ相関と輸送、強電解質溶液の流体力学的記述と非線形輸送特性、高分子-高分子の非線形弾性特性、を考察し、ソフト物質科学や非線形非平衡科学に対する新しい知見をもたらした。

なお、本論文第 2 章前半部分は佐々真一、第 4 章の一部、第 5 章は村山能宏、佐野雅己、との共同研究であるが、論文提出者が主体となって数値計算及び解析を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。