

## 審査の結果の要旨

論文提出者 平野 太一

本論文は「複雑流体における並進・回転自由度間結合に関する研究」と題し、四種類の新しい実験手法を用いて、流体内の流動と分子配向の結合の大きさを支配する粘性係数を測定すること、およびその物理的起源を分子レベルで考察・検証することを目的として行われたものである。

液晶、高分子、ミセルなどの複雑流体と呼称される物質群では、分子が持つ形状異方性によって自己組織化的な秩序形成を行うことが知られている。この起源となる自由度間の結合は、相転移に関する理論モデルの典型例として学術的な関心を集めているだけでなく、新しい材料の機能・構造が発現するといった面から材料学的な応用への期待も高い。

近年の研究により、このような系では形状異方性によって顕著になった分子回転と流体の基本モードである並進運動とが、比較的強い相互作用により影響を及ぼしあっていることが明らかになってきた。その分子ダイナミクスをより正確に論じるためには、よく知られたずり粘性と同じ次元を持つ輸送係数である、回転粘性と結合粘性も考慮する必要がある。しかし、それらの値を直接測定する手法が存在しないため、定量的な評価や比較が行えないという問題点があった。このような背景から、本研究では回転や結合の粘性値をそれぞれ独立に求める実験的手法の確立を第一に目指した。また、種々の実験的アプローチを行い、並進・回転自由度間結合に関する多視点からの観察を試みた。

本論文は8章から構成されている。

第1章は「緒言」であり、本研究の背景と目的、および本論文の構成について述べられている。

第2章は「ずり流れと分子配向の結合」と題し、結合現象の理論的記述に成功した **de Gennes** の構成方程式と回転粘性・結合粘性の定義について取り上げ、ずり粘性も含めた三種類の粘性係数と実験によって測定可能な二種類の結合パラメータとの関連づけが行われている。

第3章は「各種実験装置による結合測定の原理と手法」と題し、本研究で使用した四種類の実験手法の測定原理および結合挙動を観察するための工夫や改良点が詳細に記述されている。すなわち、光ビート分光法を用いた動的光散乱測定システム、表面波励起法による流れ誘起配向測定装置、四重極ピエゾ駆動による流動複屈折スペクトロスコピー法、微小液滴マニピュレーション技術を用いた超高速ずり誘起配向観察装置のそれぞれについて、測定結果の解析に必要な理論式の導出が行われている。

第4章は「試料」と題し、実験に用いたシアノビフェニル系液晶群と **CTAB** ひもミセル溶液について、形状特性あるいは温度特性などが記述されている。

第5章では「液晶等方相における三種粘性係数値の決定」と題し、シアノビフェニル系液晶のうち6CBの等方相における全粘性係数を決定するために行った測定結果がまとめられている。結合パラメータの一つを動的光散乱法で測定し、もう一つの結合パラメータとずり粘性の測定を表面波励起法で行い、求めた実験値を組み合わせることで理論的な予測や相対的な補正の無い、粘性係数の絶対値が決定されている。また、測定結果の温度依存性についても記述されており、液晶相転移温度近傍で結合パラメータが臨界異常性を示すこと、その臨界挙動は結合粘性のみに起因することが明らかにされた。さらに本章では、光散乱法から求まる結合パラメータと分子形状異方性との関連についても系統的な測定が行われ、3CBから8CBまで分子末端のアルキル鎖の増加に伴い、結合の大きさが線形にではなく階段状に増えていくという傾向（偶奇効果）を示すことが明らかにされている。

第6章では「高速ずり流れ下での結合挙動」と題し、直径 $10\mu\text{m}$ 程度の微小液滴同士を正面衝突させた場合に引き起こされる $10^6\text{s}^{-1}$ オーダーの歪み速度によって、等方相状態の6CB液滴内部に、結合を介して誘起される配向秩序を観察した様子が記述されている。この結果が、前章で得られた回転粘性と結合粘性の値を用いた理論的な予測とほぼ一致するという事実により、両粘性係数は実験を行った歪み速度の値までは、流速の影響を受けず一定値を保つという結論が得られている。

第7章では「ひもミセル溶液の結合挙動」と題し、液晶とは異なる性質の異方特性を示す流体として、ひもミセル溶液における結合挙動のスペクトロスコピーが行われ、特異的な共振ピークに関する詳細な検証結果が記述されている。ずり場の駆動源であるピエゾ素子に挟まれた領域のサイズ、およびひもミセル溶液の濃度を変えながら測定、解析が行われ、共振ピーク出現の原因がミセルの絡み合いによる擬似的な弾性であるという結論が得られている。

第8章は「結言」であり、本論文の内容を簡潔にまとめている。

以上のように、本研究では複雑流体における自由度相関の典型例である、並進運動と回転運動の結合に着目して独自の測定法を開発し、結合過程を支配する全粘性係数の絶対値を決定可能にする実験的手法を確立している。また、同じ結合現象に対して視点の異なる観察を行い、物理学的に興味深い知見を得ると同時に、それぞれの実験・観察システムの測定精度の高さについても検証している。本研究の成果は、現象論的にしか定義されていなかった新しい粘性係数の定量的な評価を可能にした点で、複雑流体系の物理学のさらなる発展につながる可能性が高く、したがって、物理工学への貢献が大きい。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。