

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2006～2009

課題番号：18540403

研究課題名（和文） 大変形を伴う膜の非平衡ダイナミクス

研究課題名（英文） Nonequilibrium dynamics of thin films with large deformations

研究代表者

奥蘭 透 (OKUZONO TOHRU)

東京大学・大学院工学系研究科・特任講師

研究者番号：10314725

研究分野：ソフトマター物理学

科研費の分科・細目：物理学、生物物理・化学物理

キーワード：膜、ソフトマター、非平衡、ダイナミクス

1. 研究計画の概要

本研究は、非平衡条件下での膜の大変形過程のダイナミクスを理解するために、流体中の膜の運動を記述する一般的な枠組みを構築し、それに基づいた数値モデルの確立を目的とする。それを達成するため、膜の運動の記述を、膜形状の時間変化、応力・歪みに関する構成方程式、および内部自由度（膜を構成する物質の濃度場、秩序パラメータなど）の時間変化として与える。上記の定式化に基づき、高分子溶液の溶媒蒸発過程における粘弾性膜の形成、乾燥過程においてゲル化と伴う系での乾燥後形状の予測、および内部自由度をもつ膜の非平衡ダイナミクスなどの問題に対して数値モデルを構成し、シミュレーションを行う。また、その結果と理論的な予想あるいは実験的事実と比較し、現象のメカニズムを明らかにする。

2. 研究の進捗状況

非平衡条件下での膜の大変形過程のダイナミクスを理解するために、非平衡状態における粘弾性膜のダイナミクスの典型的なプロセスとして、インクジェット印刷技術などの工学的応用の観点からも重要である、高分子溶液の溶媒蒸発に伴う膜形成過程のダイナミクスを取り上げ、以下のような研究を行った。

(1) 蒸発が速い場合のスキン層形成のダイナミクスを記述する 1 次元モデルを提案した。このモデルに基づいた理論解析および数値シミュレーションの結果、スキン層の形成過程は、蒸発速度、拡散係数、および系の特徴的長さによって定義された無次元数（ベクレ数）によって特徴付けられることが示された。

また、ベクレ数、ゲル化濃度、および高分子の初期濃度をパラメータとして、スキン層の形成条件を表す式が得られた。これらの結果は、基板上の高分子液滴の乾燥過程の実験結果と定性的に一致する。

(2) 溶媒の蒸発に伴う自由表面付近のゲル化による弾性効果を考慮した膜形成過程の理論的なモデルを構築し、蒸発速度の理論的な表式を得た。それによれば、自由表面での高分子濃度がゲル化濃度をこえると、蒸発速度が急激に減少することが示される。このことは、実験的にも示唆されていることである。このモデルでは、蒸発速度と同時に、溶液中の高分子の協同拡散係数の高分子濃度依存性についても知ることができ、ゲル化濃度をこえると協同拡散係数は急激に増加することが示される。

(3) 溶媒の蒸発速度が溶質の拡散速度に比べて遅い場合に、接触線の固定によって誘起される流れ場およびゲル化の影響を取り入れた基板上の薄膜形成に関する研究を行った。本研究では、溶媒と溶質に関する保存則を基礎として、最も遅いモードのみを考慮することにより流れ場の影響を取り入れ、かつゲル化も考慮した簡単なモデルを構築し、それを理論的に解析することによっておもに以下のような結果を得た。

高分子液滴の中央での（自由表面の）高さは時間に線形に減少し、そこでの高分子濃度は高さの逆べきで増加する。

2 乾燥後の膜の形状を決める因子は初期の高さ（体積）および高分子の初期濃度とゲル化濃度の比である。

3 乾燥後の膜形状は、上記の初期パラメータ

によっていくつかの形に分かれる。

4 高分子濃度の拡散効果は、乾燥後の膜形状の不均一性を抑制する。

以上の結果は実験で知られている結果と定性的に一致し、乾燥による膜形状の制御に指針を与えるものである。

3. 現在までの達成度

2 おおむね順調に進展している。

(理由)

応用上重要な現象に研究の焦点を当てることにより、現実的かつ重要な知見が得られており、着実な成果が上がっている。

4. 今後の研究の推進方策

固体基板上的高分子溶液の乾燥過程におけるゲル状の膜形成および形状変化のダイナミクスおよび内部自由度をもつ膜の非平衡ダイナミクスについて、以下のような研究を行う。

(1) 溶媒蒸発による粘弾性膜の形成に関して、流体力学的運動およびゲル化を考慮したモデルを構築し、理論および数値シミュレーションによる解析を行い、膜の形状を決定する物理的な因子に関する考察を行う。

(2) 液晶膜の物質透過時における非平衡現象に関し、膜の内部自由度と流体力学的自由度の結合を考慮したモデルを構築し、数値シミュレーションを援用しながら、この系の非平衡ダイナミクスに関する理論的な考察を与える。

5. 代表的な研究成果

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3 件)

1 T. Okuzono and M. Doi, "Effects of elasticity on drying processes of polymer solutions," *Physical Review E*, 77 巻, 030501-1—030501-4 頁, 2008 年, 査読有

2 T. Okuzono, K. Ozawa, and M. Doi, "Simple Model of Skin Formation Caused by Solvent Evaporation in Polymer Solutions," *Physical Review Letters*, 97 巻, 136103-1—136103-4 頁, 2006 年, 査読有

[学会発表](計 12 件)

1 奥藺透, 「高分子薄膜の乾燥ダイナミクス」, 日本物理学会 2008 年秋季大会, 2008 年 9 月 21 日, 盛岡市

2 T. Okuzono, "Final shape of drying polymer films," *Juelich Soft Matter Days 2008*, 2008 年 11 月 12 日, Bonn, Germany

3 T. Okuzono, "Dynamics of Drying Processes in Polymer Solutions," *International Soft Matter Conference 2007*,