

A STUDY ON THE PHASE BEHAVIORS IN TERNARY POLYMER SOLUTION

山下, 祐太郎

<https://hdl.handle.net/2324/1654649>

出版情報 : 九州大学, 2015, 博士 (理学), 課程博士
バージョン :
権利関係 : やむを得ない事由により本文ファイル非公開 (3)

氏 名	山下 祐太郎		
論 文 名	A STUDY ON THE PHASE BEHAVIORS IN TERNARY POLYMER SOLUTION (3成分高分子混合溶液系における相挙動の研究)		
論文調査委員	主 査	九州大学	教授 鵜田昌之
	副 査	九州大学	教授 木村康之
	副 査	九州大学	准教授 成清修

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本研究では、ゼラチン、ポリエチレングリコール、水の3成分系の相挙動を明らかにすることを目的に研究がなされた。合成高分子であるポリエチレングリコールの分子量と添加量を広い範囲で様々に変えて系の相図が求められた。その結果、高濃度もしくは高分子量のポリエチレングリコールを添加した系においては、ゼラチン分子に起因するゾル-ゲル転移に加え、溶液が相分離する現象が観測されることを見出した。この発見に加え、新たに見出された相分離の臨界点が、共存するポリエチレングリコールの分子量を大きくする場合、もしくは共存するポリエチレングリコールの濃度を高くする場合、ゼラチン濃度の低濃度側ならびに高温側に移動する現象を見出した。これらの発見は、溶液の相分離現象とゲル化現象が独立な転移現象であるという従来の理論の予測を裏付けるものである。

次に申請者は、得られた相図を基に各相間の転移のダイナミクスを、光学顕微鏡によるその場観察と小角レーザー散乱法を用いて解明した。第一に、液体-液体間の相転移が起こる領域での徐冷過程においては、相分離が核形成-成長過程で生じること、ならびに急冷過程においてはスピノダル分解的に進むことを明らかにした。第二に、ゲル化が生ずる系の急冷過程においては、スピノダル分解的な挙動が観測されるものの、系の全体的な挙動は単純な2成分液体系のスピノダル分解とは質的に異なっていることを明らかにした。このメカニズムを明らかにするため、様々な急冷過程を組み合わせた詳細な実験がなされた。その結果、ゲル化によって形成される高分子の網目が相分離を抑制していることを明らかにした。最後に、相分離線とゲル化線が交差する点において実験がなされた。この点においては、相分離はスピノダルの起こること、そしてスピノダル分解の速度が増加することを見出した。この結果は、スピノダル分解の密度揺らぎの成長が高分子網目の形成によって加速されることを強く示唆するものである。

相分離線とゲル化線の相対的位置関係が系の相分離ダイナミクスに大きな影響を与える現象についての詳細な研究は、これまで殆どなされていない。2種類の相転移現象が共存する系において観察される複雑な現象を見出したこと、ならびにその現象が生ずるメカニズムを、系統的な研究によって解明したことは本研究の大きな成果である。本研究で得られた数々の結果は、高分子多成分系の研究の端緒となる重要な成果である。

よって、本研究者は博士(理学)の学位を受ける資格があるものと認める。