

氏 名	よこじま やすのり 横 島 靖 典
学位(専攻分野)	博 士 (学 術)
学 位 記 番 号	博 乙 第 1 2 0 号
学位授与の日付	平成 15 年 11 月 27 日
学位授与の要件	学位規程第 3 条第 4 項該当
学 位 論 文 題 目	ミクロ相分離のパターン形成とスローダイナミクスに関する研究 (主査)
審 査 委 員	教 授 志波 康博 教 授 高河原 俊秀 教 授 浦川 宏 助教授 櫻井 伸一

論文内容の要旨

本論文は、ブロック共重合体 (BCP) を急冷した後に起こるパターンの自己組織化のダイナミクスを統計力学的な計算物理学の手法を用いて研究したものである。そして、生み出されるパターンのサイズが時間の経過とともにどのように変化するのか、そのダイナミクスに他のパターン形成系と共通の何か普遍的な法則が存在するのか、を探ることが主なねらいである。

二種類の非相溶なブロック (A、B) から成る鎖状 A-B BCP は、熱力学的に不安定な状態に急冷されると、同種のブロックは互いに凝集し各々 A、B に富んだ二種類の相を形成しようとするが、各高分子鎖では二種のブロックが化学的に結合されているために、相分離は通常の二種のホモポリマー混合物の相分離のように完全にマクロなスケールまで起こらず、せいぜいメソスケールまでの分離となる。このいわゆるミクロ相分離により様々な空間的に周期的な構造 (パターン) が生み出されることが知られている。本研究では、主に一次元的周期構造をもつラメラパターンの秩序化を扱っている。

本研究の内容は大きく三つに分類される。まず最初に、ラメラパターンの秩序化過程には二つの異なるスケーリング則に従う領域が存在することを見出し、そのスケーリングの振舞いが、非平衡相転移現象の代表的なものの一つであるレーリー・ベナール対流形成のそれと同じものであることを提案している。第二に、非常に低温におけるミクロ相分離において、ガラス的挙動を示すスケーリング領域を見つけ、その理論的解析を試みている。

溶液状態の BCP では、パターンの歪みに伴う局所的化学ポテンシャルの空間的不均一性は、流れの場を通じての流体力学的相互作用を生み出す。この流体力学的相互作用は長距離力であるために、それがミクロ相分離のダイナミクスに大きく関わりあっていることが期待される。最後の研究では、ラメラパターンと六角対称パターン (ヘキサゴン) の二種類のパターンの形成に及ぼす流体力学的相互作用の影響を調べている。とくにラメラの場合に、それがスケーリング仮説の破れを引き起こすことを見出している。

論文は二部で構成されており、第一部では、上述の研究結果を示した第二部の理論的考察に用いるための統計力学的な取り扱いを展開している。具体的には、パターンダイナミクスを記述する非線形偏微分方程式を解くための多重時間尺度の摂動理論、シミュレーションで用

いるマイクロ相分離の Cell-dynamical-system (CDS) 法によるモデル化、CDS モデルの線形安定性解析、および平衡状態で実現される周期構造（相図）を決める理論計算である

論文審査の結果の要旨

本論文の研究対象である A-B ブロック共重合体系のマイクロ相分離は、A 鎖と B 鎖の混合物を A-B の末端での連結という制限の下に相分離させたものと見ることもでき、鎖状の巨大分子に特有な相分離に似たパターン形成現象である。そこで現れる種々の規則構造のパターンの静的側面の理解はほぼ確立されていると言ってよいが、それらの構造に至るまでのダイナミクスについては何ら明確な結論は得られていない現状である。

このような困難な状況の中で、本研究がとりあげたマイクロ相分離のダイナミクスの諸側面は学問的にきわめて興味深く、今後の理論的な考察がますます期待されるものである。とくに、非平衡相転移現象の代表的な系である熱対流パターンの形成のダイナミクスと関連づけようとする視点は、非常に有意義な示唆を含んでいる。すなわち、マイクロドメイン構造を決めている因子について、系の詳細には依存しない普遍性を探ることで一次相転移のパターン動力学の一般則を導くという立場は、このような捕らえにくい現象を扱っていくためのかぎとして評価できる。

前述した本論分の中核である 3 つの研究内容は、このような基本的な姿勢で一貫しており、博士論文として十分な内容を備えていると判断される。

最後に、本論分の内容は、審査システムの確立している次の国際的学術雑誌に 3 編公表済みであり、そのうち 2 編は申請者が筆頭著者となっている。

1. Y. Shiwa, T. Taneike, and Y. Yokojima, *Scaling Behavior of Block Copolymers in Spontaneous Growth of Lamellar Domains*, Phys. Rev. Lett. **77**, 4378-4381, 1996.
2. Y. Yokojima and Y. Shiwa, *Ordering process in quenched block copolymers at low temperatures*, Phys. Rev. E **62**, 6838-6845, 2000.
3. Y. Yokojima and Y. Shiwa, *Hydrodynamic interactions in ordering process of two-dimensional quenched block copolymers*, Phys. Rev. E **65**, 056308 (1-11), 2002.