

## レオロジーを近代化したもの

### Modernization of Rheology

小野木 重 治\*

日本レオロジー学会が1973年1月1日に発足してから20周年の記念すべき年を迎えた。いろいろ多くの困難を克服しながら、学会が今日の姿にまで成長・発展したことを心から慶祝したく思うとともに、学会の設立のために、また設立後の学会の発展のために多大のご尽力・ご協力をいただいた先輩各位ならびに多くの会員各位に深く感謝申し上げたい。

さて、この20周年を記念するシンポジウムで講演するよう依頼されたのであるが、すでに研究の第一線から引退している私には、皆さんのお役に立つようなお話はできないという理由でかたくお断わりした。しかし、是非にということで承引せざるを得なくなった。たまたま、今年になってレオロジー発展の歴史を振り返り、レオロジーを近代化したものが何であったのかを改めて考える機会があったので、そんなことについてお話し、責めを塞ぎたいと思う。結論は当然すぎるようなことであるから、内容にあまり期待をかけることなく、創立20周年を記念する年会に際して、もう一度レオロジー研究の歴史を振り返るのも多少は意味があろうくらいの軽い気持ちでお聞き願いたい。

よく知られているように、1929年、アメリカで Eugene C. Bingham らによって Society of Rheology が設立された。その当時のことを R.S. Marvin<sup>1)</sup>が調べて、次のように記している。すなわち、

「1920年代に、ゴム、粘土、ペイント、生体関連の液体などの力学的挙動が、コロイド科学だけでなく、物理学、力学、数学の分野においてさえ関心を強くし、さらに粘度の精密測定に関連した多くの問題に対する関心も高まってきた。しかしその当時、このような問題に関心を抱いている人たちに討論の場を提供できる学会は存在しなかったため、欧米の著名な学者の間で、新しい学際的な組織をつくって学術雑誌を発行することが話し合われ、1928年までには合意が得られた。最終決定は、1928年12月、アメリカ化学会主催の「塑性に関するシンポジウム」で行われ、翌1929年10月にレオロジー学会誌 (J. of Rheology) の創刊号が発行され、同年12月に学会の創設の会合もたれた。」

さらに、この創設の会合については、出席者の一人であった G.W. Scott Blair<sup>2)</sup>が著書の中で回想している。その詳細は省略するが、レオロジーの定義に関する二点だけを述べておきたい。

レオロジーの定義は、よく知られているように、「物質の流動および変形の学問」という簡単なものであったが、第1回会合の出席者全員の一一致した意見で、「電子および熱の流れは除外する」

とともに、「純粋な水力学、空気力学および古典弾性論は含まない」ことを決めたそうである。水力学などは、レオジストが興味を抱く物質の構造とか性質に無縁であるというのが理由だったようである。また、ハイファの M. Reiner 教授が、流動は変形の一形式にすぎないという理由で、上の定義は同意語の反復になっていて不都合なことを指摘していたこと、後年「流動を含めた変形の学問」と記されるに至ったことなどが述べられている。

それはともかくとして、創立後のレオロジー学会の活動はあまり活発ではなく、学会誌も、いわゆる論文誌の体をなしていなかったばかりか、程なく廃刊になったという。その後、約20年を経過した1948年にオランダで「粘性と塑性に関する国際シンポジウム」が開催された。このシンポジウムは、5年後の1953年に英国で第2回国際レオロジー会議が開催されたとき、第1回国際レオロジー会議と称することに決まった。

以上のような経過からみて、レオロジー学会設立の頃も、それから20年後の時代でも、レオロジーの中心課題は主としてコロイド系の力学的挙動、すなわち粘性と塑性であり、ビンガムが与えたレオロジーの定義「流動と変形の学問」の変形は、単なる“添え物”に過ぎなかったように感じられる。この時代の科学者たちは、われわれと違って、レオロジーを流動学に近い意味に理解していたのではなからうか。そのような意味で、私はこの年代をレオロジーまたはレオロジー学会の草創期と呼びたい。

わが国においては、上記の国際シンポジウムから3年後の1951年に、第1回レオロジー討論会が日本化学会関東支部主催のもとに東京において開催された。その世話人は、故玉虫文一東大教授（後に本学会名誉会員）で、同教授が主宰された懇談会のメンバー（中川鶴太郎、神戸博太郎、井上勝也の三氏）が手助けをされた。討論会は膠質化学討論会と抱き合わせの形で開催され、やはりコロイド科学の色彩の濃いものであったが、高分子物質の動的粘弾性についての研究発表もいくつか含まれていたことは注目に値する。

さて、上記のレオロジー学会の動きとはほとんど無関係に、緩和時間または遅延時間の連続分布の概念に基づく線形粘弾性理論——これにはタイムスケールの分布関数またはスペクトルの決定法も含まれる——の研究が、1940年代から1950年代前半にかけて行われた。これと平行して、粘弾性の測定法（原理と装置）に関する研究および高分子材料、特に無定形高分子・エラストマーの粘弾性挙動に関する研究が主としてアメリカで行われた。その代表的なものとして、プリンストン大学の A.V. Tobolsky 一派による応力緩和の研究、NBS の H. Leaderman によるクリープの研究、ウイスコンシン大学の J.D. Ferry 一派による動的粘弾性の研究がある。

\* 京都大学名誉教授

彼らの研究結果の多くは、後述するレオロジー学会の Transactions の発行後も、Textile Res. J., J. of Polymer Sci., J. of Colloid Sci., J. of Applied Phys. に発表され、これらの研究者がレオロジストよりは、むしろ高分子物理化学者あるいは高分子物理学者をもって任じていたことをうかがうことができる。

さて、レオロジー学会の1955年までの年会で発表された論文は、J. of Appl. Phys. と J. of Colloid Sci. にシンポジウム形式で掲載されてきたのであるが、1957年に Transactions of the Society of Rheology の第1巻が発行され、前年の年会で発表された論文が、コロイド関係のものも、粘弾性関係のものも統合的に報文または抄録の形で集録された。第1巻の売れ行きがよかったので、同誌は第2巻以後も継続的に発行できるようになったことが記録されている。

この Transactions の第1巻の冒頭には、たまたま前年の年会

でビンガム・メダルを受賞した Tobolsky 教授の受賞理由書が掲載されているほか、H. Leaderman が “Proposed Nomenclature for Linear Viscoelastic Behavior” と題する提案を行っている。このことは、線形粘弾性理論に関する研究がこの頃すでにほぼ完了していたことを教えている。ちなみに、B. Gross の著書 “Mathematical Structure of the Theories of Viscoelasticity” が発行されたのは1953年である。

いずれにせよ、Transactions の発行後、高分子の粘弾性はレオロジーの重要な地位を占めることとなり、次第にコロイド関係の研究を凌駕するようになった。Transactions は、1965年には年2冊、1972年頃には年4冊に増えて1977年まで続き、1978年には J. of Rheology にバトンタッチしている。

わが国においては、奇しくも Transactions の創刊と同じ1957年に、「材料試験」第6巻第43号を「レオロジー特集号」として発

Table I. A chronological table of rheological activities.

1929	Society of Rheology 設立 J. of Rheology 発刊	
1948	International Symposium on Viscosity and Plasticity (Netherland)=1st ICR	
1951		第1回レオロジー討論会
1953	2nd ICR (England) Intern. Comm. on Rheol. 設立	高分子学会レオロジー委員会設立
1957	Trans. Soc. Rheol. 発刊 H. Leaderman : “Proposed Nomenclature for Linear Viscoelastic Behavior”	材料試験「レオロジー特集号」発刊
1958	3rd ICR (Germany)	
1959		日本材料試験協会レオロジー部門委員会設立
1963	4th ICR (U.S.A.)	
1965	(Trans. 年2冊)	
1968	5th ICR (Japan)	第5回国際レオロジー会議
1969	Intern. Comm. on Rheol. (公式) 発足	
1972	6th ICR (France) (Trans. 年4冊)	
1973	Affiliated Organization of IUPAC	日本レオロジー学会発足 (会誌1冊)
1974	Affiliated Organization of IUTAM	The Joint Meeting of the U.S. and Japan Societies of Rheology (会誌3冊)
1975		(会誌4冊)
1976	7th ICR (Sweden)	
1978	(J. of Rheology 年6冊)	
1979		The Joint Meeting of the U.S. and Japan Societies of Rheology
1980	8th ICR (Italy)	
1983		10周年記念事業
1984	9th ICR (Mexico)	
1987	(J. of Rheology 年8冊)	
1988	10th ICR (Australia)	
1991		中日レオロジー国際会議(北京)
1992	11th ICR (Belgium)	
1993		20周年記念
1994		The Pacific Conference on Rheology and Polymer Processing
1996	12th ICR (Canada)	

行し、前年に開催された第5回レオロジー討論会の研究発表を論文、資料および抄録の形で集録した。1959年の2冊目からは毎年特集号を発行し、1973年に日本レオロジー学会誌が発行されるまで続いた。学会誌は、最初の年こそ1冊だけであったが、翌年には年3冊、その翌年からは年4冊に増え、現在に至っている。

1929年以後の日米両国におけるレオロジー研究の歴史を、年代順に比較したのが Table I である。この表を参考にしながら、日米両国におけるレオロジー研究発展の歴史を振り返ってみると、次のようなことがわかる。

1. わが国では、戦中・戦後の空白に相当するだけ粘弾性測定法に関する研究も、実際の測定も遅れて開始された。また、同じ理由で、線形粘弾性理論に対する寄与はほとんどない。

2. わが国におけるレオロジー学会の発足は、アメリカのそれに比べて44年も遅れているが、レオロジー討論会の発足やレオロジー特集号の発行などは、アメリカでの実質的な活動と比べ、それほど遅れていない。換言すれば

3. アメリカでも、学会創立後の約20年間は、目立った活動も進歩もない。レオロジーは、コロイド科学の中から力学的挙動の部分抽出したに過ぎないようである。いわば古典的な域を出ない草創期である。

4. そんなレオロジーに新風を吹き込み、飛躍的な発展と近代化をもたらしたものは、一に粘弾性の理論的、実験的研究である。

特に高分子材料は、その種類のいかに問わず典型的な粘弾性体であって、その粘弾性挙動についての研究は学術的に興味深い課題であった。また、高分子を利用する工業においては、加工工程においても、製品の品質評価を行う段階においても、従来遭遇することのなかった、いろいろな新しい問題に遭遇することになった。また、1940年代の頃から、続々と新種の合成高分子が製造され、それぞれの加工法を確立し、用途開発を進めるためには、メルトの状態および固化状態での粘弾性挙動の解明が必要であった。そんな理由で、高分子の粘弾性、非ニュートン流動などの研究がすこぶる活発に行われ、過去40年近くの間、常に他の物質に関する研究を凌駕し、高分子レオロジーと呼ばれる分野を形成してきた。

よく知られているように、高分子に関する研究によって、その粘弾性挙動が線形粘弾性理論によってほぼ満足に整理されること、時間-温度の重ね合わせの原理に基づいて、極めて広いタイムスケール領域の挙動を知ることができること、その挙動には四つの

異なる領域が存在することなどがわかった。さらに、各領域における分子の変形モードが明らかになったし、レオ・オプティクス的手法を用いることによって、例えば結晶性高分子の結晶領域の運動と無定形領域の運動を分離することが可能になった。

このように、レオロジーは高分子において深奥とも言える進歩をとげたので、今ではレオロジーの新しい近代的なアスペクトについて語ろうとすれば、その内容はおのずから高分子レオロジーにならざるを得ないということではなかろうか。

以上のように、過去半世紀余の間にレオロジーがいかに発展してきたかを振り返ってきたが、問題なのは、むしろ今後のレオロジーの発展の方向であり、方法である。

(1) 理論面で、かつての粘弾性理論がそうであったような、レオロジーに一大飛躍をもたらすものが出てくる可能性はあるのか？

(2) 高分子レオロジーに匹敵するほど、あるいはそれ以上に興味深く、また重要な分野が出現する可能性はあるのか？

といった問題に答えることができるであろうか。

レオロジーの将来を予測することは、誰にとっても難しいことであるが、(2)の問題について Scott Blair<sup>2)</sup>は次のように書いている。すなわち、

「過去20年間に最も著しい発展を遂げたのが高分子のレオロジーであったように、今後進むべき道は、生物学と医学の方向にむかっていると考える」と。

最近の高分子に関する研究では、加工と関連した研究が多いし、他の材料の場合を含め、分散系・複合系など複雑な系——工業的に造られ、使われる材料が多いのであるが——についての研究が増えている。いわば、材料工学面への進出である。

上の問題に対する答えは、各人それぞれに異なるであろうが、レオロジーが、そしてレオロジー学会が先細りすることなく、いよいよ大きく発展することを願ってやまない。

(記念シンポジウム「学会創立20周年を迎えて」で講演)

## 文 献

- 1) Marvin RS, "Proc 7th International Congress on Rheology", p. 31, Gothenburg, Sweden (1976).
- 2) Scott Blair GW, "Elementary Rheology", Academic Press, London (1969); 岡小天, 東健彦, "入門レオロジー", 朝倉書店, 東京 (1970).