総 説

Personal Reminiscence on Rheology

by

Bun-ichi TAMAMUSHI

(Nezu Chemical Institute, 1-26 Toyotamakami, Nerimaku, Tokyo 176)

レオロジーに関する個人的回想

玉 蟲 文 一*

(原稿受理：1978年7月24日)

レオロジー研究の初まったころ

レオロジー (rheology) という名称は良く知られているように、初めてアメリカの物理化学者 E.C. Bingham (1879~1945) によって提案され、1929年ワシントン (D.C.) におけるアメリカ・レオロジー学会の創立に際して正式に採用されたものである。この名称に対しては“物体と流動の科学”という注釈が加えられた。上記学会は機関誌：**Journal of Rheology** を刊行したが、何かの理由によって長続きせず、学会が American Institute of Physics に吸収されると共に (1933)、雑誌も **Journal of Applied Physics** に合体された。しかし、Bingham の名はレオロジーの父として国際的に今も記念されている。彼は 1905年に学位 (Ph.D.) を受けると直にドイツの W. Ostwald の研究室に留学し、翌年帰国してから液体の粘性率の絶対測定法の研究から進んで粘土のサスペンションなどの流動性の研究に努力し、いわゆる“ビンガム流動”の現象を発見し、レオロジーにおける一つの礎石を築いた。その一連の研究は著書：*Fluidity and Plasticity*, New York (1922) として遺された。

上記のワシントンにおけるアメリカ・レオロジー学会の創立にはドイツの H. Freundlich, Wo. Ostwald, オランダの H.R. Kruyt, イスラエル (後年) の M. Reiner, イギリスの G.W. Scott Blair などが参画したと伝えられるから、ある意味ではレオロジーにおける最初の国際的会合であったと考えられる。ちなみに、H. Freundlich はもともと W. Ostwald の下での助手・私講師であったし、Wo. Ostwald は W. Ostwald の子息であったから、Bingham とは同門の間柄であり、M. Reiner は当時 Bingham の下 (ラファイエット大学) で研究していたし、Scott Blair も当時ロックフェラー奨学金によってアメリカに留学中であった。こ

のことを回顧すると、レオロジーの起源が互いに国籍を異にしながらも、同学同士の談合の中にあつたと言うことができよう。

ところで筆者は1927~1929年、ドイツ・ベルリンのカイザェウ・イルヘルム協会 (K.W.G.) に属する物理化学-電気化学研究所 (現在マックス・プランク協会・フリッツ・ハーバー研究所) の Freundlich 研究室において、界面化学とくに吸着の問題に関する研究に従事した。当時 Freundlich は所長 F. Haber の所長代理ならびにベルリン大学の名誉教授——大学外の著名な学者に与えられた名称で物理学の Einstein も同様の処遇であった——の重職に在ったが、その研究室は3名の助手 (H. Locher, H. Kantsky, G. Ettisch の諸博士、いずれも著名な研究者で教授候補) と共に約20名のドイツ国内・国外の研究者を包容し、第一次大戦後の物資欠乏の際にあってもその研究活動は創造の意欲に満ちていた。既に1920年代の前半において、この研究室では数種の無機・有機コロイド系 (ゾルおよびゲル) において、流動弾性 (Fließelastizität), チキソトロピー (Thixotropie), 流動複屈折・二色性 (Strömungsdoppelbrechung・dichroism) と名付けられような現象の発見が行われており、筆者の滞在中もそれらの研究が続けられていた。これらの現象の研究は明らかにレオロジーの発展における先駆的役割を果たしたものである。これら研究の詳細については本文末尾に記した文献に譲ることにし、筆者がこの研究室において見聞したことや直接に接触した研究者たちの印象について記すことにしたい。何よりも注目すべきことはこれらの研究と発見が極めて簡単な器具と単純な実験技術によって遂行されたという事実である。

この研究室は研究所の二階の大部分を占めていたが、教授および助手の個室とそれに付属する小研究室のほかに二つの大部屋があり、若い研究者・研究生はそこにそれぞれ局限された場所 (Sitz) を与えられていた。筆者の属した部屋にはドクター候補

* 根津化学研究所 東京都練馬区豊玉上1-26 武蔵大学構内

の G. Lindau, K. Zöllner, F. Juliusburger (いずれもドイツまたはオーストリー人) のほか, アメリカからの H. A. Abramson (ロックフェラー研究所), L.H. Reyerson (ミネソタ大学) などがいた。筆者は隣接の場所にいた前記 3 人ととくに親しくなり, 実験の合間におしゃべりをした。K. Zöllner (後にアメリカに移住, Sollner と改名した) は Fe_2O_3 -ゾル, V_2O_5 -ゾルのチキソトロピーについて固化時間の測定, H^+ その他のイオンの影響などについて調べていたが, 巨大な体格の持主で大きな手で小さい試験管に封じたサンプルを振る彼の姿は今も眼に浮ぶ。Lindau は Fe_2O_3 -ゾルの凝結に対する血清アルブミンの増感作用を調べ, その結果を生体中におけるバクテリアの抗体による凝集のメカニズムと関係付けた。その後, 彼は F-教授との連名でアメリカ産ベントナイト・サスペンションについてのチキソトロピーおよび関連現象の研究の論文を書いたが, その別刷が帰国後の筆者におくられてきたのは 1932 年であった。Zocher とその協力者はコロイド光学的研究を続行していたが V_2O_5 -ゾルにおけるタクトイドの形成, Fe_2O_3 -ゾルにおけるシラー層の形成, 中間相 (液晶) などの問題についての新知見を寄与した。これらはいずれもレオロジーに関係ある研究であるが, F-教授の研究室で第一次大戦後ナチスの政権獲得に至る約 15 年間に行われたコロイド・界面化学およびレオロジーに関する研究はその独創性において比類少ないものと言ってよからう。

K. Weissenberg の名は今もなお広くレオロジー研究者の間で知られているが, 彼は当時 A. Einstein の指導下にあった K.W.G. の理論物理学研究所に属していた。元来は幾何学を専攻したという彼であったが, 後に記すような動機から, 物理化学者との接触をもつようになり, しばしば私たちの研究所を訪れ, Freundlich 研究室や Polanyi 研究室の人々に接触し, その知見を通じて彼自身の独自の道を拓きつつあった。筆者は彼が親密な仲であった Zocher と研究所内の廊下を往来しながら話し合っている姿を見た。彼が粘弾性体について理論的考察を進め, やがては彼の名を付したレオゴニオメーターを製作するに至ったのは, このような自由な交遊から生まれたものと考えられる。彼が同じくその名を付した X-線カメラを考案したのは, Polanyi 教授とその門下の人々との交遊によるものであった。このように専門を異にする研究者間の談話・討論を陰ながら奨励したのは所長 Haber であった。彼こそは科学研究における各個人の特質に応じてその才能を引き出す天才的指導者であった。

Haber-Freundlich-Polanyi の名によって代表された K.W.I. 物理化学研究所における当時の研究活動は当時世界の物理化学の一大焦点と見做されたが, 1933 年ナチス政権が確立するに及んで, この研究所は多数のユダヤ系また他国の研究者を包容していたために人的に壊滅状態になった。Freundlich はロンドン大学・ユニヴァーシティ・カレッジの G. Donnan 教授の招きによってそこに約 5 年 (1933~38) 滞在したが, その間にベルリン以来の協力者 Juliusburger および Sollner と共に主としてレオロジーに関連する問題の研究を進めた。例えば, イギリスの流体力学者 O. Reynolds によって名付けられたダイラタンシー (dilatancy) とチキソトロピーとの関係について, スレート質鉱石から作られる化石の成因について, ゲルの構造と超音波の影響など。また, Juliusburger は新しい共同研究者 Pirquet と共にレオロペクシー (rheopexy) の現象を発見した (1936)。この間に Freundlich は

“*Thixotropy*” (Paris, 1935) のモノグラフを刊行し, 筆者にもその一本をおくってくれた。

筆者のレオロジー研究と回想

筆者がレオロジーに関連する問題に着手したのは, Freundlich-Schmidt-Lindau によるベントナイトについての論文を手にした 1932 年ごろからであり, その研究対象に日本産の粘土鉱物 (酸性白土, カオリン, モンモリロナイトまたはベントナイト) のサスペンションを選んで上記論文の内容と比較することを試みた。同時に V_2O_5 -ゾル, Fe_2O_3 -ゾル, パラフィン・サスペンション (ペンゼン中), 密ろう・サスペンション (エチルアルコール中) などのコロイド系における流動特性, チキソトロピー, ダイラタンシー, レオペクシーについての実験的理論的考察を試みた。これらの研究は戦時中に及んだが, 数年間の不如意の時期を経て, 戦後は日本の特産鉱物セリサイト・サスペンションについて (1953~60), 更に最近では液晶 (熱変性および溶媒変性) についてその流動特性と構造との関係などについて研究を行って現在に至った。しかし, 実験技術は当初から現在に至るまで単純で, 時によっては偶々新現象に出遇うこともあったが, とくに戦後におけるレオロジーの理論・実験の急速な進歩に追いつくためには少なからず困難を感じたのである。

本文は論説ではなく, 回想であるから二, 三の挿話的余談を記すことにしよう。酸性白土についての研究を初めた頃, 市販の試料は砂などの雑物が含まれていて実験に適しないので原産地として知られる新潟県 (富山県との境に近い) 糸魚川町 (現在は市) に助手一人を伴って採集に出掛けた。この町を流れる川に沿う丘陵には粘土層の露頭が見られるところがある。地表またはそれに近い浅い層の粘土は褐色または黄色を呈しており, その一部を蒸留水に懸濁させてリトマス試験紙を浸してみると青色が赤色に変わる。その故にその粘土を“酸性白土”と呼んだのであろう。しかし, 少し掘り下げて 1 メートルほどの深さのところから採取した粘土は青白色で軟らかく手のひらに糊のように粘着する。その懸濁液は中性またはアルカリ性を示す。数種の自然のサンプルを実験室に持ち帰って化学分析をした結果, この地域の粘土はアメリカ産のベントナイトに比較すると, 概してアルカリ分の含量が少ないことが分かった。しかし, それを弱アルカリまたは食塩水で処理すると, イオン交換によってベントナイトに近い性質のものになり, チキソトロピーの研究試料として適切なものとなることが分かった。ところで一応採集を終えてから糸魚川の河口に行ってみた。そこには土手近くには芦が繁っているが海に向って巨大な三角洲が張り出していた。芦の葉をかき分けながらその三角洲の一端に足を踏み入れたところ, 一見安静であった地盤がかなりの広さに互って緩やかに振動し初めた。更に歩を進めるとその振動が増幅し, 足元が砂地に吸い込まれるように感じた。それは驚きであり, 恐怖であった。筆者はこれが Reynolds の “quick sand” であると直観し, 更に踏み込むことを止めて戻った。ついでにその砂地の少量を採取して帰り調べたところ, その試料の中には砂のほかに若干量の粘土が含まれていることが分かった。その結果は Freundlich による quick sand の研究結果と一致し, その振動はチキソトロピーに帰せられるものと理解した。この奇妙な経験について筆者は新聞紙上に軽い記事を書いたことがある (“人をだます砂” 朝日新聞, 昭 36・8・12)。糸魚川付近では大

雨の後や雪どけの時に崖崩れ、山津波が起り易いことを聞いたが、その原因として、丘陵の粘土層の膨潤と外圧による軟化・流動（チキソトロピー）の現象があるのではないか、という私見を人に語ったこともある。それから約2年後、新潟県能生町で山崩れが起こったことを知ったが、その時も新聞（朝日新聞、昭38・3・22）にこの地方に堆積する粘土層——それは白土とよばれるものを含んでいる——のチキソトロピーに関係があるのではないかと推論し、地層についてのレオロジー的研究の必要性を説いたことがある。しかし、筆者の提言が実際に容れられたかどうか、知ることができなかった。火山国として日本の地層の研究は土木工学や農学の立場からのみではなく、レオロジー的基礎研究が必要であるという筆者の見解は現在も変わらない。わが国では、とかくこのような地道なルーティンの研究が為政者にも学者にも飲ばれない風習があるのは遺憾である。

次の挿話は筆者にとってむしろうれしい思い出である。昭和17（1942）年、東大理学部鮫島実三郎教授の主催で膠質化学討論会が同学部化学教室講義室で行われた。そのとき、筆者は共同研究者・佐藤弘一氏との連名で、「膠質系に於ける可逆的現象と粒子間力のポテンシャル曲線」の題目の講演をしたが、その際筆者は V_2O_5 -ゾルの流動複屈折、 Fe_2O_3 -ゾルの律動による可逆的凝結（1種のレオベクシー）と共に、筆者がベルリン当時の同僚 Zöllner 博士からもらってきた Fe_2O_3 -ゾルのチキソトロピーの供覧実験を行った。聴講者の中に当時お学部学生であった中川鶴太郎、神戸博太郎の諸君がいた——諸君とはまだ面識がなかった——ことを後で知った。中川君の手記によると、この講演がこれらの諸君のレオロジーへの関心を深め、日本におけるレオロジー研究の開拓への道に誘う一つの動機となったらしい。なお、Zöllner の Fe_2O_3 -ゾルは現在も筆者の研究室の棚の中に保存されているが、半世紀の間に変質し、ゲルはゾルになって戻らない。しかし、試験管の上方に粘着した黒褐色の薄層はシラー層の特性を示すことが分かった。上述の筆者らの講演の内容はその実験も理論も単純なものではあったが、新しい知見であったと思う。しかし、それは鮫島博士編集の「膠質化学論叢・第1輯、1943」に寄稿されたが、戦時中のことであり広く内外に知られることがなかった。やがて戦争は末期の状況となり、筆者の研究も前進を阻まれるに至った。もし戦中・戦後の混乱がなかったならば、筆者のレオロジー研究もいくらか良い果実を結んだであろうと残念に思う。

日本におけるレオロジーの発展

時は移って戦後になった。筆者の職場にも変化が起こったが1949年ごろに手に入れた本 Scott Blair : *Introduction to Industrial Rheology* (独訳本, 1940), 同著者 : *Survey of General and Applied Rheology* (London, 1943) によって筆者はレオロジーなる新しい科学の分野についての概念を得た。同時にその頃から駒場の東大教養学部の化学教室あるいは隣接の東大理工学研究所内の研究室において神戸・中川・その他2、3の同士諸君と共にレオロジーについての懇談会を持つことができた。やがて1951年度の日本化学会・コロイド化学討論会の企画を依頼されるに際して、2日間の中の1日をとくにレオロジーを討論の題目とすることを提案し、神戸博士の援助の下に理工学研究講堂においてそれを実施した。初めての企画で多少の不安があったが、意外に多くの論文の寄与があり、とくに京大工学部の堀尾教授を初めとする織

維、ゴム、塗料などの工業製品のレオロジー的問題に関する論文が寄与され、極めて活発な討論と意見交換が行われた。ここに日本のレオロジー研究の端緒が開かれた。1952年度からはレオロジー討論会は独立のものとして企画・開催されることになり、初めは日本化学会内にレオロジー委員会が設置されたが、やがて高分子学会内にレオロジー委員会が設立されるに至って（1955）前者は解消され、更に材料試験協会（後の材料学会）の中にもレオロジー委員会が設置され、これら両委員会の合同企画によって年1回のレオロジー討論会が日本の各主要都市で開かれるようになった。第5回討論会までの寄稿論文についてはその英文抄録を粗末な紙のタイプ印刷として海外の主なレオロジー学会、レオロジー研究グループ、および個人研究者に頒布したが、その後は材料学会の機関誌の特集号に和文論文あるいは報告に英文抄録を付し、それを頒布するようになった。そして1970年、日本レオロジー学会が設立されてからはその機関誌においてすべて（ただし、生物レオロジーは分離して1977年に日本生物レオロジー学会が誕生した）が統一的に処理されるに至ったのである。

一方、海外でのレオロジー研究は前述の Bingham による提唱以来、アメリカはもちろん、イギリスでもフランスでも、ドイツでもオランダでもそれぞれの組織によって活動が行われたが、1948年オランダで行われた粘性および塑性に関するシンポジウムをもって第1回国際レオロジー会議とすることが主要な参加者によって承認され、5年ごとに国際会議を各国で開催することが定められた。第2回はイギリス・オックスフォードで開かれたが、そのときに日本から送った前記の英文抄録集が組織委員長 Scott Blair によって参加者に紹介され、日本のレオロジー研究の状況が認識された。また、非公式ながら組織された「国際レオロジー委員会」に日本代表として筆者が加えられるようになった。その前後 Scott Blair と筆者との間に取り交わされた書簡集はレオロジー発達史の一つのドキュメントであるかも知れない。第4回は1958年西ドイツで開かれたが、その主催者 H.F. Müller から筆者の出席を強く要請（日本学術会議会長宛）されたが、この国際委員会が ICSU に属していないことや、招請状が時期的に急であったことなどから、筆者の出席は果たされず、偶々渡欧中の後藤廉平教授（京大）および森芳郎教授（東大）に参加してもらった。第4回は1963年アメリカ・プロビデンスのブラウン大学で行われたが、そのときは堀尾正雄教授（京大）、岡小天教授（都立大）ほか少壮の研究者数名と共に筆者もそれに参加した。いわば初めての日本のレオロジストのデモンストレーションであった。この会議中に開かれた国際委員会において第5回会議を日本で開催することが提案され、筆者は堀尾教授の有力な援助によってそれを受諾したのである。こうして1968年京都において第5回レオロジー国際会議が開かれ、非常な好評を得たことは衆知のとおりである。この会議においての国際委員会において、その組織を ICSU の中に含めること、委員会の構成、委員の選挙についての規約を作ること、会議の開催を4年ごとにするなどが提案され、承認された。筆者は堀尾教授と共にこの会議の組織委員長の責任を果たしたが、その機会に非公式国際委員会の日本代表の任を辞し、一つの精神的荷重から解放された。それまで約20年間のいきさつを顧みれば、筆者にとって奇しき因縁とも言うべきものであった。

その後の余談と将来への希望

それから間もなく、筆者は大学教授としての第二の定年を迎え責任のあまり重くない立場になり、しかも戦前の研究室（武蔵大学内根津化学研究所）に戻ることにになった。長らく研究者不在のままに放任された場所を整理するのに約半年を要したが、また研究室に残された機器・器具は既に老化し使用に堪えるものは僅かであったが、とにかく仕事場を得たことは幸いであった。資金もなく、人手もない状況で何が出来るか分からなかったが、かねてから気掛りであった昔の残り仕事があってそれをいくらかでも解決したいと考えた。それは1934年に発表した「二次相の状態式と表面層の構造」の論文の中で、液晶または中間相と呼ばれた物質の表面張力における異常性であり、筆者のこの論文の前年に発表された Wo. Ostwald の論文で指摘された同様の物質の示す粘性の異常性であった。これらの問題は液晶としての純物質が得られれば、測定は比較的単純な方法で行われる——表面張力についてはその測定技術が大へんむずかしいことが後から分かったが——と考えたので、その問題を取り上げることにした。幸いに他大学の卒業研究委託生2～3人を得たので、彼らにルーティンの実験をやってもらうことが出来た。偶々1971年のアメリカのゴードン・コンフェレンスが R.S. Porter および J.F. Johnson の主催によって初めて液晶の問題を扱った際に招かれて、とくに「表面張力の異常性の考察」を話したところ、この古典的問題は未解決で興味あるものであることが認知された。この問題（熱変性液晶の表面張力）についての実験・理論的研究は今なお十分な解決に達していないが、A.C.S. コロイド・シンポジウムの50年を記念する“コロイドおよび界面の科学”に関する国際会議（1976年サン・ファンにおいて）において、筆者として一応結論的と思われる報告をした。また、その間に興味は溶媒変性（ライロトロピック）液晶の相平衡・構造・物性に拡大され、とくにそれらについてのレオロジー的研究を実施した。それは Porter 教授などによってレオロジーにおける新しい問題として注目されるようになった。このように仕事を始めると、いくらかでも次々に問題が出てくるが、年齢は逆行せずいよいよ限界に達するというのが最近の所感である。この夏の終り（8月27日～9月1日）アメリカ・サン・ディエゴのカリフォルニア大学で行われる第3回国際生物レオロジー会議に招かれて合同セッションで講演することになったが、演題は“From Colloid Science to Biorheology—A Historical Reminiscence”である。筆者ももはや国際的にも希少価値の存在となったようだ。これからは若い有為な研究者の生長を祈るのみである。

本年5月19日、日本レオロジー学会の年次総会が京大楽友会館で開かれた際に、同学会理事会において筆者を同学会の名誉会員に推挙する決議が行われた。筆者はその総会に出席し、会長小野木重治教授からその証書を手渡される光栄に浴した。このことは筆者のレオロジストとしての最大の記念であり、感謝である。

この総会後のパーティーにおいて筆者は感謝の挨拶と共に短い回想を語ったのであったが、帰京後間もなく、同レオロジー学会・編集委員長・倉田道夫教授から同学会誌に何か寄稿するようにとの依頼を受けた。いろいろ考えたが、総説と呼ぶに相応しい記事を書くまでの準備はないので、結局上記のような雑文を綴るにとどまった。顧みれば、第10回レオロジー討論会が上田の信州大学・繊維工学部で行われたとき、筆者は「わが国におけるレオロジー研究10年の歩み」と題する特別講演を行い、その中で第10回までのレオロジー討論会で発表された論文に示された研究問題・研究者についての統計を基にして将来への展望を試みた。わが国のレオロジー討論会は間もなく30回を迎えようとしている。もし筆者になお余命があるならば、その機会にその後の進歩の情勢を加えて統計・分析を試み、それが出来れば改めて本誌の総説として寄稿したいと思う。今回は日本レオロジー学会の最初の名誉会員として推挙されたことに対する感謝のしるしとしてこのような回想記を寄稿する次第である。もっとも回想記といっても個人の断片的な思い出を書いたものであって、日本あるいは海外のレオロジー歴史を忠実に追うたものではないことは読者の直ちに気付かれる通りである。その意味から引用文献も主な著書・報告の類に限って下記する次第である。読者の諒承を乞いたい。

(20・07・1978)

主な引用文献

- E.C. Bingham, *Fluidity and Plasticity*, New York (1922).
- Wo. Ostwald, *Die Welt der vernachlässigten Dimensionen*, Dresden u. Leipzig (1927).
- H. Freundlich, *Kapillarchemie* I, II, Leipzig (1930～32).
- H. Freundlich, *Thixotropy*, Paris (1935).
- H.R. Kruyt, *Colloid Science* I, II, Amsterdam (1949～52).
- G.W. Scott Blair (H. Kauffmann), *Einführung in die Technische Fließkunde*, Dresden u. Leipzig (1940).
- G.W. Scott Blair, *Survey of General and Applied Rheology*, London (1943).
- Deutsche Rheologische Gesellschaft, *Herbert-Freundlich-Gedächtnis-Kongress*, Berlin (1954).
- The Academy of Science, *Reports on Viscosity and Plasticity*, Amsterdam (1939～1948).
- V.G.W. Harrison (ed.), *Proceedings of the Second International Congress on Rheology*, London (1954).
- E.H. Lee-A.L. Copley, *Proceedings of the Fourth International Congress on Rheology*, 1～4, New York (1965).
- S. Onogi, *Proceedings of the Fifth International Congress on Rheology*, 1～4, Tokyo (1969).
- 玉蟲文一先生受賞記念会、玉蟲博士 受賞記念論集（非売品）、東京、1976。〔この中に筆者のレオロジーに関する論文リストがある〕。