

令和 6 年 6 月 3 日現在

機関番号：13901

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19H01861

研究課題名（和文）ガラス転移温度以下の温度における高分子ガラスの緩和挙動

研究課題名（英文）Relaxation behavior of polymer glass below glass transition temperature

研究代表者

畝山 多加志（Uneyama, Takashi）

名古屋大学・工学研究科・准教授

研究者番号：10524720

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 12,100,000円

研究成果の概要（和文）：高分子溶融体のガラス状態における温度依存する運動をレオロジーや緩和の観点から明らかにすることを目指し、特にガラス転移温度以下の低温領域に着目して各種実験やシミュレーション、理論解析を行った。構造の単純なモデル系を用いた実験とシミュレーションから、ガラス転移温度以下の温度領域までレオロジー的には時間温度換算則が成立することがわかった。実験的に高分子ガラスのエイジング挙動を調べ、緩和関数の関数形がほぼ変わらないことを見つけた。また、よく知られているように低温領域では分子運動の協同性が高くなるが、そのような運動を過渡ポテンシャルに基づくモデルでうまく記述できることを見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高分子ガラスはポリスチレンやポリメチルメタクリレートのように日常的に広く使われている材料である。高分子ガラスの運動や物性についてこれまでさまざまな研究が行われているが、流動性を失う特徴的温度であるガラス転移点より低温でのレオロジーの観点からの研究は限定的であった。本研究で低温状態の高分子ガラスの挙動がある程度単純な形で記述できることがわかったため、高分子材料の挙動をより基礎的な視点から理解し、よりよい設計や利用につなげられるものと期待できる。

研究成果の概要（英文）：We investigated rheological and relaxational properties of glassy polymers by using experiments, simulations, and theoretical analyses. We paid attention to the low temperature region below the glass transition temperature. We performed experiments and simulations to model polymer glass systems with simple structures, and showed that the time-temperature superposition works for rheological properties. In experiments, we also showed that the functional form of the rheological relaxation is not sensitive to the aging. At the low temperature region, glass formers show strongly collective motions. We successfully modeled such collective motions by using the concept of the transient potential.

研究分野：レオロジー

キーワード：高分子 ガラス レオロジー 緩和 シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

ポリスチレンのような非晶性高分子はガラス転移温度より低温まで冷却されると流動性を失いガラス状態となる。ガラス転移温度より十分に低温では非晶性高分子はマクロスケールではほとんど動かない固体のように見えるが、分子レベルのミクロスケールでは熱運動のために非常に遅くではあるが緩和している。ガラス転移温度近傍での分子運動についてはこれまでに多数の研究が行われており、特徴的な協同運動やそれに付随する緩和挙動等が実験やシミュレーション等を用いて多面的に明らかにされてきている。一方、十分に低温状態での高分子ガラスの運動や緩和の理解は基礎的・応用的に重要であるにも関わらず、あまり理解が進んでいなかった。そこで、本研究課題ではガラス転移温度より低温にある高分子ガラスを対象とし、実験とシミュレーション、そしてモデル解析を組み合わせてその緩和挙動を明らかにすることを目的とした。

2. 研究の目的

非晶性高分子は高温では流動性を持つが、冷却されて低温になると流動性を失い、いわゆるガラス状態となる。特に、ガラス転移温度以下の温度でガラス状態にある高分子はマクロスケールではほとんど動きがなく単なる固体のように見えるが、分子レベルのミクロスケールでは熱運動による緩和を示す。このようなガラス緩和はいまだほとんど理解が進んでいない。本研究では、ガラス転移温度より低温にある高分子ガラスを対象とし、複合的なアプローチによりその緩和挙動とダイナミクスの解明を試みる。レオロジー測定、誘電緩和測定、赤外分光測定といった複数の実験手法による緩和の多面的測定データ、長時間の分子動力学シミュレーション、理論モデル等を比較することで、緩和の機構や高分子ガラスの分子レベルのダイナミクスを調べる。ガラス転移点以下で高分子ガラスはどのような緩和を示すのか、そしてそれをどのように記述すればよいのかを明らかにする。

3. 研究の方法

典型的かつ単純な挙動を示す高分子ガラスであるアタクチックポリスチレンを用いて、ガラス転移点以下の温度を含む幅広い温度領域における各種動的物性を実験的に調べた。ポリスチレンはガラス転移温度(約 100°C)より十分高温(200°C以上)の熔融状態から 0°Cに急冷することでガラス化した。まず、応力緩和挙動を調べるためのレオロジー測定を行った。回転型レオメータを用いて、試料に振動剪断を加えることで貯蔵・損失弾性率 $G'(\omega)$ 、 $G''(\omega)$ を測定した。流動性がないガラス状態を対象とするレオロジー測定では周波数を固定して温度依存性を測定することが多いが、本研究では緩和挙動を正確に調べるためにさまざまな温度で周波数依存性を測定しマスターカーブを構成することを試みた。また、同じ試料を用いて誘電緩和挙動を調べた。レオロジー測定と同様にさまざまな温度における複素誘電率 $\epsilon'(\omega)$ 、 $\epsilon''(\omega)$ を測定し、マスターカーブを構成することを試みた。さらに、粘弾性等を測定したのと同じ試料に対して赤外吸収分光測定や示差操作熱量測定等も合わせて実施した。

ガラス状態の試料を調整する際には熱履歴によって物性が変化することが知られている。研究を進めていく中で熱履歴の効果に着目し、熱履歴を変化させた際の緩和挙動を調べた。本研究ではガラス転移温度以下の温度で長時間さらすというエージング処理を施した試料を準備しガラス転移温度以上の高温から急冷しガラス化した試料との挙動の違いを調べた。エージング条件違いの試料に対して粘弾性や誘電緩和測定を行い、マスターカーブ構成を試みた。

ガラス転移を示すモデル系である粗視化分子動力学モデル (Kremer-Grest モデル) を用いて分子動力学 (MD) シミュレーションを行い、緩和挙動がどのように温度に依存するかを系統的に調べた。分子の運動や緩和を調べるために、各温度で拡散係数 D 、緩和弾性率 $G(t)$ 、高分子鎖の Rouse モードの緩和関数 $C(t)$ を調べ、実験と同様にマスターカーブの構成を試みた。

また、MD シミュレーションで得られた挙動を説明することのできるモデルの構築を試みた。最近、高分子のような複雑な運動を示すソフトマターを対象として、従来の粗視化モデルとは異なる考え方に基づく粗視化モデルが提唱されている。本研究では特に粗視化要素の感じるポテンシャルが時間とともにゆらぐという過渡ポテンシャルモデルに着目し、過渡ポテンシャルモデルを用いた高分子ガラスの記述を試みた。また、過渡ポテンシャルモデルそのものについての統計力学的正当性が十分には検証・確立されていなかったため、モデルの基礎的な正当性を明かにすべく過渡ポテンシャルモデル自体を新たに検討し、ミクロな運動モデルから過渡ポテンシャルを導出した。

4. 研究成果

(1) ポリスチレンの粘弾性・誘電緩和挙動

ガラス転移温度以下の温度も含む幅広い温度領域について、複数のポリスチレン試料の粘弾性緩和挙動を調べたところ、どの試料についても時間温度換算則 (tTS) を用いて $G'(\omega)$ 、 $G''(\omega)$ のマスターカーブを構成することができた。図 1 に粘弾性マスターカーブの例を示す。低温・高周波数領域では特徴的な緩和挙動が見られるが、これは経験的にガラス緩和を表現するために用いられる Kohlrausch-Williams-Watts (KWW) 型関数にてよく表現することができる。KWW 緩和より高温・低周波側では高分子鎖の形態緩和によるゴム緩和が見られる。また、低温・高周波側は小さなスケールの緩和を反映していると思われる副緩和 (いわゆる Johari-Goldstein 緩和に相当すると思われる)が見られる。レオロジーの分野では経験的に tTS はガラス転移温度より 50°C 以上上の温度でしか正当性を持たないとされているが、ポリスチレンのガラス緩和については低温でも tTS を適用することができた。これはガラス状態のポリスチレンの運動がある側面では単純なことを意味する。ただし、粘弾性で測定可能なダイナミックレンジは限定されるため、tTS の成立はあくまでみかけ上のものであり、得られたマスターカーブは擬似マス

ターカーブであると解釈するのが妥当であると考えられる。(このことは後に述べるエージング系の測定結果からも推測できる。)

マスターカーブ作成時の横シフト因子 a_T は温度を変えた際の高分子の運動性あるいは緩和時間の変化を特徴づける量である。非晶性高分子についてはガラス転移温度より 50°C 以上での a_T の温度依存性は Williams-Landel-Ferry (WLF) 型 (または Vogel-Fulcher 型) でよく記述できるとされる。図2に横シフト因子 a_T の例を示すポリスチレンの横シフト因子は高温では WLF になるものの、ガラス転移点付近で Arrhenius 型に変化する挙動が見られた。

同じポリスチレン試料について誘電緩和測定も行ったところ、 $\epsilon'(\omega)$, $\epsilon''(\omega)$ についても $G'(\omega)$, $G''(\omega)$ と同様に tTS を用いてマスターカーブを構成することができた。得られた $\epsilon'(\omega)$, $\epsilon''(\omega)$ のマスターカーブは $G'(\omega)$, $G''(\omega)$ のマスターカーブとほぼ同様の形状であった。この挙動は Matsumiya らの報告と整合している [Y. Matsumiya et al, *Macromolecules* **44**, 4355-4365 (2011)]。ただし、横シフト因子 a_T については粘弾性と誘電緩和とでいくらかの違いが見られた。高温では誘電緩和測定から得られた a_T は粘弾性測定から得られたものと同様に WLF 型でよく記述できた。低温では粘弾性測定の場合と同様、 a_T は Arrhenius 型でよく記述できた。ただし、 a_T の値自体は誘電緩和測定と粘弾性測定とで異なるものとなっていた。これは誘電緩和と粘弾性緩和に関わる熱活性化過程の経路に違いがあるためであろうと考えられる。

これらの試料に対してより小さな官能基スケールの運動の温度依存性を調べるため赤外分光測定を行った。ポリスチレンは CH やベンゼン環に由来する複数の赤外吸収ピークを持つ。吸収ピークによって温度依存性が異なるものの、どのピークもガラス転移点を含む幅広い温度範囲で測定してもピーク位置や強度の変化はわずかであった。これは粘弾性や誘電緩和の横シフト因子が数倍以上も変わっているのとは対照的である。粘弾性や誘電緩和が高分子を構成するモノマーではなくより大きな協同的な単位で動いていることを考えると、官能基のようなごく小さなスケールの運動ではガラス的な特徴はほとんどとらえられず、より大きなスケールでの運動になってようやくガラス的な運動が発現するものと解釈できる。

(2) ポリスチレンの緩和挙動に対するエージングの影響

ポリスチレンの緩和挙動に対する熱履歴の効果を見るため、急冷して作成したポリスチレン試料に対してガラス転移温度より若干低い温度に長時間さらすことでエージング試料を調整した。これらのエージング試料には密度の違いはほぼ見られず、 macroscale の静的物性はエージングをしていない試料とほとんど変わらない。さまざまな温度にて粘弾性測定を行った $G'(\omega)$, $G''(\omega)$ に対して tTS を適用することで、非エージングの試料と同様のマスターカーブを作成することができた。マスターカーブの形状はエージングに鈍感であり、エージングの有無によらずほとんど同様の緩和様式で緩和していることがわかった。しかし、マスターカーブ作成時の横シフト因子 a_T はエージングに強く依存していることがわかった。[市川千陽, 修士論文, 名古屋大学大学院工学研究科 (2024)] 類似した挙動は誘電緩和測定においても得られている。すなわち、 $\epsilon'(\omega)$, $\epsilon''(\omega)$ のマスターカーブはやはりエージングの有無に鈍感であるが、マスターカーブ作成時の低温領域の横シフト因子 a_T はエージングによって大きく変化する。

ガラス転移温度よりも高温の領域においてはエージング条件によらず a_T は同一の WLF 型で記述できるが、低温ではエージング条件を反映した異なる Arrhenius 型への遷移を示す。既に述べたように、横シフト因子は高分子の運動性あるいは緩和時間の温度依存性を示すものと解釈できる。これらの実験結果は、ポリスチレンの協同的な緩和がエージングによって定性的には変化しないものの定量的に変化しているということを示していると考えられる。例えば、いわゆるガラスのエネルギーランドスケープ描像ではガラスの緩和は多数の局所的な安定状態間をより安定な状態に向かって遷移する過程だと解釈できる。もしこのときの安定状態の分布がある種のフラクタル性を持てば、エージングが進んでより安定な状態に遷移してもそこから先の遷移もまた定性的には同様のものになると考えられる。この考え方はガラスの緩和が何らかの冪的・フラクタル的分布に支配されているという先行研究 [T. Odagaki and H. Hiwatari, *Phys. Rev. A* **43**, 1103-1106 (1991); T. Miyaguchi, T. Uneyama, and T. Akimoto, *Phys. Rev. E* **100**, 012116

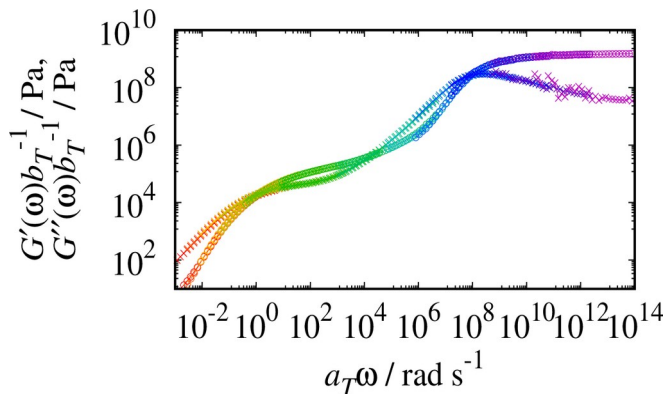


図1: ポリスチレン (重量分子量 $M_w = 2.8 \times 10^5$) の線形粘弾性マスターカーブ。○: $G'(\omega)$, ×: $G''(\omega)$ 。測定温度は $90^\circ\text{C} \sim 240^\circ\text{C}$ 。 a_T , b_T は 180°C を基準とした縦・横のシフト因子を表す。

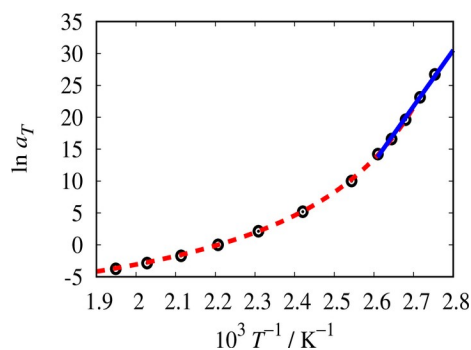


図1: ポリスチレン (重量分子量 $M_w = 2.8 \times 10^5$) の横シフト因子。線は高温・低温領域のフィッティング結果。

(2019)]とも整合するものである。

(3) Kremer-Grest モデルによる高分子の運動・緩和

モデル高分子ガラスの運動と緩和を調べるため、粗視化分子動力学モデルである Kremer-Grest モデルを用いて温度や相互作用、分子量等を変えた各種シミュレーションを行った。先行研究 [J. Baschnagel et al. J. Phys. Cond.:Mat. **12**, 6365-6374 (2000), R. Yamamoto and A. Onuki, J. Chem. Phys. **117**, 2359-2367 (2002)] を参考に、からみあいのない高分子を無次元密度 1 で充填することで高分子溶融体を準備し、温度を下げた。先行研究で報告されているように、温度を下げていくと分子運動が遅くなりガラス的に振る舞う様子が確認できた。

実験と並列に考えるため、動的な物理量である拡散係数 D 、緩和弾性率 $G(t)$ (Fourier 変換すると実験で測定した $G'(\omega), G''(\omega)$ に変換できる)、Rouse モードの緩和関数 $C_p(t)$ ($p = 1, 2, 3$) に対する tTS の成立について解析を行った。拡散係数は平均二乗変位 (MSD) の長時間領域から求めた。MSD 自体については tTS は成立しなかった。短時間領域において周辺粒子と衝突しながら局所的にわずかに動けるモードがあるためだと考えられる拡散係数 D の温度依存性を横シフト因子 a_T の温度依存性と同等のものとして読み替えることとした。 $G(t)$ についてはシミュレーションした全温度・時間範囲内において tTS が成立しマスターカーブを構成することができた。図 3 にマスターカーブの例を示す。マスターカーブは短時間領域ではガラス緩和を表す KWW 型で、長時間領域では高分子鎖全体の緩和を表す Rouse 型でよく記述することができた。また、高分子鎖の形態緩和を表す Rouse 緩和関数 $C_p(t)$ についてもシミュレーションの全温度・時間範囲内において tTS を用いてマスターカーブを構成することができた。実験と同様、高分子の運動や緩和はガラス領域においてもある程度の単純さを持っているものと解釈できる。

緩和弾性率と Rouse 緩和関数から得られた横シフト因子と拡散係数の温度依存性を比較したところ、拡散係数と Rouse 緩和関数の横シフト因子は全温度領域でほぼ一致する一方、緩和弾性率の横シフト因子は低温領域では他のものから外れることがわかった。図 4 に拡散係数とシフト因子の比較結果を示す。拡散係数は高分子鎖全体の並進運動を、Rouse 緩和関数は高分子鎖全体の形態緩和を反映している。従って、拡散係数と Rouse 緩和関数が同じ温度依存性を示しているのはどちらも高分子の大域的な運動の温度依存性を反映しているためと考えられる。一方、緩和弾性率は高温では Rouse 緩和と同様に高分子の大域的な運動を反映するが、低温では局所的な構造緩和を反映することとなる。低温で緩和弾性率の横シフト因子が他の温度依存性とずれるのは局所的な構造緩和と大域的な形態緩和の温度依存性がずれているためだと考えられる。

(4) 過渡ポテンシャルによるモデリング

実験・シミュレーションの結果から、高分子ガラスの緩和挙動には tTS が適用でき定性的にはほぼ同様であり、低温ではある種の単純さを持っているものと期待できる。その一方、特徴的な運動性あるいは緩和時間の温度依存性は着目する物理量やエージング条件等によって変化しており、温度依存性はそれほど単純ではない。さらに、分子動力学で得られた MSD は温度によって形状自体が変化していて tTS は適用できない。これらの事実を参考に、高分子ガラスの運動を高レベルに粗視化して記述することを考えた。

ガラス状態での高分子は短時間では周囲の高分子が作る拘束のために動きがほぼ凍結している。ただし、この拘束は永続的なものではなく、長時間待てば拘束が外れて高分子は動けるようになる。しかし、またすぐに新しい拘束が生成されて動きが凍結される。高分子ガラス中の 1 本の高分子鎖の動きをこのような拘束の生成消滅によって駆動されるものと解釈する。通常の粗視化モデルに表れる有効ポテンシャルではこのような特徴的な拘束の生成消滅は再現できない。しかし、高分子のからみあいを表現するために開発された過渡的結合 [P. Kindt and W. J. Briels, J. Chem. Phys. **128**, 134901 (2007); T. Uneyama, J. Chem. Phys. **150**, 024901 (2019)] の概念を

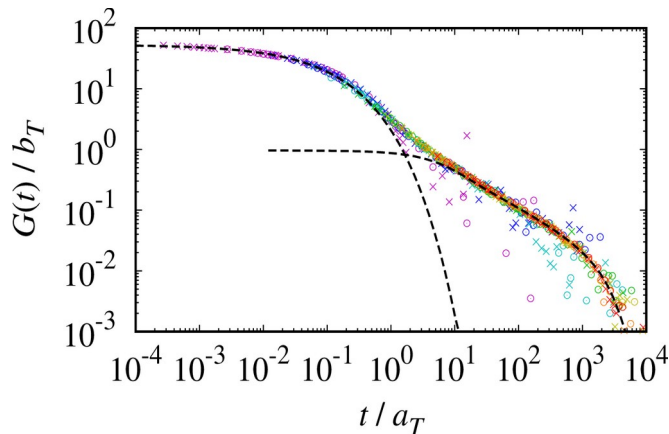


図 3: Kremer-Grest モデル (ビーズ数 25) の線形粘弾性マスターカーブ。測定温度は 0.1~2.5。 a_T, b_T は $T = 1$ を基準とした縦・横のシフト因子を表す。破線は KWW 型、Rouse 型の緩和。

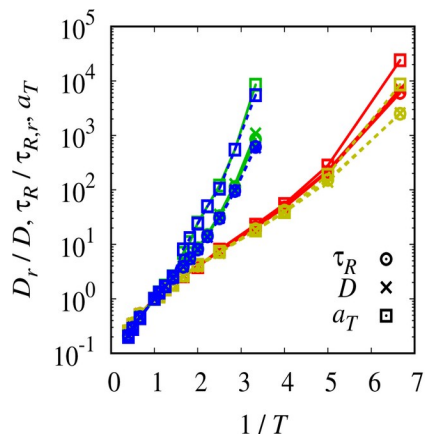


図 4: Kremer-Grest モデルの時間スケールの温度依存性。異なる色は異なる系のデータを表す。

拡張すれば生成消滅する拘束を時間依存してゆらぐポテンシャルとして表現することができる。このような過渡ポテンシャルに基づいたモデルを用いることで低温における高分子の運動を定性的に再現することができることを見つけた [T. Uneyama, Phys. Rev. E **101**, 032106 (2020)]。図 5 に分子動力学シミュレーション高分子の MSD の温度依存性とその粗視化モデルによる再現の例を示す。

ところが、過渡ポテンシャルの概念はもともと高分子のからみあい表現するために経験的に導入されたものであり、統計力学的な視点からは十分には正当化されていないものだった。ガラス状態の高分子鎖の運動の記述が妥当であるためには、過渡ポテンシャルの概念自体をミクロスケールの運動モデルから導出し、統計力学的に正当化することが望ましい。そこで、ミクロスケールの運動モデルとしていくらかの粗視化を行った過減衰 Langevin 方程式と、まったく粗視化を行っていない Hamilton の正準方程式を想定し、それぞれの運動モデルから過渡ポテンシャルを導出することを試みた。過減衰 Langevin 方程式から出発して、動的経路の実現確立を考えることで過渡ポテンシャルが発現することを示した [T. Uneyama, Phys. Rev. E **101**, 032106 (2020)]。過減衰 Langevin 方程式は正準方程式から導出可能であるため、ミクロスケールの運動から粗視化を繰り返すことで過渡ポテンシャルが発現することを示せたと言える。

しかし、この粗視化経路では過渡ポテンシャルの従う運動方程式が陽的な形で得られないという欠点があった。そこで、Hamilton の正準方程式から直接過渡ポテンシャルを含む運動方程式を導出することを試みた。一般的な粗視化では、正準方程式に対して射影演算子と呼ばれる演算子を作用させることで着目する粗視化変数の運動方程式を抽出する。粗視化変数の位置と運動量に加えてポテンシャルに対しても射影演算子を適用することで、過渡ポテンシャルを含む粗視化運動方程式の導出に成功した [T. Uneyama, Phys. Rev. E **105**, 044117 (2022)]。過渡ポテンシャルは時間遅れ効果を含む一般化 Langevin 方程式に従って時間発展することが明らかとなった。

過渡ポテンシャルを用いた記述では、長時間の高分子鎖の運動は過渡ポテンシャルの組み換えによって生じるジャンプ過程ととらえることができる。これは高分子鎖を構成する粒子がジャンプしながら動くジャンプ Rouse モデルに相当する。ジャンプ Rouse モデルの緩和挙動を詳細に調べるために動的 Monte Carlo シミュレーションと理論解析を行い、緩和挙動がジャンプの仕方によってどう変わるか調べた。ジャンプの仕方によって短時間領域の緩和挙動は変換するものの、長時間領域では緩和挙動は定量的にほぼ同じであった。この結果は実験・分子シミュレーションで示された tTS が成立する機構を説明するものであると考えられる。

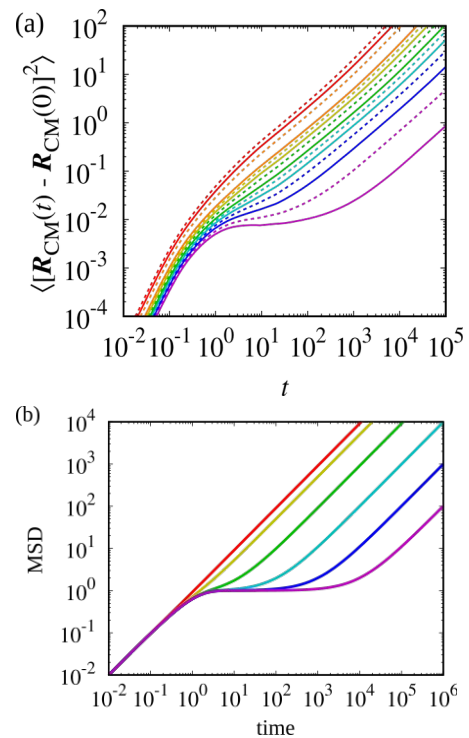


図 5: (a) Kremer-Grest モデルによる高分子鎖重心の MSD の温度依存性。下から上に行くほど高温となる。(b) 過渡ポテンシャルを用いた粗視化モデルにより高分子鎖重心の MSD。下から上に行くほど拘束効果が弱くなる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計24件（うち査読付論文 18件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Uneyama Takashi	4. 巻 50
2. 論文標題 Linear Response Theory of Scale-Dependent Viscoelasticity for Overdamped Brownian Particle Systems	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nihon Reoroji Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 275 ~ 286
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1678/rheology.50.275	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uneyama Takashi, Oishi Tatsuma, Ishida Takato, Doi Yuya, Masubuchi Yuichi	4. 巻 50
2. 論文標題 Stress Tensor of Single Rigid Dumbbell by Virtual Work Method	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nihon Reoroji Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 313 ~ 322
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1678/rheology.50.313	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakai Fumiaki, Masubuchi Yuichi, Doi Yuya, Ishida Takato, Uneyama Takashi	4. 巻 107
2. 論文標題 Fluctuating diffusivity emerges even in binary gas mixtures	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 014605-1 ~ 9
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.107.014605	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 畝山 多加志	4. 巻 71
2. 論文標題 過渡ポテンシャルを用いたソフトマテリアルの粗視化モデリング	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Society of Materials Science, Japan	6. 最初と最後の頁 666 ~ 671
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2472/jsms.71.666	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uneyama Takashi	4. 巻 49
2. 論文標題 Linear Viscoelasticity of Dumbbells Interacting via Gaussian Soft-Core Potential	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nihon Reoroji Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 61 ~ 71
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1678/rheology.49.61	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uneyama Takashi	4. 巻 105
2. 論文標題 Application of projection operator method to coarse-grained dynamics with transient potential	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 044117-1 ~ 20
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.105.044117	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Masubuchi Yuichi, Doi Yuya, Uneyama Takashi	4. 巻 126
2. 論文標題 Effects of Slip-Spring Parameters and Rouse Bead Density on Polymer Dynamics in Multichain Slip-Spring Simulations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 2930 ~ 2941
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.2c00697	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 畝山 多加志	4. 巻 76
2. 論文標題 複雑な運動の新しい見方 時間に依存してゆらぐポテンシャルと拡散係数	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 日本物理学会誌	6. 最初と最後の頁 663 ~ 668
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11316/butsuri.76.10_663	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Yuichi Masubuchi, Yuya Doi, and Takashi Uneyama	4. 巻 16
2. 論文標題 Primitive chain network simulations for the interrupted shear response of entangled polymeric liquids	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 6654-6661
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0SM00654H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takashi Uneyama	4. 巻 48
2. 論文標題 Dissipation in Langevin Equation and Construction of Mobility Tensor from Dissipative Heat Flow	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nihon Reoroji Gakkaishi (J. Soc. Rheol. Jpn.)	6. 最初と最後の頁 65-78
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1678/rheology.48.65	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takashi Uneyama and Yuichi Masubuchi	4. 巻 54
2. 論文標題 Plateau Moduli of Several Single-Chain Slip-Link and Slip-Spring Models	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Macromolecules	6. 最初と最後の頁 1338-1353
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.macromol.0c01790	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 畷山多加志	4. 巻 22
2. 論文標題 からみあった高分子のメソスケールモデリングの進展	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 分子シミュレーション学会誌 "アンサンブル"	6. 最初と最後の頁 210-215
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11436/mssj.22.210	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 畝山多加志	4. 巻 22
2. 論文標題 ゆらく拡散係数を用いた拡散・緩和現象の記述	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 分子シミュレーション学会誌 "アンサンブル"	6. 最初と最後の頁 134-141
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11436/mssj.22.134	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Masubuchi Yuichi、Uneyama Takashi	4. 巻 15
2. 論文標題 Retardation of the reaction kinetics of polymers due to entanglement in the post-gel stage in multi-chain slip-spring simulations	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 5109 ~ 5115
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9SM00681H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Hachiya Yuto、Uneyama Takashi、Kaneko Toshihiro、Akimoto Takuma	4. 巻 151
2. 論文標題 Unveiling diffusive states from center-of-mass trajectories in glassy dynamics	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 034502 ~ 034502
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.5100640	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Miyaguchi Tomoshige、Uneyama Takashi、Akimoto Takuma	4. 巻 100
2. 論文標題 Brownian motion with alternately fluctuating diffusivity: Stretched-exponential and power-law relaxation	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 012116-1 ~ 13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.100.012116	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uneyama Takashi、Nakai Fumiaki、Masubuchi Yuichi	4. 巻 47
2. 論文標題 Effect of Inertia on Linear Viscoelasticity of Harmonic Dumbbell Model	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nihon Reoroji Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 143 ~ 154
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1678/rheology.47.143	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Masubuchi Yuichi、Uneyama Takashi	4. 巻 31
2. 論文標題 Multi-chain slip-spring simulations for polyisoprene melts	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Korea-Australia Rheology Journal	6. 最初と最後の頁 241 ~ 248
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s13367-019-0024-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uneyama Takashi	4. 巻 101
2. 論文標題 Coarse-graining of microscopic dynamics into a mesoscopic transient potential model	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 032106-1 ~ 18
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.101.032106	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 畝山多加志	4. 巻 68
2. 論文標題 からみあった高分子のダイナミクスにおける末端の役割	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 高分子	6. 最初と最後の頁 598-600
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 畝山 多加志	4. 巻 37
2. 論文標題 高分子の粗視化モデリングとシミュレーション	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本化学会情報化学部会誌	6. 最初と最後の頁 81 ~ 86
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11546/cicsj.37.81	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Akimoto Takuma, Yamamoto Eiji, Uneyama Takashi	4. 巻 92
2. 論文標題 Estimating Relaxation Times from a Single Trajectory	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 074005-1 ~ 8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.92.074005	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakai Fumiaki, Uneyama Takashi	4. 巻 108
2. 論文標題 Brownian yet non-Gaussian diffusion of a light particle in heavy gas: Lorentz-gas-based analysis	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review E	6. 最初と最後の頁 044129-1 ~ 7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevE.108.044129	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Uneyama Takashi	4. 巻 52
2. 論文標題 Comparison of Linear Viscoelastic Behaviors of Langevin- and Jump-Rouse Models	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Nihon Reoroji Gakkaishi	6. 最初と最後の頁 27 ~ 35
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1678/rheology.52.27	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計52件（うち招待講演 10件 / うち国際学会 14件）

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 過減衰 Brown 粒子系の長さスケールに依存した線形粘弾性の理論
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 過渡ポテンシャルを用いた結晶性高分子の粗視化モデルの構築
3. 学会等名 第70回レオロジー討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 ゆらく過渡ポテンシャルを用いた高分子のメソスケール運動の粗視化
3. 学会等名 レア・イベントの計算科学第5回ワークショップ：レア・イベント解析とデータサイエンス（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 市川千陽，土肥侑也，畝山多加志，増淵雄一
2. 発表標題 ポリスチレンガラスの粘弾性の副緩和におけるエージング温度および時間の効果
3. 学会等名 日本レオロジー学会第49年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 市川千陽, 石田崇人, 土肥侑也, 畝山多加志, 増淵雄一
2. 発表標題 エージングしたポリスチレンガラスの副緩和の誘電緩和と線形粘弾性の比較
3. 学会等名 第70回レオロジー討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 畝山多加志, 増淵雄一
2. 発表標題 1本鎖スリップリンク・スリップスプリングモデルの平坦部弾性率の理論解析
3. 学会等名 日本レオロジー学会第48年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 ランダムおよび末端における高分子鎖の切断モデルによる分子量分布の時間変化の理論解析
3. 学会等名 分子学会第70回年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 射影演算子を直接適用したLangevin方程式の粗視化
3. 学会等名 日本物理学会 2021年秋季大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 分子間相互作用がダンベルモデルの構造と線形粘弾性に与える影響
3. 学会等名 第69回レオロジー討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Takashi Uneyama
2. 発表標題 Modeling Mesoscopic Dynamics of Polymeric Systems by Coarse-Grained Dynamics Models with Transient Potentials
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 過冷却高分子のシミュレーションにおける応力緩和と形態緩和の時間温度換算
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 射影演算子法の過渡ポテンシャルダイナミクスへの適用
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 ミクロスケール運動モデルからの過渡ポテンシャルダイナミクスの導出
3. 学会等名 第68回レオロジー討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 1次元過渡結合系の示すクラスタ構造とダイナミクスの関係
3. 学会等名 MRMフォーラム2020
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takashi Uneyama
2. 発表標題 Coarse-Grained Modeling for Mesoscopic Dynamics of Polymers by Langevin Equation with Transient Potential
3. 学会等名 International Congress on Rheology 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 広井紀彦, 土肥侑也, 畝山多加志, 増淵雄一
2. 発表標題 過渡結合MDPD法への固体壁の導入
3. 学会等名 第68回レオロジー討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 広井紀彦, 畝山多加志, 増淵雄一
2. 発表標題 過渡結合MDPD法によるポリスチレンメルトのキャピラリーシニングのシミュレーション
3. 学会等名 日本レオロジー学会第47年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 本裕太, 土肥侑也, 畝山多加志, 増淵雄一
2. 発表標題 溶融した低密度ポリエチレン発泡体のスタートアップせん断測定
3. 学会等名 第68回レオロジー討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 榎本裕太, 畝山多加志, 増淵雄一
2. 発表標題 LDPEをマトリックスとする粘弾性発泡体の線形粘弾性測定の解析
3. 学会等名 日本レオロジー学会第47年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 高分子ダイナミクスのメソスケール粗視化シミュレーション
3. 学会等名 第68回高分子学会年次大会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 高分子溶融体・濃厚溶液の構造とダイナミクス
3. 学会等名 19-1 高分子学会講演会「高分子のダイナミクスとその分子メカニズム」(招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuichi Masubuchi
2. 発表標題 Multi-chain simulations of entangled polymer dynamics
3. 学会等名 Summer School on “Transient and complex polymer networks” by DODYNET project(2019/7/23), Anacapri, Italy(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuichi Masubuchi
2. 発表標題 Primitive Chain Network Simulations for H-Polymer Melt under High Shear
3. 学会等名 Workshop on “Polymers in fast flows” by SOFTCOMP project(招待講演)(国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 過渡ポテンシャルとゆらぐ拡散係数による線形非平衡ダイナミクスの記述
3. 学会等名 第1回研究会「非線形・非平衡系の数理と物理」
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuichi Masubuchi
2. 発表標題 Modeling of entangled polymer dynamics
3. 学会等名 International Symposium on Polymers and networks via topology and entanglement (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuichi Masubuchi and Takashi Uneyama
2. 発表標題 Retardation of reaction kinetics of polymers due to entanglement in post-gel stage in multi-chain slip-spring simulations
3. 学会等名 Polymer Engineering and Science International 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 過渡ポテンシャルを用いた高分子系の粗視化記述理論の考察
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志, 宮口智成, 秋元琢磨
2. 発表標題 拡散係数がゆるぐOnset in-Uhlenbeck過程における緩和挙動の解析
3. 学会等名 日本物理学会 2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 増淵雄一, 畝山多加志
2. 発表標題 高分子ナノコンポジットの多体スリップスプリングモデル
3. 学会等名 第68回高分子討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 過渡ポテンシャルの導入による高分子のメソスケール粗視化の新規手法
3. 学会等名 第68回高分子討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志, 仲井文明, 増淵雄一
2. 発表標題 ダンベルモデルとRouseモデルの線形粘弾性に対する慣性の影響
3. 学会等名 第67回レオロジー討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takashi Uneyama
2. 発表標題 A highly coarse-grained model for dynamics of entangled polymers using transient bonds
3. 学会等名 The 91st Annual Meeting of The Society of Rheology
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 記憶効果を持つメソスケールダイナミクスのメモリカーネルを用いない粗視化手法
3. 学会等名 高分子基礎研究会2019
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 高分子レオロジーの粗視化分子モデル
3. 学会等名 関東高分子若手研究会2019 秋の講演会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 過渡結合モデルにおける不均一なダイナミクス
3. 学会等名 第9回ソフトマター研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志, 増淵雄一
2. 発表標題 過渡的な結合を用いたからみあった高分子の粗視化分子シミュレーション
3. 学会等名 第33回分子シミュレーション討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuichi Masubuchi and Takashi Uneyama
2. 発表標題 Multi-Chain Simulations for Entangled Polymers
3. 学会等名 The 16th Pacific Polymer Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yuichi Masubuchi and Takashi Uneyama
2. 発表標題 Modeling of Entangled Polymer Dynamics
3. 学会等名 Materials Research Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 過渡ポテンシャルとゆらぐ拡散係数を用いた高分子系の粗視化方法
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 市川千陽, 石田崇人, 土肥侑也, 畝山多加志, 増淵雄一, 萩原英昭
2. 発表標題 陽電子消滅測定を用いたPSガラスの自由体積空孔に対するエージングの効果の評価
3. 学会等名 日本レオロジー学会第50回記念年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takashi Uneyama, Stephen Sanderson, Mingchao Wang, and Debra J. Searles
2. 発表標題 Molecular Dynamics Simulations for Viscosity Growth and Conformations of Unentangled Polymers Under Shear Flow
3. 学会等名 8th Pacific Rim Conference on Rheology (PRCR2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takashi Uneyama
2. 発表標題 Simulation of Competition between Reaction and Relaxation in Gelation Kinetics
3. 学会等名 8th Pacific Rim Conference on Rheology (PRCR2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 過渡ポテンシャルとゆらぐ拡散係数を用いたソフトマターのダイナミクスの粗視化記述
3. 学会等名 OCTA20周年記念講演会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 高分子の新規粗視化手法の開発と結晶性高分子固体への応用
3. 学会等名 新化学技術推進協会 (JACI) コンピュータケミストリ勉強会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takashi Uneyama
2. 発表標題 Mesoscopic Coarse-Grained Modeling of Polymeric Materials with Transient Potentials
3. 学会等名 XIXth International Congress on Rheology (ICR2023) (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takashi Uneyama
2. 発表標題 Derivation of coarse-grained dynamic equations with transient potential from microscopic dynamics
3. 学会等名 28th International Conference on Statistical Physics, Statphys28 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 高速剪断流動下の高速剪断流動下の粘度と形態の解析
3. 学会等名 ナノ力学若手交流会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takashi Uneyama
2. 発表標題 Friction Coefficient in Nonlinear Polymer Rheology
3. 学会等名 Workshop on Theory and Simulation of Nonequilibrium Fluids (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 高速流動下の定常状態におけるRouse型モデルの性質
3. 学会等名 第71回レオロジー討論会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 粗視化モデルによる結晶性高分子の構造変化と力学挙動
3. 学会等名 第11回ソフトマター研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 C. Ichikawa, T. Ishida, Y. Doi, T. Uneyama, and Y. Masubuchi
2. 発表標題 The effect of viscoelastic relaxation on aging of polystyrene glass with a bimodal molecular weight distribution
3. 学会等名 The 17th International Workshop for East Asian Young Rheologist (国際学会)
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 畝山多加志
2. 発表標題 高分子の粗視化記述: 概念から新規手法まで
3. 学会等名 MaterialDX2月研究セミナー
4. 発表年 2024年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 畝山多加志	4. 発行年 2019年
2. 出版社 技術情報協会	5. 総ページ数 6
3. 書名 流体・流動解析事例集 -高分子成形加工、塗料・コーティング、化粧品・食品など-	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	土肥 侑也 (Doi Yuya) (10784770)	名古屋大学・工学研究科・助教 (13901)	
研究 分担者	増淵 雄一 (Masubuchi Yuichi) (40291281)	名古屋大学・工学研究科・教授 (13901)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------