

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 4 月 26 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24245045

研究課題名(和文) 高分子ブレンド中の鎖ダイナミクスと相成長の非線形フィードバック

研究課題名(英文) Feedback between Chain Dynamics and Phase Separation in Polymer Blends

研究代表者

渡辺 宏 (WATANABE, Hiroshi)

京都大学・化学研究所・教授

研究者番号：90167164

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,400,000円

研究成果の概要(和文)：高分子ブレンド中の相構成成長過程と成分高分子の絡み合いダイナミクスのカップリング効果の基礎的理解のために、均質絡み合い系中の緩和過程を詳細に検討した。その結果、周囲の鎖の運動で誘起される管膨張緩和過程においては、鎖骨格と直角・平行の2方向の特徴的長さが、それぞれ、応力緩和のレベルと緩和時間を決定することなどを見出した。また、局所緩和の解析も行い、遅い成分が速い成分の局所 Rouse 緩和をトポロジカルに遅延することなどを見出した。これらの新規な知見に基づいて、高分子ブレンド系の絡み合いダイナミクスと相構成成長の間の非線形カップリング効果の記述を試みた。

研究成果の概要(英文)：In polymer blends, the phase separation kinetics is strongly coupled with the entanglement dynamics of component polymers therein. For basic understanding of this coupling, the entanglement relaxation in homogeneous systems was examined in detail. It turned out that the tube dilation process (relaxation process activated by motion of surrounding chains) is associated with two characteristic length, one being in the direction perpendicular to the chain backbone and determining the stress relaxation level, and the other being in the direction parallel to the backbone and governing the relaxation time. In addition, analysis of local dynamics revealed retardation of the local Rouse relaxation of the fast component due to topological constraint from the slow component. On the basis of these new features (not considered in conventional models), an attempt was made to describe the coupling between the phase separation kinetics and the entanglement dynamics in the blends.

研究分野：分子レオロジー、高分子物理学

キーワード：高分子ブレンド 絡み合い緩和 管膨張機構 局所緩和 絡み合い長

1. 研究開始当初の背景

高分子ブレンドは、工業的に生産される高分子材料の中で大きな割合を占め、そのナノ・スケールの相構造が選択的物質透過や力学強度増加などの目的で広く利用されている。この相構造の形成過程では、成分高分子鎖の拡散と偏在化による絡み合い界面領域の形成が鍵となる。これまで、均一混合状態からの相分離過程について、鎖の濃度分布に関する時間依存型 Ginzburg-Landau 理論などに基づく研究が多く行われてきた。しかし、実際の相分離過程では、鎖の運動を支配する絡み合い長 a と局所緩和時間 τ_c が経時的に変化して空間的にも不均一となり、この変化が相構造成長と強くカップリングされる。このカップリングは、これまでの研究では殆ど考慮されなかったため、特異な相構造形成機構も含めた相分離過程の詳細は不明のまま残されて来た。

2. 研究の目的

上記の背景を鑑み、本研究は、高分子ブレンドの相構造成長過程と成分高分子の絡み合いダイナミクス間のカップリングを解明することを究極の目標とする。この目標達成のためには、絡み合い長 a と局所緩和時間 τ_c によって絡み合い鎖の運動様式どのように規定されるか、また、ブレンドの組成と共に a と τ_c がどのように変化するかを解明し、さらに、その知見を踏まえて、相分離過程の自己無撞着な記述を試みる。

3. 研究の方法

A 型双極子を持ち、末端間ベクトルの大きな揺らぎが誘電活性となるシスポリイソブレン (PI) を成分とするブレンド系について、誘電測定、粘弾性測定を行い、その結果を解析することで、絡み合い鎖の運動・緩和に関する詳細な知見を得る。特に、分子量が異なる 2 種の PI を成分とするホモポリマーブレンド系を対象として、絡み合い鎖の運動・緩和の詳細を明らかにする。また、PI と相溶するポリ(*t*-ブチルスチレン) (PtBS) を用いた PI/PtBS 異種ポリマーブレンド系については、絡み合い長 a と局所緩和時間 τ_c がブレンド組成と共にどのように変化するかを明らかにする。これらの知見を踏まえて、相分離過程の自己無撞着な記述を試みる。

4. 研究成果

(1) PI/PI ブレンド系の運動・緩和様式

図 1 は分子量 $M_1 = 2.1$ 万の単分散直鎖 PI21 を速い成分、 $M_2 = 30.8$ 万の単分散直鎖 PI308 を遅い成分とする絡み合いブレンド系の 40°C における緩和剛性率 $G(t)$ のデータ (○) を示す [文献①]。化学的に均質な PI/PI ブレンド系では、絡み合い剛性率 G_N は遅い

成分の体積分率 ϕ_2 に依存しないので、図中の $G(t)$ データは G_N で規格化してある。

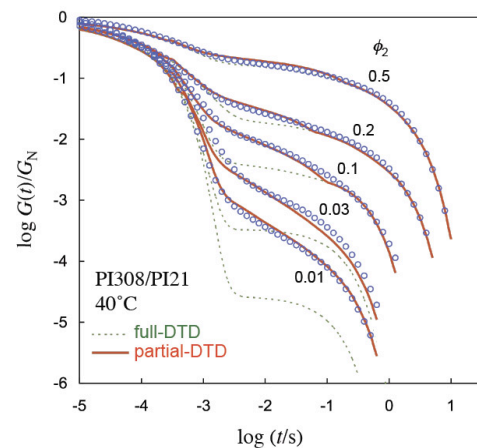


図 1. PI/PI ブレンド系の緩和剛性率

絡み合い系に対して広く用いられている管モデルでは、緩和した速い成分が遅い成分に対する溶媒として働いて絡み合い長 a を増加させる管膨張機構が重要な緩和機構として考慮されている。この機構では、未緩和の絡み合いセグメントの割合 $\varphi'(t)$ を用いて、 $G(t)$ が式 (1) のように表現される [文献①]。

$$G(t)/G_N = \{\varphi'(t)\}^{1+d}, d \approx 1.3 \quad (1)$$

A 型双極子を持つ PI については、誘電緩和関数のデータから $\varphi'(t)$ データを純実験的に求めることができるので、式 (1) を恣意性なく検証できる。 $\varphi'(t)$ データを式 (1) に用いて計算した $G(t)/G_N$ (図 1 の点線) は、 ϕ_2 が小さな場合のデータを中間時間域で過小評価する。この結果は、緩和成分を溶媒とみなす従来の管モデルに不備があることを意味する。

この点を考慮して、周囲の鎖の運動に由来する束縛解放 (CR) 機構によって相互平衡化が可能な絡み合いセグメントの最大数 $\beta_{CR}(t)$ が決まることに着目し、式 (2) で表現される部分的管膨張機構を提唱した。

$$G(t)/G_N = \varphi'(t)/\beta(t) \quad (2a)$$

$$\beta(t) = \min[\beta_{CR}(t), \{\varphi'(t)\}^{-d}] \quad (2b)$$

CR 緩和時間のデータから実験的に見積もられる $\beta_{CR}(t)$ を式 (2) に用いて計算される $G(t)/G_N$ (図 1 の実線) はデータ (○) を良く記述する。この結果は、ブレンド系の緩和過程における絡み合い長 $a(t)$ が、 G_N に対応する未緩和時の絡み合い長 a_0 および式 (2b) の $\beta(t)$ を用いて以下のように表されることを示す。

$$a(t) = a_0 \{\beta(t)\}^2 \quad (3)$$

上記の結果は、ブレンド中の成分鎖が直径 $a(t)$ の膨脹管の中で運動していること、 $a(t)$ は管膨張 (絡み合い網目の希釈) に伴う $G(t)$ の減少を記述するパラメータであることを意

味する。最も単純な場合、成分鎖は、膨脹管に沿ったレプテーション運動で緩和すると考えられる。この考えを検証するために、 $M_2 = 112$ 万の単分散直鎖 PI 1.1M を遅いマトリクス成分とし、 $M_1 = 2.1$ 万~17.9 万の単分散直鎖 PI を速い希薄プローブ (体積分率 $\phi_1 = 0.1$ または 0.2) とするブレンド系について誘電緩和測定を行った。得られた誘電損失 ϵ'' を図 2 に示す [文献②]。

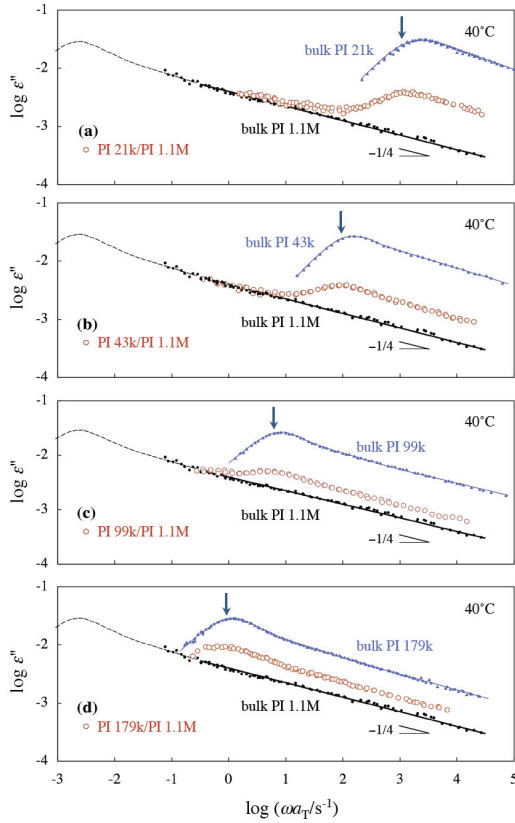


図 2. PI/PI ブレンド系の誘電損失。試料コードは分子量を千単位で表す。

図 2 のマトリクスの緩和 (図中 ●) は希薄プローブの運動・緩和より遥かに遅いため、ブレンド中の希薄プローブの緩和 (○) には管膨張機構は寄与していない。一方、プローブの単分散系の緩和 (△) には管膨張機構が大きく寄与している。従って、単分散系中のプローブが式 (3) で与えられる直径 $a(t)$ の膨脹管に沿ったレプテーションで緩和しているのであれば、遅い PI 1.1M とブレンドされることで緩和時間が $\{a(\tau_{1,単分散系})/a_0\}^3$ 倍になると予想される ($\tau_{1,単分散系}$ はプローブ単分散系の緩和時間である)。

図 3 左 は、ブレンド中のプローブの緩和時間 $\tau_{1,ブレンド}$ と $\tau_{1,単分散系}$ の比を実験的に評価し、プローブの絡み合い密度 M_1/M_e (M_e は絡み合い点間分子量) に対してプロットした結果である [文献②]。 $\tau_{1,ブレンド}/\tau_{1,単分散系}$ 比 (○) は M_1/M_e の増加とともに緩やかに減少するが、この減少は上記の予想 (点線) と比べて

遥かに弱い。この結果から、単分散系中の鎖は、式 (3) の直径 $a(t)$ を有する膨脹管に沿ってはレプテーションしないことがわかる。

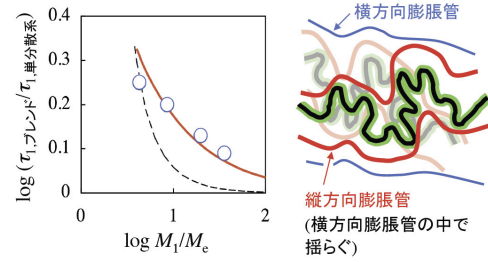


図 3. PI/PI 系の緩和時間 (左) と緩和機構 (右)

レプテーションは鎖全体の協同的運動であるので、膨脹管に沿ったレプテーションは単に長さ $a(t)$ にわたる絡み合いセグメントの平衡化だけでなく、膨脹管全体の平衡化を必要とする。このため、図 3 右に示すように、管は鎖骨格の横方向 (直角方向) に長さ $a(t)$ にわたって膨脹し、この膨脹管の中で、それより小さな直径 $a^*(t)$ を持ち縦方向 (鎖骨格方向) に膨脹した管が揺らいでいると考えられる。単分散系中の鎖は後者に沿ってレプテーションすると考えられる。

この考えに基づけば、 $\tau_{1,ブレンド}/\tau_{1,単分散系}$ 比は因子 $\{a^*(\tau_{1,単分散系})/a_0\}^3$ と一致するはずである。束縛解放 (CR) 時間のデータからこの因子を見積もった結果を図 3 左に実線で示す。 $\tau_{1,ブレンド}/\tau_{1,単分散系}$ 比はこの見積もりに近く、上記の考えの妥当性が支持された。

以上の結果から、絡み合い鎖の緩和は、緩和の程度 ($G(t)/G_N$) を決定する横方向の管膨脹と緩和時間を決定する縦方向の管膨脹に支配されていることが結論される [文献②, ③]。この結論は、化学的に不均質なブレンド系の相分離過程における絡み合いダイナミクスを記述する際の基本となる。

(2) PI/PtBS ブレンド系の緩和様式

化学的に異なる高分子を成分とするブレンド系でも、基本的な絡み合い緩和の様式は前項で述べた 2 種の直径を有する膨脹管内のレプテーションであると考えられる。しかしながら、局所運動と絡み合い剛性率には、系の化学的不均一性を反映する特徴が現れると予想される。この点を検討するため、PI とポリ(*t*-ブチルスチレン) (PtBS) の相溶性ブレンド系に対して粘弾性および誘電緩和測定を行った。その結果を図 4 に示す [文献④]。

PtBS は A 型双極子を持たないため、図 4 の ϵ'' データはブレンド中の PI の終端緩和を反映する。高温 ($\geq 60^\circ\text{C}$) では、図 1 の PI/PI ブレンドと同様に、貯蔵および損失剛性率 G' 、 G'' の粘弾性緩和は 2 段階で進行している。一方、低温 (30°C) では、PI の終端絡み合い緩和に伴う一段目の平坦部が観察

されず、Rouse 緩和 ($G' \cong G'' \propto \omega^{1/2}$) にマスクされている。この結果は、系中の低摩擦成分 (低 T_g 成分) である PI の絡み合い点間局所 Rouse 緩和が、高摩擦成分である PtBS の局所 Rouse 緩和と共に進行していること、すなわち、高摩擦成分によるトポロジカルな拘束のために低摩擦成分の局所 Rouse 緩和時間 τ_e が増加していることを示す。このトポロジカルな遅延効果は化学的に不均質な系に固有の効果である。

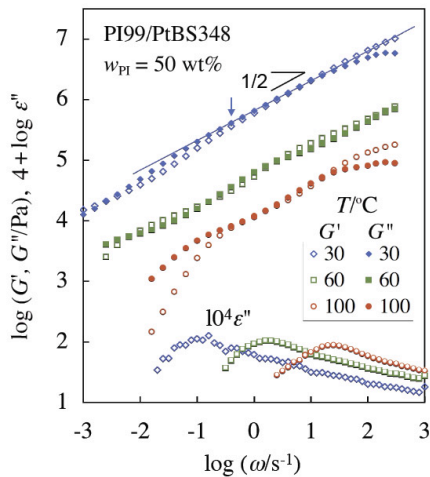


図 4. PI/PtBS ブレンド系の粘弾性緩和と誘電緩和。試料コードは分子量を千単位で表す。

相溶性 A/B ブレンドの絡み合い剛性率 G_N を支配する絡み合い長 a について、下記の混合則が提唱されている。

$$1/a = \phi_A/a_A + \phi_B/a_B \quad [\text{文献⑤}] \quad (4)$$

$$a = n_A a_A + n_B a_B \quad [\text{文献⑥}] \quad (5)$$

a_X は成分 X の単分散系における絡み合い長、 ϕ_X , n_X はブレンド中における成分 X の体積分率、Kuhn セグメント数分率である。式 (4), (5) を検証するため、一連の PI/PtBS ブレンド系について粘弾性測定を行い、 G_N を評価した。その結果を図 5 に示す。

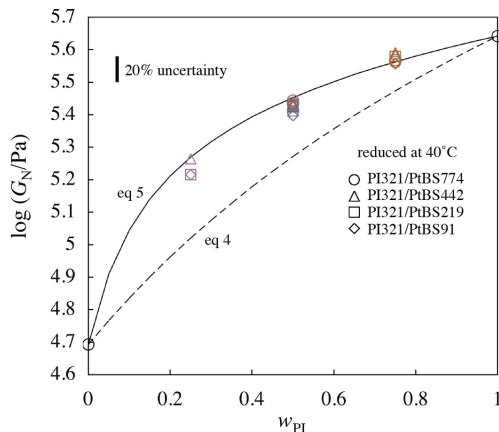


図 5. PI/PtBS ブレンド系の絡み合い剛性率。試料コードは分子量を千単位で表す。

図 5 の結果は、式 (5) の混合則 (実線) を支持する。相溶性 A/B ブレンド中では成分の主鎖骨格長の総和が絡み合い密度を決めるために式 (5) が成立するものと思われる。

(3) 相分離過程の記述

絡み合いブレンド系に対する時間依存型 Ginzburg-Landau 理論は、相分離に伴う局所濃度 $c(\mathbf{r}, t)$ の時間的・空間的变化を下式で記述する。ここで、 F は系の自由エネルギー、 g_B は熱揺動力、 L_0 は Onsager 係数である。

$$\frac{\partial c(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = L_0 \nabla^2 \left\{ \frac{\delta F(\mathbf{r}, t)}{\delta c(\mathbf{r}, t)} \right\} + g_B(\mathbf{r}, t) \quad (6)$$

$$L_0 = \frac{b^2}{540\eta_R} \frac{M}{M_e} = \frac{m_0}{90\pi^2 \rho RT} \frac{a^2}{\tau_e} \quad (7)$$

従来の研究の多くは、 L_0 を定数として取り扱ってきた。さらに、成分鎖が同一の広がりを持つ場合、 L_0 は、鎖当たりの絡み合い点数 M/M_e 、モノマーの有効ステップ長 b 、鎖が Rouse 鎖として振る舞った場合の粘度 η_R を用いて、式 (7) のように表されてきた [文献⑦]。 η_R を局所 Rouse 緩和時間 τ_e 、絡み合い長 a 、モノマー分子量 m_0 、系の密度 ρ などを用いて表せば、 L_0 が因子 a^2/τ_e に比例することがわかる (式 (7))。従って、 L_0 を定数とする従来の研究では、 a と τ_e が相分離過程においても一定であると仮定されている。

しかし、前述のように a と τ_e は組成 (濃度 c) と共に変化するので、上記理論の修正が必要となる。現在、本研究で解明した鎖の運動様式 (2種の直径を有する膨脹管内のレプテーション) および a と τ_e の表現に基づいて、理論の修正を行っている。

<引用文献>

- ① H. Watanabe, *J. Soc. Rheol. Japan*, **40**, 209, (2012).
- ② Y. Matsumiya, K. Kumazawa, M. Nagao, O. Urakawa, and H. Watanabe, *Macromolecules*, **46**, 6067 (2013).
- ③ Y. Matsumiya, Y. Masubuchi, T. Inoue, O. Urakawa, C.-Y. Liu, E. van Ruymbeke, and H. Watanabe, *Macromolecules*, **47**, 7637 (2014).
- ④ H. Watanabe and O. Urakawa, "Component dynamics in miscible polymer blends Functional Polymer Blends: Synthesis, Properties and Performance" (V. Mittal ed.), Taylor and Francis (CRC Press), USA, 1, Chapter 3 (2012).
- ⑤ J. A. Pathak, S. K. Kumar, and R. H. Colby, *Macromolecules*, **37**, 6994 (2004).
- ⑥ Q. Chen, Y. Matsumiya, Y. Masubuchi, H. Watanabe, and T. Inoue, *Macromolecules*, **41**, 8694 (2008).
- ⑦ T. Koga and K. Kawasaki, *Physica A*, **196**, 389 (1993).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (総件数 29 件) すべて査読あり

- (1) Y. Masubuchi and H. Watanabe, “Origin of Stress Overshoot under Start-up Shear in Primitive Chain Network Simulation”, *ACS Macro Lett.*, **3**, 1183–1186 (2014). DOI: 10.1021/mz500627r
- (2) Y. Matsumiya, Y. Masubuchi, T. Inoue, O. Urakawa, C.-Y. Liu, E. van Ruymbeke, and H. Watanabe, “Dielectric and Viscoelastic Behavior of Star-Branched Polyisoprene: Two Coarse-Grained Length Scales in Dynamic Tube Dilation”, *Macromolecules*, **47**, 7637–7652 (2014). DOI: 10.1021/ma501561y
- (3) E. van Ruymbeke, V. Shchetnikava, Y. Matsumiya, and H. Watanabe, “Dynamic Dilution Effect in Binary Blends of Linear Polymers with Well-Separated Molecular Weights”, *Macromolecules*, **47**, 7653–7665 (2014). DOI: 10.1021/ma501566w
- (4) Y. Masubuchi, Y. Matsumiya, and H. Watanabe, “Test of Orientation/Stretch-Induced Reduction of Friction via Primitive Chain Network Simulations for Polystyrene, Polyisoprene, and Poly(*n*-butyl acrylate)”, *Macromolecules*, **47**, 6768–6775 (2014). DOI: 10.1021/ma5016165
- (5) Y. Masubuchi, Y. Matsumiya, H. Watanabe, G. Marrucci, and G. Ianniruberto, “Primitive Chain Network Simulations for Pom-pom Polymers in Uniaxial Elongational Flows”, *Macromolecules*, **47**, 3511–3519 (2014). DOI: 10.1021/ma500357g
- (6) K. Horio, T. Uneyama, Y. Matsumiya, Y. Masubuchi, and H. Watanabe, “Rheo-Dielectric Responses of Entangled *cis*-Polyisoprene under Uniform Steady Shear and LAOS”, *Macromolecules*, **47**, 246–255 (2014). DOI: 10.1021/ma402100t
- (7) H. Watanabe, Y. Matsumiya, and E. van Ruymbeke, “Component Relaxation Times in Entangled Binary Blends of Linear Chains: Reptation/CLF along Partially or Fully Dilated Tube”, *Macromolecules*, **46**, 9296–9312 (2013). DOI: 10.1021/ma4018795
- (8) Q. Huang, N. J. Alvarez, Y. Matsumiya, H. K. Rasmussen, H. Watanabe, and O. Hassager, “Extensional Rheology of Entangled Polystyrene Solutions Suggests Importance of Nematic Interactions”, *ACS Macro Letters*, **2**, 741–744 (2013). DOI: 10.1021/mz400319v
- (9) Y. Matsumiya, K. Kumazawa, M. Nagao, O. Urakawa, and H. Watanabe, “Dielectric Relaxation of Monodisperse Linear Polyisoprene: Contribution of Constraint Release”, *Macromolecules*, **46**, 6067–6080 (2013). DOI: 10.1021/ma400606n
- (10) S. Suzuki, T. Uneyama, and H. Watanabe, “Concentration Dependence of Nonlinear Rheological Properties of Hydrophobically Modified Ethoxylated Urethane (HEUR) Aqueous Solutions”, *Macromolecules*, **46**, 3497–3504 (2013). DOI: 10.1021/ma400429y
- (11) Y. Matsumiya, H. Watanabe, A. Takano, and Y. Takahashi, “Uniaxial Extensional Behavior of (SIS)_p-type Multiblock Copolymer Systems: Structural Origin of High Extensibility”, *Macromolecules*, **46**, 2681–2695 (2013). DOI: 10.1021/ma3026404
- (12) H. Watanabe, “Fundamental Findings in Softmatter Rheology on the Basis of Multiple Method”, *J. Soc. Rheol. Japan*, **40**, 209–222, (2012). DOI: 10.1678/rheology.40.209
- (13) T. Uneyama, S. Suzuki, and H. Watanabe, “Concentration Dependence of Rheological Properties of Telechelic Associative Polymer Solutions”, *Phys. Rev. E*, **86**, 031802 (2012). DOI: 10.1103/PhysRevE.86.031802
- (14) Y. Matsumiya, Q. Chen, A. Uno, H. Watanabe, A. Takano, K. Matsuoka, and Y. Matsushita, “Dielectric behavior of Styrene-Isoprene (SI) diblock and SIS triblock copolymers: Global dynamics of I blocks in spherical and cylindrical domains embedded in glassy S matrix”, *Macromolecules*, **45**, 7050–7060, (2012). DOI: 10.1021/ma301453b
- (15) E. Tamura, Y. Kawai, T. Inoue, and H. Watanabe, “Rheo-Optical Study of Viscoelastic Relaxation Modes in Block Copolymer Micellar Lattice System”, *Macromolecules*, **45**, 6580–6586 (2012). DOI: 10.1021/ma300834u
- (16) Q. Chen, Y. Matsumiya, T. Iwamoto, K. Nishida, T. Kanaya, H. Watanabe, A. Takano, K. Matsuoka, and Y. Matsushita, “Dielectric Behavior of Guest *cis*-Polyisoprene Confined in Spherical Microdomain of Triblock Copolymer”, *Macromolecules*, **45**, 2809–2819 (2012). DOI: 10.1021/ma3001687
- (17) T. Yaoita, T. Isaki, Y. Masubuchi, H. Watanabe, G. Ianniruberto, and G. Marrucci, Primitive Chain Network Simulation of Elongational Flows of Entangled Linear Chains: Stretch/Orientation-induced Reduction of Monomeric Friction, *Macromolecules* **45**, 2773–2782 (2012). DOI: 10.1021/ma202525v
- (18) E. van Ruymbeke, Y. Masubuchi, and H. Watanabe, “Effective Value of the Dynamic Dilution Exponent in Bidisperse Linear Polymers: from 1 to 4/3”, *Macromolecules* **45**, 2085–2098 (2012). DOI: 10.1021/ma202167q
- (19) S. Suzuki, T. Uneyama, T. Inoue, and H. Watanabe, “Nonlinear Rheology of Telechelic Associative Polymer Networks: Shear Thickening and Thinning Behavior of Hydrophobically Modified Ethoxylated Urethane (HEUR) in Aqueous Solution”, *Macromolecules*, **45**, 888–898 (2012). DOI: 10.1007/s00397-011-0574-x
- (20) Q. Chen, Y. Matsumiya, and H. Watanabe, “Dynamics in Miscible Blends of

Polyisoprene and Poly(*p*-*tert*-butyl styrene): Thermo-Rheological Behavior of Components”, *Polymer J.* **44**, 102-114 (2012). DOI: 10.1038/pj.2011.33

[学会発表] (総件数 26 件)

- (1) H. Watanabe and Y. Matsumiya, “Dielectric relaxation of entangled monodisperse polyisoprene: Contribution of constraint release”, The Society of Rheology 86th Annual Meeting, 2014 年 10 月 6 日, Philadelphia (USA).
- (2) H. Watanabe, and Y. Matsumiya, “Dielectric Relaxation of Entangled Monodisperse Polyisoprene: Contribution of Constraint Release”, 6th Pacific Rim Conference on Rheology, 2014 年 7 月 21 日, Melbourne (Australia).
- (3) H. Watanabe, “Entanglement Dynamics of Flexible Polymers: Remaining Problems”, Polymer Physics Gordon Research Conference, 2014 年 7 月 14 日, South Hadley (USA). (招待講演)
- (4) H. Watanabe, “Constraint Release in Equilibrium Dynamics of Entangled Polymers”, The 11th International Symposium on Polymer Physics, 2014 年 6 月 10 日, Nanjing (China). (招待講演)
- (5) H. Watanabe, “Rheology and Flow/Deformation Mechanism in Multiblock Copolymers”, High Polymer Research Group 54th Meeting, 2014 年 4 月 29 日, Pott Shrigley (UK). (招待講演)
- (6) H. Watanabe and Y. Matsumiya, “Dielectric Relaxation of Entangled Monodisperse Polyisoprene: Contribution of Constraint Release”, 9th Annual European Rheology Conference, 2014 年 4 月 10 日, Karlsruhe (Germany).
- (7) H. Watanabe, “Comparison of Dielectric and Viscoelastic Relaxation of *cis*- Polyisoprene: Some Details of Entanglement Dynamics”, Kyoto-Beihang-DTU Symposium –Dynamics and Rheology of Polymer Melts and Solution–, 2014 年 4 月 3 日, Lyngby (Denmark). (招待講演)
- (8) H. Watanabe and Y. Matsumiya, “Dielectric Relaxation of Monodisperse Linear Polyisoprene: Contribution of Constraint Release”, The Society of Rheology 85th Annual Meeting, 2013 年 10 月 15 日, Montreal (Canada).
- (9) H. Watanabe, “Comparison of Dielectric and Viscoelastic Relaxation of *cis*-Polyisoprene: Some Details of Entanglement Dynamics”, Telluride Workshop on Polymer Physics, 2013 年 6 月 18 日, Telluride (USA) (招待講演)
- (10) H. Watanabe and Y. Matsumiya, “Dielectric relaxation of monodisperse linear *cis*-polyisoprene: Contribution of constraint release”, 8th Annual European Rheology Conference, 2013 年 4 月 4 日, Leuven

(Belgium).

- (11) H. Watanabe and Y. Matsumiya, “Enormous elongation of (SIS)_n type multiblock copolymers”, The Society of Rheology 84th Annual Meeting, 2013 年 2 月 12 日, Pasadena (USA).
- (12) H. Watanabe, “Molecular view for polymer rheology”, Pre-Workshop of IWEAYR-8: Conception of Polymer Physics and Polymer Rheology, 2013 年 1 月 29, 30 日, Phuket (Thailand). (招待講演)

[図書] (総件数 4 件)

- (1) H. Watanabe, “Entanglement Phenomena and Viscoelasticity”, in *Structure and Property of Polymers* (Y. Matsushita ed), Kodansha Scientific, Tokyo, Chapter 6 (pp 335-444), 2013.
- (2) H. Watanabe, Y. Matsumiya, Q. Chen, and W. Yu, “Rheological Characterization of Polymeric Liquids”, in *Polymer Science: A Comprehensive Reference* (K. Matyjaszewski and M. Möller ed.), Elsevier, Amsterdam, NL, vol 2, section 2.28, 683-722 (2012).
- (3) H. Watanabe and O. Urakawa, “Component dynamics in miscible polymer blends”, in *Functional Polymer Blends: Synthesis, Properties and Performance* (V. Mittal ed.), Taylor and Francis (CRC Press), USA, 1, Chapter 3 (pp 53-126) (2012)
- (4) H. Watanabe, Y. Matsumiya, K. Horio, Y. Masubuchi, and T. Uneyama, “Rheo-Dielectric Behavior of Soft Matters”, in *Non-Equilibrium Soft Matter Physics* (S. Komura and T. Ohta ed.), World Scientific, Singapore, vol 4, Chapter 2 (pp 37-87) (2012)

[その他]

ホームページ等

<http://rheology.minority.jp/jp/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

渡辺 宏 (WATANABE, Hiroshi)
京都大学・化学研究所・教授
研究者番号：90167164

(2)研究分担者

増淵 雄一 (MASUBUCHI, Yuichi)
京都大学・化学研究所・准教授
研究者番号：40291281

松宮 由実 (MATSUMIYA, Yumi)
京都大学・化学研究所・助教
研究者番号：00378853