

**先端研究助成基金助成金(最先端・次世代研究開発支援プログラム)
実施状況報告書(平成22年度)**

本様式の内容は一般に公表されます

研究課題名	動的共有結合化学的アプローチによる完全自己修復性高分子材料の創製
研究機関・ 部局・職名	九州大学・先導物質化学研究所・准教授
氏名	大塚 英幸

1. 当該年度の研究目的

研究代表者は、ジアリールビベンゾフラノン[DABBF]と呼ばれる分子骨格が、外部刺激がない条件(室温かつ酸素存在下)でも、ラジカル機構により自発的かつ速やかに結合の組み換えが進行することを明らかにした。この発見を契機に、研究代表者は完全自己修復性高分子材料の開発に関する本研究計画を着想した。平成22年度は、様々な官能基を有するDABBF骨格の合成とその基礎的な反応性を解析することを目的とした。また、水酸基やエステル骨格を有するDABBF骨格を用いる交換反応により、官能基許容性の高いラジカル交換反応であることを検証することを目的とした。また、電子スピン共鳴装置によりラジカル種の評価も行うこと、およびDABBF骨格を有する直鎖状高分子の合成を行うことを計画した。

2. 研究の実施状況

材料に入った亀裂や傷を復元できる特性は「自己修復性」と呼ばれる。身の回りにあるプラスチックに代表される様々な高分子材料に自己修復性を付与できれば、長寿命化により地球温暖化の緩和やエネルギー消費の低減化に大きく貢献できる。本研究では「動的共有結合」と呼ばれる、組み換え可能な特殊な化学結合を導入することで、共有結合を用いた世界初となる刺激不要の「完全自己修復性」をもつ高分子材料の創製を目指しており、動的共有結合ユニットとしてジアリールビベンゾフラノン[DABBF]骨格に注目した。今年度は、DABBF骨格の基礎的な反応性を解析するために、高速液体クロマトグラフィー(HPLC)や核磁気共鳴分光装置(NMR)を利用して定量性のあるモデル実験を行い、本研究の最終目的としている完全自己修復材料を構成するための鍵となる分子として機能できることを見出した。また、電子スピン共鳴装置(ESR)を用いることで、DABBF由来のラジカル種の評価を行った結果、炭素ラジカルの存在を検出することに成功し、期待通りのメカニズムで結合の組み換え反応が進行していることが示唆された。これらの実験と並行して、モノマーとして利用可能ないくつかのDABBF誘導体の合成を行うことに成功した。さらに、これらのモノマーのうち、水酸基を2個有するDABBFジオール誘導体を用いて、逐次重合法により直鎖状高分子の合成を行うことに成功した。得られた直鎖状高分子は、外部刺激がない条件でも濃度変化などにより分子量が自発的に変化する特性を有していることが明らかとなり、モノマーユニットであるDABBF誘導体を添加すると分子量が減少する傾向を示した。これらの特性は、完全自己修復性高分子材料の創製に向けて重要な知見となる。

様式19 別紙1

3. 研究発表等

<p>雑誌論文 計 3 件</p>	<p>(掲載済み一査読有り) 計 1 件 1) Yoshifumi Amamoto, Jun Kamada, Hideyuki Otsuka, Atsushi Takahara, Krzysztof Matyjaszewski, Repeatable Photoinduced Self-Healing of Covalently Cross-Linked Polymers through Reshuffling of Trithiocarbonate Units, <i>Angew. Chem. Int. Ed.</i> 50, 1660-1663 (2011). (掲載済み一査読無し) 計 0 件 (未掲載) 計 2 件 1) Yoshifumi Amamoto, Moriya Kikuchi, Hiroyasu Masunaga, Hiroki Ogawa, Sono Sasaki, Hideyuki Otsuka, Atsushi Takahara, Mesh-Size Control and Functionalization of Reorganizable Chemical Gels by Monomer Insertion into Their Cross-Linking Points, <i>Polym. Chem.</i>, 2, 2011, 印刷中. 2) 天本義史、大塚英幸、構造再編成可能な動的共有結合ポリマー, <i>高分子</i>, 60, (2011), 印刷中.</p>
<p>会議発表 計 3 件</p>	<p>専門家向け 計 3 件 1)西原正通、大塚英幸、高原 淳、自発的結合組み換えユニットを有する高分子の合成と応用、高分子学会九州支部有機材料研究会、福岡、2011年3月 2)大塚英幸、今任景一、Jing Su、天本義史、西原正通、高原 淳、環境調和を指向した高分子材料の開発 -可逆的に解離する架橋点を有する化学架橋高分子の合成と反応-、附置研究所アライアンス成果報告会、仙台、2011年3月 3)大塚英幸、天本義史、菊地守也、増永啓康、小川紘樹、佐々木 園、高原 淳、精密モノマー挿入反応によるアルコキシアミン架橋化学ゲルの網目構造制御、日本化学会第 91 春季年会、横浜、2011年3月 一般向け 計 0 件</p>
<p>図 書 計 1 件</p>	<p>Yoshifumi Amamoto, Hideyuki Otsuka, Atsushi Takahara, Synthesis and Characterization of Polymeric Nanogels, Challa S. S. R. Kumar Ed., <i>Polymeric Nanomaterials</i>, 544 pages, Wiley, (2011), 印刷中.</p>
<p>産業財産権 出願・取得状 況 計 0 件</p>	<p>(取得済み) 計 0 件 (出願中) 計 0 件</p>
<p>Webページ (URL)</p>	<p>http://takahara.ifoc.kyushu-u.ac.jp/otsuka.html</p>
<p>国民との科 学・技術対話 の実施状況</p>	<p>九州大学の WEB サイトの中に、特色ある研究の取り組みとして、本プログラムの内容を公開し、研究目的・研究内容の情報発信を行った。</p>
<p>新聞・一般雑 誌等掲載 計 0 件</p>	
<p>その他</p>	

4. その他特記事項

実施状況報告書(平成22年度) 助成金の執行状況

本様式の内容は一般に公表されます

1. 助成金の受領状況(累計)

(単位:円)

	①交付決定額	②既受領額 (前年度迄の 累計)	③当該年度受 領額	④(=①-②- ③)未受領額
直接経費	128,000,000	0	47,100,000	80,900,000
間接経費	38,400,000	0	14,130,000	24,270,000
合計	166,400,000	0	61,230,000	105,170,000

2. 当該年度の収支状況

(単位:円)

	①前年度未執 行額	②当該年度受 領額	③当該年度受 取利息等額 (未収利息を 除く)	④(=①+②+ ③)当該年度 合計収入	⑤当該年度 執行額	⑥(=④-⑤) 当該年度未執 行額
直接経費	0	47,100,000	0	47,100,000	548,345	46,551,655
間接経費	0	14,130,000	0	14,130,000	645,000	13,485,000
合計	0	61,230,000	0	61,230,000	1,193,345	60,036,655

3. 当該年度の執行額内訳

(単位:円)

	金額	備考
物品費	281,433	電子機器等
旅費	198,100	研究打ち合わせ(東京理科大学)旅費
謝金・人件費等	68,812	研究補助員賃金
その他	0	
直接経費計	548,345	
間接経費計	645,000	
合計	1,193,345	

4. 当該年度の主な購入物品(1品又は1組若しくは1式の価格が50万円以上のもの)

物品名	仕様・型・性能 等	数量	単価 (単位:円)	金額 (単位:円)	納入 年月日	設置研究機関 名
				0		
				0		
				0		