

二国間交流事業 共同研究報告書

令和5年4月15日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

[日本側代表者所属機関・部局]
国立大学法人千葉大学・大学院工学研究院
[職・氏名]
准教授・青木大輔
[課題番号]
JPJSBP 120205702

1. 事業名 相手国: 英国 (振興会対応機関: The Royal Society) との共同研究

2. 研究課題名

(和文) 応力の可視化によるロタキサン架橋高分子の物性発現メカニズムの解明

(英文) Mechanochromic rotaxane-crosslinked polymers for fundamental studies of elastomers that are both strong and tough

3. 共同研究実施期間 令和2年 4月 1日 ~ 令和5年 3月 31日 (3年 ヶ月)【延長前】 令和2年 4月 1日 ~ 令和4年 3月 31日 (2年0ヶ月)

4. 相手国側代表者(所属機関名・職名・氏名【全て英文】)

University of Liverpool, Professor, Boulatov Roman

5. 委託費総額(返還額を除く)

本事業により執行した委託費総額		3,790,310 円
内訳	1年度目執行経費	1,900,000 円
	2年度目執行経費	1,890,310 円
	3年度目執行経費	円

6. 共同研究実施期間を通じた参加者数(代表者を含む)

日本側参加者等	6名
相手国側参加者等	3名

* 参加者リスト(様式 B1(1))に表示される合計数を転記してください(途中で不参加となった方も含め、全ての期間で参加した通算の参加者数となります)。

7. 派遣・受入実績

	派遣		受入
	相手国	第三国	
1年度目			()
2年度目		1	1(0)
3年度目			()

* 派遣・受入実績(様式 B1(3))に表示される合計数を転記してください。

派遣:委託費を使用した日本側参加者等の相手国及び相手国以外への渡航実績(延べ人数)。
受入:相手国側参加者等の来日実績(延べ人数)。カッコ内は委託費で滞在費等を負担した内数。

8. 研究交流の概要・成果等

(1)研究交流概要(全期間を通じた研究交流の目的・実施状況)

当研究グループは、低分子・高分子・超分子合成技術を駆使して、構造明確な空間連結型架橋剤（ロタキサン型架橋剤）とそれを用いて高分子鎖同士を連結した架橋高分子の合成を担当した。主たる共同研究者である Roman Boulatov は、力学的刺激に応じて化学反応を引き起こす「メカノケミストリー」を牽引する新進気鋭の若手研究者であり、低分子から高分子まで幅広いシミュレーションを駆使することで、ロタキサン架橋高分子の物性発現メカニズムを分子レベルで解明を目指した。

応力緩和や高伸張性といった特異な機能・特性を発現しているロタキサン架橋高分子の物性発現メカニズムを分子レベルで解き明かすには、研究対象となる架橋体合成に対して、「計算化学」と「メカノケミストリー」のスペシャリストと研究交流を行うことが必要不可欠であった。

本研究プロジェクトを介して、合成を担当する当研究グループは「計算化学」と「メカノケミストリー」を、Roman らのグループはロタキサン架橋に対しての理解を深めることで、目的としていたロタキサン架橋高分子の物性発現メカニズムを分子レベルで解き明かすことに成功した。

研究交流は新型コロナウイルスによって制限されたが、最終年度(3年目)には、Roman らのグループから大学院生（Rob）が日本を訪問し、ディスカッションや国際交流を深めた。

強靱なゲル・エラストマーに関する研究は日本が世界をリードしているが、その一方でヨーロッパやアメリカといった科学先進国での強靱なゲル・エラストマーへの関心は薄い。今回、共同研究を進め、その成果を当研究グループの大学院生（横地）がアメリカで開催された ACS National Meeting で発表することで、活発に議論することができた。ロタキサン架橋の意義に加え、強靱なゲル・エラストマーへの関心を科学先進国で高められたと考えている。

(2)学術的価値(本研究交流により得られた新たな知見や概念の展開等、学術的成果)

上述したように、本研究で目的としていたロタキサン架橋高分子の物性発現メカニズムを分子レベルで解き明かすことに成功した。

具体的には、24 員環のクラウンエーテル(輪成分)に対して、3,5-ジメチルフェニル基(軸成分)は十分に嵩高く乗り越えることができないと従来考えられていたが、力学的刺激により、貫通構造が崩壊することがわかった。この貫通構造の崩壊(デスリッピング)こそが、軸成分が短いロタキサン架橋高分子の物性発現メカニズムであることがわかった。一般に架橋高分子の物性は架橋の密度や均一性、架橋点間距離、分子間の絡まり合いによって決まる。しかし軸成分が短いロタキサン架橋高分子においては、ロタキサン構造の「軸成分の末端構造」がその架橋体全体の物性を支配する(図1)。本系は従来にない全く新しい概念を提供しており、今後「末端構造」を意識したロタキサン架橋高分子の開発が活発になると期待している。



図1. 軸成分の嵩高さと力学的刺激の効果

(3)相手国との交流(両国の研究者が協力して学術交流することによって得られた成果)

本研究グループでは、実験的に 24 員環のクラウンエーテルに対して、力学的刺激によって 3,5-ジメチルフェニル基を乗り越えることができることを明らかにしたが、Roman らのグループは計算科学を用いて同様の結果を得ることに成功した。すなわち、実験的な結果を計算科学の面からサポートすることで、ロタキサン架橋高分子の物性発現メカニズムを分子論的解明につなげた。

(4)社会的貢献(社会の基盤となる文化の継承と発展、社会生活の質の改善、現代的諸問題の克服と解決に資する等の社会的貢献はどのようにあったか)

本研究成果は従来にない全く新しい概念を提供しており、社会生活の質を改善する新しい素材開発へと発展できる。有機材料だけでなく、無機材料とのハイブリッド化へも展開できる汎用性も持ち合わせていることから、空間連結による新しい物質材料化学の世界を開拓する技術として期待される。このように、新たな化学観だけでなく、将来的には実社会に有用な素子・素材を共同研究の成果として提供できるものと期待している。

(5)若手研究者養成への貢献(若手研究者養成への取組、成果)

本研究プロジェクトには当グループからは 5 名の学生が、Roman らのグループからは 2 名の学生が参画した。日本人の学生らは国際的な共同研究に実際に参加しているという自覚を持ち専門分野はもちろん、異分野についても理解しようと研究に没頭した。オンラインを使ったディスカッションや、Roman らのグループから来日した Rob とのディスカッションを通じて得た経験は、若手研究者養成に大きく資するものとなった。

ACS の学会へと参加した学生(横地)は、将来的に国際的な研究に従事したいと新しい夢を見出し、本共同研究を通じて Rob とコンタクトを取るようになった。また横地は、アメリカ化学会が企画する CAS Future Leaders にも選出された。

その他 Roman グループの Rob は博士号取得後、他の研究機関でポスドクとして働くためポストを探している。

(6)将来発展可能性(本事業を実施したことにより、今後どのような発展の可能性が認められるか)

本研究成果は従来にない全く新しい概念を提供しており、将来的には新しい素材開発へと発展できる。今回の共同研究は、より大きな国際共同研究の足がかりとなるものであり、将来的には、2018 年 6 月 Roman Boulatov が開催したワークショップ “mechanochemistry workshop on June 18-19 at Liverpool”に参加した若手研究者 8 名(英国、ドイツ、日本、中国、シンガポール)を中心とした世界的な分野横断型の共同研究を進めたい(図 2)。



図 2. mechanochemistry workshop on June 18-19 at Liverpool にて

(7)その他(上記(2)~(6)以外に得られた成果があれば記載してください)

例:大学間協定の締結、他事業への展開、受賞など

CAS Future Leaders (横地)