

環境調和・循環型自己修復高分子材料の開発

高島義徳・以倉峻平・山岡賢司・木戸真紀子・山下恵

環境調和型高分子材料研究開発プラットフォーム構築プロジェクト

【緒言】

本研究プロジェクトは、「新しい持続可能な高分子材料の開発」を目的にプロジェクトを推進する。特に材料設計において、架橋設計に注目し、周囲の環境に調和し、応答する材料の創製および資源循環の実現を目指す。

【可動性架橋を用いた再利用可能な粘着材料】

化学架橋の代わりに可動性架橋を導入することで、粘着剤としての実用強度と溶剤への溶解を両立することに成功した。アセチル化βCDモノマー(TAcβCD)と Ethyl acrylate(EA)からなる可動性架橋粘着剤(M-PEA-TAcβCD, 図 3a)は、溶媒に溶解し、乾燥して再利用が可能であった。再形成を繰り返すことが可能な新規のリサイクル粘着剤を創製した(図 3b)。

【光刺激応答性の易解体接着材料】

可動性架橋高分子材料に UV 照射により酸を発生させる光酸発生剤を混合することで、光刺激により架橋点を切断可能な高分子材料を作製した。EA と酸分解性の結合を有するアセチル化γCDモノマー(TAcγCD)を光酸発生剤(PAG)の存在下で塊状重合することで、光分解性可動性架橋材料(PEA-TAcγCD/PAG)を得た(図 4a)。PEA-TAcγCD/PAG を同種または異種基板の接着に応用し、UV 照射で接着強度を低下させることに成功した(図 4b, 4c)。可動性架橋の導入および光刺激で切断することにより、高い接着安定性と易解体性の両立を達成した。

【参考文献】

1. Kosaba, S.; Ikura, R.; Yamaoka, K.; Takashima, Y.; et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2024**, *16*, 25393-25403.
2. Matsumura, Y.; Yamaoka, K.; Ikura, R.; Takashima, Y.; et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* **2025**, Accepted.

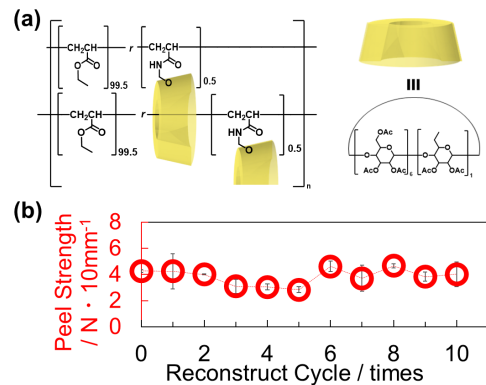


図 1. M-PEA-CD-TAcβCD の(a)化学構造および(b)リサイクル粘着特性。

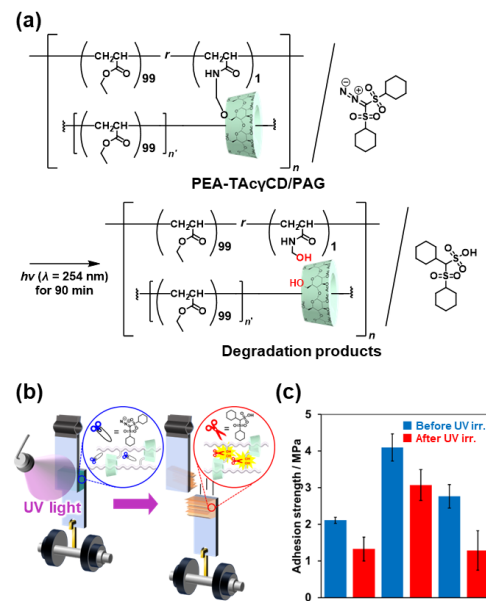


図 2. (a)PEA-TAcγCD/PAG の分解機構と (b)易解体接着の概念図および (c) UV 照射前後の接着強度の変化。

研究業績リスト

I 査読論文

Multiscale characterization and design of cellulose composites based on polymers with movable cross-links

Yusei Fujiwara, Chao Luo, Ryohei Ikura, Yoshinori Takashima, Yasutomo Uetsuji

Polymer **2024**, 291, 126603.

DOI:10.1016/j.polymer.2023.126603

Absorption of water molecules on the surface of stereocomplex-crystal spherulites of polylactides: An in-situ FT-IR spectroscopy investigation

Tomoka Kokuzawa, Shunryu Hirabayashi, Yuka Ikemoto, Junsu Park, Ryohei Ikura, Yoshinori Takashima, Yuji Higuchi, Go Matsuba

Polymer **2024**, 298, 126922.

DOI:10.1016/j.polymer.2024.126922

Relation between the Water Content and Mechanical Properties of Hydrogels with Movable Cross-Links

Koki Nishida, Ryohei Ikura, Kenji Yamaoka, Osamu Urakawa, Takashi Konishi, Tadashi Inoue, Go Matsuba, Masaru Tanaka, Yoshinori Takashima

Macromolecules **2024**, 57, 16, 7745-7754

DOI:10.1021/acs.macromol.4c00732

Viscoelastic Behavior for Optimizing the Self-Healing of Gels with Host-Guest Inclusion Complexes

Kenji Yamaoka, Ryohei Ikura, Motofumi Osaki, Hidenori Shirakawa, Kazuya Takahashi, Hiroaki Takahashi, Yasumasa Ohashi, Yoshinori Takashima

Polym. J. **2024**, 56, 1031-1039

DOI:10.1038/s41428-024-00932-7

Reinforcement and Controlling the Stability of Poly(ϵ -caprolactone)-Based Polymeric Materials via Reversible and Movable Cross-Links Employing Cyclic Polyphenylene Sulfide

Yuyang Ding, Ryohei Ikura, Kenji Yamaoka, Koki Nishida, Akihide Sugawara, Hiroshi Uyama, Saori Nara, Yoshinori Takashima

ACS Macro Letters **2024**, 13, 10, 1265-1271.

DOI:10.1021/acsmacrolett.4c00495

Mechanical Properties and Molecular Adhesion Exhibited by Inorganic-Organic Composite Elastomers

Naoki Yamashita, Ryohei Ikura, Kenji Yamaoka, Nobu Kato, Masanao Kamei,

Kentaro Ogura, Minoru Igarash, Hideo Nakagawa Yoshinori Takashima
Polymer Chemistry **2024**, 15, 4196-4203.
DOI:10.1039/D4PY00879K

Recyclable Tough Adhesive Sheets with Movable Cross-links for Sustainable Use
Sho Kosaba, Ryohei Ikura, Kenji Yamaoka, Takayuki Arai, Yoshinori Takashima
ACS Applied Materials & Interfaces **2024**, 16, 25393-25403. DOI:10.1021/acsami.4c03806

Improvement in Cohesive Properties of Adhesion Systems using Movable Crosslinked
Materials with Stress Relaxation Properties
Yunpeng Qian, Ryohei Ikura, Yusaku Kawai, Junsu Park, Kenji Yamaoka, Yoshinori Takashima
ACS Applied Materials & Interfaces **2024**, 16, 3935-3943.
DOI:10.1021/acsami.3c13342

II 国際会議等における発表

Design and Functions of Supramolecular Materials with Reversible and Movable Cross-Links
Yoshinori Takashima
Kyoto Winter School 2024
2024年2月19日-3月1日
Kyoto University (Yoshida Campus), Kyoto, Japan

Mechanical Sensing using Carbon Composites with Movable Cross-links
Ryohei Ikura, Yoshinori Takashima
Kyoto Winter School 2024
2024年2月19日-3月1日
Kyoto University (Yoshida Campus), Kyoto, Japan

Toughening and Recycling of Polymer Composites with High Cellulose Contents using
Hydrogen Bonds
Yuta Kameya, Kenji Yamaoka, Ryohei Ikura, Yoshinori Takashima
Kyoto Winter School 2024
2024年2月19日-3月1日
Kyoto University (Yoshida Campus), Kyoto, Japan

Preparation of acid-degradable movable cross-linked supramolecular materials and evaluation
of their degradability
Yusei Matsumura, Kenji Yamaoka, Ryohei Ikura, Yoshinori Takashima
Kyoto Winter School 2024
2024年2月19日-3月1日
Kyoto University (Yoshida Campus), Kyoto, Japan

Hard Substrates Adhesion using Movable Crosslinked Materials and Evaluation of the Cohesive Properties

Yunpeng Qian, Ryohei Ikura, Yusaku Kawai, Junsu Park, Kenji Yamaoka, Yoshinori Takashima
Kyoto Winter School 2024

2024年2月19日-3月1日

Kyoto University (Yoshida Campus), Kyoto, Japan

Viscoelasticity and Self-Healing Property of Reversible Cross-linking Hydrogels with Host-Guest Inclusion Complex

Yuta Fukao, Ryohei Ikura, Kenji Yamaoka, Yoshinori Takashima

Kyoto Winter School 2024

2024年2月19日-3月1日

Kyoto University (Yoshida Campus), Kyoto, Japan

Reinforcing Polycarbonate with Reversible Cross-linked Networks Using β -Cyclodextrin Dimer

Kenji Yamaoka, Ryohei Ikura, Yoshinori Takashima

Kyoto Winter School 2024

2024年2月19日 - 3月1日

Kyoto University (Yoshida Campus), Kyoto, Japan

Design and Functions of Supramolecular Materials Formed by Reversible and Movable Cross-Links

Yoshinori Takashima

21st International Cyclodextrin Symposium

2024年6月10日 - 14日

Centre Universitaire des Darses, Dunkerque, France

Fabrication and mechanical properties of polyurethane with movable cross-links (ポスター)

Ryohei Ikura

21st International Cyclodextrin Symposium

2024年6月10日 - 14日

Centre Universitaire des Darses, Dunkerque, France

Self-Healing Properties and Viscoelasticity of Polymeric Materials with Host-Guest Inclusion Complex as Reversible Cross-Links

Kenji Yamaoka, Ryohei Ikura, Yoshinori Takashima

IUPAC MACRO2024 50th World Polymer Conference

2024年7月1日 - 4日

University of Warwick, United Kingdom

Design and Functions of Polymeric Materials Based on Supramolecular Science

Yoshinori Takashima

Strasbourg-Osaka Interdisciplinary Symposium

2024/10/16(水)-2024/10/18

University of Strasbourg

Innovative Supermolecular Polymeric Materials

Yoshinori Takashima

The 10th International Symposium for Green-Innovation Polymers(GRIP 2024)

2024年11月2日 - 3日,

Jiangnan University, Wuxi, China

Design and Functionalization of Dual Cross-Network Polymeric Materials formed by reversible and movable cross-linkers

Yoshinori Takashima

14th International Gel Symposium 2024

2024年11月17日-21日

Bankoku Shinryokan Okinawa Resort MICE Facility, Okinawa, Japan

Degradation, reuse, and upcycling of poly(caprolactone)-poly(urethane) with movable crosslinks by enzymatic reactions

Yoshinori Takashima

Japan-Thailand Bilateral Symposium of Advanced Materials for Sustainable Society

2024年12月2日 - 3日

Chulalongkorn Univ, Bangkok, Thailand

Controlling of mechanical properties and enzyme-catalyzed degradation reaction with reversible and movable cross-linkers

Yoshinori Takashima

The 12th Singapore International Chemistry Conference (SICC-12)

2024年12月9日 - 13日

Singapore Expo, Singapore

Stress-strain sensors with movable cross-linked carbon composites (ポスター)

Ryohei Ikura, Kota Kajimoto, Junsu Park, Yoshinori Takashima

The 12th Singapore International Chemistry Conference (SICC-12)

2024年12月9日 - 13日

Singapore Expo, Singapore

Ⅲ 国内会議等における発表

超分子架橋による有機-無機高分子の複合化

山下 尚輝, 山岡 賢司, 以倉 峻平, 高島 義徳

日本化学会第 104 春季年会

2024 年 3 月 18 日 - 21 日

日本大学 (船橋キャンパス)

分子空間を操ることで生み出した超分子材料機能

高島 義徳

日本化学会第 104 春季年会

2024 年 3 月 18 日 - 21 日

日本大学 (船橋キャンパス)

カーボン複合可動性架橋材料を用いた応力-ひずみセンシング

以倉 峻平, 梶本 晃太, 朴 峻秀, 高島 義徳

日本化学会第 104 春季年会

2024 年 3 月 18 日-21 日

日本大学 (船橋キャンパス)

ホスト-ゲスト包接錯体を有する高分子/高分子界面の構造と粘弾性 (ポスター)

和田拓真, 山岡 賢司, 以倉 峻平, 高島 義徳

日本レオロジー学会第 51 年会

2024 年 5 月 16 日-18 日

名古屋工業大学 (御器所キャンパス 4 号館)

シクロデキストリンによる超分子架橋をもつアクリルポリマーの設計と皮膜特性

小鯖 翔, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 荒井 隆行, 高島 義徳

第 21 回ホスト-ゲスト・超分子化学シンポジウム

2024 年 6 月 1 日-2 日

京都大学 (吉田キャンパス)

アゾベンゼンを導入した可動性架橋ポリウレタン材料の作製と屈曲挙動の評価

Zhou Xin, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 朴 峻秀, Jin Changming, 高島 義徳

第 21 回ホスト-ゲスト・超分子化学シンポジウム

2024 年 6 月 1 日-2 日

京都大学 (吉田キャンパス)

可動性架橋ヒドロゲルの力学特性に及ぼす主鎖/環状分子間の相互作用の影響

西田 幸輝, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 高島 義徳

第 21 回ホスト・ゲスト・超分子化学シンポジウム

2024 年 6 月 1 日-2 日

京都大学（吉田キャンパス）

可逆性架橋を有する有機-無機高分子複合材料の自己修復性

山下 尚輝, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 加藤 野歩, 亀井 正直, 小倉 健太郎, 五十嵐 実, 中川 秀夫, 高島 義徳

第 21 回ホスト・ゲスト・超分子化学シンポジウム

2024 年 6 月 1 日-2 日

京都大学（吉田キャンパス）

Stress-strain sensor fabricated with movable cross-linked carbon composites

Ryohei Ikura, Kota Kajimoto, Junsu Park, Takashima Yoshinori

第 73 回高分子学会年次大会

2024 年 6 月 5 日-7 日

仙台国際センター

可動性架橋を導入したエラストマーの粘着特性とリサイクル性評価

小鯖 翔, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 荒井 隆行, 高島 義徳

第 73 回高分子学会年次大会

2024 年 6 月 5 日-7 日

仙台国際センター

Exploring Enzymatic Reactions of Tough Poly(ester)s-Poly(urethane) with Movable Crosslinks: Degradation, Reinforcement, Recycling and Upcycling

Jiaxiong Liu, Ryohei Ikura, Kenji Yamaoka, Akihide Sugawara, Yuya Takahashi, Bunsho Kure, Naomi Takenaka, Junsu Park, Hiroshi Uyama, Yoshinori Takashima

第 73 回高分子学会年次大会

2024 年 6 月 5 日-7 日

仙台国際センター

クエン酸変性セルロースを高重量比で含む高分子材料の強靱化と再利用

亀谷 祐太, 山岡 賢司, 以倉 峻平, 菅原 章秀, 宇山 浩, 高島 義徳

第 11 回 JACI/GSC シンポジウム

2024 年 6 月 17 日 - 18 日, 一橋大学（一橋講堂）

リサイクル可能な自己修復性超分子材料

高島 義徳

第 7 回サイエンス・サロン～次世代マテリアル技術～

2024 年 6 月 25 日

TKP ガーデンシティ PREMIUM みなとみらい

カーボン複合可動性架橋材料を用いた力学センシング

以倉 峻平, 梶本 晃太, 朴 峻秀, 高島 義徳

第70回高分子研究発表会(神戸)

2024年7月11日 - 12日

兵庫県民会館

Adhesives using Stilbene-based Reversible Crosslinks Materials and Evaluation of the photoresponsive peeling-off properties

Yunpeng Qian, Ryohei Ikura, Kenji Yamaoka, Yoshinori Takashima

第70回高分子研究発表会(神戸)

2024年7月11日 - 12日

兵庫県民会館

親水性主鎖と疎水性環状分子による可動性架橋ヒドロゲルの力学特性調査

西田 幸輝, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 高島 義徳

第70回高分子研究発表会(神戸)

2024年7月11日 - 12日

兵庫県民会館

クエン酸変性セルロースを高重量比で含む高分子複合材料の作製及びリサイクル機能の創製 (ポスター)

亀谷 祐太, 山岡 賢司, 以倉 峻平, 菅原 章秀, 宇山 浩, 高島 義徳

第70回高分子研究発表会(神戸)

2024年7月11日 - 12日

兵庫県民会館

可逆性架橋を用いた有機-無機高分子複合エラストマーの創製と分子接着性の評価 (ポスター)

山下 尚輝, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 加藤 野歩, 亀井 正直, 小倉 健太郎, 五十嵐 実, 中川 秀夫, 高島 義徳

第70回高分子研究発表会(神戸)

2024年7月11日 - 12日

兵庫県民会館

可逆性架橋を導入したポリカーボネート複合材料の作製および力学特性調査 (ポスター)

深尾 優太, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 高島 義徳

第70回高分子研究発表会(神戸)

2024年7月11日 - 12日

兵庫県民会館

可逆性・可動性の架橋を駆使した高分子材料の接着材料への展開と開発動向

高島 義徳

2024年9月6日

令和6年度日本接着学会西部支部第1回講演会

オンライン開催 (Zoom)

重合性シクロデキストリン誘導体の分子設計とその高分子材料の開発動向

高島 義徳

第40回シクロデキストリンシンポジウム

2024年9月19日 - 20日

東京大学駒場キャンパス

可動性架橋と水素結合を用いた強靱性ポリウレタン材料の作製 (ポスター)

以倉 峻平, 金 昌明, 高島 義徳

第40回シクロデキストリンシンポジウム

2024年9月19日 - 20日

東京大学駒場キャンパス

可動性架橋および可逆性架橋を有する有機-無機複合材料の作製と力学物性評価

山下 尚輝, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 加藤 野歩, 亀井 正直, 小倉 健太郎, 五十嵐 実, 中川 秀夫, 高島 義徳

第40回シクロデキストリンシンポジウム

2024年9月19日 - 20日

東京大学駒場キャンパス

ホスト-ゲスト包接錯体を架橋点に有する高分子ゲルの粘弾性 (ポスター)

山岡 賢司, 以倉 峻平, 高島 義徳

第40回シクロデキストリンシンポジウム

2024年9月19日 - 20日

東京大学駒場キャンパス

特異な架橋設計が生み出す高分子材料の構造と物性の相関

高島 義徳

第73回高分子討論会

2024年9月25日 - 27日

新潟大学五十嵐キャンパス

可逆性・可動性架橋を用いた化学・力学センシング

以倉 峻平, 梶本 晃太, 朴 峻秀, 高島 義徳

第 73 回高分子討論会

2024 年 9 月 25 日 - 27 日

新潟大学五十嵐キャンパス

エラストマーの粘着特性における可動性架橋導入の効果とそのリサイクル性評価

小鯖 翔, 以倉 峻平, 山岡賢司, 荒井 隆行, 高島 義徳

第 73 回高分子討論会

2024 年 9 月 25 日 - 27 日

新潟大学五十嵐キャンパス

可逆性架橋ゲルの自己修復性と粘弾性に及ぼす溶媒組成の効果

山岡 賢司, 以倉 峻平, 大崎 基史, 白川 瑛規, 高橋 和也, 高橋 宏明, 高島 義徳

日本レオロジー学会第 17 回西日本支部学生ワークショップ

2024 年 10 月 16 日

山形テルサ

可逆性架橋ゲルの自己修復性と粘弾性に及ぼす溶媒組成の効果

山岡 賢司, 以倉 峻平, 大崎 基史, 白川 瑛規, 高橋 和也, 高橋 宏明, 高島 義徳

第 72 回レオロジー討論会

2024 年 10 月 17 日 - 18 日

強靱でリサイクル可能な可動架橋型アクリル粘着エラストマーの開発

小鯖 翔, 以倉 峻平, 山岡 賢司, 荒井 隆行, 高島 義徳

第 33 回ポリマー材料フォーラム

2024 年 11 月 14 日 - 15 日

みやこめっせ

Preparation of acid-degradable movable cross-linked elastomer

Yusei Matsumura, Kenji Yamaoka, Ryohei Ikura, Yoshinori Takashima

第 35 回エラストマー討論会

2024 年 12 月 3 日 - 4 日

大阪大学 中之島センター

IV 著書

該当なし

V 受賞と知的財産

特許名称：高分子複合材料

発明者：高島 義徳, 原田 明, 大崎 基史, 高橋 賢作, 朴 峻秀

出願人：国立法人大阪大学
出願番号：特許第 7466897 号 09
出願日：2024 年 4 月 5 日

特許名称：複合構造体、複合体の製造方法、成形体および成形体の製造方法
発明者：奈良 早織, 東田 和樹, 高島 義徳, 朴 峻秀, 以倉 峻平
出願人：DIC 株式会社, 国立大学法人大阪大学
出願番号：特開 2024-78041
出願日：2024 年 6 月 10 日

特許名称：複合ポリマー材料及びその製造方法並びに光学材料
発明者：高島 義徳, 朴 峻秀, 以倉 峻平, 中川 秀夫, 五十嵐 実, 加藤 野歩, 亀井 正直, 小倉 健太郎
出願人：国立法人大阪大学, 信越化学工業株式会社
出願番号：特開 2024-86421
出願日：2024 年 6 月 27 日

特許名称：粘着剤、粘着シート、組成物および化合物
発明者：小鯖翔, 荒井隆行, 高島義徳, 以倉峻平, 山岡賢司, 銭韵鵬
出願人：国立法人大阪大学, リンテック株式会社
出願番号：特開 2024-150293
出願日：2024 年 7 月 21 日

VI その他研究業績、発表文献

以倉峻平, Zhou Xin, 山岡賢司, 高島義徳

可動性架橋と水素結合を組み合わせたポリウレタン材料の相乗的力学特性
ポリウレタンの材料設計、環境負荷低減と応用事例（技術情報協会）2024, 第 3 章, 第 3 節
(ISBN:978-4-86798-029-3)

山岡賢司, 山下尚輝, 以倉峻平, 高島義徳

超分子ネットワーク構造を利用した強靱性・自己修復機能材料の創製（Design of Self-healing and Tough Materials Using Supramolecular Network Structures）
オレオサイエンス 2024 年 24 巻第 3 号 p.111-118 『超分子が創る新価値』（公益社団法人日本油化学会）2024, 24, 111-118.

高島義徳

環境調和型機能性高分子材料の開発動向～水と高分子の切っても切れない関係～
FRC 談話会で講演
2024 年 3 月 13 日
大阪大学(豊中キャンパス)