

未来社会創造事業 探索加速型  
「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域  
年次報告書(探索研究期間)

令和3年度 研究開発年次報告書
--------------------

令和3年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名：土屋 康佑]

京都大学 [京都大学大学院工学研究科・特定准教授]

[研究開発課題名：オンデマンド分解性架橋剤によるリサイクラブルな天然  
ゴム材料の開発]

実施期間：令和3年10月1日～令和4年3月31日

## §1. 研究開発実施体制

(1)「分解性架橋天然ゴム研究開発」グループ(京都大学)

① 研究開発代表者:土屋 康佑 (京都大学大学院工学研究科、特定准教授)

② 研究項目

- ・架橋剤の分子設計・合成
- ・架橋天然ゴムの分解性評価
- ・架橋天然ゴムの物性評価

③ 研究開発参画機関

- ・JASRI(SPring-8)
- ・株式会社ブリヂストン

## §2. 研究開発成果の概要

今年度は、天然ゴムを架橋することができる分解性ポリペプチド架橋剤の合成と、これを用いたモデル高分子であるポリブタジエンの架橋反応の検討を行った。架橋には従来行われている天然ゴムの加硫工程と類似の反応機構で進行することが予想されるチオール基を反応部位として持つシステインを導入したポリペプチドを設計・合成した。モデル架橋剤としてポリシステインを合成した。また、分解性ユニットとして、活性酸素種(ROS)で分解されることが報告されているオリゴプロリンを含む GPPG および GPPPG 配列を持つモノマーを合成し、システインと共重合することで分解性ポリペプチド架橋剤を合成した。ポリシステインをポリペプチド架橋剤として用いて、ポリブタジエンをラジカル発生剤の存在下加熱することで、架橋ポリブタジエンを合成した。適切な条件下において作製した架橋ポリブタジエンの動的粘弾性を評価した結果、未架橋のポリブタジエンでは観測されていた低周波領域の緩和が消失しており、架橋反応により網目構造が構築されていることを示唆する結果を得た。ポリシステインと同様の架橋反応条件を用いて、分解性ユニットを有するポリペプチド架橋剤を用いた系においても同様にしてポリブタジエンの架橋を行うことができた。以上より、ポリペプチド架橋剤による天然ゴムの架橋反応を効果的に進行させることが可能なポリペプチドの配列と反応条件を確立することができた。

また、SPring-8 における放射光を用いた X 線散乱を用いた架橋天然ゴム材料の構造解析を行う手法として、リング状の架橋ゴムサンプルの引張強度測定と X 線散乱を同時に測定する実験系を確立した。

【代表的な原著論文情報】