

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）

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]

[所属:東京大学 大学院工学系研究科・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 5 年 4 月 1 日～令和 6 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、前年度までに作製した分解性ペプチド架橋剤による架橋ポリブタジエンおよび架橋ポリイソプレンについて、様々な脱架橋反応による分解性評価を行った。の評価と、ポリイソプレンを用いた架橋ゴム材料の合成を行った。まず、ポリブタジエンをポリシステインで架橋した架橋ゴムについて、酸加水分解によるペプチド部位の分解評価を行った。熱酸条件において架橋ポリブタジエンを処理した後、クロロホルムによる有機溶媒抽出を行ったところ、クロロホルム可溶部を重量比で44%程度回収することが可能であった。得られたクロロホルム可溶部は原料であるポリブタジエンとほぼ同一の構造を有しており、ペプチド架橋部位で選択的に分解反応が起こっていることが確認された。ポリシステインで架橋したポリイソプレンについても同様に酸加水分解により可溶性ポリイソプレンを回収することに成功している。以上の結果をもとに、ペプチド架橋剤による架橋・脱架橋システムを用いたリサイクル性ポリブタジエンゴムに関する研究成果について論文発表を行った。さらに、活性酸素種(ROS)で分解可能なオリゴプロリン配列を含む分解性ペプチド架橋剤により架橋した架橋ポリブタジエンおよび架橋ポリイソプレンについて、ROS による分解性評価を行った。を用いて架橋ポリブタジエンを ROS としてヒドロキシルラジカルが存在下室温で反応を行った結果、10%程度の可溶性ポリブタジエンをクロロホルム抽出により回収することができた。この結果により、限定的ではあるものの ROS を用いた脱架橋反応についても応用可能性を確認した。

また、これまでに合成した架橋剤と比べて、より迅速かつ温和な条件で分解可能なヒドラジド構造を有する新規ペプチド架橋剤の設計・合成を行った。得られた架橋剤を用いた架橋反応について検討を行い、架橋体を作成可能であることを確認した。

【代表的な原著論文情報】

- 1). Kousuke Tsuchiya*, Kayo Terada, Yui Tsuji, Simon Sau Yin Law, Hiroyasu Masunaga, Takuya Katashima, Takamasa Sakai, Keiji Numata*, Cross-linking polybutadiene rubber via a thiol-ene reaction with polycysteine as a degradable cross-linker. *Polym. J.* **2024**, *56*, 391-400. doi: 10.1038/s41428-023-00855-9.