

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：14401

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02779

研究課題名（和文）炭素繊維強化熱可塑性プラスチックの表面化学酸化による接着特性の向上

研究課題名（英文）Improvement of adhesion properties by surface chemical oxidation of carbon fiber reinforced thermoplastics

研究代表者

大久保 敬（Ohkubo, Kei）

大阪大学・先導的学際研究機構・教授

研究者番号：00379140

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,600,000円

研究成果の概要（和文）：二酸化塩素ラジカルを用いた、炭素繊維強化熱可塑性プラスチック（Carbon Fiber Reinforced Thermoplastic：CFRTP）の表面処理方法の開発を行う。CFRTP表面に安定なカルボン酸や水酸基などの極性置換基を劣化させることなく導入する反応ならびに、導入した極性官能基を起点とする接着技術の開発を行う。さらに、接着剤フリーあるいはプライマーフリー接着で、樹脂側の官能基に対する熱や光など外部刺激により易解体の機能発現を目指す。

研究成果の学術的意義や社会的意義

炭素繊維強化プラスチック（CFRP）の高分子基材として熱可塑性樹脂であるPP、PEや液晶ポリマー（LCP：ポリヒドロキシ安息香酸など）を用いる。これらの高分子基材は前述の光表面酸化によりカルボン酸基や水酸基を導入することが出来る。CFRPの表面はPP、PE、LCPであるので酸化処理による無機材料との接着特性は極めて優れた物になると予想している。すなわち、熱可塑性樹脂を基材に用いることによって、加熱・溶融工程を経て、再び炭素繊維を分離解体、高分子材料を再ペレット化することができ、リサイクル性が飛躍的に高まることが期待できる。

研究成果の概要（英文）：We will develop a surface treatment method for carbon fiber reinforced thermoplastic (CFRTP) using chlorine dioxide radicals. We will develop a reaction that introduces stable polar substituents such as carboxylic acid and hydroxyl groups on the surface of CFRTP without degrading them, and an adhesion technology that starts from the introduced polar functional groups. In addition, we aim to develop an adhesive-free or primer-free adhesive that can be easily dismantled by applying external stimuli such as heat and light to the functional groups on the resin side.

研究分野：光化学

キーワード：二酸化塩素 表面酸化 炭素繊維強化プラスチック 光反応 ラジカル C-H活性化 酸素化 接着

### 1. 研究開始当初の背景

汎用プラスチックを金属などの異種材料に接着する技術は多くの産業分野で要求されており、活発な開発が行われている。これまでに、高分子表面のプラズマ放電やコロナ放電などの酸化処理技術の開発が進み、多くの工業プロセスで実施されている。しかしこれらの処理では、高エネルギー放電処理によって物理的に高分子主鎖の炭素-炭素結合が切断され、酸化効果に経時変化があったことが問題点であった。一方、二酸化塩素による酸化反応では主鎖は酸化されず側鎖メチル基のみが酸化されるために、高分子表面の劣化による分子量低下などが起こらず、永続的な酸化効果が期待できる。

さらに本研究のようなプラスチック表面を化学的な酸化処理できる方法は、二酸化塩素法以外に有用なものはいまだされていなかった。

### 2. 研究の目的

本研究では、二酸化塩素によってポリプロピレン

などのプラスチック表面を C-H 酸化することによって極性官能基を導入することを目指した。また CFRTP とアルミニウムの接着剤フリー接着法の開発を目的とする。二酸化塩素の強力な酸化力を使用して、成形された CFRTP 表面に化学酸化処理(後処理)を施し、カルボン酸や水酸基などの極性官能基を導入する。これにより熱圧着のみでアルミニウムとの異種材料接着が可能になると考えている。また表面をレーザー微細加工された金属材料と組み合わせることによってさらに強力な実用に耐えうる超高強度プラスチック・金属接着技術の開発も行うことを最終ゴールとした。

### 3. 研究の方法

PP フィルムと一緒に二酸化塩素ガスをガラス容器に封じ、LED (365 nm, 60 W) で光照射を行う。反応後、水洗いし乾燥させる。この 2 工程のみの非常にシンプルな方法である。反応後のフィルムの表面 IR (ATR-IR 法) のスペクトルを図 3 に示す。その結果  $1700\text{ cm}^{-1}$  と  $3000\text{ cm}^{-1}$  にカルボニル基と水酸基に由来する吸収がそれぞれ明確に観測され、カルボン酸基が PP 表面に効率良く導入していることがわかった。同様に PP のかわりに CFRTP を用いた場合においても、樹脂部分効率良く酸素官能基が導入された。

さらに X 線光電子分光分析 (XPS) においても酸素原子が PP 表面に導入されていることを示すことから表面酸化反応が進行している。カルボン酸等の極性官能基が材料表面に導入されると、水との親和性が向上することが期待できる。実際に、表面の濡れ性を調べるために水接触角を測定した結果、この反応処理によって 99 度から 46 度まで下がること分かる (図 4)。さらに

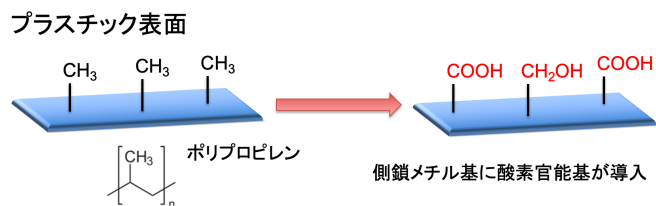
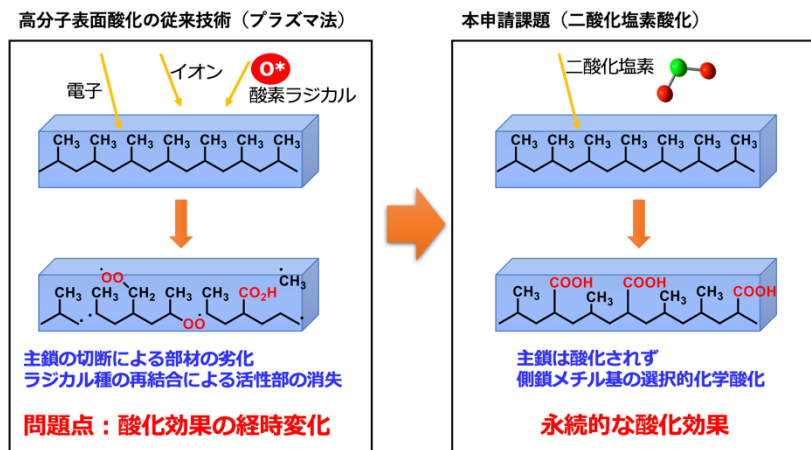


図2 プラスチック表面の光酸化の模式図。光を当てたところにだけ酸化できる

エネルギー分散型蛍光 X 線分析 (EDX) によって酸素原子の分布を調べた結果、表面から  $3\mu\text{m}$  程度の深さまで酸化反応が進行していることがわかった。それ以上の深さについてはもとの材料のままなので見た目ではまったく変化がわからない。

プラスチック材料の表面酸化反応は側鎖メチル基のないポリエチレン (PE) でも同様に反応が進行する。PE の場合はカルボン酸基では無く、主鎖に水酸基が導入される。この反応は塩素ラジカルによる炭素-水素結合の活性化によって開始されるので、ポリスチレン (PS)、ポリカーボネート (PC)、ポリエチレンテレフタレート (PET) など炭化水素系のポリマー全般に適用可能である。この方法でただ唯一達成できていないのは、炭素-水素結合が無いポリテトラフルオロエチレン (PFE) などのフッ素樹脂である。

PP 表面の酸化反応は図 5 に示す機構で進行していると考えている。まず、二酸化塩素の光照射によって生成した塩素ラジカルが PP のメチル基の水素を引き抜く。側鎖- $\text{CH}_2$  ラジカル末端は、一重項酸素分子と反応することによってペルオキシラジカル末端 ( $-\text{CH}_2\text{OO}\cdot$ ) へ変換される。次に、 $-\text{CH}_2\text{OO}\cdot$  と隣または近接する PP メチル側鎖の間で水素移動反応が起こり、ヒドロペルオキシ末端が得られ、これがカルボン酸基や水酸基へ分解をする。水素を放出した側はさらに酸素との反応が起こり、水素移動反応を繰り返すことによって徐々に酸素官能基が導入された (図 3)。

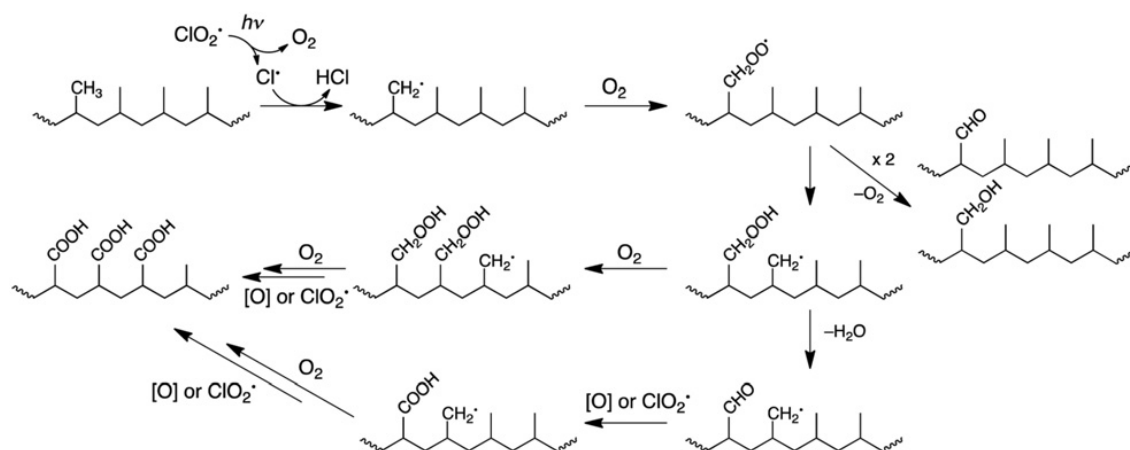


図 3 ポリプロピレンの表面酸化の反応機構<sup>5)</sup>

#### 4. 研究成果

プラスチック材料の表面改質について、従来法との比較は長所・短所については表 1 にまとめたとおりである。特にプラズマ放電処理法やコロナ放電処理法では、酸素官能基導入反応が可逆過程であったため酸化状態の寿命が数日程度と短いことが問題であった。これは放電処理が、高エネルギーのプロセスであるために、結合が強い炭素-水素結合だけではなく、炭素-炭素結合が解離する副反応が起こってしまう。一度切断された炭素-炭素結合は時間の経過とともに再び結合を形成し、もとに戻ってしまう。また、結合を形成しない場合は、分子量低下による表面劣化を招く。一方、本酸化方法では、与える光は近紫外 (365 nm) の LED 光で十分可能であるので、ポリプロピレンの側鎖メチル基を化学的に水酸基やカルボン酸基に変換するので分子量低下を伴わない。さらに分子量低下をさせずにポリプロピレン側鎖メチル基の約 1 割程度を酸素官能基に変換できる、これはプラズマ法で導入できる官能基量を凌駕することがわかった。

設備面については、放電処理では大気圧プラズマ法やコロナ法などは真空設備などの特殊な機器が通常必要であり大型となる。一方、我々の方法では、二酸化塩素噴霧と光照射の行程だけであるので、オンサイト処理が可能になる。また、二酸化塩素ガスと光さえ届けば対象物の形状は

問わないので、成形加工後の表面酸化処理が可能となることも大きな特徴である。

プラスチック表面に親水性基が導入できるので、接着剤との親和性も増大する。例えばヒドロキシ安息香酸を重合した液晶ポリマー（LCP）は多くの接着剤をはじく性質があり、難接着材料のひとつである。例えば市販のシアノアクリレート系接着剤をLCP表面に塗布したとしても、材料表面で硬化してしまい接着特性は全く得られない。そこで二酸化塩素でLCP板の表面を処理すると、LCPのベンゼン環に水酸基が導入されるので、強固に接着することが可能となる。LCP材料同士の接着も可能だが、銅板やアルミ板でも容易に接着させることができる。二酸化塩素酸化処理したPPは炭素10個に1個の割合でカルボン酸基が導入されている。これを元に単純計算すると、分子鎖2マイクロメートルおきにカルボン酸基が導入され、PPフィルム1平方センチメートルあたり2500万カ所も極性置換基が存在することとなる。この効果によって、二酸化塩素酸化処理PPを、アルミ板や鉄板に熱圧着させるだけで容易に接着剤レス異種材料接着が可能になった。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計26件（うち査読付論文 26件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 14件）

1. 著者名 Matsuda Marina, Uchiyama Mineto, Itabashi Yuki, Ohkubo Kei, Kamigaito Masami	4. 巻 13
2. 論文標題 Acridinium salts as photoredox organocatalysts for photomediated cationic RAFT and DT polymerizations of vinyl ethers	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Polymer Chemistry	6. 最初と最後の頁 1031 ~ 1039
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d1py01568k	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Yamatsugu Kenzo, Katoh Hiroto, Yamashita Takefumi, Takahashi Kazuki, Aki Sho, Tatsumi Toshifumi, Kaneko Yudai, Kawamura Takeshi, Miura Mai, Ishii Masazumi, Ohkubo Kei, Osawa Tsuyoshi, Kodama Tatsuhiko, Ishikawa Shumpei, Kanai Motomu, Sugiyama Akira	4. 巻 192
2. 論文標題 Antibody mimetic drug conjugate manufactured by high-yield Escherichia coli expression and non-covalent binding system	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Protein Expression and Purification	6. 最初と最後の頁 106043 ~ 106043
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.pep.2021.106043	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Nakanishi Ikuo, Shoji Yoshimi, Ohkubo Kei, Ueno Megumi, Shimoda Kei, Matsumoto Ken-ichiro, Fukuhara Kiyoshi, Hamada Hiroki	4. 巻 11
2. 論文標題 Effect of Magnesium Ion on the Radical-Scavenging Rate of Pterostilbene in an Aprotic Medium: Mechanistic Insight into the Antioxidative Reaction of Pterostilbene	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Antioxidants	6. 最初と最後の頁 340 ~ 340
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/antiox11020340	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Nakanishi Ikuo, Shoji Yoshimi, Ohkubo Kei, Ozawa Toshihiko, Matsumoto Ken-ichiro, Fukuzumi Shunichi	4. 巻 180
2. 論文標題 pH Effect on the Scavenging Rates of Ascorbic Acid against Selected Radicals in Phosphate Buffer Solutions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Free Radical Biology and Medicine	6. 最初と最後の頁 s64 ~ s64
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.freeradbiomed.2021.12.146	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 El-Agamey Ali, Melo Thor B., Razi Naqvi K., El-Hagrasy Maha A., Ohkubo Kei, Fukuzumi Shunichi	4. 巻 425
2. 論文標題 Laser flash photolytic generation of radical ions of carotenoids in organic solvents. Studies of their subsequent fates, including formation of stable carotenoid sigma dimer radical anion (CAR) <sup>2-</sup> ?	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Photochemistry and Photobiology A: Chemistry	6. 最初と最後の頁 113707 ~ 113707
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jphotochem.2021.113707	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Asahara Haruyasu, Takao Nozomi, Moriguchi Maiko, Inoue Tsuyoshi, Ohkubo Kei	4. 巻 58
2. 論文標題 Visible-light-induced phosgenation of amines by chloroform oxygenation using chlorine dioxide	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 6176 ~ 6179
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d2cc01336c	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Tajimi Yuka, Nachi Yasuhiro, Inada Ryoko, Hashimoto Ryoga, Yamawaki Mugen, Ohkubo Kei, Morita Toshio, Yoshimi Yasuharu	4. 巻 87
2. 論文標題 9-Cyano-10-methoxycarbonylanthracene as a Visible Organic Photoredox Catalyst in the Two-Molecule Photoredox System	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 The Journal of Organic Chemistry	6. 最初と最後の頁 7405 ~ 7413
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.joc.2c00643	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ieda Naoya, Yoshikawa Yuka, Tomita Natsumi, Ohkubo Kei, Hotta Yuji, Kawaguchi Mitsuyasu, Kimura Kazunori, Nakagawa Hidehiko	4. 巻 58
2. 論文標題 Ascorbate-assisted nitric oxide release from photocontrollable nitrosonium ion releasers for potent ex vivo photovasodilation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 8420 ~ 8423
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d2cc03193k	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kaneko Yudai, Yamatsugu Kenzo, Yamashita Takefumi, Takahashi Kazuki, Tanaka Toshiya, Aki Sho, Tatsumi Toshifumi, Kawamura Takeshi, Miura Mai, Ishii Masazumi, Ohkubo Kei, Osawa Tsuyoshi, Kodama Tatsuhiko, Ishikawa Shumpei, Tsukagoshi Masanobu, Chansler Michael, Sugiyama Akira, Kanai Motomu, Katoh Hiroto	4. 巻 113
2. 論文標題 Pathological complete remission of relapsed tumor by photo activating antibody mimetic drug conjugate treatment	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Cancer Science	6. 最初と最後の頁 4350 ~ 4362
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/cas.15565	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Shigemitsu Hajime, Sato Kazuhide, Hagio Satomi, Tani Youhei, Mori Tadashi, Ohkubo Kei, Osakada Yasuko, Fujitsuka Mamoru, Kida Toshiyuki	4. 巻 5
2. 論文標題 Amphiphilic Rhodamine Nano-assembly as a Type I Supramolecular Photosensitizer for Photodynamic Therapy	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ACS Applied Nano Materials	6. 最初と最後の頁 14954 ~ 14960
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsnm.2c03192	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Ohno Shohei, Asahara Haruyasu, Inoue Tsuyoshi, Ohkubo Kei	4. 巻 12
2. 論文標題 One-pot chlorocarboxylation of toluenes with chlorine dioxide under photoirradiation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 31412 ~ 31414
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d2ra06591f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Nakanishi Ikuo, Shoji Yoshimi, Ohkubo Kei	4. 巻 192
2. 論文標題 pH Effect on the Kinetic Isotope Effect in the Hydrogen Transfer from Trolox to Water-Solubilized 2,2-Diphenyl-1-picrylhydrazyl Radical in Phosphate Buffer Solutions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Free Radical Biology and Medicine	6. 最初と最後の頁 131 ~ 131
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.freeradbiomed.2022.10.243	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Manda Kailash, Ohkubo Kei, Shoji Yoshimi, Zoardar A. K. M. Raushan Kabir, Kamibayashi Masato, Ozawa Toshihiko, Anzai Kazunori, Nakanishi Ikuo	4. 巻 3-4
2. 論文標題 In vitro radical-scavenging mechanism of melatonin and its in vivo protective effect against radiation-induced lipid peroxidation	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Redox Biochemistry and Chemistry	6. 最初と最後の頁 100003 ~ 100003
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.rbc.2023.100003	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Yamamoto Keita, Asahara Haruyasu, Harada Kazuo, Itabashi Yuki, Ohkubo Kei, Inoue Tsuyoshi	4. 巻 11
2. 論文標題 One-step antibacterial modification of polypropylene non-woven fabrics <i>via</i> oxidation using photo-activated chlorine dioxide radicals	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry B	6. 最初と最後の頁 5101 ~ 5107
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3TB00586K	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Itabashi Yuki, Asahara Haruyasu, Ohkubo Kei	4. 巻 59
2. 論文標題 Chlorine-radical-mediated C-H oxygenation reaction under light irradiation	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 7506 ~ 7517
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D3CC01057K	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Miwa Kazuhira, Aoyagi Shinobu, Sasamori Takahiro, Ueno Hiroshi, Okada Hiroshi, Ohkubo Kei	4. 巻 125
2. 論文標題 Anionic Fluorinated Zn-porphyrin Combined with Cationic Endohedral Li-fullerene for Long-Lived Photoinduced Charge Separation with Low Energy Loss	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry B	6. 最初と最後の頁 918 ~ 925
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpcc.0c10450	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -



1. 著者名 Yamatsugu Kenzo, Kanai Motomu, Takahashi Kazuki, Sugiyama Akira, Ohkubo Kei, Tatsumi Toshifumi, Kodama Tatsuhiko	4. 巻 32
2. 論文標題 Axially Substituted Silicon Phthalocyanine Payloads for Antibody Drug Conjugates	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Synlett	6. 最初と最後の頁 1098 ~ 1103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1055/a-1503-6425	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Shigemitsu Hajime, Tamemoto Tomoe, Ohkubo Kei, Mori Tadashi, Osakada Yasuko, Fujitsuka Mamoru, Kida Toshiyuki	4. 巻 57
2. 論文標題 A cyanine dye based supramolecular photosensitizer enabling visible-light-driven organic reaction in water	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 11217 ~ 11220
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d1cc04685c	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Pokutsa Alexander, Ohkubo Kei, Zaborovski Andriy, Bloniarz Pawel	4. 巻 16
2. 論文標題 UV induced oxygenation of toluene enhanced by Co(acac) <sub>2</sub> 9 mesityl 10 methylacridinium ion N-hydroxyphthalimide tandem	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Asia-Pacific Journal of Chemical Engineering	6. 最初と最後の頁 113707 ~ 113707
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/apj.2714	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakanishi Ikuo, Shoji Yoshimi, Ohkubo Kei, Fukuzumi Shunichi	4. 巻 10
2. 論文標題 Tunneling in the Hydrogen-Transfer Reaction from a Vitamin E Analog to an Inclusion Complex of 2,2-Diphenyl-1-picrylhydrazyl Radical with $\alpha$ -Cyclodextrin in an Aqueous Buffer Solution at Ambient Temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Antioxidants	6. 最初と最後の頁 1966 ~ 1966
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/antiox10121966	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Dao Toan Thanh, Sakai Heisuke, Ohkubo Kei, Fukuzumi Shunichi, Murata Hideyuki	4. 巻 77
2. 論文標題 Low switching voltage, high-stability organic phototransistor memory based on a photoactive dielectric and an electron trapping layer	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Organic Electronics	6. 最初と最後の頁 105505 ~ 105505
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.orgel.2019.105505	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Solladie Nathalie, Fukuzumi Shunichi, Ohkubo Kei, D' Souza Francis, Rein Regis, Saito Kenji, Troiani Vincent, Qiu Hongjin, Gadde Suresh, Hasegawa Tetsuya	4. 巻 9
2. 論文標題 Two Different Multiple Photosynthetic Reaction Centers Using Either Zinc Porphyrinic Oligopeptide-Fulleropyrrolidine or Free-Base Porphyrinic Polypeptide-Li <sup>+</sup> Supramolecular Complexes	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ECS Journal of Solid State Science and Technology	6. 最初と最後の頁 061026 ~ 061026
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1149/2162-8777/abaaf5	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakanishi Ikuo, Ohkubo Kei, Shoji Yoshimi, Fujitaka Yuya, Shimoda Kei, Matsumoto Ken-ichiro, Fukuhara Kiyoshi, Hamada Hiroki	4. 巻 54
2. 論文標題 Relationship between the radical-scavenging activity of selected flavonols and thermodynamic parameters calculated by density functional theory	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Free Radical Research	6. 最初と最後の頁 535 ~ 539
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/10715762.2020.1813887	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nakanishi Ikuo, Shoji Yoshimi, Ohkubo Kei, Ozawa Toshihiko, Matsumoto Ken-ichiro, Fukuzumi Shunichi	4. 巻 56
2. 論文標題 A large kinetic isotope effect in the reaction of ascorbic acid with 2-phenyl-4,4,5,5-tetramethylimidazoline-1-oxyl 3-oxide (PTIO) in aqueous buffer solutions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 11505 ~ 11507
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0CC05214K	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Kodama Takuya, Kubo Maiko, Shinji Wataru, Ohkubo Kei, Tobisu Mamoru	4. 巻 11
2. 論文標題 Phenylene-bridged bis(benzimidazolium) (BBIm2+): a dicationic organic photoredox catalyst	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Science	6. 最初と最後の頁 12109 ~ 12117
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0SC03958F	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Nakanishi Ikuo, Shoji Yoshimi, Ohkubo Kei, Fukuhara Kiyoshi, Ozawa Toshihiko, Matsumoto Ken-ichiro, Fukuzumi Shunichi	4. 巻 68
2. 論文標題 Effects of reaction environments on radical-scavenging mechanisms of ascorbic acid	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Clinical Biochemistry and Nutrition	6. 最初と最後の頁 116 ~ 122
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3164/jcbrn.20-147	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計37件 (うち招待講演 37件 / うち国際学会 5件)

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 カーボンニュートラル循環型酪農 酪農業のエネルギー革新戦略
3. 学会等名 大阪ベンチャー研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 メタンからメタノール・ギ酸製造技術とバイオガス・バイオマス利用の可能性
3. 学会等名 日本計画研究所JPIセミナー (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 温室効果ガスから液体燃料を製造する夢の反応
3. 学会等名 トヨタ技術会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 温室効果ガスの削減と資源が循環する地域
3. 学会等名 大気とプラネタリーヘルス共創フォーラム（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 亜塩素酸イオンの活性化によるC-H結合活性化
3. 学会等名 MA-T学会ミニシンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 カーボンニュートラル循環型酪農システム バイオガスを常温・常圧光反応で液体燃料へ変換
3. 学会等名 千里ロータリークラブ（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 カーボンニュートラル循環型酪農システム バイオガスを常温・常圧光反応で液体燃料へ変換
3. 学会等名 日本生物工学会年次大会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 分子状酸素を用いた炭化水素のC-H光酸化反応，高知化学シンポジウム
3. 学会等名 高知化学会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 Photochemical Synthesis of Methanol and Formic Acid from Methane Containing Biogas with Chlorine Dioxide
3. 学会等名 15th International Symposium on Organic Reactions (ISOR-15)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 「エネルギー革命」バイオガスを液体燃料へ変換
3. 学会等名 MA-T 学会設立特別シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 バイオガスの化学変換によるカーボンニュートラル循環型酪農
3. 学会等名 超異分野学会北海道フォーラム2022 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 メタンガスの空気酸化による常温常圧メタノール合成
3. 学会等名 触媒学会札幌講演会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 二酸化塩素のチカラ 最強C-H酸化剤
3. 学会等名 第91回講演会, 産総研触媒化学融合研究センター (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 分子状酸素による炭化水素の選択的C-H光酸化反応
3. 学会等名 R&D講演会, (株)MORESCO (招待講演)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 光化学と酪農の超異分野融合
3. 学会等名 2022年度有機光化学研究会（招待講演）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 メタンガスと空気から常温常圧メタノール合成
3. 学会等名 超異分野学会 大阪大会2021（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 除菌消臭剤の有効成分である二酸化塩素を用いたプラスチック表面のC-H酸化反応
3. 学会等名 日本接着学会セミナー（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 バイオガスから新エネルギー
3. 学会等名 CMCリサーチウェビナー（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 バイオガスの化学変換技術で炭素循環型酪農を実現
3. 学会等名 エコテックグランプリ（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 Photochemical Synthesis of Methanol and Formic Acid from Methane Containing Biogas with Chlorine Dioxide
3. 学会等名 11th Asian Photochemistry Conference (APC 2021)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 除菌消臭剤の開発から生まれた化学反応 プリットと生まれるエネルギー
3. 学会等名 大阪明星高校セミナー（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 カーボンニュートラル循環型酪農 バイオガスの新しい活用法
3. 学会等名 超異分野学会 北海道フォーラム2021（招待講演）
4. 発表年 2021年



1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 化学反応によるSDGsへのアプローチ
3. 学会等名 脱炭素・SDGs社会への先端科学・融合化技術に関する東北大学・合宿セミナー（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 除菌消臭剤の開発から生まれた化学反応 プリットと生まれるエネルギー
3. 学会等名 量研機構セミナー（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 Photochemical Synthesis of Methanol and Formic Acid from Methane Containing Biogas with Chlorine Dioxide
3. 学会等名 Global Conference on Catalysis & Applied Chemical Engineering (GCC 2021)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 バイオメタンガスからメタノール合成
3. 学会等名 SLCFシンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 カーボンニュートラル循環型酪農システム バイオメタンガスの新しい活用法の開発
3. 学会等名 情報機構セミナー（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 バイオメタンガスからメタノール合成
3. 学会等名 大阪大学薬学4号館竣工式典（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 Photochemical C-H Oxygenation of Alkanes with Chlorine Dioxide
3. 学会等名 14th International Symposium on Organic Reactions (ISOR-14) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 Light-Driven C-H Oxygenation of Methane with Chlorine Dioxide
3. 学会等名 PriME2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 除菌消臭剤の開発から生まれた化学反応
3. 学会等名 KRPフェス2020 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 化学の目で見る舞鶴地域の資源 化学反応のSDGsへのアプローチ
3. 学会等名 西舞鶴高校 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 ”剛健も柔弱も” : 熱や圧だけでなく、光。
3. 学会等名 ヴァンフォーレ甲府 講演会 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 二酸化塩素を用いた光酸化反応によるプラスチック表面機能化とその応用
3. 学会等名 第17回接着技術講座 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 除菌消臭剤の研究開発から生まれた化学イノベーション
3. 学会等名 大阪大学シンポジウム（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 簡単！光でプラスチック表面を機能化 二酸化塩素で表面酸化する新技術
3. 学会等名 第10回 超異分野学会（招待講演）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 大久保敬
2. 発表標題 MA-Tの酸化制御技術 カーボンニュートラル社会の実現に向けて
3. 学会等名 日本MA-T工業会記念式典（招待講演）
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
ノルウェー	NUST			
米国	ヒューストン大			
韓国	梨花女子大			
エジプト	King Faisal University			