

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2020～2022

課題番号：20K21225

研究課題名（和文）超分子科学的な相互作用を駆使した機能性タフ材料の創製

研究課題名（英文）Creation of functional tough materials utilizing supramolecular interactions

研究代表者

山口 浩靖（Yamaguchi, Hiroyasu）

大阪大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：00314352

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：生体系に見られる複数の非共有結合を通じた超分子集合体の形成による高度な機能発現に発想を得て、水素結合ユニットと金属配位子を導入したポリマーを合成した。末端の水素結合形成を通して超分子ポリマーが生成し、金属イオン添加に寄る高強度化、と破壊エネルギーの増大がもたらされた。またこの超分子材料は化学物質応答性を示した。水素結合ユニットおよび金属配位子の非共有結合形成により優れた機能を有する超分子ポリマー材料の作製に成功した。また、本研究課題遂行中、色素分子と汎用性高分子（ポリビニルピロリドン）と水素結合並びに配位結合により超分子錯体を形成し、新たな光誘起電子移動制御システムを構築することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

持続可能な開発目標（SDGs）達成のためにプラスチックの在り方・使い方を見直すとともに代替材料を開発することは重要な課題である。使い捨てプラスチック製品の代わりに再利用可能な製品や分解可能な代替素材・刺激応答性材料を開発・利用することでプラスチックの使用量削減、環境負荷の少ない新材料創製につながると考えられる。この新規環境負荷軽減材料として本研究課題「超分子科学的な相互作用を駆使した機能性タフ材料の創製」の成果が活きるものと思われる。水素結合や配位結合等、材料として複数の相互作用ユニットを導入することで強化できるが、個々の相互作用は弱い故に分解できる特性が活用できるであろう。

研究成果の概要（英文）：Inspired by the formation of supramolecular assemblies through multiple non-covalent bonds found in biological systems, we have synthesized polymers with hydrogen bonding units and metal ligands. The supramolecular polymers were formed through the formation of hydrogen bonds at the ends, and the addition of metal ions resulted in higher strength and increased fracture energy. The supramolecular materials were also chemically responsive. We succeeded in fabricating supramolecular polymer materials with excellent functions by non-covalent bond formation of hydrogen bonding units and metal ligands. In addition, during the course of this research project, supramolecular complexes were formed with dye molecules and a versatile polymer (polyvinylpyrrolidone) by hydrogen bonding and coordination bonding, and a new photoinduced electron transfer control system was constructed.

研究分野：超分子科学

キーワード：ソフトマテリアル 水素結合 配位結合 刺激応答性材料 色素 光誘起電子移動 機能化 超分子錯体

1. 研究開始当初の背景

生体高分子が複数の相互作用を介した分子の集積により高度な機能を発現していることに発想を得て、生体高分子のみならず合成高分子においても超分子的な可逆的結合ユニットを導入した超分子ポリマーに関する研究が盛んに行われている (図1)。



図1. 可逆的な相互作用を活用した機能性超分子材料・システムの創成

例えば、2種類の非共有結合を用いた機能性超分子ゲルが報告されている。クラウンエーテルとジアルキルアンモニウム塩をそれぞれ分子の端に、トリアゾールをその中心に持つ分子は、ホストゲスト相互作用を通して線状の超分子ポリマーを生成し、ここに二価のパラジウムイオンを添加すると金属配位子相互作用を通してゲルを形成する (図2)。このゲルはホストゲスト相互作用、金属配位子相互作用の2つの非共有結合に応じて pH、熱、化学刺激応答性を示すことが見出されている。このゲル同士を接触させると接着し、自己修復性を示した。これらの機能は2つの非共有結合導入による特徴であり、通常のポリマー材料にはない機能を発現している。しかし、その一方で強度はポリマー材料に比べると劣るため、力学強度の改善が重要な課題であった。

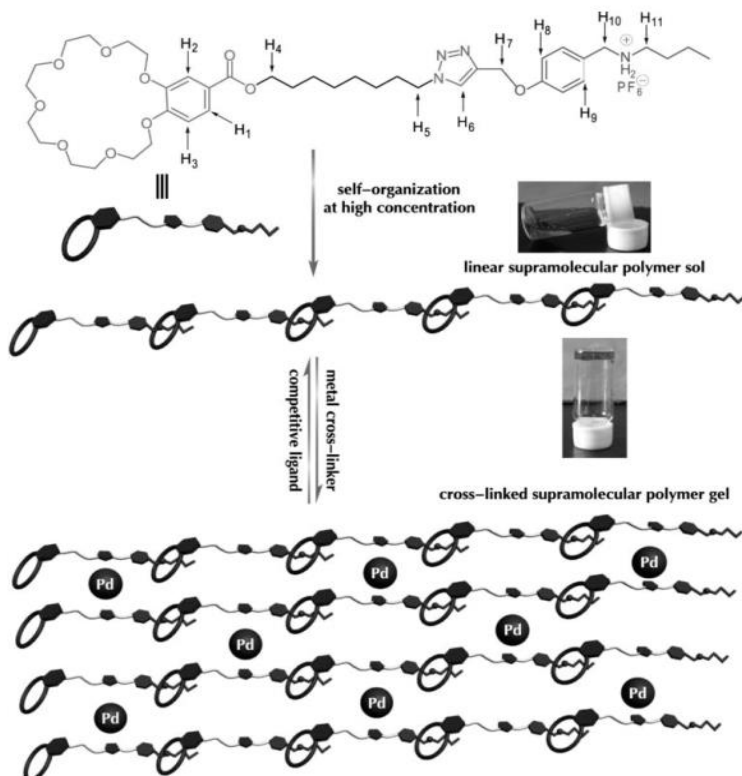


図2. ホスト-ゲスト相互作用と金属-配位子相互作用の2つの非共有結合を導入した分子からなる超分子ポリマーの例 (Yan, X.; Xu, D.; Chi, X.; Chen, J.; Dong, S.; Ding, X.; Yu, Y.; Huang, F. Adv. Mater. 2012, 24, 362-369 より) .

2. 研究の目的

本研究では低分子からなる超分子ポリマーの材料物性改善を目的に、ポリマーに対して2種類の非共有結合ユニットを導入し、超分子材料を合成した。この方法であればポリマー材料としての強度を持ちつつも低分子を用いた超分子ゲルに見られる機能の発現が可能ではないかと考えた(図3)。機能性タフ材料の創製と並行して、同一ポリマーに対して水素結合と配位結合により錯体形成可能な化合物(ここでは色素)を探索した(図4)。ポリマーとの錯体形成による色素環境変化をもとに色素から電子受容体への光誘起電子移動を制御できることを見出した。

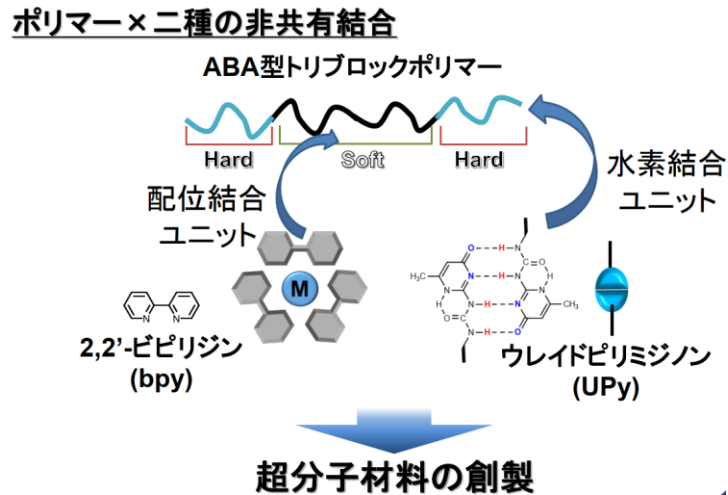


図3. 2つの異なる相互作用部位を導入したポリマーからなる超分子材料

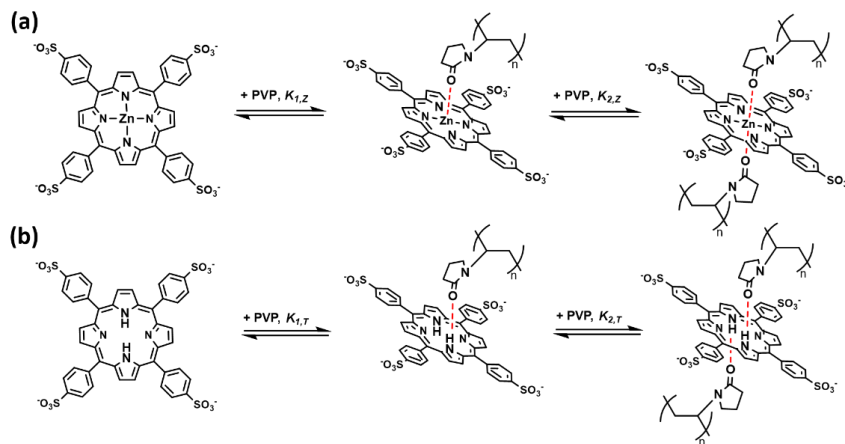


図4. 色素(亜鉛テトラフェニルポルフィリンスルホン酸、(a)及びそのフリーベース錯体(b))とポリビニルピロリドンとの錯体形成挙動

3. 研究の方法

図5に示すABA型ブロックポリマーを合成した。このポリマーは末端のUPyの水素結合形成を通して線状の超分子ポリマーを形成すると考えられる。ここに金属イオンを添加するとbpyとの金属錯体が超分子ポリマーの架橋点として働き、さらに巨大なネットワークを有する超分子集合体を形成すると予想した。この超分子ポリマーを用いて作製した材料の2種非共有結合導入による力学的強度への影響、外部刺激応答性、自己修復性等の機能について評価した。

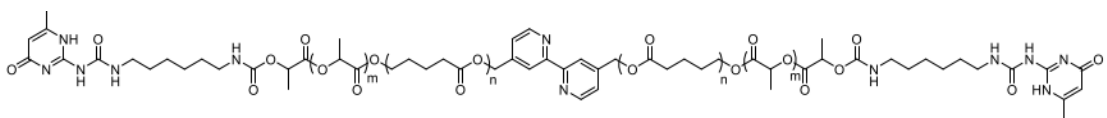


図5. 本研究において物性を調査した水素結合・配位結合ユニット導入ポリマー

4. 研究成果

(1) ポリマーへ導入した配位子と金属イオンとの錯体形成挙動

図 5 のポリマーに対して $\text{Fe}(\text{BF}_4)_2$ を用いて滴定を行い、UV-vis スペクトル測定によって Macroligand の配位能について調べた。あらかじめ 2,2'-bipyridine によって濃度を決定した $\text{Fe}(\text{BF}_4)_2$ 溶液の入った UV セルに対して、bpyPVL-PLAU 溶液を少量添加して吸光度が一定になるまで 10 分間攪拌した後、UV-vis スペクトル測定を行った。この操作を繰り返すと徐々に吸光度が上昇し、やがて飽和する様子が観察された。極大吸収波長 530nm において吸光度をポリマー中の配位ユニットと添加した Fe^{2+} のモル濃度比に対してプロットした。[Macroligand]/[Fe^{2+}] = 3:1 付近で吸光度が飽和したことから、このポリマーは Fe^{2+} とトリス錯体を形成し、六分岐星形ポリマーを生成することが示された。

(2) ポリマーへ導入した水素結合ユニット間相互作用に基づく超分子形成

水素結合の強力なアクセプターとしてはたらく DMSO 中では水素結合ユニットが異性体構造をとり、ダイマーを形成することができない。一方、 CHCl_3 などの非極性溶媒中では別の異性体構造をとり、ダイマー構造を形成する。この性質を利用して水素結合ネットワーク構造を調べた。 CDCl_3 , $\text{DMSO}-d_6$ 中での $^1\text{H-NMR}$ スペクトルを比較した結果、ポリマー末端の水素結合ユニットが分子間で水素結合を形成してネットワークを形成していることが示された。

(3) 超分子フィルム の物性

当該ポリマーは水素結合により 透明性の高い柔軟なフィルム を形成した。ここに金属イオン添加後のフィルムの架橋構造について調べるために膨潤度試験を行った。フィルムを 1 時間 CH_2Cl_2 に浸漬させて、浸漬前の重量と浸漬後の重量から膨潤率を算出して比較したところ、 Fe^{2+} の添加量が多くなるにつれ膨潤度は小さな値を示した。これは金属錯体によりポリマーの架橋点密度が増大したためと考えられる。一方、水素結合阻害剤存在下では高い膨潤度を示した。このことから フィルム内部で金属錯体および水素結合によって架橋されていることがわかった。

(4) 合成した超分子ポリマーの力学的強度

非共有結合導入による材料の力学的強度への影響について調べるために引張試験を行った。引張速度は 0.1mm/sec で試験を行い、サンプルは当該超分子ポリマーフィルムと Fe^{2+} の添加量の異なる 3 種類のフィルムを用いた。破断応力、破断ひずみともに Fe^{2+} 添加量に応じて増大した。この応力歪み曲線の初期の傾きからヤング率、面積から破壊エネルギーを算出した。ヤング率は Fe^{2+} 添加により一度減少した後、上昇する傾向が見られた。金属錯体形成によるポリマーの運動の制限などによる結晶性の低下が原因だと考えられる。また破壊エネルギーは Fe^{2+} 添加量に応じて増大し、金属錯体形成によって材料の力学的強度が向上した。同様の方法で超分子フィルムに Zn^{2+} 、 Co^{2+} を添加して、金属イオン種による力学的強度の違いについて調べた。応力歪み曲線の面積からそれぞれのサンプルの破壊エネルギーを算出すると、 Fe^{2+} 、 Co^{2+} 、 Zn^{2+} フィルムの順に大きな値を示した (図 6)。各種金属イオンと当該配位子との全安定度定数 ($\log\beta_3$) は Fe^{2+} 17.45、 Co^{2+} が 16.02、 Zn^{2+} が 13.63 であり、破壊エネルギーと同様の順に大きな値を示している。全安定度定数は金属錯体の安定度、つまり金属配位子と金属イオンとの結合のしやすさを表す指標である。この結果から 金属錯体がポリマーの架橋点として働き、その金属錯体の安定度がフィルムの力学的強度と相関があることがわかった。

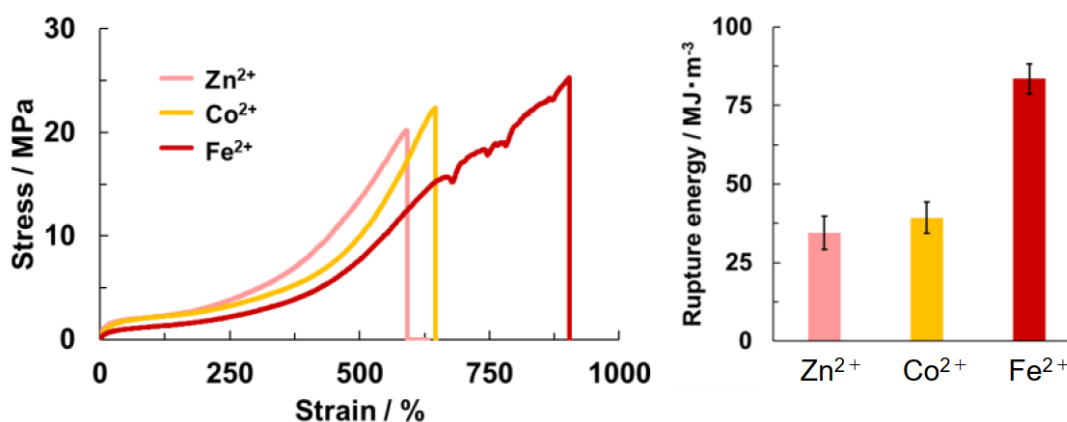


図 6. 異なる金属イオンとの超分子錯体形成による力学物性の違い

2 価の銅イオンと 1 価の銅イオンはともに当該配位子と 1:2 の金属錯体を形成する。 Cu^{2+} フィルムを還元剤であるアスコルビン酸水溶液に浸漬させると褐色へと変化した。またこの褐色のフィルムを酸化剤である NOBF_4 溶液に浸漬させると再び水色へと変化した。この色の変化は酸化還元反応によりそれぞれ Cu^{2+} が Cu^+ へ、 Cu^+ が Cu^{2+} へと変化していることを示している。酸化

還元反応によりフィルムの力学的強度が変化し、可逆的な応答性を示すことが明らかになった。

(5) 自己修復性

当該フィルムに剃刀で傷をつけ、30分間ある温度で加熱した。加温前の傷の断面積と加温後の傷の断面積から自己修復率を算出して比較した。加熱温度が40°C、50°Cと高くなるにつれ自己修復率が向上した。Fe²⁺フィルムはさらに高い自己修復率を示した。金属錯体形成によりガラス転移温度が低温側にシフトしたため各温度においてより高い自己修復性を示したと考えられる。これまでの実験で、作製した超分子フィルムは外部刺激を与えることで金属錯体構造が変化すること、加熱によるポリマーの運動性の違いが自己修復性に変化をもたらすことがわかった。

(6) 汎用性ポリマーと色素の超分子錯体形成

ポルフィリンまたはその亜鉛錯体と、汎用性コーティング材料であるポリビニルピロリドン(PVP)との相互作用を観察した。水溶性色素テトラフェニルポルフィリンスルホネート(TPPS)とその亜鉛錯体(ZnTPPS)のそれぞれの水溶液にPVPを添加すると、色素の可視紫外吸収スペクトルは等吸収点を伴いながら長波長シフトし、超分子錯体を定量的に形成することを見出した。ポルフィリンの水溶液に可視光線を長時間照射すると色素の分解が起こるが、PVP添加系ではポルフィリン環の開裂が抑制されることがわかった。

(7) 色素とポリマーからなる超分子錯体を用いた電子移動制御

PVPが電子供与体であるTPPSおよびZnTPPSとそれぞれ水素結合または配位結合によって錯体を形成することを見出した。TPPSまたはZnTPPSの水溶液に電子受容体の一種メチルビオローゲン(MV²⁺)を添加すると、UV-Visスペクトルにおいてポルフィリンの吸収帯の長波長シフトが観察された。PVP存在下ではそのような波長シフトは見られなかった。これらの水溶液に可視光を照射すると、PVP存在下でもポルフィリンからMV²⁺への電子移動に基づくポルフィリンの蛍光強度減少が見られたことから、PVP添加系ではTPPSまたはZnTPPSからMV²⁺への長距離電子移動が起こっていると考えられる。MV²⁺はポルフィリンから電子を受け取るとカチオンラジカルとなり、605nmに吸収極大を与える青色の水溶液となる。この吸光度の経時変化をモニターした結果、PVP存在下で多くの電子移動生成物を与えた(図7)。PVPが光エネルギーから化学エネルギーへの変換に重要な役割を果たしていることがわかった。PVPとポルフィリンとの特異的な相互作用を高分子間架橋ユニットとして材料に組み込み、上記の長距離電子移動反応を活用することにより、新たな精密反応制御場としての超分子機能性材料創製へと展開するための重要な結果が得られた。

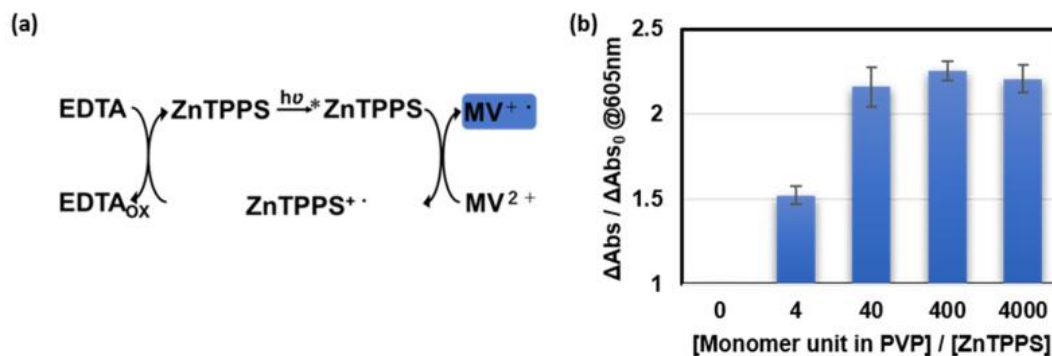


図7. ポルフィリンからMV²⁺への光誘起電子移動(a)とPVP添加による電子移動生成物の増大(b).

PVPの代わりにポリ(4ビニルメチルピリジニウム)(P4VP-Me)を用いるとTPPSおよびP4VP-MeとZnTPPSの両系で静電相互作用により定量的に錯体を形成した。この錯体は高濃度条件下では相分離を起こして沈殿となった。しかし、P4VP-Meを色素に対して過剰量添加すると、可溶性の超分子錯体を与えることがわかった。PVPとP4VP-Meはどちらも色素に添加することで色素に由来する吸収スペクトルの長波長シフトが観察されていることから、色素がポリマーマトリックス中に固定され、疎水的な環境下に存在していることが示唆された。P4VP-Me添加系ではポルフィリンの会合が促進されて、その会合体がポリマー中で安定化されたと解釈できる結果を得た。P4VP-Me添加系ではPVP添加系で見られなかった新たな高次構造を形成しており、その構造はポリマーの添加量によって動的に変化することを見出した。その結果、ポリマー過剰量存在下では色素からMV²⁺への電子移動に基づくラジカル種形成が促進され、飛躍的に光誘起電子移動効率が向上することがわかった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計20件（うち査読付論文 20件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Tsuji Yoshihiro, Kobayashi Yuichiro, Chunlin Xiao, Harada Akira, Yamaguchi Hiroyasu	4. 巻 52
2. 論文標題 Efficient Cyclization of Linear Polymer with Pseudopolyrotaxane Assistance	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 1~4
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.220427	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 Yoshida Daichi, Park Junsu, Ikura Ryohei, Yamashita Naoki, Yamaguchi Hiroyasu, Takashima Yoshinori	4. 巻 52
2. 論文標題 Self-healable Poly(dimethyl siloxane) Elastomers Based on Host-guest Complexation between Methylated β -Cyclodextrin and Adamantane	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 93~96
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.220458	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 Park Junsu, Tamura Hiroki, Nakahata Masaki, Kobayashi Yuichiro, Yamaguchi Hiroyasu, Nakajima Katsuhiko, Takahashi Hiroaki, Takata Satoshi, Kayano Kengo, Harada Akira, Hatano Kazuhiro, Takashima Yoshinori	4. 巻 52
2. 論文標題 Self-healable and Conductive Hydrogel Coatings Based on Host-guest Complexation between β -Cyclodextrin and Adamantane	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Chemistry Letters	6. 最初と最後の頁 172~176
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.220535	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 Kobayashi Yuichiro, Yamagishi Yuki, Nishimura Ryuto, Xiao Chun-Lin, Kitano Daiki, Horiguchi Akiyoshi, Hashimoto Shun, Yamaguchi Hiroyasu	4. 巻 -
2. 論文標題 Supramolecular sulfur-containing polymers with hydrogen bonding	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Sulfur Chemistry	6. 最初と最後の頁 1~10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/17415993.2023.2183773	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 Cao Yilin, Takasaki Tomoe, Yamashita Satoshi, Mizutani Yasuhisa, Harada Akira, Yamaguchi Hiroyasu	4. 巻 14
2. 論文標題 Control of Photoinduced Electron Transfer Using Complex Formation of Water-Soluble Porphyrin and Polyvinylpyrrolidone	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Polymers	6. 最初と最後の頁 1191 ~ 1191
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/polym14061191	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 Konishi Subaru, Park Junsu, Urakawa Osamu, Osaki Motofumi, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Inoue Tadashi, Matsuba Go, Takashima Yoshinori	4. 巻 18
2. 論文標題 Multi-energy dissipation mechanisms in supramolecular hydrogels with fast and slow relaxation modes	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 7369 ~ 7379
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2SM00735E	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 Jin Changming, Park Junsu, Shirakawa Hidenori, Osaki Motofumi, Ikemoto Yuka, Yamaguchi Hiroyasu, Takahashi Hiroaki, Ohashi Yasumasa, Harada Akira, Matsuba Go, Takashima Yoshinori	4. 巻 18
2. 論文標題 Synergetic improvement in the mechanical properties of polyurethanes with movable crosslinking and hydrogen bonds	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 5027 ~ 5036
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2SM00408A	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 Ikura Ryohei, Murayama Shunsuke, Park Junsu, Ikemoto Yuka, Osaki Motofumi, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Matsuba Go, Takashima Yoshinori	4. 巻 7
2. 論文標題 Fabrication and mechanical properties of knitted dissimilar polymeric materials with movable cross-links	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Molecular Systems Design & Engineering	6. 最初と最後の頁 733 ~ 745
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D2ME00016D	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 Ueda Chiharu, Park Junsu, Hirose Kazuya, Konishi Subaru, Ikemoto Yuka, Osaki Motofumi, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Tanaka Masaru, Watanabe Go, Takashima Yoshinori	4. 巻 1
2. 論文標題 Behavior of supramolecular cross-links formed by host-guest interactions in hydrogels responding to water contents	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Supramolecular Materials	6. 最初と最後の頁 100001 ~ 100001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.supmat.2021.100001	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 Kawai Yusaku, Park Junsu, Ishii Yoshiki, Urakawa Osamu, Murayama Shunsuke, Ikura Ryohei, Osaki Motofumi, Ikemoto Yuka, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Inoue Tadashi, Washizu Hitoshi, Matsuba Go, Takashima Yoshinori	4. 巻 14
2. 論文標題 Preparation of dual-cross network polymers by the knitting method and evaluation of their mechanical properties	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 32
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41427-021-00348-2	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 Ikura Ryohei, Park Junsu, Osaki Motofumi, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Takashima Yoshinori	4. 巻 14
2. 論文標題 Design of self-healing and self-restoring materials utilizing reversible and movable crosslinks	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 NPG Asia Materials	6. 最初と最後の頁 10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41427-021-00349-1	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 Yamagishi Yuki, Kobayashi Yuichiro, Horiguchi Akiyoshi, Kitano Daiki, Yamaguchi Hiroyasu	4. 巻 7
2. 論文標題 Supramolecular Polysulfide Polymers with Metal-Ligand Interactions	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 ChemistrySelect	6. 最初と最後の頁 e202103991
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/slct.202103991	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 Tsuchiya Hinako, Asaki Yuki, Sinawang Garry, Asoh Taka-aki, Osaki Motofumi, Park Junsu, Ikemoto Yuka, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Uyama Hiroshi, Takashima Yoshinori	4. 巻 4
2. 論文標題 Cellulose Nanofiber Composite Polymeric Materials with Reversible and Movable Cross-links and Evaluation of their Mechanical Properties	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Polymer Materials	6. 最初と最後の頁 403 ~ 412
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsapm.1c01332	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 Harada Akira, Takashima Yoshinori, Hashidzume Akihito, Yamaguchi Hiroyasu	4. 巻 94
2. 論文標題 Supramolecular Polymers and Materials Formed by Host-Guest Interactions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Bulletin of the Chemical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 2381 ~ 2389
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/bcsj.20210233	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 Osaki Motofumi, Yonei Shin, Ueda Chiharu, Ikura Ryohei, Park Junsu, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Tanaka Masaru, Takashima Yoshinori	4. 巻 54
2. 論文標題 Mechanical Properties with Respect to Water Content of Host-Guest Hydrogels	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Macromolecules	6. 最初と最後の頁 8067 ~ 8076
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.macromol.1c00970	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 Osaki Motofumi, Sekine Tomoko, Yamaguchi Hiroyasu, Takashima Yoshinori, Harada Akira	4. 巻 3
2. 論文標題 Material Adhesion through Direct Covalent Bond Formation Assisted by Noncovalent Interactions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Polymer Materials	6. 最初と最後の頁 2189 ~ 2196
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsapm.1c00223	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 Park Junsu, Murayama Shunsuke, Osaki Motofumi, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Matsuba Go, Takashima Yoshinori	4. 巻 32
2. 論文標題 Extremely Rapid Self-Healable and Recyclable Supramolecular Materials through Planetary Ball Milling and Host-Guest Interactions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Advanced Materials	6. 最初と最後の頁 2002008 ~ 2002008
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.202002008	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 Tsuchiya Hinako, Sinawang Garry, Asoh Taka-aki, Osaki Motofumi, Ikemoto Yuka, Higuchi Yuji, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Uyama Hiroshi, Takashima Yoshinori	4. 巻 21
2. 論文標題 Supramolecular Biocomposite Hydrogels Formed by Cellulose and Host-Guest Polymers Assisted by Calcium Ion Complexes	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Biomacromolecules	6. 最初と最後の頁 3936 ~ 3944
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.biomac.0c01095	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 Konishi Subaru, Kashiwagi Yu, Watanabe Go, Osaki Motofumi, Katashima Takuya, Urakawa Osamu, Inoue Tadashi, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira, Takashima Yoshinori	4. 巻 11
2. 論文標題 Design and mechanical properties of supramolecular polymeric materials based on host-guest interactions: the relation between relaxation time and fracture energy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Polymer Chemistry	6. 最初と最後の頁 6811 ~ 6820
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0PY01347A	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 Itami Takahiro, Hashizume Akihito, Kamon Yuri, Yamaguchi Hiroyasu, Harada Akira	4. 巻 11
2. 論文標題 The macroscopic shape of assemblies formed from microparticles based on host-guest interaction dependent on the guest content	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 6320 ~ 6320
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-021-85816-z	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 -

〔学会発表〕 計28件（うち招待講演 3件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 曹 藝霖・小林裕一郎・山口浩靖
2. 発表標題 ポリマーマトリックス中の静電相互作用を利用した光誘起電子移動制御
3. 学会等名 日本化学会第102春季年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 辻佳弘・小林裕一郎・原田明・山口浩靖
2. 発表標題 シクロデキストリン添加によるポリエチレングリコール誘導体の分子内・分子間反応比率の変化
3. 学会等名 第68回高分子研究発表会(神戸)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 堀口顕義・小林 裕一郎・山口浩靖
2. 発表標題 硫黄を原料としたチオエポキシ樹脂の合成
3. 学会等名 第68回高分子研究発表会(神戸)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 以倉峻平・村山駿介・池本夕佳・大崎基史・山口浩靖・原田明・松葉豪・高島義徳
2. 発表標題 可動性架橋を用いた高分子材料の設計と力学物性評価
3. 学会等名 第19回ホスト-ゲスト・超分子化学シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 朴峻秀・佐々木由比・石井良樹・村山駿介・大代晃平・石澤朋佳・山口浩靖・原田明・鷲津仁志・南豪・松葉豪・高島義徳
2. 発表標題 疎水性材料中のシクロデキストリン由来超分子架橋の電気化学的ガスセンサーとしての検討
3. 学会等名 第19回ホスト・ゲスト・超分子化学シンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山口浩靖・山崎誠司・小原健司・原田明
2. 発表標題 生体分子導入合成高分子を用いた酵素反応可視化システム
3. 学会等名 第71回高分子討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 辻佳弘・小林裕一郎・原田明・山口浩靖
2. 発表標題 シクロデキストリンの包接現象を利用した高濃度での環状ポリマー合成
3. 学会等名 第71回高分子討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 堀口顕義・小林 裕一郎・山口浩靖
2. 発表標題 エポキシモノマーと直鎖硫黄ユニットとの重縮合による硫黄含有ポリマーの合成
3. 学会等名 第71回高分子討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 北野大輝・小林裕一郎・山口浩靖
2. 発表標題 2,2'-ビピリジンを有する硫黄含有ポリマーからなる超分子金属錯体の合成とその熱安定性評価
3. 学会等名 第71回高分子討論会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 辻佳弘・小林裕一郎・原田明・山口浩靖
2. 発表標題 高分子濃厚溶液に シクロデキストリンを添加することによる高分子末端間反応制御
3. 学会等名 第38回シクロデキストリンシンポジウム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 堀口顕義・小林 裕一郎・山口浩靖
2. 発表標題 環状硫黄を原料とした硫黄含有エポキシポリマーの合成
3. 学会等名 第31回ポリマー材料フォーラム
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Yuichiro Kobayashi・Yuki Yamagishi・Daiki Kitano・Akiyoshi Horiguchi・Ryuto Nishimura・Shun Hashimoto・Akira Harada・Hiroyasu Yamaguchi
2. 発表標題 Supramolecular Polysulfide Polymers
3. 学会等名 The 17th Pacific Polymer Conference (PPC17) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Akiyoshi Horiguchi・Yuichiro Kobayashi・Hiroyasu Yamaguchi
2. 発表標題 Synthesis of Thioepoxy Polymers by Polycondensation
3. 学会等名 The 17th Pacific Polymer Conference (PPC17) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 山口浩靖
2. 発表標題 生体分子の分子認識能を活用した機能性超分子材料の創製
3. 学会等名 第22回中国四国地区高分子材料研究会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 曹藝霖・高崎友絵・山口浩靖
2. 発表標題 高分子マトリックス中での制御された光誘起電子移動
3. 学会等名 第70回高分子年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口浩靖・木内佑輔・後藤亜希・小林裕一郎・原田明
2. 発表標題 ルテニウムイオン存在下でのポリアクリルアミドの凝集およびゲル接着挙動
3. 学会等名 第70回高分子年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口浩靖
2. 発表標題 生体高分子と遷移金属錯体または合成高分子とのハイブリッド化による機能性超分子触媒の合成
3. 学会等名 第26回 産学高分子研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山岸佑輝・北野大輝・堀口顕義・小林裕一郎・山口浩靖
2. 発表標題 2,2'-ビビリジン-銅()錯体を用いた主鎖型超分子硫黄ポリマーの合成
3. 学会等名 第18回ホスト-ゲスト・超分子化学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 曹藝霖・高崎友絵・山口浩靖
2. 発表標題 水溶性ポルフィリンとポリビニルピロリドンの錯体形成を利用した光誘起電子移動の制御
3. 学会等名 第67回高分子研究発表会[神戸]
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 辻佳弘・小林裕一郎・山口浩靖・原田明
2. 発表標題 -シクロデキストリンとポリエチレングリコールからなる擬ポリロタキサンを利用した環状高分子の合成
3. 学会等名 第37回シクロデキストリンシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口浩靖・安達琢真・村田佳祐・山崎誠司・小原健司・小林裕一郎・原田明
2. 発表標題 生体/合成分子のハイブリッド化による機能性人工金属酵素の創製
3. 学会等名 第70回高分子討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yamaguchi Hiroyasu
2. 発表標題 Exploring Functions Based on Molecular Recognition-Collaboration between Biological and Artificial Systems
3. 学会等名 ICMR2021 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 木内佑輔、小林裕一郎、後藤亜希、山口浩靖
2. 発表標題 金属イオン添加による ポリアクリルアミドの特異的凝集
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 曹藝霖、高崎友絵、山口浩靖
2. 発表標題 水溶性ポルフィリンとポリビニルピロリドンの錯体形成を利用した光誘起電子移動の制御
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 山口浩靖
2. 発表標題 生体高分子と遷移金属錯体または合成高分子とのハイブリッド化による機能性超分子触媒の合成
3. 学会等名 第25回 産学高分子研究会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 木内佑輔、山崎誠司、小原健司、牧野早恵、小林裕一郎、山口浩靖
2. 発表標題 熱応答性高分子を用いた酵素反応制御
3. 学会等名 第14回バイオ関連シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 土屋日奈子、Garry Sinawang、麻生隆彬、大崎基史、池本夕佳、樋口祐次、山口浩靖、原田明、宇山浩、高島義徳
2. 発表標題 ホスト-ゲスト包接錯体と金属配位結合によって架橋されたセルロースナノファイバー複合超分子材料
3. 学会等名 第69回高分子討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山口浩靖
2. 発表標題 分子認識に基づく機能開拓 - 生体系と人工系のコラボレーション -
3. 学会等名 関東高分子若手研究会 2020 (招待講演)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 西原寛・山元公寿編著、山口浩靖分担執筆	4. 発行年 2020年
2. 出版社 三共出版	5. 総ページ数 537
3. 書名 フロンティア 機能高分子金属錯体	

〔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
---------	---------