

フジシール財団 研究助成事業
成果報告書

公益財団法人フジシール財団
理事長 岡 崎 裕 夫 殿

報告日 2026 年 7 月 9 日

研究課題	資源循環型シリコンオリンピックゴムの開発	助成金額
		1200 万円
助成名	特別長期研究助成	
ふりがな	ほんだ さとし	研究助成申請年度
研究者氏名	本多 智	2025 年度
所属機関	九州大学	研究期間
		2023 年 4 月 1 日～2026 年 3 月 31 日
役 職	准教授	

下記の通り、研究成果を報告いたします。

記

1. 研究成果の概要

環状高分子が空間的束縛を介して無限に連結した網目状物質はオリンピックゴム／ゲル（OG）と呼ばれる。OG は、ピエール＝ジル・ドジャン（1991 年・ノーベル物理学賞）が 1979 年に存在可能性を予言して以来、世界中の化学者が半世紀近く合成に挑んできた未踏物質である。高分子鎖がからみ合う高濃度では環構造の形成が難しく、環構造を形成しやすい希釈条件では鎖がからみ合わないというジレンマが、その合成を阻んできた。本研究は、無溶媒でも流動性に富むポリジメチルシロキサン（PDMS）と、光刺激で可逆的に解離する動的共有結合（DCB）であるヘキサアリールビイミダゾール（HABI）を組み合わせ、無溶媒という究極の高濃度条件での末端環化によりこのジレンマを解決することを目指した。

二年目までに、二元有機触媒開環重合（BOROP）による分子量(MW)と分子量分布($\mathcal{D}$)の精密制御された PDMS の合成法 (Commun. Chem., 7, 61, 2024) と、音で材料内部の局所物性を操る「音動的共有結合性物質の工学」(Adv. Mater., 35, 2304104, 2023) を確立した。最終年度にあたる本報告では、(1)環化濃度による網目形成の制御と無溶媒下での OG の形成、(2) OG の静的力学物性の取得、さらには(3)本設計思想の他ポリマーへの展開可能性、という三つの新たな成果を得たので報告する。

(1) 環化濃度の制御と無溶媒下でのオリンピックゴムの形成

水を二官能性開始剤とする BOROP とそれに次ぐ末端変換反応により、分子量の異なる両末端ロフィン型直鎖状 PDMS を作り分け、その末端酸化により HABI を鎖中にもつ環状 PDMS を合成した。その結果、直鎖状 PDMS のからみ合いに必要な臨界分子量 ($M_c \approx 24500$) を超える前駆体から得た環状 PDMS のみが貯蔵弾性率 $G' >$ 損失弾性率 G'' の固体状態を示し、その他はいずれも液体状態 ($G' < G''$) であった。従来報告されてきた HABI をもつ環状 PDMS はすべて液体であり、液状物質となるはずの環状 PDMS が固体となったことは無限網目の形成を示唆するものであり、まさに本研究が到達点として掲げる OG の形成を予感させるものであった

(2) オリンピックゴムの静的力学物性

さて、環状 PDMS がゴム状固体として得られたことにより、様々な力学試験を実施すること可能となった。

複数の分子量の直鎖状前駆体からゴム状環状 PDMS を合成し、それらの引張試験を実施した。すると、いずれの試料もよく伸び、ヤング率 $E = 0.009 \sim 0.012$ MPa、破断ひずみ $\epsilon = 4376 \sim 6620\%$ 、破断応力 $\sigma = 0.0005 \sim 0.060$ MPa を示した。とりわけ、もとの長さの約 66 倍 ($\epsilon = 6620\%$) にまで伸長した環状 PDMS は、近年「伸びすぎるゲル」として報告された材料の伸びの約二倍に相当する驚異的な値であり、「OG は高分子鎖全体の配座変化により応力を分散でき、高い伸張性を発現する」という本研究申請時の予測を実験的に裏づける。ここまでの、ゴム状固体として得られた環状 PDMS 群が OG であることに確信を得たが、さらに、得られた力学物性データから網目の実効的な絡み合い点間分子量 (M_x および M) を見積もった。具体的には、古典ゴム弾性論の関係式 $E = 3\rho RT/M_x$ ($\rho = 0.97$ g cm⁻³, $T = 298$ K) に $E = 0.009 \sim 0.012$ MPa を代入し $M_x = 6.0 \times 10^5 \sim 8.0 \times 10^5$ g mol⁻¹ を得た。独立に、有限伸長性の関係 $\lambda_{\max} = Nk^{1/2}$ から、 $M = 0.76 \times 10^6 \sim 1.7 \times 10^6$ g mol⁻¹ を得た。すなわち、小ひずみと大ひずみという互いに独立な観測量が同一のオーダーとして得られた。重要な点は、これらが PDMS メルトの絡み合い点間分子量 ($M_e \approx 12000$) を 50~140 倍も上回ることである。仮に $M_e \approx 12000$ で拘束された網目なら平坦弾性率は $G_e = \rho RT/M_e \approx 200$ kPa ($E \approx 0.6$ MPa) となるはずだが、実測値はその約 1/50 にすぎない。すなわち、化学架橋点は位置が固定され全てが弾性に寄与するのに対し、空間的拘束は変形時に鎖に沿って滑るため密度が劇的に低下したことを示している。この描像は「OG は鎖全体の配座変化により応力を分散する」という本研究の仮説を見事に説明する。すなわち、本研究で合成した環状 PDMS はオリンピックゴムであることを力学物性の観点から明らかにすることができた。

(3) 他のポリマーへの展開：からみ合いが支配するバイオ性能への波及

本研究の「化学架橋に依らず、トポロジーの拘束のみで網目を形成する」という設計思想は、PDMS に固有のものではない。その普遍性を検証する端緒として、MW と D を制御した様々な MW のポリ (2-メトキシエチルアクリレート) (PMEA) を合成し、乾燥状態と含水状態の絡み合いと水和構造を比較した。乾燥状態での臨界絡み合い分子量 (M_c) はレオロジー解析から約 24 kDa と求まり、本研究の PDMS の M_c (24500) とほぼ一致し、飽和含水条件では約 36 kDa へと増大した。さらに示差走査熱量測定の結果、 M_c を超える分子量域で水和水量が顕著に変化した。この結果は、分子鎖のからみ合いがバイオ性能を左右しうることを示す。また、この知見は、OG の概念を生体材料に展開する移植する強い動機となる。PMEA は抗血栓性材料として知られており、化学架橋剤を用いずトポロジーの拘束のみで PMEA を網目化できれば、環サイズとからみ合い密度を設計変数として水和構造すなわちバイオパフォーマンスを制御しうることを示唆する。したがって、シリコーンの資源循環にとどまらず、次世代血液適合性材料の分子設計指針にまで波及しうる基盤となった。

2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性

シリコーンは粘接着剤・シーラント・容器・保存袋など、パッケージ分野で不可欠な多用途材料である。その一方、原料ケイ素の製造に多大なエネルギーを要し、高い耐久性ゆえに使用後の解体・回収・再利用が難しいという、循環型社会に向けた課題を抱えている。本研究で創製した OG は、これらの課題に正面から応える材料であると考えている。本研究成果の一部は、構造の明確な PDMS を大量合成が可能な開環重合法の開発

(Commun. Chem., 7, 61, 2024) に成功した時点から急激に進展し、最近ではこの合成法によってラボスケールでも 100 g 規模で容易に合成できることもわかっている。とくにシリコーンの大量合成法の開発は、力学物性の観点から OG の形成条件の探索を可能にした。従来、特殊構造高分子分野では、どうしても“量”が必要となることから力学物性をフルセットで測定することは敬遠されてきた。

それに対して、本研究では、前駆体分子量と環化濃度という二つのパラメータで広範に OG の形成条件を調べることが出来た。その結果、**液状の直鎖状 PDMS を前駆体としながら、末端間の反応のみすなわち原理的には鎖延長された直鎖状成分のみからなる PDMS をゴム状固体として得ることが出来た。**この物質が積極的に固体状となった理由は、空間的束縛を介して網目が無限に連結したからであるとししか考察できず、ついに OG を形成できたと考えている。この物質（OG と呼ぶ）は、破断ひずみが 4000～6600% に達する極めて高い伸張性を持つことから、繰り返し変形を受けるシール材への応用を期待できる。架橋点同一の物質でありながら用途ごとに要求される硬さ・伸び・粘着力を作り分けられる点は、一物質に一機能が対応する従来物質とは一線を画す。

また、2025 年の期中には、東京大学から九州大学に異動し、縁あってバイオマテリアル分野に関わることになった。そこで、抗血栓性材料として知られ人工心肺（ECMO）にも採用されているポリメトキシエチルアクリレート（PMEA）を OG 化すべく、まずは、それまで知られていなかった PMEA の絡み合いが抗血栓性やたんぱく質変性に及ぼす影響を調べることにした。その結果、分子鎖のからみ合いは水和構造を介して材料のバイオ性能を左右することが分かった。具体的には抗血栓性を維持して、タンパク質の変性を抑制することと示す結果となった。その意義は大きく、オリンピックゴムの性質をうまく利用できると、血液バッグ、輸液チューブ、さらには医療デバイス包装など、安全性が最優先される用途に適したゴム材料を提供できる可能性がある。

3. 学会発表、学会誌等への論文掲載、産業財産権出願などの実績（現時点で未発表・未掲載・未出願のため、上記「1. 研究成果の概要」、「2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性」の当財団ホームページ上の公開の延期を希望される場合、その旨 記載してください。）

【原著論文】

1. Satoshi Honda*, Minami Oka, Kazuki Fuke, Pierre T. Khuri-Yakub, Chi Nan Pai, Advanced Materials, 35, 2304104, 2023
2. Hiroshi Okamoto, Atsushi Sogabe, Satoshi Honda*, Communications Chemistry, 7, 61, 2024
3. Satoshi Honda*, Yi Zhang, Masaru Tanaka, Chemical Communications, 2025
4. Satoru Ohisa, Genichi Motomura, Yoshihide Fujisaki, Norihiko Ishii, Nobuhiro Kinoshita, Kei Hagiwara, Satoshi Honda*, ACS Applied Polymer Materials, 2026
5. Yi Zhang, Yukiko Tanaka, Satoshi Honda*, Masaru Tanaka, Hydration and Entanglement Contrasts Between Dry and Wet States in Blood-Compatible Poly(2-methoxyethyl acrylate), In Review, 2026

【総説・解説】

6. Satoshi Honda*, Karin Odelius, Haritz Sardon, Organomediated Polymerization, Commun. Chem., 7, 62, 2024

【産業財産権】

7. Satoshi Honda, Method for decomposing a target object, decomposition apparatus, and target object decomposition system (PCT/JP2026/12790)
8. 岡本寛史, 曾我部敦, 本多智, クマリン骨格を有する化合物 (特願 2025-87512)
9. Hiroshi Okamoto, Atsushi Sogabe, Satoshi Honda, MACROMOLECULAR COMPOUND (PCT/JP2025/18164)
10. 本多智, 対象物の分解方法、分解装置、及び対象物分解システム (特願 2025-58487)
11. 岡本寛史, 曾我部敦, 本多智, 高分子化合物 (特願 2024-129087)
12. 本多智, 開環重合用触媒組成物 (特願 2024-124871)
13. 大久哲, 本村玄一, 藤崎好英, 萩原啓, 本多智, 触覚提示素子 (特願 2024-96236)