

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 5 月 22 日

研究課題	長期保存が可能なポリオレフィン系パッケージング素材の分子設計	助成金額
		300 万円
助成名	特別長期研究助成・研究助成・若手研究助成	
ふりがな	まつおか しんいち	研究助成申請年度
研究者氏名	松岡 真一	2025 年度
所属機関	名古屋工業大学	研究期間
		2025 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

【背景と目的】

パッケージフィルムは食品・医薬品包装など幅広い用途で使用されているが、使用時に生じる微細な傷や損傷が材料劣化や機能低下につながるため、高い透明性を維持しながら耐久性を向上させることが重要な課題となっている。特に、損傷を自発的に修復可能な自己修復性材料は、材料寿命の延長や資源消費の低減を実現する次世代の持続可能材料として注目されている。

これまでの自己修復性高分子材料では、動的共有結合や水素結合に代表される分子間相互作用を利用する手法が主流であり、その実現には高分子鎖中への極性官能基の導入が不可欠であった。一方、ポリオレフィン是非極性であるため、自己修復性を付与することは困難と考えられてきた。そのため、透明性や加工性に優れるポリオレフィン系材料に自己修復性を導入することは、学術的にも工業的にも重要な課題である。

このような背景の中、理化学研究所の Hou らは、Sc 触媒を用いたエチレンとアニシルプロピレンとの共重合により、自己修復性を示すポリオレフィンの合成に初めて成功した (*J. Am. Chem. Soc.* **2019**, *141*, **3249**)。この材料では、特殊なモノマー構造に由来して形成されるポリエチレン主鎖の微結晶とソフトセグメントが破断界面で相互作用することで、自己修復性が発現すると提唱されている。しかしながら、この自己修復挙動は特定の特殊モノマーに依存しており、一般的なポリオレフィン系材料へ適用可能な設計指針は未だ確立されていない。

そこで本研究では、ポリオレフィン系材料の透明性を維持しながら耐久性を向上させる新たな分子設計を提案し、その合成および物性評価を行った。具体的には、ポリエチレン主鎖に結晶性を付与しつつ、結晶サイズを微結晶レベルまで小さく制御することで透明性を確保した。さらに、高分子中へ柔軟鎖を導入することで、破断界面における分子鎖の再配列と相互作用を促進し、自己修復性の発現を目指した。本研究により、傷が生じても修復可能な高透明・高耐久パッケージフィルム材料の創製が期待され、持続可能社会に資する新たなポリオレフィン材料設計指針の確立につながると考えられる。

【結果と考察】

微結晶性ポリオレフィンの合成法として、高分子間クロスメタセシス反応を用いた(Scheme 1)。まず、シクロオクテンの開環メタセシス重合 (ROMP) により、主鎖に二重結合を有するポリマーを合成した。さらに、別の高分子としてノルボルネン系モノマーに着目し、ノルボルナジエン二量体 (NBDD) の開環メタセシス重合により poly(NBDD) を合成した。得られたポリシクロオクテンと poly(NBDD) との間で、Grubbs 触媒を用いたクロスメタセシス反応を行うことでマルチブロック共重合体を合成した。その後、水素化反応により主鎖中の二重結合をメチレン鎖へと変換した。なお、poly(NBDD) 中のシクロプロパン環は、メタセシス反応および水素化反応中において安定に存在した。さらに、その後のプロトン酸触媒による開環反応によってステアリン酸を導入した。

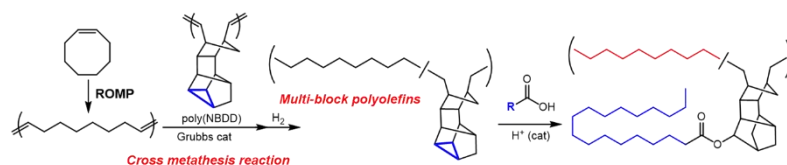
このような分子設計により、主鎖に由来する結晶性構造と、側鎖の柔軟なアルキル鎖に由来する柔軟性とを併せ持つ高分子を得た。また、本研究ではこのマルチブロック共重合体に加え、別法によりブロック共重合体、グラジエント共重合体、およびランダム共重合体も合成し、比較検討を行った。

DSC 測定の結果、ブロック共重合体、グラジエント共重合体、マルチブロック共重合体、ランダム共重合体の順に融解エンタルピーが低下した(Figure 1)。また、XRD 測定においても同様の順序で結晶性の低下が確認された(Figure 1)。一方、DSC 測定では明確なガラス転移挙動は観察されなかったが、動的粘弾性測定では約 20 °C 付近に $\tan \delta$ のピークが認められた。

各試料について、断面積約 5 mm² の試験片を作製し、これを破断した後、破断界面同士を接触させることで自己修復性を評価した

(Figure 2)。接着後に 1 g のクリップを取り付け、その重量に対する接着保持能を評価したところ、マルチブロック共重合体のみが顕著な接着性を示し、3 日以上保持可能であった。さらに、接着時間を 10 分から 3 日間まで変化させたところ、接着時間の増加とともに接着能力も向上した(Figure 2(A))。一方、破断後に接着させるまでの時間を 5 秒、10 秒、15 秒と変化させたところ、時間経過に伴い接着性は大きく低下した(Figure 2(B))。また、破断界面以外の界面同士を接触させた場合には接着性は発現しなかった。これらの結果から、破断界面は高い界面エネルギーを有しており、その界面状態が秒単位で変化することが示唆された。

XRD 測定からマルチブロック共重合体は低い結晶性を示し、DSC 測定ではブロードな融解ピークが観察されたことから、系内には微結晶が形成されていると推定される。したがって、本研究で観察された自己修復性は、これらの微結晶に起因すると考えられる。すなわち、破断界面において微結晶の凝集および



Scheme 1. synthesis of multi-block copolymer

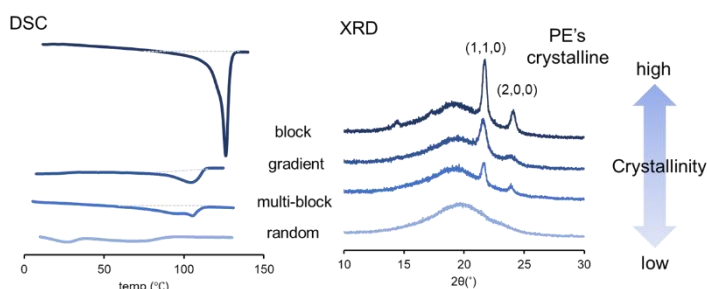


Figure 1. DSC and XRD profiles of copolymers with various monomer sequences

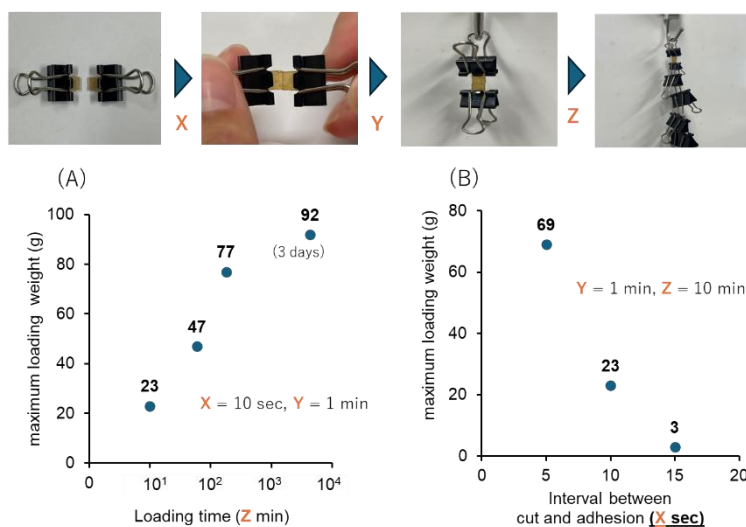


Figure 2. Self-healing experiments

再結晶化が進行することで、高い自己修復性が発現したものと考察される。

以上より、ポリオレフィンの分子設計において、主鎖に結晶性を付与しつつ、側鎖に柔軟なアルキル鎖を導入し、さらに微結晶化を制御することで、自己修復性を有する材料を創製できることを示した。このような概念をパッケージング材料へ応用することで、傷が生じて自己修復可能であり、内容物を安全に保存できる高機能材料への展開が期待される。

2. 研究成果のパッケージ産業への貢献の可能性

近年のパッケージ産業では、内容物の保護性能だけでなく、環境負荷低減や資源循環への対応が重要視されている。特に、フィルムの薄膜化や軽量化による省資源化が進められている一方で、材料の薄肉化は傷や損傷に対する脆弱性を高める可能性がある。そのため、損傷後も機能を維持できる高耐久材料の開発が求められている。

本研究で示した自己修復性ポリオレフィン材料は、微細な損傷が生じて自己発的に修復可能であるため、パッケージ材料の長寿命化に寄与することが期待される。これにより、フィルム交換頻度や廃棄量の低減が可能となり、資源使用量や環境負荷の削減につながると考えられる。

さらに、ポリオレフィンは安価で加工性に優れ、現在のパッケージ産業において最も広く利用されている材料群である。そのため、本研究で得られた自己修復性付与の設計概念は、既存のポリオレフィン製造・加工プロセスとの親和性が高く、実用材料への展開可能性も大きい。特に、透明性を維持しながら自己修復性を発現できる点は、食品包装や医薬品包装など高い視認性と安全性が要求される用途において重要な利点となる。

以上より、本研究成果は、ポリオレフィン系パッケージ材料の高機能化と長寿命化を実現し、環境低負荷かつ持続可能な次世代パッケージング材料の開発に大きく貢献する可能性を有している。

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。）

学会発表

1. 高分子学会東北支部講演会

「新しいシクロオレフィンポリマーの合成と性質」

松岡 真一

2. 第34回ポリマー材料フォーラム

「新しい環状炭化水素モノマーの重合とシクロオレフィンポリマーの合成」

松岡 真一