

化学結合の切断を利用した新しい自己強化材料の開発

～機械化学反応による急速強化が可能に～

ポイント

- ・ゲル材料の新しい自己強化アプローチの提案。
- ・弱い犠牲結合による迅速な自己強化に成功。
- ・高耐久性・疲労耐性な材料開発に期待。

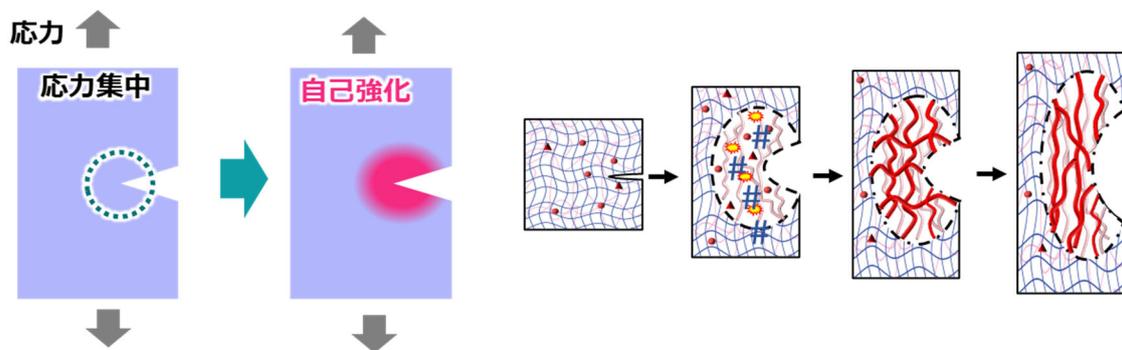
概要

北海道大学総合イノベーション創発機構化学反応創成研究拠点（WPI-ICReDD）及び同大学大学院先端生命科学研究院の龔 劍萍（グン・チェンピン）教授、WPI-ICReDD 及び米国デューク大学のマイケル・ルビンスタイン教授らの研究グループは、化学結合の切断を利用した迅速な自己強化材料を開発しました。従来、材料内の化学結合が切断されると強度が低下し破壊が進行することが一般的でした。自己強化材料は、この現象を逆手に取った新しいアプローチです。結合の切断で発生する「機械的ラジカル^{*1}」を活用し、材料内で新しい高分子ネットワークをラジカル重合^{*2} で形成させることで、使用中に自己強化を実現します。筋肉トレーニングのように、材料が使用されながら強化される仕組みです。

この自己強化は、硬く脆い第1ネットワークと柔軟な第2ネットワークからなる「ダブルネットワーク（DN）ゲル」により可能になります。従来のDNゲルでは、機械的ラジカルの生成量が少なく、ネットワーク形成速度が遅いため、迅速な強化を達成できませんでした。この課題を解決するため、今回は第1ネットワークに「弱い共有結合」を犠牲結合として導入しました。この結合は負荷時に容易に切断され、大量の機械的ラジカルを生成します。このラジカルが新しい高分子ネットワークの形成を促進し、ネットワーク形成速度が従来の100倍に向上しました。これにより、材料は短時間で強度を増し、亀裂進行を効果的に抑制できるようになりました。

このアプローチは他のポリマー材料にも応用可能で、迅速かつ効率的な強化を通じて、耐久性や疲労耐性を備えた構造材料の開発が期待されています。

なお、本研究成果は、2025年2月26日（水）公開のNature Materialsに掲載されました。



亀裂先端での応力集中と自己強化の概念図。化学結合の切断により新しい高分子ネットワークが形成され、強度向上を促進する。

【背景】

従来、材料内の化学結合が切断されると、材料の強度が低下し、破壊が進行することが一般的でしたが、研究グループは、この「化学結合の切断」を逆手に取った画期的なアプローチを提案しました。この方法では、結合切断によって生成される「機械的ラジカル」を積極的に利用し、材料内で新しい高分子ネットワークをラジカル重合で形成させることで、使用中に自己強化を実現します（図 1A）。これは、筋肉を鍛えるトレーニングのように、材料が使用される過程で強化されるというユニークな仕組みです。

この自己強化能力を持つ材料はダブルネットワーク（DN）ゲルと呼ばれます。DN ゲルは、硬く脆い第 1 ネットワークと柔軟で伸縮性のある第 2 ネットワークから構成されており、変形時に第 1 ネットワークが破壊されることで機械的ラジカルが発生します。さらに、ゲル内にあらかじめモノマーを仕込むことで、このラジカルが新しい高分子ネットワークの形成を促進し、材料の強度が向上します。しかし、従来の DN ゲルでは、機械的ラジカルの生成量が少なく、新しいネットワークの形成速度が遅いため、一般的な変形速度（ $0.01\sim 1 \text{ 秒}^{-1}$ ）では十分な強化を達成できないという課題がありました。そのため、材料に亀裂が発生した際の迅速な強化や破壊の進行を抑えることが困難でした。

【研究手法及び研究成果】

この課題を解決するため、今回、力で切断されやすい「弱い共有結合」を第 1 ネットワークに犠牲結合として導入しました。この弱い結合は負荷がかかった際に容易に切断され、大量の機械的ラジカルを生成します（図 1B）。この高濃度のラジカルが、新しいネットワークの形成を劇的に促進することで、従来の 100 倍の速度でネットワーク形成を実現しました。これにより、短時間での材料強度の急速な向上が可能となり、亀裂の進行を効果的に抑制できるようになりました（図 1D）。また、今回ルビンスタイン教授らの理論グループとの協力により、この新しいネットワークの形成における反応動力学過程の理解を深化させました。

【今後への期待】

本研究は、化学結合の切断を自己強化に活用する新たなアプローチを提示し、他のポリマーマテリアルにも応用可能な可能性を示しています。特に、弱い犠牲的結合を利用することで、機械的ラジカルの生成を加速し、迅速かつ効率的な強化が実現します。このアプローチは、従来の物理的強化手法（例：ひずみ誘発結晶化や線維化）を補完し、速度依存的な特性を持つ新しい素材設計に革新をもたらす可能性があります。

【謝辞】

本研究は JSPS 科研費 (JP22H04968、JP22K21342、JP24H00848)、JST FOREST (JPMJFR221X)、PRESTO (JPMJPR2098)、NSF Center for the Chemistry of Molecularly Optimized Networks (MONET) (CHE-2116298) の助成を受けたものです。

論文情報

論文名 Rapid self-strengthening in double network hydrogels triggered by bond scission
(結合切断によるダブルネットワークハイドロゲルの迅速な自己強化)
著者名 王 志健¹、李 偉¹、李 薛宇²、中島 祐^{1,2}、Micheal Rubinstein^{1,3}、龔 劍萍^{1,2}
(¹ 北海道大学総合イノベーション創発機構化学反応創成研究拠点 (WPI-ICReDD)、² 北海道大学大学院先端生命科学研究院、³ デューク大学)
雑誌名 Nature Materials (材料学の専門誌)
DOI 10.1038/s41563-025-02137-6
公表日 2025年2月26日(水)(オンライン公開)

お問い合わせ先

北海道大学総合イノベーション創発機構化学反応創成研究拠点 (WPI-ICReDD)・
同大学大学院先端生命科学研究院 教授 龔 劍萍 (グン・チェンピン)
TEL 011-706-9011 FAX 011-706-9011 メール gong@sci.hokudai.ac.jp
URL <https://www.icredd.hokudai.ac.jp/ja/gong-jian-ping>
<https://altair.sci.hokudai.ac.jp/g2/>

配信元

北海道大学社会共創部広報課 (〒060-0808 札幌市北区北8条西5丁目)
TEL 011-706-2610 FAX 011-706-2092 メール jp-press@general.hokudai.ac.jp

【参考図】

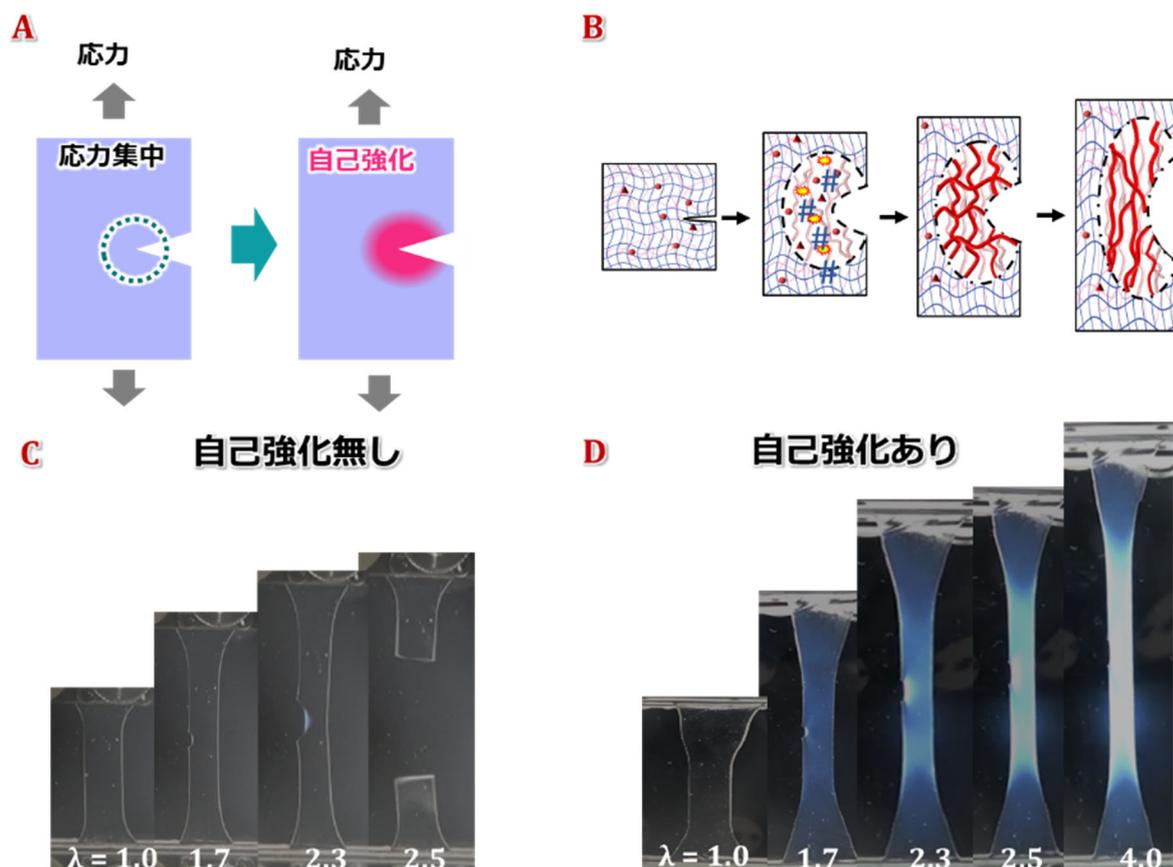


図 1. (A) 亀裂先端における応力集中と自己強化の概念図。応力集中により局所的な負荷が増大し、これが材料強度に影響を与えるメカニズムを示している。(B) 亀裂先端で高分子の化学結合が切断される際、新しい高分子ネットワークの形成が誘発される模式図。このプロセスでは、切断に伴って生成された機械的ラジカルが新たなネットワーク形成を促進し、材料の強度向上に寄与している。(C) 自己強化がない場合、亀裂が発生した後にその進展が続き、最終的に材料が破壊される様子を示している。(D) 自己強化がある場合、新たなネットワーク形成によって材料の強度が向上し、亀裂の進展が効果的に抑制される様子を示している。なお、 λ はゲルに加えた延伸率を表す。

【用語解説】

- *1 機械的ラジカル (mechanoradical) … 材料に機械的な力が加わることで、分子内の化学結合が切断される際に生成される化学種。具体的には、共有結合が引き裂かれると電子が対にならない状態 (不対電子) を持つ原子や分子が生じる。この不対電子を持つ化学種が「ラジカル」と呼ばれる。
- *2 ラジカル重合 (Radical Polymerization) … ラジカルを開始剤として用いる高分子合成の手法。ラジカルがモノマー (単量体) と反応し、連鎖反応によってポリマー (高分子) を形成する。プラスチックやゴム、塗料など多くの実用材料がラジカル重合で合成されている。

【WPI-ICReDD について】

ICReDD (Institute for Chemical Reaction Design and Discovery、アイクレッド) は、文部科学省国際研究拠点形成促進事業費補助金「世界トップレベル研究拠点プログラム (WPI)」に採択され、2018年 10 月に本学に設置されました。WPI の目的は、高度に国際化された研究環境と世界トップレベルの研究水準の研究を行う「目に見える研究拠点」の形成であり、ICReDD は国内にある 18 の研究拠点の一つです。

ICReDD では、拠点長の下、計算科学、情報科学、実験科学の三つの学問分野を融合させることにより、人類が未来を生き抜く上で必要不可欠な「化学反応」を合理的に設計し制御を行います。さらに化学反応の合理的かつ効率的な開発を可能とする学問、「化学反応創成学」という新たな学問分野を確立し、新しい化学反応や材料の創出を目指しています。

