

高田 十志和

東京工業大学物質理工学院  
特任教授

## 緩やかな束縛反応場を活用する高分子の連続改変系の構築と革新的機能化

### § 1. 研究成果の概要

分子の完全改変・修飾は極めて困難である。しかし、鎖状の高分子が触媒サイトをもつマクロサイクル分子(マクロサイクル触媒)の内孔を貫通することで、触媒と高分子上の反応点が緩やかに束縛され、効率良く反応が進行することで高度な構造改変が達成される。こうした反応場の効果を活用すれば、従来の高分子反応や重合反応では合成できない新規高分子や有用な高機能高分子が創成できる。本研究ではマクロサイクル分子内孔に触媒部位を導入したマクロサイクル触媒を用い、高分子改変の新しい基盤技術・コンセプトを創出し、学術と産業に大きなインパクトを与えることを目指す。

合成と評価・統括を担当する高田グループ(研究代表者)と、計算化学による反応メカニズムなどのシミュレーションを担当する川内グループ(主たる共同研究者)、さらに汎用高分子の改質を担当する弘中グループ(主たる共同研究者)により連携してきた。R1年度は、マクロサイクル触媒を用いた分子内高分子変換反応のシミュレーションによるマクロサイクル効果の検証を進めるとともに、分子内および分子間反応の検討結果を俯瞰的に眺め、高分子反応におけるマクロサイクル触媒の特性についての考察を深めた。また、汎用高分子の直接的修飾反応の拡張性の検討にも着手した。

- 1) 固体担持型マクロサイクル触媒の合成および高分子反応への応用
- 2) ポリアリルウレタンの分子内ヒドロアミノ化反応における基質-マクロサイクル触媒複合体の構造探索シミュレーション
- 3) 高分子基質上におけるマクロサイクル触媒の移動を検証するための新規高分子基質の合成
- 4) 汎用高分子の直接的改変に向けた遷移金属触媒による直接アミド化反応の検討

【代表的な原著論文】

1. Koji Yamamoto, Kazuki Higuchi, Masahiro Ogawa, Hiromitsu Sogawa, Shigeki Kuwata, Yoshihiro Hayashi, Susumu Kawauchi, Toshikazu Takata, “Macrocyclic Metal Complexes Bearing Rigid Polyaromatic Ligands: Synthesis and Catalytic Activity”, *Chem. Asia. J.*, 2020, *15*, 356–359.
2. Kazuko Nakazono, Takahiro Ogawa, Toshikazu Takata, “Synthesis of a cyclic poly(methyl acrylate) via topological transformation of a [1]rotaxane”, *Mater. Chem. Front.*, 2019, *3*, 2716–2720.
3. Koji Yamamoto, Kazuki Higuchi, Shigeki Kuwata, Yoshihiro Hayashi, Susumu Kawauchi, Toshikazu Takata, “Open clamshell dinuclear palladium(II) complexes possessing out-of-plane anisotropy”, *Dalton Trans.*, 2020, *49*, 2781–2785.

## § 2. 研究実施体制

### (1) 高田グループ

① 研究代表者: 高田 十志和 (東京工業大学物質理工学院、特任教授)

② 研究項目

・固体担持マクロサイクルの合成

・マクロサイクル触媒を用いた高分子修飾反応の反応機構の検討: マクロサイクル触媒の移動プロセスのシミュレーション

・マクロサイクル触媒の移動プロセス検証のための新規高分子基質合成

・汎用高分子の直接修飾反応に向けた、C-H 活性化機構反応の検討

### (2) 弘中グループ

① 主たる共同研究者: 弘中 克彦 (帝人(株)樹脂事業本部開発・技術生産統轄部、部長)

② 研究項目

・ポリカーボネートの物性評価

・汎用高分子・樹脂の機能化後の物性シミュレーション