研究助成研究成果報告書

令和 2年 9月 20日

公益財団法人江野科学振興財団 理事長 江野 眞一郎 殿

貴財団より助成のありました研究の成果について下記のとおり報告します。

申請者名			
_	三浦	佳子	即
_			

記

1.研究課題名

和 文

多孔性高分子を用いたバイオミメティックフローリアクターの開発

英 文

Biomimetic continuous flow reactor with porous polymers

2.申請者名(代表研究者)

氏 名	ローマ字表記	
三浦 佳子	Yoshiko Miura	
所属大学・機関名	英訳表記	
九州大学大学院	Graduate School of Engineering, Kyushu University	
学部・部課名 工学研究院化学工学部門	英訳表記	
	Department of Chemical Engineering	
役職名	英訳表記	
教授	Professor	

3.共同研究者(下段 英訳表記)

氏 名	所属機関名・学部名・役職
(氏 名)	
(英訳表記)	(英訳表記)
(氏 名)	
(英訳表記)	(英訳表記)
(氏 名)	
(英訳表記)	(英訳表記)
(氏 名)	
(英訳表記)	(英訳表記)

4.英文抄録(300 語以内)

Currently, many chemical syntheses depend on the ability of synthetic organic chemists with outstanding skills and experience. Development of continuous flow synthesis and flow synthesis is desired in order to carry out on-demand production in which chemical synthesis is controlled by computer. Up to now, flow synthesis reactions have been limited to chemical reactions with highly reactive substrates, but it is desirable to establish a method to utilize catalytic reactions in organic synthesis, for which enormous and advanced knowledge has been accumulated. In the flow synthesis reaction, since the reactor is a flow type, the catalyst flows out and cannot be used as it is. The utilization of the immobilization catalyst in which the catalyst is immobilized on the polymer carrier is desired. Existing immobilization catalysts, such as silica gel, have large pressure losses during flow and are not suitable for flow reactions. The development of immobilization catalyst and immobilization reaction using porous material was considered to solve this problem.

The purpose of this study is to develop immobilized catalysts with high porosity for flow reaction. we developed a synthetic polymer with high porosity, a polymerizable catalyst derivative, and a carrier that promotes the mass transfer of the substrate. In the body, the liver undergoes many reactions, which are referred to as chemical factories. The liver is a gel-like, porous organ that takes advantage of the high permeability of the gel. Considering the solubility of solvents and polymers, we developed an organometallic catalyst using porous polystyrene and an organomolecular catalyst using porous polymethacrylate as an immobilization reaction with high porosity and porosity. In both cases, the objective was to control the porous polymer and to clarify the reaction characteristics of the flow in the flow reactor.

5.研究目的

現在、化学合成の多くは、卓越した技能と経験を有する有機合成化学者の能力に依存して行われている。今後は、化学合成をコンピューターで制御するような、オンデマンド生産を行うために、連続的な流通合成、フロー合成の開発が望まれている。これまでに、フロー合成反応は、高い反応性を有する基質による化学反応に限られていたが、有機合成において、これまで、膨大で高度な知識が蓄積されている触媒反応が利用できるような手法の確立が望ましい。フロー合成反応においては、反応槽が流通式であるので、触媒が流出してしまい、そのままでは使えない。触媒を高分子担体に固定化した固定化触媒の活用が望まれる。シリカゲルなどの既存の固定化触媒では、流通時の圧力損失が大きく、フロー反応に適していない。多孔質体を利用した固定化触媒と固定化反応の開拓がこれを解決すると考えた。

固定化触媒は表面にある行き止まり(デッドエンド)構造が圧力損失の元となる。そのため、多孔質体では内部を基質が流通するため、フロー反応を円滑に省エネルギーで行うことができる。また、基質を流通させることで、触媒サイトに強制的に物質移動が促される点からも、多孔質固定化触媒は優れた性質を有している。

本研究では、空隙率の高い、固定化触媒の開発、フロー反応の開発を行うことを目的とする。本研究では固体触媒の担体は合成高分子とし、空隙率の高い合成高分子の開発、重合性の触媒誘導体の開発、基質の物質移動を促す担体の開発を行った。生体では、肝臓が化学工場と称されるように、多くの反応を行っている。肝臓はゲル状の多孔体状の器官をしており、ゲルの高い物質透過性を利用している。溶媒と高分子の溶解性を考慮して、高い空隙率と多孔性を有する固定化反応として、多孔質ポリスチレンを用いた、有機金属触媒の開発、多孔質ポリメタクリレートを用いた、有機分子触媒の開発を行った。いずれの場合も多孔質高分子の制御とともに、流通式反応装置における流通の反応特性を明らかにすることも目的とした。

6.研究内容及び成果の本文

別紙に作成添付してください。(冒頭に所属、氏名、研究課題を記載ください)

7.今後の研究の見通し

多孔質高分子として、ポリアクリルアミド、ポリスチレン、ポリメタクリレート誘導体について明らかにした。手法としては、貧溶媒をポロゲンとして用いた相分離法、エマルジョンを用いた高内水相エマルジョン法によって、多孔質高分子の合成を行った。適切な多孔質高分子を用いて、フロー反応、固定化触媒によるバッチ反応を検討してきた。多孔質高分子にすることによって十分な空隙率があるときにはフロー合成を行うことができた。空隙率が大きいことによって、分子の流通による送達や拡散による送達は有利となり、十分な触媒反応が観察されている。

一方で、この多孔質高分子に対して、どのように基質が送達しているかは未だ明らかになっていない。今後はまず、トレーサー分子を用いて、物質の輸送、拡散がどのように起こり、化学反応に寄与しているかについて明らかにする。蛍光色素(低分子)、蛍光色素ラベル化高分子(ブルーデキストランなど)、分子量の異なる、種々のトレーサー分子によって、物質の多孔性物質に対する送達を調べる。また、本研究の多孔質高分子はそれぞれ、反応溶媒に対してゲル的に膨潤するように選定されている。ゲルでは、ゲル内に対する高い物質移動を可能にすることから、物質のゲル性による高い拡散、物質移動が実現するかを調べる。

多孔質高分子の架橋密度、孔といった形状、物性の違いによる物質移動、化学反応の違いが生じるかを検討する。ポリスチレン固体触媒については、エマルジョン中の含水量を変化させて、測定を行う。また、ポリメタクリレート触媒については、架橋剤密度を変化させることによって、物性を変化させて、物質移動にどのような変化が現れるかを検討する。有機金属触媒、分子触媒など種々の反応を組み合わせたカスケード反応についても検討する。

8.本助成金による主な発表論文、著書名

服部春香、松本光、星野友、三浦佳子、化学工学論文集、2020, 46, 77-83. Masaya Kichize, Masanori Nagao, Yu Hoshino, Yoshiko Miura, *European Polymer J.* accepted.

- 「注1]本報告書は、助成金を受けた翌年9月末までに必ず提出してください。
- [注2] (お願い)印刷物の郵送と電子媒体の添付ご提供をお願いします。インターネットメールでの送付を歓迎します。〈E-Mail:enozaidan@kokoku-intech.com〉
- [注3] この報告書を当財団のホームページに掲載させていただきますので、予めご了承ください。

※当財団へのご意見・ご要望がございましたら、下記へご記入ください。 お寄せいただいたご意見・ご要望は今後の参考にさせていただきます。 貴重な研究費をいただき、本当にありがとうございます。額も多く、とても感謝していま

貴重な研究費をいただき、本当にありがとうございます。額も多く、とても感謝しています。 当該内容、これから更に出版の予定です。

アンケートへのご協力ありがとうございました。

以上