

二国間交流事業 共同研究報告書

令和 5 年 4 月 28 日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

[日本側代表者所属機関・部局]
大阪工業大学・工学部 応用化学科
[職・氏名]
教授・藤井 秀司
[課題番号]
JPJSBP 120203509

1. 事業名 相手国:ドイツ (振興会対応機関:DAAD)との共同研究

2. 研究課題名

(和文) 単粒子膜安定化リキッドマーブルの形成機構の解明と刺激応答性評価

(英文) Formation mechanism and stability analysis of liquid marbles stabilized with stimulus-responsive polymer particle monolayer

3. 共同研究実施期間 2020 年 4 月 1 日 ～2023 年 3 月 31 日 (3 年 0 ヶ月)

【延長前】 2020 年 4 月 1 日 ～2022 年 3 月 31 日 (2 年 0 ヶ月)

4. 相手国側代表者(所属機関名・職名・氏名【全て英文】)

Friedrich-Alexander University of Erlangen-Nuremberg,
Associate Professor, Nicolas Vogel

5. 委託費総額(返還額を除く)

本事業により執行した委託費総額		3,800,000 円
内訳	1年度目執行経費	1,900,000 円
	2年度目執行経費	1,900,000 円
	3年度目執行経費	- 円

6. 共同研究実施期間を通じた参加者数(代表者を含む)

日本側参加者等	13 名
相手国側参加者等	5 名

* 参加者リスト(様式 B1(1))に表示される合計数を転記してください(途中で不参加となった方も含め、全ての期間で参加した通算の参加者数となります)。

7. 派遣・受入実績

	派遣		受入
	相手国	第三国	
1 年度目	0	0	0(0)
2 年度目	3	0	0(0)
3 年度目	0	0	0(0)

* 派遣・受入実績(様式 B1(3))に表示される合計数を転記してください。

派遣:委託費を使用した日本側参加者等の相手国及び相手国以外への渡航実績(延べ人数)。

受入:相手国側参加者等の来日実績(延べ人数)。カッコ内は委託費で滞在費等を負担した内数。

8. 研究交流の概要・成果等

(1)研究交流概要(全期間を通じた研究交流の目的・実施状況)

本研究は、外部刺激により表面の親水性・疎水性バランスのコントロールが可能な刺激応答性高分子粒子が曲率を有する気液界面(3次元)に単層吸着するメカニズムおよび構造に関する基礎的知見の蓄積を行い、粒子が表面に吸着することで安定化された液滴(リキッドマーブル)の安定性・刺激応答性との因果関係を明らかにすることを目的としている。当該研究を推進することで、外部刺激によって親水性・疎水性バランスを制御可能な高分子粒子の合成に成功し、粒子表面の親水性が高い条件において粒子の大部分は水滴表面(曲率を有する3次元界面)に吸着せず水媒体中に分散するが、疎水性が高い条件において粒子は約 80° 以上の接触角で水滴表面に吸着し粒子単層膜で覆われたリキッドマーブルが形成されることを明らかにした。また、3次元気液界面においても、2次元気液界面と同様、粒子が横毛管力を駆動力として配列構造を形成することを確認し、その配列性は、2次元界面と比べて同等、または少し低いことを、粒子の配列挙動の定量評価、数値解析を通じて明らかにした。さらに、単粒子膜で3次元気液界面が覆われたリキッドマーブルの外部刺激による崩壊挙動を観察することで、刺激応答性(崩壊)の定量評価に成功した。上記のように共同研究は実を結び、日本国の機能性高分子粒子合成・評価技術および粒子の接触角測定技術と、ドイツ国の粒子吸着・配列挙動の評価技術および数値解析技術の相互移転に成功した。

各年度に一回 web セミナー、および日本国代表者、参加者のドイツ訪問時(図1)に公開セミナーを開催し、ディスカッションを通じて代表者、参加者間で密に情報交換を行い、信頼関係を深化させた。若手研究者に対し、web を利用した共同実験、公開セミナーでの発表、ディスカッションへの参加の機会をつくることで、「高度な国際的教育の場」を提供し、英語で対等に議論を行うことができる自信を身に付けた研究者の育成に努めた。研究交流を通じて、世界を相手に研究活動を推進し成果を出し続ける研究者と若手研究者の濃密な接触を推進したことで、自然科学分野において、次世代の日本国、ドイツ国の国際社会におけるプレゼンスの向上が期待できる。

当該研究交流を通じて得られた成果を、学術論文発表 39 件(うち 4 件は相手国参加者との共著)、学会発表 46 件(うち 30 件は招待・依頼講演)という形で発表した。また、参加者が学会にて 6 件ポスター賞を受賞した。さらに、国際学会・セミナーにおいて、両国研究代表者、参加者がオーガナイザーを務め当該研究に関するシンポジウムを開催した(日本国代表者、参加者主催で 2 回、相手国代表者、参加者主催で 3 回)。2023 年度に、日本国とドイツ国の研究代表者、参加者連名で、学会発表を 2 件行う予定であり、現在、学術論文が 1 報審査中、3 報執筆中である。さらに、産学連携を目的とし、イノベーション・ジャパン～大学見本市 Online に 2020 年度、2021 年度連続で研究成果を出展し、共同研究 1

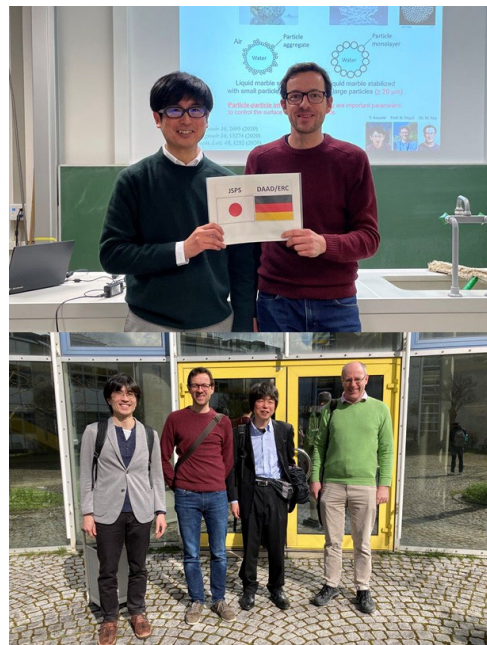


図 1 二国間交流研究グループの集合写真: 上段 日本国代表者とドイツ国代表者、下段 日本国参加者とドイツ国代表者(ドイツ国 Friedrich-Alexander University of Erlangen-Nuremberg にて撮影)

件に結び付いた。さらに一般国民へのアウトリーチ活動として、大学主催の工作実験フェア、オープンキャンパスに4件出展した。

(2)学術的価値(本研究交流により得られた新たな知見や概念の展開等、学術的成果)

本研究では、外部刺激により表面の親水性・疎水性バランスのコントロールが可能な刺激応答性高分子粒子が曲率を有する気液界面(3次元)に単層吸着するメカニズムおよび界面で形成される構造に関する基礎的知見の蓄積を行い、粒子が表面に吸着することで安定化された液滴(リキッドマーブル)の安定性・刺激応答性との相関関係の解明に取り組んだ。具体的には、外部刺激によって親水性・疎水性バランスを制御可能な高分子粒子の合成に成功し、粒子表面の親水性が高い条件において粒子の大部分は水滴表面(曲率を有する3次元気液界面)に吸着せず水媒体中に分散するが、疎水性が高い条件において粒子は約80°以上の接触角で水滴表面に吸着し粒子単層膜で覆われたリキッドマーブルが形成されることを明らかにした。また、3次元気液界面においても、2次元気液界面と同様、粒子が横毛管力を駆動力として配列構造を形成することを確認し、その配列性は、2次元気液界面と比べて同等、または少し低いことを、粒子の配列挙動の定量評価、数値解析を通じて明らかにした。さらに、単粒子膜で3次元気液界面が覆われたリキッドマーブルの外部刺激による崩壊挙動を観察することで、刺激応答性(崩壊)の定量評価に成功した。

当該研究交流を通じて得られた成果を、学術論文発表39件(うち4件は相手国参加者との共著)、学会発表46件(うち30件は招待・依頼講演)という形で発表した。この学会発表の中には、日本国側代表者の藤井(10件)、および参加者の遊佐、渡邊(それぞれ1件)の国際学会における招待講演が含まれる。また、参加者が学会にて6件ポスター賞を受賞した。さらに、国際学会・セミナーにおいて、両国研究代表者、参加者がオーガナイザーを務め当該研究に関するシンポジウムを開催した(日本国代表者、参加者主催で2回[Soft Interface Seminar: ACS Langmuir、第72回コロイドおよび界面化学討論会国際シンポジウム]、相手国代表者、参加者主催で3回[Particle-based materials Symposium 2020、International Symposium CRC 1411、Research Training Group GRK 2516 seminar])。2023年度に、日本国とドイツ国の研究代表者、参加者連名で、学会発表を2件行う予定であり、現在、学術論文が1報審査中、3報執筆中である。さらに、産学連携を目的とし、イノベーション・ジャパン〜大学見本市 Online に2020年度、2021年度連続で研究成果を出展し、共同研究1件に結び付いた。さらに一般国民へのアウトリーチ活動として、大学主催の工作実験フェア、オープンキャンパスに4件出展した。

将来、さらに本研究を継続的に発展させることで、これまでに「経験的」にノウハウに基づき扱われていたリキッドマーブルに「科学的」なメスを入れ、系統的に理解を深めることが可能になり、コロイド科学および材料化学の深耕・発展につなげることができると期待できる。また、界面吸着粒子が実現する機能の理解は、新規機能性粒子材料の開発と結びつき、日本国、ドイツ国の「精度良いモノづくり」の根幹にも寄与すると考えられる。さらに、粒子の界面吸脱着現象の理解は、環境・エネルギー問題、医療へも大きく寄与し、社会へのインパクトも大きいと考えられる。

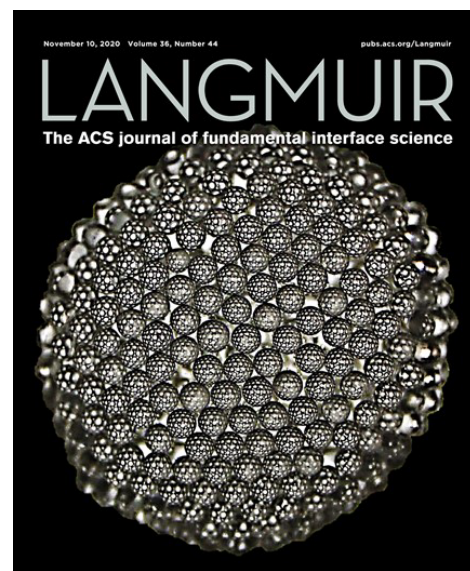


図2 両国の研究代表者と参加者が共同執筆し欧文学術雑誌に掲載されたカバーアート(アメリカ化学会 *Langmuir* 誌, Supplementary journal cover)

(3)相手国との交流(両国の研究者が協力して学術交流することによって得られた成果)

日本国の機能性高分子粒子合成・評価技術および粒子の接触角測定技術と、ドイツ国の粒子吸着・配列挙動の評価技術および数値解析技術を有機的に繋げ、対面および web・動画を利用した精密かつ正確な情報交換、共同実験を推進した。その結果、刺激応答性高分子粒子が曲率を有する気液界面(3次元)に単層吸着するメカニズムおよび構造に関する基礎的知見を取得し、LMの安定性・刺激応答性との因果関係の解明に成功した。3次元界面への刺激応答性高分子粒子の吸着・配列挙動の定量評価および数値解析、さらに、界面において粒子が形成する配列構造とリキッドマーブルの安定性・刺激応答性との相関関係の解明を試みる研究は、当該共同研究によってのみ実行可能であり、非常にユニークかつ他に例を見ない研究の展開が可能になった。特筆すべき成果として、両国の研究代表者と参加者が共同執筆し欧文学術雑誌(アメリカ化学会 *Langmuir* 誌)に掲載された論文が、カバーアートとして選出されたことが挙げられる(図2)。

(4)社会的貢献(社会の基盤となる文化の継承と発展、社会生活の質の改善、現代的諸問題の克服と解決に資する等の社会的貢献はどのようにあったか)

新規粒子・ナノ粒子の合成と、それらを用いた先端機能性材料の開発は、化学系工業分野のみならず、薬学、環境・エネルギー、材料工学、電気電子、機械、バイオマテリアル等の分野でも注目され、研究が推進されている。粒子形態の薬剤の効能を解明するために、薬剤粒子の患部(界面)への吸着、患部で形成される粒子構造とその細胞内への取り込みなど、粒子と生体との相互作用(吸着)の理解が重要である。また、我が国の国民病ともいえる花粉症の原因となる花粉、およびPM2.5に代表される大気汚染粒状物質の捕獲法の開発は喫緊の課題であり、花粉および粒子状物質の界面吸着現象がキーテクノロジーになる。更には今後、現在大量に製造されるナノ粒子が環境汚染物質として人類の生活圏に放出され、人体へ暴露される可能性があり、環境問題として取り扱われると予想される。上記のような問題を解決・克服するために、粒子の界面吸着現象、界面で形成される粒子構造の理解は非常に重要であり、医薬、環境問題へも大きく寄与し、社会へのインパクトが大きいと考えられる。本共同研究を通じて取得した知見は、上記の問題の解決に貢献し、人類が健康、安全に質の高い生活を営む社会の実現化に資すると期待できる。

(5)若手研究者養成への貢献(若手研究者養成への取組、成果)

日本国側から14名、ドイツ国側から3名の大学院生が本共同研究に参加した。2020年度実施計画書提出時、ドイツ国側から参加していた博士研究員(Marcel Rey 博士)が、当該研究交流を通じて日本国側の刺激応答性粒子合成技術の習得を強く希望したため、2021年度から日本国側代表者の研究室に移籍するための競争的外部資金を日本国代表者の指導を受けて申請し、採択された(スイス国立科学財団: Mobility fellowship P2SKP2_194953)。コロナ禍が収まり日本国への渡航が可能になるまで、スイス国立科学財団の研究費を利用し英国 The University of Edinburgh に研究の場を移して日本国代表者と共同研究を継続した。最終的に、渡航が可能になる前に研究実施期間が終了してしまい、日本国での研究は叶わなかったが、日本国代表者と引き続き共同研究を推進し、共著で国際学会にて1件発表し、現在1報論文審査中である。現在、自身で獲得したマリーキュリーフェローシッププログラムの Marie Curie Fellow として、University of Gothenburg にて博士研究員としてアカデミア分野での研究活動が続けている。また、2020年度実施計画書提出時、日本国側から8名の大学院生の参加予定であったが、粒子吸着・配列挙動の評価技術および数値解析技術の習得を強く希望する大学院生が2021年度にさらに6名現れたた

め、次世代の国際交流へ向けた波及効果を大きくするため、日本国側の参加者として加えた。若手研究者に対し、web を利用した実験方法の説明、研究ディスカッションへの参加、および web セミナーへの参加の機会をつくり、「高度な国際的教育の場」を提供した。日本国内のミーティングにおいても英語を使用したディスカッションを行い、日本の若手研究者の国際感覚の涵養に努めた。その結果、自信をもって英語で質問を行い研究内容についてディスカッションする能力の開発、英文での論文作成能力の向上に繋がった。

また、ドイツ国側代表者がオーガナイザーを務め、日本国側参加者が講演・参加した国際会議（International Symposium CRC 1411）にて、Diversity in STEM fields: Ongoing experiences with active promotion と銘打つパネルディスカッションが開催され、ドイツ国側代表者がモデレーター、日本国参加者（渡邊）がパネラーを担当した。このパネルディスカッションでは、大学でのジェンダー/国際性の平等性をテーマに、次世代の研究者の将来設計、組織設計について若手研究者の育成に資する議論が行われた。

(6)将来発展可能性(本事業を実施したことにより、今後どのような発展の可能性が認められるか)

本共同研究を通じて、日本国の機能性高分子粒子合成・評価技術および粒子の接触角測定技術と、ドイツ国の粒子吸着・配列挙動の評価技術および数値解析技術の相互移転に成功した。さらに本研究を継続的に発展させることで、これまでに「経験的」にノウハウに基づき扱われていたリキッドマーズブルに「科学的」なメスを入れ、系統的に理解を深めることが可能になり、コロイド科学および材料化学の深耕・発展につなげることができると期待できる。また、界面吸着微粒子が生み出す機能の理解は、新規機能性材料の開発と結びつき、日本国、ドイツ国の「精度良いモノづくり」の根幹にも寄与すると思われる。さらに、粒子の界面吸現象の理解は、医薬、環境・エネルギー問題へも大きく寄与し、社会へのインパクトも大きいと考えられる。

(7)その他(上記(2)～(6)以外に得られた成果があれば記載してください)

例:大学間協定の締結、他事業への展開、受賞など

■他事業への展開

当該研究交流で取得した成果をもとに、日本国およびドイツ国代表者が共同で令和4年度(2022年度)分 二国間交流事業 共同研究・セミナーへの予算申請を行い、採択に至った(課題番号: JPJSBP120223510、研究課題名: 表面凹凸構造を有する微粒子の気液界面吸着現象を利用したリキッドマーズブルの安定化、研究期間: 2022年4月1日～2024年3月31日)。

■受賞

当該研究交流に参加した大学院生が学会にて発表し、以下の通り6件受賞した。

1. 2020年度 第71回コロイドおよび界面化学討論会[オンライン](2020.9.14-16) 優秀講演賞(新井)
2. 2021年度 2021年度粉体工学会春期研究発表会[オンライン](2021.6.2-3) ベストプレゼンテーション賞(飯田)
3. 2021年度 第59回日本接着学会年次大会[オンライン](2021.6.24-25) ベストポスター賞(足羽)
4. 2021年度 第72回コロイドおよび界面化学討論会[オンライン](2021.9.17) ポスター賞(足羽)
5. 2021年度 第72回コロイドおよび界面化学討論会[オンライン](2021.9.17) ポスター賞(櫻井)
6. 2022年度 第68回高分子研究発表会(神戸)[対面](2022.7.15) エクセレントポスター賞(櫻井)

■人事

当該事業に参加した博士研究員の Marcel Rey 博士（2020 年度はドイツ側参加者、2021-2022 年度は日本国側参加者）が、2022 年度に Marie Curie Fellow として University of Gothenburg（スウェーデン）に職を得た。