

## 二国間交流事業 共同研究報告書

令和6年3月31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 120223510

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) 表面凹凸高分子粒子の気液界面吸着現象を利用したリキッドマーブルの安定化

(英文) Stabilization of liquid marbles with supraparticles carrying well-controlled surface roughness

3. 共同研究実施期間 2022年4月1日 ~ 2024年3月31日 (2年0ヶ月)【延長前】 年 月 日 ~ 年 月 日 (年ヶ月)

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		3,878,780 円
内訳	1年度目執行経費	1,900,000 円
	2年度目執行経費	1,978,780 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	22名
相手国側参加者等	6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	1		( )
2年度目	5		3 (0)
3年度目			( )

\* 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、高分子粒子の表面凹凸構造が気液界面に対する粒子のぬれ性に与える影響、および気液界面において形成される単粒子層の構造に関する基礎的知見を蓄積し、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)の形成性・構造・安定性との相関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、表面凹凸構造が精密にデザインされた高分子粒子の合成に成功し、粒子表面に疎水的凹凸構造が導入されると、気液界面における粒子のぬれ性が低下することを確認した。また、表面凹凸の度合いが向上すると、より低い表面張力を示す液滴を用いてリキッドマーブルの作製が可能になることを明らかにし、Cassie-Baxterモデルのぬれ現象をベースにして、リキッドマーブルの形成性を議論できることを示した。また、数十マイクロメートルサイズの表面凹凸粒子を用いると、粒子がリキッドマーブル表面に単粒子として吸着し、配列構造を形成することを明らかにした。さらに、単粒子膜で覆われたリキッドマーブルの外部応力印加による崩壊挙動を観察することで、崩壊の定量評価に成功した。上記のように共同研究は結実し、日本国の高分子粒子合成・評価技術およびリキッドマーブルに関する知見と、ドイツ国の表面凹凸粒子合成・評価技術、数値解析技術およびリキッドマーブル安定性評価技術の相互移転に成功した。

各年度にwebセミナーを一回、および日本国代表者、参加者のドイツ訪問時、ドイツ国参加者の日本訪問時に公開セミナーを開催するとともに、日本国代表者がオーガナイズした国際学会シンポジウム(IPC2023 Topic 4: Polymer Surface and Interface)にドイツ国代表者を招待講演者として招聘し、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(図1)。若手研究者に対し、相手国研究代表者が運営する研究室に滞在して共同実験・ディスカッション、webを利用したオンラインでの共同実験、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、英語で議論できる自信を身に付けた研究者の育成に努めた。特に、オンライン共同実験は、研究推進の上で疑問点が出てきたタイミングで実施し、今後重要になるwebディスカッション能力の向上に努めた。当該研究プログラムを通じて、世界レベルで研究活動を推進し成果を出し続けるトップ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、次世代の我が国、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11件(うち1件は相手国参加者との共著)、学会発表16件(うち11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9件受賞した。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8回、相手国代表者、参加者主催で



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(日本国代表者がオーガナイズしたIPC2023シンポジウムに、ドイツ国代表者が招待講演者として来日)、下段 日本国代表者・参加者と日本国で研究活動を行ったドイツ国参加者2名(京都大学でのワークショップ後に撮影)

3回)。また、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。さらに、2024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、学術論文を3報執筆中である。

(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)

大気中での固体表面上における液滴のぬれ性は、固体表面の化学的性質と表面粗さ(幾何学的な凹凸構造)によって決まることが知られている。これまでに、主に巨視的な表面のぬれ性について、化学的性質と表面粗さの影響を検討する研究は数多く行われているが、曲率のある表面を有するコロイド粒子のぬれ性については、化学的性質の影響のみに注目されており、表面粗さの効果を検討する研究例は本研究開始時にはなかった。また、従来のリキッドマーブルのほとんどは不定形の粒子凝集体が表面に吸着して安定化されており、リキッドマーブルの表面構造制御は困難であった。

本研究では、表面凹凸構造が精密にデザインされた高分子粒子を合成し、粒子表面凹凸構造と気液界面におけるぬれ性の相関関係を、一粒子レベルで精密に評価し、曲率を有する表面凹凸構造のぬれ現象の理解を試みた。さらに、粒子表面のぬれ性、界面に形成される単粒子層の構造、および単粒子層で安定化されたリキッドマーブルの安定性の相関関係の解明にも取り組んだ。具体的には、スプラパーティクル法により表面凹凸構造が精密にデザインされた高分子粒子の合成に成功し(図2)、粒子表面に疎水的凹凸構造が導入されると、粒子の気液界面におけるぬれ性が低下することを確認した。また、表面凹凸の度合いが向上すると、より低い表面張力を示す液滴を用いてリキッドマーブルの作製が可能になることを明らかにし、Cassie-Baxterモデルのぬれ現象をベースにして、リキッドマーブルの形成性を議論できることを示した。また、数十マイクロメートルサイズの表面凹凸粒子を用いると、粒子がリキッドマーブル表面に単粒子として吸着し、配列構造を形成することを電子顕微鏡観察を通じて明らかにした。また、粒子配列構造を数値解析することにも成功した(図3)。さらに、単粒子膜で覆われたリキッドマーブルの外部応力印

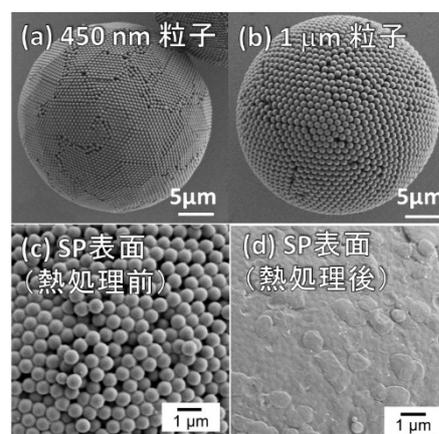


図2 (a,b) スプラパーティクル(SP)、(c,d) 熱処理前後のSP表面構造

加による崩壊挙動を観察することで、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11件(うち1件は相手国参加者との共著)、学会発表16件(うち11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9件受賞した。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8回[Soft Interface Seminar: ACS Langmuir 4回、IPC2023 Topic 4: Polymer Surface and Interface、第74回コロイドおよび界面化学討論会国際シンポジウム、MRM2023/IUMRS-ICA2023 E-3 Soft active interface、日本化学会第104春季年会アジア国際シンポジウム]、相手国代表者、参加者主催で3回[Particle-based materials Symposium 2022、Particle-based materials Symposium 2023、International Symposium CRC 1411])。また、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。さらに2024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

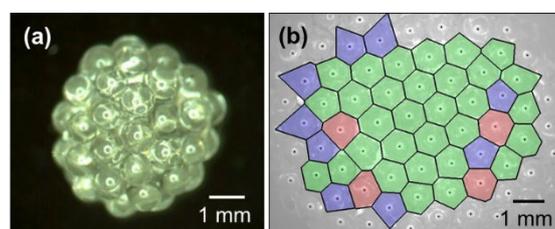


図3 (a) 表面凹凸粒子で安定化されたリキッドマーブル、(b) 粒子配列構造のポロノイ分割

文を3報執筆中である。

今後、ドイツ国側研究グループと引き続いて共同研究を発展させることで、これまでにノウハウに基づき扱われていた粒子安定化ソフト分散体（リキッドマーブル、アーマードバブル等）にサイエンスのメスを入れ、学術基盤に基づく系統的理解に繋げることが可能になると考えている。また、粒子の界面吸着現象の理解、および界面吸着粒子の機能発現は、新たな機能性粒子材料の開発に繋がり、日本国、ドイツ国の「精度良い省エネルギー型モノづくり」の発展に寄与すると期待できる。さらに、粒子の界面吸着現象の理解は、環境・エネルギー問題の解決、医療における薬剤の体内吸収の理解へも寄与し、社会へのインパクトも大きいと考えられる。

### (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)

日本国の高分子粒子合成・評価技術およびリキッドマーブルに関する知見と、ドイツ国の表面凹凸粒子合成・評価技術、数値解析技術およびリキッドマーブル安定性評価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、表面凹凸構造を有する高分子粒子が気液界面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、リキッドマーブルの形成性・構造・安定性との因果関係の解明に成功した。表面凹凸構造を有する高分子粒子の精密合成および気液界面への吸着挙動評価、さらに、界面において粒子が形成する配列構造解析とリキッドマーブルの形成性・構造・安定性評価を試みる研究は、当該共同研究によってのみ実行可能であり、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。

### (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)

新たな機能性粒子の合成と、それらを用いた粒子ベース材料の開発は、化学系工業分野のみならず、電気電子、機械、環境・エネルギー、薬学、生体材料等の分野でも注目されている。我が国の国民病ともいえる花粉症の主因となる花粉、そして大気汚染を引き起こす粒状物質の捕獲法の開発は喫緊の課題であり、これら粒子状物質の界面吸着現象の理解が問題解決の上で重要である。また、粒子状薬剤の効能を理解するために、薬剤粒子の患部（界面）への吸着、細胞内への取り込み等、粒子と生体との相互作用の理解が重要である。さらに今後、大量に製造される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想像される。上記の問題を克服・解決するために、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重要であり、環境問題、医薬分野へも大きく寄与し、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、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18名、ドイツ国側から4名の大学院生、日本国・ドイツ国から各1名の博士研究員が本共同研究に参加した。2022年度実施計画書提出時、競争的外部資金であるスイス国立科学財団(Mobility fellowship P2SKP2\_194953)の支援を受けて、エディンバラ大学(英国)にて博士研究員を務めていたMarcel Rey博士が、引き続きマリーキュリーフェローシッププログラムのMarie Curie Fellowとして採択され、ヨーテボリ大学(スウェーデン)にて博士研究員としてアカデミア分野での研究活動を続けている。日本国代表者と共同研究を継続し、共著で学術論文を1報報告し、国際学会にて1件発表し、現在1報論文執筆中である。また、2022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2023

年度にさらに 10 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、相手国研究代表者が運営する研究室に滞在して共同実験・ディスカッション、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。

(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、日本国の高分子粒子合成・評価技術およびリキッドマーブルに関する知見と、ドイツ国の表面凹凸粒子合成・評価技術、数値解析技術およびリキッドマーブル安定性評価技術の相互移転に成功した。今後、ドイツ国側研究グループと引き続いて共同研究を進展させることで、これまでにノウハウに基づき扱われていた粒子安定化ソフト分散体(リキッドマーブル、アーモドバブル等)にサイエンスのメスを入れ、学術基盤に基づく系統的理解に繋げることが可能になると考えている。また、粒子の界面吸着現象の理解、および界面吸着粒子の機能発現は、新たな機能性粒子材料の開発に繋がり、日本国、ドイツ国の「精度良い省エネルギー型モノづくり」の発展に寄与すると期待できる。さらに、粒子の界面吸脱着現象の理解は、環境・エネルギー問題の解決、医療における薬剤の体内吸収の理解へも寄与し、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、日本国代表者が令和 6 年度科学研究費助成事業 基盤研究(B)への予算申請を行い、採択に至った(課題番号: 24K01562、研究課題名: 乳化剤様高分子粒子によるリキッドマーブルの安定化・構造制御、研究期間: 2024 年 4 月 1 日 ~ 2027 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 9 件受賞した。

1. 2022 年度 第 73 回コロイドおよび界面化学討論会 (2022.9.21) ポスター賞 (山本)
2. 2022 年度 第 32 回日本 MRS 年次大会 (2022.12.7) 奨励賞 (林)
3. 2023 年度 第 74 回コロイドおよび界面化学討論会 (2023.9.17) ポスター賞 (岩田)
4. 2023 年度 The 13<sup>th</sup> SPSJ International Polymer Conference (2023.7.18-21) Materials Chemistry Frontiers Poster Prize (黒岩)
5. 2023 年度 第 43 回粘着技術研究会 (2023.11.16) 優秀賞 (山本)
6. 2023 年度 MRM 2023/ IUMRS-ICA2023 (2023.1.) Gels Award 受賞 (岩田)
7. 2023 年度 MRM 2023/ IUMRS-ICA2023 (2023.1.) Polymers Award 受賞 (山本)
8. 2023 年度 MRM 2023/ IUMRS-ICA2023 (2023.1.) Polymers Award 受賞 (横田)
9. 2023 年度 MRM 2023/ IUMRS-ICA2023 (2023.1.) Technologies Award 受賞 (黒岩)

#### ■人事

1. ドイツ国側研究代表者 Nicolas Vogel 博士が、2023 年にフリードリヒ・アレクサンダー大学 エアラ

ンゲン=ニュルンベルクにおいて准教授から教授に昇進した。

2. 当該事業に参加した博士研究員の Marcel Rey 博士（2022 年度開始時、エディンバラ大学物理・天文学研究科に post-doc として所属）が、同年度に Marie Curie Fellow としてヨーテボリ大学（スウェーデン）に職を得た。