先端国際共同研究推進事業 2023 年度採択 「Top チームのための ASPIRE」 マテリアル分野

2024 年度 年次報告書(公開版)

研究課題名
極限アスペクト比(EXAR)ナノ材料の学際的研究

日本側研究代表者 塩見 淳一郎 東京大学 教授

相手側研究代表者 · Daniel Söderberg, Professor / Head, Royal

Institute of Technology (KTH)

·KONO Junichiro, Professor, William Marsh Rice

University

· Jana Zaumseil, Professor, University of Heidelberg

研究期間 2024年2月1日~2029年3月31日

1. 研究成果の概要

① 研究構想にかかる成果

2024 年 5 月にチーム全体でキックオフミーティングを行った。研究発表により、共同研究に向けて、それぞれの研究者が有する研究シーズは基盤技術に関する情報共有と議論を行った。また、セルロースナノファイバー(Cellulose Nano Fiber: CNF)、カーボンナチューブ(Carbon Nano Tube: CNT)、クモ糸の分野ごとのグループ、分野を横断したグループ、若手だけのグループなど、様々な設定でグループディスカッションを行い、多様な軸での共同研究の誘起とチームビルディングを行った。それによって、各分野での共同研究の計画を練るとともに、分野横断の共同研究の可能性を議論して、具体的なプランを立てた。その後、分野ごとのワークショップも行った。例えば、CNFに関しては、2024 年 10 月に東京大学と Stockholm Trio(KTH、ストックホルム大学、カロリンスカ研究所のストックホルムに拠点を置く3 大学による大学連合)の戦略的パートナーシップのシンポジウムにおいて、トピカルワークショップを開催し、共同研究に関する進捗報告とその後の計画を議論した。

KTH に共同ラボ「UTokyo-KTH Joint Lab」を設置した。KTH のご厚意で実験室を本連携のために空けて利用できるようにしてくださっている。そこに 2025 年 5 月から東京大学の若手研究者が常駐し始める予定である。5 月から鴨川研究員、10 月から李講師がそれぞれ 1 年ずつ滞在し、その間多くの学生も行き来する。これによって立ち上げや立ち下げで時間を無駄にしないシームレスな研究派遣が可能となる。共同ラボで取り扱うテーマとしては、CNF のスピニングやプリンティングによる配向を制御したフィラメントやフィルム、および多機能化を目指した他の材料との複合化などから始めることになったが、上記のキックオフにおいて、スピニング技術は CNT やクモ糸でも重要であり、材料分野を跨いだスピニングセンターとすることで、分野横断を加速させる仕掛けとしても使うことになった。本年度は、このような共同ラボのより強い連携を可能にする良い準備が実施できた。

上記の分野横断の研究に加えて、各材料分野での研究もしっかりと進めた。CNF については、まず、多様な高等植物種から化学改質と機械処理で単離した CNF1 本の断面寸法と結晶性から高等植物のミクロフィブリル構造を解析した。また、CNF 表面に生じる凹欠陥の形状と導入率を定量化する画像解析プログラムを構築し、統計解析を進めた。針葉樹の細胞壁セルロースを原料とし、酸化反応によりイオン性官能基を導入した試料を機械的に解砕し、CNFへと変換した。解砕の手法・度合いを変化させた4種のCNFを対象とし、上記プログラムにより凹欠陥を統計解析した。CNF 膜については、配向度や湿度環境を変化させて熱伝導率を評価した。加えて、CNF シートの低誘電率・低誘電正接化を達成しうる設計指針の獲得を試みた。具体的には表面化学構造(対イオン)の制御、表面官能基の化学架橋、シートへの空隙導入を行った。さらに、低誘電率・低誘電正接を持つポリマー材料との複合化を行い、CNF の特長である低熱膨張率とポリマーの特長である低誘電特性を併せ持つ複合材の開発に取り組んだ。KTHとの国際共同研究においては、強靭な網目構造の形成を目的とする CNF 間の界面構造の制御およびフローフォーカシング法で CNF の配向フィラメントを作製するシステムの制御性向上や最適化のためのシミュレーションを KTHと共同で実施した。

CNT についても国際共同研究を進めた。ライス大グループとの共同研究においては、エナンチオマー分離を行った CNT の薄膜のキラル光物性研究、配列構造を形成した CNT の熱電物性および構造解析の研究を進めた。またハイデルベルグ大グループとは、エナンチオマー分離を行った CNT への量子欠陥の作製技術の開発およびその光物性研究を進めた。また、量子欠陥を導入した CNT を微小光共振器と結合させるための塗布や転写手法についての検討を進めたほか、微小光共振器上で局所的に量子欠陥を導入する化学修飾手法についても検討を進めた。CNT のみならず、NT 物質群として TMDC-NT の合成技術開発、また CNT-原子層界面における励起子輸送現象などの光量子科学研究を推進した。

クモ糸についても、研究を進めた。ジョロウグモの牽引糸に含まれる主タンパク質としては、Major Ampullate Spidroin (MaSp) として、少なくとも MaSp1、MaSp2、MaSp3 などが含まれることが報告されている。これら

のタンパク質の自己組織化挙動として、液-液相分離挙動から繊維化の分子論を検証した。また、耐水性を向上させた人工蜘蛛糸の分子設計についても取り組んだ。さらに、国際的な共同研究を通じて、蜘蛛糸の力学物性の評価系を統一するべく、日本に加えて、スウェーデンやドイツのグループと連携して研究を進めた。さらに、ドイツと日本のグループの共同研究により、マイクロ流路を利用した紡糸の研究も進めた。

② 国際ネットワーク構築・拡大/国際頭脳循環の促進に資する若手研究者の人材育成に関する成果 本チームの日本と海外の若手研究者 4 名がオーガナイザーとして企画した米国材料学会(MRS)のオーガナイズドセッション「Advancements and Applications of Extreme Aspect Ratio Nanomaterials」が採択された。開催は2025年11月30日から12月5日である。採択後から当該若手研究者らが招待講演者にコンタクトして交流を始めており、すでにビジビリティ向上やネットワーキングがはじまっている。これを持続的に定着させるために、オーガナイザーの若手研究者を半分ずつ交代しながら、毎年、あるいは隔年で継続して開催するべく、すでに次回の開催の検討も始めた。これには2つの狙いがあり、1つ目は、EXARナノ材料の横断的学術コミュニティを創って成長させることであり、2つ目は、コミュニティの創出および成長の過程を若手研究者が担うことで、多くを学び、将来的に当該学術分野の中心的な研究者となることである。セッションを企画して世界のトップ研究者を招待して交流することで、自身のビジビリティを高め、ネットワークを広げることは世界の活発な若手研究者がよく実践している術であり、日本の若手研究者にも世界スタンダードで積極的に活動してもらう。

本チームの多くの若手研究者を日本から相手国パートナーに派遣し、相手国から日本に受け入れた。東大塩見グループ・齋藤グループからは、KTH へ博士課程学生を派遣するとともに KTH から博士課程学生を受け入れ、Rice 大学からも学部生と大学院生を複数名受け入れた。都立大柳グループ・理研加藤グループでは、ライス大およびハイデルベルグ大へ学生・ポスドクを派遣した。また、ライス大およびハイデルベルグ大より、博士課程学生や博士研究員を受け入れ、共同研究を実施した。加えて、ハイデルベルク大の Zaumseil 教授やライス大 Kono 教授を招聘した。京大沼田グループには、KU Leuven に修士課程学生が留学し、試験的な実験を進めている。さらに、ドイツのグループに博士課程学生が、スウェーデンのグループに助教の若手研究者が留学し、国際ネットワークの構築を進めている。

渡航・招へいしたメンバーを以下に記載するが、これらの交流により、様々な成果が得られた。ライス大および ハイデルベルグ大への学生・研究員派遣を通して、国際共著論文に繋がる成果を得た。東大の Hou 氏によっ て、CNF からなる網目構造は、力学的に弱く脆い性質であることが課題であったが、CNF 単独ではなく、酸性 多糖等とのハイブリットにより、多価カチオンを介したダブルネットワーク構造を形成すると強靭化することが明らか となった。KTH の Isfeldt 氏により、CNF の熱伝導の分子動力学シミュレーションが可能となり、塩見研の学生 と共同で熱伝導率の理論値を得ることができた。ライス大の Stefanov 氏と Wright 氏によって、ライス大で開発 されている高配向 CNT フィラメントやフィルムの異方的熱伝導率が明らかになった。都立大の齋藤氏によって、 CNT 配列薄膜において課題であった、配列が乱れた構造の層の除去技術を確立した。その結果、配向度向 上が可能となり、CNT 高次構造制御技術を進めることができた。都立大の藤浪氏によって、エナンチオピュアな CNTへの量子欠陥作成技術を進め、そのキラル光学特性について予備的データをえることに成功した。理研の Wang 氏によって、狙った単一カーボンナノチューブへの局所的な量子欠陥導入手法として、基板上に塗布し たナノチューブの分子修飾に成功した。ハイデルベルグ大の Sebastian 氏は都立大で(6,5)、(11,-5)のエナン チオマー分離と、薄膜へのドーピング手法の検討を行い、理研では、量子欠陥を導入した CNT を微小光共振 器と結合させるための転写手法として、アントラセン結晶上に滴下した後に精密転写をすることに成功した。バ イロイト大学の Schiller 氏は京都大学で、マイクロ流路を利用し、クモ糸タンパク質の自己組織化を再現する ことに成功し、国際共著論文に繋がる成果を得た。

・ Xinyi Hou(博士課程学生、東京大学): 2024 年 10 月~2024 年 12 月、KTH(ストックホルム、スウェーデン)に派遣、Qi Zhou グループにおいて、CNF 間の界面構造制御により、強靭な網目構造の形成

に取り組んだ。

- ・ Gusten Isfeldt (博士課程学生、KTH): 2024 年9月~2024 年12月、東京大学塩見研究室に 滞在、塩見研の若手研究者と共同で CNF の分子動力学シミュレーションモデルを構築し、熱伝導率や誘電率の計算を実施した。
- ・ Ognyan Stefanov(博士課程学生、ライス大学)、Wesley Wright(修士課程学生、ライス大学): 2024 年 7 月~2024 年 8 月、東京大学塩見研究室に滞在、塩見研の若手研究者と共同で CNT フィラメントやフィルムの熱伝導計測を実施して、高い異方性を有する熱伝導を明らかにした。
- ・ 齋藤 滋輝 (博士課程学生、東京都立大学): 2024 年8月~2024 年12月、ライス大(ヒューストン、テキサス、米国)河野研究室へ派遣、ライス大河野グループにおいて CNT 配列薄膜の高次構造の制御技術開発を進めた。特に、配列薄膜作製において課題であった、配列が乱れた層を除去する技術として剥離技術の開発を進めた。
- ・ 藤浪 博之(修士課程学生、東京都立大学): 2024年8月~2024年10月、ハイデルベルグ大(ハイデルベルグ、ドイツ) Zaumseil 研究室へ派遣、ハイデルベルグ大 Zaumseil グループにおいて、エナンチオマーピュアな CNT への量子欠陥作成の技術開発およびその熱電物性研究を進めた。
- Mengyue Wang (特別研究員、理化学研究所): 2024 年 8 月~2024 年 10 月、ハイデルベルグ大 (ハイデルベルグ、ドイツ) Zaumseil 研究室へ派遣、ハイデルベルグ大 Zaumseil グループにおいて、局所 的な量子欠陥導入手法についての検討を進めた。
- ・ Finn Sebastian(博士課程学生、ハイデルベルグ大): 2024 年 11 月、東京都立大柳研究室と理化 学研究所加藤研究室に滞在。東京都立大柳研究室において、CNT エナンチオマー分離と、薄膜へのドー ピング手法の検討を行い、理化学研究所加藤研究室において、量子欠陥を導入した CNT を微小光共 振器と結合させるための塗布や転写手法についての検討を進めたほか、局所的な量子欠陥導入手法につ いての検討も進めた。
- ・ 辻 優依(助教、京都大学): 2024 年 9 月から約一年間、スウェーデン農業科学大学(SLU)およびカロリンスカ研究所(KI)にて人工シルクの構造物性に関する研究を進めている。
- ・ Tim Schiller (博士課程学生、バイロイト大学): 2024 年 10 月~2024 年 12 月、京都大学にてマイクロ流路を利用したシルクタンパク質の繊維化過程を解析した。
- ・ 中塚 友章(修士課程学生、博士進学予定、京都大学): 2025 年 1 月~2025 年 3 月、KU Leuven に新規イメージング手法に関する研究に従事。
- ・ 中 理沙(博士課程学生、京都大学): 2025 年 1 月~2025 年 3 月、バイロイト大学にてナノカ学の 測定手法に関する研究に従事。

2. 研究実施体制

研究テーマ	中心となる研究者氏名	所属機関・部署・役職名
研究テーマ1 セルロースナノ ファイバーを軸 にしたEXAR ナノ材料連携 研究	塩見 淳一郎	東京大学・大学院工学系研究科・教授
	齋藤 継之	東京大学・大学院農学生命科学研究科・
		教授
	Daniel Söderberg	Royal Institute of Technology (KTH) ·
		Dept of Fibre and Polymer Technology•
		Professor
研究テーマ2 カーボンナノチ ューブを軸にし たEXARナノ 材料連携研 究	柳 和宏	東京都立大学理学研究科·教授
	加藤 雄一郎	理化学研究所·開拓研究本部·主任研究
		員
	劉崢	産業技術総合研究所·極限機能材料研
		究部門·上級主任研究員
	Junichiro Kono	Rice University Dept of Electrical and
		Computer Engineering • Professor
	Jana Zaumseil	University of Heidelberg, Dept of
		Applied Physical Chemistry Professor
研究テーマ3 クモ糸を軸に したEXARナノ 材料連携研 究	沼田 圭司	京都大学·大学院工学研究科·教授
	Anna Rising	Swedish University of Agricultural
		Sciences/Karolinska Institutet
		Professor
	Thomas Scheibel	University of Bayreuth • Professor/Vice
		president

3. 代表的な業績(原著論文、プレスリリース、表彰など)

<原著論文>

- [1] K. Daicho, S. Fujisawa, Y. Doi, M. Suzuki, J. Shiomi, T. Saito, "Uniform elementary fibrils in diverse plant cell walls", *Proc. Natl. Acad. Sci.* 122, e2426467122 (2025).
- [2] T. Ito, K. Daicho, S. Fujisawa, T. Saito, K. Kobayashi, "Defectless and Uniform Single-Crystallite Dispersions of Sustainable Wood Nanocellulose with a Regulated Right-Handed Twist Periodicity", *Nano Lett.*, 25, 6085 (2025).
- [3] N. Fang, Y. R. Chang, S. Fujii, D. Yamashita, M. Maruyama, Y. Gao, C. F. Fong, D. Kozawa, K. Otsuka, K. Nagashio, S. Okada, Y. K. Kato, "Room-temperature quantum emission from interface excitons in mixed-dimensional heterostructures," *Nat. Commun.* 15, 2871 (2024).
- [4] Abdul Ahad, Yohei Yomogida, Md Ashiqur Rahman, Akane Ihara, Yasumitsu Miyata, Yasushi Hirose, Keisuke Shinokita, Kazunari Matsuda, Zheng Liu, Kazuhiro Yanagi, "Synthesis of Arrayed Tungsten Disulfide Nanotubes", Nano Lett. 24, 14286 (2024).
- [5] Ali D. Malay, Nur Alia Oktaviani, Jianming Chen, Keiji Numata, "Spider silk: Rapid, bottom-up self-assembly of MaSp1 into hierarchically structured fibers through biomimetic processing", Adv.

Funct. Mater. 35, 2408175 (2024).

<受賞>

- [1] 第 91 回紙パルプ研究発表会・若手優秀発表賞(2024.6.26) 張 昊果 氏(東京大学大学院 農学生命科学研究科) 「化学的かつ機械的に改質したパルプからなる高強度かつ自己消火性の透明紙」
- [2] 第 67 回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム 若手奨励賞(2024.10.2) 朝鳥 祥史郎 氏 (東京都立大学大学院 理学研究科)

[Correlation between heat flow and electrical current across mono-domain 3 layered MoS2]

[3] 令和 6 年度 総務省戦略的情報通信研究開発事業(SCOPE) 成果展開推進賞 (2025.2.3) 加藤 雄一郎 氏(理化学研究所)

「カーボンナノチューブとシリコンフォトニクスの融合による室温動作単一光子発生モジュールの研究開発」

<プレスリリース>

- [1] 2024 年 4 月 3 日「原子層ナノ物質と微小光共振器による高効率波長変換に成功 ナノフォトニクス素子の高機能化へ期待 」(https://www.riken.jp/press/2024/20240403_1/index.html) [2]2024 年 4 月 11 日「異次元ナノ半導体界面に潜む量子光源の発見 室温量子技術への応用に期待 」(https://www.riken.jp/press/2024/20240411_2/index.html) [3] 2024 年 8 月 28 日「カーボンナノチューブを使った熱電変換を社会利用へ:株式会社東海理化と共同
- [3] 2024 年 8 月 28 日「カーボンナノチューブを使った熱電変換を社会利用へ:株式会社東海理化と共同 開発」(https://www.tmu.ac.jp/news/topics/36881.html)