

ERATO 高原ソフト界面プロジェクト事後評価（予備評価）報告書

【研究総括】 高原 淳（九州大学先導物質化学研究所／教授）

【評価委員】（敬称略、五十音順）

太田 隆夫（委員長；京都大学大学院 理学研究科／教授）

中壽賀 章（積水化学工業株式会社 高機能プラスチックカンパニー／シニアフェロー）

西 敏夫（東京工業大学／特任教授）

宮田 隆志（関西大学化学生命工学部 化学・物質工学科／教授）

吉江 尚子（東京大学生産技術研究所 サステイナブル材料国際研究センター／教授）

評価の概要

ERATO 高原ソフト界面プロジェクトは、ソフト界面の階層構造とその特徴的なダイナミクスを解明し、高い機能性を持ったソフト界面を人工的に構築するための普遍的原理の確立を目指したものである。生物の構造や機能、生産プロセス等に着想を得て、技術開発に活かす試みをバイオミメティクス（生体模倣）と言い、材料分野においても国内外の多くの研究者が取り組んでいる。本プロジェクトは、材料の機能発現と構造の相関を物理的・化学的な観点から理解し、その上で超高性能のソフト界面の構築を目指しており、ナノスケールからマイクロスケールまでの統一的・体系的取り組みは他の研究グループと比較して特に優れている点である。

本プロジェクトは、界面分子設計グループ、階層構造制御グループ、先端界面構造物性解析グループの3つのグループで構成され、異なる分野の研究者が相互に連携しながら、材料合成から測定・解析までをカバーした研究を行っている。ソフト界面に重合したポリマー鎖の分子量分布と密度等を広範囲に、かつ精密に制御することに成功したことや、これまで観察することができなかったソフト界面の分子挙動を観察できる装置を開発したことは、オリジナリティが高い。特に、材料表面に超親水性のひも状分子を生やしたポリマーブラシの精密合成と、それによるソフト界面の疎水・親水性の制御、さらにこの機能を応用した防汚性、低摩擦性等を付与した材料を作出したことは、科学技術的にインパクトが大きい。一方、ソフト界面のダイナミクスと構造の“その場”測定・解析については、震災¹により破損した装置の回復や、自作装置の開発に時間を要したこともあり、実際の測定は始まったばかりである。今後これらの装置を用いたソフト界面の解析が加速的に進むことを期待する。

また、本研究の成果は学界のみならず産業界や一般社会からの関心が非常に高い。得られた機能の応用範囲は幅広く、今後、産業的・社会的価値の創出に大きく寄与すると思われる。

以上のとおり、ERATO 高原ソフト界面プロジェクトは、卓越した研究水準を示し、戦略目標「異種材料・異種物質状態間の高機能接合界面を実現する革新的ナノ界面技術の創出とその応用」に資する成果が得られるであろうと評価できる。

¹ 東日本大震災により、本プロジェクト開発の中性子反射率計（SOFIA）が設置されている J-PARC 大強度陽子加速器施設（東海村）が 9 カ月停止した。さらに、運転再開後に SOFIA の損傷が発見された。このことから、2012 年 9 月までに 17 カ月以上の研究遅延が生じた。

1. 研究プロジェクトの設定および運営

1-1. プロジェクトの全体構想

液晶、ゲル、界面活性剤、合成高分子、生体高分子、エラストマーなどの軟らかい材料「ソフトマテリアル」は、機能性材料として日常生活の中で極めて重要な地位を占めている。これらの表面・界面は総称してソフト界面と呼ばれるが、主として有機高分子で形成され、有限の厚みと、特徴的な動的特性を有している。近年、ソフトマテリアルの電気物性、生体適合性、摩擦性、接着性などの重要な機能特性の多くが、ソフト界面の構造と動的特性に大きく依存していることが明らかになりつつある。他方、自然界に目を転じると、様々な特徴的な挙動と優れた動的特性を示すソフト界面をその中に見出すことができる。このユニークな特性の解明と、その原理の材料設計への応用は、学問的・工学的に非常に重要であるにもかかわらず、その構造、動的特性などの複雑さ故に、基礎科学が確立されていない。

本プロジェクトは、ソフト界面の階層構造と分子運動特性（ダイナミクス）の集中的研究を行い、高い機能性を持ったソフト界面を人工的に構築するための普遍的原理の確立を目指すものである。具体的には、自然界に存在するソフト界面や、表面形態制御により人工的に形成したソフト界面について、その分子鎖の凝集構造やナノメートルからマイクロメートルスケールの形態・表面物性などを、空気中あるいは水中などの環境中で“その場”測定・解析する方法の開発をスタートさせ、これらの新規手法によりソフト界面の形態や物理化学的性質がその特性・機能発現へ与える影響を明らかにしようとしている。そしてこの知見に基づいて人工的に形状賦与したソフト界面に対して、重合反応などにより化学的に修飾を施し、界面の形態と物理化学的性質を制御した高機能ソフト界面の形成方法の開発を目指している。さらにこの調製した高機能ソフト界面の構造と物性を再度評価し、材料設計へフィードバックすることで、機能の高度化を目指している。このように、ソフト界面の学理を解明しようとする中で、「ソフト界面の科学」という学問分野を構築するとともに、産業への応用をも目指している構想は高く評価できる。生物の構造や機能、生産プロセス等に着想を得て技術開発に活かす試みはバイオミメティクス（生体模倣）と言い、材料分野においては国内外の多くの研究者が様々な模倣材料の合成に取り組んでいるが、本プロジェクトは材料を合成するだけでなく、その材料が持つ機能およびそれが発現するメカニズムを物理的・化学的な観点から解明し、界面構造をデザイン・制御することで、超高性能のソフト界面の構築を目指している。内外においてこのような研究を実行しているグループは少なく、その独自性は高く評価できる。また、これまでに無い機能を持った材料の開発が望めることから、様々な業種の企業から問合せや共同研究の申し出等があることから、産業応用の観点から成果が出つつあると言え、期待が大きい。以上のことから、本プロジェクトの全体構想は ERATO にふさわしいものである。

1-2. プロジェクトの運営

本プロジェクトは、精密高分子合成技術に基づいてソフト界面の分子設計を担う「界面分子設計グループ」と、ソフト界面の階層構造制御を担う「階層構造制御グループ」、ソフト界面の様々な環境下における構造・物性の“その場”測定・解析技術や、動的特性解析技術の開発を担う「先端界面構造物性解析グループ」の3つのグループを設置している。プロジェクト全体として、専門領域と年齢構成のバランスがとれた分野横断的研究者集団が形成され、融合的に研究が進めら

れていることが特長である。

各グループには高分子合成、光材料化学、機能性材料、表面物性、構造・物性解析、計算科学等、異なる分野の研究者が結集し、材料合成から測定・解析までをカバーした研究が行われている。この研究体制と幅広いテーマ設定は、これまでに無い視野と技術を持った若手研究者の育成を行うことができる観点からも高く評価できる。また、本プロジェクトでは海外のソフトマテリアル研究者との共同研究も開始しようとしており、様々な種類の界面のダイナミクスの研究という独自性のあるテーマに取り組む体制を確立している。更に、理化学研究所播磨研究所、高エネルギー加速器研究機構とも強力な共同研究体制を確立し、先端界面構造物性解析において、世界最先端の大型施設を活用した挑戦的研究の推進を目指していることも特筆に値する。

2. 研究成果

2-1. 「ソフト界面における化学的性質と諸特性」について

本プロジェクトは、基板表面に吸着させた開始剤からの表面開始重合により、化学構造と分子鎖長が明確なポリマーが成長した「電解質ポリマーブラシ」を研究対象としている。生体膜成分の親水基、タンパク質や DNA 等の代表的なソフトマテリアルの多くが有機分子の電解質であり、優れた機能を持つソフト界面を形成していることがその主たる動機である。この電解質ポリマーブラシの精密合成と、そのソフト界面の基本的性質に影響を及ぼす疎水性・親水性の制御の実現、さらにこの機能を応用して発現する、防汚性・低摩擦性等を付与したソフトマテリアルを作出している。

ポリマーブラシの精密合成において課題となるのは、界面に重合したポリマー鎖の分子量や分子量分布を広範囲にかつ精密に制御することである。本プロジェクトでは、Matyjaszewski らが 1995 年に見出した原子移動ラジカル重合 (atom transfer radical polymerization : ATRP 法)²を試行錯誤の上に改良し、重合過程において分子量と分子量分布を自在に制御することに世界で初めて成功している。電解質モノマーは極性の高い水系溶媒のみに溶解するが、本プロジェクトはアルコール系溶媒とイオン液体から成る混合溶媒を見出し、非水系で均一な溶解を可能にした点が非常に優れている。この発見は反応系に水が存在すると触媒の機能低下が起こるという問題を一気に解決するものであり、基盤研究上の大きな成果と言える。ポリマーブラシの研究では、Sackmann、Tanaka 等 (独) のグループに長年の実績があるが、本研究ではそれらと比較して分子量が大きく、かつ分子量分布の狭いポリマーブラシの作成に成功していることも高く評価できる。

この新規重合法によりポリマーブラシを調製することで、表面の親水・疎水性の度合いを自由に制御することにも成功している。超親水性の電解質ポリマーブラシに水を滴下すると、ブラシ層内に浸透した水は水分子間の水素結合距離が短くなり、秩序的な水素結合ネットワークを形成した、いわゆる構造水となることを見出している。本プロジェクトでは、構造水への変化を SPring-8 の反射型赤外吸収分光装置による測定で確認し、超親水性ブラシ中への水の浸透しやすさとその構造化がブラシ表面における表面張力の変化を引き起こし、この力のバランスの変化が水の濡れ広がりを防ぎ、ブラシに接触した物質が吸着しにくいことを明らかにしている。この成果は、防汚性の機能を持つ膜構造に関する設計の方向性を示しており、ディスプレイや電子部品の防汚機能の付与、化粧部材への応用、船底塗料など、多方面での応用展開が期待できる点で非常に産業的価値の高い知見と言える。

² Matyjaszewski ら、J. Am. Chem. Soc. 117 (20): 5614-5615 (1995)

この新規重合法では、高グラフト密度のポリマーブラシ表面の合成にも成功している。生体関節に見られる水分、体液等による水潤滑は生体関節の低摩擦を実現している。これは生体軟骨の界面に存在するブラシ状に分岐したポリマー電解質が増粘剤および保水剤として働くためであると言われており、材料表面に親水性ポリマーをグラフト重合することで水潤滑を達成する試みは多く行われてきた。しかしながら、安定な水潤滑の実現には至っていない。これまでの研究では、垂直荷重がしきい値を超えない限り、水でも良好な潤滑を実現できることが他の研究グループにより報告されている。荷重がしきい値より小さい状態では、ポリマーブラシ表面に水を流入させると、ブラシ同士が近接・接触している部分で水を含んだブラシが潤滑層として働き、低摩擦となると考えられている。そこで本プロジェクトでは、新規重合法によりグラフト密度が高いポリマーブラシを重合して、広い荷重範囲における低摩擦表面の実現を目指している。合成した高グラフト密度ポリマーブラシを表面に固定した膜で、直線往復摺動摩擦試験を行ったところ、水中の動摩擦においては低摩擦となることを確認している。加えて、実際に流体潤滑膜が形成されていることを超薄膜光干渉法により世界で初めて確認している。

一般に、電解質ポリマーブラシは塩濃度に依存して収縮・伸長する性質があり、真水中では低摩擦を示し、塩濃度の増大とともに摩擦が大きくなることが知られている。しかし、本研究ではポリ 2-メタクリロイルオキシエチルホスホリルコリン (PMPC) で合成した電解質ポリマーブラシの摩擦係数の変化量は、塩濃度が上昇しても他の同タイプのポリマーブラシと比較して著しく小さいことを確認している。このような材料は、手術用部材や人工関節等、塩分が存在する環境下で低摩擦を求められる様々な摺動部材への応用が考えられるが、生体内での実用化のためには、さらに塩濃度への依存性が少ない構造の実現が望まれる。また、現在プロジェクトで製作中である、全反射型高速ラマン分光装置やエバネッセント光動的散乱装置での測定が開始されれば、ポリマーブラシの動的解析が進み、高機能の摺動性を有するポリマー構造などの指針を得ることができるであろう。なお、ポリマーブラシの応用に関しては、耐久性や試料のサイズなどの課題があることも念頭においておくべきであろう。

2-2. 「ソフト界面における階層・傾斜構造と諸特性」について

2-1. では、化学的な表面修飾により発現するソフト界面の様々な特性(親水・疎水性、濡れ性、低摩擦性)を見出しているが、一方、ソフト界面の特性は、それを形成する材料の化学的な性質だけでなく、その形態的な構造によっても大きく変化することが知られている。例えば、蓮の葉の表面は数マイクロメートルの突起が配列した凸凹構造であり、先端には葉から分泌された疎水性のワックスがナノオーダーで微細構造体を形成している。この階層性を持つ構造により、実表面積は大きくなるが、微細な凹部分には水が入り込みにくいので、表面は撥水性となる。また、砂漠に生息する甲虫は、表面エネルギーの異なる深さと幅から成る二次元のパターン化構造を利用して砂漠で水を捕集する。本研究では、自然のユニークな例に倣い、ソフト界面の表面階層構造の制御法を確立するとともに、その特徴的な物性の発現機構の解明に取り組んでいる。

撥水性機能を有する固体表面の凸凹構造は、ナノ構造の形態および材料が持つ濡れ性の差異によって、凸凹中に空気を取り込んだ状態から液体が入り込んだ状態に転移(濡れ転移)が起きる。本研究ではナノインプリント法で作成した表面の凸凹中の濡れ転移の挙動が、各状態の界面エネルギーの変化に起因していることを明らかにした。具体的には、濡れ転移の間に固体/空気界面を固体/液体界面に置き換えるためのエネルギー障壁が生じており、このエネルギー障壁の大きさが濡れ転移の進行で起きているダイナミクスを決定していることを明らかにしている。今後、このメカニズムを補完するような、エネルギー障壁の大きさに与える表面と溶媒間や表面と被着体間の表面エネルギーの変化の影響や、凹凸形状を変化させたときの効果についての考察を期待する。

また、ヤモリの足の裏は、細かな毛が密生しており、さらにその先端が 100～1,000 本に分岐している。これにより、ヤモリが壁に張り付いたときの、壁に対する毛の接触面積を大きくすることができ、その結果、非常に優れた接着性を示すと考えられている。プロジェクトではこの構造をモデルとして、ナノインプリント法では実現が困難な高いアスペクト比を持ち、かつ、軸に沿って弾性率の傾斜を持たせたロッド構造を作ることを目指している。弾性率の傾斜構造はロッドに柔軟性をもたらすことから、それに起因する大きな付着面積と高い付着強度の実現を狙ったものである。具体的には、微細で均一な細孔の形成が可能な陽極酸化アルミニウム (AAO) 薄膜を鋳型とし、高い表面エネルギーを持つ AAO と低表面エネルギーのポリマーが引き起こす“浸透濡れ”を利用して、ポリマーナノロッドアレイを構築している。その結果、AAO 鋳型表面のポリマーの濡れ性、粘性、相溶性を利用することにより、このナノロッドが結晶化において様々な傾斜構造を取り、弾性率の傾斜を持つ高弾性材料となることを確認している。この知見は、一般的なポリマー成型物体の品質設計課題である、バルク層と界面層との結晶および配向差等の解析への応用を大いに期待させるものである。

その他、液滴を疎水性の微粒子で覆うことにより安定化され、低摩擦性、高い弾性および自己修復性、機械的強度等、特異的な表面物性を持つ、微粒子安定化液滴 (液体ビーズ) の微粒子/液体界面の直接的観察に初めて成功し、その階層構造に関するデータもまとまりつつある。これについては今後、特異的な特性を示す液滴としての学術的研究として重要であるだけでなく、ソフト界面を利用した新しい機構の親水性カプセル、マイクロリアクター等の開発など、産業的応用展開に繋がる可能性が期待できる。

2-3. 「ソフト界面における相互作用」について

ソフト界面の諸特性は化学的要因 (官能基や化学構造など) および物理的要因 (階層・傾斜構造など) により、大きな影響を受けている。しかし、これらの要因がソフト界面において様々な特性を出現させている根本的な原因は、それぞれの物質を構成している分子と分子の間に働く相互作用である。本プロジェクトでは、このようなソフト界面における相互作用の特徴を活かした新しい接着法を提案している。

イガイやフジツボなどの海洋付着生物は、産生するタンパク質の水素結合や配位結合などの化学的相互作用を有効に活用し、強固な接着界面を構築している。本研究では、これらの接着成分の中から化学的相互作用に関与すると思われる特定の分子構造に着目し、それを模倣したモデル高分子の合成を試みている。具体的には、イガイの接着タンパク質が主に水酸基、アミノ基、カテコール基から成ることに着目し、これを模倣する新規カテコール含有ポリマーを設計・合成して水中での接着性を検討している。海洋付着生物が産生するタンパク質については、これまでも多くの研究が行われているが、バイオミメティックにポリマーを設計・合成する試みは先駆的であり、新規性が高い。特に、水中での接着性を見出したことは学術的・産業的両方の観点から大変興味深い。今後、どこまで生体接着剤の持つインテリジェントな機能に近づけるのか期待したい。また、本知見は有機溶媒を使わない系で得られたものであることも評価できる。水性・耐水性接着剤の合成に利用が可能となれば、歯科用接着剤、手術用接着剤、水中工事用接着剤などの多彩な用途への応用が期待できる。

2-1. の新規合成手法で得た電解質ポリマーブラシは、多数のイオン性基が存在するため、本研究では二対のポリマーブラシを近接させることで、より大きな静電相互作用が働くことに着目している。静電相互作用は電荷量と電荷間の距離、媒体の誘電率に大きく依存する。この性質を利用し、媒体の誘電率をイオン強度で変化させることで、静電相互作用の制御を試みている。具体的には、繰り返し接着と剥離を可能とする接着材料を開発している。表面にポリカチオンのポリ 2-メタクリロイルオキシエチルトリメチル塩化アンモニウム (PMTAC) ブラシとポリアニオンのポリ 3-スルフォプロピルメタアクリル酸カリウム塩 (PSPMK) ブラシをそれぞれ調製したシリコン基板の間に水を介在させて貼り合わせると、室温で PMTAC ブラシと PS

PMK ブラシは容易に接着する。この接着力について、1 平方センチメートルの接着面積で約 15 kg のおもりを吊り下げることができる強度を確認している。さらに、この接着基板を塩水に浸すと 1 時間以内に剥がすことができ、剥離後も基板の塩を除去してから貼り合わせると再び接着が可能であることも確認している。本研究では、この現象が塩水溶液中の水和イオンが接着界面に浸透することで、ポリマーブラシ間の静電相互作用を著しく低下させること、さらにポリマー鎖はポリマー鎖同士よりも無機塩の低分子イオンとイオン対を形成しやすいため、接着強度が低下し脱接着することを明らかにしている。このような、水系で接脱着する可逆的接着は大変興味深い現象である。構造設計によっては、逆に塩水での接着や、pH で剥離する等の様々な刺激応答剥離材への応用も可能であろう。接着力の増強も含めて今後の研究の発展に期待したい。

薄膜が物質表面に付着する現象は、薄膜の膜厚、表面の粗さ、そして両者の相互作用に大きく依存すると言われている。ナノメートルサイズの厚みの薄膜（ナノ薄膜）は接着剤等を用いることなく、様々な基板へと張り付けることが可能である。本研究では、ナノ薄膜の基板への付着力の原因の解明に取り組んでいる。その結果、ナノ薄膜は屈曲性があり、基板表面の微細な凸凹に追従して密着するのに対し、マイクロメートルサイズの厚みの薄膜は屈曲性に乏しく、基板表面の凸凹を追従できず、薄膜の一部は付着力が作用する距離まで基板表面に接近できないことを確認している。さらに、ナノ薄膜と基板との界面に働く相互作用について、親水性基板はキャピラリー力、疎水性基板はファンデルワールス力と、基板の種類により付着力をもたらす力が異なることを見出している。この研究により、ナノ加工薄膜を接着させることによる新しい表面設計の指針を与えることが可能になると思われる。

上記のように、ソフト界面間に働く様々な相互作用を利用して、表面の接着性や付着性が制御できるようになると、これらの相互作用を定量化することが必要となってくる。そこで本プロジェクトでは、評価法の開発にも取り組んでいる。相互作用の評価には直接接触している面を引き離す力、すなわち付着力を測定することが必須となるが、ソフトマテリアルの場合、試料を引き離す際に変形を伴うため、非常に微弱な引き離し力を計測すると同時に、刻々と変化する接触面積も同時測定する必要がある。このためプロジェクトでは、高精度のロードセルによる高精度の引き離し力測定を行いながら、光学顕微鏡で接触面積を観察する JKR 装置を組み上げ、ソフト界面に働く付着力の測定を試みている。また、弱い相互作用を検出するために光ピンセット法を採用している。そのため、力の測定を通して、ブラシの凝集構造やイオン解離の状態に対する知見も得ることができる。光ピンセット法は集光した IR レーザーにより、液中の微小物体を捕捉・操作する技術であり、その光トラップ力がレーザー焦点からの物体の変位に比例することを利用して、極めて小さなバネ定数 (10^{-5} N/m) を持つ“力センサー”として利用できることが知られている。これまでポリマー鎖間の相互作用を測定する手法としては、原子間力顕微鏡 (AFM) や表面力測定装置 (SFA) など、高感度の力測定用スプリング (バネ定数: $\sim 10^{-2}$ N/m) を用いた手法が報告されているが、光ピンセットを用いた相互作用測定は実施されていないことから、その着眼点が非常にユニークである。さらに、本手法は遠距離で働く微弱な力を正確に検出できるため、ポリマーブラシを表面に付与した微粒子に働く相互作用の決定、粒子間の距離 (遠近) における分離性評価や、微粒子の分散やヘテロ凝集性制御への利用など、幅広い応用展開に期待が持てる。

2-4. 「ソフト界面の“その場”ダイナミクスおよび構造の解析」について

本プロジェクトでは、化学的に表面修飾および表面構造を付与したソフト界面について、様々なユニークな諸特性を見出しているが、これらの興味深い界面の特徴をさらに深く理解するためには、表面・界面のダイナミクスに関する知見を欠かすことはできない。ダイナミクスはソフトマテリアルの特性を支配する重要な因子であり、金属、ガラス、セラミクス等のハードマテリアルには見られない特徴を持っている。さらに、

ソフト界面ではポリマーが空気、水、有機溶媒、異種材料などに接すると、ダイナミクスが接触界面に応じて変化するので、表面の性質を決定づける大きな要因になっている。しかしながら、現在、ソフト界面のダイナミクスについて適切な解析技術が確立しているとは言いがたい。そこで、本プロジェクトでは、ソフト界面のダイナミクスを“その場”測定・解析する実験的手法、分析装置を開発し、それを用いることで、ソフト界面で生じている現象および機構の解明を目指している。これまでに、電解質ポリマーブラシのダイナミクスを解析する「表面動的散乱測定装置」を自作している。また、成膜過程や摩擦試験過程を測定する「表面ラマン分光測定装置」、接着・剥離過程のその場測定・解析が可能な「JKRタイプ粘着試験機」の試作も行っている。これらの装置開発により、ポリマー分子のダイナミクスの測定と同時に、ソフト界面を持つ階層構造の精確な決定を実現しようとしていることが特筆に値する。さらに、液体サンプル等を大気圧下で観察できる大気圧走査電子顕微鏡(ASEM)を導入し、溶媒蒸発過程でポリマーブレンドが形成する相分離過程において、これまで観測例が無い、大気中における初期構造形成段階の“その場”観測を計画している。これによって界面形成の分子論や相分離構造の生成メカニズムの理解が進むと期待できる。

本プロジェクトでは、上記の装置群に加えて、SPRING-8(放射光施設)およびJ-PARC(中性子施設)において、ソフト界面のダイナミクスおよび構造の“その場”測定・解析に特化した最先端装置を試作・開発している。これは他のプロジェクトに無い、本プロジェクトの大きな特徴である。SPRING-8には、高輝度でコヒーレンスの高い放射光の特徴を利用して、X線光子相関分光装置(XPCS)、微小視斜角入射X線光子相関分光装置(GIXPCS)の設計・試作を完了し、表面特性の解析を行っている。この装置はバルクおよび界面での分子運動特性を評価することができるが、我が国では表面特性の解析手法自体、これまでほとんど検討が行われていないことから、この挑戦は非常に新規性が高い。これらの装置を用いて、表面をポリスチレン(PS)ブラシで修飾したシリカ微粒子(直径110 nm)のダイナミクスをXPCSで測定したところ、PSのガラス転移温度(Tg)とは異なる温度付近で異常なブラウン運動を観察するという、新奇な現象を確認している。微粒子のダイナミクスの変化が起こるのは、マトリクス(母相)であるPSがガラス化するTg付近との予想を覆し、Tg以外の温度で変化が起こったことから、本研究の結果はブラシとマトリクスの相互作用が関連している可能性を示唆しており、大変興味深い発見である。このように、微粒子の動的挙動を追跡できるようになったことで、今後のソフト界面のダイナミクスに関する体系的な評価と解析の進展を望む。

さらに本プロジェクトでは、SPRING-8において微小視斜角入射広角X線回折(GIWAXD)/微小視斜角入射小角X線散乱(GISAXS)を同時測定し、分子オーダーから数十ナノメートルオーダーの階層構造を解析する予定であるが、装置の稼働はこれからである。これについても、階層を超えた解析結果が得られることを期待する。

J-PARCでは、高強度のパルス中性子源に最適化した飛行時間型の検出器を備え、ソフト界面のダイナミクス測定が可能な中性子反射率計(SOFT Interface Analyzer: SOFIA)を設計・試作している。この装置は中性子線を線源とすることで、重水素化溶媒によるコントラスト付与を容易に行うことができる。このため様々な溶媒界面で、基板から溶液までの組成分布、薄膜の膜厚方向の組成分布の測定が可能となる。界面の内部構造と相関の精密測定は世界的にその開発が進められており、本研究によって、今後の界面の深さ方向、すなわち、“埋もれた界面”に関する構造と、ダイナミクスに関する重要な知見が得られることを大いに期待するものである。しかしながら、東日本大震災により施設および本装置が被災しており、研究に遅れが生じているのは実に残念である。稼働再開後の研究の加速を切実に望む。

本プロジェクトでは、計算科学を用いたポリマーブラシの分子シミュレーションにも取り組んでいる。高分子ブラシの基板に平行な方向の濃度分布について、分子モンテカルロ法を用いて計算機シミュレーションを実行したところ、多様な二次元ドメインパターンを発見し、ブロック共重合体のマイクロ相分離と類似していることを見出しており、この構造と接着強度との関係の解明が期待できる。また、これまでポリマーブラ

シが基板上に均一に存在すると考えられていたが、濃度の不均一も有るということを示した点は高く評価できる。

以上に基づき本プロジェクトの研究成果を俯瞰すると、ソフト界面に重合したポリマー鎖の分子量分布と密度等について広範囲にかつ精密な制御に成功したことや、これまで観察することができなかったダイナミクス等のソフト界面の分子挙動が観察可能となる装置を開発したことで、全体的にオリジナリティの高い成果を得ている。これらは、ソフトマテリアル研究に新しい流れを引き起こすポテンシャルを有していると言える。測定装置については、J-PARCが東日本大震災により被災したために中性子反射率計（SOFIA）の1年近い停止を余儀なくされ、さらに2013年8月から補修のために再び停止が予定されている。このような状況により研究の進捗が妨げられていることは非常に残念である。再開後の研究の加速に期待したい。

次に成果の科学技術的側面については、電解質ポリマーブラシの重合法を進歩させ、新しい知見を得ていることが高く評価できる。例えば、ブラシ近傍での構造水の形成による、完全濡れが起こらないブラシや、水中において低摩擦となる、分子量分布の狭いブラシなどである。一方、ソフト界面のダイナミクスと構造の“その場”測定・解析については、いくつかのオリジナルな装置の開発に時間を要し、さらに地震の影響などもあったため、実際の測定は始まったばかりのものが多く、しかし、薄膜X線光子相関分光（XPCS）装置や中性子反射率計（SOFIA）、大気圧走査電子顕微鏡（ASEM）の開発や調整が完了したことから、今後これらの装置を用いたソフト界面の解析を迅速に行い、ソフト界面の普遍的原理の確立を目指していただきたい。また、重要な成果を世界に発信するため、投稿準備中の研究結果をすみやかに公表するよう努めていただきたい。

成果の産業社会的側面については、接着や防汚、低摩擦等の機能を持つ電解質ポリマーブラシについて、多くの企業から問い合わせ、共同研究などの申し出があることは注目すべきことである。これら機能の応用範囲は、接着剤、生体材料、機能性塗装材、分離材、MEMS技術への利用等が考えられ、幅広い産業分野での展開が期待できる。発現する機能毎に得られるポリマーの分子構造等の基本的知見の権利化はもちろん、評価技術に基づくパラメータ特許権も取得することで知的財産戦略を強化し、産業応用研究を展開していくことを強く希望する。また、ソフト界面測定の装置開発も目的のひとつであり、新手法の普及による基礎技術の発展にも努めていただきたい。

3. 総合評価

本プロジェクトは、ソフト界面の構造や機能発現のメカニズムを解明し、ナノスケールからマクロスケールにおけるソフト界面を設計・制御するという挑戦的な研究課題に対して着実に成果を出している。特に、新規に開発した精密合成法を駆使し、多種多様な構造を有するソフト界面の創製に成功している点は高く評価できる。一方、界面の動的な構造や物性の計測・解析については、震災の影響による中性子反射率計（SOFIA）の稼働ストップで、研究の進捗に遅れが生じている点や、X線光子相関分光装置（XPCS）や大気圧走査電子顕微鏡（ASEM）のように装置の開発・調整が進行中で、未だ本格稼働していないことから、今後の進展を大いに期待するものである。

本研究の成果はテレビ・雑誌等のメディアに多く取り上げられるなど、学界のみならず産業界や一般社会からの関心が非常に高い。産業界からは中小企業、海外も含む幅広い企業から問い合わせや共同研究などの申し出がある。その利用先としては、接着剤や塗料、洗剤等の消費者の身近で使用されている材料から、医療材料や電池材料等といった医療・環境・エネルギー等の最先端材料と幅広く、社会・産業的成果が得られる可能性が充分にあると思われる。

残る研究期間で、上記の計測装置の完全稼働により従来法では観測できなかった表面・界面の動的な構造や物性を見出すとともに、基礎技術の知的財産の権利化を強化し、産業界への技術移転を進めることで、科学技術イノベーションの創出に近づくことを期待する。

以上のとおり、ERATO 高原ソフト界面プロジェクトは、卓越した研究水準を示し、戦略目標「異種材料・異種物質状態間の高機能接合界面を実現する革新的ナノ界面技術の創出とその応用」に資する成果が得られるであろうと評価できる。

以上