

領域略称名：ソフト界面  
領域番号：2005

平成25年度科学研究費補助金「新学術領域研究  
(研究領域提案型)」に係る事後評価報告書

「ソフトインターフェースの分子科学」

(領域設定期間)

平成20年度～平成24年度

平成25年 6月

領域代表者 (独)理化学研究所・前田バイオ工学研究室・主任研究員・前田瑞夫

## 目 次

1. 研究領域の目的及び概要	1
2. 研究組織（公募研究を含む）と各研究項目の連携状況	3
3. 研究領域の設定目的の達成度	7
4. 研究領域の研究推進時の問題点と当時の対応状況	10
5. 研究計画に参画した若手研究者の成長の状況	11
6. 研究経費の使用状況（設備の有効活用、研究費の効果的使用を含む）	12
7. 総括班評価者による評価	13
8. 主な研究成果（発明及び特許を含む）	15
9. 研究成果の取りまとめ及び公表の状況（主な論文等一覧、ホームページ、公開発表等）	18
10. 当該学問分野及び関連学問分野への貢献度	31

## 1. 研究領域の目的及び概要

研究領域の研究目的及び全体構想について、応募時に記述した内容を簡潔に記述してください。どのような点が「我が国の学術水準の向上・強化につながる研究領域」であるか、研究の学術的背景（応募領域の着想に至った経緯、これまでの研究成果を発展させる場合にはその内容等）を中心に記述してください。

タンパク質・核酸・多糖類などの生体高分子、液晶や両親媒性分子、コロイドなど、大きな内部自由度を持つ有機物質を総称してソフトマターといふ。外部からの刺激により構造や性質が大きく変化する、いわゆるソフトな特性がその大きな特徴である。このようなソフトマターが形成する動的な界面をソフトインターフェースと定義する。ソフトインターフェースは、生物機能の多様性を支える源になっているばかりではなく、未来医療を支えるバイオマテリアル・バイオデバイスの性能を支配する重要な因子として位置づけられる。しかし、その分子レベルの研究は緒に就いたばかりである。ソフトな界面では、従来の知識では理解できない現象もしばしば見られる。

たとえばソフト界面での分子認識において、以下のような異常現象が見出されている。DNA 固定化ナノ粒子を研究していた領域代表者の前田瑞夫（理化学研究所）らは、二重鎖 DNA を表層に密生させた金ナノ粒子のコロイド安定性が、DNA 自由末端側の塩基対構造に明確に応答するという奇妙な現象に遭遇した。自由末端にミスマッチ（一塩基変異）が存在すると、完全相補（フルマッチ）の場合と比べて、高イオン強度における安定性が著しく増大するのである。これは、DNA 密生相とバルクの界面における分子構造のわずかな変化が、マクロでダイナミックな現象に增幅されたことを意味する。この DNA ナノ粒子が示す新奇現象を用いた一塩基多型診断の原理は、高い信頼性を有するとして国内外で注目を集めている。しかし分子レベルでの機構は未解明のままである。界面における分子鎖状態の解明が待たれる。

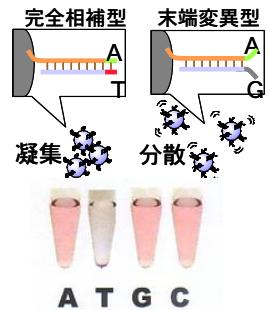
一方、領域事務担当で計画研究代表者の一人である長崎幸夫（筑波大学）らは、抗体と水溶性高分子（ポリエチレンギリコール：PEG）が密に配置された表面を構築する過程において、抗体の活性が PEG の共固定によって増強され、これまでにない高い感度を有する抗体基板が調製できることを見出した。この「界面増強 ELISA」とも言うべき新奇現象の分子機構はまだ明らかでないが、PEG が抗体タンパク質の立体構造に影響を与えている可能性があり、今後のソフトインターフェースの特性解析研究に興味がもたれる。

ナノテクノロジーは、表面・界面という古くからある未解明の研究課題に新たな光を当てた。特に、原子間力顕微鏡に代表されるようなナノ計測技術の飛躍的な進展に伴い、表面を直接、見ることが可能となり、これがさらにバイオサイエンスの分野にも波及してきている。加えてバイオセンシングの観点からも、表面や界面の精密計測ならびに利用技術に関して、近年著しい進歩が見られている。しかし、抗体や遺伝子などのバイオ素子を基板表面上に固定すると、その活性・特異性が著しく低下してしまうのが一般的であった。そこで本領域代表者らは、バイオ素子を固体に直接結合させるのではなく、水に溶存する高分子を介してこれを行うことの重要性を指摘し、2001 年度科学技術振興調整費「先導的研究等の推進」（01-03 年度）に採択され、前田、長崎、高井など（総括班メンバー・計画研究代表者：東京大学）が参画して「バイオコンジュゲート材料」に関する研究を進めてきた。ここで、高分子の構造を精密に制御し、その親水性・疎水性や荷電のバランスなどを変化させたところ、上述の例のような従来の知識では理解できない、いくつかの新奇な界面現象に遭遇したのである。

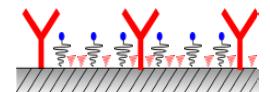
本新学術領域研究では、生体分子を含む界面構成因子を動的・空間的に捉えるソフトインターフェースの分子科学という新しい視点から、精密な界面制御技術や三次元的な界面評価技術を開発し、界面が関与する新奇現象・物性を見出しつつ新たな分子認識デバイス開発を進めることを目的として、異なる学問分野の研究者が参画し、新たな融合学術領域の創成を目指す。

ここで言う「ソフト界面」とは、二相間の「界面（interface）」ではなく、もちろん固体の表面（surface）でもなく、むしろ二相のあいだに存在する新たな領域であって、「界面域」ないし「界面圈」とでも表現されるべき「境界相（inter-phase）」である。このようなソフト界面の構成因子としては、生体分子を始めとするソフトマターそのものに加え、溶媒分子や共存塩類をも含めて考えなければならない。すなわちこの領域においては、生体分子ないし高分子鎖が、厚み方向の組成の揺らぎを伴い活発に分子運動を示す相として存在する。このような相はしかしバルクとも性質が大きく異なるものである。ソフトインターフェースは、疎水性効果、クーロン力、エントロピー、浸透圧などが関与する特異な場であり、バルクとは異なるエネルギー状態と分子運動状態を示す。

これに対し、総括班メンバーで計画研究代表者の高原 淳（九州大学）は、総括班（評価担当）の梶山千里（九大総長（当時））らと共に、走査粘弹性顕微鏡を世界に先駆けて開発し、ソフト界面の新しい分子科学



ソフト界面異常現象(1)  
DNA ブラシ自由末端での  
一塩基完全識別



ソフト界面異常現象(2)  
精密 PEG ブラシによる  
抗体活性超増感

的性質を見出している。すなわち、硬いガラス状高分子固体であっても、表面では分子鎖末端が濃縮することによる自由体積の増大、あるいは低分子量成分の濃縮による表面可塑化により、ガラス転移温度は室温以下に低下し、表面がソフトな状態となっていることを明らかにした。すなわち、表面・界面の分子鎖熱運動性の特異性を明らかにしている。これらはソフトインターフェースの物性評価の重要性と、表面分子設計の重要性を指摘するものである。

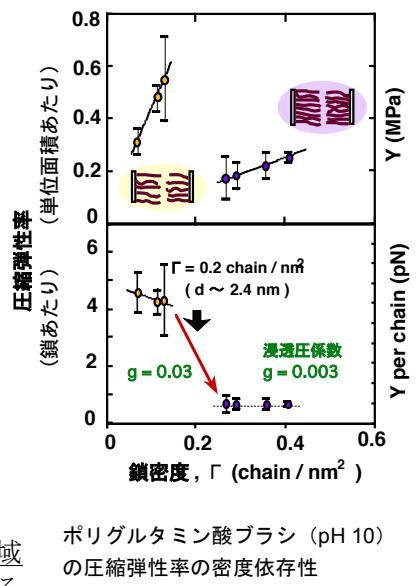
さらに、界面における分子の組織化に目を向けることも必要である。すなわち総括班メンバーで計画研究代表者の一人である栗原和枝（東北大）らは、独自の設計による表面力測定装置を駆使して、固一液界面の高分子電解質ブラシの圧縮弾性率に、密度依存性の転移を見出している。低密度側で固くなるという新奇現象であり、対イオンの浸透圧（すなわち対イオンの活量、高分子電解質鎖への結合の強さ）に転移があるとして解釈されている。これは界面の高分子電解質ブラシの特性の解明に、界面独自の計測が必要であることを示している。同グループは、また、固一液界面の液体の構造を精力的に研究しており、固一液界面に吸着した液体分子が水素結合により分子組織体を形成することを明らかにしている。従来の知識からすると驚くほど長距離の十から数十 nm に及ぶこの界面分子マクロクラスターは、もう一つの界面構成要素であり、ソフトインターフェースの機能を考える上で、界面の液体分子もまた重要な役割を担っているであろうことを示している。

このように、本提案領域は既存の学問分野の枠に収まらない新興・融合領域の創成を目指すものである。加えて、多様な研究者が新たな視点や手法による共同研究を推進することにより、当該領域の飛躍的な進歩が見込まれる。例えば、冒頭に述べた DNA 密生相が示す新奇現象の解明には上記の表面力測定が、抗体／PEG 共界面が示す特異性増強現象についてはラマン法を始めとする分光学的手法が特性解析に有効であり、さらに精密な界面設計を進めることができるとその更なる性能向上に対して有益であると考えられる。ソフト界面の分子基盤については、表面開始グラフト重合、自己組織化などのボトムアップ的な手法や、ナノインプリント、電界紡糸などのトップダウン的な手法が整い、様々な表面機能特性を有するソフトインターフェースを自在設計・パターン化構築することが可能となってきている。

ソフト界面の特性解析や分子基盤について独自性の高い取り組みが近年、急速に進んで来ており、ソフトインターフェースの分子科学を一つの新学術領域として研究する必要性に対する問題意識とともに、その準備がまさに整ったと言えよう。我が国において精密な界面構造設計・制御技術が著しく進歩し、また気鋭の研究者によって 3 次元的な界面評価技術が次々と開発され、さらにソフトインターフェースが関与する新奇な現象がいくつか見出されつつある今、世界に先駆けて本研究領域をスタートさせ、日本が同分野をリードしていくことが必要である。

国内外の状況について、まず欧米に目を向けると、スイス ETH のグループが中心となったバイオ界面に関する国際会議 BIOSURF がスイス国内で 1997 年より隔年で開催され、主に欧米研究者を中心として討論が進められている。領域代表者の前田は 01 年、事務担当者の長崎は 03 年に招待講演を行っている。04 年にはオーストラリアにて、International Conference and Workshop on Physical Chemistry of Bio-Interfaces が開催された。この会議では表面解析、非特異吸着抑制、分子認識表面の構築、アレイ技術の創出など、界面に特化した討論が 2 日半にわたり続けられ、世界中からおよそ 100 名の先導的研究者が参加した。一方、表面科学分野で最も権威のある、物理系の米国真空学会 (AVS) にも、Biomaterial Interface Division があって、盛んに活動している。04 年に長崎が、06 年には前田が招待講演を行っている。さらに 06 年から同学会が、バイオ界面に関するオープンアクセスジャーナル Biointerphases を創刊し、注目を集めている。前田、長崎、高原はその編集委員 (co-editor) を務めている。東京では 03 年に、The First International Congress on Bio-nanointerface (ICBN 2003 TOKYO) が開催された。この会議では、本領域のメンバーから前田と高原が基調講演を行ったほか、長崎、高井、菊池明彦（計画研究代表者：東京理科大学）らが招待講演を行った。国内の学会では、高分子学会・日本化学会などにおいてバイオインターフェースやソフトインターフェースを主題とした研究会やシンポジウムが近年、開催されるようになってきている。

このような取り組みを通じて、ソフトインターフェースの重要性は国内外で広く認識されつつある。しかしながら、ソフトマターからなる固一液ないし気一液界面の動的空間を分子科学の視点から重点的に研究し、新しい学術領域を創出していこうという研究組織は現状では見当たらず、本領域を早急に立ち上げることがきわめて重要であると考えられる。このような背景から本新学術領域研究の応募に至った。



ポリグルタミン酸ブラシ (pH 10)  
の圧縮弾性率の密度依存性

## 2. 研究組織（公募研究を含む）と各研究項目の連携状況

領域内の計画研究及び公募研究を含んだ研究組織と領域において設定している各研究項目との関係を記述し、どのように研究組織間の連携や計画研究と公募研究の調和を図ってきたか、図表などを用いて具体的かつ明確に記述してください。

### (1) 研究組織

領域代表者	前田瑞夫	(独)理化学研究所・前田バイオ工学研究室
事務担当者	長崎幸夫	筑波大学・大学院数理物質科学研究科
評価委員	岡野光夫 梶山千里 小林一清 中西八郎	東京女子医科大学教授 九州大学名誉教授 名古屋大学名誉教授 東北大学名誉教授

### 総括班

研究代表者	前田瑞夫	(独)理化学研究所・前田バイオ工学研究室
研究分担者	栗原和枝 高原 淳 長崎幸夫 高井まどか	東北大学・多元物質科学研究所 九州大学・先導物質化学研究所 筑波大学・大学院数理物質科学研究科 東京大学・大学院工学系研究科

### 計画研究 A01 「ソフト界面分子基盤（ソフト界面を創る）」

温度応答性インターフェースの創成と生体分子認識制御	
研究代表者	菊池明彦
	東京理科大学・基礎工学部
表面微細加工とナノグラフト層形成によるソフトインターフェースの精密設計	
研究代表者	高原 淳
研究分担者	小林元康（平成 20 年度）
	九州大学・先導物質化学研究所
生体機能性樹状高分子を用いたソフトインターフェースの設計	
研究代表者	三浦佳子
	九州大学・大学院工学研究院

### 計画研究 A02 「ソフト界面分子計測（ソフト界面を探る）」

高分子ブラシの機能と近傍の水の動態との相関に関する研究	
研究代表者	北野博巳
研究分担者	源明 誠
ソフトインターフェースの高分子鎖構造直接観察と解析	
研究代表者	熊木治郎
	山形大学・大学院理工学研究科
生体機能分子を固定したソフト界面の表面力測定	
研究代表者	栗原和枝
研究分担者	水上雅史
3 次元ナノ相分離膜構造と高感度分子認識能の動的解析	
研究代表者	佐藤 縁
研究分担者	丹羽 修（平成 20 年度～21 年度）
	(独)産業技術総合研究所・生物機能工学研究部門
	吉岡恭子
	(独)産業技術総合研究所・生物機能工学研究部門
	田中睦生（平成 23 年度～24 年度）
	(独)産業技術総合研究所・生物機能工学研究部門
高分子イオン密生ソフト界面のナノ構造と機能の相関	
研究代表者	松岡秀樹
	京都大学・大学院工学研究科

### 計画研究 A03 「ソフト界面分子認識（ソフト界面を活かす）」

分子認識バイオインターフェースのナノ構築と細胞機能診断デバイスへの展開	
研究代表者	高井まどか
	東京大学・大学院工学系研究科
高度分子認識を目指した生体分子と合成高分子のなす超構造界面密生層の構築	
研究代表者	長崎幸夫
研究分担者	吉本敬太郎
	筑波大学・大学院数理物質科学研究科
	原 晓非（平成 20 年度～22 年度）
	東京大学・大学院総合文化研究科
	堀口諭吉（平成 23 年度）
	筑波大学・大学院数理物質科学研究科

DNA 密生相が示す特異な界面現象の解明と応用		
研究代表者	前田瑞夫	(独)理化学研究所・前田バイオ工学研究室
研究分担者	宝田 徹	(独)理化学研究所・前田バイオ工学研究室
	藤田雅弘	(独)理化学研究所・前田バイオ工学研究室
半導体/生体分子ナノ界面の構築と遺伝子トランジスタへの応用		
研究代表者	宮原裕二	東京医科歯科大学・生体材料工学研究所
研究分担者	坂田利弥 (平成 20 年度)	東京大学・大学院工学系研究科
	松本 亮	東京医科歯科大学・生体材料工学研究所
	前田康弘(平成21年度～平成22年度)	東京医科歯科大学・生体材料工学研究所
リガンド固定化相と細胞表面で形成されるソフト界面での動的現象の評価と応用		
研究代表者	山岡哲二	国立循環器病研究センター研究所
研究分担者	馬原 淳	国立循環器病研究センター研究所

#### 公募研究 A01 「ソフト界面分子基盤（ソフト界面を創る）」

【前期】脂質流動界面のアレイ化と分子認識	
研究代表者	岩崎泰彦
関西大学・化学生命工学部	
【前期】水中での高分子の自発的集合化に基づく動的界面の創製とその機能・メカニズム解析	
【後期】ソフト界面制御によるナノ・マイクロ粒子の微細構造制御とその機能開発	
研究代表者	岸村顕広
東京大学・大学院工学系研究科	
【前期】バイオリソグラフィー手法の開発と表面加工への展開	
【後期】高分子規則表面のバイオエッチングとソフトマター分子群集積化への応用	
研究代表者	吉川佳広
(独)産業技術総合研究所・光技術研究部門	
【前期】インターロック構造を基盤とするソフト界面の新接着法	
研究代表者	小山靖人
東京工業大学・大学院理工学研究科	
【前期】高分子ブロック共重合体薄膜における2重らせんシリンダー構造の配向制御	
研究代表者	陣内浩司
京都工芸繊維大学・大学院工芸科学研究科	
【前期】pH 応答性インターフェースを持つ架橋ポリマー・ソームの創成	
【後期】高度に機能化された感温性ソフトインターフェースを持つ架橋ポリマー・ソームの創成	
研究代表者	遊佐真一
兵庫県立大学・大学院工学研究科	
【前期】高速親水化ソフト界面が構築できるポリマーの創製と分子インプリント法への応用	
【後期】診断デバイスの微細化に対応できる高速親水化ポリマーの創製と高感度診断基材への応用	
研究代表者	渡邊順司
甲南大学・理工学部	
【後期】DNA の二次元自己組織化によるインテリジェントソフト界面の創出	
研究代表者	葛谷明紀
関西大学・化学生命工学部	
【後期】機能性環状高分子ミセルの開発	
研究代表者	山本拓矢
東京工業大学・大学院理工学研究科	
【後期】膜エネルギー変化の制御と機能界面デザイン	
研究代表者	高木昌宏
北陸先端科学技術大学院大学・マテリアルサイエンス研究科	
【後期】細胞サイズ小胞が形成するソフト界面：その特異性を活用した新奇物性	
研究代表者	吉川研一
同志社大学・生命医科学部	
【後期】ソフト界面構築による強磁性ナノ粒子の機能化	
研究代表者	栄長泰明
慶應義塾大学・理工学部	
【後期】泡の安定性制御を可能とする刺激応答性ヘアリー粒子の創出	
研究代表者	藤井秀司
大阪工業大学・工学部	

#### 公募研究 A02 「ソフト界面分子計測（ソフト界面を探る）」

【前期】単一分子検出による界面/薄膜における高分子鎖の物性解析	
【後期】単一分子鎖の直接観察によって明らかにする高分子ソフト界面の物性	
研究代表者	青木裕之
京都大学・先端医工学研究ユニット	
【前期】時間分解界面振動分光法によるソフトマター界面構造の速度・分子論的追跡	
研究代表者	魚崎浩平
(独)物質・材料研究機構 国際ナノアーキテクトニクス拠点	
【前期】チップ増強ラマン散乱法による高分子超薄膜の相分離機構の研究	
研究代表者	尾崎幸洋
関西学院大学・理工学部	

【前期】ダイナミックな細胞内外輸送現象の1細胞定量解析法	
研究代表者 珠玖 仁	東北大学・大学院環境科学研究科
【前期】ソフト界面における自発的多重膜形成	
【後期】ソフト界面における多重膜形成のシナジズム	
研究代表者 瀧上隆智	九州大学・大学院理学研究院
【前期】ソフト界面における動的構造解析法の確立と界面拡散現象解明への展開	
研究代表者 田中敬三	九州大学・大学院工学研究院
【前期】NMRによるソフト界面間隙の液相分子クラスターの分子構造とダイナミクス解析	
研究代表者 塚原剛彦	東京工業大学・原子炉工学研究所
【前期】小腸壁における脂質吸収プロセスのモデリング	
【後期】→A03 参照	
研究代表者 野々村美宗	山形大学・大学院工学研究科
【前期】界面の分子スケールでの局所電気二重層効果による酸化還元反応速度の理論解析	
研究代表者 山本雅博	甲南大学・理工学部
【後期】ポリマーナノスフィア積層組織化膜のX線利用精密分子配向解析と機能化	
研究代表者 藤森厚裕	埼玉大学・大学院理工学研究科
【後期】負吸着性化学種の気液界面単分子膜での濃縮と膜中拡散機構のオペランド解析	
研究代表者 長谷川健	京都大学・化学研究所
【後期】高分子一液体間ナノ界面における高分子鎖シミュレーション解析	
研究代表者 森田裕史	(独)産業技術総合研究所・ナノシステム研究部門
【後期】ソフト界面で修飾されたプラズモニックチップ上の高感度蛍光バイオセンシング	
研究代表者 田和圭子	(独)産業技術総合研究所・健康工学研究部門

### 公募研究 A03 「ソフト界面分子認識（ソフト界面を活かす）」

【前期】固液界面での分子ダイナミクスに基づく電気化学的な自己報告型遺伝子検出デバイス	
【後期】アロステリック電気化学アプタザイムに基づく高感度遺伝子センサ	
研究代表者 青木 寛	(独)産業技術総合研究所・環境管理技術研究部門
【前期】ラジカルポリマーゲルを用いた超高速電荷輸送ソフト界面の構築	
研究代表者 小柳津研一	早稲田大学・理工学部
【前期】高分子結合性ペプチドを用いた機能性ソフト界面の創製	
研究代表者 芹澤 武	東京大学・先端科学技術研究センター
【前期】生体分子複合固定ソフト界面に基づく增幅・濃縮型高感度イムノアッセイデバイスの開発	
研究代表者 久本秀明	大阪府立大学・大学院工学研究科
【前期】細胞界面のナノ構造制御による機能性ハイブリッド組織の創製	
研究代表者 松崎典弥	大阪大学・大学院工学研究科
【前期】高分子ミセルキャリヤーの免疫原生制御のためのインターフェース設計	
研究代表者 横山昌幸	東京慈恵会医科大学
【前期】NSポリペプチドの特性解析と細胞磁気ラベリングへの応用	
【後期】磁性粒子上のソフト界面制御に向けた刺激応答性人工タンパク質の分子設計	
研究代表者 吉野知子	東京農工大学・大学院共生科学技術研究院
【前期】生体分子を足場とするソフトインターフェースを活用した超分子不斉光反応系の創製	
【後期】生体高分子の有するソフトインターフェースを活用した新奇超分子不斉光化学反応系の構築	
研究代表者 和田健彦	東北大学・多元物質科学研究所
【前期】→A02 参照	
【後期】小腸壁における濡れダイナミクスのコントロール	
研究代表者 野々村美宗	山形大学・大学院理工学研究科
【後期】パターン化モデル生体膜と微小構造体を接合したナノ界面における分子認識と分子輸送	
研究代表者 森垣憲一	神戸大学・遺伝子実験センター
【後期】高分子ソフト界面における分子鎖熱運動性を利用する細胞機能制御	
研究代表者 松野寿生	九州大学・大学院工学系研究院
【後期】基質界面の微細構造による細胞遊走の整流化制御と形質転換因子としての評価	
研究代表者 武田直也	早稲田大学・先進理工学部

【後期】遺伝子導入セルチップの高機能化を実現するソフト界面の構築	研究代表者 藤田聰史	(独)産業技術総合研究所・バイオメディカル研究部門
【後期】生体膜類似の糖鎖/ペプチドナノクラスターの構築と病原体の検出デバイスの開発	研究代表者 佐藤智典	慶應義塾大学・理工学部

\*研究機関名は、研究参画期間終了時における所属

## (2) 各研究項目の連携状況

本研究領域では「ソフト界面分子基盤」(すなわち創成)、「ソフト界面分子計測」(すなわち解析)、「ソフト界面分子認識」(すなわち機能)の3つの研究項目を設定し、それらの有機的な連携により新たな学術融合領域の創成を目指している。もとよりソフト界面の創成・解析・機能に関わる各研究項目は互いに不可分であるため、一般に行われているような「班会議」と称するものは本領域では一切行ってこなかった。

すなわち各9回ずつ行ってきた領域会議(非公開・1日)ならびに公開シンポジウム(1日ないし2日)はすべて、全体会議形式とした。一方でやや小さめの機動的な集まりはワークショップとし、研究項目とは独立に設定した。すなわち、「界面と水」「界面とダイナミクス」「界面とセンシング」など、共通に興味が持てるテーマについて「横串」型のワークショップ(公開・2日間)をたびたび開催することで、専門の異なる研究者が互いに出会い打ち解けるためのフォーラムとなるような運用を心がけてきた。

領域内・研究項目間での共同研究は極めて重要であり、そのための「呼び水」として RAFT 重合、ナノインプリンティングなどの界面構築技術や和周波分光、表面力測定などの解析技術を中心に「ソフト界面研修コース」(項目5に後述)を計10回以上開催し、研究項目間の連携を促してきた。主な共同研究の取り組みと成果について以下にまとめた。

### 主な共同研究実施例

A01 計画・三浦と A03 計画・高井：生体機能性界面とマイクロ流路システムの融合についての検討

A01 計画・三浦と A02 公募・野々村：デンドリマー自己組織化膜による超親水性表面の創製と動力学的な解析

A01 計画・三浦と A03 計画・宮原：糖鎖のアクリルアミド型モノマーを利用した界面でのゲル形成、糖鎖とマノースの特異的な認識のゲル応答についての検討

A02 計画・北野と A02 公募・魚崎：SFG を用いた各種ベタイン型高分子表面の水の構造評価

A02 計画・北野と A03 計画・前田：カルボキシベタイン-脂質コンジュゲートポリマーの構造解析

A02 計画・北野と A03 計画・山岡：スルホベタインとメタクリル酸活性エステルとの新規ブロックポリマーを用いた細胞分離システムの開発

A02 計画・佐藤と A03 計画・前田：糖類とレクチン間の弱い相互作用についての高感度検出・識別の目視化  
A02 計画・佐藤と A03 計画・高井：トリエチレングリコール含有アルカンチオール類を利用したマイクロ流体デバイスの開発と細胞診断

A02 計画・松岡と A01 公募・遊佐：RAFT 重合によるカチオン性両親媒性ジブロックコポリマーの合成と水面単分子膜のナノ構造

A03 計画・高井と A02 公募・魚崎：SFG を用いた MPC 高分子ブラシ表面の水の構造と界面特性評価

A03 計画・宮原と A03 公募・青木：ペプチド核酸プローブを利用した新規遺伝子センサの開発

A03 計画・山岡と A03 計画・長崎：RI による固定化抗体密度の定量化(問題解決に貢献)

A01 公募・吉川と A03 公募・青木：微量液滴アレイスポットを用いたバイオリソグラフィー

A01 公募・岸村と A01 公募・遊佐：ブロック共重合体の合成と界面特性評価

A01 公募・岩崎と A01 公募・遊佐：機能性モノマーの提供および界面の分析

A01 公募・遊佐と A03 公募・横山：ドラッグキャリア用光架橋性高分子ミセルの合成(機構解明に貢献)

A02 公募・田中と A03 公募・芹澤：ポリ MMA に接着する人工ペプチドと材料表面の相互作用解析

### 3. 研究領域の設定目的の達成度

研究期間内に何をどこまで明らかにしようとし、どの程度達成できたか、また、応募時に研究領域として設定した研究の対象に照らしての達成度合いについて、具体的に記載してください。必要に応じ、公募研究を含めた研究項目毎の状況も記述してください。

ソフトマターは、タンパク質や核酸・多糖類などの高分子・液晶・両親媒性分子・コロイドなど大きな内部自由度を特徴とする有機物質の総称である。外部からの刺激によって構造や性質が大きく変化するソフトな特性が、その大きな特徴である。このようなソフトマターから形成される動的な界面をソフトインターフェースと定義する。ソフトインターフェースは、生物機能の多様性を発現する源になっているため、医療を支えるバイオマテリアルやバイオデバイスなどの性能や機能をコントロールする重要な因子と位置づけられる。しかし、その分子レベルでの研究はほとんどなされておらず、しばしば従来の知識では理解できない現象がみられる。したがって、バイオマテリアル・デバイスの開発のために、生体分子を表面固定化するというような合目的的なアプローチにとどまることなく、生体分子を含むソフトな界面が持つ特性を分子レベルで明らかにしていく学術的な取り組みが必要であると考えられる。ゆえに本新学術領域研究では、様々な先端材料を開発していく上で重要な鍵を握る「界面」について、単純な二相系に挟まれた「面」としてではなく、動的かつ空間的な分子の特性が大きく現れる「ソフトな界面」と捉える。この認識に基づき、ソフトインターフェースの分子科学という新しい視点から、精密な界面分子基盤の構築、界面分子計測技術を開発していくとともに、それら界面が関与する新奇な現象・物性を解明することで分子デバイスなど新たな機能材料の開発を推進し、新たな学術領域の創成と将来の産業基盤の確立に資することを目的とした。

すなわち、本新学術領域研究では、生体分子を含む界面構成因子を動的・空間的に捉えるソフトインターフェースの分子科学という新しい視点から、精密な界面制御技術や三次元的な界面評価技術を開発し、界面が関与する新奇現象・物性を見出しつつ、分子認識デバイスなどの新たな機能材料の開発を進めてきた。異なる学問分野の研究者が参画し、新たな融合学術領域の創成を目指す。これによりソフトインターフェースを統括する学理を構築し、バイオマテリアル・バイオチップ等への応用に向けた設計指針を生みだすことを目指して研究を進めた。

ソフト界面の理解には、ラマン散乱法や和周波発生分光法などの分光学的手法、表面力測定法、電気化学的手法、大型放射光施設を用いる溶液小角X線散乱法やX線反射率測定法、等が特性解析に有効であると考えられる。ソフト界面の設計・創成については、表面開始グラフト重合、DNAオリガミ、などのボトムアップ的な手法や、ナノインプリント、バイオリソグラフィーなどのトップダウン的な手法が整い、様々な表面機能特性を有するソフトインターフェースを自在設計・パターン化構築することが可能となってきている。これらを得意とする研究者の有機的連携を図ることを本領域の大きな目標とした。

このように本提案領域は「既存の学問分野の枠に収まらない新興・融合領域の創成を目指す」ものである。加えて、「多様な研究者が新たな視点や手法による共同研究を推進することにより、当該研究領域の新たな展開を目指し」てきた。

また、研究人材の育成も極めて重要な課題である。領域主催の研究会には博士研究員や大学院生にも積極的に参加していただき交流を深めることを目指した。共同研究を通じてポスドク・大学院生の交流を図り、次代を担うべき世代の視野を広げることに尽力する。「ソフト界面」は、先端材料を物理学・化学・生物学の多面から学ぶという新たな視点を提供する学術領域であり、ワークショップやサマースクールの開催などを通じて概念の普及と学問体系化に努める。そのための教科書づくりを本領域が中心となって進める。以上の取り組みを強力に推進し、人材育成に努めてきた。

以下にその具体的な取り組みと成果について述べる。なお学術的成果については項目8で詳しく述べる。

#### 1) 計画研究の設定とスタートアップ

本申請領域研究では、ソフトインターフェースに関する第一線の研究者が、A01「分子基盤」、A02「分子計測」、A03「分子認識」の3つの研究項目、13の計画研究グループを組織した。自己組織化によるボトムアップ型の界面構築法や、ナノインプリントないしはリソグラフィーなどのトップダウン法と組み合わせた精密パターンニングを先導してきた界面分子基盤の専門家、各種分光法やX線・中性子散乱・反射率測定、原子間力顕微鏡、表面力測定、界面電気化学測定など界面解析の専門家、さらにタンパク質や核酸、多糖類そして細胞までを自在に操ることのできる機能界面の専門家が一堂に会する点に特色があり、それらの緊密な連携のもとに新たな学術領域の創成を目指した。計画研究代表者13名のうち、

大学教授は 5 名、准教授 4 名、研究独法の部長級 3 名であり、その後 3 名が教授昇任を果たしている。ちなみに女性は 13 名中 4 名 (31%) であり、これについては後述する。

領域発足後、ただちにこれら 13 の計画研究をスタートさせるとともに、ホームページを立ち上げたほか、発足 2 ヶ月後には公募研究の募集案内も兼ねた領域活動紹介のため第 1 回公開シンポジウムを開催し、企業関係者や大学研究者を中心に 100 名の参加を得た。ここでの熱心な質疑討論から大きな期待が感じられ、順調なスタートを切ることが出来た。

## 2) 領域設定ならびに研究項目の妥当性

公募研究には 20 件の募集枠に対して 200 件近い応募があり、この新しい領域に対する研究者の関心の高さが明らかとなった。また 3 つの研究項目に対してはそれぞれ 5:6:7 の比率で応募があり、合成・構築に比して計測・解析やバイオ・応用の割合がやや高いものの、おおむね項目ごとにバランスの良い件数分布となった。これらのこととは、本領域の設定課題が時宜を得たものであり、研究項目の設定が適切であったことを示している。

## 3) 若手研究者の積極的登用と共同研究

第 2 年次秋からは公募研究者 24 名が加わり研究交流や共同研究はさらに活発となった。公募研究者は全体に若く、24 名のうち教授職はわずか 3 名であった（採択時点）。計画研究代表者 13 名をあわせた 37 名についてみても教授級（独法部長級を含む）は 8 名にとどまり、全体に若い組織であることが本領域の大きな特徴である。もちろんこれは分野が新しいことと無関係ではない。若い研究者らは皆、自身のオリジナルのテーマを提案してきており、主体性を持った研究運営が可能であったため、スムーズに交流が進んだ。

計画研究・公募研究計 37 件というまとまった数の研究が同時進行していた訳だが、本領域ではこれを研究項目ごとに細分化はせず、常に全員参加の全体会議形式で公開シンポジウムならびに非公開の領域会議を行ってきた。すなわち、領域型研究で一般に行われる「班会議」は一切開催しなかった。これは各研究者の専門分野を超えた交流を図るためにあり、それは夜の情報交換会での活発な交流や 20 件近い共同研究となって結実している。これについては後で詳述する。

## 4) 多様な研究人材の融合による新学術領域の創成

後半の第 4 年次には公募研究の大幅な入れ替えが起こった。すなわち審査の結果、計 25 件の採択が決まったが、前半からの継続は 9 件にとどまり、16 件が新規課題となった。こうした研究課題の大幅入れ替えは領域の継続性・統一性という点からは一般に好ましくないと考えられ、また 5 年間の研究成果をまとまった形で示す上では不利な状況であるとも考えられる。しかし「多様な研究者が新たな視点や手法による共同研究を推進することにより、当該研究領域の新たな展開を目指すもの」という本領域の目的に照らせば、これはチャンスである。実際、前後半通じて延べ 39 人の公募研究者の参画を得た訳であり、これにより「既存の学問分野の枠に収まらない新興・融合領域の創成を目指すもの」としての本研究領域の裾野が大きく広がったと考えることが出来る。

このような流動性が見られた理由としては、前半の公募研究者 24 名から実に 5 名もの若手研究者が「最先端・次世代研究開発支援プログラム」に採択されたことが大きく寄与している。本新学術領域の発展性を示す一つのエピソードとして触れておきたい。また計画研究代表者 13 名、公募研究代表者 39 名の計 52 名から、教授への昇任は 16 名、准教授への昇任は 6 名を数えたことを付記したい。これらはもとより各研究者の能力や努力の賜物であるが、もし本領域がいささかなりとも寄与をしたのであれば望外の喜びである。

## 5) 班会議ではなく横串型や合宿型の研究会開催

全体会議（公開シンポジウムと領域会議で 1 泊 2 日）のみでは機動性に欠けることと、討論時間が限られることから、領域全体に横串を刺す形でテーマ設定を行い、1 泊 2 日でのワークショップを計 3 回開催して交流の機会を増やした。特に福岡市での「ソフト界面と水」、富山市での「ソフト界面のダイナミクス」では合宿形式で開催し、外部からの講師の先生も交え、夜遅くまで議論が続き、交流をさらに深めることが出来た。これらワークショップは領域内では自由参加とし、また外部にも公開としたが、内部からは毎回半数以上のメンバーが参加し、また外部からも企業研究者を中心に多数の参加を得ることが出来た。なお全体会議においても合宿形式は効果が高く、つくば市（第 3 回）、大阪市（第 4 回）、福岡市（第 6 回）、山形市（第 8 回）では、メンバーには出来るだけ連携研究者や学生も連れて指定の宿に泊まっていただくことで、交流の機会を用意するように心がけた。こうした機会を通じて、博士研究員が民間企業の幹部候補（正社員研究員）として採用される事例が生まれたほか、大学間での人材交流も進んだ。

## 6) 研修コース（計 13 回）の開催

本領域は「既存の学問分野の枠に収まらない新興・融合領域の創成を目指すもの」であることから、研究手法や取り組み方はいずれも新しいものが多く、その情報交換は研究の促進に大いに有効である。

特にソフト界面の構築・解析・応用の枠を超えた交流が大切である。そこで「ソフト界面研修コース」を設け、新しい手法を体験したり、原理を学んだり、共同研究の下打ち合わせをするための機会を用意した。これらは、個々の計測装置や技術を持つ研究室からのオファーに大きく依存した取組であるが、遠隔地の学生が参加する場合に旅費の補助を行うなど、総括班でも出来る限りの支援につとめた。独自の計測手法や合成技術を持つ研究者が積極的にそのサイエンスの開示につとめ、また領域メンバーが基礎からそれを学ぶことで、今後の分野の発展に大きく資する基礎基盤が形成された。研修コースは延べ13回を数えた。具体的な詳細は項目5で後述する。

#### 7) 若手研究者企画による国際会議等の開催

ミニシンポジウムの企画を若手研究者から公募し、これを総括班で支援する制度を設け、人材育成に努めた。これについても項目5で述べる。そのうち特に国際会議を講師の人選や連絡、そして運営まで自由にまかされて進めることは大きな経験になったという。また「ソフト界面と文化遺産」と題したミニシンポジウムは、大規模改修中の姫路城を実際に視察しながら、漆喰などのソフトな融合材料について文化財の専門家から学ぶという滅多に無い機会に恵まれ、評価委員の梶山先生や領域メンバーのほか一般の参加者にも大変好評であった。このような機会を通じ、若手研究者の育成に貢献できたと考えている。

#### 8) 新学術領域研究・関連4領域・合同公開シンポジウムの開催

新学術領域研究の制度が発足した最初の年に、本領域はスタートした。その後の数年のうちに、本領域もそれを一つのターゲットとして目指しているバイオマテリアル研究について、いくつかの領域が採択され、それぞれ活動を続けている。これら新学術領域研究で相互の情報交換を図ることを目的に、4領域合同公開シンポジウムを開催した。具体的には「融合マテリアル」「ナノメディシン分子科学」「超高速バイオアセンブラー」そして本「ソフト界面」から一人ずつ代表が出て、それぞれの領域のコンセプトと最新の成果を紹介した(2012年7月10日東大・小柴ホール)。また同様の催しを第35回日本バイオマテリアル学会大会(2013年11月26日タワーホール船堀)において開催することが決まっている。本領域の取組や成果が他の学術領域へと波及していくためのまたとない機会である。

#### 9) 女性研究者の育成

人材育成の観点から女性研究者を重視してきたことにも触れておきたい。計画研究代表者13名のうち、三浦、栗原、佐藤、高井の4名が女性研究者である(約31%)。またうち3名は若手である(採択時:三浦36歳、高井40歳、佐藤41歳)。このうち三浦、高井は本領域研究期間中にそれぞれ九州大教授、東大教授への昇任を果たした。また佐藤(産総研・主任研究員)は2012年に東工大・連携教授に就任したほか、同年、電気化学会第一回女性躍進賞を受賞している(「分子認識ソフト界面の構築と膜構造および機能評価に関する研究」)。なお公募研究においては通常の科研費審査と同様のプロセスで書面(性別は記載しない)審査が進められるため、男女の別を考慮する余地はない。結果としてのべ39名の公募研究者のうち女性研究者は2名であった。

#### 10) 大学・研究室間の交流促進

先にも述べた通り、本領域の研究代表者は総じて若く、主宰する研究室も必ずしも大きいものではないため、所属する学生は比較的狭い研究分野にとらわれ、交流範囲も研究室近傍に限られるという問題がある。そこで本領域では特に、組織を超えた研究室間での合同研究発表会の開催に学生旅費の補助などを通じて積極的に支援を行ってきた。詳細は後述するが、複数の研究室間で計3回の合同研究会が企画運営された。なかには別の新学術領域研究との間での4研究室合同発表会もあり、こうした取組が今後、研究分野を超えて広がっていくことを大いに期待するものである。

#### 11) 産業界との連携

産業界との交流について、評価委員の梶山先生から助言を受けており、これを達成するための一つの方策として2012年11月9日には「ソフト界面・新技術発表会」(於、東京大学)を開催した。本領域の5年間の成果が社会に還元されることを目指し、実用化の可能性が高いと思われる10件の成果をそれぞれの研究代表者が発表した。同発表会には企業からの40名を含め、70名の参加を得た。

またもう一つの方策として、産業界の研究者に連携協力者としての参加をお願いし、公開シンポジウムだけでなく領域研究者に閉じた領域会議でもこれら企業研究者に討論に加わっていただくような仕組みをつくった(連携協力者制度)。それまでの公開シンポジウムに参加して下さった企業研究者の方々を中心に、20名の方々に協力をお願いし、熱心に討論に参加していただいている。本領域研究者はこれに大きな刺激を受けたことは言うまでもない。また領域内の中国人博士研究員が企業研究者の目に留まり、幹部候補の正社員として採用されるに至ったことは同制度の成果として特筆したい。

#### 4. 研究領域の研究推進時の問題点と当時の対応状況

研究推進時に問題が生じた場合には、その問題点とそれを解決するために講じた対応策等について具体的に記述してください。また、組織変更を行った場合は、変更による効果についても記述してください。

本研究領域においては、研究推進時の問題点として挙げるべき大きな問題は生じなかった。また組織変更や計画変更も、後述する採択時の一度を除き無かった。ここでは関連する事柄について少し触れさせていただきたい。

平成 22 年 8 月に提出した「研究経過等の報告書」において、その項目 9 「研究領域の研究を推進する上で問題点と対応策（研究費を含む）」には次のように記載した（一部のみ抜粋）。

「若手研究者向けの大型研究費が拡充されつつあることは大変喜ばしいことであり、本領域においても、そのような大型予算を獲得するだけの潜在力を有する若手も少なくないと思われる。研究の進展次第では、領域に参画している研究者がそのような予算獲得に向けチャレンジすることもあると思われるが、重複受給の制限のため、研究期間途中で抜けることが起こりかねない。ソフトインターフェース研究が学術的に広く波及していくことや有能な人材の輩出も、本領域の狙いの一部でもあるので、そのようなチャレンジは奨励しているところであるが、領域全体の目標達成に影響が出る可能性があることは懸念材料である。」

実際、この「懸念」はその半年後に現実のものとなった。すなわち前半の公募研究者 24 名のうち 5 名が「最先端・次世代研究開発支援プログラム」に採択されるという嬉しいハプニングに見舞われた。幸い公募研究の前半 2 年の切れ目と重なったため、新しいメンバーが採択されることで本領域の陣容には特に影響は無かつた。結果的に公募研究の半数近くが入れ替わることになったが、これはまさに多様なメンバーが集うべき新しい学術領域ならではの出来事であって、むしろ喜ばしいことと理解している。すなわち研究推進上の問題点とは受け止めていない。

なお領域申請書における研究項目 A01 の研究代表者の一人が、申請書提出後（ヒアリング前）に若手研究(S)への採択が内定したため重複受給の制限から、ヒアリングでは同計画研究をのぞいて説明することとなった。このため研究項目 A01 はソフト界面分子基盤として領域全体のベースであるにもかかわらず 3 テーマに減少することとなり、他の研究項目（各 5 テーマ）にくらべ手薄となつたが、幸い A01 は公募研究で優れた応募に多数恵まれ、その後の研究遂行にはまったく障害とならなかつた。

この他、特に言及すべき研究推進時の問題点はない。

## 5. 研究計画に参画した若手研究者の成長の状況

研究領域内での若手研究者育成の取組及び参画した若手研究者の研究終了後の動向等を記述してください。

本領域は若手研究者の育成に特に力を注いできた。その方策ならびに主な実績・動向は以下の通りである。

### 1) 若手育成の方策

- i) 若手中心のミニシンポ開催（計3回）：若手研究者が中心となり、国際会議を含むミニシンポジウムを企画し開催した。若手研究者が主体となることで海外や国内の先端研究者との連携が深まり、その成長に寄与した。総括班は裏方に徹し、資金面の支援を行うほか領域内外への広報に努めた。
- ii) 国際会議を開催し、特に教育コースにおいてソフト界面に関する幅広い視点からの人材育成を行った。
- iii) 研修コースの開催により新しい、あるいは高度な計測法や新規合成法の研修を通じて育成を行った。
- iv) 若手研究者が主宰する小さな研究室同士の、大学間での合同研究発表会を通じて、学生交流を促進し、人材育成に努めるとともに、あらたな研究の展開を図った。

### 2) 実績

- i) 若手研究者主催ワークショップ・同国際シンポジウム・若手主宰者合同研修会
  - 第1回ソフト界面ワークショップ、「ソフト界面と水」、2010年8月10, 11日、九州大学、田中（A01公募）・三浦（A01計画）
  - International Workshop on Soft Interface Sciences for Young Scientists 2012, 2011年11月21-22日、産総研つくば、青木寛（A03公募）、吉川（A01公募）
  - ソフト界面ミニシンポジウム「ソフト界面と文化遺産」、2012年11月28, 29日、姫路市じばさんビル、藤井（A01公募）、遊佐（A01公募）
  - 「ソフト界面」研究室合同発表会：兵庫県立大学遊佐研究室・京都大学松岡研究室（於、兵庫県大）
  - 「ソフト界面」研究室合同発表会：東京大学吉本研究室、早稲田大学武田研究室（於、早大）
  - 新学術領域研究「ナノメディシン」・「ソフト界面」研究室合同発表会（於、関西大）：関西大学岩崎研究室（ナノメディシン）、大阪府立大学原田研究室（ナノメディシン）、大阪工業大学藤井研究室（ソフト界面）、兵庫県立大学遊佐研究室（ソフト界面）
- ii) 國際会議と教育講演会
  - Softinterface International Mini-Symposium (SIMS2012), 2012年3月17~19日、筑波大学、参加者170名、ソフト界面研究に関する教育講演6件
  - Softinterface International Mini-Symposium (SIMS2013), 2013年3月13~15日、九州大学、参加者60名、ソフト界面に関する物理化学を中心としたミニシンポジウム
  - Softinterface Educational Course, 2013年3月19日、つくば国際会議場、参加者150名、ソフト界面研究に関する教育講演6件
- iii) ソフト界面研修コース
  - 2010.8.9 ナノインプリントングと表面ぬれ特性評価、九州大学（高原）参加者3名
  - 2010.8.16-18 表面力・ずり測定法、東北大学（栗原）参加者5名
  - 2010.8.23 和周波発生(SFG)分光法による固/液界面計測、物材機構（魚崎）参加者9名
  - 2011.10.1 和周波発生(SFG)分光法による固/液界面計測（第2回）、物材機構（魚崎）参加者7名
  - 2011.12.9 TOF-MSイメージング法、筑波大学（長崎）参加者5名
  - 2011.12.19-20 表面力・ずり測定法（第2回）、東北大学（栗原）参加者1名
  - 2011.12.6-8 X線反射率測定法、京都大学（松岡）参加者2名
  - 2012.8.1-2 連鎖移動剤の合成とRAFT重合（第1回）、兵庫県立大（遊佐）参加者3名
  - 2012.9.6-7 液体クロマトグラフ質量分析法、筑波大学（長崎）参加者5名
  - 2012.11.30 和周波発生(SFG)分光法（第3回）物材機構（魚崎）参加者5名
  - 2012.11.8 連鎖移動剤の合成とRAFT重合（第2回）、兵庫県立大（遊佐）参加者3名
  - 2012.11.12-15 連鎖移動剤の合成とRAFT重合（第3回）、兵庫県立大（遊佐）参加者4名
  - 2012.12.27 粗視化シミュレーション、産総研（森田）参加者12名

### 3) 若手研究者の動向

研究代表者の教授級への昇進は16名（小柳津、田中、芹澤、久本、岩崎、山本、三浦、渡邊、瀧上、陣内、栄長、宮原、高井、菊池、長谷川、佐藤）、准教授へは6名（塚原、藤井、岸村、葛谷、藤森、横山）を数えた。また領域内若手研究者5名（芹澤、久本、松崎、塚原、珠玖）が「最先端・次世代研究開発支援プログラム」に採択されたことは特筆すべきである。領域内博士研究員が公開シンポジウムに参加された企業研究者の目に留まり正社員（幹部候補生）として採用されたことも優れたキャリアパスの一つとして付記したい。

## 6. 研究経費の使用状況（設備の有効活用、研究費の効果的使用を含む）

領域研究を行う上で設備等（研究領域内で共有する設備・装置の購入・開発・運用・実験資料・資材の提供など）の活用状況や研究費の効果的使用について総括班研究課題の活動状況と併せて記述してください。

設備備品費については課題の円滑なスタートのために、物質・材料の基礎特性を評価するための汎用分析機器をそれぞれ購入している。液体クロマトグラフィー等の日常的に使用する汎用分析機器については、各グループの研究遂行の効率性や試料の個別性を考慮して重複を妨げないこととした。主な大型機器について以下に説明する。

エネルギー損失・質量計測水晶発振子マイクロバランス（東北大学多元物質科学研究所、価格：13,398,000 円）は表面に吸着した分子の質量と粘弾性を同時に評価できる装置であり、高分子ブラシ層の吸着状態、広がり、水和状態の評価に成果を挙げている。これにより、栗原グループが得意とする表面力測定により評価できる高分子ブラシ層の特性との相関を検討することが可能となった。

回転補償子型簡易高速分光エリプソメータ（東京大学、価格：9,705,150 円）は、基板上に形成したナノメートルレベルの薄膜の膜厚測定、さらには光学定数の測定が可能である。この装置を利用して、各種ポリマーブラシの膜厚や密度を測定し、得られた情報をもとに様々な物性のバイオインターフェースのナノ構築が可能となっている。

環境コントロール原子間力顕微鏡システム基本ユニット（山形大学、価格：10,643,850 円）は高分子2次元結晶の分子鎖レベルの融解挙動の *in situ* 観察を目的として導入したものであり、これにより it-PMMA 2次元折りたたみ鎖結晶の融解挙動を分子鎖レベルの解像度で、世界で初めて *in situ* で観察することに成功した。その結果、2次元結晶の真の融点が3次元結晶に比べて数十度から 100°C 程度低下していることが初めて明らかとなった。

FET センサ用測定装置（東京医科歯科大学、価格：2,929,500 円）を購入し、水の誘電率変化に基づくトランジスタ信号変化を実証したことに加え、三浦（A01 計画）が開発した材料を用いてコンカナバリン A を上記メカニズムによりトランジスタで検出できることを明らかにした。また、青木寛（A03 公募）が開発した修飾ペプチド核酸固定化電極を用いた DNA 検出に関する研究を共同で推進した。上記2件の共同研究の成果は学術論文として出版・公表した。

X線反射率制御システム（京都大学、価格：4,620,000 円）により、様々な試料に対し X 線反射率が迅速かつ簡便に精度良く測定可能となった。同装置に関する「ソフト界面研修コース」には藤井（A01 公募）、熊木（A02 計画）らが参加して同測定の有用性と測定技術を習得し、それぞれ水面展開単粒子膜、高分子単分子結晶膜について測定を行った。前者においては気水界面における吸着の有無と、吸着層が単粒子膜であることの確認を行うことが出来た。後者においては温度依存性の検討を行い、結晶膜の融解前後で膜厚がほとんど変化しないという意外な結果を得ている。いずれも共同研究に発展し現在も継続中である。

質量分析イメージング用試料作製装置（筑波大学：10,800,000 円）は組織切片上に存在する物質を標識することなく直接的に質量分析する手法であり、それぞれの物質の切片上における位置情報を同時に得ることができるため生体界面での薬物・タンパク質等の分布計測が可能になった。同装置に関する「ソフト界面研修コース」には岸村（A01 公募）らが参加して同測定の有用性と測定技術を習得し、それぞれ組織表面における彼らの材料に関する有用なデータを得ることができた。解析は現在も継続中である。

このほか、共通の目的に総括班予算の一部を活用している。具体的には公開シンポジウムに特別講師をお招きする際の謝金に使用したほか、若手研究者が中心となって企画・運営を行う「国際ミニシンポジウム」や、若手教員が主宰する研究室間での「合同セミナー」の開催に会場費・旅費・謝金などの支援を行った。また、研究代表者・分担者以外の研究グループ関係者（ポスドク・大学院生など）が「ソフト界面研修コース」や上述の「若手交流イベント」、その他の活動に積極的に参加することを促す目的で、旅費の補助を行ってきた。支援を行った主な「若手交流イベント」を以下に再掲する。

- International Workshop on Soft Interface Sciences for Young Scientists 2012 (SISYS2012) : 青木寛（A03 公募）、吉川（A01 公募）が企画・運営（於、産総研つくば）
- 「ソフト界面」研究室合同発表会 : 兵庫県立大学遊佐研究室・京都大学松岡研究室（於、兵庫県立大）
- 「ソフト界面」研究室合同発表会 : 東京大学吉本研究室、早稲田大学武田研究室（於、早大）
- 「ソフト界面」・「ナノメディシン」研究室合同発表会 : 関西大学岩崎研究室（ナノメディシン）、大阪府立大学原田研究室（ナノメディシン）、大阪工業大学藤井研究室（ソフト界面）、兵庫県立大学遊佐研究室（ソフト界面）（於、関西大）

## 7. 総括班評価者による評価

総括班評価者による評価体制や研究領域に対する評価コメントを記述してください。

本領域の評価者は2(1)研究組織にあげた4名の有識者の先生方である。小林先生は主として研究項目A01、梶山先生はA02、岡野先生・中西先生はA03にご専門が近いが、高い視点から広くご助言をいただいた。

このうち小林先生は第1回の公開シンポジウム（計9回）から、領域研究者に閉じた領域会議（計9回）ならびに総括班実施グループを中心とした運営会議や、別途3回開催したワークショップを含めて、ほぼ全ての会合にご参加いただき、領域の運営から個別の研究テーマの詳細な議論に至るまで、数多くの助言をいただいている。本領域はソフトな界面の基礎と応用に主眼をおくものであるが、喫緊の社会的要請である環境・エネルギー問題にかかわる課題についても第3の視点として意識していくように、とのご指導をいただいた。小林先生からは書面による評価をいただくことが出来たので、以下に掲げる。

「高分子科学、コロイド科学、バイオマテリアルを含めて、ソフト界面に関わる多彩な境界領域の研究者が結集して、先端的な研究成果の交換と、活発な議論が行われた。議論を通じて、外部からの刺激に応じて構造・物性・機能が変化するソフト界面の特異性が数多く明らかにされた。ソフト界面を精密に構築し、ソフト界面を計測するための新規手法を確立し、ソフト界面の機能を拡張するなどの分野で大きな展開が見られた。とくに、若手研究者の活躍が顕著であり、若手同士の交流によって、多くの新しい研究が芽生えた。また、環境問題へのアプローチや、エネルギー材料への解決の糸口が示されたことも、当初の目標を超えた大きな成果となった。加えて、ソフト界面に関わる現象は、学術としてのみならず、産業界にとっても関心の高い分野である。本領域での交流、研究の成果をもとに、ソフト界面や材料科学に関する新しい分野がさらに発展していくとともに、産業界においても成果が活用されていくことを大いに期待している。」

梶山先生には公開シンポジウムならびに運営会議や夜の交流会にもたびたびご出席いただき、評価を含めたご挨拶をいただいた。先生はそのなかで特に産業界との連携の重要性を強く指摘された。このご助言をもとに、産業界の研究者に連携協力者としての参加をお願いし、公開シンポジウムだけでなく領域研究者に閉じた領域会議でもこれら企業研究者に討論に加わっていただくような仕組みをつくった（連携協力者制度）。それまで公開シンポジウムに参加して下さった企業研究者の方々を中心に、20名の方々に協力をお願いし、熱心に討論に参加していただいている。本領域研究者はこれに大きな刺激を受けたことは言うまでもない。また領域内の中国人博士研究員の研究がポスター発表や交流会を通じて企業研究者の目に留まり、幹部候補の正社員として採用されるに至ったことは同制度のおかげであり有り難いことである。また産業界との連携を重視せよとの梶山先生のご助言をもとに、2012年11月9日には「ソフト界面・新技術発表会」（於、東京大学）を開催するに至った。本新学術領域の5年間の成果を社会に還元していく思いを込めて、実用化の可能性が高い10件の成果を発表した。企業からの40名を含め、70名の参加を得た。

梶山先生はまた、次の領域をつくるべき若手研究者の育成の重要性を強調された。この助言をうけ、タコ壺化しがちな若手研究者の交流を促す仕組みとして「ソフト界面研修コース」を企画し、大学や機関の垣根を越えた連携強化を進めてきた。こうした取り組みはその後、若手の研究室主宰者らによる複数研究室合同発表会の自発的な取り組みへとつながっていった。これにより分野の異なる研究室間での学生交流が一段と進むことになった。

岡野先生には第2回の公開シンポジウムでの特別講演をお願いした。温度応答性高分子がつくるソフト界面の医療応用に関する最先端研究の紹介から多くの啓発を受けることができた。岡野先生からは以下のコメントをいただいている。

「高分子材料やバイオ材料が複雑な生体系と接触した界面の時間・空間的な相互作用変化を材料側と生体側から見て把握する重要性は、ライフサイエンス、生医学領域の発展に」ともないきわめて重要になっている。従来の理工学的なアプローチと生医学的アプローチの両面から界面を捉え、その全体の理解と制御に向けた本プロジェクトは21世紀の重要な基盤研究とみることができる。

従来の平衡状態で理解される界面に対し、経時的変化・代謝変化を伴う動的界面をソフト界面として体系的に理解、制御する新しい挑戦は高く評価することができる。これにより、材料とタンパク質、核酸、細胞などでのソフト界面の本質的な追究が多面的にすすめられた。たとえば、再生医療の基幹となる幹細胞とソフト界

面との相互作用を制御して分離回収するシステムの構築や、非特異的吸着を抑制し、目的物質（タンパク質、細胞）の高速診断を実現するソフト界面の作製など多くの新知見を集積し、ライフサイエンス・バイオ関連領域での基盤を作ることにとどまらず、環境問題や、エネルギー関連の材料開発への新しい指針を示すことに成功している。

日本の縦型の学問領域の枠組みにとらわれることなく、21世紀型の横断型・統合型の研究を目指し、理工学系と生物・医学系の研究者を統合させ、その融合にむけた試みはきわめて重要である。とくに、30代と40代の若手研究者を積極的に参画させることで、従来の学問の延長戦上にない成果をあげている。今日、生物学・医学と理工学の融合領域が世界的にますます重要な局面で、新知見の集積にとどまることなく、次世代の研究者育成の観点からも大きな成果を上げている点は評価でき、今後の我が国のユニークな発展が期待できる。

バイオ・メディカル領域をエンジニアリングと融合させていくプロジェクトに加え、ソフト界面のコンセプトとその科学技術基盤を発展させて行くことのできる研究者の育成という観点からも本プロジェクトはおおきな役割を果たし、高く評価できる。」

中西先生は第1回の公開シンポジウムにおいて本領域の多様性と重要性を指摘され、共通の興味のもとに各自が自由に研究を発展させるように、との助言をいただいた。領域発足に至るまでの準備期間も含め、多数のご助言をいただいたが、公務ご多忙のため、初年度を除き公開シンポジウム等へのご出席はかなわなかった。

## 8. 主な研究成果（発明及び特許を含む）【研究項目毎または計画研究毎に整理する】

新学術領域研究（公募研究含む）の研究課題を元に発表した研究成果（発明及び特許を含む）について、図表などを用いて研究項目毎に計画研究・公募研究の順に整理し、具体的に記述してください。なお、領域内の共同研究等による研究成果についてはその旨を記述してください。

**研究項目 A01 「ソフト界面分子基盤（ソフト界面を創る）」**においては、ソフト界面の特性解析と機能開発のためには多様なソフトマター分子群を集積・組織化するためのボトムアップ・テクノロジーが極めて重要であるとの考え方から、精密高分子合成の手法を駆使し、さらにトップダウン的なマイクロ・ナノ加工技術を組み合わせることにより、目的に応じてパターン化・階層化されたソフト界面の設計法・構築法の確立を目指して研究を行った。大別すると、①ソフト界面のボトムアップ的な手法による精密分子設計、②外場に対して応答するソフト界面の創成、③様々な手法の複合化による階層的ソフト界面の創成、④生体モデルを利用したソフト界面創成が行われた。中間評価にて A 評価をうけた通り、それぞれが目標に従って着実に成果を挙げた。さらに、このグループで調製したソフト界面を提供することにより計画・公募班含めた多様な研究者の間で新たに生まれた共同研究による成果も得られた。

### ① ソフト界面のボトムアップ的な手法による精密分子設計

三浦らは界面での分子配置の制御手法としては界面での分子の構成要素として、規則正しい樹状高分子である糖デンドリマーを分子設計し、自己組織化プロセスを経て精密な界面の構築を行った。また、精密な界面、樹状高分子独特の界面から発現される機能、タンパク質忌避活性材料、細菌接着性制御などを実現した。岸村らはPEGとポリアミノ酸由来の荷電セグメントからなるブロック共重合体を用い、水中でポリアニオン・ポリカチオンを混合するという簡便な手法で種々のナノ・マイクロ構造を有するポリイオンコンプレックス（PIC）を作製することに成功し、様々な機能性ソフト界面を創成した。山本らは高分子のトポロジーの精密分子設計を行い、トポロジーの違いによってミセルやハイドログルの特性が大きく変化することを見いだしている。渡邊らは高速親水化ポリマーを基板材料として、高速親水化ソフト界面が構築できるポリマーの創製と分子インプリンティング法への応用さらに診断デバイスの微細化に対応できる高速親水化ポリマーの創製と高感度診断基材への応用へと研究を開拓した。小山らはリサイクル性と安定性を併せ持つ超分子ネットワークの構築を目的とし、架橋鎖と主鎖の間に共有結合が存在しない架橋システム（インターロック架橋システム）の構築を行い、軸成分の末端置換基のサイズを輪成分の空孔サイズと同程度に調整したサイズ相補性ロタキサンの利用に基づくケミカルリサイクルシステムと、芳香族ジスルフィドの迅速光分解反応を基盤としたケミカルリサイクルシステムをそれぞれ開発した。

### ② 外場に対して応答するソフト界面の創成

菊池らは温度変化に応答して水への溶解性の変化するポリ（N-イソプロピルアクリラミド）（PNIPAAm）とその誘導体を修飾したソフト界面の調製とその物性解析、ならびに生体分子の相互作用解析を系統的に検討し、クロマトグラフィーへの応用展開を行った。遊佐らはコアが中空のポリマーで形成された微粒子であるポリマーソームのシェルに pH または温度に対して応答する高分子を用いることで、外部刺激応答性ポリマーソームを調製し様々なソフト界面としての応用を開拓した。

### ③ 様々な手法の複合化による階層的ソフト界面の創成

表面微細加工技術と高分子鎖の化学的特性の融合による機能性ソフトインターフェースの精密設計法の確立を目的とし、表面微細加工技術として電界紡糸法、ナノインプリント法、交互積層膜法、ゾルゲル法を用い、表面化学修飾法として表面開始制御ラジカル重合を用い、種々のソフトインターフェースの調製方法を提案した。さらに、種々の表面・界面構造物性評価法を駆使し、濡れ性・防汚性・分離特性等と表面階層構造の関係を明らかにした。藤井らは外部刺激により親水性・疎水性バランスのコントロールが可能なヘアーリング表面に有する刺激応答性高分子微粒子を重合法により合成し（ボトムアップアプローチ）、次いで粒子表面と気液界面との相互作用に関する基礎的知見を蓄積することで、安定性制御可能な高分子微粒子安定化泡（トップダウンアプローチ）についての基礎概念を確立した。岩崎らはポリ（2-メタクリロイルオキシエチルホスホリルコリン）（PMPC）をマイクロパターン化したシリコン基板にリン脂質リポソームを接触させることにより、自発的に運動性を備えた脂質二分子膜アレイが形成されることを見出し、糖脂質やビオチンを修飾した脂質をリポソーム調製時に添加することにより、脂質二分子膜アレイに分子認識機能を付与出来ることを明らかにした。栄長らは光機能化という観点で、磁性微粒子の直接の界面化学修飾をソフト界面へ展開し、室温強磁性ナノ粒子の界面機能化によるバイオ応用が可能な新規な磁性微粒子の創製を行った。

### ④ 生体モデルを利用したソフト界面創成

吉川らは細胞サイズの液滴や小胞を取り上げ、 $\mu\text{m}$  スケールでのソフト界面の物理化学的特質を明らかにするとともに、微小空間での蛋白質やDNAの機能制御手法を実現している。高木らは生きている細胞とモデル膜（リポソーム）両方を用いて、ラフト（相分離構造）挙動（ダイナミクス）の物理化学的解析と生物学的意義を明ら

かにする研究を行い、ナノ空間での分子反応と膜物性の関係を明らかにしている。葛谷らはDNA Origami上における酵素反応単分子解析法を活用してインテリジェントソフト界面上で酵素反応の二次元ナノ解析を実現している。

**研究項目 A02「ソフト界面分子計測（ソフト界面を探る）**」では、動的な空間であるソフト界面を、様々な先端界面計測手法を駆使して研究し（手法の高度化・開発研究も含む）、ソフト界面の構造・特性の解明を目標とした。大別すると、①ソフト界面の構造・特性や相互作用評価を目標とし、表面力・共振ずり測定法、和周波発生・ラマン・赤外などの振動分光法、X線ないし中性子散乱法・反射法、表面プラズモン共鳴などによる計測法の開発と評価、②単一分子・単一細胞レベルでの原子間力顕微鏡、超解像光学顕微鏡、電気化学顕微鏡などによる評価、③その他界面におけるユニークな現象の研究が行われた。中間評価にてA評価をうけた通り、それぞれが目標に従って着実に成果を挙げた。さらに、研修コースなどを通じて計画・公募を含めた多様な研究者の間で新たに生まれた共同研究による成果も得られた。

### ① ソフト界面や薄膜の構造・特性、生体機能分子の相互作用評価

#### 1. 振動分光による界面評価

(i) 和周波発生 (SFG) 振動分光法による、界面の水和の評価、特に機能材料高分子界面、脂質膜・ペプチド膜など生体機能界面における水の構造・特性の解明（魚崎、北野、栗原）

温度応答性高分子であるポリイソプロピルアクリラミド(PNIPAAm)膜、ならびにエラスチンライクペプチド膜表面において、温度に対して界面水の水素結合構造の規則性が可逆的に変化することが明らかとなった。

(ii) 偏光変調赤外振動分光法 (PM-IRRAS) と全反射蛍光 XAFS による水面単分子膜構造とイオンの配位構造の評価（長谷川）

長鎖脂肪酸の水面単分子膜の構造の解析と、親水基である COOH 基への亜鉛イオンの配位の詳細な構造評価が可能となった。

#### 2. X線・中性子反射、回折法による気水、油水界面の分子集合系、高分子ブラシの評価（松岡、瀧上）

・気-水界面、ならびに油-水界面に形成されるフルオロカーボンのギブス吸着膜が形成する多重膜の構造、およびその形成過程を種々の分子に対して評価し、その構造形成の駆動力、メカニズムに説明を与えた。

・気-水界面吸着した両親媒性ブロックコポリマー単分子膜が示す密度依存の構造転移(絨毯層-ブラシ層)について、親水部の特性（電荷の符号、密度、双性）、添加イオン種の効果を解明し、さらに温度応答性膜を構築した。

#### 3. 表面プラズモン共鳴・SFG 振動分光法による高分子薄膜の動的解析（田中）

厚さを制御した高分子電解質 Nafion のナノ薄膜の水との接触による構造変化、拡散を評価した。

#### 4. 表面力測定による生体機能分子間の相互作用の直接評価（栗原）

タンパク質の配向固定化法の開発し、ホスホリレーシグナル伝達系の初期過程のタンパク質間相互作用の直接評価、抗原(ニワトリ卵白リグチーム)-抗体間などの相互作用評価などに成功し、生体における重要な相互作用評価の方法論を提示した。

### ② 単一高分子・単一細胞の観察・評価

#### 1. 原子間力顕微鏡 (AFM) による高分子鎖の分子レベル観察（熊木）

高分子単分子膜を対象として、*it*-PMMA2 次元結晶の融解温度の直接評価、基板上の孤立 PMMA 鎖の構造ダイナミクス評価、高分子ブレンド膜中の孤立鎖・相分離挙動の観察、基板上での重合観察に成功した。

#### 2. 超高解像光学顕微鏡による単一高分子鎖の構造・ダイナミクス評価（青木）

超解像技術を用いた蛍光顕微鏡を開発し、空間分解能 15 nm での構造観察、配向評価を実現し、せん断による高分子のコンホーメーション変化、薄膜中の高分子鎖のセグメント運動の観察に成功した。

#### 3. 電気化学顕微鏡(SECM)とイオン伝導顕微鏡(SICM)による単一細胞の定量解析法の開発（珠久）

SECM と SICM を融合した装置を開発し、単一細胞の形状と電気化学の同時イメージングに成功し、マクロファージ活性化因子の添加による、形態、膜容量、活性酸素産生能の同時評価に成功した。

### ③ その他、界面のユニークな現象の研究展開

#### 1. 小腸壁における濡れのダイナミクス（野々村）

小腸壁モデルとしてフラクタル寒天ゲルを開発し、その表面上の液体の動的接触角を観察することにより、液体の濡れ拡がり機構への表面の効果を解明し、さらにその速度の制御要素の同定、実証に成功した。

#### 2. 3次元ナノ相分離膜構造と高感度分子認識能の動的解析（佐藤）

特異性は高いが弱い相互作用である糖鎖-レクチン間相互作用に着目し、ナノ相分離構造構築による相互作用の高感度検出、特異的吸着の抑制による S/N 向上を達成することができた。

**研究項目 A03「ソフト界面分子認識（ソフト界面を活かす）**」では、界面における分子認識に焦点を絞り、新たな機能へと結びつけることを目指してきた。DNA 密生相、抗体/PEG 共界面、など、独自性の高い材料について、新奇現象を分子レベルで解明し、医療デバイス、診断素子、バイオマテリアルなどの新機能特性へと

展開していくとともに、独創的なアイディアを組み込んだマイクロチップ、センサや細胞分離システムなど有用な工学システムの構築を目指してきた。大別すると、①独創的なソフト界面を構築することによる遺伝子やタンパク質センシングシステムの構築・高感度化、②特異的細胞相互作用を基本に細胞培養・パターンニングや分離を可能にするソフト界面の創出、③特異的生体分子反応をたくみに利用したバイオセンサーなどを中心として研究が進められた。

### ① 独創的なソフト界面を構築による遺伝子やタンパク質センシングシステムの構築・高感度化

1. 前田らはオリゴ核酸を表層に有するナノ粒子のハイブリダイゼーションによる遺伝子解析において極めてユニークな現象を見つけ、その機構解明を進めた。すなわち核酸末端構造の揺らぎがナノ粒子コロイド分散系の安定性に決定的な役割を果たしていることが明らかとなった。
2. 長崎らは異なる分子量を有するポリエチレングリコール(PEG)による高密度ブラシは高度にタンパク質非特異吸着を抑制するだけでなく、表面に固定した抗体の反応性を高度に維持することを確認した。さらにベタインを末端に有するPEGブラシを構築し、ベタインとPEGブラシのシナジー効果を検討する過程でそれぞれの役割を明らかにした。
3. 高井らは高度にタンパク質非特異吸着を抑制するメタクリロイルフォスファチジルコリンポリマー(PMPC)をベースにブラシ表面を構築し、表面抗体活性の保持を確認し、高度なタンパクセンサー表面を構築した。
4. 森垣らはラングミュアーブロジェット(LB)法と光パターンニング法をたくみに利用し、パターン化したタンパクセンシング表面を構築した。

### ② 特異的細胞相互作用を基本に細胞培養・パターンニングや分離を可能にするソフト界面の創出

1. 表面をたくみに制御し、間葉系幹細胞の操作を可能にする技術が進展した。山岡らはソフト界面の知識の蓄積を利用し、細胞ローリングによる間葉系幹細胞の分離回収に成功した。長崎は材料と細胞との接触界面で発生する酸化ストレスを効果的に低減するという新しい概念のアクティブバイオコンパティブル界面を設計し細胞分化を制御するソフト界面を作製した。これらの新しい技術は幹細胞制御技術として期待される。
2. ソフト界面の作成技術を高度に進展せしめ、動物実験の代替技術が進展した。松崎は細胞の細胞積層法を開発し、多層構造ソフト界面の作製に成功した。これら技術をベースに血管構造の構築やNO検出を可能にし、動物実験代替技術を開発している。野々村は皮膚に極めて近いソフト界面を作製し、皮膚モデルへの展開を進めている。
3. 高度な細胞パターン化を可能にする新しいソフト界面技術が発展した。藤田は表面化工法を工夫し、遺伝子導入セルチップの超高密度化に成功した。武田らは表面のパターン化を利用した間葉系幹細胞のパターン化、遊送化を制御する未来技術を開発してきた。

### ③ 特異的生体分子反応をたくみに利用したバイオセンサー

1. 生体分子を固定し、その特異的反応を利用したセンシングに基づく問題点をたくみに回避する新しいソフト界面の設計が進展してきた。宮原はゲルの相転移と糖-レクチン認識を利用したFETセンサー界面を構築し、センシングの高感度化に成功した。これはA01三浦との共同研究で達成されたものである。また、A03青木との共同研究でペプチド核酸を利用した電気化学センサーの高感度化に成功した。
2. 久本は一般に多段で行われる固相酵素免疫検定法(ELISA)を一段で行う増幅型イムノ界面を開発し、操作法を飛躍的に簡略化することに成功した。また毛細管現象を利用した濃縮型イムノアッセイ法に関しても成功している。
3. 青木らは新しい分子を設計し、ソフト界面にアプローチした。フェロセン分子の酸化還元電位をシクロデキストリンとDNAのハイブリで変化する分子を新たに設計し、電気化学センサー表面を構築した。核酸を非標識で計測する新技術であり実用化に期待が持たれる。

## 9. 研究成果の取りまとめ及び公表の状況（主な論文等一覧、ホームページ、公開発表等）

新学術領域研究（公募研究含む）の研究課題を元に発表した研究成果（主な論文、書籍、ホームページ、主催シンポジウム等の状況）について具体的に記述してください。論文の場合、計画研究・公募研究毎に順に記載し、研究代表者には二重下線、研究分担者には一重下線、連携研究者には点線の下線を付し、corresponding author には左に＊印を付してください。また、一般向けのアウトリーチ活動を行った場合はその内容についても記述してください。

### 【主な論文、書籍一覧】

#### 【計画研究】研究期間：2008（平成20）年度～2012（平成24）年度

##### —A01：ソフト界面分子基盤「ソフト界面を創る」—

###### 【A01】「温度応答性インターフェースの創成と生体分子認識制御」（代表者：菊池明彦）

1. N. Idota, A. Kikuchi, J. Kobayashi, K. Sakai, T. Okano, "Modulation of graft architectures for enhancing hydrophobic interaction of biomolecules with thermoresponsive polymer-grafted surfaces", *Coll. Surf. B. Biointerfaces*, **99**, 95-101, 2012.
2. K. Nagase, N. Mukae, A. Kikuchi, T. Okano, "Thermally modulated retention of lymphocytes on polymer-brush-grafted glass beads", *Macromol. Biosci.*, **12**, 333-340 (2012).
3. K. Nagase, M. Watanabe, A. Kikuchi, M. Yamato, T. Okano, "Thermo-responsive polymer brushes as intelligent biointerfaces: Preparation via ATRP and characterization", *Macromol. Biosci.*, **11**, 400-409 (2011).
4. A. Mizutani, K. Nagase, A. Kikuchi, H. Kanazawa, Y. Akiyama, J. Kobayashi, M. Annaka, T. Okano, "Preparation of thermo-responsive polymer brushes on hydrophilic polymeric beads by surface-initiated atom transfer radical polymerization for a highly resolute separation of peptides", *J. Chromatogr. A.*, **1217**(38), 5978-5985 (2010).

###### 【A01】「表面微細加工とナノグラフト層形成によるソフトインターフェースの精密設計」（代表者：高原淳・分担者：小林元康）

5. T. Shinohara, T. Shirahase, D. Murakami, T. Hoshino, M. Kikuchi, J. Koike, M. Horigome, H. Masunaga, H. Ogawa, A. Takahara, "Precise and Non-destructive Characterization of 'Buried' Nano-structure in Polymer Thin Film by Synchrotron Radiation Ultra-Small Angle X-ray Scattering", *Polym. J.*, **45**, 307-312 (2013). (Featured Article)
6. H. Xu, J. Nishida, H. Wu, Y. Higaki, H. Otsuka, N. Ohta, A. Takahara, "Structural Effects of Catechol-Containing Polystyrene Gels Based on Dual Cross-linking Approach", *Soft Matter*, **9**, 1967-1974 (2013).
7. W. Ma, Y. Higaki, H. Otsuka, A. Takahara, "Perfluoropolyether-infused nano-texture: a versatile Approach to omniphobic coatings with low hysteresis and high transparency", *Chem. Comm.*, **49**, 597 – 599 (2013).
8. Yano, Y. Higaki, D. Tao, D. Murakami, M. Kobayashi, N. Ohta, Y. Ikemoto, T. Moriwaki, A. Takahara, "Orientation of Poly(vinyl alcohol) Nanofiber and Crystallites in Non-woven Electrospun Nanofiber Mats under Uniaxial Stretching", *Polymer*, **53**, 4702–4708 (2012).

###### 【A01】「生体機能性樹状高分子を用いたソフトインターフェースの設計」（代表者：三浦佳子）

9. H. Seto, M. Takara, C. Yamashita, T. Murakami, T. Hasegawa, \*Y. Miura, "Surface Modification Siliceous Materials using Maleimidation and Various Functional Polymer Synthesized by Reversible Addition Fragmentation Chain Transfer Polymerization" *ACS Appl. Mat. Int.* **2012**, 4, 5125. (A02 公募・長谷川との共同研究)
10. \*Y. Miura, S. Onogi, T. Fukuda, "Syntheses and Biological Ability of Sulfo-Glycodendrimer via Click Chemistry" *Molecules*, **2012**, 17, 11877.
11. Y. Hoshino, M. Nakamoto, Y. Miura, "Control of Protein-Binding Kinetics on Synthetic Polymer Nanoparticles by Tuning Flexibility and Inducing Conformation Changes of Polymer Chains", *J. Am. Chem. Soc.*, **134**, 37, 15209-15212.
12. Y. Maeda, A. Matsumoto, Y. Miura, \*Y. Miyahara, "Preparation of alpha-mannoside hydrogel and electrical detection of saccharide-protein interactions using the smart gel-modified gate field effect transistor", *Nanoscale Res. Lett.* **2012**, 7, 108. (A03 計画・宮原との共同研究)
13. E. Matsumoto, K. Nishizawa, T. Fukuda, M. Takai, \*Y. Miura, "Separation capability of proteins using microfluidic system with dendrimer modified surface", *Trans. Mat. Res. Soc. Japan*, **2011**, 36, 541. (高井先生との共同研究)
14. T. Fukuda, E. Matsumoto, S. Onogi, \*Y. Miura, "Aggregation of Alzheimer Amyloid  $\beta$  Peptide (1-42) on the Multivalent Sulfonated Sugar Interface", *Bioconjugate Chem.* **2010**, 21, 1079.

##### —A02：ソフト界面分子計測「ソフト界面を探る」—

###### 【A02】「高分子ブラシの機能と近傍の水の動態との相関に関する研究」（代表者：北野博巳・分担者：源明誠）

15. \*Gemmei-Ide, M.; Kasai, R.; Motonaga, T.; \*Kitano, H., "Two-step recrystallization of water in concentrated aqueous solution of poly(ethylene glycol)", *J. Phys. Chem. B* **2013**, 117, 2188-2194.
16. M. Murou, H. Kitano, M. Fujita, M. Maeda, and Y. Saruwatari, "Self-association of zwitterionic polymer-lipid conjugates in water as examined by scattering measurements," *J. Colloid Interface Sci.*, **390**, 47–53 (2012). (A03 計画・前田との共同研究)
17. \*Kitano, H.; Liu, T.; Tokuwa, K.; Li, L.; Iwanaga, S.; Nakamura, M.; Kanayama, N.; Ohno, K.; Saruwatari, Y., "Polymer brush with pendent glucosylurea groups constructed on a glass substrate", *Eur. Polym. J.* **2012**, 48, 1875-1882. (A02 公募・魚崎との共同研究)
18. Kondo, T.; Nomura, K.; Murou, M.; Gemmei-Ide, M.; \*Kitano, H.; Ohno, K.; Noguchi, H.; \*Uosaki, K.; Saruwatari, Y.,

- "Structure of water in the vicinity of a zwitterionic polymer brush as examined by sum frequency generation method", *Colloids Surfaces B: Biointerfaces* **2012**, *100*, 126-132.
19. Kondo, T.; Gemmei-Ide, M.; \*Kitano, H.; Ohno, K.; Noguchi, H.; \*Uosaki, K., "Sum frequency generation study on the structure of water in the vicinity of an amphoteric polymer brush", *Colloids Surfaces B: Biointerfaces* **2012**, *91*, 215-218.
  20. \*Gemmei-Ide, M.; Ohya, A.; \*Kitano, H., "Thermally latent water in a polymer matrix", *J. Phys. Chem. B* **2010**, *114*, 4310-4312.

#### 【A02】「ソフトインターフェースの高分子鎖構造直接観察と解析」(代表者: 熊木治郎)

21. Y. Takanashi, \*J. Kumaki, "Significant Melting Point Depression of Two-Dimensional Folded-Chain Crystals of Isotactic Poly(methyl methacrylate)s Observed by High-Resolution In-Situ Atomic Force Microscopy", *J. Phys. Chem. B*, **2013**, *117*, 5594-5605.
22. K., Sugihara, \*J. Kumaki, "Visualization of Two-Dimensional Single Chain Conformations Solubilized in Miscible Polymer Blend Monolayer by Atomic Force Microscopy", *J. Phys. Chem. B*, **2012**, *116*, 6561-6568.
23. Y. Sasaki, N. Aiba, H. Hashimoto, \*J. Kumaki, "Reversible Hierarchical Phase Separation of a Poly(methyl methacrylate) and Poly(n-nonyl acrylate) Blend in a Langmuir Monolayer", *Macromolecules*, **2010**, *43*, 9077-9086.
24. N. Aiba, Y. Sasaki, \*J. Kumaki, "Strong Compression Rate Dependence of Phase Separation and Stereocomplexation between Isotactic and Syndiotactic Poly(methyl methacrylate)s in a Langmuir Monolayer Observed by Atomic Force Microscopy", *Langmuir*, **2010**, *26*, 12703-12708.

#### 【A02】「生体機能分子を固定したソフト界面の表面力測定」(代表者: 栗原和枝・分担者: 水上雅史)

25. H. Matsubara, F. Pichierri, \*K. Kurihara, "Mechanism of Diffusion Slowdown in Confined Liquids", *Phys. Rev. Lett.* **109**, 197801 (2012).
26. M. Mizukami, A. Kobayashi, \*K. Kurihara, "Structuring of Interfacial Water on Silica Surface in Cyclohexane Studied by Surface Forces Measurement and Sum Frequency Generation Vibrational Spectroscopy<sup>1</sup>", *Langmuir* **28**, 14284-14290 (2012).
27. T. Kamijo, M. Kasuya, M. Mizukami, \*K. Kurihara, "Direct Observation of Double Layer Interactions between the Potential Controlled Gold Electrode Surfaces Using the Electrochemical Surface Forces Apparatus", *Chem. Lett.*, **40**, 674-675 (2011).
28. \*K. Kurihara, "Polyelectrolyte Brushes Studied by Surface Forces Measurement", *Adv. Colloid Interface Sci.* **158**, 130-138 (2010).

#### 【A02】「3次元ナノ相分離膜構造と高感度分子認識能の動的解析」(代表者: 佐藤 縁・分担者: 丹羽 修、吉岡恭子、田中睦生)

29. \*Y. Sato, K. Yoshioka, T. Murakami, S. Yoshimoto, and O. Niwa, "Design of Biomolecular Interface for Detecting Carbohydrate and Lectin Weak Interactions", *Langmuir*, **28**, 1846-1851 (2012).
30. T. Nishimura, \*Y. Sato, M. Tanaka, R. Kurita, K. Nakamoto and O. Niwa, "Bifunctional tri(ethylene glycol) alkanethiol monolayer modified gold electrode for on chip electrochemical immunoassay of pg level leptin", *Anal. Sci.*, **27**, 465-469 (Cover & Hot article) (2011).
31. K. Yoshioka, Y. Sato, T. Murakami, M. Tanaka, and \*O. Niwa, "One-step Detection of Galectins on Hybrid Monolayer Surface with Protruding Lactoside", *Anal. Chem.*, **82**, 1175-1178 (2010).
32. \*Y. Sato, K. Yoshioka, M. Tanaka, T. Murakami, M. N. Ishida, and O. Niwa, "Recognition of lectin with high S/N ratio: carbohydrate- / tri(ethylene glycol)alkanethiol co-adsorbed monolayer", *Chem. Commun.*, 4909-4911 (2008).

#### 【A02】「高分子イオン密生ソフト界面のナノ構造と機能の相関」(代表者: 松岡秀樹)

33. A. Ghosh, S. Yusa, \*H. Matsuoka and Y. Saruwatari, "Effect of Chain Length and Salt on the Temperature-Responsive Cationic Amphiphilic Diblock Copolymer", *J. Chem. Biol. Interface*, **1**, 1-8 (2013).
34. \*H. Matsuoka, H. Chen, K. Matsumoto, "Molecular Weight Dependence of Non-Surface Activity for Ionic Amphiphilic Diblock Copolymers", *Soft Matter*, **8**, 9140 – 9146 (2012).
35. A. Ghosh, S. Yusa, \*H. Matsuoka and Y. Saruwatari, "Non-Surface Activity and Micellization Behavior of Cationic Amphiphilic Block Copolymer Synthesized by Reversible Addition - Fragmentation Chain Transfer Process", *Langmuir*, **27**, 9237-9244 (2011).
36. \*H. Matsuoka, Y. Suetomi, P. Kaewsaiha, K. Matsumoto, "Nanostructure of Poly(Acrylic Acid) Brush and its Transition in the Amphiphilic Diblock Copolymer Monolayer on the Water Surface", *Langmuir*, **25**, 13752-13762, (2009).

#### —A03: ソフト界面分子認識(ソフト界面を活かす)—

#### 【A03】「分子認識バイオインターフェースのナノ構築と細胞機能診断デバイスへの展開」(代表者: 高井まさか)

37. E. Watarai, R. Matsuno, T. Konno, K. Ishihara, \*M. Takai, "QCM-D analysis of material-cell interactions targeting a single cell during initial cell attachment", *Sensors and Actuators B*, **171-172**, 1297-1302, (2012).
38. J.-H. Seo, T. Shibayama, M. Takai, \*K. Ishihara, "Quick and simple modification of poly(dimethylsiloxane) surface by optimized molecular design of the anti-biofouling phospholipid copolymer", *Soft Matter*, **7**, 2968-2976 (2011).
39. N. Tajima, \*M. Takai, and K. Ishihara, "Significance of Antibody Orientation Unraveled: Well-Oriented Antibodies Recorded High Binding Affinity", *Anal. Chem.*, **83**, 1969-1976 (2011).

40. Y. Xu, \*M. Takai, and K. Ishihara, "Protein adsorption and cell adhesion on cationic, neutral, and anionic 2-methacryloyloxyethyl phosphorylcholine copolymer surfaces", *Biomaterials*, **30**, 4930-4938 (2009).

【A03】「高度分子認識を目指した生体分子と合成高分子のなす超構造界面密生層の構築」(代表者:長崎幸夫・分担者:吉本敬太郎、原暁非、堀口諭吉)

41. X. Yuan, D. Fabregat, K. Yoshimoto, \*Y. Nagasaki, "Development of a high-performance immunolatex based on "soft landing" antibody immobilization mechanism", *Colloid and Surface B: Biointerface*, **99**, 45-52 (2012).
42. K. Yoshimoto, M. Nishio, H. Sugasawa, \*Y. Nagasaki, "Direct Observation of Adsorption-Induced Inactivation of Antibody Fragments Surrounded by Mixed-PEG Layer on a Gold Surface", *Journal of the American Chemical Society*, **132**, 7982-7989 (2010).
43. X. Yuan, D. Fabregat, K. Yoshimoto, \*Y. Nagasaki, "Efficient Inhibition of Interfacial Nonspecific Interaction to Create Practically Utilizable High Ferritin-Response Immunolatex", *Analytical Chemistry*, **81**, 10097-10105 (2009).
44. K. Yoshimoto, M. Nozawa, S. Matsumoto, T. Echigo, S. Nemoto, T. Hatta, \*Y. Nagasaki, "Studies on the Adsorption Property and Structure of Polyamine-Ended Poly(ethylene glycol) Derivatives on a Gold Surface by Surface Plasmon Resonance and Angle-resolved X-ray Photoelectron Spectroscopy", *Langmuir*, **25**, 12243-12249 (2009).
45. S. Ganguli, K. Yoshimoto, S. Tomita, H. Sakuma, T. Matsuoka, K. Shiraki, \*Y. Nagasaki, "Regulation of Lysozyme Activity Based on Thermotolerant Protein/Smart Polymer Complex Formation", *Journal of the American Chemical Society*, **131**, 6549-6553 (2009).
46. X. Yuan, K. Yoshimoto, \*Y. Nagasaki, "High-performance Immunolatex Possessing A Mixed-PEG/Antibody Co-immobilized Surface: High Sensitive Ferritin Immunodiagnostics", *Analytical Chemistry*, **81**, 1549-1556 (2009).

【A03】「DNA 密生相が示す特異な界面現象の解明と応用」(代表者:前田瑞夫・分担者:宝田徹、藤田雅弘)

47. P. Pan, \*M. Fujita, W.-Y. Ooi, K. Sudesh, T. Takarada, A. Goto, and \*M. Maeda, "Thermoresponsive micellization and micellar stability of poly(*N*-isopropylacrylamide)-*b*-DNA diblock and miktoarm star polymers," *Langmuir*, **28**, 14347-14356 (2012).
48. W.-Y. Ooi, \*M. Fujita, P. Pan, H.-Y. Tang, K. Sudesh, K. Ito, N. Kanayama, T. Takarada, and \*M. Maeda, "Structural characterization of nanoparticles from thermoresponsive poly(*N*-isopropylacrylamide)-DNA conjugate," *J. Colloid Interface Sci.*, **374**, 315-320 (2012).
49. \*M. Fujita, Y. Katafuchi, K. Ito, N. Kanayama, T. Takarada, and M. Maeda, "Structural study on gold nanoparticle functionalized with DNA and its non-cross-linking aggregation," *J. Colloid Interface Sci.*, **368**, 629-635 (2012).
50. N. Kanayama, T. Takarada, and \*M. Maeda, "Rapid naked-eye detection of mercury ion based on non-crosslinking aggregation of double-stranded DNA-carrying gold nanoparticles," *Chem. Commun.*, **47**, 2077-2079 (2011).
51. P. Pan, \*M. Fujita, W.-Y. Ooi, K. Sudesh, T. Takarada, A. Goto, and \*M. Maeda, "DNA-functionalized thermoresponsive bioconjugates synthesized via ATRP and click chemistry," *Polymer*, **52**, 895-900 (2011).
52. T. Ohshiro and \*M. Maeda, "Single-molecule imaging of DNA duplexes immobilized on surfaces with a scanning tunneling microscope," *Chem. Commun.*, **46**, 2580-2583 (2010).

【A03】「半導体/生体分子ナノ界面の構築と遺伝子トランジスタへの応用」(代表者:宮原裕二・分担者:坂田利弥、松元亨、前田康弘)

53. T. Goda, A. B. Singi, Y. Maeda, A. Matsumoto, M. Torimura, H. Aoki and \*Y. Miyahara, "Label-free Potentiometry for Detecting DNA Hybridization using Peptide Nucleic Acid and DNA Probes", *Sensors* **2013**, *13*, 2267-2278. (A03 公募・青木(寛)との共同研究)
54. A. Matsumoto, N. Sato, T. Sakata, R. Yoshida, K. Kataoka, \*Y. Miyahara, "Chemical to Electrical Signal Transduction Synchronized with Smart Gel Volume Phase Transition", *Adv. Mater.* **2009**, *21*, 4372-4378.
55. A. Matsumoto, T. Endo, R. Yoshida, \*Y. Miyahara, "Electrical Visualization of Chemo-mechanical Signal Transduction Using a Smart Gel Gate-modified Field Effect Transistor", *Chem. Commun.* **2009**, *37*, 5609-5611.
56. A. Matsumoto, N. Sato, T. Sakata, K. Kataoka; \*Y. Miyahara, "Glucose-sensitive Field Effect Transistor Using Totally Synthetic Compounds", *J. Solid State Electrochem.* **2009**, *13*, 165-170.

【A03】「リガンド固定化相と細胞表面で形成されるソフト界面での動的現象の評価と応用」(代表者:山岡哲二・分担者:馬原淳)

57. Yamaoka T., Mahara A., Cell rolling column in purification and differentiation analysis of stem cells, *Reactive & Functional Polymers*, **71**:362-366, 2011.
58. Kakinoki, S., Uchida, S., Ehashi, T., Murakami, A., Yamaoka, T., Surface modification of poly(L-lactic acid) nanofiber with oligo(D-lactic acid)-bioactive-peptide conjugates for peripheral nerve regeneration, *Polymers*, **3**(2), 820-832, 2011.
59. Mahara A, Yamaoka T., Continuous separation of cells of high osteoblastic differentiation potential from mesenchymal stem cells on an antibody-immobilized column., *Biomaterials*, **31**:4231-7, 2010.
60. Mahara A, Yamaoka T., Antibody-immobilized column for quick cell separation based on cell rolling., *Biotechnol Prog.*, **26**:441-7, 2010.
61. Kakinoki S. and Yamaoka T., Stable modification of poly(lactic acid) surface with neurite outgrowth-promoting peptides via hydrophobic collagen-like sequence, *Acta Biomaterialia*, **6**, 1925-1930, 2010.

【公募研究】研究期間【前期】：2009（平成21）年度～2010（平成22）年度、【後期】：2011（平成23）年度～2012（平成24）年度

—A01：ソフト界面分子基盤「ソフト界面を創る」—

【A01 前期】「脂質流動界面のアレイ化と分子認識」（代表者：岩崎泰彦）

62. \*Iwasaki Y., Matsuno H. Metabolic delivery of methacryloyl groups on living cells and cell surface modification via thiol-ene "click" reaction. *Macromol. Biosci.* 2011; 11:1478-1483.
63. \*Iwasaki Y., Ota T. Efficient biotinylation of methacryloyl-functionalized nonadherent cells for formation of cell microarrays. *Chem. Commun.* 2011; 10329-10331.
64. Nakai K, Morigaki K, \*Iwasaki Y., Molecular recognition on fluidic lipid bilayer microarray corralled by well-defined polymer brushes. *Soft Matter* 2010; 6: 5937-5943.

【A01 前期】「水中での高分子の自発的集合化に基づく動的界面の創製とその機能・メカニズム解析」

【A01 後期】「ソフト界面制御によるナノ・マイクロ粒子の微細構造制御とその機能開発」（代表者：岸村顕広）

65. \*H. Oana, M. Morinag, \*A. Kishimura, K. Kataoka, M. Washizu, "Direct Formation of Giant Unilamellar Vesicles from Microparticles of Polyion Complexes and Investigation of Their Properties Using a Microfluidic Chamber", *Soft Matter*, **2013**, 9, 5448-5458.
66. Y. Anraku, \*A. Kishimura, Y. Yamasaki, \*K. Kataoka, "Living unimodal growth of polyion complex vesicles via 2D supramolecular polymerization", *J. Am. Chem. Soc.*, **2013**, 135, 1423–1429.
67. Y. Anraku, \*A. Kishimura, A. Kobayashi, M. Oba, and \*K. Kataoka, "Size-controlled long-circulating PICsome as ruler to measure critical cut-off disposition size into normal and tumor tissues", *Chem. Commun.*, **2011**, 47, 6054–6056.
68. Y. Anraku, \*A. Kishimura, M. Oba, Y. Yamasaki, and \*K. Kataoka, "Spontaneous Formation of Nanosized Unilamellar Polyion Complex Vesicles with Tunable Size and Properties", *J. Am. Chem. Soc.*, **2010**, 132, 1631-1636.
69. \*H. Oana, \*A. Kishimura, K. Yonehara, Y. Yamasaki, M. Washizu, and K. Kataoka, "Spontaneous Formation of Giant Unilamellar Vesicles from Microdroplets of Polyion Complex via Thermally Induced Phase Separation", *Angew. Chem. Int. Ed.*, **2009**, 48, 4613-4616. (Selected as a 'Hot Paper')

【A01 前期】「バイオリソグラフィー手法の開発と表面加工への展開」

【A01 後期】「高分子規則表面のバイオエッティングとソフトマター分子群集積化への応用」（代表者：吉川佳広）

70. \*Y. Kikkawa, M. Fukuda, N. Ichikawa, A. Kashiwada, K. Matsuda, M. Kanesato, T. Hiraishi: Tuning the Enzymatic Hydrolysis of Biodegradable Polyesters and It's Application to Surface Patterning, *Journal of Materials Chemistry A*, 1, 4667-4670 (2013).
71. \*Y. Kikkawa, M. Fukuda, A. Kashiwada, K. Matsuda, M. Kanesato, M. Wada, T. Imanaka, \*T. Tanaka: Binding Ability of Chitinase onto Cellulose: An Atomic Force Microscopic Study, *Polymer Journal*, **43**, 742-744 (2011).
72. \*Y. Kikkawa, M. Takahashi, M. Aoyagi, H. Suga, M. Kanesato, H. Abe: Surface Patterning of Poly( $\epsilon$ -caprolactone): Epitaxial Crystallization and Enzymatic Degradation, *Macromolecular Chemistry and Physics* 211, 2480-2483 (2010).
73. \*Y. Kikkawa, H. Kihara, M. Takahashi, M. Kanesato, T. S. Balaban, and J.-M. Lehn: Two-Dimensional Structures of Anthracene Derivatives: "In Situ" Photodimerization and Host-Guest Chemistry, *The Journal of Physical Chemistry B*, 114, 16718–16722 (2010).
74. \*Yoshihiro Kikkawa, Kenji Kurokawa, Ryota Kimura, Mayuko Takahashi, Masatoshi Kanesato, \*Hideki Abe: Solvent Induced Morphological Diversification in Poly(L-lactide-*b*- $\epsilon$ -caprolactone) block copolymer thin films, *Polymer Degradation and Stability*, 95, 1414-1420 (2010).

【A01 前期】「インターロック構造を基盤とするソフト界面の新接着法」（代表者：小山靖人）

75. Y. Kohsaka, Y. Koyama, T. Takata, "Graft Polyrotaxane: A New Class of Graft Copolymers with Mobile Graft Chains", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2011**, 50, 10417–10420. [Introduced by *Chemistry World Magazine* 2011]
76. Y. Kohsaka, K. Nakazono, Y. Koyama, S. Asai, T. Takata, "Size-complementary Rotaxane Cross-link for Stabilization and Degradation of Supramolecular Network", *Angew. Chem. Int. Ed.* **2011**, 50, 4872-4875. [Introduced by *NPG Asia Materials* 2011]
77. Y.-G. Lee, Y. Koyama, M. Yonekawa, \*T. Takata, "Synthesis of Main Chain-Type Polyrotaxanes by New Click Polymerization Using Homoditopic Nitrile N-Oxides via Rotaxanation-Polymerization Protocol", *Macromolecules* **2010**, 43, 4070-4080. [Selected as Cover Page Picture]
78. K. Nakazono, T. Takashima, T. Arai, Y. Koyama, \*T. Takata, "High-Yield One-Pot Synthesis of Permethylated  $\alpha$ -Cyclodextrin-based Polyrotaxane in Hydrocarbon Solvent through an Efficient Heterogeneous Reaction", *Macromolecules* **2010**, 43, 691-696.

【A01 前期】「高分子ブロック共重合体薄膜における2重らせんシリンダー構造の配向制御」（代表者：陣内浩司）

79. L. Li, K. Matsunaga, J. Zhu, T. Higuchi, H. Yabu, M. Shimomura, H. Jinnai, \*R. C. Hayward, T. P. Russell, "Solvent-Driven Evolution of Block Copolymer Morphology under 3D Confinement", *Macromolecules*, **43**, 7807-7812 (2010).
80. \*H. Jinnai, R. J. Spontak, T. Nishi, "Transmission Electron Microtomography and Polymer Nanostructures", *Macromolecules*, **43**, 1675-1688 (2010).
81. Y. Zhao, K. Thorkelsson, A. J. Mastroianni, T. Schilling, J. M. Luther, B. J. Rancatore, K. Matsunaga, H. Jinnai, Y. We, D.

Poulsen, J. M. J. Frechet, A. P. Alivisatos, \*T. Xu, "Small-Molecule-Directed Nanoparticle Assembly Toward Stimuli-responsive Nanocomposites", *Nat. Mater.*, **8**, 979-985 (2009).

【A01 前期】「pH 応答性インターフェースを持つ架橋ポリマーソームの創成」

【A01 後期】「高度に機能化された感温性ソフトインターフェースを持つ架橋ポリマーソームの創成」

(代表者：遊佐真一)

82. M. Inoue, K. Noda, \*S. Yusa, "Hollow nanoparticles prepared from pH-responsive template polymer micelles", *J. Polym. Sci. Part A: Polym. Chem.*, **50**, (2012), 2596-2603.
83. P. Akkahat, S. Kiatkamjornwong, S. Yusa, V. P. Hoven, \*Y. Iwasaki, "Development of a novel antifouling platform for biosensing probe immobilization from methacryloyloxyethyl phosphorylcholine-containing copolymer brushes", *Langmuir*, **28**, (2012), 5872-5881. (A01 公募・岩崎との共同研究)
84. \*S. Yusa, "Self-assembly of cholesterol-containing water-soluble polymers", *International Journal of Polymer Science*, **2012**, (2012), Article ID 609767 (10 pages).
85. M. Ito, R. Enomoto, K. Osawa, Y. Daiko, T. Yazawa, S. Fujii, Y. Yokoyama, Y. Miyanari, Y. Nakamura, A. Nakao, Y. Iwasaki, \*S. Yusa, "pH-responsive flocculation and dispersion behavior of Janus particles in water", *Polym. J.*, **44**, (2012), 181-188.
86. \*S. Yusa, Y. Shimada, T. Imae, Y. Morishima, "Self-association behavior in water of an amphiphilic diblock copolymer comprised of anionic and dendritic blocks", *Polym. Chem.*, **2**, (2011), 1815-1821.
87. F. Goto, K. Ishihara, Y. Iwasaki, K. Katayama, R. Enomoto, \*S. Yusa, "Thermo-responsive behavior of hybrid core cross-linked polymer micelles with biocompatible shells", *Polymer*, **52**, (2011), 2810-2818.
88. \*S. Yusa, S. Awa, M. Ito, T. Kawase, T. Takada, K. Nakashima, D. Liu, S. Yamago, Y. Morishima, "Solubilization of C<sub>60</sub> by micellization with a thermoresponsive block copolymer in water: Characterization, singlet oxygen generation, and DNA photocleavage", *J. Polym. Sci. Part A: Polym. Chem.*, **49**, (2011), 2761-2770.
89. A. Ghosh, S. Yusa, \*H. Matsuoka, Y. Saruwatari, "Non-surface activity and micellization behavior of cationic amphiphilic block copolymer synthesized by reversible addition-fragmentation chain transfer process", *Langmuir*, **27**, (2011), 9237-9244. (A02 計画・松岡との共同研究)
90. S. Kousaka, M. Ito, \*S. Yusa, "Photo-induced association behavior of poly(sodium acrylate) bearing a small amount of malachite green", *J. Polym. Sci. Part A: Polym. Chem.*, **49**, (2011), 4586-4593.
91. \*S. Yusa, T. Endo, M. Ito, "Synthesis of thermo-responsive 4-arms star-shaped porphyrin-centered poly(*N,N*-diethylacrylamide) via reversible addition-fragmentation chain transfer (RAFT) radical polymerization", *J. Polym. Sci.: Part A: Polym. Chem.*, **47**, (2009), 6827-6838.
92. \*S. Yusa, Y. Yokoyama, Y. Morishima, "Synthesis of oppositely charged block copolymers of poly(ethylene glycol) via reversible addition-fragmentation chain transfer (RAFT) radical polymerization and characterization of their polyion complex (PIC) micelles in water", *Macromolecules*, **42**, (2009), 376-383.
93. \*S. Yusa, M. Sugahara, T. Endo, Y. Morishima, "Preparation and characterization of a pH-responsive nanogel based on a photo-cross-linked micelle formed from block copolymers with controlled structure", *Langmuir*, **25**, (2009), 5258-5265.

【A01 前期】「高速親水化ソフト界面が構築できるポリマーの創製と分子インプリントング法への応用」

【A01 後期】「診断デバイスの微細化に対応できる高速親水化ポリマーの創製と高感度診断基材への応用」

(代表者：渡邊順司)

94. Y. Tosaki, J. Miyake, \*J. Watanabe, and \*Y. Ikeda, "Higher Stability Aggregation Obtained Using Hydrophilic-Hydrophobic Block Copolymer Based on Poly(trimethylene carbonate)", *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.*, **37**, 345-348 (2012).
95. K. Terao, J. Miyake, \*J. Watanabe, and \*Y. Ikeda, "Regulation of Protein Loading on Poly(trimethylene carbonate), Poly(L-lactic acid), and Their Copolymer: Effect of Surface Enrichment by Polymer Crystallinity", *Mater. Sci. Eng. C*, **32**, 988-993 (2012).
96. Y. Tosaki, J. Miyake, \*J. Watanabe, and \*Y. Ikeda, "Design of Poly(trimethylene carbonate) with Hydrophilic Polymer Chain and its Aggregation Property", *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.*, **36**, 565-568 (2011).
97. K. Terao, \*J. Watanabe, and \*Y. Ikeda, "Surface Enrichment of Hydrophilic or Hydrophobic Segment for Fine Biointerfaces", *Trans. Mater. Res. Soc. Jpn.*, **35**, 131-134 (2010).

【A01 後期】「DNA の二次元自己組織化によるインテリジェントソフト界面の創出」(代表者：葛谷明紀)

98. \*A. Kuzuya, T. Yamazaki, K. Yasuda, Y. Sakai, Y. Yamanaka, Y. Xu, Y. Aiba, Y. Ohya, M. Komiyama, "Nanomechanical DNA Origami Devices as Versatile Molecular Sensors", *IEEE NEMS 2012*, 405-408 (2012).
99. T. Yamazaki, Y. Aiba, K. Yasuda, Y. Sakai, Y. Yamanaka, \*A. Kuzuya, Y. Ohya, \*M. Komiyama, *Chem. Commun.*, **48**, 11361-11363 (2012).
100. \*A. Kuzuya, \*Y. Ohya, "DNA Nanostructures as Scaffolds for Metal Nanoparticles", *Polym. J.*, **44**, 452-460 (2012).

【A01 後期】「機能性環状高分子ミセルの開発」(代表者：山本拓矢)

101. Hatakeyama, F.; \*Yamamoto, T.; \*Tezuka, Y., "Systematic Synthesis of Block Copolymers Consisting of Topological Amphiphilic Segment Pairs from *kyklo*- and *kentro*-Telechelic PEO and Poly(THF)", *ACS Macro Lett.* **2013**, 2, 427-431.
102. Honda, S.; \*Yamamoto, T.; \*Tezuka, Y., "Tunable, "Enhancement of the Salt and Thermal Stability of Polymeric Micelles

by Cyclized Amphiphiles”, *Nature Commun.* **2013**, *4*, 1574.

103. Sugai, N.; \*Yamamoto, T.; \*Tezuka, Y., “Synthesis of Orientationally Isomeric Cyclic Stereoblock Polylactides with Head-to-Head and Head-to-Tail Linkages of the Enantiomeric Segments”, *ACS Macro Lett.* **2012**, *1*, 902–906.
104. Baba, E.; Honda, S.; \*Yamamoto, T.; \*Tezuka, Y., “ATRP–RCM Polymer Cyclization: Synthesis of Amphiphilic Cyclic Polystyrene-*b*-Poly(Ethylene Oxide) Copolymers”, *Polym. Chem.* **2012**, *3*, 1903–1909.
105. Tada, Y.; \*Yamamoto, T.; \*Tezuka, Y.; Kawamoto, T.; Mori, T., “Effective Synthesis and Crystal Structure of a 24-Membered Cyclic Decanedisulfide Dimer”, *Chem. Lett.* **2012**, *41*, 1678–1680.

#### 【A01 後期】「膜エネルギー変化の制御と機能界面デザイン」(代表者：高木昌宏)

106. M. C. Vestergaard, M. Morita, T. Hamada, \*M. Takagi, “Membrane fusion and vesicular transformation induced by Alzheimer's Amyloid beta”, *Biochim. Biophys. Acta, Biomembr.*, **1828**, 1314–1321 (2013).
107. T. Muraoka, T. Shima, T. Hamada, M. Morita, M. Takagi, K. V. Tabata, H. Noji, and \*K. Kinbara, “Ion Permeation by a Folded Multiblock Amphiphilic Oligomer Achieved by Hierarchical Construction of Self-Assembled Nanopores”, *J. Am. Chem. Soc.*, **134**, 19788–19794 (2012).
108. T. Hamada, M. Morita, M. Miyakawa, R. Sugimoto, M. C. Vestergaard, \*M. Takagi, “Size-dependent partitioning of nano/micro-particles mediated by membrane lateral heterogeneity”, *J. Am. Chem. Soc.*, **134**, 13990–13996 (2012).
109. T. Yoda, M. C. Vestergaard, T. Hamada, Le Phuc T. Minh, \*M. Takagi, “Thermo-induced vesicular dynamics of membranes containing cholesterol derivatives”, *Lipids*, **47**, 813–820 (2012).
110. T. Muraoka, T. Shima, T. Hamada, M. Morita, M. Takagi, \*K. Kinbara, “Mimicking multipass transmembrane proteins: Synthesis, assembly and folding of alternating amphiphilic multiblock molecules in liposomal membranes”, *Chem. Comm.*, **47**, 194–196 (2011).

#### 【A01 後期】「細胞サイズ小胞が形成するソフト界面：その特異性を活用した新奇物性」(代表者：吉川研一)

111. Y. Yoshikawa, N. Umezawa, Y. Imamura, T. Kanbe, N. Kato, K. Yoshikawa, T. Imanaka, T. Higuchi, “Effective Chiral Discrimination of Tetravalent Polyamines on Single-DNA Compaction”, *Angewandte Chemie*, **52**, 3712–3716 (2013).
112. Y. Chen, K. Suzuki, H. Mahara, K. Yoshikawa, T. Tamaguchi, “Self-organized Archimedean Spiral Pattern: Regular Bundling of Fullerene through Solvent Evaporation”, *Applied Physics Letters*, **102**, 041911 (2013).
113. H. Schiessel, M. D. Correa-Rodríguez, S. Rudiuk, D. Baigl, \*K. Yoshikawa, “Theory of DNA-cationic micelle complexation”, *Soft Matter*, **8**, 9406–9411 (2012).
114. H. Ito, M. Yanagisawa, M. Ichikawa, and \*K. Yoshikawa, “Emergence of a thread-like pattern with charged phospholipids on an oil/water interface”, *Journal of Chemical Physics*, **136**, 204903 (2012).
115. Y. Sumino, K. H. Nagai, Y. Shitaka, D. Tanaka, \*K. Yoshikawa, H. Chaté, K. Oiwa, “Large-scale vortex lattice emerging from collectively moving microtubules”, *Nature*, **483**, 448–452 (2012).
116. T. Tsuruyama, W. Liu, \*K. Yoshikawa, “In Vitro Murine Leukemia Retroviral Integration and Structure Fluctuation of Target DNA”, *PLoS ONE*, **7**, e31533 (2012).
117. M. Yanagisawa, N. Shimokawa, M. Ichikawa, \*K. Yoshikawa, “Micro-segregation induced by bulky-head lipids: Formation of characteristic patterns in a giant vesicle”, *Soft Matter*, **8**, 488–495 (2012).

#### 【A01 後期】「ソフト界面構築による強磁性ナノ粒子の機能化」(代表者：栄長泰明)

118. T. Nakamura, T. Yamamoto, M. Matoba, Y. Einaga, \*Y. Kamihara, “Paramagnetic phase of heavy-fermion compound, CeFePO, probed by 57Fe Mossbauer spectroscopy”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **81**, 064714-1–4 (2012).
119. \*D. Pajerowski, T. Yamamoto, Y. Einaga, “Photomagnetic K0.25Ni1-xCox[Fe(CN)6]•nH2O and K0.25Co[Fe(CN)6]0.75y[Cr(CN)6]0.75(1-y)•nH2O Prussian Blue Analogue Solid Solutions”, *Inorg. Chem.*, **51**, 3648–3655 (2012).
120. Y. Sakamoto, Y. Oba, H. Maki, M. Suda, Y. Einaga, \*T. Sato, M. Mizumaki, N. Kawamura, M. Suzuki, “Ferromagnetism of Pt nanoparticles induced by surface chemisorption”, *Phys. Rev. B*, **83**, 104420-1–13 (2011).
121. A. W. Indrianingsih, M. Suda, Y. Heta, K. Suzuki, \*Y. Einaga, “Surface Modification of Ferromagnetic L10 FePt Nanoparticles Using Biotin-Avidin as Biomolecular Recognition Probes”, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **84**, 873–877 (2011).

#### 【A01 後期】「泡の安定性制御を可能とする刺激応答性ヘアリー粒子の創出」(代表者：藤井秀司)

122. \*S. Fujii, H. Hamasaki, H. Abe, S. Yamanaka, A. Ohtaka, E. Nakamura, Y. Nakamura, “One-step synthesis of magnetic iron-conducting polymer-palladium ternary nanocomposite microspheres and their use as recyclable catalyst”, *J. Mater. Chem. A*, **1**, 4427–4430 (2013).
123. \*S. Fujii, M. Kappl, H.-J. Butt, T. Sugimoto, Y. Nakamura, “Soft Janus colloidal crystal film”, *Angew. Chem. Int. Ed.* **51**, 9809–9813 (2012).
124. \*S. Fujii, K. Aono, M. Suzuki, S. Hamasaki, S. Yusa, Y. Nakamura, “pH-Responsive hairy particles synthesized by dispersion polymerization with a macroinitiator as an inistab and their use as a gas-sensitive liquid marble stabilizer”, *Macromolecules*, **45**, 2863–2873 (2012).
125. \*S. Fujii, S. Matsuzawa, H. Hamasaki, Y. Nakamura, A. Bouleghlimat, N. J. Buurma, “Polypyrrole-palladium nanocomposite coating of micrometer-sized polymer particles toward a recyclable catalyst”, *Langmuir*, **28**, 2436–2447 (2012).
126. \*S. Fujii, M. Suzuki, S. P. Armes, D. Dupin, S. Hamasaki, K. Aono, Y. Nakamura, “Liquid marbles prepared from pH-responsive sterically-stabilized latex particles”, *Langmuir*, **27**, 8067–8074 (2011).

127. \*S. Fujii, M. Suzaki, Y. Kakigi, K. Aono, S. Yusa, Y. Nakamura, "Dispersion polymerization using hydroxy-functional macroazoinitiators as an inistab" *J. Polym. Sci. Part A: Polym. Chem.*, **49**, 1633-1643 (2011). (A01 公募・遊佐との共同研究)

—A02：ソフト界面分子計測「ソフト界面を探る」—

【A02 前期】「單一分子検出による界面/薄膜における高分子鎖の物性解析」および

【A02 後期】「單一分子鎖の直接観察によって明らかにする高分子ソフト界面の物性」(代表者：青木裕之)

128. T. Ube, A. Shin, \*H. Aoki, S. Ito, "Conformation of Single Polymer Chain in Rubbed Thin Film Observed by Fluorescence Imaging", *Langmuir*, **28**, 13871-13876 (2012).
129. T. Ube, \*H. Aoki, S. Ito, J. Horinaka, T. Takigawa, "Relaxation of Single Polymer Chain in Binary Molecular Weight Blends Observed by Scanning Near-field Optical Microscopy", *Soft Matter*, **8**, 5603-5611 (2012).
130. L.-T. Lee, T. Ube, \*H. Aoki, S. Ito, "Characterization of Surface Compositions of Phase-Separated Structures in Conjugated Poly(phenylene vinylene) Blends by Scanning Near-Field Optical Microscopy", *Polymer*, **52**, 5897-5903 (2011).
131. T. Ube, \*H. Aoki, S. Ito, J. Horinaka, T. Takigawa, T. Masuda, "Relaxation of Single Polymer Chain in Poly(methyl methacrylate) Films under Uniaxial Extension Observed by Scanning Near-field Optical Microscopy", *Macromolecules*, **44**, 4445-4451 (2011).
132. R. Sekine, \*H. Aoki, S. Ito, "Chain End Distribution of Block Copolymer in Two-dimensional Microphase-Separated Structure Studied by Scanning Near-Field Optical Microscopy", *J. Phys. Chem. B*, **113**, 12865-12869 (2009).
133. Y. Tamai, R. Sekine, \*H. Aoki, S. Ito, "Conformation of Single Homopolymer Chain in Micro-Phase Separated Block Copolymer Monolayer Studied by Scanning Near-Field Optical Microscopy", *Macromolecules*, **42**, 4224-4229 (2009).
134. T. Ube, \*H. Aoki, S. Ito, J. Horinaka, T. Takigawa, T. Masuda, "Affine Deformation of Single Polymer Chain in Poly(methyl methacrylate) Films under Uniaxial Extension Observed by Scanning Near-Field Optical Microscopy", *Polymer*, **50**, 3016-3021 (2009).

【A02 前期】「時間分解界面振動分光法によるソフトマター界面構造の速度・分子論的追跡」(代表者：魚崎浩平)

135. M. Ito, H. Noguchi, K. Ikeda, \*K. Uosaki, "Substrate dependent structure of adsorbed aryl isocyanides studied by sum frequency generation (SFG) spectroscopy", *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **12** (3), 3156-3163, 2010.
136. H. Noguchi, K. Taneda, H. Minowa, H. Naohara, \*K. Uosaki, "Substrate dependent structure of adsorbed aryl isocyanides studied by sum frequency generation (SFG) spectroscopy", *J. Phys. Chem. C*, **114** (9) 3958-3961, 2010.
137. Y. Tateishi, N. Kai, H. Noguchi, K. Uosaki, T. Nagamura, and K. \*Tanaka, "Local Conformation of Poly(Methyl Methacrylate) at Nitrogen and Water Interfaces", *Polym. Chem.*, **1** (3), 303-311, 2010. (A02 公募・田中との共同研究)
138. \*K. Uosaki, H. Noguchi, R. Yamamoto, S. Nihonyanagi, "Interfacial Molecular Structures of Polyelectrolyte Brush in Contact with Dry Nitrogen, Water Vapor, Liquid Water, and Aqueous Electrolyte Solution Studied by Sum Frequency Generation Spectroscopy", *J. Am. Chem. Soc.*, **132** (48), 17271-17276, 2010.
139. H. Noguchi, K. Taneda, H. Minowa, H. Naohara, \*K. Uosaki, "Humidity-Dependent Structure of Surface Water on Perfluorosulfonated Ionomer Thin Film Studied by Sum Frequency Generation Spectroscopy", *J. Phys. Chem. C*, **114** (9) 3958-3961, 2010.

【A02 前期】「チップ増強ラマン散乱法による高分子超薄膜の相分離機構の研究」(代表者：尾崎幸洋)

140. L. Guo, H. Sato, T. Hashimoto, \*Y. Ozaki, "FTIR Study on Hydrogen-Bonding Interactions in Biodegradable Polymer Blends of Poly(3-hydroxybutyrate) and Poly(4-vinylphenol)", *Macromolecules*, **43**, 3897-3902 (2010).
141. \*J. Zhang, Y. Duan, A. J. Domb, Y. Ozaki, "PLLA Mesophase and Its Phase Transition Behavior in the PLLA-PEG-PLLA Copolymer As Revealed by Infrared Spectroscopy", *Macromolecules*, **43**, 4240-4246 (2010).
142. H. Chang, J. Zhang, L. Li, Z. Wang, C. Yang, I. Takahashi, Y. Ozaki, \*S. Yan, "A Study on the Epitaxial Ordering Process of the Polycaprolactone on the Highly Oriented Polyethylene Substrate", *Macromolecules*, **43**, 362-366 (2010).
143. \*H. Sato, R. Murakami, K. Mori, Y. Ando, I. Takahashi, I. Noda, and Y. Ozaki, "Specific crystal structure of poly(3-hydroxybutyrate) thin films studied by infrared reflection-absorption spectroscopy", *Vibrational Spectroscopy*, **51**, 132-135 (2009).
144. H. Li, Y. Wu, H. Sato, L. Kong, C. Zhang, D. Tao, J. Chen, X. Liu, Y. Zhao, \*Y. Xu, J. Wu, and Y. Ozaki, "A New Facile Method for Preparation of Nylon-6 with High Crystallinity and Special Morphology" *Macromolecules*, **42**, 1175-1179 (2009).

【A02 前期】「ダイナミックな細胞内外輸送現象の1細胞定量解析法」(代表者：珠玖仁)

145. K. Ino, W. Saito, M. Kokide, T. Umemura, H. Shiku, T. Matsue, "Addressable electrode array device with IDA electrodes for high-throughput detection", *Lab Chip*, **11**, 385-388 (2011).
146. H. Shiku, D. Okazaki, J. Suzuki, Y. Takahashi, T. Murata, H. Akita, H. Harashima, K. Ino, T. Matsue, "Quantitative characterization of reporter gene expression at single-cell level with real-time RT-PCR, chemiluminescence, fluorescence, and electrochemical imaging", *FEBS Lett.*, **584**, 4000-4008 (2010).
147. H. J. Lee, S. H. Lee, T. Yasukawa, J. Ramón-Azcón, F. Mizutani, K. Ino, H. Shiku, T. Matsue, "Rapid and simple immunosensing system for simultaneous detection of tumor markers based on negative-dielectrophoretic manipulation of microparticles", *Talanta*, **81**, 657-663 (2010).
148. Y. Takahashi, Y. Murakami, K. Nagamine, H. Shiku, S. Aoyagi, T. Yasukawa, M. Kanzaki, T. Matsue, "Topographic

Imaging of Convoluted Surface of Live Cells by Scanning Ion Conductance Microscopy in a Standing Approach Mode”, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **12**, 10012-10017 (2010).

149. Y. Takahashi, A. I. Shevchuk, P. Novak, Y. Murakami, H. Shiku, Y. E. Korchev, T. Matsue, “Simultaneous non-contact topography and electrochemical imaging by SECM/SICM featuring ion current feedback regulation”, *J. Am. Chem. Soc.*, **132**(29), 10118-10126 (2010).

【A02 前期】「ソフト界面における自発的多重膜形成」

【A02 後期】「ソフト界面における多重膜形成のシナジズム」(代表者：瀧上隆智)

150. \*Takiue T., Tottori T., Tatsuta K., Matsubara H., Nitta K., Tanida H., Uruga T., and Aratono M., “Multilayer Formation of the Fluoroalkanol -  $\omega$ -Hydrogenated Fluorocarbon Mixture at the Hexane/Water Interface Studied by Interfacial Tensiometry and X-ray Reflection”, *Journal of Physical Chemistry B*, **116**, 13739 – 13748 (2012).
151. \*Takiue T., Nakamura F., Sakamoto H., Matsubara H., and Aratono M., “Miscibility and Multilayer Formation of Fluoroalkane- $\alpha,\omega$ -diol Mixture at the Air/Water Interface”, *J. Phys. Chem. B*, **115**, 471-477 (2011).
152. Aratono M., Matsubara H., and \*Takiue T., “Thermodynamic and Structure Studies of Gibbs Films at Soft Interfaces” *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, **99**, 51-55 (2010).
153. Murakami D., Fukuda T., Matsubara H., Aratono M., and \*Takiue T., “Molecular Orientation and Miscibility of Fluorinated  $\alpha,\omega$ -Alkanediol and Alcohol at the Hexane/Water Interface”, *Colloids and Surfaces A*, **354**, 205-209 (2010).
154. \*Takiue T., Fukuda T., Murakami D., Sakamoto H., Matsubara H., and Aratono M., “Molecular Orientation and Multilayer Formation in the Adsorbed Film of 1H,1H,10H,10H-Perfluorodecane-1,10-diol at the Hexane/Water Interface; Pressure Effect on the Adsorption of Fluoroalkane-diol”, *Journal of Physical Chemistry B*, **113**, 14667-14673 (2009).

【A02 前期】「ソフト界面における動的構造解析法の確立と界面拡散現象解明への展開」(代表者：田中敬二)

155. K. Hori, H. Matsuno, and \*K. Tanaka, “Sorption Kinetics of Methanol in Thin Poly(methyl methacrylate) Films Studied by Optical Reflectivity”, *Soft Matter* **7**(21), 10319-10326 (2011).
156. T. Hirata, H. Matsuno, M. Tanaka, and \*K. Tanaka, “Surface Segregation of Poly(2-methoxyethyl acrylate) in a Mixture with Poly(methyl methacrylate)”, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**(11), 4928-4934 (2011).
157. H. Matsuno, J. Nakahara, and \*K. Tanaka, “Dynamic Mechanical Properties of Solid Films of Deoxyribonucleic Acid”, *Biomacromolecules* **12**(1), 173-178 (2011).
158. Y. Fujii, T. Nagamura, \*K. Tanaka, “Relaxation Behavior of Poly(Methyl Methacrylate) at a Water Interface”, *J. Phys. Chem. B*, **114**(10), 3457-3460 (2010).
159. Y. Fujii, Z. Yang, J. Leach, H. Atarashi, and \*K. Tanaka, O. K. C. Tsui, “Affinity of Polystyrene Films to Hydrogen-Passivated Silicon and its Relevance to the Tg of the Films”, *Macromolecules* **42**(19), 7418-7422 (2009).
160. K. Akabori, H. Atarashi, M. Ozawa, T. Kondo, T. Nagamura, and \*K. Tanaka, “Glass Transition Behavior of Hyper-branched Polymers”, *Polymer* **50**(20), 4868-4875 (2009).
161. \*K. Tanaka, Y. Tateishi, Y. Okada, T. Nagamura, M. Doi, and H. Morita, “Interfacial Mobility of Polymers on Inorganic Solids”, *J. Phys. Chem. B*, **113**(14), 4571-4577 (2009).

【A02 前期】「NMRによるソフト界面間隙の液相分子クラスターの分子構造とダイナミクス解析」

(代表者：塚原剛彦)

162. K. Mawatari, T. Tsukahara, Y. Sugii, and T. Kitamori, “Extended-nano Fluidic Systems for Analytical and Chemical Technologies”, *Nanoscale*, **2**, 1588-1595 (2010).
163. K. Morikawa, K. Mawatari, M. Kato, T. Tsukahara, and T. Kitamori, “Streaming potential/current measurement systems for investigating liquid properties confined in extended-nano space”, *Lab on a Chip*, **10**, 871 - 875 (2010).
164. “T. Tsukahara, Temperature-Swing Separation of Radioactive Ions by Thermoresponsive Copolymer on a Microfluidic Chip”, *Bull. Res. Nucl. React.*, **33**, 41 (2009).

【A02 前期】「小腸壁における脂質吸収プロセスのモデリング」

【A03 後期】「小腸壁における濡れダイナミクスのコントロール」(代表者：野々村美宗)

165. T. Tanaka, H. Mayama, \*Y. Nonomura, “Direct geometrical observation of an agar gel droplet on a multi-pillar surface”, *Chemistry Letters*, **41**, 960-961 (2012).
166. \*Y. Nonomura, T. Tanaka, “Breath figure of water and ethanol on contaminated solid surfaces”, *Chemistry Letters*, **41**, 952-953 (2012).
167. Y. Kawamura, H. Mayama, \*Y. Nonomura, “Edible liquid marbles and capsules covered with lipid crystals”, *Journal of Oleo Science*, **61**, 477-482 (2012).
168. \*Y. Nonomura, S. Chida, E. Seino, H. Mayama, “Anomalous spreading with Marangoni flow on agar gel surfaces”, *Langmuir*, **28**, 3799-3806 (2012).
169. \*H. Mayama, Y. Nonomura, “Theoretical consideration of wetting on a cylindrical pillar defect: pinning energy and penetrating phenomena”, *Langmuir*, **27**, 3550-3560 (2011).
170. \*Y. Nonomura, Y. Morita, T. Hikima, E. Seino, S. Chida, H. Mayama, “Spreading behavior of water droplets on fractal agar gel surfaces”, *Langmuir*, **26**, 16150-16154 (2010).

【A02 前期】「界面の分子スケールでの局所電気二重層効果による酸化還元反応速度の理論解析」(代表者：山本雅博)

171. Yamamoto, M; “時評「その実験データの解析、ちょっととーなん?」”, 化学, **65**, 20-25 (2010).  
 172. Yamamoto, M; “講座: ポイント解説 Electric(cal) Double Layer: Tutorial 電気二重層: チュートリアル”, Review of Polarography, **56**, 11-30 (2010).

【A02 後期】「ポリマーナノスフィア積層組織化膜のX線利用精密分子配向解析と機能化」(代表者: 藤森厚裕)

173. \*A. Fujimori, S. Arai, J. Kusaka, M. Kubota, K. Kurosaka, “Formation and Structure of Langmuir-Blodgett Films of Organo-modified Alminosilicate with High Surface Coverage.”, *J. Colloid Interf. Sci.*, **392**, 2013, 256-265.  
 174. \*A. Fujimori, M. Taguchi, S. Hakozaiki, K. Kamishima, B. Ochiai, “Formation of Flat and Homogeneous Surfaces of Organized Molecular Films of Three-armed Polymerizable Amphiphiles with Metal-Scavenging Properties.”, *Langmuir*, **28**, 2012, 10830-10837.  
 175. \*A. Fujimori, J. Kusaka, M. Kubota, K. Kurosaka, “Montmorillonit-Monoschichten modifiziert mit biologisch abbaubaren Poumeren”, *Gummi Fasern Kunststoffe*, **2012**, 4, 242-244.  
 176. \*A. Fujimori, “Mixed Monolayer of Biodegradable Polymers and Organo-modified Montmorillonite.” *SPE Plastics Res. Online*, No7, 1-3, 2011.  
 177. \*A. Fujimori, J. Kusaka, R. Nomura, “Formation and Structure of Organized Molecular Films for Organo-modified Montmorillonite and Mixed Monolayer Behavior With Poly(L-lactide).”, *Polym. Eng. Sci.*, **51**(6), 1099-1107, 2011.

【A02 後期】「負吸着性化学種の気液界面単分子膜での濃縮と膜中拡散機構のオペランド解析」(代表者: 長谷川 健)

178. T. Shimoaka, \*T. Hasegawa, K. Ohno and Y. Katsumoto “Correlation between the Local OH Stretching Vibration Wavenumber and the Hydrogen Bonding Pattern of Water in a Condensed Phase: Quantum Chemical Approach to Analyze the Broad OH Band” *J. Mol. Struct.* **1029**, 209-216 (2012).  
 179. T. Shimoaka, Y. Itoh, and \*T. Hasegawa “Dynamic Rearrangement of Stearic Acid Molecules Adsorbed on a Gold Surface Induced by Ambient Water Molecules Studied by Infrared Spectroscopy” *J. Phys. Chem. C* **116**, 17142-17148 (2012).  
 180. Y. Itoh and \*T. Hasegawa, “Polarization Dependence of Raman Scattering from a Thin Film Involving Optical Anisotropy Theorized for Molecular Orientation Analysis”, *J. Phys. Chem. A* **116**, 5560-5570 (2012).  
 181. M. Muro, M. Harada, T. Okada, and \*T. Hasegawa, “Molecular Rearrangement in a Zinc Stearate Langmuir Film Dependent on a Film Preparation Method Studied Using Polarization-Modulation Infrared Reflection Absorption Spectroscopy and X-ray Absorption Fine Structure” *J. Phys. Chem. B* **116**, 3148-3154 (2012).  
 182. A. Kasuya, Y. Itoh, T. Okada, M. Osawa, Y. Takahashi, E. Kazuma, T. Tatsuma and \*T. Hasegawa, “Anisotropic Light Absorption by Localized Surface Plasmon Resonance in a Thin Film of Gold Nanoparticles Studied by Visible Multiple-Angle Incidence Resolution Spectrometry” *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**, 9691-9696 (2011).

【A02 後期】「高分子—液体間ナノ界面における高分子鎖シミュレーション解析」(代表者: 森田裕史)

183. H. Morita, I. Okabe, S. Agarwal, V. K. Singh, “Mesoscale simulation of the line-edge structure during positive and negative tone resist development process”, *Proc. SPIE*, 8325, 83250J, (2012).  
 184. H. Tsuruta, Y. Fujii, N. Kai, H. Kataoka, T. Ishizone, M. Doi, H. Morita, K. Tanaka, “Local Conformation and Relaxation of Polystyrene at Substrate Interface”, *Macromolecules*, **45**(11), 4643-4649 (2012). (A02 公募・田中との共同研究)  
 185. Y. Fujii, H. Morita, A. Takahara, K. Tanaka, “Mobility Gradient of Polystyrene in Films Supported on Solid Substrates”, *Adv. Polym. Sci.*, **252**(1), 1-27 (2013). (A02 公募・田中との共同研究)  
 186. H. Atarashi, T. Hirai, K. Hori, M. Hino, H. Morita, T. Serizawa and K. Tanaka, “Uptake of water in as-spun poly(methyl methacrylate) thin films”, *RSC ADVANCES*, **3**(11), 3516-3519 (2013). (A03 公募・芹澤との共同研究)

【A02 後期】「ソフト界面で修飾されたプラズモニックチップ上の高感度蛍光バイオセンシング」(代表者: 田和圭子)

187. K. Tawa\*, S. Haruta, T. Okutsu, and J. Nishii, “Photochemically Induced Crystallization of Proteins Accelerated on Two-Dimensional Gold Gratings”, *Japanese journal of applied physics*, **51**, 06FK09 (2012).  
 188. \*M. Mitsuishi, S. Morita, T. Miyashita, K. Tawa, and J. Nishii, “Spontaneous Emission Control of CdSe/ZnS Nanoparticle Monolayer in Polymer Nanosheet Waveguide Assembled on a One-Dimensional Silver Grating Surface”, *Langmuir*, **28**, 2313-2317 (2012).  
 189. \*K. Tawa, Y. Yokota, K. Kintaka, J. Nishii, T. Nakaoki, “An application of a plasmonic chip with enhanced fluorescence to a simple biosensor with extended dynamic range”, *Sensors and Actuators B: Chemical*, **157**, 703-709 (2011).  
 190. \*K. Tawa, X. Cui, K. Kintaka, J. Nishii, K. Morigaki, “Sensitive bioimaging in microfluidic channels on the plasmonic substrate: Application of an enhanced fluorescence based on the reverse coupling mode”, *J. Photochem. Photobiol. A: Chem.*, **221**, 261-267 (2011).  
 191. \*K. Tawa, T. Hattori, M. Umetsu, and I. Kumagai, “Zinc Oxide-Coated Plasmonic Chip Modified with a Bispecific Antibody for Sensitive Detection of a Fluorescent Labeled-Antigen”, *Analytical Chemistry*, **83**, 5944-5948 (2011).

—A03 : ソフト界面分子認識（ソフト界面を活かす）—

【A03 前期】「固液界面での分子ダイナミクスに基づく電気化学的な自己報告型遺伝子検出デバイス」

【A03 後期】「アロステリック電気化学アプタザイムに基づく高感度遺伝子センサ」(代表者: 青木 寛)

192. S. Kanata, \*T. Nishino, and H. Aoki “Effect of Aqueous Environment on Monolayer of Tetraion(III) Single Molecule Magnet”, *Journal of the Electrochemical Society*, 159-10, H772-H776 (2012).  
 193. T. Goda, Y. Maeda, R. Matsumoto, M. Torimura, \*H. Aoki, and \*Y. Miyahara, “Label-free Potentiometry for Detecting

DNA Hybridization using Peptide Nucleic Acid and DNA Probes: A Dominant Effect of Electrostatic Interaction with Underlying Surface”, *Sensors*, **13**, 2267-2278 (2012). (A03 計画・宮原との共同研究)

194. \*H. Aoki, A. Kitajima, and H. Tao, “Electrochemical Gene Sensor Arrays Prepared Using Non-contact Nanoliter Array Spotting of Gene Probes”, *Analytical Sciences*, **26** 367-370 (2010).
195. \*H. Aoki, A. Kitajima, and H. Tao “Label-free and “signal-on” DNA detection using a probe DNA terminated with ferrocene and β-cyclodextrin”, *Supramolecular Chemistry*, **22**, 455-460 (2010).
196. \*H. Aoki, A. Kitajima, and H. Tao, “Electrochemical Sensor Array Chips for Multiple Gene Detection”, *Sensors & Materials*, **22**, 327-336 (2010).

【A03 前期】「ラジカルポリマーゲルを用いた超高速電荷輸送ソフト界面の構築」(代表者：小柳津研一)

197. K. Oyaizu, T. Kawamoto, T. Suga, \*H. Nishide, “Synthesis and Charge Transport Properties of Redox-active Nitroxide Polyethers with Large Site Density”, *Macromolecules*, **43**, 10382-10389 (2010).
198. K. Oyaizu, A. Hatemata, W. Choi, \*H. Nishide, “Redox-active Polyimide/carbon Nanocomposite Electrodes for Reversible Charge Storage at Negative Potentials: Expanding the Functional Horizon of Polyimides”, *J. Mater. Chem.*, **20**, 5404-5410 (2010).
199. K. Oyaizu, \*H. Nishide, “Radical Polymers for Organic Electronics: A Radical Departure from Conjugated Polymers?”, *Adv. Mater.*, **21**, 2339-2344 (2009).
200. T. Suga, H. Ohshiro, S. Sugita, K. Oyaizu, \*H. Nishide, “Emerging N-Type Redox Active Radical Polymer for a Totally Organic Polymer-Based Rechargeable Battery”, *Adv. Mater.*, **21**, 1627-1630 (2009).
201. K. Koshika, N. Sano, K. Oyaizu, \*H. Nishide, “An Ultrafast Chargeable Polymer Electrode Based on the Combination of Nitroxide Radical and Aqueous Electrolyte”, *Chem. Commun.*, 836-838 (2009).

【A03 前期】「高分子結合性ペプチドを用いた機能性ソフト界面の創製」(代表者：芹澤 武)

202. Gao Z., Sawada T., Zhi C., Bando Y., Golberg D., \*Serizawa T., “Nucleotide-Assisted Decoration of Boron Nitride Nanotubes with Semiconductor Quantum Dots Endows Valuable Visible-Light Emission in Aqueous Solution”, *Soft Matter*, **7**, 8753-8756 (2011).
203. Ejima H., Matsumiya K., Sawada T., \*Serizawa T., “Conjugated Polymer Nanoparticles Hybridized with the Peptide Aptamer”, *Chem. Commun.*, **47**, 7707-7709 (2011).
204. Serizawa T., Matsuno H., Sawada T., “Specific Interfaces between Synthetic Polymers and Biologically Identified Peptides”, *J. Mater. Chem.*, **21**, 10252-10260 (2011).
205. Ejima H., Kikuchi H., Matsuno H., Yajima H., \*Serizawa T., “Peptide-Based Switching of Polymer Fluorescence in Aqueous Phase”, *Chem. Mater.*, **22**, 6032-6034 (2010).
206. Ejima H., Matsuno H., \*Serizawa T., “Biological Identification of Peptides that Specifically Bind to Poly(phenylene vinylene) Surfaces: Recognition of the Branched or Linear Structure of the Conjugated Polymer”, *Langmuir*, **26**, 17278-17285 (2010).
207. Gao Z., Zhi C., Bando Y., Golberg D., \*Serizawa T., “Isolation of Individual Boron Nitride Nanotubes via Peptide Wrapping”, *J. Am. Chem. Soc.*, **132**, 4976-4977 (2010).

【A03 前期】「生体分子複合固定ソフト界面に基づく増幅・濃縮型高感度イムノアッセイデバイスの開発」

(代表者：久本秀明)

208. T.G. Henares, Y. Uenoyama, Y. Nogawa, K. Ikegami, D. Citterio, K. Suzuki, S.-i. Funano, K. Sueyoshi, T. Endo, and \*H. Hisamoto, “Novel Fluorescent Probe for Highly-Sensitive Bioassay using Sequential Enzyme-Linked Immunosorbent Assay - Capillary Isoelectric Focusing (ELISA-cIEF)”, *Analyst*, **138**, 3139-3141 (2013).
209. T.G. Henares, E. Tsutsumi, H. Yoshimura, K. Kawamura, T. Yao, and \*H. Hisamoto, “Single-step ELISA Capillary Sensor Based on Surface-Bonded Glucose Oxidase, Antibody, and Physically-Adsorbed PEG membrane Containing Peroxidase-Labeled Antibody”, *Sens. Actuators B.*, **149**, 319-324 (2010).
210. M. Kataoka, H. Yokoyama, T.G. Henares, K. Kawamura, T. Yao, and \*H. Hisamoto, “Reagent-Release Capillary Array-Isoelectric Focusing Device for as a Rapid Screening Device for IEF Condition Optimization”, *Lab Chip*, **10**, 3341-3347 (2010).
211. H. Yokoyama, M. Kataoka, T.G. Henares, T. Yao, and \*H. Hisamoto, “Reagent-release capillary-based isoelectric focusing (RRC-Based IEF) towards simple, disposable, sensitive and multiplexed immunoassay on a capillary-assembled microchip (CAs-CHIP)”, *Proceedings of Micro Total Analysis Systems*, **2**, 1204-1206 (2009).

【A03 前期】「細胞界面のナノ構造制御による機能性ハイブリッド組織の創製」(代表者：松崎典弥)

212. M. Matsusaki, S. Amemori, K. Kadokawa, and \*M. Akashi, “Quantitative 3D-Analysis of Nitric Oxide Diffusion in a 3D-Artery Model Using Sensor Particle”, *Angew. Chem. Int. Ed.* **50**, 7557-7561 (2011).
213. A. Nishiguchi, H. Yoshida, M. Matsusaki, and \*M. Akashi, “Rapid Construction of Three-dimensional Multilayered Tissues with Endothelial Tube Networks by the Cell-accumulation Technique”, *Adv. Mater.* **23**, 3506-3510 (2011).
214. M. Matsusaki, R. Amekawa, M. Matsumoto, Y. Tanaka, A. Kubota, K. Nishida, and \*M. Akashi, “Physical and Specific Crosslinking of Collagen Fibers by Supramolecular Nano-gelators”, *Adv. Mater.* **23**, 2957-2961 (2011).
215. S. Amemori, M. Matsusaki, \*M. Akashi, “Biocompatible and Highly Sensitive Nitric Oxide Sensor Particles Prepared by Layer-by-Layer Assembly”, *Chem. Lett.* **39**, 42-43 (2010). **Elected as Editor's Choice**

【A03 前期】「高分子ミセルキャリヤーの免疫原性制御のためのインターフェース設計」（代表者：横山昌幸）

216. Y. Harada, Y. Maitani, M. Yokoyama, et al., "Effects of organic solvents on drug incorporation into polymeric carriers and morphological analyses of drug-incorporated polymeric micelles", *International Journal of Pharmaceutics*, **404**: 271-280 (2011).
217. K. Shiraishi, Y. Maitani, M. Yokoyama, et al., "Synthesis of Poly(ethylene glycol)-b-Poly(L-lysine) Block Copolymers Having Gd-DOTA as MRI Contrast Agent and Their Polymeric Micelle Formation by Polyion Complexation", *Journal of Controlled Release*, **148**(2):160-7 (2010).
218. I. Akiba, K. Sakurai, T. Sato, K. Shiraishi, M. Yokoyama, et al., "Encapsulation of a Hydrophobic Drug into a Polymer-Micelle Core Explored with Synchrotron SAXS", *Langmuir*, **26** (10), 7544-7551 (2010).
219. K. Hori, M. Nishihara, and M. Yokoyama, "The Combretastatin Derivative Cderiv, a Vascular Disrupting Agent, Enables Polymeric Nanomicelles to Accumulate in Microtumors", *Journal of Pharmaceutical Sciences*, **99**, 2914-25 (2010).
220. H. Ma, K. Shiraishi, M. Yokoyama, Y. Maitani et al., "Accelerated Blood Clearance Was Not Induced for a Gadolinium-Containing PEG-poly(L-lysine)-Based Polymeric Micelle in Mice", *Pharmaceutical Research*, **27**, 296-302 (2010).

【A03 前期】「NS ポリペプチドの特性解析と細胞磁気ラベリングへの応用」

【A03 後期】「磁性粒子上のソフト界面制御に向けた刺激応答性人工タンパク質の分子設計」（代表者：吉野知子）

221. Kanetsuki, Y., Tanaka, M., Tanaka, T., Matsunaga, T., \*Yoshino, T.; "Effective expression of human proteins on bacterial magnetic particles in an anchor gene deletion mutant of *Magnetospirillum magneticum* AMB-1", *Biochem. Biophys. Res. Commun.*, **426**, 7-11 (2012).
222. \*Yoshino, T., Shimojo, A., Maeda, Y., Matsunaga, T.: "Inducible expression of transmembrane proteins on bacterial magnetic particles in *Magnetospirillum magneticum* AMB-1.", *Appl. Environ. Microbiol.*, **76** (4), 1152-1157 (2010).
223. Maeda, Y., Yoshino, T., \*Matsunaga, T.: "In vivo biotinylation of bacterial magnetic particles by truncated form of Escherichia coli biotin ligase and biotin acceptor peptide", *Appl. Environ. Microbiol.*, **76**, 5785-5790 (2010).
224. Maeda, Y., Yoshino, T., \*Matsunaga, T.: "Novel nanocomposites consisting of in vivo-biotinylated bacterial magnetic particles and quantum dots for magnetic separation and fluorescent labeling of cancer cells", *J. Mater. Chem.*, **19**, 6361-6366 (2009).
225. Takahashi, M., \*Yoshino, T., Matsunaga, T.: "Surface modification of magnetic nanoparticles using asparagines-serine polypeptide designed to control interactions with cell surfaces", *Biomaterials*, **31**, 4952-4957 (2010).

【A03 前期】「生体分子を足場とするソフトインターフェースを活用した超分子不斉光反応系の創製」

【A03 後期】「生体高分子の有するソフトインターフェースを活用した新奇超分子不斉光化学反応系の構築」

（代表者：和田健彦）

226. Shinozaki, Y.; Richards, G.; Ogawa, K.; Yamano, A.; Ohara, K.; Yamaguchi, K.; Kawano, S.-i.; Tanaka, K.; Araki, Y.; Wada, T.; Otsuki, J.; Yoshinao, S.; Gary, R.; Keizo, O.; Akihito, Y.; Kazuaki, O.; Kentaro, Y.; Shin-ichiro, K.; Kentaro, T.; Yasuyuki, A.; Takehiko, W.; Joe, O., "Double Helices of a Pyridine-Appended Zinc Chlorophyll Derivative," *J. Am. Chem. Soc.*, **2013**, 135(14), 5262-5265.
227. Nishiyama, Y.; Wada, T.; Kakiuchi, K.; Inoue, Y., "Entrainier Effects on Enantiodifferentiating Photocyclization of 5-Hydroxy-1,1-diphenylpentene in Near-Critical and Supercritical Carbon Dioxide", *J. Org. Chem.*, **77**, 5681-5686 (2012).
228. Umeyama, T.; Takamatsu, T.; Tezuka, N.; Matano, Y.; Araki, Y.; Wada, T.; Yoshikawa, O.; Sagawa, T.; Yoshikawa, S.; Imahori, H., "Synthesis and Photophysical and Photovoltaic Properties of Porphyrin-Furan and -Thiophene Alternating Copolymers", *J. Phys. Chem. C*, **113**, 10798-10806 (2009).
229. Pace, T. C. S.; Nishijima, M.; Wada, T.; Inoue, Y.; Bohne, C., "Photophysical Studies on the Supramolecular Photochirogenesis for the Photocyclodimerization of 2-Anthracenecarboxylate within Human Serum Albumin", *J. Phys. Chem. B*, **113**, 10445-10453 (2009).
230. Kawanami, Y.; Pace, T. C. S.; Mizoguchi, J.; Yanagi, T.; Nishijima, M.; Mori, T.; Wada, T.; Bohne, C.; Inoue, Y., "Supramolecular complexation and enantiodifferentiating photocyclodimerization of 2-anthracenecarboxylic acid with 4-aminoprolinol derivatives as chiral hydrogen-bonding templates", *J. Org. Chem.*, **74**, 7908-7921 (2009).
231. Ke, C.; Yang, C.; Mori, T.; Wada, T.; Liu, Y.; Inoue, Y., "Catalytic Enantiodifferentiating Photocyclodimerization of 2-Anthracenecarboxylic Acid Mediated by a Non-Sensitizing Chiral Metallosupramolecular Host", *Angew. Chem., Int. Ed.*, **48**, 6675-6677 (2009).

【A03 後期】「パターン化モデル生体膜と微小構造体を接合したナノ界面における分子認識と分子輸送」

（代表者：森垣憲一）

232. Yamada, M., Imaishi, H. \*Morigaki, K. "Microarrays of phospholipid bilayers generated by inkjet-printing", *Langmuir*, **29** (21), 6404-6408, 2013.
233. \*Morigaki, K., Mizutani, K., Saito, M., Okazaki, T., Nakajima, Y., Tatsu, Y. Imaishi, H. "Surface functionalization of a polymeric lipid bilayer for coupling a model biological membrane with molecules, cells, and microstructures", *Langmuir*, **29** (8), 2722-2730, 2013.
234. \*Morigaki, K., Kimura, S., Okada, K., Kawasaki, T. Kawasaki, K. "Formation of substrate supported membranes from mixtures of long and short chain phospholipids", *Langmuir*, **28** (25), 9649-9655, 2012.
235. \*Morigaki, K., Mizutani, K., Kanemura, E., Tatsu, Y., Yumoto, N., Imaishi, H. "Photo-regulation of cytochrome P450

activity by using caged compound." *Anal. Chem.*, **84** (1), 155-160, 2012.

#### 【A03 後期】「高分子ソフト界面における分子鎖熱運動性を利用する細胞機能制御」(代表者：松野寿生)

236. Hori, K.; Matsuno, H.; Tanaka, K., Sorption Kinetics of Methanol in Thin Poly(methyl methacrylate) Films Studied by Optical Reflectivity, *Soft Matter*, **7**(21), 10319-10326 (2011).
237. Hirata, T.; Matsuno, H.; Tanaka, M.; Tanaka, K., Surface Segregation of Poly(2-methoxyethyl acrylate) in a Mixture with Poly(methyl methacrylate), *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **13**(11), 4928-4934 (2011).

#### 【A03 後期】「基質界面の微細構造による細胞遊走の整流化制御と形質転換因子としての評価」(代表者：武田直也)

238. Y. Edagawa, J. Nakanishi, K. Yamaguchi, N. Takeda\*, "Spatiotemporally Controlled Navigation of Neurite Outgrowth in Sequential Steps on the Dynamically Photo-Patternable Surface", *Colloids and Surfaces B: Biointerfaces*, **99**, 20-26 (2012).

#### 【A03 後期】「遺伝子導入セルチップの高機能化を実現するソフト界面の構築」(代表者：藤田聰史)

239. \*Fujita, S., Onuki-Nagasaki, R., Fukuda, J., Enomoto, J., Yamaguchi, S., Miyake, M., "Development of super-dense transfected-cell microarrays generated by piezoelectric inkjet printing", *Lab Chip*, **13**, 77-80 (2013).

#### 【A03 後期】「生体膜類似の糖鎖/ペプチドナノクラスターの構築と病原体の検出デバイスの開発」(代表者：佐藤智典)

240. T. Matsubara, K. Iijima, N. Yamamoto, K. Yanagisawa, \*T. Sato, "Density of GM1 in nanoclusters is a critical factor in the formation of a spherical assembly of amyloid  $\beta$ -protein on synaptic plasma membranes", *Langmuir*, **29**, 2258-2264 (2013).
241. T. Matsubara, A. Onishi, \*T. Sato, "Carbohydrate recognition by pentadecapeptide ligands for a series of sialylated oligosaccharides", *Bioorganic & Medicinal Chemistry*, **20**, 6452-6458 (2012).
242. \*N. Yamamoto, T. Matsubara, K. Sobue, M. Tanida, R. Kasahara, K. Naruse, H. Taniura, T. Sato, K. Suzuki, "Brain insulin resistance accelerates A $\beta$  fibrillogenesis by inducing GM1 ganglioside clustering in the presynaptic membranes", *J. Neurochem.*, **121**, 619-628 (2012)

#### 【書籍（領域全体の成果として公表されたもの）】

- ・ ソフトマター～分子設計・キャラクタリゼーションから機能性材料まで～（高原 淳・栗原 和枝・前田 瑞夫 編）、丸善株式会社、2009年11月20日発行。

#### 【ホームページ】

- ・ 新学術領域研究「ソフトインターフェースの分子科学」webページURL「<http://www.riken.jp/soft-kaimen/>」

#### 【公開発表等】

##### I. 本領域の総括班が主催したもの

###### (公開シンポジウム)

1. 第9回公開シンポジウム（2013年1月23日～24日）：タワーホール船堀（東京都江戸川区）（世話人：前田瑞夫）
2. 第8回公開シンポジウム（2012年7月26日）：伝国の杜・置賜文化ホール（山形県米沢市）（世話人：熊木治郎）
3. 第7回公開シンポジウム（2012年1月26日）：東京大学本郷キャンパス（東京都文京区）（世話人：高井まさか）
4. 第6回公開シンポジウム（2011年7月28日）：九州大学筑紫キャンパス（福岡県春日市）（世話人：高原淳）
5. 第5回公開シンポジウム（2011年2月3日～4日）：東京理科大学森戸記念館（東京都新宿区）（世話人：菊池明彦）
6. 第4回公開シンポジウム（2010年7月1日）：国立循環器病センター（大阪府吹田市）（世話人：山岡哲二）
7. 第3回公開シンポジウム（2010年1月21日）：筑波大学（茨城県つくば市）（世話人：長崎幸夫）
8. 第2回公開シンポジウム（2009年9月29日）：独立行政法人理化学研究所和光キャンパス（埼玉県和光市）（世話人：前田瑞夫）
9. 第1回公開シンポジウム（2009年1月27日）：タイム24ビル（東京都江東区）（世話人：長崎幸夫）

###### (国際会議)

10. Soft-interfaces Mini-Symposium 2013–Physical Chemistry and Characterization of Soft-interfaces–(SIMS2013)（2013年3月14日～15日）：九州大学西新プラザ（福岡市早良区）（オーガナイザー：高原淳）
11. International Workshop on Soft Interface Sciences for Young Scientists 2012 (SISYS2012) (2012年11月21日～22日)：産業技術総合研究所つくば中央（茨城県つくば市）（オーガナイザー：青木寛、吉川佳広）
12. Softinterface International Mini-Symposium on Biointerface –Interface between Bio and Materials- (SIMS2012)（2012年3月17日～19日）：筑波大学（茨城県つくば市）（オーガナイザー：長崎幸夫）
13. Chemistry and Functional Properties of Soft Interfaces, PACIFICHEM2010(2010年12月15日～16日、18日)：Honolulu, Hawaii, USA（オーガナイザー：高原淳、栗原和枝、前田瑞夫）

###### (国内会議)

14. ソフト界面ミニシンポジウム「ソフト界面と文化遺産」（2012年11月28日、29日）：じばさんびる（兵庫県姫路市）（オーガナイザー：遊佐真一、藤井秀司）
15. ソフト界面新技術発表会（2012年11月9日）：東京大学山上会館（東京都文京区）（オーガナイザー：長崎幸夫）

16. ワークショップ「ソフト界面と計測・センシング」（2012年8月8日、9日）：東京医科歯科大学（東京都文京区）（オーガナイザー：宮原裕二）
17. ワークショップ「ソフト界面のダイナミクス」（2011年11月3日、4日）：パレブラン高志会館（富山県富山市）（オーガナイザー：北野博巳）
18. ワークショップ「ソフト界面と水」（2010年8月10日～11日）：九州大学箱崎キャンパス（福岡市東区）（オーガナイザー：田中敬二、三浦佳子）

## II. 本領域メンバーが企画・運営したもの

1. 2012 Japan-Taiwan Bilateral Polymer Symposium (JTBPS'12), 北九州市小倉北区, 2012年09月05日-08日（オーガナイザー：田中敬二）
2. IUMRS-ICEM 2012, Biomaterials and Biomimetic Materials (2012年)（オーガナイザー：三浦佳子）
3. International Association of Colloid and Interface Scientists, Conference (IACIS2012)(2012年5月13-18日に仙台にて開催)（実行委員長：栗原和枝）
4. 第31回日本糖質学会 (2012年)（オーガナイザー：三浦佳子）
5. 日本化学会特別企画「ソフト界面を活かした先端化学」(2012年)（責任者：三浦佳子）
6. 日本化学会特別企画「ソフト界面科学のニューウェーブ」(2010年)（責任者：三浦佳子）
7. MRS-J (2011年)（代表チア：三浦佳子）
8. 3<sup>rd</sup> Asian Symposium on Advanced Materials (2011年)（オーガナイザー：三浦佳子）
9. 第63回コロイドおよび界面化学討論会「界面・分散系の新デザイン：サーファクタントフリー分散系と界面吸着粒子の科学と工学」(2011年)（一般シンポジウム提案者代表：藤井秀司）
10. MRS-J (2010年)（代表チア：三浦佳子）
11. MRS-J (2009年)（代表チア：高井まどか）

## 【一般向けアウトリーチ活動】

1. 佐賀県鳥栖市立田代中学校（3年生160名）と同鳥栖西中学校（3年生170名）でソフト界面の出前授業（2012.11.12）（実施者：前田瑞夫）
2. 出前講義：東北地方の高校に出張し、「化粧品の秘密」と題した講義：ソフト界面に関する研究の成果が皮膚の解析や製剤開発に利用されていることを紹介（本荘高校(2010年10月)、須賀川桐陽高校(2010年12月)、上山明新館高校(2010年12月)、三沢高校(2011年6月)、鶴岡中央高校(2011年10月)、水沢高校(2012年10月)）（実施者：野々村美宗）
3. 工学実感フェア2012「最新の接着剤と粘着剤で最強の接着を体験しよう」および「身の回りのプラスチック製品。その「なぜ？」を考えてみよう」（於：大阪工業大学大宮キャンパス（大阪市）、日時：2012年10月27日～28日）；（実施者：藤井秀司）
4. 立教女学院高等学校の女子高校生1年生約20名へのソフトインターフェースの実験講座（於：東京大学本郷キャンパス（東京都文京区）、日時：2012年9月15日）；（実施者：高井まどか）
5. 興譲館高校「グリーンイノベーション実験講座」(2012年8月)（於：山形県立米沢興譲館高校（山形県米沢市）、日時：2012年8月）；高校生4名を対象に「ソフトマテリアルを用いた省エネシステム」と題して実験教室を実施（実施者：野々村美宗）
6. 国際会議 IACIS2012 学術展示出展・市民講座（於：仙台国際会議場（仙台市）、日時：2012年5月13日～16日）；会議出席者ならびに校外学習で訪れた地元小学生（5, 6年生230名ほど）への成果説明・体験学習（実施者：前田瑞夫、栗原和枝、高井まどか、菊池明彦）
7. 東北大学イノベーションフェア「表面力測定によるナノ界面の新たな評価」、東京、(2012.3.15)；（実施者：栗原和枝）。
8. 2011年11月14日 2011世界化学生記念大会 公開講座：「未来社会に向けたイノベーション」において「血液から標的細胞を取り出すナノ磁石の魅力」を発表（実施者：吉野知子）
9. 親子で楽しむ実験「みずの力を体験しよう！界面科学の初步」（於：福岡県糸島市立桜野小学校、日時：2011年10月13日）；小学3年生及び保護者約30名を対象に実験教室（実施者：三浦佳子）
10. 工学実感フェア2011「スライムをつくってあそぼう」（於：大阪工業大学大宮キャンパス（大阪市）、日時：2011年8月27日）；（実施者：藤井秀司）
11. 2011年7月30日 女子中高生のためのサマースクール2011 in 農工大において「遺伝子デザインによるナノ磁石の合成と医療応用」を発表（実施者：吉野知子）
12. 東北大学イノベーションフェア「表面力測定による固一液界面評価」、（於：仙台国際センター（仙台市）、日時：2009年10月14日）；（実施者：栗原和枝）。
13. nano tech2011 国際ナノテクノロジー総合展・技術会議にて「表面力測定による機能材料ナノ界面評価」を展示、（於：東京ビックサイト（東京都江東区）、日時：2011年2月16日～18日）；（実施者：栗原和枝）。
14. 仙台電波高専の生徒への表面力測定の講義「表面力測定」、（於：東北大学（仙台市）、日時：2010年8月28日）；（実施者：栗原和枝）。
15. 山形県立山形西高校にて出前講座「ユニバーサルデザイン」「分子の間の力を測る」、（於：山形県立山形西高校（山形県山形市）、日時：2010年6月10日）；（実施者：栗原和枝）。

## 10. 当該学問分野及び関連学問分野への貢献度

研究領域の研究成果が、当該学問分野や関連分野に与えたインパクトや波及効果などについて記述してください。

1) 関連分野の学協会主催シンポジウムや学会誌において「ソフト界面」をキーワードとした特集が組まれた。その主なものを以下に列挙する。当新学術領域研究の概念や成果が広く波及していることがわかる。

- ・ 日本化学会第 90 春季年会 (2010)  
特別企画「ソフト界面科学のニューウェーブ」
- ・ 環太平洋国際化学会議 (PACIFICHEM) (2010)  
「Chemistry and Functional Properties of Soft Interfaces」
- ・ 日本化学会第 91 春季年会 (2011)  
特別企画「ソフト界面による材料化学の新潮流」
- ・ 日本分析化学会第 60 年会 (2011)  
シンポジウム「ソフト界面を活かした分析化学」
- ・ 日本膜学会第 34 年会 (2012)  
境界領域シンポジウム「人工膜と生体膜をつなぐソフト界面の利用」
- ・ 日本バイオマテリアル学会シンポジウム 2012 (2012)  
シンポジウム「バイオ診断・治療とソフト界面」

2) 当領域の若手研究者らが、新規の新学術領域研究の企画・申請に中核的な役割を果たしていることから、当領域の成果が関連分野に一定のインパクトないしは影響を与えていていることが見て取れる。

具体的には「局所計測生理」の申請（2013 年度）に高井まどか（計画 A-3）・三浦佳子（計画 A01）・栄長泰明（公募 A01）が計画研究代表者として参画しているほか、「分子特異点」の申請（2012 年度）では陣内浩司（公募 A01）・田中敬二（公募 A02）・森田裕史（公募 A02）・芹澤 武（公募 A03）らが中心となつて活動し、「ナノ循環生理」の申請（2012 年度）には岸村顕広（公募 A03）が計画研究代表者として参画している。

本領域の中では、その延長線上での後継領域を意識した立ち上げの活動は特段、行ってこなかった。「ソフト界面」はもとより新しい学術領域であり、多様な研究者が集まる境界領域であるため、その概念や研究成果は本来、他の領域へと発展的に広く波及・伝播していくべきものであると考えてきたからである。実際に若い世代により自発的にいくつかの新学術領域研究が、医工連携や新材料分野に対し提案されつつあることは、むしろ喜ばしいことである。

以上の取り組みはまだ採択に至ってはいないが、今後のますますの発展を期待するものである。