

令和 3 年 5 月 17 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2019

課題番号：15H02198

研究課題名(和文) 自律機能を有する高分子材料を用いた新技術創成

研究課題名(英文) New technology development using polymer materials with autonomous function

研究代表者

吉田 亮 (Yoshida, Ryo)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・教授

研究者番号：80256495

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 31,800,000円

研究成果の概要(和文)：生体の種々の自己組織化現象の化学モデルにもなっている振動反応(BZ反応)をポリマーネットワークの周期的体積変化や力学物性変化に変換することにより、心筋のように外部刺激のon-offなしに自ら周期的な膨潤収縮振動を起こす自励振動ゲルを開発した。高分子鎖の伸縮振動、ミセルやベシクルの凝集崩壊振動やそれに伴うゾルゲル振動、バルクゲルの体積振動や蠕動運動など、様々な階層スケールでの自励振動現象を発現することに成功した。人工繊毛、人工アメーバ、人工細胞、人工心筋、人工輸送管、自律駆動ソフトアクチュエータ(ソフトロボット)など、自律的な機能を発現する革新的なバイオミメティック材料への展開が期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

自励振動ゲルは、ゲル研究分野において唯一、“外部刺激のon-offなしに自ら膨潤収縮振動を起こす”独創的なゲルである。学術的にも、生体の自己組織化現象の化学モデルにもなっているBZ反応を、ポリマーネットワークの周期的体積変化(力学変化)に変換し、機能性材料設計に応用した世界でも最初の研究でもある。ゲルの機能性材料としての新しい可能性を提唱し、散逸構造を利用した自己組織化4次元材料としての新しい学理を築いた研究として高分子科学、材料科学、非平衡科学等の分野で先導的な役割を果たした。

研究成果の概要(英文)：“Self-oscillating” polymer gels that undergo spontaneous cyclic swelling-deswelling changes without any on-off switching of external stimuli, as with heart muscle, were developed by the researcher. The self-oscillating gels were designed by utilizing the Belousov-Zhabotinsky (BZ) reaction, an oscillating reaction as a chemical model of self-organization in living systems. Self-oscillation in several scales such as contraction and expansion of polymer chain, aggregation and disaggregation of polymer micelle and vesicle, sol-gel transition of polymer solution, volume changes, peristaltic motion, were realized. Potential applications of the self-oscillating polymers and gels include several kinds of functional material systems such as biomimetic actuators, mass transport systems and functional fluids, e.g., artificial cilia, artificial amoeba, artificial cell, artificial heart muscle, artificial transport tube, autonomous soft actuator (soft robot).

研究分野：高分子ゲル

キーワード：高分子ゲル 機能性材料 自励振動 自己組織化 生体模倣 ソフトマテリアル 非平衡ダイナミクス 自律性

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

内部に多量の溶媒を含んだ高分子の三次元網目である高分子ゲルは、ソフト&ウェットな材料として、高分子科学の領域の中でも活発に研究が行われている分野の一つである。その吸水原理の理論体系化は1940年代に、ソフトコンタクトレンズや吸水性ポリマーなどへの応用は1960~70年代にすでに行われていたが、1978年の体積相転移現象の発見以来、“スマート(あるいはインテリジェント)”ゲルとして、運動機能、物質輸送機能(放出・取り込み、分離)、情報変換・伝達機能などを持った数多くの機能性ゲルの開発が試みられた。とくに1980年代後半から現在に至るまで、ソフトアクチュエータ(人工筋肉)、刺激応答型DDS(薬物送達システム)、分離精製や細胞培養基材、形状記憶材料、分子認識材料などの機能性材料として利用する研究が活発に行われている。近年ではさらに、その構造均一性や超分子構造に基づく優れた力学物性や透明性を持つゲル、自己修復性などを持つゲルなど、新しい物性・機能を有するゲルの創製に関する研究が注目を集めている。併せて微細加工や3D加工技術の発展なども新しいゲル研究領域の分野拡大を推進している。

生物類似あるいはそれを超越する機能を有する物質系やシステムを実現する、いわゆる“バイオミメティック”あるいは“バイオインスパイアード”材料という観点からも種々の機能性ゲルが創製されている。刺激応答性ゲルもその一つであるが、一方で筆者は、生体のように自律的な機能を発現するゲル、すなわち刺激のon-off駆動によらず、心臓の拍動のように一定条件下で自発的に周期的リズム運動を行う新しい機能性ゲルの開発に取り組んできた。

生体には閉じた化学反応回路が多く存在する。それを人工的に模倣したベローソフ・ジャボチンスキー(Belousov-Zhabotinsky, BZ)反応は代謝反応(TCA回路)の化学モデルでもあり、生体現象の中でもよく見られる時間リズムや空間パターンを自発的に生み出す化学振動反応としてよく知られている。金属触媒(RuやFe錯体など)共存下の酸性水溶液中で、マロン酸などの有機基質が臭素酸などの酸化剤によって緩やかに酸化される反応であるが、その過程でサイクリックな反応ネットワークが自発的に構成され、触媒となる金属錯体が周期的な酸化還元振動を起こす。申請者はこのBZ反応をゲル内で引き起こしその化学エネルギーを力学エネルギーに変換する分子設計を行い、ゲルの周期的な膨潤収縮振動を生み出すことに成功した。1996年に初めてこの「自励振動ゲル」(self-oscillating gel)を報告し、以降系統的に研究を進めている。時空間機能をもつ4次元マテリアルとして新しい機能性ゲルの概念を提唱し具現化するとともに、1)自律駆動型の生体模倣ソフトアクチュエータ、2)自動物質輸送システム、3)自発的かつ周期的に粘弾性変化(ゾル-ゲル変化)を示す機能性流体など、新たな自律機能を持つバイオミメティック材料への応用展開を試みている。

2. 研究の目的

本研究では、自励振動高分子ゲルを基盤として生体のように自律的な機能を有する新たな高分子材料システムを設計・構築するとともに、時空間構造をもつ4次元ソフトマテリアルとしての新しい学理を創出する。将来的に細胞制御のための革新的動的足場材料として展開することなども見据えた新しい各基盤技術(ポリマーブラシ表面の作製とその評価、マルチブロック化による周期的自己集合体形成/崩壊システムの設計と構築、生体環境に適応した新規自励振動ゲルの設計など)を確立する。

3. 研究の方法

1) 新規な異方変形型自励振動ゲルの創製

酸化チタンナノシートの水分散液に磁場を印加すると、ナノシートは磁力線に対し一義的に垂直配向する。この分散液に*N*-isopropylacrylamide (NIPAAm)、*N*-3-(aminopropyl)methacrylamide (NAPMAm)、*N,N'*-methylene-bis(acrylamide) (BIS)および光ラジカル開始剤を溶解し、磁場印加下にてアクリルモノマーを光重合しゲル化させた。ナノシートの異方的配向は磁場解除後も維持された。得られたヒドロゲルのNAPMAm側鎖アミノ基を、スクシンイミジル基を有するRu錯体(Ru(bpy)₃-NHS)と反応させることで、一義的配向した酸化チタンナノシートとRu錯体とを内包するヒドロゲルを得た。

2) 自励振動ポリマーブラシ表面の作製とその動的特性評価 [1-5]

表面開始型原子移動ラジカル重合法(SI-ATRP法)を用い鎖長の制御された自励振動ポリマーを基板表面に修飾することで、高分子鎖の周期的な変化及びその伝播を伴う薄膜を作製し、その自律的な振動挙動を解析・評価した。ガラス基板上に、SI-ATRP開始剤をシランカップリング反応により固定した。NIPAAm及びNAPMAmをモノマー、CuCl/Me₆TRENを触媒としてSI-ATRP法によるグラフト重合を行った。さらに、スクシンイミジル基を有するRu(bpy)₃(Ru(bpy)₃-NHS)をNAPMAmの末端アミノ基と反応させることで自励振動ポリマーブラシ表面を作製した。モノマー濃度等の重合条件を変え、鎖長・修飾密度・Ru(bpy)₃導入量が異なるブラシ表面を系統的に作製した。修飾密度は基板にSI-ATRP開始剤と非開始剤を共固定することで制御した。調製した表面について、ATR/FT-IR測定からポリマーブラシ修飾量、UV-Vis測定によりRu(bpy)₃固定

化量、AFM 測定により膜厚を評価した。調製した基板に対し、還元状態 Ru^{2+} および酸化状態 Ru^{3+} に保持した状態で液中接触角を測定し、表面の親疎水性を評価した。また、反応溶液に基板固定していない開始剤を添加し、得られたフリーポリマーに対し GPC 及び NMR 測定を行い、分子量及び組成を評価するとともに $\text{Ru}(\text{bpy})_3$ の導入量を求めた。 Ru^{2+} および Ru^{3+} に保持した状態で LCST 測定を行った。作製した自励振動ポリマーブラシ修飾基板を BZ 反応基質溶液 (HNO_3 , NaBrO_3 , マロン酸) に浸漬し、透過型蛍光顕微鏡を用いて BZ 反応挙動の観察・画像処理による解析を行った。同様に BZ 反応基質溶液にフリーポリマーを溶解し、透過率測定により自励振動挙動を評価した。

3) 新規自励振動ブロック共重合体の創製[6-9]

親水性の PEO セグメントと自励振動高分子 $\text{poly}(\text{NIPAAm-co-Ru}(\text{bpy})_3)$ セグメントからなる AB ジブロック共重合体を RAFT 重合により合成し、これらが BZ 反応条件下で周期的に構造を転移させる現象(自励振動ミセルおよびベシクルの実現)を検討した。さらに、ジブロック共重合体に対しそのブロック比を制御することで、ユニマー/ベシクル間の構造振動を生起させた。加えてベシクル膜の架橋を行うことで、細胞膜に見られるような体積・形状振動を伴う細胞模倣ベシクルを創製した。まず RAFT 重合により $\text{PEO-}b\text{-P}(\text{NIPAAm-}r\text{-NAPMAm})$ を合成し、次に $\text{Ru}(\text{bpy})_3\text{-NHS}$ 及び *N*-スクシンイミジルメタクリレートをアミノ基とのカップリングにより反応させることで、BZ 反応触媒部位に加えて架橋可能な二重結合部位を側鎖に持つ自励振動高分子を合成した。光開始剤を用い、ベシクル形成する温度下で UV 照射することで架橋ベシクルを作製した。この架橋ベシクルに対し自律的な体積・形状振動を観察・解析した。また新しい自律型ソフトマシン創製に向け、温度応答性(疎水性)セグメント/親水性セグメント/自励振動セグメントからなる ABC 型トリブロック共重合体を合成し、アメーバのように自律的にゾル-ゲル振動する高分子溶液の創製を試みた。

4. 研究成果

バイオメテック材料への適用を目指した、自励振動ゲルの新しい自律機能材料としての展開を行った。これまでに、大腸のように蠕動運動を起こす管状自励振動ゲルを作製し管内で物質や内部流体を自律輸送することに成功しているが、更なる新規な生体模倣型ソフトアクチュエータへの展開を目的として、外部磁場印可により配向した無機酸化ナノシートを内包することにより、異方的な変形を示す自励振動ゲルを作製した。ゲルは還元状態から酸化状態へ転移するに伴い、速やかにナノシート垂直方向にのみ膨潤した。既往の自励振動ゲルは等方的に膨潤・収縮するのに対し、この自励振動ゲルは異方的かつより大きい変位で変形した。

また近年、材料表面に高分子を修飾した機能性表面や界面に関する研究が盛んに行われており、それら多くが動的機能を発現するために外部刺激を要する一方で、我々は外部刺激なしに自律駆動する自励振動ポリマーブラシを作製した。表面開始型原子移動ラジカル重合法(SI-ATRP法)を用いて、鎖長や密度が制御された自励振動高分子をガラス基板表面やガラスキャピラリー内壁面に導入し、ポリマーブラシ表面を作製した。化学反応波の伝播とともにポリマーブラシが伸縮振動することが確認された。またグラフト鎖長に傾斜をつけたり[2]、マイクロパターン化したグラフト表面を作製する[3]ことにより、化学反応波の伝播方向を任意に制御することが可能となった。生体分子モーターのようなナノオーダーでの物質輸送システム(人工繊毛)の実現など、自律機能をもつソフト界面としての展開が期待される。

さらに、RAFT 重合法により親水性セグメント(PEO)と自励振動セグメント($\text{poly}(\text{NIPAAm-co-Ru}(\text{bpy})_3)$) からなる AB 型ジブロック共重合体を合成し、その周期的な構造相転移を種々見出した。BZ 反応により自励振動セグメントの親疎水性が周期的に変化することで、自律的にその自己集合状態が変化し、ミセルやベシクル構造の形成崩壊サイクルを繰り返すことを示した。またベシクル構造を光照射により化学架橋することで、ベシクルの体積振動や膜の座屈を伴う形状振動を生起させることに成功した[6]。一方、自励振動マイクロゲル微粒子を互いに架橋した中空微粒子(自励振動コロイドソーム)も作製し、体積振動とともに多点での座屈現象や座屈点の移動など、実際の細胞変形挙動にも類似したより複雑な形状振動を示すことを明らかにした[7]。これらは自律機能をもつ人工細胞モデルの一つともみなすことができる。

また新しい自律型ソフトマシン創製に向け、温度応答性(疎水性)セグメント/親水性セグメント/自励振動セグメントからなる ABC 型トリブロック共重合体の設計により、アメーバのように自律的にゾル-ゲル振動する高分子溶液(人工アメーバ)の創製に成功した。実際に、傾斜したガラス管の中で、酸化還元振動に同期した液滴の間歇的な前進運動が観察された[9]。さらに親水性セグメントに酸化剤自己供給部位の機能を付与することで、酸化剤の供給無しにゾル-ゲル振動を生起する、「自ら呼吸するような人工アメーバ」も実現された。以上のように、ナノ~マクロスケールレベルにおいて階層的な自励振動挙動を系統的に具現化し、自律機能性ソフトマテリアルとしての研究展開を行ってきた。

引用文献

1) T. Masuda, A. Terasaki, A.M. Akimoto, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida : *RSC Adv.*, 5, 5781-

5787 (2015).

2) T. Masuda, A. M. Akimoto, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida : *Science Advances*, 2, e1600902 (2016).

3) K. Homma, T. Masuda, A. M. Akimoto, K. Nagase, K. Itoga, T. Okano, and R. Yoshida : *Small*, 13 (21), 1700041 (2017).

4) T. Masuda, A.M. Akimoto, M. Furusawa, R. Tamate, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida : *Langmuir*, 34 (4), 1673 (2018).

5) K. Homma, T. Masuda, A. M. Akimoto, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida : *Langmuir*, 35, 9794 (2019).

6) R. Tamate, T. Ueki and R. Yoshida : *Adv. Mater.*, 27, 837 (2015).

7) R. Tamate, T. Ueki and R. Yoshida : *Angew. Chem. Int. Ed.*, 55, 5179 (2016).

8) R. Tamate, T. Ueki, M. Shibayama, and R. Yoshida : *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 19, 20627 (2017).

9) M. Onoda, T. Ueki, R. Tamate, M. Shibayama and R. Yoshida : *Nature Commun.*, 8, 15862 (2017).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計31件（うち査読付論文 28件 / うち国際共著 17件 / うちオープンアクセス 8件）

1. 著者名 K. Homma, T. Masuda, A.M. Akimoto, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida	4. 巻 35
2. 論文標題 Stable and Prolonged Autonomous Oscillation in a Self-Oscillating Polymer Brush Prepared on a Porous Glass Substrate	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 9794-9801
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.9b00928	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 T. Ueno and R. Yoshida	4. 巻 123
2. 論文標題 Pattern Formation in Heterostructured Gel by the Ferrocyanide?Iodate?Sulfite Reaction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. A	6. 最初と最後の頁 5013-5018
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.9b02264	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 K. Okeyoshi and R. Yoshida	4. 巻 58
2. 論文標題 Polymeric Design for Electron Transfer in Photoinduced Hydrogen Generation through a Coil?Globule Transition	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Edn.	6. 最初と最後の頁 7304-7307
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201901666	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 S. Matsui, K. Inui Kohei, Y. Kumai, R. Yoshida and D. Suzuki	4. 巻 5
2. 論文標題 Autonomously Oscillating Hydrogel Microspheres with High-Frequency Swelling/Deswelling and Dispersing/Flocculating Oscillations	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Biomaterials Science & Engineering	6. 最初と最後の頁 5615-5622
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsbiomaterials.8b00850	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Masuda, T. Ueki, R. Tamate, K. Matsukawa and R. Yoshida	4. 巻 57
2. 論文標題 Chemomechanical motion of self oscillating gel in a protic ionic liquid	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 16693-16697
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201809413	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Masuda, A.M. Akimoto, M. Furusawa, R. Tamate, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida	4. 巻 34
2. 論文標題 Aspects of the Belousov-Zhabotinsky reaction inside a self-oscillating polymer brush	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 1673-1680
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.7b03929	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 E. Lee, Y. S. Kim, A.M. Akimoto and R. Yoshida	4. 巻 30
2. 論文標題 Reversible and directional control of chemical wave propagation in a hydrogel by magnetic migration through liquid interfaces	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Chem. Mater.	6. 最初と最後の頁 5841-5845
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsbimaterials.8b00850	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Masuda, A.M. Akimoto, M. Furusawa, R. Tamate, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida	4. 巻 34
2. 論文標題 Aspects of the Belousov-Zhabotinsky reaction inside a self-oscillating polymer brush	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 1673-1680
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.7b03929	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Onoda, T. Ueki, R. Tamate, A.M. Akimoto, C.C. Hall, T.P. Lodge and R. Yoshida	4. 巻 7
2. 論文標題 Precisely tunable sol/gel transition temperature by blending thermoresponsive ABC triblock terpolymers	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 ACS Macro Letters	6. 最初と最後の頁 950-955
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsmacrolett.8b00477	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 K. Homma, T. Masuda, A. M. Akimoto, K. Nagase, K. Itoga, T. Okano, and R. Yoshida	4. 巻 13
2. 論文標題 Fabrication of Micropatterned Self-Oscillating Polymer Brush for Direction Control of Chemical Waves	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Small	6. 最初と最後の頁 1700041
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/smll.201700041	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Ueki, K. Matsukawa, T. Masuda, and R. Yoshida	4. 巻 121
2. 論文標題 Protic Ionic Liquids for the Belousov-Zhabotinsky Reaction: Aspects of the BZ Reaction in Protic Ionic Liquids and Its Use for the Autonomous Coil-Globule Oscillation of a Linear Polymer	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 J. Phys. Chem. B	6. 最初と最後の頁 4592-4599
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs/jpcb.7b01309	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 R. Tamate, T. Ueki, M. Shibayama, and R. Yoshida	4. 巻 13
2. 論文標題 Autonomous unimer-vesicle oscillation by totally synthetic diblock copolymers: effect of block length and polymer concentration on spatio-temporal structures	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Soft Matter	6. 最初と最後の頁 4559-4568
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7sm00563f	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Masuda, N. Shimada, T. Sasaki, A. Maruyama, A. M. Akimoto, and R. Yoshida	4. 巻 56
2. 論文標題 Design of a Tunable Self-Oscillating Polymer with Ureido and Ru(bpy) ₃ Moieties	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 9459-9462
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201705277	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 T. Masuda, T. Kajisa, A. M. Akimoto, A. Fujita, K Nagase, T. Okano, T. Sakata, and R. Yoshida	4. 巻 7
2. 論文標題 Dynamic electrical behaviour of a thermoresponsive polymer in well-defined poly(N-isopropylacrylamide)-grafted semiconductor devices	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 34517-34521
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7ra05786e	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 M. Onoda, T. Ueki, R. Tamate, M. Shibayama, and R. Yoshida	4. 巻 8
2. 論文標題 Amoeba-like self-oscillating polymeric fluids with autonomous sol-gel transition	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 15862
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/ncomms15862	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 R. Tamate, T. Ueki, M. Shibayama, and R. Yoshida	4. 巻 19
2. 論文標題 Effect of substrate concentrations on the aggregation behavior and dynamic oscillatory properties of self-oscillating block copolymers	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Phys. Chem. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 20627 - 20634
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c7cp03969g	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Y.S. Kim, R. Tamate, A.M. Akimoto and R. Yoshida	4. 巻 4
2. 論文標題 Recent developments in self-oscillating polymeric systems as smart materials: from polymers to bulk hydrogels	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Mater. Horiz.	6. 最初と最後の頁 38-54
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c6mh00435k	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 Tamate Ryota, Ueki Takeshi, Yoshida Ryo	4. 巻 55
2. 論文標題 Evolved Colloidosomes Undergoing Cell-like Autonomous Shape Oscillations with Buckling	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Angew. Chem. Int. Ed.	6. 最初と最後の頁 5179 ~ 5183
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/anie.201511871	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Masuda, A. M. Akimoto, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida	4. 巻 2
2. 論文標題 Artificial cilia as autonomous nanoactuators: Design of a gradient self-oscillating polymer brush with controlled unidirectional motion	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Science Advances	6. 最初と最後の頁 e1600902
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1126/sciadv.1600902	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 R. Tamate, A. M. Akimoto and R. Yoshida	4. 巻 16
2. 論文標題 Recent advances in self-oscillating polymer material systems	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Rec.	6. 最初と最後の頁 1852-1867
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/tcr.201600009	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 R. Tamate, T. Ueki, Y. Kitazawa, M. Kuzunuki, M. Watanabe, A.M. Akimoto and R. Yoshida	4. 巻 28
2. 論文標題 Photo-dimerization induced dynamic viscoelastic changes in ABA triblock copolymer-based hydrogels for 3D cell culture	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Mater.	6. 最初と最後の頁 6401-6408
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.6b02839	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Matsukawa, T. Masuda, A.M. Akimoto and R. Yoshida	4. 巻 52
2. 論文標題 A surface-grafted thermoresponsive hydrogel in which the surface structure dominates the bulk properties	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Chem. Commun.	6. 最初と最後の頁 11064-11067
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c6cc04307k	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 小野田実真, 吉田 亮	4. 巻 37
2. 論文標題 自励振動高分子ゲルの創製とネットワーク形成する分子集合体としての新展開	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 ネットワークポリマー	6. 最初と最後の頁 3-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 金 娟秀, 秋元 文, 吉田 亮	4. 巻 NA
2. 論文標題 自励振動ゲルアクチュエータ	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 ソフトアクチュエータの材料・構成・応用技術 (監修: 安積欣志, 奥崎秀典, 鈴森康一), S&T出版	6. 最初と最後の頁 52-60
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 増田 造, 秋元 文, 吉田 亮	4. 巻 NA
2. 論文標題 機能性高分子ゲル	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 インストルメンテーションの視点からみたバイオメティクス~バイオメティクス研究及び製品開発の 動向と今後の展望~ (監修: 下村政嗣), シーエムシー・リサーチ	6. 最初と最後の頁 224-232
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Masuda, A.M. Akimoto and R. Yoshida	4. 巻 NA
2. 論文標題 Self-oscillating polymer materials	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Biomaterials Nanoarchitectonics (Ed. M. Ebara), Elsevier	6. 最初と最後の頁 219-236
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 M. Onoda, T. Ueki, M. Shibayama and R. Yoshida	4. 巻 5
2. 論文標題 Multiblock copolymers exhibiting spatio-temporal structure with autonomous viscosity oscillation	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Sci. Rep.	6. 最初と最後の頁 15792
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/srep15792	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Masuda, A. M. Akimoto, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida	4. 巻 27
2. 論文標題 Design of self-oscillating polymer brushes and control of the dynamic behaviors	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Chem. Mater.	6. 最初と最後の頁 7395-7402
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.chemmater.5b03228	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 R. Tamate, T. Ueki and R. Yoshida	4. 巻 27
2. 論文標題 Self-beating artificial cells: Design of cross-linked polymersomes showing self-oscillating motion	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Adv. Mater.	6. 最初と最後の頁 837-842
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/adma.201404757	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Masuda, A. Terasaki, A.M. Akimoto, K. Nagase, T. Okano and R. Yoshida	4. 巻 5
2. 論文標題 Control of swelling-deswelling behavior of a self-oscillating gel by designing the chemical structure	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 RSC Adv.	6. 最初と最後の頁 5781-5787
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c4ra10675j	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 T. Ueki, M. Onoda, R. Tamate, M. Shibayama, R. Yoshida	4. 巻 25
2. 論文標題 Self-oscillating AB diblock copolymer developed by post modification strategy	5. 発行年 2015年
3. 雑誌名 Chaos	6. 最初と最後の頁 64605
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/1.4921687	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計52件 (うち招待講演 29件 / うち国際学会 22件)

1. 発表者名 小野田実真、長尾道弘、高木秀彰、Li Xiang、玉手亮多、上木岳士、柴山充弘、吉田亮
2. 発表標題 自律的にゾル-ゲル振動する高分子溶液の時分割SAXS測定及びその動態
3. 学会等名 第31回高分子ゲル研究討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 佐藤昂実、李慇種、秋元文、吉田亮
2. 発表標題 ポリマー架橋法による自励振動ゲルの作製と機能評価
3. 学会等名 第31回高分子ゲル研究討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉澤俊輝、小野田実真、上木岳士、玉手亮多、秋元文、吉田亮
2. 発表標題 酸化剤供給部位を有するブロック共重合体の創製
3. 学会等名 第31回高分子ゲル研究討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Novel biomimetic and smart materials with autonomous function; "Self-oscillating" polymer gels
3. 学会等名 China-Japan 1st International Symposium on Bio-Materials and Interfaces (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉田 亮
2. 発表標題 生物のように自律的に動くスマートな高分子材料の開発とソフトアクチュエータとしての展開
3. 学会等名 日本化学会秋季事業 第9回CSJ化学フェスタ2019 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉田 亮
2. 発表標題 自励振動高分子ゲルの創製と機能性ソフトマテリアルとしての展開
3. 学会等名 2019年液晶交流会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Evolution of self-oscillating polymer gels as smart softmaterials
3. 学会等名 The 6th Hoffman Family Symposium International Symposium on Smart Biomaterials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels as biomimetic and smart softmaterials
3. 学会等名 2019 US-Japan Symposium on Polymer Chemistry: Macromolecules: Challenges and Opportunities for the 21st Century (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 本間健太、太田裕治、秋元文、南皓輔、吉川元起、長瀬健一、吉田亮
2. 発表標題 BZ反応を駆動力とした自励振動ポリマーブラシの自律的伸縮振動
3. 学会等名 第68回高分子学会年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Evolution of self-oscillating polymer gels as biomimetic and smart soft materials
3. 学会等名 International Symposium on Stimuli-responsive Materials, Windsor, USA (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels as biomimetic and smart softmaterials
3. 学会等名 Baltic Conference Series (BCS), Stockholm, Sweden (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉田 亮
2. 発表標題 自律機能を持つ動的な高分子膜の創製とその展開
3. 学会等名 平成30年電気学会全国大会 (九州大学伊都キャンパス, 福岡) (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉田 亮
2. 発表標題 高分子ゲルを用いたバイオミメティック・インテリジェント材料の開発
3. 学会等名 日本材料科学会主催第1回次世代スマート・マテリアルの創製と応用展開に関する研究会講演会 (千葉工業大学) (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 吉田 亮
2. 発表標題 機能性高分子ゲルの設計およびバイオ/バイオミメティックマテリアル等スマート材料としての応用展開
3. 学会等名 情報機構主催講演会（東京）（招待講演）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小野田実真、玉手亮多、上木岳士、柴山充弘、吉田亮
2. 発表標題 アメーバのように自律的にゾル-ゲル転移する高分子溶液の微視/巨視的振動解析
3. 学会等名 第67回高分子学会年次大会（名古屋国際会議場）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 本間健太、太田裕治、秋元文、吉田亮
2. 発表標題 修飾密度の異なる自励振動ポリマーブラシの調製と原子間力顕微鏡によるその物性評価
3. 学会等名 第67回高分子学会年次大会（名古屋国際会議場）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 古澤 麻実、金 娟秀、松川 滉、秋元 文、吉田 亮
2. 発表標題 表面グラフト構造を利用した準閉鎖型自励振動ゲルの設計
3. 学会等名 第67回高分子学会年次大会（名古屋国際会議場）
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小野田実真、玉手亮多、上木岳士、柴山充弘、吉田 亮
2. 発表標題 アメーバのようにゾル-ゲル転移する自励振動高分子溶液の創製とその駆動環境制御
3. 学会等名 第29回高分子ゲル研究討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 玉手亮多、上木岳士、柴山充弘、吉田 亮
2. 発表標題 高分子構造及び溶液条件が自励振動ブロック共重合体の振動挙動に与える影響
3. 学会等名 第29回高分子ゲル研究討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 増田 造、嶋田直彦、佐々木泰、丸山 厚、秋元 文、吉田 亮
2. 発表標題 ウレイド高分子を利用したUCST型自励振動高分子の設計と合理的な振動挙動制御
3. 学会等名 第29回高分子ゲル研究討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 金娟秀、竹田成美、木下真玲央、酒井崇匡、秋元 文、吉田 亮
2. 発表標題 螺旋状自励振動ゲルの作製とその運動機能制御
3. 学会等名 第29回高分子ゲル研究討論会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Evolution of self-oscillating polymer gels as advanced materials
3. 学会等名 2017 MRS Spring Meeting & Exhibit (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels as metal-containing functional materials
3. 学会等名 ACS National Fall Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 吉田 亮
2. 発表標題 自励振動高分子ゲルの創製とその展開
3. 学会等名 日本膜学会第39年会 (招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 吉田 亮
2. 発表標題 生体のような自律的運動をする自励振動高分子材料系の設計と構築
3. 学会等名 平成29年度第2回「メディシヨナルナノテク研究会」(招待講演)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 吉田 亮
2. 発表標題 ゲルの基礎：透過と拡散の制御
3. 学会等名 医用高分子研究会・高分子ゲル研究会合同講座（招待講演）
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 小野田実真, 玉手亮多, 上木岳士, 柴山充弘, 吉田亮
2. 発表標題 自律的にゾル/ゲル転移する高分子溶液とその運動性制御
3. 学会等名 第66回 高分子学会年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 本間健太・増田造・秋元文・長瀬健一・糸賀和義・岡野光夫・吉田亮
2. 発表標題 マイクロパターン化した自励振動ポリマーブラシによる化学反応波の方向制御
3. 学会等名 第66回 高分子学会年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 増田造・秋元文・長瀬健一・岡野光夫・吉田亮
2. 発表標題 自励振動ポリマーブラシ表面における化学振動反応の特性
3. 学会等名 第66回 高分子学会年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 玉手亮多・上木岳士・柴山充弘・吉田亮
2. 発表標題 自律的なベシクル構造の形成崩壊を示す自励振動ジブロック共重合体：ブロック長と高分子濃度が時空間構造へ与える影響の検討
3. 学会等名 第66回 高分子学会年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 金娟秀・竹田成美・木下真玲央・酒井崇匡・秋元文・吉田亮
2. 発表標題 螺旋状自励振動ゲルの作製とその運動機能制御
3. 学会等名 第66回 高分子学会年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 増田造・嶋田直彦・佐々木泰・丸山厚・秋元文・吉田亮
2. 発表標題 UCST型の相転移挙動を示す新規自励振動高分子の創製
3. 学会等名 第27回 バイオ・高分子シンポジウム
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Kenta Homma, Tsukuru Masuda, Aya Mizutani Akimoto, Kenichi Nagase, Kazuyoshi Itoga, Teruo Okano, Ryo Yoshida
2. 発表標題 Unidirectional Control of Chemical Waves on Micropatterned Self-Oscillating Polymer Brush
3. 学会等名 The 15th International Conference on Advanced Materials(IUMRS-ICAM 2017) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Eunjong Lee, Youn Soo Kim, Aya Mizutani Akimoto, and Ryo Yoshida
2. 発表標題 Design of a magnetically responsive self-oscillating gel for a control of spatiotemporal wave propagation
3. 学会等名 第66回 高分子討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 増田造・嶋田直彦・佐々木泰・丸山厚・秋元文・吉田亮
2. 発表標題 ウレイド高分子を利用したUCST型自励振動高分子の設計と評価
3. 学会等名 第66回 高分子討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 金娟秀・竹田成美・木下真玲央・酒井崇匡・秋元文・吉田亮
2. 発表標題 螺旋状自励振動ゲルの作製とその運動制御
3. 学会等名 第66回 高分子討論会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 増田造・秋元文・吉田亮
2. 発表標題 自律的な物性変化を示す生体模倣ポリマーブラシ表面の創製
3. 学会等名 第39回 日本バイオマテリアル学会大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Youn Soo Kim, Narumi Takeda, Mareo Kinoshita, Aya Mizutani Akimoto, Takamasa Sakai, and Ryo Yoshida
2. 発表標題 The helical shaped self-oscillating gel showing large and uniaxial deformation
3. 学会等名 第27回 日本MRS年次大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels as novel biomimetic materials
3. 学会等名 International Symposium on Advanced Manufacturing Science for Future Systems (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels as active matter
3. 学会等名 Current and Future Perspectives in Active Matter (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels showing autonomous biomimetic motion
3. 学会等名 CEMS Topical Meeting on Soft Robotics (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Advance in self-oscillating polymer material systems
3. 学会等名 International Symposium on Stimuli-responsive Materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels as novel smart materials
3. 学会等名 Ewha Chemistry and Nanoscience International Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels as smart functional materials
3. 学会等名 International Conference on Advanced Polymeric Materials Commemorating the 40th Anniversary of the Polymer Society of Korea (PSK) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Evolved biomimetic polymer gels undergoing autonomous oscillations like living things
3. 学会等名 The 2nd International Symposium on Biointerface Science and Engineering 4th Hoffman Family Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gel as a potential model of chemomechanical feedback system in mechanobiology
3. 学会等名 International Symposium on Nanoarchitectonics for Mechanobiology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Evolution of self-oscillating polymer gels: Functional control from nanosize to bulk range
3. 学会等名 CIMTEC 2016 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels as bioinspired dynamic softmaterials
3. 学会等名 2016 MRS Spring Meeting & Exhibit (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Self-oscillating polymer gels as smart bioinspired materials
3. 学会等名 The 3rd International Symposium for Green-Innovation Polymers (GRIP2016) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2016年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Design of novel bio-inspired smart gels and the prospect of mechanobiology
3. 学会等名 International Symposium on Nanoarchitectonics for Mechanobiology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Evolution of self-oscillating polymer gels as smart bioinspired materials
3. 学会等名 13th International Conference of Polymers for Advanced Technology (PAT2015) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2015年

1. 発表者名 R. Yoshida
2. 発表標題 Design of self-oscillating polymer gels toward bioinspired autonomous micro- and nanomachines
3. 学会等名 2015 MRS Spring Meeting & Exhibit (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2015年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>バイオ材料システム工学研究室 http://cross.t.u-tokyo.ac.jp</p>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
連携研究者	秋元 文 (Akimoto Mizutani Aya) (10585805)	東京大学・工学系研究科・准教授 (12601)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関