

令和 6 年 6 月 20 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2022

課題番号：19H02778

研究課題名（和文）座屈ゲル表面によるマイクロマニピュレータの開発

研究課題名（英文）Development of Micromanipulator with Buckling Gel Surface

研究代表者

麻生 隆彬（Asoh, Taka-Aki）

東京理科大学・先進工学部マテリアル創成工学科・准教授

研究者番号：50548378

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、ハイドロゲル表面にリンクル（しわ）構造を形成する独自の手法を開発し、リンクル構造によるマニピュレーションに取り組んだ。リンクル構造にはハイドロゲルや微粒子を捕捉する能力があることが明らかになった。さらに、リンクル構造の形成ダイナミクスを詳細に検討し、リンクル構造の進行波生成を確認した。リンクル構造の選択的な捕捉と進行波をカップリングさせることで、流体中から任意の物質のみを捕捉して輸送する革新的なコンベア型アクチュエータを開発できると考えられる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、再生医療技術の発展に伴い、一細胞の正確なマニピュレーションの必要性に加え、生体類似組織などの含水ソフトマテリアルが人工的に作製可能になってきた。きわめて微細かつ柔軟であるため、マイクロメートルスケールの微小な含水ソフトマテリアルを精密に操作しうる次世代のマニピュレーション技術の開発は急務である。本研究では、含水材料であるハイドロゲルや微小材料である微粒子を捕捉できることを明らかにしたため、低侵襲的に一細胞や細胞シートを操作可能なマイクロマニピュレータの開発につながり、再生医療分野における人工生体組織の精密操作やロボット産業に貢献する。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed a wrinkle structures on the hydrogel surface and worked on manipulation by the wrinkle structures. It was found that the wrinkle structures can trap hydrogels and microparticles. Furthermore, the dynamics of the wrinkle formation was investigated, and the travelling wave generation of the wrinkle structure was confirmed. By coupling the selective trapping ability of the wrinkle with traveling waves, we are able to develop an innovative conveyor-type actuator that traps and transports only arbitrary materials from a fluid.

研究分野：機能性高分子

キーワード：リンクル ハイドロゲル マニピュレーション 接着 アクチュエータ

様式 C-19、F-19-1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

対象を捕捉、操作し、任意の位置に精密に輸送するマニピュレータの開発が盛んに検討されている。このなかで、対象と接するアクチュエータ部位は最も重要な要素部位であり、金属やセラミックスによって構成されている。しかし、低侵襲、ソフトなハンドリングを実現するためには、硬い材料にかわる柔軟なソフトアクチュエータ、とりわけ高分子ゲルアクチュエータへの代替が期待されている。近年の科学技術の発展に伴い対象物質は徐々に微細化、複雑化している。例えば、最も困難な水中でのマニピュレーションでは、人工授精などの際には卵子一つを捕捉できるマニピュレータ、またサブミクロンサイズの微粒子を操作可能な光ピンセットなどが実用化されている。再生医療技術の発展に伴い、一細胞の正確なマニピュレーションの必要性に加え、生体類似組織などの含水ソフトマテリアルが人工的に作製可能になってきた (Nishida *et al.* *N. Engl. J. Med.* 2004, 351, 1187.; Matsusaki *et al.* *Angew. Chem. Int. Ed.* 2007, 46, 4689.; Matsunaga *et al.* *Adv. Mater.* 2011, 23, H90.)。しかし、きわめて微細かつ柔軟であるため、人の手やピンセットで操作すること難しく、手術などで問題になりつつある。したがって、マイクロメートルスケールの微小な含水ソフトマテリアルを精密に操作しうる次世代のマニピュレーション技術の開発は急務である。

微小な含水材料を低侵襲的に精密操作しうる新たなソフト界面をどのように構築するか？最近、長時間水中に浸漬した際に人の指先に形成される「しわ」が、水中での作業を効率化すると報告があった (K. Kareklas *et al.* *Biol. Lett.* 2013, 9, 20120999.)。ほとんど役割のわかっていなかった指先のしわ構造の機能を報告したきわめて珍しい報告である。見方を変えれば、自然界のソフトな界面に散見される座屈した表面、リンクル構造 (脳、内臓などの生体組織)には、表面積を獲得しながら、水を含んだ柔らかい界面を強固に接合する役割が隠されていると考えるのが、一つの答えであると考えた。エラストマー等の材料表面に微細リンクル構造を形成する手法は確立されているものの、ハイドロゲル表面を座屈させてリンクル構造を簡便に形成する方法はほとんど報告されていない。そこで、新たな動的かつ含水座屈表面の形成手法を明らかにする必要がある。ハイドロゲル表面にリンクル構造を作製し、その表面の物質吸着能、捕捉能を定量的に評価することができれば、リンクル表面の革新的機能を創出できる。そして最終的に含水系微小及びソフトマテリアルを低侵襲的かつ精密に操作しうるマイクロマニピュレータを開発することを企画した。

2. 研究の目的

繊細かつ正確な微小ソフトマテリアルの精密操作を水中で実現するために、外部刺激で表面形態が制御可能なリンクルマニピュレータを開発する。捕捉対象の材料と表面間の相互作用を表面トポロジーで制御することが出来れば、微小ソフトマテリアル、例えば一細胞や人工生体軟組織、マイクロチップなど、現在の技術ではハンドリングが困難な材料を適切に捕捉・輸送できると考えられる。外部刺激で座屈を制御し、フラット表面・リンクル表面を切り替えて、操作対象群に対して適切な表面トポロジーを提示することで、微細なソフトマテリアルのキャッチアンドリリースを実現することが可能なハイドロゲル界面、リンクルマニピュレータを構築する。

3. 研究の方法

表面トポロジーを外部刺激で制御可能なハイドロゲル表面を開発する。まず、ゲル表面のみが座屈し、リンクル構造を表面に持ったハイドロゲルの作製技術を確立する。

次に、刺激応答性の動的リンクル表面を作製する。外部刺激として温度刺激を選択し、温度変化に応答して、リンクル表面と平面がスイッチするハイドロゲル表面の作製条件を見出す。リンクル表面と平面が完全にスイッチする条件を最適化する。また、リンクル構造の形成ダイナミクスを評価することで、リンクル構造の運動機能を開拓する。

リンクル構造の捕捉能を評価する。マクロな材料の捕捉機能として、ハイドロゲルを対象とし、リンクル構造のハイドロゲルの物理的な捕捉により、ハイドロゲルの接着を実現する。マイクロな材料の捕捉としては、モデル化合物としてサブミクロンサイズの蛍光微粒子の吸着実験を実施する。具体的には、リンクルの波長を外部刺激で変化させたときの微粒子の捕捉能のサイズ選択性を評価する。

4. 研究成果

ハイドロゲルリクルの電気泳動形成

本研究では、ゲル表面へのポリイオンコンプレックス (PIC) 薄層形成を駆動力とするゲル表面リクルの電気泳動形成法を開発した (図 1)。異種電荷をもつ高分子電解質が相互作用し形成する PIC は水に不溶であり、その弾性率 (数百 MPa) はゲルの弾性率 (数百 kPa) に比べて著しく高いため、ハイドロゲル表面に PIC 薄層を形成させることで、表面における弾性率のミスマッチによってリクル構造を誘起させられると考えた。カチオン性高分子であるポリ(ジアリルジメチルアンモニウムクロライド) (PDDA) の存在下で作製したゲルの表面に、アニオン性高分子であるポリ(スチレンスルホン酸ナトリウム) (PSS) の水溶液を滴下した後、電極で挟み込み、 5 V mm^{-1} の電場を印加した。電場印加後のゲルの外観は透明であったが、位相差顕微鏡において表面にリクル構造が観察された (図 2a 左)。印加電場やゲルの弾性率を変化させると形成するリクル構造の波長が変化した。一般的に、弾性体表面に薄膜を形成した際に誘起されるリクル構造の波長 (λ) は $\lambda = 2\pi t (\bar{E}_f / 3\bar{E}_s)^{1/3}$ で記述される。ここで、 t は薄膜の厚さ、 \bar{E} はポアソン比 ν を用いて $E/(1-\nu^2)$ で記述される。 E_f および E_s はそれぞれ表面薄膜および基材の弾性率である。印加電場を大きくすることでゲル表面に形成する PIC の厚さおよび弾性率が大きくなり、波長が大きくなることやゲルの弾性率を大きくすると波長が小さくなることから、リクル構造は表面 PIC 層-ゲル間の弾性率のミスマッチによって生じていることが強く示唆された。

通常リクル形成は延伸して薄層を形成したのちに除荷する方法、もしくは薄膜を形成して収縮させる方法など、横方向への圧縮が必要であるが、本研究ではハイドロゲル表面に PIC 層を形成させるのみでリクル構造が形成した。そこで、上述の方法において基材であるハイドロゲルを一軸延伸しながら電場印加をする、すなわちゲルの網目構造に異方的な応力を加えながら PIC 層を形成することを試みた。ゲルの延伸率を増加させるとランダムからヘリンボーン (ジグザグ)、ストレート (ストライプ) と劇的に形態を変化させた (図 2a)。図 2b に示すように延伸中のゲルには延伸に垂直な方向に対して圧縮応力が印加される。ゲルの弾性率は延伸方向よりも延伸に垂直な方向の方が柔らかいため、その方向に座屈するほうが有利であり、垂直方向への座屈が支配的になったことが示唆される。そこで、配向ゲルに対してリクル形成を実施した。グルタルアルデヒドで架橋したポリ(ビニルアルコール) (PVA) ゲルを一軸延伸したまま、グルタルアルデヒド水溶液に浸漬して追架橋し、配向ゲルとした。一軸延伸により伸ばされた高分子鎖の配向は、追架橋によってある程度保持されていると考えられる。配向ゲル表面に対して、PIC 層を形成させると、配向リクル構造が観察された。これは、ゲルと PIC 層の応力ミスマッチによるリクル形成メカニズムをさらに拡張し、ゲル内部のわずかな応力分布を表面のリクル構造へ転写する新しいリクル形成メカニズムを提案するものである。

刺激応答性ハイドロゲルは、外部刺激に応答しその物性が変化するゲルである。温度応答性ゲルは、低温では親水性であるが、下限臨界溶液温度 (LCST) 以上になると水に不溶になる性質を持っている。代表的な温度応答性ゲルであるポリ(*N*-イソプロピルアクリルアミド) (PNIPAAm) ゲルの LCST は 32°C 付近である。筆者らは温度応答性ゲル表面にリクル構造を作製することで、外部刺激によるゲルの物性の変化によってリクル構造の形状を変化させられると考えた。PNIPAAm ゲルの表面に上述の方法で

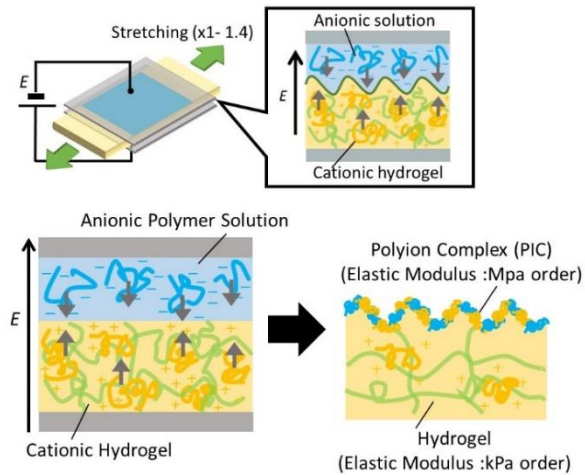


図 1. ハイドロゲル表面へのリクル構造の電気泳動形成の模式図

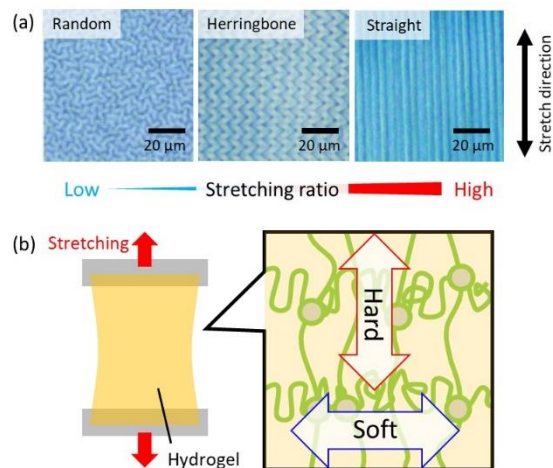


図 2. (a) 異なる延伸時に形成されたリクル構造 (b) 延伸時のゲル内部の高分子鎖のイメージ図。

リンクル構造を形成させ、温度を変化させた。興味深いことに、20 °Cでは観察されたリンクル構造が 50 °Cに加熱することで消失した。さらに、ゲルを冷却することで再びリンクル構造が生じた (図 3)。同様に、配向リンクル構造を形成させたゲルを用いた実験ではリンクル構造が可逆的に変形した。リンクル構造はゲル-PIC 間の弾性率のミスマッチによって誘起されるため、加温によって引き起こされる PNIPAAm の脱水和に伴うゲルのヤング率の上昇によりゲル-PIC 間の弾性率のミスマッチが解消され、リンクル構造が変形したと考えられる。以上、外部刺激にตอบสนองし、その形状を可逆的に切り替え可能な温度応答性ハイドロゲルリンクルを構築した。

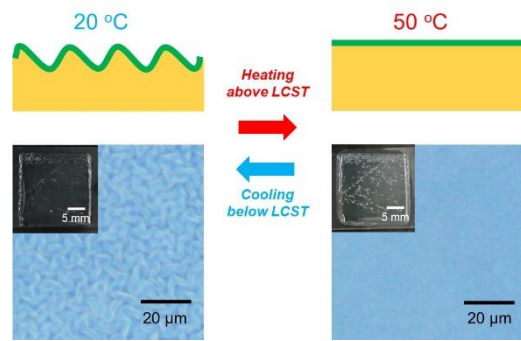


図 3. 温度でリンクルの形成と消失が制御可能な刺激応答性リンクル

動的リンクル

透明電極を通して位相差顕微鏡により形成過程のゲル表面を直接観察した。電場印加すると直ちにゲル表面にリンクル構造が形成し、連続的な座屈を伴いランダムに変形しながら生長する様子が観察された。リンクルの進行方向はばらばらであったがそれぞれのリンクル波一方向へと移動し、進行波を生成していた。異なる電気泳動時間により形成させたリンクル構造の波長 (λ) と振幅 (A) を白色干渉顕微鏡を用いて測定すると、波長は電場印加直後に急激に増加した後一定になったのに対し、振幅は波長が一定になった後も増加し続けた。波長が一定であるとき、振幅は PIC 層の表面積に依存すると考えられる。従って、電気泳動中に生長する PIC 層は、厚みや硬さが一定になった後も表面積を増加させることで、振幅を増加させながら生長するメカニズムが考えられる。また、リンクル構造が激しく運動するのは波長が急激に変化する初期過程であることが示唆された。

ゲルを一軸方向へ圧縮した状態で電場を印可して PIC 層を形成させると、圧縮方向に対して平行な配向リンクルが形成した (図 4)。ゲルを横方向から圧縮した状態では、内部の高分子網目にかかる応力は圧縮方向に軟らかくなるため優先的に座屈しやすくなり、配向リンクルが形成される。その形成過程を直接観察したところ、配向リンクルが圧縮方向に伝播する様子が観察された。波形はわずかに乱れるものの一方向へ移動し続けた。シンプルな刺激で生成する蠕動運動のような進行波の生成に成功し、含水材料表面の動的なリンクル構造は、細胞などの微小物体を低侵襲に輸送するマニピュレーションシステム等への応用が期待される。

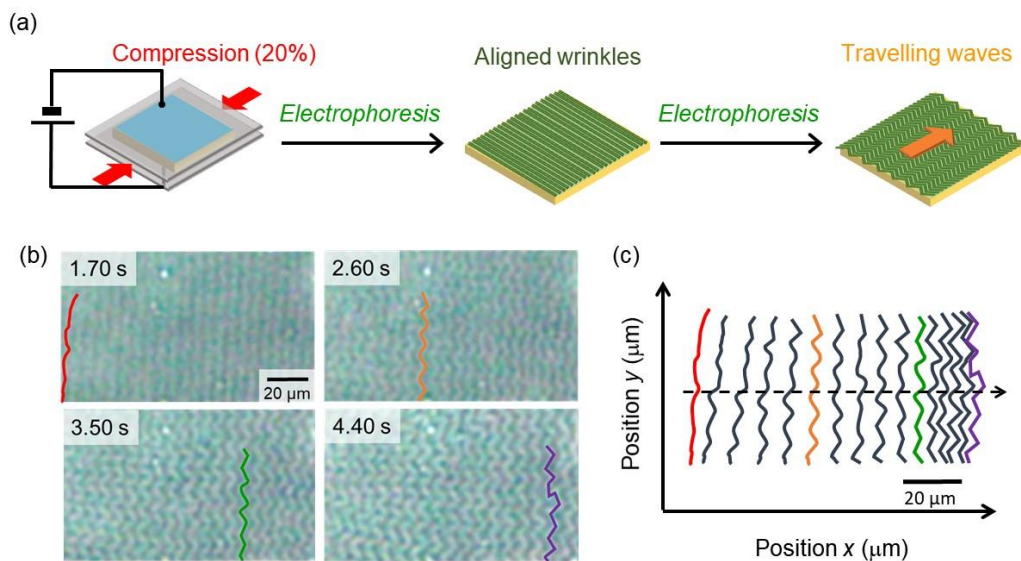


図 4. (a) 一軸圧縮下でのリンクル構造形成の実験模式図. (b) 電気泳動形成時の時間変化におけるリンクル構造の位相差顕微鏡写真. (c) 0.18 秒ごとのリンクル波形のマッピング.

リンクル構造によるマクロナ捕捉とマイクロな捕捉

一般的に、材料の接着は化学的あるいは物理的なアプローチによって実施されている。しかし、ハイドロゲルは高い含水率のために特に接着が困難な材料であり、さらなる接着法の開発が必要とされている。我々は、接着界面に対してリンクル構造を形成することで、ハイドロゲルを捕捉する、リンクル構造の形状を用いた物理的なアプローチによる新たなハイドロゲルの接着手法を開拓した。

PVAゲルをカチオン性高分子であるPDDAあるいはアニオン性高分子であるPSSの存在下で架橋反応により作製した。アニオン性ハイドロゲルは薄膜状のゲルとして作製した。作製したアニオン性ゲルはPVAの貧溶媒であるエタノールを用いて収縮させ、乾燥させたものを接着実験に用いた。膨潤ゲル薄膜、乾燥ゲル薄膜をそれぞれカチオン性ハイドロゲルで挟み込み接着させると、乾燥ゲル薄膜を用いた場合にのみゲルどうしが接着した(図5ab)。この接着は水中に浸漬しても安定に接着を維持していた。また、接着ゲルの断面の顕微鏡観察を実施すると、リンクル構造が観察された(図5c)。このことから、ゲル薄膜の膨潤に伴うリンクル形成によって薄膜がゲルを捕捉し、ゲルどうしが接着することが示唆された。

リンクル構造を形成した接着ゲルに対して、リンクルゲル薄膜のみを延伸すると、ゲル薄膜の延伸に伴い、リンクル構造の消失が伝播していく様子が観察された。最終的にゲルどうしは剥離し、ゲルの接着面に大きな損傷は観察されなかった。この結果から、リンクル構造の形成によって弱い相互作用を増幅し強固な接着を形成可能な一方、その解消によって接着ゲルを容易に剥離可能なことが示唆された。

さらに、外部刺激によってリンクル形成と消失を誘導し、ゲルの接着と剥離を制御した。PVAに対して酸触媒存在下でアセトアルデヒドを反応させ、アニオン性ゲル薄膜を疎水化することで温度応答性ゲル薄膜を作製した。このゲル薄膜は20℃では水に膨潤する一方で、50℃の水に浸漬すると収縮した。50℃で完全に収縮させたゲル薄膜をカチオン性ゲルで挟み込み、それらを20℃に冷却することによって温度応答性ゲル薄膜をゲル-ゲル界面で再膨潤させると、ゲルどうしは接着した。この接着ゲルは20℃の水中では剥離しなかったのに対して、50℃に加熱すると、接着界面のリンクル構造が徐々に消失し、最終的にゲルは剥離した。このことから、刺激応答性リンクル構造を用いてゲル-ゲル接着界面のリンクル構造の有無を切り替えることで、強固な接着と簡便な剥離を両立するハイドロゲルの接着が可能であることがわかった。

リンクル構造はハイドロゲルのようなマクロの構造体を捕捉して接着できることがわかったため、次にリンクル構造に対する粒子の捕捉能を評価した。具体的には、リンクルの波長を変化させたときの微粒子の捕捉能のサイズ選択性を評価し、形成するリンクルの波長と捕捉される微粒子の粒径の関係を明らかにした。異なる波長のリンクル表面に直径約2 μm の粒子を播種したところ、波長2.0 μm と3.3 μm では粒子をほとんど捕捉しないのに対して、波長2.5 μm の表面では粒子を捕捉する様子が観察された(図6; 矢印部位に粒子が捕捉されている)。このようなリンクルの選択的な捕捉と進行波をカップリングさせることで、流体中から任意の物質のみを捕捉して輸送する革新的なコンベア型アクチュエータを開発できると考えられる。

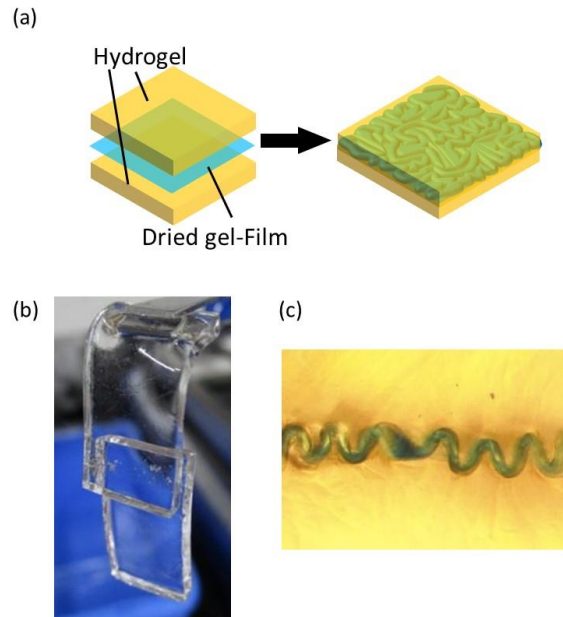


図5. (a) ゲル薄膜によるハイドロゲルの接着実験模式図. (b) 接着したゲルの写真. (c) 接着断面の顕微鏡写真.

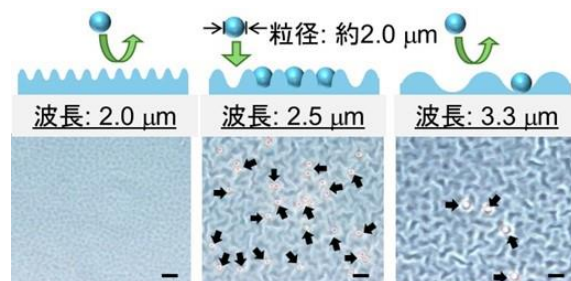


図6. 波長の異なるリンクル表面による微粒子の捕捉実験.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計33件（うち査読付論文 33件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Yuka Kashihara, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama	4. 巻 43
2. 論文標題 Travelling wave generation of wrinkles on the hydrogel surfaces	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Macromol. Rapid Commun.	6. 最初と最後の頁 2100848
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/marc.202100848	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 Raghav Soni, Taka-Aki Asoh*, Yu-I Hsu, Hiroshi Uyama*	4. 巻 29
2. 論文標題 Freshwater-durable and marine-degradable cellulose nanofiber reinforced starch film	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Cellulose	6. 最初と最後の頁 1667-1678
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10570-021-04410-8	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 Madhurangika Panchabashini Horathal Pedige, Taka-Aki Asoh*, Yu-I Hsu, Hiroshi Uyama*	4. 巻 278
2. 論文標題 Stimuli-responsive composite hydrogels with three-dimensional stability prepared using oxidized cellulose nanofibers and chitosan	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Carbohydrate Polymers	6. 最初と最後の頁 118907
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbpol.2021.118907	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 Akihida Sugawara, Taka-Aki Asoh*, Yoshinori Takashima, Akira Harada, Hiroshi Uyama*	4. 巻 51
2. 論文標題 Thermoresponsive hydrogels reinforced with supramolecular cellulose filler	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Chem. Lett.	6. 最初と最後の頁 145-148
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.210658	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 Yanting Lyu, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 9
2. 論文標題 Facile synthesis of three-dimensional hydroxyapatite monolith for protein adsorption	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 J. Mater. Chem. B	6. 最初と最後の頁 9711-9719
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1TB02021H	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 Taka-Aki Asoh*, Shiho Takai, Hiroshi Uyama	4. 巻 -
2. 論文標題 Actuation of hydrogel architectures prepared by electrophoretic adhesion of thermoresponsive microgels	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.1c02330	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 Yan Wang, Luwei Zhang, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 13
2. 論文標題 Facile preparation of hierarchically porous monolith with optical activity based on helical substituted polyacetylene via one-step synthesis for enantioselective crystallization	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 48020-48029
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.1c12801	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 Emil Hajili, Zhicheng Suo, Akihide Sugawara, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 275
2. 論文標題 Fabrication of chitin monoliths with controllable morphology by thermally induced phase separation of chemically modified chitin	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Carbohydrate Polymers	6. 最初と最後の頁 118680
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbpol.2021.118680	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 Luwei Zhang, Yan Wang, Lei Pan, Ruizhi Tang, Taka-Aki Asoh*, Junjie Ou, Hiroshi Uyama*	4. 巻 23
2. 論文標題 Fabrication of reuseable bifunctional biomimetic Ti4+-phosphorylated cellulose monolith with coral-like structure for enrichment of phosphorylated peptides and glycosylated peptides	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Green Chemistry	6. 最初と最後の頁 7674-7684
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1GC02206G	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 Akihide Sugawara, Taka-Aki Asoh*, Yoshinori Takashima, Akira Harada, Hiroshi Uyama*	4. 巻 10
2. 論文標題 Mechano-responsive hydrogels driven by the dissociation of a host-guest complex	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Macro Letters	6. 最初と最後の頁 971-977
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsmacrolett.1c00357	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 Raghav Soni, Yu-I Hsu, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 120
2. 論文標題 Synergistic effect of hemiacetal crosslinking and crystallinity on wet strength of cellulose nanofiber-reinforced starch films	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Food Hydrocolloids	6. 最初と最後の頁 106956
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.foodhyd.2021.106956	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 Yanting Lyu, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 6
2. 論文標題 Fabrication of inorganic oxide fiber using a cigarette filter as template	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 15374-15381
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.1c01750	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 -

1. 著者名 Yan Wang, Luwei Zhang, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 2
2. 論文標題 Hydrophobic and hydrophilic modification of hierarchically porous monolithic polyimide derivatives as functional liquid absorbers	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materials Advances	6. 最初と最後の頁 3560-3568.
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1MA00185J	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 Yanting Lyu, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 5
2. 論文標題 Hierarchical Porous TiO2 monolith prepared using cellulose monolith as template	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Mater. Chem. Front.	6. 最初と最後の頁 3877-3885
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D1QM00220A	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 Shunsuke Mizuno, Taka-Aki Asoh*, Yoshinori Takashima, Akira Harada, Hiroshi Uyama*	4. 巻 222
2. 論文標題 Molecule-responsive polymer monolith as a smart gate driven by host-guest interaction with morphology restoration	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Macromol. Chem. Phys.	6. 最初と最後の頁 2000392
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/maco.202000392	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 Shunsuke Mizuno, Taka-Aki Asoh*, Yoshinori Takashima, Akira Harada, Hiroshi Uyama*	4. 巻 56
2. 論文標題 Palladium nanoparticle loaded -cyclodextrin monolith as flow reactor for concentration enrichment and conversion of pollutants based on molecular recognition	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chem. Commun.	6. 最初と最後の頁 14408-14411
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/D0CC06684B	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 Taka-Aki Asoh*, Tatsuya Yamamoto, Hiroshi Uyama	4. 巻 10
2. 論文標題 Particle Packing into Loose Networks for Tough and Sticky Composite Gels	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 17173
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-020-74355-8	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 -

1. 著者名 Chen Qian, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 41
2. 論文標題 Dimensionally stable and mechanically adaptive polyelectrolyte hydrogel	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Macromol. Rapid Commun.	6. 最初と最後の頁 2000406
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/marc.202000406	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 Zheng-Tian Xie, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 49
2. 論文標題 Facile fabrication of flow reactor from natural wood	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chem. Lett.	6. 最初と最後の頁 1232-1235
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1246/cl.200466	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 Chen Qian, Tatsuya Higashigaki, Taka-Aki Asoh*, Hiroshi Uyama*	4. 巻 12
2. 論文標題 Anisotropic conductive hydrogels with high water content	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Applied Materials & Interfaces	6. 最初と最後の頁 27518-27525
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsami.0c06853	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 Taka-Aki Asoh*, Megumi Nakamura, Tatsuya Shoji, Yasuyuki Tsuboi, Hiroshi Uyama	4. 巻 41
2. 論文標題 Electrophoretic adhesion of conductive hydrogels	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Macromol. Rapid Commun.	6. 最初と最後の頁 2000169
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/marc.202000169	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 Yang Zhaohang, Asoh Taka-Aki, Uyama Hiroshi	4. 巻 56
2. 論文標題 A cellulose monolith supported metal/organic framework as a hierarchical porous material for a flow reaction	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 411 ~ 414
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9CC08232H	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 Soni Raghav, Asoh Taka-Aki, Uyama Hiroshi	4. 巻 238
2. 論文標題 Cellulose nanofiber reinforced starch membrane with high mechanical strength and durability in water	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Carbohydrate Polymers	6. 最初と最後の頁 116203 ~ 116203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbpol.2020.116203	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 Kato Masatoshi, Asoh Taka-Aki, Uyama Hiroshi	4. 巻 55
2. 論文標題 Electrophoretic fabrication of an active and selective wrinkle surface on hydrogels	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Chemical Communications	6. 最初と最後の頁 4170 ~ 4173
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9cc01307e	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 Kato Masatoshi, Asoh Taka Aki, Uyama Hiroshi	4. 巻 40
2. 論文標題 Hydrogel Adhesion by Wrinkling Films	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Macromolecular Rapid Communications	6. 最初と最後の頁 1900434 ~ 1900434
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/marc.201900434	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 Kato Masatoshi, Kashihara Yuka, Asoh Taka-Aki, Uyama Hiroshi	4. 巻 36
2. 論文標題 Geometry Control of Wrinkle Structures Aligned on Hydrogel Surfaces	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Langmuir	6. 最初と最後の頁 1467 ~ 1473
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.langmuir.9b03967	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 Qian Chen, Asoh Taka-Aki, Uyama Hiroshi	4. 巻 8
2. 論文標題 Osmotic squat actuation in stiffness adjustable bacterial cellulose composite hydrogels	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Materials Chemistry B	6. 最初と最後の頁 2400 ~ 2409
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9TB02880C	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 Xie Zheng-Tian, Asoh Taka-Aki, Uyama Hiroshi	4. 巻 214
2. 論文標題 Monolithic cellulose supported metal nanoparticles as green flow reactor with high catalytic efficiency	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Carbohydrate Polymers	6. 最初と最後の頁 195 ~ 203
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbpol.2019.03.036	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 Sugawara Akihide, Asoh Taka-Aki, Takashima Yoshinori, Harada Akira, Uyama Hiroshi	4. 巻 177
2. 論文標題 Composite hydrogels reinforced by cellulose-based supramolecular filler	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Polymer Degradation and Stability	6. 最初と最後の頁 109157 ~ 109157
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.polyimdegradstab.2020.109157	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 Suzune Miki, Taka-Aki Asoh, Akihide Sugawara, Yu-I Hsu, Hiroshi Uyama	4. 巻 44
2. 論文標題 Self-healing hydrogels based on complex formation between a sugar and metal ions	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Networkpolymer, Japan	6. 最初と最後の頁 223-231
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11364/networkedpolymer.44.5_223	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 Emil Hajili, Akihide Sugawara, Taka-Aki Asoh, and Hiroshi Uyama	4. 巻 11
2. 論文標題 Fabrication of 3D Hierarchically Porous Chitosan Monolith by Thermally Induced Phase Separation of Chemically Modified Chitin	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 ACS Sustainable Chemistry & Engineering	6. 最初と最後の頁 5473-5484
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/1cssuschemeng.2c06953	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 Luwei Zhang, Yan Wang, Wanjun Zhang, Yu-I Hsu, Taka-Aki Asoh, Baoyun Qi, Hiroshi Uyama	4. 巻 8
2. 論文標題 Robust dual-biomimetic titanium dioxide-cellulose monolith for enrichment of phosphopeptide "	5. 発行年 2022年
ACS Biomaterials Science & Engineering	6. 最初と最後の頁 2676-2683
3. 雑誌名 ACS Biomaterials Science & Engineering	
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsbmaterials.2c00385	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 麻生隆彬	4. 巻 47
2. 論文標題 ゲルの表面・界面ではたらくリンクル構造	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 膜	6. 最初と最後の頁 130-136
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5360/membrane.47.130	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43件 (うち招待講演 10件 / うち国際学会 7件)

1. 発表者名 麻生隆彬
2. 発表標題 界面微細構造制御による高分子材料の接着
3. 学会等名 第20回産官学接着若手フォーラム (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Taka-Aki Asoh
2. 発表標題 Fabrication of functional wrinkles at hydrogel interfaces
3. 学会等名 021 Annual Spring Meeting of the Polymer Korea Society, Korea-Japan Joint Symposium (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柏原優香・麻生隆彬・宇山浩
2. 発表標題 電気泳動法を用いたハイドロゲル表面への動的なリンクル形成
3. 学会等名 第33回高分子ゲル研究討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柏原優香・麻生隆彬・宇山浩
2. 発表標題 電気泳動により形成するハイドロゲル表面リンクルの ダイナミクス
3. 学会等名 第70回高分子学会年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 麻生 隆彬 ・高井 志帆 ・宇山 浩
2. 発表標題 ゲル粒子の三次元接着によるソフトアクチュエータ の構築
3. 学会等名 第70回高分子学会年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 塩地 優樹 ・麻生 隆彬 ・宇山 浩
2. 発表標題 水溶性セルロース誘導体とポリアニオンの高分子コ ンプレックス形成
3. 学会等名 第70回高分子学会年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三木 涼音 ・麻生 隆彬 ・宇山 浩
2. 発表標題 ポリアニオンの対イオンと糖鎖の錯形成を利用した 自己修復ゲルの開発
3. 学会等名 第70回高分子学会年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 辻田 航輝・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 導電性薄膜とハイドロゲルの接着による導電性ハイドロゲルリンクルの作製
3. 学会等名 第70回高分子学会年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 麻生 隆彬・呂 燕;・宇山 浩
2. 発表標題 セルロースモノリス骨格をテンプレートとして用いる無機多孔体の作製
3. 学会等名 第70回高分子討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柏原優香・麻生隆彬・宇山浩
2. 発表標題 電気泳動によるハイドロゲル表面への動的なリンクル形成
3. 学会等名 第70回高分子討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 三木 涼音・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 ポリアニオンの対イオンと糖鎖の錯形成による自己修復ゲルの開発
3. 学会等名 第70回高分子討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 辻田 航輝・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 導電性薄膜とハイドロゲルの接着によるリンクル構造を有するハイドロゲル電極の作製
3. 学会等名 第70回高分子討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 塩地 優樹・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 水溶性セルロース誘導体とポリアニオンの錯形成によるハイドロゲルの接着
3. 学会等名 第70回高分子討論会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuka Kashihara, Taka-Aki Asoh, Hiroshi Uyama
2. 発表標題 Electrophoretic Fabrication of Wrinkles on Hydrogels and Its Wrinkling Dynamics
3. 学会等名 PacifiChem2021 (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柏原優香・麻生隆彬・宇山浩
2. 発表標題 電気泳動法により形成したハイドロゲルリンクルのダイナミクス
3. 学会等名 第43回日本バイオマテリアル学会大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柏原優香・麻生隆彬・宇山浩
2. 発表標題 電気泳動法により形成するハイドロゲル表面リンクルの微細構造制御
3. 学会等名 第59回日本接着学会年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柏原優香・麻生隆彬・宇山浩
2. 発表標題 動的なハイドロゲルリンクルの電気泳動形成
3. 学会等名 第10回JAC1/GSCシンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 柏原優香・麻生隆彬・宇山浩
2. 発表標題 電気泳動法により作製したハイドロゲル表面リンクルのダイナミクス
3. 学会等名 第67回高分子研究発表会（神戸）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 麻生隆彬
2. 発表標題 ハイドロゲルの接着と表面機能性リンクル
3. 学会等名 第176回東海高分子研究会講演会（招待講演）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 麻生隆彬
2. 発表標題 接着制御を基盤としたハイドロゲル構造体の構築に関する研究
3. 学会等名 第4回NEXT高分子(関西)交流会(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 麻生隆彬
2. 発表標題 界面微細構造制御によるハイドロゲルの接着制御と材料構築
3. 学会等名 精密ネットワークポリマー研究会第14回若手シンポジウム(招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 麻生 隆彬 ・山本 達也 ・宇山 浩
2. 発表標題 疎水性粒子が充填された高靱性複合ハイドロゲルの 作製
3. 学会等名 第69回高分子学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 柏原 優香 ・加藤 雅俊 ・麻生 隆彬 ・宇山 浩
2. 発表標題 電気泳動形成したハイドロゲル表面リンクルのダイナ ミクス
3. 学会等名 第69回高分子学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 塩地 優樹・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 水溶性セルロース誘導体の特異的相互作用による ハイドロゲルの接着
3. 学会等名 第69回高分子学会年次大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 麻生 隆彬・柏原 優香・宇山 浩
2. 発表標題 刺激応答性ハイドロゲルリンクルの電気泳動形成
3. 学会等名 第69回高分子討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 麻生 隆彬・銭 晨・東垣 達也・宇山 浩
2. 発表標題 バクテリアセルロース骨格を利用して作製した異方 導電性ハイドロゲル
3. 学会等名 第69回高分子討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 柏原 優香・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 ハイドロゲル表面リンクルの微細構造制御
3. 学会等名 日本接着学会関西支部第16回若手の会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山本 達也・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 マイクロ粒子が高濃度で充填した温度応答性複合ゲルの力学物性
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 麻生 隆彬・中村 萌・東海林 達也・坪井 泰之・宇山 浩
2. 発表標題 導電性高分子とハイドロゲルの接着による機能性複合ゲル材料の作製
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 加藤 雅俊・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 電気泳動成形による刺激応答性リンクルゲル表面の構築
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 山本達也・麻生隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 微粒子を高濃度で充填した刺激応答性ゲルの力学物性
3. 学会等名 第65回高分子研究発表会(神戸)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 福島 詞葉・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 ゲルペーストを前駆体に用いるハイドロゲル立体造形法の開発
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 高井 志帆・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 温度応答性ゲル粒子の接着による三次元構造体の作製
3. 学会等名 第68回高分子討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 菅原 章秀・麻生 隆彬・高島 義徳・原田 明・宇山 浩
2. 発表標題 セルロース/マトリックス界面にホスト-ゲスト相互作用を有する複合ゲル
3. 学会等名 第68回高分子討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 加藤 雅俊・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 電気泳動により構築されるハイドロゲル表面の刺激応答性リンクル構造
3. 学会等名 第68回高分子討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山本 達也・麻生 隆彬・宇山 浩
2. 発表標題 マイクロ粒子を充填した温度応答性ゲルの力学物性
3. 学会等名 第68回高分子討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taka-Aki Asoh
2. 発表標題 Functional Hydrogel Architectures Based on Hierarchical Structure of Bacterial Cellulose
3. 学会等名 Fifth International Symposium on Advances in Sustainable Polymers (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taka-Aki Asoh, Chen Qian, Hiroshi Uyama
2. 発表標題 Mechanically Adaptive Composite Hydrogel Based on Bacterial Cellulose
3. 学会等名 ICBP2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taka-Aki Asoh
2. 発表標題 Hierarchical Hydrogel Architectures Based on Bacterial Cellulose Nanofiber
3. 学会等名 46th Annual Meeting & International Symposium The Korean Society for Microbiology and Bio technology (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taka-Aki Asoh
2. 発表標題 Hydrogel adhesion utilizing wrinkle structures
3. 学会等名 第68回高分子討論会（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 麻生隆彬
2. 発表標題 ヒドロゲルの接着制御による 材料構築
3. 学会等名 第26回次世代医工学研究会（招待講演）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Taka-Aki Asoh
2. 発表標題 Electrophoretic Adhesion of Conductive Polymers and Hydrogels for Fabrication of Photothermal Actuator
3. 学会等名 The 40th International Conference of Photopolymer Science and Technology (ICPST-40)（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 麻生隆彬
2. 発表標題 SDGsを牽引するトータルゲルサイエンス, Introductory Remarks
3. 学会等名 第72回高分子討論会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
--	---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------