日本膜学会第45年会・膜シンポジウム2023合同大会　学生賞報告

膜シンポジウム2023実行副委員長・学生賞選考委員長
森田真也

第45年会・膜シンポジウム2023合同大会のポスターセッションは，大会2日目の11月21日（火）12時30分～14時50分，早稲田大学リサーチイノベーションセンターのB会場にて対面形式で開催されました．ポスター発表は全部で74演題あり，そのうち学生賞には67演題（人工膜40演題，生体膜・境界領域27演題）のエントリーがありました．審査には35名の学生賞選考委員の先生方にご協力いただき，1演題あたり3名の選考委員が，プレゼンテーション能力とコミュニケーション能力について評価を行いました．ポスター発表は，前半（奇数番号）と後半（偶数番号）に70分ずつ分かれて行いましたが，選考委員だけではなく学生を含む多くの参加者がポスターを閲覧し，活発な議論を行い，その時間帯にポスター会場から人が減ることはありませんでした．厳正な審査の結果，僅差ではありましたが，17演題（人工膜12演題，生体膜・境界領域5演題）が，学生賞の受賞となりました．大会3日目の午後に表彰式を行いましたが，受賞者全員が集まり，山口会長から一人ずつ表彰状と副賞が手渡され，全員で記念撮影を行いました．受賞された皆様には心よりお祝い申し上げます．最後になりましたが，発表者ならびに指導教員の皆様，審査ならびに集計でご協力いただきました選考委員の皆様，運営にご尽力いただきました実行委員長・実行副委員長の皆様ならびに事務局の渡部様，ポスター会場を設営していただきました早稲田大学の皆様には，この場をお借りして厚く御礼申し上げます．

学生賞選考委員（敬称略）
赤松憲樹，稲垣奈都子，太田誠一，奥山浩人，大橋秀伯，奥野貴士，兼橋真二，神尾英治，川勝孝博，河野健一，久保田　昇，熊谷和夫，小暮健太朗，佐伯大輔，佐藤祐也，菅　恵嗣，杉本　悠，須丸公雄，田代陽介，田中俊輔，通阪栄一，長澤寛規，中尾裕之，長尾耕治郎，南雲　亮，中瀬生彦，野村幹弘，原　重樹，原　伸生，比嘉　充，松岡淳，森田真也，山登正文，吉岡朋久，渡邉望美

学生賞受賞者（掲載はポスター番号順）

P–2S　今吉真崇（広大院先進理工）
「液体オリゴマーのプラズマ重合反応を用いたLayered-hybridシリカ膜の開発」

P–4S　山下浩輝（東工大化生研）
「高感度な膜型バイオセンシングに向けた膜表面設計及び検出特性評価」

P–6S　久保卓也（広大院先進理工）
「オルガノシリカ膜を用いた中～高温における高効率な湿りガス分離」

P–15S　兎洞海斗（都立大院都市環境）
「超高CO_2透過性を有する表面修飾ナノ粒子含有高分子複合膜の温度依存性」

P–16S　古川未希（広大院先進理工）
「ゼオライト中間体オリゴマーの薄膜化とナノ多孔膜への応用」

P–20S　松本　渉（東京都市大院総合理工）
「ブレンステッド酸触媒による非共役複素環ポリマー膜の合成と気体分離特性」

P–21S　韓　升升（工学院大先進工）
「CMB–MMA共重合ポリマーをブレンドしたPVDF膜の開発と洗浄性評価」

P–22S　田渕美樹（神戸大院科技イノベ）
「W/Oエマルション分離への応用を目指したフッ素フリーなシリカ修飾ポリケトン膜の開発」

P–27S　牧原大晟（広大院先進理工）
「オルガノシリカ膜の細孔径制御と有機水溶液の逆浸透濃縮への応用」

P–32S　井上夏輝（都立大院都市環境）
「燃料電池用ナノファイバー複合電解質膜の化学的安定性に対するナノファイバーの効果」

P–33S　舞弓哲史（東工大化生研）
「アンチファウリング膜設計に向けたQCMセンサー表面改質と吸着挙動解析」

P–34S　冨依勇佑（東大物性研）
「軟X線発光分析を用いた自己組織化単分子膜界面における撥水挙動解析」

P–51S　東　智大（九大院工）
「イオン液体を利用したmRNA医薬の経皮送達技術の開発」

P–60S　加藤杏南（富山大院薬）
「脂質スクランブリングペプチドにより出芽した細胞外小胞の解析」

P–70S　豊福淳大（九大院工）
「生体適合性イオン液体を用いた核酸医薬の経皮・細胞内送達」

P–73S　久保田　颯（九大院）
「生体膜局所の定量的脂質プロファイリングに向けたマイクロニードル固相抽出–質量分析法の開発と応用」

P–74S　前田悠希（東大院工）
「細胞表面マーカーの高感度検出に向けた有機半導体ポリマー蛍光ナノ粒子のon–membrane集積化」

ポスター会場風景

学生賞授賞式

P-2S

液体オリゴマーのプラズマ重合反応を用いたLayered-hybrid シリカ膜の開発

今吉 真崇
Imayoshi Masataka

広島大学大学院先進理工系科学研究科 化学工学プログラム

この度は，日本膜学会「第 45 年会」・「膜シンポジウム 2023」合同大会 において学生賞を授与いただき，大変光栄に存じます．学会関係者の皆様，審査していただいた先生方に心より御礼申し上げます．以下に簡単ではありますが，研究内容について紹介させていただきます．

高分子多孔膜を支持体とする Layered-hybrid シリカ膜は，低コストかつ加工性に優れるという特長を有しています．特に，細孔径の大きい UF 膜への製膜に際しては，支持体細孔の良好な被覆と薄膜化の両立が課題となります．本研究では，液体前駆体を含侵した高分子支持体の表面に大気圧プラズマを照射することで，高密度な分離層を形成する新規な製膜法を開発しました．気体前駆体の蒸着を用いたプラズマ CVD 製膜では被覆性の課題により分離性が発現しない一方で，液体前駆体を用いた界面重合製膜，Hybrid 製膜では高い分離性が発現し，UF 膜上へのシリカ分離層の形成が確認されました．以上の結果は，液体前駆体を用いたアプローチが UF 膜への均一な製膜に有用であることを示しており，今後は各製膜パラメータの最適化や液体前駆体種を変更することにより，更なる膜性能の向上を目指しております．

今回の発表では多くの方と有意義な議論をさせていただき，大変充実した学会発表となりました．今回の受賞を励みに，今後の研究に精進していきたいと思います．最後にはなりますが，日頃からご指導いただいている分離工学研究室の先生方に心より感謝申し上げます．

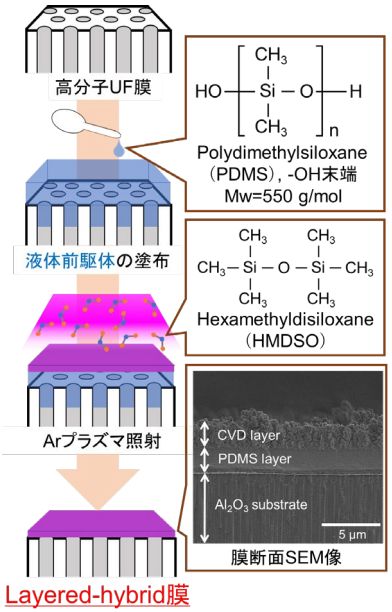

Fig. Membrane fabrication concept

P-4S

高感度な膜型バイオセンシングに向けた膜表面設計及び検出特性評価

山下　浩輝
Hiroki Yamashita

東京工業大学物質理工学院応用化学系応用化学コース

この度は日本膜学会「第 45 年会」・「膜シンポジウム 2023」合同大会において学生賞を頂き大変光栄に存じます．発表を聴講してくださった方々，学会関係者の方々，ポスター審査員の方々に深く感謝申し上げます．以下，簡単ではありますが、本発表の研究内容を紹介させていただきます．

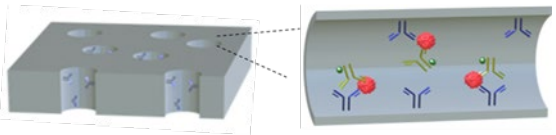

Fig. 1 Schematic illustration of membrane-based biosensor.

高齢化や感染拡大によって医療の負担が増すなか，患者の傍らで疾病の有無を簡便かつ迅速に判定できる診断デバイスが注目されています．我々の研究室では膜の微小細孔内に抗体を集密化させ，検体の透過を利用することで高い感度と迅速性の両方を達成した膜透過型バイオセンサを開発しており，患者の傍らでの医療診断に向けた有望なデバイスです(Fig. 1)．しかし，血

清や唾液などの夾雑タンパクを含む検体を用いた検出試験では，夾雑タンパクが膜に非特異的にファウリングしてしまうことによって感度が低下してしまうことが課題です．そこで本研究では分子検出部位（抗体）とアンチファウリング性を有する共重合体ポリマーの比率を検討し，膜型センサの抗体導入量や検出特性に関する影響を調査しました．結果として，アンチファウリング性を有するモノマーの割合を増やし，抗体の導入量を減らしても，微小細孔内に抗体が集密化されているためにシグナルが維持できることが確認されました．これによって分子検出によって得られるシグナルを維持しつつもファウリングを効果的に抑制できることが明らかとなりました．

本学会では大学の先生方や企業の方と非常に有意義なディスカッションをさせていただき，今後の研究の進展につながるようなアドバイスなども頂きました．今回の受賞を励みに，より一層研究に邁進し，膜学の発展に貢献したいと思います．最後になりますが，本研究を遂行するにあたり，日頃よりご指導頂いている山口猛央教授，奥山浩人助教，ならびに研究室の方々に心より感謝申し上げます．

P-6S

オルガノシリカ膜を用いた中～高温における高効率な湿りガス分離

久保　卓也
Kubo Takuya

広島大学大学院先進理工系科学研究科先進理工系科学専攻

このたびは，膜シンポジウム 2023 において学生賞を授与いただき，大変光栄に思います．本学会の運営にご尽力いただいた関係者の皆様，審査員の先生方，そしてポスター発表をお聴きくださいました全ての方々に厚く御礼申し上げます．以下に，簡単ではありますが私の研究内容をご紹介させていただきます．

オルガノシリカは Si 原子間が C で有機架橋された材料であり，これまでエタン架橋のオルガノシリカ膜が 150℃で高い水熱安定性を有し，非常に高い湿りガス分離性能を示すことが報告されており，中～高温帯での水蒸気を伴う様々なプロセスへの応用が期待されています．私の研究では，このオルガノシリカの有機架橋基の C 数を変化させ，新疎水性の制御による膜のさらなる高性能化を目指しました．

作製した 3 本のオルガノシリカ膜(架橋基の C 数より C1，C2，C3)は同様の純ガス透過性能を示しましたが，湿りガス分離(H_2O/H_2, H_2O/N_2)では違う傾向が見られました．Fig. 1 に代表的な C1 の湿りガス分離の温度依存性の測定結果を示します．いずれの膜も低温(80℃)では細孔内の吸着水が増加しガス透過率が単成分の値から減少するブロッキング効果が発現し，親水性の高い C1 が最も強くブロッキングしました．反対に高温(200℃)では上流の水分圧が低く，どの膜でもブロッキングは見られませんでした．そこで高温における透過率を比較すると，最も疎水な C3 が H_2 に対して H_2O がより高透過となっていました．これは，親水性の低さゆえに細孔内の H_2O の拡散性が上昇したためだと考えています．以上のことから，低温や高水分圧下ではより強くブロッキングが発現し，高い選択性が得られる C1 が適する場合があり，高温や低水分圧下では最も透過性の高い C3 が適しているといえます．

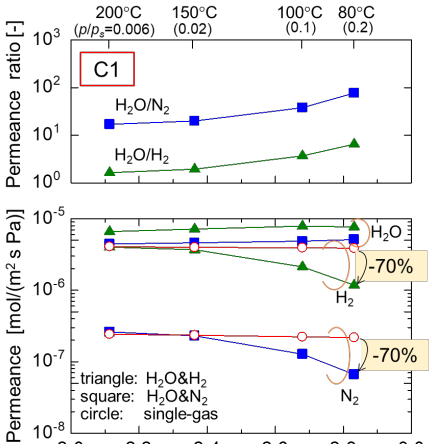

Figure 1　Temperature dependence of water vapor and gas permeances through a BTESM-derived membrane.

最後になりますが，本研究を進めるにあたって日頃よりご指導と多くの議論をさせて頂いております森山教洋助教，都留稔了教授，金指正言教授，長澤寛規助教ならびに研究室の皆様に心より感謝申し上げます．

P-15S

超高 CO_2 透過性を有する表面修飾ナノ粒子含有高分子複合膜の温度依存性

兎洞　海斗
Udo Kaito

東京都立大学大学院都市環境科学研究科環境応用化学域

このたびは日本膜学会「第 45 年会」・「膜シンポジウム 2023」合同大会において学生賞を授与させていただき大変光栄に思っております。学会関係者の方々、発表を聴講していただいた皆様、ならびに審査してくださった先生方に、心より御礼申し上げます。以下に簡単ではありますが、本研究の内容をご紹介致します。

大気中の CO_2 を直接回収する DAC において、膜分離による DAC 技術は省エネルギーとして優れており、普及に向けて期待されています。我々が開発した PIM-1 と表面修飾ナノ粒子(NP)からなる超高 CO_2 透過性を有する膜 (NP/PIM-1 膜) は、気体透過係数が高いことから 400 ppm の CO_2 回収濃度でも回収可能であることが示されています。DAC を用いる設置場所は任意に選択することができるため、本研究では温度に着目し、様々な温度条件下で NP/PIM-1 膜の CO_2 透過性能を評価し、DAC 実用化に適する温度について報告しました。気体透過測定により、PIM-1 膜は温度下降に伴い、CO_2 透過性は低下、CO_2/N_2 透過選択性は増加するといった一般的な挙動を示すのに対し、NP/PIM-1 膜は CO_2 透過性と CO_2/N_2 透過選択性が共に向上 (Figure 1) する、トレードオフの関係を打破することに成功しました。これは、表面修飾ナノ粒子からなるクラスター部分が、高気体拡散場のパーコレーション輸送を提供し、見かけの拡散の活性化エネルギーが低下したことが要因と考えられます。結果として、NP/PIM-1 の気体透過性能は、5℃といった低温度域で Robeson Upper Bound を大幅に上回り、膜分離での DAC の可能性を示唆しました。

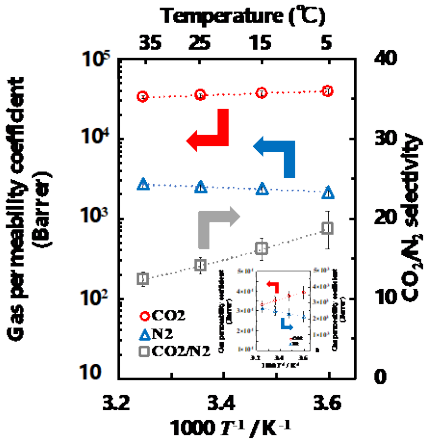

Figure 1 Temperature dependence of gas permeable coefficient of NP/PIM-1.

このたびの発表では、多くの先生方と議論を交わすことができ、また様々なご意見をいただき、大変勉強になりました。最後になりますが、本研究を進めるにあたり日頃よりご指導いただいております川上浩良教授、山登正文准教授、ならびに研究室の皆様に深く感謝申し上げます。

P-16S

ゼオライト中間体オリゴマーの薄膜化とナノ多孔膜への応用

古川　未希
Furukawa Miki

広島大学大学院先進理工系科学研究科先進理工系科学専攻

このたびは，日本膜学会『合同大会』において学生賞をいただき、大変光栄に思います．学会関係者の皆様，発表を聴講していただいた皆様，審査していただいた先生方に厚く御礼申し上げます．以下に簡単ではございますが，本研究の概要を紹介させていただきます．

ゼオライト膜は分子ふるいと選択的吸着能により，高い分離性能を示す一方で，製膜プロセスが複雑であり，結晶化に長時間を要することが実用上の課題です．ゼオライトは結晶成長過程で，秩序構造を有する中間体を形成します．近年，この過程で生じる中間体を制御し，所望のゼオライト構造を高選択に得る手法が提案されています．本研究では，制御された秩序構造を有するオリゴマーを出発物質とした，新たなナノ多孔膜製膜プロセスの構築を目的として，MFI 中間体をモデルに多孔質支持体への製膜に向けた合成条件の検討を行いました．結果として Si wafer 上でオリゴマーゾルを水熱処理することで，0.3μm 程度のナノ結晶の薄膜製膜が可能であることが明らかとなりました．多孔質基材上ではゾルの浸透が課題でしたが，内部の疎水化処理等の被覆性向上により，平均細孔径約 0.55 nm のナノ多孔膜の製膜に成功しました．

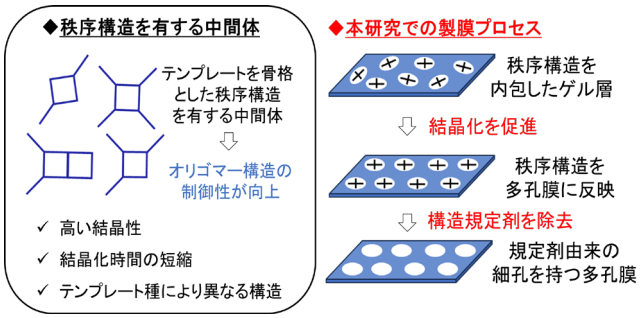

Figure Schematic of the membrane fabrication process in this study.

今回の発表では，多くの先生方と有意義な議論をさせていただき，充実した学会となりました．今回の受賞を励みに今後もより一層研究に精進したいと思います．最後になりますが，本研究を遂行するにあたりご指導を賜りました広島大学分離工学研究室の先生方に心より感謝申し上げます．

P-20S

ブレンステッド酸触媒による非共役複素環ポリマー膜の合成と気体分離特性

松本　渉
Matsumoto Wataru

東京都市大学大学院総合理工学研究科電気・化学専攻応用化学領域

このたびは，日本膜学会第 45 年会・膜シンポジウム 2023 合同大会において学生賞を授与いただけたこと，大変光栄に思っております．学会関係者の皆様，審査員の先生方，発表をお聴きくださいました方々に深く御礼申し上げます．以下，簡単ではございますが，研究内容を紹介させていただきます．

本研究では，複素環化合物のブレンステッド酸触媒による重付加反応より非共役複素環ポリマー自立膜を合成し，その気体透過特性について評価しました．

合成では，トリフルオロメタンスルホン酸を触媒とした非共役ポリチオフェン自立膜が，トリフルオロ酢酸を酸触媒とした非共役ポリフラン自立膜が得られました．それぞれの膜について二酸化炭素，窒素，酸素の気体透過係数を測定すると，どちらの膜も総じて気体透過係数は低い値でありましたが，二酸化炭素/窒素および酸素/窒素において高い分離性能を有しており，特に非共役ポリチオフェン自立膜の酸素/窒素の分離性能は，UpperBound（2008）を超え，優れた気体分離膜としての特性を有していたこと

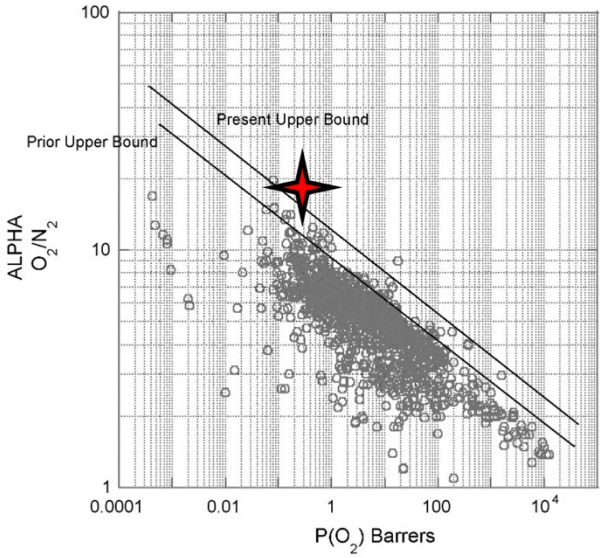

Figure Comparison of O_2/N_2 gas permeability performance of the obtained unconjugated polythiophene freestanding membrane with Upper Bound (2008).

を報告いたしました（Figure）．この高い気体分離性能を示したのは，チオフェン環同士による π-π スタッキングの影響により膜材料中にサブナノオーダーの細孔が形成され，高効率な分子ふるいが達成されたものと推測しています.

本発表において，多くの先生方と有意義な議論をさせていただき，非常に勉強になりました．今後もこの受賞を励みに，より一層研究に邁進したいと思います．最後になりますが，本研究を進めるにあたりご指導いただきました，塩月雅士准教授，岩村武准教授，阪口壽一教授，および研究室の皆様に心より感謝申し上げます.

P-21S

CMB-MMA 共重合ポリマーをブレンドした PVDF 膜の開発と洗浄性評価

韓 升升
HAN Shengsheng

工学院大学大学院工学研究科化学応用専攻

この度は,日本膜学会「第 45 年会」・「膜シンポジウム 2023」合同大会において学生賞をいただき,大変光栄に思っております.学会関係者の皆様,ポスターを審査してくださった先生方,ポスター発表を聞いてくださった皆様にお礼申し上げます.以下に本研究の概要を紹介します.

膜の実用化に向けて解決すべき最大の問題はファウリングです. 今回,ジメチルスルホキシド（DMSO）にポリフッ化ビニリデン（PVDF）を 15 wt%とカルボキシメチルベタイン（CMB）：メタクリル酸メチル（MMA）=20:80 で合成したポリマー（CMB20MMA80）を 0~6wt%完全溶解させて,NIPS 法でブレンド膜を製膜しました.FT-IR を用いて共重合ポリマーのブレンド濃度増加に伴い膜表面の CMB 存在割合が増加することを明らかにしました.また,初期フラックス 1×10^{-5} m^3 m^{-2} s^{-1} で 1000ppmBSA 水溶液の透過実験を行った後,pH 11 の NaOH 水溶液を用いて膜洗浄を行いました.PVDF 膜は透過実験を行うと洗浄後もフラックスが完全には回復せず,ファウリングによってフラックスは 1×10^{-6} m^3 m^{-2} s^{-1} 程度まで低下しました.これに対し共重合ポリマーを 3 wt%ブレンドした膜は,洗浄後にフラックスが大幅に回復し,再度透過実験を行うとフラックスは 5×10^{-6} m^3 m^{-2} s^{-1} 程度の低下にとどりました.以上のように,NIPS 法で CMB-MMA 共重合ポリマーをブレンドした PVDF 精密ろ過膜の開発に成功しました.

今回,多くの先生方と議論をさせていただき,とても充実した学会発表となりました.今回の受賞を励みに,今後の研究により一層真摯に取り組む所存です.最後に,日頃よりご指導いただいております赤松憲樹教授,王暁琳特任教授,中尾真一名誉教授,並びに研究室の皆様に深く御礼申し上げます.

P-22S

W/O エマルション分離への応用を目指した フッ素フリーなシリカ修飾ポリケトン膜の開発

田渕　美樹
Tabuchi Miki

神戸大学大学院 科学技術イノベーション研究科 科学技術イノベーション専攻

この度は，日本膜学会「第 45 年会」・「膜シンポジウム 2023」合同大会において，学生賞を頂き光栄に思います．この場をお借りして，学会関係者の方々，発表をお聞き下さった皆様方に御礼申し上げます．以下に，発表内容の概略を記載します．

石油採掘の際などに発生する W/O（water-in-oil）エマルションの分離技術が求められており，中でも膜分離法が注目されています．本系を分離対象とする膜においては，オイル中の水滴を選択的に阻止するために，疎水的な表面が有効とされることから，膜成分にフッ素系物質を用いるといったアプローチが主に検討されてきました．しかし，世界各国において，フッ素系物質の製造を規制する動きが強まっています．このような背景から，本研究ではフッ素フリーな高性能分離膜の開発を行いました．

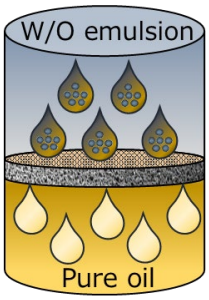

Fig 1. Image of W/O emulsion separation

膜の作製は，オイル高透過性のための多孔構造や溶剤耐性を有するポリケトン膜をベースに，表面粗さ向上のためのシリカ粒子を修飾した後，フッ素未含有の疎水性シランを単層コーティングすることで実施しました．そして，トルエン系エマルションの分離試験において，今回新たに作製した膜は，従来のフッ素含有膜と同等量以上のエマルションを処理することに成功しました．このような高いエマルション処理性能の発現は，フッ素含有膜と比較して，親油性が向上したことに起因すると考えられます．

また，今回の発表では，多くの方々と有意義な議論をさせて頂き，大変充実した時間となりました．最後になりますが，本研究を遂行するにあたりご指導を賜りました中川敬三准教授，ならびに神戸大学 松山・吉岡研究室の皆様に心より感謝申し上げます．

P-27S

オルガノシリカ膜の細孔径制御と有機水溶液の逆浸透濃縮への応用

牧原　大晟
Makihara Taisei

広島大学大学院　先進理工系科学研究科　先進理工系科学専攻　化学工学プログラム

このたびは，日本膜学会「第 45 年会」・「膜シンポジウム 2023」合同大会において学生賞を授与いただき，大変光栄に思います．学会関係者の皆様，審査員の先生方，ポスター発表を聴講していただいた皆様に厚く御礼申し上げます．以下に簡単ではありますが，本研究の概要を紹介させていただきます．

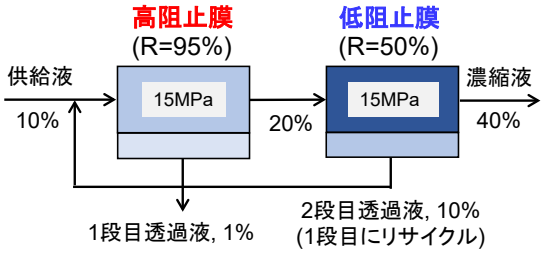

Figure 1 Schematic diagram of multi-stage RO system

省エネルギー分離技術である逆浸透（RO）による有機水溶液の高濃度濃縮が注目されています．我々は，耐有機溶媒性に

優れるオルガノシリカ膜を用い，高回収率のための高阻止膜と，膜間の浸透圧差を低減するための低阻止膜を組み合わせた多段濃縮システム（Figure 1）を提案しています．本研究では多段濃縮システムの実現に向けて，分離性能を制御したオルガノシリカ膜の作製，および各種有機水溶液の逆浸透特性評価を行いました．コーティングゾル調製および製膜条件を検討することで，高阻止膜と低阻止膜の分画分子量はそれぞれ 70, 170 g/mol 程度となり，膜の分離性能が制御可能であることが明らかになりました．また N, N-dimethylformamide 水溶液系において，bis(triethoxysilyl)ethane(BTESE) 膜と比べて bis(triethoxysilyl)methane(BTESM)膜のほうが高透過，高選択な傾向を示しました．これは BTESM の親水的な構造により，水の透過が促進されたためと考えられます．

本学会は，多くの先生方から鋭い意見や質問をいただき，非常に有意義な時間となりました．得られた知見を参考に，今後も一層研究に励みたいと思います．最後になりますが，本研究を遂行するにあたりご指導を賜りました広島大学分離工学研究室の先生方に心より感謝申し上げます．

P-32S

燃料電池用ナノファイバー複合電解質膜の化学的安定性に対するナノファイバーの効果

井上　夏輝
Inoue Natsuki

東京都立大学大学院都市環境科学研究科環境応用化学域

このたびは日本膜学会「第 45 年会」・「膜シンポジウム 2023」合同大会において学生賞をいただけたこと，大変光栄に思います．学会関係者の皆様，審査員の先生方，発表をお聴きくださいました皆様に深く御礼申し上げます．以下，簡単ではございますが，研究内容を紹介させていただきます．

次世代型燃料電池自動車の開発に向けて，高分子電解質膜に最も求められる特性は膜耐久性の飛躍的な向上です．私が所属する川上研究室では，高分子ナノファイバー(NF)をマトリクス電解質と組み合わせることによってプロトン伝導性の向上を報告してきました．本研究では，NF 複合膜について化学的劣化試験を行い，その後各種特性評価や分析を行うことで，NF が電解質膜の化学的安定性に与える効果を検証しました．化学的劣化試験には，鉄イオンを含む過酸化水素水に膜を浸すことによりラジカルを強制的に発生させて膜を劣化させる Fenton 試験を採用しました．Fenton 試験前後で，プロトン伝導度や機械強度の維持率を測定したところ，NF 複合膜の維持率は単独膜に比べて高くなっており，NF 複合膜は単独膜に比べてマトリクス電解質の分解を抑制することが明らかとなりました．これは，NF が強固な骨格として働き，膜の含水による膨潤が抑えられ，鉄イオンやラジカルの膜内での拡散が抑制された結果と考えています．また、スルホン酸ポリマーと塩基性ポリマーをブレンドした NF は，NF 内部で酸塩基相互作用により優れた安定性を示すことが分かりました．

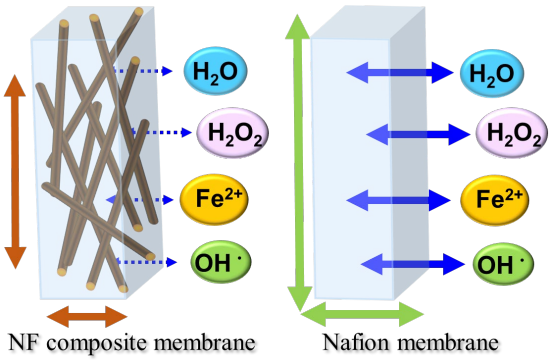

Figure 1. Process to inhibit degradation of NF composite membranes.

本発表において，多くの方々と深い議論をさせていただき，大変有意義な時間となりました．今後もこの受賞を励みに，より一層研究に邁進したいと思います．最後に，日頃よりご指導いただいている川上浩良教授，田中学准教授，並びに研究室の皆様に深く感謝申し上げます．

P-33S

アンチファウリング膜設計に向けた QCM センサー表面改質と吸着挙動解析

舞弓　哲史
Mayumi Tetsufumi

東京工業大学科学技術創成研究院化学生命科学研究所

このたびは、日本膜学会第 45 年会・膜シンポジウム 2023 合同大会において学生賞を頂き、大変光栄に存じます。発表を聴講して頂いた皆様, 審査してくださった先生方, ならびに学会関係者の方々に, この場をお借りして心より御礼申し上げます. 以下簡単ではありますが, 今回の発表内容を紹介いたします.

世界的な水不足の解決に向け, 水処理膜技術が注目を集めていますが, 原水中の不純物が膜表面に吸着するファウリング現象が問題となっています. ファウリングの抑制には超親水性の双性イオンポリマーによる修飾が有効だとされていますが, 実際にどのようなポリマー状態が最適かは全く分かっていません. 当研究室ではこれまで困難であった修飾ポリマー分子量・密度の同時制御法の構築に成功しております. この手法を用いて, 複雑な多成分系でのファウリング挙動を明らかにすべく, 吸着層の粘弾性解析が可能な水晶振動子マイクロバランス法(QCM-D) に着目しました. 上記の密度・分子量制御法を QCM センサー上に適用し, 構造制御されたブラシ層を形成しました. さらに, 精密修飾表面に対して様々な有機物を用いた透過試験を行い, アンチファウリング特性の評価と多成分系ファウラント溶液中での複雑な吸着現象の観測に成功しました.

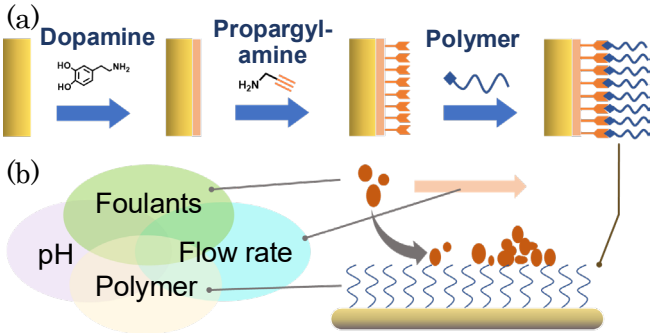

Figure 1 (a) The scheme of precise modification with dopamine. (b) Evaluation of anti-fouling performance using QCM-D.

最後になりますが, 日頃よりご指導を頂いている山口猛央教授, 菅原勇貴助教, 奥山浩人助教, ならびに研究室の方々に心より感謝申し上げます.

P-34S

軟 X 線発光分析を用いた疎水性単分子膜界面における撥水挙動解析

冨依　勇佑
Tomiyori Yusuke

東京大学大学院 新領域創成科学研究科 物質系専攻

このたびは，日本膜学会主催の「第 45 年会」・「膜シンポジウム 2023」合同大会において学生賞をいただき，大変光栄に存じます．学会関係者の方々，発表を聴いてくださった皆様に心より御礼申し上げます．以下に研究内容を簡潔にご紹介いたします。

本研究では，多様な機能を付与できるナノ構造材料である自己組織化単分子膜 (SAMs) の膜界面における水の吸着挙動に関して知見を得るべく，元素ごとに占有軌道の電子状態を観測できる強力なツールである軟 X 線発光分光 (XES) を用い，界面での疎水性が異なる多様な SAMs 上での水の電子状態を解析しました．一般に真空中での測定を要する XES ですが，我々の研究グループが開発した気体・液体雰囲気下においても XES 測定を可能とするセットアップ (**Fig. 1**) を用いることで，機能発現時における水の電子状態解析から分子レベルで水の吸着メカニズムに関する知見を得ることに成功したことが本研究の特徴です．

本発表では，ハイドロカーボン鎖とフルオロカーボン鎖の比較を通じて，鎖への水の取り込みにおける顕著な違いを XES より得られた水のネットワーク構造より明らかにしました．さらにこの実験的に観測した吸着事象の差異について，分子動力学シミュレーションにより可視化することで，分子鎖が水の段階的な吸着に対して与える影響について詳細に考察しました．

本発表を通じて多くの先生方と有意義な議論を交わすことができました．この受賞をより一層の研究への奮起として活かしたいと思います．最後に，日々の指導を頂いている原田慈久教授，木内久雄助教，そして共に切磋琢磨している研究室の皆様への深い感謝の意を表します．

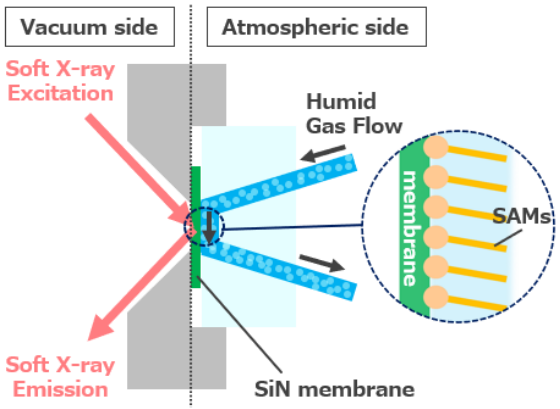

Fig. 1. Schematic of experimental setup for XES measurements and magnified view of the substrate surface.

P-51S

イオン液体を利用した mRNA 医薬の経皮送達技術の開発

東　智大
Higashi Tomohiro

九州大学大学院工学府応用化学専攻

このたびは膜シンポジウム 2023 において学生賞を頂き，大変光栄に存じます．学会関係者の皆様，審査員の先生方，発表をお聴きくださいました方々に深く御礼申し上げます．以下，簡単ではありますが研究内容を紹介させていただきます．

本研究では，経皮浸透促進性および生体適合性が報告されているイオン液体（Ionic liquid, IL）を用いて mRNA を製剤化することで，高効率な経皮・細胞内送達を目指しています．モデル mRNA として，赤色蛍光タンパク質をコードした mRNA を用いました．高分子量である mRNA を高効率で内包した製剤を調製するため，mRNA 水溶液と IL を混合しイオン液体液晶（Ionic Liquid Crystal, ILC）を形成させました．37℃で一晩インキュベートし，熱平衡に達成させ ILC 製剤の調製としました．本製剤は熱力学的に安定であり，ILC 製剤を用いたとき有意に mRNA の皮膚浸透性および細胞内取込みが促進され，赤色蛍光タンパク質の発現が起こることが確認されました．さらに小角 X 線散乱測定（SAXS）から，良好な皮膚浸透性を示す ILC 製剤の構造は、ヘキサゴナル構造であることが示唆されました．IL は水や有機溶媒に次ぐ第 3 の液体として注目され，2000 年以降急速に論文数を増やしてきた研究領域です．さらに，液晶構造は両親媒性分子と親水性溶媒のみから構成される単純な系ですが，薬剤の拡散性を制御できる点，粘性が適度に高い点などでドラッグデリバリーシステムに適切な製剤として注目されています．本研究は，生体由来の親水性 IL を界面活性剤として用い，mRNA を製剤化することで，世界で初めての経皮・細胞内送達の同時達成を志向しています．

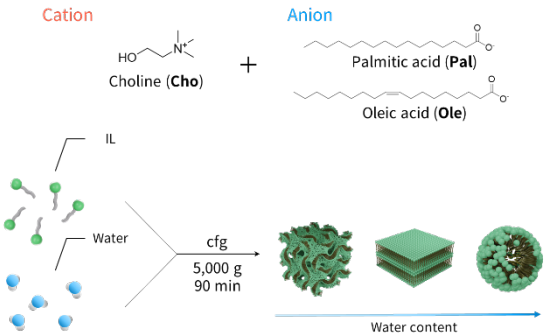

Figure 1 Schematic illustration of this study.

今回の発表において多くの先生方と実りの多いディスカッションができたことを大変嬉しく思います．今後もこの受賞を励みに，より一層研究に邁進したいと思います．最後になりましたが，本研究を遂行するにあたりご指導を賜りました後藤雅宏 教授，ならびに研究室の皆さまに心より感謝申し上げます．

P-60S

脂質スクランブリングペプチドにより出芽した細胞外小胞の解析

加藤　杏南
Kato Anna

富山大学大学院総合医薬学研究科総合医薬学専攻

このたびは，膜シンポジウム 2023 において学生賞をいただき，大変光栄に存じます．学会関係者の皆様，ポスターを審査していただいた先生方，発表を聞いてくださった皆様に心より御礼申し上げます．以下に簡単ではありますが，研究内容についてご紹介いたします．

細胞はエクソソームやマイクロベシクルなどの細胞外小胞(EV)を放出しています．マイクロベシクルは細胞膜から直接出芽した小胞であり，その出芽には細胞膜内外層の脂質を混合するタンパク質，スクランブラーゼが関わります．マイクロベシクルとエクソソームは出芽経路が異なり，マイクロベシクルはエクソソームと比較して粒径が大きく，CD63 タンパク質の含量が少ないとされています．EV は生体適合性が高く，治療への応用が期待されていますが，細胞から放出される EV の量が少ないことが課題です．本研究では細胞に添加することで人工的に脂質スクランブリングを引き起こすペプチドによる，細胞外小胞の出芽誘導を評価し，天然 EV との比較を行いました．その結果，ペプチド(4RQ, 4RRH)を投与することで，ペプチド非存在下と比較して培養上清中の粒子数が有意に増加すること，ペプチド EV は天然 EV よりも粒径が大きく，CD63 含有量が少ないことを明らかにしました．このことから，脂質スクランブリングペプチドによって，マイクロベシクルの出芽が選択的に促進された可能性が示唆されました．

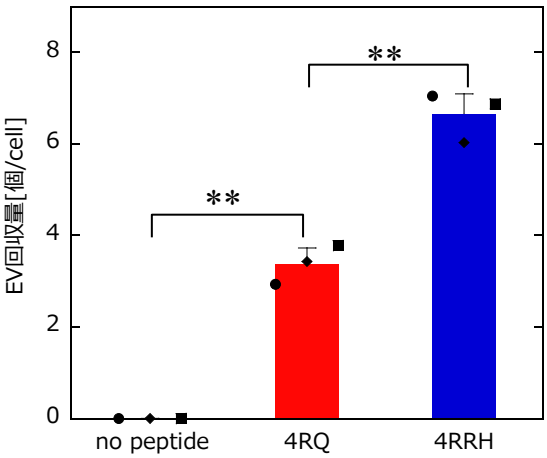

Fig 1. Amounts of extracellular vesicles budded in 1 h.

本学会では，多くの方々と有意義な議論をさせていただき大変嬉しく思います．今回の受賞を励みに，今後もより一層研究に精進したいと思います．最後になりますが，本研究を遂行するにあたり，ご指導いただきました中野実教授，池田恵介准教授，中尾裕之助教授，ならびに研究室の皆様に心より感謝申し上げます．

P-70S

生体適合性イオン液体を用いた核酸医薬の経皮・細胞内送達

豊福　淳大
Toyofuku Kiyohiro

九州大学大学院工学府応用化学専攻

このたびは膜シンポジウム 2023 において学生賞を頂き，大変光栄に存じます．発表を聴講していただいた皆さま，審査してくださった先生方，ならびに学会関係者の方々に，この場をお借りして心より御礼申し上げます．以下，簡単ではありますが研究内容を紹介させていただきます．

本研究では，経皮浸透促進性および生体適合性が報告されているイオン液体（Ionic liquid, IL）を用いて核酸医薬を製剤化することで，高効率な経皮・細胞内送達を目指しています．モデル核酸として，抗腫瘍効果を持つアンチセンスオリゴヌクレオチドを用いました．親水性薬物である核酸を皮膚になじみやすい油に分散させるため，核酸水溶液と IL のシクロヘキサン溶液を高速撹拌しエマルションを形成させた後，凍結乾燥・油中分散の過程を経て Solid-in-Oil 製剤（IL-S/O）を調製しました．本製剤は長期間安定であり，IL-S/O を用いたとき有意に核酸の皮膚浸透性および細胞内取込みが促進され，標的タンパク質のノックダウンが起こることが確認されました．さらに動物実験では，IL-S/O の経皮投与により，注射投与に匹敵するレベルで担癌マウスの腫瘍成長が抑制されることが示唆されました．IL は水や有機溶媒に次ぐ第 3 の液体として注目され，2000 年以降急速に論文数を増やしてきた研究領域です．従来は触媒や溶媒抽出，電気化学などの分野で用いられていましたが，近年生体適合性 IL を利用したドラッグデリバリーシステムに注目が集まっています．本研究は，脂質由来の疎水性 IL を界面活性剤として用い，核酸医薬を製剤化することで，世界で初めて経皮・細胞内送達を同時に達成しております．

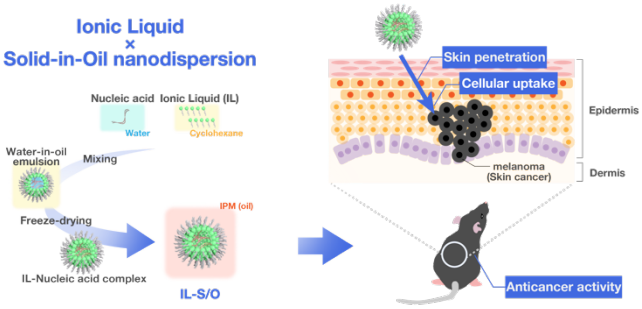

Figure 1 Schematic illustration of this study.

今回の発表において多くの先生方と実りの多いディスカッションができたことを大変嬉しく思います．今後もこの受賞を励みに，より一層研究に邁進したいと思います．最後になりましたが，本研究を遂行するにあたりご指導を賜りました後藤雅宏 教授，ならびに研究室の皆さまに心より感謝申し上げます．

P-73S

生体膜局所の定量的脂質プロファイリングに向けたマイクロニードル固相抽出-質量分析法の開発と応用

久保田 颯
Hayate Kubota

九州大学大学院 理学府 化学専攻

この度は，膜シンポジウム 2023 にて学生賞を授与いただき大変光栄に思っております．学会関係者の皆様，発表を聴講いただいた皆様，審査員の先生方に厚く御礼申し上げます．以下に簡単ではありますが，本研究の内容を紹介いたします．

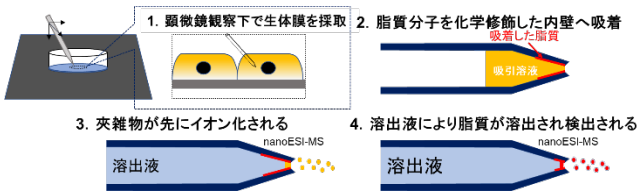

Fig. 1. Concept of solid phase extraction-nanoelectrospray ionnization mass spectrometry using a C16-modified microneedle.

脂質ラフトなどの「生体膜マイクロドメイン」は，細胞内外の物質移動・シグナル伝達などの重要な生命現象に関与しています．解析手法として蛍光標識プローブや人工膜を用いた手法が挙げられますが，間接法であるため生体膜を構成する内在性の物質の実態は不明瞭でした．そこで，私たちは脂質膜をガラス製マイクロニードルで直接採取し，ニードル内部で固相抽出による精製を行い，ナノエレクトロスプレーイオン化-質量分析で定量解析する新手法を開発しました．本手法では，マイクロニードルを用い

てマウス神経芽細胞腫 Neuro2a へ接触させ，細胞一部を吸引します．ガラスニードルには内壁をシランカップリング剤によって疎水性修飾しており，吸引した脂質をニードル内部に吸着させることが可能であるため，これを水で洗浄しメタノールで試料を溶出させ質量分析機で分析を行いました．この手法を用いて，Neuro2a 細胞の神経突起部と細胞体部をそれぞれ分析し，それぞれにおける phosphatidylcholine 種の脂質の存在比をところ，飽和脂質は神経細胞突起部に，不飽和脂質は細胞体部に多く存在していることが示唆されるデータを得ることに成功しました．再現性や安定性など多くの課題を残す本手法ではありますが，神経細胞局所の脂質プロファイルの定量比較に成功したことは，生体膜局所における脂質機能の解明の一助となることに期待しております．

最後になりましたが，本研究を進めるにあたりご指導いただきました川井隆之准教授，松森信明教授，木下祥尚助教，鳥飼浩平助教，劉晨晨助教，マイクロニードル作製に尽力いただいた伊藤美由紀技術補佐員，ならびに研究室の皆様に心より感謝申し上げます。

P-74S

細胞表面マーカーの高感度検出に向けた 有機半導体ポリマー蛍光ナノ粒子の on-membrane 集積化

前田　悠希
Yuki Maeda

東京大学大学院工学系研究科バイオエンジニアリング専攻

このたびは日本膜学会『合同大会』 において学生賞をいただき， 大変光栄に存じます． 学会関係者の皆様，審査員の先生方，本発表に興味を持って聞きにいらしてくださった方々に深く御礼申し上げます．

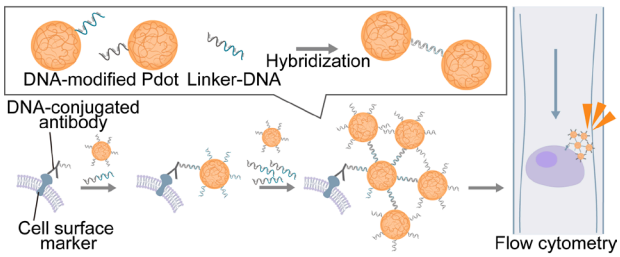

Figure 1 Concept of this research

フローサイトメトリーは，細胞表面のタンパク質発現に関する詳細な情報を取得できるため，臨床検査に広く用いられています．しかし，蛍光シグナルの感度に限界があるため，低発現の細胞表面マーカーの検出は困難です．そこで本研究では有機半導体ポリマー蛍光ナノ粒子（Pdots）の，DNA をリンカーとした細胞膜上での逐次集積による細胞表面マーカーの高感度検出に取り組みました（Figure 1）．細胞表面マーカーに結合させた一本鎖 DNA(ssDNA) 修飾抗体を足掛かりとし，22 nm の Pdot 表面に修飾した ssDNA とハイブリダイゼーションすることでマーカーを Pdot で標識しました．その後上記のハイブリダイゼーションを繰り返すことで Pdot をさらに 2 段階集積しました．その結果，Nalm-6 細胞上の CD19 からの蛍光シグナルを既往の蛍光色素と比較して約 125 倍にまで向上させることができました．さらに，22 nm の Pdot の集積体と同程度の体積である 81 nm の Pdot を用いて 1 段階標識し，その蛍光強度と比較したところ，逐次集積の方が約 24 倍の輝度を示しました．以上より小さい粒子を逐次集積する本手法がより立体障害を低減させ効率的に輝度の向上を実現できたと考えられます．したがって本手法は低発現の表面マーカーを高感度に検出し，早期かつ正確な診断に貢献できると期待されます．

今回初めてオンサイトで参加させていただき，多くの先生方，同世代の研究者の方々との議論を通して改めて学会という場の大きな意義を感じました．この受賞を励みに，今後の研究により一層邁進する所存です．

最後になりましたが，本研究を遂行するにあたりご指導を賜りました太田誠一准教授，中村乃理子助教ならびに研究室の皆様に心より感謝申し上げます．