科学研究費助成事業研究成果報告書



令和 5 年 5 月 1 9 日現在

機関番号: 10101

研究種目: 基盤研究(C)(一般)

研究期間: 2019~2022 課題番号: 19K05361

研究課題名(和文)レーザー捕捉・顕微計測法による過冷却エアロゾル液滴の物性研究

研究課題名(英文)A Study on Physical Properties of Aerosol Liquid Droplet Based on Laser Trapping - Microspectroscopies

研究代表者

喜多村 昇 (Kitamura, Noboru)

北海道大学・理学研究院・名誉教授

研究者番号:50134838

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文):空気中におけるジメチルスルホキシド(DMSO)、エタノール(EtOH)、および水の単一エアロゾル液滴のレーザー捕捉・顕微計測に基づき、エアロゾル液滴の物理化学的特徴を明らかにした。DMSOの凍結温度(fp)は+18.5度Cであるが、空気中に浮遊させたDMSO液滴は、空気以外と接触しないために結晶核を生成せず、fp以下であるマイナス58度C近辺まで凍結しないことを明らかにした。さらに、EtOHおよび水は空気中におけるマイクロメートルサイズへのエアロゾル化により液体粘度が上昇するとともに、エアロゾル液滴の粘度は液滴サイズの減少と共に増加することを実験的に示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義 エアロゾル液滴の物理化学的特徴を明らかにする実験的な研究は限られている現状において、本研究においては 温度制御下における単一エアロゾル液滴のレーザー捕捉・顕微分光法を駆使することによってマイクロメートル サイズのエアロゾル液滴の凍結温度や液体粘度の特性を明らかにしたことは大きな学術的意義がある。特に、エ アロゾル液滴の液体粘度が液滴サイズに依存することを示した事は、液体物性の特徴の更なる理解を進める上で 重要な知見である。更に、エアロゾル液滴は化学蒸着法のような工業プロセスや日常生活で利用される各種スプ レー製品に利用されているため、エアロゾル液滴の物性の理解は社会的に意義がある。

研究成果の概要(英文): On the basis of a potential application of a laser trapping-microspectroscopy technique, we showed physicochemical characteristics of single aerosol dimethyl sulfoxide (DMSO), ethanol (EtOH), and water microdroplets in air. Although the freezing point (fp) of bulk DMSO liquid is +18.5 degree, an aerosol DMSO microdroplet levitated in air is shown to take a supercooled liquid state down to -58 degree. Since a single DMSO microdroplet in air does not contact other than air, freezing nucleus formation is unlikely and this results in formation of an unfrozen DMSO droplet even below fp = +18.5 degree. It has been also demonstrated that aerosolization of EtOH or water in air gives rise to a liquid viscosity jump and the viscosities of these aerosol microdroplets increase with decreases in the droplet size in a micrometer dimension.

研究分野: 分光分析化学

キーワード: エアロゾル液滴 レーザー捕捉・顕微分光 過冷却液体 液滴サイズ依存性

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

研究代表者らは 1990 年代初頭から単一コロイド微粒子のレーザー捕捉・顕微計測システムを 独自に開発して研究を行ってきた[1].さらに,2010年頃から実験手法を空気中の単一エアロゾ ル液滴のレーザー捕捉・顕微計測に発展させるとともに , 室温から-60 ℃ まで温度制御可能なエ アロゾル測定チャンバーも開発した、このような研究の中、代表者らは空気中のエアロゾル水滴 は-60℃ 近辺まで凍結せずに過冷却液状態として存在することを見出し報告している [2].この 実験結果は、空気中にレーザー捕捉・浮遊させたエアロゾル水滴は空気以外の何物とも接触しな いために凍結核を生成せず,過冷却液体状態を生成し易い事を意味する.これは溶液中のコロイ ド微粒子とは異なる気相中に浮遊するエアロゾル液滴の大きな特徴であり,水以外の液体につい てもエアロゾル化することにより過冷却状態を容易に生成させることができる事を示唆するもの である.また,エアロゾル水滴の -60 \odot までの過冷却状態生成は温度低下に伴う0 \odot 以下にお ける水滴粘度の増加が予想される. 更に, 室温・空気中において水やジメチルスルホキシド ((CH₃)₂SO, DMSO)をエアロゾル化することによって液体自身のラマンバンド幅が対応するバ ルク液体のバンド幅に比べて狭線化することも明らかになっており,エアロゾル化による何らか の液体物性変化も示唆されていた.しかしながら,本研究開始までの段階において,単一エアロ ゾル液滴の凍結温度や粘度のような液体物性の詳細かつ系統的な実験研究は皆無であった、エア ロゾル液滴は化学蒸着法のような工業プロセスや日常生活で用いるスプレー製品の基本となる対 象であるため,その基本的な液体物性の解明や物性解明のための実験手法を確立する事は極めて 重要である.このような背景と研究代表者らの研究準備のもと基盤研究(C)として採択され た.

2. 研究の目的

以上のような研究背景と予備実験結果を踏まえ,本研究課題においては,温度制御型エアロゾル測定チャンバーを用いた単一エアロゾル液滴のレーザー捕捉・顕微計測法を駆使することにより,空気中に浮遊させたマイクロメートルサイズの単一エアロゾル液滴の液体物性を明らかにする事を企図して研究を行った.具体的には,以下の2つの主要課題に焦点をあてて研究を行った.

研究課題 1:空気中に浮遊させた単一エアロゾル DMSO 液滴の過冷却相生成と液体粘度の温度依存性の解明

研究課題2:室温下において空気中に浮遊させたエアロゾル水滴およびエタノール(EtOH) 液滴粘度の液滴サイズ依存性の解明

研究においては,レーザー捕捉した単一エアロゾル液滴の1)顕微ラマン分光測定を行い、バルク液体とエアロゾル液滴のラマン特性を比較検討する事,また,2)顕微蛍光法(定常光・時間分解)や共焦点顕微光学系に基づく3次元空間分光法・顕微偏分光を駆使して研究を推進する事とした.

3.研究の方法

Fig. 1 に示した温度制御型エアロゾル測定チャンバーを利用した単一液滴のレーザー捕捉・顕微計測システム [2] を用いて研究を行った.液体窒素中を通した N_2 ガスを銅製エアロゾル測定チャンバーに通気し,そのガス流速によりチャンバー自身の温度を室温 \sim -60 $^{\circ}$ C の範囲で温度制御を行うことが可能であり,チャンバー中に挿入したサーモカップルにより温度をモニターした.対物レンズにより回折限界まで集光した $1064\,\mathrm{nm}$ の連続発振レーザー光を倒立

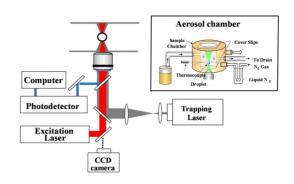


Fig. 1 Experimental setup for temperature-controlled laser trapping – microspectroscopy of single aerosol microdroplets in air.

型顕微鏡ステージ上に設置した測定チャンバー内に集光することにより,チャンバー内において 単一エアロゾル液滴をレーザー捕捉した.また,捕捉レーザー光と同軸で導入した励起光を捕捉 液滴に照射することにより,顕微蛍光分光や顕微ラマン分光を行った.エアロゾル DMSO 液滴お よび EtOH 液滴の研究においては,レーザー捕捉液滴自身の顕微偏光ラマンスペクトル測定を行った.単一エアロゾル水滴の実験においては,試料水に溶解させたローダミンB(RhB)の蛍光スペクトル・寿命測定や顕微蛍光偏光測定・3次元空間分解顕微蛍光測定も併せて行った.

4. 研究成果

4.1 単一エアロゾル DMSO 液滴の過冷却相生成

本研究課題の開始段階において,室温近辺に凍結温度(f_p)を有する DMSO(0.1 mol/dm³ (= M) KI 存在下, f_p = +18.4 $^{\circ}$ C)がエアロゾル化により過冷却液相を生成する事が示唆されていた.そこで,エアロゾル液滴およびバルク DMSO の温度可変ラマン分光測定を行った.Fig. 2 にバルク液体(20 $^{\circ}$ C),バルク固体(0 $^{\circ}$ C),およびエアロゾル液滴(0.2 $^{\circ}$ C(直径 (d) = \sim 10 μ m)の SO 伸縮振動(\mathbf{a}) および HCH ねじれ振

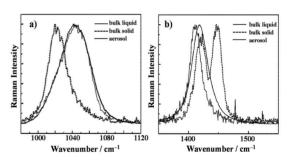


Fig. 2 Raman spectra of DMSO ([KI] = 0.1 M) in bulk liquid (20 °C, solid curve), bulk solid (0 °C, dotted curve), and aerosol droplet systems (0.2 °C, $d = \sim 10 \mu m$, solid red curve) [3]. **a**) SO stretching and **b**) HCH bending modes.

動 (b) に由来するスペクトル測定結果を示す.バルク液体のスペクトルは $1042~{\rm cm}^{-1}$ の SO 伸縮 および $1426~{\rm cm}^{-1}$ の HCH ねじれ振動に特徴づけられるが,バルク固体の SO 伸縮振動はバルク液体に比べて低波数側シフトするとともに,HCH ねじれ振動は $1455~{\rm cm}^{-1}$ に新しいピークを示す.これに対し, $0.2~{\rm C}$ におけるエアロゾル DMSO 液滴はバルク固体に特有なピークを示さず,バルク液滴 $20~{\rm C}$)と同様なスペクトルとして特徴づけられる.このことから,空気中に浮遊する DMSO 液滴は $0.2~{\rm C}$ においても凍結しておらず,過冷却液体として存在することが実験的に示された.さらに,偏光ラマンスペクトル測定を行った結果, $-14.9~{\rm C}$ におけるエアロゾル液滴中の DMSO分子の回転緩和時間($\tau_{\rm rot}$)は $\tau_{\rm rot}=3.90~{\rm ps}$ となり, f_p 以下の温度においても DMSO 分子は高速に回

転しており,エアロゾル DMSO 液滴は $f_P=+18.4$ $^{\circ}$ C 以下において過冷却状態となっていることが明らかになった.-14.9 $^{\circ}$ C 以下におけるエアロゾル DMSO 液滴の τ_{rot} の測定は低信号 / 雑音比のために難しいが,-57 $^{\circ}$ C まで過冷却状態となっているものと結論した.DMSO 液滴と同様な過冷却状態生成はエアロゾル水滴についても観測されており,空気中に浮遊させたエアロゾル水滴は-60 $^{\circ}$ C まで凍結しない.気相としか接触せずに凍結核を生成しにくいエアロゾル液滴は過冷却状態を生成しやすい事が結論される [3].

4.2 エアロゾル液滴粘度の液滴サイズ依存性

水,DMSO,エタノール(EtOH),tert-ブタノールエアロゾル液滴のラマンスペクトルは,対応するバルク液体のスペクトルに比べて狭線化する.例として Fig. 3 に EtOH の実験結果を示す 2876,2927,および 2974 cm⁻¹ にピークを示すラマンバンドは,それぞれ EtOHの CH2対称伸縮,CH3対称伸縮,CH3 非対称伸縮振動である.バルクおよびエアロゾル液滴の各ラマンピーク値に変化はないものの,図中に値を示したように,各バンドの半値全幅(full-width at half maximum: fwhm)値はバルク液体に比べてエアロゾル化により狭くなることが分かる.スペクトルバンドの狭線化の理由として EtOH 分子自身の運動自由度の抑制が考えられる.そこで,エアロゾル DMSO 液滴の

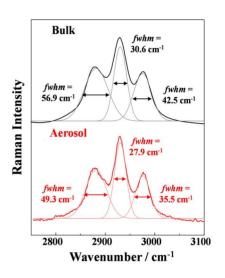


Fig. 3 Raman spectra of EtOH in bulk (a)) and aerosol droplet systems (b)) at 22.0 °C [4]. An EtOH droplet in air was laser trapped by a CW 532 nm laser beam (laser power $(P_{532}) = 7.3$ mW).

実験と同様に,EtOH のバルクおよびエアロゾル系における顕微偏光ラマンスペクトル測定を行い,EtOH 分子の $\tau_{\rm rot}$ 値を見積もった.その結果, $22.0\,^{\circ}$ C におけるエアロゾル EtOH 液滴($d=16.5\,^{\circ}$ μm)の $\tau_{\rm rot}$ 値は $2.33\,^{\circ}$ ps,バルク EtOH 液体の $\tau_{\rm rot}$ 値は $1.65\,^{\circ}$ ps となり,バルク液体に比べてエアロゾル液滴中の EtOH 分子の回転運動は遅くなることが明らかになった. $\tau_{\rm rot}$ 値および Stokes – Einstein 式(式(1),a(EtOH 分子半径) = $0.662\,^{\circ}$ Å, $k_{\rm B}$ = ボルツマン定数,T= 絶対温度)に基づいて液体粘度(η)を見積る事ができる.

$$\tau_{\rm rot} = \frac{8\pi a^3 \eta}{k_{\rm B}T} \tag{1}$$

その結果 , 22.0 °C におけるエアロゾル EtOH 液滴およびバルク EtOH の粘度は , それぞれ 1.33 および 1.20 cP となり EtOH 液体はエアロゾル化により粘度が上昇することが明らかになった [4] .

EtOH のエアロゾル化による粘度上昇の原因として,界面における表面張力に起因する Laplace $\mathbb{E}(\Delta P)$ が考えられる $.P_{\rm air}$, $P_{\rm liq}$ をそれぞれ空気相,液相の圧力, γ を空気 / 液体界面の表面張力,r を液滴の半径として, ΔP は(2)式で与えられる.

$$\Delta P = P_{air} - P_{liq} = \frac{2\gamma}{r} \tag{2}$$

(2) 式から考えると, ΔP は液滴サイズ (r) が小さくなるほど大きくなるはずである.そこで, エアロゾル EtOH 液滴の τ_{rot} および η 値の液滴サイズ依存性を見積もった.実験結果を Fig.~4 に示

す.図から明らかなように,液滴サイズが小さくなるほど EtOH 液滴粘度が上昇する.さらに, Fig. 5 に結果を示すように,EtOH 液滴半径の逆数と η 値は直線関係を示し,(2)式の Laplace 圧の 関係に従って液滴粘度が上昇する事も明らかになった.Fig. 5 中には,RhB 色素の蛍光寿命の粘度 依存性から見積もったエアロゾル水滴粘度の水滴サイズ依存性についても示しているが [5],こ

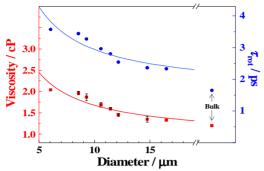


Fig.4 Droplet size dependences of τ_{rot} and the viscosity in an aerosol EtOH system at 22.0 °C [4].

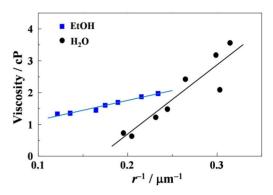


Fig. 5 Droplet size dependences of the viscosities in aerosol EtOH (22 $^{\circ}$ C) and H₂O droplet systems (20 $^{\circ}$ C) in air [5]. The solid lines represent the linear regression of the data.

の場合にも η と r^1 の間に直線関係が得られる.(2)式から,Fig. 5 のエアロゾル EtOH 液滴および 水滴に観測される η と r^1 の直線関係の傾きの比は γ (air/H2O = 72.75 mN)/ γ (air/EtOH = 22.55 mN) = ~3.2 になると予想される.実際の Fig. 5 の傾きの比は~3.7 となり,(2)式からの予想と大き〈変 わらない.このことからも,液体のエアロゾル化による粘度上昇には Laplace 圧が大き〈関与して いる事が示唆される.液滴粘度が r^1 に従い増加することから,Fig. 4 および Fig. 5 の結果は ΔP 効果と同様に,液滴の表面積 / 体積比(r^1)の変化を反映していることが明らかである.空気 / 水界面においては氷構造を形成していること [6],また,空気 / EtOH 界面においては EtOH 分子のエチル基が空気相に突き出た構造を取ることが報告されている[7].液滴の表面層は液滴内部 に比べて構造的に込み合った構造をとっているために分子の回転運動が抑制され, τ 00 から見積もられる液滴粘度は高くなるものと考えられる.さらに,これに Laplace 圧の増加も大き〈影響を与えるため,結果的にエアロゾル水滴および EtOH 液滴の表面層の粘度が上昇していると推察される.実際に,エアロゾル水滴に関する RhB 蛍光の空間分解動的蛍光異方性測定の結果から,水滴内部に比べて表面層の粘度が高くなることが判明している[5].エアロゾル水滴および EtOH 液滴

参考文献

- [1] マイクロ化学 微小空間の化学を拓く, 増原極微変換プロジェクト編, 化学同人, 1993.
- [2] S. Ishizaka, T. Wada, and N. Kitamura, Chem. Phys. Lett., 2011, 506, 117.
- [3] A. Miura, R. Nakajima, S. Abe, and N. Kitamura, J. Phys. Chem. A, 2020, 124, 9035.
- [4] R. Nakajima, A. Miura, S. Abe, and N. Kitamura, Anal. Chem., 2021, 93, 5218.
- [5] S. Abe, R. Nakajima, K. Ueno, A. Miura, and N. Kitamura, Submitted.
- [6] G. Richmond, Annual Rev. Phys. Chem., 2001, 52, 357.
- [7] W. Gan, Z. Zhang, R.-R. Feng, and H.-F. Wang, Chem. Phys. Lett., 2006, 423, 261.

5 . 主な発表論文等

「雑誌論文〕 計9件(うち査読付論文 9件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件)

〔雑誌論文〕 計9件(うち査読付論文 9件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件)	
1.著者名 Atsushi Miura, Riku Nohara, Azumi Nojima, and Noboru Kitamura	4.巻 93
2.論文標題 Laser-Induced Single-Molecule Extraction and Detection in Aqueous Poly(N-isopropylacrylamide)/1-Butanol Solutions	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 Analytical Chemistry	6.最初と最後の頁 3202-3208
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.0c04673	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 Ryosuke Nakajima, Atsushi Miura, Sayaka Abe, and Noboru Kitamura	4.巻 93
2.論文標題 Optical Trapping - Polarized Raman Microspectroscopy of Single Ethanol Aerosol Microdroplets: Droplet Size Effects on Rotational Relaxation Time and Viscosity	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 Analytical Chemistry	6.最初と最後の頁 5218-5224
掲載論文のDOI (デジタルオプジェクト識別子) 10.1021/acs.analchem.0c05406	 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 Atsushi Miura, Ryosuke Nakajima, Sayaka Abe, and Noboru Kitamura	4.巻 124
2.論文標題 Optical Trapping-Microspectroscopy of Single Aerosol Microdroplets in Air: Supercooling of Dimethylsulfoxide Microdroplets	5 . 発行年 2020年
3.雑誌名 Journal of Physical Chemistry A	6 . 最初と最後の頁 9035-9043
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jpca.0c06179	 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 Atsushi Miura, Riku Nohara, Azumi Nojima, and Noboru Kitamura	4.巻 93
2.論文標題 Laser-Induced Single-Molecule Extraction and Detection in Aqueous Poly(N-isopropylacrylamide)/1-Butanol Solutions	5 . 発行年 2021年
3.雑誌名 Analytical Chemistry	6.最初と最後の頁 3202-3208
 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.anaIchem.0c04673	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	4 . 巻
Ryosuke Nakajima, Atsushi Miura, Sayaka Abe, and Noboru Kitamura	93
2.論文標題	5 . 発行年
Optical Trapping-Polarized Raman Microspectroscopy of Single Ethanol Aerosol Microdroplets:	2021年
Droplet Size Effects on Rotational Relaxation Time and Viscosity	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Analytical Chemistry	5218-5224
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acs.analchem.0c05406	有
10.1021/acs.ana1chem.0c05406	19
「オープンアクセス	国際共著
· · · · · · =· ·	口冰八日
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	-
4 # 74.67	4 **
1.著者名	4 . 巻
S. Akagi, T. Horiguchi, S. Fujii, and N. Kitamura	58
2	
2.論文標題	5.発行年
Terminal Ligand (L) Effects on Zero-Magnetic-Field Splitting in the Excited Triplet States of	2019年
	2013+
[{Mo6Br8}L6]2- (L = Aromatic Carboxylates)	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Inorganic Chemistry	703 - 714
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acs.inorgchem.8b02881	有
10.1021/ ac3.11101 gotto:::0002001	1
「 オープンアクセス	国際共著
1	
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	-
1 英老夕	1 2 2 2
1.著者名	4 . 巻
1.著者名 Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov	
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov	48
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2.論文標題	5 . 発行年
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov	48
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2.論文標題	5.発行年 2019年
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2.論文標題	5.発行年 2019年
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters	5.発行年 2019年
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2 . 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3 . 雑誌名 Dalton Transactions	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3.雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2 . 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3 . 雑誌名 Dalton Transactions	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3.雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子)	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f オープンアクセス	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f オープンアクセス	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 -
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 -
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 -
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 -
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2 . 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3 . 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1 . 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2 . 論文標題	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 4.巻 5.発行年
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 4.巻 2019年
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 4.巻 5.発行年
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3. 雑誌名	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 4.巻 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 4.巻 2019年
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3. 雑誌名	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 4.巻 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3. 雑誌名	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 4.巻 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3. 雑誌名 ACS Omega	5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 4 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 21251 - 21259
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3. 雑誌名	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4.巻 4.巻 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2.論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3.雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1.著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2.論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3.雑誌名 ACS Omega	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 - 査読の有無 - 有 - 国際共著 - 4.巻 4 5.発行年 2019年 - 6.最初と最後の頁 21251 - 21259 - 査読の有無
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3. 雑誌名 ACS Omega	5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 4 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 21251 - 21259
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2.論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3.雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1.著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2.論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3.雑誌名 ACS Omega 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.9b02749	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 4 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 21251 - 21259 査読の有無 有
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2. 論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3. 雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1. 著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2. 論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3. 雑誌名 ACS Omega	48 5.発行年 2019年 6.最初と最後の頁 12522 - 12530 - 査読の有無 - 有 - 国際共著 - 4.巻 4 5.発行年 2019年 - 6.最初と最後の頁 21251 - 21259 - 査読の有無
Y. M. Gayfulin, K. A. Brylev, M. R. Ryzhikov, D. G. Samsonenko, N. Kitamura, and Y. V. Mironov 2.論文標題 Luminescent Twelve-Nuclear Rhenium Clusters 3.雑誌名 Dalton Transactions 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/c9dt02352f 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 1.著者名 M. Sekine, H. Ikeda, K. Nagata, A. Ito, E. Sakuda, N. Kitamura, A. Shinohara, and T. Yoshimura 2.論文標題 Luminescent-Intensity Switching of Tetracyanidonitridorhenium(V) Complexes with Five-Membered N-Heteroaromatic Ligands and Photoluminescence-Intensity Change 3.雑誌名 ACS Omega 掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.9b02749	48 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 12522 - 12530 査読の有無 有 国際共著 - 4 . 巻 4 5 . 発行年 2019年 6 . 最初と最後の頁 21251 - 21259 査読の有無 有

1.著者名	4 . 巻
K. A. Brylev, B. S. Akhamadeev, J. G. Elistratova, I. R. Nizameev, A. T. Gubaidullin, I. V.	58
Kashnik, N. Kitamura, SJ. Kim, Y. V. Mironov, and A. R. Mustafina	
2.論文標題	5 . 発行年
[{Re6Q8}(S03)6]10- (Q = S or Se): Facile Synthesis and Properties of the Most Highly Charged Octahedral Cluster Complexes and High Magnetic Relaxivity of Their Colloids with Gd3+ Ions	2019年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Inorganic Chemistry	15889 - 15897
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1021/acs.inorgchem.9b02346	有
	CORNELL AND
オープンアクセス	国際共著
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	-

〔学会発表〕 計7件(うち招待講演 0件/うち国際学会 0件)

1.発表者名

三浦篤志,中筋裕香,喜多村曻

2 . 発表標題

レーザー捕捉によるタンパク質の結晶化はなぜ難しい?: in situ顕微分光計測による結晶化阻害要因の解明

3 . 学会等名

2021年第82回応用物理学会秋季学術講演会

4.発表年 2021年

1.発表者名

三浦篤志,安部彩夏,中島僚介,李桐,喜多村曻

2 . 発表標題

空中浮遊単一エアロゾル液滴における液滴粘度のサイズ依存性の顕微分光分析

3 . 学会等名

日本分析化学会 第70年会

4 . 発表年

2021年

1.発表者名 三浦篤志

2 . 発表標題

単一高分子微粒子を分析場とする微量物質抽出分析

3.学会等名

第69回応用物理学会春季学術講演会

4 . 発表年

2022年

1 . 発表者名 Sayaka Abe, Atsushi Miura, Sho Fujii, Noboru Kitamura, and Kosei Ueno
2 . 発表標題
Size Dependent Viscosity Change of Single Levitated Aerosol Droplet by Laser Trapping - Microspectroscopy
3.学会等名
日本化学会第100春季年会
4 . 発表年 2020年
安部 彩夏、三浦 篤志、上野 貢生、喜多村 昇
2 . 発表標題
レーザー捕捉・時間分解顕微分光による単一エアロゾル水滴粘度のサイズ依存性の検討
3 . 学会等名 日本分析化学会第 6 8 年会
4 . 発表年 2019年
1 . 発表者名 北村 侑子、藤井 翔、三浦 篤志、上野 貢生、喜多村 昇
2 . 発表標題 レーザー誘起衝撃波を用いたメカノクロミック発光現象の解析
レーン 即兆[1] 李水、色 用り リレクカテテリー シテカルルネッ 呼仰
3 . 学会等名 2 0 1 9 光化学討論会
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 李 桐、藤井 翔、三浦 篤志、喜多村 昇、上野 貢生
2 . 発表標題 レーザー捕捉・時間分解蛍光顕微分光法による単一エアロゾル油滴の粘度測定
3 . 学会等名 2 0 1 9 年北海道支部冬季研究発表会
4.発表年 2020年

(図書〕	計0件
•		H 1 - 1 1

〔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
	三浦 篤志	北海道大学・理学研究院・准教授	
研究分担者	(Miura Atsushi)		
	(90379553)	(10101)	

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