研究成果報告書 科学研究費助成事業

今和 4 年 5 月 1 9 日現在

機関番号: 11301

研究種目: 基盤研究(B)(一般)

研究期間: 2017~2019

課題番号: 17H02744

研究課題名(和文)メゾスコピック粒子の3次元空間配置アクティブ制御と生体イメージングへの用途展開

研究課題名(英文)Active control of 3D arrangement on mesoscopic particles and their application to biological imaging

研究代表者

長尾 大輔 (Nagao, Daisuke)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号:50374963

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 14,200,000円

研究成果の概要(和文):本研究は、生体内の特定部位をイメージングするためのナノ材料を開発することを目的として実施された。イメージング用ナノ材料としては、粒径均一性の高い粒子を配列させたコロイド結晶とし、同結晶の構成要素となる粒子を検討した。その構成粒子として、中空部に金属ナノ粒子を内包した粒子(Yolk/Shell型粒子)を合成し、その粒子の分散および集積状態における諸特性を調べた。その結果、Yolk/Shell型のコロイド結晶であれば、シェル接触によるYolk/Shell型か子集積(凝集)状態でも内包した金属ナノ粒子由来の光学特性およびラマン分光特性が得られることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義 金属ナノ粒子は、比表面積が大きく容易に凝集するため、金属ナノ粒子本来の特性を機能性材料として活かせない問題があった。本研究では粒子集積させた状態でその本来の特性を材料の機能として活かせる構造としてYolk/Shell型コロイド結晶に着目した。本構造を利用すれば、集積状態でも本来の特性を大きく損なうなく、粒子高密度化によるラマンシグナル等の増強効果が期待できることを示した点に学術的な意義がある。

研究成果の概要(英文): The objective of the present work is development of nanomaterials usable for imaging specific parts of organisms. Several types of monodisperse yolk/shell particles, which are composed of a movable inner core and outer silica shell, were synthesized to prepare colloidal crystals applicable to the imaging. The yolk/shell structure is found to allow inner metal cores to exhibit intrinsic optical properties and also show the Raman signals even when the yolk/shell particles are assembled in a limited space.

研究分野: 材料化学工学

キーワード: ナノ材料 中空粒子

様 式 C-19、F-19-1、Z-19(共通)

1.研究開始当初の背景

環境の変化に応じて特性が変化する刺激応答性材料はセンサー、スイッチ、表示素子(電子ペーパーを含む) 記憶素子等、幅広い用途展開が想定される機能性材料である。従来の刺激応答性材料開発は、原子・分子レベルでの相変化(構造変化)の組合せに基づくものがほとんどであった。しかしながら、原子・分子の積上げによるボトムアップ的アプローチは、分子の設計や開発に多大な時間を要するため、短い期間で大きく変化するデバイス側の要求に柔軟に応えられるプロセスとは言い難い。これに対して、微細加工技術を駆使して構造体を作り込む手法、いわゆるトップダウン的アプローチも検討されているが、量子サイズ効果も取り込めるサイズ領域まで材料を精密に微細加工する場合、生産コストや加工時間の観点で問題を抱えている。原子・分子を積み上げて作る「ボトムアッププロセス」と、バルク体を小さく作り込む従来型の「トップダウンプロセス」の両者が得意とする領域の狭間にある 10 nm ~ sub-μm 程度の周期構造体を、迅速かつ低コストで作製するプロセス開発が強く求められていた。

2.研究の目的

金ナノ粒子を含む、粒径 100 nm 以下の金属ナノ粒子は、特異な光学特性やセンシング特性を示すことが広く知られる。これらの特性は、光照射によってナノ粒子の自由電子が振動し、その振動によって局在的な電場が生じる「局在表面プラズモン共鳴」に由来する。これらの特性(光学特性やセンシング特性)はプラズモン特性と呼ばれる。粒子近傍に生じる電場強度は、金属ナノ粒子が互いに接近した領域、すなわち「ホットスポット」において著しく増強される。このような特徴を活かし、プラズモン特性を制御するには、粒子同士を集める(集積化させる)ことが重要になってくる。一方、多くのナノ粒子は、大きな表面エネルギーを有するため不安定であり、溶液中の pH や温度を含む様々な外部環境因子の変化に対して必要以上に敏感に応答することが多く、粒子径の小さなナノ粒子の凝集傾向は一般に強い。

このような金属ナノ粒子のプラズモン特性を受けて本研究では、ナノ粒子の凝集状態を回避しつつ、ナノ粒子を集める手法の開発として、さらには、粒径が均一な単分散粒子の集積・配列プロセス開発の一つとして、可動性メゾスコピック粒子を内包した中空コロイド結晶(周期構造体)を作製し、それを生体内特定部位のイメージングプローブとして展開することを検討した。中空部に可動体を内包することで、コロイド結晶内部の構造をアクティブに制御することを目指した。可動性内包物としては、代表的プラズモニックナノ材料である金ナノ粒子を主に検討し、金ナノ粒子の集積状態やナノ粒子の形状が光学特性やセンシング特性に及ぼす影響を調べることを当初の目的とした。

3.研究の方法

ナノサイズの微粒子は、バルク材料とは異なる性質を示す。例えば、数 10 nm 程度の金ナノ粒子は、前述したように「局在表面プラズモン共鳴」に由来する特異的な光学特性やセンシング特性を示す。またナノ粒子が互いに近接した領域「ホットスポット」において、ナノ粒子近傍の電場が著しく増強されることも広く知られる。そこで本研究では、複数の金ナノ粒子を集積させた金ナノクラスターを予め調製し、それをメゾスコピック領域にある中空粒子内に取り込むことを検討した。さらに、調製した金ナノクラスター内包型中空粒子の光学特性を評価することも合わせて検討した。

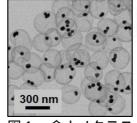
金属ナノ粒子の形状が光学特性やセンシング特性に及ぼす影響については、異方性ナノ粒子の一種としてロッド状金ナノ粒子(GNR)を中空部に内包した金ナノロッド内包中空粒子を合成し、その影響を調べることにした。GNR内包中空粒子の合成プロセスは、金ナノロッド(GNR)の調製、調製した金ナノロッドのシリカ被覆、カチオン性高分子を利用したシリカの選択エッチングの3工程からなる。本研究では、集積しても中空構造が維持される選択的シリカエッチングプロセスについて特に詳細に検討した。

生体内での様々な動態を調べるには、ナノ粒子の動きを長時間トレースできるナノ材料を開発しておく必要がある。そこで本研究では、紫外光の長時間照射に対しても退色の少ない発光材料として酸化亜鉛ナノ粒子を選定し、その発光特性についても合わせて検討することにした。

4. 研究成果

(1) 金ナノクラスター内包型中空粒子の作製とその特性評価

金ナノクラスターを内包した中空粒子の作製は、次の多段階プロセスにより行った。多段階工程は、初めにクラスターを構成する金ナノ粒子を合成する工程(1)、続いて金ナノ粒子を適切な厚さのシリカ層で被覆する工程(2)、最後に得られたシリカ被覆粒子表面をカチオン性高分子修飾剤で修飾し、シリカ層内部のみをエッチングする工程(3)で構成される。工程(2)において、投入する金ナノ粒子の個数を増やすことによって、シリカ層内部に取り込ませる数を増やせることを明らかにした。このとき、シリカ層内部に取り込ませる個数の範囲は2~10個程度



クラスター状態で 閉じ込めた金ナノ 粒子 平均径: 186 nm 分散度: 12%

図1 金ナノクラスター内包型 中空粒子の一例

であった。図1に合成した金ナノクラスター内包型中空粒子の一例を示す。工程(3)については、液中でアニオン化するシリカ表面に対して、カチオン性高分子修飾剤(ポリエチレンイミン等)を吸着させることで、シリカ層の内部を選択的にエッチングできることを示した。このような多段階プロセスにより、シリカ殻が形成する微小な(メゾスコピック領域の)微小空間に、単一状態の金ナノ粒子だけでなく、複数個がクラスター化した金ナノクラスターを閉じ込められることを実証した。

光学特性評価では初めに、シリカ殻内に内包された金ナノ粒子の個数が消光スペクトルに及ぼす影響を調べた。その結果、消光スペクトルに発現するピーク波長は、内包金ナノ粒子個数の増大とともに長波長側にシフト(レッドシフト)した。また、金ナノクラスターを内包した中空粒子のセンシング特性についても調べた。特性評価はラマンシグナルを測定することで行い、プローブ分子はシリカ被覆前の金ナノ粒子表面に作用させておいた。その結果、複数個の金ナノ粒子を内包した中空粒子からは、単一の金ナノ粒子内包中空粒子に比べて、50倍を超える強いラマンシグナルが検出された。これらの光学およびセンシング特性の比較から、金ナノクラスターを内包した中空粒子内では、金ナノ粒子間にホットスポットが形成されたことが示された。

外部刺激に対するスイッチング応答を調べるため、得られた金ナノクラスター内包型中空粒子を分散させた水溶液に対して交流電場を印加した。その結果、交流電場を印加することで、誘電泳動力によりナノ粒子が電極近傍に集積することが明らかになった。この現象を利用することで、電場印加後には中空粒子の局所的な数密度が向上することが判明した。電場印加前後において、プローブ分子のラマンシグナルを比較したところ、電場印加後のシグナルは、印加前と比べてラマンシグナル強度が増強した。このような一連の比較検討から、粒子濃度が低く希薄な状態でナノ粒子が分散していても、センシング対象となる生体内において、外部刺激により同粒子を集積化すれば、効率的にナノ粒子特有のセンシング特性を引き出せることが期待される。また、金ナノクラスターを内包した中空粒子の集積状態は、電場を解除することで再び分散状態に戻ることも確認できた。中空粒子の集積 分散状態は可逆的であり、外部電場の ON/OFF により集積・分散状態を制御できることも明らかになった。液中での分散安定性の高い中空シリカ粒子は、電場等の外的な刺激を受け粒子同士が接近しても、分散状態を維持することができる。このように、凝集しやすい金ナノクラスターの液中での分散性を担保し、可逆的に集積状態を制御するためのアプローチを見出した。

(2) 金ナノロッド内包型中空粒子の作製について

金ナノロッド(GNR)内包型中空粒子も多段階プロセスにより調製した。多段階プロセスは、カチオン性界面活性剤溶液中での金ナノ粒子の異方成長工程(1)と、ゾル・ゲル反応を利用したGNR のシリカ被覆工程(2)と、シリカ被覆 GNR の選択的シリカエッチング工程(3)の3工程からなる。初めの GNR 調製工程では、共存させるイオン種の濃度を変えることで、金ナノロッドのアスペクト比を変えられることを確認した。GNR のアスペクト比を大きくすることで、長軸中来の消光ピーク波長を長波長側にシフトさせることができた。第2工程では、ゾル・ゲル反応で用いる溶媒組成を適切に調整することで、GNR 表面をシリカで被覆することができた。しかしながら、シリカ被覆によって得られる複合粒子の球形度が必ずしも十分ではなかった。そこで、多段階のゾル・ゲル反応プロセスも検討した。その結果、多段階プロセスをシリカ被覆に適用することで、単一プロセスでは得られない球形度の高いシリカ被覆粒子を得られることがわかった。また2段階目のシリカ被覆過程では、シリカ源を加水分解させる際の溶媒組成の制御が重要であることを指摘した。第3工程では、球状のシリカ被覆 GNR 粒子の表面にカチオン性高分子を静電的に吸着させる手法を利用することで、被覆粒子表面近傍に存在するシリカ成分を残したまま、内部のシリカ成分を選択的エッチングできることを明らかにした。このような多段階プロセスを利用することで球形度の高い GNR 内包中空粒子を合成できることがわかった。

第3工程のシリカ層の選択的エッチングについては、エッチング後もシリカ殻の球形度を保てる反応条件を詳細に検討した。初めに、カチオン性高分子修飾時の高分子濃度と生成粒子形状の関係を調べた。エッチング前のシリカ被覆粒子濃度(体積分率)を一定として、カチオン性高分子濃度を0.025-0.01 g/mL の範囲で変えた。いずれの高分子濃度においても球状の中空粒子が得られたことから、選択的なシリカエッチングに必要な高分子濃度を明らかにした。

引き続き、選択エッチング溶液に分散させるシリカ被覆粒子濃度と、エッチング後の粒子形状について調べた。その結果、低濃度では球状のシリカ粒子が得られ、中~高濃度においては、当初の予想に反して、エッチング後の粒子のシリカ殻に変形や崩壊が見られた。シリカ殻の変形あるいは崩壊が、シリカ殻の厚さと強く関係するものと考え、シリカ殻の厚さを生成物の電子顕微鏡像から推定した。その結果、シリカ殻の薄化が進行すると、シリカ殻の機械的強度が低下し、変形や崩壊が生じやすくなることが判明した。シェル殻の薄化要因として、溶解シリカ種の再析出速度の相違を推定し、シリカ種の縮合反応への大きな影響を及ぼす溶液 pH を測定した。高濃度のシリカ被覆粒子分散液の溶液 pH は、低濃度のシリカ被覆粒子分散液の pH よりも 0.5 程度低いことが明らかになった。これらの結果から、本エッチングプロセスにおいて球状の中空シリカ粒子を得るには、中実シリカ粒子の総表面積を制御する必要性を指摘した。

最後に、3種の大きさ異なるシリカ被覆粒子を選択エッチングすることで、シリカ被覆粒子のサイズと、エッチング後の粒子形状の関係について調べた。シリカ被覆粒子の総表面積を一定値より小さな値を設定しエッチングしたところ、中空粒子の全体の大きさに対するシリカ殻の厚

さが十分に厚い、すなわちシリカ殻の機械的強度が十分に保たれる条件では、いずれの大きさのシリカ被覆粒子においても球状度の高い中空粒子が得られた。

シリカエッチング前の粒子の総表面積を適切に設定し、球状シリカ被覆 GNR の選択エッチングを試みたところ、球形度の高い GNR 内包中空粒子を合成することに成功した。合成した GNR 内包中空粒子の一例を図 2 に示す。この粒子の光学特性 および SERS 特性を評価したところ、光学特性評価では GNR 近傍の屈折率変化が要因と考えられる消光ピーク波長シフトが観測された。SERS 特性評価では、GNR 内包中空粒子においてプローブ分子由来のラマン強度の増大が認められた。これら

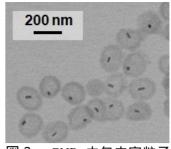


図 2 GNR 内包中空粒子

の結果は、GNR 内包中空粒子のシリカ殻が多孔性を有することを示唆しており、本研究におけるプロセス提案により、中空粒子内に閉じ込めた GNR であってもその特異な表面を検出対象分子のセンシング場として活用できることを示した。

(3) 中空シリカ粒子に内包した金ナノ材料の可動性について

前節までに調製した金ナノ材料内包中空シリカ粒子は、シリカ殻が形成する微小空間は金ナノ材料の回転半径よりも大きく、GNR が微小閉空間内において自由に回転運動できる空間を確保していた。そこで調製した各粒子を国際共同研究先であるオランダ・ユトレヒト大学の Debye Institute の Soft Condensed Matter グループに送り、液中での金ナノ材料の動きを Liquid cell TEM (液中でのナノ材料観察を可能にする特殊な電子顕微鏡)で観察した。その結果、シリカ殻が形成する空間が数十ナノメートルという極微小な閉空間であっても、内包する金ナノ材料がプラウン運動できることを直接観察できた。

(4) 長時間の紫外線照射でも退色しないナノ材料について

シリカ粒子表面に酸化亜鉛ナノ粒子を担持させて蛍光複合粒子を、静電ヘテロ凝集を利用して合成した。その結果、調製した複合粒子に取り込まれた酸化亜鉛ナノ粒子が、蛍光顕微鏡観察において十分に強い発光強度を示すこと、さらに30分程度の長時間紫外線照射に対して発光強度を大きく低下させることなく、局所空間でのイメージング材料として利用できることを実証した。

5 . 主な発表論文等

「雑誌論文 〕 計6件(うち査読付論文 6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6件(うち査読付論文 6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 Ayumi Yahata, Haruyuki Ishii, Kosuke Nakamura, Kanako Watanabe, Daisuke Nagao	4.巻 30(12)
2.論文標題 Three-dimensional periodic structures of gold nanoclusters in the interstices of sub-100 nm polymer particles toward surface-enhanced Raman scattering	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名 Advanced Powder Technology	6.最初と最後の頁 2957-2963
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1016/j.apt.2019.09.003	 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 Kanako Watanabe, Tom A. J. Welling, Sina Sadighikia, Haruyuki Ishii, Arnout Imhof, Marijn A. van Huis, Alfons van Blaaderen, Daisuke Nagao	4.巻 566(15)
2.論文標題 Compartmentalization of gold nanoparticle clusters in hollow silica spheres and their assembly induced by an external electric field	5.発行年 2020年
3.雑誌名 Journal of Colloid and Interface Science	6.最初と最後の頁 202-210
掲載論文のDOI(デジタルオプジェクト識別子) 10.1016/j.jcis.2020.01.094	 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 Natsuki Kohama, Chika Suwabe, Haruyuki Ishii, Kumiko Hayashi, Daisuke Nagao	4.巻 568
2.論文標題 Characterization on magnetophoretic velocity of the cluster of submicron-sized composite particles applicable to magnetic separation and purification	5 . 発行年 2019年
3.雑誌名 Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects	6.最初と最後の頁 141-146
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.colsurfa.2019.02.011	 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 Kanako Watanabe, Eri Tanaka, Haruyuki Ishii, Daisuke Nagao	4.巻 14
2.論文標題 Plasmonic properties of gold nanoparticle clusters formed via applying AC electric field	5 . 発行年 2018年
3.雑誌名 Soft Matter	6.最初と最後の頁 3372-3377
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C8SM00097B	 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
Kanako Watanabe, Eri Tanaka, Haruyuki Ishii, Daisuke Nagao	-
2 . 論文標題	5.発行年
Plasmonic properties of gold nanoparticle clusters formed via applying AC electric field	2018年
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Soft Matter	-
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1039/C8SM00097B	有
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	-
1 莱老名	/

1.著者名	4 . 巻
Haruyuki Ishii, Mitsunobu Nara, Yuri Hashimoto, Arata Kanno, Shunho Ishikawa, Daisuke Nagao,	85
Mikio Konno	
2.論文標題	5.発行年
Uniform formation of mesoporous silica shell on micron-sized cores in the presence of	2018年
hydrocarbon used as a swelling agent	
3.雑誌名	6.最初と最後の頁
Journal of Sol-Gel Science and Technology	539-545
掲載論文のDOI(デジタルオブジェクト識別子)	査読の有無
10.1007/s10971-018-4589-y	有
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18件(うち招待講演 1件/うち国際学会 4件)

1.発表者名

亀田涼太、新井しおり、渡部花奈子、林久美子、長尾大輔

2 . 発表標題

細胞内観察へ向けた蛍光磁性複合粒子の分散・凝集制御

- 3 . 学会等名 化学工学会第85年会
- 4.発表年 2020年
- 1.発表者名

持明佳祐、渡部花奈子、長尾大輔

2 . 発表標題

金コア-シリカシェル粒子の単分散な球状集積体作製プロセスの検討

3 . 学会等名

化学工学会第85年会

4 . 発表年

2020年

1.発表者名 末田良樹、佐藤昌紀、渡部花奈子、長尾大輔
2 . 発表標題 蛍光シリカナノ粒子を利用したフレキシブルな蛍光ナノコンポジット膜の作製
3 . 学会等名 化学工学会第85年会
4 . 発表年 2020年
1.発表者名 長谷川将史、渡部花奈子、長尾大輔
2.発表標題金ナノ粒子が3次元に非最密集積した構造体の作製
3 . 学会等名 マテリアル・ファブリケーション・デザインセミナー
4 . 発表年 2020年
1 . 発表者名 K. Nakamura, K. Watanabe, D. Nagao
2 . 発表標題 Effect of silica encapsulation on plasmon characteristics of gold nanotriangle
3 . 学会等名 OKINAWA COLLOIDS 2019 (国際学会)
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 中村幸佑、黒田昂太郎、渡部花奈子、長尾大輔
2 . 発表標題 金ナノトライアングルのシリカ被覆プロセスとプラズモン特性に関する研究
3 . 学会等名 第21回先端研究発表会
4 . 発表年 2019年

1.発表者名 中村幸佑、黒田昂太郎、渡部花奈子、石井治之、長尾大輔
2 . 発表標題 シリカカプセル化金ナノトライアングルの作製とそのプラズモン特性
3 . 学会等名 化学工学会第84年会
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 長尾大輔
2 . 発表標題 単分散な微粒子を集めて作れる新材料
3 . 学会等名 マテリアル・ファブリケーション・デザインセミナー(招待講演)
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 前田悠希、金澤惇、石井治之、長尾大輔
2 . 発表標題 蛍光シリカ粒子を充填したフレキシブル蛍光ナノコンポジット膜の作製
3.学会等名 第21回化学工学会学生発表会【東京大会】
4 . 発表年 2019年
1.発表者名 小濵奈月、石井治之、今野幹男、長尾大輔
2 . 発表標題 触媒担体粒子に向けた単分散磁性複合粒子の特性に及ぼす粒径の影響
3 . 学会等名 化学工学会第50回秋季大会
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 八幡あゆみ、石井治之、長尾大輔
2 . 発表標題 金-ポリマーニ成分ナノ粒子配列体によるプラズモン特性の制御
3 . 学会等名 化学工学会第50回秋季大会
4 . 発表年 2018年
1.発表者名 S. Arai, N. Kohama, H. Ishii, D. Nagao
2 . 発表標題 Synthesis of fluorescently-labelled magnetic composite particles using double electrostatic heterocoagulation
3.学会等名 32nd Conference of the European Colloid and Interface Society (ECIS)2018 (国際学会)
4 . 発表年 2018年
1.発表者名 新井しおり、小濵奈月、石井治之、長尾大輔
2 . 発表標題 ヘテロ凝集法を用いた蛍光磁性複合粒子の合成
3.学会等名 第20回先端研究発表会
4 . 発表年 2018年
1 . 発表者名 N. Kohama, K. Watanabe, H. Ishii, M. Konno, D. Nagao
2 . 発表標題 Preparation of magnetic composite particles toward precise separation of target biomolecules
3.学会等名 16th Conference of the International Association of Colloid and Interface Scientists
4 . 発表年 2018年

1.発表者名
I.光衣有石 A. Yahata, H. Ishii, D. Nagao
A. Tallata, H. Tallit, D. Nagao
2 . 発表標題
Fabrication of Ordered Structure Incorporating Gold Nanoparticles for Highly Sensitive Detection of Chemical Components
3. 学会等名
The 6th Asian Symposium on Emulsion Polymerization and Functional Polymeric Microspheres(国際学会)
4 7V±/r
4. 発表年
2018年
4 7V±+v7
1.発表者名
八幡あゆみ、石井治之、長尾大輔
2. 発表標題
微量化学成分検出に向けた金ナノ粒子内包周期構造体の作製
3 . 学会等名
第7回CSJ化学フェスタ2017
4 . 発表年
2017年
1 . 発表者名
1 . 発表者名 渡部花奈子、石井治之、長尾大輔
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2.発表標題
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2.発表標題
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2.発表標題
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao 2 . 発表標題 A new method for controlling the clustering of nanoparticles in their assembly
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao 2 . 発表標題 A new method for controlling the clustering of nanoparticles in their assembly 3 . 学会等名
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao 2 . 発表標題 A new method for controlling the clustering of nanoparticles in their assembly
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao 2 . 発表標題 A new method for controlling the clustering of nanoparticles in their assembly 3 . 学会等名 UK Colloids 2017: An International Colloids and Interface Science Symposium (国際学会)
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao 2 . 発表標題 A new method for controlling the clustering of nanoparticles in their assembly 3 . 学会等名 UK Colloids 2017: An International Colloids and Interface Science Symposium (国際学会) 4 . 発表年
渡部花奈子、石井治之、長尾大輔 2 . 発表標題 高感度分子センサーへの応用に向けた金ナノ粒子集積システムの提案 3 . 学会等名 化学工学会第49回秋季大会 4 . 発表年 2017年 1 . 発表者名 K. Watanabe, H. Ishii, D. Nagao 2 . 発表標題 A new method for controlling the clustering of nanoparticles in their assembly 3 . 学会等名 UK Colloids 2017: An International Colloids and Interface Science Symposium (国際学会)

١	図書]	計1件	

VEE / WILL	
1.著者名 渡部花奈子、 長尾大輔	4 . 発行年 2017年
2.出版社 株式会社シーエムシー出版	5.総ページ数 10
3 . 書名 高分子微粒子八ンドブック「Yolk/Shell 構造粒子」	

〔産業財産権〕

〔その他〕

東北大学大学院工学研究科 化学工学専攻https://www.che.tohoku.ac.jp/~mpe/	트로프호호up
木心ハナハナルエナッカバイ 10ナエナサス	及尼斯九主!!
Inttos://www.che.tohoku.ac.in/~mpe/	
por	

6.研究組織

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
	梅津 光央	東北大学・工学研究科・教授	
研究分担者	(Umetsu Mitsuo)		
	(70333846)	(11301)	
	石井 治之	山口大学・大学院創成科学研究科・准教授(テニュアトラック)	
研究分担者	(Ishii Haruyuki)		
	(80565820)	(15501)	

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