

微小液滴を利用した DNA 修飾金ナノ粒子結晶の均一生成に成功

結晶サイズのばらつきを従来法の約 9 分の 1 に低減—次世代光学材料やナノデバイスへの応用に期待—

ポイント

- ① DNA 修飾金ナノ粒子結晶は次世代光学材料への応用が期待されていますが、結晶サイズの制御が困難でした。
- ② 熱制御型液滴マイクロ流体システムを構築し、微小液滴を結晶化環境として利用することで、均一な DNA 修飾金ナノ粒子結晶の作製に成功しました。
- ③ 従来法と比較して結晶サイズのばらつきを約 9 分の 1 に低減し、新たな光学材料や機能性ナノデバイスの開発への応用が期待されます。

概要

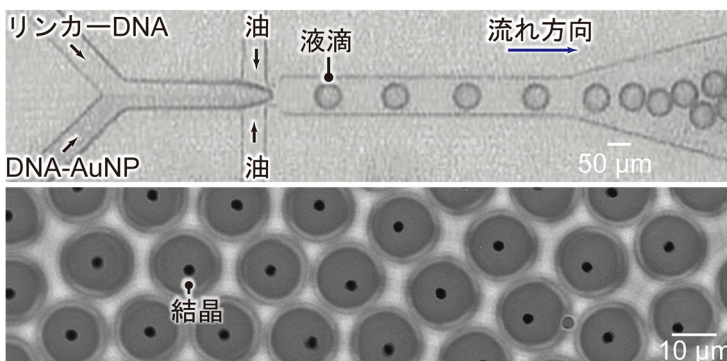
DNA 修飾ナノ粒子 (DNA-NP) (※1) が自己集合化 (※2) して形成する超格子 (※3) は、高機能な光学材料やナノデバイスへの応用が期待されている一方で、これまで結晶サイズのばらつきが大きく、均一な結晶を作製することが困難でした。そのため、結晶サイズや品質を精密に制御する新たな製造技術の開発が求められていました。

本研究では、微小液滴を利用して結晶化環境を精密に制御することにより、DNA 修飾金ナノ粒子 (DNA-AuNP) 超格子を高い均一性で作製可能とする新技術を開発しました。

九州大学大学院工学研究院の鳥取直友助教、佐久間臣耶准教授、山西陽子教授、名古屋大学未来材料・システム研究所の田川美穂教授らの研究グループは、熱制御型液滴マイクロ流体システムを構築し、DNA 修飾金ナノ粒子を均一な微小液滴内で結晶化させることで、結晶サイズのばらつきを大幅に低減することに成功しました。本手法では、高温条件下のマイクロ流路内で均一サイズの液滴を生成した後、超低速で冷却することで DNA 修飾金ナノ粒子の結晶化を制御します。液滴サイズによる結晶化への影響を評価した結果、液滴サイズが小さくなるほど単一結晶体 (※4) が形成されやすくなることが明らかになり、特に液滴径 23 μm 以下の条件では主に単一結晶体が形成されることを確認しました。さらに、従来のバッチ法 (※5) と比較して結晶サイズのばらつきを約 9 分の 1 に低減することに成功しました。

本研究成果は、均一サイズのナノ粒子超格子の製造技術として、新たな光学材料や機能性ナノデバイスの開発への応用が期待されます。また、他種のナノ粒子材料への展開など、ナノ材料製造技術の高度化にも貢献すると考えられます。

本研究成果は、2026 年 8 月 10 日 (月) 午後 5 時 (日本時間) に Wiley 発行の国際学術誌 Small に掲載されました。



マイクロ流路を用いた液滴生成と液滴内の生成結晶の様子。

研究者からひとこと：液滴という微小空間で結晶化を制御することで、従来難しかったナノ粒子結晶の均一化を実現できました。液滴サイズの制御により単一結晶体の形成を促進できた点は、本研究の重要な成果の一つだと考えています。今後はより詳細な結晶構造の解析や他の材料系への展開を進め、新たな光学材料や機能性材料の開発につなげていきたいと考えています。

(鳥取直友助教)

【研究の背景と経緯】

DNA 修飾金ナノ粒子は、DNA の塩基配列を設計することで規則的な三次元構造を形成できるため、新たな光学材料やナノデバイスの構成材料として注目されています。特に、DNA 修飾金ナノ粒子が自己集合化して形成する超格子は、粒子の規則的な配列に由来する特異な光学特性や機能の発現が期待されています。一方で、超格子の性能は結晶サイズや構造の均一性に大きく依存するため、高性能な材料を実現するためには、均一な結晶を再現性よく作製する技術が不可欠です。しかし、従来のバッチ法による結晶化では、結晶ごとにサイズや構造がばらつきやすく、超格子の特性を安定して引き出すことが困難でした。近年、微小液滴を利用した液滴マイクロ流体技術（※6）が注目されており、均一な反応場を多数形成できることから、材料合成やバイオ分析への応用が進められています。しかし、DNA 修飾金ナノ粒子の結晶化に応用し、結晶サイズや均一性を制御する研究はこれまで十分に行われていませんでした。そこで本研究では、均一サイズの微小液滴を結晶化の場として利用することで、DNA 修飾金ナノ粒子超格子の形成過程を精密に制御し、高均一な結晶を作製できる新たな手法の開発に取り組みました。

【研究の内容と成果】

本研究では、DNA 修飾金ナノ粒子を内包した均一サイズの微小液滴を連続的に生成できる熱制御型液滴マイクロ流体システムを構築しました（図 1）。本システムを用いて生成した微小液滴を DNA 修飾金ナノ粒子の結晶化環境として利用し、高温状態（65°C）から 35°C まで超低速（0.01°C min⁻¹）で冷却することで、液滴内における DNA 修飾金ナノ粒子の自己集合化過程を精密に制御しました。その結果、液滴サイズが小さくなるほど単一結晶体が形成されやすくなることを明らかにしました。特に液滴径 23 μm 以下の条件では、単一結晶体が高い割合で形成されることを確認しました（図 2）。これは、液滴サイズが小さくなることによって一つの液滴内で形成される結晶核の数が抑制され、単一の結晶が優先的に成長するためであると考えられます。さらに、単一結晶体が形成される条件では、液滴サイズが大きくなるほど形成される結晶サイズも大きくなる傾向が確認され、液滴サイズに応じて形成される結晶サイズを制御できることを示しました。また、均一な微小液滴を結晶化環境として利用することで、図 3 に示すように、従来のバッチ法と比較して結晶サイズのばらつきを約 9 分の 1 に低減することに成功しました。これは、微小液滴が独立した均一な結晶化環境として機能することで、各液滴内で同様の結晶成長が進行し、高い均一性と再現性の実現に至ったと考えられます。さらに、小角 X 線散乱（small angle X-ray scattering; SAXS）（※7）測定により、形成された超格子の結晶構造を評価した結果、本手法によって規則的な超格子構造が形成されるとともに、得られた超格子は従来法によって形成された超格子と同様の結晶構造を有することが示されました。これらの結果から、本研究で提案したシステムは、DNA 修飾金ナノ粒子超格子を高い再現性で製造できる新たな手法であることを実証しました。さらに、本手法は、液滴サイズや結晶形成過程を制御できることから、目的に応じたナノ粒子超格子の設計・製造への応用も期待されます。

【今後の展開】

本研究で開発した技術は、DNA 修飾金ナノ粒子超格子を高い再現性で製造するための基盤技術としての活用が期待されます。今後は、より詳細な結晶構造の解析を進め、液滴サイズや結晶化条件が超格子形成に与える影響を明らかにするとともに、本手法を他種のナノ粒子系へと展開することで、多様なナノ粒子超格子の形成へ応用できると考えられます。また、より大きな結晶体の形成や製造スケールアップを進めることで、ナノ粒子超格子のサイズ制御範囲の拡大と効率的な製造を可能とする技術への発展も期待されます。さらに、本研究で得られる超格子の構造・光学特性・機能の関係を明らかにすることで、新たな光学材料や機能性ナノデバイスの開発などへ貢献すると考えられます。

【参考図】

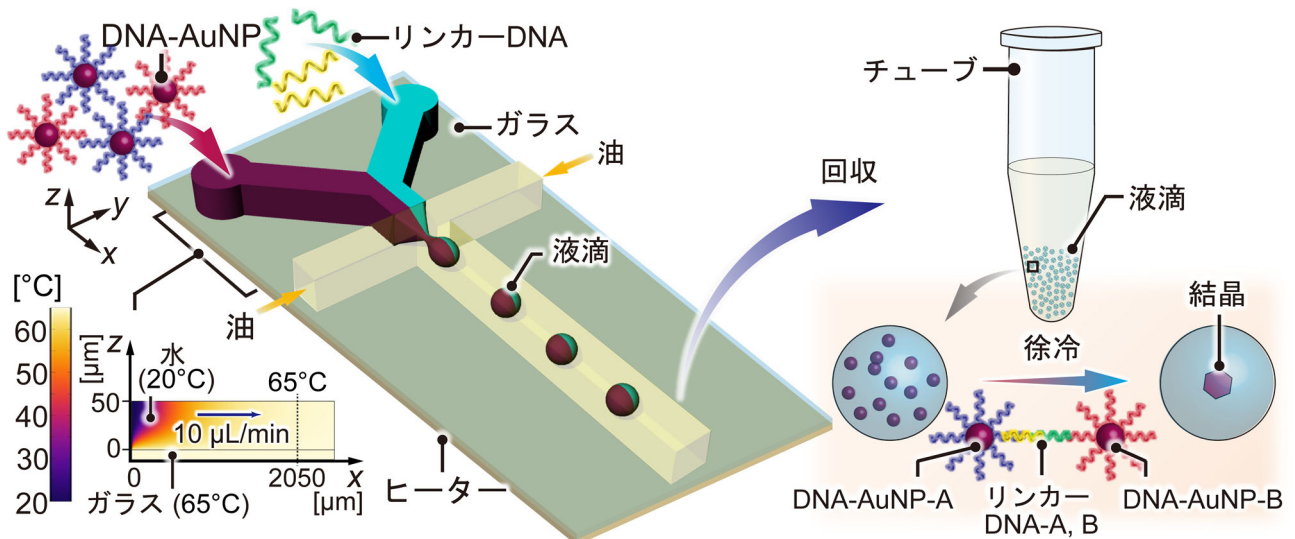


図1 熱制御型液滴マイクロ流体システムによる DNA 修飾金ナノ粒子超格子の作製。DNA 修飾金ナノ粒子を含む溶液から均一サイズの微小液滴を生成し、液滴を回収した後に超低速で冷却することで、液滴内における DNA 修飾金ナノ粒子の自己集合化を制御し、結晶を形成する。

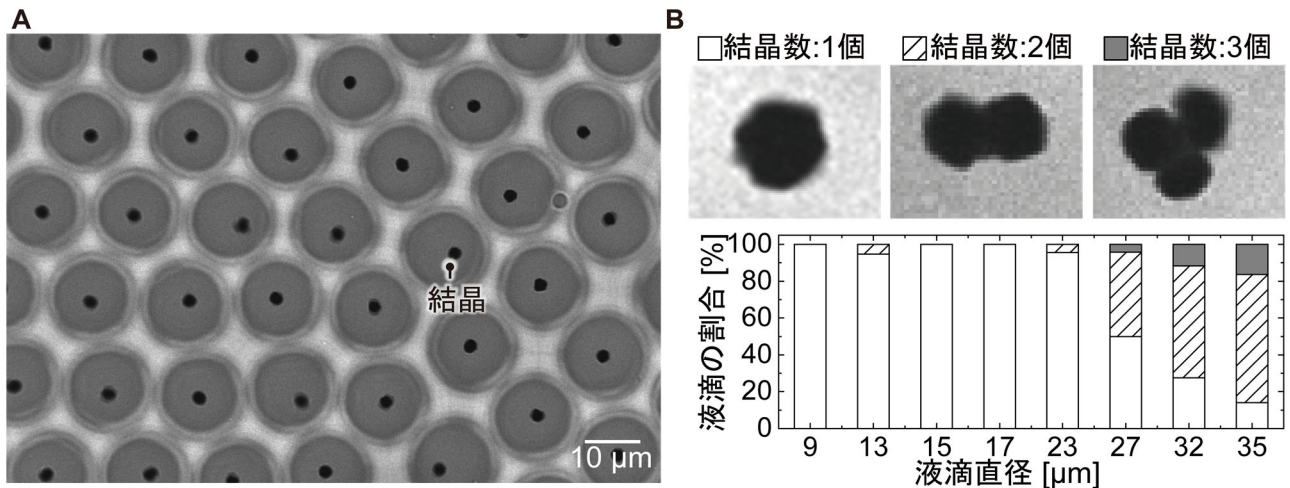


図2 液滴サイズが超格子結晶形成に与える影響。(A) 個々の微小液滴内で形成された結晶の顕微鏡観察像。(B) 液滴直径と形成される結晶数の関係。液滴サイズが小さくなるほど単一結晶体の割合が増加し、液滴径 23 µm 以下では主に単一結晶体が形成されることを示している。

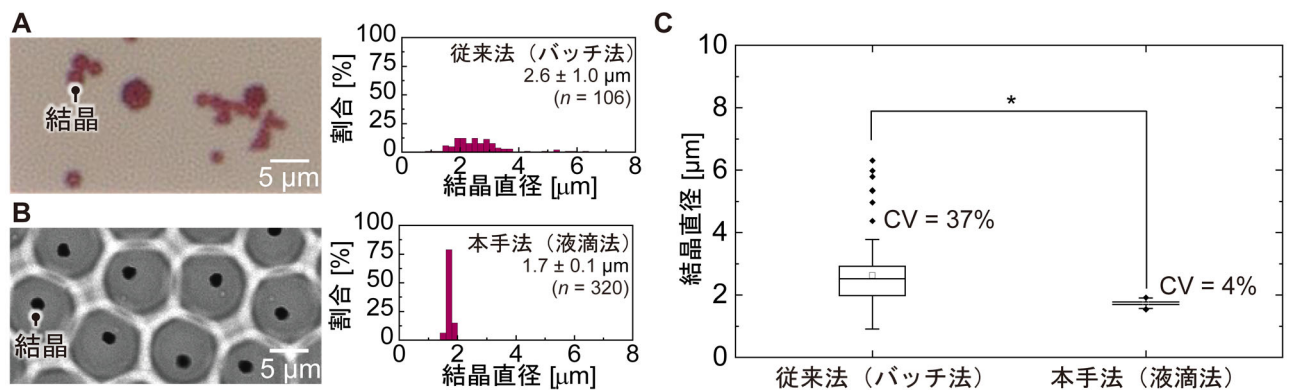


図3 従来手法 (バッチ法) と本手法 (液滴法) で作製した超格子結晶の比較。(A) 従来のバッチ法で作製した結晶の顕微鏡像と結晶サイズ分布。(B) 液滴法で作製した結晶の顕微鏡像と結晶サイズ分布。(C) バッチ法と液滴法で得られた結晶サイズの比較。液滴法では結晶サイズの変動係数 (CV) が 37%から 4%へ低下し、結晶サイズのばらつきが従来法の約 9 分の 1 に低減されたことを示している。

【用語解説】

(※1) DNA 修飾ナノ粒子 (DNA-NP)

ナノ粒子の表面に DNA を結合させたナノ粒子。DNA 配列を設計することで、粒子同士を特定の位置関係で結合させることができ、規則的な構造体の形成が可能となる。

(※2) 自己集合化

外部から複雑な操作を加えなくても、構成要素同士の相互作用によって自発的に秩序構造が形成される現象。本研究では DNA 修飾金ナノ粒子が自己集合化することで規則的な構造体を形成する。

(※3) 超格子

ナノ粒子が規則的に並ぶことによって形成される結晶構造のこと。原子が規則的に配列した通常の結晶に対し、超格子ではナノ粒子が構成要素となる。粒子の配列に由来した特異な光学特性や機能の発現が期待されている。

(※4) 単一結晶体

本研究における単一結晶体とは、液滴内で一つの結晶粒子が形成された超格子構造を指す。これは厳密な完全単結晶を意味するものではない。

(※5) バッチ法

反応溶液を一つの容器内でまとめて混合し、反応や結晶化を行う従来の結晶生成手法。本研究で用いた液滴法とは異なり、反応環境を個別に制御することが難しいため、生成される結晶のサイズや構造にばらつきが生じやすい。

(※6) 液滴マイクロ流体技術

マイクロメートルサイズの微小流路内で液滴を生成・操作する技術。均一な大きさの液滴を連続生成できるため、化学反応や材料合成、バイオ分析などへの応用が進められている。

(※7) 小角 X 線散乱 (small angle X-ray scattering; SAXS)

試料に X 線を照射し、散乱された X 線を解析することで内部の規則構造を評価する手法。ナノ粒子超格子の結晶構造や粒子配列の規則性を調べるために広く利用されている。

【謝辞】

本研究の一部は、JST CREST (JPMJCR19S6)、JSPS 科研費 (JP19H02555、JP25H00410、JP25K24703)、JST ムーンショット型研究開発事業 (JPMJMS2217-5-1)、九州大学 藤井徳夫 研究奨励基金の助成を受けたものです。また、本研究は、名古屋大学未来材料・システム研究所における共同利用・共同研究として実施されました。小角 X 線散乱測定は、高輝度光科学研究センター (JASRI) の承認 (提案番号 2022B1742) を得て、Spring-8 (BL40B2) において行われました。

【論文情報】

掲載誌： Small

タイトル： Thermally regulated droplet microfluidics enables uniform, size-controllable DNA-nanoparticle superlattices

著者名： Naotomo Tottori, Miho Tagawa, Azusa Takao, Lidong Zhang, Maasa Yokomori, Shinya Sakuma, and Yoko Yamanishi

D O I： 10.1002/sml.74787

【お問合せ先】

<研究に関すること>

九州大学 大学院工学研究院 助教 鳥取直友（トットリナオトモ）

TEL：092-802-3230

Mail：tottori@mech.kyushu-u.ac.jp

名古屋大学 未来材料・システム研究所 教授 田川美穂（タガワミホ）

TEL：052-789-5343

Mail: tagawa.miho.z5@f.mail.nagoya-u.ac.jp

<報道に関すること>

九州大学 広報課

TEL：092-802-2130 FAX：092-802-2139

Mail：koho@jimu.kyushu-u.ac.jp

名古屋大学 総務部広報課

TEL：052-558-9735 FAX：052-788-6272

Mail：nu_research@t.mail.nagoya-u.ac.jp