

## 主 論 文 要 旨

報告番号	甲 第 号	氏 名	朝倉 亮
主論文題目：  希土類ドーパ $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ナノ粒子のグリコサーマル合成と生体分子検出への応用			
(内容の要旨) 蛍光は非侵襲性の高感度な検出端であるため、生化学研究や医療診断では有機色素をラベリング剤としたバイオイメージングや生体分子の定量が広く行われている。しかし、有機色素は光照射により退色しやすく、ストークスシフトが小さいといった欠点を有する。近年、この問題を解決する材料のひとつとして CdSe/ZnS 量子ドットが提案されたが、毒物元素である Cd を含むためその毒性が懸念されている。そこで本研究では、グリコサーマル法により $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ (YAG)に希土類元素をドーパした無機蛍光ナノ粒子を合成し、生体分子検出への応用を検討した。 第1章に、本研究の背景と従来の研究を概説した。 第2章では、本研究で用いた特性評価の手法について述べた。 第3章では、グリコサーマル法による $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$ ナノ粒子の合成の条件が粒子の特性に与える影響について考察した。反応後の溶媒中にテトラヒドロフランが含有することと原料濃度の増大に伴い圧力が増大することから、粒子が生成するメカニズムを考察した。また、クエン酸を添加したグリコサーマル合成では、1次粒子径が減少し、かつ、蛍光量子効率が増大した。この結果を粒子表面の金属イオンへのクエン酸の配位により説明した。 第4章では、グリコサーマル合成した $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$ ナノ粒子に生体分子であるビオチンをコンジュゲートして、蛍光プローブを作製した。作製したビオチン化 $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$ ナノ粒子は生体特異的な結合によりアビジンビーズを免疫標識できることから、このナノ粒子は蛍光プローブとして応用可能であることを示した。 第5章では、ポリアクリル酸を $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$ ナノ粒子表面に吸着させることにより、リン酸緩衝液中での粒子の分散安定性を向上させた。さらに、ポリアクリル酸のカルボキシル基を利用して粒子表面にストレプトアビジンを固定することができた。作製したストレプトアビジン固定ナノ粒子はウシ血清アルブミンを定量できることから、このナノ粒子は生体分子検出へ応用可能であることを示した。 第6章では、 $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$ ナノ粒子をポリメタクリル酸メチルビーズに静電的に吸着させることによって、フローサイトメトリー用の蛍光ビーズを作製した。 $\text{YAG}:\text{Ce}^{3+}$ ナノ粒子の吸着処理回数に依存した蛍光強度を持つビーズは、フローサイトメトリーによって識別可能であることを確認した。このビーズに生体分子を固定してモデル実験を行うことから、ナノ粒子を複合した蛍光ビーズがフローサイトメトリーによる生体反応検出に応用可能であることを示した。 第7章では、 $\text{YAG}:\text{Yb}^{3+}$ ナノ粒子をグリコサーマル合成し、その特性評価を行った。作製した $\text{YAG}:\text{Yb}^{3+}$ ナノ粒子に波長 940 nm の近赤外レーザー光を照射すると $\text{Yb}^{3+}$ の f-f 遷移による近赤外蛍光が観測された。また、焼成により欠陥濃度と表面有機物量が減少すると、蛍光強度が増大することを明らかにした。 第8章では、 $\text{Gd}^{3+}$ と $\text{Yb}^{3+}$ を同時に含有する YAG ナノ粒子の作製と特性評価を行った。2段階グリコサーマル合成により $\text{YAG}:\text{Yb}^{3+}$ ナノ粒子表面に $\text{Gd}^{3+}$ を偏析させたナノ粒子を合成した。このナノ粒子が近赤外蛍光と $T_1$ 短縮効果の2つの機能を併せ持つことから、蛍光と磁気共鳴によるマルチモーダルイメージング用のナノ粒子として応用可能であることを示した。 第9章に、結論として各章で得られた結果を総括し、今後の展望を述べた。			

以上