

2020年3月2日（西暦記入）

## (第14回) 2018年度・研究助成報告

研究題名	噴霧乾燥法を用いた食品粉体の内部/表面構造の制御とテクスチャー特性評価
研究期間	2018年4月1日～2020年3月31日
研究機関・所属 研究者名	広島大学 大学院 工学研究科 化学工学専攻 荻 崇

## 1. 2018(2019)年度研究成果の概要

本研究では、液滴を利用した微粒子構造化技術を活用し、「食品・医療分野へ応用される粉体の構造化とテクスチャー特性に関する基礎的研究」を実施した。具体的には、噴霧法を用いて、ナノ・ミクロレベルで構造が制御されたポーラスシリカ粒子の調製を検討し、それらの構造が混合特性や粒子吸着特性へ及ぼす影響を評価した。さらに、本研究では、TEMPO酸化セルロースナノファイバー(TOCN)担持ポーラスシリカ微粒子の合成とリゾチーム吸着特性評価を行った。リゾチームは塩基性タンパク質吸着のモデルとしてよく用いられる物質であり、また溶菌酵素とも呼ばれるように、細菌の細胞壁を破壊するため、医薬品などにも用いられる人体に有益なタンパク質(酵素)である。ポーラスシリカ微粒子及びTOCN担持ポーラスシリカ微粒子で比較した結果、TOCN担持ポーラスシリカ微粒子の方が高いリゾチーム吸着性能を持つと明らかになった。さらに、マイクロ孔を持つ粒子を液相中で第2成分と混合した場合、マイクロ孔のサイズによって混合特性が異なることが明らかとなった。

## 2. 助成期間内での研究成果の概要

1. 研究背景と目的

急速に進展する高齢化、健康に対する強い関心、嗜好の多様化などにより、食品に求められる機能も多様になっている。特に歯ごたえ、歯ざわり、口あたり、溶解性と言った食品、医薬品のテクスチャー特性は重要なファクターである。このようなニーズに応える方法の一つとして、食品粉体の内部および表面構造をナノ・ミクロレベルで制御する技術は大きな可能性を秘めている。これまでに申請者は、液滴内のコロイドの自己組織化現象を利用して、様々な構造を持つ粉体材料の調製に従事してきた。液滴内物質のサイズ、濃度、帯電状態、第2成分(鋳型材料)が微粒子の構造化形成に及ぼす影響を実験的に評価してきた。しかしながら、このような微粒子構造化技術の食品粉体への応用を詳細に検討した事例はまだ少なく、研究の意義は大きい。そこで、本研究では、これまで申請者が培ってきた液滴を利用した微粒子構造化技術を活用し、「食品・医療分野へ応用される粉体の構造化とテクスチャー特性に関する基礎的研究」を実施する。具体的には、噴霧乾燥法を用いて、ナノ・ミクロレベルで構造が制御されたポーラスシリカ粒子の調製を検討し、それらの構造がテクスチャー

特性(ここでは、混合特性や粒子吸着特性)へ及ぼす影響を評価した。本研究では、特にタンパク質の吸着特性に着目した。現在、タンパク質吸着の技術は様々な分野で用いられている。その中で、粒子状吸着剤が主に用いられる分野として、タンパク質の分離・精製や、バイオセンサーなどが挙げられる。これまで活性炭、メソポーラスシリカ、樹脂など様々な吸着剤が研究されているが、吸着性能や生体適合性等に未だ多くの問題点がある。そこで本研究では、TEMPO 酸化セルロースナノファイバー、以後 TOCN に着目した。TOCN は長さ約 200 nm、幅約 2 nm のファイバーであり、生体適合性がよく、また触媒下で水酸基をカルボキシ基へ変化させているため高い負の電位を持ち、正帯電物質の吸着に有効である。今回は吸着質として、タンパク質の一種であるリゾチームを用いた。リゾチームは人間の涙や汗、体液などに含まれており、細菌に抵抗する成分であるため医薬品などに利用されている。また、塩基性タンパク質吸着のモデルとしてよく用いられ、pH が 11.5 以下の範囲では正電位を持つ。TOCN はリゾチームの吸着に有利な負の電位を持っているが、単体では凝集しやすく、分散した状態で乾燥するのが難しいという問題がある。そこで、ポーラスシリカ微粒子を支持体として用いることを検討した。ポーラスシリカ微粒子はそれ自体の吸着性能は低いが、高い比表面積を持つ。そこで、TOCN とポーラスシリカ微粒子を組み合わせることで、より高い吸着性能を持つ、タンパク質吸着剤が合成できると考えた。よって本研究では、TOCN が担持したポーラスシリカ微粒子を合成しタンパク質吸着特性を評価すること目的とした。

## 2. 実験方法

図 1 に本実験の概要を示す。この研究は 3 段階で構成される。まず、支持体となるポーラスシリカ微粒子をテンプレート法で合成する。次に、合成した微粒子に TOCN を担持し、最後にリゾチーム吸着特性評価を行った。はじめに、Step1 のポーラスシリカ微粒子合成については、噴霧熱分解法によりポーラスシリカ微粒子を作製した。原料溶液を霧化させ、キャリアガスを用いて縦型管状炉に導入し、そこで合成した微粒子をフィルターで捕集した。原料溶液はシリカ原料の TEOS (オルトケイ酸テトラエチル) と超純水、触媒として硝酸、ポーラスシリカ微粒子の原料溶液にはテンプレート材料である PMMA (ポリメチルメタクリレート) も加えて調製した。また TOCN の長さが 200 nm であるため、ポア径が 300 nm、500 nm のポーラスシリカ微粒子作製を検討した。そのための前段階として、TEOS 濃度が平均粒子径に与える影響を調べるために、中実微粒子の合成も行った。次に TOCN 担持に向けて、ポーラスシリカ微粒子の表面電位を負から正に変えるために、表面修飾剤の PDDA (ポリジアリルジメチルアンモニウムクロリド) を超純水中でポーラスシリカ微粒子と混合することで表面修飾を行った。続いて、TOCN 担持を行った。TOCN 分散溶液と表面修飾を行ったポーラスシリカ微粒子を混合し、噴霧乾燥法により TOCN 担持ポーラスシリカ微粒子とした。さらに、作製した微粒子のリゾチームに対する吸着特性評価を行った。

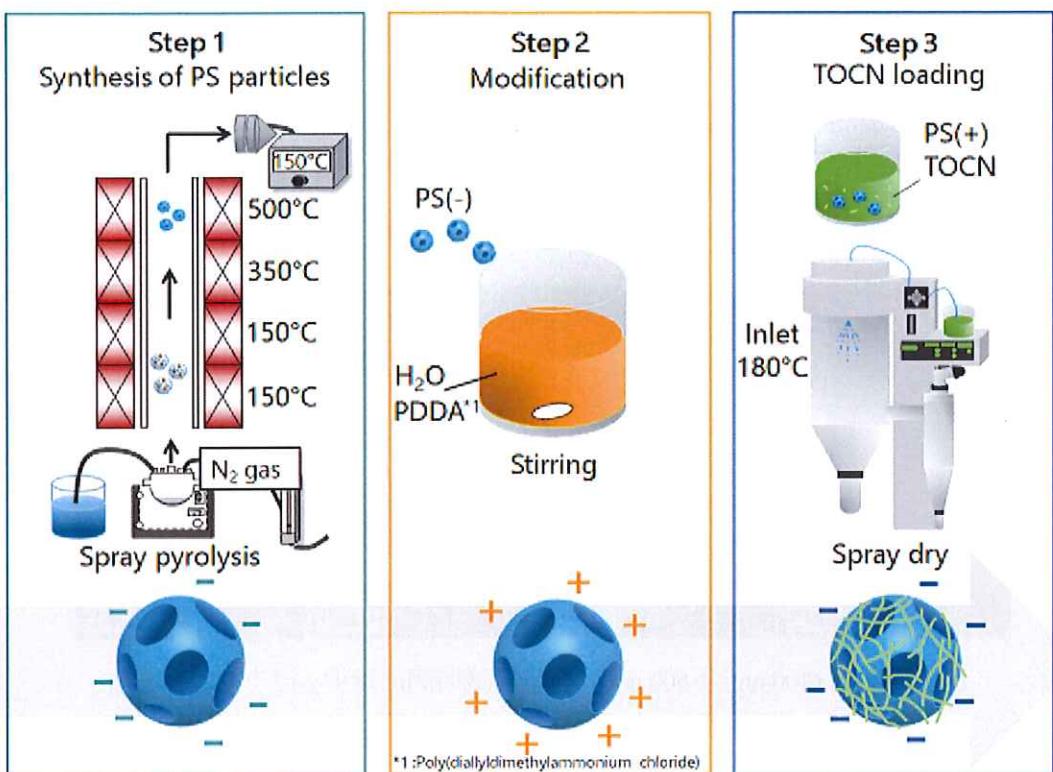


図1 セルロースナノファイバー担持ポーラスシリカ粒子の合成方法

PS: ポーラスシリカ、TOCN: TEMPO酸化セルロースナノファイバー

### 3. 実験結果

#### 3.1 PMMA微粒子の分散と評価

TEOS と PMMA からポーラスシリカ微粒子を合成することは初めての取り組みであったため、まず PMMA の分散について検討した。使用する PMMA は粉末であり、分散前は凝集している。そこで、PMMA と超純水を混合、ホモジナイザーで分散し、分散処理時間と粒子径の関係について調査した。図2に分散処理時間に対する、DLSによる平均粒子径のグラフを示す。PMMA の粒子径が 300 nm、500 nm の場合、分散処理前の状態では凝集粒子由来の大きな粒子径が見られた。また、0 分から 60 分にかけて平均粒子径が低下していく傾向が見られ、60 分以降大きな変化は見られなかった。また、粒子の状態を SEM で観察したところ、PMMA の粒子径が 300 nm、500 nm ともに、60 分経過時点でき大きな凝集粒子はほぼ消失していた。よって、PMMA の粒子径が 300 nm、500 nm ともに最低限 60 分間ホモジナイザーを用いて分散させる必要があることが分かった。

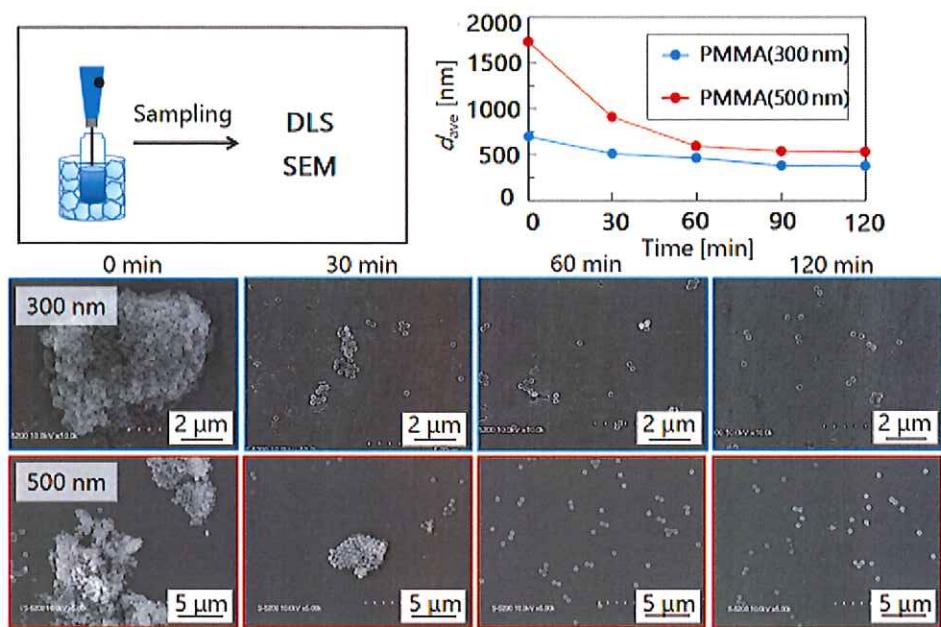


図 2 PMMA (300 nm と 500 nm)の分散経過時間に対する粒子形状の変化

分散条件: PMMA: 1.316 g、H<sub>2</sub>O: 43.6 ml

### 3.2 噴霧熱分解法による中実シリカ微粒子の合成

噴霧熱分解法にて原料溶液の TEOS 濃度が生成するシリカ微粒子の粒子径へ及ぼす影響を検討するため、まず中実シリカ微粒子の合成を行った。その際 TEOS を用いた噴霧熱分解法によるシリカ微粒子の合成について、既往の文献[1]を参考にして実施した。シリカ源の TEOS 濃度を 0.10 mol/L から 0.90 mol/L まで変化させて中実シリカ微粒子合成を行い、その粒子形態を SEM により観察を行った結果を図 3 に示す。TEOS 濃度が増加するにつれて、中実シリカ微粒子の粒子径も約 600 nm から 900 nm まで増加していることが分かった。

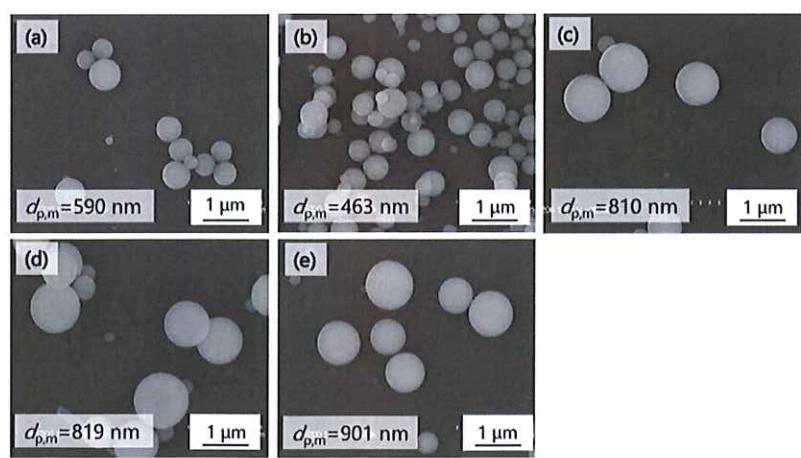


図 3 TEOS 濃度が異なる場合の中実シリカ微粒子合成の SEM 結果

TEOS 濃度: (a) 0.10 mol/L, (b) 0.25 mol/L, (c) 0.40 mol/L, (d) 0.75 mol/L, (e) 0.90 mol/L,  
 TEOS: 0.10-0.90 mol/l, H<sub>2</sub>O: 43.6-35.2 ml, HNO<sub>3</sub>: 5 ml, ガス流量: (a-c) 0.8 L/min, (d-e) 1.6 L/min,  
 霧化量: 6

### 3.3 噴霧熱分解法によるポーラスシリカ微粒子合成

ポーラスシリカ微粒子を合成するため、TEOS、超純水、硝酸、PMMA を混合して原料溶液とし、噴霧熱分解法によりポーラスシリカ微粒子を合成した。テンプレートを用いたポーラス微粒子の合成については、既往の文献[2-3]を参考に実施した。300 nm の PMMA を用いて合成したポーラスシリカ微粒子の結果を以下の図 4 に示す。図 4 から分かるように、どの PMMA/TEOS 重量比においても、ポーラスシリカ微粒子の存在が確認できた。また、PMMA/TEOS 重量比を増加させていくにしたがって、ポーラス微粒子の割合も増加し、PMMA/TEOS 重量比 1.2 の場合にほぼ全ての粒子のポーラス化ができたことが分かる。よって、シリカ源 TEOS とテンプレート粒子 PMMA を用いた噴霧熱分解法によるポーラスシリカ微粒子の合成において、PMMA/TEOS 重量比は 1.2 で十分であると判断した。

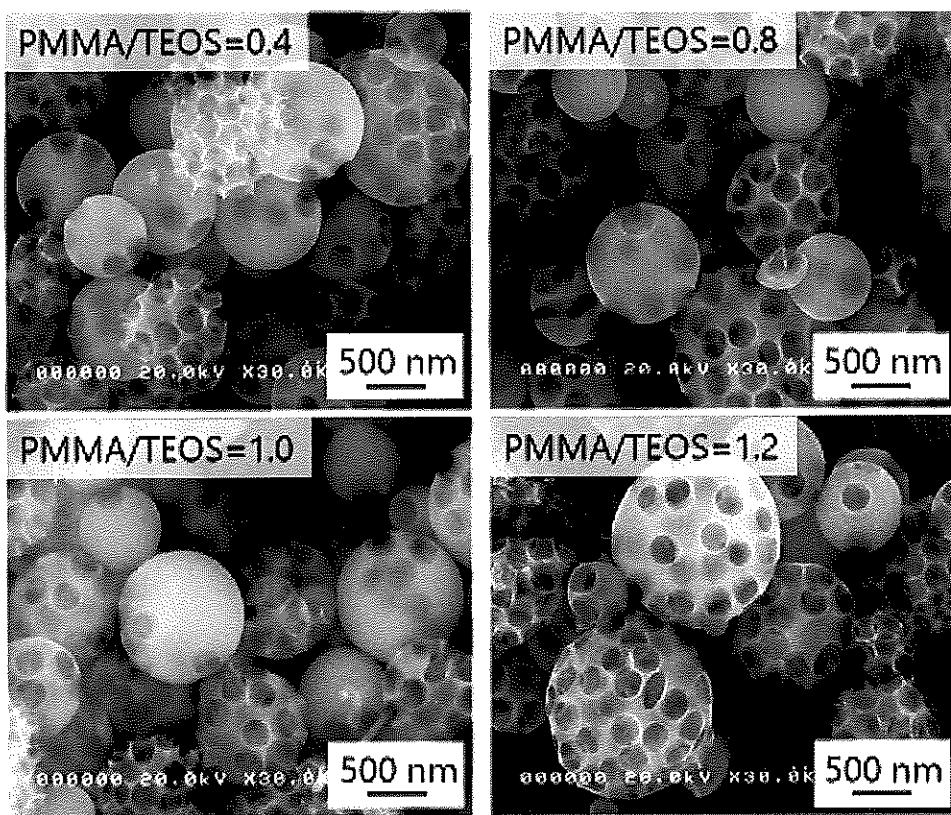


図 4 異なる PMMA/TEOS 重量比におけるポーラスシリカ微粒子合成の SEM 画像

PMMA/TEOS 重量比: (a) 0.4 (b) 0.8 (c) 1.0 (d) 1.2. TEOS 濃度 : 0.4 mol/L, HNO<sub>3</sub>: 5 mL, 1 M,  
溶媒: 超純水

### 3.4 ポーラスシリカ微粒子への TOCN 担持

TEMPO 酸化セルロースナノファイバーは負帯電であり、ポーラスシリカ微粒子も負帯電であるため、あらかじめポーラスシリカ微粒子に表面修飾を行い、その後 TOCN 担持を行った。ポーラスシリカ微粒子、表面修飾を行ったポーラスシリカ微粒子、TOCN 担持を行ったポーラスシリカ微粒子において粒子形態を SEM で観察した。その結果を以下の図 5 に示す。

表面修飾後のポーラスシリカ微粒子において、PDDA によってポアが塞がれている様子は見られず、粒子形態を維持したまま表面修飾が行われたと推測できる。また、PMMA 粒子径 300 nm、500 nm それぞれを用いて合成したポーラスシリカ微粒子それぞれの TOCN 担持後における SEM 画像を以下の図 6 に示す。TOCN 担持後のポーラスシリカ微粒子においては、特に 300 nm の PMMA を用いて合成したポーラスシリカ微粒子で、TOCN がポア上でネットワークを形成している様子が確認された。しかし、500 nm の PMMA を用いて合成したポーラスシリカ微粒子においてはポア上に TOCN は確認されなかった。また、両方の微粒子において、複数の粒子が非常に近くにある場合にポア上以外の粒子表面同士で、TOCN が糸のようになり粒子同士を繋いでいたことから、粒子表面にも TOCN は担持されたと考えられる。さらに、PDDA とポーラスシリカ粒子を混合した場合、300nm の孔を持つシリカ粒子が、マイクロ孔を持たない粒子や、500nm の孔を持つシリカ粒子よりも、PDDA 溶液と迅速に混合することが明らかとなった。これは、マイクロ孔への液拡散に起因したと考えられる。

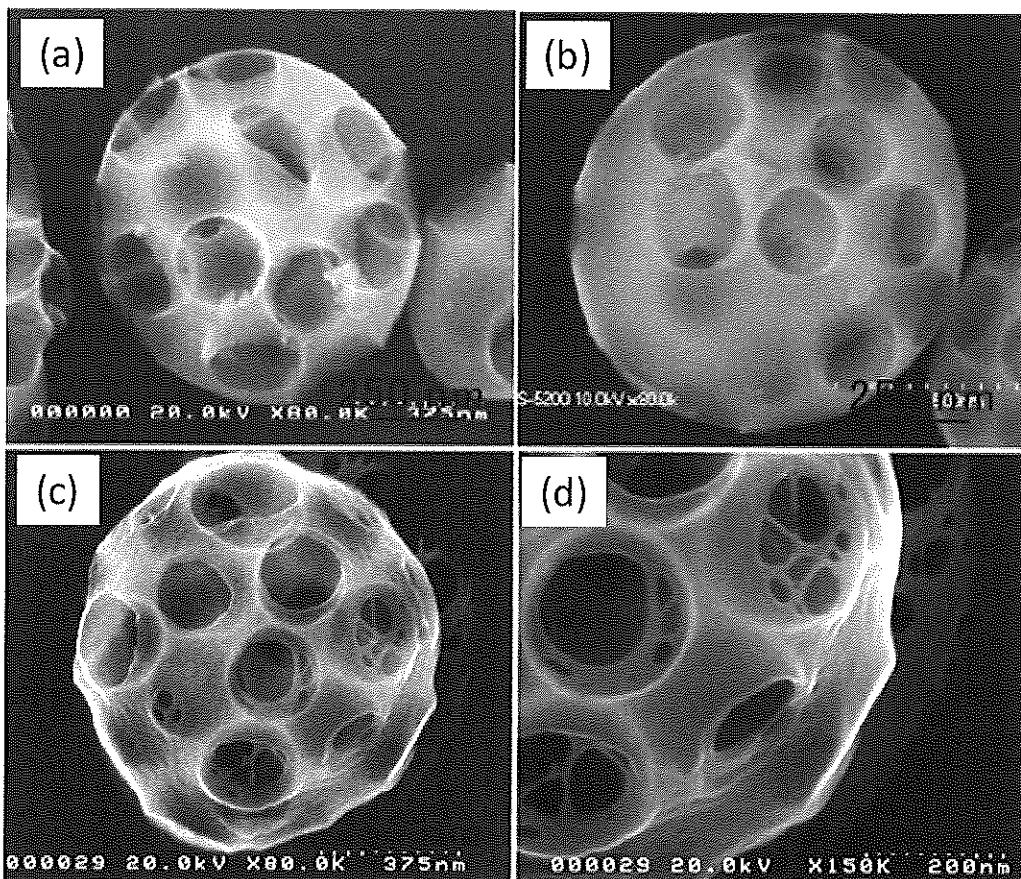


図 5 300 nm の PMMA を用いたポーラスシリカ微粒子における SEM 画像  
(a)ポーラスシリカ微粒子 (b) 表面修飾後 (c),(d) TOCN 担持後。(b) PDDA:Silica=2:1 で混合後、2 回超純水で洗浄して乾燥させた微粒子。(c) TOCN:Silica=60:40(質量比)で混合し(水溶媒)、噴霧乾燥した微粒子

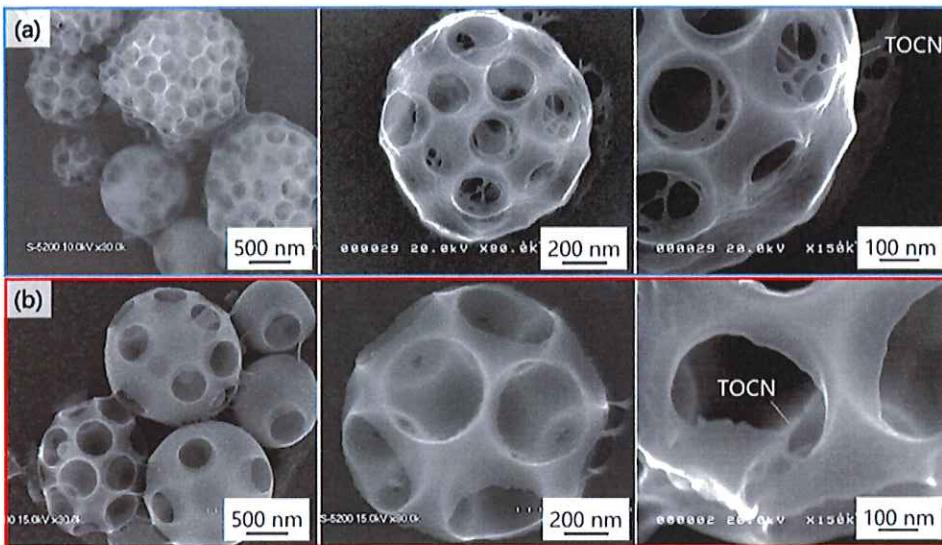


図 6 TOCN 担持後のポーラスシリカ微粒子の SEM 画像

(a) PMMA: 300 nm (b) PMMA: 500 nm

また、TOCN 担持後のポーラスシリカ微粒子について、それぞれ粒子径およびポア径の測定を行った。その結果を図 7 に示す。300 nm の PMMA を用いたポーラスシリカ微粒子に TOCN を担持した場合の平均粒子径は 1.2  $\mu\text{m}$ 、500 nm の PMMA を用いたポーラスシリカ微粒子に TOCN を担持した場合の平均粒子径は 1.4  $\mu\text{m}$  であった。また、ポア径についても測定を行った。300 nm の PMMA を用いたポアでは 244 nm、500 nm の PMMA を用いたポアでは 470 nm の平均ポア径であった。

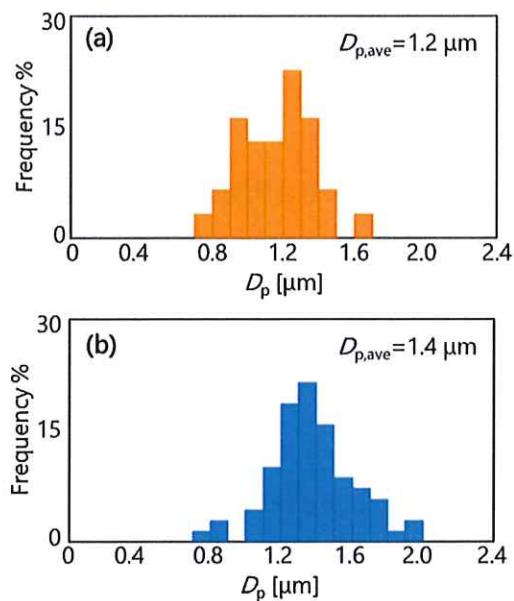


図 7 TOCN 担持ポーラスシリカ微粒子の粒度分布測定結果

(a) PMMA: 300 nm (b) PMMA: 500 nm

また、300 nm の PMMA を用いて合成したポーラスシリカ微粒子について、ポーラスシリカ微粒子、表面担持後のポーラスシリカ微粒子、TOCN 担持後のポーラスシリカ微粒子、TOCN 単体における FT-IR スペクトルを測定した。測定は、ATR 法を用いて行った。その結果を以下の図 8 に示す。表面修飾前後でスペクトルを比較すると、修飾剤の PDDA に起因する-CH<sub>2</sub> を表すピークが表面修飾後のポーラスシリカ微粒子において現れていることが分かる。また、TOCN 担持前後のスペクトルを比較すると、TOCN に由来する-COO<sup>-</sup>を表すピークが現れていることが分かる。このピークは、TOCN 単体のスペクトルにも共通して存在している。

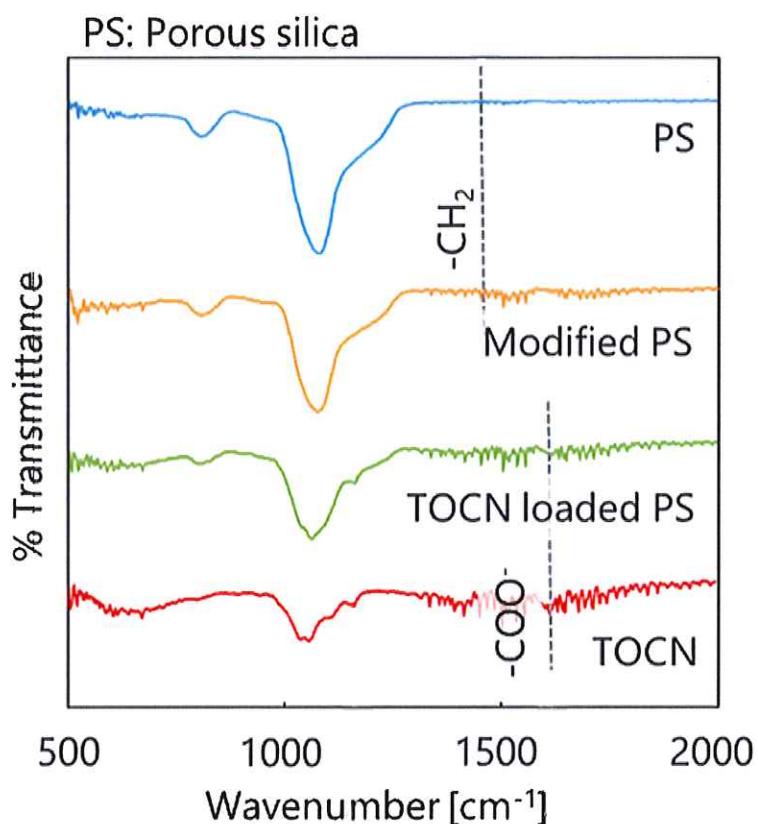


図 8 PMMA (300 nm) を用いて合成したポーラスシリカ微粒子の FT-IR 測定結果

また、ポーラスシリカ微粒子、表面修飾後のポーラスシリカ微粒子、TOCN 担持後のポーラスシリカ微粒子について、ゼータ電位の測定を行った。図 9 に示すように、300 nm、500 nm それぞれの PMMA を用いて合成したポーラスシリカ微粒子の両方について測定を行ったが、両方のポーラスシリカ微粒子では-30 mV 程度、表面修飾後では+20 mV 程度、TOCN 担持後では-50 mV 程度とほぼ同じ値をとった。また、TOCN を担持することで、ポーラスシリカ微粒子のみの場合と比較して、約 20 mV ほど強く負帯電であることが確認された。以上、FT-IR およびゼータ電位測定結果より、ポーラスシリカ微粒子への表面修飾および TOCN 担持は十分に行われたと言える。

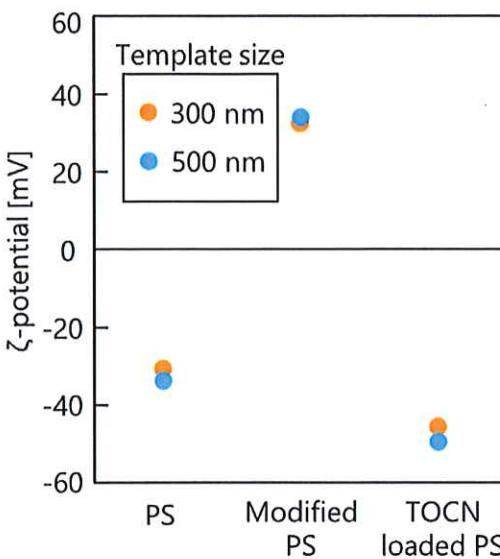


図9 PMMA (300 nm) を用いて合成したポーラスシリカ微粒子のゼータ電位測定結果

### 3.5 吸着特性評価

TOCN 担持ポーラスシリカ微粒子のリゾチームに対する吸着特性評価を行った。今回は、静的吸着について検討した。吸着質としてタンパク質の一種であるリゾチームを用いた。測定した吸光度の結果をもとに、吸着率の算出を行った。まず、各経過時間における溶液中のリゾチーム量  $w$  を吸光度より算出した。計算式は式(1)を用いた。

$$w_t = \frac{Abs_{t=t}}{Abs_{t=0}} \times w_i \cdots (1)$$

ここで、 $w_t$ 、 $w_i$ 、 $Abs_{t=t}$ 、 $Abs_{t=0}$  はそれぞれ時間  $t=t$  における溶液中のリゾチーム量[mg]、時間  $t=0$  における溶液中のリゾチームの初期濃度[mg]、時間  $t=t$  における吸光度、時間  $t=0$  における吸光度である。次に、吸着量  $Q$  を式(2)より算出した。

$$Q = \frac{w_i - w_t}{m} \cdots (2)$$

ここで、 $m$  は使用した吸着剤の量[g]である。 $Q$  は、吸着剤 1 gあたりに吸着した吸着質 [mg]であり、その吸着剤の吸着容量を表す。また、実験においてはじめに加えた吸着質のうちどのくらい吸着したかについて、式(3)より算出した。

$$\% Adsorption = \frac{w_i - w_t}{w_i} \times 100 \cdots (3)$$

以上より算出した吸着特性評価の結果(平均値)を、以下の図 10 に示す。TOCN 担持ポーラスシリカ微粒子では、300 nm、500 nm いずれの PMMA を用いたポーラスシリカ微粒子においても、約 65 から 70% のリゾチーム吸着率を示した。

図10では500 nmのPMMAを用いたポーラスシリカ微粒子にTOCNを担持した吸着剤の吸着率が若干高くなっているが、この結果は複数回吸着実験を行った結果を平均したものであり、回ごとにどちらの粒子の吸着率が高いか、ということは入れ替わってしまう場合もあったため、実際はほぼ吸着性能に変わりはないと考えられる。また、300 nmのPMMAを用いたポーラスシリカ微粒子のみおよび表面修飾後のものにおいても、同じように吸着実験を行ったところ、TOCNを担持したポーラスシリカ微粒子と比較してリゾチーム吸着性能が低い結果が得られた。これより、TOCNを担持したことによりリゾチーム吸着性能が向上したと言える。また、5分経過時点の吸着率をその後も維持したことから、5分経過時点で十分に吸着が行われたと言える。

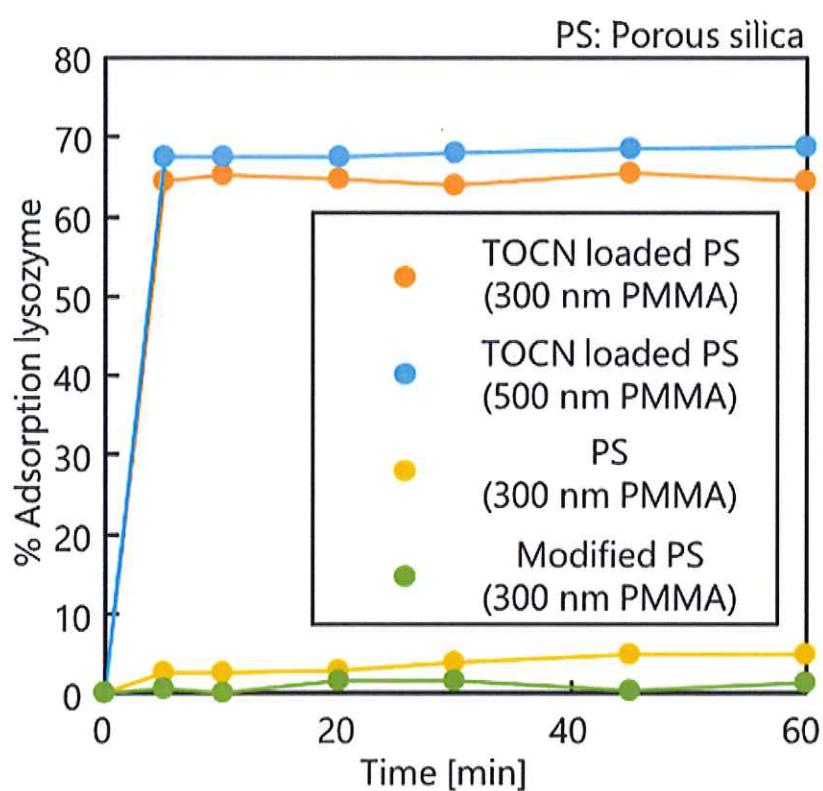


図10 吸着特性評価結果(平均値)

TOCN@Silica: 0.005 g, リゾチーム溶液濃度: 0.2 mg/ml, 溶液量: 50 ml

また、測定結果より、飽和吸着量  $Q_e$  の算出を行った。 $Q_e$ について、式(4)を用いて計算した。

$$Q_e = \frac{C_i - C_e}{m} \cdot V \cdots (4)$$

ここで、 $C_i$ 、 $C_e$ 、 $m$ 、 $V$ は、初期リゾチーム濃度[mg/ml]、平衡時リゾチーム濃度[mg/ml]、吸着剤の質量[g]、混合したリゾチーム溶液の体積[ml]である。この式を用いて計算した結果を以下の表1に示す。

表1 飽和吸着量  $Q_e$  の計算結果

Sample	$Q_e$ [mg/g]
TOCN loaded PS (300 nm PMMA)	1083
TOCN loaded PS (500 nm PMMA)	1149
PS (300 nm PMMA)	99
Modified PS (300 nm PMMA)	29

TOCN 担持ポーラスシリカ微粒子の  $Q_e$  が、TOCN を持たないポーラスシリカ微粒子と比較して 10 倍ほど大きい値となった。また、既応の研究と飽和吸着量を比較した表を以下の表 2 に示す。他の吸着剤の飽和吸着量について、既応の文献[4-8]を参考にした。これより、本研究で合成した TOCN 担持ポーラスシリカ微粒子のリゾチームに対する吸着性能が他の吸着剤と比較して高いことが明らかになった。[9-10]これは、他のリゾチーム吸着剤と比較して TOCN 担持ポーラスシリカ微粒子は多くのカルボキシ基を持っているためだと考えられる。既応の論文[11]で、同じくカルボキシ基を多く含むリゾチーム吸着剤においても、非常に高い飽和吸着量を示したことが報告されている。

表2 リゾチームに対する飽和吸着量の比較

Adsorbent material	Amount of adsorbent [mg/ml]	Initial concentration of lysozyme [mg/ml]	Saturated adsorption [mg/g]
Alginate/graphene oxide	3.33	1	275
Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub> /Au-MBISA	2	0.8	346
Activated carbon	0.67	0.1	7
Heparin doped CaCO <sub>3</sub>	20	3	88.1
Lyz-MMIPs	1	0.4	102.4
TOCN loaded PS (This research) (Pore size:500 nm)	0.1	0.2	1149

#### 4. まとめと今後の課題

本研究では、TEOS 及び PMMA を用いた噴霧熱分解法によるポーラスシリカ微粒子の合成と TOCN 担持、リゾチーム吸着特性評価を行った。ポーラスシリカ微粒子合成において、TEOS 濃度 0.4 mol/L、PMMA/TEOS 重量比 1.2 で十分にポーラスシリカ微粒子合成が出来ることが明らかになった。また、TOCN を担持する際、PDDA を用いて表面修飾を行うことで TOCN を担持することに成功した。吸着特性について、ポーラスシリカ微粒子及び TOCN 担持ポーラスシリカ微粒子で比較した結果、TOCN 担持ポーラスシリカ微粒子の方が高いリゾチーム吸着性能を持つと明らかになった。また、TOCN の分散状態を維持したままシリカ担持・乾燥し吸着剤として利用することに成功した。今後の課題としては以下が挙げられる。

- (1) 噴霧熱分解法によるポーラスシリカ微粒子の収率改善。
- (2) ポーラスシリカ微粒子の形状の均一化が必要である。
- (3) 粒子表面での表面修飾およびTOCN 担持状態の詳細解析
- (4) 吸着特性評価のpH依存性、温度依存性、脱着およびリサイクル試験などの評価

## 5 参考文献

- [1] H. D. Jang, H. Chang, Y. Suh, K. Okuyama, Synthesis of SiO<sub>2</sub> nanoparticles from sprayed droplets of tetraethylorthosilicate by the flame spray pyrolysis, *Curr. Appl. Phys.*, **2006**, 6, 1, e110-e113.
- [2] A. B. D. Nandiyanto, A. Shhendi, T. Ogi, R. Umemoto, K. Okuyama, Size- and charge-controllable polystyrene spheres for templates in the preparation of porous silica particles with tunable internal hole configurations, *Chem. Eng. J.*, **2014**, 256, 421-430.
- [3] M. Abdullah, F. Iskander, S. Shibamoto, T. Ogi, K. Okuyama, Preparation of oxide particles with ordered macropores by colloidal templating and spray pyrolysis, *Acta Materialia*, **2004**, 52, 5151-5156.
- [4] Li. J, Ma. J, Chen S., Huang Y., He J., Adsorption of lysozyme by alginate/graphene oxide composite beads with enhanced stability and mechanical property, *Mat. Sci. Eng. C*, **2018**, 89, 25-32.
- [5] Zhu X., Zhang L., Fu A., Yuan H., Efficient purification of lysozyme from egg white by 2-mercapto-5-benzimidazolesulfonic acid modified Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/Au nanoparticles, *Mat. Sci. Eng. C*, **2016**, 59, 213-217.
- [6] M. T. Stone, M. Kozlov, Separating Proteins with Activated Carbon, *Langmuir*, **2014**, 30, 8046-8055.
- [7] Shi P., Qin J., Hu J., Bai Y., Zan X., Insight into the mechanism and factors on encapsulating basic model T protein, lysozyme, into heparin doped CaCO<sub>3</sub>, *Coll. Surf. B*, **2019**, 175, 184-194.
- [8] Z. Zhang, H. Wang, H. Wang, C. Wu, M. Li, L. Li, Fabrication and evaluation of molecularly imprinted magnetic nanoparticles for selective recognition and magnetic separation of lysozyme in human urine, *Analyst*, **2018**, 143, 5849-5856.
- [9] 大島達也, 新規セルロース材料の開発と、高比表面積性に基づく吸着担体としての可能性, イオン交換セミナー, **2013**, 11-18.
- [10] T. Oshima, S. Taguchi, K. Ohe, Y. Baba, Phosphorylated bacterial cellulose for adsorption of proteins, *Carbohydr. Polym.*, **2011**, 83, 2, 953-958.
- [11] Q. Fu, Y. Si, C. Duan, Z. Yan, L. Liu, J. Yu, B. Ding, Highly Carboxylated, Cellular Structured, and Underwater Superelastic Nanofibrous Aerogels for Efficient Protein Separation, *Adv. Funct. Mater.*, **2019**, 1808234.

### 3. 研究発表

#### [論文発表]

- A. B. D. Nandiyanto, T. Ogi, W. N. Wang, L. Gradon, K. Okuyama, Template-assisted Spray-drying Method for the Fabrication of Porous Particles with Tunable Structures, *Advanced Powder Technology*, 30(12), 2908-2924.
- A. M. Rahmatika, Y. Goi, T. Kitamura, W. Widiyastuti, T. Ogi, TEMPO-Oxidized Cellulose Nanofiber (TOCN) decorated macroporous silica particles: synthesis, characterization, and their application in protein adsorption, *Materials Science and Engineering: C*, 105, 110033, (2019).

#### [書籍]

- 萩 崇、平野 知之:PCP/MOF および各種多孔質材料の作り方、使い方、評価解析、(分担執筆)、P.333-346、(ナノ)微粒子の空孔構造制御とその応用 (㈱技術情報協会, 2019 年 10 月 31 日発刊)

#### [学会発表]

- Takashi Ogi: Design and Control of Highly Ordered Nanostructured Particle for Sustainable Chemistry and Engineering, National Central University-Hiroshima University Joint Symposium on Materials Chemistry and Physics (2019/10/31 NCU, Taiwan)
- Annie Mufyda Rahmatika, Takashi Ogi: Synthesis of cellulose nanofiber loaded nanostructured macroporous particles for advanced protein absorbent, The 18th Asian Pacific Confederation of Chemical Engineering Congress, (2019/9/23-27 Sapporo, Japan)
- Annie Mufyda Rahmatika, 萩 崇, 北村武大, 後居洋介: タンパク質吸着性能の向上へ向けたマクロポーラス粒子担持セルロースナノファイバ, 第36回 エアロゾル科学・技術研究討論会 (2019/9/9 広島大学)
- 萩 崇: 微粒子のポーラス・中空構造化と機能評価に関する研究、粉体工学会「不均質構造の利用と制御に関するワークショップ」2019年度第1回研究会 (2019/6/5 山梨県一樹山荘)
- Annie Mufyda Rahmatika, Takashi Ogi: Preparation of porous carbon particles using poly (methyl methacrylate) template via spray pyrolysis process, Powder Engineering Society-Fall 2018 Research Presentation, (2018/11/27 Tokyo, Japan)

