

平成 23 年 5 月 25 日現在

機関番号：3 2 6 6 3

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2009～2010

課題番号：2 1 8 6 0 0 7 2

研究課題名（和文） 外部磁場による磁性カーボンナノチューブのマニピュレーション

研究課題名（英文） Manipulation of iron-contained carbon nanotubes by an external magnetic field

研究代表者

長岡 豊 (NAGAOKA YUTAKA)

東洋大学・理工学部・助教

研究者番号：9 0 5 3 1 8 8 0

研究成果の概要（和文）：磁性カーボンナノチューブ（CNT）に回転磁場を印加し、ナノ・マイクロ領域で操作する手法を開発した。磁性 CNT は鉄原子が CNT 内に内包されているため、磁場により、運動を付加することが出来る。本研究ではこの磁性 CNT に回転磁場を印加した。その際発生する回転運動を利用し、磁性基板上的磁性 CNT を二次元的に操作することに成功した。また、蛍光分子による CNT の可視化に成功し、その運動を観察した。

研究成果の概要（英文）：I developed a manipulation method of a magnetic carbon nanotube (CNT) on nano/micro scales by an external magnetic field. When I applied the external magnetic field, the magnetic carbon nanotube, in which iron atoms are contained, can be controlled by the field. In this study, I manipulated the magnetic carbon nanotube two dimensionally utilizing a rotational motion of the CNT on the surface of a magnetic substrate by a rotational magnetic field. I also visualized the CNT immobilizing the fluorescence molecules on the surface of CNT.

交付決定額

（金額単位：円）

| | 直接経費 | 間接経費 | 合計 |
|------------|-----------|---------|-----------|
| 2 0 0 9 年度 | 950,000 | 285,000 | 1,235,000 |
| 2 0 1 0 年度 | 750,000 | 225,000 | 975,000 |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 年度 | | | |
| 総 計 | 1,700,000 | 510,000 | 2,210,000 |

研究分野：工学

科研費の分科・細目：機械工学・流体工学

キーワード：カーボンナノチューブ、ナノ材料、マイクロ・ナノデバイス、マニピュレーション、回転磁場、ナノマシン

1. 研究開始当初の背景

カーボンナノチューブ（CNT）や異方性ナ

ノ、マイクロ材料は、その電気、機械、化学的に優れた特徴があり、ナノエレクトロニクス、複合材料やナノデバイスなど多岐に渡る

応用研究が進んでいる。しかし、これらの物質を任意の場所への配置することは技術的にまだ困難である。従って、ナノ・マイクロ技術でこれらの異方性ナノ性材料を利用した応用をする際には、ナノ・マイクロ領域中で正確に位置、運動を制御すること（マニピュレーション）が非常に重要である。これらの物質の位置、運動の制御は近年非常に注目されており、その手法は光や電場を用いた光ピンセット、誘電泳動など盛んに研究が行われている [J. Plewa, *et al.*, *Opt. Express*, **12**, 1978 (2004). etc.]. これらの手法は物質の移動の分解能の高さや並列処理が容易に行えるメリットがある。しかし、光ピンセットはレーザーの焦点を正確に設定しなければならず、そのシステム構成は煩雑かつ比較的大型になってしまうデメリットもある。また、マイクロ・ナノ領域で使用できる誘電泳動のシステムを構築するには半導体製造技術であるリソグラフィ技術を用いたトップダウン型の工程によって制作される。そのため設備投資に莫大なコストがかかるデメリットがある。従って、従来の手法より安価かつ容易にナノ・マイクロ物質の位置制御を達成できる手法の開発は急務であり、その手法が確立されることにより、ナノ・マイクロ技術の発展に大きく寄与することが考えられる。

一方、磁性 CNT は、その内部に鉄原子や磁性ナノ粒子を内包させることや、外部に磁性ナノ粒子を吸着させることによって、外部磁場に容易に反応する CNT であり、近年数多くの手法によって合成されている [N. Grobert, *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 3363 (1999). etc.]. 申請者らのこれまでの研究において、磁性体基板上的磁性 CNT に回転磁場を印加すると、磁場に追従し転がりながら磁性体基板上を動く現象が確認された [H. Morimoto, *et al.*, *Phys. Rev. E* **78**, 021403 (2008)]. この原理は、以下の通りである。磁性体基板上的磁性 CNT に磁場を印加すると、磁性 CNT と磁性体基板間に磁氣的相互作用が発生し、磁性 CNT は磁性基板上に接触する。ここに回転磁場を印加すると、磁性 CNT は磁場に追従し、回転運動する。この際、磁性体基板と磁性 CNT 間に十分な摩擦力がある場合、CNT の回転運動が駆動力となり、磁性基板上を転がりながら移動させることができる。この手法は磁性体基板に多少の凹凸があっても磁性 CNT はそれに沿って移動させられることも確認した。また、CNT 自体の長短や、屈曲など形状の変化に因らず移動可能であった。この結果は、回転磁場中の磁性ナノ・マイクロ材料の回転運動を利用することにより、磁性体基板上でそれらの位置制御が可能であることを示唆している。この技術によって、数マイクロの領域でも CNT の位置制御を行うこと

ができるため、ナノ・マイクロデバイスの作製（例えば CNT を利用した FET など）に貢献できると期待できる。

2. 研究の目的

申請者らの従来の研究では、磁性体基板の縁の部分のみ CNT の稼働可能である。このため移動できる範囲が限られてしまう問題点があった。そこで、本研究の最終的な目標は、より高自由度の磁性 CNT マニピュレーション技術の確立を実現することである。そこで、以下の2項目を重点研究課題として研究を進める。

(1) 磁性体基板面に対し、垂直な回転磁場を印加することにより、自由度の高い位置制御手法へと改良する。そして、効率よく磁性 CNT を動かすための条件検討を行い、磁性基板上の磁性 CNT の移動を制御する。

(2) 磁性基板上での磁性 CNT の運動を詳細に調べるために、鮮明な可視化技術を開発する。

3. 研究の方法

(1) 高自由度マニピュレーション装置の開発

磁性 CNT を、基板上で回転させるための3軸コイル装置を構築した。これは既存の倒立顕微鏡に設置可能であり、x,y,z 軸方向に対してそれぞれ、コイルがある物である。磁場は、ファンクションジェネレーターから出力された交流電流をアンプで増幅し、それぞれのコイルに位相が90度ずれた電流を流すことにより発生させた。開発した装置の性能を評価するため、ガウスメーターで磁場分布を測定後、直径2.8 μmの磁性粒子を用いて回転磁場を印加し、クラスターがどのような運動をするか実験を行った。

(2) 磁性 CNT の可視化方法

磁性 CNT をより鮮明に可視化し、その動きを詳細に解析するために磁性 CNT の可視化方法を検討した。可視化には蛍光顕微鏡を用いるが、溶液に Fluorescein sodium salt を分散させ、背景を光らせる方法と、磁性 CNT の表面に直接 1-pyrenebutanoic acid, succinimidyl ester (以下 PSE) を吸着させ、観察する手法の2種類を行った。その後、磁性 CNT を用いた実験を行い、磁性 CNT の運動の様子を蛍光顕微鏡で観察した。

4. 研究成果

磁性 CNT をマニピュレーションするための

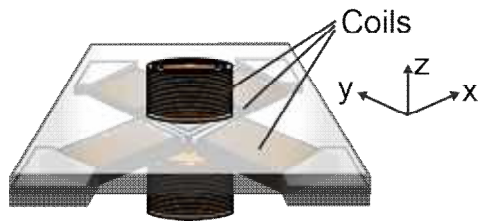


図1 . 作製したコイルの概略図。

高自由度マニピュレーション装置を構築した。その概略図を図1に示す。z軸にあるコイルについては、顕微鏡で観察するために空芯のヘルムホルツコイルにした。本装置で可能な回転磁場の最大周波数は30 Hzである。磁性CNTのマニピュレーションの際に印加した磁束密度は12 mTである。まず、これを用いて磁性粒子に縦回転の回転磁場を印加した。すると、磁性粒子溶液を封入しているセル内部で回転運動をしていることを確認した。

次に、蛍光顕微鏡を用いた磁性CNTの可視化を試みた。まず、磁性CNTは界面活性剤(SDS)を加えた水に混合した後、超音波分散機を用いて水に分散させた。そこに蛍光試薬であるFluorescein sodium saltを混合した。Fluorescein sodium saltの励起波長は460 nmであり、蛍光波長は510 nmの蛍光色素である。したがって、溶液に励起光を照射すると、溶液全体が発光する。すると磁性CNTが存在する部分は影になるため、観察が可能となる。図2にCNTの明視野像とFluorescein sodium salt混合溶液による蛍光顕微鏡像を比較したものを示す。このようにFluorescein sodium saltによって背景を光らせる方法でも明視野と同等にCNTの存在を確認することが可能となった。磁性体基板はスパッタリングにより、ガラス基板上に金膜を成膜し、そこに電気メッキによってニッケルを堆積させた。これをカバーガラスで挟み、CNT-Fluorescein sodium salt混合溶液を流し込み封入して観察を行った。回転磁場中における磁性基板上での磁性CNTの運動の軌跡を図3に示す。図中のAからBまでは回転磁場の周波数が4 Hzであり、BからCまでは10 Hzの周波数の回転磁場を印加した。磁

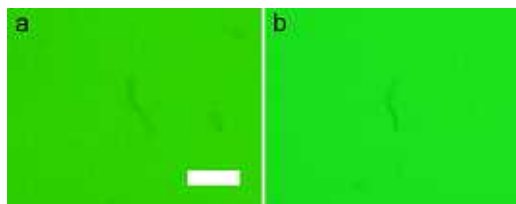


図2 . 磁性CNTの観察像。(a)明視野顕微鏡による観察。(b) Fluorescein sodium salt混合溶液を用いた蛍光顕微鏡像。スケールバー：5 μm

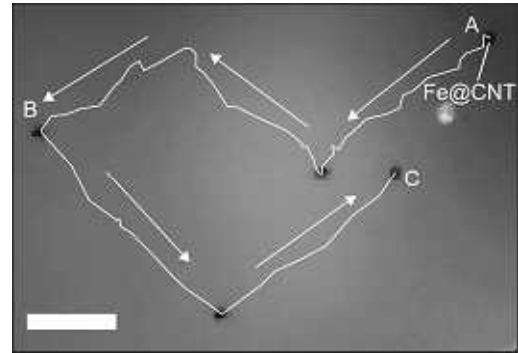


図3 . 磁性基板上における磁性CNTのマニピュレーション。スケールバー：10 μm

性CNTは磁場に追従しながら回転運動をし、基板上を転がりながら移動することが明らかとなった。また、印加する磁場の向き、周波数を変えることにより、その移動方向・速度を制御できた。本手法により、磁性体基板上における磁性CNTの二次元的マニピュレーションが可能になった。

次に、より鮮明に磁性CNTを可視化し、その運動を鮮明に観察するため、その表面に蛍光分子を直接吸着させる手法を試みた。本手法で使用した蛍光分子は1-pyrenebutanoic acid, succinimidyl esterを用いた。この蛍光分子は4つの芳香環から成るピレンブタン酸部分がCNT表面へ、 π - π 相互作用により吸着することが知られている[R. J. Chen, *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **123**, 3838 (2001)]。このPSEは励起波長が345 nmであり、蛍光波長は376 nmの蛍光分子である。図4に磁性CNT表面にPSEを吸着させ、蛍光顕微鏡で観察した写真を示す。磁性CNTの部分が青白く鮮明に写っており、Fluorescein sodium saltを用いた場合よりはっきりとその存在を可視化することが可能となった。このPSEを吸着させた状態で、同様にマニピュレーション実験を行ったが、基板上を転がりながら移動する様子も確認できた。また、PSEの、スクシンイミジルエステル部分はアミド結合を介し種々のタンパク質を固定化することが出来る利点もある。このことから、磁性CNTの表面修飾が容易に行えるため、生体細

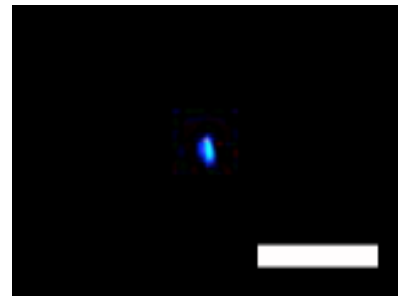


図4 . PSEを用いた磁性CNTの可視化。スケールバー：10 μm

胞への特異的吸着も可能となる。よって磁性 CNT を利用したドラッグデリバリーやバイオセンサーなどへの応用の可能性も考えられる。

本研究課題の実験装置で印加した磁場の強さは 9.55 kA/m であり、強磁場を必要としない。また印加する回転磁場の周波数は数 Hz でも移動可能なため、比較的容易に実現可能なシステムである。よって、本手法を、既存の光ピンセット、電気泳動、誘電泳動などと組み合わせることにより、選択的かつ自由度の高いマニピュレーションシステムが構築できると期待できる。

本研究課題の成果は、NanoteC10、ICONN2010、ISEM2009 などの国際学会で発表を行った。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計3件)

T. Higashi, Y. Nagaoka, H. Minegishi, A. Echigo, R. Usami, T. Maekawa and T. Hanajiri, Regulation of PCR efficiency with magnetic nanoparticles in a rotational magnetic field, Chem. Phys. Lett. **506**, 239-242 (2011) (査読有り)。

B. G. Nair, Y. Nagaoka, H. Morimoto, Y. Yoshida, T. Maekawa and D. S. Kumar, Aptamer conjugated magnetic nanoparticles as nanosurgeons, Nanotechnology **21**, 455102 (2010) (査読有り)。

T. Mizuki, N. Watanabe, Y. Nagaoka, T. Fukushima, H. Morimoto, R. Usami and T. Maekawa, Activity of an enzyme immobilized on superparamagnetic particles in a rotational magnetic field, Biochem. Biophys. Res. Commun. **393**, 779-782 (2010) (査読有り)。

[学会発表](計8件)

Y. Nagaoka, K. Tokuda, T. Hashimoto, K. Nishijima, H. Morimoto, A. Eto, N. Grobert and T. Maekawa, Two-dimensional dynamics control of Fe contained carbon nanotubes by a rotational magnetic field, International Conference on Carbon Nanoscience and Nanotechnology (NanoteC10), 2010, 9/2, Oxford, UK.

Y. Nagaoka, K. Tokuda, H. Morimoto, A. Eto, N. Grobert and T. Maekawa,

Two-dimensional manipulation of iron-contained carbon nanotubes on a magnetic substrate using a rotational magnetic field, 2010 International Conference on Nanoscience and Nanotechnology (ICONN2010), 2010, 2/24, Sydney, Australia.

K. Tokuda, Y. Nagaoka, Y. Sakamoto, A. Eto, H. Morimoto and T. Maekawa, Two-dimensional manipulation of iron contained carbon nanotubes on a magnetic substrate by a rotational magnetic field, The 14th International Symposium on Applied Electromagnetics and Mechanics (ISEM2009), 2009, 9/23, Xi'an, China.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

長岡 豊 (NAGAOKA YUTAKA)

東洋大学・理工学部・助教

研究者番号：90531880

(2) 研究分担者 (0)

(3) 連携研究者 (0)