

令和 5 年 6 月 9 日現在

機関番号：13901

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2022

課題番号：21K14512

研究課題名（和文）磁性ナノ粒子磁気発熱量の実験的予測とその応用

研究課題名（英文）Prediction of heat dissipation of magnetic nanoparticles under alternating magnetic fields and its application

研究代表者

岡 智絵美（OKA, CHIEMI）

名古屋大学・工学研究科・助教

研究者番号：70823285

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,600,000円

研究成果の概要（和文）：磁性ナノ粒子は交流磁場中で発熱する特性を有しており、がん磁気温熱療法、ドラッグデリバリー、マイクロシステム遠隔駆動への応用が期待されている。磁性ナノ粒子の発熱特性応用では、磁性ナノ粒子の発熱を正確に制御することが重要である。しかし、実在する磁性ナノ粒子の発熱量を正確に予測する方法はまだない。そこで本研究では、磁性ナノ粒子の発熱量を算出可能な実験式導出とその応用を着想した。そして、磁性ナノ粒子間磁気的相互作用の大きさを用いて、発熱量理論式を補正することで、実験式を導出できる可能性を見出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

磁性ナノ粒子間磁気的相互作用の大きさが、磁性ナノ粒子の交流磁場下における発熱に影響を及ぼすことは、シミュレーションを用いた研究などで報告されているが、実験的にそれを明らかにした例はほとんどない。また、本研究の成果は、磁性ナノ粒子の発熱量予測に貢献する成果であり、将来的に磁性ナノ粒子を用いたがん治療やマイクロデバイス開発の促進に繋がるものである。

研究成果の概要（英文）：Magnetic nanoparticles have the property of generating heat in alternating magnetic fields, and are expected to be applied to magnetic hyperthermia, drug delivery, and remote drive of microsystems. In the application of the heat generation properties, it is important to precisely control the heat generation of the magnetic nanoparticles. However, there is still no method to accurately predict the amount of heat generated by real magnetic nanoparticles. In this study, we tried to develop an experimental formula that can be used to calculate the amount of heat. We found that the magnitude of magnetic interaction between magnetic nanoparticles can be used to correct the theoretical heat generation equation to derive the experimental equation.

研究分野：ナノマイクロ科学

キーワード：磁性ナノ粒子 磁気発熱 がん磁気温熱療法 粒子間距離 シリカ被覆

1. 研究開始当初の背景

磁性ナノ粒子は交流磁場中で発熱する特性を有しており、この発熱特性は、がん温熱療法、ドラッグデリバリー、マイクロシステム遠隔駆動への応用が期待されている。特に、がん温熱療法応用について盛んに研究が行われており、2020年に出版された関連論文は6,000編以上に達している。磁性ナノ粒子の発熱特性応用では、オーバーヒートを防ぎ、磁性ナノ粒子の発熱を正確に制御することが重要である。したがって、磁性ナノ粒子の発熱特性の実用化では、実際の発熱量を予測した粒子設計が不可欠となる。しかし、実在する磁性ナノ粒子の発熱量を正確に予測する方法はまだなく、用途に合わせた粒子設計指針はいまだ確立されていない。そこで本研究では、磁性ナノ粒子の発熱量を算出可能な実験式導出とその応用を着想した。

2. 研究の目的

本研究では、磁性ナノ粒子の発熱量を算出可能な実験式導出に向けた検討を目的とし、「磁性ナノ粒子間距離および磁性ナノ粒子間磁氣的相互作用は磁気発熱にどのような影響を及ぼすのか」を研究課題の核心をなす学術的「問い」として実験を行った。また、磁性ナノ粒子の発熱特性を利用した遠隔駆動マイクロバルブの駆動特性磁場強度依存性についても評価することを目的とした。

3. 研究の方法

本研究テーマでは、交流磁場中における磁性ナノ粒子の発熱量に対して、粒子間距離および粒子間磁氣的相互作用がどのような影響を及ぼすかを明らかにし、磁気発熱量算出式を導出し、マイクロバルブ設計へ応用することを最終目標としている。これを達成するために本研究では、以下の4項目を2年間で実施した。

(1) 磁性ナノ粒子の合成と粒子間距離制御

塩化鉄と水酸化ナトリウムを用いた共沈法にて磁性酸化鉄ナノ粒子を合成し、この粒子を異なる膜厚のシリカで被覆することにより、粒子間距離の異なる磁性ナノ粒子粉末を調製した。シリカ被覆はオルトケイ酸テトラエチル (TEOS) を用いて実施した。

(2) 発熱量評価

磁性ナノ粒子粉末試料に2 MHzの交流磁場を印加した際の発熱量を評価した。粒子間距離の異なる試料についてそれぞれ評価を行い、粒子間距離と発熱量の相関を得た。発熱量はR.E. Rosensweigが提唱した発熱量理論式 [1] からのずれで評価した。

(3) 粒子間磁氣的相互作用評価

磁気特性測定装置 (MPMS) を用いて、Isothermal remanent magnetization (IRM) 測定および Direct current demagnetization (DCD) 測定を5 Kで実施し、delta M plotsを作成することで粒子間磁氣的相互作用の大きさを評価した。測定試料は、磁性ナノ粒子粉末を接着剤に分散させ硬化させた試料を用いた。

(4) マイクロバルブ駆動特性の磁場強度依存性

磁性ナノ粒子含有熱応答性ゲルからなる遠隔駆動マイクロバルブをフォトリソグラフィを用いて作製し、その駆動特性の磁場強度依存性を評価した。

4. 研究成果

(1) 磁性ナノ粒子の合成と粒子間距離制御

共沈法にて合成した磁性酸化鉄ナノ粒子を、TEOSを用いてシリカ被覆した。添加するTEOSの量を変化させ、シリカ膜厚の異なるシリカ被覆酸化鉄ナノ粒子を調製した。図1に調製した粒子のTEM画像を示す。TEOS添加量増加に伴いシリカ膜厚が厚くなっていく傾向が確認できる。しかし、TEOS添加量2.4 mLおよび4.8 mLでは、酸化鉄ナノ粒子1つ1つがシリカ被覆されている様子が観察されるのに対し、TEOS添加量7.2 mL以上では、複数の酸化鉄ナノ粒子がまとまってシリカ被覆されていることがわかる。したがって、TEOS添加量7.2 mL以上の試料のTEM画像からはシリカ膜厚を正確に評価することが困難であった。そこで、ICP-MS測定から得たシリカ/MNP質量比と、粒子1つ1つがシリカ被覆されているモデルを用い、シリカ膜厚を算出した。粒子間距離はシリカ膜厚の2倍に相当する。

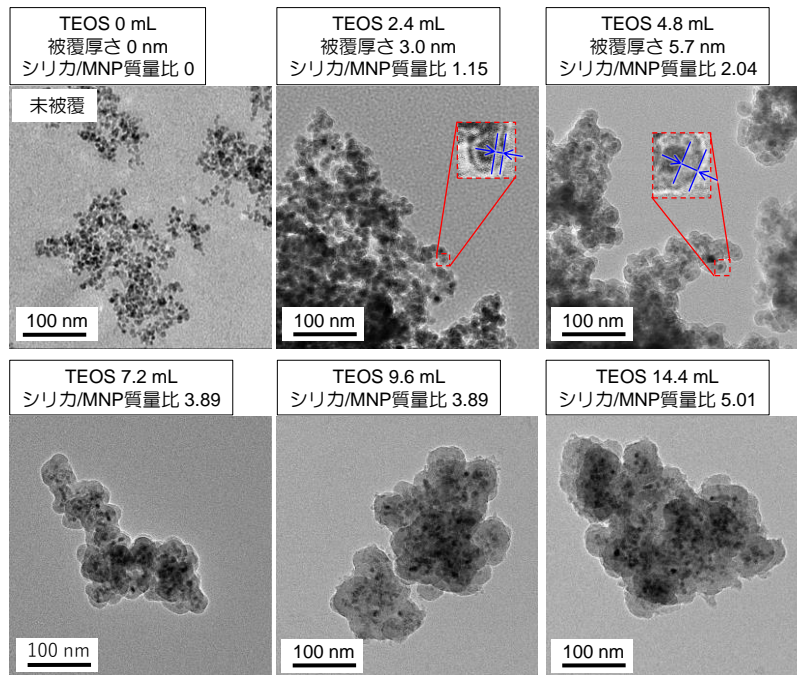


図1 酸化鉄ナノ粒子およびシリカ被覆酸化鉄ナノ粒子の TEM 画像

(2) 発熱量評価

図2に調製したシリカ被覆酸化鉄ナノ粒子の発熱量を評価した結果を示す。発熱量は R.E. Rosensweig が提唱した発熱量理論式からのずれ(発熱量比)として評価した。この結果から、シリカ膜厚増加、つまり粒子間距離増加に伴い、酸化鉄ナノ粒子単位質量あたりの発熱量比は、減少したのち増加に転じる傾向を示すことがわかった。

(3) 粒子間磁氣的相互作用評価

MPMS を用いて ΔM plots を作成し、磁性ナノ粒子粉末試料の粒子間磁氣的相互作用の大きさを評価した結果を図3に示す。図3(a)が ΔM plots であり、図3(b)がその ΔM の最小値をまとめた結果である。この結果から、粒子間距離に対するピーク位置は図2の結果と異なるものの、 ΔM の最小値、つまり粒子間磁氣的相互作用の大きさも、粒子間距離増加に伴い、減少したのち増加に転じる傾向であることがわかる。

このことから、磁性ナノ粒子間磁氣的相互作用の大きさが、発熱量理論式からの発熱量のずれの要因になっていることが示唆された。図2の結果と図3(b)の結果で、ピーク位置が異なっている理由は、測定試料の状態の違いに起因する可能性が考えられる。発熱量評価は酸化鉄ナノ粒子粉末またはシリカ被覆酸化鉄ナノ粒子粉末を測定試料としているのに対し、MPMS 測定では接着剤で固めた試料を測定試料としている。この違いが、粒子間距離に対するピーク位置の違いの原因として考えられる。これについては、今後、発熱量評価と同じ試料条件で MPMS 測定を行うことで、その影響を確認する。

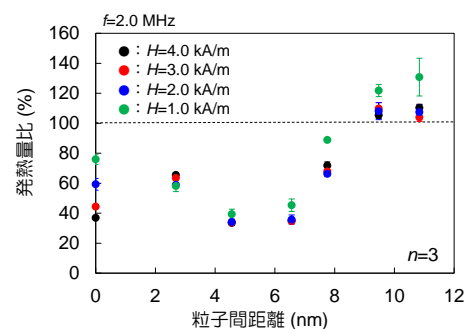


図2 発熱量比の粒子間距離依存性

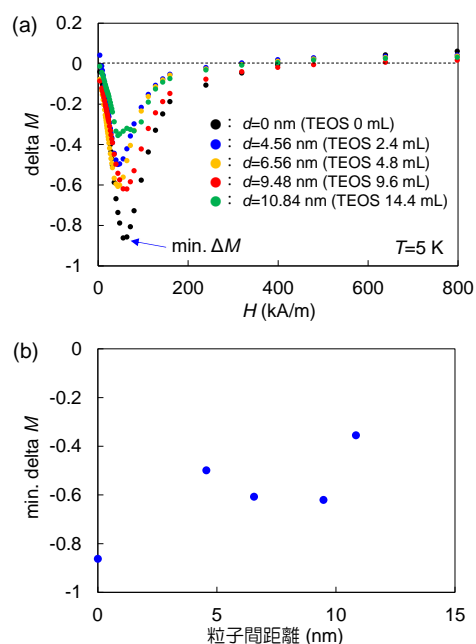


図3 (a) ΔM plots, (b) ΔM の最小値の粒子間距離依存性

(4) マイクロバルブ駆動特性の磁場強度依存性

磁性ナノ粒子含有熱応答性ゲルからなる遠隔駆動マイクロバルブを作製し、その駆動特性の磁場強度依存性を評価した。このバルブは、交流磁場印加に伴う磁性ナノ粒子の発熱により、マイクロ流路中に設置された下限臨界溶液温度型の熱応答性ゲルが収縮することで、マイクロ流路が開く機構となっている。図4に作製したマイクロバルブ評価用基板の写真と、磁場印加駆動時の様子を示した。

マイクロバルブの開度の磁場強度依存性を評価した結果、磁場強度増加に伴い、バルブ開度が増加する様子が観察された。これは、磁場強度増加に伴い、磁性ナノ粒子の発熱量が増加することに起因する。このことから、印加磁場強度によりバルブの駆動特性を制御できることが確認できた。

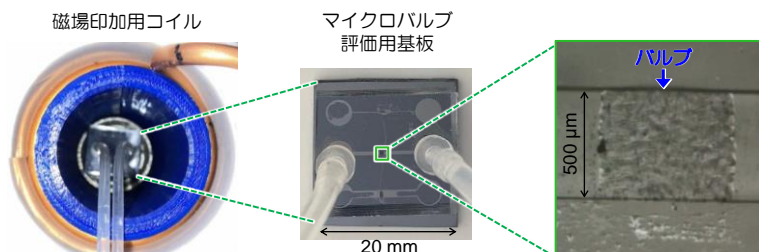


図4 マイクロバルブ評価用基板と磁場印加の様子

本研究の結果から、実在する磁性ナノ粒子における発熱量の理論値からのずれは、磁性ナノ粒子間磁気的相互作用の大きさと相関がある可能性が示唆された。つまり、磁性ナノ粒子間磁気的相互作用の大きさを補正値として、発熱量理論式を補正することで、磁性ナノ粒子の発熱量を算出する実験式を導出できる可能性が示唆された。本研究テーマでは、今後引き続き検討を進め、実験式導出を目指す。

[1] R. E. Rosensweig, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, **252**, 370-374 (2002)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 木村優介, 櫻井淳平, 秦誠一, 岡智絵美
2. 発表標題 シリカ被覆磁性ナノ粒子の磁気発熱量評価
3. 学会等名 第45回日本磁気学会学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 木村優介, 櫻井淳平, 秦誠一, 岡智絵美
2. 発表標題 シリカ被覆磁性酸化鉄ナノ粒子の磁気発熱量評価
3. 学会等名 日本機械学会2021年度年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Naoki Okada, Junpei Sakurai, Seiichi Hata, Chiemi Oka
2. 発表標題 Volume control of thermo-responsive gels including magnetic-nanoparticle
3. 学会等名 35th International Microprocesses and Nanotechnology Conference (MNC2022) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 谷平 光一, 三輪 大貴, 櫻井 淳平, 秦 誠一, 岡 智絵美
2. 発表標題 磁性ナノ粒子の磁気発熱で駆動する無配線マイクロバルブ
3. 学会等名 応用物理学会 第13回集積化MEMSワークショップ
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岡田 尚樹, 櫻井 淳平, 秦 誠一, 岡 智絵美
2. 発表標題 磁性ナノ粒子添加熱応答性ゲルの収縮挙動解明
3. 学会等名 2022年電気化学秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 岡 智絵美
2. 発表標題 磁性酸化鉄ナノ粒子の発熱特性と医療応用
3. 学会等名 応用物理学会2022年度東海NFRW・若手チャプタージョイントワークショップ(招待講演)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>マイクロ・ナノプロセス工学研究グループWebページ http://mnm.mae.nagoya-u.ac.jp/</p>

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

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