

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 26 日現在

機関番号：17301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2016

課題番号：26630071

研究課題名(和文)MRIと強磁性ナノ粒子による植物内水分輸送機構の3次元測定

研究課題名(英文)Utilisation of ferrofluid in MRI equipment for 3D measurement of water transport in plants

研究代表者

山口 朝彦(YAMAGUCHI, Tomohiko)

長崎大学・工学研究科・准教授

研究者番号：00284711

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、Fe₃O₄ナノ粒子を界面活性剤としてオレイン酸でコーティングし、ドデシル硫酸ナトリウムで水溶液中に分散させた強磁性流体の粒度分布、TEM画像、STEM画像、液中TEM画像などを測定した。また、12T NMR装置により、強磁性ナノ流体の温度および体積濃度をパラメータとして、プロトンのT₁およびT₂緩和時間の測定を行なった。本研究の成果として、強磁性流体をMRIのコントラスト物質として利用する際に有用なデータの一部を取得し、強磁性流体をMRIで用いる場合の課題を明らかにすることができた。

研究成果の概要(英文)：The ferrofluid, with Fe₃O₄ nano particles, coated with surfactant called oleic acid, and well dispersed in Sodium Dodecyl Sulphate (SDS) water solution, is a special type of nanofluid, and can be used as a contrast agent in MRI and hyperthermia. The diameter distribution of particles in a sample of this ferrofluid, TEM images and STEM images of magnetite nano particles, and TEM images in solution in order to identify the type of ferrofluid. To use ferrofluid as a contrast agent for MRI, T₁ and T₂ relaxation time at different temperatures and volume concentrations were measured by 12T NMR. Useful data have been measuring and storing, and some issues for ferrofluid as a MRI contrast agent are cleared in this study.

研究分野：熱工学

キーワード：強磁性流体 NMR TEM 植物内水分輸送 バイオミメティクス

1. 研究開始当初の背景

ヒートパイプは宇宙機器での利用を始めとして、コンピュータの熱管理や、近い将来、ハイブリッド自動車や電気自動車の熱管理のための高性能熱輸送デバイスとしての利用が期待される。ヒートパイプの性能は、重力に対する蒸発・凝縮の向きとウィック構造に大きく依存し、蒸発側→凝縮側の重力方向での利用や、加減速を繰り返す条件での利用においてはウィック内の毛管力による液体輸送が特に重要となる。重力に抗した水分輸送の例として樹木が挙げられるが、自然界の現象の工学への応用の一環として、植物の水分輸送機構のヒートパイプへの応用に着目した。

植物の水分輸送については、細胞レベルのミクロな現象としては生物物理学や植物生理学において多くの研究がなされており、樹木のMRIによる断層撮影も静的なものは報告されている^①が、マクロな現象としての学理は完全には解明されておらず、MRIによる水分輸送のダイナミックな非侵襲3次元測定についてもこれまで報告されていない。また、強磁性ナノ粒子は、MRIのコントラスト物質としての利用や、癌の温熱療法への利用が研究されているが、その粒径分布、濃度および温度とMRIのT1、T2との関係の詳細は明らかになっていない。

2. 研究の目的

樹木はポンプ動力を用いずに重力に抗して数十メートルの高さまで水分を輸送する。植物の水分輸送機構の解明は、ヒートパイプのウィック構造の開発への応用が期待され、高性能熱輸送デバイスの更なる高効率化に貢献できる可能性を秘めている。本研究では、樹木幹内の水分輸送機構を明らかにするために、非侵襲測定であるMRIを用いた植物内水分輸送の3次元測定を想定し、強磁性ナノ粒子を水に希薄分散させた強磁性流体をマーカーとして用いるのに必要となるデータの収集を試みる。

(1) 磁性流体を用いるに当たり、事前に強磁性ナノ粒子の粒径分布、体積濃度など、強磁性流体を特定する性質を明らかにする必要がある。

(2) また、強磁性流体の温度および体積濃度と、MRIのT1、T2の関係を明らかにする必要があるため、NMR装置を用いて既知の温度および体積濃度の強磁性流体のNMR信号測定を行ないデータの整備を試みる。

3. 研究の方法

樹木内部の非侵襲測定のためにMRIを利用することを想定し、強磁性流体をコントラスト物質として用いるためのデータ収集を試みる。

(1) まず、強磁性流体を特定するために、流体中に分散した強磁性ナノ粒子の粒度分布の測定を行なう。同時に、正確な分散状態を

観察するために、SEMまたはTEMによる直接観察を行ない、強磁性ナノ粒子の粒径や分散状態、体積濃度の算出のために必要となるデータの収集を行なう。

(2) 次に、強磁性流体を希釈し、MRIのコントラスト物質として利用するためのデータを収集する。測定には、温調が可能なNMRを利用し、強磁性流体の温度と流体中の強磁性ナノ粒子の体積濃度をパラメータとして、NMRのT1およびT2緩和時間の測定を行なう。

4. 研究成果

本研究では強磁性ナノ粒子として、温熱療法やMRIのコントラスト物質として報告のあるマグネタイト(Fe_3O_4)を選択した。マグネタイトのナノ粒子に界面活性剤としてオレイン酸を用い、さらに水溶液中で分散させるためにドデシル硫酸ナトリウムを添加している。

(1) マグネタイトは、その粒径によって磁気的性質が異なるため、水溶液中の粒度分布を光散乱法による粒度分布測定装置であるMalvern HPPSによって測定した。測定結果を図1に示す。粒径は10 nmから100 nmの範囲にあり、モードは40 nm付近にあることがわかる。

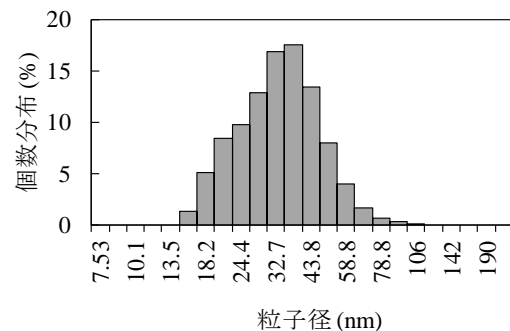


図1 強磁性流体の粒度分布

(2) 光散乱法で得られるのは、粒径の確率分布であり、また、その粒径がマグネタイトナノ粒子そのものの粒径かどうかを確認できないため、今回はTEMによる観測を実施した。まずは、観察用チップに微量の強磁性流体を滴下し、乾燥させた後に観察した。図2に観察用チップの網目付近を俯瞰したTEM画像を、図3にマグネタイトナノ粒子を拡大したTEM画像を示す。図2のTEM画像では、同じ粒径を持つ、二、三種類のナノ粒子が観察される。粒子の中でも黒く写っているものが金属粒子、つまりマグネタイトナノ粒子であると推測される。図3は図2の中でマグネタイトナノ粒子と思われる黒く写っている粒子を拡大したものである。原子の規則正しい配列が観察され、これがマグネタイトナノ粒子である可能性が大きい。粒径は約10 nmである。他に白く写っている粒子は、分散剤として添加したドデシル硫酸ナトリウムが凝集したものと推測され、同じ物質ではないが、同様の観察結果がArumらにより報告されている^②。

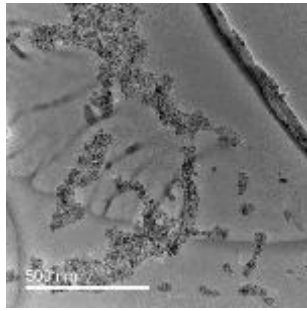


図2 Fe₃O₄強磁性流体のTEM画像

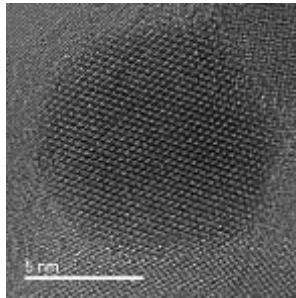


図3 Fe₃O₄強磁性流体中粒子のTEM画像
(Fe₃O₄ ナノ粒子拡大画像)

図4 および図5 に図3 に写るナノ粒子の EELS 解析結果の STEM マッピング画像およびスペクトルを示す。図4 中では Fe 原子を赤に、O 原子を緑に、C を青にマッピングしてある。図5 のスペクトルからも、Fe と O が観測されており、この粒子がマグネタイトナノ粒子であることが確認できる。

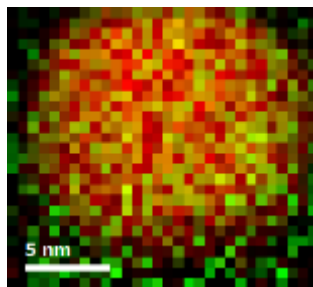


図4 EELS 解析の STEM マッピング画像
赤: Fe, 緑: O

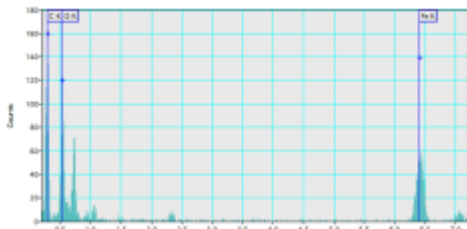


図5 EELS 解析によるスペクトル

以上のように、TEM および STEM による観察の結果、粒径約 10 nm のマグネタイトナノ粒子により強磁性流体が構成されていることがわかった。また、図1の粒度分布の測定結果と併せると、光散乱法による粒度分布の測定

では、単一の粒子から粒子の集合体として分散している粒子塊を測定していることがわかる。

(3) 前述の TEM 画像は強磁性流体を乾燥させて観測したもので、液中の体積濃度を算出する手掛りにはならない。そこで、液中観測用のチップを導入して、液中 TEM による観測を試みた。図6に液中 TEM による画像をいくつか示す。液中 TEM による強磁性流体の観測は新たな試みであり、現時点ではこれらが何を観測しているのか、これらの画像の意味するところはわかっていない。液中 TEM による強磁性流体の観察は、新しい研究課題として今後チャレンジしていくつもりである。

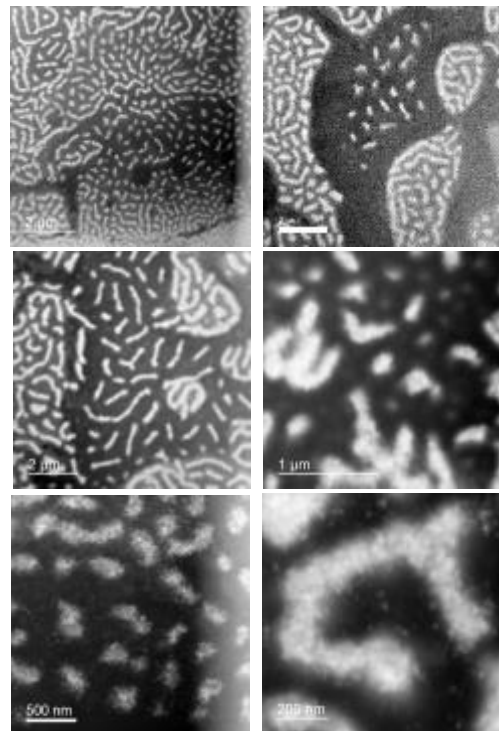


図6 Fe₃O₄強磁性流体の液中 TEM 画像

(4) MRI のコントラスト物質として強磁性流体を用いることを考えると、MRI 画像から流体中の強磁性ナノ粒子の体積濃度や流体の温度の情報を得る必要がある。医療用 MRI の画像は、一般的にはプロトンの T1 および T2 緩和時間から合成されるので、静磁場回路の一定磁場強度における T1 および T2 緩和時間が、強磁性ナノ粒子の体積濃度と流体の温度によってどのように変化するかを推測するためのデータがあれば有用である。本研究では、温調が可能な 12T NMR 装置である Varian NMR System 500PS SN 型によって強磁性流体を希釈したサンプルの T1 および T2 緩和時間を測定した。途中、装置の調整があり、測定を続けているところである。現在、測定済みのデータから、30°Cにおける純水の T1 緩和時間および T2 緩和時間を表1および表2に、原液を 30 倍に希釈した強磁性流体の T1 緩和時間および T2 緩和時間を表3および表4に示す。

表 1 30°Cにおける純水の T1 緩和時間

peak	T1	error
1	0.7609	0.1362
2	0.4685	0.05139
3	1.462	1.437
4	0.6932	0.315

表 2 30°Cにおける純水の T2 緩和時間

peak	T2	error
1	1.222	0.3055
2	1.23	0.258

表 3 30°Cにおける強磁性流体 (30 倍希釈) の T1 緩和時間

peak	T1	error
1	0.6936	0.09617
2	0.4695	0.05626
3	1.227	0.8277

表 4 30°Cにおける強磁性流体 (30 倍希釈) の T2 緩和時間

peak	T2	error
1	1.308	0.241

本研究では、 Fe_3O_4 ナノ粒子を界面活性剤としてオレイン酸でコーティングし、ドデシル硫酸ナトリウムで水溶液中に分散させた強磁性流体の粒度分布、TEM 画像、STEM 画像、液中 TEM 画像などを測定した。また、12T NMR 装置により、強磁性ナノ流体の温度および体積濃度をパラメータとして、プロトンの T1 および T2 緩和時間の測定を行なった。本研究の成果として、強磁性流体を MRI のコントラスト物質として利用する際に有用なデータの一部を取得し、強磁性流体を MRI で用いる場合の課題を明らかにすることができた。

<引用文献>

- ① CAREL W. WINDT, FRANK J. VERGELDT, P. ADRIE DE JAGER, HENK VAN AS, MRI of long-distance water transport: a comparison of the phloem and xylem flow characteristics and dynamics in poplar, castor bean, tomato and tobacco, Plant, Cell and Env., 29(9), 2006, 1715-1729.
- ② Yosefine Arum, Yun-Ok Oh, Hyun Wook Kang, Seok-Hwan Ahn, Junghwan Oh, Chitosan-Coated Fe_3O_4 Magnetic Nanoparticles as Carrier of Cisplatin for Drug Delivery, Fish Aquat Sci, 18(1), 2015, 89-98

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 0 件)

[学会発表] (計 2 件)

- ① T. Matsuzaki, K. Tokuda, H. Matsuo, T. Yamaguchi, NMR Signal of a Fe_3O_4 Ferrofluid on Different Volume Concentration, The proceedings of the 14th Joing Symposium of Nagasaki University and Jeju National University on Science and Technology (JSST 2017), Jeju, (Korea), 2017.5, JSST2017-5.
- ② Jiaju Hong, Yunhua Gan, Paul Glover, Yuying Yan, Tomohiko Yamaguchi, Bo Li, Experimental measurement on dynamic concentrations of nanofluid flow with NMR, The proceedings of the Heat Transfer Symposium 2014, Beijing, (China), 2014.5, Paper No. IHTS140135.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

<http://www2.mech.nagasaki-u.ac.jp>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山口 朝彦 (YAMAGUCHI, Tomohiko)
長崎大学・工学研究科・准教授
研究者番号：00284711

(2) 研究分担者

なし

(3) 連携研究者

なし

(4) 研究協力者

なし