# 水溶液中のイオン濃度と磁性ナノ粒子のブラウン緩和との相関

小田翔也、北本仁孝 (東京工業大学)

## Study of relationship between Brownian relaxation and ionic concentration in aqueous solution Shoya Oda, Yoshitaka Kitamoto (Tokyo Institute of Technology)

## 諸言

体内の体液中には様々なイオンが溶けている。例えば Na, Cl, K イオン等が存在する。イオンは体液の循環 や神経の伝達に作用している。これらのイオンのバランスは適度に保たれているが、腎臓に疾患がある場合 などはイオン濃度が定常値からずれる。そのため体液のイオン濃度を測定することで疾患の有無を検査する ことができる。NaClを用いて、水溶液のイオン濃度を増加させた場合に交流磁場に応答する磁気信号を測定 した結果、高調波信号が低下したことを報告した[1]。交流磁化応答の遅れが顕著になる周波数領域まで測定 を行い、粒子の振舞により高調波信号がどのように変化するかを調べた結果を報告する。

#### 実験方法

磁性粒子を励磁するためにソレノイドコイルを使用した。印加する磁場強度は最大で120 G<sub>p-p</sub>、測定周波数は 510 Hz から最高で10000 Hz までとした。また磁場検出のために、もう一つのソレノイドコイルを用いた。 測定用コイルは励磁用コイルの内側に設置した。磁性流体はカプセル状の容器に内包し、カプセルは測定用 コイルの内部に設置した。磁性流体中に含まれる磁性粒子は酸化鉄粒子(平均直径約13 nm)を使用した。 加えたイオンは NaCl であり、0.18 mol/L、0.35 mol/L に調整し、それぞれ 25 µL 採取し、5 µL の磁性流体に 加えた。最終的な NaCl 濃度はそれぞれ 0.14 mol/L、0.29 mol/L である。

#### 実験結果

Fig.1に交流磁化率の周波数依存性を示す。交流磁化率の結果より、イオン濃度が高くなるに従って磁化率 が低下することがわかった。イオン濃度の増加による粒子同士の凝集により、流体力学的径が増加したため に緩和時間が長くなることが原因と考えられる。また周波数が高くなるとイオン濃度に関わらず信号が低下 した。この結果は粒子が次第に励磁信号に応答出来なくなることを示していると考えられる。Fig.2には第五 次高調波信号の基本波の周波数に対する依存性を示した。Fig.2に示されているように、高調波信号はある周 波数において極小値を持つことがわかった。またこの極小値はイオン濃度の増加、すなわち緩和時間に関係 しており、緩和時間が長くなるとともに極小値をとる周波数は低下した。この原因として、周波数が高くな るに伴い、ヒステリシスを描くなどランジュバン関数で描かれる磁化曲線から外れていくことなどが考えら れる。今回得られた結果より力学的な運動を伴う高調波信号測定は、粒子周りのイオン濃度などの環境に応 じて極小値を持つことから、結果を考察することによって粒子の振舞を解明できるものと期待できる。



Fig. 1 AC susceptibility of magnetic fluid

Fig. 2 Dependence of 5ht harmonic signal on frequency

#### <u>参考文献</u>

1) 小田翔也, 他, 第 39 回日本磁気学会学術講演会, 8pE-2 (2015).

# Low oscillatory-field relaxometry for estimating hydrodynamic-size distribution of magnetic nanoparticles dispersed in a liquid medium

S. B. Trisnanto<sup>1</sup>, Y. Kitamoto<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Tokyo Institute of Technology, Yokohama 226-8052, Japan

The relaxation behaviors involving both magnetic moment and particle rotations are key phenomena in a dynamically-magnetized magnetic nanoparticle suspension, which are practically observable through its magnetization responses. For a ferrofluid, the varying primary and secondary (hydrodynamic) sizes of the suspended particles are responsible for the broadening relaxation-time distribution which leads to technical disadvantage toward magnetic biosensing (*i.e.*, liquid-phase magnetic immunoassay) in term of accuracy. As an alternative method of preliminary particle-size characterization, we developed a low oscillatory-field relaxometry which is, in principle, an estimation of relaxation-time distribution corresponding to frequency-dependent complex magnetic susceptibility, further addressable to the particle-size distribution. Practically, we implemented a coil-based inductive magnetometry which measures the inductive voltage triggered by a frequency-modulated magnetic field, further converted into a frequency-domain transfer-function to obtain signal components: magnitude and phase. Comparing these parameters of a colloidal magnetic sample to that of the reference (*i.e.*, free sample) in terms of magnitude ratio and phase difference estimates complex magnetic susceptibility of the sample, which is further correlated with the Debye relaxation model to generate a discrete probability density function (PDF) of relaxation-time distribution. The corresponding hydrodynamic-size is then calculated by satisfying the well-known Brownian relaxation-time equation<sup>1</sup>) on each sampling point of the PDF.

To demonstrate the performance of the system, we, here, evaluated two water-based iron oxide nanoparticle suspensions having roughly 0.5 wt. % particle-concentration and different surface-coating; these suspensions are sufficiently-dense to be accurately-characterized by dynamic light scattering (DLS) measurement. A chirp ac current with the logarithmic instantaneous sampling-frequencies ranging from 275 Hz to 325 kHz was fed to an impedingly-controlled induction coil, thus producing a relatively-constant 1 Oe<sub>rms</sub>-magnetic field at the operating frequency range. Under this synthesized magnetic-field, the frequency-dependent magnetic moments of the 80µl samples were characterized, as shown in Fig. 1a. Since the applied field is considerably-small, thermal energy should be dominant to kinetically-randomize the particle motions, instead of particle rotation. This system, therefore, indirectly measures translational Brownian relaxation, as well as nanoscopic single-particle vibration of the weakly-clustered-particles, in which the resulting magnetization dynamics are coherent with the applied field. Correspondingly, the hydrodynamic-size distribution  $\rho(D_h)$  extracted from Fig. 1a indicates that the samples were polydispersive ferrofluids with the overlapped lognormal size-distributions (Fig. 1b). For sample 1 (having 15.85 and 20.01 nm in mean primary-sizes), there are 2 mean secondary-particle-sizes at 34.12 and 66.69 nm, in which the smaller  $D_h$  is attributable to single-particle dispersion, whereas the larger one may include the cluster formed. Meanwhile, for sample 2 (having 6.35 nm in mean primary particle-size), we indicated the multiple mean secondary-particle-sizes at 19.11, 35.87, 48.42, and 121.51 nm, suggesting that the suspended particles

exist as a particle-cluster. In conclusion, we have shown that a low oscillatory-field relaxometry is capable of analyzing hydrodynamic size distribution of ferrofluid. However, our current system can only characterize magnetic samples which have magnetic moment more than  $1 \times 10^{-5}$  emu.

#### **Reference**

 W. T. Coffey *et al*, Adv. Chem. Phys., **83** (2007) 263.



**Fig. 1** (a) Frequency-dependent magnetic moment of magnetic suspensions measured at 1  $Oe_{rms}$  and (b) numerical estimation of the corresponding hydrodynamic size distribution of the suspended particles

# 高感度 MI センサによる誘発性脳磁場 N100 信号検出の試み

沈 清如、王 可望、内山 剛

(名古屋大学)

N100 Brain Waves Detection Using Highly Sensitive MI Sensor

Q. Shen, K. Wang, T. Uchiyama

(Nagoya University)

#### <u>はじめに</u>

脳の活動によって、頭部周辺には微小な磁 場が誘発される。これは脳磁図と呼ばれ、地 磁気の1億分の1以下と微弱であるため、測 定には超高感度センサが必要である。パルス 通電による磁化回転を用いた磁気インピータ ンス(MI)センサは、pT(10-12T)オーダーの 磁界検出分解能が実現でき、平滑筋などの細 胞組織の電気活動に伴う電流の変化を磁場の 形で捉えることが可能である。刺激に対し、 刺激呈示後、潜時100ミリ秒前後で発生する 陰性電位がN100と呼ぶ。本研究では、MI セ ンサを用いて脳波N100に対応する磁気信号 の検出を試みた。

#### <u>実験方法と結果</u>

事象関連電位 N100 信号を検出するため、座 った状態の被験者に一種類の刺激音(1000H z)をランダムに聞かせた。MI センサは被験 者の右側頭部に設置され、頭との間隔が約5mm である。音源も右側に設置されている。図1



Fig1.Magnetic field measurement system at the temporal region using MI sensor



Fig 2.Time series of magnetic wave forms in the temporal region due to single stimulus

は、実験の図である。図2に、今回の実験により得られた側頭部の生体信号の時間領域波形を示 す。測定したデータは200回の加算平均を行って求めた3回の試行実験の結果である。信号は -100msから0msの平均値をオフセットとして補正した。100ms付近にN100に対応すると考 えられる、陰性信号のピークが観察されているが、信号の大きさにばらつきが見られる。加算回 数を増やした実験により計測精度を確認する予定である。

 [1] T. Uchiyama, K. Mohri, Life Fellow, IEEE, Y. Honkura, and L. V. Panina, "Recent Advances of Pico-Tesla Resolution Magneto-Impedance Sensor Based on Amorphous Wire CMOS IC MI Sensor," IEEE Trans. Magn., vol. 48, no.11, pp. 3833-3839, Nov. 2012.

[2] Pause.B.M,Sojka.B,Krauel.K,Ferstl.R.(1996). "The nature of the late positive complex within the olfactory event-related potential (OERP)".Psychophysiology vol 33,no.4,pp.376-384.

# MI センサを使用した通常環境下での心磁図計測

田中武, 畑善之, 緒方祐史, 柿沼文一, 上田智章\*, 小林宏一郎\*\* ((株)アドバンテスト研究所、\*(株)フォスメガ \*\*岩手大学)

Magnetocardiogram measurement using MI sensor outside magnetically shielded room T. Tanaka, Y. Hata, Y. Ogata, B. Kakinuma, T. Ueda\*, and K. Kobayashi\*\* (Advantest Laboratories Limited, \*PhosMega Co., Ltd, \*\*Iwate University)

### <u>はじめに</u>

心磁図は心電図よりも高確率で虚血を発見できる臨床事例が報告されていることから<sup>1)</sup>、虚血性心疾患の 検出に有効であるが、これまで心磁図計測に使用されてきた SQUID 磁束計は、装置自体の価格が高いこと、 液体ヘリウムによる冷却が必要であるためランニングコストが高いこと、及び計測には磁気シールドルーム が必要であるという3つの問題がある。そのため、装置の低価格化、及び小型化は非常に困難であり、生活 中での常時モニタは事実上不可能である。そこで、比較的安価であり、かつ常温で動作するセンサを用いて、 心磁図計測を行うことで、虚血性心疾患の早期発見の一助となると考えられる。本研究では常温動作可能な 磁気検出素子を使用し、磁気シールドルームを用いないで心磁図計測を試みた。

#### <u>実験方法</u>

常温磁気検出用センサとして採用した MI センサ<sup>2)</sup> は原理的に低ノ イズレベルであることが報告されていることから<sup>3)</sup>、微弱な生体磁気を 検出できる可能性が高いと考えられる。具体的には、アイチ・マイクロ・ インテリジェント社製の高感度磁気センサ(型式: MI-CB-1DJ)を使用 し、Ch 数は 25、5cm 間隔で縦5×横5の正方形のアレイを構成した。 測定条件は図1に示すように、被験者が寝た状態で、上からセンサをか ざして Z 方向(体表面の向き)とし、Ch.22を剣状突起の位置に合わせ た。体表面からセンサまでの距離は、最接近チャンネルで約5mm、心電 図(I誘導)も同時に計測を行った(計測時間は5分)。商用電源ノイ

ズは移動平均処理での除去、外来磁気ノイズは多 Ch のデータを使用しての除去、心電同期加算処理による除去、及び 25Ch のデータを 9Ch に圧縮することによる空間的平均化処理による除去を行った。

#### 実験結果

測定結果を図2に示す。図中の実線が心磁図、点線が心電図を表す。外来磁気ノイズ、及びMIセンサ 自身のノイズが低減されることにより、心電図と同期 したタイミングでR波、S波、及びT波が観測できた。 また、心臓を挟んで波形が反転していることも考慮す ると、心磁図を計測していることが分かる。また、 SQUIDと比較してセンサの距離を近づけることが出 来ることにより、商用電源ノイズ除去のための移動平 均処理、及び空間的平均化処理を行っているにもかか わらずR波は最大で60pTの信号を検出できた。



#### 参考文献

- 1) 神鳥明彦:心磁計の基本技術と臨床応用技術, 電気学会論文誌 A 125 巻 2 号, pp.81-84, (2005)
- 2) L. V. Panina and K. Mohri: Appl. Phys. Lett. Vol.65 (9), pp.1189-1191, (1994)
- 3) L. G. C. Melo et al : J. Appl. Phys. 103, pp.033903-1-6, (2008)



図1. 計測位置の概略図

## 脳磁計ファントムを利用した磁気センサの評価手法

## 小山大介,足立善昭,上原弦 (金沢工業大学 先端電子技術応用研究所) Evaluation Method of Magnetic Sensors Using Phantom for Magnetoencephalography Daisuke Oyama, Yoshiaki Adachi, Gen Uehara (Applied Electronics Laboratory, Kanazawa Institute of Technology)

**はじめに** 近年,冷媒による冷却が不要な磁気センサの高感度化が進み,心磁図や脳磁図等の生体磁気計測 への応用に関する研究が進められている.しかし,生体計測ではいわゆる「正解」の信号がはっきりしない ため,実際の生体磁気信号計測だけではセンサシステムの評価が難しい.そこで著者らは,システムの定量 的な評価を目的として,脳磁計用ファントムを利用した評価方法を提案している.本研究ではその一例とし て,ファントムによって発生させた磁界分布を市販の磁気センサを用いて計測した結果について発表する.

**実験方法** Fig. 1 に実験方法の概要を示す.ファントムは著者らが 開発した乾式ファントム<sup>1)</sup>を利用した.ファントムを構成する二 等辺三角形コイルに周波数 11 Hz,振幅 10 μAの正弦波電流をバ ースト状に印加して磁気信号を発生させた.ここで,振幅 10 μA の電流を印加した場合の等価電流双極子の大きさは約 50 nA・m であり,脳磁計によってヒトの聴覚誘発磁場を計測した場合に推 定される等価電流双極子の大きさと同程度である.本研究では室 温の磁気センサとして,市販の MI センサ(アイチ・マイクロイ ンテリジェント株式会社, MI-CB-1DH)を用いた.鉛直方向(z 方向)の磁気センサの移動と,鉛直方向を回転軸としたファント ムの回転(θ)により,ファントム周辺の磁界分布を計測した.

**実験結果** Fig. 2 に計測した波形を示す.本実験では位置の異なる 48 点で計測を行ったので、その各点で記録された波形を重畳させ て描いた.ファントムからの磁気信号が検出されていることがわ かる.なお、記録したデータには加算平均処理(1600回)及び移 動平均処理(平均化幅16.5 ms)を施した.

Fig. 2 の矢印に示す時刻における信号強度を等磁界線図として 描いた図を Fig. 3 に示す. 等価電流双極子周辺の磁界分布として 特徴的な湧き出し,吸い込みの両極性が得られていることが分か る. Fig. 2 及び Fig. 3 の結果から,本センサを用いた脳磁図検出 の可能性が示唆された.

一方,得られた磁界分布データから等価電流双極子の位置を推定したところ,ファントムの持つ「正解の位置」からは3.7 mm ずれた結果となり,従来の脳磁計で計測した場合」に比べて大きくなった. 生体磁気計測装置による信号源推定で良好な結果を得るには,高い信号/雑音比を実現するだけでなく,センサの位置決め精度の向上が重要である.本研究により,生体磁気計測装置の統合的な評価にファントムが有効であることが分かった.



Fig. 1 Schematic diagram of experiment



Fig. 3 Isofield contour map.

## 参考文献

1) D. Oyama, Y. Adachi, M. Yumoto, I. Hashimoto, G. Uehara, Journal of Neuroscience Methods, 251 (2015) 24-36.