

# 減衰振動磁場中における酸化鉄ナノ粒子分散液の吸光度変化

諏訪雅頼、魚谷明良、塚原 聡  
(大阪大学)

Absorbance change of iron oxide nanoparticle suspension under damped oscillatory magnetic field.

M. Suwa, A. Uotani, S. Tsukahara  
(Osaka Univ.)

## はじめに

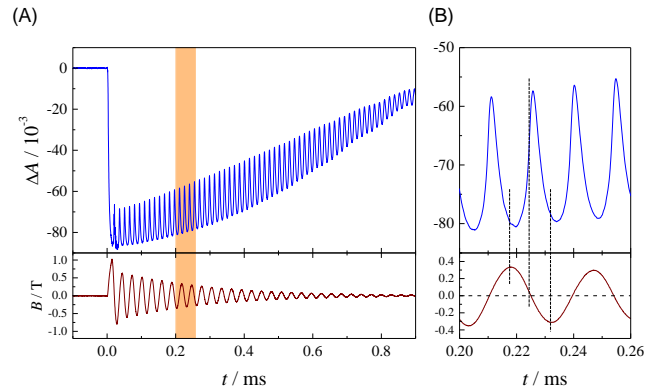
磁気粒子イメージングや磁気ハイパーサーミアのように、超常磁性酸化鉄ナノ粒子の磁化ダイナミクスを利用する医療技術が発展してきている。これらの技術では、粒子内の磁化の回転（ネール回転）のみでなく、粒子自体の回転（ブラウン回転）を考慮することで高精度なイメージングや発熱効率の上昇につながる事が数値計算によって示唆されている<sup>1,2)</sup>。磁気モーメントの配向挙動は通常、磁化測定により観察する。しかし、磁化曲線の微小な変化からネール回転とブラウン回転を見分けることは難しい。そこで本研究では、減衰振動パルス磁場中での酸化鉄ナノ粒子分散液の吸光度変化から、ブラウン回転の観測を試みた。

## 実験手法

Ewijk らの手法<sup>3)</sup>で直径  $10.4 \pm 1.4$  nm のマグヘマイト ( $\gamma$ - $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) 磁性ナノ粒子 (magnetic nanoparticle, MNP) を合成した。これを水中に分散させ、吸光度測定に適した  $50 \sim 200 \mu\text{g cm}^{-3}$  の濃度になるよう希釈した。また、溶媒の粘性依存性を調べるため、グリセロールを添加した。LCR 回路の放電により、初期振幅  $\sim 1$  T の減衰振動パルス磁場を発生させた。その周波数はコンデンサの電気容量に依存し、今回は主に 34.4 kHz で実験を行った。10 mm  $\times$  10 mm (直径  $\times$  長さ) の空芯ソレノイドコイルを用い、上記の MNP 分散液を 5 mm  $\times$  5 mm (内径  $\times$  長さ) の円筒型ガラスセルに封入し、コイル内に設置した。光源には Xe ランプ用い、モノクロメータで波長 405 nm に単色化した光を磁場と平行にセルに照射、パルス磁場に伴う吸光度変化を観測した。

## 実験結果

Fig. 1 に MNP 分散液の吸光度変化を示す。磁場印加後、直ちに吸光度が減少し、振動磁場の 2 倍の周波数をもつ楕型波形が観測された。吸光度の極小は磁場の極値付近、極大はゼロ交差付近にあったが、いずれも磁場に対して遅れていた。マグヘマイト MNP は磁化容易軸と同じ方向に光軸を持つことが報告されている<sup>4)</sup>。磁場印加により磁化容易軸が磁場と平行に配向するため、光軸と照射した光の進行方向とが一致する。これにより、ランダム配向である無磁場下に比べ、磁場中では吸光度が減少したと考えられる。従って吸光度変化の波形は、ブラウン回転のダイナミクスを反映する事が示差された。更に、吸光度変化から磁化容易軸の配向度を見積もることが可能であり、交流磁場中における超常磁性ナノ粒子の回転運動のメカニズムを考察した。



**Fig. 1** (A) The absorbance change of the MNP suspension (top) under the damped oscillating magnetic field (bottom) and (B) the expansion of the highlighted region in (A).

## 参考文献

- 1) D. B. Reeves, J. B. Weaver: *Appl. Phys. Lett.*, 107, 223106 (2015).
- 2) H. Mamiya, B. Jeyadevan: *Sci. Rep.*, 1, 00157 (2011)
- 3) G. A. van Ewijk et al.: *J. Magn. Magn. Mater.*, 201, 31-33, (1999)
- 4) F. Bentivegna, et al.: *J. Appl. Phys.*, 85, 2270-2278 (1999)

# 液中磁性ナノ粒子の磁化・容易軸ダイナミクス

大多哲史<sup>1</sup>, トリスナント・スコバグース<sup>2</sup>, 竹村泰司<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>静岡大学, <sup>2</sup>横浜国立大学)

Dynamics of magnetization and easy-axis of magnetic nanoparticles dispersed in liquid

S. Ota<sup>1</sup>, S. B. Trisnanto<sup>2</sup>, Y. Takemura<sup>2</sup>

(<sup>1</sup>Shizuoka University, <sup>2</sup>Yokohama National University)

## はじめに

ハイパーサーミアや磁気粒子イメージング(MPI)において、交流磁場に対する磁化ダイナミクスの解明が必要不可欠である。特に血中などの液中においては粒子（磁化容易軸）の回転も重要である。ネール緩和時間 $\tau_N$ とブラウン緩和時間 $\tau_B$ によって、 $1/\tau = 1/\tau_N + 1/\tau_B$ と表される実効的緩和時間 $\tau$ の理論に従うと、 $\tau_B \gg \tau_N$ において磁化回転に比べて遅い容易軸回転は実質的に生じない<sup>1)</sup>。しかし、我々は $\tau_B \gg \tau_N$ の条件下で、容易軸回転を観測するという実効的緩和時間の理論では説明できない現象<sup>2)</sup>を実験的に確認した<sup>3)</sup>。本研究では、磁化及び容易軸のダイナミクスを磁化曲線による定常的な応答とパルス磁場を用いた過渡的な応答の計測により初めて解明し、さらに数値解析により計測結果を裏付けると共に各粒子一つの応答を観測した。

## 実験方法・結果

超常磁性のマグヘマイト粒子（フェルカルボトラン）について、水中に分散させた液中試料と、寒天により容易軸回転を固定した固体試料を用意した。Figure 1 に液中試料と固体試料の磁化信号の差分を容易軸回転を表した磁化曲線として示した<sup>4)</sup>。差分磁化曲線の残留磁化はゼロであり、これはゼロ磁場において液中試料と固体試料の磁化が同一であることを示している。特に 0.2 kHz というネール緩和時間、ブラウン緩和時間と比較して低周波条件では、容易軸回転が磁化回転に追従し、磁化が完全に緩和するゼロ磁場において、容易軸も完全に緩和したと考えられる。磁化に追従した容易軸回転は数値計算でも示されている<sup>5)</sup>。高磁場では、差分磁化曲線がヒステリシスを示した。これは磁場増加過程（磁化配向過程）と磁場減少過程（磁化緩和過程）で固体試料に対する液中試料のエネルギー状態が異なることを示している。磁化の配向・緩和過程において、容易軸も配向・緩和することにより、固体試料に比べて液中試料の方が磁化回転が促進する。Figure 2 のようにパルス磁場を印加した際に、磁場の立ち上がりに伴う磁化増加に加えて、静磁場状態においても磁化の増加を確認した<sup>6)</sup>。これは最初に磁化のみが磁場増加に伴って回転して、磁化に遅れて容易軸が回転する過渡的な応答を示しており、特にコア粒径の大きな粒子で顕著である。発表では、数値解析によって各粒子一つの配向状態に注目した結果も示す。

## 謝辞

本研究の一部は、科研費 15H05764、17H03275、17K14693 の助成を受けて実施した。

## 参考文献

- 1) R. E. Rosensweig, *J. Magn. Magn. Mater.*, **252**, 370 (2002).
- 2) H. Mamiya and B. Jayadevan, *Sci. Rep.*, **1**, 157 (2011).
- 3) S. Ota, T. Yamada, and Y. Takemura, *J. Appl. Phys.*, **117**, 17D713 (2015).
- 4) S. Ota and Y. Takemura, *Appl. Phys. Express*, **10**, 085001 (2017).
- 5) T. Yoshida, S. Bai, A. Hirokawa, K. Tanabe, and K. Enpuku, *J. Magn. Magn. Mater.*, **380**, 105 (2015).
- 6) S. B. Trisnanto, S. Ota, and Y. Takemura, *Appl. Phys. Express*, **11**, in print (2018).

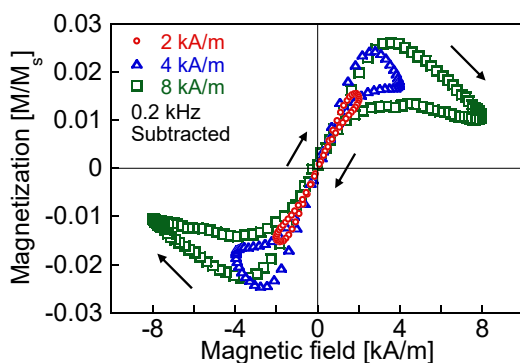


Fig. 1 AC magnetization curves in solid sample subtracted from those in liquid sample for Ferucarbotran<sup>4)</sup>.

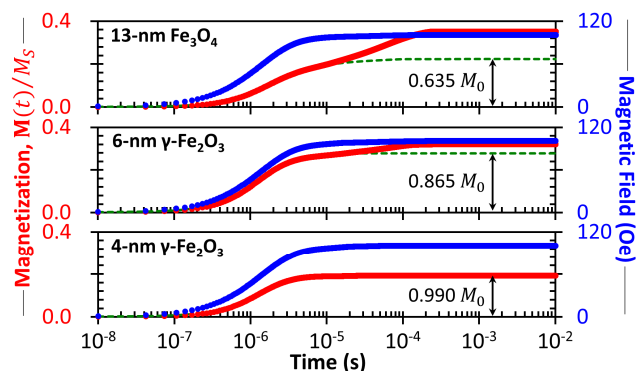


Fig. 2 Temporal magnetization response in applying pulse field with respect to magnetic nanoparticles of different core sizes<sup>6)</sup>.

## 磁氣的粒子間相互作用の無い状態における サイズおよび形状の異なるマグネタイトナノ粒子の磁気特性

福本浩哉<sup>1</sup>, 間宮広明<sup>2</sup>, ジョンクヤ<sup>1</sup>, 鈴木一正<sup>1</sup>, 宮村弘<sup>1</sup>, バラチャンドランジャヤデワン<sup>1</sup>

(1: 滋賀県大, 2: 物質・材料機構)

Magnetic property of interaction-free magnetite nanoparticles with different size and shape

H. Fukumoto<sup>1</sup>, H. Mamiya<sup>2</sup>, J. Cuya<sup>1</sup>, K. Suzuki<sup>1</sup>, H. Miyamura<sup>1</sup> and B. Jeyadevan<sup>1</sup>

(1: The University of Shiga Prefecture, 2: NIMS)

### はじめに

マグネタイトナノ粒子(MNPs)は、磁気温熱療法や MRI など医療応用への検討が盛んに行われている磁性材料である。応用に適した MNPs の厳密な設計を行うためには、個々のナノ粒子の磁気応答を求める必要がある。そこで考慮すべき点として、サイズや形状による表面効果と磁氣的粒子間相互作用の2つが挙げられる。本研究では、サイズや形状による表面効果の影響を調べるためサイズの異なる八面体 MNPs の作製を行い、さらに非磁性体であるシリカを粒子表面に被覆することで磁氣的粒子間相互作用の無い試料の作製を試みた。また、得られた試料の磁気特性評価を行い、八面体 MNPs のサイズが磁気特性に与える影響について系統的に調査した。

### 実験方法

オレイン酸とオレイルアミンを等モル混合した溶媒に前駆体となる鉄(III)アセチルアセトナート( $\text{Fe}[\text{acac}]_3$ )を加え、280 °Cで加熱することで八面体の形状を有するMNPsを作製した。得られた粒子をシクロヘキサンとIGEPAL®CO-520の混合溶液中に加え、懸濁液を攪拌しながら、アンモニア水とオルトケイ酸テトラエチル(TEOS)を滴下し、粒子へのシリカ被覆を行った。作製した試料の粒径および形状評価には透過型電子顕微鏡を、磁気特性評価には磁気特性測定装置(Quantum Design社製MPMS-5XL)を用いた。

### 実験結果

Fig. 1 に示すように、前駆体である  $\text{Fe}[\text{acac}]_3$  の濃度を变化させることで、直径 11.2, 15.1, 23.4 nm の異なるサイズを有する単分散八面体の形状を有する MNPs を得た。次に、磁氣的粒子間相互作用のない試料を得るため、各サイズの八面体 MNPs に対して TEOS の濃度および塩基性を調整し、膜厚 28.5, 32.7, 30.7 nm にシリカ被覆された MNPs を作製した。作製したシリカ被覆 MNPs を用いて、FORC 図解析より粒子間相互作用の評価を行った。その結果、各試料において粒子間相互作用が無いことが確認された。磁氣的に孤立した MNPs の粒子サイズが磁気特性に与える影響を系統的に調べるため、粒径-実効磁気異方性相関図を算出した (Fig. 2)。全ての試料において実効磁気異方性定数  $K_{\text{eff}}$  が  $20 \text{ kJ/m}^3$  で、粒子サイズへの依存性は確認されなかった。この理由は、今回作製した八面体の形状を有する MNPs が、粒子サイズより形状による磁気特性への寄与が大きいためであると考えられる。今後、立方体や球など他の形状を有する MNPs の粒子間相互作用の無い状態で磁気特性の評価を行うことで、サイズ・形状それぞれの磁気特性への寄与が明らかになると期待される。

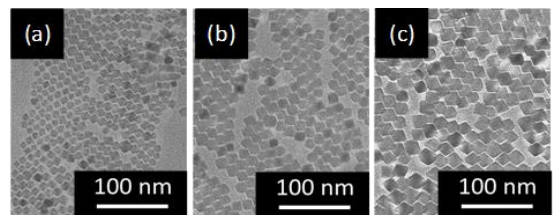


Fig.1 TEM images of octahedral magnetite nanoparticles with average diameters, (a) 11.2, (b) 15.1 and (c) 23.4 nm.

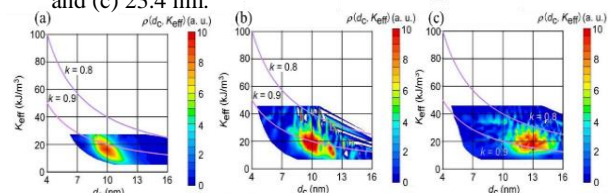


Fig.2 Effective anisotropy constant - particle diameter correlation diagram of silica coated magnetite samples with average diameters (a) 11.2, (b) 15.1 and (c) 23.4 nm.

# 鍼加温用アプリケーションタのコイル形状と誘導加温実験

山田外史, 池畑芳雄\*, 池田慎治  
(公立小松大学, \*金沢大学)

Shape of the coil and the induction heating experiment of acupuncture warming applicator

S.Yamada, Y.Ikeda\*, S.Ikeda  
(Komatsu Univ., \*Kanazawa Univ.)

## はじめに

高齢化社会に伴い低侵襲な医療技術が求められている。東洋医学における「灸」治療は「つぼ」の部位に対し温熱刺激を与えることによって生理状態を変化させ、疾病を治癒する。しかし、皮膚上から「もぐさ」などの燃焼により加温するため皮膚等への影響を軽減することが求められる。

今回、鍼治療用の「鍼」を用いて皮膚外部からアプリケーションタ（励磁コイル）を用いて、皮下部の鍼部分のみを誘導加熱できれば、皮膚などへの影響を抑え必要な温度、時間間隔で加温できる。ここでは、キャンセルコイル付励磁コイルを提案し、コイル形状、磁界分布、発熱・温度計測を行ったので報告する。

## 誘導加温コイル

提案する鍼の温熱刺激の励磁装置の基本構成を Fig.1 に示す。身体に刺された鍼に、励磁コイル部分をセットし、その後一定時間励磁コイルに電流を流し加温する。

Fig. 1 に示すような皮膚外部に位置する平面コイルで鍼を励磁してもコイル中心が最大となる。これを避けるために①磁性体でシールドする方法、②キャンセルコイルの2方法を検討したが今回は後者の方法について検討した。

Fig. 2 がキャンセルコイル付のアプリケーションタである。皮膚近傍鍼の磁界を逆巻コイルにより弱める。励磁コイルとキャンセルコイルは、直列に接続される。

## 誘導加温実験

Fig. 3 は、磁界解析から得られた鍼に沿った中心軸上の磁束密度分布である。コイルは皮膚に面して設置されており、キャンセルコイルにより磁界は部分的に弱められる。

Fig. 4 は、空気中の鍼をサーモグラフィーにより測定した温度分布である。図の右端が表皮である。表皮近くの温度は抑制されているが、すぐ下では最高温度となっている。

## まとめ

励磁コイルにより鍼を電磁誘導して加温する灸システムにおいて、皮膚近傍の加温を抑制する加温システムについて検討した。

## 参考文献

- 1) S. Yamada, Y. Ikehata, R. Hayashi, T. Ueno, M. Kakikawa, *J. Magn. Soc. Jpn.*, Vol.39, No.2, pp.30-34, 2015.

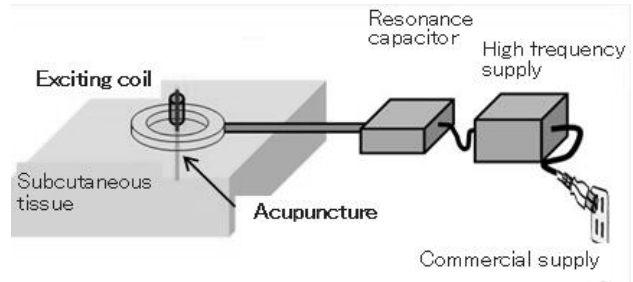


Fig. 1 Applicator system for acupuncture heating

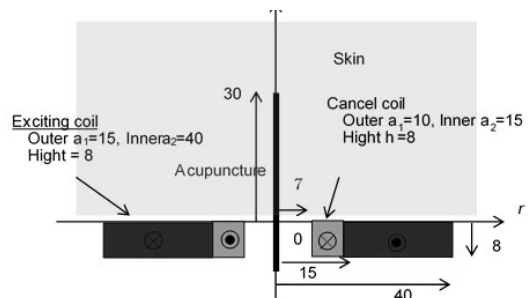


Fig. 2 Applicator with cancel coil

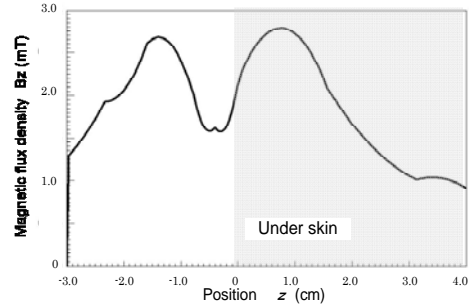


Fig. 3 Magnetic flux density around acupuncture

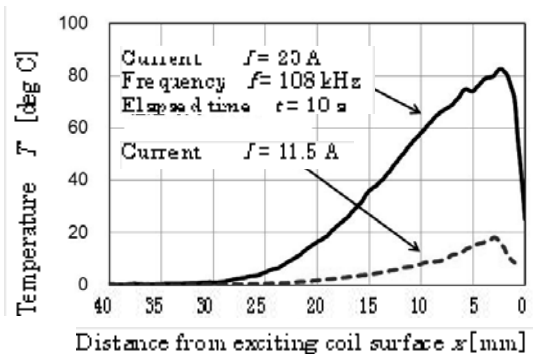


Fig. 4 Temperature of acupuncture

# 空隙 100 mm の磁気ハイパーサーミア用 磁気回路型磁場発生装置の開発

伊藤哲也\*, 中川貴, 長谷川諒, 清野智史, 山本孝夫  
(大阪大学 大学院工学研究科)

Development of a 100-mm gap magnetic circuit type magnetic field generator for magnetic hyperthermia

T. Ito, T. Nakagawa, R. Hasegawa, S. Seino, T. Yamamoto  
(Graduate School of Engineering, Osaka University)

## 1. 研究背景

近年, 新たながんの治療法として磁気ハイパーサーミア療法が注目されている。これは適切な発熱体をがん患部周辺に挿入し, 体外から交流磁場を印加することで発熱体を発熱させ, がん細胞を加温する治療法である。発熱体には金属の針や磁性流体などが検討されており, その発熱量は磁場強度に強く依存する。さらに発熱体は体内のどの位置にあっても適当な温度まで上昇できる必要があり, そのために体内の広い領域に均一かつ高強度な交流磁場を発生できる装置が求められている。これまで我々は, 人体適用規模である空隙 300mm の装置の前段階として, 空隙 50 mm の磁気回路型磁場発生装置を作製し, 得られる磁場の空間均一性を示してきた<sup>1)</sup>。本研究ではそれを小動物治療に適用可能な空隙 100 mm に拡張した装置を作製・評価した成果について報告する。

## 2. 実験

フェライト(日立フェライト電子, ML33D)を用いて磁気回路を構成し, 100 mm の空隙を持つ磁気回路型磁場発生装置を作製した(Fig. 1)。励磁コイル  $L_e$  は整合器を介して電源装置に接続され, 共振回路を構成する(Fig. 2)。共振条件の調整は整合器内の可変インダクタ  $L_m$ , 可変キャパシタ  $C_m$  を用いて行い, 磁場強度の測定にはピックアップコイルを用いた。本研究では磁場発生装置が持つ励磁能力を周波数  $f$  と磁場強度  $H$  のべき乗の積で表し, これを推定発熱指標(Estimated Heating Index : EHI)と呼ぶ。発熱体として有用とされている磁性流体の EHI は  $fH^2$  である。この装置を一定電力で稼働させ, EHI が最大になるよう共振回路の最適化を行う。

## 3. 実験結果と考察

実験より,  $7 \times 2$  巻きのコイルを使用し,  $C_m$  を 500 pF に設定して共振( $f = 417.5$  kHz)させた場合に磁性流体の EHI が最大になることがわかった(Fig. 3)。コイルの巻き数を増やす( $L_e$  を増加させる)と磁場強度は増加するが, インピーダンスが増加し励磁電流が減少する。また,  $C_m$  を増加させると励磁電流は増加するが, 共振周波数  $f$  が減少する。これらのことから EHI を最大にするための条件は一意に定まり, 空隙 100 mm の磁気回路型磁場発生装置では, 上記の条件が最適であることが明らかとなった。

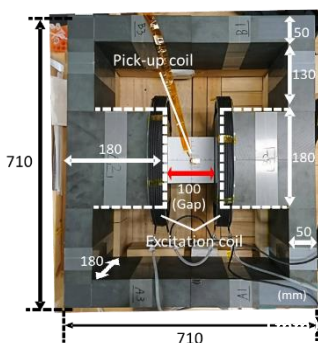


Fig. 1 Magnetic field generator

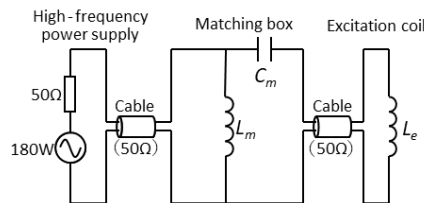


Fig. 2 Resonant circuit

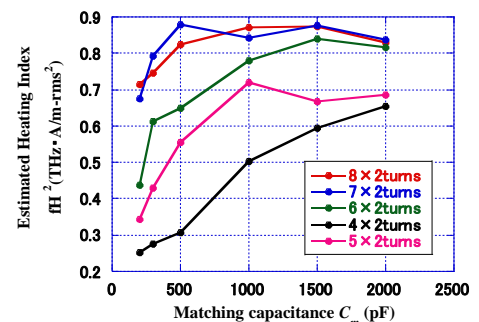


Fig. 3 Relationship between matching capacitance and estimated heat index

## 参考文献

- 1) R. Hasegawa, T. Nakagawa, S. Seino and T. A. Yamamoto, "Optimization of Resonant Circuit and Evaluation of Magnetic Field Uniformity with 50 mm Gap Magnetic Field Generator", J. Magn. Soc. Jpn 42(2018) 90-95.