

研究終了報告書

「パターン認識による磁性ナノ粒子の磁化応答学理体系化」

研究期間： 2021 年 10 月～ 2024 年 3 月

研究者： 大多 哲史

1. 研究のねらい

磁性ナノ粒子の磁化応答は、国内外研究機関で実験・理論の両側面から解析され、多くの新材料やその応用に関する研究がなされている。磁化とは磁性体の内部に存在するベクトル量で、磁性ナノ粒子の産業展開には磁化応答の理解が必要不可欠である。一例として、磁化応答由来の磁気信号による腫瘍など組織の位置検出法 (Gleich *et al.*, *Nature*, 2005.) が注目されている。しかし磁性ナノ粒子について、【問題①】磁化応答理論が、実測から得た大局的データに基づいて体系化されていないこと、【問題②】磁化応答を表す基礎理論が複雑なため、固体物理における知見が異分野に反映され難いことがボトルネックとなり、分野を超えた産業展開への障壁となっている。

磁性ナノ粒子の磁化応答は、粒子構造 (粒子径や形状)、励起磁場の条件 (強度、周波数、波形)、周囲環境 (粘性、凝集形態) によって相乗的に変化する。例えば、溶媒の粘性は粒子の物理的回転に影響を与えて磁化応答に反映され、磁化応答は周囲環境の性状に影響を受け、逆に磁化応答を観ることでその性状を測定できる。磁化応答に影響する物理パラメータの多様さに由来して、表現できる性状の多様性は計り知れない。

磁性ナノ粒子の磁化配向は、外部磁場が印加された際に、粒子内部の特定方位に磁化を拘束する作用 (磁気異方性) と印加磁場の大きさのバランスで決定する。また、液体中では磁化回転に合わせて粒子自体が物理的に回転する。ACT-X では、パラメータ間の実効的な相互依存性 (有機的相互作用) 解析による磁化応答モデル構築を目指して研究遂行した。パラメータ間の有機的相互作用とは、パラメータ間の実効的相互依存性を指す。例えば溶媒粘度と磁気異方性は元来独立したパラメータであるが、溶媒粘度の変化が実効的に磁気異方性に影響することが推測される。

本研究では、磁化応答の実測に基づいた実効的な磁気緩和時間や磁気異方性定数の解析による、実測に基づいた磁化応答モデル体系化を研究のねらいとした。このため、磁化の時間発展的な応答や、印加磁場の強度に依存した磁化配向などの複数の異なる計測方法により、磁化応答に関する情報を収集して、多様なパラメータ解析の実現を目指した。磁化応答に対する理解を深めることで、磁性ナノ粒子を用いた革新的技術創成に貢献できる。

2. 研究成果

(1) 概要

ACT-X を通して、(A)磁性ナノ粒子の時間発展的な磁化配向状態の実測範囲拡大と、複数の実測法を組み合わせることで磁気緩和時間や粒子径、磁気異方性を解析する手法を確立した。

磁性ナノ粒子の時間発展的な磁化応答を表すパラメータとして磁気緩和時間があり、粒子構造に由来するパラメータ(粒径や磁気異方性)や、印加磁場強度、周囲環境の性状(溶媒の粘性や粒子の凝集状態)に依存することが知られている。このため、パルス磁場を用いた計測法により直接実測した磁化応答から、機械学習の方法を適用して磁気緩和時間分布を解析する手法を構築した。本解析について、交流励磁下における磁化率の実測と比較した際に、解析した緩和時間分布から計算した磁化率の周波数特性が十分に一致する結果も得られ、実測可能な範囲内における解析の妥当性を確認した。ここに、磁場強度に対する磁化配向の依存性を示す曲線から解析した、粒子体積分布の情報を組み合わせることで、磁気異方性の情報を獲得できる。複数の計測手法に機械学習による解析手法を組み合わせることで、磁化応答に関わる複数パラメータの実測における解析を実現した。

(2) 詳細

研究代表者は、磁場に追従する磁化の過渡的応答(磁気緩和)から磁化配向に要する時間(磁気緩和時間)の分布についての実測に基づくデータを、理論関数に基づいた計算データを学習させたニューラルネットワークを用いて解析する手法を確立した。

磁気緩和については、静磁場に高速で遷移するパルス磁場を用いて観測を実施した。計測回路系の時定数に依存する印加磁場の遷移期間においては、磁化応答が印加磁場の変化に追従して生じるため、正確な観測を行えない。また磁化の変化が遅くなるほど、計測用のセンサコイルから得られる電圧信号が減少するため計測感度の問題から遅い磁化応答についても計測限界がある。これらの計測回路系の時定数と計測感度の兼ね合いから決定する時間領域において、磁化応答の実測に成功し、緩和時間分布の解析を実施した。(後藤, 大多* *et al*, 日本磁気学会, 2023.)。またここに、印加磁場強度に依存した磁化配向を示す曲線から解析した粒子体積分布を組み合わせ、磁性ナノ粒子の結晶性や形状など複数要因から決定する磁気異方性を示す定数の算出可能性を見出した。

さらに、解析した緩和時間分布から、交流励磁下の磁化応答を表す磁化率を計算した。交流磁場の周波数と磁気緩和時間の兼ね合いから、一般的には高周波数になるほど、磁化の振幅が減衰して、印加磁場に対する位相遅れが大きくなる。磁化の振幅と位相遅れの情報を Debye モデルにより磁化率の実部と虚部として表現することができる。交流励磁計測においても、計測回路系の時定数や感度の問題から、計測可能な周波数領域が限定される。磁化の時間発展的応答から解析した緩和時間分布に基づいて、計算した磁化率の周波数特性と、実際に交流励磁下で計測した磁化率を比較した結果、十分な傾向の一致を確認できた。

以上のように当初計画通り、3 種類の実測法を組み合わせ、総合的に磁化応答や物理パラメータを評価する手法を構築した。その一方で、特に磁気緩和計測では、磁化配向が計測時間の範囲内で収束していない場合もあることに加え、磁化が印加磁場方向へと配向し始めるナノ秒台以下の時間領域についても、高速な磁化応答に計測回路系が追従できていないため、計測が困難な状態にある。計測回路系の時定数と計測感度を考慮した正確な計測を実施可

能な時間領域において解析を実施したものが、現状の磁気緩和時間分布になる。このため、計測対象の磁性ナノ粒子本来のパラメータ解析の実現において、磁化応答を十分に広い時間領域で計測する必要性を確認した。

3. 今後の展開

現状では、磁気緩和時間分布の解析を実現できたが、磁化応答を複雑化する「粒子の物理的回転」を切り分けて解析できていない。このため、異なる実測法を追加で組み合わせることにより、粒子の物理的回転と磁化回転の間に生じる相互作用を考慮した磁化応答モデル構築を今後の目標とする。この計測から解析を含めた一連の手法の確立とモデル関数の作成は、2024年度内に実施することを考えている。

磁化応答を表す詳細なモデル構築(モデル関数作成)を実現することで、実測した磁化応答から精細なパラメータ解析を実施でき、多様な情報を得ることができる。磁性ナノ粒子の形状や表面修飾状態などの種類を変えることで、観測可能な性状も変化することも予想されるため、観測対象に対して用いる磁性ナノ粒子の最適化も今後の課題となる。

このように、磁性ナノ粒子の磁化応答解析をコア技術として、物理・化学・生物学的な現象の解明や、医療技術などにおける社会実装へ繋げていくことを今後の展開として見据えている。

4. 自己評価

4-1. 研究目的の達成状況

ACT-X の期間内においては、複数の磁化計測手法を用いたパラメータ解析の一つとして、磁気緩和時間分布の解析に成功した。そして、作成した解析アルゴリズムは、緩和時間分布のみならず、粒子体積やその他のパラメータ解析にも適用できる汎用性があることを確認した。その一方で磁化応答を表現するモデル関数の構築には、磁化応答の全貌を捉える広い時間領域や印加磁場条件を実現する計測法や、磁化自体の応答と粒子の物理的回転といった現象の分離など、必要な課題を明確化した。

4-2. 研究の進め方(研究実施体制及び研究費執行状況)

本研究は、研究提案者自身が主体となり、提案者が主催する研究室の学生の協力も得て、実測・解析手法の開発を実施した。研究費については、磁性ナノ粒子の実測に必要な電源機器類や、電子回路作製に必要な電子部品、計測用の磁性ナノ粒子購入費、ACT-X の領域会議参加における旅費において執行した。

4-3. 研究成果の科学技術及び社会・経済への波及効果

磁性ナノ粒子の時間発展的磁化応答は、物質の確率的応答や有極性分子の応答に根差している。本研究により、磁性ナノ粒子の磁化応答に関するモデル関数を作成することで、磁性ナノ粒子を先駆けとして、時間発展的応答を含む材料のAIを用いた設計や生物学的現象などのモデル化へも展開可能性という科学技術上の波及効果が期待される。

また磁性ナノ粒子は、外部磁場によって非接触に動態制御可能な材料という特徴を活用して医療分野などへの応用が可能である。例えば、温熱治療など副作用や身体的負担の少ないがん治療法により、治療の負担を軽減して患者の生活の質を大幅に改善できる。

5. 主な研究成果リスト

(1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数: 1件

1. Satoshi Ota and Yasushi Takemura, "Evaluation of magnetization dynamics influenced by Brownian relaxation in magnetic nanoparticles", International Journal on Magnetic Particle Imaging, 2023, Vol.9, No. 1, 2303055, pp. 1-5.

構造の異なる磁性ナノ粒子について、磁化応答と粒子の物理的配向の動的計測を実施して、粒子構造に依存した磁化応答への、粒子の物理的回転の寄与を解析した。

(2) 特許出願

研究期間全出願件数: 0 件(特許公開前のものは件数にのみ含む)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

- [1] 大多哲史, 小坂宏輝, 本多勁汰, 二川雅登, 清水広介, 竹村泰司, "腫瘍内に投与された磁性ナノ粒子の磁化応答に基づく緩和時間解析", 第 32 回 MAGDA コンファレンス, OS-10-13, 金沢, 2023 年 11 月 28 日.
- [2] Haruki Goto, Masato Futagawa, Yasushi Takemura, and Satoshi Ota, "Characterization of Néel relaxation time in multicore magnetic nanoparticles", Intermag 2023, XPC-12, Sentsu, Japan, 19 May 2023.
- [3] Satoshi Ota, Yasushi Takemura, "Evaluation of magnetization dynamics influenced by Brownian relaxation", 12th International Workshop on Magnetic Particle Imaging, 600, Aachen, Germany, 23 Mar. 2023.
- [4] 大多哲史, "がん診断治療への応用に向けた磁性ナノ粒子の磁化応答解析", スピン医療応用研究会, 豊中, 2023 年 3 月 1 日【招待講演】.
- [5] Haruki Goto, Yuka Akita, Ren Takahashi, Harutoyo Hirano, Masato Futagawa, Yasushi Takemura, Satoshi Ota, "Estimation of Interdepending Parameters Distribution in Magnetic Nanoparticles Based on Magnetization curves", 11th International Conference on fine particle magnetism, P2-24, Yokohama, Japan, 20 Oct. 2022.