

氏名	鈴木 聖弥
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	令和5年9月26日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科専攻	秋田県立大学大学院システム科学技術研究科 博士後期課程総合システム科学専攻
学位論文題目	<b>Regime Change in Aggregate Structures of Magnetic Particles in a Time-Dependent Applied Magnetic Field and the Heating Effect due to the Brownian Relaxation Mechanism (Brownian Dynamics Simulations)</b> (時間依存型磁場中での凝集形態転移およびブラウン緩和メカニズムによる発熱効果(ブラウン動力学シミュレーション))
主指導教員	<u>教授 佐藤 明</u>
論文審査委員	主査 <u>教授 佐藤 明</u>  副査 <u>主幹研究員 廣田 憲之</u> (国立研究開発法人 物質・材料研究機構) <u>教授 安藤 努</u> (日本大学 生産工学部 機械工学科) <u>准教授 小方 聡</u> (東京都立大学 システムデザイン学部 機械システム工学科)

## 論文内容要旨

磁性粒子サスペンションは、流体工学や磁気材料工学、医用工学など様々な分野で大きな応用の可能性を秘めている。流体工学分野では、磁気粘性効果を利用した磁気制御型ダンパーやアクチュエータの開発が試みられている。機能性流体は、一般に、磁場または電場のいずれかの影響下でその機能特性を示すものとして分類される。外部磁場に応答する典型的な機能性流体は、磁性流体と磁気粘性流体(MRサスペンション)である。近年、磁性粒子サスペンションは、医用工学分野における応用に関して様々な研究者によって精力的に研究されている。上述の分野で使用される磁性粒子は、球状や棒状(スピンドル状)、ディスク状、キューブ状などの様々な幾何学的形状を有する。これらの様々な形状を有する粒子は、近年の調製技術の進歩により合成が可能となっている。本研究で注目している医用工学分野における磁性粒子の代表的な応用例の一つに磁気温熱治療がある。これは、発熱効果により腫瘍やがん細胞のみを死滅させる治療法である。この発熱のメカニズムには、ネール緩和とブラウン緩和の2つがある。これまでの研究では主にネール緩和による発熱効果に対して焦点が当てられてきた。近年では、より大きな粒子を用いたブラウン緩和に基づく発熱効果についても研究がなされている。

このような背景から、本研究では様々な形状を有する磁性粒子サスペンションの時間依存型磁場中における挙動やブラウン緩和に基づく発熱効果を明らかにした。本論文から得られた結果を総括すると以

下のようになる。まず、比較的取り扱い易い球状磁性粒子サスペンションを対象に、振動磁場中における粒子の挙動と発熱効果を検討した。発熱効果は粒子間磁気力の影響と磁場の影響の大小関係で発熱効果を向上あるいは低下させることが明らかとなった。次に、もう一つの代表的な磁場である回転磁場に注目した。凝集体の有無と印加磁場の周波数によって発熱効果が大きく異なることが明らかとなった。さらに粒子形状による影響を検討するために、棒状およびディスク状粒子に着目した。まず、球に比べて母液との摩擦が大きい棒状粒子を対象に、振動および回転磁場中における挙動を解析した。磁場の種類により発熱効果の特徴が大きく異なることが明らかとなった。次に、面接触による強固な凝集体による発熱効果の向上を期待してディスク状粒子を採用し、振動磁場中における挙動を解析した。また、棒状粒子の場合と比較して発熱効果を詳細に検討した。本研究から、粒子形状および磁場の形態などによって効果的な発熱効果が得られる状況が異なることが明らかとなった。具体的には、高周波数領域では、棒状磁性粒子に回転磁場を印加した場合に高い発熱効果が得られる。一方で低周波数領域では振動磁場を印加したディスク状粒子が有効である。さらには、正弦波と三角波を合成した修正型の振動磁場を印加することにより、低周波数領域における発熱効果の向上を確認した。

以上のように、本研究は、磁性粒子サスペンションを用いた磁気温熱療法への応用に際して、重要な知見を与えるとともに、医用工学分野における学問的な体系化に大きく寄与するものである。

以下に各章の概要を示す。

第1章の「Introductory remarks」では、本論文の研究背景とともに、磁性粒子の工学的応用、ならびに、研究目的について論じた。

第2章の「The behavior and heating effects of spherical magnetic particles in an alternating magnetic field」では、比較的取り扱い易い球状磁性粒子分散系を対象に、振動磁場中における粒子の挙動と発熱効果をブラウン動力学法により解明した。鎖状クラスタが磁場方向に形成されている状況では、粒子の磁気モーメントの磁場に対する応答は粒子間磁気力の影響により大きく遅れる。一方で粒子間の磁気的な相互作用が弱く凝集体が形成されない状況下では、粒子の運動を妨げる主たる要因は母液との間の摩擦抵抗のみとなり、粒子の配向は他の状況に比べ早くなる。粒子間の磁気的な相互作用の強さが不十分であり凝集体が形成されない状況下では、粘性摩擦力のみが磁気モーメントの磁場方向に対する配向を遅らせる主な要因となるため、粒子の配向の応答が他の場合に比べ比較的早くなる。粒子間磁気力が強く、また、磁場の影響が粒子間磁気力に比べ支配的な状態では、磁場方向に伸びた大きな鎖状クラスタが形成される。この状況下では、鎖状クラスタが大きな抵抗として働き、発熱効果を向上させる。

第3章の「Unexpected characteristics of spherical particles in an alternating magnetic field」では、球状磁性粒子の安定した凝集体が発熱効果を低下させるという予期せぬ特性について着目し、詳細に議論した。発熱効果はある条件下では粒子間磁気力の増加に伴って向上するが、さらに粒子間磁気力が強くなると発熱効果は低下へと転じる。本研究から、発熱効果の低下の原因は以下のように結論付けることができる。粒子間の磁気的な相互作用の強さが増加し磁場の影響よりも支配的になると、粒子は環状クラスタを形成し磁場に反応を示さなくなる。そのため磁場-磁化曲線のヒステリシスループの面積が小さくなり、発熱効果は減少するようになる。反対に、磁場の影響が支配的な場合には、クラスタを構成する粒子の磁気モーメントは磁場の変化に対して遅れながらも反応することができ、その結果、発熱効果は向上する。

第4章の「The behavior and heating effects of spherical magnetic particles in a rotating magnetic field」では、もう一つの代表的な経時変化する磁場である回転磁場に注目し、球状磁性粒子の挙動について明らかにした。また、前章までで扱った振動磁場の場合と比較することにより発熱特性について詳細に議論した。

系内に鎖状のクラスタが形成され、鎖状クラスタが回転する状況では、非常に大きな加熱効果が得ら

れる。粒子間磁気力が支配的な状況下では、粒子はリング状クラスタを形成する。リング状クラスタを構成する粒子の磁気モーメントは、磁場に対して反応を示さない。そのため、安定したリング状クラスタを形成する状況では、回転磁場中において大きな発熱効果は得られない。今回の結果と前章までの振動磁場の結果を比較すると、粒子の挙動と発熱効果には大きな特徴の相異が見られた。振動磁場の場合、磁場の変化に応答するためクラスタ内において粒子単体で回転する傾向があるが、回転磁場の場合、鎖状クラスタは一部が分離、再結合をするものの、クラスタとして回転する傾向がある。発熱効果は、回転磁場を印加した場合、振動磁場に比べてより強い粒子間磁気力が作用する状況においても十分に大きな加熱効果が得られる。したがって、粒子間の磁気的な相互作用が強い場合には、振動磁場よりも回転磁場の方が適していると言える。

第5章の「The behavior and heating effects of rod-like magnetic particles in an alternating and a rotating magnetic field」では、棒状磁性粒子サスペンションを対象に、振動磁場および回転磁場中における粒子の挙動と発熱効果を検討した。近年の調製技術の進歩により、様々な形状を有する粒子が調製させるようになった。本研究では、その中でも、球状粒子よりも強い摩擦抵抗が期待される棒状粒子に着目した。振動および回転磁場の両方に共通する特徴として、粒子間相互作用の強さが非常に強い場合には、棒状粒子は鎖状のクラスタではなく、密集した塊状のクラスタを形成する。このクラスタの構成粒子は互いに反対方向に傾斜する。振動磁場の場合、中間程度の周波数領域では、磁場の方向に沿って太い鎖状クラスタが形成され、クラスタを形成する棒状粒子は粒子自体が振動磁場の変化に追従して回転する傾向がある。対照的に、回転磁場の場合、線状クラスタは磁場の回転に反応して全体が回転する傾向がある。どちらの磁場においても、磁場の変化に対してクラスタの構成粒子間の磁気的な相互作用が粒子の緩和運動に対する抵抗として働き、その結果、磁場の影響が粒子間磁気力の影響に比べて支配的な状況下において発熱効果は向上する。磁場の形態と発熱効果について注目すると、比較的高い周波数領域においては、回転磁場を印加した方が高い発熱効果が得られる傾向がある。これは、回転磁場の場合、粒子は磁場に対して追従するために常に回転し続けるため、磁場の変化によって大きく回転する必要がある振動磁場よりも磁場に対して追随性が高くなる傾向があるためである。一方で低周波数領域では、より大きな摩擦抵抗が得られる振動磁場の方が効果的である。また、振動磁場の場合、発熱効果は、粒子間磁気力、磁場の強さ、振動数に強く影響される。一方で、回転磁場の場合、磁場の強さは粒子間磁気力が発熱効果に対して効果的に作用する範囲を決めるのみで、発熱効果に対する直接的な影響は小さい。

第6章の「The behavior and heating effect of disk-like magnetic particles in an alternating magnetic field (Sine and modified magnetic field)」では、面接触による強固な凝集体の形成による発熱効果の向上を期待して、ディスク状磁性粒子を採用し、振動磁場中における粒子の挙動と発熱効果を検討した。また、前章で扱った棒状磁性粒子の場合と比較することにより発熱特性を詳細に議論した。さらには、印加磁場を修正することにより発熱効果の向上を試みた。棒状やディスク状粒子に対して比較的高周波数の磁場を印加した場合、ディスク状粒子に比べ棒状粒子の方がより高い発熱効果が得られる傾向がある。これは、粒子形状の違いによる母液との間の摩擦の大きさの差が原因である。棒状粒子の方が高い周波数領域でも磁場に対して追従するためである。一方で低周波数領域においては、より大きな粘性抵抗を得られるディスク状粒子の方が効果的である。また、本研究では、正弦波に位相をずらした三角波を加えることにより磁場の改良を行った。ここで提案した磁場の特徴は、従来型の磁場に比べ磁場の切り替わりから最大値を取るまでの時間が短くなることにある。そのため、粒子は短時間で磁場方向に大きく回転する必要があり、高い発熱効果が期待される。比較的高い周波数の修正型磁場を印加した場合、粒子の磁場に対する追随性は悪化するため、発熱効果は低下する。一方で粒子の磁気モーメントが磁場に対して十分に追従できる低周波数領域では、短時間に大きく粒子が回転をしようとするため、より大きな摩擦が生

じ，発熱効果が向上する。

第7章の「Summary and concluding remarks」では，本研究で得た結果を総括するとともに，今後の研究展望を論じた。

論文提出者氏名	鈴木 聖 弥
論文 題 目	Regime Change in Aggregate Structures of Magnetic Particles in a Time-Dependent Applied Magnetic Field and the Heating Effect due to the Brownian Relaxation Mechanism (Brownian Dynamics Simulations) (時間依存型磁場中での凝集形態転移およびブラウン緩和メカニズムによる発熱効果(ブラウン動力学シミュレーション))
主 指 導 教 員	佐藤 明
副 指 導 教 員	二村 宗 男
論文審査委員	主査 教 授 佐藤 明 副査 主幹研究員 廣田 憲之 (国立研究開発法人 物質・材料研究機構) 教 授 安藤 努 (日本大学 生産工学部 機械工学科) 准教授 小方 聡 (東京都立大学 システムデザイン学部 機械システム工学科)

## 論文審査結果要旨

本論文は、時間依存型磁場中における磁性粒子サスペンションの凝集体の内部構造および発熱効果に関して、ブラウン動力学法により解析したものである。本博士論文は緒論および結論を含めて7章より構成される。

第1章では、本論文の研究背景とともに磁性粒子の工学的応用例、ならびに、研究目的について論じている。第2章では、比較的取り扱い易い振動磁場中における球状磁性粒子を対象に粒子の挙動を解析し、粒子の凝集現象と発熱効果の関係性を明らかにしている。第3章では、球状磁性粒子の安定した凝集体の形成が発熱効果の低下を引き起こすという予期せぬ特性について詳細に議論している。第4章では、回転磁場について取り上げ、球状磁性粒子の凝集体および発熱効果について第2章および第3章で扱った振動磁場を印加した場合の結果と比較することにより詳細に検討している。第5章では、上記の研究を棒状磁性粒子へと拡張し、振動および回転磁場中における凝集現象と発熱効果について解析している。第6章では、摩擦抵抗の増加および面接触による強固な凝集体の形成が発熱効果に対して効果的に作用することを期待してディスク状磁性粒子を採用し、振動磁場中における挙動と発熱効果について第5章の棒状粒子の結果と比較し評価している。さらには、印加磁場を修正することにより発熱効果の改善を試みている。第7章では、本研究で得た結果を総括するとともに、今後の研究展望を論じている。

本研究の研究成果は、時間依存型磁場中における磁性粒子の凝集体の内部構造と発熱効果について粒子ベースのシミュレーション法により詳細に解明したものであり、磁性粒子サスペンションを用いた磁気温熱療法への応用に際して、重要な知見を与えるとともに、医用工学分野における学問的な体系化に大きく寄与するものと考えられる。なお、本論文の研究成果は、International Journalに4編、和文論文集に1編、国際会議に4件、国内学会に4件として既に公開されている。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。