

研究テーマ (和文) AB	カーボンナノチューブ DDS の基盤技術形成				
研究テーマ (欧文) AZ	Development of techniques for DDS using carbon nanotube carrier				
研究氏 代表 者	カタカナ CC	姓) ムラカミ	名) トシヤ	研究期間 B	2014 ~ 2015 年
	漢字 CB	村上	俊也	報告年度 YR	2015 年
	ローマ字 CZ	Murakami	Toshiya	研究機関名	和歌山大学
研究代表者 CD 所属機関・職名	村上俊也 和歌山大学 助教				

概要 EA (600 字～800 字程度にまとめてください。)

【背景】カーボンナノチューブ (CNT) の有するナノサイズの内部空間を活用してドラッグデリバリーシステム (DDS) のキャリアとして用いる場合、内部空間へ物質内包の手法は開示されているが、被内包物の取り出し手法が確立していないという課題があった。そこで我々は、放射線照射欠陥導入法[1]を活用して、図 1 に示すような CNT 壁に孔を形成して被内包物を取り出す手法を考案し、実験的検証を行った。この手法の特徴は、図 2 に示したように放射線の照射位置と ON・OFF の制御により、CNT の吸着選択性の有無にかかわらず薬剤の放出位置とタイミングを制御できることにあり、従来の放射線治療法との複合治療による新しい治療方法として発展する可能性が高い。

【実験】単層構造の CNT を使用し、被内包物にモデル物質としてフェロセンを用いた。これらを真空封管して加熱 (200℃) することで[2]、フェロセン内包 CNT を作製した。フェロセン内包 CNT に放射線 (X 線) 照射した後、熱アニール (300℃) (欠陥の回復[1]) を行った。各試料は、ラマン散乱分光法と分析電子顕微鏡による元素分析により評価した。

【結果と考察】図 3 にフェロセン内包前後と、X 線照射後、熱アニール後のラマンスペクトルを示す。D バンド (欠陥誘起なモード) の強度に着目すると、X 線照射後の増大と熱アニール後の減少は、それぞれ欠陥の形成と修復を示している。他方、ラジアルブリージングモード (RBM) (炭素の直径方向の振動様式) に着目すると、フェロセン内包後に高波数シフトした。その後の X 線照射では変化しないが、熱アニールで元の周波数に戻った。過去の文献や、物質を内包しない CNT を用いた様々な RBM 変化の比較検証により、図 3 に示した RBM 周波数の挙動は、図の右側に示したイラストのように、欠陥が入った後にフェロセンが外部に放出され、その後の熱アニールにより欠陥が修復されたモデルが考えられる。また、X 線照射前後の元素分析解析から、フェロセン構成物である鉄の濃度が 0.24 から 0.15atom% に減少したことは RBM 解析の結果をサポートする。

今後、CNT を用いた DDS の実用的な検討を行うことで、効率的ながん等の治療方法として、医療応用の面で高い波及効果が期待される。さらに、放射線照射欠陥の熱アニールによる欠陥制御により CNT 内に新規なナノ構造体を形成することも分かり、放射線誘起欠陥は様々な分野に波及効果のある技術となる可能性がある。

[1] T. Murakami, et.al., J. Appl. Phys. **114** (2013) 114311. [2] Y. F. Li, et. al., Nanotechnology **17** (2006) 4143.

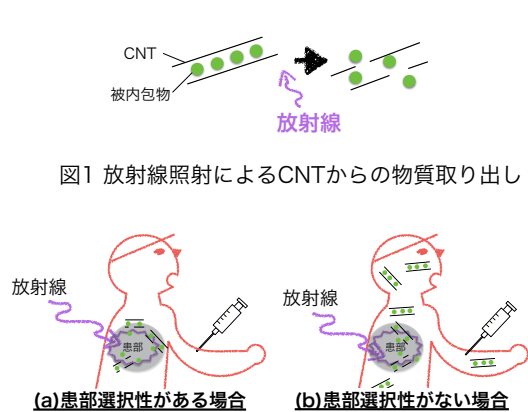


図1 放射線照射によるCNTからの物質取り出し

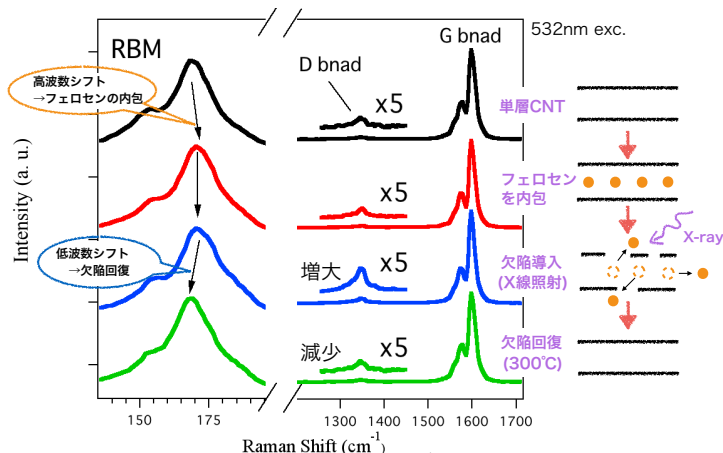


図3 モデル物質の内包および取り出しにおけるラマンスペクトル

キーワード FA	カーボンナノチューブ	ドラッグデリバリーシステム	欠陥	放射線
----------	------------	---------------	----	-----

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA									
研究機関番号 AC					シート番号									

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	フェロセンを内包した単層カーボンナノチューブのラマン散乱評価							
	著者名 <sup>GA</sup>	本田 惇, 村上俊也, 木曾田賢治, 伊東千尋	雑誌名 <sup>GC</sup>	2015 年秋季第 76 回応用物理学会学術講演会講演予稿集					
	ページ <sup>GF</sup>	15-152	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	5	巻号 <sup>GD</sup>	
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	X 線照射および熱アニーリングによる単層カーボンナノチューブ内への新規ナノ構造形成							
	著者名 <sup>GA</sup>	村上俊也, 磯崎 哲, 橋本翔平, 木曾田賢治, 伊東千尋	雑誌名 <sup>GC</sup>	2015 年秋季第 76 回応用物理学会学術講演会講演予稿集					
	ページ <sup>GF</sup>	15-063	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	5	巻号 <sup>GD</sup>	
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	X 線照射欠陥から作製した単層カーボンナノチューブ内の炭素鎖構造のラマンイメージング評価							
	著者名 <sup>GA</sup>	村上俊也, 木曾田賢治, 伊東千尋	雑誌名 <sup>GC</sup>	2015 年秋季第 76 回応用物理学会学術講演会講演予稿集					
	ページ <sup>GF</sup>	15-151	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	5	巻号 <sup>GD</sup>	
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	Formation of carbon-nanostructure from X-ray induced defect in single-walled carbon nanotubes							
	著者名 <sup>GA</sup>	村上俊也, 磯崎 哲, 本田 惇, 木曾田賢治, 伊東千尋	雑誌名 <sup>GC</sup>	International Conference on Diamond Carbon Materials					
	ページ <sup>GF</sup>	O7B.4	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	5	巻号 <sup>GD</sup>	
雑誌	論文標題 <sup>GB</sup>	カーボンナノチューブの X 線誘起欠陥を利用した新規ナノ構造体の作製							
	著者名 <sup>GA</sup>	村上俊也, 松田充晃, 木曾田賢治, 伊東千尋	雑誌名 <sup>GC</sup>	日本顕微鏡学会 第 71 回学術講演会					
	ページ <sup>GF</sup>	P_M-28	発行年 <sup>GE</sup>	2	0	1	5	巻号 <sup>GD</sup>	

#### 欧文概要<sup>EZ</sup>

Carbon nanotubes (CNT) are good candidates for carriers of drug delivery system (DDS) because various molecular nanomaterials are easily incorporated into CNTs. However, it has not been established the method to release the molecules from CNTs. In this work, we have developed the technique of releasing molecules from CNTs utilizing radiation defects in CNT walls. This method can control the position and timing of releasing drug from CNTs by ON-OFF of X-ray irradiation. Therefore, our method can be developed as the new medical techniques for cancer.

Ferrocene and single-walled CNTs were used as model materials in this study. Ferrocene-incorporated CNTs were prepared by a vapor diffusion method in vacuum. The ferrocene-incorporated CNTs were X-ray-irradiated to form defects in CNTs and release ferrocene from them. Then, they were annealed at 300 °C in inert gas to recover the X-ray-induced defects.

Each sample was characterized by Raman spectroscopy. D band (defect induced mode) and RBM (radial breathing modes) of pristine, ferrocene-incorporated, X-ray-irradiated, and thermal-annealed samples were carefully compared. The D band analysis clearly showed that defects were formed in CNT wall by X-ray irradiation and the defects were eliminated by thermal annealing. Moreover, from the analysis of RBM frequency, we found that the ferrocene was released from ferrocene-incorporated CNT by formation of X-ray-induced defects. This result corresponded to that of energy dispersive X-ray spectroscopic analysis: the iron concentration of the ferrocene-incorporated CNTs were reduced from 0.24 to 0.15 atom% after X-ray irradiation.

For realizing the new DDS techniques utilizing the radiation irradiation, we have much work to break through. For example, the control of the amount of releasing materials and the investigation of the radiation-irradiated effects for the incorporated materials in CNTs are important issues.

Additionally, we found the new Raman peaks derived from the new nano-structure that grew in CNT samples by thermal annealing of the X-ray induced defects. Therefore, radiation irradiation method is interesting not only in DDS application but also in material science.