



Pannon Egyetem
Vegyésszmérnöki- és Anyagtudományok Doktori Iskola

Mágneses kolloidok viselkedése külső elektromágneses terekben

DOKTORI (PhD) ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

Készítette:
Guba Sándor
okleveles környezetmérnök

Témavezető:
Dr. Szalai István
egyetemi tanár

2020

Bevezetés

Az intelligens, adaptív vagy okos anyag elnevezést először az 1980-as években alkalmazták olyan anyagokra, amelyek tulajdonságaik megváltoztatásával alkalmazkodnak a környezeti változásokhoz. Az intelligens anyagoknak egyik nagy csoportját a lágy intelligens anyagok alkotják. A ferrokolloidok, vagy más néven mágneses folyadékok alatt az intelligens anyagok egy speciális fajtáját értjük. A ferrokolloidok részecskéinek mérettartománya nanométer nagyságrendű, stabil rendszert képesek alkotni a hordozóközegükkel. A részecskék monodoménus szerkezetűek, ezért szuperparamágneses tulajdonságot mutatnak. Ezeket az anyagokat többféle módon lehet hasznosítani. Napjainkban az ipari és gyógyászati felhasználásban jelentős igény mutatkozik az ilyen típusú anyagok fejlesztésére. A kutatások fő irányai a különböző anyagok előállítási lehetőségeinek kutatása, karakterizációja és a felhasználási területek feltárása. A kutatómunkámban kifejezetten a mágneses térre érzékeny intelligens anyagokkal, a ferrokolloidokkal foglalkoztam. Ezek az anyagok mágneses tér hatására képesek a különböző makroszkópikus paramétereiket megváltoztatni.

Célkitűzés

Mivel az egyes felhasználási területeken eltérő tulajdonságokat használnak ki, a kutatás célja a mágneses folyadékok fontosabb paramétereinek mágneses térerősségtől való függésének meghatározása volt. A kísérleti munka során három nagyobb célt tűztem ki. Meghatározom a mágneses folyadékcseppekre ható erőt inhomogén mágneses térben. Különböző felületeken mérem a mágneses folyadékcseppek kontaktszögének mágneses tér hatására bekövetkező változását. További cél volt egy mérőrendszer fejlesztése és tesztelése a mágneses folyadékok hipertermiás felhasználásának vizsgálatára.

Kísérleti munka

A kísérleti munka a kitűzött célokhoz hasonlóan három nagyobb területre tagolódik. Az első témában a mágneses folyadékcseppre ható erő meghatározását végeztem el inhomogén mágneses tér alkalmazásával, amely orvosi biológiai felhasználások során lehet fontos. A kísérletek során többféle térerősség érték mellett mértem különböző méretű mágneses folyadékcseppekre ható erőt, majd a kísérleti adatokat elméleti számolással hasonlítottam össze. A cél olyan modell kidolgozása volt, amellyel a folyadékcseppek tulajdonságainak ismeretében a csepp és a környezete közötti kölcsönhatások becsülhetők.

A második téma keretében a mágneses folyadékcseppek mágneses tér hatására bekövetkező kontaktszög változását vizsgáltam hidrofíli és hidrofób felületeken. A kutatás célja a kontaktszög, és így a nedvesítési tulajdonságok térfüggésének meghatározása volt.

A harmadik témában a mágneses folyadékok terápiás célú hipertermiás vizsgálatához használható differenciál cellás és differenciális hőmérsékletmérést alkalmazó mérőrendszer fejlesztését mutatom be. A kutatás célja egy váltakozó mágneses térben használható, alacsony költségű módszer kifejlesztése volt, amely a jelenleg használt hőmérsékletmérési módokhoz hasonló, vagy jobb mérési pontosságot tesz lehetővé.

Új tudományos eredmények, tézisek

1. Saját fejlesztésű eszközzel, többféle térerősség érték mellett mértem különböző méretű biokompatibilis szuperparamágneses magnetit nanorészecskéket tartalmazó folyadékcseppekre ható erőt. (Vonatkozó publikációk: [C3], [K5])
 - 1.1. Megállapítottam, hogy a ferrokolloid cseppekre ható erő elfogadható pontossággal közelíthető a magnetit részecskék megfelelő paraméterekkel számolt Langevin-féle mágnesezettség alapján, feltéve, hogy a térerősséget a modified mean field (MMF2) modellel számoljuk.

Kis intenzitású inhomogén mágneses térben (39,9-83,1) kA m⁻¹ térerősség és (810-7195) kA m⁻² gradiens mellett végzett mérésakor az elméleti és kísérleti adatok nagysága közel azonos (10%-on belüli). Közepes intenzitású inhomogén mágneses térben (79,4-169,3) kA m⁻¹ térerősség és (1734-15027) kA m⁻² gradiens mellett végzett mérésakor a mágnes pólusához közel nagy gradiensnél és 150 kA m⁻¹ felett a számított adatoknál nagyobb, kis gradiensnél és 100 kA m⁻¹ alatt pedig kisebb értékeket mértem. Nagy intenzitású inhomogén mágneses térben (117,7,9-251,0) kA m⁻¹ térerősség és (2440-21929) kA m⁻² gradiens mellett végzett mérésakor nagy gradiensnél és 175 kA m⁻¹ felett kiugróan nagyobb értékeket mértem az elméleti számításhoz képest az 5,19 m/m%-os magnetit koncentrációjú minta esetében. Kis gradiensnél és 150 kA m⁻¹ alatt azonban a számolt és mért adatok értékeinek nagysága közel azonos (10%-on belüli).
 - 1.2. A mérések során három féle magnetit koncentrációt vizsgáltam három különböző cseppmérettel. Megállapítottam, hogy a modell a legnagyobb cseppméret (73 µl) esetén alacsony koncentrációnál (2,58 m/m%) felülbecsüli, nagyobb koncentrációnál (5,19 m/m%) pedig alábecsüli a mért értékeket.
2. Saját fejlesztésű eszközökkel mértem a mágneses folyadékcseppek mágneses tér hatására bekövetkező kontaktszög változását hidrofíl (szilícium lap) és hidrofób (PDMS) felületeken különböző hőmérsékleteken. (Vonatkozó publikációk: [C2], [K2], [K3], [K4])
 - 2.1. Megállapítottam, hogy a kontaktszögek kis térerősség esetén (10 kA m⁻¹-ig) a magnetit koncentrációjával arányosan csökkennek a térerősség növelésével mindkét felület típus esetén. PDMS felületen a szilícium lap felületen mért értékekhez képest eltérés tapasztalható a változás jellegében a legnagyobb vizsgált koncentrációnál (5,80 V/V%). 10 kA m⁻¹ mágneses térerősség felett a változás tendenciája megfordul (lokális minimum alakul ki).
 - 2.2. Nagy térerősség esetén (10 kA m⁻¹ felett) hidrofób felületen a kontaktszög változásának tendenciája megfordul (lokális minimum alakul ki), a legnagyobb vizsgált koncentráció (5,80 V/V%) esetén a kezdetinél nagyobb kontaktszögeket is mértem. Hidrofíl felület esetében ezt a jelenséget a legnagyobb vizsgált koncentráció esetén tapasztaltam. Mindkét felület esetében elmondható, hogy a kontaktszög-változások tendenciája függ a hőmérséklettől, azonban a lokális minimum a különböző felületeken más-más térerősség értékeknél jelenik meg. Szilícium lap felületen ez a minimum 35 kA m⁻¹ és 40 kA m⁻¹ között, a PDMS felületen alacsonyabb, 10 kA m⁻¹ és

20 kA m⁻¹ (15 °C), valamint 5 kA m⁻¹ és 10 kA m⁻¹ (24 °C) közötti térerősségeknél található.

3. Szerves oldószer és vízbázisú ferrokolloidok SLP értékeit határoztam meg differenciálcellás műszer és saját fejlesztésű differenciális hőmérsékletmérési módszer együttes alkalmazásával. A két tekercses elrendezés lehetővé teszi, hogy a kolloiddal egy időben a referencia anyag mérése is megtörténjen, így a mérési eredményt befolyásoló hőeffektus kiküszöbölhető. (Vonatkozó publikációk: [C1], [K1])

3.1. Megállapítottam, hogy a differenciál cellás elrendezés és differenciális hőmérsékletmérés hatékonyan alkalmazható hígított kolloidok (5,80 V/V%) és alacsony intenzitású ($0,32 \pm 0,01$ kA m⁻¹) mágneses tér esetén. A méréseket klinikai körülményeknek megfelelő frekvencia (480 ± 1 kHz) és térerősség értékeken végeztem.

3.2. Megállapítottam, hogy differenciális üzemmódban olyan hőmérséklet érzékelő szenzorokat (T és K típusú termoelem, Pt100 RTD) is lehet váltakozó mágneses térben való relatív hőmérsékletmérésre használni, amelyek anyaguk miatt alapesetben érzékenyek a nagyfrekvenciás (300 kHz-800 kHz) terekre. A kísérletek során megállapítottam, hogy a váltakozó mágneses tér egyedi hőmérséklet érzékelő szenzorok alkalmazása esetén jelentősen befolyásolhatja a mérési eredményeket.

3.3. Megmutattam, hogy a váltakozó mágneses tér okozta önmelegedés a differenciális méréssel kompenzálható, így egyéb kiegészítő mérések nélkül alkalmas a relatív hőmérsékletváltozás követésére.

3.4. A különböző hőmérséklet érzékelő szenzorokkal mért hőmérsékletváltozás alapján kiszámolt $0,050 \text{ W g}^{-1}$ és $0,093 \text{ W g}^{-1}$ közötti SLP értékek jó egyezést mutattak. Megállapítottam, hogy az SLP értékek fordítottan arányosak a kolloidok koncentrációjával, a két vizsgált kolloid esetében a hígított mintáknál 77% és 57%-os növekedést tapasztaltam, rendre az EMG700 és EMG900 kolloidoknál. Az ILP értékek összhangban vannak az irodalmi adatokkal.

3.5. A differenciális mérési módszer nagyobb térerősségen való alkalmazhatóságát az EMG900-100 típusú kolloid méréssel igazoltam ($0,53 \pm 0,02$) kA m⁻¹ térerősségen, 480 kHz frekvencia mellett. A kolloid SLP értéke ($0,131 \pm 0,004$) W g⁻¹-nak adódott, amely alapján megállapítható, hogy négyzetes összefüggés tapasztalható az SLP és a mágneses tér erőssége között.

Tézispontok alapjául szolgáló tudományos publikációk, előadások és poszterek

- [C1] **Guba, S.;** Horváth, B.; Molnár, G. and Szalai, I.: A double cell differential thermometric system for specific loss power measurements in magnetic hyperthermia, *Measurement*, (2020), IF (2019): 3,364, Q1
<https://doi.org/10.1016/j.measurement.2020.108652>
- [C2] **Guba, S.;** Horváth, B. and Szalai, I.: Examination of contact angles of magnetic fluid droplets on different surfaces in uniform magnetic field, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, (2019), IF (2019): 2,954, Q2
<https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2019.166181>
- [C3] **Guba, S.;** Horváth, B. and Szalai, I.: Determination of the Force Acting on Biocompatible Ferrofluid Droplets in Inhomogeneous Magnetic Field, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 444 (2017), IF (2017): 3,233, Q1
<https://doi.org/10.1016/j.jmmm.2017.08.022>
- [K1] **Guba, S.;** Horváth, B.; Molnár, G. és Szalai, I.: Mágneses folyadékok melegedésének vizsgálata váltakozó mágneses térben, XXI. Energetika-Elektrotechnika – ENELKO és XXX. Számítástechnika és Oktatás – SzámOkt Multi-konferencia
- [K2] **Guba, S.;** Horváth, B. és Szalai, I.: Mágneses folyadékcseppek kontaktszögének meghatározása mágneses térben különböző hőmérsékleteken In: Dr. Sebestyén-Pál, György; Dr. Szabó, Loránd; Dr. Biró, Károly-Ágoston (szerk.) ENELKO 2019 SzámOkt 2019: XX. Nemzetközi Energetika-Elektrotechnika Konferencia, XXIX. Nemzetközi Számítástechnika és Oktatás Konferencia, Erdélyi Magyar Műszaki Tudományos Társaság (EMT), (2019) pp. 38-44., 7 p., Kolozsvár, Románia, 2019. október 10-13.
- [K3] **Guba, S.;** Horváth, B. and Szalai, I.: Examination of contact angles of magnetic fluid droplets on different surfaces in uniform magnetic field, *International Conference on Magnetic Fluids – ICMF 2019*, Párizs, Franciaország, 2019. július 8-12.
- [K4] **Guba, S.;** Horváth, B. és Szalai, I.: Mágneses folyadékcseppek kontaktszögének meghatározása különböző felületeken In: Barabás, István (szerk.) XXVII. Nemzetközi Gépészeti Konferencia OGÉT 2019, Erdélyi Magyar Tudományos Társaság (EMT), (2019) pp. 153-156., 4 p. Nagyvárad, Románia, 2019. április 25-28.
- [K5] **Guba, S.;** Horváth, B. és Szalai, I.: Biokompatibilis szuperparamágneses folyadékcseppekre ható erő meghatározása inhomogén mágneses térben, In: Biró, K. Á; Sebestyén, P. Gy (szerk.) ENELKO 2016 - XVII. Nemzetközi Energetika-Elektrotechnika Konferencia, SzámOkt 2016 - XXVI. Nemzetközi Számítástechnika és Oktatás Konferencia, Kolozsvár, Románia: Erdélyi Magyar Műszaki Tudományos Társaság (EMT), (2016) pp. 47-52., 6 p., ENELKO, Kolozsvár, 2016. október 6-9.

Egyéb tudományos publikációk, előadások

1. Horváth, B.; Rigó, M.; **Guba, S.**; Szalai, I. and Barabás, R.: Magnetic field response of aqueous hydroxyapatite based magnetic suspensions, *Heliyon* 5: 4 p. (2019), <https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2019.e01507>
2. Méndez-Bermúdez, J. G., Dominguez, H.; Pusztai, L.; **Guba, S.**; Horváth, B. and Szalai, I.: Composition and temperature dependence of the dielectric constant of 1-propanol/water mixtures: Experiment and molecular dynamics simulations, *Journal of Molecular Liquids* 219 pp. 354-358, (2016) <http://dx.doi.org/10.1016/j.molliq.2016.02.053>
3. Horváth, B.; **Guba, S.** és Szalai, I.: Mágneses folyadékok és szuszpenziók viselkedése külső mágneses térben, Balogh, András; Klein, Mónika (szerk.) *Konferencia Kiadvány* (2019) p. 43, Műszaki Kémiai Napok 2019, Veszprém, 2019. április 16-18.
4. Horváth, B.; **Guba, S.**; Rigó, M. és Szalai, I.: Mágneses folyadékok és szuszpenziók mágneses és reológiai tulajdonságai, Műszaki Kémiai Napok, Veszprém, 2018. április 24-26.
5. **Guba, S.**; Horváth, B. és Szalai, I.: Mágneses részecskéket tartalmazó kompozit elasztomerek készítése és mechanikai vizsgálata, XXIII. Nemzetközi Vegyészkonferencia, Déva, Románia, 2017. október 25-28.
6. **Guba, S.**; Horváth, B. és Szalai, I.: N-ZVI tartalmú kompozit elasztomerek vizsgálata, Energetika-Elektrotechnika Konferencia - ENELKO 2017, Nagyvárad, 2017. október 12-15.
7. **Guba, S.**; Balogh, D.; Horváth, B. és Szalai, I.: Mágneses kompozit elasztomerek készítése és mechanikai vizsgálata, Nemzetközi Gépészeti Találkozó – OGÉT, Kolozsvár, 2017. április 27-30.
8. **Guba, S.**; Horváth, B. és Szalai, I.: Biokompatibilis szuperparamágneses folyadékcseppekre ható erő meghatározása inhomogén mágneses térben, PhD hallgatók anyagtudományi napja XVI., Veszprém, 2016. november 28.