

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 20 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560049

研究課題名（和文）磁気浮上を利用した反磁性磁化率精密測定の実現と材料プロセスへの応用

研究課題名（英文）Advance of the precise measurement of diamagnetic susceptibility by using a magnetic levitation technique and its application for materials processing

研究代表者

高橋 弘紀（TAKAHASHI KOHKI）

東北大学・金属材料研究所・助教

研究者番号：60321981

研究成果の概要（和文）：磁気力と重力が釣り合った磁気浮上状態を利用して反磁性物質の磁化率の温度変化を高感度かつ非接触で測定するための新しい装置として、外部から試料の観察が容易で磁場中でも加熱可能な透明ガラスヒーターを用いた加熱装置を開発した。この装置を用いることで、これまでの装置では不可能であった 300℃程度までの温度範囲において加熱中の試料の浮上位置変化による磁化率の測定と無容器溶融凝固過程の観察が可能となった。

研究成果の概要（英文）：A new furnace with a transparent glass heater has been developed for diamagnetic susceptibility measurements using a magnetic levitation technique. This furnace allows sensitive and contactless measurements of the susceptibility change and observation of containerless melting and solidification processes up to 300°C, because it is easy to observe a sample from outside of the furnace during heating in high magnetic fields.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2011 年度	700,000	210,000	910,000
2012 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：磁気科学

科研費の分科・細目：応用物理学・工学基礎・応用物理学一般

キーワード：磁気浮上，反磁性磁化率，非接触測定，無容器溶融凝固，磁場中プロセス

1. 研究開始当初の背景

(1) 反磁性物質が磁場から受ける磁気力（単位質量当たり： $F_{\text{mag}} = (\chi_g/\mu_0)B(\partial B/\partial z)$ ）と重力（単位質量当たり： g ）が釣り合った磁気浮上状態は、その力の釣り合いが物質を構成する原子・分子レベルで成り立つため、擬似的な微小重力環境であるとみなすことができる。この磁気浮上を利用することで反磁性物質の無容器溶融凝固が可能となり、磁気浮上は強磁場を利用した新しい材料プロセス環

境として近年注目を集めている。実際、これまでに、光学ガラス、パラフィン、透明プラスチックなどの無容器溶融凝固を行ってきた。

(2) 磁気浮上状態にある試料の挙動は、磁化率の変化に極めて敏感である。加熱により温度変化する試料が上昇・下降するのや、不均一加熱によって回転運動するのが観察され、これらの挙動は加熱による試料の磁化率の温度変化に起因すると考えられた。反磁性磁

磁化率の温度変化は一般には非常に小さいものとして扱われ、多くの場合無視されている。しかしながら、磁気浮上を利用した無容器溶解凝固においては、反磁性磁化率の温度依存性は極めて重要なパラメータである。特に、融点前後の磁化率の変化は、試料の完全非接触状態を保持する上で必要不可欠な知見である。

(3) 実際、磁気浮上を利用して有機結晶ベンゾフェノンやパラフィンなど比較的融点の試料に対する反磁性磁化率の温度変化測定を試み、溶解過程や構成分子の磁場配向に伴う微小な磁化率変化が観測された。

(4) 通常は無視される反磁性磁化率の温度依存性において、実際に精密に測定してみると非常に興味深い現象が観察されてきたが、循環水式恒温槽を用いた装置では、試料の加熱温度はせいぜい 60°C 程度が限度であった。

2. 研究の目的

磁気浮上状態を利用することで反磁性物質の磁化率（反磁性磁化率）の温度変化、特に融点前後での磁化率変化を非接触で精密に測定する方法を確立し、実際に磁化率を測定することにより、磁場中材料プロセス、磁気浮上を利用した無用溶解凝固プロセスのためのデータを取得する。また装置改良によって測定できる試料の対象をより高融点のものに広げるとともに、溶解過程、凝固過程における過渡的な磁化率変化を精密に測定することを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 反磁性物質を浮上させるマグネットとして、高磁気力場 ($|B(\partial B/\partial z)|_{\max} \approx 3,000 \text{ T}^2/\text{m}$) が発生可能なハイブリッドマグネット（東北大金研に設置）を使用する。ハイブリッドマグネットを使用することで、質量磁化率 $\chi_g \approx 4.1 \times 10^9 \text{ m}^3/\text{kg}$ の反磁性物質の浮上が可能であり、ほとんどの有機物の浮上が可能である。

(2) 磁化率の変化を測定するためには試料の浮上位置の変化を観測する必要があるため、炉外部からの観察が容易となるよう、発熱体に透明ガラスヒーターを用いた加熱装置の開発を行う。

(3) 新しい加熱装置は、ハイブリッドマグネットの 52mm 室温ボア中に設置でき、磁場中で 300°C 程度まで昇温可能なものとし、水冷ジャケットによってマグネットへの熱侵入を抑える構造とする。

(4) 作製した加熱装置を用いて有機結晶の溶解凝固過程、結晶成長過程、プラスチック材料のガラス転移点、融点での磁化率変化を測定し、反磁性磁化率の温度依存性に関する系統的なデータを得る。

(5) これまでの装置を引き続き使用し、

n-alkane の磁化率測定に関するデータを補充し、パラフィンの磁化率温度変化に関する考察を深める。

4. 研究成果

(1) パラフィンで見られた質量磁化率の温度依存性をより詳しく調べるために、炭素数の揃った *n*-alkane を試料として磁化率の温度依存性を測定した。これまでに測定した *n*-tricosane (炭素数 23, 融点 47°C) と *n*-docosane (同 22, 46°C) に加え、*n*-heneicosane (同 22, 46°C) を用いて測定を行った。Fig. 1 に *n*-heneicosane の測定結果を示す。図から分かるように室温から融点付近まで質量磁化率はほとんど変化しない。これは *n*-tricosane や *n*-docosane 同様で、パラフィンで観測されたような反磁性磁化率の減少は観測されなかった。また、試料#2 は溶解状態から降温させることによって再凝固過程の磁化率の測定も行った。その結果、再凝固した試料の磁化率は、これまで測定した試料同様、分子の磁

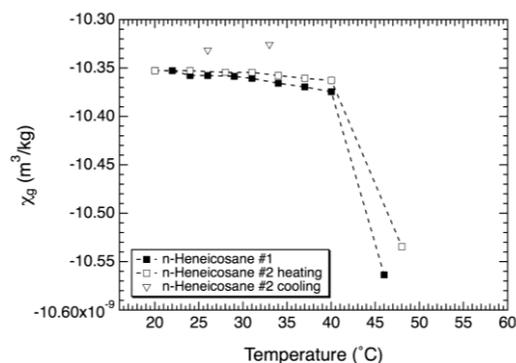


Fig. 1 *n*-tricosane の質量磁化率の温度依存性. 2つの試料の測定データは 20°C の値の平均値で規格化（平行移動）してある。

場配向による磁化率の増加が観測された。

(2) 単分散の試料とパラフィンでは融点以下の磁化率に振る舞いに違いが見られることから、パラフィンに見られる磁化率増加は *n*-alkane の混合物に見られる現象と考え、単分散の *n*-alkane を取って混合した試料を作製し測定を行った。混合試料は 2 種類作製した。1 つは *n*-tricosane, *n*-docosane, *n*-heneicosane を 1:1:1 で混合したもの (mix1), もう 1 つは *n*-tricosane と *n*-docosane を 1:1 で混合したものの (mix2) である。Fig. 2 に磁気浮上した試料の様子を、Fig. 3 に測定結果を示す。Mix1 に関しては 2 つの試料 (#1, #2) の 20°C の値で平均値 ($\approx 10.453 \times 10^9 \text{ m}^3/\text{kg}$) に平行移動して規格化してある。Mix1, mix2 いずれの試料においても、室温から昇温するにつれて磁化率の増加が観測された。Mix1 においてはどちらの試料も 28°C 付近から増加し、増加量は平均で 0.14% であった。Mix2 においては 34°C

付近から 0.13% 増加しているのが観測された。これはパラフィンで見られた振る舞いと極めて似ている。また、mix2 で磁化率の増加を示す温度は mix1 に比べて高温側にシフトしており、これは mix2 には 3 種の *n*-alkane の中では最も低融点の *n*-heneicosane が含まれていないためと考えられる。以上の結果から、単分散の *n*-alkane では磁化率の増加が見られず、それらの混合試料では増加が観測されること、増加を示す温度は混合物に含まれる *n*-alkane の種類に依存することが分かった。

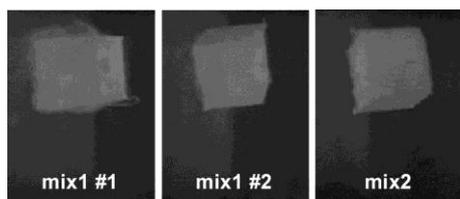


Fig. 2 磁気浮上している混合試料 (mix1, mix2)。

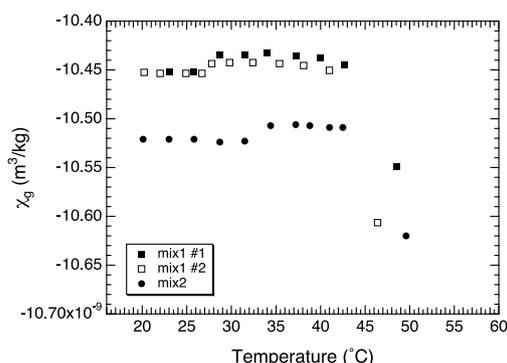


Fig. 3 混合試料の質量磁化率の温度依存性。Mix1 の 2 つの試料の測定データは 20°C の値の平均値で規格化 (平行移動) してある。

(3) 磁気浮上を利用した磁化率測定をより多くの物質に適用するため、これまでの循環水式恒温槽よりも高温まで昇温可能な装置として、透明ガラスヒーターを用いた加熱装置の開発を行った。

① 装置の概略を Fig. 4 に示す。ガラスヒーターは外径 18, 内径 15, 長さ 50 mm の石英ガラス管に透明導電膜 (ITO が主) を蒸着したものであり, AC, DC どちらでも加熱可能で, ヒーター単独では 500°C までの昇温が可能である。ガラスヒーター内壁には温度制御用の熱電対 (type-K) が貼り付けてある。ヒーターのフランジ外径は 46 mm とし, その外側に水冷ジャケットを配することでマグネットへの熱侵入を抑えるようにしてある。試料空間となるヒーター内は真空引きが可能であり, 高真空は望めないものの, 空気中の酸素

による磁気アルキメデス効果を低減することが可能である。また, 窒素などへの置換も行うことができる。CCD カメラは, ヒーター上部フランジより上側に配置することで, 熱による影響を受け難くする構造とし, これまでの観察系と同様, プリズムによって水平方向から試料の観察を行う配置としている。

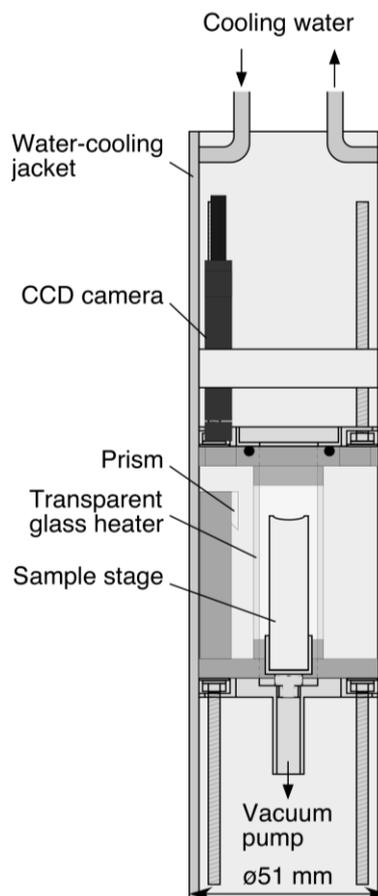


Fig. 4 透明ガラスヒーターを用いた加熱装置の概略図。

② Fig. 5 に磁場中で行った昇温テストの結果を示す。設定温度を 150, 300°C とし, AC100 V でテストを行った。いずれの設定温度の場合でも, 磁場中における昇温過程はゼロ磁場と同様であることが確認された。磁場中での AC 通電であることから装置の振動などの懸念があったが, 通電時におけるリード線の振動は見られたものの装置自体の振動は見られなかった。また, Fig. 6 に示すように, ゼロ磁場中ではあるが 300°C まで加熱してもガラスの透明度に変化がないことも確認した。震災の影響でハイブリッドマグネットでの実験は行えなかったが, 今後十分に活用できると考えられる。

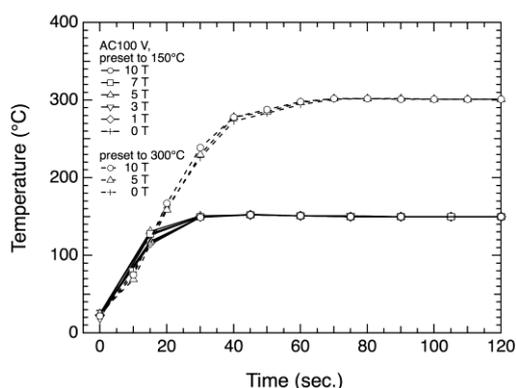


Fig. 5 透明ガラスヒーターを用いた加熱装置の磁場中での昇温テストの結果.

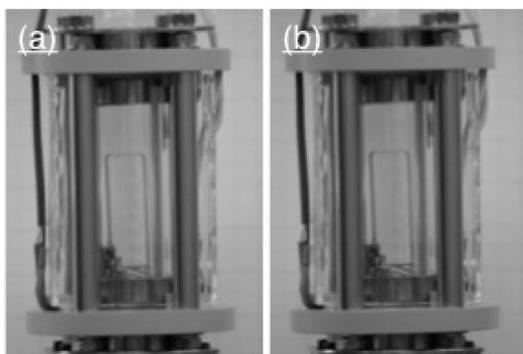


Fig. 6 昇温中のガラスヒーター. (a)室温, (b)300°C.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① 高橋弘紀, 渡辺和雄, “磁気浮上を利用した反磁性磁化率測定”, 化学工業 (Chemical Industry), 査読無, **64** (2013) 213-218 (DOI, URL 無し)
- ② K. Takahashi, I. Mogi, S. Awaji, K. Watanabe, “Non-contact measurement of diamagnetic susceptibility change by a magnetic levitation technique”, Measurement Science and Technology, 査読有, **22** (2011) 035703 (6pp) DOI: 10.1088/0957-0233/22/3/035703

[学会発表] (計 7 件)

- ① 高橋弘紀, 他, 「磁化率測定用磁気浮上炉の開発状況」, 第 60 回応用物理学会春季学術講演会, 2013 年 3 月 27~30 日, 神奈川工科大学

- ② 高橋弘紀, 他, 「ガラスヒーターを用いた磁気浮上用加熱炉の開発」, 第 7 回日本磁気科学会年会, 2012 年 11 月 20~22 日, 京都大学益川ホール
- ③ 高橋弘紀, 他, 「磁気浮上磁化率測定用加熱炉の開発」, 第 73 回応用物理学会学術講演会, 2012 年 9 月 11~14 日, 愛媛大学
- ④ K. Takahashi, 他, 「Temperature dependence of the diamagnetic susceptibility of *n*-alkanes measured by a magnetic levitation technique」, 5th International Workshop on Materials Analysis and Processing in Magnetic Fields (MAP5), 2012 年 5 月 13~17 日, Autrans, France
- ⑤ 高橋弘紀, 他, 「磁気浮上を利用して測定した *n*-alkane の磁化率の温度依存性」, 第 6 回日本磁気科学会年会, 2011 年 9 月 26~28 日, 東京大学山上会館
- ⑥ 高橋弘紀, 他, 「磁気浮上を利用して測定した *n*-alkane の反磁性磁化率温度変化」, 2011 年春季第 58 回応用物理学関係連合講演会, 2011 年 3 月 9 日, 2011 年春季第 58 回応用物理学関係連合講演会講演予稿集
- ⑦ K. Takahashi, 他, 「Diamagnetic susceptibility change in solid-liquid phase transition of organic materials measured by a magnetic levitation technique」, The International Chemical Congress of Pacific Basin Societies (PACIFICHEM2010), 2010 年 12 月 15~20 日, Honolulu, USA

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 弘紀 (TAKAHASHI KOHKI)
 東北大学・金属材料研究所・助教
 研究者番号: 60321981

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: