

機関番号：33910

研究種目：特定領域研究

研究期間：2006～2010

課題番号：18070005

研究課題名（和文）マイクロ波と分子磁性相互作用の理論・分子動力学研究

研究課題名（英文）Theory and Molecular Dynamics Study of Mechanisms of Microwave Heating of Magnetic and Dielectric Materials

研究代表者

田中 基彦 (TANAKA MOTOHIKO)

中部大学・全学共通教育室・教授

研究者番号：80167501

研究成果の概要（和文）：

マイクロ波による誘電体、磁性体、金属粉体の効率的な加熱の物理機構を、古典・量子力学的分子動力学法、電磁波理論などを用いて研究、これらの加熱がマイクロ波の光子エネルギーを非共鳴的に多周期にわたって蓄積することで発生することを明らかにした。また、磁性体結晶内でのエネルギー緩和過程、時間依存 DFT 法による物質の電磁波への応答やマイクロ波の化学反応促進効果について、次の段階に繋がる研究を開始した。

研究成果の概要（英文）：

We have studied the physical mechanisms of microwave heating of dielectric and magnetic materials as well as non-magnetic metallic powders by means of classical and quantum mechanical molecular dynamics simulations, analytical electromagnetic wave theory. Such heating occurs by non-resonant absorption and accumulation of microwave electric and/or magnetic energies over many wave periods.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	39,200,000	0	39,200,000
2007年度	15,500,000	0	15,500,000
2008年度	11,200,000	0	11,200,000
2009年度	11,000,000	0	11,000,000
2010年度	10,200,000	0	10,200,000
総計	87,100,000	0	87,100,000

研究分野：物質工学、分子動力学（計算機シミュレーション）

科研費の分科・細目：材料工学、応用物理・材料加工、表面物理

キーワード：マイクロ波加熱機構、誘電体・磁性体・金属粉体、量子物性、ハイゼンベルクモデル、多光子現象、分子動力学

1. 研究開始当初の背景

マイクロ波により水（液体）や食品（高分子）が効率的に加熱されることは日常的な経験であるが、本来表皮効果のため電磁波を反射する金属の粒子で構成される粉体がマイクロ波照射のもと高いエネルギー効率で加熱されることは R. Roy (Nature 1999) の実験まで予想されていなかった。このためマイクロ波による物質加熱の機構、とくに磁性体の加熱機構はまったく未知であった。また食塩を

含む水や氷がなぜマイクロ波でよく加熱（解凍）されるかも未知であった（純粋な氷はマイクロ波で加熱できない）。これらの解明は物性的に興味ある問題であると同時に、マイクロ波による高純度製鉄（錆びない鉄）や産業廃棄物処理・貴金属回収などマイクロ波応用の基礎付けとなるものである。このような時代背景のもと特定領域研究「マイクロ波励起・高温非平衡反応場の科学」（代表者 佐藤元泰、領域 465）が提案され、その5つの

計画研究のうち唯一の理論研究班として、本研究が採択された。

2. 研究の目的

マイクロ波による磁性体の加熱機構を中心として、密接に関連するマイクロ波によく応答する物質（誘電体、磁性体、金属粉体）の加熱過程を明らかにすることが、この課題研究の目的である。また、マイクロ波の非熱効果である化学反応の促進機構について研究の糸口を見出すこと、特定領域研究のほかの計画・公募研究と連携して双方の研究を促進することもこの研究の目的である。

3. 研究の方法

マイクロ波による物質の加熱機構を理論で解明するため、①古典力学（ニュートン力学）による分子動力学法コードを作成して水（誘電体）の加熱研究に使用、また半古典的手法として、スピンに関するハイゼンベルクモデルを磁鉄鉱（強磁性体）の加熱研究に使用した。②量子力学（密度汎関数法）に基づく分子動力学法として、スペインで開発された SIESTA コードを利用して、主として水加熱の研究を実行。③径が数から数十マイクロンの微視的な金属粉末を μm （マイクロ波の波長）サイズで巨視的に記述する実効パラメータ理論を定式化して、計算機による数値解析を実行。④非熱効果である化学反応促進に関しては、状態遷移理論を適用した。

4. 研究成果

この課題研究では理論の視点から、マイクロ波による物質（誘電体、磁性体、金属粉末）の加熱機構を研究してきた。これまでの主な研究成果を以下にまとめる。(1)(2)(3)(7)(8)が既に成果が得られている研究であり、その他は継続中の研究である。

(1)磁場による強磁性体の加熱機構

マイクロ波製鉄の原料であり強（フェリ）磁性体である磁鉄鉱 Fe_3O_4 がマイクロ波の磁気成分により加熱される機構を解明した。手法として、電子スピンを古典理論で記述するハイゼンベルクモデルを用い、マイクロ波磁気揺動を加えて、スピンの応答をエネルギー原理およびスピン動力学により調べた。この理論計算で解析した結果、①マイクロ波照射による加熱率は温度とともに上昇し、キュリー温度付近で最大となる。熱雑音のため磁性はキュリー温度で消失するが、スピン応答はそこで最大となる、②マイクロ波周波数に関して、2GHz 付近で加熱率が

極大となる。すなわちこの加熱はマイクロ波の光子エネルギーを多くの周期にわたって蓄積する非共鳴過程である。さらに、③強い磁性をもたないヘマタイト ($\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$) はマイクロ波磁気成分では加熱できないことを示した。非共鳴電子スピンのマイクロ波磁場への応答は、実験事実を非常によく説明しており、強磁性体のマイクロ波加熱機構の基礎を明らかにしたといえる。（論文 2）

(2)電場による誘電体の加熱機構

純粋な水（誘電体）、氷、食塩を含む水と水のマイクロ波のもとでの加熱機構を明らかにした。手法としては、①ニュートン力学による古典的分子動力学法、②密度汎関数法 (DFT) に基づく量子力学的分子動力学法、を用いた。前者の研究成果は、(i)純粋な水の場合、永久電気双極子をもつ水分子がマイクロ波 AC 電場により微小な回転運動を励起され加熱される、(ii)純粋な「氷」はマイクロ波で加熱できない。これは分子どうしが固く水素結合した氷結晶となっていることが原因である、(iii)微量でも食塩を含む水は、純粋な水に比べて数倍よく加熱される。これは Na^+ , Cl^- などのイオンが、水素結合で 6 員環を構成する水分子の籠構造のなかで AC 電場で揺すられる効果が加わるためである、(iv)食塩を含む「氷」はマイクロ波で加熱（解凍）できる。これは水分子の籠構造がイオンのもつ電荷によりその周辺で脆弱となるため（イオンのサイズ効果ではない）である。すなわち、単純に液体の水（氷）といっても、その加熱機構はその状態や食塩の有無によりすべて異なる。

後者の研究では、原子間力を自己無撞着に決定する量子力学的分子動力学法で、(i)マイクロ波電場のもとで液体の水分子に回転運動励起が励起される。水分子は互いに水素結合で束縛した籠構造を作るため自由に並進運動できず、運動エネルギーはほぼ回転運動のエネルギーである、(ii)電子エネルギーが分子の運動エネルギーの 2 倍程度であるが、これはマイクロ波という外部場により水分子が強制励起されている結果である。

（論文 7,8,10,11）

(3)非磁性金属粉体の加熱機構

（磁性をもたない）金属粉末がマイクロ波で加熱される機構を、Mie 理論と Bruggeman 理論をあわせ用いて定式化する理論モデルを構築して、明らかにした。この手法は、長さのオーダーが大きく異なる金属粒子（数マイクロン）とマイクロ波（センチメートルの波

長)を3次元理論で扱うことを可能としている。主な結果は、①金属粒子と粒界(空隙)で構成される金属粉体の(遠方で観測される)実効誘電率・透磁率は、それらが単一粒子の値と大きく異なる。金属粒子が非磁性でも、粉体のなかに渦電流が誘起され、実効的な複素透磁率は有限となり、金属粉体は真空中では磁気成分で加熱される、②実効誘電率・透磁率を使うことで、マイクロ波実験で使うキャビティを実寸でモデル化することが可能となり、キャビティ内での電磁波伝搬を解析、金属粉体の電界・磁界加熱特性を予測した。粉体の粒子サイズ・充填率、粒子内に誘起される定在波などが効いて、キャビティ中ではマイクロ波の磁界だけでなく電界でも加熱が生じることを示した。(論文 1,3,9)

(4)結晶中でのエネルギー緩和

ハイゼンベルクモデルを用いて鉄 Fe^{2+} , Fe^{3+} の電子スピンを記述、これを結晶格子を構成する原子系と結合させて、マイクロ波による磁性体加熱でのエネルギーの流れを研究している。具体的には、マイクロ波磁場のもとで電子スピン運動方程式と原子のニュートン運動方程式を連立して解き、マイクロ波から磁性結晶へのエネルギーの流れを解析する方程式系を確立し、これに基づく計算機シミュレーションコードを作成した。これまでに、キュリーワイス則に従う磁化の温度依存性が正しく再現されること、および結晶の安定平衡状態が得られている。この研究は継続中であり、今後マイクロ波磁場印加のもとで長時間ランを行い、マイクロ波から物質へのエネルギーの緩和を解明する。

(5)時間依存 DFT 法利用のコード開発

電磁波と物質の相互作用を量子力学に基づき研究するため、電磁場などの外部刺激に対する物質の応答を実時間・実空間で扱える「時間依存密度汎関数法」の開発を進めている。この手法は物質の動的、あるいは励起に伴う特性の解析に対してきわめて有効である。これまでに電場の応答による電磁状態の変化について基本的特性を求めることができた。

(6)化学反応促進の効果

マイクロ波照射下での分子内組み換え反応(Diels-Alder 反応)に状態遷移理論を適用して、反応速度を評価した。分子反応速度が状態遷移理論で定量的に求められ、実験とよい一致を見た。これは熱効果の現象であり、マイクロ波の非熱効果による反応促進の理論

的解明は今後の課題である。

(7)有機高分子の効率的合成と応用

この研究班に属する公募研究(代表者 大内将吉)では、DNA やタンパク質を含む多量の有機高分子の反応生成過程がマイクロ波照射で大きく向上することを示した。なかでも電気双極子をもつ高分子の反応が促進されることが実験的に明らかにされた。このマイクロ波を使う技術により、従来の熱を加える方式に比べ化学合成の短時間化と収率向上が達成され、さらに DNA やタンパク質など生体高分子の効率的な複製に利用できる。これらはマイクロ波効果の存在を明らかに示している(論文 5,6,12。科研費報告は別途行われる)

(8)領域内連携研究

当計画研究班の理論研究は、①マイクロ波による加熱基礎実験に関して計画研究班 A01 と、②キャビティ内の電磁波強度の分布計算について計画研究班 A02 と(論文 4)、③強磁性体を原料とするマイクロ波製鉄の原理に関して計画研究班 A04 と、④縦磁場を印加した時の磁性体加熱過程について計画研究班 A05 とそれぞれ連携協力して研究を進めてきた。

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 12 件)

1. M. Ignatenko and M. Tanaka, Effective permittivity and permeability of coated metal powders at microwave frequency, *Physica B*, 405, 352–358 (2010). 査読有
2. M. Tanaka, H. Kono, and K. Maruyama, Selective heating mechanism of magnetic metal oxides by a microwave magnetic field, *Phys. Rev. B.*, 79, 104420 (2009). 査読有
3. M. Ignatenko, M. Tanaka, and M. Sato, Absorption of microwave energy by spherical nonmagnetic metal particle, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 48, 067001 (2009). 査読有
4. G. Xie, M. Suzuki, D. V. Louzguine, M. Tanaka, M. Sato, and A. Inoue, Analysis of electromagnetic field distributions in a 915 MHz single-mode microwave applicator, *PIER* 89, 135-148 (2009). 査読有
5. H. Sakaeda, Y. Nishiyori, Y. Shirakawa, T. Yoshimura, T. Kusumoto, S. Ohuchi, Analysis of Protein and Peptide of

- Cultured Microorganism under Microwave Irradiation, Peptide Science 341-342 (2009). 査読有
6. T. Yoshimura, Y. Shirakawa, N. Sakaeda, S. Ohuchi, Molecular Weight Control of the Peptide Intermediate by the Microwave Assisted Hydrolysis of Protein, Peptide Science, 133-134 (2009). 査読有
 7. M.Tanaka and M.Sato, Mechanism of enhanced heating of salty water and ice under microwaves, JMPEE (International Microwave Power and Energy Institute), 42, 62-69 (2008). 査読有
 8. M.Murakami and M.Tanaka, Nano-cluster expansion into vacuum and quasi-mono energetic spectrum by uniformly distributed contaminant ions, Phys.Plasmas, 15, 082702 (2008). 査読有
 9. M.Suzuki, M.Ignatenko, M.Yamashiro, M.Tanaka and M.Sato, Numerical study of microwave heating of micrometer size metal particles, ISIJ (Iron and Steel Institute of Japan), 48, 681-684 (2008). 査読有
 10. M.Tanaka and M.Sato, Microwave heating of water, ice and saline solution: Molecular dynamics study, J.Chem.Phys., 126, 034509 1-9 (2007). 査読有
 11. K.Nakai, H.Kono, Y.Sato, N.Niitsu, R.Sahnoun, M.Tanaka, Y.Fujimura, Ab initio molecular dynamics and wavepacket dynamics of highly charged fullerene cations produced with intense near-infrared laser pulses, Chemical Physics, 338, 127-134 (2007). 査読有
 12. S. Arimitsu, D. Wakino, K. Nishida, K.Uchibayashi, S.Ohuchi, Correlation of the Dipole Moment of Amino Acid Derivatives and the Reaction Yield in Microwave Assisted Peptide Synthesis, Peptide Science, 205-206 (2007). 査読有
- [学会発表] (計37件)
1. 田中基彦、日本化学会シンポジウム 招待講演「マイクロ波による物質加熱と変性機構の理論・分子動力学法による解明」(2011年3月26日、神奈川大学)
 2. M. Ignatenko, M. Tanaka and M.Sato, Microwave heating of metal powders in single-mode cavity: Interpretation of experiments, 13th Plasma and Materials Science Conference (2010年12月21~22日、核融合科学研究所).
 3. M.Ignatenko and M.Tanaka, Arrangement of experimental setup for microwave heating of metal powders in single-mode cavity, JEMEA Symposium(2010年11月17日~19日、九州大学).
 4. M.Ignatenko and M.Tanaka, 招待講演、Analysis of microwave heating of copper powders in single-mode cavity, ISIJ Novel Processing Forum (2010年11月24日、東京).
 5. M.Tanaka and M.Ignatenko, H.Kono, K.Maruyama, and Y.Zempo, 国際会議、招待発表、Mechanism of microwave heating of dielectric and magnetic materials by means of atomistic theories, Materials Science & Technology Conference 2010 (2010年10月18日~20日、Houston USA)
 6. M.Ignatenko and M.Tanaka, 国際会議、Microwave heating of copper powders in a single-mode cavity: Interpretation of experiments, Materials Science & Technology Conference 2010 (2010年10月18日~20日、Houston USA)
 7. 田中基彦、日本物理学会シンポジウム、開催提案・座長「マイクロ波・テラヘルツ波による加熱の物理機構」(2010年9月24日、大阪府立大学)
 8. 田中基彦、日本金属学会シンポジウム、基調講演「マイクロ波による物質加熱の分子シミュレーション」(2009年9月16日、京都大学)
 9. M. Tanaka, H. Kono, K. Maruyama, and M. Ignatenko, 第12回 AMPERE 国際会議 口頭発表、分科会座長、Classical and Quantum Mechanical Theories of Microwave Heating of Magnetic Materials (2009年9月7日~10日、Karlsruhe, Germany)
 10. M. Ignatenko, M. Tanaka and M.Sato, 第12回 AMPERE 国際会議 口頭発表、Numerical analysis of microwave heating of copper powders (2009年9月7日~10日、Karlsruhe, Germany)
 11. 田中基彦、プラズマ科学のフロンティア 特別講演、マイクロ波による物質加熱のメカニズム：古典および第一原理分子動力学法による研究 (2009年9月4日、核融合科学研究所)
 12. 田中基彦, 河野裕彦, 丸山耕司, M.Ignatenko, 山城昌司、マイクロ波による磁性酸化物の加熱・焼結過程、日本物理学会 (2009年3月28日、立教大学)
 13. M.Ignatenko and M.Tanaka, Effective parameters of non-magnetic metal powders at microwave frequencies、日

- 本物理学会 (2009年3月28日、立教大学)
14. 田中基彦、マイクロ波特定領域研修会(領域事務局として開催)、話題「マイクロ波加熱の機構：理論研究でわかったこと、今後の課題」(2009年8月26日～28日、蓼科高原)
 15. 田中基彦、依頼講演「なぜマイクロ波は誘電体・磁性体を効率的に加熱できるのか？—最近の理論研究から」、技術交流会(技術交流財団)、2008年12月26日、名古屋)
 16. M.Tanaka, H. Kono, K. Maruyama, M. Ignatenko, and M. Sato, 国際会議(口頭発表)、Theoretical studies of microwave heating of liquid and solid materials, GCMEA 2008 (2008年8月4日～8日、滋賀).
 17. M.Tanaka, 国際会議, “Our Research Project of Microwaves under Grant-in-Aid from MEXT, A03 Group: Theory of Microwave Heating”, Workshop on Theory of Microwave Heating, Science and Technology of Microwaves– Induced, Thermally Non-Equilibrium Reaction Fields, GCMEA 2008 (2008年8月4日～8日、滋賀).
 18. M.Tanaka, 国際会議・依頼講演(ショートコース)、「マイクロ波加熱の原理：誘電体・磁性体はなぜマイクロ波で加熱できるのか？」Theoretical Investigations of the Mechanisms of the Microwave Heating, GCMEA 2008 (2008年8月4日～8日、滋賀).
 19. M. Ignatenko, M. Suzuki, M. Tanaka, M. Yamashiro, and M. Sato, Numerical study of microwave heating of highly conducting particles arranged in regular lattice, GCMEA 2008 (2008年8月4日～8日、滋賀).
 20. M. Tanaka, H. Kono, K. Maruyama, M. Ignatenko, and M. Sato, 国際会議、「Topical Lecture」(招待発表), Theoretical study of microwave heating of dielectric and magnetic materials, Strong Microwaves: Science and Applications (2008年7月27日～8月4日、Nizhny Novgorod, Russia).
 21. M. Ignatenko, M. Suzuki, M. Tanaka, M. Yamashiro, and M. Sato, Application of electromagnetic energy by small metal particle (2008年7月27日～8月4日、Nizhny Novgorod, Russia).
 22. 田中基彦、河野裕彦、丸山耕司、マイクロ波による磁性金属粉体の加熱：そのメカニズム、日本物理学会 (2008年3月25日、大阪)
 23. M. Ignatenko, M. Suzuki, M. Yamashiro, M. Tanaka, and M. Sato, Microwave heating of metal powder: Single particle approximation (日本物理学会, 2008年3月24日、大阪)
 24. M. Tanaka, 招待講演、Microwave heating of polar liquid and magnetic materials: Mechanisms of heating, Recent Advances in Microwave Technology and Applications (2008年1月29日～31日、Melbourne, Australia).
 25. M. Murakami, and M. Tanaka, 招待講演、Ion acceleration by expansion of intense-laser-irradiated plasmas, Laser Optics2008 (2008年6月23日～28日、St. Petersburg, Russia).
 26. M. Tanaka, M. Sato, M. Suzuki, M. Ignatenko, M. Yamashiro, Microwave heating of metallic oxide powders: Mechanism of magnetic energy absorption (第1回領域公開シンポジウム、2007年12月20日～21日、東京)
 27. M. Tanaka, Microwave heating of metallic oxide powders: Mechanism of magnetic energy absorption, Materials Research Institute, Pennsylvania State (2007年11月5日、University Park, USA).
 28. M. Tanaka, M. Sato, M. Suzuki, M. Ignatenko and M. Yamashiro, 国際会議、Microwave heating of materials: From polar liquid to magnetic oxides, 17th International Toki Conference (2007年10月16日、土岐).
 29. M. Tanaka and M. Sato, 国際会議、Molecular dynamics study of microwave heating of water and related materials, 11th AMPERE Conference (2007年9月4日～7日、Oradea, Romania).
 30. 田中基彦、河野裕彦、丸山耕司、山城昌志、M. Ignatenko^a、鈴木基晴、佐藤元泰、金属酸化物粉体のマイクロ波加熱：磁気加熱の基礎メカニズム、JEMEAシンポジウム(2007年9月25日～27日、仙台)
 31. 田中基彦、佐藤元泰、マイクロ波による水・結晶氷の加熱：塩イオン効果とその加熱機構、日本物理学会 (2007年9月21日～24日、北海道大学)
 32. M. Tanaka, Molecular dynamics study of microwave heating of materials: From water to metallic powders、理論計算科学セミナー、理化学研究所 (2007年6月7日)
 33. 田中基彦、特別(集中)講義、「高温プラズマとイオン性物質の分子動力学シミュ

- レーション」京都大学理学部・大学院理学研究科 (2006年11月20日～22日)
34. 田中基彦、佐藤元泰、マイクロ波による水・氷加熱の数値シミュレーション、第6回マイクロ波効果・応用国際シンポジウム (2006年11月2日～4日、大垣)
35. 鈴木基晴、田中基彦、佐藤元泰、若手招待発表、金属粉体のマイクロ波シミュレーション、第6回マイクロ波効果・応用国際シンポジウム (2006年11月2日～4日、大垣)
36. M.Tanaka, 招待講演、Heating of water and ionic solutions by applied microwaves: Molecular dynamics study, 11th International Conference of Colloidal and Molecular Electro-optics (2006年5月22日～25日、京都大学)
37. 田中基彦、招待講演、強結合系イオン性ソフトマター、物理・天文・地球物理3学会合同プラズマ科学シンポジウム、(2006年5月17日、幕張)

[その他]

(1) ホームページ

物質研究 <http://dphysique.isc.chubu.ac.jp/>
 特定領域 <http://phonon.nifs.ac.jp/>

(2) 学術賞

① ***Rustum Roy Innovator Award***

Given to “Theoretical Studies of Microwave Heating of Liquid and Solid Matters”, by M.Tanaka, H.Kono, K.Maruyama, M.Ignatenko, and M.Sato, *For the most significant contributions to scientific research in The Field of Microwave and RF Power Engineering (MAJIC), The International Federation of Associations*, at 1st Global Congress on Microwave Energy and Applications, August 4-8 (Shiga, Japan, 2008)

② ***AMPERE Europe, The 2009 Best Paper Award***: Given to “Classical and Quantum Mechanical Theories of Microwave Heating of Magnetic Materials”, by M.Tanaka, H.Kono, K.Maruyama, and M.Ignatenko, AMPERE Conference, Sep.7-11 (Karlsruhe, Germany, 2009).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

田中 基彦 (TANAKA MOTOHIKO)
 中部大学・全学共通教育室・教授
 研究者番号：80167501

(2) 研究分担者

河野 裕彦 (KONO HIROHIKO)

東北大学・大学院理学研究科・教授
 研究者番号：70178226
 2006-2010年度

佐藤 学 (SATO MANABU)
 東北大学・大学院工学研究科・助教
 研究者番号：40226006
 2006-2008年度

丸山 耕司 (MARUYAMA KOJI)
 理化学研究所・デジタルマテリアル研究チーム・研究員
 研究者番号：00425646
 2008-2010年度

善甫 康成 (ZEMPO YASUNARI)
 法政大学・情報科学部・教授
 研究者番号：60557859
 2009-2010年度

(3) 連携研究者

Ignatenko, Maxim

中部大学・全学共通教育室・研究員
 研究者番号：80423490
 2007-2010年度

山城 昌志 (YAMASHIRO MASASHI)

日本大学・生産工学部・助教
 研究者番号：70397777
 2007-2008年度

佐藤 元泰 (SATO MOTOYASU)

核融合科学研究所・装置工学応用物理研究系・教授
 研究者番号：60115855
 2006-2010年度

Louzguine, Dmitri

東北大学・金属材料研究所・教授
 研究者番号：60302212
 2006-2010年度

謝 国強 (XIE GUOQIANG)

東北大学・金属材料研究所・助教
 研究者番号：50422134
 2006-2010年度

(4) 研究協力者

鈴木 基晴 (SUZUKI MOTOHARU)
 高砂工業・企画情報課・係長
 研究者番号：なし (総研大・院生)
 2006-2007年度