

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 15 日現在

機関番号：34310

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03718

研究課題名(和文) 動的磁化率の測定と応用：線形応答理論にもとづく新しい磁化率解析法

研究課題名(英文) Measurements and applications of dynamic magnetic susceptibility

研究代表者

小玉 一人 (Kodama, Kazuto)

同志社大学・研究開発推進機構・嘱託研究員

研究者番号：00153560

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 9,200,000円

研究成果の概要(和文)：磁性ナノ粒子の動的磁化過程を明らかにするための機器開発と基礎実験を行った。時間領域測定では、パルス磁場によって誘導される磁化の自由減衰を測定し、これを離散フーリエ変換することによって間接的に広帯域周波数スペクトルを得る新しい測定解析法開発した。加えて、パルス磁場中の測定からは磁気ヒステリシスに相当するM-H曲線が得られ、従来の振動磁力計による方法よりもはるかに短時間で自然試料の飽和磁化や保磁力を測定することが可能となった。

研究成果の概要(英文)：This study consists of developing instrumentation to investigate the dynamic magnetization process of magnetic nano-particles and a series of experiments using such new instrumentation in both time domain and frequency domain. In the time domain, we measured free decay of magnetization induced by a pulse magnetic field. Based on linear transformation theory, such time-domain data can be transformed to those in the frequency domain from which broad-band frequency spectrum can result. Moreover, such measurements in the pulse magnetic field was found to be a rapid and easy-to-use method for the determination of magnetic hysteresis instead of the conventional method with VSM that is usually quite time-consuming.

研究分野：岩石磁気学

キーワード：環境磁気 磁性ナノ粒子 磁化率

1. 研究開始当初の背景

物質に交流磁場を加えると同一周波数の磁化変化を生ずる。この磁化と外部磁場の比が磁化率（一般には複磁化率）である。磁場強度が十分小さい場合（地球磁場程度）では、磁化は磁場に対して可逆的になる。このときの磁化率は、初期磁化率と呼ばれ、市販の磁化率計で測定されるのはこの値である。しかし、磁場周波数が高くなると虚数成分が無視できなくなって位相遅れが生ずる。これは広い意味の緩和現象で、デバイ型周波数スペクトルで表される。ただし実際の系ではある程度の分布をもつので、それに応じてスペクトルは分散する。この分散は磁性粒子集団の粒径や保磁力の分布の関数である。本研究は以上の点に着目し、短時間（ $< 1 \text{ ms}$ ）のパルス磁場をかけて誘導された磁化が自由減衰する過程を上記のインパルス応答ととらえ、その FFT によって間接的にスペクトルを求める方法をとる。これまでの研究によって、パルスの多数回繰り返し（stacking）の効果を確認することができた。Stacking によって S/N 向上が図れることから、1 パルス 1ms の測定を千回連続しても 1 秒足らずで完了する画期的に高速・高分解能の磁化緩和（インパルス磁化率）測定が可能になる確信を得た。感度向上には高速スイッチング素子や高速データロガーが必須である。最近では高速サンプリングと大 DDR メモリーを備えた小型 AD 変換ボードが比較安価で入手できるようになった。これらエレクトロニクス分野の急速な発展も、本研究着想のきっかけとなった。

2. 研究の目的

弱交流磁場下の磁化率は、地球科学の様々な分野で利用される物性のひとつである。一般に磁性鉱物の総量を表す指標と考えられているが、本来磁化率は外部磁場の強度や周波数、温度・圧力など様々な要因によって変化する。本研究では、特に高周波数帯域での磁化率の挙動に着目し、新たに開発するハイブリッド磁化率計によって、時間・周波数両領域で磁化率を同時測定する。得られたデータを線形応答理論に立脚した数値モデルで解析することによって、nano-meter サイズの磁性微粒子の粒径分布を推定する。自然界に存在する磁性微粒子は、黄砂や PM2.5 と混じって遠距離を飛来する粉塵、海底下のバクテリア起源微粒子、風化・続成過程での二次生成微粒子などとして広範に存在し、その粒度分布は大気循環や環境変化を鋭敏に反映する有力な一次データである。本研究によって、これまで困難であった野外での磁性微粒子の定量とそれにもとづく応用研究が広がるであろう。

3. 研究の方法

線形応答理論によれば、時間領域のインパルス応答と周波数領域のスペクトルはフーリエ変換・逆変換によって相互に変換可能である。本研究は以上の点に着目し、短時間（ $< 1 \text{ ms}$ ）のパルス磁場をかけて誘導された磁化

が自由減衰する過程を上記のインパルス応答ととらえ、その FFT によって間接的にスペクトルを求める。一方、市販パルス磁化器を利用して、インパルス磁化率測定も試みた。その結果、パルス直後の 2 ms にわたって磁化が減衰する様子が見えた。周波数領域では 1kHz ~ 1MHz 帯に対応する。磁鉄鉱の微粒子を仮定すると、数 nm の超微細粒子の担う磁気緩和である。しかし小型可搬コイルではパルス強度や感度に限界がある。そこで、新たにハイブリッド磁化率計を開発した。野外では、凹凸のある地層面に直接接触させる場合も多いので、コイル径を数 cm 程度にする必要がある。しかし小コイルの単発パルスでは感度が低い。そこで、NMR のようにパルス磁場を繰り返して積算して S/N 比を上げる。さらに、近接センサーを利用したインダクタンス測定によって高周波磁化率を直接測定する。専用の平面渦巻きコイルは上記のインパルス磁化率測定コイルと共用できる。ハイブリッド磁化率計とは、このような二つの機能を組み合わせた小型磁化率計である。

4. 研究成果

磁性ナノ粒子の動的磁化過程を明らかにするための機器開発と基礎実験を行った。時間領域測定では、パルス磁場によって誘導される磁化の自由減衰を測定し、これを離散フーリエ変換することによって間接的に広帯域周波数スペクトルを得る新しい測定解析法開発した。加えて、パルス磁場中の測定からは磁気ヒステリシスに相当する M-H 曲線が得られ、従来の振動磁力計による方法よりもはるかに短時間で自然試料の飽和磁化や保磁力を測定することが可能となった。さらに、迅速かつ高精度に測定、実験室内だけでなく野外にも携行可能、専門知識や熟練を必要としない簡易な操作性、埋蔵遺跡や文化財など非破壊その場測定を条件とする野外測定、などの諸要件を満たす計測システムを構築するための基礎実験を行った。小型・迅速・高精度を両立させるため、インパルス磁化率と高周波磁化率を同一システムで測定可能な新しい磁化率計 - ハイブリッド磁化率を開発する一方、周波数領域では、3-MHz までの広帯域磁化率スペクトルを測定することができた。これら時間領域・周波数領域の結果から、線形応答理論にもとづいて相互に変換する基礎理論を構築すると共に、代表的な自然試料を用いてそれらの有用性を確認した。例えば、中国黄土層を対象とした磁化率周波数スペクトル研究からは、最終氷期以降の全球気候変動の解明に役立つ高分解能の気候変動指標を提案した。また、同様の手法を深海底堆積物に適用し、ガスハイドレート形成など深海底の急速な環境変化に対応する磁性鉱物の変化を定量的に議論した。これらの応用研究の結果、従来よりもはるかに短時間で自然試料中のナノサイズ磁性鉱物の粒度分布や含有量を定量できることが明らかとなった。こうした研究成果をもとに、海洋堆

積物を対象に磁化率研究をすすめ、深海底の古環境変動さらにその原因である全球気候変動の解明に役立つ環境磁気学的研究手法を提案した。

中国黄土試料の磁化率周波数スペクトルから粒度分布の時系列を復元した。モンスーンの卓越する寒冷期に粗粒成分比の大きいイベントが多いことがわかった。グローバルに分布する海底堆積物への適用が期待されるが、そのためには野外（船上）でも可能な迅速・簡便な測定法が必須である。新手法を模索する中で、上記のパルス・フーリエ変換法の着想、そしてそれを可能にする小型測定器 ハイブリッド磁化率計 の発想に至った。

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 8 件)

1) Magnetic Properties and Paleomagnetism of Zebra Rock, Western Australia: Chemical Remanence Acquisition in Hematite Pigment and Ediacaran Geomagnetic Field Behavior, Abrajevitch, A., B. Pillans, A. P. Roberts, and K. Kodama, 19, 32-48, 2018, 10.1002/2017GC007091(査読有)

2) Emplacement of a layered mafic intrusion in the Shimanto accretionary complex of southwest Japan: Evidence from paleomagnetic and magnetic fabric analysis, Kodama, K., T. Byrne, J. C. Lewis, J. P. Hibbard, M. Sato, and T. Koyano, GSA special paper, 10, 110-122, 2018 (査読有)

3) High-sensitivity multifunctional spinner magnetometer using magneto-impedance sensor, Kodama, K., *Geochem. Geophys. Geosyst.*, 18,1-7, 2017, 10.1002/2016GC006615(査読有)

4) Impact of climate change on the magnetic mineral assemblage in marine sediments from Izu rear arc, NW Pacific Ocean, over the last 1 Ma, *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, Kars, M., R. J. Musgrave, K. Kodama, A.-S. Jonas, M. Bordiga, W. Ruebsam, M. Vautravers, and T. Bauersachs, 480, 53-69, 2017, 10.1016/j.palaeo.2017.05.016(査読有)

5) Multimethod Approach to the Study of Recent Volcanic Ashes from Tengger Volcanic Complex, Eastern Java, Indonesia, Santoso, N., S. Bijaksana, K. Kodama, D. Santoso, and D. Dahrin, *Geosciences*, 63, 1-10, 2017, 10.3390/geosciences7030063(査読有)

6) Hydrostatic pressure effect on magnetic hysteresis parameters of pseudo-single-domain magnetite, Sato, M., Y. Yamamoto, T. Nishioka, K. Kodama, N. Mochizuki, and H. Tsunakawa, *Geochem.*

Geophys. Geosyst., 2016, 10.1002/2016GC006406(査読有)

7) Asian monsoon modulation of non-steady state diagenesis in hemipelagic marine sediments offshore of Japan, Chang, L., C. T. Bolton, M. J. Dekkers, A. Hayashida, D. Heslop, W. Krijgsman, K. Kodama, G. A. Paterson, A. P. Roberts, E. J. Rohling, Y. Yamamoto, and X. Zhao, *Geochem. Geophys. Geosyst.*, 17, 1-20, 2016, 10.1002/2016GC0063442016(査読有)

8) Magnetic properties of iron minerals produced by natural iron- and manganese-reducing groundwater bacteria, Abrajevitch, A., L. M. Kondratyeva, E. M. Golubeva, K. Kodama, and R. S. Hori, 206, 1340-1351, 2016, *Geophys. Jour. Int.*, 10.1093/gji/ggw221(査読有)
〔学会発表〕(計 3 件)

1) Quantification of the effect of inhomogeneous magnetization or irregularity in shape on the measurement of remanent magnetization with a high-sensitivity multifunctional spinner magnetometer, Kodama, K., EGU 2017 Annual Meeting

2) High-sensitivity multifunctional spinner magnetometer using a magneto-impedance sensor, Kodama, K., JpGU - AGU Joint Meeting 2017

3) 不均一磁化や異方的形状をもつ試料を測定するための Offset Dipole Model、小玉一人、第 142 回地球電磁気・地球惑星圏学会講演会、2017
〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況 (計 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小玉 一人 (Kodama Kazuto)
同志社大学・研究開発推進機構・嘱託研究員
研究者番号：00153560

(2) 研究分担者

山本 祐二 (Yamamoto Yuji)
高知大学・教育研究部・教授
研究者番号：00452699
齋藤 武士 (Saito Takeshi)
信州大学・理学部・准教授
研究者番号：80402767

(3) 連携研究者

()

研究者番号：

(4) 研究協力者

()