

東京大学 大学院新領域創成科学研究科
基盤科学研究系物質系専攻

平成 19 年度

修士論文

強磁場による弱磁性粒子の
組織制御法に関する研究

2008年1月29日提出
指導教員：和田 仁 教授



66131 : 田中 良

目次

第一章 研究の背景.....	4
1-1. はじめに.....	4
1-2. 磁気科学.....	4
1-2-1. 磁気科学とは.....	5
1-2-2. 磁気科学で用いる代表的な力.....	5
1-2-3. 強磁場によって明らかになる現象の例.....	8
1-3. 強磁場を用いた弱磁性粒子の構造制御.....	12
1-3-1. 誘起磁気双極子間相互作用.....	13
1-3-2. 二次元空間における一次元鎖.....	13
1-3-3. 二次元三角格子構造.....	14
第二章 研究の目標、および目的.....	22
2-1. 研究の目標.....	22
2-2. 本研究の目的.....	22
2-3. 研究の流れ.....	22
第三章 二次元三角格子の格子間隔制御.....	24
3-1. 理論的背景.....	24
3-2. 実験装置.....	25
3-2-1. 超伝導マグネット.....	25
3-2-2. 光学顕微鏡.....	26
3-2-3. 試料セル.....	26
3-2-4. 昇降装置.....	27
3-2-5. CCD カメラ.....	27
3-2-6. 画像処理ソフトウェア.....	28
3-2-7. その他の装置.....	28
3-3. 実験手順.....	30
3-3-1. 実験準備.....	30
3-3-2. 実験.....	32
3-3-3. 解析.....	33
3-3-4. MD 法を用いたシミュレーション.....	33
3-4. 格子間隔制御の条件.....	34
3-4-1. 実験に使用した粒子、および周囲媒体.....	34
3-4-2. 使用する粒子の体積で制御する方法.....	36
3-4-3. 粒子の周囲媒体に対する相対的な磁化率で制御する方法.....	36
3-4-4. 磁場強度と磁場の空間分布で制御する方法.....	37
3-5. 実験結果.....	38

3-5-1. 使用する粒子の体積で制御する方法.....	39
3-5-2. 粒子の周囲媒体に対する相対的な磁化率で制御する方法.....	40
3-5-3. 磁場強度と磁場の空間分布で制御する方法.....	41
第四章 磁性体による磁場、および磁気力分布の制御.....	42
4-1. 概要.....	42
4-2. 計算に用いたソフトウェア (OPERA) について.....	42
4-3. 検討条件.....	43
4-3-1. 基本条件の検討.....	43
4-3-2. 磁性体を考慮した解析方針.....	49
4-3-3. 磁性体を考慮した解析条件.....	51
4-4. 実験結果.....	52
4-4-1. 得られた計算結果の傾向.....	52
4-4-2. 磁性体による影響の評価.....	57
第五章 考察.....	61
5-1. 格子間隔制御実験における実験結果とシミュレーション結果の違いについて.....	61
5-1-1. 概要.....	61
5-1-2. 粒子内の誘起磁気双極子の分布.....	61
5-1-3. 計算.....	62
5-1-4. シミュレーションへの適用.....	65
5-2. 本研究の結果をもとに作製されるフォトニック結晶に関する検討.....	68
第六章 本研究の成果.....	70
第七章 期待される今後の展開.....	72
補論1、 誤差評価結果.....	76
1-1. はじめに.....	76
1-2. 各項目に対する誤差評価.....	77
1-3. 具体的な数値を用いた誤差評価.....	84
1-4. 結論.....	89
1-5. 参考資料.....	89
補論2、 二次元三角格子の格子間隔制御に関するデータ.....	91
2-1. 粒子選定結果.....	91
2-2. 密度測定結果.....	96
2-3. 実験結果の詳細.....	99

補論 3、	ゲル材料を用いた溶液の固化・取り出しに関する検討.....	102
3-1.	概要.....	102
3-2.	検討条件.....	102
3-3.	実験結果.....	103
第八章	参考文献.....	112
第九章	謝辞.....	113

第一章 研究の背景

1-1. はじめに

——磁石は面白い。

小さいころにそう感じたことのある人は、かなり多いのではないだろうか。棒状や馬蹄形、ボタン形と様々な形を持ち、互いに引き付けあい、または反発しあう。ある種の金属、例えば鉄に近づければくっつき、不思議なことにくっついた鉄もまた磁石になる。砂鉄集めや磁石を使った模様作りを楽しんだ経験は、多くの人が持っているだろう。

それだけではない。我々は、磁石を与えられるだけではなく、作ることもできる。磁鉄鉱のような自然の産物からではない。銅線を巻いて電流を流す。それだけのことで、銅線を巻いて作ったコイルは磁石になる。鉄芯を入れれば強くなる。流す電流を変えれば強さが変わる。磁石の持つ不思議な力をコントロールできる間隔は、まことに魅力的である。

それでは、我々はどれほど強い磁石を扱うことができるのだろうか。確かに、単純に考えれば、コイルに膨大な電流を流せば、際限なく強い磁石を作ることにはできそうである。が、現実はそのよう簡単ではない。銅線は電気を流しやすいが、それでも $10^{-8} \Omega / \text{m}$ 程度の抵抗がある。抵抗があるところに電流を流せば、ジュール熱が発生する。例えば、長さ 100 mm、半径 10 mm、総巻数 10000 回の銅線（直径 0.5 mm）製のコイルを使って 1 テスラ（T：磁場強度を表す単位。1 T は地磁気の 2 万倍程度）の磁場を発生させようとする、3A 以上の電流が必要であり、そのジュール熱は毎秒 3.5kJ 以上にもなる。こうなると、銅線が痛まないようにするためには多量の水を用いてコイルを冷却し続けねばならず、コスト、スペースが莫大になる。そのため、非常に強力な磁石は作製することは可能でも、誰でもが扱えるものではなかった。

しかし、近年、1911 年の Kmerlingh Onnes らによる発見に始まる超伝導の研究が進展し、電気抵抗を持たない超伝導コイルが市販されるようになってきた。超伝導、というと問題になるのは、（現在市販されている超伝導コイルの材料に限っていえば）ごく低温（10 K 程度）においてしか零抵抗を示さず、低温への冷却機構が必要な点である。しかし、これについても気体の断熱膨張を利用し、ヘリウムフリーの冷却装置が広まっており、強い磁石を用いることのできる環境は、研究室レベルではかなり一般的になってきたといえる。このことは、磁石を用いて引き起こされる現象にいわば「さらなる面白さ」を与え、弱い磁場の影響下では観察されなかったような様々な現象の存在が明らかにされてきている。

本研究では、このような強力な磁場を用いることで明らかになってきた「さらなる面白さ」を応用につなげることを目標に、特に粒子の規則配列構造の作製を対象として研究を進めてきた。次節以降では、磁場効果とその起源を例示した後、本研究の主眼である弱磁性粒子を用いた規則配列作製について詳細な説明を行う。次章以降では、本章の内容をもとに実験、およびその結果、さらに考察を述べていく。

1-2. 磁気科学¹⁾

磁気科学とは、磁場と物質との相互作用を用いて引き起こされる様々な現象に関する科学である。そこで、本節では磁場が物質に与える様々な影響を解説し、さらにそれらが引き起こす

興味深い現象のいくつかを例示する。

1-2-1. 磁気科学とは

本論文で扱う磁気科学の最大の特徴は、弱磁性体に対しても顕著な影響を与えることができる点にある。

全ての物質は磁性を持つ。磁石に対する応答の強さは、物質固有の磁化率によって規定される。この磁化率の大きさによって、物質を以下の4つの磁性に分類することができる。

- ・ 強磁性 : 鉄などの弱い磁石にも反応する物質。
- ・ 常磁性 : 磁場の向きと同じ方向に、わずかながら磁化される物質 ($\chi \sim 10^{-6}$)
- ・ 反磁性 : 磁場の向きと反対に、わずかながら磁化される物質 ($\chi \sim -10^{-6}$)
- ・ 反強磁性 : 印加磁場強度を0にしたとき、全く磁化していない方向をもつ物質

このうち、常磁性、および反磁性の物質をまとめて弱磁性物質と呼ぶ。これらの物質は、磁化率が 10^{-6} (SI 単位系で表した体積磁化率) 程度であり、磁場によって鉄などの強磁性体 (磁化率は 10^3 程度) の 10^{-9} 程度の影響しか受けない。そのため、従来の弱い磁場 (1 テスラ以下程度) では磁場による影響はほとんど確認できなかった。

それに対し、近年数 T 以上の強磁場の利用が一般的になってきたことで、磁場が物質に与える影響が顕在化し、新奇な現象の発見・解明やプロセッシングへの応用を目的とした研究が進められてきた。特に、最近では冶金学に関連した研究以外の分野も活発に研究されており、スピントロニクスや材料作製、生体応用などの幅広い研究が行われている。

1-2-2. 磁気科学で用いる代表的な力

磁気科学で観察される現象は、磁場と物質の相互作用に由来する。強磁場下では、磁場によって、物質が

- ・ 磁気力
- ・ 磁気トルク
- ・ ローレンツ力
- ・ 熱力学的エネルギー

といった影響を受け、これらによってさまざまな現象が引き起こされる。以下、それぞれの内容を示す。

・ 磁気力 (ファラデー力)

磁気力 (ファラデー力) は、磁気エネルギーに起因する力である。ここでは、図 1.1 に示したように、外界から断熱した系中に外部磁界 H (A/m) 中に体積 V (m^3) 体積磁化率 χ (-) の物質が置かれたときに物質が受ける力を考える。

まず、外部磁界 H (A / m) の持つエネルギーは式 1.1 のように表される。

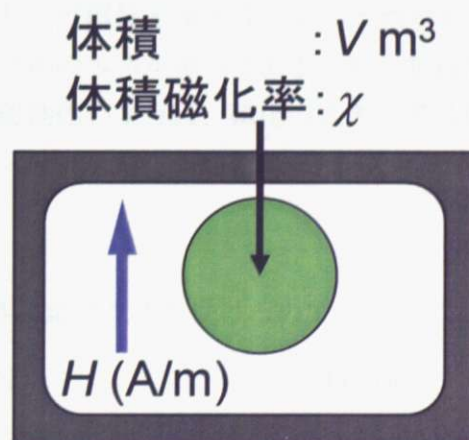


図 1.1 物体への磁場印加

$$u_m = \frac{\mu_0}{2} \mathbf{H}^2 \quad (\text{J}) \quad (1.1)$$

ここで、 μ_0 は真空の透磁率 ($4\pi \times 10^{-7} \text{ H/m}$) である。これより、外部磁界が微小量 ($\Delta \mathbf{H}$) 変化した場合のエネルギー変化は、

$$\Delta u_m = \frac{\mu_0}{2} \{(\mathbf{H} + \Delta \mathbf{H})^2 - \mathbf{H}^2\} \approx \mu_0 \mathbf{H} \cdot \Delta \mathbf{H} = \mathbf{H} \cdot \Delta \mathbf{B} \quad (\text{J}) \quad (1.2)$$

となる。これにより、体積 $V(\text{m}^3)$ の範囲における全エネルギー変化は

$$dU_{mag} = \int_V d\mathbf{v} \mathbf{H} \cdot d\mathbf{B} \quad (\text{J}) \quad (1.3)$$

となる。ここで、式(1.3)で与えられたエネルギーは、真空中に磁場を作る仕事、反磁場を作る仕事、および磁性体を磁化する仕事の三つに使われる。有限の大きさの磁性体では、磁場強度 \mathbf{B} (T)は、外部磁界 \mathbf{H}_e (A/m)、反磁場 \mathbf{H}_d (A/m)、および単位体積あたりの磁化 \mathbf{M} (A/m)を用いて

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}_e + \mu_0 \mathbf{H}_d + \mu_0 \mathbf{M} \quad (\text{T}) \quad (1.4)$$

と表せるので、これを(1.3)式に代入して

$$dU_{mag} = \int_V d\mathbf{v} \mu_0 \mathbf{H}_e d\mathbf{H}_e + \int_V d\mathbf{v} \mu_0 \mathbf{H}_d d\mathbf{H}_d + \int_V d\mathbf{v} \mu_0 \mathbf{H} d\mathbf{M} \quad (\text{J}) \quad (1.5)$$

が得られる。このうち、物性に関係なく決定される値であるため、物質に依存するエネルギー変化は、第二項、第三項の和であり、

$$dU_{mag} = \int_V d\mathbf{v} \mu_0 \mathbf{H}_d d\mathbf{H}_d + \int_V d\mathbf{v} \mu_0 \mathbf{H} d\mathbf{M} = \int_V d\mathbf{v} \mu_0 \mathbf{H}_e d\mathbf{M} \quad (\text{J}) \quad (1.6)$$

となる。ここで、物質の磁気モーメントは、磁化の体積積分

$$\mathbf{m} = \int_V d\mathbf{M} \quad (\text{Am}^2) \quad (1.7)$$

と表されることを用いると、これを式(1.6)に代入した後に両辺を実験操作全体について積分したうえで移項して式を整えると、

$$-\int_V \mu_0 \mathbf{m} d\mathbf{H}_e = U_{mag} + (-\mu_0 \mathbf{m} \cdot \mathbf{H}_e) \quad (\text{J}) \quad (1.8)$$

となる。この右辺第一項は物質を磁化する(磁化し、反磁場を発生させる)ためのエネルギーであり、第二項は磁化した物体を移動させるためのエネルギーであるため、左辺は磁場中におけるポテンシャルエネルギーを表す。弱磁性体のように、磁化の大きさが外部磁界によらず一定であれば、左辺の式は

$$E_{mag} = -\int_V \mu_0 \mathbf{m} d\mathbf{H}_e = -\mu_0 \mathbf{m} \cdot \mathbf{H}_e \quad (\text{J}) \quad (1.9)$$

となる。磁場中の物体は、このポテンシャルの傾きに応じた力を受けるので、

$$\mathbf{F} = -\text{grad} E_{mag} = \mu_0 \mathbf{m} \text{grad} \mathbf{H} = \frac{\chi}{\mu_0} V \text{grad} \mathbf{B} \quad (\text{N}) \quad (1.10)$$

の大きさを持つ磁気力(ファラデー力)を受けることとなる。この式は、磁場勾配の存

在下では、常磁性体は磁場が強い側へ、反磁性体は磁場が弱い側へ力を受けることを示している。

・ 磁気トルク

次に、物体の磁気モーメントと外部磁界の向きが異なるとき、例えば磁気異方性を有する物体に磁場を印加した際に、磁化容易軸と印加磁界の方向が異なっていた場合や印加した磁界、もしくは物体を回転させた場合に磁場が物体に与える影響を考える。

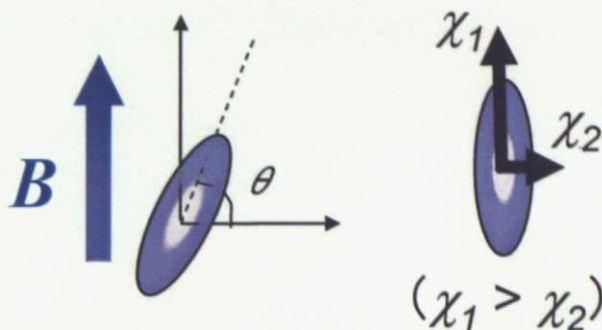


図 1.2 磁気異方性のある物体への磁場印加

図 1.2 のように、磁気異方性を有する物体が外部磁場中に置かれた状況を考える。

まず、磁気モーメント \mathbf{m} (Am^2)と外部磁界の間の角度が θ (deg.)の場合、磁気エネルギーは

$$E_{mag} = -\mathbf{m} \cdot (\mu_0 \mathbf{H}) = -\mathbf{m} \cdot \mathbf{B} = -mB \cos \theta \quad (\text{J}) \quad (1.11)$$

と表される。この磁気エネルギーは、磁気モーメントと外部磁界の向きを一致させるようにトルクを与える。このトルクは、回転軸をトルクベクトルの方向とすれば

$$T = -\frac{\partial E_{mag}}{\partial \theta} \mathbf{m} \times \mathbf{B} = \mathbf{m} \times \mathbf{B} \quad (\text{Nm}) \quad (1.12)$$

となる。図 1.2 の例の状況では、磁気モーメントの成分は $(B\chi_1 \sin \theta, 0, B\chi_2 \cos \theta)$ と表せるので、この物体は磁気トルクとして、 y 軸周りに

$$T = (0, (\chi_1 - \chi_2) B^2 \sin 2\theta, 0) \quad (\text{Nm}) \quad (1.13)$$

というトルクを受ける。この力により、磁気異方性を有する物体に磁場を印加すると、物体はその磁化率に応じて、一つの方向を向くように配向する。

・ ローレンツ力

磁場が物質に与える影響の三つ目として、ローレンツ力がある。これは、図 1.3 に示すように、物質中に電子の流れが存在するとき、流れる電子に働く力である。電子が流れる（つまり電流が存在する）と、その周囲には誘導磁場が発生する。これにより、図 1.3 における電流の右側の磁場が強められると同時に、電流の左側の磁場が弱められる。これにより、電子の周囲には局所的に磁場ポテンシャルが生まれ、電子はポテンシャルの低い側へ向けて

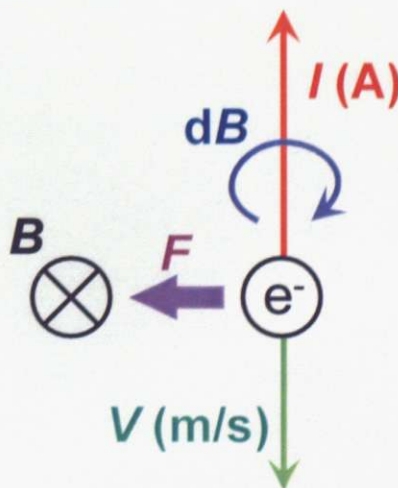


図 1.3 ローレンツ力

$$F = -e(\mathbf{v} \times \mathbf{B}) \quad (\text{N}) \quad (1.14)$$

で表される力を受ける。

・ 熱力学的エネルギー

次に、磁場中に置かれた物質が磁場から受ける影響として、熱力学的なエネルギーへの影響を考える。これまでの三項目では、磁場中の物質が磁場から受ける力学的な力を問題にしてきた。一方、物が磁化することは、外部からエネルギーが与えられているはずであり、これは熱力学的には内部エネルギーが増加したと解される。このとき、磁気エネルギーによる内部エネルギーの変化は、式(1.5)の第三項のみとなるので、

$$dU_{mag} = \int_V dv \mu_0 \mathbf{H} d\mathbf{M} \quad (\text{J}) \quad (1.15)$$

となる。これをもとにルジャンドル変換を用いてギブズの自由エネルギー変化を求めると、

$$G = U - TS - PV - \int_V dv \mu_0 \mathbf{H} \mathbf{M} \quad (\text{J}) \quad (1.16)$$

となる。ここで、温度と圧力を一定として印加磁界 H (A/m) と磁気モーメント M (A/m) が変化した場合、ギブズエネルギーの変化量は

$$dG = -\mu_0 \int_V dv \mathbf{M} d\mathbf{H} \quad (\text{J}) \quad (1.17)$$

と表わされ、磁場を印加することによる自由エネルギー変化の大きさが求まる。このエネルギーは化学反応の活性化エネルギー ($\sim \text{kJ}$) と比べると大きなものではないが、ラジカル反応の反応温度や相転移温度を数 $^{\circ}\text{C}$ 変化させる程度の影響を与えることができることが知られている。

1-2-3. 強磁場によって明らかになる現象の例

磁気科学の分野では、これまで、前項で説明した4つの影響を様々な物質に顕在化させることで、数多くの興味深い現象を示してきた。以下では、いくつかの代表的な現象を解説する。

1-2-3-1. モーゼ効果²⁾

まず、磁気エネルギー、および磁気力を用いた現象について説明する。式(1.3)、および(1.10)で表されるように、磁気エネルギーや磁気力は磁場強度の二乗で大きくなる。そのため、これらに起因する現象は、強磁場を用いた磁気科学を代表する現象であるといえる。

磁気エネルギーによって観察される現象の一つに、モーゼ効果がある。これは、図 1.4 に示すように、液体の界面が変形する様子が観察される現象であり、聖書中のモーゼの奇跡になぞらえてこの名がついている。ここで、図の上段は超伝導コイルによって発生した最大 10 T の磁場中に反磁性の水を置いた場合であり、下段は同じく 10 T の磁場中に常磁性の硫酸銅水溶液を置いた場合である。このとき、超伝導コイルの長さは有限であるため、発生する磁場強度の分布はコイル端の影響を受け、コイルの中心から離れるほど弱くなる。そのため、液体は式(1.10)に従う磁気力が働き、反磁性の液体は中心から離れる向きに、常

磁性の液体は中心向きに磁気力を受ける。それにともない、モーゼ効果もこの地点で最大になっている。

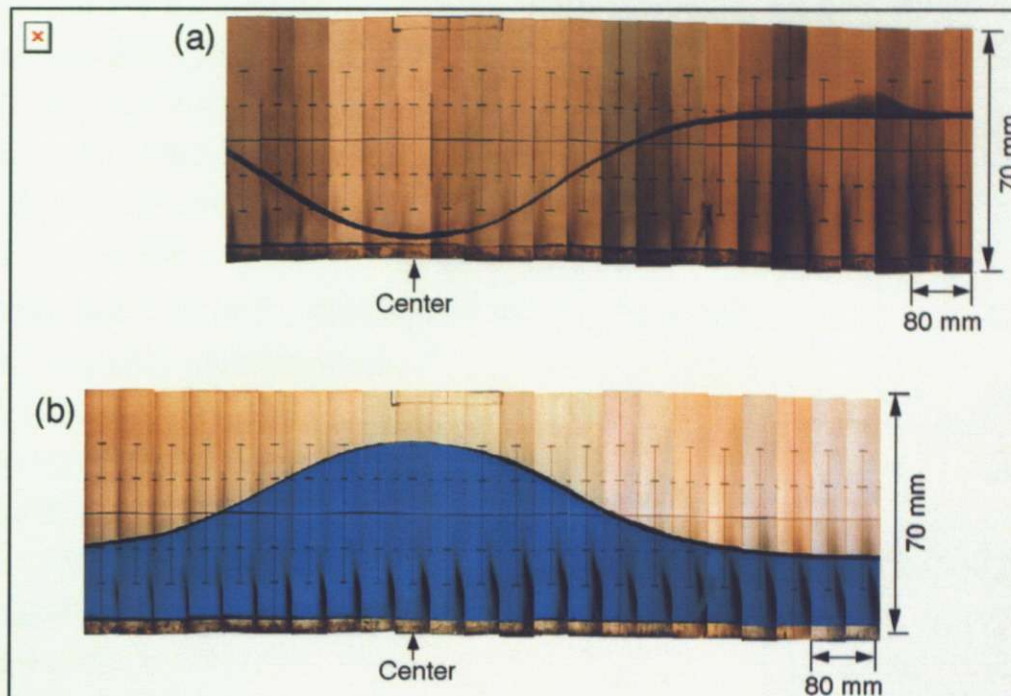


図 1.4 モーゼ効果

上：大気（常磁性）と水（反磁性）、下：硫酸銅水溶液（常磁性）と大気（常磁性）²⁾

このモーゼ効果は、磁気エネルギーと位置エネルギーのつりあいで説明される。超伝導コイルの軸方向に B (T) の磁場中に密度 ρ (kg/m³)、磁化率が χ (・) の液体を置くことを考える。この場合、単位体積あたりの磁気エネルギーと位置エネルギーのつりあいは、液面の高低差を Δh (m)、磁場中心からの磁場強度の変化量を ΔB (T) として

$$\frac{\chi}{2\mu_0} (\Delta B)^2 = \rho g \Delta h \quad (1.18)$$

と表せるので、液面の高低差は

$$\Delta h = \frac{\chi}{2\mu_0 \rho g} (\Delta B)^2 \quad (\text{m}) \quad (1.19)$$

となる。例えば、水は体積磁化率が -9.032×10^{-6} (・) の反磁性体であり、図 1.4 の上段の実験では、液面が 40 mm 程度凹んでいる。一方、硫酸銅水溶液は体積磁化率が 8.397×10^{-6} の常磁性体であり、図 1.4 の下段の実験では液面が 30 mm 程度盛り上がっている。この効果は式(1.19)からも分かるように、磁場強度の二乗で大きくなるため、強磁場の影響が非常にわかりやすい例である。

1-2-3-2. 磁気浮上、および磁気分離^{3),4)}

前項のモーゼ効果は、磁場を水平に印加した場合に観察される現象であった。次に、磁

場を鉛直方向に印加した場合に観察される現象を説明する。

図 1.5 は、磁気力を用いて水を浮上させた実験例（印加磁場強度は約 16 T）である。反磁性粒子に対して磁場を鉛直方向に印加することで、式(1.10)に従い、物体に図 1.6 に示すように重力と反対向きの磁気力を与えることが可能である。この力が重力とつりあう条件下では、物体は力のつりあいによって静止することができ、磁気浮上が実現できる。

さらに、物体のみならず、周囲の環境も考慮に入れた場合、この磁気浮上はより容易に達成できる。物体の周囲の環境が真空でない場合、物体には周囲媒体からの磁気力が

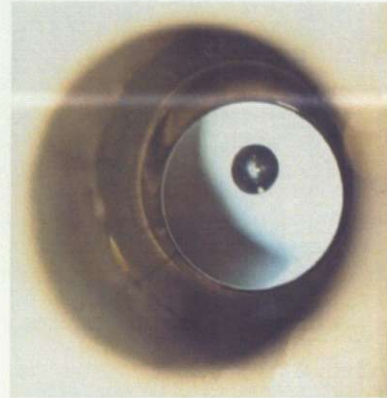


図 1.5 水の磁気浮上 ④

働く。さらに、周囲媒体が磁気力を受けることで、相対的に物体にも力が働くことになる。物体の密度を ρ_1 (kg/m³)、磁化率を χ_1 (-)とし、周囲媒体の密度を ρ_2 (kg/m³)、磁化率を χ_2 (-)とすると、物体が浮上する時の力のつりあいは、単位体積あたりで z 方向（鉛直方向）に働く力のみを考えた場合、

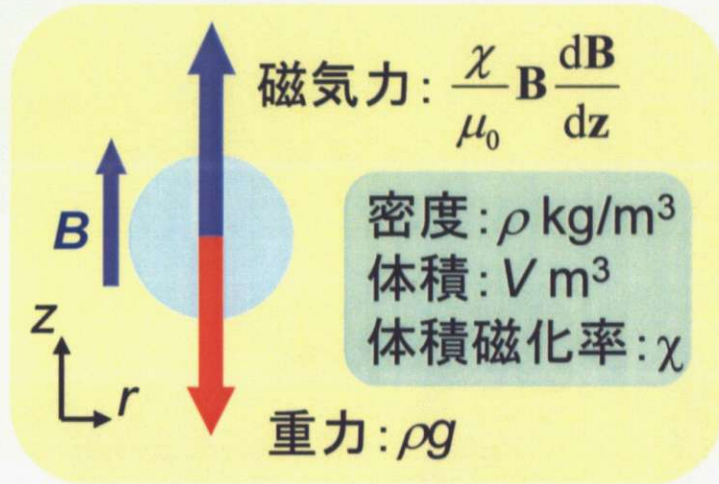


図 1.6 磁気浮上の原理

$$(\rho_1 - \rho_2)g = \frac{(\chi_1 - \chi_2)}{\mu_0} \mathbf{B} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial z} \quad (\text{N}) \quad (1.20)$$

となる。この式は、周囲媒体に強い常磁性体（高圧酸素など）を用いる、また密度が大きな物質を用いることで、磁気浮上が容易に実現することを示している。この周囲媒体からの浮力を用いた磁気浮上を、磁気アルキメデス浮上と呼ぶ。図 1.7 は、硫酸銅水溶液を高圧（18.2 atm）の酸素中に浮上させた様子であり、常磁性体も磁気浮上させることができることを示している。



図 1.7 硫酸銅の磁気浮上

さらに、この磁気浮上、特に磁気アルキメデス浮上を用いると、図 1.8 に示したように、物質の分離を行うことも可能になる。これを磁気アルキメデス分離と呼ぶ。

ここで、物質の浮上条件は、式(1.20)に示したように、物質の物性値によって決定される。

この値は物質によって異なるため、異なる物質はそれぞれ異なる位置に浮上することになる。この現象を用いると、磁化率や密度がわずかに異なる物質が混合した試料を磁気浮上させることで、物質ごとに分離することが可能になる。図 1.8 は、数種類の色ガラスを混合した試料を磁気アルキメデス分離した例であり、ガラスのリサイクル過程への応用が期待される技術である。

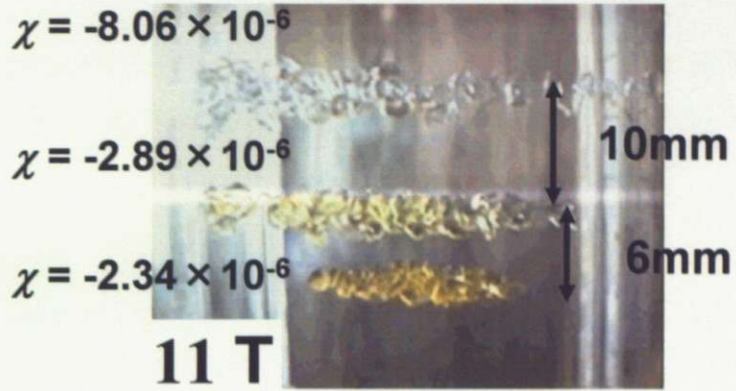


図 1.8 ガラス粒子の磁気分離

1-2-3-3. 磁場による配向性制御

磁気トルクを利用した現象の例として、磁場配向が知られている。式(1.13)に示したように、磁気異方性を有する物質に磁場を印加すると、物質の磁性と磁化容易軸と印加磁場の向きがそろうように回転する。

この現象を図 1.9 に示すようなコロイドプロセス（液相中にコロイドを分散させたスラリーを固化成型し、セラミックス等を作製する

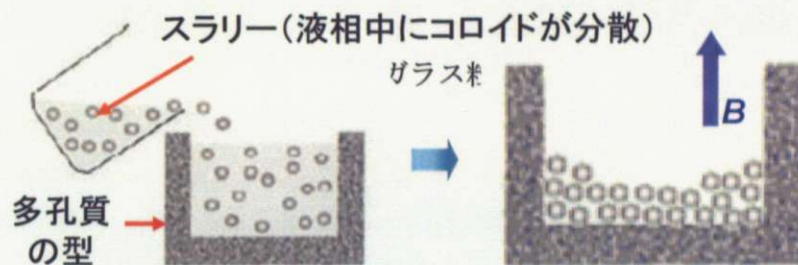
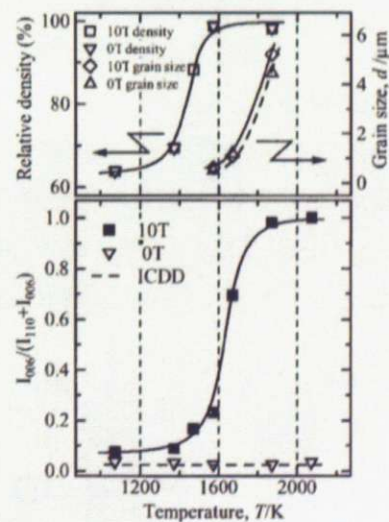


図 1.9 コロイドプロセスの模式図

プロセス) に適用することで、結晶の配向度を高めた材料を作製することが可能である。

図 1.10 は α -アルミナを 10 T の印加磁場下で固化整形したのち、無磁場下で 1600℃ で焼結した際の温度変化に伴う配向度の変化を示している⁵⁾。 α -アルミナはコランダム構造で六方晶系の結晶構造を持ち、磁気異方性を示す。これを 10 T 下で固化した試料を焼結した場合、温度が上がるにしたがって配向度が大幅に向上していくことが分かる。これは、磁気トルクが体積の大きな粒子ほどよく働くために磁場印加によって体積の大きな粒子が磁場配向しており、その後の焼結プロセスでオストワルト成長することで全体の配向度が高まっていくためであると考えられる。



上: 密度変化、粒子成長過程
下: 配向促進過程

ICDD:

International Center for Diffraction Dataカード

図 1.10 コロイドプロセスの例⁵⁾

この現象は、これまで様々な物質で試みられており、熱電変換材料である

[Ca₂CoO_{3-δ}]_{0.62}CoO₂ の配向制御を同様の手法で行い、特性の改善に成功している例も報告されている。また、単結晶育成が困難な試料に対する擬単結晶の作製手法としても期待されている。

1-2-3-4. 銀の無電解析出反応への影響

最後に、ローレンツ力によって観察される効果の例として、銀の無電解析出に対する強磁場の影響を説明する。図 1.11 は、磁場を印加した場合、および印加していない場合のそれぞれの条件で無電解析出によって銀樹を成長させた結果⁶⁾である。



図 1.11 銀の無電解析出に対する強磁場の影響⁶⁾

銀の無電解析出は、硝酸銀溶液と金属銅を用いて、



で表わされる化学反応で進行する。このとき、反応に伴って銀樹の先端には $2e^-$ が供給され、逆に銅からは $2e^-$ が放出される。これらの電子は銀樹内を流れるため、銀樹には電流が流れることになる。磁場中では、この電流にローレンツ力がかかるため、図 1.11 に見られるように、印加磁場に応じた方向に旋回した形状の銀樹が形成されることになる。

なお、このような渦上の形状を示す原因としては、ローレンツ力による銀樹の回転以外にも、硝酸銀溶液中の銀イオンの運動が磁場によって影響される可能性も考えられる。しかし、銀樹が旋回する際、枝がある程度成長してから根元から回転する様子が観察されていることや、溶液中のイオン流に対する磁場の影響をシミュレートすると図 1.11 とは逆巻ききの銀樹が成長することになるといった研究から、この現象はローレンツ力によるものであると考えられる。

1-3. 強磁場を用いた弱磁性粒子の構造制御

以下では、本研究の主眼である、強磁場を用いた弱磁性粒子の構造制御について説明する。まず、誘起磁気双極子間相互作用について説明し、次いで二次元空間における粒子の一次元鎖構造の形成を説明する。その後、本研究で対象とした二次元三角格子構造について詳細な解説を加える。

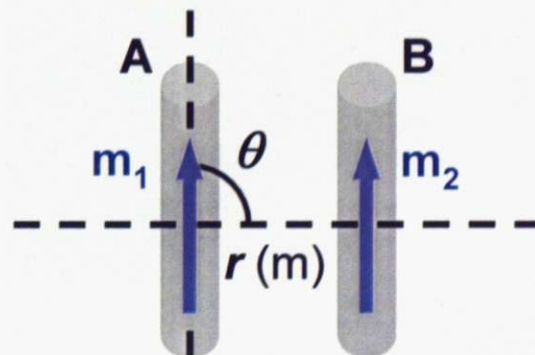


図 1.12 仮定する磁気双極子

1-3-1. 誘起磁気双極子間相互作用

磁場中に置かれた物質は、磁場の向きと物質の磁性に応じて磁化され、周囲に磁気ポテンシャルを形成する。ここで、図 1.12 のように二つの磁気双極子を考え、双極子 A が双極子 B に及ぼす影響を考える。

磁気ポテンシャルの式は磁化を q (Wb) として

$$\varphi = \frac{q}{4\pi r} \quad (\text{Wb/m}) \quad (1.21)$$

と表わされるので、 $+m$ (A/m) より I_1 (m)、 $-m$ (A/m) より I_2 (m) 離れた地点での磁気ポテンシャルは、

$$\varphi = \frac{1}{4\pi} \left(\frac{q}{I_1} + \frac{q}{I_2} \right) = \frac{m}{4\pi} \left(\frac{I_1 - I_2}{I_1 I_2} \right) \quad (\text{Wb/m}) \quad (1.22)$$

となる。この式を三角公式を用いて解くと、 $r \gg d$ の場合について

$$I_1 = r - \frac{d}{2} \cos \theta \quad (\text{m}), \quad I_2 = r + \frac{d}{2} \cos \theta \quad (\text{m}) \quad (1.23)$$

より、磁気ポテンシャルは

$$\varphi = \frac{q}{4\pi} \frac{d \cos \theta}{r^2} = \frac{m \cos \theta}{4\pi r^2} = \frac{\mathbf{m} \cdot \mathbf{r}}{4\pi r^3} \quad (\text{Wb/m}) \quad (1.24)$$

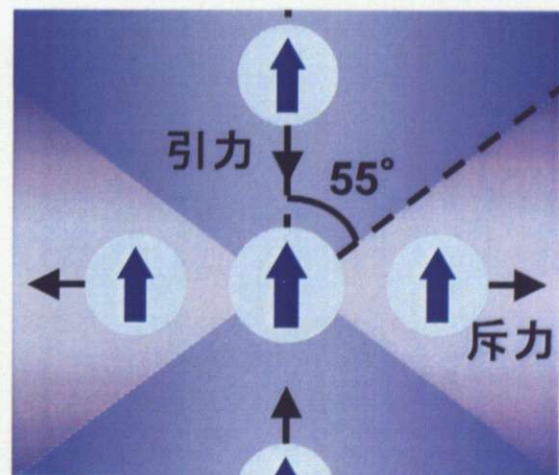
と書くことができる。よって、双極子 A が双極子 B の位置につくる磁場 \mathbf{H} は、 $\mathbf{H} = \nabla \varphi$ より、

$$\mathbf{H} = -\nabla \varphi = \frac{-1}{4\pi} \left[\nabla \left(\frac{\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{r}}{r^3} \right) \right] = \frac{-1}{4\pi r^3} \left[\mathbf{m}_1 - \frac{3}{r^2} (\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{r}) \mathbf{r} \right] \quad (\text{A/m}) \quad (1.25)$$

となる。よって、A、B 二粒子間の相互作用エネルギーは

$$U = -\mu_0 \mathbf{m}_2 \cdot \mathbf{H} = \frac{\mu_0}{4\pi r^3} \left[\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{m}_2 - \frac{3}{r^2} (\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{r})(\mathbf{m}_2 \cdot \mathbf{r}) \right] \quad (\text{J/m}^3) \quad (1.26)$$

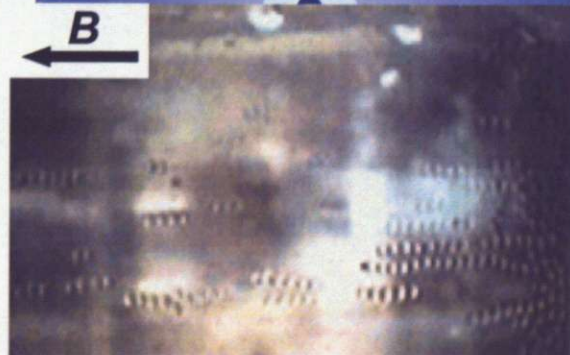
と表わされる。この式は、二つの磁気モーメントの位置関係によって働く力が引力か斥力かが決定されることを示しており、式を解くと、図 1.13 に示すように、 $\theta = 55^\circ$ を境に引力と斥力が切り替わることがわかる。



1-3-2. 二次元空間における一次元鎖

前段で示した誘起磁気双極子間相互作用の一例として、図 1.14 に示すような一次元鎖構造の形成が知られている。

この現象では、双極子間相互作用は引力として作用している。反磁性粒子をガラスセル中に封入し、図 1.15 に示すように超伝導マグネット



中にセットして水平方向に磁場を印加する。このとき、印加磁場の方向は、セル中の二次元空間内ではほぼ平行になっている。図に示した実験は全て同一の粒子であるから、全ての磁気モーメントは同じ大きさである。そのため、印加磁場と同じ方向に並んだ粒子同士の相互作用のポテンシャルエネルギーは式(1.26)に $\cos \theta = 1$ を代入すれば良く、

$$U = \frac{\mu_0}{4\pi^3} \left[\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{m}_2 - \frac{3}{r^2} (\mathbf{m}_1 \cdot \mathbf{r})(\mathbf{m}_2 \cdot \mathbf{r}) \right] = -\frac{2\mu_0 m^2}{4\pi^3} \quad (\text{J/m}^3) \quad (1.27)$$

となる。よって、粒子間に働く力はこのポテンシャルの微分になるため、

$$F = -3 \frac{\mu_0 m^2}{2\pi^4} \quad (\text{N}) \quad (1.28)$$

図 1.14 相互作用による一次元鎖

となる。これは粒子間に引力が働くことを示している。これにより、反磁性粒子が磁場勾配

(モーゼ効果の項で示したとおり、磁場中心から離れるにしたがって、磁場強度は弱くなる)にしたがって磁場中心から離れようとする際、粒子同士が引力によってつながり、図に示したような一次元鎖構造を形成する。なお、図 1.15 で示した実験は、反磁性の直径 1 mm のガラス粒子 (密度 $2.5 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、体積磁化率 -1.44×10^{-5}) を常磁性の 40 wt% 塩化マンガン水溶液 (密度 $1.8 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、体積磁化率 8.10×10^{-4}) の中に入れることで相対的に反磁性を強め、相互作用を強めることでより長い一次元鎖の形成を実現している。

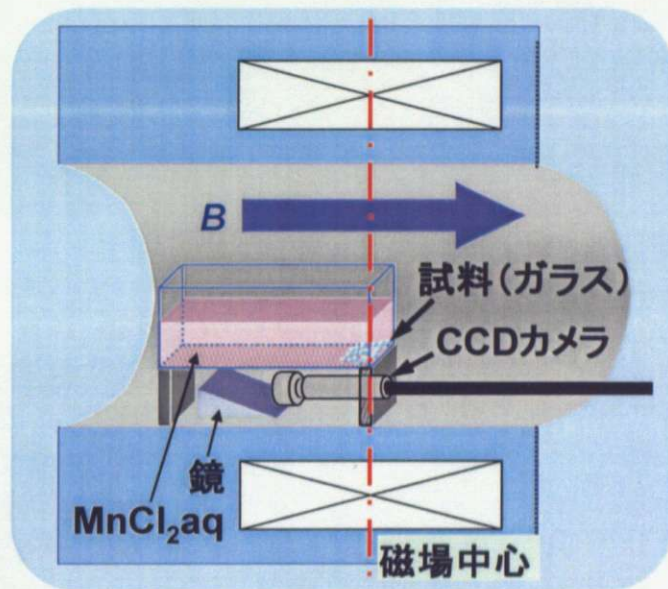
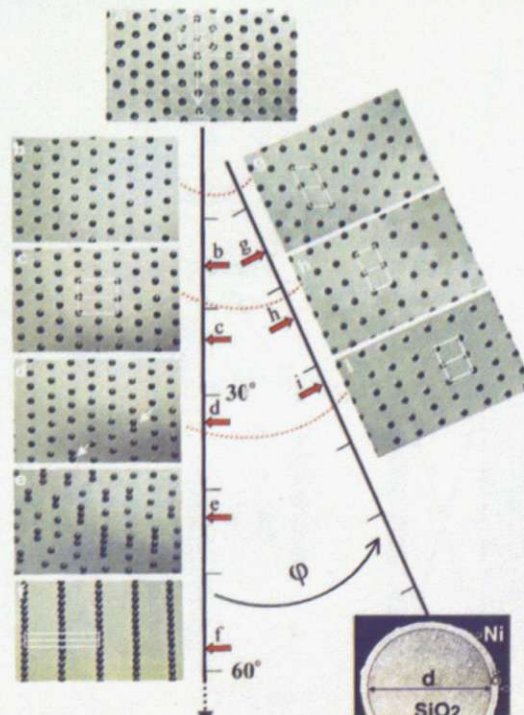


図 1.15 一次元鎖形成実験の概要

1-3-3. 二次元三角格子構造

前節では、二次元空間中の粒子に対して空間と水平な方向に磁場を印加した場合に観察される現象を示した。本節では、二次元空間に対して垂直に磁場を印加した場合に観察される現象として、本研究で焦点を当てている弱磁性粒子を用いた二次元三角格子構造の形成について説明する。



1-3-3-1. 現象

磁場を用いた規則配列の作製は、従来、強磁

性体を用いて研究がおこなわれてきた。たとえば、2000年にはWenらにより、SiO₂粒子にニッケルをコーティングした粒子に100 Gauss程度の磁場を方向を変えながら印加すると、図1.16に示すように、三角格子と四角格子を作り分けることができることが示された⁷⁾。また、2001年には、Saadoらにより、図1.17に示すように、希土類系の永久磁石を気液界面に並べて作製した三角格子構造を三次元的に並べることでエネルギーギャップを生じ、特定波長を遮断する効果を示すことが示された⁸⁾。

これに対し、弱磁性物質に対しても、弱磁性の球状粒子を複数配した二次元空間に対して垂直に5 T程度の強磁場を印加することで、図1.18に示すように、二次元三角格子構造を形成することが知られている⁹⁾。ここでは、図1.19に示すように、40 wt%の塩化マンガン水溶液中加入したシャーレ中に直径1 mmの金粒子（密度 $19.3 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、体積磁化率 -3.44×10^{-5} ）を置き、超伝導コイルを用いて液面に垂直な向きに磁場を印加すると、自己組織的に三角格子構造を形成す

自己組織的に三角格子構造を形成す

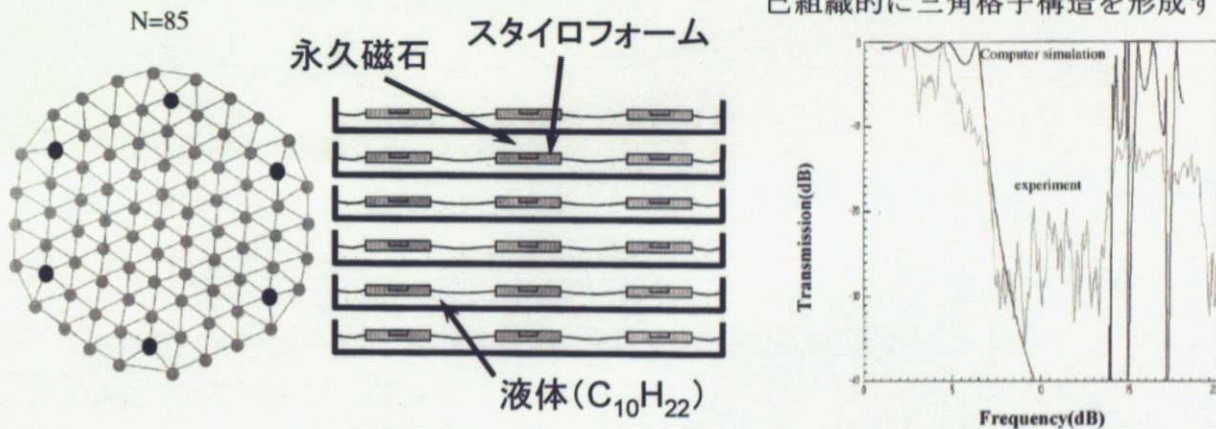


図 1.17 強磁性体の三角格子配列とそのエネルギーギャップ⁸⁾

ることが示された。この現象は、自己組織的な規則配列形成の新しい手法として注目されている。

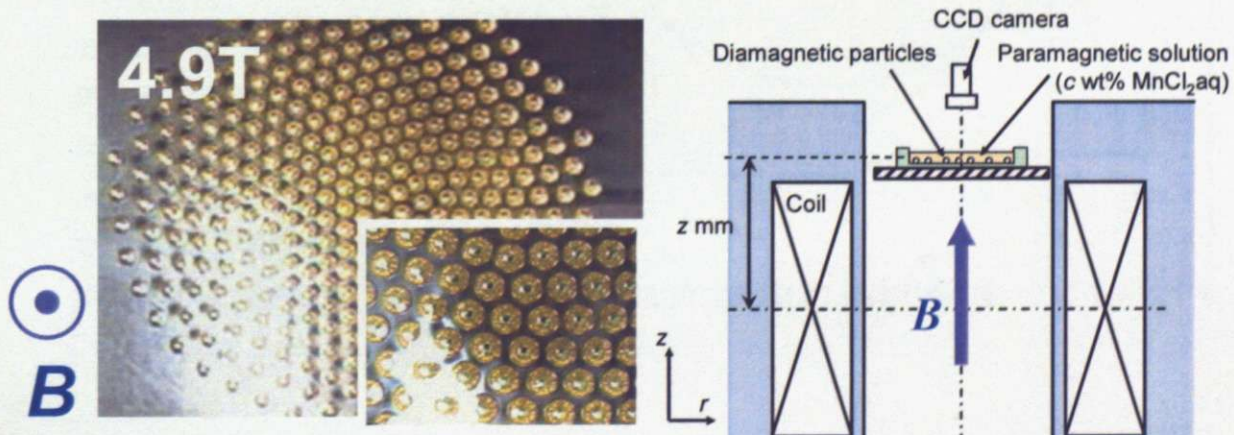


図 1.18 弱磁性粒子（金）を用いた

図 1.19 二次元三角格子形成実験

1-3-3-2. 原理

この現象は、前節で説明した一次元鎖の形成と同様に、誘起磁気双極子間相互作用と磁気力によって説明される。

まず、磁気双極子間相互作用について考える。今回の条件では、溶液中の粒子の磁気モーメントは図 1.20 に示すようになっている。この場合、式(1.26)における $\cos \theta$ は 0 となる。よって、ポテンシャルエネルギーは

$$U = \frac{\mu_0 m^2}{4\pi r^3} \quad (\text{J/m}^3) \quad (1.29)$$

となる。よって、双極子間に働く磁気力は

$$F = \frac{3\mu_0 m^2}{4\pi r^4} \quad (\text{N}) \quad (1.30)$$

となる。特に、周囲媒体の影響を考えると、磁気力は

$$F = \frac{3\mu_0 (\Delta m)^2}{4\pi r^4} \quad (\text{N}) \quad (1.31)$$

となる。これらの力は、粒子間に斥力が働くことを示している。

次に、磁気力について考える。

この現象では、磁場の印加に超伝導コイルを用いている。ビオ・サバルの法則

$$\mathbf{B} = \mu_0 \int \frac{I d\mathbf{l} \times \mathbf{r}}{4\pi r^2} \quad (\text{T}) \quad (1.32)$$

からも分かる通り、電流との距離 r (m) が離れると、その地点に発生する磁場強度は減少する。コイル中の磁場強度の分布は、図 1.21 に示すように、直径上の対称な二点が発生する磁場の足し合わせを一周分足し合わせることで得られる。よって、内径が十分に大きなコイル中では、コイルの中心部ほど磁場強度

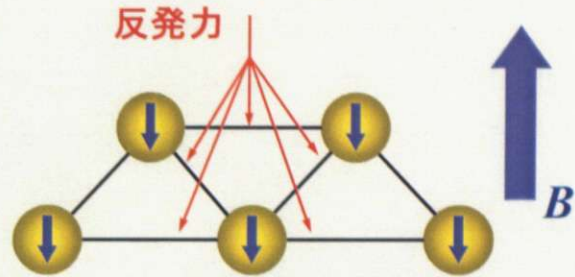
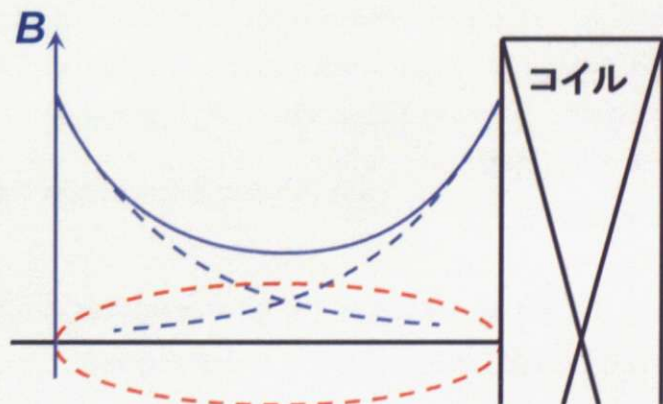


図 1.20 印加磁場中の誘起磁気双極子



が弱くなる。これにより、金のような反磁性を持つ物質は、式(1.10)に従い、コイルの中心

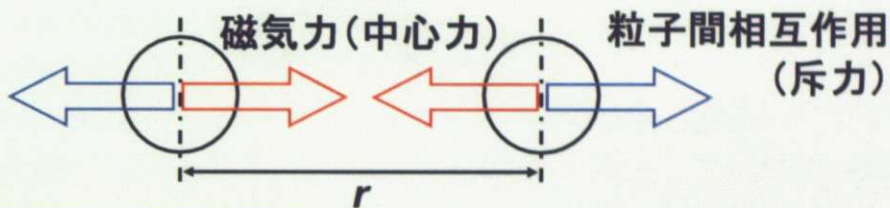
図 1.21 コイル内の磁場強度分布

部に向けて磁気力を受ける。このとき、全ての粒子はコイルの中心部に集まろうとするため、互いの斥力とのつりあいで一定の安定位置をとることになる。

以上より、この現象において、三角格子構造は図 1.22 に示すように、

$$\frac{\Delta\chi}{\mu_0}VB\frac{\partial B}{\partial r} = \sum \frac{3\mu_0(\Delta m)^2}{4\pi r^4} \quad (\text{N}) \quad (1.33)$$

という力のつりあいによって決定される。ここで、磁場強度 B の変化は、超伝導コイルの径方向 (r 方向) についてのみ注目した。ここで、全ての粒子が単一の直径を有する球状粒子であれば、その粒子間相互作用の強さは方向に寄らず一定であるため、均一な格子間隔を有する三角格子構造が形成されることになる。



<p>中心力: $F_{mag} = \frac{\Delta\chi}{\mu_0}VB\frac{\partial B}{\partial r}$</p>	<p>斥力: $F_{dip} = -\frac{3\mu_0 m_1 m_2}{4\pi r^4}, m = \frac{\Delta\chi}{\mu_0}VB$</p>
---	---

$\Delta\chi$: 粒子と周囲媒体との磁化率差
 B : 印加磁場強度

μ_0 : 真空の透磁率
 r : 粒子間距離

V : 粒子の体積

1-3-3-3. 強磁場を用いた格子作製の特徴

以上で説明した、強磁場を用いた二次元三角格子構造の作製手法は、以下に示すような特徴を持つ。

第一に、この手法は非常に多様な材料を制御することができる。前段で説明したとおり、この手法は全ての物質が有する物性である磁性によって配列を形成している。これは、この手法が多様な物質に適用されうることを示している。特に、周囲媒体を考慮した磁気アルキメデス効果を用いることで、図 1.18 に示したような反磁性物質のみならず、常磁性物質であっても、周囲媒体に対して相対的に反磁性を示す条件を整えることで構造形成が可能になる。強磁場下での制御に向かない強磁性体ごく一部の物質しか示さない物性であることを考えると、この手法はほとんど全ての物質を制御しうるといえる。

図 1.22 三角格子構造における力のつり合い

この特徴は、例えばクーロン力を用いた構造制御が一定以上の電荷を必要とすることと比べて、幅広い材料選択の自由度があり、多様な物性を有する材料作製を可能にしようと考えられる。

第二に、この手法は μm オーダーから mm オーダーまで、幅広い大きさの材料を制御す

ることが可能である。式(1.10)、および式(1.31)からもわかるように、この現象では、単位体積当たりの力のつり合いが規則配列構造を決定している。そのため、粒子の大きさが変化してもつり合いの式は変化せず、同様につり合いを考えることができる。このため、この手法は基本的に、どのような大きさの粒子に対しても適用することが可能である。

ここで、粒子の大きさが変化した時に注意すべき影響として、粒子の熱エネルギーがある。粒子に働く力は、粒子の大きさが小さくなった場合、磁気力は体積の 1/2 乗に、磁気双極子間相互作用は体積の 1/4 乗に比例する。これに対し、熱エネルギーは体積に関係なく一定である。そのため、粒子の体積が小さくなるにつれて、熱エネルギーの影響が無視できなくなる。この問題は、より強い磁場を印加することで解決されることが予想され、たとえば直径 1 μm の系では 30 T 程度の強磁場を印加することで熱エネルギーを上回る相互作用を与えることができると予想される。このように、粒子を小さくするにつれて、必要に応じて印加磁場強度を変化させることで、この手法は（印加できる磁場強度の範囲内で）どのような大きさの粒子も制御することが可能である。

この特徴は、例えばファンデルワールス力を用いた構造制御が非常に小さな粒子においてしか有効でないことと比べて、より幅広い構造制御を実現し、さまざまな物性を持つ材料作製を可能にすると考えられる。

これらの特徴により、この手法は、構造を規定する複数の実験条件、例えば粒子の磁化率や粒子の大きさを任意に変化させることが可能であり、それによってさまざまな物性を有する材料を作製することが可能であると考えられる。

1-3-3-4. 応用の可能性

以上の特徴により、このような二次元三角格子構造形成プロセスへの磁場利用には、いくつかの応用が考えられる。

第一に、フォトニック結晶と呼ばれる光学素子が挙げられる。フォトニック結晶とは誘電率の異なる二種類以上の物質を規則的に配列した構造を有する材料である¹⁰⁾。図 1.23 には最も単純な規則配列構造の例として二種類の誘電体からなる多層膜を示した。このとき、屈折率を n_1, n_2 とし、相の厚さを d (m)、 a (m) とすると、ブラッグ反射の原理により、

$$k = \frac{2\pi}{(\lambda/n_{av})} = \frac{m\pi}{a} \quad (m^{-1}) \quad n_{av} = \sqrt{n_2^2 + (n_1^2 - n_2^2)}$$

(1.34)

となる波数の光が遮断され、結晶内部を通過できないことになる。この現象は、通常の結晶が原子の配列によってエネルギーバンドを形成し、バンドギャップに応じた光を吸収する減少と同様に、フォトニ

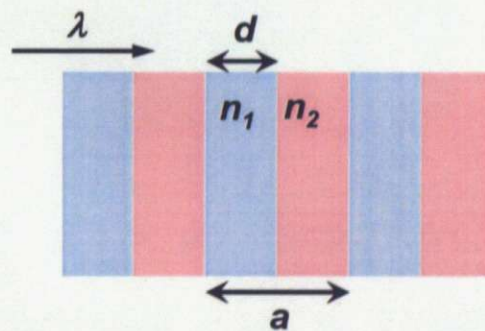
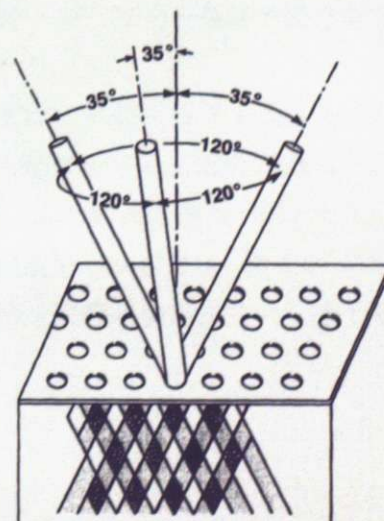


図 1.23 誘電体多層膜



ック結晶中の結晶配列に応じてフォトニックバンドギャップと呼ばれるエネルギーギャップを形成し、特定波長の光を通さないために生じている。

このフォトニック結晶は、1979年に大高によってフォトニックバンドが提唱されたことにはじまる。その後、1987年にE.Yablonovitchによりフォトニック結晶が提案され、さらに1991年に図1.24に示すような誘電体に穴をあけた構造によって三次元のフルバンドギャップが確認される¹¹⁾に至り、研究が活発になった。現在は、図1.25に示すようなWoodpile構造を用いた三次元結晶の作成¹²⁾が主流である。この構造ではマイクロ波領域を中心に可視光領域に至る幅広い範囲でのフルバンドギャップを持つ構造が研究されている。強磁場を用いた構造制御は、特にマイクロ波程度の領域について多様な材料作製を可能にする、新しい材料作製法になりうると期待される。

フォトニック結晶以外の応用例としては、磁気記録材料への応用やテストパターン作製等も考えられる。前者は図1.26に示すように、磁性体を磁気モーメントが互いに逆を向くように配列させることで高い記録密度を実現する磁気記録材料である。強磁場を用いた規則配列構造作製手法を用いると、同一の方向を向く磁性体ごとに配列を作成することで、図1.25に示すような配列構造の作成が可能であると考えられる。

また、撮像素子の解像度の確認等に用いられるテストパターンは、まさに規則配列構造を有しており、強磁場を用いた規則配列構造作製により、さまざまな格子間隔を有するパターンの作製が可能であると考えられる。

以上に挙げた材料は、その構造によって機能が規定されている。そのため、強磁場を用いた規則配列作製手法は、自在な材料を用いて配列作製を行うことが可能であることから、多様な機能を有する材料を作製することができる手段として有用であると考えられる。

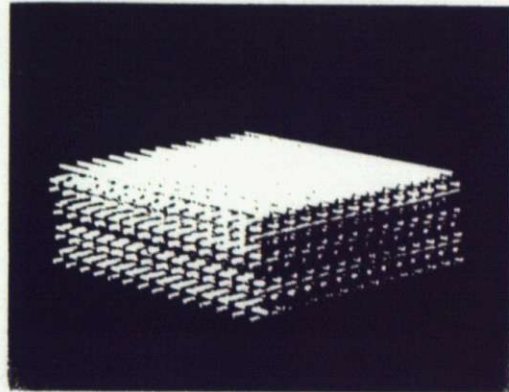


図 1.25 Woodpile 構造¹²⁾

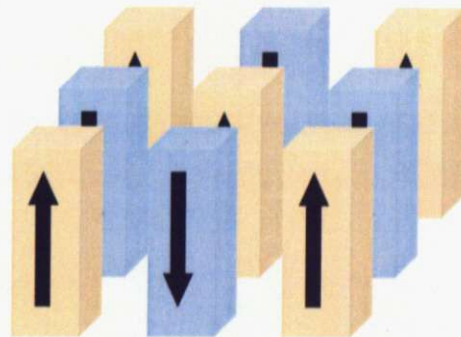


図 1.26 磁気記録材料の模式図

1-3-3-5. これまでの研究

最後に、以上で説明してきた強磁場を用いた弱磁性粒子の二次元三角格子構造形成について、これまで行われてきた研究について簡単に解説する。

弱磁性粒子を用いた二次元三角格子構造に関する研究は、当初からフォトニック結晶などへの応用を考え、その最大の特徴である構造制御の可能性を中心に研究が進められてきた。たとえば、2006年に安藤らが発表した論文¹³⁾では、この構造制御の一例として、粒子数の変化が格子間隔に及ぼす影響が理論解析と実験の両面から検討され、図1.27に示すように、粒子が多くなるほど粒子間に働く力が強まり、格子間隔が狭まっていく様子が示さ

れた。

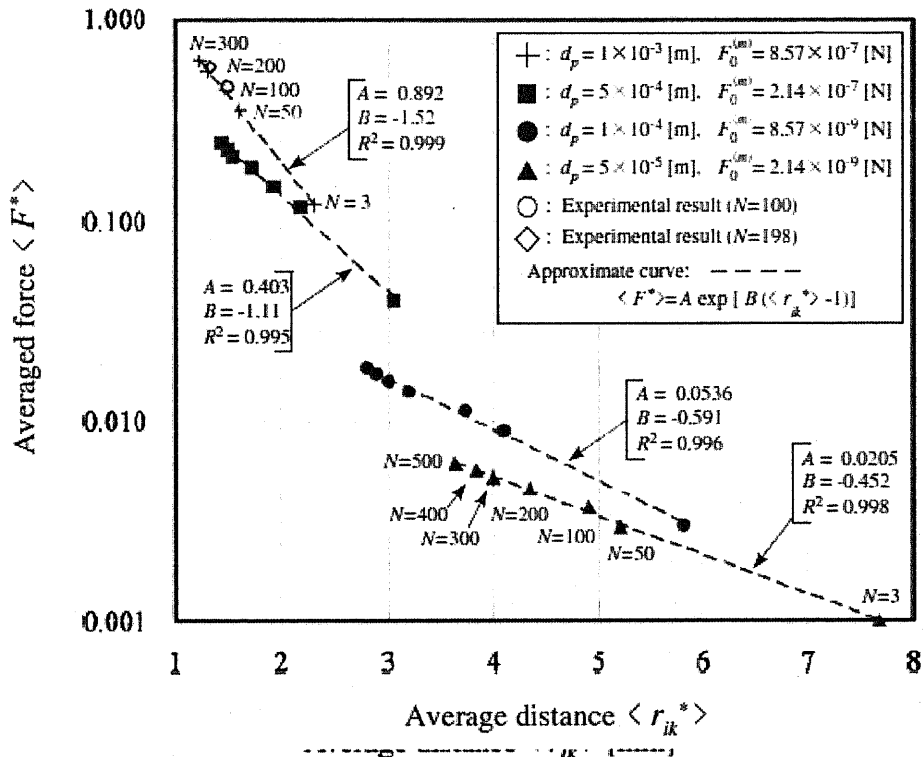


図 1.28 粒子数、および粒子径による格子間隔の変化¹⁴⁾
 図 1.27 粒子数による格子間隔の変化¹⁴⁾

また、図 1.28 に示すように、粒子数に加えて粒子径を変化させた場合の格子間隔に対する影響も数値計算によって検討され、この現象への理論的な理解が進むとともに、構造制御の可能性が示されてきた¹⁴⁾。

第二章 研究の目標、および目的

2-1. 研究の目標

前章で述べたように、強磁場は、反磁性体や常磁性体といった弱磁性体に対してもその相互作用を顕在化させるほどの影響を及ぼし、さらにこれらの粒子を制御することが可能であると考えられる。

本研究では、その中でも、誘起磁気双極子間相互作用を用いた三角格子構造形成に注目した。この現象はすべての物質がもつ物性である磁性に起因するため、様々な材質や大きさの粒子で構造を作製することができる。この特徴から、この現象は規則配列構造を有する材料の作製プロセスへの応用が期待されている。

しかし、この現象に関する研究は、これまでのところその構造、特に格子間隔に関する理論解明と制御の可能性の検証を中心に進められてきており、その材料作製手法は未だ確立されていない。そこで本研究では、この現象の材料作製プロセスへ応用への実現に向け、「誘起磁気双極子モーメント間の相互作用による構造形成を利用した新たな材料作製プロセスの開発」を目標として研究を行った。

2-2. 本研究の目的

この材料作製プロセスの開発には、大きく以下の二点に関する知見の集積が必要となる。

第一に、三角格子構造の組織制御手法の確立がある。本手法を用いた材料作製プロセスに期待される利点は、強磁場下における誘起磁気双極子間相互作用という単一の原理のもとで、多様な格子配列を有する材料を自在に作製することができる自由度の高さである。そのため、組織制御手法の確立は材料作製プロセスへの応用にとって非常に重要な要素となる。第二に、作製した格子配列を磁場がない環境に取り出すための固定化手法の確立が必要である。これまでの研究では、液体中にて構造形成を行っていたため、無磁場下では構造を保つことができなかった。そのため、材料作成に向けては無磁場下でも構造が保持されるよう、構造を固定化する必要がある。

本研究では、これらの二点のうち、前者の三角格子構造の組織制御手法の確立を目的として研究を行った。

2-3. 研究の流れ

本研究では、まず、格子作製条件を変化させることによる三角格子構造の格子間隔制御について検証を行った。1-3-3.で述べたとおり、二次元三角格子構造の格子間隔は中心力としての外部磁場による磁気力、および斥力としての誘起磁気双極子間相互作用のつりあいによって決定される。これらの力は物質や周囲媒体の物性、印加磁場強度といった実験条件によって決定される。ここで、 V , $\Delta\chi$ が中心力では1次に依存するのに対し、双極子間相互作用では2次の依存を示すことから、格子間隔を

- (i) 使用する粒子の体積で制御する方法
- (ii) 粒子と周囲媒体との磁化率差で制御する方法

(iii) 磁場強度と磁場の空間分布で制御する方法

の三つの手法で制御することを試みた。これらの条件は、それぞれ(i)は粒子の粒径、(ii)は周囲媒体として用いる塩化マンガン溶液濃度、また(iii)は粒子への印加磁場強度によって変化させることが可能である。そこで、本研究ではこれらの三つの手法による格子間隔の制御手法について、実験とMD法(Molecular dynamics methods: 分子動力学法)を用いたシミュレーションの両面から検討を行った。

さらに、本研究では、格子間隔をより幅広く制御するため、磁場強度分布の制御を試みた。上記の各条件のうち、印加磁場強度については実験に用いる超電導マグネットの緒元によって印加できる磁場強度の空間分布が決まってしまう。そこで、超電導マグネット中に磁性体を入れて周囲の磁場強度を変化させることによって印加磁場強度を制御し、広い範囲で平坦な磁場強度分布を得られる磁性体の配置を検討した。磁場解析は、有限要素法を用いて磁場計算ソフトウェアによって行った。また、シミュレーションによって磁性体の有無による粒子間距離を比較し、格子間隔制御への可能性を検討した。

第三章 二次元三角格子の格子間隔制御

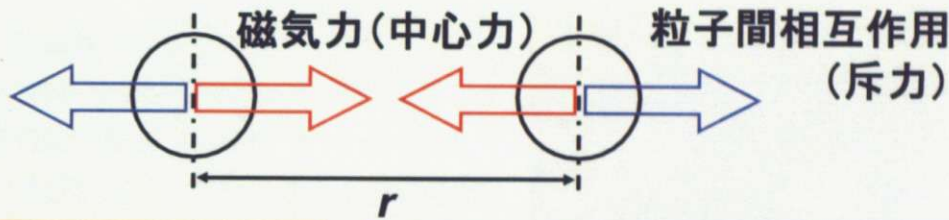
3-1. 理論的背景

本節では、二次元三角格子の格子間隔制御に関する理論的背景、およびそこから本実験で格子間隔制御に用いる条件を示す。

第一章の式(1.33)に示したように、この構造の格子間隔は、磁気力と誘起磁気双極子間相互作用との釣り合いで決定される。ここで、単純化のために二粒子と周囲媒体のみからなる系を考えると、力のつり合いは、図 3.1 に示すように

$$\frac{\Delta\chi}{\mu_0} V \mathbf{B} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial r} = \frac{3\mu_0 (\Delta m)^2}{4\pi r^4} \quad (\text{N}) \quad (3.1)$$

となる。よって、格子間隔はこれらの力のつり合いを変化させることで制御することが可能である。



$$\text{中心力: } F_{mag} = \frac{\Delta\chi}{\mu_0} V \mathbf{B} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial r}$$

$$\text{斥力: } F_{dip} = -\frac{3\mu_0 m_1 m_2}{4\pi r^4}, \quad m = \frac{\Delta\chi}{\mu_0} V \mathbf{B}$$

$\Delta\chi$: 粒子と周囲媒体との磁化率差
 B : 印加磁場強度

μ_0 : 真空の透磁率
 r : 粒子間距離

V : 粒子の体積

図 3.1 三角格子構造における力のつり合い

ここで、式(3.1)に

$$\Delta m = \frac{\Delta\chi}{\mu_0} V B \quad (\text{Am}^2) \quad \text{ただし、} B = (B_r^2 + B_z^2)^{1/2} \quad (\text{T}) \quad (3.2)$$

を代入し、また左辺の微分と内積を計算すると、

$$\frac{\Delta\chi}{\mu_0} V \mathbf{B} \text{grad} \mathbf{B} = \frac{3(\Delta\chi V B)^2}{4\mu_0 \pi r^4} \quad (3.3)$$

となる。ここで、この式の左右両辺を見比べると、左辺は V 、 $\Delta\chi$ 、および B のそれぞれについて一乗の関数であるのに対し、右辺はこれらの変数について二乗の関数となっている。このことから、これらの値を変化させることで、力のバランスが変化し、格子間隔 $r(\text{m})$ の値が変化することが予想される。このことは、式(3.3)を粒子間の距離 r について解くことで、

$$r = \sqrt[4]{\frac{3\Delta\chi V B^2}{4\pi \mathbf{B} \text{grad} \mathbf{B}}} \quad (\text{m}) \quad (3.4)$$

とすると、より直観的に理解しやすくなる。

以上を踏まえ、本研究では

- (i) 使用する粒子の体積 $V(\text{m}^3)$: 粒子の直径
- (ii) 粒子の周囲媒体に対する相対的な磁化率 $\Delta\chi(-)$: 周囲媒体 (MnCl_2 水溶液) の濃度
- (iii) 磁場強度と磁場の空間分布 $B(\text{T})$: 印加する磁場強度、および格子形成の実験位置の三つの条件を変化させることにより、格子間隔の制御を試みた。ただし、印加磁場強度については、式(3.4)からもわかるとおり、 $\text{grad } B$ が変化してしまうと力のバランスが変化しないため、ここでは超電導コイル内の磁場分布が磁場中心からの距離によって異なることを利用し、印加する磁場強度を変化させると同時に実験位置を変化させ、 $B \text{ grad } B$ を一定に保ちながら磁場強度のみを変化させた。

3-2. 実験装置

実験は、以下の各装置を用いて行った。

3-2-1. 超伝導マグネット

本研究では、磁場を印加するために、図 3.2 に示すような JASTEC 社製の超伝導マグネット JMTD13C100 を使用した。このマグネットは直径 100 mm の室温ボアを有しており、この部分に最大磁場強度 13 T の磁場を印加することが可能である。

このとき、磁場分布は図 3.3 に示したように、マグネットの中央部分で磁場強度が最も強く、マグネットの両端に向かうにつれて弱くなっている。これにより、ボアの中心軸上で軸方向に見たポテンシャルの微分 ($B_r \partial B_r / \partial z + B_z \partial B_z / \partial z$: 磁気力に比例) は図 3.4 のようになっている。



図 3.2 超伝導マグネット外観

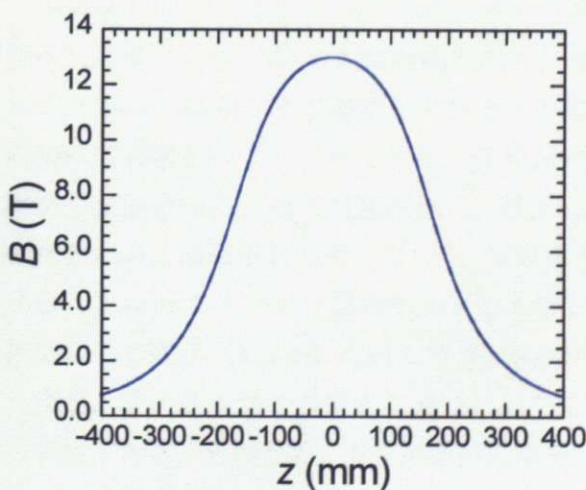


図 3.3 ボア軸方向の磁場強度

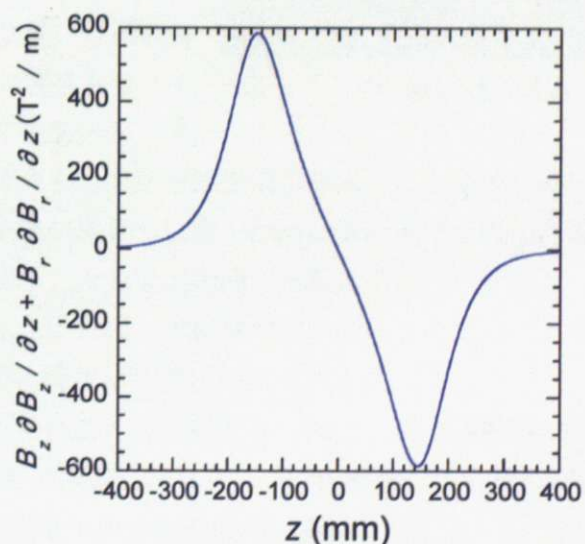


図 3.4 ボア軸方向の磁気力分

また、ボアの径方向に見た磁場分布はボアの中心から離れるに従って図 3.5 に示すように変化する。これにより、径方向のポテンシャルの微分 ($B_r \partial B_r / \partial r + B_z \partial B_z / \partial r$) は図 3.6 に示すように変化し、中心から 182 mm 離れた地点でほぼ 0 になっていることがわかる。

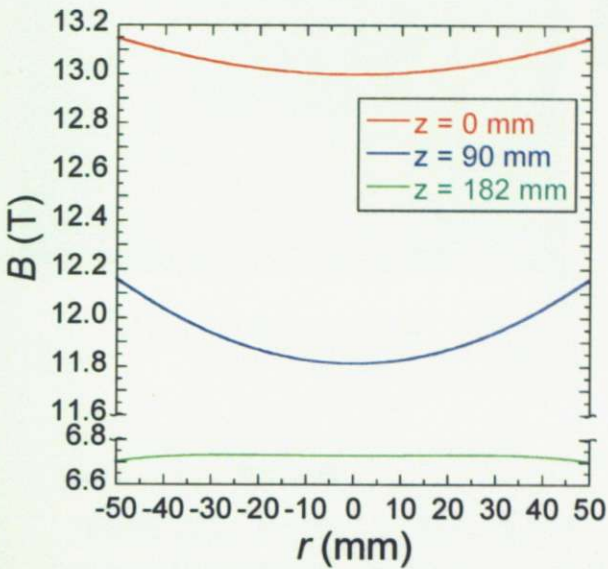


図 3.5 ボア径方向の磁場分布

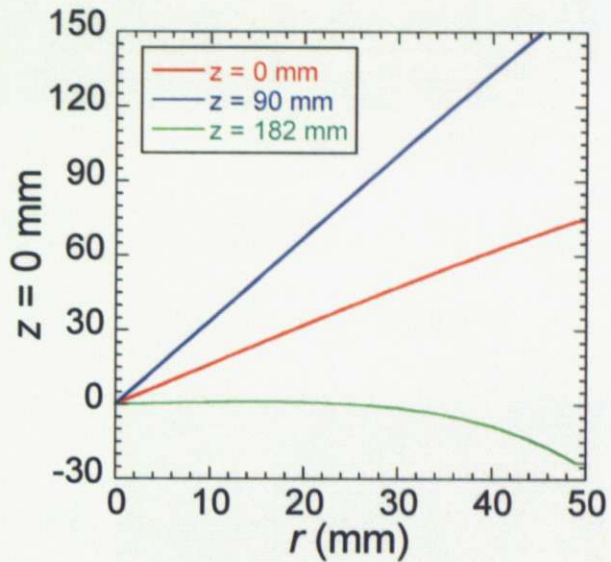


図 3.6 ボア径方向の磁気力分布

3-2-2. 光学顕微鏡

実験に使用する球状粒子は、図 3.7 に示す Nikon 社製の光学顕微鏡 ECLIPSE E-400 POL を用いて選定した。この顕微鏡は、上部にカメラを設置することで外部のモニターと接続することが可能であり、本研究では同社製のデジタルカメラ用アプリケーションである ACT-2U を用いて試料の観察を行った。



図 3.7 光学顕微鏡の外観

3-2-3. 試料セル

本研究では、図 3.8 に示す二次元密閉セルを用いて実験を行った。本セルは、図 3.9 に断面を示すような構造となっており、内部に媒体とする溶液と試料とする粒子を封入し、密閉系にて実験を行うことができる。粒子が分布する二次元空間を気液界面とした場合、モーゼ効果や表面張力によって攪乱が生じ、結果に誤差が生じてしまうため、本研究では気液界面を排するために密閉系を使用している。本研究では、二次元空間の高さを決めるスペーサとして、厚さ 1.2 mm のテフロン製のリングを使用した。これは、本研究で用いる粒子中でもっとも大きな粒子の直径 (1 mm) に対して 20% の余裕を持たせた値になっている。

なお、アクリル製の外殻中にガラス板を入れているのは、親水性の向上、および摩擦の低減が目的である。そのため、ガラス板は低摩擦材料で作製したうえ、1M の水酸化ナトリウム溶液中に数時間浸け、表面の親水性、平滑性を向上させてから使用している。

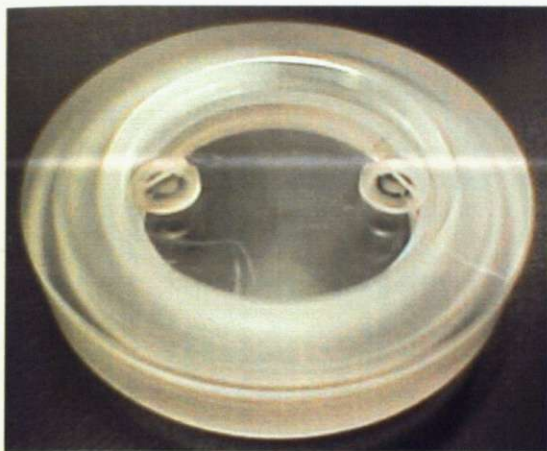


図 3.8 試料セルの外観

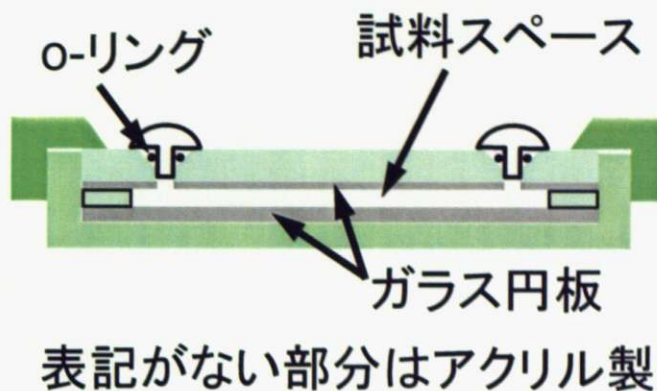


図 3.9 試料セルの断面図

3-2-4. 昇降装置

本研究では、3-2-3.で示した試料セルを磁場中にセットするために、図 3.10 に示す昇降装置を用いた。本装置は、ハンドルに歯車が連結されており、歯車の回転を介して次ページに示すような試料ステージを昇降させる仕組みになっている。

本装置を用いると、

- ・ ハンドルが一回転した時の試料ステージの移動量は一定 (2 mm) であるため、試料セルの位置をより精確に定めることが可能である
- ・ 試料ステージは垂直に上下するため、試料セルを水平にセッティングし、また水平を保つことが容易である

といった利点があり、試料のセッティングを精確に行うことが可能である。



図 3.10 昇降機の外観

3-2-5. CCD カメラ

作成した格子の観察は、図 3.11 に示す ELMO 社製の CCD カメラ QN42HL と同 CCD カメラ用レンズ T3425MC を用いて行った。本 CCD カメラの解像度は

$$= 38 \text{ 万画素}$$

となっている。また、有効撮像面積は

$$\text{水平 (3.65 mm)} \times \text{垂直 (2.74 mm)}$$

となっている。また、レンズは焦点距離が 25 mm の単焦点レンズであり、 $\times 0.66 \sim \times 1.0$ の間で倍率を変化さ



図 3.11 CCD カメラの外観

せることが可能であり、1画素あたりの撮影範囲が $10\ \mu\text{m} \times 10\ \mu\text{m}$ 未満となるように組み合わせてある。

3-2-6. 画像処理ソフトウェア

本研究では、実験結果を撮影したデータの解析に、National Instruments 社製の画像解析ソフトウェアである NI Vision Assistant を用いた。本ソフトウェアは、図 3.12 に例を示すように、

- 任意の 2 つの同心円（図中の緑の円）の間に含まれる色（黒白）の境界を検出する
- 検出した境界上に一定数（図では 20）の点をとる
- 各点からの距離の標準偏差が最小となる点を中心とし、近似円の半径を決定する
- 中心から円を描き、境界の概形を真円で近似する



図 3.12 昇降機の外観

という手順で粒子の外形を真円で近似することができ、近似円の直径、中心座標、および近似円ソフトウェアが認識した境界線上の点との距離の標準偏差の各データを pixel 単位で得ることができる。

3-2-7. その他の装置

以下では、本研究において補助的に使用した各装置について簡単に説明する。

3-2-7-1. 電子天秤

試料の測定は、図 3.13 に示すメトラー・トレド社製の電子ばかり AB204-S を使用した。本はかりは 10 mg から 220 g までの範囲を 0.1 mg の単位で測定することが可能である。

3-2-7-2. 超音波ホモジナイザー

本研究では、粒子間の分散性を良くするため、溶液中に少量の分散剤を添加した。そのさい、図 3.15 に示す Sonics and Materials 社製の超音波ホモジナイザー VC-130 を用いて攪拌を行い、分散性を向上させた。

3-2-7-3. 恒温槽

本研究では、実験に先立ち、使用する溶液の密度測定を実施した。その際、密度測定時の溶液温度を一定に保つため、図 3.16 に示すトーマス科学機器株式会社製の恒温槽 TRL108H を用いた。

3-2-7-4. 水平器

本研究では、三角格子形成時における試料セルのセッティングを精確に行うことが求められる。そこで、試料セルの水平性を確かめるため、図 3.17 に示す株式会社アカツキ製作所製の水平器であるアルミレベル L-120Q を用いて試料セルの水平性を確かめた。この水平器の感度は $\pm 0.5 \text{ mm} / 1 \text{ m}$ であった。



図 3.13 電子天秤の外観

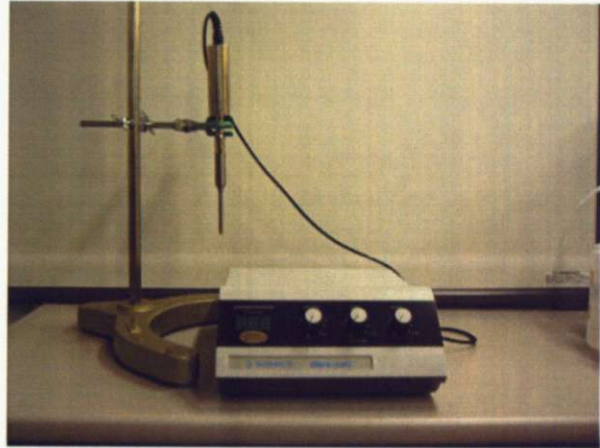


図 3.15 超音波ホモジナイザーの外観



図 3.16 恒温槽の外観



図 3.17 水平器の外観

3-3. 実験手順

実験は、以下の手順で行った。

3-3-1. 実験準備

3-3-1-1. 誤差評価

本研究では、実験を始める前段階として、使用を予定している実験条件（粒子、溶液など）について、考えられる実験誤差を見積もった。詳細は補論にて詳説するが、以下に示す実験においては、実験結果として得られる格子間隔に対し、最大で10%程度の誤差が生じることが示された。

3-3-1-2. 粒子選定

次に、三角格子構造の作製に使用する粒子を直径が $\pm 2\%$ （直径1mmの粒子の場合は $980\ \mu\text{m} \sim 1020\ \mu\text{m}$ ）の範囲になるように選定した。均一な格子間隔を有する三角格子構造を作製するには、各粒子間の相互作用が均一である必要がある。そのため、実験にはできる限り均一な大きさ、密度を有する粒子を使用する必要がある。しかし、実際の選定作業は光学顕微鏡を用いて行うため、選定可能な範囲として $\pm 2\%$ を選択した。

粒子の選定は、光学顕微鏡を用いて粒子を50倍、もしくは100倍に拡大しながら、図3.18

に示すように、許容誤差を含めた粒子径（例えば $1\ \text{mm} \pm 2\%$ ならば $980\ \mu\text{m}$ と $1020\ \mu\text{m}$ ）の同心円を描き、粒子の外周がその範囲に含まれる粒子を選択することで行なった。この際、長さの基準として、図3.19に示すように、較差 $\pm 2\ \mu\text{m}$ のマイクロメーターの1mmを使用した。さらに、重量測定が可能な粒子については、各粒子の重量を測定し、重量が近い粒子同士を用いて実験を行った。なお、この選定の結果、実験に使用した粒子の詳細は、補論にて掲載する。

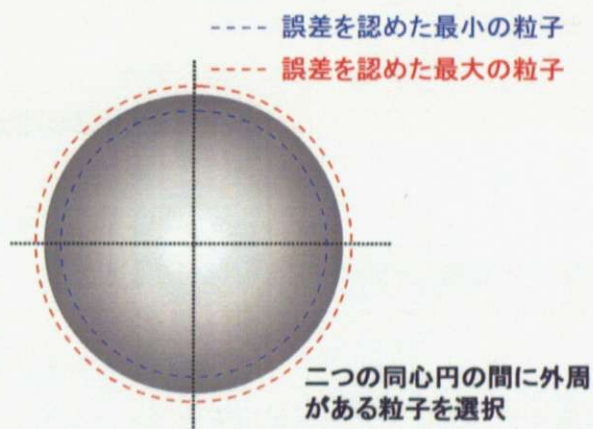


図 3.18 粒子選定の概要



図 3.19 マイクロメーターを用いた1mmの標準

3-3-1-3. 試料溶液の作製

試料溶液の調整は、温度等の条件によって誤差を生じにくいよう、重量濃度を単位として行った。また、試料の調整にあたっては、誤差を小さくするため、薬包紙等を用いず、すべ

てビーカー中で行った。

また、実験に先立ち、使用する溶液の密度を見積もるため、溶液の密度測定を行った。まず、ビーカー中に少量の溶液を入れて電子天秤中に置き、測定する溶液を滴下する間に水の蒸発量が変わらないようにした。次に、20℃に設定した恒温槽中に測定する溶液を数分浸け、溶液の温度を20℃にした。測定する溶液の量は1回10 mlとし、滴下は1分以内に行うようにした。重量測定は、溶液の滴下前、滴下開始から1分後、および2分後に行い、水の蒸発量を補正した滴下溶液の重量を求め、密度を計算した。このとき、溶液の採取は精度を高めるためホールピペットを用い、ピペットの使用前には3回ずつとも洗いを行っている。また、測定時には溶液調製時の誤差を排除するため、各濃度につき3種類の溶液を用意し、溶液を変えながら合計10回の密度測定を行った。

3-3-1-4. 試料セルの作成

次に、以上のように選定・調整した試料を密閉セル中に封入した。

封入に先立ち、粒子の分散性を良くするため、10 ml程度の溶液中に粒子と分散剤（合成洗剤をピペットで5滴）を加え、超音波ホモジナイザーを用いて約20 Aで5分程度攪拌した。

攪拌終了後は、速やかに溶液と試料をセル中に入れ、気泡が入らないよう注意しながら蓋をしめた。セルには気泡を排出するための空気穴（図 3.8 にてネジが刺さっている部分）があけてあるので、万一気泡が混入してしまった場合には、水の蒸発によって溶液濃度が変わってしまわないよう、急いで空気穴から排出する。実際の操作では、30秒程度で排出できない場合には、溶液濃度への影響を考え、再度操作をやり直した。

3-3-1-5. 超伝導マグネット内へのセッティング

以上で試料セルを作製したのち、3-2-4.で説明した昇降装置を用い、超伝導マグネット内にセットした。

セッティングの全体図は、図 3.20 に示すとおりであった。

まず、マグネット上部に水平器を置き、マグネットが水平に設置されていることを確認した。次に、作製した格子配列が見やすいよう、ボアの内側に白い紙を貼ったのち、マグネット上部に昇降装置を設置した。ここで、試料セルを置く前に、水平器を用いて試料ステージの水平性を確認した。以上のセッティングが終了した後、試料セルをステージ上に置き、ハンドルを回してステージを所定の位置まで降下させた。ステージの位置を合わせ、磁場の印加を始めた後、試料上部に CCD カメラを、またボアの下側に照明用の LED ライトを設置した。この LED ライトは4つの LED を直列につないであり、11.5V 程度の電圧を印加して使用した。

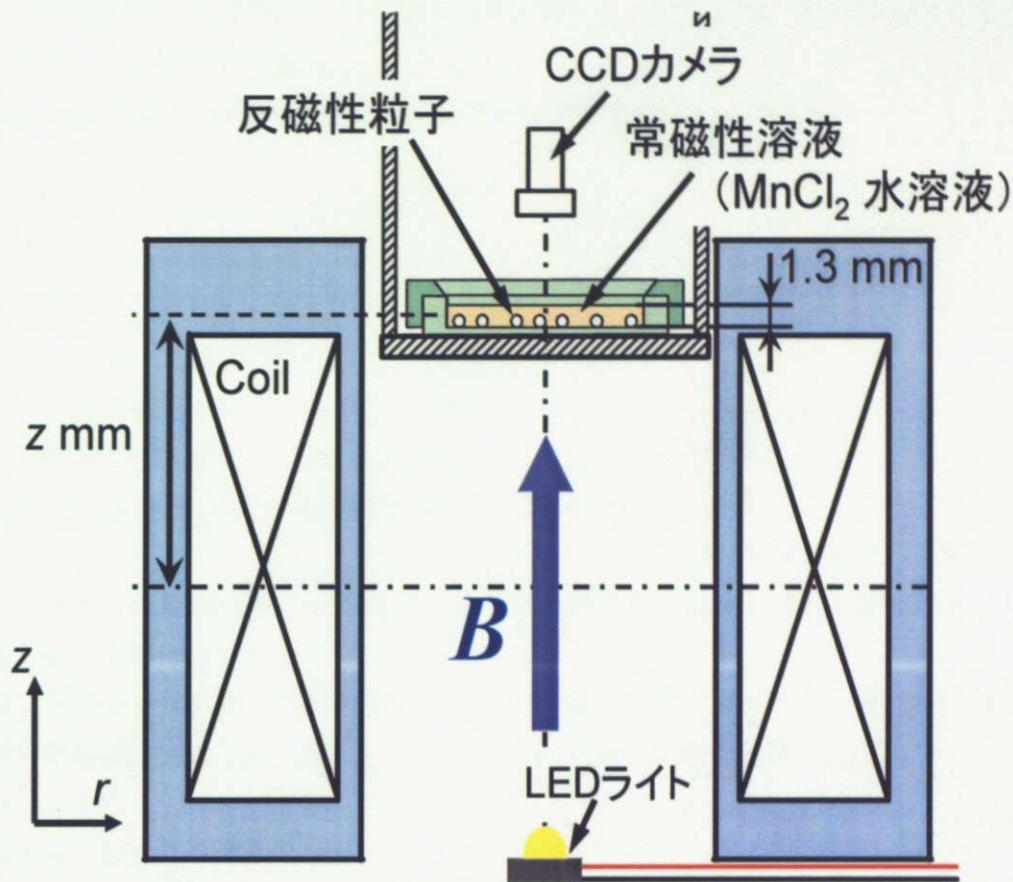


図 3.20 実験系の概略図

3-3-2. 実験

3-3-2-1. 三角格子構造の作製

実験にあたっては、まず、磁気アルキメデス浮上により粒子が浮上するまで、磁場を印加した。磁気アルキメデス浮上をした状態でさらに磁場強度を強くすると、粒子は磁気力によって上面のガラス板に強く押し付けられていく。ガラス板は前節で説明したように表面処理を行ってはいるが、摩擦がないわけではない以上、過剰な浮力はガラスの動きを抑制してしまうと考えられる。そこで、本研究では、いったん、磁気アルキメデス浮上する磁場強度に対して $\pm 0.3 \text{ T}$ 程度の範囲で磁場強度を変化させ、安定な三角格子を作製した。その後、三角格子を形成したところで磁場を強め、 1 T 程度あげるごとに試料セルに軽く振動を与え、磁場強度に応じて格子間隔を微調整した。これは、実際の操作で実験位置を変化させずに印加磁場強度を変化させた場合、印加磁場強度と磁場勾配が同時に変化することから、格子間隔にはほとんど影響がない（理論上は全く変化がない）と考えられるためである。

また、実験は各条件につき二回ずつ行うようにし、実験操作による誤差の結果への影響が小さくなるようにした。

3-3-2-2. CCDカメラによる記録

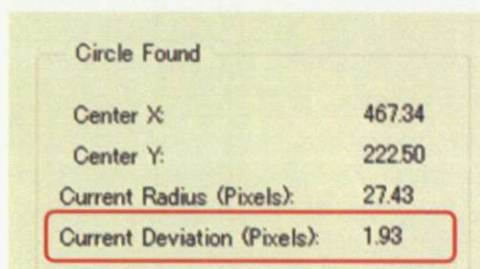
形成された三角格子が安定したところで、CCDカメラを用いて作製した格子を撮影、記録した。この際、作製した格子ができる限り画面一杯に撮影されるように留意した。ただし、

粒子の直径が小さくなり、倍率を最大 (×1.00) にしても画面一杯にならなくなった場合については、この限りではない。

撮影した映像は、DVD に焼きつけ、解析に使用した。

3-3-3. 解析

前段で得られた実験結果は、3-2-6で説明した画像処理ソフトウェア NI Vision Assistant を用いて解析した。本研究では、近似円の精度の基準として、近似円と境界線上の点の距離の標準偏差が 2.00 pixel 未満になる (図 3.21 参照) ように中心位置を決定し、計測に用いた。



Circle Found	
Center X:	467.34
Center Y:	222.50
Current Radius (Pixels):	27.43
Current Deviation (Pixels):	1.93

この値が2未満になるように中心を決定

図 3.21 解析における近似の基準

この結果得られた各粒子の中心位置、および半径から、隣接する粒子間距離を計算し、その平均値を粒子間距離とした。

なお、ソフトウェアでの解析結果は、すべて pixel 単位で得られる。そこで、本研究では、粒子径の平均値が 600 μm に等しいと仮定し、粒子間の距離を計算した。

3-3-4. MD 法を用いたシミュレーション

最後に、実験と合わせて行った、MD 法 (Molecular Dynamics Methods) を用いたシミュレーションについて説明する。本シミュレーションプログラムは安藤らが計算に使用していたもの^{13),14)}とほぼ同じであり、条件を変更して使用した。

本シミュレーションは Fortran で記述されており、以下の手順でシミュレーションを行う。

- ・ 図 3.22 に示すように、設定した任意の範囲内に粒子をランダムに配置する。このとき、粒子同士は互いに重ならないように配置する。なお、図 3.22 は直径 1 mm の金粒子を 100 粒子を 40 wt% の塩化マンガン溶液中に入れて実験を行った場合のシミュレーション結果の一例である。
- ・ 各粒子に働く力を 10^{-4} 秒程度ごとに計算し、各時間における粒子の運動を計算する。
- ・ 粒子が安定するまで計算を続ける (図 3.23)。このさい、基準は磁気力と相互作用の差が磁気力の 1×10^{-8} 倍未満となる程度とした。
- ・ 計算結果は図 3.24 に示すような三体分布関数を用いて分布を調べた。ここでは、粒子間隔を直径の 1.0 倍から 0.01 倍ごとに、また角度を $30^\circ \sim 90^\circ$ を 1° 刻みに選びながら粒子の個数を計測した。

なお、本研究におけるシミュレーションでは本実験で用いた 13 T マグネットを仮定し、実験と同様に次節に示す各条件で計算を行った。

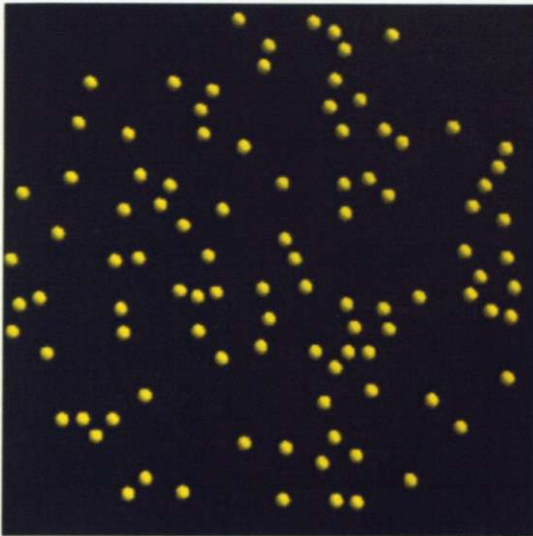


図 3.22 粒子の初期配置

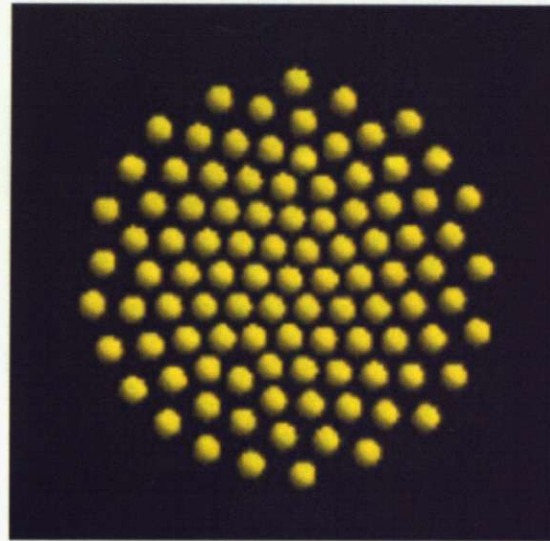


図 3.23 シミュレーション結果

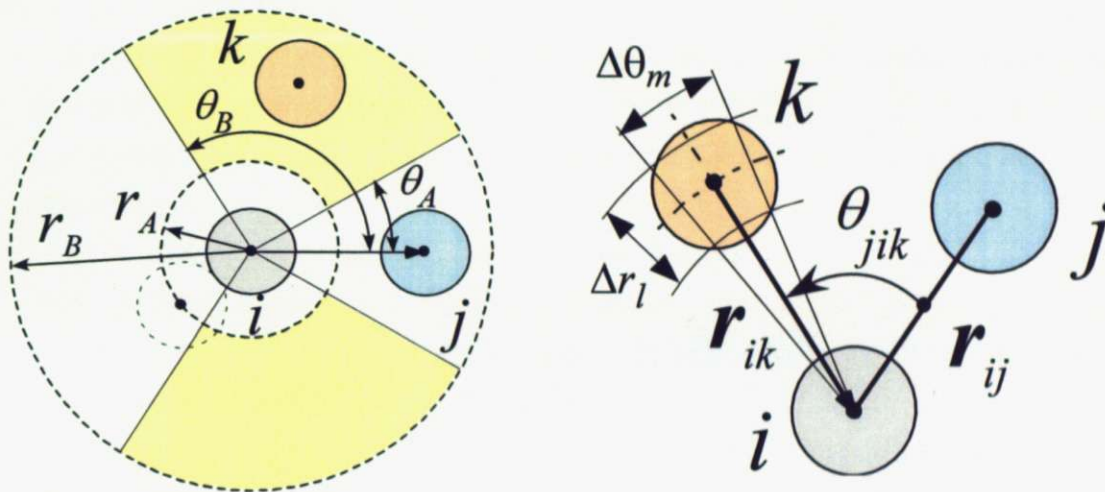


図 3.24 三体分布関数の概要

3-4. 格子間隔制御の条件

本節では、実際の実験に用いた試料、および実験条件について説明する。

3-4-1. 実験に使用した粒子、および周囲媒体

本研究では、

- ・ 金粒子 (直径 1 mm : 高純度化学製)
- ・ ガラス粒子 (直径 800 μm、および 400 μm : アズワン株式会社製)
- ・ ガラス粒子 (直径 600 μm : 井内盛栄堂製)
- ・ 青銅粒子 (直径 500 μm、および 150 μm : 三井金属製)

の各粒子を用いて実験を行った。各粒子の物性値は、表 3.1 に示すとおりであった。なお、これらの粒子のうち、青銅粒子は、三井金属様のご厚意によりご提供いただいた試料である。この場をお借りして御礼申し上げます。

表 3.1 実験に使用した粒子の物性値

d (mm)	error (μm)	materials	ρ [kg/m^3]	$\chi_{particle}$ [-]
1	± 20	Au	1.93E+04	-3.45E-05
0.8	± 16	SiO ₂	2.50E+03	-1.55E-05
0.6	± 12	SiO ₂	2.50E+03	-1.55E-05
0.5	± 10	Cu 90.1 % - Sn 9.9 %	8.61E+03	-1.15E-05
0.4	± 8	SiO ₂	2.50E+03	-1.55E-05
0.2		SiO ₂	2.50E+03	-1.55E-05
0.15		Cu 90.1 % - Sn 9.9 %	8.61E+03	-1.15E-05

また、実験には各試料から適切な粒子を7つずつ選び、図 3.24 に示すように6つの三角格子を形成するように実験を行った。これは、

- 三角格子構造の最小単位である3粒子による格子形成は、一回に測定できる格子間隔の数が少ないことに加え、特に周方向について安定性が悪くなってしまふ（三角格子を組みながら回転運動してしまふ）ため、もう少し大きな単位で三角格子構造を作製するほうが適切である
- 一方、7つ以上（たとえば19粒子）での三角格子構造の形成は、図 3.25 に示すように粒子間の相互作用が複雑になり、特に内側の三角格子においては格子間隔の変化量に影響があることが予想された。実際、第一章で紹介した安藤らの研究においても、粒子数が増加すると、中心部と周辺部の間にわずかながら格子間隔の変化が生じることが示されているため、制御性を示す本研究では、できる限り小さな単位で三角格子構造を形成する方が実験条件の変化が格子間隔に及ぼす影響を明確に示すことができると考えた

という理由による。

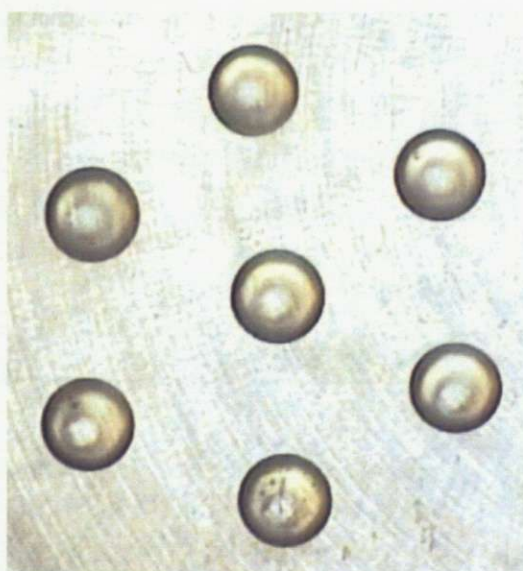
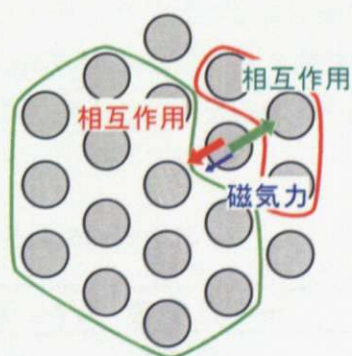


図 3.24 本実験で作製した三角格子の例



外側からの相互作用(赤色)も格子間隔に影響

↓
相互作用(緑色)と磁気力のつりあい
への影響力が分かりにくくなる

図 3.25 多粒子系での力のつりあい

次に、本実験では、塩化マンガン水溶液を媒体として使用した。これは、塩化マンガン (MnCl_2) は体積磁化率が約 1.04×10^{-2} (-) という強い常磁性体であり、粒子との相対的な磁化率差 $\Delta\chi$ (-) を強め、磁気力や粒子間相互作用を強めるのに有用であると考えられるためである。

3-4-2. 使用する粒子の体積を制御する方法

粒子の体積による構造制御は、表 3.1 に示した各粒子を用いて実験を行った。ここで、改めてその物性値を表 3.10 に示す。

本実験では、塩化マンガン溶液は磁化率が大きく、粒子に働く相互作用が大きくなる 40 wt% のものを使用した。また、実験位置として、中心力が最も小さく、格子間隔が広くなるとともに格子間隔の変化が見やすくなると考えられる実験位置として、磁場中心から 182 mm (図 3.7 参照) の位置を選んだ。

表 3.10 粒子の体積による構造制御実験条件

d (mm)	error (μm)	materials	ρ (kg/m^3)	$\chi_{particle}$ (-)
1	± 20	Au	1.93E+04	-3.45E-05
0.8	± 16	SiO_2	2.50E+03	-1.55E-05
0.6	± 12	SiO_2	2.50E+03	-1.55E-05
0.5	± 10	Cu 90.1 % - Sn 9.9 %	8.61E+03	-1.15E-05
0.4	± 8	SiO_2	2.50E+03	-1.55E-05
0.2		SiO_2	2.50E+03	-1.55E-05
0.15		Cu 90.1 % - Sn 9.9 %	8.61E+03	-1.15E-05

3-4-3. 粒子の周囲媒体に対する相対的な磁化率を制御する方法

相対的な磁化率差による構造制御は、表 3.11 に示す各濃度の塩化マンガン水溶液 (40 wt% から 10 wt% まで 5 wt% きざみ) を用いて実験を行った。

本実験では、磁化率が大きく、また密度が小さい (低濃度の溶液でも磁気アルキメデス浮上が可能) ガラス粒子を用いた。ここで、粒子の直径は、ハンドリングの容易さから、600 μm とした。また、実験位置としては、前段と同様に、中心力が最も小さく、格子間隔が広くなるとともに格子間隔の変化が見やすくなると考えられる実験位置として、磁場中心から 182 mm (図 3.6 参照) の位置を選んだ。

表 3.11 相対的な磁化率差による構造制御実験条件

c_{ideal} (wt%) MnCl_2 の重量(g)	合計重量 (g)	実際の濃度 (wt%)	密度 (kg/m^3)	$\Delta\chi$ [-]
40	47.154	39.993	1.428E+03	8.104E-04
40	31.436	40.005	1.428E+03	8.104E-04
35	41.258	34.992	1.360E+03	6.741E-04
30	35.367	29.993	1.297E+03	5.492E-04
25	29.470	25.001	1.238E+03	4.348E-04
20	15.718	20.007	1.182E+03	3.301E-04
15	11.789	14.998	1.130E+03	2.342E-04
10	7.858	10.002	1.082E+03	1.462E-04
5	3.929	5.000	1.038E+03	6.545E-05

3-4-4. 磁場強度と磁場の空間分布を制御する方法

印加磁場強度による構造制御は、表 3.12 に示す各実験位置と磁場強度を用いて実験を行った。3-1 で説明したとおり、本実験では、印加する磁場強度を変化させると同時に実験位置を変化させ、 $B \text{ grad } B$ を一定に保ちながら磁場強度のみを変化させることが必要である。そこで、まず、磁場強度を磁場中心における最大磁場強度が 13 T から 1.5 T 刻みに変化させることに決めた。このとき、図 3.27 に示すように、中心付近におけるボア径方向のポテンシャルの微分 ($B_r \partial B_r / \partial r + B_z \partial B_z / \partial r$) が等しくなるように磁場中心からの高さを定め、各磁場強度での実験位置とした。

表 3.12 印加磁場強度による構造制御実験条件

中心磁場強度 (T)	磁場中心からの高さ (mm)	実験位置での磁場強度 (T)	中心から 3 mm の地点での磁気力 (N)
13.0	182.0	6.73	1.25E-12
11.5	181.5	5.98	1.25E-12
10.0	180.5	5.25	1.25E-12
8.50	179.5	4.51	1.25E-12
7.00	177.5	3.79	1.25E-12
5.50	174.3	3.07	1.25E-12
4.00	197.8	2.37	1.25E-12
2.50	149.3	1.72	1.25E-12

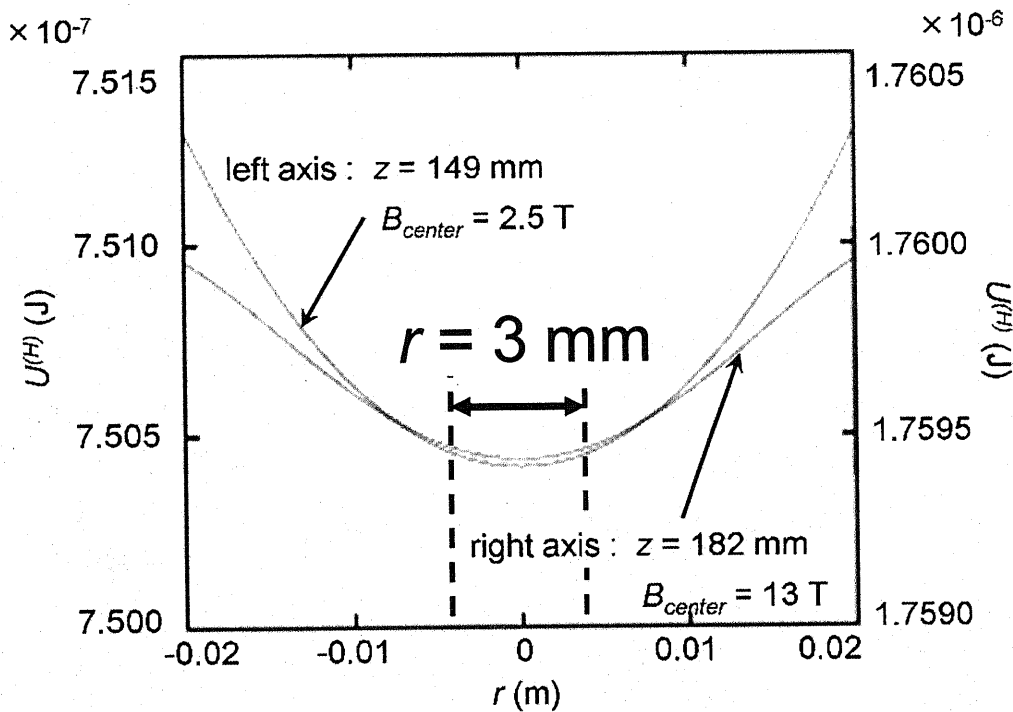


図 3.27 磁気力に関する条件

本実験では、磁化率が大きく、また密度が小さい（低磁場下でも磁気アルキメデス浮上が可能な）ガラス粒子を用いた。ここで、粒子の直径は、ハンドリングの容易さから、 $600\ \mu\text{m}$ とした。この時、シミュレーションを行なった結果より、格子間隔が $1.9\ \text{mm}$ 以下になることが予想されたため、粒子は図 3.28 に示すように、半径 $3\ \text{mm}$ 程度の中に収まると予想された。この結果をもとに、実験位置の決定にあたっては、図 3.27 に示したように、ボアの中心から半径 $3\ \text{mm}$ の範囲の範囲でポテンシャルの微分が等しくなるように決定した。また、塩化マンガン溶液は、 $\Delta\chi(\cdot)$ が大きく粒子に働く相互作用が大きくなる $40\ \text{wt}\%$ を使用した。

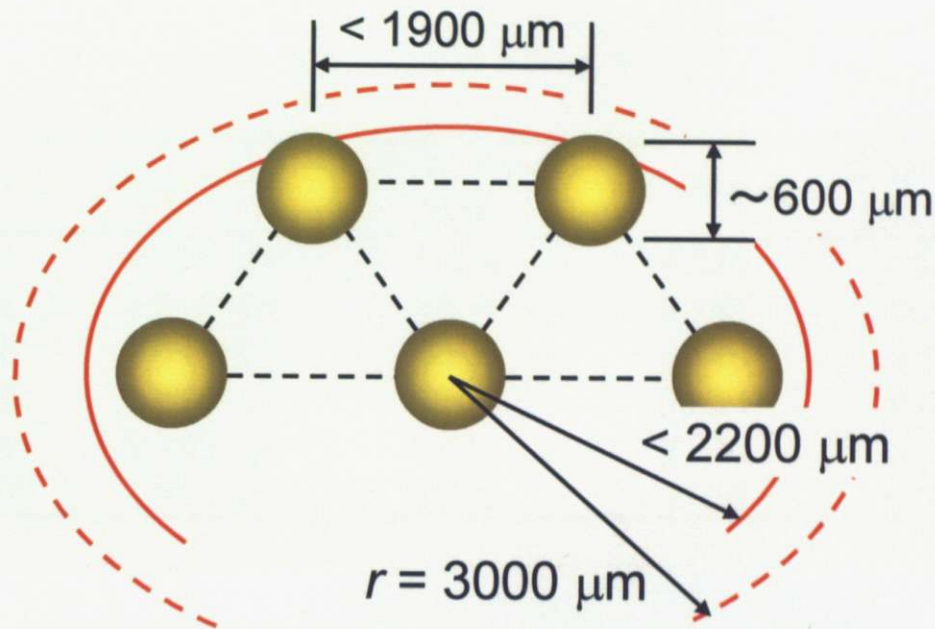


図 3.28 予想された粒子の分布範囲

3-5. 実験結果

本節では、上記の各条件にて実験を行った結果を示す。なお、詳細な実験結果は補論に掲載する。ここで、実験結果は 3-3-3 で述べたとおり、2 回の実験で測定した隣接粒子間の格子間隔（24 箇所）の平均値 (r) を実験に使用した粒子の直径 (d) で規格化した値であり、実験結果の標準偏差も測定した 24 箇所についての標準偏差を示す。

グラフにおいて、縦軸は実験結果として得られた格子間隔 (r) を粒子径 (d) で規格化した値とした。また実験結果を赤色で、数値シミュレーション結果を青色で示し、エラーバーは実験結果に関する標準偏差を示した。

3-5-1. 使用する粒子の体積を制御する方法

表 3.13 に、粒子の体積を変化させた場合の実験結果を示す。

また、この結果をグラフに描くと、図 3.29 に示すようになった。ここで、横軸は異なる粒子同士を比較するため、溶液と周囲媒体の磁化率差と粒子の体積の積 ($|\Delta\chi|V\text{m}^3$) とし、格子間隔の変化の傾向がわかりやすいように、対数表示した。

この結果から、粒子の体積を変化させた場合、シミュレーションと実験結果は同じ傾向で推移し、格子間隔の制御が可能であることがわかる。以上の結果から、粒子の体積を変化させることで、格子間隔を変化させることができることが示された。

表 3.13 粒子の体積による構造制御結果

r (mm)	$ \Delta\chi V$ (-)	シミュレーション結果	実験結果	実験結果の標準偏差
1.0	4.42E-04	2.604	2.020	0.085
0.8	2.21E-04	2.815	2.151	0.107
0.6	9.34E-05	3.165	2.378	0.101
0.5	5.38E-05	3.395	2.634	0.096
0.4	2.77E-05	3.714	2.840	0.197
0.15	1.45E-06	5.495	4.038	0.354

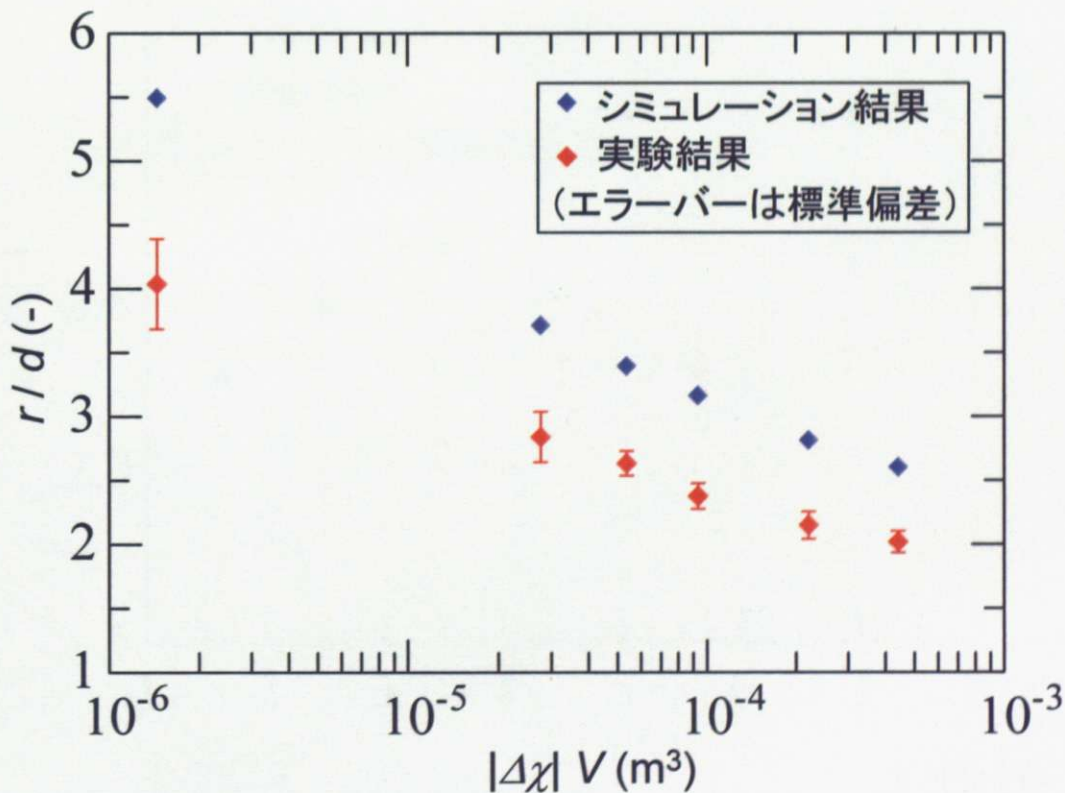


図 3.29 粒子の体積による構造制御

3-5-2. 粒子の周囲媒体に対する相対的な磁化率を制御する方法

表 3.14 に、粒子の体積を変化させた場合の実験結果を示す。この結果をグラフに描くと、図 3.30 に示すようになった。ここで、縦軸は実験結果として得られた格子間隔(r mm)を粒子径(d mm)で規格化した値とし、横軸は粒子と周囲媒体の磁化率差 ($\Delta\chi$)とした。また、実験結果を赤色で、数値シミュレーション結果を青色で示し、エラーバーは実験結果に関する標準偏差を示している。この結果、周囲の溶液濃度を変化させることで、格子間隔を変化させることが可能であることが示された。

表 3.14 周囲の溶液濃度による構造制御結果

c (wt%)	$ \Delta\chi $ (-)	シミュレーション結果	実験結果	実験結果の標準偏差
40	8.26E-04	3.165	2.378	0.101
35	6.90E-04	3.045	2.359	0.089
30	5.65E-04	2.925	2.303	0.107
25	4.50E-04	2.795	2.249	0.088
20	3.46E-04	2.655	2.091	0.085
15	2.50E-04	2.485	1.957	0.141
10	1.62E-04	2.275	1.744	0.118

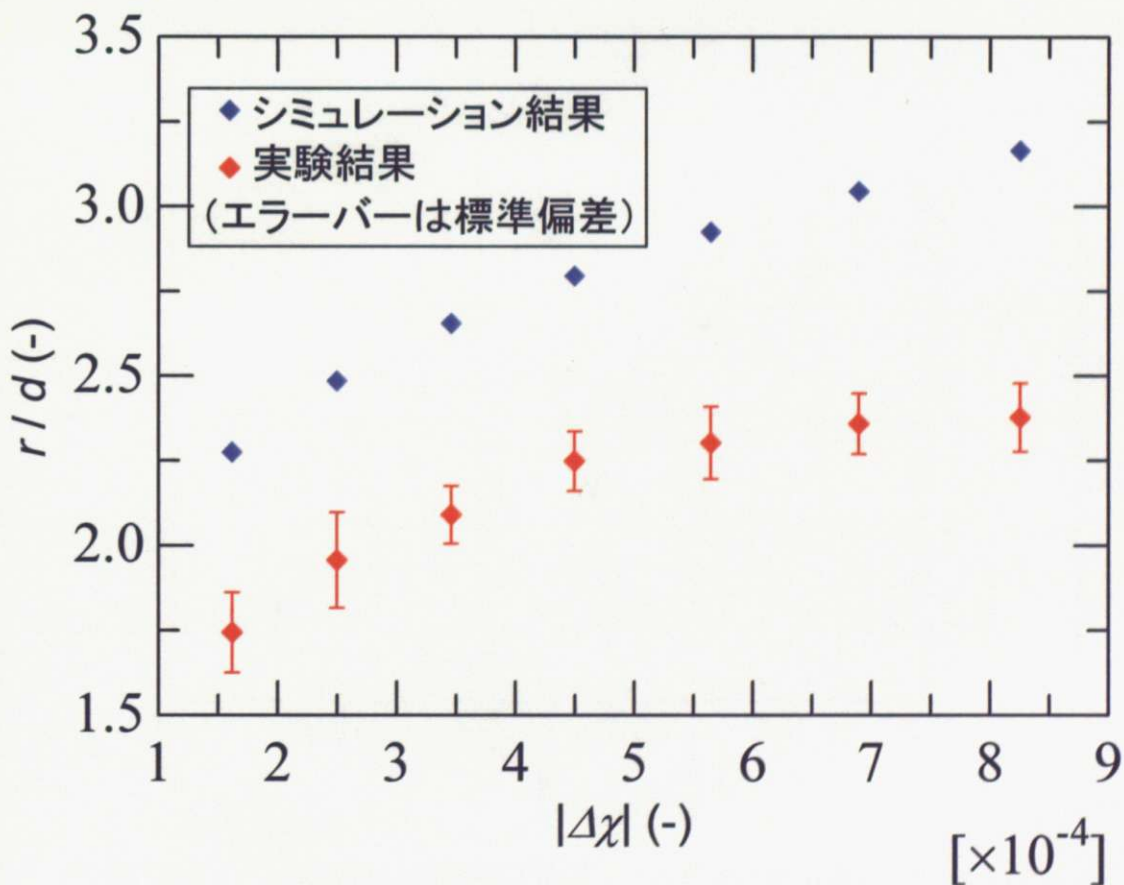


図 3.30 周囲の溶液濃度による構造制御結果

3-5-3. 磁場強度と磁場の空間分布を制御する方法

表 3.15 に、粒子の体積を変化させた場合の実験結果を示す。この結果をグラフに描くと、図 3.31 に示すようになった。ここで、縦軸は実験結果として得られた格子間隔(r mm)を粒子径で(d mm)規格化した値とし、横軸は実験位置での印加磁場強度 (B T)とした。また、実験結果を赤色で、数値シミュレーション結果を青色で示し、エラーバーは実験結果に関する標準偏差を示している。この結果、周囲の溶液濃度を変化させることで、格子間隔を変化させることが可能であることが示された。

表 3.15 印加磁場強度による構造制御結果

B_{center} (T)	z (mm)	B_{sample} (T)	シミュレーション結果	実験結果	実験結果の標準偏差
13.0	182.0	6.729	3.165	2.378	0.101
11.5	181.5	5.982	3.015	2.352	0.096
10.0	180.5	5.253	2.805	2.269	0.084
8.5	179.5	4.509	2.655	2.211	0.091
7.0	177.5	3.786	2.465	2.146	0.092
5.5	174.3	3.068	2.265	2.048	0.072
4.0	197.8	2.368	2.035	1.911	0.090
2.5	149.3	1.721	1.785	1.736	0.072

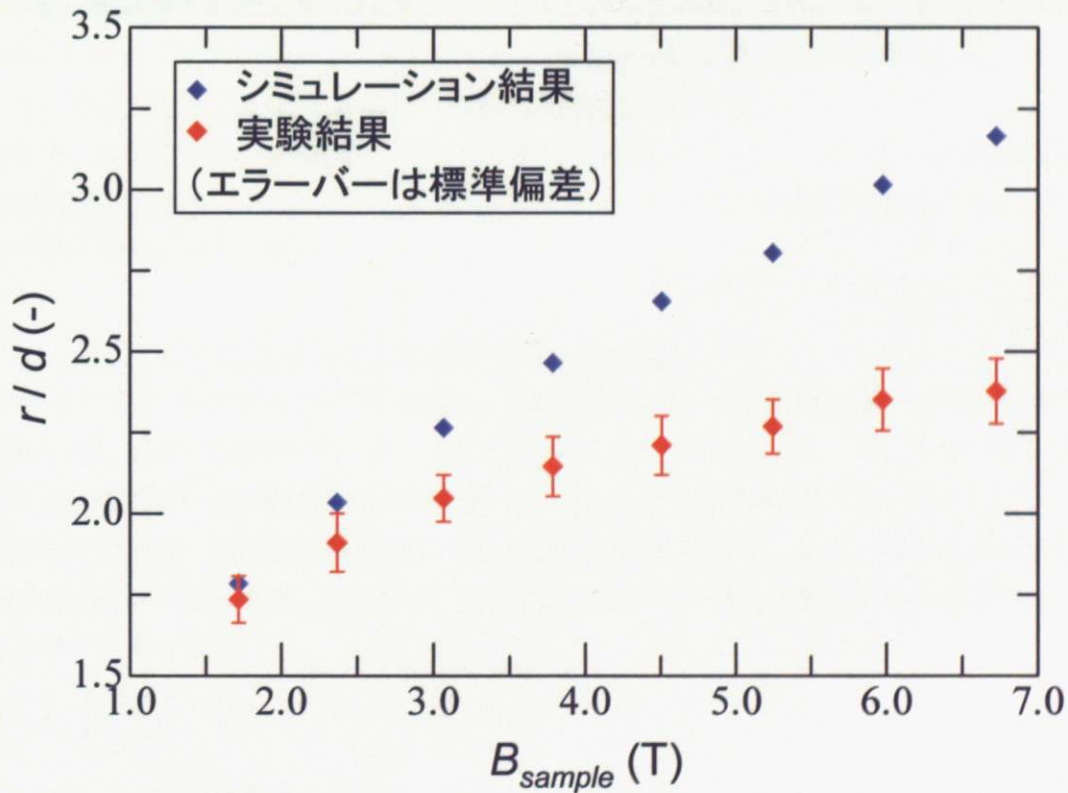


図 3.31 印加磁場強度による構造制御結果

第四章 磁性体による磁場、および磁気力分布の制御

4-1. 概要

第三章では、誘起磁気双極子間相互作用を用いた二次元三角格子構造の格子間隔を制御する手法として、(i) 使用する粒子の体積で制御する方法、(ii) 粒子の周囲媒体に対する相対的な磁化率で制御する方法、および(iii) 磁場強度と磁場の空間分布で制御する方法の各手法が有用であり、これらを変化させるパラメータである粒子の粒径や周囲媒体である塩化マンガン水溶液の濃度、および粒子への印加磁場強度を変化させることで格子間隔の制御が可能であることを示した。

これらの条件の中で、粒子径、および媒体とする溶液の濃度については、我々は条件を任意に設定し、自在に制御することができる。これに対し、磁場強度に関しては、その空間分布は超電導マグネットに依存しており、我々は所与の磁場分布の中で二次元面内の磁場分布が平坦になる条件を探す必要があった。そのため、第三章で行った格子間隔制御実験では、基準とする実験位置を磁場中心の上方 182 mm としていた。しかし、この地点では、

- ・ 格子作製位置の磁場強度は 6.73 T と、磁場中心での最大磁場強度である 13 T の半分程度になっており、超伝導マグネットの性能を十分に利用できていなかった。
- ・ また、ボアの軸と直行する二次元面内の磁場分布についても、面の中心付近では中心に向かって磁場強度が弱くなる（反磁性粒子に対しては中心力が働く）のに対し、面の中心から 25 mm 程度より離れた地点では周縁部に向かって磁場強度が弱くなる（半磁性粒子に対しては周縁部へ向かう遠心力が働く）状況になっていた。そのため、多数の粒子を用いた構造形成を目指すには、より井戸型に近い形状の磁場強度分布が求められる。

といった問題があり、格子間隔制御の自由度が制限されていた。

そこで、本研究では、超電導マグネット中に強磁性体を入れることでその周囲の磁場強度分布を制御することでより均一かつ強い印加磁場強度を用いた構造制御を実現することで、より幅広い格子間隔制御の可能性を検討した。

4-2. 計算に用いたソフトウェア (OPERA) について

本研究では、第二章で述べたとおり、Vector Field 社の磁場計算ソフトウェアである OPERA-3D を用いて計算を行った。本ソフトウェアは、導電体 (コイル) のモデリング機能を加えた 3D モデラーに電磁場解析用の計算プログラムを加えた構成になっている。

本プログラムは、有限要素法を用いて磁場強度の計算を行う。まず、導体として物体の形状と電流密度を入力しておき、そこから、 $I(A)$ の電流が $r(m)$ 離れた地点に作る磁場強度に関するビオ・サバールの法則

$$\mathbf{B} = \mu_0 \int \frac{I d\mathbf{l} \times \mathbf{r}}{4\pi r^2} \quad (\text{T}) \quad (4.1)$$

を基本とし、ここに反磁場の影響等を考慮して、ある地点の磁場強度を求める。

計算に当たっては、まずモデルの設定を行う。本ソフトでは、資料の形状、体積磁化率（もしくは B-H 曲線）、および作成する要素の最大サイズを設定することができる。また、境界条

件として、軸周りの対称性、および軸に垂直な方向の対称性（軸の原点を通る平面に対称）の有無を設定することができる。また、計算領域の外側では磁場強度を 0 とみなすので、境界条件が計算結果に大きな影響を及ぼさないように計算領域の外側にバックグラウンド領域（計算領域から境界条件までの計算結果を滑らかにつなぐための領域）を設定する必要がある。

計算は、設定した対称性、およびバックグラウンドに基づいて計算領域を設定し、設定したサイズに従ってメッシュを作成する。その後、メッシュの結節点（ノード）における磁場強度をニュートン・ラプソン法を用いて計算する。その後、ノード間を二次関数でつなぐように磁場強度を計算することで、計算領域全体の磁場強度分布を得ることができる。

計算結果は、ポストプロセッサを用いて表示することができる。ここでは、計算領域内の任意の平面、もしくは曲線上の磁場強度分布を任意の細かさで取得することができる。

4-3. 検討条件

4-3-1. 基本条件の検討

まず、コイルの条件としては、図 4.1 に示すように、前章で使用した JASTEC 社製の超電導マグネットと同様の構成とした。ここで、 z 軸は磁場中心を 0 としてマグネットの軸方向（上方に正）に、また r 軸は z 軸と原点を同じくしてマグネットの系方向（外側に正）に設定した。この際、計算条件を決定するため、コイルのみを設定した状態で数値計算を行い、JASTEC 社から提供していただいている磁場強度分布の数値との比較を行った。ここで、計算条件として、

- メッシュは、図 4.2 における灰色の部分（磁場中心より半径 50 mm、上方 200 mm まで）は 1 mm きざみで作成した。また、バックグラウンドとして z 方向には 1000 mm まで、 r 方向には 400 mm までを計算領域として設定し、最大 10 cm のメッシュを作成した。メッシュを作成した様子を図 4.3 に示す。
- 対称性は z 軸周りに 20 回対象を仮定し、

$$\frac{dB}{dn} = 0 \quad (n: \text{境界面に垂直な単位ベクトル}) \quad (4.2)$$

の境界条件を仮定した。

- ニュートン・ラプソン法における収束は 10^{-8} T 以下とした。
- $z = 0$ を通り、 z 軸に垂直な面について、磁場強度が連続となるような境界条件を仮定した。
- データの取得は、磁場中心より半径 50 mm、上方 200 mm までの面について、1 mm 刻みに行った。また、 $z = 0$ mm、および 50 mm については、周方向のデータを 0.5° おきに取得し、周方向の磁場強度分布に揺らぎがないことを確認した。

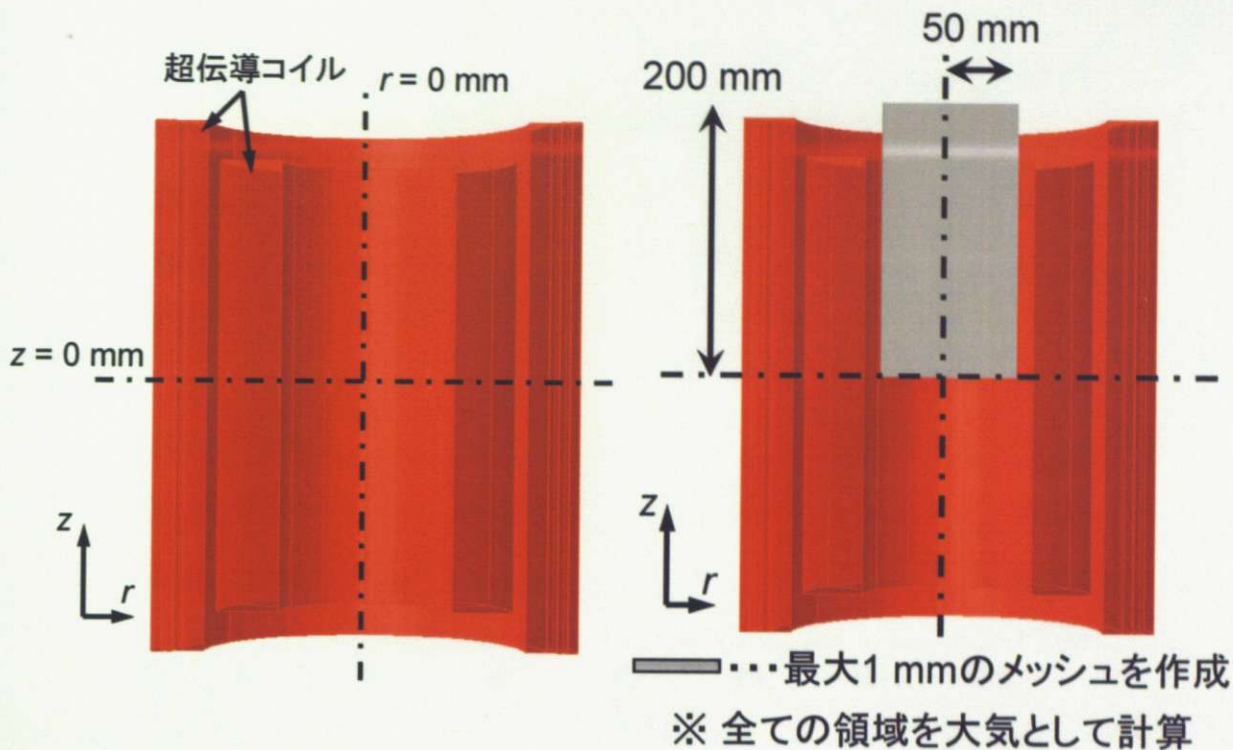


図 4.1 超伝導コイルの設定

図 4.2 計算領域の設定

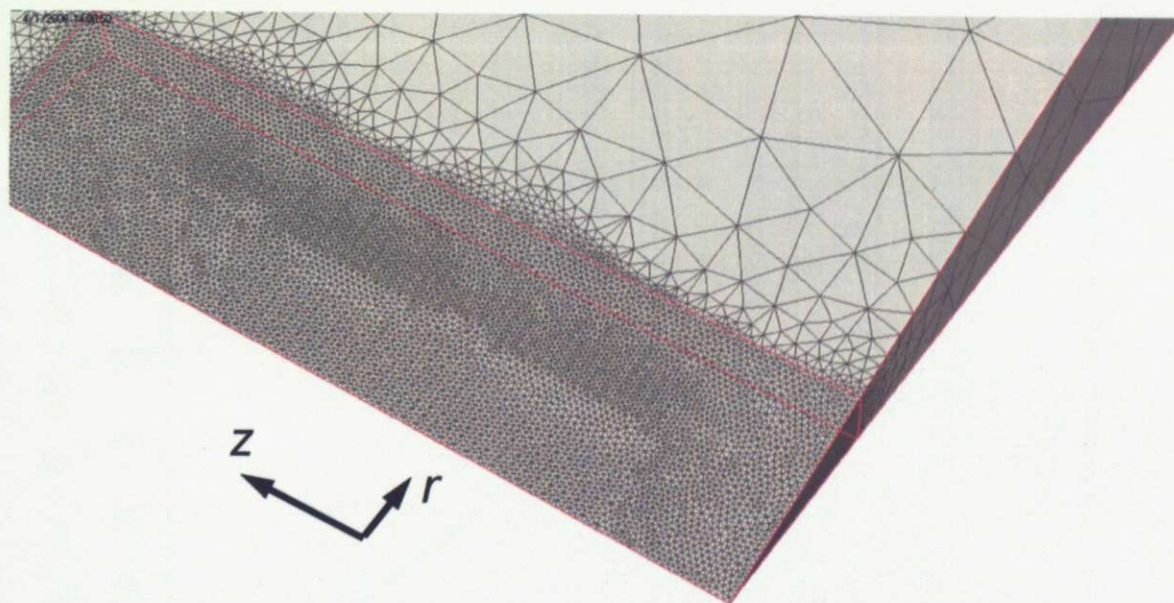


図 4.3 計算領域に作成したメッシュ (色の濃い部分は一辺の長さが最大 1 mm)

の各条件を設定した。その結果、まず $z = 0 \text{ mm}$ 、および 182 mm における径方向の磁場強度、および磁気力 (磁気力における B を変数とする部分の値である、 $B_r dB_r / dr + B_z dB_z / dr$) の分布は図 4.4~4.7 に示す通りであった。また、 $r = 0 \text{ mm}$ における軸方向の磁場強度、および磁気力 (磁気力における B を変数とする部分の値である、 $B_r dB_r / dz + B_z dB_z / dz$) の分布は図 4.8、および図 4.9 に示す通りであった。

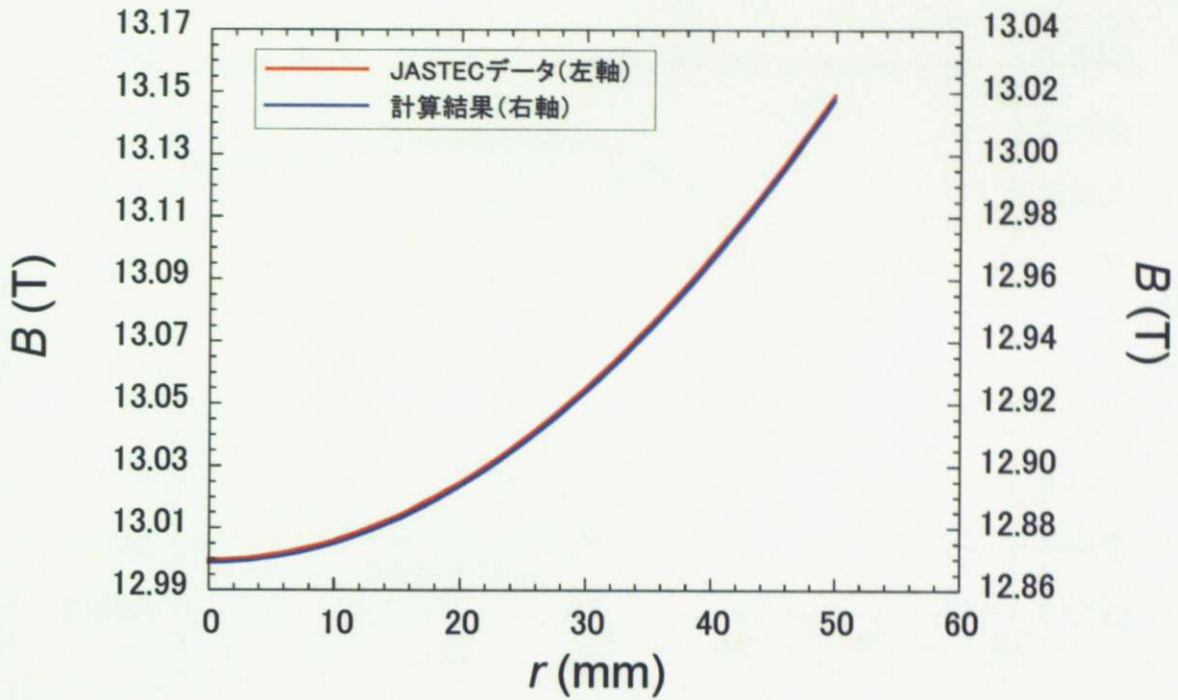


図 4.4 : $z = 0$ mm での磁場強度分布比較

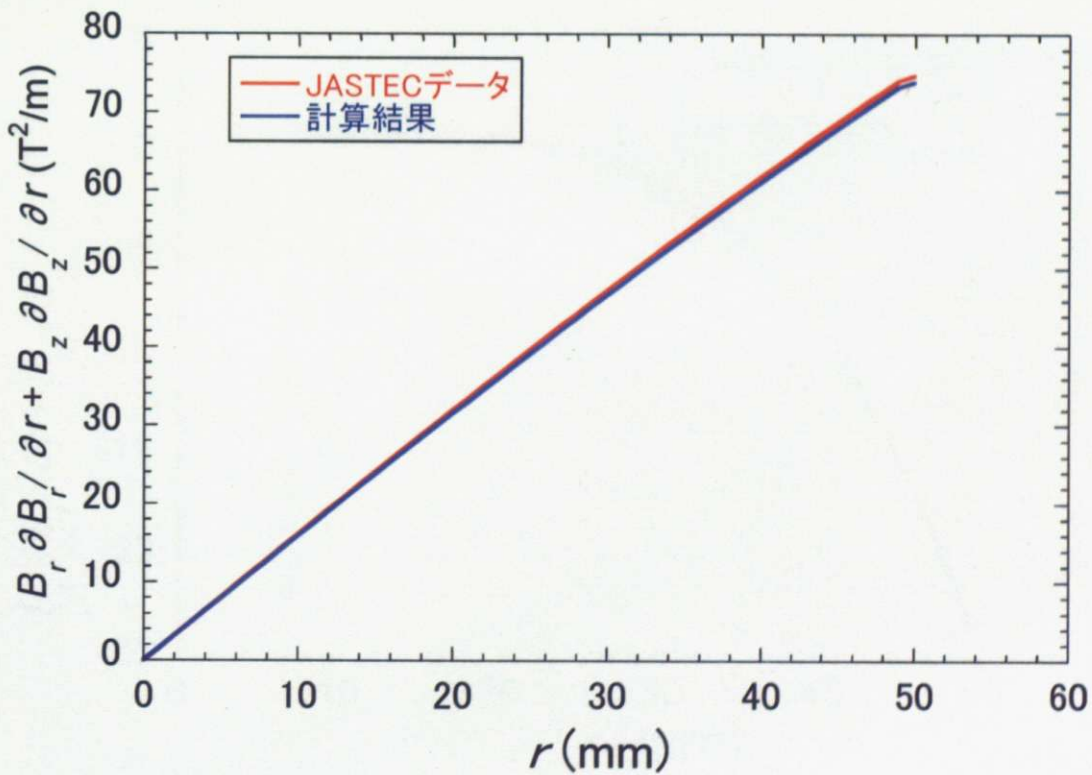


図 4.5 : $z = 0$ mm での磁気力分布比較

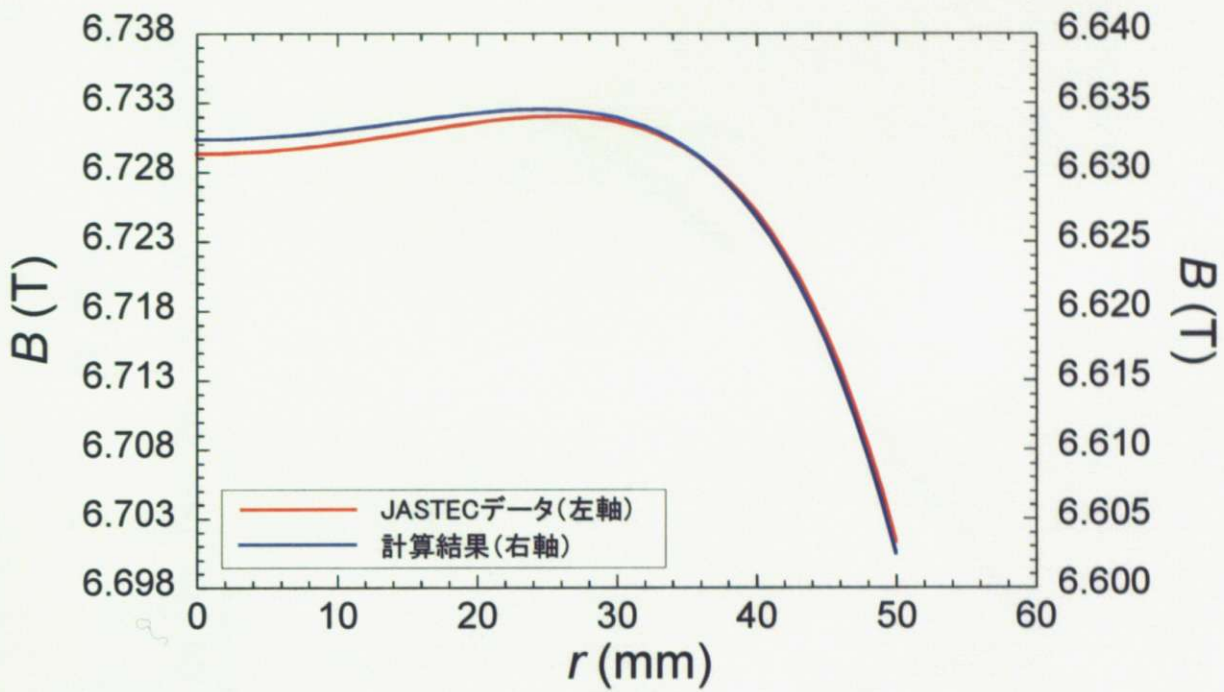


図 4.6 : $z = 182$ mm での磁場強度分布比

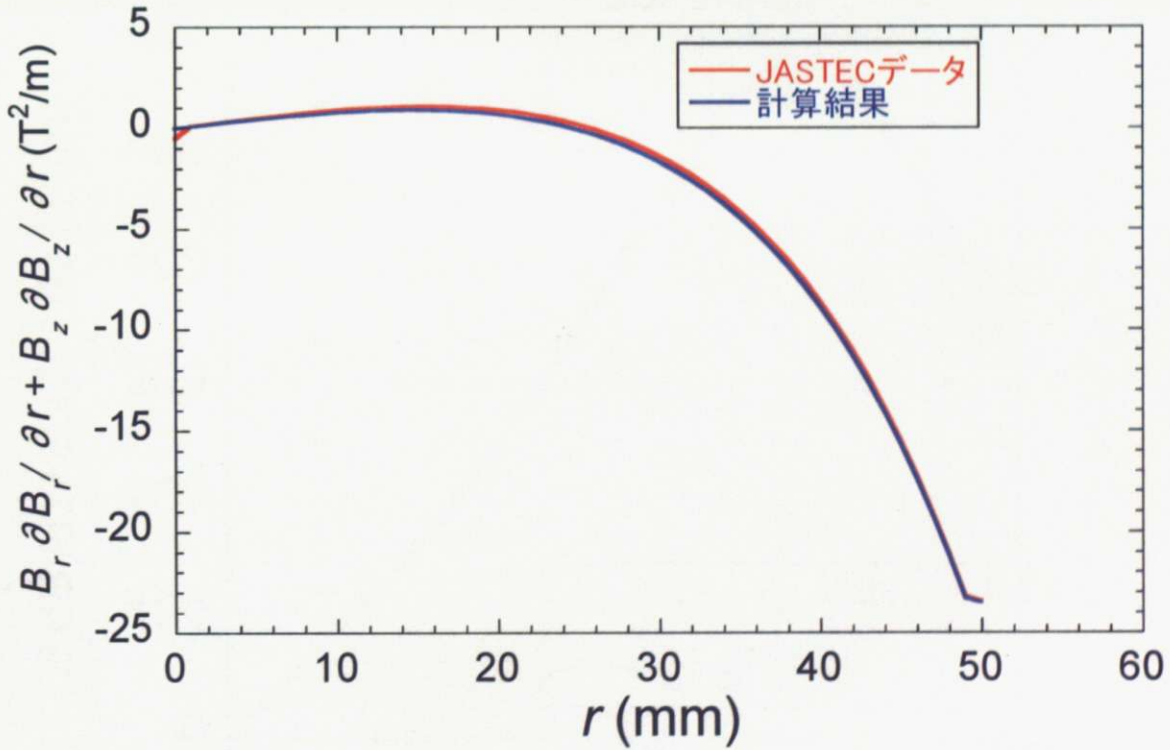


図 4.7 : $z = 182$ mm での磁気力分布比較

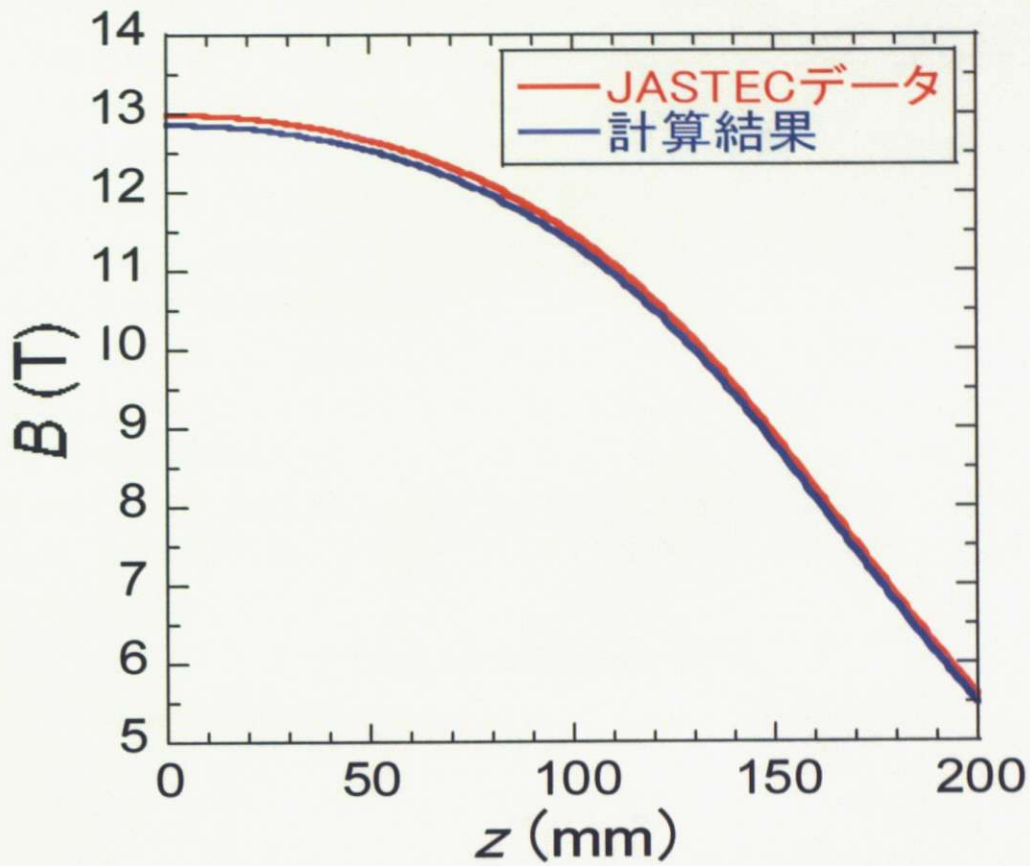


図 4.8 : $r = 0$ mm における磁場強度分布比較

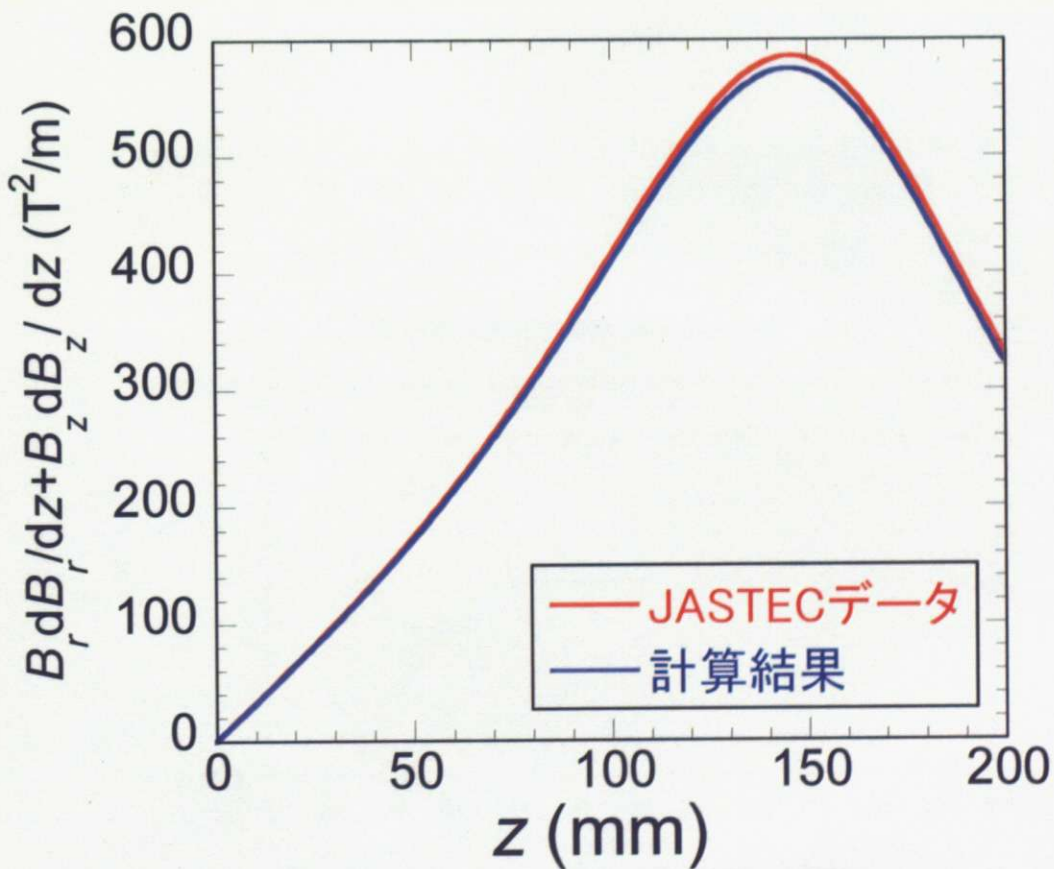


図 4.9 : $r = 0$ mm における磁気力分布比較

これらの結果から、

- ・ 磁場分布については、最大で 0.13 T のずれがあるものの、形状は一致しており、精度よく再現されている。
- ・ 磁気力分布については、最大で 11 T²/m のずれがあるものの、形状は一致しており、JASTEC よりご提供いただいたデータを再現できる。

ことが示された。これにより、今回設定したコイル、および一辺 1 mm 以下のメッシュ作成という条件の妥当性が示された。

次に、 $z = 0$ mm、 $r = 3$ mm、および 50 mm における周方向の磁場強度分布を図 4.10、および図 4.11 に示す。これらの結果より、周方向の磁場分布にはほとんど揺らぎはなく、非常に均一な磁場分布が得られていることが分かる。また、 $z = 0$ mm、および 50 mm における $r = 3$ mm、25 mm、および 50 mm における磁場分布に関する平均、および標準偏差を表 4.1 に示す。この結果からも、標準偏差は 10^{-3} ガウス未満となっており、磁場分布が均一であることが分かる。

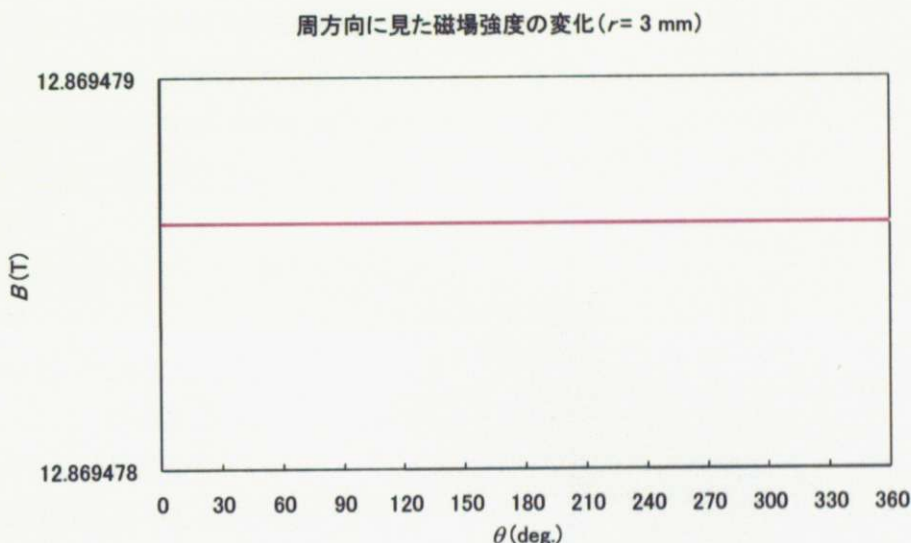


図 4.10: $z = 0$ 、 $r = 3$ mm での磁場強度分布

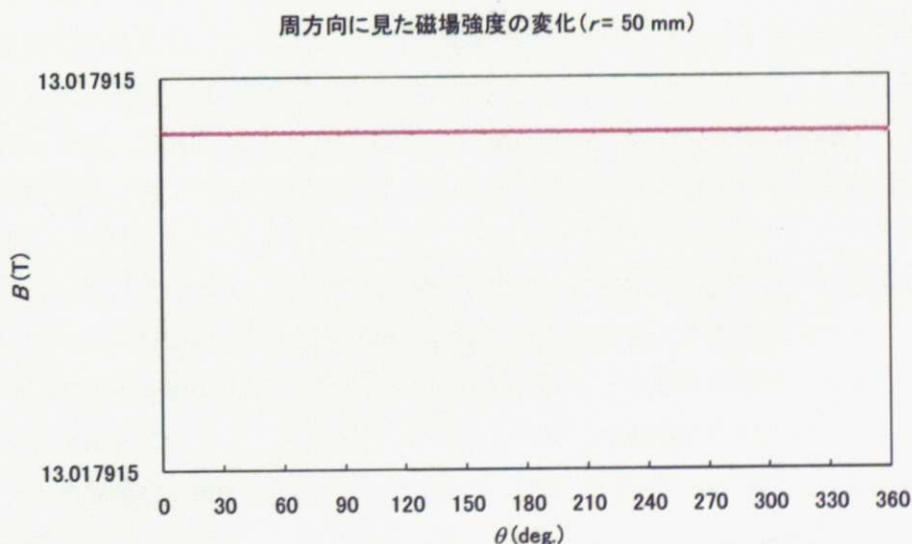


図 4.11: $z = 0$ 、 $r = 50$ mm での磁場強度分布

表 4.1: ボア径方向に見た磁場強度分布 ($z = 0 \text{ mm}$)

		$z=0 \text{ mm}$	$z=50 \text{ mm}$
$r=3 \text{ mm}$	平均値 (T)	12.86947863	12.5434101
	45° の値 (T)	12.86947863	12.5434101
	標準偏差 (T)	4.60645E-11	5.58796E-09
	平均値との誤差 (T)	-3.07168E-11	-2.00959E-09
$r=25 \text{ mm}$	平均値 (T)	12.90727157	12.59475391
	45° の値 (T)	12.90727157	12.59475392
	標準偏差 (T)	1.10054E-09	3.16525E-08
	平均値との誤差 (T)	-1.06382E-09	1.40831E-08
$r=50 \text{ mm}$	平均値 (T)	13.01791459	12.74464134
	45° の値 (T)	13.01791459	12.74464135
	標準偏差 (T)	6.66668E-11	3.08181E-08
	平均値との誤差 (T)	-3.34452E-11	1.435E-08

4-3-2. 磁性体を考慮した解析方針

以上の検討により計算条件が確定できたことを受け、次に、磁性体を考慮することで周囲の磁場強度分布に与える影響を検討した。本段では、解析にあたっての方針を説明する。

まず、基本条件としては、前段の検討を基本として、

- 磁性体には鉄製の円盤を仮定した。ここでは、図 4.12 に示すような磁化曲線を描く鉄を仮定した。
- 磁性体は磁場中心に対して対象になるように配置した。磁性体は磁場が強い部分（磁場中心）に向かっ

て磁気力を受ける。この力の大きさは磁場強度の二乗に比例するため、強磁場下では磁場中心に対して対称な位置に磁性体を配し、両者を弱磁性体でつなぐことで磁気力をつりあわせる。本研究では、計算領域を磁場中心の上側とし、 $z = 0 \text{ mm}$ の平面に境界条件を設定した。以下では、磁場中心情報の磁性体についてのみ、磁性体の位置などを記述する。

- メッシュは、図 4.13 における濃い灰色の部分（磁場中心より半径 50 mm、上方 200 mm まで）、および磁性体内部は 1 mm きざみで作成した。また、バックグラウンドとして z 方向には 1000 mm まで、 r 方向には 400 mm までを計算領域として設定し、最大 10 cm のメッシュを作成した。メッシュを作成した様子を図 4.14 に示す。
- データの取得は、磁性体上面より半径 30 mm、上方 50 mm までの面について、1 mm 刻みに行った。

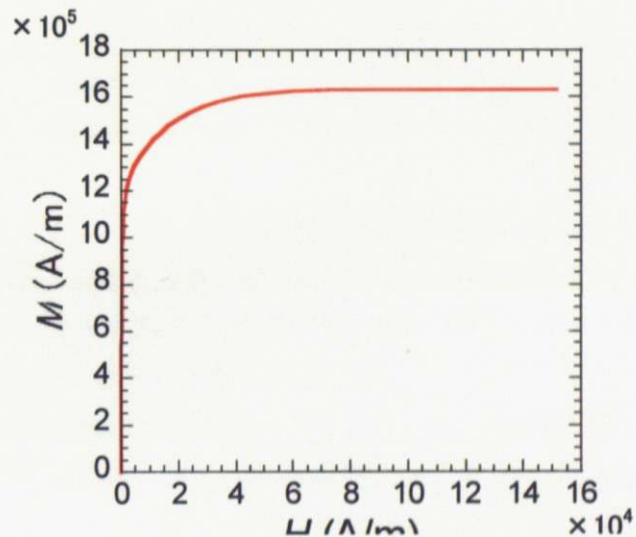
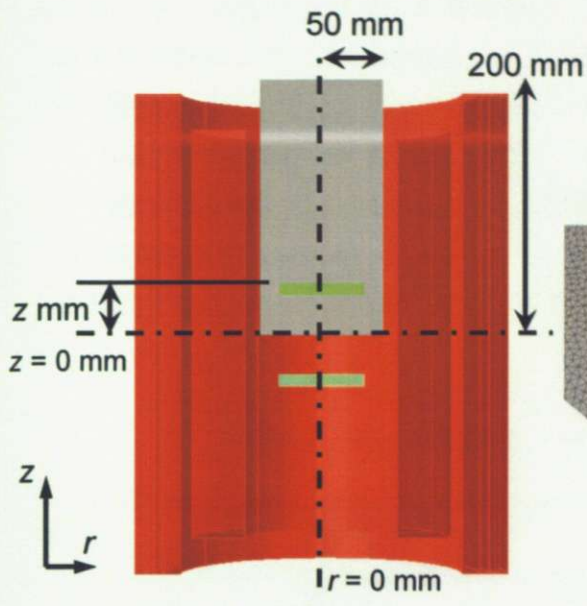


図 4.12: 仮定した磁性体（鉄）の磁化曲線



■■■ 磁性体
 ■■■ 大気として計算
 ※ 最大で1 mmのメッシュを作成

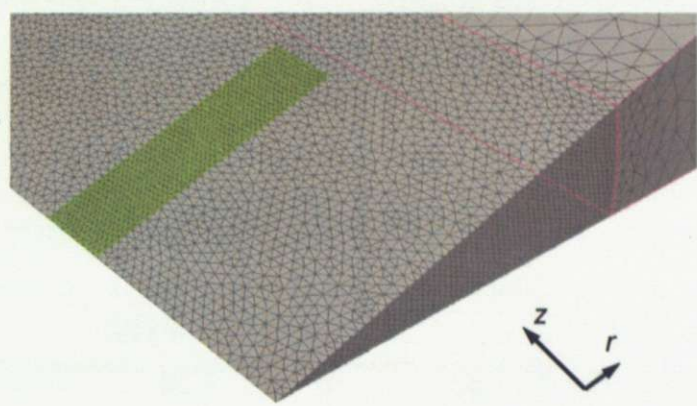


図 4.13：磁性体を用いた解析モデル

図 4.14：磁性体を含むモデルへのメッシング

の各条件を設定した。このデータ取得範囲は、多粒子を用いた材料作製への応用を視野にいれ、 $600\ \mu\text{m}$ のガラス粒子を 800 粒子用いた時に粒子が分布する半径（半径 $30\ \text{mm}$ 以内）について検討したものである。また、境界条件は 4-3-1 と同様に、 z 軸周りには 20 回対称、かつ z 軸の原点を通り、 z 軸に垂直な面について対称になる条件を設定した。

本研究では、この範囲について、前章の基準条件（磁性体なし、 $z = 182\ \text{mm}$ 、中心磁場強度 $13\ \text{T}$ ）を基準として、より広い範囲で均一な磁場強度、および磁気力の分布を得られる地点を検討した。比較に当たっては、

- ・ 二次元面内の磁場強度が、ボア中心から離れるに従って単調に増加している
- ・ 半径 $25\ \text{mm}$ ($\phi = 600\ \text{mm}$ のガラス粒子 500 個を用いたときに粒子が分布する範囲の半径) の範囲で磁場強度が
 計算結果 - 従来の条件での値 $< 0\ (\text{T})$
 を満たす

という各条件に合うデータを抽出した。さらに、抽出した条件について、 r 方向、および z 方向の磁気力を計算し、粒子の浮上条件と比較した。また、シミュレーションによって格子間隔制御への影響を検討した。

4-3-3. 磁性体を考慮した解析条件

以上の方針の下で、本研究では、以下の各条件下で磁性体の影響を検討した。検討は、

- ・ 磁性体の厚さを $t = 10$ mm として、その直径、および位置を変化させた場合
- ・ 磁性体の位置を $z = 80$ mm として、その厚さ、および直径を変化させた場合
- ・ 磁性体の直径を $\phi = 60$ mm、および厚みを $t = 10$ mm として、二枚の磁性体の間に試料空間を用意した場合

のそれぞれについて検討を行った。それぞれの条件を表 4.2~4.4 に示す。

表 4.2: 磁性体の直径、および位置を変化させた解析条件

磁性体上面からの 磁場中心の高さ (z mm)	磁性体の直径 (ϕ mm)				
10	50	60	70	80	
20			70		
30			70		
40			70		

※ 磁性体の厚さは $t = 10$ mmとした

表 4.3: 磁性体の厚さ、および直径を変化させた解析条件

磁性体の厚み (t mm)	磁性体の直径 (ϕ mm)				
10			60		
20			60		
30			60		
40	40	50	60	70	80
50			60		

※ 磁性体の位置は $z = 80$ mmとした

表 4.4: 磁性体を二枚とし、磁性体の間隔を変化させた解析条件

一枚目の磁性体の 位置 (z mm)	二枚目の磁性体の位置 (z mm)			
20	60	70	80	

※ 磁性体の大きさは $\phi = 60$ mm、 $t = 10$ mmとした

4-4. 実験結果

4-4-1. 得られた計算結果の傾向

以下では、前節で示した各解析条件下における計算結果の傾向を示す。ここでは、

- ・ 磁性体の上面からの高さを h (mm) として示す
- ・ 磁場強度に関する比較は、磁場強度分布の均一さが比較しやすいよう、磁場強度をボア中心における磁場強度で規格化した結果を示す

の各条件をおき、結果をまとめた。

4-4-1-1. 磁性体の厚さを固定し、直径および位置を変化させた場合

まず、表 4.2 の条件について、磁性体の厚さを $t = 10$ mm、位置を $z = 10$ mm とし、磁性体の直径を変化させた際の結果を図 4.15 に示す。

この結果より、磁性体の直径が小さい場合には下に凸の、直径が一定以上大きくなると上に凸の磁場強度分布を示すことがわかる。また、この境界付近において磁場や磁気力の分布が最も均一になる傾向が示された。

また、今回の条件では、磁性体の直径を $\phi = 70$ mm とした場合において、前節に示した条件を満たす結果が得られた。なお、直径を $\phi = 60$ mm とした場合は、条件を満たしているように見えるものの、ボア中心付近において磁場強度がボアの外側に向かって減少する領域があるため、条件を満たしていない。

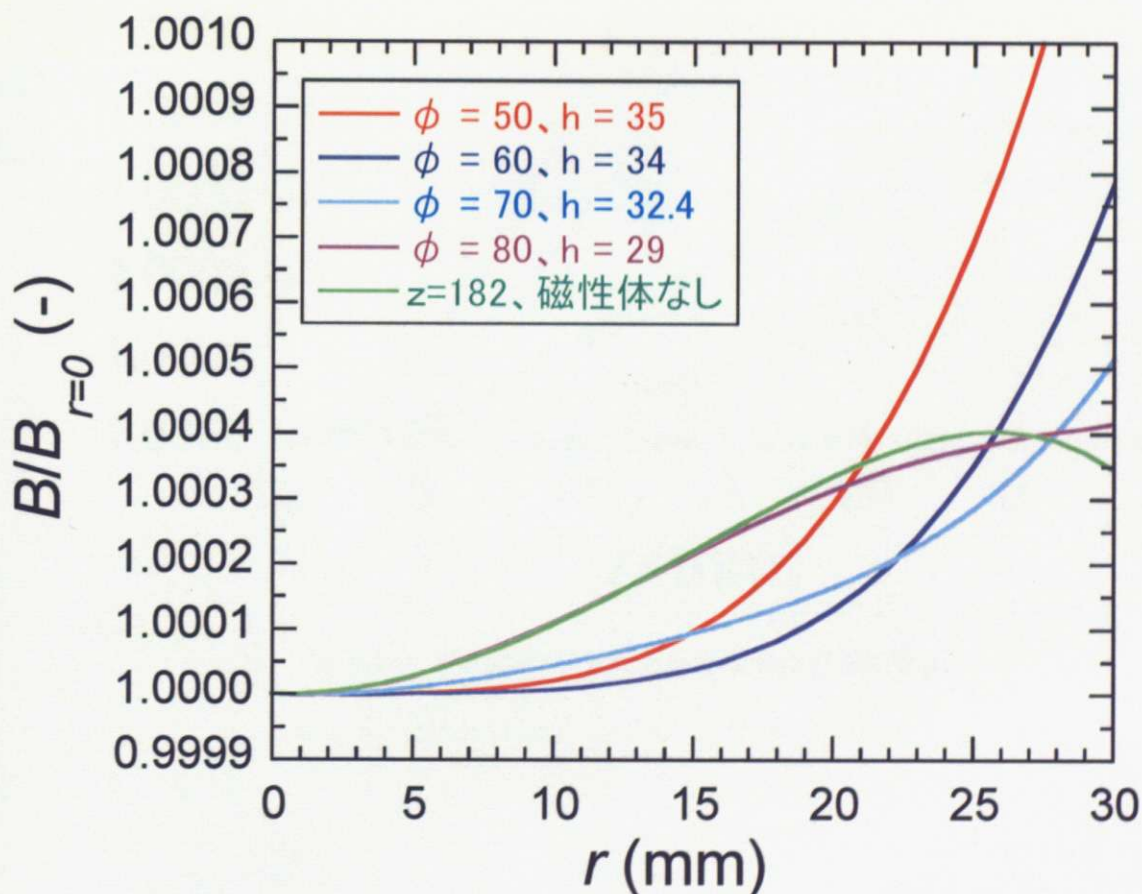


図 4.15：磁性体の直径による磁場強度分布の変化

次に、図 4.16 は、前段の結果を元に、磁性体の厚みを $t = 10 \text{ mm}$ とし、直径を最も平坦な磁場強度分布が得られた $\phi = 70 \text{ mm}$ に固定した状態で、磁性体上面の位置を $z = 10 \text{ mm}$ から 40 mm まで、 10 mm 刻みで変化させた時に得られた磁場強度分布に関する比較結果を示す。

この結果より、磁性体の大きさを固定した場合、二次元平面内の磁場強度分布は磁性体の位置が磁場中心に近い場合には下に凸の、磁場中心から離れた場所では上に凸の分布を示すことがわかった。

また、今回の条件でも、磁性体の直径が $\phi = 70 \text{ mm}$ 、位置が $z = 10 \text{ mm}$ の場合においてのみ、前節に示した条件に合った結果が得られた。

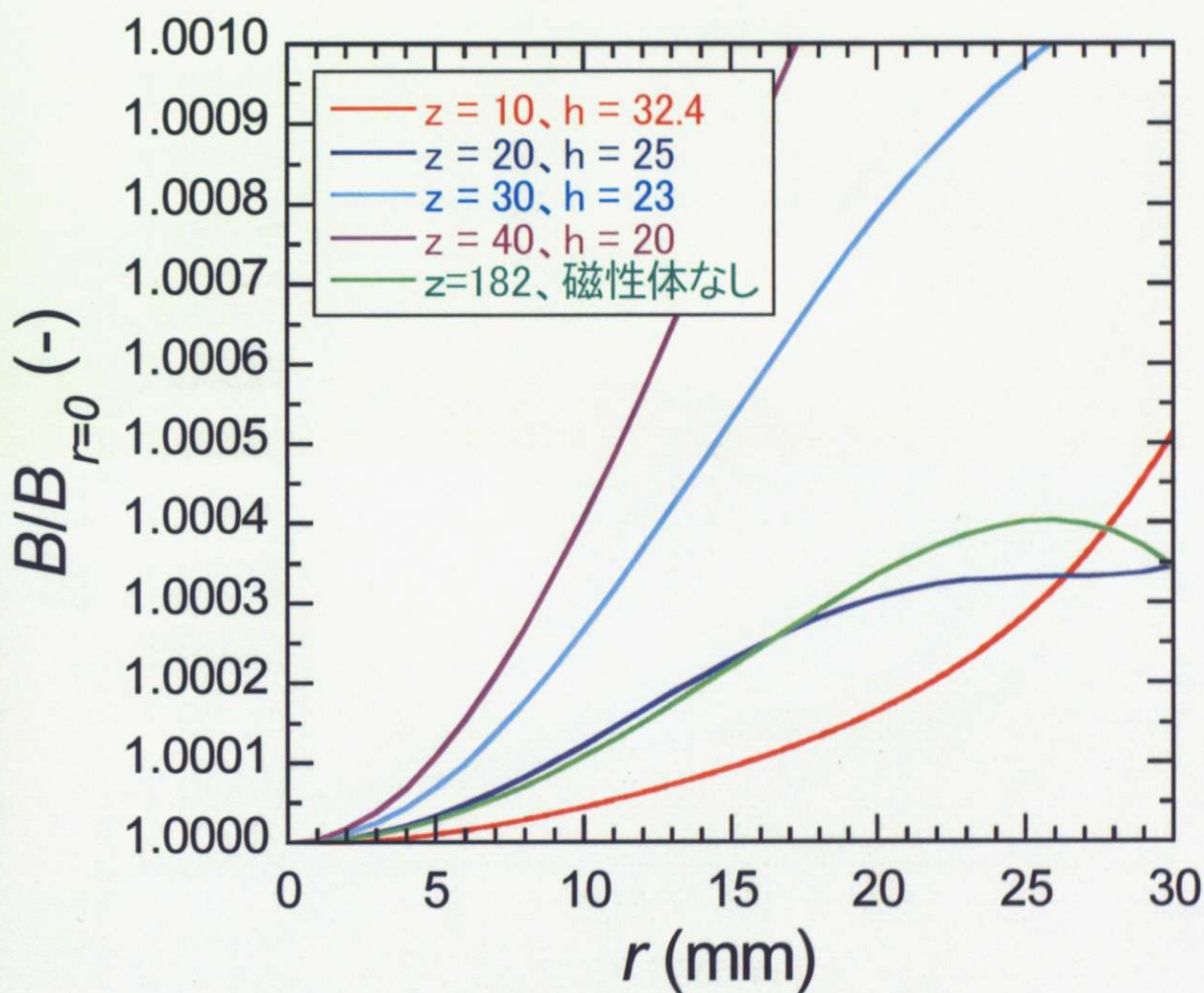


図 4.16：磁性体の位置による磁場強度分布の変化

4-4-1-2. 磁性体の位置を固定し、厚さおよび直径を変化させた場合

次に、図 4.17 には、表 4.3 の条件について、磁性体の直径を $\phi = 60 \text{ mm}$ 、位置を $z = 80 \text{ mm}$ とし、磁性体の厚さを変化させた際の結果を示す。

この結果より、二次元平面内の磁場強度分布は、磁性体が薄い場合には上に凸の、厚くなると下に凸の分布を示すことがわかった。

しかし、今回計算を試みた磁性体の配置では、前節の条件に当てはまる磁場強度分布を示す結果を得ることはできなかった。なお、磁性体の厚さを 40 mm とした際に得られた結果は、ボア中心から 25 mm 程度の範囲で非常に平坦な磁場強度分布が得られているものの、ボア中心付近において磁場強度がボアの外側に向かって減少する領域があるため、条件を満たしていない。

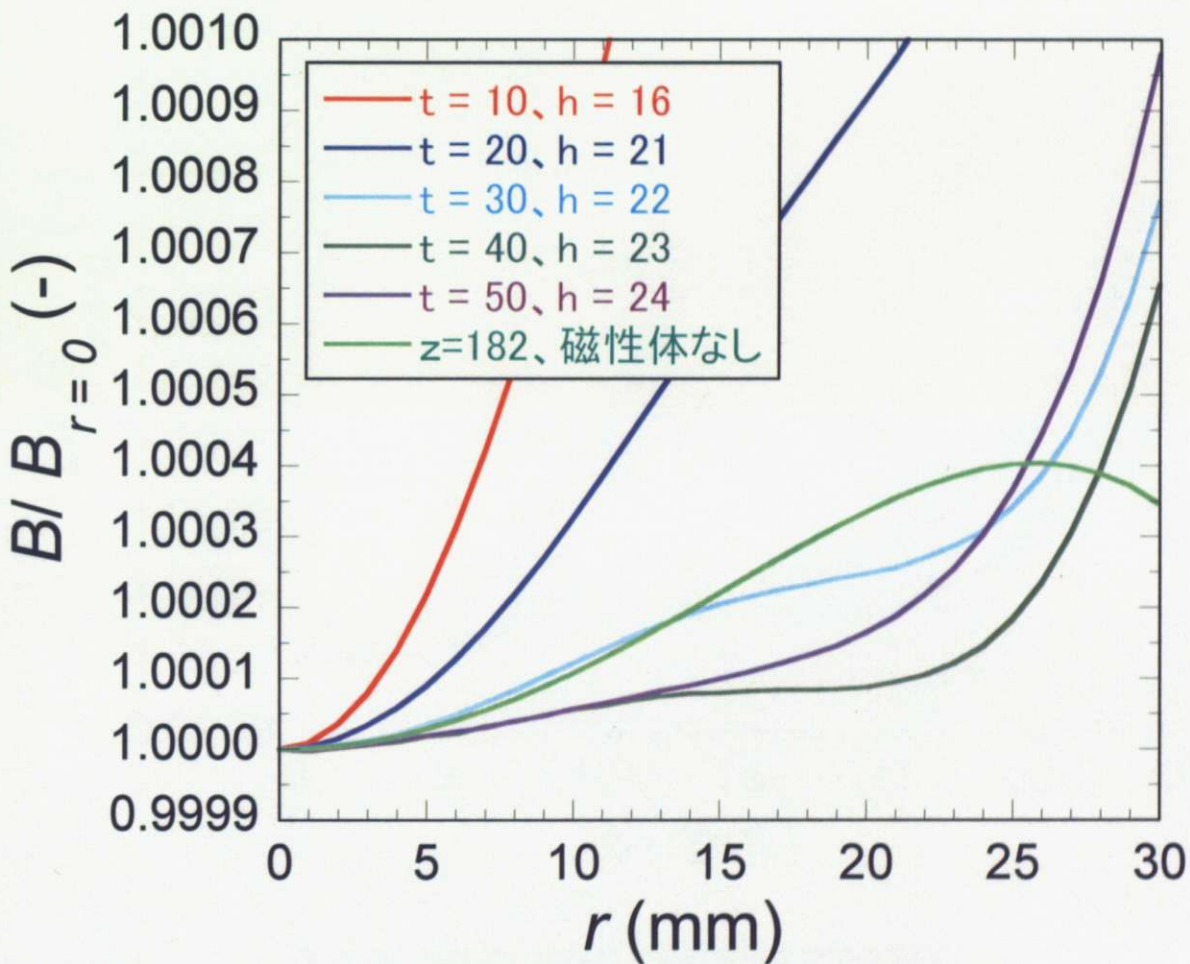


図 4.17：磁性体の厚さによる磁場強度分布の変化

この結果を元に、磁性体の厚さを前段の結果の中で最も平坦な磁場強度分布を示した条件である $t = 40 \text{ mm}$ に固定した状態で、磁性体の直径を $\phi = 40 \text{ mm}$ から 80 mm まで、 10 mm 刻みで変化させた結果を図 4.18 に示す。

この結果では、図 4.15 における結果と同様に、二次元平面内の磁場強度分布は、磁性体の直径が小さい場合には下に凸の、直径が一定以上大きくなると上に凸の分布を示すという傾向が見られる。

また、厚さを固定して半径を変化させた場合でも、前段同様に、条件を満たす磁性体の配置を見つけることはできなかった。

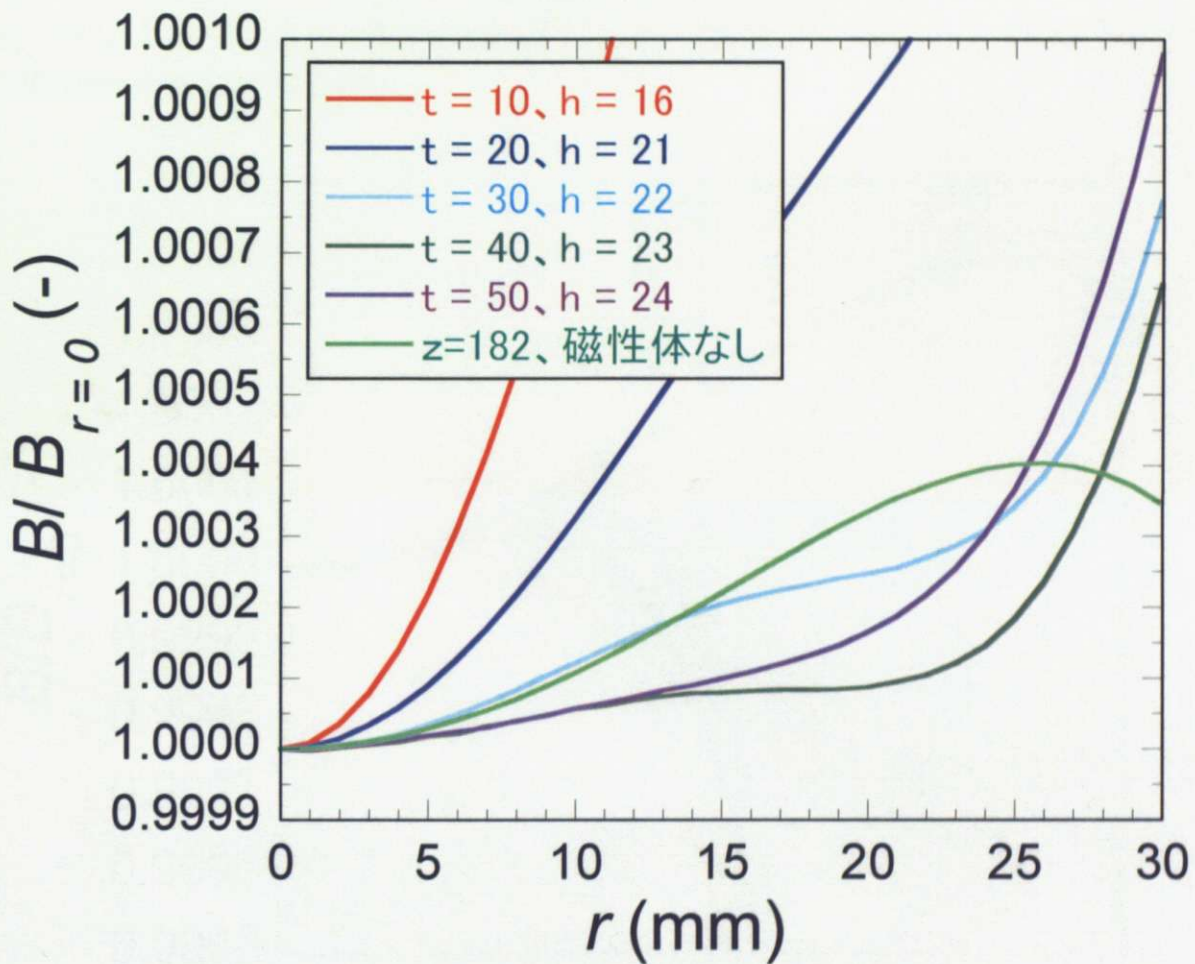


図 4.18：磁性体の直径による磁場強度分布の変化

4-4-1-3. 磁性体の直径および厚みを固定し、二枚の磁性体を用意した場合

最後に、図 4.19 に、表 4.4 の条件について、磁性体の厚さを $t=10\text{ mm}$ 、直径を $\phi=10\text{ mm}$ とした二枚の磁性体を考慮し、磁性体間の距離を変化させた場合に関する試料空間（磁性体間の空間）における磁場強度変化の計算結果を示す。

この結果では、磁性体間の磁場強度分布は、ボアの中心付近では比較的均一であるが、中心から離れると磁性体の端部の影響から急激な磁場強度変化を示してしまうため、これらの結果の中では、上記の条件に当てはまる結果を得ることはできなかった。

以上の結果より、磁性体を $z=10\text{ mm}$ 、 $\phi=70\text{ mm}$ 、 $t=10\text{ mm}$ の条件で超伝導マグネット内に挿入することで、これまで以上に広範囲かつ均一な磁場を得ることができると示された。これにより、より広範な条件での格子間隔制御が可能になると考えられ、さらに自在な格子間隔制御の実現が示唆される。

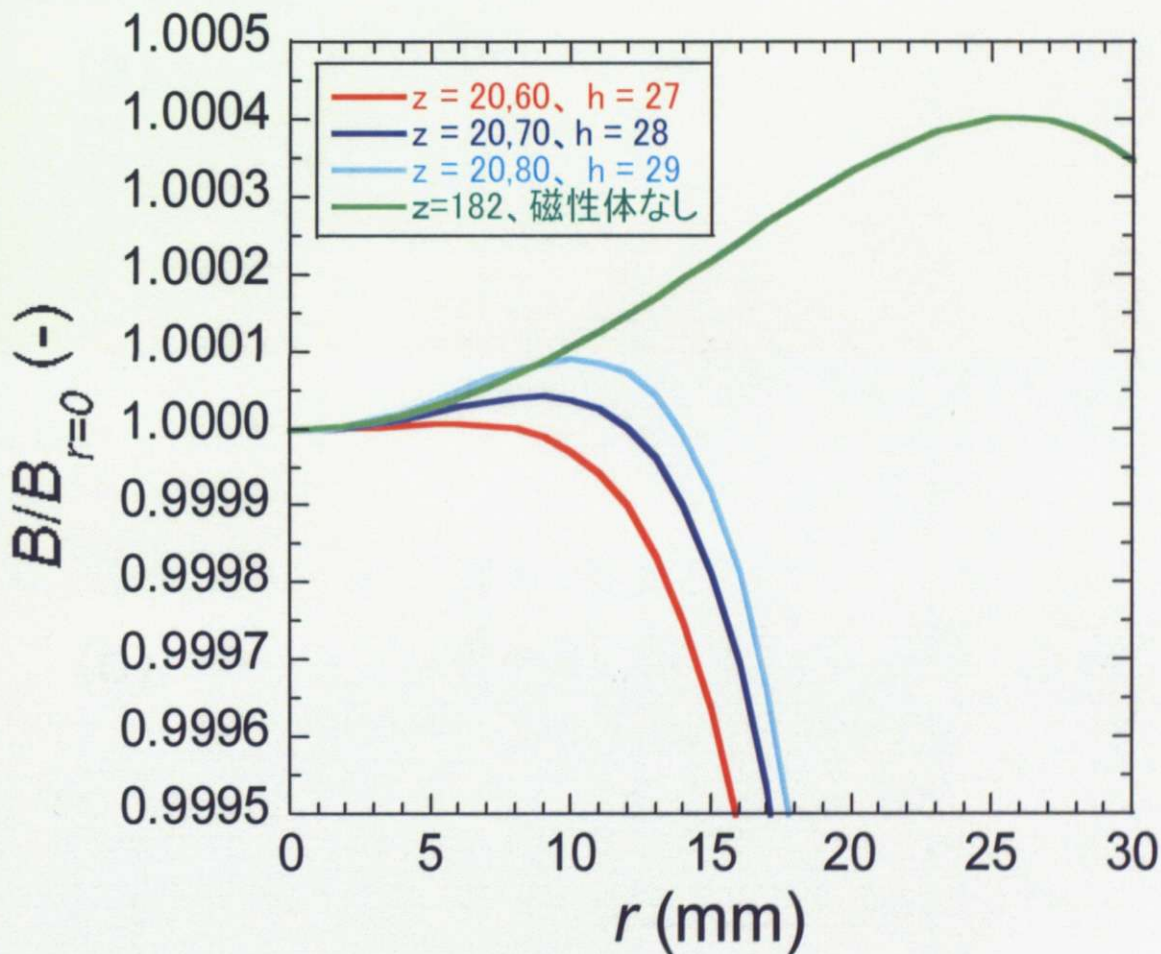


図 4.19：二枚の磁性体間の距離による磁場強度分布の変化

4-4-2. 磁性体による影響の評価

以下では、前節で格子作製に相当であると選択した $z = 10 \text{ mm}$ 、 $\phi = 70 \text{ mm}$ 、 $t = 10 \text{ mm}$ の磁性体配置条件について、磁性体による三角格子構造形成への影響を検討する。まず、図 4.20 は、磁性体を挿入することによる磁性体周辺の磁場強度分布への影響を視覚的にしめすため、 $h = 10 \text{ mm} \sim 40 \text{ mm}$ 、 $r = -30 \text{ mm} \sim 30 \text{ mm}$ の範囲における等磁場曲線を、磁性体がない場合 (a)、および磁性体を挿入した場合 (b) について比較したものである。この結果より、印加磁場中に磁性体を挿入することで、

- ・ r 方向の磁場分布が均一化する
- ・ z 方向の磁場強度変化が急激になる

といった影響が見てとれる。これは、印加磁場中の磁性体によって外部に生じる磁場は、磁性体の断面方向には磁性体の中心付近でもっとも強くなり、また磁性体から離れると式(4.1)に示したビオ・サバルの法則からわかるように距離の 3 乗に反比例して減衰するという特徴に由来すると考えられる。

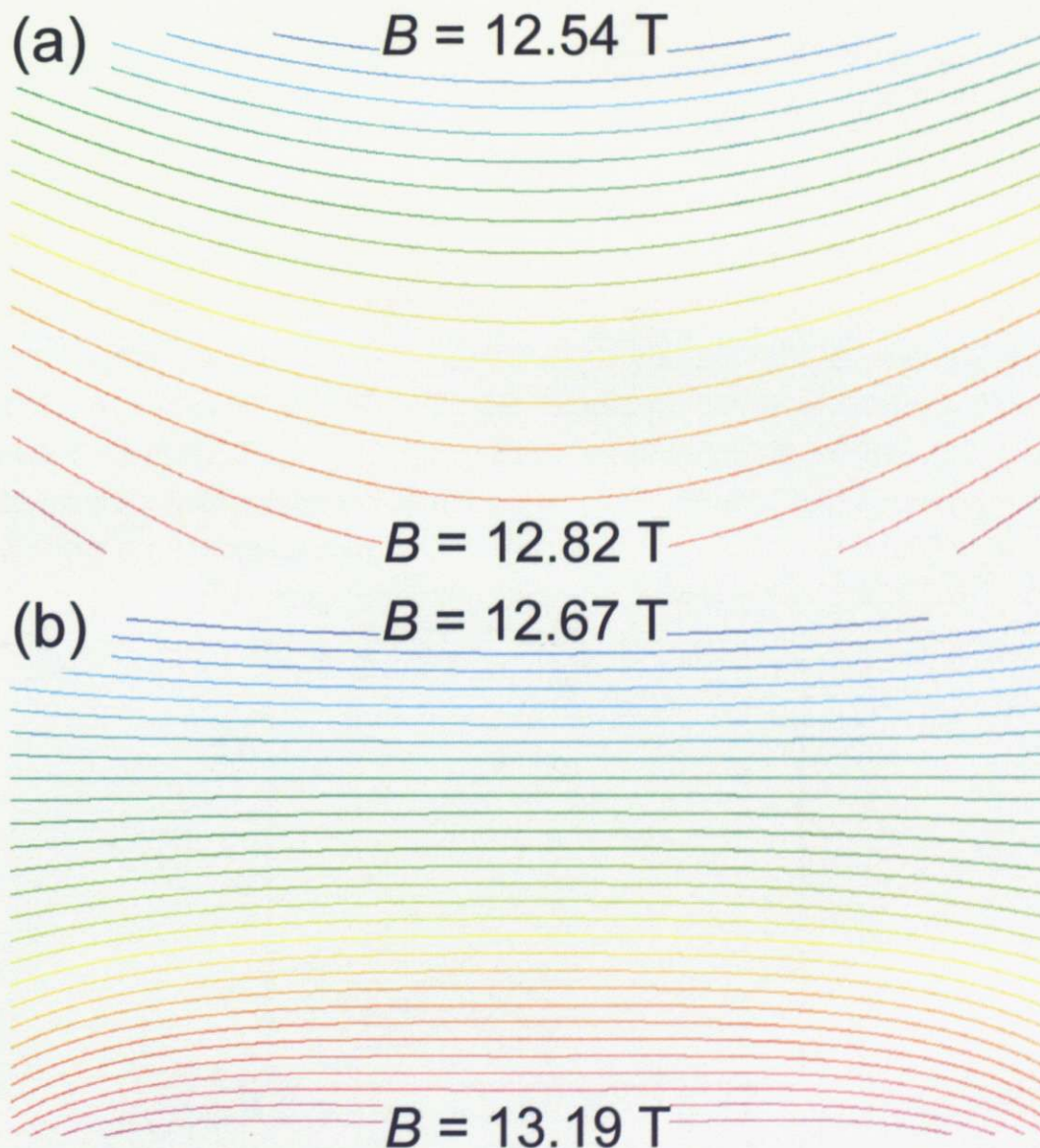


図 4.20: 磁性体による磁場強度分布の変化 (等磁場曲線の間隔は 185 G)

(a) 磁性体を用いない場合 (b) $z = 10 \text{ mm}$ 、 $\phi = 70 \text{ mm}$ 、 $t = 10 \text{ mm}$ に磁性体を配した場合

次に、前章の実験条件との比較として、前章で基準とした実験条件（磁性体なし、 $z = 182 \text{ mm}$ ）と磁性体を用いた場合の条件（磁性体を $z = 10 \text{ mm}$ 、 $\phi = 70 \text{ mm}$ 、 $t = 10 \text{ mm}$ の条件で配置した場合の $h = 32.4 \text{ mm}$ の位置）における磁場強度を比較した結果を図 4.21 に示す。

この結果、磁性体を用いた条件では、前章での実験条件に比べ、半径 25 mm ($\phi = 600 \text{ mm}$ のガラス粒子 500 個を用いたときに粒子が分布する範囲の半径) の範囲で空間磁場分布がより均一となり、かつ 2 倍近い磁場強度を印加して構造形成を行うことが可能になることが示された。

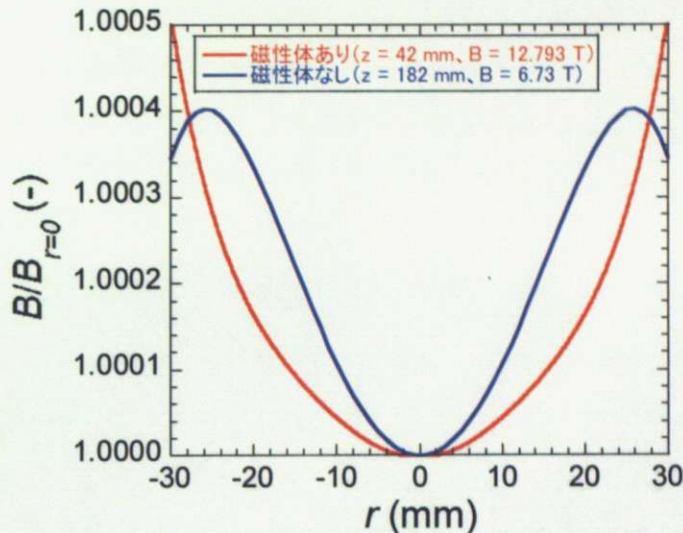


図 4.21：磁性体による磁場強度分布の平坦化

次に、この結果が格子間隔制御に与える影響を調べるため、前章の実験における相対的な磁化率差による構造制御と同様に、周囲媒体である塩化マンガン水溶液の濃度を 10 wt\% から 40 wt\% まで変化させた場合についてシミュレーションを行った。このとき、図 4.22 に示すような結果が得られ、これまで周囲媒体として 40 wt\% の塩化マンガン溶液を必要とした格子間隔を 30 wt\% 程度で実現できることがわかった。また、格子間隔の制御範囲も広がったことが確認され、磁性体を用いて磁場強度分布を制御することにより、組織制御条件に大きな自由度を与えることができることが示唆された。

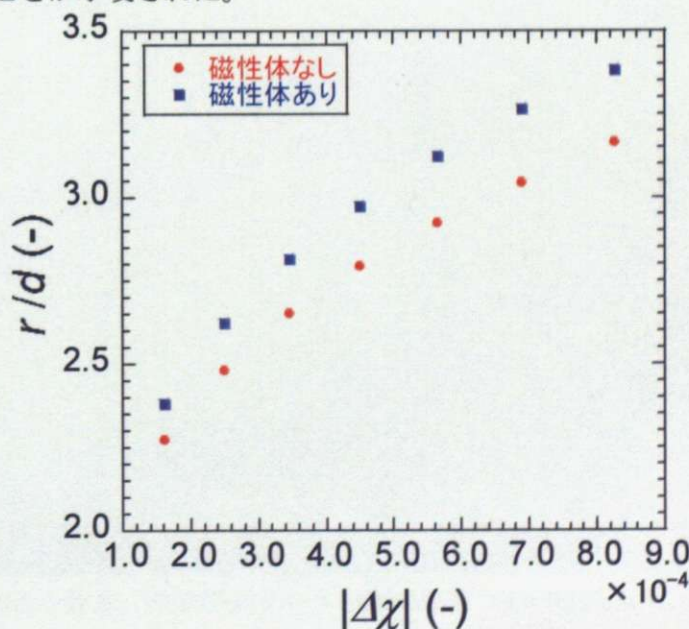


図 4.22：磁性体による格子間隔制御への影響

さらに、図 4.21 で示された磁場強度分布の平坦化による影響を調べるため、直径 $600 \mu\text{m}$ のガラス粒子を 300 粒子用いたときに形成される三角格子構造における格子間隔をシミュレーションによって計算した。得られた格子間隔の分布をコンター図を用いて比較したところ、図 4.23 に示す結果が得られた。ここで、図の横軸は粒子間の角度 θ を、また縦軸は粒子の直径で規格化した格子間隔を示している。この結果より、実験における基準条件での計算結果は $\theta = 60^\circ$ 、 $rd = 1.6$ 付近に、また磁性体を用いた条件での計算結果は $\theta = 60^\circ$ 、 $rd = 1.75$ 付近に分布のピークを持ち、ともに三角格子構造を形成していることがわかる。また、磁性体を用いた結果は、実験における基準条件での結果に比べ、格子間隔が 1 割程度大きくなり、三体分布関数におけるピークの現れ方がより一点に集中した形になっており、磁場強度分布が平坦化したことにより、均一な三角格子構造が形成されていることがわかる。なお、形成された三角格子構造を図 4.24 に示す。

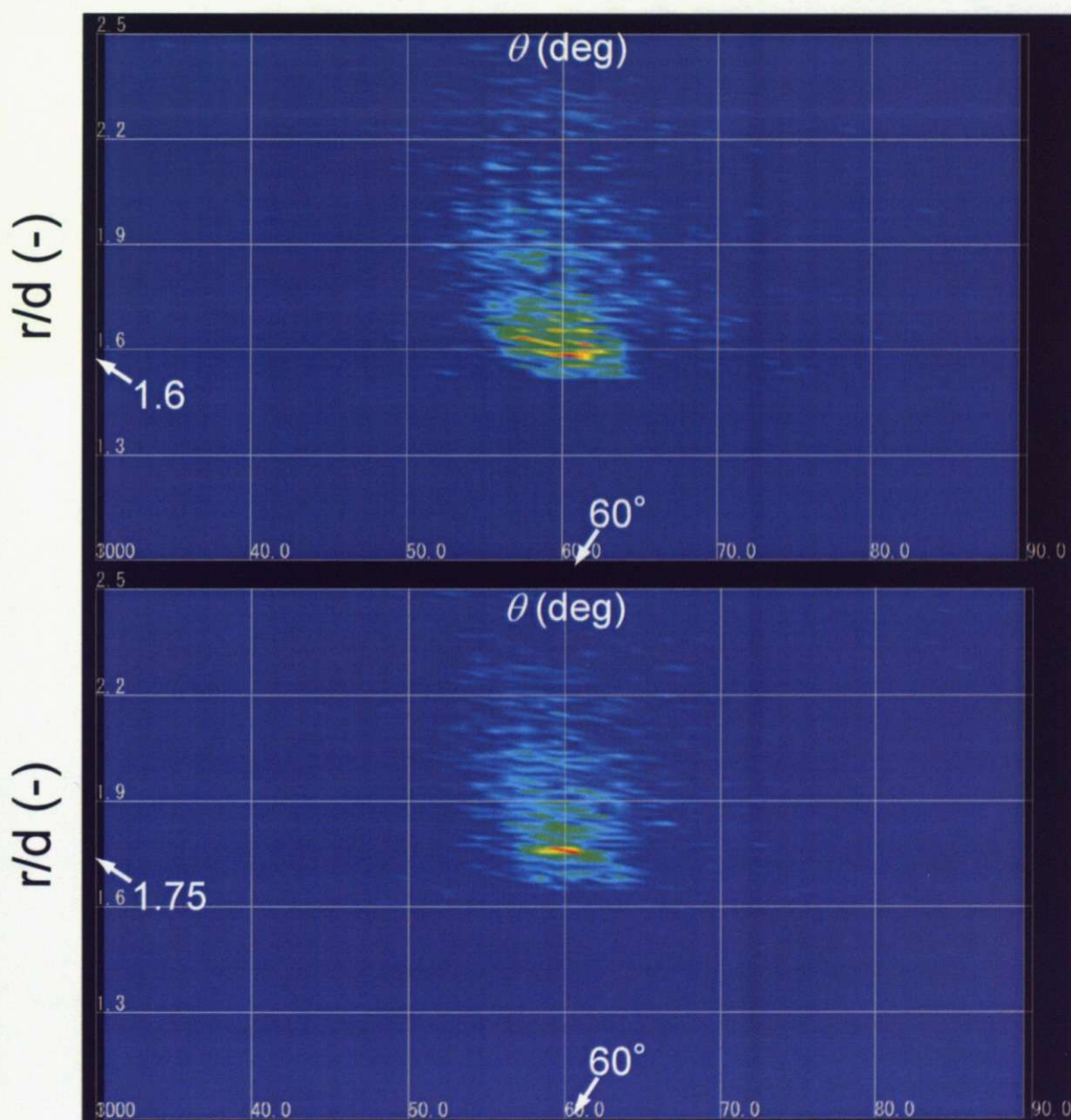


図 4.23：格子間隔の分布への磁場強度分布制御の影響 ($\phi = 600 \mu\text{m}$ のガラス粒子 300 粒子)
 (上) 実験における基準条件(下) $z = 10 \text{ mm}$ 、 $\phi = 70 \text{ mm}$ 、 $t = 10 \text{ mm}$ に磁性体を配した場合

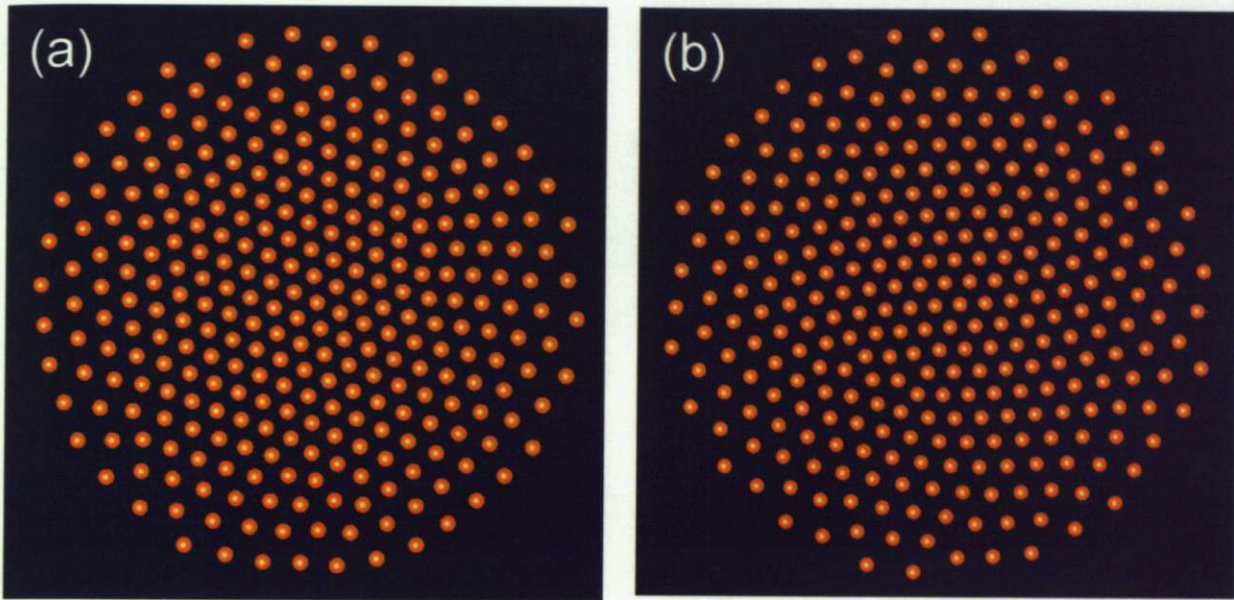


図 4.24: シミュレーションによって計算された三角格子構造

(a) 実験における基準条件 (b) $z = 10 \text{ mm}$ 、 $\phi = 70 \text{ mm}$ 、 $t = 10 \text{ mm}$ に磁性体を配した場合

以上の結果より、印加磁場中に磁性体を挿入し、磁場強度の空間分布を制御することにより、より高い自由度で、かつより均一性の高い三角格子構造制御が可能になることが示唆された。