

磁気浮上を利用した *n*-alkane の高感度磁化率測定

Sensitive measurements of diamagnetic susceptibility of *n*-alkane by a magnetic levitation technique

東北大・金研 高橋弘紀, 茂木 巖, 淡路 智, 渡辺 和雄
K. Takahashi, I. Mogi, S. Awaji and K. Watanabe
Institute for Materials Research, Tohoku University

1. はじめに

勾配磁場中にある反磁性物質に働く磁気力と重力が鉛直方向で釣り合った磁気浮上状態は、擬似的な微小重力環境と見なすことができるため、強磁場を利用した新しい材料プロセスとして注目されている。物質が磁場から受ける磁気力は、その物質の磁化率に依存するため、無容器溶融凝固プロセスにおいて試料の磁化率が変化する場合、温度変化によって浮上位置が変化する。そのため、プロセス中の試料位置を一定に保つためには、磁化率の変化に合わせて磁場の強さを調整する必要がある。通常、反磁性磁化率の温度変化は無視できるものとして扱われているが、磁気浮上状態においては、試料の温度変化によって浮上位置が変化する、即ち、磁化率が温度変化するのが観察されている。これらの現象は、磁気浮上状態が反磁性磁化率の温度変化を高感度に測定できることを示している。我々はこのことに着目し、これまでに磁気浮上を利用した反磁性磁化率の温度変化測定を試みてきた[1]。測定原理としては、試料に働く磁気力から磁化率を求める点で Faraday 法に他ならないが、試料容器を必要としないこと、溶融凝固過程をその場観察しながら測定できる点など、通常の Faraday 法には無いメリットがある。また試料の大きさも 1mm 程度あれば十分測定可能で、力の釣り合いが磁場分布に基づいて点で成り立っていることを考慮すれば、試料は小さければ小さい程、磁化率を正確に測定できると考えられる。

これまでに報告したパラフィン（融点 48-50°C）においては、室温から昇温するにつれて磁化率が僅かに増加（約 0.18%）し、融点直下から減少するのが観測されていた[2]。パラフィンを構成する *n*-alkane は融点直下で多段の固相-固相相転移を示す[3]ことから、磁化率の増加と相転移との関係に注目し測定を行ってきた。そこで、相転移と磁化率の関係をより明確にするために、炭素数の揃った単分散の *n*-alkane について磁化率を測定したところ、*n*-tricosane（融点 47°C, 炭素数 23）、*n*-docosane（融点 46°C, 炭素数 22）、*n*-heneicosane（融点 42°C, 炭素数 21）においては、いずれもパラフィンで見られたような融点以下での磁化率の増加は見られなかった[4]。このことから、磁化率増加の振る舞いは *n*-alkane の混合物に見られる現象と考え、今回は敢えて単分散 *n*-alkane の混合試料を作製し、測定を行った。

2. 実験方法

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 (mix2) である。用いた *n*-alkane はいずれも東京化成工業製で純度は 99% 以上である。それぞれに秤量した試料を試料ビンに入れ混合し、50°C に熱したホットプレート上で一度溶融させ、凝固した試料を 1 辺約 2 mm の立方体状に成形した。磁気浮上にはハイブリッドマグネット (28T-HM) を使用し、52 mm の室温ボア内に設置した循環水式恒温槽によって温調を行った。試料セル、プリズム、マイクロ CCD カメラ、照明用 EL 素子、熱電対 (type-T) 等を備えたインサートを恒温槽内にセットし、浮上する試料の様子を観察した。試料セル内の雰囲気は窒素ガスとし、セルの開口部をシーロフィルム (富士フィルム) で密封した。インサートの写真を Fig. 1 に示す。

測定手順は以下の通りである。まず試料を浮上させ、水冷マグネットの電流値を徐々に下げながらハイブリッドマグネットとしての発生磁場を弱くしていく。この時試料は徐々に降下し、やがて浮上を維持できずに落下するが、落下する直前の電流値から試料が浮上する限界の磁場の値を求める。その後再度試料を浮上させ、浮上限界の磁場から水冷マグネットの電流値として 5 A 高い磁場で浮上をさせ、

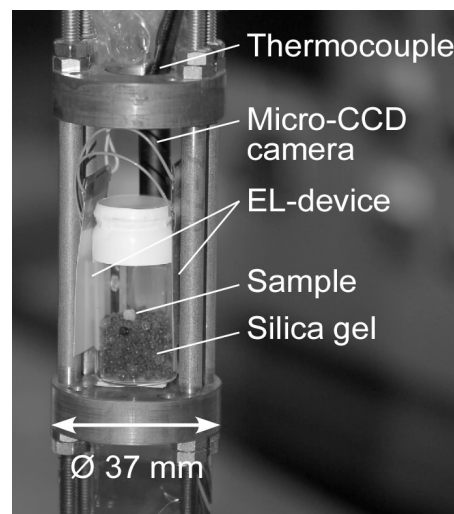


Fig. 1 Photograph of the insert around the sample cell.

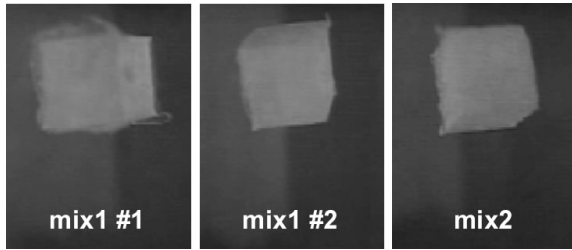


Fig. 2 Snap shots of levitating samples at 20°C.

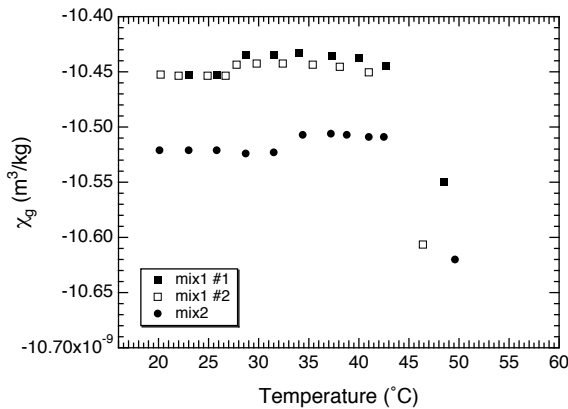


Fig. 2 Temperature dependence of magnetic susceptibility per unit mass of mixtures of n-alkanes.

初期浮上位置とした。水冷マグネットの電流値 5 A は、磁場の値として 0.004 T に相当し、この時の試料の移動距離は約 0.7 mm であった。初期位置に浮上した試料が温度変化によってその位置を変えた場合、再度水冷マグネットの電流値を変化させ、試料が初期位置に戻るよう制御した。この時、試料の挙動が安定するまで十分待つことで試料の温度が平衡状態に達したと判断した。1つの温度の測定に 20 ~ 30 分以上を要して測定している。磁化率の値は、その時の中心磁場の値から浮上位置での磁気力場 $B(\partial B/\partial z)$ を計算により求め、磁気浮上状態における力の釣り合いの式、

$$(\chi_g/\mu_0)B(\partial B/\partial z) = g \quad (1)$$

から質量磁化率 χ_g を求めた。ここで、 μ_0 は真空の透磁率、 g は重力加速度である。

3. 実験結果

Fig. 2 に磁気浮上した試料の様子を示す。Mix1 に関しては 2 つの試料 (#1, #2) について測定し、20°C における浮上磁場はマグネットの中心でそれぞれ 18.872 T, 18.940 T であった。また、mix2 については 18.865 T であった。Fig. 3 に mix1, mix2 の測定によって得られた磁化率の温度依存性を示す。Mix1 に関しては 2 つの試料の 20°C での値で平均値を取り、その値 $-10.453 \times 10^{-9} \text{ m}^3/\text{kg}$ に平行移動して規格化

してある。この時の試料間の差は $0.113 \times 10^{-9} \text{ m}^3/\text{kg}$ であり、平均値の 1.1% であった。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。

4. まとめ

パラフィンと単分散の *n*-alkane 試料で見られた磁化率の温度依存性の違いを検証するため、単分散試料の混合試料を作製し、磁気浮上を利用して磁化率の温度変化を測定した。その結果、混合試料においては、パラフィンの場合と同様、融点以下の温度で磁化率の増加が観測された。このことから、パラフィンや混合試料で観測された磁化率の増加は、相転移に伴う磁場配向によるものである可能性は低く、例えば、軟化し始めた低融点の *n*-alkane の中で融点の高い *n*-alkane ドメインが磁場配向することによってもたらされている等の理由が考えられる。

参考文献

- [1] K. Takahashi, *et al.*: J. Phys.: Conf. Ser. **156** (2009) 012020.
- [2] K. Takahashi, *et al.*: Meas. Sci. Technol. **22** (2011) 035703.
- [3] E. B. Sirota, *et al.*: J. Chem. Phys. **98** (1992) 5809.
- [4] 高橋, 他: 東北大学金属材料研究所強磁場超伝導材料研究センター平成 21 年度年次報告 (2010) 171.