解説

実用的 3 次元結晶配向法としての回転変調磁場配向への取り組みの現状

堀井 滋*

京都先端科学大学ナガモリアクチュエータ研究所, 〒615-8577 京都市右京区山ノ内五反田町 18 番地.

Magnetic Alignment by Modulated Rotating Magnetic Field as a Practical Process of Three Dimensional Crystal Alignment

Shigeru HORII*

Nagamori Institute of Actuators, Kyoto University of Advanced Science, 18 Yamanouchi-Gotanda-cho, Ukyo-ku, Kyoto 615-8577, Japan.

Received January 9, 2020; Revised February 15, 2020; Accepted February 17, 2020

ABSTRACT

Bi-axial grain alignment by modulated rotating magnetic field (MRF) is a candidate of material production process which can be applicable at room temperature. However, to raise MRF into a practical process, one should quantitatively understand requirements for achieving alignment of hard magnetization axis by rotating field. In this review article, rotation speed of MRF and time-dependent viscosity of slurry as two of the requirements are focused on. Orientation degrees of high-critical temperature superconductors' green compacts aligned in MRF were found to be improved with the increase in concentration of butanol added in ethanol-based slurry. This is because time derivative of viscosity of slurry is lowered by the addition of butanol. The author's group has recently developed an equipment that can generate a linear-drive type MRF and, in this review article, attempted to improve an effective rotation speed component in MRF by ingenuity of arrangement of the permanent magnet unit. At the current stage, the effective rotation speed has been successfully increased to be more than 500 rpm. Due to this, the orientation degrees of magnetically aligned powder samples of a high-critical temperature superconductor were also improved. Design of the arranged permanent magnet unit applicable to each substance is important.

KEY WORDS

magnetic alignment, modulated rotating magnetic field, superconductor, viscosity, rotation rate

1 緒 言

磁場配向法は物質の結晶磁気異方性（あるいは形状磁気異方性）を利用した結晶配向法である。300 K 程度で磁気異方性を有する物質であれば、室温で磁場配向法が適用できる可能性が高く、磁場配向は室温で行える材料製造プロセスとなる。現在、磁場配向法には3種類の配向方法が知られていて、「静磁場」を用いた第一磁化容易軸の配向、「回転磁場」を用いた磁化困難軸の配向¹⁾、「回転変調磁場」を用いた三結晶軸すべての配向（三軸配向）^{2,3)}がある。特に、「回転変調磁場」の場合、三結晶軸すべての配向を可能とすることから、磁場配向法は、エピタキシー技術と同様、材料作製プロセスとして擬似単結晶組織の形成技術に展開できる可能性がある。ここで回転変調磁場とは、静止磁場による第一磁化容易軸配向と回転磁場による磁化困難軸配向の両方の効果を合わせもつ

磁場のことを指す。回転変調磁場の発生方法として、これまでに間欠回転⁴⁻⁶⁾、回転速度変調^{2,3)}、首振り回転⁷⁾が報告されている。

Figs. 1 (a), 1 (b), 1 (c) に、回転変調磁場として間欠回転型、回転速度変調型、首振り型の回転変調磁場の模式図をそれぞれ示す。Fig. 1 (a) で示した間欠回転型磁場の場合、180 度（半回転）分の磁場回転工程につき1度の静止工程を加え、これらを繰り返すことで回転変調磁場を発生する。“180 度回転”と“静止”の2つの工程がそれぞれ回転磁場効果と静磁場効果の役割をもつため、回転変調磁場としては比較的理解しやすい磁場であると思われる。Fig. 1 (b) で示した回転速度変調型（周波数変調型ともいう）の場合、360 度（1 回転）分の回転磁場工程の中に、0 度近傍および180 度近傍に低速回転工程が含まれている。低速回転工程の導入により、磁場回転面内に磁化容易軸に対する配向エネルギーの利得が低速回転角度領域で得られる。これは、低速回転工程が静磁場工

* Corresponding author, E-mail: horii.shigeru@kuas.ac.jp

Fig. 1 Schematics of three different modulated rotating magnetic fields and measured surfaces, α , β , and γ , for determination of magnetization axes. (a) intermittent rotation type, (b) frequency-modulated type, and (c) oscillation type.

程の役割を果たしていることを意味する。Fig. 1 (c) で示した首振り回転型磁場の場合、一部の角度領域のみではあるが回転磁場工程が存在する。このことから、回転磁場による磁化困難軸配向が実現することは想像に難くない。また、首振り角度 (2ϕ) が $2\phi < 90^\circ$ であれば、磁場強度を B [T] として常に $B\cos\phi > B\sin\phi$ が成立する。これは、時間平均磁場として磁場回転面内に首振り角度の中心にのみ静磁場が存在するように見えていることを意味し、首振り角度の中心方向に静磁場による第一磁化容易軸配向が起こる。上記の3つの型の説明は定性的なものであり、各々の型に応じた上記の「配向条件を満たす」ことで、 α 面、 β 面、 γ 面に対して垂直にそれぞれ第一磁化容易軸、第二磁化容易軸、磁化困難軸が配向する。

回転変調磁場のような回転磁場が含まれる磁場配向の場合、「配向条件を満たす」には回転磁場特有の配向条件を理解する必要がある。本稿では、まず回転磁場の配向条件について簡単に触れたのち、この回転磁場配向条件に含まれる磁化困難軸配向のための重要なパラメータである分散媒粘性および磁場回転速度の重要性について実験結果を交えて述べる。特に、実用的な回転磁場の高速化には、近年我々のグループが開発した“試料や磁石を回すことなく”、“直線的に回転変調磁場を印加できる”リニア駆動型回転変調磁場発生装置が有用であり、これを活用した取り組みを紹介する。

2 回転磁場による磁化困難軸配向における 粘性および磁場回転速度の重要性

前節では、回転変調磁場により三軸結晶磁気異方性を有する物質の三次元結晶配向が実現できること、3種類の回転変調磁場はいずれも静磁場配向と回転磁場配向の両方の効果をもつことを紹介した。回転磁場の配向条件については2018年10月号の拙著の解説記事に原理を含めて詳細に報告している⁸⁾が、本稿においても回転磁場条件は重要な役割を果たしているので簡単に振り返ることとする。

回転磁場を使って磁化困難軸配向を実現するには、大まかには2つの条件を満たす必要がある。第1は十分な配向エネルギーを物質に印加することであり、第2は低速の回転磁場によって起こる第一磁化容易軸の追従現象から解放することである。特に、第2の条件は、静磁場を使った配向では考慮する必要のない条件であるので、回転磁場を含む配向では考慮すべき因子が増え、配向条件が相対的に複雑化する。まず、

第1の条件である配向エネルギーに着目し、回転磁場の配向条件を表すと以下の通りとなる。

$$\frac{VB^2}{4\mu_0}\Delta\chi > 1000k_B T \quad (1)$$

ここで、 B , $\Delta\chi$, μ_0 , V , k_B , T はそれぞれ磁場 (磁束密度)、磁化容易軸とその垂直方向の磁化率の差 (以後、磁気異方性)、真空透磁率、粒子の体積、ボルツマン定数、絶対温度である。左辺の式は回転磁場での配向エネルギーを表し、磁場の2乗、磁気異方性、粒子の体積に比例する。右辺については、配向がボルツマン分布に従うときの熱擾乱エネルギーを表している。なお、 $1000k_B T$ (熱擾乱エネルギーの1000倍) は、約5度の半値幅で磁化困難軸が配向する条件⁹⁾に相当する。

次に、第2の条件について簡単に述べる。磁場の回転に対して磁化容易軸が追従しない回転磁場条件の詳細については木村らの論文¹⁾に譲るが、定性的には、磁気異方性が高いほど、回転する磁場に対して、第1磁化容易軸が追従して回転しやすくなり、磁化困難軸の配向は、この追従条件よりも高速回転にして、第1磁化容易軸が追従できなくなる非追従条件として表現される。実験的に求めた十分な磁化困難軸配向が実現する非追従条件¹⁰⁾をもとに、磁場回転速度 Ω [rad/s] および配向時間 $\tau = 6\eta\mu_0/(B^2\Delta\chi)$ [s] を用いて以下の式が導かれる。

$$\frac{6\eta\mu_0}{B^2\Delta\chi}\Omega > 5 \sim 10 \quad (2)$$

ここで、粒子は球状とし、媒体の粘性は η [Pa s] である。式 (1) および式 (2) の意味するところをまとめると、定性的には以下の通りとなる。

- ・式 (1) より、 B の値が大きいほど、配向エネルギーとしては有利に働く。
- ・式 (2) より、 B の値が小さいほど、磁化容易軸の非追従を実現する粘性条件が広がる点で有利に働く。前項とは相反の関係にある。
- ・式 (2) より、高粘性ほど高い $\Delta\chi$ をもつ物質も対象となる点で有利に働くが、配向時間が延びる。粘性の時間変化も重要な因子である。
- ・式 (2) より、磁場回転の高速化は有利に働く。但し、試料の回転によって相対的に回転磁場を発生させる試料回転方式³⁻⁵⁾では、高速化により粘性流などの問題が同時に起こるため、配向を逆に乱す要素も存在することから高速化は

逆効果となる可能性が高い。

定量的な議論については、一例として高温超伝導物質の磁気異方性を用いて行っており、原理を含めた詳細⁸⁾についてはすでに報告している。ただ、上記の定性的な理解からでも回転磁場を含む磁場で配向を行うには、粘性の制御（粘性の時間変化も含む）と磁場回転の高速化が重要な役割を果たすことがわかっていただけたと思う。

3 回転変調磁場配向における粘性と配向度の関係

前節では、簡単ではあるが、回転磁場の印加による磁化困難軸配向の成立条件について述べた。配向エネルギー条件に加えて、回転する磁場に対して第一磁化容易軸が追従できなくなる条件（非追従条件）も同時に考慮する必要があることが、静磁場での第一磁化容易軸配向とは異なる点である。したがって、回転磁場を含む磁場では、粘性（時間変化含む）と磁場回転速度も重要な配向度決定因子として加わる。本節では、このうち粘性および粘性の時間変化に着目し、 $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ [Er123, $y \sim 7$, 斜方晶構造] 高温超伝導物質の配向挙動と粘性の関係について紹介する。

Er123のアルコール系スラリーを用いて自然乾燥でのシートキャスト法で成形体を作製する場合、粘性およびその時間変化の制御方法として、主にアルコール種の選択やバインダーの添加量制御が挙げられる。著者のグループでは、これまでにアルコールとしてエタノールを、バインダーとしてポリビニルブチラール（PVB）を用いてきた。本節では、PVB添加量の制御に加えて、エタノールに比べて飽和蒸気圧（20℃）が10分の1程度の値をもつブタノールを活用することで、粘性とその時間変化を定性的に理解しようと試みた。

初期状態としてアルコールに対するPVB濃度を5 wt%, 10 wt%, 15 wt%としたPVB-エタノール溶液およびPVB-50%エタノール50%ブタノール溶液を調製した。これらのPVB-アルコール溶液に、体積分率が20 vol%となるよう市販のEr123粉末を添加し、十分に攪拌しスラリーとした。なお、市販のEr123粉末は焼結体を粉碎した焼結粉であり、走査型電子顕微鏡（SEM）像の画像解析から得た平均粒径としてメディアン径が0.75 ミクロン、体積加重平均が3.0 ミクロンであった。また、SEM像からEr123焼結粉は角ばった粒子でありシングルグレインから構成される粉末であることが示唆された。上記のスラリーを室温20℃の部屋（空調制御あり）に静置し、スラリー重量の時間変化からPVB濃度の時間変化を明らかにした。定性的にはPVB濃度は粘性の大小関係を反映した指標と考えられる。

Figs. 2 (a) および 2 (b) に、エタノール系およびエタノール+ブタノール混合系のEr123スラリーを自然乾燥でシートキャストさせたときのPVB濃度の時間変化をそれぞれ示す。ここで、粉末を添加していないPVB-エタノール溶液のPVB濃度と粘性の関係¹¹⁾として、PVB濃度の上昇に対して粘度は指数関数的に上昇することがわかっている。したがって、Fig. 2で見られる時間変化以上に粘度の時間変化は大きくなることが予想される。また、高配向度が実現するエポキ

Fig. 2 Changes in PVB concentration as a function of time in sheet-casting process for Er123 slurries with (a) ethanol and (b) ethanol + butanol as media.

シ樹脂の初期粘度（40 Pa・s 程度）と同程度の初期粘度を示すPVBの重量濃度を調べたところ、エタノールに対して約30 wt%であった。Fig. 2 (a) に示すように、エタノールのみを分散媒とするスラリーの場合、PVB初期濃度が5 wt%のスラリーのPVB濃度は、PVB濃度が30 wt%程度となる時間で急激に上昇する。これに対して、初期PVB濃度を増加させることにより、30 wt%近傍のPVB濃度の時間変化を緩やかにできている。これを踏まえ、Fig. 2 (b) に示したエタノール+ブタノール混合系スラリーでは、初期濃度5 wt%のスラリーにおいても、PVB濃度の時間変化が大きく抑制できていることがわかる。もう一つの特徴として、PVB初期濃度を増加させてもPVB濃度の時間変化の傾きはそれほど変化しないことが挙げられる。すなわち、定性的にはブタノール添加したエタノールを分散媒として使用することにより、スラリーの粘性の時間変化を緩やかにする効果をもたらす。

上記のエタノール系およびエタノール+ブタノール混合系のEr123スラリーを用いて、試料回転方式の首振り回転磁場 [Fig. 1 (c) 参照] 下で自然乾燥でシートキャストさせてEr123配向厚膜を作製し、(103)面の極点図測定から配向度を評価した。なお、Er123粉末の体積分率は20 vol.%, 初期PVB濃度は5, 10, 15 wt%, 印加磁場は1, 3, 5 T, 首振り回転角度は $\phi = 20$ deg, 首振り回転速度は20 rpmとした。一例とし

て, Figs. 3 (a) および 3 (b) に, 初期 PVB 濃度 15 wt%, 印加磁場 5 T としたときのエタノール系およびエタノール+ブタノール混合系の Er123 スラリーから作製した Er123 配向体の (103) 極点図をそれぞれ示す. いずれも 4 回対称性のスポットが認められたことから双晶構造をもつ Er123 粉末は 2 軸配向していることがわかった. 斜方晶構造の場合, 通常 2 回対称性のスポット³⁾が現れるはずであるが, Dy123 粒子には正方晶-斜方晶転移に伴う双晶組織が形成され, Fig. 5 (a) で得られた 4 回対称性のスポットは双晶組織¹²⁾をもつ粒子が 2 軸配向した結果として理解できる. 一方で, 両者の間にスポットの鋭さが異なっている. エタノール+ブタノール混合系 Er123 スラリーから作製した Er123 配向体で相対的にシャープなスポットが得られ, 配向性が高まっていることが示唆された. そこで, 両者の差を定量的に理解するために, これらの Er123 配向厚膜の (103) 極点図から配向度 F (%) を算出した. なお, ここでの配向度 F とは, (103) 極点図の全積算強度に対する 4 回対称ピークの積算強度 (半径 5 度以内) の割合を百分率で表したものである. エタノール系およびエタノール+ブタノール混合系から作製した 2 軸配向 Er123 厚膜の F はそれぞれ 29%, 38% であり, 配向度からもブタノール添加による粘性制御の有用性が示された.

本稿で作製したすべて Er123 配向体の (103) 極点図から配向度 F (%) を算出し, Fig. 4 に示すような磁場強度と配向度の関係を得た. PVB 濃度 5 wt% を除き, ブタノールを含まないスラリーで作製したものに比べて, エタノール+ブタノール混合を分散媒としたスラリーでは配向度が上昇した. 特に, 配向磁場 5 T, PVB 濃度 15 wt% のスラリーから得た Er123 厚膜では, 最も高い配向度を示し, $F = 38\%$ であった. これらの結果から, エタノールを分散媒としたスラリーでは, 配向が行われる粘性領域でスラリーの乾燥が急激で, 粘性の時間変化も急激となり, 配向に必要な時間が十分に確保できず配向度が向上しなかったことがわかる. ブタノール+エタノール混合溶液で粘性の時間変化を緩やかにすることで, エタノール系よりも定着するまでの配向時間が延び配向度が向上したものと理解している. 但し, 現状においてもエポキシ樹脂中で実現できる配向度 ($F = 58\%$) に比べて低く, この改善が今後の課題である.

4 回転変調磁場における回転磁場高速化と配向度の関係

第 2 節で述べたように, 回転磁場を含む磁場で磁化困難軸の配向を実現するには, 配向エネルギー条件に加えて, 粘性の制御 (粘性の時間変化も含む) と磁場回転の高速化が重要な役割を果たす. 本節では, 後者の“磁場回転の高速化”に着目する. 筆者のグループが最近開発した試料の回転工程や磁場の回転工程を含むことなく回転変調磁場を高磁場回転速度で直線的に発生できるリニア駆動型回転変調磁場発生装置を用いた配向実験^{8,13)}から, 磁場回転速度と配向度の関係について紹介する.

リニア駆動型回転変調磁場発生装置は, 直線的にシート状の製造物が搬送される連続製造プロセスに対して回転変調磁

Fig. 3 (103) pole figures of Er123 green compacts sheet-casted under the oscillation type of modulated rotating magnetic field with 5 T. Dispersed media are (a) ethanol and (b) ethanol + butanol.

Fig. 4 Relationship between B and F for Er123 green compacts obtained in this study.

場や回転磁場をどのように導入するのか, という課題に応える装置である. 配列した永久磁石 (配列磁石) を直線往復運動させるだけの機構であるが, 配列磁石に静磁場印加効果と回転磁場印加効果をもたらすような機能を組み込むことが必要である. 鉛直方向に磁場回転成分をもつ回転変調磁場を発生させる場合, 基本的な配列磁石の設計指針は大まかには以下の通りである.

1. 同一の磁場強度をもつ鉛直方向成分の磁場領域が, 直線運動方向に存在すると静磁場印加効果が得られる.
2. 直線運動方向に対して, 磁場方向が空間的に変化する磁

Fig. 5 Schematics of cross-section of (a) arranged magnet unit A and (b) arranged magnet unit B.

場領域を設けることで回転磁場効果が得られる。

例えば、上記1および2を有する配列磁石で、上記2の磁場方向が180度変化する磁場領域をもつ場合、この配列磁石を直線往復運動させることで実質的に間欠回転磁場相当の磁場（正確には180度ごとに反転する間欠回転磁場）を発生させることができる。詳細については、すでに2018年10月号の解説記事として原理証明実験も含めて詳細に報告している⁸⁾ので、そちらに譲るとして、当該装置の特長の一つが数百rpm相当の高速の回転磁場（現有設備での値）が印加できることである。我々のグループで用いている超伝導電磁石の水平静磁場中で“試料回転方式”によって発生する間欠回転磁場では、試料回転速度は最高60 rpmであり、この回転速度と比較すると、リニア駆動型回転変調磁場発生装置では、試料を回転させる必要がないだけでなく、一桁速い高回転速度で回転磁場を発生し印加できるようになっている。

上記から、永久磁石の配列の仕方や直線往復運動の速度によって磁場回転速度は変化する（制御できる）ことは容易に想像できる。つまり、同一の駆動装置においては配列磁石の仕様が、発生可能な回転変調磁場条件を決定付けてしまう。また、高速の回転磁場だけでなく高磁束密度化との両立も重要な課題であり、配列磁石が極めて重要な位置を占めているは容易に予測できる。これを踏まえ、本稿では磁場回転速度の高速化に向けた取り組みとして、2種類の配列磁石を紹介する。本稿では、配列磁石AおよびBとよぶ。Figs. 5 (a)および5 (b)に、配列磁石AおよびBの断面模式図を示す。また、これらの仕様について、すでに報告した配列磁石（初期型配列磁石）^{8,13)}と比較したものをTable 1に示す。配列磁石Aについては、初期型と比べて配列磁石下部の水平に磁化した磁石の幅と配列磁石上部の磁石の幅を狭めていることが特徴である。Table 1から明らかのように、この配列の工夫により下部で発生する回転磁場領域の磁束密度を高める効果をもた

Table 1 Characteristics of the two arranged magnet units together with that of the previously reported magnet unit. That of the initial type has been reported in ref. 13.

type	rotations per stroke	B in SF region	B in RF region
initial	2	0.9 T	0.5 T
A	2	0.9 T	0.7 T
B	3	0.9 T	0.7 T

らしている。結果的に、静磁場領域の磁場強度を低下させることなく、回転磁場領域の磁場強度が高くなっている。なお、配列磁石Aを一往復させると、初期型と同様に、2回転分の間欠回転磁場が発生し、最大の磁場回転速度も300 rpm程度である。一方、配列磁石Bについては、配列磁石Aよりもさらに幅を狭め、これにより鉛直方向に同一の方向に磁化された上部と下部の磁石対の数が1対増えて4対となっている。さらに、上部と下部のギャップも狭めた。これらの工夫により、配列磁石Bの静磁場相当領域および回転磁場相当領域の磁場強度は配列磁石Aと同程度に維持されつつ、1往復の運動で3回転分の間欠回転磁場を発生できる。配列磁石Bでの磁場回転速度は最高400 rpm超とさらなる高速化を実現した。

3つの配列磁石（初期型、配列磁石AおよびB）を用いて、エポキシ樹脂中、室温で高温超伝導 $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ [Dy123, $y \sim 7$, 斜方晶構造] 粉末を配向させた。室温でのDy123の磁化率の大小関係は $\chi_c > \chi_a > \chi_b$ である。直線往復運動させるクランク部の回転速度は最高速度の180 rpmとし、Table 1で示した磁場回転速度が得られる配向条件である。ここで、エポキシ樹脂としてハンツマン・ジャパン製アラルダイト（スタンダード）を用い、エポキシ樹脂：Dy123粉末 = 10:1（重量比）で混練したものを試料としてアクリル容器に流し込んだ。また、試料位置（底部）は下部配列磁石の上面からの高さが2 mmとなるように固定した。Figs. 6 (a), 6 (b), 6 (c)に、初期型、配列磁石A、配列磁石Bで配向させたDy123粉末配向体の(103)極点図をそれぞれ示す。なお、測定は c 軸配向面で行った。いずれも明瞭な4回対称性のピークが得られた。これらの結果は、10テスラの超伝導電磁石で試料回転方式の間欠回転磁場で行った双晶構造をもつDy123粉末配向体での結果¹⁴⁾と定性的に一致した。Fig. 6の結果は双晶組織をもつDy123粒子の2軸配向として理解できる。いずれの配列磁石も直線往復運動により回転変調磁場を発生できることを示している。

ここで、配向度 F に着目すると、初期型、配列磁石A、配列磁石Bでの F の値はそれぞれ38%, 50%, 51%であった。初期型と比較して配列磁石Aで作製したDy123配向体の配向度が著しく向上したのは、回転磁場相当領域の磁場強度が高まり回転磁場の配向エネルギーが増加したことによると考えられる。超伝導電磁石で試料回転方式の間欠回転磁場で配向させたDy123粉末配向体（エポキシ樹脂中配向）¹⁴⁾では、1テスラ未満の間欠回転磁場だと配向度が急激に低下する振る

Fig. 6 (103) pole figures for the Dy123 green compacts aligned using (a) the previously reported magnet unit, (b) magnet unit A, and (c) magnet unit B.

舞いが見られた。ところが、0.5 テスラの静磁場でも第一磁化容易軸である c 軸だけ配向させるには十分な磁場である¹⁴⁾ こともわかっている。これら2つの配列磁石の磁場強度レベルでは、回転磁場の磁場強度の大小関係が配向度の支配因子となっている。

次に、配列磁石 A と配列磁石 B の結果を比較してみる。一見すると、 F の値の比較からだけでは著しい配向度の向上は見られない。しかし、Figs. 6 (b) と 6 (c) の4つのスポットに着目すると、スポットの鋭さが異なっていて、配列磁石 B で作製した配向体でシャープなスポットが得られていることが見て取れる。また、スポットの強度についても Fig. 6 (c) の最高強度は Fig. 6 (b) のそれに比べて 1.1 倍高いことがわかった。配列磁石 A と配列磁石 B の間に磁場強度は大きな違いはないことから、回転磁場の高速化が磁化困難軸である b 軸の高配向度実現に影響を与えたものと推測される。このように、配列磁石の仕様により配向度も変化することから、回転磁場配向特有の配向条件を念頭に置きながら対象物質に応じて配列磁石の設計指針を構築していくことが重要である。

5 ま と め

本稿では、3つのトピックについて紹介した。まず、回転磁場による磁化困難軸配向を実現させるための配向エネルギー条件と第一磁化容易軸の非追従条件について簡単に述べ、回転磁場配向特有の問題として粘性（粘性の時間変化）制御および磁場回転速度の高速化の重要性を指摘した。2つ目のトピックとして、高温超伝導セラミックス粉末を含むスラリーを用いた回転変調磁場配向における粘性（粘性の時間変化）制御と配向度の関係について述べた。非水系スラリーの回転変調磁場配向において、粘性の時間変化を制御するために飽和蒸気圧（蒸発速度）の異なる2種類の分散媒（エタノール系、エタノール+ブタノール系）を利用し、初期粘性の制御をバインダー（PVB）の添加量でおこなった。スラリーの粘度の時間変化を緩やかにすることで配向度は向上した。3つ目のトピックとして、磁場回転速度と配向度の関係について、リニア駆動型回転変調磁場発生装置を用いた高温超伝導セラミックス粉末のエポキシ樹脂中配向実験から明らかにした。仕様の異なる3種類の配列磁石ごとに配向度が異なる結果が得られ、永久磁石レベルの磁場強度の範囲では回

転磁場成分の磁場強度と磁場回転速度を高めることが配向度向上の鍵となることがわかった。

対象とする物質により、磁化軸、磁気異方性、材料製造で用いる粒径は異なる。すなわち、適切な回転磁場条件や粘性条件（粘性の時間変化の条件）は扱う材料に大きく依存する。リニア駆動型回転変調磁場発生装置はシート成形時の配向を連続的に実現できる実用性の高い回転磁場発生装置であるが、対象材料を拡大させるには配列磁石の高磁場化や磁場回転の高速化が不可欠である。加速器用アンジュレータやモータ用磁石配列の基本的概念として利用されているのがハルバッハ配列¹⁵⁾であり、磁場配向用の配列磁石の設計指針を考える上で、ハルバッハ配列は磁力線の高密度化の実現に有用であると考えている。この概念に加えて、磁力線の方位制御に関する新たなアイデアを取り入れることで磁場配向用配列磁石の設計指針を構築につながる。

6 謝 辞

本稿における研究成果は、野津乃祐、柏木勇人、木村史子、土井俊哉（京都大学）の各氏との共同研究によるものです。配列磁石の磁力線分布計算については、鈴木泰輔、菅谷豪洋（東和製作所）の両氏の協力によるものです。本研究の一部は、科学技術振興機構・研究成果最適展開支援プログラム（A-STEP）および科学研究費助成事業（17H03235）の助成によって行われました。ここに感謝の意を表します。

文 献

- 1) T. Kimura: Polymer J., **35** (2003) 823-843.
- 2) T. Kimura, F. Kimura, M. Yoshino: Langmuir, **22** (2006) 3464.
- 3) T. Fukushima, S. Horii, H. Ogino, T. Uchikoshi, T. S. Suzuki, Y. Sakka, J. Shimoyama, K. Kishio: Appl. Phys. Express, **1** (2008) 111701.
- 4) S. Horii, M. Yamaki, M. Haruta, J. Shimoyama: IEEJ Trans. Fund. and Mater., **132** (2012) 397-403. (in Japanese)
- 5) M. Yamaki, S. Horii, M. Haruta, J. Shimoyama: Jpn. J. Appl. Phys., **51** (2012) 010107.
- 6) S. Horii, T. Doi: J. Jpn. Soc. Powder Powder Metal., **63** (2016) 947-954. (in Japanese)
- 7) M. Yamaki, M. Furuta, T. Doi, J. Shimoyama, S. Horii:

- Physics Procedia, **58** (2014) 62-65.
- 8) S. Horii: J. Jpn. Soc. Powder Powder Metal., **65** (2018) 634-639. (in Japanese)
 - 9) S. Horii, J. Shimoyama: “High temperature superconductors ~Occurrence, synthesis and applications~” Nova Science Publishers (2018) 153.
 - 10) T. Kimura, F. Kimura, Y. Kimura: J. Mag. Mag. Mater., **451** (2018) 65.
 - 11) M. Yamaki: “Tri-axial crystal orientation of rare-earth-based cuprate superconductors by magnetic alignment techniques,” doctoral thesis, Kochi University of Technology (2014) 147. (in Japanese)
 - 12) Z. Hiroi, M. Takano, Y. Takeda, R. Kanno, Y. Bando: Jpn. J. Appl. Phys., **27** (1988) L580-L582.
 - 13) S. Horii, I. Arimoto, T. Doi: J. Ceram. Soc. Jpn., **126** (2018) 885-887.
 - 14) S. Horii, T. Nishioka, I. Arimoto, S. Fujioka, T. Doi: Supercond. Sci. Technol., **29** (2016) 125007.
 - 15) K. Halbach: Nuclear Instruments and Methods, **169** (1980) 1-10.