

15 T 級強磁場中小型急冷炉の開発

Development of a Compact Quenching Furnace for Use in High Magnetic Fields up to 15 T

小山佳一¹⁾*・山下美咲¹⁾・小林領太¹⁾・三井好古¹⁾・高橋弘紀²⁾・宇田聡²⁾
Keiichi KOYAMA¹⁾*, Misaki YAMASHITA¹⁾, Ryota KOBAYASHI¹⁾, Yoshifuru MITSUI¹⁾,
Kohki TAKAHASHI²⁾, Satoshi UDA²⁾

¹⁾ 鹿児島大学大学院理工学研究科物理・宇宙専攻

¹⁾ Graduate School of Science and Engineering, Kagoshima University, Kagoshima 890-0065

²⁾ 東北大学金属材料研究所

²⁾ Institute for Materials Research, Tohoku University, Sendai 980-8577

* koyama@sci.kagoshima-u.ac.jp

Abstract: A compact quenching furnace used in high magnetic fields was developed for studying magnetic field effect on synthesis. The furnace was performed for the temperature $T \leq 643$ K and magnetic fields $\mu_0 H \leq 15$ T. The cooling rate was about 40 K/s in a magnetic field of 15 T. As a performance test of the furnace, an in-field heat treatment at 643 K and in-field quenching were carried out for a Mn-Bi ferromagnet. The magnetic field effect on the phase equilibrium between MnBi and Mn_{1.08}Bi was examined by X-ray powder diffraction measurements.

Keywords: in-field quenching furnace, high magnetic field, magnetic materials, MnBi

1. はじめに

磁場は結晶配向や拡散係数、相平衡状態などに影響を及ぼす[1-3]。高機能磁性材料の開発には、磁場中熱処理が重要な技術の一つとなる。これまでに磁場を用いて、Nd-Fe-B 磁石の保持力の[4]や DyFe₂ 基合金の磁歪性能の増強[5]などが報告されている。

Mn-Bi 合金の金属組織や磁気特性を磁場で制御することを目指し、Mn-Bi に対する磁場中熱処理が行われてきた。MnBi (LTP 相: 低温相)は Mn-Bi 二元系合金の安定相(平衡相)の一つで、 $T_i = 628$ K (包晶反応温度)以下で強磁性を示す。この T_i において、MnBi は強磁性 LTP 相から Mn_{1.08}Bi (HTP 相: 高温相)+Bi 液相へ分解する。つまり、MnBi はこの分解に起因して強磁性から常磁性への磁気一次相転移を示す [6]。三井らは、強磁場中熱分析によって、Mn-Bi 二元状態図が磁場で変化することをおもに報告した[7]。この磁場変化は主に、Mn_{1.08}Bi (HTP 相: 高温相)+Bi 液相から強磁性 MnBi への T_i が磁場に対し 2 K/T の割合で上昇したことによる[6]。しかし、磁場中の相平衡を調査するには、磁場中熱分析だけでなく磁場中熱処理-急冷法による相の形態評価も重要である。

強磁場中急冷炉は 2009 年に Garcin によって報告された[8]。この装置はフランス・グルノーブルにある国立研究所 CNRS の 120 mm 室温ボアをもつ強磁場超伝導マグネットで使用された。この装置の冷却速度は、1173 K から 300 K までにおいて約 200 K/s と報告された。CNRS のこの装置は比較的大きく特殊であり、材料科学の発展のためには、材料科学者が小規模研究室のマグネットで利用できかつ大型強磁場マグネットでも高い技能なく使える装置の開発が必要である。普及・汎用型の超伝導マグネットの一つに、50 mm の室温空間ボアをもつ無冷媒(冷凍機冷却, ヘリウムフリー)超伝導マグネット(Cryocooled Superconducting Magnet: CSM)がある。

我々は、50 mm 室温空間ボアをもつ普及型 CSM で利用出来る小型の強磁場中急冷炉を開発してきた。本紀要において、我々が鹿児島大学で開発してきた強磁場中小型急冷炉を紹介し、東北大学金属材料

研究所附属強磁場超伝導材料研究センターの強磁場 CSM を利用した装置の性能試験結果を報告する [9-11]。

2. 装置概要

小型急冷装置にするために、装置系は軽量にした。また、金属製の電気炉は強磁場中で移動させると、移動方向と反対向きに電磁力を受ける。そのため、装置の金属部をできるだけ減らし、樹脂などの非金属で製作した。図 1(a)と(b)に装置の概略図と写真を示す。急冷炉は主に、無誘導巻きされた非磁性ニクロムヒーター(Non-magnetic Nichrome-heater)と冷却ジャケット(Water-cooling jacket : Bakelite)からなる電気炉部、容積 158 cm³の急冷用水筒、試料ホルダー (図 1(b)) の3パーツから構成されている。この3パーツはどれも独立し、容易に全て取り外し可能なデザインとなっている。試料の温度は試料ホルダー内の試料位置に導入された R 型 (Pt-PtRh) 熱電対とデータロガーによって計測される。試料は小型直流電源と接続されたヒーターによって加熱される。冷却ジャケットは外型 3mm の銅管を無誘導巻にして製作され、小型チラーによって室温以下の水が冷却ジャケットとチラーとの間を循環する。マグネットの室温空間ボアに挿入される部分の装置外型は 48 mm となっている。試料ホルダー内は真空ポンプと He ガスなどのガスボンベと接続できるようになっており、真空雰囲気中、ガス雰囲気中での熱処理と急冷が可能である。

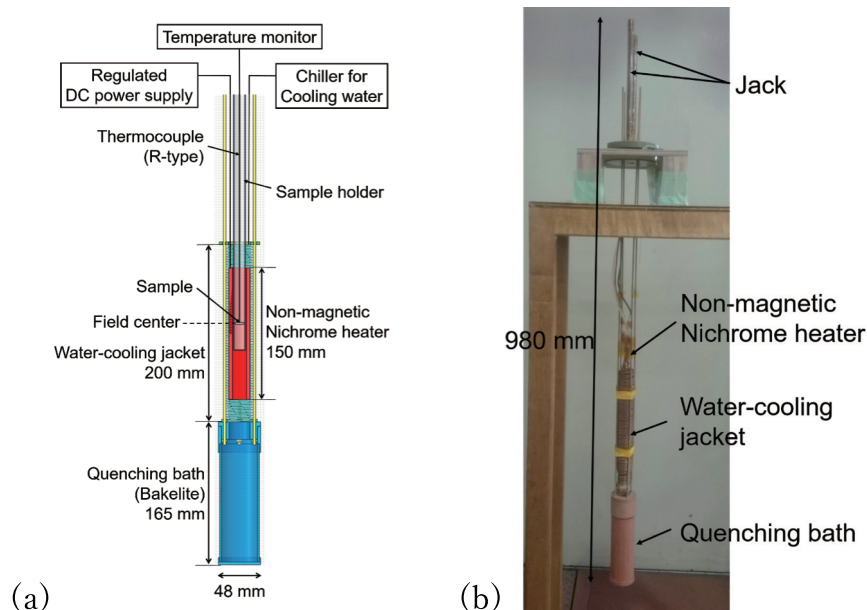


図1 開発した強磁場小型急冷炉の概略図(a)と試料部の詳細図(b)。

図 1 (b)のように、電気炉と水の入った冷却用水筒は、連結されて装置上部の外付のジャッキによって一体化、ジャッキを引き上げることにより、試料ホルダーと独立して移動できる。図 2 のように、ジャッキを引き上げることにより、試料は磁場中心に固定されたまま水筒の水の中に試料ホルダーが浸されることで急冷される。急冷における水の温度上昇はほとんど無い。試料を取り替える際には、電気炉部と水筒はマグネットに設置したままで、試料ホルダーのみの取り外しができるデザインとなっている。ジャッキと電気炉部、水筒を連結させている支持棒の長さは使用するマグネットに合わせて容易に変更できる。また、試料ホルダーの全長も使用するマグネットに合わせて変えることができるので、我々が開発した磁場中急冷炉システムは 50 mm ボアを有するマグネットであれば全て挿入可能

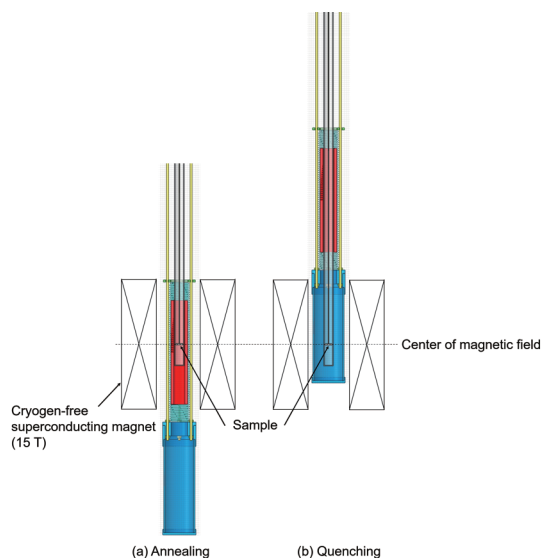


図2 開発した強磁場小型急冷炉の概略図。磁場中熱処理状態(a)と磁場中急冷の状態(b)。

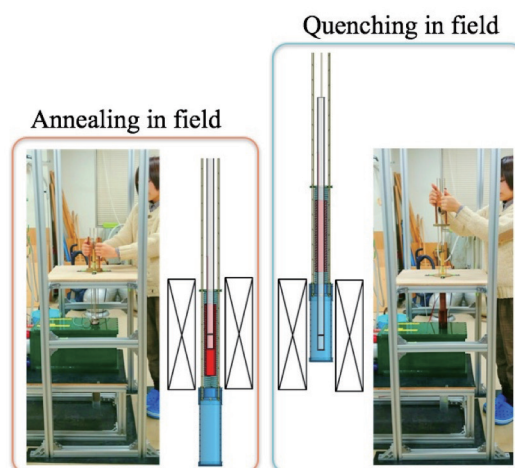


図3 鹿児島大学8 T 無冷媒超伝導マグネット（8T-SCM）に磁場中小型急冷炉（1号機）を取り付けて磁場中熱処理(a)とジャッキを引上げて急冷(b)するときの写真と概略図。

である。

図3に、鹿児島大学理学部物理科学科の8 T 無冷媒超伝導マグネット（8T-SCM）に磁場中小型急冷炉（1号機）を取り付け、磁場中熱処理(a)とジャッキを引上げて急冷(b)するときの写真を示す。女子学生でも8 T 磁場中急冷が容易に実施できる。図4に、本装置を東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターの15T 無冷媒超伝導マグネット（室温空間ボア：50 mm）に開発した強磁場中小型急冷炉（3号機）を取り付けた写真を示す。

3. 装置性能評価

装置の性能評価は急冷速度の測定と試料を用いた急冷試験によって行われた。図5に0 T, 5 T, 10 T, 15 T の磁場、He ガス雰囲気中における熱処理温度 643 K（370℃）から急冷したときの冷却曲線を示す。印加した磁場に関わらず、約 40 K/s の冷却速度を得られた。

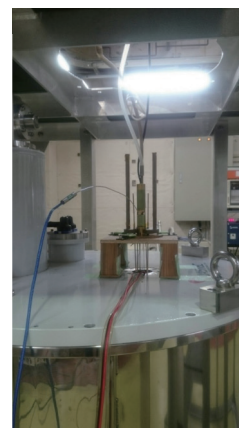
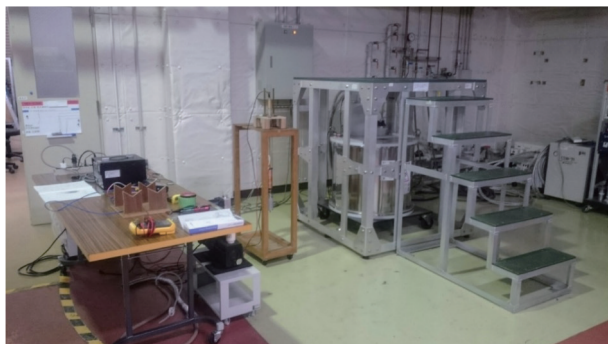


図4 東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センター15 T 無冷媒超伝導マグネット (15T-SCM) に磁場中小型急冷炉 (3 号機) を取り付けて磁場中熱処理しているときの写真。

試料を用いた急冷試験には、低温相(LTP)から高温相(HTP)への包晶反応温度が 2 K/T の割合で増加する MnBi 試料が用いられた [6]。急冷した試料の X 線粉末回折測定結果を図 6 に示す。0 T, 5 T, 10 T 中で急冷(Quenching)した試料は、Bi の回折ピークと HTP のピーク (図中黒丸) が確認されるが、15 T の磁場を印加した試料では Bi の回折ピークと LTP のピークのみが観測された。これらは、Mitsui 等が報告した MnBi の磁場中平衡状態図と矛盾しない[3]。これにより、磁場による包晶反応温度の上昇を磁場中急冷法によっても確認できた。

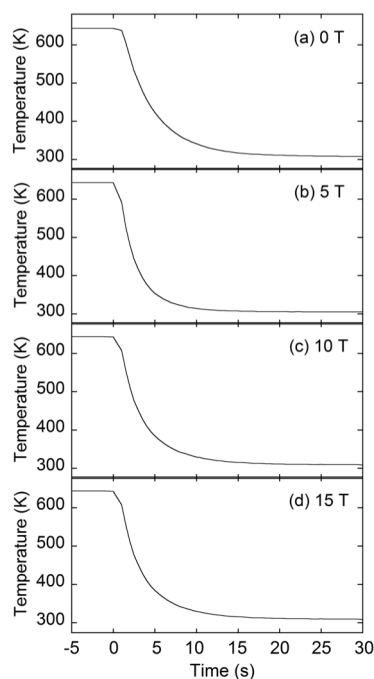


図5 0 T, 5 T, 10 T, 15 T の磁場中で He ガス雰囲気中熱処理温度 643 K(370°C) から急冷したときの冷却曲線。

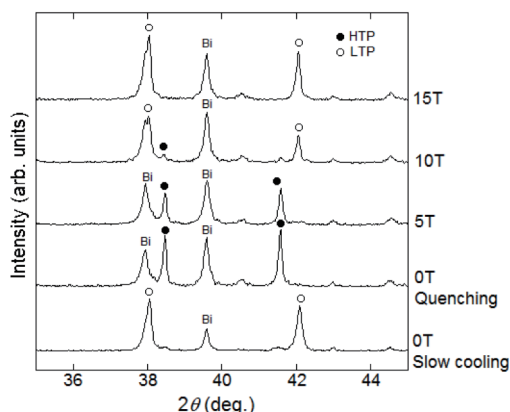


図6 0 T, 5 T, 10 T, 15 T の磁場中で He ガス雰囲気中熱処理温度 643 K(370°C) から急冷した MnBi の X 線粉末回折パターン。

4. まとめ

得られた結果は、強磁場中急冷炉が材料合成に対する磁場効果と強磁場中相平衡を評価するための有用な装置であることを示した。強磁場中急冷法を用いた物質合成は、材料の磁場効果の理解および新しい磁性材料の開発に有用であることが期待される。本研究で開発された強磁場中小型急冷炉の4号機は現在、東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターの20T-CSMで最大19 T強磁場中の実験を進めている。

謝辞

本研究の一部は東北大学金属材料研究所における共同研究(16K0066, 17K005316)により実施されました。本研究の強磁場実験は東北大学金属材料研究所附属強磁場超伝導材料研究センターで行いました。本研究の一部は公益法人カシオ科学振興財団および科研費基盤研究(B) 16H04547, 科研費若手研究(B) 26820281 の助成を受けて行いました。

参考文献

- [1] H. Yasuda, I Ohnaka, Y. Yamamoto, A. Sukarto, N. Takezawa, K. Kishio, Mater. Trans. 44 (2003) 2550-2554.
- [2] H. Fujii, S. Tsurekawa, Phys. Rev. 83 (2011) 054412.
- [3] Y. Mitsui, K. Koyama, K. Watanabe, Mater. Trans. 54 (2013) 242-245.
- [4] H. Kato, T. Miyazaki, M. Sagawa, K. Koyama, Appl. Phys. Lett. 84 (2004) 4230-4232.
- [5] Q. Wang, Y. Liu, T. Liu, P. Gao, K. Wang, J. He, Appl. Phys. Lett. 101 (2012) 132406.
- [6] K. Koyama, Y. Mitsui, E.S. Choi, Y. Ikehara, E.C. Plam, K. Watanabe, J. Alloys and Compound. 509 (2011) L78-L80.
- [7] Y. Mitsui, K. Koyama, K. Watanabe, Mater. Trans. 54 (2013) 242-245.
- [8] T. Garcin T, "Thermodynamic and kinetic effects of static magnetic field on phase transformations in low-alloy steels," Ph.D. dissertation, Joseph Fourier Univ., Grenoble, France (2009). [Online]. Available: <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00519996/document>.
- [9] M. Yamashita, K. Abematsu, K. Takahashi, Y. Mitsui, K. Koyama, IEEE Magn. Lett. 8 (2017) 6501504.
- [10] 山下美咲, 「強磁場中急冷炉の開発」修士論文 鹿児島大学 (2017) .
- [11] 小山 佳一, 山下美咲, 小林領太, 三井好古, 高橋弘紀, 宇田聡, 「磁場誘起合成促進効果の解明」、平成 28 年度東北大学金属座利用研究所研究部共同研究報告, (2017) 139-140.