学術論文

磁性流体中の内部構造変化による超音波伝播特性への影響

Influence of Inner Structure in a Magnetic Fluid on Ultrasonic Propagation

本澤 政明*1(正員), 詫間 弘規*2, モハマド ファイズ*2, 澤田 達男*2(正員)

Masaaki MOTOZAWA (Mem.), Hiroki TAKUMA, Mohd FAIZ, Tatsuo SAWADA (Mem.)

Experimental results for the properties of ultrasonic propagation velocity and attenuation in a kerosene-based magnetic fluid (EXP04019) are reported. The ultrasonic frequency used is 2 MHz and the measurement scheme is based on the pulse method. The external magnetic field intensity is varied from 0 mT to 550 mT and the angle between the magnetic field direction and the direction of ultrasonic wave propagation is adjusted from 0° to 90°. We observed various characteristic properties of ultrasonic propagation. The ultrasonic propagation velocity and attenuation change with the elapsed time of external magnetic field application and with magnetic field intensity. When the magnetic field is applied to magnetic fluid, some of the magnetic particles in the magnetic fluid form clustering structures. These structures cause the properties of ultrasonic propagation. We discussed influence of inner structure in magnetic fluid on ultrasonic propagation.

Keywords: Magnetic fluid, ultrasound, ultrasonic propagation velocity, attenuation, chain-like cluster.

1 緒 言

磁性流体とは、水やケロシンといった溶媒に直径約 10 nm 程度のマグネタイト,鉄、ニッケル等の強磁性 体微粒子をオレイン酸などの界面活性剤を添加して安 定分散させたもので, 固体の状態で持つ強磁性の性質 と流体としての流動する性質を併せ持つように強磁性 体微粒子を液体中に分散させ、見かけ上、流体が磁性 を帯びているように人工的に作られた一種の固液混相 流体(コロイド溶液)である[1]。磁性流体の大きな特徴 は、磁場印加によって、磁気体積力を受け、流体が磁 性を帯びたように振る舞い、流動特性が大きく変化す るところにある[2]。この特徴を生かして、クラッチや ダンパー,比重選別装置などへの応用機器開発研究が 進められている。とりわけ、スピーカーのボイスコイ ル保持や真空シールにおいては広く実用されている。 近年では、医療分野への応用研究も盛んに行われてき ており、MRI 検査の感度向上、磁場による薬品移送技 術(Drug Delivery), 交流磁場の印加により内部磁性粒子 が発熱する性質を生かした腫瘍に対する局所的な温熱 療法(Magnetic Fluid Hyperthermia, MFH)への応用など の研究がなされている。

連絡先: 澤田 達男, 〒223-8522 横浜市港北区日吉 3-14-1, 慶應義塾大学理工学部機械工学科, e-mail: sawada@mech.keio.ac.jp ^{*1}東京理科大学, ^{*2}慶應義塾大学 磁性流体に磁場を印加すると内部強磁性粒子が凝 集し,磁場方向に鎖状クラスターを形成することが知 られている。この内部構造変化は磁性流体の物性に大 きく影響を及ぼす。このため,磁性流体の応用利用に おいて,磁場印加時の内部構造解析は非常に重要であ る。しかしながら,磁性流体が黒色不透明であること から,内部構造解析は困難なのが現状である。

磁性流体中の内部構造解析には、これまで顕微鏡に よる可視化手法[3]が実験的解析に多く用いられてい る。しかしながら、実験試料を薄膜状にすることが必 要となり、流体自体の内部に生じている構造変化とは 異なることも懸念されており,解析をより困難なもの にしている。そこで、本研究では、磁性流体中の内部 構造変化に伴い、超音波の伝播が影響を受ける[4]こと を応用して,超音波を用いた内部構造解析を提案する。 超音波による手法は、不透明な流体へ非接触での解析 が可能であるため,磁性流体の内部構造解析の手法と して有効な手法の1つであると考えられる。以上のよ うな背景から、磁場印加による磁性流体の内部構造に 伴う超音波伝播特性への影響を精査することは、UVP による流動計測の磁性流体への適用や超音波による内 部構造変化の非接触解析への応用に向けて、非常に重 要である。この目的のもと、本研究では、磁性流体中 の超音波伝播特性として、音速、減衰率について詳細 に計測し、磁場印加による内部構造変化がもたらす超 音波伝播への影響を検討したので、ここに報告する。



 ①Personal Computer
 ②Digital Oscilloscop

 ③GPIB cable
 ④Pulse Generator

 ⑤Temperature Control Unit
 ⑥Thermistor

 ⑦Electromagnet
 ⑧Power Supply

 ⑨Test Cell
 ⑩Ceramic Oscillator

Fig. 1 Experimental apparatus.

2 実 験

2.1 実験装置

図1に実験装置の概略を,図2に測定部であるテス トセルの詳細を示す。本測定はパルス法に基づいて構 築されている。超音波発生装置④より、内部でバース ト波とトリガを同時に発振する。トリガ信号は、デジ タルオシロスコープ②へそのまま取り込まれ、バース ト波は、テストセル⑨内のセラミック振動子⑩に伝達 される。その結果、振動子より超音波が発生し、テス トセル内の試験流体中を伝播し、他方の振動子に受信 される。受信信号はそのままオシロスコープに取り込 まれ、超音波の受信波形を形成する。トリガ信号と受 信波を同期させることで、磁性流体中の超音波伝播時 間Tを求めることが出来る。また、テストセル作成時 に試験流体中の超音波伝播距離 L を求めているので, 試験流体中の音速 Vは, V=L/Tで求まる。デジタルオ シロスコープで形成されている受信波形は GPIB③を 介して、コンピュータ①に取り込むことが出来る。こ の受信波形を基に超音波の減衰率を計算することが出 来る。超音波は周波数2MHzのものを用いた。

テストセルは図2に示されるように二重構造になっ ており,内部矩形容器には磁性流体を,外部容器には, 温度調整装置⑤から供給される恒温水を循環させ,

Table I	Properties of Magnetic Fluid.	
Test fluid	EXP04019	Kerosene
Particle material	Fe ₃ O ₄	
Carrier liquid	Kerosene	
Magnetization	15.7 kA/m	
Density	1062 kg/m^3	782 kg/m^3
Viscosity	1.37 mPa·s	1.06 mPa⋅s



Fig. 2 Structure of test cell.

内部容器内の磁性流体の温度を制御している。磁性流体の温度はサーミスター⑥で測定され,±0.1 ℃以内で管理することが可能である。また,テストセルはステージと共に回転させることが可能で,超音波伝播方向と磁場印加方向のなす角 Øを 0°~90°まで変えることが出来る。超音波の伝播距離は図 2 に示される通り 32 mm として設計しているが,精密な工作は不可能なため,検定実験によって精密な伝播距離を求めている。 電磁石⑦によって,磁性流体に 550 mT までの磁場印加が可能である。

磁性流体は,Ferrotec 社製のケロシンベース磁性流体 EXP04019 を用いた。なお、この磁性流体の物性値 を母液のケロシンの物性値と共に表1に示した。以下,本論で単に磁性流体と記したときは、全てこの磁性流体を指すものとする。

2.2 評価方法

本研究では, 無磁場下と印加磁場下における流体中 を伝播する超音波の物理量変化を比較することで, 音 速変化率, 減衰率変化を定義して, 評価した。

·音速変化率

伝播距離 L の磁性流体中を伝播する超音波の無磁場下での伝播速度, 伝播時間をそれぞれ V₀, T₀, 印加磁場下での伝播速度, 伝播時間をそれぞれ V₁, T₁として, 音速変化率ΔV/V₀を次のように定義した。

$$\frac{\Delta V}{V_0} = \frac{V_1 - V_0}{V_0} = \frac{L/T_1 - L/T_0}{L/T_0} = \frac{T_0 - T_1}{T_1}$$
(1)

・減衰率変化

本実験装置では、厳密な意味での流体中の吸収係数 の測定は非常に難しい。そこで、本研究では受信波形 の振幅(受信音圧)を無磁場下と印加磁場下において比 較することで、無磁場下から磁場印加時の受信音圧の 変化を磁性流体中の超音波の減衰率変化Δαとして評 価を行った。送信音圧を Pとし、無磁場下の磁性流体 の受信音圧を P₀、磁場印加時の受信音圧を P₁とした 時、無磁場から磁場を印加した時の超音波の減衰率変 化Δα は次のように定義される。なお、単位は(dB/m) である。

$$\Delta \alpha = -\frac{20}{L} \log_{10} \left(\frac{P_1}{P} \right) - \left\{ -\frac{20}{L} \log_{10} \left(\frac{P_0}{P} \right) \right\}$$

$$= \frac{20}{L} \log_{10} \left(\frac{P_0}{P_1} \right)$$
(2)

3 実験結果および考察

3.1 磁性流体中の音速の測定

無磁場下における磁性流体中の伝播速度を測定した。液温は20 ℃から30 ℃まで変化させた。

結果を図3に示す。図中のプロットは、それぞれ磁 性流体、溶媒であるケロシン、純水中の音速である。 また、比較として水ベース磁性流体 W-40(タイホー工 業社製)の音速測定結果を併せて載せた。一方、実線は、 純水中の音速データとして広く信頼されている Grosso-Mader[5]の純水中の音速値である。これと本測 定結果とを比較すると、両者はよく一致しており、本 装置の信頼性が確認される。

まず,内部に粒子が分散していない純水とケロシン 中の伝播速度について考える。純水中の音速は,温度 増加と共に上昇しており,一方で,ケロシン中の音速 は温度増加と共に減少している。一般に純水以外の純 溶媒に関しては,ケロシンのように温度上昇と共に音 速が減少することが実験的に得られており,液体中の



Fig. 3 Ultrasonic propagation velocity in magnetic fluid.

超音波伝播理論から説明されている。特に,純水中の 音速の特異な変化は,水の分子構造が深く関係してい ると考えられている。液体状態の水は,2 個以上の水 分子が水素結合などの相互作用によって集合した会合 体と水素結合をしていない水分子の平衡状態である会 合構造を形成していることが知られている。純水の音 速を考えると,実験の温度域においては,この会合構 造が保存されており,温度上昇によって,この会合構 造が壊れていくことで,純水の圧縮率が減少する。一 般的に,媒体中を伝播する超音波の音速aは,体積弾 性率K,断熱圧縮率 χ ,密度 ρ を用いて次式で表される。

$$a = \sqrt{\frac{K}{\rho}} = \sqrt{\frac{1}{\rho\chi_s}}$$
(3)

よって, 圧縮率の減少に伴い, 音速は増加する。温度 が 74 ℃程度でこの会合構造は崩壊し, 通常の液体と 同様に音速は減少に転じると言われている。

ここで、純水に強磁性微粒子を分散させた水ベース 磁性流体 W-40 を考えると、W-40 においては、温度の 増加と共に音速が減少している。先に記した純水中の 音速理論と併せて考慮すると、強磁性微粒子を分散さ せたことで、水中の会合構造が崩壊したものと考える ことができる。

一方,磁性流体中の音速変化を考えると,その要因 には,温度上昇による溶媒ケロシンの音速減少の影響 と,内部強磁性微粒子のブラウン運動の活発化による 影響の二つが考えられる。図3に示される通り,ケロ シン中の音速と磁性流体中の音速の減少率が,ほぼ同 等であったことを考えると,後者の強磁性体微粒子の ブラウン運動の影響はごく小さいものであると考えら



日本AEM学会誌 Vol.17, No.1 (2009)

Fig. 4 Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in magnetic fluid.

れる。ここで、式(3)を用いて、音速測定結果から体積 弾性率を求めると、ケロシンにおいては約1.28 GPa で あり、磁性流体においては、約1.23 GPa となる。よっ て、溶媒への強磁性微粒子の添加によっても体積弾性 率は溶媒からあまり変化が無く、密度が大きくなった ために、これに応じて磁性流体中の音速が溶媒中より も小さくなったと考えることが出来る。

3.2 超音波伝播の経時変化特性

磁性流体中の超音波伝播の磁場印加後からの経時変 化特性に関して,音速変化率については図4に,減衰 率変化については図5に示す。印加磁場強さは100mT と500mT,なす角 ϕ は ϕ =0°と ϕ =90°である。磁場 印加1時間経過後,磁場を除去してそのまま10分間同 様に測定を行った。なお、以後,流体の実験実施温度 は25 °Cで一定とした。

3.2.1 音速変化率について

 ϕ = 0°において、磁性流体に磁場を印加すると、音速は磁場印加後、経過時間と共に増加する。磁場印加 によって、磁性流体では、強磁性微粒子のブラウン運動が拘束され、その後、磁場方向に鎖状クラスターが 形成される。 ϕ = 0°においては、超音波はクラスター 形成方向に伝播する。このため、強磁性微粒子が磁場 方向に配列した部分を超音波が伝播しており、固体中 の音速は液体中の音速よりはるかに大きいため、クラ スターの成長とともに音速が増加したものと考えら れる。クラスターは伝播速度変化がほぼ定常になるま で、成長を続けているものと考えられ、供試磁性流体 では 5 分程度かけて鎖状クラスターが成長している



Fig. 5 Elapsed time dependence of ultrasonic attenuation in magnetic fluid.

と考えられる。さらに, 強磁場の方が音速変化が大き いことから, 内部粒子はより強く凝集し, 鎖状クラス ターも大きく成長しているものと考えられる。

一方, *φ*=90°においては, 100 mT においては, *φ*=0° とほぼ同様の変化を示しているが, 500 mT においては, 音速変化が減少している。これは, 超音波がクラスタ ーを伝播する方向が大きく影響していると考えられる。 この影響については次節で検討する。

その後,磁場を除去した時の測定においては,わず か10分の測定では,音速の変化を捉えることができな かった。磁場除去による内部構造の崩壊過程の検討を 行うためには,より長時間に渡る測定が必要と考えら れ,この測定結果に関しても後述することとする。

3.2.2 減衰率変化について

減衰率変化については、全ての測定条件において、 磁場印加直後に急激に増加している。音速変化では、 磁場印加後5分程度で定常になり、この時間で鎖状ク ラスターが形成されると判断した。これを減衰率変化 に当てはめると、減衰率の急激な変化は、磁場印加後 約5分程度であり、鎖状クラスターが形成されると音 速変化同様に減衰率も定常になる。この急激な減衰率 の変化は、磁場印加によって、内部微粒子がクラスタ ーに向かって凝集し、運動が活発化したためであると 考えられる。そして、鎖状クラスターが形成すると内 部微粒子の運動が収まることで減衰率にも影響を与え なくなったものと考えられる。減衰率変化に関しても、 より強磁場下のほうが、大きな変化を示しており、ク ラスターが大きく成長することで、超音波の伝播によ り強い影響を与えているものと考えることができる。





Fig. 6 Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in magnetic fluid.

3.3 超音波伝播の異方性

各印加磁場において, クラスターを成長させ, φ を 0°から90°まで変化させた時の音速変化率, 減衰率 変化を測定した。結果をそれぞれ図6, 図7に示す。

3.3.1 音速変化率について

図6に示される通り、100 mT では、超音波の伝播 に大きな変化はないが、500 mT 印加時には明確な異 方性がある。強磁場下の方がクラスターは大きく成長 しており、その影響が大きくなり、明確な異方性が現 れたと考えられる。さらに、500 mT 印加時には、 $\phi=$ 0°の時に音速が最大で、 $\phi=90°$ の時に音速が最小で あることは、磁性流体に形成されるクラスターが、磁 場方向に鎖状に形成していることを明確に示しており、 $\phi=90°$ においては、クラスターに垂直に超音波が伝播 するため、超音波の伝播が阻害され、音速が減少に転 じたものと考えられる。これらの結果は、図4の経時 変化においも同様の結果が得られている。

そこで,式(3)によって記される弾性率を考えると, 無磁場下の磁性流体においては,弾性率は,もちろん 等方であるが,内部にクラスターが形成されると,弾 性率に異方性が生じ,クラスター方向の弾性率は垂直 方向の弾性率よりもわずかに大きいと考えられる。

3.3.2 減衰率変化について

図7の減衰率変化も音速変化とほぼ同様のことが示 されている。強磁場下の方がクラスターの成長に伴う, より大きな異方性を示している。また, *φ*が大きい方 が, クラスターによる影響が大きく, 超音波伝播の障 壁としての役割を果たし,減衰率変化も増大する。



Fig. 7 Anisotropy of ultrasonic attenuation in magnetic fluid.

以上から、磁性流体中の超音波伝播を考えると、超 音波がクラスター方向に伝播する時は、その影響は小 さく、この方向が垂直に近付くにつれ、その影響が強 まると考えられる。このメカニズムを考えると、粒子 の濃度分散や磁場印加時の流体中の体積弾性率の違 い等が絡み合い理論的な考察は非常に困難である。ま た、過去にも理論的な検討がなされている[6]が、研 究者ごとにその見解も異なる。

3.4 磁場除去後の内部構造変化

図4において、磁場除去後の音速に経時変化がほと んど見られなかった。このため、磁場除去後の内部粒 子の状態を検討するため、より長時間の計測を行った。 $\phi = 0^{\circ}$ において、100 mT、500 mT の磁場を 60 分間印 加した後、磁場を除去して 720 分間測定を続けた。結 果を図 8 に示す。図 8 において、磁場除去の時刻を 0 としている。すなわち、この時刻は、図4 における 60 分後(磁場除去時)の時刻である。

図4において,磁場除去直後,500 mT, φ=90°の時, 音速がφ=0°の時と近い値まで立ち上がる。同時計測 ではないため,磁場除去前後のφ=90°と0°の音速の大 小の議論はできないが,磁場印加時に現れていた異方 性が無くなっており,鎖状クラスターは崩壊したもの と考えられる。音速が無磁場下より増加した状態が保 たれており,測定後,磁性流体を攪拌すると音速変化 率がほぼ0に戻ったことを踏まえると,磁場除去によ って,内部強磁性微粒子の凝集体が,鎖状クラスター の形成領域に分布している状態であると考えられる。 磁場除去後の内部状態の概念図を図9に示す。図中の ●が内部粒子の凝集体(一次クラスター)を表す。











次に、図8において、500 mT 印加後は、磁場を除去 してもほとんど音速が変化していないことが分かる。 これは、先に記した、内部粒子の凝集体が自然には分 散せず、保持されているものと考えられる。一方で、 100 mT 印加時においては、磁場除去後、わずかずつ音 速が減少しており、印加磁場が弱かったため、内部粒 子の凝集は強磁場と比較して弱く、少しずつ分散に転 じたものと考えられる。本結果のみから鎖状クラスタ 一形成時と凝集体分散時の音速の大小の比較はできな いものの、このように、内部粒子の分散が進まないと 推測できる結果は、可視化による実験では得ることが 出来ない認識である。

以上から、今後より詳細な計測を続けることで、ブ ラウン運動による粒子の拡散や粒子沈殿の Stokes の法 則などを考慮することで磁場印加による一次クラスタ ー(内部粒子の凝集体)のサイズの検討も期待できる。

4 結 言

本研究では、印加磁場下におけるケロシンベース磁 性流体中の超音波伝播特性として音速変化、減衰率変 化を精密に測定した。この測定を元にして、内部構造 変化がもたらす超音波伝播への影響を検討した。

磁性流体中の音速は、磁場印加によって増加した。

また,この音速変化は,流体中に形成されるクラスタ ーの成長が密接に関係していると考えられる。音速変 化はクラスター形成による流体の物性変化を示し,異 方性の存在により,クラスターが鎖状に形成されるこ とを示している。

磁性流体中の減衰率変化においても、内部粒子の挙 動を推測しうる特徴的な結果が得られた。磁場印加直 後に減衰率は大幅に増加しており、内部強磁性微粒子 が凝集し、鎖状クラスターの形成に向けて活発に運動 しているものと考えられる。鎖状クラスターが形成さ れるとその運動は収まり、減衰率変化も小さくなる。 また、鎖状クラスターに垂直に超音波が伝播する時 (Ø=90°)は、クラスターが障壁として働き、超音波の 減衰への影響は非常に大きい。音速変化と減衰率から、 鎖状クラスターの成長時間、成長過程が検討できた。

磁場除去後の測定では,可視化では得られていない 知見を得た。磁場印加後,磁場を除去するとクラスタ 一自体は崩壊すると考えられる。しかしながら,内部 強磁微粒子の凝集体はほとんど自然分散することなく, クラスターの形成領域に漂っていると考えられる。こ の結果は,磁場が強いほど顕著に現れている。これを さらに精査することで,今後,磁性流体中の内部粒子 の運動の解明への可能性も検討できる。

以上のように、磁性流体中の超音波伝播には、磁場 印加による内部構造変化が密接に関係している。この メカニズムは理論的にも非常に複雑であり、その解明 にはさらなる詳細な実験と理論的な検討が必要である。

謝辞

本研究の一部に対し、科学研究費補助金(特別研究員 奨励費)による補助を受けたことを記し、謝意を表す。 (2008 年 5 月 21 日受付, 2008 年 8 月 22 日再受付)

参考文献

- [1] 神山, 磁性流体入門, 産業図書, pp.2-3, 1989.
- [2] R. E. Rosensweig, Ferrohydrodynamics, Cambridge University Press, Chap. 2, 1985.
- [3] B. Jeyadevan and I. Nakatani, J. Magn. Magn. Mater., Vol. 201, pp. 62-65, 1999.
- [4] M. Motozawa, Y. Matsumoto, and T. Sawada, *JSME Int. J., Ser. B*, Vol. 48, pp. 471-477, 2005.
- [5] V. A. Del Grosso and C. W. Mader, J. Acoust. Soc. Am., Vol. 52, pp. 1442 -1446, 1972.
- [6] S. Taketomi, J. Phys. Soc. Jpn., Vol. 55, No. 3, pp. 838-844, 1986.