

磁気機能性流体中の超音波伝播特性  
に関する基礎研究

2007年2月

本澤政明

# 目次

<b>第1章 序論</b>	<b>6</b>
1.1 機能性流体工学	6
1.2 磁性流体	7
1.2.1 磁性流体の物性	8
1.2.2 磁性流体の応用	9
1.3 MR 流体	11
1.3.1 MR 流体の応用	11
1.4 超音波	11
1.4.1 超音波の応用	12
1.5 UVP(Ultrasonic Velocity Profiler)	14
1.6 本研究の目的	14
1.7 本論文の構成	16
<b>第2章 超音波伝播物性-基礎理論</b>	<b>22</b>
2.1 緒言	22
2.2 超音波伝播理論 [33, 43]	22
2.3 液体中の超音波伝播音速 [44]	24
2.3.1 一般的事項	24
2.3.2 液体中の音速理論	25
2.4 液体中の超音波の吸収機構 [49]	27
2.4.1 一般的事項	27
2.4.2 古典吸収	27
2.5 超音波の分散性	28
2.6 結言	29
<b>第3章 超音波伝播特性計測システム</b>	<b>30</b>
3.1 緒言	30
3.2 計測システム概略	30

3.3	テストセル	31
3.4	測定原理	31
3.5	受信波形のパソコンへの取り込み	32
3.6	本計測システムに必要な検定	36
3.6.1	試験流体中の超音波伝播時間の計測	36
3.6.2	試験流体中の超音波伝播距離の計測	39
3.6.3	試験流体中の伝播速度の計算	39
3.6.4	電磁石の磁場分布測定, 励磁特性	41
3.6.5	サーミスターの検定	43
<b>第4章</b>	<b>磁性流体中の超音波伝播特性と内部構造解析-伝播速度によるアプローチ</b>	<b>44</b>
4.1	緒言	44
4.2	磁性流体中の超音波伝播特性における過去の研究	44
4.2.1	コロイド溶液, 懸濁液中の超音波伝播特性	44
4.2.2	磁性流体中の超音波伝播特性の研究	45
4.3	磁場印加時の磁性流体の挙動(クラスターの形成)	48
4.3.1	内部粒子の構造	48
4.3.2	鎖状クラスターの形成	48
4.4	磁性流体内部構造解析の研究	50
4.5	磁性流体中の超音波伝播速度理論	51
4.5.1	Parsons の理論	52
4.5.2	Sokolov の理論	53
4.6	磁性流体中の超音波伝播特性の実験	54
4.6.1	磁性流体の物性	54
4.6.2	実験パラメータ	55
4.6.3	実験内容	55
4.7	磁性流体中の伝播速度の測定	60
4.8	磁場印加後の伝播速度の経時変化特性	60
4.9	伝播速度の磁場依存性	60
4.10	伝播速度変化の異方性	61
4.10.1	測定方法	61
4.10.2	測定結果	62
4.11	内部粒子濃度の変化に伴う伝播特性	62
4.11.1	各濃度の磁性流体中の伝播速度	62

4.11.2	各濃度の磁性流体中の伝播速度の経時変化	62
4.11.3	各濃度の磁性流体中の伝播速度の異方性	63
4.12	磁場印加方法 (sweep rate) による伝播特性	63
4.13	磁性流体中の伝播速度に関する検討	88
4.14	磁場印加後の伝播速度の経時変化特性の検討	89
4.15	伝播速度の磁場依存性の検討	90
4.15.1	一般的な伝播速度変化の傾向	90
4.15.2	特異な伝播速度変化の傾向	91
4.15.3	磁性流体の種類による比較	91
4.15.4	他の研究者との比較	92
4.16	伝播速度の異方性の検討	92
4.16.1	一般的検討	92
4.16.2	磁性流体の種類による比較	94
4.16.3	他の研究者との比較	94
4.17	内部粒子濃度の変化に伴う伝播特性の検討	95
4.17.1	伝播速度	96
4.17.2	磁場印加後の経時変化特性	96
4.17.3	異方性の検討	96
4.18	Sweep rate による伝播速度変化特性	98
4.19	結 言	98
<b>第 5 章</b>	<b>磁性流体中の超音波伝播特性と内部構造解析-超音波の減衰によるアプローチ</b>	<b>99</b>
5.1	緒 言	99
5.2	磁性流体中の超音波吸収理論	99
5.2.1	Parsons の理論	99
5.2.2	Taketomi の理論	99
5.3	減衰率の計測	100
5.3.1	減衰率の計測方法	100
5.4	減衰率変化の実験	102
5.5	磁場印加後の減衰率の経時変化特性	102
5.6	減衰率の磁場依存性	102
5.7	減衰率の異方性	103
5.8	減衰率の経時変化特性の検討	109
5.9	減衰率の磁場依存性の検討	110

5.9.1	一般的傾向	110
5.9.2	Skumiel の計測との比較	111
5.10	減衰率の異方性の検討	112
5.10.1	一般的傾向	112
5.10.2	他の研究者との比較	112
5.11	磁性流体による比較	113
5.12	結 言	114
<b>第 6 章</b>	<b>MR 流体中の超音波伝播物性と内部構造解析-磁性流体との比較</b>	<b>115</b>
6.1	緒 言	115
6.2	MR 流体中における過去の研究	115
6.3	MR 流体中の超音波伝播特性測定方法	116
6.3.1	MR 流体中の超音波受信波形	116
6.3.2	測定方法	117
6.3.3	誤差の検討	118
6.3.4	繰り返し性による検討	119
6.4	MR 流体の物性	119
6.5	MR 流体中の伝播速度変化の実験	120
6.6	磁場印加後の伝播速度の経時変化特性	121
6.7	伝播速度の磁場依存性	121
6.8	伝播速度の異方性	121
6.9	磁場印加方法 (sweep rate) による伝播速度変化特性	122
6.10	磁場印加後の伝播速度の経時変化特性の検討	127
6.11	伝播速度の磁場印加依存性の検討	127
6.12	伝播速度の異方性の検討	128
6.13	Sweep rate による伝播速度変化特性の検討	128
6.14	結 言	129
<b>第 7 章</b>	<b>磁性流体管内振動流への UVP の適用, MR 流体チャンネル流の流動構造解析</b>	<b>130</b>
7.1	緒 言	130
7.2	磁性流体管内振動流の UVP による速度分布計測	130
7.2.1	概要	130
7.2.2	磁性流体管内振動流, UVP 計測における過去の研究	131
7.2.3	UVP の原理	132
7.2.4	管内振動流実験装置	135

7.2.5	試験磁性流体	135
7.2.6	磁性流体中の超音波伝播速度と伝播特性	136
7.2.7	UVPによる磁性流体の流動計測の検討	137
7.2.8	分解能に与える影響	138
7.2.9	UVPによる磁性流体振動流の流動計測	140
7.2.10	まとめ	141
7.3	MR流体チャンネル流の超音波による流動構造解析	143
7.3.1	概要	143
7.3.2	MR流体チャンネル流における過去の研究	143
7.3.3	MR流体チャンネル流内部構造解析実験装置	143
7.3.4	MR流体チャンネル流内部構造解析実験方法	144
7.3.5	MR流体チャンネル流内部構造解析実験結果と検討	145
7.3.6	まとめ	146
7.4	結言	146
<b>第8章</b>	<b>総括</b>	<b>149</b>
	謝辞	154
	参考文献	156
	主論文に関する論文目録	165
<b>付録A</b>	<b>磁性流体の可視化実験</b>	<b>168</b>
A.1	電子顕微鏡による内部粒子の可視化	168
A.2	磁性流体中の鎖状クラスターの可視化	168
A.2.1	可視化方法	168
A.2.2	可視化結果と検討	170
A.3	今後の課題	173
<b>付録B</b>	<b>磁性流体中の超音波伝播理論の詳細</b>	<b>174</b>
B.1	Parsonsの理論	174
B.2	Taketomiの理論	176
<b>付録C</b>	<b>Newton流体管内振動流の理論解析</b>	<b>182</b>

# 第1章 序論

## 1.1 機能性流体力学

流体力学の発展の歴史は、技術開発の発展の歴史であるということが出来るであろう。いくつか例をあげるならば、古くは、古典流体力学と水車、ポンプといった水力機械の発展との関係性、乱流、境界層など近代流体力学から超音速流など高速流体力学への発展は、飛行機におけるプロペラ機からジェット機への発展とも関連が深く、近年では、宇宙工学や原子力開発の発展に関連して、電磁流体力学などの発展が見られている。機能性流体力学の学問分野の形成も近年のナノテクノロジー、マイクロマシン技術の発展に関連しており、この流体力学発展の歴史の延長線上にあるということが出来る [1]。

近年の目覚ましい技術発達により、超微粒子の製造 [2] と共に、液体中に特有の機能を有する超微粒子を分散させることで、液体に様々な機能を発揮させることが可能となった。機能性流体力学において、機能性流体とは、温度、光、重力、電磁場などの外部環境条件に応答させて、強磁性微粒子、イオンなど流体のミクロな構成要素の物理的性質を変化させることで、流体自体に機能性を持たせ、その性質を変化させることができる流体と定義される。現在、この機能性流体の基礎研究が発展し、応用開発に関する研究が活発に行われるようになり、新たな研究分野としての体系化が図られてきている。

一言に機能性流体といっても様々な種類の機能性流体が存在する。ここに代表的なものをいくつか上げるならば、磁性流体、MR 流体 (Magnetorheological fluid, 磁気懸濁流体)、ER 流体 (Electrorheological fluid, 電気粘性流体)、液晶、プラズマ流体といった電磁場に応答する機能性流体、高分子特有の性質を有するゲル分散流体、チキソトロピー流体、バイオテクノロジーへの応用が期待されるマイクロカプセル流体、人工血液などがある。本研究では、機能性流体として、磁場に応答する磁気機能性流体の一種である磁性流体と MR 流体を取り上げた。磁性流体と MR 流体に関しては、次節以降に詳しく記すものとして、ここで、先に記した磁気機能性流体以外の機能性流体を取り上げて簡単に説明する [3, 4]。

### ER 流体, 液晶

ER 流体は、シリカゲルなどの誘電性微粒子を電氣的絶縁体の液体中に分散させたコロイド溶液であり、電場の印加によって、鎖状のクラスターが形成され、流体の粘度が大きく変化する。一

方、液晶は、構成粒子自身が極性を有し、その配向性を制御することで、見かけの粘度を変化させることができる。加える電圧は高電圧であるが、消費電力が非常に小さく、近年では、ディスプレイなどへの応用開発が進んでいる。

## プラズマ流体

プラズマ流体は、気体を放電させることにより気体の一部が電離し、イオン、電子、分子などから構成された多成分の流体である。特に、圧力による影響を大きく受け、粘度や熱伝導率などが著しく変化したり、光を放射する多機能性流体である。近年では、MHD 発電、フロンガスなどの環境有害物質の分解、浄化に応用されている。

## 人工血液

血液は全身の細胞へ酸素と栄養を供給し、二酸化炭素、老廃物を廃棄する役割を果たしている。これらの機能のうち、酸素運搬機能に着目して血液に変わる機能を持つ流体が、現在開発されている人工血液である。

## 1.2 磁性流体

磁性流体とは、強磁性の性質と流体としての流動する性質をあわせ持つように強磁性の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。水やケロシンといった溶媒に直径が約 10nm 程度のマグネタイト、鉄、ニッケル等の強磁性体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、磁性流体中の浮遊微粒子は、粒子間のファンデルワールス力や磁気吸引力、界面活性剤の反発力によって、ブラウン運動を行っている [5, 6]。

もともと磁性流体は、NASA の Papell により開発され、無重力場でのロケットの液体燃料を磁石を用いて誘導するために液体に強い磁化を持たせようというものであった。しかし、現実には燃料制御と利用されるまでには至らなかった。近年まで、磁性流体の応用利用に関しては、様々なアイデアが提案され、多くの関心を集めている。一方で、基礎研究面でも、磁場作用下で示す特異な振る舞いから、多くの理論研究 [7, 8, 9] がなされ、新しく磁性流体力学という学問としての体系化が進められている。

さらに、様々な種類の磁性流体も開発されてきている。例えば、本来、磁性流体は黒色であるが、これを赤、黄、青に着色した有色磁性流体 [10]、飽和磁化が極めて大きい窒化磁性流体 [11]、従来の磁性流体とは、流体構成などが全く異なるイオン磁性流体 [12] などがある。イオン磁性流体では、内部微粒子が常に同じ表面電荷をもつことで電氣的に斥力を得て、安定分散している。



しかしながら、学問体系としては未完成の部分も多く、新しい応用面での開発、研究も多く進められている(1.2.2節にまとめる)ものの、磁場作用下における磁性流体の複雑な挙動などが原因となり、十分な検討がなされているとは言えない。このように、磁性流体工学は、今後なお一層の進展が望まれる研究分野といえる。

### 1.2.1 磁性流体の物性

通常広く用いられる磁性流体は、マグネタイトを分散粒子として用い、分散媒として炭化水素類、エステル類、エーテル、水などを用いている。ベース液、界面活性剤、分散粒子の種類、濃度を変えることによって、様々な物性は変わるが、その物性値は、磁場の影響を大きく受ける。磁化および粘度以外の物性値への影響については、未だ十分な研究がなされていないのが現状である。ここで、磁性流体の物性について、以下にいくつか記す [13]。

#### レオロジー特性

流体のレオロジー特性としては、流れのずり運動により生ずる内部摩擦力から定義される粘度特性が主なものとなるが、磁場の作用する磁性流体について考えると、磁場の影響により、粒子に回転摩擦トルクが発生し、新たな粘性散逸が生じるため、見かけ上粘度が増加したことに相当する。この他にも、磁性流体は磁場印加により特徴的な物性変化を示し、この性質を応用して様々な応用機器が提案されている。

#### 音響学的性質

音波物性とは、音波の測定から伝播媒質内の内部構造やそのダイナミクスなどを観察し、その基礎的性質を研究する分野であり、物質の内部の様子は、音波の音速や吸収といった測定しうる物理量に反映される。あらゆる物質に対する内部構造解析において音波物性研究は非常に有効な手段であり、その基本的情報を得ることができる。

磁性流体における音波物性も同様で、一様磁場の作用する磁性流体中を伝播する音速や減衰については興味深い異方性が観測されてきている [6]。本研究は、磁性流体の音響学的性質に深く関連しており、この性質に対して詳細に計測を行い、磁性流体中の超音波伝播物性とその内部構造の解析を行うことを目的としている。

#### 磁気光学効果

磁性流体は、通常は不透明であるが、粒子濃度を極端に小さくするか、薄膜状にすると光が透過できるようになる。ここに磁場を作用させると新たな光学異方性が生じ、様々な特異な光学現

象が観測されるようになる。これらの現象を総称して、磁気光学効果という。この性質を利用することで、薄膜状の磁性流体において、透過光による鎖状クラスターの可視化が可能となる。

### 1.2.2 磁性流体の応用

磁性流体は磁性と流動性を併せ持っており、磁場勾配下におくと、磁性流体全体が磁気を帯びたように振る舞い、流体の圧力分布や流れのパターンを変えることができる。そこで、この磁性流体特有の物理的性質を利用した様々な機器への応用研究がなされている。具体的な応用例を、表 1.1 に示す。このうち、現在実用化されている機器、特筆すべき応用分野を以下にまとめる [5, 14]。

表 1.1: Application of the magnetic fluid

応用した原理	応用機器
磁性	インクジェットプリンター, 磁性流体軸シール 薬剤の誘導
磁気浮力	比重差選別装置, アクチュエーター, ダンパ スピーカーのボイスコイル保持, 磁性流体研磨
レオロジー特性	ショックアブソーバ, ダンパ
凝集性	光シャッター, 磁気センサ, 光分岐素子
界面特性	境界層制御, 電熱制御
その他	造影剤, 燃料添加剤

#### 磁性流体ダンパー

磁性流体を磁場の印加によって保持すると同時に、磁性流体内におかれた物体に作用する磁気力を利用して、運動を制御する装置として磁性流体ダンパーが開発されている。作動する系の運動形態に対応して、リニアダンパー、回転粘性ダンパー、ダッシュポット型ダンパーが上げられる。リニアダンパーは次に述べるスピーカーのボイスコイルへ応用されている。

この他にも、同調液体ダンパーの作動流体に磁性流体を用いた応用研究がなされており、磁性流体の挙動を制御することで、本来難解であった同ダンパーのアクティブ制御が容易に実現可能なことが判明している。これは、磁性流体すなわちダンパー自体の固有振動数が印加磁場方向、強度に従って変化することを利用したもので、構造物振動の広範囲な振動数に対して強力な制振効果が発揮できている [15]。

## 磁性流体シール

磁性流体シールは、永久磁石、磁極片、軸（磁性体）で構成される磁気回路に磁性流体を注入し、磁気体積力を応用している。磁場によって軸上に磁性流体の液体 O リングが形成され、これを保持することで、駆動部などから発生するゴミ、オイルミストなどの浸入を防ぐ。

使用目的は、防塵用シールと真空シールに大別される。防塵用シールとしては、ハードディスクに多数採用されており、クリーンルーム用設備の駆動部としても実用化が進んでいる。真空シールとしては、電子顕微鏡シールへの応用が図られており、磁性流体シールを用いることで、これまで開発された多段ステージシールの中でも最小のものが開発されている。これらのシールの欠点は、シール耐圧が小さいこと、磁性流体の劣化が原因となり、長期間の安定動作が保証されないことにあったが、現在までの技術革新と磁性流体の選択によってシール耐圧、耐久性能が飛躍的に向上している。

## スピーカー

従来のスピーカーでは、磁気ギャップ内でのボイスコイルのセンタリングが不完全なことからコイルの断線、コイルの振動が不安定になるなどの問題が生じ生産効率が低かった。そこで、磁気ギャップに磁性流体を注入したところ、ボイスコイルのセンタリングが容易になり、コイルで発生する熱の放熱効果、ダンピング性能の向上につながった。生産効率も飛躍的に向上し、現在では磁性流体のスピーカーへの応用が一般化している。さらに、これらの利点を生かすことでマイクロスピーカー、小型補聴器への応用もなされている [16]。

## 医療技術への応用

近年、医療技術は飛躍的に発展している。その発展の中で、磁性流体、磁性ナノ粒子を応用した医療技術も開発されてきている。具体例をあげるならば、磁場による薬剤の誘導 (Drug Delivery)、患部へ磁性ナノ粒子を誘導した上での局所温熱療法 (Hyperthermia)、X 線撮影、MRI の造影剤、超音波検査の感度向上などがあげられる。

抗癌剤は、正常な細胞にも大きな副作用を与えるため、患部まで薬剤を直接誘導できるというのは非常に有用である。さらに磁性流体中のフェライトはすぐれた X 線吸収剤であるため、同時に X 線造影剤としての効果も持つ [17, 18]。X 線造影剤への利用と同様に、磁性流体による MRI の造影剤 [19]、超音波検査の感度向上への研究 [20] も積極的になされている。また、磁性ナノ粒子に交流磁場を印加すると発熱するという特性を生かして、患部に磁性ナノ粒子を誘導し、発熱させることで腫瘍への局所温熱療法が可能である。マウスにおける実験で大きな効果が報告されており、磁性流体を用いた技術を特に Magnetic Fluid Hyperthermia(MFH) と呼んでいる [23, 24, 25]。

## 1.3 MR 流体

MR(Magneto-Rheological) 流体は、粒径が数  $\mu\text{m}$  の鉄やマグネタイトなどの強磁性微粒子にオレイン酸などの界面活性剤を用いて、水や炭化水素油などの溶媒に安定分散させたサスペンションであり、体積分散率は約 30% である。磁性流体では磁場印加によってその流動特性が大きく変化するが、MR 流体では磁場に磁場に磁性流体以上に応答し、流動性がほとんど消滅すると共に、制御可能な降伏応力を示すようになる [14, 29]。磁性流体に比べ、粒子が大きいため、界面活性剤により沈殿を防ぐ工夫がされているものの分散安定性が悪く、実用化には、粒子の沈殿による応用機器の特性の時間変化を把握する必要がある。MR 流体は、飽和磁化が磁性流体より圧倒的に大きく、磁場印加による大きな粘度増加、制御可能な降伏応力や大きな磁気力を示す。MR 流体の流動特性の研究 [25, 26] は、分散粒子に沈殿などが見られ、再現性に問題があるなどの理由から、磁性流体同様未だ進んでいないのが実情である。

### 1.3.1 MR 流体の応用

MR 流体の機能性は、磁場下での強固なクラスター形成に起因しており、磁性流体に比べ磁場印加による大きな粘度変化、降伏応力が存在する。このため磁性流体では、比較的小規模な系を有する応用機器への利用に応用されているのに対して、よりダイナミックな機構を有する応用機器への利用が注目されている [27, 28]。

具体的な応用機器としては、磁性流体と同様の形態を取り、耐震ダンパー、ブレーキ、クラッチ、MR 流体研磨、耐圧シール、バルブなどのアクチュエータが考案されている。特にダンパーとしての応用研究 [30, 31] は盛んであり、アメリカではトラックの座席シートのダンパーとして実用化されている。磁性流体同様医療分野への応用 [32] も考案されつつあり、今後の発展が期待される機能性流体である。

## 1.4 超音波

超音波は周波数が 20kHz を超える音波、もしくは弾性振動と定義される。一般に人間の聴覚は、20Hz~20kHz の空気振動を音として感じる。そこで、音波は、超低周波音波、可聴音、超音波と 3 つに分類でき、これは人間の耳の能力を基準にしたものであるため、下限の 20kHz というのは便宜的なものであるといえる。また、上限については、特に定義はされていないものの、波長が原子間隔や平均分子間距離と同程度にまで短くなると、普通の媒質も連続体とはみなされず、超音波としては扱えなくなる。その意味では 1THz 程度が上限となる。今日、測定や応用技術に多く用いられる超音波は 10GHz 以下である。

超音波は、あらゆる物質中を伝わり、そのうち一部の例外を除いては、気体中の音速が最も遅

い。超音波の媒質中の伝播速度は原則的には周波数によらず一定であり、その性質は、光と類似性が高く、反射、屈折、回折、散乱、干渉、ドップラー効果、衝撃波、複屈折など波動に共通な性質を持つ。一方、光との相違点は、縦波と横波が存在すること、弾性の他に密度にも依存することなどが上げられる。

音波は、媒質に対して時間的にも空間的にも周期的な圧力の変動をもたらす。この圧力変動に応答し、物質中の欠陥や構造といった内部状態は、音速や吸収などの物理量に反映する。音波測定から伝播媒質内の内部構造や基礎的性質を研究する分野が音波物性である。音波が「物質科学を貫く横糸」と例えられるように、音波物性は、気体、液体、溶液、高分子、金属などに関する物性研究において、その基本情報を得ることができる。本研究では、超音波によって、磁気機能性流体の音波物性を計測することで、外部環境変化による内部構造変化、基本特性を探求する [33]。

なお、本論文では、以後「超音波伝播速度」を省略して「伝播速度」と記述するものとする。

### 1.4.1 超音波の応用

超音波技術は、今日広く多様に社会に浸透している。たとえば、工業界で利用される洗浄、非破壊検査、加工、医療機関での診察治療、海洋技術の水中通信、計測、一般家庭における小型洗浄機になどがあげられる。表 1.2 に、これらの応用を分類してあげ、以下にいくつか取り上げて示す [33, 34]。

表 1.2: Application of the ultrasound

応用技術	応用分野	応用機器
超音波計測	工業計測	非破壊検査 (深傷, 非労検査), 流量計, 距離計
		超音波映像 (超音波顕微鏡, 超音波ホログラフィ)
	水中, 海洋計測	ソナー, 魚群探知機, 海底探査, 測深, 水中通話
	医療診断	超音波映像検査, 血流計
強力超音波	固体中	機械加工 (切削, 穴あけ), 治療 (超音波メス, ハイパーサーミア)
	液体中	洗浄, 滅菌, 乳化, 霧化
	気体中	集じん, 浮揚
電子デバイス	通信, 情報処理	フィルタ, 周波数制御 (発振機, 振動子), 光音響デバイス
	圧電機能	超音波モーター, 圧電アクチュエータ, 圧電センサ
音波物性	材料研究	伝播速度, 吸収, 弾性率, 非線形性

## 超音波非破壊検査

超音波深傷法は、超音波非破壊検査法の一つとして、構造物の傷、ひび、空洞などの検査に広く用いられている [34, 35]。この原理は、測定対象に超音波パルスを入射し、反射エコーの受信時間と大きさから内部の欠陥の位置と大きさを測定する。近年まで工業分野への応用として様々な研究がなされている [36, 37] が、欠陥を受信波形から定量的に把握することは困難であり、作業の効率化や精度向上のうえで欠点があった。近年では、これに対して、電磁超音波深触子を用いて、電磁誘導を利用した方法が開発され、精度向上の研究 [38, 39] もなされている。

## 超音波加工

超音波振動を利用して素材を変形、加工する方法で、素材を変形するだけの塑性加工と振動切削を含む超音波加工に大別できる。例えば、超音波振動切削法は、バイトなど切削工具に超音波振動を印加し、超音波振動させる事で、刃先と工作物の瞬間的な衝突で切削する方法である。切削抵抗が低減するため、工具の寿命が延びる。また、刃物に加えた高い振動のために加工精度も向上する。

## 医療における超音波診断

医療領域において超音波は、一般的に心エコーなどと呼ばれており、超音波診断装置に用いられている。超音波診断装置は、主に生体の形態情報を得る事に用いられている。診断装置では、超音波パルスを体内に入射し、反射パルスの輝度を変調する事で生体内組織の情報が表示される [40]。非侵襲でリアルタイム表示が可能なことから、診察でも一般的に使用される。さらに、動的情報の取得として超音波ドップラー効果を利用した血流速度の測定にも使用されている [34, 41]。

## 超音波スペクトロスコピー

音波物性の実験的研究において、対象となる試料、周波数、精度に応じて適切な測定法を選ぶ必要がある。さらには、極低音、高温、高圧など、特殊な環境下においては、それに対応する技術が必要となる。超音波スペクトロスコピーとは、超音波領域で伝播速度や減衰の周波数分散を測定するものと定義される。さらに、今日では周波数分散の測定に限らず、材料や物性の研究を目的として、測定技術を適宜応用することで、音波計測、評価を行う事も併せて超音波スペクトロスコピーという。

## 1.5 UVP(Ultrasonic Velocity Profiler)

UVP(Ultrasound Velocity Profiler) method は、超音波のドップラー効果を用いた流速分布測定装置 [42] で、レーザードップラー流速計と比べて、測定に音波を用いるため、磁性流体といった不透明流体への適用が可能である。その測定手法は、流体内部にトレーサー粒子を混入し、外部から超音波パルスを発射することで、トレーサーに反射した超音波パルスの周波数がドップラー効果により変化することを利用して、トレーサーの速度、すなわち、局所的な流速を求める手法である(詳細な原理は第7章に示す)。

UVP は、磁性流体の流速分布計測に非常に有効であるが、これを適用するには、磁性流体中の詳細な伝播速度の値が必要となる。しかしながら、磁性流体に磁場を印加すると、磁性流体中に形成されるクラスターなどの磁性流体の内部構造変化の影響から、その伝播速度が変化することが判明している。このことから、磁性流体中の詳細な伝播速度の計測と磁場印加時の超音波伝播特性の研究は必要不可欠である。本研究では、実際に UVP を磁性流体管内振動流に適用し流速測定を行なうにあたり、磁性流体中の伝播速度を詳細に計測した。さらに、磁場印加による磁性流体中の伝播速度変化の計測に与える影響も検討した。

## 1.6 本研究の目的

今回、研究対象の機能性流体として磁場に応答する磁気機能性流体である磁性流体と MR 流体を取り上げた。磁性流体、MR 流体のみならず機能性流体の工学的な応用のためには、機能性を持たせた状態での物性研究が必要不可欠である。それにもかかわらず、特に電磁場下での流体の特性評価は計測装置が複雑に組み合わせることが多く、機能性流体の物性研究、内部構造解析等は非常に困難である。さらに、磁性流体の流動計測をとっても、磁性流体は黒色不透明であるため、従来のレーザードップラー流速計などの光学的手法や熱線・熱膜流速計などの電気的手法の適用は困難である。この流動計測に有用であると考えられる UVP に関しても、先に記した通り、磁性流体中の伝播速度や磁場印加時の特性などの詳細なデータが明らかになっていない。

また、磁性流体、MR 流体に磁場を印加すると、流体中の強磁微粒子は、ブラウン運動の拘束やクラスターの生成といった複雑な振る舞いを起こす。このことから、内部構造変化に起因する磁気機能性流体特有の物性変化が原因となって、期待される工学的な応用も現時点では実用にまで至っていないというのが実情である。

これらのことを考えると、磁性流体、MR 流体中の超音波伝播特性の研究は、磁気機能性流体の物性研究、超音波による流動計測において非常に重要である。印加磁場下における磁性流体中の超音波の伝播特性は、磁性流体を構成する微粒子や、磁場印加によって形成されるクラスターに密接に関係があると考えられるものの、超音波伝播特性に関する研究は、研究者によりその見解に多くの差異が見られる。これは、磁性流体の様々な特性が複雑に絡み合ったことが要因の一

つであるといえる。さらに、MR 流体においては、超音波の減衰が非常に大きいため、伝播速度といった計測が非常に難しく、MR 流体中の超音波伝播特性の研究は、世界的にもほとんど行なわれていないのが実態である。

これらの背景から、本研究では次の点を研究の目的としてあげる。

1. 磁性流体、MR 流体中の超音波伝播特性計測システムの構築
2. 磁性流体中の超音波伝播速度、減衰を用いた伝播特性研究、基礎資料の提供
3. 同計測システムの MR 流体への適用
4. 超音波による磁性流体、MR 流体の内部構造非接触解析へのアプローチ
5. これらの結果に基づく磁気機能性流体の流動場の計測
  - (a) UVP による磁性流体の流動計測
  - (b) MR 流体チャンネル流の内部構造変化の解析

以上に示す通り、磁性流体、MR 流体中の超音波伝播特性を実験的かつ理論的に解析し、同時に強磁微粒子のブラウン運動やクラスターの形成といった流体の内部構造の検討を行う。これらを総括して、超音波による磁性流体、MR 流体の内部構造非接触解析を検討することを第一の目的とする。次に、この結果に基づく応用計測として、UVP による磁性流体の流動計測、超音波による MR 流体チャンネル流の内部構造変化の解析を行うことを第二の目的と位置付ける。

本研究の成果は、磁性流体、MR 流体中の超音波特性や内部構造変化の詳細な基礎データの提供、磁気機能性流体の物性研究、音波物性研究の一つとして確立することにある。さらに、本研究は先にあげた磁気機能性流体特有の問題解決の糸口となり、磁性流体、MR 流体の工学的な応用の第一歩となるものと考えている。



## 1.7 本論文の構成

前述の通り、磁性流体、MR 流体中の超音波伝播特性研究は、UVP の磁性流体への適用や、磁性流体、MR 流体の超音波物性の基礎資料、印加磁場下における内部構造解析として非常に有用である。この目的をもとに、次頁に本論文の構成を示すと共にここにその詳細を記す。

第1章は、本章であり、本研究に関わる機能性流体力学、磁気機能性流体、磁性流体、MR 流体、超音波、超音波計測技術等を詳細に記した。さらに、機能性流体中の超音波伝播特性研究の課題を示すと共に本研究の目的を記した。

第2章は、本研究に必要となる代表的な媒質中の超音波物性理論に関して、音速理論と減衰理論の両面を記す。液体中の超音波伝播理論は、液体分子構造の複雑さなどから非常に難しく、さらに内部粒子の混在した磁気機能性流体においてはその理論的解析は非常に困難なものとなる。このことを踏まえて、磁性流体、MR 流体における過去の理論研究と本研究の実験結果の比較方法を検討し、本研究の方向付けを記す。

第3章では、本研究における超音波伝播特性の計測システムの詳細を記す。磁場印加時の磁気機能性流体中の超音波計測は、計測として非常に重要な位置を占めるにもかかわらず、装置が大掛かりになるなどの困難な部分もある。また、本研究では磁場下の磁気機能性流体中の微細な伝播速度変化を計測するという目的から、計測システムに様々な検定を行う必要がある。本章では、計測システムにおける検定方法についても詳細に述べる。

第4章では、磁性流体中の超音波伝播特性研究を超音波伝播速度を取り上げて、その実験結果、考察を記す。実験結果をもとに印加磁場下における内部構造変化の解析をした。さらに、冒頭部に磁性流体中の超音波伝播特性の理論研究や印加磁場下の内部構造変化の研究も記した。

第5章では、第4章に対応して、磁性流体中の超音波伝播特性研究を超音波の減衰を取り上げて評価する。第4章の伝播速度と比較しつつ内部構造を解析した。減衰の測定は非常に困難であるため、測定方法に関して詳細に記す。

第6章では、MR 流体中の超音波伝播特性実験結果、考察を記した。磁性流体と比較して内部粒子の大きさの違いから顕著に差が現れており、この結果の差異について言及した。さらに、実験研究が少ない要因ともなっている、MR 流体中の超音波の減衰に起因する計測の難しさにも言及し、本研究において行った測定方法を記す。

第7章では、以上の超音波計測の流動場への応用として2つの流動場を例に取り上げた。まず、磁性流体中の超音波伝播特性の結果をもとにした、UVP による磁性流体管内振動流の測定方法を検討すると共に、この測定結果を記す。次に、MR 流体チャンネル流の内部構造変化を超音波を用いて解析した結果を示す。

第8章で、本研究の成果を記し、総括とする。

# 本論文の構成

## 第1章 序論

- ・ 機能性流体工学の概要
- ・ 磁性流体, MR流体の詳細と応用
- ・ 超音波技術の詳細と応用
- ・ 機能性流体中の超音波伝播物性研究の意義
- ・ 本研究の目的

## 第2章 理論

- ・ 媒体中の超音波伝播理論
- ・ 液中の超音波伝播音速理論
- ・ 超音波の古典吸収理論

## 第3章 超音波伝播特性計測システム

- ・ 計測システムの概要
- ・ 計測システムの検定実験

## 第4章 磁性流体中の超音波伝播特性(伝播速度)

- ・ 磁性流体中の超音波伝播特性の従来の研究
- ・ 磁性流体中の超音波伝播速度特性の実験, 結果
- ・ 考察と超音波による内部構造変化へのアプローチ

## 第5章 磁性流体中の超音波伝播特性(減衰)

- ・ 磁性流体中の超音波の減衰の計測方法
- ・ 磁性流体中の超音波伝播減衰特性の実験, 結果
- ・ 考察と超音波による内部構造変化へのアプローチ

## 第6章 MR流体中の超音波伝播特性

- ・ MR流体中の超音波伝播特性の計測方法
- ・ MR流体中の超音波伝播特性の実験, 結果
- ・ 考察と超音波による内部構造変化へのアプローチ

## 第7章 磁気機能性流体の流動場の計測

- ・ 超音波による磁性流体の流動計測
- ・ MR流体チャンネル流の超音波による流動構造解析

## 第8章 総括

- ・ 磁気機能性流体中の超音波伝播特性
- ・ 超音波伝播特性による内部構造変化解析へのアプローチ
- ・ 流動場の計測

## 記号一覧表

$a$	: 反射体粒子が $\Delta t$ の間に移動する距離 (m)
$a_{cl}$	: クラスターの代表長さ (m)
$B$	: 磁場印加の磁束密度 (mT)
$C_0$	: 磁性流体の粒子濃度 (wt%)
$C_p$	: 定圧熱容量 (J/mol)
$C_v$	: 定容熱容量 (J/mol)
$c$	: 媒体中の超音波伝播速度 (m/s)
$c_0$	: 無磁場下での磁性流体中の超音波伝播速度 (m/s)
$c_A$	: Alphen の音速 (m/s)
$c_g$	: 気体中の超音波伝播速度 (m/s)
$c_R$	: Rao の分子音速度 (m/s)
$d$	: クラスター半径 (m)
$dl$	: 空間分解能 (m)
$F_1$	: クラスターが磁場から受ける復元力 (N)
$f$	: 超音波の周波数 (Hz)
$f_D$	: ドップラー周波数 (Hz)
$f_N$	: サンプリング周波数 (Hz)
$f_0$	: 超音波パルスの基本周波数 (Hz)
$f_1$	: 反射体粒子における超音波パルスの周波数 (Hz)
$f_2$	: 受信する反射波の超音波パルスの周波数 (Hz)
$H$	: 印加磁場強度 (A/m)
$I$	: 電磁石への供給電流 (A)
$K$	: 体積弾性率 (Pa)
$k_c$	: $= -F_1/x_c \sin \phi$
$k_\alpha$	: 熱膨張係数 (1/K)
$L$	: テストセル中の超音波伝播距離 (m)
$L_{ave}$	: 液中の平均分子間距離 (m)
$L_f$	: 液中の分子間距離 (m)
$l$	: トランスデューサーから反射体粒子までの距離 (m)
$l_f$	: トランスデューサーから最も遠い反射体粒子までの距離 (m)
$l_{max}$	: 速度分布の測定限界距離 (m)
$l_p$	: 超音波パルスの長さ (m)

$M$	: 気体の分子量
$N$	: 単位体積あたりのクラスタの個数
$N_A$	: 液中の分子数
$n$	: 速度分布計測の繰り返し数
$n'$	: 超音波パルスの発振回数
$P$	: 入力音圧 (Pa)
$P'$	: 出力音圧 (Pa)
$P_{in}$	: MR 流体チャンネル流へのピストン押し出し圧 (Pa)
$P_0$	: 無磁場下での受信音圧 (Pa)
$P_1$	: 印加磁場下での受信音圧 (Pa)
$p$	: 超音波の音圧 (Pa)
$R$	: 管半径 (m)
$R_0$	: 気体定数
$s$	: 伝播係数 ( $=\omega\sqrt{\rho/K}$ )
$t_a$	: 1つの速度分布を求めるのに要する時間 (s)
$t_c$	: 1つの速度分布の解析, 表示に要する時間 (s)
$t_p$	: パルスの発振から受信までの時間 (s)
$t_r$	: 1つのパルス受信に要する時間 (s)
$T$	: 試験流体中の超音波伝播時間 (s)
$T'$	: 絶対温度 (K)
$T_a$	: 測定システムの信号伝播時間 (s)
$T_c$	: $T + T_a$ (s)
$T_{UVP1}$	: 超音波の発振から反射波受信開始までの時間 (s)
$T'_{UVP1}$	: 超音波の発振から反射波受信終了までの時間 (s)
$T_0$	: 無磁場下での試験流体中の超音波伝播時間 (s)
$u$	: 流速 (m/s)
$u_0$	: ピストンの最大速度 (m/s)
$u_{max}$	: 流速の測定限界 (m/s)
$V$	: 試験流体中の超音波伝播速度 (m/s)
$V_0$	: 無磁場下での試験流体中の超音波伝播速度 (m/s)
$v$	: 体積 ( $m^3$ )
$v_a$	: $= v - v_{mol}$ ( $m^3$ )
$v_c$	: クラスタ体積 ( $m^3$ )
$v_f$	: 自由体積 ( $m^3$ )

$v_{mol}$	: 気体 1mol あたりの体積 ( $m^3$ )
$W$	: Wormersley 数 ( $= R\sqrt{\omega/\nu}$ )
$w$	: Wada の分子圧縮率
$x_c$	: クラスターの変位
$z$	: 音響インピーダンス ( $= \rho c$ )
$\alpha$	: 本研究で定義する減衰率 (dB/m)
$\alpha_i$	: Leslie 係数 ( $i = 1, 2, 3 \dots$ )
$\alpha_{cl}$	: 古典吸収 ( $\alpha_s + \alpha_h$ )
$\alpha_d$	: 吸収係数 (dB/m)
$\alpha_h$	: 熱伝導による吸収
$\alpha_p$	: Parsons の理論による吸収
$\alpha_r$	: クラスターの回転運動による吸収
$\alpha_s$	: ずり粘性による吸収
$\alpha_T$	: Taketomi の理論による吸収 ( $\alpha_r + \alpha_t$ )
$\alpha_t$	: クラスターの並進運動による吸収
$\beta_{ij}$	: $\rho_0/\chi_{ij}$
$\gamma$	: $C_p/C_v$
$\gamma_1$	: $C_0^{-1}(\alpha_2 - \alpha_3)$
$\gamma_2$	: $C_0^{-1}(\alpha_2 + \alpha_3)$
$\Delta t$	: 超音波パルスの発振間隔 (s)
$\delta$	: 超音波の立ち上りにより本来の周期より増大した時間 (s)
$\zeta$	: 体積粘度 (Pa·s)
$\eta_s$	: ずり粘性率 (Pa·s)
$\Theta$	: $v_{mol}/v$
$\theta$	: ピストンの位相
$\square$	: 熱伝導率 (W/m·K)
$\lambda$	: $\gamma_2/\gamma_1$
$\mu_0$	: 単位体積あたりの飽和磁化 (A/m)
$\nu$	: 動粘性係数 ( $m^2/s$ )
$\rho$	: 超音波伝播媒体の密度 ( $kg/m^3$ )
$\rho_0$	: 磁性流体の密度 ( $kg/m^3$ )
$\rho_m$	: 磁性流体の強磁性粒子の密度 ( $kg/m^3$ )
$\tau$	: パルス発振から反射波受信までの時間 (s)
$\tau_m$	: 磁性流体の振動緩和時間 (s)

- $\tau_0$  : 超音波受信時刻 (s)
- $\tau_1$  :  $\tau_2 - 1/f = \tau_1 + \delta$ (s)
- $\tau_2$  : 超音波受信 1 周期後の時刻 (s)
- $\tau_{mr1}$  : MR 流体中の超音波受信時刻 (s)
- $\tau_{mr2}$  : MR 流体中の超音波受信波形と時間軸の交差時刻 1(s)
- $\tau_{mr3}$  : MR 流体中の超音波受信波形と時間軸の交差時刻 2(s)
- $\Phi$  : 速度ポテンシャル
- $\phi$  : 超音波伝播方向と磁場方向のなす角 ( $^{\circ}$ )
- $\chi_0$  : 磁性流体の平均磁化率
- $\chi_{ij}$  : 構成要素の磁化率
- $\chi_s$  : 断熱圧縮率
- $\chi_T$  : 等温圧縮率
- $\psi$  : 反射波の位相差
- $\omega$  : 超音波角振動数 (rad/s)
- $\omega_c$  : 磁性流体内部強磁性粒子の固有振動数 (rad/s)
- $\varphi$  : トランスデューサーの設置角 ( $^{\circ}$ )

## 第2章 超音波伝播物性-基礎理論

### 2.1 緒言

第1章にも述べた通り、音波の伝播特性は媒体となる物質の構造や性質を反映しており、音波物性研究は流体の物性研究においても非常に重要な位置を占める。近年では、溶液の物性研究は、特に液体構造や内部粒子間の相互作用について、熱力学に基づく平衡論的な理論から分子論的なレベルでの理論へと移行しつつある。しかし、長時間スケールでの変化の相関に関する知見も重要となっており、この知見は前者のミクロ的観点と溶液をマクロ的な変化を扱う観点の接点として重要になると考えられる。「音波物性は森を見るようなもの」という言葉もある通り、音波は分子をはじめとする内部粒子集団の運動としての物質の特性を反映しており、内部粒子一つ一つの特性のみだけでなく溶液全体がどのような特性を持つものなのかを明らかにする。

以上の点を考えても、磁性流体、MR流体中の超音波伝播特性研究は、磁気機能性流体の工学的応用の上で、内部粒子運動の研究と同様に非常に重要な位置を占めているといえる。磁場印加によるクラスター形成など内部構造変化の研究と共に、クラスターの形成による磁性流体、MR流体の超音波伝播特性変化の研究は非常に意義深い。そこで、本章では、次章以降の磁気機能性流体中の超音波伝播特性の実験、検討を論ずる前に、液体、溶液の物性研究に基づいた溶液中の超音波伝播特性理論についてまとめる。また、磁性流体、MR流体に関する理論研究に関しては、より複雑で研究者によっても見解に差異があることから、第4章以降の実験の段階において取り上げて実験結果と比較することとする。

### 2.2 超音波伝播理論 [33, 43]

音波が媒体中を伝播する時、その媒体の密度は周期的に変化し、音場における振動的な圧力変化を音圧という。図2.1に示す微小体積  $\delta x_1 \delta x_2 \delta x_3$  を考える。この微小体積の各軸に垂直な両面が音圧  $p$  によって受ける力は、 $x_1$  軸については、 $p \delta x_2 \delta x_3$ 、 $\left(p + \frac{\partial p}{\partial x_1}\right) \delta x_2 \delta x_3$  であり、音圧によって  $x_1$  方向に  $-\frac{\partial p}{\partial x_1} \delta x_1 \delta x_2 \delta x_3$  の駆動力を受ける。 $x_2, x_3$  方向についても同様なことが言え、媒体の密度を  $\rho$  とすると、微小体積部分の質量は、 $\rho \delta x_1 \delta x_2 \delta x_3$  となるので、この微小部分の運動方程式は、

$$-\frac{\partial p}{\partial x_1} = \rho \ddot{u}_1, \quad -\frac{\partial p}{\partial x_2} = \rho \ddot{u}_2, \quad -\frac{\partial p}{\partial x_3} = \rho \ddot{u}_3 \quad (2.1)$$

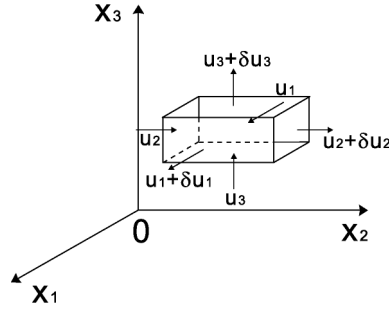


図 2.1: Theory of ultrasonic propagation

となる。ここで  $u_1, u_2, u_3$  はそれぞれ各軸における変位である。媒体の振動により生じる体積変化を  $\delta v$  とすると、

$$\delta v = \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + \frac{\partial u_3}{\partial x_3} \right) \delta x_1 \delta x_2 \delta x_3 \quad (2.2)$$

となる。媒体の体積弾性率を  $K$  とすると、この体積変化によって生じる圧力上昇は

$$p = -K \left( \frac{\partial u_1}{\partial x_1} + \frac{\partial u_2}{\partial x_2} + \frac{\partial u_3}{\partial x_3} \right) \quad (2.3)$$

となる。速度ポテンシャル  $\Phi$  を次式のように定義する。

$$u_1 \equiv -\frac{\partial \Phi}{\partial x_1}, \quad u_2 \equiv -\frac{\partial \Phi}{\partial x_2}, \quad u_3 \equiv -\frac{\partial \Phi}{\partial x_3} \quad (2.4)$$

式 (2.1) より、音圧  $p$  と速度ポテンシャル  $\Phi$  の間には

$$p = \rho \dot{\Phi} + C \quad (2.5)$$

の関係がある。ここで、定数  $C$  は大気圧であるから無視できるので、式 (2.3) と式 (2.4) の  $u_1, u_2, u_3$  を消去すると

$$\dot{p} = K \Delta \Phi, \quad \Delta = \frac{\partial^2}{\partial x_1^2} + \frac{\partial^2}{\partial x_2^2} + \frac{\partial^2}{\partial x_3^2} \quad (2.6)$$

が得られ、これを式 (2.5) に代入すると速度ポテンシャル  $\Phi$  を与える方程式

$$\Delta \Phi - \frac{\rho}{K} \ddot{\Phi} = 0 \quad (2.7)$$

が得られる。これが、超音波伝播の基礎方程式で波動方程式である。この式から音圧と粒子速度  $u_1, u_2, u_3$  を求めることができる。粒子速度とは、音波が伝播する媒体の変位速度を意味し、超音波伝播速度と区別するために用いられている。



時間変化を  $\exp(i\omega t)$  で表すとすると、 $x_1$  方向に伝播する音波は、 $x_2, x_3$  と無関係になるので、式 (2.7) の波動方程式は、

$$\left(\frac{d^2}{dx_1^2} + s^2\right)\Phi = 0 \quad \text{ただし } s^2 = \left(\frac{\rho}{K}\right)\omega^2 \quad (2.8)$$

となる。ここで、 $s$  は伝播係数と呼ばれる。この微分方程式を解くと

$$\Phi = A \exp i(\omega t - s x_1) + A' \exp i(\omega t + s x_1) \quad (2.9)$$

となる。式 (2.9) から音波の伝播速度  $c$  を計算すると、

$$c = \frac{\omega}{s} = \sqrt{\frac{K}{\rho}} \quad (2.10)$$

という超音波音速理論の最も有名な式が得られる。式 (2.9) を式 (2.4)、式 (2.5) に代入すると、音圧  $p$ 、粒子速度  $\dot{u}_1$  が次のように得られる。

$$p = A i \omega \rho \exp i(\omega t - s x_1) \quad (2.11)$$

$$\dot{u}_1 = A i s \exp i(\omega t - s x_1) \quad (2.12)$$

式 (2.11) と式 (2.12) の比をとると音響インピーダンス  $z$  が定義される。

$$z \equiv \frac{p}{\dot{u}_1} = \rho c \quad (2.13)$$

これは、音波の周波数によらず、音波の媒体の透過を考えるうえで非常に重要なパラメータとなる。

## 2.3 液体中の超音波伝播音速 [44]

### 2.3.1 一般的事項

一般的事項として、2.2 節と関連付けて、液体中の伝播速度を考えるうえで必要な関係式を次に記す。まず、式 (2.10) にも示した音速の一般的な式で、体積弾性率  $K$ 、断熱圧縮率  $\chi_s$ 、密度  $\rho$  の媒体中の音速は次式で与えられる。

$$c = \sqrt{\frac{K}{\rho}} = \sqrt{\frac{1}{\rho \chi_s}} \quad (2.14)$$

ここで、体積弾性率  $K$  は体積  $v$  を用いて

$$K = -v \left(\frac{\partial p}{\partial v}\right)_s = \rho \left(\frac{\partial p}{\partial \rho}\right)_s \quad (2.15)$$

が成り立つので、

$$\frac{\partial p}{\partial \rho} = \frac{K}{\rho} \quad (2.16)$$

よって、音速は次式でも示される。

$$c = \sqrt{\frac{\partial p}{\partial \rho}} \quad (2.17)$$

これは等エントロピー的に起こる。さらに、断熱圧縮率  $\chi_s$  は等温圧縮率  $\chi_T$  とは次式で関係づく。

$$\chi_T = \gamma \chi_s \quad (2.18)$$

ここで  $\gamma$  は比熱比であり、定圧熱容量  $C_p$  と定容熱容量  $C_v$  の比、 $\gamma = C_p/C_v$  で与えられる。式 (2.15) と気体の状態方程式から、理想気体の音速は

$$c = \sqrt{\frac{\gamma R_0 T'}{M}} \quad (2.19)$$

と表される。ここで  $R_0$  は気体定数、 $T'$  は絶対温度、 $M$  は気体の分子量である。理想気体の音速は直接本論とは関係ないが、断熱過程としての系の圧縮率を通して液体中の音速が議論されていること、気体の物性研究など様々な場面で用いられることが多いのでここに併せて記した。

### 2.3.2 液体中の音速理論

液体構造の複雑さや圧縮率の計算の難しさから、液体中の音速を理論的に予測することは困難である。液体中の音速理論には主として次の2つの考え方がある。

1. 液体中の弾性波あるいは縦波の伝播として議論する
2. 音速と圧縮率の関係から、断熱過程としての系の圧縮率を通して液体あるいは溶液の物性を議論する

前者の立場においては、現在までに満足すべき音波の伝播理論は無く、後者の立場による伝播理論が様々に提案されている。液中の超音波伝播理論は非常に複雑であり、研究者によってその見解に差異があるのが現状である。この液中の超音波伝播理論に基づいて、本研究の磁気機能性流体中の超音波伝播を理論的に見積もるのは不可能であるが、参考として音速理論として最も代表的な液体中の音速と圧縮率の経験則、液体モデルを使った経験的な理論をここに取り上げる。

#### Rao の分子音速度 [45]

$v_{mol}$  を1モルあたりの体積としたとき、Rao の分子音速度  $c_R$  は次式で定義され、会合液体を除いて温度によらず一定である。

$$c_R \equiv v_{mol} c^{\frac{1}{3}} = \frac{M}{\rho} c^{\frac{1}{3}} \quad (2.20)$$

## 分子圧縮率

Wada[46] は、次式に示す分子圧縮率  $w$  なる量を導入した。

$$w \equiv \frac{M}{\rho} \chi_s^{-\frac{1}{7}} \quad (2.21)$$

これは、温度にも圧力にもよらない。

## 分子圧縮率と分子音速度の関係 [47]

上記の  $w$  と  $c_R$  には次の関係が成り立つ。

$$w = \frac{M}{\rho^{\frac{6}{7}}} c^{\frac{2}{7}} = M^{\frac{1}{7}} c_R^{\frac{6}{7}} \quad (2.22)$$

よって  $c_R$  も温度、圧力によらないことがわかる。これが成立する仮想的液体においては次の式が成立する。

$$\frac{1}{c} \left( \frac{\partial c}{\partial T} \right)_p = \frac{3}{\rho} \left( \frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_p = -3k_\alpha \quad (2.23)$$

$$\frac{1}{c} \left( \frac{\partial c}{\partial p} \right)_T = \frac{3}{\rho} \left( \frac{\partial \rho}{\partial p} \right)_T = -3\chi_T \quad (2.24)$$

ここで、 $k_\alpha$  は熱膨張係数である。

## 自由体積モデルによる理論 [48]

液体の自由体積モデルにより液体中の音速を考える。自由体積模型では分子の平衡位置の周りの分子が動き回る空間、自由体積  $v_f$  を割り当て、液体中の分子間の隙間の距離を  $L_f$  とすると、

$$L_f = v_f^{\frac{1}{3}} = \left( \frac{v_f}{N_A} \right)^{\frac{1}{3}} \quad (2.25)$$

音波が液体中を伝播するとき、分子の間隔は気体中と同じ音速で伝わり、分子内部での伝播はほぼ瞬間的になされると仮定する。液体の平均分子間距離を  $L_{ave}$ 、気体中の音速を  $c_g$  とすれば、

$$c = \frac{L_{ave}}{L_f} c_g = \left( \frac{v_{mol}}{v_f} \right)^{\frac{1}{3}} \left( \frac{\gamma R_0 T'}{M} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.26)$$

であらわされる。これによって、気体中と液体中の音速から  $v_f$  を求めることができる。

さらに、この考えから弾性剛体球からなる流体に対して次の状態式を示した。

$$pv \left\{ 1 - \left( \frac{v_{mol}}{v} \right)^{\frac{1}{3}} \right\} = R_0 T' \quad (2.27)$$

ここで、先にも記した通り  $v$  は媒体の体積、 $v_{mol}$  は 1 モルあたりの体積で分子の占有体積とも呼ばれる。 $\Theta = v_{mol}/v$  とおき、 $v_a$  を次式で定義して導入する。

$$v_a = v - v_{mol} = v(1 - \Theta) \quad (2.28)$$

さらに  $L_f = v^{\frac{1}{3}} - v_{mol}^{\frac{1}{3}}$  すなわち、 $v_f = v(1 - \Theta^{\frac{1}{3}})^3$ 、また液体では  $v_a \ll v$  であるので、 $v_a = 3v^{\frac{2}{3}}v_f^{\frac{1}{3}}$  の関係になる。よって、

$$pv_a = 3R_0T' \quad (2.29)$$

となる。音速の一般的な式を用いて、

$$c = \frac{v}{v_a} \left( \frac{C_V + 3R}{C_V} \right)^{\frac{1}{2}} \left( \frac{3R_0T'}{M} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.30)$$

となる。 $v_a$  は、熱膨張による体積増加の測定から見積もることができ、液体中の音速から求めた  $v_a$  との一致が良い。

## 2.4 液体中の超音波の吸収機構 [49]

### 2.4.1 一般的事項

式 (2.12) から、媒体中を  $x$  方向に伝播する音波の振幅が減衰する時の変位  $u_{sonic}$  は、

$$u_{sonic} = u_0 \exp(-\alpha_d x) \exp i\omega \left( t - \frac{x}{c} \right) \quad (2.31)$$

となり、一般的に  $\exp(-\alpha_d x)$  の項に注目して、 $\alpha_d$  を吸収係数 (または減衰定数) と呼んでいる。単位は、SI 単位系では  $[\text{m}^{-1}]$ 、慣用的には  $[\text{cm}^{-1}]$  であるが、一般的には、neper という単位を用いて  $[\text{neper}/\text{cm}]$  が使われる。また、dB には  $1\text{neper} = 8.68\text{dB}$  で換算できる。この  $\alpha_d$  は時間的に定常な波動が空間的に減衰することを意味している。

本研究でも、吸収係数の計測を試みたが、超音波の拡散減衰等の排除、振動子の設置方法、アクリルの音響インピーダンスなどを考えなければならず、ここに定義される液体の吸収係数  $\alpha_d$  の計測は、本測定装置では不可能であった。そこで、本研究では、受信波形を比較し、その波形の減衰を比較することで、これを減衰率  $\alpha$  と定義して評価する手法を用いた。詳細な定義、計測評価方法は第 5 章に示す。

### 2.4.2 古典吸収

古典吸収とは、ずり粘性と熱伝導が原因となる吸収である。超音波による縦波変形にはずり変形が混じっているため、ずり粘性率 (第 1 粘性とも呼ぶ)  $\eta_s$  による超音波の吸収  $\alpha_s$  は

$$\alpha_s = \frac{8\pi^2 \eta_s f^2}{3\rho c^3} \quad (2.32)$$

で与えられる。また、音波は断熱過程であるため圧縮された部分は高温になり、膨張した部分では低温になる。この高温部から低温部への熱移動が吸収の原因となる。熱伝導による吸収  $\alpha_h$  は、

$$\alpha_h = \frac{2\pi^2 (\gamma - 1) \square f^2}{\rho c^3 C_p} \quad (2.33)$$

と表される。ここで、 $\square$ は熱伝導率である。熱の輻射による吸収もあるが、この寄与はきわめて小さいため無視できる。

以上の和をとることで粘性と熱伝導による古典吸収  $\alpha_{cl}$  は

$$\alpha_{cl} = \alpha_s + \alpha_h = \frac{2\pi^2}{\rho c^3} \left( \frac{4}{3} \eta_s + \frac{(\gamma - 1) \square}{C_p} \right) f^2 \quad (2.34)$$

となる。

さらに、熱伝導率の影響は粘性に対して小さいのでこれを無視して吸収係数  $\alpha_d$  の周波数  $f$  への依存性を示すならば、

$$\frac{\alpha_d}{f^2} = \frac{2\pi^2}{\rho c^3} \frac{4}{3} \eta_s \quad (2.35)$$

と表すことができ、本研究の超音波周波数領域の計測においては、 $\alpha_d/f^2$  は周波数に寄らず一定であり、吸収は周波数の2乗に比例する。本研究においては、理論的には最も小さい周波数 (1MHz) における計測が、吸収が大きく良好な結果が得られるかと考えたが、実際の計測においては、振動子による音場やオシロスコープの分解能などが影響し、2MHzによる計測が最も良好であった。

## 2.5 超音波の分散性

本研究の測定にあたり、測定周波数域において伝播速度変化に周波数依存性が存在するか検討する必要がある。超音波の分散性 (周波数依存性) を与える要因として、流体が運動している時に生じる粘性率に起因するものと液体の振動緩和に起因するものの2つが考えられる。

流体の粘性率による周波数依存性は、式 (2.7) の波動方程式に粘性項が与えられることで生じる。このため、周波数依存性を考えるためには、流体の物性値を与えて音速理論と照らし併せる必要がある。しかしながら、本研究では、流体を静止した状態で測定を行っているため、粘性率に起因する周波数依存性は無いものと考えられる。そこで、液体の振動緩和による周波数依存性を考える。

## 液体の振動緩和

振動緩和とは、ある振動から他の振動、回転、並進へのエネルギー移動を言う。振動の自由度から並進の自由度へのエネルギー移動過程において、音波のエネルギーは熱として系に加えられ、その平衡を乱す。多くの液体では、このエネルギーの移動に音速度分散や吸収量の周波数依存として観測される。音速度分散の計測は、ここから得られる緩和強度から液体の比熱を見積もることができるという点で、液体の物性を知る手段の一つとして重要である。

本研究では、超音波は、1, 2, 4MHzの周波数のものを用いた。液体の場合、振動緩和現象は数百 MHz～数 GHz と非常に大きな周波数域において存在することが知られており、本研究の超音波の周波数域では、音速度分散はないものと考えられる。

## 実際の測定

周波数 1, 2, 4MHz の超音波を用いて、実際に磁性流体中の伝播速度を測定した。結果、周波数の違いによる伝播速度の差は、0.1%以内であった。この差は測定の偶然誤差であり、周波数依存性によるものではないと考えられる。実際の測定においても周波数依存は無いものと確認できた。

以上から、本研究の周波数域において、超音波の分散は無いものと考えられる。このため、本研究では、周波数依存性は測定対象とせず、音場の関係から測定に適している 2MHz における超音波を用いて計測を行なった。

## 2.6 結 言

本章に示した通り、液体中の超音波伝播理論は非常に複雑であり、内部に粒子を分散させている磁性流体、MR 流体に関してはより複雑さが増す。そもそも、液体理論の本質的な課題は、液体の構成分子や原子間の分子対ポテンシャルから液体の熱力学的性質や動的挙動を表現する理論と計算手法に方向付けられている。今日では、モンテカルロ法や分子動力学法に基づくシミュレーションが発達し様々な研究がなされている。しかしながら、液体中の音速度といった物理量を計算するには至っていない。磁性流体、MR 流体に関しても同様で、多くの理論的検討がなされているものの研究者によって見解に大きく差異があり、実験結果との一致も悪い。

液体中の超音波伝播理論は非常に複雑であり、磁気機能性流体中の超音波伝播理論はより複雑さが増すため、これらの理論に基づいて、磁気機能性流体の超音波伝播を理論的に見積もるのは不可能である。本研究では、各研究者の理論研究結果は実験結果との比較を行なう上で取り上げる。実験結果とこれまでになされている理論研究との比較を行い、実験結果の理論に基づく検討を行うという方向付けで超音波伝播理論から内部構造解析へのアプローチを行なうこととする。

## 第3章 超音波伝播特性計測システム

### 3.1 緒言

本章では、本研究の超音波伝播特性に用いた計測システム、測定におけるシステムの検証に関して詳細に記述する。

先に述べた通り、機能性流体中の超音波伝播特性を計測するうえで、外部環境下における機能性を持たせた状態(本研究では外部磁場下)での超音波計測が重要である。しかしながら、強磁場を印加した状態での計測のためには、計測システムに様々な装置を組み合わせる必要が生じ、装置が大掛かりになる。さらに、磁性流体、MR流体中の超音波計測は伝播速度変化が非常に小さいため、精度の高い計測が要求される。これらのことを考慮したうえで、本計測システムには次のような特徴を持たせている。

1. 試験流体への磁場印加が 550mT 程度まで可能
2. 試験流体の温度調整、保持が可能
3. 超音波伝播方向と磁場方向のなす角  $\phi$  が可変
4. 試験流体中の超音波伝播時間の計測分解能は  $0.001\mu\text{s}$

### 3.2 計測システム概略

超音波伝播特性計測システム概略を図 3.1 に示す。本計測システムは、パルス法に基づいている。④超音波発生装置 (Pulse generator) より、内部でトリガとバースト波を同時に発生させ、発生させたトリガ信号は①デジタルオシロスコープへそのまま送信させ、バースト波は⑨テストセル中の⑩振動子に伝達させる。このバースト波によって、振動子から超音波が発生し、テストセル内部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、オシロスコープにそのまま取り込まれ、超音波の受信波形を形成する。超音波受信信号をオシロスコープに取り込まれたトリガ信号を同期させることで、テストセル内の超音波伝播時間を計算することができる。また、オシロスコープに得られた受信信号は、③ GPIB を通して、②パソコンに取り込むこともできる。

⑦電磁石は⑧直流安定化電源の電流制御によって、550mT までの磁場印加が可能であり、テストセルは、360度回転が可能な構造となっている。テストセル周りには、⑤温度制御装置によって温度制御された恒温水を循環させテストセル内部の試験流体の温度を管理する。また、試験流体

温度は、⑥サーミスターによって測定できる。試験流体の温度は± 0.1℃以内での制御が可能である。

なお、オシロスコープのサンプリング周波数は、1GHzであり、50MHz程度の周波数の超音波まで測定が可能である。超音波発生装置は、現状では振動子を用意することによって、15MHzまでの周波数の超音波の発生が可能である。本研究では、4MHzの周波数まで超音波計測を行ったが、より高周波数域の計測は、分解能は上がるものの超音波のパワーが小さくなるため、非常に難しい。

### 3.3 テストセル

本計測システムのテストセルの詳細を図 3.2 に示す。テストセルは二重構造で、内部の直方体容器には試験流体を、外部容器には温度制御装置によって温度管理された恒温水を循環させ試験流体の温度を管理する。内部容器の側板には、アクリル板とアルミ板を使用しており、アクリル板に振動子を固定し、他方のアルミ板は内部試験流体への熱伝導を良好にするために用いた。振動子周りにはキャップをつけ、空気層を設けることで、超音波の損失を無くした。側板のアクリル板の厚さは2mmで両端で4mmとなる。アクリル中の音速は2320m/s(at 20℃, 本多電子(株)測定)である。3.6節に記す検定実験により、試験流体中の超音波伝播時間計測方法を記す。

超音波の周波数は振動子によって変化させるため、超音波の周波数によって、同様の仕様のテストセルをそれぞれ作成した。テストセル内部容器の超音波伝播距離は設計では32mmであるが、精密な工作ができないため、超音波伝播距離も検定実験において特定した。

### 3.4 測定原理

パルス法とは、対向する2枚の圧電振動子間に試料を置き、超音波パルスを送受する手法であり、液体試料であれば本装置のように試料セルに振動子を取り付ける。本測定装置のように、受信波形を整形して到達時間を示すパルスを作り、次のパルスと同期させることで、試料中の超音波伝播時間を求める手法をシングア라운드法と呼び、試料中の超音波伝播速度を求める手法として広く使用されている。なお、本装置における超音波発生装置のパルス発振周波数は50Hzである。

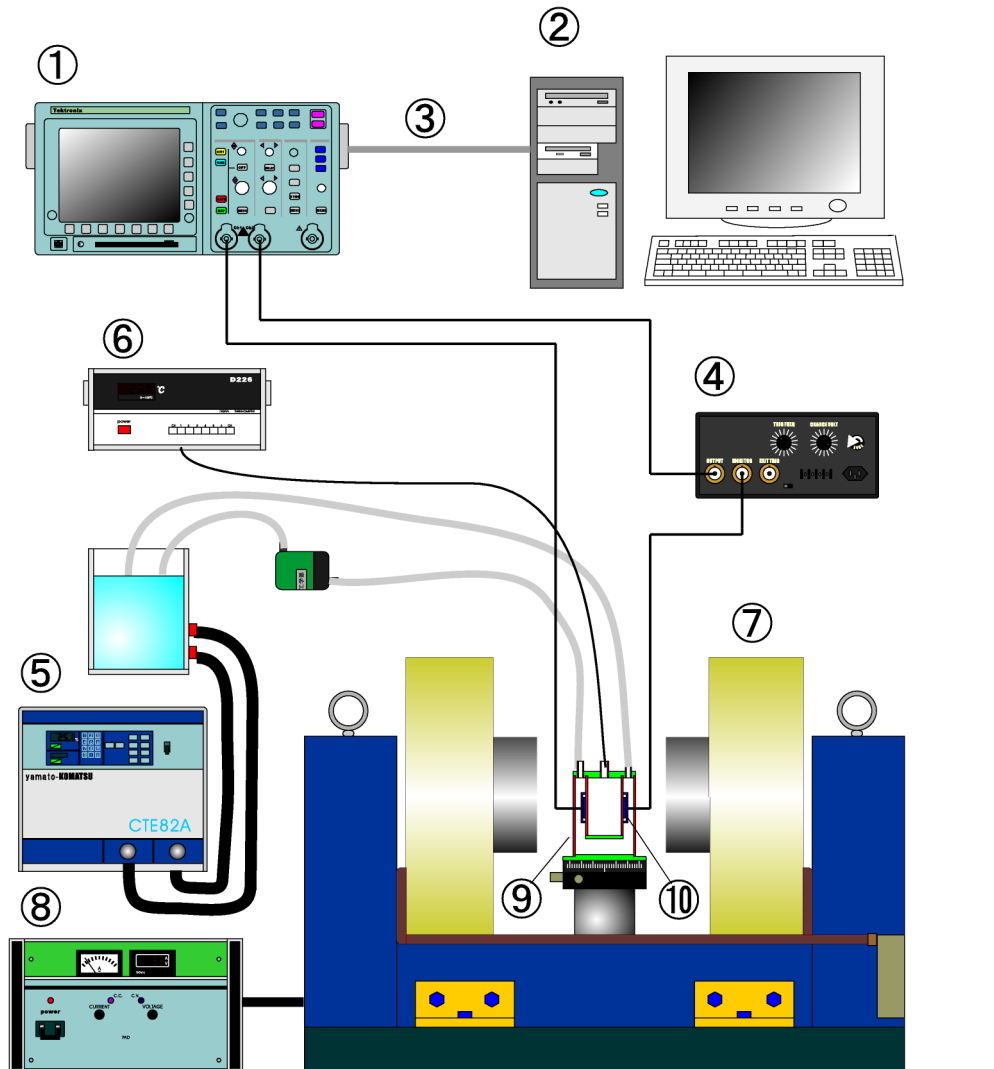
シングア라운드法において留意すべき点は、計測される伝播時間には、電気的な遅延時間も含まれ、これを差し引かなければならないことである。また、受信波の立ち上がりは必ずしも明確ではないことから、超音波の到達時間をどのように決めるかという問題もある。この点を踏まえて、3.6.1節に試験流体中の超音波伝播時間の計測方法を記す。



### 3.5 受信波形のパソコンへの取り込み

試験流体内を伝播し振動子に受信された伝播信号は、電気信号としてオシロスコープに取り込まれる。オシロスコープでは、ノイズを軽減するためアベレージ機能を用いることで受信波形を表示する。オシロスコープによって、試験流体中の超音波伝播時間は計測が可能となる。

さらに、受信波形の比較、減衰率の計測のためには、受信波形をパソコンに取り込む必要がある。3.2節に記したように GPIB を用いてパソコンとオシロスコープを接続し、受信波形をパソコンに取り込んだ。パソコンに取り込む際、GPIB 制御ソフトとしてナショナルインスツルメンツ(株)製の計測制御用アプリケーションソフト LabVIEW を用いた。制御プログラムのダイアグラムを図 3.3 に示す。GPIB によって、オシロスコープの表示波形がサンプリング周波数 10kHz でパソコンに取り込まれる。これは、パソコンで受信波形から計算を行うにあたり十分なサンプリング率である。



- |                            |                      |
|----------------------------|----------------------|
| ① Digital Oscilloscope     | ② Computer           |
| ③ GPIB cable               | ④ Pulse Generator    |
| ⑤ Temperature Control Unit | ⑥ Thermister         |
| ⑦ Electromagnet            | ⑧ Power Supply       |
| ⑨ Test Cell                | ⑩ Ceramic Oscillator |

図 3.1: Experimental system of ultrasonic propagation property

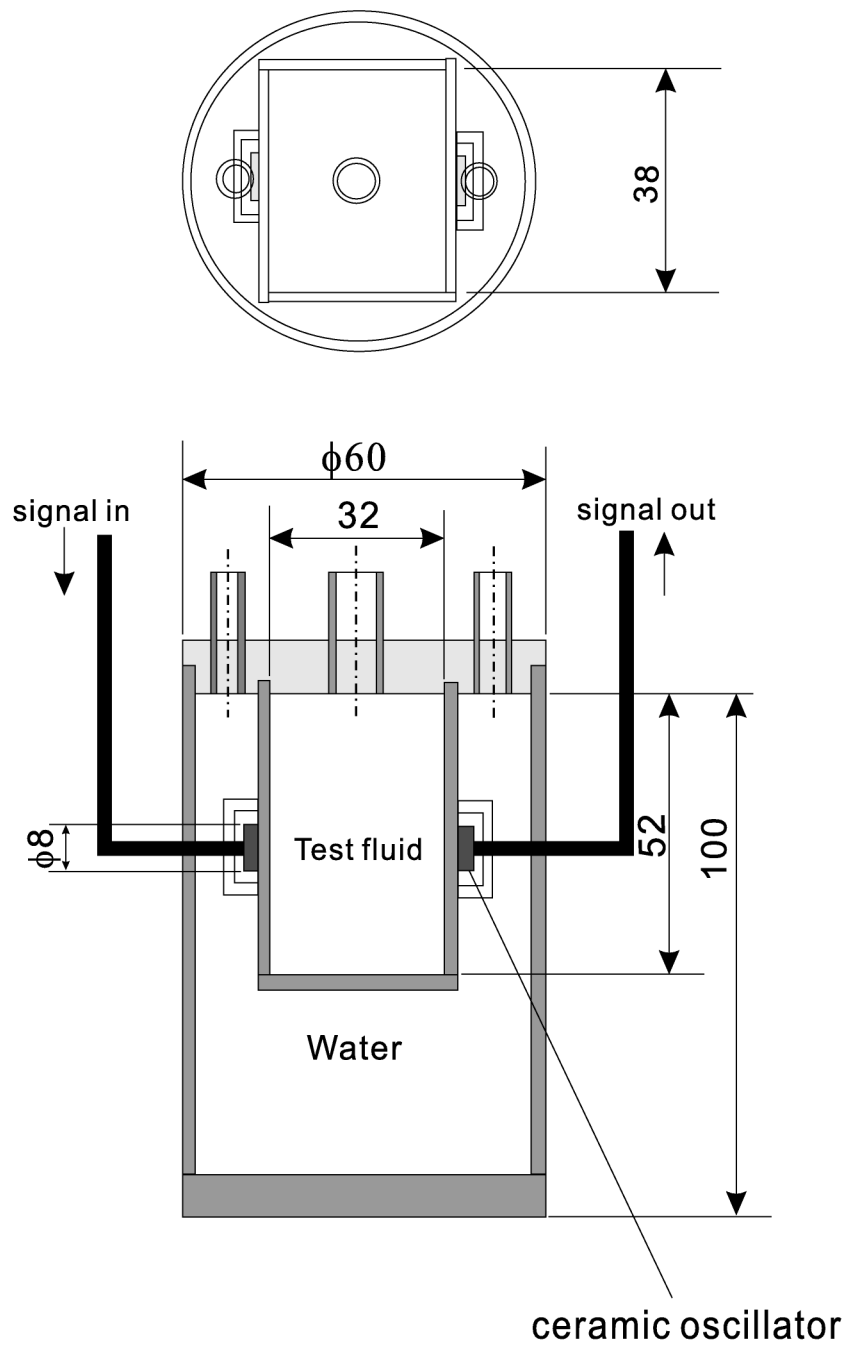


图 3.2: Detail of the test cell

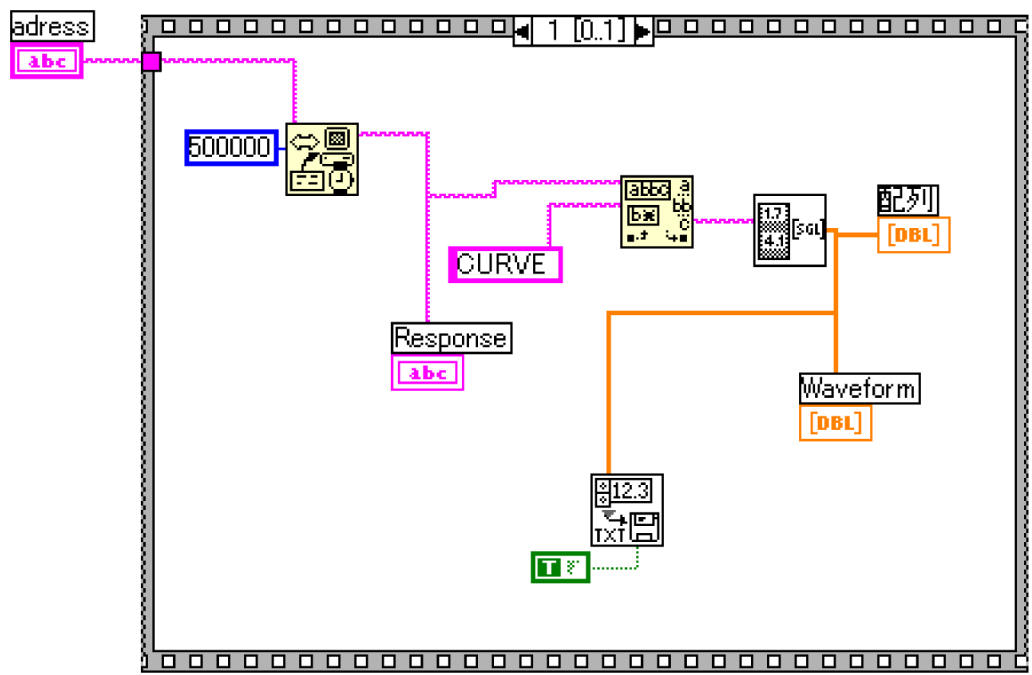
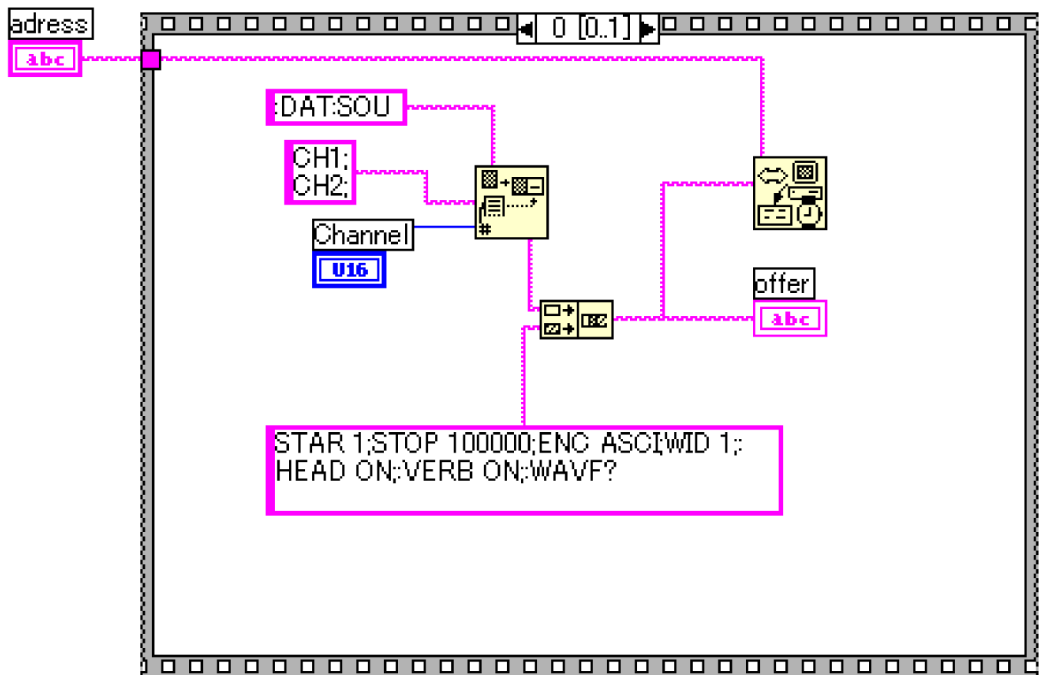


图 3.3: Diagram of GPIB control program

## 3.6 本計測システムに必要な検定

前節まで、本計測システムの装置概要を簡単に述べた。ここでは、実際の音波計測にあたり本装置に必要な検定実験を行った。考えるべき検定実験は、次の通りである。

1. テストセル内部容器の試験流体中の超音波伝播時間の計測
2. テストセル内部容器の試験流体中の超音波伝播距離の計測
3. 試験流体中の超音波伝播速度の計算、評価方法
4. 電磁石の磁場分布、励磁特性の計測
5. 温度計測に用いるサーミスターの検定

### 3.6.1 試験流体中の超音波伝播時間の計測

#### 超音波受信時刻の読み取り

オシロスコープに得られる受信波形の一例を図 3.4 に示す。図 3.4 では、 $f\text{Hz}$  の周波数の超音波を用いたと仮定する。また、ここに示す計測方法は、受信波形に乱れがない場合のものであり、後に示す MR 流体の計測では減衰が大きく、受信波形に乱れがあるものは別の方法で評価している。

図 3.4 中の (Receiving ultrasound) $\tau_0$  がオシロスコープより求められる超音波到達時刻である。しかしながら、この点は必ずしも明確ではないため、受信波形から  $\tau_0$  を特定するのは難しい。そこで、受信 1 周期後の時間軸と交差する点 (Zero cross point) $\tau_2$  を読み取り、次式の通り 1 周期分の時間  $1/f$  を差し引きすることで、受信時刻  $\tau_1$  とした。

$$\tau_1 = \tau_2 - \frac{1}{f} \quad (3.1)$$

ここで、図 3.4 にも示される通り、受信波形の 1 周期目は、受信波の立ち上がりにより、実際よりも大きな周期を持つてしまうため、 $\tau_0 = \tau_1$  とはならず、次式の通り、受信時刻の読み取りには、常に  $\delta$  の誤差を持つことになる。 $\delta$  も測定ごとに当然異なるが、これはごくわずかな差であるため、全ての計測で同じ誤差値を持つものとする。

$$\tau_1 = \tau_0 + \delta \quad (3.2)$$

#### 試験流体中の伝播時間の計測

計測システム図 3.1 を考えると、本測定システムでは、図 3.5 の概略に示される通り、 $T_c$  が計測されることになる。この  $T_c$  は、試験流体中の超音波伝播時間  $T$  以外に、システム内伝播時間  $T_a$  (超音波発生装置からの電気信号の伝播時間、テストセル内部容器側板の亚克力中の超音波伝播時間) が含まれている。精密な測定には、この装置内伝播時間  $T_a$  を差し引き、試験流体中の超音波伝播時間  $T$  を特定しなければならない。

図 3.6 にシステム内伝播時間  $T_a$  の計測方法を示す。図に示す通り、テストセルを作成する前にテストセル内部容器の側板に振動子を固定した状態でアクリル板同士を密着させ、上記と同様の方法で超音波伝播時間を計測する。この計測の後、テストセルを作成すれば、計測において、電気信号、超音波は全て同じ系のシステムを伝播することになるので、この伝播時間がシステム内伝播時間  $T_a$  である。

しかしながら、計測で求まる値は、実際の伝播時間より  $\delta$  の誤差を持っているので、計測される値は、どちらも  $T_c + \delta$ ,  $T_a + \delta$  となる。試験流体中の超音波伝播時間  $T$  は  $T_c$  から  $T_a$  を差し引いた値であるので、超音波伝播時間  $T$  は、次式で求まる。

$$T = T_c + \delta - (T_a + \delta) = T_c - T_a \quad (3.3)$$

以上から、受信時刻の読み取りによる誤差  $\delta$  は、計測には影響を与えない。

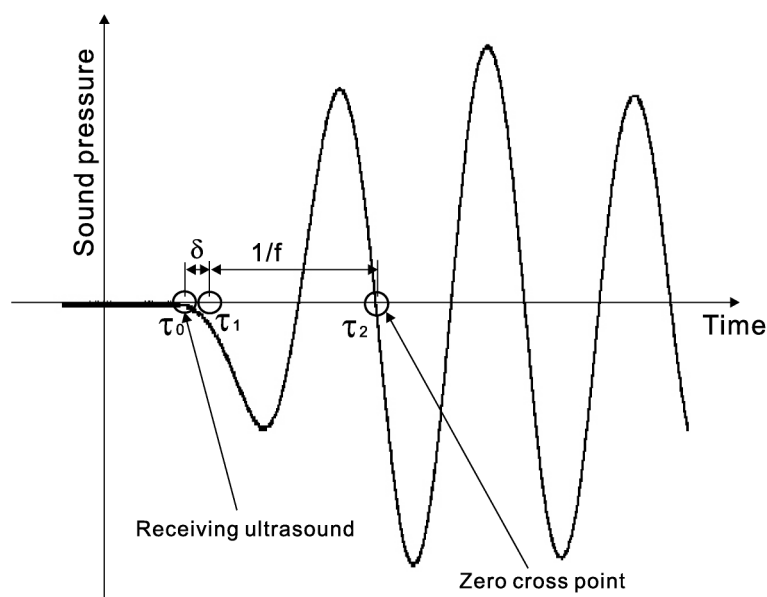


図 3.4: Wave form of ultrasound

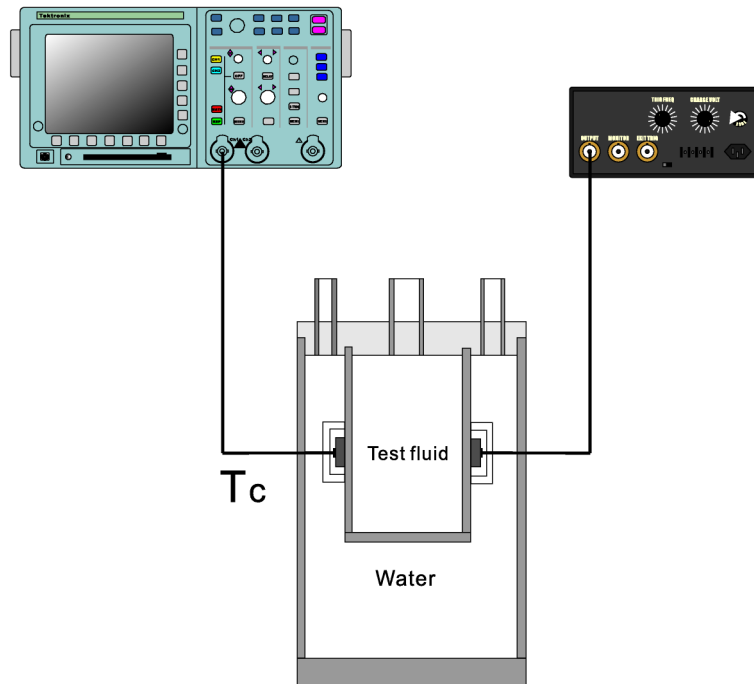


図 3.5: Measurement of  $T_c$

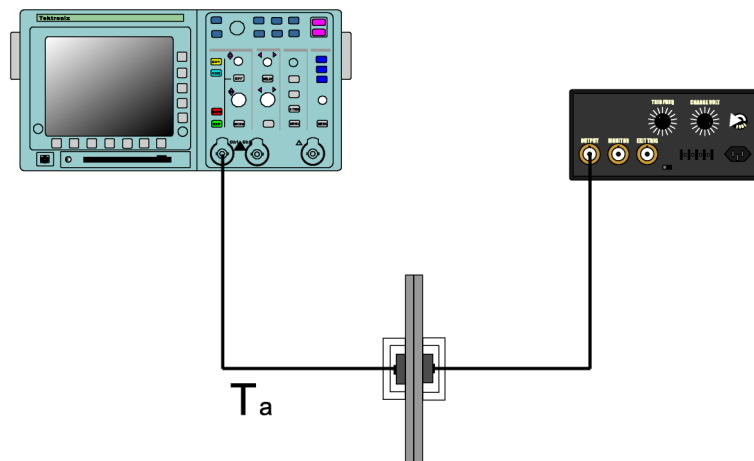


図 3.6: Measurement of  $T_a$

### 3.6.2 試験流体中の超音波伝播距離の計測

図 3.2 に示す通り、テストセル内部容器中の試験流体の超音波伝播距離  $L$  は 32mm として設計しているが、高精度の工作が不可能であるため、この伝播距離の計測も必要である。しかしながら、この伝播距離の計測は、完成したテストセルにおいて行わなければならないため、レーザーや超音波を用いた距離計測方法は適用できない。

そこで、作成したテストセルを用いて純水中の伝播速度の計測を行い、純水中の伝播速度として信頼されている。Grosso-Mader の計測値 [50] と比較、近似することで超音波伝播距離  $L$  の特定を行った。検定実験の結果の一例を図 3.7 に示す。上の図は超音波伝播距離を 32mm として計測した結果であり、Grosso-Mader の計測値と比較し、純水中の伝播速度を最小自乗法で近似し、超音波伝播距離  $L$  を逆算することで特定した。近似後が下の図である。以降の実験では、このようにして求められた伝播距離  $L$  を用いる。

### 3.6.3 試験流体中の伝播速度の計算

以上のように、作成したテストセル全てにおいて装置内伝播時間  $T_a$ 、超音波伝播距離  $L$  を求めた。これによって、先に示した試験流体中の超音波伝播時間  $T$ 、超音波伝播距離  $L$  から次式によって試験流体中の伝播速度  $V$  を求めることができる。

$$V = \frac{L}{T} \quad (3.4)$$

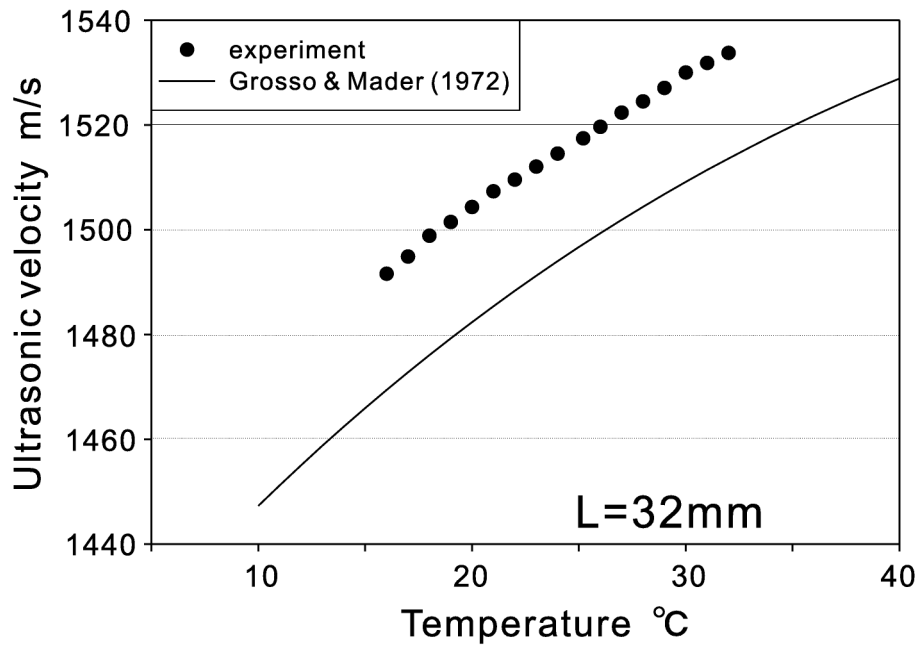
作成したテストセルそれぞれで、試験流体中の超音波伝播速度の計測を行なっても、各テストセルによる測定値の誤差は 0.1% 程度であり、ほぼ同等の値が得られた。さらに、本実験では、試験流体の伝播速度そのものを求めるときは、上記の方法によって行ったが、磁場印加などによる伝播速度変化の評価には、次に示す音速変化率を用いた。

無磁場下での伝播速度、伝播時間をそれぞれ  $V_0$ 、 $T_0$ 、印加磁場下での伝播速度、伝播時間をそれぞれ  $V$ 、 $T$  とし、音速変化率  $\Delta V/V_0$  は次のように与えられる。

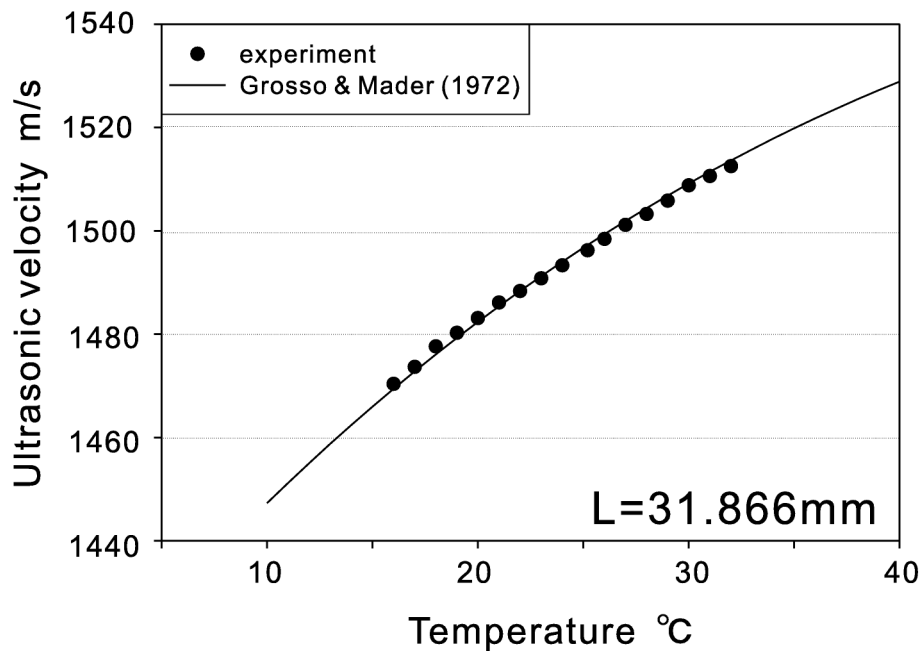
$$\frac{\Delta V}{V_0} = \frac{V - V_0}{V_0} = \frac{L/T - L/T_0}{L/T_0} = \frac{T_0 - T}{T} \quad (3.5)$$

本実験では、無磁場下での試験流体の伝播速度から印加磁場後の伝播速度の変化であるこの音速変化率  $\Delta V/V_0$  を用いることで、伝播距離  $L$  による誤差も解消することができる。





↓ Approximation



⊗ 3.7: Measurement of ultrasonic propagation length in the test cell

### 3.6.4 電磁石の磁場分布測定, 励磁特性

図 3.1 に示す電磁石の鉄芯部分であるポールピースは直径 125mm, 厚み 32.5mm の円筒形であり, 磁極間距離は 70mm となっている。磁極間にテストセルを配置した際, テストセル内部容器内における磁場分布は一様でなければならない。また, 電磁石の磁場は直流安定化電源の電流によって制御するため, この励磁特性の計測も必要である。そこで, 磁極間における磁場分布測定, 磁極間中心部における励磁特性の測定を行った。

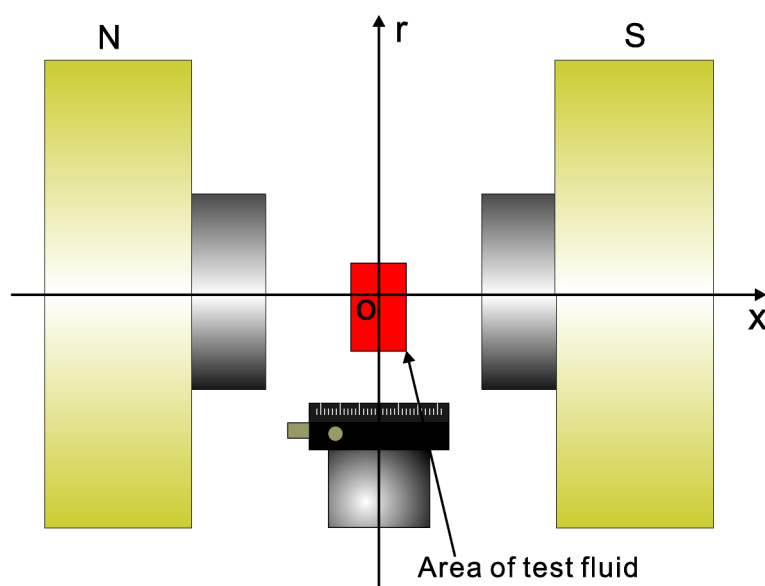


図 3.8: Measurement of magnetic field

#### 磁場分布測定

図 3.8 に示すように, 電磁石の極板間の中心を原点として磁極径方向 ( $r$ ) では -60mm から +60mm 間で, 磁極軸方向 ( $x$ ) では -35mm から +35mm 間において, それぞれ 5mm 間隔で電磁石への供給電流 5A, 10A, 15A, 20A の 4 通りについて磁場分布計測を行った。図中の磁極間の長方形部分がテストセル中の試験流体の占める領域である。

磁場分布計測結果を図 3.9, 図 3.10 に示す。図 3.9 は磁極径方向磁場分布, 図 3.10 は磁極軸方向磁場分布である。図に示すように, 磁極径方向, 磁場方向の全ての供給電流による磁場において, テストセル中の試験流体における磁場分布はほぼ一様であると考えられる。

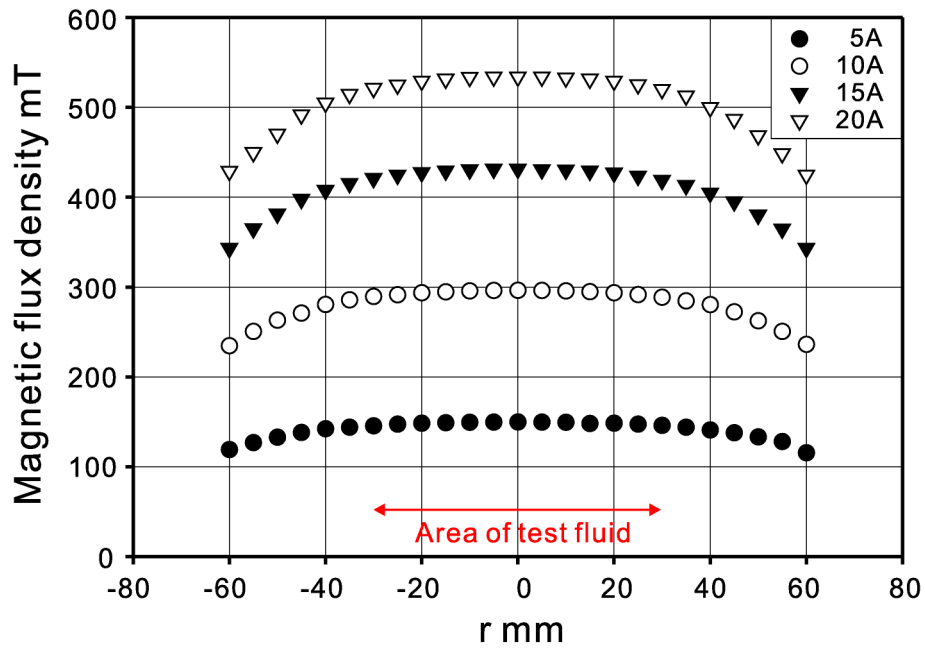


图 3.9: Magnetic field distribution ( $r$ )

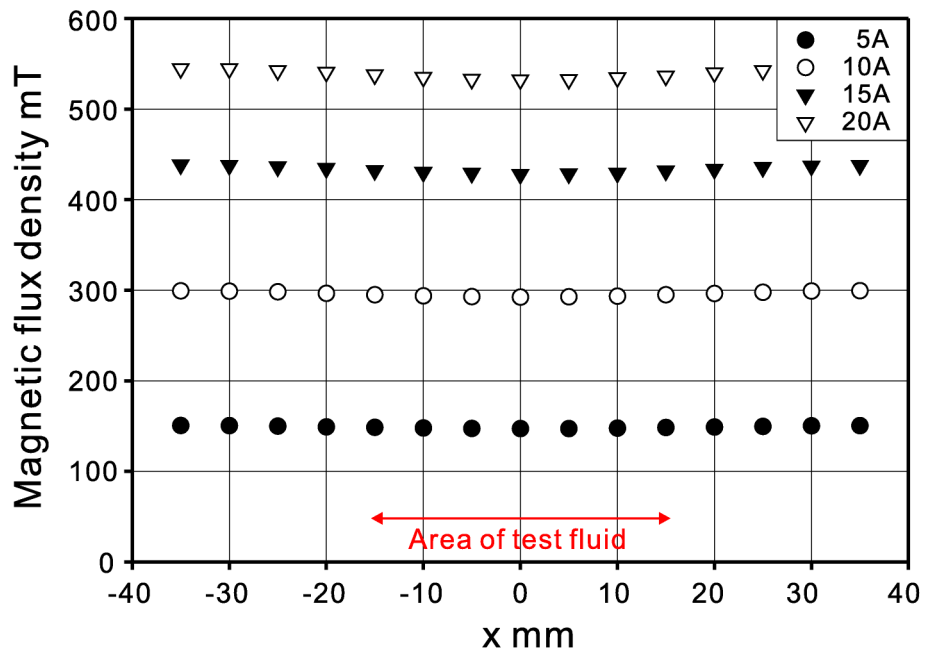


图 3.10: Magnetic field distribution ( $x$ )

## 励磁特性測定

図 3.8 の電磁石極板間中心位置の原点において、電磁石の供給電流を 0A から 20A まで 0.5A ごとに変化させて励磁特性を測定した。

励磁特性測定結果を図 3.11 に示す。図上に 3 次の多項式近似によって求めた近似曲線も同時に示す。この測定による近似曲線は電磁石の供給電流を  $I$ A, 磁束密度を  $B$ mT として,

$$B = -0.0204I^3 + 0.364I^2 + 27.424I \quad (3.6)$$

で与えられる。この近似式を用いて各供給電流に相当する磁場強度を求めた。

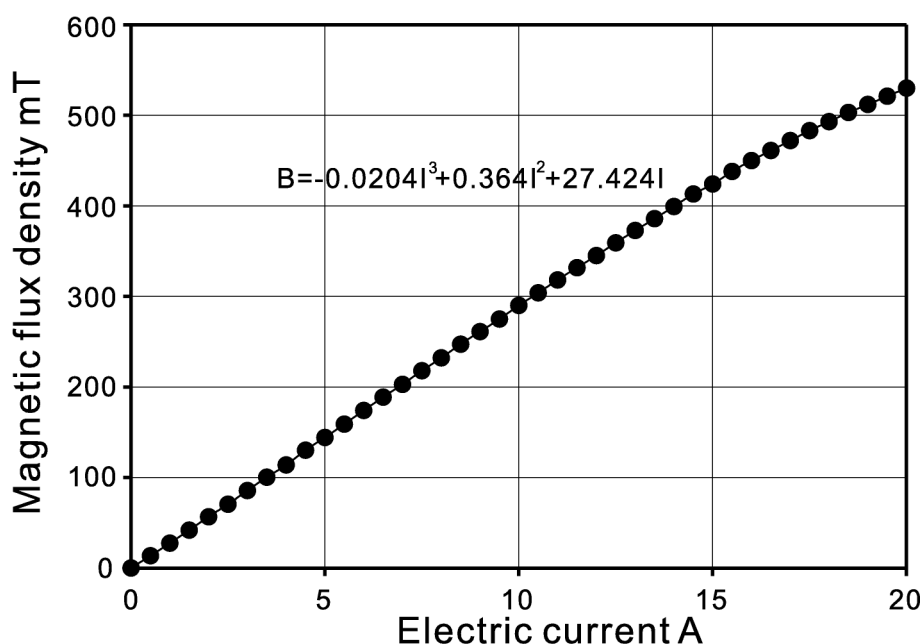


図 3.11: Magnetic field excitation

### 3.6.5 サーミスターの検定

図 3.1 において、試験流体の温度を計測するサーミスターの検定も精密温度計を用いて行った。サーミスターの温度計測には 0.2℃の誤差が生じていたため、サーミスターの補正を行い、正確な温度が計測できるようにした。

## 第4章 磁性流体中の超音波伝播特性と内部構造解析-伝播速度によるアプローチ

### 4.1 緒言

第1章で記した通り、磁性流体中の超音波伝播特性の研究は、UVPを用いた流動計測、印加磁場下における磁性流体の内部構造解析において非常に重要である。そこで、磁性流体中の超音波伝播特性に関して、本章では伝播速度変化に基づくアプローチ、第5章に減衰に基づくアプローチと章分けした。本章では、磁場印加による磁性流体中の伝播音速変化に注目した、超音波伝播特性の実験結果と考察、過去の理論研究との比較、内部構造変化の検討を行う。また、実験結果を記す前に、現在までの磁性流体中の超音波伝播特性の研究、特筆すべき理論、磁場印加によって形成される鎖状クラスターの詳細、鎖状クラスター形成に関連した現在までの磁性流体内部構造研究について詳細に取り上げる。

### 4.2 磁性流体中の超音波伝播特性における過去の研究

本論文では、磁性流体中の超音波伝播特性について、第4章：伝播速度によるアプローチ、第5章：音波の減衰によるアプローチと章分けしたが、現在まで進められている磁性流体中の超音波伝播特性の研究の歴史を紐解くにあたり、伝播速度と吸収で磁性流体中の超音波伝播特性研究を厳密に分けることは難しい。よって、本節において伝播速度についてのみならず吸収も含めた現在までの磁性流体中の超音波伝播特性の研究の流れについてここにまとめる。

#### 4.2.1 コロイド溶液、懸濁液中の超音波伝播特性

第1章において、無磁場下の磁性流体は一種のコロイド溶液であると記した。また、MR流体は、磁性流体よりも内部粒子が大きい一種の懸濁液(サスペンション)である。懸濁液中の超音波伝播特性研究は古くからなされており、超微粒子の生成技術の進歩[2]と共に、コロイド溶液、懸濁液中の超音波伝播特性研究も進んできている。

Harker-Temple[51]は、過去になされた懸濁液中の超音波伝播特性の理論を伝播速度と吸収の両面でまとめあげ、特に懸濁液中の超音波伝播速度に関して、理論から計算を行い、過去の研究から求められる計算結果との比較を行っている。この理論式は懸濁液中の超音波伝播特性理論とし

て一般的に用いられている。Holmesら [52] は周波数 55MHz 程度までの超音波で実験によって懸濁液中の伝播速度と吸収を計測し、超音波スペクトロスコピーを取ると共に、Harker-Temple の理論との比較を行っている。さらに、懸濁液の内部粒子の大きさを 3 通りに変えて同様の計測を行い流体間の比較も行っている [53]。Hibberdら [54] は内部粒子の界面活性剤の異なる懸濁液に対して伝播速度において超音波スペクトロスコピーを取り、界面活性剤の影響を検討している。このように、懸濁液中の超音波伝播特性研究は、懸濁液中の内部粒子の構造を解析するうえで大きな手がかりとなっている。

#### 4.2.2 磁性流体中の超音波伝播特性の研究

磁性流体中の音波物性 (超音波伝播特性) の研究は、磁性流体内部構造の解析方法としても有効視されてきて、理論研究、実験研究がなされてきている。しかしながら、この物性研究は非常に難解であり、研究者ごとにその知見が分かれる部分が多々ある。ここに磁性流体中の超音波伝播研究をまとめて記す。

#### 理論研究

印加磁場下における磁性流体中を伝播する音波物性の研究は、Parsons[55] の研究が始まりだと考えられる。Parsons は印加磁場下の磁性流体中をネマティック液晶とみなし、磁性流体中の伝播速度と吸収の異方性の理論を論じた。Parsons の理論は、磁場方向と超音波伝播方向のなす角を  $\phi$  としたとき、 $\phi = 0^\circ$  の時の伝播速度を基準として、伝播速度の異方性は、 $\sin^2 2\phi$  の関数になると論じた (詳細は、4.5 節に記す) が、後になされた実験的な研究とは一致が見られていなかった。しかしながら、本研究の磁性流体を薄めた異方性の計測において、Parsons の液晶中の異方性の理論に近い結果が得られている。さらに、Taketomi[56] によって Parsons の理論の近似レベルを上げ、磁性流体中の磁場印加時に形成される鎖状クラスターの回転運動や並進運動による減衰を考慮に入れた異方性の理論式が論じられた。Gotoh-Chung[57] は、Taketomi の理論研究以前に磁性流体の電気量の関係から吸収係数の異方性を論じている。Henjes[58] は、流体力学の基礎方程式とマクスウェルの方程式から導いた伝播速度の異方性を提案した。Sokolov-Tolmachev[59] は、ベース液の違いに注目して、水ベース磁性流体、ケロシンベース磁性流体中の伝播速度の異方性を物性の違いから理論付けた。

#### 実験研究

上記した理論研究においても付随した実験はいくらかなされているが、実験によって磁性流体中の超音波伝播特性を論じた研究は次の通りである。

Chung-Isler[60, 61] は、水ベース磁性流体における伝播速度と吸収の異方性を計測し、Parsons の理論研究との比較を行っている。しかしながら、計測精度にやや問題があると考えられる。Krueger[62] は、異方性の計測を行ったうえで、理論モデルを構築し内部構造変化を論じているものの、計測結果が少なく結果の比較にはやや疑問を感じる。Vaidya-Mehta[63] は印加磁場下の磁性流体中の伝播速度について、温度をパラメータとしてその依存性を計測している。340K 付近において特異な変化が計測されており、内部微粒子の運動を考える上に非常に興味深い結果であるといえる。Mehta-Patel[64] は、異方性を磁性流体の温度と磁場強度の両面から計測しているが、こちらも計測結果が少なく、計測結果にもばらつきが多く問題がある。Gogozov ら [65] は、数種類の磁性流体において伝播速度を計測し、温度依存性を比較している。

1990 年前後の磁性流体中の超音波伝播特性の主な実験計測は、上述した通りであるが、第 1 章に記した通り、超音波の計測は非常に繊細であり、当時は計測技術も進んでいないため、計測精度は高いとはいえない。これが、研究者ごとに実験結果に差異が見られる一つの要因であると考えられることができる。

## 最近なされている研究

最近の磁性流体中の超音波伝播特性の研究は、ポーランドの超音波研究所にて盛んに行われている。当初は上記の理論研究に対して計測を進める形で研究がなされていたが、ごく最近になり、生体適合性のある磁性流体 (Biocompatible Magnetic Fluid) が開発され [66]、エコー検査への適用、感度増加を目的として、超音波物性研究が進められている。

具体的には、Skumiel らによって一連の研究が 1995 年以降になされている。1995 年に磁性流体中の超音波伝播速度のヒステリシス、異方性を実際に計測し、過去になされた理論解析との比較を行っている [67]。しかしながら、当初は、計測のサンプリング数の少なさや精度に問題があった。さらに吸収係数の計測 [68] も行っているものの、非常にばらつきの多い結果であった。そこで、2000 年に入り、Taketomi の理論式を用いて、磁性流体の粘度や内部強磁性粒子径などのパラメータを用いることで、超音波物性の変化を印加磁場の変化と照らし合わせて求めている [69, 70]。この結果、磁場印加時の磁性流体の粘性係数や弾性定数を見積もることができた。しかしながら、パラメータの取り方が要因となる誤差が懸念されていた。さらに、2002 年からは Jozefczak らによって、吸収係数のヒステリシスの計測 [71]、伝播速度の経時変化 [72]、磁場印加方法による検討 [73, 74] がなされている。Biocompatible magnetic fluid が開発されてからは、この磁性流体に研究対象を移し、生体への応用を目的とした超音波の計測 [20, 75] を行っている。

## 著者らの研究

著者の所属する研究グループでも 2000 年以降、磁性流体中の超音波伝播特性の研究を行っており、当初は伝播速度を中心とした計測を行った。その結果、前述のポーランドの研究グループに対して、競合する形で実験計測を行っている。音波物性研究であるため、計測のターゲットは、伝播速度や減衰率などで同様であるが、研究の対象、目的などは大きく異なっている。我々の計測システムにおいて、彼らの研究結果の検証なども行っているが、彼らの研究と比較し違いをあげるのであれば、次の通りである。

1. 超音波による磁性流体の流動計測のため、磁性流体中の超音波伝播速度を様々な検定を行い詳細に計測している。
2. 印加磁場下の内部構造変化の解析を目的としている。このため、次に上げる通り実験条件に大きく差が出る。
  - (a) 最大印加磁場強さが大きい
  - (b) 濃度やベース液の違う多くの種類の磁性流体を用いている
  - (c) 流体温度を一定のもとで計測を行っている
3. 可視化実験を行っている (Appendix A.2 に詳細を記す)
4. MR 流体中における計測を行い比較検討している

これらの研究は、2000 年に Sawada らによって始まる。Sawada ら [76] は、磁性流体中の超音波計測システムを構築し、1MHz の周波数の超音波において伝播速度、減衰率の計測を行った。さらに、鎖状クラスターの可視化を行うことで、超音波伝播特性から内部構造変化を多角的に検証した。しかしながら、計測に関して、サンプリング周波数が低いなど精度の検定等にやや問題があった。そこで、次の通り計測システムを一変した。

1. デジタルオシロスコープを用いることでサンプリング周波数を上げた (20MHz → 1GHz)
2. 10MHz 程度の周波数まで対応できるようにした
3. GPIB を用いることで、受信波形をパソコンに高速で取り込める (減衰率計測のためのデジタル処理が可能になる)
4. 伝播速度の計測に対し、様々な観点から検定を行った
5. 磁場強さをパソコンでも制御ができるようにした (磁場掃引が一定になる)

この計測をもとにして、磁性流体、MR 流体中の超音波伝播特性の伝播速度のヒステリシス、異方性など様々な観点から多くの計測を行い、クラスター形成などの内部構造変化の解析を行った [77, 78]。



## 4.3 磁場印加時の磁性流体の挙動 (クラスターの形成)

### 4.3.1 内部粒子の構造

磁性流体の内部粒子は 10nm 程度であり，強い磁性を有するため，粒子間に磁気力やファンデルワールス力などが吸引力として働き，粒子が凝集してしまう。このため，界面活性剤を添加することで，凝集を防いでいる。内部粒子構造の概念図を図 4.1 に示す。図に示す通り，オレイン酸などの界面活性剤の分子構造は，一般に極性基 (親水基) と無極性基 (疎水基) で構成されている。

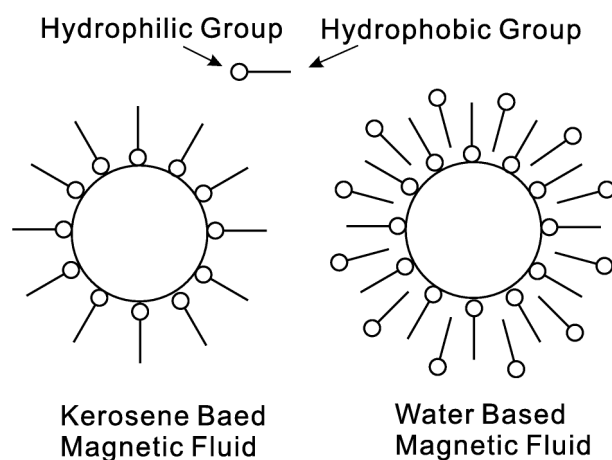


図 4.1: Inner particle of magnetic fluid

マグネタイト粒子をケロシンや飽和炭化水素といった極性の小さな溶媒に分散させるには図 4.1 の左図のように単分子層吸着によって吸着させることで，安定に分散することができる。これに対し，水を溶媒とする場合には，右図のように二分子層吸着によって，2 種類の界面活性剤を二重に被覆することで親水基が外側を向くので，安定分散を図ることができる。この内部粒子構造の違いも超音波の伝播に影響を与えていると考えられる。

### 4.3.2 鎖状クラスターの形成

磁性流体に磁場を印加すると，内部粒子の安定分散が保てなくなり，一部が凝集し鎖状クラスターが生成されることが判明している。本研究では，鎖状クラスターの可視化実験も行なった。可視化実験の詳細は Appendix A.2 にまとめる。鎖状クラスターの可視化画像を図 4.2 に示す。図の画像は，磁性流体に 40mT の磁場を印加し，磁場印加直後 (0.5 分後)，5 分後，10 分後，30 分後の様子である。

磁性流体に磁場を印加すると内部粒子の一部が凝集し，1 次クラスター (1st cluster) を形成す

る。さらに、この1次クラスターが磁場方向に鎖状に連なっていく。この連なりを鎖状クラスター (Chain-like cluster) と呼んでいる。この鎖状クラスターの形成は特に水ベース磁性流体において顕著に表れている。図4.2に示すように、鎖状クラスターは、磁場印加によって、時間をかけて太く長く成長するのが確認できる。鎖状クラスターのスケールは、Jeyadevan-Nakatani[79]の可視化実験から最大で数百  $\mu\text{m}$  程度まで成長するとされており、本研究の可視化実験においてもほぼ同様の結果が得られている。

この鎖状クラスターの形成は、磁性流体の物性変化の様々な要因となり、磁性流体の工学的な応用の妨げとなっているといえる。さらに医療分野への応用を考える上でも、鎖状クラスターが形成されている状態では、薬剤誘導やハイパーサーミアにおいて期待している効果が薄れることが問題となっている。内部粒子の凝集現象や鎖状クラスターの形成といった内部構造の変化は未だに未解決の部分が多く、この内部構造の解明は、磁性流体の流動特性などの物性の解明だけでなく、工学的応用、医療分野への応用の第一歩として非常に重要な位置を占める。

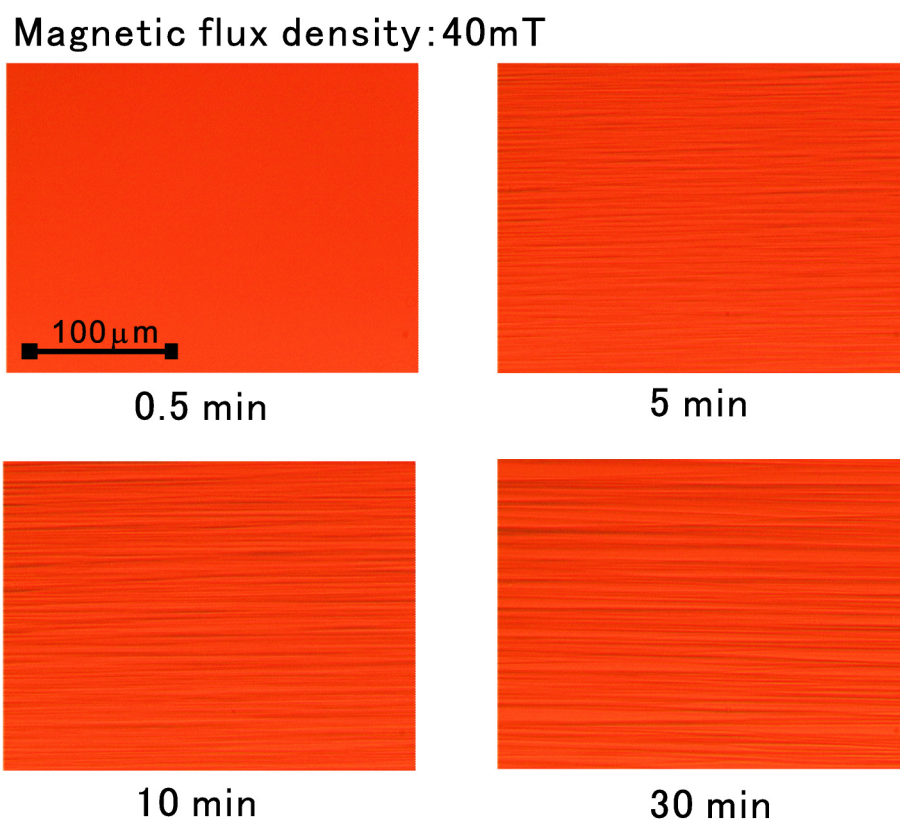


図 4.2: Chain-like cluster

## 4.4 磁性流体内部構造解析の研究

磁性流体は、黒褐色の不透明液であるため、その内部構造の観察は非常に困難である。また、鎖状クラスター形成には磁場を長時間にわたって印加する必要があるため、この磁場が測定機器へ悪い影響を及ぼすことも懸念される。この解析に対して、本研究では、超音波伝播特性によって、磁性流体の内部構造変化の解析にアプローチすることを目的としているが、これまで、シミュレーションや可視化実験などによる解析が図られており、ここにその研究の概要を記す。

### 磁性流体内部粒子の凝集現象の研究

コロイド溶液中の微粒子の凝集現象は、従来より様々な報告がなされて来ている。Hayes[80]は光学顕微鏡によってこの凝集現象を検証した。これに対し、磁性流体では、磁場存在下における内部粒子の凝集現象は、Sano-Doi[81]や神山-佐藤[82]によって理論的に解析が行われた。特に神山-佐藤は、統計力学の概念を基にして解離平衡論とクラスターを構成する平均粒子数を式に与えることで水ベース磁性流体の凝集現象を解析した。Jonesら[83, 84]は、磁性流体を薄膜状にすることで磁場印加時における内部粒子の凝集現象を可視化し、解析を行っている。これらの理論と実験の結果をまとめて、Taketomiら[85]は、薄膜状の磁性流体の内部粒子の凝集現象の可視化を行うと共に、理論的な解析を行っている。この可視化実験で鎖状クラスターの形成も確認されている。

### クラスター形成のシミュレーション

磁性流体内部粒子の凝集、鎖状クラスターの形成のシミュレーションは佐藤[86]を中心に行われているものが有名である。佐藤は、当初理論的背景からモンテカルロ法を用いてアルゴリズムを構築し、モデル系に対するシミュレーションを行うことでこの有用性を論じた。この手法を用いて2次元系に対するシミュレーションを行い鎖状クラスターの捕獲に成功した[87]。さらに、3次元系に対しても同様のシミュレーションを行い、凝集構造の粒子間の引力、磁場強さへの依存性、内部構造自体を明らかにすることも試みた。その結果、2次元系とは異なるシミュレーション結果が得られ、これに基づいて鎖状クラスターの形成過程を解析した[88]。

### 鎖状クラスターの可視化

凝集現象の解明にも一部可視化による研究がなされているが、鎖状クラスターといった内部構造の解明には、可視化による研究が最も一般的で、その数も多い。しかしながら、一言で可視化と言っても磁性流体の可視化は非常に難しい。その理由として、磁性流体は黒色不透明であるため、光学顕微鏡の適用に技術を要する。磁場を印加した状態での観察が必要となる。内部粒子自

体の観察には、電子顕微鏡を用いなければならない。などがあげられる。

鎖状クラスターの可視化の研究をさかのぼってみると、Cernakらは、薄膜状の磁性流体において、磁場を垂直方向 [89] および水平方向 [90] を印加することで、形成される鎖状クラスターを上方向と横方向から光学顕微鏡によって観察した。磁場印加時間による、鎖状クラスターの数を評価したが、結果にはばらつきが多い。Hongら [91] は、薄膜状のケロシンベース磁性流体において光学顕微鏡を用いて観察し、磁場の強さによる形成されるクラスターの量の違いを観察した。Donselaarら [92] は、3種類の磁性流体において磁場を印加せずに、サンプルを乾燥させることで電子顕微鏡によって粒子の凝集した1次クラスターの観察を行った。Sawadaら [93] は、光学顕微鏡を用いて、薄膜状の磁性流体に磁場を印加し、コンデンサーレンズを用いることでレイリー散乱光を捕らえ、鎖状クラスターの可視化を行った。不透明の磁性流体に対してレイリー散乱光によって可視化した点で、革新的であるといえる。Jeyadevan-Nakatani [79] は、同様にレイリー散乱光によってクラスターの可視化を行い、イオン磁性流体と水ベース磁性流体において、磁場除去後のクラスターの崩壊過程を観察している。Yangら [94] は、薄膜状の磁性流体に磁場を印加する方向を $0^{\circ}$ ~ $90^{\circ}$ 傾けて観察することで鎖状クラスターの形成を立体的に観察した。中谷 [95] はレイリー散乱光を捕らえる可視化手法、電子顕微鏡を用いる可視化手法をまとめ、さらに撮影結果を磁気構造から鎖状クラスターの形成過程を検討した。さらに、鎖状クラスターの形、サイズの議論を行った。

このように、可視化による内部構造の解析は多くなされている。内部構造の解析の実験を考えると、可視化実験では磁性流体の液量は、薄膜状にするためわずか数 $\mu\text{l}$ 程度であり、これに対して、本研究の超音波計測では約50mlであり、液量は格段に多い。薄膜状では内部粒子数も少ない等の理由から、磁性流体の液量の違いも鎖状クラスターの形成に影響を与えらる。この点を考えても、本研究のように超音波により、薄膜状ではない磁性流体の内部構造解析を行なうことは非常に意義深い。

## 4.5 磁性流体中の超音波伝播速度理論

磁性流体中の超音波伝播速度の理論を考えるのは非常に複雑で、各種パラメータが多く存在し、研究者ごとに見解が異なっている。また、理論研究に対して実験研究もなされているが、理論式には多くの未知パラメータが含まれているため、これらを適当に与えることで実験との比較を行っている。ここでは、本研究と関わりの深い、磁性流体中の音波伝播速度に関して書かれたParsonsの理論 [52] とSokolovの理論 [59] を簡単にまとめ、後の検討の参考とする。細かな理論式の導出はAppendix Bにまとめる。

### 4.5.1 Parsons の理論

Parsons の理論は、磁性流体中の超音波伝播特性における初の理論研究と言われている。Parsons は磁場の印加された磁性流体をネマティック液晶とみなし、液晶理論から磁性流体中の超音波伝播速度の異方性に関する理論式を導いている。

Cartesian 座標系を用い、 $z$  方向に磁場  $\mathbf{H}$  が作用し、 $xz$  平面に音波が伝播しているとすれば、伝播速度  $V$  は以下で表される。

$$V = V_0(1 + \Delta) \quad (4.1)$$

ただし、 $\Delta$  は以下で定まる。

$$\Delta = C_0 \left( \frac{\lambda^2}{8} \right) \left( \frac{\gamma_1 \omega}{\rho_0 V_0^2} \right) \left( 1 - \frac{\omega^2}{\omega_c^2} \right) \frac{\omega \tau_m}{(1 - \omega^2/\omega_c^2)^2 + \omega^2 \tau_m^2} \sin^2 2\phi \quad (4.2)$$

ここで、 $\rho_0$  は磁性流体の密度、 $\omega$  は超音波角周波数、 $V_0$  は  $z$  方向伝播する無磁場下の磁性流体中の伝播速度、 $\phi$  は音波伝播方向と磁場方向のなす角度、 $C_0$  は粒子濃度、 $\omega_c$  は以下で与えられる強磁性微粒子の固有振動数である。

$$\omega_c = \sqrt{\chi_0 H / \rho_0 C_0 a_{cl}^2} \quad (4.3)$$

$\chi_0$  は磁性流体の平均磁化率、 $a_{cl}$  は磁性クラスターの代表長さを表す。 $\tau_m$  は振動緩和時間で

$$\tau_m = \gamma_1 / (\chi_0 H) \quad (4.4)$$

と定まる。

また、 $\lambda$  は以下で表される。

$$\lambda = \gamma_2 / \gamma_1 \quad (4.5)$$

定数  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  は液晶理論における Leslie 係数  $\alpha_i$  を用いて

$$\gamma_1 = C_0^{-1}(\alpha_2 - \alpha_3) \quad (4.6)$$

$$\gamma_2 = C_0^{-1}(\alpha_2 + \alpha_3) \quad (4.7)$$

と書ける。

以上から、式 (4.1)、式 (4.2) は、次のように表せる。

$$\frac{\Delta V}{V_0} = F(C_0, f, H) \sin^2(2\phi) \quad (4.8)$$

この式に表されるように、Parsons は印加磁場下の音速の異方性は  $\sin^2 2\phi$  に依存すると理論付けた。

そこで、具体的な数値を見積もる。本研究の磁性流体の物性、実験条件を考慮すると、磁性流体の密度  $\rho_0: 1.412 \times 10^3 (\text{kg/m}^3)$ , 粒子濃度  $C_0: 40 (\%)$ , クラスターの代表長さ  $a_d: \text{約 } 200 (\mu\text{m})$ , 磁性流体の磁化  $\chi_0 H: 1.0 \times 10^4 (\text{A/m})$  とおおよその物性値を見積もることができる。この値をもとに本理論から強磁性粒子の固有振動数  $\omega_c$  は、 $\omega_c = 2.1 \times 10^4$  程度である。また、本研究に用いた超音波の周波数は  $2\text{MHz}$  であるので、角周波数  $\omega = 1.3 \times 10^7$  である。以上から、超音波の各周波数  $\omega$  は、強磁性粒子の固有振動数  $\omega_c$  に対して、 $10^3$  程度大きな値が得られた。Parsons によると、 $\omega_c \gg \omega$  では、異方性が存在せず、 $\omega_c \ll \omega$  において、異方性を見積もることができるとしているので、理論による比較も比較的妥当なものであると考えることができる。しかしながら、液晶理論に基づく Leslie 係数の具体的な値を、本研究のみから見積もることは難しく、本研究における理論との比較も定性的なものとする。

Parsons の理論結果と実験結果の比較では、Parsons は磁性流体の内部構造変化を液晶とみなしているためか、後になされた実験との一致が見られていない。しかしながら、本研究では磁性流体を薄めた時に、Parsons の示す理論に近い傾向が得られており、混相流においてもこのような傾向が得られるといわれていることから、上記の具体的なパラメータの見積もりに基づき、この理論と比較することで、磁性流体の内部構造解析を試みる。

#### 4.5.2 Sokolov の理論

磁性流体を外部磁場  $\mathbf{H}$  中におく。磁場方向  $\mathbf{H}$  と超音波伝播方向のなす角を  $\phi$  とすると、磁性流体力学の基礎方程式から次の音速を求めることができる。

$$c = c_0 \sqrt{\frac{1}{2} \left\{ \left( 1 + \frac{c_A^2}{c_0^2} \right) \pm \sqrt{\left( 1 + \frac{c_A^2}{c_0^2} \right)^2 - 4 \frac{c_A^2}{c_0^2} \cos^2 \phi} \right\}} \quad (4.9)$$

ここで、 $c_0$  は無磁場下の磁性流体の音速、 $c_A$  は Alphen の音速で次のように定義される。

$$c_A = \sqrt{\beta_{\perp} \mu_0 \cos^2 \phi} \quad (4.10)$$

と与えられる。 $\mu_0$  は単位体積あたりの飽和磁化である。

また、 $\beta_{\perp}$  は  $\beta_{\perp} = \beta_{xx} = \beta_{yy}$  であり、 $\beta$  は次式で記され、構成する物質から見積もることができる。

$$\beta_{ij} = \frac{\rho_0}{\chi_{ij}} \quad (4.11)$$

ここで、 $\rho_0$  は磁性流体の密度、 $\chi_{ij}$  は各構成要素の磁化率である。

以上から、Alphen の音速  $c_A$  を見積もることで、磁性流体中の音速とその異方性を議論することができる。

Sokolov の理論では, Alphen の音速  $c_A$  を見積もらなければならないことに問題があるが, 超音波伝播方向と磁場方向のなす角  $\phi$  によって, 異方性の式が与えられているので, その傾向を検討することができる。本研究では, この理論に基づいた検討も行った。

## 4.6 磁性流体中の超音波伝播特性の実験

### 4.6.1 磁性流体の物性

本実験で用いた磁性流体は次の通りである。

1. 水ベース磁性流体 W-40
2. ケロシンベース磁性流体 HC-50
3. 炭化水素ベース磁性流体 EXP04019
4. 炭化水素ベース磁性流体 EXP01052

なお, EXP04019, EXP01052 については, ケロシンベースであると予想できるが, ベース液が公表されていないため, 炭化水素ベースとした。各磁性流体の物性を表 4.1 に示す。各物性値は製造会社公表値であり, 密度, 粘度は流体温度が 25 °C の時の値である。

表 4.1: Properties of magnetic fluids

磁性流体	W-40	HC-50	EXP04019	EXP01052
製造会社	タイホー工業(株)	タイホー工業(株)	フェロテック(株)	フェロテック(株)
内部粒子	マグネタイト	マグネタイト	マグネタイト	マグネタイト
溶媒	水	ケロシン	炭化水素	炭化水素
重量濃度 (wt%)	40	50	非公表	非公表
密度 (kg/m <sup>3</sup> )	1.40×10 <sup>3</sup>	1.39×10 <sup>3</sup>	1.049×10 <sup>3</sup>	1.340×10 <sup>3</sup>
粘度 (mPa·s)	25	15	2.18±10%	4.80±10%

### 密度, 粘度, 磁化率の計測

流体の密度, 粘度は, その温度依存性を調べるために独自でも測定を行った。ただし, HC-50 に関してのみ測定ができていない。測定結果を密度を図 4.3, 粘度を図 4.4 に示す。各値の近似直線も併せて記した。実験の検討においては, HC-50 以外はこの測定結果を用いて物性値を計算している。磁化率の測定も全ての磁性流体において行った。測定結果を図 4.5 に示す。

## 磁性流体の希釈

本実験に用いる試験流体として、希釈した磁性流体も扱った。水ベース磁性流体 W-40 を水で希釈し、重量濃度 40%(原液), 30%, 20%, 10%とした流体と、ケロシンベース磁性流体 HC-50 をケロシンで希釈し、重量濃度 50%(原液), 37.5%, 25%, 12.5%とした流体を用いた。

図 4.6 に水ベース磁性流体 W-40 を希釈した磁性流体の磁化率を、図 4.7 にケロシンベース磁性流体 HC-50 を希釈した磁性流体の磁化率を示す。ただし、HC-50 を 12.5%に希釈したものは計測できていない。

### 4.6.2 実験パラメータ

本研究の実験で用いた可変パラメータは、以下の通りである。これらを組み合わせることで様々な条件において磁性流体中の超音波伝播特性の実験を行った。

1. 磁性流体の種類：W-40, HC-50, EXP04019, EXP01052 の 4 種類
2. 超音波の周波数：2MHz
3. 磁性流体への印加磁場強さ：0mT から 550mT まで可変
4. 超音波伝播方向と磁場方向のなす角  $\phi$ (詳細は図 4.8)： $0^\circ \sim 180^\circ$  まで可変
5. 磁場印加時間：鎖状クラスターの成長時間を考慮して設定
6. 音速変化率  $\Delta V/V_0$ ：式 (3.5) に記した音速変化率を用いることで伝播速度変化を評価

超音波の周波数は、特に断りが無いときは 2MHz を用いている。また、第 3 章にも記した通り、伝播速度そのものを用いて絶対評価を行うと測定ごとに偶然誤差の影響が大きく、また、テストセル中の伝播距離に起因する誤差も生じてくる。測定評価の精度向上を考慮して、音速変化率を用いて、一部の計測ではこの評価を用いた。

### 4.6.3 実験内容

本研究において、磁性流体中の超音波伝播特性における伝播速度変化特性とこの結果を元にした内部構造解析へのアプローチとして、次のような条件のもとで伝播速度変化の計測を行った。

1. 磁性流体中の超音波伝播速度の測定
2. 磁場印加直後からの伝播速度の経時変化
3. 伝播速度変化の印加磁場強さへの依存性
4. 伝播速度変化の異方性
5. 磁性流体の内部粒子濃度の違いによる伝播速度変化
6. 磁場掃引 (sweep rate) を考慮した計測



## 実験方法の決定付け

本研究では、可変パラメータが非常に多く存在し、その組み合わせで非常に多くの実験が考えられる。例えば、磁場依存性の実験を取り上げても、磁場印加待機時間、磁場印加方向などによって、結果自体も変わりうる。

そこで、実験結果の比較を行なうにあたり、実験ごとに磁場印加待機時間といった実験方法を選択、固定する必要がある。本研究ではこの実験方法の決定付けとして、何通りかの予備実験を行い、文献等と比較して、結果を検討するうえで有効であると考えられる実験方法を選択、固定した。さらに、実験の結果、特異な変化が現れた場合、実験方法を変えて測定し、比較を行なった。各実験条件の詳細は次節以降でまとめる。

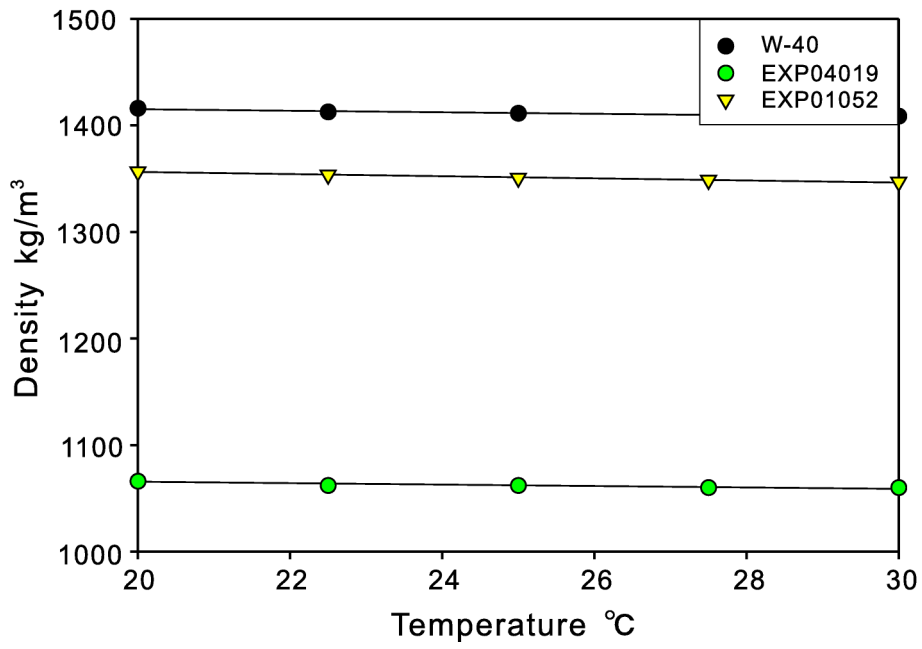


图 4.3: Density of magnetic fluids

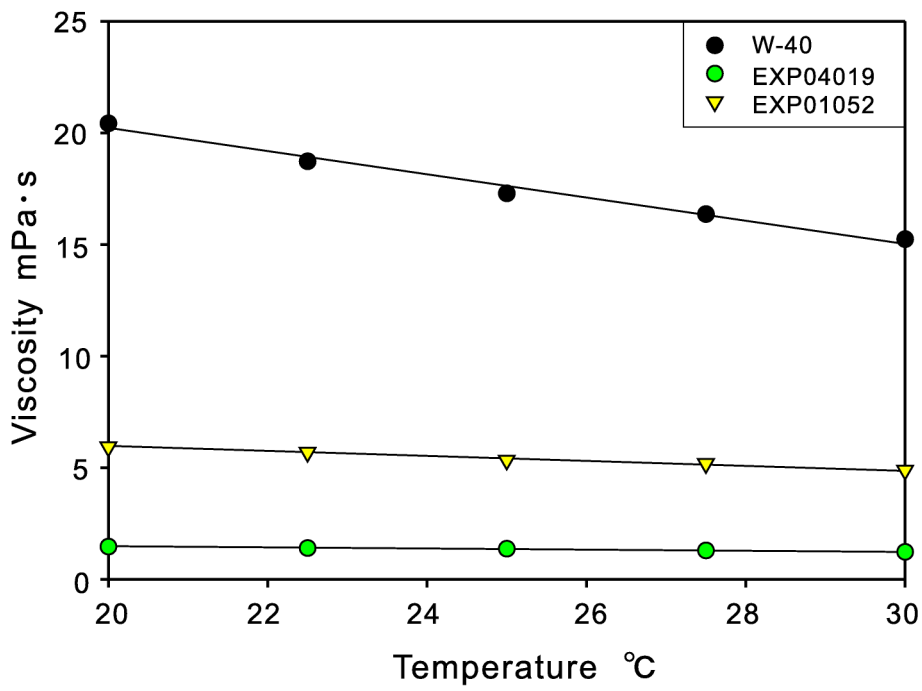


图 4.4: Viscosity of magnetic fluids

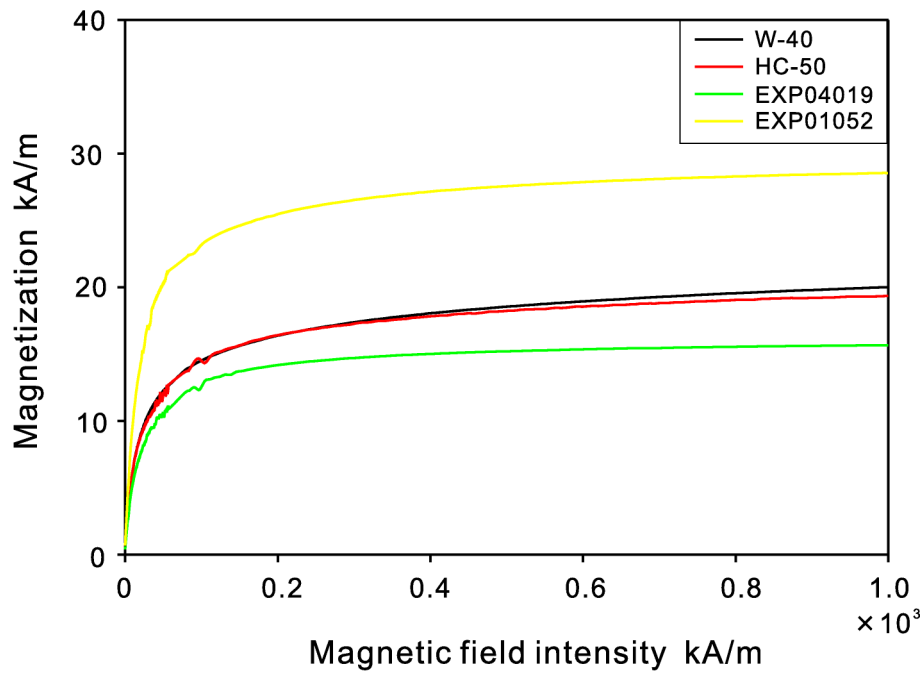


图 4.5: Magnetization curve of magnetic fluids

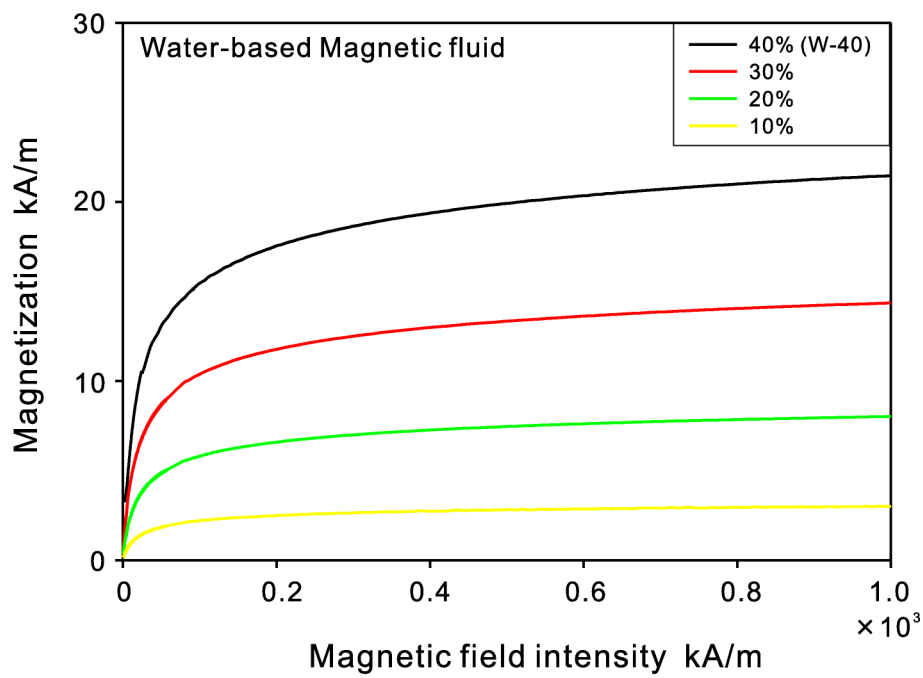


图 4.6: Magnetization curve of diluted water-based magnetic fluids (W-40)

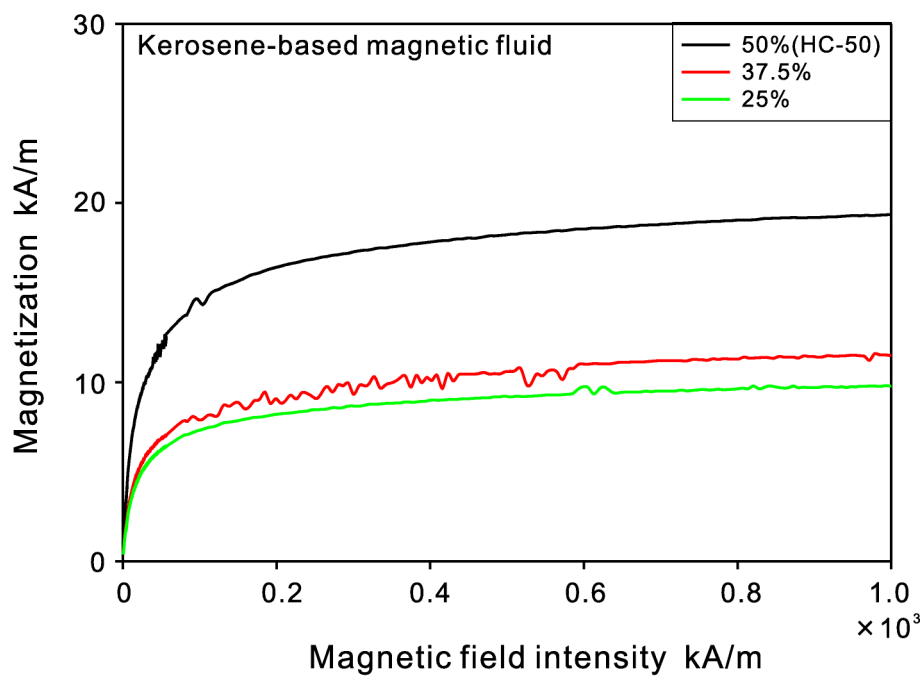


图 4.7: Magnetization curve of diluted kerosene-based magnetic fluids (HC-50)

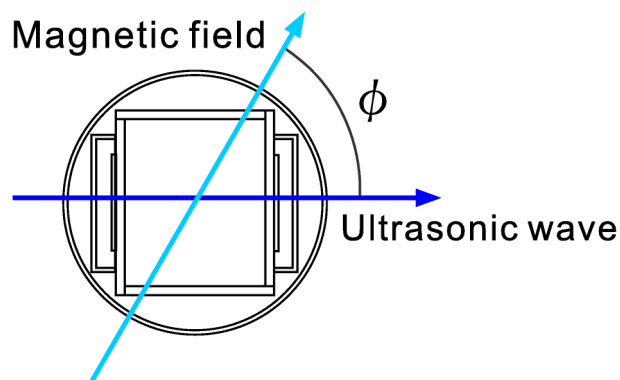


图 4.8: Angle  $\phi$  between the direction of ultrasonic propagation and magnetic field

## 4.7 磁性流体中の伝播速度の測定

4種類の磁性流体とその溶媒である純水とケロシンにおいて、流体中の超音波伝播速度を流体温度を20℃から30℃まで1℃ごとに変化させて測定した。磁性流体中の超音波伝播速度の詳細値は、第7章に記すUVPを適用するうえでも重要である。

測定結果を図4.9, 図4.10に示す。図4.9には、W-40とHC-50のベースの異なる磁性流体中の伝播速度と各溶媒中の伝播速度を示した。図4.10には、EXP04019とEXP01052中の伝播速度と比較のためHC-50中の伝播速度を示した。

## 4.8 磁場印加後の伝播速度の経時変化特性

磁性流体へ磁場を印加した時、磁場印加後、どのような経時変化特性があるか伝播速度変化を測定した。伝播速度の経時変化を測定することで、磁性流体中の鎖状クラスターがどの程度の時間をかけて成長し、どの程度まで成長するか、磁性流体の物性による鎖状クラスター形成の差異も解析できると考えられる。

磁性流体に100mTもしくは500mTの磁場を印加し、印加した直後から30秒～1分ごとに伝播速度変化を測定する。変化が大きい間は30秒ごとに測定した。測定の最後に、そのまま磁場を除去し、その状態での伝播速度の経時変化も測定した。

測定結果を図4.11～図4.14に示す。音速変化率は、式(4.12)を100倍して%で結果を示している。図4.11はW-40とHC-50において、100mTの磁場を $\phi = 0^\circ$ で印加した時の経時変化である。図4.12は、EXP04019とEXP01052において100mT, 500mTの磁場を $\phi = 0^\circ$ で印加したときの経時変化である。さらに、図4.13と図4.14は、それぞれEXP04019とEXP01052に100mT, 500mTの磁場を $\phi = 0^\circ$ ,  $\phi = 90^\circ$ で印加したときの経時変化を示しており、60分後からは、磁場を除去して10分間測定を続けている。

## 4.9 伝播速度の磁場依存性

磁性流体への印加磁場強さによって、どのような伝播特性があるか伝播速度変化を測定した。磁場依存性を検討することで、内部に形成される鎖状クラスターの成長過程、崩壊過程を解析することができる。

HC-50, EXP04019, EXP01052の3種類の磁性流体を用いて、磁場印加方向と超音波伝播方向のなす角 $\phi = 0^\circ, 45^\circ, 90^\circ$ において伝播速度を測定した。印加磁場強さは、増磁過程では、供給電流を0.5A(磁場強さにして約15mT)ごとに20Aまで、減磁過程では1A(磁場強さにして約30mT)ごとに0Aまで、磁場変更後1分間印加してから測定を行った。最後に磁性流体を攪拌して測定を行った。

測定結果を図 4.15～図 4.24 に示す。図 4.15～図 4.23 は、各磁性流体において、 $\phi$  を変えて測定を行ったものである。さらに図 4.24 は、EXP04019 と EXP01052 における、 $\phi$  が  $0^\circ$  と  $90^\circ$  の時の増磁過程の伝播速度変化をまとめて示したものである。

## 4.10 伝播速度変化の異方性

磁性流体中の鎖状クラスターは磁場方向に形成される。このため鎖状クラスター (磁場方向) に対して超音波が伝播する角度 ( $\phi$ ) により、伝播速度にも影響を及ぼすと考えられる。鎖状クラスターを十分に成長させたいうえで、超音波伝播速度の異方性の解析を行った。

### 4.10.1 測定方法

測定試料には、W-40, HC-50, EXP04019, EXP01052 を用いた。測定方法は、まず磁性流体に磁場を印加し鎖状クラスターを十分に成長させる。この時、印加磁場の強さは、50, 100, 150, 200, 250, 300, 350, 400, 450, 500mT とした。異方性を考えるには、クラスターを十分に成長させた後、 $\phi$  を変化させて測定を行なう必要がある。そこで、測定前に十分な時間磁場を印加することで鎖状クラスターを成長させている。この磁場印加時間の決定は、4.8 節の伝播速度の経時変化の結果を基に、伝播速度の経時変化が一定となるまでの時間とした。例えば、W-40 においては、経時変化の結果に基づくと、クラスター形成に時間がかかるため、表 4.2 に示す時間だけ磁場を印加して、印加後に測定を開始した。

測定は、各磁場において  $\phi$  を  $0^\circ$  から  $3^\circ$  ごとに回転させ、回転後 1 分待機して測定した。さらに  $90^\circ$  から、同様の方法で  $0^\circ$  まで戻しながら測定した。この方法によって、 $\phi$  の増加過程と減少過程の測定値を比較することで、テストセル回転時にクラスターが壊れていないかも確認できると考えられる。

表 4.2: Time of applying magnetic field

磁場強さ	磁場印加時間	磁場強さ	磁場印加時間
50mT	3 時間	300mT	1 時間 30 分
100mT	2 時間 30 分	350mT	1 時間 30 分
150mT	2 時間	400mT	1 時間
200mT	2 時間	450mT	1 時間
250mT	1 時間 30 分	500mT	1 時間

#### 4.10.2 測定結果

測定結果を図 4.25～図 4.32 に示す。 $\phi$  の増加過程と減少過程の比較のため、図 4.25～図 4.27 に HC-50 の結果のみ取り上げて、異方性を磁場ごとに示した図を示す。他の磁性流体においてもほぼ同様の結果が得られている。図中の「increase」は  $\phi = 0^\circ$  から  $\phi = 90^\circ$  まで増加させる過程、「decrease」は同様に  $\phi = 90^\circ$  から  $\phi = 0^\circ$  まで減少させる過程を示している。さらに、変化の全体的な傾向を観察するため、測定結果を三次元的に図 4.28 に示した。

全試験流体の  $\phi = 0^\circ$  から  $\phi = 90^\circ$  への増加過程の測定結果を 100mT ごとにまとめて図 4.29～図 4.32 に示した。

#### 4.11 内部粒子濃度の変化に伴う伝播特性

鎖状クラスターの形成領域は、内部粒子の濃度の濃い領域であると考えられる。そこで、磁性流体の重量濃度を変えたうえで、磁場印加時の伝播速度の経時変化と異方性を検討する。この測定は、磁場印加によって磁性流体の内部粒子がどのように応答するかを解析するうえで大きな資料となると考えられる。また、磁性流体の長期使用による濃度変化による影響などを調べるうえでも意義深いと考えられる。なお、本実験では、4.6.1 節に記した希釈した磁性流体を用いている。

##### 4.11.1 各濃度の磁性流体中の伝播速度

各濃度の磁性流体中の超音波伝播速度を測定した。測定方法は、4.7 節に記した方法と同様である。測定結果を図 4.33、図 4.34 に示す。図はそれぞれ各濃度の水ベース磁性流体とケロシンベース磁性流体中の伝播速度である。また、比較のため、それぞれの溶媒である水とケロシン中の伝播速度も併せて載せた。

##### 4.11.2 各濃度の磁性流体中の伝播速度の経時変化

磁場印加後の超音波伝播速度の経時変化を各濃度において測定した。測定方法は、4.8 節に記す方法と同様である。測定結果を図 4.35～図 4.38 に示す。図 4.35 と図 4.36 は、各濃度における水ベース磁性流体中の伝播速度変化であり、印加磁場強さは 500mT、 $\phi$  はそれぞれ  $0^\circ$  と  $90^\circ$  である。同様に図 4.37 と図 4.38 は、各濃度におけるケロシンベース磁性流体中の伝播速度変化である。

### 4.11.3 各濃度の磁性流体中の伝播速度の異方性

各濃度における磁性流体中の伝播速度の異方性を測定した。測定方法は4.10節に記す方法と同様である。測定結果を図4.39～図4.47に示す。測定結果は水ベース磁性流体W-40を希釈したものを取り上げた。なお、ケロシンベース磁性流体HC-50においても同等の結果が得られている。図4.39～図4.42はそれぞれ各濃度における伝播速度の異方性であり、図4.43～図4.47に各濃度における異方性を比較するために、各印加磁場強さにおける異方性をまとめて示した。

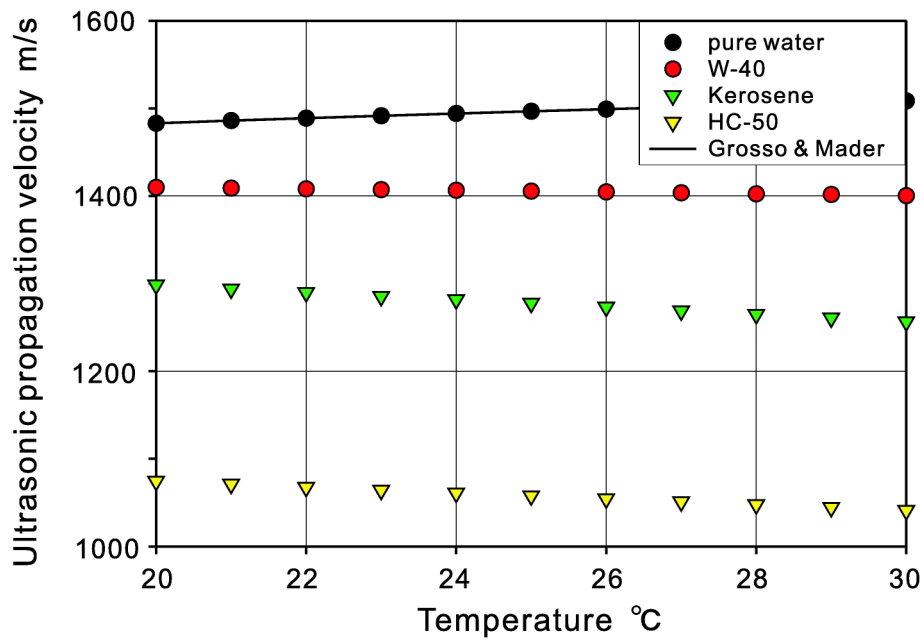
## 4.12 磁場印加方法 (sweep rate) による伝播特性

Sweep rate とは、印加磁場強度の時間変化率であり、これを一定で磁場を掃引することは、一定の時間に同じ割合で磁場を増加させることを示す。例えば、磁性流体に500mTを印加する場合、同じ印加磁場強さでも、60分かけて500mTに達するように磁場を掃引するのと、10分で500mTに達するように磁場を掃引するのでは、内部構造変化にも差が生じると考えられる。この解析を行うため、sweep rate を一定にしたうえで、伝播速度を計測し、内部構造変化を比較した。図3.1における、⑧直流安定化電源をパソコンによって制御することで一定の割合で磁場を掃引するようにした。

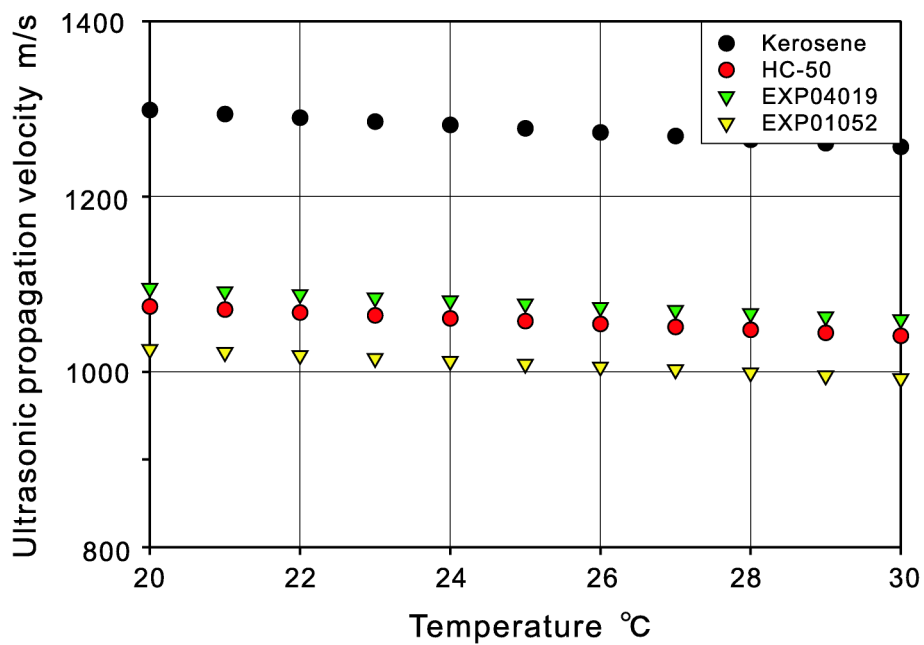
磁場掃引方法は、最大磁場の530mTに達するまで100分、50分、25分、12.5分かけて磁場が増加するようにsweep rate を設定し掃引した。なお、単位時間あたりの磁束密度の増加量  $dB/dt$  は、100分で5.30mT/min、50分で10.6mT/min、25分で21.2mT/min、12.5分で42.4mT/minである。この方法で磁場を掃引しながら伝播速度変化を測定している。

測定結果を図4.48～図4.53に示す。図は、それぞれW-40、HC-50、EXP04019の磁性流体における結果であり、横軸に時間軸と磁場をとることで2通りの方法で結果を示している。





⊠ 4.9: Ultrasonic propagation velocity in W-40 and HC-50



⊠ 4.10: Ultrasonic propagation velocity in HC-50, EXP04019 and EXP01052

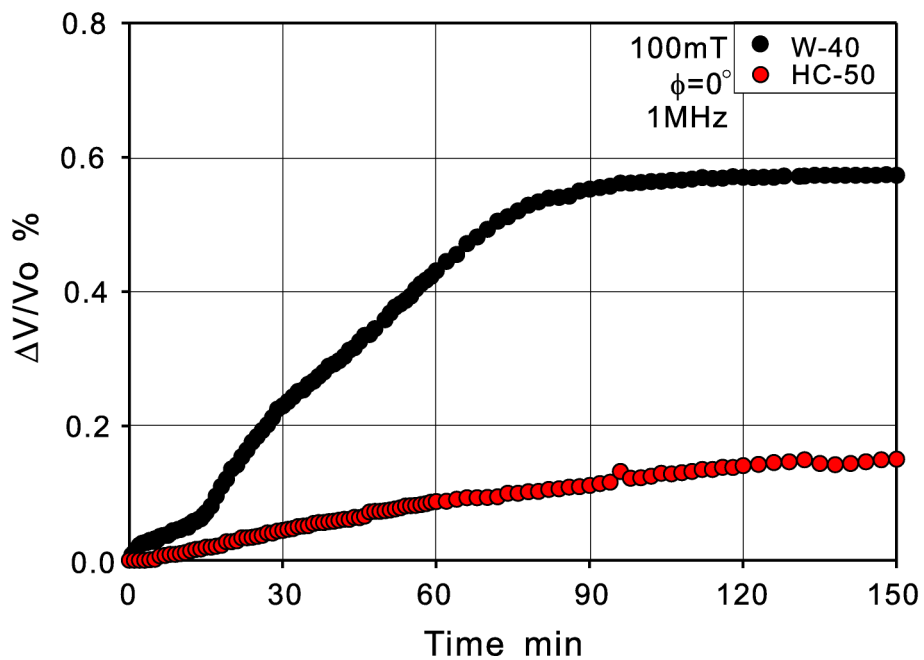


図 4.11: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in W-40 and HC-50

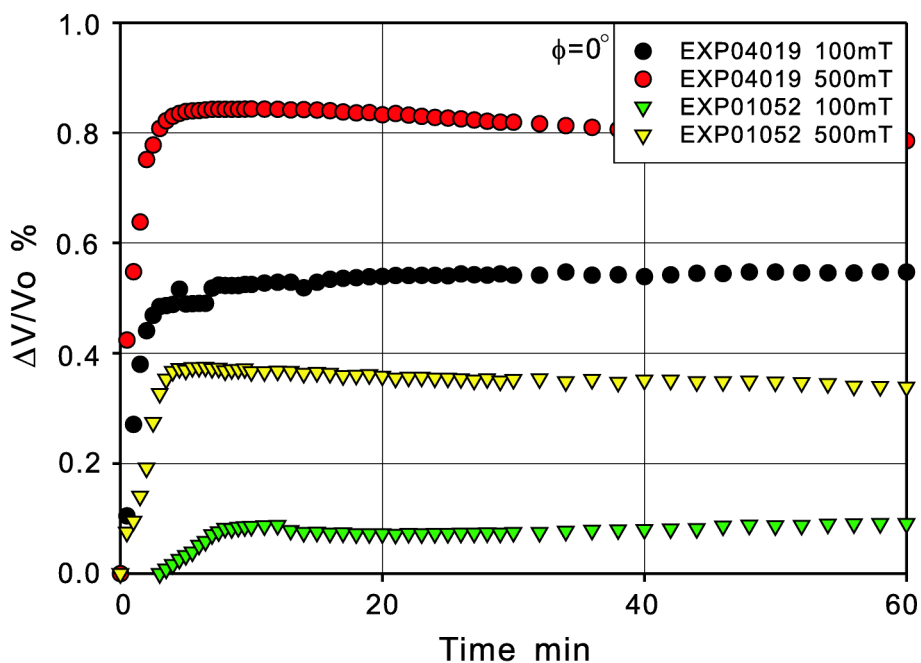


図 4.12: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in EXP04019 and EXP01052

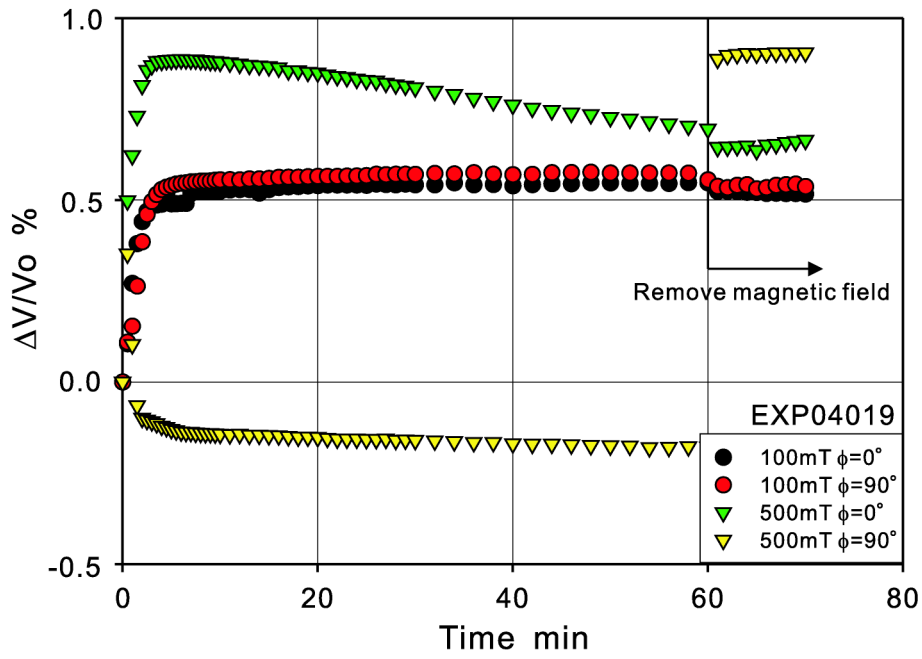


图 4.13: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in EXP04019

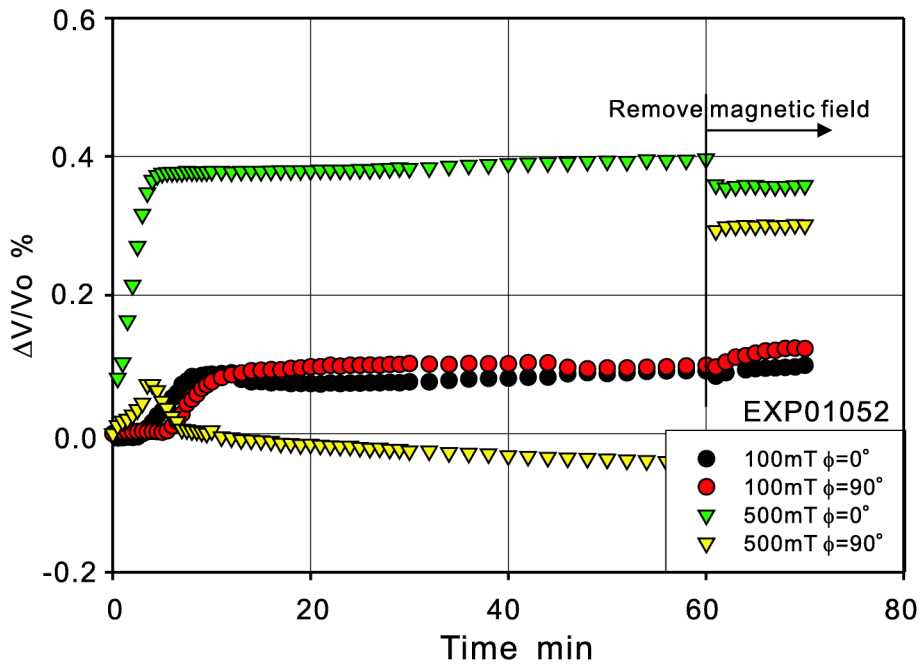


图 4.14: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in EXP01052

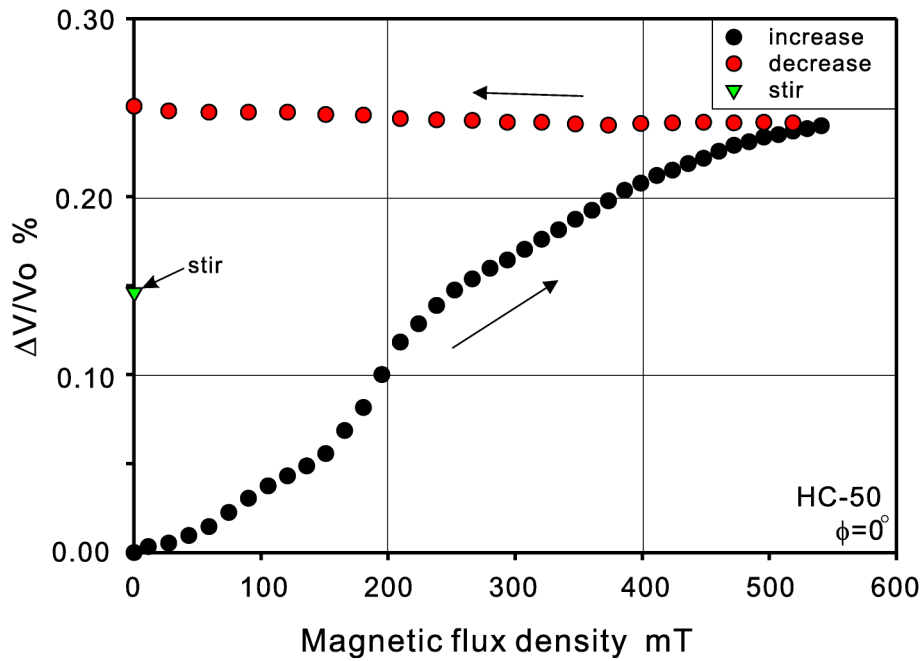


Figure 4.15: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in HC-50 for  $\phi = 0^\circ$

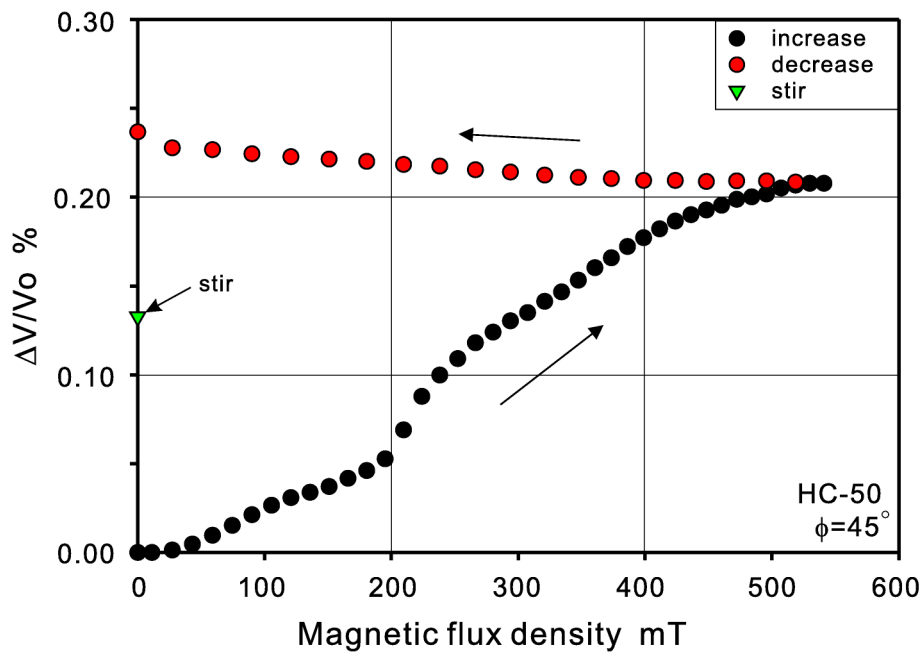


Figure 4.16: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in HC-50 for  $\phi = 45^\circ$

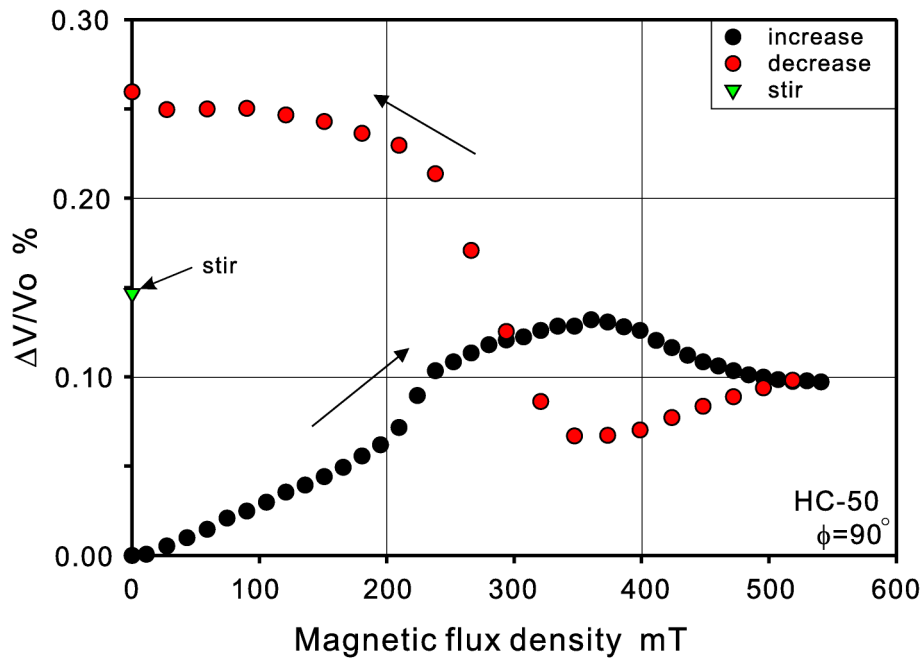


图 4.17: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in HC-50 for  $\phi = 90^\circ$

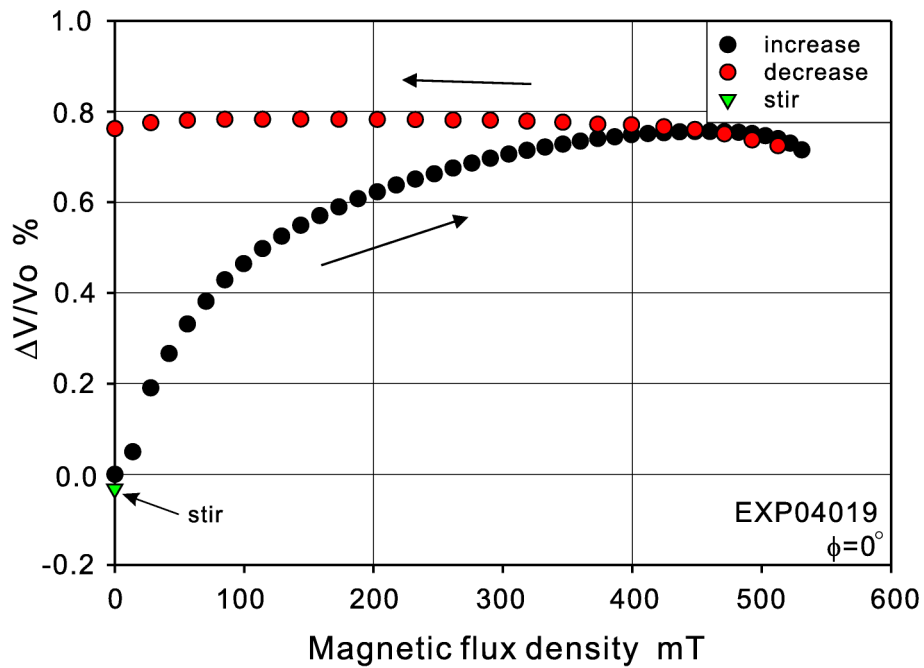


图 4.18: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in EXP04019 for  $\phi = 0^\circ$

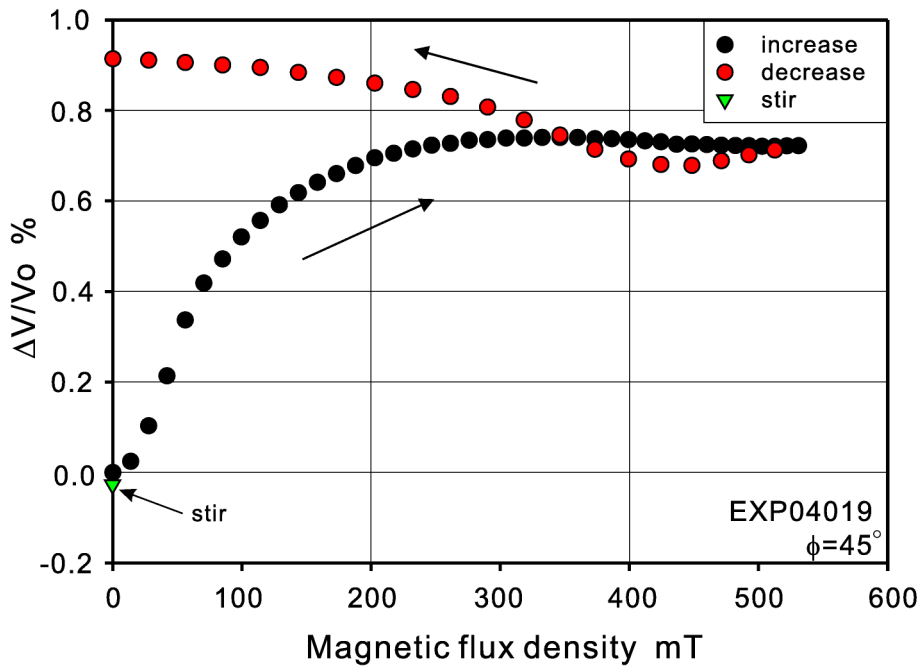


图 4.19: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in EXP04019 for  $\phi = 45^\circ$

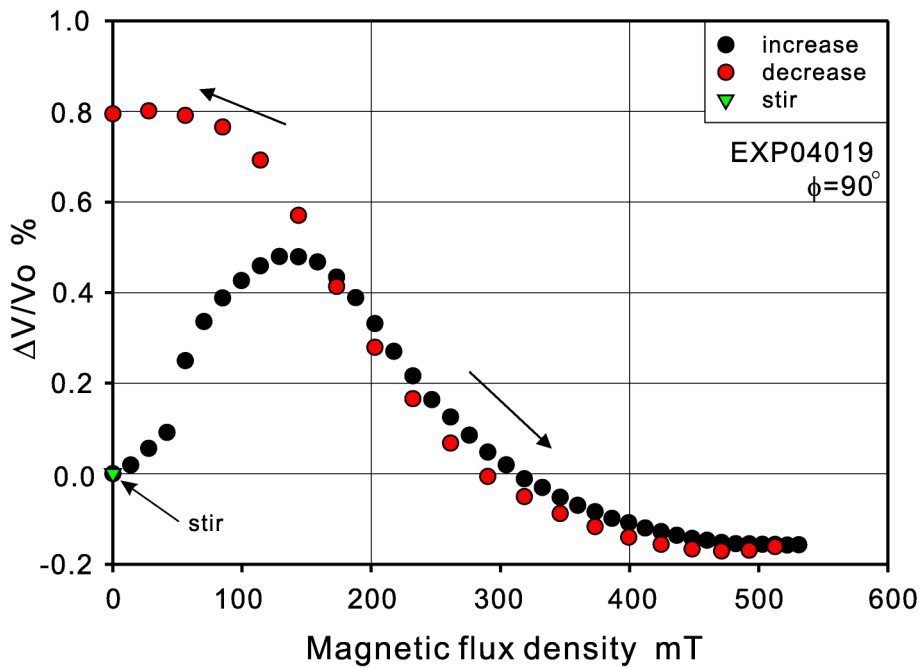
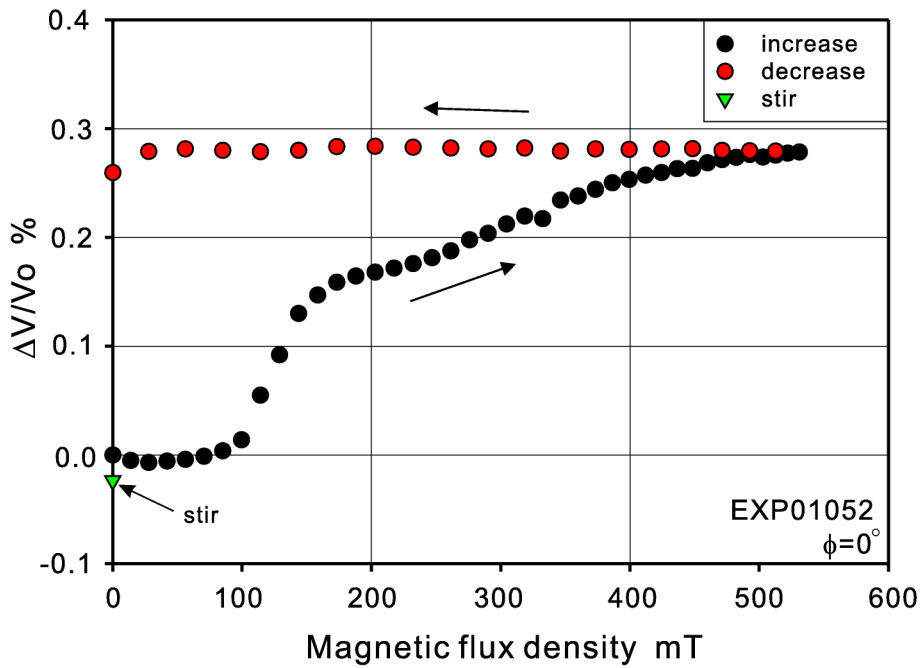
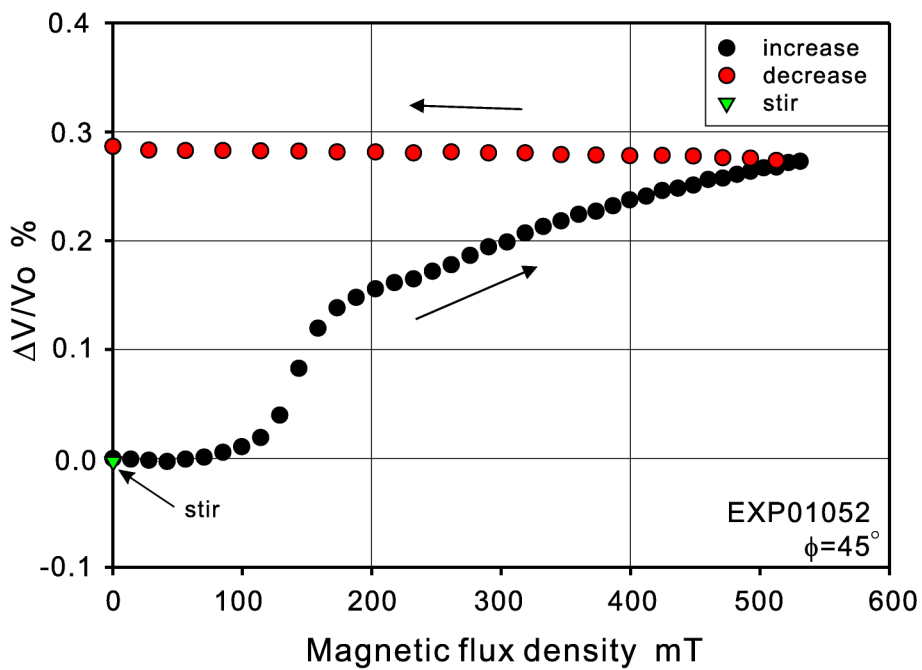


图 4.20: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in EXP04019 for  $\phi = 90^\circ$



⊠ 4.21: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in EXP01052 for  $\phi = 0^\circ$



⊠ 4.22: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in EXP01052 for  $\phi = 45^\circ$

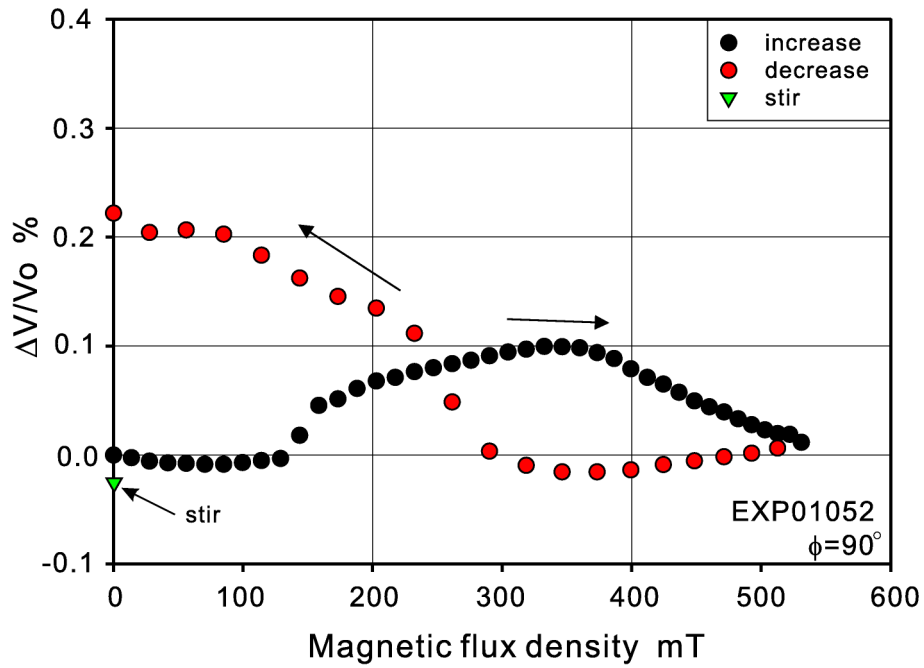


图 4.23: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in EXP01052 for  $\phi = 90^\circ$

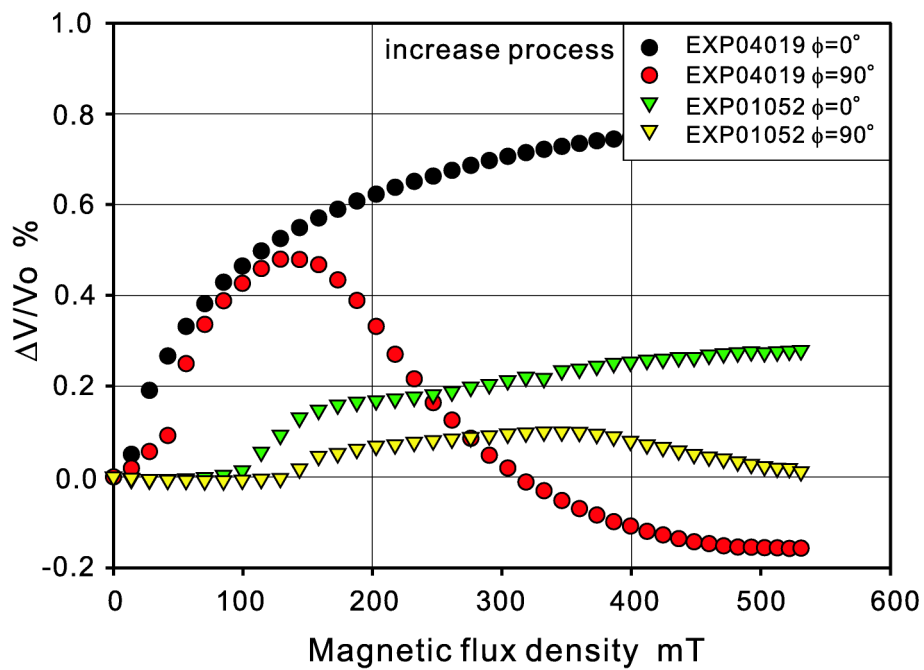
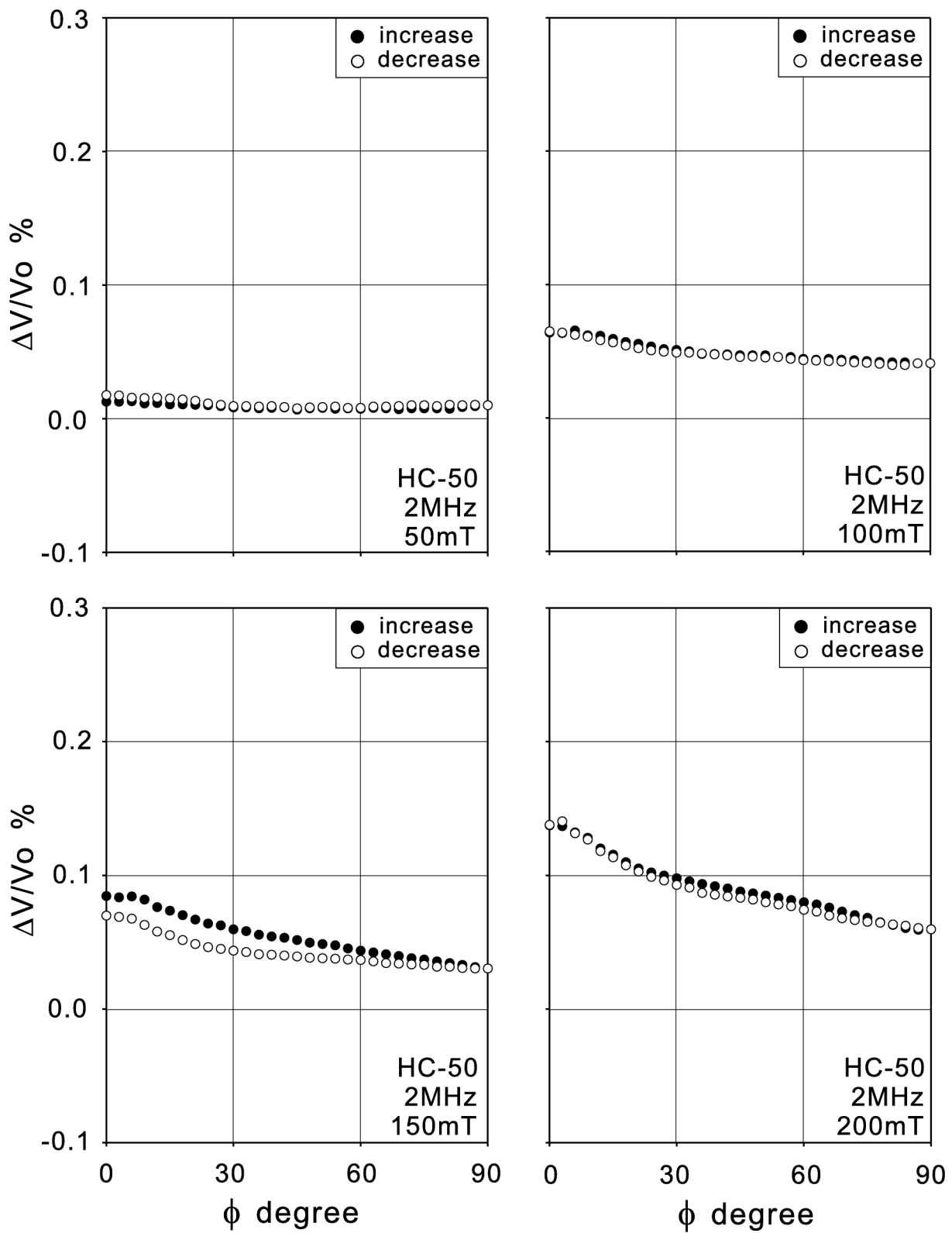
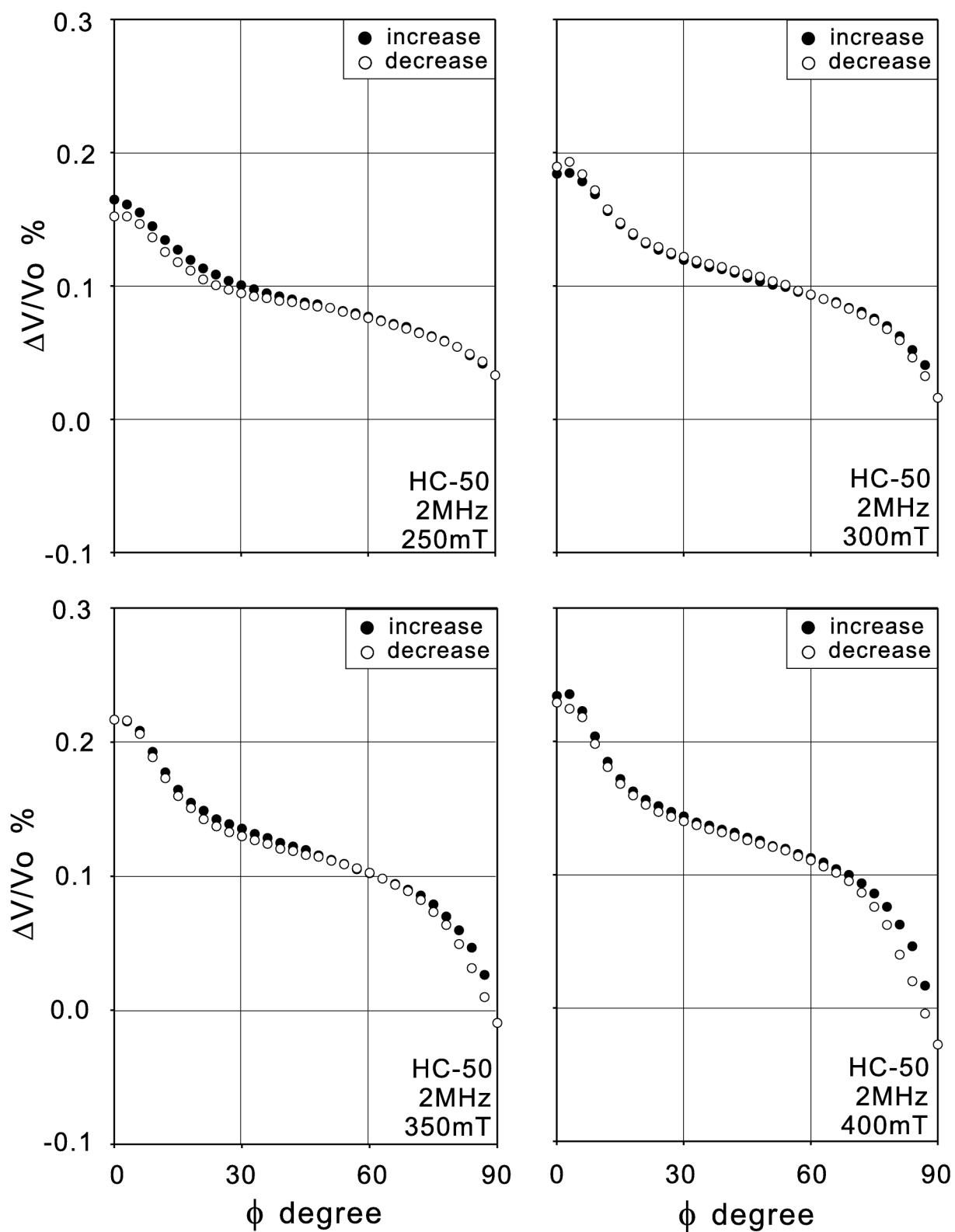


图 4.24: Magnetic field dependence of ultrasonic propagation velocity in EXP04019 and EXP01052

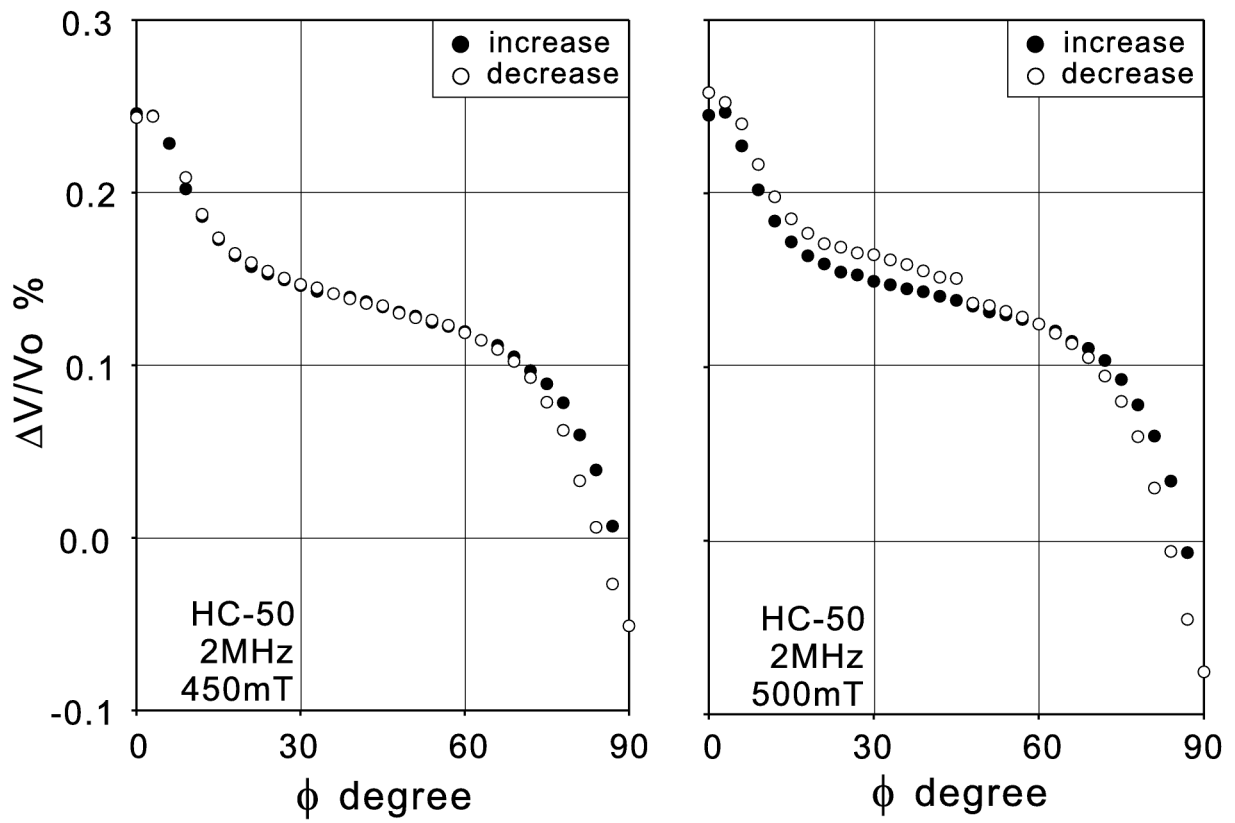




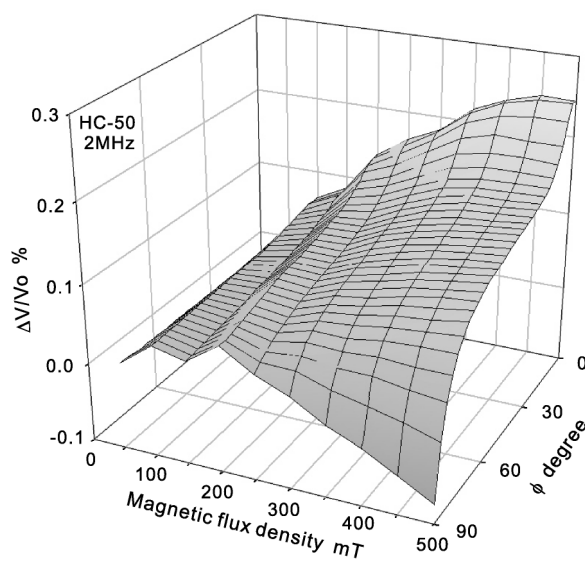
⊠ 4.25: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in HC-50 ①



⊠ 4.26: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in HC-50 ②



⊠ 4.27: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in HC-50 ③



⊠ 4.28: 3D anisotropy form of ultrasonic propagation velocity in HC-50

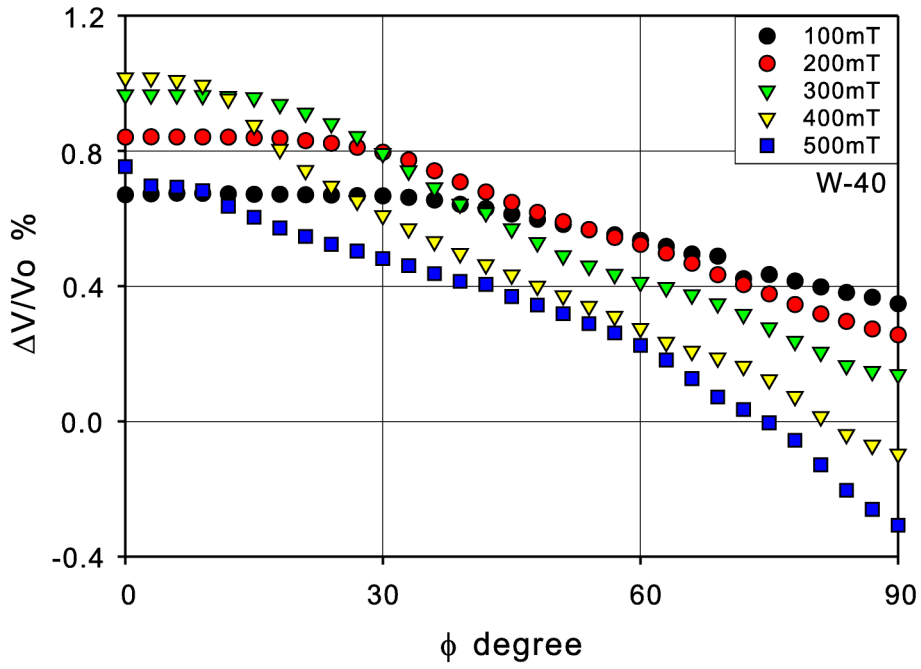


Figure 4.29: Detail of anisotropy of ultrasonic propagation velocity in W-40

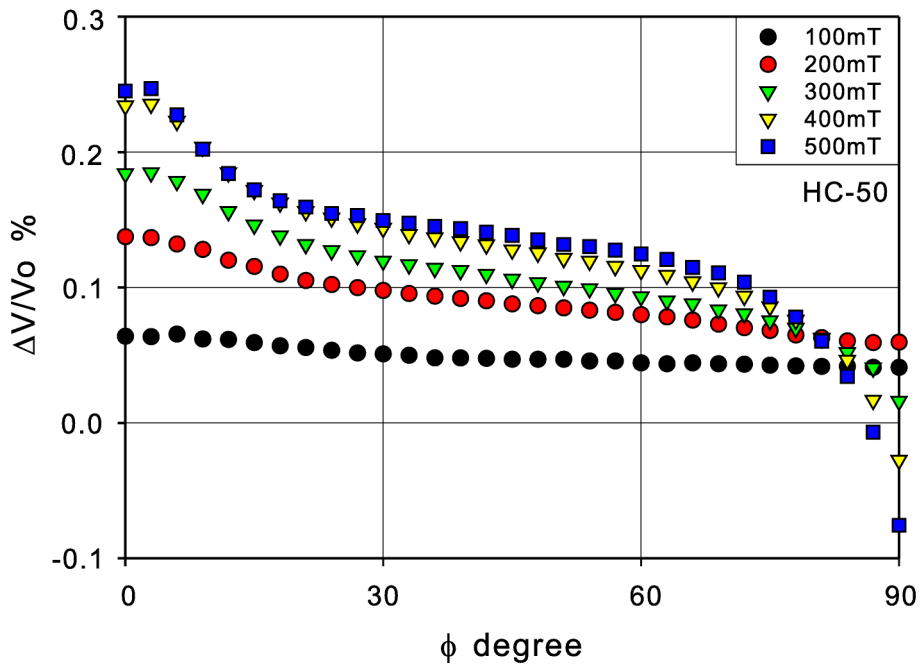
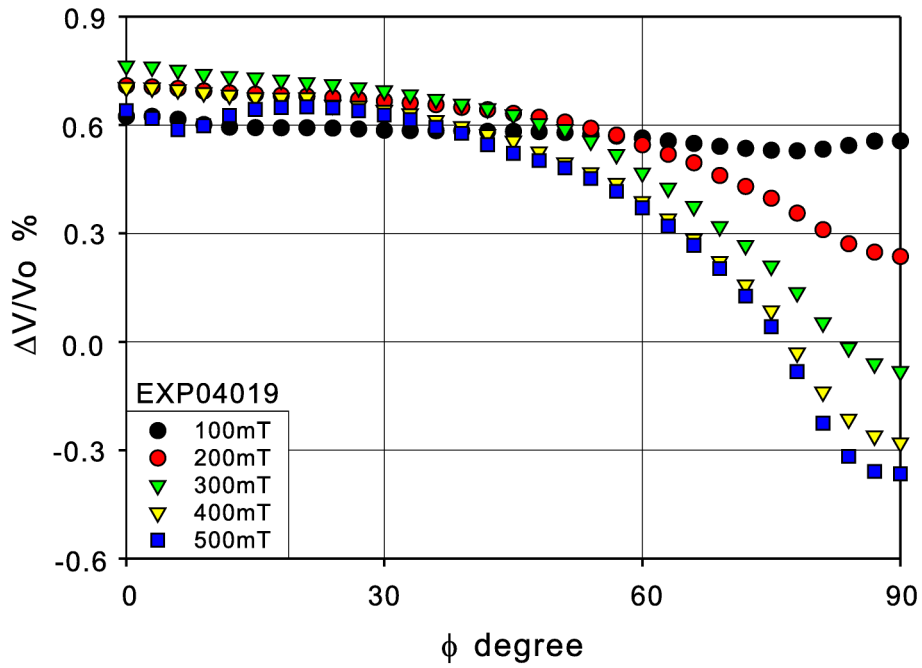
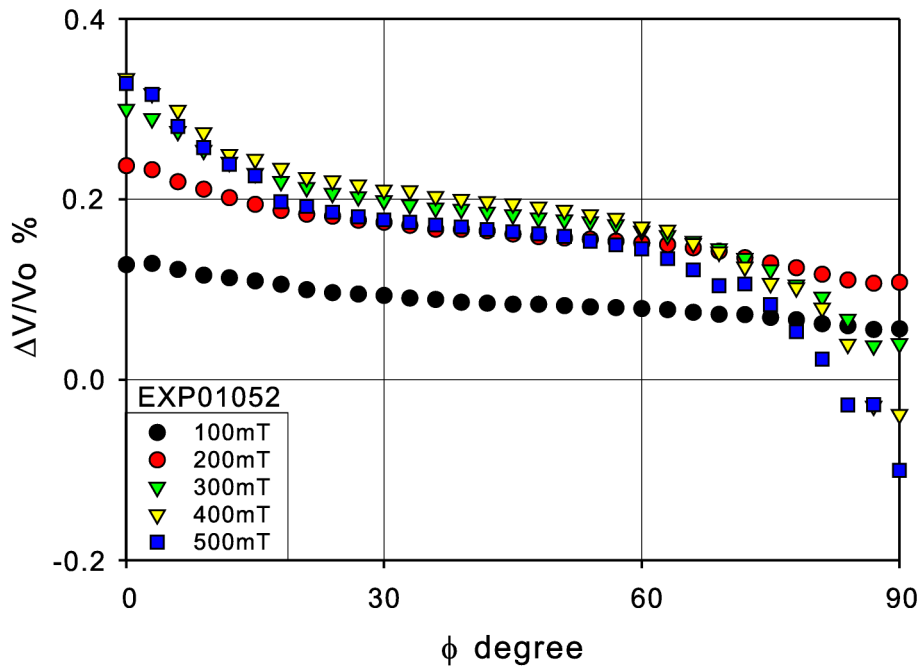


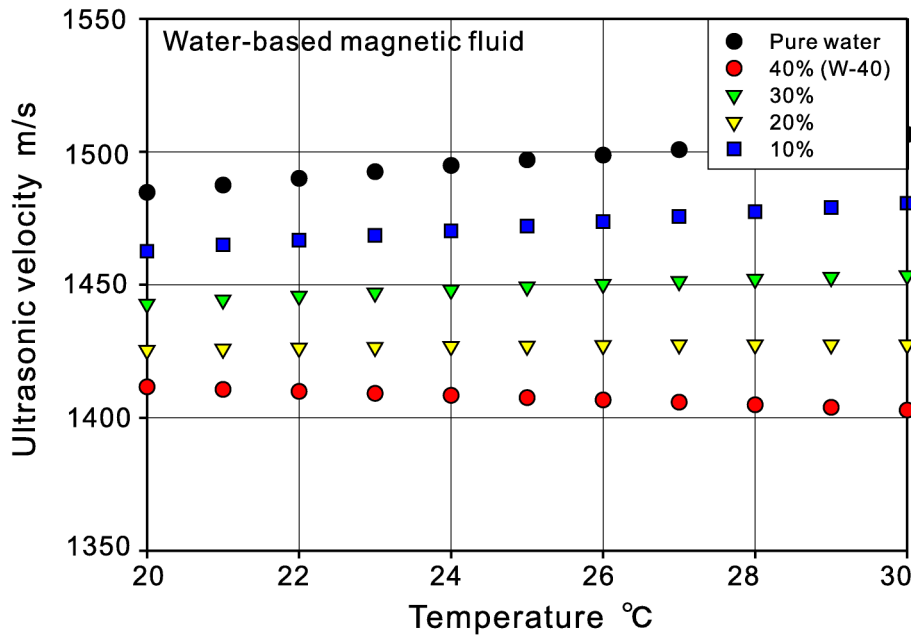
Figure 4.30: Detail of anisotropy of ultrasonic propagation velocity in HC-50



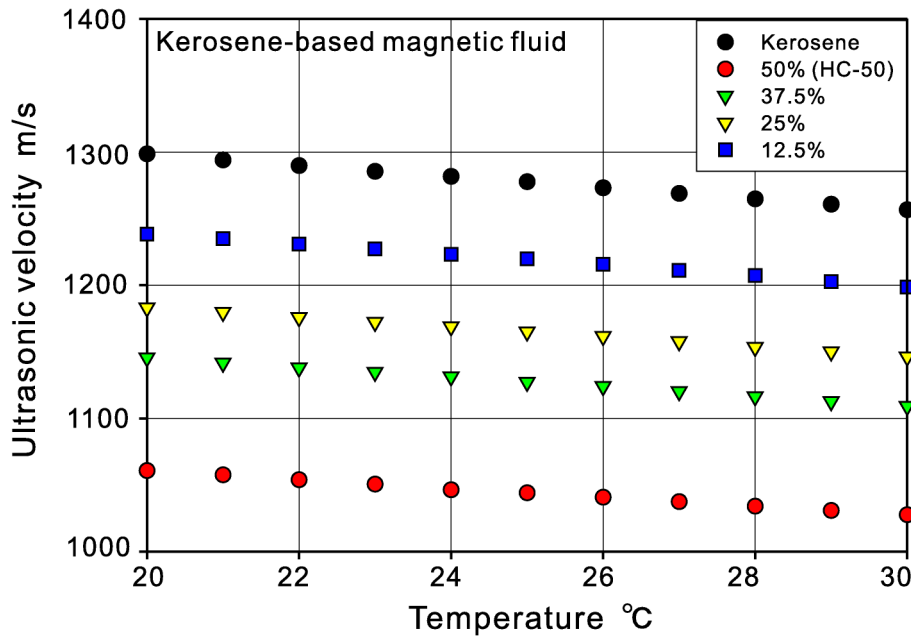
⊠ 4.31: Detail of anisotropy of ultrasonic propagation velocity in EXP04019



⊠ 4.32: Detail of anisotropy of ultrasonic propagation velocity in EXP01052



⊠ 4.33: Ultrasonic propagation velocity in diluted water-based magnetic fluids



⊠ 4.34: Ultrasonic propagation velocity in diluted kerosene-based magnetic fluids

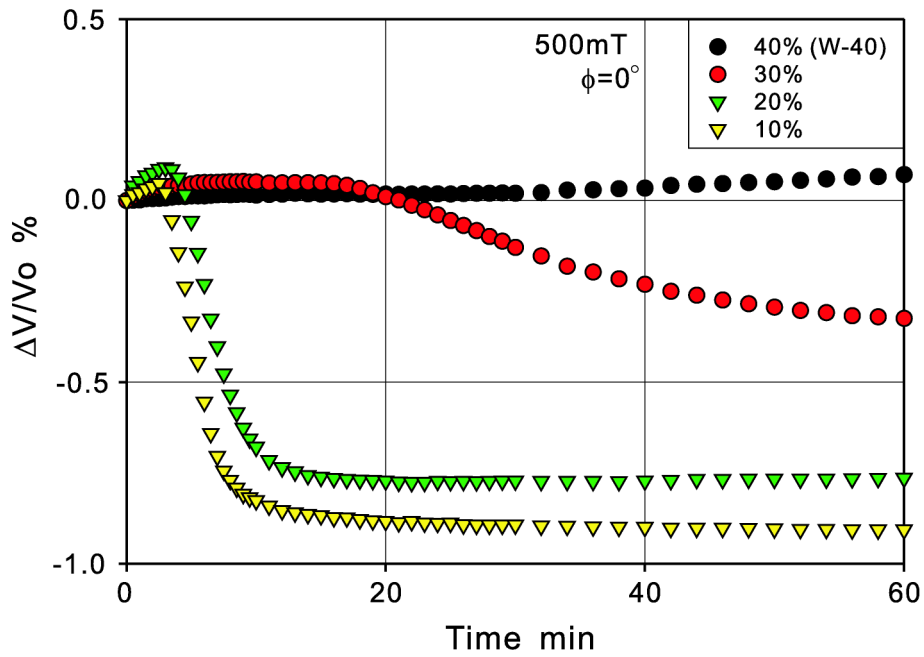


图 4.35: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in diluted water-based magnetic fluids in 500mT and  $\phi = 0^\circ$

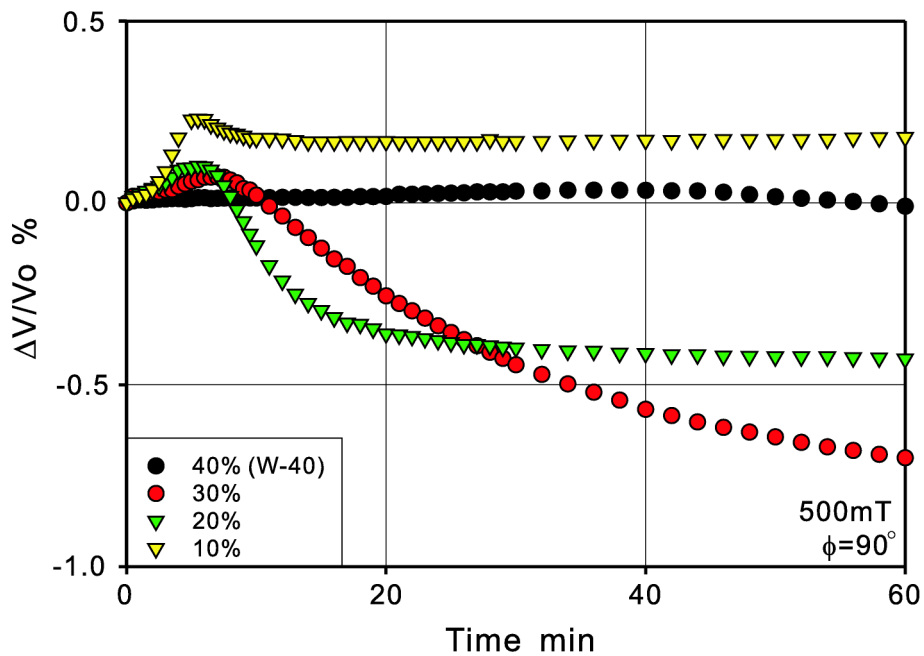


图 4.36: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in diluted water-based magnetic fluids in 500mT and  $\phi = 90^\circ$

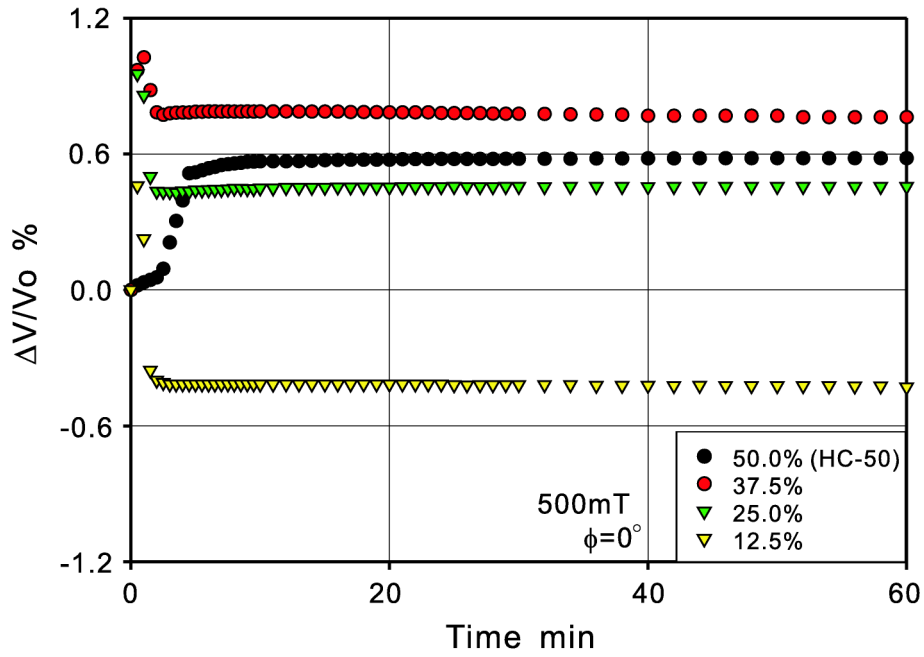


Figure 4.37: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in diluted kerosene-based magnetic fluids in 500mT and  $\phi = 0^\circ$

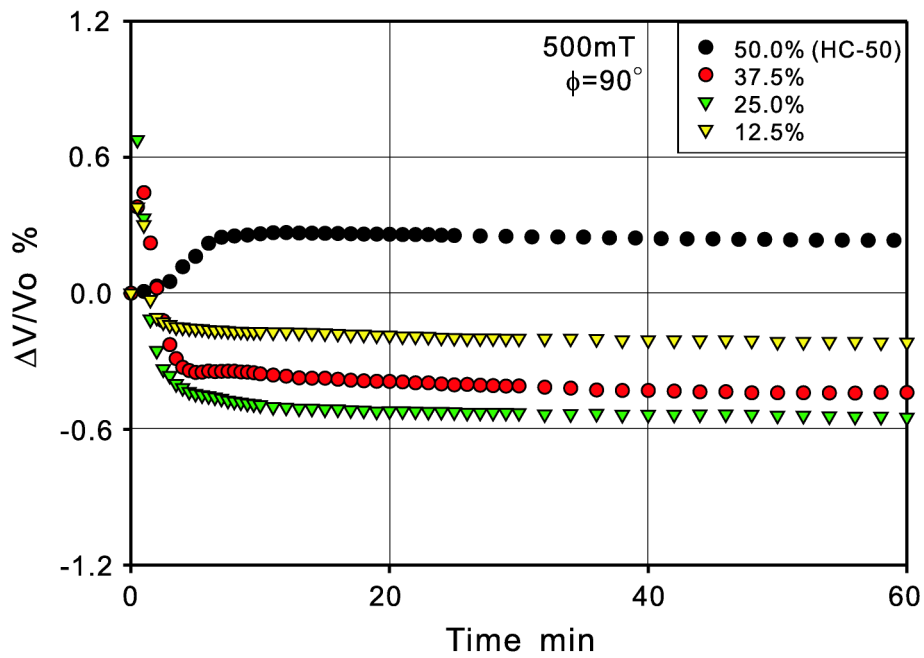
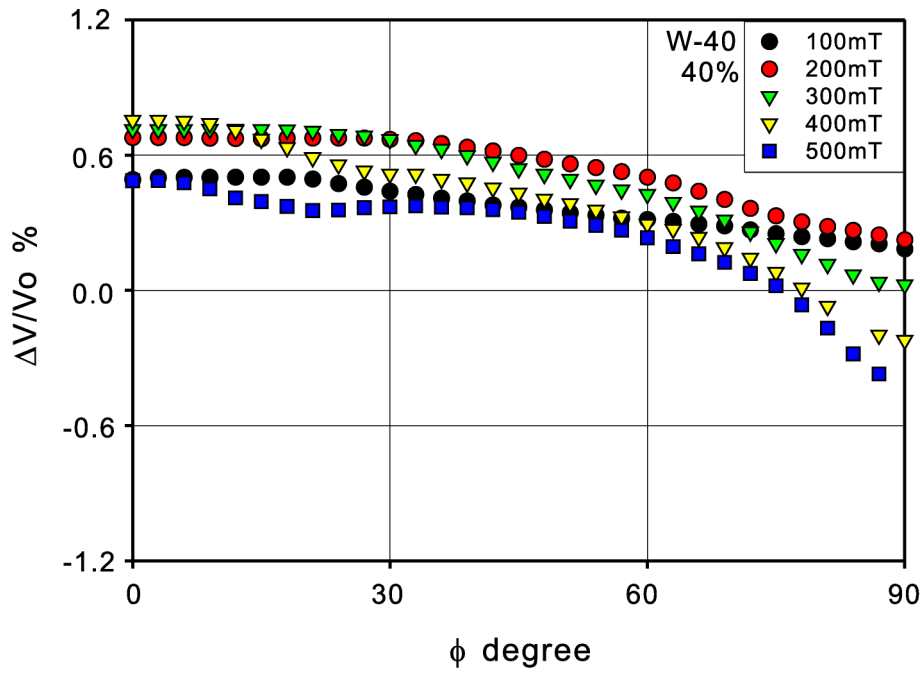
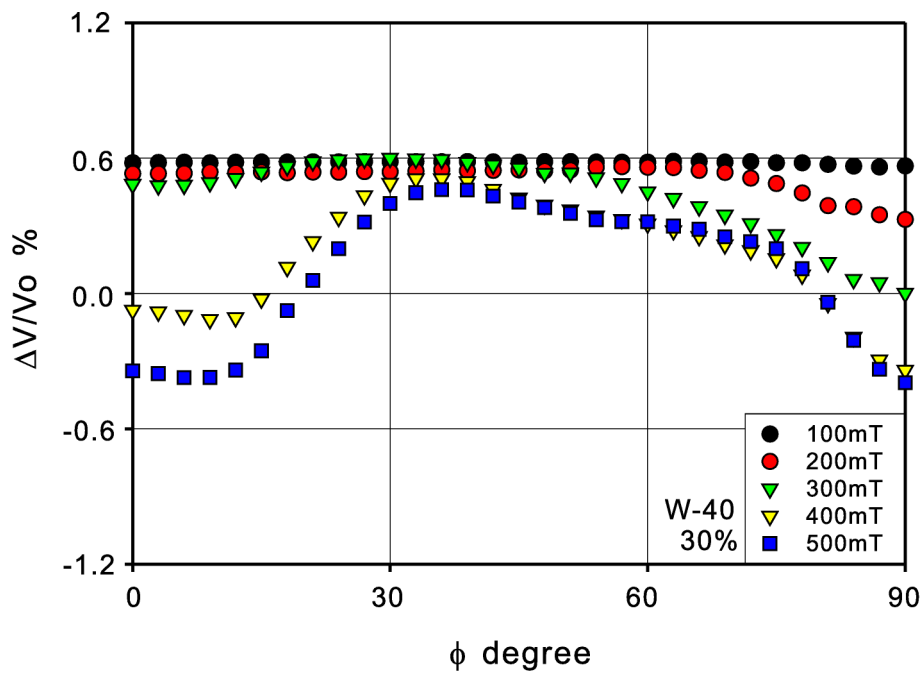


Figure 4.38: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in diluted kerosene-based magnetic fluids in 500mT and  $\phi = 90^\circ$





⊠ 4.39: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in 40wt% water-based magnetic fluid



⊠ 4.40: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in 30wt% water-based magnetic fluid

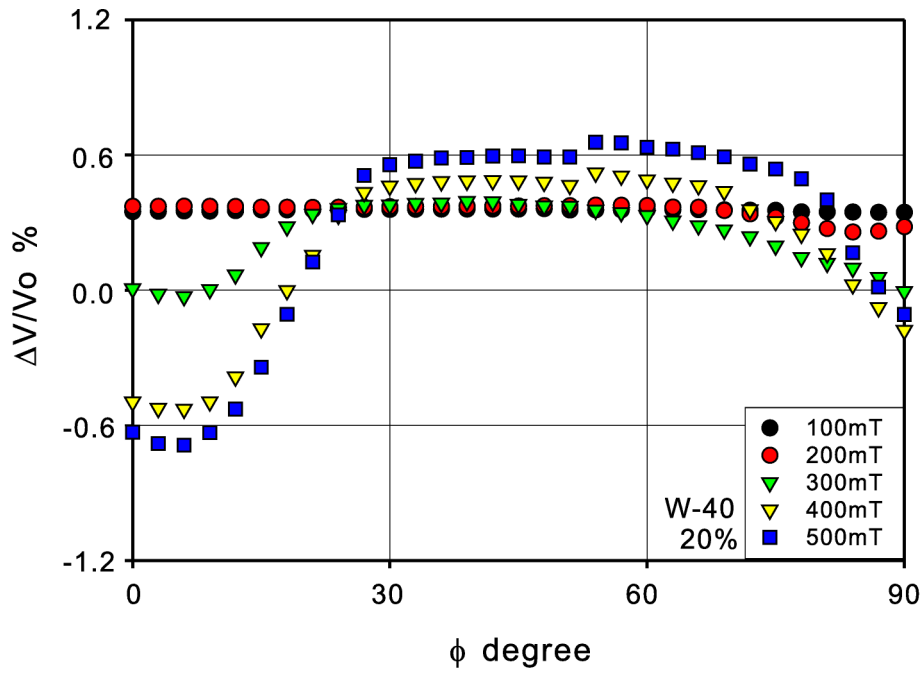


图 4.41: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in 20wt% water-based magnetic fluid

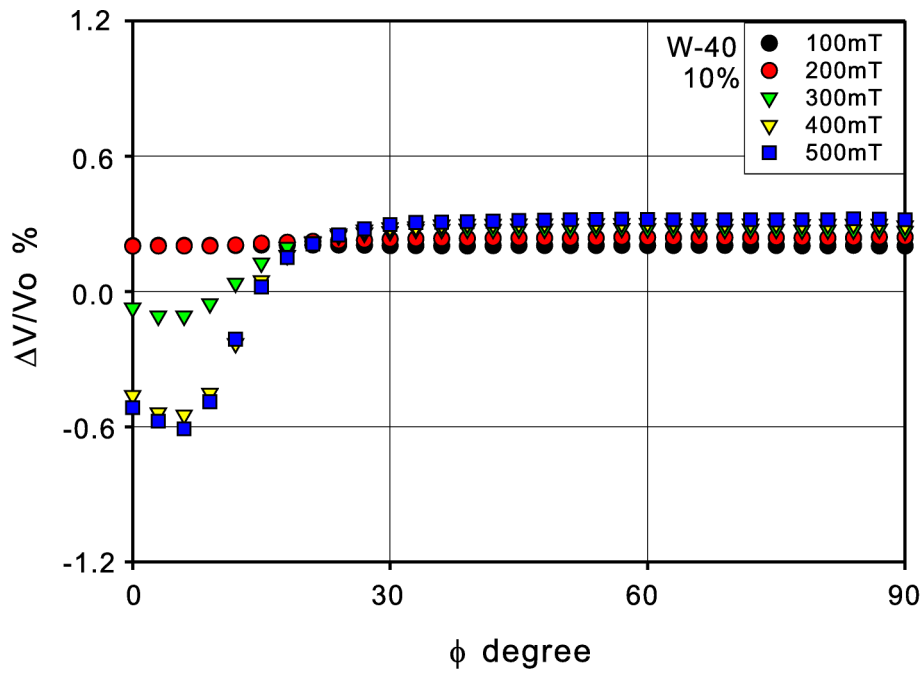


图 4.42: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in 10wt% water-based magnetic fluid

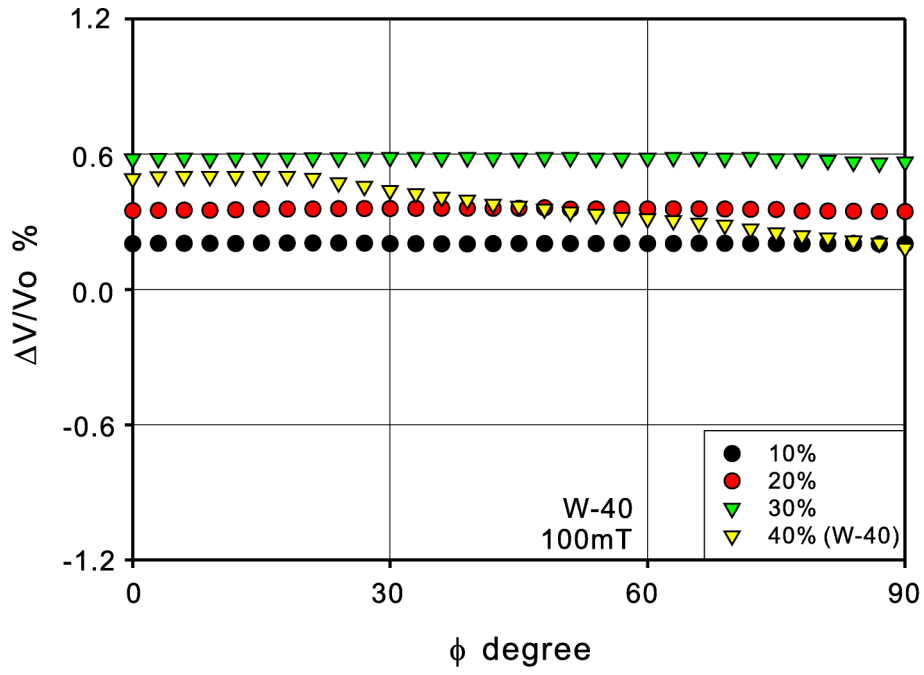


Figure 4.43: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in diluted water-based magnetic fluids under 100mT

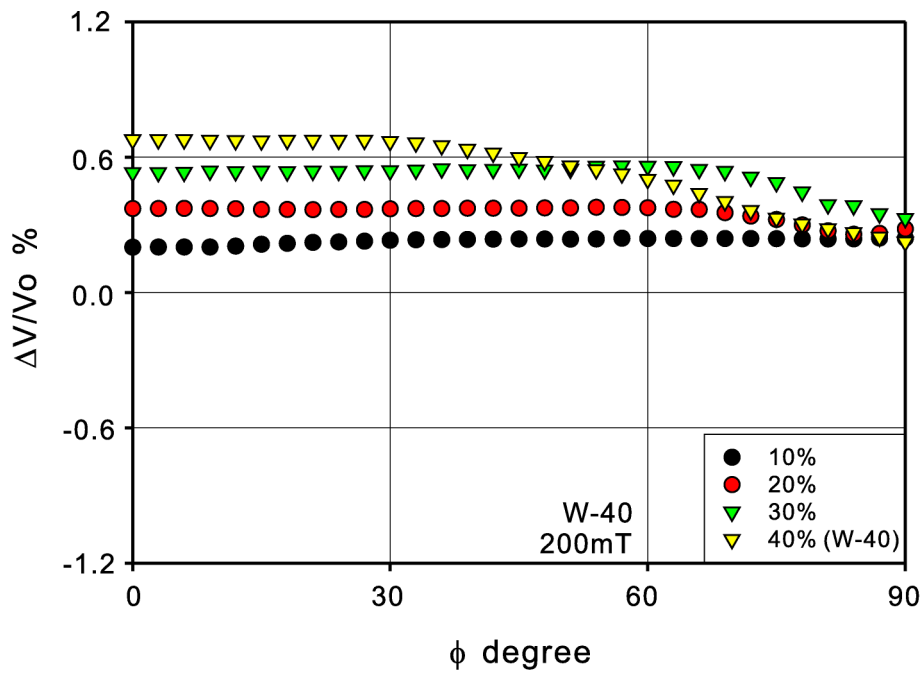


Figure 4.44: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in diluted water-based magnetic fluids under 200mT

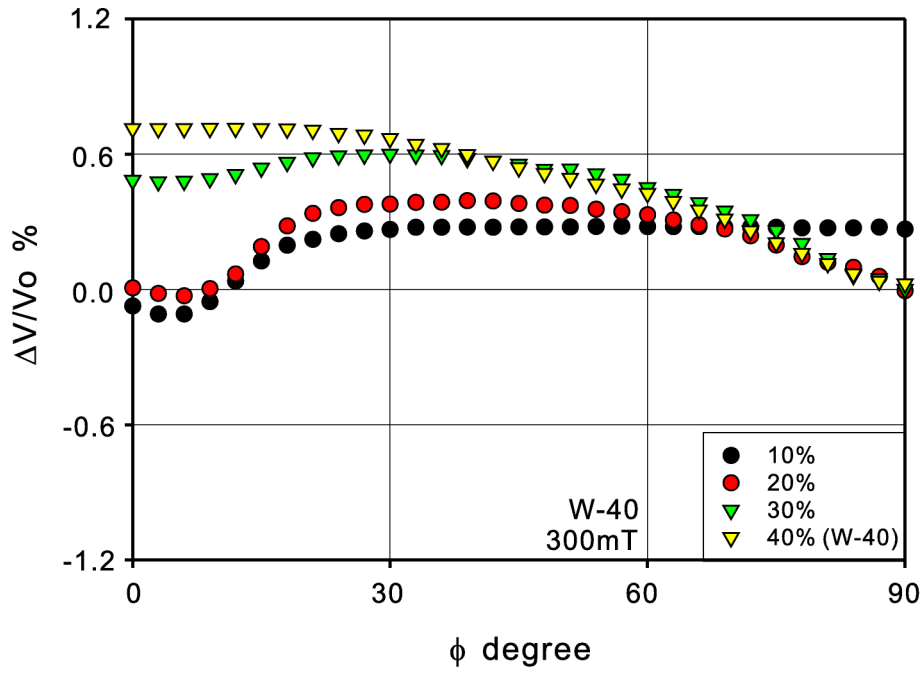


Figure 4.45: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in diluted water-based magnetic fluids under 300mT

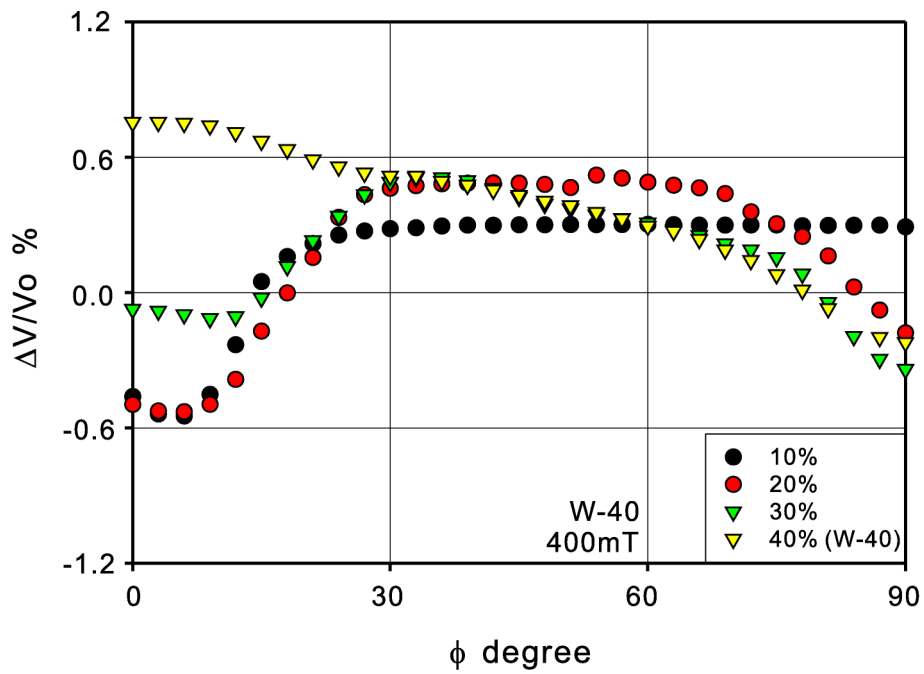


Figure 4.46: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in diluted water-based magnetic fluids under 400mT

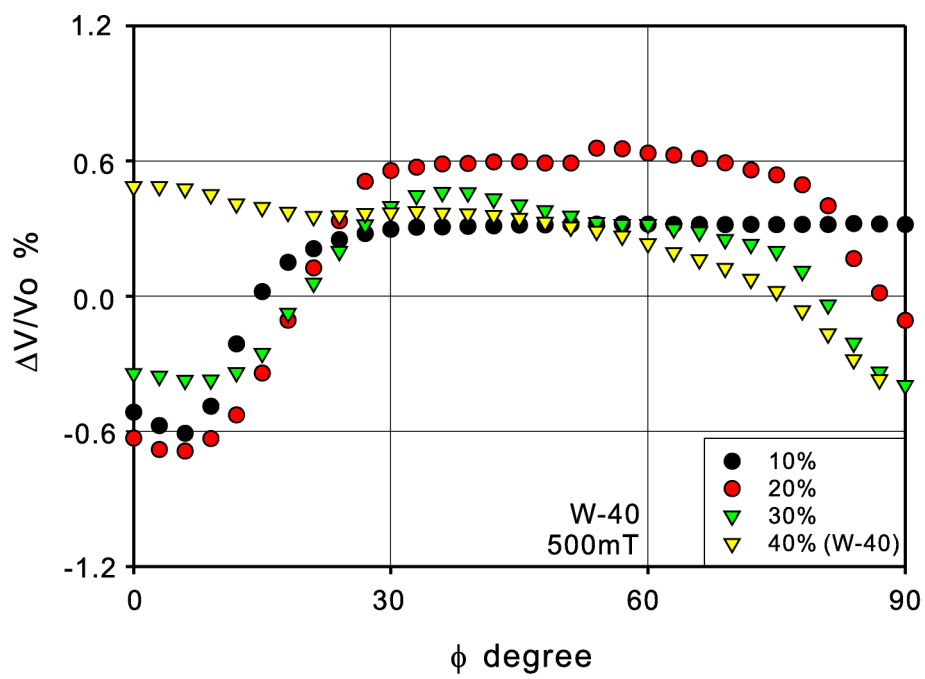


图 4.47: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in diluted water-based magnetic fluids under 500mT

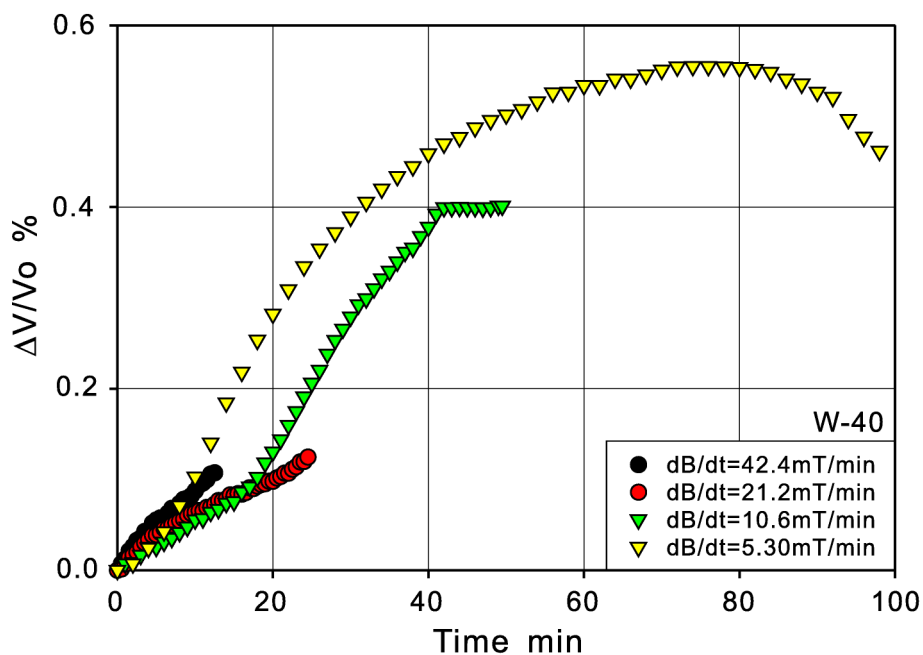


图 4.48: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in W-40 as a function of sweep rate

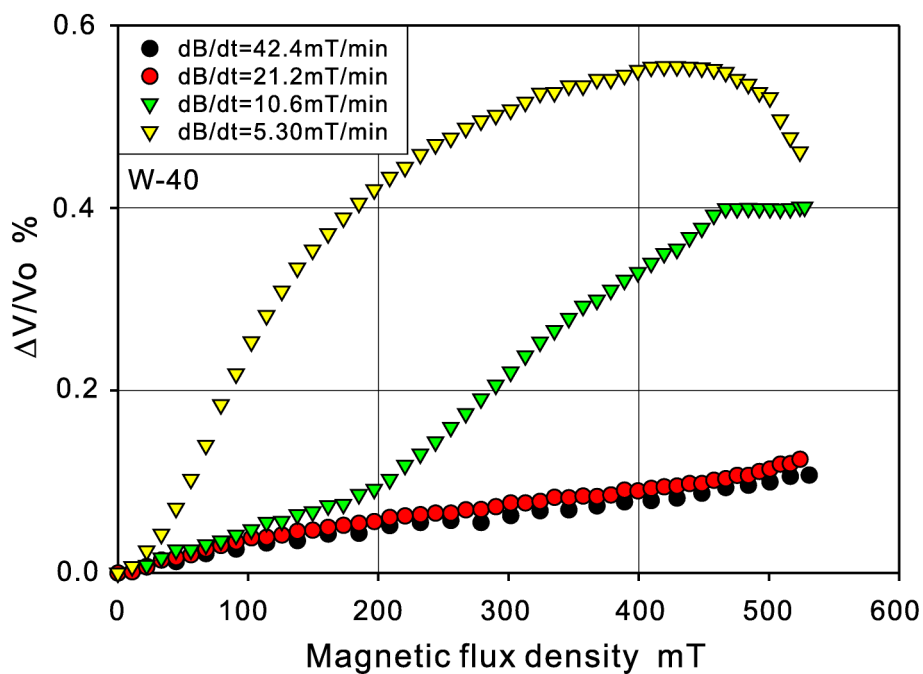


图 4.49: Magnetic flux density dependence of ultrasonic propagation velocity in W-40 as a function of sweep rate

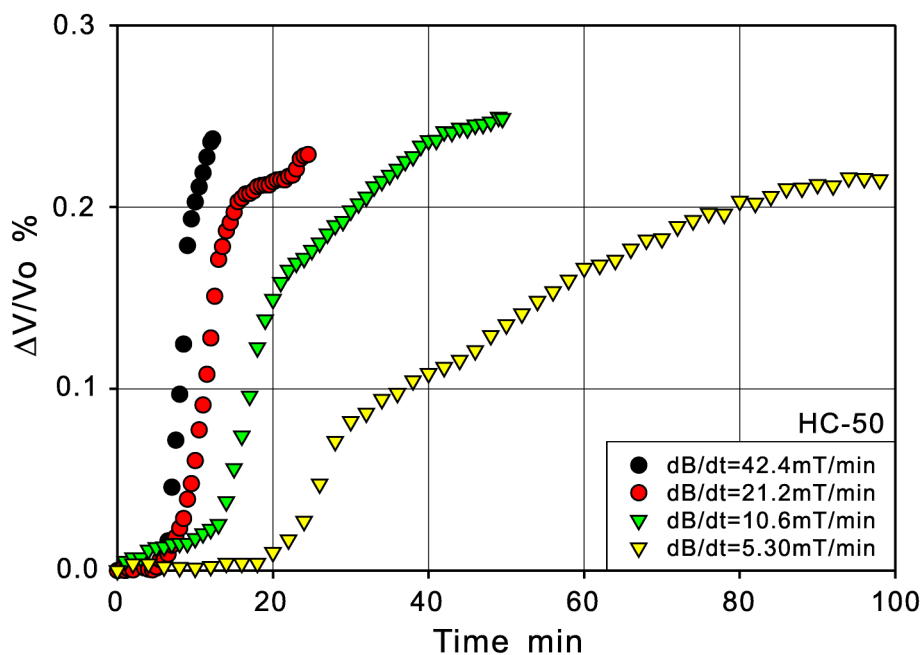


Figure 4.50: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in HC-50 as a function of sweep rate

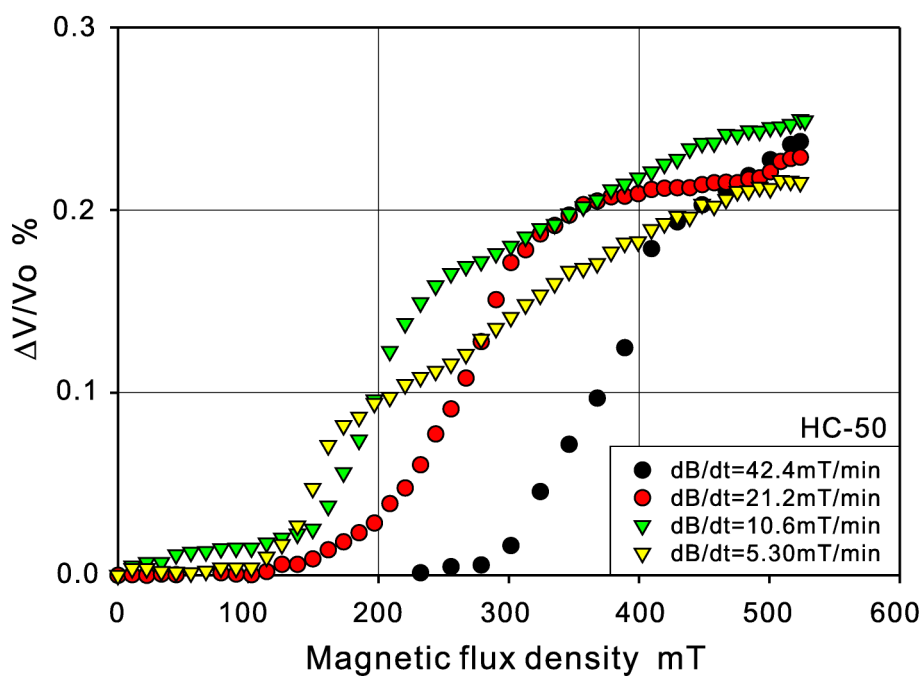


Figure 4.51: Magnetic flux density dependence of ultrasonic propagation velocity in HC-50 as a function of sweep rate

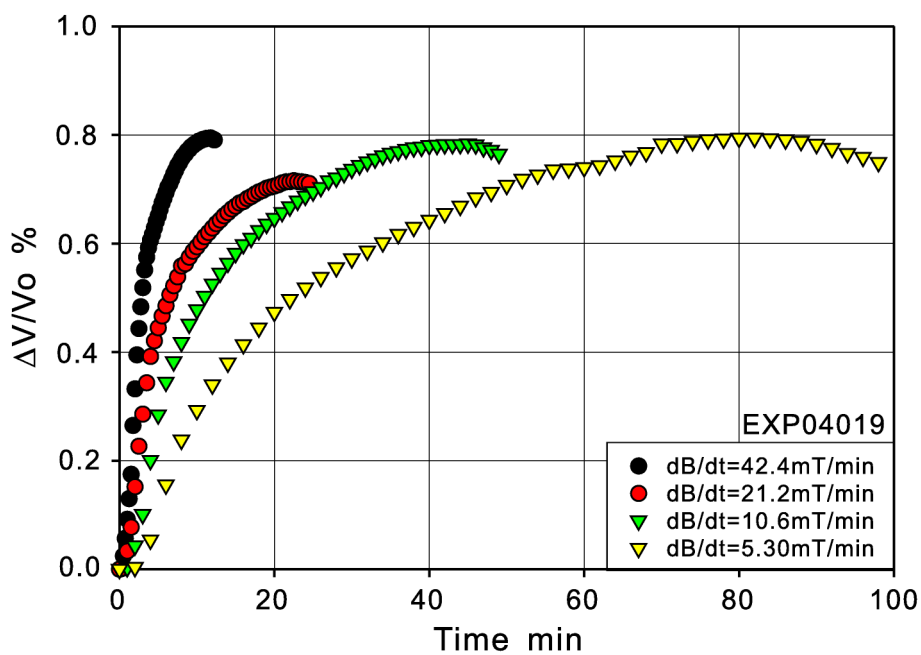


图 4.52: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in EXP04019 as a function of sweep rate

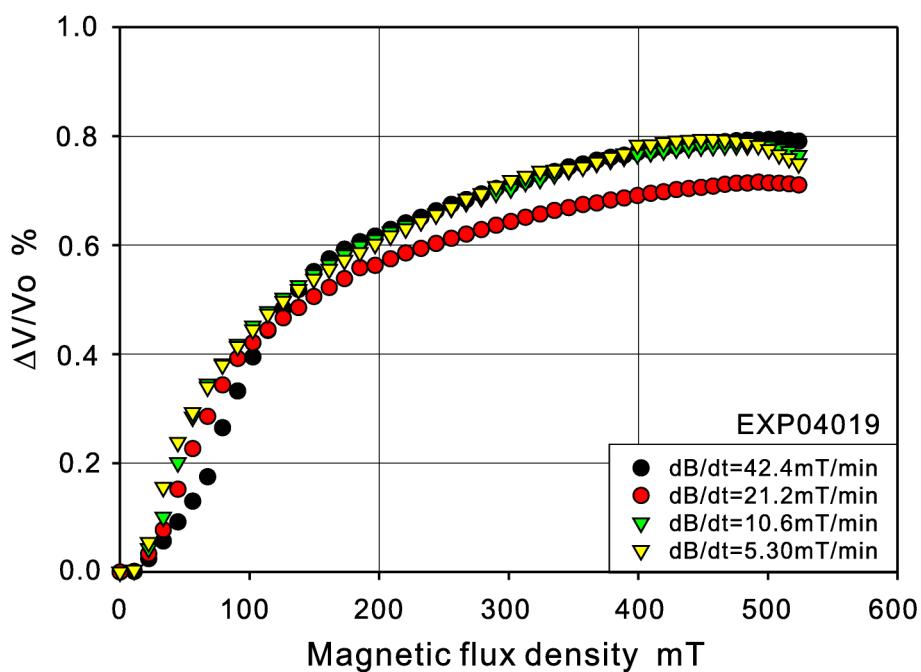


图 4.53: Magnetic flux density dependence of ultrasonic propagation velocity in EXP04019 as a function of sweep rate



### 4.13 磁性流体中の伝播速度に関する検討

本実験で用いた磁性流体は、W-40、HC-50、EXP04019、EXP01052 であり、図 4.9 によると、W-40 の溶媒である純水中の伝播速度は温度と共に上昇しており、HC-50 の溶媒であるケロシン中の伝播速度は温度と共に減少する。水以外の液体に関しては、温度上昇と共に伝播速度が減少することが知られている。ケロシンの場合、式 (2.25)、(2.26) の自由体積を考慮した式を考えると、温度と共に自由体積  $v_f$  は増加するので、伝播速度は逆に流体の温度増加と共に下がると考えられる。水の場合、自由体積による式からは説明がつかず、水の圧縮率を考慮する。さらに、水は伝播速度だけでなく、他の性質に関しても他の流体と異なる特徴的な性質を示す。これは、水の分子構造が深く関係していると考えられており、水分子の水素結合がその要因の一つとされている。

液体状態の水は、水分子が一つ一つ孤立して集まったものではなく、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ことが知られている。この水分子の会合構造に関しては、分子軌道法などの計算手法の発展によって、様々な説が提案されている。そこで、水の超音波伝播速度を考えると、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、水の圧縮率が減少し、式 (2.14) を考えると、伝播速度が増加する。さらに温度を増加させると、温度が 74 °C 程度で会合構造は崩壊し、会合構造によるの寄与がなくなるため、通常の液体と同様に伝播速度は減少に転じる。

そこで、磁性流体中の伝播速度を考えると、磁性流体は上記の溶媒に強磁性微粒子を安定分散させた液体であるため、この微粒子の影響を受けて、W-40、HC-50 ともにベースである溶媒よりも磁性流体中の伝播速度が小さくなっていると考えられる。そこで、内部粒子の運動の影響を考えると、温度上昇に伴い強磁微粒子のブラウン運動は活発化する。HC-50 について考えると、温度増加に伴う伝播速度の減少の要因として、温度上昇による溶媒ケロシン中の伝播速度の減少の影響と、ブラウン運動の活発化による影響の 2 つが考えられる。ケロシンの伝播速度と HC-50 の伝播速度の減少率が、ほぼ同等であること考えると、強磁微粒子のブラウン運動の影響はごく小さいものと考えられる。一方、W-40 においては、強磁微粒子のブラウン運動の影響が小さいと考ええると、伝播速度は増加しそうであるが、水に強磁性微粒子を混合することで、先に示した水の会合構造が崩壊し、他の液体と同様の性質を示すため、W-40 中の伝播速度も減少に転じていると考えられる。図 4.10 の EXP04019、EXP01052 の伝播速度は HC-50 に近い値であり、その変化についても上記と同様のことが考えられる。

次に、便宜的に式 (2.14) の  $c = \sqrt{K/\rho}$  を用いて、体積弾性率の計算を行う。25 °C の W-40、HC-50 中の伝播速度、物性値は以下の通りである。

- ・ W-40 伝播速度：1409.94m/s, 密度：1409kg/m<sup>3</sup>
- ・ HC-50 伝播速度：1057.82m/s, 密度：1390kg/m<sup>3</sup>

- ・水 伝播速度：1496.69m/s, 密度：1000kg/m<sup>3</sup>
- ・ケロシン 伝播速度：1277.67m/s, 密度：790kg/m<sup>3</sup>

この値を用いて、体積弾性率の計算を行うと次の表 4.3 のようになる。

表 4.3: Bulk modulus of fluids (at 25 °C, 1atm)

流体	体積弾性率 (GPa)
水ベース磁性流体	2.8
ケロシンベース磁性流体	1.6
水	2.2
ケロシン	1.3

表 4.3 のように、溶媒に強磁性微粒子を添加すると、体積弾性率は大きくなる。このことは、溶媒に強磁性微粒子を混合することで、液体の密度変化が大きくなることを示している。また、25 °Cにおいて、溶媒に強磁性微粒子の添加による体積弾性率の増加率は、W-40 では 27%、HC-50 では 23% であり、伝播速度の減少率は、W-40 では 6%、HC-50 では、18% となっている。一概に結論付けるのは難しいが、HC-50 の方が強磁性微粒子の添加による影響を強く受けていると考えられる。式 (2.14) を液体中の伝播速度にそのまま適用するのは問題があるが、このように単純計算することによって、液体の体積弾性率を評価し、その物性変化の特性などを推測するのは、一般的によく行われる手法である。

#### 4.14 磁場印加後の伝播速度の経時変化特性の検討

図 4.11, 図 4.12 によると、磁性流体に  $\phi = 0^\circ$  で磁場を印加すると、伝播速度が増加している。これは、磁場印加による強磁性微粒子の挙動と磁性流体中の鎖状クラスター形成が寄与していると考えられる。磁性流体中の強磁微粒子はブラウン運動を行っているが、磁場を印加することで、まず強磁性微粒子のブラウン運動が拘束され、さらに、磁場によって鎖状クラスターが形成される。磁性流体中に鎖状クラスターが形成されると、磁性流体中の内部粒子の局所濃度に差が出る。鎖状クラスターの形成領域は高濃度領域であるので、超音波の伝播速度が増加したものと考えられる。以上から、磁場印加時の磁性流体中の伝播速度は鎖状クラスターが大いに影響しており、伝播速度変化を評価する事でその内部構造の変化が解析できる。

図 4.11, 図 4.12 では、磁場印加直後から徐々に伝播速度が増加していることが分かる。これは、磁場印加時間と共に磁性流体中の鎖状クラスターが成長していることを示している。100mT の磁場の下、HC-50 では、2 時間半程度で伝播速度が一定になっており、W-40 では 90 分位をかけて一定に達している。すなわち、鎖状クラスターの成長にはやや時間がかかり、伝播速度が一定に

なるまで時間をかけて鎖状クラスターが成長し続けると考えることができる。また、EXP04019, EXP01052 では内部粒子の磁場応答性が優れており、磁場印加後 10 分程度で伝播速度が一定に達しており、磁場印加直後に鎖状クラスターが成長しているといえる。この鎖状クラスターの成長の違いは、4.6.1 節に記した磁性流体の物性値も影響を与えているものと考えられるが、そこに依存性を見出すことは難しく、物性値のみから鎖状クラスター成長時間を推測するのは本研究では不可能であった。また、100mT の磁場印加よりも 500mT の磁場印加の方が伝播速度の変化は大きく、変化が一定になるまでの時間も早い。これは、強磁場の方が粒子を強く凝集させ、鎖状クラスターは大きく成長し、その成長速度も速いということを示していると考えられる。

次に、 $\phi$  について考える。図 4.13, 図 4.14 に示される通り、500mT においては、 $\phi = 0^\circ$  の方が  $\phi = 90^\circ$  より大きな伝播速度変化が得られており、 $\phi = 90^\circ$  では伝播速度変化が負になっている。鎖状クラスターは磁場方向に形成されるため、 $\phi = 0^\circ$  における鎖状クラスター形成方向に超音波が伝播するほうが、 $\phi = 90^\circ$  のように垂直に伝播するより伝播速度は大きくなる。これに関しては、より詳細な検討が必要なため、後の異方性の検討の部分で詳しく記述する。100mT においては、鎖状クラスターがさほど大きく成長していないため、超音波の伝播には大きな影響を与えず、 $\phi = 0^\circ$  と  $\phi = 90^\circ$  で伝播速度変化がほぼ同等であったと考えられる。

また、測定 of 最終段階で磁場を除去しても伝播速度はやや変化するだけで減少したりせず一定のまま保たれる。さらに測定後、磁性流体を攪拌すると伝播速度変化はほぼ 0 に戻る。このことを考えると、磁場を除去しても内部粒子の凝集体は自然分散せず、鎖状クラスターの形成領域に高濃度で分布している状態であり、攪拌によって始めて内部粒子の凝集体が分散したものと推測できる。内部粒子の自体運動を考えると、通常、内部粒子はブラウン運動を行なっているため、自然分散は進むはずである。しかしながら、磁場印加により内部粒子は凝集し、この凝集体は磁場所を除去しても粒子一つ一つまでは崩壊できず保持されていると考えられる。この凝集体はブラウン運動をしないうえ、自然分散も進んでいないものと考えられることができる。

## 4.15 伝播速度の磁場依存性の検討

### 4.15.1 一般的な伝播速度変化の傾向

図 4.15, 図 4.16, 図 4.18, 図 4.19, 図 4.21, 図 4.22 によると、HC-50, EXP04019, EXP01052 全ての磁性流体において、伝播速度変化の傾向は類似している。増磁と共に伝播速度は上昇し、その後の減磁過程では、伝播速度はもとの経路で減少せず、ヒステリシスが計測されている。これは、増磁過程では、鎖状クラスターが成長することで、伝播速度も増加しており、減磁過程においては、鎖状クラスターは崩壊せずにそのまま保持されていることを示していると考えられる。測定終了後、磁性流体を攪拌して伝播速度を測定すると、その変化が小さくなる。測定終了後は磁場や温度といった他の要因が全く作用しないので、減磁過程では、内部粒子が自然に分散する

ことなく鎖状クラスター形成領域に高濃度の状態で分散しているものと考えられる。結果は図示していないが、このヒステリシスは W-40 においても計測されており、同様の傾向を示している。

#### 4.15.2 特異な伝播速度変化の傾向

図 4.17, 図 4.20, 図 4.23 によると,  $\phi = 90^\circ$  では, 前述のような傾向とは全く違う, 特異な変化が起こっている。各磁性流体において, 磁場を印加すると, 増磁と共に一度伝播速度が増加し, その後, 伝播速度は減少に転じる。減磁過程においても, 伝播速度は一定に保たれずに, 減磁と共に再び伝播速度が増加するという特異な傾向を示している。

この特異な変化は, 初め磁場印加時間の少なさに起因するものであると考えた。前節にも記した通り, 伝播速度変化には経時変化が存在するので, 本測定における磁場印加 1 分ごとの測定では, 磁場印加時間が少なすぎると考えられる。そこで, 磁場印加時間を 5 分にして再測定した。結果を図 4.54 に示す。この図に示される通り, 磁場印加 1 分でも 5 分でもほぼ同じ傾向を示すことが分かり, 磁場印加時間に起因するものではないことが確認できた。

そこで, この特異な現象もやはり内部粒子の鎖状クラスターの成長過程に起因するものであると考えられる。図 4.54 では, 増磁過程の伝播速度増加段階①, 増磁過程の伝播速度減少段階②, 減磁過程③と 3 つに分けた。この図を用いて, この過程を次のように検討した。

- ① 低磁場では鎖状クラスターは大きくしておらず, 内部粒子の濃度が相対的に濃くなっているために伝播速度が増加
- ② 鎖状クラスターが徐々に大きく成長し,  $\phi = 90^\circ$  であるため, 鎖状クラスターが超音波の伝播速度に大きな影響を与えてたため, 伝播速度が減少 (詳細は異方性の検討で記す。)
- ③ 減磁により, 鎖状クラスターは小さくなり内部粒子の凝集体が分散せず超音波伝播領域に相対的に高濃度で分散している状態であり, 播速度増加。

#### 4.15.3 磁性流体の種類による比較

図 4.24 では EXP04019 と EXP01052 における増磁過程を取り上げた。これを見ると, EXP04019 の方が伝播速度変化が大きい。EXP01052 と比較して, EXP04019 の鎖状クラスターの方がより大きく成長したのと考えられる。これは, 図 4.1 に示すような, 内部粒子の構造やその分散性による磁化の違いに端を発しているものであると考えられるが, 本測定のみで, 磁性流体の物性値の違いなどからその内部粒子の構造を解析するのは難しい。

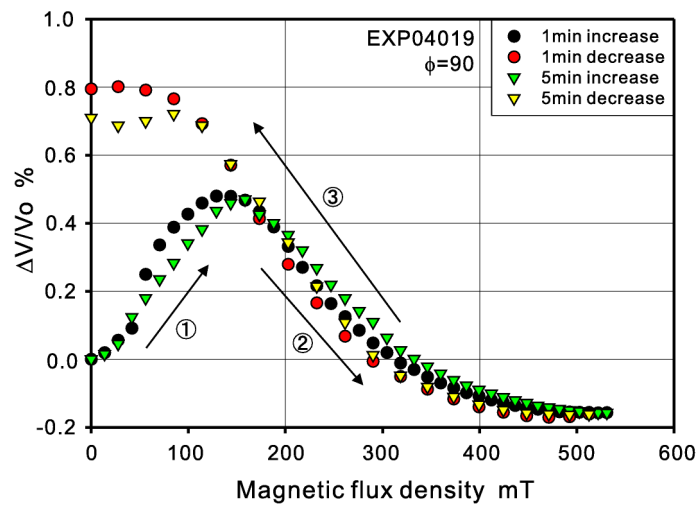


図 4.54: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in EXP04019 for  $\phi = 90^\circ$

#### 4.15.4 他の研究者との比較

伝播速度変化の磁場依存性の計測はいくつか行われており、ここにそれらとの比較を行う。Chung-Isler[60]の計測は、おそらく磁性流体の伝播速度変化に対して初めて行われた計測であると考えられ、磁場を200mT程度まで増加させながら、伝播速度変化を検討している。 $\phi = 0^\circ$ 、 $\phi = 45^\circ$ においては、増磁と共に伝播速度が増加しており、 $\phi = 90^\circ$ においても特異な変化が捉えられているという意味では、本研究の計測結果と傾向は似ている。しかしながら、音速変化率が20%と異常に大きな値が計測されており、計測システムの伝播時間の計測に問題があったものだと考えられる。Skumielら[67]は、水ベース磁性流体において同様の測定を行っており、ヒステリシスが捉えられている。本研究で行ったW-40の結果と比較しても、音速変化率など多くの部分で一致した結果が得られている。

### 4.16 伝播速度の異方性の検討

#### 4.16.1 一般的検討

図 4.25～図 4.27 に伝播速度の異方性を議論するために、HC-50 の異方性を取り上げた。各磁場において、十分に磁場を印加し鎖状クラスターを成長させた状態で測定している。 $\phi = 0^\circ$  から  $\phi$  を増加させていく過程で測定の後、 $\phi = 90^\circ$  から戻す過程でも測定を行った。結果に示されるように、 $\phi$  の増加過程でも減少過程でもヒステリシスはなく、ほぼ同様の伝播速度が測定された。これにより、テストセルの回転に起因する、内部に形成された鎖状クラスターの崩壊は起こっていないことが確認できた。これらの結果を元にして3Dの図にすると、図 4.28 に示される通り、非

常に滑らかな変化が測定でき、実験方法の信頼性も確認することができた。

図 4.29～図 4.32 から、磁性流体中の伝播速度の変化には、異方性が存在し、全ての磁性流体において、 $\phi = 0^\circ$  の時に伝播速度が最大となっており、 $\phi = 90^\circ$  の時伝播速度が最小となっている。鎖状クラスターは印加磁場方向に形成されるため、 $\phi = 0^\circ$  の時、超音波は鎖状クラスターと平行に伝播するため、鎖状クラスターによる伝播の妨害が小さいと考えられ伝播速度が最小となっている。逆に、 $\phi = 90^\circ$  の時、超音波が鎖状クラスターと垂直に伝播するため、伝播速度が最大となっていると感覚的には理解ができるであろう。そこで、実際に鎖状クラスターがどのように伝播速度に影響を与えているかを考える。第 5 章で示す減衰率であれば、超音波が鎖状クラスターに物理的に衝突することで障壁となり影響を受けていると理解できるが、伝播速度については、説明が不十分である。

そこで、テストセル内部に形成される鎖状クラスターの概略図を図 4.55 に示す。印加磁場下において、鎖状クラスターは概略図のように磁場方向に形成されていると考えられる。超音波が鎖状クラスターを伝播するとき、どのような領域を伝播するかが問題となる。 $\phi = 0^\circ$  では鎖状クラスター領域中を主に伝播していると考えられ、 $\phi = 90^\circ$  の時は、超音波は鎖状クラスターと溶媒の 2 つの領域を伝播すると考えることができる。鎖状クラスターが一様に分散していると仮定すると、鎖状クラスターは溶媒に比べて、体積弾性率が大きいので、鎖状クラスター中のみを伝播する  $\phi = 0^\circ$  の方が伝播速度が大きくなったものと考えられるし、鎖状クラスターの形成によって伝播領域の密度が  $\phi = 0^\circ$  では、相対的に高くなるため伝播速度も最大となったと考えることもできる。逆に溶媒域では伝播速度は小さいため、溶媒域とクラスター域の両方を伝播する  $\phi = 90^\circ$  において、伝播速度が最小になったと考えられる。本計測システムでは、クラスター域と溶媒域を伝播する超音波を重ね合わせのうえ、平均することで受信波形を表示するシステムとなっており、クラスター域、溶媒域を伝播した超音波は分けて検出することはできない。

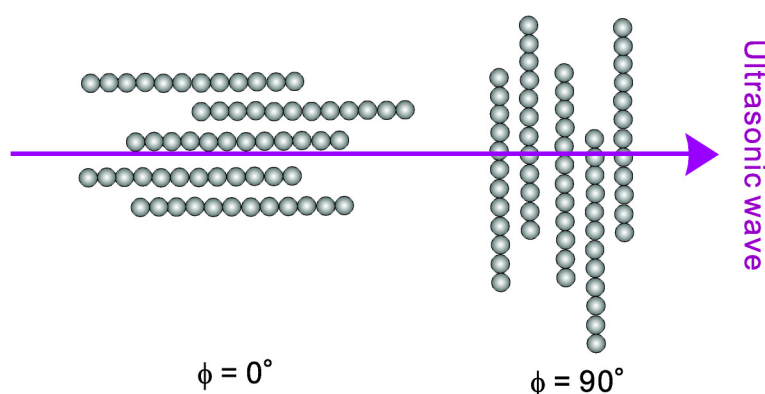


図 4.55: Ultrasonic propagation in chain-like cluster

さらに、式 (2.14) の  $c = \sqrt{K/\rho}$  を考えると、鎖状クラスターの形成は、磁性流体の体積弾性率に影響を及ぼしていると考えられる。しかしながら、体積弾性率は異方性を持たないため、異方性の存在を考えるに、鎖状クラスターの形成により鎖状クラスター方向と垂直方向の弾性率とはなっていると考えることができる。伝播速度から考えると、鎖状クラスター方向では伝播速度が大きいためその弾性率も大きく、逆に垂直方向では弾性率は小さいものと考えられる。これは、鎖状クラスターの形成を概念的に理解するうえで一つの参考となる。しかしながら、鎖状クラスターの形成は、クラスター域と溶媒域が複雑に絡み合っており、実際に伝播速度から弾性率を見積もることで、磁性流体どうして鎖状クラスターの状態を比較することは困難である。

#### 4.16.2 磁性流体の種類による比較

HC-50, EXP04019, EXP01052(炭化水素ベース)における異方性はW-40(水ベース)と比較して異方性の傾向が類似している。これは図 4.1 に示される磁性流体の粒子構造が影響していると考えられ、炭化水素ベースの磁性流体では内部粒子は単分子吸着構造であるが、水ベースでは2分子吸着構造となっている。一般的に単分子吸着構造の方が磁場印加に対して安定した挙動を示すことが確認されており、このため炭化水素ベースの磁性流体の方が伝播速度の変化、結局は鎖状クラスターの形成が類似しているものと考えられる。

さらに、磁場印加による伝播速度変化の大きさは水ベースであるW-40の方が比較的大きい。これは、水ベース磁性流体では、炭化水素ベースの磁性流体に比較して鎖状クラスターが大きく成長したためであると考えられる。鎖状クラスターの成長の違いは、前述の通り、粒子構造の違いに起因するといわれている。水ベースでは、炭化水素ベースに比べて、鎖状クラスターが顕著に観測される。この鎖状クラスターの大きさの違いは、Appendix A.2 で示す可視化実験によっても確認された。

#### 4.16.3 他の研究者との比較

異方性の研究に関しては、理論、実験ともに比較的多くなされており、ここで本研究の測定結果と他の研究者の研究結果との比較を行う。

#### Sokolov-Tolmachev の理論との比較

4.5.2 節に Sokolov-Tolmachev の理論 [59] を記した。この理論と実験結果を比較する。Sokolov-Tolmachev は、磁性流体中の超音波伝播速度の異方性を式 (4.9) の通り理論付け、未知のパラメータに適当な値を見積もることで、異方性の理論図を作成した。この理論計算に用いたのは、ケロシンベース磁性流体であり、印加磁場強さは 200mT であった。そこで、本研究のこの条件にお

けるの結果と Sokolov-Tolmachev の理論計算結果をあわせて図 4.56 に示す。図 4.56 によると、Sokolov-Tolmachev の理論計算と実験結果では、定性的な傾向は一致しているが、定量的には一致していない。各物性値が異なるため、当然の結果であるが、音速変化率のオーダーと傾向が同じだということは注目すべき点である。

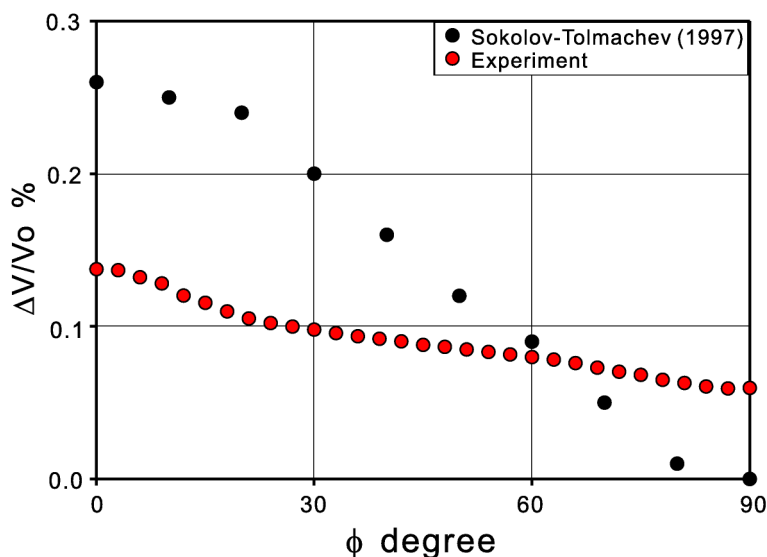


図 4.56: Comparison with the theory of Sokolov

#### その他の研究者との比較

Parsons は式 (4.2) のような理論式を導いて、超音波伝播速度は、無磁場下の伝播速度を基準として  $\sin^2 \phi$  に依存すると理論付けたが、この結果は後になされた他の研究者の実験との一致は見られない。本計測においても全く異なる傾向であった。これは、Parsons は磁場印加時の磁性流体を液晶として計算しており、鎖状クラスターの形成を考慮に入れていないためであると考えられる。

Mehta-Patel[64] は異方性への磁性流体温度の依存性を計測したが、結果には、非常にばらつきが多く、信頼性のある結果ということとはできない。Skumiel ら [67] の計測は、磁場は 50mT 程度でしか計測を行っておらず、ごく小さい異方性しか計測できていないが、磁場依存性の計測と同様、本研究と一致している部分が多い。

#### 4.17 内部粒子濃度の変化に伴う伝播特性の検討

鎖状クラスターはいわば濃度分布の違いでもあると考えられるので、異なる粒子濃度の磁性流体で測定を行った。



#### 4.17.1 伝播速度

伝播速度の値は W-40 を薄めた測定結果が図 4.33, HC-50 を薄めた測定結果が図 4.34 に示されている。これらの図に示される通り、どちらの磁性流体においても濃度を薄めるほど、溶媒の伝播速度に近づいてくることが分かる。これは、内部粒子の濃度が薄まったことにより粒子添加の影響が薄れ、溶媒自体の特性に近づいていることを顕著に表した結果であるといえる。

この結果を利用すると、W-40 の場合、磁性流体をある割合で薄めることで、伝播速度において温度依存性の無い磁性流体を調合でき、温度制御を必要としないシステムへの応用や実験が可能になると考えられる。

#### 4.17.2 磁場印加後の経時変化特性

図 4.35～図 4.38 に示す伝播速度の経時変化について考える。前述の通り、内部に形成される鎖状クラスターは、伝播速度変化が一定になるまでの時間をかけて成長していると考えられる。これらの図に示すように、十分な時間経過後伝播速度変化が一定になっている。伝播速度変化が一定になる時間を見ると、全ての結果について、磁性流体を薄めるほど、この時間は短くなっており、鎖状クラスターの形成に時間を要さなくなった。さらに、薄めることで磁場への応答性がよくなることから、図 4.6, 図 4.7 に示される磁化率を考えることで、使用目的に対して適当な条件を持つ磁性流体の調合の可能性も考えられる。

次に、内部構造に関して考える。ここまで、磁性流体中の伝播速度の大小によって内部に形成される鎖状クラスターの形状、大きさを議論してきた。本測定の場合、磁性流体を薄めるほど、内部粒子の影響が小さく、クラスターも相対的に小さくなるので、伝播速度変化が小さくなり、磁場による影響が少なくなるものと予測した。しかしながら、これらの結果が示す通り、予想のつかないものであり、磁場印加による伝播速度が濃度に対して全く規則性のないものであった。これは、薄めた磁性流体に磁場印加した時の磁性流体の物性が影響をしていると考えられる。

#### 4.17.3 異方性の検討

異方性に関しては、顕著に違いの現れた W-40 における結果を図 4.39～図 4.47 に示した。希釈した磁性流体においては、希釈していない磁性流体の異方性の結果とは全く異なる異方性が現れた。これに関して、Parsons の理論と比較することで検討する。

前節の異方性に対応する傾向を考えると、異方性は磁場が強いほど大きく現れており、磁性流体が薄いほど、磁場による影響が小さいことが分かる。濃度が薄いほど溶媒に近い状態であるといえるので、磁場による影響も少なく、伝播速度変化も小さいと考えられる。また、磁場が大きければ鎖状クラスターも大きく成長するので、伝播速度の変化が大きくなっているといえる。こ

れらは、先に記した異方性の結果に準じるものであるといえるが、伝播方向のなす角  $\phi$  に関する異方性は全く異なる傾向が得られている。

### Parsons の理論との比較

磁性流体を希釈した時の異方性は、 $\phi = 45^\circ$  において伝播速度が最大となる部分が現れた。ここから単純に内部構造を解析することは難しく、推測もつげがたい。式 (4.2) に示した Parsons の理論 [55] によると、伝播速度の異方性は、無磁場下の伝播速度を基準として  $\sin^2 2\phi$  に依存しており、伝播速度変化は  $\phi = 45^\circ$  で最大となり、本測定結果と類似している。そこで、濃度が 20% と 30% の磁性流体について、この傾向が顕著に表れている 500mT における結果と Parsons の理論に適切なパラメータを見積もって計算した結果を、図 4.57 に示す。

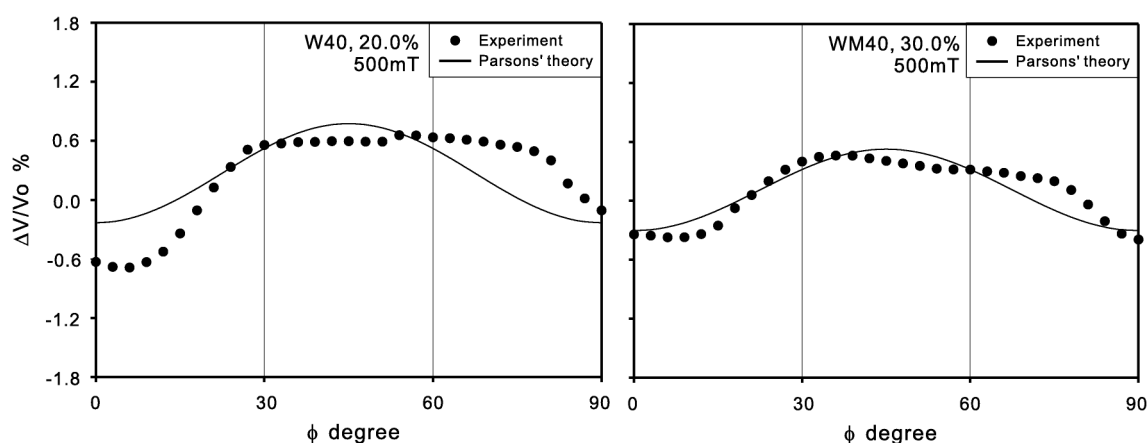


図 4.57: Comparison of experiment with the theory of Parsons

図 4.57 に示されるように、希釈した磁性流体に磁場を印加すると Parsons の理論に傾向が類似しているのが分かる。Parsons は磁場印加時の磁性流体をネマティック液晶とみなして液晶理論から伝播速度変化の理論を導き出した。液晶とは、棒状もしくは円盤状の異方的な形をもつ分子からなる結晶と液体の中間相といえ、秩序の低い相から順に、ネマティック相、スメテリック相、柱状相に分類される。これを考えると、内部粒子の濃度分布が低いと磁場の印加によって、内部には鎖状クラスターが形成されるというよりは、ネマティックな液晶とみなせるような液晶状態に変化していると考えられる。その結果、希釈していない磁性流体の異方性で示された  $\phi = 0^\circ$  で伝播速度が最大となる異方性から、ここに示す結果の  $\phi = 45^\circ$  近傍で最大となる異方性へと遷移したものと考えられる。経時変化にも記した特異な伝播速度変化もこの異方性が原因であると考えられる。しかしながら、Parsons の理論から導き出したことは、あくまで推論でしかなく、Parsons の理論が検証されていないため、今後、更なる実験、検討が必要となる。

## 4.18 Sweep rateによる伝播速度変化特性

同じ磁場強度でも徐々に増磁していくのと、急速に増磁するのでは鎖状クラスターの成長に差が出ると予測できる。そこで、sweep rateを換えた実験を行った。

図 4.48, 図 4.49 に示される通り, W-40 においては, 明らかに伝播速度変化特性に違いが出ているのが分かる。一方, 図 4.50, 図 4.51 に示される HC-50 では, さほど伝播速度変化に差が出ていない。図 4.49, 図 4.51 に示される磁場依存性をもとにした図を考えると, この変化の傾向がほぼ同等であれば鎖状クラスターはどの sweep rate においても同様に成長していることを示す。W-40 では, sweep rate の違いにより明らかに伝播速度変化に差が出ており, ゆっくり増磁するほど伝播速度は大きく, 鎖状クラスターも大きく成長していることを示している。W-40 では, 磁性流体のクラスターの成長に時間がかかるため, 磁場増加が緩やかな方が, 凝集が強く進んだものであると考えられる。一方, HC-50 においては, どの sweep rate においても, ほとんど伝播速度変化に差がなく, 形成される鎖状クラスターの大きさにはさほど差がないと考えられるが, 磁場を早く印加するほど強磁場域で急速に鎖状クラスターが成長している。HC-50 に関しては, 経時変化からは説明がつかず, 内部粒子の構造に起因するものであると推測できる。

EXP04019 においては, 他の磁性流体と比べ図 4.53 はどの過程においてもほぼ同様の傾向を示している。また, 時間軸をもとにした図 4.52 にも顕著に示される通り, 磁場印加に時間をかけてもかけなくても鎖状クラスターは磁場に対して同等の成長をなしているといえる。図 4.13 にも示される通り, EXP04019 は経時変化もほとんど差がない。磁性流体の問題点の一つに, 磁場印加時の挙動に再現性が小さいことがあげられている。EXP04019 の計測のように, 磁場印加による測定結果の繰り返し性があるのは, 内部構造を解析するうえで非常に有効である。この意味で, EXP04019 は, 磁場応答性も良好で, 計測に適した磁性流体だといえる。

Jozefczak ら [73] は, sweep rate に基づく計測も行っており, 計測には水ベース磁性流体を用いている。この結果, sweep rate の違いによる差が顕著に表れており, ゆっくり増磁する方が伝播速度変化が大きくなっており, 本研究の W-40 による計測と傾向が良く一致している。

## 4.19 結 言

本章では, 磁性流体中の超音波伝播速度を測定した。結果, その伝播速度には, 印加磁場強さ, 印加磁場時間, 磁場印加方法などによって伝播速度が変化し, ヒステリシスや異方性といった特徴的な超音波伝播特性を得た。この変化は, 磁性流体中の内部構造変化が要因の一つであると考え, この伝播速度特性の結果をもとに内部クラスター形成過程, 構造の解析を行った。磁性流体は不透明であることから可視化などによる内部構造解析は非常に困難であるため, このように超音波を用いた内部構造解析は非常に有効であると考えられる。

# 第5章 磁性流体中の超音波伝播特性と内部構造解析-超音波の減衰によるアプローチ

## 5.1 緒言

本章では磁性流体中の超音波の減衰に注目して超音波伝播特性の実験，過去の理論研究，実験との比較を行う。また，第4章の伝播速度の結果と比較しつつ磁性流体中の内部構造変化を解析する。減衰率の測定は非常に難しいため，本研究で用いた減衰率の評価方法もここに記す。

## 5.2 磁性流体中の超音波吸収理論

超音波伝播速度の理論研究同様，磁性流体中の超音波の吸収に関してもいくつかの理論研究がなされている。ここに，Parsonsによる理論[55]，Taketomiの吸収理論[56]をまず取り上げる。理論計算の詳細な方法は，Appendix Bに記述する。

### 5.2.1 Parsonsの理論

4.5.1節にParsonsの伝播速度の理論を示したが，Parsonsは磁性流体中の伝播速度の異方性を理論付けると同時に，吸収係数の理論式も導出している[55]。Parsonsによる吸収係数 $\alpha_p$ は次のように与えられる。

$$\alpha_p = C_0 \lambda \frac{\omega^2 \gamma_1}{8 \rho_0 V_0^3} \left\{ \frac{(1 - \omega^2 / \omega_c^2)^2}{(1 - \omega^2 / \omega_c^2)^2 + \omega^2 \tau^2} \right\} \sin^2 2\phi \quad (5.1)$$

各パラメータは4.5.1節に記した通りである。この式に表される通り，Parsonsは吸収係数の異方性も $\phi = 0^\circ$ の時の吸収係数を基準として， $\sin^2 2\phi$ に依存すると理論付けた。しかしながら，この結果も後になされた実験研究との一致は見られなかった。

### 5.2.2 Taketomiの理論

Taketomi[56]は，Parsonsの理論の近似レベルを上げ，磁性流体中の磁場印加時に形成される鎖状クラスターの回転運動や並進運動による減衰を考慮に入れた異方性の理論式を導いた。

Taketomiによる吸収係数 $\alpha_T$ は，鎖状クラスターの回転運動の散逸エネルギーによる吸収 $\alpha_r$

と鎖状クラスターの並進運動の散逸エネルギーによる吸収  $\alpha_t$  によると考え、それぞれ次のように記した。

$$\alpha_r = \frac{\omega^2}{2\rho_0 c^3} \left\{ \alpha_4 + \zeta - 2\eta_s/3 + 2\alpha_5(\cos \phi)^2 + \alpha_1(\cos \phi)^4 \right\} \quad (5.2)$$

$$\alpha_t = \frac{3\pi\eta_s d \omega^3 v_c N (6\pi\eta_s d + \rho_0 v_c \omega) / (k_c^2 v)}{(\sin \phi - \rho_m v_c \omega^2 / k_c)^2 + (6\pi\eta_s d \omega / k_c)^2} \quad (5.3)$$

ここで  $\alpha_i$  (ここでは,  $i=1, 4, 5$ ) は液晶理論における Lselie 係数,  $d$  はクラスター半径,  $\zeta$  は粘性係数,  $\eta_s$  は溶媒のずり粘性率,  $\rho_0$  は磁性流体の密度,  $\rho_m$  は強磁性微粒子の密度,  $v$  は磁性流体の体積,  $v_c$  はクラスター体積,  $N$  は単位体積あたりのクラスターの個数である。また,  $k_c$  はクラスターが磁場から受ける復元力  $F_1$  とクラスターの変位  $x_c$  によって以下のように定まる。

$$k_c = -F_1 / \{(\sin \phi) \cdot x_c\} \quad (5.4)$$

Taketomi の吸収係数  $\alpha_T$  は, この 2 式の和で与えられる。

$$\alpha_T = \alpha_r + \alpha_t \quad (5.5)$$

Taketomi による吸収係数も未知のパラメータが多く, 実験との比較は困難であるが, 後の Skumiel の実験によって比較がなされている [69]。Taketomi の理論をもとに本研究においても比較検討を行うこととする。

### 5.3 減衰率の計測

流体中の吸収係数は, 厳密には第 2 章で記した式 (2.31) によって定義される。しかしながら, 磁性流体に限らず, 流体中の吸収係数の計測は非常に難しい。これは, 超音波の拡散や減衰等に起因したもので, 測定には, 振動子の超音波発信面と受信面の中心軸を厳密に合わせなければならぬ, 振動子間に対象流体以外の媒体を存在させない等の条件が必要となる。この条件を考えると, 本研究において厳密な意味での磁性流体の吸収係数を求めることは不可能である。

そこで, 本研究では受信波形の振幅 (受信電圧) を無磁場下と印加磁場下において比較することで, 無磁場下の磁性流体から磁場印加した時の磁性流体中の超音波の減衰率の評価を行った。この手法は超音波伝播の減衰を評価するうえでよく用いられる手法である。

#### 5.3.1 減衰率の計測方法

実験装置図 3.1 において, 受信波形は GPIB を介してパソコンに取り込むことができ, 受信される音圧 (振幅) は電圧に変換して測定される。そこで, 実験において図 5.1 のように, 無磁場下

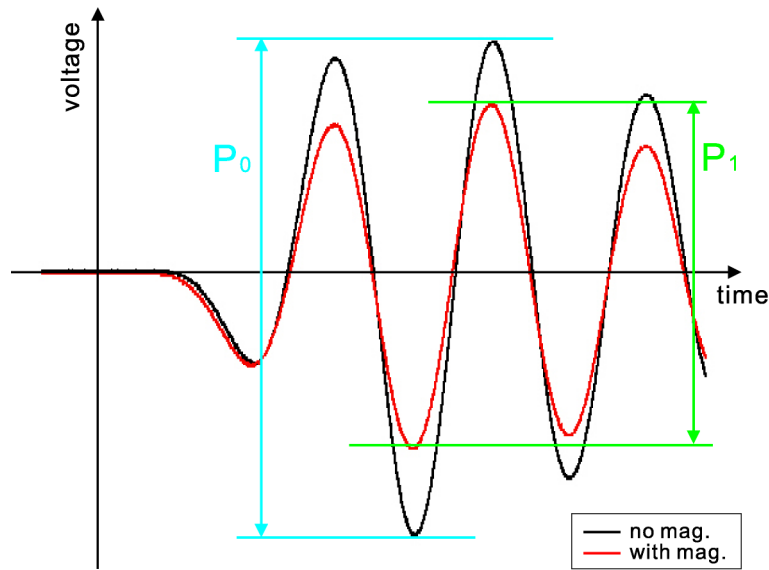


図 5.1: Measurement of attenuation

と磁場印加時に磁性流体中の超音波の伝播した時，それぞれ図に示すような受信波形が得られたとする。

この時，受信波形の振幅を peak to peak で読み取る。具体的には，図に示される  $P_0$ (無磁場下の受信音圧) と  $P_1$ (印加磁場下の受信音圧) を測定する。

一般的に，入力音圧  $P$ ，出力音圧を  $P'$  とすると，音圧の減衰は dB によって次のように定義される。

$$-20 \log_{10} \left( \frac{P'}{P} \right) \quad (5.6)$$

ここで注意が必要なのは，一般的には，dB は信号の増幅の評価に用いられるが，ここでは，減衰を評価するため，信号が減衰する時に正になるよう定義している。

ここで媒質  $L$ (m) あたりを通過する音波の減衰量  $\alpha$ (吸収係数ではない) は次のように定義できる。

$$\alpha = -\frac{20}{L} \log_{10} \left( \frac{P'}{P} \right) \quad (5.7)$$

単位は，(dB/m) である。本研究では，パルサーからの入力音圧  $P$  の大きさの計測ができないため，次のように減衰を評価する。

図 5.1 に示したように，無磁場下の磁性流体の受信音圧を  $P_0$ ，磁場印加時の受信音圧を  $P_1$  とした時，無磁場から磁場を印加した時の磁性流体中の超音波の減衰量変化は，

$$\Delta\alpha = -\frac{20}{L} \log_{10} \left( \frac{P_1}{P} \right) - \left\{ -\frac{20}{L} \log_{10} \left( \frac{P_0}{P} \right) \right\} \quad (5.8)$$

$$= \frac{20}{L} \log_{10} \left( \frac{P_0}{P_1} \right) \quad (5.9)$$

となる。式 (5.9) によって、磁場印加時の超音波の減衰率を評価する。この定義では、超音波の減衰が大きいほど  $\Delta\alpha$  は正の大きい数になる。また、この方法は、第 4 章の音速変化率と同様に無磁場から磁場を印加した時の変化を評価しているため、音速変化率との比較が容易であることも利点の一つにあげられる。

## 5.4 減衰率変化の実験

本実験では、試験磁性流体として EXP04019 と EXP01052 の磁性流体を用いた。溶媒、分散方法等が同じで物性の違う両磁性流体を用いて実験、比較することにより、磁場印加時の内部粒子の挙動を検討することができると考えられる。磁性流体の物性値については、4.6.1 節にあげた通りである。

第 4 章における磁性流体中の超音波伝播速度特性の計測結果に対応させて、以下の実験を行った。

1. 磁場印加直後からの減衰率の経時変化
2. 減衰率変化の印加磁場強さの依存性
3. 減衰率変化の異方性

## 5.5 磁場印加後の減衰率の経時変化特性

4.8 節で、磁性流体への磁場印加直後からの超音波伝播速度の経時変化特性を測定した。これに対応して、同様の方法で減衰率の経時変化を測定する。これにより、磁性流体中の内部粒子がどのような挙動を行い、鎖状クラスターを形成していくか、磁性流体の物性による鎖状クラスターの成長の違いが解析できる。

測定方法は、4.8 節と同様の方法で伝播速度変化に変わり減衰率変化を計測した。測定結果を図 5.2~図 5.5 に示す。図 5.2 は EXP04019 における結果で、100mT, 500mT の磁場を  $\phi = 0^\circ$ ,  $\phi = 90^\circ$  で印加したときの減衰率の経時変化である。60 分後からは、磁場を除去して 10 分間計測を続けている。磁場印加直後に減衰率が急激に上がることから図 5.3 に磁場直後から 10 分までの結果を載せた。図 5.4, 図 5.5 は EXP01052 のもので、同様の方法で結果を示している。

## 5.6 減衰率の磁場依存性

磁性流体への印加磁場強さにより、減衰率の変化にどのような特性があるか測定した。磁場による依存性を測定することで、伝播速度変化と併せて増磁過程では鎖状クラスターの成長の解析が可能であると考えられる。また、減磁過程では、内部に形成された構造の崩壊過程を減衰率からも予測することができる。

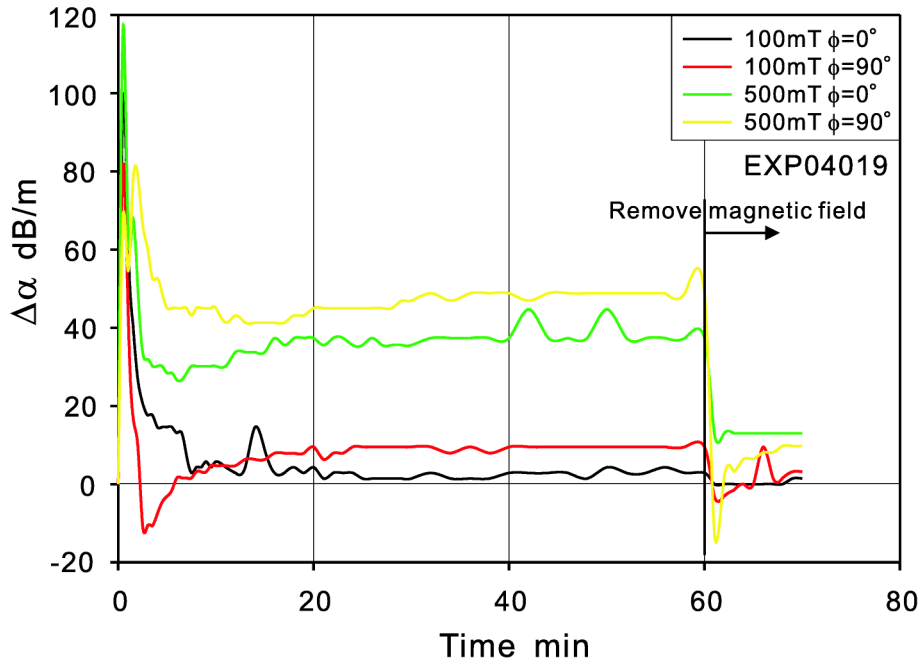
測定方法は、4.9節に示した方法と同様である。測定結果を図5.6～図5.9に示す。図5.6～図5.8は、EXP04019の磁性流体において、 $\phi$ を3種類に変えて測定を行ったものである。さらに図5.9は、EXP04019の磁性流体における $\phi = 0^\circ$ 、 $45^\circ$ 、 $90^\circ$ の時の増磁過程の減衰率変化をまとめたものである。

## 5.7 減衰率の異方性

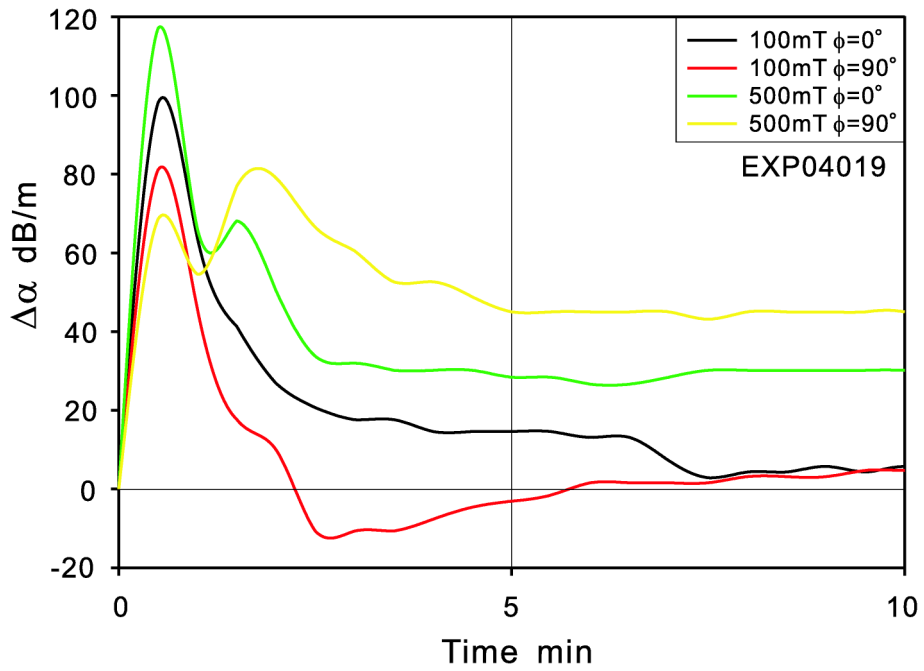
磁性流体中の鎖状クラスターは磁場方向に形成される。鎖状クラスター(磁場方向)に対して超音波が伝播する角度( $\phi$ )に関する異方性を測定することで、伝播速度の異方性と併せて、鎖状クラスターの形状解析ができると考えられる。

異方性の実験方法は、4.10節と同じ方法である。測定結果を図5.10に示す。異方性は $\phi = 0^\circ$ から $\phi = 90^\circ$ の角度の増加過程における結果を100mTごとに示した。





⊗ 5.2: Elapsed time dependence of ultrasonic attenuation in EXP04019 ①



⊗ 5.3: Elapsed time dependence of ultrasonic attenuation in EXP04019 ②

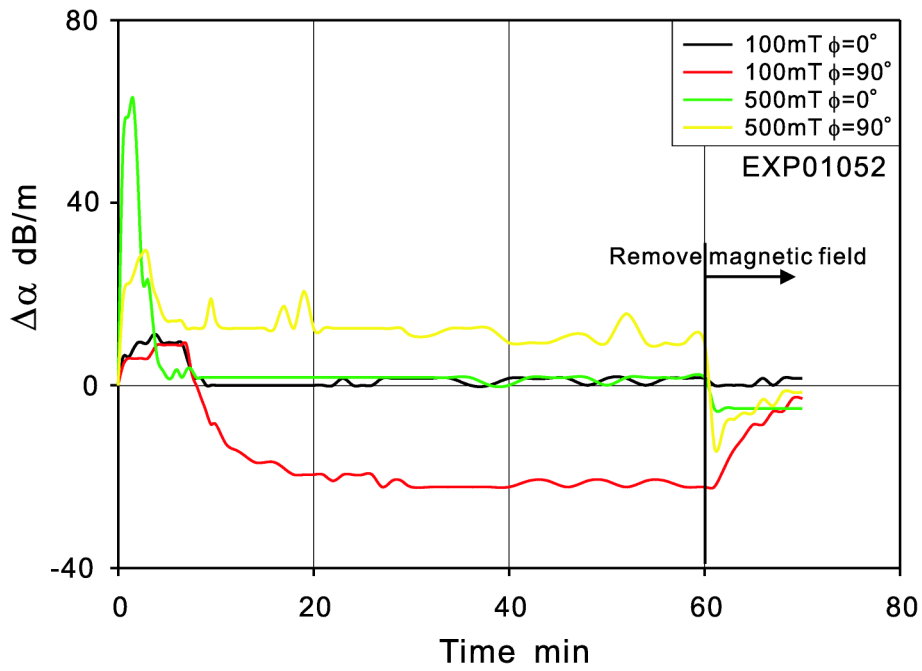


图 5.4: Elapsed time dependence of ultrasonic attenuation in EXP01052 ①

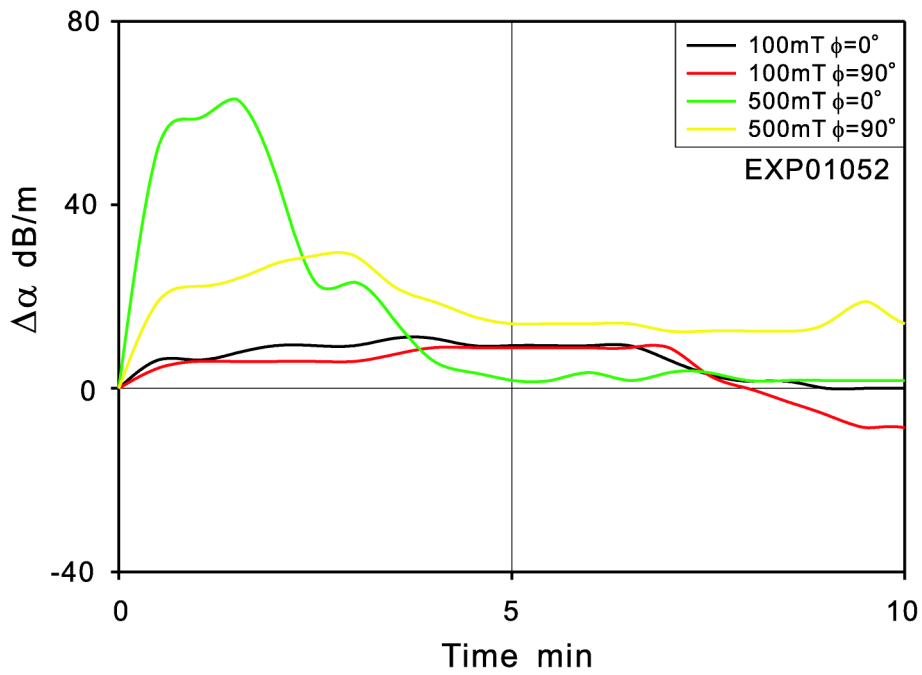


图 5.5: Elapsed time dependence of ultrasonic attenuation in EXP04019 ②

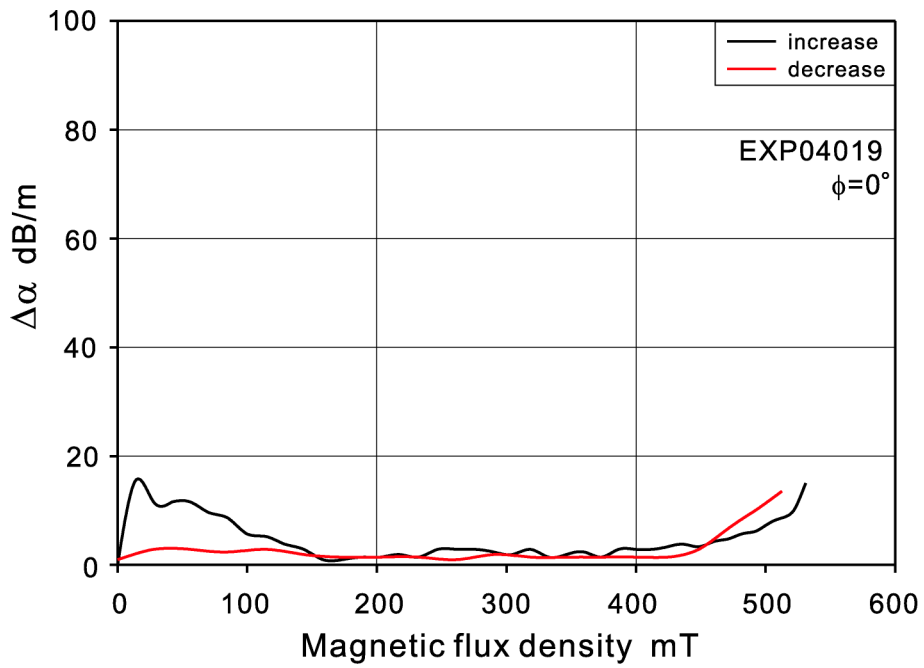


图 5.6: Magnetic field dependence of ultrasonic attenuation in EXP04019 for  $\phi = 0^\circ$

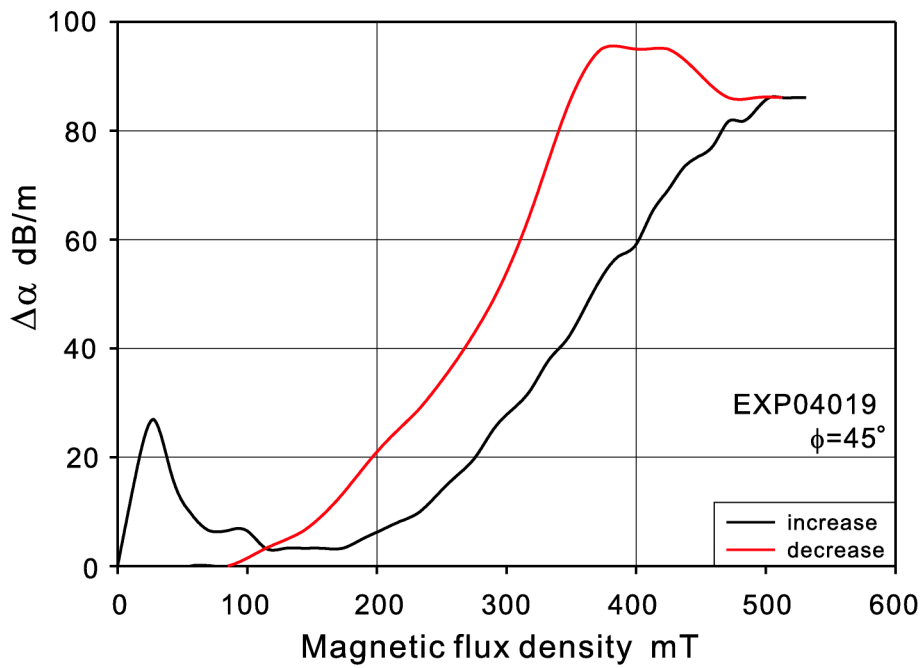


图 5.7: Magnetic field dependence of ultrasonic attenuation in EXP04019 for  $\phi = 45^\circ$

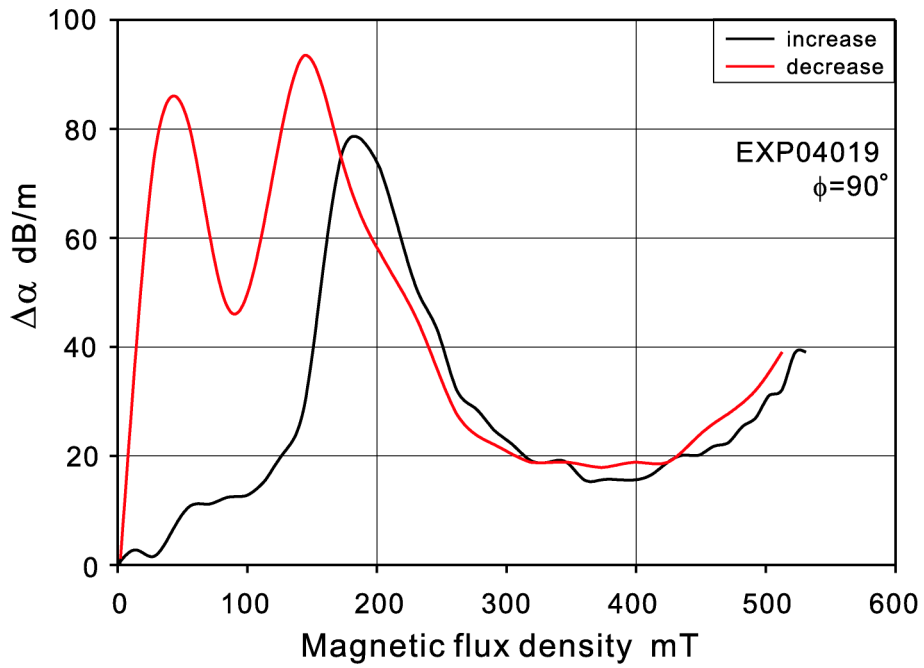


图 5.8: Magnetic field dependence of ultrasonic attenuation in EXP04019 for  $\phi = 90^\circ$

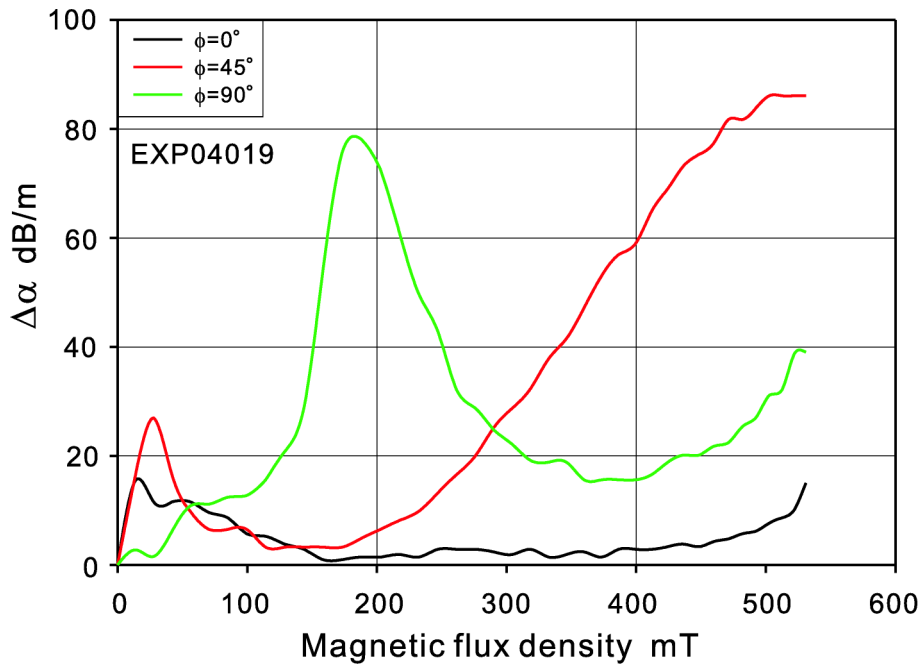


图 5.9: Magnetic field dependence of ultrasonic attenuation in EXP04019 (increase process)

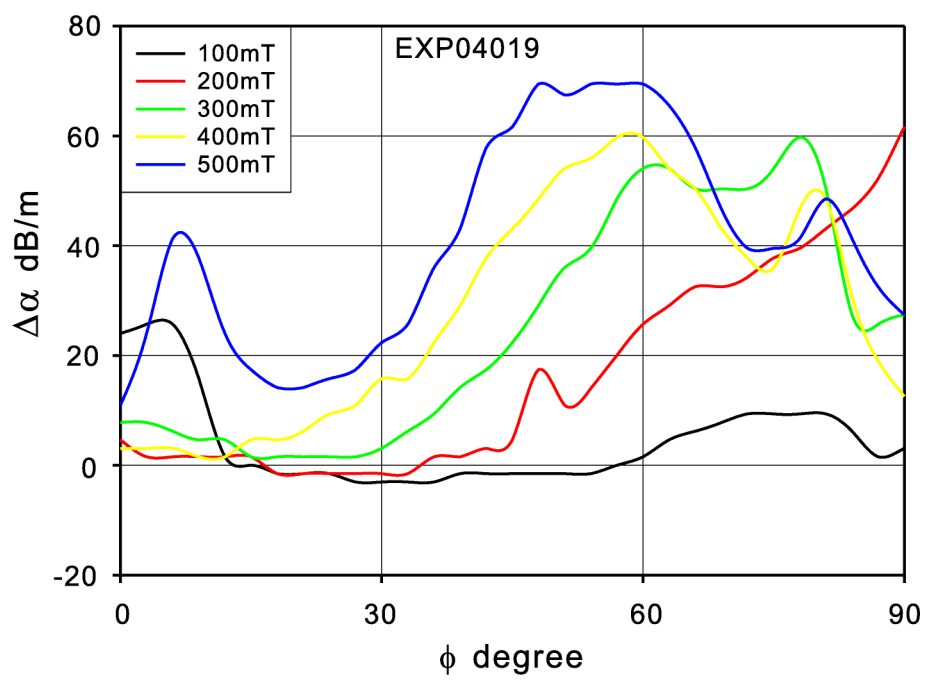


图 5.10: Anisotropy of ultrasonic attenuation in EXP04019

## 5.8 減衰率の経時変化特性の検討

図 5.2, 図 4.13, 図 5.4, 図 4.14 をまとめて, 図 5.11 に示す。これらの図を考えると, 磁場印加直後に減衰率が急激に増加することが分かる。磁場印加後 5 分程度で伝播速度変化は定常になり, この時間で鎖状クラスターが形成されると記した。これを減衰率の結果に当てはめてみると, 図 5.3, 図 5.5 に示される通り, 減衰率の急激な変化が起こるのも, 磁場印加後約 5 分程度の領域であることがわかる。さらに鎖状クラスターが形成されると伝播速度変化同様に減衰率も定常になることが分かる。この急激な減衰率の変化は, 磁場印加によって, 内部粒子がクラスターの形成に向かって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されてしまうと内部粒子の運動は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。

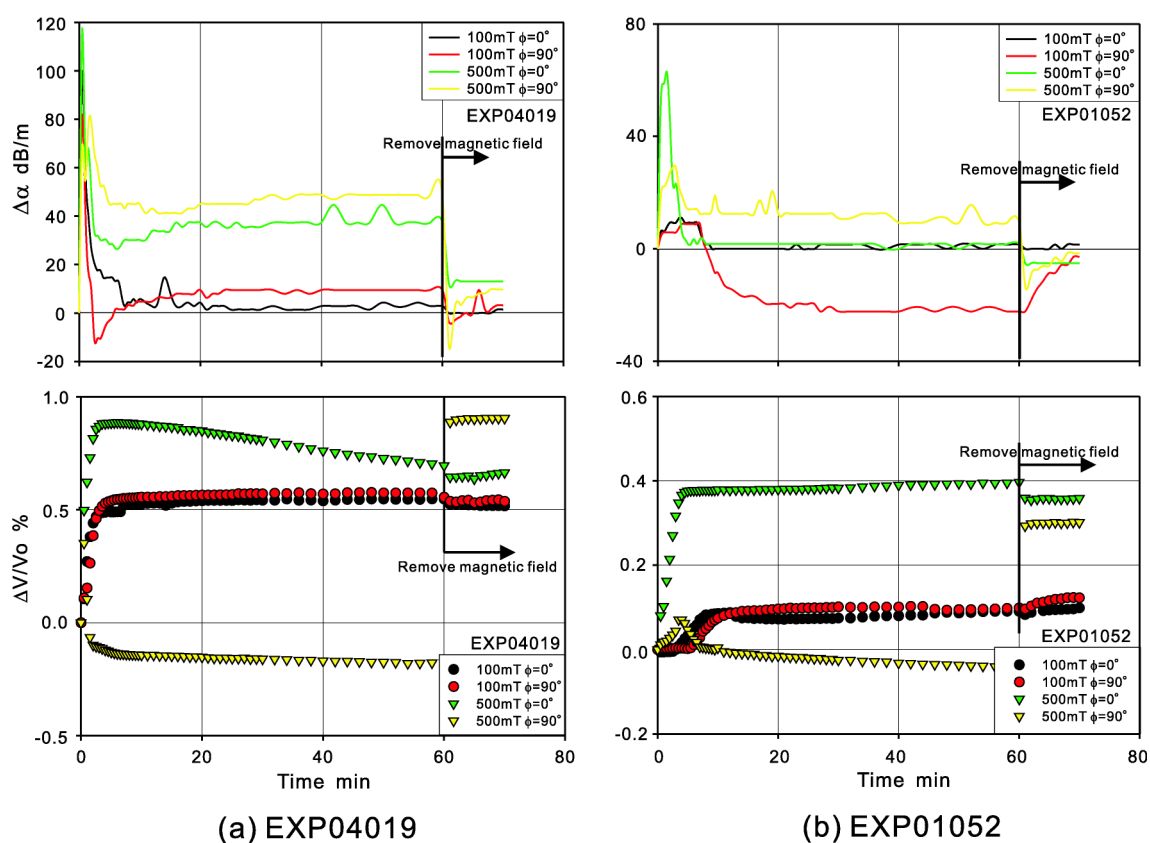


図 5.11: Elapsed time dependence of attenuation and ultrasonic propagation velocity

また, EXP01052 ではそれほど顕著な差が現れていないが, EXP04019 では, 500mT の結果は 100mT に比べ, 減衰率がかなり大きいことが分かる。これは, 鎖状クラスターの形成が超音波の減衰に影響を与えていることを示している。 $\phi = 0^\circ$  で伝播するときよりも  $\phi = 90^\circ$  で伝播するときのほうが減衰率が大きく, 鎖状クラスターに垂直で伝播することは, 溶媒域とクラスター域を多く伝播していかなければならないことから減衰率が増加したと考えられる。

また、磁性流体間の違いを見ると、伝播速度変化では EXP01052 の方が小さく、この変化は内部の鎖状クラスターの形成に起因するものなので、EXP01052 で成長する鎖状クラスターは EXP04019 と比較して細く小さいと推測した。減衰率においても同様に EXP01052 の方が小さく、超音波の伝播では伝播領域に阻害するものが少ないほど減衰率も小さくなるはずなので、この結果からも EXP01052 に形成する鎖状クラスターは小さいものであると考えられる。

しかしながら、EXP01052 では、100mT の磁場を  $\phi = 90^\circ$  で印加した時に、減衰率が負となる結果が得られた。これは、超音波が増幅していることを示す。無磁場から磁場を印加した時、内部粒子の作用によって、超音波が伝播しやすくなったという事を示すが、一般的に考えて、内部粒子が凝集に進んでいる領域で、増幅することはありえないといえる。そこで、再測定も行なったが、同様に増幅する結果が得られた。低磁場では、鎖状クラスターの形成も小さいため、溶媒域と内部粒子濃度の濃い領域が複雑に絡み合っていることが要因の一つにあげられるが、この結果のみから内部構造を予測することは困難である。増幅の要因に関しては、今後、測定方法の検定なども含めて、詳細に検討する必要がある。

測定後、磁場を除去すると減衰率は 0 に近づき、無磁場の状態に戻ろうとするのが分かる。4.14 節に記した通り、伝播速度では磁場を取り除いても伝播速度が変わらず、磁場により凝集した内部粒子は、分散が進まず、このためブラウン運動も弱く、鎖状クラスターの領域に粒子濃度が濃い状態で存在していると考えた。減衰率の結果と比較することからも、同様な内部状態であると推測できる。

## 5.9 減衰率の磁場依存性の検討

### 5.9.1 一般的傾向

図 5.6～図 5.8 に示される EXP04019 の磁場依存性の減衰率変化を見る。増磁過程では、図 5.9 にまとめたように、 $\phi = 0^\circ$  では、図 4.18 に示される伝播速度増加のような傾向はない。鎖状クラスター形成方向に超音波が伝播する時は、伝播に大きな影響は与えていない。しかし、 $\phi = 45^\circ$  では、鎖状クラスターが超音波の伝播に影響を与えると考えられ、増磁と共に減衰率が増大している。 $\phi = 90^\circ$  では、特異な変化が測定され、200mT の低磁場において減衰率が最大となり、さらに強磁場になると減衰率は減少する。 $\phi = 90^\circ$  について考えると、図 4.20 に示される通り、鎖状クラスターの形成に伴い予測できない結果が得られた。磁場依存性において、100mT 以下の低磁場領域では、わずかに減衰率が増加している。低磁場域では鎖状クラスターが成長は小さく、磁場により鎖状クラスターの形成へ向けて粒子の運動が活発化したものと考えられる。

減磁過程においては、伝播速度変化に示されるような特徴的なヒステリシスは計測されておらず、ほぼ増磁過程と同様な傾向をとっている。減衰率変化の経時変化にも示した通り、減磁によって鎖状クラスターは小さくなり、内部粒子の凝集体の自然分散も進んでいないものと推測できる。

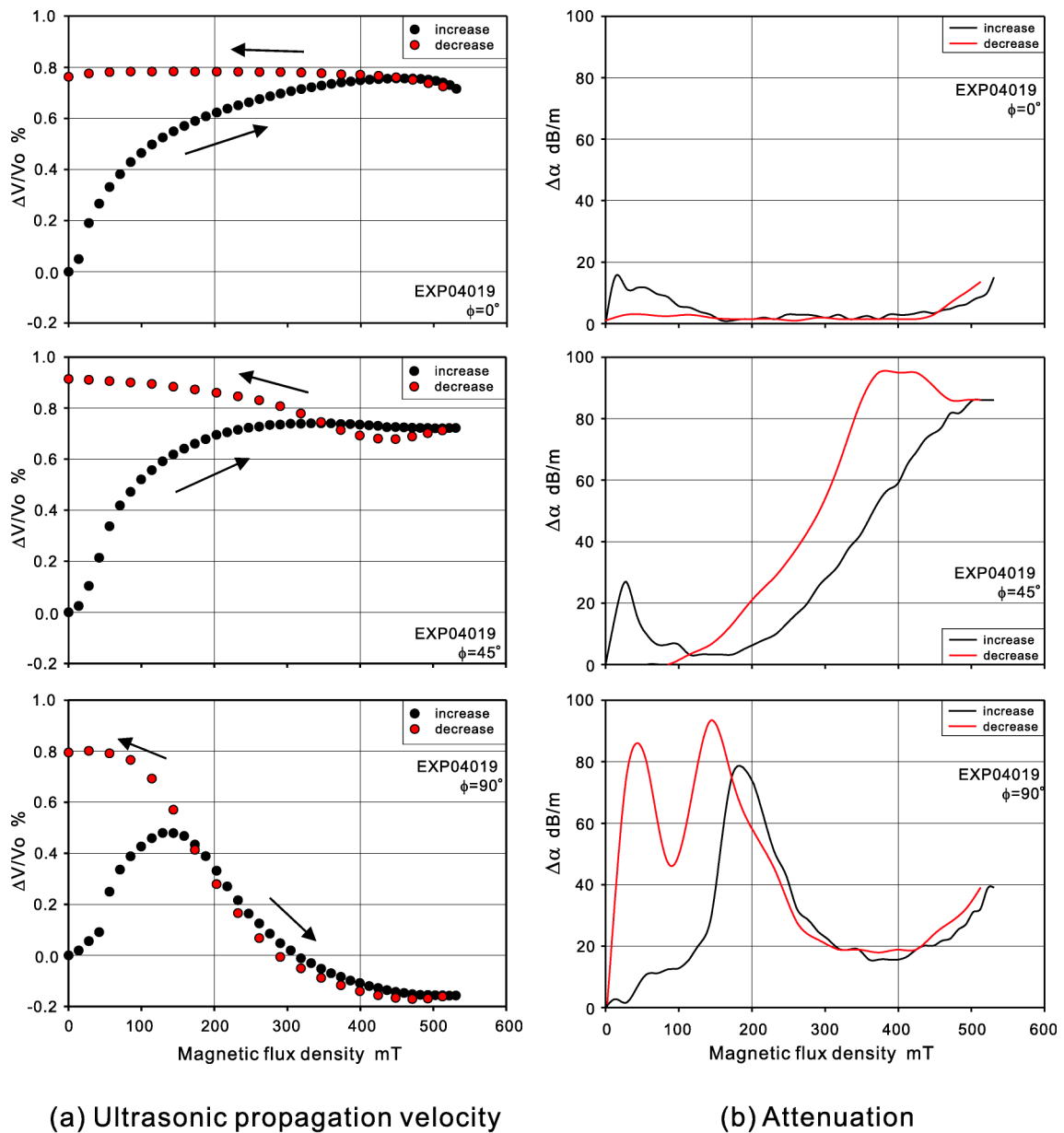


図 5.12: Hysteresis of attenuation and ultrasonic propagation velocity

### 5.9.2 Skumiel の計測との比較

減衰率の磁場依存性の計測は、Skumiel らによって積極的に行われている。Skumiel ら [68] が初めて行った計測は、計測結果には非常にばらつきが多く、内部粒子の構造から鎖状クラスターの形成を推測しているものの、結果にばらつきが多いため解析には問題がある。結果を比較すると、100mT 以下の低磁場域で、わずかに減衰率が増加しているのは本研究と一致している。さらに 100mT 以下の磁場、 $\phi = 0^\circ$  において詳細に計測を行っており [70]、50mT 程度で最大になると



いう結果を得ている。これは、先に述べた通り、本研究でも同様の傾向が得られており、内部粒子の運動が鎖状クラスターの形成に向けて活発になっているためと考えられる。また、Skumielらの計測においても  $\phi = 90^\circ$  においては、内部状態の推測が困難な特異な変化が計測されている。

## 5.10 減衰率の異方性の検討

### 5.10.1 一般的傾向

減衰率は、図 5.10 に示されるように、 $\phi = 0^\circ$  付近で、一度減衰率が少し大きくなり、その後は、 $\phi$  が大きくなるほど減衰率も大きくなる。これは、伝播速度の異方性と比較しても特徴的であり、伝播速度では、鎖状クラスターの形成によって内部粒子の濃度分布の差が伝播速度に異方性を与えると検討した。一方、減衰率では、 $\phi = 90^\circ$  において、いわば鎖状クラスターが壁のように障壁となり減衰率が大きくなったといえる。磁場が大きいほど異方性は大きく、内部粒子が強く凝集し大きな鎖状クラスターが成長したものと考えられる。 $\phi = 90^\circ$  に関しては、このように内部構造を解析できるものの、 $\phi = 0^\circ$  においては、鎖状クラスター方向に超音波が伝播するので、減衰率は小さくなるものと考えられるが、減衰率が増加する領域が得られており、この結果のみから内部構造を推測することが非常に難しいので、次節において、理論研究と比較することで検討する。

### 5.10.2 他の研究者との比較

式 (5.1) に示した通り、Parsons[55] は減衰率は  $\sin^2 2\phi$  に依存すると理論付けた。この結果は、他の研究者の実験結果とも一致が見られず、本測定においても同様である。

Taketomi の理論 [56] は式 (5.2)～式 (5.5) のような非常に複雑な式で示され、Taketomi により未知のパラメータを適当に与えることで計算がなされている。この計算をもとに、実験結果との定性的な比較を図 5.13 に示す。実験データにはばらつきが多いが、その傾向は Taketomi の理論に類似している。Taketomi の理論では  $\phi = 20^\circ$  付近と  $\phi = 90^\circ$  で減衰率が最大となっており、本実験においても  $\phi = 10^\circ$  付近と  $\phi = 90^\circ$  付近に減衰率の大きくなる領域が得られた。Taketomi によると、この  $\phi = 20^\circ$  付近の減衰率の増加は、鎖状クラスターの並進運動による吸収であるとされている。これは、 $\phi = 20^\circ$  付近の鎖状クラスターとほぼ平行方向に超音波が伝播する領域でも減衰率が増加することを示す。

Gotoh-Chung[57] は電荷の関係から非線形性に求める理論を提案しており、Taketomi の理論と同様、 $\phi = 30^\circ$  付近と  $\phi = 90^\circ$  に減衰率が最大となる領域が現れており、本研究の計測結果と定性的な傾向は類似している。両理論とも任意パラメータの数値を適当に選ぶことで実験値に合わせて理論曲線を得ており、この理論の信頼性を計るのは難しいが、実験結果と比較することで定性的な検討を行い、内部構造解析を行う。両者共に異方性による内部構造変化の解析は行っていない

いが、磁性流体中の内部粒子の挙動は、非常に複雑であり、理論のみから鎖状クラスターの形成を理論付けるのは困難である。理論と実験両面で、鎖状クラスターと垂直方向以外にも、減衰率が大きくなる領域が確認できたことは内部粒子の運動を考えるうえで重要である。

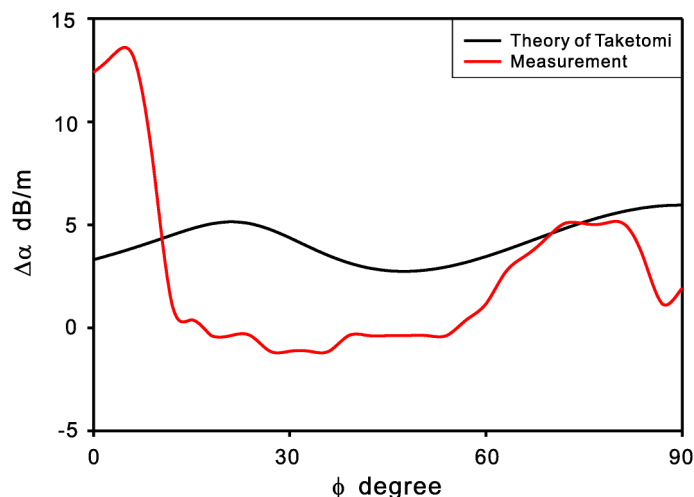


図 5.13: Anisotropy of attenuation in experiment and theory

一方、実験研究では、Isler-Chung[61]が減衰率の異方性を測定した。異方性の傾向自体は本研究と同様であるが、 $\phi = 0^\circ$ 、 $\phi = 40^\circ$ 、 $\phi = 90^\circ$ において、磁場依存性の実験も行っており、 $\phi = 0^\circ$ 、 $\phi = 40^\circ$ では、低磁場部で急激に減衰率が增大し磁場増加とともに減衰率が増加していくという結果は本研究結果と良く一致していた。しかしながら、 $\phi = 90^\circ$ における特異な変化は得られていない。Skumielらによって実験がなされているが、結果は上記したものと同様であった。

## 5.11 磁性流体による比較

本研究では、EXP01052においても測定を行った。結果を比較すると傾向はやや異なっていた。その傾向としては、100mTの低磁場域において、一度減衰率が大きくなることは同じである。EXP04019と比較して減衰率も小さく、増磁における減衰率も大きな変化が得られていない。伝播速度による検討同様、鎖状クラスターの形成が小さく超音波の伝播にはさほど影響を与えないため、減衰率も小さくなったものと考えられる。これらは、4.6.1節に示した磁性流体の物性値と磁化率、内部粒子の違いが鎖状クラスターの形成に大きく影響を与えたと考えられ、詳しい知見のためには、さらに多くの種類による磁性流体における詳細な計測が必要であると考えられる。

このように磁性流体が異なると減衰率変化の傾向も異なっており、減衰率に関しては、一概に全ての磁性流体で同じ傾向として内部構造を解析するのは難しい。このため、磁性流体ごとに伝播速度、減衰率を計測比較することによって、磁性流体の種類ごとに内部構造を解析し比較する

ことは重要である。

## 5.12 結 言

本章では、磁性流体中の超音波の伝播の減衰率を計測し、その結果をもとに理論との比較、内部構造の解析を行った。第4章の伝播速度の実験に準じて、減衰率の経時変化、磁場依存性、異方性の測定を行なった。これらの結果を伝播速度の結果と比較することで、伝播速度の結果を補完する解析も行なえた。

経時変化特性では、磁場印加直後に急激に減衰率が増加する。これは、磁場印加直後には内部粒子が鎖状クラスターの形成に向かって活発に運動しているためであると考えられ、鎖状クラスターが形成されると減衰率は変化しなくなる。また、磁場依存性では、伝播速度のような増磁、減磁過程におけるヒステリシスは測定できなかった。伝播速度の結果のみから鎖状クラスターは減磁過程でも保持されているものと考えたが、減衰率の変化と併せると、減磁によって鎖状クラスターは小さくなるが、内部粒子の凝集体の分散は進まないと考えられた。逆に、異方性においては伝播速度のような内部粒子の挙動を予測できる傾向は得られず、 $\phi = 0^\circ$  付近と  $\phi = 90^\circ$  付近で減衰率が大きくなる結果が得られた。

# 第6章 MR流体中の超音波伝播物性と内部構造解析-磁性流体との比較

## 6.1 緒言

MR流体は、磁性流体と比較して内部粒子が1000倍程度大きい磁気機能性流体で、内部粒子が大きいため懸濁液としての性質を示す。磁性流体では磁場を印加すると、見かけの粘度変化といった物性変化や鎖状クラスターの形成などが特徴的であった。一方、MR流体に磁場を印加すると、その磁化の大きさから流動性は消滅する。また、クラスターの形成も内部粒子が塊のような塊状クラスターになるといわれている。

本章では、このMR流体中の伝播速度に基づく超音波伝播特性を調べる。さらに磁性流体と比較しつつ、内部粒子の大きさに起因するクラスター形成過程、形状などの内部構造解析を行う。

MR流体中の超音波伝播特性は、磁性流体における研究と異なり著者の知る限り世界的にもほとんど研究がなされていない。これは、MR流体中を伝播する超音波の減衰や散乱が非常に大きく、計測が困難なためであると考えられる。本研究においても、MR流体の計測は、波形が弱く非常に乱れていたため困難であった。実験では、わずかな伝播時間の変化を捉えることで、伝播速度変化を測定した。

## 6.2 MR流体中における過去の研究

MR流体の研究は、磁場印加時のダイナミックな特性変化を適用した応用分野への研究が盛んである。しかしながら、磁場印加時のレオロジー特性の解析や内部構造解析などの基礎研究は比較的少ない。応用研究に関しては、第1章で詳細に述べた通りであるので、2つだけ取り上げる。Volkovaら[96]は、印加磁場下におけるMR流体に条件を変えて、せん断応力を与えて、可視化を行った。その結果、MR流体では磁場印加時にせん断応力を与えるとクラスターが網状パターンを持って階層構造を形成することが明らかとなった。この網状パターンを比較することで流れ場における粒子の挙動について解析できることを示した。また、Nishiyamaら[97]は、MR流体の印加磁場下のクラスター構造の解析とレオロジー特性の評価を行った。これにより、増磁によるクラスターの形成に伴い、見かけの粘度や降伏応力が著しく増加することを実験的に確認した。

## 6.3 MR 流体中の超音波伝播特性測定方法

MR 流体中の超音波伝播速度の計測も磁性流体に記した方法に準拠して行った。しかしながら、図 3.4 に示した磁性流体の波形に比べて、減衰や散乱が原因となり、受信波が微弱なうえ、波形は大きく乱れていた。本研究ではオシロスコープの感度を上げて波形を表示し、受信波形から磁場印加によるわずかな伝播時間変化を捉える計算することで、超音波伝播特性の測定を行った。

### 6.3.1 MR 流体中の超音波受信波形

磁性流体の受信波形図 3.4 と同様に、MR 流体中の超音波受信波形の一例を図 6.1 に示す。図に示されるように MR 流体中の超音波受信波形は、大きく乱れていることが分かる。この受信波形の問題点は次の点にある。

1. 受信波形が乱れている
2. 受信位置の特定が難しい
3. 受信波が用いている周波数の周期を持っていない

このような問題から磁性流体と同様の方法で伝播速度を測定するのは難しい。しかしながら、磁場の印加により、受信波形がシフト (伝播時間が変化) することが捉えられたので、次に記す方法によって、超音波伝播時間を決め、音速変化率を求めることにした。

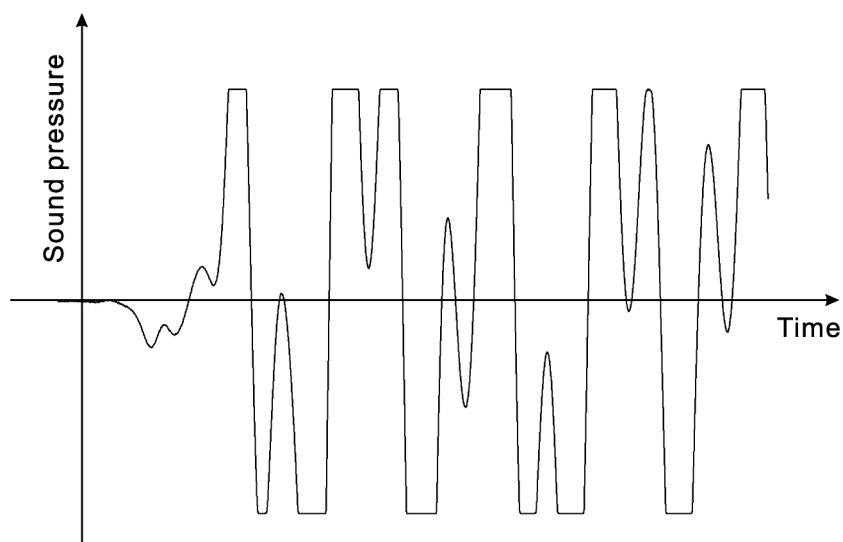


図 6.1: Wave form of ultrasound in MR fluid

### 6.3.2 測定方法

実験装置、テストセルは第3章で記した図3.1、図3.2をそのまま用いている。また、テストセルの超音波伝播距離 $L$ は、3.6.2節で決定したものをを用いた。次に、超音波伝播時間決定方法を記す。

図6.2に受信波形の超音波受信時間近傍の波形を示す。超音波受信時刻は図に示される Receiving ultrasound の点の $\tau_{mr1}$ を読み取ればよい。しかしながら、時間軸と明確に交わっていないため、 $\tau_{mr1}$ の特定は困難である。磁性流体ではこれに対して、1周期後の交差点を読み取り超音波の周期を差し引くという方法を用いたが、MR流体においては、波形が乱れているためにこの方法は用いることはできない。そこで、時間軸との交差点である Zero cross point 2, 3を用いて、超音波伝播時間を特定した。

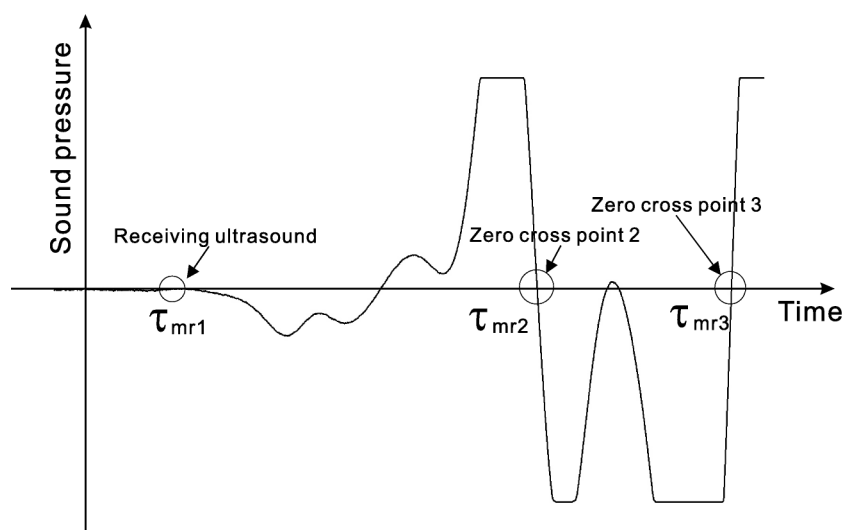


図 6.2: Wave form of ultrasound in MR fluid 2

1. 無磁場下の状態で、誤差は大きいものの $\tau_{mr1}$ を概ね読み取る。
2. Zero cross point 2, 3の時刻 $\tau_{mr2}$ ,  $\tau_{mr3}$ を読み取る。これらの時刻は、完全に時間軸と交差するため、読み取りによる誤差は生じない。
3. 求めた $\tau_{mr1}$ ,  $\tau_{mr2}$ ,  $\tau_{mr3}$ から $\Delta\tau_{mr1-2} = \tau_{mr2} - \tau_{mr1}$ ,  $\Delta\tau_{mr1-3} = \tau_{mr3} - \tau_{mr1}$ を計算し、受信位置からのずれ時間 $\Delta\tau_{mr1-2}$ ,  $\Delta\tau_{mr1-3}$ を求める。

このずれ時間を無磁場下の25℃のMR流体において計測する。これが、磁性流体における超音波の周期に相当する値である。この値を磁場印加時の測定において使用することで、磁場印加による伝播時間の変化を読み取れることになる。

そこで磁場印加の計測において、磁場印加時の Zero cross point を  $\tau'_{mr2}$ ,  $\tau'_{mr3}$  とすると、無磁場の状態で求めた  $\Delta\tau_{mr1-2}$ ,  $\Delta\tau_{mr1-3}$  を使用して、磁場印加時の MR 流体中の超音波伝播時間  $T$  は、次のように決定できる。

$$T = \tau'_{mr2} - \Delta\tau_{mr1-2} - T_a \quad (6.1)$$

である。 $\tau'_{mr3}$  についても同様である。このようにして、受信時刻は2通り得ることができるので、この受信時刻を用いて超音波伝播速度を計算し伝播速度を求め平均する。以上で求めた伝播速度を音速変化率として評価することで磁場印加による伝播速度変化を評価した。

### 6.3.3 誤差の検討

図 6.2 において、 $\tau_{mr1}$  を読み取り時に誤差が生じる。そこで、この誤差の検討として、実測波形の超音波受信時刻付近をさらに拡大したものを図 6.3 に示す。図中に示す  $2\mu\text{s}$  の時間幅から判断すると、 $\tau_{mr1}$  の読みとりには、 $\pm 1\mu\text{s}$  程度の誤差は生じると判断できる。

この誤差を実際の超音波伝播速度に直して計算すると、 $\pm 30\text{m/s}$  ほどであり、前述の方法によって実際に求めた MR 流体の伝播速度は  $950\text{m/s}$  程度であったので、誤差割合は  $\pm 3\%$  程であると考えられる。以上から、MR 流体中の超音波伝播速度を絶対評価として用いることは不的確である。本研究において、MR 流体に関しては超音波伝播速度の絶対値を求めることが本位ではないので伝播速度の値に関しては言及しないものとする。

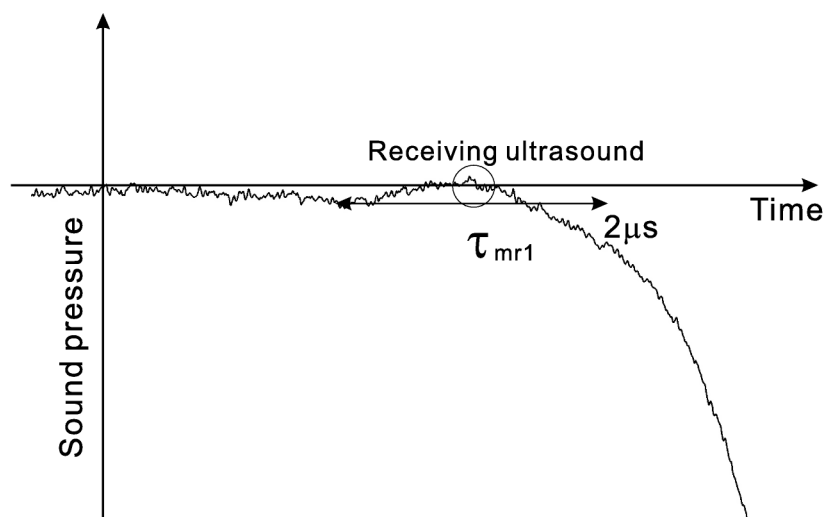


図 6.3: Examination of error

### 6.3.4 繰り返し性による検討

磁性流体においては、受信波形が明確に捕らえられるので、超音波伝播時間の測定における誤差はほとんど生じない。しかしながら、MR 流体では、前述の通り波形が乱れているので、測定毎の繰り返し性が取れなければ、波形の乱れに起因する測定誤差が存在すると考えらる。そこで、次のように繰り返し性の確認実験を行った。

まず、同じ MR 流体を 3 試料 (Sample A, Sample B, Sample C) を用意する。各 MR 流体に磁場を印加し増磁過程における伝播速度変化を上記の方法で測定する。なお、磁場は、Sample A は約 13mT 毎、Sample B は約 26mT 毎、Sample C は約 52mT 毎に増磁した。測定では、超音波の周波数は 1MHz で、 $\phi = 0^\circ$  である。

実験結果を図 6.4 に示す。図に示される通り、どの試料による測定においてもほぼ同様の結果が示されており、磁場印加方法を変えたとしても繰り返し性があると考えられる。よって、本測定では、波形の乱れに起因する測定誤差はほとんど生じておらず、この方法による MR 流体中の超音波伝播速度の評価は妥当であるといえる。

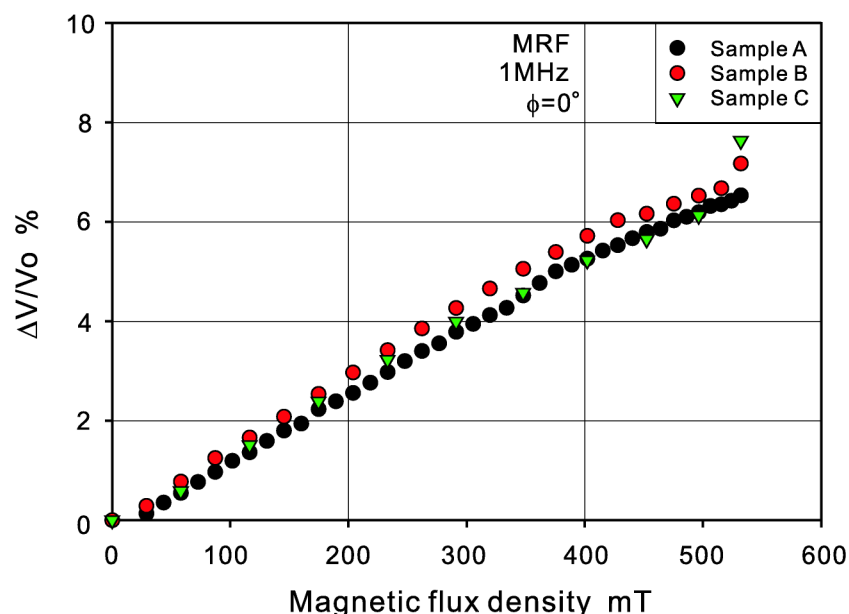


図 6.4: Re-creation of measurement of MR fluid

## 6.4 MR 流体の物性

MR 流体として LORD 社製の MRF132-AD と MRF132-DG を用いた。簡略のため両者を併せて MRF と表記することにする。ただし、2 種類の MR 流体は、LORD 社による製品名称の改訂によるもので、原料処方に変更はなく、同じ物性を持っている。



MR 流体の物性値を表 6.1 に記す。各物性値は製造会社公表の値であり、密度、粘度は流体が 25 °C の時の値である。さらに、磁化率の計測も行ったので、図 6.5 に示す。比較試料として、磁性流体 EXP04019 の物性値を併せて載せる。

表 6.1: Properties of magnetic and MR fluids (at 25 °C)

試験流体	EXP04019	MRF
製造会社	フェロテック (株)	LORD Co.
内部粒子	マグネタイト	鉄
溶媒	炭化水素	炭化水素
重量濃度 (wt%)	非公表	80.98
密度 (kg/m <sup>3</sup> )	1.049 × 10 <sup>3</sup>	2.98~3.18 × 10 <sup>3</sup>
粘度 (mPa·s)	2.18 ± 0.2	92 ± 15

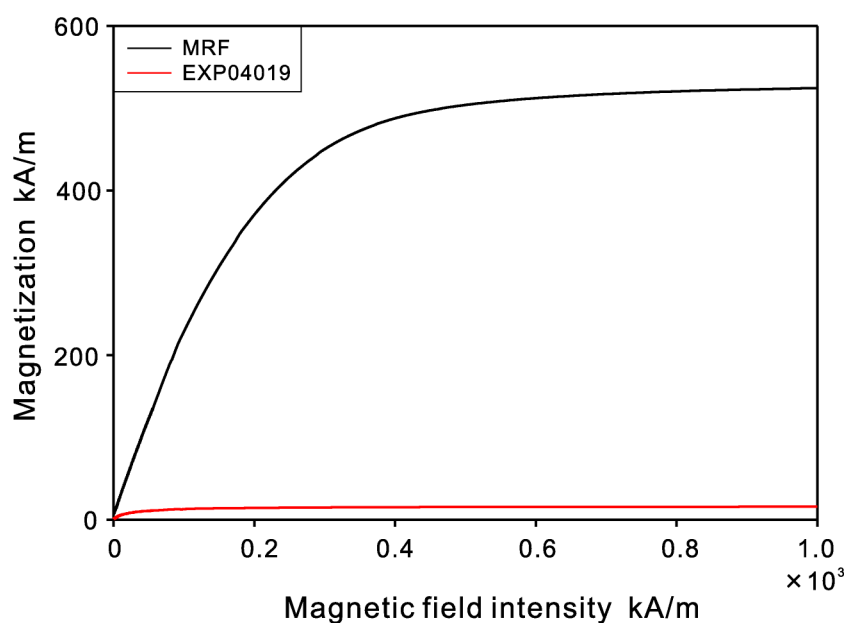


図 6.5: Magnetization curve of magnetic and MR fluids

## 6.5 MR 流体中の伝播速度変化の実験

本研究の MR 流体中の超音波伝播特性として超音波伝播速度変化を扱った。次の測定を行い、磁性流体と結果を比較することで粒子サイズの違いによる内部構造変化を解析できる。

1. 磁場印加直後からの伝播速度の経時変化特性
2. 伝播速度変化の印加磁場依存性
3. 伝播速度変化の異方性
4. 磁場増加割合 (sweep rate) を考慮した測定

## 6.6 磁場印加後の伝播速度の経時変化特性

4.8 節において、磁性流体中の超音波伝播速度の磁場印加後からの経時変化の測定を行った。MR 流体においても同様の方法で経時変化特性を測定する。これにより、内部に形成されるクラスタの成長時間や形成されるクラスタのスケールを解析できると考えられる。

測定は、4.8 節と同様の方法で行なった。ただし、測定には、周波数 1MHz の超音波を用いた。測定結果を図 6.6、図 6.7 に示す。図 6.6 は、MR 流体に 100mT と 500mT の磁場を印加した時の経時変化で、 $\phi = 0^\circ$  の下で測定を行っている。最後に磁場を除去して測定した。図 6.7 は磁性流体との比較のため、MR 流体と EXP04019 に 500mT を印加した時の経時変化特性の結果を併せて載せた。

## 6.7 伝播速度の磁場依存性

4.9 節の磁性流体中の超音波伝播速度の磁場依存性の測定と比較することで、内部に形成されるクラスタの磁場強度による成長過程を解析できる。

測定方法は、4.9 節と同様の方法で行った。ここでは、増磁過程においても供給電流 1A ごと (磁場強さにして約 30mT) に増磁した。測定結果を図 6.8~図 6.10 に示す。図 6.8、図 6.9 は MR 流体中の超音波伝播速度のヒステリシスであり、それぞれ  $\phi = 0^\circ$ 、 $\phi = 90^\circ$  のものである。縦軸の音速変化率のスケールが 10 倍違うことに注意されたい。図 6.10 には、上記結果における増磁過程の変化のみを取り上げた。さらに比較対照として、伝播速度変化の最も大きい磁性流体 EXP04019 中の超音波伝播速度変化を併せて載せた。

## 6.8 伝播速度の異方性

4.10 節の磁性流体中の超音波伝播速度の異方性の実験と比較することで、MR 流体におけるクラスタの形状を解析できる

測定は、100mT と 500mT の磁場において MR 流体を換えてそれぞれ測定を行った。実験開始前、完全にクラスタを形成させるため、30 分程磁場を印加し続け、その後磁場印加方向と超音波伝播方向のなす角  $\phi$  を  $5^\circ$  ずつ変えながら  $90^\circ$  まで測定した。超音波の周波数は 1MHz である。

測定結果を図 6.11 に示す。

## 6.9 磁場印加方法 (sweep rate) による伝播速度変化特性

MR 流体においても急速に磁場を掃引するのとゆっくり磁場を掃引するのでは内部のクラスターの成長に違いがあるといわれている。この解析のため、sweep rate を変えた測定を磁性流体同様に行った。

磁場掃引方法、測定方法は 4.12 節に示した方法と全く同様である。測定結果を図 6.12, 図 6.13 に示す。図は、MR 流体における結果をそれぞれ横軸に時間軸と磁場をとることで 2 通りの方法で示している。

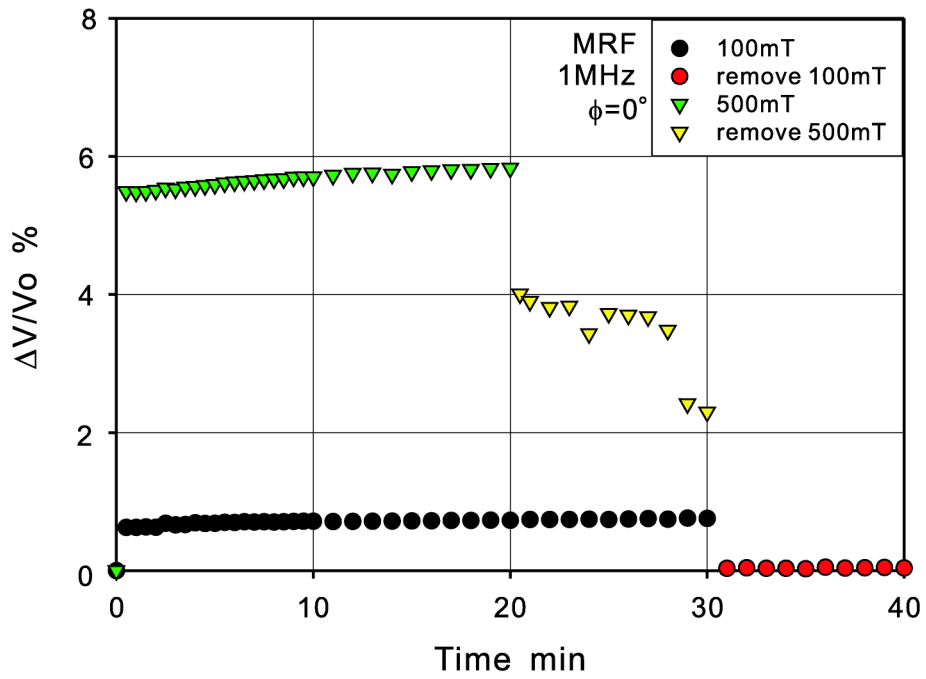


図 6.6: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in MRF

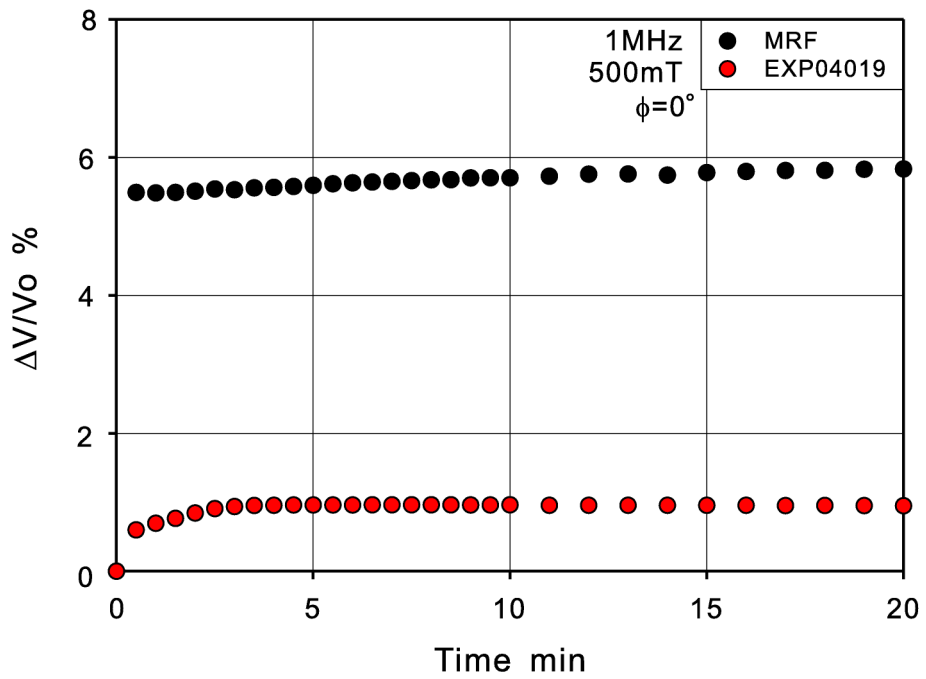
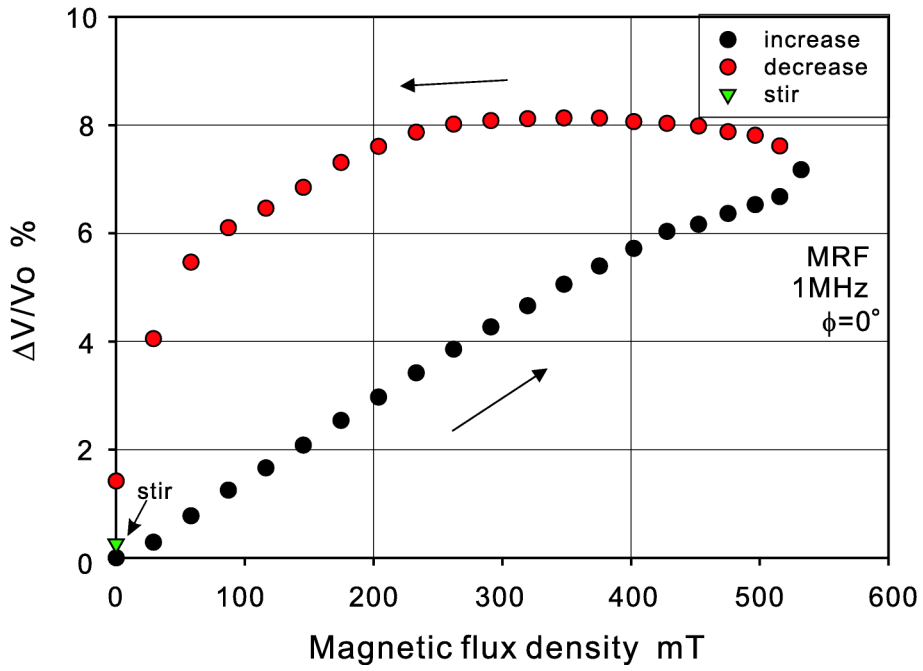
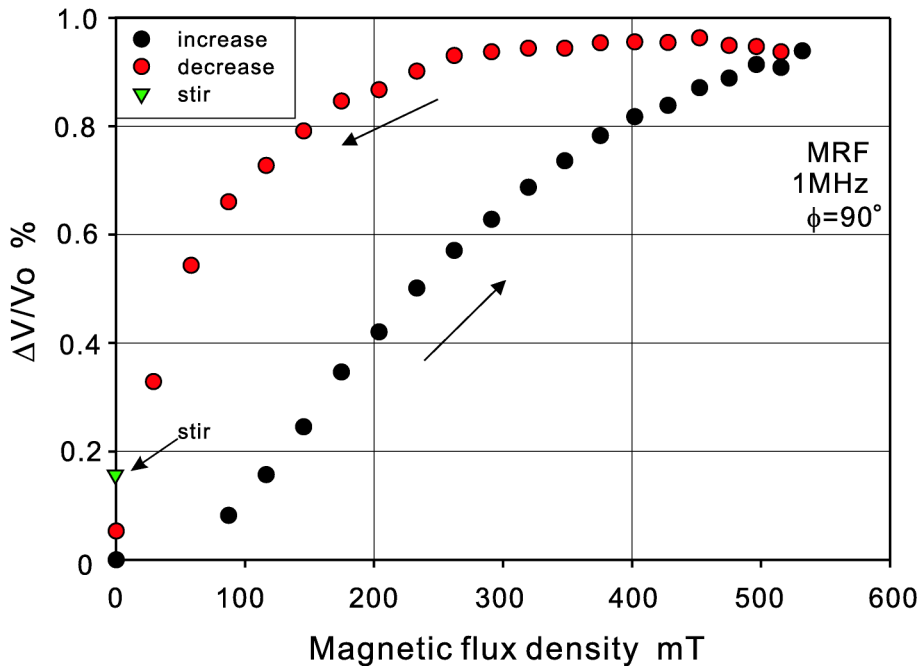


図 6.7: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in MRF and EXP04019



⊠ 6.8: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in MRF for  $\phi=0^\circ$



⊠ 6.9: Hysteresis of ultrasonic propagation velocity in MRF for  $\phi=90^\circ$

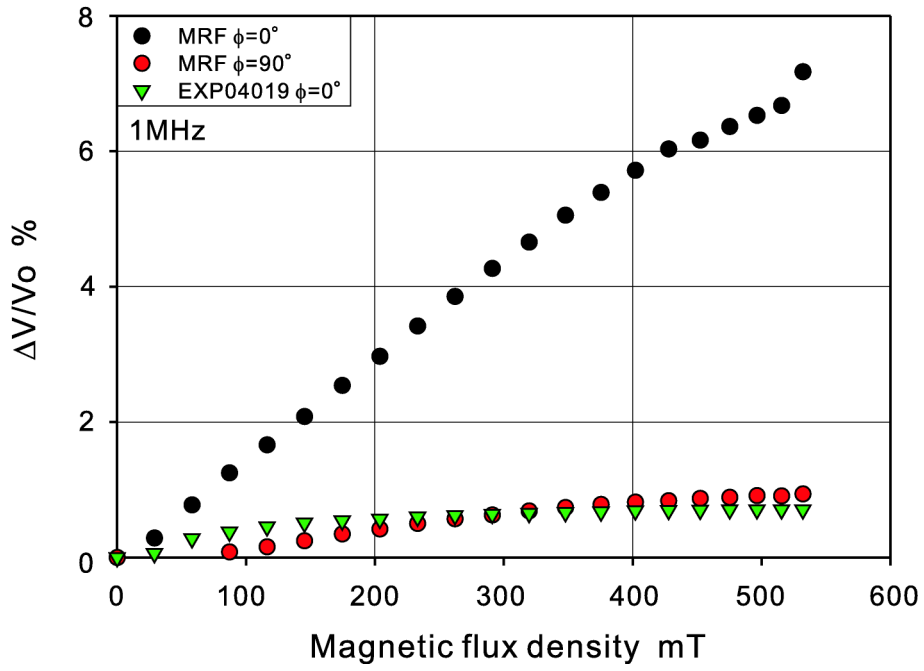


Figure 6.10: Magnetic field dependence of ultrasonic propagation velocity in MRF

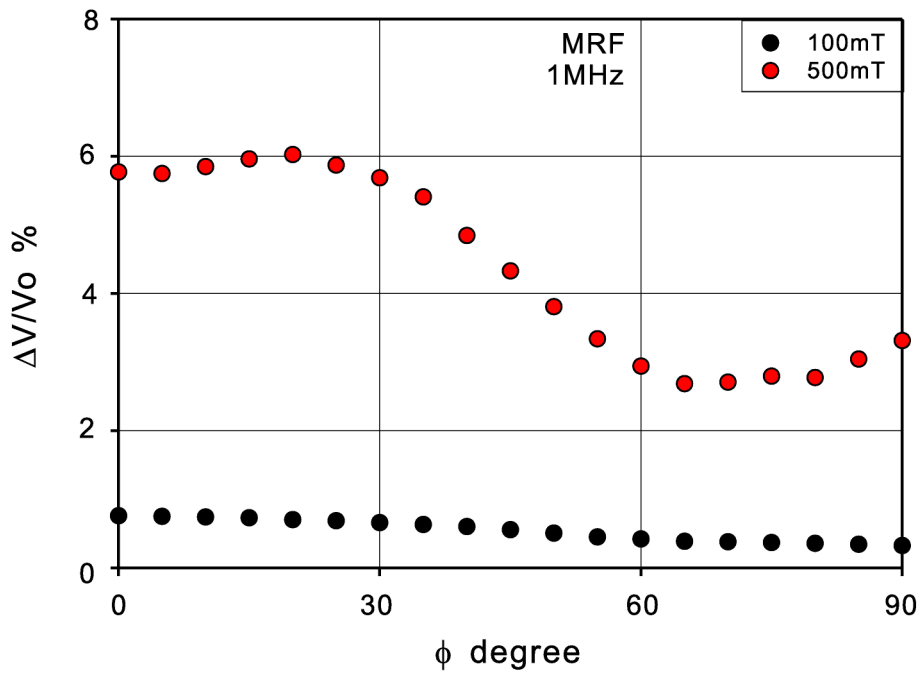


Figure 6.11: Anisotropy of ultrasonic propagation velocity in MRF

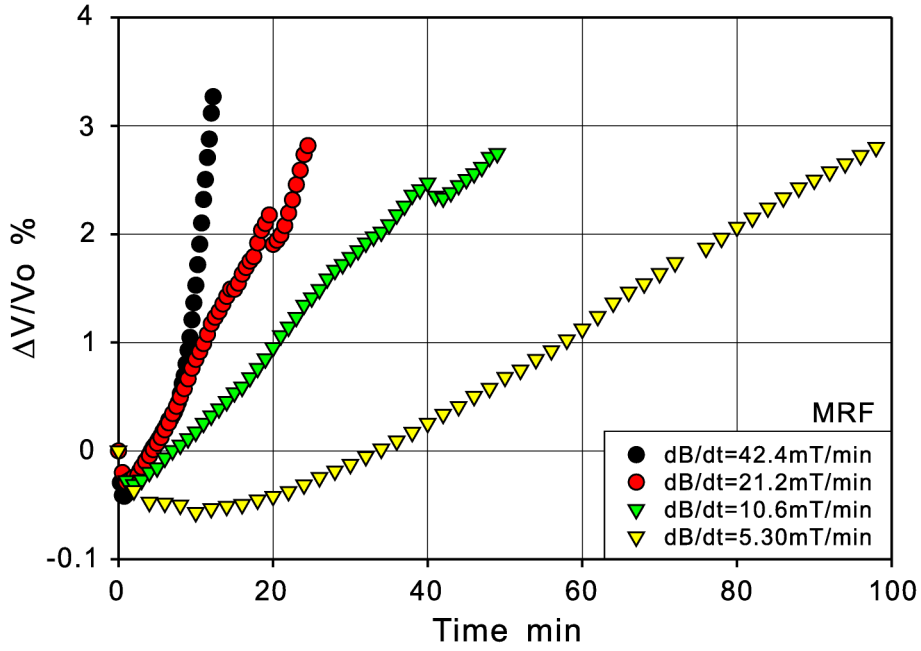


图 6.12: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in MRF as a function of sweep rate

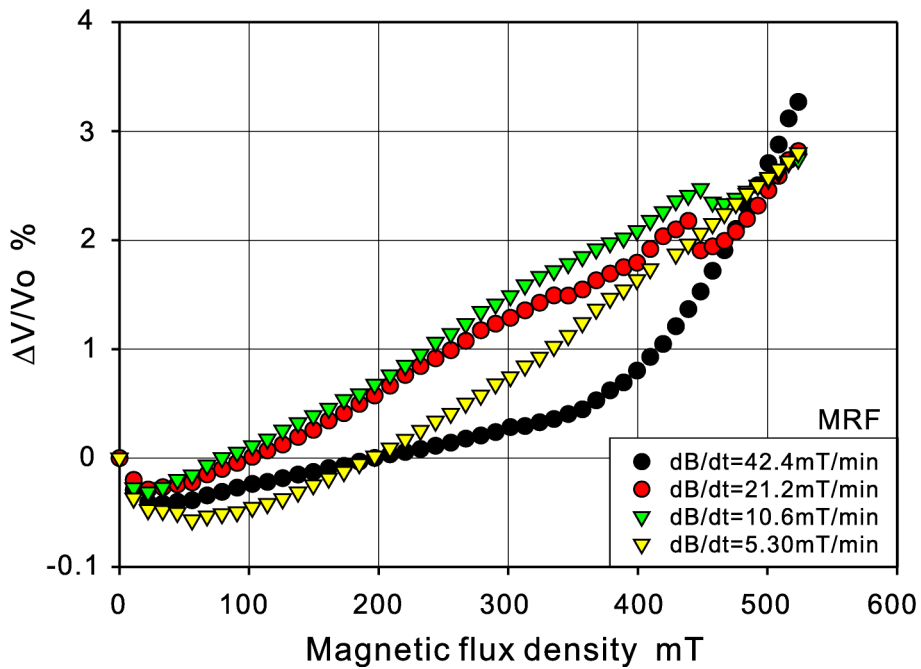


图 6.13: Magnetic field dependence of ultrasonic propagation velocity in MRF as a function of sweep rate

## 6.10 磁場印加後の伝播速度の経時変化特性の検討

図 6.6 によると、MR 流体では 100mT、500mT どちらの強さの磁場を印加しても直後に伝播速度が増加し、その後はほぼ一定の値をとることが分かる。これは、磁場印加直後に内部にクラスターが形成された結果であると容易に推測でき、MR 流体の磁場への応答性が高いことを示している。さらに、500mT の磁場印加の方が伝播速度の増加が大きい。当然の結果といえるが、磁場が大きいほど内部粒子が強く凝集し、MR 流体では強磁場の印加で、鉄粒子が塊状になっていると考えられる。

磁場を除去すると、図 4.13、図 4.14 で示される磁性流体の結果と比較して、磁性流体では磁場を除去してもほとんど伝播速度は減少せず、保持されているが、MR 流体では 500mT の磁場印加においては徐々に伝播速度が減少し、100mT の磁場印加に至っては即座に伝播速度が無磁場下の状態に戻っている。この結果から、磁場による拘束がなくなると、MR 流体の凝集が解放され、徐々に粒子が分散していると考えられる。しかしながら、磁場除去後の分散への応答性はよくない。この磁場を除去した時の分散性の悪さが MR 流体に挙げられている問題の一つである。

次に図 6.7 に示された 500mT の磁場印加における磁性流体との比較を考える。MR 流体の内部粒子は磁性流体に比べ 1000 倍程度大きく、図 6.5 に示される通り、磁化率も磁性流体より圧倒的に大きいのが分かる。溶媒よりも鉄粒子中の伝播速度の方が大きいため、MR 流体では磁場印加によって内部状態は粒子が塊のような状態であると考えられ、ここに塊状クラスターが形成されている可能性が示される。

また、MR 流体では伝播速度が磁場印加直後にほぼ一定になるのに対し、磁性流体ではある程度時間をかけて一定になる。これは図 4.11 に顕著に示されている。上記の通り、MR 流体では磁場印加後即座にクラスターが形成されており、そのクラスターの形状は、伝播速度変化が大きいことから解析すると、鉄の塊のような状態になっていると考えるべきである。

## 6.11 伝播速度の磁場印加依存性の検討

図 6.8 に示されるようにヒステリシスを持っている。図 6.10 に増磁過程をまとめて取り上げて示しているが、増磁過程では磁場が大きくなるほど伝播速度も増加しており、より粒子が強く凝集し、前節に記した通りの結果が得られている。また、図 6.4 において、繰り返し性も良好な結果が確認されていることから、MR 流体量、印加磁場強さから内部のクラスターの形成の定量的な解析の可能性が検討できるが、この解析を行うためには流体量などを変えたより多くの実験が必要である。磁性流体と比較すると、伝播速度変化も数段大きいことが分かる。

減磁過程では、図 4.18 に示される磁性流体のようなヒステリシスは得られず、伝播速度は 200mT 付近を境に減少に転じる。前節で粒子が大きいため磁場を除去すると磁性流体とは違い凝集を保持できないと記したが、この結果から 200mT 程度の磁場が粒子の凝集を保持できる限界の磁場で



あり、この磁場を境に強く凝集した粒子が急速に崩壊、分散へ転じていると考えられる。無磁場になった段階でクラスターはほぼ崩壊していると考えられ、測定後の攪拌でもほとんど伝播速度が変化していないことから確認できる。

図 6.9 に示される  $\phi = 90^\circ$  の時の結果について考える。このヒステリシスも、上に記した  $\phi = 0^\circ$  の場合と同様な傾向が現れており、また、伝播速度の変化率は、 $\phi = 0^\circ$  の場合と比較して 1/8 程度になっている。これに関しては、異方性の検討部分で詳しく述べることとする。磁性流体においては  $\phi = 90^\circ$  の場合に特異な伝播速度変化が計測された (図 4.19)。しかし、MR 流体では、このような特異な傾向は全く検出されなかった。この結果は、MR 流体の磁場応答性の良さを示しているものと解析できる。

## 6.12 伝播速度の異方性の検討

図 6.9, 図 6.11 に示す通り、MR 流体中の伝播速度変化にも顕著な異方性が計測された。MR 流体のクラスターは塊状クラスターを形成すると記した。クラスター状態から検討すると、もし磁場印加によってクラスターが等方性の塊状になっていれば、このような異方性は生じず、 $\phi$  を変えても伝播速度変化は一定となるはずである。しかしながら、このように異方性が計測されたということから、クラスターの形状は磁場方向に配向性を持って形成されていると考えられる。解析される塊状クラスターの形状のイメージを図 6.14 に示す。図のように、磁場方向に鉄粒子が配列しつつ、粒子濃度は非常に濃く、固体に近い状態であると考えられる。

この図を考えると、 $\phi = 0^\circ$  においては、超音波伝播領域に鎖状の粒子部分が相対的に多く存在し、 $\phi = 90^\circ$  においては、溶媒にあたる部分が  $\phi = 0^\circ$  の時に比較して相対的に多く存在していると考えられる。溶媒部分は鉄粒子に比較して伝播速度は格段に遅いので、伝播する超音波をを平均して測定する本計測においては、 $\phi = 90^\circ$  の時、最小の伝播速度が得られたと考えられる。

## 6.13 Sweep rate による伝播速度変化特性の検討

第 4 章において、同じ磁場強度でも徐々に掃引していくのと、急速に掃引するのでは内部クラスターの形成に差があると考えられていると記した。MR 流体においては、特にこのことが考えられており、ゆっくりと磁場を掃引することで内部粒子は強く凝集するものと考えられていた。そこで、本測定では sweep rate を変えた実験を行った。

図 6.13 に示されるように、伝播変化がほぼ同等であればクラスターは sweep rate によらず同様に形成されることを示す。MR 流体では、どの sweep rate でもほぼ同じような伝播速度変化が測定されており、時間軸をもとにした図 6.12 にも顕著に示される通り、掃引時間に関係なく、クラスターは磁場に対して同等の成長をなしているといえる。この結果は図 6.6 の経時変化特性に示

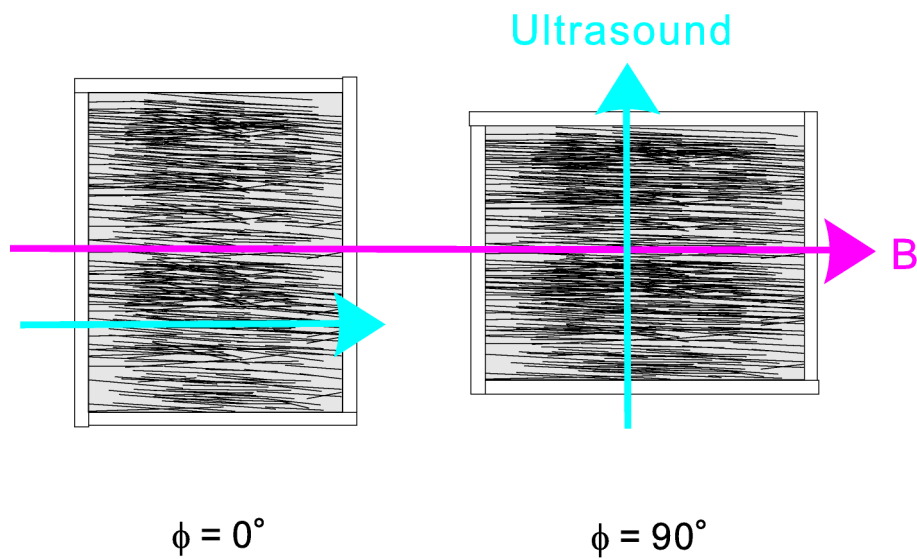


図 6.14: Analysis of inner structure

した通り，MR 流体は磁場印加直後に伝播速度が増加し，その後ほとんど伝播速度が変化しないため，どのように磁場を印加しても内部に形成されるクラスターの状態が変わらなかったものと推測できる。ここに記した通り，本測定においては，磁場の掃引によるクラスター形状の差を捕らえるには至らなかった。

## 6.14 結 言

本章において，MR 流体中の伝播速度を計測し，磁場印加によるその伝播速度変化を検討した。MR 流体中の伝播速度変化は，磁性流体に非常に大きく，磁場印加によって劇的に変化する。これは磁性流体に比較して内部粒子が 1000 倍程度大きいことに起因しており，磁場印加直後にクラスターが形成され，その形状は塊状になっていると考えられる。

MR 流体は磁場応答性に非常に優れており，増磁により線形的に伝播速度も増加し，クラスターが増磁とともに強く凝集していくと推測される。さらに減磁によって，弱磁場下では，クラスターは保持できずに崩壊，分散に転じていくと考えられ，磁性流体と異なる特徴的な結果が得られた。伝播速度変化に異方性が存在したため，粒子の凝集は，磁場方向に配向性を持ってなされていると考えられる。

# 第7章 磁性流体管内振動流へのUVPの適用, MR流体チャンネル流の流動構造解析

## 7.1 緒言

ここまで、磁気機能性流体として、磁性流体、MR流体を取り上げて、静止場、すなわちサンプル状態における超音波伝播特性の基礎データを記し、さらに超音波による内部構造の解析へのアプローチを行った。これは、内部構造変化や物性変化など不明な部分も多かった磁性流体やMR流体の物性の一つの基礎資料となりうるものであると考えている。そこで、本章ではこれまで得られたの結果や計測方法などを基礎資料として、本研究の応用として流動場への超音波計測の適用を考える。

本章では次の2種類の流動場を考えた。

1. 磁性流体管内振動流のUVPによる速度分布測定
2. MR流体チャンネル流の超音波による流動構造解析

磁性流体においては、管内振動流を流動場の例として取り上げ、UVPを用いた速度分布の測定を行った。UVPの使用に際しては、磁性流体中の超音波伝播速度が非常に重要なパラメータとなる。このため、流動場の測定前に本研究に記したような超音波伝播速度特性を計測し、流動計測に影響を与えるか考慮しなければならない。

MR流体では、チャンネル流を流動場の例として用いた。MR流体は磁化率が大きいため磁場を印加することでシールとして作用し流動を遮断する。しかしながら、流動圧がシール耐圧を上回ればこのシールが崩壊し流動を始める。この状態変化に対して、流動構造変化の解析、MRシール崩壊の予知を超音波により行った。

## 7.2 磁性流体管内振動流のUVPによる速度分布計測

### 7.2.1 概要

超音波ドップラー効果を用いた流速分布測定装置は、測定に超音波を用いるので、不透明流体である磁性流体の流動計測に非常に有効である。UVPの磁性流体への適用には、磁性流体の詳細な超音波伝播速度の値が必要であり、さらに磁場を印加した流動状態で測定を行うためには、本研

究で記した磁性流体中の超音波伝播速度の磁場印加特性を検討しなければならない。そこで、本研究においては次の手順で流動計測を行うものとする。

1. 使用する磁性流体中の超音波伝播速度を測定する。
2. 流動計測に用いる印加磁場強さを考慮して、磁性流体中の超音波伝播速度の経時変化特性を測定する。
3. 測定された磁性流体中の伝播速度を UVP の流動計測に使用するが、磁場印加における音速変化がどのように影響するかを検討する。
4. 磁性流体管内振動流の UVP による速度分布計測を行う。

### 7.2.2 磁性流体管内振動流，UVP 計測における過去の研究

磁性流体管内振動流の理論的な研究は、古くからなされており、神山ら [98] は理論、実験によって圧力勾配振幅に及ぼす磁場の影響を検討した。磁場印加時の圧力勾配振幅は、理論解析以上に大きく、見かけの粘度増加以外からも磁場の効果を受けていることを実験的に明らかにした。さらに、この磁性流体管内振動流の流動特性について、磁性流体の圧縮性の効果による検討を行った。実験結果は定性的な説明はつくものの、定量的には理論解析結果と実験に大きな差が現れている [99]。Shliomis-Kamiyama[100] は、これらの流動特性は、内部粒子の偏在に起因するものだと予想し、非一様磁場における理論解析を行った。このように磁性流体管内振動流の理論研究もなされてきているが、この流動特性の詳細な解明には至っていない。

磁性流体流動の理論研究に対して求められたのが、流動中の速度分布計測による流動解析であり、UVP の開発 [42] により、磁性流体への適用が考えられていった。山中ら [101, 102] は、磁性流体管内振動流に UVP を用いて、非一様磁場下の速度分布測定を行った。また、長谷川ら [103] も一様磁場下での磁性流体管内振動流の速度分布測定を行い、クラスターの成長が振動流にどのような影響を及ぼすかを議論した。

磁性流体振動流以外にも、UVP を用いた磁性流体の流動計測はなされている。例えば、Kikura ら [104] は磁性流体の様々な流れに対して UVP を用いた流動計測を行い、磁性流体流動場計測への UVP の有効性を論じた。さらに、Taylor-Coutte 流れを測定し、渦構造に対する磁場の効果を明らかにした [105]。Sawada ら [106] は、磁性流体のスロッシング現象に対して UVP による流動測定を行うことで現象の解析を行った。UVP による流量測定の精度を検討する研究 [107] もなされている。

### 7.2.3 UVP の原理

図 7.1 に超音波ビームと流れの位置関係を示す。試料流体に反射体粒子を混濁させ管内に流す。トランスデューサーから超音波パルスを図のように発振すると、パルスが反射体粒子に当たって、パルスが表面で反射してトランスデューサーに戻ってくる。

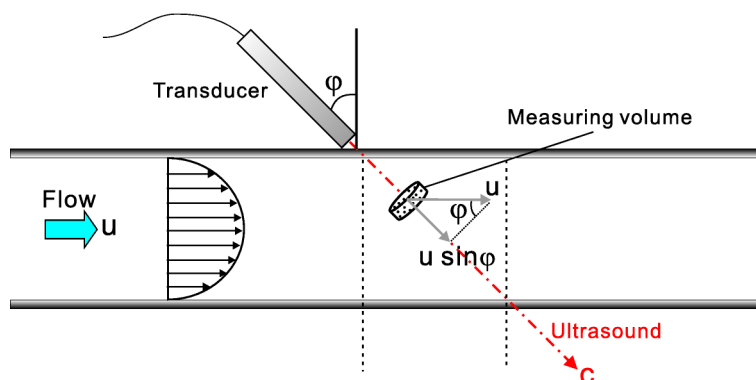


図 7.1: Principle of UVP method

トランスデューサーの設置角を  $\varphi$  としたとき、パルス伝播方向を計測軸  $x$  として考える。まず、この反射波によって反射体粒子の位置を求める。トランスデューサーから反射体粒子までの距離を  $l$ 、超音波パルス発振から反射波受信までに要した時間を  $\tau$ 、試料流体中の超音波伝播速度を  $c$  とすると、反射体までの距離は、

$$l = \frac{c\tau}{2} \quad (7.1)$$

と求まる。

位置  $x$  における流速を  $u$  とすると、UVP では、図 7.1 に示される通りトランスデューサーの軸方向成分の速度成分  $u \sin \varphi$  が得られる。この位置  $x$  において、超音波パルスが反射した時、反射波は反射体粒子の速度によりドップラー効果を受け、周波数が増える。超音波パルスの基本周波数を  $f_0$  とすると、位置  $x$  における超音波周波数  $f_1$  は、

$$f_1 = f_0 \frac{c - u \sin \varphi}{c} \quad (7.2)$$

となる。さらに、トランスデューサーが受信する反射波の周波数  $f_2$  は、

$$f_2 = f_1 \frac{c}{c + u \sin \varphi} = f_0 \frac{c - u \sin \varphi}{c + u \sin \varphi} \quad (7.3)$$

となる。従って、式 (7.2)、式 (7.3) より流速  $u$  は次のように求まる。

$$u = \frac{c}{\sin \varphi} \frac{f_0 - f_2}{f_0 + f_2} \quad (7.4)$$

ここでドップラー効果によって変位した周波数 (ドップラー周波数と呼ぶ) を  $f_D$  とすると  $f_D$  は,

$$f_D = f_0 - f_2 \quad (7.5)$$

で与えられる。基本周波数  $f_0$  に対して, ドップラー周波数  $f_D$  は小さいため,  $f_0 \simeq f_2$  と置けるので, これを考慮すると, 式 (7.4) は,

$$u = \frac{c}{\sin \varphi} \frac{f_D}{2f_0} \quad (7.6)$$

となる。この式が UVP における速度分布計測の基本式となる。しかし, このドップラー周波数  $f_D$  は基本周波数  $f_0$  と比較して, 非常に小さいため直接計測することは困難である。

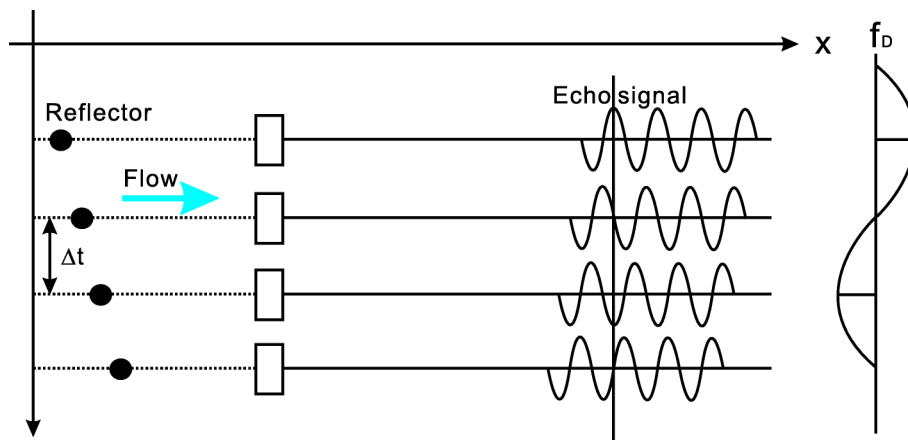


図 7.2: Detection of Doppler shift

そこで, 一般的に UVP では次のような工夫をして計測を行っている。図 7.1, 図 7.2 に示すように, 超音波パルスの発振は時間間隔  $\Delta t$  で複数回繰り返す。すると, 反射体が移動しているので, 反射波の受信には, わずかな位相を持って検出される。その位相差  $\psi$  は,

$$\psi = f_0 \Delta t \quad (7.7)$$

で表される。ここで  $\Delta t$  は反射体粒子がその間に移動する距離  $a$  と試験流体中の音速  $c$  から,

$$\Delta t = \frac{2a}{c} \quad (7.8)$$

なので, 式 (7.7) に代入して微分すると,

$$\frac{d\psi}{dt} = f_0 \frac{d(\Delta t)}{dt} = f_0 \frac{2}{c} \frac{da}{dt} = \frac{2uf_0}{c} = f_D \quad (7.9)$$

となり, 反射波の位相差を時間微分することで, ドップラー周波数  $f_D$  を求めることができ, 式 (7.9) を式 (7.6) に代入することで流速を求められる。

このようにして測定位置とその流速を関連付けられるので, 速度分布の計測が可能となる。次に UVP の分解能について記す。

## 時間分解能

ドップラー周波数を求めるには、超音波パルスの発振と受信を何度も繰り返さなければならぬ。この発振受信の一回にかかる時間を  $t_p$  とした時、トランスデューサーから一番遠い計測地点からの反射波が最大の  $t_p$  を示すことになる。この計測地点までの距離を  $l_f$  とすると、

$$t_p \geq \frac{2l_f}{c} \quad (7.10)$$

でなければならない。次に、1つの速度分布を求めるのにかかる時間を  $t_a$ 、パルス発振回数を  $n$  とすると、リアルタイムで速度分布を表示するためには、1つの速度分布を解析、表示する時間  $t_c$  を加えることで、

$$t_a = t_p n + t_c \quad (7.11)$$

となる。既存の UVP は、数十～数百 ms の時間分解能である。

## 空間分解能

計測位置の決定は超音波パルスごとに行われるため、この判別を行える最小の間隔が空間分解能であるといえる。超音波パルス長さを  $l_p$  とすると、基本周波数  $f_0$  より、

$$l_p = \frac{c}{f_0} n' \quad (7.12)$$

となる。ここで  $n'$  は超音波周波数を  $n'$  周期分発振したことを示す。従って、反射波も同様の長さのパルス幅をもっていると考えられる。この長さ  $l_p$  の反射波をトランスデューサーで受信した場合、受信に要する時間  $t_r$  は、

$$t_r = \frac{l_p}{c} = \frac{1}{f_0} n' \quad (7.13)$$

であり、空間上のある点  $x_1$  で超音波パルスの反射が起こる時、超音波の発振から反射波の受信を始めるまでの時間を  $T_{UVP1}$ 、受信終了までの時間を  $T'_{UVP1}$  とすると、

$$T_{UVP1} = \frac{2x_1}{c}, \quad T'_{UVP1} = \frac{2x_1}{c} + t_r \quad (7.14)$$

となる。また  $x_1$  より一つはなれた地点を  $x_2$  とすると、反射波の混同を防ぐために  $x_1$  からの反射波の受信が終了してから  $x_2$  からの反射波の受信が始まるようにしなければならない。このため、次式を充たさなければならない。

$$\left(\frac{2x_2}{c}\right) - \left(\frac{2x_1}{c} + t_r\right) \geq 0 \quad (7.15)$$

従って、次のように空間分解能  $dl$  が求まる。

$$dl = x_2 - x_1 \geq \frac{c}{2} t_r = \frac{n'c}{2f_0} \quad (7.16)$$

である。本実験では、超音波パルスの周波数 4MHz,  $n'=4$  で実験を行っている。磁性流体中の音速を 1420m/s とすると、空間分解能は 0.71mm となる。

## 速度分解能

ドップラー周波数を求めるのに測定可能な最大ドップラー周波数  $(f_D)_{max}$  は、サンプリング周波数  $f_N$  で与えられるので、

$$(f_D)_{max} = f_N = \frac{1}{\Delta t} \quad (7.17)$$

となる。このサンプリング周波数でドップラー周波数を求めなければならない。  $f_D$  の1周期に最低2回はサンプリングを行わなければならないので、速度の測定限界  $u_{max}$  は、式(7.6)より、

$$u_{max} = \frac{c}{2f_0} \frac{f_N}{2} = \frac{c}{4f_0 \Delta t} \quad (7.18)$$

と表される。従って、超音波パルスの発振間隔  $\Delta t$  を小さくするほど、  $u_{max}$  を上げることができるが、時間分解能を考える必要があるため、トランスデューサーから最も遠い測定可能地点までの距離を  $l_{max}$  とすると

$$l_{max} = \frac{c \Delta t}{2} \quad (7.19)$$

である。以上から次のように UVP の測定限界を示すことができる。

$$u_{max} l_{max} = \frac{c^2}{8f_0} \quad (7.20)$$

### 7.2.4 管内振動流実験装置

実験装置概略を図 7.3 に示す。タンク、円管内に反射体微粒子を混濁した磁性流体を満たし、ピストンの往復運動によって円管内に磁性流体の振動流を起こす。振動流の速度分布測定は UVP によって行い、この測定点の上下に永久磁石を設置して磁場を印加する。円管は、内径 30mm、全長 3000mm であり、管の一方にタンクを配置している。

トランスデューサーの設置位置はピストン下至点から 2000mm、トランスデューサーの設置角  $\varphi=14^\circ$ 、反射体粒子はリキッドガス社製の MFS-10M を用いた。MFS-10M は平均径  $0.9\mu\text{m}$  で  $\text{SiO}_2$  でできた多孔質粒子である。UVP 計測に関する諸事項の決定には様々な検定を踏まえて行っているが、本論文では磁性流体中の超音波伝播速度特性を考えることで UVP による測定を実際に行うことをここでの目的としているため、詳細に関しては省略する。

### 7.2.5 試験磁性流体

本振動流の計測には、フェロテック (株) 製の水ベース磁性流体 MSG-W11 を用いた。物性値は、密度 (at  $20^\circ\text{C}$ ) :  $1.33 \times 10^3 \text{kg/m}^3$ 、粘度 (at  $20^\circ\text{C}$ ) :  $11.12 \text{mPa}\cdot\text{s}$  である。



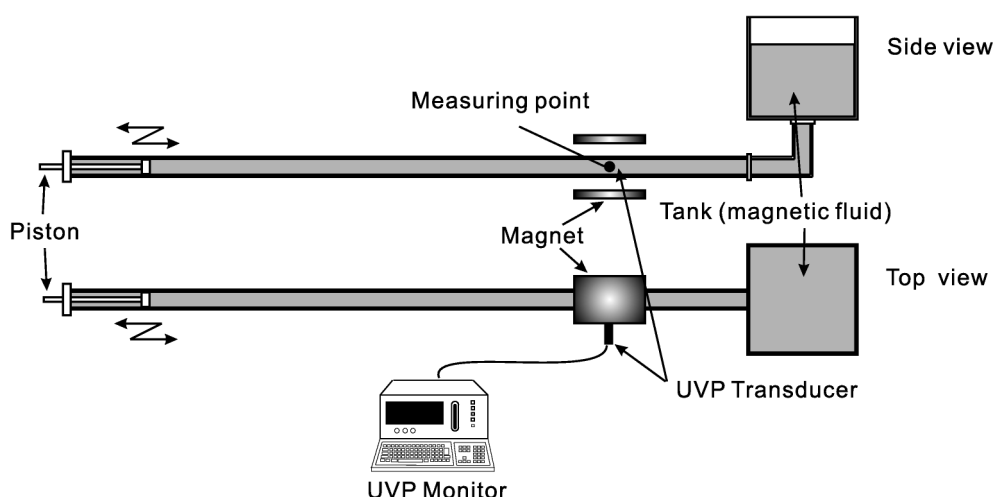


図 7.3: Experimental apparatus of magnetic fluid pipe flow

### 7.2.6 磁性流体中の超音波伝播速度と伝播特性

UVP における磁性流体管内振動流の計測のため、計測に必要となる磁性流体中伝播速度を詳細に測定し、磁場を印加した時の伝播特性を次の通り検討した。

#### 磁性流体中の超音波伝播速度

UVP のトランスデューサーの超音波周波数は 4MHz である。そこで、4MHz の周波数の超音波を用いて、MSG-W11 中の超音波伝播速度を測定した。測定方法は、4.7 節に記した通りである。伝播速度値の比較として、純水と W-40 中の超音波伝播速度の値も併せて載せた。測定結果を図 7.4 に示す。

#### 磁性流体中の超音波伝播速度特性

本測定において、永久磁石による磁性流体への磁場印下は最大でも 100mT である。また、超音波トランスデューサーを配置する位置を考えると、磁場方向と超音波伝播方向のなす角  $\phi$  は  $90^\circ$  で計測を行うことになる。そこで、MSG-W11 に 100mT の磁場を印加し、超音波を  $\phi = 90^\circ$  で伝播させた時の伝播速度の経時変化を測定した。超音波の周波数は 4MHz を用いている。測定方法は 4.8 節に記した通りである。測定結果を図 7.5 に示す。

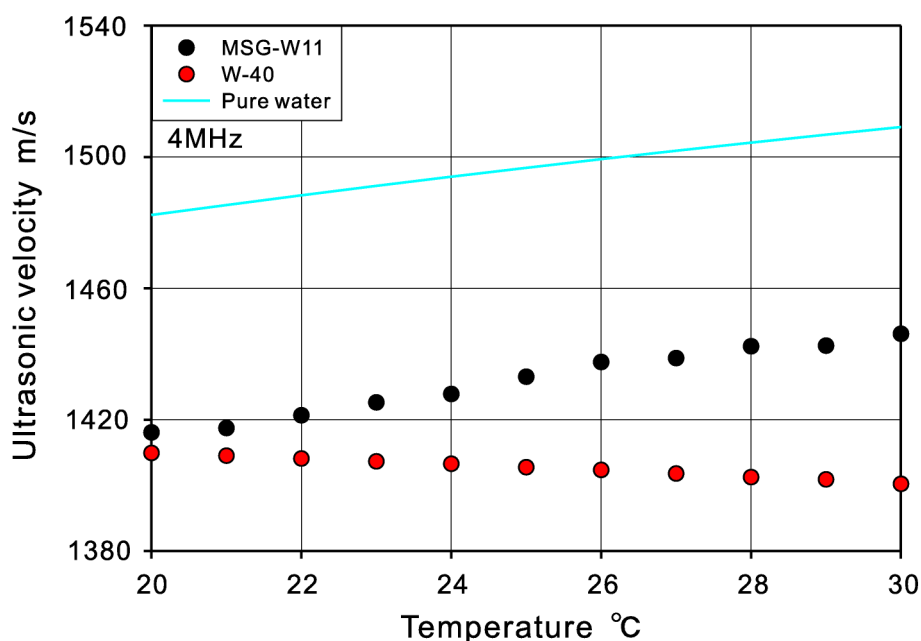


図 7.4: Ultrasonic propagation velocity in MSG-W11

### 7.2.7 UVP による磁性流体の流動計測の検討

磁性流体中の超音波伝播速度特性の計測結果に基づき、UVP による磁性流体流動計測に及ぼす影響を検討する。

#### UVP の測定原理に与える影響

図 7.4 より、UVP の計測は 25 °C で行っているため、磁性流体中の伝播速度は約 1430m/s であり、この値を用いて UVP で流動計測を行う。また、図 7.5 より 100mT 磁場を印加した際の伝播速度変化は最大で約 0.06% 程度である。

UVP の原理を考えると、流体中の伝播速度が計算に必要なのは、測定位置を決める式 (7.1) と流速値を決める式 (7.6) である。磁性流体中の伝播速度は磁場印加によって変化するので、この変化が UVP による計測にどのような影響を及ぼすか検討する。ここで、仮に磁場印加による伝播速度変化が 5% 程度あったと仮定する。この変化を考慮に入れた時、式 (7.1) と式 (7.6) において、測定結果を 1.05 倍しなければならない。このため、測定位置は図 7.6 に示すように管壁付近ほど誤差が大きくなり、流速に関しては、図 7.7 に示すように流速の速い部分ほど誤差が大きくなる。

磁性流体の場合は、伝播速度変化がごく微小であるため、計測に影響はしないと考えられる。しかしながら、MR 流体のように大きく伝播速度が変わる流体の場合、この変化を検討に入れる必要があり、計測結果の評価方法の検討が必要となる。流動を与えると、クラスターの崩壊によっ

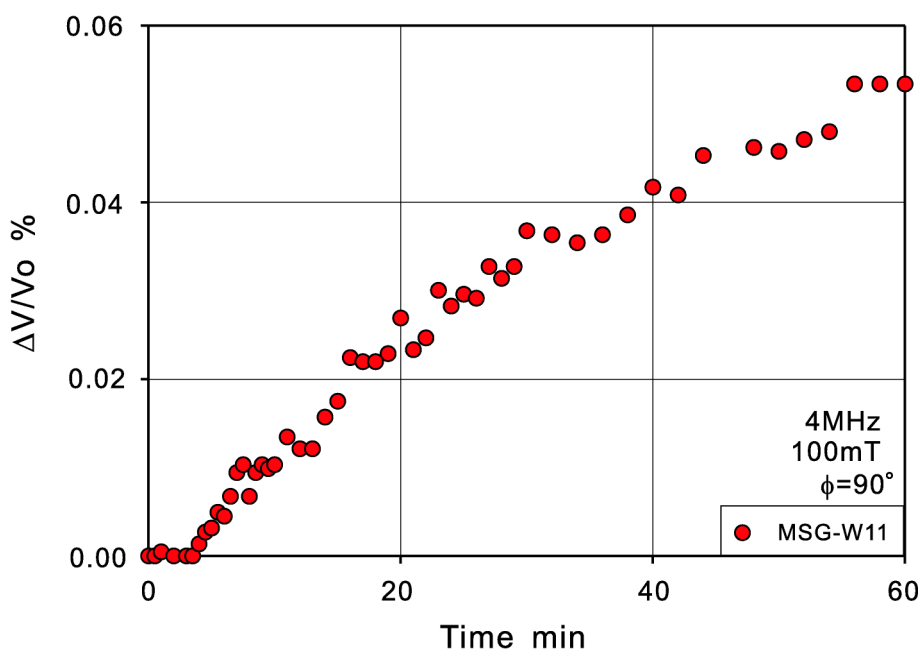


図 7.5: Elapsed time dependence of ultrasonic propagation velocity in MSG-W11

でも伝播速度も変化するので、ここまでの特性を考慮すると流動計測は非常に難しいものとなる。この場合、リアルタイムで伝播速度を測定しながら、流速分布の計測を行うシステムの構築が必要となる。

本研究では、磁場印加による伝播速度変化が、0.07%であり、速度値にして1 m/s程度でしかないため、流体温度による伝播速度変化の影響の方が大きくなる。このことも考慮すると、詳細な流動計測には温度による伝播特性や温度制御も重要なものとなる。

### 7.2.8 分解能に与える影響

伝播速度の変化は、分解能にも影響を与える。本計測で得たように伝播速度が外部環境によって増加するのであれば、時間分解能に与えられる式(7.10)、速度分解能で与えられる式(7.20)を考えると、分解能も高くなる。逆に、大きく伝播速度が減少する場合、分解能の検討が必要となり、UVPの初期設定を行わなければならない。空間分解能に関しては、式(7.16)によって検討されるが、結局は反射体粒子がパルス内を通過するかどうかによってしまうため、速度分布の計測には、ほとんど影響を与えないと考えられる。

## 磁性流体の流動計測

磁性流体への磁場印加による伝播速度変化は微小であるため、測定結果に影響を与えないと考えられる。このため、磁性流体中の伝播速度の測定を行うことで、UVPによる磁性流体の速度分布計測は有効であると考えられる。UVPの適用例として、実際に管内振動流の速度分布計測を行ったので次節に示す。

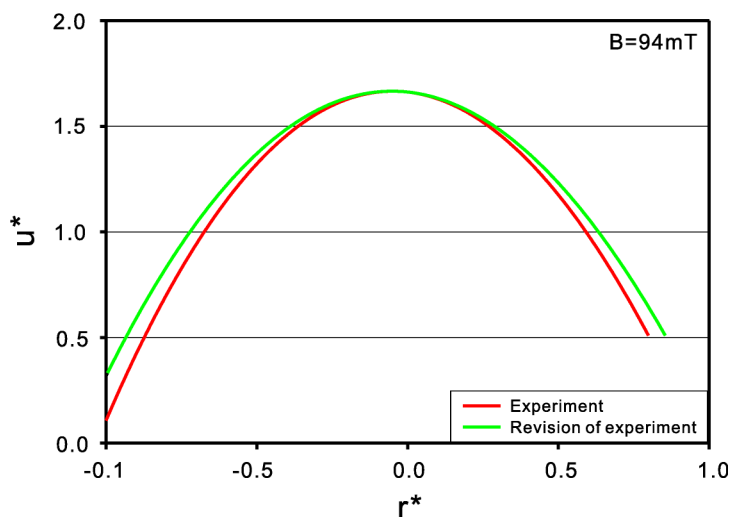


図 7.6: Error of measuring point by UVP

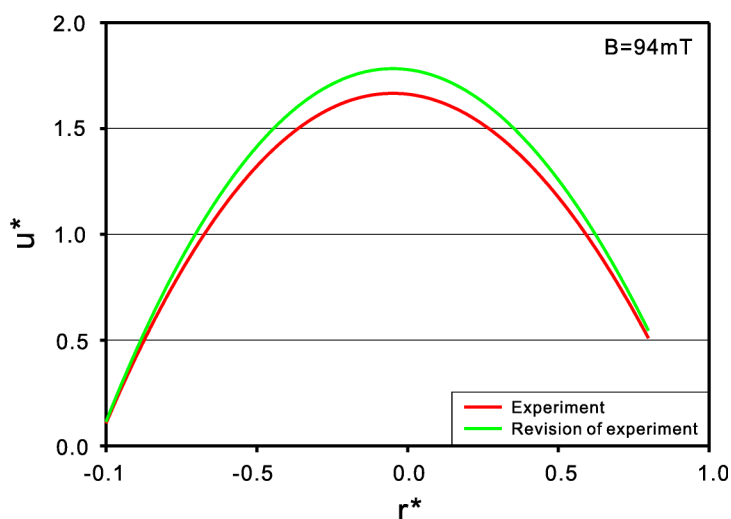


図 7.7: Error of velocity profile measurement by UVP

## 7.2.9 UVPによる磁性流体振動流の流動計測

### 測定方法

一般的に、管内振動流を扱う場合には、次式で定義される  $W$  (Wormersley 数) を用いることで、流動に対する速度分布の検討を行う。 $\nu$ : 動粘性係数,  $\omega$ : 角振動数,  $R$ : 管半径として、

$$W = R\sqrt{\frac{\omega}{\nu}} \quad (7.21)$$

で与えられる。本計測では、 $W = 4.2$  に設定することによって、計測を行った。なお、ピストンと振動流の周期は同じであり 9.6s である。

ここでは、次の 3 通りの測定を行った。

1. 無磁場下での速度分布測定
2. ピストン振動下において、94mT の磁場を印加した時の速度分布測定
3. 予め磁性流体に 94mT の磁場を 1 時間印加し、鎖状クラスターを形成させた後の振動流の速度分布測定

### 計測結果

計測結果を図 7.8～図 7.10 に示す。図中の  $u^*$ ,  $r^*$  はそれぞれ無次元速度と無次元半径を表しており、 $u_0$  をピストンの最大速度として、

$$u^* = \frac{u}{u_0}, \quad r^* = \frac{x}{R} \quad (7.22)$$

である。振動流はピストンの往復運動を基準として、ピストンが下至点から上至点に移動する時の中間点を  $\theta = 0$  と設定した。図 7.8 は、無磁場下の磁性流体振動流の速度分布を示している。図 7.9 は、ピストン振動下において 94mT の磁場印加しながら速度分布測定を行った結果である。図 7.10 は、予め磁場をかけることで鎖状クラスターを形成させて、振動流を起こした時の速度分布測定の結果である。この測定に関しては、経過時間によって速度分布が変化することが予想されるので、ピストン始動から 2 周期目の結果を採用している。

### 検討

図 7.8 における速度分布では、無磁場下では磁性流体を Newton 流体として扱え、Newton 流体振動流特有のアンニュラ効果が生じている。アンニュラ効果とは、流体の粘性力と慣性力の兼ね合いによって、速度が 0 に近づく位相で中心部と管壁部で速度方向が逆転するという現象である。

図 7.9 より、94mT の磁場を印加することで振動流のアンニュラ効果が消滅している事がわかる。これは、磁場印加による磁性流体の見かけの粘度増加が流動場に対して大きく影響を与えた結果であると考えられる。

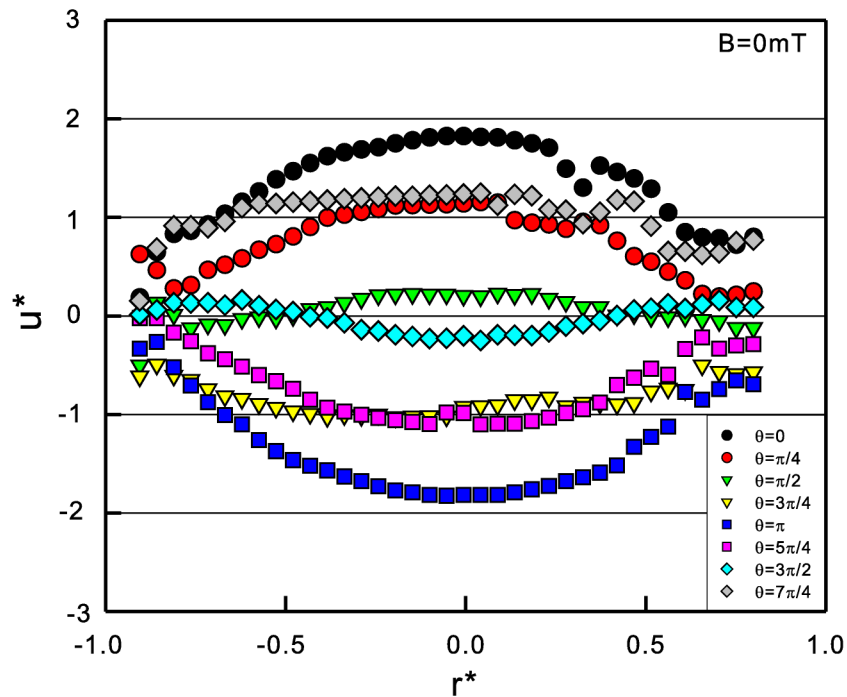


図 7.8: Velocity profile for  $B = 0\text{mT}$

図 7.10 より、鎖状クラスターを形成した状態からの振動流の速度分布計測では、前者の結果より大きく速度分布が変化していることが分かる。これは、管内に形成された鎖状クラスターが流動により押し流されたことで、堰を切るように急激に流速が増加したと考えることもできる。しかしながら、理論的に説明付けるのは非常に難しい。また、鎖状クラスターの崩壊に伴うためか最大流速が管中心部からずれているのも興味深い結果である。

### 7.2.10 まとめ

磁性流体の流動分布計測に UVP は非常に有効であり、実際の流動計測を行うことによって、非常に興味深い結果が得られた。印加磁場下の磁性流体の流動場の解析は、磁性流体の応用にとって重要であり、理論研究に対して、このように実際に流動計測を行うことは非常に有意義であり、今後の成果が期待される。

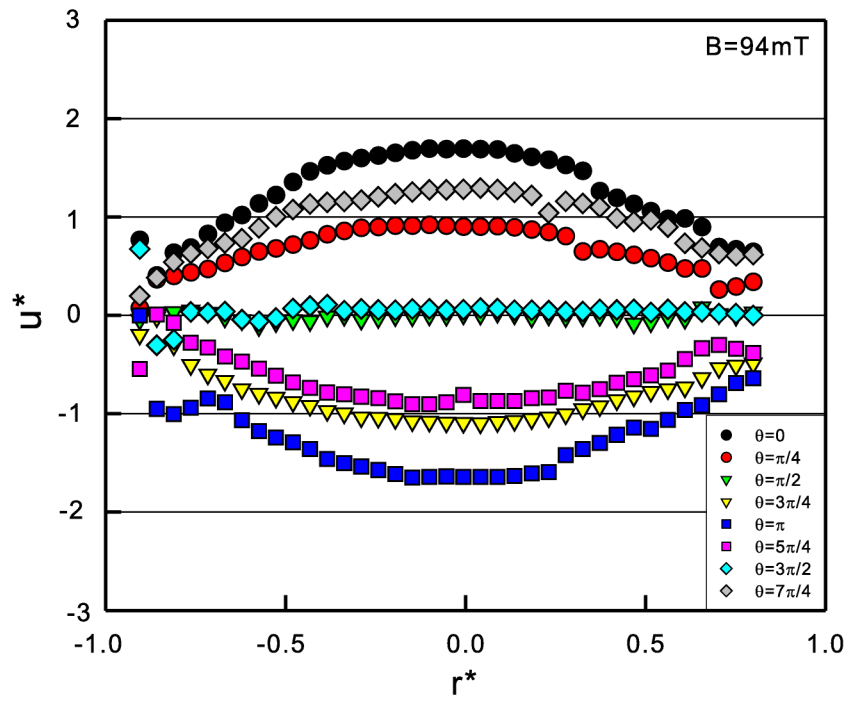


图 7.9: Velocity profile for  $B = 94\text{mT}$

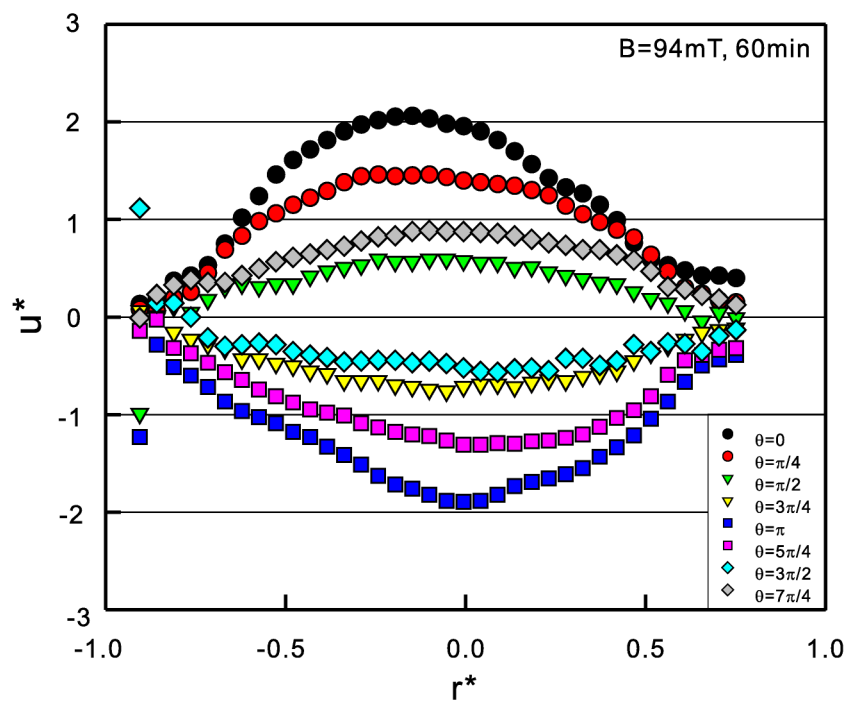


图 7.10: Velocity profile for  $B = 94\text{mT}$ , applying 60min

## 7.3 MR 流体チャンネル流の超音波による流動構造解析

### 7.3.1 概要

MR 流体は磁性流体に比べ、磁場印加で制御可能な降伏応力や大きな粘性力を持っており、応用研究が活発になされている。しかしながら、MR 流体の内部構造、レオロジー特性を考慮した流動解析は非常に困難であり、なされている研究が少ないのが現状である。これに対して、本研究では MR 流体チャンネル流の流動解析に対して、超音波を用いて流動内部構造解析を行うこととした。

### 7.3.2 MR 流体チャンネル流における過去の研究

MR 流体は、印加磁場下における特徴的な物性変化から数々の応用研究がなされているにも関わらず、その複雑なレオロジー特性などに起因するため、流動場における研究が応用研究に対して少ないが、本件に関わりの深い MR 流体チャンネル流における研究をあげる。

Yamamoto-Nakano[108] は、MR 流体チャンネル流の圧力流れモードにおいて定常および動的なレオロジー特性を計測し、これをもとに往復振動流に対する機械モデルを構築することで圧力差を測定した。Nishiyama ら [109] は、矩形断面の MR チャンネル流における圧力流れ場において、構成方程式を提案し、レオロジー特性を考慮した圧力流れ場における MR 流体の流動解析を理論的に行った。そして、流動場に磁場を印加し、流量を計測することで MR 流体による流動制御バルブとしての応用の可能性を検討した。さらに、流動場の圧力分布を測定することで、磁場印加により MR 流体がシールとして作用し流れが遮断すること、流動によってシールが崩壊に転じることを確認した [110]。本研究では西山らと共同のもと、超音波により MR 流体チャンネル流の流動構造の解析を行い、MR シール崩壊予知の検討を行なった [111]。

### 7.3.3 MR 流体チャンネル流内部構造解析実験装置

実験装置の概略を図 7.11 に示す。流路は 10mm×10mm の矩形断面であり、流路の一端にコンプレッサー、ピストンなどで構成される Pressure controll system によって、押出し圧  $P_{in}$  で MR 流体を押出すことによって、圧力流れ場を形成する。押出し圧は 120kPa まで可変で、磁場印加は電磁石により 150mT まで印加できる。振動子は、図 7.11 に示す通り管路外壁、電磁石中心部に 1 枚設置、さらに左右 2 枚ずつ 30mm 毎に設置した。ピストン側 (図中左側) から順に Ch1, Ch2, Ch3, Ch4, Ch5 とする。

本測定装置においても、3.6 節に記したように純水の計測によって、超音波伝播時間  $T$ 、超音波伝播距離  $L$  の検定を行っている。MR 流体は LORD 社製の MRF-132AD を用いており、物性は 6.4 節に記した通りである。



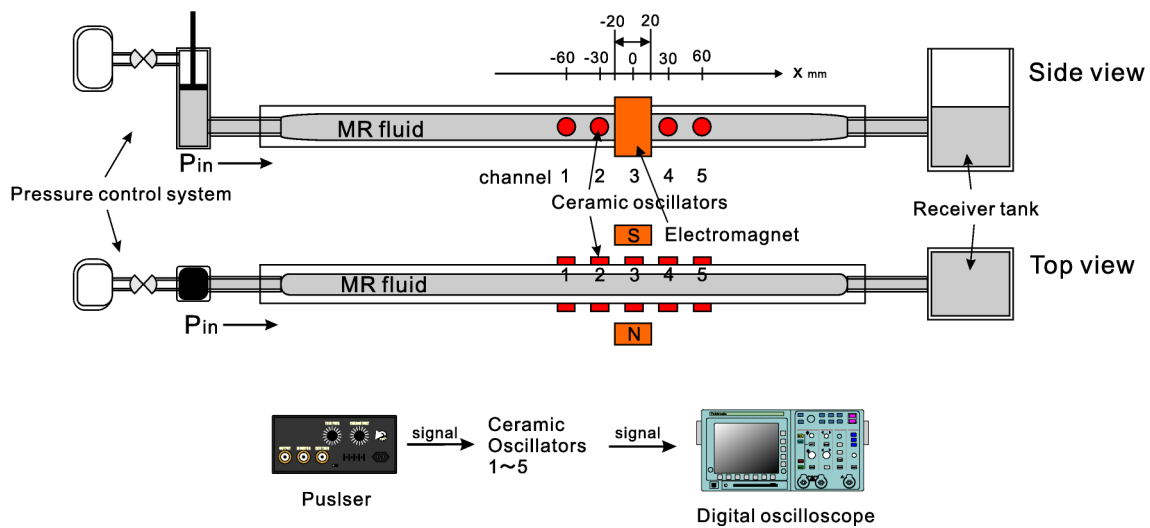


図 7.11: Experimental apparatus of an MR fluid channel flow

### 7.3.4 MR 流体チャンネル流内部構造解析実験方法

超音波振動子を設置した Ch1~Ch5 の部分において、超音波伝播速度、磁場作用下における伝播速度変化特性を測定した。具体的には、次の 2 通りの実験を行った。

1. Ch1~Ch5 における超音波伝播速度の印加磁場強度依存性
2. Ch1~Ch5 における超音波伝播速度を基にした流動内部構造解析

#### 印加磁場強度依存性

Ch1~Ch5 において、4.9 節に示した磁場依存性を計測した。磁場は 10mT ごとに 140mT まで印加した。

#### 流動内部構造解析

次の手順によって流動内部構造解析を行った。伝播速度の計測は Ch1~Ch5 全てにおいて行っている。さらに伝播速度は基準値からの音速変化率を用いて評価している。

1. 無磁場下、押し出し圧  $P_{in} = 0$ (流動なし) の状態において伝播速度を計測、この値を基準  $V_0$  とした
2. 80mT の磁場印加、押し出し圧  $P_{in} = 0$ (流動なし) の状態において伝播速度を計測
3. 磁場を印加したまま、押し出し圧  $P_{in}$  によって圧力を加える (流動あり)、押し出し圧は、40kPa, 60kPa, 80kPa とした。この状態で伝播速度を計測

### 7.3.5 MR 流体チャンネル流内部構造解析実験結果と検討

#### 磁場印加強さ依存性

測定結果を図 7.12 に示す。図では、磁場作用域の Ch3 においてのみ伝播速度が増加している。これは、磁場の増加によって、MR 流体中に塊状クラスターが形成され、超音波伝播領域の濃度が相対的に増加したため、伝播速度が増加したと考えられる。

次に、磁場作用域の隣である Ch2, Ch4 では逆に伝播速度が減少している。これは磁場作用域における塊状クラスターの形成によって、内部粒子が磁場作用域に引き寄せられた結果、粒子濃度が相対的に減少したため伝播速度が減少に転じたと考えられる。

磁場作用域から遠い Ch1 と Ch5 においては、Ch1 は伝播速度の変化がなく、Ch5 では伝播速度が減少している。この地点では磁場作用の影響をほとんど受けていないため、Ch1 では伝播速度が変化していないと考えられる。これに対して、Ch5 では減少しており、チャンネル流の磁場作用域の下流は矩形管を解放しているため、磁場の作用によって、Ch1 とは異なり内部粒子が引き寄せられ、粒子濃度が相対的に減少したものと考えられる。

#### 流動内部構造解析

計測結果を図 7.13 に示す。図に示されるように、無磁場、 $P_{in} = 0\text{kPa}$  においては、全ての点で基準となるため音速変化率は全て 0 である。

80mT の磁場を印加すると ( $P_{in} = 0\text{kPa}$ )、磁場作用域の Ch3 では伝播速度が増加、Ch2, Ch4 では伝播速度が減少、Ch1, Ch5 では伝播速度が変化していないことが分かる。これは、Ch5 以外では、図 7.12 に示した磁場依存の結果と同様であり、MR 流体の塊状クラスター形成に伴い内部粒子濃度が相対的に変化したためであると考えられる。

次に、磁場を印加したまま  $P_{in} = 40\text{kPa}$ ,  $P_{in} = 60\text{kPa}$  の押し出し圧を加える (80mT)。押し出し圧を加えても伝播速度にはほとんど変化が見られない。これは、MR 流体への磁場の作用によって、流動が遮断されているため、流動が無く、内部粒子の相対的な濃度が変化していないものと考えられる。

$P_{in} = 80\text{kPa}$  を加えた時、その傾向は大きく変化する。これは圧力増加に伴い流動を遮断しきれずに流動が開始した結果であると考えられる。磁場作用領域では、濃度分布が高いため伝播速度は増加しているが、他の部分では特徴的な傾向が得られていない。これは、流動が開始すると受信波形が乱れてしまい、測定に再現性が無くなる為である。このため、流動状態においては、伝播速度は内部状態を定量的に評価しうる指標にはなりえない。しかしながら、流動開始の瞬間に受信波形も乱れるため、この瞬間を感知することで、MR 流体シールの崩壊の予知を検討することが可能であると考えられる。

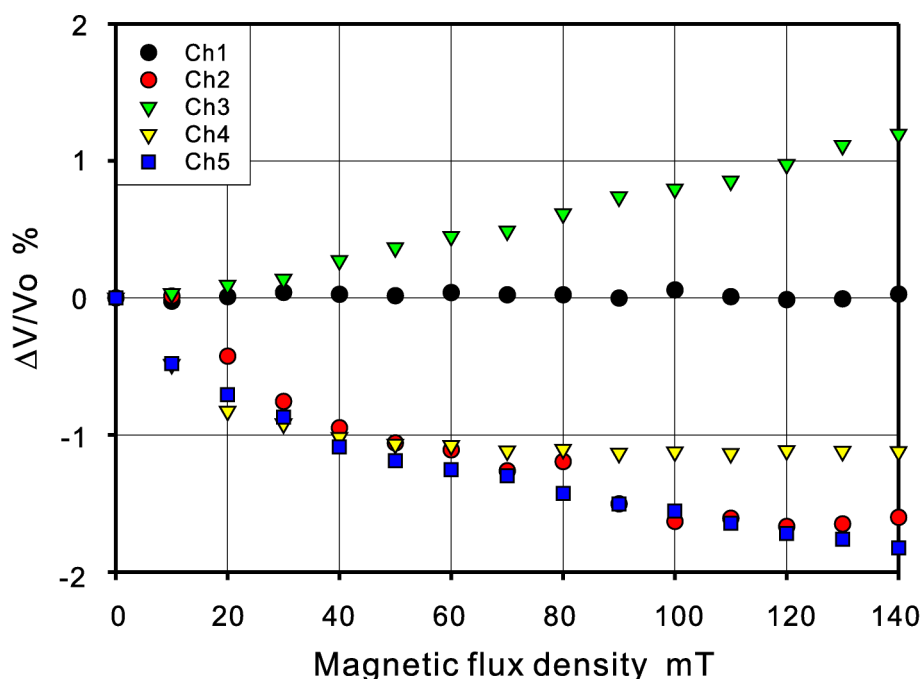


図 7.12: Magnetic field dependence of ultrasonic propagation in MR fluid flow

### 7.3.6 まとめ

超音波によるMR流体チャンネル流の流動内部構造解析を行った。流動が遮断されている状態では、伝播速度変化に特徴的な傾向があり、超音波による内部構造解析が可能であった。流動状態では、受信波形の乱れから定量的な計測は難しい。しかし、逆にシールの崩壊の瞬間を非接触によって解析できることが明らかになった。

## 7.4 結 言

本章では、磁気機能性流体中の超音波伝播特性の結果を応用して、次のような流動場における計測を行った。各測定における結果、検討をまとめて記す。

### 1. UVPによる磁性流体管内振動流の流速分布計測

- (a) 磁性流体中の超音波伝播速度変化特性を測定することで、UVPの磁性流体流動への適用を考えた。その結果、磁場印加時の磁性流体中の伝播速度変化は非常に小さいためUVPの計測に影響は与えないと考えられる。
- (b) 超音波伝播速度変化は、UVPの計測における測定位置決定、流速分布の計算、分解能といった重要なパラメータに大きく影響を与えるため、伝播速度変化が大きい場合はUVPの適用にはその誤差を検討する必要がある。

- (c) 磁性流体管内振動流の速度分布計測を行い、無磁場下では、Newton 流体振動流特有のアンニュラ効果が計測された。磁場を印加すると見かけの粘度変化などが原因となり、アンニュラ効果が消滅する。鎖状クラスターを形成させた状態から振動流の計測を行うと流体内部構造が流動に大きく影響を与える。

## 2. 超音波による MR 流体チャンネル流の流動構造解析

- (a) 磁場作用下における MR 流体内部構造が流動を遮断する状態における流動構造を超音波により解析した。シールが崩壊し流動が生じると急激に受信波形が乱れることから流動状態への変位も解析できた。
- (b) 流動が生じると受信波形が大きく乱れてしまうため、流動中の定量的な解析は難しいが、波形の乱れる瞬間を検知するでシールが崩壊へ転じる瞬間を計測できる可能性がある。

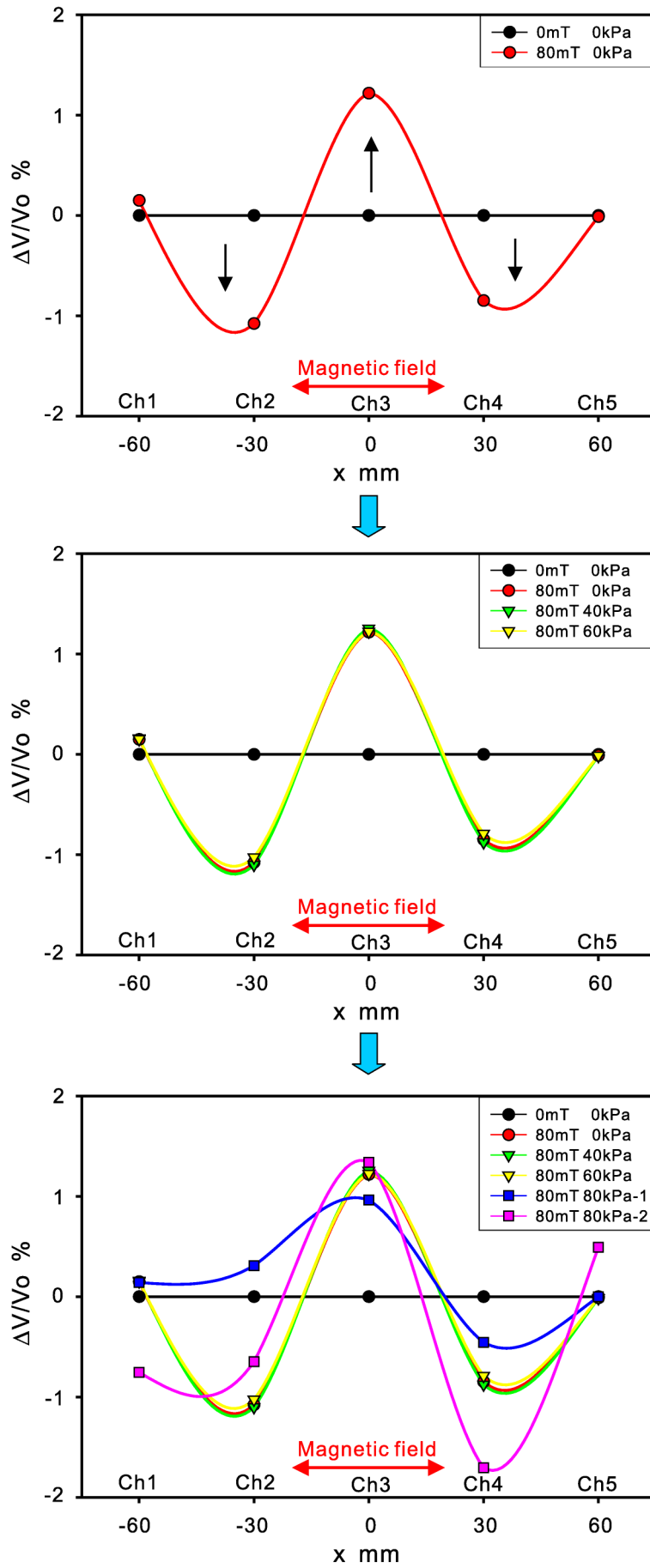


图 7.13: Analysis of inner structure in MR fluid flow

## 第8章 総括

本研究では、磁場に応答する磁気機能性流体として、磁性流体とMR流体を取り上げた。近年、磁気機能性流体の磁場印加下での特性を生かして、様々な機器の応用が提案されているが、実用に至っていないのが現状である。この理由として、内部構造の挙動、磁場印加時のクラスター構造の複雑さや流動計測の難しさに起因するものが挙げられる。これらの諸問題に対して、本研究では超音波伝播物性研究を進めることで磁性流体、MR流体の物性研究を行い、その基礎資料を提供すること、その結果を利用した内部構造解析を行うことを目的とした。また、応用として流動場における計測も実施した。

第1章では、磁性流体、MR流体、超音波技術などを紹介した。現在、磁気機能性流体は、基礎研究からダンパーなどの工学的応用、さらには医療分野への応用など、幅広い分野で研究がなされており、磁気機能性流体の将来性と課題を記した。そこで、本研究の目的として磁気機能性流体中の超音波特性の研究を行うことを記し、その課題等を記述した。

第2章では、基本的な媒体中の超音波伝播理論についてまとめた。超音波伝播特性を考えるうえで基礎的な超音波伝播理論は重要である。特に、液体中の超音波伝播理論は、内部粒子の運動などを考えなければならず、様々な理論が提案されてきているものの、非常に難解である。これらの理論研究をもとに、本研究において、どのような実験、解析を進めるかを検討し、本研究の方向付けを提起した。

第3章では、本研究における計測システムの構築を詳細に説明した。機能性流体の実験においては、機能を持たせた状態(本研究では磁場印加)での計測が重要になることから、計測装置に以下の機能を与えた。

1. 磁場を印加した状態で様々な磁場印加条件(磁場印加強さ、磁場印加方向、sweep rateなど)を変えた測定が可能
2. 試験流体の温度を一定に保持できる
3. 超音波伝播速度、減衰率の計測が可能

である。さらに本研究では、流体中の伝播速度や微細な伝播速度変化を計測するという立場から、

計測システムに対して次のような検定を行った。

1. テストセル中の試験流体の超音波伝播時間の計測方法
2. テストセル中の試験流体の超音波伝播距離の詳細な計測
3. 試験流体中の伝播速度の評価方法

第4章では、磁性流体中の超音波伝播特性として伝播速度の検討を行い、その特性から内部構造変化を解析した。以下に結果をまとめる。

1. 磁性流体中の伝播速度は、磁性流体の温度に依存する。これは、磁性流体内部の強磁性微粒子のブラウン運動やベース液に強磁性微粒子を添加した事による体積弾性率の変化等に起因しているものと考えられる。
2. 磁性流体中の伝播速度は、磁場印加からの経時時間に応じ変化する。これは、磁性流体中に形成される鎖状クラスターが大きく関係している。鎖状クラスターの成長は、超音波伝播速度が一定になるまで続いており、伝播速度の大きさも鎖状クラスターのサイズを示す一種の指標となる。
3. 磁場印加後、磁場を除去しても、伝播速度は減少へは転じず保持される。磁場を除去しても、鎖状クラスターは完全には崩壊せず、内部粒子の凝集体 (1次クラスター) として溶媒中に分散している状態であると解析できる。
4. 伝播速度の磁場依存性によると、 $\phi = 0^\circ$  と  $\phi = 45^\circ$  では、どの磁性流体でも増磁により磁性流体中の伝播速度も増加した。これも増磁による鎖状クラスターの成長に起因している。その後の減磁により、ヒステリシスが測定された。減磁過程では、成長した鎖状クラスターは粒子の凝集体として、分散せずに磁場によって鎖状クラスター形成領域に保持されているものと考えられる。
5.  $\phi = 90^\circ$  の時は、磁場印加によって、伝播速度が特異な変化を示した。この特異な変化は、内部粒子の濃度分布の影響と鎖状クラスターの形成の影響が相互作用していると解析した。
6. 磁性流体中の伝播速度変化には、異方性が存在した。鎖状クラスターは磁場方向に形成されるため、超音波の伝播する領域に存在する鎖状クラスターが影響している。鎖状クラスターへの伝播方向の違いによって伝播速度に特徴的な異方性が生じたものと考えられる。
7. 伝播速度の異方性に関しては、炭化水素ベースの磁性流体の方が伝播速度変化が比較的小さい。これは、水ベースに比べて鎖状クラスターの成長が小さいためであると検討した。鎖状クラスターのサイズの違いは、内部粒子構造の違いに起因するものであり、単分子吸着である炭化水素ベースでは、伝播速度変化にも規則性があり、鎖状クラスターの形成に一様性がある。
8. 磁性流体の濃度を薄めた測定においては、流体の性質自体は溶媒に近づいていると考えられ

るが、磁場印加時は異方性などに特異な変化が見られた。Parsons の理論と比較することで、磁性流体を希釈した時、磁場印加時の磁性流体の内部状態はネマティック液晶に近いクラスター構造になっていると推測した。

9. Sweep rate による磁場掃引方法では、W-40 においては、ゆっくりと磁場を掃引するほど伝播速度が大きく変化することから鎖状クラスターが大きく成長すると考えられる。しかしながら、磁場応答性の良い EXP04019 ではどの磁場掃引方法においてもほぼ同等の変化を示しており、鎖状クラスターの形成に差はない。
10. 理論研究に対して、実験結果との比較を行った。類似する部分も多かったものの、かけ離れた結果が得られた部分もあった。今後より詳細に検討することが望ましい。

伝播速度は磁性流体の内部構造を考えるうえで、重要な資料となる。本章では、多くの実験によって磁性流体中の超音波伝播速度の基礎データを提供し、その音波物性の変化に基づいて内部構造変化の議論を行なった。

第 5 章では、第 4 章に対して、磁場印加による超音波伝播の減衰率に注目して、その特性を計測し、伝播速度と比較することで内部構造の解析を行った。以下に結果をまとめる。

1. 磁場印加後からの経時変化では、磁場印加直後に急激に減衰率が大きく変化し、その後は定常に戻る。磁場印加直後には内部粒子が鎖状クラスターの形成に向かって活発に運動しているためであると考えられ、鎖状クラスターが形成されると減衰率は変化しなくなった。
2. 磁場依存性では、伝播速度のようなヒステリシスは計測されなかった。増磁過程では、鎖状クラスターの成長とともに伝播速度同様に減衰率は増加している。減磁によって減衰率も減少しており、磁場減少で鎖状クラスターは小さくなるが、内部粒子の凝集体の分散は進まないものと推測した。
3. 異方性においては、 $\phi = 0^\circ$  付近と  $\phi = 90^\circ$  付近に減衰率が大きくなる領域が得られた。この傾向は Taketomi の理論と類似したものであった。しかし、異方性の結果は特異であり、この結果のみから内部構造を解析するのは困難である。

減衰率は内部粒子の運動を考えるうえで、非常に重要である。しかしながら、その計測は難しく、結果もばらつきの多い部分があった。減衰率の結果のみで内部解析自体を議論するのは困難であるが、伝播速度と比較することで、伝播速度変化では得られない知見も得ることができた。

第 6 章では、MR 流体中の超音波伝播速度を計測し伝播特性の検討をした。MR 流体中では、超音波の減衰や散乱が大きく、波形が大きく乱れてしまうため、その波形からの伝播速度変化の測定方法も検討した。ここでは、わずかな伝播時間の変化を捉えることができ、伝播速度変化特性



が計測に結びついた。結果を以下にまとめる。

1. 磁性流体と比較して大きな伝播速度変化が得られる。これは内部粒子が 1000 倍程度大きいことに起因していると考えられ、内部に形成されるクラスターも磁性流体と比較すると鉄粒子が塊のような状態の塊状クラスターとなる可能性が見出された。
2. 磁場印加直後に伝播速度は増加するため、MR 流体は磁場応答性に非常に優れ、内部のクラスターは磁場印加直後に瞬時に形成されたものと推測できる。
3. 磁場依存性の計測において、磁性流体同様ヒステリシスが計測された。このヒステリシスは、磁性流体とは異なりクラスターは弱磁場下では保持しきれずに崩壊に転じていくと解析できる。これも内部粒子の大きさに起因しており、MR 流体内では粒子は分散に進んでいるものと考えられる。
4. 形成されるクラスターは塊状であると推測されるが、伝播速度変化に異方性が存在した。このことから、粒子の凝集は磁場方向に配向性を持って形成されており、結果、伝播速度の遅い溶媒部分の領域が多い  $\phi = 90^\circ$  の時、伝播速度が最小になる。
5. Sweep rate を変えた測定では、伝播速度変化にはほとんど差が現れなかった。本研究からは、MR 流体ではどのように磁場を印加しても同じようにクラスターが形成していると解析できる。これは、経時変化特性にも示される通り、MR 流体特有の磁場への応答性の良さためである。

MR 流体中の超音波伝播特性の研究はほとんどなされていない。本研究で、実際に計測を行い、磁性流体と比較して内部構造変化に起因する伝播速度変化特性が計測された。

第 7 章では、本研究で得られた結果に基づき応用として流動場への適用を考えた。ここでは、磁性流体管内振動流の UVP による速度分布の計測と MR 流体チャンネル流の流動構造の解析を行なった。

UVP による磁性流体管内振動流の速度分布計測は次のようにまとめることができる。

1. 磁性流体中の超音波伝播速度変化特性の結果に基づき、UVP の磁性流体への適用を考えた。UVP の適用前に磁性流体の超音波伝播速度、磁場印加による伝播速度変化を求め、この値を UVP に適用した。磁場印加時の磁性流体中の伝播速度変化は非常に小さいため UVP の計測には影響を及ぼさない。
2. 超音波伝播速度変化は、UVP の計測における測定位置決定、流速分布の計算、分解能といった重要なパラメータに大きく影響を与える。このため、伝播速度変化を大きく見積もって検討を行った。
3. UVP により磁性流体管内振動流の流動計測を行った。無磁場下では、Newton 流体振動流特

有のアンニュラ効果が計測された。磁場を印加するとアンニュラ効果は消滅した。鎖状クラスタを形成させた状態で流動を与えると、流体内部構造が流動に大きく影響を与え、速度分布が大きく変化する。

MR 流体チャンネル流の超音波による流動解析では次のようにまとめることができる。

1. 磁場作用下における MR 流体内部構造が流動を遮断する状態からシールが崩壊し流れが生じる流動への転移の流動構造解析を超音波により行なった。
2. 流動が生じると受信波形が大きく乱れてしまうため、流動中の定量的な解析は難しいが、波形の乱れる瞬間を読み取ることでシールが崩壊へ転じる瞬間を検知できる可能性がある。これは、MR 流体のバルブの制御を考えるうえで非常に有効であると考えられる。

以上のように、磁気機能性流体中の超音波伝播特性の基礎資料を提供し、その結果を元にした内部構造変化の解析を行った。超音波による磁気機能性流体の内部構造変化の解析は、流体自体が不透明でその解析が難しいことから有効である。本研究では、主に周波数は 2MHz のものを用い、周波数分散性の検討は行わなかった。音波物性を考えるうえでは、超音波の分散(周波数依存性)を考える狭義での超音波スペクトロスコピーも重要であると考えられ、今後分散性を与えるような高周波数での計測をすることは重要である。

## 謝 辞

本研究は、慶應義塾大学大学院理工学研究科に在学中、本塾理工学部機械工学科 澤田達男教授のご指導の下で行なわれたものである。同教授には、学部時代より公私共に熱心なご指導、ご鞭撻を賜りました。至らない著者に対して、大変な設備投資をして頂いたり、多くの国際会議発表の機会を頂きました。修士の時には心臓病で入院するにあたり、親切にご対応頂きました。その折は、大変ご迷惑をおかけ致しました。ここに深く御礼申し上げます。

東北大学流体科学研究所 西山秀哉教授には、MR 流体に関する研究を中心に、様々な観点からご指導を賜るだけでなく、同研究所において共同研究として超音波による MR 流体の流動構造解析の研究をさせて頂く機会まで賜りました。さらに、本論文の作成においても快く副査を引き受けて頂き、貴重なご討論を賜りましたことを深く感謝致します。

本論文の作成にあたり、本塾理工学部物理学科 宮島英紀教授には、磁性物理の観点から理学的なご討論を頂きました。本塾理工学部機械工学科 三井公之教授には、超音波流動計測の原理について誤りをご指摘頂きました。本塾理工学部機械工学科 杉浦壽彦助教授には、著者の理解が不足していた超音波の波動方程式に関して丁寧にご指導頂きました。ここに深謝致します。

本多電子(株) 小林和人氏には、学部時代より超音波装置の製造から超音波計測まで丁寧にご指導を頂きました。多くの要望、質問に対し、非常に親切にご対応頂きました。ここに厚く御礼申し上げます。

本塾実験教育支援センター 相原今朝雄氏、斉田尚彦氏には、学部時代より機械加工に関して厳しくご指導賜ると共に、研究からは学べない多くの知識を賜りました。お陰様で、機械加工に関する知識も広がりました。同センター 小向康夫氏には、実験装置の電氣的不具合への対応、電子回路の作成と親切にご指導頂きました。同センター 高野朋幸氏には、実験遂行にあたり必要な装置を検討して頂くと共に、提供までして頂きました。深く感謝致します。

東北大学流体科学研究所 片桐一成元技術室長には、共同研究を行なう際に、同氏作成の実験機装置を使用させて頂くと共に、実験に対して丁寧にご指導賜りました。同氏の幅広い測定装置に関する知識、工作技術などは非常に勉強になりました。東北大学流体科学研究所 高奈秀匡助手には、実験方法、結果の解析のご討論を賜ると共に、成果発表までして頂きました。ここに厚く御礼申し上げます。

学生生活を共に過ごしました宇田川英男氏、喰田洋氏、田中博之氏、押川雄樹氏、平井理一氏、

印南崇氏，相澤崇之三等陸尉，堀江庄平氏，松本佳之氏，山崎圭史氏，吉岡良氏，吉田真一氏，Mr.Andrea Benvenuti，長谷川亮氏，下田学氏，大野憲一氏，富田賢治氏，飯塚裕太氏，兼安茂博氏，小河重三郎氏，本間裕大氏に厚く御礼申し上げます。特に，宇田川氏には6年間にわたり研究だけでなくパソコン技術，英語発表など様々なご指導を賜りました。また，平井氏，松本氏，飯塚氏には，著者と共同で実験を行なって頂きました。昼夜問わずの長時間の実験ご苦労様でした。また，東北大学では，綿引亮介氏に実験を補助して頂きました。その他多くの友人に対して感謝の意を表します。有意義な学生生活を過ごすことが出来ました。

本研究に対し，日本学術振興会科学研究費補助金(特別研究員奨励費)，慶應義塾大学大学院高度化推進研究費，慶應義塾先端科学技術センター後期博士課程研究助成金，慶應工学会国際交流援助費による補助を受けたことを記し，謝意を記します。

最後に，長きに渡る学生生活を認めて頂き，様々な面でここまで養って頂いた父正治，母真知子，叔父孝治，妹浩子に対し，本論文の完成を報告すると共に心より感謝致します。また，お世話になった全ての方々に，この場を借りて御礼申し上げたいと思います。

2007年1月 澤田研究室学生居室にて

## 参考文献

- [1] 西山秀哉, 知能流体システムの基礎と応用, フルイドパワーシステム, **32**(2001), pp. 318-321.
- [2] 安田源ら, 機能性材料科学, 朝倉書店, (1998), pp. 86-92.
- [3] 日本機械学会編, 機能性流体・知能流体, コロナ社, (2000), pp. 1-91.
- [4] 谷順二, インテリジェント材料・流体システム, コロナ社, (1999), pp. 129-148.
- [5] 神山新一, 磁性流体入門, 産業図書, (1989), pp.1-3, pp.42-48, pp.96-125.
- [6] 武富荒, 近角聡信, 磁性流体, 日刊工業新聞社, (1988), pp.85-88.
- [7] J.L.Neuringer and R.E.Rosensweig, Ferrohydrodynamics, *Phys. Fluids*, **7**(1964), pp.1927-1937.
- [8] V.V.Gogosov, Hydrodynamics of magnetic fluid, *J. Magn. Magn. Mater.*, **65** (1987), pp.301-306.
- [9] 井門康司, 木谷勝, 導電性磁性流体の構成方程式に関する非平衡理論, 日本機械学会論文集 (B 編), **59**(1993), pp.1953-1958.
- [10] T.Atarashi, T.Imai and J.Shimoiizaka, On the preparation of the colored water-based magnetic fluids (red, yellow, blue and black), *J. Magn. Magn. Mater.*, **85**(1990), pp.3-6.
- [11] I.Nakatani, M.Hijikata and K.Ozawa, Iron-nitride magnetic fluids prepared by vapor-liquid reaction and their magnetic properties, *J. Magn. Magn. Mater.*, **122**(1993), pp.10-14.
- [12] R.Massart, Preparation of aqueous magnetic liquids in alkaline and acid media, *IEEE. Trans. Magn.*, **17**(1981), pp.1247-1248.
- [13] 神山新一, 磁性流体工学の進展, 日本機械学会論文集 (B 編), **62**(1996), pp.1281-1287.

- [14] 須藤誠一ら, 日本実験力学会第2回技術講習会教材 磁気機能性流体の基礎と応用  
～磁性流体の諸特性からその産業応用まで～, 日本実験力学会, (2006), pp.17-21,  
pp.24-27, pp.58-68.
- [15] S.Horie et al., Effective method of applying magnetic field on a tuned liquid  
damper using a magnetic fluid, *Int. J. Appl. Electromagnetics and Mechanics*,  
to be published.
- [16] <http://ferrotec.co.jp/>
- [17] O.Brunke et al., Determination of magnetic particle distribution in biomedical ap-  
plications by X-ray microtomography, *J. Magn. Magn. Mater.*, **289**(2005), pp.428-  
430.
- [18] R.Aquino et al., Sm and Y radiolabeled magnetic fluids: magnetic and magneto-  
optical characterization, *J. Magn. Magn. Mater.*, **289**(2005), pp.431-434.
- [19] J.W.M.Bulte, Magnetic nanoparticles as markers for cellular MR imaging, *J.*  
*Magn. Magn. Mater.*, **289**(2005), pp.423-427.
- [20] A.Jozefczak, Acoustic properties of PEG biocompatible magnetic fluid under per-  
pendicular magnetic field, *J. Magn. Magn. Mater.*, **293**(2005), pp.240-244.
- [21] A.Jordan et al., Magnetic fluid hyperthermia (MFH): Cancer treatment with AC  
magnetic field induced excitation of biocompatible superparamagnetic nanoparti-  
cles, *J. Magn. Magn. Mater.*, **201**(1999), pp.413-419.
- [22] U.Gneveckow et al., Description and characterization of the novel hyperthermia-  
and thermoablation-system MFH 300F for clinical magnetic fluid hyperthermia,  
*Med. Phys.*, **31**(2004), pp.1444-1451.
- [23] H.G.Bagaria and D.T.Johnson, Transient solution to the bioheat equation and  
optimization for magnetic fluid hyperthermia treatment, *Int. J. Hyperthermia*,  
**21**(2005), pp.57-75.
- [24] S.I.Park et al., Biological and thermic effects of magnetic fluids for photodynamic  
therapy and hyperthermia, *J. Magn. Magn. Mater.*, **304**(2006), pp.403-405.
- [25] J.D.Carlson and M.R.Jolly, MR fluid: form and elastomer devices, *Mechatronics*,  
**10**(2000), pp.555-569.

- [26] J.Liu, Magnetorheological fluids: from basic physics to application, *JSME Int. J. Ser.B*, **45**(2002), pp.55-60.
- [27] 藤田豊久, 島田邦雄, MR 流体の特性とその応用, 日本応用磁気学会誌, **27**(2003), pp.91-100.
- [28] S.Sudo, M.Funaoka and H.Nishiyama, Impact of droplets of magneto-rheological suspension under applied magnetic fields, *J. Intell. Mater. Sys. Struc.*, **13**(2002), pp.409-413.
- [29] L.Zipser, L.Richter and U.Lange, Magnetorheologic fluids for actuators, *Sensors and Actuators A*, **92**(2001), pp.318-325.
- [30] H.Nishiyama, T.Oyama and T.Fujita, Damping characteristics of MR fluids in low magnetic fields, *Int. J. Mod. Phys. B*, **15**(2001), pp.829-836.
- [31] H.Nishiyama, S.Fushimi and M.Nakano, Numerical simulation of MR fluid damping characteristics using a modified Bingham model, *J. Intell. Mater. Sys. Struc.*, **13**(2002), pp.647-653.
- [32] R.Sheng, G.A.Flores and J.Liu, In vitro investigation of a novel cancer therapeutic method using embolizing properties of magnetorheological fluids, *J. Magn. Magn. Mater.*, **194**(1999), pp.167-175.
- [33] 高木堅志郎ら, 超音波便覧, 丸善 (1999), pp3-5, pp.21-24, pp.229-226, pp.345-368.
- [34] 超音波工業会編, はじめての超音波, 工業調査会 (2004), pp.32-80, pp125-137.
- [35] 丹羽登, 超音波計測, 昭晃堂 (1982), pp.65-89.
- [36] 川嶋紘一郎ら, ナノメートルオーダーの隙間を持つ微細損傷・不完全結合部検出のための非線形超音波画像化システム, 非破壊検査, **54**(2005), pp.509-514.
- [37] 鳥越一平ら, 音響インテンシティーを利用した非破壊非接触検査, 非破壊検査, **55**(2006), pp.84-88.
- [38] 杉浦壽彦, 丸山真一, 電磁超音波深触子による超音波送受信過程の数値解析, 超音波 TECHNO(2001), pp.38-43.
- [39] 丸山真一, 杉浦壽彦, 吉沢正紹, 電磁超音波深触子による超音波の送受信 (試料内に存在する欠陥の影響), 日本機械学会論文集 (C 編), **67**(2001), pp.653-660.

- [40] P.M.Meaney, M.D.Chill and G.R.Haar, The intensity dependence of lesion position shift during focused ultrasound surgery, *Ultrasound in Med. Biol.*, **26**(2000), pp.441-450.
- [41] 伊東正安, 望月剛, 超音波診断装置, コロナ社 (2002), pp.98-154.
- [42] Y. Takeda, Velocity profile measurement by ultrasound Doppler shift method, *Int. J. Heat Fluid Flow*, **7**(1986), pp.313-318.
- [43] 小橋豊, 音と音波, 裳華房 (1969), pp.62-88.
- [44] 野村浩康, 川泉文男, 香田忍, 液体および溶液の音波物性, 名古屋大学出版会 (1994), pp.23-50, pp.109-120.
- [45] M.R.Rao, Velocity of sound in liquids and chemical constitution, *J. Chem. Phys.*, **9**(1941), pp.682-685.
- [46] Y.Wada, On the relation between compressibility and molar volume of organic liquid, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **4**(1949), pp.280-283.
- [47] Y.Wada, Pressure dependence of sound velocity in organic liquids, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **11**(1956), p.1203.
- [48] L.Tonks, The complete equation of state of one, two and three-dimensional gases of hard elastic spheres, *Phys. Rev.*, **50**(1936), pp.955-963.
- [49] 能本乙彦, 生嶋明, 鳥飼安生, 音波物性とその応用, オーム社 (1969), pp.1-4.
- [50] V.A.Del Grosso and C.W.Mader, Speed of sound in pure water, *J. Acoust. Soc. Am.*, **52**(1972), pp.1442-1446.
- [51] A.H.Harker and J.A.G.Temple, Velocity and attenuation of ultrasound in suspensions of particles in fluids, *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **21**(1988), pp.1576-1588.
- [52] A.K.Holmes, R.E.Challis and D.J.Wedlock, A wide-bandwidth study of ultrasound velocity and attenuation in suspensions: comparison of theory with experimental measurements, *J. Coll. Interface Sci.*, **156**(1993), pp.261-268.
- [53] A.K.Holmes, R.E.Challis and D.J.Wedlock, A wide-bandwidth ultrasonic study of suspensions: the variation of velocity and attenuation with particle size, *J. Coll. Interface Sci.*, **168**(1994), pp.339-348.



- [54] D.J.Hibberd, B.H.Robinson and M.M.Robins, Ultrasonic characterisation of colloidal dispersions: detection of flocculation and adsorbed layers, *Coll. Surfaces B: Biointerfaces*, **12**(1999), pp.359-371.
- [55] J.D.Parsons, Sound velocity in a magnetic fluid, *J. Phys. D*, **8**(1975), pp.1219-1225.
- [56] S.Taketomi, The anisotropy of the sound attenuation in magnetic fluid under an external magnetic field, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **55**(1986), pp.838-844.
- [57] K.Gotoh and D.Y.Chung, Ultrasonic attenuations in magnetic fluids, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **53**(1984), pp.2521-2528.
- [58] K.Henjes, Sound propagation in magnetic fluid, *Phys. Rev. E*, **50**(1994), pp.1184-1188.
- [59] V.V.Sokolov and V.V.Tolmachev, Anisotropy of sound propagation velocity in a magnetic fluid, *Acoust. Phys.*, **43**(1997), pp.92-95.
- [60] D.Y.Chung and W.E.Isler, Ultrasonic velocity anisotropy in ferrofluids under the influence of magnetic field, *J. Appl. Phys.*, **49**(1978), pp.1809-1811.
- [61] W.E.Isler and D.Y.Chung, Anomalous attenuation of ultrasound in ferrofluid under the influence of a magnetic field, *J. Appl. Phys.*, **49**(1978), pp.1812-1815.
- [62] D.A.Krueger, Review of agglomeration in ferrofluid, *IEEE. Trans. Mag.*, **16**(1980), pp.251-253.
- [63] S.P.Vaidya and R.V.Mehta, Temperature dependence of the ultrasonic velocity in a magnetic fluid subjected to an external magnetic field, *J. Mag. Magn. Mater.*, **39**(1983), pp.82-84.
- [64] R.V.Mehta and J.M.Patel, Velocity anisotropy of ultrasound in magnetic fluids, *J. Magn. Magn. Mater.*, **65**(1987), pp.204-206.
- [65] V.V.Gogozov et al., Investigation of various magnetic fluids by means of ultrasonic methods, *J. Magn. Magn. Mater.*, **122**(1993), pp.70-73.
- [66] P.P.Gravina et al., Biocompatible magnetic fluid: a comparative birefringence investigation, *J. Magn. Magn. Mater.*, **252**(2002), pp.393-395.

- [67] A.Skumiel, M.Labowski and T.Hornowski, Investigation of the ultrasonic propagation velocity anisotropy in magnetic liquids in a constant magnetic field, *Acoust. Lett.*, **19**(1995), pp.87-92.
- [68] A.Skumiel, T.Hornowski and M.Labowski, Resonance absorption of the ultrasonic waves in magnetic liquid in DC magnetic field, *Ultrasonics*, **36**(1998), pp.421-426.
- [69] A.Skumiel, T.Hornowski and A.Jozefczak, Investigation of magnetic fluids by ultrasonic and magnetic methods, *Ultrasonics*, **38**(2000), pp.864-867.
- [70] A.Jozefczak, A.Skumiel and T.Hornowski, The effect of the rate of magnetic field and temperature changes on the ultrasonic wave absorption coefficient in a magnetic fluid, *Ultrasonics*, **38**(2000), pp.868-871.
- [71] A.Jozefczak, M.Labowski and A.Skumiel, Hysteresis of changes of ultrasonic wave absorption coefficient in a magnetic fluid caused by the magnetic field, *J. Magn. Mater. Mater.*, **252**(2002), pp.356-359.
- [72] A.Jozefczak, The time dependence of the changes of ultrasonic wave velocity in ferrofluid under parallel magnetic field, *J. Magn. Mater. Mater.*, **256**(2003), pp.267-270.
- [73] A.Jozefczak, A.Skumiel and M.Labowski, Effects of the sweep rate of the magnetic field on the change of ultrasonic wave velocity in magnetic fluid, *J. Magn. Mater. Mater.*, **258**(2003), pp.474-476.
- [74] A.Jozefczak, Ultrasonic study of the effect of time of the ferrofluid exposure to magnetic field on its structure, *J. Magn. Mater. Mater.*, **272**(2004), pp.1691-1692.
- [75] A.Jozefczak, A.Skumiel and M.Labowski, Effect of biocompatible coating of nanoparticles on acoustics property of the magnetic fluid, *J. Magn. Mater. Mater.*, **290**(2005), pp.265-268.
- [76] T.Sawada, H.Nishiyama and T.Tabata, Influence of a magnetic field on ultrasound propagation in a magnetic fluid, *J. Magn. Mater. Mater.*, **252**(2002), pp.186-188.
- [77] M.Motozawa and T.Sawada, Influence of magnetic field on ultrasonic propagation velocity in magnetic fluids, *J. Magn. Mater. Mater.*, **289**(2005), pp.66-69.

- [78] M.Motozawa, Y.Matsumoto and T.Sawada, Effect of External magnetic field on ultrasonic propagation velocity in magnetic fluids, *JSME Int. J., Ser. B*, **48**(2005), pp.471-477.
- [79] B.Jeyadevan and I.Nakatani, Characterization of field-induced needle-like structures in ionic and water-based magnetic fluids, *J. Magn. Magn. Mater.*, **201**(1999), pp.62-65.
- [80] C.F.Hayes, Dispersion equation for a wave on free nematic surface in the presence of an applied magnetic field, *J. Coll. Interface Sci.*, **52**(1975), pp.115-120.
- [81] K.Sano and M.Doï, Theory of agglomeration of ferromagnetic particles in magnetic fluids, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **52**(1983), pp.2810-2815.
- [82] 神山新一, 佐藤明, 一様磁場中における磁性流体の凝集現象, 日本機械学会論文集 (B編), **53**(1987), pp.3009-3013.
- [83] G.A.Jones and H.Niedoba, Field induced agglomeration in thin films of aqueous based magnetic fluids, *J. Magn. Magn. Mater.*, **73**(1988), pp.33-38.
- [84] G.A.Jones and D.G.Belfield, Field-induced agglomeration in thin films of magnetic fluids, *J. Magn. Magn. Mater.*, **85**(1990), pp.37-39.
- [85] S.Taketomi et al., Experimental and theoretical investigations on agglomeration of magnetic colloidal particles in magnetic fluids, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **60**(1991), pp.1689-1707.
- [86] 佐藤明, 微粒子の凝集構造捕獲のための計算機シミュレーション法 (Cluster-moving Monte Carlo アルゴリズム), 日本機械学会論文集 (B編), **57**(1991), pp.2690-2695.
- [87] A.Satoh et al., Two-dimensional Monte Carlo simulations to capture thick chain-like clusters of ferromagnetic particles in colloidal dispersions, *J. Coll. Interface Sci.*, **178**(1996), pp.620-627.
- [88] 佐藤明ら, 強磁性微粒子の太い鎖状クラスタ形成に関する 3次元モンテカルロ・シミュレーション, 日本機械学会論文集 (B編), **61**(1995), pp.2961-2967.
- [89] J.Cernak and P.Macko, The time dependence of particle aggregation in magnetic fluid layers, *J. Magn. Magn. Mater.*, **123**(1993), pp.107-116.

- [90] J.Cernak, Aggregation of needle-like macro-clusters in thin layers of magnetic fluid, *J. Magn. Magn. Mater.*, **132**(1994), pp.258-269.
- [91] C.Y.Hong et al., Ordered structure in Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> kerosene-based ferrofluids, *J. Appl. Phys.*, **81**(1997), pp.4275-4277.
- [92] L.N.Donselaar et al., Visualisation of particle association in magnetic fluids in zero-field, *J. Magn. Magn. Mater.*, **201**(1999), pp.58-61.
- [93] T.Sawada et al., Visualization of clustering on non-magnetic and ferromagnetic particles in magnetic fluids, *Proc. SPIE*, **3783**(1999), pp.389-396.
- [94] H.C.Yang et al., Behavior of the magnetic structures of the magnetic fluid film under tilted magnetic fields, *J. Magn. Magn. Mater.*, **201**(1999), pp.313-316.
- [95] 中谷功, 水ベース磁性流体におけるコロイド粒子分散の高次構造の観察, 磁性流体連合講演会講演論文集, (2001), pp.43-49.
- [96] O.Volkova et al., Flow-induced structures in magnetorheological suspensions, *J. Magn. Magn. Mater.*, **201**(1999), pp.66-69.
- [97] H.Nishiyama et al., Evaluations of cluster structure and magneto-rheology of MR suspensions, *Int. J. Modern Phys.*, **19**(2005), pp.1437-1442.
- [98] 神山新一, 小池和雄, 池田裕一, 磁性流体の管内非定常流動特性, 日本機械学会論文集 (B 編), **54**(1988), pp.3331-3337.
- [99] 神山新一, 島田邦雄, 磁性流体の管内振動流に関する研究 (わずかに圧縮性を考慮した場合の理論解析), 日本機械学会論文集 (B 編), **57**(1991), pp.1273-1276.
- [100] M.I.Shliomis and S.Kamiyama, Hydrostatics and oscillatory flows of magnetic fluid under a nonuniform magnetic field, *Phys. Fluids*, **7**(1995), pp.2428-2434.
- [101] 山中玄太郎, 木倉宏成, 武田靖, UVP を用いた磁性流体円管内振動流の速度分布計測, 日本機械学会論文集 (B 編), **67**(2001), pp.2717-2724.
- [102] G.Yamanaka et al., Flow measurement on an oscillating pipe flow near the entrance using the UVP method, *Expt. Fluids*, **32**(2002), pp.212-220.
- [103] 長谷川亮ら, クラスタ成長の磁性流体管内振動流に及ぼす影響, 日本 AEM 学会誌, **14**(2006), pp.21-26.

- [104] H.Kikura, Y.Takeda and T.Sawada, Velocity profile measurements of magnetic fluid flow using ultrasonic Doppler method, *J. Magn. Magn. Mater.*, **201**(1999), pp.276-280.
- [105] H.Kikura, M.Aritomi and Y.Takeda, Velocity measurement on Taylor-Couette flow of a magnetic fluid with small aspect ratio, *J. Magn. Magn. Mater.*, **289**(2005), pp.342-345.
- [106] T.Sawada, H.Kikura and T.Tanahashi, Kinematic characteristics of magnetic fluid sloshing in a rectangular container subject to non-uniform magnetic fields, *Expt. Fluids*, **26**(2004), pp.215-221.
- [107] 大窪智行, 武田靖, 森治嗣, UVP を用いた高精度流量計の精度評価に関する研究, 日本機械学会論文集 (B 編), **72**(2006), pp.81-89.
- [108] H.Yamamoto and M.Nakano, Rheological properties and dynamic mechanical model of a magnetorheological suspension in pressure flow mode, *J. Soc. Rheology. Jpn.*, **30**(2002), pp.83-88.
- [109] H.Nishiyama, M.Watanabe and H.Yamaguchi, Analysis of MR fluids flow in a rectangular channel considering magneto-rheological properties, *Int. J. Modern Phys. B*, **19**(2005), pp.1276-1282.
- [110] 西山秀哉ら, 磁場下における MR 流体の流動構造と流動制御特性, 日本機械学会 2006 年度年次大会講演論文集, **2**(2006), pp.15-16.
- [111] 西山秀哉ら, 圧力流れ場における MR 流体の流動構造と流動制御特性, 日本機械学会流体工学部門講演論文集, (2006), CD-Rom.

# 主論文に関する論文目録

## 原著論文

1. M.Motozawa and T.Sawada, Influence of magnetic field on ultrasonic propagation velocity in magnetic fluids, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Vol.289 (2005), pp.66-69.
2. M.Motozawa, Y.Matsumoto and T.Sawada, Effect of external magnetic field on ultrasonic propagation velocity in magnetic fluids, *JSME International Journal, Series B*, Vo.48, No.3 (2005), pp.471-477.
3. M.Motozawa, Y.Matsumoto and T.Sawada, Influence of a uniform magnetic field on ultrasonic propagation velocities in magnetic fluids, *International Journal of Applied Electromagnetics and Mechanics*, accepted for publication.

## 国際会議論文

1. M.Motozawa\* and T.Sawada, Characteristics of ultrasound propagation in a magnetic fluid under uniform magnetic field, *ASME FEDSM'03, 4th ASME-JSME Joint Fluids Engineering Conference*, Honolulu, (2003-7), CD-Rom.

## 国際会議発表

1. M.Motozawa\* and T.Sawada, Ultrasonic propagation properties in a magnetic fluid, *Third International Symposium on Ultrasonic Doppler Methods for Fluid Mechanics and Fluid Engineering*, Lausanne, (2002-9), pp.137-141.
2. M.Motozawa\* and T.Sawada, Effect of a uniform magnetic field on ultrasonic propagation velocity in a magnetic fluid, *the Fifth International PAMIR Conference on Fundamental and Applied MHD*, Ramatuelle, (2002-9), pp.IV57-IV61.
3. M.Motozawa\* and T.Sawada, Influence of magnetic field on ultrasonic propagation velocity in magnetic fluids, *10th International Conference on Magnetic Fluids*, Guaruja, (2004-8), pp.219-220.
4. M.Motozawa\*, Y.Matsumoto and T.Sawada, Characteristic properties of ultrasonic propa-

- gation velocity in magnetic fluids under magnetic field, First International Conference on Flow Dynamics, Sendai, (2004-11), CD-ROM.
5. M.Motozawa\*, Y.Matsumoto, T.Sawada, K.Katagiri and H.Nishiyama, Ultrasonic propagation velocity in magnetic fluids and MR fluids under magnetic field, 6th World Conference on Experimental Heat Transfer, Fluid Mechanics and Thermodynamics, Matsushima, (2005-4), CD-ROM.
  6. M.Motozawa, Y.Matsumoto\* and T.Sawada, Influence of a uniform magnetic field on ultrasonic propagation velocities in magnetic fluids, The 12th International Symposium on Interdisciplinary Electromagnetic Mechanics and Biomedical Problems, Bad Gastein, (2005-9), pp.44-45.
  7. M.Motozawa\*, Y.Matsumoto and T.Sawada, Influence of magnetic particle concentration on ultrasonic propagation velocity in a magnetic fluid, Second International Conference on Flow Dynamics, Sendai, (2005-11), DVD-Rom.
  8. M.Motozawa\* and T.Sawada, Properties of ultrasonic propagation in functional fluids under magnetic fields, The 10th International Conference on Electrorheological Fluids and Magnetorheological Suspensions, Lake Tahoe, (2006-6), p.163.
  9. S.Yoshida, K.Tomita\*, A.Benvenuti, T.Sawada and M.Motozawa, Velocity profile of non-magnetic fluid and magnetic fluid sloshing, 5th International Symposium on Ultrasonic Doppler Method for Fluid Mechanics and Fluid Engineering, Zurich, (2006-9), pp.39-42.
  10. M.Motozawa\*, Y.Iizuka and T.Sawada, Ultrasonic analysis of clustering structure in magnetic fluid under magnetic field, International Conference on Advanced Technology in Experimental Mechanics 2007, Fukuoka, (2007-9), submitted.

## 国内会議発表

1. 本澤政明\*, 澤田達男, 印加磁場下における磁性流体中の超音波伝播特性, 第14回「電磁力関連のダイナミクス」シンポジウム, 岡山, (2002-5), pp.441-444.
2. 本澤政明\*, 澤田達男, 磁性流体中を伝播する超音波の吸収特性, 磁性流体連合講演会, 名古屋, (2002-12), pp.18-20.
3. 喰田洋, 本澤政明\*, 澤田達男, 磁性流体内に形成される強磁性体微粒子の鎖状クラスター成長, 第52回理論応用力学講演会, 東京, (2003-1), pp.505-506.
4. 松本佳之\*, 本澤政明, 澤田達男, 磁性流体中の超音波伝播速度変化に関する研究, 第13回MAGDAコンファレンス, 仙台, (2004-3), pp.45-47.
5. 本澤政明\*, 松本佳之, 澤田達男, 片桐一成, 西山秀哉, 印加磁場下におけるMR流体中の超音

- 波伝播速度変化に関する研究, 第 36 回流体力学講演会, 米沢, (2004-9), pp.13-16.
6. 吉岡良\*, 山崎圭史, 本澤政明, 澤田達男, 磁場印加下における磁性流体内の鎖状クラスター成長, 第 52 回レオロジー討論会, 弘前, (2004-9), pp.16-17.
  7. 松本佳之\*, 本澤政明, 澤田達男, 濃度の異なる磁性流体中の超音波伝播特性, 磁性流体連合講演会, 横浜, (2005-12), pp.14-15.
  8. 西山秀哉, 高奈秀匡\*, 片桐一成, 本澤政明, 澤田達男, 磁場下における MR 流体の流動構造と流動制御特性, 日本機械学会 2006 年度年次大会, 熊本, Vol.2 (2006-9), pp.15-16.
  9. 本澤政明\*, 松本佳之, 澤田達男, 印加磁場による磁性流体, MR 流体中の超音波伝播速度への影響, 日本機械学会 2006 年度年次大会, 熊本, Vol.2 (2006-9), pp.17-18.
  10. 西山秀哉, 高奈秀匡\*, 片桐一成, 本澤政明, 澤田達男, 圧力流れ場における MR 流体の流動構造と流動制御特性, 流体工学部門講演会, 川越, (2006-10), CD-Rom.
  11. 本澤政明\*, 飯塚裕太, 澤田達男, 超音波を用いた磁性流体内部構造の実験的解析, 第 15 回 MAGDA コンファレンス in 桐生, 桐生, (2006-11), pp.176-179.
  12. 本澤政明, 長谷川亮\*, 飯塚裕太, 澤田達男, 磁性流体の流動計測への超音波の適用, 熱工学コンファレンス 2006, 横浜, (2006-11), pp.253-254.
  13. 西山秀哉, 高奈秀匡\*, 片桐一成, 本澤政明, 澤田達男, MR 流体の複雑流動構造を考慮した流量制御特性, 磁性流体連合講演会, 札幌, (2006-12), pp.41-43.

## その他

1. 澤田達男, 本澤政明, 松本佳之, 長谷川亮, 印南崇, 超音波による磁性流体内部計測とクラスター成長の及ぼす影響, 日本機械学会流体工学部門, P-SCD345 機能性流体工学の先端融合化に関する研究分科会成果報告書, (2006), pp.78-87.
2. 受賞 日本 AEM 学会, 第 15 回 MAGDA コンファレンス in 桐生, 優秀講演論文賞, (2006)



## 付録 A 磁性流体の可視化実験

本研究では、次に示す可視化実験を行った。

1. 電子顕微鏡による内部粒子の可視化
2. 光学顕微鏡を用いた透過光による磁性流体鎖状クラスターの可視化

磁性流体、MR 流体の粒子構造解析の参考資料として、内部粒子の可視化を電子顕微鏡で行った。また、光学顕微鏡を用いて磁性流体中の鎖状クラスターの形成過程の可視化を透過光によって行った。光学顕微鏡による可視化では、可視化画像を用いて成長過程を定量的に評価し、超音波伝播特性の結果との相互関係を導き出そうと考えたが、両者の比較による解析は、非常に難しかった。これは、クラスターの可視化は薄膜状で行わなければならないため、流体量の違いからクラスターの形成にも大きく差が出たためであると考えられる。ここにその可視化について記す。

### A.1 電子顕微鏡による内部粒子の可視化

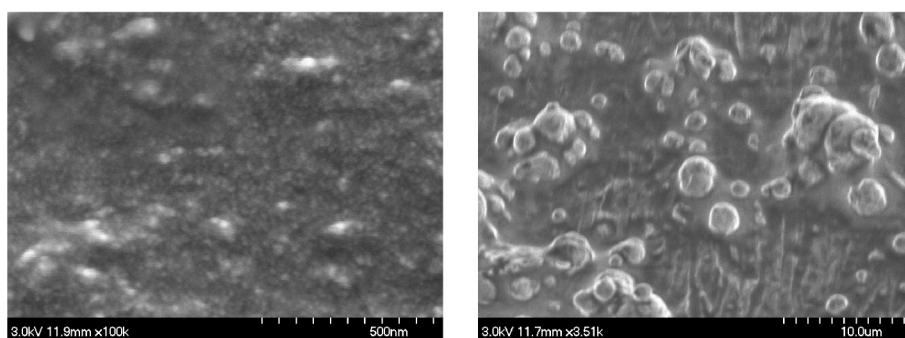
走査型電子顕微鏡を用いて、磁性流体、MR 流体の内部粒子の観察を行なった。流体試料は、本研究で用いた水ベース磁性流体 (W-40)、MR 流体 (MRF-132DG) である。

観察結果を A.1 に示す。左図が磁性流体で、右図が MR 流体の内部粒子の可視化画像である。磁性流体では、内部粒子径が 10nm 程度であるため、この可視化画像から明確な内部粒子の確認は出来ないものの、わずかに観察される白い斑点のようなものが内部粒子であると推測できる。一方、MR 流体においては、はっきりと内部粒子が観察できており、可視化画像から本研究で用いた MR 流体の内部粒子は  $3\mu\text{m}$  程度であると確認できた。

### A.2 磁性流体中の鎖状クラスターの可視化

#### A.2.1 可視化方法

磁性流体の試料(プレパラート)を作成し、これを明視野法によって、垂直方向の透過光を捕らえることで、光学顕微鏡を用いて観察した。観察した画像は、CCD カメラによって、パソコンに画像ファイルとして取り込むことが出来る。この方法で磁性流体中のクラスターの可視化を行なううえで、重要なことは次の 2 点である。



W-40

MRF

図 A.1: Visualization of inner particle in magnetic and MR fluids

1. プレパラートの作成 (光の透過)
2. 磁場印加が可能

#### プレパラートの作成

磁性流体プレパラートの作成は、実験条件の違いによるプレパラート間での比較を可能にすることを考えると非常に難しい。プレパラートの作成にあたり、次のことに留意しなければならない。

1. 磁性流体量を一定にする
2. 光が透過できる
3. 磁性流体のベース液 (ここでは水) の蒸発を防ぐ
4. 実験条件を変えた結果の比較が可能

明視野法において、光は磁性流体試料を透過しなければならない。このため、試料は、非常に少ない流体量 (数  $\mu\text{l}$ ) の薄膜状にする必要がある。しかしながら、流体量が少ないため、磁性流体量を一定にするのは難しく、たとえ流体量を一定に出来たとしても、プレパラートを作成の段階で薄膜の厚さを一定にするのは困難であり、観察は出来てもプレパラート間の実験の繰り返し性は小さくなり、比較が難しい。

そこで、これらを考慮して次の方法によってプレパラートを作成した。まず、葉さじによって、流体量が出来るだけ同じになるよう注意してプレパラートを作成する。この段階では、磁性流体量も薄膜の厚さも各プレパラート間でばらばらである。そこで、作成したプレパラートを実際に明視野法で可視化を行ない、画像処理ソフトによって、得られた画像の平均明度を測定し、この平均明度がある一定の範囲内にあるものだけを選択して、磁性流体の試料とした。この方法で作

成した試料を用いて、繰り返しの実験を平均することで、実験条件を変えた可視化結果の比較が可能となる。この手法は、多くの予備実験によって、経験的に得られたものであり、理論的な裏づけはないが、可視化画像によりクラスターの成長を評価するうえで、最適であると考えている。

クラスターの可視化は、その成長を評価するため、長時間の連続的な観察が必要である。しかしながら、長時間の撮影において不具合が生じることが観察された。この原因は、磁性流体量が少量であるため、観察中にベース液が蒸発することであると判明した。そこで、この蒸発を防ぐため、カバーガラス周りを接着剤で固めることによって、この蒸発を防いだ。検定実験を行なった結果、撮影の不具合も生じなかった。

## 磁場の印加

磁場の印加は永久磁石間にプレパラートを置くことで行なった。磁性流体の試料には、最大80mT程度までの磁場印加が可能であり、磁石間隔を変えることで磁場印加強度を変えることが出来る。また、磁場による光学顕微鏡への影響はほとんどないものと考えられる。

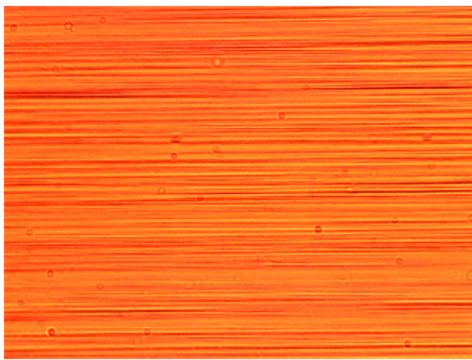
### A.2.2 可視化結果と検討

可視化結果を図 A.2, 図 A.3 に示す。図はそれぞれ40mT, 80mTの磁場を印加した時の印加60分後までの撮影画像を10分ごとに示している。可視化画像に示される通り、磁性流体中の鎖状クラスターは時間をかけて、太く長く成長することが確認できる。また、強磁場(80mT)の方がわずかであるが早く大きく成長していることも確認でき、そのクラスターのサイズは数百 $\mu\text{m}$ 程度であった。これは、ここまで述べてきた本研究の結果とも整合性のあるものであった。

そこで、可視化実験では、これらの画像に対し明度の標準偏差を計算することでクラスターの成長を定量的に評価することを試みた。磁場印加後初期の間は、クラスターの成長により、明度の標準偏差も大きくなることは確認できた。しかし、30分ほど時間が経過すると、可視化画像からも確認できる通り、クラスターが大きく成長することで、観察領域から逸脱してしまうため、定量評価の指標とはならない。そこで、この成長初期の段階をもって、超音波伝播特性の結果と比較も検討したが。

可視化画像の明度の標準偏差と超音波伝播速度の経時変化の結果の比較は、クラスターの成長速度などを検討するうえで意義深いと考えたものの、その結果は適合性のあるものではなかった。これは、本論文内でも記したが、流体量の違いと可視化画像ではクラスターの成長が飽和状態になるまで評価出来ていないことが主な原因であると考えられる。このため、可視化実験においては、APPENDIXとしてクラスターの成長、サイズを実際に観察するという観点のみに留めた。

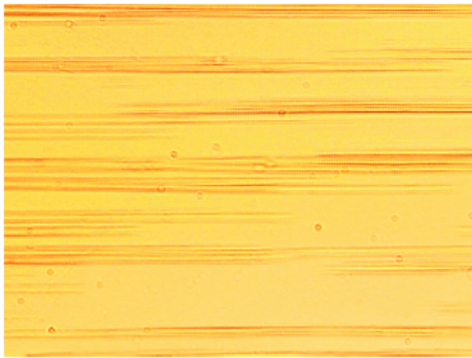
Magnetic flux density 40mT



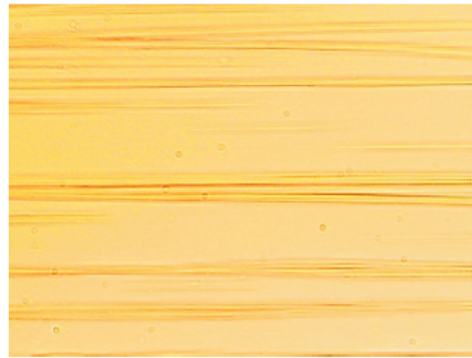
10 min



20 min



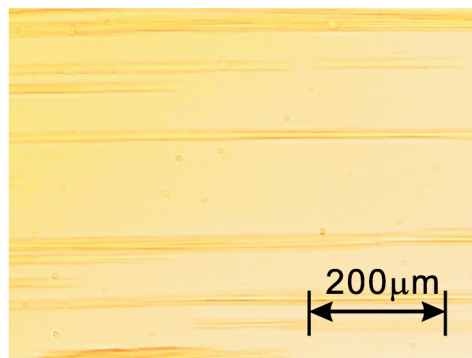
30 min



40 min



50 min



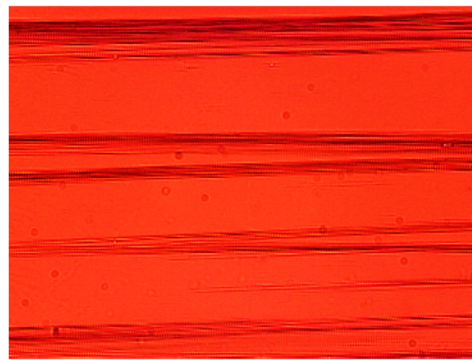
60 min

☒ A.2: Visualization of the chain-like cluster under 40mT

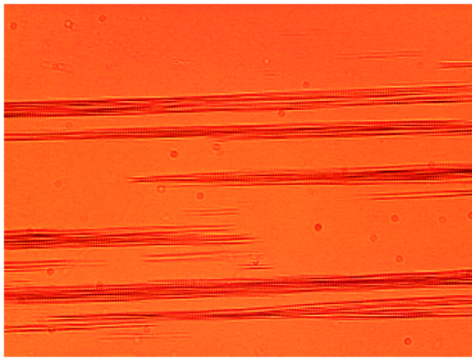
Magnetic flux density 40mT



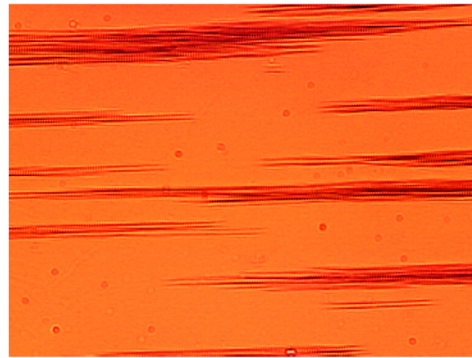
10 min



20 min



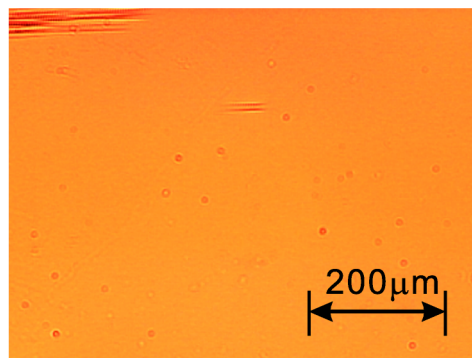
30 min



40 min



50 min



60 min

☒ A.3: Visualization of the chain-like cluster under 80mT

### A.3 今後の課題

可視化による今後の研究課題を検討するに、次のような事が挙げられるであろう。

#### 内部粒子の可視化

内部粒子の可視化にあたり、今回は、走査型電子顕微鏡を使用した。走査型電子顕微鏡の分解能は5nm程度であるため、磁性流体のように10nmの粒子を観察するのはやや心許無い。結果、図A.1に示した通り、内部粒子の判別は難しかった。

近年では、電解放出型透過電子顕微鏡が開発され、分解能は0.2nm程度と非常に優れているため、磁性流体の粒子観察への適用が可能かは検討すべきであるが、非常に興味深い。電子顕微鏡による内部粒子可視化のそもそもの課題は、真空状態による観察が求められるため、流体内部状態の観察が不可能なことにある。磁性流体内部で磁場印加により内部粒子が凝集し、鎖状クラスターを形成する過程の可視化は、磁性流体研究分野における将来の課題である。

#### 光学顕微鏡による可視化

一言に可視化といっても、光学顕微鏡による可視化も様々な手法が上げられる。ここでは、透過光による明視野法を用いた。この方法以外にも、試料に斜め方向から光を当てることでレイリー散乱光を発生させ、これを捕らえる暗視野法やレーザーによって試料を三次元的に観察する方法など様々な手法があるため、可視化方法を検討することは重要である。

また、クラスター成長の定量評価においても、今回様々な問題が得られたため、画像処理方法、観察方法を検討し、クラスターの成長を試みることは意義深い。さらに、本研究では、超音波によりクラスターの成長を定量的に評価したという面もあるため、これと比較するのは非常に興味深い。

以上に記した通り、本研究の超音波伝播特性による内部構造解析を考えるうえで、可視化による内部構造の解析は大きな参考となりうるため、超音波伝播特性の更なる探求と併せて、可視化による内部構造の研究を行うことは非常に重要であるといえる。

## 付録B 磁性流体中の超音波伝播理論の詳細

### B.1 Parsons の理論

次のように磁束密度を定義する。

$$\mathbf{m}(\mathbf{r}, t) = (\rho_m(\mathbf{r}, t)/\rho_{0m})\chi_0\mathbf{n}(\mathbf{r}, t) \quad (\text{B.1})$$

$\rho_m$  は磁性粒子の密度，その平均を  $\rho_{0m}$  で記す。 $\chi_0$  は流体の平均磁化率，外部磁場  $H$  で，磁化率は  $H$  に独立していて，磁性粒子の濃度と種類による。 $\mathbf{n}$  は  $\mathbf{m}$  と平行な単位ベクトルである。

今， $\rho_m = C\rho$ ， $\rho_{0m} = C_0\rho_0$  とする。 $C$  は磁性粒子の濃度であり， $\rho$  は流体の総密度である。

$$\mathbf{m}(\mathbf{r}, t) = [\chi_0 C(\mathbf{r}, t)\rho(\mathbf{r}, t)\mathbf{n}(\mathbf{r}, t)]/C_0\rho_0 \quad (\text{B.2})$$

ここで，平衡状態からの微小変動を考える。十分に小さい  $\rho'$ ， $C'$ ， $\mathbf{n}'$  を与えて， $\rho = \rho_0 + \rho'$ ， $C = C_0 + C'$ ， $\mathbf{n} = \mathbf{n}_0 + \mathbf{n}'$  とし，これを式 (B.2) に用いると，

$$\mathbf{m}(\mathbf{r}, t) = \chi_0\mathbf{n}_0 + \chi_0[(\rho'/\rho_0)\mathbf{n}_0 + (C'/C_0)\mathbf{n}_0 + \mathbf{n}'] = \mathbf{m}_0 + \mathbf{m}' \quad (\text{B.3})$$

$\mathbf{m}_0 = \chi_0\mathbf{n}_0$  は，流体中の一定磁化率である。次に，流体の自由エネルギーについて考える。

$$E = -\chi_0(\mathbf{n}, \mathbf{H}) \quad (\text{B.4})$$

$\mathbf{H}$  は外部磁場である。一般的に，流体により生成された内部磁場があるとき，これは， $\chi_0$  によるものであり強磁場下 (1000mT 程度) においては，無視できるほど小さい。

連続の式

$$\frac{\partial \rho'}{\partial t} + \rho_0(\nabla, \mathbf{v}) = 0 \quad (\text{B.5})$$

運動量保存

$$\rho_0 \frac{\partial v_i}{\partial t} + T_{ij,j} = 0 \quad (\text{B.6})$$

支配方程式

$$I_{ij} \frac{\partial^2 n_i}{\partial t^2} + g_i + \gamma_1 \dot{n}_i^* + \gamma_2 n_j d_{ij} = 0 \quad (\text{B.7})$$

Cartesian テンソルを用いると、式 (B.6), (B.7) は

$$T_{ij} = p\delta_{ij} + t_{ij} \quad (\text{B.8})$$

であり、 $p$  は圧力、 $t_{ij}$  は粘性テンソルである。

$$t_{ij} = -\alpha_2 n_i \dot{n}_j^* - \alpha_3 n_j \dot{n}_i^* \quad (\text{B.9})$$

$\alpha_2, \alpha_3$  は Leslie 係数であり、式 (B.9) の  $\dot{n}_i^*$  と  $d_{ij}$  の項は、次のように表すことができる。

$$\dot{n}_i^* = \frac{\partial n_i}{\partial t} - \frac{1}{2}[(\nabla x v)n]_i \quad (\text{B.10})$$

$$d_{ij} = \frac{1}{2}(v_{i,j} + v_{j,i}) \quad (\text{B.11})$$

式 (B.7) において、 $I$  は粒子密度の慣性モーメント、 $a$  はトルクがかかった状態での回転可能な最も大きい磁性クラスターの代表長さである。液晶中においては、 $a$  は分子長であり、高周波数において、慣性項は無視できる程小さい。しかしながら、磁性流体中では、針状クラスターが形成され、音波によって破壊されないとする、支配力  $g_i$  は次のように与えられる。

$$g_i = \partial E / \partial n_i \quad (\text{B.12})$$

式 (B.7) は  $\mathbf{n}^2 = 1$  のもとで解かれる。

次に、外部磁場  $\mathbf{H}$  を  $z$  方向におく。 $\phi$  を  $\mathbf{H}$  と伝播ベクトル  $\mathbf{q}$  のなす角、 $\theta$  を  $\mathbf{n}$  と  $\mathbf{H}$  のなす角とする。ここで  $n_z = \cos \theta \simeq 1$ ,  $n_x = \sin \theta \simeq \theta$  とし、式 (B.7) を  $\theta$  を用いて変形すると、

$$I_{ij} \frac{\partial^2 \theta}{\partial t^2} + \frac{\partial \theta}{\partial t} + \frac{1}{2}(\lambda + 1) \frac{\partial v_z}{\partial x} + \frac{1}{2}(\lambda - 1) \frac{\partial v_x}{\partial z} + (\chi_0 H / \gamma_1) \theta = 0 \quad (\text{B.13})$$

ここで、 $\lambda = \gamma_2 / \gamma_1$  である。

次に、式 (B.9) から  $t_{ij}$  を求める。式 (B.7) を用いて、式 (B.9) 中の  $\dot{n}_i^*$  について解き、式 (B.6) に代入すると、音速の式は次のように与えられる。

$$\rho_0 \frac{\partial v_x}{\partial t} + \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{1}{2} C_0 (\lambda - 1) \frac{\partial J}{\partial z} = 0 \quad (\text{B.14})$$

$$\rho_0 \frac{\partial v_z}{\partial t} + \frac{\partial p}{\partial z} + \frac{1}{2} C_0 (\lambda + 1) \frac{\partial J}{\partial x} = 0 \quad (\text{B.15})$$

式 (B.9) より、速度勾配の項、速度勾配を含む項を除く。 $J$  は、

$$J = \chi_0 H \theta + \frac{\mathbf{I} \partial^2 \theta}{\partial t^2} \quad (\text{B.16})$$

圧力は  $p = p_0 + p'$  と書ける。ここで、 $p_0$  は一定、 $p'$  は微小変化する。音波の定義を用いると、

$$p' = (\partial p / \partial \rho)_{s, C_\theta} \rho' \quad \text{and} \quad p' \equiv V_0^2 \rho' \quad (\text{B.17})$$



そこで、次の形の解を考える。

$$\rho'(x, z, t) = \sum_q \rho_q \exp[i(q_1 x + q_3 z)] \exp(i\omega t) \quad (\text{B.18})$$

式 (B.5), (B.13), (B.14), (B.15) に式 (B.18) を代入して,  $\rho_q, v_{qx}, v_{qz}, \theta_q$  の4つの式を導く。この解によって、次の関係が導かれる。

$$V_0^2 q^2 - \omega^2 = \frac{i\gamma_1 C_0 q^2 (\omega_c^2 - \omega^2)}{4\rho_0 \omega \omega_c^2 (1 + i\omega\tau_m) [v_0^2 q^2 (\lambda \cos 2\phi - 1)^2 - \omega^2 (\lambda^2 - 2\lambda \cos 2\phi + 1)]} \quad (\text{B.19})$$

ここで,  $\tau = \gamma_1/m_0 H$  で緩和時間,  $\omega_c = \sqrt{\chi_0 H/I}$  は  $\theta$  の微小変化に対する固有振動数である。

$$q_1 = q \sin \phi \quad \text{and} \quad q_3 = q \cos \phi \quad (\text{B.20})$$

$\omega$  が与えられているので, 式 (B.19) から  $q$  が決まる。

$$q = (\omega/V_0) + q' \quad (\text{B.21})$$

式 (B.19) を  $q'$  について線形化して, 右辺を小さいものとして扱うと,  $q'$  についての解は,

$$-2\omega V_0 q' = \frac{C_0 \lambda^2 i \gamma_1 \omega^3 (\omega_c^2 - \omega^2)}{4\rho_0 V_0^2 \omega_c^2} \left\{ \frac{(1/\omega_c^2) - i\omega\tau_m}{(1 - \omega^2/\omega_c^2)^2 + \omega^2\tau_m^2} \right\} \sin^2 2\phi \quad (\text{B.22})$$

$q' = q'_r + iq'_i$ ,  $V = \omega/q_r$  として相速度を定義すると,

$$V = V_0(1 + \Delta) \quad (\text{B.23})$$

ここで,  $\Delta$  は次のように与えられる。

$$\Delta = C_0 \left( \frac{\lambda^2}{8} \right) \left( \frac{\gamma_1 \omega}{\rho_0 V_0^2} \right) \left( 1 - \frac{\omega^2}{\omega_c^2} \right) \frac{\omega\tau_m}{(1 - \omega^2/\omega_c^2)^2 + \omega^2\tau_m^2} \sin^2 2\phi \quad (\text{B.24})$$

このように, Parsons は,  $(\sin 2\phi)^2$  に音速変化が依存するとしているが, これは, 後に行われたいづれの実験においても一致が見られていない。

## B.2 Taketomi の理論

Parsons の音波の吸収理論を発展させた Taketomi の理論を以下に示す。

### 鎖状クラスターの回転による音波の吸収

Parsons は磁性流体をネマティック液晶とみなし, ベクトル  $\mathbf{n}$  を以下のように導入した。

$$\mathbf{m}(\mathbf{r}, t) = (\rho_m(\mathbf{r}, t)/\rho_{0m}) \cdot \chi_0 \cdot \mathbf{n}(\mathbf{r}, t) \quad (\text{B.25})$$

ここで、 $\rho_m$  は磁性コロイド粒子の局所密度で、 $\rho_{0m}$  は  $\rho_m$  の平均的な値、 $\chi_0$  は磁性流体の磁化率  $\chi$  の平均的な値である。 $xyz$  三次元直交座標系を用いて行う。磁場  $\mathbf{H}$  は  $z$  軸方向にかけられている。音波は  $xz$  平面を  $z$  軸に対して  $\phi$  の角度をなして伝播する。2 次以降の空間偏微分項を無視して、吸収係数  $\alpha_p$  を次のように得た。

$$\alpha_p = \frac{\omega^2 \gamma_1}{8\rho_c^3} \left\{ \frac{(1 - \omega^2/\omega_c^2)^2}{(1 - \omega^2/\omega_c^2)^2 + \omega^2 \tau_m^2} \right\} (\sin 2\phi)^2 \quad (\text{B.26})$$

$\omega_c$  は以下で与えられる。

$$\omega_c = \sqrt{\chi_0 H / I} \quad (\text{B.27})$$

ここで、 $I$  は強磁性微粒子の慣性密度モーメントであり、 $\tau_m$  は

$$\tau_m = \gamma_1 / (m_0 H) \quad (\text{B.28})$$

である。定数  $\gamma_1$ ,  $\gamma_2$  は Leslie 係数  $\alpha_i$  を用いて

$$\gamma_1 = \alpha_3 - \alpha_2 \quad (\text{B.29})$$

$$\gamma_2 = \alpha_6 - \alpha_5 = \alpha_2 + \alpha_3 \quad (\text{B.30})$$

と書ける。ここで、磁性流体をネマティック液晶と見なすためには次の条件を必要とする。

$$\gamma_2 = 0 \quad (\text{B.31})$$

強磁性微粒子は磁場の作用下で凝集し、鎖状クラスターを形成している。鎖状クラスター中の微粒子の磁化方向は全て同方向であると仮定し、Parsons が設定した配向ベクトル  $\mathbf{n}$  を微粒子の磁化方向ではなく、クラスターの磁化の方向とする。連続の式、Navier-Stokes の方程式、 $\mathbf{n}$  方向に関する運動方程式は以下のように表される。

$$\rho_{,t} + (\rho u_j)_{,j} = 0 \quad (\text{B.32})$$

$$\rho \dot{u}_i + (T_{0ij} + t_{ij})_{,j} = 0 \quad (\text{B.33})$$

$$I' \ddot{n}_i + \Pi_{ij,j} + f_i + f'_i = \gamma n_i, \quad (\text{B.34})$$

ここで、 $I'$  はクラスターの慣性密度モーメント、 $X_{,t} = \partial X / \partial t$ ,  $X_{,i} = \partial X / \partial i$ , また、ドットはそれぞれの  $t$  に関するラグランジュ微分である。また、 $u_i$  は流体速度の  $i$  成分であり、 $\gamma$  は定数である。 $T_{0ij}$  と  $t_{ij}$  はそれぞれ応力テンソルの保存成分と散逸成分である。 $\Pi_{ij,j}$  は応力ひずみテンソル、 $f_i$ ,  $f'_i$  はそれぞれ  $n_i$  方向に働く体積力の保存成分と散逸成分である。これらは、以下の式によって与えられる。

$$T_{0ij} = p \cdot \delta_{ij} - n_{k,i} \cdot \Pi_{kj} \quad (\text{B.35})$$

$$t_{ij} = -\alpha_1 n_k n_p A_{kp} n_i n_j - \alpha_2 (N_i n_j - N_j n_i)$$

$$\begin{aligned}
& -\alpha_4 A_{ij} - \alpha_5 (A_{ik} n_k n_j + n_i n_k A_{kj}) \\
& -\mu_1 \delta_{ij} A_{ll} - \mu_2 n_i n_j A_{ll} - \mu_3 \delta_{ij} n_k n_p A_{kp}
\end{aligned} \tag{B.36}$$

$$\Pi_{ij} = -\frac{\partial F_d^*}{\partial n_{ij}} \tag{B.37}$$

$$f_i = \frac{\partial F_d}{\partial n_i} \tag{B.38}$$

$$f'_i = \gamma_1 N_i = -2\alpha_2 N_i \tag{B.39}$$

$p$  は圧力,  $F_d$  はひずみエネルギーの合計を表す。磁気エネルギーは以下の式で表される。

$$\begin{aligned}
F_d = & \frac{K_1}{2} (\nabla \cdot \mathbf{n})^2 + \frac{K_2}{2} (\mathbf{n} \cdot (\nabla \times \mathbf{n}))^2 \\
& + \frac{K_3}{2} (\mathbf{n} \times (\nabla \times \mathbf{n}))^2 - \chi_0 (\mathbf{n} \cdot \mathbf{H})
\end{aligned} \tag{B.40}$$

$K_1, K_2, K_3$  は定数である。変数  $N_i$  は以下で与えられる。

$$N_i = \dot{n}_i + \omega_{ij} n_j \tag{B.41}$$

変数  $\omega_{ij}, A_{ij}$  を以下のように定義する。

$$\omega_{ij} \equiv \frac{1}{2} (u_{j,i} - u_{i,j}) \tag{B.42}$$

$$A_{ij} \equiv \frac{1}{2} (u_{j,i} + u_{i,j}) \tag{B.43}$$

ここで,  $\mathbf{n}$  は磁場の方向とほぼ同じであると仮定すると, 以下のように表現できる。

$$(n_i) = \left( \sqrt{\frac{\theta}{1+\theta^2}}, 0, \sqrt{\frac{1}{1+\theta^2}} \right) \tag{B.44}$$

$$|\theta| \ll 1 \tag{B.45}$$

このとき, 式 (B.40) は次のように書ける。

$$F_e = \frac{K_1}{2} (\theta_{,x})^2 + \frac{K_3}{2} (\theta_{,z})^2 + \chi_0 H \theta^2 / 2 + const. \tag{B.46}$$

ここで,  $\theta_{,x} = \partial\theta/\partial x$  である。また  $\theta$  は微小であるとし, 2次以上の項を無視する。磁場の方向と音波伝播方向を考慮すると流体の速度  $\mathbf{u}$  は次のように表現できる。

$$u_x = u_x(t, x, z), \quad u_y = 0, \quad u_z = u_z(t, x, z) \tag{B.47}$$

式 (B.47) を用いて, 式 (B.38), 式 (B.41) はそれぞれ以下のように導かれる。

$$f_x = \chi_0 H \theta, \quad f_y = f_z = 0 \tag{B.48}$$

$$N_x = \dot{\theta} + \frac{1}{2} (u_{z,x} - u_{x,z}), \quad N_y = N_z = 0 \tag{B.49}$$

式 (B.37), 式 (B.46) から  $\Pi_{ij}$  は次のように表現できる。

$$\begin{aligned} \Pi_{xx} &= -K_1\theta_{,x} & \Pi_{xz} &= -K_3\theta_{,z} \\ \text{and for other pairs of } i \text{ and } j & & \Pi_{ij} &= 0 \end{aligned} \quad (\text{B.50})$$

式 (B.39), 式 (B.41), 式 (B.44), 式 (B.48), 式 (B.50) を用いれば, 式 (B.34) から以下の式が導かれる。

$$\begin{aligned} I'\ddot{\theta} - 2\alpha_2\dot{\theta} - K_1\theta_{,xx} - K_3\theta_{,zz} + m_0H\theta \\ + \alpha_2u_{x,z} - \alpha_2u_{z,x} &= 0 \end{aligned} \quad (\text{B.51})$$

ここで,  $u_{ij}$ ,  $\theta$ ,  $\dot{\theta}$ ,  $\theta_{,i}$  は一次の微量量とみなす。同様の近似を用いて, 式 (B.35) は以下のように表すことができる。

$$T_{0ij} = p\delta_{ij} \quad (\text{B.52})$$

次に密度  $\rho$  を普遍量  $\bar{\rho}$  と微小変動量  $\rho'$  に分割する。

$$\rho = \bar{\rho} + \rho'(t, x, z) \quad (\text{B.53})$$

このとき,  $T_{0ij}$  は以下のように表現できる。

$$v^2 = \left( \frac{\partial p}{\partial \rho} \right)_s \quad (\text{B.54})$$

ここで,  $c$  は音速で,

$$T_{0ij} = c^2\rho'\delta_{ij} \quad (\text{B.55})$$

である。これは等エントロピーでなされる。また, 式 (B.32) は以下のようになる。

$$\bar{\rho}(u_{x,x} + u_{z,z}) + \rho'_{,t} \quad (\text{B.56})$$

$t_{ij}$  に対しても同様な近似をし, 式 (B.54) とともに式 (B.33) に代入すると, 以下の等式が得られる。

$$\begin{aligned} \bar{\rho}u_{x,t} + u^2\rho'_{,x} - \alpha_4u_{x,xx} + \mu_1\rho'_{,tx}/\bar{\rho} - \mu_3u_{z,xz} \\ - \alpha_2\theta_{,tz} + \frac{1}{2}(\alpha_2 - \alpha_4 - \alpha_5)u_{x,zz} - \frac{1}{2}(\alpha_2 + \alpha_4 + \alpha_5)u_{z,xz} = 0 \end{aligned} \quad (\text{B.57})$$

$$\begin{aligned} \bar{\rho}u_{z,t} + u^2\rho'_{,z} - (\alpha_1 + \alpha_4 + 2\alpha_5)u_{z,zz} + (\mu_1 + \mu_2)\rho'_{,tz}/\bar{\rho} - \mu_3u_{z,zz} \\ + \alpha_2\theta_{,tx} - \frac{1}{2}(\alpha_2 + \alpha_4 + \alpha_5)u_{x,xz} + \frac{1}{2}(\alpha_2 - \alpha_4 - \alpha_5)u_{z,xx} = 0 \end{aligned} \quad (\text{B.58})$$

式 (B.51), 式 (B.56), 式 (B.57), 式 (B.58) を用いれば,  $\theta$ ,  $u_x$ ,  $u_z$ ,  $\rho'$  が求まる。これらの量を次のように書き直す。

$$\begin{aligned} \theta &= \theta_q e^{i\phi}, & u_x &= u_1 e^{i\phi} \\ u_z &= u_3 e^{i\phi}, & \rho' &= \rho_q e^{i\phi} \end{aligned} \quad (\text{B.59})$$

ここで  $\psi$  は

$$\psi = q_x x + q_z Z - \omega t \quad (\text{B.60})$$

ここで、 $\mathbf{q}$  は波数ベクトルである。式 (B.59) のフーリエ変換によって、偏微分方程式の式 (B.51)、式 (B.56)、式 (B.57)、式 (B.58) は線形の代数方程式に置き換わる。自明でない解 ( $\theta_q, u_1, u_3, \rho_q$ ) を得るためには、これらの係数の行列式がゼロでなければならない。

よって、鎖状クラスターの回転による音波の吸収  $\alpha_r$  は行列式から以下のように得られる。

$$\alpha_r = \frac{\omega^2}{2\bar{\rho}v^3} \{(\alpha_4 + \mu_1) + 2\alpha_5(\cos \phi)^2 + \alpha_1(\cos \phi)^4\} \quad (\text{B.61})$$

ここで、 $\alpha_i$  は  $(\bar{\rho}\omega)/\alpha^2$  に対して一次の微小項であり、二次以上の微小項は無視している。また、次の関係式を用いた。

$$\mu_2 + \mu_3 = 0 \quad (\text{B.62})$$

また

$$\alpha_4 = 2\eta \quad (\text{B.63})$$

$$\mu_1 = \zeta - 2\eta/3 \quad (\text{B.64})$$

であり、式 (B.61) の右辺第一項は次のように書ける。

$$\frac{\omega^2}{2\bar{\rho}c^3} \left( \zeta + \frac{4}{3}\eta \right) \quad (\text{B.65})$$

これは通常の流体の吸収係数と等しく、 $\eta, \zeta$  はそれぞれせん断粘度、体積粘度である。式 (B.61) の右辺第二項、第三項はクラスターの回転に由来する吸収係数への付加項である。

### 鎖状クラスターの並進運動による音波の吸収

ここで、鎖状クラスターを次のようにモデル化する。強磁性微粒子は凝集し球体のクラスターを形成し、磁場にそってビーズ状に整列しているとする。鎖状クラスターの方向と、音波伝播の方向、 $x$  方向とのなす角を  $\phi$  とする。また、球状クラスターの半径を  $d$  とする。 $x_c$  だけ変位したクラスターに働く復元力  $F_1$  を以下のように表す。

$$F_1 = -k_c(\sin \phi) \cdot x_c \quad (\text{B.66})$$

$F_1$  はクラスター間相互に働く磁気力に由来し、鎖状のクラスター方向と変位したクラスターの距離  $(\sin \phi) \cdot x_c$  に比例する。流体の速度  $u_x$  を以下とする。

$$u_x = u_0 \exp\{i(qx - \omega t)\} \quad (\text{B.67})$$

ここで、 $u_0$  は一定である。クラスターは音波の伝播する  $x$  方向に振動し、その変位  $x$  は以下のよう  
に表される。

$$x = x_0 \exp\{i(qx - \omega t)\} \quad (\text{B.68})$$

ここで、 $x_0$  は一定である。このとき、クラスター速度  $V_c$  は以下で与えられる。

$$V_c = -i\omega x \quad (\text{B.69})$$

鎖状クラスターに働く摩擦力  $F_2$  は次のように表される。

$$F_2 = -6\pi\eta_0 a (V_c - u_x) \quad (\text{B.70})$$

$\eta_0$  は流体のせん断粘度である。鎖状クラスターに働く圧力  $F_3$  は以下で表される。

$$F_3 = \rho v_c u_0 \omega \exp\{i(qx - \omega t)\} \quad (\text{B.71})$$

$v_c$  はクラスターの体積であり

$$v_c = \frac{4\pi}{3} d^3 \quad (\text{B.72})$$

である。以上よりクラスターの運動方程式が以下で表される。

$$\rho_m v_c \ddot{x} = F_1 + F_2 + F_3 \quad (\text{B.73})$$

磁性流体の単位体積、時間あたりの散逸エネルギー  $E_{dis}$  は次のように表現できる。

$$E_{dis} = -\frac{N}{4} \langle F_2 \cdot \bar{u} + \bar{F}_2 \cdot u \rangle \quad (\text{B.74})$$

$N$  は単位体積あたりのクラスターの個数、 $\bar{u}$  は  $u$  の共役複素数、 $\langle \dots \rangle$  は時間平均を示す。(B.73)  
の解を (B.74) に代入すると、

$$E_{dis} = \frac{3\pi\eta_0 a \omega^3 \rho_0 v_c u_0^2 (6\pi\eta_0 a + \rho_0 v_c \omega) N / k_c^2}{(\sin \phi - \rho_m v_c \omega^2 / k_c)^2 + (6\pi\eta_0 a \omega / k_c)^2} \quad (\text{B.75})$$

よって鎖状クラスターの並進運動による吸収係数  $\alpha_t$  は以下で表される。

$$\alpha_t = E_{dis} / (\rho_0 v u_0^2) = \frac{3\pi\eta_0 a \omega^3 v_c N (6\pi\eta_0 a + \rho_0 v_c \omega) / (k_c^2 V_c)}{(\sin \phi - \rho_m v_c \omega^2 / k_c)^2 + (6\pi\eta_0 a \omega / k_c)^2} \quad (\text{B.76})$$

Taketomi による吸収係数  $\alpha_T$  は  $\alpha_r$  と  $\alpha_t$  の和である。

$$\alpha_T = \alpha_r + \alpha_t \quad (\text{B.77})$$

## 付録C Newton流体管内振動流の理論解析

第7章では、UVPを用いた磁性流体管内振動流の速度分布計測を行なった。無磁場下における磁性流体は、Newton流体として取り扱うことで、理論解析が可能となる。ここに、Newton流体の管内振動流の理論解析を記す。

管軸方向を  $x$ 、管半径方向を  $r$  として、管軸方向の速度分布  $u(r, t)$  を考える。Navier-Stokes の方程式は次のように与えられる。

$$\frac{\partial u}{\partial t} - \nu \left( \frac{\partial^2 u}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial u}{\partial r} \right) = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x} \quad (\text{C.1})$$

である。 $\rho$  は流体の密度、 $\nu$  は動粘性係数である。ここで、圧力勾配を

$$-\frac{\partial p}{\partial x} = Ae^{i\omega t} \quad (\text{C.2})$$

として、変数分離法により、 $u(r, t) = u(r)e^{i\omega t}$  とすると、式 (C.1) は、次のようになる。

$$\frac{d^2 u}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{du}{dr} - \frac{i\omega}{\nu} u = -\frac{A}{\nu\rho} \quad (\text{C.3})$$

この式の特殊解は、

$$u(r) = \frac{A}{i\omega\rho} \quad (\text{C.4})$$

となる。

次に式 (C.3) の同次解を考える。斉次方程式は、

$$\frac{d^2 u}{dr^2} + \frac{1}{r} \frac{du}{dr} - \frac{i\omega}{\nu} u = 0 \quad (\text{C.5})$$

ここで  $i\sqrt{\frac{i\omega}{\nu}}r = kr'$  とおき変数変換を行い整理すると、

$$r'^2 \frac{d^2 u}{dr'^2} + r' \frac{du}{dr'} + r'^2 u = 0 \quad (\text{C.6})$$

となる。

ここで、式 (C.6) は0次ベッセル微分方程式の形なので、式 (C.5) の同次解は第2種ベッセル関数  $J_0(r')$ 、 $Y_0(r')$  を用いて

$$u(r) = A_1 J_0(r') + B_1 Y_0(r') \quad (A_1, B_1 \text{ は任意定数}) \quad (\text{C.7})$$

と表せる。

よって、式 (C.3) の一般解  $u(r, t)$  は、

$$u(r, t) = \left\{ A_1 J_0 \left( i \sqrt{\frac{i\omega}{\nu}} r \right) + B_1 Y_0 \left( i \sqrt{\frac{i\omega}{\nu}} r \right) + \frac{A}{i\omega\rho} \right\} e^{i\omega t} \quad (\text{C.8})$$

である。ここで、 $u(r, t)$  が  $r = 0$ 、つまり  $r' = 0$  で有限であることを考慮すると、 $Y_0(r')$  が発散してしまうので  $B_1 = 0$  である。また、 $r = R$  ( $R$ :管半径) で  $u(r, t) = 0$  である。これらを式 (C.8) に代入すると、

$$A_1 = \frac{iA}{\omega\rho J_0 \left( i \sqrt{\frac{i\omega}{\nu}} R \right)} \quad (\text{C.9})$$

となる。ここで、無次元半径  $r^* = \frac{r}{R}$ 、Wormersley 数  $W = R \sqrt{\frac{\omega}{\nu}}$  を用い、虚数項を除くと  $u(r, t)$  は、

$$u(r, t) = \text{Re} \left[ \frac{iA}{\omega\rho} \left\{ \frac{J_0 \left( r^* W i^{\frac{3}{2}} \right)}{J_0 \left( W i^{\frac{3}{2}} \right)} - 1 \right\} e^{i\omega t} \right] \quad (\text{C.10})$$

と求まる。これが、Newton 流体の管内振動流理論速度分布であり、本研究ではピストンで振動流を与えているため、ピストンの往復運動による流量を考慮することで、本研究に適用しうる速度分布の理論式を求めることが出来る。