磁性流体^{*}

(2. 磁性流体力学の基礎式)

Magnetic Fluids

(2. Basic Equations of Hydrodynamics of Magnetic Fluids)

神 山 新 一^{**}
KAMIYAMA Shinichi

流体の機能化、知能化を計る上で、混相流体の活用は重要な役割を演じるようになってきている。特に電磁場の作用下で高機能性を発揮する流体として磁性流体やER流体をベースとしてより高い付加価値を付けるための研究が活発化してきている。

本講座では、機能流体の代表例として磁性流体を取り上げ、その基礎から応用にわたる研究の道筋を4回シリーズで解説するものである。前回[1]はその1回目として、混相流体的な側面から磁性流体をとらえて磁性微粒子を含む流体の特性について解説した。今回はそれに引き続いて、磁性流体の力学を扱う場合の基礎式を中心に磁性流体力学の成り立ちについて解説することにする。

1. 磁場中で磁性流体に働く力(磁気力)

磁性流体に磁場が作用すると様々な現象が観測されるが、これらの現象を正しく理解するためには、磁性流体力学の知識が必要である。ところで、磁性流体は固液混相流体(コロイド溶液)であるが、粒子径が小さく(～10nm)、一様な分散が得られる場合には、見かけ上、連続流体としての取扱いが可能である。一様な連続流体を仮定した磁性流体力学の取扱いにおいては、通常の流体力学の場合に対して、磁氣的応力が加わることを考慮しなければならない。今、磁性流体の磁化 M が磁場 H と至るところで平行であるとすると、磁性流体の磁気応力テンソル T_m は、

$$T_m = -\left\{ \mu_0 \int_0^H \left(\frac{\partial M v}{\partial v} \right)_{H,T} dH + \frac{\mu_0}{2} H^2 \right\} I + H B \quad (1)$$

で与えられる[2]。ここに、 $v=1/\rho$ ：比体積(m^3/kg)、 I ：単位ダイアディック($=ii+jj+kk$)、 HB はベクトル H 、 B のダイアディック表示、 i, j, k ：

直角座標軸の単位ベクトル。

式(1)の応力テンソルは、また次のようにも表せる。

$$T_{ij} = -\left\{ \mu_0 \int_0^H \left(\frac{\partial M v}{\partial v} \right)_{H,T} dH + \frac{\mu_0}{2} H^2 \right\} \delta_{ij} + H_i B_j \quad (1')$$

ただし、 δ_{ij} ：クロネッカーのデルタ($i=j$ で $\delta=1$ 、 $i \neq j$ で $\delta=0$)。

磁化の強さ M は磁束密度 B と磁場の強さ H とにより

$$B = \mu_0 (H + M) \quad (2)$$

の関係で表されるから、 $H//M$ を仮定すると、

$$B = \mu H, \quad M = \chi H \quad (3)$$

が得られる。ここに、 μ (透磁率)と χ (磁化率)は、 H と $v(=1/\rho)$ に依存するスカラー量である。

さて、磁気応力テンソル T_m の定義より、体積 V_c の磁性流体(その表面積を S とする)に作用する力

* 1996.4.15 受付

** 東北大学流体科学研究所 〒980-77 仙台市青葉区片平2-1-1
TEL(022)217-5259 FAX(022)217-5261

は、

$$\begin{aligned} F_t &= \iint_s T_m \cdot n dS = \iiint_v \nabla \cdot T_m dV_c \\ &= \iiint_v f_m dV_c \end{aligned} \quad (4)$$

で表される。ここに、 $f_m = \nabla \cdot T_m$ は単位体積に働く磁気力(体積力)を表す。式(1)を用いると、

$$\begin{aligned} f_m &= -\nabla \left\{ \mu_0 \int_0^H \left(\frac{\partial M_v}{\partial v} \right)_{H,T} dH + \frac{\mu_0}{2} H^2 \right\} \\ &\quad + H(\nabla \cdot B) + B \cdot \nabla H \\ &= -\nabla \left\{ \mu_0 \int_0^H \left(\frac{\partial M_v}{\partial v} \right)_{H,T} dH + \mu_0 M \nabla H \right\} \end{aligned} \quad (5)$$

が得られる。ただし、式(5)の誘導には、電磁場の式(マックスウェルの式)より、

$$\nabla \cdot B = 0, \nabla \times H = j \text{ (電流密度)} = 0 \quad (6)$$

及びベクトル表示

$$B \cdot \nabla H = \left(\frac{B}{H} \right) \left(\frac{1}{2} \right) \nabla H^2 - B \times (\nabla \times H)$$

が用いられている。

しかしながら、 $M = nmL(\xi)$ より磁化 M が $n \propto \rho$ で密度に比例するとすると、

$$\left(\frac{\partial M_v}{\partial v} \right) = (M - \rho \frac{\partial M}{\partial \rho}) \cong 0$$

となり、結局

$$f_m = \mu_0 (M \cdot \nabla) H \cong \mu_0 M \nabla H \quad (7)$$

が求められる。

2. 準平衡磁性流体力学

2.1 流体の運動方程式

前回説明した磁化の緩和時間 τ_N 、 τ_B の大小関係で、磁性流体力学の取扱い基礎式も異なったものになる。それぞれの緩和機構が支配的となる場合の流体中での磁性粒子の振舞いを示せばFig. 1のようになる。

粒子径が十分小さく、 $KV/kT \ll 1$ 、すなわち、 $\tau_N \ll \tau_B$ となる場合には、粒子自身の回転運動と磁気トルク $m \times H$ による磁気モーメント m の回転(粒子内で自由に回転できる)とは互いに独立とな

(a) rotation of magnetic moment only (Neel relaxation) (b) rotation of particle (Relaxation of rotational Brownian motion)

Fig. 1 Behavior of magnetic moment in a particle.

り、流体の巨視的な運動への磁気トルクの影響は無視し得ることになる。ローゼンズバイクは $\tau_N \rightarrow 0$ の極限、すなわち、磁化の緩和が瞬時に達成される場合を仮定して磁性流体力学の基礎式を導き、この場合の力学の範囲を「準平衡磁性流体力学」(Quasi-equilibrium ferrohydrodynamics)と名付けた。

このときの運動方程式は、通常の粘性流体のナビエ・ストークスの式に式(7)の f_m が加わり構成される。すなわち、 q を流速、 K を単位質量当たりの磁性流体に働く外力、 p を圧力として運動方程式を表せば、

$$\begin{aligned} \rho \frac{Dq}{Dt} &= \rho \left\{ \frac{\partial q}{\partial t} + (q \cdot \nabla) q \right\} \\ &= K - \nabla p + \mu_0 M \nabla H + \eta_s \nabla^2 q \end{aligned} \quad (8)$$

となり、非圧縮性を仮定すれば、連続の式は、

$$\nabla \cdot q = 0 \quad (9)$$

である。

2.2 界面での境界条件

磁性流体の自由界面ではマックスウェルの応力および表面張力により、

$$p_0 - p_i = \frac{\mu_0}{2} |M_s^2|_i - \frac{2S}{R} \quad (10)$$

の圧力差が生ずることになる。ここに、 p_i 、 p_0 :

Fig. 2 Pressure jump at interface.

界面内外での圧力、 n ：界面に垂直方向の成分、 S ：表面張力、 R ：界面の平均曲率半径である。右辺第2項は表面張力の効果でよく知られているが、第1項は磁性流体特有の項で、界面が水平面であっても圧力のジャンプが存在することになる。

Fig. 2はその物理的説明をするために表したもので、強い磁化を持つ磁性流体①と弱い磁化を持つ磁性流体②との界面近くに薄い層 δ をとり、圧力のジャンプ条件を説明したものである。すなわち、磁束密度の垂直方向成分の連続性($\nabla \cdot \mathbf{B} = 0$)から $H_{2n} + M_{2n} = H_{1n} + M_{1n}$ となり、 $M_{1n} > M_{2n}$ より $H_{1n} < H_{2n}$ となる。すなわち、磁場勾配 ∇H は、弱い磁化を持つ流体の方向(上側)に向くことになる。その結果、粒子1個当たり $d\mathbf{f} = \mu_0 m_n \nabla H$ の磁気体積力は 2δ の層のなかではともに上向きに働くことになる。

界面の片側での単位長さ当たりの粒子数を $n\delta$ とすると、 $\nabla H = (H_{2n} - H_{1n}) / 2\delta$ であるから、片側で作用する体積力は $f_n = df_n n\delta = \mu_0 M(H_{2n} - H_{1n}) / 2$ となり、力の釣合の条件は $p_1 + f_{1n} + f_{2n} = p_2$ 。故に、

$$\begin{aligned} p_1 - p_2 &= -(f_{1n} + f_{2n}) \\ &= -\frac{1}{2} \mu_0 (M_{1n} + M_{2n}) (H_{2n} - H_{1n}) \\ &= -\frac{\mu_0}{2} (M_{1n}^2 - M_{2n}^2) = \frac{\mu_0}{2} |M_n^2|_1^2 \quad (11) \end{aligned}$$

が導かれる。

2. 3 渦度の発生とベルヌーイの式

式(8)より $(\mathbf{q} \cdot \nabla) \mathbf{q} = 1/2 \nabla q^2 - \mathbf{q} \times (\nabla \times \mathbf{q})$ であるから

$$\begin{aligned} \rho \frac{\partial \mathbf{q}}{\partial t} - 2\mathbf{q} \times \boldsymbol{\Omega} &= -\nabla(p + \psi + \frac{\rho q^2}{2}) \\ &+ \mu_0 M \nabla H + \eta_s \nabla^2 \mathbf{q} \quad (12) \end{aligned}$$

ただし、 ψ ：外力のポテンシャルエネルギー($\mathbf{K} = -\nabla \psi$)、 $\boldsymbol{\Omega} = (1/2) \nabla \times \mathbf{q}$ である。式(12)のローテーションをとると、($\nabla \times$ 式(12))より、

$$\begin{aligned} \frac{\partial \boldsymbol{\Omega}}{\partial t} + (\mathbf{q} \cdot \nabla) \boldsymbol{\Omega} &= \frac{D\boldsymbol{\Omega}}{Dt} = (\boldsymbol{\Omega} \cdot \nabla) \mathbf{q} + \mu_0 \nabla \\ &\times \frac{(M \nabla H)}{2\rho} + \nu_s \nabla^2 \boldsymbol{\Omega} \quad (13) \end{aligned}$$

さて、一般に磁化 M は温度及び磁場の関数 $M = M(T, H)$ であるから、

$$dM = \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_H dT + \left(\frac{\partial M}{\partial H} \right)_T dH$$

より、式(13)の右辺第2項は、

$$\begin{aligned} \nabla \times (M \nabla H) &= \nabla M \times \nabla H + M \nabla \times \nabla H \\ &= \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_H \nabla T \times \nabla H + \\ &\quad \left(\frac{\partial M}{\partial H} \right)_T \nabla H \times \nabla H \end{aligned}$$

結局、式(13)は

$$\left\{ \frac{\partial \Omega}{\partial t} + (\mathbf{q} \cdot \nabla) \Omega \right\} = (\Omega \cdot \nabla) \mathbf{q} + \mu_0 \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_H \nabla T \\ \times \frac{\nabla H}{2\rho} + \nu_s \nabla^2 \Omega \quad (14)$$

となる。右辺第2項が熱磁気のプロセスによる渦の生産項を表すことになる[3]。\$\Omega = 0\$ (渦なし流れ) の場合には、\$\mathbf{q} = \nabla \phi\$ の速度ポテンシャル \$\phi\$ が存在し、式(12)より次のベルヌーイ (Bernoulli) の式が得られる。

$$\rho \frac{\partial \phi}{\partial t} + p + \phi + \frac{\rho q^2}{2} - \mu_0 \int_0^H M dH = \text{一定} \quad (15)$$

なお、\$\nabla \times (M \nabla H) = 0\$ の場合は \$\mathbf{f}_m (= \mu_0 M \nabla H) = \nabla \Psi\$ の磁気ポテンシャル \$\Psi\$ が存在する。

2. 4 エネルギーの式

次に、流体中の温度分布を問題にする場合には、次のエネルギー方程式を考慮する必要がある。

$$\rho c \frac{DT}{Dt} + \mu_0 T \left(\frac{\partial M}{\partial T} \right)_H \frac{DH}{Dt} = \nabla \cdot (k \nabla T) + \Phi \quad (16)$$

ここに、\$c\$: 比熱、\$k\$: 熱伝導率、\$\Phi\$: 粘性散逸項である。

式(16)の左辺第2項は、非一様磁場下での磁気熱量効果を表す。すなわち、磁性流体が強磁場の領域に入ると加熱され、逆に、強磁場の領域から弱磁場の領域に流出する場合には冷却されることを意味している。

3. 磁性流体中の物体に作用する力

Fig. 3 (a) に示すように、磁性流体を満たした容器の上下に二つの磁石をN極が対向するように設置して磁性流体に非一様磁場分布を与えると、点線で示した磁力線分布からもわかるように、磁石近傍の流体中では強い磁場が作用するのに対し、容器の中央付近では弱い磁場が作用している。この非一様磁場分布のために流体中の圧力は、重力場での静水圧に磁気圧が加わり (式(15)参照)、非一様な圧力分布が形成されることになる。すなわち、強い磁場の作用する磁石近傍での圧力は大きくなり、弱い磁場の作用する中央付近での圧力は小さくなる。

(a) Distribution of magnetic line of force (b) Force acting on a body immersed in a magnetic fluid

Fig. 3 Effect of nonuniform magnetic field on pressure distribution of magnetic fluid.

この状態でFig. 3 (b) に示すように、非磁性の物体を投入すると、通常なら物体の密度が液体の密度より大きく、容器の底に沈むような物体でも磁気圧の効果により圧力の小さくなる中央部に浮遊させることができるようになる。このとき、流体中に存在する非磁性の物体に作用する力 \$F\$ は式(10)と(15)より、

$$F = - \int_S \left(p + \frac{\mu_0}{2} M_n^2 \right) dS - \rho' gV \\ = (\rho - \rho') gV - \int_S \mu_0 \left(\int_0^H M dH + \frac{1}{2} M_n^2 \right) dS \quad (17)$$

で与えられる。ここに、\$S\$: 物体の表面積、\$V\$: 物体の体積、\$\rho\$、\$\rho'\$: 磁性流体及び非磁性体の密度。

式(17)の右辺第1項はアルキメデスの原理に基づき、物体に作用する浮力の影響を表し、第2項が磁性流体中の磁気力に基づく圧力変化により物体に作用する力である。いま、物体まわりの狭い領域で磁場勾配 \$\nabla H\$ が一定であると仮定し、界面での圧力差 \$\mu_0 M_n^2/2\$ の効果を無視すると、

$$\frac{F}{V} = (\rho - \rho') g - \mu_0 \tilde{M} \nabla H \quad (18)$$

(ここに、\$\tilde{M} = 1/V \int M dV\$: 体積平均磁化の強さ)

がえられ、通常なら容器の底に沈むような物質でも磁場の操作により、 $F=0$ で浮遊し、 $F>0$ で浮上することになる。これより、 $\vec{M}=2\times 10^4 \text{ A/m}$ 、 $\nabla H=-8\times 10^6 \text{ A/m}^2$ とれば、 $\rho'=2\times 10^4 \text{ kg/m}^3$ の物質まで流体中に浮遊させることができることになる。すなわち、見かけ上、流体の密度が

$$\rho_a = \rho - \mu_0 \left(\frac{\vec{M}}{g} \right) \nabla H \quad (19)$$

に変化したものとみなすことができる。

4. 極性流体としての力学

粒子径がある程度の大きさになり、 $\tau_N \gg \tau_B$ となると、粒子の磁気モーメント $\vec{m}$ は粒子内で拘束されるようになり、粒子自身の回転によりその方向を変えることになる。いま、簡単のためにFig. 4に示すように、一様せん断流($\vec{\Omega} = \nabla \times \vec{q} / 2 = \text{一定}$)中に粒子(すべて直径 d の球で、磁気モーメント $\vec{m}$ は粒子内で固定しているとする)が単位体積当たり n 個分散しているとし、その中の一つの粒子の回転運動を考える。磁場の作用しない場合には、粒子の回転角速度 ω は流体の回転角速度 Ω に一致するが、磁場の作用下では微粒子に $\vec{m} \times \vec{H}$ の磁気トルクが作用し、磁気モーメント $\vec{m}$ が $\vec{H}$ の方向に向こうとするため Ω と ω とは一致しなくなり、粒子の回転に及ぼす磁場の影響を考慮する必要が生ずる。その結果、1個の粒子当り $\pi d^3 \eta_0 (\Omega - \omega)$ の回転摩擦トルクが発生する。これが前回述べた磁場による粘度増加の物理的説明である[5]。

この場合、巨視的な流体の運動を記述する上で、速度 $\vec{q}$ 、圧力 p 、磁化 $\vec{M}$ のほかに、内部角運動量 S

Fig. 4 Particle rotation in uniform shear flow.

を考慮した新しい基礎方程式系が必要となる。ここに、 S は単位体積中に含まれる粒子の総角運動量を意味しており、直径 d の球状粒子を仮定し、その体積濃度が小さければ、粒子の平均角速度を ω 、単位体積当たりの粒子の慣性モーメントを $I (=8 \pi a^5 \rho_s n / 15)$ とすると、 $S = I \omega$ となる。このような極性流体の運動を記述する基礎方程式として、シリオミス博士[6]は非圧縮性流体の仮定のもとに以下の式を導いている。すなわち、流体の運動方程式：

$$\rho \frac{D\vec{q}}{Dt} = -\nabla p + \mu_0 (\vec{M} \cdot \nabla) \vec{H} + \eta_s \nabla^2 \vec{q} + \left(\frac{1}{2\tau_s} \right) \nabla \times (S - I \vec{\Omega}) \quad (20)$$

連続の式：

前出の式(9)

内部角運動量の式：

$$\frac{DS}{Dt} = \mu_0 (\vec{M} \times \vec{H}) - \left(\frac{I}{\tau_s} \right) (\omega - \Omega) + \gamma \nabla^2 S \quad (21)$$

電磁場の方程式：

前出の式(6)

ただし、 $\tau_s = a^2 \rho_s / 15 \eta_0$ ：流体摩擦に基づく粒子の回転の緩和時間、 $\gamma = 2R^2 / 3 \tau_b$ ：内部角運動量の拡散係数。なお、式(21)の $I / \tau_s = 8 \pi a^3 \eta_0 n$ は回転粘度を表す。

極性流体の方程式系を正確に解くにはかなり複雑な計算が必要となるが、いま、粒子径 $d=10 \text{ nm}$ のコバルト粒子を室温($kT \sim 4 \times 10^{-21} \text{ J}$)、 $\eta_0 \sim 10^{-3} \text{ Pa}\cdot\text{s}$ のベース液中に分散させた磁性流体を考えると、 $\tau_N \gg \tau_B \sim 10^{-6}$ 、また、 $\tau_s \sim 10^{-11}$ 、 $I \sim 10^{-14} \text{ kg/m}$ となるから、式(20)及び(21)において、 DS/Dt 、 $\gamma \nabla^2 S$ 及び DM/Dt の各項は他の項に比べて微小項として省略できることになり、その場合には比較的簡単に解を求めることができる。具体的な解析例については次回に述べることにする。

5. 熱力学的特性

磁性流体のエネルギー式の特徴は式(16)の左辺第2項より得られる次の関係式で表される。

$$\Delta T = - \left(\frac{\mu_0 T}{\rho c} \right) \left(\frac{\partial \vec{M}}{\partial T} \right)_H \Delta H \quad (22)$$

すなわち、磁場の変化による温度の変化が生ずる

ことを表している。

いま、代表的な数値として $\rho = 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、 $c = 10^3 \text{ J/kg} \cdot \text{K}$ 、 $\mu_0 (\partial M / \partial T)_H = 10^{-4} \sim 10^{-2} \text{ T/K}$ (感温磁性流体の代表値～鉄(固体)のキュリー点近傍の値)、 $T = 300 \text{ K}$ 、 $\Delta H = 10^6 \text{ A/m}$ とすると、 $\Delta T = 0.03 \sim 3$ 度の値を得る。すなわち、温度上昇が問題になるのは、熱磁気係数 ($K = -\mu_0 (\partial M / \partial T)_H / M$) が極端に大きい場合で、通常の磁性流体の場合にはほとんど無視し得るオーダーであることが分かる。

ところで、磁性流体の熱力学特性としては、熱対流不安定性への磁場の影響を考える必要がある。Fig. 5 (a) のように水平に置かれた 2 枚の平板間に流体を満たし、平板の下側から加熱した場合に起こる対流不安定 (ベナール対流) の問題はよく知られており、その不安定性が発生する臨界条件は、平板間の流体層の厚さと流体の熱的物性値及び平板間の温度勾配で定義されるレーレー数 Ra で規制される。すなわち、

$$Ra = \frac{\rho^2 c \beta g A d^4}{k_l \eta} > Ra_c = 1,708 \quad (23)$$

で対流不安定が起きる。ここに、 $A = dt/dz$: 温度勾配、 $\beta = -d(\ln \rho) / dT$: 体積膨張率、 k_l : 熱伝導率、 d : 液相の厚さ、 η : 流体の粘度である。垂直平板管の場合の臨界レーレー数は、 $Ra_c = 1,588$ となる。

さて、感温磁性流体 ($\mu_0 (\partial M / \partial T)_H \ll 0$ の場合) に磁場が作用する場合には、温度変化により磁気 f_m が強く影響されるので、通常の流体の場合の浮力の影響に加えて、磁気力の変化により対流不安定の発生が影響を受けることになる。この場合の不安定性の発生条件は、

$$Ra = \frac{\rho c A d^4}{k_l \eta} (\beta \rho g + \mu_0 M K G) = 1,708 \text{ (水平層)}, \\ 1,588 \text{ (垂直層)} \quad (24)$$

で与えられる [7]。ここに、 $G = -dH/dz$: 磁場勾配、 $K = -(\partial M / \partial T)_H / M$: 熱磁気係数。

いま、代表値として $T = 300 \text{ K}$ 、熱磁気係数 ($-K$) $= 10^{-3} (\text{K}^{-1})$ 、体積膨張率 $\beta = 5 \times 10^{-4} (\text{K}^{-1})$ 、密度 $\rho = 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、 $c = 4 \times 10^3 \text{ J/kg} \cdot \text{K}$ 、 $A = 10^3 \text{ K/m}$ 、 $M = 29.9 \text{ kA/m}$ 、 $G = 8 \times 10^5 \text{ A/m}^2$ 、 $g = 9.8 \text{ m/s}^2$ とすると

(a) Bnard convection

(b) Generation of nonuniform field under constant applied field

Fig. 5 Thermoconvective instability.

$$\frac{\mu_0 M K G}{\beta \rho g} \cong 6 \quad (25)$$

が得られ、この種の不安定性に対しては重力よりも磁気力の影響が重要であることが分かる。なお、Fig. 5 (b) に示すように、一様な外部磁場 H_e が作用する場合でも温度変化による磁化の強さの変化が顕著であれば、 $B = \mu_0 (H_i + M) = \mu_0 H_e =$ 一定の関係より、流体内では磁場勾配が生ずるために、やはり対流不安定性が生ずることになる [8]。

参考資料

- [1] 神山新一：混相流, Vol.10, No.1, 76-82 (1996).
- [2] Rosensweig, R.E.: Ferrohydrodynamics, Cambridge Univ. Press, New York (1985).
- [3] Neuringer, J.L. and Rosensweig, R.E.: Phys. Fluids, Vol.7, No.12, 1927-1937 (1964).
- [4] Bashtovoi, V.G. et al.: Introduction to Thermomechanics of Magnetic Fluids, Hemisphere Publ. Co., New York (1988).
- [5] Shliomis, M.I.: Sov. Phys. JETP, Vol.34, No.6, 1291-1294 (1972).
- [6] Shaposhnikov, I.G. and Shliomis, M.I.: МАГН. ФИЗИКА, No.1, 47-58 (1975).
- [7] Curtis, R.A.: Phys. Fluids, Vol.14, No.10, 2096-2102 (1971).
- [8] Finlayson, B.A.: J. Fluid Mech., Vol.40, No.4, 753-767 (1970).