磁性流体の熱伝導率に関する研究

A Study on Thermal Conductivity of Magnetic Fluid

竹越榮俊*、柴田豊広**、平澤良男*、小坂暁夫*

Eisyun Takegoshi, Toyohiro Shibata, Yoshio Hirasawa, Akio Kosaka

本研究では、磁性流体の熱伝導率が非定常熱線法によりマグネタイトと界面活性剤の濃度及び温度を変化させて測定された。一方、この熱伝導率は従来から良く知られている混合物の電気伝導率推算式を用いて計算された。その結果、Kernerのコーティングモデルによる計算値が実験値と比較的良く一致した。

In this study, the thermal conductivity of magnetic fluids was measured by a transient hot wire method in change in the volume fraction of magnetite and surfactant and temperature. On the other hand, the thermal conductivity was calculated by the use of some well-known equations on the electrical conductivity of mixture. Consequently, the values calculated by Kerner's coating model were agreed comparatively. [**Key words** : transient hot wire method, thermal conductivity, magnetic fluid, measurement, calculation]

1. はしがき

強磁性体の微粉を液体中に分散させた磁性流体は磁気に応答する流体として注目され、回転軸シール、ブレーキやクラッチ、あるいは回転レギュレータ等への応用が考えられ、特にマイクロマシン等への応用が構造上有利であると言われている。磁性流体の物理・化学的性質については多数の研究[1]～[4]があるが、成分や温度変化を対象とした熱伝導率の研究はあまりなされていない。磁性流体はベース流体と分散微粉との間の密度差が大きいため、粒子の沈降を防ぐ目的で大量の界面活性剤が使用されている。そのため、物性値に及ぼす界面活性剤の影響は無視できない。

本研究では、ケロシンベースおよび水ベースのマグネタイト系磁性流体について、マグネタイト微粉と界面活性剤の濃度、および温度を変化させて熱伝導率実験を行った。また、2種類以上の混合物の代表的な電気伝導率推算式である Kerner の式および Eucken の式を用いて界面活性剤の影響をも考慮した熱伝導率計算を行い、実験値と比較した。

Fig. 1 Arrangement of instruments for transient hot wire method

Fig. 2 Outline of temperature control unit

* 富山大学工学部機械知能システム工学科, 〒930-8555 富山市五福 3190. Dept. of Mechanical and Intellectual systems Eng., Toyama University, Gofuku 3190, Toyama 930-8555.

FAX:076-445-6785 E-mail:takegosi@eng.toyama-u.ac.jp

** 愛知機械工業(株), 〒456-0072 名古屋市中熱田区川南一番町 1-10, Aichi Kikai Co. Ltd, kawanami ichiban-machi 1-10, Nagoya 456-0072, Japan.

2. 実験装置および方法

Fig.1は著者らが従来から使用している非定常熱線法による実験装置[5]の配置図を示す。銅製の試料容器（内径33mm、肉厚2.5mm、高さ100mm）の中に実験試料が入れられ、上部にはOリング付フランジが接合され、蓋の開閉が容易にできる。熱線には直径50 μ mの白金線を用い、この電気抵抗の変化から温度測定を行う。白金線の抵抗測定区間は約50mmである。また、抵抗測定用のリード線は熱線と同じ太さの白金線を用い、半田で接合した。なお、水ベース磁性流体では少し導電性があったので、電極および白金線をラッカーで薄く塗装して絶縁した。熱伝導率測定はパーソナルコンピュータを用いて、計測から実験データの取り込みおよび熱伝導率の算出までの一連の作業を自動化した。定電流電源の誤差は0.1%以下、またデジタルボルト計は6.5桁のものをを用い、その分解能は0.1 μ Vである。

Fig.2は実験装置の温度制御系の概略図を示す。大きなデュワー瓶⑧（内径120mm、深さ800mm）の中に、上部の気密フランジ④からステンレス管⑥（内径23mm）によって黄銅製の真空容器⑩（外径102mm、高さ285mm）が吊り下げられている。真空容器の上部は開閉が容易にできるように低融点半田によって接合されている。デュワー瓶の中には氷水が入れられ、真空容器の表面温度を0℃に保持できる。一方、真空容器の中心には、Fig.1で示した試料容器⑪が断熱台⑭の上に置かれている。試料容器の外周にはヒータ線⑬が巻かれ、直流PID制御により約0℃から数十℃まで任意に温度設定（変動値 $\pm 0.01^\circ\text{C}$ 以内）できる。

実験方法は、装置をセットしたのちデュワー瓶の中で0℃まで冷却させる。次に真空容器を排気し、試料容器周りのヒータに通電して目的とする温度を得る。ついで、約1時間かけて試料温度が十分に安定したのち、熱線に通電し一回の測定を終了する。このとき、測定時間は粘度の低い試料で7秒程度、そのときの熱線の温度上昇は約1℃となるように実験した。この範囲では対流の発生は見られなかった。同温度で実験を2～3回繰り返し、次に温度を上昇させて同様に実験を行った。熱伝導率は周知のように温度上昇と対数時間の関係が直線となる部分から算出した。

3. 実験試料

本研究では、実験試料としてケロシンベース磁性流体（タイホー工業製、フェロコロイドHC-50）および水ベース磁性流体（同W-40）を用いた。これはケロシン又は水中に、分散質として数十nmのマグネタイト（ Fe_3O_4 ）微粉を分散

させたものである。それぞれの密度はHC-50では $\rho = 1.39\text{g}/\text{cm}^3$ 、W-40では $\rho = 1.42\text{g}/\text{cm}^3$ である。この磁性流体の成分質量割合(%)をTable 1に示す。ここで、オレイン酸およびドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム（以下SDBSと略記）は、マグネタイトをベース流体中に分散させるための

Table 1 Composition of magnetic fluid (mass %)

	Base fluid	Magnetite	Surfactant	
			Oleic acid	Sodium dodecylbenzenesulfonate
Kerosene base (HC-50)	42	50	8	-
Water base (W-40)	46	40	8	6

Table 2 Volume fraction of magnetite and surfactant in magnetic fluid

Specimen	Base fluid	Magnetite v_1 (%)	Surfactant v_2 (%)
No. 1	Kerosene	1.7	1.5
No. 2		3.7	3.4
No. 3		6.2	5.7
No. 4		9.3	8.6
No. 5		13.5	12.4
No. 6	Water	2.1	4.4
No. 7		4.5	9.6
No. 8		7.4	15.8
No. 9		11.0	23.5

Fig. 3 Comparison of literature and experimental values for thermal conductivity of pure water

Fig. 4 Thermal conductivity of base fluid and surfactant composing magnetic fluid

界面活性剤である。本実験ではTable 1の成分の磁性流体原液、ならびにこれらをベース流体で希釈した試料を用いた。希釈するとき、ホモジナイザーを用いて攪拌した。Table 2にこれらの試料のマグネタイトと界面活性剤の体積割合(%)を示す。残りがベース流体の体積割合となる。No.5 および No.9 の試料は原液で、その他が希釈した試料である。なお、Table 2の体積割合は成分の真密度から計算によって求めた。そのとき、水、マグネタイトおよびオレイン酸の密度は文献よりそれぞれ1.00、5.18、0.90g/cm³とし、またケロシンはメーカのデータより0.79g/cm³とし、SDBSは不明であったので推測により0.79g/cm³とした。なお、水ベース磁性流体は2種の界面活性剤が使用されているが、Table 2の値はこれらの体積割合の和を示している。

4. 実験結果および考察

まず、本実験装置の精度を調べるため、純水の熱伝導率を測定した。その結果をFig.3に示す。測定値には少しばらつきはあるものの被覆しない熱線、被覆した熱線とも文献値[6]との偏差は±2%以内に入っており、とくに被覆の影響は見られない。

Fig.4に磁性流体の構成液体であるベース流体および界面活性剤の熱伝導率の温度による変化を示す。水は正確な文献値[6]があるのでそれを示した。ケロシンおよびオレイン酸は本実験による測定値を示すが、温度上昇とともに僅かに減少する。もう一つの界面活性剤であるSDBSは、水に溶解していない場合には固体であったので、測定していない。

Fig.5は原液であるNo.5とNo.9の試料の熱伝導率と温度との関係を示す。ケロシンベースの磁性流体は温度上昇とともに λ_m は減少し、また水ベースの場合は温度上昇とともに逆に増大するが、いずれもベース流体の熱伝導率の影響を強く受けている。

Fig.6およびFig.7は分散質の体積率（マグネタイトと界面活性剤の和と仮定）と熱伝導率比との関係を示したものである。図の○印は実験値、実線はKerner[7]またはEucken[8]の理論式から計算した値である。理論式は、いずれも連続相の中に球状の分散質が分散した混合物の電気伝導率推算式を、熱伝導にアナログしたものである。彼らはn相の分散質の場合について論じているが、ここでは簡単のために分散質が2相の場合を考え、Fig.8(a)に示すように一つの分散質の表面にもう一つの分散質がコーティングされた状態で分散している場合と、Fig.8(b)のように二種の分散質が別々に分散している場合を考える。Kerner（コーティング）の式がFig.8(a)に対応し、それを以下に示す。この場合、分

散相2がコーティング相である。

$$\frac{\lambda_m}{\lambda_c} = \frac{(1 - v_1 - v_2) + k_1 v_1 E_1 + k_2 v_2 E_2}{(1 - v_1 - v_2) + v_1 E_1 + v_2 E_2} \quad (1)$$

$$E_1 = \frac{9k_2}{(k_1 + 2k_2)(k_2 + 2) + 2\{v_1/(v_1 + v_2)\}(1 - k_2)(k_2 - k_1)}$$

Fig. 5 Change in thermal conductivity of magnetic fluids with temperature

Fig.6 Relation between thermal conductivity ratio of kerosene base magnetic fluid and volume fraction of dispersed phase

Fig. 7 Relation between thermal conductivity ratio of water base magnetic fluid and volume fraction of dispersed phase

$$E_2 = \frac{3(k_1 + 2k_2)}{(1 + 2k_2)(k_2 + 2) + 2\{v_1/(v_1 + v_2)\}(1 - k_2)(k_2 - k_1)}$$

また、Kerner (2分散質) の式と Eucken (2分散質) の式は Fig.8(b)に対応し、それぞれ以下に示す。

Kerner (2分散質)

$$\frac{\lambda_m}{\lambda_c} = \frac{(1 - v_1 - v_2) + 3k_1 v_1 / (k_1 + 2) + 3k_2 v_2 / (k_2 + 2)}{(1 - v_1 - v_2) + 3v_1 / (k_1 + 2) + 3v_2 / (k_2 + 2)} \quad (2)$$

Eucken (2分散質)

$$\frac{\lambda_m}{\lambda_c} = \frac{2(1 - v_1 - v_2) + k_1(1 + 2v_1) + k_2(1 + 2v_2)}{(2 + v_1 + v_2) + k_1(1 - v_1) + k_2(1 - v_2)} \quad (3)$$

これら3式のいずれにおいても分散質が1種だけの場合は、Maxwellの式[9]に一致する。本研究では、分散質1としてマグネタイトを、分散質2として界面活性剤を想定して計算した。Table 1に示したように水ベース磁性流体では、2種の界面活性剤の混合物を使用しているが、このうちSDBSの熱伝導率が不明であったので、計算ではこの混合した界面活性剤の熱伝導率としてオレイン酸の値を用いた。また、マグネタイトの熱伝導率は温度によらず一定と仮定し文献等より5.3W/(m・K)とした。

ケロシンベース磁性流体の場合、Fig.6に示したように分散質の体積率の増加で λ_m/λ_c の実験値は増大する。各理論式の計算値も同様に体積率の増加で増大するが、Kerner (コーティング) の式が実験値に近く、Euckenの式がいちばん離れている。これからKerner (コーティング) のモデルが実際の磁性流体の構造に近いものと考えられるが、実験値と幾分離れている理由として、Kerner (コーティング) の式がかなり薄いコーティング相を想定しているのに対し、本実験でコーティング相とした界面活性剤が相当厚い層であること、また、界面活性剤の一部がミセルとしてFig.8(b)のように存在していることが原因と考えられる。

水ベースの場合では、Fig.7からわかるように実験値は分散質の体積率の増加とともに減少する。一方、理論式を見ると3式の値は大きく異なり、Kerner (コーティング) の式が減少するのに対し、Eucken (2分散質) の式は増大し、Kerner (2分散質) の式はほとんど変化しない。このうち、Kerner (コーティング) の式が実験値にいちばん近い値を示しているが、それでも実験値よりもかなり大きい。これはケロシンベースの場合と同様の理由のほか、計算において界面活性剤の熱伝導率としてオレイン酸のみの熱伝導率を用いたことが原因と思われる。

5. 結言

(a) Coating model (b) Two dispersed model

Fig. 8 Mixed model of continuous phase and dispersed phase

マグネタイト系磁性流体の熱伝導率について以下のことがわかった。

- (1) ケロシンベースの場合、熱伝導率は温度上昇で僅かに減少し、また分散質の体積率の増加とともに増大した。
- (2) 水ベースの場合、熱伝導率は温度上昇とともに幾分増大し、また分散質の体積率の増加で逆に減少した。
- (3) 計算値は両者ともKernerのコーティングモデルによる理論式が実験値と比較的良好一致した。

NOMENCLATURE

v : Volume fraction

λ : Thermal conductivity

k_1 : Thermal conductivity ratio (λ_1/λ_c)

k_2 : Thermal conductivity ratio (λ_2/λ_c)

Subscript

1 : Dispersed phase 1 (or magnetite)

2 : Dispersed phase 2 (or surfactant)

c : Continuous phase (or base fluid)

m : Mixture (or magnetic fluid)

参考文献

- [1] G.E.Kronkalis, M.M.Maierov and V.E.Fertman; *Magnitnaya Gidrodinamika*, No.2(1984), 38-41.
- [2] Ya.Kagan; *Magnitnaya Gidrodinamika*, No.2(1988), 130-133.
- [3] J.Popplewell, A.Al-Qemaie, S.W.Charles, R.Moskowitz and K.Raj; *Colloid Polym. Sci.* **260-3**(1982), 333-338.
- [4] V.G.Bashtovio, O.K.Safonenko, N.E.Volkova and A.G.Reks; *Magnitnaya Gidrodinamika*, No.1(1991), 13-17.
- [5] E.Takegoshi, U.Watanabe, A. Kosaka, T.Yamamoto; 16th Japan Symp. Thermophysical Properties, (1995), 237-240.
- [6] K.Kobayashi, et al.; *Thermophysical Properties Handbook*, (1990), 64, Yokendo.
- [7] E.H.Kerner; *Proc. Phys. Soc.London, Sec. B*, **69**(1956), 802.
- [8] A.Eucken; *VDI Forsch.-h.*, **3-353**(1932), 1.
- [9] J. C. Maxwell; *A Treatise on Electricity and Magnetism*, Vol.1 (1892), 440, Oxford Univ. Press, London.

[Received Feb. 3, 2000, Accepted Mar. 1, 2000]