

## 交流磁場( $H_x, H_{y0}\cos(\omega t), 0$ )の下の磁性流体の非線形応答

名大工 土井正男、シー ハワード

### はじめに

磁性流体とは、強磁性の微粒子( $\approx 10\text{nm}$ )を液体中に分散させたコロイド溶液である。磁性流体に磁場をかけると、微粒子の磁気モーメントが磁場方向を向き、流体に磁化が生ずる。

磁性流体の微粒子の磁気モーメントには二つの緩和過程がある。一つはネール(Néel)過程と呼ばれ、粒子の結晶中での磁気モーメントの緩和過程である。磁気モーメントの方向( $\vec{n}$ )が結晶の磁化容易軸の方向( $\vec{p}$ )の周りをゆらぐと、エネルギーの変化が次式で与えられる<sup>1</sup>。

$$\Delta U = -KV_m(\vec{p} \cdot \vec{n})^2 \quad (1)$$

ここで、 $K$ が結晶の異方性係数で、 $V_m$ が磁気ドメインの体積である。ネール緩和過程は磁気モーメントがエネルギー障壁をのりこえて緩和する過程であるので、その緩和時間 $\tau_N$ は次式で与えられる<sup>1</sup>。

$$\tau_N = \tau_r \exp(KV_m/k_B T) \quad (2)$$

ここで、係数 $\tau_r$ は約 $10^{-9}\text{s}$ である。直径 $10\text{nm}$ の粒子の場合には $\tau_N \approx 10^{-9}\text{s}$ 。 $\tau_N$ は溶媒の粘度によらない。もう一つの緩和過程は粒子自身の回転の熱運動による磁気モーメントの緩和で、その特徴時間は次のように書ける<sup>1</sup>。

$$\tau_B = \frac{3V\eta}{k_B T} \quad (3)$$

ここで、 $V$ が粒子の流体力学的体積で、 $\eta$ が溶媒の粘度である。直径 $10\text{nm}$ の粒子の場合には $\tau_B \approx 10^{-8}\text{s}$ なので、ネール緩和過程の方が回転の緩和過程より速くおこると考えられる。従って、このような系では、磁気モーメントの緩和時間が溶媒粘度によらないはずである。

### 島田<sup>2</sup>の実験結果

最近、島田<sup>2</sup>は $10\text{nm}$ の磁性粒子でできた分散系に定常磁場  $H_x$  を  $x$  方向に加えながら、 $y$  方向に振幅の小さい交流磁場  $H_{y0}e^{i\omega t}$  をかけ、 $y$  方向の交流帯磁率 ( $\chi'(\omega) + i\chi''(\omega)$ ) を測定し、興味ある現象を見いだした。即ち定常磁場を加えないときには $1\text{kHz}$ から $1000\text{kHz}$ の間に明白な緩和は現われませんが、定常磁場を加えると数 $\text{kHz}$ に緩和が現われる。この緩和過程の特徴的時間 $\tau$ は $\tau_N$ と $\tau_B$ よりずっと長い。 $H_x$ を大きくすると緩和時間 $\tau$ が減少し、 $\chi''$ の緩和ピークの高さも減少する。また緩和時間の温度依存性は溶媒の粘度の温度依存性とほぼ同じであり、緩和過

程が溶媒の粘度によって支配されていることを示唆している。

島田はこの現象が磁場によってクラスターができるためであると提案したが、クラスター形成が交流帯磁率とどのように関係しているかについての説明を与えなかった。ここで、我々は鎖状クラスターのモデルを用い、ネールの緩和過程が充分速くおこっているという仮定のもとで、y方向の交流帯磁率を計算した<sup>3</sup>。

### モデルと計算

図1に示すように磁場  $\vec{H}$  の下で N個の粒子でできた鎖状クラスターを考える。鎖のエネルギーが次のように書ける。

$$\tilde{U} = -m \sum_{i=1}^N \vec{H} \cdot \vec{n}_i - m^2 \sum_{i < j} \vec{n}_i \cdot \vec{T}_{ij} \cdot \vec{n}_j - KV_m \sum_{i=1}^N (\vec{p}_i \cdot \vec{n}_i)^2 \quad (4)$$

ここで m が粒子の磁気モーメントの大きさを、 $\vec{T}_{ij}$  が磁気モーメント同士の相互作用テンソルである：

$$\vec{T}_{ij} = \frac{1}{4\pi\mu_0 |\vec{r}_{ij}|^3} \left[ \frac{3\vec{r}_{ij}\vec{r}_{ij}}{|\vec{r}_{ij}|^2} - \vec{I} \right] \quad (5)$$

ここで  $\vec{r}_{ij} = \vec{R}_i - \vec{R}_j$  である。

簡単のため、隣り合うペアだけの相互作用を考える。 $H_{y0}=0$  の場合の鎖の状態（つまり、直線）からの摂動を考え、交流磁場  $(H_x, H_{y0}\cos(\omega t), 0)$  の下で、系の自由エネルギーの変化  $(A - A_0)$  を計算する。我々が着目している時間スケール  $\tau$  は  $\tau_N$  と  $\tau_B$  より長いので、 $\{\vec{n}_i\}$  と  $\{\vec{p}_i\}$  が平行分布をとると仮定する。従って、与えられた鎖の配置  $\{\vec{R}_i\}$  と磁場  $\vec{H}$  の下で、自由エネルギー  $A$  が次式のように書ける。

$$A(\{\vec{R}_i\}, \vec{H}) = -k_B T \ln \left[ \prod_i d\vec{n}_i d\vec{p}_i \exp(-\tilde{U}/k_B T) \right] \quad (6)$$

以後、詳しい計算を省略するが、(4)式と(5)式を(6)式に代入し、 $(A - A_0)$  を  $u_{iy}$  と  $u_{iz}$  の二次の項まで展開する。磁気モーメント間の相互作用を平均場で近似する。配置  $\{\vec{R}_i\}$  の時間変化を求めるのに、次式のような各粒子についての力の釣り合いの式を用いる。

$$\zeta \frac{d\vec{R}_i}{dt} = \vec{F}_i^{\text{random}} - \frac{\partial A}{\partial \vec{R}_i} \quad (7)$$

ここで、 $\zeta$  が摩擦係数で、 $\vec{F}_i^{\text{random}}$  が熱運動のランダム力である。 $-\partial A / \partial \vec{R}_i$  が磁気モーメントの相互作用と磁場による力である。

鎖のy方向の磁気モーメント $\mathbf{m}_y$ が次のように自由エネルギーの微分として求められる。

$$\mathbf{m}_y(\{\hat{\mathbf{u}}_i\}, \vec{\mathbf{H}}) = - \frac{\partial A}{\partial \mathbf{H}_y} \quad (8)$$

最後に、磁性流体中の鎖の長さ $N$ が全て同じで、更に $N$ が $\mathbf{H}_x$ によらないと仮定すると、y方向の交流帯磁率( $\chi'(\omega) + i\chi''(\omega)$ )が次のようになる。

$$\chi'(\omega, \mathbf{H}_x) = \chi_\infty + \sum_{p=1}^{N-1} \frac{\Delta\chi_p}{1 + (\omega\tau_p)^2} \quad (9)$$

$$\chi''(\omega, \mathbf{H}_x) = \sum_{p=1}^{N-1} \frac{\Delta\chi_p \omega\tau_p}{1 + (\omega\tau_p)^2} \quad (10)$$

我々は、 $\chi_\infty$ 、 $\tau_p$ と $\Delta\chi_p$ を磁場 $\mathbf{H}_x$ と相互作用パラメータ $\epsilon = \frac{3m^2}{2\pi\mu_0 d^3 k_B T}$  ( $d$ : 粒子の直径) の関数として求めた。最大項の $p=1$ の場合の結果を図2-4に示す。

### まとめ

島田の実験では、磁性流体が $10^{-4}$ sの緩和時間を示した。この緩和時間がネール過程や粒子の回転の熱運動の特徴時間よりずっと長い。本研究では、鎖状クラスタのモデルを用い、y方向の交流帯磁率を計算した。求めた $\chi_\infty$ 、 $\tau_p$ と $\Delta\chi_p$ の $\mathbf{H}_x$ の依存性が実験と定性的に一致する。

### 文献

- [1] R.E. Rosensweig, "Ferrohydrodynamics" (Cambridge, 1985).
- [2] 島田宗勝、磁性流体連合講演会 (12/1991) p40.
- [3] M. Doi and H. See, to appear in J. Phys. Soc. Jpn.

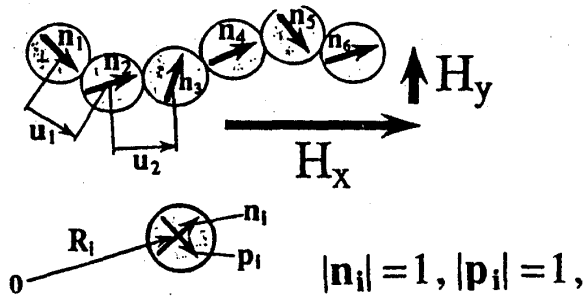


Fig.1 A chain-like cluster of magnetic colloids

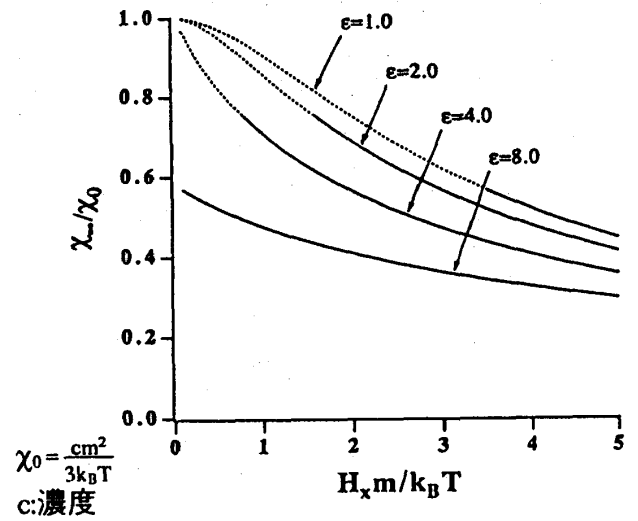


Fig.2 The high frequency limiting susceptibility  $\chi_{\infty}$  is plotted against the dimensionless bias field.

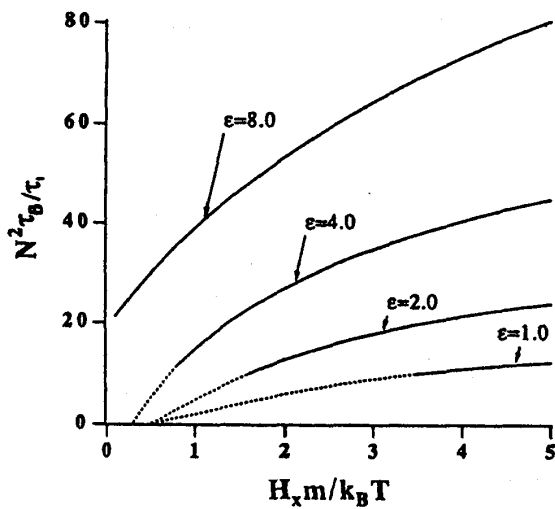


Fig.3 The relaxation time  $\tau$  is plotted against the dimensionless bias field.

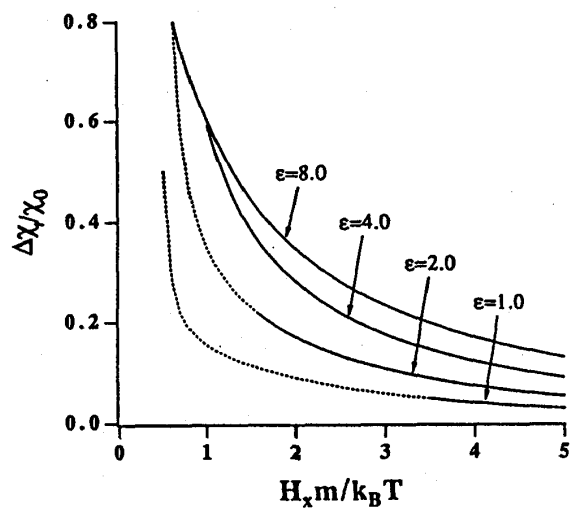


Fig.4 The relaxation strength  $\Delta\chi$  is plotted against the dimensionless bias field.