

Intelligens anyagok nemlineáris mágneses és elektromos tulajdonságainak vizsgálata

DOI:10.18136/PE.2026.994

Decsi Péter

2026. január 14.

Intelligens anyagok nemlineáris mágneses és elektromos tulajdonságainak vizsgálata

Az értekezés doktori (PhD) fokozat elnyerése érdekében készült a Pannon Egyetem
Vegyészmérnöki- és Anyagtudományok Doktori Iskolája keretében

anyagtudományok és technológiák tudományágban

Írta: Decsi Péter

Témavezető: Szalai István

Elfogadásra javaslom: igen / nem.

.....
témavezető

Az értekezés bírálatra bocsátható.

.....
TDHT elnök

A jelölt az értekezés nyilvános vitáján %-ot ért el.

A bíráló Bizottság tagjai:

elnök:.....

bírálok:.....

tagok:.....

Veszprém,

.....
Bíráló Bizottság
elnök

A doktori (PhD) oklevél minősítése:.....

Veszprém,

.....
EDHT elnök

Kivonat

Az intelligens anyagok olyan funkcionális rendszerek, amelyek külső gerjesztésre (elektromos, mágneses, mechanikai vagy hőmérsékleti hatásra) gyorsan és reverzibilisen változtatják meg anyagtulajdonságaikat. Jelen értekezés az intelligens anyagok egy fontos részhalmozására, a mágneses folyadékokra fókuszál, és ezek lineáris és nemlineáris dinamikus mágneses viselkedését vizsgálja váltakozó (AC), illetve váltakozó és egyen (AC+DC) mágneses térben. A vizsgálatok középpontjában a frekvenciafüggő komplex szuszceptibilitás és annak magasabb rendű (harmonikus) összetevői állnak, amelyek közvetlen információt adnak a relaxációs folyamatokról, a kölcsönhatásokról és a telítési nemlinearitásról.

A kísérleti munka során egy saját fejlesztésű, kölcsönös indukciós (differenciáltranszformátoros) AC szuszceptométert valósítottunk meg. A referencia- és mintatekeres differenciális kapcsolása, a precíziós áramgenerátoros gerjesztés, valamint a lock-in detektálás lehetővé teszi, hogy a komplex szuszceptibilitás $\chi^*(\omega)$ spektruma reprodukálhatóan meghatározható legyen. A mérőrendszert kereskedelmi mágneses folyadékokkal validáltuk: Ferrotec EMG700 és EMG900 ferrofluidumokkal, valamint Parker MRF-140CG magnetoreológiai folyadékkal. A ferrofluidumoknál a spektrumok jellegzetes relaxációs viselkedést mutatnak, a mérési adatok kvantitatív jellemzésére Cole–Cole típusú illesztést alkalmaztunk, illetve hőmérsékletfüggő mérések alapján aktiválási energia becslést végeztünk. A magnetoreológiai folyadék esetén a kisfrekvenciás közel kvázisztatikus tartomány mellett a nagyfrekvenciás veszteségek és a mérőrendszer torzulásai kiemelt értelmezési szempontot jelentenek.

Az elméleti részben a dipoláris keménygömb (DHS) modell Mean Spherical Approximation (MSA) leírására építve, a Szalai–Dietrich-féle implicit mágnesezettségi egyenletet térerősség szerint hetedik rendig sorfejtettük, és zárt alakú kifejezéseket adtunk a nemlineáris együtthatókra. A sorfejtés és egy Debye-típusú relaxációs közelítés segítségével analitikus formulákat vezetünk le a dinamikus szuszceptibilitás harmonikus komponenseire tisztán váltakozó térben, majd az elméletet kiterjesztettük AC+DC gerjesztésre. A numerikus összehasonlítások alapján a hetedrendű sorfejtés a mérnöki és kísérleti gyakorlatban releváns gyenge és közepes terekben megbízható közelítést ad (tipikusan $H_0^* < 1.4$), míg erős terekben a telítési nemlinearitás miatt a harmonikusok jellegzetes maximumon át elnyomódnak. A dc előmágnesezés szimmetriasértés révén páratlan felharmonikusokat is létrehoz, nagy dc arány esetén pedig gyakorlatilag „kikapcsolja” a nemlineáris választ, ez a jelenség többek között a mágneses részecske képalkotás (MPI) és a mágneses hipertermia térbeli szabályozásában közvetlenül hasznosítható.

Kulcsszavak: intelligens anyagok; mágneses folyadék; ferrofluidum; magnetoreológiai folyadék; komplex szuszceptibilitás; nemlineáris válasz; felharmonikusok; MSA; lock-in detektálás; AC+DC gerjesztés.

Abstract

Smart materials are functional systems whose properties can be tuned rapidly and reversibly by external stimuli (electric or magnetic fields, mechanical load, temperature, etc.). This dissertation focuses on a key subgroup of smart materials, namely magnetic fluids, and investigates their linear and nonlinear dynamic magnetic response under alternating (AC) as well as combined alternating and static (AC+DC) magnetic fields. The central quantity is the frequency-dependent complex magnetic susceptibility and its higher-order (harmonic) components, which provide direct insight into relaxation processes, interactions, and saturation-induced nonlinearities.

On the experimental side, a custom mutual-inductance (differential transformer) AC susceptometer was developed. Differential wiring of the reference and sample coils, precision current-source excitation, and lock-in detection enable reproducible determination of the complex susceptibility spectrum $\chi^*(\omega)$ over the relevant frequency range. The measurement setup was validated using commercially available magnetic fluids: Ferrotec EMG700 and EMG900 ferrofluids, and Parker MRF-140CG magnetorheological fluid. The ferrofluid spectra exhibit characteristic relaxation behavior, quantitative evaluation was carried out using Cole–Cole-type fits, and temperature-dependent measurements were used to estimate an activation energy. For the magnetorheological fluid, the quasi-static low-frequency regime and the rapidly increasing high-frequency losses highlight the importance of carefully separating intrinsic sample dissipation from instrumental distortions.

On the theoretical side, an MSA-based description of dipolar hard spheres was employed. Starting from the implicit magnetization equation derived within the MSA framework, a seventh-order field expansion was obtained and closed-form expressions were derived for the nonlinear coefficients. By combining this expansion with a Debye-type relaxation approximation, compact analytical formulas were developed for the harmonic components of the dynamic susceptibility in a purely AC field, and the model was extended to AC+DC excitation. Numerical comparisons indicate that the seventh-order expansion provides accurate results in the practically relevant weak-to-moderate field regime (typically $H_0^* < 1.4$), while in strong fields the linear and nonlinear components are suppressed due to saturation. Introducing a DC bias breaks the symmetry and generates odd harmonics, at sufficiently large DC-to-AC ratio the nonlinear response is effectively switched off. This behavior is directly relevant to applications such as magnetic particle imaging (MPI) and magnetic hyperthermia, where DC bias fields are used for spatial selection and active control of signal/heating efficiency.

Keywords: smart materials; magnetic fluids; ferrofluids; magnetorheological fluids; complex susceptibility; nonlinear response; harmonics; mean spherical approximation (MSA); lock-in detection; AC+DC excitation.

Zusammenfassung

Intelligente (Smart-)Materialien sind funktionale Systeme, deren Eigenschaften sich durch äußere Anregungen (elektrische oder magnetische Felder, mechanische Belastung, Temperaturänderung usw.) schnell und reversibel einstellen lassen. Diese Dissertation konzentriert sich auf eine wichtige Untergruppe intelligenter Materialien, nämlich magnetische Flüssigkeiten, und untersucht deren lineares und nicht-lineares dynamisches Magnetverhalten in wechselnden (AC) sowie in kombinierten wechselnden und statischen (AC+DC) Magnetfeldern. Im Mittelpunkt stehen die frequenzabhängige komplexe Suszeptibilität und deren höherordentliche (harmonische) Komponenten, die direkten Aufschluss über Relaxationsprozesse, Wechselwirkungen und Sättigungsnichtlinearitäten geben.

Im experimentellen Teil wurde ein eigenentwickeltes AC-Suszeptometer nach dem Prinzip der gegenseitigen Induktion (Differentialtransformator) realisiert. Die differentielle Verschaltung von Referenz- und Probenwicklung, eine präzise stromquellenbasierte Anregung sowie die Lock-in- Detektion ermöglichen eine reproduzierbare Bestimmung des komplexen Spektrums $\chi^*(\omega)$. Der Messaufbau wurde an kommerziellen magnetischen Flüssigkeiten validiert: an den Ferrotec- Ferrofluiden EMG700 und EMG900 sowie an der magnetorheologischen Flüssigkeit Parker MRF-140CG. Die Ferrofluid-Spektren zeigen ein charakteristisches Relaxationsverhalten, zur quantitativen Beschreibung wurden Cole–Cole-Anpassungen verwendet. Zusätzlich erlauben temperaturabhängige Messungen eine Abschätzung der Aktivierungsenergie. Für die magnetorheologische Flüssigkeit sind neben dem quasi-statischen Niederfrequenzbereich insbesondere hochfrequente Verluste und instrumentelle Verzerrungen bei der Interpretation zu berücksichtigen.

Im theoretischen Teil wird auf einer MSA-basierten Beschreibung dipolarer Hartkugeln aufgebaut. Ausgehend von der impliziten Magnetisierungsgleichung im Mean-Spherical-Approximation-Rahmen wurde eine Feldentwicklung bis zur siebten Ordnung hergeleitet und geschlossene Ausdrücke für die nichtlinearen Koeffizienten bestimmt. Durch Kombination dieser Entwicklung mit einer Debye-ähnlichen Relaxationsnäherung wurden kompakte analytische Formeln für die harmonischen Komponenten der dynamischen Suszeptibilität in reinem AC-Feld abgeleitet und anschließend auf AC+DC-Anregung erweitert. Numerische Vergleiche zeigen, dass die Entwicklung bis zur siebten Ordnung im für Experimente und Anwendungen relevanten schwachen bis mittleren Feldbereich eine zuverlässige Näherung liefert (typischerweise $H_0^* < 1, 4$), während in starken Feldern aufgrund der Sättigung sowohl lineare als auch nichtlineare Beiträge unterdrückt werden. Eine DC-Vormagnetisierung bricht die Symmetrie und erzeugt ungerade Harmonische, bei ausreichend großem DC/AC-Verhältnis wird die nichtlineare Antwort praktisch „abgeschaltet“. Dieses Verhalten ist u. a. für Anwendungen wie die Magnetpartikelbildung (MPI) und die magnetische Hyperthermie unmittelbar nutzbar, in denen DC-Felder zur räumlichen

Selektion und zur aktiven Kontrolle von Signal bzw. Heizleistung eingesetzt werden.

Schlüsselwörter: intelligente Materialien; magnetische Flüssigkeiten; Ferrofluid; magnetorheologische Flüssigkeit; komplexe Suszeptibilität; nichtlineare Antwort; Harmonische; Mean Spherical Approximation (MSA); Lock-in-Detektion; AC+DC-Anregung.

Jelölések

E	elektromos térerősség [V/m]
D	elektromos eltolás (elektromos indukció) [C/m ²]
B	mágneses indukció [T]
H	mágneses térerősség [A/m]
M	mágnesezettség [A/m]
μ_0	vákuumpermeabilitás [H/m]
μ_r	relatív permeabilitás [-]
μ	permeabilitás ($\mu = \mu_0 \mu_r$) [H/m]
χ	mágneses szuszceptibilitás [-]
$\chi^*(\omega)$	komplex mágneses szuszceptibilitás [-]
$\chi'(\omega)$	a szuszceptibilitás valós része [-]
$\chi''(\omega)$	a szuszceptibilitás képzetes része [-]
χ_0	kisfrekvenciás (kvázisztatikus) határérték [-]
χ_∞	nagyfrekvenciás határérték [-]
$\Delta\chi$	szuszceptibilitás-lépcső ($\Delta\chi = \chi_0 - \chi_\infty$) [-]
J	áramsűrűség [A/m ²]
ρ_{el}	töltéssűrűség [C/m ³]
σ	elektromos vezetőképesség [S/m]
t	idő [s]
f	frekvencia [Hz]
ω	körfrekvencia ($\omega = 2\pi f$) [rad/s]
j	képzetes egység ($j^2 = -1$)
τ	relaxációs (jellemző) idő [s]
τ_B	Brown-relaxációs idő [s]
τ_N	Néel-relaxációs idő [s]
τ_{eff}	effektív relaxációs idő [s]
f_0	kísérleti (próba)frekvencia a Néel-modellben [Hz]
α_{CC}	Cole–Cole szélességparaméter ($0 < \alpha_{CC} \leq 1$) [-]
β_{CD}	Cole–Davidson kitevő ($0 < \beta_{CD} \leq 1$) [-]
$(\alpha_{HN}, \beta_{HN})$	Havriliak–Negami paraméterek [-]
$g(\ln \tau)$	relaxációsidő-eloszlás (DRT), normált [-]
N	részecskék száma [-]
V	térfogat [m ³]
ρ	részecske-számsűrűség (számkoncentráció) [m ⁻³]
ϕ	térfogattört (részecske térfogataránya) [-]
m	egy részecske mágneses dipólusmomentuma [A m ²]
M_s	telítési mágnesezettség [A/m]
k_B	Boltzmann-állandó [J/K]

T	abszolút hőmérséklet [K]
K	mágneses anizotrópia-állandó [J/m^3]
η_0	a hordozóközeg dinamikai viszkozitása [Pa s]
$L(\alpha)$	Langevin-függvény [-]
α	Langevin-paraméter ($\alpha = mH/(k_B T)$), dimenziótlan térerősség [-]
$H_{ac}(t)$	váltakozó (AC) mágneses tér időfüggése [A/m]
H_0	az AC mágneses tér amplitúdója [A/m]
$u_{ref}(\omega)$	referenciatekerccs indukált feszültsége (fázor) [V]
$\Delta u_2(\omega)$	differenciális indukált feszültség (minta-referencia) [V]
$i(\omega)$	gerjesztőáram (fázor) [A]
M_{mut}	kölcsönös indukció a tekercsek között (a szövegben gyakran M) [H]
F	kitöltési tényező (geometriai/felvételi tényező) [-]
X	lock-in in-phase komponens [V]
Y	lock-in kvadratúra komponens [V]
A	lock-in amplitúdó ($A = \sqrt{X^2 + Y^2}$) [V]
ρ^*	redukált sűrűség (pl. $\rho^* = \rho d^3$; a szövegben $\rho \sigma^3$ alakban is) [-]
μ^*	redukált dipólusmomentum (a szöveg szerinti definícióval) [-]
H^*	redukált mágneses tér (a szöveg szerinti definícióval) [-]
H_0^*	redukált AC amplitúdó [-]
H_{dc}^*	redukált DC előmágnesező tér [-]
$q(\xi)$	redukált inverz kompresszibilitási függvény (MSA/PY) [-]
m_1, m_3, m_5, m_7	statikus sorfejtési együtthatók a mágnesezettséghez
$\hat{m}_1, \hat{m}_3, \hat{m}_5, \hat{m}_7$	dinamikus (komplex) sorfejtési együtthatók
$\hat{\chi}_{n\omega}$	az n -edik felharmonikus szuszceptibilitáskomponense [-]

Tartalomjegyzék

Nyilatkozatok	i
Kivonat	ii
Abstract	iii
Zusammenfassung	iv
Jelölések	vi
1. Bevezetés	1
2. Irodalmi áttekintés	3
2.1. Intelligens anyagok és alkalmazási területeik	3
2.1.1. Rövid áttekintés az anyagcsaládokról	4
2.1.2. Alkalmazási területek(válogatás)	4
2.1.3. Mágneses folyadékok: ferrofluidumok	5
2.2. Mágnesesség alapjai, törvények	6
2.2.1. Mágneses térerősség, mágneses permeabilitás	7
2.2.2. Mágnesezettség, mágneses szuszceptibilitás	7
2.3. Mágneses anyagok osztályozása	8
2.3.1. Diamágneses anyagok	9
2.3.2. Paramágneses anyagok	9
2.3.3. Ferromágneses anyagok	9
2.3.4. Antiferromágneses anyagok	10
2.3.5. Ferrimágneses anyagok	10
2.4. Mágneses folyadékokra jellemző mennyiségek	10
2.4.1. Egyensúlyi mágnesezettség: szuperparamágnesesség	11
2.4.2. Mágneses relaxáció	12
2.4.3. Viskozitás	12
2.5. Mikromágnesesség, domének	12
2.6. Mágneses folyadékok	13
2.6.1. Ferrofluidumok	13
2.6.2. Magnetoreológiai folyadékok	13
2.7. Mágneses folyadékok előállítása	14
2.7.1. Nanorészecskék előállítása	15
2.7.2. Részecskék stabilizálása	16
2.8. A mágnesezettség és a szuszceptibilitás modellezése	18
2.9. Mágneses szuszceptibilitás időben változó mágneses térben	20

2.10.	Polidiszperzitás és relaxációs időállandók nem Debye viselkedése	20
2.10.1.	Folytonos relaxációs időeloszlás (DRT)	21
2.10.2.	Empirikus spektrummodellek	21
2.10.3.	Méreteloszlás és időállandók összefüggése	22
2.10.4.	Kölcsönhatások és aggregáció	22
2.10.5.	Térerősség és maradó mágnesezettség függő relaxációs idők	22
2.11.	Mágneses szuszceptibilitás mérésére alkalmas módszerek áttekintése . .	22
2.11.1.	Erőmérő módszerek	23
2.11.2.	Indukciós és váltakozó áramú módszerek	24
2.11.3.	Közvetlen magnetométerek	25
2.11.4.	Szuszeptibilitás mérés speciális módszerei	25
2.11.5.	Mágneses folyadékok szuszceptibilitásának mérésének sajátos- ságai	26
2.11.6.	A saját fejlesztésű mérőrendszer szükségessége	27
2.12.	Lock-in méréstechnika	27
2.12.1.	Elvi alapok: fázisérzékeny detektálás	28
2.12.2.	Analóg lock-in erősítők felépítése	30
2.12.3.	Digitális lock-in technikák	31
2.12.4.	Előnyök és korlátok	31
2.12.5.	Jel/zaj arány és integrálási idő	32
2.12.6.	Gyakorlati szempontok a lock-in méréstechnikában	32
2.12.7.	Alkalmazási példák	33
2.12.8.	Mérési bizonytalanság, kalibráció és hibaforrások	34
3.	Kísérleti módszer	37
3.1.	Saját fejlesztésű mérőeszköz bemutatása	37
3.1.1.	Mérőcella kialakítása	37
3.1.2.	Mágneses szuszceptibilitás számítása	37
3.2.	Tekercsmeghajtó áramkör	39
3.3.	Mérőrendszer architektúra	39
3.4.	Geometriai és tekercstervezési szempontok	41
3.5.	A mérőtekercsek termosztálása	41
3.6.	Az adatgyűjtés és kiértékelés menete	42
3.7.	A mérőrendszer korlátai	42
3.7.1.	Becslés a hőmérsékletmérésből származó mérési hibáról	43
3.8.	A rendszer működésének ellenőrzése	45
3.9.	Mérési protokoll	47
3.10.	A mérőeszköz validációja, mérési eredmények	50
3.10.1.	EMG700 ferrofluidumra kapott mérési eredmények	50
3.10.2.	EMG700 ferrofluidum hőmérsékletfüggésének ábrázolása	51
3.10.3.	Aktiválási energia számítása a hőmérsékletfüggésből	52
3.10.4.	EMG900 ferrofluidumra kapott mérési eredmények	54
3.10.5.	Parker MRF-140CG magnetoreológiai folyadékra kapott mé- rés eredmények	55
3.10.6.	Mérési eredmények összehasonlítása szakirodalmi adatokkal . .	57
3.11.	Összefoglalás a kísérleti módszerről	59

4. Elméleti modell váltakozó mágneses térben	60
4.1. MSA mágnesezettség sorfejtése térerősség szerint	60
4.1.1. Statikus, térerősség-függő szuszceptibilitás	61
4.1.2. Szuszceptibilitás időfüggvénye tisztán váltakozó térben	61
4.2. Eredmények tisztán váltakozó mágneses térben	63
4.2.1. Numerikus számítások	63
4.2.2. Frekvenciafüggés gyenge terekben	63
4.2.3. Térerősségfüggés, a nemlinearitás erősödése	63
4.2.4. A sorfejtés konvergenciája	67
4.3. Összefoglalás a MSA sorfejtett modellre vonatkozóan	67
5. Elméleti modellek váltakozó (AC) és egyen (DC) mágneses térben	70
5.1. MSA sorfejtett mágnesezettségi és szuszceptibilitás egyenlet	70
5.1.1. A szuszceptibilitás időfüggvénye váltakozó és rá szuperponált váltakozó térben	70
5.1.2. Komplex szuszceptibilitás Debye közelítésben	71
5.2. Mágnesezettség és szuszceptibilitás egzakt időfüggvénye (egzakt MSA)	72
5.2.1. Implicit mágnesezettség és a statikus (térfüggő) szuszceptibilitás	72
5.2.2. Időtartománybeli egzakt (komplex) megoldás	73
5.2.3. Lineáris és felharmonikus szuszceptibilitások kinyerése Fourier- analízissel	73
5.3. Numerikus eredmények váltakozó és egyen mágneses térben	73
5.3.1. Gyenge és közepes terek: a hetedrendű MSA-sorfejtés érvé- nyessége	74
5.3.2. Szuszceptibilitás erős váltakozó térben DC szuperpozíció nélkül	78
5.3.3. Szuszceptibilitás erős váltakozó térben DC szuperpozíció mellett	79
5.4. Összefoglalás a MSA AC+DC modellekre vonatkozóan	80
6. Összefoglalás	82
Tézispontok	84
Kapcsolódó publikációk jegyzéke	87
Ábrák jegyzéke	91
Köszönetnyilvánítás	92
Irodalomjegyzék	97
Függelék	98

1. fejezet

Bevezetés

Az intelligens anyagok fejlesztése és vizsgálata az anyagtudomány egyik dinamikus fejlődő területe. Ezek az anyagok és rendszerek külső gerjesztés hatására (például elektromos vagy mágneses térben, mechanikai igénybevételre vagy hőmérsékletváltozásra) képesek megváltoztatni szerkezetüket és ezáltal makroszkopikus tulajdonságaikat. A szabályozhatóság, a gyors válaszügy és az integrálhatóság miatt az intelligens anyagok számos mérnöki alkalmazásban megjelennek szenzorokként, aktuátorokként, illetve adaptív szerkezeti elemekként.

Az értekezés témája az intelligens anyagok közül a mágneses folyadékokhoz kapcsolódik. A ferrofluidumok és magnetoreológiai (MR) folyadékok olyan diszperz rendszerek, amelyekben mágneses részecskék hordozóközegben vannak elosztatva, és külső mágneses tér hatására a rendszer effektív tulajdonságai jelentősen megváltozhatnak. A mágneses folyadékok esetén a mágneses tér nemcsak egyensúlyi mágnesezettséget hoz létre, hanem a váltakozó gerjesztés miatt dinamikus jelenségeket is gerjeszt: a részecskék orientációja és a mágneses momentumok relaxációja frekvenciafüggő, a válasz fáziskéséssel és disszipációval jár. Ezt a viselkedést a komplex mágneses szuszceptibilitás $\chi(\omega)$ írja le.

A gyakorlati alkalmazások jelentős részében azonban nem elegendő a kis terekre érvényes, lineáris közelítés. Közepes és erős gerjesztés esetén a telítési jelenségek, a dipólus-dipólus kölcsönhatások, valamint a mintaszerkezeti hatások nemlineáris választ hoznak létre, amelynek egyik legfontosabb következménye a felharmonikusok megjelenése. A nemlineáris dinamikus válasz kulcsszerepet játszik több modern technológiában is: a mágneses részecske képalkotásban (MPI) a jel alapja a nemlineáris mágnesezettség, míg a mágneses hipertermiában a veszteségek és a fűtési hatások aktív szabályozása gyakran DC előmágnesezéssel valósul meg.

A fentiek miatt a mágneses folyadékok dinamikus szuszceptibilitásának vizsgálatához olyan kísérleti és elméleti eszköztár szükséges, amely reprodukálhatóan méri a komplex szuszceptibilitás spektrumát, képes kezelni a nemlineáris válasz harmonikus összetevőit, fizikai paraméterekkel (például sűrűség, dipólusmomentum, hőmérséklet) kapcsolatba hozható, ugyanakkor mérnöki szempontból is használható, egyszerű modelleket ad.

A dolgozat fő célkitűzései az alábbiakban foglalhatók össze:

1. Egy kölcsönös indukción alapuló, lock-in detektálású AC szuszceptométer megépítése és mérési protokoll kidolgozása a mágneses folyadékok komplex szuszceptibilitásának meghatározására.

2. A mérőrendszer validálása és mágneses folyadékok (ferrofluidumok és MR folyadék) spektrumainak értelmezése, különös tekintettel a relaxációs viselkedésre, a nem-Debye jellegre és a mérési korlátokra.
3. MSA-alapú (Mean Spherical Approximation) elméleti leírás kidolgozása tisztán váltakozó mágneses térben: a mágnesezettségi egyenlet térerősség szerinti sorfejtése, majd a nemlineáris dinamikus szuszceptibilitás harmonikusainak analitikus meghatározása Debye-típusú relaxációs közelítésben.
4. Az elméleti modell kiterjesztése AC+DC gerjesztésre, a szimmetriasértés és a DC tér okozta harmonikus-szerkezet vizsgálata, valamint a sorfejtés érvényességi tartományának számszerű jellemzése.

Fontos megemlítenünk, hogy a doktori téma eredeti témakiírása intelligens anyagok tulajdonságainak lock-in mérési technikával történő, nemlineáris jellegű vizsgálatára irányult. A kutatás a munka előrehaladtával - a mérési módszer fejlesztésének fókuszából következően - a dinamikus mágneses szuszceptibilitás frekvenciafüggő vizsgálatára szűkült. Az értekezésben a nemlineáris hatásokat elméleti megközelítésben vizsgáljuk, a mérési módszer továbbfejlesztése ilyen célra egy későbbi lépcsőfok.

Megjegyezzük, hogy a mérési módszer és az elméleti munka alkalmas elektromos szuszceptibilitás elektromos térben történő vizsgálatára is.

A dolgozat felépítése ennek megfelelően a következő. A 2. fejezetben irodalmi áttekintést adunk az intelligens anyagokról és a mágneses folyadékokról, bemutatjuk a komplex szuszceptibilitás fogalmát, a relaxációs képeket, a nem-Debye viselkedést, valamint a szuszceptibilitásmérés módszereit és a lock-in méréstechnikát. A 3. fejezetben ismertetjük a saját fejlesztésű AC szuszceptométer felépítését, a mérési protokollt és a validációs mérések tapasztalatait. A 4. fejezetben a tisztán AC gerjesztésre vonatkozó MSA-alapú, sorfejtett elméleti modellt vezetjük le és numerikusan elemezzük. Az 5. fejezetben az AC+DC térben kapott elméleti eredményeket tárgyaljuk, kiemelve a DC komponens hatását, valamint a sorfejtés pontosságát a gyakorlatban releváns mezőtartományban. Végül a 6. fejezetben összegezzük az elért eredményeket és kitekintést adunk a lehetséges továbbfejlesztési irányokra.

2. fejezet

Irodalmi áttekintés

A fejezet célja, hogy a dolgozat témáját - a mágneses folyadékok lineáris és nemlineáris mágneses tulajdonságainak vizsgálatát - szélesebb anyagtudományi és fizikai kontextusba helyezze, valamint összefoglaljuk azokat az elméleti és kísérleti eredményeket, amelyekre a későbbi fejezetek épülnek. A fejezetben egyrészt áttekintjük az intelligens anyagok főbb családjait és alkalmazási területeit, másrészt részletesen bemutatjuk a ferrofluidumok és magnetoreológiai folyadékok mikroszkopikus és makroszkopikus viselkedését, előállítását és stabilizálását, különös tekintettel a mágneses szuszceptibilitás szempontjából releváns jelenségekre.

A fejezet első részében (2.1-2.3) röviden összefoglaljuk az intelligens anyagok főbb típusait, majd a mágnesesség alapfogalmait, törvényeit és a mágneses anyagok klasszikus osztályozását, ezzel megalapozva a mágneses folyadékok tárgyalását. A 2.4-2.7 alfejezetekben a mágneses folyadékokra jellemző fizikai mennyiségeket (egyensúlyi mágnesezettség, relaxáció, viszkozitás), a ferrofluidumok és magnetoreológiai folyadékok sajátosságait, valamint a nanorészecskék előállításának és stabilizálásának főbb módszereit tekintjük át. Ezt követően a 2.8-2.10 fejezetekben a mágnesezettség és a mágneses szuszceptibilitás különböző elméleti modelljeit (Langevin-, Weiss-, MSA-elmélet), a váltakozó térben értelmezett komplex szuszceptibilitást, valamint a polidiszperzitásból és kölcsönhatásokból eredő nem Debye-viselkedést mutatjuk be.

A fejezet záró részében (2.11-2.12) a mágneses szuszceptibilitás mérésére szolgáló módszerek fő csoportjai kerülnek ismertetésre, kiemelve a mágneses folyadékok mérésének sajátosságait, majd részletes áttekintést adunk a lock-in mérés technikáról, amely a dolgozatban bemutatott saját fejlesztésű AC szuszceptométer kulcseleme. Ezzel az irodalmi áttekintés egyrészt nagy vonalakban összefoglalja a témához kapcsolódó jelenlegi tudásanyagot, másrészt kijelöli azokat az elméleti és kísérleti kérdéseket, amelyekre a 3-5. fejezetekben bemutatott mérőrendszerrel és modellezéssel választ keresünk.

2.1. Intelligens anyagok és alkalmazási területeik

Az intelligens vagy smart anyagok olyan funkcionális anyagok, amelyek külső hatásra - tipikusan elektromos, mágneses, mechanikai hőmérsékleti, kémiai vagy optikai hatásra - gyorsan és reverzibilisen változtatják meg egy vagy több anyagtulajdonságukat. Ez a jelenség kihasználható és valamilyen funkció ellátására teszi alkalmassá az anyagot [1, 2]. Ez lehet többek között elektromechanikai (pl. piezoelektromosság),

magnetomechanikai (pl. magnetrostriktió, magnetoreológia), elektro- vagy magnetotermikus (pl. dielektromos és mágneses veszteségeken alapuló lokális hőtermelés) illetve optomechanikai/optikai hatás. Közös jellemzőjük a szabályozhatóság, a gyors (μs - ms) válaszidő, valamint az integrálhatóság szenzorokba és aktuátorokba.

Az intelligens anyagok széles körébe tartoznak többek között a piezoelektromos és elektrostriktív kerámiák és polimerek (pl. ólom-cirkonát-titanát: PZT, polivinilidén-fluorid: PVDF), alakemlékező ötvözetek (SMA-k (Shape Memory Alloy) pl. NiTi) és polimerek, magnetrostriktív anyagok (pl. Terfenol-D) és elektroaktív polimerek (EAP-k pl. dielektromos elasztomerek), folyadék alapú térérzékeny rendszerek (elektroreológiai és magnetoreológiai folyadékok) valamint speciális kolloidális nanofolyadékok, más néven ferrofluidumok [1, 3, 4, 5, 6, 7]. Az irodalmi áttekintés anyagokat bemutató részében ezekre az anyagokra fókuszálunk, kiemelten a ferrofluidumokra.

2.1.1. Rövid áttekintés az anyagcsaládokról

Piezoelektromos és elektrostriktív rendszerek

Az elektromos tér mechanikai deformáció konverzióján alapuló piezoktuátorok és -szenzorok a nagy pontosságú pozicionálásban, rezgéscsillapításban és energiagyűjtésben használatosak [7].

Alakemlékező ötvözetek

Martenzites fázisátalakuláson alapuló alakvisszanyerő és szuperrugalmas tulajdonságuk miatt a SMA-k hasznosak lehetnek orvosi és mechatronikai alkalmazásokban, különösen hőmérséklet és feszültségerzékenységüknek köszönhetően [3].

Magnetrostriktív anyagok

Ritkaföldfém alapú ötvözetek (pl. Terfenol-D) mágneses térre alakváltozással reagál, így aktuátorok és szenzorok építhetők belőlük [4].

Elektroaktív polimerek (EAP)

Az elektroaktív polimerek feszültség hatására alakváltozást szenvednek, a dielektromos elasztomerek elektromos tér hatására nagy fajlagos nyúlást és gyors dinamikát kínálnak. Alkalmazási területeik a robotika és az orvosi eszközök [8, 9, 10, 11].

Térérzékeny folyadékok

Az elektroreológiai (ER) és magnetoreológiai (MR) folyadékok külső tér hatására változtatják meg nyírófeszültségüket, viszkoelasztikus változást mutatnak. Ez alkalmazható félaktív rezgéscsillapításban és nyomtatékávitelben [12, 5].

2.1.2. Alkalmazási területek(válogatás)

Rezgéscsillapítás és dinamikai gépelemek

A ferrofluid alapú csillapítók és dinamikus rezgéselnyelők térvezérelt viszkozitása révén kis tömeg mellett nagy csillapítás érhető el, hangszórókban a ferrofluid-tömítések

és töltetek a hővezetést és mechanikai csillapítást egyaránt javítják [12, 5]. A magnetoreológiai rendszerek (MR) a viszkozitásnövekedés miatt nagy igénybevételű félaktív csillapítóknak (épületek földrengésállóságának javítására) terjedtek el, többnyire ferrofluidumok és MR anyagok hibrid megoldásaival, melynek köszönhetően a csillapító sáv szélesség és finomhangolhatóság kompromisszuma javítható [13].

Tömítéstechnika és tribológia

A mágneses folyadék tömítések gyors válasza és önjavító folyadékfilmje statikus, forgó és alternáló tömítésekben egyaránt kihasználható, széles sebesség és nyomástartomány mellett. A felületi texturálás a Rosensweig-instabilitáson keresztül további súrlódáscsökkentési lehetőségeket kínál [14, 15].

Hőtechnika és energiahasznosítás

Mágneses folyadékokkal a hőátadás javítható, vagy lokális hőforrások alakíthatók ki változó mágneses tér segítségével. Ez mikrohűtésben és energiaelnyelő rendszerekben hasznosítható [16].

Mikrofluidika és lab-on a chip

Ferrofluidumokkal a mikroszatornás szivattyú, szeparáció, cseppgenerálás és szelephatás hajtható végre érintésmentesen, mágneses mezővel vezérelten. Integrált impedancia érzékelőkkel kombinálva nagy szelektivitású, kis mintamennyiséget igénylő, hordozható analitikai rendszerek valósíthatók meg [17, 6].

Biomedicina

Szuperparamágneses vas-oxid nanorészecskék klinikai képalkotásban (pl. MRI-kontraszt), célzott gyógyszerbevitelben és mágneses hipertermiában alkalmazható. Ezekben a területeken a részecskeméret, a felületkémia és a relaxációhangolás a diagnosztikai és a terápiás hatékonyság kulcsa [18, 19, 20, 21].

2.1.3. Mágneses folyadékok: ferrofluidumok

A ferrofluidumok néhány tíz nanométeres, tipikusan magnetit, maghemit részecskék kolloidális diszperziója valamilyen hordozóközegben. Mágneses térben a részecskék mágneses dipólusmomentuma részben vagy teljesen rendeződik, miközben a folyadék híg marad. A ferrofluidumok időfüggő mágneses válasza két jelenség szuperpozíciója: a részecskék mozgásához kötött Brown-féle és a részecske belső mágnesezettségének átfordulásához kötött Néel-féle relaxáció. Az, hogy melyik domináns, a részecskék méretétől és az anizotrópiától függ [16].

A relaxáció vizsgálata és a váltakozó mágneses tér frekvenciája közötti összefüggés tanulmányozása kulcsfontosságú a veszteségi mechanizmusok és a mágnesezhetőség szempontjából. Nagyobb mágneses térben a részecskék kölcsönhatása miatt aggregátumok jönnek létre és a szemcsék láncokba, majd oszlopokba rendeződnek. Az anyag nyírófeszítéssel szembeni ellenállóképessége növekszik, látszólagos viszkozitása emelkedik. Ez kihasználható csillapítóknak, rezgésizolálásban és csapágyakban. Független, homogén állandó térerősség esetén egy megadott küszöb felett a szabad

felszín instabillá (Rosensweig-instabilitás) válik, periodikus csúcsok és völgyek alakulnak ki. Ez mintaképződési és felülettopográfiai eszközök alapjául szolgálhat, így az optikában, tribológiában lehet kihasználni a jelenséget [14, 15].

2.2. Mágnesesség alapjai, törvények

A mágnesesség első alkalmazása a hajózáshoz köthető. Zheng Gongliang 1064-ben jött rá, hogy a vas mágneses maradhat, amennyiben magas hőmérsékletről hirtelen hűtjük le. Amennyiben egy így készített tűt lebegtetünk, az kölcsönhatásba lép a Föld mágneses mezejével. A jelenség legelső alkalmazása a kínai Sheng Kua nevéhez köthető az iránytű 1088-as feltalálásával. Coey ettől az időponttól kezdve hét korszakra osztja a mágnesesség történetét [22], melyek nagy hatással voltak a tudomány számos ágának fejlődésére. Gondoljunk csak orvosi alkalmazásban a mágnesesrezonancia vizsgálatokra, villamos gépeinkre vagy a merevlemezekre. A 20. század talán legnagyobb hatású fizikusa, Richard Feynmann szerint a történelem legnagyobb tudományos eredménye James Clerk Maxwell nevéhez köthető, az elektromágneses tér törvényeinek rendszerbe foglalásával 1864-ben [22].

$$\begin{aligned}
\oint_{\mathcal{A}} \mathbf{D} d\mathbf{A} &= \int_{\mathcal{V}} \rho dV \\
\oint_{\mathcal{A}} \mathbf{B} d\mathbf{A} &= 0 \\
\oint_{\mathcal{G}} \mathbf{H} ds &= \int_{\mathcal{A}} \mathbf{J} d\mathbf{A} + \frac{d}{dt} \int_{\mathcal{A}} \mathbf{D} d\mathbf{A} \\
\oint_{\mathcal{G}} \mathbf{E} ds &= -\frac{d}{dt} \int_{\mathcal{A}} \mathbf{B} d\mathbf{A}
\end{aligned} \tag{2.1}$$

ahol \mathbf{D} az elektromos eltolás vektora, ρ a töltéssűrűség, \mathbf{B} a mágneses indukció, \mathbf{H} a mágneses térerősség és \mathbf{J} az áramsűrűség.

Az első egyenlet nem más, mint a Gauss-törvény, a második egyenlet a mágneses Gauss-törvény, a harmadik egyenlet a Maxwell által kiegészített Ampère-féle gerjesztési törvény, a negyedik egyenlet a Faraday-féle indukciós törvény integrálalakban [23]. Kísérleti tapasztalatok alapján a Maxwell-egyenletek mellett még az ún. "anyagegyenletek" szükségesek a jelenségek leírásához:

$$\mathbf{D} = \mathbf{D}(\mathbf{E}), \tag{2.2}$$

$$\mathbf{B} = \mathbf{B}(\mathbf{H}), \tag{2.3}$$

$$\mathbf{J} = \mathbf{J}(\mathbf{E}). \tag{2.4}$$

Ha csak a kis terek tartományában érvényes anyagegyenletekre szorítkozunk, úgy:

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \epsilon_r \mathbf{E}, \tag{2.5}$$

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mu_r \mathbf{H}, \tag{2.6}$$

$$\mathbf{J} = \sigma \mathbf{E}, \tag{2.7}$$

ahol ϵ_r , μ_r és σ izotrop anyagokra skalár mennyiségek, anizotrop anyagokra pedig tenzorok. Kutatásaink során izotrop mennyiségekkel foglalkozunk, a továbbiakban az anyagi tulajdonságokat így kezeljük.

A Maxwell által rendszerbe foglalt egyenletek az elektromos és mágneses térhez kapcsolódnak, az elektromos térerősség és mágneses indukció nagyságát írják le a tér tetszőleges pontjában az elektromos töltés és áramsűrűség segítségével. Az elektromosság és mágnesség elemi építőkövei az elektromos töltések és mágneses dipólusok. Az elektromos (ϵ_0) és mágneses (μ_0) állandók összefüggenek

$$\sqrt{\epsilon_0\mu_0} = \frac{1}{c}, \quad (2.8)$$

ahol c a fény sebessége vákuumban. A dielektrikumok és a mágneses anyagok kezelésére bevezették a villamos fluxussűrűség és a mágneses térerősség fogalmát. Kiegészítő egyenletként szokták kezelni Lorentz törvényét, amely leírja hogy elektromos és mágneses térben mekkora erő (\vec{F}) hat adott töltésű (q) részecskére, mely (\vec{v}) sebességgel halad [23].

$$\vec{F} = q(\vec{E} + \vec{v} \times \vec{B}) \quad (2.9)$$

2.2.1. Mágneses térerősség, mágneses permeabilitás

Az anyagban keletkező vezetési áramok miatt a \mathbf{B} mágneses indukció \mathbf{B}' anyagban nagyobb lesz, mint vákuumban. Ez azzal magyarázható, hogy az anyagot alkotó atomok, molekulák saját mágneses tere a külső mágneses térre szuperponálódik. A két mágneses indukció viszonyával definiálhatjuk az illető anyagra jellemző relatív mágneses permeabilitást:

$$\mathbf{B}' = \mu_r \mathbf{B}. \quad (2.10)$$

A definícióból következik, hogy vákuumra $\mu_r = 1$, bármilyen más anyagra pedig $\mu_r \neq 1$. A relatív mágneses permeabilitás dimenziómentes (egység dimenziójú) fizikai mennyiség.

Az elektromosságban \mathbf{B} mágneses indukció mellett szokásos definiálni a \mathbf{H} mágneses térerősségvektort:

$$\mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0\mu_r}. \quad (2.11)$$

Megjegyezzük, hogy anizotróp anyagokra a permeabilitás nem skalár, hanem tenzormennyiség, de a disszertációban külső tér hiányában csak izotróp anyagokkal foglalkozunk.

Belátható, hogy a \mathbf{B} és \mathbf{H} vektorok két különböző anyag határfelületén törést szenvednek. Az indukcióvonalak a kisebb relatív permeabilitású közegből a nagyobb relatív permeabilitású közegbe történő áthaladás során a felületi normálistól elhajlanak. Ezt a jelenséget mágneses árnyékolásra lehet felhasználni.

2.2.2. Mágnesezettség, mágneses szuszceptibilitás

Az anyagot alkotó atomok és molekulák jó részének mágneses dipólusmomentuma van. Egy V térfogatú (gáz-, folyadék- vagy szilárdfázisú) anyag \mathbf{M} mágnesezettségén az egységnyi térfogatra jutó mágneses dipólusmomentumot értjük:

$$\mathbf{M} = \frac{\sum_{i=1}^N \mathbf{m}_i}{V}, \quad (2.12)$$

ahol \mathbf{m}_i az i -edik részecske mágneses dipólusmomentuma. Izotróp anyag mágnesezettsége – külső mágneses tér hiányában – zérus. A külső mágneses tér bekapcsolásával, a tér az elemi dipólusokat a saját irányába próbálja beforgatni, s így az

anyag mágnesezettsége már nullától különböző lesz. Gáz- és folyadékfázisban a molekulák hőmozgása csökkenti a külső tér orientációs hatását, aminek egy egyensúlyi mágnesezettség kialakulása az eredménye. Általában az anyag mágnesezettsége függ a mágneses térerősségtől. A kis mágneses terek tartományában a mágnesezettség arányos a mágneses térerősséggel:

$$\mathbf{M} = \chi \mathbf{H}, \quad (2.13)$$

ahol χ a mágneses szuszceptibilitás. Mivel a mágneses térerősség és a mágnesezettség SI mértékegysége egyaránt A/m, a mágneses szuszceptibilitásnak – a relatív mágneses permeabilitáshoz hasonlóan – egységdimenziójúnak kell lennie. A legtöbb anyag esetén azonban még a mágneses szuszceptibilitás is mágneses térerősségfüggést mutat, ezért a gyakorlatban a mágneses anyagok jellemzésére az ún. kezdeti (vagy $H = 0$ -nál vett) mágneses szuszceptibilitás terjedt el, ami izotróp anyagra az alábbiak szerint definiálható:

$$\chi_0 = \left(\frac{\partial M}{\partial H} \right)_{H=0}. \quad (2.14)$$

Megjegyezzük, hogy anizotróp anyagokra a mágneses szuszceptibilitás a permeabilitáshoz hasonlóan nem skalár, hanem tenzormennyiség.

Be lehet látni, hogy a mágneses térerősségre a makroszkopikus (vezetési) áramok is hatással vannak, s ehhez a mennyiséghez juthatunk, ha a mágneses indukcióból levonjuk a mikroszkopikus áramok mágneses momentumainak hatását, azaz:

$$\mathbf{H} = \frac{1}{\mu_0} \mathbf{B} - \mathbf{M}. \quad (2.15)$$

A 2.13. egyenletet a 2.15. egyenletbe helyettesítve azt kapjuk, hogy:

$$\mathbf{B} = \mu_0(1 + \chi) \mathbf{H}. \quad (2.16)$$

A 2.16. és a 2.11. egyenleteket összehasonlítva adódik, hogy a mágneses szuszceptibilitás és a relatív permeabilitás nem függetlenek:

$$\mu_r = \chi + 1. \quad (2.17)$$

2.3. Mágneses anyagok osztályozása

Öt különböző anyagcsoport figyelhető meg a mágneses viselkedés szempontjából [24]. Diamágneses, paramágneses, ferromágneses, antiferromágneses és ferrimágnes anyagok. A részecskék momentumát az atomokban megtalálható elektronok spinje és pályamomentuma határozza meg. A részecskék mágneses momentuma változtatható külső mágneses térrel, vagy lehet spontán, vagyis külső mágneses tér nélkül is kialakulhat. Megkülönböztetünk olyan eseteket, amikor az anyag mágneses állapotát a részecskék eredő mágneses momentuma fogja meghatározni, vagyis a dipólusok kooperációban működnek, illetve olyat, ahol nem kooperatív módon alakul ki az anyag mágnesezettsége [23].

2.3.1. Diamágneses anyagok

A diamágneses anyagok mágneses szuszceptibilitása negatív és független a hőmérséklettől. A diamágneses anyagok jellegzetes tulajdonsága, hogy bennük a spin- és a pályamomentum semlegesítik egymást, ezért normális állapotukban nincs ki-felé irányuló mágneses momentumuk. Diamágneses anyag a réz, a nátrium-klorid, a szilícium-dioxid, a higany, a víz és a nitrogén is. Mágneses szuszceptibilitásuk negatív és $|\chi_m| \sim 10^{-6}$ nagyságrendű.

2.3.2. Paramágneses anyagok

A paramágnesesség nem kooperatív típusú, a részecskék permanens mágneses dipólusmomentummal rendelkeznek. Az orientációjukat a termikus mozgás (Brown-féle hőmozgás) határozza meg, vagyis véletlenszerű. Az anyag mágnesezettsége, vagyis a dipólusok eredő momentuma külső mágneses térrel kialakítható. Mágneses szuszceptibilitásuk pozitív, és $\chi_m \sim 10^{-5}$ nagyságrendű. A paramágneses anyagok szuszceptibilitásának hőmérsékletfüggését a Curie-törvény írja le:

$$\chi = \frac{C}{T}, \quad (2.18)$$

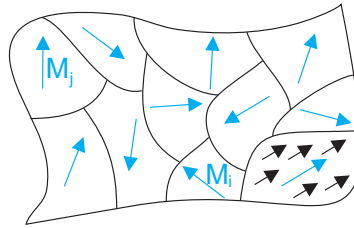
ahol C az anyagra jellemző állandó. Ilyen anyagok az oxigén, a platina, a króm és a palládium is. Mivel az oxigéngáz pozitív mágneses szuszceptibilitása jóval nagyobb, mint a nitrogéngáz negatív mágneses szuszceptibilitása, ezért a levegő (mint gázelegy) paramágneses tulajdonságokat mutat. Ehhez a csoporthoz tartoznak az általunk vizsgálandó mágneses folyadékok (mágneses kolloidok) is.

2.3.3. Ferromágneses anyagok

A ferromágneses anyagokban hosszútávú rendezettség figyelhető meg a dipólusok között, emiatt az anyagnak spontán mágnesezettsége van. A ferromágneses anyagot alkotó részecskéknek permanens dipólusmomentuma van. A részecskék dipólusmomentumai egy tér-tartományban (doménben, 2.1 ábra) azonos irányúak, így a doméneknek eredő mágneses momentuma lehet. Mivel a szomszédos domének irányítotttsága különbözik, így a ferromágneses anyagdarab eredő mágnesezettsége végül zérus. A külső mágneses tér a doméneket egy irányba rendezheti, ami nagy kezdeti mágneses szuszceptibilitást eredményez. Az anyag mágnesezettsége a tér nagyságával arányos, attól függ, hogy a dipólusok milyen arányban és mennyiségben állnak be a térrel párhuzamosan. A mágnesezettség eléri a maximumát, amennyiben már minden dipólus irányba állt, ezt nevezik szaturációnak, telítettségnek. Az anyag hőmérsékletének növelésével a hőmozgásból származó energia meghaladja a mágneses kölcsönhatásból származó energiát, az anyag elveszti mágnesezettségét, vagyis paramágnesessé válik. Azt a hőmérsékleti értéket, ahol a ferromágneses anyagban rendezettség már nem figyelhető meg, Curie-pontnak (kritikus hőmérsékletnek) nevezzük. Mágneses szuszceptibilitásuk pozitív és $\chi_m \sim 10^3 - 10^5$ nagyságrendű.

A domének mérete 0,01 mm és 10 mm között változhat. A ferromágneses anyagok a hőmérséklet növelésével egy T_C hőmérsékleten elvesztik ferromágneses jellegüket. Ezt a hőmérsékletet az illető anyag Curie-hőmérsékletének nevezzük. A mágneses szuszceptibilitás hőmérsékletfüggése a $T_C < T$ hőmérséklettartományban a

$$\chi = \frac{C'}{T - T_C} \quad (2.19)$$



2.1. ábra. Domének egy ferromágneses anyagban

Curie-Weiss-törvény alapján írható le, ahol C' és T_C az illető anyagra jellemző állandók. (Termodinamikai szempontból a T_C hőmérsékleten egy másodrendű ún. ferromágneses – paramágneses fázisátalakulás játszódik le.) Ferromágneses anyagok a vas, a nikkell és a kobalt is. Speciális ferromágneses ötvözetek extrém nagy kezdeti mágneses szuszceptibilitást mutathatnak, pl. "supermalloy" nevű ötvözet esetén $\chi_{m0} \simeq 10^6$. A mágneses domének pl. a Barkhausen-féle kísérlettel mutathatók ki [23].

2.3.4. Antiferromágneses anyagok

Az antiferromágnesesség kooperatív típusú. A szomszédos atomok momentumának iránya váltakozik, így gyakorlatilag eredő mágneszettség nincs. Antiferromágneses anyagok általában az átmeneti fémek vegyületei, főleg oxidjai között fordulnak elő. Az ilyen típusú rendezettség nagyon alacsony hőmérsékleten, illetve az úgynevezett Néel-hőmérséklet alatt jelentkezik. Antiferromágneses anyag a MnO, NiO, CoO.

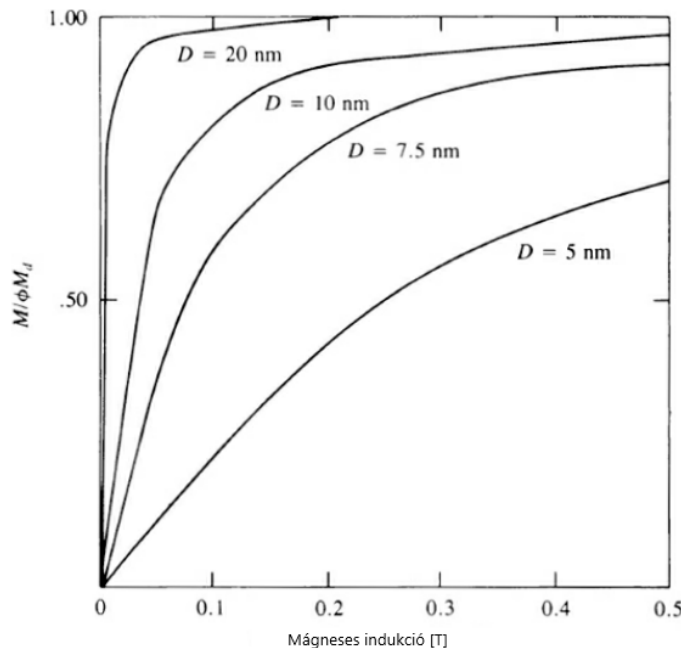
2.3.5. Ferrimágneses anyagok

A ferrimágnesesség kooperatív típusú, olyan anyagok mágneses tulajdonsága, amelyekben a különböző szomszédos atomok mágneses momentuma eltérő nagyságú és ellentétes irányú. A ferrimágnesesség hasonló a ferromágnesességhez, de az ilyen anyagok eredő mágnesessége jóval gyengébb. Ferritekben és néhány más anyagban figyelhető meg. Ilyen például a magnetit kristály, amely a mágneses kolloidok egyik fontos alkotóeleme lehet.

2.4. Mágneses folyadékokra jellemző mennyiségek

Mágneses folyadékok specifikus fizikai tulajdonságai közé tartozik az egyensúlyi mágneszettség állandó térben, a mágneszettség változása változó mágneses térben illetve a nyírófeszültség az alakváltozási sebesség függvényében [25].

Az alább bemutatott fizikai tulajdonságok általában a mágneses folyadékokra jellemzőek, de eltérés figyelhető meg ferrofluidumok és magnetoreológiai folyadékok esetén.



2.2. ábra. Mágneszettségi görbék különböző részecskeátmérők (D) esetén

2.4.1. Egyensúlyi mágneszettség: szuperparamágnesesség

A folyadékban található részecskék véletlenszerűen orientálódnak külső mágneses tér hiányában, így eredő mágneszettséget nem tapasztalunk. A külső mágneses tér forgatónyomatékokat gyakorol a mágneses dipólusokra és ez B növelésével a hőmozgással versengve orientálja a dipólusokat. Nagy mágneses indukció esetén minden részecske orientálódhat, a mágneszettség eléri a szaturációs értéket. A szaturációs értékének nagyságát a folyadékban található részecskék számsűrűsége és dipólusmomentuma $M_s = \rho m$ határozza meg, mivel a részecskék dipólusmomentuma arányos a térfogatukkal. Minél kisebb a részecske, annál nagyobb indukció esetén éri el a mágneszettség a telítési értéket [23].

Amennyiben egy híg mágneses folyadékot tekintünk, feltehetjük, hogy a mágneses dipólusok nem állnak egymással kölcsönhatásban. (Nagy a részecskék átlagos távolsága, így a dipólus-dipólus kölcsönhatás elhanyagolható.)

Egy ilyen paramágneses gáz (híg mágneses folyadék) mágneszettségének térerősség függésére statisztikus termodinamikai alapon Langevin vezetett le analitikus összefüggést (2.20).

$$\frac{M}{M_s} = \coth \alpha - \frac{1}{\alpha} = L(\alpha) \quad (2.20)$$

ahol $M_s = \frac{Nm}{V} = \phi m$ a telítési mágneszettség a $\phi = N/V$ térfogattörttel és az m_d részecske dipólusmomentummal kifejezve. A 2.20. egyenletben $\alpha = \frac{mH}{k_B T}$, ahol H a külső mágneses tér, T az abszolút hőmérséklet és k_B a Boltzmann állandó.

Az összefüggés monodiszperz folyadékokra igaz, az egyenletnek számos kiterjesztése van, amelyek a polidiszperz részecskéket is modellezik. A 2.2. ábrán látható mágneszettségi görbék kezdeti meredeksége a kezdeti mágneses szuszceptibilitás.

2.4.2. Mágneses relaxáció

Ferrofluidumok mágnesezettsége esetén kétféle relaxációs mechanizmus figyelhető meg, miután megváltoztattuk a mágneses teret [25]. Az első mechanizmus a relaxáció a részecske folyadékban történő forgásából adódik, a második a dipólusmomentumvektor forgásából adódik a részecskén belül. Amennyiben a ferrofluidumot megszilárdítjuk (pl. fagyasztással) csak a második jelenség figyelhető meg. Az első jelenséget Brown-relaxációnak nevezték el, mivel a részecskékre ható erőter energiája ekkor meghaladja a hőmozgásból származó energiát. A második jelenség neve Néel-relaxáció, oka az, hogy a domén mágnesezettségének két egymással ellentétes állapota lehetséges. Az állapotváltáshoz át kell lépni egy energiaküszöböt, ennek a küszöbnek a nagysága anyagfüggő állandó. A relaxáció változó mágneses térben figyelhető meg, nagyságát a relaxációs időállandóval jellemezzük, nagysága függ a tér frekvenciájától (f_0), a hőmérséklettől, térfogattól, így a részecske méretétől, anyagi minőségtől (K) és viszkozitástól (η_0) (2.21. és 2.22. egyenletek).

$$\tau_B = 3V\eta_0/kT \quad (2.21)$$

$$\tau_N = \frac{1}{f_0} \exp \frac{KV}{kT} \quad (2.22)$$

Attól függően, hogy melyik jelenség meghatározó, belső ($\tau_N \ll \tau_B$) vagy külső ($\tau_B \ll \tau_N$) szuperparamágneses tulajdonságokat mutat az anyag.

2.4.3. Viskozitás

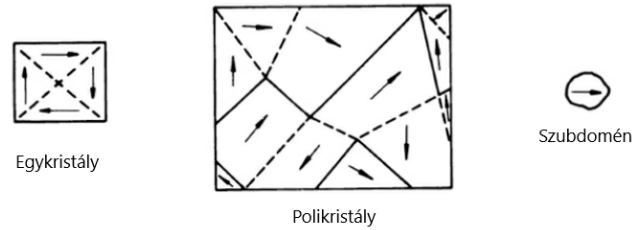
A ferrofluidum folyadék fázisban marad a mágneses tér szaturációja esetén is, a folyadék viszkozitását meghatározza a mágneses tér jelenléte. A hordozó folyadék eredeti viszkozitása emelkedik azáltal, hogy mágneses részecskéket diszpergálunk benne a részecskék energiadisszipációja miatt, ugyanúgy, mint minden szuszpenzió esetén. A viszkozitásnövekedést a részecskék mérete, koncentrációja és alakja is meghatározza. Külső mágneses tér jelenlétében nyírófeszültség hatására a tér irányultságától függően viszkozitásnövekedés figyelhető meg. A viszkozitásnövekedés nagyságát a Néel és Brown relaxáció is befolyásolja, így számos tényezőtől függ. Fontos a tér irányultsága, hiszen a nyírószilárdság növekedését a részecskék térrel párhuzamos láncokba és oszlop struktúrába rendeződése okozza.

A magnetoreológiai folyadékok viszkozitása jobban növelhető, közel szilárd állapot érhető el a szaturáció elérésével.

2.5. Mikromágnesesség, domének

A ferromágneses szilárd anyagok doméneket tartalmaznak, amelyekben az egyedülálló atomok mágneses dipólusai orientálódnak. A doméneket először Pierre Weiss írta le 1907-ben [25]. A doménstruktúrákat a 2.3. ábrán láthatjuk.

Az anyagok doménekre bonthatók, amelyek az anyag energiaminimumra való törekvése miatt alakulnak ki. A domének határainak kialakításához energia szükséges. A mágneses anyagok általános bemutatásánál a mágnesesség klasszikus értelmezését bemutattuk, ugyanakkor a doménelmélet alapjait Heisenberg magyarázta meg először 1928-ban kvantumelméleti alapon. A kvantummechanika szerint az atomok



2.3. ábra. Mágneses domének a ferromágneses szilárd anyagokban (ábra [25] alapján)

spin-je és pályamomentuma határozza meg, hogy a szomszédos atomok milyen energiaviszonyban állnak egymással.

2.6. Mágneses folyadékok

A mágneses folyadékokra jellemző, hogy kis méretű mágneses dipólussal rendelkező részecskéket tartalmaznak, így a hiszterézis jelensége elhanyagolható, vagy rendkívül kismértékű, sem remanencia (maradó mágnesezettség), sem koercivitás (annak mértéke, hogy egy anyag mennyire tartja meg a kialakított belső rendezettséget) nem figyelhető meg bennük.

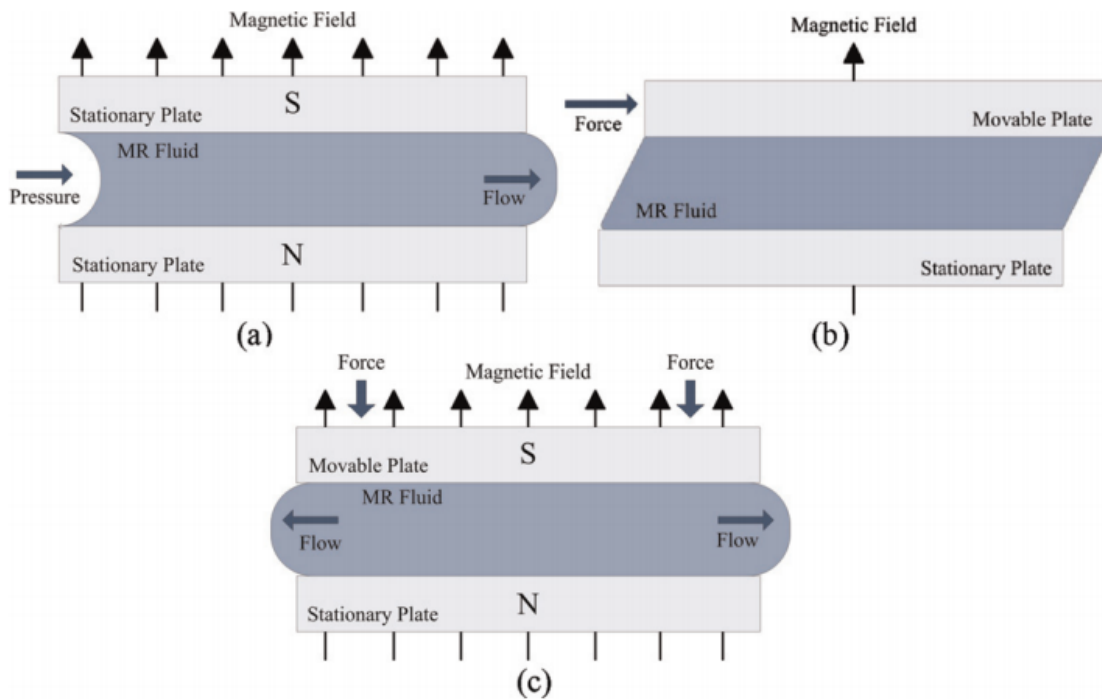
A mágneses folyadékok közé tartoznak a magnetoreológiai (MR) folyadékok is. MR folyadékok esetén a részecskék mikron és e fölötti mérettartományban találhatóak, mágneses térben sokkal nagyobb viszkozitással rendelkeznek, akár szilárd állapotba is hozhatók. A ferrofluidumok ehhez képest nagyon nagy mágneses térben is folyékony állapotban maradnak.

2.6.1. Ferrofluidumok

A mágneses folyadékok leggyakoribb típusa a ferrofluidum. A ferrofluidum egy koloid, melynek lényege, hogy egy folytonos médiumban egyenletes eloszlásban találhatóak részecskék. Szuszpenzióknak nevezzük azokat az anyagokat, amelyekben a részecskék ülepedése minimális. A ferrofluidumok szuszpenzióknak tekinthetők, azonban állandó erőterben koncentrációgradiens figyelhető meg. A ferrofluidumok 2-15 nm átmérőjű dipólusmomentummal rendelkező ferromágneses vagy antiferromágneses részecskéket tartalmaznak, melyek **monodomének**. A részecskéket felületaktív anyaggal vonják be azért, hogy az aggregáció és az ülepedés minimális legyen. A Brown-féle véletlenszerű hőmozgás a részecskéket szuszpendált állapotban tartja. A ferrofluidumok mesterségesen létrehozott anyagok, a természetben nem találhatóak meg.

2.6.2. Magnetoreológiai folyadékok

Magnetoreológiai folyadékok esetén a ferromágneses részecskék szintén egy hordozóközegben vannak eloszlva. A szemcsék már nem diszperz eloszlásban vannak, az ülepedés sokkal jellemzőbb, alkalmazásuk esetén erre kiemelt figyelmet kell fordítani. A szemcsék mérete mikrométeres nagyságrendbe tartozik, emiatt a szemcse nem csak egy domént tartalmaz (külső tér hiányában a részecskék eredő dipólusmomentuma zérus), a ferrofluidumokra jellemző relaxáció nem figyelhető meg. A folyadék



2.4. ábra. Magnetoreológiai folyadékok alkalmazása során kihasznált jelenségek [26]

látszólagos viszkozitása egészen a közel szilárd állapotig növelhető, sokkal nagyobb térerősség mellett kerülnek szaturációs állapotba. Alkalmazásuk esetén három különböző módon lehet kihasználni a viszkozitásnövekedést (2.4. ábra). Abban az esetben, ha két álló fal között áramlik a folyadék mágneses térben, a folyási ellenállást használják ki (a) flow mode). Amennyiben az egyik fal rögzített, a másikat vele párhuzamosan toljuk el, a folyadék nyírószilárdsága miatt ellenerőt fejt ki a falakra (b) shear mode). Abban az esetben, ha a két falat közelítjük egymáshoz, a köztük lévő MR folyadék kiáramolni kényszerül, így a két hatás egyszerre jelentkezik (c) squeeze mode).

A jelenségek kihasználásával tengelykapcsoló, fék, csapágy és tömítés alakítható ki [26].

2.7. Mágneses folyadékok előállítása

A ferrofluidumok többnyire vas-oxidokat tartalmaznak. Ezek a természetben megtalálhatók, viszonylag egyszerűen alakíthatók mágneses folyadékok előállításához. Nyolcféle vas-oxid ismert, ezek között leggyakoribb a hematit ($\alpha - Fe_2O_3$), magnetit (Fe_3O_4) és a maghemit ($\gamma - Fe_2O_3$) [27].

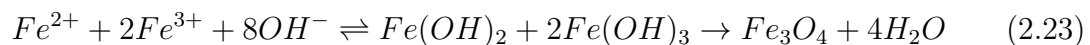
A hematit a legstabilabb vas-oxid és n-típusú félvezető normál környezeti körülmények között. Katalizátorként, pigmentként is alkalmazzák költséghatékonysága és a korrózióval szembeni nagymértékű ellenállása miatt. A magnetit és maghemit szintézise során prekursor.

2.7.1. Nanorészecskék előállítása

A részecskék elő lehet állítani precipitációval, termikus bontással, szol-gél szintézissel, mikroemulzióval, ultrahang besugárzással és biológiai szintézissel is. Minden technológia lehet vizes és vízmentes attól függően, hogy a részecskéket később milyen hordozóközegbe helyezzük.

Precipitáció

A leghagyományosabb módszer magnetit részecskék előállítására a precipitáció, amelynek során Fe^{2+} és Fe^{3+} ionokat vegyítenek 1:2 arányban bázikus oldószerben szobahőmérsékleten vagy magasabb hőmérsékleten. Az oldatban végbemenő kémiai reakció:



A reakció során (2.23. egyenlet) a magnetit magképződés gyorsabb, ha a vegyület pH-ja alacsonyabb, mint 11, ha ennél magasabb, akkor a szemcsék növekedése gyorsabb. A pH szabályozásával így a részecskék mérete korlátozottan ugyan, de befolyásolható. Más technológiákhoz képest a szemcseméret nagyobb szórást mutat. A felületaktív anyagokat már a lecsapatási folyamat közben hozzáadják a vegyülethez, így kerül el az aggregációt. A reakció végbemenetele után a vegyület szárítható, amely befolyásolja a mágnesség szaturációjának nagyságát. A precipitáció esetén a reakció nagyon gyorsan végbemegy, így a részecskék mérete, eloszlása és alakja korlátozottan befolyásolható.

Termikus bontás

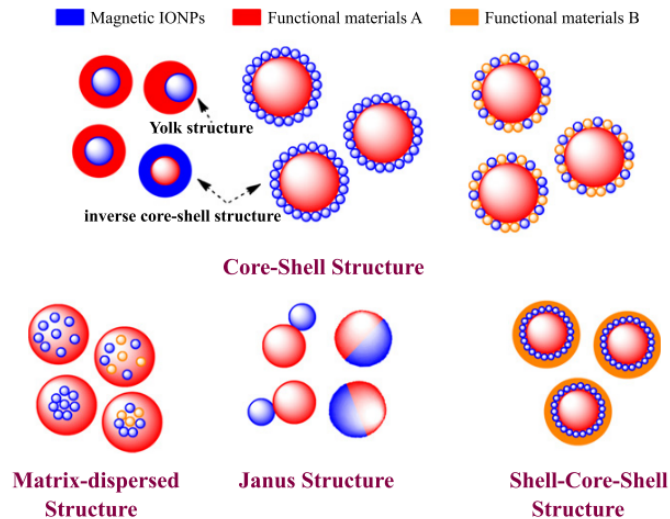
Vízmentes termikus bontás során a prekursorokat nagy hőmérsékletű keverékbe injektálják. Így a magképződés és a szemcsenövekedés jobban különválasztható, a reakció lassításának érdekében különböző stabilizátorokat alkalmaznak. A szemcsék lehetnek gömb alakúak, átmérőjük 30 nm alatti, de a méret szórása viszonylag nagy. A reakció paramétereinek szabályozásával a szemcsék alakja beállítható, lehet gömb és kocka alakú is. A termikus bontással létrehozott szemcséket többnyire apoláris hordozóközegbe helyezik. A termikus bontás során leggyakrabban karbonil vegyületekből indulnak ki.

Hidro- és szolotermikus szintézis

A termikus bomláshoz képest magasabb nyomáson történik a magas hőmérsékletű kamrába injektálás, mellyel előnyösebb a magnetit részecskék előállítása. A módszerrel diszlokáció mentes egykristály is előállítható, olyan anyagok esetén is alkalmazható, amelyek a forrásponton már nem stabilak. Jó minőségű nanokristály hozható létre, mellyel a szemcsék méretének szórása is minimalizálható. A reakcióidő szabályozásával a szemcsék alakja rendkívüli mértékben változtatható, nanokapszulák, üreges szemcsék is létrehozhatók.

Szol-gél reakció és poliól módszer

A módszert számos fémoxid előállításához alkalmazták korábban is. Egy kolloid oldat a prekursor, amely szemcséket vagy polimereket tartalmaz. A részecskékből



2.5. ábra. Felületaktív anyagok struktúrájának típusai [27]

hálózat alakul ki, amelyek a Van der Waals és hidrogénkötésekkel kapcsolódnak. A kötések a reakció során könnyen felbonthatók, így végeredményben kisméretű (akár 8 nm átmérőjű) szemcséket kapunk. Ezek a szemcsék mágneses szaturációja magas, biomedikus alkalmazásban elterjedtek. A módszerrel bonyolult struktúrák, például nanoketrecek is kialakíthatók.

Szonotermikus, ultrahangos előállítás

A szonolízis során nagy amplitúdójú, nagyfrekvenciás hanghullámokat alkalmazunk, a kavitáció kémiai hatását használják ki. Az előzőekhez képest kis nyomáson és alacsony hőmérsékleten tartható a vegyület, akár katalizátorok alkalmazása is elkerülhető, így biokompatibilis anyagok is előállíthatók. A szemcsék hosszú ideig stabilak maradnak, így közel tökéletes szuszpenzió valósítható meg. A módszer hátránya, hogy a szemcsék mérete és alakja nehezen befolyásolható.

Bioszintézis

Bioszintézis során baktériumokat alkalmaznak, a reakció során redukció vagy oxidáció történik. A módszernek szintén előnye, hogy biokompatibilis nanorészecskéket hozhatunk létre, de az elő-organizmusok befolyásolása nem egyszerű feladat.

2.7.2. Részecskék stabilizálása

A nanorészecskék legnagyobb és elkerülhetetlen problémája, hogy önmagukban instabilak. Egyrészt a felületi energia csökkentése érdekében a szemcsék aggregálódnak, másrészt a szemcsék gyorsan oxidálódnak nagy kémiai aktivitásuk miatt. Alkalmazásuk során törekszünk ezen jelenségek minimalizálására, ezért a részecskéken felületaktív anyagokat alkalmaznak. A felületaktív anyagok a kiülepedést is lassítják. A felületaktív anyag elhelyezkedése szerint különböző csoportokba soroljuk az egyes technikákat. Ezek lehetnek mag-héj, mátrix, Janus típusú, vagy héj-mag-héj struktúrájúak [27] (2.5. ábra).

Mag-héj struktúra

A vas-oxid magot szerves bevonattal látják el, amely a részecskét stabillá és biokompatibilissé teheti. A mag nem feltétlenül van a szemcse közepén, emiatt tojássárgája (yolk) struktúrájának is nevezik. A részecske így már kompozitként viselkedik, a végső fizikai tulajdonságai eltérőek az összetevők tulajdonságaitól. Kísérleteket végeznek fordított (inverz) rendszerekkel is, ahol a mágneses nanorészecske a héj, és a felületaktív anyag a mag, ezek fizikai tulajdonságai eltérőek, úgy, hogy megtartják félvezető és mágneses tulajdonságaikat. Az inverz rendszerek a szenzortechnikában és orvosi alkalmazásban használhatók ki.

Mátrix struktúra

A részecskék egy alapmátrixban helyezkednek el, így kisebb aggregátumok keletkeznek, amelyek nagyobb részecskékké nem tudnak összeállni. Különböző szemcse-nagyság érhető el így, amellyel a fizikai tulajdonságok befolyásolhatók.

Janus struktúra

A Janus struktúrában a szemcse fele a mágneses nanorészecske, a másik fele egy funkcionális anyag. A struktúrát többnyire orvosi alkalmazásban lehet kihasználni, így gyógyszermolekulák juttathatók el a szervezet jól meghatározott pontjaiba.

Héj-mag-héj struktúra

A héj-mag-héj struktúrában a mágneses nanorészecske két funkcionális anyag között helyezkedik el. Így olyan struktúra alakítható ki, amellyel a külső réteg felületaktív anyag, így megakadályozható az aggregáció és a kiüledés, a részecske stabillá és biokompatibilissé tehető, a belső réteg lehet például foszforeszkáló, így az orvosi diagnosztikában alkalmazható.

Szerves anyagok, egyéb molekulák

A mágneses részecske szerves bevonatával szintén az orvosi alkalmazások esetén kísérleteznek, diagnosztikai, árnyékolási, MRI-technikában.

A nanorészecskéhez speciális kémiai csoportok kapcsolhatók, amelyek további molekulákhoz kapcsolást tesznek lehetővé. Segítségükkel megoldható, hogy a részecske apoláris és poláris hordozóban is szuszpenziót alkothasson. A szuszpenzió akár évekig is stabil maradhat, jelentős aggregáció és kicsapódás nélkül, úgy hogy a részecske mágneses tulajdonságait megőrzi.

Polimerek

A polimer bevonatok esetén hosszú láncú molekulákkal vonják be a mágneses nanorészecskét. A szuszpenzió stabilitása jobb, mint az egyéb bevonatok esetén, számos funkcióra alkalmassá tehető (orvosi képalkotás, diagnosztika, terápia). Környezeti tényezők változtatásával (pH, hőmérséklet, fény) a részecskék fizikai tulajdonságai megváltoztathatók. A polimer bevonatok alkalmazásával a szemcsék mérete nagyobb, mágneses tulajdonságaik romlanak.

Szervetlen anyagok

Szervetlen bevonattal (szilícium dioxid, szén, fémek, fém-oxidok) nagy elektronsűrűség és magas fényelnyelés vagy akár foszforeszkálás is elérhető. Növeli a félvezető hatékonyságot, katalizátorként is működhet, azonosításra is alkalmassá teszi a részecskét. Előállításuk során nehéz megvalósítani, hogy a bevonat minden részecskét egységes vastagságban bevonjon, emellett ne tartalmazzon olyan részecskét amelyben nincs ferromágneses mag, mivel ez rontaná a hatékonyságot. Fémes bevonatokkal (akár több rétegben is) érdekes orvosi alkalmazásokban találkozhatunk, azonban a bevonatok kialakítása nehéz.

A mágneses folyadékok mágneses szuszceptibilitásának vizsgálatához nézzük meg, hogyan modellezhető a viselkedésük [28].

2.8. A mágnesezettség és a szuszceptibilitás modellezése

Mint említettük, a mágneses szuszceptibilitás a mágnesezettség térerősség szerinti differenciálhányadosa. Pontosabban a kezdeti szuszceptibilitás ezen differenciálhányados nulla térerősségnél vett értéke. Kölcsönhatás mentes dipoláris fluidumokra először Langevin adott zárt formulát a mágnesezettség térerősség függésére.

$$M = \mu\rho\mathcal{L}\left(\frac{\mu H}{k_B T}\right) \quad (2.24)$$

, ahol μ a mágneses dipólusmomentum, ρ a számsűrűség, $\mathcal{L}(x) = \coth(x) - 1/x$ a Langevin-függvény, k_B a Boltzmann-állandó, T a hőmérséklet.

Az irodalomban [29, 28, 30] többen használták mágneses kolloidok jellemzésére a Langevin egyenletet, de ez csak kis sűrűségek tartományában érvényes. A Langevin egyenletből származtatott kezdeti szuszceptibilitás

$$\chi_0 = \chi_L = \frac{\rho\mu^2}{3k_B T} \quad (2.25)$$

Ez a szuszceptibilitás formula is csak kis sűrűségek, illetve nagy hőmérsékleten érvényes. Kölcsönható rendszerekre először Weiss vezetett le zárt formulát a mágnesezettségre [22]. Ezt az elméletet átlagtér elméletnek is nevezik (Mean Field Theory)

$$M = \mu\rho\mathcal{L}\left(\frac{\mu H}{k_B T} + \frac{4\pi\mu}{3k_B T}M\right) \quad (2.26)$$

Látható, hogy ez az egyenlet a mágnesezettségre (M) egy implicit egyenlet. Rekurzív módon könnyen megoldható. Ebből az egyenletből származtatott kezdeti mágneses szuszceptibilitást, amit szintén Weiss származtatott

$$\chi_0 = \frac{\chi_L}{1 - \frac{4\pi}{3}\chi_L} \quad (2.27)$$

A Weiss elmélet, mint említettük egy átlagtér elmélet, azonban a fenti szuszceptibilitás formula csak korlátozottan alkalmazható ferrofluidumokra. Látható, hogy

a fenti egyenlet $\frac{4\pi}{3}\chi_L = 1$ -nél divergál. Ennek fizikai magyarázata a paramágneses-ferromágneses fázisátalakulás. Ilyen jelenség a mágneses folyadékoknál mai tudásunk alapján nem lehetséges, ezért ez az egyenlet a mágneses folyadékok mágneses szuszceptibilitásának leírására csak korlátozottan alkalmas.

Weiss MFT-t Ivanov és munkatársai fejlesztették tovább, perturbációelméleti alapon az alábbi egyenletet vezették le:

$$M = \mu\rho\mathcal{L}\left(H + \frac{4\pi}{3}M_L + \frac{(4\pi)^2}{144}M_L\frac{dM_L}{dH}\right). \quad (2.28)$$

Ivanov és munkatársai megmutatták, hogy ez az egyenlet jól használható mágneses folyadékok mágnesezettségének meghatározására.

Az egyenletből levezették, hogy

$$\chi_0 = \chi_L\left(1 + \frac{4\pi\chi_L}{3} + \frac{(4\pi\chi_L)^2}{144}\right) \quad (2.29)$$

Ivanov és munkatársai több publikációban is összehasonlították a fenti egyenletből származó kísérleti eredményekkel és jó egyeztetést találtak [30].

A dipoláris (elektrosztatikusan dipoláris) folyadékok szuszceptibilitásának számítására Wertheim dolgozott ki egy úgynevezett MSA elméletet [31]. Ezen elmélet keretében a kezdeti mágneses szuszceptibilitás is megadható:

$$\chi_0 = \frac{\chi_L}{q(-\xi)} \quad (2.30)$$

ahol $\chi_L = \rho\mu^2/(3k_B T)$ a Langevin szuszceptibilitás.

Az egyenletekben bemutatott $q(x)$ függvény a Persus-Yevick közelítésben

$$q(x) = \frac{(1+2x)^2}{(1-x)^4} \quad (2.31)$$

A ξ paraméter pedig az alábbi egyenlet megoldásából adódik.

$$4\pi\chi_L = q(2\xi) - q(-\xi) \quad (2.32)$$

Szalai és Dietrich sűrűségfüggő elméleti alapon megmutatták, hogy az MSA szuszceptibilitás az alábbi mágnesezettségi egyenlet alapján számolható [32, 33, 34].

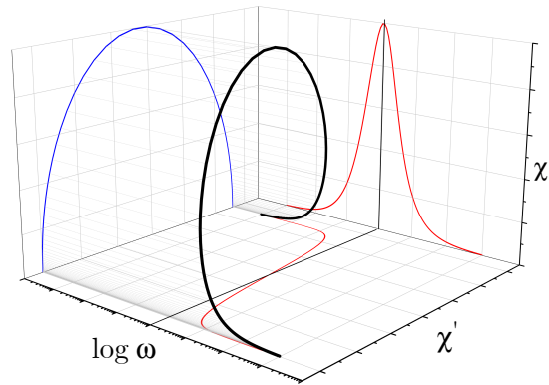
$$M = \mu\rho\mathcal{L}\left(\frac{\mu H}{k_B T} + 3M\frac{1 - q(-\xi)}{\mu\rho}\right) \quad (2.33)$$

ahol μ a mágneses dipólusmomentum, ρ a számsűrűség, $\mathcal{L}(x) = \coth(x) - 1/x$ a Langevin-függvény, k_B a Boltzmann-állandó, T a hőmérséklet és q a merev gömbök redukált inverz kompresszibilitási függvénye [35], melyben ξ az MSA egyenlet implicit megoldása.

Ha $q(-\xi) = 1$ a 2.33. egyenlet a Langevin mágnesezettséget adja vissza (2.24), és a Langevin szuszceptibilitás megegyezik a nulla térerősség mellett vett szuszceptibilitással, χ_0 -lal.

Ha $q(-\xi) = 1 - (4\pi/3)\chi_L$, akkor a mágnesezettségi egyenlet a MFA formában írható fel.

$$M = \mu\rho\mathcal{L}\left(\frac{\mu}{k_B T}(H + 4\pi M/3)\right) \quad (2.34)$$



2.6. ábra. A Debye-egyenlet szerint megadott komplex szuszceptibilitás spektrum három dimenziós reprezentációja

2.9. Mágneses szuszceptibilitás időben változó mágneses térben

A külső mágneses térbe helyezett anyagban a mágnesezettség kialakulásához idő szükséges, amelyet relaxációnak nevezünk. Ez az egyensúlyi állapot bekövetkezéséhez szükséges időt jelenti. Amennyiben megszüntetjük a mágneses teret, a mágnesezettség megszűnéséhez szintén idő kell. Tekintsük a folyadékot rendszernek, amelynek bemenete a mágneses térerősség (H), kimenete a mágnesezettség (M). Ekkor

$$M(t)(\omega) = \chi H(t)(\omega) \quad (2.35)$$

mágnesezettség alakul ki az anyagban. Ha a tér időben periodikus, akkor az anyag mágneses szuszceptibilitását komplex mennyiségnek tekintjük. Ezt felbontjuk $\chi'(\omega)$ valós és $\chi''(\omega)$ képzetes részre, vagyis

$$\chi(\omega) = \chi'(\omega) - j\chi''(\omega) \quad (2.36)$$

ahol j a képzetes egység. A relaxáció modellezésére a Debye-egyenletet vagy ennek valamelyik változatát (pl. Cole-Cole egyenlet) szokás alkalmazni, amely dielektrikumokra lett eredetileg felírva, de esetünkben is alkalmazható.

$$\chi(\omega) = \chi_\infty + \frac{\chi_s - \chi_\infty}{(1 + j\omega\tau)} \quad (2.37)$$

ahol χ_∞ a szuszceptibilitás nagyfrekvenciás határértéke, χ_s a szuszceptibilitás kisfrekvenciás határértéke, τ pedig a relaxációs időállandó.

A Debye-egyenlettel [36] megadott komplex szuszceptibilitás függvény ábrázolását a 2.6. ábra szemlélteti.

2.10. Polidiszperzitás és relaxációs időállandók nem Debye viselkedése

A fejezet célja a 2.9 pontban bemutatott Debye-egyenlet kiterjesztése polidiszperz és részecskék kölcsönhatását is figyelembe vevő rendszerekre. Bevezetjük a relaxációs

idő eloszlás formális leírását, az empirikus és fizikai modelleket, valamint összekötjük a mérési eltérésekkel.

A 2.37 egyenletben bemutatott Debye-egyenlet egyetlen, jól definiált relaxációs időt feltételez. Valós ferrofluidumokban a részecskeátmérő, a hidrodinamikai térfogat, az anizotropia, a mag-héj szerkezet és a dipólus-dipólus kölcsönhatások elkerülhetetlenül torzulásokat okoznak a rendszer dinamikai viselkedésében, a szuszceptibilitás spektrum szélesedik és aszimmetrikussá válik (nem Debye-viselkedés). A képzetes szuszceptibilitás csúcsa így eltér a modellekben bemutatott $\omega\tau = 1$ ponttól és formától, amit a 2.6 ábrán látható "körív" torzulása jelez a $\chi' - \chi''$ síkon. A ferrofluidumok dinamikáját leíró elméleti és szimulációs munkák kimutatják, hogy a polidiszperzitás és az interakciók együtt a csúcs alacsonyabb frekvenciák felé tolását és a görbe szélesedését okozzák [30].

2.10.1. Folytonos relaxációs időeloszlás (DRT)

A nem Debye jelenségek általános leírására bevezetjük a relaxációs idők folytonos eloszlását $g(\ln \tau)$ (normált: $\int g(\ln \tau) d \ln \tau = 1$). Ekkor az egyensúlyi és a nagyfrekvenciás határérték közötti $\Delta\chi = \chi_s - \chi_\infty$ mellett

$$\chi^*(\omega) = \chi_\infty + \Delta\chi \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{g(\ln \tau)}{1 + i\omega\tau} d \ln \tau \quad (2.38)$$

A DRT alapú kiértékelés előnye, hogy modellmentesen képes az eloszlás szélességét és asszimetriáját megbecsülni [37].

2.10.2. Empirikus spektrummodellek

Az empirikus spektrummodellek a relaxációs időeloszlás nem Debye viselkedését írják le [38, 36]:

- Cole-Cole (CC):

$$\chi^*(\omega) = \chi_\infty + \frac{\Delta\chi}{1 + (i\omega\tau)^\alpha}, \text{ ahol } 0 < \alpha \leq 1 \quad (2.39)$$

- Cole-Davidson (CD):

$$\chi^*(\omega) = \chi_\infty + \frac{\Delta\chi}{[1 + i\omega\tau]^\beta}, \text{ ahol } 0 < \beta \leq 1 \quad (2.40)$$

- Havriliak-Negami (HN):

$$\chi^*(\omega) = \chi_\infty + \frac{\Delta\chi}{[1 + (i\omega\tau)^\alpha]^\beta} \quad (2.41)$$

A CC a Cole-Cole síkon ($\chi' - \chi''$) való szimmetrikus kiszélesedést jellemzi, α a szélesség paramétere. A CD az aszimmetrikus, elnyúló görbe jellemzésére alkalmas, a HN pedig egyesíti a CC és CD modellek tulajdonságait, a gyakorlatban ez adja a legjobb illesztést polidiszperz és/vagy kölcsönható rendszerekre [29].

2.10.3. Méreteloszlás és időállandók összefüggése

A 2.4.2. fejezetben bemutatott két domináns mechanizmus, a Brown- (részecske forgása a folyadéokban) és a Neél-relaxáció (a mágneses dipólusmomentum átbillenése az anizotrópia gáton). Polidiszperz rendszer esetén a Brown időállandó arányos a térfogattal (2.21). Ha a hidrodinamikai térfogat ($V_h \approx D^3$) log-normális, akkor $\ln \tau_B$ normális, τ_B log-normális eloszlású. A Neél időállandó $\tau_N = \tau_0 \exp(KV/(k_B T))$. Ekkor $\ln \tau_N = \ln \tau_0 + (K/k_B T)V$, vagyis a térfogateloszlás lineáris összefüggésben van $\ln \tau_N$ -nel. Jellemzően ez nagysgrendekkel szélesebb eloszlást és erős hőmérsékletfüggést okoz [39].

2.10.4. Kölcsönhatások és aggregáció

Koncentrált ferrofluidumokban a dipólus-dipólus kölcsönhatás, a lánc és klaszterképződés és a lokális szerkezetek erősen torzítják a szuszceptibilitás spektrumokat. A képzetes rész csúcsa lejjebb tolódik (a relaxáció lassul), szélesedik és a Cole-Cole diagram laposabbá, ellipszoiddá válik. A mágneses mező amplitúdója befolyásolja a spektrumot, nemlinearitások megjelenésével ($2\omega, 3\omega$ komponensek) és a relaxációs időállandó eltolódásával jár.

2.10.5. Térerősség és maradó mágnesezettség függő relaxációs idők

A relaxációs idők térerősség függése - még gyenge váltakozó térben is - kimutatható, így a spektrum csúcsa amplitudó függvényében eltolódik. Ez különösen fontos a nemlineáris mérések esetén, illetve a mágneses hipertermia, MPI alkalmazásoknál [40].

2.11. Mágneses szuszceptibilitás mérésére alkalmas módszerek áttekintése

A mágneses szuszceptibilitás mérése az anyagok mágneses viselkedésének megértését és jellemzését teszi lehetővé. Mérésével vizsgálható az anyagok reakciója a külső mágneses tér hatására, ezáltal információt nyújt az anyagok szerkezetéről és összetételéről. Pontos és megbízható adatok ismeretében az alkalmazás során fontos tulajdonságaikat ismerhetjük meg. Az eredmények felhasználhatók anyagtudományi kutatásokban, mélyebb betekintést adnak az anyagok szerkezetébe és viselkedésébe. Kutatási területünk elsősorban a mágneses folyadékokhoz tartozik. Ezen anyagok tulajdonságai a külső hatások által nagymértékben befolyásolhatók, így alkalmazásukhoz feltétlenül szükséges ismernünk, hogy mi milyen mértékben módosítja viselkedésüket.

Ipari alkalmazások esetén az anyagok kiválasztásában nyújtanak segítséget, szenzorokban és aktuátorokban alkalmazva ezeket az anyagokat új perspektívákat nyithatunk meg.

Geofizikai kutatások során a kőzetek és talajok mágneses tulajdonságainak ismerete segíthet megérteni a földtani jelenségeket és felhasználható archeológiai kutatásokban is.

A mágneses szuszceptibilitás mérése kritikus jelentőségű a mágneses rezonancia képalkotás (MRI) területén. Az emberi szövetek mágneses szuszceptibilitása befolyásolja a képalkotás minőségét és érzékenységet, így a mérés elengedhetetlen a pontos diagnózis és kezelés szempontjából. A mágneses folyadékok alkalmazhatók mind diagnosztikai, mint terápiás célokra, olykor egyszerre is, ezt hívják teranosztikának.

A fejezetben bemutatunk néhány mágneses szuszceptibilitás mérésére alkalmas módszert a teljesség igénye nélkül. A mérési módszerek sokfélék lehetnek, de négy nagy csoportba sorolhatók [41, 42].

- Erőmérő módszerek: Guoy és Faraday mérleg, torziós és alternáló magnetométerek
- Indukciós és váltakozó áramú eljárások: kölcsönös indukciós hidak, AC szuszceptométerek
- Közvetlen magnetométerek: Rezgőmintás (VSM) és SQUID magnetométerek
- Speciális és kiegészítő módszerek: Mechanikai magnetometria és optikai módszerek

2.11.1. Erőmérő módszerek

Guoy-módszer

A Guoy-módszer a mágneses szuszceptibilitás mérésének egyik legrégebbi és a szeretlen kémiai gyakorlatban a leginkább elterjedt megoldás. A módszert Louis Georges Guoy mutatta be a 19. század végén. A mérési módszer lényege, hogy a mérendő minta egy hosszú, keskeny csőben inhomogén mágneses térbe kerül. A csőben lévő anyagra ható erő függ a mágneses szuszceptibilitástól. A minta a mágnes pólusai között úgy helyezkedik el, hogy egyik része nagy mágneses térben van, a másik gyakorlatilag anélkül. Amennyiben V térfogatú mintát helyezünk mágneses térbe, annak energiája megváltozik. A megfelelő mágnesszettség:

$$M_C = M \cdot V \quad (2.42)$$

Az energiaváltozás nagysága

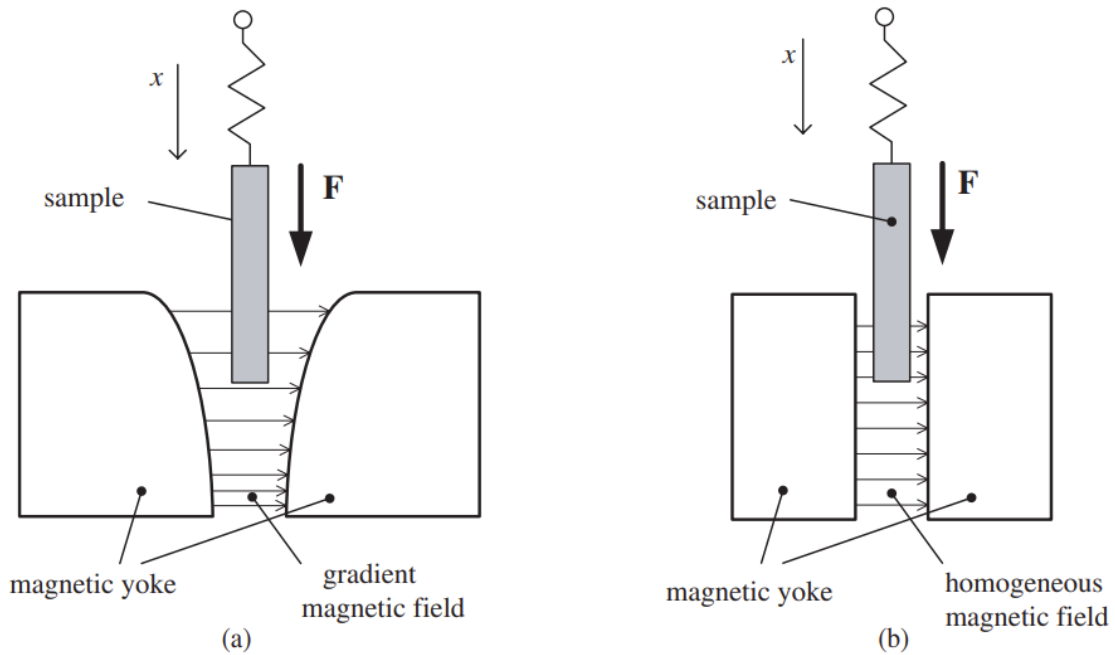
$$E = -\frac{1}{2}\mu_0 M_C H \quad (2.43)$$

A mintára ható erő az energiaváltozásból származtatható

$$F = -\frac{dE}{dx} = \frac{1}{2}\mu_0 V \frac{d(M_C H)}{dx} = \mu_0 \chi_m V H \frac{dH}{dx} \quad (2.44)$$

Az egyenletből látható, hogy a minta szuszceptibilitásával arányos a mintára ható erő.

Ezt a kis nagyságrendű erőt analitikai mérleggel is mérhetjük, ezért nevezik mérleg módszernek.



2.7. ábra. Faraday (a) és Guoy (b) mérleg (Ábra forrása: [41])

Faraday-mérleg

A Faraday-mérleg szintén erőmérő elven működik, de a minta térfogatára ható mágneses térgradiens közel állandó, a HdH/dz szorzat állandó. A minta egy erőmérő cellára, vagy nagy pontosságú analitikai mérlegre felfüggesztve helyezkedik el.

Mivel a Guoy-módszerhez képest a mintára inhomogén mágneses mező hat, az eredmény kevésbé érzékeny a minta homogenitására (pl. ferrofluiduok esetén az ülepedés), kisebb mintamennyiség is elegendő és az egykristály anyagokon is jó reprodukálhatósággal rendelkezik.

A Faraday mérleg esetén a mágneses térerősség nem állandó a kitéréssel, a Guoy mérleg esetén igen, ez látható a 2.7 ábrán.

Az erőmérő módszerek alkalmazhatók váltakozó mágneses tér esetén is, a mintára ható erő ezáltal alternálóvá válik, a rezgő mintatartó elmozdulását érzékeny detektorral mérik. A rezgés lehet alternáló és forgó is. Ezzel extrém kisméretű, pl. nanostruktúrák mágneses válaszát is mérni lehet [43].

2.11.2. Indukciós és váltakozó áramú módszerek

A váltakozó áramú szuszceptometria esetén a mérendő mintát egy gerjesztő tekercs által létrehozott, harmonikusan váltakozó mágneses térbe helyezik. A minta mágneszettségének változása egy felvevő tekercsben indukál feszültséget. Így a rendszer hasonlóan működik, mint egy transzformátor. A szekunder tekercsben indukált feszültség nagysága arányos a minta mágneses szuszceptibilitásával. A gerjesztés és a rá adott válasz időbeli késleltetésének meghatározásával a komplex mágneses szuszceptibilitás is mérhetővé válik.

A gyakorlati megvalósítás során a két tekercs kölcsönös indukciós hídba kapcsolódik, az indukált feszültséget impedancia analízátorral vagy lock-in méréstechnikával határozzák meg. A frekvenciafüggésből részletes információ nyerhető a relaxációs

jelenségekről és fázisátmenetekről [44].

A módszer alkalmazásának előnye, hogy kis mágneses szuszceptibilitás esetén is alkalmazható, lehetővé válik a komplex szuszceptibilitás mérésének lehetősége, viszonylag egyszerű a megvalósítása és a térerősség jól definiálható. A mérőrendszer tervezésekor és az eredmények kiértékelésekor figyelembe kell venni a mintarató anyagát és geometriai tulajdonságait, az örvényáramokat, hiszterézist és a nemlineáris válasz okozta jelenségeket.

2.11.3. Közvetlen magnetométerek

Rezgőmintás magnetométer (VSM)

A rezgőmintás magnetométer (Vibrating Sample Magnetometer (VSM)) Simon Foner találmánya az 1950-es évekből [45], ma egy elterjedt megoldás szilárd minták mágneses szuszceptibilitásának mérésére. A VSM működési elve Faraday indukciós törvényén alapul: a homogén mágneses térben elhelyezett mintát tipikusan 10-100 Hz frekvenciával rezgetik. A minta környezetében lévő felvevő tekercsben a minta mágnesezettségéből származó fluxus időbeli változása elektromotoros erőt indukál. A mérhető feszültség amplitúdója arányos a minta mágnesezettségével, a $M(H)$ hiszterézisgörbe is felvehető.

A módszer előnye, hogy széles mágneses térerősség intervallumban, (tipikusan néhány teszláig), nagy frekvenciatartományban alkalmazható és széles hőmérsékleti tartományban termostálható. A mágnesezettségi görbe kezdeti meredekségéből számraztatható a kezdeti mágneses szuszceptibilitás is.

SQUID magnetométer

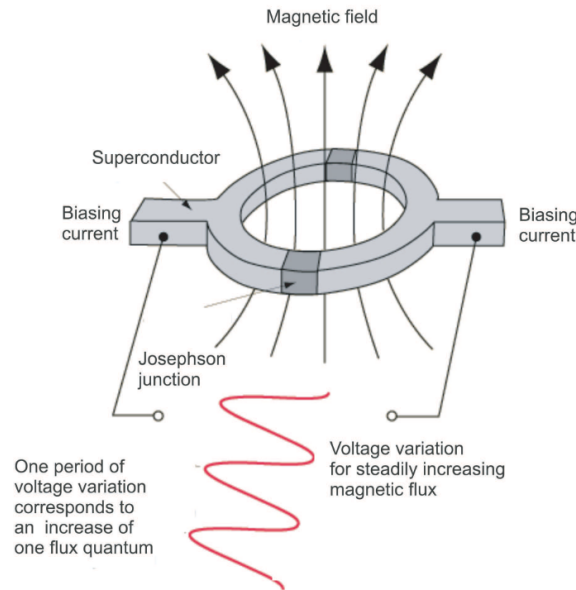
A SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) a máig ismert legérzékenyebb fluxus-érzékelők közé tartozik. Egy szupravezető gyűrűbe integrált Josephson-átmenetek révén a mágneses fluxus kvantálódik; a SQUID kimenőjele rendkívül kis fluxusváltozásokra is érzékeny [41].

A magnetométerben a minta mágneses dipólusmomentuma által létrehozott fluxust egy tekercsrendszer csatolja a mérőrendszerbe. Állandó és váltakozó mágneses térben is használható. Mivel a szenzort szupravezető állapotban kell tartani, nagyon alacsony (4.2 K) hőmérséklet fenntartására van szükség, rendszeres kalibrálás és a minta elhelyezésének szigorú protokollja miatt költséges mérési eljárásnak tekinthető, de gyengén mágnesezhető félvezetők esetén is alkalmazható, komplex mágneses fázisdiagramok felvételére (spinüveg, többfázisú rendszerek, stb.) is lehetőséget biztosít.

2.11.4. Szuszceptibilitás mérés speciális módszerei

Evans módszer

Az Evans módszert NMR-alapú oldat szuszceptometriának is hívják, melynek lényege, hogy a Guoy-módszert alkalmazva egy paramágneses oldat mágneses szuszceptibilitása kis eltolást okoz a gerjesztés és a válaszjel frekvenciájában. A frekvenciakülönbségből és a minta fizikai paramétereiből számítható a mágneses szuszceptibilitás [46].



2.8. ábra. SQUID magnetométer működési elve [41]

Előnye, hogy kis mintamennyiséggel, egyszerű mérési módszerrel viszonylag gyorsan és jó pontossággal ad információt a paramágneses komplexek spinállapotáról. Hátránya, hogy nagy relaxációs sebességnél és anizotróp mágneses viselkedés esetén a kiértékelés bonyolult lehet.

Mechanikai és optikai módszerek

A nanomechanikai elrendezések rendkívül kis minták (nanomágnesek, 2D anyagok) statikus és dinamikus szuszceptibilitását képesek mérni széles frekvenciatartományban a mechanikai rezonanciák kihasználásával.

Az optikai módszerek (Faraday- és Kerr-effektus) a fény polarizációjának mágneses tér hatására bekövetkező változását használják ki a mágneses tulajdonságok detektálására. Különösen vékony filmek és felületi rétegek esetén előnyösek, ahol a hagyományos térfogati magnetometria nem alkalmazható [46].

2.11.5. Mágneses folyadékok szuszceptibilitásának mérésének sajátosságai

Mágneses folyadékok szuszceptibilitásának mérése esetén a statikus esetet vizsgálni nem elégséges, a mechanikai dinamikus mérési módszerek pedig olyan frekvenciatartományban működőképesek, amelyek a mágneses folyadékok esetén már nem alkalmasak a végbemenő relaxációs jelenségek vizsgálatára. A mágneses folyadékok mágneses szuszceptibilitásának méréséhez többféle frekvencián különböző térerősség mellett kell vizsgálni a szuszceptibilitást, tekintettel arra, hogy az anyag nem homogén, viselkedését nagy mértékben meghatározza az, hogy kolloid állapotú anyagról van szó. A mérést nehezíti, hogy a környezeti tényezők (pl. hőmérséklet) nagymértékben befolyásolják az anyagok viselkedését.

Az erre a célra kifejlesztett mérőrendszerek többnyire valamilyen szolenoidot tartalmaznak, amelynek magjában található a mágneses folyadék. A mérőeszközök egy

része induktivitást, kapacitást és ellenállást mér, ezáltal meghatározható a tekercsbe helyezett anyag mágneseles szuszceptibilitása [47]. A mérőeszközök kialakításához, behangolásához jó alapul szolgálnak ebben a disszertációban is tárgyalt matematikai modellek.

Az induktivitás alapú mérőrendszerek kHz-es méréstartományig alkalmasak az AC szuszceptibilitás mérésére. Más rezonancián alapuló mérőeszközök alkalmazásához hosszú mérési idő szükséges. A toroid tekercssel rendelkező mérőrendszerek a GHz-es méréstartományban is működőképeseek, de rosszabb az érzékenységük, valamint a mérendő minta kezelése nehézkes [41].

2.11.6. A saját fejlesztésű mérőrendszer szükségessége

A dolgozat célkitűzései alapján a vizsgálatok középpontjában a mágneseles folyadékok frekvenciafüggő *komplex* szuszceptibilitása áll, továbbá a nemlineáris válasz felharmonikus komponensei is releváns információt hordoznak. E követelmények már önmagukban indokolják, hogy a bemutatott módszerek közül olyan elrendezést válasszunk, amely (i) közvetlenül komplex mennyiséget szolgáltat (amplitúdó és fázis), (ii) alkalmas kis jelek nagy zajban történő detektálására, és (iii) a harmonikus detektálás lehetőségét is biztosítja lock-in technikával.

A klasszikus, illetve közvetlen magnetométeres eljárások (erőmérő módszerek, VSM, SQUID stb.) sok esetben elsősorban statikus vagy kvázistatikus információt adnak, illetve a dinamikus spektrum felvétele és a mintakezelés (különösen folyadék minták esetén) nem illeszthető rugalmasan a vizsgálni kívánt protokollhoz. A jelen értekezésben viszont a cél a spektrumok összehasonlítható, visszakövethető felvétele és a mérési korlátok számszerű kezelése, amihez a mérési geometria, a mintatartó, a gerjesztés és a kiértékelési lánc kontrollja szükséges.

Mágneseles folyadékoknál a mérési tartomány megválasztása különösen kritikus: ferrofluidumok esetén a részecskekinematika miatt a kisfrekvenciás tartomány kiemelt, és a térerősséget alacsonyan kell tartani, hogy elkerüljük az aggregációt és a struktúraképződést; magnetoreológiai folyadékoknál pedig eltérő mikroszerkezeti okok miatt más jellegű korlátok jelennek meg. Ez a gyakorlatban olyan testreszabott gerjesztést, tekercsgeometriát és mérőcellát igényel, amely a vizsgált anyagcsaládhoz illeszkedik.

Az indukciós és AC alapú módszerek állnak legközelebb a fenti célokhoz, ugyanakkor a kísérleti megvalósításnál és a kiértékelésnél kezelni kell a mintatartó és geometriai tényezők hatását, az örvényáramokat, a hiszterézist, valamint a későbbiekben a nemlineáris válasz okozta torzításokat.

Végül a gyártói adatlapok tipikusan csak korlátozott összehasonlítási alapot adnak (például kezdeti szuszceptibilitás megadása mérési körülmények részletezése nélkül), ezért a dolgozat céljai szempontjából különösen fontos egy egységes, dokumentált mérési protokoll és egy reprodukálható mérőrendszer kialakítása, valamint indokolt egy saját mérőberendezés kialakítása, amelynél a gerjesztés stabilitása, a sáv szélesség, a fázisviszonyok és a kalibráció egy kézben tartható, amelynek eredményei később elméleti modellekhez is konzisztensen illeszthetők.

2.12. Lock-in mérés technika

A mérőeszköz amelyet kifejlesztettünk a lock-in mérés technikán alapul, ezért tekintjük át ennek lényegét.

A korszerű kísérleti fizika és mérés technika egyik visszatérő problémája a nagyon kis jelek meghatározása jelentős zaj jelenlétében. Sok alkalmazásban a hasznos jel amplitúdója nagyságrendekkel kisebb lehet a környezeti zajnál. Ilyen esetekben a hagyományos egyen- vagy váltófeszültség-mérés, illetve spektrumanalízis önmagukban nem elegendő.

A lock-in mérés technika - vagy lock-in detektálás - olyan módszer, amely ismert frekvenciájú és fázisú referenciajel segítségével szelektíven „kiszűri” a hasznos jelet a zajból. A technika kulcsa a fázisérzékeny detektálás (phase-sensitive detection, PSD), amely nagyfokú szelektivitást biztosít a referenciafrekvencián, miközben a más frekvenciákra eső zajkomponenseket hatékonyan elnyomja. Lock-in erősítő alatt ma már teljes mérés technikai alrendszer értünk, amely tartalmazza a jel előerősítését, a referenciajel-kezelést, a keverést (szorzást), szűrést, valamint a kimeneti jel amplitúdó- és fázisinformációjának előállítását.

Az alábbiakban áttekintjük a lock-in mérés technika elvi alapját, gyakorlati analóg és digitális megvalósítását, a jel/zaj arány (SNR) javításának eszközeit, a módszer gyakorlati korlátait és alkalmazási területeit [48, 49, 50].

2.12.1. Elvi alapok: fázisérzékeny detektálás

A mérendő jel modellje

Tegyük fel, hogy a mérendő detektorjel a következő formában írható:

$$u_{in}(t) = A \cos(\omega_0 t + \varphi_s) + n(t) \quad (2.45)$$

ahol

- A a hasznos jel amplitúdója,
- $\omega_0 = 2\pi f_0$ a jel (és a referencia) körfrekvenciája,
- φ_s a jel fázisa,
- $n(t)$ pedig a zaj, amely lehet fehérzaj, $1/f$ zaj, hálózati zavar (50/60 Hz, illetve felharmonikusai), valamint más, nem kívánt összetevők kombinációja.

A lock-in technika egyik alapvető lépése, hogy a mért jel frekvenciáját ismert, jól definiált értékre „kényszerítjük”, tipikusan moduláció segítségével. Ez történhet például mechanikus (chopper), elektromechanikus vagy elektronikus modulációval. A moduláció frekvenciája lesz a lock-in referenciafrekvenciája f_0 .

Referenciajel és szorzás

A lock-in erősítő referencia bemenetére olyan jel érkezik, amely pontosan ismeri (vagy vezérli) a moduláció frekvenciáját és fázisát. A referenciajel ideális esetben:

$$u_{ref}(t) = \cos(\omega_0 t + \varphi_r) \quad (2.46)$$

A lock-in detektálás lényege a szorzás (keverés) a bemeneti jellel:

$$u_{mix}(t) = u_{in}(t) u_{ref}(t) \quad (2.47)$$

A fenti jelalakot szétbontva:

$$u_{mix}(t) = [A \cos(\omega_0 t + \varphi_s) + n(t)] \cos(\omega_0 t + \varphi_r) \quad (2.48)$$

A hasznos jelre eső rész:

$$A \cos(\omega_0 t + \varphi_s) \cos(\omega_0 t + \varphi_r) = \frac{A}{2} [\cos(\varphi_s - \varphi_r) + \cos(2\omega_0 t + \varphi_s + \varphi_r)] \quad (2.49)$$

Látható, hogy a szorzás eredménye egy DC komponensből $\cos(\varphi_s - \varphi_r)$ és egy kétszeres frekvenciájú komponensből $\cos(2\omega_0 t + \dots)$ áll. Amennyiben a kimeneti jelet aluláteresztjük olyan szűrővel, amely elnyomja a $2\omega_0$ és magasabb frekvenciákat, a jel átlaga a következőhöz konvergál:

$$\langle u_{mix}(t) \rangle \approx \frac{A}{2} \cos(\varphi_s - \varphi_r) \quad (2.50)$$

A zajjal kapcsolatos szorzás:

$$n(t) \cos(\omega_0 t + \varphi_r) \quad (2.51)$$

tipikusan olyan spektrumú marad, amelynek átlaga - megfelelően hosszú integrálási idő és kellően széles spektrumú zaj esetén - közel zérus. Ezzel szemben a hasznos jelhez tartozó DC komponens nem tűnik el, így a jel/zaj arány jelentősen javul.

Komplex komponensek

A lock-in erősítők túlnyomó többsége kétdimenziós (vektoros) detektálást valósít meg: a bemenő jelet egyszerre szorozza meg egy koszinusz és egy szinusz referenciájellel:

$$\begin{aligned} u_X(t) &= u_{in}(t) \cos(\omega_0 t) \\ u_Y(t) &= u_{in}(t) \sin(\omega_0 t) \end{aligned} \quad (2.52)$$

A megfelelő szűrés után a kimeneti (átlagolt) értékek:

$$\begin{aligned} X &\approx \frac{A}{2} \cos(\varphi_s) \\ Y &\approx \frac{A}{2} \sin(\varphi_s) \end{aligned} \quad (2.53)$$

Ebből az amplitúdó és fázis:

$$\begin{aligned} R &= \sqrt{X^2 + Y^2} \approx \frac{A}{2} \\ \varphi_s &= \arctan\left(\frac{Y}{X}\right) \end{aligned} \quad (2.54)$$

Az X és Y komponensek tehát a jel fázisban lévő és 90° -kal eltolt fázisú összetevői. Ez a reprezentáció különösen hasznos, ha a mérendő rendszer válaszában fázisa is információt hordoz (pl. komplex impedancia, átviteli függvény mérése).

2.12.2. Analóg lock-in erősítők felépítése

Jelfeldolgozás: előerősítő és sávkorlátozás

A lock-in erősítő bemenetére általában nagyon kis amplitúdójú jel érkezik (mikrovolt-millivolt tartomány), ennek megfelelően a jelfeldolgozásnak az alábbi feladatot kell ellátnia:

1. Bemeneti előerősítő: nagy bemeneti impedancia, alacsony zaj, választható erősítési tartományok (pl. $1 \times 10^6 \times$).
2. Sávszűrők: gyakran alkalmaznak előzetes sávszűrést a túlfutás és a telítődés csökkentésére, valamint bizonyos zavarok (pl. hálózati zavar) részleges elnyomására.
3. Anti-aliasing szűrő (digitális lock-in esetén): a mintavételezés előtti sávkorlátozás.

A bemeneti fokozat tervezésénél kiemelt szempont a dinamikus tartalék (dynamic reserve): az a képesség, hogy a hasznos jel amplitúdójánál lényegesen nagyobb zaj vagy zavarjelek jelenlétében is lineáris tartományban maradjon az erősítő.

Referenciajel-kezelés és fázisállítás

A referenciajel több forrásból is származhat:

- külső referencia bemenet (TTL, analóg jel),
- belső oszcillátor (pl. függvénygenerátor),
- optikai vagy mechanikus chopper kimenete.

A lock-in erősítő belső elektronikája a referenciajeltől előállítja a szükséges koszinusz és szinusz jelalakokat. Analóg megvalósításban ezt például fázistoló hálózatokkal vagy fáziszárt hurkokkal (PLL) lehet elérni.

Fontos paraméter az ún. fázisbeállítás (phase shift): a felhasználó által beállítható fázis, amellyel a referenciajelet az optimális irányba állítja. Ezzel elérhető, hogy a teljes hasznos jel az X csatornára essen, míg az Y közel zérus legyen.

Fázisérzékeny detektor (multiplikátor)

Az analóg lock-in eszközökben a szorzást - régebbi műszerekben - kapcsoló-multiplikátorokkal (switching demodulator), újabban analóg multiplikátor IC-kkel valósítják meg. A kapcsoló-multiplikátor ideális esetben $+1$ és -1 közötti váltakozó szorzófaktort alkalmaz a jelre a referencia fázisának megfelelően, ami négyszögjel-szerű demodulációt eredményez. Ez széles sávú, de további harmonikusokat is létrehoz, amelyeket az aluláteresztő szűrő távolít el.

Aluláteresztő szűrő és időállandó

A szorzás után a jel aluláteresztő integráló szűrőre kerül, amelynek feladata a magasabb frekvenciájú komponensek (főként a $2\omega_0$ -nél jelentkező összetevő) elnyomása és az átlagolás. A szűrő karakterisztikája többnyire első- vagy többrendű:

- elsőrendű RC szűrő: átviteli függvénye

$$H(\omega) = \frac{1}{1 + j\omega\tau},$$

ahol τ az időállandó;

- magasabb rendű (pl. 2-4. rendű) szűrők: meredekebb amplitúdócsökkenéssel a levágási frekvencia felett.

A szűrő effektív sávszélessége (noise bandwidth) közelítőleg

$$\Delta f \sim \frac{1}{4\tau}$$

elsőrendű szűrő esetén. Ez meghatározza, hogy a lock-in erősítő zajterhelése milyen frekvenciasávból származik: minél nagyobb az időállandó τ , annál kisebb Δf , és annál jobb a jel/zaj arány, ugyanakkor növekszik a mérési rendszer válaszideje: a lock-in kimenete lassabban követi a jel valódi változásait.

2.12.3. Digitális lock-in technikák

Blokkvázlat és működési elv

A modern lock-in erősítők jelentős része digitális jelfeldolgozást alkalmaz. A jelfeldolgozó egység fő feladatai:

1. A bemeneti jel analóg előerősítése és sávszűrése.
2. A jel analóg-digitális átalakítása (ADC) megfelelő mintavételi frekvenciával f_s .
3. Numerikus szorzás digitálisan generált referenciajelekkel ($\cos(\omega_0 t)$, $\sin(\omega_0 t)$).
4. Digitális aluláteresztő szűrők (pl. FIR, IIR).
5. Az X , Y , illetve R és φ számítása.

Digitális megvalósítás esetén a referenciajel általában egy numerikusan vezérelt oszcillátor kimenete. A frekvencia- és fázisbeállítás így rendkívül pontos és stabil, a demodulációs frekvencia könnyen változtatható.

2.12.4. Előnyök és korlátok

A digitális lock-in módszer fő előnyei:

- Rugalmas szűrési karakterisztikák: a digitális szűrők átviteli függvénye szabadon tervezhető (pl. Butterworth, Chebyshev, elliptikus, lineáris fázisú FIR).
- Stabil frekvencia- és fázisvezérlés, alacsony drift.

- Több párhuzamos csatorna és több frekvencián történő lock-in detektálás egyazon hardveren (multi-sine vagy többfrekvenciás lock-in).
- Könnyebb adattárolás, adatkiértékelés, numerikus feldolgozás.

Korlátot jelenthet:

- a mintavételi frekvencia és ADC-felbontás („kvantálási zaj”) korlátozza a dinamikus tartományt,
- a nagy időállandók digitális megvalósítása nagy puffereelési igényt támaszt,
- a realtime működés követelménye (pl. beágyazott rendszerekben) a számítási kapacitás függvénye.

2.12.5. Jel/zaj arány és integrálási idő

Zajcsökkentés elve

Ha a zaj fehérzaj jellegű, azaz a spektrális sűrűsége a vizsgált sávban közel állandó, akkor az aluláteresztő szűrő által meghatározott sáv szélesség Δf csökkentésével a kimeneti zaj RMS értéke arányos $\sqrt{\Delta f}$ -vel.

Mivel $\Delta f \sim 1/(4\tau)$, a zaj $\sim \tau^{-1/2}$ módon csökken, azaz a jel/zaj arány javulása közel arányos az időállandó négyzetgyökével. Ez analóg módon átlagolásként jelenik meg: ha a lock-in kimenetét T_{int} ideig integráljuk, a zaj RMS értéke $\sim T_{\text{int}}^{-1/2}$ -tel csökken.

1/f zaj és alacsony frekvenciás zavarok

Sok detektortípus és elektronika esetén a zajspektrum nem fehér, hanem jelentős 1/f jellegű komponenssel bír: a kis frekvenciákon (különösen DC körül) a zaj erősen megnő. Ezért a lock-in mérés technikában gyakori stratégia a modulációs frekvencia felfelé tolása a 1/f tartomány fölé, egy olyan sávba, ahol a zaj közel fehér. Így a lock-in módszer különösen alkalmas nagyon lassú jelenségek (pl. lassan változó paraméterek) mérésére úgy, hogy a jelet mesterségesen gyorsabb időskálára toljuk.

A modulációs frekvencia megválasztásánál kompromisszumot kell kötni: túl alacsony frekvencia esetén dominál az 1/f zaj és a környezeti zavarok (pl. hőmérsékleti drift, mechanikai rezgések), túl magas frekvencia esetén romolhat a mérendő rendszer átviteli függvénye (nem követi a modulációt), illetve a detektor sáv szélessége korlátoz.

2.12.6. Gyakorlati szempontok a lock-in mérés technikában

Modulációs stratégia

A lock-in mérés technika alkalmazásakor gyakran modulálják a bemeneti jelet. A moduláció típusa lehet:

- amplitúdómoduláció (AM): a mérendő mennyiséget periodikusan be- és kikapcsoljuk, vagy két érték között váltogatjuk;
- frekvenciamoduláció (FM) vagy fázismoduláció: kevésbé gyakori, de egyes spektroszkópiai technikákban előfordul;

- mechanikai moduláció: pl. optikai chopper, rezgő tükör, rezgő minta.

A moduláció mélységének és frekvenciájának megválasztása a mérendő rendszer fizikai tulajdonságaitól függ: biztosítani kell, hogy a rendszer válasza lineáris tartományban maradjon és a moduláció ne vezessen nem kívánt hiszterézishez, melegedéshez vagy egyéb nemlineáris hatásokhoz.

Fázisdrift és szinkronizáció

A lock-in technika működésének alapfeltétele a referenciajel és a moduláció pontos szinkronizációja. Ha a referenciajel fázisa lassan elcsúszik a modulációhoz képest (fázisdrift), akkor az X és Y komponensek eltolódnak, és a mérés pontatlan lesz. Ennek elkerülésére: célszerű a moduláció forrását közvetlenül a lock-in referencia bemenetéről vezérelni (belső referencia mód), vagy a modulátor kimenetét visszacsatolni a lock-in referencia bemenetére (külső referencia mód), szükség szerint PLL-el stabilizálva.

Nemlineáris hatások, felharmonikus detektálás

Valós mérőrendszerekben gyakran jelentkeznek nemlineáris viselkedések, amelyek a mérési frekvencia felharmonikusain jeleket generálnak. A lock-in erősítők többsége nemcsak az alapfrekvencián, hanem annak felharmonikusain (pl. $2f_0$, $3f_0$) is képes detektálni. Ez különösen hasznos például: nemlineáris spektroszkópia, nemlineáris vezetés, dielektromos válasz mérése, magasabb rendű effektusok kimutatása során.

Ekkor a referenciajel frekvenciáját a kívánt felharmonikusra állítjuk, illetve a lock-in szoftver/hardver ennek megfelelően generálja a demodulációs jeleket.

Dinamikus tartomány, túlvezérlés

A lock-in erősítő gyakorlati használata során figyelni kell arra, hogy a bemeneti jel - beleértve a zajt és zavarokat is - ne vezérelje túl a bemeneti erősítőt vagy a multiplikátor fokozatot. A túlvezérlés jelalak-torzuláshoz, harmonikus generáláshoz, sőt a lock-in kimenetének téves értelmezéséhez vezet. A megfelelő erősítési tartomány kiválasztása, sávszűrés, illetve - szükség esetén - külső csillapítás használata ezért alapvető fontosságú.

2.12.7. Alkalmazási példák

Optikai mérések

Optikai kísérletekben gyakori, hogy a detektor (pl. fotodióda, fotomultiplikátor) által szolgáltatott jel rendkívül kicsi, miközben jelentős háttérfény és elektronikus zaj van jelen. Ilyen esetekben gyakran bevett szokás, hogy a fényforrást mechanikus chopperrel modulálják (pl. néhány száz Hz-kHz frekvencián megszagatják), és a lock-in referenciajelét a chopper jeléből nyerik. A lock-in így kizárólag a modulált komponensre érzékeny, elnyomva a nem modulált háttérfényt.

Elektromos és mágneses mérések

Komplex impedancia, dielektromos állandó, mágneses szuszceptibilitás és egyéb frekvenciafüggő fizikai mennyiségek mérésében a lock-in erősítő kulcsszerepet játszik. A

vizsgált mintát meghajtó AC jel frekvenciája egyben lock-in referencia is. A lock-in kimeneti X és Y komponensei közvetlenül kapcsolhatók a minta valós és képzetes impedancia-összetevőihöz, illetve a mágneses válasz fázisban lévő (valós) és késleltetett (képzetes) részeihez.

Hőmérsékleti és termoelektromos mérések

Termoelektromos szenzorok (pl. termoelemek) esetén a hasznos jel gyakran a hőmérséklet lassú változásával arányos, így különösen erős az $1/f$ zaj és a drift. Ilyenkor elterjedt megoldás, hogy a hőmérsékletet - vagy a hőáramot - periodikusan modulálják (pl. fűtőellenállás periodikus ki-/bekapcsolásával) és a lock-in a termoelektromos feszültség modulált komponensét méri.

2.12.8. Mérési bizonytalanság, kalibráció és hibaforrások

Amplitúdó- és fáziskalibráció

A lock-in mérések értelmezéséhez szükség van a rendszer amplitúdó- és fázisválaszá-
nak ismeretére. A kalibráció során ismert amplitúdójú és fázisú tesztjelet viszünk a bemenetre, a lock-in által mért R és φ értékeket összevetjük az elvárttal, majd meghatározzuk a rendszer skálázási tényezőit és esetleges konstans fáziseltolását.

A fáziskalibráció különösen fontos, ha a mérés célja a rendszer diszperziós tulajdonságainak vagy relaxációs idejének pontos meghatározása.

Időálló és mintavételi idő szerepe a bizonytalanságban

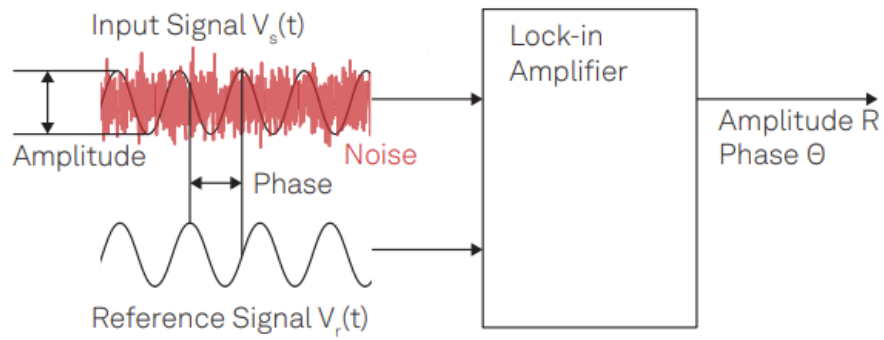
A lock-in kimenetének szórása - és így a mérési bizonytalanság - az időálló és az effektív integrálási idő függvénye. Ha a kimenetet további átlagolásnak vetjük alá (pl. N darab, lock-in által már szűrt mintát átlagolunk), akkor a statisztikus bizonytalanság $\sim 1/\sqrt{N}$ módon csökken, ugyanakkor figyelembe kell venni a mérendő mennyiség időbeli stabilitását: ha a jel valódi változásai összevethetők az integrálási idővel, a túl hosszú átlagolás a dinamikus információ elvesztésével jár.

Rendszeres hibák és drift

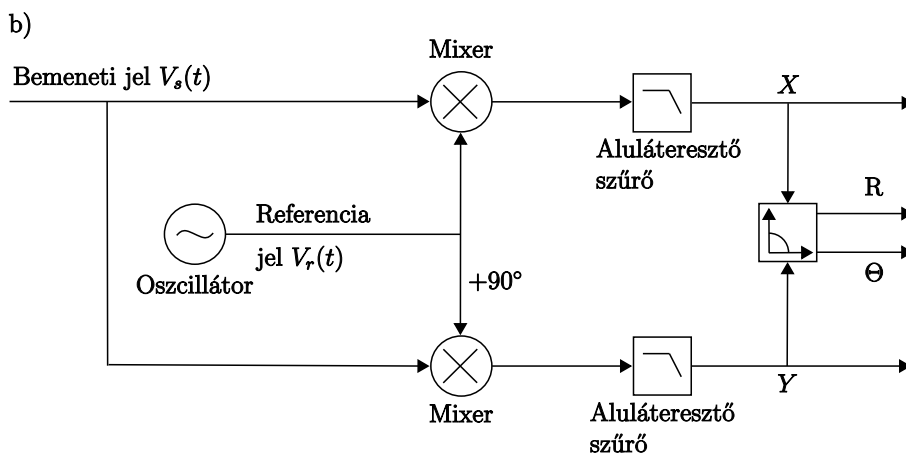
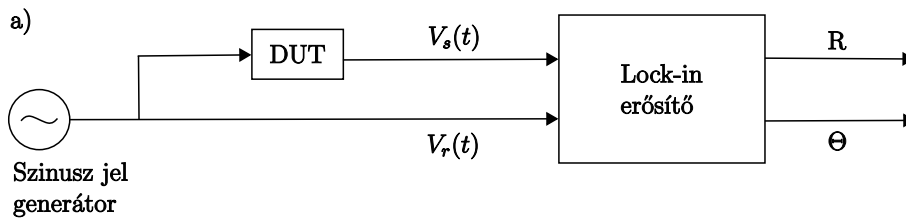
A lock-in erősítő - bár a zaj jelentős részét képes elnyomni - nem mentes a rendszeres hibáktól:

- fázisdrift a referenciajelben vagy a mintában,
- amplitúdódrift a bemeneti erősítőben (pl. hőmérsékletfüggés),
- mechanikai stabilitás hiánya (rezgés, elmozdulás),
- hőmérsékleti változások okozta paraméterváltozások.

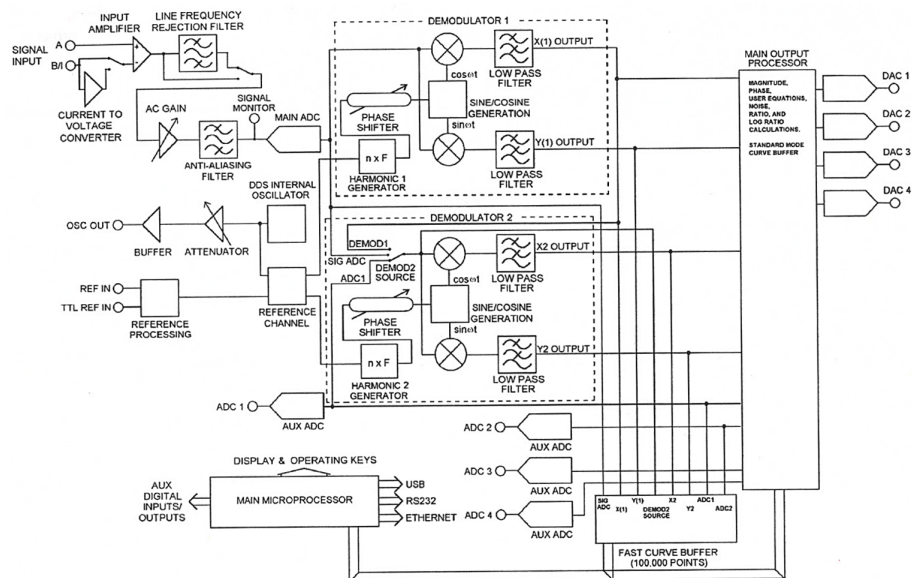
Ezek hatásának minimalizálásához stabil laboratóriumi környezet, rendszeres kalibráció, valamint - amennyiben lehetséges - differenciális mérési elrendezés használata ajánlott (referencia- és mintaág egyidejű mérésével).



2.9. ábra. A lock-in mérés technika képességeinek bemutatása [48]



2.10. ábra. A lock-in mérés technika sematikus ábrája [48]



2.11. ábra. Az Ametek 7270 lock-in erősítő blokk diagramja

3. fejezet

Kísérleti módszer

3.1. Saját fejlesztésű mérőeszköz bemutatása

A mágneses folyadékokra jellemző jelenségeket a frekvenciafüggő mágnesezettség, mágneses szuszceptibilitás mérésével lehet meghatározni. A mágneses folyadékok esetén kulcsfontosságú, hogy kis frekvencián és kis mágneses térerősség tartományokban érdemes a vizsgálatokat végezni. Ferrofluidumok esetén a részecskék dinamikája megköveteli a 100 Hz alatti mérést. Viszonylag nagy mágneses szuszceptibilitásuk miatt a térerősséget 1000 A/m alatt kell tartani annak érdekében, hogy ne következzen be a részecskék aggregációja, különböző struktúrák kialakulása. Magnetoreológiai folyadékok esetén más a helyzet, a nagyobb részecskeméret miatt multidomén rendszerek alakulnak ki, eredő dipólusmomentumuk kisebb, praktikusán zéró.

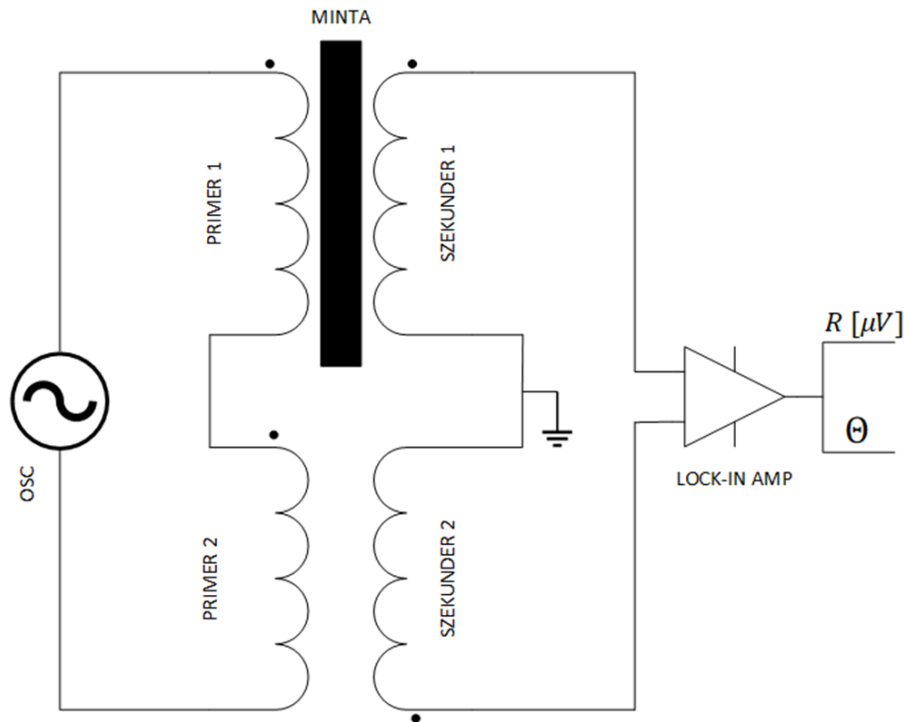
3.1.1. Mérőcella kialakítása

A mérőcella alapja egy differenciáltranszformátoros kapcsolás. Két különálló tekercstesre 0,1 mm átmérőjű szigetelt rézvezetéket tekercselünk két rétegben. A két tekercs külső rétegeit sorba kapcsoltuk, ez lesz a transzformátor primer oldala. A tekercsek belső rétege a szekunder tekercs, amelyeket eltérő polaritással rendelkeznek, így differenciáltranszformátort kialakítva. A szekunder tekercsek kimeneteit egy Ametek SR7270 lock-in erősítő differenciális bemeneteire kapcsoljuk. Ezzel az elrendezéssel, amennyiben a két tekercs azonos, csak zaj mérhető. Amennyiben az egyik tekercsbe anyagot helyezünk, a kiegyensúlyozottság megszűnik, a bele helyezett anyag szuszceptibilitásával arányos feszültségkülönbség mérhető.

Ezt a feszültséget mérjük a lock-in analizátorral. Az analizátoron mérhetjük a szekunder tekercsekben az indukált feszültségeket egyesével a földponthoz képest is, de mérhetjük differenciális módban is, ezáltal meghatározható, hogy a tekercsek mennyire egyeznek meg, milyen mértékben okozza a gerjesztéshez képest a szekunder tekercsekben indukált amplitúdóváltozást és fázistolást a tekercsek induktivitása és kapacitása [K1], [C1].

3.1.2. Mágneses szuszceptibilitás számítása

A primer tekercsüket eleinte a lock-in analizátor belső oszcillátorával hajtottuk meg, amely adatlapja szerint képes 0,001 Hz és 250 kHz-es ± 50 ppm pontossággal 1 mHz-es felbontással. Amplitúdója 1 μ V és 5 V között állítható és amplitúdótartománytól



3.1. ábra. Mágneses szuszceptibilitásmérő cellájának sematikus felépítése

függően $1 \mu\text{V}$ - $1,25 \text{ mV}$ felbontással, $\pm 0,3\%$ -os pontossággal. Harmonikus torzítása -80 dB 1 kHz -es frekvencia és 100 mV amplitúdó mellett.

A primer tekercsre kapcsolt feszültség hatására

$$i(\omega) = u_1(\omega)/Z_1(\omega) \quad (3.1)$$

áram folyik. Látható, hogy a tekercs impedanciájával fordítottan arányosan a rajta folyó áram meghatározott. Az áramerősség meghatározza a primer tekercs belsejében létrejövő mágneses térerősséget. A tekercs impedanciáját befolyásolja ellenállása és induktivitása, amelyek hőmérséklet és frekvenciafüggő mennyiségek. Tekintettel arra, hogy a mágneses folyadék frekvencia- és hőmérsékletfüggő karakterisztikáját kívánjuk vizsgálni feszültségvezérelt precíziós áramgenerátoros kapcsolással hajtjuk meg a primer tekercsüket, így minimalizálható az ebből származó hiba.

A primer tekercsben folyó áram mágneses teret hoz létre, amely feszültséget indukál a szekunder tekercsekben.

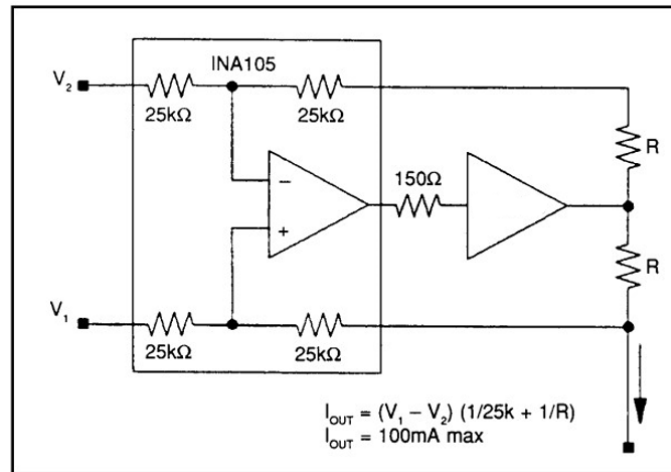
$$u_{ref}(\omega) = -j\omega M i(\omega) \quad (3.2)$$

A tekercsek között fennálló M kölcsönös indukció változik a tekercsbe helyezett anyag szuszceptibilitásával arányosan.

$$M = 1 + \chi(\omega)F \quad (3.3)$$

ahol F a minta és a tekercs átmérőjének hányadosa, vagyis a tekercs kitöltési tényezője.

A szekunder tekercsekben indukált feszültség mérésével vizsgálható a minta mágneses szuszceptibilitása. Az indukált feszültséget azonban nem csak a minta, de a



3.2. ábra. Precíziós áramgenerátoros kapcsolás sematikus ábrája[51]

mintatartó szuszceptibilitása, valamint a tekercs karakterisztikája is meghatározza, amelyet egy különbségképzéssel kezelünk.

$$\chi(\omega) = \frac{\Delta u_2(\omega)}{u_{ref}(\omega)} / F \quad (3.4)$$

ahol $u_{ref}(\omega)$ a lock-in erősítőre kapcsolt egyik szekunder tekercsben indukált feszültség földponthoz képest, $\Delta u_2(\omega)$ pedig a differenciális csatornán mért indukált feszültség különbsége a mintával és anélkül. Így a számítással minimalizálható a tekercs induktivitása, a mintatartó szerepe és a tekercsek kiegyensúlyozatlanságából adódó eltérés.

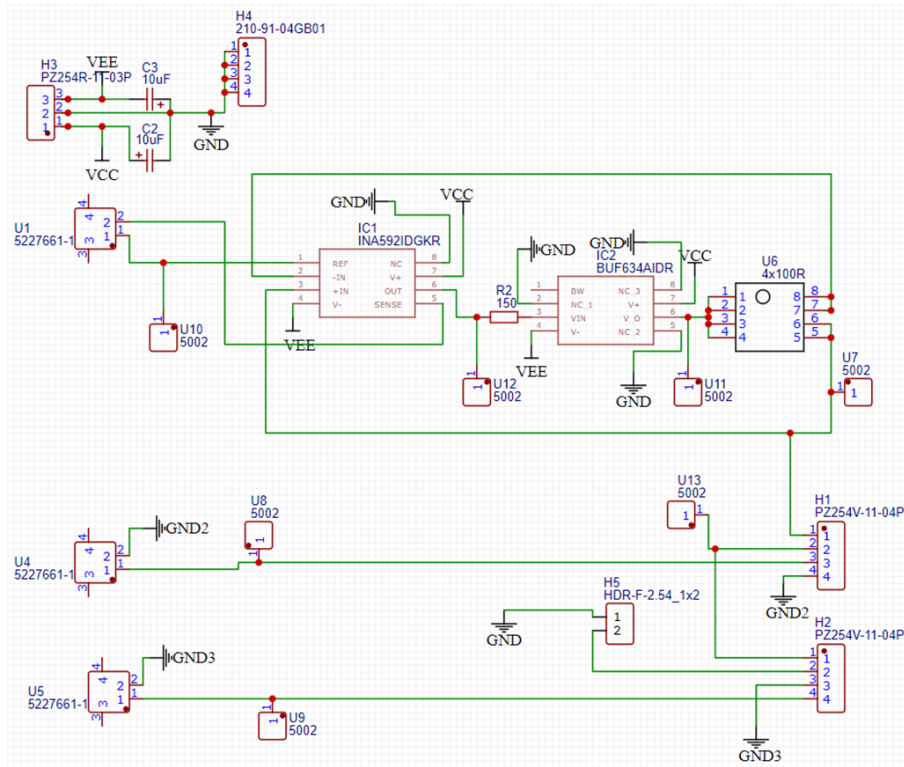
3.2. Tekercsmeghajtó áramkör

Annak érdekében, hogy a tekercsek frekvenciafüggő impedanciáját kiküszöböljük egy precíziós áramgenerátoros kapcsolást hoztunk létre (3.2. ábra). Ennek alapja az INA105 precíziós differenciálerősítő, amelyet kiegészítettünk egy BUF634A puffere erősítővel annak érdekében, hogy a maximális áramerősséget megnöveljük [K1]. A visszacsatoló ellenállások a 694-3 ellenállás hálóból lettek felépítve, amelyek egyenként 100Ω-osak, $< \pm 0,05\%$ -os tűréssel és $< \pm 5ppm/^\circ C$ hőmérsékleti együtthatóval rendelkeznek. A visszacsatolásba két-két ellenállás van párhuzamosan kötve, így 50Ω eredő ellenállással számolva a kimeneten az áramerősség nagysága $i_o(t) = (u_1(t) - u_2(t))(1/25000 + 1/50)$.

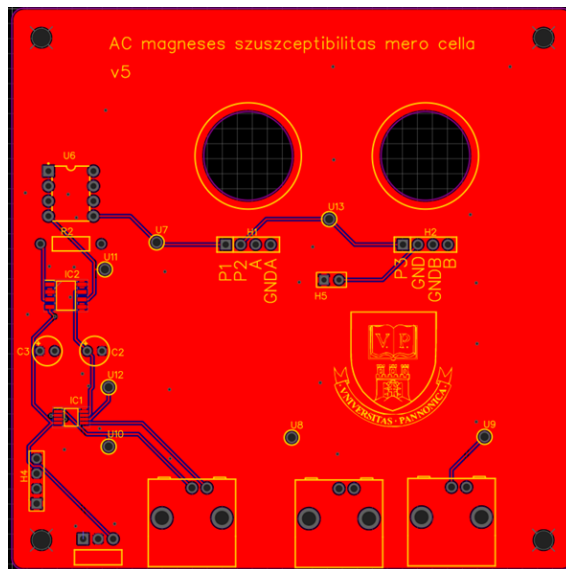
A feszültségvezérelt áramgenerátort a tekercsek mellett egy egyedi fejlesztésű nyomtatott áramköri panelen valósítottuk meg. A jelek a panel és a lock-in analizátor között BNC csatlakozós árnyékolt kábelben vannak továbbítva.

3.3. Mérőrendszer architektúra

A kölcsönös indukciós szuszceptométerek lényege, hogy a gerjesztő tekercs $H_{ac}(t) = H_0 \cos \omega t$ váltakozó mágneses teret hoz létre, amely a mintában $M(t)$ mágnesezettséget kelt. A minta mágneses fluxusának változását a két, ellenirányban tekercselt



3.3. ábra. Megvalósított áramgenerátoros kapcsolás



3.4. ábra. Szuszceptibilitás mérő cella paneljának nyomtatott áramköri lapja

tekercs differenciálisan érzékeli. A fázisérzékeny detektálás (lock-in) egyszerre adja a $\chi'(\omega)$ fázisban lévő és $\chi''(\omega)$ fázistolásban lévő komponenseket, valamint nemlineáritás esetén a felharmonikusokat is ($2\omega, 3\omega, \dots$). A kölcsönös indukciós szuszceptométerek előnye, hogy kis mintamennyiség mellett is nagy érzékenységet biztosítanak, széles frekvenciatartományban alkalmasak a disszipációs és nemlineáris jelenségek feltárására és integrálható a hőmérséklet, nyomás és egyentér mérés is a rendszerbe [K1], [C1].

A megvalósított elrendezéssel (3.1. ábra) összhangban a referencia és mintatekercs differenciális kivezetése a lock-in A és B csatornáira kerül, a gerjesztőáramot pedig a feszültségvezérelt precíziós áramgenerátor biztosítja (3.3. ábra), melyet a lock-in analízátor oszcillátora hajt meg. A differenciáltranszformátoros felépítés a közös módusú zavarokat természetes módon elnyomja.

3.4. Geometriai és tekercestervezési szempontok

A mintára ható H_{ac} térerősség meghatározó a mágneszettség szempontjából.

Amennyiben a szolenoid kellően hosszú, $H_{ac} \approx Ni$, rövid tekercsnél számottevő a végeknél és a tekercs belsejében található inhomogenitás.

Az ellenirányban tekercselt, azonos paraméterekkel rendelkező tekerccspárral megvalósított differenciálkapcsolat minimalizálja a differenciális módban mért feszültséget. A menetszám, a hengeres testre felcsévélte huzal rétegek és a tekercestest anyaga is közrejátszanak a mérésben, figyelembe véve a sajátfrekvenciát és a mérési frekvenciatartományt.

A kiértékelésben szereplő F kitöltési tényező a minta és a tekercs axiális átfedését jellemzi. Az F számítható a tekercs és a minta pontos geometriájából. A cél a kitöltési tényező maximalizálása, vagyis a minta keresztmetszetének maximalizálása a tekercsben. Ezt nagyrészt a felhasznált tekercest tartó szerkezet keresztmetszeti méretei korlátozzák.

A már bevezetett összefüggés szerint a mintával és minta nélkül mért differenciális feszültségárányból (3.4. egyenlet) számítható a szuszceptibilitás. Ez módszer a tekercs saját karakterisztikáját és a mintatartó hatását a különbségképzéssel kioltja.

A mérések szempontjából fontos, hogy a mérendő minta hőmérséklete állandó, termosztálható legyen. A tekercsen folyó áram, valamint a mágneses folyadék melegedésének következtében a hőmérséklet eltolódik. Ennek vizsgálatára kísérletet végeztünk, melynek keretén belül az áramgenerátor maximális teljesítményével meghajtva (szinuszos gerjesztés 100 mA áramerősséggel), egy víz alapú ferrofluidumot (Ferrotec EMG700) a tekercsbe helyezve, a szuszceptibilitás képzetes részének maximumán gerjesztve (120 Hz) egy órán át üzemeltettük a tekercsket. A 3.5. ábrán egy hőkamerás felvételen látható, hogy a tekercs, a környezeti hőmérséklethez képest 4 K-nel melegedett fel.

3.5. A mérőtekercs termosztálása

A mágneses folyadékok viselkedését a hőmérséklet rendkívüli mértékben befolyásolja. Ennek vizsgálatára megvalósítottuk a tekercs és a minta termosztálását. Tekintettel arra, hogy a hőmérséklet mérése a tekercs belsejében nem megvalósítható, létermosztálást valósítottunk meg. Ehhez egy folyadékos laboratóriumi



3.5. ábra. A tekercsek melegedésének ellenőrzése, hőkamerás felvétel

termosztátot alkalmaztunk, a termosztát által keringetett folyadékot réz csőben keringettük és azt spirál alakban feltekerve a mérőtekercsek köré helyeztük. Ezt az összeállítást helyeztük bele egy jól szigetelt tartályba. A mérések során a beállított hőmérsékletet a tekercsek és a minta hosszú idő elteltével érte el, ezért a hőmérsékletfüggő mérések megvalósítása hosszú időt (hőmérsékleti értékenként kb. 30 percet) vesz igénybe.

3.6. Az adatgyűjtés és kiértékelés menete

Az adatgyűjtésre egy LabView alapú programot fejlesztettünk, amely a mérési protokoll fejezetben bemutatott automatizmus szerint teljesen automatikusan gyűjti és tárolja az adatokat egy CSV fájlba. A CSV fájlok alapján a szuszeptibilitás számítása fejezetben bemutatott számítás szerint egy MATLAB script számolja a dinamikus szuszeptibilitást és exportálja a grafikonokat egy menetben.

3.7. A mérőrendszer korlátai

Vizes, olajos vagy jó szigetelő hordozóközeget tartalmazó minták mérésekor az örvényáram hatás magasabb frekvencián lép fel. Ekkor a mintatartó mágnesezhetősége és a tekercsek kapacitív jellege, vagy a skin effektus is torzíthatja a mérést. Ez a χ'' csúcsát eltolja. Emiatt a gerjesztés maximumát és a mérési tartományt korlátozni kell, a magasabb frekvenciatartományban a mérési eredményeket fenntartásokkal kell kezelni.

A mérőrendszer továbbfejlesztésénél olyan kalibrációs módszert kell választani, amelynél ezek a sajátosságok számszerűsíthetők. Ilyen lehet például az, hogy a mintatartóba kis menetszámú, ismert geometriájú kalibrációs tekercset helyezünk,

amelyre szinuszos áramot adva ismert mágnesezettségű referencia jelet keltünk [52].

A környezeti zajokat a lock-in mérés technika nagyrészt kiszűri, azonban kerülni kell azokon a frekvenciákon való mérést, amelyek jel-zaj aránya nem megfelelő (pl. 50 Hz). A mérés nagyrészt automatizálható, de időnként szükség van ismételt végrehajtásra az időállandó, sáv szélesség és a szűrési paraméterek manuális változtatásával.

A mérőrendszer folyamatos fejlesztésével az árnyékolással, csillagpontos földelés-sel, földhurkok kerülésével a hibákat csökkentettük. A precíziós áramgenerátoros kapcsolás 10 kHz felett már amplitudócsökkenést és fázistolást okoz, amelyet a mérési módszer és a számítási metodika sem küszöböl ki.

A mágneses folyadékok viselkedése hőmérsékletfüggő, a relaxációs időállandók változnak, így a tekercseken folyó áramot korlátozni kell, a továbbfejlesztés során a termosztálás megvalósítása elengedhetetlen.

A mágneses folyadékok mintartóba való betöltése nehézkes, a levegőbuborékokat el kell kerülni. Ezen felül biztosítani kell a mintában található részecskék homogenitását, a kiülepedés elkerülését, így a minta nem tartható hosszú ideig a tartóban.

Így tehát a mérőeszköz bizonytalanságának és a reprodukálhatóság meghatározásához az alábbi szempontokat kell figyelembe vennünk.

- A gerjesztő tér amplitudója (áramerősség pontosság, tekercsfaktor)
- A tekercsek, mintatartók geometriai bizonytalansága F kitöltési tényező és N menetszám arányok értéke
- Hőmérséklet hatása a mintára
- Örvényáramok
- A tekercsek kiegyensúlyozatlansága és fáziseltérése
- Külső zajok és zavarok

A mérőrendszeréről készült fotó a 3.6. ábrán látható.

3.7.1. Becslés a hőmérsékletmérésből származó mérési hibáról

A környezeti tényezők közül a folyadék viselkedését legnagyobb mértékben a hőmérséklet határozza meg. Az alábbiakban bemutatunk egy számítást, amely az elméleti modellek alapján számszerűsíthetővé teszi a hőmérsékleti eltérésből származó hiba nagyságát a szuszceptibilitásra vonatkozóan.

Feltételezzük, hogy χ_0 hibáját a termosztálás, hőmérsékletmérés hibája határozza meg.

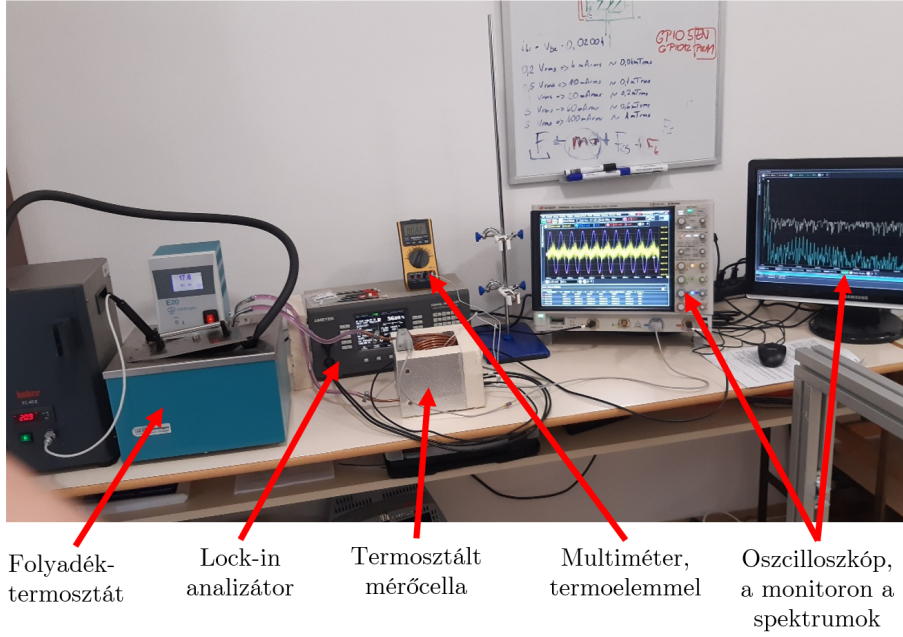
A hibaszámításhoz a hibaterjedési formulát használjuk fel:

$$\Delta\chi = \frac{\partial\chi}{\partial T}\Delta T \quad (3.5)$$

Hogy egyszerű legyen a számolás, a Debye-egyenletet használjuk, amit az értekezés 2.37. egyenlete alapján kapunk meg $\alpha = 0$ esetén.

A szuszceptibilitás valós részére felírva:

$$\chi = \chi_\infty + \frac{\chi_0 - \chi_\infty}{1 + \omega^2\tau^2} \quad (3.6)$$



3.6. ábra. A mérőrendszerrel készült fénykép

Itt χ_0 a kezdeti, DC szuszceptibilitás ($\omega = 0$) ami függ a hőmérséklettől.

A legtöbb modell, így az MSA is egy sorfejtést ad χ_0 -ra amelynek az első tagját vesszük figyelembe.

$$\chi_0 = \chi_L + \frac{4\pi}{3}\chi_L \quad (3.7)$$

ahol

$$\chi_L = \frac{1}{3} \frac{\rho m^2}{k_B T} \quad (3.8)$$

a Langevin szuszceptibilitás. A hibaterjedési formulában szereplő derivált:

$$\frac{\partial \chi}{\partial T} = \frac{\partial \chi_\infty}{\partial T} + \frac{\frac{\partial \chi_0}{\partial T} - \frac{\partial \chi_\infty}{\partial T}}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (3.9)$$

Jó közelítéssel $\frac{\partial \chi_\infty}{\partial T} \cong 0$, τ kevésbé függ T -től így

$$\frac{\partial \chi}{\partial T} = \frac{\partial \chi_0}{\partial T} \cdot \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \quad (3.10)$$

A Langevin szuszceptibilitást visszahelyettesítve és az átlakításokat elvégezve megkapjuk, hogy:

$$\frac{\partial \chi}{\partial T} = \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \cdot \frac{\partial (\chi_L + \frac{4\pi}{3}\chi_L^2)}{\partial T} \quad (3.11)$$

$$\frac{\partial \chi}{\partial T} = \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \cdot \left(\frac{\partial \chi_L}{\partial T} + \frac{4\pi}{3} \cdot 2\chi_L \cdot \frac{\partial \chi_L}{\partial T} \right) \quad (3.12)$$

$$\frac{\partial \chi}{\partial T} = \frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \cdot \left(1 + \frac{8\pi}{3}\chi_L \right) \cdot \frac{\partial \chi_L}{\partial T} \quad (3.13)$$

A számítás egyszerűsítéséhez vegyük a Langevin-szuszeptibilitás hőmérséklet szerinti deriváltját:

$$\frac{\partial \chi_L}{\partial T} = \frac{\partial}{\partial T} \frac{1}{3} \frac{\rho m^2}{k_B T} = -\frac{1}{3} \frac{\rho m^2}{k_B T^2} = -\frac{\chi_L}{T} \quad (3.14)$$

A Langevin szuszeptibilitást visszahelyettesítve a szuszeptibilitás hibája:

$$\Delta \chi = - \left(\frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \cdot \left(1 + \frac{8\pi}{3} \chi_L \right) \cdot \frac{\chi_L}{T} \right) \quad (3.15)$$

Esetünkben $\chi_0 = 6, 7$, így a Langevin szuszeptibilitás a fenti összefüggés alapján $\chi_L \cong 1, 2$. Legyen a $T = 300K$, a hőmérsékletmérés pontossága $\Delta T \cong 1 K$, akkor

$$\Delta \chi = - \left(\frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} \cdot \left(1 + \frac{8\pi}{3} 1, 2 \right) \cdot \frac{1, 2}{300} \right) \quad (3.16)$$

Ha $\omega = 0$ és $\Delta T = 1 K$, akkor $\Delta \chi = 0,044$. Százalékos értékben kifejezve $\frac{0,044}{6,7} = 0,66\%$

Ha vizsgáljuk a frekvenciafüggést, azt láthatjuk, hogy a hiba a frekvencia növekedésével csökken. $\omega \tau = 1$ esetén a hiba ennek a fele, $0,33\%$, ha $\omega \tau = 2$, akkor $0,17\%$. Ez korrelációban van későbbiekben részletezett Cole-Cole illesztés jósági fokával ($99,85\%$)

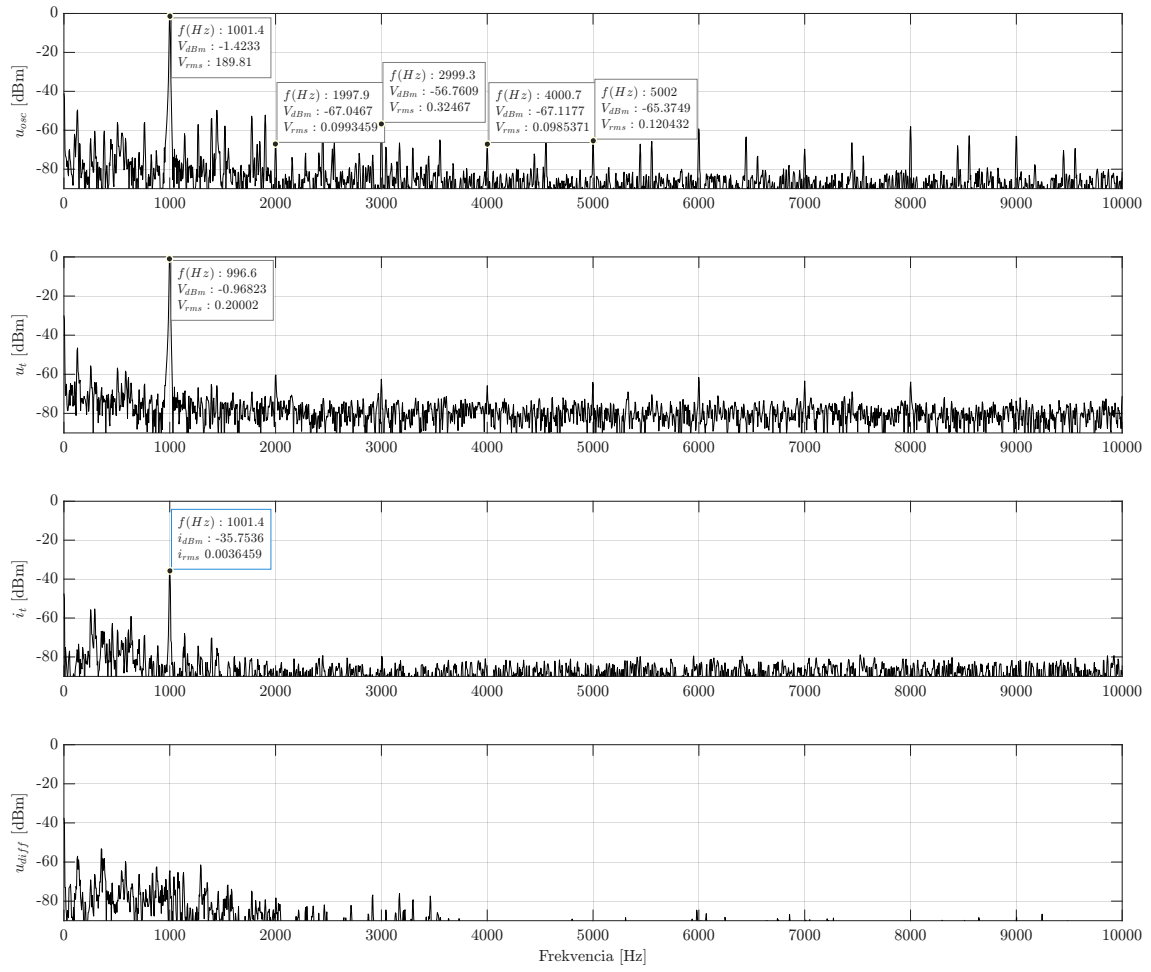
3.8. A rendszer működésének ellenőrzése

Annak érdekében, hogy a mérési eredményeket megbízhatóan tudjuk értelmezni és az előző alfejezetben bemutatott bizonytalanságokat ellenőrizni tudjuk, elvégeztünk néhány olyan mérést, amellyel a mérőrendszer megbízhatósága vizsgálható.

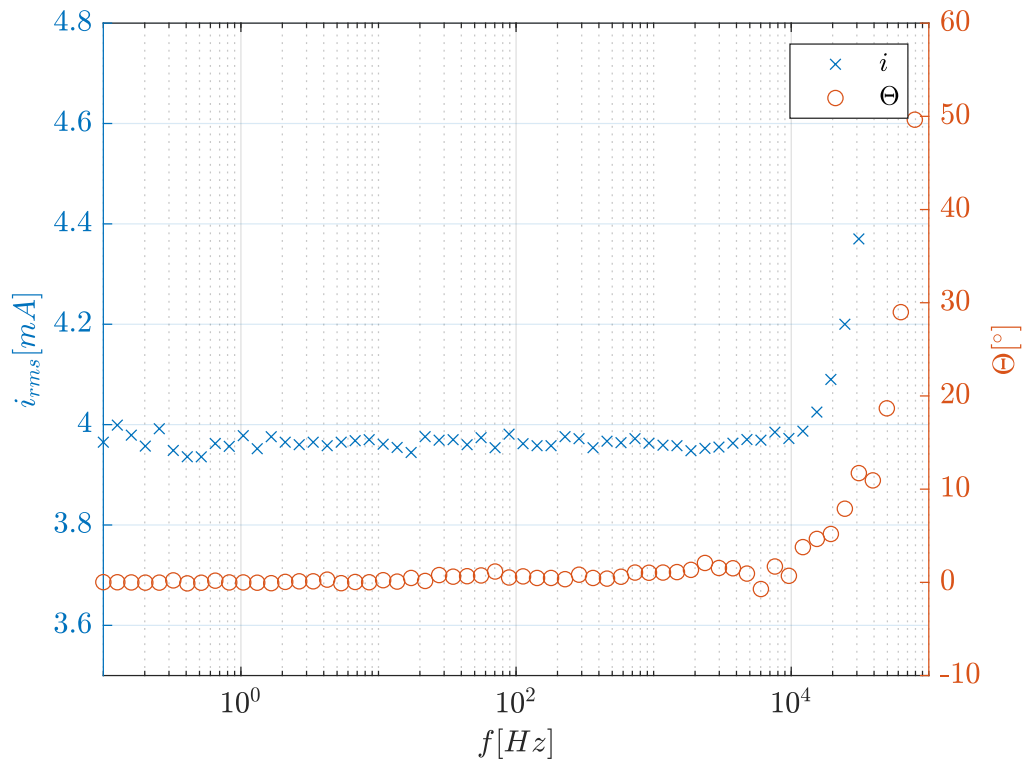
A mérőrendszer egyes pontjaira oszcilloszkóp szondákat helyeztünk. Ellenőriztük a lock-in erősítő oszcillátorát, a tekercsre kapcsolt feszültséget, a tekercsre kapcsolt áramerősséget és a lock-in erősítő differenciális csatornára kapcsolt feszültséget.

A 3.7 ábrán látható, hogy amennyiben a lock-in erősítő oszcillátorán 1 kHz -es feszültséget állítunk be és a mérőtekercsben csak üres mintatartó van, milyen feszültség spektrumot mérhetünk a tekercsre kapcsolva, azokon milyen áram folyik. Az ábra alsó részén látható spektrum a lock-in analízátor jelmonitora, amely az AD konverter bemenetére kapcsolt feszültség. A spektrumokból az látható, hogy alacsonyabb frekvenciatartományokban a mérőrendszer -70 dB körüli zajpadlóval terhelt kiemelkedő csúcsokkal. 1 kHz felett fehér zajt figyelhetünk meg, amely -90 dB alatt marad. Az 1 kHz felharmonikusain kiemelkedő csúcsok figyelhetők meg, de még -80 dB alatt maradnak. A rendszer harmonikus torzítása $0,0033\%$ vagy $-89,6 \text{ dB}$, amelyet figyelembe kell majd vennünk akkor, ha a szuszeptibilitás mérést a magasabb rendű harmonikusain folytatjuk.

A mérőrendszerben a precíziós áramgenerátor a szűk keresztmetszet a kihasználható sáv szélességnél, jelenlegi konstrukciójában a BUF634 puffere erősítő karakterisztikája korlátozza azt. Annak érdekében, hogy ismert legyen a viselkedése, elvégeztük a spektrumának vizsgálatát is. Ehhez az áramgenerátorra a tekercsekkel sorba 1 Ohm -os fémréteg ellenállást kötöttünk, és azt a lock-in erősítő differenciális bemenetére kapcsoltuk. A számítások szerint ekkor 4 mA áramnak kell folynia ezen.



3.7. ábra. A mérőrendszer egyes pontjain mért feszültség és áram spektrumok



3.8. ábra. Az áramgenerátor frekvenciaspektruma 4 mA áramerősség esetén

A 3.8. ábrán látható, hogy 10 kHz-ig a spektrum szép, felette viszont amplitúdóváltozás és egyre jobban növekvő fázistolás jelentkezik.

3.9. Mérési protokoll

A mérési protokoll leírásával célunk, hogy bemutatott mérőberendezéssel végzett mérések ismételhető, összehasonlítható és visszakövethető végrehajtási rendjét rögzítsük. A protokoll külön kitér a mintakezelésre, a lock-in beállításokra, a háttér-mérésre, a frekvenciasöpítés menetére, a kiértékeléshez szükséges adatok rögzítésére.

Cél és mérési mennyiségek

A mérés elsődleges célja a komplex szuszceptibilitás $\chi(\omega)$ meghatározása, különös tekintettel a $\chi'(\omega)$ (fázisban lévő) és $\chi''(\omega)$ (fázistolásban lévő) komponensekre. Nemlineáris vizsgálatok esetén a válasz felharmonikus komponensei ($2\omega, 3\omega, \dots$) is rögzíthetők.

Mintaelőkészítés és mintabetöltés

Mintahomogenizálás A mintát mérés előtt homogenizálni kell óvatos keveréssel, forgatással vagy ultrahangos kezeléssel, hogy a részecske-koncentráció közel állandó legyen. Üledésre hajlamos minták esetén a mintabetöltés és a mérés közötti időt minimalizálni kell.

Levegőbuborékok elkerülése A mintatartó betöltése során kerülni kell a buborékképződést. Buborék jelenléte a kitöltési tényezőt és a hatásos térfogatot változtatja, így a $\chi(\omega)$ értékelését torzítja. A betöltéshez javasolt fecskendő, lassú töltés és ha lehetséges rövid várakozási idő a buborékok felúszásáig.

Geometriai konzisztencia A mintatartót teljes mértékben ki kell tölteni a mérendő anyaggal. Az üres és mintás állapot csak a mérendő minta jelenlététől térhet el, a mintatartó sem anyagában, sem geometriájában nem változtatható, hiszen a tartó szuszceptibilitása is közrejátszik.

Műszer előkészítése és inicializálás

Bemelegítés és stabilizáció A lock-in és a gerjesztőáramkör bemelegedési ideje után (tipikusan 15–30 perc) indokolt a zajsztint ellenőrzése.

Kábelezés, árnyékolás, földelés A mérés előtt ellenőrizni kell az árnyékolt kábelek épségét, a csillagpontos földelést, valamint a földhurkok hiányát. A környezeti zavarokra érzékeny frekvenciákon a mérés kerülendő.

Háttérmérés (üres mintatartó) és kiegyenlítés

Üres mérés Az üres mintatartót a mintatekercsbe helyezve fel kell venni a referencia jelet és a differenciális csatorna jelét a teljes vizsgált frekvenciatartományban. Ez a mérés szolgál a későbbi különbségképzés alapjául.

Kiegyenlítettség ellenőrzése Üres állapotban a differenciális jelnek minimálisnak kell lennie. Ha a differenciális jel nagy vagy erősen frekvenciafüggő, akkor ellenőrizni kell: (i) a tekercsek szimmetriáját, (ii) a csatlakozások polaritását, (iii) a mintatartó pozícióját. A cél a reprodukálható, stabil jel biztosítása.

Gerjesztési paraméterek beállítása

Gerjesztés amplitúdója A gerjesztőáramot úgy kell megválasztani, hogy a vizsgált anyag a lineáris tartományban maradjon (ha lineáris $\chi(\omega)$ a cél), illetve ne idézzünk elő nem kívánt aggregációt vagy struktúraképződést. A választott amplitúdót minden mérésnél rögzíteni kell.

Frekvenciatartomány A frekvenciatartományt a (i) vizsgált relaxációs idők, (ii) a jel/zaj arány és (iii) a mérőlánc sávszélessége alapján kell meghatározni. Zajos környezetben az 50 Hz és közvetlen környezete kerülendő, magasabb frekvencián az áramgenerátor karakterisztikája torzíthat.

Lock-in beállítások és mérési időzítés

Detektálási mód A mérést célszerű X/Y (in-phase/quadrature) formában rögzíteni, továbbá a referencia csatornát (amellyel a normalizálás történik) külön menteni.

Időálló és szűrés A lock-in időállóját τ és a meredekséget (filter slope) úgy kell választani, hogy egy pont stabilizációjára elegendő idő álljon rendelkezésre, de a teljes mérés ne nyúljon el túlzottan (drift, ülepedés). A gyakorlatban általában minden frekvenciaponton legalább 5τ ideig kell várakozni a kiolvasás előtt.

Mérési sorozat menete

1) **Üres mérés felvétele** A teljes söprés az üres mintatartóval (háttér) történjen meg először.

2) **Minta mérés felvétele** A mintát tartalmazó mintatartót azonos pozícióban a mintatekercsbe helyezve ismételjük meg a söprését. Minden ponton rögzítendő:

- gerjesztés: frekvencia, oszcillátor amplitúdó, áram (ha mérhető),
- lock-in: X, Y (vagy R, θ), időálló, sáv szélesség, szűrés,
- referencia jel (pl. a szekunder tekercs földponthoz képest mért feszültsége),
- differenciális jel (minta-referencia különbség).

Kiértékeléshez szükséges mentések

A nyers adatokat olyan formátumban kell menteni, hogy a teljes kiértékelési lánc később reprodukálható legyen. A tárolt adatok:

- minta azonosító,
- mintatérfogó, mérés időpontja,
- hőmérséklet, labor körülmények,
- tekercs- és mintatartó geometria, kitöltési tényező számításához szükséges adatok,
- lock-in és meghajtó beállítások.

Számítási lépések

A komplex szuszceptibilitás számítása a háttérméréssel képzett különbségből történik. A feldolgozás lépései:

1. differenciális jel meghatározása: $\Delta u_2(\omega) = u_{2,minta}(\omega) - u_{2,ures}(\omega)$,
2. referencia jel meghatározása: $u_{ref}(\omega)$,
3. normalizálás és kitöltési tényező korrekció: $\chi(\omega) = \frac{\Delta u_2(\omega)}{u_{ref}(\omega)} \frac{1}{F}$,
4. $\chi'(\omega)$ és $\chi''(\omega)$ komponensek előállítás (X/Y vagy amplitúdó-fázis alapján).

A mérési sorozat csak akkor tekinthető érvényesnek, ha:

- a mért jel stabil (időben és frekvencia mentén),
- a jel/zaj arány a teljes vizsgált tartományban megfelelő,
- nem látható a mintára utaló drift (pl. ülepedés, hőmérsékletváltozás miatt) a mérés időskáláján.

3.10. A mérőeszköz validációja, mérési eredmények

A mérőeszközön elvégeztünk néhány mágneses folyadék szuszceptibilitásának mérését. Ehhez kiválasztottuk a Ferrotec EMG700 [C1], EMG900 ferrofluidumait és a Parker MRF140 magnetoreológiai folyadékot. A választás azért esett erre a 3 termékre, mert ezek a leggyakrabban alkalmazott mágneses folyadékok. A termékek gyártói adatlapjai megtalálhatók az értekezés függelékében.

Mágneses folyadékok szintézisével több laboratóriumban is foglalkoznak, de megbízható, stabil vagy ismert szuszceptibilitású mintát nem tudunk beszerezni.

Ferrotec EMG-700 SP ferrofluidum: Az EMG700 a Ferrotec vízbázisú EMG-sorozatába tartozó ferrofluidum, amelyet tipikusan olyan alkalmazásokhoz ajánlanak, ahol gyors párolgás előnyös, illetve ahol a ferrofluidumnak vízbázisú rendszerrel keverednie kell; a gyártói leírás szerint az EMG700 fekete–barnás megjelenésű, és anionos felületaktív anyaggal stabilizált diszperzió.

Ferrotec EMG900 ferrofluidum: Az EMG900 az olajbázisú EMG-sorozat tagja; a Ferrotec ezt a csoportot olyan esetekre pozicionálja, amikor nem kívánatos a párolgás, illetve amikor nem szeretnénk, hogy a ferrofluidum más komponensekkel keveredjen. A sorozat hordozóközege jellemzően könnyű szénhidrogén alapú olaj, amely az APG-típusú (hangszórós) fluidumokhoz képest nagyobb volatilitású, miközben a viszkozitása inkább a vízéhez közelít; a termék leírásában az EMG900 szintén fekete–barnás folyadékként szerepel.

Parker LORD MRF-140CG magnetoreológiai folyadék: Az MRF-140CG a Parker LORD (LORD) műszaki adatlapja szerint szénhidrogén-alapú magnetoreológiai (MR) folyadék, amely mikronméretű mágnesezhető részecskéket tartalmaz. Mágneses tér hatására szabadon folyó folyadékból szabályozható folyáshatárú, félszilárd állapotba hozható. Általános, szabályozható energiaelnyelő alkalmazásokhoz (pl. lengéscsillapítók, csillapítók, fékek) ajánlják; a viszkozitás a mágneses térrel arányosan hangolható, és a fluidum szelepüzemben (fojtáson átáramlás) illetve nyírás üzemben (két felület közti nyírás) is használható.

3.10.1. EMG700 ferrofluidumra kapott mérési eredmények

A 3.9 ábra az EMG700 ferrofluidum komplex szuszceptibilitás-spektrumát mutatja. A valós komponens (χ') alacsony frekvencián közel állandó (χ_0), majd a relaxációs tartományba érve csökken, miközben a képzetes komponens (χ'') egy jól definiált maximumot mutat. Ez a viselkedés tipikusan relaxációs folyamatra utal: a rendszer a gerjesztéshez képest fáziskéséssel válaszol és a disszipáció akkor maximális, amikor a gerjesztés és a jellemző relaxációs idő összemérhető ($\omega\tau \approx 1$).

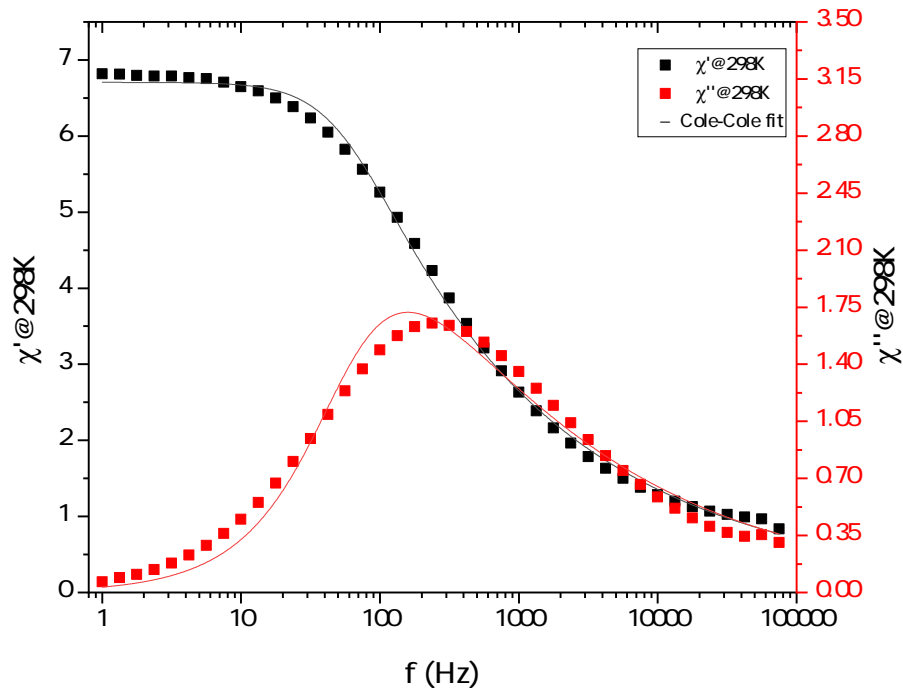
A spektrum kvantitatív jellemzésére Cole–Cole (általánosított Debye) illesztés alkalmazható:

$$\chi^*(\omega) = \chi_\infty + \frac{\chi_0 - \chi_\infty}{1 + (i\omega\tau)^{1-\alpha}}, \quad 0 < \alpha \leq 1. \quad (3.17)$$

Az α paraméter a relaxációs idők szóródását (polidiszperzitás, kölcsönhatások, aggregáció) reprezentálja: $\alpha = 0$ tiszta Debye-eset, $\alpha > 0$ kiszélesedő spektrumot jelez.

A 3.9 ábrán látható χ'' maximum helyéből első közelítésben a jellemző relaxációs idő:

$$\tau \approx \frac{1}{2\pi f_{\max}}, \quad (3.18)$$



3.9. ábra. EMG700 ferrofluidum mérési eredményei

ahol f_{\max} a χ'' csúcshékvenciója. A Cole–Cole illesztés ennél pontosabb, mert egyszerre veszi figyelembe χ' és χ'' teljes hékvenciófüggését.

A Cole-Cole illesztés eredményei az alábbi táblázatban láthatók.

α	0,70191
$\tau[s]$	0,00265
χ_0	6,70575
χ_∞	0,06301
R^2	0,99856

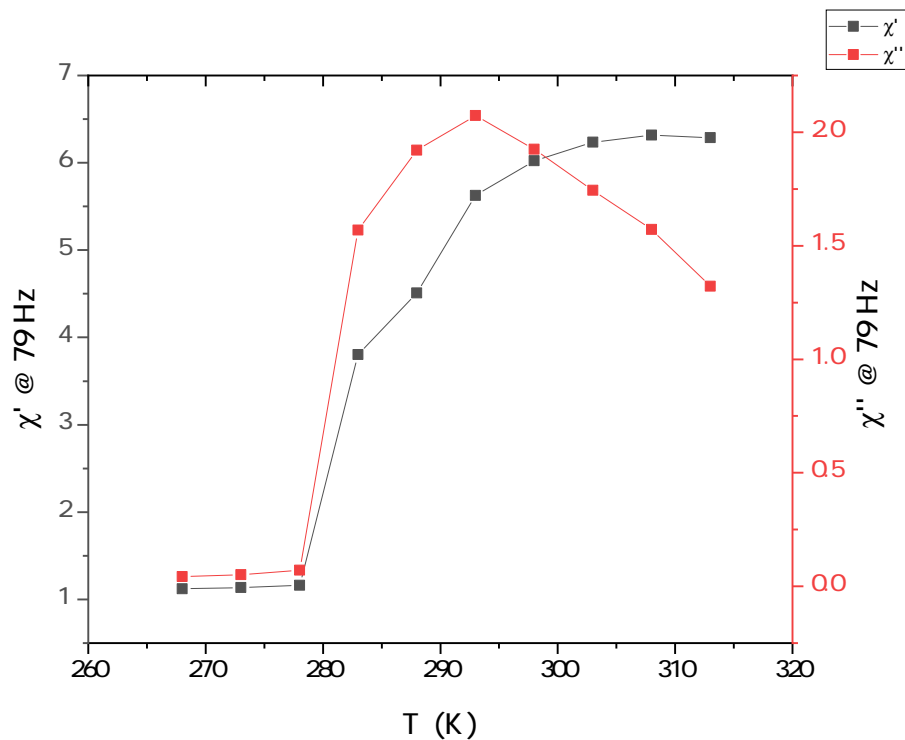
3.10.2. EMG700 ferrofluidum hőmérsékletfüggésének ábrázolása

A 3.10 ábra a χ' és χ'' komponensek hőmérsékletfüggését mutatja rögzített gerjesztési hékvención. A függvény ábrázolásához a 79 Hz-es gerjesztési hékvenciót választottuk, mert ez a hékvenció a szuszceptibilitás képzetes részének maximuma környékén helyezkedik el és jól szemlélteti a spektrum hőmérsékletfüggését.

Ferrofluidumok esetén a relaxációs idő hőmérsékletfüggése több mechanizmusból állhat: a Brown-relaxáció (a részecske fizikai forgása a hordozófoládékban) és a Néel-relaxáció (a mágneses momentum átbillenése az anizotrópia-gáton) párhuzamosan járulhat hozzá az effektív relaxációhoz. Ennek megfelelően az effektív relaxációs idő közelíthető:

$$\frac{1}{\tau_{\text{eff}}} = \frac{1}{\tau_N} + \frac{1}{\tau_B}. \quad (3.19)$$

A hőmérséklet növelésével a viszkozitás csökkenése és a termikus energia növekedése általában rövidíti a relaxációs időt, így a veszteségi csúcs (χ'' maximum) hékvenciója magasabb értékek felé tolódik. Rögzített mérési hékvención ez azt eredményezheti,



3.10. ábra. EMG700 ferrofluidum hőmérsékletfüggésének ábrázolása

hogy a $\chi''(T)$ görbe maximumot mutat azon a hőmérsékleten, ahol a rendszer saját időskálája éppen illeszkedik a gerjesztés időskálájához ($\omega\tau_{\text{eff}} \approx 1$).

3.10.3. Aktiválási energia számítása a hőmérsékletfüggésből

A hőmérsékletfüggő dinamikus szuszeptibilitás-mérésekből a relaxáció jellemző időállandója, $\tau(T)$ meghatározható. A $\tau(T)$ értékek származtathatók (i) a veszteségi komponens (χ'') csúcsfrekvenciájából ($\omega\tau \approx 1$), vagy (ii) a teljes spektrumra illesztett (pl. Cole–Cole) modell τ paraméteréből. Az ábrázolt időállandók a különböző hőmérsékletek esetén mért dinamikus szuszeptibilitásra illesztett Cole-Cole modellből lettek meghatározva.

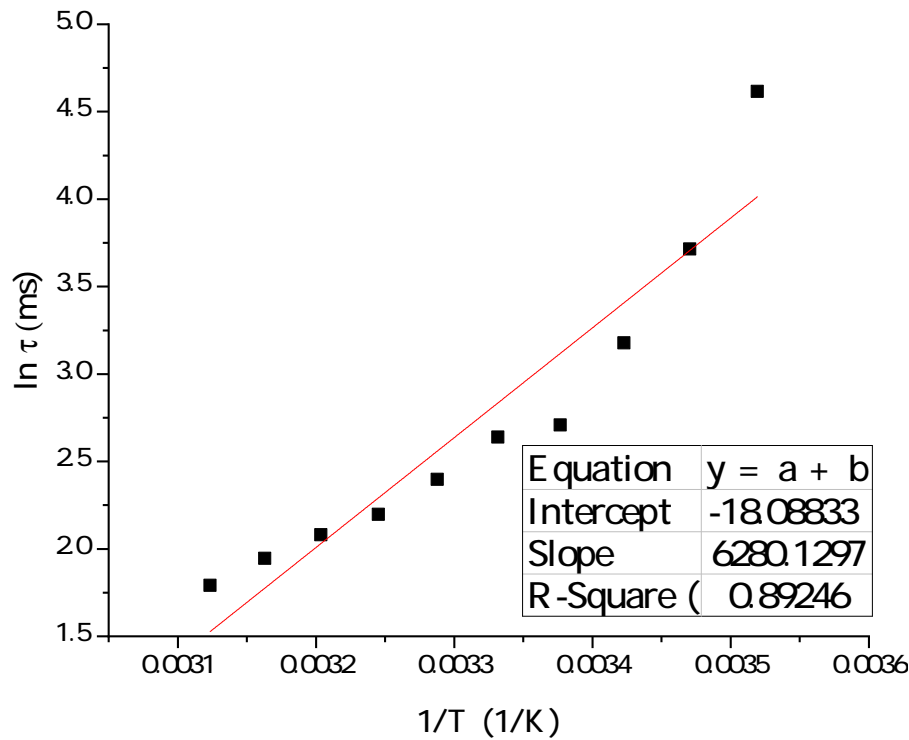
Az Arrhenius-modell szerint a relaxációs idő:

$$\tau(T) = \tau_0 \exp\left(\frac{E_a}{k_B T}\right), \quad (3.20)$$

ahol E_a az effektív aktiválási energia, k_B a Boltzmann-állandó, τ_0 pedig a preexponenciális tényező. Természetes alapú logaritmust véve:

$$\ln \tau = \ln \tau_0 + \frac{E_a}{k_B} \frac{1}{T}. \quad (3.21)$$

A fenti összefüggés alapján $\ln(\tau)$ lineárisan függ $1/T$ -től, ezért az aktiválási energia meghatározásához Arrhenius-ábrázolást készítettünk, ahol a vízszintes tengelyen $1/T$ (1/K), a függőleges tengelyen pedig $\ln(\tau)$ szerepel (3.11). Megjegyezzük, hogy a 3.11. ábrán τ ezredmásodperc (ms) egységben szerepel; ez a meredekséget (és így E_a -t) nem befolyásolja, csak a $\ln \tau_0$ tengelymetszetet tolja el konstans értékkel.



3.11. ábra. EMG700 Arrhenius-ábrázolása az aktiválás energia meghatározásához

A 3.11. ábrán látható lineáris illesztés alakja $y = a + bx$, ahol $y = \ln \tau$ és $x = 1/T$. Az illesztés paraméterei:

$$a = -18,08 \pm 2,55, \quad b = 6280,12 \pm 770,75 \text{ K}, \quad (3.22)$$

a determinációs együttható pedig $R^2 = 0.89$.

Az Arrhenius-egyenlet (3.21) és az illesztés alapján:

$$E_a = b k_B. \quad (3.23)$$

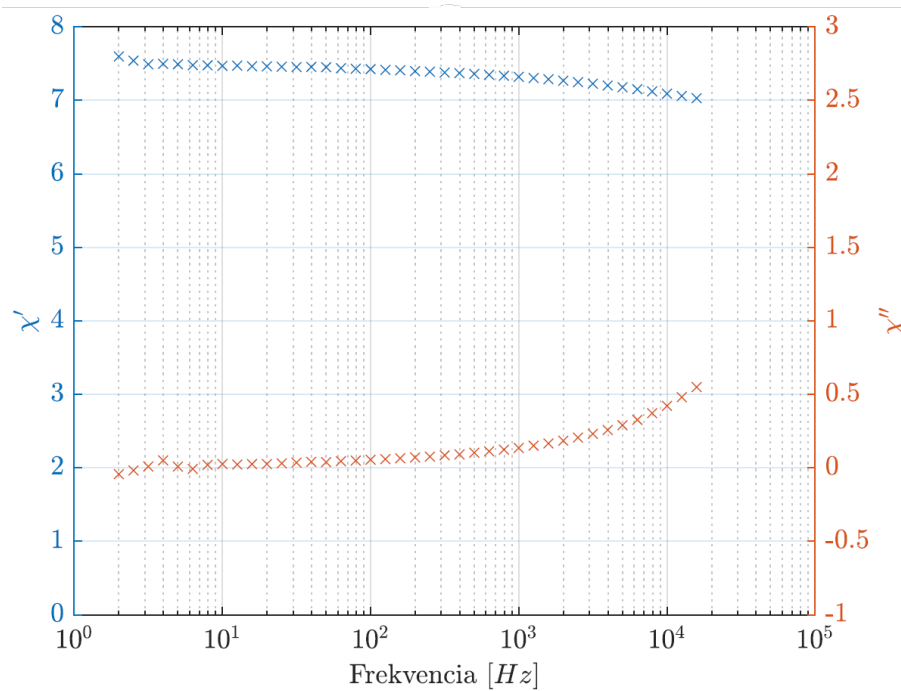
Moláris formában (kJ/mol egységben) az aktiválási energia:

$$E_a = b R \approx (6280 \pm 771) \cdot 8,314 \frac{\text{J}}{\text{mol K}} = (52,2 \pm 6,4) \text{ kJ/mol}, \quad (3.24)$$

ahol R az egyetemes gázállandó.

Az R^2 érték alapján az Arrhenius-közelítés a vizsgált hőmérséklet-tartományban elfogadható. A hőmérsékleti értékek megbízhatóságát rontja a termosztálás sajátossága. Ezen felül a pontok szórása arra utalhat, hogy a relaxációt több mechanizmus (Brown- és/vagy Néel-relaxáció), illetve mintaszerkezeti hatások (kölsönhatás, aggregáció) is befolyásolhatják.

Az illesztésből kapott paramétereket az alábbi szempontok szerint ellenőrizzük: (i) az $\ln \tau$ - $1/T$ ábrán a pontok közel lineáris trendet adnak a vizsgált tartományban; (ii) az illesztés bizonytalanságai (meredekség, tengelymetszet) reálisak és a pontszórással összhangban állnak; (III) a kapott E_a nagyságrendje összevethető a várható mechanizmussal (Néel esetén anizotrópia-energia, Brown esetén viszkozitás/hidrodinamikai forgás dominanciája).



3.12. ábra. EMG900 dinamikus mágneses szuszceptibilitása

Következtetés az aktiválási energiára. Az $\tau(T)$ adatok Arrhenius-ábrázolása alapján a relaxáció a vizsgált hőmérséklettartományban közel termikusan aktivált jellegű. A kapott E_a vizsgálata arra utal, hogy a mérési tartományban a relaxációt Brown-Néel kevert mechanizmus határozza meg. Jelentős eltérések vagy görbülés esetén a méreteloszlás, kölcsönhatások vagy aggregáció szerepe sem zárható ki, ami a mérés érvényességi tartományát kijelöli. Tekintettel a mérőberendezés termosztálásának pontatlanságaira, ezen folyadék mérési eredményeiből nem vonhatunk le messzemenő következtetéseket, a $E_a = 52,2 \text{ kJ/mol}$ számszerűsítve is mindkét relaxációs mechanizmusra utalhat, mert összhangban vagy egy egy-doménés superparamágneses vasoxid részecske Néel-gátjával, valamint utalhat a hordozóközeg reológiai sajátosságaira is (Brown-relaxáció).

3.10.4. EMG900 ferrofluidumra kapott mérési eredmények

A 3.12. ábrán egy olaj alapú ferrofluidum a Ferrotec EMG900 dinamikus mágneses szuszceptibilitását láthatjuk. A spektrumban az alábbi jellegzetességek figyelhetők meg:

(i) **Kisfrekvenciás plató a χ' komponensben.** Alacsony frekvencián a χ' közel állandó, ami a kvázi-statisztikus határértékhez (χ_s) közeli viselkedésre utal. Ez összhangban van a Debye-relaxáció alacsony frekvenciás tartományával, ahol $\omega\tau \ll 1$ esetén $\chi'(\omega) \approx \chi_s$.

(ii) **χ' lassú csökkenése nagyobb frekvenciák felé.** A mért tartomány felső részében a χ' enyhe csökkenést mutat, ami arra utal, hogy a rendszer már megközelíti a relaxációs átmeneti tartományt, vagy a spektrum több relaxációs időt

(eloszlást) tartalmaz, és a gyorsabb komponensek már részben „kifutnak” a vizsgált tartományból (nem Debye jelleg). Polidiszperzitás és kölcsönhatások esetén a spektrum csúcsa és szélessége módosul, a veszteségi csúcs alacsonyabb frekvenciára tolódhat és szélesedhet.

(iii) A χ'' komponens növekedése és a csúcs hiánya a mért tartományban. A veszteségi komponens alacsony frekvencián közel zérus, majd a frekvencia növelésével monoton növekszik a mért tartományon belül. A Debye- (és általában a Cole–Cole) típusú relaxációban $\chi''(\omega)$ tipikusan egy maximumot mutat $\omega\tau \approx 1$ környezetében. Mivel a maximum a jelenlegi mérési tartományban nem jelenik meg, a karakterisztikus relaxációs frekvencia valószínűsíthetően a vizsgált felső határ felett helyezkedik el.

Mérési korlátok és a spektrum megbízhatósága

A kiértékelésnél két, a dolgozatban korábban is tárgyalt gyakorlati szempont különösen fontos:

Alacsony frekvenciás zaj és drift. Lock-in mérés technikában a kis frekvenciákon gyakran dominál az $1/f$ jellegű zaj és a környezeti drift; a zaj csökkentése hosszabb integrálással érhető el, de ez a mérés időtartamát növeli. Ez a χ'' nagyon kis értékeinél látható kis szórás/eltérést eredményezhet.

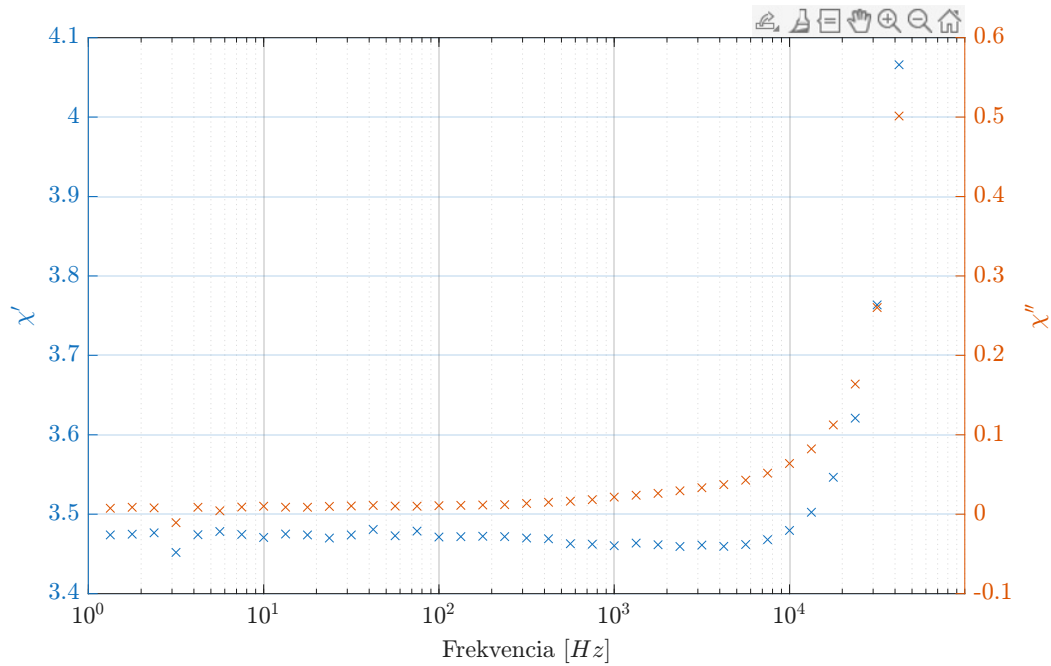
Magas frekvenciás mérőlánc-hatás. A mérőrendszer ellenőrzése során kimutatható, hogy 10 kHz felett a meghajtás amplitúdója és fázisa torzulhat (amplitúdóváltozás és növekvő fázistolás). Mivel az EMG900 spektrumban a χ'' éppen a magasabb frekvenciákon kezd jelentősebben növekedni, különösen indokolt a 10 kHz feletti pontok kalibrációval korrigált, vagy óvatosan kezelt értelmezése.

3.10.5. Parker MRF-140CG magnetoreológiai folyadéokra kapott mérési eredmények

Elvégeztük a Parker MRF-140CG magnetoreológiai folyadék dinamikus mágneses szuszeptibilitásának mérését, melynek eredményét a 3.13. ábrán láthatjuk. A spektrum értelmezése során az alábbi megállapításokat tehetjük:

(i) Kisfrekvenciás tartomány: közel állandó χ' , nagyon kicsi χ'' . Az $1-10^3$ Hz tartományban a χ' közel állandó, kb. 3.45–3.50 körül alakul, miközben a χ'' értéke a nullához közeli (nagyságrendileg < 0.05). Ez arra utal, hogy ebben a tartományban a rendszer közel kvázisztatikus módon képes követni a gerjesztést ($\omega\tau \ll 1$ jellegű viselkedés), a disszipáció pedig viszonylag kicsi.

(ii) Nagyfrekvenciás tartomány: χ' és különösen χ'' gyors növekedése. A spektrum felső részében (kb. 10^4 Hz fölött) mind a χ' , mind a χ'' meredeken emelkedik. A χ'' különösen markáns növekedése azt jelzi, hogy a veszteségi mechanizmusok a nagyobb frekvenciákon dominánsabbá válnak. MR folyadékoknál ez több okból is felléphet:



3.13. ábra. Parker MRF-140CG dinamikus mágneses szuszeptibilitása

- (a) vezető részecskékhez kötődő örvényáramos veszteségek: a tipikus MR folyadékok mikronos, jó vezetőképességű vasalapú részecskéket tartalmaznak, amelyeknél az AC mágneses tér örvényáramokat indukálhat;
- (b) mérőrendszer átviteli karakterisztikája: a magas frekvencián fellépő amplitúdó- és fázistorzulások a χ' - χ'' szétválasztásába is „átíródhatnak”, ezért ebben a tartományban különösen fontos a kalibráció vagy a pontok óvatos kezelése a korábban említett mérőberendezés korlátok miatt;
- (c) relaxációs csúcs (ha a valódi maximum a mért tartományon túl van): ha a χ'' maximuma a vizsgált felső határ felett helyezkedik el, akkor a mért görbe csak a csúcs felé „felfutó” oldalt mutatja, maximum nélkül.

(iii) **A veszteségi maximum hiánya a mért tartományban.** A $\chi''(f)$ görbén a vizsgált frekvenciasávban nem jelenik meg egyértelmű maximum. Ennek két praktikus következménye van:

1. a karakterisztikus relaxációs frekvencia (ha relaxációs modell írja le) várhatóan a mért tartományon kívül esik, ezért a τ közvetlen meghatározása nem megvalósítható;
2. a nagyfrekvenciás χ'' növekedés egy része lehet mérőlánc hatás vagy vezetési (örvényáramos) veszteség, ami nem klasszikus Debye/Cole–Cole relaxációs jellegű.

A MRF140 spektrum alapján a mérés megbízhatóan igazolja a kisfrekvenciás, közel kvázistatikus viselkedést, ugyanakkor a nagyfrekvenciás tartományban tapasztalt meredek χ'' növekedés miatt célszerű a következő kiegészítő lépések elvégzése:

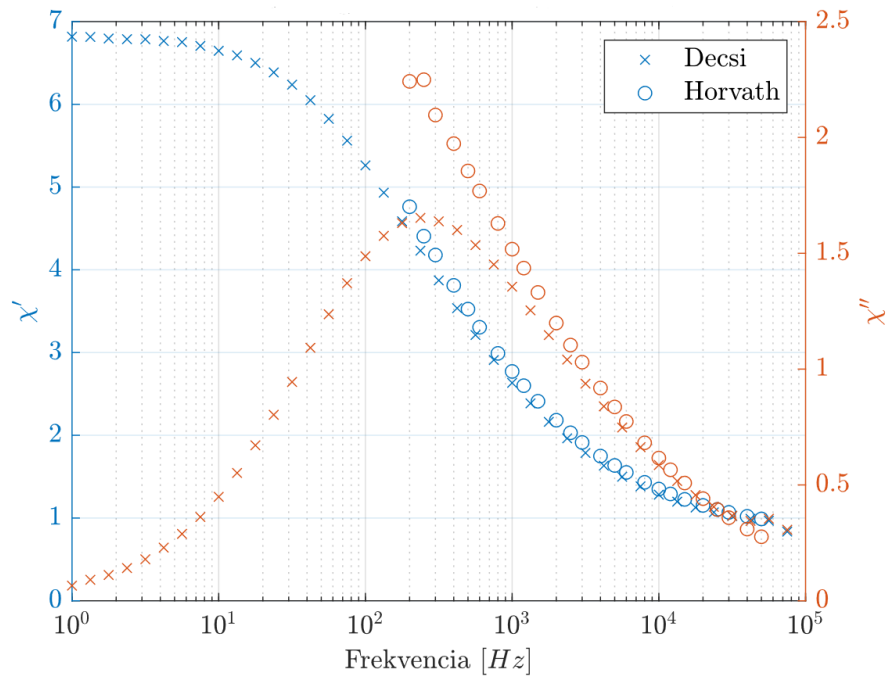
- **Kiterjesztett frekvenciasáv**, hogy a χ'' maximum megjelenjen és a τ stabilan becsülhető legyen;
- **Kalibráció nagy frekvencián**, hogy elválasztható legyen a minta-fizikai veszteség és a mérőberendezés torzítása;
- **DC előmágnesezéses mérőssor**: szuperponált DC térerősséggel vizsgálni, hogyan változik a spektrum a részecskék láncképződése/struktúrája miatt (különösen χ'' és a jelalak).

3.10.6. Mérési eredmények összehasonlítása szakirodalmi adatokkal

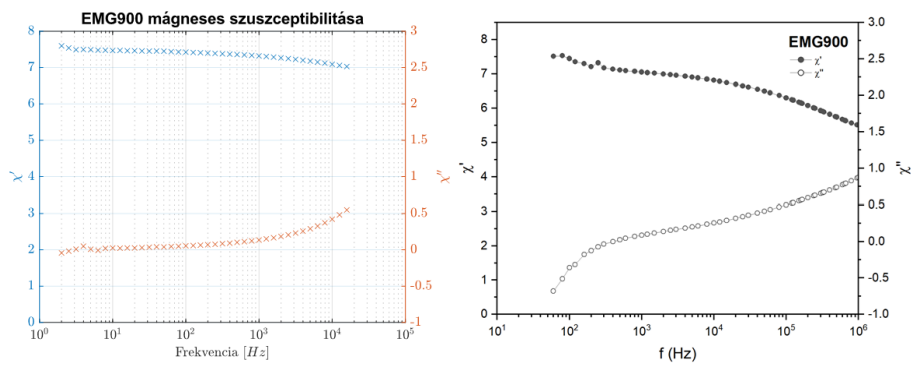
Az általunk kiválasztott anyagokra közvetlenül mérési eredményeket nem találtunk, azonban a kutatócsoport, melyben részt vettem, RLC impedanciamérésen alapuló mérőberendezést (Horváth B.) is fejlesztett. A két mérőberendezés sávszélessége eltérő, de van köztük átfedés, így az eredmények összehasonlíthatóak. A méréseket azonos körülmények között, ugyanazon mintán, kis időeltolódással végeztük, így a környezeti tényezők befolyását minimalizáltuk.

Az RLC körös mérőberendezés működési elve azon alapul, hogy egy LC oszcillátor rezonanciafrekvenciáját egy mintával töltött légmagos szolenoid (L) és egy fix kapacitás (C) határozza meg, így a szolenoidban lévő anyag mágnesezhetőségének változása megváltoztatja az induktivitást, és ezzel eltolja a rezonanciafrekvenciát. A szuszceptibilitást tehát a kis amplitúdójú, váltakozó „próbatér” frekvenciaváltozásából határozható meg, miközben a mintát egy külső gerjesztő térnek tesszük ki. A rezonanciafrekvenciát nagy időfelbontással egy frekvenciaanalizátor követi, és a frekvencia-suszceptibilitás kapcsolatát ismert szuszceptibilitású anyagokkal végzett kalibráció adja meg. A külső mágnesezést a detektáló tekercs köré helyezett Helmholtz-tekercspár hozza létre, jellemzően nagyáramú meghajtással és mérésvezérléssel, így a rendszer a frekvenciaeltolódás időbeli követéséből adja a szuszceptibilitás (különösen a valós komponens) időfüggését [C1].

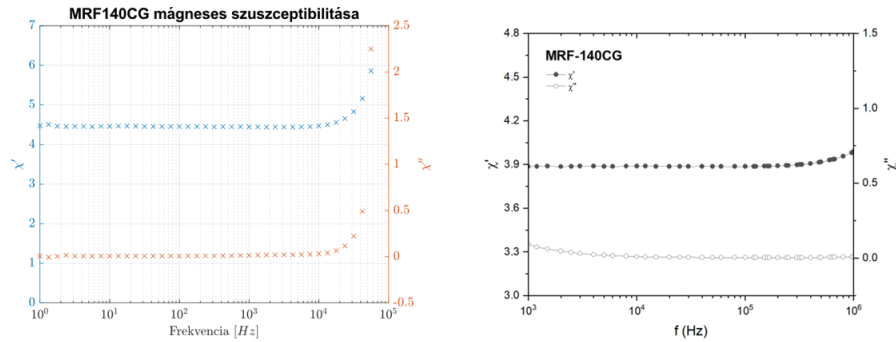
A mérési eredményekből (3.14., 3.15. és 3.16. ábrák) látható, hogy a spektrumok jellegre és nagyságrendjüket tekintve is megegyeznek, eltéréseket a berendezések működési elvéből adódó sávszélességkorlátok miatt láthatunk. Az egyetlen adat, amellyel a mérési eredmény összehasonlítható, a gyártó által megadott 12,57-es kezdeti mágnesezhetőség, ugyanakkor nincs megadva, hogy ez milyen mérési módszerrel, milyen körülmények között mérve igaz. A gyártó honlapján is szerepel, hogy a konkrét folyadék tervezési szempontjai között szerepelt a gyors párolgás, amely a koncentrációt befolyásolja. Az általuk mért anyagra/mintára vonatkozóan nem ismertek a folyadék korára, állapotára és előéletére vonatkozó tulajdonságok, így az eredmények közvetlenül nem összehasonlíthatók. A fenti ábrákon látható mérési eredmények összehasonlításával következtethetünk arra, hogy a mérési eredményeink reálisak. További igazolásként a Cole-Cole illesztés pontosságából ($R^2 = 99,85\%$) és az aktiválási energia illesztésének pontosságából ($R^2 = 89,24\%$) a mérési eredmények jó korrelációt mutatnak az elméleti modellekkel.



3.14. ábra. EMG700 dinamikus mágneses szuszeptibilitásának összehasonlítása (x szimbólummal Decsi P. differenciáltranszformátoros mérési elven mérve, o szimbólummal Horváth B. RLC körös impedanciamérés elven mérve)



3.15. ábra. EMG900 mágneses szuszeptibilitás spektruma (bal oldalon Decsi P. differenciáltranszformátoros lock-in mérési elven mérve, jobb oldalon Horváth B. RLC körös impedanciamérés elven mérve)



3.16. ábra. MRF 140 CG mágneses szuszceptibilitás spektruma (bal oldalon Decsi P. differenciáltranszformátoros lock-in mérési elven mérve, jobb oldalon Horváth B. RLC körös impedanciamérés elven mérve)

3.11. Összefoglalás a kísérleti módszerről

A fejezetben bemutatott a dinamikus mágneses szuszceptibilitás méréséhez alkalmazott, saját fejlesztésű kölcsönös indukciós (differenciáltranszformátoros) szuszceptométer felépítését és a hozzá tartozó mérési protokollt. A bemutatott elrendezésben a referencia- és mintatekerces differenciális kapcsolása, valamint a lock-in detektálás biztosítja, hogy a komplex szuszceptibilitás frekvenciafüggése a vizsgált tartományban reprodukálhatóan meghatározható legyen, miközben a gerjesztés stabilitását a precíziós áramgenerátoros meghajtás garantálja. A fejezetben tárgyaltuk a mérés szempontjából lényeges korlátokat is (különösen a magasabb frekvenciákon fellépő amplitúdó- és fázistorzulásokat, illetve a termosztálásból adódó bizonytalanságokat), amelyek a későbbi kiértékelés során a pontok súlyozását és az értelmezés óvatosságát indokolják.

Az előző főfejezetben összefoglalt elméleti háttér (komplex szuszceptibilitás, relaxációs képek és nem-Debye viselkedés, lock-in méréstechnika) e fejezetben a konkrét mérőeszköz és a végrehajtási rend szintjén válik alkalmazhatóvá. A későbbi fejezetekben bemutatott MSA-alapú modellezés a jelen fejezetben definiált mérhető mennyiségekhez és a validált mérési tartományhoz kapcsolható: a cél a mért spektrumokkal konzisztens paraméterezés, valamint a ferrofluidumok és magnetoreológiai folyadékok dinamikájának kvantitatív összehasonlítása.

4. fejezet

Elméleti modell váltakozó mágneses térben

Ebben a fejezetben olyan elméleti modellt mutatunk be, amely alkalmas a mágneses folyadékok tisztán váltakozó (AC) mágneses térre adott lineáris és nemlineáris mágneses válaszána - különösen a komplex szuszceptibilitás harmonikus komponenseinek - leírására. Fontos megemlítenünk, hogy a mérések során SI mértékegységrendszert alkalmaztunk, az elméleti modellek esetén pedig a kapcsolódó szakirodalom inkább a CGS mértékegységrendszert alkalmazza, így mi is ezt választottuk. A kiindulópont a dipoláris keménygömb-modell, valamint Wertheim Mean Spherical Approximation (MSA) elmélete[31], amelyre Szalai és munkatársai [32, 33, 53, 54, 34, 55] sűrűségfukcionál-elméleti alapon implicit mágnesezettségi egyenletet vezettek le monodiszperz mágneses folyadékokra. Ennek a mágnesezettségi függvénynek a térerősség szerinti sorfejtéséből felírható a mágnesezettség és a statikus szuszceptibilitás gyenge és közepes terekre érvényes hatványsora, majd az így kapott együtthatók segítségével meghatározhatók a dinamikus szuszceptibilitás harmonikusai váltakozó térben [C2].

4.1. MSA mágnesezettség sorfejtése térerősség szerint

Annak érdekében, hogy a 2.9. fejezetben bemutatott 2.33. implicit egyenletet meg tudjuk oldani, fejtsük sorba térerősség szerint növekvő hatványsorrend szerint, azt feltételezve, hogy gyenge-közepes térerősség tartományban maradunk. Hetedrendű sorfejtés után

$$M(H) = m_0 + m_1H + m_2H^2 + m_3H^3 + m_4H^4 + m_5H^5 + m_6H^6 + m_7H^7 + \dots \quad (4.1)$$

A mágneses folyadékok nem mutatnak spontán mágnesezettséget ezért m_0 értéke nulla, szimmetria megfontolások miatt a páros kitevűjű tagok is nullák. A tagok kifejtés után a következő alakba írhatók fel:

$$m_1 = \frac{\rho\mu^2}{3k_B T} \frac{1}{q(-\xi)} \quad (4.2)$$

$$m_3 = -\frac{\rho\mu^4}{45(k_B T)^3} \frac{1}{q^4(-\xi)} \quad (4.3)$$

$$m_5 = -\frac{\rho\mu^6}{4725(k_B T)^5} \frac{11q(-\xi) - 21}{q^7(-\xi)} \quad (4.4)$$

$$m_7 = -\frac{\rho\mu^8}{70875(k_B T)^7} \frac{19q^2(-\xi) - 88q(-\xi) + 84}{q^{10}(-\xi)} \quad (4.5)$$

A formulák felépítéséből jól látható, hogy

- az együtthatók abszolút értéke a rend növekedésével gyorsan csökken
- az m_1 tag a lineáris válaszért felelős és $H \rightarrow 0$ határérték esetén a kezdeti szuszceptibilitást kapjuk
- az m_3, m_5, m_7 stb. együtthatók a nemlinearitás különböző fokát írják le: minél nagyobb rendű együtthatóhoz tartozó tag járul hozzá mérhetően, annál erősebben nemlineáris az $m(H)$ jelleggörbe.

4.1.1. Statikus, térerősség-függő szuszceptibilitás

A mágneses szuszceptibilitás térfüggésének leírásához vegyük a mágnesezettség mágneses térerősség szerinti parciális deriváltját.

$$\chi = \frac{\partial M}{\partial H} \quad (4.6)$$

A műveletet a 4.1. egyenleten végrehajtva megkapjuk a

$$\chi = m_1 + 3m_3 H^2 + 5m_5 H^4 + 7m_7 H^6 + \dots \quad (4.7)$$

összefüggést.

m_1 visszaadja a szuszceptibilitást tér nélküli közelítésben

$$\chi_0 = \frac{\chi_L}{1 - 4\pi\chi_L/3}, \quad (4.8)$$

vagy átrendezve a gyakoribb Langevin szuszceptibilitás formájában

$$\chi_L = \frac{\chi_0}{4\pi\chi_0/3 + 1}. \quad (4.9)$$

4.1.2. Szuszceptibilitás időfüggvénye tisztán váltakozó térben

Az időfüggő mágneses szuszceptibilitás felírásához tekintsük a mágneses térerősséget periodikusan változó mennyiségnek,

$$H(t) = H_0 \cos(\omega t) \quad (4.10)$$

ahol H_0 a térerősség amplitudója, ω a körfrekvencia, t az idő. Az időfüggő mágneses szuszceptibilitás nemlinearitása kifejezhető a magasabb rendű felharmonikusokkal.

Az időfüggő szuszeptibilitás Fourier-bontása

Amennyiben behelyettesítjük a 4.7. egyenletbe az időfüggést, alkalmazzuk a megfelelő trigonometrikus azonosságokat, a következő sorfejtett egyenletet kapjuk.

$$\chi(t) = \chi_0 + \chi_{2\omega} \cos(2\omega t) + \chi_{4\omega} \cos(4\omega t) + \chi_{6\omega} \cos(6\omega t) + \dots \quad (4.11)$$

A felíráshoz az alábbi trigonometrikus összefüggéseket használtuk.

$$\begin{aligned} \sin^2 x &= \frac{1 - \cos(2x)}{2} \\ \sin^4 x &= \frac{3 - 4 \cos(2x) + \cos(4x)}{8} \\ \sin^6 x &= \frac{10 - 15 \cos(2x) + 6 \cos(4x) - \cos(6x)}{32} \end{aligned} \quad (4.12)$$

A trigonometrikus függvények együtthatói a következő formában fejthetők ki.

$$\chi_0 = m_1 + \frac{3}{2}m_3H_0^2 + \frac{15}{8}m_5H_0^4 + \frac{35}{16}m_7H_0^6 \quad (4.13)$$

$$\chi_{2\omega} = \frac{3}{2}m_3H_0^2 + \frac{5}{2}m_5H_0^4 + \frac{105}{32}m_7H_0^6 \quad (4.14)$$

$$\chi_{4\omega} = \frac{5}{8}m_5H_0^4 + \frac{21}{16}m_7H_0^6 \quad (4.15)$$

$$\chi_{6\omega} = \frac{7}{32}m_7H_0^6 \quad (4.16)$$

Látható, hogy az elsőrendű tag is tartalmaz összetevőket a magasabb rendű együtthatókból, a tagok száma viszont csökken a harmonikus számával.

A mágneses válasz komplex leírása

Amennyiben vizsgálni kívánjuk a szuszeptibilitást váltakozó mágneses térben, tekintsünk rá komplex mennyiségként (2.36. egyenlet szerint). A statikus egyenletekbe helyettesítsük be a frekvenciafüggő komplex mennyiségeket

$$\frac{\mu^2 H}{3k_B T} \equiv \frac{\mu^2 H}{3k_B T} \frac{1}{1 + i\omega\tau} \quad (4.17)$$

A behelyettesítések után a komplex MSA tagok az alábbiak lesznek.

$$\hat{m}_1 = \frac{\rho\mu^2}{3k_B T} \frac{1}{q(-\xi)} \frac{1}{1 + i\omega\tau} \quad (4.18)$$

$$\hat{m}_3 = -\frac{\rho\mu^4}{45(k_B T)^3} \frac{1}{q^4(-\xi)} \frac{1}{(1 + i\omega\tau)^2} \quad (4.19)$$

$$\hat{m}_5 = -\frac{\rho\mu^6}{4725(k_B T)^5} \frac{11q(-\xi) - 21}{q^7(-\xi)} \frac{1}{(1 + i\omega\tau)^3} \quad (4.20)$$

$$\hat{m}_7 = -\frac{\rho\mu^8}{70875(k_B T)^7} \frac{19q^2(-\xi) - 88q(-\xi) + 84}{q^{10}(-\xi)} \frac{1}{(1 + i\omega\tau)^4} \quad (4.21)$$

A $\hat{\chi}_{n\omega}$ ($n=2, 4, 6$) a nemlineáris szuszceptibilitások és a n -edik harmonikus amplitudóját jelentik. Mágneses térerősség hiányában, ahol a mágnesezettség a lineáris régióban van, a magasabb rendű felharmonikusok eltűnnek és csak $\hat{\chi}_0$ van jelen, amely a lineáris szuszceptibilitás. Tipikus mágneses folyadékokban a magasabb rendű felharmonikusok annyira alacsonyak, hogy a pontos mérésük kísérleti módszerekkel jelenleg nem lehetséges, ezért elhanyagoljuk, a magasabb rendű szuszceptibilitásukat csak a negyedik tagig vizsgáljuk [C2].

4.2. Eredmények tisztán váltakozó mágneses térben

4.2.1. Numerikus számítások

A függvények és spektrumok ábrázolásához redukált mennyiségeket alkalmaztunk a numerikus számítások során. Vezessük be a $\rho^* = \rho\sigma^3$ redukált sűrűséget, $\mu^* = \mu/\sqrt{\sigma^3 k_B T}$ redukált dipólusmomentumot és $H^* = H\sqrt{\sigma^3/(k_B T)}$ redukált mágneses térerősséget.

Az ábrázoláshoz egy tipikus híg mágneses folyadék tulajdonságait legjobban közelítő mennyiségeket határoztunk meg. Vegyük figyelembe, hogy a modell $\sigma \approx 10nm$ tökéletes gömb részecskéket tartalmaz egy hordozóközegben. Vegyük $\rho^* = 0,1$ -nek, $\mu^* = 1$ -nek így a folyadék Langevin szuszceptibilitása $4\pi\chi_L \approx 0,415$.

Az általunk vizsgált sorfejtett MSA modell kis mágneses tér mellett vizsgálandó. A 2.33. egyenletben szereplő $q(-\xi)$ értékét háromféleképpen modellezhetjük. Langevin szerint $q(-\xi) = 1$, Debye-Weiss szerint $q(-\xi) = 1 - (4\pi\mu^2\rho)/9$ az MSA szerint pedig a 2.32. és a 2.31. egyenletek segítségével adható meg. Mivel ez egy implicit függvény numerikus közelítéssel számítottuk ki az értékét. A fenti bekezdésben megadott értékek felhasználásával $q(-\xi) \approx 0,877$ -nek tekintettük.

4.2.2. Frekvenciafüggés gyenge terekben

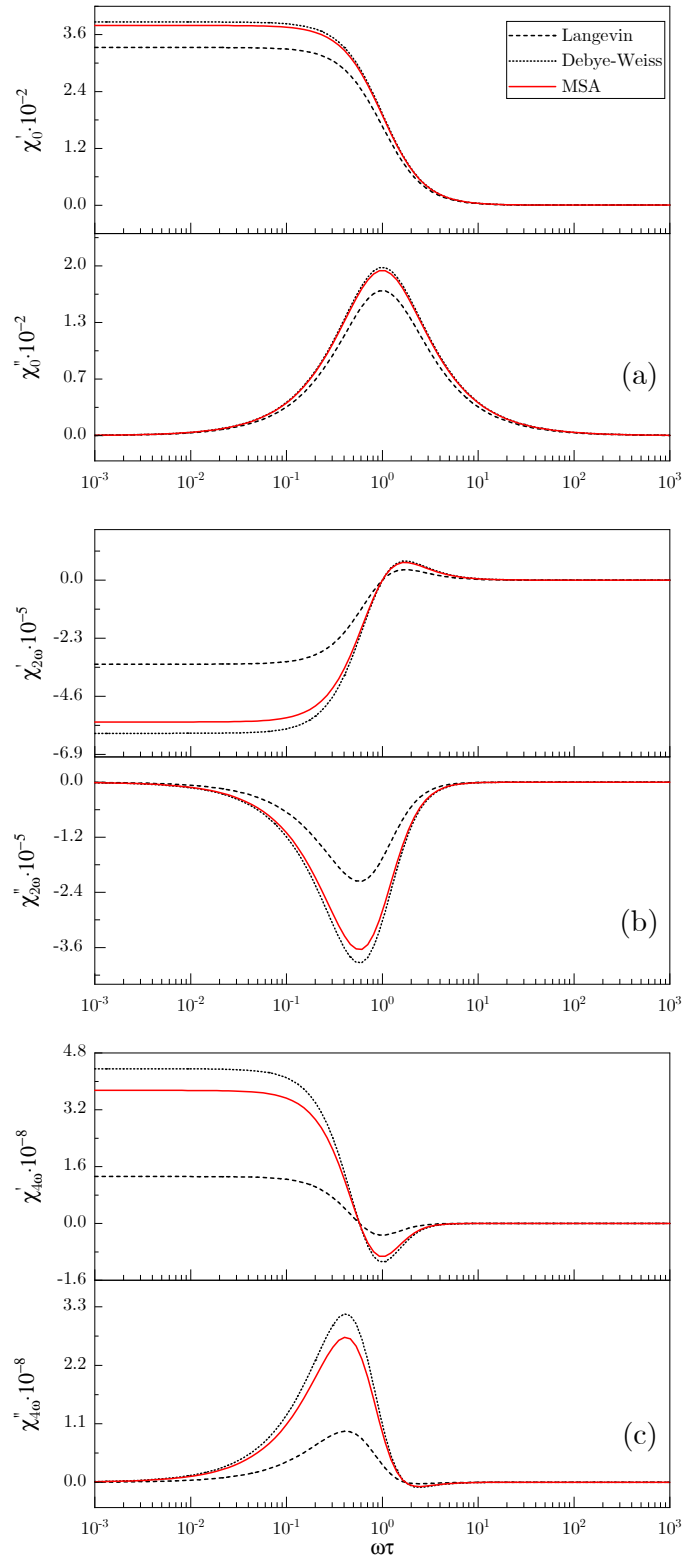
Gyenge mezőben ($H^* \approx 0,1$) a lineáris komponens spektruma jól illeszkedik a klasszikus Debye-relaxációhoz: $\chi'_0(\omega)$ kis frekvencián közel konstans, majd a relaxációs frekvencia környezetében ($\omega\tau \approx 1$) meredeken csökken, miközben $\chi''_0(\omega)$ egy jól definiált, közel szimmetrikus csúcsot mutat (4.1).

A nemlineáris $\hat{\chi}_{2\omega}$ és $\hat{\chi}_{4\omega}$ komponensek frekvenciafüggése ugyanakkor lassabb relaxációt jelez: a képzetes rész ($\chi''_{2\omega}$, $\chi''_{4\omega}$) csúcsa az $\omega\tau < 1$ tartományba tolódik, a spektrum alsó frekvenciás oldala kiszélesedik, és a görbe aszimmetrikussá válik. Ez azzal magyarázható, hogy a nemlineáris komponensek az $M(H)$ magasabb rendű deriváltjaira érzékenyek, amelyeknél a dipólus-dipólus kölcsönhatások, valamint a részleges telítettség miatt a relaxáció lelassul. A számítások kvalitatívan reprodukálják a Fokker-Planck-egyenleten alapuló bonyolultabb elméletek eredményeit [56].

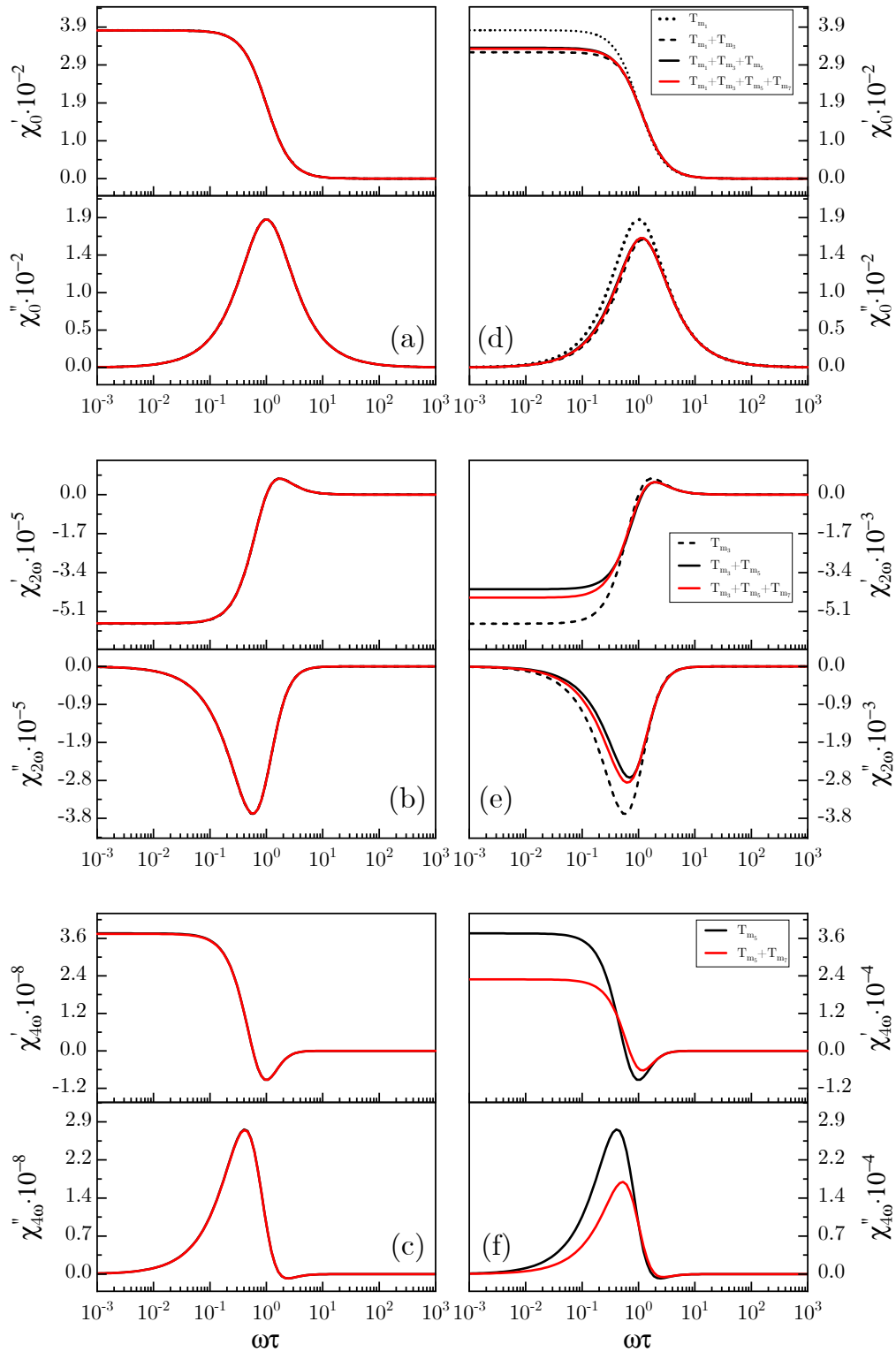
4.2.3. Térerősségfüggés, a nemlinearitás erősödése

A térerősség növelésének hatását a $\hat{\chi}_0$, $\hat{\chi}_{2\omega}$ és $\hat{\chi}_{4\omega}$ komponensek spektrumára úgy vizsgáljuk, hogy H^* értékét például 0,1-től 1-ig változtatjuk (4.3. ábra). A numerikus eredmények alapján a következő általános trendek figyelhetők meg:

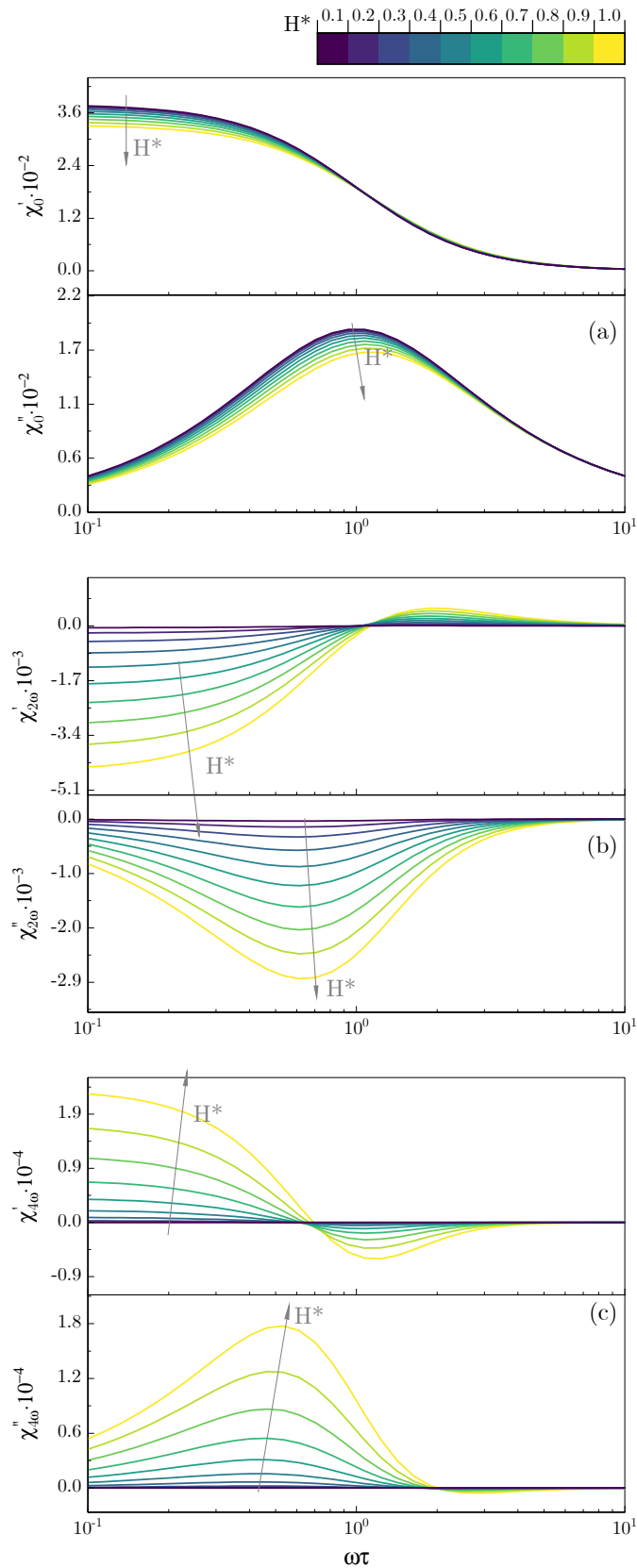
- A lineáris komponens $|\hat{\chi}_0|$ csökken a tér növelésével, ami a mágnesezettség telítődése miatt a differenciális szuszceptibilitás csökkenését tükrözi. A $\chi''_0(\omega)$



4.1. ábra. A lineáris $\hat{\chi}_0$ (a) és a magasabb rendű nemlineáris $\hat{\chi}_{2\omega}$ (b) és $\hat{\chi}_{4\omega}$ (c) szuszceptibilitások az MSA elmélet és a Langevin, valamint a Debye-Weiss közelítések összehasonlítására kis mágneses térerősség mellett ($H^* = 0, 1, \rho^* = 0, 1, \mu^* = 1$)



4.2. ábra. A hetedrendű $M(H)$ -sorfejtésből származtatott harmonikus szuszceptibilitások konvergenciájának szemléltetése a térerősség függvényében: a görbék a sorfejtés részösszegeit (egymásra épülő közelítéseit) mutatják, és összevethetők a numerikusan meghatározott referenciaértékekkel. A konvergencia gyenge mezőkben jó, míg nagyobb H^* értékeknél és magasabb rendű harmonikusoknál (különösen $\hat{\chi}_{4\omega}$ esetén) romlik, ami további tagok bevonását indokolhatja.



4.3. ábra. A $\hat{\chi}_0$, $\hat{\chi}_{2\omega}$ és $\hat{\chi}_{4\omega}$ spektrumainak változása a gerjesztő tér amplitúdójával: a számításokban H^* értékét 0,1 és 1 között változtatjuk. A térerősség növelésével a lineáris komponens csökkenése, valamint a nemlineáris komponensek spektrumának eltolódása és torzulása követhető.

relaxációs csúcsa a nagyobb tér esetén magasabb frekvenciák felé tolódik, ami a relaxációs idő rövidülésére utal.

- A nemlineáris komponensek - különösen $|\hat{\chi}_{2\omega}|$ - szignifikánsan növekednek a tér erősödésével, nagyjából hatványfüggés szerint az adott tartományban.
- A $\hat{\chi}_{4\omega}$ komponens tipikusan egy nagyságrenddel kisebb, mint $\hat{\chi}_{2\omega}$, de még jól mérhető szintet érhet el a gyakorlatban alkalmazott AC térerősségek mellett.

A nagyon nagy terek ($H^* < 1,6$) tartományában a hetedik rendűre sorfejtett modell már nem minden esetben ad fizikailag ésszerű spektrumot: a $\chi'_0(\omega)$ és $\chi''_0(\omega)$ görbéken lokális maximumok és oszcillációk jelenhetnek meg, amelyek az $M(H)$ sorfejtésének konvergencia-határára utalnak. A modell ilyen terekben csak óvatosan használható, vagy magasabb rendű (H^9, H^{11}, \dots) tagok bevezetésével javítható.

4.2.4. A sorfejtés konvergenciája

Mivel a lineáris és nemlineáris szuszceptibilitás-komponensek (4.13-4.16. egyenletek) sorozatok formájában épülnek fel az $m_1, m_3, m_5, m_7, \dots$ együtthatókból, célszerű megvizsgálni, hogy gyenge és közepes terekben milyen pontossággal közelíthetők a sor első néhány tagjával.

A numerikus vizsgálat azt mutatja [C2], hogy:

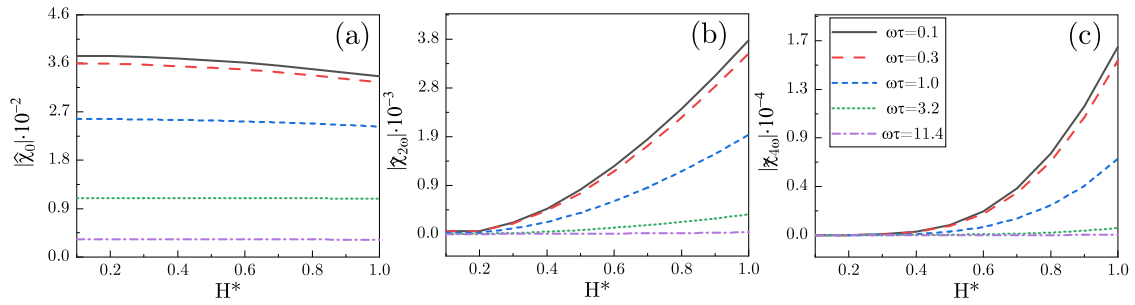
- gyenge terekben ($H^* < 0,1$) ez az egyszerűsítés nagyon jó: a teljes és az első taggal közelített spektrum gyakorlatilag fedésben van mindhárom komponensnél;
- közepes terekben ($H^* \approx 1$) az eltérések már jelentősek, különösen a $\hat{\chi}_{4\omega}$ komponensnél, ahol a sorban rendelkezésre álló tagok száma is kisebb (a hetedik rendű sorfejtés miatt csak m_5 és m_7 járul hozzá);
- a konvergencia minősége a harmonikus szám növekedésével romlik: míg $\hat{\chi}_0$ és $\hat{\chi}_{2\omega}$ esetén a sor még elfogadhatóan viselkedik, $\hat{\chi}_{4\omega}$ közelében már sokkal érzékenyebb a magasabb rendű tagokra.

Ez a viselkedés alátámasztja, hogy a hetedik rendű sorfejtés gyenge mezőkben elegendő a negyedik harmonikusig, de nagyobb térerősségek és magasabb harmonikusok korrektebb leírásához a sorfejtés további tagjainak bevonása szükséges.

4.3. Összefoglalás a MSA sorfejtett modellre vonatkozóan

A 4.1. fejezetben a mágneses folyadékok dinamikus szuszceptibilitásának leírására alkalmas, MSA-alapú elméleti modellt mutattuk be tisztán váltakozó mágneses tér esetére [C2]. A legfontosabb eredmények a következőkben foglalhatók össze:

1. Analitikus mágnesezettségi sorfejtés. A dipoláris keménygömb modell MSA-alapú mágnesezettségi egyenletét H térerősség szerint hetedik rendig sorba fejtve zárt alakú kifejezéseket kaptunk az m_1, m_3, m_5, m_7 együtthatókra. Ezek

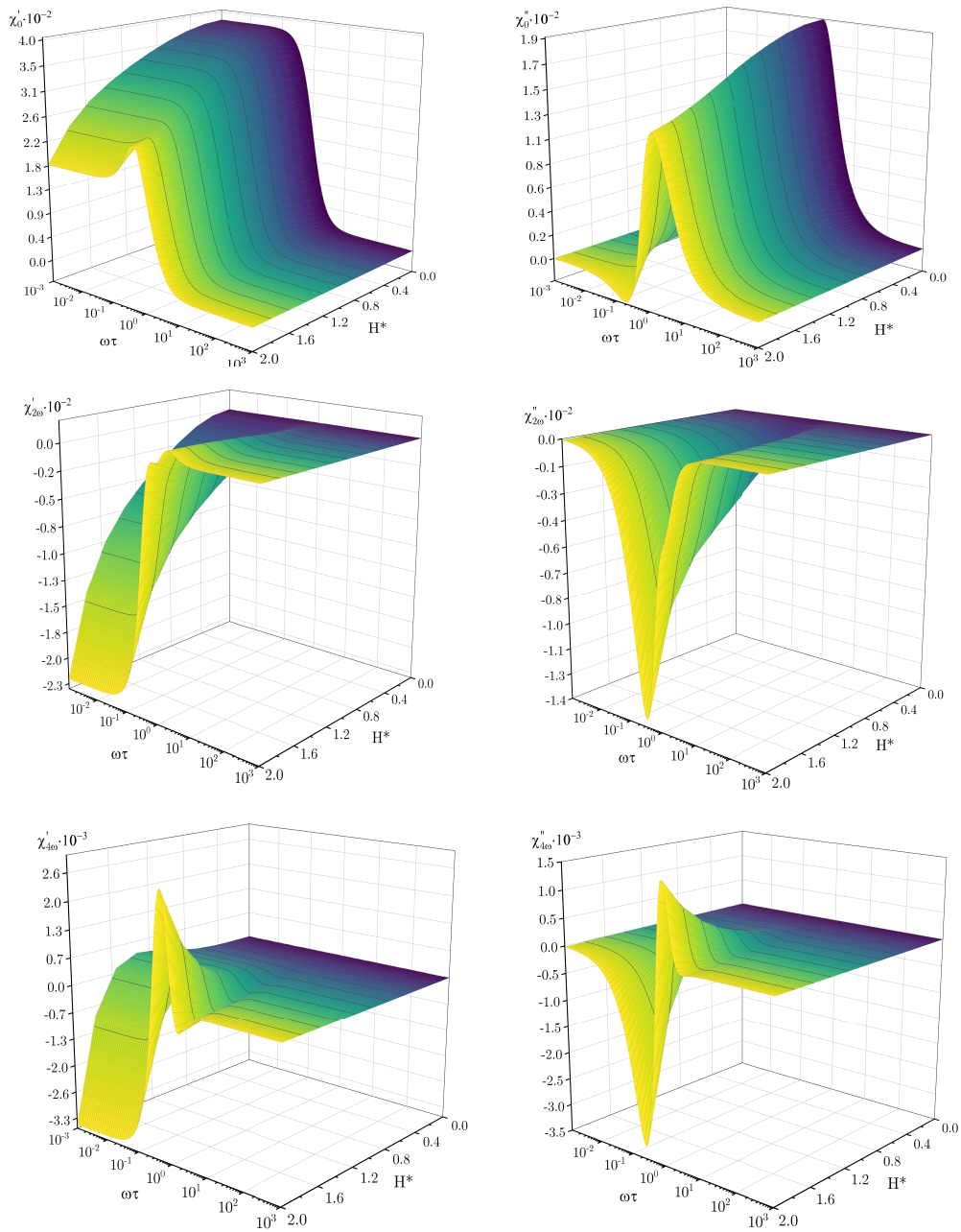


4.4. ábra. A harmonikus komponensek amplitúdójának térerősségfüggése: H^* térerősség függvényében, több dimenziótlan frekvencián ($\omega\tau = 0, 1; 0, 3; 1, 0; 3, 2; 11, 4$).

a koefficiensek közvetlenül kapcsolódnak a folyadék mikroszkopikus paramétereireihez (ρ , μ , T) és a $q(\xi)$ redukált inverz kompresszibilitási függvényhez, így könnyen alkalmazhatók paraméter-illesztésre.

2. Statikus és dinamikus szuszceptibilitás kapcsolata. A mágnesezettség sorfejtéséből következő $\chi(H)$ térerősség-függő szuszceptibilitás a 0., 2., 4. és 6. harmonikus Fourier-komponenseire bontva egyszerű, analitikusan kezelhető formulákat ad a nemlineáris dinamikus szuszceptibilitásra. A kifejezések világosan mutatják, hogy az egyes harmonikusok amplitúdói különböző hatványfüggéssel skálázódnak a térerősség amplitúdójával.
3. Debye-típusú időfüggés beépítése. A Debye–Weiss modellből kiinduló relaxációs formula alkalmazásával a statikus MSA-eredményeket kiterjesztettük a komplex, frekvenciafüggő szuszceptibilitásokra: az m_k statikus együtthatók \hat{m}_k komplex mennyiségekké válnak, amelyekben a $1/(1 + i\omega\tau)^p$ faktorok a relaxáció rendjét tükrözik.
4. Numerikus vizsgálat és érvényességi tartomány. A redukált paraméterekkel számolt spektrumok gyenge terekben kvantitatívan közelítik a Debye–Weiss-limit viselkedését, miközben figyelembe veszik az MSA által leírt kölcsönhatási hatásokat is. A lineáris komponens klasszikus Debye-csúcsot mutat, míg a nemlineáris komponensek csúcsa alacsonyabb frekvenciára tolódik, spektrumuk kiszélesedik. A hetedik rendű sorfejtés gyenge mezőkben ($H^* < 0,1$) jól használható a negyedik harmonikusig, nagyobb mezőkben azonban a konvergencia romlik, és magasabb rendű tagok bevonása szükséges.

A következő főfejezetben a fenti leírást kiterjük olyan esetre, amikor a váltakozó mágneses térre egy egyenáramú (DC) bias tér is superponálódik. Ez a szimmetriasértés miatt új, páratlan harmonikusok megjelenéséhez vezet, és lehetővé teszi a mágneses folyadékok viselkedésének részletesebb modellezését.



4.5. ábra. A komplex szuszceptibilitás háromdimenziós reprezentációja: a harmonikus komponensek (lineáris és nemlineáris tagok) valós és képzes részének felületszerű ábrázolása a frekvenciafüggés szemléltetésére.

5. fejezet

Elméleti modellek váltakozó (AC) és egyen (DC) mágneses térben

5.1. MSA sorfejtett mágnesezettségi és szuszceptibilitás egyenlet

Annak érdekében, hogy a váltakozó és rá szuperponált egyen mágneses tér modelljét is fel tudjuk állítani, szintén induljunk ki a 2.9. fejezetben bemutatott 2.33. Langevin mágnesezettségi egyenletből és tartsuk meg a 4.1. egyenletet amely a térerősség szerinti sorfejtést mutatja be. Az együtthatók ebben az esetben is megegyeznek a korábban bemutatottakkal (4.2 – 4.5. egyenletek). A mágneses szuszceptibilitás felírásához a 4.7. egyenletet alkalmazzuk.

5.1.1. A szuszceptibilitás időfüggvénye váltakozó és rá szuperponált váltakozó térben

Amennyiben a váltakozó mágneses térre H_0 amplitudójú egyen teret (H_{DC}) szuperponálunk a térerősség helyére a következő összefüggést helyettesítsük:

$$H(t) = H_{DC} + H_0 \cos(\omega t) \quad (5.1)$$

Az AC és DC tér irányultsága megegyezik a hengeres minta hosszirányú tengelyével. Trigonometrikus azonosságok alkalmazásával a következő formára alakítjuk az egyenletet [C3].

$$\chi(t) = \chi_0 + \chi_{1\omega} \cos(\omega t) + \chi_{2\omega} \cos(2\omega t) + \chi_{3\omega} \cos(3\omega t) + \chi_{4\omega} \cos(4\omega t) + \chi_{5\omega} \cos(5\omega t) + \chi_{6\omega} \cos(6\omega t) + \dots \quad (5.2)$$

Az egyen tér hatására a tisztán váltakozó térrel ellentétben nem tűnnek el páratlan összetevők a χ_k szuszceptibilitás komponensekből. A szuszceptibilitás komponensek a következő alakot kapják, ahol a m_k összetevők az előző főfejezetben bemutatottak maradnak.

$$\begin{aligned} \chi_0 = & m_1 + \frac{3}{2}m_3 (H_0^2 + 2H_{DC}^2) + \\ & \frac{15}{8}m_5 \left(H_0^4 + 8H_0^2H_{DC}^2 + \frac{8}{3}H_{DC}^4 \right) + \\ & \frac{35}{16}m_7 \left(H_0^6 + 18H_0^4H_{DC}^2 + \frac{16}{5}H_{DC}^6 \right) \end{aligned} \quad (5.3)$$

$$\begin{aligned} \chi_{1\omega} = & 6m_3H_0H_{DC} + 15m_5 \left(H_0^3H_{DC} + \frac{4}{3}H_0H_{DC}^3 \right) + \\ & \frac{105}{4}m_7 \left(H_0^5H_{DC} + 4H_0^3H_{DC}^3 + \frac{8}{5}H_0H_{DC}^5 \right) \end{aligned} \quad (5.4)$$

$$\begin{aligned} \chi_{2\omega} = & \frac{3}{2}m_3H_0^2 + \frac{5}{2}m_5 (H_0^4 + 6H_0^2H_{DC}^2) + \\ & \frac{105}{32}m_7 (H_0^6 + 16H_0^4H_{DC}^2 + 16H_0^2H_{DC}^4) \end{aligned} \quad (5.5)$$

$$\chi_{3\omega} = 5m_5H_0^3H_{DC} + \frac{105}{8}m_7 \left(H_0^5H_{DC} + \frac{8}{3}H_0^3H_{DC}^3 \right) \quad (5.6)$$

$$\chi_{4\omega} = \frac{5}{8}m_5H_0^4 + \frac{21}{16}m_7 (H_0^6 + 10H_0^4H_{DC}^2) \quad (5.7)$$

$$\chi_{5\omega} = \frac{21}{8}m_7H_0^5H_{DC} \quad (5.8)$$

$$\chi_{7\omega} = \frac{7}{32}m_7H_0^6 \quad (5.9)$$

Ahogy látható, az első χ_0 együttható is tartalmaz magasabb rendű tagokat a sorfejtésből és a magasabb felharmonikusok egyre kevesebb tagot tartalmaznak, mivel a sorfejtést a hetedik rendben lezártuk.

Amennyiben $H_{DC} = 0$ visszakapjuk a 4.13 – 4.16. egyenleteket, a páratlan számú szuszceptibilitás komponensek eltűnnek.

5.1.2. Komplex szuszceptibilitás Debye közelítésben

Amennyiben a mágneses térnek váltakozó komponense van, a mágneses szuszceptibilitás a korábbi esethez hasonlóan komplex mennyiségként kezelendő.

$$\hat{\chi} = \text{Re}(\hat{\chi}) - i\text{Im}(\hat{\chi}) \quad (5.10)$$

Ferrofluidumok esetén feltételezhető, hogy a relaxációs mechanizmusok közül a Brown-féle relaxáció meghatározó. Az átlagos mágneses dipólusmomentum a váltakozó mágneses tér irányában közelíthető a Boltzmann eloszlásfüggvénnyel. Amennyiben az előzőekhez hasonlóan behelyettesítjük a

$$\frac{\mu^2 H}{3k_B T} \rightarrow \frac{\mu^2 H_0}{3k_B T} \frac{1}{(1 + i\omega\tau)} \quad (5.11)$$

összefüggést a statikus egyenletbe, az komplex, frekvenciafüggéssel egészül ki. A komplex együtthatók felírásához a korábbi módszert alkalmazzuk, így megkapjuk a \hat{m}_k ($k = 1, 3, 5, 7$) MSA összefüggéseket.

$$\hat{m}_1 = \frac{\rho\mu^2}{3k_B T} \frac{1}{q(-\xi)} \frac{1}{(1+i\omega\tau)} \quad (5.12)$$

$$\hat{m}_3 = -\frac{\rho\mu^4}{45(k_B T)^3} \frac{1}{q^4(-\xi)} \frac{1}{(1+i\omega\tau)^2} \quad (5.13)$$

$$\hat{m}_5 = -\frac{\rho\mu^6}{4725(k_B T)^5} \frac{11q(-\xi) - 21}{q^7(-\xi)} \frac{1}{(1+i\omega\tau)^3} \quad (5.14)$$

$$\hat{m}_7 = -\frac{\rho\mu^8}{70875(k_B T)^7} \frac{19q^2(-\xi) - 88q(-\xi) + 84}{q^{10}(-\xi)} \frac{1}{(1+i\omega\tau)^4} \quad (5.15)$$

Ezek behelyettesíthetők az 5.3–5.9. egyenletekbe, így a komplex mágneses szuszceptibilitás együtthatók felírhatók.

5.2. Mágnesezettség és szuszceptibilitás egzakt időfüggvénye (egzakt MSA)

A 5.1. szakaszban alkalmazott térerősség szerinti hetedrendű sorfejtés előnye, hogy zárt alakú képleteket ad a harmonikusokra, ugyanakkor a levágásból adódó hiba a térerősség növekedésével és különösen a magasabb rendű harmonikusok esetén gyorsan nő. Ezért a nemlineáris szuszceptibilitások meghatározásához referenciamegoldásként az MSA egzakt, implicit mágnesezettségi egyenletének időfüggő megoldását is felhasználjuk.

5.2.1. Implicit mágnesezettség és a statikus (térfüggő) szuszceptibilitás

Az MSA mágnesezettségi egyenlete (lásd 2.33. egyenlet) implicit alakban adja M -et H függvényében, ezért az egzakt megoldásnál minden időpillanatban numerikusan kell meghatároznunk a mágnesezettséget. A továbbiakban az MSA-ból származó, térfüggő statikus szuszceptibilitást a definíció szerint $\chi = \partial M / \partial H$ alakban képezzük. Mivel M implicit függvénye H -nak, rövid deriválás után az alábbi zárt alak adódik (az MSA-egyenlet szerkezetének megfelelően):

$$\chi(H) = \frac{\rho\mu^2}{k_B T} \frac{L'(\frac{\mu H}{k_B T} + \frac{3M}{\mu\rho}(1 - q(-\xi)))}{1 - 3(1 - q(-\xi)) L'(\frac{\mu H}{k_B T} + \frac{3M}{\mu\rho}(1 - q(-\xi)))}, \quad (5.16)$$

ahol ρ a számsűrűség, μ a dipólusmomentum, T a hőmérséklet, $L(x) = \coth(x) - 1/x$ a Langevin-függvény, és

$$L'(x) = 1 - \coth^2(x) + \frac{1}{x^2} \quad (5.17)$$

a Langevin-függvény deriváltja. A $q(-\xi)$ mennyiség az MSA (Percus–Yevick) zárási feltételből adódik (lásd 2.31–2.32. egyenletek).

A külső mágneses térerősséget a váltakozó (ac) és a rá szuperponált egyen (dc) komponenssel írjuk le:

$$H(t) = H_{DC} + H_{AC} \cos(\omega t), \quad (5.18)$$

ahol H_{AC} az ac amplitúdója, H_{DC} a dc bias, ω a körfrekvencia.

5.2.2. Időtartománybeli egzakt (komplex) megoldás

A dc+ac gerjesztés miatt a szuszeptibilitás időfüggővé válik, az 5.16. egyenletből $\chi(t)$ (illetve $\widehat{\chi}(t)$) adódik. Ehhez minden t időpillanatban szükséges a (komplex) mágnesezettség meghatározása az implicit MSA-egyenletből:

$$\widehat{M}(t) = \mu\rho L \left(\frac{\mu\widehat{H}(t)}{k_B T} + \frac{3\widehat{M}(t)}{\mu\rho} (1 - q(-\xi)) \right). \quad (5.19)$$

Az 5.19. egyenletet numerikus iterációval oldjuk meg (komplex mennyiségként), majd az így kapott $\widehat{M}(t)$ behelyettesítésével számítjuk $\widehat{\chi}(t)$ -t az 5.16. egyenlet alapján. A számítást egy perióduson végezzük, $T = 2\pi/\omega$ mellett.

5.2.3. Lineáris és felharmonikus szuszeptibilitások kinyerése Fourier-analízissel

Az időfüggvényből a lineáris és nemlineáris komponenseket Fourier-transzformációval nyerjük ki. A n -edik harmonikus valós és képzetes része:

$$\Re(\widehat{\chi}_{n\omega}) = p \frac{\omega}{\pi} \int_0^T \Re(\widehat{\chi}(t)) \cos(n\omega t) dt, \quad (5.20)$$

$$\Im(\widehat{\chi}_{n\omega}) = p \frac{\omega}{\pi} \int_0^T \Im(\widehat{\chi}(t)) \cos(n\omega t) dt, \quad (5.21)$$

ahol

$$p = \begin{cases} \frac{1}{2}, & n = 0, \\ 1, & n \geq 1. \end{cases} \quad (5.22)$$

Az $n = 0$ tag a fundamentális (lineáris) komplex ac szuszeptibilitásnak felel meg, míg $n \geq 1$ esetén a $\widehat{\chi}_{n\omega}$ mennyiségek a felharmonikusok amplitúdói. A dc bias ($H_{DC} \neq 0$) szimmetriatörést okoz, ezért a páratlan harmonikusok is megjelennek az 5.20–5.21. egyenletek szerinti spektrumban. A komponensek abszolút értéke $|\widehat{\chi}_{n\omega}| = \sqrt{\Re(\widehat{\chi}_{n\omega})^2 + \Im(\widehat{\chi}_{n\omega})^2}$ közvetlenül összevethető különböző harmonikusrendek között.

5.3. Numerikus eredmények váltakozó és egyen mágneses térben

Ebben a szakaszban áttekintjük azokat a numerikus eredményeket, amelyek a váltakozó mágneses térre szuperponált egyen (dc) mágneses tér esetén adódnak a hetedrendű MSA-sorfejtés felhasználásával. Célunk egyrészt kvantitatív módon jellemezni a lineáris és nemlineáris szuszeptibilitás-függvények frekvencia- és térerősséggfüggését, másrészt összehasonlítani a sorfejtett és az időfüggvényből egzakt módon számított változattal [C3].

A számításokhoz az előző fejezethez hasonlóan dimenziótlanított mennyiségeket használunk: a redukált sűrűség $\rho^* = \rho\sigma^3$, a redukált dipólusmomentum $\mu^* =$

$\mu/\sqrt{\sigma^3 k_B T}$, valamint a váltakozó és egyen tér redukált amplitúdói

$$H_0^* = H_0 \sqrt{\frac{\sigma^3}{k_B T}}, \quad H_{dc}^* = H_{dc} \sqrt{\frac{\sigma^3}{k_B T}}. \quad (5.23)$$

A továbbiakban egy tipikus, híg magnetit-alapú ferrofluidumot reprezentáló paramétereket alkalmazunk: $\rho^* = 0,1$, $\mu^* = 1$, amelyekre $4\pi\chi_L \approx 0,42$ adódik. A frekvencia a Brown-típusú relaxációs idővel dimenziótlanított alakban jelenik meg: $\omega\tau$.

A sorfejtett és az egzakt MSA-időfüggvényből számított spektrumok összevetése az 5.1. ábrán látható; a térerősség növelésével jelentkező eltérések pedig a térerősséggfüggő görbéken (5.2. ábra) válnak szemléletessé.

A tisztán váltakozó gerjesztéshez tartozó, térerősség mentén felvett komplex amplitúdókat az 5.2. ábra mutatja, míg a különböző harmonikusok egymáshoz viszonyított nagyságrendje az 5.3. ábra alapján értelmezhető.

A dc szuperpozíció hatása a harmonikus szerkezetre (páratlan komponensek megjelenése, valamint a maximumok helyének és értékének módosulása) a frekvencia- és térerősséggfüggő eredményeken (5.1. és 5.2. ábrák), illetve a harmonikusok összegző ábráján (5.3. ábra) követhető.

A nemlinearitás fizikai eredete (a mágnesezettségi görbe telítődésbe fordulása és az ebből következő harmonikus-képződés) sematikusán az 5.4. ábrán követhető.

5.3.1. Gyenge és közepes terek: a hetedrendű MSA-sorfejtés érvényessége

Első lépésként megvizsgáljuk, hogy a hetedrendű MSA-sorfejtés (az m_1, m_3, m_5, m_7 együtthatókat tartalmazó mágnesezettségi hatványsor) milyen térerősségig képes az AC+DC gerjesztés mellett megbízhatóan közelíteni az egzakt MSA megoldást. A mágneses tér alakja

$$H(t) = H_{dc} + H_0 \cos(\omega t), \quad (5.24)$$

a redukált mennyiségekkel pedig $H^*(t) = H_{dc}^* + H_0^* \cos(\omega t)$.

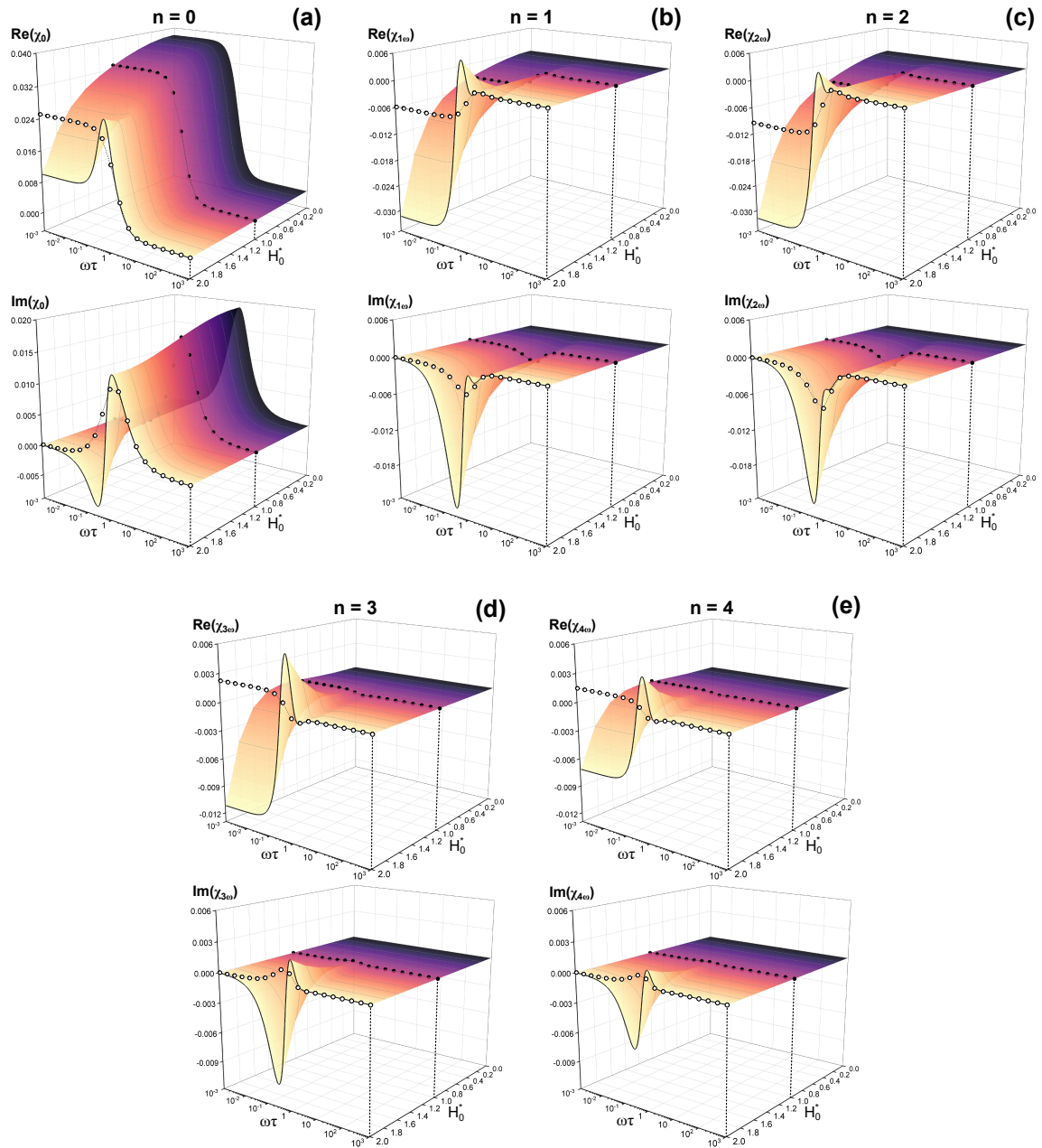
A vizsgálatban a dc komponens és az ac amplitúdó aránya rögzített, $H_{dc}^*/H_0^* = 0,2$, miközben H_0^* értékét $H_0^* = 1$ és $H_0^* = 2$ között változtatjuk. A lineáris és nemlineáris komplex szuszceptibilitásokat

$$\hat{\chi}_0(\omega), \quad \hat{\chi}_\omega(\omega), \quad \hat{\chi}_{2\omega}(\omega), \quad \hat{\chi}_{3\omega}(\omega), \quad \hat{\chi}_{4\omega}(\omega) \quad (5.25)$$

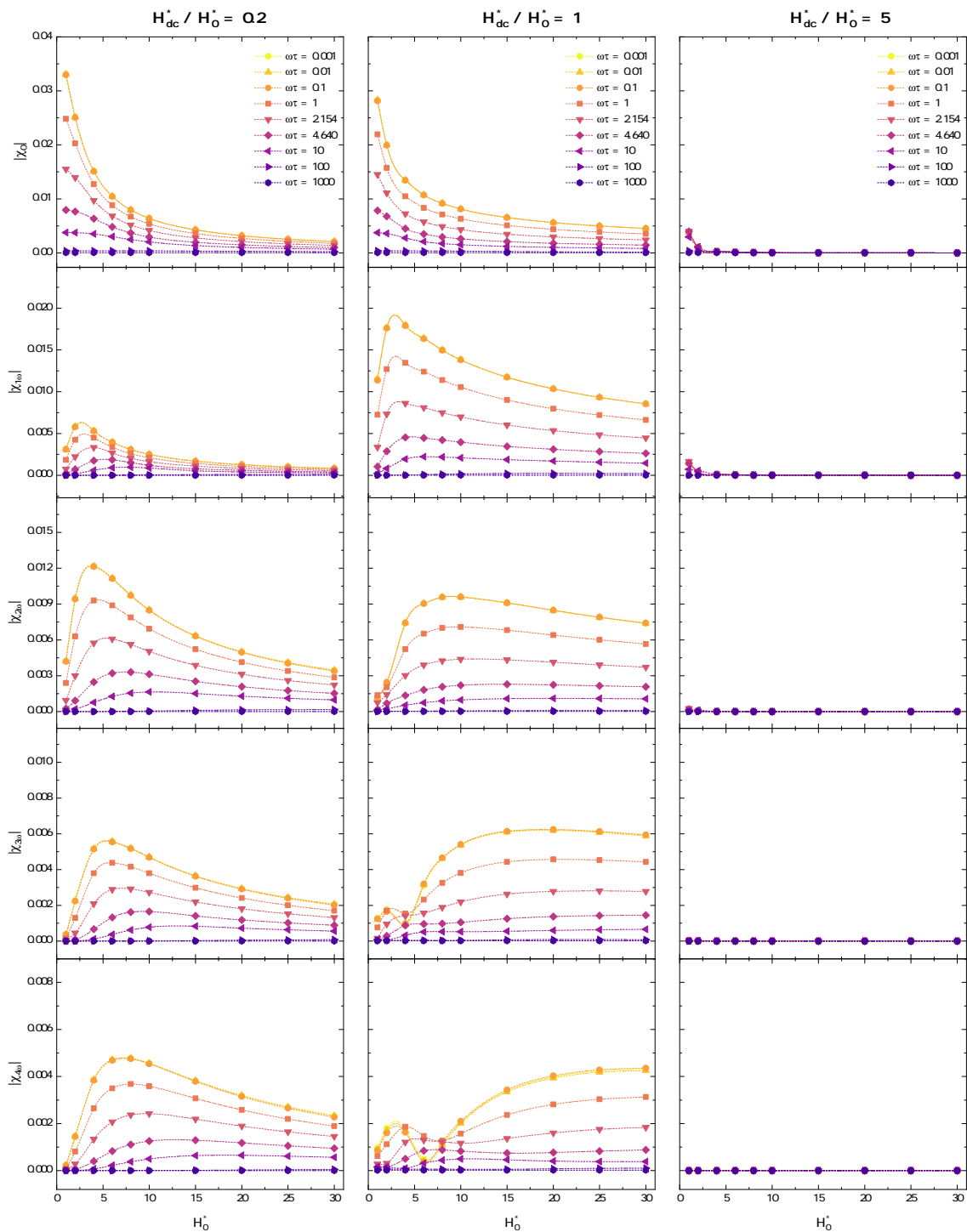
a fejezet elméleti részében megadott analitikus formulák komplexített változataiból, illetve az egzakt MSA-időfüggvény numerikus Fourier-analíziséből határozzuk meg.

A numerikus összehasonlítás azt mutatja [C3], hogy

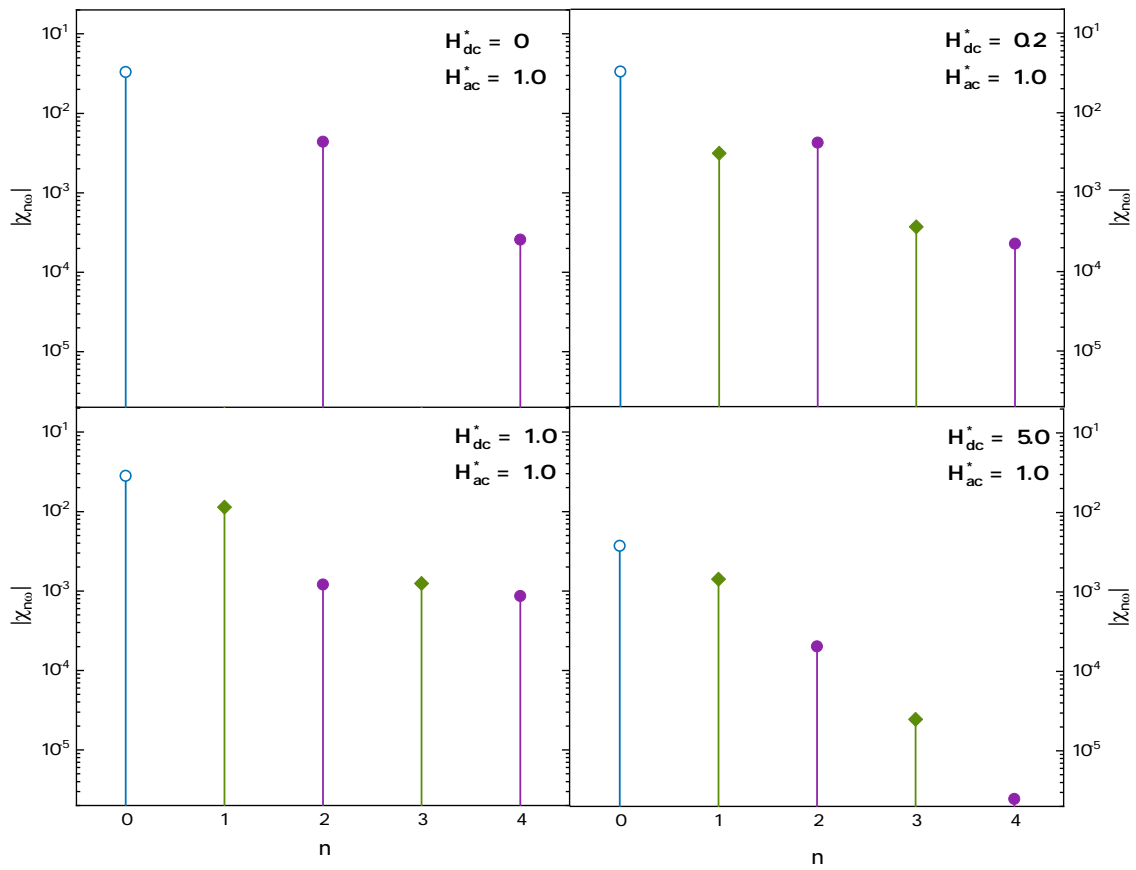
- $H_0^* = 1$ esetén (amire $H_{DC}^* = 0,2$ szuperponálódik) a hetedrendű sorfejtésből származó spektrumok gyakorlatilag fedésben vannak az egzakt MSA megoldással: a lineáris komponens és az $n = 1 \dots 4$ harmonikusok esetén a relatív eltérés a teljes vizsgált frekvenciatartományban 1% alatt marad.
- a térerősség növelésével az eltérés gyorsan nő: $H_0^* = 1,2$ körül az átlagos hiba még mindig 1% alatti, míg $H_0^* = 1,4$ közelében az alacsonyabb frekvenciákon már 1-2%-os eltérés is megjelenhet;



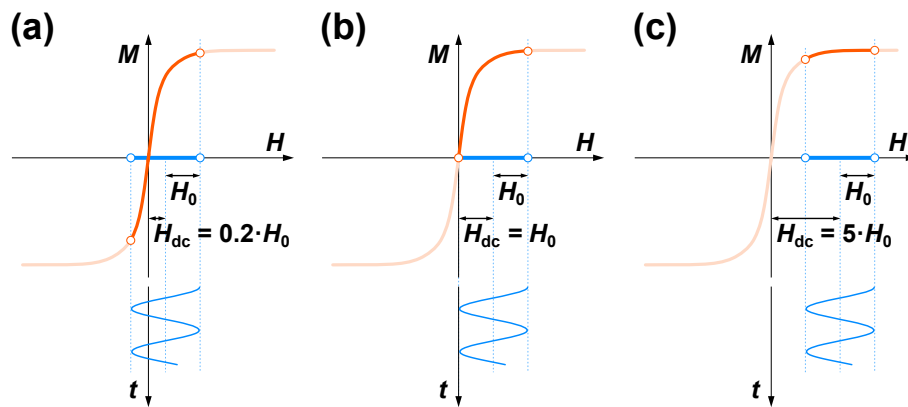
5.1. ábra. A komplex dinamikus szuszceptibilitás harmonikus komponenseinek spektrumai AC+DC gerjesztés esetén. Az ábra a $\hat{\chi}_{n\omega}(\omega)$ (az ábrán jelölt $n = 0, 1, 2, 3, 4$) komponensek valós és képzetes részének frekvenciafüggését szemlélteti, kiemelve, hogy DC bias mellett a szimmetria sérül, így a páratlan harmonikusok ($n = 1, 3$) megjelennek. A gerjesztés alakja: $H(t) = H_{dc} + H_0 \cos(\omega t)$.



5.2. ábra. A harmonikus szuszceptibilitás-komponensek nagysága a váltakozó tér amplitúdójának függvényében: $|\hat{\chi}_{n\omega}|(H_0^*)$ több dimenziótlan frekvencián (az ábrán jelölt $\omega\tau$ értékek mellett). A görbecsaládok bemutatják a nemlinearitás erősödését és a DC bias által módosított harmonikusszerkezetet a térerősség növelésével.



5.3. ábra. A harmonikus komponensek (az ábrán $n = 0 \dots 4$) nagyságrendi összevetése különböző térerősség-kombinációk mellett, rögzített H_{ac}^* amplitúdóval. A DC bias növelésével a harmonikus szerkezet átrendeződik: páratlan komponensek jelennek meg/erősödnek, és a maximumok helye és értéke is módosul. Az ábra a frekvencia- és térerősségfüggő eredmények összefoglaló, összehasonlító nézete.



5.4. ábra. Mágneszettség kialakulása a térerősség függvényében, sematikus ábra

- a sorfejtés korlátai nagyobb térerősség esetén válnak nyilvánvalóvá: $H_0^* > 1,6$ felett a $\hat{\chi}_0(\omega)$ és egyes nemlineáris komponensek spektrumaiban lokális maximumok és oszcillációk jelennek meg, amelyek nem láthatók az egzakt MSA megoldásban, és egyértelműen a sorfejtés korlátainak tudhatók be.

A fenti tapasztalatok alapján a hetedrendű MSA-sorfejtés AC+DC gerjesztés esetén is megbízhatóan alkalmazható a mérnöki szempontból releváns gyenge és közepes terek tartományában, nagyjából a $0 \leq H_0^* \leq 1,4$ között, amely kísérleti paraméterekre átszámítva a tipikus, $0\text{--}25 \text{ kA m}^{-1}$ tartományt fedi le. Ebben a mezőtartományban az $n \leq 4$ harmonikusokra vonatkozó analitikus formulák kellően pontos közelítést adnak, miközben megőrzik a sorfejtés módszerének legnagyobb előnyét, az egyszerű, zárt alakú egyenleteket. A sor további tagokkal (H^9, H^{11}, \dots) való bővítése ugyan a térerősség-felső határt is kitolná és a magasabb harmonikusok pontosságát is javítaná, de az egyenletek bonyolultsága jelentősen növekedne.

5.3.2. Szuszceptibilitás erős váltakozó térben DC superpozíció nélkül

A hetedrendű sorfejtés térerősség szerinti korlátai miatt az erős terek tartományában ($H^* \gg 1$) célszerű az egzakt MSA megoldást használni. Először a $H_{\text{DC}}^* = 0$ esetet tekintjük, azaz tisztán váltakozó gerjesztést:

$$H^*(t) = H_0^* \cos(\omega t), \quad (5.26)$$

ahol H_0^* értékét egészen $H_0^* \approx 30$ -ig növeljük, hogy a magnetizáció a teljes periódus alatt a telítődés közeli tartományba kerüljön.

Az eredmények alapján a lineáris és nemlineáris komponensek térerősségfüggése a következő általános jellemzőket mutatja:

- kis frekvenciákon ($\omega\tau \ll 1$) a lineáris komponens $|\hat{\chi}_0|$ a térerősség növelésével monoton csökken és nagy térerősség esetén a telített mágnesezettség miatt gyakorlatilag nullához tart; nagy frekvenciákon ($\omega\tau > 100$) $|\hat{\chi}_0|$ már a gyengébb tartományban is kicsi;
- az $n = 2$ és $n = 4$ harmonikusok gyenge mágneses mezőben sokkal kisebbek, mint a lineáris komponens, de H_0^* növelésével nagyjából hatványfüggés szerinti növekedést mutatnak, és mindkettő jellegzetes, széles maximumot vesz fel $H_0^* \approx 5$ környékén; a maximum helye a frekvencia növelésével nagyobb H_0^* felé tolódik, míg a maximum értéke csökken;
- a maximumon túl a nemlineáris komponensek hozzájárulása hiperbolikusan csökken: ekkor a mágneses tér már olyan nagy, hogy a mágnesezettség közel végig telítésben van, ezért a szuszceptibilitás különbsége lecsökken;
- a rendszer választás gyenge terekben a lineáris komponens dominálja ($H_0^* < 4$), míg erősebb terekben a második és negyedik harmonikus hozzájárulása is jelentőssé válik; a második harmonikus azonban a teljes térerősség- és frekvenciatartományban nagyobb marad, mint a negyedik.

A térerősség-függő spektrumok minőségi jellemzői jól egyeznek a Fokker-Planck-egyenletre épülő, bonyolultabb elméletek előrejelzéseivel: a nemlineáris harmonikusok relaxációs csúcsai alacsonyabb frekvenciák felé tolódnak, spektrumuk aszimmetrikus és kiszélesedő, miközben erős terekben a harmonikusok amplitúdója a telítődő mágnesezettség miatt elnyomódik.

5.3.3. Szuszceptibilitás erős váltakozó térben DC szuperpozíció mellett

A DC szuperpozíció hatását erős terekben szintén az egzakt MSA megoldás segítségével vizsgáljuk. Három jellegzetes esetet különítünk el a DC és AC komponens aránya alapján: $H_{DC}^*/H_0^* = 0, 2$, $H_{DC}^*/H_0^* = 1$, $H_{DC}^*/H_0^* = 5$.

A három esethez tartozó tipikus $M(H)$ hiszterézisgörbék szemléletesen mutatják, hogy a DC komponens hogyan módosítja az időben változó mágneses tér által bejárt tartományt: kis DC esetén a görbe még a $H = 0$ körül szimmetrikus, $H_{DC}^*/H_0^* = 1$ esetén az időfüggés a $[0, 2H_0^*]$ intervallumon zajlik, míg nagy DC esetén ($H_{DC}^*/H_0^* = 5$) a rendszer a teljes periódus alatt a telítődő tartomány közelében marad.

Kis DC arány: $H_{DC}^*/H_0^* = 0, 2$

Ha a DC komponens jóval kisebb, mint az ac amplitúdó, akkor a térerősség csak enyhén „megbillenti” az $M(H)$ görbe körüli szimmetriát. Ennek megfelelően:

- a $\hat{\chi}_0$ komponens térerősség- és frekvenciafüggése nagyon hasonló az $H_{DC}^* = 0$ esethez: gyenge térben nagy, majd H_0^* növelésével monoton csökken, különösen kis frekvenciákon;
- a páros felharmonikusok ($n = 2, 4$) térerősségfüggése szintén a DC nélküli esetre emlékeztet: gyenge térben hatványfüggés-szerű növekedést mutatnak, majd széles maximumon át hiperbolikusan csökkennek;
- a DC komponens megszünteti a szimmetriát, ezért az addig eltűnő páratlan felharmonikusok ($n = 1, 3$) is megjelennek; gyenge térben ezek nagysága kicsi, de H_0^* növelésével hasonló viselkedést mutatnak, mint a páros felharmonikusok.

Ebben a tartományban a lineáris komponens dominálja a választ, ugyanakkor a második és negyedik harmonikus, valamint a megjelenő első és harmadik felharmonikus is jól mérhető tartományba kerülhet a gyakorlatban.

Közepes DC arány: $H_{DC}^*/H_0^* = 1$

Amikor a DC komponens és az ac amplitúdó nagysága megegyezik, a mágneses tér a periódus során 0 és $2H_0^*$ között változik, így a rendszer már a periódus egy része alatt telített állapotban van. Ebben az esetben a térerősségfüggésben új, kvalitatív jellegzetességek jelennek meg:

- a $\hat{\chi}_0$ komponens továbbra is monoton csökken H_0^* növelésével, hasonlóan a kis DC komponens esetéhez;

- az $n = 1 \dots 4$ felharmonikusok mindegyike hatványfüggés-szerű növekedésen és maximumon megy keresztül, azonban az $n = 3$ és $n = 4$ komponensek térerősséggfüggésében alacsony frekvenciákon ($\omega\tau < 4$) egy további lokális minimum is megjelenik;
- a maximumok és minimumok helye a felharmonikus rendjének növekedésével ($n = 1 \rightarrow 4$) egyre nagyobb H_0^* irányába tolódik, ami azt tükrözi, hogy a magasabb rendű felharmonikusok kialakulásához nagyobb térerősség és erősebb nemlinearitás szükséges.

A térerősség növelésével a lineáris és nemlineáris komponensek egyaránt közel nullához tartanak: ha $H_0^* > 10$, akkor a mágneses tér a periódus során végig a telítődő tartományban mozog, így a szuszceptibilitás komponensek különbsége a teljes frekvenciatartományban kicsi marad.

Nagy DC arány: $H_{DC}^*/H_0^* = 5$

Ha a DC komponens nagyságrenddel nagyobb az ac amplitúdónál, akkor a mágneses tér a teljes periódus során a telített régióban marad, a mágneses dipólusok kvázi „befagynak” a DC tér irányába. Ennek megfelelően:

- a $\hat{\chi}_0$ lineáris komponens és az összes $n \geq 1$ harmonikus magnitúdója a teljes vizsgált frekvenciatartományban igen kicsi;
- a térerősség növelése tovább csökkenti a szuszceptibilitások abszolút értékét, a jel kisebb frekvenciákon sem válik mérhetővé;
- fizikailag ez az a térerősség tartomány, amelyet például MPI-ben, illetve mágneses hipertermiában a fűtési hatásfok aktív szabályozására használnak: a nagy DC összetevő gyakorlatilag letiltja a nemlineáris választ az adott térfo-gatelemben.

5.4. Összefoglalás a MSA AC+DC modellekre vonatkozóan

Az AC+DC mágneses térre vonatkozó MSA-alapú elméleti leírás numerikus vizsgálata alapján az alábbi főbb következtetések vonhatók le:

1. A hetedrendű mágnesezettségi sorfejtés közepes mágneses térerősségig ($H_0^* < 1,4$) megbízhatóan közelíti az egzakt MSA megoldást, és az $n \leq 4$ harmonikusokra vonatkozó analitikus formulák jól használhatók a gyakorlatban szokásos térerősség tartományban.
2. Erős mágneses tér esetén ($H^* \gg 1$) a lineáris komponens térerősség-növelés hatására lecsökken, míg a nemlineáris komponensek jellegzetes maximumon keresztül szintén elnyomódnak; a spektrumok minőségi jellemzői összhangban vannak a Fokker-Planck-egyenletre épülő elméletek előrejelzéseivel.
3. A DC összetevő megjelenése a szimmetriasértés következtében páratlan felharmonikusokat hoz létre, miközben módosítja a páratlan harmonikusok térerősséggfüggését is. Kis DC esetén az $H_{DC}^*/H_0^* \ll 1$ esetre jellemző viselkedés csak

enyhén torzul, míg $H_{\text{DC}}^*/H_0^* \approx 1$ esetén a harmadik és negyedik felharmonikus térerősségfüggésében új lokális szélsőértékek jelennek meg.

4. Ha a DC komponens olyan nagy, hogy a rendszer a periódus teljes időtartamában telítés közelében marad ($H_{\text{DC}}^*/H_0^* \gg 1$), akkor a lineáris és nemlineáris szuszceptibilitások minden frekvencián gyakorlatilag nullához tartanak. Ez az a tartomány, amelyben a nemlineáris válasz célzottan kikapcsolható, és amelyet több modern orvosi és mérnöki alkalmazás (MPI, mágneses hipertermia) is kihasználhat.

A fenti eredmények összességében azt mutatják, hogy az MSA-alapú, sorfejtésen nyugvó elméleti leírás nemcsak tisztán váltakozó térben, hanem DC komponens jelenlétében is alkalmas a lineáris és nemlineáris dinamikus szuszceptibilitás kísérleti adatokhoz illeszkedő, paraméterezhető modelljének megadására.

6. fejezet

Összefoglalás

Az értekezés célja a mágneses folyadékok (ferrofluidumok és magnetoreológiai folyadékok) lineáris és nemlineáris dinamikus mágneses tulajdonságainak vizsgálata volt, különös tekintettel a komplex mágneses szuszceptibilitás frekvenciafüggésére és a nemlineáris válasz harmonikus összetevőire váltakozó (AC), illetve váltakozó és egyen (AC+DC) mágneses térben. A dolgozat a kísérleti mérés technikát és az elméleti modellezést szorosan összekapcsolva ad olyan, a gyakorlatban is alkalmazható leírást, amely egyszerre paraméterezhető mikroszkopikus mennyiségekkel és alkalmas a nemlineáris spektrális jellemzők értelmezésére.

Kísérleti eredmények

A 3. fejezetben bemutatott mérőrendszer egy kölcsönös indukciós (differenciáltranszformátoros) AC szuszceptométer, amelyben a referencia- és mintatekerés differenciális kapcsolása, a lock-in detektálás és a stabil áramgenerátoros gerjesztés biztosítja, hogy a komplex szuszceptibilitás frekvenciafüggése reprodukálhatóan meghatározható legyen. A mérések során feltártuk a rendszer korlátait is (különösen a magasabb frekvenciákon jelentkező amplitúdó- és fázistorzulásokat, valamint a termosztálásból adódó bizonytalanságokat), amelyek a kiértékelésnél és az értelmezésnél óvatosságot igényelnek.

A mérőrendszert Ferrotec EMG700 és EMG900 ferrofluidumok, valamint Parker MRF-140CG magnetoreológiai folyadék mérésével validáltuk. A ferrofluidumok spektrumai relaxációs jellegű viselkedést mutatnak; Cole–Cole illesztéssel a relaxációs idő és a spektrum szélessége kvantitatívan jellemezhető. Hőmérsékletfüggő mérések alapján aktiválási energia becslést is végeztünk, amely rámutat a relaxációs mechanizmusok és a mintaszerkezeti hatások lehetséges szerepére. A magnetoreológiai folyadék esetén a kisfrekvenciás kvázisztatikus tartomány mellett a nagyfrekvenciás veszteségek meredek növekedése hangsúlyozta a további kalibráció és a DC előmágnesezési mérések jelentőségét.

Elméleti eredmények

A 4. fejezetben a dipoláris keménygömb modell MSA-alapú leírásából kiindulva a mágnesezettségi egyenletet térerősség szerint hetedik rendig sorba fejtettük, és zárt alakú kifejezéseket kaptunk a nemlineáris együtthatókra. A sorfejtés révén a statikus

szuszeptibilitás térerősségfüggése egyszerű hatványsoros alakban adódik, amelyből a dinamikus szuszeptibilitás harmonikus komponensei analitikusan kezelhető formában származtathatók. A statikus MSA-eredményeket Debye-típusú relaxációs közelítéssel kiterjesztettük a komplex, frekvenciafüggő esetre, így a harmonikus spektrumok numerikus vizsgálata elvégezhetővé vált. Az elemzés rámutatott arra, hogy a sorfejtés konvergenciája a harmonikus szám növekedésével romlik, és a magasabb harmonikusok korrekt leírásához erősebb terekben a sor további tagjainak bevonása szükséges.

Az 5. fejezetben a modellt kiterjesztettük váltakozó és egyen mágneses tér szuperpozíciójára. A numerikus vizsgálatok főbb következtetései:

1. A hetedrendű sorfejtés gyenge és közepes terekben megbízhatóan közelíti az egzakt MSA megoldást, és a gyakorlatban releváns tartományban (tipikusan $H_0^* < 1.4$) az $n \leq 4$ harmonikusokra adható analitikus formulák jól használhatók.
2. Erős terekben a lineáris komponens csökken, a nemlineáris komponensek pedig jellegzetes maximumon keresztül szintén elnyomódnak, összhangban a telítési nemlinearitás fizikai képével.
3. A DC összetevő szimmetriasértést okoz: páratlan felharmonikusok jelennek meg, és a harmonikusok térerősségfüggése megváltozik. Különösen $H_{DC}^*/H_0^* \approx 1$ környezetében új lokális szélsőértékek is megjelenhetnek egyes komponenseknél.
4. Nagy DC arány esetén, amikor a rendszer a periódus teljes ideje alatt telítés közelében marad, a lineáris és nemlineáris szuszeptibilitások gyakorlatilag nullához tartanak: a nemlineáris válasz célzottan „kikapcsolható”. Ez a jelenség több alkalmazásban (MPI, mágneses hipertermia) közvetlenül hasznosítható.

A kutatómunka legfontosabb eredményeit részletesebben a következő fejezetben található tézispontokban és kapcsolódó publikációkban részletezzük, ezután röviden összefoglaljuk terveinket a munka folytatását illetően.

Tézispontok

1. **Mérési módszer fejlesztése** Kidolgoztam és validáltam egy saját fejlesztésű, kölcsönös indukciós (differenciáltranszformátoros) AC szuszceptométert és mérési protokollt, amelyben a differenciális tekercselrendezés, a lock-in detektálás és a precíziós áramgenerátoros gerjesztés reprodukálható komplex szuszceptibilitás-spektrum meghatározását tesz lehetővé, a validáció során alkalmazható kiértékelési eljárásokat (pl. Cole–Cole illesztés, hőmérsékletfüggésből aktiválási energia becslés) és a mérési korlátokból adódó értelmezési szempontokat is rögzítettem.

Kapcsolódó publikációk: [K1], [C1]

- (a) *Lock-in mérés integrálása:* a szekunder tekercsek differenciális csatolásával a lock-in erősítő fázis- és amplitúdóérzékeny detektálását közvetlenül a mintahatásra érzékeny jelre alkalmaztam, ami stabil, reprodukálható komplex (valós+képzetes) mérési eredményt ad.
 - (b) *Mérési tartományok és minta-specifikus korlátok:* a mérési beállításokat a mágneses folyadékok fizikai sajátosságaihoz illesztettem (ferrofluidumoknál tipikusan alacsony frekvenciatartomány és kis térerősség a struktúra-képződés elkerülésére).
 - (c) *Kiértékelési protokoll:* rögzítettem a komplex szuszceptibilitás spektrumának meghatározási lépéseit (amplitúdó- és fázisinformáció a gerjesztéshez képest), és megadtam azokat a gyakorlati ellenőrzéseket, amelyekkel a mérési torzulások (pl. rendszerhatások) elkülöníthetők.
 - (d) *Validáció valós mintákon:* a mérőrendszert kereskedelmi mágneses folyadékokkal validáltam (Ferrotec EMG700, EMG900 ferrofluidumok, valamint Parker MRF-140CG MR folyadék), és bemutattam a spektrumok értelmezésének fő jellegzetességeit.
 - (e) *Relaxációs paraméterek kinyerése:* a ferrofluidum spektrumok kvantitatív jellemzésére Cole–Cole illesztést alkalmaztam, továbbá hőmérsékletfüggő mérésekből aktiválási energia becslést végeztem, összekapcsolva azt a relaxációs mechanizmusokkal és lehetséges szerkezeti hatásokkal.
2. **Elméleti modell váltakozó térben** A dipoláris keménygömb-modell MSA-alapú (Szalai–Dietrich-féle [32]) mágnesszettségi egyenletét térerősség szerint hetedik rendig sorfejtettem és zárt alakú kifejezéseket adtam az együtthatókra, majd ezekből Debye-típusú relaxáció beépítésével analitikus formulákat vezettem le a nemlineáris dinamikus szuszceptibilitás harmonikus komponenseire, továbbá numerikusan kijelöltem a közelítés érvényességi tartományát (gyenge mezőkben a negyedik harmonikusig jól használható, nagyobb mezőkben a konvergencia romlik).

Kapcsolódó publikációk: [K2], [C2]

- (a) *Fizikai paraméterkapcsolat*: rögzítettem a dipoláris keménygömb-modell MSA-alapú levezetését, és megmutattam, hogy a sorfejtés együtthatói közvetlen kapcsolatban állnak fizikai paraméterekkel (pl. sűrűség, dipólusmomentum, hőmérséklet).
 - (b) *Hetedrendű sorfejtés*: az implicit egyenletet hetedik rendig sorba fejtettem, szimmetria miatt a spontán mágnesezettség és a páros hatványtagok kiesnek, így a releváns nemlineáris együtthatók m_1, m_3, m_5, m_7 adódnak.
 - (c) *Statikus–dinamikus kapcsolat és harmonikusok*: megadtam azt a formális kapcsolatot, amellyel a térerősségfüggő (statikus) szuszceptibilitásból a dinamikus válasz Fourier-komponensei (0., 2., 4., 6. harmonikus) analitikusan előállíthatók, és bemutattam a harmonikus amplitúdók térerősségskálázódását.
 - (d) *Debye-típusú relaxáció beépítése*: a statikus MSA-eredményeket Debye-típusú relaxációval kiterjesztettem a komplex, frekvenciafüggő esetre úgy, hogy a statikus együtthatók komplex mennyiségekké válnak.
 - (e) *Konvergencia és érvényességi tartomány*: numerikusan elemeztem a sorfejtés konvergenciáját, igazoltam, hogy gyenge mezőkben a közelítés kiváló, közepes mezőkben a magasabb harmonikusok érzékenyebbek, és a harmonikusszám növekedésével a konvergencia romlik.
3. **Sorfejtett modell AC+DC térben** A hetedrendű MSA-sorfejtésen nyugvó leírást AC+DC gerjesztésre általánosítottam, és az $n \leq 4$ harmonikusokra a gyakorlatban közvetlenül használható analitikus spektrum-formulákat adtam, numerikus összevetéssel igazoltam, hogy a közelítés közepes térerősségig megbízható ($H_0^* < 1,4$, tipikusan 0–25 kA m⁻¹), valamint megmutattam, hogy a DC bias szimmetriasértés révén páratlan felharmonikusokat is létrehoz, nagy DC aránynál pedig a nemlineáris válasz célzottan „letiltható”.

Kapcsolódó publikáció: [C3]

- (a) *Gerjesztési alak és szimmetriasértés*: az AC+DC tér esetén a mágneses tér alakja $H(t) = H_{dc} + H_0 \cos(\omega t)$. A DC komponens szimmetriasértést okoz, ami új harmonikus-szerkezethez vezet.
- (b) *Harmonikus komplex szuszceptibilitások*: a sorfejtett elméletből a lineáris és az $n = 1 \dots 4$ harmonikus komplex szuszceptibilitásai ($\hat{\chi}_0, \hat{\chi}_\omega, \hat{\chi}_{2\omega}, \hat{\chi}_{3\omega}, \hat{\chi}_{4\omega}$) közvetlenül számíthatók analitikus formulák segítségével.
- (c) *Pontosság egzakt referenciához képest*: kvantitatív összevetéssel kimutattam, hogy tipikus bias arány mellett (pl. $H_{dc}^*/H_0^* = 0,2$) $H_0^* \approx 1$ esetén a sorfejtés és az egzakt megoldás spektrumai gyakorlatilag fedésben vannak (a vizsgált komponenseknél 1% alatti eltéréssel).
- (d) *Érvényességi tartomány*: megadtam azt a tartományt, ahol a sorfejtés még megbízható ($0 \leq H_0^* \leq 1,4$), és ezt kísérleti paraméterekre átszámítva a tipikus 0–25 kA m⁻¹ mezőtartománnyal is összekapcsoltam.
- (e) *A sorfejtés korlátainak azonosítása*: rámutattam, hogy nagyobb térerősségek esetén a sorfejtés műtermékeket (lokális maximumok, oszcillációk)

mutathat, amelyek az egzakt megoldásban nem jelennek meg, ezért erős terekben a közelítés nem alkalmazható korrekció nélkül.

4. **Egzakt modell AC+DC térben** Meghatároztam a mágnesezettség egzakt időfüggvényét az implicit MSA-egyenlet $H(t) = H_{\text{DC}} + H_{\text{AC}} \cos(\omega t)$ gerjesztés melletti iteratív numerikus megoldásával, majd az így kapott időfüggvényt (valós jelként kezelve) Fourier-analízissel spektrummá alakítottam, és ebből számítottam a harmonikus szuszceptibilitásokat. Az egzakt megoldást referenciaalaként használtam a sorfejtett leírás pontosságának kvantitatív ellenőrzésére és az erős-térbeli telítési jellegzetességek értelmezésére.

Kapcsolódó publikáció: [C3]

- (a) *Egzakt időfüggvény előállítása:* az MSA-időfüggvényt numerikusan határoztam meg az AC+DC gerjesztés mellett, és bemutattam a $H(t)$ és $M(t)$ időbeli alakulását különböző paramétereknél.
- (b) *Spektrumképzés és harmonikusok:* a mágnesezettségi időjelből gyors Fourier-transzformációval spektrumot képeztem, ennek amplitúdóiból számítottam az alapösszetevő és felharmonikusok hozzájárulásait, majd ezekből a harmonikus szuszceptibilitásokat.
- (c) *Referenciaként történő felhasználás:* az egzakt spektrumot a sorfejtett formulák pontosságának ellenőrzésére használtam, és ezzel számszerűen is alátámasztottam a sorfejtés alkalmazhatóságát gyenge–közepes mezőkben, illetve a telítési nemlinearitás megjelenését erősebb mezőkben.

Kapcsolódó publikációk jegyzéke

Folyóiratcikkek

[C1] Horváth, B., Decsi, P. és Szalai, I. (2022). Measurement of the response time of magnetorheological fluids and ferrofluids based on the magnetic susceptibility response. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures*, 33(7), 918-927. <https://doi.org/10.1177/1045389X211038697>

[C2] Horváth, B., Decsi, P. és Szalai, I. (2022). Nonlinear contributions to the dynamic magnetic susceptibility of magnetic fluids. *Journal of Molecular Liquids*, 359, 119279. <https://doi.org/10.1016/J.MOLLIQ.2022.119279>

[C3] Horváth, B., Guba, S., Decsi, P. és Szalai, I. (2026). Nonlinear dynamic susceptibility of magnetic fluids insymmetry breaking dc magnetic fields. *Journal of Molecular Liquids*, (Bírálat alatt, kézirat száma: MOLLIQ-D-25-05858)

Konferenciaközlemények

[K1] Decsi, P. és Szalai, I. (2020). Alacsony frekvenciás AC szuszceptométer mágneses folyadékok komplex szuszceptibilitásának mérésére. In I. Barabás (Ed.), XXI. Energetika-Elektrotechnika - ENELKO és XXX. Számítástechnika és Oktatás - SzámOkt Multi-konferencia (pp. 29-33). Erdélyi Magyar Műszaki Tudományos Társaság - EMT.

[K2] Horváth, B., Decsi, P. és Szalai, I. (2022). Nonlinear dynamic susceptibility of magnetic fluids in symmetry breaking dc magnetic fields. In: *Chemistry, Physics and Biology of Colloids and Interfaces: Book of Abstracts* pp. 40-40. , 1 p.

Kitekintés

A dolgozat eredményei alapján több továbbfejlesztési irány is adódik. Kísérleti oldalon indokolt a nagyfrekvenciás kalibráció továbbfejlesztése, valamint DC előmágnesezéssel mérési sorok bevezetése, különösen MR folyadékok esetén, ahol a minta szerkezet (láncképződés) és az örvényáramos veszteségek nagy szerepet játszhatnak. Elméleti oldalon a sorfejtés magasabb rendű tagokkal való bővítése kiterjesztheti az érvényességi tartományt és javíthatja a magasabb harmonikusok pontosságát, miközben a polidiszperzitás és a nem-Debye relaxáció explicit kezelése közelebb viheti a modellt a valós rendszerekhez. Összességében az értekezésben bemutatott mérési módszer és az MSA-alapú, sorfejtéssel nyugvó elméleti leírás együttesen olyan keretet ad, amely alkalmas a mágneses folyadékok nemlineáris dinamikus szuszceptibilitásának mérésére, értelmezésére és paraméterezhető modellezésére.

Hosszútávon megfogalmazott célunk szerint olyan kísérleti-elméleti eszköztárat építünk, amely a komplex szuszceptibilitás spektrumát reprodukálhatóan méri, a megjelenő nemlineáris harmonikusokat is kezelni tudja, és az eredményeket fizikai paraméterekhez (pl. sűrűség, dipólusmomentum, hőmérséklet) köti, miközben mérnöki szempontból használható, egyszerű modelleket ad. A gyártók tipikusan legfeljebb 1-2 skalár adatot adnak meg (pl. kezdeti szuszceptibilitás), miközben a mi mérésünk a teljes $\chi'(\omega)$, $\chi''(\omega)$ spektrumot szolgáltatja, és a későbbi nemlineáris vizsgálatokban a válasz felharmonikus komponenseit (2ω , 3ω , ...) is rögzíthetővé teszi. Ez azért lényeges, mert a spektrumalak (csúcshely, szélesség, aszimmetria, több folyamat jelenléte) közvetlenül utalhat részecskeméretre/hidrodinamikai állapotra, kölcsönhatásokra, aggregációra stb. - vagyis pontosan arra, amit az adatlapok nem részleteznek. Az MSA-alapú leírásban a kezdeti szuszceptibilitás nem „önálló” mérési szám, hanem a modellben megjelenő Langevin-suszceptibilitáson (χ_L) és a $q(-\xi)$ korrekciós függvényen keresztül a részecskék sűrűségéhez és dipólusmomentumához kapcsolódik. Polidiszperz rendszerekre Szalai és mtsai [34] részletesen megadják a polidiszperz mágneszettségi egyenletet és a hozzá tartozó χ_0 - χ_L kapcsolatot.

A cikk egyik fontos, gyakorlati üzenete, hogy ferrofluidumok esetén χ_0 és χ_L erősen függenek a szemcsék méretétől és eloszlásától, ezért ezek a paraméterek magnetogranulometriai analízissel meghatározhatók. Következésképpen: ha a mérési spektrumból megbízhatóan meghatározzuk χ_0 -t (és adott esetben kiegészítő mérésből M_s -t), akkor az MSA/DFT keretben visszafejthető a paraméterkészlet, ami összetételre és állapotra (pl. effektív koncentráció/számsűrűség, effektív dipóluserősség, polidiszperzitás) ad információt - épp azt, ami gyártói oldalról tipikusan hiányzik.

A komplex spektrum illesztéséből kinyert relaxációs idő és azok hőmérsékletfüggése a mintában zajló mechanizmusokra utal: az Arrhenius-ábrázolásból például aktiválási energia adható, miközben a pontszórás és az illesztés jellegéből az is látszik, hogy a relaxációt több mechanizmus (Brown/Néel), illetve mintaszerkezeti hatások

(kölsönhatás, aggregáció) is befolyásolhatják.

Ez a spektrumalapú kiértékelés tipikusan többet mond a minta állapotáról, pl. öregedéséről és kölsönhatásairól, mint egyetlen adat. Fontos hangsúlyozni, hogy az MSA típusú leírásnak van érvényességi tartománya: Szalai és mtsai [34] szerint a mágnesezettségi állapotegyenlet megbízhatósága korlátozott tartományig megfelelő, és a nagy térerősség esetén, valamint erősebb polidiszperzitásnál a modell nem kellően részletes. Emellett az ilyen típusú mágnesezettségi egyenletek nem kezelik a klaszter-/láncképződést, ami valós ferrofluidumokban felléphet, így ilyen esetekben a spektrumok értelmezéséhez aggregációs elemekkel bővített leírás válik szükségessé.

Ábrák jegyzéke

2.1. Domének egy ferromágneses anyagban	10
2.2. Mágneszettségi görbék különböző részecskeátmérők (D) esetén	11
2.3. Mágneses domének a ferromágneses szilárd anyagokban (ábra [25] alapján)	13
2.4. Magnetoreológiai folyadékok alkalmazása során kihasznált jelenségek [26]	14
2.5. Felületaktív anyagok struktúrájának típusai [27]	16
2.6. A Debye-egyenlet szerint megadott komplex szuszceptibilitás spektrum három dimenziós reprezentációja	20
2.7. Faraday (a) és Guoy (b) mérleg (Ábra forrása: [41])	24
2.8. SQUID magnetométer működési elve [41]	26
2.9. A lock-in mérés technika képességeinek bemutatása [48]	35
2.10. A lock-in mérés technika sematikus ábrája [48]	35
2.11. Az Ametek 7270 lock-in erősítő blokk diagramja	36
3.1. Mágneses szuszceptibilitásmérő cellájának sematikus felépítése	38
3.2. Precíziós áramgenerátoros kapcsolás sematikus ábrája[51]	39
3.3. Megvalósított áramgenerátoros kapcsolás	40
3.4. Szuszceptibilitás mérő cella paneljének nyomtatott áramköri lapja	40
3.5. A tekercsek melegedésének ellenőrzése, hőkamerás felvétel	42
3.6. A mérőrendszerről készült fénykép	44
3.7. A mérőrendszer egyes pontjain mért feszültség és áram spektrumok	46
3.8. Az áramgenerátor frekvenciaspektruma 4 mA áramerősség esetén	47
3.9. EMG700 ferrofluidum mérési eredményei	51
3.10. EMG700 ferrofluidum hőmérsékletfüggésének ábrázolása	52
3.11. EMG700 Arrhenius-ábrázolása az aktiválás energia meghatározásához	53
3.12. EMG900 dinamikus mágneses szuszceptibilitása	54
3.13. Parker MRF-140CG dinamikus mágneses szuszceptibilitása	56
3.14. EMG700 dinamikus mágneses szuszceptibilitásának összehasonlítása (x szimbólummal Decsi P. differenciáltranszformátoros mérési elven mérve, o szimbólummal Horváth B. RLC körös impedanciamérés elven mérve)	58
3.15. EMG900 mágneses szuszceptibilitás spektruma (bal oldalon Decsi P. differenciáltranszformátoros lock-in mérési elven mérve, jobb oldalon Horváth B. RLC körös impedanciamérés elven mérve)	58
3.16. MRF 140 CG mágneses szuszceptibilitás spektruma (bal oldalon Decsi P. differenciáltranszformátoros lock-in mérési elven mérve, jobb oldalon Horváth B. RLC körös impedanciamérés elven mérve)	59

- 4.1. A lineáris $\hat{\chi}_0$ (a) és a magasabb rendű nemlineáris $\hat{\chi}_{2\omega}$ (b) és $\hat{\chi}_{4\omega}$ (c) szuszceptibilitások az MSA elmélet és a Langevin, valamint a Debye-Weiss közelítések összehasonlítására kis mágneses térerősség mellett ($H^* = 0, 1, \rho^* = 0, 1, \mu^* = 1$) 64
- 4.2. A hetedrendű $M(H)$ -sorfejtésből származtatott harmonikus szuszceptibilitások konvergenciájának szemléltetése a térerősség függvényében: a görbék a sorfejtés részösszegeit (egymásra épülő közelítéseit) mutatják, és összevethetők a numerikusan meghatározott referenciaértékekkel. A konvergencia gyenge mezőkben jó, míg nagyobb H^* értékeknél és magasabb rendű harmonikusoknál (különösen $\hat{\chi}_{4\omega}$ esetén) romlik, ami további tagok bevonását indokolhatja. 65
- 4.3. A $\hat{\chi}_0$, $\hat{\chi}_{2\omega}$ és $\hat{\chi}_{4\omega}$ spektrumainak változása a gerjesztő tér amplitúdójával: a számításokban H^* értékét 0,1 és 1 között változtatjuk. A térerősség növelésével a lineáris komponens csökkenése, valamint a nemlineáris komponensek spektrumának eltolódása és torzulása követhető. 66
- 4.4. A harmonikus komponensek amplitúdóinak térerősségfüggése: H^* térerősség függvényében, több dimenziótlan frekvencián ($\omega\tau = 0, 1; 0, 3; 1, 0; 3, 2; 11, 4$). 68
- 4.5. A komplex szuszceptibilitás háromdimenziós reprezentációja: a harmonikus komponensek (lineáris és nemlineáris tagok) valós és képzetes részének felületszerű ábrázolása a frekvenciafüggés szemléltetésére. . . 69
- 5.1. A komplex dinamikus szuszceptibilitás harmonikus komponenseinek spektrumai AC+DC gerjesztés esetén. Az ábra a $\hat{\chi}_{n\omega}(\omega)$ (az ábrán jelölt $n = 0, 1, 2, 3, 4$) komponensek valós és képzetes részének frekvenciafüggését szemlélteti, kiemelve, hogy DC bias mellett a szimmetria sérül, így a páratlan harmonikusok ($n = 1, 3$) is megjelennek. A gerjesztés alakja: $H(t) = H_{dc} + H_0 \cos(\omega t)$ 75
- 5.2. A harmonikus szuszceptibilitás-komponensek nagysága a váltakozó tér amplitúdójának függvényében: $|\hat{\chi}_{n\omega}|(H_0^*)$ több dimenziótlan frekvencián (az ábrán jelölt $\omega\tau$ értékek mellett). A görbecsaládok bemutatják a nemlinearitás erősödését és a DC bias által módosított harmonikusszerkezetet a térerősség növelésével. 76
- 5.3. A harmonikus komponensek (az ábrán $n = 0 \dots 4$) nagyságrendi összevetése különböző térerősség-kombinációk mellett, rögzített H_{ac}^* amplitúdóval. A DC bias növelésével a harmonikus szerkezet átrendeződik: páratlan komponensek jelennek meg/erősödnek, és a maximumok helye és értéke is módosul. Az ábra a frekvencia- és térerősségfüggő eredmények összefoglaló, összehasonlító nézete. 77
- 5.4. Mágnesezettség kialakulása a térerősség függvényében, sematikus ábra 77

Köszönetnyilvánítás

Elsősorban szeretnék köszönetet nyilvánítani témavezetőmnek Prof. Szalai István-nak aki szakmailag és emberileg is támogatott. Köszönöm, hogy olyan példaképpel dolgozhatok együtt, akivé én is szeretnék válni.

Köszönöm a Pannon Egyetem minden munkatársának, hogy biztosította a kutatáshoz szükséges anyagi és infrastrukturális feltételeket.

Köszönöm veszprémi kollégáimnak Horváth Barnabásnak és Guba Sándornak, hogy kérdéseimmel mindig fordulhattam hozzájuk, közben rendkívüli türelmet tanúsítva.

Köszönöm intézeti kollégáimnak, hogy a nehezebb időkben támogattak.

Köszönöm családomnak, akik olykor áldozatok árán tették lehetővé, hogy a munkámban kiteljesedhessek.

Ezen felül köszönöm mindenkinek, aki így vagy úgy motivált a disszertációm befejezésére.

Irodalom

- [1] Shashi Bahl és tsai. „Smart materials types, properties and applications: A review”. *Materials Today: Proceedings* 28 (2020. jan.), 1302–1306. old. ISSN: 2214-7853. DOI: [10.1016/J.MATPR.2020.04.505](https://doi.org/10.1016/J.MATPR.2020.04.505).
- [2] Yadong Yin és John A. Rogers. „Introduction: Smart Materials”. *Chemical Reviews* 122 (5 2022. márc.), 4885–4886. old. ISSN: 15206890. DOI: [10.1021/ACS.CHEMREV.2C00074](https://doi.org/10.1021/ACS.CHEMREV.2C00074).
- [3] K. Otsuka és C.M. Wayman. *Shape Memory Materials*. Cambridge University Press, 1998. ISBN: 9780521444873. URL: <https://books.google.hu/books?id=dxpjQgAACAAJ>.
- [4] Mukund A. Patil és Ravikiran Kadoli. „Engineers guide to Terfenol-D actuators: Design, performance, and real-world applications”. *Sensors and Actuators Reports* 8 (2024. dec.), 100236. old. ISSN: 2666-0539. DOI: [10.1016/J.SNR.2024.100236](https://doi.org/10.1016/J.SNR.2024.100236).
- [5] Juan De Vicente, Daniel J. Klingenberg és Roque Hidalgo-Alvarez. „Magnetorheological fluids: A review”. *Soft Matter* 7 (8 2011), 3701–3710. old. ISSN: 1744683X. DOI: [10.1039/c0sm01221a](https://doi.org/10.1039/c0sm01221a).
- [6] Ruey Jen Yang és tsai. „Micro-magnetofluidics in microfluidic systems: A review”. *Sensors and Actuators B: Chemical* 224 (2016. márc.), 1–15. old. ISSN: 0925-4005. DOI: [10.1016/J.SNB.2015.10.053](https://doi.org/10.1016/J.SNB.2015.10.053).
- [7] Xuyang Zhou és tsai. „Review on piezoelectric actuators: materials, classifications, applications, and recent trends”. *Frontiers of Mechanical Engineering* 2024 19:1 19 (1 2024. jan.), 6–. old. ISSN: 2095-0241. DOI: [10.1007/S11465-023-0772-0](https://doi.org/10.1007/S11465-023-0772-0).
- [8] Hector Medina, Carson Farmer és Isaac Liu. „Dielectric Elastomer-Based Actuators: A Modeling and Control Review for Non-Experts”. *Actuators* 2024, Vol. 13, Page 151 13 (4 2024. ápr.), 151. old. ISSN: 2076-0825. DOI: [10.3390/ACT13040151](https://doi.org/10.3390/ACT13040151).
- [9] Diana Narvaez és Brittany Newell. „A Review of Electroactive Polymers in Sensing and Actuator Applications”. *Actuators* 14 (6 2025. jún.). ISSN: 20760825. DOI: [10.3390/ACT14060258](https://doi.org/10.3390/ACT14060258).
- [10] Giovanna Di Pasquale és tsai. „Ionic polymer-metal composites (IPMCs) and ionic polymer-polymer composites (IP2Cs): Effects of electrode on mechanical, thermal and electromechanical behaviour”. *AIMS Materials Science* 2017 5:1062 4 (5 2017), 1062–1077. old. ISSN: 2372-0484. DOI: [10.3934/MATERSCI.2017.5.1062](https://doi.org/10.3934/MATERSCI.2017.5.1062).

- [11] Yu Zhao és tsai. „Review of dielectric elastomers for actuators, generators and sensors”. *IET Nanodielectrics* 3 (4 2020. dec.), 99–106. old. ISSN: 2514-3255. DOI: [10.1049/iet-nde.2019.0045](https://doi.org/10.1049/iet-nde.2019.0045).
- [12] Mark R. Jolly, Jonathan W. Bender és J. David Carlson. „Properties and Applications of Commercial Magnetorheological Fluids”. *Journal of Intelligent Material Systems and Structures* 10 (1 1999. jan.), 5–13. old. ISSN: 1045-389X. DOI: [10.1177/1045389X9901000102](https://doi.org/10.1177/1045389X9901000102).
- [13] Prem Narayan Vishwakarma, Pankaj Mishra és Sunil Kumar Sharma. „Characterization of a magnetorheological fluid damper a review”. *Materials Today: Proceedings* 56 (2022. jan.), 2988–2994. old. ISSN: 2214-7853. DOI: [10.1016/J.MATPR.2021.11.143](https://doi.org/10.1016/J.MATPR.2021.11.143).
- [14] Decai Li és tsai. „Theory analyses and applications of magnetic fluids in sealing”. *Friction* 2023 11:10 11 (10 2023. márc.), 1771–1793. old. ISSN: 2223-7704. DOI: [10.1007/S40544-022-0676-8](https://doi.org/10.1007/S40544-022-0676-8).
- [15] Xiang-Fan Li és tsai. „On the Rosensweig instability of ferrofluid-infused surfaces under a uniform magnetic field”. *Physics of Fluids* 35 (11 2023. nov.). ISSN: 1070-6631. DOI: [10.1063/5.0173602](https://doi.org/10.1063/5.0173602).
- [16] Madhusree Kole és Sameer Khandekar. „Engineering applications of ferrofluids: A review”. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 537 (2021. nov.), 168222. old. ISSN: 0304-8853. DOI: [10.1016/J.JMMM.2021.168222](https://doi.org/10.1016/J.JMMM.2021.168222).
- [17] Gabriele Barrera és tsai. „Microfluidic Detection of SPIONs and Co-Ferrite Ferrofluid Using Amorphous Wire Magneto-Impedance Sensor”. *Sensors* 24 (15 2024. aug.), 4902. old. ISSN: 14248220. DOI: [10.3390/S24154902/S1](https://doi.org/10.3390/S24154902/S1).
- [18] Morteza Mahmoudi és tsai. „Superparamagnetic iron oxide nanoparticles (SPIONs): Development, surface modification and applications in chemotherapy”. *Advanced Drug Delivery Reviews* 63 (1-2 2011. jan.), 24–46. old. ISSN: 0169-409X. DOI: [10.1016/J.ADDR.2010.05.006](https://doi.org/10.1016/J.ADDR.2010.05.006).
- [19] Ogechukwu Ngwu-Hyacinth és tsai. „Ultraszám Superparamagnetic Iron Oxide Nanoparticles as Positive Contrast Agents in Low-Field Magnetic Resonance Imaging”. *iRADIOLOGY* 3 (5 2025. okt.), 372–387. old. ISSN: 2834-2860. DOI: [10.1002/ird3.70035](https://doi.org/10.1002/ird3.70035).
- [20] Q. A. Pankhurst és tsai. „Applications of magnetic nanoparticles in biomedicine”. *Journal of Physics D: Applied Physics* 36 (13 2003. jún.), R167. ISSN: 0022-3727. DOI: [10.1088/0022-3727/36/13/201](https://doi.org/10.1088/0022-3727/36/13/201).
- [21] Ruirui Qiao, Chunhui Yang és Mingyuan Gao. „Superparamagnetic iron oxide nanoparticles: from preparations to in vivo MRI applications”. *Journal of Materials Chemistry* 19 (35 2009. aug.), 6274–6293. old. ISSN: 1364-5501. DOI: [10.1039/B902394A](https://doi.org/10.1039/B902394A).
- [22] J. M. D. Coey. *Magnetism and Magnetic Materials*. Dublin: Cambridge University Press, 2001. jan., 1–617. old. ISBN: 9780521016766. DOI: [10.1017/CB09780511845000](https://doi.org/10.1017/CB09780511845000).
- [23] István Szalai. *Fizika II. Elektromosság*. Veszprém: Pannon Egyetem, 2012, 1–65. old.

- [24] C. M. Hurd. „Varieties of magnetic order in solids”. *Contemporary Physics* 23.5 (1982), 469–493. old. ISSN: 13665812. DOI: [10.1080/00107518208237096](https://doi.org/10.1080/00107518208237096).
- [25] Ronald E. Rosensweig. *Ferrohydrodynamics*. Mineola, New York: Dover Publications, 1985, 368. old. ISBN: 0486678342.
- [26] M. Zeinali és tsai. „Magnetorheological Fluid Characterization and Applications”. *Reference Module in Materials Science and Materials Engineering*. Elsevier, 2016. ISBN: 9780128035818. DOI: [10.1016/B978-0-12-803581-8.03992-8](https://doi.org/10.1016/B978-0-12-803581-8.03992-8).
- [27] Wei Wu és tsai. „Recent progress on magnetic iron oxide nanoparticles: Synthesis, surface functional strategies and biomedical applications”. *Science and Technology of Advanced Materials* 16.2 (2015). ISSN: 14686996. DOI: [10.1088/1468-6996/16/2/023501](https://doi.org/10.1088/1468-6996/16/2/023501).
- [28] Barnabás Horváth, Péter Decsi és István Szalai. „Nonlinear contributions to the dynamic magnetic susceptibility of magnetic fluids”. *Journal of Molecular Liquids* 359 (2022. aug.), 119279. old. ISSN: 0167-7322. DOI: [10.1016/J.MOLLIQ.2022.119279](https://doi.org/10.1016/J.MOLLIQ.2022.119279).
- [29] P. C. Fannin, B. K.P. Scaife és S. W. Charles. „The measurement of the frequency dependent susceptibility of magnetic colloids”. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 72 (1 1988. márc.), 95–108. old. ISSN: 0304-8853. DOI: [10.1016/0304-8853\(88\)90276-4](https://doi.org/10.1016/0304-8853(88)90276-4).
- [30] Alexey O. Ivanov és Philip J. Camp. „Theory of the dynamic magnetic susceptibility of ferrofluids”. *Physical Review E* 98 (5 2018. nov.), 50602. old. ISSN: 24700053. DOI: [10.1103/PhysRevE.98.050602](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.98.050602).
- [31] M. S. Wertheim. „Exact Solution of the Mean Spherical Model for Fluids of Hard Spheres with Permanent Electric Dipole Moments”. *The Journal of Chemical Physics* 55 (9 1971. nov.), 4291–4298. old. ISSN: 0021-9606. DOI: [10.1063/1.1676751](https://doi.org/10.1063/1.1676751).
- [32] I. Szalai és S. Dietrich. „Magnetization and susceptibility of ferrofluids”. *Journal of Physics Condensed Matter* 20 (20 2008). ISSN: 09538984. DOI: [10.1088/0953-8984/20/20/204122](https://doi.org/10.1088/0953-8984/20/20/204122).
- [33] I. Szalai és S. Dietrich. „Magnetization of multicomponent ferrofluids”. *Journal of Physics: Condensed Matter* 23 (32 2011. júl.), 326004. old. ISSN: 0953-8984. DOI: [10.1088/0953-8984/23/32/326004](https://doi.org/10.1088/0953-8984/23/32/326004).
- [34] I. Szalai, S. Nagy és S. Dietrich. „Comparison between theory and simulations for the magnetization and the susceptibility of polydisperse ferrofluids”. *Journal of Physics: Condensed Matter* 25 (46 2013. okt.), 465108. old. ISSN: 0953-8984. DOI: [10.1088/0953-8984/25/46/465108](https://doi.org/10.1088/0953-8984/25/46/465108).
- [35] Barnabás Horváth. „Molekuláris és komplex fluidumok lineáris és nemlineáris dielektromos tulajdonságainak vizsgálata”. Dissz. Veszprém A: Pannon Egyetem, 2014, 1–111. old. DOI: [10.18136/PE.2014.554](https://doi.org/10.18136/PE.2014.554). URL: https://konyvtar.uni-pannon.hu/doktori/2014/Horvath_Barnabas_dissertation.pdf.
- [36] Kenneth S. Cole és Robert H. Cole. „Dispersion and Absorption in Dielectrics I. Alternating Current Characteristics”. *The Journal of Chemical Physics* 9 (4 1941. ápr.), 341–351. old. ISSN: 0021-9606. DOI: [10.1063/1.1750906](https://doi.org/10.1063/1.1750906).

- [37] Christian Plank és tsai. „A review on the distribution of relaxation times analysis: A powerful tool for process identification of electrochemical systems”. *Journal of Power Sources* 594 (2024. febr.), 233845. old. ISSN: 0378-7753. DOI: [10.1016/J.JPOWSOUR.2023.233845](https://doi.org/10.1016/J.JPOWSOUR.2023.233845).
- [38] S. Havriliak és S. Negami. „A complex plane representation of dielectric and mechanical relaxation processes in some polymers”. *Polymer* 8 (C 1967. jan.), 161–210. old. ISSN: 0032-3861. DOI: [10.1016/0032-3861\(67\)90021-3](https://doi.org/10.1016/0032-3861(67)90021-3).
- [39] L. Maldonado-Camargo és tsai. „Estimating the contribution of Brownian and Néel relaxation in a magnetic fluid through dynamic magnetic susceptibility measurements”. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 412 (2016. aug.), 223–233. old. ISSN: 0304-8853. DOI: [10.1016/J.JMMM.2016.03.087](https://doi.org/10.1016/J.JMMM.2016.03.087).
- [40] Takashi Yoshida és Keiji Enpuku. „Field-dependent Néel relaxation time of magnetic nanoparticles in AC excitation fields: Boundary field between Néel- and Brownian-dominant regions”. *Journal of Applied Physics* 135 (9 2024. márc.). ISSN: 10897550. DOI: [10.1063/5.0192306/3268017](https://doi.org/10.1063/5.0192306/3268017).
- [41] P Marcon és K Ostanina. „Overview of methods for magnetic susceptibility measurement”. *Progress in Electromagnetics Research Symposium*. 2012, 420–424. old. ISBN: 9781934142202.
- [42] Michal Staňo és Olivier Fruchart. „Magnetic Nanowires and Nanotubes”. *Handbook of Magnetic Materials* 27 (2018. jan.), 155–267. old. ISSN: 15672719. DOI: [10.1016/bs.hmm.2018.08.002](https://doi.org/10.1016/bs.hmm.2018.08.002).
- [43] Joseph E. Losby, Vincent T.K. Sauer és Mark R. Freeman. „Nanomechanical Torque Magnetometry”. *Magnetic Measurement Techniques for Materials Characterization* (2021. jan.), 151–168. old. DOI: [10.1007/978-3-030-70443-8_8](https://doi.org/10.1007/978-3-030-70443-8_8).
- [44] R. V. Sarmago, K. L.C. Molina és L. J.D. Guerra. „A new perspective to AC magnetic susceptibility measurements in an unbalanced mutual inductance bridge”. *Physica C: Superconductivity and its Applications* 364-365 (2001. nov.), 239–242. old. ISSN: 0921-4534. DOI: [10.1016/S0921-4534\(01\)00762-6](https://doi.org/10.1016/S0921-4534(01)00762-6).
- [45] Simon Foner. „Versatile and Sensitive Vibrating-Sample Magnetometer”. *Review of Scientific Instruments* 30.7 (1959), 548–557. old.
- [46] Junbiao Zhao és tsai. „An overview of advanced instruments for magnetic characterization and measurements”. *Frontiers in Electronics* 6 (2025. szept.), 1645594. old. ISSN: 2673-5857. DOI: [10.3389/FELEC.2025.1645594](https://doi.org/10.3389/FELEC.2025.1645594).
- [47] Grazia Lo Sciuto, Paweł Kowol és Adam Pilśniak. „Automated measurements and characterization of magnetic permeability in magnetorheological fluid”. *Microfluidics and Nanofluidics* 26.8 (2022. aug.), 1–10. old. ISSN: 16134990. DOI: [10.1007/S10404-022-02565-9/FIGURES/10](https://doi.org/10.1007/S10404-022-02565-9/FIGURES/10).
- [48] Zurich Instruments. *Principles of Lock-in Detection*. URL: <https://www.zhinst.com/europe/en/resources/principles-of-lock-in-detection> (elérés dátuma 2025. 12. 02.).
- [49] M. L. Meade. *Lock-in amplifiers : principles and applications*. P. Peregrinus on behalf of the Institution of Electrical Engineers, 1983, 232. old. ISBN: 9780906048948.

- [50] Qianwen Zhang, Wonje Jeong és Dae Joon Kang. „Lock-in amplifiers as a platform for weak signal measurements: Development and applications”. *Current Applied Physics* 66 (2024. okt.), 95–109. old. ISSN: 1567-1739. DOI: [10.1016/J.CAP.2024.07.002](https://doi.org/10.1016/J.CAP.2024.07.002).
- [51] Texas Instruments. *INA105 Precision Unity Gain Differential Amplifier Datasheet*. 1993. URL: <http://www.burr-brown.com/>.
- [52] Josef Ježek és František Hroudá. „Eddy currents in the measurement of magnetic susceptibility of rocks”. *Physics of the Earth and Planetary Interiors* 274 (2018), 138–147. old. ISSN: 0031-9201. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.pepi.2017.11.008>.
- [53] S. Nagy és I. Szalai. „Nonlinear dielectric effect of dipolar fluid mixtures”. *Journal of Molecular Liquids* 164 (3 2011. dec.), 157–161. old. ISSN: 0167-7322. DOI: [10.1016/J.MOLLIQ.2011.08.014](https://doi.org/10.1016/J.MOLLIQ.2011.08.014).
- [54] T. Kristóf, D. Boda és I. Szalai. „An analytic solution for the magnetization of two-dimensional ferrofluids based on the mean spherical approximation”. *Journal of Physics: Condensed Matter* 24 (33 2012. júl.), 336002. old. ISSN: 0953-8984. DOI: [10.1088/0953-8984/24/33/336002](https://doi.org/10.1088/0953-8984/24/33/336002).
- [55] I. Szalai, S. Nagy és S. Dietrich. „Linear and nonlinear magnetic properties of ferrofluids”. *Physical Review E* 92 (4 2015. okt.), 42314. old. ISSN: 15502376. DOI: [10.1103/PhysRevE.92.042314](https://doi.org/10.1103/PhysRevE.92.042314).
- [56] Yuriy L. Raikher és Victor I. Stepanov. „Nonlinear Dynamic Susceptibilities and Field-Induced Birefringence in Magnetic Particle Assemblies”. *Advances in Chemical Physics*. Szerk. Stuart A. Rice. 129. köt. Wiley, 2004, 419–588. old.

Függelék

1. Ferrotec EMG700 gyártói adatlapja
2. Ferrotec EMG900 gyártói adatlapja
3. Parker MRF140CG gyártói adatlapja

SAFETY DATA SHEET

[SECTION 1]: PRODUCT AND COMPANY IDENTIFICATION

Product Trade Name : EMG 700 Series - EMG700, EMG 705, EMG 707, EMG 708 Ferrofluid
Chemical Name : Proprietary Product
Chemical Formula : Mixture
Chemical Family : Colloidal Dispersion
Relevant Identified Use : Domain Detection, Biomedical Research
Uses Advised Against : Continuous contact with human body

Manufacturer's Name : **Ferrotec (USA) Corporation**
Importers / Distributor : **Ferrotec (USA) Corporation, 33 Constitution Dr., Bedford, NH 03110, USA**
Responsible Party : **ferrofluid-safety@ferrotec.com**
Telephone Number : **(603) 472-6800**
Emergency Tel. Number : **+1 (800)424-9300 (CHEMTREC – US only)**
+1 (703)527-3887 (CHEMTREC – International)

Other safety information : **+81-479-73-6752 (FERROTEC CORP. – Japan)**

[SECTION 2]: HAZARD IDENTIFICATION

OSHA Hazards : N/A

Target Organs : N/A

GHS Classification : N/A

GHS Label Elements, including precautionary statements

Pictogram: N/A

Signal word: None

Hazard statement(s): None

Precautionary statement(s): None

Any hazards not otherwise classified or identified during classification process: N/A

% of mixture consisting of ingredient(s) of unknown toxicity: N/A

HMIS Classification

Health hazard: 1 (Mild skin irritation)

Chronic Health Hazard: 0

Flammability: 0

Physical hazards: 0

NFPA Rating**Health hazard:** 1 (mild irritant)**Fire:** 0**Reactivity Hazard:** 0**Potential Health Effects****Inhalation:** May cause slight irritation of airways**Skin:** May cause slight irritation of skin**Eyes:** May cause slight irritation of eye membranes**Ingestion:** May cause slight irritation of mucus membranes

[SECTION 3]: COMPOSITION / INGREDIENT INFORMATION**Synonyms:** N/A

The precise composition of this mixture is proprietary information.

A more complete disclosure will be provided to a physician or a nurse in the event of a medical emergency. All components are registered in Chemical Abstracts Service (CAS).

Composition		Proportion % (by volume)	Exposure Limit	Toxicity Data
A	Magnetite (Fe ₃ O ₄) Particles	1.2 – 6.2	N/A	N/A
B	Water Soluble Dispersant	7 – 27	N/A	N/A
C	Deionized Water	66.8 – 91.8	N/A	N/A

[SECTION 4]: FIRST AID MEASURES**Necessary measures to be taken according to route(s) of exposure -****Ingestion:** Rinse mouth and give moderate amount of water to drink. This product is mildly alkaline (pH 7 - 9). Do not induce vomiting unless directed by medical professional. If vomiting does occur, the head should be kept lower than the torso so as to prevent aspiration into the lungs.**Eye contact:** Immediately flush eyes with plenty of water for at least 15 minutes, occasionally lifting eyelids. Check for and remove contact lenses. Get medical attention.**Skin Contact:** Flush contaminated skin with water. Remove contaminated clothing and shoes. Get medical attention if symptoms occur. Wash clothing before reuse. Clean shoes thoroughly before reuse.**Inhalation:** Move person to fresh air. If person is not breathing call for emergency assistance (911 or other emergency number) then give artificial respiration, preferably mouth-to-mouth if possible. Call a poison control center or doctor for further treatment advice.**Most important symptoms/effects****Acute:** N/A**Delayed:** N/A**Indication of immediate medical attention and special treatment needed, if necessary:** This product should not cause any significant health issues. Take appropriate action for signs of allergic or sensitivity reaction.

Notes to physicians: This product is mildly alkaline (pH 7-9). Treatment is symptomatic and supportive.

[SECTION 5]: FIRE FIGHTING MEASURES

Suitable extinguishing media: CO₂, foam, dry chemical, water spray

Unsuitable extinguishing media: N/A

Specific hazards arising from chemical combustion products: N/A

Special protective equipment and precautions for fire-fighters: N/A

[SECTION 6]: ACCIDENTAL RELEASE MEASURES

Steps to be taken in case material is released or spilled:

Personal precautions: Remove clothing that may have become contaminated, wash skin thoroughly with soap and lots of water.

Environmental Precautions: Remove free liquid. Add absorbent (sand, earth, sawdust) to spill area. After removing absorbent, wash surface with soap and water to reduce possible slipping hazard.

Methods and materials for containment and cleanup: Consult federal state and local regulations applicable to disposal of wastewater.

[SECTION 7]: HANDLING AND STORAGE

Precautions for safe handling: Ordinary care in handling chemicals. Wash hands after handling.

Conditions for safe storage: Store in a cool, dry area.

Other precautions: Avoid contamination of food or tobacco products. Users should be aware that a very small percentage of the population may display unexpected allergic skin reactions to otherwise innocuous industrial chemicals and raw materials.

[SECTION 8]: EXPOSURE CONTROLS / PERSONAL PROTECTION

OSHA permissible exposure limit (PEL): Not established

ACIGH Threshold Limit Value (TLV): Not established

Any other exposure limit used recommended by the chemical manufacturer, importer, or employer preparing the safety data sheet, where available: N/A

Appropriate engineering controls: N/A

Personal Protective Measures/Equipment:

Respiratory protection: None required unless smoke, mists or vapors are produced.

Ventilation: No special ventilation required.

Hand protection: Quality rubber or plastic gloves to prevent prolonged or repeated contact with skin, conform to EN 374 (EU)

Eye protection: Safety glasses if splash is possible, conform to EN 166 (EU)

Other protective equipment: Not necessary.

[SECTION 9]: PHYSICAL AND CHEMICAL PROPERTIES

Appearance: Black Fluid	Lower /Upper Flammability or Explosion Limits: N/A (water-based)
Odor: Mild, soaplike	Vapor Pressure (mm Hg @ 20°C): 17.5
Odor Threshold: Not established	Vapor Density (Air=1): <1
pH: 8 - 9	Density: 1.13 – 1.26 g/cc
Melting/Freezing Point: 0°C	Water Solubility: Complete
Boiling Point: 100°C	Partition Coefficient: n-octanol/water: not established
Flash Point: N/A (water-based)	Auto-ignition Temperature: N/A (water-based)
Evaporation Rate: Not established	Decomposition Temp.: Not established
Flammability (solid/gas): N/A (water-based)	Viscosity: <5 cP
Explosive properties: N/A (water-based)	Oxidizing properties: Not established

[SECTION 10]: STABILITY AND REACTIVITY

Reactivity: N/A

Chemical stability: Stable at normal temperatures and pressures.

Possibility of hazardous reactions: Will not occur

Conditions to avoid (e.g. static discharge, shock or vibration): N/A

Incompatible materials: Strong oxidizing material, heat and flame.

Hazardous decomposition products: Burning may produce carbon monoxide and nitrogen gases.

[SECTION 11]: TOXICOLOGICAL INFORMATION**Acute Toxicity****Oral LD50**

LD50 Oral – Not established

Inhalation LC50

LC50 Inhalation – Not established

Dermal LD50

LD50 Dermal – Not established

Other information on acute toxicity

Skin corrosion/irritation: May cause rash on skin or eye and/or mucus membranes from prolonged contact.

Serious eye damage/eye irritation: Not established

Respiratory or skin sensitization: Not established

Germ cell mutagenicity: Not established

Carcinogenicity: This product DOES NOT contain any materials considered to be carcinogenic by any recognized sources. This product DOES NOT contain any materials listed in the NTP.

IARC: Not established

NTP: N/A

OSHA: N/A

Reproductive Toxicity: Not established

Teratogenicity: Not established

Specific target organ toxicity – single exposure (Globally Harmonized System): Not established

Specific target organ toxicity – repeated exposure (Globally Harmonized System): Not established

Aspiration hazard: As with any water-based preparation, aspiration is not recommended as may cause asphyxia and/or irritation.

Potential health effects

Inhalation: Slight irritation of mucus membranes

Ingestion: Slight irritation of mucus membranes

Skin: Slight irritation of skin

Eyes: Slight irritation of eye membranes

Signs and Symptoms of Exposure: N/A

Synergistic effects: Not Established

Additional Information: N/A

[SECTION 12]: ECOLOGICAL INFORMATION

Ecotoxicity (Aquatic and Terrestrial toxicity): No data

Persistence and biodegradability: No data

Bioaccumulation potential: No data

Mobility in soil: No data

Other adverse effects: No data

[SECTION 13]: DISPOSAL CONSIDERATION

Product: Comply with all federal, state and local regulations for disposal of wastewater.

Do not dump this product into sewers, on the ground or into any body of water.

Contaminated packaging: Dispose of as unused product.

[SECTION 14]: TRANSPORT INFORMATION

DOT (US)

Hazard class: N/A

UN No: N/A

Packing Group: N/A

Proper bulk shipping description: Not Regulated

Proper non-bulk shipping description: Not Regulated

Reportable Quantity: N/A

Marine Pollutant: N/A

Poison Inhalation Hazard: N/A

IMDG Hazard class: Not Regulated

UN No: N/A

Packing Group: N/A

Proper bulk shipping description: Not regulated

Proper non-bulk shipping description: Not regulated

ICAO shipping description: Not regulated

ADR/RID hazard class: Not regulated

IATA

Hazard class: N/A

UN No: N/A

Packing Group: N/A

Proper bulk shipping description: Not regulated

Proper non-bulk shipping description: Not regulated

[SECTION 15]: REGULATORY INFORMATION

OSHA Hazards: N/A

DSL Status: N/A

SARA 302 Components: N/A

SARA 313 Components: N/A

Composition	CAS No.	TSCA	EINECS	OSHA
A Magnetite (Fe ₃ O ₄)	1309-38-2	Registered	Registered	Registered
B Water Soluble Dispersant(s)	Proprietary	Registered	Registered	Registered
C Deionized Water	7732-18-5	Registered	Registered	Registered

These components do not contain any chemical subject to the reporting requirements of Section 313 of Title III of the Superfund Amendment and Reauthorization Act (SARA) of 1986 and 40 CFR part 372.

[SECTION 16]: OTHER INFORMATION

We believe the statements, technical information and recommendations contained herein to be reliable, but they are given without warranty or guarantee of any kind, express or implied, and we assume no responsibility for any loss, damage or expense, direct or consequential, arising from their use.

This material is not sold for use in products for which prolonged contact with skin or implantation into the human body is intended. We do not recommend this material as safe and effective for such uses and assume no liability for any such use.

RoHS compliance statement: This product meets the requirements of RoHS compliance.

REACH 2 Compliance Statement: This product is believed to meet the requirements of REACH 2 Compliance.

Date of preparation: 2013-08-09

Date of last revision and revision level: 2021-07-22, Rev. D

SAFETY DATA SHEET

[SECTION 1]: PRODUCT AND COMPANY IDENTIFICATION

Product Trade Name	: EMG 900 Series – EMG 900, 901, 905, 907, 909, 911 Ferrofluid
Chemical Name	: Proprietary Product
Chemical Formula	: Mixture
Chemical Family	: Colloidal Dispersion
Relevant Identified Use	: Domain Detection/Microfluidic Research
Uses Advised Against	: Loudspeaker Applications and any app. that requires long fluid life; Continued contact with skin or mucous membranes; inhalation or ingestion
Manufacturer's Name	: Ferrotec (USA) Corporation
Importers / Distributor	: Ferrotec (USA) Corporation, 33 Constitution Dr., Bedford, NH 03110, USA
Telephone Number	: (603) 472-6800
Emergency Tel. Number	: +1 (800)424-9300 (CHEMTREC – US only) +1 (703)527-3887 (CHEMTREC – International)
Other safety information	: +81-479-73-6752 (FERROTEC CORP. – Japan) +49-7022-9270-0 (FERROTEC GmbH – Germany)

[SECTION 2]: HAZARD IDENTIFICATION

Skin Corrosion / Irritation: Category 2

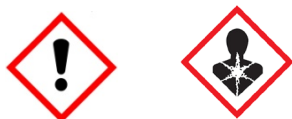
Severe Eye Damage / Irritation: Category 2

Target Organs : Not Established

Aspiration Toxicant: Category 1

GHS Label Elements, including precautionary statements -

Pictogram:



Signal word: Warning, **Danger**

Hazard statement(s):

H315 Cause skin irritation

H319 Cause serious eye irritation

H304 May be fatal if swallowed and enters airways

Precautionary statement(s):

-Prevention

P264 Wash thoroughly after handling

P273 Avoid release to the environment

P280 Wear protective gloves / protective clothing / eye protection / face protection.

-Response

P301 + P310: IF SWALLOWED: Immediately call a POISON CENTER or doctor/physician

P302+P352 If on skin: Wash with plenty of soap and water

P305+P351+P338 If in eyes: Rinse cautiously with water for several minutes. Remove contact lenses, if possible and easy to do. Continue rinsing.

P331: Do NOT induce vomiting

P332+P313: IF skin irritation occurs: Get medical advice/attention.

P337+P313: If eye irritation persists: Get medical advice/attention.

P362 Take off contaminated clothing and wash before reuse.

P391 Collect spillage

P501: Dispose of contents and container in accordance with local regulations

Contains: DISTILLATES (PETROLEUM), HYDROTREATED LIGHT

Any hazards not otherwise classified or identified during classification process: GHS Class 4 Combustible

% of mixture consisting of ingredient(s) of unknown toxicity: Not Applicable (to be indicated henceforth as N/A)

HMIS Classification

Health hazard: 1

Chronic Health Hazard: N/A

Flammability: 1

Physical hazards: 0

NFPA Rating

Health hazard: 1

Fire: 1

Reactivity Hazard: 0

Potential Health Effects

Inhalation: Inhalation of oil mist or vapors at elevated temperatures may cause respiratory irritation.

Skin: Potential skin irritant

Eyes: Potential eye irritant

Ingestion: No significant health hazard, however aspiration during ingestion can cause severe respiratory effects, including death.

[SECTION 3]: COMPOSITION / INGREDIENT INFORMATION

Synonyms: N/A

The precise composition of this mixture is proprietary information.

A more complete disclosure will be provided to a physician or a nurse in the event of a medical emergency. All components are registered in Chemical Abstracts Service (CAS).

Composition		Proportion % (by volume)	Exposure Limit	Toxicity Data
A	Iron Oxide (magnetite)	3 - 15	No Data	No Data
B	Oleic Acid Dispersant	6 - 30	No Data	No Data
C	Distillates (Petroleum) Hydrotreated Light	55 - 91	No Data	No Data

[SECTION 4]: FIRST AID MEASURES

Necessary measures to be taken according to route(s) of exposure -

Ingestion: This material has minimal toxicity, but fluid aspirated into lungs during ingestion could cause severe pulmonary injury or death. Do not induce vomiting; seek immediate medical attention.

Eye contact: Check for contact lenses and remove. Flush with water for at least 15 minutes and consult a physician for treatment.

Skin Contact: Wash with soap and water.

Inhalation of smoke or mist: Move to fresh air and refer to a physician for treatment. If difficulty in breathing is observed, supply oxygen. If inhaled, there are possibilities of dizziness or asphyxiation without special symptoms.

Most important symptoms/effects

Acute: Not established

Delayed: Not established

Indication of immediate medical attention and special treatment needed, if necessary: This product should not cause any significant health issues. Take appropriate action for signs of allergic or sensitivity reaction.

Notes to physicians: This product contains a fatty acid dispersant and Distillates (Petroleum), Hydrotreated Light. If breathing has stopped, try artificial respiration.

[SECTION 5]: FIRE FIGHTING MEASURES

Suitable extinguishing media: CO₂, Foam, dry chemical, water spray (water spray may cause frothing)

Unsuitable extinguishing media: N/A

Specific hazards arising from chemical combustion products: Burning may produce carbon monoxide and nitrogen oxides. Vapor mixed with air at temperatures above flash point may be explosive. Vapor is heavier than air.

Special protective equipment and precautions for fire-fighters: Respirators, if smoke or vapor is present.

[SECTION 6]: ACCIDENTAL RELEASE MEASURES

Steps to be taken in case material is released or spilled

Personal precautions: Remove clothing that may have become contaminated, wash skin thoroughly with soap and lots of water.

Environmental Precautions: Remove free liquid. Add absorbent (sand, earth, sawdust) to spill area. After

removing absorbent, wash surface with soap and water to reduce possible slipping hazard. If contamination of ground water is a concern, build a dike to contain spilled fluid, then clean as indicated. Prevent spilled fluid from entering sewers, water courses or low areas.

Methods and materials for containment and cleanup: Consult federal state and local regulations applicable to disposal of waste oil products.

[SECTION 7]: HANDLING AND STORAGE

Precautions for safe handling: Ordinary care in handling chemicals. Wash hands after handling.

Conditions for safe storage: Keep in a cool, dark area. If large quantities are stored, ground the storage container to prevent static buildup.

Other precautions: Avoid contamination of food or tobacco products. Users should be aware that a very small percentage of the population may display unexpected allergic skin reactions to otherwise innocuous industrial chemicals and raw materials.

[SECTION 8]: EXPOSURE CONTROLS / PERSONAL PROTECTION

OSHA permissible exposure limit (PEL): Not established

ACGIH Threshold Limit Value (TLV): Not established

Any other exposure limit used or recommended by the chemical manufacturer, importer, or employer preparing the safety data sheet, where available: No data

Appropriate engineering controls: Supply adequate ventilation

Personal Protective Measures/Equipment:

Respiratory protection: Not required unless smoke, mists or vapors are produced.

Ventilation: No special ventilation required.

Hand protection: Rubber or plastic gloves to prevent prolonged or repeated contact with skin, conforms to EN374 (EU).

Eye protection: Safety glasses recommended if splash is possible, conforms to EN 166 (EU).

Other protective equipment: Apron recommended but not required.

[SECTION 9]: PHYSICAL AND CHEMICAL PROPERTIES

Appearance: Black/brown fluid	Lower /Upper Explosion Limits: Not established
Odor: Mild, faint	Vapor Pressure (kPa @ 20°C): 0.1
Odor Threshold: Not established	Vapor Density (Air = 1): 6.4
pH: N/A	Density: 1.21 – 1.42 g/cc
Melting/Freezing Point (°C): Not established	Water Solubility: Insoluble
Boiling Point (°C): 223	Partition Coefficient: n-octanol/water: No data
Flash Point (°C): 95	Auto-ignition Temperature: 215°C
Evaporation Rate: < 0.01	Decomposition Temp.: No data
Flammability (solid/gas): No data	Viscosity: 6 - <12 cP
Explosion properties: No data available	Oxidizing properties: No data available

[SECTION 10]: STABILITY AND REACTIVITY

Reactivity: No data

Chemical stability: Stable under recommended storage conditions

Possibility of hazardous reactions: No data

Conditions to avoid (e.g. static discharge, shock or vibration): Will evaporate if left open to air. Avoid flame, spark and other ignition sources. Keep away from sewers and bodies of water.

Incompatible materials: Strong oxidizing agents

Hazardous decomposition products: In the event of fire, see section 5.

[SECTION 11]: TOXICOLOGICAL INFORMATION

Acute Toxicity

Oral LD50

LD50 Oral – No data

Inhalation LC50

LC50 Inhalation – No data

Dermal LD50

LD50 Dermal – No data

Other information on acute toxicity

Skin corrosion/irritation: May cause skin irritation

Serious eye damage/eye irritation: May cause irritation to eyes and/or membranes

Respiratory or skin sensitization: May cause respiratory irritation,

Aspiration: May be fatal if swallowed and enters airways. Based on physic-chemical properties of the material

Germ cell mutagenicity: No data

Carcinogenicity: No data

IARC: No data

NTP: No data

OSHA: No data

Reproductive Toxicity: No data

Teratogenicity: No data

Specific target organ toxicity – single exposure (Globally Harmonized System): No data

Specific target organ toxicity – repeated exposure (Globally Harmonized System): No data

Potential health effects

Inhalation: Slight irritation
Ingestion: May cause death if aspirated during swallowing
Skin: Slight irritation
Eyes: Slight irritation

Signs and Symptoms of Exposure: Symptoms, if present, vary with individual. Watch for signs of allergic reaction, rash or respiratory distress.

Synergistic effects: No data

Additional Information: N/A

[SECTION 12]: ECOLOGICAL INFORMATION

Ecotoxicity (Aquatic and Terrestrial toxicity): Variable data, not expected to be harmful to aquatic organisms

Persistence and biodegradability: Expected to be inherently biodegradable

Bioaccumulative potential: No data

Mobility in soil: No data

Other adverse effects: No data

[SECTION 13]: DISPOSAL CONSIDERATION

Product: Comply with all federal, state and local regulations for disposal of waste oils. High temperature incineration.

Do not dump this product into sewers, on the ground or into any body of water.

Contaminated packaging: Dispose of as unused product, high temperature incineration.

[SECTION 14]: TRANSPORT INFORMATION

DOT (US)

Hazard class: Not Regulated for Land Transport

UN No: N/A

Packing Group: N/A

Proper bulk shipping description: Hydrocarbons, Liquid, N.O.S.

Proper non-bulk shipping description: Not restricted

Reportable Quantity: None

Marine Pollutant: No Reference

Poison Inhalation Hazard: N/A

IMDG

Hazard class: Not Regulated for Land Transport

UN No: N/A

Packing Group: N/A

Proper bulk shipping description: Not restricted

Proper non-bulk shipping description: Not restricted

ICAO shipping description: Not restricted
ADR/RID hazard class: Not restricted

IATA

Hazard class: Not Regulated for Air Transport
UN No: N/A
Packing Group: N/A
Proper bulk shipping description: Not restricted
Proper non-bulk shipping description: Not restricted

[SECTION 15]: REGULATORY INFORMATION

OSHA Hazards: N/A

DSL Status: N/A

SARA 302 Components: N/A

SARA 313 Components: N/A

Composition	CAS No.	TSCA	EINECS	OSHA
A Magnetite (Fe ₃ O ₄)	1309-38-2	Registered	Registered	Registered
B Oleic Acid Dispersant	112-80-1	Registered	Registered	Registered
C Distillates (Petroleum) Hydrotreated Light	64742-47-8	Registered	Registered	Registered

These components do not contain any chemical subject to the reporting requirements of Section 313 of Title III of the Superfund Amendment and Reauthorization Act (SARA) of 1986 and 40 CFR part 372.

[SECTION 16]: OTHER INFORMATION

We believe the statements, technical information and recommendations contained herein to be reliable, but they are given without warranty or guarantee of any kind, express or implied, and we assume no responsibility for any loss, damage or expense, direct or consequential, arising from their use.

This material is not sold for use in products for which prolonged contact with skin or implantation into the human body is intended. We do not recommend this material as safe and effective for such uses and assume no liability for any such use.

RoHS compliance statement: This material is believed to comply with RoHS standards.

REACH 2 Compliance Statement: This material is believed to comply with REACH standards.

This GHS Compliant SDS form was completed by the Ferrotec (USA) Ferrofluids Documentation Group.

Date of preparation: 2014-06-06 Date of last revision and revision level: 2021-07-22, Rev. E

MRF-140CG Magneto-Rheological Fluid

Technical Data Sheet

MRF-140CG fluid is a hydrocarbon-based magneto-rheological (MR) fluid formulated for general use in controllable, energy-dissipating applications such as shocks, dampers and brakes.

MRF-140CG fluid is a suspension of micron-sized, magnetizable particles in a carrier fluid. When exposed to a magnetic field, the rheology of MRF-140CG fluid reversibly and instantaneously changes from a free-flowing liquid to a semi-solid with controllable yield strength. Altering the strength of the applied magnetic field precisely and proportionally controls the consistency or yield strength of the fluid.

MRF-140CG fluid can be used in valve mode (fluid flowing through an orifice) or in shear mode (fluid shearing between two surfaces). In the absence of a magnetic field, MRF-140CG fluid flows freely or allows free movement. Upon application of a magnetic field, the fluid's particles align with the direction of the field in chain-like fashion, thereby restricting the fluid's movement within the gap in proportion to the strength of the magnetic field.

Features and Benefits:

Fast Response Time – responds instantly and reversibly to changes in a magnetic field.

Dynamic Yield Strength – provides high yield strength in the presence of a magnetic field and very low yield strength in the absence of a magnetic field; allows for a wide range of controllability.

Temperature Resistant – performs consistently throughout a broad temperature range, meeting the requirements of demanding applications such as automotive shock absorbers.

Hard Settling Resistant – provides high resistance to hard settling; easily redispersed.

Non-Abrasive – formulated to not abrade the devices in which the MR fluid is used.

Application:

Mixing – Under common flow conditions, no separation is observed between particles and the carrier fluid. However, a degree of separation may eventually occur under static conditions. If needed, use a paint shaker to redisperse the particles into a homogeneous state prior to use.

Storage:

Keep container tightly closed when not in use.

Typical Properties*	
Appearance	Dark Gray Liquid
Viscosity, Pa·s @ 25°C (77°F) Constant shear 500 sec ⁻¹	0.336
Density g/cm ³ (lb/gal)	3.71 (31.0)
Solids Content by Weight, %	85.44
Flash Point, °C (°F)	>150 (>302)
Operating Temperature, °C (°F)	-40 to +130 (-40 to +266)

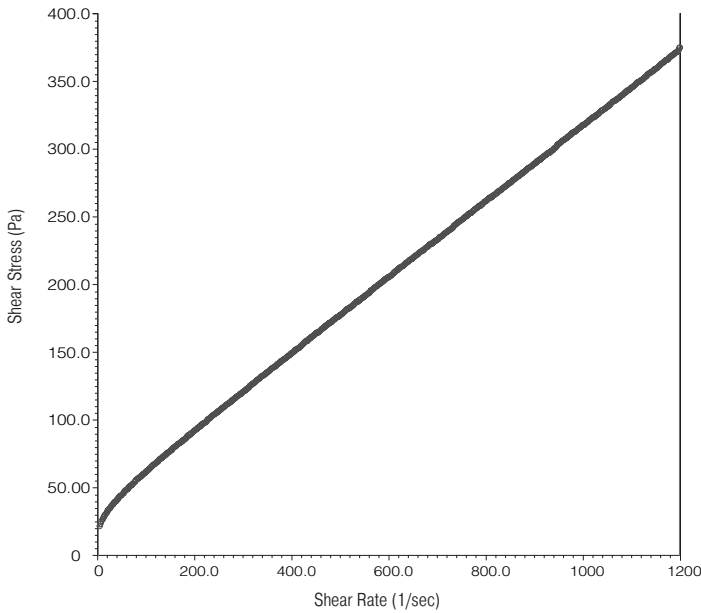
*Data is typical and not to be used for specification purposes.

Cautionary Information:

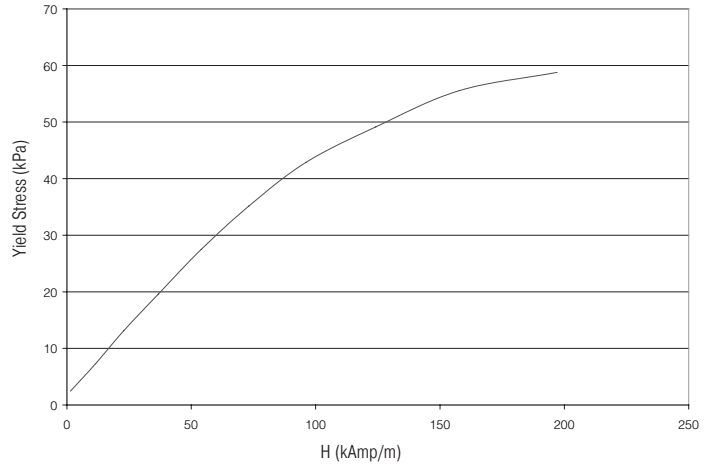
Before using this or any Parker Lord product, refer to the Safety Data Sheet (SDS) and label for safe use and handling instructions.

For industrial/commercial use only. Must be applied by trained personnel only. Not to be used in household applications. Not for consumer use.

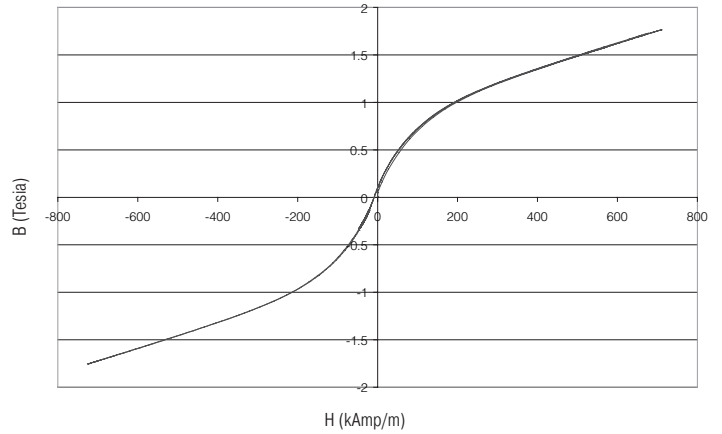
Shear Stress as a function of Shear Rate with no Magnetic Field applied at 40°C (104°F)



Yield Stress vs. Magnetic Field Strength



Typical Magnetic Properties



Values stated in this document represent typical values as not all tests are run on each lot of material produced. For formalized product specifications for specific product end uses, contact the Customer Support Center.

Information provided herein is based upon tests believed to be reliable. In as much as Parker Lord has no control over the manner in which others may use this information, it does not guarantee the results to be obtained. In addition, Parker Lord does not guarantee the performance of the product or the results obtained from the use of the product or this information where the product has been repackaged by any third party, including but not limited to any product end-user. Nor does the company make any express or implied warranty of merchantability or fitness for a particular purpose concerning the effects or results of such use.

WARNING — USER RESPONSIBILITY. FAILURE OR IMPROPER SELECTION OR IMPROPER USE OF THE PRODUCTS DESCRIBED HEREIN OR RELATED ITEMS CAN CAUSE DEATH, PERSONAL INJURY AND PROPERTY DAMAGE.

This document and other information from Parker-Hannifin Corporation, its subsidiaries and authorized distributors provide product or system options for further investigation by users having technical expertise.

The user, through its own analysis and testing, is solely responsible for making the final selection of the system and components and assuring that all performance, endurance, maintenance, safety and warning requirements of the application are met. The user must analyze all aspects of the application, follow applicable industry standards, and follow the information concerning the product in the current product catalog and in any other materials provided from Parker or its subsidiaries or authorized distributors.

To the extent that Parker or its subsidiaries or authorized distributors provide component or system options based upon data or specifications provided by the user, the user is responsible for determining that such data and specifications are suitable and sufficient for all applications and reasonably foreseeable uses of the components or systems.



Parker Lord
Engineered Materials Group

111 LORD Drive
Cary, NC 27511-7923
USA

phone +1 877 275 5673

www.Parker.com/APS