

## ОПТИЧЕСКИЕ НЕЛИНЕЙНОСТИ, ИНДУЦИРУЕМЫЕ В МАГНИТНОЙ ЖИДКОСТИ ПЕРЕМЕННЫМ МАГНИТНЫМ ПОЛЕМ

*Ю.Л. Райхер, С.В. Бурылов, В.И. Степанов*

Найден спектральный состав колебаний ориентации частиц в магнитной жидкости (МЖ) в переменном поле большой амплитуды. Показано, что суперпарамагнетизм частиц приводит к появлению в частотном спектре интенсивности поляризованного света, прошедшего через МЖ, характерных особенностей – минимумов полевой зависимости амплитуд гармоник.

Измерение двойного лучепреломления с успехом используется<sup>1-3</sup> для изучения магнитных жидкостей (МЖ) – суспензий однодоменных феррочастиц. Оптическая анизотропия этих сред весьма велика: например, в магнетитовых МЖ с объемным содержанием твердой

фазы 3 – 5 % постоянная Коттона – Мутона в  $10^6 - 10^7$  раз больше, чем для молекулярных жидкостей <sup>4</sup>. Столь сильный отклик на приложенное поле обусловлен, конечно, значительной величиной магнитного момента  $\mu$  отдельной феррочастицы: при размере последней  $\sim 100 \text{ \AA}$  имеем  $\mu \sim 10^{-15}$  эрг/Гс, т. е. около  $10^5$  магнетонов. Оценка параметра  $\xi = \mu H / k_B T$ , определяющего ориентацию частицы в магнитном поле  $H$  при температуре  $T$ , дает  $\sim 10^{-2} H$  для  $T = 300 \text{ К}$ , т. е.  $\xi$  достигает единицы уже в полях умеренной величины. Очевидно, что начиная с  $H \gtrsim 100 \text{ Э}$ , полевые зависимости ориентационных эффектов в МЖ становятся существенно нелинейными. В настоящей работе изучено влияние указанных нелинейностей на динамику двулучепреломления в МЖ.

Рассмотрим разбавленную суспензию однодоменных феррочастиц с объемом  $V \sim 10^{-18} \text{ см}^3$ . Форму частицы будем моделировать вытянутым эллипсоидом вращения, предполагая анизотричность достаточной для создания одноосной магнитной анизотропии с направлением легкого намагничивания вдоль главной оси эллипсоида, ориентацию которой будем характеризовать единичным вектором  $\vec{v}$ . Используя типичные значения константы магнитной анизотропии  $K \sim (1 - 5) \cdot 10^5 \text{ эрг/см}^3$  и оценивая при  $T = 300 \text{ К}$  отношение энергии анизотропии частицы к ее тепловой энергии, находим  $\sigma = KV / k_B T \lesssim 5$ , что указывает на интенсивную ориентационную диффузию магнитного момента частицы (суперпарамагнетизм) – см. <sup>5</sup>. В суперпарамагнитных частицах при  $\sigma < 5$  время отклика магнитного момента  $\tau_0$  не превышает  $10^{-8} \text{ с}$ , так что в полях  $H(t)$  с частотами  $\omega \tau_0 \ll 1$  ориентацию вектора  $\mu$  можно считать равновесной.

В линейно-поляризованном поле оптическая анизотропия  $\Delta n$  суспензии пропорциональна <sup>6</sup> величине  $S = S_{ik} h_i h_k$ , где  $\mathbf{h}$  – единичный вектор направления поля, а  $S_{ik} = \frac{3}{2} (\langle v_i v_k \rangle - \delta_{ik} / 3)$  – макроскопический тензор ориентации, определяемый усреднением по ансамблю частиц. Для рассматриваемого случая суперпарамагнитных частиц в низкочастотном поле уравнение движения параметра  $S$  имеет вид

$$\tau \dot{S} + S = (2/15) \sigma \mathcal{L}(\xi). \quad (1)$$

Здесь  $\mathcal{L}(x) = 1 - 3L(x)/x$ , где  $L(x)$  – функция Ланжевена. Время релаксации  $\tau = A\eta V / k_B T$ , определяющее дисперсию  $S$  (и, следовательно,  $\Delta n$ ) – это дебаевское время вращательной диффузии частицы, взвешенной в жидкости с вязкостью  $\eta$ ; формфактор  $A$  равен единице для шара и возрастает по мере увеличения анизотричности. Отметим, что даже в маловязких жидкостях  $\tau \gtrsim 10^{-6} \text{ с}$ , поэтому принятое условие  $\omega \tau_0 \ll 1$  не накладывает жесткого ограничения на величину  $\omega \tau$ .

Уравнение (1) отличается от уравнения движения тензора ориентации неполярных молекул в электрическом поле <sup>7</sup> только видом правой части. В уравнении (1) стоит насыщающаяся, а не просто квадратичная (как в случае электрополяризации) функция поля, что сообщает вынуждающей силе существенный ангармонизм.

Рассмотрим частотный спектр установившихся колебаний  $S(t)$  в поле  $H = H_0 \cos \omega t$ . Полагая в (1)  $\xi = \xi_0 \cos \omega t$ , где  $\xi_0 = \mu H_0 / k_B T$ , и раскладывая искомую величину в гармонический ряд

$$S(t) = \sigma \sum_{l=0}^{\infty} s_{2l\omega} \cos(2l\omega t - \varphi_l), \quad (2)$$

получим из (1) и (2) систему алгебраических уравнений для спектральных амплитуд  $s_{2l\omega}(\xi_0, \omega \tau)$ . Из (1) и (2) легко найти закон дисперсии  $s_{2l\omega} \propto 1/\sqrt{1 + (2l\omega \tau)^2}$  и асимптотику  $s_{2l\omega} \propto \xi_0^{2l}$  в слабых полях. Для произвольных  $\xi_0$  спектр функции (2) строится численно; результаты расчета амплитуд нескольких первых мод колебаний представлены на рис. 1.

Наиболее доступным методом экспериментального определения зависимости  $S(t)$  является измерение двулучепреломления. Проследим влияние нелинейных эффектов на частот-

ный спектр интенсивности света, прошедшего через слой магнитной жидкости. Примем стандартную геометрию эксперимента: поляризатор и анализатор скрещены, направление поля составляет с их осями угол  $45^\circ$ . В этих условиях относительная интенсивность прошедшего луча дается соотношением  $I = \sin^2(\delta/2)$ , где  $\delta$  – фазовый сдвиг, пропорциональный  $\Delta l$ . Для разбавленной суспензии, когда  $\delta \ll 1$ , имеем  $I \approx \delta^2/4 \propto S^2$ . Преобразуя согласно этому соотношению найденный выше спектр  $S(t)$  в спектр  $I(t)$ , получим картину, представленную на рис. 2 (здесь, как и на рис. 1, постоянная составляющая не приведена). Видно, что при  $\omega\tau \ll 1$  поведение спектральных амплитуд для всех  $l > 1$  имеет четко выраженный немонотонный характер: наблюдается минимум, положение которого  $\xi^{(l)}$  с ростом номера гармоники смещается в сторону больших значений амплитуды приложенного поля. Зависимость  $\xi^{(l)}$  от  $l$  находилась численно: при  $\omega\tau \leq 0,1$  расчет дает

$l$	2	3	4
$\xi^{(l)}$	4,2	6,8	9,4

По мере роста частоты поля положения минимумов на кривых  $I_{2l\omega}(\xi_0)$  изменяются слабо, хотя глубины их заметно уменьшаются; одновременно происходит снижение самих амплитуд  $I_{2l\omega}$ , что в рамках рассматриваемой модели объясняется отсутствием колебаний ориентации при  $\omega\tau \rightarrow \infty$ .

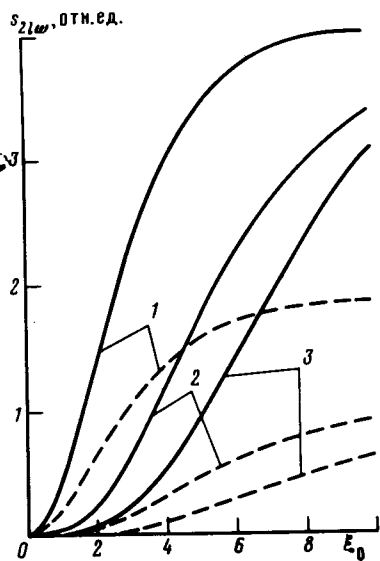


Рис. 1

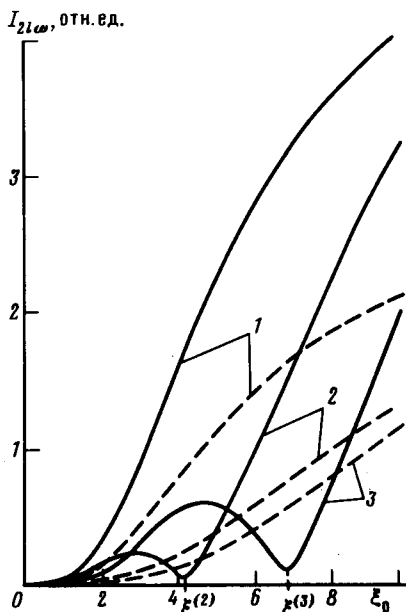


Рис. 2

Рис. 1. Зависимость частотного спектра параметра ориентации от амплитуды приложенного поля: кривые 1 –  $s_{2\omega}$ , 2 –  $2s_{4\omega}$ , 3 –  $4s_{6\omega}$  при  $\omega\tau = 0,1$  (сплошные линии) и  $\omega\tau = 1,0$  (штриховые)

Рис. 2. Зависимость частотного спектра интенсивности поляризованного света  $I(t)$  от амплитуды приложенного поля: кривые 1 –  $I_{2\omega}$ , 2 –  $3I_{4\omega}$ , 3 –  $8I_{6\omega}$  при  $\omega\tau = 0,1$  (сплошные линии) и  $\omega\tau = 1,0$  (штриховые)

Для проверки развитой теории воспользуемся результатами работы <sup>8</sup>, где исследовалась модуляция света оптической ячейкой, заполненной ферроколлоидом с объемной концентрацией магнетита 0,15%, и где впервые была экспериментально обнаружена немонотон-

ность зависимостей  $I_{2l\omega}(H_0)$ . Ниже приведено сопоставление взятых из <sup>8</sup> отношений амплитуд полей  $H^{(l)}$ , отвечающих минимумам спектральных амплитуд интенсивности, с числами из таблицы :

$$\begin{array}{l} \xi^{(3)} / \xi^{(2)} \Big|_{\text{эксп}} \approx 1,4 \\ \xi^{(4)} / \xi^{(2)} \Big|_{\text{эксп}} \approx 1,9 \end{array} \quad \begin{array}{l} \xi^{(3)} / \xi^{(2)} \Big|_{\text{теор}} = 1,6 \\ \xi^{(4)} / \xi^{(2)} \Big|_{\text{теор}} = 2,2 \end{array} .$$

Количественное согласие теории с экспериментом оказывается удовлетворительным. Для определения размера феррочастиц возьмем приведенное в <sup>8</sup> значение  $H^{(2)} \approx 500$  Э и вычислим отношение  $\xi_{\text{теор}}^{(2)} / H^{(2)}$ , которое, согласно нашей модели, равно  $\mu / k_B T$ . Полагая для однодоменных частиц  $\mu = MV$ , где  $M = 480$  Гс — намагниченность магнетита, получим для комнатной температуры оценку  $V = k_B T \xi^{(2)} / MH^{(2)} \approx 6,8 \cdot 10^{-19}$  см<sup>3</sup>. В пересчете на линейный размер это дает  $\approx 110$  Å, что хорошо коррелирует с известными данными по электронной микроскопии магнетитовых МЖ.

Авторы благодарят Ю.Н.Скибина за разъяснение экспериментальной ситуации и М.И.Шлиомиса за ценные критические замечания.

#### Литература

1. Скибин Ю.Н., Чеканов В.В., Райхер Ю.Л. ЖЭТФ, 1977, 72, 949.
2. Scholten P.C. IEEE Trans. Magn., 1980, 16, 221.
3. Chikazumi S., Taketomi S., Ukita M. et al. J. Magn. and Magn. Mater., 1987, 65, 245.
4. Taketomi S. J. Appl. Phys. Jap., 1983, 22, 1137.
5. Вонсовский С.В. Магнетизм. М.: Наука, 1971, гл. 23.
6. Волькенштейн М.В. Молекулярная оптика. М.: Гостехиздат, 1951.
7. Френкель Я.И. Кинетическая теория жидкостей. Л.: Наука, 1975, гл. 6.
8. Скибин Ю.Н. Тез. докл. IV Всесоюз. конф. по магнитным жидкостям. Иванова, 1985, 2, 98.

Институт механики сплошных сред  
Уральское отделение  
Академии наук СССР

Поступила в редакцию  
4 февраля 1988 г.