

## ДИНАМИЧЕСКАЯ ВОСПРИИМЧИВОСТЬ КОНЦЕНТРИРОВАННЫХ МАГНИТНЫХ ЖИДКОСТЕЙ

*Ю.Л.Райхер, А.Ф.Пшеничников*

Показано, что возможной причиной наблюдаемого в магнитных коллоидах логарифмического закона дисперсии восприимчивости является возникновение в этих системах состояния типа дипольного спинового стекла.

В 1980 году впервые появилось сообщение об экспериментах<sup>1</sup>, указывающих на сходство магнитных спиновых стекол и магнитных жидкостей (МЖ) – концентрированных суспензий однодоменных частиц ферро- или ферримагнетиков. В работе<sup>1</sup> был обнаружен характерный пик температурной зависимости восприимчивости  $\chi(T)$  суспензий ультрамалых ( $\sim 100 \text{ \AA}$ ) частиц магнетита – наиболее распространенного материала для МЖ. В настоящей статье мы приведем результаты измерений динамических свойств магнетитовых МЖ, также свидетельствующие в пользу спин-стекольной модели, и обсудим ее конкретное содержание применительно к рассматриваемым системам.

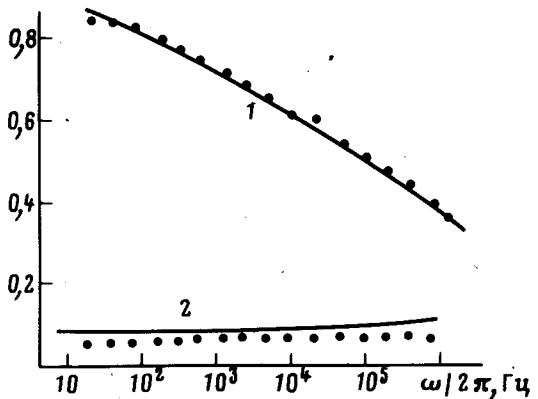
На первый взгляд, принципиальная разница между обычными спиновыми стеклами и МЖ заключается в том, что в последних пространственная структура не является фиксированной: магнитные зерна МЖ обладают механическими поступательными и вращательными степенями свободы в жидкой матрице. Наличие такой микроподвижности должно, конечно, учитываться при определении реакции системы на переменное внешнее поле. В приближении независимых зерен (малые концентрации) расчет<sup>2</sup> дает для МЖ дебаевскую линию  $\chi' \sim \sim (1 + \omega^2 \tau_B^2)^{-1}$ , где  $\tau_B = 3V\eta/k_B T$  – броуновское время вращательной диффузии сферической частицы объема  $V$  в жидкости с динамической вязкостью  $\eta$ . Типичные значения  $\tau_B$  при  $V \sim 10^{-18} \text{ см}^3$  составляют около  $10^{-6} \text{ с}$ . В<sup>2</sup> предполагалось, что однодоменная частица имеет магнитный момент  $\mu = M_s V$ , где  $M_s$  – намагниченность насыщения материала. Для сильно разбавленных МЖ модель<sup>2</sup> с учетом поправок на неелевский суперпарамагнетизм удовлетворительно согласуется с экспериментом<sup>3</sup>.

Ситуация в корне изменяется при переходе к концентрированным системам, в которых объемная доля твердой фазы составляет 10 – 20 %. В таких МЖ, как свидетельствуют многочисленные наблюдения (см., например, обзор<sup>4</sup>), магнитное диполь-дипольное взаимодействие заставляет частицы объединяться в агрегаты, имеющие в отсутствие внешнего поля квазисферическую форму. В агрегате, содержащем достаточное число частиц (десять и более) трудно предполагать появление некомпенсированного магнитного момента: ферромагнитные кластеры энергетически невыгодны. Если же учесть конечность агрегата и полидисперсность зерен реальной МЖ, то следует признать маловероятным и образование регулярной структуры с антиферромагнитным упорядочением. Наиболее правдоподобно выглядит упаковка агрегата по типу спинового стекла, когда направления магнитных моментов отдельных областей некоррелированы и сумма их по агрегату обращается в нуль. В этом случае воздействие переменного магнитного поля не может привести к вращению сгустка зерен (агрегата), поскольку его намагниченность всегда оказывается параллельной внешнему полю, и врачающий момент строго равен нулю. Иными словами, образование агрегатов приводит к "выключению" механических степеней свободы МЖ в переменном поле, что и объясняет близкое родство этих систем с твердыми спиновыми стеклами.

Для рассмотрения динамики намагничивания концентрированной МЖ используем простую кластерную модель спинового стекла<sup>5, 6</sup>, трактующую последнее как набор невзаимодействующих областей, характеризуемых суперпарамагнитным поведением. Согласно этой модели намагничивание системы происходит путем преодоления энергетических барьеров  $\sim K\nu$ , где  $\nu$  – объем перемагничивающегося кластера,  $K$  – эффективная констан-

та анизотропии. В нашем случае  $K$  имеет магнитостатическую природу, так что  $K \sim M_s^2$ . Таким образом, температура замерзания имеет порядок  $T_f \sim M_s^2 V/k_B \lesssim 10^3$  К и определяется усреднением температур блокирования ориентационных флуктуаций магнитных моментов отдельных кластеров. Отметим, что формирование фазы спинового стекла всегда приводит к появлению широкого спектра распределения  $v$ ; вопрос о виде функции распределения  $f(v)$  решается<sup>6</sup> сопоставлением с экспериментом.

Для эксперимента были взяты образцы МЖ (коллоиды магнетита в керосине) со средним размером зерен  $\sim 100$  Å и намагниченностью насыщения  $M_0 = 54$  и  $79,5$  Гс. Измерение динамической восприимчивости проводилось при комнатной температуре в диапазоне 20 Гц – 30 кГц по схеме моста взаимной индуктивности, а в диапазоне 20 кГц – 1 МГц – резонансным методом. Обнаружено, что обе исследованные жидкости имеют сходное поведение частотных зависимостей вещественной  $\chi'$  и мнимой  $\chi''$  компонент восприимчивости. Данные измерений образца №2 приведены на рисунке, где явно прослеживается типично для спиновых стекол CuMn и др.<sup>7</sup> квазилинейное убывание  $\chi'$  с логарифмом частоты при  $T \lesssim T_f$ .



Частотные зависимости компонент магнитной восприимчивости МЖ: точки – эксперимент, сплошные линии – расчет по формулам (4); кривая 1 –  $\chi'$ , кривая 2 –  $\chi''$

Приведем интерпретацию этих результатов в рамках кластерной модели. Для оценки времени  $\tau$  перехода магнитного момента через потенциальный барьер  $Kv$  воспользуемся формулой Нееля

$$\tau = \tau_0 \exp(Kv/k_B T), \quad (1)$$

где  $\tau_0$  – затравочная константа  $\sim 10^{-9}$  с. Статическая (равновесная) восприимчивость кластера объема  $v$  составляет  $\chi_0 = M_s^2 v / 3k_B T$ , поэтому в системе кластеров, где имеется разброс по  $v$ , для компонент восприимчивости получим

$$\chi' = \frac{NM_s^2}{3k_B T} \int_0^\infty \frac{v^2 f(v) dv}{1 + \omega^2 \tau^2}, \quad \chi'' = \frac{NM_s^2}{3k_B T} \int_0^\infty \frac{\omega \tau v^2 f(v) dv}{1 + \omega^2 \tau^2}; \quad (2)$$

здесь  $N$  – полное число кластеров. Используем в качестве  $f(v)$  инвертированное гамма-распределение

$$f(v) = \frac{V_0^{1+\gamma}}{\Gamma(1+\gamma)v^{2+\gamma}} \exp(-V_0/v), \quad (3)$$

где  $V_0$  и  $\gamma$  – параметры,  $\Gamma(x)$  – гамма-функция;  $f(v)$  нормирована на единицу. Величина  $f(v)$  имеет при  $v > V_0$  степенную асимптотику и потому удобна для описания широкого спектра распределения  $v$ .

В изученном диапазоне частот ( $\omega/2\pi \leq 1$  МГц) справедливо приближение  $|\ln \omega \tau_0| \gg \gg 1$ , так что подставляя (1) и (3) в (2) и выполняя интегрирование с логарифмической

по  $\omega\tau_0$  точностью, получим частотные зависимости компонент восприимчивости в виде

$$\chi' = C(-\ln \omega\tau_0)^{1-\gamma}, \quad \chi'' = 2C(1-\gamma)(-\ln \omega\tau_0)^{-\gamma}. \quad (4)$$

Сопоставление формул (4) с экспериментальными кривыми дает  $\gamma = 0,32$ ,  $\tau_0 = 2 \cdot 10^{-9}$  с. Результаты расчета при указанных значениях параметров изображены на рисунке сплошными линиями. Коэффициент  $C$  в (4) является функцией  $M_0$ ,  $K$  и  $V_0$ ; сравнивая его теоретическое значение с найденным из эксперимента  $C = 0,13$ , получим при  $K \approx M_s^2$  оценку  $V_0 \approx 10V$ . Таким образом, характерный размер перемагничивающейся области (кластера) оказывается на порядок больше объема отдельного зарна МЖ, что согласуется с предположением о кооперативной природе рассматриваемых явлений.

Авторы благодарят М.И.Шлиомиса за постоянный интерес к работе и подробные обсуждения полученных результатов.

### Литература

1. Tari A., Popplewell J., Charles S.W. J. Magn. and Magn. Mater. 1980, **15 -18**, 1125.
2. Марценюк М.А., Райхер Ю.Л., Шлиомис М.И. Труды Международной конференции по магнетизму ICM-73. М.: Наука, 1984, 3, 540.
3. Майоров М.М. Магнитная гидродинамика, 1979, № 2, 21.
4. Krueger D.A. IEEE Trans. Magn., 1980, MAG-16, 251.
5. Wohlfarth E.P. Phys. Lett., 1979, **70 A**, 489.
6. Aharoni A. Phys. Lett., 1983, **99 A**, 458.
7. Van Duyneveldt A.J., Mulder C.A.M. Physica, 1982, **114B**, 82.