

УДК 537.63  
PACS 75.50.Mm, 75.78.-n

## Аномальный рост динамической восприимчивости магнитной жидкости в сильных полях

**А. В. Лебедев**

Институт механики сплошных сред УрО РАН  
614013, Пермь, ул. Королева, 1  
email: lav@icmm.ru

Магнитная жидкость, содержащая значительную долю крупных частиц, путем центрифугирования была разделена на две фракции. Была измерена динамическая восприимчивость полученных образцов на основной гармонике в зависимости от концентрации частиц, частоты и амплитуды переменного магнитного поля. Обнаружено, что для тяжелой фракции модуль динамической восприимчивости увеличивается с ростом амплитуды поля на частотах, выше критической. В предельно концентрированном образце зафиксирован рост восприимчивости в 1.6 раза. Изменение восприимчивости существенно зависит от концентрации жидкости и практически не зависит от температуры. Небольшое влияние на рост восприимчивости оказывает кристаллизация несущей среды.

**Ключевые слова:** магнитная жидкость; динамическая восприимчивость; диаграмма Коул–Коула

*Поступила в редакцию 17.03.2018; принята к опубликованию 17.04.2018*

## Abnormal growth of dynamic susceptibility of magnetic fluid in strong fields

**A. V. Lebedev**

Institute of Continuous Media Mechanics UB RAS Korolev St. 1, 614013, Perm  
email: lav@icmm.ru

A magnetic fluid containing a large proportion of coarse particles was centrifuged into two fractions. The dynamic susceptibility of the obtained samples on the fundamental harmonic was measured as a function of particle concentration, frequency, and amplitude of the alternating magnetic field. It is found that for the heavy fraction, the modulus of dynamic susceptibility increases with increasing field amplitude at frequencies above the critical one. In an extremely concentrated sample, an increase in the susceptibility was recorded 1.6 times. The change in susceptibility depends essentially on the concentration of the liquid and is practically independent of temperature. A slight influence on the growth of susceptibility is due to the crystallization of the carrier medium.

**Keywords:** magnetic fluid; dynamic susceptibility; Cole–Cole diagram

*Received 17.03.2018; accepted 17.04.2018*

doi: 10.17072/1994-3598-2018-2-28-34

## 1. Введение

На сегодняшний день теория Ланжевена [1, 2] является отправной точкой при описании свойств магнитных жидкостей [3] – коллоидных растворов магнетиков. Согласно теории Ланжевена, с ростом напряженности поля магнитные моменты диспергированных частиц постепенно выстраиваются в одном направлении, все меньше и меньше отклоняясь на внешние воздействия. Магнитная восприимчивость системы частиц при этом неуклонно уменьшается. В случае переменных полей необходимо дополнительно учитывать конечное время дрейфа частиц или время релаксации [4]. Однако в целом картина остается прежней – увеличение амплитуды поля должно снижать восприимчивость магнитной жидкости [5, 6].

В предлагаемой работе приводятся результаты измерения динамической восприимчивости магнитной жидкости в зависимости от амплитуды переменного поля. Оказалось, что магнитная восприимчивость (отношение амплитуды основной гармоники намагниченности к амплитуде зондирующего поля) в некоторых случаях растет с амплитудой поля. Это явление наблюдается на образцах магнитной жидкости, содержащих крупные частицы, и для частот поля, превышающих критическую.

## 2. Приготовление образцов

В экспериментах использовались те же образцы магнитной жидкости, что и при исследовании частотных спектров релаксации в нашей недавней работе [7]. Дисперсную фазу (магнетит) получали методом химической конденсации по реакции, предложенной Элмором [8]. Следуя [9], желаемое распределение частиц по размерам получали вариацией условий синтеза (концентрации используемых растворов солей железа и аммиака, pH среды, температуры и скорости подачи растворов и интенсивности перемешивания). Полученный коллоидный раствор разбавлялся до гидродинамической концентрации частиц около 6 % и дважды обрабатывался на центрифуге, снабженной четырьмя нестандартными кюветами объемом 20 мл каждая. Частицы, выпавшие в осадок, удалялись. В результате центрифугирования были выделены легкая и тяжелая фракции с разной концентрацией и дисперсным составом частиц.

Дисперсный состав частиц определялся из магнитогранулометрического анализа статической кривой намагничивания по методике [10], позволяющей вполне корректно определить числовую плотность коллоидных частиц, средний магнитный момент и средний квадрат магнитного момента частиц. Дисперсный состав частиц описывался гамма-распределением в предположении, что форма

частиц не сильно отличается от сферической. Основные параметры (температура, при которой измерялась кривая намагничивания, начальная восприимчивость (восприимчивость в нулевом подмагничивающем поле)  $\chi_0$ , намагниченность насыщения  $M_\infty$ , числовая концентрация частиц  $n$ , средний магнитный момент  $\langle m \rangle$ , средний квадрат магнитного момента  $\langle m^2 \rangle$ , средний диаметр  $\langle x \rangle$  магнитного ядра частицы и относительная ширина распределения частиц по размерам  $\delta_x$ ) представлены в таблице. Последним приведен параметр диполь-дипольного взаимодействия  $\lambda$ , который рассчитывался по известным значениям ланжевенской восприимчивости и гидродинамической концентрации частиц:  $\chi_L = 8\lambda\phi$ . Ланжевенская восприимчивость  $\chi_L$  или восприимчивость ансамбля частиц в отсутствие взаимодействий рассчитывалась по модели модифицированного эффективного поля [11]. Гидродинамическая концентрация частиц с учетом стабилизирующих оболочек находилась из параметров распределения при условии длины молекулы олеиновой кислоты 2 нм.

### Основные параметры синтезированных образцов феррожидкости

Параметр	Исходная МЖ	Лёгкая фракция	Тяжёлая фракция
T, C	10	12.5	12.5
$\chi_0$	1.207	0.743	4.86
$M_\infty$ , kA/m	8.40	7.39	13.34
$n$ , $10^{22} \text{ m}^{-3}$	3.69	3.85	5.79
$\langle m \rangle$ , $10^{-19} \text{ A/m}^2$	2.28	1.92	2.31
$\langle m^2 \rangle$ , $10^{-37} \text{ A}^2/\text{m}^4$	2.32	1.50	4.16
$\langle x \rangle$ , nm	7.74	7.46	6.94
$\delta_x$	0.52	0.49	0.56
$\lambda$	1.66	1.17	3.14

## 3. Оборудование

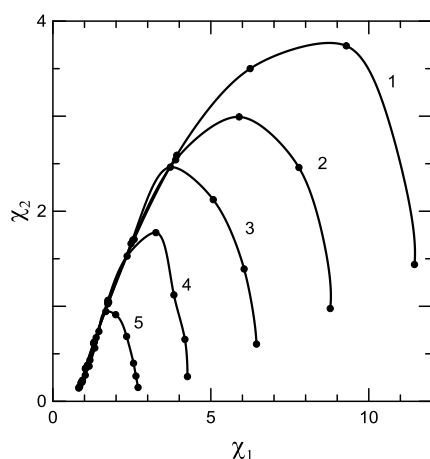
Измерения динамической восприимчивости выполнялись мостом взаимной индуктивности, снабжённым системой термостатирования. Конструкция моста, описанного в работе [12], была доработана для измерений восприимчивости в сильных полях. Измерительные и намагничивающие катушки были разделены системой термостатирования. Для повышения точности измерений регистрация сигналов в диапазоне частот 16 Гц–240 кГц производилась с помощью двухканального синхронного усилителя ElockIn 203 (Anfatec). Этот прибор одновременно измеряет амплитуды двух входных напряжений и сдвиг фаз между ними. Его использование в разы уменьшает погрешность измерений и более чем на порядок сокращает время измерений. На низких частотах 0.1 Гц–

8 Гц выходные сигналы моста измерялись с помощью 24-разрядного аналого-цифрового преобразователя (АЦП фирмы «Руднев–Шиляев»).

Для термостатирования моста использовался струйный термостат КРИО-ВТ-01, обеспечивающий рабочий диапазон температур от  $-30^{\circ}\text{C}$  до  $100^{\circ}\text{C}$ .

#### 4. Результаты измерений восприимчивости

Для эксперимента было подготовлено четыре образца тяжелой фракции различной концентрации. Первые три образца отличались по концентрации друг от друга примерно в два раза. Концентрация последнего образца была близка к предельной и отличалась примерно в полтора раза от предыдущей. Также были приготовлены два образца исходной жидкости и легкой фракции предельно высокой концентрации.

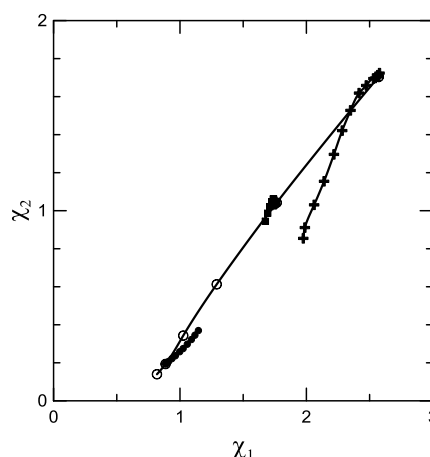


**Рис. 1.** Семейство диаграмм Коул–Коула для образца № 3 тяжелой фракции при амплитуде переменного магнитного поля: 1 – 0.18, 2 – 1, 3 – 2, 4 – 4, 5 – 8 кА/м

В первой серии опытов была измерена динамическая восприимчивость приготовленных образцов при температуре  $T = -2.5^{\circ}\text{C}$  для фиксированного ряда частот 4.11, 12.33, 37, 111, 333 Гц, 1, 3, 9, 27, 81 кГц в зависимости от амплитуды поля. Полученные результаты измерений наиболее наглядно могут быть отображены с помощью диаграмм Коул–Коула. В отличие от спектрального анализа этот метод не дает точных количественных результатов. Однако его использование позволяет сделать новые качественные выводы. Здесь просматривается некая аналогия с методом фазовых портретов в механике.

На рис. 1 представлены диаграммы Коул–Коула для третьего образца тяжелой фракции, построенных для фиксированного ряда амплитуд поля: 0.18, 1, 2, 4 и 8 кА/м. Образец № 3 был выбран в качестве примера потому, что он имеет высокую

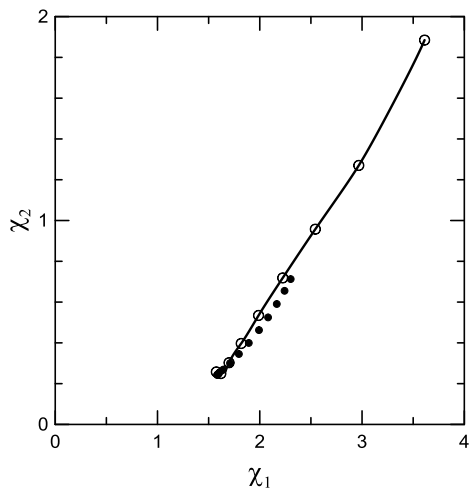
концентрацию, и его диаграммы близки к замкнутым полуокружностям. Полученные кривые представляют собой семейство плавных дуг, сливающихся в одну на высоких частотах. Качественно это может быть объяснено следующим образом: с ростом амплитуды поля крупные частицы перестают реагировать на изменение поля и исключаются из процесса намагничивания. Но имеется одна особенность диаграммы, интерпретация которой пока не ясна. Продолжения всех кривых пересекают ось абсцисс в одной, отличной от нуля, точке. Получается, что рост амплитуды поля никак не влияет на высокочастотный предел восприимчивости магнитной жидкости.



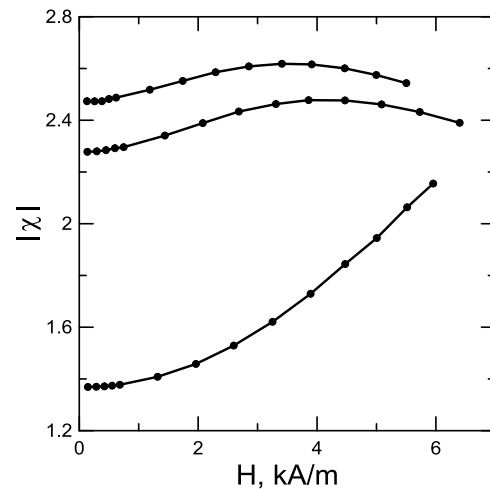
**Рис. 2.** Высокочастотная часть диаграммы Коул–Коула образца № 3 тяжелой фракции. Круги и плавная кривая – восприимчивость в поле амплитудой 0.18 кА/м. Кресты – изменение восприимчивости с ростом поля на частоте 333 Гц. Квадраты – восприимчивость на частоте 1 кГц. Точки – изменение восприимчивости на частоте 27 кГц

Еще более необычно выглядит сам процесс трансформации диаграмм Коул–Коула в области высоких частот. На рис. 2 представлена в увеличенном масштабе высокочастотная часть диаграммы образца №3. Круги и плавная кривая отображают восприимчивость в поле амплитудой 0.18 кА/м. Кресты соответствуют изменению восприимчивости с ростом поля на частоте 333 Гц. Квадраты – восприимчивость на частоте 1 кГц. Точки отображают изменение восприимчивости с ростом поля на частоте 27 кГц.

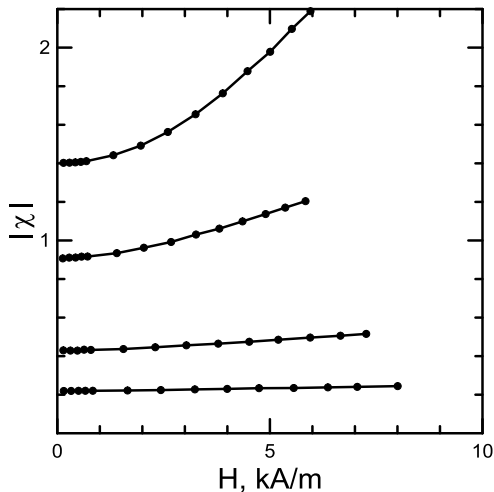
Как следует из рис. 2, существует частота переменного поля, на которой величина динамической восприимчивости на основной гармонике практически не зависит от амплитуды переменного поля. Выше этой частоты восприимчивость жидкости растет вместе с полем. Причем на диаграмме Коул–Коула соответствующие восприимчивости точки смещаются вдоль кривой восприимчивости, соответствующей полю малой амплитуды. По-



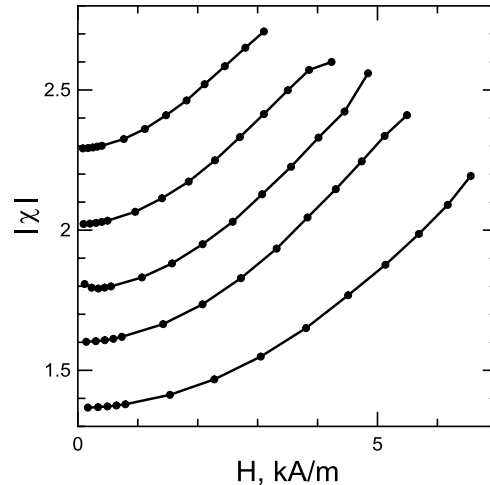
**Рис. 3.** Высокочастотная часть диаграммы Коул-Коула образца №4 тяжелой фракции. Круги и плавная кривая отображают восприимчивость в поле 0.18 кА/м. Точки – изменение динамической восприимчивости с ростом поля на частоте 27 кГц



**Рис. 4.** Сравнение амплитудных зависимостей динамической восприимчивости легкой фракции (верхняя кривая), исходной жидкости (средняя кривая) и тяжелой фракции (нижняя кривая). Частота измерений 27 кГц



**Рис. 5.** Сравнение амплитудных зависимостей модуля динамической восприимчивости образцов тяжелой фракции для разных концентраций. Частота измерений 27 кГц



**Рис. 6.** Зависимость модуля динамической восприимчивости концентрированного образца №4 тяжелой фракции от амплитуды поля при температурах (снизу вверх): -25, 0, 25, 50 и 75 °С. Частота измерений 27 кГц

следнее заключение может быть проиллюстрировано более наглядно с помощью рис. 3.

Рис. 3 отображает изменение с ростом поля компонент динамической восприимчивости самого концентрированного образца тяжелой фракции на частоте 27 кГц. Как видно из рисунка, компоненты восприимчивости в сильном поле слабо (порядка процентов) отличаются от кривой восприимчивости в слабом поле. При этом смещение вдоль диаграммы Коул–Коула весьма значительно: полтора-два раза по величине. Создается такое впечатление, что увеличение амплитуды поля компенсируется уменьшением его частоты.

Рост восприимчивости с полем наблюдался именно на образцах тяжелой фракции. То есть наличие в образце крупных частиц парадоксальным образом влияет на его высокочастотную восприимчивость. Хотя некоторые слабые намеки на рост восприимчивости наблюдались и на концентрированных образцах исходной жидкости и легкой фракции. На рис. 4 приводится сравнение зависимостей модулей динамической восприимчивости исходной жидкости и выделенных фракций на частоте 27 кГц. Как следует из рис. 4, увеличение доли крупных частиц радикальным образом меняет амплитудную зависимость восприимчивости жидкости на высоких частотах.

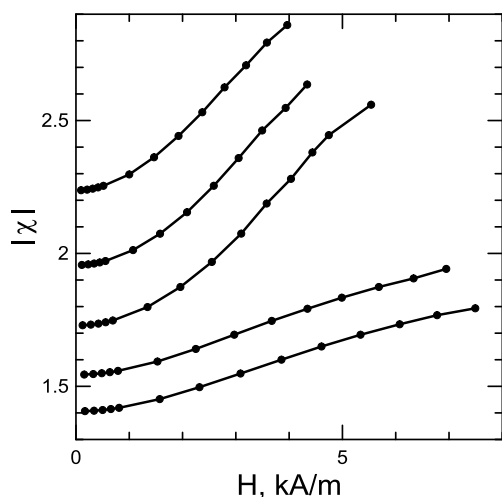
Рост динамической восприимчивости в разной степени наблюдался на всех образцах тяжелой фракции. У образца самой малой концентрации восприимчивость изменялась всего на десяток процентов. Сравнение амплитудных зависимостей восприимчивости образцов тяжелой фракции для различных концентраций представлено на рис. 5. Частота поля равна 27 кГц. Из рис. 5 следует, что существенное влияние на высокочастотную динамическую восприимчивость помимо дисперсного состава жидкости оказывает также и межчастичное взаимодействие. Причем это влияние является существенным. Если бы межчастичные взаимодействия отсутствовали, то относительное изменение модуля динамической восприимчивости с амплитудой поля не зависело бы от концентрации. Однако восприимчивость концентрированного образца растет гораздо сильнее, чем у образца малой концентрации даже с учетом разницы в величине модуля восприимчивости. Без учета влияния взаимодействия восприимчивость концентрированного образца в максимальном поле лишь немного бы превысила 1.5, тогда как она реально составляет 2.2. То есть в нашем случае межчастичные взаимодействия обеспечивают полуторный прирост динамической восприимчивости на высоких частотах.

Следующая серия экспериментов состояла в выяснении степени влияния температуры на рост восприимчивости с амплитудой поля. Были выполнены измерения полевой зависимости динамической восприимчивости самого концентрированного образца тяжелой фракции при пяти температурах  $-25$ ,  $0$ ,  $25$ ,  $50$  и  $75^\circ\text{C}$ . Полученные результаты представлены на рис. 6. Как следует из рисунка, рост модуля восприимчивости примерно

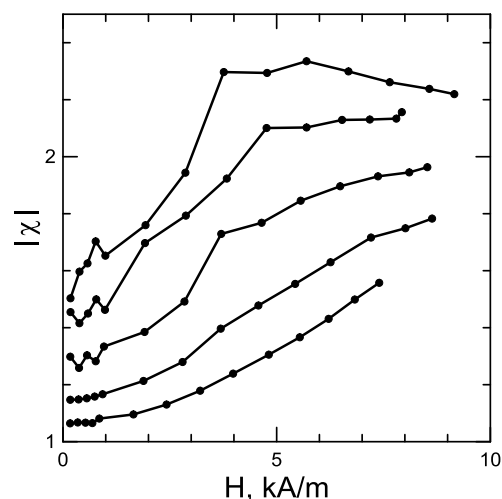
пропорционален восприимчивости в слабом поле. Следовательно, в данном случае влияние межчастичных взаимодействий не следует связывать с образованием и разрушением агрегатов частиц. Очевидно, влияние межчастичных взаимодействий должно реализовываться другим путем.

Для выяснения возможного сценария была выполнена серия дополнительных экспериментов. Был приготовлен образец тяжелой фракции предельной концентрации на основе гексадекана. Гексадекан – углеводород линейного строения с общей формулой  $\text{C}_{16}\text{H}_{34}$ , имеющей температуру плавления  $+18^\circ\text{C}$ . Как и в предыдущей серии экспериментов, были выполнены измерения полевой зависимости динамической восприимчивости на частоте 27 кГц при тех же значениях температуры:  $-25$ ,  $0$ ,  $25$ ,  $50$  и  $75^\circ\text{C}$ . Полученные результаты показаны на рис. 7. Из представленных на рисунке кривых две нижние, соответствующие температурам  $0$  и  $-25^\circ\text{C}$ , существенно отличаются от кривых, измеренных при положительных температурах. Очевидно, здесь сказывается влияние кристаллизации несущей среды (гексадекана), при которой частицы теряют вращательную подвижность. При положительных температурах, благодаря возможности вращения частиц, происходит выстраивание полей легких осей намагничивания. Это, по-видимому, и служит причиной более быстрого нарастания восприимчивости жидкости.

Образец на основе гексадекана имеет еще одну примечательную особенность: при кристаллизации гексадекана рост динамической восприимчивости наблюдается на гораздо более низких частотах – вплоть до 4 Гц. На рис. 8 представлено семейство полевых зависимостей динамической восприимчивости концентрированного образца на базе гекса-



**Рис. 7.** Зависимость модуля динамической восприимчивости концентрированного образца тяжелой фракции на основе гексадекана от амплитуды поля при температурах (снизу вверх):  $-25$ ,  $0$ ,  $25$ ,  $50$  и  $75^\circ\text{C}$ . Частота измерений 27 кГц



**Рис. 8.** Зависимости модуля динамической восприимчивости образца тяжелой фракции на базе гексадекана от амплитуды поля для частот (сверху вниз) 4.11, 37, 333 Гц, 3 и 27 кГц. Температура измерений  $-2.5^\circ\text{C}$

декана для частот 4.11, 37, 333 Гц, 3 и 27 кГц. К сожалению, измерить восприимчивость для более низких частот в данном случае оказалось невозможно из-за аппаратных ограничений.

## 5. Заключение

Путем центрифугирования образец магнитной жидкости с широким распределением частиц по размерам был разделен на две фракции - легкую и тяжелую.

Измерена зависимость динамической восприимчивости от амплитуды магнитного поля для концентрированных образцов исходной жидкости, легкой фракции и четырех образцов тяжелой фракции различной концентрации. Обнаружено, что восприимчивость тяжелой фракции растет с амплитудой внешнего поля. Для исходной жидкости и легкой фракции изменение восприимчивости слабо выражено. Нарастание восприимчивости с полем происходит на частотах, превышающих некоторую характерную.

При увеличении динамической восприимчивости с полем, точки на диаграмме Коул-Коула, отображающие ее компоненты, смещаются вдоль кривой, соответствующей восприимчивости в слабых полях.

С увеличением концентрации жидкости рост ее восприимчивости с амплитудой поля усиливается. Это может быть объяснено влиянием межчастичных взаимодействий.

С изменением температуры эффект роста восприимчивости качественно не меняется. Рост восприимчивости при различных температурах пропорционален значению восприимчивости в слабых полях.

Кристаллизация несущей среды ослабляет эффект роста восприимчивости. Это объясняется невозможностью ориентации легких осей намагничивания частиц.

## Список литературы

1. Langevin P. Sur la theory du magnetism // *Journal de Physique*. 1905. Vol. 4. P. 678.
2. Langevin P. Magnetism et theory des electrons // *Annales de Chimie et de Physique*. 1905. Vol. 5. P. 70.
3. Шлюмис М. И. Магнитные жидкости // *Успехи физических наук*. 1974. Т. 112. Вып. 3. С. 435-458.
4. Debye P. Zur Theorie der anomalen Dispersion im Gebiete der langwelligen elektrischen Strahlung // *Verhandlungen der Deutsche Physikalische Gesellschaft*. 1913. Vol. 15. P. 777.
5. Raikher Y. L., Stepanov V. I. Nonlinear dynamic susceptibilities and field-induced birefringence in magnetic particle assemblies. In: *Advances in*

*Chemical Physics Series*. New-York: Wiley, 2004. P. 419-588.

6. Raikher Y. L., Stepanov V. I. Physical aspects of magnetic hyperthermia: Low-frequency AC field absorption in a magnetic colloid // *Journal on Magnetism and Magnetic Materials*. 2014. Vol. 368. P. 421-427.
7. Lebedev A. V., Kantorovich S. S., Ivanov A. O., Arefyev I. M., Pshenichnikov A. F. Weakening of magnetic response experimentally observed for ferrofluids with strongly interacting magnetic nanoparticles // *Journal of Molecular Liquids*. Направлена в печать.
8. Elmore W. C. On preparation of the magnetite high dispersed // *Physical Review*. 1938. Vol. 54. P. 309-310.
9. Gribov N. M., Bibik E. E., Buzunov O. V., Naumov V. N. Physico-chemical regularities of obtaining highly dispersed magnetite by the method of chemical condensation // *Journal on Magnetism and Magnetic Materials*. 1990. Vol. 85. P. 7-10.
10. Пиеничников А. Ф., Лебедев А. В., Радионов А. В., Ефремов Д. В. Магнитная жидкость для работы в сильных градиентных полях // *Коллоидный журнал*. 2015. Т. 77. С. 207-213.
11. Иванов А. О., Кузнецова О. Б. Магнитогранулометрический анализ ферроколлоидов: модифицированная модель среднего поля второго порядка // *Коллоидный журнал*. 2006. Т. 68. С. 472-484.
12. Пиеничников А. Ф. Мост взаимной индуктивности для анализа магнитных жидкостей // *Приборы и техника эксперимента*. 2007. Т. 4. С. 88-93.

## References

1. Langevin P. Sur la theory du magnetism. *Journal de Physique*, 1905, vol. 4, p. 678.
2. Langevin P. Magnetism et theory des electrons. *Annales de Chimie et de Physique*, 1905, vol. 5. p. 70.
3. Shliomis M. I. Magnetic fluids. *Soviet Physics – Uspekhi*, 1974, vol. 17, pp. 153-169.
4. Debye P. Zur Theorie der anomalen Dispersion im Gebiete der langwelligen elektrischen Strahlung. *Verhandlungen der Deutsche Physikalische Gesellschaft*, 1913, vol. 15, p. 777.
5. Raikher Y. L., Stepanov V. I. Nonlinear dynamic susceptibilities and field-induced birefringence in magnetic particle assemblies. In: *Advances in Chemical Physics Series*. New-York: Wiley, 2004, pp. 419-588.
6. Raikher Y. L., Stepanov V. I. Physical aspects of magnetic hyperthermia: Low-frequency AC field absorption in a magnetic colloid. *Journal on Magnetism and Magnetic Materials*, 2014, vol. 368, pp. 421-427.

7. Lebedev A. V., Kantorovich S. S., Ivanov A. O., Arefyev I. M., Pshenichnikov A. F. Weakening of magnetic response experimentally observed for ferrofluids with strongly interacting magnetic nanoparticles. *Journal of Molecular Liquids* (to be published).
8. Elmore W. C. On preparation of the magnetite high dispersed. *Physical Review*, 1938, v. 54, pp. 309–310.
9. Griбанov N. M., Bibik E. E., Buzunov O. V., Naumov V. N. Physico-chemical regularities of obtaining highly dispersed magnetite by the method of chemical condensation. *Journal on Magnetism and Magnetic Materials*, 1990, vol. 85, pp. 7–10.
10. Pshenichnikov A. F., Lebedev A. V., Radionov A. V., Efremov D. V. A magnetic fluid for operation in strong gradient fields. *Colloid Journal*, 2015, vol. 77, no. 2, pp. 196–201. DOI: 10.1134/S1061933X15020155.
11. Ivanov A. O., Kuznetsova O. B., Magnetogranulometric analysis of ferrocolloids: second-order modified mean field theory. *Colloid Journal*, 2006, vol. 68, pp. 430–440. DOI: 10.1134/S1061933X06040065.
12. Pshenichnikov A. F. A mutual-inductance bridge for analysis of magnetic fluids. *Instruments and Experimental Techniques*, 2007, vol. 50, no 4, pp. 509–514. DOI: 10.1134/S0020441207040136.

**Просьба ссылаться на эту статью в русскоязычных источниках следующим образом:**

Лебедев А. В. Аномальный рост динамической восприимчивости магнитной жидкости в сильных полях // Вестник Пермского университета. Физика. 2018. № 2 (40). С. 28–34. doi: 10.17072/1994-3598-2018-2-28-34

**Please cite this article in English as:**

Lebedev A. V. Abnormal growth of dynamic susceptibility of magnetic fluid in strong fields. *Bulletin of Perm University. Physics*, 2018, no. 2 (40), pp. 28–34. doi: 10.17072/1994-3598-2018-2-28-34