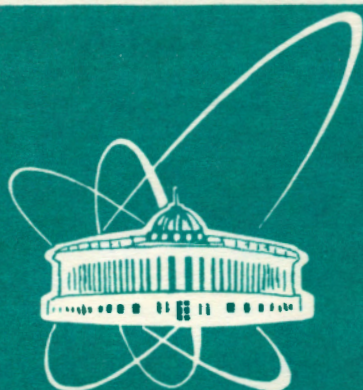


93-456



ОБЪЕДИНЕННЫЙ
ИНСТИТУТ
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ
ДУБНА

P17-93-456

В.М.Дубовик, М.А.Марценюк*, Н.М.Марценюк*

ТЕОРИЯ КЮРИ-ВЕЙССОВСКОГО ПОВЕДЕНИЯ
АГРЕГИРОВАННОЙ МАГНИТНОЙ СУСПЕНЗИИ

Направлено в «Journal of Magnetism and Magnetic Materials»

*Пермский государственный университет

1993

1. Введение

Простейшая модель, объясняющая магнитные свойства феррожидкостей, исходит из того, что магнитные частицы не взаимодействуют между собой, и поэтому в слабых полях магнитная восприимчивость подчиняется закону Кюри:

$$\chi = \mu_0^2 N \frac{1}{3kT}, \quad (1)$$

где N - плотность числа частиц, μ_0 - магнитный момент одной частицы, k - постоянная Больцмана, T - температура. Однако, как показали многочисленные эксперименты (см. [1-5] и указанную там литературу), начальная восприимчивость изменяется с температурой не по закону Кюри (1), а приближенно описывается законом Кюри-Вейсса

$$\chi = \mu_0^2 N \frac{1}{3k(T - T_0)}, \quad (2)$$

где T_0 - некоторая постоянная величина (ее называют температурой упорядочения), зависящая от взаимодействия между частицами. В некоторых экспериментах [1] наблюдаемое значение T_0 было положительным, в других [2-3] - отрицательным. Авторы работ [2-3] предполагают, что отрицательное значение T_0 связано с образованием агрегатов магнитных частиц, имеющих кольцевую магнитную структуру, подобную антиферромагнитной. Однако, вообще говоря, закон Кюри-Вейсса является не строгим, и наблюдалось также нелинейное поведение обратной восприимчивости в зависимости от температуры [3].

Очевидно, что наблюдаемое отклонение восприимчивости от закона Кюри связано со взаимодействием между частицами [6]. Однако конкретные механизмы его проявления, ведущие к этому отклонению, остаются невыясненными. Одна из первых попыток теоретического объяснения [7] основывается на предположении, что в магнитной жидкости в отсутствие магнитного поля формируется антиферромагнитная структура, состоящая из пространственно коррелированных линейных цепочек магнитных частиц, причем направления намагничивания в соседних цепочках антипараллельны. Однако это предположение, а также предположение о существовании в магнитной жидкости структур типа спинового стекла не подтверждаются экспериментально. Маловероятно также

и существование других корреляционных механизмов с большим радиусом корреляции (с "дальним порядком"), которые лежат в основе так называемой среднесферической модели [8]. Представляется, что наиболее вероятным механизмом кюри-вейссовского поведения магнитной жидкости является образование агрегатов магнитных частиц, по предположению, сделанному в работе [2].

В данной работе детально разрабатывается именно агрегативный механизм проявления взаимодействия между частицами. Суть его заключается в следующем. Как показано с помощью наблюдений малоуглового рассеяния нейтронов [9-10], даже в устойчивых магнитных жидкостях всегда присутствуют агрегаты из небольшого числа (до 10) магнитных частиц. При этом в зависимости от формы агрегата, а также от числа частиц, из которых он состоит, магнитные диполи частиц образуют некоторую упорядоченную магнитную структуру ферро-, антиферро- или ферримагнитного типа. При повышении температуры происходит разрушение этой структуры, что и проявляется как кюри-вейссовское поведение суспензии. Как мы увидим, такая модель позволяет объяснить данные экспериментов [1-5].

Как показывают расчеты, магнитная структура агрегатов, обусловленная диполь-дипольным взаимодействием составляющих его частиц, во многих случаях имеет вихревую составляющую, которая описывается тороидным моментом. Поэтому дополнительную информацию об образовании агрегатов можно получить, измеряя тороидную восприимчивость агрегированной суспензии [11]. В данной работе рассматривается модель "жестких" агрегатов (то есть неизменных по форме), состоящих из суперпарамагнитных частиц. Предполагается, что магнитная структура диполей внутри агрегата возникает за счет их взаимодействия между собой при достаточном понижении температуры. При этом все рассмотрение ведется для области температур выше точки перехода в упорядоченное состояние, так как обычно при более низких температурах суспензия замерзает. Модель предсказывает более общий, чем простой кюри-вейссовский, закон изменения восприимчивости с температурой. Это связано с тем, что агрегаты в суспензии совершают хаотическое броуновское движение и поэтому, например, однородное поле может способствовать образованию не только той структуры, которая образуется при переходе через критическую температуру, но также и других структур, которые также "размягчаются" вблизи точки перехода.

План работы следующий. Во втором разделе вводится модель жестких агрегатов. В третьем - рассматривается приближение среднего поля применительно к обсуждаемой задаче. По сравнению с обычным вариантом этого приближения здесь дополнительно вводится усреднение по ориентациям агрегатов. В четвертом разделе рассмотрены типы магнитного упорядочения диполей возникающего при переходе через точку Кюри. Приведены результаты численного расчета некоторых структур. В пятом разделе получено общее выражение для начальных восприимчивостей суспензии (магнитной, тороидной и "перекрестной") для жесткого агрегата произвольной формы и показано, что температурная зависимость восприимчивостей имеет более общую форму, чем в простом законе Кюри-Вейсса. В шестом - эти восприимчивости вычислены для случая

наиболее часто встречающихся - двухчастичных агрегатов. Показано, что основной вклад этих агрегатов в магнитную восприимчивость имеет "ферромагнитную" природу, что соответствует типу упорядоченного состояния этих агрегатов. В этом же разделе приведены результаты численного расчета зависимости восприимчивостей от температуры для некоторых форм агрегатов, включая плотно упакованные.

2. Модель жестких агрегатов

Между частицами суспензии существует два основных вида взаимодействия - магнитное диполь-дипольное и конфигурационное. Под последним мы имеем в виду взаимодействие немагнитной природы, приводящее к отталкиванию частиц. Оно возникает благодаря наличию на поверхности частиц оболочки поверхностно активного вещества, служащей для предотвращения коагуляции суспензии. Зависимость энергии взаимодействия от расстояния между частицами r качественно имеет вид, представленный на рис. 1. Минимум A соответствует магнитному притяжению между частицами. Потенциальный барьер C - описывает отталкивание оболочек поверхностно активного вещества и, наконец, второй минимум - B - есть следствие сильной связи частиц, которым удается проникнуть через высокий потенциальный барьер C . Качественно можно представлять себе, что в этом случае частицы имеют общую оболочку ПАВ. Дальнейшему сближению частиц препятствует их "твердая сердцевина".

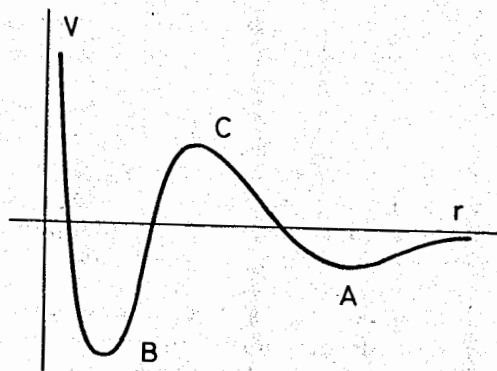


Рис.1. Зависимость энергии взаимодействия между частицами магнитной суспензии от расстояния.

В соответствии с характером рассмотренного взаимодействия частиц, в суспензии могут существовать агрегаты двух типов: 1) "магнитные" агрегаты, которым соответствует минимум потенциала A на рис.1 и 2) "конфигурационные", возникающие при достаточном сближении частиц. В первом случае фор-

мообразующей силой служит магнитное притяжение между частицами. Процесс агрегирования в этом случае является обратимым, форма и размеры агрегатов могут изменяться под влиянием внешнего поля и теплового движения. Численный расчет и макро моделирование, проведенные в работе [12], показывают, что эти агрегаты в целом имеют вытянутую форму, что соответствует анизотропному характеру диполь-дипольного взаимодействия. Конфигурационные агрегаты, наоборот, имеют плотно упакованную пространственную структуру, так как конфигурационные силы в первом приближении можно считать центрально симметричными. При этом форму агрегатов в широком интервале температур можно считать независимой от внешних воздействий. Поэтому далее мы будем считать их "жесткими".

При исследовании магнитной структуры агрегатов большое значение имеет характер связи между магнитным моментом отдельной частицы \vec{m} и ориентацией самой частицы, которая задается некоторым вектором \vec{n} , жестко связанным с частицей (ось анизотропии). Тип этой связи зависит от величины энергии анизотропии KV (здесь K - константа анизотропии, V - объем частицы) по сравнению с энергией теплового движения kT . Если $KV \gg kT$, то связь между векторами \vec{m} и \vec{n} можно считать жесткой (модель "замороженных" диполей). Другой предельный случай возникает, если выполняется обратное неравенство: $KV \ll kT$. Дипольный момент \vec{m} слабо связан с ориентацией вектора \vec{n} , и частица считается суперпарамагнитной. Таким образом, в зависимости от типа формообразующих сил и характера связи между векторами \vec{m} и \vec{n} возможны четыре предельных типа агрегатов, которые указаны в таблице 1.

Таблица 1. Типы агрегатов магнитных частиц

Формообразующие силы	Магнитные свойства отдельной частицы	
	Замороженный диполь	Суперпарамагнитная
Конфигурационные	I	II
Магнитные	III	IV

Можно считать, что агрегаты I типа (замороженные диполи, конфигурационный тип пространственной связи) вообще не изменяют своих свойств под влиянием внешних воздействий (магнитных и тепловых). Агрегаты II типа имеют жесткую форму, но их магнитные свойства могут меняться в зависимости от поля и температуры, что определяется безразмерным параметром λ , равным отношению энергии магнитного взаимодействия μ_0^2/a^3 к тепловой энергии (a -

среднее расстояние между частицами)

$$\lambda = \frac{\mu_0^2}{a^3 kT}. \quad (3)$$

При $\lambda \gg 1$ за счет большой величины магнитного взаимодействия агрегат имеет некоторую магнитную структуру [13]. При увеличении температуры, когда λ достигает некоторого критического значения $\lambda_c \sim 1$, агрегат становится суперпарамагнитным, его магнитная структура исчезает. Такое изменение магнитных свойств агрегатов макроскопически приводит к появлению особенностей в зависимости восприимчивости от температуры. Если агрегаты относятся к типу III или IV, то внешние воздействия могут изменить не только их магнитные состояния, но и форму. В этом случае также должны наблюдаться аномалии восприимчивости. В данной работе мы ограничимся рассмотрением только агрегатов II типа. Как будет ясно из дальнейшего, в таких агрегатах возможны фазовые переходы как по ферромагнитному "сценарию", так и по "антиферромагнитному" или по некоторому более сложному их сочетанию.

3. Приближение среднего поля

Будем рассматривать жесткий агрегат типа II, состоящий из n частиц. Пусть \vec{r}_a - радиусы-векторы, а \vec{r}_a - магнитные моменты частиц (здесь индекс a пробегает значения $1, 2, \dots, n$). Радиусы-векторы, направленные от частицы a к частице b будем обозначать символами

$$\vec{r}_{ab} = \vec{r}_a - \vec{r}_b. \quad (4)$$

В жестком агрегате взаимные расстояния между частицами считаются фиксированными. Число частиц n мы будем считать не слишком большим ($n \leq 10$), как это обычно имеет место в устойчивых суспензиях. Поэтому агрегат можно считать броуновской частицей. В соответствии с принятой моделью агрегат имеет следующие степени свободы: 1) он может как целое совершать поступательные и вращательные движения и 2) векторы \vec{m}_a , описывающие магнитные состояния агрегата, могут изменять свою ориентацию, оставаясь при этом постоянными по величине. В дальнейшем мы не будем рассматривать поступательное движение, так как оно не существенно для рассматриваемой здесь задачи об изменении магнитного состояния.

Функция распределения по выбранным степеням свободы определяется энергией агрегата, которая включает диполь-дипольное взаимодействие частиц между собой

$$U = - \sum_a \sum_{a < b} m_{ai} A_{ik}(\vec{r}_{ab}) m_{bk}, \quad (5)$$

где обозначено

$$A_{ik}(\vec{r}) = \frac{(3x_i x_k - \delta_{ik} r^2)}{r^5}, \quad (6)$$

а также взаимодействие с внешним полем, которое мы запишем в виде

$$U_f = - \sum_a (\vec{m}_a \vec{H}_a). \quad (7)$$

Здесь предполагается, что агрегат взаимодействует, вообще говоря, с неоднородным полем $\vec{H}(\vec{r})$ и $\vec{H}_a = \vec{H}(\vec{r}_a)$ - поле, действующее на a -ю частицу. В большинстве случаев поле считают слабо неоднородным, и поэтому его можно разложить в ряд вблизи начала координат, выбранного внутри агрегата

$$\vec{H}(\vec{r}) \approx \vec{H}(0) + \frac{1}{2} [\vec{r} [\nabla \vec{H}]_0] + \vec{r} \cdot \{ \nabla \vec{H} \}_0 \dots, \quad (8)$$

где градиенты поля берутся в точке $\vec{r} = 0$, что отмечено индексом 0. Квадратные скобки, как обычно, обозначают векторное произведение, а фигурные - тензорное произведение векторов, которое определено как

$$\{ \vec{a} \vec{b} \}_{ik} = \frac{1}{2} (a_i b_k + a_k b_i - \frac{2}{3} (\vec{a} \vec{b}) \delta_{ik}). \quad (9)$$

С учетом разложения (8) энергию взаимодействия агрегата с полем (7) можно записать в виде

$$U_f = - (\vec{M} \vec{H}_0) - (\vec{T} \vec{G}) - (Q : F), \quad (10)$$

где введены мультипольные моменты агрегата - магнитный \vec{M} , гориодный \vec{T} и квадрупольный Q :

$$\vec{M} = \sum_a \vec{m}_a; \quad \vec{T} = \frac{1}{2} \sum_a [\vec{r}_a \vec{m}_a]; \quad Q = \sum_a \{ \vec{r}_a \vec{m}_a \}, \quad (11)$$

а также введены обозначения для поля и его градиентов:

$$\vec{H}_0 = \vec{H}(0); \quad \vec{G} = [\nabla \vec{H}]_0; \quad F = \{ \nabla \vec{H} \}_0. \quad (12)$$

В дальнейшем мы не будем здесь рассматривать квадрупольное взаимодействие.

Используя выражения (5), (7), функцию распределения можно записать в виде

$$dW(\vec{m}_1, \vec{m}_2, \dots, \vec{m}_n, \Omega) = \exp\{-\beta(U + U_f)\} d\vec{m}_1 \dots d\vec{m}_n d\Omega, \quad (13)$$

где $\beta = 1/kT$ - обратная температура в энергетических единицах. Символом Ω обозначены углы ориентации агрегата. Термодинамические свойства системы определяются статистическим интегралом

$$Z = \int dW = \int \exp\{-\beta(U + U_f)\} d\vec{m}_1 \dots d\vec{m}_n d\Omega. \quad (14)$$

Методы вычисления интегралов такого типа неоднократно обсуждались в литературе [14-16]. В работе Сано и Дои [14] используется приближенный метод, основанный на формуле Гаусса. Этот метод эквивалентен методу среднего поля. В работах [15-16] значение интеграла получено в виде бесконечного разложения в ряд по функциям Бесселя. Далее мы будем использовать приближенный метод

среднего поля [17], который позволяет наиболее простым и наглядным способом получить интересующие нас результаты. Кроме того, этот метод легко реализуется численно (ср. [11-13]). В нашем случае метод среднего поля сводится к следующей последовательности шагов. Представим магнитный момент каждой частицы в виде суммы некоторого среднего значения $\vec{\mu}_a$ и флуктуации $\vec{\delta}_a$:

$$\vec{m}_a = \vec{\mu}_a + \vec{\delta}_a. \quad (15)$$

Среднее значение является неизвестной пока функцией температуры β , магнитного поля H и ориентации агрегата Ω

$$\vec{\mu}_a = \langle \vec{m}_a \rangle = \vec{\mu}_a(\beta, \vec{H}, \Omega). \quad (16)$$

Подставляя \vec{m}_a в виде (15) в выражение для энергии взаимодействия U (5), мы можем представить ее в виде суммы трех слагаемых, содержащих флуктуации $\vec{\delta}_a$ соответственно в нулевой, первой и второй степенях. Пренебрегая членом, содержащим квадраты флуктуаций (в этом и состоит основное предположение метода среднего поля) и выражая с помощью (15) $\vec{\delta}_a$ через $\vec{\mu}_a$ и \vec{m}_a , энергию U можно представить в виде

$$U = U_0 - \sum_a \vec{m}_a \cdot \sum_{b \neq a} (A_{ab} \cdot \vec{\mu}_b), \quad (17)$$

где обозначено

$$U_0 = \sum_a \sum_{b > a} (\vec{\mu}_a \cdot A_{ab} \cdot \vec{\mu}_b). \quad (18)$$

Таким образом, в этом приближении мы учли только среднее поле $\sum_{b \neq a} (A_{ab} \cdot \vec{\mu}_b)$, действующее на каждую частицу со стороны всех окружающих ее других частиц.

Подставляя выражение для энергии (17) в статистический интеграл (14), можно видеть, что он преобразуется к виду

$$Z = \int d\Omega \exp\{-\beta U_0\} \prod_a \int \exp\{\beta(\vec{m}_a \vec{h}_a)\} d\vec{m}_a, \quad (19)$$

где введено обозначение для эффективного поля

$$\vec{h}_a = \vec{H}_a + \sum_{b \neq a} (A_{ab} \cdot \vec{\mu}_b). \quad (20)$$

Интегралы по \vec{m}_a в правой части соотношения (19) (далее будем обозначать их символами Z_a) легко вычисляются:

$$Z_a = \int \exp\{\beta(\vec{m}_a \vec{h}_a)\} d\vec{m}_a = 4\pi \frac{sh(\xi_a)}{\xi_a}, \quad (21)$$

здесь символом ξ_a обозначено безразмерное поле

$$\xi_a = \beta \mu_0 h_a. \quad (22)$$

При вычислении интеграла Z_a учитывалось, что момент \vec{m}_a имеет фиксированную длину μ_0 , и поэтому интегрирование проводилось только по углам ориентации вектора \vec{m}_a . Подставляя (21) в (19), получим

$$Z = \int d\Omega \exp\{-\beta U_0\} \prod_a Z_a. \quad (23)$$

Для окончательного вычисления статистического интеграла Z необходимо провести интегрирование по углам ориентации агрегата Ω , для чего необходимо знать функцию $\vec{\mu}_a$ (16). Эту функцию можно найти из условия минимума свободной энергии Φ , которая обычным образом выражается через интеграл Z :

$$\Phi = -\frac{1}{\beta} \ln Z. \quad (24)$$

Неизвестные функции $\vec{\mu}_a$ находятся из условия равенства нулю вариационной производной

$$\frac{\delta \Phi}{\delta \vec{\mu}_a(\Omega)} = 0. \quad (25)$$

Подставляя Z в виде (23) в соотношение (24) и вычисля производную, после простых преобразований получим

$$\vec{\mu}_a = \frac{\mu_0 \mathcal{L}(\xi_a) \vec{h}_a}{h_a}, \quad (26)$$

где введена функция Ланжевена

$$\mathcal{L}(\xi) = cth(\xi) - \frac{1}{\xi}. \quad (27)$$

Полученное уравнение (26) имеет простой физический смысл: ориентация магнитного момента каждой частицы агрегата определяется суммарным полем \vec{h}_a (20), включающим внешнее поле и поля окружающих частиц.

Решая нелинейное уравнение (26) относительно переменных $\vec{\mu}_a$, мы найдем их в виде функций (16). Подставляя затем $\vec{\mu}_a$ в (23) и интегрируя по углам ориентации агрегата Ω , мы получим окончательное выражение для свободной энергии как функции внешнего магнитного поля и температуры. Для вычисления восприимчивости следует найти вторые производные свободной энергии по полю (\vec{H}_0 или \vec{G}). Эти вычисления легче всего провести в два этапа. Сначала, вычисляя первые производные, мы получим средние значения мультипольных моментов

$$\langle \vec{M} \rangle = -\frac{\partial \Phi}{\partial \vec{H}_0}; \quad \langle \vec{T} \rangle = -\frac{\partial \Phi}{\partial \vec{G}}. \quad (28)$$

Подынтегральное выражение в статистическом интеграле (23) зависит от поля двояким образом - явно, через величину \vec{H}_a и неявно - через функцию $\vec{\mu}_a$. Так как согласно уравнению (25) производная от Φ по $\vec{\mu}_a$ равна нулю, то при дифференцировании следует учитывать только явную зависимость от поля. После

вычисления производных (28) средние значения моментов $\langle \vec{M} \rangle$ и $\langle \vec{T} \rangle$ можно представить в виде

$$\langle \vec{M} \rangle = \frac{1}{Z} \int d\Omega \exp\{-\beta U_0\} \vec{M} \prod_a Z_a d\Omega;$$

$$\langle \vec{T} \rangle = \frac{1}{Z} \int d\Omega \exp\{-\beta U_0\} \vec{T} \prod_a Z_a d\Omega, \quad (29)$$

где моменты \vec{M} и \vec{T} определяются выражениями (11) с заменой \vec{m}_a на $\vec{\mu}_a$. Последующее дифференцирование средних значений моментов по полю дает возможность найти восприимчивости – магнитную χ^M , тороидную χ^T и перекрестную χ^{TM} :

$$\chi_{ik}^M = N \frac{\partial \langle M_i \rangle}{\partial H_{0k}}; \quad \chi_{ik}^T = N \frac{\partial \langle T_i \rangle}{\partial G_k}; \quad \chi_{ik}^{TM} = N \frac{\partial \langle M_i \rangle}{\partial G_k} = N \frac{\partial \langle T_k \rangle}{\partial H_{0i}} \quad (30)$$

где N – плотность числа агрегатов данного сорта.

Зависимость восприимчивостей суспензии от поля вдали от температуры перехода агрегата в упорядоченное состояние T_0 рассматривалась в работе [11]. В этой области ($T < T_0$) моменты частиц слабо зависят от температуры, что дает возможность рассматривать агрегат как структуру с почти замороженными диполями. В данной работе мы интересуемся восприимчивостями вблизи температуры перехода $T \sim T_0$. В сильных магнитных полях, таких, что энергия частицы в поле значительно превышает энергию взаимодействия между частицами внутри агрегата, агрегат можно считать суперпарамагнитным. Поэтому основной интерес представляет "начальная" восприимчивость суспензии, то есть восприимчивость в слабых полях, которая наиболее чувствительна к магнитной структуре агрегатов.

4. Типы магнитного упорядочения агрегатов

Прежде чем переходить к вычислению восприимчивостей, рассмотрим решение нелинейного уравнения (26) в отсутствие внешнего поля. Это позволит нам установить типы магнитных структур, образуемых дипольными моментами частиц внутри агрегата в области температур ниже точки перехода (в упорядоченной "фазе"). В предельном случае $T \rightarrow 0$, что соответствует $\xi \rightarrow \infty$, функцию Ланжевена $\mathcal{L}(\xi)$ в уравнении (26) можно считать равной единице. Поэтому уравнение (26) приводится к виду

$$\vec{\mu}_a = \frac{\mu_0 \vec{h}_a}{h_a}, \quad (31)$$

где единичный вектор \vec{h}_a/h_a , согласно выражению (20) (в котором следует положить $\vec{H}_a = 0$), ориентирован в направлении суммарного поля, действующего на частицу со стороны окружающих ее соседей. Уравнение (31) может быть решено

численно. Процедура решения основана на использовании методов микромагнетизма, как это подробно описано авторами работы [13] и где также приведены результаты решения уравнения (31) для большого числа различных по форме агрегатов. Для рассматриваемых здесь жестких агрегатов с сильным преобладанием конфигурационного взаимодействия и в предположении, что все частицы одинаковы по размеру и имеют сферическую форму, наиболее вероятные пространственные структуры (то есть структуры с наибольшей плотностью упаковки и максимальной энергией связи), образующиеся путем последовательного присоединения одиночных частиц таковы [18]:

- правильный треугольник (3 частицы);
- тетраэдр (4 частицы);
- тригональная бипирамида (5 частиц);
- бипирамида с тетраэдром ("шапкой") на одной из граней (6 частиц);
- седьмая частица может образовать "шапку" на грани предыдущего агрегата, но эта форма является неустойчивой, и она замыкается в пентагональную бипирамиду (7 частиц).

Далее агрегаты образуются посредством присоединения "шапочных" частиц на гранях семичастичного агрегата. Магнитная структура наиболее плотных агрегатов с числом частиц $n \leq 5$ показана на рис.2. Подробный анализ магнитной структуры этих и других возможных агрегатов позволил установить, что она наиболее полно описывается магнитным и тороидным моментами \vec{M} и \vec{T} . Значения этих моментов указаны в подписи к рис.2 для изображенных там агрегатов.

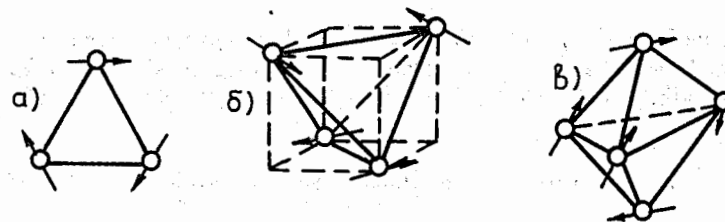


Рис.2. Магнитная структура плотно упакованных агрегатов для случая трех (а), четырех (б) и пяти (в) частиц. Суммарные магнитные моменты M трех- и четырехчастичных агрегатов равны нулю, а для пятичастичного агрегата $M = 1.59\mu_0$. Тороидные моменты равны соответственно 1,73; 2,0 и 2,68 (в единицах $a\mu_0$).

Изменение магнитной структуры с температурой может быть найдено путем численного решения уравнения (26). Процедура численного решения аналогична описанной в [13]. В большинстве случаев наблюдается плавная зависимость параметров во всей области температур, кроме точки T_0 , где происходит спонтанное возникновение структуры. На рис.3 изображены зависимости магнитного и тороидного моментов агрегата от температуры для агрегатов в форме правильного треугольника, тетраэдра, тригональной бипирамиды и правильной

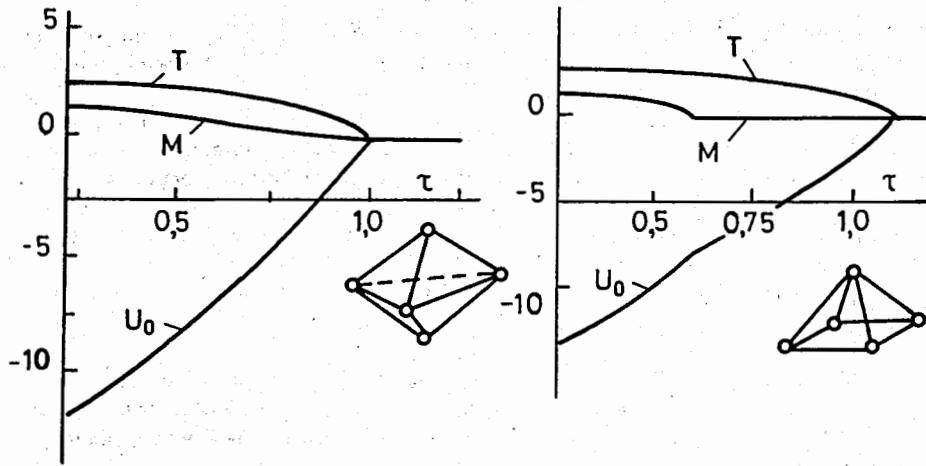


Рис.3. Зависимость магнитного M/μ_0 и торoidalного $T/a\mu_0$ моментов агрегатов от температуры (форма агрегатов показана на рис. справа вверху). По оси абсцисс отложена температура в безразмерных единицах ($1/\lambda$)

четырёхгранной пирамиды. Как можно видеть из этого рисунка, для последнего агрегата существует две температуры перехода в упорядоченное состояние. Более подробно детали перехода будут обсуждаться в следующей публикации.

5. Восприимчивость выше точки перехода

Вблизи точки перехода в области $T > T_0$ мы можем считать средние значения магнитных моментов частиц $\vec{\mu}_a$ малыми величинами, пропорциональными приложенному слабому магнитному полю. Разлагая функцию Ланжевена $\mathcal{L}(\xi)$ (28) в уравнении (26) в степенной ряд по малому ξ : $\mathcal{L}(\xi) \approx \xi/3$, мы можем преобразовать уравнение (26) в систему линейных уравнений относительно неизвестных $\vec{\mu}_a$:

$$\vec{\mu}_a = \frac{1}{3}\beta\mu_0^2\vec{h}_a = \frac{1}{3}\beta\mu_0^2(\vec{H}_a + \sum_{b \neq a} A_{ab} \cdot \vec{\mu}_b). \quad (32)$$

В дальнейшем удобно перейти к безразмерным переменным, считая единицами измерения для момента $\vec{\mu}_a$, магнитного поля \vec{H}_a , расстояния \vec{r} и температуры T соответственно

$$[\mu_a] = \mu_0; \quad [H_a] = \frac{1}{\beta\mu_0}; \quad [r] = a; \quad [T] = \frac{ka^3}{\mu_0^2}. \quad (33)$$

Для безразмерных переменных мы будем использовать прежние обозначения. В новых переменных уравнение (32) имеет вид

$$3\vec{\mu}_a - \lambda \sum_{b \neq a} A_{ab} \cdot \vec{\mu}_b = \vec{H}_a, \quad (34)$$

где λ – параметр взаимодействия, определенный соотношением (3).

Неизвестные величины μ_{ai} удобно представить в виде однострочковой матрицы, имеющей $3n$ элементов, которую мы обозначим символом $|\Psi\rangle$. Кроме этого, мы введем $3n$ базисных векторов $|ai\rangle$, имеющих всего одну компоненту, равную единице, которая находится в строке с номером $3(a-1) + i$ матричного столбца. С помощью базисных векторов $|ai\rangle$ вектор магнитного состояния агрегата $|\Psi\rangle = \text{col}(\mu_{1z}, \mu_{1y}, \dots, \mu_{ny}, \mu_{nz})$ может быть записан в виде

$$|\Psi\rangle = \sum_{ai} \mu_{ai} |ai\rangle. \quad (35)$$

Аналогично компоненты поля H_{ai} мы можем рассматривать как компоненты некоторого $3n$ -мерного вектора поля $|H\rangle$, причем разложение этого вектора по тому же базису $|ai\rangle$ имеет вид

$$|H\rangle = \sum_{ai} H_{ai} |ai\rangle. \quad (36)$$

Коэффициенты уравнения (34) $A_{ab} = A_{ik}(\vec{r}_{ab})$ мы можем рассматривать как квадратную матрицу $\hat{\mathcal{H}}$ размером $3n \times 3n$ $\mathcal{H}_{aibk} = A_{ik}(\vec{r}_{ab})$. С помощью введенных обозначений уравнение (34) запишется в виде

$$(3 - \lambda\hat{\mathcal{H}})|\Psi\rangle = |H\rangle \quad (37)$$

Матрица $\hat{\mathcal{H}}$, уже по способу ее определения, является действительной и симметричной. Поэтому она имеет действительные собственные значения и ортогональные собственные состояния, которые мы можем определить, решая задачу на собственные значения

$$\hat{\mathcal{H}}|\Psi_m\rangle = E_m|\Psi_m\rangle, \quad (38)$$

причем состояния $|\Psi_m\rangle$ образуют ортонормированный базис

$$\langle \Psi_m | \Psi_{m'} \rangle = \delta_{mm'}. \quad (39)$$

Вектор состояния $|\Psi\rangle$ может быть разложен по этому базису:

$$|\Psi\rangle = \sum_m C_m |\Psi_m\rangle, \quad (40)$$

где коэффициенты разложения связаны с исходными параметрами μ_{ai} некоторым соотношением. Чтобы найти эту связь, заметим, что в силу ортонормированности базиса $|ai\rangle$ из соотношения (35) мы можем выразить μ_{ai} через проекции вектора состояния на базисные векторы:

$$\mu_{ai} = \langle ai | \Psi \rangle. \quad (41)$$

Подставляя в это соотношение вместо $|\Psi\rangle$ его разложение (40) по собственным векторам $|\Psi_m\rangle$, получим искомую связь в виде

$$\mu_{ai} = \sum_m C_m \langle ai|\Psi_m\rangle. \quad (42)$$

Обратимся теперь к уравнению (37). Разложим вектор поля $|H\rangle$ по собственным векторам матрицы $\hat{\mathcal{H}}$:

$$|H\rangle = \sum H_m |\Psi_m\rangle. \quad (43)$$

Подставив, далее, в (37) вместо $|\Psi\rangle$ его разложение по базисным векторам $|\Psi_m\rangle$, для коэффициентов C_m получим уравнение

$$(3 - \lambda E_m) C_m = H_m \quad (44)$$

откуда находим решение

$$C_m = \frac{H_m}{3 - \lambda E_m}.$$

Подставляя C_m в соотношение (42), получаем значения компонент средних магнитных моментов частиц в виде

$$\mu_{ai} = \sum_m \langle ai|\Psi_m\rangle \frac{H_m}{3 - \lambda E_m}. \quad (45)$$

Коэффициенты разложения H_m вектора поля $|H\rangle$ в соотношении (43) могут быть выражены через исходные компоненты поля H_{ai} аналогично тому, как была найдена связь между C_m и μ_{ai} :

$$H_m = \langle \Psi_m|\Psi\rangle = \sum_{bk} H_{bk} \langle \Psi_m|bk\rangle. \quad (46)$$

Подставляя это выражение в (45), получим

$$\mu_{ai} = \sum_m \sum_{bk} \langle ai|\Psi_m\rangle \frac{1}{3 - \lambda E_m} \langle \Psi_m|bk\rangle H_{bk}. \quad (47)$$

Таким образом, мы нашли решение уравнения (34). Для дальнейшего преобразуем его к несколько более удобной форме. Во-первых, введем векторы

$$L_i^{(am)} = \langle ai|\Psi_m\rangle, \quad (48)$$

что позволяет записать соотношение (47) в инвариантном виде

$$\mu_a = \sum_b \sum_m \bar{L}^{(am)} \frac{(\bar{L}^{(bm)} \cdot \vec{H}_{bk})}{3 - \lambda E_m}. \quad (49)$$

Во-вторых, учитывая, что между значениями поля на частицах \vec{H}_b и полями \vec{H}_0 и \vec{G} существует связь вида (см. (8), (12))

$$\vec{H}_b = \vec{H}_0 + \frac{1}{2}[\vec{G}\vec{r}_b], \quad (50)$$

где \vec{H}_0 имеет смысл однородного поля, а \vec{G} – вихря магнитного поля, мы можем переписать соотношение (49) так:

$$\bar{\mu}_a = \sum_b \sum_m \bar{L}^{(am)} \frac{(\bar{L}^{(bm)} \vec{H}_0) + \frac{1}{2}([\vec{r}_b \bar{L}^{(bm)}] \vec{G})}{3 - \lambda E_m}. \quad (51)$$

Отметим, что векторы $\bar{L}^{(am)}$, заданные для каждой частицы в состоянии $|\Psi_m\rangle$, позволяют наглядно геометрически интерпретировать собственные состояния $|\Psi_m\rangle$ как некоторую совокупность векторов ("моментов"), заданных на каждой частице.

Для вычисления восприимчивостей следует обратиться к соотношениям (29)–(30). В рассматриваемом приближении слабых полей можно ограничиться линейным приближением по полю при вычислении средних моментов $\langle \vec{M} \rangle$ и $\langle \vec{T} \rangle$. Поскольку \vec{M} и \vec{T} в соответствии с их определением (11) и найденными значениями магнитных моментов (51) пропорциональны приложенным полям, то для остальных сомножителей под знаком интеграла в выражениях (29) мы можем ограничиться нулевым приближением по полю. В этом случае вместо соотношений (29) приближенно имеем

$$\langle \vec{M} \rangle = \frac{1}{8\pi^2} \int d\Omega \vec{M}; \quad \langle \vec{T} \rangle = \frac{1}{8\pi^2} \int d\Omega \vec{T}. \quad (52)$$

Подставляя значения моментов частиц агрегата (51) в формулы (11) (где, напомним, \vec{m}_a следует заменить на их средние значения $\bar{\mu}_a$) которыми определены тороидный и магнитный моменты, получаем

$$\vec{M} = \sum_{mab} \bar{L}^{(am)} \frac{(\bar{L}^{(bm)} \vec{H}_0) + \frac{1}{2}([\vec{r}_b \bar{L}^{(bm)}] \vec{G})}{3 - \lambda E_m};$$

$$\vec{T} = \frac{1}{2} \sum_{mab} [\vec{r}_a \bar{L}^{(am)}] \frac{(\bar{L}^{(bm)} \vec{H}_0) + \frac{1}{2}([\vec{r}_b \bar{L}^{(bm)}] \vec{G})}{3 - \lambda E_m}. \quad (53)$$

Подставляя эти выражения в равенства (52) и учитывая, что результат усреднения произвольного тензора второго ранга по углам пропорционален его свертке

$$\frac{1}{8\pi^2} \int D_{ik} d\Omega = \frac{1}{3} D_{jj} \delta_{ik}, \quad (54)$$

с помощью формул (31) мы можем найти тензоры восприимчивости суспензии в виде $\chi_{ik}^M = \chi_M \delta_{ik}$; $\chi_{ik}^{TM} = \chi_{TM} \delta_{ik}$; $\chi_{ik}^T = \chi_T \delta_{ik}$, где скалярные величины χ_M , χ_{TM} и χ_T имеют вид

$$\chi_M = \frac{1}{3} \mu_0^2 N \frac{\beta}{\lambda} \sum_{abm} \frac{(\bar{L}^{(am)} \cdot \bar{L}^{(bm)})}{\tau - E_m},$$

$$\chi_{TM} = \frac{1}{6} \mu_0^2 N \frac{\beta}{\lambda} \sum_{abm} \frac{(\bar{L}^{(am)} [\vec{r}_b \bar{L}^{(bm)}])}{\tau - E_m}, \quad (55)$$

$$\chi\tau = \frac{1}{12} \mu_0^2 N \frac{\beta}{\lambda} \sum_{abm} \frac{(\vec{r}_a \vec{L}^{(am)}) \cdot (\vec{r}_b \vec{L}^{(bm)})}{\tau - E_m},$$

где введена безразмерная температура $\tau = 3/\lambda$.

Температурная зависимость восприимчивостей может быть представлена в общей форме в виде

$$\chi(\tau) = \sum_c \sum_m N_c \frac{a_m^{(c)}}{\tau - E_m^{(c)}}, \quad (56)$$

где N_c - плотность числа агрегатов данного сорта, $a_m^{(c)}$ - некоторые численные коэффициенты, а $E_m^{(c)}$ - собственные значения соответствующей данному агрегату матрицы $\hat{H}^{(c)}$, которыми определяются температурные сдвиги. Значения параметров $a_m^{(c)}$ и $E_m^{(c)}$ целиком определяются геометрией агрегата и, конечно, типом магнитного взаимодействия между частицами - здесь - диполь-дипольного, а в объемных ферромагнетиках - обменного. Собственные значения могут быть как положительными, так и отрицательными, а в сумме по c и по m содержится, вообще говоря, несколько слагаемых, поэтому полученная зависимость от температуры (56) имеет более сложный вид, чем простой закон Кюри-Вейсса. Причина этого заключается в том, что для покоящегося агрегата восприимчивость анизотропна (в силу анизотропии дипольного взаимодействия), то есть является тензором второго ранга, а при усреднении по ориентациям агрегата главные значения этих тензоров складываются, что, в конечном счете, и приводит к более сложной температурной зависимости. В самом деле, если построить график в осях χ и τ , то, вообще говоря, эта зависимость в соответствии с (56) будет нелинейной, что соответствует данным эксперимента [2,3].

Температура перехода агрегата в упорядоченное магнитное состояние определяется максимальным собственным значением $(E_m)_{max}$. Этим значением определяется и нижняя граница применимости формул (55). Те восприимчивости, у которых в сумме по m коэффициент a_m , соответствующий $(E_m)_{max}$, отличен от нуля, при приближении к точке перехода имеют особенность температурной зависимости вида $1/x$, а все остальные - не имеют. Определить, какая из восприимчивостей имеет эту главную особенность, можно, вычисляя коэффициент H_m , при $|\Psi_m\rangle$, соответствующем $(E_m)_{max}$ (в дальнейшем состоянии $|\Psi_m\rangle$, имеющее максимальное собственное значение, будем называть основным, а все остальные - возбужденными), а также и исходя из простых соображений симметрии. Для линейных агрегатов в основном состоянии (то есть в той структуре, которая возникает после перехода через точку $\tau_c = (E_m)_{max}$) моменты ориентированы вдоль оси агрегата. Очевидно, что при $\tau > \tau_c$ этой структуры еще нет, но однородное поле имеет такую же симметрию, как и "будущая" структура, поэтому в магнитной восприимчивости этих агрегатов проявляется эта главная особенность. В то же время вихревое поле не может привести к линейному намагничению агрегатов, поэтому тороидная восприимчивость не будет иметь главной особенности. Для кольцевых агрегатов положение меняется: так как основное состояние этих агрегатов как раз имеет кольцевую (вихревую) структуру, то главная особенность будет содержаться в тороидной восприимчивости, а в магнитной ее не будет.

Отметим также, что в самой точке перехода должен наблюдаться максимум на кривой $\chi(\tau)$ для той восприимчивости, которая имеет главную особенность. Причем этот максимум пропорционален числу агрегатов данного сорта. Поскольку в суспензии имеются агрегаты разных сортов с близкими температурами перехода, что возможно хотя бы из-за разброса частиц суспензии по размерам, этот максимум будет размыт. Формулы (55) сохраняют свой вид и для замороженной суспензии в предположении, что ориентация агрегатов хаотическая.

Перекрестная восприимчивость может быть отлична от нуля только для тех агрегатов, которые могут приобрести суммарный магнитный момент под действием вихревого магнитного поля. Очевидно, что это возможно только в том случае, если форма агрегата по симметрии допускает существование псевдоскаляра (хиральные агрегаты). Агрегаты с плотной упаковкой и состоящие из одинаковых частиц ахиральны. Однако, как уже говорилось, в реальных суспензиях наблюдается значительный разброс частиц по размерам и, кроме того они не имеют точно сферической формы, поэтому скорее всего агрегаты из таких частиц хиральны. В этой работе мы не будем обсуждать зависимость перекрестной восприимчивости от температуры, хотя ее измерение может дать важные сведения о пространственной структуре агрегатов, что особенно существенно для объяснения оптических явлений, в которых наблюдается вращение плоскости поляризации света, проходящего через тонкие слои суспензии.

6. Примеры

Как показывают нейтроноскопические исследования [9,10], в магнитной жидкости всегда присутствуют агрегаты из двух частиц, и поэтому они дают существенный вклад в восприимчивость суспензии. В этом простом случае все вычисления можно провести в явном виде, что дает возможность детально рассмотреть те особенности температурного поведения восприимчивости, которые обсуждались выше. Далее также будут рассмотрены агрегаты более сложной формы, которые требуют численных расчетов.

Запишем сначала в явном виде уравнение (34). Учитывая определение тензора $A_{ik}(\vec{r}_{ab})$ (6), для рассматриваемого случая (двухчастичные агрегаты) мы можем представить его в виде

$$A_{ik}(\vec{r}_{12}) = 3n_i n_k - \delta_{ik}, \quad (57)$$

где \vec{n} - единичный вектор, направленный по линии, соединяющей центры частиц. Подставляя тензор (57) в уравнение (34), получаем систему уравнений для определения средних значений магнитных моментов частиц

$$\begin{cases} 3\vec{\mu}_1 - \lambda(3\vec{n}(\vec{n}\vec{\mu}_2) - \vec{\mu}_2) = \vec{H}_1 \\ 3\vec{\mu}_2 - \lambda(3\vec{n}(\vec{n}\vec{\mu}_1) - \vec{\mu}_1) = \vec{H}_2 \end{cases} \quad (58)$$

Выберем систему координат таким образом, чтобы ось z была направлена по вектору \vec{n} , и запишем уравнения (58) в матричном виде (37). При указанном

выборе системы координат матрица \hat{H} для данной задачи в базисе $|ai\rangle$ ($a = 1, 2; i = x, y, z$) имеет вид

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2 \\ -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 2 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (59)$$

Легко показать, что собственные значения и собственные состояния этой матрицы выглядят, как в табл.2. Как было отмечено выше, каждому состоянию

Таблица 2. Собственные значения и собственные состояния матрицы \hat{H} для двухчастичного агрегата

m	E_m	$ \Psi_m\rangle$
1	2	$(1z\rangle + 2z\rangle)/\sqrt{2}$
2	1	$(1x\rangle - 2x\rangle)/\sqrt{2}$
3	1	$(1y\rangle - 2y\rangle)/\sqrt{2}$
4	-1	$(1x\rangle + 2x\rangle)/\sqrt{2}$
5	-1	$(1y\rangle + 2y\rangle)/\sqrt{2}$
6	-2	$(1z\rangle - 2z\rangle)/\sqrt{2}$

мы можем сопоставить набор векторов $\vec{L}^{(am)}$ на частицах, определенных соотношением (48). Сравнивая определение векторов $\vec{L}^{(am)}$ с данными таблицы 2, легко видеть, что в рассматриваемом случае эти векторы имеют значения, указанные в таблице 3, где единичные векторы \vec{i} и \vec{j} направлены по осям x и y выбранной системы координат. Векторы $\vec{L}^{(am)}$ показаны на рис. 4. Состояние $|\Psi_1\rangle$, в котором моменты частиц параллельны и направлены по оси z отвечает максимальному собственному значению матрицы \hat{H} и оно в данном случае является основным. Безразмерная температура перехода τ_c в это состояние в соответствии с данными табл. 2 равна 2: $\tau_c = 2$ (она совпадает с максимальным собственным значением). Отметим, что в основном состоянии минимальна магнитная энергия агрегата, а собственные значения E_m равны энергии с обратным знаком.

Учитывая, что радиусы-векторы частиц \vec{r}_1 и \vec{r}_2 имеют компоненты $(0 \ 0 \ 1/2)$ и $(0 \ 0 \ -1/2)$ и подставляя значения векторов $\vec{L}^{(am)}$, приведенные выше, в выражения для восприимчивостей (55), получим окончательно при $\tau > 2$:

$$\chi_M = \frac{2}{3} \mu_0^2 N \frac{\beta}{\lambda} \left(\frac{1}{\tau-2} + \frac{2}{\tau+1} \right); \quad \chi_T = \frac{1}{6} \mu_0^2 N \frac{\beta}{\lambda} \frac{1}{\tau-1}; \quad \chi_{TM} = 0. \quad (60)$$

Таблица 3.

m	1	2	3	4	5	6
$\sqrt{2}\vec{L}^{(1m)}$	\vec{n}	\vec{i}	\vec{j}	\vec{i}	\vec{j}	\vec{n}
$\sqrt{2}\vec{L}^{(2m)}$	\vec{n}	$-\vec{i}$	$-\vec{j}$	\vec{i}	\vec{j}	$-\vec{n}$

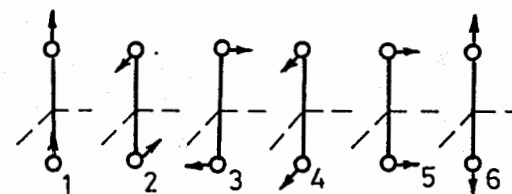


Рис.4. Магнитные конфигурации двухчастичного агрегата в состояниях $|\Psi_m\rangle$ (цифрами 1,...,6 указаны номера состояний в соответствии с табл.2).

Таким образом, как и предполагалось, в данном случае главную особенность $1/(\tau - 2)$ имеет магнитная восприимчивость. Как можно видеть из рис. 5(а), обратная магнитная восприимчивость нелинейно зависит от температуры, что объясняется наличием второго слагаемого в выражении для χ_M в (60). Хотя это слагаемое не имеет особенности (напомним, что применимость выражений (60) ограничена областью $\tau > \tau_c$), тем не менее оно изменяет ход температурной зависимости восприимчивости.

Как показывают численные расчеты, аналогичный характер зависимости восприимчивостей от температуры имеют и другие линейные агрегаты, что можно видеть из рис. 5(б) на примере линейного агрегата из пяти частиц. Для кольцевых агрегатов, а также для симметричных агрегатов с плотной упаковкой основное состояние имеет вихревую структуру, и поэтому главная особенность содержится в зависимости тороидной восприимчивости от температуры, что можно видеть из рис. 5(в,г), где изображены зависимости от температуры обратных восприимчивостей для кольцевого агрегата из четырех частиц и для агрегата из пяти частиц в форме тригональной бипирамиды.

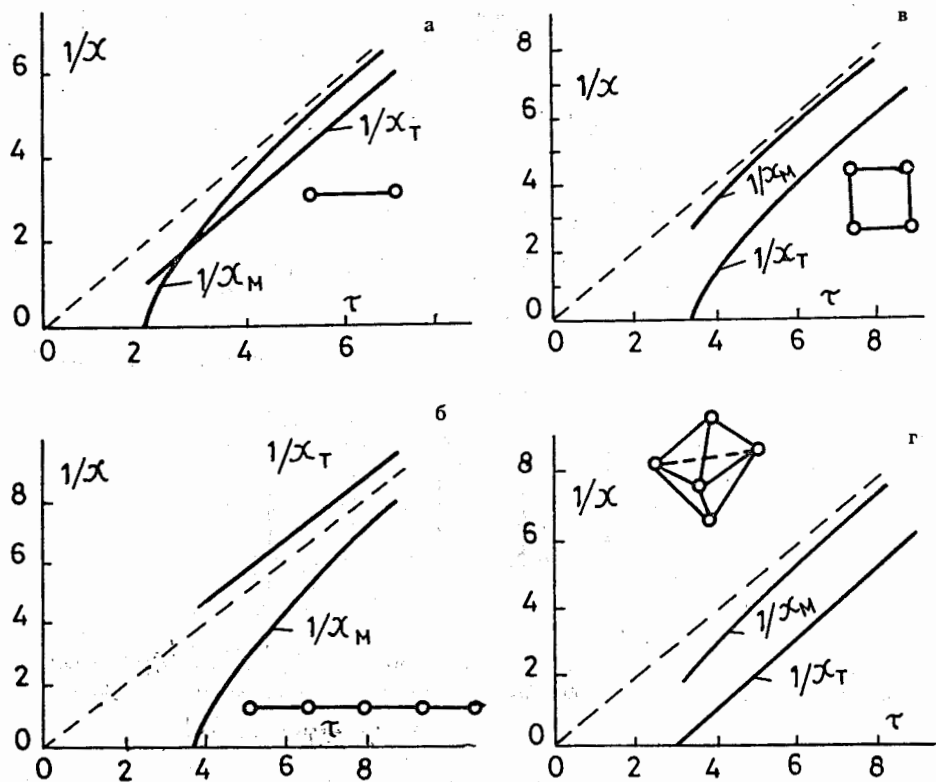


Рис.5. Зависимость обратных восприимчивостей $1/\chi_M$ и $1/\chi_T$ от температуры в области $\tau > \tau_c$. Формы агрегатов показаны на рис.

7. Заключение

Проведенное исследование показывает, что в рамках рассмотренной модели жестких агрегатов с суперпарамагнитными взаимодействующими частицами магнитная восприимчивость суспензии не подчиняется закону Кюри. Это является следствием спонтанного возникновения упорядоченной магнитной структуры, образуемой дипольными моментами частиц, из которых состоит агрегат. Зависимость восприимчивости от температуры в общем случае имеет более общий характер, чем в законе Кюри-Вейсса. Как следствие этого, обратная восприимчивость нелинейно зависит от температуры. Дополнительную информацию о структуре агрегатов можно получить, измеряя тороидную восприимчивость суспензии, а также перекрестную – магнитно-тороидную – восприимчивость.

Развитая в этой работе теория позволяет рассмотреть поведение восприимчивости во всем интервале температур – как выше, так и ниже точки перехода, а

также учесть возможность изменения формы агрегатов (типы III и IV в табл.1), что и предполагается сделать в последующих публикациях.

Авторы работы приносят благодарность А.Н.Захлевных за полезные обсуждения.

Литература

- O'Grady K., Bradburry A., Charles S.W., Menear S., Popplewell J., Chantrell R.W. *Curie-Weiss behaviour of ferrofluids*. J.Mag.& Mag.Mat., 1983, 31-34 p.958-960.
- Popplewell J., Abu Aisheh B., Ayoub N. Y *The effect of particle interactions on Curie-Weiss behaviour in ferrofluids*. J. Appl. Phys., 1988, 64, no.10, pt.2, p.5852-5854.
- Holmes M., O'Grady K., Popplewell J. *A study of Curie-Weiss behaviour in ferrofluids*. J. Mag.& Mag. Mat. 1990,85, p. 47-50.
- Mehta R.V., Upadhyay R.V., Satriya G.M., Travedi P.M., Dashnacharya B.A., Gojal P.S., Rao K.S. *Magnetic properties of laboratory synthesized magnetic fluids and their temperature dependence*. //Abstracts of 6 Int. Conf. on Mag. Fluids. Paris, 1992. P. 34-35.
- Williams H.D., O'Grady K., Charles S.W., Davies K.J. *Curie-Weiss behaviour in ferrofluids. The effects of particle size and distribution*//Abstracts of 6 Int. Conf. on Mag. Fluids. Paris, 1992. P. 76-77.
- Menear S., Bradburry A., Chantrell R.W. *A model of the properties of colloidal dispersion of weakly interacting fine ferromagnetic particles* // J. Mag.& Mag. Mat. 1984, 43, p.166-176.
Miles J.J., Gerber R., Chantrell R.W., Parker M.R. *Field induced ordering in paramagnetic suspensions* IEEE Trans. Mag., 1988, 24, n. 2, p. 1668-1670.
- Шлиомис М.И. *О начальной восприимчивости коллоидов кобальта*. //Сб. "Структурные свойства и гидродинамика магнитных коллоидов". Свердловск : УНЦ АН СССР, 1986. С. 3-8.
- Morozov K.I., Lebedev A.V. *The effect of magneto-dipole interactions on the magnetization curves of ferrocolloids*.// Abstracts of 5 Int. Conf. on magnetic fluids. Riga,1989. P.49-50.
Martin G.A.R., Bradburry A., Chantrell R.W. *An integral equation approach to phase transitions in ferrofluids* J.de Physique (Colloque C8, Suppl. no.12) 49, 1988, p.1847-1848.
- Rozman R., Janssen J.J.M., Rekveldt M.Th. *Interparticle correlations in Fe₃O₄ ferrofluids, studied by the small angle neutron scattering technique* // J. Mag. Mag. Mater., 1990,85, n.1-3, p. 97-99.

- Rozman R., Janssen J.J.M., Rekveldt M.Th. *Interparticle correlations in Fe₃O₄ ferrofluids, studied by the small angle neutron scattering technique* // J. Appl. Phys., 1990, 67, n.6, p. 3072-3080.
10. Itoh S., Endoh Y., Charles S.W. *Polarized neutron studies of ferrofluids* J. Mag.& Mag. Mat., 1992, 111, n. 1-2, p. 56-62.
 11. Dubovik V.M., Martsenuyk M.A., Martsenuyk N.M. *Toroidal susceptibility of aggregated magnetic fluids*. Препринт ОИЯИ. Дубна, 1993. 16 с.
 12. Martsenuyk M.A., Martsenuyk N.M., Suytkin S.V. *Modelling of dipole aggregates of magnetic particles* // Abstracts of 6 Int. Conf. on Mag. Fluids. Paris, 1992. P. 156-57.
 13. Дубовик В.М., Марценюк М.А., Марценюк Н.М. *Перемагничение агрегатов магнитных частиц вихревым полем и использование тороидности для записи информации*. – Препринт ОИЯИ Р17-92-541, Дубна, 1992. 30 с.
 14. Sano K., Doi M. *Theory of agglomeration of ferromagnetic particles in magnetic fluids* // J. Phys. Soc. Jap., 1983, 52, n. 8, p. 2810-2815.
 15. Chan D.Y.C., Henderson D. *The orientation-averaged interaction of a pair of magnetic dipole spheres in an external magnetic field*. J. Coll. & Interface Sci., 1984, 101, no.2, p. 419-423.
 16. Blum L., Torruella A.J. *Invariant expansions. 1V. The exponentials of tensorial expressions* // J. Chem. Phys., 1988, 89, n.8, p.4976-4980.
 17. Смарт Дж. *Эффективное поле в теории магнетизма*. М.: Мир, 1968 – 272 с. (Пер. с англ. издания : Smart J.S. *Effective field theories of magnetism* Philadelphia-London :W.B.Saunders C., 1968).
 18. Губин С.П. *Химия кластеров. Основы классификации и строение*. - М.: Наука, 1987. 263 с.

Дубовик В.М., Марценюк М.А., Марценюк Н.М.
Теория кюри-вейссовского поведения
агрегированной магнитной суспензии

P17-93-456

Построена теория, объясняющая экспериментально наблюдаемое отклонение от закона Кюри температурной зависимости начальной магнитной восприимчивости агрегированной магнитной суспензии. Расчет восприимчивости проводится для модели жестких агрегатов в приближении среднего поля с учетом усреднения по ориентациям агрегатов. Причиной «кюри-вейссовского» поведения суспензии является температурное изменение магнитной структуры агрегатов ферромагнитных частиц, которое происходит по сценарию фазового перехода. На многочисленных примерах показано, что параметр порядка перехода определяется формой агрегатов. Для симметричных агрегатов, которые имеют равный нулю магнитный момент («антиферромагнитная структура»), роль параметра порядка играет тороидный момент. Показано, что в реальных условиях для полного понимания характера температурной зависимости магнитной восприимчивости суспензии необходимо также проводить измерения тороидной восприимчивости.

Работа выполнена в Лаборатории теоретической физики им. Н.Н.Боголюбова ОИЯИ.

Препринт Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1993

Перевод авторов

Dubovik V.M., Martsenuyk M.A., Martsenuyk N.M.
The Theory of Curie-Weiss Behaviour of Aggregated Magnetic Suspension

P17-93-456

The theory of the experimentally observed deviation in the temperature dependence of the initial susceptibility of aggregated magnetic suspension from the Curie behaviour is developed. The model of rigid aggregates is considered. The susceptibility is computed in the mean-field approximation when averaging over the aggregate orientations is taken into account. The reason of the Curie-Weiss behaviour of magnetic susceptibility of a suspension is the thermal change of the magnetic state of aggregates that is analogous to the phase transition of a condensed phase. It is shown that the order parameter depends on the aggregate form. The aggregates of a closed form («antiferromagnetic structure») with their total magnetic moments equal to zero have the toroid moment as an order parameter. Some examples of aggregates are considered and the temperature dependence of the initial susceptibility is calculated for the interval $T > T_c$. It is shown that for a real suspension into the complete set of observables the toroid susceptibility has to be included.

The investigation has been performed at the Bogoliubov Theoretical Laboratory, JINR.

Preprint of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 1993