

03:07
 ©1994 г.

ФОТОДЕФЛЕКЦИОННАЯ СПЕКТРОСКОПИЯ МАГНИТНЫХ ЖИДКОСТЕЙ

Г.С.Митюрич, П.В.Астахов

Гомельский государственный университет,
 246699, Гомель, Беларусь
 (Поступило в Редакцию 24 декабря 1993 г.)

Изучены диссипативные свойства коллоидных растворов малых частиц ферромагнетиков методом фотодефлекционной спектроскопии. Исследовано изменение скорости диссиляции энергии светового пучка, взаимодействующего с магнитной жидкостью, в зависимости от формы феррочастиц и величины внешнего магнитного поля. Для коллоидного раствора магнетита Fe_3O_4 рассчитаны углы дефлекции, величина которых проанализирована как функция пространственной нормированной координаты, скорости поступательного движения магнитной жидкости, частоты амплитудной и поляризационной модуляции возбуждающего излучения.

Как известно [1], магнитные жидкости представляют собой коллоидные растворы малых частиц ферро- или ферримагнетика, обладающих постоянным магнитным моментом. При намагничивании внешним полем происходит ориентационное упорядочение частиц и колloid может проявлять анизотропию в отношении своих оптических и диссипативных свойств [2]. Исследование кинетики релаксации магнитного двулучепреломления и дихроизма золей ферромагнетиков проводились в [3], где обнаружена линейная зависимость характерного времени релаксации магнитооптических свойств от вязкости несущей среды коллоида.

Исследование магнитооптических эффектов обычно проводится для разбавленных коллоидных растворов с объемной концентрацией $\sim 10^{-5} - 10^{-3}$ и для незначительных толщин [1]. Поэтому оптическая анизотропия, как правило, мала и проявляется преимущественно не из-за кристаллографической, а из-за анизотропии формы. В видимом диапазоне длин волн магнитные жидкости проявляют значительное поглощение, что вынуждает проводить магнитооптические исследования в отраженном свете, например с помощью экваториального эффекта Керра [2].

Одним из эффективных бесконтактных методов изучения непрозрачных сред является метод фотодефлекционной спектроскопии,

основанный на лазерном возбуждении модулированных термоупругих колебаний в объеме образца, регистрируемых по отклонению зондирующего пучка [4].

В настоящей работе метод фотодефлекционной спектроскопии используется для исследования диссипативных свойств поступательно движущихся ферромагнитных жидкостей. Пусть возбуждающий лазерный пучок, действующий на магнитную коллоидную жидкость с частотой амплитудной модуляции Ω , возбуждает на этой частоте термоупругие колебания в полосе дихроичного поглощения. Предположим также, что излучение модулировано с частотой ω по линейным поляризациям вдоль и поперек намагничивающего поля. Тогда для разности объемной диссипации энергии ортогональных компонент светового пучка можно записать

$$\Delta Q = Q_{\parallel} - Q_{\perp} = k_r I_0 e^{-k_0 z}, \quad (1)$$

где I_0 — интенсивность падающего излучения; k_0 — коэффициент поглощения в отсутствие внешнего магнитного поля; k_r — величина относительного линейного дихроизма ($k_r = (k_{\parallel} - k_{\perp})/k_0$; k_{\parallel} , k_{\perp} — коэффициенты поглощения света, поляризованного вдоль и поперек вектора напряженности магнитного поля), определенная для прозрачных несущих сред, согласно [5], соотношением

$$k_r = \frac{3\text{Im}(a_{\parallel} - a_{\perp})}{\text{Im}(a_{\parallel} + 2a_{\perp})} a L_2(\xi). \quad (2)$$

Здесь $a_{\parallel, \perp}$ — компоненты тензора поляризуемости частицы; $L_2 = 1 - 3L/\xi$, $L = \text{cth } \xi - \xi^{-1}$ — функция Ланжевена, описывающая равновесную намагниченность ансамбля невзаимодействующих феррочастиц; $\xi = mH/kT$ — ланжевеновский аргумент; m — магнитный момент частицы; H — напряженность магнитного поля; k — постоянная Больцмана; T — температура; $a = 3/2(F'/F - 1/3)$, $F = \int \exp(\sigma x^2) dx$, $F' = dF/d\sigma$, σ — параметр эффективной магнитной анизотропии ферроколлоида. Для частиц формы эллипсоида вращения [1]

$$a_{\parallel, \perp} = \frac{\varepsilon_1(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{4\pi((\varepsilon_2 - \varepsilon_1)n_{\parallel, \perp} + \varepsilon_1)}, \quad (3)$$

где ε_1 — диэлектрическая проницаемость несущей среды, $\varepsilon_2 = \varepsilon'_2 + i\varepsilon''_2$ — комплексная диэлектрическая проницаемость феррочастицы, $n_{\parallel, \perp}$ определяются выражением

$$n_{\parallel} = \frac{(1 - e^2)}{2e^2} \left[\ln \left(\frac{1 + e}{1 - e} \right) - 2e \right], \quad e = 1 - \left(\frac{b}{a} \right)^2, \quad (4)$$

$n_{\parallel} + 2n_{\perp} = 1$, $\tau = b/a$ — эллиптичность формы частицы.

Разность диссиации энергии (1), как следует из (2)–(4), проявляет сильную зависимость от анизотропии формы. При стремлении частицы к шарообразной форме, когда $\tau \rightarrow 1$, $e \rightarrow 0$, величина ΔQ также приближается к нулевому значению тем быстрее, чем меньше величина напряженности внешнего намагничивающего поля (рис. 1, кривая 1).

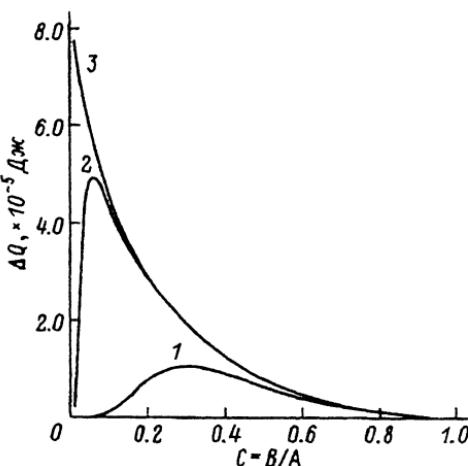


Рис. 1. Зависимость разности диссипации энергии от формы частиц магнитной жидкости при различной величине напряженности внешнего магнитного поля.
1 — $H = 1$, 2 — 100 A/m , 3 — 100 kA/m .

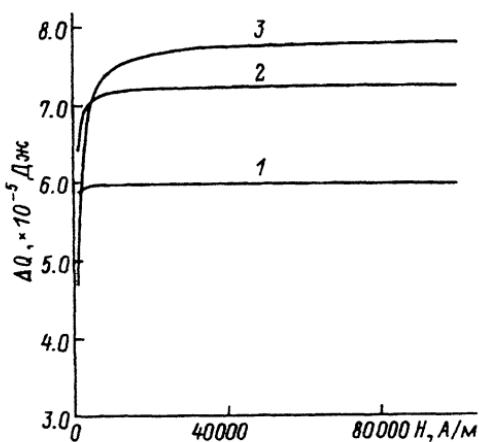


Рис. 2. Зависимость разности диссипации энергии от величины напряженности внешнего магнитного поля для частиц различной формы.

1 — $C = 0.05$, 2 — 0.02 , 3 — 0.01 .

С возрастанием напряженности магнитного поля H величина разности диссирируемой энергии стремится к насыщению (рис. 2), что связано с переориентацией всех частиц жидкости в направлении поля.

На графике зависимости $\Delta Q \sim f(\tau = b/a)$ при малых значениях H имеют место максимумы (рис. 1, кривые 1, 2), исчезающие при возрастании значения магнитного поля, которые, по-видимому можно объяснить не полной ориентацией феррочастиц при значениях поля H ниже $H_{\text{нас}}$. Точки максимумов кривых 1, 2 соответствуют предельному значению дихроизма при полной ориентации всех частиц магнитного коллоида в направлении вектора \mathbf{H} . Причем максимум разности диссипации энергии достигается в зависимости от величины намагничивающего поля при различных значениях анизотропии формы частицы. Чем меньше τ , т.е. чем ближе частица к иглообразной форме, тем быстрее происходит их переориентация по направлению намагничивающего поля и последующее насыщение величины ΔQ .

Разностная диссипация энергии (1) представляет собой плотность мощности тепловых источников уравнения теплопроводности

$$\Delta T(\mathbf{r}, t) - \frac{1}{\beta_{\text{м.ж}}} \frac{d}{dt} T(\mathbf{r}, t) = V_x \frac{dT(\mathbf{r}, t)}{dx} - \frac{1}{k_{\text{м.ж}}} \Delta Q(\mathbf{r}, t) f(t), \quad (5)$$

описывающего распределение тепловых полей в движущейся магнитной жидкости. Предполагается, что выбранный скоростной режим движения не приводит к фазовому расслоению магнитного коллоида. В (5) $f(t) = 1/2(1 + \exp(i\Omega t))(1 + \exp(i\omega t))$ — гармонически модулирующая источник функция; $k_{\text{м.ж}}$ — коэффициент теплопроводности магнитной жидкости, связанный с коэффициентом температуропроводности $\beta_{\text{м.ж}}$ соотношением $\beta_{\text{м.ж}} = k_{\text{м.ж}}/\rho C_p$, ρ — плотность, C_p — удельная теплоемкость.

Для двухфазной системы [6,7]

$$k_{\text{м.ж}} = k_0 \frac{2k_0 + k_{\text{м}} - 2c(k_0 - k_{\text{м}})}{2k_0 + k_{\text{м}} + c(k_0 - k_{\text{м}})}, \quad (6)$$

где k_0 , $k_{\text{м}}$ — коэффициенты теплопроводности несущей среды и коллоидных частиц соответственно.

В случае магнитных жидкостей на углеводородной основе в диапазоне значений объемных концентраций $0.004 \leq c \leq 0.2$ можно воспользоваться эмпирической зависимостью [7]

$$k_{\text{м.ж}} = a_0 + a_1 c + a_2 c^2, \quad (7)$$

где $a_0 = 0.1267$, $a_1 = -0.0559$, $a_2 = 3.455$.

Плотность магнитной жидкости при равенстве плотностей жидкой основы и поверхностно-активного вещества определяется формулой [7]

$$\rho_{\text{м.ж}} = \rho_0 + c(\rho_{\text{м}} - \rho_0). \quad (8)$$

Решение уравнения теплопроводности (5) в пренебрежении температурной зависимостью параметров $k_{\text{м.ж}}$, $\beta_{\text{м.ж}}$, $\rho_{\text{м.ж}}$, C_p , что справедливо при незначительных мощностях лазерного излучения, будем искать в виде

$$T(x, y, z, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \int_0^{+\infty} \int_0^{+\infty} \Delta Q(\xi, \eta, \mu, \tau) G(\xi, \eta, \mu, \tau) d\xi d\eta d\mu d\tau, \quad (9)$$

потребовав при этом непрерывности температуры и тепловых потоков на границе, разделяющей магнитную жидкость и окружающую среду. В (9) $G(\xi, \eta, \mu, \tau)$ — функция Грина, удовлетворяющая операторному уравнению

$$\Delta G - \frac{1}{\beta_{\text{м.ж}}} \frac{dG}{dt} = V_x \frac{dG}{dx} - \frac{1}{k_{\text{м.ж}}} \delta(x - \xi, y - \eta, z - \mu) \delta(t - \tau). \quad (10)$$

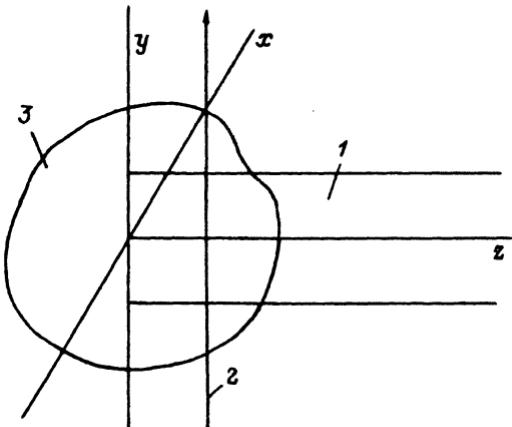


Рис. 3. Геометрия взаимодействия возбуждающего (1) и зондирующего (2) лучей в исследуемом образце (3).

Выполнив разложение $G(\xi, \eta, \mu, \tau)$ и дельта-функции $\delta(x - \xi, y - \eta, z - \mu), \delta(t - \tau)$ в интеграл Фурье, получим для функции Грина уравнения теплопроводности следующее выражение:

$$G = \frac{\theta(t)}{8\rho C_p \pi^{\frac{3}{2}} (\beta_{\text{м.ж}}(t - \tau))^{\frac{3}{2}}} \exp \left[-\frac{(x - (\xi + V_x(t - \tau)))^2}{4\beta_{\text{м.ж}}(t - \tau)} \right] \times \\ \times \exp \left[-\frac{(y - \eta)^2}{4\beta_{\text{м.ж}}(t - \tau)} \right] \exp \left[-\frac{(z - \mu)^2}{4\beta_{\text{м.ж}}(t - \tau)} \right], \quad (11)$$

где $\theta(t)$ — функция Хевисайда.

Используя (11) и проинтегрировав выражение (9) по пространственным координатам, с учетом соотношений (1)–(4), (7), (8) можно получить распределение поля температур в движущейся вдоль оси OX магнитной жидкости

$$T(x, y, z, t) = \frac{3aL_2(\xi)\text{Im}(a_{\parallel} - a_{\perp})}{2k_{\text{м.ж}}\text{Im}(a_{\parallel} + 2a_{\perp})} \times \\ \times \int_0^t \frac{(1 + \cos(\omega\tau))(1 + \cos(\Omega\tau))}{a^2 + 8\beta_{\text{м.ж}}(t - \tau)} \exp \left[-\frac{2(x - V_x(t - \tau))^2}{a^2 + \beta_{\text{м.ж}}(t - \tau)} \right] \times \\ \times \exp \left[-\frac{2y^2}{a^2 + \beta_{\text{м.ж}}(t - \tau)} \right] \exp [-k_0(z + k_0\beta_{\text{м.ж}}(t - \tau))] d\tau. \quad (12)$$

Для определения величины термоупругих колебаний в исследуемой среде используется зондирующий пучок малой мощности, длина волны которого выбирается в области прозрачности магнитной жидкости. В данном случае рассмотрена трансверсальная геометрия взаимодействия возбуждающего и зондирующего пучков, в которой зондирующий пучок перпендикулярен возбуждающему, а вектор скорости поступательного движения магнитной жидкости совпадает с направлением оси OX (рис. 3). Угол отклонения зондирующего пучка на основе (12) определяется соотношением

$$\Phi(x, z, t) = \frac{1}{n} \frac{d\Delta n}{dT} \int_y \frac{dT(x, y, z, t)}{dx} dy, \quad (13)$$

где

$$\Delta n = n_{\parallel} - n_{\perp} = \frac{2\pi c(a_{\parallel} - a_{\perp})}{n} a L_2(\xi),$$

$\frac{d\Delta n}{dT}$ — температурный градиент разности показателей преломления.

Как следует из (12), (13), экспериментальное измерение значений угла дефлексии позволяет определить величину относительного линейного дихроизма магнитного ферроколлоида

$$k_r = \Phi(x, z, t) \left(-\frac{\sqrt{2\pi}}{nk_{\text{м.ж}}} \frac{d\Delta n}{dT} \int_0^t \frac{(1 + \cos(\omega\tau))(1 + \cos(\Omega\tau))(x - V_x(t - \tau))}{(a^2 + 8\beta_{\text{м.ж}}(t - \tau))^{3/2}} \times \right)$$

$$\times \exp \left[-\frac{2(x - V_x(t - \tau))^2}{a^2 + \beta_{m,k}(t - \tau)} \right] \exp [-k_0(z + k_0 \beta_{m,k}(t - \tau))] d\tau \right]^{-1}. \quad (14)$$

Полученные выражения (12), (13) являются достаточно громоздкими и их интегрирование в аналитическом виде не представляется возможным. Поэтому воспользуемся в дальнейшем методом численного интегрирования и проанализируем зависимость величины дефлекционных углов от диссипативных свойств магнитной жидкости.

Расчеты показывают, что температурное распределение в покоящейся жидкости имеет симметричную форму, близкую к лоренцевой, с максимумом в геометрическом центре возбуждающего пучка (рис. 4, кривая 1). При увеличении скорости движения максимум температурного распределения смещается в сторону положительных значений по оси OX , а абсолютная величина максимума уменьшается (рис. 4). Угол дефлекции пробного луча сильно зависит от геометрии считывания и кинетики фотоакустического преобразования в магнитной жидкости. В рамках ориентационной модели магнитного коллоида [1] малые частицы ферромагнетиков однодоменные, магнитный момент отдельной частицы достаточно велик, вследствие этого возрастает и величина парамагнитной восприимчивости. Расчеты показывают, что величина углов дефлекции пробного луча в таких жидкостях будет достигать нескольких десятков угловых секунд, а в оптимизирующих условиях и угловых минут. Поэтому измерения удобно проводить при большой величине магнитного поля, когда разность диссипации энергии близка к насыщению. Величина дефлекционного угла в этом случае также будет максимальной (случай покоящейся жидкости) (рис. 5, кривая 1). С увеличением скорости движения, как следует из рис. 5 (кривые 2, 3) максимум величины углов дефлекции уменьшается и смещается в направлении скорости движения, причем возникает асимметрия координатной зависимости дефлекционных углов. Изменение частоты

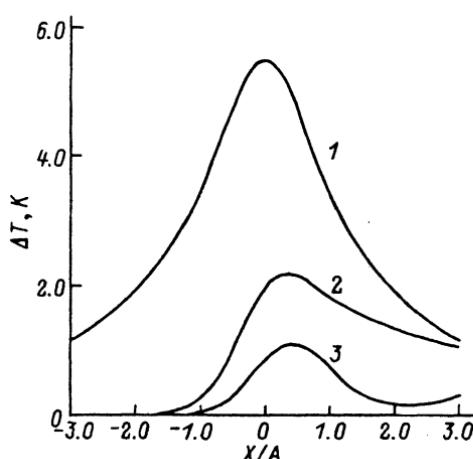


Рис. 4. Температурное распределение в магнитной жидкости при различных скоростях движения.
1 — $V_x = 0$, 2 — 0.01 , 3 — 0.05 m/s.

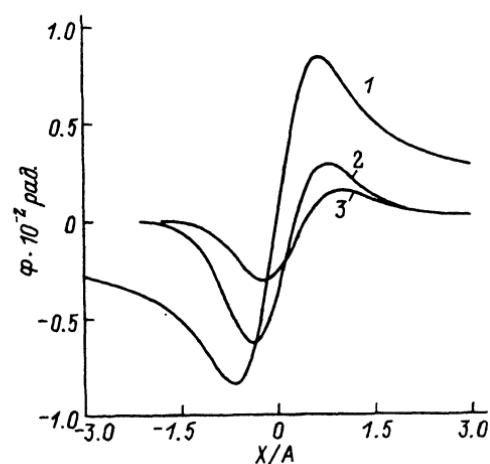


Рис. 5. Зависимость дефлекционных углов от нормированной координаты при различных скоростях движения.
1-3 — то же, что и на рис. 4.

амплитудной модуляции пробного лазерного пучка приводит к традиционным в фотоакустической спектроскопии зависимостям [8]. С увеличением Ω происходит падение амплитуды сигнала, что объясняется неспособностью среды откликаться на быстрые изменения из-за термической инерционности.

Таким образом, в работе проанализированы особенности метода лазерной фотодефлекционной спектроскопии применительно к поступательно движущимся магнитным жидкостям при трансверсальной геометрии взаимодействия. Показана возможность определения величины относительного линейного дихроизма магнитной жидкости фотодефлекционным методом.

Список литературы

- [1] Блум Э.Я., Майоров М.М., Цеберс А.О. Магнитные жидкости. Рига: Зиннатне, 1989. 386 с.
 - [2] Кожевников В.М., Падалка В.В., Райков Ю.Л. и др. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1987. Т. 51. № 6. С. 1042-1048.
 - [3] Майоров М.М., Цеберс А.О. // Коллоид. журн. 1977. Т. 39. № 6. С. 1087-1093.
 - [4] Boccara C., Fournier D., Badoz J. // Appl. Phys. Lett. 1980. Vol. 36. N 2. P. 130-132.
 - [5] Sholten D.C. // IEEE Trans. Magn. 1980. Vol. 16. N 2. P. 221-225.
 - [6] Шлиомис М.И. // УФН. 1974. Т. 112. № 3. С. 427-458.
 - [7] Фертман В.Е. Магнитные жидкости. Минск: Вышешшая школа, 1988. 184 с.
 - [8] Mityurich G.S., Astakhov P.V. // Proc. 5th Spring School on Acousto-Optics and Applications. SPIE. 1992. P. 300-308.
-