

P14-2007-21

М. Балашою^{1,2}, Д. Бика³, Л. Векас³, К. И. Грицай¹,
В. Н. Дугинов¹, В. А. Жуков¹, Т. Н. Мамедов¹,
В. Г. Ольшевский¹, К. Петреску⁴

**ИССЛЕДОВАНИЕ МАГНИТНЫХ СВОЙСТВ
ФЕРРОЖИДКОСТИ μ SR-МЕТОДОМ
НА ФАЗОТРОНЕ ЛЯП ОИЯИ**

¹Объединенный институт ядерных исследований, Дубна

²Horia Hulubei National Institute of Nuclear Physics
and Technology, Bucharest

³Center for Fundamental and Advanced Technical Research,
Timisoara, Romania

⁴R & D Institute for Electrotechnics, Bucharest

Балашою М. и др.

P14-2007-21

Исследование магнитных свойств феррожидкости
 μ SR-методом на фазотроне ЛЯП ОИЯИ

Впервые для изучения свойств магнитных жидкостей применен μ SR-метод. Исследована феррожидкость на основе Fe_3O_4 в диапазоне температур 114–300 К в нулевом и поперечном спину мюона магнитном поле. Практически во всех случаях наблюдалась значительная релаксация спина. В случае отсутствия внешнего магнитного поля наблюдается падение скорости релаксации и поляризации спина мюона до нулевого значения при температуре 230 К, а затем резкий рост поляризации в диапазоне 240–255 К.

Работа выполнена в Лаборатории ядерных проблем им. В. П. Дзелепова ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 2007

Balasoiu M. et al.

P14-2007-21

Magnetic Property Investigation of the Ferrofluid
by μ SR-Spectroscopy on the DLNP JINR Phasotron

The μ SR-method was applied to the study of the magnetic fluid properties for the first time. The ferrofluid on the Fe_3O_4 basis was investigated in the temperature range from 114 to 300 K at the zero and transverse magnetic field conditions. The distinct μ SR-signal was observed in both cases. In zero field measurements the drop in the relaxation rate and polarization at $T = 230$ K to zero-level followed by fast increasing of the latter in the temperature interval from 240 to 255 K were observed.

The investigation has been performed at the Dzhelepov Laboratory of Nuclear Problems, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 2007

ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время значительное внимание уделяется исследованию свойств магнитных жидкостей, разработке методов их получения и использованию в практических целях [1]. Магнитные жидкости представляют собой высокодисперсные коллоиды ферро- или ферримагнитных наночастиц, диспергированных в различных жидкостях. Поведение магнитных наночастиц существенно отличается от поведения макроскопических магнитных образцов. Это связано с тем, что наночастицы являются пограничными объектами между объемными системами и отдельными атомами, в них возрастает роль поверхностных эффектов, что приводит к появлению новых свойств.

Свойства магнитных материалов определяются поведением образующихся в них доменов и доменных стенок. Однако если размер магнитной частицы меньше некоторой критической величины, формирование доменов становится энергетически невыгодным, и частица существует в виде единичного домена. Для таких частиц характерно явление суперпарамагнетизма. Исследование суперпарамагнитных наночастиц важно не только для понимания фундаментальных свойств магнетизма, но и для применения магнитных жидкостей в практических целях таких, как создание накопителей информации высокой плотности, использование в медицине для направленной транспортировки лекарственных средств и многих других технических приложениях.

Ферриты-шпинели (MeF_2O_4 , где Me — Fe, Mg, Zn, Co, Ni, Mn и др.), на основе которых приготавливаются многие магнитные жидкости, являются наиболее изученными соединениями, служащими для понимания и контроля суперпарамагнитных свойств магнитных жидкостей [2]. Хорошо изученной является магнитная структура магнетита (Fe_3O_4) [3].

Структурные и магнитные свойства феррожидкостей в зависимости от размеров наночастиц изучались многими методами, в том числе с использованием квантовых магнитометров (SQUID), спектроскопии Мессбауэра [2], метода малоуглового рассеяния нейтронов [4–6]. В настоящей работе для изучения магнитных свойств феррожидкости впервые используются поляризованные положительные мюоны (μSR -метод [7]). Известно, что имплантированный в среду положительный мюон является очень чувствительным зондом для изучения магнитных свойств вещества. Вследствие несохранения пространственной четности в слабых взаимодействиях получаемые на ускорителях мюоны от распада $\pi^+ \rightarrow \mu^+ + \nu_\mu$ поляризованы вдоль направления своего импульса, и пространственное распределение позитронов от их распада $\mu^+ \rightarrow e^+ + \nu_e + \bar{\nu}_\mu$ является асимметричным по отношению к направлению начальной поляризации положительных мюонов. В среде поляризация мюона

зависит от взаимодействия его магнитного момента с локальными магнитными полями среды. Изменение в поляризации мюона в течение его времени жизни в среде может быть экспериментально прослежено путем наблюдения зависящей от времени асимметрии $\mu^+ \rightarrow e^+$ распада. Другой измеряемой величиной в μ SR-методе является частота прецессии спина мюона, с помощью которой может быть определена величина локального магнитного поля, действующего на мюон в среде.

1. ИЗМЕРЕНИЯ И ПРЕДВАРИТЕЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

Исследуемая феррожидкость представляла собой раствор нанодисперсного магнетита (Fe_3O_4) в дейтерированной воде, стабилизированного додецилбензолсульфатом кислоты ($\text{Fe}_3\text{O}_4/2\text{DBS}/\text{D}_2\text{O}$) с объемной концентрацией магнитных частиц 4,7%. Магнитные частицы, окруженные стабилизирующей кислотой, имели средний диаметр $d = 118,9 \text{ \AA}$ со стандартным отклонением $\sigma = 26,7 \text{ \AA}$.

Измерения проводились на мюонном канале фазотрона ЛЯП ОИЯИ на установке МЮСПИН в поперечном спину мюона магнитном поле (TF-эксперимент) и в отсутствие внешнего поля (ZF-эксперимент). Магнитное поле Земли и рассеянное поле от ускорителя на месте расположения образца компенсировались с точностью лучше чем 0,05 Э. Образец был упакован в кювету из меди, толщина стенок кюветы в направлении пучка мюонов составляла 100 мкм. Толщина образца вдоль оси пучка мюонов составляла около 1 г/см^2 . Охлаждение образца, размещенного в криостате, производилось парами жидкого азота. Температура образца стабилизировалась с точностью не хуже 0,2 К. Измерения проводились в интервале температур 114–300 К. Позитроны от распада μ^+ , остановившихся в образце, регистрировались двумя телескопами из сцинтилляционных счетчиков, расположенных до (BW-телескоп) и после (FW-телескоп) образца. При каждом значении температуры в гистограммы временного распределения позитронов $\mu^+ \rightarrow e^+$ распада было набрано примерно $3 \cdot 10^6$ событий.

Измерения показали, что в феррожидкости наблюдается существенный μ SR-сигнал в условиях как TF-, так и ZF-эксперимента. На рис. 1 сигнал прецессии спина мюона приведен в сравнении с таким же сигналом для образца из меди при температуре 300 К и внешнем магнитном поле 400 Э. Медный образец используется в качестве контрольного образца, в котором релаксация спина мюона при комнатных температурах не наблюдается [8]. Как следует из рис. 1, в феррожидкости имеет место затухание (релаксация) поляризации спина мюона со временем. При увеличении внешнего магнитного поля от 100 до 700 Э при температуре 300 К происходит увеличение скорости релаксации спина мюона от 0,3 до $0,8 \text{ мкс}^{-1}$. В поперечном спину мюона магнитном

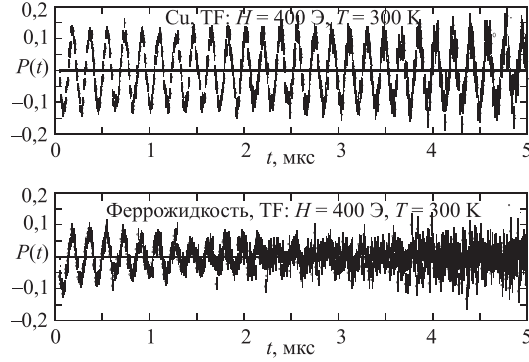


Рис. 1. μ SR-спектры, исправленные с учетом фона и времени жизни мюона, для меди и феррожидкости в поперечном спину мюона внешнем магнитном поле

поле наблюдается также сдвиг частоты прецессии спина мюона $(\omega - \omega_0)/\omega_0$ по отношению к частоте прецессии ω_0 в меди.

Результаты измерений в условиях ZF при нескольких температурах представлены на рис. 2. Как видно из рисунка, при температуре 114 К и выше 230 К наблюдается быстрая релаксация поляризации мюона. В отсутствие релаксации спина мюона, например, при $T = 230$ К, экспериментальные точки случайным образом распределены по обе стороны нулевой линии. При отличной от нуля скорости релаксации данные для FW- и BW-телескопов отклоняются в разные стороны от нулевой линии, как и следовало ожидать из асимметрии пространственного распределения позитронов от распада продольно-поляризованных мюонов.

Временное распределение позитронов $\mu^+ \rightarrow e^+$ распада аппроксимировалось функцией $N(t) = N_0 \cdot [1 + P(t)] \cdot \exp(-t/\tau_\mu) + \text{фон}$, где для функции $P(t)$ в случае измерений во внешнем магнитном поле использовалось выражение $P_{\text{TF}}(t) = P_0 \cdot \exp(-\sigma t) \cdot \cos(\omega t + \phi)$, а для случая отсутствия поля — $P_{\text{ZF}}(t) = P_0 \cdot \exp(-(\sigma t)^k)$.

Во всем температурном диапазоне для фитирования экспериментальных данных, полученных при нулевом магнитном поле, наилучшим образом подходит функция $_{\text{ZF}}(t)$ с $k = 1$. Однако значительное отличие χ^2 при фитировании функцией с $k = 1$ от случаев с $k = 1/2$ и $k = 2$ наблюдается лишь при температурах 240, 250 и 255 К.

На рис. 3 представлены температурные зависимости поляризации и скорости релаксации спина мюона, полученные в условиях ZF. Как видно, имеется достаточно сложная зависимость амплитуды поляризации P_0 и скорости релаксации σ от температуры. Особо выделяются рост поляризации при

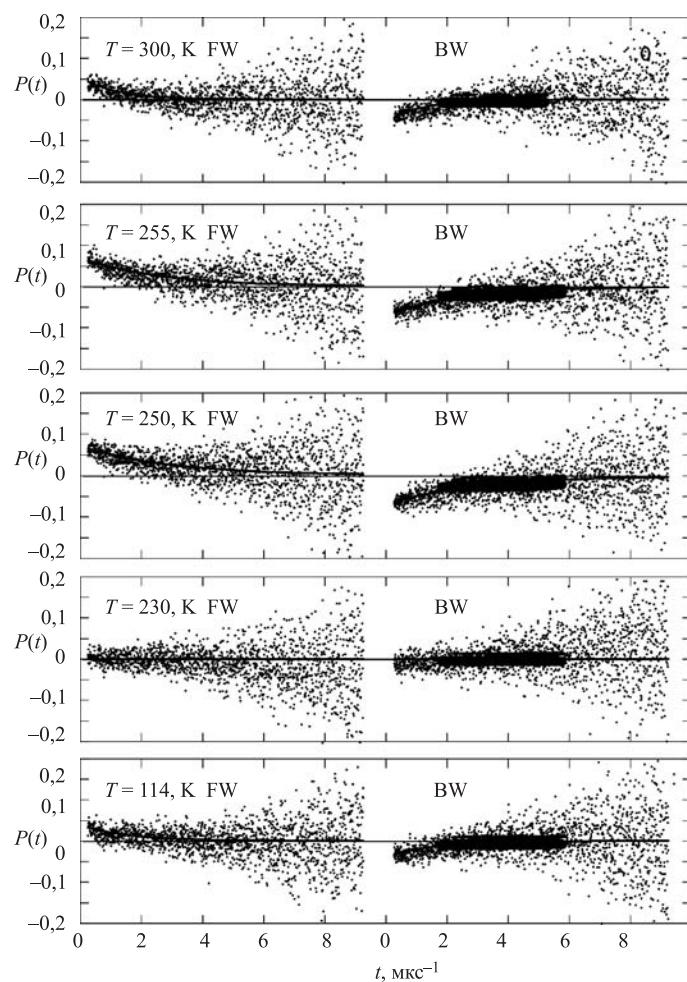


Рис. 2. μ SR-спектры, исправленные с учетом фона и времени жизни мюона, для феррожидкости в отсутствие внешнего магнитного поля

$T = 240$ – 255 К и падение скорости релаксации и амплитуды поляризации до нуля при $T = 240$ К. Очевидно, что требуется более детальное исследование в области температур 100 – 150 К, 200 – 250 К и выше 270 К. Ранее особенности в поведении поляризации положительных мюонов при температурах 120 и 250 К наблюдались для массивного образца Fe_3O_4 [9], а более детальное изучение перехода Вервье было проведено и в монокристаллическом образце [10].

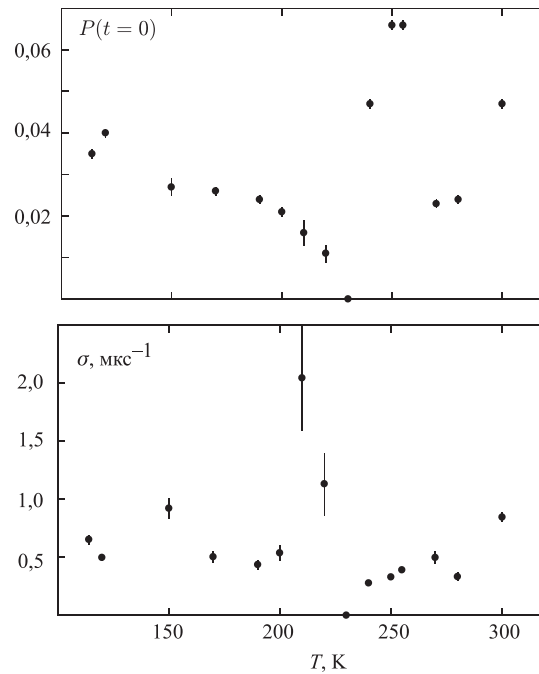


Рис. 3. Температурные зависимости поляризации и скорости релаксации спина мюона в феррожидкости в отсутствие магнитного поля

Магнитное поле на мюоне в среде обусловлено магнитными моментами наночастиц, случайно распределенных в объеме раствора. Если полагать, что в рассматриваемом диапазоне температур диффузия мюона отсутствует (он находится в химически связанном состоянии) и магнитные моменты наночастиц при $T < 300$ К «заморожены», то, исходя из скорости релаксации спина мюона, можно оценить среднюю дисперсию поля на мюоне как $\delta B = \sigma / \gamma_\mu$ ($\gamma_\mu = 13,55$ кГц/Гс). Соответственно из настоящих данных следует, что на мюоне имеется магнитное поле с дисперсией $\delta B = 0,5 \cdot 10^6 / (13,55 \cdot 10^3) \approx 37$ Гс со средним значением, равным нулю.

Наличие магнитного поля на мюоне свидетельствует о том, что магнитные моменты частиц «заморожены» или, по крайней мере, скорость их релаксации сравнима или менее $1/\tau_\mu$. Равенство нулю среднего значения поля на мюоне может быть в том случае, если магнитные моменты наночастиц ориентированы в пространстве случайным образом, то есть упорядочение магнитных моментов отсутствует.

Необходимо отметить, что μ SR-метод помимо статических процессов применим для изучения динамических процессов в большом диапазоне частот: 10^5 – 10^9 Гц. Таким образом, интервал корреляционных времен, изучаемый μ SR-методом, заполняет широкий промежуток, недоступный для исследований с помощью мессбауэровской спектроскопии и метода измерений магнитной восприимчивости на переменном токе (см. таблицу). Одной из важных характеристик суперпарамагнитной системы является температура блокировки T_B . Как показывают результаты измерений этого параметра (например, в магнитной жидкости на основе CoFe_2O_3 [2]) мессбауэровской спектроскопией и с помощью квантового магнитометра (SQUID), полученные значения T_B отличаются более чем в два раза.

Диапазоны времен спиновой корреляции, доступные для исследований различными методами

Метод измерения	Корреляционное время, с
Рассеяние нейтронов	$< 10^{-10}$
Спектроскопия Мессбауэра	10^{-10} – 10^{-8}
μ SR-метод, TF-условия	10^{-11} – 10^{-5}
μ SR-метод, ZF-условия	10^{-11} – 10^{-4}
Измерение магнитной восприимчивости на переменном токе	10^{-4} – 10^0

Приведенные в настоящей работе результаты свидетельствуют о том, что более детальные исследования μ SR-методом позволят получить новую информацию о свойствах суперпарамагнитных феррожидкостей.

Авторы благодарны коллективу фазотрона ОИЯИ за надежную работу ускорителя.

Исследования поддерживаются грантом полномочного представителя Румынии в ОИЯИ.

ЛИТЕРАТУРА

1. *Odenbach S.* // J. Phys.: Cond. Matt. 2004. V. 16. P. R1135.
2. *Vestal Ch. H., Zhang Z. J.* // Int. J. of Nanotechnology. 2004. V. 1. P. 240.
3. *Shull C. G., Wollan E. O., Koehler W. C.* // Phys. Rev. 1951. V. 84. P. 912.
4. *Aksenov V. et al.* // Appl. Phys. A. 2002. V. 74. Suppl. P. S943.

5. *Aksenov V. L. et al.* // J. Magn. Magn. Mat. 2003. V. 258–259. P. 452.
6. *Avdeev M. V. et al.* // J. Magn. Magn. Mat. 2004. V. 270. P. 371.
7. *Schenck A.* Muon Spin Rotation Spectroscopy, Adam Hilger Ltd., Bristol, England, 1985.
8. *Гребинник В.Г. и др.* // ЖЭТФ. 1975. Т. 68. С. 1584.
9. *Boeketa C. et al.* // Phys. Rev. 1986. V. 33. P. 210.
10. *Bimbi M. et al.* // Physica B. 2006. V. 374. P. 51.

Получено 6 февраля 2007 г.

Редактор *М. И. Зарубина*

Подписано в печать 19.03.2007.

Формат 60 × 90/16. Бумага офсетная. Печать офсетная.

Усл. печ. л. 0,62. Уч.-изд. л. 1,21. Тираж 295 экз. Заказ № 55685.

Издательский отдел Объединенного института ядерных исследований
141980, г. Дубна, Московская обл., ул. Жолио-Кюри, 6.

E-mail: publish@pds.jinr.ru

www.jinr.ru/publish/