

М. Балашою<sup>2,3</sup>, С.Г. Барсов<sup>1</sup>, Д. Бика<sup>4</sup>, Л. Векас<sup>4</sup>,  
С.И. Воробьев<sup>1</sup>, К.И. Грицай<sup>2</sup>, В.Н. Дугинов<sup>2</sup>, **В.А. Жуков<sup>2</sup>**,  
Е.Н. Комаров<sup>1</sup>, В.П. Коптев<sup>1</sup>, С.А. Котов<sup>1</sup>, Т.Н. Мамедов<sup>2</sup>,  
С.М. Микиртычьянц<sup>1</sup>, К. Петреску<sup>5</sup>, Г.В. Щербаков<sup>1</sup>

**Влияние магнитных наночастиц на  
поведение поляризованных положительных  
мюонов в феррожидкости на основе  
Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> в среде D<sub>2</sub>O**

<sup>1</sup>Петербургский институт ядерной физики, 188300 Гатчина,  
Ленинградской обл., Россия.

<sup>2</sup>Объединенный институт ядерных исследований, 141980 Дубна,  
Московская обл., Россия.

<sup>3</sup>Institute of Space Sciences, Bucharest, Romania.

<sup>4</sup>Center for Fundamental and Advanced Technical Research, Timisoara,  
Romania.

<sup>5</sup>R&D Institute for Electrotechnics, Bucharest, Romania.

**Influence of magnetic nanoparticles on behaviour of polarized positive muons in ferrofluid on the  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  base in carrier medium  $\text{D}_2\text{O}$** 

**M. Balasoiu, S. G. Barsov, D. Bica, L. Vekas, S. I. Vorobyev, K. I. Gritsaj, V. N. Duginov, V. A. Zhukov, E. N. Komarov, V. P. Koptev, S. A. Kotov, T. N. Mamedov, C. M. Mikirtychyants, C. Petrescu, G. V. Shcherbakov**

**Abstract**

Ferrofluid on the basis of the  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  nanoparticles dispersed in the heavy water  $\text{D}_2\text{O}$  have been investigated by means of the  $\mu\text{SR}$ -method. It was revealed that the distinct muonium precession signal is observed simultaneously with the muon (diamagnetic) precession signal. Behaviour of the muon and muonium fractions in ferrofluid is compared with those in the pure heavy water. Experiment was carried out at temperatures  $25 \div 300$  K in the transverse magnetic fields of 8 Oe and 280 Oe. It was observed that muon (diamagnetic) fraction is created in the ferrofluid approximately in the same proportion as in  $\text{D}_2\text{O}$ , however the muon spin relaxation rate is in a considerable extent higher in ferrofluid than in  $\text{D}_2\text{O}$  at temperatures  $T > 150$  K. Part of the muonium fraction at these temperatures is essentially less in ferrofluid than in  $\text{D}_2\text{O}$ . The precession frequencies of the muon and muonium spins in ferrofluid are noticeable lower than in  $\text{D}_2\text{O}$ .

**Аннотация**

$\mu\text{SR}$ -методом исследована феррожидкость на основе наночастиц  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ , диспергированных в тяжелой воде  $\text{D}_2\text{O}$ . Обнаружено, что наряду с прецессионным сигналом от мюонной (диамагнитной) компоненты наблюдается отчетливый сигнал от мюониевой компоненты. Поведение мюонной и мюониевой фракций в феррожидкости сравнивается с их поведением в чистой тяжелой воде. Эксперимент проводился в поперечных направлениию спина мюона магнитных полях 8 Гс и 280 Гс в диапазоне температур  $25 \div 300$  К. Найдено, что диамагнитная (мюонная) фракция образуется в феррожидкости приблизительно в той же пропорции, что и в  $\text{D}_2\text{O}$ , однако скорость релаксации спина мюона значительно выше в феррожидкости по сравнению с  $\text{D}_2\text{O}$  при температурах  $T > 150$  К. Доля мюониевой фракции при этих температурах существенно меньше в феррожидкости, чем в  $\text{D}_2\text{O}$ . Частоты прецессии спинов мюона и мюония заметно ниже в феррожидкости, нежели в  $\text{D}_2\text{O}$ .

Работа выполнена на мюонном канале Петербургского института ядерной физики им. Б.П. Константинова РАН.

## **Введение**

Материалы, в которых распределены магнитные наночастицы в немагнитной среде, представляют большой практический и научный интерес. Они широко используются в технике, перспективным является их применение в медицине, с точки зрения высоких технологий, актуально создание на их основе магнитных накопителей информации большой емкости. Научный интерес к таким материалам связан с изучением природы магнетизма в объектах, размеры которых не превышают размера домена. Сведения о достижениях в изучении свойств наночастиц можно найти в ряде современных обзоров и цитированной в них литературе [1–3].

В настоящее время наиболее интенсивно изучаются магнитные жидкости, представляющие собой коллоидные системы, состоящие из монокристаллических магнитных наночастиц, диспергированных в органических или неорганических жидких средах. Стабильность магнитных жидкостей достигается покрытием магнитных наночастиц поверхностно-активным веществом (ПАВ), предотвращающим их слипание за счет сил Ван-дер-Ваальса и магнитных диполь-дипольных взаимодействий.

Одним из часто встречающихся веществ, на основе которого приготавливаются магнитные жидкости, является магнетит  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . Магнитная структура его монокристаллов хорошо изучена [4].  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  является ферримагнетиком при температурах ниже температуры  $T_C = 858$  К, и в результате изменения кристаллической структуры испытывает переход Вервея (переход металл – изолятор) при температуре  $T_V \approx 123$  К. Монокристаллы магнетита изучались в работах [5–7] также методом вращения спина поляризованного положительного мюона ( $\mu$ SR-метод [8]). В работах [5, 6] в отсутствие внешнего магнитного поля наблюдались резкие изменения единственной наблюдаемой частоты прецессии спина мюона и скорости его деполяризации при  $T_V \approx 123$  К, а также аномальное поведение этих характеристик в области 250 К. В работе [7] в нулевом поле при  $T < 120$  К наблюдались три частоты прецессии спина мюона, соответствующие разным его положениям в кристаллической решетке, их резкий скачок при  $T_V$  и особенность в поведении скорости релаксации поляризации в области  $T = 220$  К.

Магнитные свойства феррожидкостей, где могут отчетливо проявиться различия между объемными монокристаллами и

однодоменными наночастицами, изучались многими методами, в том числе с использованием квантовых магнетометров SQUID, спектроскопии Мессбауэра [2], метода малоуглового рассеяния нейтронов [9–11]. В предыдущей нашей работе [12] для изучения магнитных свойств феррожидкости впервые использовались поляризованные положительные мюоны. 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. Следующей измеряемой величиной в  $\mu$ SR-методе является частота прецессии спина мюона, с помощью которой может быть определена величина локального магнитного поля, действующего на мюон в среде.

В качестве носителя наночастиц, покрытых ПАВ, часто используется вода. Когда поляризованный положительный мюон останавливается в чистой воде, то, как правило, регистрируются два  $\mu$ SR-сигнала. Один из них возникает от мюония  $\text{Mu}$  – водородоподобного атома [13, 14], состоящего из мюона и электрона ( $\mu^+e^-$ ), прецессирующего с ларморовской частотой, определяемой в основном магнитным моментом электрона. Другой сигнал относится к положительному мюону, находящемуся в диамагнитном окружении. В случае воды, скорее всего, мюон находится в ее молекуле, где один атом водорода замещен мюонием:  $\text{MuOH}$ . В диамагнитной молекуле мюон ведет себя как свободная частица, прецессирующая с частотой, определяемой магнитным моментом мюона. Отношение частот прецессии  $F_{\text{Mu}}/F_\mu$  составляет 103. Сказанное выше в равной степени относится как к обычной воде –  $\text{H}_2\text{O}$ , так и к тяжелой воде –  $\text{D}_2\text{O}$ . Таким образом, при изучении феррожидкости на основе растворителя, где могут существовать две фракции (“мюониевая” и “мюонная”), мы имеем два сорта магнитных зондов. Для каждого из них могут быть определены указанные выше измеряемые в  $\mu$ SR-методе параметры.

В первой работе [12] было исследовано поведение мюонной компоненты в феррожидкости на основе магнетита  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  в среде тяжелой воды  $\text{D}_2\text{O}$  в области температур  $114 \div 300$  К в нулевом и поперечном

направлению спина мюона магнитном поле. Во всех случаях наблюдалась значительная релаксация поляризации мюона, в отсутствие поля проявились нерегулярности в поведении амплитуды поляризации и скорости ее релаксации в области температур  $240 \div 255$  К, в поперечном поле имел место заметный сдвиг частоты прецессии спина мюона по отношению к частоте прецессии в чисто диамагнитном образце меди. В настоящей работе детально исследуются температурные зависимости амплитуд, скоростей релаксации и частот прецессии спинов мюонной и мюониевой компонент в аналогичном образце магнитной жидкости при различных поперечных магнитных полях и проводится сравнение полученных результатов с данными для чистой тяжелой воды  $D_2O$ .

## Эксперимент

Эксперименты выполнялись в пучке положительных мюонов, поляризованных вдоль направления своего импульса, на синхроциклотроне ПИЯФ РАН (Гатчина). Импульс мюонов составлял 90 МэВ/с, импульсный разброс пучка  $\Delta p/p = 0,06$  (FWHM), степень поляризации пучка 90%.

Измерения образцов с феррожидкостью и с тяжелой водой проводились на  $\mu SR$ -установке ПИЯФ [15]. В этой установке позитроны от  $\mu^+ \rightarrow e^+$ -распада регистрировались телескопом из сцинтилляционных счетчиков, расположенном в направлении пучка мюонов после исследуемого образца. Образец находился в поперечном по отношению к направлению спина мюона магнитном поле (TF), создаваемом катушками Гельмгольца. Источник питания катушек Гельмгольца обеспечивает стабильность установленного тока (поля) на уровне  $\sim 10^{-3}$ . Однородность магнитного поля в центральной области магнитной системы в объеме  $200 \text{ см}^3$  была не хуже  $10^{-4}$ . Внешние рассеянные магнитные поля компенсировались дополнительными катушками до уровня  $\sim 0,05$  Гс. Образцы размещались в криостате, где их охлаждение производилось парами испаряющегося жидкого гелия. Стабильность установившейся температуры в образце обеспечивалась в пределах  $\pm 0,1$  К.

Исследуемая феррожидкость  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  представляла собой раствор нанодисперсного магнетита  $Fe_3O_4$  в тяжелой воде  $D_2O$ , стабилизированного ПАВ – додецилбензолсульфатом кислоты 2DBS. Магнитные частицы вместе с окружающей их стабилизирующей кислотой имеют средний диаметр  $d = 118,9 \text{ \AA}$  со стандартным отклонением  $\sigma = 6,7 \text{ \AA}$ . Объемная концентрация магнитных частиц составляет 4,7%. Магнитное ядро из  $Fe_3O_4$  имеет средний диаметр  $70 \text{ \AA}$ . В 1 мл феррожидкости находится 0,244 г магнетита, а на 1 г  $Fe_3O_4$  приходится 0,3 г ПАВ.

Феррожидкость находилась в кювете из меди с суммарной толщиной стенок кюветы 100 мкм в направлении пучка мюонов. Количество исследуемого вещества в направлении пучка составляло около 1,2 г/см<sup>2</sup>. Измерения на образце Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/2DBS/D<sub>2</sub>O проводились в интервале температур 26 ÷ 300 К. При каждой температуре в гистограммы временного распределения позитронов  $\mu^+ \rightarrow e^+$ -распада набиралось примерно  $2 \cdot 10^7$  событий.

Экспериментальные данные анализировались с помощью функции, обычно используемой для описания временных спектров, где присутствуют мюонный и мюониевый прецессионные сигналы:

$$N(t) = N(0) \cdot \exp(-t/\tau_\mu) \cdot [1 + G_\mu(t) + G_{\text{Му}}(t) + G_B(t)] + B, \quad (1)$$

где  $N(0)$  – нормирующий множитель,  $\tau_\mu$  – время жизни мюона (2,2 мкс),  $B$  – фон случайных совпадений,  $G_\mu(t)$ ,  $G_{\text{Му}}(t)$  и  $G_B(t)$  – функции, описывающие мюонный (диамагнитный), мюониевый и фоновый прецессионные сигналы соответственно. Сигнал  $G_B(t)$  представляет собой вклад фона от остановок мюонов в пластике входного мюонного детектора, во входных окнах криостата и в медных стенках контейнера исследуемого образца. Вклад данного фона определялся по скорости релаксации мюонной поляризации в феррожидкости при температуре образца 300 К в нулевом внешнем магнитном поле и был равен величине  $0,031 \pm 0,004$ . Вклад этого фона оставался неизменным для всех исследованных образцов. Фон случайных совпадений ( $B$ ) определялся по обработке начального участка временного спектра (до момента распада мюона) и не превышал величины 2%.

Функции  $G_\mu(t)$  и  $G_{\text{Му}}(t)$  при анализе экспериментальных данных принимались в виде

$$G_{\mu,\text{Му}}(t) = a_{\mu,\text{Му}} \cdot \exp(-\lambda_{\mu,\text{Му}} \cdot t) \cdot \cos(2 \cdot \pi \cdot F_{\mu,\text{Му}} \cdot t + \varphi_{\mu,\text{Му}}), \quad (2)$$

где  $a_{\mu,\text{Му}}$ ,  $\lambda_{\mu,\text{Му}}$ ,  $F_{\mu,\text{Му}}$  и  $\varphi_{\mu,\text{Му}}$  представляют коэффициенты асимметрии углового распределения позитронов при распаде поляризованных мюонов, скорости релаксации поляризации, частоты и фазы ларморовской прецессии мюона или мюония соответственно.

Полезные события (с типичной скоростью счета 300 с<sup>-1</sup>) записывались в гистограмму с помощью преобразователя время-код, имеющего диапазон прямого преобразования 10 мкс при ширине канала 4,9 нс.

Эксперименты проводились в различных внешних магнитных полях: в слабом поперечном спине мюона поле 8 Гс и в сильном поперечном поле 280 Гс. Измерения на феррожидкости в поле 280 Гс проводились в двух

режимах: FC – охлаждение образца происходило при включённом внешнем поле 280 Гс; ZFC – охлаждение образца производилось в нулевом магнитном поле. При обработке экспериментальных данных в больших магнитных полях в формуле (1) член  $G_{\text{Mn}}(t) = 0$ , так как частоты мюониевой прецессии неразрешимы в данных экспериментальных условиях. Амплитуды ларморовской прецессии мюона (мюония) в исследуемых образцах сравнивались с амплитудой прецессии в образце меди, для которого в поперечном магнитном поле 280 Гс асимметрия составляла  $a_{\text{Cu}} = 0,303 \pm 0,002$ .

### Результаты и обсуждение

Экспериментальные данные по феррожидкости приводятся в сравнении с аналогичными данными для тяжелой воды, которая в образце  $\text{Fe}_3\text{O}_4/2\text{DBS}/\text{D}_2\text{O}$  занимает ~ 95% его объема. Для  $\text{D}_2\text{O}$  были выполнены отдельные измерения при нескольких температурах. Кроме того, для

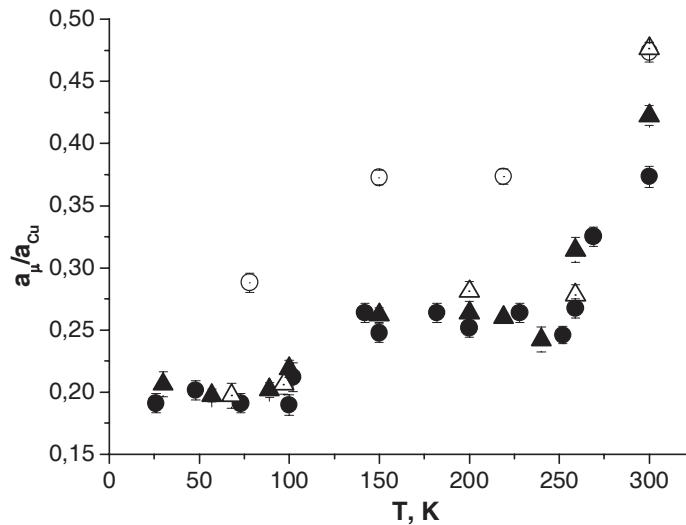


Рис. 1. Зависимость доли асимметрии мюонной компоненты от температуры в образцах  $\text{D}_2\text{O}$  (светлые значки) и  $\text{Fe}_3\text{O}_4/2\text{DBS}/\text{D}_2\text{O}$  (темные значки) во внешних поперечных магнитных полях 280 Гс (круглые точки) и 8 Гс (треугольники)

сравнения привлекаются данные работы [16], в которой проводились более полные исследования  $D_2O$   $\mu SR$ -методом. Как в этой работе, так и у нас исследовались поликристаллические образцы.

На рисунке 1 представлены температурные зависимости  $a_{\mu}/a_{Cu}$  (отношения начальной асимметрии к асимметрии в эталонном образце Cu) для мюонной (диамагнитной) фракции в образцах  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  и  $D_2O$  во внешних магнитных полях  $280 \pm 1$  Гс и  $8 \pm 0,1$  Гс.

Данные для образца  $D_2O$  вполне совместимы с более детальными измерениями, представленными в работе [16]. При комнатной температуре в жидкой фазе наше значение доли мюонной фракции  $0,473 \pm 0,008$  для тяжелой воды близко к значению  $0,57 \pm 0,03$  работы [17]. После замораживания образца наблюдается резкое уменьшение доли мюонной фракции. Скачкообразное изменение начальной поляризации положительных мюонов в точке фазового перехода обычная вода  $H_2O$ –лед наблюдалось впервые в работе [17]. В интервале температур  $100 \div 150$  К как по нашим данным, так и по данным работы [16], в  $D_2O$  имеет место  $20 \div 25\%$  уменьшение доли мюонной фракции.

Температурная зависимость асимметрии мюонной фракции для образца  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  (рис. 1, темные значки) практически повторяет рассмотренную выше температурную зависимость асимметрии для  $D_2O$ . Присутствие магнитных наночастиц в феррожидкости приводит к незначительному уменьшению доли диамагнитной фракции при комнатной температуре. Однако в феррожидкости не наблюдается увеличения доли мюонной фракции при переходе от малого внешнего магнитного поля, 8 Гс, к большому полю, 280 Гс. При комнатной температуре в образце  $D_2O$  также нет зависимости доли мюонной компоненты от величины внешнего магнитного поля.

По установленным представлениям [18] диамагнитная фракция в воде интерпретируется как продукт быстрой химической реакции мюона с молекулами среды или продуктами радиолиза в конце его трека с образованием диамагнитной молекулы  $DMuO$ . Не исключена потеря части мюонной компоненты за счет мюонов, попавших в магнитные наночастицы, в область высокого магнитного поля внутри них, и прецессирующих с другой частотой. Это возможно, поскольку доля магнитного материала на пути пучка мюонов составляет  $\sim 0,25$  г/см<sup>2</sup> по отношению к  $\sim 1,2$  г/см<sup>2</sup> композита  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$ . Тем не менее, резкое изменение асимметрии мюонной фракции, характерное для  $D_2O$  при переходе ее из твердого состояния в жидкое ( $3,82$  °С), наблюдается и для данной феррожидкости. Недалеко от точки фазового перехода вода – лед в работе [12] для этой же феррожидкости в отсутствие магнитного поля



обнаружена достаточно сложная температурная зависимость как для асимметрии, так для скорости релаксации спина мюона.

Следует отметить особенность в температурной зависимости доли мюонной фракции при изменении напряженности внешнего магнитного поля. При температурах меньших температуры фазового перехода жидкость – лед в образце  $D_2O$  наблюдается зависимость доли мюонной фракции от величины магнитного поля; доля мюонной фракции увеличивается по мере увеличения напряженности внешнего магнитного поля. Этот эффект, возможно, связан с подавлением мюониевой фракции внешним магнитным полем. В феррожидкости не наблюдается зависимости доли мюонной фракции от величины внешнего магнитного поля во всем диапазоне исследуемых температур.

На рисунке 2 показано поведение доли мюониевой фракции ( $2a_{Mu}/a_{Cu}$ ) в зависимости от температуры образцов  $D_2O$  (светлые точки) и феррожидкости (темные точки).

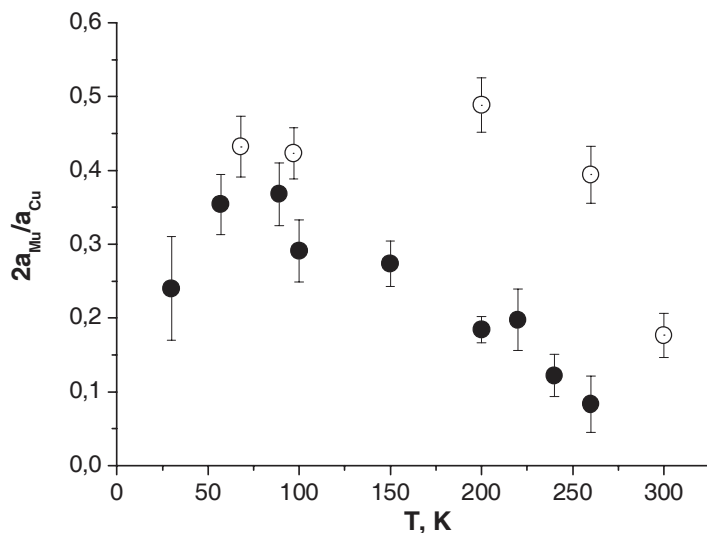


Рис. 2. Зависимость доли асимметрии мюониевой компоненты от температуры в образцах  $D_2O$  (светлые значки) и  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  (темные значки) в слабом поперечном магнитном поле 8 Гс

Следует отметить, что вклад мюониевой компоненты в твердой фазе  $D_2O$  в наших измерениях, оцениваемый как  $0,45 \pm 0,04$  (рис. 2), отличается от значения  $0,63 \pm 0,01$  работы [16] в данном диапазоне температур. Кроме того, из работ [16] и [19] следует, что для поликристаллов льда  $D_2O$  и  $H_2O$  сумма поляризаций  $P_\mu + P_{Mu} = 1$ , что свидетельствует об отсутствии недостающей фракции, которая всегда имеется в жидкой фазе воды. В нашем случае сумма вкладов мюонной ( $a_\mu/a_{Cu} \sim 0,27$ , рис. 1) и мюониевой ( $a_{Mu}/a_{Cu} \sim 0,45$ , рис. 2) компонент во льду заметно отличается от единицы. Наличие недостающей фракции может быть объяснено тем, что в наших измерениях использовалась тяжелая вода, не прошедшая специальной очистки. Причиной такой ситуации может быть присутствие в воде кислорода, с которым мюоний вступает в химическую реакцию или взаимодействует посредством спин-обменного механизма [19].

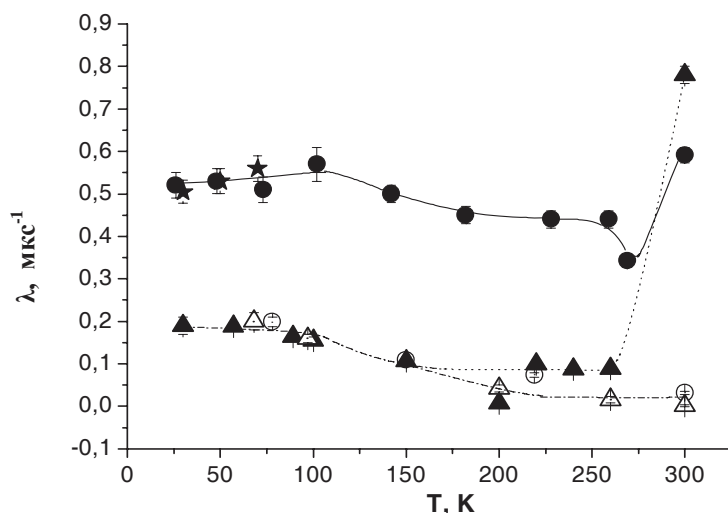


Рис. 3. Зависимость скорости релаксации спина мюона от температуры образцов  $D_2O$  (светлые значки) и  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  (темные значки) в поперечных магнитных полях 8 Гс (треугольники) и 280 Гс (точки); звездочками отмечены результаты ZFC-измерений во внешнем магнитном поле 280 Гс. Линии проведены для лучшей визуализации соответствующих температурных зависимостей

Наибольшие отличия проявляются в поведении асимметрии  $a_{\text{Mu}}/a_{\text{Cu}}$  мюониевой фракции в  $\text{Fe}_3\text{O}_4/2\text{DBS}/\text{D}_2\text{O}$  по сравнению с  $\text{D}_2\text{O}$ . В образце  $\text{Fe}_3\text{O}_4/2\text{DBS}/\text{D}_2\text{O}$  в твердой фазе (рис. 2) наблюдается значительный “вклад” недостающей мюониевой фракции, составляющий  $\sim 50\%$  от поляризации начального мюонного пучка в области температур  $\sim 250$  К. Величина недостающей мюониевой фракции доходит до нуля при  $T \approx 50$  К. Даже учитывая отмеченный выше вклад в недостающую фракцию от тяжелой воды, видим значительное влияние магнитных частиц на поведение мюониевой фракции в образце  $\text{Fe}_3\text{O}_4/2\text{DBS}/\text{D}_2\text{O}$ . Возможной причиной уменьшения доли мюониевой фракции может быть также наличие в композите органического вещества ПАВ, количество которого на пути пучка мюонов составляет  $\sim 0,07$  г/см<sup>2</sup>. Возникший в воде мюоний может диффундировать к ПАВ, образуя замещенные мюонием парамагнитные радикалы, сигнал от которых не наблюдается в данных экспериментальных условиях. При низких температурах вклад от диффузии мюония уменьшается, что приводит к уменьшению величины недостающей мюониевой фракции.

На рисунке 3 представлены температурные зависимости скорости релаксации мюонной компоненты в слабом и сильном магнитных полях для образцов  $\text{Fe}_3\text{O}_4/2\text{DBS}/\text{D}_2\text{O}$  и  $\text{D}_2\text{O}$ .

Сравнивая наши результаты по релаксации спинов мюона в  $\text{D}_2\text{O}$  с результатами работы [16], где исследовалась тщательно очищенная тяжелая вода, видим, что здесь нет заметных расхождений. Релаксация мюонной фракции (рис. 3, светлые значки) в  $\text{D}_2\text{O}$  в жидкой и твердой фазах при  $T > 200$  К незначительна. Она, как и в работе [16], меньше, чем  $0,05$  мкс<sup>-1</sup>. При низких температурах наблюдается значительное увеличение скорости релаксации. То же самое имеет место и в работе [16].

В образце  $\text{Fe}_3\text{O}_4/2\text{DBS}/\text{D}_2\text{O}$  (рис. 3, темные значки) наибольшее отличие от данных для  $\text{D}_2\text{O}$  наблюдается в скорости релаксации спина мюона в области температур  $200 \div 260$  К при измерениях в магнитном поле 8 Гс и во всем диапазоне температур при измерениях в поле 280 Гс. В поле 8 Гс скорость релаксации находится на уровне  $\sim 0,1$  мкс<sup>-1</sup>, а при 280 Гс существенно увеличивается: до  $\sim 0,5 \div 0,8$  мкс<sup>-1</sup>. В твердой фазе молекулы “мюониевой” воды  $\text{MuDO}$ , как и все остальные молекулы, неподвижны. Помимо диполь-дипольных взаимодействий с дейтроном и с дейтронами соседних молекул, приводящих к медленной деполяризации, мюон испытывает дополнительную деполяризацию за счет взаимодействия с беспорядочными магнитными полями магнитных наночастиц.

Звездочками отмечены результаты ZFC-измерений во внешнем магнитном поле 280 Гс. Видим хорошее согласие с данными FC-измерений в указанном диапазоне температур.

На рисунке 4 показана температурная зависимость скорости релаксации спина мюония для феррожидкости (темные значки) и D<sub>2</sub>O (светлые значки) в поперечном магнитном поле 8 Гс. Как видно из рисунка, эта характеристика для D<sub>2</sub>O практически не зависит от температуры и во всем температурном диапазоне приблизительно составляет  $\sim 2,5 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ , что сравнимо со значениями  $2 \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$  [16] для этого же температурного интервала и  $(2,0 \pm 0,2) \cdot 10^6 \text{ с}^{-1}$ , полученной при 77 К соответственно [20].

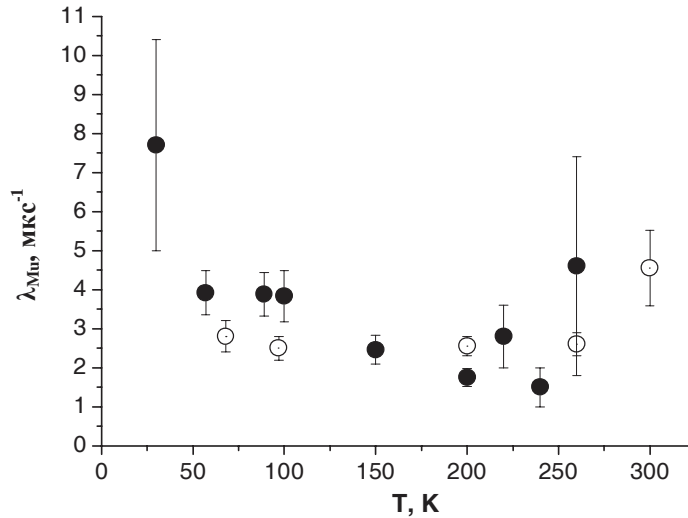


Рис. 4. Зависимость скорости релаксации спина мюония от температуры образцов D<sub>2</sub>O (светлые значки) и Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>/2DBS/D<sub>2</sub>O (темные значки) в поперечном магнитном поле 8 Гс

Различие в поведении скорости релаксации спина мюония в феррожидкости по сравнению с тяжелой водой трудно оценить из-за больших ошибок измерений. Однако в высокотемпературной области, где диффузия мюония наиболее интенсивна, скорости релаксации мюониевой компоненты в феррожидкости и в D<sub>2</sub>O практически одинаковы. Возможное увеличение скорости релаксации при T < 150 К может быть связано с замедлением диффузии мюония.

На рисунках 5 ÷ 7 представлены температурные зависимости частот прецессии спинов мюона и мюония. Измерения этих характеристик проведены в условиях охлаждения образцов в отсутствие магнитного поля (ZFC-процедура). Для всех зависимостей характерно уменьшение частоты прецессии мюонной (мюониевой) компоненты в феррожидкости по сравнению с  $D_2O$ . Это означает, что внешнее магнитное поле, испытываемое мюоном (мюонием), находящимся преимущественно в дисперсионной среде  $D_2O$ , несколько компенсируется рассеянными полями элементарных наномангнетиков, выстраивающихся по направлению внешнего поля.

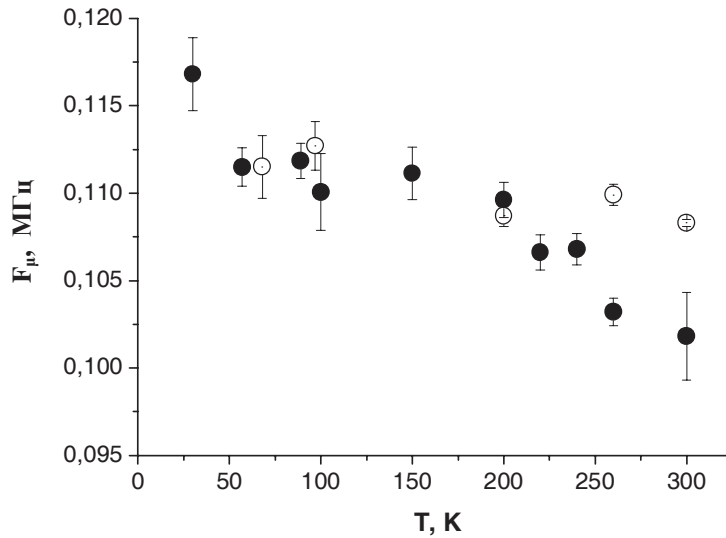


Рис. 5. Зависимость частоты прецессии спина мюона от температуры в образцах  $D_2O$  (светлые значки) и  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  (темные значки) во внешнем поперечном магнитном поле с напряженностью 8 Гс

Частоты прецессии спина мюона, полученные в слабом магнитном поле 8 Гс в области температур 50 ÷ 150 К для образцов  $D_2O$  и  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  в пределах ошибок совпадают (рис. 5). По-видимому, в этом случае температура образца лежит ниже температуры блокировки  $T_b$ .

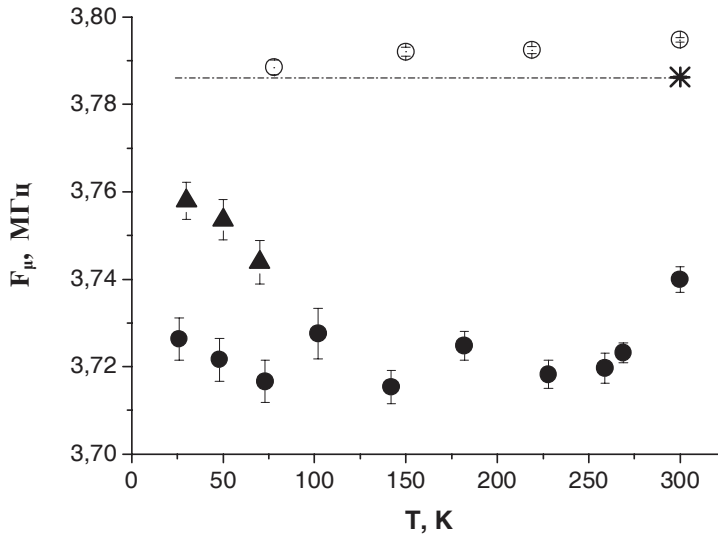


Рис. 6. Зависимость частоты прецессии спина мюона от температуры образцов  $D_2O$  (светлые значки) и  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  (темные значки) во внешнем поперечном магнитном поле 280 Гс. Треугольниками показаны результаты ZFC-измерений. Звездочкой показана частота мюонной прецессии в эталонном медном образце. Измерения при температуре 300 К на всех указанных образцах производились без выключения магнитного поля

В этих условиях направление намагниченности каждой наночастицы выстраивается вдоль ее оси “легкого” намагничивания [2]. Магнитное поле 8 Гс недостаточно, чтобы преодолеть энергетический барьер, необходимый для отклонения направления намагниченности наночастицы от “легкой” оси. Беспорядочная ориентация осей легкого намагничивания приводит к погашению магнитного поля, создаваемого наночастицами. Различие в частотах намечается при  $T > 150$  К, где частота прецессии спина мюона в  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  заметно меньше частоты такой же прецессии в  $D_2O$ . При температурах выше температуры блокировки в результате тепловой активации магнитные моменты наночастиц имеют возможность отклоняться от оси “легкого” намагничивания и выстраиваться в

направлении внешнего магнитного поля. Сдвиг частоты прецессии спина мюона в феррожидкости по отношению к  $D_2O$  в поле 8 Гс при  $T \geq 250$  К составляет приблизительно 7%, что соответствует  $\sim 0,5$  Гс.

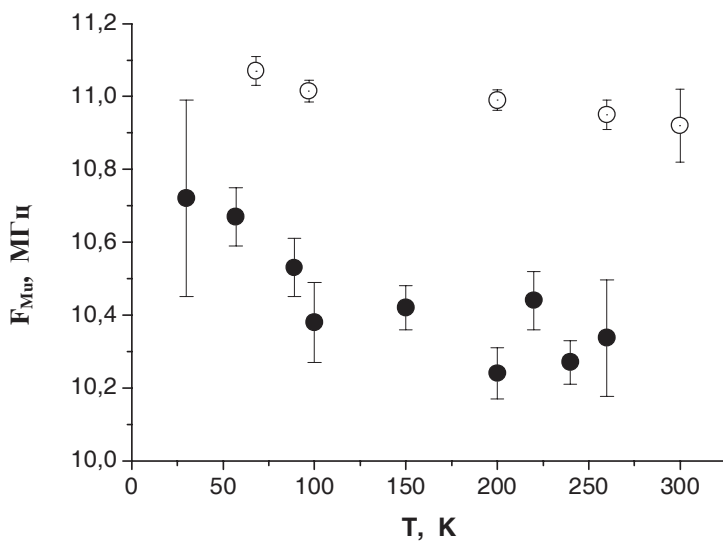


Рис. 7. Зависимость частоты прецессии спина мюония от температуры в образцах  $D_2O$  (светлые точки) и  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  (черные точки) во внешнем поперечном магнитном поле 8 Гс (поле определено по частоте прецессии спина мюона в медном образце)

Более точно частоты мюонной прецессии можно измерить при больших магнитных полях. На рисунке 6 представлены результаты таких измерений для образцов  $Cu$ ,  $D_2O$  и  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  во внешнем магнитном поле 280 Гс. Частота прецессии спина мюона для образца  $Cu$  измерена только при комнатной температуре. Мы наблюдаем практически постоянный сдвиг частот для  $D_2O$  и  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  приблизительно в 1,5%, что соответствует полю  $\sim 4$  Гс. При комнатной температуре этот сдвиг меньше, что может быть объяснено частичным нарушением выстроенности магнитных моментов наночастиц из-за их броуновского вращения. Наблюдается зависимость величины сдвига частот от условия охлаждения образца. Так, при ZFC-процедуре (охлаждение в нулевом

внешнем магнитном поле), сдвиг частот в два раза меньше по сравнению со сдвигом частот, наблюдаемым в FC-измерениях (охлаждение во внешнем магнитном поле).

Частота прецессии спина мюония (рис. 7) для образца D<sub>2</sub>O в интервале температур 50 ÷ 300 К в магнитном поле 8 Гс практически не зависит от температуры. Частота прецессии спина мюония в феррожидкости в высокотемпературной области меньше такой же частоты (как и для мюона, см. рис. 5) приблизительно на 7%, что соответствует компенсации внешнего поля на ~ 0,5 Гс. Намечающееся уменьшение сдвига частот в низкотемпературной области свидетельствует о беспорядочном замораживании магнитных моментов наночастиц при температурах ниже температуры блокировки.

Отметим еще один экспериментальный факт. Анализ экспериментальных данных, представленных на рисунках 5 и 7, показывает, что при T < 200 К теоретическое отношение частот прецессии спинов мюония и мюона, равное 103, не выполняется. Так, для феррожидкости имеем F<sub>Mu</sub>/F<sub>μ</sub> = 95 ± 1, а для образца D<sub>2</sub>O аналогичное отношение равно 100 ± 1.

Обработка результатов измерений во внешнем магнитном поле 280 Гс на образце феррожидкости дает асимметрию распределения a = 0,134 ± 0,002 и скорость релаксации поляризации λ = 0,58 ± 0,02 мкс<sup>-1</sup>. При этом не удаётся выделить вклад от фоновых источников (стенки камеры, содержащей феррожидкость, входные и выходные окна криостата, пластик задающего счетчика).

При наличии внешнего однородного магнитного поля в феррожидкости наномангнетики выстраиваются своими магнитными моментами по направлению внешнего поля. Рассеянные магнитные поля от наномангнетиков суммируются. Появляется среднее рассеянное магнитное поле, которое уменьшает действующее внешнее однородное магнитное поле в самой феррожидкости. Образец феррожидкости становится источником дополнительного магнитного поля по отношению к окружающим его объектам. Это приводит к изменению частоты прецессии спина мюона, остановившегося в стенках контейнера, а самое главное – к увеличению скорости релаксации поляризации мюонов. В результате всех этих процессов μSR-параметры для феррожидкости и для медных стенок контейнера, измеренные во внешнем магнитном поле, стали не различимы.

В то же время обработка временного спектра, измеренного при температуре образца феррожидкости 300 К, в нулевом внешнем магнитном поле при фиксированной полной асимметрии (a = 0,134 ± 0,002), указала на наличие двух компонент в функции релаксации поляризации (рис. 8) со



следующими параметрами:  $a_1 = 0,030 \pm 0,004$ ;  $a_2 = 0,104 \pm 0,004$ ;  $\lambda_1 = 0,08 \pm 0,04 \text{ мкс}^{-1}$ ;  $\lambda_2 = 1,5 \pm 0,1 \text{ мкс}^{-1}$ . Функция релаксации поляризации, отображённая на рисунке 8, соответствует полному ансамблю мюонов, остановившихся в исследуемом образце и в соответствующих элементах криостата.

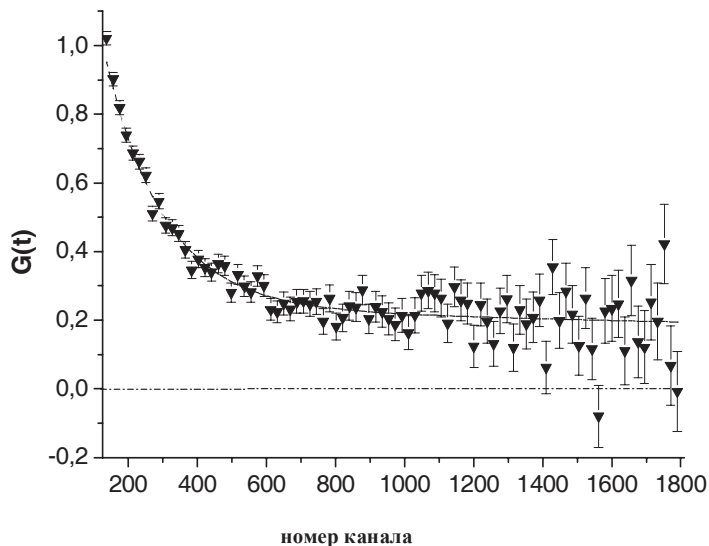


Рис. 8. Функция релаксации поляризации мюонов в феррожидкости при температуре образца 300 К в нулевом внешнем магнитном поле; 1 канал = 4,9 нс

Можно сделать предположение, что в феррожидкости присутствуют рассеянные магнитные поля от наномагнетиков, ориентированных в объеме образца случайным образом в отсутствие внешнего магнитного поля. Наличие рассеянных магнитных полей приводит к увеличению скорости релаксации поляризации мюонов, остановившихся в феррожидкости. Влияние наномагнетиков на медную среду контейнера при этом ничтожно мало. Тогда скорости релаксации поляризации мюонов, остановившихся в феррожидкости и в медной оболочке контейнера, отличаются друг от друга, и появляется возможность определить вклад фона в суммарную статистику. Следовательно, доля асимметрии  $a_1 = 0,030 \pm 0,004$  является вкладом фона в полную наблюдаемую асимметрию распада мюонов, остановившихся в феррожидкости и в

стенках контейнера. Так как условия эксперимента остаются неизменными при работе со всеми образцами, то и вклад фона можно считать неизменным для всех образцов; последнее замечание особенно важно при работе с тяжелой водой.

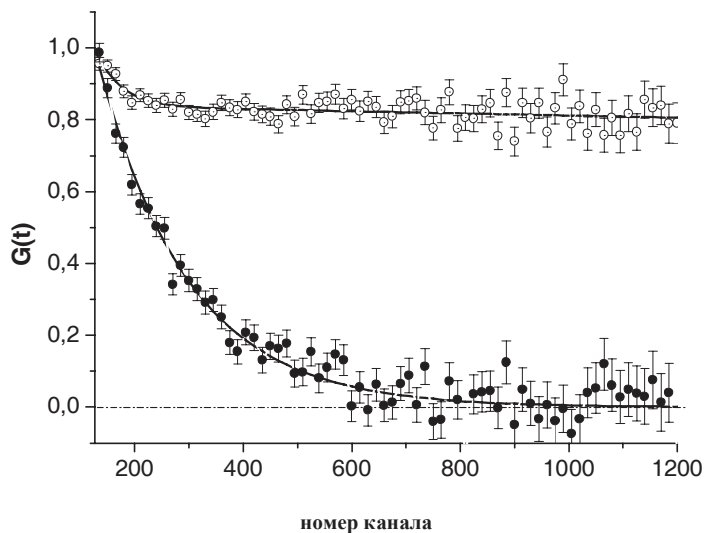


Рис. 9. Функции релаксации поляризации мюонов, остановившихся в образцах  $D_2O$  (светлые значки) и феррожидкости (черные значки) при температуре образца 300 К в нулевом внешнем магнитном поле; 1 канал = 4,9 нс

Попытаемся провести сравнительный анализ  $\mu SR$ -параметров для феррожидкости и тяжелой воды. На рисунке 9 показано поведение функций релаксации для образцов феррожидкости (черные значки) и тяжелой воды ( $D_2O$ ) (светлые значки) при температуре образцов 300 К. Здесь при обработке экспериментальных данных учтен вклад фона, источниками которого являются окна криостата и камеры.

Для образца  $D_2O$  функция релаксации состоит из двух компонент: быстрой компоненты со скоростью затухания  $\lambda_{M\mu} = 4,9 \pm 1,1 \text{ мкс}^{-1}$  и асимметрией  $a_{M\mu} = 0,032 \pm 0,004$  и медленной компоненты со скоростью затухания  $\lambda_{\mu} = 0,010 \pm 0,003 \text{ мкс}^{-1}$  и асимметрией  $a_{\mu} = 0,131 \pm 0,004$ . По-видимому, быстрая компонента связана с существованием мюония в

чистой тяжёлой воде, а медленная компонента соответствует релаксации спина мюона в диамагнитном соединении.

В феррожидкости видим одну компоненту со скоростью релаксации  $\lambda_{\mu} = 1,5 \pm 0,1 \text{ мкс}^{-1}$  и асимметрией  $a_{\mu} = 0,104 \pm 0,004$ . Мюониевую компоненту в функции релаксации выделить не удаётся. Следует напомнить, что скорость релаксации поляризации мюонной компоненты в феррожидкости во внешнем магнитном поле 280 Гс была  $\lambda_{\mu} = 0,60 \pm 0,02 \text{ мкс}^{-1}$ . Видим зависимость параметра релаксации  $\lambda_{\mu}$  от величины внешнего магнитного поля. Для  $\text{D}_2\text{O}$  такой зависимости не наблюдается:

$$\lambda_{\mu}(280 \text{ Гс}) = 0,031 \pm 0,003 \text{ мкс}^{-1} \quad \text{и} \quad \lambda_{\mu}(0 \text{ Гс}) = 0,010 \pm 0,003 \text{ мкс}^{-1}.$$

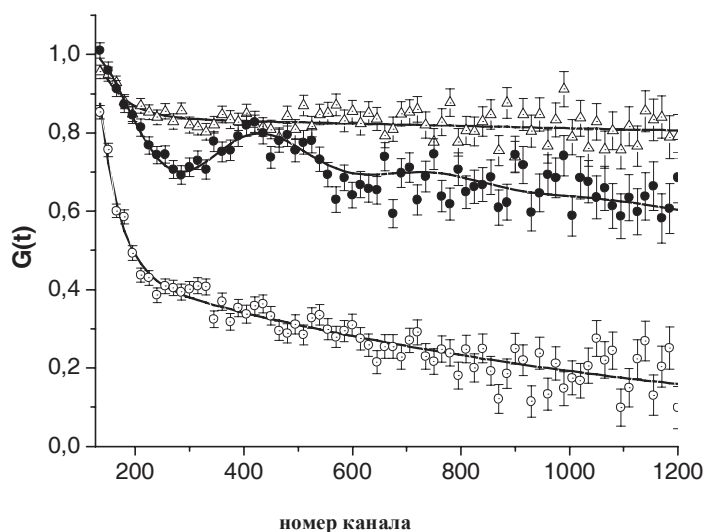


Рис. 10. Функции релаксации поляризации мюонов в образце  $\text{D}_2\text{O}$  при температурах образца 300 К (треугольники), 200 К (черные точки) и 97 К (светлые точки) в нулевом внешнем магнитном поле; 1 канал = 4,9 нс

Значительная разница в скоростях релаксации поляризации мюонной компоненты в тяжелой воде и феррожидкости в нулевом внешнем магнитном поле, очевидно, связана с наличием в феррожидкости рассеянных магнитных полей произвольно ориентированных магнитных

диполей (наномагнитиков). Во внешнем магнитном поле наномагнетики феррожидкости ориентируются по полю, что приводит к эффективному уменьшению разброса магнитного поля, действующего на мюон.

При температурах меньших температуры перехода жидкость – лед исследуемые образцы становятся поликристаллами. Появляются кристаллические неоднородные электрические поля, что приводит к усложнению процессов взаимодействия мюона (мюония) со средой. На рисунке 10 показаны функции релаксации поляризации мюонов, остановившихся в образце  $D_2O$ , при температурах образца 300 К, 200 К, 97 К.

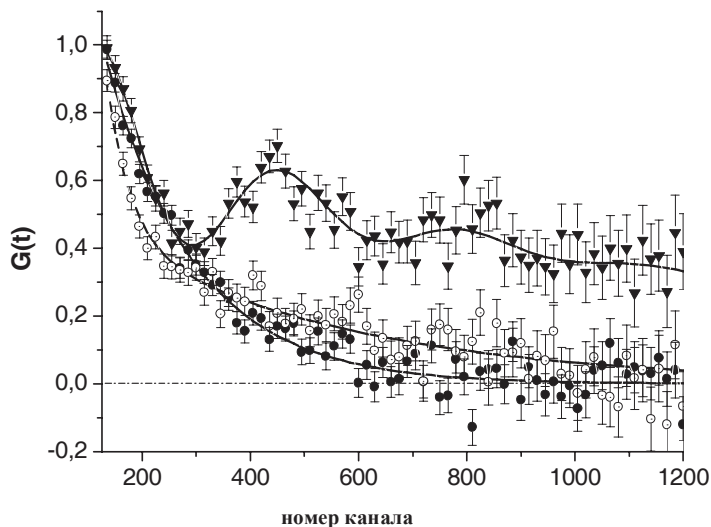


Рис. 11. Функции релаксации поляризации мюонов в образце феррожидкости в нулевом внешнем магнитном поле при температурах 300 К (черные точки), 215 К (треугольники), 97 К (светлые точки); 1 канал = 4,9 нс

Видим, что функции релаксации во всех указанных случаях состоят из двух компонент. При температурах 300 К и 97 К – это сумма двух экспонент с разными скоростями затухания. При температуре образца 200 К функция релаксации представляет собой сумму осциллирующего и экспоненциально затухающего слагаемых. Амплитуды быстро затухающих экспонент и осциллирующего слагаемого соответствуют доли мюониевой

компоненты в общем процессе релаксации мюонной поляризации при соответствующих температурах образца. Медленно затухающие слагаемые соответствуют доле диамагнитной (мюонной) компоненты в релаксационном процессе.

Более подробные измерения были выполнены на образце феррожидкости. Функции релаксации поляризации мюонов в феррожидкости в нулевом внешнем магнитном поле показаны на рисунке 11.

Структуры функций релаксации для образцов  $D_2O$  и феррожидкости  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  подобны между собой, за исключением температуры 300 К, при которой в случае феррожидкости не наблюдается сигнал от мюониевой компоненты и скорость релаксации диамагнитной компоненты значительно выше, чем в тяжелой воде.

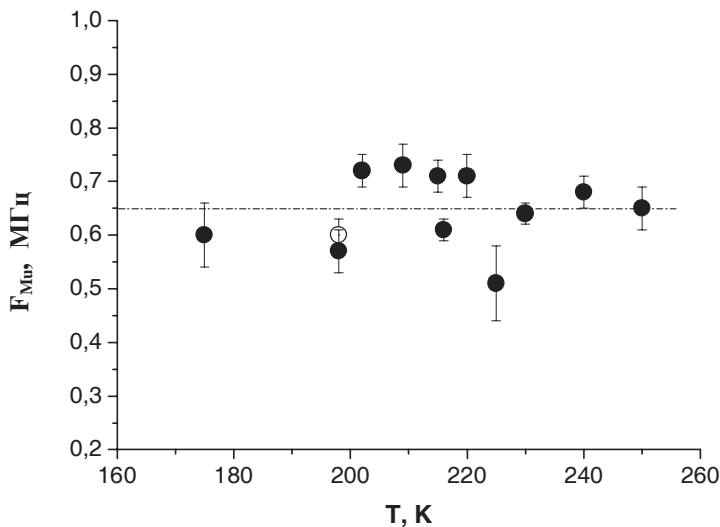


Рис. 12. Зависимость частоты осцилляций в образцах феррожидкости (черные точки) и  $D_2O$  (светлая точка) от температуры образцов в нулевом внешнем магнитном поле

Осцилляции с частотой примерно равной  $0,65 \pm 0,05$  МГц в нулевом внешнем магнитном поле наблюдаются для образца феррожидкости в интервале температур  $170 \div 250$  К (рис. 12). Для образца  $D_2O$  в указанном

интервале температур измерения сделаны только при температуре образца 200 К; наблюдаемая частота осцилляций при этой температуре для данного образца равна  $0,62 \pm 0,02$  МГц.

На рисунке 12 демонстрируется поведение наблюдаемой частоты осцилляций в образце феррожидкости при изменении температуры образца.

Аналогичные осцилляции наблюдались в монокристаллах льда тяжелой и обычной воды в нулевом внешнем магнитном поле [21]. Частота осцилляций была  $0,63 \pm 0,01$  МГц, что хорошо согласуется с результатами наших измерений. Причиной появления таких осцилляций является взаимодействие квадрупольного момента атома мюония с неоднородным электрическим полем кристаллической решетки льда.

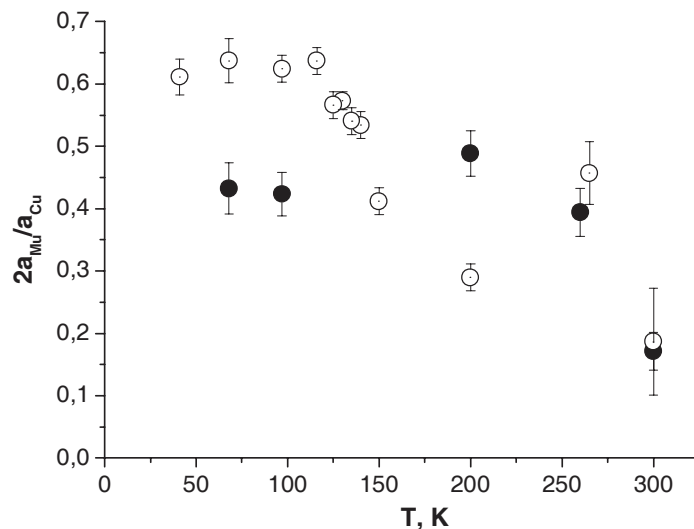


Рис. 13. Зависимость полярности (доли) мюониевой компоненты от температуры образца  $D_2O$ . Черные точки — измерения производились в магнитном поле 8 Гс, светлые точки — измерения проведены в нулевом внешнем магнитном поле

Итак, быстрая компонента в функции релаксации мюонной полярности в отсутствие внешнего магнитного поля связана с наличием мюония в исследуемых образцах, а медленная компонента, по-видимому,

связана с процессом деполяризации диамагнитного состояния мюона в веществе. Оказалось, что мюониевая и мюонная компоненты в нулевом внешнем магнитном поле достаточно хорошо разделяются между собой по скорости релаксации, за исключением температуры 300 К для феррожидкости. Есть возможность провести сопоставление экспериментальных данных, полученных при измерениях во внешнем магнитном поле и без поля. На рисунке 13 демонстрируется зависимость поляризации мюониевой компоненты от температуры образца  $D_2O$  во внешнем магнитном поле с напряженностью 8 Гс (черные точки) и в нулевом поле (светлые точки).

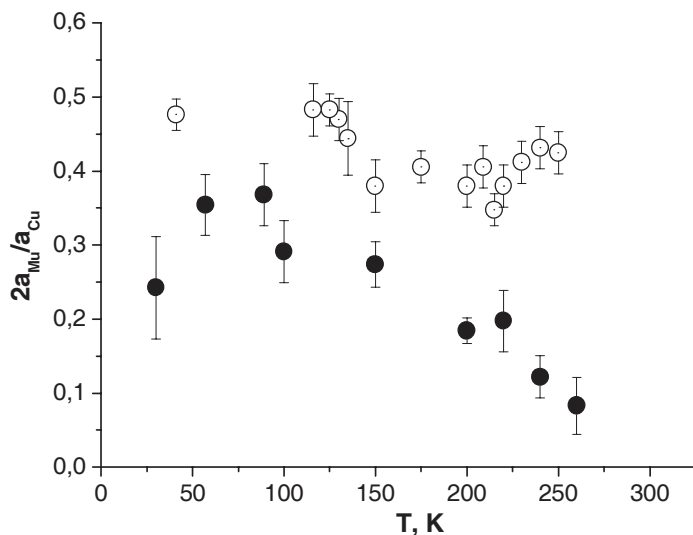


Рис. 14. Зависимость поляризации (доли) мюониевой компоненты от температуры образца  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$ . (Черные точки – измерения производились в магнитном поле 8 Гс; светлые точки – измерения проведены в нулевом внешнем магнитном поле)

Наблюдается хорошее согласие в поведении мюониевой поляризации при высоких температурах образца ( $> 250$  К). При более низких температурах мюониевая поляризация при наличии слабого внешнего магнитного поля остаётся практически постоянной величиной, в то время как поляризация в отсутствии внешнего магнитного поля

проявляет немонотонное поведение в зависимости от температуры образца  $D_2O$ . В области низких температур ( $< 120$  K) доля поляризации мюониевой компоненты в образце  $D_2O$  в отсутствие внешнего магнитного поля значительно больше поляризации, наблюдаемой во внешнем поле.

Совершенно по-другому ведет себя поляризация мюониевой компоненты при изменении температуры в образце феррожидкости ( $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$ ) (рис. 14). Так, в области высоких температур образца ( $> 150$  K) мюониевая поляризация в отсутствие внешнего магнитного поля значительно выше по сравнению с поляризацией, наблюдаемой во внешнем поле, и остается практически неизменной во всем диапазоне температур. В то же время во внешнем магнитном поле видим монотонный рост поляризации по мере понижения температуры образца.

На рисунке 15 демонстрируется поведение скорости релаксации поляризации мюониевой компоненты при изменении температуры образцов  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  и  $D_2O$  в нулевом внешнем магнитном поле.

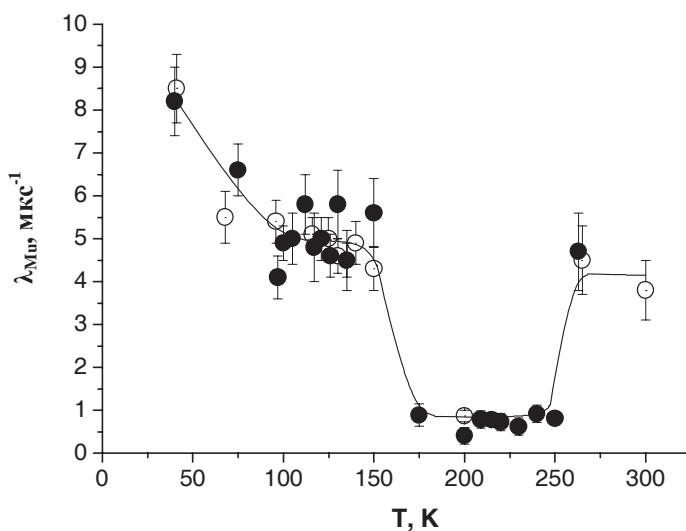


Рис. 15. Зависимость скорости релаксации мюониевой поляризации от температуры образцов  $D_2O$  (светлые точки) и  $Fe_3O_4/2DBS/D_2O$  (черные точки) в нулевом внешнем магнитном поле



В обоих исследованных образцах скорость релаксации мюониевой поляризации при отсутствии внешнего магнитного поля при изменении температуры образцов ведет себя подобным образом. Присутствие в феррожидкости наномагнетиков никакого влияния на скорость релаксации не оказывает. К сожалению, при комнатной температуре (300 К) в феррожидкости мюониевая компонента не наблюдается. Возможно, это связано с большим затуханием из-за присутствия в феррожидкости случайных рассеянных магнитных полей. В области температур  $175 \div 250$  К наблюдается резкое уменьшение скорости релаксации поляризации мюониевой компоненты. В этой же области температур в функции релаксации наблюдаются осцилляции спина мюона (см. рис. 12 и 13).

### **Заключение, выводы**

В заключение отметим, что наблюдается значительное изменение характеристик  $\mu$ SR-спектров в исследованной нами феррожидкости по сравнению с такими же характеристиками в тяжелой воде, которая составляет основу образца.

Доля диамагнитной (мюонной) компоненты в  $D_2O$  зависит от величины внешнего магнитного поля, в феррожидкости такой зависимости не наблюдается (рис. 1).

Наблюдается одинаковая температурная зависимость доли мюонной фракции в феррожидкости и в тяжелой воде, но скорость релаксации мюонной фракции в феррожидкости при  $T > 100$  К существенно выше скорости релаксации этой же фракции в  $D_2O$  (рис. 1 и рис. 3).

В области температур  $100 \div 300$  К во внешнем магнитном поле в феррожидкости наблюдается значительное подавление мюониевой фракции по отношению к аналогичной фракции в  $D_2O$ , причем скорости релаксации поляризации по мюониевой компоненте для обоих образцов практически не зависят от температуры последних (рис. 2, рис. 4).

Для той и другой фракции отклонения в поведении характеристик в феррожидкости от характеристик в образце  $D_2O$  в наибольшей степени наблюдаются в твердой и в жидкой фазах вблизи точки плавления.

В феррожидкости в поперечном спину мюона магнитном поле имеет место сдвиг частоты прецессии спинов, как мюона, так и мюония по отношению к частоте прецессии в  $D_2O$ .

В отсутствие внешнего магнитного поля в образцах феррожидкости и  $D_2O$  в диапазоне температур  $150 \div 250$  К в функциях релаксации поляризации наблюдаются осцилляции, связанные с взаимодействием

квадрупольного момента атома мюония с неоднородным электрическим полем кристаллической решетки льда. Частота осцилляций в указанном диапазоне температур остаётся практически неизменной и не зависит от наличия наночастиц магнетита в поликристаллах льда.

Доля мюониевой компоненты в феррожидкости в отсутствие внешнего магнитного поля составляет существенно большую величину по сравнению с долей, наблюдаемой в слабом внешнем магнитном поле. Особенно это проявляется в области высоких температур ( $> 150$  К). Совершенно иначе ведет себя доля мюониевой компоненты в образце  $D_2O$ .

### Литература

1. С.П. Губин, Ю.А. Кокшаров, Г.Б. Хомугов, Г.Ю. Юрков. Успехи химии, **74** (6) (2005) 539.
2. Ch.H. Vestal, Z. John Zhang. Int. J. of Nanotechnology, **1** (2004) 240.
3. S. Odenbach. J. Phys: Cond. Matt., **16** (2004) R1135.
4. C.G. Shull, E.O. Wollan, W.C. Koehler. Phys. Rev., **84** (1951) 912.
5. C. Boekma, R.L. Lichti, V.A.M. Brabers et al. Phys. Rev. B, **31** (1985) 1233.
6. C. Boekma, R.L. Lichti, K.C.B. Chan et al. Phys. Rev. B, **33** (1986) 210.
7. M. Bimbi, G. Allodi, R. De Renzi Chan et al. Physica B, **374 – 375** (2006) 51.
8. A. Schenck. *Muon Spin Rotation Spectroscopy*. Adam Hilger, Ltd, Bristol, England, (1985) 325 p.
9. V. Aksenov, M. Avdeev, M. Balasoiu et al. Appl. Phys. **A74** (2002) S943.
10. V.L. Aksenov, M.V. Avdeev, M. Balasoiu et al. J. Magn. Magn. Mat. **258 – 259** (2003) 452.
11. M.V. Avdeev, M. Balasoiu, V.L. Aksenov et al. J. Magn. Magn. Mat. **270** (2004) 371.
12. М. Балашою, Д. Бика, Л. Векас и др. Сообщения ОИЯИ Р14-2007-21 (2007) Дубна.
13. Г.Г. Мясичева, Ю.В. Обухов, В.С. Роганов, В.Г. Фирсов. ЖЭТФ, **53**, вып. 2 (8) (1967) 451.
14. P.W. Percival, H. Fischer, M. Camany et al. Chem. Phys. Lett. **39**, № 2 (1976) 333.
15. С.Г. Барсов, С.И. Воробьев, В.П. Коптев и др. ПТЭ, **50**, № 6 (2007) 36.

16. P.W. Percival, E. Roduner, H. Fischer. Chem. Phys. **32** (1978) 353.
17. Г.Г. Мясичева, Ю.В. Обухов, В.С. Роганов и др. Химия высоких энергий, **1** (1967) 387.
18. В.П. Смилга, Ю.М. Белоусов. *Мюонный метод исследования вещества*. М.: «Наука» (1991) 344 стр.
19. Г.Г. Мясичева, Ю.В. Обухов, В.С. Роганов и др. Химия высоких энергий, **14** (1980) 179.
20. И.И. Гуревич, Е.А. Мелешко, И.А. Муратова и др. Письма в ЖЭТФ, **18** (1973) 608.
21. J.H. Brewer. Hyperfine Interactions, **8** (1981) 375.