

УДК 537.636+535.361.1:531.3

Григорук В. І.<sup>1</sup>, д.ф.-м.н., проф  
Коваленко В. Ф.<sup>1</sup>, д.ф.-м.н., проф.,  
Петричук М. В.<sup>1</sup>, к.ф.-м.н., с.н.с.,  
Танигін Б. М.<sup>1</sup>, к.ф.-м.н.,  
Шулима С. І.<sup>1,\*</sup>, аспірант.

### Зміна оптичного пропускання тонких шарів магнітної рідини під дією імпульсного магнітного поля

<sup>1</sup> Київський національний університет імені Тараса Шевченка, 03022, м. Київ, пр-т. Глушкова, 4г,  
\*e-mail: kiw\_88@mail.ru

V. I. Grygoruk<sup>1</sup>, Dr.Sci., Prof.,  
V. F. Kovalenko<sup>1</sup>, Dr.Sci., Prof.,  
M. V. Petrychuk<sup>1</sup>, Ph.D.,  
B. M. Tanygin<sup>1</sup>, Ph.D.,  
S. I. Shulyma<sup>1,\*</sup>, post grad. student.

### Changing of the optical transmission of thin ferrofluid layers under the influence of magnetic field pulses

<sup>1</sup> Taras Shevchenko National University of Kyiv, 03022, Kyiv, Glushkova st., 4g,  
\*e-mail: kiw\_88@mail.ru

*Досліджено вплив імпульсного магнітного поля на оптичне пропускання тонких шарів магнітної рідини. Показано, що під впливом імпульсного магнітного поля, прикладеного нормально до поверхні досліджуваного зразка, відбувається зменшення оптичного пропускання з подальшим поверненням останнього у вихідний стан ще на протязі дії магнітного поля. Досліджено залежності спостереженого ефекту від величини імпульсу для зразків різної товщини.*

*Ключові слова: магнітна рідина, оптичне пропускання, імпульс магнітного поля.*

*The influence of the pulse magnetic field on the optical transmission of thin layers of ferrofluid is investigated. It is shown that under the influence of pulse of magnetic field, applied normal to the sample's surface, take place reduction of the optical transmission with further returning optical transmission to its original state even during the term of the magnetic field. The dependences of the observed effect from magnitude of the pulse for samples with different thickness are investigated. For characterize the dynamics of the optical transmission in the samples the time of decreasing of optical transmission to a minimum value and the time of further increasing its to a level 90% from the signal in the absence of the magnetic field pulse are presented. The time of the reduction and the time of subsequent increasing of the magnitude of the optical transmittance gradually decrease with increasing magnitude of the magnetic field pulse, taking some characteristic threshold value for each sample. The experimental results are explained by the dynamics of the structural rearrangement of magnetic clusters under the influence of magnetic fields and scattering of light on such magnetic clusters.*

*Key Words: ferrofluid, optical transmission, pulse magnetic field.*

Статтю представив д.ф.-м.н., проф. Анісімов І.О.

#### Вступ

В останні роки значно зріс інтерес до нанорозмірних систем, одним із проявів яких є магнітні рідини (МР) – колоїдні суспензії магнітних наночастинок, що дисперговані в рідині-носієві. Ці унікальні розчини мають перспективу для прикладного застосування в різних галузях науки і техніки [3-5].

В МР, навіть при відсутності зовнішнього магнітного поля, можуть виникати кластери магнітних частинок [6, 7]. Розрізняються два основні типи агрегатів в МР: рідинно-крапельні

кластери [8] і жорсткі кластери [9]. Поява таких агрегатів у МР призводить до зміни її фізичних властивостей [10, 11].

В [11] показано, що при освітленні тонких шарів (~200 мкм) МР оптичним випромінюванням видимого ( $\lambda \sim 0.63$  мкм) діапазону, потужність якого (20 мкВт) недостатня для прояву його теплової дії, в ній відбувається поступове ізотропне формування магнітних кластерів, які складаються із великого числа  $\sim 10^7$  колоїдних частинок. Вимкнення випромінювання призводить до релаксації

магнітної кластерної структури МР до початкового «неосвітленого» стану. Вплив слабкого магнітного поля ( $\sim 10$  Е), орієнтованого в площині тонких шарів МР, призводить до напрямленого росту магнітних кластерів, який спостерігається на протязі часу  $\sim 60$  с, вздовж напрямку магнітного поля, що в свою чергу викликає зміни оптичного пропускання такої МР.

Для дослідження зміни оптичних властивостей МР використовується також метод розсіювання оптичного випромінювання. Так, в [12] показано, що під впливом коротких імпульсів ( $\sim 5$  с) магнітного поля, прикладених паралельно до поверхні товстих ( $\sim 10$  мм) шарів МР із жорсткими кластерами, відбувалося різке зростання величини інтенсивності розсіяного випромінювання відразу після включення імпульсу. Ця величина інтенсивності майже не змінювалась під час тривалості імпульсу, тоді як після вимкнення імпульсу відбувалося її повільне зменшення. Час наростання сигналу розсіяного світла складав величину майже на два порядки меншу ніж час його спадання. Така поведінка викликана орієнтацією агрегатів магнітних частинок, що мають несферичну форму, в магнітному полі.

Таким чином оптичне випромінювання може слугувати детектором появи і зміни орієнтації структур магнітних кластерів в МР. Такі результати є важливими для розуміння процесу формування кластерів у МР та їх властивостей.

Особливості формування магнітних структур у МР під дією магнітного поля розглядалися різними іншими методиками (наприклад, [10, 1]), проте нам не відомі дослідження впливу імпульсного магнітного поля, напрямленого нормально до площини тонких шарів МР, методом вимірювання оптичного пропускання цих шарів.

Метою даної роботи є дослідження впливу імпульсного магнітного поля, достатньо значної величини і тривалості, орієнтованого нормально до поверхні тонких шарів МР товщиною від декількох десятків до сотень мікрометрів, на пропускання оптичного випромінювання через ці шари.

#### Умови експерименту

Для дослідження використовувалась МР типу магнетит в керосині, стабілізована олеїною кислотою. Досліджувана МР відзначалась високою стабільністю, ознакою якої є те, що вторинні магнітні кластери формувалися лише під дією зовнішнього магнітного поля, і які руйнувалися при вимкненні поля, утворюючи

однорідну, «класичну» МР, яка складалась із наночастинок та їх первинних кластерів. Експериментальні зразки являли собою контейнери, утворені на поверхні предметного скла, в яких розміщувалась МР. Зверху контейнери були обмежені покрівельним склом. В роботі використовувалися контейнери з товщинами: 50; 120 та 250 мкм, площі поперечного перерізу для яких складали відповідно: 1.27; 0.73 та 0.89  $\text{см}^2$ .

Для дослідження оптичного пропускання тонких шарів МР використовувалась установка, зображена на рис.1.

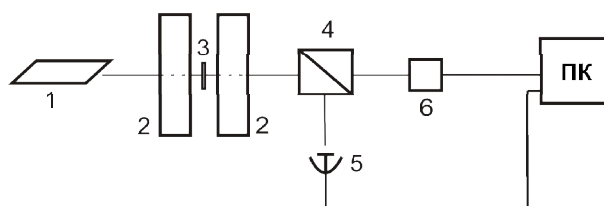


Рис.1. Схема експериментальної установки: 1 – лазер, 2 – електромагніт, 3 – досліджуваний зразок, 4 – напівпрозоре дзеркало, 5 – фотоприймач, 6 – CMOS камера

Як джерело оптичного випромінювання використовувався гелій-неоновий лазер ЛГН-208А. За допомогою електромагніта 2, в феромагнітних осердях якого було зроблено отвори, створювалося магнітне поле, напрямком якого співпадав з напрямком поширення оптичного випромінювання. Досліджувані зразки 3 розміщувалися посередині між полюсами електромагніту, нормально до ліній магнітного поля. Змінюючи величину струму в обмотці електромагніту можна було змінювати величину напруженості магнітного поля від 0 до 3000 Е. Величина напруженості магнітного поля вимірювалася за допомогою датчика магнітного поля SS490. Імпульс магнітного поля формувався за допомогою електромеханічного ключа. В роботі використовувалися імпульси магнітного поля тривалістю  $\tau_{\text{имп}} \sim 40$  с. Неоднорідність магнітного поля в області розміщення зразка не перевищувала 4 %. Лазерний промінь після виходу з електромагніту потрапляв на напівпрозоре дзеркало 4, де він розділявся на два променя, один з яких фокусувався на фотоприймачеві 5, а інший потрапляв на CMOS камеру 6. Електричний сигнал з фотоприймача записувався в пам'ять ПК за допомогою модуля реєстрації напруг Triton 3000 U, який дозволяв проводити виміри із кроком 150 мс. Візуальне

спостереження структури в тонких шарах МР здійснювалося за допомогою CMOS камери, приєднаної до ПК.

Форма імпульсу магнітного поля в області розміщення досліджуваних зразків представлена на вставці рис.2а. Час наростання магнітного поля складав  $\sim 0.4$  с, а час спадання – менше  $0.1$  с.

### Результати експерименту

Проведені дослідження показали, що при ввімкненні імпульсу магнітного поля з деяким запізненням ( $\sim 0.1\tau_{\text{имп}}$ ) спостерігається суттєве зменшення сигналу оптичного пропускання для досліджуваних зразків МР. Таке зменшення спостерігається на протязі деякого періоду часу ( $\tau_1$ ), а потім самовільно ще під час дії імпульсу

поля відбувається збільшення оптичного пропускання (рис. 2). Як видно, такий перехід відбувається достатньо швидко, а сам процес збільшення оптичного пропускання, який проходить більш повільно, ніж процес зменшення оптичного пропускання, будемо характеризувати величиною часу  $\tau_2$ . Вимикання імпульсу призводить до повернення структури у початковий стан, при цьому спостерігається деякий перехідний процес (рис. 2).

Відносна зміна інтенсивності пропускання  $\Delta I/I_0$ , при величині імпульсу магнітного поля напруженістю  $520$  Е, для зразків товщиною  $50$  мкм складала величину  $\sim 82\%$ , а для зразків товщиною  $250$  мкм –  $\sim 90\%$ .

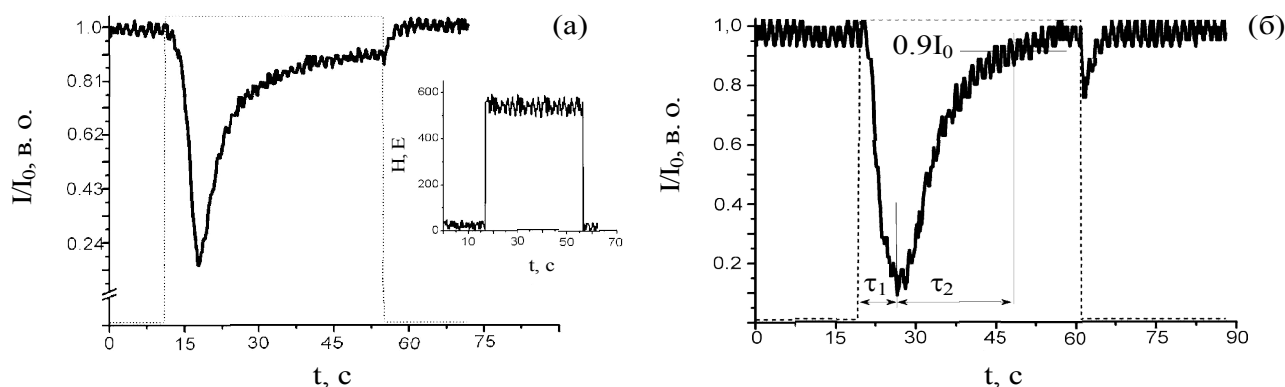


Рис.2. Відносна зміна інтенсивності оптичного пропускання шару МР під впливом імпульсу магнітного поля величиною  $520$  Е (вставка рис.2а.) для зразків товщиною: а)  $50$  мкм; б)  $250$  мкм. Пунктиром показано контур зміни електричного струму в котушках електромагніту;  $I_0$  – інтенсивність світла, що проходить через зразок, при відсутності магнітного поля.

Результати дослідження впливу величини імпульсів магнітного поля на спостережений ефект магнітоіндукованої зміни оптичного пропускання тонких шарів МР наведено на рис.3.

Із ростом величини імпульсу магнітного поля відбувається збільшення глибини піку для кривої оптичного пропускання (рис.3). При цьому спостерігається, що при збільшенні величини імпульсу в момент максимального падіння величини сигналу оптичного пропускання, більша кількість магнітних частинок і первинних кластерів зтягуються в центральну область досліджуваного шару МР, утворюється більша кількість вторинних кластерів, що призводить до збільшення глибини піку кривої оптичного пропускання при рості величини імпульсу.

Для зразків товщиною  $50$  мкм зміна сигналу оптичного пропускання при величині імпульсу магнітного поля  $150$  Е була настільки малою, що

її не вдалося зафіксувати на фоні шумів фотоприймача.

Залежності величин  $\tau_1$  і  $\tau_2$  від амплітуди імпульсу магнітного поля наведені на рис. 4 а,б.

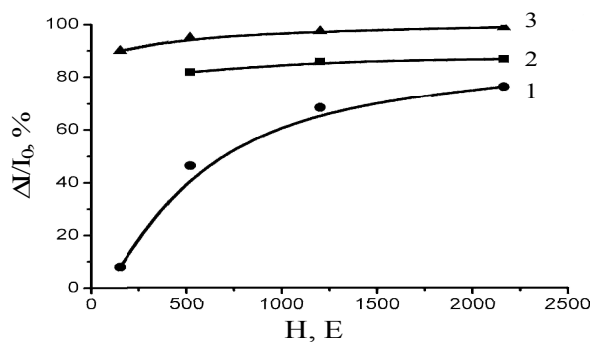


Рис.3. Залежність максимальної зміни величини оптичного пропускання під впливом імпульсу магнітного поля від його величини для зразків МР різної товщини, мкм: 1-  $120$ ; 2-  $50$ ; 3-  $250$ .

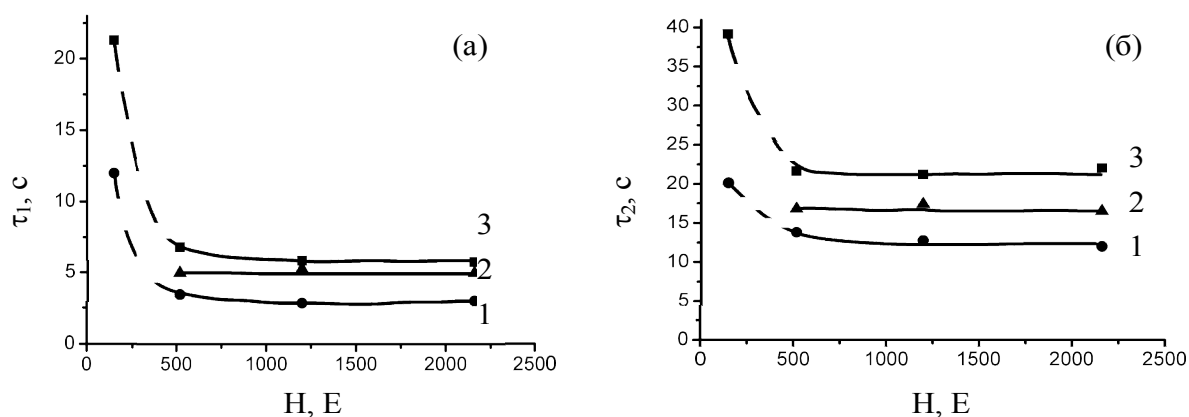


Рис.4. Залежності (а) – часу зменшення ( $\tau_1$ ) і (б) – часу подальшого збільшення ( $\tau_2$ ) оптичного пропускання шарів МР від величини імпульсу магнітного поля для зразків різної товщини, мкм: 1- 120; 2- 50; 3- 250.

Ці залежності мають, в цілому, подібний характер: із ростом величини імпульсу (для зразків товщиною 120 і 250 мкм) зменшується як  $\tau_1$ , так і  $\tau_2$ , поступово приймаючи певне характерне граничне для кожного зразка значення ( $\tau^\infty$ ). Для зразків товщиною 120 мкм:  $\tau_1^\infty \sim 3$ с,  $\tau_2^\infty \sim 12$ с, а для зразків товщиною 250 мкм:  $\tau_1^\infty \sim 5.7$ с,  $\tau_2^\infty \sim 21.5$ с. Для шарів МР товщиною 50 мкм граничне значення часу зменшення і часу подальшого збільшення величини оптичного пропускання складають, відповідно:  $\tau_1^\infty \sim 5$ с і  $\tau_2^\infty \sim 17$ с.

#### Обговорення результатів.

Для пояснення того факту, що під дією імпульсу магнітного поля змінюється оптичне пропускання тонких шарів МР, пропонуємо наступну модель. До включення магнітного поля досліджувані зразки представляють собою однорідну МР із окремими наночастинками ( $\sim 10$  нм) та поодинокими первинними кластерами.

В момент включення імпульсу магнітного поля, збільшується енергія дипольно-дипольної взаємодії між наночастинками [13], у вільній енергії ентропійна складова [14] вже не домінує і в шарі МР починають формуватися вторинні кластери, розміри яких стають набагато більшими за розміри окремих наночастинок. Поява і ріст таких агрегатів призводить до збільшення розміру їх поперечного перерізу та довжини в напрямку, паралельному до напрямку магнітного поля на протязі часу  $\tau_1$  (рис. 2), що призводить до збільшення величини розсіювання

та поглинання в шарі МР. Таке початкове збільшення товщини вторинних кластерів призводить до зменшення оптичного пропускання.

Коли товщина вторинних кластерів стає рівною довжині хвилі лазера, величина розсіювання оптичного випромінювання набуває максимального значення [2] і величина оптичного випромінювання, що проходить через шар МР, набуває мінімального значення (рис.2). Подальший ріст геометричного перерізу вторинних кластерів призводить до зменшення величини розсіяного випромінювання. У зв'язку з наявністю неоднорідності магнітного поля відбувається об'єднання сусідніх (близько розташованих) вторинних кластерів, що також призводить до збільшення величини їх геометричного перерізу і зменшенню кількості центрів розсіювання і поглинання. Все це, у свою чергу, призводить до збільшення інтенсивності випромінювання, що проходить через досліджувані зразки (рис.2).

В момент вимкнення магнітного поля ентропійна складова знову починає домінувати у вільній енергії і для утворених структур магнітних частинок енергетично вигідно розділитись на початкові первинні кластери та окремі наночастинки, що призводить до відновлення початкового значення оптичного пропускання шару МР.

Зменшення  $\tau_1$  та  $\tau_2$  при відносно малих полях (до  $\sim 500$  Е) із ростом величини імпульсу, ми пов'язуємо із впливом броунівського руху, який намагається перешкодити формуванню кластерної структури. При великих полях енергія

магнітної взаємодії наночастинок і первинних кластерів набагато перевищують енергію броунівського руху, і тому на формування структури впливає лише енергія магнітної взаємодії і вязкість рідини-носія. Із рис. 4 видно, що для зразків товщиною 50 мкм відсутні дані про величини  $\tau_1$  і  $\tau_2$  для відносно малих ( $\sim 150$  Е) значень величини імпульсу магнітного поля. Це пов'язано із малістю ефекту зміни оптичного пропускання під дією імпульсів магнітного поля малих величин для зразків таких товщин.

Той факт, що значення  $\tau_1$  і  $\tau_2$  відрізняються для різних досліджуваних зразків пов'язано, на нашу думку, з тим, що швидкість формування вторинних кластерів залежить не тільки від величини імпульсу магнітного поля, а і від геометричних розмірів (товщини і площі) досліджуваних зразків МР. Наявність граничного значення для  $\tau_1$  і  $\tau_2$  пов'язана із тим, що при досягненні певного критичного значення ( $H_{кр}$ ) величини імпульсу магнітного поля ( $H_{кр} > \sim 1000$  Е) швидкість утворення вторинних кластерів не зростає через вплив вязкості середовища, що оточує магнітні наночастинок.

### Висновки

В даній роботі було досліджено вплив імпульсів магнітного поля, прикладених нормально до поверхні тонких шарів магнітної рідини, на їх оптичне пропускання, яке безумовно, пов'язане з внутрішньою структурою

цих шарів. З отриманих результатів можна зробити наступні висновки:

1. Вперше спостережений ефект, який полягає у достатньо різкому зменшенні величини оптичного пропускання тонких шарів магнітної рідини при включенні імпульсу магнітного поля, прикладеного нормально до поверхні шару, і подальшому його збільшенні ще під час дії імпульсу. Цей ефект є наслідком збільшення розсіювання і поглинання в досліджуваних зразках, через формування і ріст вторинних кластерів в МР.

2. Збільшення амплітуди імпульсу поля призводить до збільшення пікової величини магнітоіндукованої зміни оптичного пропускання. Така поведінка пов'язана із збільшенням кількості вторинних кластерів у центральній області досліджуваного зразка шару МР при зростанні величини імпульсу, що призводить до збільшення поглинання і розсіювання.

3. Наявність граничного значення для часу зменшення ( $\tau_1$ ) і часу подальшого збільшення ( $\tau_2$ ) оптичного пропускання шарів МР заданої товщини вище певного критичного значення імпульсу магнітного поля ( $H_{кр} > \sim 1000$  Е) пов'язане з обмеженістю швидкості утворення вторинних кластерів через вплив вязкості середовища, що оточує магнітні наночастинок.

### Список використаних джерел

1. Блум Э.Я. Магнитные жидкости / Э.Я. Блум, М.М. Майоров, А.О. Цеберс.– Рига: Зинатне, 1986. – 386 с.
2. Bohrem C.F. Absorption and Scattering of light by small particles / C.F. Bohrem, D.R. Huffman. – New York: John Wiley & Sons, 1998. – 544 p.
3. Timonen J.V.I. Switchable static and dynamic self-assembly of magnetic droplets on superhydrophobic surfaces / J.V.I. Timonen, M. Latikka., L. Leibler, R.H.A. Ras, O. Ikkala // Science. – 2013 – 341, №6143, – P. 253-257.
4. Lübbe A.S. Preclinical experiences with magnetic drug targeting: tolerance and efficacy / A.S. Lübbe, C. Bergemann, W. Hunt, T. Fricke, H. Reiss, J.W. Brock, D. Huhn // Cancer Res. – 1996. – 56. – P. 4694-4701.
5. Yellen B.B. Programmable self-aligning ferrofluid mask for lithographic applications / B.B.Yellen, G. Friedman, K.A. Barbee // IEEE Trans. on Magn. – 2004. – 40, №4. – P. 2994-2996.

### References

1. BLUM, YE., MAYOROV, M., TSEBERS, A. (1986) *Magnitnyye zhidkosti*. Riga:Zinatne.
2. BOHREM, C., HUFFMAN D. (1998) *Absorption and Scattering of light by small particles*. New York: John Wiley & Sons.
3. TINONEN, J., LATIKKA, M., LEIBLER, L., RAS, R., IKKALA, O. (2013) Switchable static and dynamic self-assembly of magnetic droplets on superhydrophobic surfaces. *Science*. 341(6143). p. 253-257.
4. LÜBBE, A., BERGEMANN, C., HUNT, W., FRICKE, T., REISS, H., BROCK, J., HUHN, D. (1996) Preclinical experiences with magnetic drug targeting: tolerance and efficacy. *Cancer Res*. 56. p. 4694-4701.
5. YELLEN, B., FRIEDMAN, G., BERBEE, K. (2004) Programmable self-aligning ferrofluid mask for lithographic applications. *IEEE Trans. on Magn.* 40(4). p. 2994-2996.

6. Zubarev A.Yu. Condensation phase transitions in ferrofluids / A.Yu. Zubarev, L.Yu. Iskakova // *Physica A.* – 2004. – **335**, №3. – P. 325-338.
7. Tanygin B.M. Molecular dynamics study of the primary ferrofluid aggregate formation / B.M. Tanygin, V.F. Kovalenko, M.V. Petrychuk, S.A. Dzyan // *JMMM.* – 2012. – **324**, №23. – P. 4006-4010.
8. Bacri J.C. Study of the deformation of ferrofluid droplets in a magnetic field / J.C. Bacri, D. Salin, R. Massart // *J. Physique-Lett.* – 1982. – **43**, №6. – P. 179-184.
9. Moldovan B.N. Periodic structure of spicular magnetic clusters in a magnetic liquid / B.N. Moldovan, O.A. Antonyuk, M.V. Petrychuk, V.F. Kovalenko // *J. Coll. and Int. Sci.* – 2005. – **75**, №6, – P. 93-97.
10. Chikazumi S. Physics of magnetic fluid / S. Chikazumi, S. Taketomi, M. Ukita, M. Mizukami, H. Miyajima, M. Setogawa, Y. Kurihara // *JMMM.* – 1987. – **65**, №2-3. – P. 245-251.
11. Hoffmann B. Reversible light-induced cluster formation of magnetic colloids / B. Hoffmann, W. Köhler // *JMMM.* – 2003. – **262**, №2 – P. 289-293.
12. Erin K.V. Light scattering by aggregates of magnetite nanoparticles in a magnetic field / K.V. Erin, S.A. Kunikin // *Tech. Phys.* – 2007. – **52**, №10. – P. 1332-1335.
13. Chan D.Y.C. The orientation-averaged interaction of a pair of magnetic dipolar spheres in an external magnetic field / D.Y.C. Chan, D. Henderson // *J. Coll. and Int. Sci.* – 1984. – **101**, №2, – P. 419-423.
14. Scholten P.C. How magnetic can a magnetic fluid be? / P.C. Scholten // *JMMM.* – 1983. – **39**, №1-2, P. 99–106.
6. ZUBAREV, A., ISKAKOVA, L. (2004) Condensation phase transitions in ferrofluids. *Physica A.* 335(3). p. 325-338.
7. TANYGIN, B., KOVALENKO, V., PETRYCHUK, M., DZYAN, S. (2012) Molecular dynamics study of the primary ferrofluid aggregate formation. *JMMM.* 324(23). p. 4006-4010.
8. BACRI, J., SALIN, D., MASSART, R. (1982) Study of the deformation of ferrofluid droplets in a magnetic field. *J. Physique-Lett.* 43(6). p. 179-184.
9. MOLDOVAN, B., ANTONYUK, O., PETRYCHUK, M., KOVALENKO, V. (2005) Periodic structure of spicular magnetic clusters in a magnetic liquid. *J. Coll. and Int. Sci.* 75(6). p. 93-97.
10. CHIKAZUMI, S., TAKETOMI, S., UKITA, M., MIZUKAMI, M., MIYAJIMA, H., SETOGAWA, M., KURIHARA, Y. (1987) Physics of magnetic fluid. *JMMM.* 65(2-3). p. 245-251.
11. HOFFMANN, B., KÖHLER, W. (2003) Reversible light-induced cluster formation of magnetic colloids. *JMMM.* 262(2). p. 289-293.
12. ERIN, K., KUNIKIN, S. (2007) Light scattering by aggregates of magnetite nanoparticles in a magnetic field. *Tech. Phys.* 52(10). p. 1332-1335.
13. CHAN, D., HENDERSON, D. (1984) The orientation-averaged interaction of a pair of magnetic dipolar spheres in an external magnetic field. *J. Coll. and Int. Sci.* 101(2). p. 419-423.
14. SCHOLTEN, P. (1983) How magnetic can a magnetic fluid be? *JMMM.* 39(1-2). p. 99–106.

Надійшла до редакції 5.11.14