

# СТРУКТУРИРОВАНИЕ МАГНИТНЫХ ЖИДКОСТЕЙ В ОТСУТСТВИЕ ВНЕШНЕГО ПОЛЯ

**A. Ю. Зубарев\*, Л. Ю. Искакова**

*Уральский федеральный университет  
620000, Екатеринбург, Россия*

Поступила в редакцию 10 июля 2012 г.

Работа посвящена теоретическому исследованию структурных превращений в ферромагнитных жидкостях в отсутствие внешнего магнитного поля. Результаты, в соответствии с известными лабораторными и компьютерными экспериментами, показывают, что если концентрация и энергия магнитного взаимодействия частиц меньше некоторых критических значений, большинство частиц формирует отдельные линейные цепочки. Если эти величины превышают критические значения, большинство частиц концентрируется в разветвленных сетчатых структурах. Переход от цепочек к сетке не является разрывным фазовым переходом первого рода, а имеет непрерывный характер.

**DOI:** 10.7868/S0044451013020120

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Ферромагнитные жидкости (магнитные жидкости) представляют собой коллоидные суспензии однодоменных ферро(ферри)магнитных частиц в несущей жидкой среде. Богатый набор уникальных физических свойств этих систем, находящих активное применение во многих современных наукоемких технологиях, притягивает к ним большой интерес исследователей и практиков.

Характерный размер частиц современных ферромагнитных жидкостей порядка 10–20 нм. Для того чтобы предотвратить их коагуляцию под действием центральных дисперсионных сил, частицы покрываются специальными поверхностными слоями, состоящими из молекул ПАВ, или имеющими ионную природу. Эти слои полностью или частично экранируют дисперсионные силы.

Многочисленные эксперименты показывают, что частицы ферромагнитных жидкостей могут образовывать различные гетерогенные структуры — линейные цепочки, замкнутые кольца, Y-подобные вилки, плотные капли и т. д. [1–6]. Типичный размер таких капель порядка нескольких микрон, они легко наблюдаются при помощи обычных оптических микроскопов. Поскольку размер частиц ферромагнитности существенно меньше длины волны видимого света, отдельные

частицы, цепочки и другие кластеры с линейной структурой не могут быть обнаружены в оптических экспериментах. Однако недавно они наблюдались при помощи электронных микроскопов [6, 7]. В то же время цепочки, кольца, вилки и другие ветвистые структуры наблюдались во многих компьютерных экспериментах (см., например, [8–12]).

Первые модели капельных агрегатов [13–16] интерпретировали их появление как фазовый переход газ–жидкость в системах индивидуальных дипольных частиц. Появление цепочек и других кластеров в этих моделях игнорировалось. Однако появление линейных цепочек на предпереходной стадии в макроскопически-однородной ферромагнитности с хорошо экранированными частицами сейчас может считаться твердо установленным явлением. Модель фазовой конденсации частиц в ферромагнитности при учете возникновения в ней цепочечных агрегатов была предложена в работе [17]. В этой работе были рассмотрены два предельных случая нулевого и бесконечно большого внешнего магнитного поля. Анализ [17] показывает, что при увеличении энергии магнитного взаимодействия частиц (уменьшении температуры), действительно, вначале образуются линейные цепочки, затем цепочки конденсируются в объемные плотные фазы. Отметим, что в случае сильных магнитных полей плотные фазы ферро частиц как ансамбли отдельных цепочек наблюдались в лабораторных [6] и компьютерных [10, 11] экспериментах.

---

\*E-mail: Andrey.Zubarev@usu.ru

Однако для случая нулевого магнитного поля эксперименты [6, 18, 19] и компьютерные исследования [19–22] показывают, что после образования линейных цепочек увеличение энергии магнитного взаимодействия частиц и их концентрации ведет к формированию ветвистых и сетчатых структур. Объединение dipольно-взаимодействующих частиц в плотные однородные глобулы, минуя стадию формирования цепочек, наблюдалось в компьютерных экспериментах [23]. Однако в этой работе изучалась так называемая жидкость Штокмайера, в которой частицы взаимодействуют dipоль-dipольным способом и центрально по закону Леннарда–Джонса. Компьютерное моделирование [23] было выполнено для случая, когда энергия центрального притяжения примерно равна энергии магнитного взаимодействия между частицами.

Таким образом, последние компьютерные и экспериментальные исследования свидетельствуют о том, что в отсутствие внешнего магнитного поля конденсация ферромагнитных, хорошо экранированных от центрального взаимодействия, частиц происходит по особому сценарию — вначале формирование линейных цепочек, потом — ветвистых агрегатов и сетчатых структур. Следует отметить, что вопрос о том, могут ли чисто магнитные взаимодействия в отсутствие внешнего поля вызывать фазовую конденсацию частиц типа газ–однородная жидкость, является весьма дискуссионным; в литературе по этому поводу высказывались противоположные точки зрения (см., например, [20–22]).

Нужно признать, что фундаментальные особенности конденсации частиц в феррожидкостях, несмотря на долгую историю вопроса, до сих пор не установлены. Изучение таких особенностей важно не только с точки зрения общей теории фазовых переходов, но и в связи со многими практическими применениями магнитных жидкостей и их композиций. Так, например, в последние годы для различных видов технологий активно синтезируются и исследуются магнитополимерные композиции (феррогели и ферроэластомеры), состоящие из магнитных частиц, внедренных в полимерную матрицу. Внедрение частиц происходит, когда матрица находится в жидком, не полимеризованном состоянии. В этом состоянии композиция представляет собой обычную магнитную жидкость. При полимеризации матрицы структуры, образованные феррочастицами, фиксируются. Макроскопические свойства и поведение полимеризованной композиции сильно зависят от типа структур, образованных частицами [18].

Другим примером необходимости изучения внутренних структур в магнитных жидкостях является развитие медико-биологических технологий, основанных на использовании этих систем [24]. Так, например, эффективность магнитной гипертермии для лечения опухолевых заболеваний существенно определяется структурами, которые образуют феррочастицы в биологической ткани.

Первая модель феррожидкости с частицами, объединенными в линейные цепочки и Y-образные вилки, была предложена в работе [25]. В этой работе был предсказан фазовый переход первого рода газ–жидкость, причем «жидкость» трактовалась как плотная фаза Y-вилок. Однако статистика распределения частиц по цепочкам и вилкам в этой работе не рассматривалась. Вместе с тем эта статистика играет определяющее важную роль в формировании внутренних структур и их взаимных превращений в феррожидкостях [17], а также в формировании макроскопических свойств этих систем [26]. Отметим, что вывод [25] о фазовом переходе первого рода от газа цепочек к «жидкости» ветвистых структур не подтверждается компьютерными экспериментами [20, 22].

На сегодняшний день статистические модели феррожидкостей, учитывающие возможность образования ветвистых и сетчатых структур, отсутствуют. Ниже предлагается простая статистическая модель феррожидкости, учитывающая возможность возникновения линейных цепочек, Y-подобных вилок и связных сетчатых структур. Рассмотрен случай, когда внешнее магнитное поле отсутствует. Учитываются только магнитодипольные взаимодействия частиц, т. е. предполагается, что центральные дисперсионные силы практически полностью экранированы поверхностными слоями на частицах.

Результаты исследования показывают, что когда концентрация частиц и энергия их магнитодипольного взаимодействия достаточно малы, в феррожидкости, в основном, возникают линейные цепочки. Если концентрация и энергия взаимодействия частиц превышают некоторые пороговые значения, начинает доминировать сетчатая структура. Переход от объединения частиц преимущественно в цепочки к объединению в сетчатую структуру не является фазовым переходом первого рода, а имеет непрерывный характер. Аналогичный вывод о непрерывном переходе от цепочек к сеткам был сделан в работах [20, 22] на основе проведенных компьютерных экспериментов.

## 2. ОСНОВНЫЕ ПРИБЛИЖЕНИЯ И СТАТИСТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ

Будем рассматривать систему идентичных магнитных сфер с постоянным магнитным моментом  $m$  каждая. Основным допущением модели является то, что частицы могут формировать линейные цепочки,  $Y$ -образные вилки и сетки, включающие в себя большое количество частиц. Нужно отметить, что в двухмерных слоях ферроцомпакт часто наблюдаются замкнутые кольцеобразные агрегаты [6]. Однако эти кольца не были замечены в трехмерных компьютерных моделях ферржидкостей. Более того, анализ зависимостей начальной намагниченности трехмерных ферржидкостей от концентрации частиц позволяет сделать вывод о том, что в реальных образцах кольца отсутствуют. Окончательно вопрос о существовании колец в трехмерных магнитных жидкостях в литературе не выяснен, но предварительные оценки показывают, что в трехмерном случае образование колец ведет к большим энтропийным потерям, что делает их возникновение практически невозможным. Для двухмерных образцов такие потери относительно невелики [27], поэтому в них кольца могут образовываться. Здесь, ради максимального упрощения анализа, кольца не учитываются.

Рассматриваемые структуры проиллюстрированы на рис. 1. В рамках одной модели невозможно рассмотреть все возможные топологические типы сеток. Здесь мы рассмотрим, по-видимому, топологически простейшую сетку, состоящую из связанных  $Y$ -вилок. Эта сетка состоит из трехчастичных узлов, соединенных линейными сегментами (цепочками). Будем считать, что треугольники, петли и другие замкнутые участки в сетке отсутствуют. Сетку будем рассматривать как бесконечную структуру.

Обозначим  $g_n^c$  — число  $n$ -частичных цепочек в

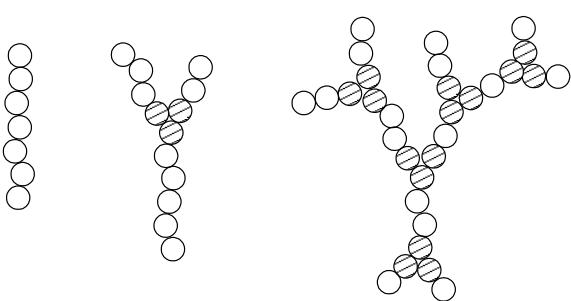


Рис. 1. Иллюстрация рассматриваемых структур. Заштрихованы частицы, формирующие узлы сеток и вилок

единице объема ферржидкости;  $g_{ijk}^Y$  — число вилок с  $i, j$  и  $k$  частицами в ее ветвях в этом объеме;  $g_{ijk}^N$  — число узлов в сетке, соединенных сегментами с  $i, j, k$  частицами. Чтобы избежать недоразумений отметим, что мы не включаем частицы, непосредственно находящиеся в узлах вилок и сетки, в числа  $i, j$  и  $k$ .

В каждой цепочке и линейном сегменте вилки и сетки мы будем учитывать магнитное взаимодействие только ближайших соседних частиц. Такое приближение обычно используется в теории цепочечных агрегатов в системах дипольных частиц, вызываемая им ошибкой в определении свободной энергии цепочки не превышает двадцати процентов [25]. Наконец, будем пренебречь любыми взаимодействиями между цепочками, вилками, узлами и сегментами цепи. Такое приближение выглядит вполне оправданным, когда концентрация частиц невелика. Отметим, что влияние взаимодействия цепочек на их характерные размеры было исследовано в работе [17] в предположении, что другие агрегаты и структуры в магнитной жидкости отсутствуют.

В рамках выбранных приближений свободная энергия единичного объема ферржидкости может быть записана в виде

$$F = F^c + F^Y + F^N; \quad (1)$$

$$F^c = k_B T \sum_{n=1}^{\infty} g_n^c \left[ \ln \frac{g_n^c V}{e} - \varepsilon^c (n-1) \right],$$

$$F^Y = k_B T \times \\ \times \sum_{i \geq j \geq k=0}^{\infty} g_{ijk}^Y \left[ \ln \frac{g_{ijk}^Y V}{e} - \varepsilon^T - \varepsilon^c (i+j+k) \right],$$

$$F^N = k_B T \times \\ \times \sum_{i \geq j \geq k=0}^{\infty} g_{ijk}^N \left[ \ln \frac{g_{ijk}^N V}{e} - \varepsilon^T - \frac{\varepsilon^c}{3} (i+j+k+3) \right].$$

Здесь  $F^c$ ,  $F^Y$  и  $F^N$  — свободные энергии на единицу объема соответственно цепочек, вилок и сетки;  $k_B T$  — абсолютная температура в энергетических единицах;  $\varepsilon^c$  — средняя безразмерная относительно  $k_B T$  энергия магнитного взаимодействия между ближайшими частицами в линейных цепочках (сегментах ветвистых структур),  $\varepsilon^T$  — безразмерная энергия взаимодействия между тремя частицами узла;  $V$  — гидродинамический (вместе с поверхностными экранирующими слоями) объем частицы. Безразмерные энергии  $\varepsilon^{c,T}$  будут оценены ниже. Члены с

логарифмами в (1) соответствуют энтропии идеального газа соответственно цепочек, вилок и узлов сетки. Порядок суммирования по  $i, j, k$  позволяет избежать кратного учета идентичных конфигураций для вилок и сетки [27]. Множитель  $1/3$  в последнем члене (1) позволяет учесть тот факт, что в рассматриваемой сетке число линейных сегментов равно числу трехчастичных узлов.

Функции распределения  $g^c, g^Y, g^N$ , соответствующие термодинамически равновесному состоянию ферророджидкости, обеспечивают минимум свободной энергии (1) при учете условия баланса частиц в системе:

$$\varphi^c + \varphi^Y + \varphi^N = \varphi, \quad (2)$$

$$\varphi^c = \sum_{n=1}^{\infty} n g_n^c V,$$

$$\varphi^Y = \sum_{i \geq j \geq k=0}^{\infty} (i+j+k+3) g_{ijk}^Y V,$$

$$\varphi^N = \sum_{i \geq j \geq k=0}^{\infty} \left( \frac{i+j+k}{3} + 3 \right) g_{ijk}^N V.$$

Здесь  $\varphi$  — полная объемная концентрация частиц в системе;  $\varphi^c, \varphi^Y$  и  $\varphi^N$  — объемные доли частиц, формирующих соответственно цепочки, вилки и сетку.

Минимизируя (1) при условии (2), после стандартных преобразований получаем

$$\begin{aligned} g_n^c &= \frac{\exp(-\varepsilon^c)}{V} X^n, \\ g_{ijk}^Y &= \frac{\exp(\varepsilon^T - 3\varepsilon^c)}{V} X^{i+j+k+3}, \\ g_{ijk}^N &= \frac{\exp(\varepsilon^T - 2\varepsilon^c)}{V} X^{2+(i+j+k+3)/3}. \end{aligned} \quad (3)$$

Здесь  $X$  — неопределенный множитель Лагранжа. Для того чтобы найти его, необходимо подставить соотношения (3) в условие (2). Используя первое соотношение в (3), легко получаем

$$\varphi^c = \exp(-\varepsilon^c) \frac{X}{(1-X)^2}. \quad (4)$$

Удобно ввести  $n = i+j+k+3$  — полное число частиц в вилке. Концентрация  $\varphi^Y$  может быть вычислена так:

$$\begin{aligned} \varphi^Y &= \exp(\varepsilon^T - 3\varepsilon^c) \sum_{n=3}^{\infty} n X^n \left( \sum_{j=1}^{n-2} \sum_{k=1}^j 1 \right) = \\ &= \exp(\varepsilon^T - 3\varepsilon^c) \frac{3X^3}{(1-X)^4}. \end{aligned} \quad (5)$$

Используя аналогичные соображения, получаем

$$\begin{aligned} \varphi^N &= \exp(\varepsilon^T - 3\varepsilon^c) \times \\ &\times X^2 \sum_{n=3}^{\infty} \left( \frac{n}{3} + 2 \right) X^n \left( \sum_{j=1}^{n-2} \sum_{k=1}^j 1 \right) = \\ &= \exp(\varepsilon^T - 2\varepsilon^c) \frac{X^3(3-2X^{1/3})}{(1-X^{1/3})^4}. \end{aligned} \quad (6)$$

Подставляя (4)–(6) в первое соотношение (2), приходим к уравнению относительно  $X$ , которое легко может быть решено численно.

### 3. РАСПРЕДЕЛЕНИЕ ЧАСТИЦ ПО АГРЕГАТАМ

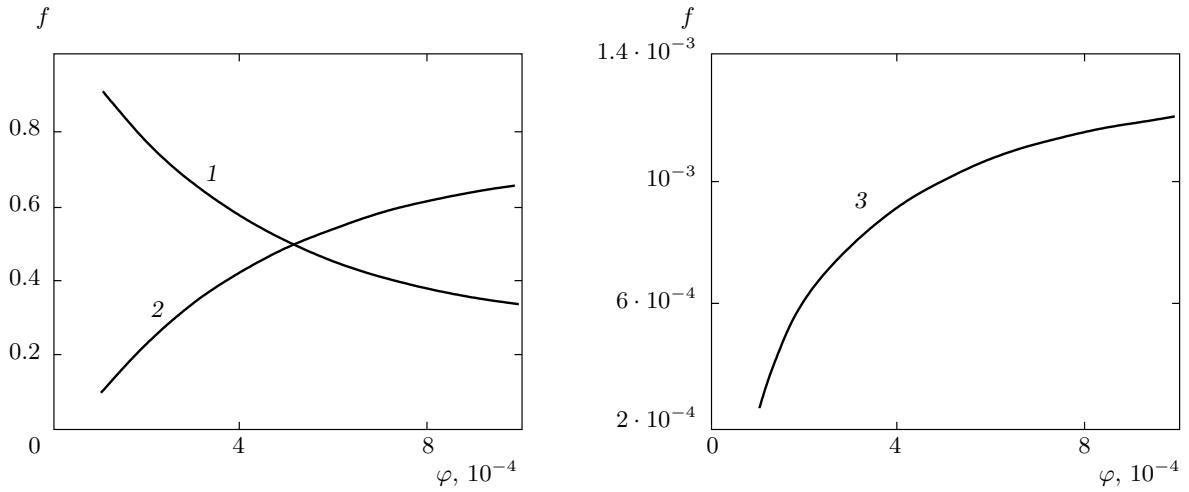
Для того чтобы определить множитель Лагранжа  $X$ , необходимо оценить безразмерные энергии  $\varepsilon^c$  и  $\varepsilon^T$ . В первом приближении пренебрежем флуктуациями расположений и ориентаций частиц в линейных сегментах и трехчастичных узлах, т. е. будем рассматривать основные состояния этих кластеров. Безразмерные энергии основных состояний линейных сегментов и узлов были оценены в работе [27]. В принятых здесь обозначениях они имеют вид

$$\varepsilon^c = \varepsilon_0^c = \frac{\mu_0}{2\pi} \frac{m^2}{d^3 k_B T}, \quad \varepsilon^T = \varepsilon_0^T = \frac{15}{8} \varepsilon_0^c. \quad (7)$$

Здесь  $\mu_0$  — магнитная проницаемость вакуума,  $d$  — гидродинамический (с учетом поверхностных слоев) диаметр частицы; индекс «0» соответствует рассматриваемому основному состоянию кластера. Подставляя (7) в формулы (4)–(6) и далее во второе соотношение (2), мы определяем  $X$  и затем, используя (4)–(6), концентрации  $\varphi^c, \varphi^Y$  и  $\varphi^N$ . Некоторые результаты расчетов относительных концентраций  $f^{c,Y,N} = \varphi^{c,Y,N}/\varphi$  приведены на рис. 2.

Оценки показывают, что для типичных магнитовых ферророджидкостей, частицы которых покрыты слоями ПАВ толщиной около 2 нм, величина  $\varepsilon_0^c = 5$  соответствует диаметру магнитного ядра, равному примерно 15–16 нм. Частицы таких размеров присутствуют во многих современных ферророджидкостях.

Результаты, представленные на рис. 2, показывают, что в случае, когда концентрация  $\varphi$  мала, большинство частиц ферророджидкости образует линейные цепочки. При увеличении  $\varphi$  доля частиц, образующих сетку, возрастает и, когда  $\varphi$  превышает некоторое пороговое значение, соответствующее пересечению кривых 1 и 2, число частиц в сетке начинает превышать полное число частиц в отдельных цепочках. Число же частиц, образующих вилки, оказывается



**Рис. 2.** Относительные концентрации частиц, объединенных в отдельные цепочки (кривая 1), в сетку (2) и в вилки (3) как функции полной объемной концентрации частиц  $\varphi$ . Вычисления соответствуют безфлуктуационному приближению (7) при  $\varepsilon_0^c = 5$

существенно меньше чисел частиц, формирующих цепочки и сетку.

Пороговое значение концентрации  $\varphi$ , соответствующее рис. 1, очень мало — порядка нескольких сотых процента. В современных ферроэмульсиях магнитная объемная концентрация частиц (т. е. определенная только с учетом их магнитных ядер, без поверхностных слоев) часто достигает 7–10% (см., например, [26]). Учитывая это, можно прийти к выводу, что в отсутствие магнитного поля все частицы с диаметром магнитного ядра около 15 нм и более должны быть собраны в сетчатые агрегаты. Однако эксперименты это не подтверждают.

Для того чтобы получить более адекватные количественные оценки концентраций частиц в агрегатах, необходимо учесть флуктуации частиц в линейных и треугольных кластерах. Учет таких флуктуаций приведет к перенормировке энергий  $\varepsilon^c$  и  $\varepsilon^T$ . Анализ показывает, что результаты такой модификации зависят от размерности ферроэмульсии — они несколько различаются для двумерных слоев и трехмерных объемных образцов. Для двумерных слоев поправки к энергиям взаимодействия частиц в цепочках и трехчастичных узлах были оценены в работе [27]. Вычисления поправок к  $\varepsilon^T$  для трехмерных образцов очень громоздки и заслуживают отдельной работы. Поэтому здесь, чтобы получить физически принципиальные результаты, мы используем оценки [27] энергий  $\varepsilon^c$  и  $\varepsilon^T$  для двумерных образцов. В принятых здесь обозначениях они имеют вид

$$\begin{aligned}\varepsilon^c &\approx \varepsilon_0^c - \ln\left(\frac{3\sqrt{3}\varepsilon_0^c}{4}\right), \\ \varepsilon^T &\approx \frac{15}{8}\varepsilon_0^c - \ln\left(\frac{2\pi^{1/2}}{0.034}\left(\frac{\varepsilon_0^c}{2}\right)^{9/2}\right).\end{aligned}\quad (8)$$

На рис. 3 приведены результаты расчетов относительных концентраций  $f^{c,Y,N}$ , полученные при помощи оценок (8).

Качественно зависимость относительных концентраций  $f$  от полной объемной концентрации частиц  $\varphi$  сейчас такая же, как на рис. 2. Однако пороговое, для перехода от цепочек к сетке, значение  $\varphi$  на рис. 3 примерно равно восьми процентам, что представляется более разумным, чем значение, получаемое из расчетов в безфлуктуационном приближении (7). По порядку величины это значение пороговой концентрации соответствует компьютерным экспериментам [20, 21], где образование сеток наблюдалось при концентрациях порядка нескольких процентов.

Различие между пороговыми концентрациями, соответствующими рис. 2 и 3 составляет два порядка величины. Поэтому учет флуктуаций частиц в кластерах необходим для получения адекватных результатов.

На рис. 4 приведены результаты, аналогичные та-ковым на рис. 3, но при несколько большей энергии взаимодействия частиц. Сравнивая рис. 3 и 4, легко видеть, что пороговая концентрация очень чувствительна к величине этой энергии (т. е. к размеру взаи-

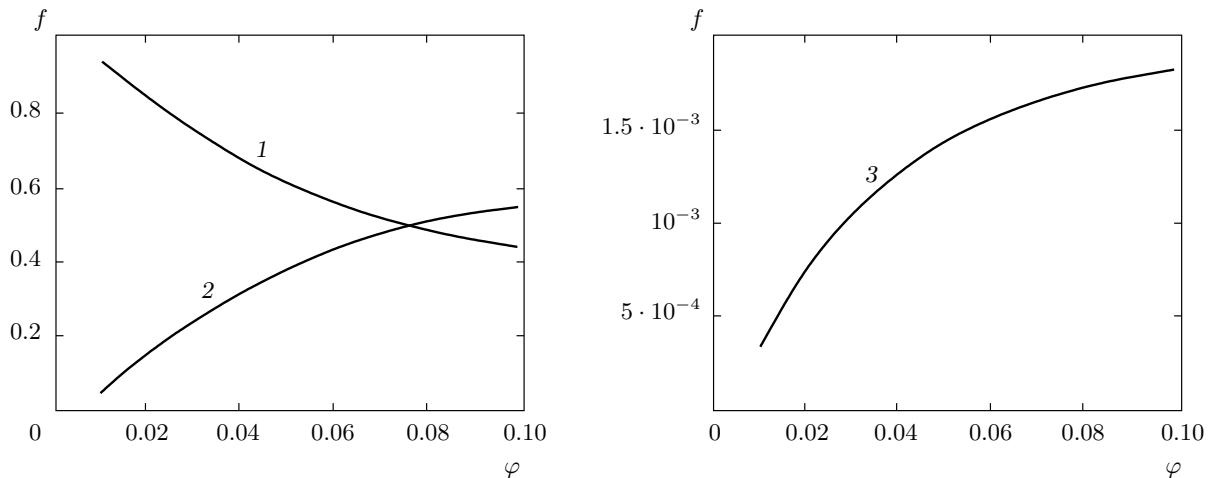
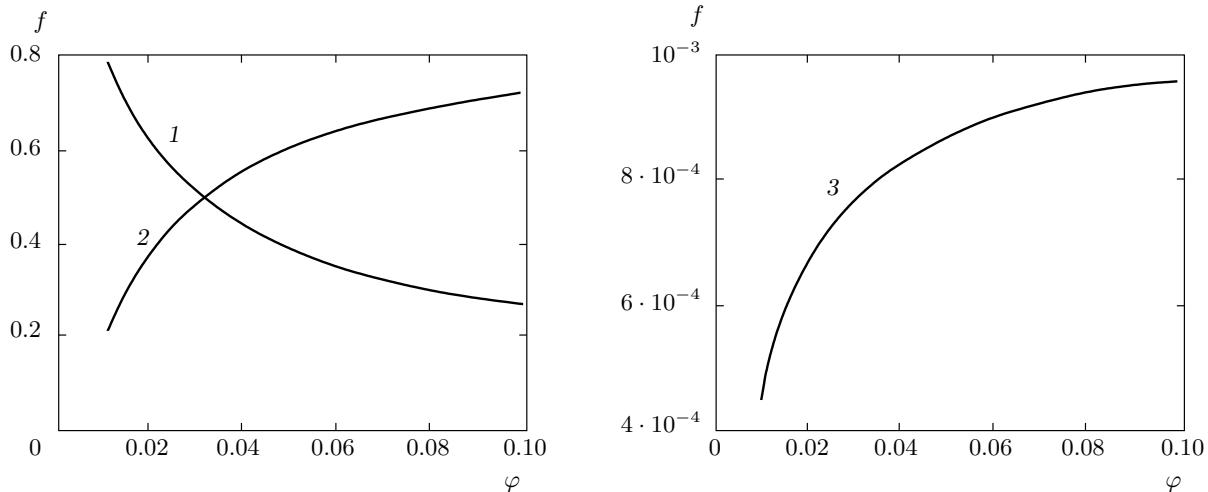


Рис. 3. То же, что на рис. 2 при использовании соотношений (8) вместо (7)

Рис. 4. То же, что и на рис. 3 при  $\varepsilon_0^c = 6$ 

модействующих частиц) — она быстро уменьшается с ростом  $\varepsilon_0^c$ .

Простые вычисления показывают, что безразмерный химический потенциал частиц равен

$$\chi = \frac{V}{k_B T} \frac{\partial F}{\partial \varphi} = nX - \varepsilon^c. \quad (9)$$

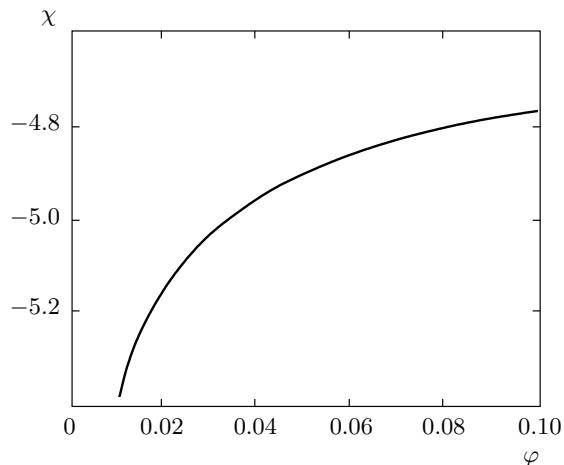
На рис. 5 приведены расчеты зависимости  $\chi$  от концентрации  $\varphi$ . Монотонный рост функции  $\chi(\varphi)$  в том числе в области концентрации пересечения кривых 1 и 2 на рис. 4 свидетельствует о том, что переход от отдельных цепочек к сетке не является разрывным фазовым переходом первого рода.

Аналогичный вывод о том, что образование сеток не является фазовым переходом первого рода,

был сделан в работах [20, 22] на основе проведенных компьютерных экспериментов.

Анализ [17] фазового перехода газ–жидкость в ферро жидкости с отдельными цепочками (без ветвистых структур) показывает, что такой переход ожидаем, когда  $\varepsilon_0^c > 5.6\text{--}5.8$  и  $\varphi > 11\text{--}12\%$ . Следовательно, можно ожидать, что образование сетей происходит при меньших значениях  $\varepsilon_0^c$  и  $\varphi$ , чем переход газ–жидкость в системе частиц. Этот вывод соответствует наблюдениям сетчатых структур в экспериментах [6, 18, 19] и компьютерных исследованиях [19, 20, 22].

Отметим, что возникновение сетчатых и иных гетероструктур в ферро жидкостях может приводить к кардинальному изменению динамических свойств



**Рис. 5.** Безразмерный химический потенциал частиц  $\chi$  как функция их полной объемной концентрации  $\varphi$  при  $\varepsilon_0^c = 6$

этих систем. В частности, они могут быть ответственны за наблюдавшиеся в работе [28] особенности кинетики перемагничивания феррожидкостей, характерные для спиновых стекол. Влияние внутренних структур на динамические свойства феррожидкостей заслуживает отдельного исследования.

#### 4. ВЫВОДЫ

В работе теоретически исследовано термодинамически равновесное состояние феррожидкости, состоящей из одинаковых однодоменных сферических частиц, в отсутствие внешнего магнитного поля. Основываясь на результатах известных компьютерных и лабораторных экспериментов, мы предположили, что частицы могут образовывать линейные цепочки,  $Y$ -образные вилки и связную сетчатую структуру. Предполагается, что частицы взаимодействуют только магнитным образом, т. е. центральные дисперсионные силы между ними полностью экранированы поверхностными слоями.

Анализ показывает, что если объемная концентрация и энергия магнитного взаимодействия частиц малы, большинство частиц формирует линейные цепочечные агрегаты. Если же концентрация и энергия межчастичного взаимодействия превышают некоторые критические значения, большинство частиц находится в сетчатой структуре. Число частиц, находящихся в  $Y$ -образных вилках, мало по сравнению с числом частиц в цепочках и в сетке. В отличие от модели [25], не учитывающей статистический характер распределения частиц по линейным

цепочкам и сегментам ветвистых структур, полученные нами результаты показывают, что переход между состояниями с доминирующим числом частиц в цепочках к состоянию с доминирующей сеткой не является разрывным переходом первого рода. Этот вывод подтверждается компьютерными экспериментами [20, 22].

Сравнение полученных результатов с результатами модели [17] фазовой конденсации в феррожидкостях с цепочками позволяет сделать вывод о том, что формирование сетчатой структуры, по крайней мере, предшествует конденсации частиц в однородную «жидкую» фазу. Этот вывод соответствует результатам лабораторных и компьютерных экспериментов [6, 18–20, 22] в которых наблюдалась сетчатые кластеры ферро частиц.

Мы рассмотрели топологически простейшую сетьку с узлами, соединяющими по три линейных сегмента, без замкнутых треугольников и петель. Очевидно, учет возможности образования более многочастичных узлов, петель и других топологических особенностей увеличит вероятность образования сетчатого кластера. Следовательно, учет этих обстоятельств не изменит принципиального вывода о том, что сетки появляются до фазовой конденсации частиц в однородную плотную «жидкую» фазу.

В предлагаемой модели не учитывается взаимодействие между частицами, находящимися в различных кластерах. Поэтому она не дает ответа на вопрос об эволюции сетчатой структуры при увеличении концентрации частиц и энергии их взаимодействия. В принципе, можно ожидать два возможных сценария такой эволюции. Во-первых, при увеличении энергии и концентрации частиц сетка может становиться все более плотной, в ней могут появляться узлы, соединяющие более чем три линейных сегмента; число таких узлов может возрастать, однако характерная структура сетки будет сохраняться. Во-вторых, начиная с некоторого значения энергии взаимодействия и концентрации частиц, может происходить коллапс сетки в однородную плотную фазу. Первый из этих сценариев обсуждался в работах [20, 22], второй — в работе [21]. Анализ задачи об эволюции сетки, как и учет более общей ее топологии — предмет отдельного рассмотрения.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 10-01-96002-Урал, 10-02-96001-Урал, 10-02-00034, 12-01-00132), а также в рамках программы Министерства образования РФ (проект 2.1267.2011).

## ЛИТЕРАТУРА

1. C. F. Hayers, J. Colloid Interface Sci. **52**, 239 (1975).
2. E. A. Peterson and A. A. Kruege, J. Colloid Interface Sci. **62**, 24 (1977).
3. J. C. Bacri and D. Salin, J. Magn. Magn. Matter. **9**, 48 (1983).
4. A. F. Pshenichnikov, J. Magn. Magn. Matter. **145**, 139 (1995); P. K. Khizgenkov, V. L. Dorman, and F. G. Bar'jakhtar, Magnetohydrodynamics **25**, 30 (1989).
5. M. F. Islam, K. H. Lin, D. Lacoste, T. C. Lubenski, and A. G. Yodh, Phys. Rev. E **67**, 021402 (2003).
6. M. Klokkenburg, B. H. Erne, J. D. Meedldijk et al., Phys. Rev. Lett. **97**, 185702 (2006).
7. M. Levy, C. Wilhelm, J.-M. Siaugue et al., J. Phys. Cond. Matt. **20**, 204133 (2008).
8. J. M. Caillol, J. Chem. Phys. **9**, 9835 (1993).
9. M. E. Van Leeuwen and B. Smit, Phys. Rev. Lett. **71**, 3991 (1993).
10. D. Levesque and J. J. Weis, Phys. Rev. E **49**, 5131 (1994).
11. A. Satoh, R. W. Chantrell, S. Kamiyama, and G. N. Coverdal, J. Colloid Interface Sci. **181**, 422 (1996).
12. Z. Wang and C. Holm, Phys. Rev. E **68**, 041401 (2003).
13. K. Sano and M. Doi, J. Phys. Soc. Jpn. **52**, 2810 (1983).
14. A. O. Tsebers, Magnetohydrodynamics **18**, 345 (1982).
15. K. I. Morozov, Bull. Acad. Sci. USSR, Phys. Ser. **51**, 32 (1987).
16. Yu. A. Buyevich and A. O. Ivanov, Physica A **190**, 276 (1992).
17. L. Yu. Iskakova, G. A. Smelchakova, and A. Yu. Zubarev, Phys. Rev. E **79**, 011401 (2009).
18. А. П. Сафонов, Т. В. Терзян, А. С. Истомина, И. В. Бекетов, Высокомолекулярные соединения, Сер. А **54**, 30 (2012).
19. W. Wen, F. Kun, K. F. Pal, D. W. Zheng, and K. N. Tu, Phys. Rev. E **59**, R4758 (1999).
20. A. P. Hyynnen and M. Dijkstra, Phys. Rev. E **72**, 051402 (2005).
21. J. M. Tavares, J. J. Weis, and M. M. Tela da Gama, Phys. Rev. E **73**, 041507 (2006).
22. G. Ganzenmüller, G. N. Patey, and P. J. Camp, Mol. Phys. **107**:4, 403 (2009).
23. J. Richardi and M. P. Pilani, Phys. Rev. E **77**, 061510 (2008).
24. L. Trahm, in *Colloidal Magnetic Fluids: Basis, Development and Application Berlin*, ed. by S. Odenbach, Springer, Berlin (2009), p. 327.
25. T. Tlusty and S. Safran, Science **17**, 1328 (2000).
26. S. Odenbach, *Magnetoviscous Effects in Ferrofluids*, Springer, Berlin (2002).
27. A. Yu. Zubarev and L. Yu. Iskakova, Phys. Rev. E **76**, 061405 (2007).
28. Ю. Л. Райхер, А. Ф. Пшеничников, Письма в ЖЭТФ **41**, 109 (1985).