

Instabilitäten magnetischer Flüssigkeiten in statischen Magnetfeldern

H a b i l i t a t i o n s s c h r i f t

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium habilitatus (Dr. rer. nat. habil.)

genehmigt durch die Fakultät für

Naturwissenschaften

der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

von Dr. Adrian Lange

geb. am 24.9.1965 in Leipzig

Gutachter:

Prof. Dr. Andreas Engel

Prof. Dr. Manfred Lücke

Prof. em. Dr. Klaus Stierstadt

Magdeburg, den 5.7.2003

Vorwort

Diese Arbeit faßt meine Forschungsergebnisse zu Instabilitäten magnetischer Flüssigkeiten zusammen, die unter der Einwirkung statischer Magnetfelder entstehen. Die Forschungsarbeiten wurden an der Universität Magdeburg durchgeführt.

Ich möchte mich insbesondere bei Andreas Engel bedanken, der mir die Möglichkeit gegeben hat, dieses Forschungsgebiet in seiner Arbeitsgruppe zu bearbeiten. Viele produktive Diskussionen mit ihm und René Friedrichs begleiteten die hier vorgestellten Arbeiten. Hervorheben möchte ich auch die sehr enge und stimulierende Zusammenarbeit mit Bert Reimann und Reinhard Richter aus der Arbeitsgruppe von Ingo Rehberg (Universität Magdeburg, später Universität Bayreuth). Die dort durchgeführten Experimente waren über all die Jahre hinweg eine stete Motivation. Ebenfalls schulde ich Vladislav Mekhonoshin und der Deutschen Forschungsgemeinschaft Dank, deren finanzielle Unterstützung die Zusammenarbeit mit Vladislav erst ermöglicht hat. Ein besonderer Dank gilt Peter Kohler für die kritische Durchsicht dieser Arbeit. Ebenso möchte ich mich bei den vielen ungenannten Personen für ihre Unterstützung ganz herzlich bedanken.

Inhaltsverzeichnis

1	Faszination magnetischer Fluide	3
2	Magnetische Fluide	7
2.1	Was sind magnetische Fluide?	7
2.2	Stabilität magnetischer Fluide	9
2.2.1	Stabilität gegen magnetische Feldgradienten	9
2.2.2	Stabilität gegen Sedimentation	10
2.2.3	Stabilität gegen magnetische Agglomeration	10
2.2.4	Stabilität gegen van-der-Waals-Kräfte	11
2.3	Physikalische Eigenschaften magnetischer Fluide	12
2.3.1	Magnetische Relaxation	12
2.3.2	Magnetisierung	13
2.4	Herstellung und Anwendung magnetischer Fluide	15
3	Musterbildung und ihre theoretische Beschreibung	17
3.1	Lineare Stabilitätsanalyse	19
3.2	Amplitudengleichung	21
4	Verschiedene Aspekte der Oberflächeninstabilität auf magnetischen Fluiden	25
4.1	Anwachsende Kämmе	27
4.1.1	System und Grundgleichungen	27
4.1.2	Wellenzahl maximalen Wachstums	29
4.1.3	Maximale Wachstumsrate	32
4.2	Zerfallende Kämmе	34
4.3	Definition eines adjungierten Operators bei Oberflächen- deformationen	36
4.4	Schräge Kämmе	39
5	Thermomagnetische Konvektion	45
	Literaturverzeichnis	53
	Angefügte Veröffentlichungen	57

Kapitel 1

Faszination magnetischer Fluide

Die in vielerlei Richtungen wirkende Faszination der magnetischen Fluide speist sich daraus, daß magnetische Fluide etwas verbinden, was sich auf den ersten Blick nur schwer verbinden läßt. Die tägliche Erfahrung lehrt, daß Flüssigkeiten ein bestimmtes Volumen, aber keine bestimmte Form haben, das heißt sie können fließen. Dem entgegengesetzt verbindet sich mit einem Magneten die Vorstellung von einem Stück Festkörper mit festem Volumen und fester Form, der eine permanente Magnetisierung aufweist. Auf welche Art und Weise sollen diese beiden gegensätzlichen Eigenschaften in einem Ganzen vereinigt werden? Daß der Schein der Unvereinbarkeit nicht gänzlich trügt, zeigt sich daran, daß es erst Mitte der 60er Jahre des letzten Jahrhunderts gelang, eine Rezeptur zur Herstellung magnetischer Fluide zu entwickeln. Nachdem das Problem ihrer Herstellung überwunden worden war, konnte die Untersuchung der vielfältigen Eigenschaften dieser Flüssigkeiten beginnen. Magnetische Fluide sind einerseits gewöhnliche Flüssigkeiten wie Wasser, Alkohol oder Glycerin, das heißt ihnen können Eigenschaften wie Viskosität und Oberflächenspannung zugeordnet werden. Andererseits reagieren sie empfindlich auf das Einbringen in ein Magnetfeld, indem sich eine Magnetisierung im Fluid herausbildet. Diese Magnetisierung geht aber auf Null zurück, sobald das Magnetfeld abgeschaltet wird. Auf Grund dieser Eigenschaft handelt es sich bei magnetischen Fluiden um **magnetisierbare Flüssigkeiten**.

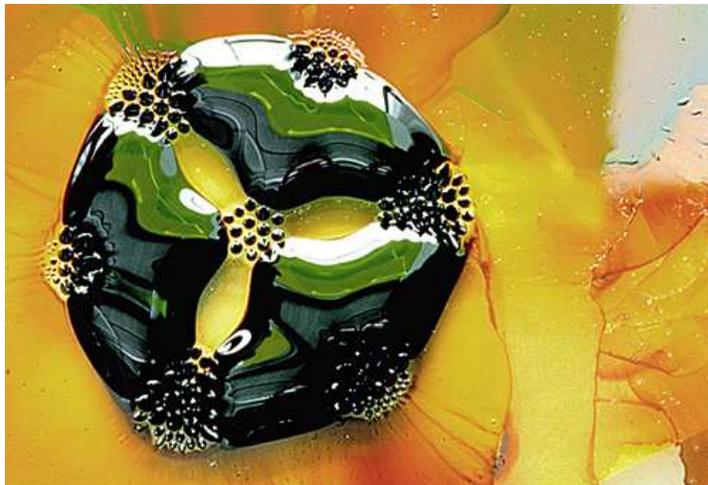


Abbildung 1.1: Ein Tropfen magnetischer Flüssigkeit auf einer Glasplatte mit sieben Dauermagneten. © Felice Frankel, 1997.

Plaziert man einen Tropfen magnetischer Flüssigkeit auf eine Glasplatte in ein Magnetfeld, so bestimmen drei konkurrierende Einflüsse seine Gestalt. Der Wettbewerb von Gravitation, Oberflächenspannung und Magnetfeld hält nicht immer eine einfache Lösung für die Form des Tropfens bereit. Vielmehr ist die Lösung dieses Konflikts ab einer bestimmten Magnetfeldstärke eine Form, wie sie die Natur sonst nirgends hervorbringt. Die Ästhetik der resultierenden Tropfengestalt ist beispielhaft in dem Foto von Felice Frankel eingefangen (Abb. 1.1), das dem Buch "On the Surface of Things: Images of the Extraordinary in Science" [1] entnommen wurde. In Bereichen hoher Magnetfelder bricht der Tropfen in mehrere Stachel auf, während in Regionen schwacher Magnetfelder die Oberfläche glatt bleibt: die Tropfengestalt läßt die Lage der sieben Dauermagnete erraten. Es ist nicht nur die Faszination der Formen, die magnetische Flüssigkeiten so attraktiv machen. Es ist auch ihre Eigenschaft, lichtundurchlässig zu sein, die einen Blick in das Innere der Flüssigkeit verwehrt. Die Entschlüsselung der Geheimnisse, die sich hinter dieser dunklen und undurchsichtigen Oberfläche verbergen, ist eine starke Triebkraft, sich mit einer solchen Flüssigkeit zu beschäftigen.

Eine der überraschenden Eigenschaften von magnetischen Flüssigkeiten ist, daß mittels eines äußeren Magnetfeldgradienten die effektive Dichte der Flüssigkeit variiert und damit von außen eingestellt werden kann. In diesem Zusammenhang tauchten sehr schnell Ideen auf, diese Eigenschaft zur Separation von nichtmagnetischen Giftstoffen aus kontaminierten Böden oder zum Sortieren mehrkomponentiger Gemische zu nutzen. Diesen Anwendungen stehen aber die hohen Anschaffungskosten für magnetische Fluide entgegen. Obwohl die ersten Synthetisierungen mehr als 35 Jahre zurückliegen, gibt es praktisch nur eine Firma, die magnetische Flüssigkeiten in großen Mengen herstellt ¹. Diese Monopolisierung zusammen mit einer effektiven Geheimhaltung zu den Details der Herstellung sorgen für Preise zwischen 1.500 und 10.000 Euro pro Liter. Deshalb werden Separatoren auf der Basis magnetischer Fluide lediglich zur Trennung von Gold- und Platinverbindungen aus aufgeschwemmten Erzböden verwendet [2].

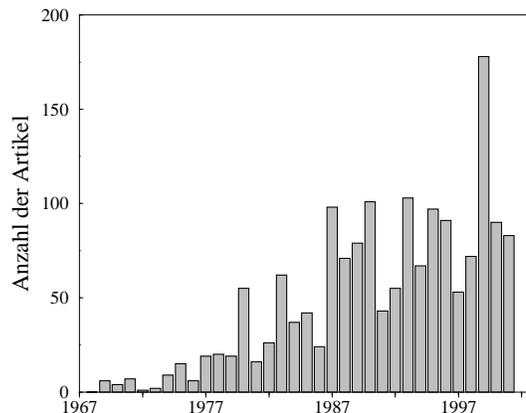


Abbildung 1.2: Anzahl der Publikationen zu magnetischen Flüssigkeiten in den Jahren 1968 bis 2001. Der Spitzenwert von 178 Artikeln im Jahre 1999 wurde durch das Erscheinen mehrerer Konferenzbände verursacht. Quelle: INSPEC-Datenbank.

Mit der Möglichkeit der Synthese von magnetischen Fluiden Mitte der 60er Jahre gab es die ersten vom Blickpunkt der Musterbildung aus motivierten Analysen, die sich mit den unkonventionellen und spektakulären Phänomenen dieser Substanz beschäftigen. Allem voran ist die Oberflächeninstabilität in Form von Stacheln zu nennen [3], die mittlerweile nach einem der Pioniere auf dem Gebiet der Physik magnetischer Fluide, Ronald E. Rosensweig, benannt worden ist. Anschließend waren es hauptsächlich Ingenieure, die die Untersuchungen von magnetischen Flüssigkeiten vorantrieben, um ihre Anwendungspotentiale auszuloten. Stimuliert von den faszi-

¹Die Firma Ferrotec Corporation produziert circa 20 Tonnen magnetischer Fluide pro Jahr.

nierenden Eigenschaften und den noch vielen ungelösten Fragen erlebt die physikalisch motivierte Forschung zu magnetischen Fluiden seit Ende der 80er Jahre des letzten Jahrhunderts einen markanten Aufschwung, der sich in der deutlich gestiegenen Anzahl von Publikationen niederschlägt (siehe Abb. 1.2).

Die hier vorgestellten Arbeiten behandeln Instabilitäten magnetischer Flüssigkeiten, die unter der Einwirkung statischer Magnetfelder entstehen. Der Schwerpunkt wird von Arbeiten zum bekanntesten Beispiel der Musterbildung für magnetische Flüssigkeiten gebildet: der Instabilität einer freien horizontalen Oberfläche in einem vertikalen Magnetfeld, die oberhalb einer kritischen Magnetfeldstärke zur Ausbildung markanter Stacheln führt (Kapitel 4.1 bis 4.3). Der erste Aspekt der Analysen ist die Charakterisierung des linear instabilsten Musters bei sprunghafter Magnetfeldstärkerhöhung. Dieses Muster ist durch eine maximale Wachstumsrate ausgezeichnet und dominiert deshalb das lineare Regime des Musterbildungsprozesses. Für die Wellenzahl des linear instabilsten Musters ergibt sich eine lineare Abhängigkeit von der Stärke des überkritischen Magnetfeldes (Kapitel 4.1.2). Für die maximale Wachstumsrate und die zugehörige Wellenzahl werden Skalierungsgesetze abgeleitet, die die Abhängigkeit beider Größen vom Magnetfeld und der Viskosität der magnetischen Flüssigkeit beschreiben (Kapitel 4.1.3). Als zweiter Aspekt wird der Zerfall des linear instabilsten Musters bei sprunghafter Verringerung der Magnetfeldstärke analysiert. Aus dieser Analyse lassen sich die Frequenz des oszillatorischen Zerfalls und die Propagationsgeschwindigkeit des zerfallenden Musters bestimmen. Beide Größen zeigen bei Variation des unterkritischen Magnetfeldes ein wurzelförmiges Verhalten (Kapitel 4.2). Der dritte Aspekt führt auf das Problem der Definition eines adjungierten Operators für Instabilitäten mit deformierten Grenzflächen (Kapitel 4.3). Es werden die Gründe aufgezeigt, warum es bisher nicht möglich war, einen solchen Operator zu definieren.

Wird das statische Magnetfeld horizontal zur Schicht orientiert, ist eine zusätzliche vertikale Vibration nötig, um eine Instabilität der freien Oberfläche zu generieren (Kapitel 4.4). Für hohe Vibrationsfrequenzen werden in Abhängigkeit von der Schichtdicke und der Magnetfeldstärke Oberflächendeformationen beliebiger Orientierung bezüglich der Richtung des Magnetfeldes oder auch rhombische Muster als Instabilität vorhergesagt.

Präpariert man die horizontale Flüssigkeitsschicht dagegen ohne freie Oberfläche, kann ein radialer Temperaturgradient in Zusammenspiel mit einem vertikalen statischen Magnetfeld eine thermomagnetische Instabilität in Form von vertikalen Konvektionsrollen antreiben (Kapitel 5). Es werden die Bedingungen bestimmt, unter denen vertikale Konvektionsrollen möglich sind und die kritischen Magnetfeldstärken, jenseits derer Konvektion einsetzt.

Für die Analyse der verschiedenen Instabilitäten werden im nachfolgenden Kapitel 2 die magnetischen Fluide näher beschrieben und in Kapitel 3 Methoden zur theoretischen Beschreibung der Musterbildung präsentiert.

Kapitel 2

Magnetische Fluide

In diesem Kapitel sollen die magnetischen Fluide mit ihren Eigenschaften, Besonderheiten und Anwendungsmöglichkeiten vorgestellt werden. Sehr viel umfassendere Einführungen in die Physik magnetischer Fluide sind in [4–6] zu finden.

2.1 Was sind magnetische Fluide?

Magnetische Fluide (MF) sind *stabile* kolloidale Suspensionen von ferro- oder ferrimagnetischen Nanopartikeln in einer Trägerflüssigkeit. Die ferromagnetischen Partikel werden aus Eisen, Nickel oder Kobalt gewonnen, während als ferrimagnetische Materialien Magnetit (Fe_3O_4) oder Kobaltferrit (CoFe_2O_4) eingesetzt werden. Trägerflüssigkeiten für MF können Wasser, Öle oder Kohlenwasserstoffe wie Hexan sein. Die Bezeichnung als *kolloidale* Suspension betont die Kleinheit der dispergierten festen Bestandteile, die sich im Bereich von einigen Nanometern bewegt. Auf Grund der Breite der Größenverteilung müssen reale MF als polydispers angesehen werden mit typischen Durchmessern d_f für den ferromagnetischen Kern¹ zwischen 2 und 20 Nanometern [7]. Infolge des Herstellungsprozesses haben die Nanopartikel keine einheitliche Gestalt, sondern realistisch ist ein Gemisch von sphärischen, elliptischen und polygonalen Teilchen sowie Konglomeraten von diesen.

Um die Stabilität der magnetischen Flüssigkeit zu sichern, muß insbesondere eine Agglomeration der einzelnen Nanopartikel verhindert werden. Dazu werden die Teilchen mit einer Schicht aus Tensiden umhüllt. Diese Hülle verhindert, daß sich die Teilchen so nahe kommen, daß die auf kurzen Abständen sehr starken, attraktiven van-der-Waals-Kräfte (siehe Abschnitt 2.2.4) dominieren. In Abb. 2.1 ist der Idealzustand in Form einer geschlossenen Schicht von Tensiden für ein sphärisches Teilchen dargestellt. Aus Neutronen-Kleinwinkelstreuexperimenten wurde die Dicke der Seifenschicht zu 2 bis 3 nm bestimmt [8].

Durch die Verwendung nanometergroßer Teilchen in den MF bestehen diese Partikel lediglich aus einer einzigen Domäne bzw. einer Subdomäne. Die Teilchen besitzen deshalb ein festes magnetisches Moment \mathbf{m} , dessen Betrag

$$|\mathbf{m}| = m = M_{S,f} V_f \quad (2.1)$$

durch den Betrag der Sättigungsmagnetisierung $M_{S,f}$ und das Volumen V_f des ferromagnetischen Kerns gegeben ist. Bei Abwesenheit eines Magnetfeldes sind die Orientierungen der magnetischen Momente der einzelnen Nanopartikel infolge ihrer thermischen Bewegung zufällig verteilt. Deshalb ist das mittlere magnetische Moment im Flüssigkeitsvolumen V gleich Null, $\langle \mathbf{m} \rangle_V \equiv 0$. Bei Anwesenheit eines Magnetfeldes orientieren sich die magnetischen Momente der Nanopartikel mehr oder minder parallel zum Feld. Der Einstellwinkel der Momente zur Feldrichtung hängt

¹Im Folgenden wird immer vom ferromagnetischen Kern gesprochen, unabhängig davon, ob die Nanopartikel ferro- oder ferrimagnetischen Ursprungs sind.

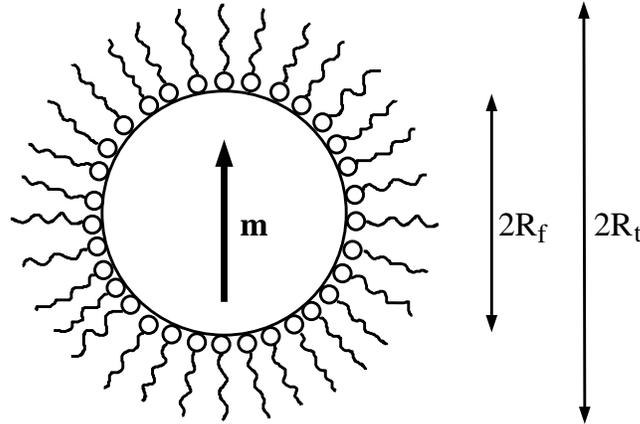


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung eines vollständig ummantelten sphärischen magnetischen Teilchens. R_f bezeichnet den Radius des ferromagnetischen Kerns, R_t den des Teilchens einschließlich der Hülle und \mathbf{m} das magnetische Moment des Teilchens.

vom Verhältnis der magnetischen Feldenergie zur thermischen Energie ab. Da nun das mittlere magnetische Moment im Volumen V größer Null ist, stellt sich eine makroskopische, von Null verschiedene Magnetisierung in Feldrichtung ein.

Auf diesem Zusammenhang zwischen anwesendem Magnetfeld und korrespondierender Magnetisierung basiert die Bezeichnung von magnetischen Fluiden als magnetisierbaren Flüssigkeiten. Das oben beschriebene Verhalten der magnetischen Momente in Ab- bzw. Anwesenheit eines Magnetfeldes ist charakteristisch für paramagnetische Materialien. Vergleicht man die Suszeptibilität χ (siehe Abschnitt 2.3.2) klassischer paramagnetischer Stoffe wie Mangan, Platin oder Aluminium mit denen von magnetit- oder kobalt-basierten MF, so wird deutlich, daß deren Suszeptibilität um 3 bis 5 Größenordnungen höher liegen (siehe Tabelle 2.1). Auf Grund dieser Relation wird das Verhalten der MF als **super**paramagnetisch bezeichnet. Die zur Herstellung der magnetischen Flüssigkeiten anfangs verwendeten ferromagnetische Materialien haben die Bezeichnung Ferrofluide begründet. Da dieser Name bezüglich der physikalischen Eigenschaften aber irreführend ist, soll in dieser Darstellung auf die Verwendung dieses Begriffes verzichtet werden.

Tabelle 2.1: Die Suszeptibilität χ von jeweils drei para-, superpara- und ferromagnetischen Materialien. Alle mit der Bezeichnung EMG versehenen magnetischen Fluide sind auf der Basis von Magnetit hergestellt.

	χ		χ		χ
Mangan	$8.72 \cdot 10^{-4}$ [9]	EMG 901	3.0 [10]	Nickel	110 – 600 [11]
Platin	$2.61 \cdot 10^{-4}$ [9]	EMG 909	0.8 [10]	Kobalt	70 – 250 [11]
Aluminium	$2.05 \cdot 10^{-5}$ [9]	Co-MF	23.5 [12]	Eisen	150 – 5000 [11]

Magnetischen Flüssigkeiten können als elektrisch nichtleitend betrachtet werden, da sowohl die Festkörpermateriale als auch die Trägerflüssigkeiten keine nennenswerten elektrischen Leitfähigkeiten aufweisen. Dies unterscheidet sie grundsätzlich von den elektrisch leitfähigen Metallschmelzen, die in der Magnetohydrodynamik untersucht werden. Um diese Abgrenzung deutlich zu machen, wurde von Rosensweig der Begriff *Ferrohydrodynamik* [4] bzw. von Müller und Liu der Begriff *Ferrofluidodynamik* [13] geprägt. Zusammenfassend läßt sich sagen, daß magnetische Flüssigkeiten viskose, elektrisch nichtleitende Flüssigkeiten sind, die sich unter der Einwirkung eines Magnetfeldes

des superparamagnetisch verhalten.

2.2 Stabilität magnetischer Fluide

In der Definition der MF wurde der stabile Charakter der Suspensionen hervorgehoben. Da es sich bei einer Suspension um eine feine Verteilung eines unlöslichen festen Stoffes in einer Flüssigkeit handelt, ist eine stabile Suspension durch die Abwesenheit von Phasenseparation zwischen den festen Bestandteilen und der Trägerflüssigkeit gekennzeichnet. Phasenseparation kann durch magnetische Feldgradienten, durch die Gravitationskraft sowie durch die Agglomeration der Teilchen infolge von van-der-Waals- und magnetischen Dipol-Dipol-Kräften verursacht werden. Zur Abschätzung der Stabilitätsbedingungen ist es ausreichend, die Relationen der relevanten Energien zu betrachten. Dies sind die thermische Energie

$$E_{th} \sim k_B T, \quad (2.2)$$

die magnetische Energie

$$E_m \sim \mu_0 M_{S,f} V_f H, \quad (2.3)$$

und die potentielle Energie

$$E_g \sim \delta\rho V_f g h. \quad (2.4)$$

Dabei bezeichnet $k_B = 1.38 \cdot 10^{-23} \text{ Nm K}^{-1}$ die Boltzmann-Konstante, T die Temperatur, $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ Vs A}^{-1} \text{ m}^{-1}$ die Permeabilität des Vakuums, H die Magnetfeldstärke, $\delta\rho$ den Dichteunterschied zur Trägerflüssigkeit, $g = 9.81 \text{ m s}^{-2}$ die Erdbeschleunigung und h die Füllhöhe der Flüssigkeit.

2.2.1 Stabilität gegen magnetische Feldgradienten

Der magnetische Feldgradient kann zum einen durch eine äußere Quelle erzeugt sein. Dann ist $E_m \sim \mu_0 H M_{S,f} V_f$ diejenige Energie, die nötig ist, um ein magnetisierbares Teilchen von einem Punkt mit der Feldstärke H zu einem Punkt außerhalb des Feldes zu bewegen. Der Bewegung der Teilchen in Richtung höherer Felder wirkt die thermische Energie entgegen, die es dem Teilchen erlaubt, das gesamte Fluidvolumen zu durchmessen. Stabilität gegen Segregation ist offensichtlich dann gegeben, wenn

$$\frac{E_{th}}{E_m} = \frac{k_B T}{\mu_0 H M_{S,f} V_f} \geq 1 \quad (2.5)$$

gilt. Bei einer Sättigungsmagnetisierung für Magnetit von $M_{S,f} = 4.8 \cdot 10^5 \text{ Am}^{-1}$ können bei einer Zimmertemperatur von $T = 293 \text{ K}$ Nanopartikel mit einem Durchmesser von $d_f \lesssim 8 \text{ nm}$ einer Felddifferenz bis zu $2.5 \cdot 10^4 \text{ Am}^{-1}$ widerstehen.

Zum anderen kann sich ein Feldgradient auch bei Anwesenheit eines konstanten Feldes einstellen, wenn die eingebrachte MF eine freie Oberfläche aufweist. Oberhalb eines kritischen Magnetfeldes tritt die Rosensweig-Instabilität (siehe Beginn des Kapitels 4) auf, deren sichtbarer Ausdruck die Ausbildung von Stacheln ist. Anschaulich werden in diesen Stacheln die Feldlinien des Magnetfeldes zusammengedrückt: je schmaler der Stachel, um so größer die Kompression der Magnetfeldlinien. Diese Vorstellung macht plausibel, daß es eine Magnetfelddifferenz zwischen der Spitze des Stachels mit H_{\max} und der Basis mit H_{\min} gibt. Abbildung 2.2 zeigt die Magnetfeldvariation in einem 5 mm hohen Stachel für das magnetische Fluid EMG 909. Mit $H_{\max} \simeq 16.5 \text{ kA m}^{-1}$ und $H_{\min} \simeq 11.0 \text{ kA m}^{-1}$ ergibt sich ein kritischer Durchmesser von $d_f \simeq 13 \text{ nm}$. Teilchen, die größere räumliche Ausdehnungen haben, sind also nicht mehr gleichmäßig in der Flüssigkeit verteilt. Es kommt demnach, zumindest in Langzeitexperimenten mit kommerziellen MF, zu Entmischungsprozessen bei der Rosensweig-Instabilität, was bereits experimentell beobachtet wurde [14].

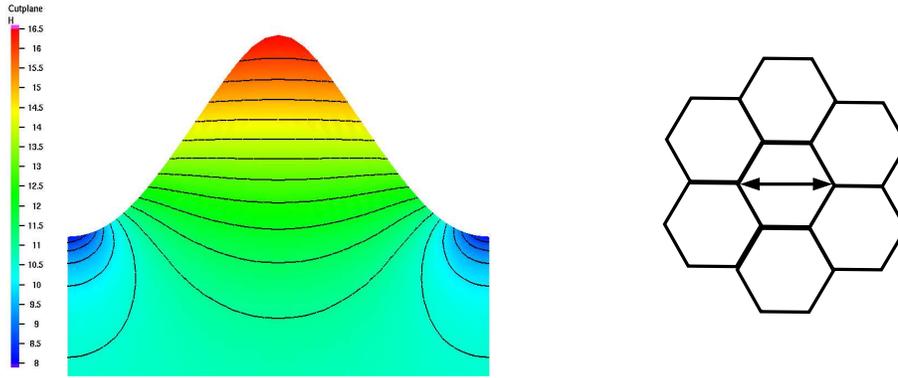


Abbildung 2.2: Magnetfeldvariation in einem 5 mm hohen Stachel für das magnetische Fluid EMG 909. Die Skala an der linken Seite gibt die Stärke des Magnetfeldes zwischen 16.5 kA m^{-1} (rot) und 8 kA m^{-1} (blau) an. Der Pfeil in der rechten Skizze zeigt die Lage der Schnittebene, wobei sich im Zentrum jedes Sechsecks die Spitze eines Stachels befindet. (Mit freundlicher Genehmigung von Gunar Matthies [15]).

2.2.2 Stabilität gegen Sedimentation

Während die Gravitation die Teilchen in einem gefüllten Gefäß nach unten zieht, sorgt die thermische Bewegung der Teilchen dafür, daß diese in der Trägerflüssigkeit dispergiert bleiben. Vergleicht man die potentielle Energie bei einer Füllhöhe von $h = 5 \text{ cm}$ mit der magnetischen Energie,

$$\frac{E_g}{E_m} = \frac{\delta \rho g h}{\mu_0 H M_{S,f}} \simeq 0.13, \quad (2.6)$$

so wird deutlich, daß die Segregationswirkung der Gravitation im Vergleich zu der einer magnetischen Felddifferenz sehr klein ist.

2.2.3 Stabilität gegen magnetische Agglomeration

Da jedes Nanoteilchen ein permanentes magnetisches Dipolmoment \mathbf{m} mit dem dazugehörigen Dipolfeld hat, resultieren daraus Dipol-Dipol-Wechselwirkungen mit benachbarten Teilchen. Befinden sich zwei Dipolmomente $\mathbf{m}_1 = \mathbf{m}_2 = \mathbf{m}$ auf einer Verbindungslinie und zeigen in dieselbe Richtung, ergibt sich eine anziehende Wechselwirkungsenergie von

$$E_{\text{DD}} = -\mathbf{m}_1 \mathbf{B}(\mathbf{m}_2) = -\mathbf{m}_1 \frac{\mu_0}{4\pi} \left[\frac{3(\mathbf{r} \mathbf{m}_2) \mathbf{r}}{r^5} - \frac{\mathbf{m}_2}{r^3} \right] = -\frac{\mu_0 \pi M_{S,f}^2 d_f^3}{72(1 + s/d_f)^3}, \quad (2.7)$$

wobei s der Abstand zwischen den beiden ferromagnetischen Kernen ist (siehe Abb. 2.3). Auf Grund dieser anziehenden Wechselwirkungsenergie können die beiden Teilchen nach einer Kollision aneinander haften bleiben. Um dies zu verhindern, muß die thermische Energie größer sein als die Wechselwirkungsenergie im Falle des Kontaktes, $s = 0$, also

$$\frac{E_{th}}{2|E_{\text{DD}}|} = \frac{144 k_B T}{\mu_0 \pi M_{S,f}^2 d_f^3} \geq 1. \quad (2.8)$$

Daraus ergibt sich ein kritischer Durchmesser von $d_f \lesssim 9 \text{ nm}$, damit die Teilchen nicht der magnetischen Agglomeration unterliegen.

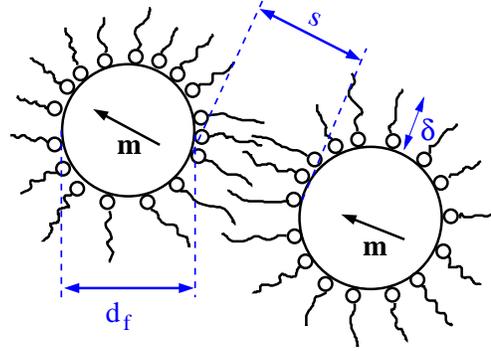


Abbildung 2.3: Zwei ummantelte ferromagnetische Teilchen mit dem gleichen magnetischen Dipolmoment \mathbf{m} und den relevanten Längen: der Distanz s zwischen den Kernen, dem Kerndurchmesser d_f und der Länge δ des Tensids.

2.2.4 Stabilität gegen van-der-Waals-Kräfte

Die Wirkung attraktiver van-der-Waals-Kräfte ist nicht spezifisch für MF, sondern sie tritt zwischen allen elektrisch neutralen Molekülen auf. Diese attraktiven intermolekularen Kräfte haben ihren Ursprung in fluktuierenden elektrischen Dipol-Dipol-Kräften, die durch immer vorhandene Variationen der Elektronendichte in den Molekülen hervorgerufen werden. Unter der Annahme sphärischer Teilchen gleichen Durchmessers erhielt Hamaker [16] folgenden Ausdruck für diese attraktive Wechselwirkung

$$E_{\text{vdW}} = -\frac{A}{6} \left[\frac{2}{l^2 + 4l} + \frac{2}{(l + 2)^2} + \ln \frac{l^2 + 4l}{(l + 2)^2} \right], \quad (2.9)$$

wobei $l = 2s/d_f$ und A die Hamaker-Konstante ist. Ihr Wert für Magnetit in Kohlenwasserstoffen wird von Rosensweig mit $A = 10^{-19}$ Nm (Schwankungen um den Faktor 3 sind möglich) angegeben [4]. Die Größe dieser attraktiven Wechselwirkung nimmt mit abnehmendem Abstand zu und divergiert für $s \rightarrow 0$.

Um die attraktiven van-der-Waals- und magnetischen Dipol-Dipol-Kräfte zu kompensieren, wird die Methode der sterischen Stabilisation angewandt. Dazu werden langkettige Tenside mit einem funktionellen Kopf, zum Beispiel Oleinsäure oder Polychloropren, in die Trägerflüssigkeit gegeben. Die funktionelle Gruppe ist für die Bindung des Tensids auf der Oberfläche des ferromagnetischen Kerns verantwortlich, während der langkettige Rest die Lösbarkeit in der Trägerflüssigkeit sichert. Die Idee, daß sich aus der Verwendung von langkettigen Tensiden eine abstoßende Kraft bei Annäherung der Kerne ergibt, läßt sich wie folgt skizzieren. Sind die Kerne relativ nahe zueinander (siehe Abb. 2.3), dann verringert sich das den Tensiden zur Verfügung stehende Volumen, $\partial V/\partial s > 0$. Die korrespondierende Kraft zwischen den Teilchen ist

$$\mathbf{F}_r = -\text{grad}U = -\frac{\partial U}{\partial s} \text{grad } s = -\frac{\partial U}{\partial V} \frac{\partial V}{\partial s} \mathbf{e}_s = p \frac{\partial V}{\partial s} \mathbf{e}_s > 0 \quad (2.10)$$

abstoßend, wobei $dU = -pdV$ benutzt wurde, und \mathbf{e}_s der Einheitsvektor bezüglich s ist. Dieser Mechanismus wird auch als entropische Abstoßung bezeichnet.

Für den Fall der MF haben Rosensweig et al. [17] die aus der sterischen Abstoßung resultierende Wechselwirkungsenergie für sphärische Teilchen gleichen Durchmessers zu

$$E_r = \begin{cases} \frac{\pi d_f^2 k_B T C}{2} \left[2 - \frac{l+2}{l_m} \ln \frac{1+l_m}{1+l/2} - \frac{l}{l_m} \right] & s \leq 2\delta \\ 0 & s \geq 2\delta \end{cases} \quad (2.11)$$

berechnet. Die Oberflächenkonzentration der Tenside wird mit \mathcal{C} bezeichnet und $l_m = 2\delta/d_f$ gibt das Verhältnis der zweifachen Tensidlänge zum Durchmesser des ferromagnetischen Kerns an (siehe Abb. 2.3).

Am Beispiel eines Magnetitnanopartikels mit einem Kerndurchmesser von 8 nm ist deutlich zu erkennen, daß die sterische Abstoßung bei einem Tensid der (unrealistischen) Länge von 0.5 nm zu gering ist, um die van-der-Waals- und die magnetische Attraktion überzukompensieren, $E_{\text{res}} < 0$ [rote Kurve in Abb. 2.4(a)]. Dagegen erzeugt ein Tensid mit der Länge von 2 nm eine Barriere, $E_{\text{res}} > 0$ für $0.2 \text{ nm} \leq s \leq 3.2 \text{ nm}$ [rote Kurve in Abb. 2.4(b)]. Der minimal mögliche Abstand zweier Nanopartikel kann zu 3 nm abgeschätzt werden.

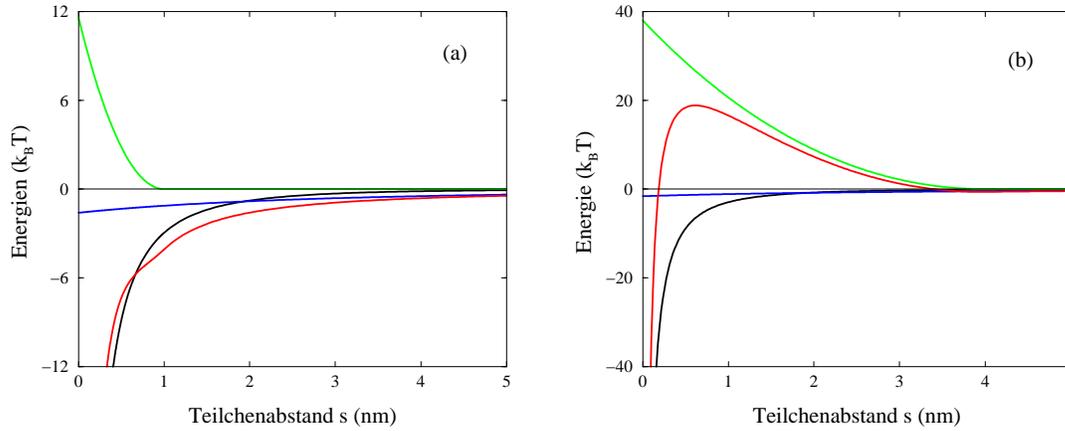


Abbildung 2.4: Wechselwirkungsenergien für Längen des Tensids von $\delta = 0.5 \text{ nm}$ (a) bzw. 2 nm (b) in Abhängigkeit vom Teilchenabstand s bei Zimmertemperatur. Aufgetragen sind die Beiträge der magnetischen Attraktion (2.7) (blau), der van-der-Waals-Attraktion (2.9) (schwarz), der sterischen Abstoßung (2.11) (grün) und der resultierenden Energie (rot). Die Barriere von bis zu $18 k_B T$ für Abstände $0.2 \text{ nm} \leq s \leq 3.2 \text{ nm}$ in (b) verhindert die Agglomeration der Nanopartikel. Die zur Berechnung verwendeten Werte sind: $M_{S,f} = 4.8 \cdot 10^5 \text{ Am}^{-1}$, $d_f = 8 \text{ nm}$, $A = 10^{-19} \text{ Nm}$, $T = 293 \text{ K}$ und $\mathcal{C} = 10^{18} \text{ m}^{-2}$.

2.3 Physikalische Eigenschaften magnetischer Fluide

Einerseits handelt es sich bei magnetischen Fluiden um gewöhnliche viskose Flüssigkeiten. Andererseits verhalten sie sich superparamagnetisch, das heißt bei Anlegen eines äußeren Feldes baut sich eine Magnetisierung auf. Die Frage, wie sich diese Magnetisierung verhält, wenn das äußere magnetische Feld seine Richtung ändert, führt auf das Problem der magnetischen Relaxation.

2.3.1 Magnetische Relaxation

Es gibt zwei prinzipielle Möglichkeiten für den Prozeß, der geänderten Richtung des Magnetfeldes zu folgen. Zum einen kann das Teilchen als Ganzes dem Magnetfeld nachfolgen [Abb. 2.5(a)]. Diese Eigenschaft wird als “magnetisch hart” bezeichnet. Zum anderen kann nur das magnetische Moment \mathbf{m} innerhalb des Teilchens dem Magnetfeld nachfolgen [Abb. 2.5(b)]. Ein solches Verhalten wird als “magnetisch weich” bezeichnet.

Der erstgenannte Relaxationsprozeß ist durch die Brownsche Relaxationszeit [18]

$$\tau_B = \frac{3V_f \eta_0}{k_B T} \quad (2.12)$$

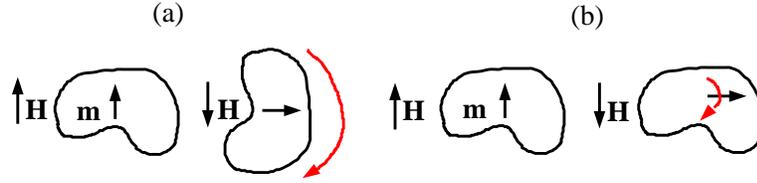


Abbildung 2.5: (a) Das Teilchen folgt als Ganzes der geänderten Richtung von \mathbf{H} . (b) Nur das magnetische Moment \mathbf{m} *innerhalb* des Teilchens folgt der geänderten Richtung von \mathbf{H} .

charakterisiert, wobei die dynamische Viskosität der Trägerflüssigkeit mit η_0 bezeichnet ist. Zur Bestimmung der charakteristischen Zeit für den zweitgenannten Relaxationsprozeß muß in Erinnerung gerufen werden, daß das ferromagnetische Material zu einer gewissen Kristallklasse gehört. So ordnen sich die Eisenatome bei Zimmertemperatur in kubisch raumzentrierter Form an, während Nickel in kubisch-flächenzentrierter Form vorliegt. Innerhalb dieser Kristallstrukturen gibt es bevorzugte Richtungen für die Ausrichtung der Magnetisierung. Das magnetische Dipolmoment \mathbf{m} einer Domäne tendiert dazu, sich parallel zu einer der bevorzugten Richtungen zu orientieren. Versucht \mathbf{m} der geänderten Richtung des Magnetfeldes zu folgen, “überstreicht” es dabei nicht bevorzugte Magnetisierungsrichtungen. Dieses “Überstreichen” ist durch das Überwinden einer Energiebarriere möglich, die durch die Anisotropiekonstante des Materials K charakterisiert ist, $E_{\text{bar}} = KV_f$. Diese Energiebarriere muß mit der thermischen Energie verglichen werden. Nach Néel [19,20] induziert die thermische Energie im Falle $KV_f \ll k_B T$ Fluktuationen der Magnetisierung innerhalb des Teilchens mit der charakteristischen Zeit

$$\tau_N = \tau_0(T) \exp\left(\frac{KV_f}{k_B T}\right). \quad (2.13)$$

Dabei ist τ_0 ein materialabhängiger Faktor, der wie \sqrt{T} wächst [19] und sich um eine Größenordnung zwischen $T = 2$ K und $T = 200$ K ändert [21]. Für die Beschreibung aller in den MF auftretenden Phänomene ist es entscheidend, die Relation zwischen den beiden Relaxationszeiten (2.12, 2.13) und den anderen charakteristischen Zeiten t_{char} (z. B. für Diffusions- oder Konvektionsprozesse) zu bestimmen. Unter der Voraussetzung, daß die effektive magnetische Relaxationszeit

$$\frac{1}{\tau_{\text{eff}}} = \frac{1}{\tau_B} + \frac{1}{\tau_N} \quad (2.14)$$

deutlich kleiner ist als t_{char} , liegt in der magnetischen Flüssigkeit immer Gleichgewichtsmagnetisierung vor. Das heißt, zu jedem Zeitpunkt und an jedem Ort sind Magnetisierung und magnetisches Feld im Fluid parallel zueinander, also $\mathbf{M}(\mathbf{r}, t) \parallel \mathbf{H}(\mathbf{r}, t)$. Diese Annahme ist für die hier vorgestellten Musterphänomene immer erfüllt, denn die effektive magnetische Relaxationszeit liegt typischerweise bei $\tau_{\text{eff}} \approx 10^{-4}$ s [22], was mehrere Größenordnungen kleiner ist als die typische Zeit für Konvektionsströmungen.

2.3.2 Magnetisierung

Bei Vorliegen der Gleichgewichtsmagnetisierung sind die Einheitsvektoren von Magnetfeld und Magnetisierung parallel,

$$\mathbf{e}_H = \mathbf{e}_M \iff \frac{\mathbf{H}}{H} = \frac{\mathbf{M}}{M}. \quad (2.15)$$

Dabei bezeichnet M den Betrag der Magnetisierung, die im Allgemeinen eine Funktion der Temperatur und des angelegten Magnetfeldes ist, $M = M(H, T)$, wobei höhere Magnetfelder (Temperaturen) eine höhere (niedrigere) Magnetisierung verursachen. Ein Umschreiben von Gleichung (2.15)

ergibt dann die Definition der Suszeptibilität χ

$$\mathbf{M} = \left[\frac{M(H, T)}{H} \right] \mathbf{H} = \chi \mathbf{H} \quad \Rightarrow \quad \chi(H) \equiv \frac{M(H, T)}{H}. \quad (2.16)$$

Unter der Annahme kugelförmiger Teilchen gleichen Durchmessers und vernachlässigbarer Teilchen-Teilchen-Wechselwirkung wird die Abhängigkeit der Magnetisierung von Temperatur und Magnetfeld durch die Langevin-Funktion $L(\xi)$ beschrieben [4]

$$M(H, T) = M_S L(\xi) = M_S \left(\coth \xi - \frac{1}{\xi} \right) \quad (2.17)$$

mit dem Langevin-Parameter

$$\xi = \frac{\mu_0 m H}{k_B T} \quad (2.18)$$

und der Sättigungsmagnetisierung M_S . Der Volumenanteil der ferromagnetischen Teilchen in der Flüssigkeit wird mit ϕ bezeichnet, während die Teilchenzahldichte n bezogen auf das Volumen der kolloidalen Suspension durch

$$n = \frac{\phi}{V_f} \quad (2.19)$$

gegeben ist. Die Sättigungsmagnetisierung der MF läßt sich dann aus der Teilchenzahldichte und dem magnetischen Moment des ferromagnetischen Kerns (2.1) bestimmen,

$$M_S = nm = \phi M_{S,f}. \quad (2.20)$$

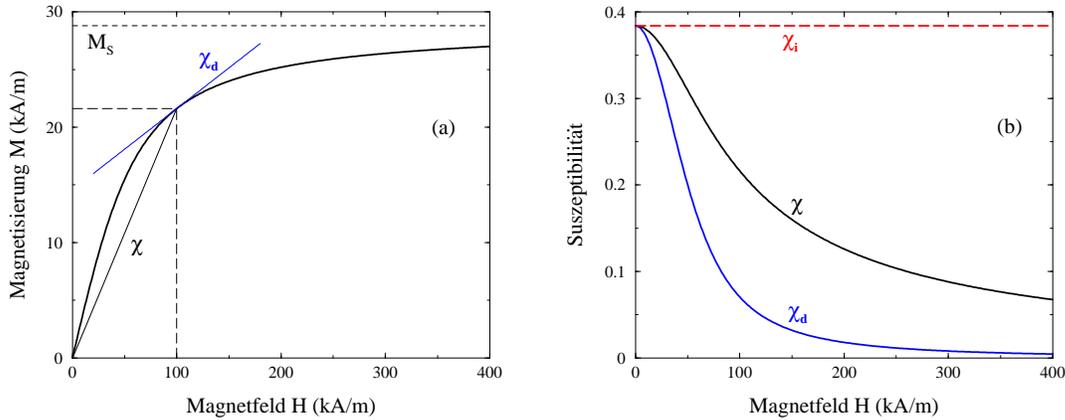


Abbildung 2.6: (a) Die Magnetisierung M wächst linear für kleine Magnetfelder an und erreicht für große H den Sättigungswert M_S . Die Relation der Suszeptibilitäten χ und χ_d zur Magnetisierungskurve $M(H)$ ist für $H = 100 \text{ kA m}^{-1}$ angegeben. Die Abhängigkeit beider Suszeptibilitäten von der Magnetfeldstärke wird in (b) gezeigt. Für $H \rightarrow 0$ stimmen χ und χ_d mit der Anfangsuszeptibilität χ_i (2.22) überein. Die zur Berechnung verwendeten Werte sind: $M_{S,f} = 4.8 \cdot 10^5 \text{ Am}^{-1}$, $d_f = 8 \text{ nm}$, $T = 293 \text{ K}$ und $\phi = 0.06$.

Trägt man die Magnetisierung der MF über der angelegten Feldstärke auf [siehe Abb. 2.6(a)], erkennt man, daß die Definition der Suszeptibilität χ in (2.16) als Quotient von Magnetisierung

und Feldstärke nur im linearen Bereich die Abhängigkeit $M(H)$ korrekt wiedergibt. Aus diesem Grund wird eine differentielle Suszeptibilität

$$\chi_d(H) = \left(\frac{\partial M(H, T)}{\partial H} \right)_T \quad (2.21)$$

eingeführt, die, wenn für alle H bekannt, in äquivalenter Art und Weise wie die Magnetisierungskurve die MF charakterisiert. Für $H \rightarrow 0$ stimmen χ_d und χ überein [siehe Abb. 2.6(b)] und nehmen den Wert der Anfangsuszeptibilität χ_i an. Außer an dieser Stelle wird auf die Verwendung der verschiedenen Suszeptibilitäten verzichtet, und alle angegebenen Werte beziehen sich auf die Anfangsuszeptibilität. Dazu entwickelt man die Langevin-Funktion für $\xi \ll 1$, das heißt für $H \ll k_B T / (\mu_0 m)$ und erhält aus dieser Entwicklung eine lineare Beziehung zwischen der Magnetisierung und dem Magnetfeld. Mittels Gleichung (2.16) ergibt sich das Curie-Gesetz für die Abhängigkeit der Anfangsuszeptibilität von der Temperatur,

$$\chi_i = \frac{\mu_0 n m^2}{3 k_B} \frac{1}{T}. \quad (2.22)$$

2.4 Herstellung und Anwendung magnetischer Fluide

Für die Herstellung langzeitstabiler MF ist es wichtig, die richtige Kombination aus der Größe des ferromagnetischen Kerns, den Tensiden und der Trägerflüssigkeit zu wählen. Erst Mitte der 60er Jahre fand man die geeignete Rezeptur, bei der das Festkörpermateriale in Kugelmøhlen zerkleinert wurde. Der Rezeptcharakter der Herstellung soll durch folgendes Zitat aus [17] illustriert werden: "The procedure is to fill a mill jar about half full with the steel balls, add kerosene to slightly more than cover the balls, add the ferrite and surfactant, and mill for such a period as required. About one week of grinding is required to produce a fluid noticeably responsive to the field of a small permanent magnet while three weeks or more is required to completely reduce the ferrite to the colloidal state."

Dieser klassische Weg ist heute durch die kolloidchemische Synthetisierung der MF abgelöst. Dabei werden die Nanopartikel bei Anwesenheit des Lösungsmittels und des Tensids durch eine Fällungsreaktion hergestellt. Für Magnetitnanoteilchen ist dies die Reaktion von Natriumhydroxid und Eisen(II,III)-chlorid zu Magnetit, Natriumchlorid und Wasser²:



Die Schwierigkeit bei kolloidchemischen Verfahren besteht darin, während der Fällungsreaktion die Tenside an die Oberfläche des ferromagnetischen Kerns anzubinden. Diese Anbindung soll dann auch noch bei einer definierten Größe des Magnetitteilchens geschehen, denn mit zunehmender Bedeckung verlangsamt sich die Reaktion und das Wachstum der Kristalle kommt zum Erliegen. Diese Schwierigkeiten sind zum einen der Grund, warum die Details der Herstellung Betriebsgeheimnisse sind, und zum anderen warum in kommerziellen MF eine breite Größenverteilung der Teilchen zu finden ist.

Die mengenmäßig bedeutendsten Anwendungen magnetischer Fluide sind der Einsatz in vakuumdichten Drehdurchführungen und in hochwertigen Lautsprechern. Zwischen der beweglichen Tonspule an der Membran und dem Weicheisenkern bzw. dem Weicheisenjoch besteht ein enger Luftspalt mit einem starken Magnetfeld. Bringt man in diesen Luftspalt eine MF [siehe Abb. 2.7(a)], so wird die magnetische Eigenschaft des Kühlmittels genutzt, um es an der Stelle zu fixieren, an der die Wärme abgeleitet werden soll. Da die Wärmeleitfähigkeit der MF circa 4.5 mal größer ist als die von Luft, läßt sich die thermische Belastung eines Lautsprechers deutlich steigern [23]. Gleichzeitig wird die magnetische Flüssigkeit genutzt, um unerwünschte Taumelbewegungen der Tonspule zu dämpfen.

²Die stöchiometrischen Angaben für die Natriumverbindungen in [4] sind nicht korrekt.

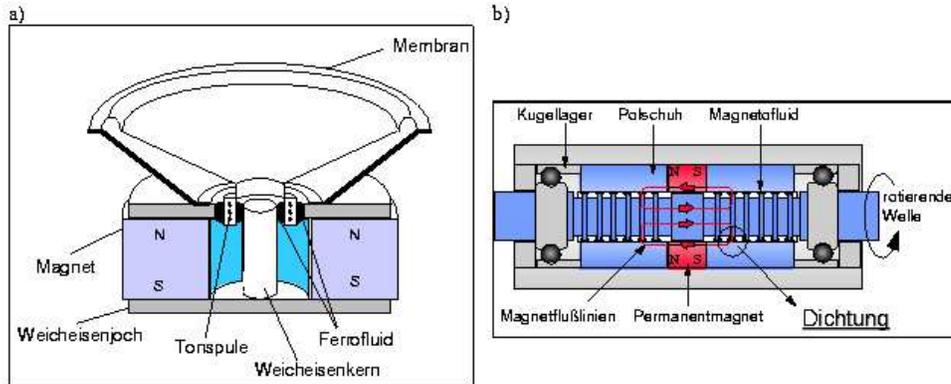


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung eines Lautsprechers (a) und einer Dichtung (b), in denen magnetische Flüssigkeiten zum Einsatz kommen [24].

Die zweite sehr wichtige Anwendung ist der Einsatz von MF bei der Konstruktion von vakuumdichten Drehdurchführungen, in denen eine sich drehende Welle gegenüber einer Druckdifferenz abgedichtet wird. Die Dichtung ist mit ein oder mehrere Permanentmagneten versehen, die die in den Spalt zwischen Polschuh und rotierender Welle eingebrachte MF fixieren [siehe Abb. 2.7(b)]. Auf diese Weise können Druckdifferenzen bis zu $6 \cdot 10^6$ Pa bei Drehzahlen bis zu 30.000 U/min reibungsarm abgedichtet werden [24]. Durch die sehr geringen Verdampfungsrate erfüllen MF die Bedingung einer langlebigen Emissionsfreiheit. Deshalb befinden sich MF zum Beispiel in den Dichtungen von Festplatten heutiger Rechner. Der Vorteil von magnetischen Fluiden, als Dichtungsmittel keinerlei Partikel zu generieren, macht ihren Einsatz in der Halbleiterindustrie weit verbreitet, da dort Druckdifferenzen unter Reinstbedingungen abgedichtet werden müssen. Ein sehr umfassender Einblick in die Einsatzmöglichkeiten magnetischer Fluide in Dichtungen, als Dämpfer, in Separatoren oder als Zusatz in Poliermaterialien wird in [25] gegeben.

Die Eigenschaft, magnetische Fluide mittels eines Magnetfeldes lokal fixieren zu können, findet auch im medizinischen Bereich Anwendung. Dazu werden die MF zum Beispiel als Trägerstoff für Chemotherapeutika genutzt und mit Hilfe eines Magneten an Orte oberflächennaher Karzinome gebracht. In Laborversuchen konnte gezeigt werden, daß auf diese Weise beim Einsatz von weniger Chemotherapeutikum die Tumore sich in kürzerer Zeit zurückbilden und dementsprechend die Intensität der Nebenwirkungen ebenfalls zurückging [26]. Eine aktuelle Übersicht zu den Einsatzmöglichkeiten und Ergebnissen magnetischer Botenstoffe im medizinischen Bereich findet man in [27].

Kapitel 3

Musterbildung und ihre theoretische Beschreibung

Musterbildende Systeme sind Bestandteil unserer täglichen Erfahrung: zum Beispiel in der Form von Kolonien bildenden Bakterien, von Schneekristallen und von Wolkenformationen in der Erdatmosphäre (Abb. 3.1). Eine mögliche Definition des Begriffs Muster muß bei einer derartigen Vielfalt natürlich vage bleiben. Philip Ball, Redakteur der Zeitschrift *Nature*, erklärt in seinem Buch “The self-made tapestry” Muster als reguläre, sich wiederholende Anordnung von einheitlichen Elementen, wobei für den Grad der Identität der Elemente sowie die Regularität ihrer Anordnung eine gewisse Varianz erlaubt ist [28].

Die Existenz von Mustern für Systeme im thermodynamischen Gleichgewicht ist bereits sehr lange bekannt. Beispielsweise befaßte sich schon 1610 der Astronom Johannes Kepler eingehender mit der Gestalt von Schneekristallen [29]. Aber erst im Verlauf des letzten Jahrhunderts wurde die Erkenntnis gewonnen, daß auch Systeme, die durch einen äußeren Zwang fern vom thermodynamischen Gleichgewicht gehalten werden, zeitliche und räumliche Muster ausbilden können. Klassische hydrodynamische Instabilitäten wie im Rayleigh-Bénard-System oder chemische Oszillationen wie in der Belousov-Zhabotinsky-Reaktion trugen maßgeblich zu dieser Erkenntnis bei. Ein erstes Merkmal dieser musterbildenden Systeme ist, daß es sich um dissipative Systeme handelt, die in Energieaustausch mit ihrer Umgebung stehen, um sie vom Gleichgewicht wegzutreiben. Ein zweites Grundelement ist die Existenz eines Instabilitätspunktes, bei dem der Musterbildungsprozeß einsetzt. Dieser Punkt ist typischerweise dadurch bestimmt, daß dort erstmals die vom Gleichgewicht wegtreibenden Mechanismen (destabilisierend genannt) stärker sind als die zum Gleichgewicht hinführenden Mechanismen (stabilisierend genannt). Bei einer solchen Relation wachsen anfänglich kleine Abweichungen vom Gleichgewicht an, der Musterbildungsprozeß kommt in Gang. Als drittes Element ist der nichtlineare Charakter des Systems anzuführen. Dieser sorgt dafür, daß im Verlauf des Musterbildungsprozesses eines der möglichen Muster ausgewählt wird.

Musterbildende Systeme werden typischerweise durch nichtlineare partielle Differentialgleichungen beschrieben, für die es im allgemeinen nicht möglich ist, nichttriviale analytische Lösungen anzugeben. Um dennoch Aussagen über den Einsatzpunkt, die Auswahl und die Stabilität der Muster machen zu können, werden zwei sich ergänzende Methoden angewandt. Während die Methode der linearen Stabilitätsanalyse den Einsatzpunkt der Musterbildung, das heißt die Instabilität des Grundzustandes bestimmt, führt die Methode der Mehrskalanalyse auf eine Gleichung für die Amplituden der Muster. Mit dieser Amplitudengleichung wird die Auswahl und die Stabilität der verschiedenen Muster untersucht. Beide Methoden sollen nachfolgend skizziert werden (Ein umfassender Überblick über Musterbildung und ihre theoretische Beschreibung wird in [30] gegeben.).

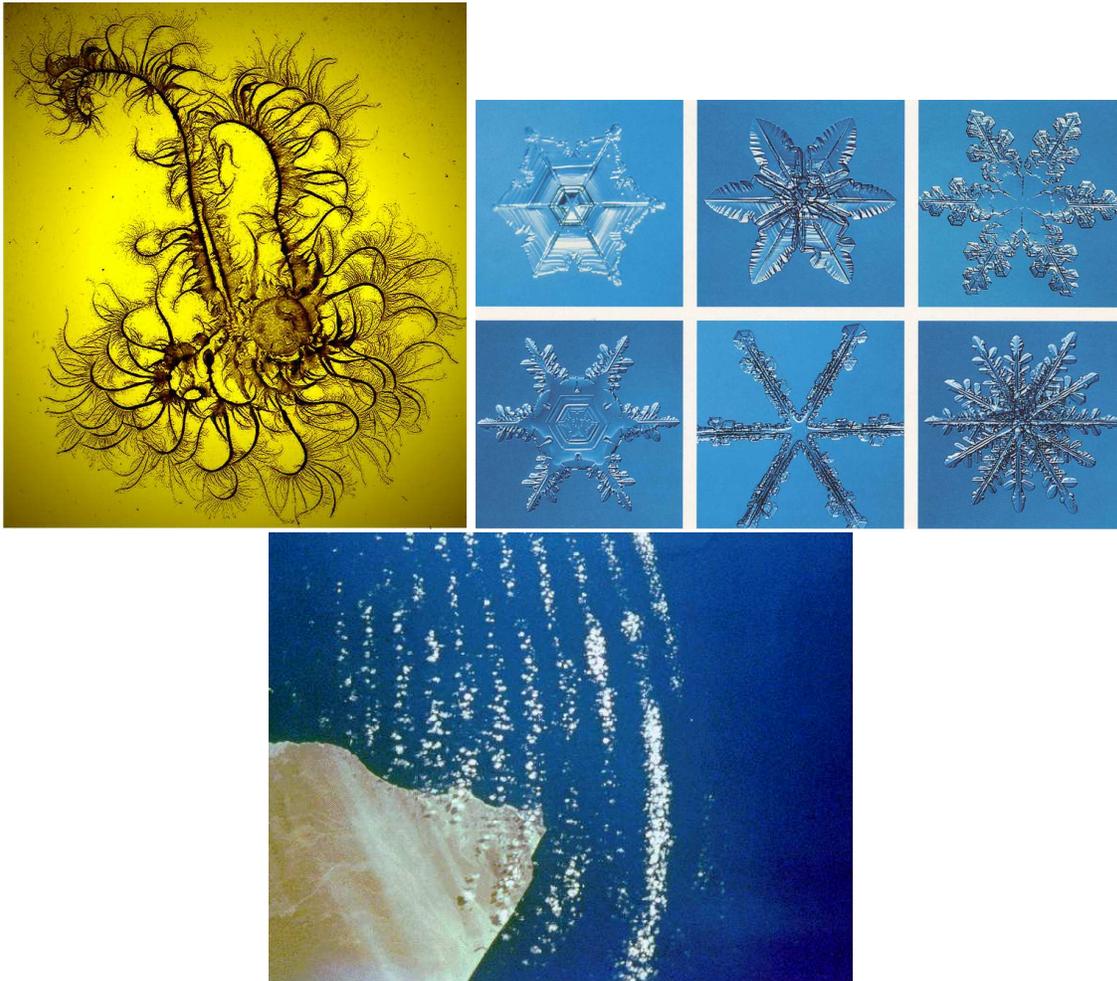


Abbildung 3.1: Beispiele für komplexe Muster bei Bakterien (links oben), Schneekristallen (rechts oben) und in der Erdatmosphäre (unten). Mit freundlicher Genehmigung von Eshel Ben-Jacob, Yoshinori Furukawa und LPI/NASA.

3.1 Lineare Stabilitätsanalyse

Das System der nichtlinearen partiellen Differentialgleichungen läßt sich formal in der Form

$$\partial_t \vec{U}(\mathbf{r}, t) = G[\vec{U}, \partial_{x_i} \vec{U}_j, \dots; R] \quad (3.1)$$

schreiben. Die Komponenten des Zustandsvektors \vec{U} enthalten die Variablen des Systems, wie zum Beispiel die Geschwindigkeitskomponenten, die Temperatur oder das skalare magnetische Potential. G ist ein nichtlinearer Operator in \vec{U} und dessen Ableitungen. Der dimensionslose Kontrollparameter R enthält die von außen beeinflussbaren Größen, zum Beispiel die Temperaturdifferenz oder das Magnetfeld, und ist somit ein Maß für die Stärke, mit der das System vom Gleichgewicht weggetrieben wird. Vervollständigt wird die Beschreibung des Systems durch einen Satz von Randbedingungen, die durch die Wahl der Geometrie und die physikalischen Eigenschaften des Systems bestimmt werden. Gleichung (3.1) besitzt häufig eine zeitunabhängige und räumlich homogene Lösung \vec{U}_G , die den Grundzustand charakterisiert. Betrachtet man kleine Abweichungen von diesem Gleichgewichtszustand, $\vec{U}(\mathbf{r}, t) = \vec{U}_G + \vec{U}(\mathbf{r}, t)$, so ergibt sich nach Einsetzen in Gleichung (3.1)

$$\partial_t \vec{U}(\mathbf{r}, t) = L(R)\vec{U} + N(\vec{U}; R), \quad (3.2)$$

wobei L ein linearer Operator ist, und N die nichtlinearen Beiträge aus (3.1) enthält. Will man die Stabilität des Grundzustandes bestimmen, ist es ausreichend, sind auf den linearen Teil von Gleichung (3.2) zu beschränken. Aus diesem Grund werden die nachfolgenden Schritte unter dem Begriff lineare Stabilitätsanalyse zusammengefaßt.

Um Aussagen über die Stabilität des Grundzustandes treffen zu können, muß seine Stabilität gegenüber jeder möglichen Störung getestet werden. Diese beliebigen Störungen können als Überlagerung bestimmter Grund- oder Normalmoden aufgefaßt werden, so daß es ausreichend ist, die Stabilität bezüglich dieser Grundmoden zu testen. Der Test kann separat für jede einzelne Normalmode vorgenommen werden, da lineare Gleichungen betrachtet werden, und deshalb verschiedene Grundmoden nicht miteinander wechselwirken. Für die hier interessierenden Probleme wird ein in der (x, y) -Ebene unendlich ausgedehntes System betrachtet, dessen vertikale Ausdehnung aber endlich sei. Für eine solche Geometrie wird zur Lösung des linearen Teils der Gleichung (3.2) ein Normalmodenansatz in der Form

$$\vec{U}(x, y, z, t) = \vec{U}(z)e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}+pt} \quad (3.3)$$

verwendet. Mit $\mathbf{r} = (x, y)$ wird der ebene Ortsvektor bezeichnet, und $\mathbf{q} = (q_x, q_y)$ ist der Wellenvektor, dessen Absolutbetrag die Wellenzahl q angibt, $q = |\mathbf{q}|$. Der Normalmodenansatz (3.3) beschreibt eine räumlich periodische Störung des Grundzustandes mit der Wellenzahl q . Diese Wellenzahl und die zugehörige Wachstumsrate $p(q)$ sind diejenigen Größen, in denen sich die verschiedenen Grundmoden voneinander unterscheiden.

Wie sich die Störungen $\vec{U}(x, y, z, t)$ zeitlich entwickeln, hängt vom Vorzeichen des Realteils von $p \in \mathbb{C}$ ab. Bei einem positiven Realteil, $\sigma = \Re(p) > 0$, wachsen die Störungen exponentiell in der Zeit an, der Grundzustand wird instabil. Bei einem negativen Realteil klingen die Störungen exponentiell ab, der Grundzustand bleibt stabil. Die Störungen können nicht nur rein exponentiell wachsen oder abklingen, sondern dabei auch oszillatorisches Verhalten zeigen. Der Betrag des Imaginärteils von p , $\omega = |\Im(p)|$, gibt die Kreisfrequenz möglicher Oszillationen der Störungen an. Auf Grund dieser Zusammenhänge wird p als Wachstumsrate bezeichnet, was bei dem gewählten Ansatz (3.3) streng genommen nur für den Realteil σ zutrifft.

Nach dem Einsetzen des Normalmodenansatzes (3.3) in den linearen Teil von (3.2) ergibt sich ein Differentialgleichungssystem für die noch unbekanntenen Funktionen in $\vec{U}(z)$. Um die nichttriviale Lösung für dieses Differentialgleichungssystem eindeutig zu bestimmen, werden die Randbedingungen benutzt. Bei der gewählten Geometrie sind dies Bedingungen für den Wert der Variablen

an den Rändern in z -Richtung bzw. für $z \rightarrow \pm\infty$. Im Ergebnis führt die Erfüllung der Randbedingungen zur Dispersionsrelation

$$F[p(q), q; R] = 0, \quad (3.4)$$

die häufig nur implizit angegeben werden kann. Ihre (numerische) Lösung liefert die Abhängigkeit der Wachstumsrate jeder einzelnen Normalmode von der Wellenzahl bei gegebenem Kontrollparameter.

Im Raum, der von q und R aufgespannt wird, ist derjenige Kontrollparameter R_c ausgezeichnet, bei dem zum ersten Mal eine Wellenzahl mit verschwindender Wachstumsrate existiert, $\sigma(q_c, R_c) = 0$ [schwarze Kurve in Abb. 3.2(a)]. Die Normalmode mit dieser Wellenzahl q_c heißt kritische Mode und wird als marginal stabil bezeichnet. Man sagt, die Instabilität setzt bei $R = R_c$ mit einer Wellenzahl q_c ein. Für alle Kontrollparameter $R < R_c$ ist der Grundzustand stabil, da alle Störungen wegen $\sigma(q) < 0$ für alle q zerfallen [blaue Kurve in Abb. 3.2(a)]. Für $R > R_c$ existiert ein Band von Moden $q_l < q < q_r$, gegen die der Grundzustand instabil wird, da für Moden aus diesem Band $\sigma(q) > 0$ zutrifft [rote Kurve in Abb. 3.2(a)]. Für $R > R_c$ lassen sich Wellenzahlen q_l und q_r finden, die $\sigma(q_l) = \sigma(q_r) = 0$ erfüllen. Die Wertepaare (R, q) , für die gerade $\sigma(q, R) \equiv 0$ gilt, bilden die sogenannte neutrale Kurve, die in Abb. 3.2(b) dargestellt ist.

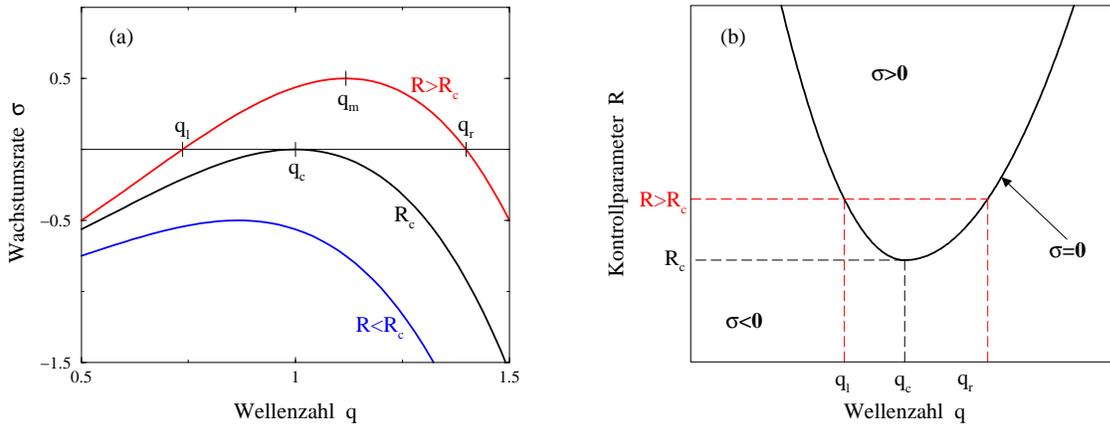


Abbildung 3.2: (a) Schematische Darstellung der Abhängigkeit der Wachstumsrate σ von der Wellenzahl q und dem Kontrollparameter R (alle Größen in dimensionslosen Einheiten). Die Instabilität setzt bei einem kritischen R_c mit der kritischen Wellenzahl q_c ein (schwarze Kurve). Die Wellenzahl q_m markiert die Wellenzahl maximalen Wachstums für $R > R_c$ (rote Kurve). Für $R < R_c$ (blaue Kurve) ist der Grundzustand stabil. (b) Die neutrale Kurve (durchgezogene Linie), die durch $\sigma(q, R) \equiv 0$ gegeben ist, trennt das Gebiet instabiler Moden mit $\sigma > 0$ von den stabilen Moden mit $\sigma < 0$. Das Band der instabilen Moden wird durch $q_l(R)$ und $q_r(R)$ begrenzt.

Die Wellenzahl q_m , für die $\sigma(q)$ bei festem R maximal wird, heißt linear instabilste Mode. Da sie am schnellsten wächst im Vergleich zu allen anderen Moden aus dem instabilen Band, sollte diese Mode im linearen Regime des Musterbildungsprozesses dominieren. Die detaillierte Analyse dieses Problems für die Rosensweig-Instabilität widmet sich Kapitel 4.1. Experimentell kann diese Mode beobachtet werden, wenn der Kontrollparameter sprunghaft auf einen überkritischen Wert erhöht werden kann. Diese Möglichkeit ist für die Rosensweig-Instabilität gegeben, da sich das Magnetfeld sehr schnell (in einem Zeitintervall von einigen Millisekunden) erhöhen lässt. Auf die entsprechenden Experimente und den Vergleich der Messungen mit den eigenen theoretischen Ergebnissen wird in Abschnitt 4.1.2 eingegangen. In unmittelbarem Zusammenhang zur linear instabilsten Mode q_m steht die zugehörige maximale Wachstumsrate. Deren Skalierungsverhalten in Abhängigkeit von den äußeren Parametern und den Fluideigenschaften wird in Abschnitt 4.1.3

dargestellt.

Mit dem sprunghaften Erhöhen des Kontrollparameters auf einen überkritischen Wert wird das Anwachsen eines Musters mit q_m ausgelöst. Aber auch die anschließende Umkehrung führt auf interessante physikalische Ergebnisse. Bei der plötzlichen Verringerung des Kontrollparameters zerfällt das durch q_m charakterisierte Muster. Die dabei auftretende Oszillation und Propagation des Musters wird in Abschnitt 4.2 behandelt.

Aus der linearen Stabilitätsanalyse kann man den Einsatzzpunkt R_c der Instabilität und die Wellenzahl q_c an diesem Punkt bestimmen. Diese Methode sagt außerdem die linear instabilste Mode q_m im superkritischen Bereich $R > R_c$ voraus. Die lineare Stabilitätsanalyse macht keine Aussagen darüber, welches Muster sich in diesem Bereich etablieren wird. Dafür ist es notwendig, die nicht-lineare Wechselwirkung der instabilen Moden heranzuziehen, was erst mit Amplitudengleichungen möglich ist.

3.2 Amplitudengleichung

Amplitudengleichungen werden durch eine Mehrskalenanalyse um den kritischen Punkt (R_c, q_c) herum gewonnen. Durch die Entwicklung in der Nähe von (R_c, q_c) werden die vielen stabilen Moden "ausgeblendet", und nur die schwach wachsenden instabilen Moden einbezogen. Durch diese Beschränkung in den Moden ist eine erhebliche Reduktion der vollen Bewegungsgleichungen auf die in der Nähe von (R_c, q_c) gültige Amplitudengleichung möglich. Da ein Parameterbereich leicht oberhalb von R_c analysiert wird, spricht man von einer schwach nichtlinearen Analyse.

Die Wachstumsrate für die instabilen Moden, $\sigma \sim (R - R_c)$, gibt die typische Zeitskala

$$T = (R - R_c)t \quad (3.5)$$

vor, auf der sich die Amplitude der instabilen Moden ändert. In analoger Weise bestimmt die Bandbreite für die instabilen Moden, $q_r - q_l \sim \sqrt{R - R_c}$, die Skala

$$X = \sqrt{R - R_c} x, \quad (3.6)$$

auf der die räumliche Änderung des Musters stattfindet. Da die räumliche und zeitliche Variation wegen $(R - R_c) \ll 1$ nur langsam vonstatten geht, werden T und X als die langsamen Skalen bezeichnet. Die schnellen Skalen sind diejenigen, auf denen die stabilen Moden sich ändern. Auf Grund dieser Skalenseparation wird die Methode als Mehrskalenmethode bezeichnet. Schreibt man die Abweichungen $\vec{U}(x, z, t)$ vom Grundzustand als

$$\begin{aligned} \vec{U}(x, z, t) &= \vec{U}(z)e^{iqx+pt} + \text{c.c.}, \\ &= \underbrace{e^{i(q-q_c)x} e^{\sigma t}}_{A(X, T)} e^{iq_c x} \vec{U}(z)e^{i\omega t} + \text{c.c.}, \end{aligned} \quad (3.7)$$

so ist zu erkennen¹, daß sich der zur nichtlinearen Analyse verwendete Ansatz aus einer bezüglich X und T langsam veränderlichen Amplitude A und der kritischen Mode aus der linearen Stabilitätsanalyse zusammensetzt. Im Unterschied zur linearen Theorie muß wegen der nichtlinearen Terme in (3.2) der konjugiert komplexe Anteil des Ansatzes konsequent mitgenommen werden.

Die Ableitung der Amplitudengleichung startet mit der Entwicklung des äußeren Kontrollparameters R und aller physikalischen Größen U_j aus dem Zustandsvektor

$$R = R_c + \varepsilon R_1 + \varepsilon^2 R_2 + \dots, \quad (3.8)$$

$$U_j = \varepsilon U_{j,0} + \varepsilon^2 U_{j,1} + \varepsilon^3 U_{j,2} + \dots, \quad (3.9)$$

¹Für das Verständnis wurde an dieser Stelle nur ein zweidimensionales System in der (x, z) -Ebene betrachtet.

sowie dem Ersetzen der Ableitungen entsprechend der Vorschrift

$$\partial_x \rightarrow \pm i q_c + \varepsilon \partial_X \quad \text{bzw.} \quad \partial_t \rightarrow \pm i \omega + \varepsilon^2 \partial_T . \quad (3.10)$$

ε ist ein Entwicklungsparameter, $0 < \varepsilon \ll 1$, bezüglich der Größe der Abweichungen vom Grundzustand. Mit dieser Entwicklung ergibt sich aus Gleichung (3.2) ein lineares Gleichungssystem für \vec{U}_0 , \vec{U}_1 und \vec{U}_2 ,

$$L_0 \vec{U}_0 = 0 , \quad (3.11)$$

$$L_0 \vec{U}_1 = -L_1(R_1) \vec{U}_0 + N(\vec{U}_0, \vec{U}_0; R_c) , \quad (3.12)$$

$$L_0 \vec{U}_2 = -L_1(R_1) \vec{U}_1 - L_2(R_2) \vec{U}_0 + N(\vec{U}_0, \vec{U}_1; R_c) , \quad (3.13)$$

nach dem Vergleich der Koeffizienten für die drei niedrigsten Ordnungen in ε . Die Operatoren L_0 , L_1 und L_2 enthalten die linearen Beiträge der jeweiligen ε -Ordnung, während die N -Terme die entsprechenden nichtlinearen Beiträge bezeichnen².

Um zur Amplitudengleichung zu gelangen, müssen die inhomogenen Gleichungen für \vec{U}_1 und \vec{U}_2 gelöst werden. Entsprechend der Fredholmschen Alternative [30] haben diese Gleichungen nur dann eine Lösung, wenn die rechte Seite orthogonal zu allen Nulleigenvektoren des linear adjungierten Operators L_0^\dagger ist. Sei \vec{U}_0 ein solcher Eigenvektor, dann ergibt die Multiplikation von Gleichung (3.12) von links mit \vec{U}_0 [analog für Gleichung (3.13)]

$$-\langle \vec{U}_0, L_1 \vec{U}_0 \rangle + \langle \vec{U}_0, N_1(\vec{U}_0, \vec{U}_0) \rangle = \langle \vec{U}_0, L_0 \vec{U}_1 \rangle = \langle L_0^\dagger \vec{U}_0, \vec{U}_1 \rangle = 0 , \quad (3.14)$$

wobei das Skalarprodukt mit \langle , \rangle bezeichnet wurde. Mit Hilfe dieser Lösbarkeitsbedingungen kann R_1 und R_2 ausgedrückt und die Amplitudengleichung formuliert werden.

In Abhängigkeit davon, welche speziellen Fragestellungen mit den Amplitudengleichungen analysiert werden sollen, ist der Ansatz für die Amplitude der Störung zu gestalten. Soll zum Beispiel das Selektionsproblem zwischen Mustern wie Hexagonen, Quadraten und Rollen untersucht werden, ist folgende Darstellung sinnvoll:

$$\vec{U}_0(x, y, z, t) = \vec{U}_0(z) \sum_{n=1}^6 [A_n(T) e^{i \mathbf{q}_n \mathbf{r}} + A_n^*(T) e^{-i \mathbf{q}_n \mathbf{r}}] . \quad (3.15)$$

Dabei wurde angenommen, daß es sich um nicht-oszillatorische Muster handelt, deren Amplituden zusätzlich nicht auf den langsamen räumlichen Skalen variieren sollen. Deshalb ist $A_n(T)$ nur von der langsamen Zeitskala T abhängig. Mit Hilfe der sechs Amplituden A_n und den zugehörigen Wellenvektoren \mathbf{q}_n ist es möglich, die drei gewünschten Muster zusammensetzen. Die Wellenzahl aller Wellenvektoren \mathbf{q}_n ist gleich der kritischen, $|\mathbf{q}_n| = q_c$, und ihre relative Lage zueinander ist in Abb 3.3 dargestellt. Für $A_1 = A_2 = A_3 = A$ und $A_n = 0$ mit $n > 3$ erhält man Sechsecke, für $A_1 = A_5 = A$ und alle anderen $A_n = 0$ erhält man Quadrate, sowie für $A_1 = A$ und $A_n = 0$ mit $n > 1$ ergeben sich Rollen. Mit einem solchen Ansatz (3.15) liefert die Auswertung der Lösbarkeitsbedingungen folgende generelle Amplitudengleichung für A_1 ,

$$\partial_T \tilde{A}_1 = \epsilon \tilde{A}_1 + \alpha_q \tilde{A}_2^* \tilde{A}_3^* - \left[g_d |\tilde{A}_1|^2 + g_{nd} \left(|\tilde{A}_2|^2 + |\tilde{A}_3|^2 \right) + g_t \left(|\tilde{A}_4|^2 + |\tilde{A}_6|^2 \right) + g_n |\tilde{A}_5|^2 \right] \tilde{A}_1 , \quad (3.16)$$

mit

$$\tilde{A}_n = \varepsilon A_n . \quad (3.17)$$

Das Maß für den Abstand zum kritischen Punkt der Instabilität ist durch

$$\epsilon = \frac{R - R_c}{R_c} = \frac{\varepsilon R_1 + \varepsilon^2 R_2}{R_c} , \quad (3.18)$$

²Die in den Gleichungen benutzte Schreibweise nimmt quadratische Nichtlinearitäten an, wie sie typisch für hydrodynamische Probleme sind.

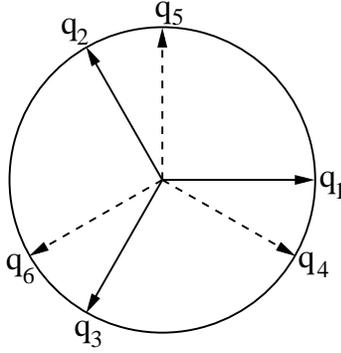


Abbildung 3.3: Zwei Tripel von Wellenvektoren, $\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, \mathbf{q}_3$ und $\mathbf{q}_4, \mathbf{q}_5, \mathbf{q}_6$ mit den Relationen $\mathbf{q}_1 + \mathbf{q}_2 + \mathbf{q}_3 = 0$, $\mathbf{q}_4 + \mathbf{q}_5 + \mathbf{q}_6 = 0$ und $\mathbf{q}_1 \cdot \mathbf{q}_5 = 0$.

gegeben, womit der Zusammenhang zwischen dem Entwicklungsparameter ε aus (3.8–3.10) und ϵ hergestellt ist. Die Gleichungen für die anderen Amplituden ergeben sich durch zirkulare Permutation und Bilden des konjugiert Komplexen. In den Koeffizienten $\alpha_q, g_d, g_{nd}, g_t$ und g_n (Notation aus [31]) sind nur die Eigenschaften und die Geometrie des Systems enthalten. Deshalb ist die Struktur der Gleichungen von den Details des Systems unabhängig und wird durch die Symmetrie des Problems bestimmt. Diese Eigenschaft der Amplitudengleichungen machen sie so weit verbreitet in der schwach nichtlinearen Analyse von Musterphänomenen. Ist die generische Struktur der Gleichungen bekannt, kann das qualitative Verhalten des Systems untersucht werden. Für das gewählte Selektionsproblem ist dies die Bestimmung derjenigen ϵ -Werte, die die Stabilitätsbereiche von Hexagonen, Quadraten und Rollen angeben. Diese ϵ -Werte lassen sich in allgemeiner Form als Funktion der Koeffizienten α_q, \dots, g_n ausdrücken [31, 32]. Die Bestimmung der konkreten Werte der Koeffizienten für das jeweilige System ist aber häufig eine sehr aufwendige Arbeit [31, 33], die nötig ist, um quantitativ Theorie und Experiment zu vergleichen.

Ein unabdingbares Element für die Ableitung der Amplitudengleichung ist die Existenz eines linear adjungierten Operators L_0^\dagger . Wie sich im Verlauf meiner Arbeiten herausgestellt hat, ist es ein bisher ungelöstes Problem, einen solchen Operator bei Anwesenheit von deformierten Grenzflächen zu definieren. Die Details dieses Problems und die Implikationen für andere musterbildende Systeme werden im Abschnitt 4.3 dargelegt.

Kapitel 4

Verschiedene Aspekte der Oberflächeninstabilität auf magnetischen Fluiden

Das populärste Beispiel für die Musterbildung auf magnetischen Flüssigkeiten ist die Normalfeld- oder Rosensweig-Instabilität. Diese kann für eine Schicht magnetischer Flüssigkeit (MF) mit einer freien Oberfläche beobachtet werden. Wird senkrecht zu dieser im Grundzustand ebenen Grenzfläche [siehe Abb. 4.1(a)] ein äußeres, räumlich homogenes Magnetfeld angelegt, so bilden sich oberhalb einer kritischen Magnetfeldstärke markante Stachel aus [siehe Abb. 4.1(b)]. Typischerweise ordnen sich diese in einem statischen hexagonalen Muster an, wobei sich im Zentrum jedes Sechsecks die Spitze eines Stachels befindet. Das entstehende statische Muster charakterisiert den Endzustand des Musterbildungsprozesses.

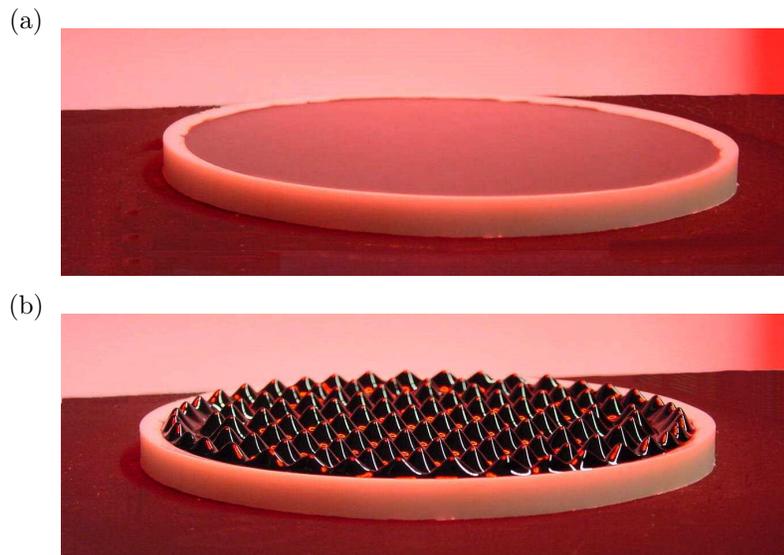


Abbildung 4.1: Das Bild (a) zeigt die stabile, ebene Grenzfläche für ein unterkritisches Magnetfeld. (b) MF-Stachel für ein überkritisches Magnetfeld in einer Teflon[®]-Schale von 12 cm Durchmesser. Mit freundlicher Genehmigung von Bert Reimann.

Für die ebene Grenzfläche ist das Magnetfeld der destabilisierende Mechanismus, denn es bevorzugt eine deformierte Oberfläche. In die konkav deformierten Gebieten werden die Magnetfeldlinien hineingezogen, während sie aus den konvex deformierten Gebieten herausgedrückt werden. Dadurch erhöht sich die Magnetisierung in den Stacheln aus MF, und erniedrigt sie sich in den Tälern ohne magnetische Flüssigkeit im Vergleich zur Magnetisierung bei einer ebenen Grenzfläche. Die Gesamtmagnetisierung ist also für den Fall der deformierten Oberfläche größer als im Fall der ebenen Grenzfläche. Dies ist mit einer niedrigeren freien Energie verbunden [34], weshalb die deformierte Grenzfläche vom Magnetfeld favorisiert wird.

Gravitation und Oberflächenspannung favorisieren eine ebene Grenzfläche. Diese beiden Effekte wirken als stabilisierenden Mechanismen, denn für eine deformierte Oberfläche muß einerseits Flüssigkeit gegen die Schwerkraft der Erde angehoben werden. Andererseits kostet die mit einer Deformation verbundene Oberflächenvergrößerung Energie, wofür die Oberflächenspannung ein Maß ist.

Eine deformierte Oberfläche bildet sich erst dann heraus, wenn die Verringerung der freien Energie durch den Magnetfeldanteil die Erhöhung durch die Gravitation und die Oberflächenspannung überkompensiert. Welche konkrete Gestalt die Deformation hat, läßt sich erst nach der Auswertung des Ausdrucks für die freie Energie sagen [35]. Der Magnetfeldbeitrag zur freien Energie ist ein Integral, in das neben dem äußeren Magnetfeld auch das Magnetfeld im Fluid eingeht. Dieses ergibt sich als Lösung einer Laplace-Gleichung und muß die Randbedingungen erfüllen, in die die noch unbestimmte freie Grenzfläche eingeht. Gleichzeitig ist diese freie Grenzfläche aber auch die obere Integrationsgrenze des zu berechnenden Integrals. Auf Grund dieser komplizierten Verknüpfung sind anschauliche Aussagen darüber, welches Muster sich herausbilden wird, nicht einfach zu treffen. Eine detaillierte Analyse dieser nichtlinearen Wechselwirkung und ihre Auswirkungen auf das Selektionsproblem zwischen verschiedenen Mustern wird in [35] gegeben. Die Muster, die nur von einem Wellenzahlvektor \mathbf{q}_n gebildet werden [siehe Erläuterungen zum Ansatz (3.15)], werden als Kämmen bezeichnet. Dieser Begriff vermittelt eine anschaulichere Vorstellung vom Erscheinungsbild dieses Musters als der sonst gebräuchliche Begriff der Rollen, der der Beschreibung von Konvektionsphänomenen entstammt.

Werden dynamische Phänomene mit magnetischen Flüssigkeiten betrachtet, kommt ein von Null verschiedenes Strömungsfeld hinzu, was die Wechselwirkungen noch komplexer gestaltet. Das Strömungsfeld wird von der Oberflächenform abhängen, die ihrerseits die Magnetfeldkonfiguration beeinflusst. Diese Magnetfeldkonfiguration geht dann über die Kelvin-Kraft (4.1) in die Navier-Stokes-Gleichung (4.3) ein. Deren Lösung liefert ein Strömungsfeld, das wiederum Einfluß auf die Oberfläche hat.

Die in dieser Abhandlung vorgelegten Ergebnisse zeigen, daß die Analyse der Oberflächeninstabilität auf magnetischen Flüssigkeiten zu vielen neuen Erkenntnissen und physikalischen Einsichten führt, obwohl die Rosensweig-Instabilität seit mehr als 30 Jahren bekannt ist. Die nachfolgenden vier Abschnitte stellen die Ergebnisse vor,

- wenn das vertikale Magnetfeld auf einen überkritischen Wert erhöht wird,
- wenn das vertikale Magnetfeld von einem überkritischen auf einen unterkritischen Wert vermindert wird,
- für die Problematik der Definition eines adjungierten Operators bei Anwesenheit einer deformierten Grenzfläche und
- wenn die ebene Grenzfläche gleichzeitig einem horizontalen Magnetfeld und einer vertikalen Vibration ausgesetzt ist.

4.1 Anwachsende Kämme

Die Motivation für die Arbeit zur Wellenzahl maximalen Wachstums¹ [A36] speiste sich aus einer kontroversen Situation bezüglich der Abhängigkeit dieser Wellenzahl vom äußeren Magnetfeld. In Experimenten mit kontinuierlicher Magnetfelderhöhung über den kritischen Wert hinaus wurde eine konstante [3,37], aber auch eine veränderliche [38] Wellenzahl beobachtet. All diese Beobachtungen waren rein qualitativ und bezogen sich auf den Endzustand der statischen Stachel, der sich als Ergebnis der nichtlinearen Wechselwirkungen einstellt. Aus theoretischer Sicht gab es eine lineare Stabilitätsanalyse für eine extrem viskose und unendlich tiefe MF-Schicht [39]. Diese Analyse sagte eine konstante Wellenzahl maximalen Wachstums voraus und wurde als theoretische Bestätigung der Beobachtungen aus [3,37] angesehen.

Dieser Vergleich ist aber aus drei Gründen zu hinterfragen.

1. Die Ergebnisse aus einer linearen Theorie wurden mit experimentellen Daten aus dem nicht-linearen Regime verglichen.
2. Die Materialparameter wie zum Beispiel die Viskosität waren grundverschieden in der Theorie und im Experiment.
3. Die Magnetfelder wurden im Experiment kontinuierlich erhöht, so daß von einer gewissen Zeitabhängigkeit des Magnetfeldes ausgegangen werden muß. Demgegenüber geht das Magnetfeld in die Theorie als eine Größe ein, die unmittelbar ihren überkritischen Wert annimmt.

Um zu realistischen quantitativen theoretischen Aussagen über das Verhalten der Wellenzahl maximalen Wachstums zu kommen, muß vorallem die reale Viskosität der MF in die Betrachtung einbezogen werden. Um die so erzielten Ergebnisse mit dem Experiment zu vergleichen, muß in diesem das Magnetfeld sprunghaft erhöht werden. Außerdem muß die Wellenzahl des Musters zu einem Zeitpunkt bestimmt werden, der klar vor der endgültigen hexagonalen Anordnung der Stachel liegt, damit die Ergebnisse dem linearen Regime zugeordnet werden können.

4.1.1 System und Grundgleichungen

Zur Beschreibung wird eine horizontal unendlich ausgedehnte Schicht der Dicke h einer inkompressiblen, elektrisch nichtleitenden und viskosen magnetischen Flüssigkeit konstanter Dichte betrachtet. Die Flüssigkeit wird nach unten bei $z = -h$ durch den Boden eines nichtmagnetischen, unendlich tiefen Behälters begrenzt und hat nach oben eine freie Grenzfläche bei $z = \zeta(x, y, t)$. Wegen des elektrisch nichtleitenden Charakters der Flüssigkeit kann die stationäre Form der Maxwell-Gleichungen verwendet werden, die sich auf eine Laplace-Gleichung für die magnetischen Potentiale $\Phi^{(i)}$ in jedem der drei Gebiete reduziert ($i = 1$ bezeichnet Luft, 2 die magnetische Flüssigkeit und 3 das Gefäß, siehe Abb. 4.2). Es wird angenommen, daß die Magnetisierung $\mathbf{M}^{(2)}$ der MF eine lineare Funktion des Magnetfeldes $\mathbf{H}^{(2)}$ ist, $\mathbf{M}^{(2)} = (\mu_r - 1)\mathbf{H}^{(2)}$, wobei μ_r die relative Permeabilität der Flüssigkeit ist. Außerdem soll die Magnetisierung eine lineare Funktion der Fluidichte $\rho^{(2)}$ sein, was auf die gebräuchliche Form der Kelvin-Kraftdichte [4]

$$\mathbf{F}_K = \mu_0(\mathbf{M}^{(2)}\text{grad})\mathbf{H}^{(2)} \quad (4.1)$$

führt, die aus der Wechselwirkung der Fluidmagnetisierung mit dem Gradienten des magnetischen Feldes im Fluid resultiert. Mit diesen Annahmen läßt sich das untersuchte System durch die Kontinuitätsgleichung,

$$\text{div } \mathbf{v}^{(2)} = 0, \quad (4.2)$$

die Navier-Stokes-Gleichung für die MF,

$$\rho^{(2)}\partial_t\mathbf{v}^{(2)} + \rho^{(2)}(\mathbf{v}^{(2)}\text{grad})\mathbf{v}^{(2)} = -\text{grad } p^{(2)} + \eta^{(2)}\Delta\mathbf{v}^{(2)} + \mu_0(\mathbf{M}^{(2)}\text{grad})\mathbf{H}^{(2)} + \rho^{(2)}\mathbf{g}, \quad (4.3)$$

¹Auf die in dieser Arbeit beigelegten Arbeiten wird in der Form A# verwiesen.

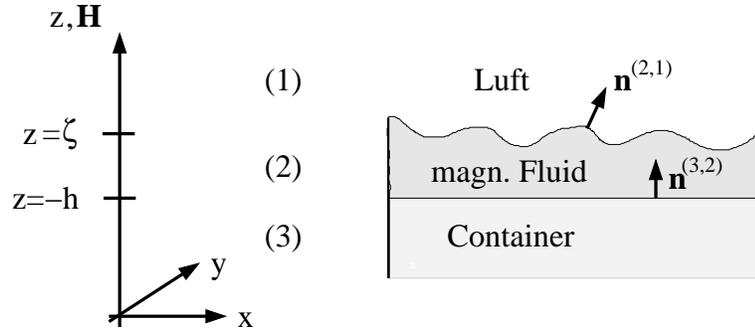


Abbildung 4.2: Skizze des betrachteten Systems.

und die Laplace-Gleichungen in jedem Medium,

$$\Delta\Phi^{(i)} = 0, \quad (4.4)$$

beschreiben. Das Geschwindigkeitsfeld im Fluid ist mit $\mathbf{v}^{(2)} = (u^{(2)}, v^{(2)}, w^{(2)})$ bezeichnet, der hydrostatische Druck mit $p^{(2)}$ und die Erdbeschleunigung mit $\mathbf{g} = (0, 0, -g)$. Die ersten drei Terme auf der rechten Seite von (4.3) resultieren aus der Divergenz des Spannungstensors, $\text{div} \overleftrightarrow{T}^{(2)}$, mit den Komponenten [4]

$$T_{ij}^{(2)} = \left\{ -p^{(2)} - \mu_0 \int_0^{H^{(2)}} (M^{(2)} - \rho^{(2)} \partial_{\rho^{(2)}} M^{(2)}) dH^{(2)'} - \mu_0 \frac{[H^{(2)}]^2}{2} \right\} \delta_{ij} + H_i^{(2)} B_j^{(2)} + \rho^{(2)} \nu^{(2)} (\partial_i v_j^{(2)} + \partial_j v_i^{(2)}), \quad (4.5)$$

Dabei sind die dynamische Viskosität $\eta^{(2)}$ aus Gleichung (4.3) und die kinematische Viskosität $\nu^{(2)}$ aus Gleichung (4.5) über die Beziehung $\eta^{(2)} = \rho^{(2)} \nu^{(2)}$ miteinander verknüpft. Um die Ausdrücke in (4.3) zu erhalten, wurde $\text{rot} \mathbf{H}^{(2)} = 0$ und das Verschwinden des Integrals in (4.5) wegen $M^{(2)} \sim \rho^{(2)}$ benutzt. $M^{(2)}$, $H^{(2)}$ und $B^{(2)}$ bezeichnen den Betrag der Magnetisierung $\mathbf{M}^{(2)}$, des Magnetfeldes $\mathbf{H}^{(2)}$ und der magnetischen Induktion $\mathbf{B}^{(2)}$ in der Flüssigkeit.

Die zur vollständigen Beschreibung gehörenden Randbedingungen sind die Kontinuität der Normalkomponente (Tangentialkomponente) der Induktion (des Magnetfeldes) an der oberen sowie unteren Grenzfläche,

$$\mathbf{n}^{(2,1)} \cdot (\mathbf{B}^{(1)} - \mathbf{B}^{(2)}) = 0, \quad \mathbf{n}^{(2,1)} \times (\mathbf{H}^{(1)} - \mathbf{H}^{(2)}) = 0 \quad \text{bei } z = \zeta, \quad (4.6)$$

$$\mathbf{n}^{(3,2)} \cdot (\mathbf{B}^{(2)} - \mathbf{B}^{(3)}) = 0, \quad \mathbf{n}^{(3,2)} \times (\mathbf{H}^{(2)} - \mathbf{H}^{(3)}) = 0 \quad \text{bei } z = -h, \quad (4.7)$$

festen Randbedingungen für die Geschwindigkeit am Containerboden,

$$\mathbf{v}^{(2)} = 0 \quad \text{bei } z = -h, \quad (4.8)$$

die kinematische Grenzbedingung an der freien Oberfläche,

$$w^{(2)} = \partial_t \zeta + (\mathbf{v}^{(2)} \text{ grad}) \zeta \quad \text{bei } z = \zeta, \quad (4.9)$$

und die Kontinuität des Spannungstensors über die freie Grenzfläche hinweg,

$$n_i^{(2,1)} (T_{ij}^{(1)} - T_{ij}^{(2)}) - \sigma K n_j^{(2,1)} = 0 \quad \text{bei } z = \zeta. \quad (4.10)$$

In (4.10) ist die Oberflächenspannung zwischen der magnetischen Flüssigkeit und Luft mit σ bezeichnet, die Krümmung der Oberfläche mit $K = \operatorname{div} \mathbf{n}^{(2,1)}$ und der dazugehörige Normalenvektor mit

$$\mathbf{n}^{(2,1)} = \frac{\operatorname{grad}[z - \zeta(x, y)]}{|\operatorname{grad}[z - \zeta(x, y)]|} = \frac{(-\partial_x \zeta, -\partial_y \zeta, 1)}{\sqrt{1 + (\partial_x \zeta)^2 + (\partial_y \zeta)^2}}. \quad (4.11)$$

Die oberen Indizes (2, 1) am Einheitsvektor geben seine Richtung, von Medium 2 nach Medium 1, an; analog für den Normalenvektor $\mathbf{n}^{(3,2)} = (0, 0, 1)$ am Containerboden (siehe Abb. 4.2).

Folgt man der in Abschnitt 3.1 beschriebenen Prozedur, so erhält man am Ende folgende implizite Dispersionsrelation² [40–42]

$$\begin{aligned} F(q, \omega; \nu, B, h) &:= \frac{\nu^2}{\tilde{q} \coth(\tilde{q}h) - q \coth(qh)} \left\{ \tilde{q} [4q^4 + (q^2 + \tilde{q}^2)^2] \coth(\tilde{q}h) - q [4q^2 \tilde{q}^2 \right. \\ &\quad \left. + (q^2 + \tilde{q}^2)^2] \tanh(qh) - \frac{4q^2 \tilde{q} (q^2 + \tilde{q}^2)}{\cosh(qh) \sinh(\tilde{q}h)} \right\} + \tanh(qh) \left[gq + \frac{\sigma}{\rho} q^3 \right. \\ &\quad \left. - \frac{(\mu_r - 1)^2 B^2}{\rho \mu_0 \mu_r} \Lambda(qh) q^2 \right] = 0, \end{aligned} \quad (4.12)$$

für die Relation von Wellenzahl q und der zugehörigen Wachstumsrate $\omega = \omega_1 + i\omega_2$. In den Kapiteln 4.1 und 4.2 wird die Zeitabhängigkeit im Normalmodenansatz (3.3) in der Form $\exp[-i\omega t]$ verwendet, um die Vergleichbarkeit mit früheren Ergebnissen aus [39] zu erleichtern. In der Dispersionsrelation bezeichnet $\tilde{q} = \sqrt{q^2 - i\omega/\nu}$ die modifizierte Wellenzahl, $\Lambda(qh)$ einen schichtdickenabhängigen Faktor,

$$\Lambda(qh) = \frac{e^{qh}(1 + \mu_r) + e^{-qh}(1 - \mu_r)}{e^{qh}(1 + \mu_r)^2 - e^{-qh}(1 - \mu_r)^2}, \quad (4.13)$$

und B ist die Stärke der äußeren Induktion parallel zur z -Achse. Die Bedingung marginaler Stabilität, $\omega = 0$, definiert die kritischen Größen, für die die Rosensweig-Instabilität einsetzt. Für unendliche dicke Schichten ($h \rightarrow \infty$) ist die kritische Induktion durch

$$B_{c,\infty}^2 = \frac{2\mu_0 \mu_r (\mu_r + 1) \sqrt{\rho \sigma g}}{(\mu_r - 1)^2} \quad (4.14)$$

gegeben. Die zugehörige kritische Wellenzahl ist

$$q_c = \sqrt{\frac{\rho g}{\sigma}}. \quad (4.15)$$

Diese kritischen Werte für den *Einsatz* der Instabilität treffen sowohl für viskose und als auch für nichtviskose magnetische Fluide zu.

4.1.2 Wellenzahl maximalen Wachstums

Um die prinzipielle Abhängigkeit der Wellenzahl maximalen Wachstums von der Viskosität und der Induktion zu bestimmen, ist es günstig, die Dispersionsrelation für unendlich dicke Schichten in dimensionsloser Form zu analysieren. Mit den dimensionslosen Größen für alle Längen, die Induktion, die Zeit und die Viskosität,

$$\bar{l} = q_c l, \quad \bar{B} = \frac{B}{B_{c,\infty}}, \quad (4.16)$$

$$\bar{t} = \frac{g^{3/4} \rho^{1/4}}{\sigma^{1/4}} t, \quad \bar{\nu} = \frac{g^{1/4} \rho^{3/4}}{\sigma^{3/4}} \nu, \quad (4.17)$$

²Ab jetzt wird auf die Verwendung der oberen Indizes verzichtet, da nur Größen der MF gemeint sind.

ergibt sich für wachsende Störungen $\bar{\omega} = i\bar{\omega}_2$ mit $\bar{\omega}_2 > 0$ folgender Ausdruck für die Dispersionsrelation

$$F(\bar{q}, \bar{\omega}_2; \bar{\nu}, \bar{B}) := \left(\bar{\nu} + \frac{\bar{\omega}_2}{2\bar{q}^2} \right)^2 + \frac{\bar{q} + \bar{q}^3 - 2\bar{B}^2\bar{q}^2}{4\bar{q}^4} - \bar{\nu}^2 \sqrt{1 + \frac{\bar{\omega}_2}{\bar{\nu}\bar{q}^2}} = 0, \quad (4.18)$$

deren Lösung für drei verschiedene überkritische Induktionen in Abb. 4.3(a) gezeigt ist.

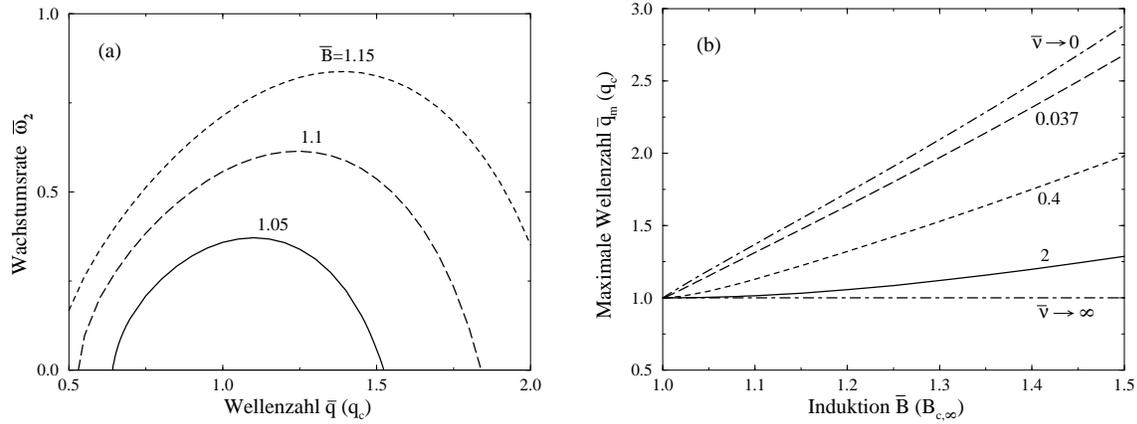


Abbildung 4.3: (a) Positive Wachstumsraten $-i\bar{\omega} = \bar{\omega}_2$ als Funktion der Wellenzahl \bar{q} und der Induktionsstärke \bar{B} für $\bar{\nu} = 0.037$, typisch für MF in Experimenten [38, 43]. (b) Maximale Wellenzahl \bar{q}_m als Funktion der überkritischen Induktion \bar{B} für verschiedene Viskositäten. \bar{q}_m ist eine monoton mit \bar{B} anwachsende Funktion mit der Ausnahme $\bar{q}_m = 1$ [39] im Falle unendlich großer Viskosität (untere strich-punktierte Linie). Im Grenzfall einer nichtviskosen MF (obere strich-punktierte Linie) ist die Abhängigkeit durch $\bar{q}_m = (1/3) \left(2\bar{B}^2 + \sqrt{4\bar{B}^4 - 3} \right)$ [41] gegeben.

Darin ist deutlich zu erkennen, daß das Maximum der Kurven, gegeben durch \bar{q}_m und $\bar{\omega}_{2,m}$, monoton mit \bar{B} wächst. Die Wellenzahl mit maximalem Wachstum ist über $\partial\bar{\omega}_2/\partial\bar{q} = 0$ definiert. Da $\bar{\omega}_2(\bar{q})$ nur implizit aus $F(\bar{q}, \bar{\omega}_2; \bar{\nu}, \bar{B}) = 0$ bestimmt werden kann, ergibt sich die maximale Wachstumsrate aus $\partial_{\bar{q}}F = 0$. Somit lassen sich aus dem Schnittpunkt der Lösungen für die beiden impliziten Gleichungen $F = 0$ und $\partial_{\bar{q}}F = 0$ die interessierenden Größen \bar{q}_m und $\bar{\omega}_{2,m}$ ermitteln. Die Ergebnisse für \bar{q}_m in Abhängigkeit von \bar{B} und $\bar{\nu}$ sind in Abb. 4.3(b) dargestellt.

Die Wellenzahl maximalen Wachstums ist eine monoton wachsende Größe für zunehmende überkritische Felder für alle Viskositäten mit der Ausnahme des Grenzfalles $\bar{\nu} \rightarrow \infty$. Die Änderung von \bar{q}_m bei konstanter Induktionsdifferenz ist am größten für nichtviskose MF [obere strich-punktierte Linie in Abb. 4.3(b)], um für anwachsende Viskositäten immer geringer zu werden. Für wenig viskose MF hängt \bar{q}_m linear von \bar{B} ab, so lange \bar{B} nicht zu groß ist. Mit anwachsender Viskosität werden diese Bereiche der linearen Abhängigkeit kleiner [vergleiche $\bar{\nu} = 0.037$ und $\bar{\nu} = 2$ in Abb. 4.3(b)]. Insgesamt kann aus Abb. 4.3(b) geschlossen werden, daß reale MF, hier durch $\bar{\nu} = 0.037$ repräsentiert, *quantitativ* durch Grenzfälle nicht gut beschrieben werden. *Qualitativ* gibt der Fall $\bar{\nu} \rightarrow 0$ die richtige Tendenz wieder.

Mit Hilfe einer geeigneten Meßapparatur ist es möglich, das lineare Regime der Rosensweig-Instabilität sichtbar zu machen und *quantitativ* die Wellenzahl des entsprechenden Musters zu vermessen. Diese Meßapparatur wurde in der Arbeitsgruppe von Prof. Rehberg und Dr. Richter von Bert Reimann an der Universität Magdeburg entwickelt. Von ihm stammen auch die nachfolgenden Aufnahmen der Instabilität und die experimentellen Daten für den Vergleich mit der Theorie. Abbildung 4.4(a) zeigt, daß sich zuerst, vorgegeben durch die Form des Containers, zirkuläre Kämmen und Täler (erscheinen beide als helle Kreise) bilden. Aus den Kämmen entwickelt

sich eine zirkulare Anordnung von Stacheln [Abb. 4.4(b)], die sich erst mit der Zeit zur endgültigen hexagonalen Anordnung umgruppiert [Abb. 4.4(c)].

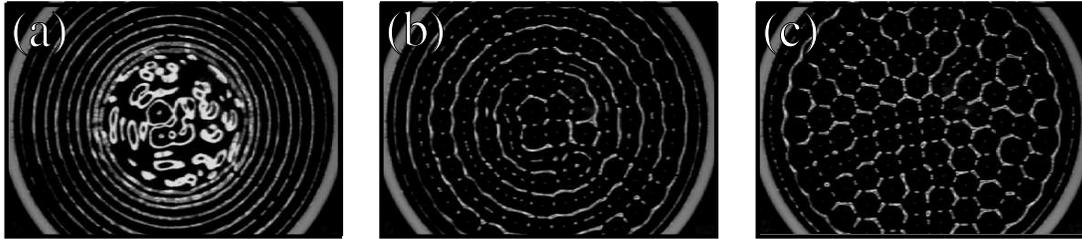


Abbildung 4.4: Drei Momentaufnahmen während der Musterbildung bei sprunghafter Erhöhung des Magnetfeldes auf einen überkritischen Wert. Die Bilder wurden für $\Delta t = 180$ ms (a), 280 ms (b) und 560 ms (c) nach dem Beginn der Felderhöhung aufgenommen.

Die Wellenzahl aus dem konzentrisch deformierten Gebiet in Abb. 4.4(a) wird in Abb. 4.5 mit den Ergebnissen für die Wellenzahl maximalen Wachstums verglichen. Dafür wurde die experimentelle Füllhöhe von $h = 2$ mm und die konkreten Fluidparameter von EMG 909 (gestrichelte Linie), $\rho = 1.02 \cdot 10^3 \text{ kg m}^{-3}$, $\nu = 5.88 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$, $\sigma = 2.65 \cdot 10^{-2} \text{ kg s}^{-2}$ und $\mu_r = 1.8$, verwendet. Der Vergleich mit den experimentellen Daten aus den Messungen von Bert Reimann (offenen Quadrate) zeigt, daß der richtige lineare Zusammenhang beginnend bei der kritischen Wellenzahl bereits wiedergegeben wird, aber die kritische Induktion noch zu groß ist. Da die kritische Wellenzahl von den Fluidparametern Dichte und Oberflächenspannung abhängt [siehe Gleichung (4.15)], und die Viskosität keinen Einfluß auf die kritischen Größen hat, verbleibt die relative Permeabilität als Fitparameter. Die beste Übereinstimmung ergibt sich mit $\mu_r \simeq 1.85$ (durchgezogene Linie in Abb. 4.5), was lediglich 2.8% über der Angabe des Herstellers, aber immer noch klar innerhalb des vom Hersteller angegebenen Toleranzbereiches von $\sim 10\%$ liegt.

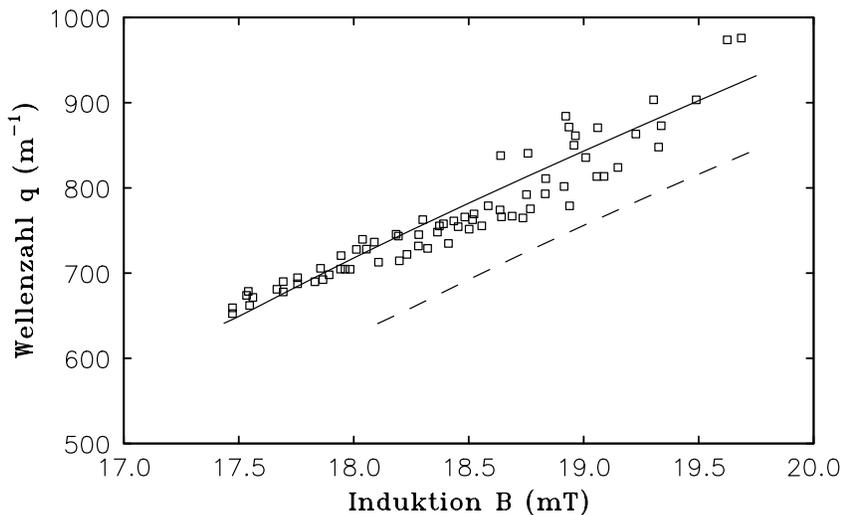


Abbildung 4.5: Wellenzahl q in Abhängigkeit von der magnetischen Induktion B . Die offenen Quadrate kennzeichnen die Meßergebnisse; die gestrichelte Linie die theoretischen Ergebnisse mit den Fluidparametern von EMG 909 laut Herstellerangaben. Mit μ_r als Fitparameter (siehe Text) ergibt sich die durchgezogene Linie der besten Übereinstimmung.

Als Hauptergebnis läßt sich feststellen, daß das linear instabilste Muster tatsächlich im Experiment beobachtet wird, und die theoretisch vorhergesagte lineare Abhängigkeit von q_m mit wachsender Induktion bestätigt wurde. Wesentliche Voraussetzung für diese sehr gute Übereinstimmung von Theorie und Experiment war die Erfüllung von zwei Bedingungen: im Experiment mußte das magnetische Feld sprunghaft erhöht werden, in die Theorie mußten die realen Fluid- und Systemparameter eingehen.

4.1.3 Maximale Wachstumsrate

Die numerischen Ergebnisse aus [A36] für Schichtdicken von $h = 100$ mm bis $h = 2$ mm legen nahe, daß es für nicht zu dünne MF-Schichten, $h \geq 4$ mm, eine generische Abhängigkeit von q_m und $\omega_{2,m}$ von den Fluid- und Systemparametern gibt. Nach der experimentellen Bestätigung der Vorhersagen für die Wellenzahl maximalen Wachstums, war es das Ziel der Studie in [A44], Vorhersagen für die Skalierungseigenschaften der maximalen Wachstumsrate zu treffen. Zwei weitere Gründe motivieren diese Zielstellung. Zum einen steht mit einem röntgenoptischen Abbildungsverfahren eine experimentelle Methode mit hoher zeitlicher Auflösung zur Verfügung, um die Wachstumsraten zu messen [45]. Zum anderen fehlen insbesondere für die maximale Wachstumsrate bisher systematische Untersuchungen in musterbildenden Systemen. Solche Untersuchungen sind aber wünschenswert, weil damit die zeitlichen Aspekte des linearen Regimes charakterisiert werden können. Die räumliche Charakterisierung dieses Regimes erfolgte durch die Wellenzahl q_m .

Um die Abhängigkeit von q_m und $\omega_{2,m}$ von der Induktion und der Viskosität abzuleiten, werden die dimensionslosen Größen aus (4.18) um ihre kritischen Werte herum entwickelt,

$$\bar{B} = 1 + \hat{B} \quad \bar{q} = 1 + \hat{q}_m \quad \bar{\omega}_2 = 0 + \hat{\omega}_{2,m}, \quad (4.19)$$

und ein Bereich in der Nähe des Einsatzpunktes der Rosensweig-Instabilität betrachtet, $(\hat{B}, \hat{q}_m, \hat{\omega}_{2,m}) \ll 1$. Für $\bar{\nu} \gg \hat{\omega}_{2,m}$ liefert eine solche Entwicklung in $F = 0$ und $\partial_{\bar{q}} F = 0$ die beiden Gleichungen

$$4\bar{\nu}\hat{\omega}_{2,m} - 8\hat{B} + 3\hat{\omega}_{2,m}^2 + 8\bar{\nu}\hat{q}_m\hat{\omega}_{2,m} - 16\hat{q}_m\hat{B} - 4\hat{B}^2 - \frac{\hat{\omega}_{2,m}^3}{2\bar{\nu}} = 0, \quad (4.20)$$

$$-16\hat{B} - 8\hat{B}^2 + 4\hat{q}_m - 16\hat{B}\hat{q}_m + 8\bar{\nu}\hat{\omega}_{2,m} + 8\bar{\nu}\hat{q}_m\hat{\omega}_{2,m} + \frac{\hat{\omega}_{2,m}^3}{\bar{\nu}} = 0. \quad (4.21)$$

Die in (4.20, 4.21) auftretenden Terme umfassen alle Beiträge bis zur dritten Ordnung in \hat{B} , wenn von folgender Beziehung zwischen q_m bzw. $\omega_{2,m}$ und der Induktion ausgegangen wird,

$$\hat{\omega}_{2,m} = \alpha\hat{B} + \beta\hat{B}^2 + \gamma\hat{B}^3 + O(\hat{B}^4), \quad (4.22)$$

$$\hat{q}_m = \delta\hat{B}^2 + \epsilon\hat{B}^3 + O(\hat{B}^4). \quad (4.23)$$

Die Bestimmung der Expansionskoeffizienten α bis ϵ durch Einsetzen von (4.22, 4.23) in (4.20, 4.21) liefert die Abhängigkeit von der Viskosität. Dies ist möglich für $\hat{B} < \bar{\nu}^2/6$, da nur dann die Ausgangsbedingung $\bar{\nu} \gg \hat{\omega}_{2,m}$ erfüllt bleibt. Für Induktionen größer als $\bar{\nu}^2/6$ muß sowohl die implizite Dispersionsrelation (4.12) als auch ihre Ableitung bezüglich q numerisch gelöst werden. Wegen des impliziten Charakters sind aber nur Fits möglich, um die Abhängigkeit von q_m und $\omega_{2,m}$ von der Induktion zu approximieren. Sehr gute Näherungen ergeben sich mit Fitfunktionen, die einen linearen und einen Quadratwurzelterm in \hat{B} enthalten. Beide \hat{B} -Bereiche zusammenfassend erhält man

$$\hat{\omega}_{2,m} = \begin{cases} \frac{2}{\bar{\nu}}\hat{B} + \left(\frac{1}{\bar{\nu}} - \frac{3}{\bar{\nu}^3}\right)\hat{B}^2 + \left(\frac{10}{\bar{\nu}^5} - \frac{3}{\bar{\nu}^3}\right)\hat{B}^3 & \text{für } 0 \leq \hat{B} < \bar{\nu}^2/6 \\ c_1\sqrt{\hat{B}} + c_2\hat{B} & \text{für } \bar{\nu}^2/6 \ll \hat{B} \leq 0.4 \end{cases} \quad (4.25)$$

$$\hat{\omega}_{2,m} = \begin{cases} \frac{2}{\bar{\nu}}\hat{B} + \left(\frac{1}{\bar{\nu}} - \frac{3}{\bar{\nu}^3}\right)\hat{B}^2 + \left(\frac{10}{\bar{\nu}^5} - \frac{3}{\bar{\nu}^3}\right)\hat{B}^3 & \text{für } 0 \leq \hat{B} < \bar{\nu}^2/6 \\ c_1\sqrt{\hat{B}} + c_2\hat{B} & \text{für } \bar{\nu}^2/6 \ll \hat{B} \leq 0.4 \end{cases} \quad (4.26)$$

$$\hat{q}_m = \begin{cases} \frac{6}{\bar{\nu}^2}\hat{B}^2 + \left(\frac{6}{\bar{\nu}^2} - \frac{22}{\bar{\nu}^4}\right)\hat{B}^3 & \text{für } 0 \leq \hat{B} < \bar{\nu}^2/6 \\ c_3\hat{B} + c_4\sqrt{\hat{B}} & \text{für } \bar{\nu}^2/6 \ll \hat{B} \leq 0.4, \end{cases} \quad (4.27)$$

$$\hat{q}_m = \begin{cases} \frac{6}{\bar{\nu}^2}\hat{B}^2 + \left(\frac{6}{\bar{\nu}^2} - \frac{22}{\bar{\nu}^4}\right)\hat{B}^3 & \text{für } 0 \leq \hat{B} < \bar{\nu}^2/6 \\ c_3\hat{B} + c_4\sqrt{\hat{B}} & \text{für } \bar{\nu}^2/6 \ll \hat{B} \leq 0.4, \end{cases} \quad (4.28)$$

wobei die vier Koeffizienten c_i , $i = 1, \dots, 4$, für jede einzelne MF zu bestimmen sind.

Anhand der Gleichungen (4.25–4.28) und aus der Abb. 4.6 ist sehr deutlich zu erkennen, daß es zwei verschiedene Skalierungsregimes sowohl für die maximale Wachstumsrate als auch für die zugehörige Wellenzahl gibt. Die Voraussetzung für die obige Expansion, $\bar{\nu} \gg \hat{\omega}_{2,m}$, wird für $\hat{B} < \bar{\nu}^2/6$ klar erfüllt, wie aus der relativen Lage des horizontalen Pfeils (für $\bar{\nu}$) und der durchgezogenen Linie [markiert (4.25)] bis zur entsprechenden Induktionsstärke in Abb. 4.6(a) hervorgeht. Als untere Grenze für den Übergang zwischen den beiden Skalierungsregimes kann $\bar{\nu}^2/6$ angesehen werden (vertikaler Pfeil in Abb. 4.6). Da $\bar{\nu}$ eine Kombination aus der physikalischen Dichte, Viskosität und Oberflächenspannung ist, kann durch die geschickte Wahl dieser Fluidparameter der Übergangsbereich so gewählt werden, daß er inmitten der experimentell möglichen Sprungweiten für das magnetische Feld liegt. Auf diese Weise kann durch die Wahl der MF das Skalierungsregime sowohl oberhalb als auch unterhalb des Übergangsbereiches untersucht werden.

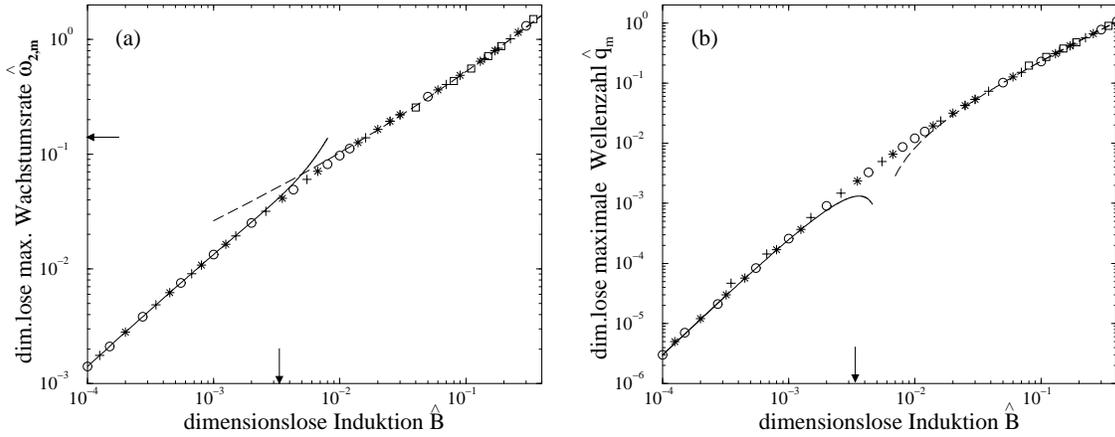


Abbildung 4.6: Dimensionenlose maximale Wachstumsrate $\hat{\omega}_{2,m}$ (a) und dimensionenlose maximale Wellenzahl \hat{q}_m (b) als Funktion der dimensionslosen überkritischen Induktion \hat{B} für die MF APG S20. Die durchgezogenen Linien markieren die analytischen Resultate (4.25) für $\hat{\omega}_{2,m}$ und (4.27) für \hat{q}_m in (a) und (b). Die gestrichelten Linien markieren die Fits (4.26) für $\hat{\omega}_{2,m}$ und (4.28) für \hat{q}_m in (a) und (b) mit $c_1 = 0.74$, $c_2 = 2.91$, $c_3 = 2.99$, $c_4 = -0.22$ [A44]. Die Ergebnisse für $h = 100$ mm (\circ), 50 mm ($*$), 10 mm ($+$) und 4 mm (\square) wurden aus der numerischen Lösung der Dispersionsrelation (4.12) und deren Ableitung nach q gewonnen. Die vertikalen Pfeile in (a) und (b) zeigen den Wert für $\bar{\nu}^2/6$ an, der horizontale Pfeil in (a) den Wert der dimensionslosen Viskosität $\bar{\nu}$.

Die maximale Wachstumsrate beginnt linear mit \hat{B} anzuwachsen. Am oberen Ende des Gültigkeitsbereiches für die Entwicklung (4.19) machen sich der quadratische und kubische Korrekturterm in \hat{B} bemerkbar. Für $\bar{\nu}^2/6 < \hat{B}$ hängt die maximale Wachstumsrate gleichermaßen linear und wurzelförmig von \hat{B} ab. Beide Beiträge sind relevant, da Fits mit nur einer funktionellen Abhängigkeit deutlich schlechtere Approximationen liefern.

Für relativ kleine überkritische Induktionen hängt die maximale Wellenzahl zunächst quadratisch von \hat{B} ab, ehe kubische Korrekturen in \hat{B} auftreten. Für $\bar{\nu}^2/6 < \hat{B}$ wächst \hat{q}_m im wesentlichen linear mit \hat{B} an, da $c_3 \gg |c_4|$ (siehe Abbildungsunterschrift und [A44]). Diese lineare Abhängigkeit wurde im vorangegangenen Kapitel 4.1.2 bereits detailliert untersucht.

Aus den analytischen Ergebnissen (4.25) und (4.27) läßt sich auch die Abhängigkeit von der Viskosität ablesen. Für $\hat{B} < \bar{\nu}^2/6$ ist die maximale Wachstumsrate indirekt proportional zur Viskosität, während für die zugehörige Wellenzahl der Zusammenhang $\hat{q}_m \sim \bar{\nu}^{-2}$ besteht. Um auch für die Fits (4.26) und (4.28) die Abhängigkeit von der Viskosität angeben zu können, wurden in [A44]

die Koeffizienten c_i für elf verschiedene magnetische Flüssigkeiten bestimmt, deren Viskosität zwei Größenordnungen überdecken. Aus diesen Datensätzen wurden approximativ die Abhängigkeiten $c_i = c_i(\bar{\nu})$ zu

$$c_1 = 1.11 - 4.13\bar{\nu} + 5.0\bar{\nu}^2 \quad c_2 = 4.0 - 5.0\bar{\nu} + 3.44\bar{\nu}^2, \quad (4.29)$$

$$c_3 = 3.53 - 4.21\bar{\nu} + 3.06\bar{\nu}^2 \quad c_4 = -0.75 + 0.38/\sqrt[6]{\bar{\nu}}, \quad (4.30)$$

bestimmt [A44], die in Abb. 4.7 dargestellt sind.

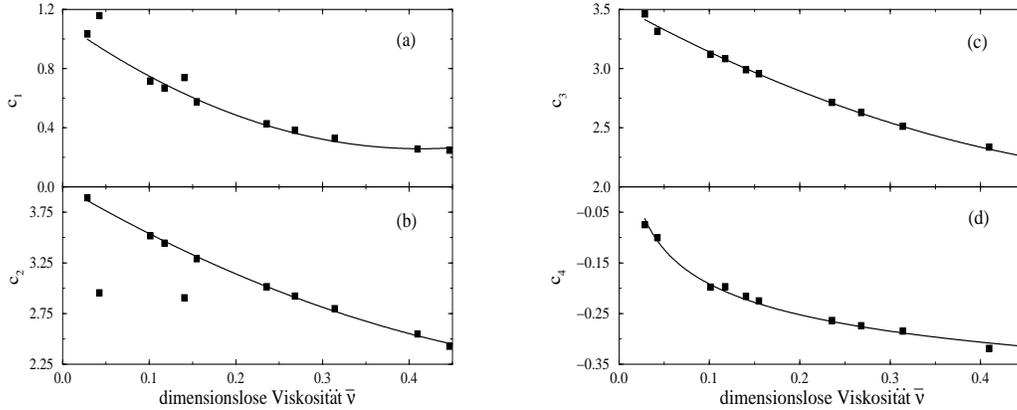


Abbildung 4.7: Abhängigkeit der Koeffizienten c_1 (a), c_2 (b), c_3 (c) und c_4 (d) aus (4.26) und (4.28) von der dimensionslosen Viskosität $\bar{\nu}$. Die Werte der c_i aus [A44] für elf verschiedene magnetische Fluide sind als schwarze Quadrate eingezeichnet. Die durchgezogenen Linien geben die Näherungen mittels (4.29) und (4.30) an.

Alle Koeffizienten zeigen dabei eine monotone Abhängigkeit: mit wachsender Viskosität werden ihre Werte kleiner. Für $\bar{\nu} \simeq 0.04$ und $\bar{\nu} \simeq 0.14$ zeigen c_1 und c_2 erkennbare Abweichungen vom Trend. Als mögliche Ursache kommen Ungenauigkeiten in der Bestimmung der Oberflächenspannung in Betracht, da der Zusammenhang $\hat{\omega}_{2,m} \sim \sigma^{1/4}\omega_{2,m}$ besteht. Aus Experimenten zu Oberflächenwellen auf nichtmagnetischen Flüssigkeiten ist bekannt, daß zum Beispiel eine Kontamination der Oberfläche Abweichungen bis zu 20% im Wert der Oberflächenspannung verursachen kann [46, 47].

4.2 Zerfallende Kämme

Im vorangegangenen Kapitel 4.1 sind die maximale Wachstumsrate und die zugehörige Wellenzahl analysiert worden, die das Verhalten des linear instabilsten Musters bei einer sprunghaften Erhöhung des Magnetfeldes charakterisieren. Aber auch der umgekehrte Prozeß ist von Interesse: Wie kann der Zerfall des linear instabilsten Musters beschrieben werden, wenn das Magnetfeld sprunghaft auf einen unterkritischen Wert verringert wird? Erwartet werden kann entweder ein rein exponentieller Zerfall, $\Re(-i\omega) < 0$ und $|\Im(-i\omega)| = 0$, oder ein exponentieller Zerfall, der von Oszillationen überlagert ist, $\Re(-i\omega) < 0$ und $|\Im(-i\omega)| \neq 0$. Außerdem ist davon auszugehen, daß die Kämme bei ihrem Zerfall auf der Oberfläche der MF propagieren, so daß Oszillationsfrequenz und Propagationsgeschwindigkeit die zwei Größen sind, mit denen zerfallende Kämme charakterisiert werden können.

Um diese Größen auch experimentell zugänglich zu machen, bedarf es einer genauen zeitlichen und sehr schnellen Steuerung des Magnetfeldes. Nach der sprunghaften Erhöhung von einem Startwert B_0 auf einen überkritischen Wert B_{sup} (maximale Sprungzeit 80 ms) kommt es zur Ausbildung

der Kämme. Diese sind aber nur ein transientes Muster auf dem Weg zum endgültigen Muster in Form von hexagonal angeordneten Stacheln (siehe Abb. 4.4). Aus diesem Grund muß nach einer relativ kurzen Verweilzeit von 10 bis 20 ms das Magnetfeld sprunghaft auf einen unterkritischen Wert $B_{\text{sub}} > B_0$ verringert werden, um den Zerfall der Kämme auszulösen. Die experimentellen Methoden zur Bestimmung der Oszillationsfrequenz und der Propagationsgeschwindigkeit werden im Detail in [A48] dargestellt und wurden von Bert Reimann in der Arbeitsgruppe von Prof. Rehberg und Dr. Richter an der Universität Bayreuth realisiert.

Entsprechend dieser experimentellen Prozedur muß die Dispersionsrelation (4.12) für eine unterkritische Induktion B_{sub} und die maximale Wellenzahl q_m ausgewertet werden. Abbildung 4.8 zeigt die Ergebnisse für das Beispiel einer unendlich dicken Schicht. Für eine überkritische Induktion $B_{\text{sup}} = 1.05B_{c,\infty}$ (dicke durchgezogene Linie) entwickelt sich ein linear instabiles Muster mit der maximalen Wachstumsrate $\omega_m = i\omega_{2,m}$ ($\omega_{2,m} > 0$) und der dazugehörigen Wellenzahl q_m [dünne durchgezogene Linien in Abb. 4.8(a)]. Die Lösung für eine unterkritische Induktion $B_{\text{sub}} = 0.96B_{c,\infty}$ (dicke gestrichelte Linie) und die maximale Wellenzahl q_m entspricht einer abklingenden Oszillation mit $\omega_2 < 0$ und $|\omega_1| \neq 0$ (dünne gestrichelte Linien in Abb. 4.8). Die Frequenz dieser Oszillationen ist durch $f = |\omega_1|/(2\pi)$ gegeben und die Propagationsgeschwindigkeit durch $v = (|\omega_1| + \omega_2)/q_m$. Die Lösung der Dispersionsrelation für verschiedene unterkritische Induktionen bei fester maximaler Wellenzahl liefert für eine endliche Schichtdicke und die konkreten Fluidparameter dann diejenigen Daten, die mit den experimentellen Ergebnissen zu vergleichen sind.

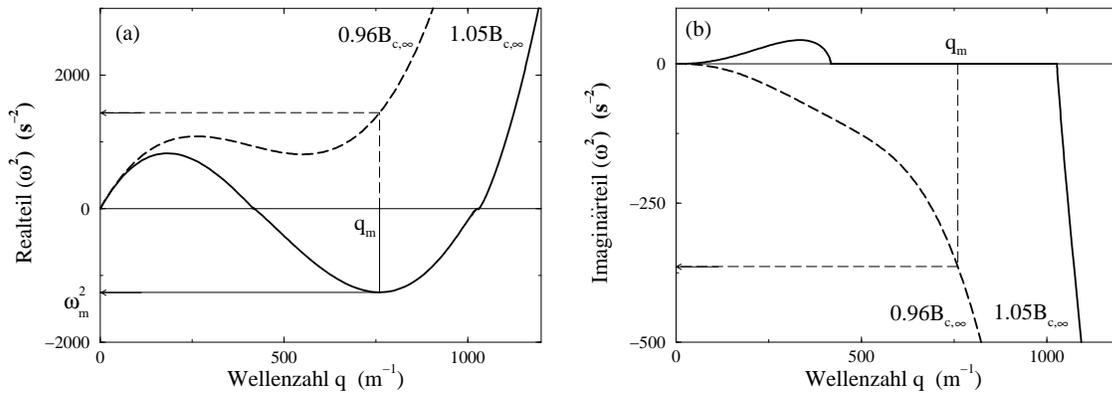


Abbildung 4.8: Abhängigkeit des Real- (a) und Imaginärteils (b) von ω^2 von der Wellenzahl q für eine überkritische (dicke durchgezogene Linie) und eine unterkritische (dicke gestrichelte Linie) Induktion. Die maximale Wachstumsrate ω_m^2 und die zugehörige Wellenzahl q_m des linear instabilsten Musters sind durch dünne durchgezogene Linien gekennzeichnet; die Lösung im unterkritischen Fall für q_m durch dünne gestrichelte Linien. Die zur Berechnung verwendeten Materialparameter sind $\nu = 5.17 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2/\text{s}$, $\rho = 1.16 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$, $\sigma = 2.65 \cdot 10^{-2} \text{ kg/s}^2$, $\mu_r \simeq 1.935$ und $B_{c,\infty} = 16.84 \text{ mT}$.

Für Muster, die durch eine superkritische Bifurkation aus dem Grundzustand hervorgehen, zeigen charakteristische Größen wie die Amplitude des Musters ein wurzelförmiges Verhalten bei Erhöhung des Kontrollparameters [30]. Da die Kämme aber ein transientes Muster sind, wird die Erhöhung des Kontrollparameters im Experiment durch größer werdende Sprünge von einem konstanten Wert für B_{sup} zu immer kleineren Werten von $B_{\text{sub}} > B_0$ realisiert. Die unter diesen Bedingungen bestimmten Werte der Frequenz [Abb. 4.9(a)] und der Propagationsgeschwindigkeit [Abb. 4.9(c)] zeigen ein wurzelförmiges Verhalten bei Variation der unterkritischen Induktion. Dabei bezeichnen die Symbole die Meßergebnisse und die durchgezogenen Linien die theoretischen Ergebnisse. Für beide Größen ist eine sehr gute Übereinstimmung festzustellen. Vergleicht man

die Quadrate der entsprechenden Daten, Abb. 4.9(b) und (d), erkennt man, daß kein reines Quadratwurzelverhalten vorliegt. Insbesondere für die Propagationsgeschwindigkeit gibt es gewisse Ondulationen sowohl in den experimentellen als auch in den theoretischen Ergebnissen. Da letztere mit 10 Dezimalstellen Genauigkeit berechnet worden sind, ist im Moment davon auszugehen, daß diese Abweichungen eine inhärente Eigenschaft der Dispersionsrelation sind.

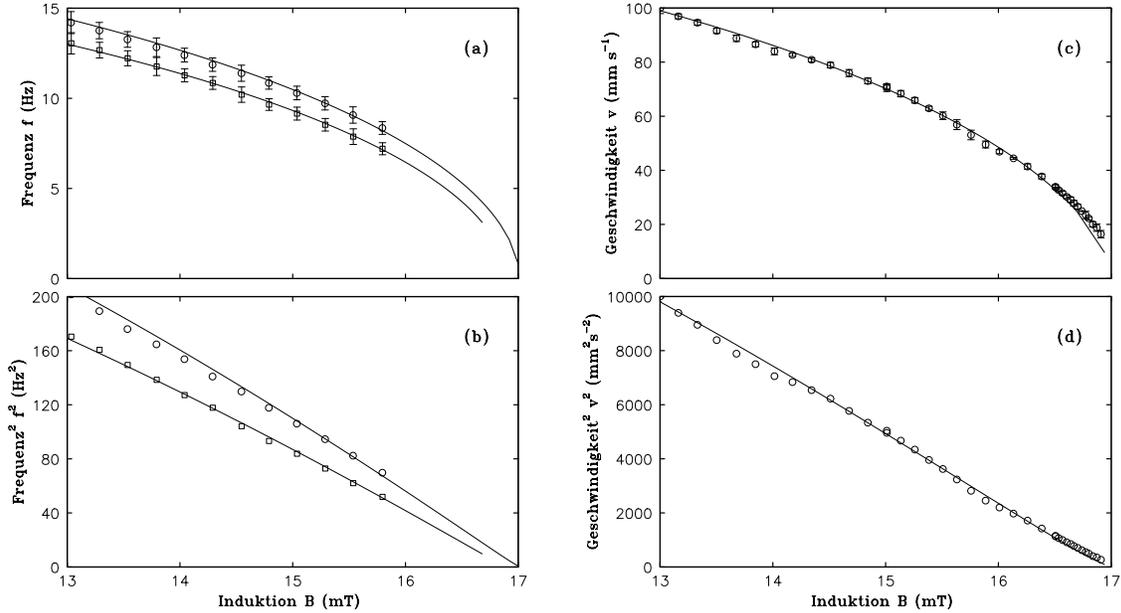


Abbildung 4.9: Experimentell bestimmte Abhängigkeit der Frequenz (a) und der Propagationsgeschwindigkeit (c) der zerfallenden Kämmen von der unterkritischen Induktion. (b) und (d) zeigen das Quadrat der jeweiligen Größe. Das linear instabilste Muster wurde mit einem Sprung auf $B_{\text{sup}} = 18$ mT (Kreise) bzw. 17.5 mT (Quadrate) erzeugt. Für die Messung der Frequenz (Propagationsgeschwindigkeit) wurde eine Schichtdicke von $h = 3$ (2) mm verwendet. Die durchgezogenen Linien bezeichnen die theoretischen Ergebnisse.

4.3 Definition eines adjungierten Operators bei Oberflächen-deformationen

In diesem Abschnitt soll der Frage nachgegangen werden, ob und wie es möglich ist, einen linear adjungierten Operator für die Rosensweig-Instabilität zu definieren. Aus den Darlegungen in Kapitel 3.2 geht hervor, daß ein solcher Operator notwendig ist, um eine Amplitudengleichung für die nichtlineare Analyse des jeweiligen Problems abzuleiten. Die Frage nach einem solchen Operator ist auch für alle anderen musterbildenden Systeme relevant, bei denen die Instabilität mit einer deformierten Grenzfläche verkoppelt ist. Dies betrifft zum Beispiel die Bénard-Marangoni-Konvektion in geschichteten Fluiden oder Oberflächenwellen (Faraday-Wellen) auf Flüssigkeiten. In diesem Sinne sind die nachfolgend formulierten Ergebnisse von weitreichenderer Natur und werden deshalb auch im Hinblick auf die beiden anderen Beispielsysteme diskutiert.

Da das etablierte Muster für die Rosensweig-Instabilität eine statische Anordnung von Stacheln ist, entfällt \mathbf{v} als Zustandsvariable, und der Zustandsvektor aus (3.9) enthält folgende Elemente:

$$\vec{U} = (\phi^{(3)}, \phi^{(2)}, \phi^{(1)}, \phi^{(1)}|_0, \phi^{(2)}|_0, \zeta)^T. \quad (4.31)$$

Die Bestimmung einer Größe an der Stelle $z = 0$ wird durch $|_0$ symbolisiert. Die magnetischen Potentiale $\phi^{(i)}$ für die drei verschiedenen Medien sind über $\mathbf{h}^{(i)} = -\text{grad } \phi^{(i)}$ definiert, wobei die $\mathbf{h}^{(i)}$ die Abweichungen von den Grundzustandsfeldern $\mathbf{H}_G^{(i)}$ beschreiben. Für die Randbedingungen (4.6, 4.10) müssen die magnetischen Potentiale an einer a priori unbekanntem Grenzfläche $\zeta(x, y)$ ausgewertet werden. Deshalb werden alle Potentiale $\phi^{(i)}$ in eine Taylor-Reihe um $z = 0$ entwickelt,

$$\phi^{(i)}(x, y, z = \zeta) = \phi^{(i)}(x, y, 0) + \partial_z \phi^{(i)}(x, y, z) \Big|_0 \cdot \zeta + \frac{1}{2} \partial_{zz} \phi^{(i)}(x, y, z) \Big|_0 \cdot \zeta^2 + \dots ; \quad (4.32)$$

analog für alle räumlichen Ableitungen von $\phi^{(i)}$. Diese Entwicklung ist der Grund, warum im Zustandsvektor (4.31) die Potentiale $\phi^{(1)}$ und $\phi^{(2)}$ an der Stelle $z = 0$ erscheinen, zusätzlich zu den Potentialen selbst. Analoge Erweiterungen des Zustandsvektors wurden für das Bénard-Marangoni-System [31, 33] oder für die elektrohydrodynamische Konvektion in Filmen nematischer Flüssigkristalle mit freien Oberflächen verwendet [49].

Der adjungierte Operator L^\dagger ist über $\langle \vec{U}, L\vec{U} \rangle = \langle L^\dagger \vec{U}, \vec{U} \rangle$ definiert. Um die Problematik der Umsetzung dieser Definition für die Rosensweig-Instabilität zu veranschaulichen, wird das Skalarprodukt des Zustandsvektors mit seinem zugehörigen adjungierten Vektor betrachtet,

$$\begin{aligned} \langle \vec{U}, \vec{U} \rangle &= \varepsilon^2 \langle \vec{U}_0, U_0 \rangle + \varepsilon^3 \left(\langle \vec{U}_0, \vec{U}_1 \rangle + \langle \vec{U}_1, \vec{U}_0 \rangle \right) + O(\varepsilon^4), \\ &= \lim_{l \rightarrow \infty} \frac{1}{l^2} \int_{-l/2}^{l/2} dx \int_{-l/2}^{l/2} dy \left[\int_{-\infty}^{-h} dz \bar{\phi}^{(3)*} \phi^{(3)} + \frac{1+\eta}{1-\eta} \int_{-h}^{\zeta} dz \bar{\phi}^{(2)*} \phi^{(2)} + \int_{\zeta}^{\infty} dz \bar{\phi}^{(1)*} \phi^{(1)} \right. \\ &\quad \left. + d\bar{u}_4^* \Big|_{\zeta} \phi^{(1)} \Big|_{\zeta} + e\bar{u}_5^* \Big|_{\zeta} \phi^{(2)} \Big|_{\zeta} + f\bar{u}_6^* \Big|_{\zeta} \zeta \right]. \end{aligned} \quad (4.33)$$

Die drei Integrale in den eckigen Klammern beschreiben die Volumenbeiträge, während die drei nachfolgenden Ausdrücke die Beiträge von der Oberfläche kennzeichnen. Eine solche Formulierung des Skalarproduktes wurde [31, 33, 49] entnommen, wo Nichtlinearitäten im Volumen und an der Oberfläche analysiert wurden. Die Koeffizienten vor den Oberflächenbeiträgen, d , e und f , sowie die ‘‘Oberflächen’’komponenten des adjungierten Zustandsvektors, \bar{u}_4 , \bar{u}_5 und \bar{u}_6 , sind noch zu bestimmen. Denn aus [31, 33] ist bekannt, daß die ‘‘Oberflächen’’komponenten des adjungierten Zustandsvektors \vec{U} nicht einfach die adjungierten ‘‘Oberflächen’’komponenten des Zustandsvektors \vec{U} sind. Da sowohl \vec{U} als auch \vec{U} die gesamte Information über die Abweichungen vom Grundzustand enthalten, erscheint die noch unbekannte Oberfläche ζ als Grenze an zwei Integralen und als Ort, an dem die Oberflächenterme auszuwerten sind. Während für letztere die Entwicklung entsprechend (4.32) vorgenommen werden kann, liefert die Expansion des zweiten Integrals

$$\int_{-h}^{\zeta} dz \bar{\phi}^{(2)*} \phi^{(2)} = \varepsilon^2 \int_{-h}^0 dz \phi_0^{(2)*} \phi_0^{(2)} + \varepsilon^3 \left[\zeta_0 \bar{\phi}_0^{(2)*} \Big|_0 \phi_0^{(2)} \Big|_0 + \int_{-h}^0 dz \left(\bar{\phi}_0^{(2)*} \phi_1^{(2)} + \bar{\phi}_1^{(2)*} \phi_0^{(2)} \right) \right] + O(\varepsilon^4) \quad (4.34)$$

(analoge Expansion für das dritte Integral). Vergleicht man die Ausdrücke in den beiden niedrigsten Ordnungen in ε aus Gleichung (4.33), ergeben sich die beiden folgenden Beziehungen:

$$\begin{aligned} \langle \vec{U}_0, \vec{U}_0 \rangle &= \lim_{l \rightarrow \infty} \frac{1}{l^2} \int_{-l/2}^{l/2} dx \int_{-l/2}^{l/2} dy \left[\int_{-\infty}^{-h} dz \bar{\phi}_0^{(3)*} \phi_0^{(3)} + \frac{1+\eta}{1-\eta} \int_{-h}^0 dz \bar{\phi}_0^{(2)*} \phi_0^{(2)} + \int_0^{\infty} dz \bar{\phi}_0^{(1)*} \phi_0^{(1)} \right. \\ &\quad \left. + d\bar{u}_{0,4}^* \Big|_0 \phi_0^{(1)} \Big|_0 + e\bar{u}_{0,5}^* \Big|_0 \phi_0^{(2)} \Big|_0 + f\bar{u}_{0,6}^* \Big|_0 \zeta_0 \right] \end{aligned} \quad (4.35)$$

und

$$\begin{aligned}
\langle \vec{U}_0, \vec{U}_1 \rangle + \langle \vec{U}_1, \vec{U}_0 \rangle &= \lim_{l \rightarrow \infty} \frac{1}{l^2} \int_{-l/2}^{l/2} dx \int_{-l/2}^{l/2} dy \left\{ \int_{-\infty}^{-h} dz \left(\bar{\phi}_0^{(3)*} \phi_1^{(3)} + \bar{\phi}_1^{(3)*} \phi_0^{(3)} \right) \right. \\
&+ \frac{1+\eta}{1-\eta} \int_{-h}^0 dz \left(\bar{\phi}_0^{(2)*} \phi_1^{(2)} + \bar{\phi}_1^{(2)*} \phi_0^{(2)} \right) + \int_0^{\infty} dz \left(\bar{\phi}_0^{(1)*} \phi_1^{(1)} + \bar{\phi}_1^{(1)*} \phi_0^{(1)} \right) \\
&+ d \left(\bar{u}_{0,4}^* \phi_1^{(1)} + \bar{u}_{1,4}^* \phi_0^{(1)} \right) \Big|_0 + e \left(\bar{u}_{0,5}^* \phi_1^{(2)} + \bar{u}_{1,5}^* \phi_0^{(2)} \right) \Big|_0 + f \left(\bar{u}_{0,6}^* \Big|_0 \zeta_1 + \bar{u}_{1,6}^* \Big|_0 \zeta_0 \right) \\
&+ \zeta_0 \left[\bar{\phi}_0^{(2)*} \phi_0^{(2)} - \bar{\phi}_0^{(1)*} \phi_0^{(1)} + d \left(\bar{u}_{0,4}^* \partial_z \phi_0^{(1)} + \partial_z \bar{u}_{0,4}^* \phi_0^{(1)} \right) + e \left(\bar{u}_{0,5}^* \partial_z \phi_0^{(2)} + \partial_z \bar{u}_{0,5}^* \phi_0^{(2)} \right) \right] \Big|_0 \\
&\left. + f \partial_z \bar{u}_{0,6}^* \Big|_0 \zeta_0^2 \right\}. \tag{4.36}
\end{aligned}$$

Der Ausdruck für das Skalarprodukt $\langle \vec{U}_0, \vec{U}_0 \rangle$ enthält das erwartete Ergebnis, denn es tauchen nur Produkte von zwei Funktionen aus der ersten Ordnung der Entwicklung in ε auf. Die durch die Anwesenheit einer deformierten Grenzfläche verursachten Probleme treten erstmals in $\langle \vec{U}_0, \vec{U}_1 \rangle + \langle \vec{U}_1, \vec{U}_0 \rangle$ klar zu Tage. Die linke Seite von Gleichung (4.36) läßt nur Produkte von zwei Funktionen erwarten, die zur ersten bzw. zweiten Ordnung der ε -Entwicklung gehören. Die Expansion an der deformierten Grenzfläche erzeugt aber zusätzliche Terme [in den beiden letzten Zeilen in (4.36)], die jeweils drei Funktionen aus der ersten Ordnung enthalten. Diese können weder dem Skalarprodukt $\langle \vec{U}_0, \vec{U}_1 \rangle$ noch $\langle \vec{U}_1, \vec{U}_0 \rangle$ zugeordnet werden. Dieselben Probleme mit nicht zuzuordnenden Termen ergeben sich in jeder weiteren Ordnung der Entwicklung von $\langle \vec{U}, \vec{U} \rangle$.

Diese allgemeinen Betrachtungen für das Skalarprodukt $\langle \vec{U}, \vec{U} \rangle$ zeigen die Grundsätzlichkeit des Problems: bei Anwesenheit einer deformierten Grenzfläche werden Zusatzterme generiert, die sich nicht sinnvoll einordnen lassen bzw. eine praktikable Definition des adjungierten Operators jenseits der ersten Entwicklungsordnung in ε verhindern [A50]. Diese Einschätzung wird unterstützt durch die Tatsache, daß es in der bekannten Literatur kein einziges Beispiel gibt, in dem die Entwicklung an einer deformierten Grenzfläche vorgenommen und ein adjungierter Operator definiert wurde. Bisher wurden im wesentlichen zwei Wege beschritten, um dieses Problems zu umgehen. Für beide ist allerdings zu sagen, daß die oben geschilderten Probleme als Motivation für die alternativen Zugänge unerwähnt bleiben.

Für Konvektionsphänomene in geschichteten Fluidsystemen oder Filmen nematischer Flüssigkeitskristalle mit freien Oberflächen sind die Deformationen der Grenzfläche eher klein, so daß sie von nachgeordneter Bedeutung auf die Musterbildung sind. Aus diesem Grund wird die Näherung einer ebenen Grenzfläche angenommen, $\zeta = 0$, wodurch die oben beschriebenen Probleme eliminiert werden. Bestätigt wird diese Sichtweise durch die gute quantitative Übereinstimmung der so erzielten Ergebnisse mit den experimentellen Resultaten [33, 51].

Eine Vernachlässigung der Oberflächen deformation für magnetische Flüssigkeiten ist aber nicht möglich. Die nichtlineare Analyse in [52, 53] beschreitet einen ähnlichen Weg wie ihn die Entwicklung (3.9) vorzeichnet, allerdings mit der Variante, daß auf eine Entwicklung des Kontrollparameters R verzichtet wird. Auf diese Weise wird die Definition eines adjungierten Operators umgangen, da nun die Größen R_1 oder R_2 aus (3.8) nicht mehr bestimmt werden müssen. Stattdessen liefert die Lösbarkeitsbedingung Forderungen an die Amplitude [52, 53]: die Ableitung bezüglich der langsamen räumlichen Variablen muß eine streng monoton fallende oder wachsende Funktion sein. Mit einer solchen speziellen Lösung lassen sich aber nicht Selektionsprobleme zwischen idealen Mustern behandeln, da deren Amplitude sich nicht auf dieser Längenskala ändert.

Für Faraday-Wellen stellt sich die Situation ähnlich dar. In [54] wird ebenso wie in [52, 53] auf eine Entwicklung des Kontrollparameters verzichtet, wodurch das Problem des adjungierten Operators umgangen wird. Um den Lösbarkeitsbedingungen dennoch einen Sinn zu geben, werden zwei verschiedene Musteramplituden eingeführt und mit deren Hilfe eine Amplitudengleichung abgeleitet. Inwieweit eine derart abgeleitete Amplitudengleichung reale experimentelle Ergebnisse quantitativ

beschreiben kann, ist schwer einzuschätzen. Bisher gibt es nur zwei Übergangsfrequenzen zwischen Mustern verschiedener Symmetrie, für die Übereinstimmung erreicht wurde [54]. Als Basis für eine generelle Bewertung einer solchen Ableitung ist dies noch unzureichend.

Amplitudengleichungen lassen sich aber nicht nur über den “klassischen” Weg der Fredholm-schen Alternative gewinnen. Über ein Energieminimierungsprinzip [35, 55, 56] oder Methoden der Funktionalanalysis [57] gelangt man auch zu Amplitudengleichungen. Das erste Prinzip liefert gute quantitative Ergebnisse im Vergleich zu den experimentellen Daten [35], aber beide Methoden sind auf statische Probleme begrenzt. Um in der Perspektive auch dynamische Probleme mit magnetischen Flüssigkeiten schwach nichtlinear analysieren zu können, wäre es wünschenswert, die oben beschriebenen Probleme in der Zukunft zu lösen. Als zusätzlicher Gewinn würden auch andere, mit deformierten Oberflächen verbundene Phänomene davon profitieren.

4.4 Schräge Kämme

In den vorangegangenen drei Abschnitten sind verschiedene Aspekte der Rosensweig-Instabilität unter der Voraussetzung untersucht worden, daß ein konstantes überkritisches Magnetfeld *normal* zu ungestörten ebenen Grenzfläche die Instabilität verursacht. Wird nun stattdessen das konstante Magnetfeld *horizontal* zur Schicht angelegt, so existiert *kein* kritischer Wert, bei dem eine Instabilität auftreten würde. Um bei Anwesenheit eines horizontalen Magnetfeldes dennoch eine Instabilität zu generieren, sind zusätzliche, destabilisierend wirkende Mechanismen notwendig.

Eine Möglichkeit besteht darin, die horizontalen Magnetfelder zeitabhängig mit der Kreisfrequenz ω zu wählen [58]. Die dabei zu beobachtende Oberflächeninstabilität weist zwei charakteristische Merkmale auf. Die Deformationen oszillieren mit der halben Anregungsfrequenz $\Omega = \omega/2$, was als subharmonisches Antwortverhalten bezeichnet wird. Als primäre Instabilität werden Kämme beobachtet, deren Wellenvektor parallel zur Richtung des Magnetfeldes orientiert ist. Somit sind die Oberflächendeformationen senkrecht zum Magnetfeld ausgerichtet, weshalb im Folgenden von senkrechten Kämmen gesprochen wird.

Als zweite Möglichkeit kann das System vertikalen Vibrationen ausgesetzt werden. Die dabei zu beobachtende Instabilität in Form von parametrisch angeregten Oberflächenwellen ist seit den Versuchen von Faraday im Jahre 1831 bekannt [59] und trägt inzwischen auch seinen Namen. Für das Einsetzen der Instabilität ist eine kritische Intensität der vertikalen Vibration nötig, jenseits derer die Oberflächendeformationen typischerweise subharmonisches Antwortverhalten zeigen. Durch Variation von Schichtdicke und Anregungsfrequenz sowie deren Anzahl kann ein harmonisches Antwortverhalten, $\Omega = \omega$, angeregt [60] sowie Muster in der Form von Kämmen, Quadraten, Sechsecken, Dreiecken oder Rhomben stabilisiert werden [61–64]. Die größere Mustervielfalt für die Faraday-Instabilität läßt erwarten, daß bei der Kombination von konstantem horizontalem Feld und vertikaler Vibration nicht nur Kämme senkrecht zum Magnetfeld als primäre Instabilität möglich sind.

Im Vergleich zu den Grundgleichungen aus Kapitel 4.1 erfährt das System durch die vertikale Vibration $\mathbf{a}(t)$ eine effektive, zeitlich modulierte Beschleunigung $\mathbf{g}(t) = [0, 0, -g - a \cos(\omega t)]$ statt der konstanten Erdbeschleunigung \mathbf{g} . Bis auf diese Modifikation in Gleichung (4.3) wird mit demselben Satz von Grundgleichungen und Randbedingungen wie in Kapitel 4.1 die Dispersionsrelation abgeleitet. Auf Grund der expliziten harmonischen Zeitabhängigkeit der Anregung ergeben sich Differentialgleichungen mit periodischen Koeffizienten. Deshalb werden die kleinen Störungen des Grundzustandes mit Hilfe eines Floquet-Ansatzes dargestellt,

$$\begin{pmatrix} X(x, y, z, t) \\ \zeta(x, y, t) \end{pmatrix} = \sin(\mathbf{q}\mathbf{r}) e^{(\sigma+i\alpha\omega)t} \sum_{n=-\infty}^{\infty} \begin{pmatrix} X_n(z) \\ \zeta_n \end{pmatrix} e^{in\omega t}, \quad (4.37)$$

$$Y(x, y, z, t) = \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}) e^{(\sigma+i\alpha\omega)t} \sum_{n=-\infty}^{\infty} Y_n(z) e^{in\omega t}. \quad (4.38)$$

Die Größe X steht für $h_x^{(i)}$, $h_y^{(i)}$ und $w^{(2)}$; die Größe Y steht für $h_z^{(i)}$, $p^{(2)}$ und $u^{(2)}$. Im Vergleich zum Normalmodenansatz (3.3) ist die räumliche Periodizität durch $\sin(\mathbf{q}\mathbf{r})$ bzw. $\cos(\mathbf{q}\mathbf{r})$ beschrieben, was äquivalent zu $e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}}$ ist wegen des linearen Charakters der Gleichungen. Die zeitliche Abhängigkeit ist bereits in Real- und Imaginärteil aufgespalten mit der Wachstumsrate σ und der Summe über die möglichen Oszillationsfrequenzen. Diese sind entweder ein n -faches der Anregungsfrequenz ω für $\alpha = 0$ (entspricht dem harmonischen Antwortverhalten) oder ein $(n + 1/2)$ -faches für $\alpha = 1/2$ (entspricht dem subharmonischen Antwortverhalten).

Nach dem Einsetzen der Entwicklung (4.37, 4.38) in die Grundgleichungen und Randbedingungen erhält man am Ende die Gleichung

$$\sum_{n=-\infty}^{\infty} (W_n \zeta_n - a \zeta_{n-1} - a \zeta_{n+1}) e^{[s+i(\alpha+n)\omega]t} = 0 \quad (4.39)$$

mit

$$\begin{aligned} W_n = & -2 \left[\frac{\nu^2}{q[\tilde{q}_n \coth(\tilde{q}_n h) - q \coth(qh)]} \left(\tilde{q}_n [4q^4 + (q^2 + \tilde{q}_n^2)^2] \coth(qh) \coth(\tilde{q}_n h) \right. \right. \\ & - q[4q^2 \tilde{q}_n^2 + (q^2 + \tilde{q}_n^2)^2] - \frac{4\tilde{q}_n q^2 (q^2 + \tilde{q}_n^2)}{\sinh(qh) \sinh(\tilde{q}_n h)} \left. \right) + g + \frac{\sigma q^2}{\rho} \\ & \left. + \frac{q(\mu_r - 1)^2 \Lambda(qh)}{\rho \mu_0} \left(\frac{q_x B}{q} \right)^2 \right], \end{aligned} \quad (4.40)$$

$$\Lambda(qh) = \frac{e^{qh}(\mu_r + 1) + e^{-qh}(\mu_r - 1)}{e^{qh}(\mu_r + 1)^2 - e^{-qh}(\mu_r - 1)^2}, \quad (4.41)$$

$\tilde{q}_n = \sqrt{q^2 + [\sigma + i(\alpha + n)\omega]/\nu}$ und der Induktionsstärke B des äußeren Magnetfeldes parallel zur x -Achse. Vergleicht man die Ausdrücke in (4.40) mit der Dispersionsrelation (4.12) für ein vertikales Feld, so ergeben sich zwei Unterschiede. Der Ausdruck proportional zur Induktionsstärke hat dasselbe Vorzeichen wie der Beitrag der Gravitation und der Oberflächenspannung. Ein konstantes horizontales Magnetfeld stabilisiert also die Grenzfläche und kann alleine keine Instabilität verursachen. Im selben Ausdruck erscheint statt der Wellenzahl q nur die x -Komponente des Wellenvektors, was die Einführung eines effektiven Feldes

$$\mathbf{B}_{\text{eff}} = \frac{(\mathbf{q}\mathbf{B})}{q^2} \mathbf{q} = \frac{q_x B}{q} \frac{\mathbf{q}}{q} = B \cos \theta \frac{\mathbf{q}}{q} \quad (4.42)$$

sinnvoll macht. Dabei bezeichnet θ den Winkel zwischen dem Wellenvektor \mathbf{q} und der äußeren Induktion \mathbf{B} . Somit ist die Wirkung einer äußeren Induktion \mathbf{B} auf eine Störung, die sich in eine beliebige Richtung \mathbf{q} ausbreitet, äquivalent zur Wirkung einer effektiven Induktion \mathbf{B}_{eff} parallel zu \mathbf{q} .

Unter der Ausnutzung der Tatsache, daß Gleichung (4.39) für alle Zeiten erfüllt sein muß, erhält man ein rekursives Gleichungssystem für die Koeffizienten ζ_n , das nach Abschneiden bei $n = N$ auf eine implizite Gleichung zur Bestimmung der Amplitude der Beschleunigung a [54]

$$a = |G(a, q, \omega, B_{\text{eff}}, \nu, \sigma, \rho, \mu_r)|, \quad (4.43)$$

hinausläuft. Bei bekannten Systemparametern kann diese Gleichung numerisch gelöst werden und liefert die Abhängigkeit der Beschleunigung a von q für diesen Parametersatz. Die kritischen Werte a_c und q_c entsprechen dabei dem absoluten Minimum der Kurve $a(q)$ für verschwindende Wachstumsraten, $\sigma = 0$.

Abbildung 4.10 zeigt die Lösung von Gleichung (4.43) für eine magnetische Flüssigkeit ohne äußeres Feld, $B_{\text{eff}} = 0$ (gestrichelte Linien), und für $B_{\text{eff}} = B_{c,\infty}$ (durchgezogene Linien) bei $\sigma = 0$. Es fällt auf, daß im Unterschied zur schematischen Darstellung in Abb. 3.2(b) die neutrale Kurve

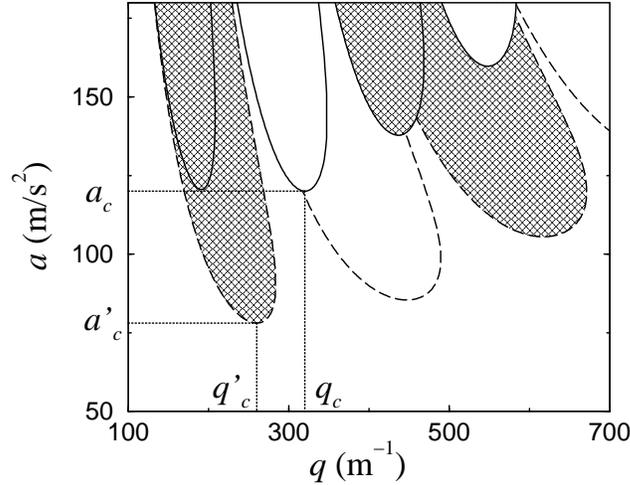


Abbildung 4.10: Neutrale Kurve für eine Anregungsfrequenz von $f = 10$ Hz und eine Schichtdicke von $h = 2$ mm. Gestrichelte (durchgezogene) Linien entsprechen $B_{\text{eff}} = 0$ ($B_{\text{eff}} = B_{c,\infty}$). Gefüllte bzw. leere Zungen entsprechen dem subharmonischen bzw. harmonischen Antwortverhalten des Systems. a_c und q_c (a'_c und q'_c) sind die kritischen Beschleunigungen und Wellenzahlen für $B_{\text{eff}} = B_{c,\infty}$ ($B_{\text{eff}} = 0$). Die Fluidparameter sind $\nu = 10^{-4}$ m²/s, $\sigma = 0.0265$ N/m, $\rho = 1020$ kg/m³, $\mu_r = 1.85$ und $B_{c,\infty} = 17.28$ mT.

in mehrere Zungen zerfällt. Innerhalb jeder Zunge ist die ebene Grenzfläche instabil gegenüber parametrisch angeregten stehenden Wellen, außerhalb ist sie stabil. Das absolute Minimum aller Zungen bei festem B -Wert gibt die kritische Beschleunigung a_c , die kritische Wellenzahl q_c und die zugehörige Ordnung l (von links nach rechts) der Zunge, zu der diese kritischen Werte gehören. Diese Ordnung l definiert die Kreisfrequenz des Antwortverhaltens über $\Omega = l\omega/2$. Demnach liegt für Zungen ungerade (gerader) Ordnung subharmonisches (harmonisches) Verhalten vor. Im dargestellten Beispiel verursacht das äußere Magnetfeld einen Wechsel von subharmonischem zu harmonischem Verhalten.

Abbildung 4.11 zeigt die Abhängigkeit der kritischen Größen von der Frequenz f für vier verschiedene Induktionsstärken bei fester Schichtdicke $h = 2$ mm. Für alle Induktionsstärken und nicht zu kleine Frequenzen, $f \gtrsim 2$ Hz, hat die Instabilität subharmonischen Charakter wegen $l = 1$. Für kleinere Frequenzen treten bikritische Punkte auf, weshalb die Abhängigkeit $a_c(f)$ nicht glatt und die von $q_c(f)$ diskontinuierlich ist (siehe Vergrößerungen in Abb. 4.11). Bikritische Punkte sind solche Punkte im Parameterraum, für die das absolute Minimum von $a(q)$ gleich den lokalen Minima zweier benachbarter Zungen ist. Im feldfreien Fall geschieht ein solcher Überlapp zum Beispiel zwischen der ersten subharmonischen Zunge ($l = 1$) und der ersten harmonischen Zunge ($l = 2$) für $f_{bc,1} \simeq 1.86$ Hz [siehe Vergrößerung in Abb. 4.11(a)]. Für Frequenzen kleiner als $f_{bc,1}$ hat die Instabilität harmonischen Charakter bis zum nächsten bikritischen Punkt bei $f_{bc,2} \simeq 1.55$ Hz, bei dem das Antwortverhalten zum subharmonischen Charakter mit $l = 3$ zurückwechselt. Insgesamt durchläuft das System für $f \rightarrow 0$ eine ganze Folge von Wechseln zwischen subharmonischem und harmonischem Verhalten. Ein äußeres Magnetfeld kann die Frequenz der bikritischen Punkte in Abhängigkeit von der Viskosität der MF in unterschiedliche Richtungen verschieben. Für hoch-viskose Flüssigkeiten werden die Übergangsfrequenzen erhöht (siehe Abb. 4 in [A65]), für niedrig-viskose Flüssigkeiten vermindert [siehe Vergrößerung in Abb. 4.11(a)].

Ein Charakteristikum aller Abhängigkeiten $a_c(f)$ ist das Auftreten eines Minimums für alle untersuchten Induktionsstärken [Abb. 4.11(a)]. Um diese Minima zu erklären, muß man sich daran erinnern, daß viskose Dämpfung die Ursache für einen endlichen Wert von a_c ist. Die viskose

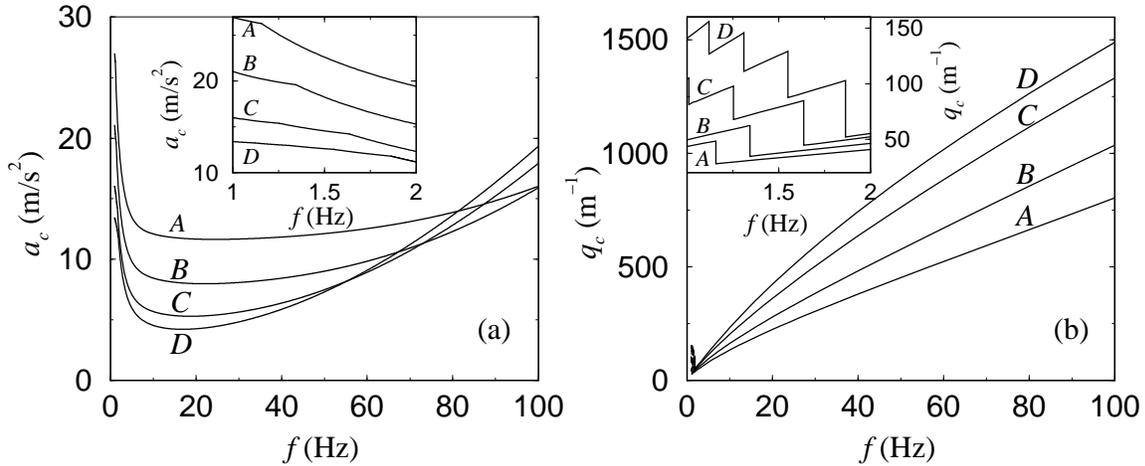


Abbildung 4.11: Abhängigkeit der kritischen Beschleunigung a_c (a) und der kritischen Wellenzahl q_c (b) von der Anregungsfrequenz f für $h = 2$ mm. Vergrößerungen: Verhalten der Größen für kleine Frequenzen. Die effektiven Induktionsstärken sind $B_{\text{eff}} = 1.5B_{c,\infty}$ (A), $B_{c,\infty}$ (B), $0.5B_{c,\infty}$ (C), 0 (D). Die gleichen Fluidparameter wie in Abb. 4.10 mit der Ausnahme von $\nu = 5.88 \times 10^{-6}$ m^2/s wurden verwendet.

Dämpfung vollzieht sich sowohl in der Grenzschicht der Flüssigkeit am Boden als auch im Inneren der Flüssigkeit. Mit Hilfe der dimensionslosen Tiefe der Fluidschicht $d = q_c h$ kann die Dominanz von einem dieser Dämpfungsmechanismen bestimmt werden (Abb. 4.12). Für dünne Schichten gilt $d \lesssim 1$, und in diesen ist die Dämpfung in der Grenzschicht am Boden vorherrschend (erstes Regime). Für große Schichtdicken gilt $d \gg 1$, und hier ist die Dämpfung im Inneren relevant, während die Dämpfung in der Grenzschicht am Boden vernachlässigt werden kann (zweites Regime).

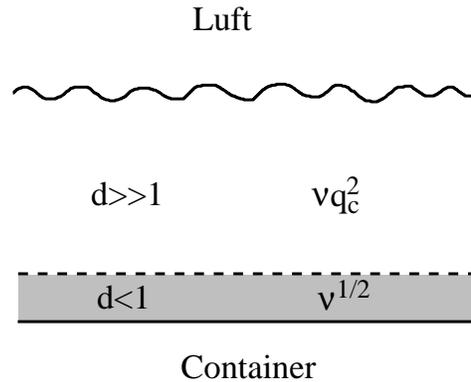


Abbildung 4.12: Die Dämpfung in der Flüssigkeit ist dominant für $d \gg 1$ und proportional zu νq_c^2 [66]. Die Dämpfung in der Grenzschicht am Boden ist dominant für $d < 1$. Der Exponent für die Abhängigkeit der Dämpfung in der Grenzschicht am Boden wurde in [60] abgeleitet.

Das erste Dämpfungsregime tritt für kleine Frequenzen in Abb. 4.11 auf, so lange $q_c \lesssim 500 \text{ m}^{-1}$ gilt. Innerhalb dieses Bereiches erhöht sich mit anwachsender Frequenz die kritische Wellenzahl, weshalb sich d ebenfalls erhöht. Dies kennzeichnet eine schwächere Dämpfung in der Grenzschicht am Boden, und die für die Instabilität notwendige Beschleunigung fällt deshalb geringer aus.

Das zweite Dämpfungsregime ist typisch für $q_c > 500 \text{ m}^{-1}$. Da die Dämpfung im Inneren der Flüssigkeit proportional zu q_c^2 ist [66], wird diese Dämpfung mit anwachsender Frequenz stärker, da auch q_c anwächst. Somit ist für größere Frequenzen eine erhöhte Beschleunigung nötig. Der Übergang zwischen diesen beiden Dämpfungsregimen führt auf das Minimum in der kritischen Beschleunigung.

Nun soll dargestellt werden, wie das Magnetfeld die kritische Beschleunigung beeinflusst. Aus Abb. 4.11(b) kann man ablesen, daß das Magnetfeld die zugehörige kritische Wellenzahl absenkt. Diese Verringerung von q_c und damit von d bewirkt aber gegenteilige Effekte in den verschiedenen Dämpfungsregimes. Im niederfrequenten Bereich, also im ersten Dämpfungsregime, verursacht die Absenkung von q_c eine stärkere Dämpfung in der Grenzschicht am Boden, was eine Erhöhung der kritischen Beschleunigung zur Folge hat [siehe Kurven $D \rightarrow A$ für $f \lesssim 40 \text{ Hz}$ in Abb. 4.11(a)]. Im hochfrequenten Bereich dagegen verursacht die Absenkung von q_c eine schwächere Dämpfung im Inneren der Flüssigkeit. Allerdings ist die Auswirkung auf die kritische Beschleunigung nicht so ohne weiteres zu erkennen, weshalb dieser hochfrequente Fall nachfolgend ausführlicher betrachtet wird.

Abbildung 4.13(a) zeigt die Abhängigkeit der kritischen Beschleunigung a_c von der effektiven Induktion im hochfrequenten Fall, $f = 100 \text{ Hz}$, für verschiedene Schichtdicken h . Während für unendlich dicke Fluidschichten die kritische Beschleunigung monoton abfällt (Kurve E), zeigt a_c für endliche, aber nicht zu dünne Schichten, $h \geq 1.14 \text{ mm}$, ein Minimum (Kurven D bis B). Für noch dünnere Schichten dagegen wächst a_c monoton an (Kurve A).

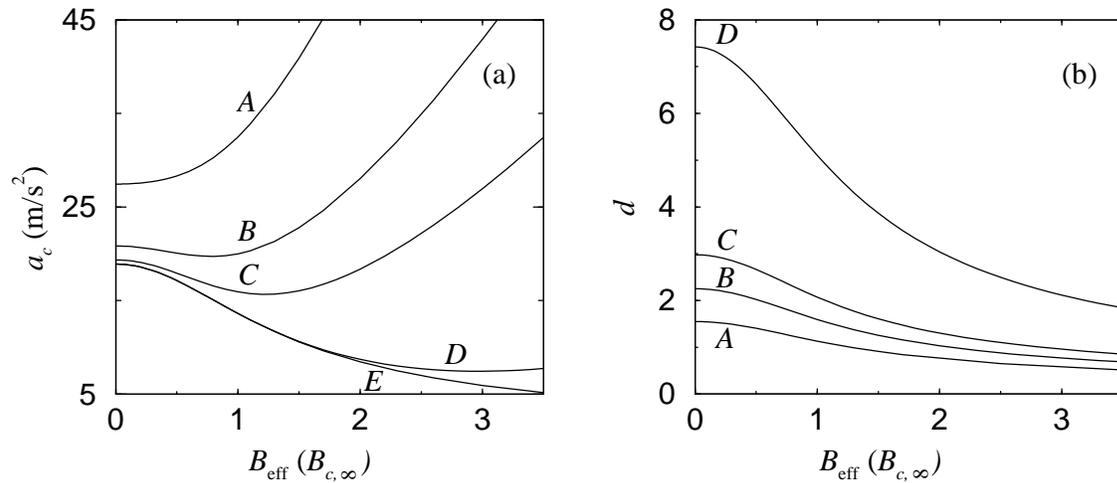


Abbildung 4.13: Kritische Beschleunigung a_c (a) und dimensionslose Tiefe des Fluids $d = q_c h$ (b) in Abhängigkeit von der effektiven Induktion B_{eff} für $f = 100 \text{ Hz}$. Die Schichtdicken sind $h = 1 \text{ mm}$ (A), 1.5 mm (B), 2 mm (C), 5 mm (D) und $h = \infty$ (E). Die Fluidparameter sind die gleichen wie in Abb. 4.11.

Um diese Abhängigkeiten zu verstehen, ist es sinnvoll, $d(B_{\text{eff}})$ zu betrachten [Abb. 4.13(b)]. Im Gebiet $d \gg 1$, dem zweiten Dämpfungsregime, verursacht die Absenkung von q_c eine schwächere Dissipation im Inneren der Flüssigkeit, weshalb die kritische Beschleunigung absinkt. Dies geschieht so lange, bis die dimensionslose Tiefe d in die Größenordnung von 1 kommt. Bei einer weiteren Verkleinerung von d wird nun die Dissipation in der Grenzschicht am Boden relevant und stärker. Deshalb erhöht sich der Wert für die kritische Beschleunigung wieder. Dieser Übergang vom zweiten zum ersten Dämpfungsregime verursacht das Minimum bezüglich a_c bei $B_{\text{eff}}^* > 0$ in den Kurven D bis B. Mit abnehmender Schichtdicke h wird der Wert des effektiven Magnetfeldes, bei dem dieser Übergang stattfindet, immer kleiner. Für $h \leq 1.14 \text{ mm}$ findet kein Übergang statt,

da das zweite Dämpfungsregime überhaupt nicht auftritt. Für $h = \infty$ gibt es keine Grenzschicht und somit keine dort stattfindende Dissipation, die relevant werden könnte. Im Ergebnis fällt a_c monoton mit wachsendem B_{eff} ab.

Das nichtmonotone Verhalten von $a_c(B_{\text{eff}})$ kann ausgenutzt werden, um verschiedene linear instabilste Muster auszuwählen. Wenn die äußere Induktion B *kleiner* ist als B_{eff}^* , dann sind Käme mit $\mathbf{q} \parallel \mathbf{B}$ favorisiert. Denn jeder von Null verschiedene Winkel θ liefert eine effektive Induktion, deren zugehörige kritische Beschleunigung *größer* ist als die die bei B . Als primäre Instabilität sind demnach senkrechte Käme zu erwarten. Wenn die äußere Induktion B *größer* als B_{eff}^* ist, dann wird sich ein Winkel θ zwischen Wellenvektor und Feldrichtung einstellen, der durch die Relation $\cos \theta = \pm B_{\text{eff}}^*/B$ gegeben ist. Auf diese Weise wird der Punkt mit der minimalsten kritischen Beschleunigung zugänglich. Deshalb sollten für $B > B_{\text{eff}}^* \neq 0$ Käme mit einem Winkel von $+\theta$ oder $-\theta$ oder rhombische Muster als Überlagerung beider Orientierungen als primäre Instabilitäten zu beobachten sein. Für sehr dünne Schichten wird B_{eff}^* Null, was einem Winkel von $\theta = 90^\circ$ entspricht. In diesem Fall sind Käme parallel zum magnetischen Feld als primäre Instabilität zu erwarten. Somit kann durch die geschickte Wahl der Schichtdicke und der äußeren Induktion zwischen verschiedenen linear instabilsten Mustern ausgewählt werden.

Kapitel 5

Thermomagnetische Konvektion

Allen bisher beschriebenen Instabilitäten war gemeinsam, daß eine Schicht magnetischer Flüssigkeit mit einer freien Oberfläche betrachtet wurde. Fällt diese freie Oberfläche weg, dann ist die Anwesenheit eines Magnetfeldes nicht mehr ausreichend, um eine Instabilität zu generieren. Es sind dafür zusätzliche destabilisierende Mechanismen notwendig, wie im nachfolgenden Beispiel ein von außen aufgeprägter Temperaturgradient.

Die Motivation für diese Arbeit waren Experimente, die die Beobachtung einer neuartigen konvektiven Instabilität in magnetischen Fluiden beschrieben. In [67, 68] wird eine horizontale Schicht MF zwischen zwei Glasplatten lokal durch einen Laserstrahl erwärmt. Dieser Laserstrahl tritt vertikal durch die Schicht hindurch, die außerdem noch einem konstanten vertikalen Magnetfeld ausgesetzt ist. Durch die Absorption des Laserlichtes in der Flüssigkeit entsteht ein Temperaturgradient und infolgedessen ein Gradient des Brechungsindex. Dieser Gradient wirkt wie eine Zerstreuungslinse und weitet den durchtretenden Laserstrahl auf. Im feldfreien Fall sind als stationäres Beugungsbild konzentrische Kreise zu beobachten. Bei Anlegen eines äußeren Feldes werden oberhalb einer kritischen Feldstärke diese konzentrischen Kreise durch polygonal geformte Muster ersetzt, zwischen denen das System wechselt. Diese polygonalen Beugungsmuster wurden von den Experimentatoren als "Fingerabdrücke" vertikaler Konvektionsrollen interpretiert [68].

Diese Interpretation ist vor allem aus zwei Gründen mit einem Fragezeichen zu versehen. Ein großer Nachteil des Experimentes ist es, daß es keine Informationen über die Temperatur- und Konzentrationsverteilung in der Schicht gibt. Deshalb gibt es auch keine gesicherten Erkenntnisse über das Strömungsprofil in der Schicht und die Orientierung von möglichen Konvektionsrollen. Zum anderen sind keine der relevanten Materialparameter wie die Abhängigkeit des Brechungsindex von der Temperatur und von der Konzentration bekannt. Für organische Dispersionen ist die Bestimmung dieser Größen aus unabhängigen Experimenten gelungen [69]. Vergleicht man die auf diesen Daten basierenden theoretischen Resultate mit den experimentellen Werten für den Durchmesser der konzentrischen Kreise, sind signifikante Abweichungen festzustellen (siehe Abb. 2 in [69]).

In Anbetracht dieser Unwägbarkeiten muß das zu entwickelnde Modell darauf beschränkt bleiben, nur die essentiellen Merkmale des Experiments wiederzuspiegeln. Dies sind eine zylindersymmetrische Temperaturverteilung sowie die endliche Höhe und der endliche Radius der Probe. Ziel ist es, die Bedingungen zu bestimmen, unter denen vertikale Konvektionsrollen möglich sind und die dafür nötigen Magnetfelder zu berechnen.

Als Modellgeometrie werden drei konzentrische Zylinder der Höhe h betrachtet (siehe Abb. 5.1). Der innere Zylinder mit dem Radius R_1 , der konstanten Temperatur T_1 und der konstanten Suszeptibilität $\chi(T_1)$ ist umgeben vom mittleren Zylinder mit dem Radius R_2 . Innerhalb des Zylinderspaltes $R_2 - R_1$ fällt die Temperatur auf den Wert $T_0 < T_1$ ab, weshalb in diesem Bereich die Suszeptibilität eine räumliche Variation, $\chi = \chi[T(r)]$, erfährt. Der äußere Zylinder mit dem Radius R_{out} bildet den Abschluß, wobei innerhalb des Bereiches $R_{\text{out}} - R_2$ die konstante Temperatur T_0

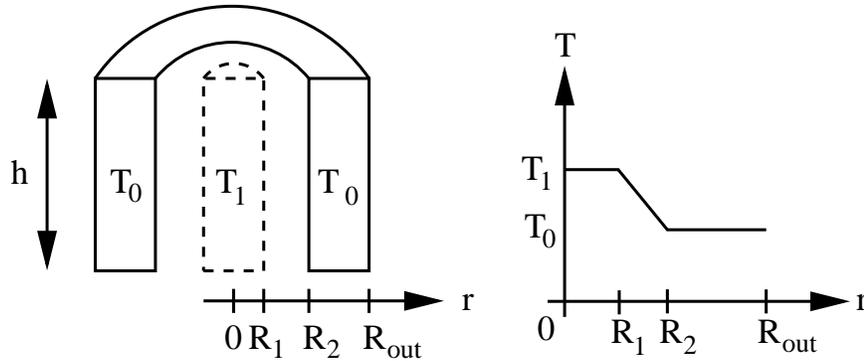


Abbildung 5.1: Schematische Anordnung der konzentrischen Zylinder (links) sowie prinzipieller Temperaturverlauf (rechts).

und die konstante Suszeptibilität $\chi(T_0)$ vorliege. Auf Grund dieser Zusammensetzung ergibt sich eine effektive Suszeptibilität von

$$\chi_{\text{eff}} = \frac{1}{R_{\text{out}}} \left(R_1 \chi(T_1) + (R_2 - R_1) \int_{R_1}^{R_2} dr \chi[T(r)] + (R_{\text{out}} - R_2) \chi(T_0) \right) \quad (5.1)$$

für das Gesamtsystem, das einem konstanten vertikalen Magnetfeld mit der Induktion \mathbf{B}_{ext} ausgesetzt ist. Das Magnetfeld im Zylinderspalt ist durch $\mathbf{H}_{\text{int}} = \mathbf{B}_{\text{ext}} / [\mu_0(1 + N\chi)]$ gegeben. Dabei bezeichnet $\chi = \chi_i(1 + \beta_1\chi_i)$ die Suszeptibilität der MF und χ_i die Anfangsuszeptibilität (2.22). Ein quadratischer Term in χ_i mit $\beta_1 = 1/3$ [70–72] wurde hinzugefügt, um zu testen, inwieweit Abweichungen von der linearen Beziehung zwischen der Magnetisierung und der Fluidichte Einfluß auf die kritischen Felder haben. Solche Abweichungen gehen mit einem erhöhten Volumenanteil der ferromagnetischen Teilchen einher, weshalb im Folgenden für $\beta_1 \neq 0$ von nicht-verdünnten MF gesprochen wird. Der Demagnetisierungsfaktor N trägt der endlichen Ausdehnung der konzentrischen Zylinder Rechnung und hängt sowohl vom Verhältnis der Höhe zum Durchmesser, $\gamma = h/(2R_{\text{out}})$, als auch von der effektiven Suszeptibilität χ_{eff} ab [73]. Die Kelvin-Kraftdichte (4.1) ergibt sich dann zu

$$\mathbf{f}_K = -\frac{B_{\text{ext}}^2}{\mu_0} F_{\chi_i} \frac{\text{grad}\chi_i}{\chi_i} \quad (5.2)$$

mit

$$F_{\chi_i} = \frac{\chi_i^2 \{N + \beta_1 [3N\chi_i(1 + \beta_1\chi_i) - 1]\}}{(1 + N\chi)^3}. \quad (5.3)$$

Faßt man MF als binäre Mischungen von Nanopartikeln und Trägerflüssigkeit auf, ist es notwendig, den Einfluß von Temperatur und Konzentration auf die Musterbildung durch die Abschätzung der charakteristischen Zeiten zu bestimmen. Die charakteristische Zeit für konvektive Phänomene ist durch $t_c = L_c^2/\kappa$ gegeben und die für diffusive Phänomene durch $t_d = L_d^2/D$. L_c (L_d) ist die charakteristische Länge für Konvektion (Diffusion), κ die thermische Diffusivität und D der Massendiffusionskoeffizient. Mit den typischen Werten $\kappa \approx 4 \times 10^{-8} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ und $D \approx 8 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ergibt sich, daß die charakteristische Zeit für die Diffusion um drei Größenordnungen größer ist als die charakteristische Zeit für die Konvektion. Denn für das betrachtete System sind beide charakteristischen Längen gleich der Zylinderspaltbreite $R_2 - R_1$.

Auf Grund dieser Relation der Zeiten wird das System von der Kontinuitäts-, der Navier-Stokes-

und der Wärmeleitungsgleichung beschrieben, die entdimensionalisiert die Form

$$\operatorname{div} \bar{\mathbf{v}} = 0, \quad (5.4)$$

$$\frac{\partial \bar{\mathbf{v}}}{\partial t} + (\bar{\mathbf{v}} \operatorname{grad}) \bar{\mathbf{v}} = \mathcal{P} (-\operatorname{grad} \bar{\varphi} + \Delta \bar{\mathbf{v}}) + \mathcal{M} F_{\chi L} \frac{\operatorname{grad} \bar{T}}{\bar{T}}, \quad (5.5)$$

$$\frac{\partial \bar{T}}{\partial t} + (\bar{\mathbf{v}} \operatorname{grad}) \bar{T} = \Delta \bar{T} \quad (5.6)$$

haben. In der Navier-Stokes-Gleichung (5.5) kommen zwei dimensionslose Zahlen vor: die Prandtl-Zahl $\mathcal{P} = \nu/\kappa$ charakterisiert das Fluid, und über die Magnetisierungszahl $\mathcal{M} = B_{\text{ext}}^2 (R_2 - R_1)^2 / (\mu_0 \rho \kappa^2)$ kann die Stärke der äußeren Anregung eingestellt werden. Auf Grund der Zylindersymmetrie ist das Geschwindigkeitsfeld zweidimensional, $\mathbf{v} = (u, v)$, und wird mit $\kappa/(R_2 - R_1)$ entdimensionalisiert. Die Zeit wird mit $(R_2 - R_1)^2/\kappa$ skaliert, die Temperatur mit $(T_1 - T_0)$ und der Druck φ mit $\rho \kappa \nu / (R_2 - R_1)^2$. Für die Geschwindigkeit werden feste Randbedingungen angenommen, $\bar{u} = \partial_{\bar{r}} \bar{u} = 0$ für $\bar{r} = \eta/(1 - \eta)$ und $\bar{r} = 1/(1 - \eta)$, wobei $\eta = R_1/R_2$ das Radienverhältnis ausdrückt. An jedem der beiden Ränder wird die Temperatur als konstant betrachtet, $\bar{T}[\bar{r} = \eta/(1 - \eta)] = \bar{T}_1$ und $\bar{T}[\bar{r} = 1/(1 - \eta)] = \bar{T}_0$.

Da die Kelvin-Kraftdichte die einzige destabilisierende Kraftdichte ist, muß sie ein Profil aufweisen, das zu einer potentiell instabilen Schichtung innerhalb der Flüssigkeit führt. Wenn der innere Zylinder die wärmere Region ist, zeigt Abb. 5.2(a) das erforderliche Profil. Die r -Komponente der Kelvin-Kraftdichte muß nach innen gerichtet sein, und ihr Betrag muß nach außen hin monoton anwachsen. Für ein solches Profil erfährt ein Fluidvolumen im Abstand $r + \delta r$ [durchgezogenes Rechteck in Abb. 5.2(b)] eine größere Kraft in Richtung Zentrum als ein Volumenelement im Abstand r (gestricheltes Rechteck). Wird dieses nun von r nach $r + \delta r$ verschoben (strich-punktiertes Rechteck), dann ergibt sich eine resultierende Kraft (Durch die Pfeile in Abb. 5.2(b) unten symbolisiert.), die dieselbe Orientierung hat wie die Verschiebung. Diese Kraft kann die kleinen Verschiebungen wärmerer Flüssigkeit in kältere Regionen verstärken und somit eine instabile Schichtung innerhalb der Flüssigkeit generieren.

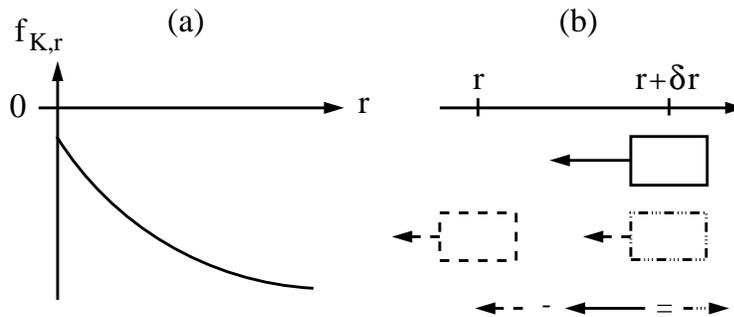


Abbildung 5.2: (a) Notwendiges destabilisierendes Profil der r -Komponente der Kelvin-Kraftdichte $f_{K,r}$ bei Erwärmung von innen. (b) Ein Volumenelement im Abstand $r + \delta r$ (durchgezogenes Rechteck) erfährt eine größere Kraft in Richtung Zentrum als ein Volumenelement im Abstand r (gestricheltes Rechteck). Bei Verschieben nach $r + \delta r$ (strich-punktiertes Rechteck) zeigt die resultierende Kraft in Richtung der Verschiebung (siehe strich-punktiertes Pfeil).

Diese Argumente führen zu der Forderung, daß die r -Ableitung der Kelvin-Kraftdichte über die gesamte Zylinderspaltbreite kleiner als Null sein muß, $\partial_{\bar{r}} f_{K,\bar{r}} < 0$ für $\bar{r} \in [\eta/(1 - \eta), 1/(1 - \eta)]$. Aus der Anwendung dieser Forderung auf den strömungsfreien, wärmeleitenden Grundzustand, $\bar{\mathbf{v}}_G = 0$ und $\bar{T}_G = \bar{T}_0 + (\bar{T}_1 - \bar{T}_0) \ln[\bar{r}(1 - \eta)] / \ln \eta$, wurde in [A74] das kritische Radienverhältnis

bestimmt, jenseits dessen eine instabile Schichtung möglich ist. Für realistische Temperaturen T_1 oberhalb der Raumtemperatur $T_0 = 300$ K wird deutlich, daß nur für einen sehr schmalen Spalt eine solche instabile Schichtung möglich ist (Abb. 5.3). Diese Beschränkung hängt dabei nicht empfindlich vom Wert für β_1 und vom Demagnetisierungsfaktor N ab, wie die vier Parametersätze in Abb. 5.3 zeigen. Damit sind die geometrischen Bedingungen bestimmt, unter denen vertikale Konvektionsrollen für einen rein radialen Temperaturgradienten überhaupt erst auftreten können.

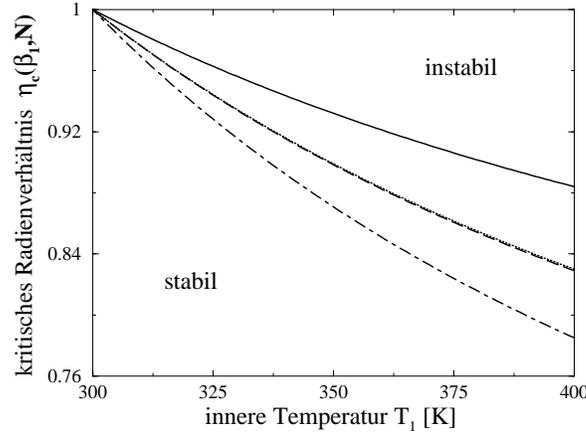


Abbildung 5.3: Gebiete potentiell instabiler bzw. stabiler Kraftdichteprofile bei fester äußerer Temperatur $T_0 = 300$ K und $\chi_i = 3$. Die vier verschiedenen Parametersätze sind $\beta_1 = 0$, $N = 1$ (gestrichelte Linie), $\beta_1 = 0$, $N = 0.7$ (strich-punktierte Linie), $\beta_1 = 1/3$, $N = 1$ (durchgezogene Linie) und $\beta_1 = 1/3$, $N = 0.7$ (punktierte Linie), wobei die Ergebnisse für den ersten und letzten Parametersatz praktisch zusammenfallen.

Da der die Konvektion ermöglichende Zylinderspalt sehr schmal ist, können in der linearen Stabilitätsanalyse Terme wie $\partial_{\bar{r}}(\partial_{\bar{r}} + 1/\bar{r})$ gut durch $\partial_{\bar{r}}^2$ approximiert werden. Außerdem ist es vorteilhaft, die neue radiale Koordinate $\zeta = \bar{r} - \eta/(1 - \eta)$ einzuführen. Da das betrachtete System nicht mehr unendlich ausgedehnt in der (x, y) -Ebene ist, sondern Zylindersymmetrie aufweist, haben die Normalmoden die geänderte Gestalt

$$\begin{pmatrix} \bar{u}(\zeta, \phi, \bar{t}) \\ \bar{\rho}(\zeta, \phi, \bar{t}) \\ \bar{T}(\zeta, \phi, \bar{t}) \end{pmatrix} = e^{\bar{p}\bar{t}} \cos(l\phi) \begin{pmatrix} \bar{u}(\zeta) \\ \bar{\rho}(\zeta) \\ \bar{T}(\zeta) \end{pmatrix} \quad \bar{v}(\zeta, \phi, \bar{t}) = e^{\bar{p}\bar{t}} \sin(l\phi) \bar{v}(\zeta), \quad (5.7)$$

wobei l die azimutale Wellenzahl ist. Für marginale Stabilität, $\bar{p} = 0$, hat das sich aus (5.4–5.6) ergebende Differentialgleichungssystem die Gestalt

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial \zeta^2} - \alpha^2 \right)^2 \bar{u} - \frac{\alpha^2}{l^2} \left(\frac{\partial^2}{\partial \zeta^2} - \alpha^2 \right) \bar{u} = -\alpha^2 \frac{\mathcal{M}}{\mathcal{P}} f_{\chi_i} \frac{\bar{T}}{\bar{T}_G^2} \frac{\partial \bar{T}_G}{\partial \zeta}, \quad (5.8)$$

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial \zeta^2} - \alpha^2 \right) \bar{T} = \bar{u} (\bar{T}_0 - \bar{T}_1), \quad (5.9)$$

mit $\alpha = (1 - \eta)l/\eta$ und

$$f_{\chi_i} = -\chi_i \frac{\partial F_{\chi_i}}{\partial \chi_i} = \frac{\chi_i^2 [6N^2 \beta_1^2 \chi_i^3 (1 + \beta_1 \chi_i) + 4N \chi_i^2 \beta_1 (N - 4\beta_1) + \chi_i (N - 10\beta_1) + 2\beta_1 - 2N]}{(1 + N\chi)^4}. \quad (5.10)$$

Ein solches Differentialgleichungssystem ist dadurch lösbar, daß die unbekannte Funktion $\bar{u}(\zeta)$ in eine Reihe orthogonaler Funktionen entwickelt wird, die die vier Randbedingungen $\bar{u} = \partial_\zeta \bar{u} = 0$ für $\zeta = 0, 1$ erfüllen [75]. Damit ist es möglich, die Differentialgleichung (5.9) für \bar{T} zu lösen und die dazugehörigen Randbedingungen zu erfüllen. Die Differentialgleichung (5.8) wird dann mittels eines Galerkin-Verfahrens (Details siehe [A74]) approximativ gelöst.

Als feste Materialparameter werden $\rho = 1.53 \times 10^3 \text{ kg m}^{-3}$, $\nu = 6.54 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$, $\chi_i = 3$, und $\kappa = 4.2 \times 10^{-8} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ gewählt. Die äußere Temperatur T_0 bei $R_2 = 1 \text{ cm}$ wird bei 300 K fixiert, die Höhe h bei 1 cm und der Radius des inneren Zylinders bei $\eta = 1.01\eta_c(\beta_1 = 1/3, N = 1)$. Die kritischen Induktionsstärken für den Einsatz der vertikalen Konvektionsrollen werden für vier verschiedene Kombinationen berechnet: eine verdünnte ($\beta_1 = 0$) und nicht-verdünnte ($\beta_1 = 1/3$) magnetische Flüssigkeit mit $R_{\text{out}} = \infty$ ($N = 1$) bzw. $R_{\text{out}} \simeq 3.33 \text{ cm}$. Der Demagnetisierungsfaktor für die endliche Probe mit dem Höhe-zu-Durchmesser-Verhältnis von $\gamma = 0.15$ und der effektiven Suszeptibilität entsprechend Gleichung (5.1) wird mittels der Daten aus [73] bestimmt.

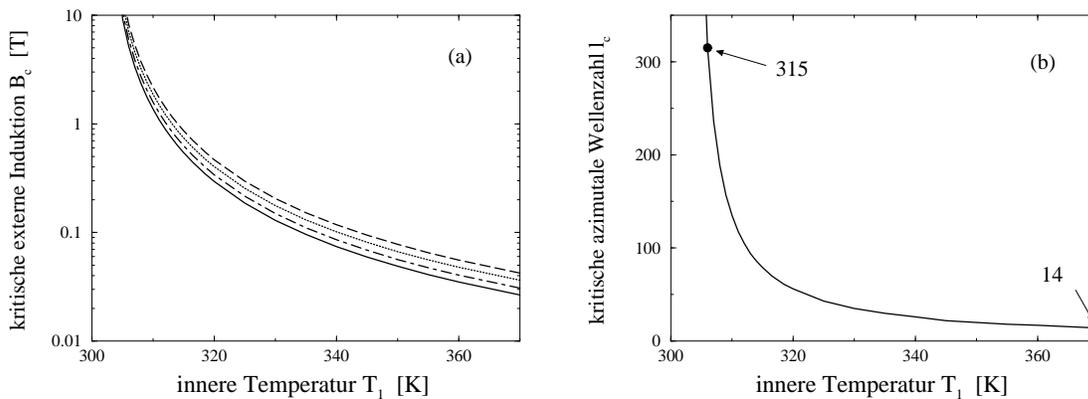


Abbildung 5.4: Kritische externe Induktion B_c (a) und kritische azimuthale Wellenzahl l_c (b) in Abhängigkeit von der inneren Temperatur T_1 für die Raumtemperatur $T_0 = 300 \text{ K}$ (andere Materialparameter: siehe Text). Für die unendlich ausgedehnte Probe weist die nicht-verdünnte Flüssigkeit (durchgezogene Linie) eine niedrigere Schwelle auf als die verdünnte Flüssigkeit (gestrichelte Linie). Im Fall einer endlichen Probe mit $R_{\text{out}} \simeq 3.33 \text{ cm}$ ist die Relation umgekehrt [vergleiche punktierte Linie ($\beta_1 = 1/3$) und strich-punktierte Linie ($\beta_1 = 0$)]. Die kritische Wellenzahl (b) ist unabhängig von $\chi(\chi_i)$ und N und beschreibt einen drastischen Anstieg der Anzahl der Konvektionsrollen von $l_c = 14$ für $\delta T = 70 \text{ K}$ auf $l_c = 315$ für $\delta T = 6 \text{ K}$.

Die Abbildung 5.4 zeigt die kritische externe Induktion B_c und die zugehörige Wellenzahl l_c in Abhängigkeit von der inneren Temperatur $T_1 > T_0$. Eine Verringerung der Temperaturdifferenz von $\delta T = 70 \text{ K}$ auf $\delta T = 4 \text{ K}$ verursacht einen dramatischen Anstieg der kritischen Induktion um annähernd drei Größenordnungen. Die Ursache dafür liegt darin, daß mit abnehmender Temperaturdifferenz das kritische Radienverhältnis, bei dem Konvektion möglich ist, größer wird (siehe Abb. 5.3 für $T_1 \rightarrow 300 \text{ K}$); das heißt der Zylinderspalt wird immer schmaler. Da die Konvektionsrollen aber die gleiche Längenskala in r - und ϕ -Richtung bevorzugen, müssen sehr viel mehr Rollen in einem schmaleren Zylinderspalt angetrieben werden. Die Energie für diesen Antrieb stammt aus der äußeren Induktion, weshalb diese so markant anwächst.

Während die kritische azimuthale Wellenzahl l_c unabhängig von $\chi(\chi_i)$ und N ist [siehe Abb. 5.4(b)], variiert die kritische Induktion. Vergleicht man zuerst die Schwellen für die unendlich ausgedehnte Probe, so hat die nicht-verdünnte MF [durchgezogene Linie in Abb. 5.4(a)] die niedrigere Schwelle im Vergleich zur verdünnten Probe (gestrichelte Linie). Für alle getesteten Temperaturen ist der Unterschied annähernd konstant, $B_c(\beta_1=1/3, N=1) \simeq 0.63B_c(\beta_1=0, N=1)$. Für die endli-

che Probe verhalten sich die Schwellen umgekehrt: das verdünnte Fluid (strich-punktierte Linie) hat die niedrigere Schwelle im Vergleich zum nicht-verdünnten Fluid (punktierte Linie). Auch hier bleibt der Abstand der Schwellen für die verschiedenen Temperaturdifferenzen quasi konstant, $B_c[\beta_1=1/3, N(\gamma=0.15, \chi_{\text{eff}})] \simeq 1.18B_c[\beta_1=0, N(\gamma=0.15, \chi_{\text{eff}})]$.

Der Wert der kritischen Induktion wird durch die Größe von f_{χ_i} für die gegebene Kombination von N , β_1 und χ_i beeinflusst. Je höher der Wert von f_{χ_i} , um so kleiner kann die externe Induktion sein, um dieselbe kritische magnetische Kraftdichte zu erzielen und damit Konvektion auszulösen. Abbildung 5.5 zeigt den Wert von f_{χ_i} in Abhängigkeit von der Anfangssuszeptibilität für die vier untersuchten Kombinationen. Für $\chi_i = 3$ hat die verdünnte Flüssigkeit in der unendlich ausgedehnten Probe den niedrigsten f_{χ_i} -Wert (siehe Schnittpunkt der vertikalen durchgezogenen Linie mit der gestrichelten Linie in Abb. 5.5) und dementsprechend die höchste kritische Induktion [siehe gestrichelte Linie in Abb. 5.4(a)]. Genau umgekehrt verhält es sich mit der nicht-verdünnten Flüssigkeit in der unendlich ausgedehnten Probe, die den höchsten f_{χ_i} -Wert bei $\chi_i = 3$ und deshalb die niedrigste kritische Induktion hat.

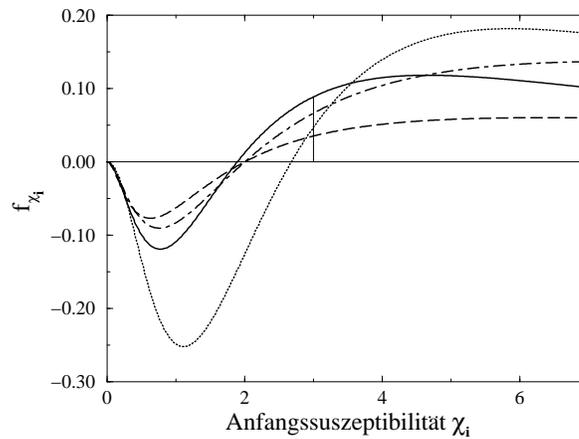


Abbildung 5.5: f_{χ_i} in Abhängigkeit von der Anfangssuszeptibilität χ_i . Die vier verschiedenen Sets sind $\beta_1=0, N=1$ (gestrichelte Linie), $\beta_1=1/3, N=1$ (durchgezogene Linie), $\beta_1=0, N(\gamma=0.15, \chi_{\text{eff}})$ (strich-punktierte Linie) und $\beta_1=1/3, N(\gamma=0.15, \chi_{\text{eff}})$ (punktierte Linie). Die vertikale durchgezogene Linie markiert $\chi_i = 3$.

Die physikalischen Gründe für die Relation der verschiedenen Schwellen sind die folgenden. Die Kelvin-Kraft ist proportional zur Magnetisierung in der magnetischen Flüssigkeit [siehe Gleichung (4.1)]. Je höher die Magnetisierung ist, um so kleiner kann die externe Induktion sein, um die gleiche magnetische Kraft zu erzeugen. Für die unendlich ausgedehnte Probe, für die $N = 1$ unabhängig von χ ist, verursacht eine erhöhte Konzentration von magnetischen Teilchen im Fluid eine höhere Magnetisierung und damit eine niedrigere Schwelle. Für die endliche Probe hängt der Demagnetisierungsfaktor von χ ab [73]: N ist kleiner für höhere Konzentrationen. Ein kleinerer Demagnetisierungsfaktor geht mit einem größeren inneren Magnetfeld und einer kleineren Magnetisierung einher, wenn von außen eine vertikale Induktion anliegt. Auf Grund dieser Zusammenhänge verursacht in einer endlichen Probe die Erhöhung der Konzentration der magnetischen Teilchen zwei gegensätzliche Effekte bezüglich der Magnetisierung. Im untersuchten Fall für $\chi_i = 3$ siegt der indirekte Einfluß des Demagnetisierungsfaktors: das verdünnte Fluid hat die niedrigere Schwelle. Aber für $\chi_i > 3.2$ gewinnt der direkte Einfluß der Konzentration über den indirekten des Demagnetisierungsfaktors. Als Konsequenz hat nun das nicht-verdünnte Fluid die niedrigere Schwelle (die punktierte Linie ist nun oberhalb der strich-punktierten Linie in Abb. 5.5).

Der Vergleich mit den experimentellen Daten aus [68] ist nur sehr eingeschränkt möglich, da es

keine Informationen über das innere Temperaturprofil und damit z. B. über die Werte von R_1 und R_2 gibt. Trotzdem zeigen die berechneten Werte an, daß relativ hohe Induktionsstärken notwendig sind, um mittels eines rein radialen Temperaturgradienten Konvektion zu triggern. Extrapoliert man zu Radien im Bereich von einigen Hundert Mikrometern (nicht unwahrscheinlich wegen der Heizung durch einen Laserstrahl), kommt man zu extrem hohen Induktionsstärken. Trotz der fehlenden Informationen aus dem Inneren der Schicht lassen die theoretischen Ergebnisse es eher unwahrscheinlich erscheinen, daß vertikal orientierte Konvektionsrollen allein durch einen radialen Temperaturgradienten generiert werden können. Sollte zusätzlich ein axialer Temperaturunterschied auftreten, wird es noch wichtiger, zu aussagekräftigen Daten aus dem Inneren der Schicht zu kommen, um realistische Vorstellungen über das Strömungsprofil zu entwickeln. Außerdem muß der Einfluß der Diffusion neu diskutiert werden, da die charakteristischen Längen für Konvektion und Diffusion nun nicht mehr gleich groß sein müssen.

Literaturverzeichnis

- [1] F. Frankel, G. M. Whitesides, *On the surface of things: Images of the extraordinary in science*, Chronicle Books, San Francisco, 1997.
- [2] V. V. Gogosov, R. D. Smolkin, V. S. Krokhmal, O. P. Saiko, L. I. Mangov, V. I. Nozkodubov, Industrial separators based on magnetic fluids (a survey), *Magneto hydrodynamics* 30 (1994) 96–103.
- [3] M. D. Cowley, R. E. Rosensweig, The interfacial stability of a ferromagnetic fluid, *J. Fluid Mech.* 30 (1967) 671–688.
- [4] R. E. Rosensweig, *Ferrohydrodynamics*, Cambridge University Press, Cambridge, 1985.
- [5] V. G. Bashtovoy, B. M. Berkovsky, A. N. Vislovich, *Introduction to thermodynamics of magnetic fluids*, Hemisphere Publishing Corp., Washington, 1988.
- [6] E. Blums, A. Cebers, M. Maiorov, *Magnetic fluids*, de Gruyter, Berlin, 1997.
- [7] M. Raşa, Magnetic properties and magneto-birefringence of magnetic fluids, *Eur. Phys. J. E* 2 (2000) 265–275.
- [8] A. Wiedenmann, Small-angle neutron scattering investigations of magnetic nanostructures using polarized neutrons, *J. Appl. Cryst.* 33 (2000) 428–432.
- [9] F. Kohlrausch, *Praktische Physik*, Vol. 3, B. G. Teubner, Stuttgart, 1986.
- [10] Ferrotec Corp., Data sheets.
- [11] R. M. Bozorth, *Ferromagnetism*, IEEE Press, Piscataway, 1978.
- [12] M. Giersig, D. Su, C. Gansau, N. Buske, High resolution elektronmicroscopical and magnetic characterisation of nanoscaled Co-particles, Poster at the 8th International Conference on Magnetic Fluids in Timisoara (Romania) (1998).
- [13] H. W. Müller, M. Liu, Structure of ferrofluid dynamics, *Phys. Rev. E* 64 (2001) 061405.
- [14] R. Richter, private Mitteilung (2002).
- [15] G. Matthies, Finite element methods for free boundary value problems with capillary surfaces, Ph.D. thesis, Univ. Magdeburg (2002).
- [16] H. C. Hamaker, The London-van der Waals attraction between spherical particles, *Physica* 4 (1937) 1058–1072.
- [17] R. E. Rosensweig, J. W. Nestor, R. S. Timmins, Ferrohydrodynamic fluids for direct conversion of heat energy, *Mater. Assoc. Direct Energy Conv. Proc. Symp. AIChE Chem Eng. Ser. 5* (1965) 104–108, discussion: 133–137.

- [18] J. Frenkel, *The kinetic theory of liquids*, Dover Publications, New York, 1955.
- [19] M. L. Néel, Influence des fluctuations thermiques sur l'aimantation de grains ferromagnétique très fins, *C. R. Acad. Sci. Paris* 228 (1949) 664–666.
- [20] L. Néel, Thermoremanent magnetization of fine powders, *Rev. Mod. Phys.* 25 (1953) 293–296.
- [21] M. Respaud, M. Goiran, J. M. Broto, F. Lioni, L. Thomas, B. Barbara, T. O. Ely, C. Amiens, B. Chaudret, Dynamical properties of non-interacting Co nanoparticles, *Europhys. Lett.* 47 (1999) 122–127.
- [22] A. Zeuner, R. Richter, I. Rehberg, Experiments on negative and positive magnetoviscosity in an alternating magnetic field, *Phys. Rev. E* 58 (1998) 6287–6293.
- [23] J. Schwender, Kommerzielle Produkte und Anwendungen der Ferrofluidics GmbH, in: *Second german ferrofluid workshop*, Magdeburg, 1999, pp. 11–13.
- [24] M. Wagener, *Magnetische Flüssigkeiten – Herstellung, Eigenschaften und Anwendungen*, Lehrgangsmanuskript (2001).
- [25] B. Berkovski, V. Bashtovoy (Eds.), *Magnetic Fluids and Application Handbook*, Begell House, New York, 1996.
- [26] C. Alexiou, W. Arnold, R. J. Klein, F. G. Parak, P. Hulin, C. Bergemann, W. Erhardt, S. Wagenpfeil, A. S. Lübke, Locoregional cancer treatment with magnetic drug targeting, *Cancer Res.* 60 (2000) 6641–6648.
- [27] *Proceedings of the second International Conference on Scientific and Clinical Applications of Magnetic Carriers*, *J. Magn. Magn. Mat.* 194 (1999) 1–274.
- [28] P. Ball, *The self-made tapestry*, Oxford University Press, Oxford, 1999.
- [29] J. Kepler, *Strena seu de Nive Sexangula*, apud Godefridum Tampach, Francofurti ad Moenum, 1611.
- [30] M. C. Cross, P. C. Hohenberg, Pattern formation outside of equilibrium, *Rev. Mod. Phys.* 65 (1993) 851–1112.
- [31] J. Bragard, M. G. Velarde, Bénard-Marangoni convection: planforms and related theoretical predictions, *J. Fluid Mech.* 368 (1998) 165–194.
- [32] S. Ciliberto, P. Coulet, J. Lega, E. Pampaloni, C. Perez-Garcia, Defects in roll-hexagon competition, *Phys. Rev. Lett.* 65 (1990) 2370–2373.
- [33] A. Engel, J. B. Swift, Planform selection in two-layer Bénard-Marangoni convection, *Phys. Rev. E* 62 (2000) 6540–6553.
- [34] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, *Elektrodynamik der Kontinua*, Akademie-Verlag, Berlin, 1980.
- [35] R. Friedrichs, A. Engel, Pattern and wavenumber selection in magnetic fluids, *Phys. Rev. E* 64 (2001) 021406.
- [36] A. Lange, B. Reimann, R. Richter, Wave number of maximal growth in viscous magnetic fluids of arbitrary depth, *Phys. Rev. E* 61 (2000) 5528–5539.
- [37] J. Bacri, D. Salin, First-order transition in the instability of a magnetic fluid interface, *J. Physique Lett.* 45 (1984) L559–L564.

- [38] T. Mahr, Oberflächeninstabilitäten bei Ferrofluiden, Ph.D. thesis, University of Magdeburg (1998).
- [39] D. Salin, Wave vector selection in the instability of an interface in a magnetic or electric field, *Europhys. Lett.* 21 (1993) 667–670.
- [40] J. Weilepp, H. R. Brand, Competition between the Bénard-Marangoni and the Rosensweig instability in magnetic fluids, *J. Phys. II France* 6 (1996) 419–441.
- [41] B. Abou, G. N. de Surgy, J. E. Wesfreid, Dispersion relation in a ferrofluid layer of any thickness and viscosity in a normal magnetic field; asymptotic regimes, *J. Phys. II France* 7 (1997) 1159–1171.
- [42] H. W. Müller, Parametrically driven surface waves on viscous ferrofluids, *Phys. Rev. E* 58 (1998) 6199–6205.
- [43] T. Mahr, I. Rehberg, Nonlinear dynamics of a single ferrofluid-peak in an oscillating magnetic field, *Physica D* 111 (1998) 335–346.
- [44] A. Lange, Scaling behaviour of the maximal growth rate in the Rosensweig instability, *Europhys. Lett.* 55 (2001) 327–333.
- [45] R. Richter, J. Bläsing, Measuring surface deformations in magnetic fluid by radioscopy, *Rev. Sci. Instrum.* 72 (2001) 1729–1733.
- [46] D. M. Henderson, J. W. Miles, Surface-wave damping in a circular cylinder with a fixed contact line, *J. Fluid Mech.* 275 (1994) 285–299.
- [47] D. R. Howell, B. Buhrow, T. Heath, C. McKenna, W. Hwang, M. F. Schatz, Measurements of surface-wave damping in container, *Phys. Fluids* 12 (2000) 322–326.
- [48] B. Reimann, R. Richter, A. Lange, I. Rehberg, Transient magnetic liquid ridges, submitted to *Phys. Rev. E* (2002).
- [49] V. B. Deyirmenjian, Z. D. Daya, S. W. Morris, Weakly nonlinear analysis of electroconvection in a suspended fluid film, *Phys. Rev. E* 56 (1997) 1706–1713.
- [50] A. Lange, The adjoint problem in the presence of a deformed surface: the example of the Rosensweig instability on magnetic fluids, *Int. J. Modern Phys. B* 16 (2002) 1155–1170.
- [51] A. Juel, J. M. Burgess, W. D. McCormick, J. B. Swift, H. L. Swinney, Surface tension-driven convection patterns in two liquid layers, *Physica D* 143 (2000) 169–186.
- [52] S. K. Malik, M. Singh, Nonlinear dispersive instabilities in magnetic fluids, *Quart. Appl. Math.* XLII (1984) 359–371, There is a misprint in equation (9).
- [53] S. K. Malik, M. Singh, Nonlinear field instability and chaos in magnetic fluids, *Quart. Appl. Math.* LI (1993) 519–534.
- [54] P. Chen, J. Viñals, Amplitude equation and pattern selection in Faraday waves, *Phys. Rev. E* 60 (1999) 559–570.
- [55] E. A. Kuznetsov, M. D. Spektor, Existence of a hexagonal relief on the surface of a dielectric fluid in an external electrical field, *Sov. Phys. JETP* 44 (1976) 136–141.
- [56] A. Gailitis, Formation of the hexagonal pattern on the surface of a ferromagnetic fluid in an applied magnetic field, *J. Fluid Mech.* 82 (1977) 401–413.
- [57] M. Silber, E. Knobloch, Pattern selection in ferrofluids, *Physica D* 30 (1988) 83–98.

- [58] J. Bacri, A. Cebers, J. Dabadie, R. Perzynski, Roll-rectangle transition in the magnetic fluid Faraday instability, *Phys. Rev. E* 50 (1994) 2712–2715.
- [59] M. Faraday, On the forms and states assumed by fluids in contact with vibrating elastic surfaces, *Philos. Trans. R. Soc. London* 52 (1832) 319–340.
- [60] H. W. Müller, H. Wittmer, C. Wagner, J. Albers, K. Knorr, Analytical stability theory for Faraday waves and the observation of the harmonic surface response, *Phys. Rev. Lett.* 78 (1997) 2357–2360.
- [61] D. Binks, M.-T. Westra, W. van de Water, Effect of depth on the pattern formation of Faraday waves, *Phys. Rev. Lett.* 79 (1997) 5010–5013.
- [62] D. Binks, W. van de Water, Nonlinear pattern formation of Faraday waves, *Phys. Rev. Lett.* 78 (1997) 4043–4046.
- [63] H. W. Müller, Periodic triangular patterns in the Faraday experiment, *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993) 3287–3290.
- [64] H. Arbell, J. Fineberg, Two-mode rhomboidal states in driven surface waves, *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000) 654–657.
- [65] V. V. Mekhonoshin, A. Lange, Faraday instability on viscous ferrofluids in a horizontal magnetic field: oblique rolls of arbitrary orientation, *Phys. Rev. E* 65 (2002) 061509.
- [66] L. D. Landau, E. M. Lifshitz, *Hydrodynamik*, Akademie-Verlag, Berlin, 1980.
- [67] T. Du, W. Luo, Nonlinear optical effects in ferrofluids induced by temperature and concentration cross coupling, *Appl. Phys. Lett.* 72 (1998) 272–274.
- [68] W. Luo, T. Du, J. Huang, Novel convective instabilities in a magnetic fluid, *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999) 4134–4137.
- [69] R. Spill, W. Köhler, G. Lindenblatt, W. Schaertl, Thermal diffusion and Soret feedback of gold-doped polyorganosiloxane nanospheres in toluene, *Phys. Rev. E* 62 (2000) 8361–8368.
- [70] L. Onsager, Electric moments of molecules in liquids, *J. Am. Chem. Soc.* 58 (1936) 1486–1493.
- [71] K. I. Morozov, A. V. Lebedev, The effect of magneto-dipole interactions on the magnetization curves of ferrocolloids, *J. Magn. Magn. Mat.* 85 (1990) 51–53.
- [72] Y. A. Buyevich, A. O. Ivanov, Equilibrium properties of ferrocolloids, *Physica A* 190 (1992) 276–294.
- [73] D. Chen, J. A. Brug, R. B. Goldfarb, Demagnetizing factors for cylinders, *IEEE Trans. Magnetics* 27 (1991) 3601–3619.
- [74] A. Lange, Thermomagnetic convection of magnetic fluids in a cylindrical geometry, *Phys. Fluids* 14 (2002) 2059–2064.
- [75] S. Chandrasekhar, *Hydrodynamic and hydromagnetic stability*, Dover Publ., New York, 1981.

Angefügte Veröffentlichungen

- [1] A. Lange, B. Reimann, and R. Richter,
Wave number of maximal growth in viscous magnetic fluids of arbitrary depth,
Phys. Rev. E **61**, 5528–5539 (2000)
- [2] A. Lange,
Scaling behaviour of the maximal growth rate in the Rosensweig instability,
Europhys. Lett. **55**, 327–333 (2001)
- [3] B. Reimann, R. Richter, I. Rehberg, and A. Lange,
Transient magnetic liquid ridges,
eingereicht bei Phys. Rev. E
- [4] A. Lange,
The adjoint problem in the presence of a deformed surface: the example of the Rosensweig instability on magnetic fluids,
Int. J. Modern Phys. B **16**, 1155–1170 (2002)
- [5] V. V. Mekhonoshin and A. Lange,
Faraday instability on viscous ferrofluids in a horizontal magnetic field: oblique rolls of arbitrary orientation,
Phys. Rev. E **65**, 061509 (2002)
- [6] A. Lange,
Thermomagnetic convection of magnetic fluids in a cylindrical geometry,
Phys. of Fluids **14**, 2059–2064 (2002)