

УДК 533.9...1

САМООРГАНИЗАЦИЯ КЛАСТЕРОВ АКТИВНЫХ БРОУНОВСКИХ ЧАСТИЦ В КОЛЛОИДНОЙ ПЛАЗМЕ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

© 2023 г. М. М. Васильев*, А. А. Алексеевская, К. Г. Косс, Е. В. Васильева, О. Ф. Петров
ФГБУН Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия

*E-mail: vasiliev@ihed.ras.ru

Поступила в редакцию 14.11.2023 г.

После доработки 15.11.2023 г.

Принята к публикации 04.12.2023 г.

Кластеры активных броуновских частиц в газоразрядной плазме рассматриваются как открытые системы с обменом энергией с окружающей средой. Показана эволюция кластера из 19 активных броуновских частиц с частично поглощающей металлической поверхностью (так называемых янус-частиц) при воздействии на них интенсивного лазерного излучения. Экспериментально наблюдалось формирование сильно коррелированных кластеров заряженных частиц с ростом мощности лазерного излучения. На основе анализа траекторий частиц, области их локализации, изменения их кинетической энергии, фрактальной размерности и динамической энтропии при различных значениях плотности мощности лазерного излучения изучена самоорганизация кластера сильновзаимодействующих частиц в плазме высокочастотного тлеющего разряда.

DOI: 10.31857/S0040364423060170

ВВЕДЕНИЕ

Процессы самоорганизации и эволюции широко распространены в природе. Физические принципы таких процессов лежат в основе образования и устойчивости сложных структур в неравновесных системах различной природы. Открытые системы с обменом энергией с окружающей средой могут поглощать энергию извне, запасать ее, преобразовывать в энергию собственного движения, а также способны “сбрасывать” энтропию в окружающую среду, формируя таким образом сложные системы вдали от равновесия. При этом экспорт энтропии из системы приводит к увеличению ее сложности, фактически это означает эволюцию такой системы [1].

Привычным примером таких систем выступают любые живые системы, начиная от бактерий и микроорганизмов и заканчивая млекопитающими. Однако существует большое количество синтетических (искусственных) систем, проявляющих те же свойства самоорганизации и эволюции [2, 3]. При этом физические принципы формирования порядка в таких системах оказываются теми же, что и для биологических систем. Фактически это означает, что в лабораторных условиях *in situ* становится доступно изучение этих процессов.

Системы активных броуновских частиц являются примером открытых систем. В отличие от классических броуновских частиц, находящихся в тепловом равновесии со средой, активные броуновские частицы имеют механизм преобразования энергии, поступающей извне, в энергию собственного нетеплового движения [4]. Энергия этого движения может на порядки отличаться от энергии (температуры) окружающей среды. Механизм активности может иметь различную природу: химические реакции, взаимодействие со звуковыми волнами, электрическими и магнитными полями, фотофоретический эффект и др.

В данной работе рассматриваются структуры, образованные частицами микронных размеров в плазме тлеющего высокочастотного разряда низкого давления. В основе механизма активного броуновского движения частиц лежит возникновение радиометрической силы [5]. Активность частиц обусловлена их способностью к поглощению низкоэнтропийного лазерного излучения и преобразованию его в кинетическую энергию собственного движения.

В данной работе рассматриваются структуры, образованные частицами микронных размеров в плазме тлеющего высокочастотного разряда низкого давления. В основе механизма активного броуновского движения частиц лежит возникновение радиометрической силы [5]. Активность частиц обусловлена их способностью к поглощению низкоэнтропийного лазерного излучения и преобразованию его в кинетическую энергию собственного движения.

ПОСТАНОВКА ЭКСПЕРИМЕНТА

Эксперимент проводился в плазме высокочастотного разряда емкостного типа. Основным элементом экспериментального стенда была газоразрядная вакуумная камера с оптическими окнами, три из которых расположены на боковой поверхности и одно в верхней ее части (рис. 1). Перед экспериментом воздушная атмосфера из камеры откачивалась последовательно соединенными форвакуумным и турбомолекулярным на-

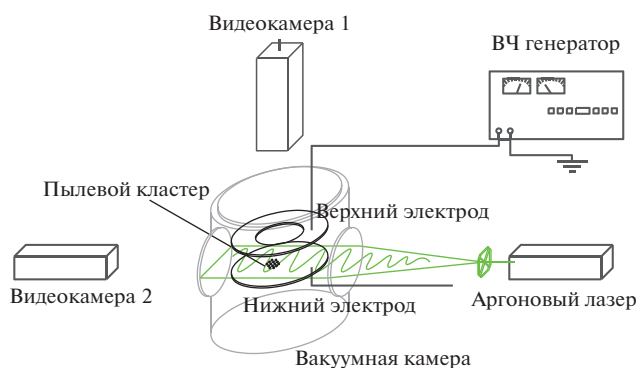


Рис. 1. Схема экспериментальной установки.

сосами до остаточного давления не менее 10^{-4} Па. Затем камера наполнялась инертным газом до давления $P = 1.3$ Па. В данном эксперименте в качестве плазмообразующего газа применялся аргон. В газоразрядной камере помещались два плоских горизонтально расположенных электрода, между которыми прикладывалось напряжение 350 В с частотой 13.56 МГц. Мощность ВЧ-генератора составляла 11 Вт.

После генерации между электродами тлеющего разряда емкостного типа в плазму инжектировались сферические монодисперсные частицы диаметром 10 мкм, на части поверхности которых было нанесено медное покрытие, поглощающее лазерное излучение. Таким образом, частица представляла собой разновидность так называемых янус-частиц [6]. Попадая в плазму, частица заряжалась в результате потока электронов и ионов на ее поверхность до заряда $\sim 10^4 e$, в результате чего устанавливался баланс между электрической силой, направленной вверх в приэлектродном слое ВЧ-разряда, и силой тяжести. Таким образом, формировалась система пылевых частиц, левитирующих в газовом разряде. Для визуализации и воздействия на формирующийся кластер пылевых частиц использовалось аргонное лазерное излучение. Пучок расширялся с помощью телескопической системы и формировался так называемый лазерный “нож” с однородно распределенной плотностью мощности лазерного излучения в горизонтальном направлении.

Инжектор частиц, используемый в эксперименте, позволял контролируемо вбрасывать необходимое количество частиц в разряд. При инжекции 19 частиц формировался гексагональный кластер, состоящий из двух “оболочек” (рис. 2а).

Движение отдельных частиц снималось с помощью видеокамер в горизонтальной и вертикальной плоскостях. Скоростная видеокамера № 1 (рис. 1) осуществляла видеосъемку положения частиц в горизонтальной плоскости. Видеокамера № 2 контролировала монослойность (квазидвумерность)

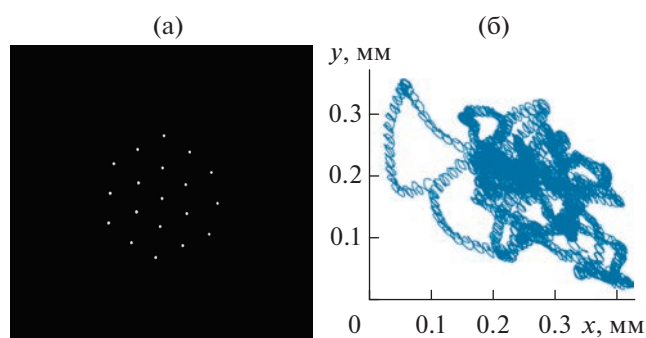


Рис. 2. Видеоквадрат кластера янус-частиц (а) в приэлектродной области ВЧ-разряда; (б) — траектория центральной частицы в кластере за 8 с.

кластера на протяжении всего эксперимента. Скорость съемки составляла 400 кадр/с. Это позволяло получить достаточное для анализа временное разрешение динамики частиц, максимальная скорость движения которых не превышала 1 мм/с. Полученные видеоизображения обрабатывались с помощью программного обеспечения Plasma, в результате чего получались координаты и траектории частиц (рис. 2б) в ходе всего эксперимента.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ АНАЛИЗ

При воздействии лазерного излучения на кластер, сформированный янус-частицами, наблюдалось их активное броуновское движение. При этом изменение мощности лазерного излучения приводило к изменению характера движения и кинетической энергии каждой из частиц, формирующей кластер. Траектории для частиц в кластере представлены на рис. 3. Различными цветами отмечены траектории разных частиц.

При увеличении интенсивности лазерного излучения, попадающего на поверхность частиц кластера, с 0.05 до 4 Вт включительно наблюдалось уменьшение их кинетической энергии E_k в 5 раз (рис. 4). При этом формировалась упорядоченная структура кластера (см. рис. 2а).

Проанализировав изменение парной корреляционной функции (рис. 5) для кластера, можно сделать вывод, что с ростом мощности наблюдается структурный переход. На это указывает расщепление второго пика. Согласно ряду исследований, этот признак означает разрушение гексагональной кристаллической решетки двумерной системы [7].

Для анализа состояния открытой системы, к которой относится рассматриваемая структура коллоидных частиц в плазме, удобно использовать динамическую энтропию первого пересечения. Способ ее вычисления подробно описан в работах [8, 9]. Если пространственный масштаб ϵ

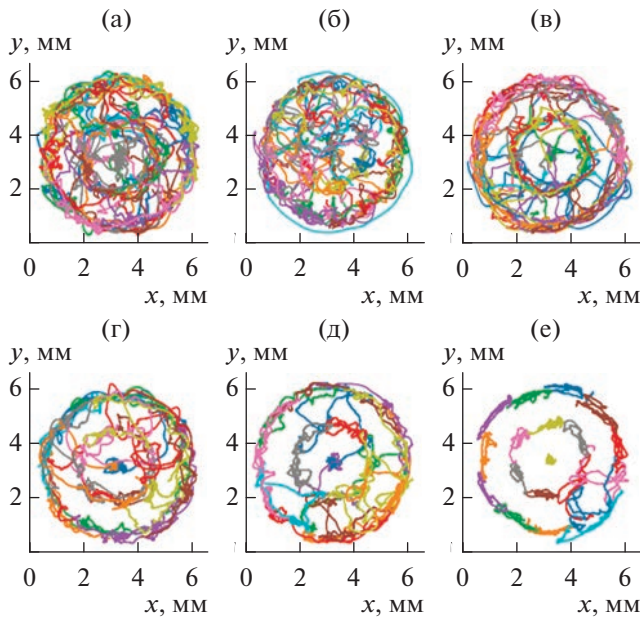


Рис. 3. Траектории частиц в кластере за время $t = 30$ с при различных значениях мощности лазерного излучения: (а) – $W = 0.05$ Вт, (б) – 0.5, (в) – 1, (г) – 2, (д) – 3, (е) – 4.

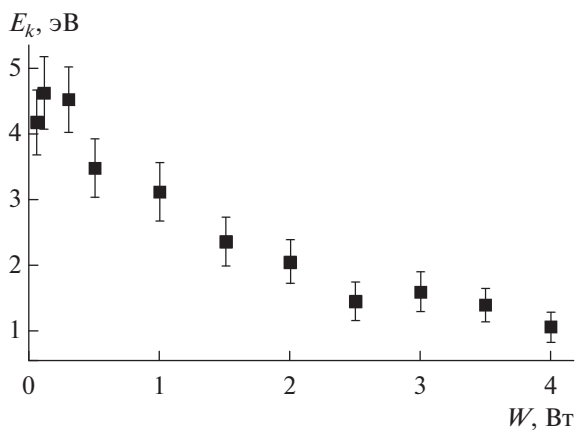


Рис. 4. Зависимость средней кинетической энергии E_k частиц в кластере при изменении мощности W лазерного излучения от 0.05 до 4 Вт.

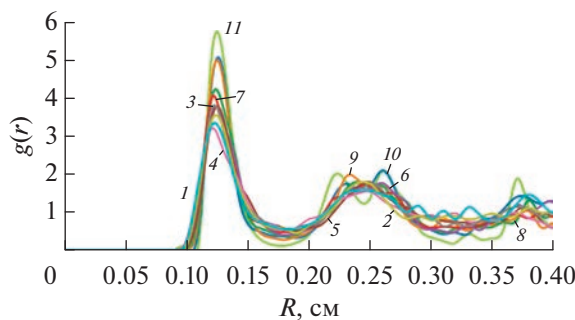


Рис. 5. Парные корреляционные функции для кластера при значениях мощности лазерного излучения от 0.05 до 4 Вт; 1 – 0.05 Вт, 2 – 0.1, 3 – 0.3, 4 – 0.5, 5 – 1.0, 6 – 1.5, 7 – 2, 8 – 2.5, 9 – 3, 10 – 3.5, 11 – 4.

достаточно велик [9], динамическую энтропию можно приближенно найти, описав в момент времени $t = 0$ вокруг частицы сферу радиуса ϵ с центром в точке нахождения частицы, а затем определить момент времени τ , в который траектория впервые достигнет порогового значения ϵ . Осредняя это “время первого пересечения” $\tau(\epsilon) = \int_0^\infty P_\epsilon(t) dt$, где $P_\epsilon(t)$ – вероятность того, что частица достигнет границы сферы ϵ в момент времени между t и $t + dt$, можно определить динамическую энтропию первого пересечения $S(\epsilon)$ [8]: $S(\epsilon) \equiv 1/\tau(\epsilon)$. Таким образом, динамическая энтропия $S(\epsilon)$ – мера средней “скорости покидания” частицей места ее локализации [10].

На рис. 6 представлена динамическая энтропия в зависимости от мощности лазерного излучения, попадающего на пылевой кластер. Можно увидеть различие между динамической энтропией для разупорядоченного кластера (при малых интенсивностях лазерного излучения) и для состояния кластера, в котором частицы локализованы и не перемещаются между “оболочками”.

Одним из наиболее информативных параметров, полученных из функции динамической энтропии частицы, является угол ее наклона, т.е. производная $\Delta(\epsilon^*) \equiv d(\lg(S(\epsilon^*))) / d(\lg(\epsilon^*))$.

Начальные участки кривых характеризуют движение частиц, подобное баллистическому. Двигаются частицы одинаково, а производная $\Delta(\epsilon^*)$ с хорошей точностью равна -1 . После участка, соответствующего баллистическому режиму движения, величина производной увеличивается по модулю, выходя на константу Δ . Эта константа Δ отражает фрактальный характер движения частицы и по абсолютной величине совпадает с фрактальной размерностью ее траектории [11].

При $\Delta = 2$ реализуется стандартное броуновское движение, которое представляет собой процесс, не проявляющий персистентности (т.е. его приращения независимы). При других значениях

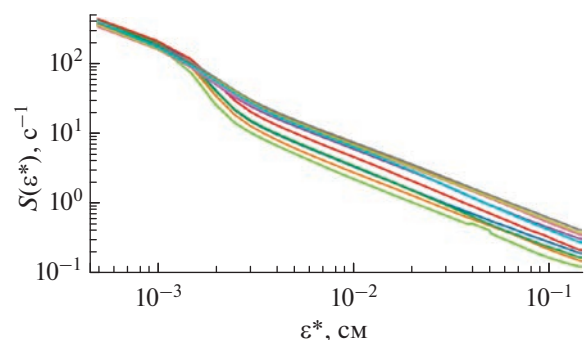


Рис. 6. Динамическая энтропия для кластера из 19 частиц при мощности лазерного излучения от 0.05 до 4 Вт; обозначения кривых, как на рис. 5.

параметра движение можно разделить на два типа. Значения $1 < \Delta < 2$ соответствуют персистентному дробному броуновскому движению, значения $\Delta > 2$ — антиперсистентному дробному броуновскому движению [11].

На рис. 7 представлена фрактальная размерность траекторий частиц в зависимости от их средней кинетической энергии. Она для всех частиц при всех значениях мощности лазера заметно ниже двух (средние значения варьируются в пределах $1.1 \leq \Delta \leq 1.4$). Это означает, что движение янус-частиц в эксперименте отличается от классического броуновского, фрактальная размерность которого равна двум, и является дробным, или фрактальным, персистентным броуновским движением. Судя по всему, такой характер движения обусловлен наличием дополнительной постоянной силы, т.е. активным броуновским движением исследуемых частиц.

С возрастанием кинетической энергии частиц (уменьшением мощности лазера) фрактальная размерность траекторий уменьшается, приближаясь к единице (т.е. движение становится почти детерминированным). Следует отметить немонотонный характер уменьшения фрактальной размерности. Так, при значениях средней кинетической энергии от 1.5 до 2 эВ наблюдается “провал” в зависимости $\Delta(E_k)$. По всей видимости, он связан со структурным переходом в кластере, а именно выходом коллоидных частиц, расположенных в оболочках кластера, из своих потенциальных ям и их перемещением на вакансии в других оболочках (см. рис. 3д, траектории частиц кластера при мощности лазерного излучения 3 Вт). При этом

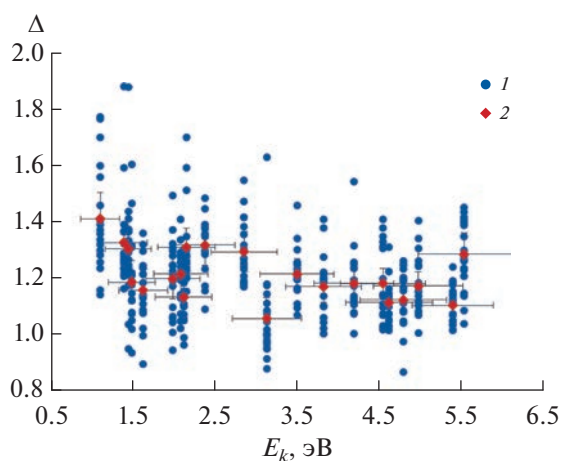


Рис. 7. Фрактальная размерность траекторий частиц кластера при различных значениях средней кинетической энергии частиц, мощность лазерного излучения — от 0.05 до 4 Вт: 1 — фрактальная размерность траекторий каждой отдельной частицы, 2 — средние значения для различных мощностей лазерного излучения.

часть траектории (при движении частицы в оболочке кластера) остается рандомизированной, а при перемещении между оболочками она имеет более детерминированный, сглаженный характер. Здесь можно провести аналогию с полетами Леви [11], когда частица перемежает случайное и направленное движение.

При дальнейшем повышении средней кинетической энергии частиц ($E_k > 2$ эВ) они начинают перемещаться по всей площади кластера, не привязываясь к вакансиям (см. рис. 3б, траектории частиц кластера при мощности лазерного излучения 0.5 Вт). Снижение фрактальной размерности с ростом кинетической энергии связано со сглаживанием их траектории вследствие увеличения внешней постоянной силы.

Представленный механизм плавления 19-частичного кластера аналогичен механизму, описанному в [12] для 7-частичного кластера коллоидных частиц в плазме. Однако в настоящей работе при минимальном значении кинетической энергии частиц кластер уже прошел первую стадию плавления, когда частицы вышли из своих потенциальных ям и начали двигаться в пределах оболочек кластера. Также, судя по рис. 3, максимальный разогрев был недостаточен для того, чтобы центральная частица вышла из своей потенциальной ямы. Это находит отражение и во фрактальной размерности: на рис. 7 видно, что почти для всех значений кинетической энергии фрактальная размерность траектории одной (центральной) частицы превышает Δ для остальных частиц кластера.

Эта тенденция видна и на зависимости области локализации частиц от кинетической энергии $\varepsilon_0^*(E_k)$ (рис. 8).

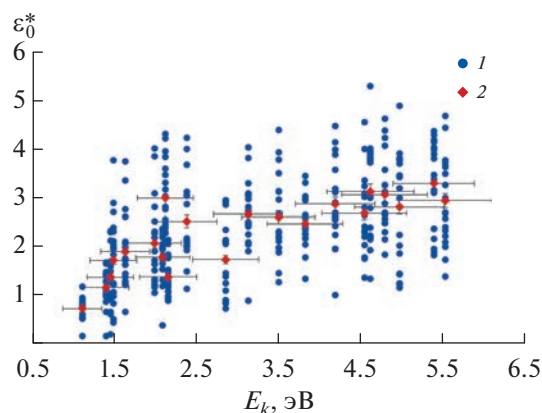


Рис. 8. Область локализации частиц кластера при различных значениях средней кинетической энергии частиц, мощность лазерного излучения — от 0.05 до 4 Вт: 1 — область локализации каждой отдельной частицы, 2 — средние значения областей локализации для различных мощностей лазерного излучения.

Область локализации — это радиус окружности, за пределы которой частица не выходит при движении. Она рассчитывалась по максимальному значению ϵ , при котором динамическая энтропия данной частицы не обращается в ноль, а затем нормировалась на среднее межчастичное расстояние [12]. На рис. 8 область локализации центральной частицы кластера заметно меньше остальных почти для всех значений кинетической энергии. А при $E_k \sim 1.5$ и ~ 2 эВ наблюдаются скачки средних значений области локализации, отражающие структурные переходы при плавлении кластера: первый связан с перемещением частиц между оболочками кластера, второй — с размыванием потенциальных ям отдельных частиц и свободным блужданием частиц по всей площади кластера. Отметим, что первый структурный переход соответствует $\langle \epsilon_0^* \rangle \sim 1$ (т.е. среднему межчастичному расстоянию), а второй — $\langle \epsilon_0^* \rangle \sim 2$ (удвоенному среднему межчастичному расстоянию, или расстоянию между двумя оболочками). С дальнейшим повышением кинетической энергии средняя область локализации частиц монотонно возрастает, достигая $\langle \epsilon_0^* \rangle \sim 3$.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представлены результаты экспериментального изучения процесса самоорганизации в пылевом кластере, сформированном янус-частицами в приэлектродном слое ВЧ-разряда при воздействии лазерного излучения. На основе анализа траекторий частиц и парных корреляционных функций, их кинетической энергии в зависимости от мощности лазера, функции динамической энтропии и фрактальной размерности траекторий частиц показано, что характер движения частиц в кластере соответствует активному броуновскому движению. Экспериментально обнаружен эффект самоорганизации в пылевом кластере при увеличении мощности воздействующего лазерного излучения. Выдвинуто предположение, что при воздействии на янус-частицы энергия ла-

зерного излучения преобразуется в потенциальную энергию их межчастичного взаимодействия, что в свою очередь приводит к росту параметра неидеальности.

Представленные результаты исследования выполнены при поддержке Российского научного фонда (грант № 20-12-00372).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. *Ebeling W., Feistel R.* Physics of Self-organization and Evolution. Weinheim: Wiley–VCH, 2011.
2. *Prigogine I., Nicolis G., Babloyantz A.* Thermodynamics of Evolution // *Phys. Today*. 1972. V. 25. № 11. P. 23.
3. *Petrosky T.Y., Prigogine I.* Laws and Events: The Dynamical Basis of Self-organization // *Canad. J. Phys.* 1990. V. 68. № 9. P. 670.
4. *Shields C.W. IV, Velev O.D.* The Evolution of Active Particles: Toward Externally Powered Self-propelling and Self-reconfiguring Particle Systems // *Chem*. 2017. V. 3. № 4. P. 539.
5. *Petrov O.F., Statsenko K.B., Vasiliev M.M.* Active Brownian Motion of Strongly Coupled Charged Grains Driven by Laser Radiation in Plasma // *Sci. Rep.* 2022. V. 12. № 1. P. 8618.
6. *Su H., Hurd Price C.A., Jing L., Tian Q., Liu J., Qian K.* Janus Particles: Design, Preparation, and Biomedical Applications // *Mater. Today Bio*. 2019. V. 4. P. 100033.
7. *Deng D., Argon A.S., Yip S.* A Molecular Dynamics Model of Melting and Glass Transition in an Idealized Two-dimensional Material I // *Phil. Trans. R. Soc. Lond. A*. 1989. V. 329. 549.
8. *Allegrini P., Douglas J.F., Glotzer S.C.* Dynamic Entropy as a Measure of Caging and Persistent Particle Motion in Supercooled Liquids // *Phys. Rev. E*. 1999. V. 60. P. 5714.
9. *Gaspard P., Wang X.-J.* Noise, Chaos, and (ϵ, τ) -Entropy per Unit Time // *Phys. Rep.* 1993. V. 235. № 6. P. 291.
10. *Gaspard P., Nicolis G.* Transport Properties, Lyapunov Exponents, and Entropy per Unit Time // *Phys. Rev. Lett.* 1990. V. 65. P. 1693.
11. *Mandelbrot B.B.* The Fractal Geometry of Nature. San Francisco: W.H. Freeman and Co., 1982.
12. *Koss X.G., Petrov O.F., Statsenko K.B., Vasiliev M.M.* Small Systems of Laser-driven Active Brownian Particles: Evolution and Dynamic Entropy // *EPL*. 2018. V. 124. P. 45001.