

СТРУКТУРЫ АКТИВНЫХ БРОУНОВСКИХ ЧАСТИЦ В МОНОСЛОЕ КОЛЛОИДНОЙ ПЛАЗМЫ ПРИ ВОЗДЕЙСТВИИ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ

Д. А. Заморин, Р. А. Сыроватка, К. Г. Косс, М. М. Васильев, О. Ф. Петров

Экспериментально обнаружен двухстадийный переход в монослое активных коллоидных частиц в плазме. Анализ парных и ориентационных корреляционных функций показывает переход в монослое частиц от кристаллического состояния к гексатическому, а затем к жидкостному (изотропной жидкости), что полностью согласуется с теорией перехода Березинского–Костерлица–Таулесса. Таким образом, в наших экспериментах активная двумерная структура вдали от термодинамического равновесия демонстрирует поведение, схожее с поведением термодинамически равновесных систем.

Ключевые слова: активные броуновские частицы, коллоидная плазма, двумерные структуры, переход БКТ.

1. Введение

Активные броуновские частицы [1], в отличие от пассивных броуновских частиц [2], которые находятся в тепловом равновесии с окружающей средой, могут преобразовывать энергию окружающей среды в кинетическую энергию своего движения, в результате чего они оказываются в состоянии, далеком от равновесия с окружающей средой [3–6]. Активными броуновскими частицами могут быть заряженные частицы, взвешенные в плазме [7–9], вязкой жидкости [10] или левитирующие в криогенной жидкости (криогенный коллоид) [11, 12], кинетическое движение которых индуцируется лазерным излучением [7–10, 12]. Одной из фундаментальных проблем физики активных броуновских частиц является роль коллективных явлений в ансамбле (рое) таких частиц, при их сильном взаимодействии, в эволюции образованных ими макроскопических структур.

ОИВТ РАН, 125412 Россия, Москва, ул. Ижорская, 13, стр. 2; e-mail: Xeniya.Koss@gmail.com.

Коллективные явления в роे активных броуновских частиц в процессе эволюции могут демонстрировать аналогии с обычными фазовыми переходами. Так, как было показано в работе [13], в модели системы активных частиц при определенных условиях происходит двухступенчатый переход из кристаллического состояния в жидкостное посредством образования промежуточного гексатического состояния, даже вдали от равновесия, в соответствии с теорией Березинского–Костерлица–Таулесса (БКТ) [14–19]. Кристаллическое состояние при этом характеризуется дальним трансляционным и дальним ориентационным порядком, тогда как гексатическое состояние имеет близкий трансляционный порядок и квазидальний ориентационный порядок, а жидкое состояние имеет близкий трансляционный и близкий ориентационный порядок.

Одним из механизмов активного движения броуновских частиц является фотофотофорез [20, 21]. Как только частица попадает в газ, при освещении частицы происходят поглощение, дифракция, преломление и отражение света, а также выделение тепла на поверхности частицы. Воздействие лазерного излучения на частицу может привести к появлению радиометрической силы [20, 21], связанной с неравномерным нагревом поверхности частицы лазерным лучом. Когда размер частицы значительно превышает длину волны лазерного излучения, это происходит из-за неоднородного освещения поверхности одиночной сферической частицы (в приближении геометрической оптики) [9]. В результате возникает температурный градиент, при котором столкновения молекул газа с нагретой поверхностью частицы приводят к возникновению нескомпенсированной радиометрической силы, и, как следствие, движению частицы.

В ряде работ [7–9, 22] изучалось активное броуновское движение далеких от равновесия светопоглощающих и сильно взаимодействующих частиц, взвешенных в ВЧ газовом разряде при лазерном облучении, когда характер и интенсивность активного движения зависят от воздействия излучения. Частицы после инжекции в разрядный объем приобретают отрицательные заряды за счет потоков ионов и электронов, поступающих на поверхность частиц, пока не будет достигнуто стационарное состояние. Благодаря балансу силы тяжести и электростатической силы, обеспечивающему вертикальное удержание, заряженные частицы левитируют над плоским горизонтальным электродом в ВЧ разряде, образуя монослойную структуру с незначительно малыми вертикальными перемещениями. Частицы приобретают достаточно высокий электрический заряд ($\sim 10^2 - 10^5$ зарядов электронов) под действием потока частиц плазмы [23, 24]. Эти заряженные частицы эффективно взаимодействуют друг с другом, а также с внешним электрическим полем. Действие внешних сил и сил взаимодействия в

сочетании с диссипативными механизмами в этих системах может привести к самоорганизации системы, в результате чего образуются квазистационарные кристаллические или жидкостные структуры [23–27].

Целью данной работы является изучение структур светопоглощающих и сильно взаимодействующих частиц в монослое вдали от равновесия, в условиях, когда природа и интенсивность броуновского движения частиц зависит от воздействия лазерного излучения. В эксперименте полимерные частицы, покрытые металлом, левитируют в газовом разряде. Поглощение лазерного излучения покрытой металлом поверхностью частицы создает радиометрическую силу, которая, в свою очередь, приводит в движение частицы.

В данной работе представлены результаты наблюдений активного характера броуновского движения таких частиц, а также двухступенчатого перехода (плавление) из кристаллического состояния в гексатическое и жидкостное при изменении мощности лазерного излучения.

2. Эксперимент

Экспериментальная установка. Основой экспериментальной установки являлась цилиндрическая газоразрядная камера с ВЧ-электродами и диспенсером для инжекции частиц микронных размеров [9]. На нижний электрод в форме диска диаметром 20 см подавался ВЧ-сигнал частотой 13.56 МГц. Верхний электрод в форме кольца с внутренним диаметром 10 см был заземлен. Таким образом, создавался емкостной ВЧ газовый разряд, в приэлектродной области которого были реализованы условия, необходимые для левитации частиц. Для создания дополнительного потенциала, препятствующего радиальному разлету частиц, на нижний электрод помещалось металлическое кольцо.

После инжекции частицы, заряженные потоками электронов и ионов на их поверхность, формировали плоскую дискообразную коллоидную структуру (моносвой), содержащую около 6000 частиц. Была получена моносвойная структура частиц с практически равномерным распределением их плотности при мощности разряда 4 Вт и давлении газа 3.9 Па.

Экспериментальная установка была оснащена системой видеонаблюдения, состоящей из цифровой видеокамеры и Ar⁺-лазера для освещения частиц. Видеокамера с размерами пикселя 7.5 мкм могла захватывать 8-битные монохромные изображения разрешением 1440×1440 пикселей с частотой 50 или 100 кадров в секунду в зависимости от мощности лазера.

Для подсветки частиц использовался расширенный плоскоцилиндрической линзой лазерный пучок с длиной волны излучения 532 нм, однородный по мощности на масштабе всей структуры.

Положение частиц на каждом видеокадре определялось с субпиксельной точностью.

Кинетическая температура. Анализ полученных видеоданных позволяет определить координаты отдельных частиц в каждый момент времени, в то время как анализ перемещений частиц за межкадровый интервал дает скорость v_p их перемещения. Основываясь на данных о скоростях всех частиц в структуре в каждый момент времени, можно получить распределение частиц по скоростям и среднюю кинетическую энергию их движения $E_k = m_p v_p^2 / 2$.

Эффективный параметр неидеальности. Для диагностики структур частиц в плазме используется эффективный параметр неидеальности в виде

$$\Gamma^* = 1.5(eZ)^2(1 + \kappa + \kappa^2/2) \exp(-\kappa)/(k_B T_{eff} r_p) \quad (1)$$

и параметр масштабирования

$$\xi = \omega^* / \nu_{fr}, \quad (2)$$

где

$$\omega^* = \{2(eZ)^2(1 + \kappa + \kappa^2/2) \exp(-\kappa)/(r_p^3 \pi m_p)\}^{1/2}, \quad (3)$$

а также применяется методика, основанная на анализе процессов массопереноса на малых временах наблюдения [7, 28]. Здесь $\kappa \equiv r_p/\lambda$ – параметр экранирования, k_B – постоянная Больцмана, λ – длина экранирования, r_p – межчастичное расстояние, Z – электрический заряд частицы, T_{eff} – кинетическая (эффективная) температура частиц, m_p – масса частицы и ν_{fr} – коэффициент трения частиц, возникающий при их столкновении с нейтральными частицами окружающего газа.

Численные расчеты для двумерных кулоновских систем и систем Юкавы показывают, что физические свойства таких систем имеют две характерные точки фазовых переходов. Первый из них относится к фазовому переходу “жидкость – гексатическая фаза” и происходит, когда эффективный параметр неидеальности $\Gamma^* = 98 \pm 4$. Вторая точка (при $\Gamma^* = 154 \pm 4$) соответствует переходу от гексатической фазы к идеальному кристаллу, когда коэффициент диффузии частиц стремится к нулю [29–31].

Корреляционный порядок в двумерных структурах. Количественный и качественный анализ фазового состояния системы выполняется, как правило, с использованием парной $g(r)$ и ориентационной $g_6(r)$ корреляционных функций и динамики образования различных топологических дефектов [32–35]. Напомним, что парная функция $g(r)$

определяет вероятность нахождения двух частиц, разделенных расстоянием r , и является мерой трансляционного порядка в системе взаимодействующих частиц; $g(r) = 1$ для идеальных газов. Для двумерных систем ориентационная функция $g_6(r)$ характеризуется углом $\theta(\mathbf{r})$, который определяет ориентацию относительно некоторой фиксированной оси отсчета r связи между двумя соседними частицами. Для идеальной гексагональной структуры $g_6(r) \equiv 1$, тогда как для других состояний (например, для жидкостей) эта функция уменьшается с увеличением расстояния.

Изучение пространственной асимптотики парных корреляционных функций $g(r)$ и ориентационной корреляционной функции $g_6(r)$ широко используется для анализа фазового состояния системы. Асимптотика парных функций $g(r)$ для двумерной системы была исследована в деталях в [36], где было показано, что пространственный спад пиков (g^s) парной корреляционной функции в идеальном кристалле описывается степенным законом $g^s \propto (r/r_p)^{-\eta}$ с $\eta < 1/3$ и экспоненциальной зависимостью $g^s \propto \exp(-\mu r/r_p)$ в жидкостной и гексатической фазах, где $\mu = \mu_h \equiv \text{const}$ и $\mu > \mu_h$, соответственно, для жидкостной и гексатической фазы. Ориентационная корреляционная функция характеризуется степенной асимптотикой в гексатической фазе и экспоненциальной асимптотикой в жидкостной фазе.

Следует отметить, что математические выражения для функции $g_6(r)$ могут незначительно отличаться в разных работах, и поэтому это касается методов их вычисления. В этой статье мы рассчитали $g_6(r)$ в соответствии со следующим соотношением [32]:

$$g_6(r - r') = \frac{\langle \psi_6^*(r)\psi_6(r') \rangle}{\langle \rho(r)\rho(r') \rangle}. \quad (4)$$

Здесь $\rho(r) = \sum_{i=1}^N \delta(r - r_i)$, а $\psi_6(r) = \sum_{i=1}^N \delta(r - r_i)\psi_{6,i}$ – микроскопическая плотность параметра ориентационного порядка, где суммирование по j ведется по всем ближайшим соседям N_i i -й частицы, а угол θ_{ij} образован связью, соединяющей i -ю и j -ю частицы, и фиксированной осью. В этих определениях величина $g_6(r) \equiv 1$ была выбрана для идеальной гексагональной решетки независимо от значения шага разбиения Δr .

Фрактальная размерность траекторий частиц. Изучение фрактальной размерности траекторий частиц в плазме показало свою эффективность при анализе структурных переходов в системах активных броуновских частиц [37, 38]. В настоящей работе использована методика оценки фрактальной размерности траекторий на основе динамической энтропии среднего времени первого пересечения, подробно описанная в работах [37, 39, 40].

Динамическая энтропия первого пересечения – это простое приближение энтропии Колмогорова–Синая, сходящееся даже в случае броуновского движения. Можно примерно вычислить динамическую энтропию следующим образом. Для достаточно больших значений параметра огрубления ε вокруг частицы в начальный момент времени строится сфера радиуса ε с центром в местоположении частицы. Затем определяется время, за которое частица впервые достигает границы ε . Усредняя данное время первого пересечения $\tau(\varepsilon) = \int_0^\infty P_\varepsilon(t)tdt$, где $P_\varepsilon(t)$ – вероятность того, что частица пересечёт границу сферы за время между t и $t + dt$, можно определить динамическую энтропию первого пересечения $S(\varepsilon)$ как $S(\varepsilon) \equiv 1/\tau(\varepsilon)$ [39].

Исходя из того, что координаты коллоидных частиц известны для каждого момента времени, были построены зависимости динамической энтропии среднего времени первого пересечения $S(\varepsilon)$ от параметра огрубления ε и вычислены численные логарифмические производные от этих зависимостей. Для малых ε абсолютное значение производной близко к 1 с хорошей точностью, что указывает на баллистический режим движения. На сравнительно больших расстояниях (когда частица испытала достаточно столкновений с окружающими частицами) производная принимает значение Δ_f , где Δ_f – показатель степени в зависимости $\tau(\varepsilon) \propto \varepsilon^{\Delta_f}$ [39, 40].

3. Результаты и обсуждение

В экспериментах в данной работе использовались сферические частицы меламиноформальдегида (MF) с анизотропным медным покрытием. Воздействие лазерного излучения на частицу может привести к появлению радиометрической силы, связанной с неоднородным освещением поверхности одиночной частицы лазерным лучом и, как следствие, к неравномерному нагреву одиночных частиц и неравномерному распределению температуры по поверхности частицы, когда размер частицы значительно больше, чем длина волны лазерного излучения (в приближении геометрической оптики для одиночной сферической частицы).

При увеличении мощности лазерного излучения P_{las} примерно в 2.5 раза (от 350 до 900 мВт) кинетическая энергия $E_k = m_p v_p^2/2$ наблюдаемых частиц (частиц в пределах области, облучаемой лазерным лучом) увеличивается примерно в 4.5 раза. Это означает, что существует механизм преобразования энергии внешнего источника (лазерного излучения) в энергию их кинетического движения, т. е. они являются открытыми системами, а движение самих частиц можно охарактеризовать как движение активных броуновских частиц с сильным кулоновским взаимодействием.

При $P = 350$ мВт в монослое частиц формируется кристаллическая структура, что подтверждается значением парной корреляционной функции в первом пике g_{\max} , в первом минимуме g_{\min} и расщеплением второго ее пика. Также на кристаллическое состояние указывает поведение ориентационной корреляционной функции $g_6(r)$, значения которой близки к единице при $\Gamma^* = 264$. При увеличении кинетической энергии частиц наблюдается переход монослоя частиц из кристаллического состояния в жидкостное.

При более высокой кинетической температуре частиц (при кинетическом нагреве частиц) обнаружено, что парная корреляционная функция $g(r)$ уменьшается экспоненциально с увеличением расстояния между частицами, в то время как ориентационная корреляционная функция $g_6(r)$ демонстрирует алгебраический спад со степенью -0.15 при $\Gamma^* = 153$ и 119 и со степенью -0.25 при $\Gamma^* = 100$. При $\Gamma^* = 71$ наблюдается экспоненциальный спад ориентационной функции $g_6(r) \propto \exp(-r/5)$, тем самым происходит переход структуры в изотропную жидкость, которая характеризуется экспоненциальным уменьшением как $g(r)$, так и $g_6(r)$.

Как было показано в работах [7, 41], изменение характера ориентационной корреляционной функции от постоянного значения к степенному спаду в окрестности $\Gamma^* = 150$ и от степенного спада к экспоненциальному вблизи $\Gamma^* = 100$ указывает на двухстадийное плавление с образованием промежуточного состояния с гексатическим порядком в об-

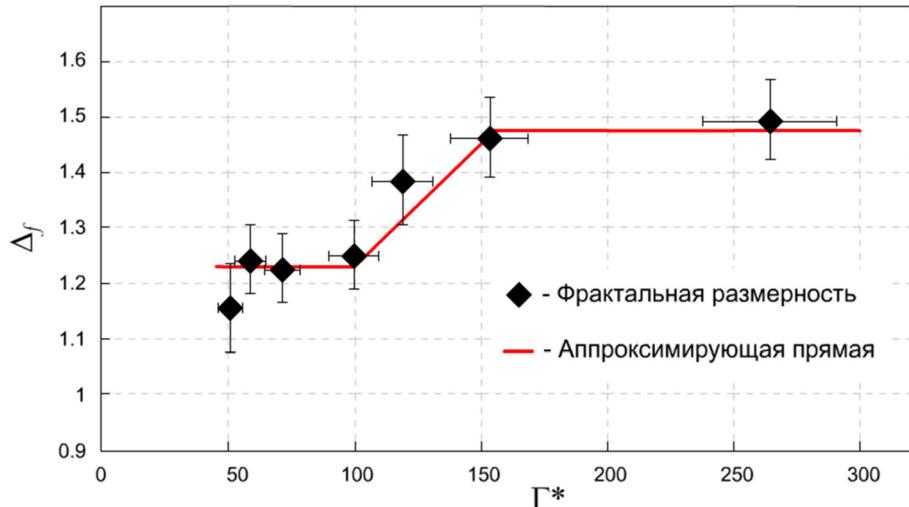


Рис. 1: Зависимость усредненной фрактальной размерности траекторий активных броуновских частиц от эффективного параметра неидеальности Γ^* . Явно видны две критические точки при $\Gamma^* \approx 100$ и $\Gamma^* \approx 150$.

ласти $\Gamma^* = 153 - 100$. Таким образом, сценарий плавления, предложенный Березинским–Костерлицем–Таулессом (БКТ), полностью соответствует представленным измерениям.

Также отметим, что зависимость $g_6(r) \propto r^{-0.25}$, наблюдавшаяся при $\Gamma^* = 100$, является предельным значением квазидального ориентационного порядка в теории БКТ.

Таким образом, в наших экспериментах активная двумерная структура вдали от термодинамического равновесия демонстрирует поведение, схожее с поведением термодинамически равновесных систем.

Значения средней фрактальной размерности траекторий коллоидных частиц Δ_f для различных величин эффективного параметра неидеальности Γ^* представлены на рис. 1. Видно, что аппроксимирующая линия имеет две особые точки при $\Gamma^* \approx 100$ и $\Gamma^* \approx 150$. Критическая точка при $\Gamma^* \approx 150$ на рис. 1 соответствует нарушению трансляционного порядка в системе, вторая ($\Gamma^* \approx 100$) – переходу в жидкое состояние. Между ними находится промежуточное состояние, соответствующее гексатическому состоянию в теории БКТ.

4. Заключение

В данной работе изучен процесс плавления в монослое активных броуновских частиц, левитирующих в приэлектродном слое ВЧ газового разряда. Активные броуновские частицы представляли собой меламиноформальдегидные микросферы с напыленным анизотропным металлическим покрытием. Такая морфология поверхности частиц позволила им преобразовывать энергию лазерного облучения в увеличение кинетической энергии их движения. Экспериментально обнаружен двухстадийный переход в монослое коллоидных частиц в плазме. Измерены парные и ориентационные корреляционные функции, а также фрактальная размерность траекторий частиц. Анализ корреляционных функций показывает переход в монослое частиц от кристаллического состояния к гексатическому, а затем к жидкостному (изотропной жидкости), что полностью согласуется с теорией перехода Березинского–Костерлица–Таулесса. Таким образом, в наших экспериментах активная двумерная структура вдали от термодинамического равновесия демонстрирует поведение, схожее с поведением термодинамически равновесных систем.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект №25-12-00406 (<https://rscf.ru/project/25-12-00406/>)).

ЛИТЕРАТУРА

- [1] C. Bechinger et al., Rev. Mod. Phys. **88**, 045006 (2016).

- [2] J. Perrin, *Atoms* (Constable, 1914).
- [3] S. Ramaswamy, Annu. Rev. Condens. Matter Phys. **1**, 323 (2010).
- [4] M. C. Marchetti et al., Rev. Mod. Phys. **85**, 1143 (2013).
- [5] S. J. Ebbens, J. R. Howse, Soft Matter **6**, 726 (2010).
- [6] R. Golestanian, T. B. Liverpool, A. Ajdari, New J. Phys. **9**, 126 (2007).
- [7] O. F. Petrov, M. M. Vasiliev, O. S. Vaulina, et al., Europhys. Lett. **111**(4), 45002 (2015).
- [8] E. V. Vasilieva, O. F. Petrov, M. M. Vasiliev, Sci. Rep. **11**, 523 (2021).
- [9] O. F. Petrov, K. B. Statsenko, M. M. Vasiliev, Sci. Rep. **12**, 8618 (2022).
<https://doi.org/10.1038/s41598-022-12354-7>.
- [10] E. A. Kononov, R. V. Senoshenko, M. M. Vasiliev, O. F. Petrov, Physics of Fluids **36**(11), 117145 (2024). <https://doi.org/10.1063/5.0240975>.
- [11] M. M. Vasiliev, O. F. Petrov, K. B. Statsenko, JETP Lett. **102**, 771 (2015).
- [12] O. F. Petrov, R. E. Boltnev, M. M. Vasiliev, Sci. Rep. **12**(1), 6 (2022).
- [13] J. U. Klamser, S. C. Kapfer, W. Krauth, Nat. Commun. **9**, 5045 (2018).
- [14] L. V. Berezhinskii, Sov. Phys. JETP **32**(3), 493 (1971).
- [15] L. V. Berezhinskii, Sov. Phys. JETP **34**(3), 610 (1972).
- [16] J. M. Kosterlitz, D. J. Thouless, J. Phys. C: Solid State Phys. **6**, 1181 (1973).
- [17] J. M. Kosterlitz, J. Phys. C: Solid State Phys. **7**, 1046 (1974).
- [18] D. R. Nelson, B. I. Halperin, Phys. Rev. B: Condens. Matter **19**, 2457 (1979).
- [19] A. P. Young, Phys. Rev. B: Condens. Matter **19**, 1855 (1979).
- [20] O. Preining, Photophoresis. In *Aerosol Science* (ed. C. N. Davies) (Academic Press, 1996).
- [21] O. Jovanovic, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer **110**, 889 (2009).
- [22] M. M. Vasiliev, A. A. Alekseevskaya, K. G. Koss, et al., High Temp. **61**(6), 759 (2023).
- [23] V. E. Fortov, A. G. Khrapak, S. A. Khrapak, et al., Phys. Usp. **47**(5), 447 (2004).
- [24] V. E. Fortov, G. E. Morfill (eds.). *Complex and Dusty Plasmas* (CRC Press, 2009).
- [25] D. I. Zhukhovitskii et al., New J. Phys. **17**, 053041 (2015).
- [26] O. S. Vaulina, I. E. Drangevski, X. G. Adamovich, et al., Phys. Rev. Lett. **97**, 195001 (2006).
- [27] R. E. Boltnev, M. M. Vasiliev, E. A. Kononov, O. F. Petrov, Sci. Rep. **9**, 3261 (2019).
- [28] O. S. Vaulina, X. G. Adamovich, O. F. Petrov, V. E. Fortov, Phys. Rev. E **77**, 066404 (2008).
- [29] O. S. Vaulina et al., Phys. Rev. Lett. **97**, 195001 (2006).

- [30] O. S. Vaulina et al., Phys. Rev. E **77**, 066404 (2008).
- [31] E. V. Vasilieva, O. S. Vaulina, JETP **117**(1), 169 (2013).
- [32] K. Strandburg, Rev. Mod. Phys. **60**, 161 (1988); *Bond-Orientational Order in Condensed Matter Systems*, edited by K. J. Strandburg (Springer, New York, 1992).
- [33] I. Lyuksyutov, A. G. Naumovets, V. Pokrovsky, *Two-dimensional Crystals* (Academic Press, Inc., 1992).
- [34] D. R. Nelson, *Defects and geometry in condensed matter physics* (Cambridge University Press, 2002).
- [35] *40 Years of Berezinskii–Kosterlitz–Thouless Theory*. Ed. by J. V. Jose (World Scientific, 2013).
- [36] R. Seshadri, R. Westervelt, Phys. Rev. Lett. **66**, 2774 (1991).
- [37] X. G. Koss, E. A. Kononov, I. I. Lisina, et al., Molecules **27**, 1614 (2022).
- [38] X. G. Koss, O. F. Petrov, K. B. Statsenko, M. M. Vasiliev, EPL **124**, 45001 (2018).
- [39] P. Allegrini, J. F. Douglas, S. C. Glotzer, Phys. Rev. E **60**, 5714 (1999).
- [40] K. G. Koss, I. I. Lisina, M. M. Vasiliev, et al., Plasma Phys. Rep. **49**, 57 (2023).
- [41] E. V. Vasilieva, O. S. Vaulina, J. Exp. Theor. Phys. **117**(1), 169 (2013).

Поступила в редакцию 9 декабря 2025 г.

После доработки 11 декабря 2025 г.

Принята к публикации 11 декабря 2025 г.