

АКТИВНОЕ БРОУНОВСКОЕ ДВИЖЕНИЕ ПЫЛЕВЫХ ЧАСТИЦ В КВАЗИОДНОМЕРНЫХ (ЦЕПОЧЕЧНЫХ) СТРУКТУРАХ В ТЛЕЮЩЕМ РАЗРЯДЕ

А. С. Светлов^{}, Е. А. Кононов, Ф. М. Трухачёв, М. М. Васильев, О. Ф. Петров*

*Объединенный институт высоких температур Российской академии наук
125412, Москва, Россия*

*Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 18 мая 2023 г.,
после переработки 29 мая 2023 г.
Принята к публикации 30 мая 2023 г.

Представлены экспериментальные результаты исследования формирования и динамики цепочечных структур активными броуновскими частицами в тлеющем разряде постоянного тока. Механизм активного движения частиц связан с преобразованием лазерного излучения частицами в энергию собственного (не теплового) движения. С помощью анализа параметров движения (траекторий, среднеквадратичного смещения, кинетической энергии) в зависимости от интенсивности лазерного излучения, падающего на частицы, показано, что частицы являются активными броуновскими. При этом возможно управлять их движением без изменения параметров разряда. Экспериментально обнаружено, что формирование цепочечных структур и их устойчивое состояние не нарушается при кинетическом разогреве частиц с ростом их кинетической энергии более чем на порядок. Это свидетельствует о реализации механизма формирования цепочек с сильной связью между частицами, который не объясняется простым кильваторным (ионным) следом за вышестоящей частицей.

DOI: 10.31857/S0044451023110020
EDN: PNATSW

1. ВВЕДЕНИЕ

За последние десятилетия исследование активной материи (activematter) стало одним из самых захватывающих и бурно развивающихся направлений в физике «мягкого» конденсированного вещества (softmatter) [1–15]. Фундаментальный аспект исследований заключается в развитии физики неравновесных систем; физики диссипативных структур; физики хаоса; принципов самоорганизации, самосборки, зарождения жизни. Базовым элементом физики активной материи является понятие «активная броуновская частица» (АБЧ), которое обобщает понятие «броуновская частица» на случай неравновесных систем. В отличие от пассивных броуновских частиц, движение которых определяется тепловой

энергией среды, АБЧ получают некоторую дополнительную энергию движения (химическую, электромагнитную и др.). В результате АБЧ помимо случайного теплового движения, характерного для пассивных броуновских частиц, совершают также направленное движение в течение заметных промежутков времени [1–15]. Кроме того, состояние АБЧ нельзя описать в рамках равновесной термодинамики, в отличие от пассивных броуновских частиц [3]. Примером АБЧ являются бактерии и некоторые подвижные клетки [4–6], микро- и нанороботы [7], активные микрочастицы [8, 9], пылевые частицы в плазме и сверхтекучем гелии [10–15] и т. д. АБЧ могут двигаться независимо и могут проявлять коллективный характер [5, 16]. Средняя кинетическая энергия АБЧ может значительно превосходить среднюю кинетическую энергию (температуру) окружающей среды [1, 2]. Среди приложений физики АБЧ можно выделить следующие: развитие методов доставки лекарственных веществ, разработку новых материалов и др.

^{*} E-mail: svetlov.anton.s@gmail.com

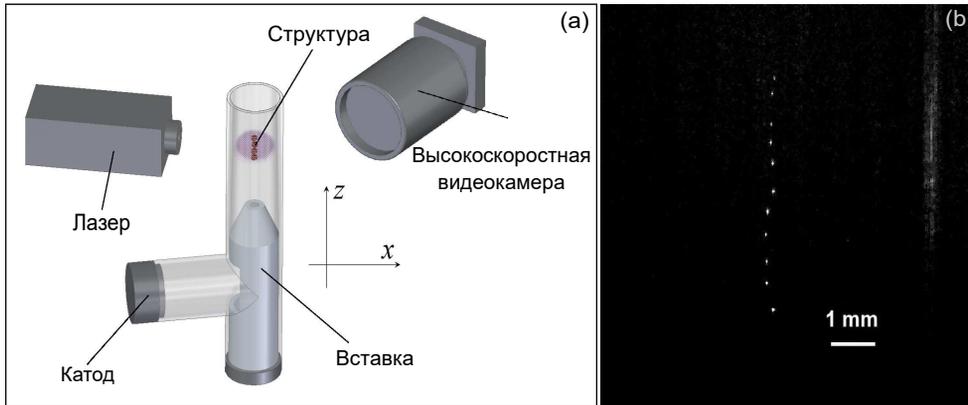


Рис. 1. Схема экспериментальной установки тлеющего разряда (а); фотография квазиодномерной цепочечной структуры (b)

Коллоидная плазма является удобным объектом исследования АБЧ [10–15]. Действительно, в плазме, по сравнению с электролитами, значительно меньшую роль играют химические процессы, что позволяет более точно управлять параметрами эксперимента. Кроме того, низкая вязкость плазмы позволяет использовать слабые источники энергии для возбуждения активного движения и, таким образом, использовать линейный математический формализм. В работе [11] представлены результаты экспериментального исследования параметров активного броуновского движения одиночных микрочастиц под воздействием лазерного излучения в плазме емкостного ВЧ-разряда. Показано, что лазерное излучение является эффективным механизмом индуцирования активности пылевых частиц. Важно отметить, что используемые в эксперименте лазеры небольшой мощности практически не влияют на параметры разряда. Драйвером активного броуновского движения частиц выступает фотофоретическая сила. В работе приведено сравнение движения сферических частиц меламин-формальдегида диаметром $D \approx 10$ мкм с различным типом покрытия. В частности, исследовалось три типа частиц: частицы без покрытия; частицы с однородным тонким медным покрытием; янус-частицы, часть поверхности которых имела железное покрытие (свойства янус-частиц детально описаны в [17]). Как показали исследования [11], характер движения янус-частиц оказался наиболее сложным по сравнению с другими типами исследуемых частиц. Динамика янус-частиц представляла комбинацию орбитального и хаотического движений, в то время как характер движения непокрытых частиц и частиц с однородным покрытием был преимущественно орбитальным в плоскости, параллельной лазерному лучу.

В представленной работе проведено исследование активного броуновского движения пылевых частиц, формирующих квазиодномерные (цепочечные) структуры, содержащие 11 микрочастиц, под действием лазерного излучения. Активное движение частиц индуцировалось лазерным излучением, нагревающим поглощающую поверхность частиц. Сильное взаимодействие заряженных частиц приводило к более сложному поведению наблюдаемых структур. Целью работы являлось исследование формирования цепочечных структур активных броуновских частиц и их динамики под действием лазерного излучения в стратифицированном тлеющем разряде постоянного тока.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ УСТАНОВКА

Схема установки приведена на рис.1. Эксперимент проводился в вертикально ориентированной газоразрядной стеклянной трубке длиной $l = 1250$ мм и внутренним диаметром $d = 40$ мм. Расстояние между катодом и анодом, расположенными в ответвлениях внизу и вверху трубки, составляло 1050 мм. Нижний конец трубки был запаян, а верхняя часть была подключена к системе контроля давления, там же располагался инжектор пылевых частиц. Трубка откачивалась с помощью турбомолекулярного насоса и заполнялась инертным газом аргоном до рабочего давления $P = 7.5$ Па, после чего с использованием источника питания Spellman между анодом и катодом зажигался разряд постоянного тока. Сила тока составляла $i = 0.75$ мА при напряжении $U = 1.6$ кВ. В ходе эксперимента в трубку непрерывно подавался плазмообразующий газ со скоростью 2 стандартных см³/мин, что позволяло поддерживать неизменными свойства плазмы.

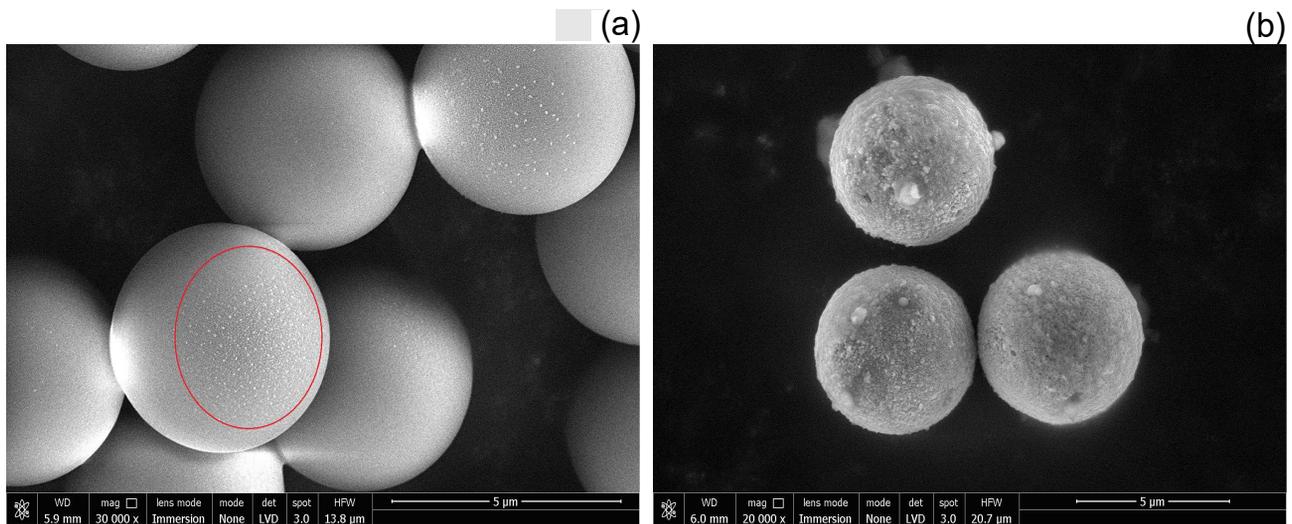


Рис. 2. РЭМ-изображения сферических монодисперсных частиц меламин-формальдегида диаметром 5 мкм: *a* — частицы с однородным медным покрытием; *b* — янус-частицы

Пылевые частицы инжестировались в разрядную камеру с помощью магнитного воздействия (встряхивания) одного из двух контейнеров, содержащих частицы различного типа. Использовались два типа сферических монодисперсных частиц диаметром $D \approx 5$ мкм: меламин-формальдегид, полностью покрытый медью, и янус-частицы (с частичным медным покрытием). Использование двух независимых контейнеров позволило проводить эксперименты с различными микрочастицами, сохраняя неизменными параметры разряда. После инъекции частицы падали в область положительного столба разряда, где происходила их зарядка и захват в областях повышенной ионизации — стратах. Для стабилизации положения страт была использована диэлектрическая конусообразная вставка, концентрирующая поток электронов и ионов по оси трубки.

Источником энергии активного броуновского движения частиц являлся твердотельный лазер с длиной волны 532 нм, мощность которого можно было варьировать. С помощью системы оптических линз лазерный луч был расширен до диаметра 10 мм и направлен таким образом, чтобы он полностью покрывал зону движения частиц и при этом был перпендикулярен оси трубки. Этот же лазер использовался для визуализации пылевой структуры.

Движение пылевых частиц фиксировалось высокоскоростной видеокамерой. Частота записи составляла 400 кадров в секунду при разрешении 512×512 пикселей (19.6 мкм/пиксель). Полученные данные обрабатывались при помощи специализированных компьютерных программ [13, 18, 19].

3. РЕЗУЛЬТАТЫ НАБЛЮДЕНИЙ

3.1. Материалы

Как упоминалось выше, в эксперименте использовались следующие типы монодисперсных сферических меламин-формальдегидных частиц диаметром $D \approx 5$ мкм: частицы с однородным тонким медным покрытием; частицы с частичным медным покрытием (янус-частицы). Изображения частиц, полученные с помощью растрового электронного микроскопа (РЭМ), представлены на рис. 2. Частицы с медным покрытием произведены фирмой MicroParticles GmbH (Berlin, Germany), в то время как янус-частицы были изготовлены по технологии, описанной в [20].

3.2. Баланс сил

Рассмотрим силы, действующие на пылевые частицы в исследуемой разрядной плазме. Как показано в [15], динамика одиночных пылевых частиц в тлеющем разряде определяется следующими силами: силой гравитации F_g ; кулоновской силой со стороны электрического поля разряда F_E ; силами ионного и нейтрального увлечения F_{id} , F_{nd} ; фотофоретической силой F_f . Состояние равновесия обеспечивалось тремя силами F_g , F_E , F_{id} .

В нашем случае к указанным силам добавляются силы взаимодействия между частицами в квазиодномерной цепочке [21–23]. Считается, что заряженная пылевая частица в тлеющем разряде формирует конфигурацию ионного потока, содержащего ионный фокус. Параметры ионного фокуса определяются в первую очередь зарядом частиц.

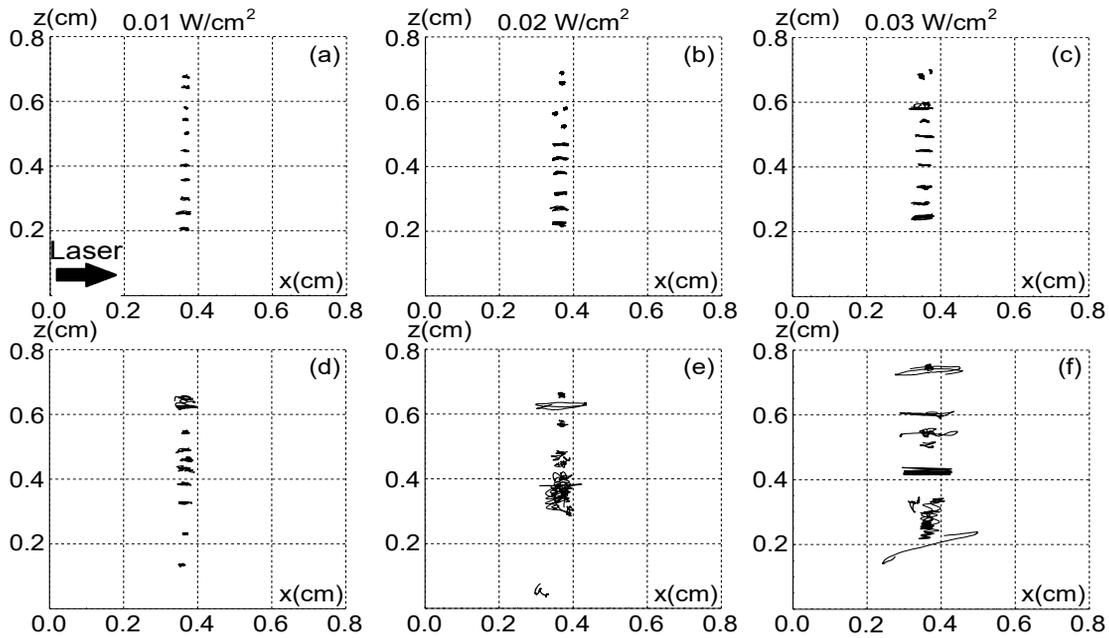


Рис. 3. Траектории частиц в цепочечной структуре в страте тлеющего разряда за промежуток времени $\Delta t = 0.5$ с при различной интенсивности лазерного излучения: *a-c* — частицы с покрытием, *d-f* — янус-частицы

В нашем эксперименте частицы имели примерно одинаковую массу m_d и размеры D . Согласно известным моделям [24], величина заряда частицы, погруженной в газовый разряд, зависит от ее радиуса. Следовательно, заряд исследуемых частиц Z можно считать одинаковым. Таким образом, при одинаковых условиях разряда и отсутствии лазерного воздействия плазменно-пылевые структуры двух исследуемых типов (содержащих частицы с однородным покрытием и янус-частицы) обладали примерно одинаковой динамикой. В таком случае нет необходимости точно измерить указанные выше силы, а достаточно обеспечить одинаковые параметры разряда для двух типов используемых частиц.

Рассмотрим теперь силы, определяющие их активное движение. Как показано в работах [11], механизмы активности, выводящие системы плазма-пылинка из состояния равновесия, основаны на фотофоретических силах. При этом, с одной стороны, фотофорез обеспечивается температурными градиентами на поверхности частиц. В этом случае возникает асимметрия силы нейтрального увлечения. Такой механизм реализуется для всех частиц, используемых в эксперименте. С другой стороны, для янус-частиц возникают дополнительные фотофоретические эффекты, связанные с различием коэффициентов аккомодации на разных участках поверхности частицы.

Градиенты температуры и коэффициентов аккомодации, наряду с вращением частицы вокруг оси, могут создавать нескомпенсированные силы, вызы-

вающие ее активное движение (в частности, возникновение орбитального вращения [25]). Ожидается, что действие фотофоретической силы будет существенно разным для частиц с разным типом поверхности [11]. Янус-частица, освещенная лазерным излучением, может иметь наиболее заметные температурные градиенты на поверхности из-за ее неоднородности. Это приводит к сильным фотофоретическим эффектам, которыми можно управлять посредством изменения интенсивности лазерного излучения, I_L , которая пропорциональна мощности лазера P_L , $P_L \sim I_L$. Отметим, что для частиц с однородной поверхностью фотофорез также является фактором активности [11].

3.3. Формирование структур, динамика пылевых частиц

В процессе эксперимента микрочастицы заданных типов инжектировались в объем разрядной плазмы тока, где в результате баланса рассмотренных сил наблюдалось формирование квазиодномерных (цепочечных) структур (рис. 1*b*). Для возбуждения активного броуновского движения цепочечные структуры облучались лазерным излучением различной интенсивности. Для анализа динамики частиц данные видеосъемки обрабатывались специализированным программным обеспечением, которое позволяло определить координаты частиц x, z , среднеквадратичные смещения $\langle r^2(t) \rangle$ и другие параметры. Траектории движения частиц представлены на рис. 3.

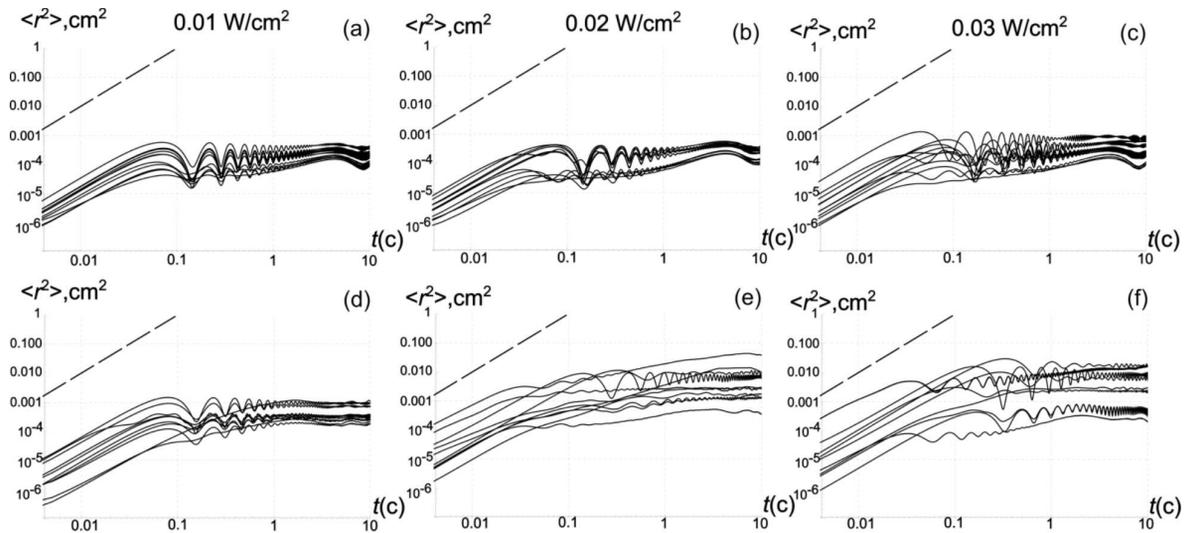


Рис. 4. Среднеквадратичные смещения для пылевых частиц: *a–c* — частицы с покрытием, *d–f* — янус-частицы

Как видно, при минимальной мощности лазера частицы обоих типов формируют продольную цепочечную структуру. Это состояние соответствует минимальной кинетической энергии частиц. Потенциальной энергии межчастичного взаимодействия, которая обусловлена кулоновскими силами и наличием ионного фокуса, достаточно для формирования упорядоченной цепочки. Однако динамика частиц начинает сильно меняться при увеличении интенсивности лазерного излучения. Действительно, покрытые частицы сохраняют цепочечную структуру, несмотря на рост их кинетической энергии (см. рис. 3*a–c*). При этом вертикальное межчастичное расстояние немного уменьшается с увеличением мощности лазера. По-видимому, ионный фокус в рассматриваемом случае является пространственно размытым, что может быть фактором устойчивости цепочки. Структура из янус-частиц под воздействием лазерного излучения деградирует значительно быстрее, хотя и сохраняет некоторые признаки вертикальной цепочки. На наш взгляд, это связано с тем, что кинетическая энергия янус-частиц растет быстрее с ростом интенсивности излучения по сравнению с кинетической энергией частиц с однородным покрытием [15]. Это их свойство можно назвать эффективной теплоемкостью, которая у янус-частиц минимальна в нашей ситуации. Следовательно, при одних и тех же значениях интенсивности лазерного излучения кинетический разогрев цепочки из янус-частиц развивается быстрее, что приводит к ее деградации.

Согласно современным представлениям, за отрицательно заряженными пылевыми макрочастицами в бесстолкновительной плазме формируется ионный фокус [26, 27]. При этом считается, что вторая и по-

следующие макрочастицы, формирующие пылевую цепочку, взаимодействуют как с отрицательно заряженными макрочастицами, так и с положительным ионным фокусом. Такое дипольное приближение кильватерного взаимодействия обычно приводится для объяснения формирования цепочечных пылевых структур, наблюдаемых в лабораторных экспериментах. Однако анализ траекторий микрочастиц в наших экспериментах указывает на необходимость более детального исследования механизма формирования цепочечных структур в тлеющем разряде постоянного тока. Действительно, несмотря на некогерентное движение частиц и их значительное смещение в горизонтальной плоскости, не происходит разрушения цепочечной структуры. Важной характеристикой движения частиц является среднеквадратичное смещение, определяемое по формуле [25]

$$\langle r^2(t) \rangle = \langle [r(t) - r(0)]^2 \rangle, \quad (1)$$

$r(0)$ — вектор начального положения частицы, $r(t)$ — положение частицы в момент времени t . В нашем случае проводилось усреднение по времени $T = 10$ с, графики представлены на рис. 4.

На коротком временном масштабе графики демонстрируют баллистический режим движения с асимптотикой $\sim t^2$ (штриховая линия) для всех частиц. Начиная с момента времени $t \sim 0.1$ с наблюдается режим движения «в ловушке» с определенным периодом (см. подробнее [12], рис. 4*b* при $a = 1$). Так же, как и в [28–31], асимптотик $\sim t^{3/2}$, характерных для активного броуновского движения в классической пространственно-однородной системе (без ловушки) в наших экспериментах не обнаружено (подробнее см. [2]). Из анализа рис. 4 можно оце-

нить степень хаотичности движения частиц в цепочечных структурах. Действительно, при малых интенсивностях лазерного излучения период орбитального вращения всех частиц примерно одинаков. Начальную фазу вращения из рис. 4 определить нельзя. Однако из наблюдений можно сделать вывод, что фазы кругового движения частиц не совпадают (см. рис. 1b). С ростом интенсивности излучения янус-частицы хаотизируются значительно быстрее и в большей степени. Такой характер активности полностью согласуется с результатами, описанными в [15] для одиночных частиц.

Еще одной характеристикой активного броуновского движения является средняя кинетическая энергия частиц [32–34]. На рис. 5 представлена зависимость от I для кинетической энергии частиц, усредненной по времени ($T = 60$ с) и по ансамблю частиц.

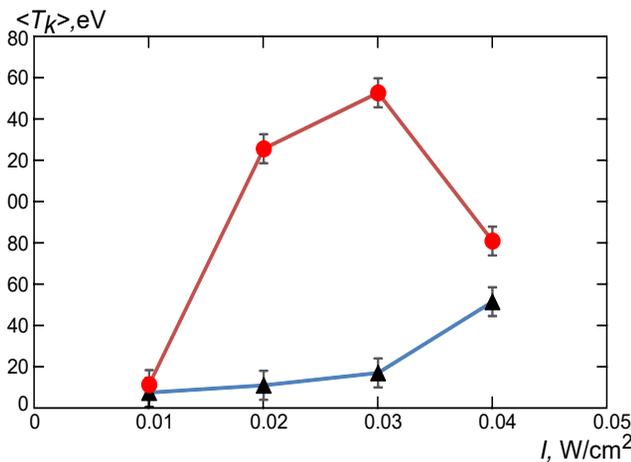


Рис. 5. Зависимость усредненной по времени и по ансамблю кинетической энергии частиц от интенсивности лазерного излучения: треугольники — цепочка из покрытых частиц, кружки — цепочка из янус-частиц

Из рис. 5 видно, что незначительное увеличение интенсивности лазерного излучения приводит к увеличению кинетической энергии частиц на порядок (для покрытых частиц) и более (для янус-частиц). Кинетическая энергия янус-частиц растет значительно быстрее с ростом интенсивности излучения. При этом при плотности мощности 0.04 Вт/см^2 достигается предельное значение кинетической энергии для двух самых энергичных янус-частиц, которые покидают цепочечную структуру. С этим связано наблюдаемое уменьшение $\langle T_k \rangle$ при $I = 0.04 \text{ Вт/см}^2$. Следует отметить, что кинетическая энергия микрочастиц значительно превышает среднюю кинетическую энергию атомов

буферного газа ($T_n \sim 0.03 \text{ эВ}$), что указывает на активный характер движения.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Впервые экспериментально исследовано активное броуновское движение пылевых частиц в квазиодномерных (цепочечных) структурах в тлеющем разряде постоянного тока под действием лазерного излучения. Исследовались цепочки из частиц с тонким медным покрытием и цепочки из янус-частиц. Все частицы имели одинаковые размеры ($D \approx 5 \text{ мкм}$) и примерно одинаковые массы и электрические заряды. Эксперименты выполнены при одинаковых параметрах тлеющего разряда постоянного тока $i = 0.75 \text{ мА}$, $U = 1.6 \text{ кВ}$ в плазмообразующем газе аргоне при $P = 7.5 \text{ Па}$. На основе анализа траекторий, среднеквадратичных смещений, а также средних кинетических энергий микрочастиц, формирующих структуры, сделан вывод, что рассмотренные частицы являются активными броуновскими.

Экспериментально показано, что характер влияния лазерного излучения на квазиодномерные (цепочечные) структуры зависит от типа частиц, формирующих цепочки. С увеличением интенсивности лазерного излучения в диапазоне от 10^{-2} до $4 \cdot 10^{-2} \text{ Вт/см}^2$ средняя кинетическая энергия пылевых частиц увеличивалась на порядок и более. Все частицы цепочки совершали преимущественно круговое движение около своих положений равновесия в радиальной плоскости. Радиус кругового движения возрастал с ростом интенсивности излучения. Сохранение цепочечной структуры при этом, по-видимому, свидетельствует о пространственной размытости ионного фокуса, который предположительно может являться одним из механизмов формирования цепочек. Для определения механизмов формирования цепочечных структур в тлеющем разряде необходимы дополнительные исследования.

Средняя кинетическая энергия янус-частиц, формирующих цепочечную структуру, возрастала значительно быстрее при увеличении интенсивности лазерного излучения по сравнению со случаем покрытых частиц. За счет этого взаимное положение янус-частиц в цепочке могло изменяться при изменении интенсивности лазерного излучения, а сама цепочка деградировала. При этом некоторые признаки цепочечной структуры сохранялись даже в случае максимальной интенсивности излучения $I = 4 \cdot 10^{-2} \text{ Вт/см}^2$. Отметим, что отдельные янус-частицы покидали область страты при максимальной

мощности лазера. Из-за анизотропии свойств поверхности янус-частиц цепочечная структура, образованная такими частицами, проявляла более сложный характер движения по сравнению со структурой из полностью покрытых частиц.

ЛИТЕРАТУРА

1. И. С. Арансон, *Активные коллоиды*, УФН **183**, 87 (2013) [I. S. Aranson, *Active Colloids*, Phys. Usp. **56**, 79 (2013)].
2. C. Bechinger, R. DiLeonardo, H. Löwen et al., Mod. Phys. **88**, 045006 (2016).
3. A. Einstein, Annalender Physik **322**, 549 (1905).
4. D. Selmeczi, L. Li, L. I. Pedersen et al., Eur. Phys. J. Spec. Top. **157**, 1 (2008).
5. H. C. Berg, Springer Science and Business Media (2008), p. 134.
6. M. E. Cates, Rep. Prog. Phys. **75**, 042601 (2012).
7. S. Sanchez, A. N. Ananth, and V. M. Fomin, J. Amer. Chem. Soc. **133**, 14860 (2011).
8. W. F. Paxton, K. C. Kistler, and C. C. Olmeda, J. Amer. Chem. Soc. **126**, 13424 (2004).
9. J. Li and V. V. Singh, ACS Nano **8**, 11118 (2014).
10. V. Nosenko, F. Luoni, A. Kaouk et al., Phys. Rev. Res. **2**, 033226 (2020).
11. K. Arkar, M. M. Vasiliev, O. F. Petrov et al., Molecules **26**, 561 (2021).
12. I. I. Fairushin, M. M. Vasiliev, and O. F. Petrov, Molecules **26**, 6974 (2021).
13. X. G. Koss, E. A. Kononov, I. I. Lisina et al., Molecules **27**, 1614 (2022).
14. O. F. Petrov, K. B. Statsenko, and M. M. Vasiliev, Sci. Rep. **12**, 8618 (2022).
15. A. S. Svetlov, M. M. Vasiliev, E. A. Kononov et al., Molecules **28**, 1790 (2023).
16. R. F. Ismagilov and A. Schwartz, Angew. Chem. Int. Ed. Engl. (2002), Vol. **41**, pp. 652–654.
17. A. Perro, S. Reculosa, S. Ravaine et al., J. Mater. Chem. **15**, 3745 (2005).
18. F. M. Trukhachev, R. E. Boltnev, A. A. Alekseevskaya et al., Phys. Plasmas **28**, 093701 (2021).
19. F. M. Trukhachev, R. E. Boltnev, A. A. Alekseevskaya et al., Plasma Phys. Rep. **49**, 129 (2023).
20. E. A. Kononov, M. M. Vasiliev, E. V. Vasilieva et al., Nanomaterials **11**, 2931 (2021).
21. О. С. Ваулина, Э. А. Саметов, Е. А. Лисин, ЖЭТФ **158**, 399 (2020).
22. I. I. Lisina, E. A. Lysin, O. S. Vaulina et al., J. Phys.: Conf. Ser. **1147**, 012112 (2019).
23. I. I. Lisina and O. S. Vaulina, Phys. Scripta **89**, 105604 (2014).
24. J. E. Allen, Phys. Scripta **45**, 497 (1992).
25. J. Eymeren and G. Wurm, Mon. Not. Roy. Astron. Soc. **420**, 183 (2012).
26. M. Lampe, G. Joyce, G. Ganguli et al., Phys. Plasmas **7**, 3851 (2000).
27. I. H. Hutchinson, Phys. Rev. E **85**, 066409 (2012).
28. M. M. Vasiliev, O. F. Petrov, A. A. Alekseevskaya et al., Molecules **25**, 3375 (2020).
29. S. Jahanshahi, H. Lowen, and B. Hagen, Phys. Rev. E **95**, 022606 (2017).
30. H. Qian, M. P. Sheetz, and E. L. Elson, Biophys. J. **60**, 910 (1991).
31. H. Löwen, J. Phys. Cond. Matt. **21**, 474203 (2009).
32. В. Е. Фортов, А. Г. Храпак, С. А. Храпак и др., *Пылевая плазма*, УФН **174**, 495 (2004).
33. В. Е. Фортов, Г. Е. Морфилл, *Комплексная и пылевая плазма. Из лаборатории в космос*, Физматлит, Москва (2012).
34. О. Ф. Петров, М. М. Васильев, Йе Тун и др. ЖЭТФ **147**, 372 (2015).