

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ НАУКИ
ОБЪЕДИНЕННЫЙ ИНСТИТУТ ВЫСОКИХ ТЕМПЕРАТУР
РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК

УДК 533.9

На правах рукописи

Кононов Евгений Александрович

**АКТИВНОЕ БРОУНОВСКОЕ ДВИЖЕНИЕ
СИЛЬНОВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩИХ ЗАРЯЖЕННЫХ ЧАСТИЦ В
ГАЗОРАЗРЯДНОЙ ПЛАЗМЕ**

1.3.9 - физика плазмы

Диссертация

на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
д.ф.-м.н., проф., академик РАН
Петров Олег Федорович

Москва 2022

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ	4
ГЛАВА 1. ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ	14
1.1 Активное броуновское движение частиц	16
1.2 Виды активных броуновских частиц	18
1.3 Механизмы активного броуновского движения.....	20
1.3.1 Химические реакции.....	20
1.3.2 Акустические колебания	23
1.3.3 Эффект Марангони	24
1.3.4 Воздействие электрических и магнитных полей.....	26
1.3.5 Воздействие излучения	30
1.4 Активное броуновское движение в плазменно-пылевых системах.....	35
ГЛАВА 2. АКТИВНОЕ БРОУНОВСКОЕ ДВИЖЕНИЕ ЧАСТИЦ В ПЛАЗМЕ ВЫСОКОЧАСТОТНОГО ЕМКОСТНОГО РАЗРЯДА	39
2.1 Модификация поверхности в плазме емкостного высокочастотного разряда как явление эволюции частиц.....	39
2.1.1 Экспериментальный комплекс и средства диагностики для изучения модификации макрочастиц	40
2.1.2 Исследование модификации частиц в пылевой структуре, левитирующей в приэлектродном слое ВЧ-разряда	42
2.1.3 Исследование модификации поверхности макрочастиц, находившихся на электроде.....	47
2.2. Активное броуновское движение модифицированных частиц при воздействии лазерного излучения.....	50
2.2.1 Экспериментальный комплекс и средства диагностики для изучения движения пылевых частиц в плазме ВЧ-разряда.....	50

2.2.2 Анализ характера движения модифицированных пылевых частиц при воздействии лазерного излучения	52
2.3 Структурные переходы в плазменно-пылевой системе модифицированных частиц при воздействии лазерного излучения	55
2.3.1 Анализ изменения состояния монослоя модифицированных пылевых частиц при воздействии лазерного излучения	56
2.3.2 Оценка изменения температуры модифицированных пылевых частиц при воздействии лазера.....	59
2.4 Выводы	60
ГЛАВА 3. АКТИВНОЕ БРОУНОВСКОЕ ДВИЖЕНИЕ ЧАСТИЦ В ПЛАЗМЕ ТЛЕЮЩЕГО РАЗРЯДА ПОСТОЯННОГО ТОКА	63
3.1 Структурные переходы в цепочечной системе активных броуновских частиц при внешнем воздействии	63
3.1.1 Экспериментальный комплекс и средства диагностики для изучения цепочечных структур активных броуновских частиц.....	63
3.1.2 Анализ изменения состояния цепочечной структуры активных броуновских частиц при воздействии лазерного излучения.....	65
3.2 Явления самоорганизации в криогенной газоразрядной плазме	70
3.2.1 Экспериментальный комплекс и средства диагностики для изучения криогенной пылевой плазмы	73
3.2.2 Исследование плазменно-пылевых структур и их самоорганизации при температуре сверхтекучего гелия	76
3.2.3 Формирование волокон и наночастиц в криогенной газоразрядной плазме	81
3.3 Выводы	85
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	87
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ	90

ВВЕДЕНИЕ

Актуальность темы исследования

Одним из примеров термодинамически открытых, диссипативных систем, часто встречающихся в окружающем мире – в космосе, в технологических процессах, является плазма, содержащая левитирующие заряженные микрочастицы. Плазму, в которой возможно формирование левитирующих пылевых структур, называют пылевой. Структуры могут формироваться из различных частиц, отличающихся по форме, составу и обладающими различными свойствами, что позволяет наблюдать широкий спектр эффектов. Частицы в плазме могут быть как пассивными, так и активными броуновскими, способными автономно преобразовывать доступную энергию среды (химическую, электромагнитную, тепловую и т.д.) в собственное механическое движение. Изменение состояния плазменно-пылевых систем, сформированных из пассивных броуновских частиц, возможно только при варьировании параметров окружающей их среды (изменение параметров газового разряда). В то же время изменение состояния систем из активных броуновских частиц возможно в результате изменения кинетической температуры частиц в результате внешнего воздействия (лазерного излучения) при неизменных параметрах среды. Воздействие такой активной среды как плазма может приводить к изменению свойств макрочастиц, в результате чего их поведение в структуре может кардинально меняться: пассивные броуновские частицы могут стать активными, в результате чего такие структуры могут проявлять активные свойства, а также способность к самоорганизации при внешних воздействиях.

Структуры называются диссипативными при условии, что рассеяние поступающей извне энергии обеспечивает стационарную упорядоченную структуру с энтропией меньше равновесной. Диссипативные структуры способны к самоорганизации и эволюции при увеличении потока энтропии в окружающую

среду. Частным случаем диссипативных структур являются среды, состоящие из активных микрочастиц. В последние годы активное броуновское движение вызывает большой интерес не только в физике, но и в биологии, социологии, материаловедении и медицине. В то время как пассивные броуновские частицы находятся в тепловом равновесии с окружающей средой, активные броуновские частицы способны поглощать энергию из окружающей среды и превращать ее в свою кинетическую энергию, которая выводит их из термодинамического равновесия. Таким образом, системы активных броуновских частиц можно рассматривать как открытые системы, а сами частицы — как системы, далекие от термодинамического равновесия.

Как и равновесные системы конденсированного вещества, активная материя может находиться в различных «фазовых состояниях», которые можно классифицировать по их симметриям. (Под «фазовым состоянием» в системе далекой от равновесия понимается стационарное неравновесное состояние с определенным типом симметрии.) Принципиально нет причин, запрещающих обнаружение в активной материи тех же фаз, которые характерны для конденсированного вещества в термодинамическом равновесии. Например, как и равновесные системы, активные среды существуют в «неупорядоченном» состоянии. Согласно численным данным, переход «порядок–беспорядок» в таких системах является переходом первого рода. С точки зрения пространственной симметрии, системы активных частиц также не отличаются от сегнетоэлектрических и нематических жидких кристаллов. Однако способность активного вещества постоянно потреблять и рассеивать энергию приводит к ряду различий.

Сферы применения активных броуновских частиц разнообразны: например, разрушение вредных веществ в окружающей среде, контроль потоков вещества в миниатюрных устройствах типа «lab-on-a-chip», целевая доставка лекарства или микроустройства к больным органам. При разработке каталитических нано- и микромоторов необходима информация о способах управления их движением,

равно как и о влиянии формы и материала поверхности частиц на их коллективное поведение.

Степень разработанности темы исследования

В настоящее время исследование плазменно-пылевых систем представляет собой полностью сформировавшуюся междисциплинарную область науки, связанную с физикой плазмы и астрофизикой, механикой жидкости и материаловедением, теориями открытых систем и активных частиц.

Пылевая плазма образуется при введении в частично ионизованный газ частиц твердого/жидкого вещества микронных либо субмикронных размеров [1]. Зарядка частиц в плазме приводит к их захвату в неоднородном электрическом поле и появлению новой, коллоидной, компоненты плазмы, удобной для проведения исследований различных физических коллективных процессов (например, самоорганизации в одно-, двух- и трехмерных системах, волновых процессов) на кинетическом уровне [2, 3]. История исследований пылевой плазмы насчитывает уже почти шесть десятилетий [4]. За это время многочисленные исследования были проведены и в земных условиях [5], и на борту Международной космической станции [6-8].

Цели и задачи работы

Целью диссертационной работы являлось экспериментальное изучение активного броуновского движения частиц, формирующих упорядоченные структуры в газоразрядной плазме, в том числе при температурах сверхтекучего гелия.

Поставлены и решены следующие задачи:

- 1) Исследование модификации поверхности макрочастиц, а именно формирования металлического покрытия, после их экспозиции в приэлектродной области высокочастотного (ВЧ) разряда емкостного типа. Модернизация экспериментального стенда для захвата частиц из структуры, левитирующей над

электродом. Проведение анализа поверхности и состава частиц, размещенных на электроде и в пылевой структуре.

2) Исследование характера движения полимерных частиц с модифицированной поверхностью в монослое при воздействии лазерного излучения. Проведение сравнения линейного смещения до изменения направления движения и отклонения от направления движения макрочастиц при различных значениях мощности лазерного излучения. Поиск механизмов активности частиц с модифицированной поверхностью.

3) Анализ структурных характеристик для плазменно-пылевой системы из модифицированных полимерных частиц при воздействии лазерного излучения.

4) Исследование характера движения активных броуновских частиц в цепочечной структуре в плазме тлеющего разряда постоянного тока при воздействии лазерного излучения. Анализ структурных характеристик для цепочечной структуры при различных значениях мощности лазерного излучения.

5) Исследование плазменно-пылевых структур в тлеющем разряде гелия в газоразрядной трубке, охлаждаемой сверхтекучим гелием при температуре 1.6 К и выше.

Научная новизна работы

Модернизирован экспериментальный стенд для захвата частиц из плазменно-пылевой структуры, левитирующей в плазме высокочастотного разряда.

Впервые экспериментально исследована модификация частиц, левитирующих в пылевой структуре в плазме высокочастотного разряда, а именно формирование металлического покрытия.

Предложена и апробирована методика модификации частиц, расположенных на электроде, в плазме высокочастотного разряда. Данный подход применен для создания нового объекта исследования – янус-частиц.

Впервые экспериментально изучен характер движения частиц с модифицированной поверхностью в плазменно-пылевой структуре и их активные свойства в широком диапазоне мощности воздействующего лазерного излучения.

Впервые экспериментально изучены структурные характеристики плазменно-пылевой системы из модифицированных частиц в широком диапазоне мощности воздействующего лазерного излучения.

Показано наличие структурного перехода «кристалл-жидкость» в плазменно-пылевой структуре модифицированных частиц при воздействии лазерного излучения.

Предложено объяснение структурного перехода и возникновения активных свойств частиц с модифицированной поверхностью при воздействии лазерного излучения с учетом роли фотофоретической силы в движении макрочастиц.

Показано, что металлические частицы проявляют активные свойства в плазме тлеющего разряда постоянного тока и их активность растет с увеличением мощности лазерного излучения, приводя к структурному переходу с обменом фрагментами цепочек внутри цепочечной структуры.

Впервые экспериментально исследованы плазменно-пылевые структуры в тлеющем разряде гелия в трубке, охлаждаемой сверхтекучим гелием при температуре 1.6 К и выше.

Предложено объяснение возникновения второй и третьей компонент мультимодальной пылевой плазмы – облака наночастиц и волокон – как результат распыления материала диэлектрической вставки, используемой для концентрации потока электронов на оси разрядной трубки.

Теоретическая и практическая значимость работы

Исследования затрагивают сразу несколько областей науки, такие как: физика пылевой и низкотемпературной плазмы, физика газового разряда, химия

полимеров и материаловедение. Представленные в данной работе результаты экспериментальных исследований могут оказаться полезными широкому кругу специалистов, в том числе занимающихся созданием новых конструкционных и функциональных материалов, изучением свойств активных коллоидных систем и разработкой приложений, связанных с их использованием.

Модификация приводит к развитию у частиц уникальных функциональных свойств поверхности и состава, которые могут быть использованы как в медицинских и технических целях (адресная доставка лекарств и создание порошковых основ для композитных материалов), так и в научных (создание активных янус-частиц для изучения самоорганизации в коллоидных и плазменно-пылевых системах).

Методология и методы исследования

Для анализа структуры и состава поверхности частиц использован сканирующий электронный микроскоп (РЭМ) FEI Nova NanoSEM 650 (Thermo Fisher Scientific, Waltham, MA USA). Метод РЭМ позволяет получить изображение поверхности исследуемого материала с высоким пространственным разрешением (0,4 нм), а также провести рентгеноспектральный микроанализ (EDAX Octane Pro, EDAX, Mahwah, NJ USA) для получения элементного состава исследуемого материала.

Для исследования динамических свойств частиц и структурных характеристик плазменно-пылевых систем из них с помощью специального программного обеспечения анализировались видеозаписи, полученные в ходе экспериментов. Определялись координаты частиц для каждого момента времени (на каждом кадре видеозаписи), после чего восстанавливались траектории пылевых частиц в структурах, их скорости и ускорения.

Положения, выносимые на защиту

1. Методика формирования металлического покрытия на поверхности макрочастиц в приэлектродном слое емкостного высокочастотного разряда.
2. Результаты экспериментального изучения броуновского движения макрочастиц с модифицированной поверхностью в плазме высокочастотного разряда при лазерном воздействии.
3. Результаты экспериментального изучения лазерно-индуцированного структурного перехода «кристалл-жидкость» в монослое активных броуновских частиц при их модификации в плазме высокочастотного разряда.
4. Результаты экспериментального изучения структурного перехода в цепочечной структуре из активных броуновских частиц в тлеющем разряде постоянного тока при воздействии лазерного излучения.
5. Результаты экспериментального изучения структурных изменений многокомпонентной криогенной пылевой структуры, сформированной из макрочастиц в окружении синтезированных полимерных наночастиц и волокон, в диапазоне температур 1.6 - 2 К.

Степень достоверности и апробация результатов работы

Представленные в данной диссертационной работе результаты экспериментальных исследований с высокой точностью воспроизводятся в многочисленных экспериментах. Работа обобщает результаты, представленные в научных публикациях автора.

Результаты исследований докладывались на международных и всероссийских научных конференциях с международным участием: X International Conference «Plasma Physics and Plasma Technology» (PPPT-10): September 12-16, 2022, Minsk, Belarus; 9th International Conference on the Physics of Dusty Plasmas (ICPDP 2022), Space Research Institute (IKI), Moscow, Russia, May 23–27 2022; 18th International Workshop Complex Systems of Charged Particles and Their Interactions with Electromagnetic Radiation (CSCPIER-2022), Moscow, Russia, April 11-13, 2022;

XXXVII Fortov International Conference on Equations of State for Matter (ELBRUS 2022), Elbrus, Kabardino-Balkaria, Russia, 1–6 March 2022; 17th Physics of Nonideal Plasmas Conference. Dresden, Germany. September 20-24, 2021; XXXV International Conference on Equations of State for Matter, March 1–6, 2020, Elbrus, Kabardino-Balkaria, Russia; 64-я научная Всероссийская конференция МФТИ (г. Долгопрудный, 2021); 63-я Всероссийская научная конференция МФТИ, 23 - 29 ноября 2020; XXXIV International Conference on Interaction of Intense Energy Fluxes with Matter, Elbrus, Kabardino-Balkaria, Russia, March 1–6, 2019; 61-ая Всероссийская научная конференция МФТИ, Долгопрудный, 19– 25 ноября 2018; 60-я Научная конференция МФТИ, Москва - Долгопрудный - Жуковский, 20–26 ноября 2017 г.

Исследования в рамках диссертационной работы поддержаны грантом РФФИ № 20-32-90039, стипендией Президента Российской Федерации для поддержки молодых ученых СП-5688.2021.1.

По теме исследований опубликованы 9 научных работ в ведущих зарубежных и российских рецензируемых научных журналах из перечня ВАК:

1. Koss K.G., **Kononov E.A.**, Lisina I.I., Vasiliev M.M., Petrov O.F. «Dynamic Entropy of Two-Dimensional Active Brownian Systems in Colloidal Plasmas» // *Molecules*. – 2022. – V. 27. – P. 1514.

2. **Kononov E.A.**, Vasiliev M.M., Vasilieva E.V., Petrov O.F. «Particle Surface Modification in the Near-Electrode Region of an RF Discharge» // *Nanomaterials*. – 2021. – V. 11. – P. 2931.

3. Arkar K., Vasiliev M.M., Petrov O.F., **Kononov E.A.**, Trukhachev F.M., «Dynamics of Active Brownian Particles in Plasma» // *Molecules*. – 2021. – V. 26. – P. 561.

4. Boltnev R.E., **Kononov E.A.**, Trukhachev F.M., Vasiliev M.M., Petrov O.F., «Synthesis of nanoclusters and quasy one-dimensional structures in glow discharge at $T \approx 2$ K» // *Plasma Sources Science and Technology*. – 2020. – Vol. 29. – P. 085004.
5. Vasiliev M.M., **Kononov E.A.**, Arkar K., Petrov O.F., «Dynamics of motion of particles with a modified surface in a dusty plasma monolayer» // *Journal of Physics: Conference Series*. – 2020. – V. 1556. – P. 012074.
6. **Kononov E.A.**, Vasiliev M.M., Petrov O.F., «Localization of active particles in chain structures in a direct current discharge under external influence» // *Journal of Physics: Conference Series*. – 2020. – V. 1556. – P. 012075.
7. Boltnev R.E., Vasiliev M.M., **Kononov E.A.**, Petrov O.F., «Formation of solid helical filaments at temperatures of superfluid helium as self-organization phenomena in ultracold dusty plasma» // *Scientific Reports*. – 2019. – V. 9. – P. 3261.
8. **Кононов Е.А.**, Васильев М.М., Петров О.Ф., «Лазерно-индуцированный фазовый переход в монослое полимерных частиц, левитирующих в газоразрядной плазме низкого давления» // *Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики*. – 2018. – Т. 153(5), – С. 721-725.
9. Болтнев Р.Е., Васильев М.М., **Кононов Е.А.**, Петров О.Ф., «Явления самоорганизации в криогенной газоразрядной плазме: формирование пылевого облака наночастиц и плазменно-пылевых волн» // *Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики*. – 2018. – Т. 153(4), – С. 671-676.

Личный вклад автора работы

Все представленные в диссертационной работе результаты получены автором лично или при его непосредственном участии. Автор принимал участие в подготовке и проведении экспериментальных работ, обработке и анализе результатов. Также автор активно участвовал в совместных обсуждениях и подготовке рукописей к публикации.

Структура и объем диссертации

Диссертационная работа состоит из введения, трех глав, заключения и библиографии. Общий объем работы составляет 106 страниц, включая 34 рисунка, 3 таблицы и список цитируемой литературы, содержащий 153 наименования.

ГЛАВА 1. ОБЗОР ЛИТЕРАТУРЫ

За последнее десятилетие исследование активной материи (active matter) стало одним из самых захватывающих и бурно развивающихся новых направлений в физике «мягкого» конденсированного вещества (soft matter), а также в области статистической механики и материаловедения [1-4]. Раздел физики, изучающий подобные системы – физика конденсированного состояния или физика «мягкого вещества» (англ. «Soft matter Physics»). Превалирующее число таких систем в окружающем мире – коллоидные: жидкие продукты животного происхождения, нефть, краски, аэрозоли, пылевая плазма и многое другое. В рамках данной дисциплины рассматриваются физические принципы, определяющие поведение микроэмульсий, пен, жидких кристаллов, мицелл и других коллоидных систем, находящихся широкое применение как в фундаментальных исследованиях, так и в производственных технологиях [5, 6]. Активная материя может значительно изменяться под действием тепловых флуктуаций, а при приложении незначительного внешнего воздействия наблюдаются деформации. Также влияние оказывает изменение концентрации вещества в системе, внутренние взаимодействия и др. Динамика и самоорганизация в таких системах, влияние внешних факторов на них представляются перспективными для исследовательских работ.

Активная материя представляет собой новый и весьма сложный объект. Активные частицы способны автономно преобразовывать доступную энергию окружающей среды (химическую, электромагнитную, тепловую и т.д.) в собственное механическое движение. Синтетические активные частицы, как правило, состоят из композиционных материалов, составные части которых по-разному взаимодействуют со средой или имеют различный отклик на внешние возмущения. Независимо от природы своего происхождения, система активных частиц находится вдали от термодинамического равновесия. В жидких и газообразных коллоидных системах реализуется броуновское движение частиц [7,

8]. Обычно оно является пассивным, так как обусловлено тепловым хаотичным движением среды и ее взаимодействием с частицами. В том случае, если система преобразует получаемую извне энергию в направленное движение частиц в ней, уже возникает активное броуновское движение. Интересно, что способностью к активному броуновскому движению обладают не только микрообъекты вроде бактерий и янус-частиц, но и живые организмы и системы макромасштаба. В настоящее время наиболее перспективными направлениями использования активных коллоидных систем являются медицина, химические технологии, нанотехнологии, фотоника и др. Примерами является направленный транспорт лекарственных веществ, биомаркеры, материалы для микроэлектроники и энергосберегающих технологий, также потенциально активные коллоидные системы могут применяться в нефтяной промышленности. Изучение явлений, связанных с структурными переходами в активных системах, в том числе в плазменно-пылевых структурах активных броуновских частиц – актуальная задача, позволяющая исследовать эволюцию и самоорганизацию сильнонеидеальных диссипативных систем.

Динамика активных систем в лабораторных условиях может быть весьма разнообразна: от образования и разрушения структур до их качественной эволюции. Управление коллоидными системами, находящимися в неравновесном состоянии, является фундаментальной задачей, которая может быть полезной для разработки инновационных материалов, а также для понимания закономерностей активности у искусственных и живых объектов. Исследуются неравновесные процессы в активных системах из-за потенциального применения их в самособирающихся структурах с заданными характеристиками. Таким образом, изучение поведения активных броуновских частиц в коллоидной системе при внешнем воздействии может позволить наблюдать и анализировать их механизмы самоорганизации, что является интересной и актуальной задачей на текущий момент.

1.1 Активное броуновское движение частиц

Классическое пассивное броуновское движение характерно для любой гомогенной среды, где энергия равномерно распределена по системе [9]. Данное пассивное движение броуновской частицы является чисто диффузионным и характеризуется коэффициентом трансляционной диффузии:

$$D_T = \frac{k_B T}{6\pi\eta R}, \quad (1.1)$$

где k_B – постоянная Больцмана, T – абсолютная температура, η – вязкость, R – эквивалентный (гидродинамический) радиус активной частицы.

В то же время движущаяся пассивная частица подвержена вращательной диффузии (англ. rotational diffusion), которая может быть описана через коэффициент вращательной диффузии и характерное время τ_R :

$$D_R = \tau_R^{-1} = \frac{k_B T}{8\pi\eta R^3} \quad (1.2)$$

Трансляционную составляющую движения определяет линейный размер частицы (радиус), а вращательную – её объём. В случае однородной среды это независимые друг от друга параметры. Тогда в двумерном пространстве можно описать движение частицы следующей системой стохастических выражений:

$$\dot{x} = \sqrt{2D_T}\xi_x, \quad \dot{y} = \sqrt{2D_T}\xi_y, \quad \dot{\varphi} = \sqrt{2D_R}\xi_\varphi, \quad (1.3)$$

где $[x, y]$ – координаты частицы, φ – угол поворота частицы относительно произвольной неподвижной оси, $\xi_x, \xi_y, \xi_\varphi$ – случайные несвязанные величины с нулевым средним значением и единичной дисперсией. Имеют вероятностное распределение, отличное от гауссовского.

Если же частица активная (рисунок 1.1), т.е. движется самостоятельно в результате преобразования энергии из внешних источников с некоторой скоростью u , то её движение само по себе подвержено вращательной диффузии D_R . Возникает

зависимость между поступательной и вращательной составляющей, а стохастические выражения для описания движения преобразуются:

$$\dot{x} = v \cos \varphi + \sqrt{2D_T} \xi_x, \quad \dot{y} = v \sin \varphi + \sqrt{2D_T} \xi_y, \quad \dot{\varphi} = \sqrt{2D_R} \xi_\varphi \quad (1.4)$$

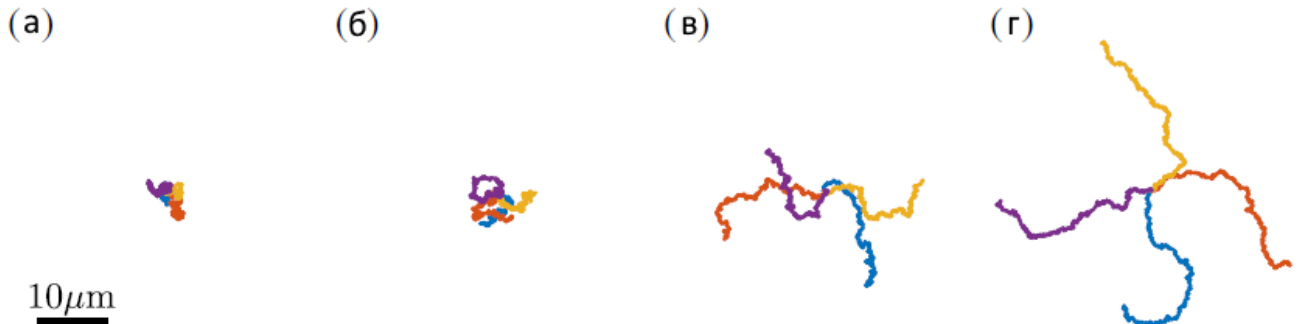


Рисунок 1.1 – Траектории активных броуновских частиц в воде. Броуновская частица (а) с нулевой скоростью (пассивная броуновская частица), (б) $v = 1$ мкм/с, (в) $v = 2$ мкм/с, (г) $v = 3$ мкм/с.

Для частицы в начальный момент времени $t = 0$ вышеописанные выражения имеют вид:

$$x(0) = y(0) = 0; \quad \varphi(0) = 0 \quad (1.5)$$

Среднее линейное смещение вдоль направления и по нормали к вектору скорости для пассивной броуновской частицы равно нулю из-за учёта симметрии случайных процессов:

$$\langle x(t) \rangle = \langle y(t) \rangle \equiv 0 \quad (1.6)$$

Тогда как для активной частицы среднее смещение по нормали к вектору скорости $\langle y(t) \rangle \equiv 0$, а смещение в направлении движения $\langle x(t) \rangle$ отлично от нуля и приобретает следующий вид:

$$\langle x(t) \rangle = \frac{v}{D_R} (1 - e^{-D_R t}) = v \tau_R (1 - e^{-t/\tau_R}) \quad (1.7)$$

где v – средняя скорость частицы.

Охарактеризовать расстояние, пройденное частицей по направленной прямолинейной траектории до преобразования движения в случайно направленное можно линейным смещением L (англ. persistence length):

$$L = \frac{v}{D_R} = v\tau_R \quad (1.8)$$

Активные частицы находят применение как в фундаментальной, так и в прикладных областях. Изучение поведения активных частиц и систем, далеких от равновесия, коллективных эффектов – одно из основных фундаментальных направлений физики. В то же время, направленное перемещение активных микро- и нанообъектов находит практическое применение в медицине, экологических задачах и микроэлектронике.

1.2 Виды активных броуновских частиц

Активная система, состоящая из активных броуновских частиц, может получить энергию извне и преобразовывать её в кинетическую энергию движения [2]. Как следствие, наблюдаются явления, характерные только для движущихся систем: способность к самопередвижению, самовосстановлению; свойство роения (англ. swarming). На систему могут действовать извне электрические и магнитные поля, а также гидродинамические потоки. В результате возникают силы или вращательные моменты на частицах в объёме среды и на границе раздела фаз. Также химическими реакциями либо воздействием на систему ультрафиолетовым или гамма-излучением можно сообщить энергию изнутри. Подобным способом индуцируются микропловцы (англ. microswimmers) и янус-частицы (ассиметричные частицы) [10].

Часто предпочтительное направление движения для активных частиц (например, биологических агентов) задает их пространственная конфигурация (голова-хвост) [11]. Данная асимметрия присуща высшим организмам, в то же время схожий тип движения наблюдается у клеток, управляемых полярным актиновым цитоскелетом [12-15]. Также предпочтительное направление движения

может определяться движущим механизмом, что можно наблюдать для искусственных активных частиц, таких как химически активные коллоиды.

Примером активного броуновского движения, возникающего как коллективный эффект, является внутриклеточный транспорт с помощью связанных молекулярных моторов. Моторные белки, такие как миозин или кинезин, движутся вдоль волокон (актина, микротрубочек) внутри клетки, транспортируют везикулы или обеспечивают активные силы [16, 17]. Одиночные моторы имеют предпочтительное направление движения вдоль данной нити, движение, которое обеспечивается АТФазой. Во многих ситуациях моторы связаны друг с другом, например, при коллективной тяге к большой везикуле [18]. Коллективные эффекты в агрегатах моторов можно изучать *in vitro* в анализах подвижности, в которых роли транспортера и трека поменялись местами: на стеклянной поверхности, покрытой моторами, зафиксированными в своем положении, происходит перемещение нити с участием, как правило, большого числа моторов (до нескольких сотен). Коллективный эффект, который был обнаружен в таких экспериментах — это возникновение двунаправленного движения. Нить, движущаяся некоторое время в одном направлении, спонтанно изменяет направление движения на противоположное. Движения и движется "в обратную сторону" [19].

Коллоидные системы, содержащие твердые микро- и наночастицы, могут приводиться в движение с помощью различных внешних и внутренних сил. В качестве практического применения данного явления разработаны различные устройства, названные микропловцами. Искусственные микропловцы — это коллоидные частицы, сравнимые по размеру и механизму движения с живыми микроорганизмами, которые могут перемещаться в жидкости. Их размеры обычно лежат в пределах 1-10 мкм. В отличие от природных организмов, искусственно созданные микропловцы обычно не имеют движущихся частей и вместо этого взаимодействуют с окружающей средой посредством химических реакций (путем создания химического, электрического или теплового градиента вблизи своей

поверхности посредством протекания поверхностных химических реакций) и преобразованием полученной энергии в движение.

1.3 Механизмы активного броуновского движения

1.3.1 Химические реакции

Активные системы способны преобразовывать химическую свободную энергию в системе в собственную механическую энергию движения путем протекания химической реакции. Частицы, активность которых проявляется благодаря химическим реакциям, достигают наибольших скоростей по сравнению с другими видами индуцирования активности. Движение частиц может реализовываться с помощью поверхностных химических реакций с созданием локальных градиентов в системе, с помощью изменения рН дисперсионной среды, изменения дзета-потенциала и др. [20-23].

Например, в исследовании [24] движение микропловцов реализовывалось с помощью фотохимических реакций. Микропловцы представляли собой янус-частицы, которые состояли из медного либо золотого ядра, покрытого слоем диоксида титана TiO_2 . В качестве среды использовалась вода или водный раствор перекиси водорода. При нахождении частиц под видимым спектром света им присуще только броуновское движение. В то же время, при воздействии на систему ультрафиолетовым излучением происходило поверхностное фотокаталитическое разложение H_2O_2 , в результате чего заметно увеличивалась интенсивность движения янус-частиц в 0,5% растворе перекиси. При воздействии ультрафиолета на частицы в воде без перекиси водорода также наблюдалось направленное движение частиц, а на длительных временах – их самосборка в трехмерные структуры. На рисунке 1.2 приведены траектории частиц: наиболее интенсивное движение наблюдается в растворе перекиси водорода при воздействии ультрафиолетового излучения (рисунок 1.2e), которое поглощается диоксидом титана.

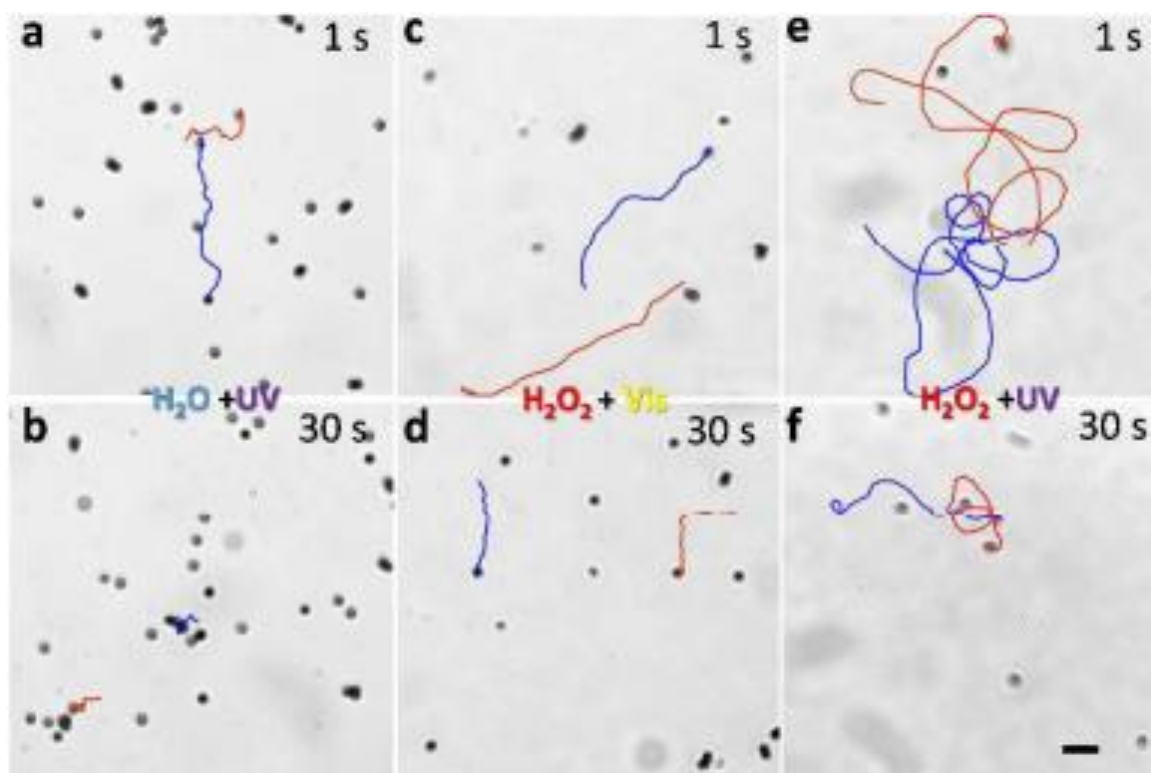


Рисунок 1.2 – Траектории движения медных янус-частиц с покрытием из диоксида титана: (a, b) - в воде при УФ-освещении, (c, d) - в перекиси водорода при видимом свете, (e, f) - в перекиси водорода при УФ- освещении.

Также в зависимости от состава янус-частиц наблюдались различия в самоорганизации частиц. При добавлении в систему пассивных броуновских частиц происходила их самосборка возле активных с образованием протяженных гексагональных структур. Кластеры из частиц на основе меди перемещались с большей скоростью, чем в случае частиц на основе золота, так как поверхность меди обладает более сильными фотокаталитическими свойствами по сравнению с золотом.

В аналогичном эксперименте [25] наблюдалось движение стержнеобразных частиц диаметром 370 нм, состоящих из сегментов Pt и Au длиной 1 мкм каждый, в водных растворах пероксида водорода, при этом наблюдалась генерация кислорода на платиновой части стержня. Движение стержней можно объяснить эффектом самоэлектрофореза: каждый стержень в системе представляет собой «батарею», в качестве анода которой служит платина, а в качестве катода –

золото. При попадании биметаллических стержней в среду, содержащую водный раствор перекиси водорода, поверхностные электрохимические реакции создают ток от анода к катоду и дополнительный ионный ток в электролите. Реакция окисления на аноде вводит положительные ионы в раствор, а реакция восстановления на катоде потребляет положительные ионы. Продукты этих реакций вызывают положительный заряд жидкости, окружающей половину из Pt, и отрицательный заряд жидкости, окружающей половину из Au, что создает электрический диполь и соответствующее электрическое поле в жидкости. В результате самопроизвольного возникновения электрического поля стержни приводятся в движение. Возникшее электрическое поле воздействует на отрицательно заряженный стержень и положительные заряды в двойном электрическом слое, окружающем стержни. В результате возникновения течения положительно заряженной жидкости к катоду отрицательно заряженный стержень-анод совершает направленное движение (рисунок 1.3).

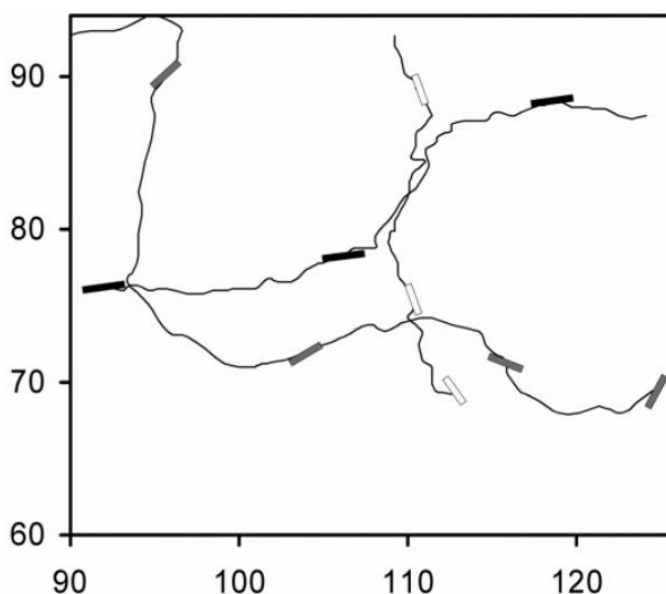


Рисунок 1.3 – Траектории трёх AuPt стержней длиной 2 мкм каждый в 2.5% растворе перекиси водорода.

Как и электролитные аккумуляторы, стержни преобразуют химическую энергию реакции в электрическую энергию, которая, в свою очередь, преобразуется в кинетическую энергию направленного движения.

1.3.2 Акустические колебания

Активное броуновское движение частиц может быть вызвано акустическими воздействиями на систему [26]. В работе исследовалось движение металлических (Au, Pt, Ru) и биметаллических (AuRu и AuPt) стержней длиной 1-3 мкм и диаметром 300 нм, помещенных в воду. При воздействии на частицы непрерывным или импульсным ультразвуком наблюдалась их левитация, вращение и самосборка в кольца и полосы внутри системы. При изменении амплитуды акустической волны наблюдалось изменение скорости движения стержней. На рисунке 1.4 приведены структуры, возникавшие в результате сборки твердых частиц. Также реализовывалось направленное движение стержней вдоль краев этих структур и вращение вокруг центра кольцевых структур. При этом разные стержни внутри одной структуры могли вращаться как по часовой стрелке, так и против часовой стрелки. На основе этого наблюдения сделан вывод, что движение металлических частиц в акустическом поле не зависит от их объединения в кольца или полосы; т.е. сборка стержней в структуры не прекращает их направленное движение и не меняет направление их движения. Также, в отличие от полимерных частиц в акустическом поле, металлические стержни формировали не только плотное кольцо, но и образовывали множество концентрических малых колец меньшей плотности внутри общей структуры.

Возникновение активного броуновского движения частиц было обусловлено эффектом самопроизвольного акустофореза – движения из-за возникновения градиента акустического давления [27, 28]. Для коротких промежутков времени наблюдается направленное движение частиц, а на длительных временах направление движения частиц становится случайным. В то же время движение частиц приобретает диффузионный характер с эффективным коэффициентом диффузии, который значительно превышает значение для пассивного броуновского движения.

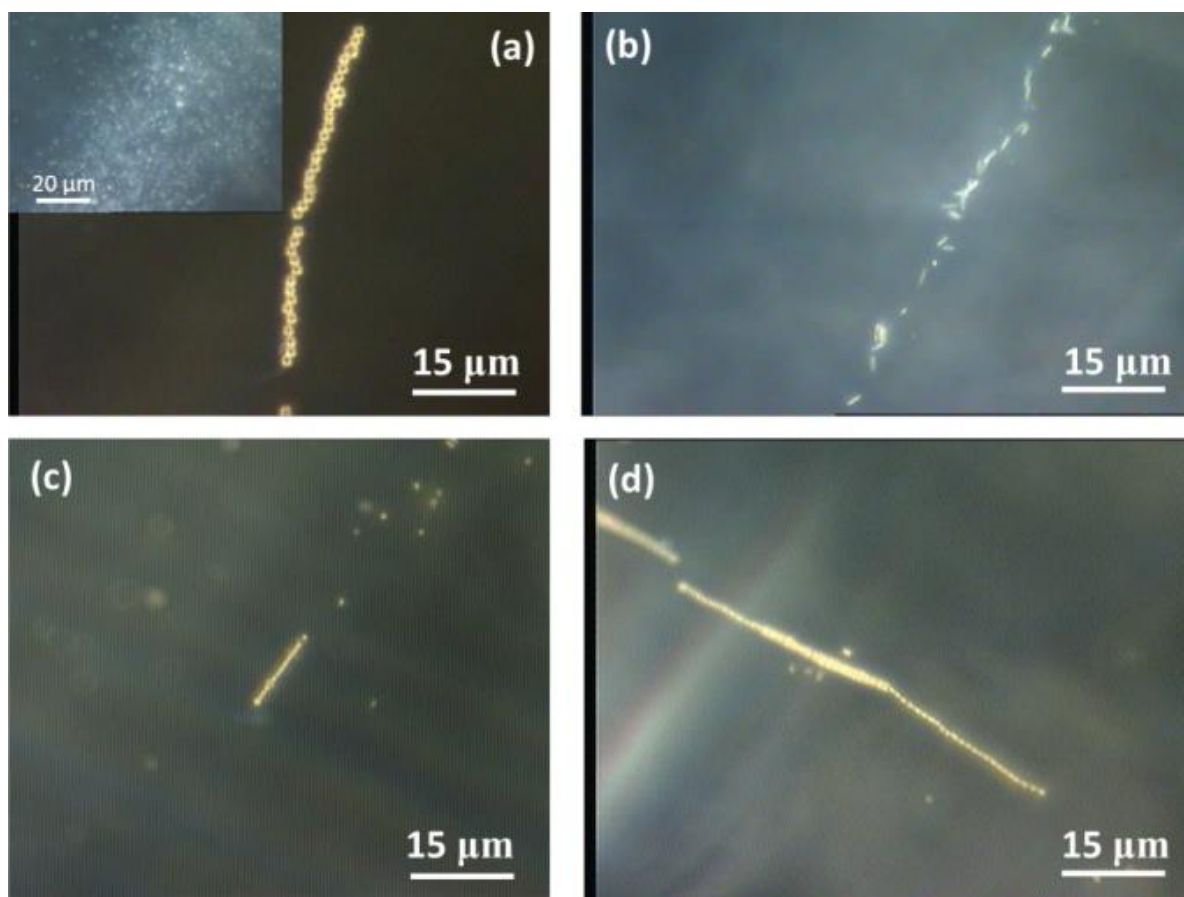


Рисунок 1.4 – Цепочечные структуры, образованные различными микрочастицами в акустическом поле: полимерными частицами (a, b), золотыми микросферами (c), золотые микростержнями (d).

1.3.3 Эффект Марангони

В результате нарушения симметрии на поверхности капля эмульсии равномерная концентрация ПАВ переходит в структуру из нескольких зон с разной концентрацией, из-за чего возникает градиент поверхностного натяжения [29]. В этом случае капля приходит в движение из-за смещения слоев жидкости в сторону роста поверхностного натяжения. Такое явление, характерное для термодинамически неравновесных систем, называется эффектом Марангони. Скорость движения жидкости прямо пропорционально градиенту поверхностного натяжения:

$$\mathbf{u} \sim \nabla_s \sigma, \quad (1.9)$$

где \mathbf{u} – вектор скорости потока жидкости, $\nabla_s \sigma$ – градиент поверхностного натяжения.

Эффект Марангони в большей степени характерен для двух- и одномерных систем (например, тонких слоев жидкости).

В исследовании [30] изучалась активная эмульсия октана в водном растворе додецилсульфата натрия, на внешней поверхности монодисперсных капель которой был нанесен водный раствор аммиака. С помощью технологии капельной микрофлюидики были получены капли октана в водном растворе со средним диаметром 70 мкм. Возникал градиент поверхностного натяжения $\nabla_s \sigma$, капли двигались в пределах всей области, в которую был добавлен аммиак (рисунок 1.5). С помощью изменения концентрации аммиака скорость капель эмульсии варьировалась в пределах от 200 до 2000 мкм/с. Также на систему влияло добавление неиндифферентного для используемого ПАВ электролита – при использовании додецилсульфата натрия в качестве стабилизатора капель эмульсии электролитом был раствор хлорида натрия.

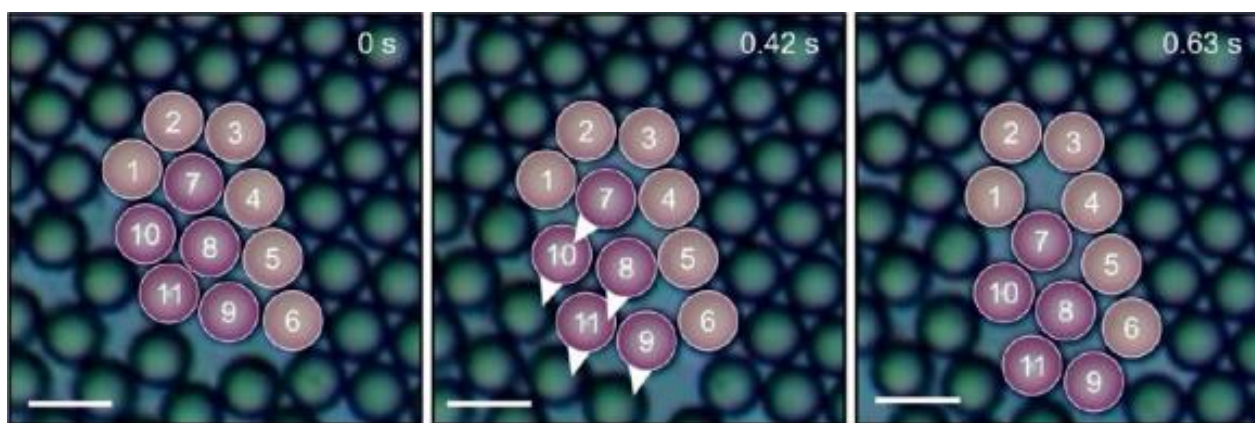


Рисунок 1.5 – Движение капель активной эмульсии со скоростью 1592 мкм/с.

Полученная активная система представляла собой «коллоидный кристалл» - двумерную упорядоченную структуру. Возникновение коллоидных кристаллов в активных эмульсиях обусловлено силами ван-дер-Ваальса и силами взаимного притяжения частиц в структуре. Скорость роста коллоидного кристалла линейно возрастает с ростом скорости активных капель эмульсии.

1.3.4 Воздействие электрических и магнитных полей

В коллоидных системах можно наблюдать различные неравновесные процессы, называемыми управляемыми или активными [31], при воздействии внешних электрических и магнитных полей:

1. **Диссипативные:** процессы, в результате которых внешняя энергия расходуется на переход системы из начального термодинамического состояния в новое состояние динамического неравновесия или в состояние статической кинетической ловушки.

2. **Управляемые:** тип диссипативного коллоидного взаимодействия, в котором движение частиц и их сборка в структуры обусловлены общим градиентом энергии.

3. **Активные:** тип диссипативного коллоидного взаимодействия, в котором сборка в структуры и движение частиц определяется локальными для частиц градиентами энергии.

4. **Статическая сборка:** механизм сборки, в котором конечная структура сохраняется независимо от характеристик внешнего источника энергии, в т.ч. и после его исчезновения.

5. **Динамическая сборка:** механизм сборки, формирующий структуры, которые зависят от переходных характеристик поля (напряженность и частота), структура существует только при наличии источника энергии требуемой мощности и распадается после его отключения.

6. **Пассивное движение:** миграция частиц через результирующий градиент поля.

Взаимное расположение элементов системы изменяется при приложении электрического либо магнитного поля изменяется. Приложение внешнего переменного электрического поля нарушает двойной электрический слой, окружающий коллоидную частицу в растворе (рисунок 1.6а). В случае приложения

магнитного поля происходит упорядочение локальных магнитных моментов внутри коллоидной частицы (рисунок 1.6b).

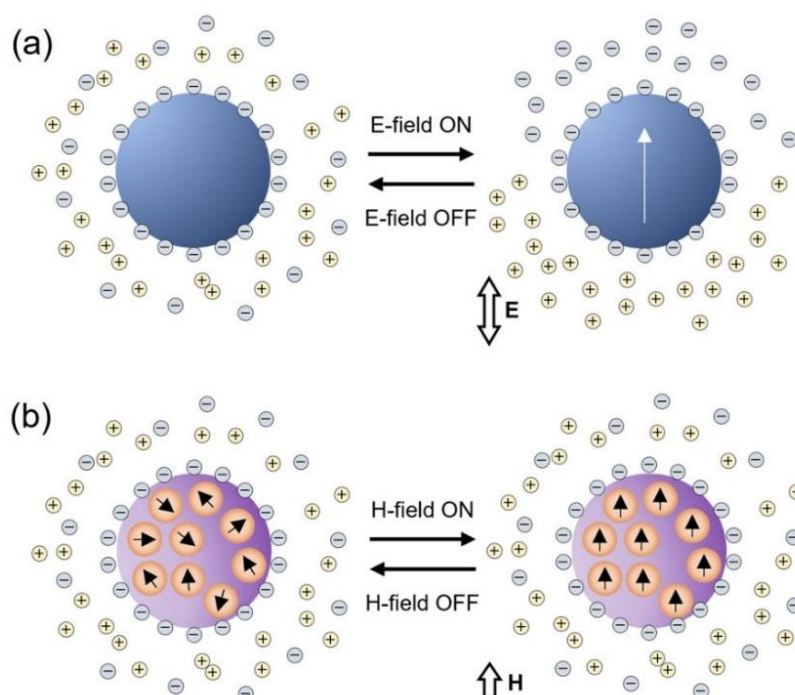


Рисунок 1.6 – Влияние электрического (a) и магнитного (b) полей на коллоидную частицу.

Приложение электрических полей эффективно для систем с большим количеством частиц, так как слабо- или непроводящие коллоидные частицы могут быть легко поляризованы в водной среде. С электрическим полем также взаимодействуют присутствующие в дисперсной среде свободные ионы, что может вызывать возникновение локальных потоков электролита вблизи частиц.

В исследовании [32] экспериментально изучалось действие электрического поля на проводящую систему из частиц бронзы диаметром 100 мкм в растворе спирта в толуоле. При изменении напряженности поля или концентрации спирта структуры приходят в движение (рисунок 1.7а-в), а при смене направления поля вращающиеся вихри преобразуются в пульсирующие кольца (рисунок 1.7г-и). В экспериментах с частицами диаметром 2-3 мкм (сферы из золота) наблюдались также дендритные структуры и самособирающиеся нити [33].

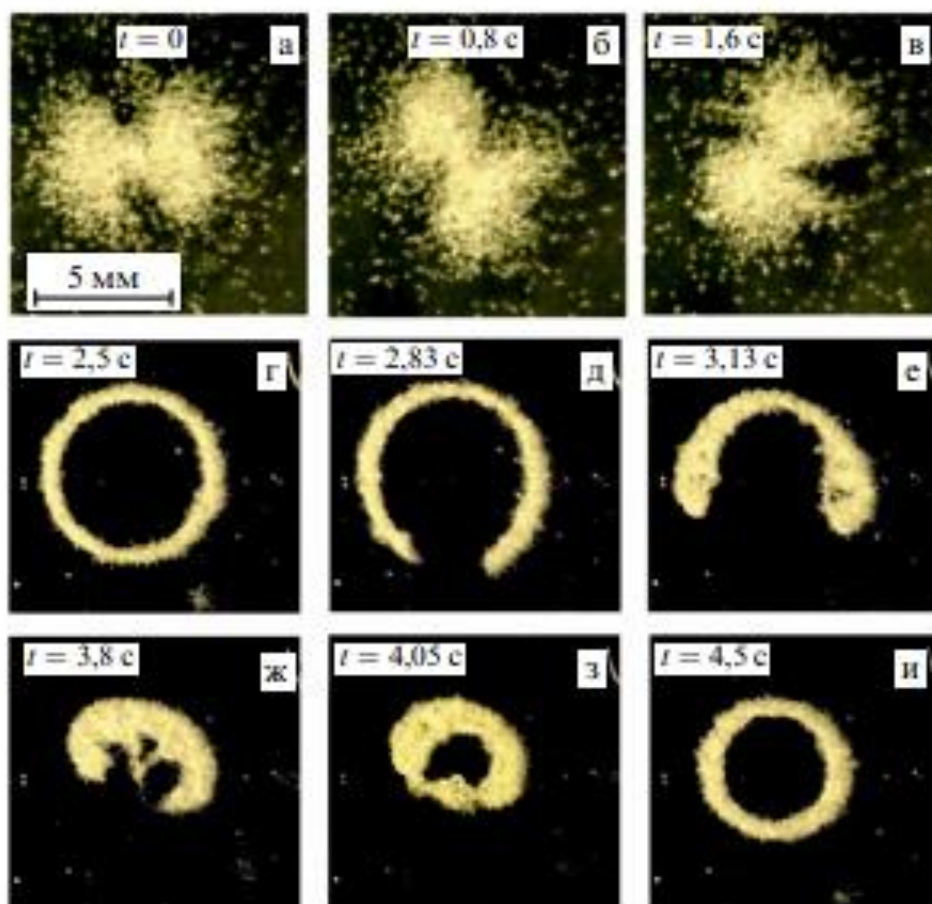


Рисунок 1.7 – Вращающийся бинарный вихрь-звезда (а-в), пульсирующие кольца (г-и).

Магнитные поля не контактируют напрямую с коллоидной системой и не вызывают электрохимических реакций. Возможность применения магнитного индуцирования определяется магнитными свойствами коллоидных частиц: они должны быть магнитными или содержать магнитный домен (парамагнетики и ферромагнетики), позволяющий им быть восприимчивыми к магнитному полю. В постоянном магнитном поле могут наблюдаться цепочечные кластеры и объёмные коллоидные кристаллы. При изменении поля возрастает и сложность образующихся структур: от самособирающихся микропловцов до квазистатических листов и мембран.

В работе [34] использовались ферромагнитные никелевые сферы диаметром 100 мкм, взвешенные на границе раздела сред вода-воздух. Частицы подвергались воздействию внешнего магнитного поля частотой 140 Гц и амплитудой 80 кА/м,

направленного по нормали к границе раздела сред. При некоторых значениях частоты f и амплитуды поля H_0 наблюдалась самосборка частиц в «магнитные змеи» - подвижные линейные змеевидные объекты, состоящие из ферромагнитно упорядоченных цепочек (рисунок 1.8). Расстояние между соседними сегментами «змей» λ зависит от частоты поля f , а ширина «змей» W определяется амплитудой H_0 . Взаимосвязь поля и расстояния λ можно описать эмпирическим соотношением:

$$f^2 \approx \frac{g}{2\pi\lambda} + \frac{2\pi\sigma}{\rho\lambda^3}, \quad (1.10)$$

где g – ускорение свободного падения, σ – поверхностное натяжение, ρ – плотность жидкости.

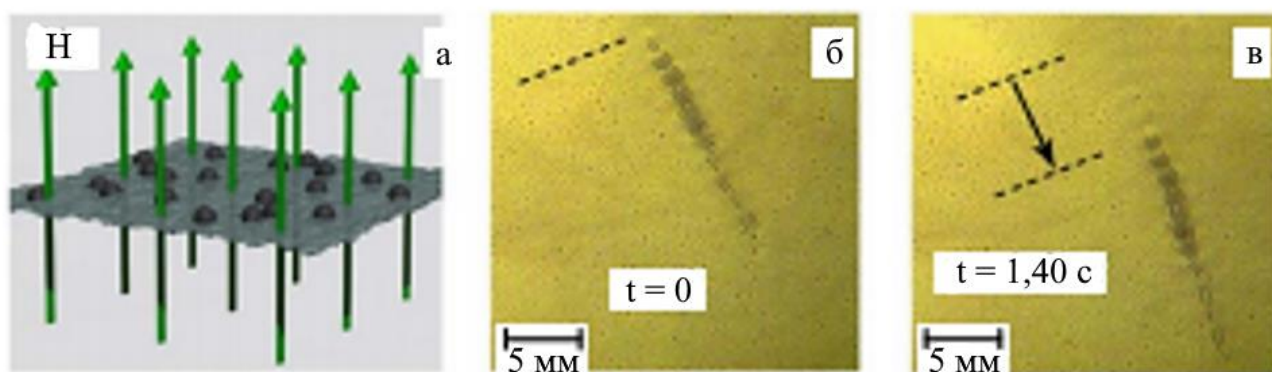


Рисунок 1.8 – Однородное переменное магнитное поле и ферромагнитные частицы на поверхности воды (а), магнитная «змея» из ферромагнитных частиц (б, в).

При малых частотах f «змей» не приходят в движение. Траектория и скорость частиц может регулироваться магнитным полем. Интересно, что такие частицы могут захватывать и переносить другие частицы (в т.ч. немагнитные).

В перспективе подобные самодвижущиеся системы могут быть использованы в медицине для направленного транспорта лекарственных веществ и др.

1.3.5 Воздействие излучения

Воздействие света на активные частицы также может приводить их в движение посредством возникновения локальных градиентов температуры и термофореза, либо путем поверхностных химических реакций. Подобные системы не требуют наличия магнитных включений или модификации функциональными группами.

В работе [35] было исследовано движение Янус-частиц, которое осуществлялось с помощью свето-индуцированного диффузионного осмоса. При воздействии синим светом с длиной волны 455 нм на коллоидную систему на межфазной границе возникает градиент концентрации из-за реакции изомеризации фотоактивных изомеров (рисунок 1.9). В результате изменяется осмотическое давление и появляется поток дисперсионной среды вдоль границы раздела фаз.

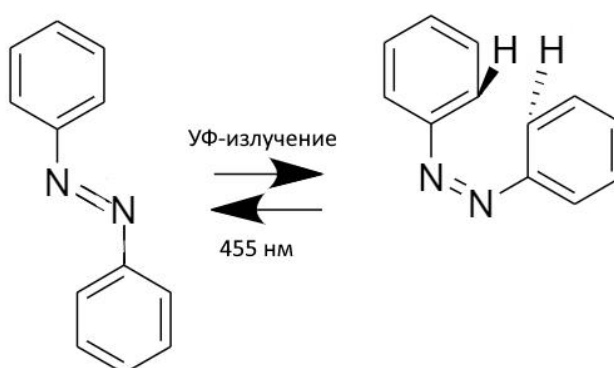


Рисунок 1.9 – Схема реакции изомеризации азобензола при световом воздействии

Для индуцирования активного движения были использованы пористые микрочастицы кремнезема, наполовину покрытые 40 нм слоем золота. Частицы помещались в раствор, содержащий способное к изомеризации фотоактивное вещество. При воздействии световым излучением на систему транс-изомеры азобензола (гидрофобные) преобразовывались в цис-изомеры (гидрофильные), в результате чего возникали диффузионные локальные потоки у поверхности частиц, взаимодействие которых приводит к отталкиванию соседних частиц. Скорость

движения частиц зависела от интенсивности облучения: от 0.2 мкм/с при плотности мощности 0.01 мВт/см² до 1.4 мкм/с при 8 мВт/см².

Коэффициент эффективной диффузии рассчитывался по формуле:

$$D_{eff} = \frac{k_B T}{6\pi\eta R} + \frac{1}{4}v^2\tau_R \quad (1.11)$$

где k_B – постоянная Больцмана, T – температура, η – вязкость, R – радиус активной частицы, v – скорость активной частицы, τ_R – характерное время вращательной диффузии.

Также активность в системе может индуцироваться с помощью ультрафиолетового излучения. В работе [36] изучалось движение янус-частиц SiO₂-Ag диаметром 2.34 мкм в системе, сформированной в 0.5% растворе перекиси водорода. При воздействии на данную систему ультрафиолетового излучения наблюдалось движение частиц из освещенной области (рисунок 1.10). Оно обусловлено фотолизом Ag при воздействии излучения, так как в освещенной области индуцируется реакция между Ag и H₂O₂ с образованием ионов Ag⁺ и гидропероксила HO₂⁻. Из-за разности коэффициентов диффузии ионов возникает градиент концентрации ионов, приводящий к движению частиц из освещенной области (с наибольшей концентрацией) в «теневую» (с меньшей концентрацией), что также характерно для эффекта Марангони.

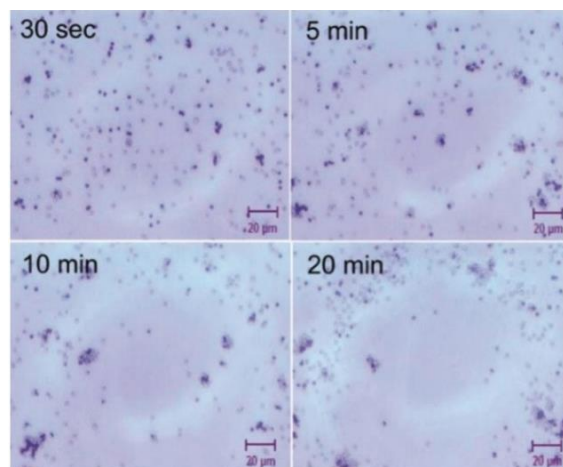


Рисунок 1.10 – Янус-частицы SiO₂-Ag под действием ультрафиолетового излучения.

В исследовании [37] на коллоидную систему, состоящую из сфер из (3-метакрилоксипропила) триметоксисилана, содержащих внутри маленький куб гематита, воздействовали извне лазерным излучением с длиной волны от 430 до 490 нм. Частицы помещались в раствор перекиси водорода, гидроксида тетраметиламмония и додецилсульфата натрия. При воздействии лазерного излучения частицы приходили в движение, достигая скоростей до 15 мкм/с, и образовывали различные структуры (Рисунок 1.11), которые разрушались в отсутствии лазерного излучения.

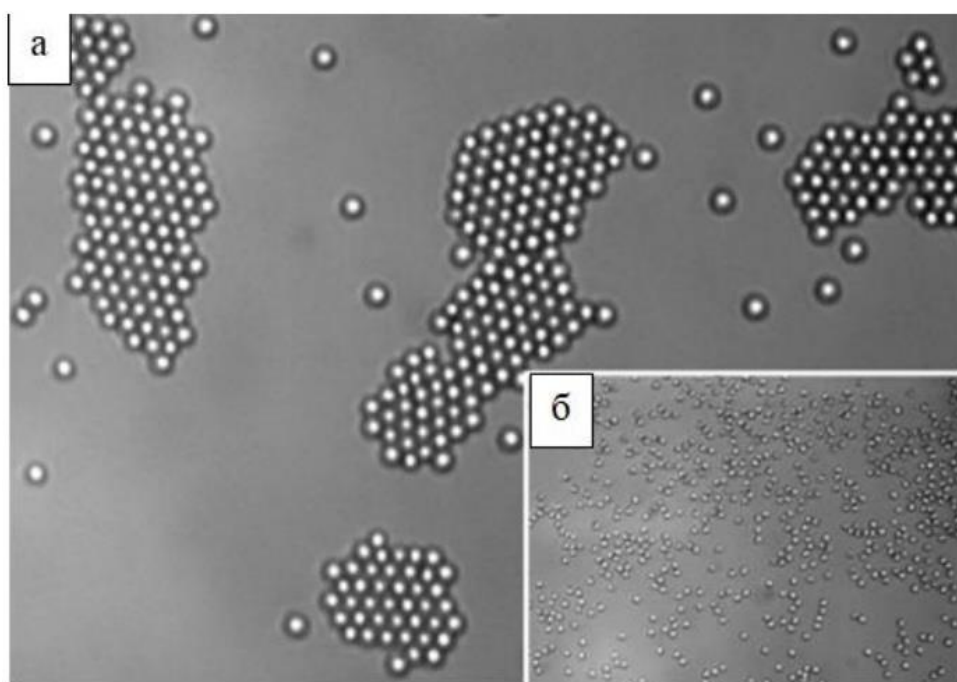


Рисунок 1.11 - Образование структур через 350 с после включения лазера (а), распад структур через 100 с после выключения излучения (б).

В этом эксперименте движение частиц объясняется взаимодействием перекиси водорода и гематита, для которых лазерное излучение служит катализатором реакции, сопровождающейся выделением кислорода и тепла. Движение пузырьков кислорода приводит к появлению градиентов концентрации и температуры, что вызывает движение самих частиц.

В движение могут приходиться и полностью органические коллоидные системы, на которые воздействует излучение. В работе [38] исследовалось

поведение органических коллоидных микрочастиц из гиперразветвленных полимеров, которые приводились в управляемое движение с помощью ультрафиолетового света. Средний размер дисперсных частиц составил 2.1 мкм, дисперсионная среда представляла собой смесь воды и диметилсульфоксида в соотношении 1:5. Для получения фотоактивного соединения использовался 3',3'-диметил-1'-(2-гидроксиэтил)-6-нитроспиро [2H-1-бензопиран-2,2'-индолин] (спиропиран), которым функционализировали гиперразветвленный полимер Boltorn H40.

При воздействии ультрафиолетового излучения на коллоидную систему частицы приходили в движение в направлении освещаемой области. Движение частиц индуцировалось в результате изомеризации спиропирана при ультрафиолетовом излучении, что приводило к изменению межфазного поверхностного натяжения. При добавлении соли хлорида натрия в раствор скорость движения частиц увеличивалась.

Было рассчитано среднее значение среднеквадратичного смещения для 30 частиц при различной интенсивности УФ-излучения. При интенсивности излучения 34 мВт/см² зависимость среднеквадратичного смещения от времени практически линейная. При увеличении интенсивности УФ-излучения до 89 мВт/см² зависимость имеет вид, приближенный к параболическому, что может быть обусловлено более активным движением частиц. При мощности излучения 192 мВт/см² кривая также имеет параболический вид, но среднеквадратичное со временем изменяется быстрее, чем при меньших значениях плотности мощности.

Также движение Янус-частиц при воздействии лазера может быть обусловлено термофоретической силой. Для сферических коллоидных частиц из однородного материала не существует поверхностного градиента температуры и не возникает самопроизвольно термофоретическое движение, характерное для неоднородных частиц, состоящих из фрагментов с различной фотокаталитической активностью [39]. Интенсивность движения частицы определяется разностью

показателей тепло- и электропроводности её частей, а также удельной площадью ее поверхности [40].

Стоит учитывать, что термофоретические свойства активных частиц могут меняться при наличии в системе поверхностно-активного вещества, которое адсорбируется на поверхности частиц. При отсутствии ПАВ под действием термофореза частицы перемещаются в область с более низкой температурой, тогда как при наличии ПАВ – в область с повышенной температурой [41].

Активные частицы, используемые в исследованиях, можно разделить на два структурных типа: изотропные макрочастицы и янус-частицы. В первом случае облучаемая сторона частицы получает больше энергии, что приводит к локальному градиенту освещенности частицы в направлении распространения света, который преобразуется в химический градиент посредством поверхностной фотокаталитической реакции. Возникает самоэлектрофорез, частица движется параллельно световому потоку. Янус-частицы могут переориентироваться в однородном световом поле из-за несимметричного нагрева - происходит выравнивание (поляризация) частицы по световому градиенту. Дальнейшее движение частицы вдоль или против светового градиента будет определяться её положением и взаимодействием облучаемой области с окружающей дисперсионной средой [42].

В работе [43] исследовалось движение частиц полистирола, наполовину покрытых золотом (толщина покрытия 25 нм). Частицы диаметром 1 мкм образовывали монослой между двумя стеклянными пластинками (Рисунок 1.12). Лазерное излучение поглощалось покрытой частью частицы, возникал локальный температурный градиент, реализовывался «само-термофорез» (англ. self-thermophoresis) – термофоретическое движение в отсутствии внешнего температурного градиента, приводящий к термофорезу частицы.

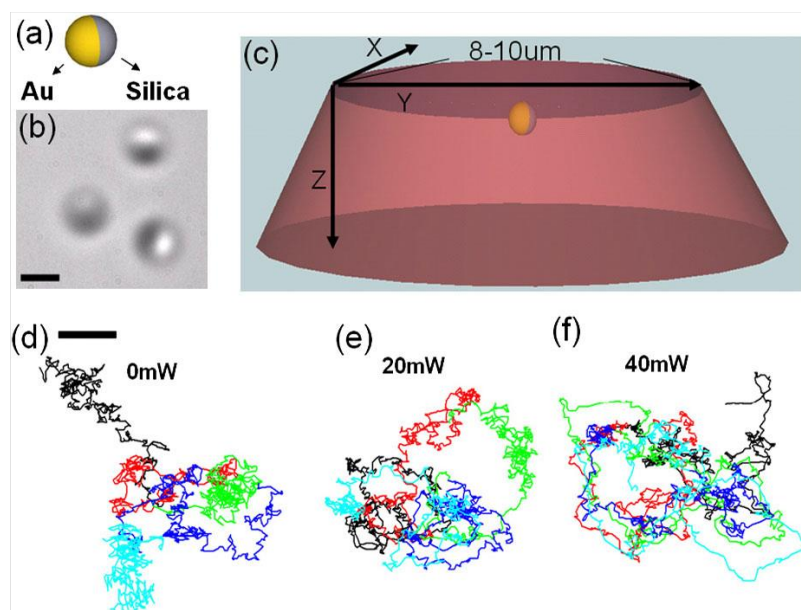


Рисунок 1.12 - Схема янус-частицы (а), янус-частицы под микроскопом (b), схема янус-частицы в камере, красная область освещается лазером (с), траектории янус-частиц в течение 10 секунд в плоскости XY при различных мощностях лазера (d-f).

Помимо твердых янус-частиц, используют и жидкофазные янус-капли, состоящие из двух несмешивающихся жидкостей. Под действием излучения в подобных коллоидных системах наблюдались такие коллективные эффекты, как образование кластеров и их вращение. С помощью тепловых градиентов возможно менять направление и скорость активных капель. Также влияние на характер движения капель оказывал их химический состав, способ их формирования, используемого для стабилизации ПАВ и температуры [44].

1.4 Активное броуновское движение в плазменно-пылевых системах

Основные составляющие окружающего мира – это плазма и пыль. По современным данным, более 99.9 % видимого вещества во Вселенной является плазмой. Плазма может возникать в результате ионизации звезд, в условиях высокой температуры. Процессы ионизации могут протекать в туманностях, разреженном межзвездном газе и пылегазовых облаках в результате действия ультрафиолетового излучения. Таким образом, в результате взаимодействия между компонентами плазмой и пылью возникает новый объект для исследования: система, содержащая помимо характерных носителей зарядов (электронов и ионов)

заряженные частицы конденсированного вещества – пылевые частицы. В свою очередь, заряженные частицы могут существенным образом влиять на свойства содержащей их плазменной среды. Для обозначения такой плазмы, как правило, применяется термин «пылевая плазма» (англ. *dusty plasma*), также могут использоваться термины «комплексная плазма», «коллоидная плазма», «плазма с конденсированной дисперсной фазой».

Одним из примеров термодинамически открытых, диссипативных систем, часто встречающихся в окружающем мире – в космосе, в технологических процессах, является плазма, содержащая левитирующие заряженные микрочастицы [45]. Плазму, в которой возможно формирование левитирующих пылевых структур, называют пылевой. Пылевые структуры могут формироваться из различных частиц, отличающихся по форме, составу и обладающими различными свойствами, что позволяет наблюдать широкий спектр эффектов. Частицы в плазме могут быть как пассивными, так и активными броуновскими, способными автономно преобразовывать доступную энергию среды (химическую, электромагнитную, тепловую и т.д.) в собственное механическое движение. Изменение состояния плазменно-пылевых систем, сформированных из пассивных броуновских частиц, возможно только при варьировании параметров окружающей их среды (изменение параметров газового разряда). В то же время изменение состояния систем из активных броуновских частиц возможно в результате изменения кинетической температуры частиц в результате внешнего воздействия (лазерного излучения) при неизменных параметрах среды. Воздействие такой активной среды как плазма может приводить к изменению свойств макрочастиц, в результате чего их поведение в пылевой структуре может кардинально меняться: пассивные броуновские частицы могут стать активными, в результате чего такие структуры могут проявлять активные свойства, а также способность к самоорганизации при внешних воздействиях.

Для проведения экспериментов по изучению свойств пылевой плазмы в наземных лабораториях используются газовые разряды, протекающие при

давлениях плазмообразующего инертного газа от 1 до 10^3 Па [45-47]. Генерируемая плазма содержит ионы и электроны в концентрациях порядка 10^8 - 10^{10} см⁻³, при этом температура электронов $T_e \sim 1 - 7$ эВ существенно выше температуры ионов $T_i \sim 0.025 - 0.03$ эВ. Линейные размеры пылевых частиц, инжектируемых в плазму, лежат в диапазоне от сотен нанометров (нанокластеры вещества) до десятков мкм (в случае полимерных макрочастиц или стеклянных микросфер). В результате высокой подвижности электронов частицы в плазме приобретают значительный отрицательный заряд величиной в диапазоне $10^3 - 10^5 e$. Сильно взаимодействуя между собой, заряженные частицы могут формировать квазистационарные пылевые структуры жидкостного или кристаллического типа, в которых могут наблюдаться структурные переходы. Таким образом, пылевая плазма является уникальным объектом, позволяющим изучать различные явления, в том числе процессы самоорганизации и эволюции на кинетическом уровне.

В настоящее время исследование пылевой плазмы представляет собой активно развивающуюся междисциплинарную область науки, связанную с физикой плазмы и астрофизикой, механикой жидкости и материаловедением, теориями открытых систем и активных частиц, что подтверждается многочисленными экспериментальными и теоретическими исследованиями [46, 47]. Зарядка частиц в плазме приводит к их захвату в неоднородном электрическом поле и появлению новой, пылевой, компоненты плазмы, удобной для проведения исследований различных физических коллективных процессов (например, самоорганизации в одно-, двух- и трехмерных системах, волновых процессов) на кинетическом уровне [48, 49]. Пылевая плазма является термодинамически открытой, диссипативной системой, которая может существовать в состояниях, подобных жидкости или кристаллу, и образовывать анизотропные трехмерные (в том числе квазиодномерные и квазидвумерные) структуры [50].

В пылевой плазме могут формироваться различные типы структур, такие как кристаллические или жидкостные, в которых могут наблюдаться структурные переходы [46]. Широкий спектр наблюдаемых эффектов в плазменно-пылевых

структурах, в том числе плавление и другие структурные переходы, происходящих в результате различных воздействий, например, изменения параметров газового разряда, описан в работах [47, 51, 52].

Изучение явлений, связанных с двумерным структурным переходом «кристалл-жидкость» в плазменно-пылевых структурах – актуальная задача, позволяющая исследовать эволюцию и самоорганизацию сильнонеидеальных систем. В частности, плавление плазменного кристалла может быть вызвано равномерным ростом кинетической энергии частиц в плазменно-пылевой системе при воздействии лазерного излучения, выражающимся в изменении только кинетической температуры частиц при неизменных параметрах окружающей их среды [53]. При этом рост кинетической энергии частиц в пылевой структуре можно объяснить эффектом фотофореза. Фотофоретическая сила, действующая на пылевые частицы, возникает при их нагреве поглощенным лазерным излучением, в результате чего растет передаваемый импульс молекулами буферного газа, поскольку молекулы газа после соударения с разогретой поверхностью частицы покидают ее с большей скоростью [54]. Действие фотофоретической силы приводит к росту случайного движения макрочастиц в плазменно-пылевой структуре. Данный эффект наблюдался в работах [53, 55], при формировании плазменного кристалла из покрытых металлом частиц.

Полимерные частицы эффективно рассеивают лазерное излучение и поглощением можно пренебречь, следовательно, при воздействии лазерного излучения явления фотофореза не будет, а возникающая сила светового давления приводит к явлению продавливания частиц в пылевой структуре [56]. В то же время воздействие такой активной среды, как плазма, может привести к модификации полимерных частиц, в результате которой могут изменяться их размеры и поверхность [57, 58], что может привести к возникновению новых эффектов.

ГЛАВА 2. АКТИВНОЕ БРОУНОВСКОЕ ДВИЖЕНИЕ ЧАСТИЦ В ПЛАЗМЕ ВЫСОКОЧАСТОТНОГО ЕМКОСТНОГО РАЗРЯДА

2.1 Модификация поверхности в плазме емкостного высокочастотного разряда как явление эволюции частиц

В данном разделе описана модификация поверхности макрочастиц в приэлектродном слое емкостного высокочастотного разряда, изученная в работе [1].

Высокочастотные (ВЧ-) разряды широко используются в различных областях науки и техники [2], в том числе для исследования плазменно-пылевых систем заряженных частиц [3]. В плазме ВЧ-разряда можно формировать левитирующие пылевые системы с использованием частиц микронных размеров, различающихся по форме и составу, а также наблюдать широкий спектр эффектов, возникающих в результате различных воздействий, например, изменения параметров газового разряда [4]. При внешних воздействиях такие системы могут проявлять активные свойства, а также способность к самоорганизации [5].

В то же время известно, что в плазме могут изменяться размеры и поверхность частиц, образующих пылевую систему [6, 7]. Действие такой активной среды, как плазма, может привести к развитию уникальных свойств у макрочастиц. В результате их поведение в плазменно-пылевой системе может резко измениться: пассивные броуновские частицы могут стать активными, что может вызвать различные явления, такие как структурные переходы, кластеризация и т.д. Существует также проблема образования центров плавления в кристаллических системах, вызванных движущимися частицами, источником которых, предположительно, являются электроды.

2.1.1 Экспериментальный комплекс и средства диагностики для изучения модификации макрочастиц

На рисунке 2.1 представлена схема эксперимента. Исследования проводились в плазме емкостного ВЧ-разряда, создаваемого между двумя дискообразными электродами внутри газоразрядной камеры. Электроды диаметром 186 мм расположены на расстоянии 60 мм друг от друга. Электроды были подсоединены к источнику питания с помощью медных подводов. В центре верхнего стального электрода сделано отверстие диаметром 80 мм для введения частиц в область разряда и видеорегистрации процессов, проходящих в разряде. Инжектированные частицы, попадая в разряд, приобретают отрицательный заряд за счет потоков ионов и электронов, идущих к их поверхности, в результате чего они начинают левитировать в приэлектродном слое над нижним электродом за счет баланса гравитационных и электрических сил. Для сбора частиц из пылевой структуры в нижнем алюминиевом электроде сделано отверстие диаметром 71 мм, в которое вставлялась сетка с квадратными ячейками со стороной 2.4 мм. Такая конфигурация нижнего электрода способствует удержанию частиц в потенциальной ловушке, так, что частицы оказываются в центре приэлектродного слоя и образуют плазменно-пылевую систему. Под нижним электродом на специальном держателе находился выдвижной столик с двусторонней электропроводящей углеродной лентой, на который улавливались пылевые частицы из структуры после отключения разряда. Кроме того, на верхнем электроде была закреплена пластина с углеродной лентой с размещенными на ней частицами.

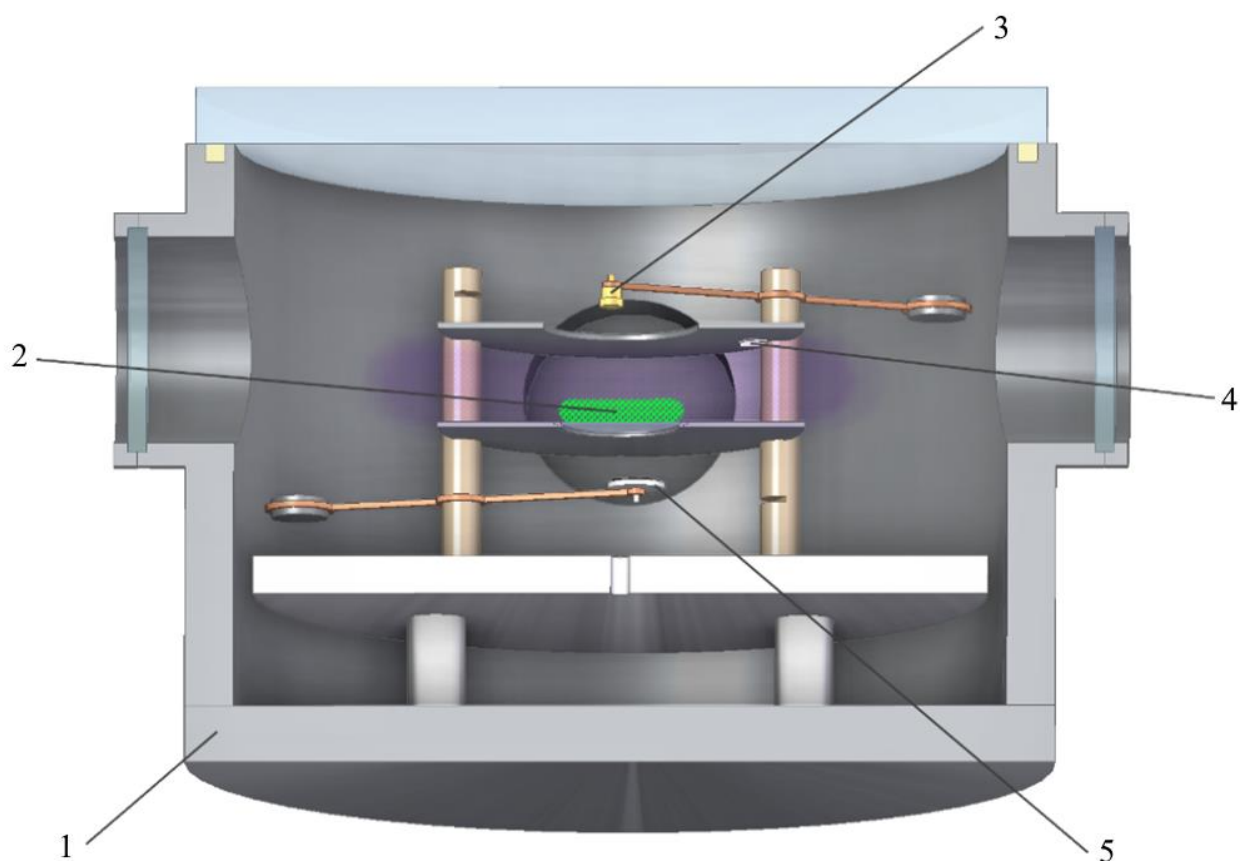


Рисунок 2.1 - Схема эксперимента: 1 – экспериментальная камера; 2 – плазменно-пылевая структура над сеткой; 3 – контейнер с частицами; 4 – пластина с частицами на электроде; 5 – выдвижное устройство для улавливания частиц.

Газоразрядная камера полностью откачивалась и заполнялась плазмообразующим газом – аргоном до давления 5 Па. Рабочая камера в ходе эксперимента непрерывно откачивалась турбомолекулярным насосом, давление поддерживалось непрерывной подачей рабочего газа со скоростью 2 стандартных см³/мин. Таким образом, плазма разряда сохраняла неизменные свойства на протяжении всего эксперимента. На электроды подавалось переменное напряжение от высокочастотного генератора с частотой 13.56 МГц, в результате чего возникал тлеющий разряд. Генерация плазмы осуществлялась при мощности $W_{\text{load}} = 15$ Вт, при этом отраженная мощность составляла $W_{\text{ref}} = 4$ Вт.

В экспериментах использовались два типа монодисперсных сферических меламин-формальдегидных (МФ) частиц, производимых компанией MicroParticles

GmbH (Berlin, Germany): диаметром 10.6 ± 0.1 мкм без покрытия и диаметром 10.0 ± 0.2 мкм с медным покрытием (толщина покрытия ≈ 200 нм). Каждый эксперимент проводится только с одним типом частиц, подвергаемых воздействию плазмы в двух разных местах: 1) равномерное воздействие на всю поверхность во время левитации частиц в слое разряда над нижним электродом (в плазменно-пылевой системе), 2) воздействие на половину поверхности расположенных на верхнем электроде частиц. После выключения разряда частицы извлекались из обоих мест для дальнейшего анализа.

Для анализа исходных частиц до воздействия плазмы и извлеченных после экспозиции использован сканирующий электронный микроскоп (РЭМ) FEI Nova NanoSEM 650 (Thermo Fisher Scientific, Waltham, MA USA). Метод РЭМ позволяет получить изображение поверхности исследуемого материала с высоким пространственным разрешением (0.4 нм), а также провести рентгеноспектральный микроанализ (EDAX Octane Pro, EDAX, Mahwah, NJ USA) для получения элементного состава исследуемого материала.

2.1.2 Исследование модификации частиц в пылевой структуре, левитирующей в приэлектродном слое ВЧ-разряда

Основное исследование проводилось для частиц МФ без покрытия, образующих пылевые системы из ~ 2000 частиц над нижним электродом. На рисунке 2.2 представлена типичное изображение получаемых квазидвумерных пылевых структур.

Экспериментально установлено, что состав и структура поверхности частиц изменяются: на их поверхности осаждаются металлы, и после 30 мин воздействия или более появляется островковое металлическое покрытие (см. рисунок 2.3). Размер островков составляет 100-200 нм после 30 мин воздействия, а центры кристаллизации распределены по поверхности частиц неравномерно.

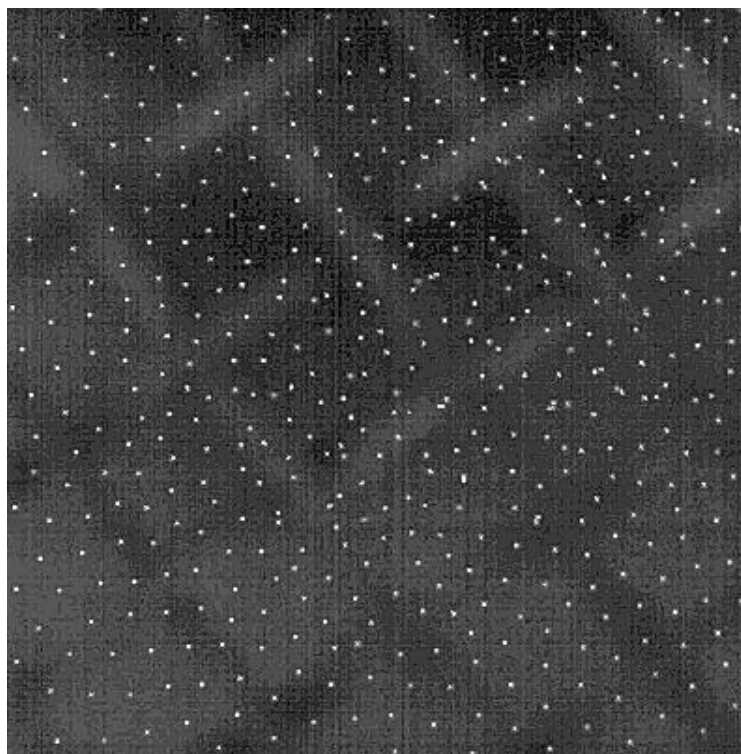
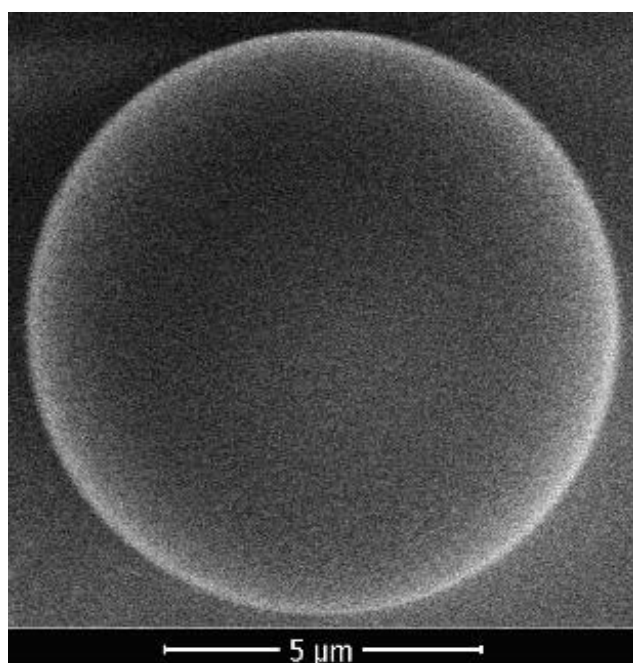
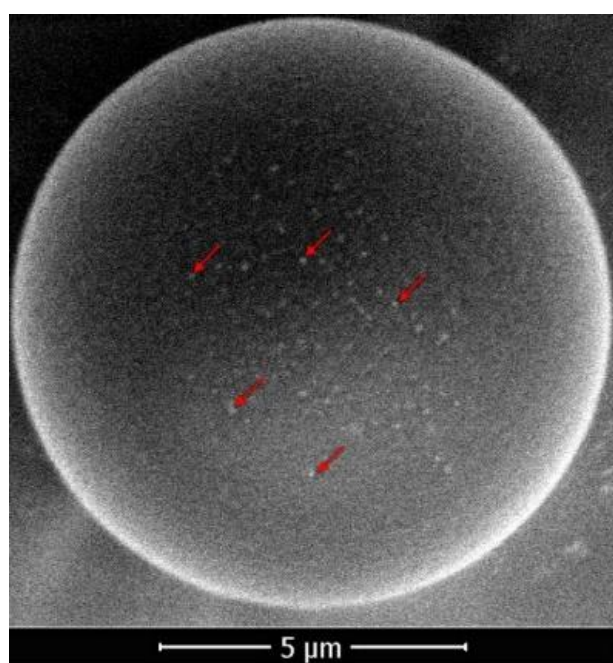


Рисунок 2.2 – Кадр видеозаписи квазидвумерной плазменно-пылевой системы, парящей над сеткой.



(a)



(б)

Рисунок 2.3 – РЭМ-изображения полимерных частиц без покрытия (а) до и (б) после 30 мин воздействия плазмы в плазменно-пылевой системе. Красными стрелками отмечено островное металлическое покрытие.

Был проанализирован состав поверхности исходных частиц до экспозиции в плазме, а также частиц после экспозиции, уловленных на углеродную ленту выдвижного устройства под решеткой после выключения разряда. Результаты рентгеноспектрального микроанализа представлены на рисунках 2.4 и 2.5, а также в таблице 2.1. Анализ показал, что в составе поверхности уловленных частиц появились металлы, источниками которых могут быть стальные и алюминиевые электроды, а также медные провода, соединяющие электроды с ВЧ-генератором. При воздействии низкоэнергетических ($E_i \sim 100$ эВ) потоков ионов [8] происходит эрозия электродов и других металлических поверхностей, находящихся в контакте с плазмой. Продукты эрозии осаждаются на поверхности частиц и образуют островное покрытие. Содержание металла в частицах различно и достигает 2.53 мас. % для железа, 1.54 мас. % для меди и 0.38 мас. % для алюминия после 6 ч воздействия плазмы.

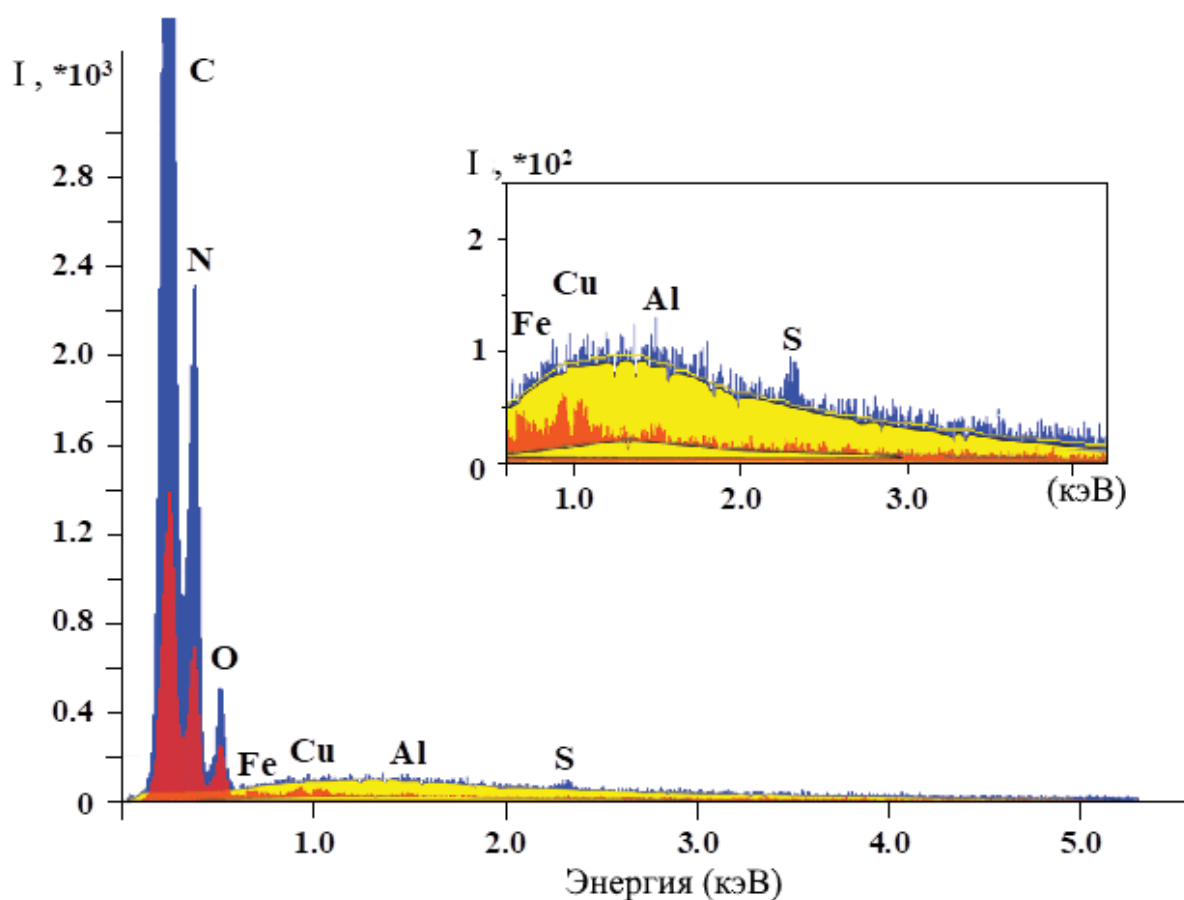


Рисунок 2.4 – Спектры составов частиц без покрытия до (синий) и после (красный) 6 ч воздействия плазмы. Желтым цветом обозначен фон.

Рассматривая временную зависимость количества металла на поверхности частиц (рисунок 2.5 и таблица 2.1), можно увидеть, что металл начинает осаждаться на поверхности частиц уже через 1 мин воздействия, и его количество увеличивается со временем. При этом изменение элементного состава поверхности нелинейно во времени. Кроме того, островковое покрытие не наблюдается до 30 мин воздействия.

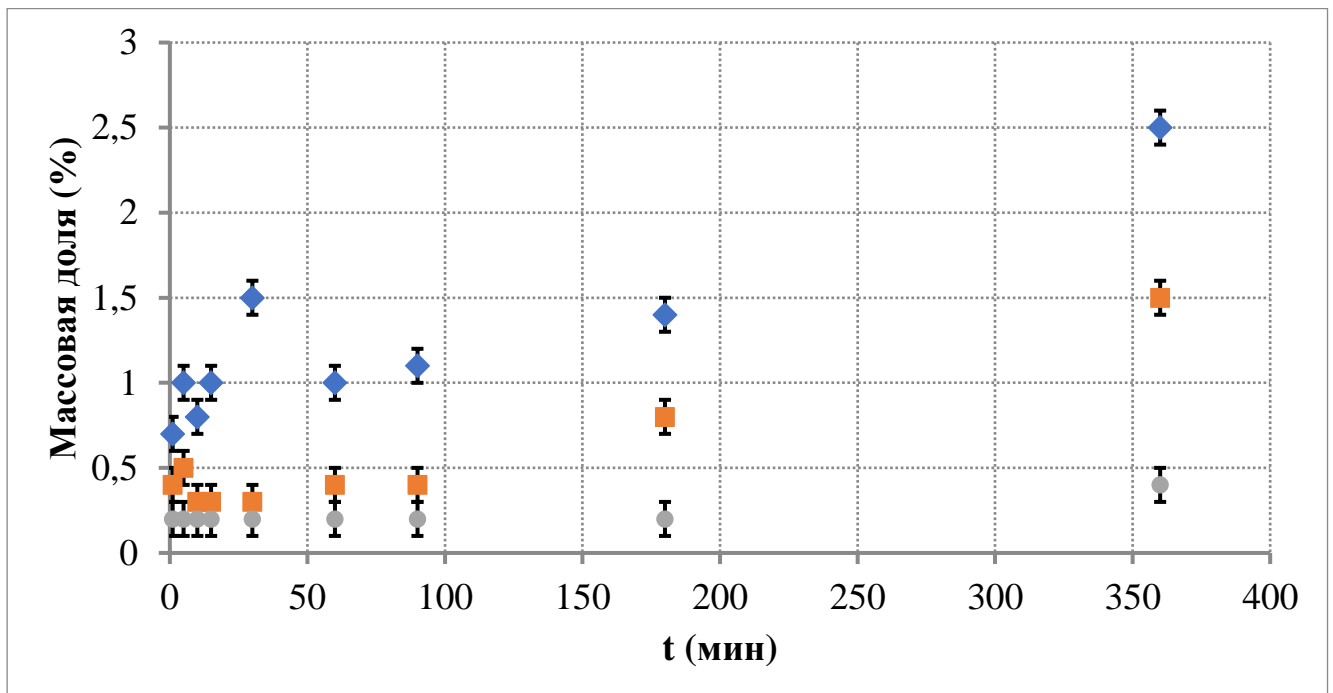


Рисунок 2.5 – Массовая доля элементов различных типов металлов на поверхности частиц МФ, левитирующих в плазменно-пылевой системе, при различном времени экспозиции. ● – для Al, ■ – для Cu, ◆ – для Fe.

В то же время, для частиц с медным покрытием, левитирующих в плазменно-пылевой системе, никаких изменений в структуре поверхности не наблюдалось в течение всего времени эксперимента (6 ч), хотя элементный состав поверхности изменился (см. таблицу 2.2).

Таблица 2.1 – Элементный состав частиц меламина-формальдегида в зависимости от времени выдержки в пылевой структуре.

Время, мин	Элемент (мас. %)						
	Fe	Cu	Al	C	N	O	S
0	-	-	-	31.8	55.9	11.9	0.4
1	0.7	0.4	0.2	37	53	8.3	0.4
5	1	0.5	0.2	38.8	50.5	8.6	0.4
10	0.8	0.3	0.2	38.8	50.9	8.6	0.4
15	1	0.3	0.2	38.9	50.3	8.9	0.4
30	1.5	0.3	0.2	38.7	49.9	9	0.4
60	1	0.4	0.2	37.7	52	8.3	0.4
90	1.1	0.4	0.2	37.4	52.2	8.3	0.4
180	1.4	0.8	0.2	36.2	52	9	0.4
360	2.5	1.5	0.5	37.6	46	11.5	0.4

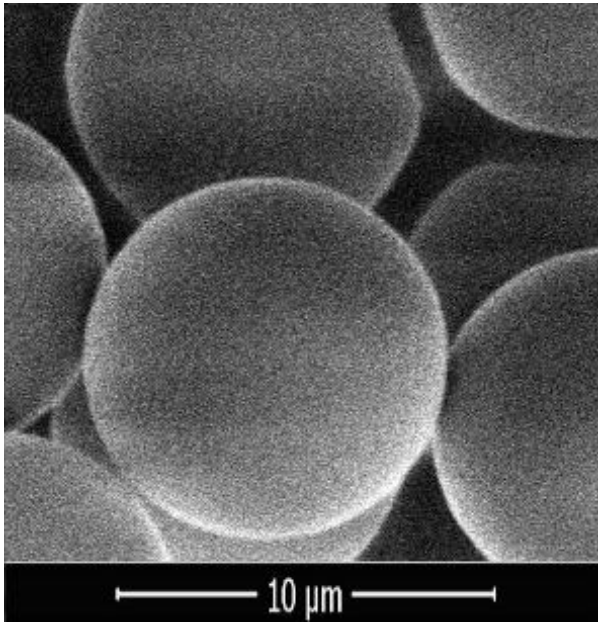
Таблица 2.2 – Элементный состав частиц МФ до и после 6 ч экспозиции, собранных с верхнего электрода и из плазменно-пылевой системы.

Частицы	Элемент (мас. %)							
	Fe	Cu	Al	C	N	O	S	Cl
Без покрытия								
Исходные	-	-	-	31.85	55.8	11.98	0.37	-
Экспонированные в плазменно-пылевой системе	2.53	1.54	0.38	37.71	45.94	11.53	0.37	-
Экспонированные на электроде	2.55	0.38	0.29	32.31	51.14	12.93	0.4	-
С медным покрытием								
Исходные	-	84.68	-	4.45	6.95	2.56	-	1.36
Экспонированные в плазменно-пылевой системе	4.59	71.87	0.47	7.21	10.82	3.59	-	1.45
Экспонированные на электроде	3.86	53.78	0.35	12.29	21.58	5.52	0.66	1.96

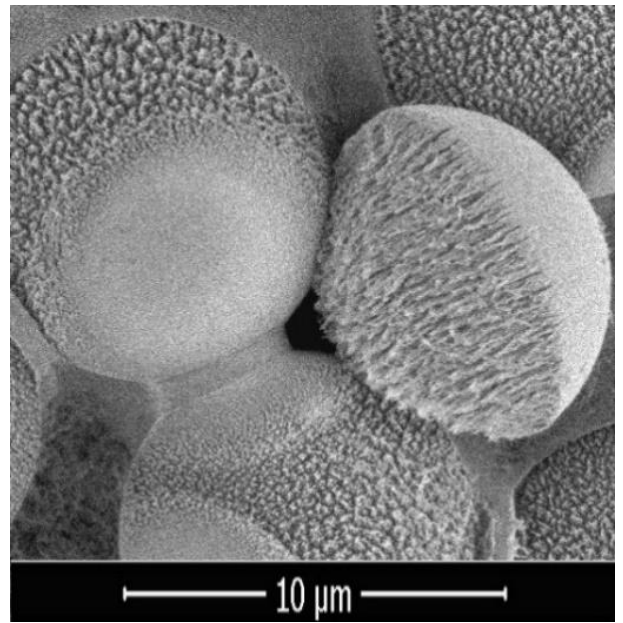
2.1.3 Исследование модификации поверхности макрочастиц, находившихся на электроде

Проведен анализ состава и структуры поверхности обоих типов частиц, расположенных на верхнем электроде, после 6 ч воздействия плазмы (см. рисунок 2.6). Полимерные частицы без покрытия приобретают эллипсоидную форму вследствие эрозии (см. рисунок 2.6б). В то же время на половине их поверхности, обращенной к плазме, осаждается металл, что приводит к образованию иглоподобных структур. Иглы имеют следующие типичные размеры: длина 1-1.5 мкм и толщина 10-300 нм. Что касается частиц с медным покрытием, расположенных на верхнем электроде, то на их поверхности наблюдается образование столбчатых структур (см. рисунок 2.6г). Типичный столбик имеет длину 100-200 нм и толщину 50-100 нм.

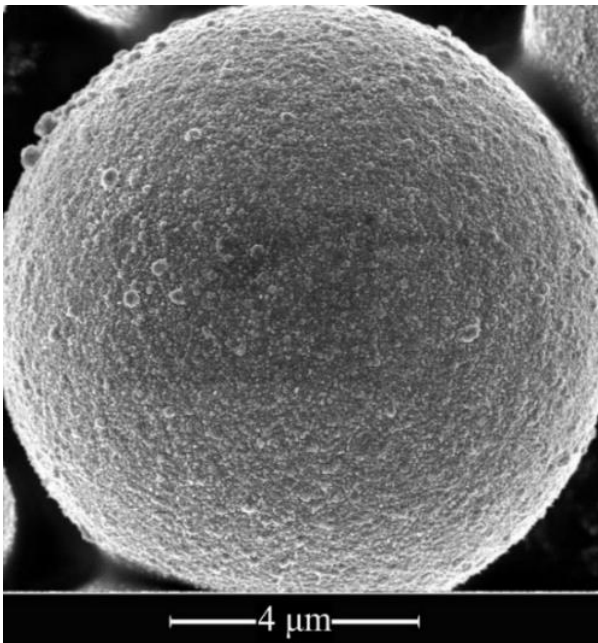
Проанализирован элементный состав поверхности исходных частиц до и после 6 ч воздействия плазмы, отобранных с верхнего электрода и плазменно-пылевой системы. Массовый анализ показывает, что столбчатые образования на поверхности частиц, подвергшихся воздействию (рисунок 2.6 б,г), состоят в основном из железа (до 3.86 мас. %, таблица 2.2). В то же время частицы с медным покрытием, собранные из плазменно-пылевой системы, после плазменного облучения содержат больше внешних включений, чем частицы, собранные с верхнего электрода. Следует отметить, что частицы на верхнем электроде не всегда образуют единый слой, в результате чего получается разная степень модификации поверхности из-за частичного экранирования вышележащими частицами.



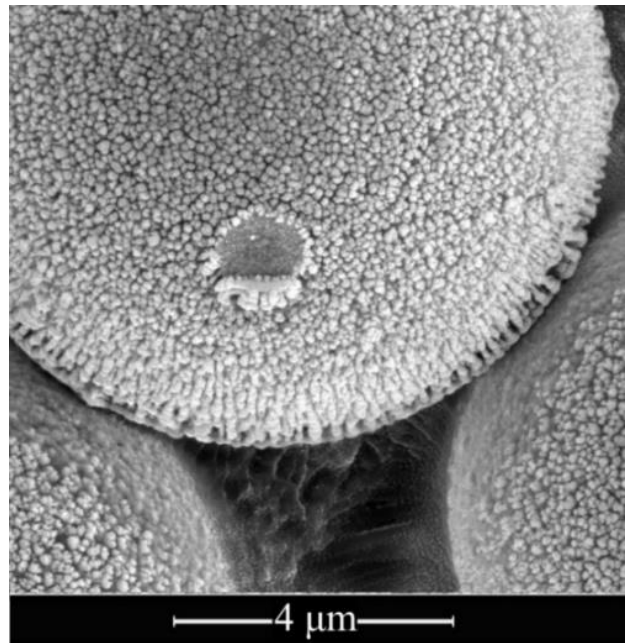
(a)



(б)



(в)



(г)

Рисунок 2.6 – РЭМ-изображения частиц МФ без покрытия (верхний ряд) и с медным покрытием (нижний ряд): (а,в) – исходные частицы до плазменной обработки; (б,г) – частицы после 6 ч плазменной обработки, расположенные на верхнем электроде.

В итоге, частицы в приэлектродной области разряда модифицируются за счет эрозии электродов и других металлических поверхностей, которые находятся в контакте с плазмой разряда. Более того, такая модификация приводит к развитию у частиц уникальных функциональных свойств поверхности и состава, которые могут быть использованы как в медицинских [9] и технических [10] целях (адресная доставка лекарств и создание порошковых основ для композитных материалов), так и в научных (создание активных Янус-частиц для изучения самоорганизации в коллоидных и плазменно-пылевых системах [11, 12]).

Плазма, содержащая микрочастицы, широко распространена в природе (особенно в космосе), в технологических процессах и т.д. [13]. Частицы в плазме существенно влияют на ее свойства, например, на распределение зарядов, полей и т.д. В свою очередь, плазма взаимодействует с контактирующими с ней объектами, такими как различные части экспериментальной установки (электроды или стенки рабочей камеры), а также микрочастицы, вызывая изменение свойств последних. Этот факт важно учитывать при описании плазменно-пылевых систем, их свойств и процессов, происходящих в таких системах.

Например, в теоретических работах [14, 15] описаны транспортные процессы и структурные переходы в системе сферических полимерных частиц; в экспериментальных исследованиях [4] исследуются структурные переходы в системе таких частиц при изменении параметров плазмы. Другой пример показан в [16], где наличие металлического покрытия на частицах приводит к структурным переходам в плазменно-пылевой системе из-за внешнего воздействия лазера при постоянных параметрах газового разряда. С другой стороны, повторные исследования показывают, что структурный переход возможен и в плазменно-пылевой системе частиц без покрытия в результате рассеяния лазерного излучения частицами при постоянных параметрах плазмы. Полимерные частицы модифицируются и приобретают поглощающее излучение металлическое покрытие, которое под действием лазера приводит к нагреву макрочастиц и возникновению фотофоретической силы, способствующей их движению.

2.2. Активное броуновское движение модифицированных частиц при воздействии лазерного излучения

В данном разделе описано броуновское движение модифицированных макрочастиц, формирующих квазидвумерную пылевую структуру, при воздействии лазерного излучения различной интенсивности, изученное в работе [17].

2.2.1 Экспериментальный комплекс и средства диагностики для изучения движения пылевых частиц в плазме ВЧ-разряда

Схема эксперимента приведена на рисунке 2.7. Эксперимент проводился в плазме емкостного высокочастотного (ВЧ) разряда, формируемого между двумя дискообразными стальными электродами. Электроды диаметром 186 мм расположены на расстоянии 50 мм друг от друга. Для инъекции микрочастиц и видеорегистрации процессов, проходящих в разряде, в центре верхнего электрода сделано отверстие диаметром 80 мм. На электроды подавалось переменное напряжение от высокочастотного генератора с частотой 13.56 МГц, в результате чего возникал тлеющий разряд. Генерация плазмы осуществлялась при мощности $W_{\text{load}} = 13$ Вт, при этом отраженная мощность составляла $W_{\text{ref}} = 2.5$ Вт.

Газоразрядная камера в ходе эксперимента непрерывно откачивалась турбомолекулярным насосом. В качестве плазмообразующего газа использовался аргон. Давление в экспериментальной камере составляло 5 Па и поддерживалось непрерывной подачей рабочего газа со скоростью 3 стандартных см³/мин. Таким образом, плазма разряда сохраняла неизменный состав и свойства на протяжении всего эксперимента.

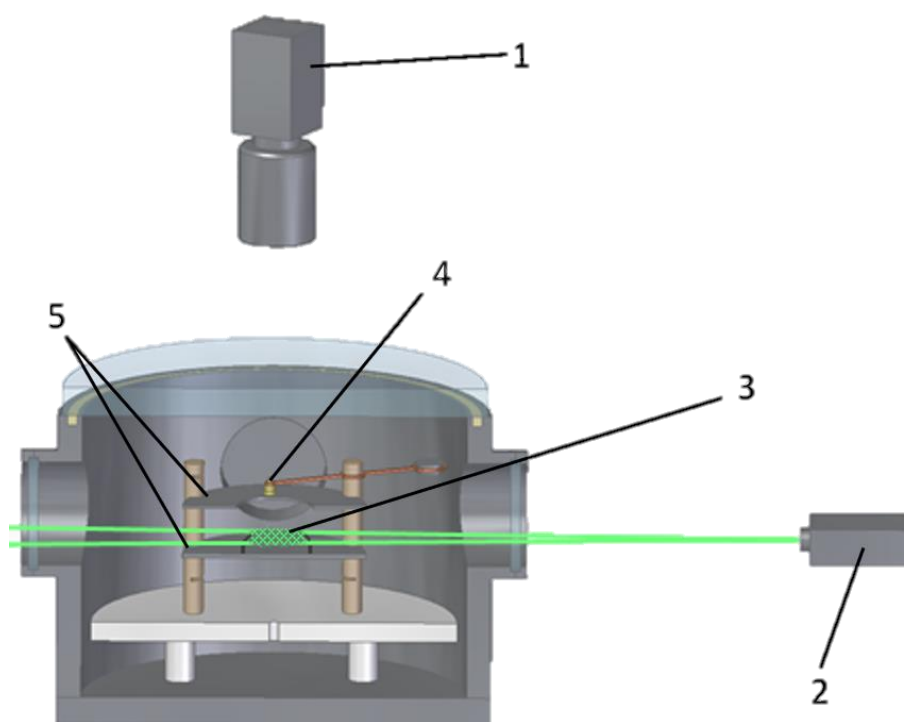


Рисунок 2.7 – Схема эксперимента: 1 – высокоскоростная видеокамера; 2 – газоразрядный аргоновый лазер; 3 – плазменно-пылевая структура в кольцевой ловушке; 4 – контейнер с частицами; 5 – ВЧ-электроды.

В эксперименте для формирования двумерной пылевой структуры использовались монодисперсные сферические полимерные частицы из меламин-формальдегида с диаметром 10.6 ± 0.1 мкм и плотностью 1.5 г/см³. Сформированный плазменный кристалл содержал в себе ~ 1500 частиц и удерживался в поле кольца диаметром 50 мм и высотой 2 мм. Для визуализации полученная структура подсвечивалась пучком аргонового газоразрядного лазера, сформированным в «лазерный нож». Площадь пучка лазерного излучения в области структуры составляла 17.5 см \times 0.5 см = 8.75 см². В ходе эксперимента после 90 минут экспозиции плазменно-пылевой структуры мощность лазерного излучения постепенно увеличивалась каждые 4 минуты со значений W_{las} от 0.04 Вт до 7.18 Вт.

Наблюдаемое в результате увеличения мощности лазерного излучения изменение характера движения макрочастиц регистрировалось высокоскоростной видеокамерой MotionPro с частотой съемки 200 кадров в секунду.

2.2.2 Анализ характера движения модифицированных пылевых частиц при воздействии лазерного излучения

После компьютерной обработки полученных экспериментальных видеоданных были определены координаты частиц для каждого момента времени, их траектории и скорости, проведены измерения среднего квадратичного смещения и линейного смещения вдоль направления движения и отклонения от него движущихся пылевых частиц.

На рисунке 2.8 в качестве характерного примера представлены траектории модифицированных микрочастиц в плоскости монослоя за 0.5 секунды, при различных значениях мощности лазерного излучения.

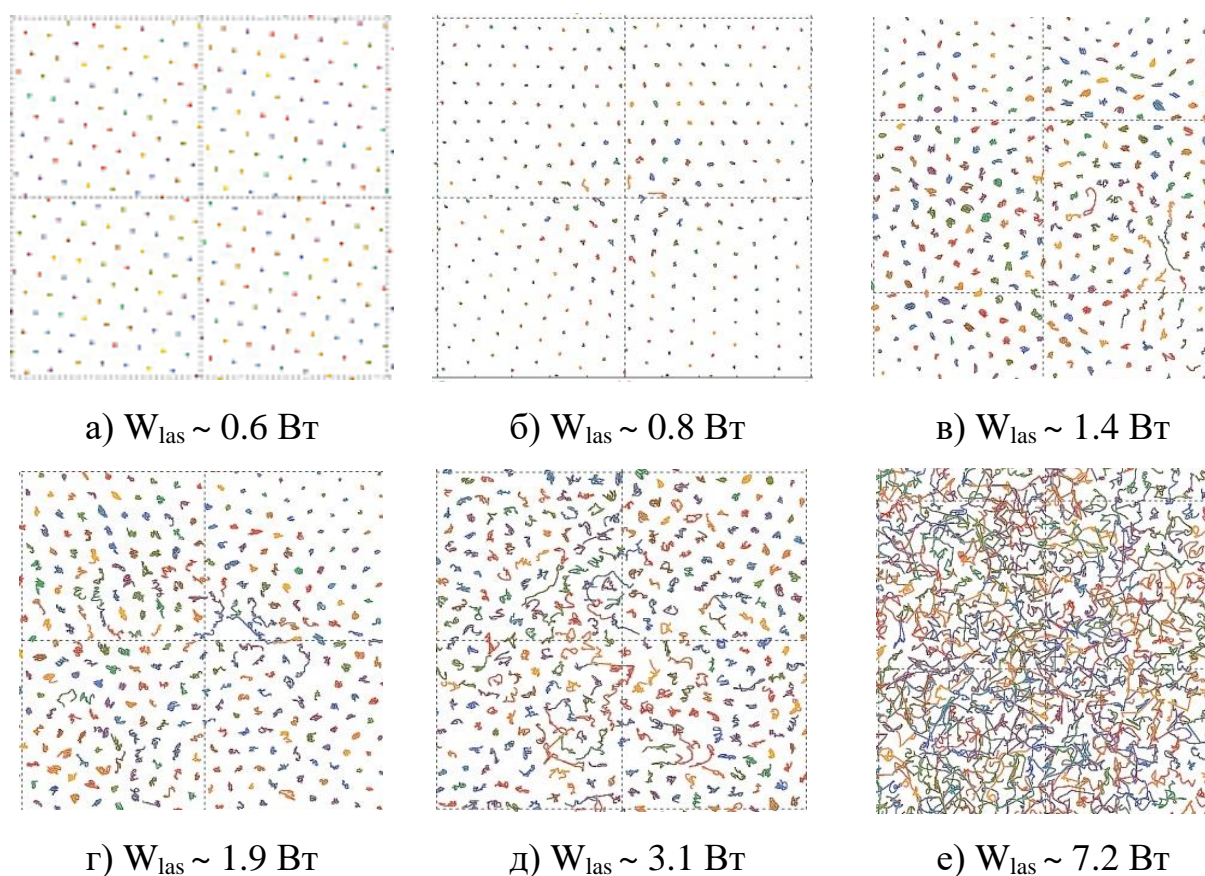


Рисунок 2.8 – Траектории движения частиц с модифицированной поверхностью в плоскости монослоя за 0.5 секунды, при различных значениях мощности лазерного излучения.

Для анализа характера движения модифицированных частиц построены графики среднего квадратичного смещения движущихся пылевых частиц монослое после экспозиции в разряде от времени при различной мощности лазерного излучения (рисунок 2.9). Экспериментально обнаружено, что увеличение мощности воздействующего лазерного излучения на монослой из модифицированных частиц меламин-формальдегида приводит к увеличению среднего квадратичного смещения движущихся макрочастиц, что означает уменьшение связи между заряженными частицами в монослое.

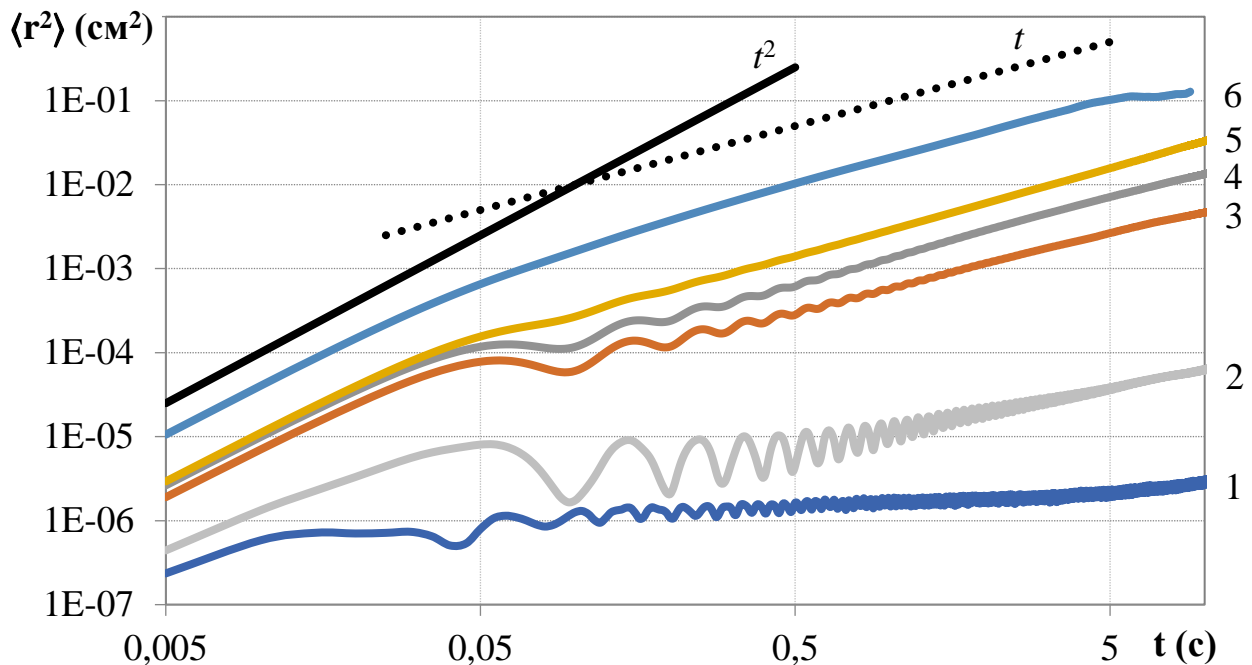


Рисунок 2.9 – Изменение среднеквадратичного смещения $\langle r^2 \rangle$ движущихся макрочастиц в монослое от времени при различных значениях мощности лазерного излучения: 1 – $W_{\text{las}} \approx 0.6$ Вт; 2 – $W_{\text{las}} \approx 0.8$ Вт; 3 – $W_{\text{las}} \approx 1.4$ Вт; 4 – $W_{\text{las}} \approx 1.9$ Вт; 5 – $W_{\text{las}} \approx 3.1$ Вт; 6 – $W_{\text{las}} \approx 7.2$ Вт.

В то же время для кристаллического состояния плазменно-пылевой структуры при низких (< 1.4 Вт) значениях мощности лазерного излучения наблюдается ограниченность движения пылевых частиц в течении длительного периода времени ($t > 0.5$ с), что можно объяснить формированием электростатической ловушки, обусловленной сильным взаимодействием

макрочастиц [6]. То есть, при увеличении мощности лазерного излучения ($>1.4 \text{ Вт}$), модифицированные частицы приобретают дополнительный импульс, позволяющий совершать движение в плоскости монослоя. При этом диффузия пылевых частиц в монослое для коротких времен ($t < 0.2 \text{ с}$) аномально высока $\langle r^2 \rangle = 2D \times t \sim [t^2, t)$, где $\langle r^2 \rangle$ – среднеквадратичное смещение движущихся макрочастиц, D – коэффициент диффузии, t – время, за которое происходит смещение, что соответствует баллистическому и переходному режимам аномальной диффузии, но для больших времен ($t > 0.2 \text{ с}$) экспериментальные данные согласуются с нормальной диффузией $\langle r^2 \rangle = 2D \times t \sim t$. Таким образом, динамика движения модифицированных частиц меламин-формальдегида в монослое изменяется при различной мощности лазерного излучения и соответствует трем режимам: удержание ловушкой, броуновское движение и комбинированное направлено-случайное движение, состоящее из лазерно-индуцированного (фотофорез) и броуновского движения, что согласуется с наблюдаемыми траекториями движения макрочастиц (см. рисунок 2.8).

Для анализа активных свойств модифицированных полимерных частиц были построены зависимости линейного смещения L до изменения направления движения и отклонение от направленного движения модифицированных частиц от значений мощности лазерного излучения (рисунок 2.10). Экспериментально установлено, что при увеличении мощности воздействующего лазерного излучения на монослой величина линейного смещения до изменения направления движения макрочастиц растет, в то время как отклонение от направленного движения остается постоянным и в пределах погрешности равна 0.

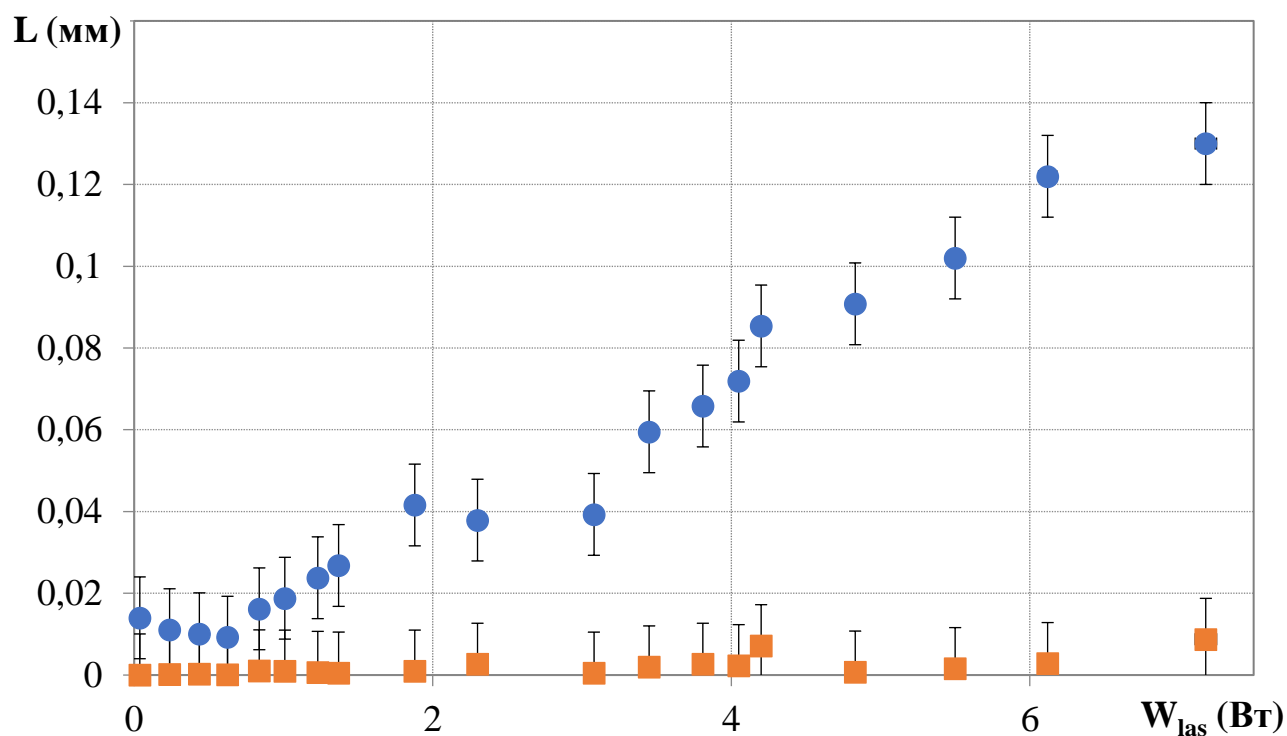


Рисунок 2.10 – линейное смещение L до изменения направления движения и отклонение от направленного движения модифицированных частиц, при различных значениях мощности лазерного излучения W_{las} . ● – линейное смещение до изменения направления движения, ■ – отклонение от направленного движения.

Следовательно, согласно определению активных броуновских частиц [18], можно сделать вывод, что модифицированные частицы меламин-формальдегида в монослое после 90 минут экспозиции в плазме емкостного высокочастотного разряда являются активными броуновскими частицами, и их активность растет при увеличении интенсивности воздействующего лазерного излучения, это соответствует результатам анализа их среднеквадратичного смещения и траекторий.

2.3 Структурные переходы в плазменно-пылевой системе модифицированных частиц при воздействии лазерного излучения

В данном разделе описаны структурные переходы в монослое модифицированных частиц при воздействии лазерного излучения различной интенсивности, изученные в работе [19].

2.3.1 Анализ изменения состояния монослоя модифицированных пылевых частиц при воздействии лазерного излучения

Для исследования самоорганизации пылевой структуры модифицированных частиц при воздействии лазерного излучения использовались видеоданные, полученные в ходе эксперимента, описанного в разделе 2.2.1. После компьютерной обработки полученных видеозаписей были определены такие параметры плазменно-пылевой структуры, как степень упорядоченности (корреляционная функция и эффективный параметр неидеальности [14]) и средняя кинетическая энергия движения полимерных частиц.

Эффективный параметр неидеальности Γ^* – безразмерный параметр, характеризующий пространственную корреляцию в сильнонеидеальных системах частиц, взаимодействующих с экранированным кулоновским потенциалом типа Юкавы $\varphi(r) = (eZ)^2 \exp(-r/\lambda)/r$, где r – расстояние, λ – длина экранирования, а eZ – заряд частиц.

Эффективный параметр неидеальности

$$\Gamma^* = 1.5(eZ)^2(1 + k + k^2/2)\exp(-k)/Tr_p, \quad (2.1)$$

где $k = r_p/\lambda$, r_p – среднее межчастичное расстояние, а T – кинетическая температура частиц, восстановлен путем сопоставления экспериментально полученной парной корреляционной функции с результатами численного моделирования методом молекулярной динамики Ланжевена по первому максимуму парной корреляционной функции [14].

На рисунке 2.11 приведен график изменения средней кинетической энергии движения E_k частиц меламина-формальдегида в начальный момент времени и частиц после выдержки в плазме в течение 90 минут, при различных значениях мощности лазерного излучения W_{las} . Согласно полученным зависимостям, кинетическая энергия экспонированных частиц в монослое росла по мере увеличения мощности лазерного излучения от $E_k \sim 1$ эВ до $E_k \sim 121$ эВ. Вместе с тем экспонированные частицы начали приобретать существенную кинетическую

энергию движения при мощности лазерного излучения $W_{\text{las}} \sim 0.7$ Вт. В то же время у частиц без экспонирования изменения значений кинетической энергии движения ($E_k \sim 1$ эВ) по мере увеличения мощности лазерного излучения не наблюдалось. При значениях мощности лазерного излучения от 2 до 3 Вт наблюдалось нарушение монотонного роста средней кинетической энергии движения экспонированных пылевых частиц, которое может быть связано с структурным переходом [20] в этом диапазоне параметров.

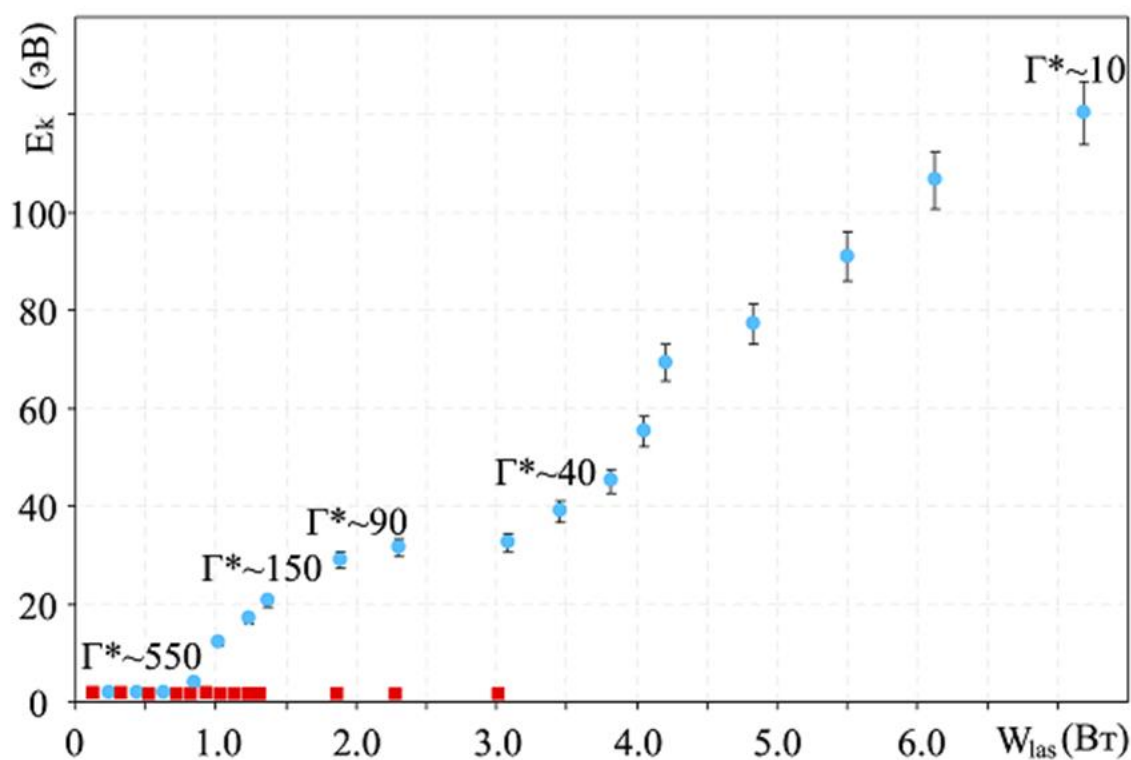


Рисунок 2.11 – Средняя кинетическая энергия движения E_k частиц меламин-формальдегида в начальный момент времени (\blacksquare) и после выдержки в плазме (\bullet) в течение 90 минут, при различных значениях мощности лазерного излучения W_{las} . Для характерных точек E_k модифицированных частиц указаны соответствующие эффективные параметры неидеальности Γ^* .

На рисунке 2.12 показана парная корреляционная функция плазменно-пылевой структуры после 90 минут экспозиции в разряде при различных значениях мощности лазерного излучения, а также соответствующие эффективные параметры неидеальности. Согласно приведенным результатам, значение

эффективного параметра неидеальности Γ^* изменяется от $\Gamma^* \sim 550$, соответствующего кристаллическому состоянию пылевой структуры при мощности лазерного излучения $W_{\text{las}} \sim 0.625$ Вт, до $\Gamma^* \sim 10$, соответствующего жидкостному состоянию структуры при мощности лазерного излучения $W_{\text{las}} \sim 7.18$ Вт. Вместе с тем у парной корреляционной функции изучаемой плазменно-пылевой системы при мощности лазерного излучения выше $W_{\text{las}} \sim 1.6$ Вт наблюдается исчезновение расщепления второго максимума, что является критерием и говорит о наличии структурного перехода «кристалл – жидкость» [20].

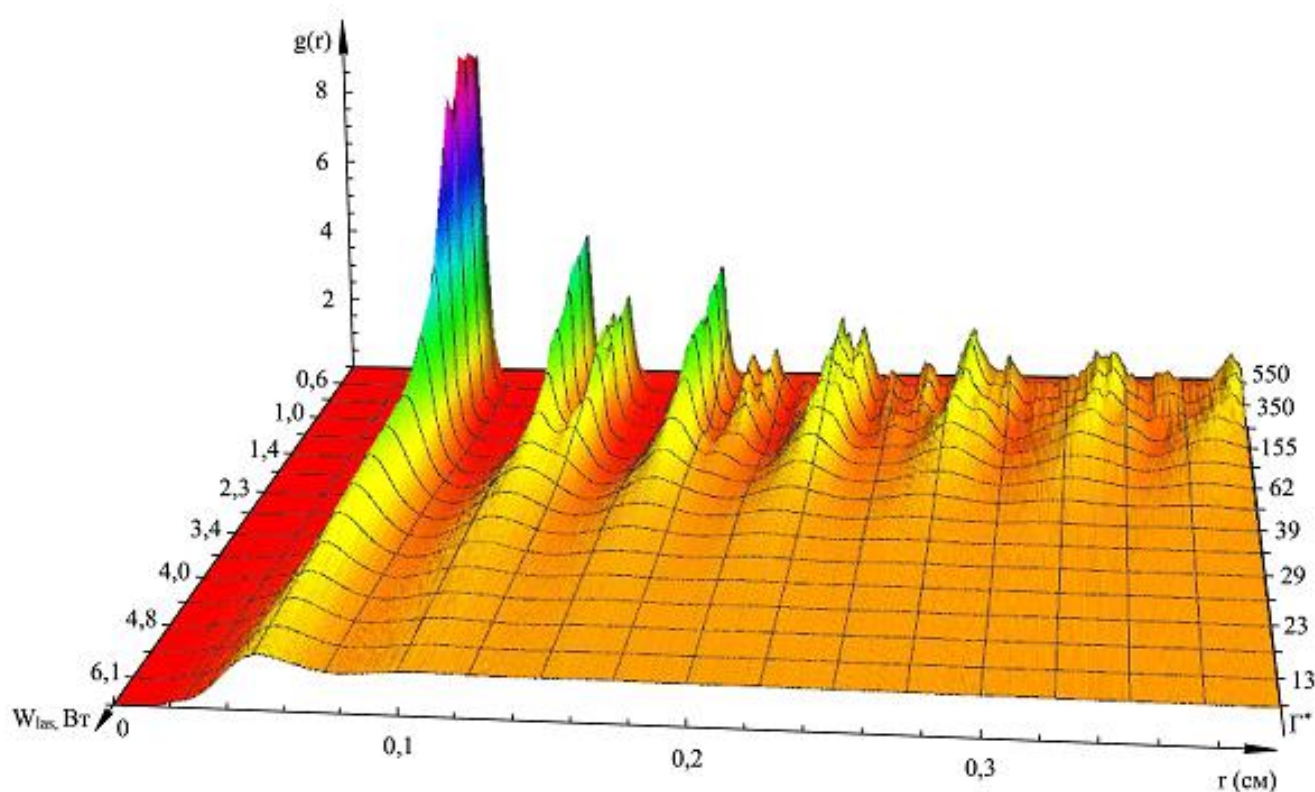


Рисунок 2.12 – Парная корреляционная функция плазменно-пылевой структуры после выдержки частиц в плазме в течение 90 минут при различных значениях мощности лазерного излучения. Для характерных корреляционных функций указаны соответствующие мощность лазерного излучения и эффективный параметр неидеальности Γ^* .

Можно сделать вывод, что после экспонирования частиц меламин-формальдегида в плазме ВЧ-разряда в течение 90 минут воздействие лазерного

излучения приводило к увеличению кинетической энергии макрочастиц, и в монослое наблюдался структурный переход.

2.3.2 Оценка изменения температуры модифицированных пылевых частиц при воздействии лазера

Наблюдаемое явление структурного перехода в монослое полимерных частиц можно объяснить модификацией поверхности частиц, непрерывно проходящей в ходе всего эксперимента (рисунок 2.13). В результате осаждения продуктов эрозии электродов на поверхность и образования металлической островковой пленки макрочастицы в пылевой структуре могли эффективно поглощать лазерное излучение, что приводило к росту их кинетической энергии.

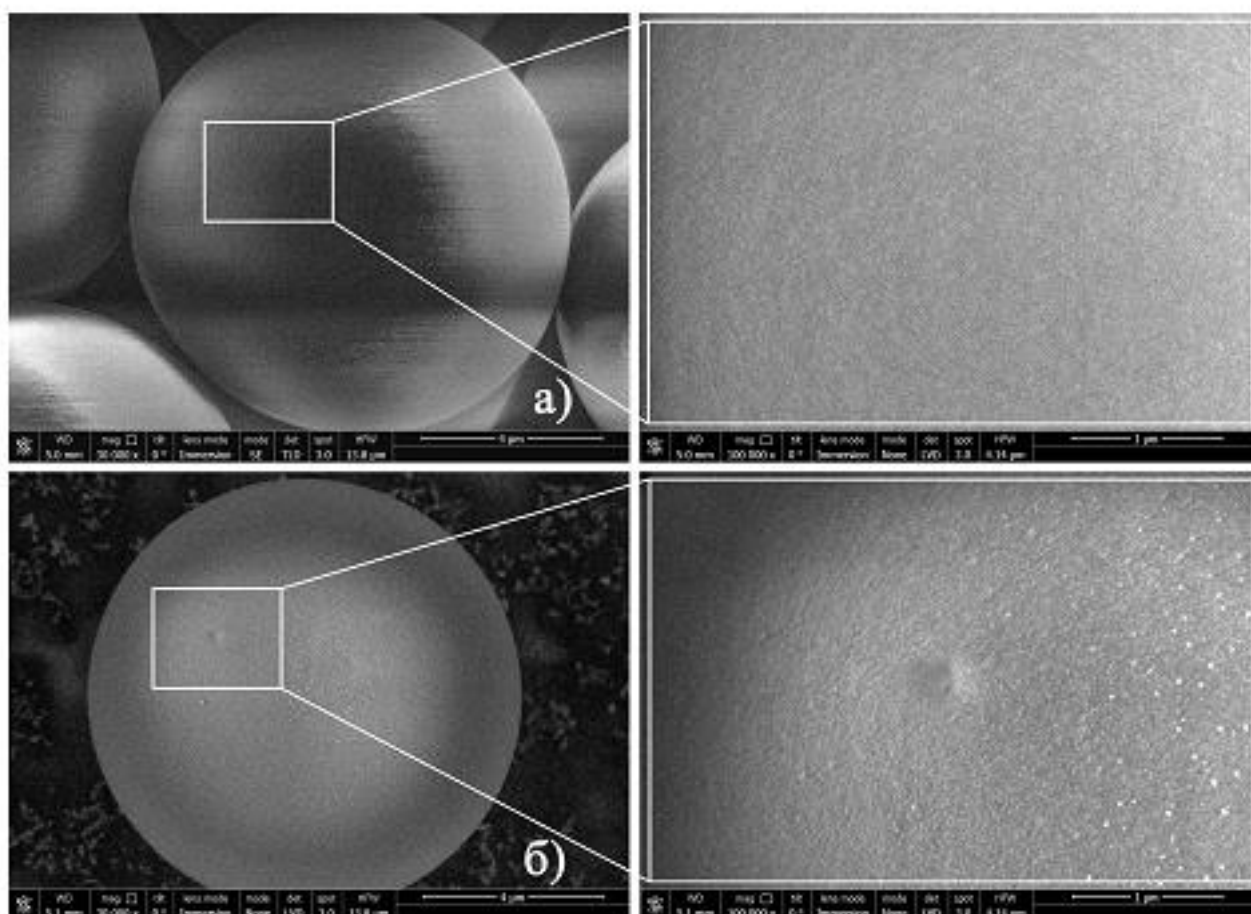


Рисунок 2.13 – Изображения, полученные методом РЭМ, исходных частиц (а) и частицы (б), уловленной после их модификации в ВЧ-разряде. Рамкой выделены участки поверхностей частиц, представленные на изображениях справа.

Оценка изменения температуры пылевых частиц приведена, с учетом результатов работы [21], для времен $\delta t \sim 1$ с, которые характеризуют установление стационарного состояния пылевой структуры, при воздействии лазерного излучения мощностью 1 Вт: Площадь пучка лазерного излучения в области структуры $0.175\text{ м} \times 0.005\text{ м} = 875 \times 10^{-6} \text{ м}^2$. Плотность падающей мощности лазерного излучения $\approx 1.1 \times 10^3 \text{ Вт/м}^2$. Площадь освещаемой поверхности частицы (площадь для оценки поглощения сферической частицы $2\pi r^2/2 \sim \pi r^2$, $r \sim 5 \times 10^{-6} \text{ м}$) $\approx 0.8 \times 10^{-10} \text{ м}^2$. Падающая на частицу мощность лазерного излучения $\approx 0.9 \times 10^{-7} \text{ Вт}$. Коэффициент поглощения излучения в видимом спектре для железа 0.7 [22]. Анализ изображений поверхности частиц, полученных методом РЭМ (рисунок 2.13), позволяет сделать вывод, что металлические островки занимают $\sim 10\%$ площади поверхности частицы. Следовательно, мощность лазерного излучения, поглощенного частицей, будет $\approx 0.63 \times 10^{-9} \text{ Вт}$. Объем макрочастицы $4/3\pi r^3 \approx 5.23 \times 10^{-10} \text{ см}^3$. Плотность меламин-формальдегида 1.5 г/см^3 . Масса m_{MF} частицы меламин-формальдегида $\approx 7.9 \times 10^{-13} \text{ кг}$. Из результатов рентгеноспектрального микроанализа модифицированных частиц, масса железа m_{Fe} , приходящаяся на частицу $\approx 0.4 \times 10^{-13} \text{ кг}$. Теплоемкость C_{Fe} железа $489 \text{ Дж/кг} \times \text{К}$ [22]. Теплоемкость C_{MF} меламин-формальдегида $1000 \text{ Дж/кг} \times \text{К}$ [21]. Соответственно, лазерное излучение мощностью 1 Вт может приводить к нагреву пылевых частиц со скоростью $\delta T / \delta t = Q / (C_{\text{Fe}} m_{\text{Fe}} + C_{\text{MF}} m_{\text{MF}}) \delta t \sim 1 \text{ К/с}$.

Таким образом, наблюдавшееся увеличение кинетической энергии пылевых частиц при увеличении мощности лазерного излучения может быть связано с возникновением существенной фотофоретической силы, вносящей вклад в движение частиц.

2.4 Выводы

В данной главе показаны изменения состава и структуры поверхности полимерных частиц с металлическим покрытием и без него при экспозиции в двух вариантах: при левитации в приэлектродной области ВЧ-разряда и при размещении

на верхнем электроде. При выдержке частиц в плазменно-пылевой системе на их поверхность осаждаются металлы, при этом изменение элементного состава поверхности нелинейно во времени. На поверхности частиц без покрытия начинает формироваться островковая металлическая пленка, которая, вероятно, со временем может превратиться в сплошное покрытие. Источником материала являются электроды и другие металлические поверхности, подвергающиеся распылению низкоэнергетическими ($E \sim 100$ эВ) ионами плазмообразующего газа.

Для частиц, собранных с верхнего электрода, непокрытые частицы подвергаются эрозии, в результате чего на поверхности, обращенной к плазме, могут образовываться игольчатые структуры осажденных металлов, а форма макрочастиц может меняться. В то же время на поверхности частиц с медным покрытием образуются столбчатые структуры, состоящие из продуктов эрозии электрода.

В данной главе приведены убедительные факты того, что в приэлектродной области ВЧ-разряда частицы модифицируются, при этом свойства их поверхности изменяются. И этот факт должен учитываться при дальнейшем исследовании и применении подобного рода систем частиц в плазме ВЧ-разряда.

Результаты исследований по формированию модифицированного покрытия полимерных частиц использованы в работах [11, 12, 17, 19].

В исследовании наблюдалось изменение характера движения полимерных частиц с модифицированной поверхностью в квазидвумерной пылевой структуре при изменении мощности воздействующего лазерного излучения. Проведенный анализ траекторий и среднего квадратичного смещения макрочастиц в монослое отображает изменение динамики движения макрочастиц при различной мощности лазерного излучения: при мощности лазерного излучения менее 1.4 Вт удержание ловушкой; при мощности лазерного излучения более 1.4 Вт броуновское движение и комбинированное направлено-случайное движение, состоящее из лазерно-индуцированного (фотофорез) и броуновского движения. Анализ линейного

смещения макрочастиц до изменения направления движения и отклонения от него при различных значениях мощности лазерного излучения показал, что частицы с модифицированной поверхностью начинают проявлять активность при воздействии на них лазерного излучения и их активность растет с увеличением мощности воздействующего лазерного излучения. Можно сделать вывод, что эволюция квазидвумерной пылевой структуры из полимерных частиц с модифицированной поверхностью оказалась возможной в результате приобретения макрочастицами свойств, соответствующих активным броуновским частицам. Появившийся в результате модификации поверхности механизм преобразования энергии лазерного излучения в энергию движения позволил полимерным частицам изменять динамику своего движения и степень своей активности при изменении мощности воздействующего лазерного излучения.

Экспериментально наблюдались рост кинетической энергии и структурный переход «кристалл-жидкость» в квазидвумерной структуре модифицированных частиц, левитирующих в приэлектродном слое емкостного высокочастотного (ВЧ) разряда. Зафиксирован рост кинетической энергии модифицированных частиц от $E_k \sim 1$ эВ до $E_k \sim 121$ эВ, возникающий при воздействии лазерного излучения мощностью выше $W_{las} \sim 0.7$ Вт, в то время как у частиц в начальный момент времени кинетическая энергия при лазерном воздействии не изменялась и составляла $E_k \sim 1$ эВ. Обнаружено уменьшение степени упорядоченности плазменно-пылевой структуры из модифицированных частиц при увеличении мощности лазерного излучения. Наблюдался структурный переход в квазидвумерной пылевой структуре при воздействии лазерного излучения мощностью $W_{las} \sim 1.6$ Вт. Предложено объяснение структурного перехода в структуре из модифицированных частиц с учетом роли фотофоретической силы в движении макрочастиц.

ГЛАВА 3. АКТИВНОЕ БРОУНОВСКОЕ ДВИЖЕНИЕ ЧАСТИЦ В ПЛАЗМЕ ТЛЕЮЩЕГО РАЗРЯДА ПОСТОЯННОГО ТОКА

3.1 Структурные переходы в цепочечной системе активных броуновских частиц при внешнем воздействии

В данном разделе описаны структурные переходы в цепочечной системе активных броуновских частиц при внешнем воздействии, которые изучались в работе [1].

Под воздействием лазерного излучения металлическая поверхность частиц разогревается и на частицы начинает действовать радиометрическая сила [2]. В работе [3] было показано, что микрочастицы с металлической оболочкой, находясь в газоразрядной плазме под действием радиометрической силы, индуцированной лазерным излучением, являются активными. Причем эффективность преобразования энергии, поступающей из окружающей среды, в кинетическую энергию поступательного и вращательного броуновского движения частицы контролируется мощностью лазерного излучения [4]. Этот важнейший результат открывает новое направление в исследованиях плазменно-пылевых систем, связанное с структурными переходами в системах активных частиц. Для анализа структурных переходов можно применять подход, основанный на расчёте динамической энтропии открытой диссипативной системы взаимодействующих частиц [5]. Для вычисления динамической энтропии используется простое приближение, которое легко можно применять для анализа экспериментов и численного моделирования [6].

3.1.1 Экспериментальный комплекс и средства диагностики для изучения цепочечных структур активных броуновских частиц

Эксперименты по изучению локализации частиц в цепочечных структурах проводились в газоразрядной стеклянной трубке длиной $l = 450$ мм и внутренним

диаметром $d = 40$ мм. Нижний конец трубки был запаян и в нем располагался катод, верхняя часть трубки была подключена к системе непрерывной откачки и там же располагался анод. Трубка откачивалась и заполнялась инертным газом неоном до рабочего давления $P = 16.7$ Па, которое поддерживалось непрерывной подачей рабочего газа со скоростью 0.4 стандартных $\text{см}^3/\text{мин}$, после чего между анодом и катодом зажигался разряд постоянного тока при следующих параметрах: напряжение $U = 1.8$ кВ и сила тока $I = 0.4$ мА. В ходе эксперимента в одной из страт положительного столба разряда была сформирована цепочечная структура, состоящий из полидисперсных медных частиц со средним диаметром 2.5 мкм (см. рисунок 3.1), а максимальная длина цепочки составляла 16 частиц.

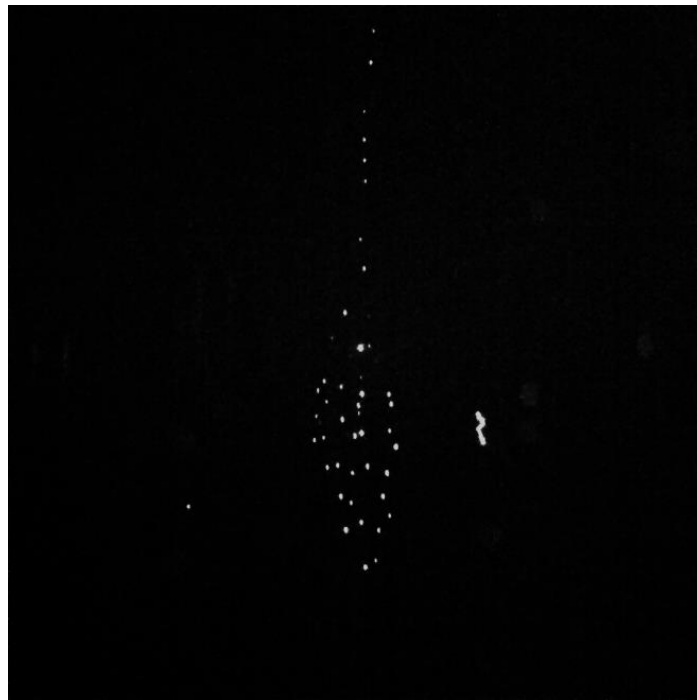


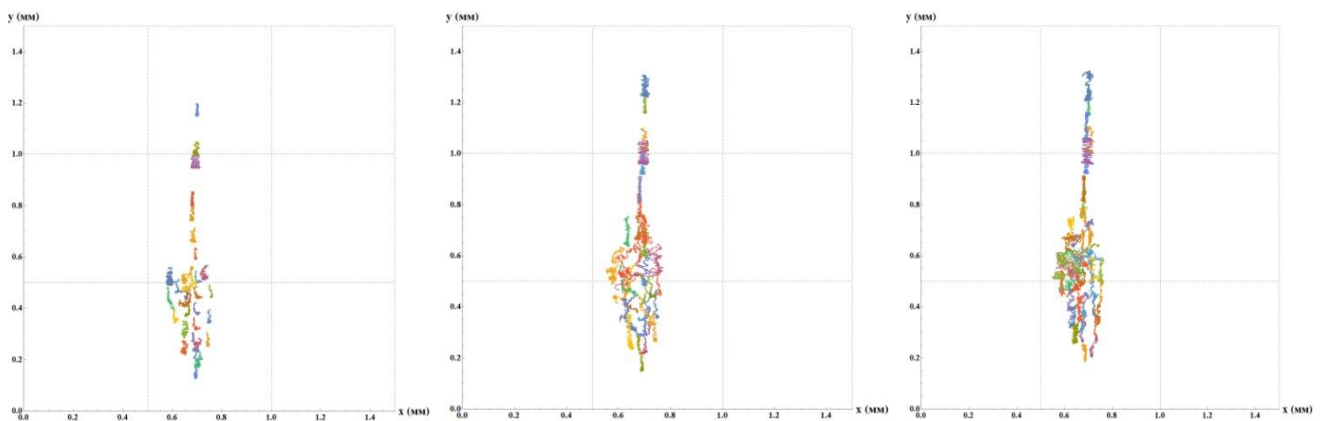
Рисунок 3.1 – Иллюстрация кадра видеоизображения цепочечной структуры, образованного в одной из страт положительного столба разряда постоянного тока в неоне при давлении 16.7 Па, напряжении 1.8 кВ и силе тока 0.4 мА.

Для визуализации и воздействия на полученный цепочечную структуру использовался однородный расширенный пучок твердотельного лазера диаметром 3 см, площадь пучка составляла 7.1 см^2 , заведенный через стеклянное дно трубки. В ходе эксперимента интенсивность лазерного излучения постепенно

увеличивалась (в диапазоне от 79 до 980 мВт), что приводило к кинетическому разогреву частиц. При этом порядок в расположении частиц в структуре по вертикали не нарушался, что было видно при наблюдениях за структурой. Движение пылевых частиц регистрировалось в вертикальной плоскости при помощи высокоскоростной видеокамеры с частотой видеосъемки 200 кадров/с и пространственным разрешением 13.2 мкм/пикс.

3.1.2 Анализ изменения состояния цепочечной структуры активных броуновских частиц при воздействии лазерного излучения

Полученные видеоизображения обрабатывались при помощи специальных компьютерных программ, в результате чего были определены координаты частиц для каждого момента времени, их траектории и скорости, на основе которых проведены измерения среднего квадратичного смещения и динамической энтропии для каждой микрочастицы в структуре, а также измерения линейного смещения до изменения направления движения и отклонения от него. На рисунке 3.2 в качестве характерного примера представлены траектории пылевых частиц в цепочечной структуре, при различных мощностях разогревающего лазера.



(а) $W_{\text{лаз}} = 156$ мВт

(б) $W_{\text{лаз}} = 380$ мВт

(в) $W_{\text{лаз}} = 950$ мВт

Рисунок 3.2 – Траектории движения макрочастиц в цепочечной структуре за 10 секунд.

Описание изменения состояния для малых систем с помощью хорошо известных термодинамических функций не корректно. Поэтому для анализа степени хаотизации системы использовались зависимости динамической энтропии от параметра огрубления.

В данной главе для вычисления динамической энтропии используется простое приближение, которое легко можно применять для анализа экспериментов и численного моделирования – динамическая энтропия первого пересечения (MFPT dynamic entropy) [7, 8]. При условии, что пространственный масштаб (параметр огрубления) не слишком мал, динамическую энтропию можно приближенно подсчитать, описав в момент времени $t = 0$ вокруг частицы сферу радиуса, равного параметру огрубления, с центром в точке нахождения частицы, а затем, определив момент времени τ , в который траектория впервые достигнет заданного порогового значения ε . Обратное «время первого пересечения» и будет равным динамической энтропии первого пересечения $S(\varepsilon) \equiv 1/\tau(\varepsilon)$. Таким образом, динамическая энтропия $S(\varepsilon)$ – мера средней “скорости убегания” частицы от ее начального положения [8,9]. Следует обратить внимание на то, что эту величину можно подсчитать для каждой отдельной частицы системы; для этого лишь необходимо иметь достаточное пространственное и временное разрешения видеозаписывающей аппаратуры, а также достаточное время съёмки.

При мощности лазерного излучения до 225 мВт динамическая энтропия цепочечной структуры представляет собой два «пучка», соответствующие верхней части, где частицы уединены, и нижней части, содержащей несколько цепочек. При этом «пучки» динамической энтропии рассеяны, а цепочечная структура были стабильны и частицы в нем двигались медленно в окрестностях своих положений равновесия (рисунок 3.3а). При увеличении мощности лазера до 380 мВт частицы выходили из своих потенциальных ям и начинали двигаться внутри оболочек цепочечных структур, при этом «пучки» динамической энтропии начинают сливаться в один (рисунок 3.3б). При дальнейшем повышении интенсивности лазерного излучения до 980 мВт цепочки начинали «обмениваться» частицами, а

«пучок» динамической энтропии при значениях параметра огрубления от 0.01 до 0.1 имеет перегиб, а участок после перегиба вновь становится единым и соответствует диффузионному режиму движения частиц (рисунок 3.3в).

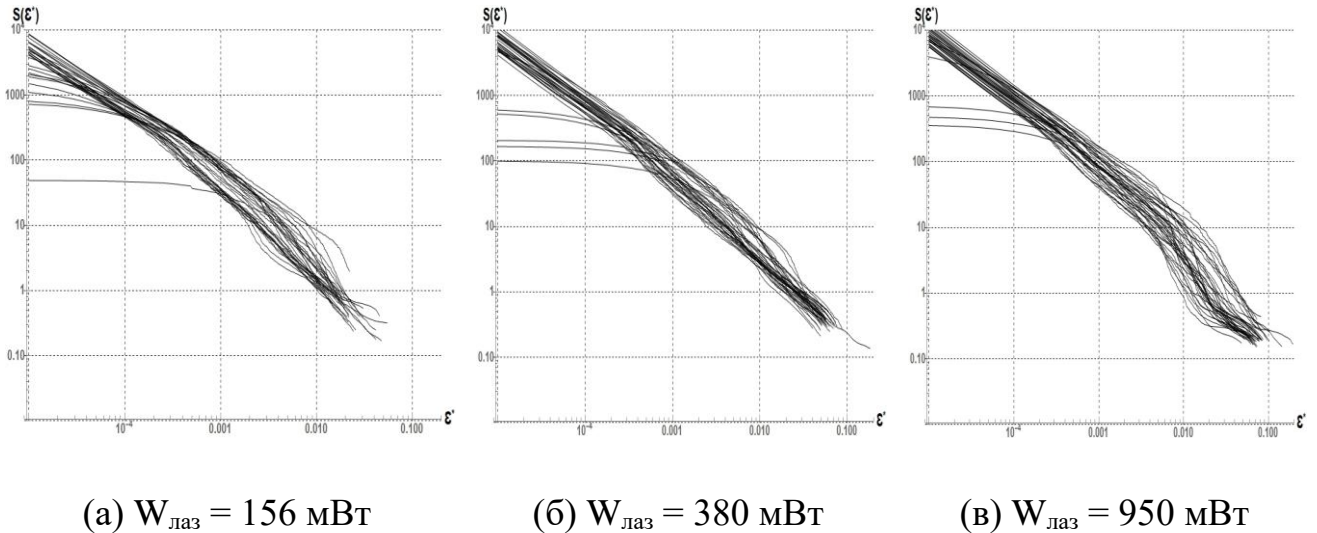


Рисунок 3.3 – Динамическая энтропия каждой частицы в цепочечной структуре при различной мощности лазерного излучения.

Для анализа динамических характеристик плазменно-пылевой системы были построены графики среднего квадратичного смещения движущихся частиц в цепочечной структуре от времени при различной мощности лазерного излучения (см. рисунок 3.4). При низких ($< 225 \text{ мВт}$) значениях мощности лазерного излучения наблюдается ограниченность движения частиц в течении длительного периода времени ($t > 0.1 \text{ с}$, рисунок 3.4а), что означает удержание макрочастиц в ловушках. Увеличение интенсивности воздействующего лазерного излучения ($> 380 \text{ мВт}$) на цепочечную структуру приводит к увеличению среднего квадратичного смещения движущихся макрочастиц, что означает уменьшение связи между заряженными микрочастицами в цепочечных структурах. При этом диффузия частиц в цепочечных структурах для коротких времен ($t < 3 \text{ с}$, рисунок 3.4б; $t < 7 \text{ с}$, рисунок 3.4в) аномально высока $\langle x^2 \rangle = 2Dt \sim [t^2, t)$, что соответствует баллистическому и переходному режимам аномальной диффузии. Но для больших времен ($t > 3 \text{ с}$, рисунок 3.4б; $t > 7 \text{ с}$, рисунок 3.4в) экспериментальные данные согласуются с нормальной диффузией $\langle x^2 \rangle = 2Dt \sim t$, что означает, что

длительность нахождения макрочастиц в данном режиме уменьшается с увеличением мощности лазерного излучения.

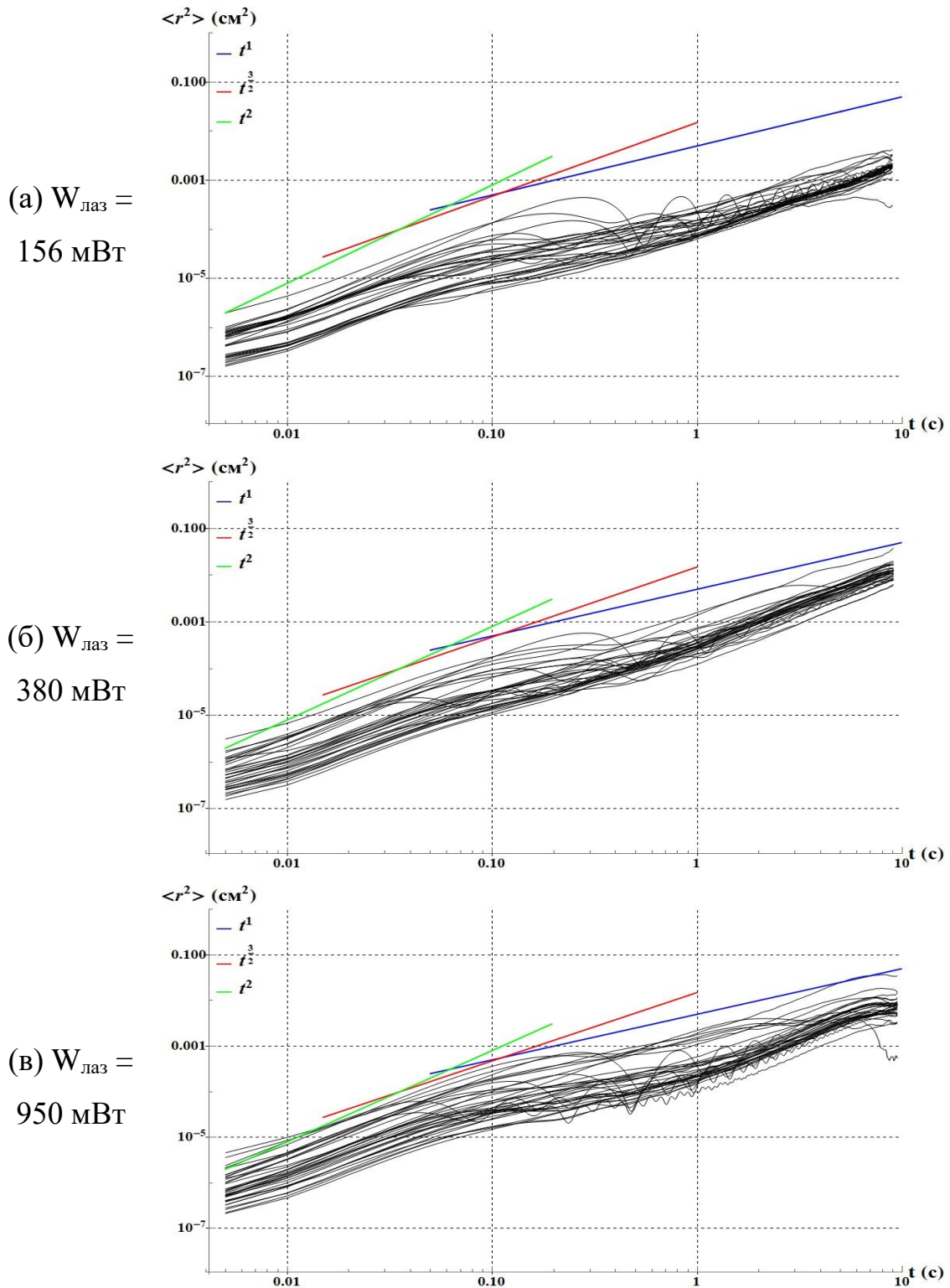


Рисунок 3.4 – Изменение среднего квадратичного смещения $\langle r^2 \rangle$ движущихся макрочастиц в цепочечной структуре от времени при различных значениях мощности лазерного излучения.

Таким образом, динамика движения частиц в цепочечной структуре изменяется при различной мощности лазерного излучения и соответствует трем режимам: удержание ловушкой, броуновское движение и комбинированное направлено-случайное движение, состоящее из лазерно-индуцированного (фотофорез) и броуновского движения, что согласуется с результатами анализа динамической энтропии.

Для анализа характера броуновского движения частиц в цепочечной структуре построены изменение линейного смещения вдоль направления движения и отклонения от него при различных значениях мощности лазерного излучения $W_{\text{лаз}}$ (см. рисунок 3.5).

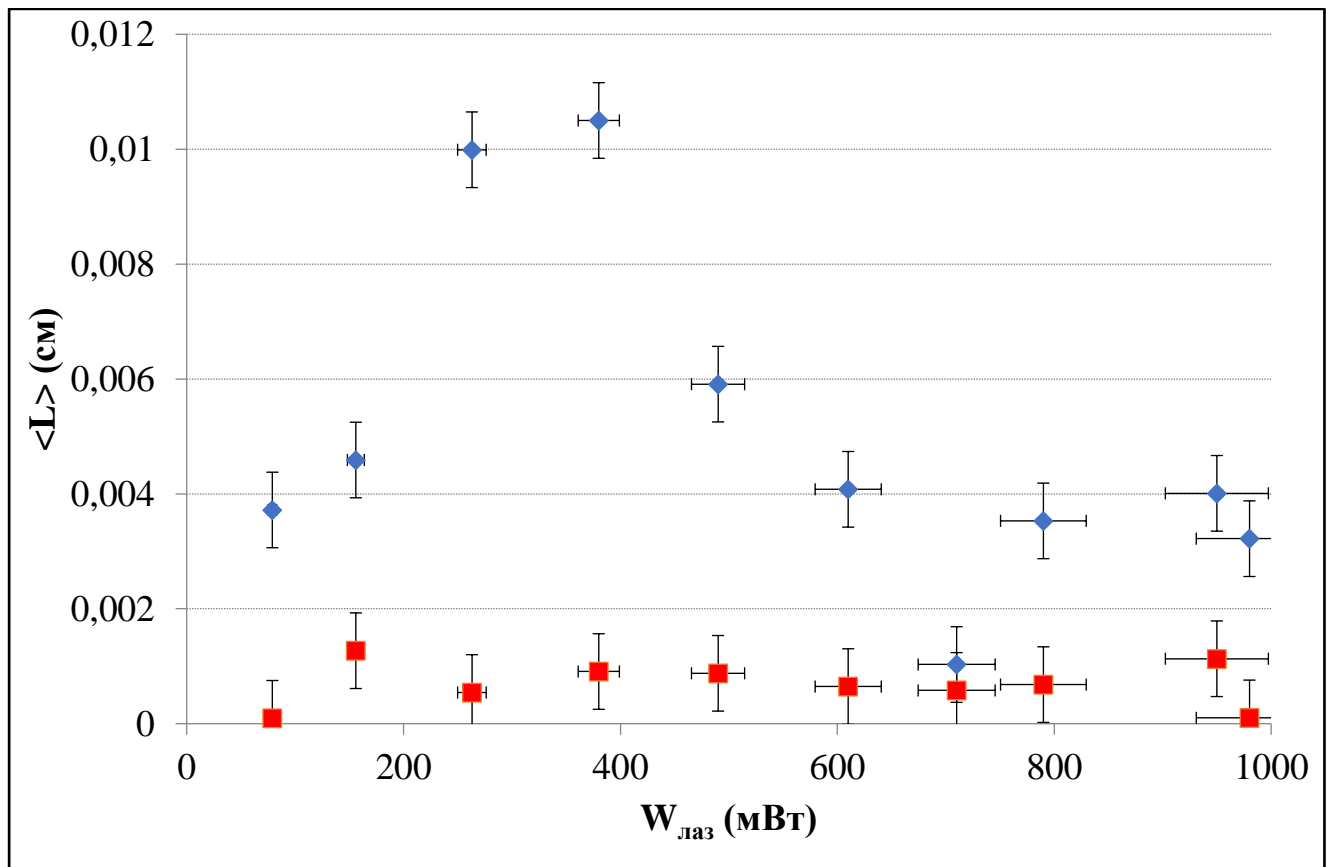


Рисунок 3.5 – Изменение линейного смещения L при броуновском движении частиц в цепочечной структуре вдоль (\blacklozenge) направления движения и отклонение (\blacksquare) от него при различных значениях мощности лазерного излучения $W_{\text{лаз}}$.

Установлено, что при увеличении мощности воздействующего лазерного излучения величина линейного смещения вдоль направления движения макрочастиц растет и имеет максимум при 380 мВт, что может говорить о росте активности по мере увеличения мощности лазерного излучения. Однако, при мощности лазерного излучения свыше 380 мВт величина линейного смещения вдоль направления движения макрочастиц уменьшается до первоначальных значений и выходит на плато, что можно объяснить затратами энергии макрочастиц на преодоление потенциального барьера и перескоки внутри цепочечной структуры. В то же время величина отклонения от направления движения макрочастиц остается постоянной и в пределах погрешности близка к 0. Таким образом, можно сделать вывод [10], что частицы меди в цепочечной структуры являются активными броуновскими частицами, их активность растет по мере увеличения мощности лазерного излучения, приводя к структурному переходу с обменом фрагментами цепочек.

3.2 Явления самоорганизации в криогенной газоразрядной плазме

В данном разделе описаны явления самоорганизации в криогенной газоразрядной плазме, изученные в работах [11-13].

Явления самоорганизации в природе чрезвычайно разнообразны. Их можно обнаружить в диссипативных системах различной сложности и масштаба: от физических систем, изучаемых в наномире и астрономии, до социальных и экономических процессов в мире людей. Явления самоорганизации присущи открытым неравновесным системам, отличающихся нелинейностью взаимодействия составляющих их объектов. Примером таких систем является пылевая плазма, образованная микроскопическими заряженными частицами, левитирующими в плазме газового разряда. Интенсивное рассеяние света микроскопическими частицами позволяет непосредственно наблюдать за движением частиц и определять их координаты и скорости в реальном времени. Поэтому пылевая плазма может быть использована как удобный инструмент для

изучения различных явлений самоорганизации, например, 3-D [14-18] и 2-D [4] структурных переходов, образования нелинейных волн [19, 20], в том числе с аномально большой амплитудой [21]. Пылевая плазма предоставляет уникальную возможность проводить исследования в гораздо более широком диапазоне температур нейтрального газа (в случае гелия температура меняется как минимум на два порядка) по сравнению с альтернативными системами, такими как кластеры, состоящие из капель воды, левитирующих над горячими поверхностями [22-25]. Поэтому свойства пылевой плазмы и различные процессы в ней могут быть исследованы при различных температурах нейтрального газа.

Актуальность изучения криогенной пылевой плазмы обусловлена как ее широкой распространенностью (в атмосфере Земли и в космосе, с ней также надо считаться на поверхности Марса и Луны), так и необходимостью учитывать ее возможное влияние на технологические процессы при производстве дисперсных композиционных материалов, использовании плазменного напыления и травления в микроэлектронике. История исследований пылевой плазмы насчитывает уже почти шесть десятилетий [26]. За это время многочисленные исследования были проведены и в земных условиях [27], и на борту Международной космической станции [28-30]. Отдельный интерес вызывали исследования пылевой плазмы при криогенных температурах в связи с возможностью понижения температуры макрочастиц и их кинетической энергии с одновременным увеличением параметра неидеальности плазмы (при условии сохранения заряда макрочастиц). Первая работа по исследованию криогенной пылевой плазмы была опубликована в 2001 г. [31]. В дальнейшем исследования различных плазменно-пылевых систем были продолжены и при более низких температурах, вплоть до температуры жидкого гелия, 4.2 К [4, 32-38], но достичь более низких температур до сих пор не удавалось. При этом надо иметь в виду, что понижение температуры разряда до 2 К при условии охлаждения пылевой компоненты и прочих равных условиях привело бы к увеличению параметра неидеальности плазмы более чем в два раза.

Сравнительных экспериментальных исследований пылевой плазмы при 4.2 К и 77 К до сих пор было проведено немного [33, 35, 39-42]. Результаты этих исследований были недавно рассмотрены и проанализированы в [43]. Противоречивые результаты по температурной зависимости межчастичного расстояния в плазменно-пылевых структурах обсуждались в [43]. Образование сверхплотных упорядоченных плазменно-пылевых структур при самых низких температурах ожидалось в течение многих лет на основе предположения о справедливости прямой зависимости между кинетической энергией микроскопических частиц и температурой нейтрального газа [40, 42]. Тем не менее, это предположение не было подтверждено экспериментально [43]. Другим интересным и пока необъяснимым экспериментальным результатом является уменьшение заряда пылевых частиц с понижением температуры нейтрального газа [20, 22, 29]. Наряду с необходимостью получения новой информации, важной для описания пылевой плазмы при криогенных температурах, оставался открытым вопрос о нижней границе температур, при которых ещё можно проводить экспериментальные исследования пылевой плазмы.

С другой стороны, интерес к исследованию криогенной пылевой плазмы также вызван и относительно слабой изученностью плазмы газового разряда при температурах ниже 5 К. Основной проблемой при разработке и исследовании таких плазменных систем является не охлаждение разрядной трубки до температуры ниже 4.2 К (в качестве криоохладителя может быть использован жидкий гелий), а ограничение мощности, выделяемой в газовом разряде, приводящей к повышению температуры нейтрального газа [44]. В литературе нет достоверной информации о положительных носителях заряда в криогенном тлеющем разряде, поскольку даже при $T \approx 80$ К плотности молекулярных ионов, He_3^+ и He_4^+ , достигают 10 % и 1 % соответственно [45, 46]. Известно, что механизм проводимости гелиевой плазмы меняется при $T < 5$ К [47] и такая плазма не излучает свет [44]. Необходимо учитывать возможное присутствие метастабильных отрицательных ионов гелия, He^- и He_2^- , с временем жизни 359 мкс [48] и 135 мкс [49], соответственно, в гелиевой

плазме при $T \sim 1$ К. Образование обоих анионов гелия, He^- и He_2^- , происходит с участием метастабильных атомов He^* [50]. Плотность атомов He^* может достигать значений $\sim 10^{13} \text{ см}^{-3}$ при общей плотности атомов гелия $\sim 10^{17} \text{ см}^{-3}$ и $T \approx 10$ К [51, 52].

Стоит отметить, что охлаждение нейтральных и положительных ионных компонентов плазмы до температур ≈ 1 К позволяет классифицировать такую плазму как ультрахолодную плазму [53].

3.2.1 Экспериментальный комплекс и средства диагностики для изучения криогенной пылевой плазмы

Экспериментальная установка для исследования криогенной гелиевой плазмы и пылевых структур более подробно описана в работе [54]. Установка для исследования плазменно-пылевых структур при температуре жидкого гелия была разработана на основе оптического криостата Janis SVT-200, позволяющего проводить оптические исследования в температурном диапазоне от 1.5 до 300 К. Схема установки показана на рисунке 3.6. Температуру жидкого ^4He в криостате понижали приблизительно до 1.6 К откачкой паров гелия механическим насосом. Эксперименты с разрядом постоянного тока проводились в вертикально ориентированной стеклянной трубке (4), помещенной во внутренний канал криостата. При температурах ниже 4.2 К нижняя часть разрядной трубки (до зоны нахождения плазменно-пылевых структур) была погружена в жидкий гелий. Внутренний диаметр трубки составлял 20 мм, а расстояние между электродами - 600 мм. Нижний конец трубки запаян, а к верхнему концу припаяно коваровое кольцо, через которое трубка соединена со стальной трубой, выходящей из криостата через вакуумное уплотнение. На верхнем конце стальной трубы закреплен крестообразный коннектор для подсоединения линии напуска и откачки газообразного гелия, датчика давления и вакуумного ввода для сигнала управления работой инжектора макрочастиц. Давление газообразного гелия в разрядной трубке

измерялось с помощью конвектора Granville-Phillips 275, присоединенного к крестообразному соединителю (12).

Для измерения температуры в криостате использовались два температурных датчика. Первый, диодный (Lake Shore DT-670) с диапазоном измерений от 1.4 до 500 К, располагался рядом с нижним концом разрядной трубки. Второй, калиброванный полупроводниковый (ТПК-1.5/60-22) с диапазоном измерений от 1.5 до 60 К, был закреплен на внешней поверхности разрядной трубки на высоте формируемой плазменно-пылевой структуры (5). Сигналы с датчиков обрабатывались двухканальным контроллером температуры Lake Shore 335.

В начале эксперимента температура во внутреннем канале криостата была понижена до 1,6 К, затем канал был заполнен сверхтекучим гелием (HeII) до его оптических окон. Разряд постоянного тока внутри разрядной трубки, охлаждаемой HeII, инициировался напряжением на катоде (8) с отрицательным потенциалом -3.2 кВ. В разрядной трубке поддерживалось давление газа гелия 4-6 Па. Ток разряда составлял около 20-30 мкА. Такой режим тлеющего разряда, при котором ток не превышает 100 мкА и отсутствует свечение положительного столба и страт, является оптимальным для поддержания температуры газообразного гелия вблизи температуры стенки трубки 4.2 - 5 К [44]. В этих условиях было возможным охлаждать разрядную трубку сверхтекучим гелием с температурой в пределах от 1.6 до 2.17 К. В дополнительных экспериментах было установлено, что при наличии в рабочем канале криостата жидкого гелия непрерывная откачка паров гелия при тепловыделениях в разряде ~ 100 мВт позволяет поддерживать градиент температуры между анодом и катодом в пределах 2–3 К.

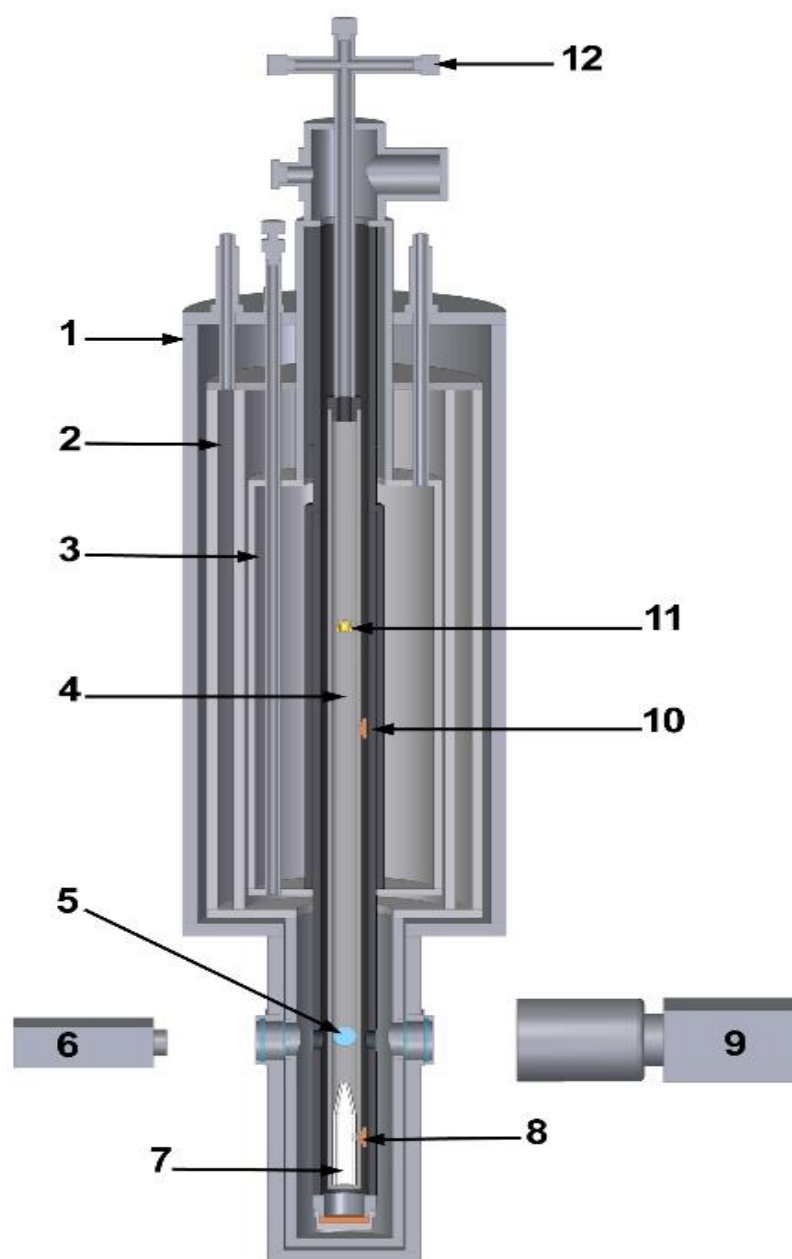


Рисунок 3.6 – Схема экспериментальной установки: 1) криостат; 2) резервуар жидкого азота; 3) резервуар жидкого гелия; 4) газоразрядная трубка; 5) плазменно-пылевая структура; 6) лазер; 7) диэлектрическая вставка; 8) катод; 9) высокоскоростная видеокамера; 10) анод; 11) инжектор частиц CeO_2 ; 12) крестообразный разъем.

Микрочастицы вводились в область разряда с помощью инжектора (11), расположенного в верхней части разрядной трубки. Инжектор представляет собой контейнер, расположенный в верхней части разрядной трубки. Инжектор заполнялся полидисперсными частицами CeO_2 (размером от 0.1 мкм до 100-200

мкм). Порошок вытряхивался из контейнера при подаче на пьезоизлучатель (установленный в контейнере) сигнала от звукового генератора. Инжектированные частицы попадали в положительный столб разряда, где происходила их зарядка и захват в ионизационные области (страты). Таким образом, формируются пылевые структуры. Пылевые структуры, сформированные в самом нижнем слое положительного столба, были отслежены и изучены. Исследование полученных структур проводилось в нижней страте положительного столба. Для изучения явлений в плазменно-пылевых структурах при криогенных температурах была разработана и изготовлена специальная вставка в криостат. Положение страты (5) стабилизировалось на уровне оптических окон путем вставки специального диэлектрического конуса (7), который фокусировал электронный поток на оси трубки. Движения пылевых частиц в плазменной структуре отслеживались высокоскоростной видеокамерой (9) с частотой до 300 кадров/с. Плазменно-пылевые структуры освещались лазерным "ножом" (высотой 8 мм и шириной 0.22 мм), введенным в криостат через оптическое окно под прямым углом к оси высокоскоростной видеокамеры. Для освещения использовался непрерывный твердотельный лазер (6) мощностью до 85 мВт на длине волны 532 нм.

3.2.2 Исследование плазменно-пылевых структур и их самоорганизации при температуре сверхтекучего гелия

Начальной точкой эксперимента было достижение минимальной температуры и заполнение шахты криостата сверхтекучим гелием примерно до оптических окон. После этого в трубке, охлаждаемой сверхтекучим гелием, зажигался разряд и создавалась плазменно-пылевая структура из частиц диоксида церия. Эволюция структуры пылевой плазмы в диапазоне температур от 1.63 до 2.16 К показана на рисунке 3.7. Формирование сфероидальной пылевой структуры наблюдалось при инжекции частиц диоксида церия в газовый разряд в трубке, охлаждаемой сверхтекучим гелием при температуре 1.63 К (рисунок 3.7а, напряжение между электродами 3.2 кВ, ток 30 мкА, давление газообразного гелия в трубке 5 Па). Размер структуры варьировался от 2 до 5 мм, обычно ее высота

превышала диаметр. Жидкоподобная структура состояла из случайно движущихся быстрых и медленных частиц, скорости которых различались более чем на порядок. Некоторые быстрые частицы создавали интенсивные вихревые потоки на боковой поверхности плазменно-пылевой структуры. Среднее межчастичное расстояние в структуре, l_{ip} , составляло 120 ± 15 мкм.

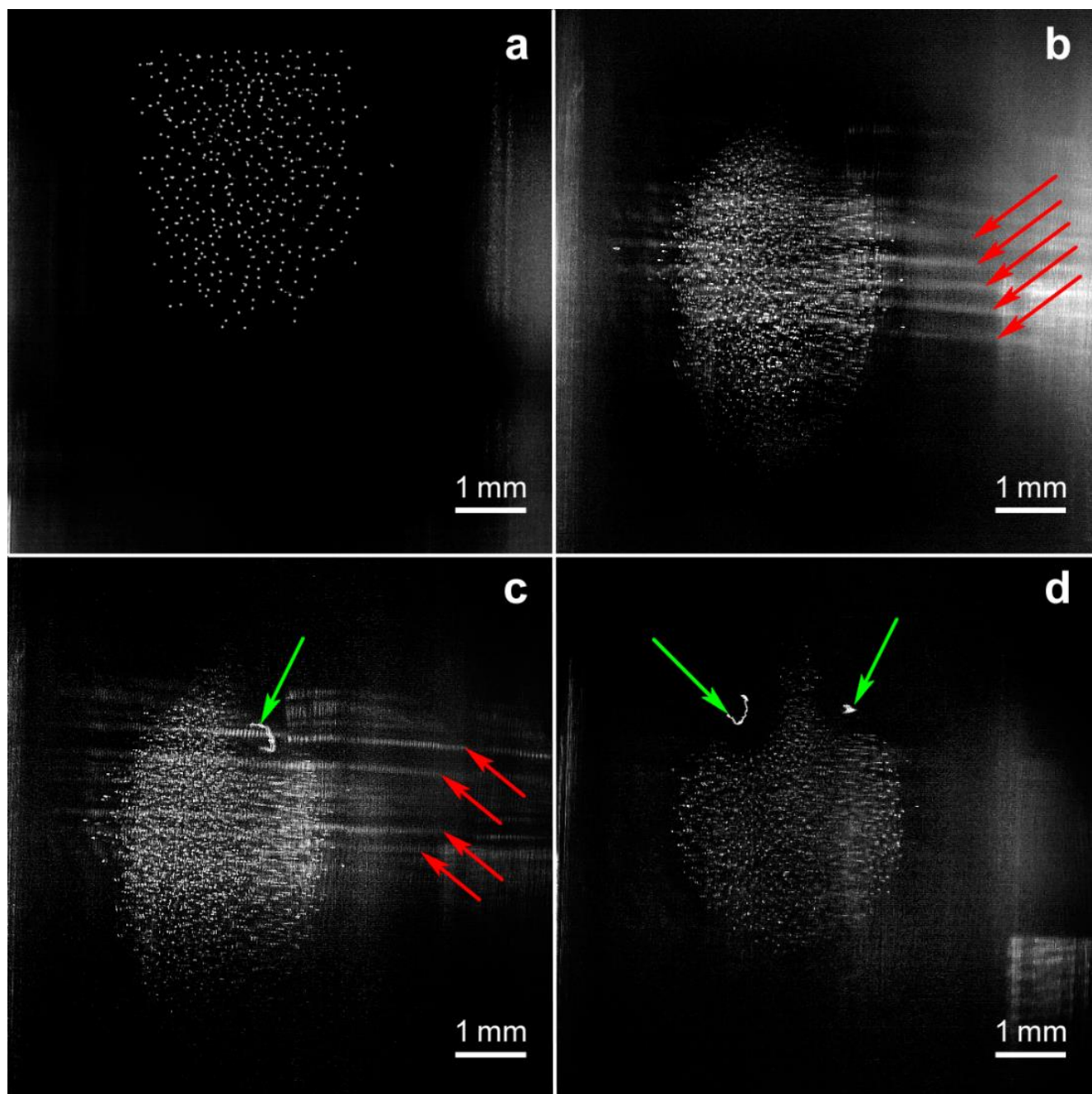


Рисунок 3.7 – Трансформация плазменно-пылевой структуры в диапазоне температур от 1.63 до 2.16 К: а) структура, образованная частицами CeO_2 при 1.63 К; б) структура и волны в облаке полимерных наночастиц, $T = 2.0$ К, красные

стрелки указывают на волны плотности в облаке наночастиц; с) структура, состоящая из частиц CeO_2 , облака полимерных наночастиц и твердых волокон, $T = 2.0$ К, зеленая стрелка указывает на волокна; d) пустоты вокруг твердых волокон, левитирующих внутри пылевой структуры, сформированной частицами CeO_2 , $T = 2.16$ К.

Облако наночастиц появилось в поле зрения примерно через 1000 с после зажигания тлеющего разряда (рисунок 3.7b). Высота облака была аналогична высоте пылевой структуры, но его диаметр в 3 раза превышал диаметр структуры. Появление наночастиц привело к изменению формы облака из диоксида церия и межчастичного расстояния в нем. Облако было распознано благодаря рассеянию лазерного света на модуляциях его плотности (наиболее интенсивные волны плотности отмечены красными стрелками на рисунок 3.7b и 3.7c), соответствующих коллективному колебательному движению наночастиц. Было установлено, что частота колебаний снизилась с 48 Гц до 20 Гц при увеличении температуры с 1.69 К до 2.0 К при давлении ≈ 4 Па. В то же время скорость волны уменьшилась с 16.8 до 7.4 мм/с, а длина волны осталась неизменной и составила 0.37 ± 0.03 мм. В области наложения пылевой структуры и облака наночастиц вокруг макрочастиц не наблюдалось пустот. Таким образом, наблюдалось появление второй компоненты в плазменно-пылевой структуре, что привело к изменению ее состояния.

После появления облака частиц, с задержкой в несколько минут, в области формирования пылевой структуры наблюдалось появление отдельных волокон, длиной \sim от 0.1 до 1 мм (рисунок 3.7c). Короткие волокна длиной ~ 0.1 мм быстро вращались. По анализу видеозаписей было установлено, что скорость вращения малых волокон составляла не менее 100 оборотов/с.

Интересной особенностью было отсутствие в облаке наночастиц войдов вокруг волокон (рисунок 3.7c), тогда как они хорошо заметны в плазменно-пылевой структуре (расстояние от волокна до пылевых макрочастиц, или «радиус»

войда, в этом случае составляли 0.3-0.4 мм, рисунок 3.7d). Волокна обычно левитировали на одной высоте относительно центра сфероидальной структуры. Облако наночастиц наблюдалось в диапазоне температур 1.6-2 К. Волокна были видны в поле зрения вплоть до температуры 4.4 К.

Облако наночастиц наблюдалось более 15 мин в узком температурном диапазоне, от 1.6 до 2.17 К, т. е. до момента перехода жидкого гелия, охлаждающего разрядную трубку, в нормальное состояние. При разрушении плазменно-пылевой структуры при 9.8 К из-за выключения разряда микроскопические частицы отбрасывались затухающим электрическим полем на стенки трубки. Разрядная трубка извлекалась из криостата после каждого эксперимента. Частицы CeO_2 прилипали к стенке трубки и образовывали "отпечаток" пылевой структуры на внутренней поверхности трубки. Частицы и волокна, осевшие на стенке трубки, были собраны с помощью углеродной ленты и исследованы с помощью сканирующей электронной микроскопии и рентгеновского энергодисперсионного (EDX) микроанализа.

Было установлено, что частицы оксида церия, собранные со стенок трубки, имеют более узкое распределение по размерам (от 1 до 20-30 мкм) по сравнению с первоначальным широким распределением полидисперсных частиц (от 0.1 до ~100 мкм). Эффективное значение заряда, Z_d , для одной частицы диаметром 1 мкм, было получено с помощью баланса гравитационного и электростатического (предполагая, что плотность оксида церия составляет 7.6 г/см^3 и вертикальный градиент электрического поля равен 10 В/см) и оказалось $\approx 250e$, где e - элементарный заряд, $1.6 \times 10^{-19} \text{ Кл}$. На основе этого значения заряда был оценен параметр неидеальности, Γ . Γ отражает отношение между потенциальной (кулоновской, E_C) и тепловой (кинетической, E_k) энергиями частиц. Значение параметра неидеальности определяется по формуле:

$$\Gamma = E_C / E_k = 1 / (4\pi\epsilon_0) \times (Z_d \times e)^2 / (E_k \times l_{ip}) \quad (3.1)$$

где ϵ_0 - диэлектрическая проницаемость.

Получено значение $\Gamma \approx 20$ для $E_k = m_p \times \langle v_p \rangle^2 / 2 \approx 6 \times 10^{-21}$ Дж, определенное из значений массы частицы CeO_2 диаметром 1 мкм, m_p , и средней скорости, v_p , макрочастиц в структуре, полученных при обработке видеозаписей. Столь высокая кинетическая энергия частиц может быть обусловлена как действием фотометрической силы, вызванной интенсивным лазерным излучением подсветки, так и неоднородностью внешнего электрического поля [55]. Кроме того, необходимо учитывать слабую диссипацию энергии частиц в исследуемой системе, определяемую низким давлением порядка 1 Па. Эти значения хорошо согласуются с наблюдаемой жидкоподобной сфероидальной плазменно-пылевой структурой. Таким образом, грубую оценку плотностей электронов и положительных ионов в квазинейтральной комплексной плазме можно сделать, используя концентрацию пылевых частиц $n_d = 5 \times 10^5 \text{ см}^{-3}$, рассчитанную по среднему межчастичному расстоянию $n_e, n_i \sim n_d \times Z_d \approx 10^8 \text{ см}^{-3}$.

Волокна представляют собой эластичные спиралевидные ленты шириной от 12 до 22 мкм и толщиной 2-5 мкм. Электронные микрофотографии волокна длиной 5 мм приведены на рисунке 3.8. Для получения дополнительной информации о структуре волокна показаны микрофотографии с различным оптическим увеличением. Белые рамки на рисунке 3.8a, 3.8b и 3.8c относятся к области, показанной на рисунке 3.8b, 3.8c и 3.8d, соответственно. Общий вид волокна и ее конец показаны на рисунках 3.8a и 3.8b, соответственно. Удельная масса волокна была оценена и составила 0.2 мкг/мм при условии, что удельный вес волокна составляет около 1 г/см³. Таким образом, удельный заряд, необходимый для левитации волокна, должен составлять $\approx 7 \times 10^6 \text{ e/мм}$. Спиральная лента похожа на винт Архимеда. При большом оптическом увеличении на поверхности волокна видны небольшие выпуклости, рисунок 3.8c и 3.8d. Их диаметр находится в диапазоне от 10 до 100 нм. Можно предположить, что эти выпуклости соответствуют наночастицам в облаке, наблюдаемом при температурах ниже 2 К. Малые размеры этих наночастиц и отсутствие пустот вокруг волокон,

левитирующих в облаке наночастиц, указывают вместе на низкие значения их электрического заряда, $\sim e$.

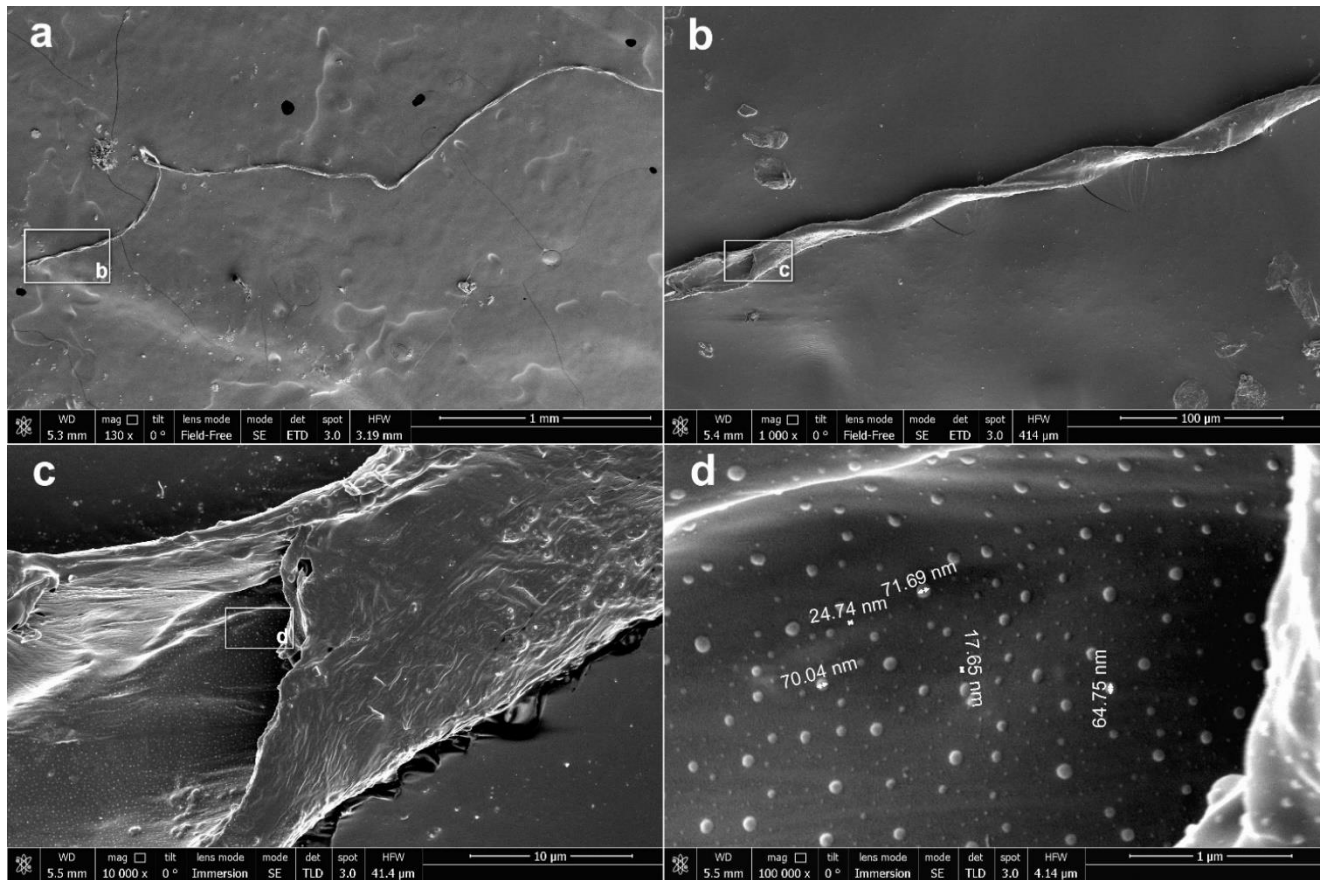


Рисунок 3.8 – РЭМ микрофотографии спирального волокна, полученные при различных увеличениях: а) $\times 130$; б) $\times 1000$; в) $\times 10000$; д) $\times 100000$. Белая рамка соответствует области, показанной на последующей микрофотографии.

3.2.3 Формирование волокон и наночастиц в криогенной газоразрядной плазме

Химический состав волокон был изучен методом рентгеновского энергодисперсионного микроанализа. Состав волокон приведен в таблице 3.1 и сравнен с составом диэлектрического конуса, изготовленного из глины DAS (материал для моделирования, воздушного отвердевания). Искусственная глина состоит из талька, $\text{Mg}_3(\text{OH})_2\text{Si}_4\text{O}_{10}$, ≈ 30 мас. %, гипса, $\text{CaSO}_4 \cdot 2(\text{H}_2\text{O})$, ≈ 30 мас. %, и целлюлозных, $(-\text{C}_6\text{H}_{10}\text{O}_5^-)$, волокон, ≈ 30 мас. % [56]. Остальной компонент глины представляет собой клей на акриловой основе [57], состав которого защищен

патентом [56]. Данные, приведенные в таблице 3.1, показывают значительное различие в составах волокон и глины. Видно, что волокна состоят в основном из углерода, кислорода и кремния. Появление церия в волокнах может быть объяснено адсорбцией частиц оксида церия на поверхности волокон. Химический состав нанокластеров не исследовался из-за их малого размера (рисунок 3.8d).

Таблица 3.1 – Химический состав глины и волокон (микроанализ EDX не позволяет анализировать количество атомов водорода).

Глина		Волокно	
Элемент	Ат. вес, %	Элемент	Ат. вес, %
O	61	O	30
C	14	C	61
Mg *	11		
Si	9	Si	8
Al *	3		
S *	1		
Ca *	1		
		Ce **	1

* - содержание Mg, Al, S и Ca в волокнах составляло ~ 0.1 %.

** - присутствие церия в волокнах может быть объяснено адсорбцией частиц оксида церия на поверхности волокон. Некоторые другие химические элементы (Na, K, Cl) были обнаружены в глине и в волокнах как примеси на уровне ~ 0.1 %.

Можно сделать вывод, что интенсивное распыление диэлектрического конуса, используемого для стабилизации положения самого нижнего слоя в положительном столбе тлеющего разряда, происходит за счет электронов и ионов, сфокусированных в небольшое отверстие в верхней части вставки. На рисунке 3.9 приведена фотография нижней части трубки при включенном разряде при температуре 295 К. В области выходного отверстия конусообразной части вставки видно интенсивное свечение плазмы. Известно, что распыление твердой полимерной мишени при комнатной температуре может привести к выделению летучих фрагментов макромолекул, которые в дальнейшем могут быть

использованы в качестве прекурсоров для плазменной полимеризации [58, 59, 60]. Во многих случаях при напылении полимеров образуются структуры, химически не похожие ни на первичный полимер, ни на полимер, полученный плазменной полимеризацией мономера, поскольку любая перенесенная масса, скорее всего, представляет собой высокорреакционные атомы и небольшие фрагменты полимера, а не длинные неповрежденные цепи [59]. Более того, различные полимерные фрагменты могут образовывать различные структуры. Например, радиочастотное магнетронное распыление поли(тетрафторэтилена) позволило получить супергидрофобные пленки, в которых сшитые наночастицы плазменного полимера фторуглерода были встроены в несшитую непрерывную $(-CF_2-)_x$ матрицу с высококристаллической структурой [60]. Наночастицы размером 20-30 нм формировались вблизи магнетрона и имели сшитую структуру из-за быстрой случайной радикальной рекомбинации в плазме. Непрерывная фаза формировалась на удаленных расстояниях от магнетрона в результате более медленной ступенчатой газофазной полимеризации бирадикалов CF_2 .



Рисунок 3.9 – Фотография нижней части трубки с горящим тлеющим разрядом.

Следует отметить устойчивые условия разряда при температуре жидкого гелия: давление в разрядной трубке зависело только от температуры жидкого гелия и тока разряда. Распыление диэлектрической вставки при комнатной температуре вызывает быстрый рост давления в разрядной трубке и приводит к яркой эмиссии из области вблизи конусного отверстия. Цвет эмиссии из этой области менялся во времени. Конечное давление в разрядной трубке после выключения разряда и охлаждения гелиевого газа может быть в 2-3 раза выше начального (~ 100 Па). Такое повышение давления может быть связано с эффективным распылением диэлектрической вставки. Часть распыленного материала остается в газовой фазе при комнатной температуре, создавая дополнительное давление в трубке и изменяя спектр излучения. Очевидно, что любой распыленный материал будет сразу же агрегироваться в нанокластеры или осаждаться на холодных поверхностях при температуре жидкого гелия (пары любого вещества, кроме гелия, пересыщены при $T = 2$ К, даже давление молекулярного водорода при такой температуре намного меньше 10^{-5} Па).

Предполагается, что температура нейтрального газа внутри разрядной трубки приблизительно равна температуре стенки трубки. Это предположение основано на следующих экспериментальных фактах: очень низкое тепловыделение, ~ 1 мВт/см, было в области разряда, заполненной достаточно плотным ($\approx 2 \times 10^{17}$ атомов/см³) гелием; не наблюдалось радиального градиента температуры за счет образования пустот или разрежения центральной части пылевой структуры (рисунок 3.7). Хорошо известно, что радиальный градиент температуры (вследствие либо быстрого охлаждения стенки разрядной трубки, либо быстрого повышения температуры вдоль оси трубки при увеличении тока) заставляет пылевые частицы двигаться к стенке трубки под действием термофоретической силы [61].

Известно, что в разрядах небольшой мощности полимеры главным образом распадаются на мономеры, которые затем, например на холодной подложке, снова могут сформировать длинные полимерные молекулы [62]. Получаемый в

результате распыления поверхности пар практически любого вещества при температуре данного эксперимента является пересыщенным, что приводит к интенсивной нуклеации атомов и молекул, а затем и к коагуляции наночастиц (размерами порядка нанометра) [63]. Начиная с размеров порядка 10 нм такие частицы становятся способны к зарядке в плазме и процесс коагуляции может быть ограничен для более крупных частиц за счет кулоновского отталкивания [64, 65]. В рассматриваемом случае мы видим, что размеры полимерных наночастиц не превышают 100 нм.

3.3 Выводы

В данной главе показаны изменения локализации и рост активности медных микрочастиц в кластере из цепочечных структур по мере увеличения значений мощности разогревающего лазерного излучения. Проведенный анализ траекторий, динамической энтропии и среднего квадратичного смещения макрочастиц в кластере отображает изменение динамики движения частиц по мере увеличения мощности лазерного излучения: при значениях мощности лазерного излучения менее 225 мВт цепочечные структуры были стабильны, а частицы в них двигались медленно, находясь в ловушке; при значениях мощности лазерного излучения от 225 до 380 мВт макрочастицы выходили из своих потенциальных ям и начинали двигаться внутри оболочек цепочечных структур; при дальнейшем увеличении мощности воздействующего лазерного излучения до 980 мВт цепочки начинали «обмениваться» частицами. Таким образом, динамика движения частиц в кластере из цепочечных структур изменяется при различной мощности лазерного излучения и соответствует трем режимам: удержание ловушкой, броуновское движение и комбинированное направлено-случайное движение, состоящее из лазерно-индуцированного (фотофорез) и броуновского движения. Анализ линейного смещения до изменения направления движения и отклонения от него макрочастиц при различных значениях мощности лазерного излучения показал, что изменение динамики движения частиц и структурный переход с обменом фрагментами цепочек внутри кластера стали возможны благодаря механизму преобразования

энергии оптического излучения в энергию движения частиц, то есть активности медных частиц.

При гелиевых температурах наблюдалась и была исследована мультимодальная сложная плазма, образованная сфероидальной плазменно-пылевой структурой, состоящей из полидисперсных частиц оксида церия, наложенных на облако наночастиц (менее 100 нм) и твердых спиральных волокон (длиной до 5 мкм и шириной до 22 нм) в диапазоне температур 1.6-2 К.

Заряды, определенные для наночастиц, микроскопических частиц CeO_2 и твердых волокон, составляют $\sim 1e$, $\approx 250e$ и $\sim 10^6e$, соответственно, и находятся в хорошем согласии с наблюдениями взаимодействия частиц оксида церия с наночастицами и волокнами.

Параметр неидеальности $\Gamma \sim 10$ был определен для сфероидальной пылевой структуры, и это значение хорошо согласуется с ее жидкоподобным типом.

Были исследованы волновые колебания в облаке полимерных наночастиц, которые формировались в области криогенного разряда и наблюдались в узком температурном диапазоне от 1.6 до 2.17 К. При гелиевых температурах в плазменно-пылевых структурах наблюдались вихри.

Полученные результаты позволяют сделать вывод, что нанокластеры и твердые волокна могут формироваться в результате ионного распыления диэлектрического материала в ходе экспериментов при $\Gamma < 2$ К.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Исследования затрагивают сразу несколько областей науки, такие как: физика пылевой и низкотемпературной плазмы, физика газового разряда, химия полимеров и материаловедение. Представленные в данной работе результаты экспериментальных исследований могут оказаться полезными широкому кругу специалистов, в том числе занимающихся созданием новых конструкционных и функциональных материалов, изучением свойств активных коллоидных систем и разработкой приложений, связанных с их использованием.

Экспериментально исследована модификация поверхности, а именно формирование металлического покрытия, макрочастиц после их экспозиции в приэлектродной области высокочастотного (ВЧ) разряда. При попадании макрочастиц в плазму ВЧ разряда на поверхность частиц, левитирующих над нижним электродом разрядной камеры, начинают осаждаться металлы. Электроды и элементы газоразрядной камеры, подвергшиеся эрозии, могут служить источником осажденного материала. Кроме того, представлен анализ поверхности и состава частиц, размещенных на электроде после воздействия плазмы в течение 6 ч. Выявлено, что состав и структура поверхности частиц меняется в ходе экспозиции в плазме. Поверхность частиц подвергается эрозии, в то же время образуются структуры различной формы – игольчатые для частиц без покрытия, столбчатые для частиц с металлическим покрытием. Модификация приводит к развитию у частиц уникальных функциональных свойств поверхности и состава, которые могут быть использованы как в медицинских и технических целях (адресная доставка лекарств и создание порошковых основ для композитных материалов), так и в научных (создание активных янус-частиц для изучения самоорганизации коллоидных и плазменно-пылевых систем).

Показано, что при воздействии лазерного излучения динамика движения макрочастиц с модифицированной поверхностью в монослое изменяется и соответствует трем режимам: удержание ловушкой, броуновское движение и

комбинированное направлено-случайное движение. Проведено сравнение линейного смещения до изменения направления движения и отклонения от направления движения макрочастиц при различных значениях интенсивности лазерного излучения. Установлено, что полимерные частицы с модифицированной поверхностью являются активными броуновскими частицами и их активность растет с увеличением интенсивности лазерного излучения.

Экспериментально зафиксирован рост кинетической энергии модифицированных частиц от $E_k \sim 1$ эВ до $E_k \sim 121$ эВ при лазерном воздействии, в то время как у частиц без модификации кинетическая энергия не изменялась и составляла $E_k \sim 1$ эВ. Показано уменьшение степени упорядоченности монослоя из модифицированных частиц при увеличении интенсивности лазерного излучения. Наблюдался лазерно-индуцированный структурный переход «кристалл-жидкость» в монослое модифицированных макрочастиц, левитирующих в приэлектродном слое емкостного высокочастотного разряда. Проведены оценки параметра неидеальности пылевой системы. Предложено объяснение структурного перехода с учетом роли фотофоретической силы в движении макрочастиц. Влияние фотофоретической силы связано с модификацией поверхности макрочастиц в плазме, в результате которой частицы могут эффективно поглощать лазерное излучение.

Представлены результаты исследования структурного перехода в цепочечной структуре из активных броуновских частиц в плазме тлеющего разряда постоянного тока при воздействии лазерного излучения. Проведенный анализ траекторий, динамической энтропии и среднего квадратичного смещения макрочастиц в цепочечной структуре отображает изменение динамики движения частиц по мере увеличения интенсивности лазерного излучения: изначально цепочечные структуры были стабильны, а частицы в них двигались медленно, находясь в ловушке; при увеличении интенсивности лазерного излучения макрочастицы выходили из своих потенциальных ям и начинали двигаться внутри оболочек цепочечных структур; при дальнейшем увеличении интенсивности

воздействующего лазерного излучения цепочки начинали «обмениваться» частицами. В результате анализа линейного смещения вдоль направления движения и отклонения от направления движения макрочастиц установлено, что активность макрочастиц растет с увеличением интенсивности лазерного излучения, приводя к структурному переходу с обменом фрагментами цепочек.

Впервые исследована мультимодальная пылевая плазма, сформированная в положительном столбе тлеющего разряда постоянного тока при температуре сверхтекучего гелия. Формирование жидкоподобной пылевой структуры произошло после инъекции полидисперсных частиц оксида церия в тлеющий разряд. Параметр неидеальности ~ 10 , определенный для структуры, соответствует ее жидкоподобному типу. В структурах наблюдались вихри при гелиевых температурах (4-10 К). Облако наночастиц и нелинейные волны внутри облака наблюдались при $T < 2$ К. Впервые наблюдались твердые спиральные волокна длиной до 5 мм, диаметром до 22 мкм, суммарным зарядом $\sim 10^6 e$, левитирующие в газовом разряде при температуре ~ 2 К и давлении 4 Па. Анализ условий эксперимента и состава волокон позволяет сделать вывод, что волокна и нанокластеры образовались в результате ионного распыления диэлектрического материала в ходе экспериментов.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Фортов В. Е., Храпак А. Г., Храпак С. А., Молотков В.И., Петров О.Ф. «Пылевая плазма» // УФН. – 2004. – Т. 174. – С. 495–544.
2. Фортов В. Е., Морфилл Г. Е. Комплексная и пылевая плазма. Из лаборатории в космос. – Москва : Физмат-лит, 2012.
3. Петров О. Ф., Васильев М. М., Ёе Тун и др. «Двумерный фазовый переход в сильнонеидеальной пылевой плазме» // ЖЭТФ. – 2015. – Т. 147. – С. 372–378.
4. Wuerker R. F., Shelton H., Langmuir R. V. «Electrodynamic Containment of Charged Particles» // J. Appl. Phys. – 1959. – Vol. 30. – P. 342.
5. Энциклопедия низкотемпературной плазмы. Серия А. Прогресс в физике и технике низкотемпературной плазмы // под ред. В. Е. Фортова. – Москва : Янус-К, 2006.
6. Fortov V. E., Morfill G. E. Complex and Dusty Plasmas: From Laboratory to Space, 1st ed. Boca Raton, FL, USA : CRC Press, 2009.
7. Ramazanov T. S., D'yachkov L. G., Dzhumagulova K. N. et al. «Experimental investigations of strongly coupled Coulomb systems of diamagnetic dust particles in a magnetic trap under microgravity conditions» // Europhys. Lett. – 2016. – Vol. 116. – P. 45001.
8. Мясников М. И., Дьячков Л. Г., Петров О. Ф. и др. «Кулоновский разлет диамагнитных пылевых частиц в антипробкотронной магнитной ловушке в условиях микрогравитации» // ЖЭТФ. – 2017. – Т. 151. – С. 372-378.

Список литературы к главе 1

1. Pietzonka, P. «The oddity of active matter» // Nat. Phys. – 2021. – Vol. 17. – P. 1193–1194.
2. Арансон И. С. «АКТИВНЫЕ КОЛЛОИДЫ» // УФН. – 2013. – Т. 183, № 1. – С. 87–102.
3. Falk M. J., Alizadehyazdi V. J., Jaeger H. & Murugan A. «Learning to control active matter» // Physical Review Research. – 2021. – Vol. 3. – P. 033291.
4. Mandal R., Bhuyan P.J., Chaudhuri P. et al. «Extreme active matter at high densities» // Nat. Commun. – 2020, – Vol. 11. – P. 2581.
5. Ebbens S. J. «Active Colloids: Progress and Challenges towards realising Autonomous Applications» // Current Opinion in Colloid & Interface Science. – 2015. – Vol. 21. – P. 14–23.
6. Sang Y., Han J., Zhao T., Duan P. & Liu M. «Circularly Polarized Luminescence in Nanoassemblies: Generation, Amplification, and Application» // Advanced Materials. – 2019. – Vol. 32(41). – P. 1900110.
7. Avni Y., Komura S. & Andelman D. «Brownian motion of a charged colloid in restricted confinement» // Physical Review E. – 2021. – Vol. 103. – P. 042607.
8. Verweij R., Moerman P., Nathalie E. G., Huijnen L., Groenewold J., Kegel W., van Blaaderen A. & Kraft D. «Flexibility-induced effects in the Brownian motion of colloidal trimers» // Physical Review Research. – 2020. – Vol. 2. – P. 033136.
9. Bechinger C., Leonardo R. D. et al. «Active particles in complex and crowded environments» // Rev. Mod. Phys. – 2016. – Vol. 88. – P. 045006.
10. Chen X. Zh. et al. «Magnetoelectric micromachines with wirelessly controlled navigation and functionality» // Mater. Horiz. – 2016. – Vol. 3. – P. 113.

11. Romanczuk P., Bär M., Ebeling W. et al. «Active Brownian particles» // *Eur. Phys. J. Spec. Top.* – 2012. – Vol. 202. – P. 1–162.
12. Joanny J. F., Jülicher F., Prost J. «Motion of an Adhesive Gel in a Swelling Gradient: A Mechanism for Cell Locomotion» // *Phys. Rev. Lett.* – 2003. – Vol. 90. – P. 168102.
13. Kruse K., Joanny J. F., Jülicher F., Prost J. «Contractility and retrograde flow in lamellipodium motion» // *Phys. Biol.* – 2006. – Vol. 3. – P. 130.
14. Mitchison T. J., Cramer L. P. «Actin-Based Cell Motility and Cell Locomotion» // *Cell.* – 1996. – Vol. 84. – P. 371.
15. Ridley A.J., Schwartz M.A., Burridge K., Firtel R.A., Ginsberg M.H., Borisy G., Parsons J.T., Horwitz A.R. «Cell Migration: Integrating Signals from Front to Back» // *Science.* – 2003. – Vol. 302. – P. 1704.
16. Howard J. *Mechanics of Motor Proteins and the Cytoskeleton.* Sunderland, MA, USA : Sinauer Associates, 2001.
17. Jülicher F., Ajdari A., Prost J., «Modeling molecular motors» // *Rev. Mod. Phys.* – 1997. – Vol. 69. – P. 1269.
18. Guerin T., Prost J., Martin P., Joanny J. F. «Coordination and collective properties of molecular motors: theory» // *Curr. Opin. Cell Biol.* – 2010. – Vol. 22. – P. 14–20.
19. Endow S. A., Higuchi H. «A mutant of the motor protein kinesin that moves in both directions on microtubules» // *Nature.* – 2000. – Vol. 406. – P. 913.
20. Dai, B., Wang, J., Xiong, Z. et al. «Programmable artificial phototactic microswimmer» // *Nature Nanotech.* – 2016. – Vol. 11. – P. 1087–1092.

21. Ma X., Jang S., Popescu M., Uspal W., López A., Hahn K., Kim D. & Sanchez S. «Reversed Janus Micro/Nano-Motors with Internal Chemical Engine» // ACS nano. – 2016. – Vol. 10. – P. 8751–8759.
22. Palacci J., Sacanna S., Vatchinsky A., Chaikin P. & Pine D. «Photo-Activated Colloidal Dockers for Cargo Transportation» // Journal of the American Chemical Society. – 2013. – Vol. 135. – P. 15978–15981.
23. Maggi C., Saglimbeni F., Dipalo M. et al. «Micromotors with asymmetric shape that efficiently convert light into work by thermocapillary effects» // Nat. Commun. – 2015. – Vol. 6. – P. 7855.
24. Wang L., Popescu M. N., Stavale F., Ali A., Gemming T., & Simmchen J. «Cu@TiO₂ Janus microswimmers with a versatile motion mechanism» // Soft Matter. – 2018. – Vol. 14. – P. 6969-6973.
25. Paxton W., Kistler K., Olmeda C., Sen A., St. Angelo S., Cao Y., Mallouk T., Lammert Pa. & Crespi V. «Catalytic Nanomotors: Autonomous Movement of Striped Nanorods» // J. Am. Chem. Soc. – 2004. – Vol. 126(41). – P. 13424–13431.
26. Wang W., Castro L., Hoyos M. & Mallouk T. «Autonomous Motion of Metallic Microrods Propelled by Ultrasound» // ACS Nano. – 2012. – Vol. 6. – P. 6122–6132.
27. Lenshof A., Magnusson C. & Laurell T. «Acoustofluidics 8: Applications of acoustophoresis in continuous flow microsystems» // Lab on a chip. – 2012. – Vol. 12. – P. 1210-1223.
28. Bogatyr V., Biebricher A. & Wuite G. «Quantitative acoustophoresis: a contact-free assay for the mechanical characterization of bioparticles» // Biophysical Journal. – 2022. – Vol. 121. – P. 417a.
29. Schmitt M.: Active emulsion droplets driven by Marangoni flow. PhD Thesis, Technical University Berlin, 2017.

30. Kichatov B., Korshunov A., Sudakov V., Gubernov V., Yakovenko I. & Kiverin A. «Crystallization of Active Emulsion» // *Langmuir*. – 2021. – Vol. 37(18). – P. 5691–5698.
31. Harraq A., Choudhury B. D. & Bharti B. «Field-Induced Assembly and Propulsion of Colloids» // *Langmuir*. – 2022. – Vol. 38(10). – P. 3001–3016.
32. Sapozhnikov M. V., Tolmachev Y. V., Aranson I. S., Kwok W. K. «Dynamic Self-Assembly and Patterns in Electrostatically Driven Granular Media» // *Phys. Rev. Lett.* – 2003. – Vol. 90. – P. 114301.
33. Sapozhnikov M. V., Aranson I. S., Tolmachev Y. V., Kwok W. K. «Self-Assembly and Vortices Formed by Microparticles in Weak Electrolytes» // *Phys. Rev. Lett.* – 2004. – Vol. 93. – P. 084502.
34. Snezhko A., Belkin M., Aranson I. S., Kwok W. K. «Self-Assembled Magnetic Surface Swimmers» // *Phys. Rev. Lett.* – 2009. – Vol. 102. – P. 118103.
35. Feldmann D., Arya P., Lomadze N., Kopyshv A. & Santer S. «Light-driven motion of self-propelled porous Janus particles» // *Applied Physics Letters*. – 2019. – Vol. 115. – P. 263701.
36. Sen A., Ibele M. et al. «Chemo and phototactic nano/microbots» // *Faraday Discuss.* – 2009. – Vol. 143. – P. 15-27.
37. Palacci J., Sacanna S., Steinberg et al. «Living Crystals of Light-Activated Colloidal Surfers» // *Science*. – 2013. – Vol. 339(6122). – P. 936–940.
38. Li W., Wu X., Qin H., Zhao Z. and Liu H. «Light-Driven and Light-Guided Microswimmers» // *Adv. Funct. Mater.* – 2016. – Vol. 26. – P. 3164-3171.
39. Sagot B. «Thermophoresis for spherical particles» // *Journal of Aerosol Science*. – 2013. – Vol. 65. – P. 10–20.

40. Uspal W. E. «Theory of light-activated catalytic Janus particles» // J. Chem. Phys. – 2019. – Vol. 150(11) – P. 114903.
41. Avital E. J., Miloh T. «Self-thermophoresis of laser-heated spherical Janus particles» // Eur. Phys. J. E. – 2021. – Vol. 44. – P. 139.
42. Yu N., Lou X., Chen K. & Yang M. «Phototaxis of active colloid by self-thermophoresis» // Soft Matter. – 2019. – Vol. 15. – P. 408-414.
43. Jiang H.-R., Yoshinaga N., Sano M. «Active Motion of a Janus Particle by Self-Thermophoresis in a Defocused Laser Beam» // Phys. Rev. Lett. – 2010. – Vol. 105. – P. 268302.
44. Meredith C., Castonguay A., Chiu Y.-J., et al. «Chemical design of self-propelled Janus droplets» // Matter. – 2022. – Vol. 5. – P. 616-633.
45. Fortov V. E., Morfill G. E. Complex and Dusty Plasmas: From Laboratory to Space, 1st ed. Boca Raton, FL, USA : CRC Press, 2009.
46. Фортов В. Е., Храпак А. Г., Храпак С. А., Молотков В.И., Петров О.Ф. «Пылевая плазма» // УФН. – 2004. – Т. 174. – С. 495–544.
47. Ваулина О.С., Петров О.Ф., Фортов В.Е. и др., Пылевая плазма. Эксперимент и теория. Москва : Физмат-лит, 2009.
48. Фортов В. Е., Морфилл Г. Е. Комплексная и пылевая плазма. Из лаборатории в космос. – Москва : Физмат-лит, 2012.
49. Петров О. Ф., Васильев М. М., Ёе Тун и др. «Двумерный фазовый переход в сильнонеидеальной пылевой плазме» // ЖЭТФ. – 2015. – Т. 147. – С. 372–378.
50. Fortov V.E. et al. «Complex (dusty) plasmas: Current status, open issues, perspectives» // Physics reports. – 2005. – Vol. 421. – P. 1–103.

51. Couëdel L., Nosenko V., Ivlev A. V., Zhdanov S. K., Thomas H. M., and Morfill G. E. «Direct Observation of Mode-Coupling Instability in Two-Dimensional Plasma Crystals» // *Phys. Rev. Letters.* – 2010. – Vol. 104. – P. 195001.
52. Васильев М. М., Петров О. Ф., Стаценко К. Б. «Кулоновские структуры из заряженных макрочастиц в статических магнитных ловушках при криогенных температурах» // *Письма в ЖЭТФ.* – 2015. – Т. 102. – С. 881-885.
53. Косс К. Г., Петров О. Ф., Мясников М. И. и др., «Фазовые переходы и динамическая энтропия в малых двумерных системах: эксперимент и численное моделирование» // *ЖЭТФ.* – 2016. – Т. 150. – С. 111-121.
54. Preining O. «Photophoresis» // *Aerosol Science* (ed. C.N. Davis). N.Y.: Academic Press, 1966. – P. 111-135.
55. Petrov O. F., Vasiliev M. M., Vaulina O. S. et al. «Solid-hexatic-liquid transition in a two-dimensional system of charged dust particles» // *EPL.* – 2015. – Vol. 111. – P. 45002.
56. Ворона Н.А., Гавриков А.В., Иванов А.С. и др., «Вязкость плазменно-пылевой жидкости» // *ЖЭТФ.* – 2007. – Т. 132. – С. 941.
57. Killer C., Mulsow M., Melzer A. «Spatio-temporal evolution of the dust particle size distribution in dusty argon rf plasmas» // *Plasma Sources Sci. Technol.* – 2015. – Vol. 24. – P. 025029.
58. Karasev V.Yu., Dzlieva E.S., Gorbenko A.P. et al. «Modification of the texture of a polymer material surface in dust plasma» // *Technical Physics.* – 2017. – Vol. 62. – P. 496.

Список литературы к главе 2

1. Kononov E. A., Vasiliev M. M., Vasilieva E. V., Petrov O. F. «Particle Surface Modification in the Near-Electrode Region of an RF Discharge» // *Nanomaterials*. – 2021. – V. 11. – P. 2931.
2. Hopwood J. «Review of inductively coupled plasmas for plasma processing» // *Plasma Sources Sci. Technol.* – 1992. – Vol. 1. – P. 109–116.
3. Thomas H., Morfill G. E., Demmel V. et al. «Plasma Crystal: Coulomb Crystallization in a Dusty Plasma» // *Phys. Rev. Lett.* – 1994. – Vol. 73. – P. 652–655.
4. Couëdel L., Nosenko V., Ivlev A. V. et al. «Direct Observation of Mode-Coupling Instability in Two-Dimensional Plasma Crystals» // *Phys. Rev. Lett.* – 2010. – Vol. 104. – P. 195001.
5. Kryuchkov N.P., Ivlev A.V., Yurchenko S.O. «Dissipative phase transitions in systems with nonreciprocal effective interactions» // *Soft Matter*. – 2018. – Vol. 14. – P. 9720–9729.
6. Killer C., Mulsow M., Melzer A. «Spatio-temporal evolution of the dust particle size distribution in dusty argon rf plasmas» // *Plasma Sources Sci. Technol.* – 2015. – Vol. 24. – P. 025029.
7. Karasev V. Y., Dzljeva E. S., Gorbenko A. P., et al. «Modification of the texture of a polymer material surface in dust plasma» // *Tech. Phys.* – 2017. – Vol. 62. – P. 496–498.
8. Ingram S. G., Braithwaite N. St.J. «Ion and electron energy analysis at a surface in an RF discharge» // *J. Phys. D Appl. Phys.* – 1988. – Vol. 21. – P. 1496–1503.
9. Kaushik N. K., Kaushik N., Linh N. N. et al. «Plasma and Nanomaterials: Fabrication and Biomedical Applications» // *Nanomaterials*. – 2019. – Vol. 9. – P. 98.

10. Yu F., Liu M., Ma C. et al. «A Review on the Promising Plasma-Assisted Preparation of Electrocatalysts» // *Nanomaterials*. – 2019. – Vol. 9. – P. 1436.
11. Arkar K., Vasiliev M. M., Petrov O. F., Kononov E. A., Trukhachev F. M., «Dynamics of Active Brownian Particles in Plasma» // *Molecules*. – 2021. – V. 26. – P. 561.
12. Koss K. G., Kononov E. A., Lisina I. I., Vasiliev M. M., Petrov O. F. «Dynamic Entropy of Two-Dimensional Active Brownian Systems in Colloidal Plasmas» // *Molecules*. – 2022. – V. 27. – P. 1514.
13. Fortov V. E., Morfill G. E. *Complex and Dusty Plasmas: From Laboratory to Space*, 1st ed. Boca Raton, FL, USA : CRC Press, 2009.
14. Vaulina O. S., Dranzhevski I. E. «Transport of macroparticles in dissipative two-dimensional Yukawa systems» // *Phys. Scr.* – 2006. – Vol. 73. – P. 577.
15. Vasilieva E. V., Vaulina O. S. «Orientational order and formation of topological defects in two-dimensional systems» // *J. Exp. Theor. Phys.* – 2013. – Vol. 117. – P. 169–176.
16. Vasilieva E. V., Petrov O. F., Vasiliev M. M. «Laser-induced melting of two-dimensional dusty plasma system in RF discharge» // *Sci. Rep.* – 2021. – Vol. 11. – P. 523.
17. Vasiliev M. M., Kononov E. A., Arkar K., Petrov O. F., «Dynamics of motion of particles with a modified surface in a dusty plasma monolayer» // *Journal of Physics: Conference Series*. – 2020. – V. 1556. – P. 012074.
18. Bechinger C., Leonardo R. D. et al. «Active particles in complex and crowded environments» // *Rev. Mod. Phys.* – 2016. – Vol. 88. – P. 045006.
19. Кононов Е. А., Васильев М. М., Петров О. Ф., «Лазерно-индуцированный фазовый переход в монослое полимерных частиц, левитирующих в

газоразрядной плазме низкого давления» // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 2018. – Т. 153(5). – С. 721–725.

20. Petrov O. F., Vasiliev M. M., Vaulina O. S. et al. «Solid-hexatic-liquid transition in a two-dimensional system of charged dust particles» // EPL. – 2015. – Vol. 111. – P. 45002.
21. G. H. P. M. Swinkels, H. Kersten, H. Deutsch et al. «Microcalorimetry of dust particles in a radio-frequency plasma» // J. Appl. Phys. – 2000. – Vol. 88. – P. 1747.
22. Физические величины. Справочник. Под ред. И. С. Григорьева, Е. З. Мейлихова. М.: Энергоатомиздат, 1991. 1232 с.

Список литературы к главе 3

1. Kononov E. A., Vasiliev M. M., Petrov O. F., «Localization of active particles in chain structures in a direct current discharge under external influence» // Journal of Physics: Conference Series. – 2020. – V. 1556. – P. 012075.
2. Jovanovic O. «Photophoresis—Light induced motion of particles suspended in gas» // Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer. – 2009 – Vol. 110. – P. 889–901.
3. Koss X. G. et al. «Small systems of laser-driven active Brownian particles: Evolution and dynamic entropy» // EPL. – 2018. – Vol. 124. – P. 45001.
4. Petrov O. F., Vasiliev M. M., Vaulina O. S. et al. «Solid-hexatic-liquid transition in a two-dimensional system of charged dust particles» // EPL. – 2015. – Vol. 111. – P. 45002.
5. Косс К. Г., Петров О. Ф., Мясников М. И., Стаценко К. Б., Васильев М. М., «Фазовые переходы и динамическая энтропия в малых двумерных системах: эксперимент и численное моделирование» // ЖЭТФ. – 2016. – Т. 150(1). – С. 111.

6. Gaspard P. and Wang X. J. «Noise, chaos, and (ε, τ) -entropy per unit time» // Phys. Rep. –1993 – Vol. 235. – P. 291.
7. Allegrini P., Douglas J. F., and Glotzer S. C., «Dynamic entropy as a measure of caging and persistent particle motion in supercooled liquids» // PRE. – 1999. – Vol. 60. – P. 5714.
8. Koss K. G., Kononov E. A., Lisina I. I., Vasiliev M. M., Petrov O. F. «Dynamic Entropy of Two-Dimensional Active Brownian Systems in Colloidal Plasmas» // Molecules. – 2022. – V. 27. – P. 1514.
9. Gaspard P. and Nicolis G. «Transport properties, Lyapunov exponents, and entropy per unit time» // Phys. Rev. Lett. – 1990. – Vol. 65. – P. 1693.
10. Bechinger C., Leonardo R. D. et al. «Active particles in complex and crowded environments» // Rev. Mod. Phys. – 2016. – Vol. 88. – P. 045006.
11. Boltnev R. E., Kononov E. A., Trukhachev F. M., Vasiliev M. M., Petrov O. F. «Synthesis of nanoclusters and quasy one-dimensional structures in glow discharge at $T \approx 2$ K» // Plasma Sources Science and Technology. – 2020. – Vol. 29. – P. 085004.
12. Boltnev R. E., Vasiliev M. M., Kononov E. A., Petrov O. F. «Formation of solid helical filaments at temperatures of superfluid helium as self-organization phenomena in ultracold dusty plasma» // Scientific Reports. – 2019. – V. 9. – P. 3261.
13. Болтнев Р. Е., Васильев М. М., Кононов Е. А., Петров О. Ф., «Явления самоорганизации в криогенной газоразрядной плазме: формирование пылевого облака наночастиц и плазменно-пылевых волн» // Журнал Экспериментальной и Теоретической Физики. – 2018. – Т. 153(4). – С. 671–676.

14. Chu J. H. and I L. «Direct observation of Coulomb crystals and liquids in strongly coupled rf dusty plasmas» // *Phys. Rev. Lett.* – 1994. – Vol. 72. – P. 4009–4012.
15. Thomas H. et al. «Plasma crystal: Coulomb crystallization in a dusty plasma» // *Phys. Rev. Lett.* – 1994. – Vol. 73. – P. 652–655.
16. Hayashi Y. and Tachibana K. «Observation of Coulomb-crystal formation from carbon particles grown in a methane plasma» // *Jpn. J. Appl. Phys. A.* – 1994. – Vol. 33. – P. 804–808.
17. Melzer A., Trottenberg T., Piel A. «Experimental determination of the charge on dust particles forming Coulomb lattices» // *Phys. Lett. A.* – 1994. – Vol. 191. – P. 301-308.
18. Rubin-Zuzic M. et al. «Kinetic development of crystallization fronts in complex plasmas» // *Nat. Phys.* – 2006. – Vol. 2. – P. 181-185.
19. Zhang H., Qi X., Duan W.-S., & Yang L. «Envelope solitary waves exist and collide head-on without phase shift in a dusty plasma» // *Sci. Rep.* – 2015. – Vol. 5. – P. 14239-8.
20. Ross A. E. & McKenzie D. R. «Predator-prey dynamics stabilised by nonlinearity explain oscillations in dust-forming plasmas» // *Sci. Rep.* – 2016 – Vol. 6. – P. 24040-9.
21. Tsai Y.-Y., Tsai J.-Y., and I L. «Generation of acoustic rogue waves in dusty plasmas through three-dimensional particle focusing by distorted waveforms» // *Nat. Phys.* – 2016. – Vol. 12. – P. 573–577.
22. Fedorets A. A., «Droplet cluster» // *JETP Lett.* – 2004. – Vol. 79. – P. 372–374.
23. Umeki T., Ohata M., Nakanishi H., and Ichikawa M. «Dynamics of microdroplets over the surface of hot water» // *Sci. Rep.* – 2015. – Vol. 5. – P. 8046-6.

24. Fedorets A. A., et al. «Self-assembled levitating clusters of water droplets: pattern formation and stability» // *Sci. Rep.* – 2017. – Vol. 7. – P. 1888-6.
25. Zaitsev D. V., Kirichenko D. P., Ajaev V. S., and Kabov O. A. «Levitation and Self-Organization of Liquid Microdroplets over Dry Heated Substrates» // *Phys. Rev. Lett.* – 2017. – Vol. 119. – P. 094503-5.
26. Wuerker R. F., Shelton H., and Langmuir R. V. «Electrodynamic Containment of Charged Particles» // *J. Appl. Phys.* – 1959. – Vol. 30. – P. 342.
27. Энциклопедия низкотемпературной плазмы, под ред. В. Е. Фортова, серия А, т. I-2, Москва : Янус-К. 2006.
28. Fortov V. E., Morfill G. E. *Complex and Dusty Plasmas: From Laboratory to Space*, 1st ed. Boca Raton, FL, USA : CRC Press, 2009.
29. Ramazanov T. S., D'yachkov L. G., Dzhumagulova K. N. et al. «Experimental investigations of strongly coupled Coulomb systems of diamagnetic dust particles in a magnetic trap under microgravity conditions» // *Europhys. Lett.* – 2016. – Vol. 116. – P. 45001.
30. Мясников М. И., Дьячков Л. Г., Петров О. Ф. и др. «Кулоновский разлет диамагнитных пылевых частиц в антипробкотронной магнитной ловушке в условиях микрогравитации» // *ЖЭТФ.* – 2017. – Т. 151. – С. 372.
31. Fortov V. E., Vasilyak L. M., Vetchinin S. P. et al. «Plasma-dust structures at cryogenic temperatures» // *Doklady Physics.* – 2002. – Vol. 47. - P. 21.
32. Антипов С. Н., Асиновский Э. И., Кириллин А. В. и др. «Заряд и структуры пылевых частиц в газовом разряде при криогенных температурах» // *ЖЭТФ.* – 2008. – Т. 133. – С. 948.

33. Kubota J., Kojima C., Sekine W., Ishihara O. «Coulomb Cluster in a Plasma under Cryogenic Environment» // *J. Plasma Fusion Res. Series.* – 2009. – Vol. 8. – P. 286.
34. Антипов С. Н., Васильев М. М., Майоров С. А. и др. «Плазменно-пылевые структуры в he-kr тлеющем разряде постоянного тока» // *ЖЭТФ.* – 2011. – Т. 139. – С. 554.
35. Ishihara O. «Low-dimensional structures in a complex cryogenic plasma» // *Plasma Phys. Control. Fusion.* – 2012. – Vol. 54. – P. 124020.
36. Shindo M., Samarian A., Ishihara O. «Dynamics of Charged Dust Near Liquid Helium Surface» // *JPS Conf. Proc.* – 2014. – Vol. 1. – P. 015049.
37. Васильев М. М., Петров О. Ф., Стаценко К. Б. «Кулоновские структуры из заряженных макрочастиц в статических магнитных ловушках при криогенных температурах» // *Письма в ЖЭТФ.* – 2015. – Т. 102. – С. 881-885.
38. Самойлов И. С., Баев В. П., Тимофеев А. П. и др. «Пылевая плазма в тлеющем разряде гелия в диапазоне температур 5–300 К» // *ЖЭТФ.* – 2017. – Т. 151. – С. 582.
39. Asinovskii E. I., Kirillin A. V., Markovets V. V. «Plasma coagulation of microparticles on cooling of glow discharge by liquid helium» // *Phys. Lett. A.* – 2006. – Vol. 350. – P. 126-128.
40. Antipov S. N. et al. «Dust structures in cryogenic gas discharges» // *Phys. Plasmas.* – 2007. – Vol. 14. – P. 090701-4.
41. Antipov S. N., Vasiliev M. M., and Petrov O. F. «Non-ideal dust structures in cryogenic complex plasmas» // *Contrib. Plasm. Phys.* – 2012. – Vol. 52. – P. 203-206.

42. Antipov S. N., Schepers L. P. T., Vasiliev M. M., and Petrov O. F. «Dynamic Behavior of polydisperse dust system in cryogenic gas discharge complex plasmas» // *Contrib. Plasm. Phys.* – 2016. – Vol. 56. – P. 296-301.
43. Samoilov I. S. et al. «Dusty plasma in a glow discharge in helium in temperature range of 5–300 K» // *J. Exp. Theor. Phys.* – 2017. – Vol. 124. – P. 496-504.
44. Kirillin A. V. and Markovets V. V. «A glow discharge in helium at cryogenic temperatures» // *High Temp.* – 1973. – Vol. 11. – P. 637-643.
45. de Vries C. P., Oscan H. J. «Mass spectrometry proof of the existence of He_3^+ and He_4^+ ions» // *Phys. Lett. A.* – 1969. – Vol. 29. – P. 299-300.
46. Gerardo J. B., Gusinow M. A. «Helium ions at 76 K: their transport and formation properties» // *Phys. Rev. A.* – 1971. – Vol. 4. – P. 2027-2033.
47. Asinovskii E. I., Kirillin A. V., Markovets V. V., and Fortov V. E. «Change-over of the conductivity mechanism in a nonperfect helium plasma on cooling to ~ 5 K» // *Dokl. Phys.* – 2001. – Vol. 46. – P. 321-325.
48. Reinhard P., et al. «Precision Lifetime measurements of He^- in a cryogenic electrostatic ion-beam trap» // *Phys. Rev. Lett.* – 2009. – Vol. 103. – P. 213002-4.
49. Andersen T., Andersen L. H., Bjerre N., Hvelplund P., Posthumus J. H. «Lifetime measurements of He_2^- by means of a heavy-ion storage ring» // *J. Phys. B-At. Mol. Opt.* – 1994. – Vol. 27. – P. 1135–1142.
50. Huber S. E. and Mauracher A. «On the properties of charged and neutral, atomic and molecular helium species in helium nanodroplets: interpreting recent experiments» // *Mol. Phys.* – 2014. – Vol. 112. – P. 794–804.
51. Asinovskii E. I., Kirillin A. V., and Markovets V. V. «A glow discharge in helium at cryogenic temperatures» // *High Temp.* – 1975. – Vol. 13. – P. 858-866.

52. Samovarov V. N., and Fugol I. Ya. «Recombination decay of cryogenic helium plasma» // J. Exp. Theor. Phys. – 1978. – Vol. 48. – P. 444-452.
53. Killian T. C., Pattard T., Pohl T., Rost J. M. «Ultracold neutral plasmas» // Phys. Reports. – 2007. – Vol. 449. – P. 77–130.
54. Boltnev R. E., Vasiliev M. M., and Petrov O. F. «An Experimental Setup for Investigation of Cryogenic Helium Plasma and Dusty Plasma Structures within a Wide Temperature Range» // Instrum. and Exp. Techniques. – 2018. – Vol. 61. – P. 626-629.
55. Sukhinin G. I., Fedoseev A. V., Salnikov M. V. et al. «Plasma anisotropy around a dust particle placed in an external electric field» // Phys. Rev. E. – 2017. – Vol. 95. – P. 063207.
56. Silvestri S., Di Benedetto F., Raffaelli C., Veraldi A. «Asbestos in toys: an exemplary case» // Scand. J. Work Env. Health. – 2016. – Vol. 42. – P. 80-85.
57. Frangova K. «Polymer Clays as an Alternative for the Gap-Filling of Ceramic Objects» in «Glass and ceramics conservation 2007: interim meeting of the ICOM-CC Working Group» edited by L. Pilosi. Nova Gorica, Kromberk: Goriški muzej, 2007.
58. Pratt I. H. and Lausman T. C. «Some characteristics of sputtered polytetrafluoroethylene films» // Thin Solid Films. – 1972. – Vol. 10. – P. 151-154.
59. Youngblood J. P., McCarthy T. J. «Plasma polymerization using solid phase polymer reactants (non-classical sputtering of polymers)» // Thin Solid Films. – 2001. – Vol. 382. – P. 95-100.
60. Serov A. et al. «Poly(tetrafluoroethylene) sputtering in a gas aggregation source for fabrication of nano-structured deposits» // Surface & Coatings Technology. – 2014. – Vol. 254. – P. 319–326.

61. Balabanov V. V. et al. «The Effect of the Gas Temperature Gradient on Dust Structures in a Glow-Discharge Plasma» // J. Exp. Theor. Phys. – 2001. – Vol. 92. – P. 86–92.
62. Zaitsev A., Poncin-Epaillard F., Lacoste A. et al. «Bottom-up and templateless process for the elaboration of plasma-polymer nanostructures» // Plasma Process. Polym. – 2016. – Vol. 13. – P. 227.
63. Kovacevic E., Berndt J., Strunskus T. et al. «Size dependent characteristics of plasma synthesized carbonaceous nanoparticles» // J. Appl. Phys. – 2012. – Vol. 112. – P. 013303.
64. Аршинов А. А., Мусин А. К. «Равновесная ионизация частиц» // ДАН. – 1958. – Т. 120. – С. 747.
65. Mamunuru M., Le Picard R., Sakiyama Y. et al. «The Existence of Non-negatively Charged Dust Particles in Nonthermal Plasmas» // Plasma Chem. Plasma Process. – 2017. – Vol. 37. – P. 701.