Письма в ЖЭТФ, том 97, вып. 6, с. 366 – 371 © 2013 г. 25 марта

Броуновское движение пылевых частиц в слабоионизованной плазме

В. Е. Фортов[+*], *О. Ф. Петров*[+*], *О. С. Ваулина*[+*], *К. Г. Косс*[+1)]

[+] *Объединенный институт высоких температур РАН, 125412 Москва, Россия*

[*] *Московский физико-технический институт, 117303 Москва, Россия*

Поступила в редакцию 13 декабря 2012 г.

После переработки 12 февраля 2013 г.

Представлены результаты экспериментального исследования различных режимов броуновского движения взаимодействующих (заряженных) пылевых частиц в плазме. Предложена и экспериментально проверена новая аналитическая модель для корректного описания динамики массопереноса таких частиц, включая переход между баллистическим и диффузионным режимами их движения.

DOI: 10.7868/S0370274X13060076

Броуновское движение в системах взаимодействующих частиц широко распространено в природе. Оно наблюдается, например, в биологических и полимерных коллоидных растворах, в плазме продуктов сгорания, в атмосфере Земли и т.д. Случайное блуждание отдельной частицы между атомами/молекулами окружающего ее газа или другими частицами среды после большого числа столкновений описывается уравнениями макроскопической диффузии с некоторым коэффициентом D, не зависящим от времени [1–5]. Коэффициент D диффузии частиц можно получить путем анализа временных зависимостей среднего квадрата их смещений $\langle x^2 \rangle = \langle x(t)^2 \rangle$ как $D \equiv \lim_{t\to\infty} D_m(t)$, где $D_m(t) = \langle x^2 \rangle/(2t)$ – так называемая функция массопереноса, а треугольные скобки обозначают усреднение по ансамблю и по всем временным интервалам длительностью t [1–5]. Простое решение $D \equiv D_0 = T/(\nu_{fr} M)$, известное как соотношение Эйнштейна, имеет место лишь для случая невзаимодействующих частиц. (Здесь T и M – температура и масса частицы соответственно, а ν_{fr} – коэффициент трения частицы за счет ее столкновений с нейтралами окружающего газа.)

Однако для анализа процессов переноса при физически малых временах наблюдения (т.е. для режимов движения частиц, отличных от диффузионного, а именно баллистического и переходного) описание в рамках макроскопической кинетики может оказаться недостаточным. Исследование процессов массопереноса на малых временах наблюдения имеет особую важность для изучения быстрых процессов (таких, как распространение ударных волн и импульсных воздействий или движение фронта химических превращений в конденсированных средах [5, 6]), а также для анализа транспортных характеристик сильно диссипативных неидеальных сред (таких, как коллоидные растворы и плазма продуктов сгорания [7–15]), где корректное измерение коэффициентов диффузии частиц требует постановки длительных экспериментов. Современные средства диагностики допускают такую возможность [7–16]. Однако на настоящий момент аналитические модели разработаны только для двух простейших случаев: невзаимодействующие частицы и одиночная броуновская частица, движение которой ограничено потенциальным полем ловушки. Анализ этих задач не позволяет: (i) описать переход между баллистическим и диффузионным режимами для системы *взаимодействующих частиц* (потенциал взаимодействия φ между которыми не равен нулю); (ii) исследовать влияние числа таких частиц $N_p \neq 1$ на характер их броуновского движения.

В настоящей статье мы представляем результаты экспериментального исследования броуновского движения взаимодействующих частиц в пылевой плазме (ионизованном газе, содержащем заряженные пылевые частицы микронного размера). Такая плазма широко распространена в природе и образуется в ряде технологических процессов [14, 15]. Заряды пылевых частиц Q могут варьироваться в пределах от $\sim 10^2\, e$ до $\sim 10^6\, e$, благодаря чему реализуется весь спектр состояний системы: от дебаевской плазмы со слабым взаимодействием частиц до сильно неидеальных систем, таких, как “пылевые кристаллы”. При этом эффективный параметр неидеальности пылевых систем $\Gamma^* = l_p^2 \varphi''/(2T)$ может меняться в диапазоне от $\Gamma^* \sim 0.1$ до $\Gamma^* \gg \Gamma_c^*$. Здесь φ'' – вторая производная парного потенциала $\varphi(l)$ в точке среднего

[1)]e-mail: Xeniya.Koss@gmail.com

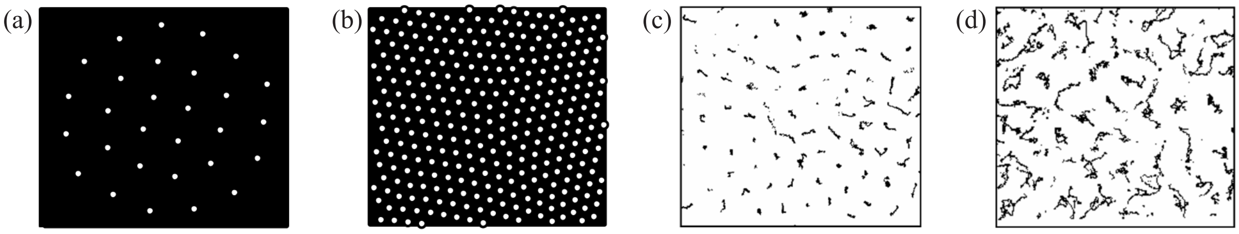

Рис. 1. Видеоизображения пылевого кластера ($N_p = 29$) (a) и фрагмента протяженного пылевого облака (b), а также траекторий частиц в протяженном облаке за время $t = 4$ с для экспериментов с $P = 0.08$ Торр, $D/D_0 \cong 0.066$ и $P = 0.05$ Торр, $D/D_0 \cong 0.26$ (d)

межчастичного расстояния $l = l_p$, а $\Gamma_c^* \cong 100$ – величина параметра Γ^* в точке кристаллизации системы, где происходит формирование "совершенного" кристалла и отсутствует миграция частиц ($D = 0$).

Поскольку отдельные пылинки, подсвеченные лазерным лучом, легко наблюдаются невооруженным глазом, для анализа их динамики может использоваться стандартная видеокамера с частотой кадров от 25 до 500 с^{-1}. Таким образом, лабораторная пылевая плазма является уникальным объектом для изучения транспортных свойств неидеальных систем на "кинетическом уровне" и непосредственной экспериментальной проверки существующих аналитических и численных результатов.

Большинство лабораторных экспериментов по изучению пылевой плазмы проводится в слабоионизованной плазме газовых разрядов, где столкновения между пылевыми частицами и атомами/молекулами окружающего газа могут значительно влиять на транспортные свойства пылевой подсистемы. Благодаря высокой подвижности электронов неэмитирующие пылевые частицы, вводимые в газоразрядную плазму, приобретают в ней значительный отрицательный заряд, $|Q| \sim (10^3{-}10^5)e$. Газоразрядная плазма имеет небольшой избыток положительного заряда $\delta n = n_i - n_e > 0$ (где n_i, n_e – концентрации ионов и электронов), который и позволяет компенсировать отталкивание отрицательно заряженных частиц, формируя ловушку с градиентом электрического поля $\alpha \propto \delta n$ [14, 15]. Отметим, что в условиях емкостного высокочастотного (ВЧ) разряда наблюдается формирование как двумерных пылевых кластеров, так и протяженных монослоев, содержащих тысячи частиц. Помимо фундаментальных аспектов, исследования физических свойств таких систем представляют особый прикладной интерес в области нано- и микротехнологий, а также при разработке покрытий и материалов с заданными свойствами [14, 15].

Эксперименты проводились в плазме ВЧ-разряда в аргоне при давлении P от 0.02 до 0.2 Торр. Мощность разряда W составляла от 2 до 25 Вт. Схема экспериментальной установки, процедуры измерений и обработки экспериментальных данных, а также используемые методы и средства диагностики подробно описаны в работах [14–18]. Пылевая компонента была представлена частицами меламинформальдегида различных радиусов ($a \approx 2.75$ и 6.37 мкм) плотностью $\rho_p \approx 1.5\,\text{г}/\text{см}^3$. Имеющиеся средства диагностики позволяли анализировать как небольшие двумерные пылевые кластеры (с числом частиц $N_p < 50$), так и протяженные пылевые монослои ($N_p \approx 2500{-}30000$).

Для визуализации пылевого облака использовалась подсветка плоским лучом гелий-неонового лазера (ширина ~ 2.5 см, размер перетяжки ~ 200 мкм). Положения пылевых частиц регистрировались с помощью высокоскоростной видеокамеры (частота кадров $f_{vc} \sim (200{-}500)\,\text{с}^{-1}$). Продолжительность одного эксперимента при стабильных условиях составляла ~ 10 с. Видеозапись обрабатывалась при помощи специального программного обеспечения, позволяющего идентифицировать позицию каждой частицы в кадре. Затем вычислялись координаты, траектории и скорости пылевых частиц, на основании чего определялись среднее межчастичное расстояние l_p, температура T и функции массопереноса $D_m(t) = \langle x^2 \rangle/(2t)$ пылевых частиц, где $\langle x^2 \rangle = \langle x(t)^2 \rangle$ – средний квадрат смещения пылевых частиц в зависимости от времени наблюдения t.

Для диагностики характерных частот ω_c и ν_{fr} и величины эффективного параметра неидеальности Γ^* системы использовались различные независимые методы измерений, включая методику, основанную на анализе процессов массопереноса на малых временах наблюдения [17], а также метод, базирующийся на решении обратной задачи Ланжевена [18]. Здесь $\omega_c = (\omega_t^2 + \omega_{pp}^2)^{1/2}$, где $\omega_t = (|Q\alpha|/M)^{1/2}$ – характерная частота ловушки, α – градиент электрического поля ловушки, $\omega_{pp} = (5.4\varphi''/2\pi M)^{1/2}$ – характерная частота колебаний частиц за счет их парного взаимодействия [14–18]. Следует отметить, что в системах, состоящих из множества частиц ($N_p > 1$), величина $\omega_t^2 \sim \omega_{pp}^2/N_p$ [18, 19]. Таким образом, для описанных экспериментов величина $\omega_c \cong \omega_{pp}$, поскольку число анализируемых частиц $N_p \geq 29$.

В условиях экспериментов межчастичное расстояние l_p составляло около 750 ± 200 мкм. Параметр масштабирования $\xi_c = \omega_c/\nu_{fr}$ изменялся в пределах $\sim 0.2{-}2$. Отношение D/D_0 варьировалось от 0 до 0.4. Для иллюстрации результатов измерений были выбраны экспериментальные данные, наиболее наглядно демонстрирующие поведение частиц в исследуемых системах. Иллюстрация позиций и траекторий частиц для различных экспериментов представлена на рис. 1. Нормированные функции массопереноса $D_m(t)/D_0$, измеренные в различных экспериментах, показаны на рис. 2.

Для описания броуновского движения обычно используется система уравнений Ланжевена со случайной силой F_{ran}, благодаря которой устанавливается равновесная температура частиц T, характеризующая кинетическую энергию их стохастического (теплового) движения [2–5]. В этом случае смещение j-й частицы вдоль выбранной координаты $x_j = x_j(t)$ за время t в однородной квазиравновесной среде под действием некоторой потенциальной силы F описывается решением системы дифференциальных уравнений [2–5]:

$$M\frac{d^2x_j}{dt^2} = -M\nu_{fr}\frac{dx_j}{dt} + F + F_{\text{ran}}. \qquad (1)$$

В случае невзаимодействующих частиц ($F = 0$) решение уравнения (1) может быть представлено как [2, 5, 10, 16]:

$$D_m(t)/D_0 = 1 - [1 - \exp(-\nu_{fr}t)]/\nu_{fr}t. \qquad (2)$$

При $t \to \infty$ и $\nu_{fr}t \gg 1$ получим $D_m(t) \to D_0$. На малых временных интервалах ($\nu_{fr}t \ll 1$) движение частиц имеет баллистический характер, а $D_m \propto t$.

В случае единственной броуновской частицы ($N_p = 1$), в линейной гармонической ловушке ($F = -M\omega_c^2 x$, где $\omega_c = \omega_t \equiv (|Q\alpha|/M)^{1/2}$) решение уравнения (1) имеет вид [2, 11, 16]

$$\frac{D_m(t)}{D_0} = \\ = \frac{1 - \exp(\nu_{fr}t/2)[\cosh(\nu_{fr}t\psi) + \sinh(\nu_{fr}t\psi)/(2\psi)]}{2\xi_c^2\nu_{fr}t}. \qquad (3)$$

Здесь $\psi = (1-8\xi_c^2)^{1/2}/2$, $\xi_c = \omega_c/\nu_{fr}$. При $t \to \infty$ и $(\omega_c + \nu_{fr})t \gg 1$ получим $D_m(t) \to 0$. На малых временных интервалах при $(\omega_c + \nu_{fr})t \ll 1$, движение также имеет баллистический характер ($D_m \propto t$).

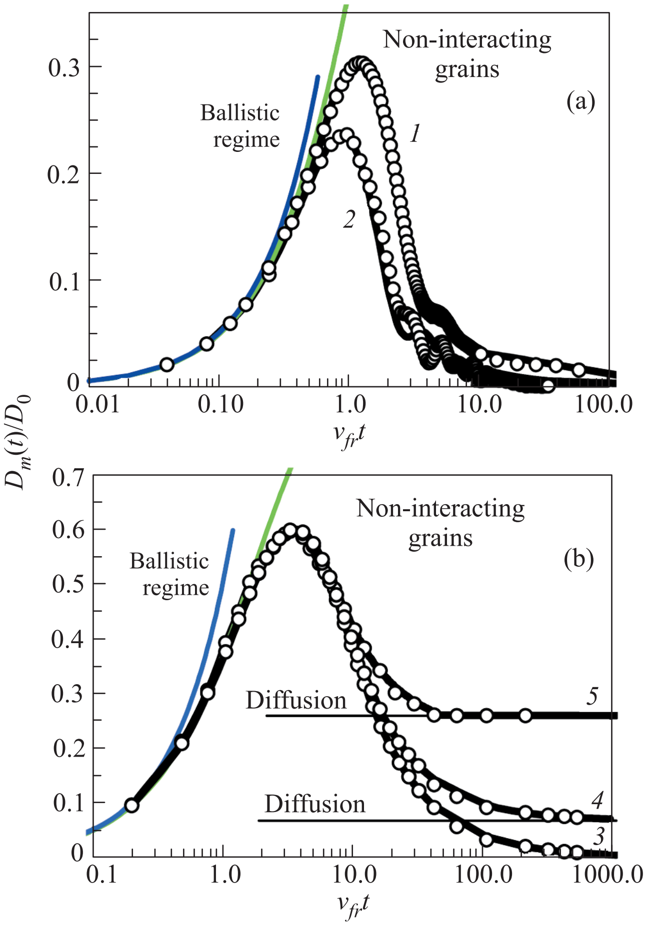

Рис. 2. Функции $D_m(t\nu_{fr})/D_0$ для экспериментов с частицами радиуса $a = 6.37$ мкм (a) и 2.75 мкм (b) в кластерах ($N_p = 29$, кривые *1*, *3*) и в протяженных пылевых структурах (кривые *2*, *4*, *5*) с параметрами: *1* – $P = 0.065$ Торр, $\nu_{fr} = 8\,\text{с}^{-1}$, $\xi_c \cong 1.45$, $\Gamma^* \cong 210$, $D = 0$; *2* – $P = 0.12$ Торр, $\nu_{fr} = 12\,\text{с}^{-1}$, $\xi_c \cong 1.85$, $\Gamma^* \cong 180$, $D = 0$; *3* – $P = 0.1$ Торр, $\nu_{fr} = 25\,\text{с}^{-1}$, $\xi_c \cong 0.32$, $\Gamma^* \cong 167$, $D = 0$; *4* – $p = 0.08$ Торр, $\nu_{fr} = 20\,\text{с}^{-1}$, $\xi_c \cong 0.32$, $\Gamma^* \cong 74$, $D/D_0 \cong 0.066$; *5* – $P = 0.05$ Торр, $\nu_{fr} = 13\,\text{с}^{-1}$, $\xi_c \cong 0.32$, $\Gamma^* \cong 28$, $D/D_0 \cong 0.26$. Линии – аналитические решения уравнения (5), $\langle x^2(t)\rangle/t$, для различных экспериментов

Следует отметить, что решение (3), полученное для гармонического осциллятора, прекрасно описывает экспериментальное поведение функций $D_m(t)/D_0$ для частиц в кластерных системах с различными коэффициентами трения ν_{fr} и параметрами масштабирования $\xi_c = \omega_c/\nu_{fr}$, где $\omega_c = \omega_{pp}$ (см. рис. 2, кривые *1* и *3*). Таким образом, характер броуновского движения частиц в небольших кластерных системах практически не отличается от динамики движения одной частицы в линейной ловушке.

Вместе с тем гармоническое приближение (3) не учитывает возможности развития дополнительных высокочастотных осцилляций среднеквадратичного смещения в протяженных неидеальных системах, содержащих большое число частиц ($N_p \gg 10$). Такие осцилляции хорошо проявляются при низком трении $(1-8\xi_c^2) < 0$; см. кривую *2* на рис. 2a и рис. 3), а их

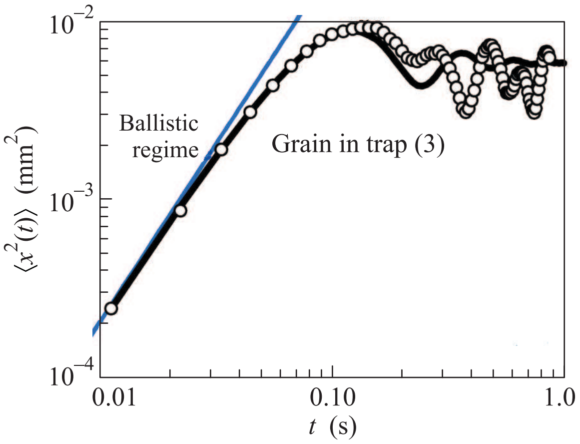

Рис. 3. Функция $\langle x^2(t)\rangle$ для эксперимента с протяженной пылевой структурой ($a = 6.37$ мкм, $P = 0.12$ Торр)

формирование может быть обусловлено возникновением продольных и поперечных мод в слабодиссипативных протяженных средах [20]. Кроме того, гармоническая аппроксимация (3) хорошо передает поведение частиц только на малых временах наблюдения и не позволяет описать эволюцию их движения к диффузионному режиму (см. рис. 2b, кривые *4* и *5*).

Для того чтобы описать движение броуновских частиц в жидкости ($D \neq 0$), необходимо учесть изменения потенциальной силы в системе (1), возникающие за счет флуктуаций электрического поля δE, вызванных тепловым движением частиц с зарядом Q. В первом приближении такая сила может быть представлена в виде $F = -Q\delta E$ и задана уравнением $\partial F/\partial t = -2M\omega_c^2 V - \sigma F$, где V – скорость частиц, а значение σ определяется величиной коэффициента подвижности частиц, $\sigma \approx 4\omega_c^2(DM/T)$ (для $D/D_0 < 0.5$). В этом случае функция массопереноса $D_m(t)$ может быть получена путем решения системы уравнений:

$$M\frac{d^2\langle V_0V\rangle}{dt^2} = -M(\nu_{fr}+\sigma)\frac{d\langle V_0V\rangle}{dt} - (2\omega_c^2+\nu_{fr}\sigma)\langle V_0V\rangle,$$

$$\langle V_0V\rangle = \frac{1}{2}\frac{d^2\langle x^2\rangle}{dt^2}, \qquad (4)$$

с граничными условиями: $\langle x^2(t=0)\rangle = 0$, $\left.\dfrac{d\langle x^2\rangle}{dt}\right|_{t=0}$, $\langle V_0V\rangle = T/M$, $\int\limits_0^\infty \langle V_0V\rangle dt = D$. Здесь $\langle V_0V\rangle = \langle V(0)V(t)\rangle$ – автокорреляционная функция скоростей частиц. Напомним, что величину ω_c можно легко измерить при помощи различных методов диагностики или оценить теоретически [14–18], а также, что для протяженных структур ($N_p \gg 1$)$\omega_c \cong \omega_{pp} = (5.4\varphi''/\pi M)^{1/2} \propto (\Gamma^* T)^{1/2}$, откуда $\sigma \propto \Gamma^* D$. При этом величина коэффициента диффузии взаимодействующих частиц, в свою очередь, зависит от параметра неидеальности системы, $D = D(\Gamma^*)$, и уменьшается с ростом Γ^* [14–17].

В общем виде решение системы (4) можно записать как

$$\langle x^2(t)\rangle = 2C_1\left\{\frac{t}{\gamma-\omega_1} - \frac{1-\exp[-(\gamma-\omega_1]t}{(\gamma-\omega_1)^2}\right\} + \\ + 2C_2\left\{\frac{t}{\gamma+\omega_1} - \frac{1-\exp[-(\gamma+\omega_1)]t}{(\gamma+\omega_1)^2}\right\}, \qquad (5)$$

где $\gamma = (\sigma + \nu_{fr})/2$, $\omega_1 = [\gamma^2 - (2\omega_c^2 + \sigma\nu_{fr})]^{1/2}$, $C_1 + C_2 = T/M$, а $C_1/(\gamma-\omega_1) + C_2/(\gamma+\omega_1) = D$. Таким образом, при $t \to \infty$ и $(\omega_1+\gamma)t \gg 1$ имеем $D_m(t) \to D$, а на малых временных интервалах ($(\omega_1+\gamma)t \ll 1$) движение частиц имеет баллистический характер: $\langle x^2\rangle \approx Tt^2/M$ и $D_m(t) = \langle x^2\rangle/(2t) \propto t$. В случае, когда ω_1 – мнимая величина, искомое решение легко представить в виде суперпозиции, включающей члены $\exp(-\gamma t)\sin(\omega_2 t)$ и $\exp(-\gamma t)\cos(\omega_2 t)$, где $\omega_2 = [-\gamma^2 + (2\omega_c^2 + \sigma\nu_{fr})]^{1/2}$. Следует отметить, что решение (5) прекрасно описывает поведение частиц в экспериментах при $\omega_1 > 1$ (см. рис. 2b), а в случае $D = 0$ (т.е. $\sigma = 0$) переходит в уже известное соотношение (3).

Отметим, что необходимым условием для корректного наблюдения диффузионного режима движения заряженных частиц, удерживаемых в ловушке с характерной частотой $\omega_t \equiv (|Q\alpha|/M)^{1/2}$, является наличие достаточно протяженного пылевого облака ($N_p \gg 1$). При этом диффузионный режим может наблюдаться только в центральной части такого облака. В пренебрежении длиной свободного пробега пылевой частицы ($\sim D(M/T)^{1/2}$, половина радиуса R облака должна значительно превышать корень квадратный из среднеквадратичного смещения уединенной частицы: $R/2 \gg x_0 = (T/M\omega_t^2)^{1/2}$. Учитывая, что для двумерного пылевого слоя $R \approx [(N_p-1)/\pi]^{1/2} l_p$, а $T/(M\omega_t l_p^2) \geq 1/\Gamma^{*1/2}$ [16–19], получим $([N_p-1)/\pi]^{1/2} \gg 4/\Gamma^{*1/2}$. Дополнительным условием является жидкостное состояние системы, т.е. $D \neq 0$ и $\Gamma^* < \Gamma_c^*$ [14–17].

Здесь следует упомянуть недавние эксперименты по измерению броуновского движения единственной зондовой частицы латекса в воде, помещенной в оптическую ловушку [12, 13]. Иллюстрация реконструкции указанных экспериментов для частицы диаметром 1 мкм приведена на рис. 4. Параметры

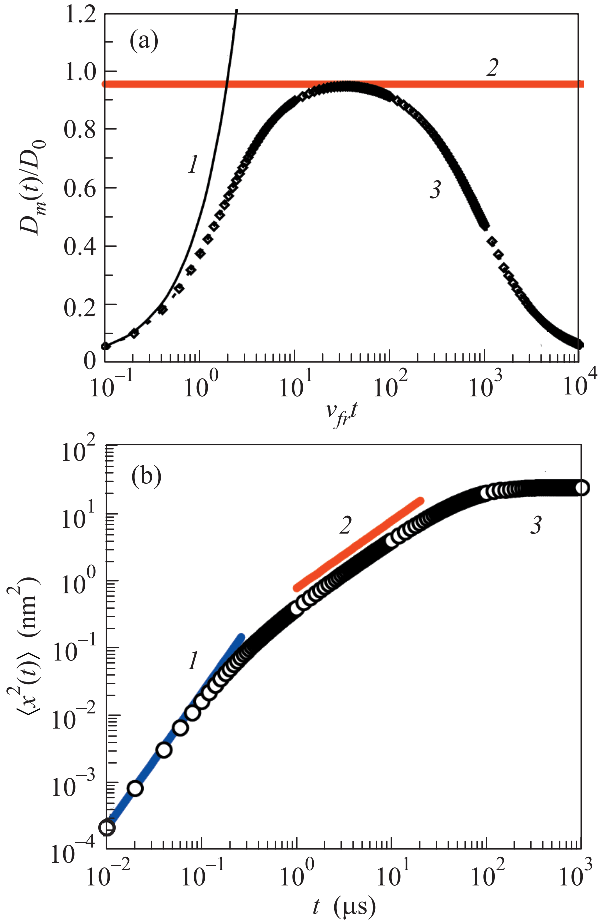

Рис. 4. Иллюстрация реконструкции экспериментов [12, 13]. Линиями обозначены функции $D_m(t)/D_0$ (a) и $\langle x^2(t)\rangle$ (b) для различных режимов движения частиц: *1* – баллистический режим ($D_m(t) \propto t$); *2* – псевдодиффузия. Символами *3* показано решение уравнения (3)

системы были восстановлены по данным из [12, 13]: $\xi_c \cong 0.03$, $\nu_{fr} \approx 10^7\,\text{с}^{-1}$, $T/M \approx 2.5 \cdot 10^2\,\text{см}^2/\text{с}^2$. Значение ν_{fr} рассчитывалось по формуле Стокса: $\nu_{fr} = 6\pi a\eta/M$, где η – вязкость воды при комнатной температуре и нормальном давлении. Значение градиента ловушки α было получено при помощи известной формулы: $\alpha^2 = T/x_0^2$, где $x_0^2 = \langle x(t \to \infty)^2\rangle$. Отметим, что рис. 4b практически полностью воспроизводит данные эксперимента, где пологий максимум $D_m(t)$ для малых $\xi_c \ll 1$, регистрируемый в течение длительного времени ($t\nu_f \sim 100$), ошибочно принимается за проявление диффузионного режима движения частиц (см. рис. 4a). Аналогичное заблуждение имело место при анализе результатов экспериментов по наблюдению движения частицы в ловушке в работе [10].

Итак, в данной работе представлены результаты экспериментального изучения броуновского движения взаимодействующих пылевых частиц в слабоионизованной газоразрядной плазме. Эксперименты проводились в плазме ВЧ-разряда для малых кластерных и протяженных плазменно-пылевых систем, содержащих пылевые частицы различных размеров. Исследовалось влияние количества пылевых частиц и величины коэффициента трения на формирование различных режимов их движения. Предложена новая аналитическая модель для описания перехода от баллистического к диффузионному режиму движения частиц для различных условий их наблюдения. Результаты настоящей работы могут оказаться полезными для экспериментального и численного анализа процессов массопереноса при физически малых временах, недостаточных для описания движения частиц в рамках макроскопической кинетики.

Работа частично поддержана Российским фондом фундаментальных исследований (гранты # 10-08-00389-а, 11-02-01333-а, 12-08-31284 мол_а), Министерством образования и науки Российской Федерации, а также программой президиума РАН.

1. Я. И. Френкель, *Кинетическая теория жидкостей*, Л.: Наука, 1975).
2. S. Chandrasekhar, Rev. Mod. Phys. **15**(1), 1 (1943).
3. *Photon Correlation and Light Beating Spectroscopy* (ed. by H. Z. Cummins and E. R. Pike), Plenum, N.Y., 1974.
4. R. Kubo, Science **233**, 330 (1986).
5. А. А. Овчинников, С. Ф. Тимашев, А. А. Белый, *Кинетика диффузионно-контролируемых химических процессов*, М.: Химия, 1986.
6. Р. Додд, Дж. Эйлбек, Дж. Гиббон, Х. Моррис, *Солитоны и нелинейные волновые уравнения*, М.: Мир, 1988.
7. F. C. MacKintosh and C. F. Schmidt, Curr. Opin. Colloid Interface Sci. **4**, 300 (1999).
8. C. Tischer, S. Altmann, S. Fisinger et al., Appl. Phys. Lett. **79**, 3878 (2001).
9. S. Jeney, E. H. K. Stelzer, H. Grubmüller, and E.-L. Florin, Chem. Phys. Chem. **5**, 1150 (2004).
10. B. Lukić, S. Jeney, C. Tischer et al., Phys. Rev. Lett. **95**, 160601(2005).
11. T. Li, S. Kheifets, D. Medellin, and M. G. Raizen, Science **328**, 1673 (2010).
12. R. Huang, I. Chavez, K. M. Taute et al., Nat. Phys. **7**, 576 (2011).

13. P. N. Pusey, Science **332**, 802 (2011).
14. *Complex and Dusty Plasmas* (ed. by V. E. Fortov and G. E. Morfill), CRC Press, 2010.
15. О. С. Ваулина, О. Ф. Петров, В. Е. Фортов и др., *Пылевая плазма (эксперимент и теория)*, М.: Физматлит, 2009.
16. О. С. Ваулина, К. Г. Адамович, ЖЭТФ **133**(5), 1091 (2008).
17. О. С. Ваулина, К. Г. Адамович, О. Ф. Петров, В. Е. Фортов, ЖЭТФ **134**(2), 367 (2008).
18. O. S. Vaulina, E. A. Lisin, A. V. Gavrikov et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 035003 (2009).
19. O. S. Vaulina, X. G. Adamovich, and S. V. Vladimirov, Physica Scripta **79**, 035501 (2009).
20. H. Ohta and S. Hamaguchi, Phys. Plasmas **7**, 4506 (2000).