

# РАСПРОСТРАНЕНИЕ ТРЕХМЕРНОГО ФРОНТА КРИСТАЛЛИЗАЦИИ В СИЛЬНОНЕИДЕАЛЬНОЙ ПЫЛЕВОЙ ПЛАЗМЕ

Д. И. Жуховицкий <sup>a,b\*</sup>, В. Н. Наумкин <sup>a</sup>, А. И. Хуснулгатин <sup>b</sup>,

**В. И. Молотков** <sup>a</sup>, А. М. Липаев <sup>a,b</sup>

<sup>a</sup> Объединенный институт высоких температур Российской академии наук  
125412, Москва, Россия

<sup>b</sup> Московский физико-технический институт (государственный университет)  
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 16 июля 2019 г.,  
после переработки 12 октября 2019 г.  
Принята к публикации 17 октября 2019 г.

Проанализированы данные, полученные в лаборатории ПК-3 Плюс на борту Международной космической станции при исследовании распространения фронта кристаллизации в пылевой плазме. Разработан «осевой» алгоритм идентификации «кристаллоподобных» частиц, который позволяет распознавать различные кристаллические домены и их поверхности. Предложено определение трехмерной скорости фронта, предполагающее, что существует небольшой участок поверхности домена, распространяющийся вдоль некоторой линии, перпендикулярной к этому участку. Показано, что скорость фронта практически не зависит от времени и составляет около 60 мкм/с. Предложена теория распространения фронта кристаллизации в пылевом облаке в предположении, что поток кристаллизующихся частиц пропорционален разности коэффициентов самодиффузии жидкой и кристаллической фаз. Полученная оценка сверху для скорости фронта коррелирует с результатом обработки эксперимента.

DOI: 10.31857/S0044451020040173

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Низкотемпературную плазму, содержащую пылевые микрочастицы размерами от нескольких десятков нанометров до нескольких тысяч микрометров называют пылевой плазмой [1–6]. В данной системе возможно изучение фундаментальных процессов в сильнонеидеальной системе на наиболее фундаментальном (кинетическом) уровне путем наблюдения отдельных микрочастиц и их взаимодействий. В наземных экспериментах микрочастицы в значительной степени подвержены действию силы тяжести. В условиях микрогравитации, например на Международной космической станции (МКС), гравитация компенсируется орбитальным движением МКС [7–13]. Благодаря высокой подвижности электронов частицы приобретают значительный (макро-

скопический) отрицательный электрический заряд. В результате частицы выталкиваются из области сильного электрического поля в приэлектродную область. Таким образом, они могут образовывать почти однородные протяженные облака частиц в объеме газового разряда низкого давления. Кроме того, как следствие большого заряда частицы такие подсистемы могут образовывать трехмерный (3D) пылевой кристалл. В них, так же как и в равновесных системах, могут происходить фазовые переходы первого рода, в частности плавление – кристаллизация [1, 14].

Наиболее ценная информация может быть получена из наблюдения кинетики фазовых переходов. В наземном эксперименте [15] наблюдался рост кристаллического домена в «жидкоподобном» пылевом облаке. С помощью визуализации фронта кристаллизации авторы наблюдали его распространение. Однако недостаточная однородность системы и отсутствие 3D-сканирования не позволили измерить истинную скорость фронта в 3D-облаке. Результат

\* E-mail: dmr@ihed.ras.ru

этой работы является лишь оценкой этой скорости по порядку величины. Отметим, что рост зародышей твердой фазы в «переохлажденных» коллоидных системах [16, 17] аналогичен процессам, происходящим в пылевой плазме.

В настоящей работе использованы данные эксперимента, проведенного с использованием лаборатории ПК-3 Плюс на борту МКС [11, 18–20], в котором формировалась переохлажденная система частиц «жидкоподобной» фазы для наблюдения за образованием и ростом кристаллических доменов, содержащих более  $10^4$  частиц. С помощью объемного сканирования, выполненного в ходе эксперимента, можно восстановить 3D-координаты каждой микрочастицы [19]. Затем выделяются отдельные кристаллические домены и их поверхности, для чего применяются и сравниваются различные методы. Целью данной работы является нахождение скорости фронта 3D-кристаллизации. Эта задача осложняется двумя обстоятельствами. Во-первых, поверхность домена довольно нерегулярна, а интервалы между последовательными трехмерными сканированиями слишком велики, так что смещение между соответствующими точками распространяющегося фронта не может быть определено непосредственно. Во-вторых, конечная скорость сканирования приводит к искажению поверхности, что означает, что видимая и истинная поверхности домена различаются. Эти задачи решены путем определения небольшой плоской области поверхности домена (площадки), которая распространяется вдоль некоторой прямой, перпендикулярной к ней (в направлении прямолинейного распространения). Это позволяет измерить смещение данной области между последовательными сканированиями и, таким образом, определить скорость фронта.

Задача теоретического описания распространения фронта кристаллизации осложняется спецификой рассматриваемой системы, в которой, в отличие от обычного вещества, кинетическая температура частиц фиксирована разрядом, в котором они находятся. В основу теории положено предположение о том, что поток кристаллизующихся частиц формируется в результате диффузионных переходов жидкоподобных частиц на поверхность кристалла и отрыва частиц от этой поверхности с их переходом в жидкую фазу. Тогда соответствующий поток жидкоподобных частиц должен быть пропорционален разности коэффициентов самодиффузии пылевой жидкости и кристалла. Получено уравнение, описывающее кинетику данного процесса. Оно имеет форму уравнения диффузии с граничным усло-

вием на подвижной границе. Получено его решение, которое совместно с уравнением, связывающим коэффициенты диффузии, дает возможность найти скорость движения фронта в зависимости от параметра неидеальности подсистемы частиц.

В разд. 2 применяются и сравниваются различные методы идентификации «кристаллоподобных» частиц, которые образуют кристаллические домены, и выделить их поверхности. В разд. 3 предложено определение скорости фронта кристаллизации, основанное на концепции направления прямолинейного распространения. В разд. 4 построена теория распространения фронта кристаллизации; теоретические оценки сравниваются с данными по определению скорости фронта. Результаты данного исследования суммируются в разд. 5.

## 2. ИДЕНТИФИКАЦИЯ ФРОНТА КРИСТАЛЛИЗАЦИИ

В качестве объекта применения разработанных ниже алгоритмов для определения скорости распространения фронта кристаллизации использовались данные, полученные в ходе эксперимента, подробное описание которого дано в работе [20]. В данном эксперименте, проведенном на установке ПК-3 Плюс в условиях микрогравитации на борту МКС, плазма создавалась радиочастотным генератором с максимальной мощностью 4 Вт, работающим на частоте 13.56 МГц. Плазмообразующим газом был аргон при давлениях 10 и 15 Па. После включения радиочастотного генератора и образования плазмы в нее вводились сферические монодисперсные частицы диаметром  $1.55 \pm 0.04$  мкм из двуокиси кремния. Затем включался генератор низкочастотного (255 Гц) электрического поля небольшой амплитуды. В результате формировалось практически однородное пылевое облако с концентрацией частиц  $n_d = 7.4 \cdot 10^5$  см<sup>-3</sup>, структура которого была близка к кристаллической. После этого низкочастотный генератор отключался на 5 с и затем включался вновь. После отключения генератора пылевой кристалл разрушался, превращаясь в жидкоподобную фазу, а после его повторного включения данная жидкоподобная фаза оказывалась способной к кристаллизации, т. е. переохлажденной. При отключении генератора пылевой кристалл разрушается не полностью. Его остатки — кристаллические домены, включающие в себя небольшое число частиц, — являются зернами кристаллоподобной фазы, растущими во всех направлениях.

Объем пылевой плазмы, доступный для исследования, ограничен полем зрения камеры высокого разрешения и глубиной трехмерного сканирования [20]. Он содержит более 150000 частиц. В начале наблюдения (первый скан) в поле зрения камеры нет ни одного домена; часть поверхности первого из них оказывается в поле зрения лишь на седьмом скане. Метод определения 3D-координат частиц описан в работе [19]. Пусть ось  $z$  системы координат, являющаяся осью симметрии пылевого облака, направлена от центра разряда к электроду, ось  $x$  лежит в плоскости лазерного ножа (лазерного луча, применяемого для визуализации частиц и имеющего форму тонкой пластины), а ось  $y$  перпендикулярна этой плоскости. Направление оси  $y$  совпадает с направлением нечетных сканов. Начало координат находится в центре разряда. Первый домен в объеме наблюдения регистрируется уже при седьмом сканировании, а затем объем, занимаемый кристаллической фазой, увеличивается до начала одиннадцатого скана, когда все домены перестают расти. Кроме того, к этому времени весь объем заполнен контактирующими кристаллическими доменами (кроме окрестности приэлектродной области, где кристаллизация невозможна). Следовательно, достаточно обработать данные, полученные при сканировании от № 7 до № 11.

Начнем с идентификации «кристаллоподобных» и «жидкоподобных» частиц с последующим выделением отдельных доменов. Широко используемый метод  $q_6$ -корреляционного критерия основан на введении локального параметра порядка [21, 22]

$$\bar{q}_{lm}(i) = \frac{1}{N_i} \sum_{j=1}^{N_i} Y_{lm}(\hat{\mathbf{r}}_{ij}), \quad (1)$$

где  $Y_{lm}$  — сферические гармоники,  $\hat{\mathbf{r}}_{ij} = (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i) / |\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i|$  — единичный вектор, который определяет направление от  $i$ -й частицы к своему соседу с номером  $j$ ,  $\mathbf{r}_i$  и  $\mathbf{r}_j$  — радиус-векторы соответствующих частиц, а сумма берется по всем  $N_i$  ближайшим соседям  $i$ -й частицы. Здесь и в дальнейшем для определения ближайших соседей мы будем использовать алгоритм SANN [23].

Локальный параметр порядка (1) позволяет определить коэффициент корреляции для  $i$ -й и  $j$ -й частиц:

$$\kappa_{ij} = \frac{\sum_{m=-6}^6 \bar{q}_{6m}(i) \bar{q}_{6m}^*(j)}{\left[ \sum_{m=-6}^6 |\bar{q}_{6m}(i)|^2 \sum_{m=-6}^6 |\bar{q}_{6m}(j)|^2 \right]^{1/2}}, \quad (2)$$

где звездочка означает комплексное сопряжение. Согласно работе [22],  $i$ -я частица отождествляется с кристаллоподобной, если она имеет по крайней мере 11 ближайших соседей, для которых  $|\kappa_{ij}| > 0.5$  (в этом случае мы называем  $i$ -ю и  $j$ -ю частицы сильнокоррелированными). Такой критерий корреляции оказался эффективным инструментом для разделения отдельных частиц на группы кристаллоподобных и жидкоподобных. Таким образом, можно выделить межфазную границу. Однако этот критерий не способен определить границу раздела между разными кристаллическими доменами, и, следовательно, он не может их разделить. В то же время целью настоящей работы является исследование межфазной границы, включая ее части, контактирующие с другими доменами. Таким образом, для нашей задачи важно разработать альтернативный алгоритм, способный идентифицировать как частицы, так и домены.

Идея алгоритма, использованного в работе, основана на том факте, что в различных доменах ориентация кристаллических осей различна. Таким образом, можно считать, что данная частица принадлежит данному домену, если направления к ее ближайшим соседям близки к направлениям осей кристалла. С учетом этого для каждой частицы ищутся пары почти противоположных ближайших соседей, которые определяют ориентацию данной ячейки кристаллической решетки. Далее то же проделывается для одной из соседних частиц и проверяется, имеет ли полученная ячейка ту же ориентацию. Из-за небольших искажений направления всех пар могут не совпадать, поэтому мы ограничиваем количество совпадений до пяти. При наличии этих совпадений мы идентифицируем обе частицы как кристаллоподобные и относящиеся к одному и тому же домену. Данный алгоритм будем называть осевым алгоритмом [20].

Реализуется данный алгоритм следующим образом. Случайно выбирается  $k$ -я частица с радиус-вектором  $\mathbf{R}_k$  и находятся все ее  $N_k$  ближайших соседа. На этом этапе мы считаем  $k$ -ю частицу центральной, принадлежащей рассматриваемому домену. Пусть  $\mathbf{R}_l = \mathbf{r}_i^{(k)}$  — радиус-вектор одного из ближайших соседей центральной частицы, где  $l$  нумерует данную частицу в системе. В качестве локальной характеристики кристаллической решетки введем матрицу

$$\rho_{ij}^{(k)} = \left| \mathbf{r}_i^{(k)} + \mathbf{r}_j^{(k)} - 2\mathbf{R}_k \right|.$$

Будем называть соответственными два ближайших соседа, определяемых индексами  $i_0$  и  $j_0$ , если для

фиксированного  $i = i_0$  матричный элемент  $\rho_{i_0 j}^{(k)}$  имеет минимум при  $j = j_0$ , когда  $j$  пробегает значения от 1 до  $N_k$ , и наоборот, для фиксированного  $j = j_0$  матричный элемент  $\rho_{i j_0}^{(k)}$  имеет минимум при  $i = i_0$ , когда  $i$  пробегает значения от 1 до  $N_k$ . Если выполняется дополнительное условие  $\rho_{i j}^{(k)} < \rho_c$ , где  $\rho_c$  — некоторое достаточно малое расстояние, то можно определить единичный вектор

$$\mathbf{d}_{ij}^{(k)} = \frac{\mathbf{r}_i^{(k)} - \mathbf{r}_j^{(k)}}{|\mathbf{r}_i^{(k)} - \mathbf{r}_j^{(k)}|}.$$

Для соответственных частиц в идеальной решетке  $\rho_{ij}^{(k)} = 0$  и  $\mathbf{d}_{ij}^{(k)}$  определяет направление кристаллической оси. Таким образом, мы формируем множество векторов  $\mathbf{d}_{ij}^{(k)}$ , соответствующих всем найденным парам соответственных частиц. Затем эта процедура повторяется для ближайшего соседа с радиус-вектором  $\mathbf{R}_l$ , причем генерируется набор векторов  $\mathbf{d}_{ij}^{(l)}$ . Если хотя бы  $\nu = 5$  пар векторов  $\mathbf{d}_{ij}^{(k)}$  и  $\mathbf{d}_{ij}^{(l)}$  удовлетворяют условию

$$|\mathbf{d}_{ij}^{(k)} \cdot \mathbf{d}_{ij}^{(l)}| > 1 - \varepsilon, \quad (3)$$

где  $\varepsilon > 0$  является параметром, то, по определению, этот сосед принадлежит одному домену. В противном случае этот сосед в дальнейшем игнорируется. При этом мы сравниваем локальные направления векторов кристаллической решетки (или антипараллельных им векторов), которые были определены наиболее надежно.

Для идеальной решетки соответствующие пары будут удовлетворять соотношению  $|\mathbf{d}_{ij}^{(k)} \cdot \mathbf{d}_{ij}^{(l)}| = 1$ . Для нашей системы оптимальные параметры, обеспечивающие наиболее точную идентификацию домена, оказались  $\rho_c = 50$  мкм,  $\varepsilon = 9.73 \cdot 10^{-3}$ . Параметр  $\rho_c$  много меньше, чем удвоенное среднее расстояние между частицами  $|\mathbf{r}_i^{(k)} - \mathbf{r}_j^{(k)}| \sim 2n_d^{-1/3} = 221$  мкм, а выбор  $\varepsilon$  гарантирует, что наименьший угол между векторами  $\mathbf{d}_{ij}^{(k)}$  и  $\mathbf{d}_{ij}^{(l)}$  или между  $\mathbf{d}_{ij}^{(k)}$  и  $-\mathbf{d}_{ij}^{(l)}$  меньше чем  $8^\circ$ . Очевидно, что эти параметры могут быть чувствительны к параметрам решетки.

Далее, выбирается следующий ближайший сосед, пока все они не будут проверены. Аналогично, частицы, которые удовлетворяют условию (3), помечаются как принадлежащие данному домену. В противном случае они помечаются как не принадлежащие данному домену. Тем не менее они все еще учитываются как ближайшие соседи для центральной частицы (кроме  $k$ -й) и, в принципе, они могут быть добавлены к домену, если для них выполняется

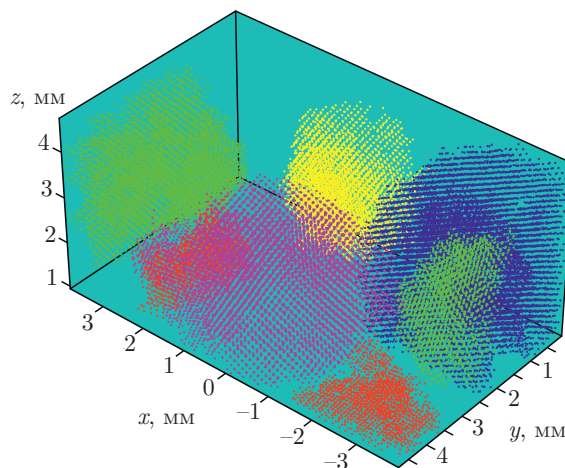


Рис. 1. (В цвете онлайн) Домены из истинных кристаллических частиц, определенные с помощью осевого алгоритма для скана № 11. Цвет указывает на различную ориентацию кристаллических осей. Жидкоподобные частицы и кристаллические домены, содержащие менее 1000 частиц, не показаны

условие (3). Затем одна из соседних частиц рассматривается как центральная, и вся процедура повторяется до тех пор, пока не будут обнаружены все частицы, образующие домен. На следующем этапе мы случайным образом выбираем следующую начальную частицу, не принадлежащую ни к одному уже найденному домену, и находим новый домен, пока все домены не будут определены.

Сравнение между этим «осевым» алгоритмом и критерием корреляции показывает, что оба метода помечают почти те же самые частицы как «кристаллоподобные», если правильно выбрано значение параметра  $\nu$  ( $\nu < 5$ ). Однако в этом случае осевой алгоритм не способен разделить разные домены, так же как и  $q_6$ -корреляционный критерий. Параметр  $\nu = 5$ , выбранный выше, является минимальным, при котором домены еще можно разделить. Хотя количество кристаллоподобных частиц в этом случае более чем на 25% меньше, чем это число, определенное по критерию корреляции (для скана № 7), несоответствие имеет место в основном вблизи поверхности домена и плоскостей, которые ограничивают поле зрения камеры и глубину сканирования. Заметим, что форма межфазной границы кристалл-жидкость, которая слабо зависит от числа частиц, мало отличается при использовании обоих методов. На рис. 1 показаны различные кристаллические домены, определенные с помощью осевого алгоритма для скана № 11, для которого количество кристал-

лоподобных частиц максимально. На этом рисунке хорошо видны различно ориентированные кристаллические решетки различных доменов.

В дальнейшем будем рассматривать наиболее крупный домен, показанный на рис. 1 синим цветом. Выделим фронт кристаллизации. Если пренебречь флуктуациями границы домена в масштабе межчастичных расстояний и предположить прямолинейное распространение малой площадки (см. разд. 2), то в определении фронта возникает некоторый произвол. В этом случае расстояние между этим фронтом и эквимольной поверхностью не имеет физического смысла аналогично определению поверхности натяжения для плоской границы раздела двух фаз. Поэтому не важно, например, удовлетворяют ли частицы, образующие фронт,  $q_6$ -корреляционному критерию. Важно лишь использовать одно и то же определение фронта для всех сканов. Следовательно, достаточно выделить монослой частиц на поверхности домена, который содержит только кристаллоподобные частицы. Этот монослой состоит из опорных частиц для фронта кристаллизации. Выделение поверхностного монослоя осуществляется по алгоритму работы [24], который хорошо зарекомендовал себя в задаче об определении поверхности аргоноподобного кластера. Согласно этому алгоритму, частица 1 с радиусом-вектором  $\mathbf{r}_1$ , которая принадлежит данному домену, называется внутренней, если существует по крайней мере одна частица 2 с радиусом-вектором  $\mathbf{r}_2$ , принадлежащая тому же домену и имеющая более четырех ближайших соседей, такая, что выполняются условия

$$\mathbf{r}_1 \cdot \mathbf{r}_2 > r_1^2, \quad r_2^2 - \frac{(\mathbf{r}_1 \cdot \mathbf{r}_2)^2}{r_1^2} < L^2, \quad (4)$$

где  $L$  — параметр длины порядка межчастичного расстояния. Частицы, которые не являются внутренними и имеют более четырех ближайших соседей, являются, по определению, поверхностными частицами.

Для нахождения поверхностных частиц сдвинем начало координат в точку ( $x = -4$  мм,  $y = 0$ ,  $z = 0.9$  мм), так что радиус-вектор поверхностных частиц составляет с поверхностью угол, не отличающийся значительно от прямого. Левая часть второго условия (4) — это квадрат расстояния между частицей 2 и осью, проходящей через начало системы координат и частицу 1. Положим  $L^2 = 0.45r_{min}^2$ , где  $r_{min}$  — расстояние между частицей 1 и ее ближайшим соседом. Результаты определения фронта кристаллизации для сканов с № 7 по № 11 приведены на рис. 2. Заметим, что выбранный алгоритм эф-

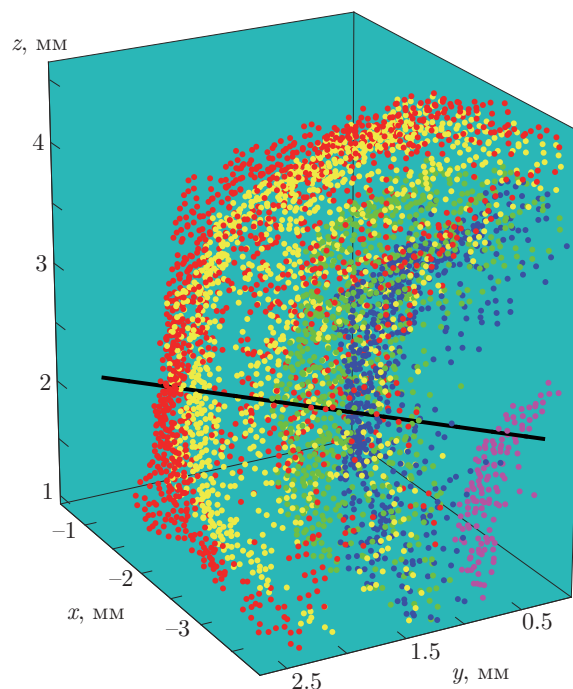


Рис. 2. (В цвете онлайн) Эволюция фронта кристаллизации во времени для домена, маркированного синим цветом на рис. 1. Показаны поверхности домена, определенные с помощью условия (4) и соответствующие сканам №№ 7–11. Частицы, образующие поверхность домена, показаны различными цветами для различных сканов. Сплошная линия указывает направление распространения фронта

фективно удаляет частицы, примыкающие к плоскостям, ограничивающим поле зрения видеокамеры и глубину сканирования, которые не образуют никакой физической поверхности. Видно, что начиная со скана № 7 поверхность рассматриваемого домена появляется в поле зрения и растет, пока этот рост не оказывается ограниченным поверхностями соседних доменов и приэлектродным слоем. Малое различие между фронтами сканирования № 10 и № 11 свидетельствует о том, что рост домена в это время прекращается. На рис. 2 также видно, что фронт кристаллизации в целом не имеет определенной формы. Поскольку скорость фронта корректно определяется только для плоской площадки, распространяющейся вдоль определенного направления, мы должны искать такую площадку и соответствующее направление распространения.

### 3. ОПРЕДЕЛЕНИЕ СКОРОСТИ ФРОНТА

При определении 3D-скорости распространения фронта кристаллизации возникают две проблемы.

Во-первых, время между последовательными сканированиями достаточно велико, так что путь малого участка фронта может быть криволинейным, поэтому его нельзя измерить. Это делает даже физическое определение скорости фронта проблематичным. Во-вторых, скоростью  $v$  фронта нельзя полностью пренебречь по сравнению со скоростью  $u$  сканирования. Следовательно, видимая поверхность домена, определенная при сканировании, отличается от реальной. Обе проблемы устраняются, если предположить, что существует малая часть поверхности домена (площадка), которая может быть аппроксимирована плоскостью и которая распространяется вдоль определенной линии (направления распространения), параллельной истинной нормали к площадке,  $\mathbf{n} = \{n_x, n_y, n_z\}$ . Определим скорость  $v$  распространения фронта как скорость движения площадки вдоль  $\mathbf{n}$  (при этом направления скорости фронта и  $\mathbf{n}$  совпадают).

Рассмотрим пару четных или нечетных сканов, для которых наблюдаемые площадки параллельны. Нормаль  $\mathbf{n}'$  к наблюдаемой площадке можно связать с  $\mathbf{n}$ . Рассмотрим пару нечетных сканов, обозначив их 1 и 2, в ходе которых пылевое облако сканируется в направлении оси  $y$ . Тогда плоскость лазерного ножа во время скана 1 определяется уравнением  $y = u(t - \tau_1)$ , где  $t$  — время, а  $\tau_1$  — время начала сканирования. Уравнение движения истинной площадки имеет вид  $\mathbf{n} \cdot \mathbf{r} = vt$ , где  $\mathbf{r}$  обозначает точку в пространстве. Видимая площадка является частью плоскости, в которой движется линия пересечения плоскости лазерного ножа и плоскости, в которой лежит истинная площадка. Исключая время из уравнений, определяющих плоскости лазерного ножа и площадки, получим

$$\mathbf{n}' \cdot \mathbf{r} = r_1 = \frac{v\tau_1}{\eta}, \quad \mathbf{n}' = \left\{ \frac{n_x}{\eta}, \frac{n_y - \beta}{\eta}, \frac{n_z}{\eta} \right\}, \quad (5)$$

где  $r_1$  — расстояние между видимой площадкой и началом координат,

$$\eta = \sqrt{n_x^2 + (n_y - \beta)^2 + n_z^2} \simeq 1 - \beta n_y \simeq 1 - \beta n'_y, \quad (6)$$

$\beta = v/u$ . Предполагается, что  $\beta \ll 1$ .

Аппроксимируем видимую площадку секущей плоскостью, близкой к касательной плоскости, перпендикулярной нормали  $\mathbf{n}'$ . Фиксируем такую небольшую группу из  $m$  частиц с радиус-векторами  $\mathbf{r}_i$  вблизи точки пересечения линии распространения площадки и поверхности домена, которая максимизирует скалярное произведение  $\mathbf{r}_i \cdot \mathbf{n}'$ . Радиус-вектор центра масс выбранной группы есть

$$\mathbf{R}_c^{(1)} = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m \mathbf{r}_i, \quad (7)$$

а его проекция на направление  $\mathbf{n}'$  дается выражением

$$r_1 = \mathbf{n}' \cdot \mathbf{R}_c^{(1)} = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m \mathbf{r}_i \cdot \mathbf{n}'. \quad (8)$$

Из уравнений (5) и (6) следует, что

$$\beta u \tau_1 = (\beta n'_y - 1) r_1. \quad (9)$$

Для следующего нечетного скана

$$\beta u \tau_2 = (\beta n'_y - 1) r_2,$$

где  $\tau_2$  — время начала скана 2, а  $r_2$  определяется правой частью уравнения (8) для скана 2. Вычитая (9) из этого уравнения, получим скорость фронта между последовательными нечетными сканами [20]:

$$v = v_{odd} = \frac{v_0}{1 + n'_y v_0 / u}, \quad v_0 = \frac{r_2 - r_1}{\tau_2 - \tau_1}. \quad (10)$$

Как видно из (10), скорость фронта инвариантна относительно выбора системы координат и зависит только от разности времен начала нечетных (четных) сканов. Уравнение для скорости фронта между последовательными четными сканами отличается от (10) знаком  $u$ :

$$v = v_{ev} = \frac{v_0}{1 - n'_y v_0 / u}. \quad (11)$$

Последний член в знаменателях выражений (10) и (11) является поправкой на конечную скорость сканирования.

Так как при прямолинейном распространении площадки совпадают направления вектора  $\mathbf{R}_c^{(2)} - \mathbf{R}_c^{(1)}$ , который определяет линию распространения, и истинной нормали

$$\mathbf{n} = \left\{ (1 - \beta n'_y) n'_x, (1 - \beta n'_y) n'_y + \beta, (1 - \beta n'_y) n'_z \right\}, \quad (12)$$

необходимо, варьируя  $\mathbf{n}'$ , минимизировать разность между вектором  $\mathbf{R}_c^{(2)} - \mathbf{R}_c^{(1)}$  и его проекцией на направление вектора  $\mathbf{n}$ ,

$$\rho_c = \left| \mathbf{n} \times \left( \mathbf{R}_c^{(2)} - \mathbf{R}_c^{(1)} \right) \right|. \quad (13)$$

При этом мы игнорируем нефизические краевые максимумы, соответствующие направлениям распространения, которые почти параллельны плоскостям, ограничивающим рассматриваемый объем. В

то же время площадка не должна быть частью границы между двумя доменами.

Были проанализированы данные, полученные при восьми сканированиях вперед и восьми назад [20]. Глубина и скорость каждого сканирования были соответственно 4.8 мм и  $u = 0.6$  см/с; период сканирования был  $\tau_2 - \tau_1 = 23.4$  с. Таким образом, скорость распространения фронта определялась следующим образом. Для каждого обработанного домена была определена его видимая поверхность при каждом сканировании, затем выбирались соответствующие пары последовательных нечетно-нечетных или четно-четных сканов. Для каждой пары сканов варьировался вектор  $\mathbf{n}'$  с целью минимизировать  $\rho_c$  (13) с использованием формул (7) и (12). Таким образом, определялись как направление распространения, так и скорость (уравнения (8), (10) и (11)). При этом оказывается, что оптимальное количество частиц, представляющих площадку, составляет  $m = 50$ ; в результате  $\rho_c = 23$  мкм, в то время как межчастичное расстояние равно  $n_d^{-1/3} = 111$  мкм. Выполнение условия  $\rho_c n_d^{1/3} \ll 1$  для рассматриваемой системы свидетельствует о том, что существуют по крайней мере одно прямолинейное направление распространения и соответствующая площадка.

Описанная выше процедура применялась для двух наибольших доменов, а именно, для обозначенных синим и фиолетовым цветами на рис. 1. Другие домены имеют слишком маленькую поверхность для их обработки. Для синего домена пара сканов № 8 и № 10 является единственной, для которой удовлетворяются сформулированные выше условия определения скорости фронта. Так, для нечетной пары № 7 и № 9 линия распространения проходит вне доменной поверхности скана № 7, которая частично невидима (см. рис. 2). По той же причине невозможно найти минимум  $\rho_c$ , отличный от краевого, для этой пары сканов. В последней паре сканов (№ 9 и № 11) площадка для скана № 11 является границей между двумя соседними доменами. По этой причине эта пара непригодна для анализа. Однако, используя линию распространения, определенную для сканов № 8 и № 10 (черная прямая на рис. 2), можно рассчитать расстояние между ее пересечениями с доменными поверхностями (смещение фронта) для всех возможных пар сканов как  $\Delta S = \mathbf{n} \cdot (\mathbf{r}_2 - \mathbf{r}_1)$ , где  $\mathbf{r}_2$  и  $\mathbf{r}_1$  — радиус-векторы частиц, принадлежащих поверхности соответствующего домена и расположенных на самом малом расстоянии от линии распространения. Координаты таких частиц однозначно связаны с моментами времени  $\tau_2$  и  $\tau_1$ , в кото-

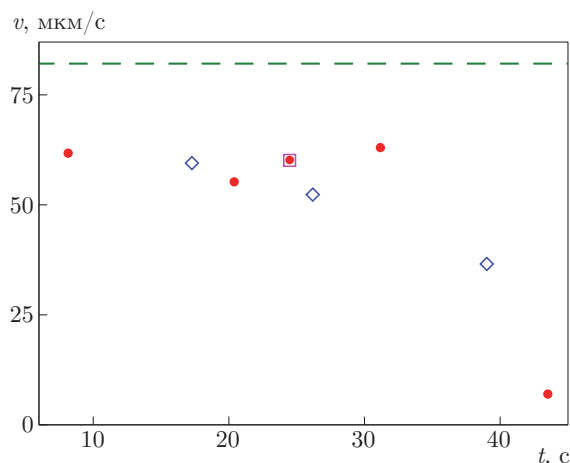


Рис. 3. Скорость распространения фронта кристаллизации из ее определения (10), (11) для синего и фиолетового доменов на рис. 1 (соответственно квадрат и ромбы) и из результатов точечного измерения для синего домена (кружки). Штрихи — теоретическая оценка сверху

рые эти частицы освещаются лазерным ножом. Заметим, что линия распространения не пересекается с поверхностью сканирования № 7. Соответствующая разница во времени,  $\Delta\tau = \tau_2 - \tau_1$ , позволяет определить скорость фронта  $v = \Delta S / \Delta\tau$  методом описанного выше точечного измерения. Для фиолетового домена на рис. 1 точечное измерение является излишним, поскольку все три пары сканов (№№ 7 и 9, №№ 8 и 10, №№ 9 и 11) удовлетворяют условиям анализа.

#### 4. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТА, ТЕОРИЯ И ОБСУЖДЕНИЕ

Процедура минимизации, обсуждаемая в разд. 3, дает оценку для скорости фронта  $v \simeq 59$  мкм/с. Результаты определения скорости, выполненного для двух доменов, приведены на рис. 3. Этот рисунок свидетельствует о том, что скорость фронта кристаллизации практически не зависит ни от времени распространения, ни от пространственного положения в пылевом облаке. Заметим, что резкое уменьшение скорости через 40 с после наблюдаемого начала распространения фронта связано со столкновением границ соседних доменов. Это столкновение может увеличить связанные с деформацией напряжения внутри доменов и тем самым сдвинуть их состояние в сторону бинодали кристаллизация–плавление. Уменьшение скорости также может быть результатом неоднородного «перегрева» жидкоподобной фазы. Отметим хорошее согласие между ско-

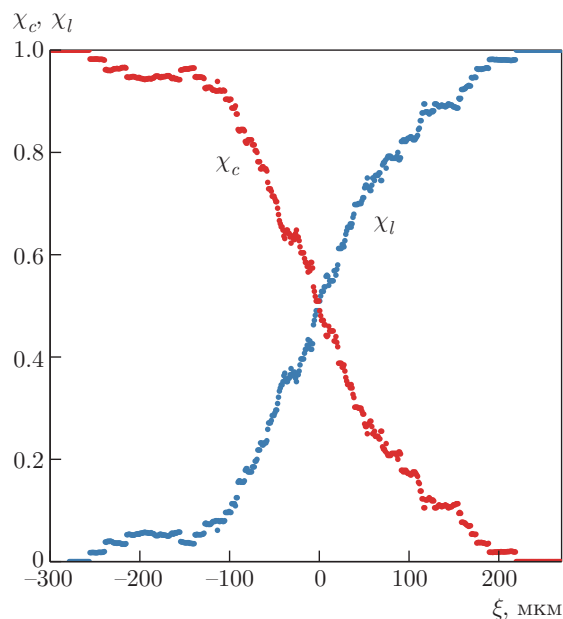


Рис. 4. Доли жидкоподобных и кристаллоподобных частиц вдоль межфазной границы кристалл–жидкость

ростями, определенными с помощью процедуры минимизации для обоих доменов и точечного измерения (см. рис. 3).

Для анализа полученных результатов необходимо исследовать структуру межфазной границы и оценить параметр неидеальности пылевой подсистемы. Межфазную границу будем характеризовать долями жидкоподобных,  $\chi_l = n_l / (n_l + n_c)$ , и кристаллоподобных  $\chi_c = n_c / (n_l + n_c)$ , частиц. Здесь  $n_l$  и  $n_c$  — концентрации соответственно жидкоподобных и кристаллоподобных частиц. Для нахождения  $\chi_l$  и  $\chi_c$  определялись числа жидкоподобных и кристаллоподобных частиц в тонком цилиндрическом слое (высотой 100 мкм и радиусом 500 мкм) при различных смещениях  $\xi$  его центра от центра межфазной границы. Ось цилиндра совпадала с направлением линии прямолинейного распространения площадки, использованной для определения скорости фронта. Оказалось, что для всех исследованных доменов независимо от номера скана профиль межфазной границы практически одинаков и имеет вид, представленный на рис. 4. Видно, что межфазная граница имеет конечную ширину, которая, с учетом конечной ширины слоя, лишь незначительно превосходит межчастичное расстояние. Видна также асимметрия профилей: скорость убывания  $\chi_c$  уменьшается с возрастанием  $\xi$ .

Оценим параметр неидеальности для рассматриваемого пылевого облака, используя результаты работы [25]:

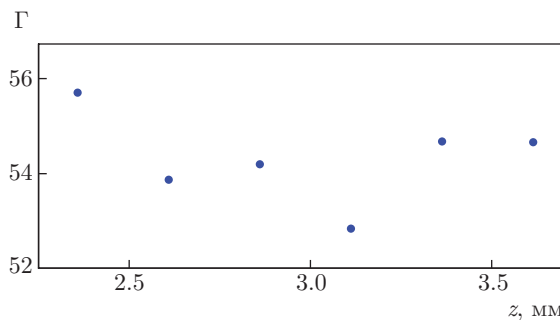


Рис. 5. Параметр неидеальности для пылевых частиц в зависимости от координаты вдоль оси симметрии установки

$$\Gamma = \frac{Z^2 e^2}{r_d T_d} = 3 \left( \frac{r_d}{\delta r} \right)^2. \tag{14}$$

Здесь  $Z$  — заряд пылевой частицы в единицах заряда электрона,  $e$  — элементарный электрический заряд,  $T_d$  — кинетическая температура пылевой частицы в энергетических единицах,  $r_d = (3/4\pi n_d)^{1/3}$  — радиус ячейки Вигнера–Зейтца для пылевой частицы,  $\delta r$  — стандартное 3D-отклонение частицы от ее положения равновесия в ячейке. Параметр неидеальности, определенный для эксперимента, проводимого при тех же условиях без сканирования, в объеме, ограниченном полем зрения камеры высокого разрешения и глубиной трехмерного сканирования, оказывается практически постоянным во всем объеме наблюдения (рис. 5),  $\Gamma \simeq 54$ . Заметим, что в пределах точности определения  $\Gamma$  различие между его значениями для кристаллоподобной и жидкоподобной фаз не наблюдается. Малая величина  $\Gamma$  соответствует тенденции, отмеченной в работе [25]:  $\Gamma$  уменьшается с уменьшением диаметра частиц.

Значительное отличие полученного экспериментально параметра неидеальности от величины, характерной для порога кристаллизации однокомпонентной плазмы указывает на существенное различие свойств этих систем. Действительно, в отличие от однокомпонентной плазмы, пылевая плазма является сильнонеравновесной системой. В этой системе нельзя не учитывать наличие действующих на частицу сил увлечения ионами и электрического поля. Именно эти силы, полностью отсутствующие в однокомпонентной плазме, определяют конфигурацию, распределение плотности и заряд частиц в пылевом облаке. Как уже отмечалось выше, большое влияние на свойства системы оказывает низкочастотный генератор.

При  $\Gamma = 54$  кинетическая температура  $T_d = Z^2 e^2 / r_d \Gamma$  частиц аномально высока. Поскольку все параметры плазмы, которые могут влиять на



скорость фронта, почти постоянны в исследуемом объеме, а влиянием кривизны фронта, по-видимому, можно пренебречь, определенная выше скорость также должна быть постоянной (ср. рис. 3). Следовательно, она не должна зависеть от направления, в котором она была определена. Таким образом, можно сделать вывод о том, что мы нашли 3D-скорость фронта кристаллизации, распространяющегося в пылевой плазме.

Теория распространения фронта кристаллизации в сильнонеидеальной пылевой плазме значительно отличается от теории для обычных веществ, поскольку кинетическая температура пылевых частиц задается параметрами пылевой плазмы и, следовательно, одинакова для различных фаз [25]. Это определяет уникальность данной системы, в которой тепловые потоки, играющие, как правило, определяющую роль в обычных системах, отсутствуют. Как показывает данное исследование, фрактальные структуры на межфазной границе также отсутствуют, и ее участки можно приближенно считать плоскими.

Для построения теории распространения фронта кристаллизации будем предполагать, что его движение обусловлено потоками частиц, переходящих из жидкой фазы на поверхность кристалла и отрывающихся от поверхности кристалла. Каждый из этих элементарных процессов происходит при преодолении частицами некоторой энергии активации и поэтому носит аррениусский характер. Тогда естественно отождествить указанные процессы с диффузией частиц внутри межфазной границы. Действительно, коэффициент самодиффузии порядка произведения частоты перехода частицы из одной элементарной ячейки жидкости (кристалла) в другую на квадрат среднего межчастичного расстояния. Поэтому число актов кристаллизации (плавления) отдельных частиц, приходящееся на единицу поверхности межфазной границы, пропорционально соответствующему коэффициенту самодиффузии. Поскольку на бинодали кристалл–жидкость межфазная граница неподвижна, а поток жидкоподобных частиц равен нулю, естественно предположить, что этот поток пропорционален разности коэффициентов самодиффузии для жидкой и кристаллической фаз. Заметим, что при этом мы пренебрегаем различием между энергиями активации при самодиффузии частицы в пылевой жидкости и при «прыжке» частицы из жидкости в свободный узел кристаллической решетки. То же можно сказать и об отрыве частиц от кристаллической фазы.

Рассмотрим одномерную задачу в направлении оси  $x$ . В соответствии с теорией межфазной границы Ван дер Ваальса будем рассматривать ее как область плавного перехода от одной фазы к другой, т.е. будем считать функции  $n_\ell(x)$  и  $n_c(x)$  кусочно-непрерывными в этой области. Очевидно, что  $n_\ell + n_c = n_d = \text{const}$ . Если считать, что фронт кристаллизации движется в положительном направлении оси  $x$ , то, в соответствии со сделанным выше предположением, полный поток жидкоподобных частиц равен

$$j = -(D_\ell - D_c) \frac{\partial n_\ell}{\partial x}, \quad (15)$$

где  $D_\ell$  и  $D_c$  — коэффициенты самодиффузии жидкоподобных и кристаллоподобных частиц (при кристаллизации  $D_\ell > D_c$ ). Заметим, что в случае плавления нужно было бы писать  $j = -(D_c - D_\ell)(\partial n_c / \partial x)$ . Подставляя (15) в уравнение непрерывности для жидкоподобных частиц,

$$\frac{\partial n_\ell}{\partial t} + \frac{\partial j}{\partial x} = 0, \quad (16)$$

где  $t$  — время, получим уравнение типа уравнения диффузии:

$$\frac{\partial n_\ell}{\partial t} = (D_\ell - D_c) \frac{\partial^2 n_\ell}{\partial x^2}. \quad (17)$$

Величины  $D_\ell$  и  $D_c$  в (17), как обычно, считаем постоянными.

Считая  $n_\ell = n_\ell(\xi)$  функцией единственной переменной  $\xi = x - vt$ , сформулируем граничное условие на бесконечности,  $n_\ell(\infty) = n_d$ , и на движущейся со скоростью  $v$  границе,  $n_\ell(0) = 0$ . Тогда решение уравнения (17) записывается в виде

$$n_\ell(\xi) = n_0 \left(1 - e^{-\xi/l}\right), \quad (18)$$

где  $l = (D_\ell - D_c)/v$  — толщина межфазной границы, которая, как следует из рис. 4, порядка межчастичного расстояния,  $l \simeq n_d^{-1/3}$ . Таким образом, скорость межфазной границы  $v = (D_\ell - D_c)/l$ . При приближении к бинодали кристалл–жидкость имеем  $D_\ell \rightarrow D_c$ , и  $v \rightarrow 0$ , а если  $D_c > D_\ell$ , то  $v < 0$ , т.е. фронт плавления движется в противоположном направлении. Отметим, что в случае кристаллизации для полного потока кристаллизующихся частиц в плоскости  $\xi = 0$  имеем  $j_{\xi=0} = -vn_d$ , как и должно быть. При этом число актов кристаллизации частиц, приходящееся на единицу поверхности межфазной границы, равно  $ln_d D_\ell / l^2 = n_d D_\ell / l$ , что соответствует сделанным выше предположениям.

Аналогично однокомпонентной модели неидеальной плазмы предположим, что бинодаль жидкость–кристалл однозначно определяется величиной параметра неидеальности  $\Gamma$ , значение которого на бинодали обозначим  $\Gamma_0$ . Тогда можно написать

$$D_k = B_k \exp\left(-\alpha_k \frac{\Gamma}{\Gamma_0}\right), \quad (19)$$

где  $k = \ell, c$  и  $B_k$  — предэкспоненциальный множитель, а  $\alpha_k$  — некоторый числовой фактор. Поскольку  $v \equiv 0$  при  $\Gamma = \Gamma_0$ , из выражения (19) получим  $B_c = B_\ell e^\Delta$ , где  $\Delta = \alpha_c - \alpha_\ell$ . Следовательно, скорость фронта может быть записана в виде

$$v = \frac{D_\ell}{l} \left\{ 1 - \exp\left[\left(1 - \frac{\Gamma}{\Gamma_0}\right) \Delta\right] \right\}. \quad (20)$$

Величины  $l$  и  $\Delta$  являются параметрами данной модели. Из соотношения (20) следует, что  $v < 0$  при  $\Gamma/\Gamma_0 < 1$ , что соответствует распространению фронта плавления, а при  $\Gamma/\Gamma_0 > 1$  распространяется фронт кристаллизации ( $v > 0$ ). Здесь соотношение  $\Gamma/\Gamma_0$  играет роль пересыщения в теории нуклеации.

Верхнюю оценку для скорости фронта кристаллизации можно получить из уравнения (20):

$$v = D_\ell/l \simeq D_\ell n_d^{1/3}.$$

Из предполагаемого сходства между нашей системой и моделью однокомпонентной плазмы можно получить грубую оценку  $\Delta \gtrsim 1$ . Тогда верхняя оценка скорости мало отличается от (20), если  $(\Gamma/\Gamma_0 - 1)\Delta > 1$ , что может быть совместимо с условием  $\Gamma/\Gamma_0 - 1 < 1$ . Согласно работе [26],

$$D_\ell \simeq \frac{r_d^2}{6\tau_0} \exp\left(-\frac{3\Gamma}{\Gamma_0}\right),$$

где  $\tau_0$  — характерное время, которое может быть оценено по частоте колебаний частиц в ячейке Вигнера–Зейтца,  $\omega_0 = (\Gamma T_d / M r_d^2)^{1/2}$  [25],  $\tau_0 \simeq 2\pi/\omega_0$  ( $M$  — масса частицы). Следовательно,

$$v \simeq \frac{3}{4\pi(36\pi)^{2/3}} \omega_0 n_d^{-1/3} \exp\left(-\frac{3\Gamma}{\Gamma_0}\right). \quad (21)$$

Если мы предположим, что система находится в метастабильной области недалеко от бинодали,  $\Gamma \simeq \Gamma_0$ , то для условий описанного эксперимента ( $r_d \simeq 6.86 \cdot 10^{-3}$  см,  $\omega_0 \simeq 1.46 \cdot 10^3$  с $^{-1}$ ), получим верхнюю оценку для скорости фронта:  $v \simeq 82.1$  мкм/с, что коррелирует с экспериментальным результатом (см. рис. 3). Этот результат согласуется с оценкой скорости фронта кристаллизации [15], составившей порядка одного межчастичного расстояния в секунду.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной работе проведен анализ кинетики фазового перехода первого рода в комплексной плазме, а именно, распространения фронта кристаллизации через облако заряженных частиц пыли в условиях микрогравитации. Для разделения частиц на жидкоподобные и кристаллоподобные разработаны два подхода. С помощью  $q_6$ -корреляционного критерия можно эффективно разделить частицы на принадлежащие различным фазам. Однако с помощью этого критерия невозможно разделять различные кристаллические домены и выделять их поверхности. По этой причине мы положили в основу методики разделения частиц и доменов определение главных кристаллических осей для каждого домена. Это позволило нам не только идентифицировать кристаллоподобные частицы, но и эффективно разделить разные домены. Используемый способ определения поверхности домена позволяет выделить группу поверхностных частиц, которые образуют распространяющийся фронт.

Ключевым моментом в измерении скорости фронта является определение направления прямой распространения. Предполагается, что существует небольшая область поверхности домена (площадка), распространяющаяся вдоль этой прямой перпендикулярно к ней. Эта прямая определяется из процедуры минимизации разности между вектором, соединяющим центры площадок, соответствующих последовательным однонаправленным сканам, и его проекцией на направление нормали к этим площадкам. При этом учитывается поворот видимых нормалей вследствие конечной скорости сканирования. В ходе этой процедуры рассчитывается скорость фронта кристаллизации. Эта истинная скорость 3D-фронта является важным свойством кинетики кристаллизации плазмы.

Оказывается, что скорость фронта кристаллизации почти постоянна для рассмотренной системы и составляет около 60 мкм/с, т.е. примерно половину межчастичного расстояния в секунду. Отметим хорошее согласие между точечным измерением и определением скорости методом прямолинейного распространения. Фронт кристаллизации равномерно распространяется в однородном пылевом облаке и замедляется, когда поверхности соседних доменов соприкасаются.

Теоретические оценки, сделанные в данной работе, основаны на предположении, что поток жидкоподобных частиц пропорционален разности коэф-

фициентов самодиффузии жидкоподобных и кристаллоподобных частиц. Коэффициент самодиффузии для жидкоподобных частиц заимствован из результатов моделирования жидкости с межчастичным взаимодействием Юкавы. Заметим, что использование модели жидкости с межчастичным взаимодействием Юкавы в условиях нашего эксперимента представляется допустимым по крайней мере для оценки (21), не претендующей на высокую точность, поскольку обнаруженная в работе [20] структура пылевого кристалла в виде недеформированной кубической объемно-центрированной решетки указывает на несущественную роль неньютоновского характера поведения плазменно-пылевой жидкости. Для скорости фронта получена оценка сверху, которая коррелирует со скоростью, следующей из обработки данных эксперимента. Исследования в данной области могут способствовать развитию теории сильнонеидеальной плазмы.

## ЛИТЕРАТУРА

1. *Complex and Dusty Plasmas: From Laboratory to Space*, ed. by V. E. Fortov and G. E. Morfill, Series in Plasma Physics, CRC Press, Boca Raton, USA (2010).
2. J. H. Chu and I. Lin, Phys. Rev. Lett. **72**, 4009 (1994).
3. H. Thomas, G. E. Morfill, V. Demmel et al., Phys. Rev. Lett. **73**, 652 (1994).
4. S. V. Vladimirov, K. Ostrikov, and A. A. Samarian, *Physics and Applications of Complex Plasmas*, Imperial College, London (2005).
5. V. Fortov, A. Ivlev, S. Khrapak et al., Phys. Rep. **421**, 1 (2005).
6. M. Bonitz, C. Henning, and D. Block, Rep. Prog. Phys. **73**, 066501 (2010).
7. G. E. Morfill, U. Konopka, M. Kretschmer et al., New J. Phys. **8**, 7 (2006).
8. M. Schwabe, S. K. Zhdanov, H. M. Thomas et al., New J. Phys. **10**, 033037 (2008).
9. G. E. Morfill, H. M. Thomas, U. Konopka et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 1598 (1999).
10. S. A. Khrapak, B. A. Klumov, P. Huber et al., Phys. Rev. Lett. **106**, 205001 (2011).
11. H. M. Thomas, G. E. Morfill, V. E. Fortov et al., New J. Phys. **10**, 033036 (2008).
12. K. Jiang, V. Nosenko, Y. F. Li et al., Europhys. Lett. **85**, 45002 (2009).
13. M. Schwabe, K. Jiang, S. Zhdanov et al., Europhys. Lett. **96**, 55001 (2011).
14. V. N. Naumkin, A. M. Lipaev, V. I. Molotkov et al., J. Phys. Conf. Ser. **946**, 012144 (2018).
15. M. Rubin-Zuzic, G. E. Morfill, A. V. Ivlev et al., Nature Phys. **2**, 181 (2006).
16. U. Gasser, E. R. Weeks, A. Schofield et al., Science **292**, 258 (2001).
17. U. Gasser, J. Phys.: Condens. Matter **21**, 203101 (2009).
18. A. G. Khrapak, V. I. Molotkov, A. M. Lipaev et al., Contrib. Plasma Phys. **56**, 253 (2016).
19. V. N. Naumkin, D. I. Zhukhovitskii, V. I. Molotkov et al., Phys. Rev. E **94**, 033204 (2016).
20. D. I. Zhukhovitskii, V. N. Naumkin, V. I. Molotkov et al., Plasma Sources Sci. Technol. **28**, 065014 (2019).
21. P. J. Steinhardt, D. R. Nelson, and M. Ronchetti, Phys. Rev. B **28**, 784 (1983).
22. P. R. ten Wolde, M. J. RuizMontero, and D. Frenkel, J. Chem. Phys. **104**, 9932 (1996).
23. J. A. van Meel, L. Fillion, C. Valeriani et al., J. Chem. Phys. **136**, 234107 (2012).
24. D. I. Zhukhovitskii, J. Chem. Phys. **125**, 234701 (2006).
25. D. I. Zhukhovitskii, V. N. Naumkin, A. I. Khusnulgatин et al., Phys. Rev. E **96**, 043204 (2017).
26. O. S. Vaulina and S. V. Vladimirov, Phys. Plasmas **9**, 835 (2002).