

# ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ И ДИНАМИЧЕСКАЯ ЭНТРОПИЯ В МАЛЫХ ДВУМЕРНЫХ СИСТЕМАХ: ЭКСПЕРИМЕНТ И ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

*К. Г. Косс, О. Ф. Петров, М. И. Мясников\*, К. Б. Стаценко, М. М. Васильев*

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

Поступила в редакцию 23 сентября 2015 г.

Представлены результаты экспериментального и численного изучения фазовых переходов в сильнонеравновесных малых системах сильно взаимодействующих броуновских частиц. Для анализа состояния исследуемых систем использовался метод динамической энтропии. Проведены эксперименты с кинетическим нагревом структур частиц микронного размера в лабораторной плазме ВЧ-разряда. Наблюдались три фазовых состояния рассмотренных малых систем — кристаллическое, жидкостное и переходное. Описан механизм фазовых переходов в кластерных структурах сильно взаимодействующих частиц.

DOI: 10.7868/S0044451016070105

## 1. ВВЕДЕНИЕ

Изучение малых структур — актуальная задача в различных областях науки и техники. Особенный интерес она представляет для наноиндустрии, так как наноматериалы и зерна кристаллов можно рассматривать как малые системы. Использование кластерных структур на основе квазидвумерной углеродной решетки открывает новые возможности для развития наноэлектронных технологий. Учитывая, что кластеры из нескольких десятков частиц могут сохранять свою индивидуальность внутри макроскопических объектов, становится возможным проектирование материалов с уникальными свойствами. Отдельно следует отметить роль, которую играет изучение термодинамических свойств газожидкостных систем в малых объемах [1], так как эта задача является актуальной для добычи углеводородов из резервуаров с нано- и микроскопическим размером пор. Также одной из важных прикладных и теоретических задач является изучение примесных нанокластерных структур, образующихся в жидком гелии при температурах порядка 1 К.

Кластеры обнаруживают особенности, которые не характерны ни для микроскопических, ни для макроскопических тел. Поэтому такие мезоскопиче-

ские объекты иногда относят к «пятому состоянию материи», в дополнение к твердому, жидкому, газообразному и плазменному. Описание малых систем является нетривиальным, так как к ним неприменимы методы статистической термодинамики. Ситуация осложняется, если мы имеем дело с открытыми системами, — а в приложениях мы рассматриваем преимущественно их.

Одной из интереснейших задач в изучении кластеров является исследование фазовых переходов в них, что обусловлено распространенностью малых систем в различных технических приложениях. В частности, агрегатное состояние кластеров молекул и атомов оказывает существенное влияние на свойства искусственных материалов, содержащих узкие капилляры и малые поры. Однако классический термодинамический подход к малым системам неприменим. Дело в том, что ключевым понятием в классической термодинамике является термодинамический предел, т. е. переход к системе из бесконечного числа частиц в бесконечном объеме — переход, который невозможно использовать в мезоскопических структурах [2, 3].

Фактически, изучение фазовых переходов в малой системе представляет собой изучение перехода структуры от порядка к хаосу и обратно. Если не ограничиваться рассмотрением термодинамически изолированных систем, практически не встречающихся в природе, то для количественного описания этого процесса можно использовать лишь неболь-

\* E-mail: miasnikovmi@mail.ru

шое количество инструментов. Так, например, интересна серия работ [4–6], в которых динамика переохлажденных жидкостей описывается при помощи четырехчастичных корреляционных функций. Но, по существу, все подходы к измерению степени хаотичности незамкнутых систем сводятся к поиску их энтропии [7].

Первоначально термин «энтропия» был введен в термодинамике для описания функции состояния, изменение которой определяет количество переданного системе тепла. Больцман дал статистическое определение энтропии как для равновесных, так и для неравновесных процессов. В 1948 г. Шеннон ввел понятие энтропии, которое стало ключевым в теории информации [8]. Сравнение этих величин показало, что информационная энтропия Шеннона пропорциональна статистической энтропии Больцмана и термодинамической энтропии [9]. Понятие информационной энтропии было позднее развито Колмогоровым [10] и Синаем [11], которые ввели новый метрический инвариант  $h_{KS}$  динамических систем, определяющий скорость увеличения энтропии  $S$  в результате перемешивания траекторий в фазовом пространстве:

$$S = h_{KS}t + \ln(\varepsilon), \quad (1)$$

где  $t$  — время,  $\varepsilon$  — элементарный фазовый объем. Для вычисления энтропии с большей точностью следует перейти к пределу  $\varepsilon \rightarrow 0$ . Таким образом, одним из основных свойств энтропии динамической системы  $h_{KS}$  является ее независимость от способа разбиения фазового пространства и его огрубления  $\varepsilon$  [12].

Необходимо отметить, что у энтропии Колмогорова – Синая есть несколько особенностей, затрудняющих ее применение для описания сложных конфигурационных изменений в динамических системах. Один из таких недостатков — ее расходимость для броуновского движения в связи с недифференцируемостью траекторий [13, 14]. В связи с этим удобным обобщением стало понятие динамической энтропии  $h(\varepsilon)$ , зависящей от величины разбиения  $\varepsilon$ , введенное в работе [13]. В настоящей же работе для вычисления динамической энтропии используется простое приближение, которое легко можно применять для анализа экспериментов и численного моделирования [13–15]: так называемая динамическая энтропия первого пересечения (mean first-passage time (MFPT) dynamic entropy).

Следует отметить, что упорядоченные динамические системы, несмотря на стационарность, практически всегда являются неравновесными (так как

в равновесном состоянии системы энтропия максимальна), поэтому метод динамической энтропии является особенно важным для описания состояния таких систем. Отметим, что связь между кинетическими характеристиками системы и эргодической теорией для ряда динамических систем была показана несколько десятилетий назад в работе [16], а именно, было установлено фундаментальное соотношение между коэффициентом диффузии, наибольшим показателем Ляпунова и энтропией Колмогорова – Синая для газа Лоренца. А в ряде работ [17, 18] наибольший показатель Ляпунова использовался в качестве индикатора фазового перехода динамической системы.

Малые системы являются сильно неоднородными — в них почти невозможно разделить поверхностные и объемные свойства. По этой причине диагностика их состояния значительно отличается от диагностики свойств макроскопических объектов, а их изучение представляет сложную задачу как в теоретическом, так и в экспериментальном плане. Однако существует уникальный физический объект, позволяющий наблюдать мезоскопические системы невооруженным глазом и регистрировать движение составляющих их частиц на «кинетическом» уровне — это структуры, формируемые частицами микронного размера в плазме. Такие частицы самопроизвольно образуются в плазме в результате различных процессов, либо вводятся в плазму извне. Заряжаясь в результате различных процессов, они приобретают значительный отрицательный или положительный электрический заряд ( $\sim 10^2$ – $10^5$  зарядов электрона) [17–23]. Такие заряженные частицы эффективно взаимодействуют как между собой, так и с внешними электрическими (или магнитными) полями. Совместное действие внешних сил и сил межчастичного взаимодействия с процессами диссипации в таких системах может приводить к формированию как квазистационарных плазменно-пылевых структур (подобных жидкости или твердому телу), так и к сложным колебательным или хаотическим режимам [24–41]. Интересны работы [42, 43], в которых рассмотрены вопросы формирования двумерных кластеров со свободными границами и спиралевидных пылевых структур в плазме. Следует отметить, что плазменно-пылевые структуры в лабораторном газовом разряде являются существенно открытыми системами, так как для поддержания разряда (и, соответственно, левитации частиц) требуется постоянный приток энергии, которая в ходе эксперимента рассеивается при взаимодействии пылинок с частицами окружающей плазмы. Доба-

вим, что в статьях [16, 44] аналитически и численно рассматривается трехмерный кулоновский кластер в цилиндрически симметричной гармонической ловушке, однако вопрос фазовых переходов в ней не затронут.

Одним из основных вопросов в экспериментальном исследовании фазовых переходов является равномерный кинетический разогрев системы частиц, при котором меняется только кинетическая температура частиц, но не параметры окружающей их среды. Наиболее подходящими для исследования фазовых переходов в квазидвумерных плазменно-пылевых структурах являются методы разогрева с помощью лазерного излучения [45–47]. В данной работе представлены результаты экспериментального и численного исследования плавления квазидвумерных кластеров макрочастиц в плазме. Эксперименты проводились с полимерными частицами, левитирующими в приэлектродном слое высокочастотного емкостного разряда, увеличение кинетической температуры пылинок достигалось с помощью их лазерного облучения.

## 2. ЧИСЛЕННОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ

Численное моделирование малых систем проводилось методом молекулярной динамики с применением термостата Ланжевена, основанным на решении системы из  $N_p$  обыкновенных дифференциальных уравнений движения (где  $N_p$  — число частиц в расчетной ячейке), с учетом силы Ланжевена  $F_{\text{ran}}$ , отвечающей за стохастический характер движения частиц с заданной кинетической температурой  $T$ . Базовые принципы техники моделирования, уравнения движения для компонент моделируемой системы, а также ограничения на шаг интегрирования подробно описаны в работе [48]. Расчеты были выполнены для двумерных систем с экранированным кулоновским потенциалом взаимодействия, состоящих из семи частиц. В начальный момент времени частицы были размещены в модельной ловушке случайным образом; в ходе моделирования они выстраивались в структуры с разной степенью упорядоченности.

При моделировании кластеров, состоящих из семи частиц, радиус частицы задавался равным  $a = 5 \cdot 10^{-4}$  см, плотность материала частицы —  $\rho_d = 1.5$  г/см<sup>3</sup>, масса частицы —  $7.854 \cdot 10^{-10}$  г, заряд частицы —  $q_d = 1.5 \cdot 10^4$  е. Частицы удерживались полем ловушки с частотой  $\omega = 10$  с<sup>-1</sup>. Коэффициент трения частиц о нейтральные частицы буфер-

ного газа задавался равным  $10$  с<sup>-1</sup>, длина экранирования составляла  $0.01$  см. Кинетическая температура пылевой подсистемы изменялась в диапазоне  $T = 10^{-7}$ – $30$  эВ. Шаг моделирования по времени составлял  $0.01$  с, а общее время моделирования —  $400$  с. На рис. 1 показаны траектории движения частиц за  $40$  с в кластерах из семи элементов, полученные в результате численного моделирования при разных кинетических температурах частиц.

## 3. ЭКСПЕРИМЕНТ

Эксперименты по исследованию плавления квазидвумерных кластеров проводились в высокочастотном газовом разряде в атмосфере аргона. Экспериментальный стенд для изучения пылевой плазмы представлял собой газоразрядную камеру, откачиваемую до давления  $0.01$  Па, которая затем наполнялась аргоном до давлений  $3$ – $7$  Па. Мощность ВЧ-разряда в экспериментах составляла  $4$ – $12$  Вт. Для формирования плазменно-пылевых структур в разряд инжектировались полистироловые пылевые частицы диаметром  $10.16$  мкм и плотностью  $1.05$  г/см<sup>3</sup>. В таких условиях частицы приобретали значительный отрицательный электрический заряд и при достижении баланса электрической силы и силы тяжести формировали пылевые структуры в приэлектродной области ВЧ-разряда. Варьируя параметры разряда (мощность разряда и давление буферного газа), удавалось добиться осаждения избыточного числа пылевых частиц и получить левитацию желаемой структуры, а именно, единственного кластера, состоящего из семи частиц. Для визуализации (подсветки) структуры и одновременно для кинетического разогрева структуры (увеличения кинетической температуры пылинок) применялся аргоновый лазер, плоскопараллельный пучок излучения которого имел в перетяжке толщину около  $250$  мкм (лазерный «нож»). Мощность лазерного излучения варьировалась от  $18$  до  $300$  мВт.

Движение пылевых частиц регистрировалось при помощи высокоскоростной ПЗС-видеокамеры с частотой видеосъемки, варьируемой в пределах  $30$ – $200$  кадров/с. Полученные видеоизображения обрабатывались при помощи специально разработанных компьютерных программ, в результате чего были определены координаты частиц, их траектории и скорости движения. На рис. 2 показаны траектории движения частиц за  $40$  с в кластере из семи элементов, полученные в ходе эксперимента при изменении мощности лазерного излучения, в

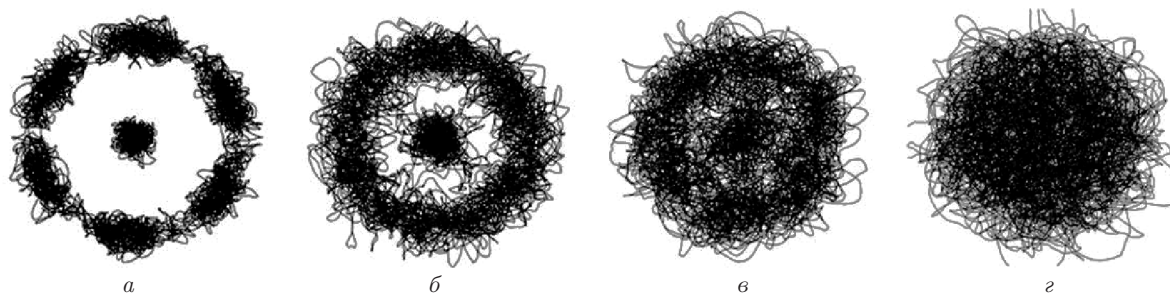


Рис. 1. Траектории движения частиц за 40 с в кластерах из семи элементов, полученные в результате численного моделирования при разных кинетических температурах частиц: *a* —  $T = 2$  эВ, *б* — 4.9 эВ, *в* — 9.5 эВ, *г* — 29 эВ

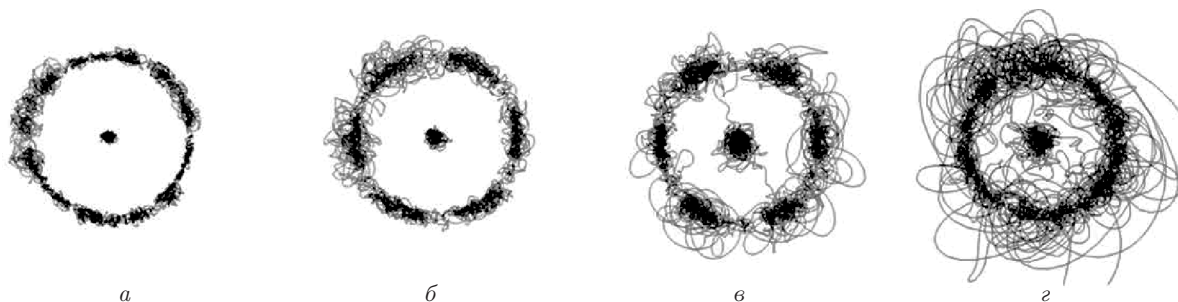


Рис. 2. Траектории движения частиц за 40 с в кластерах из семи элементов, полученные в ходе эксперимента при изменении мощности излучения лазера  $W$ : *a* —  $W = 19$  мВт,  $T = 4.8$  эВ; *б* —  $W = 39$  мВт,  $T = 5.6$  эВ; *в* —  $W = 100$  мВт,  $T = 9.8$  эВ; *г* —  $W = 149$  мВт,  $T = 25.4$  эВ

результате чего изменялась кинетическая температура частиц.

#### 4. АНАЛИЗ И ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

В данной работе для вычисления динамической энтропии используется простое приближение, которое легко можно применять для анализа экспериментов и численного моделирования [13–15]. При условии, что пространственный масштаб  $\varepsilon$  не слишком мал [13], динамическую энтропию можно приближенно подсчитать, описав в момент времени  $t = 0$  вокруг частицы сферу радиуса  $\varepsilon$  с центром в точке нахождения частицы, а затем определив момент времени  $\tau$ , в который траектория впервые достигнет порогового значения  $\varepsilon$ . Усредняя это время первого пересечения  $\tau(\varepsilon)$  по всем частицам системы, получаем динамическую энтропию первого пересечения  $S(\varepsilon)$  [14]:

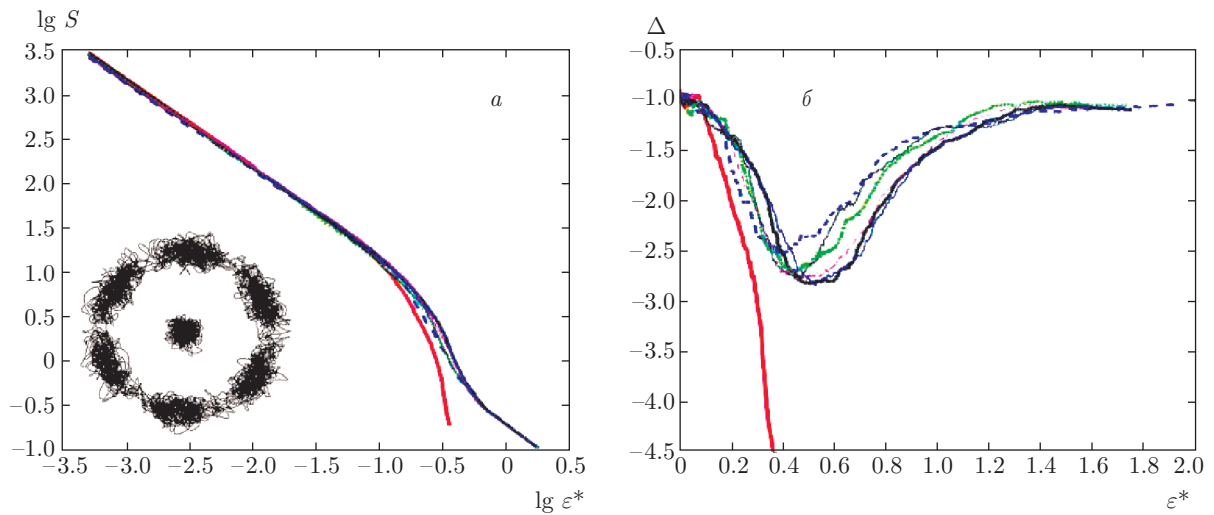
$$S(\varepsilon) \equiv 1/\tau(\varepsilon), \tag{2}$$

где

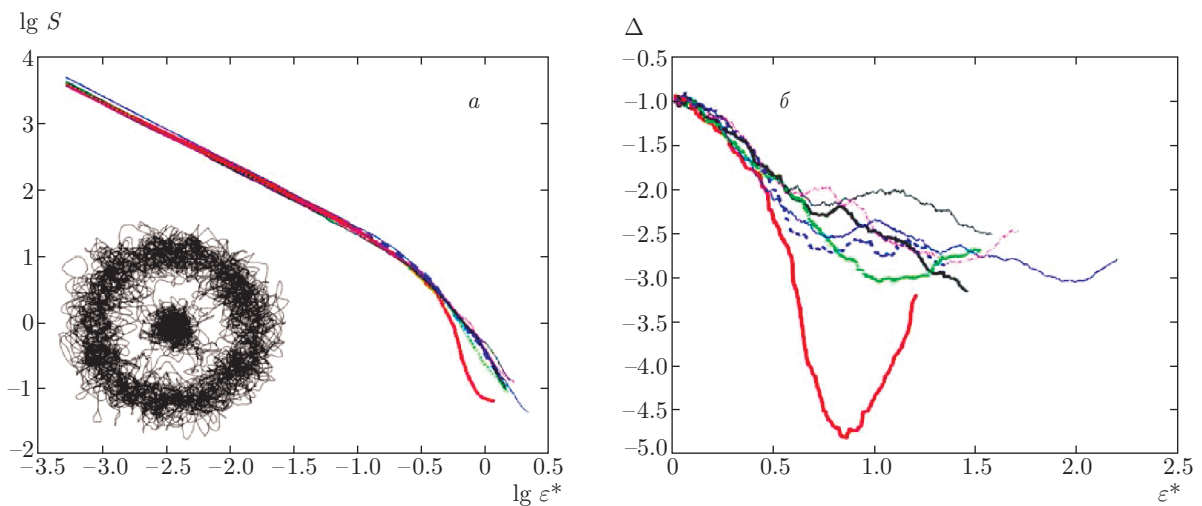
$$\tau(\varepsilon) = \int_0^\infty P_\varepsilon(t) dt,$$

а  $P(\varepsilon)$  — вероятность того, что частица достигнет границы сферы  $\varepsilon$  в момент времени между  $t$  и  $t + dt$ . Таким образом, динамическая энтропия  $S(\varepsilon)$  — мера средней «скорости убегания» частицы из ее окружения [49].

На рис. 3–5 показаны зависимости величины динамической энтропии и ее производной от величины огрубления  $\varepsilon$ , полученные в результате численного моделирования, а на рис. 6–8 — экспериментально полученные динамическая энтропия и ее производная. Все результаты представлены для нормированного параметра огрубления  $\varepsilon^* = \varepsilon/l_p$ , где  $l_p$  — среднее расстояние между частицами кластера. Следует отметить, что отличительной особенностью представленной методики исследования является возможность анализировать динамику каждой отдельной частицы; так, на рис. 3–8 кривые, соответствующие разным частицам кластера, обозначены разными цветами (оттенками серого). Для систем, находящихся в упорядоченном состоянии, хорошо заметно различие между динамической энтро-



**Рис. 3.** Динамическая энтропия (а) и ее производная (б) для кластера из семи частиц, полученные при численном моделировании. На вставке (а) — траектории частиц кластера за 40 с. Кинетическая температура частиц  $T = 2.0$  эВ. Переходное фазовое состояние: частицы локализованы в потенциальных ямках

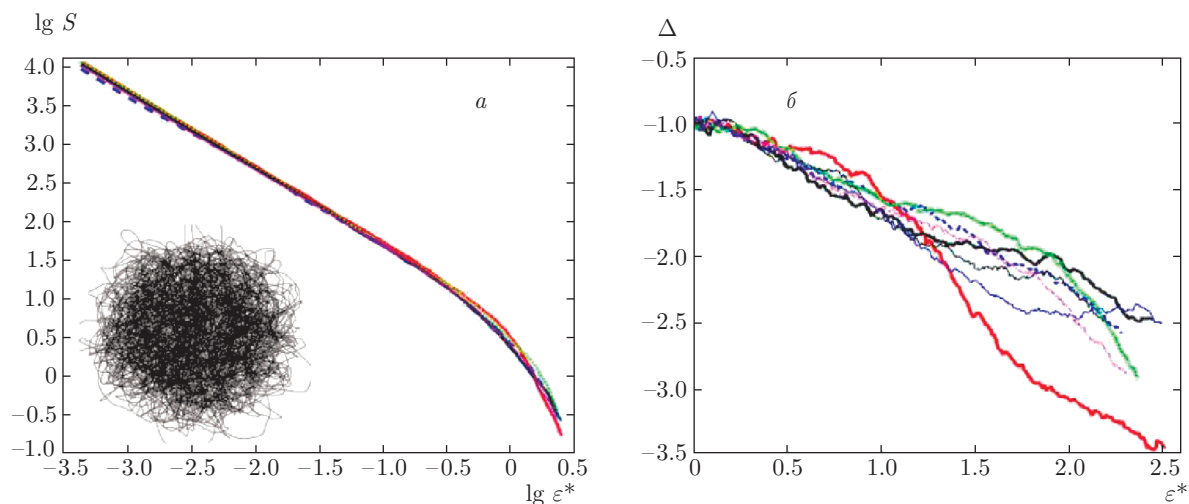


**Рис. 4.** Динамическая энтропия (а) и ее производная (б) для кластера из семи частиц, полученные при численном моделировании. На вставке (а) — траектории частиц кластера за 40 с. Кинетическая температура частиц  $T = 4.9$  эВ. Переходное фазовое состояние: потенциальные ямки обмениваются частицами

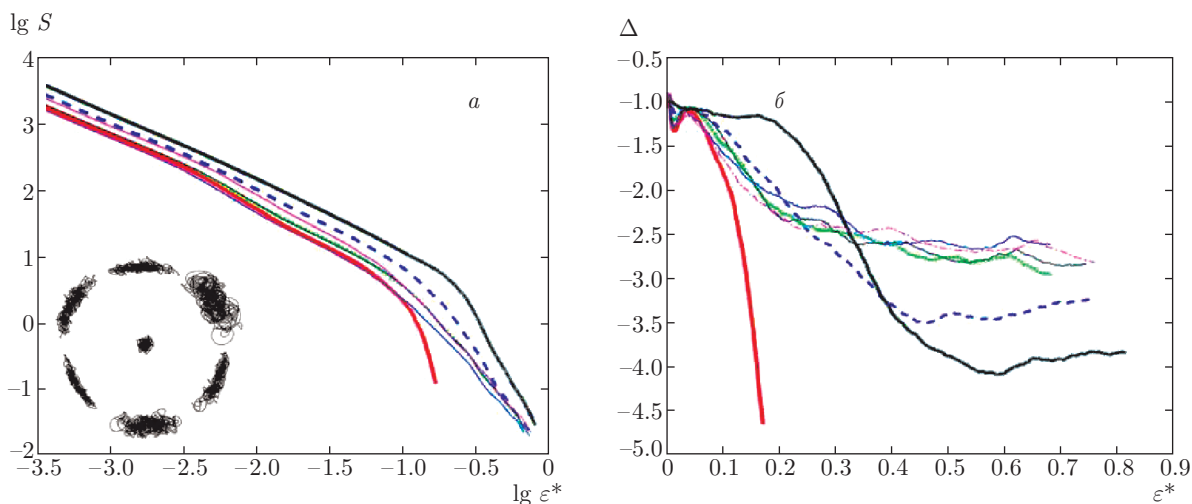
пией частиц, находящихся в разных оболочках. На рис. 3, 4, 6, 7, 8 центральной частице соответствуют графики  $S(\varepsilon^*)$  и  $\Delta(\varepsilon^*) \equiv d(\lg(S(\varepsilon^*))) / d(\lg \varepsilon^*)$ , наиболее круто уходящие вниз. Рисунок 9 демонстрирует, как меняются  $S(\varepsilon^*)$  и  $\Delta(\varepsilon^*)$  для центральной частицы кластера при нагреве системы, полученной в численном моделировании.

Начальные участки кривых (для малых  $\varepsilon^*$ ) соответствуют баллистическому режиму движения частиц. Движение всех частиц системы в этом режиме идентично, а производная  $\Delta(\varepsilon^*)$  с хорошей точ-

ностью равна  $-1$ . После участка, соответствующего баллистическому режиму движения, величина производной увеличивается по модулю, достигая максимума в точке  $\varepsilon^* = \varepsilon_c^*$  — характерном размере «клетки», или потенциальной ямы, в которой движется частица. Для больших  $\varepsilon$  значение производной становится равным константе, по величине которой можно судить о степени локализации частицы (а в совокупности — о степени локализации системы в целом). Иллюстрация упомянутых характерных значений приведена на рис. 10. Частица, для



**Рис. 5.** Динамическая энтропия (*a*) и ее производная (*б*) для кластера из семи частиц, полученные при численном моделировании. На вставке (*a*) — траектории частиц кластера за 40 с. Кинетическая температура частиц  $T = 29.0$  эВ. Жидкостная фаза



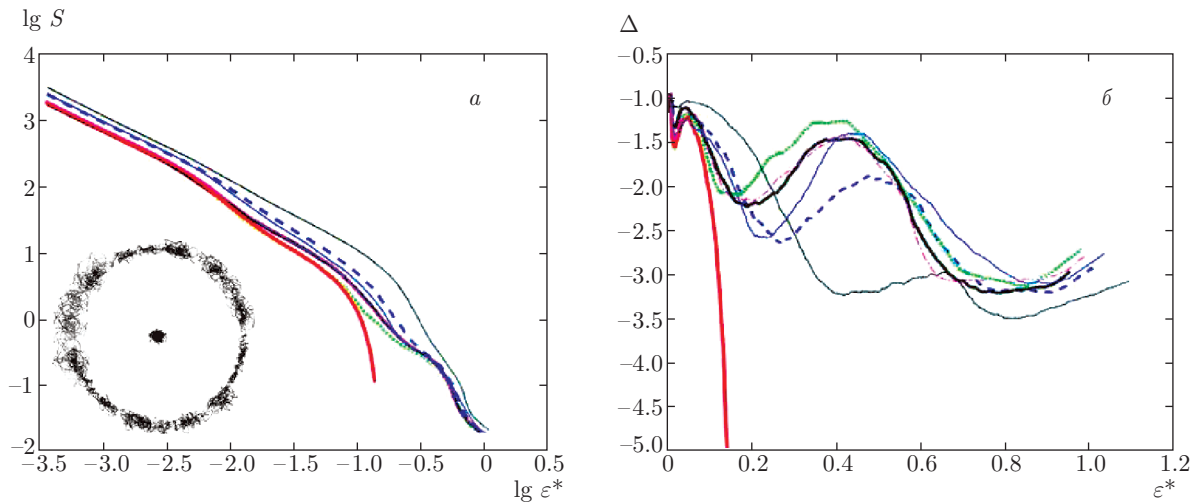
**Рис. 6.** Динамическая энтропия (*a*) и ее производная (*б*) для кластера из семи частиц, полученные в эксперименте. На вставке (*a*) — траектории частиц кластера за 40 с. Мощность лазера — 28 мВт, кинетическая температура частиц  $T = 4.5$  эВ. Переходное фазовое состояние: высокая степень локализации частиц в потенциальных желобах ( $\Delta(\epsilon^*) < -2$ )

которой  $\Delta(\epsilon^*) \geq -2$ , совершает броуновское движение (см. рис. 3, 8), а если  $\Delta(\epsilon^*) < -2$  — движение частицы ограничено [14], см. рис. 4–7.

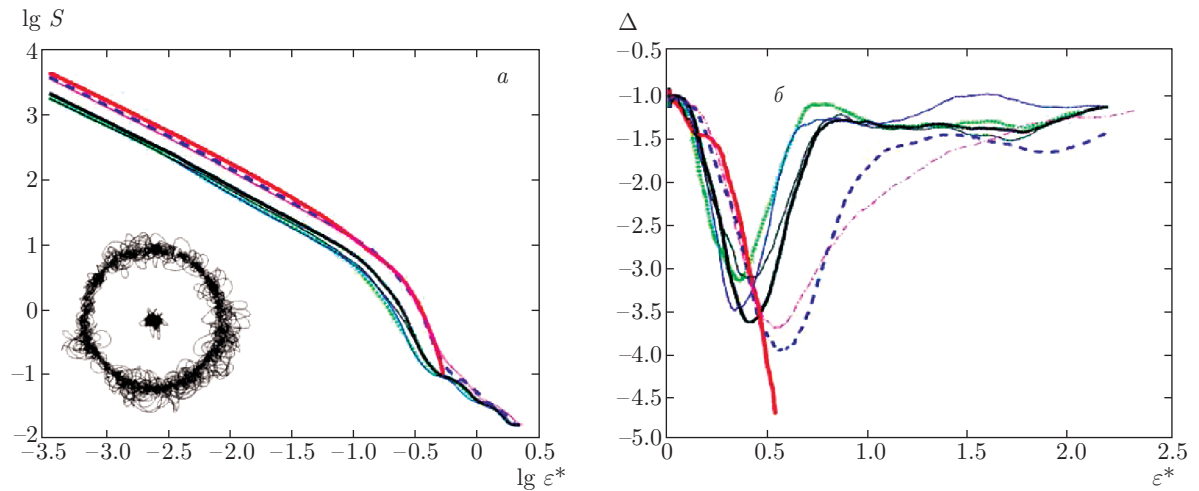
Обратим внимание на то, что в представленных результатах численного моделирования при повышении температуры на графике производной энтропии пропадает локальный минимум (см. рис. 5), т. е. частицы «выходят из клетки», но их движение приобретает ограниченный характер, так как значения производных при больших  $\epsilon^*$  меньше  $-2$ . Это связано с влиянием ловушки, удерживающей частицы.

Анализ зависимостей динамической MFPT-энтропии от величины огрубления  $\epsilon^*$  выявил следующие закономерности.

1) Расположение  $S(\epsilon^*)$  по вертикали дает информацию о кинетической температуре частицы. Чем выше график, тем более активно движется соответствующая частица (за меньшее время «осваивает» ту же область пространства). Наиболее хорошо эта тенденция прослеживается на рис. 9*a*, где представлены графики для динамической энтропии одной и той же частицы при разных температурах.



**Рис. 7.** Динамическая энтропия (а) и ее производная (б) для кластера из семи частиц, полученные в эксперименте. На вставке (а) — траектории частиц кластера за 40 с. Мощность лазера — 19 мВт, кинетическая температура частиц  $T = 4.5$  эВ. Переходное фазовое состояние — частицы перемещаются по потенциальному желобу



**Рис. 8.** Динамическая энтропия (а) и ее производная (б) для кластера из семи частиц, полученные в эксперименте. На вставке (а) — траектории частиц кластера за 40 с. Мощность лазера — 81 мВт, кинетическая температура частиц  $T = 6.2$  эВ. Переходное фазовое состояние: частицы локализованы в потенциальных желобах

2) Наклон  $S(\epsilon^*)$  характеризует локализацию частицы, т. е. частица может двигаться быстрее, но в более ограниченной области пространства. Это свидетельствует о том, что потенциальная яма у этой частицы более глубокая. Так, сравнение графиков на рис. 9 позволяет сделать вывод о том, что при повышении кинетической температуры с  $T = 9.5$  эВ до  $T = 29$  эВ центральная частица кластера освоила большую область (график  $S(\epsilon^*)$  лежит выше, пропадает локальный минимум функции  $\Delta(\epsilon^*)$ , соответствующий ограниченной «клетке»), но при этом ее движение стало носить более локализованный ха-

актер: для больших  $\epsilon^*$  график  $\Delta(\epsilon^*)$  лежит ниже для  $T = 29$  эВ. Как было отмечено выше, это связано с влиянием ловушки.

3) На некоторых графиках пучков  $S(\epsilon^*)$  прослеживается динамика «слияния»: частицы, обладавшие разной скоростью и находившиеся в потенциальных ямах разной глубины, начинают двигаться одинаково («прорывают» потенциальный желоб, обмениваются скоростями) (рис. 3, 7, 8).

4) «Ступеньки» соответствуют движению частицы внутри кластерной оболочки. Более пологие участки — движение между потенциальными яма-

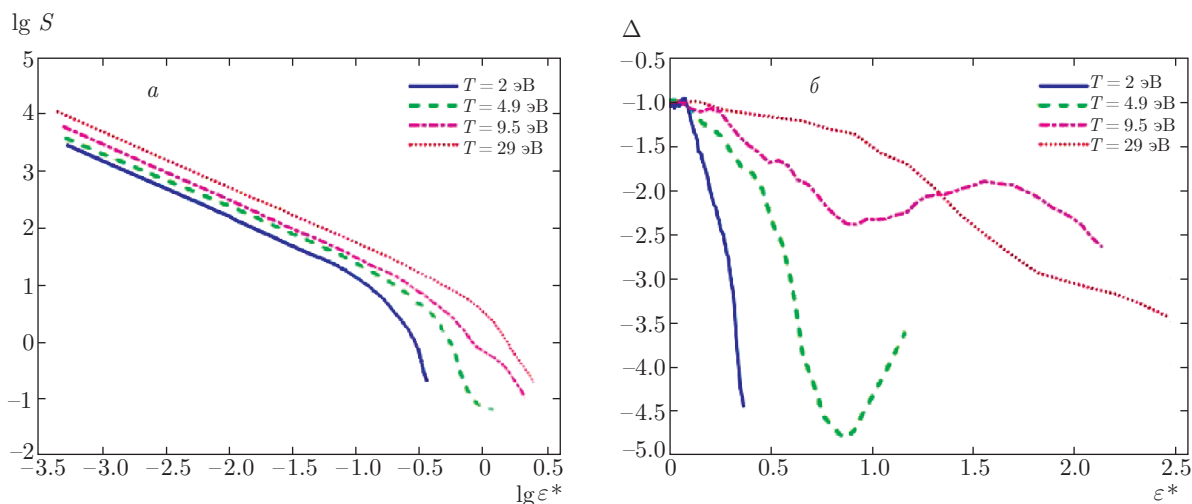


Рис. 9. Динамическая энтропия  $S(\epsilon^*)$  (а) и ее производная  $\Delta(\epsilon^*)$  (б) для центральной частицы кластера, полученные при численном моделировании при различных значениях кинетической температуры системы

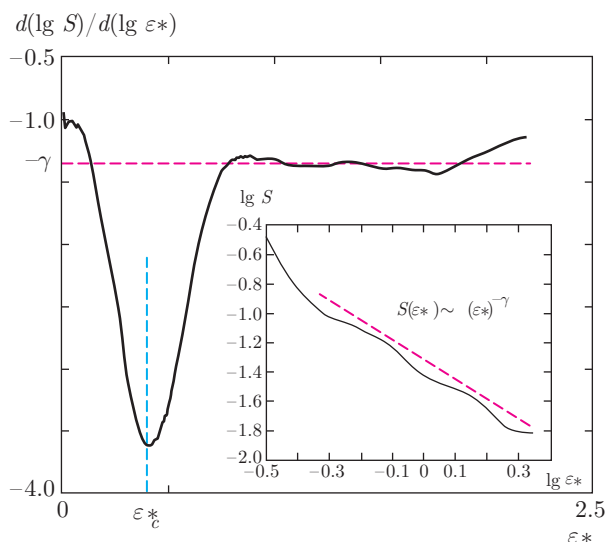


Рис. 10. Иллюстрация определения характерного размера «клетки»  $\epsilon^*$ , в которой движется частица, а также угла наклона графика энтропии  $\Delta(\epsilon^*) = -\gamma$ . На рисунке изображена производная  $d(\lg(S(\epsilon^*)))/d(\lg \epsilon^*)$  для одной из частиц кластера, полученная в эксперименте; на вставке — участок зависимости  $S(\epsilon^*)$  для той же частицы, соответствующий указанному значению  $\gamma$

ми, более крутые — задержка в потенциальной яме (см. рис. 7).

Отметим, что графики, представленные на рис. 6 и 7, были получены для разных мощностей лазера (28 мВт и 19 мВт, соответственно), при этом кинетические температуры пылевых систем совпадают (4.5 эВ). На рис. 6 показано переходное состояние

системы — от более упорядоченной фазы к менее упорядоченной. В этом случае энергия, сообщенная системе, приводит к изменению ее состояния в сторону меньшей корреляции (что сказывается на форме производной динамической энтропии, см. рис. 6б и 7б), не меняя заметно при этом ее кинетической температуры (и, следовательно, абсолютной величины динамической энтропии, см. рис. 6а, 7а). Более подробное рассмотрение зависимости динамики плавления пылевых кластеров с помощью «разогрева» лазерным излучением — предмет отдельного рассмотрения.

Таким образом, механизм плавления в рассмотренных нами системах таков. Кристаллическое состояние кластера характеризуется высокой степенью локализации частиц в нем, о чем говорит наличие локальных минимумов на графиках производной  $d(\lg(S(\epsilon^*)))/d(\lg \epsilon^*)$ , и ограниченностью их подвижности (для больших  $\epsilon^*$  производная энтропии стремится к значению, меньшему  $-2$ ). На первом этапе при повышении температуры частицы выходят из своих потенциальных ям и начинают двигаться внутри оболочек кластера. При этом глубина локальных минимумов производной энтропии уменьшается, а для больших значений  $\epsilon^*$  производная энтропии становится равной  $-2$  и больше, что свидетельствует о броуновском характере движения частиц. С дальнейшим повышением температуры оболочки начинают обмениваться частицами, глубины потенциальных желобов, в которых они движутся, уменьшаются; и, наконец, после размытия потенциальных границ все частицы начинают равноправно



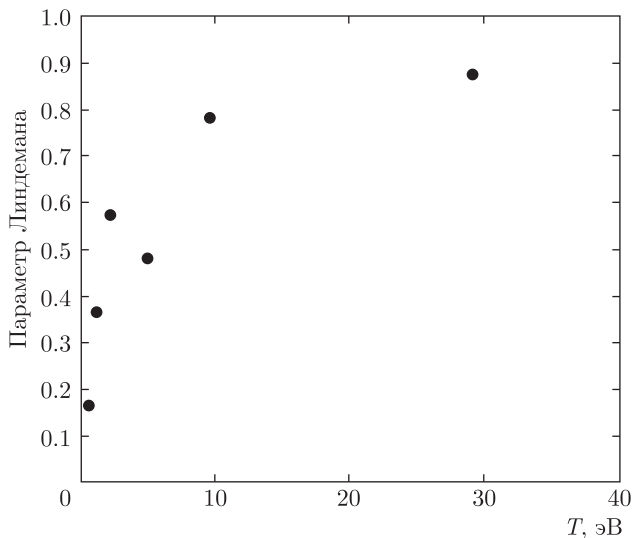


Рис. 11. Зависимость параметра Линдемана от температуры в численном эксперименте для кластера из семи частиц

двигаться по площади ловушки. Структура переходит в жидкостное состояние, «пучок» динамической энтропии сливается в один, размер «клетки», в которой движется частица (положение локального минимума производной энтропии), увеличивается, а движение частиц остается броуновским ( $\Delta(\varepsilon^*) \geq -2$ ).

Таким образом, кристаллической фазе рассмотренных малых систем взаимодействующих частиц соответствует наличие локальных минимумов на графиках производной динамической энтропии, а для больших  $\varepsilon^*$  — значения  $\Delta(\varepsilon^*) < -2$ . В жидкостной фазе локальные минимумы производной отсутствуют,  $\Delta(\varepsilon^*) \geq -2$ . Переходная фаза характеризуется наличием менее выраженных локальных минимумов, при этом значения производной  $\Delta(\varepsilon^*)$  при больших  $\varepsilon^*$  могут меняться от  $-2$  до  $-1$ , так как с повышением кинетической температуры системы частицы переходят в режим броуновского движения.

На данный момент количественные критерии, которые позволили бы точно определить точки фазовых переходов в малых системах взаимодействующих частиц, отсутствуют. Тем не менее визуальные наблюдения траекторий частиц в сочетании с оценкой различных полуэмпирических критериев, используемых для протяженных структур (например, параметр Линдемана [45, 46] или флуктуации межчастичного расстояния [50]), позволяют сделать однозначный вывод о фазовом состоянии, в котором находится система.

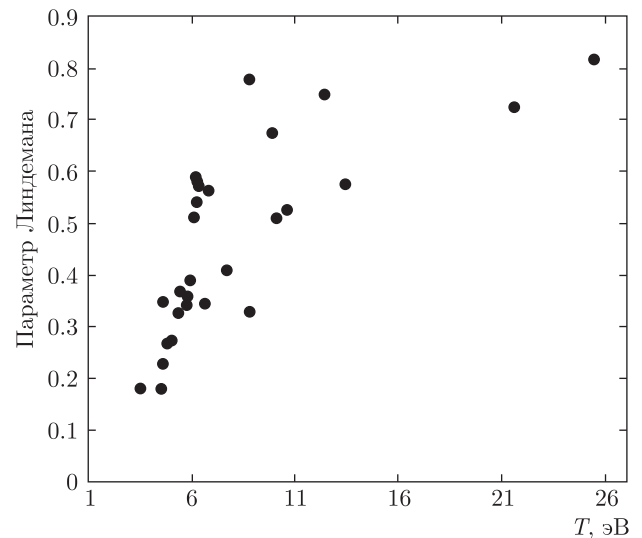


Рис. 12. Зависимость параметра Линдемана от температуры, полученная в результате эксперимента для кластера из семи частиц

Для качественной проверки предложенной методики оценки фазового состояния мы использовали параметр Линдемана  $\delta_L = \Delta l / r_d$ , где  $\Delta l$  — среднеквадратичное смещение частицы,  $r_d$  — среднее межчастичное расстояние. На рис. 11 и 12 приведены зависимости  $\delta_L$  от температуры для кластеров из семи частиц, полученные в результате соответственно численного моделирования и эксперимента. Скачок параметра  $\delta_L$ , соответствующий переходу из кристаллического в жидкостное состояние, происходит для модельного кластера в диапазоне температур 0.5–10 эВ, а для экспериментально полученного — в диапазоне температур 5–10 эВ. Отметим, что и экспериментальные, и «численные» точки на рис. 11, 12 лежат выше критического параметра Линдемана для протяженных двумерных систем, равного 0.18 [45, 46]. Различие в температурах плавления на рис. 11, 12 связано с отличием параметров, задаваемых в численном моделировании, от параметров эксперимента (сила, действующая со стороны ловушки, и радиус Дебая). Этот же результат прослеживается и на траекториях движения частиц. Хорошо заметно (см. рис. 1, 2), что фазовые состояния системы, полученные в лабораторном эксперименте, отличаются от фаз, зарегистрированных в численном моделировании при близких температурах. Например, в лабораторном эксперименте при  $T \sim 9.8$  эВ частицы локализованы в кластерных оболочках: имеют место лишь единичные случаи их перехода с периферии в центр (рис. 2в). В то же время частицы в модельной системе при

температуре  $T \sim 9.46$  эВ активно перемещаются по всей площади кластера, фазовое состояние близко к жидкостному (рис. 1б).

Тем не менее точное положение точки фазового перехода, равно как и этапы плавления, с помощью критерия Линдемана отследить не удастся — наиболее подходящим инструментом для этого оказывается динамическая энтропия, позволяющая зафиксировать фазовое состояние как системы в целом, так и каждой отдельной составляющей ее частицы.

## 5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представлены полученные экспериментально и численно функции динамической энтропии (MFPT) для систем из семи частиц при различных значениях кинетических температур. Наблюдались три фазовых состояния рассмотренных малых систем (кристаллическое, жидкостное и переходное). Описан механизм фазовых переходов в рассмотренных системах. Предлагаемый способ анализа динамики систем может применяться к сколь угодно малым структурам, вплоть до структур, состоящих из одной частицы.

Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (проект № 14-12-01440).

## ЛИТЕРАТУРА

1. Т. Ф. Аслямов, О. Ю. Динариев, Письма в ЖЭТФ **99**, 523 (2014).
2. D. H. E. Gross, *Microcanonical Thermodynamics*, World Scientific, Singapore (2001).
3. T. L. Hill, *Statistical Mechanics: Principles and Selected Applications*, Dover Publications, New York (1987).
4. S. Franz, C. Donati, G. Parisi, and S. C. Glotzer, *Philosophical Magazine Part B* **79**, Issue 11–12 (1999).
5. S. C. Glotzer, V. N. Novikov, and T. B. Schröder, *J. Chem. Phys.* **112**, 509 (2000).
6. N. Lucević and S. C. Glotzer, *J. Phys.: Condens. Matter* **15**, 2437 (2003).
7. Ю. Л. Климонтович, *Введение в физику открытых систем*, Янус-К, Москва (2002).
8. C. E. Shannon, *Bell Syst. Tech. J.* **27**, 379 (1948); **27**, 623 (1948).
9. В. Эбелинг, *Образование структур при необратимых процессах. Введение в теорию диссипативных структур*, Мир, Москва (1979).
10. А. Н. Колмогоров, *ДАН СССР* **119**, 861 (1958); **125**, 754 (1959).
11. Я. Г. Синай, *ДАН СССР* **124**, 768 (1959); **125**, 1200 (1959).
12. Г. М. Заславский, Р. З. Сагдеев, *Введение в нелинейную физику: от маятника до турбулентности и хаоса*, Наука, Москва (1988).
13. P. Gaspard and X.-J. Wang, *Phys. Rep.* **235**, 291 (1993).
14. P. Allegrini, J. F. Douglas, and S. C. Glotzer, *Phys. Rev. E* **60**, 5714 (1999).
15. P. Gaspard, M. E. Briggs, M. K. Francis, J. V. Sengers, R. W. Gammon, J. R. Dorfman, and R. V. Caflabrese, *Nature* **384**, 865 (1998).
16. Л. Г. Дьячков, Письма в ЖТФ **41**, 81 (2015).
17. J. Barré and T. Dauxois, *Europhys. Lett.* **55**, 164 (2001).
18. Kyung-Hoon Kwon and Byung-Yoon Park., *J. Chem. Phys.* **107**, 5171 (1997).
19. С. Соу, *Гидродинамика многофазных систем*, Мир, Москва (1971).
20. M. Sodha and S. Guha, *Phys. Colloidal Plasmas, Adv. Plasma Phys.* **4** (1971).
21. Д. Жуховицкий, А. Храпак, И. Якубов, *Ионизационное равновесие в плазме с конденсированной дисперсной фазой*, Химия плазмы. Вып. 11, Энергоатомиздат, Москва (1984).
22. В. Е. Фортов, И. Т. Якубов, *Неидеальная плазма*, Энергоатомиздат, Москва (1994).
23. M. Rosenberg and D. A. Mendis, *IEEE Trans. on Plasma Science* **23**, 177 (1995).
24. J. Chu, and L. I, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 4009 (1994).
25. H. Thomas, G. Morfill, V. Demmel et al., *Phys. Rev. Lett.* **73**, 652 (1994).
26. A. Melzer, T. Trottenberg, and A. Piel, *Phys. Lett. A* **191**, 301 (1994).
27. Y. Hayashi and K. Tachibana, *Jpn. J. Appl. Phys.* **33**, 804 (1994).
28. В. Е. Фортов, А. П. Нефедов, В. М. Торчинский и др., Письма в ЖЭТФ **64**, 86 (1996).

29. А. М. Липаев, В. И. Молотков, А. П. Нефедов и др., ЖЭТФ **112**, 2030 (1997).
30. А. П. Нефедов, О. Ф. Петров, В. И. Молотков и др., Письма в ЖЭТФ **72**, 313 (2000).
31. V. E. Fortov, A. P. Nefedov, O. F. Petrov, A. A. Samarian, and A. V. Chernyshev, Phys. Rev. E **54**, R2236 (1996).
32. V. E. Fortov, A. P. Nefedov, O. F. Petrov et al., JETP Lett. **63**, 187 (1996).
33. В. Е. Фортов, А. П. Нефедов, О. С. Ваулина и др., ЖЭТФ **114**, 2004 (1998).
34. V. Fortov, A. Nefedov, V. Vladimirov et al., Phys. Lett. A **258**, 305 (1999).
35. G. Morfill, H. Thomas, U. Konopka et al., Phys. Rev. Lett. **83**, 1598 (1999).
36. D. A. Low, W. H. Steel, B. M. Annaratone et al., Phys. Rev. Lett. **80**, 4189 (1998).
37. V. V. Zhakhovskii, V. I. Molotkov, A. P. Nefedov et al., JETP Lett. **66**, 419 (1997).
38. O. S. Vaulina, S. A. Khrapak, O. F. Petrov, and A. P. Nefedov, Phys. Rev. E **60**, 5959 (1999).
39. О. С. Ваулина, А. А. Самарян, Б. Джеймс, О. Ф. Петров, В. Е. Фортов, ЖЭТФ **123**, 1179 (2003).
40. О. С. Ваулина, А. А. Самарян, О. Ф. Петров, Б. Джеймс, Меландсо, Физика плазмы **30**, 698 (2004).
41. O. S. Vaulina, S. V. Vladimirov, A. Yu. Repin et al., Phys. Plasm. **13**, 012111-1 (2006).
42. V. N. Tsytovich, N. G. Gousein-zade, and G. E. Morfill, Phys. Plasm. **13**, 033503 (2006).
43. N. G. Gusein-zade and V. N. Tsytovich, Plasm. Phys. Rep. **31**, 392 (2005).
44. L. G. D'yachkov, M. I. Myasnikov, O. F. Petrov, T. W. Hyde, J. Kong, and L. Matthews, Phys. Plasm. **21**, 093702 (2014).
45. Y. Ivanov and A. Melzer, Phys. Plasm. **12**, 072110 (2005).
46. M. Wolter and A. Melzer, Phys. Rev. E **71**, 036414 (2005).
47. H. Thomsen, P. Ludwig, M. Bonitz, J. Schablinski, D. Block, A. Schella, and A. Melzer, J. Phys. D: Appl. Phys. **47**, 383001 (2014).
48. *Complex and Dusty Plasmas*, ed. by V. E. Fortov and G. E. Morfill, CRC Press (2010), Ch. 7, p. 325 (Комплексная и пылевая плазма: из лаборатории в космос, под ред. В. Фортова, Г. Морфилла, пер. с англ. под ред. А. Г. Храпака, Наука, Москва (2012), гл. 7, с. 334).
49. P. Gaspard and G. Nicolis, Phys. Rev. Lett. **65**, 1693 (1990).
50. Jan Schablinski, Dietmar Block, Alexander Piel, André Melzer, Hauke Thomsen, Hanno Köhlert, and Michael Bonitz, Phys. Plasm. **19**, 013705 (2012).