

## Электрокристаллизация переохлажденной воды, заключенной между графеновыми слоями

Р. М. Хуснутдинов<sup>+\*1)</sup>, А. В. Мокшин<sup>+\*1)</sup>

<sup>+</sup>Институт физики Казанского (Приволжского) федерального университета, 420008 Казань, Россия

<sup>\*</sup>Удмуртский федеральный исследовательский центр Уральского отделения РАН, 426068 Ижевск, Россия

Поступила в редакцию 31 июля 2019 г.

После переработки 6 сентября 2019 г.

Принята к публикации 6 сентября 2019 г.

Ключевой особенностью кристаллизации переохлажденной воды в конфайнменте под воздействием внешнего стационарного электрического поля является то, что структурное упорядочение здесь определяется не только обычными термодинамическими и кинетическими факторами – уровнем переохлаждения, разностью химических потенциалов для жидкости и кристалла, вязкостью, – но также величиной и направлением приложенного электрического поля, размером системы (размерные эффекты), геометрией ограничивающих поверхностей. В настоящей работе рассматривается электрокристаллизация переохлажденной воды при температуре  $T = 268$  К, заключенной между параллельными, идеально ровными слоями графена. Установлено, что структурное упорядочение определяется двумя характерными режимами. Начальный режим соотносится с ориентацией дипольных молекул воды под действием внешнего электрического поля. Последующий режим характеризуется релаксацией метастабильной системы в кристаллическую фазу. Однородное электрическое поле, приложенное перпендикулярно графеновым слоям, препятствует структурному упорядочению, тогда как поле, приложенное в боковом направлении, способствует формированию фазы кубического льда Ic.

DOI: 10.1134/S0370274X19200074

Вода – одно из самых распространенных веществ на планете Земля. Однако, несмотря на свое широкое распространение и многочисленные экспериментальные, теоретические и численные исследования, многие физические свойства ее остаются малоизученными до сих пор [1–6]. Специфическое расположение двух атомов водорода относительно атома кислорода в молекуле воды приводит к тому, что распределение электронной плотности в ней является достаточно неоднородным. Несмотря на наличие выделенных направлений в межмолекулярном взаимодействии воды, которые могут быть соотнесены с некоторыми хорошо известными кристаллическими фазами, типичными для однокомпонентных систем, вода характеризуется достаточно сложной фазовой диаграммой, которая содержит большое количество устойчивых и метастабильных фаз; несколько тройных точек, одну или, возможно, даже две критические точки. Так, например, в работах [7–10] активно обсуждается вопрос, связанный с возможностью существования в воде второй критической точки<sup>2)</sup>.

К настоящему времени достоверно установлено, что фазовая диаграмма воды содержит, по крайней мере, 17 кристаллических фаз [17–20] и три аморфные фазы, включая аморфный лед низкой плотности (АЛНП), аморфный лед высокой плотности (АЛВП) и аморфный лед сверхвысокой плотности (АЛСВП) [21–23].

В последнее время особую значимость приобретают исследования свойств воды, заключенной в пространственных областях, ограниченного размера и специфической геометрии. Это может быть вода, находящаяся в цилиндрических твердотельных порах или между тонкими пленками/пластинами [24]. В случае, когда размер ограничивающей области является соизмеримым с характерным масштабом потенциала межмолекулярного взаимодействия воды, на многих физических свойствах и характеристиках воды начинают сказываться так называемые размерные эффекты. Фазовая диаграмма пространственно-ограниченной воды характеризуется рядом специфических особенностей: наличие устойчивых метаста-

<sup>1)</sup>e-mail: khrm@mail.ru; anatolii.mokshin@mail.ru

<sup>2)</sup>Отметим, что существование второй критической точки было продемонстрировано для воды на основе молекулярно-

динамических расчетов с различными модельными потенциалами [11–13]. Подобные результаты были получены для ряда других тетраэдрически координированных жидкостей [14–16].

бильных фаз (например, *додэкагональных квазикристаллов* [25]), смещение линии плавления и изменение областей равновесных фаз [26–28]. Учет размерных эффектов зачастую является нетривиальной задачей. Примечательно, что именно эти эффекты обуславливают самые разнообразные процессы, в которых участвует вода: диффузия в клеточных мембранах, перенос влаги в порах растений и др.

Особое внимание исследователей привлечено к изучению влияния внешних полей (электрических и магнитных полей, ультразвука и др.) на процессы кристаллизации воды в конфайнменте [29–32]. Кристаллизация воды под действием внешнего электрического поля – *электрокристаллизация* – является ключевым явлением для таких процессов, как образование атмосферных осадков, формирование и нарастание льда на крыльях самолетов, криоконсервация биологических тканей и другие [33, 34].

Цель данной работы заключается в исследовании влияния однородного электрического поля (ее величины и направления) на процессы кристаллизации пространственно-ограниченной переохлажденной воды. Рассматриваемая система представляет собой слой переохлажденной воды, расположенный между двумя бесконечными параллельными графеновыми пленками (см. рис. 1). Расстояние между графено-

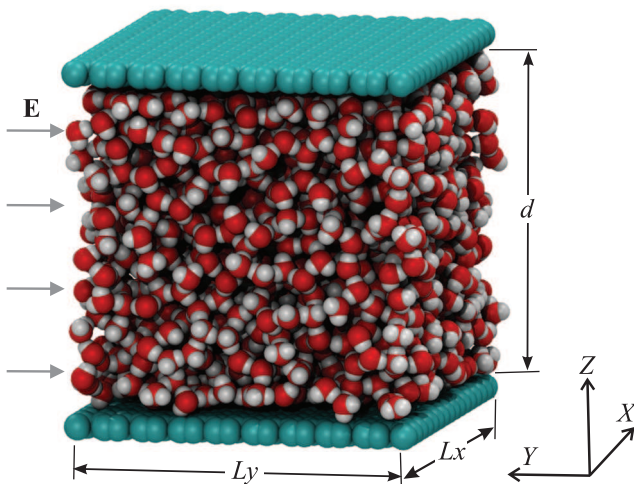


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схематический вид моделируемой системы при температуре  $T = 268$  К и плотности  $\rho = 0.92$  г/см<sup>3</sup>

выми пленками составляет порядка десяти средних линейных размеров молекулы воды. Взаимодействие между молекулами воды реализуется с помощью атомистического модельного потенциала Тр4р/Исе [35], который корректно воспроизводит фазовую диаграмму [36]. Внутримолекулярные связи учитывают-

ся с помощью SHAKE-алгоритма [37]. Расчет энергии электростатических взаимодействий осуществляется на основе PPPM-метода с радиусом отсечки  $r_c = 13 \text{ \AA}$  [38]. Взаимодействие между атомами углерода графеновых слоев с молекулами воды задается с помощью потенциала Леннард–Джонса, параметры которого определяются на основе правила смешивания Лоренца–Бертло [39, 40]. Моделирование выполняется в изотермически-изохорическом ( $NVT$ -) ансамбле при температуре  $T = 268$  К при значениях плотности из диапазона  $\rho \in [0.90; 0.98]$  г/см<sup>3</sup>. Для стабилизации температуры используется алгоритм термостатирования Нозе–Гувера с параметром релаксации 1.0 пс [41, 42]. Переохлажденная фаза воды при температуре  $T = 268$  К была получена из высокотемпературного жидкого состояния при  $T = 350$  К быстрым охлаждением со скоростью  $\gamma \simeq 1.0$  К/пс [43]. Периодические граничные условия применяются вдоль  $OX$  и  $OY$  направлений. Внешнее однородное постоянное электрическое поле напряженностью  $E = 0.5 \text{ В/\AA}$  может прилагаться либо перпендикулярно графеновым слоям (вдоль оси  $Z$ ), либо вдоль бокового направления (вдоль оси  $Y$ ). Отметим, что такая величина электрического поля соответствует напряженностям, которые испытывают молекулы воды вблизи поверхностей биополимеров [44] и в трещинах кристаллов аминокислот [45]. Согласно *ab-initio* молекулярно-динамическим расчетам, электрические поля выше порогового значения  $E_c \sim 0.35 \text{ В/\AA}$  способны диссоциировать объемную воду с образованием устойчивого ионного тока [46], тогда как в случае условий конфайнмента вода диссоциирует при более высоких значениях напряженности электрического поля,  $E > 0.5 \text{ В/\AA}$  [47].

Для выявления влияния электрического поля на процесс структурного упорядочения в переохлажденной воде используется структурный анализ, основанный на вычислении глобального параметра ориентационного порядка Стейнхардта–Нельсона–Роншетти [48, 49]:

$$\bar{Q}_l = \left( \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-l}^l \left| \frac{\sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^{n_b^{(i)}} Y_{lm}(\theta_{ij}, \varphi_{ij})}{\sum_{i=1}^N n_b^{(i)}} \right|^2 \right)^{1/2}.$$

Здесь  $n_b^{(i)}$  – число ближайших соседей для  $i$ -той молекулы,  $Y_{lm}(\theta_{ij}, \varphi_{ij})$  – сферические гармоники, а  $\theta_{ij}$  и  $\varphi_{ij}$  – полярные и азимутальные углы, соответственно. Следует отметить, что каждый тип кристаллической решетки характеризуется уникальным набором значений параметров ориентационного порядка  $\bar{Q}_l$  (где  $l = 4, 6, 8, \dots$ ). Это дает возможность иден-

тифицировать наличие в рассматриваемой системе упорядоченной структуры определенного типа. Так, например, параметр  $\bar{Q}_4$  принимает значения 0.259 и 0.506 для идеальных гексагональных и кубических льдов, соответственно. Для неупорядоченных систем (вода, аморфный лед) параметры  $\bar{Q}_4$  и  $\bar{Q}_6$  принимают значения, близкие к нулю [50].

На рисунке 2 представлены временные зависимости двух параметров порядка – внутренней энергии  $U$  и параметра ориентационного порядка  $\bar{Q}_4$ , рассчитанных для воды в конфайнменте при температуре  $T = 268$  К и плотности  $\rho = 0.92$  г/см<sup>3</sup>, кристаллизующейся под действием электрического поля напряженностью  $E = 0.5$  В/Å: (а) – поле наложено перпендикулярно графеновым слоям (вдоль оси  $Z$ ) и (б) в боковом направлении (вдоль оси  $Y$ ), соответственно. Как видно из рис. 2, оба параметра оказываются оди-

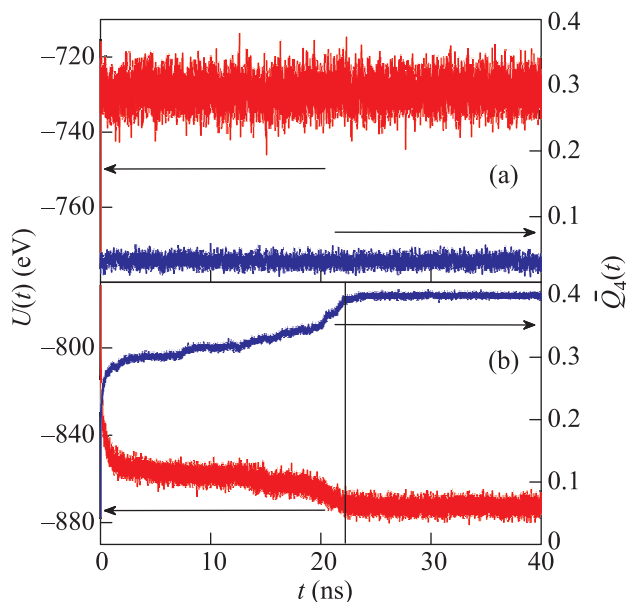


Рис. 2. (Цветной онлайн) Временные зависимости внутренней энергии (красная линия) и глобального параметра ориентационного порядка  $\bar{Q}_4$  (голубая линия) переохлажденной воды в конфайнменте при температуре  $T = 268$  К, плотности  $\rho = 0.92$  г/см<sup>3</sup> и внешнем электрическом поле напряженностью  $E = 0.5$  В/Å: (а) – поле наложено перпендикулярно графеновым слоям (вдоль оси  $Z$ ) и (б) – в боковом направлении (вдоль оси  $Y$ ), соответственно

наково информативными для детектирования структурных изменений в воде. Так, в случае, когда электрическое поле приложено перпендикулярно графеновым слоям (направление  $OZ$ ), никаких структурных трансформаций за время 40 нс не происходит (см. рис. 2а). При ориентировании электрического

поля вдоль системы (направление  $OY$ ) наблюдается достаточно быстрая кристаллизация воды, что наглядно видно на временных зависимостях  $U(t)$  и  $\bar{Q}_4(t)$ . Внутренняя энергия уменьшается до значения  $U = -872$  эВ, а параметр ориентационного порядка увеличивается до значения  $\bar{Q}_4 = 0.403$ , что характерно для упорядоченной системы (рис. 2б). Временной масштаб электрoкpисталлизации образца, характеристики которого приводятся на рис. 2б, составляет  $\tau \sim 22$  нс. Наблюдаемая зависимость структурных изменений от ориентации электрического поля обусловлена наличием ограничивающих поверхностей по направлению  $OZ$ , препятствующих при ориентировании диполей вдоль  $OZ$ -направления достижению более низких плотностей, которые типичны кристаллическим фазам воды.

На рисунке 3а, б представлены временные зависимости глобальных параметров порядка  $\bar{Q}_4$  и  $\bar{Q}_6$  для воды в конфайнменте, находящейся под действием внешнего электрического поля  $E = 0.5$  В/Å, приложенного вдоль  $OY$ -направления. Результаты приводятся для воды при различных плотностях. На представленных зашумленных кривых  $\bar{Q}_4(t)$  и  $\bar{Q}_6(t)$  наглядно различаются два режима структурного упорядочения. Первый режим обусловлен ориентацией дипольных молекул воды под действием электрического поля, в результате чего формируется квазиупорядоченная структура с характерными значениями параметров порядка  $\bar{Q}_4 = 0.34 \div 0.4$  и  $\bar{Q}_6 = 0.2 \div 0.28$ . Второй режим определяет дальнейшее упорядочение и соотносится с обычной релаксацией в равновесную кристаллическую фазу. В этом режиме параметры  $\bar{Q}_4$  и  $\bar{Q}_6$  достигают значений 0.399 и 0.36, соответственно. Очевидно, что оба режима должны характеризоваться временными масштабами, размеры которых будут зависеть как от плотности системы, так и от величины внешнего электрического поля  $E$ . Результаты единичных численных экспериментов при некоторых заданных плотностях (см. рис. 3а, б) не позволяют выполнить оценки этих временных масштабов.

На рисунке 3с представлены траектории формирования упорядоченной фазы на  $(\bar{Q}_4, \bar{Q}_6)$ -диаграмме. Примечательно, что кристаллизация воды с различными рассмотренными плотностями характеризуется на  $(\bar{Q}_4, \bar{Q}_6)$ -диаграмме общей траекторией, устремленной в область кристаллического льда с кубической симметрией (Ic). Максимальные значения параметров порядка  $\bar{Q}_4$  и  $\bar{Q}_6$  достигаются при плотностях  $\rho = 0.92$  и  $0.94$  г/см<sup>3</sup>. Согласно результатам квантово-механических расчетов [51] и экспериментальных данных [52, 53] фаза кубического льда,

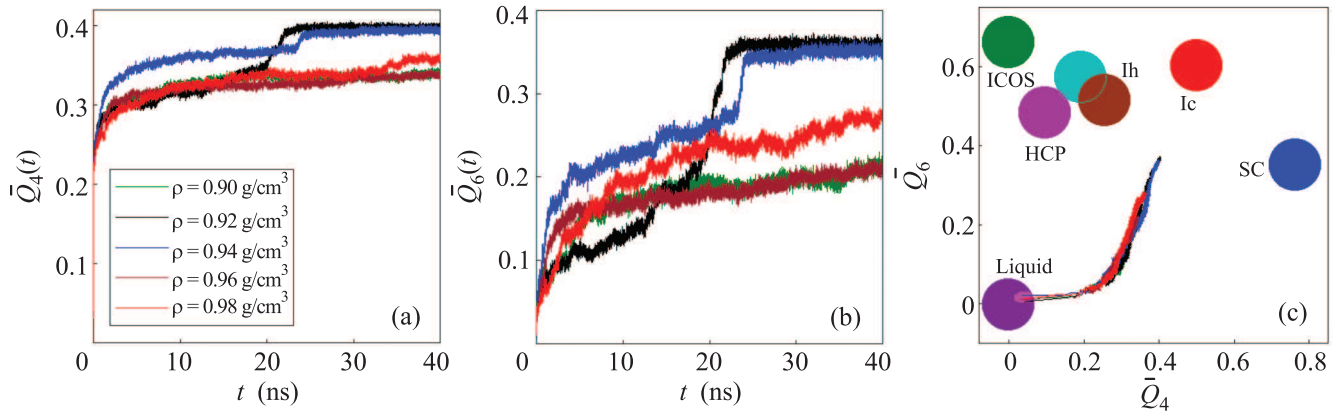


Рис. 3. (Цветной онлайн) Временные зависимости глобальных параметров порядка  $\bar{Q}_4$  (a) и  $\bar{Q}_6$  (b) для воды в кон-  
 файнменте, находящейся под действием внешнего электрического поля с  $E = 0.5 \text{ В/\AA}$  при температуре  $T = 268 \text{ К}$  и  
 различных плотностях; (c) – траектории формирования упорядоченной фазы на  $(\bar{Q}_4, \bar{Q}_6)$ -диаграмме. Маркерами отме-  
 чены области значений для кристаллических форм льда (Ih, Ic – гексагональный и кубический лед, соответственно) и  
 различных идеальных кристаллических структур: SC – простая кубическая, FCC – гранецентрированная кубическая,  
 HCP – гексагональная плотноупакованная, ICOS – икосаэдрическая структуры

во-первых, должна являться нестабильной в слу-  
 чае объемной макросистемы, а во-вторых, эта фа-  
 за возникает при более низких температурах. В рас-  
 сматриваемой нами ситуации структура кубическо-  
 го льда также идентифицируется по наблюдаемым  
 гексагональным каналам [молекулы воды образу-  
 ют алмазоподобную упаковку льда Ic в плоскости  
 (111)], которые характерны для этого типа льда (см.  
 рис. 4). Таким образом, наложение внешнего элек-

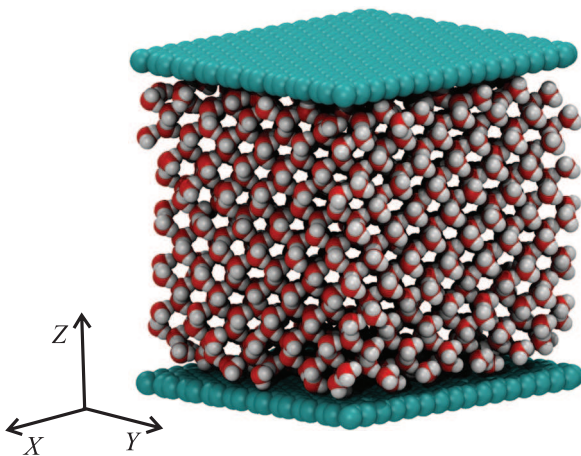


Рис. 4. (Цветной онлайн) Конфигурация системы при  
 температуре  $T = 268 \text{ К}$  и плотности  $\rho = 0.92 \text{ г/см}^3$  под  
 действием внешнего электрического поля напряженно-  
 стью  $E = 0.5 \text{ В/\AA}$

трического поля приводит к формированию куби-  
 ческого льда Ic вместо наиболее распространенно-  
 го гексагонального льда Ih. Следует отметить, что

несмотря на то, что структуры льдов очень похожи,  
 кубический лед является термодинамически менее  
 стабильным, чем обычный гексагональный лед (за  
 исключением небольшой области низких температур  
 $T \in [123; 153] \text{ К}$ ). Каждая молекула воды образует  
 четыре водородные связи и удовлетворяет так назы-  
 ваемым “правилам льда” в обеих фазах [54]. В гекса-  
 гональной и кубической фазах льда тетраэдрическая  
 симметрия в расположении молекул является близ-  
 кой к идеальной. Базальная плоскость (001) льда Ih  
 и плоскость (111) льда Ic идентичны. Примечатель-  
 но, что полученные результаты согласуются с выво-  
 дами работы [24], авторами которой с помощью элек-  
 тронной микроскопии высокого разрешения для слоя  
 воды нанометровой толщины, заключенной между  
 двумя графеновыми слоями, наблюдалась квадрат-  
 ная решетка льда – фаза, имеющая симметрию,  
 качественно отличающуюся от обычной тетраэдриче-  
 ской геометрии водородных связей между молеку-  
 лами воды. Такой тип льда может рассматриваться  
 как слой кубического льда в плоскости (110), кото-  
 рая характеризуется высокой плотностью упаковки  
 с постоянной решетки  $2.83 \text{ \AA}$ . Такой лед может фор-  
 мироваться внутри гидрофобных наноканалов в виде  
 двухслойных и трехслойных кристаллитов.

Особенности кристаллизации рассмотренной в  
 настоящей работе системы обусловлены тремя аспек-  
 тами. Здесь первый аспект связывается с обыч-  
 ной релаксацией переохлажденной воды в кристал-  
 лическую фазу. Второй аспект представляет собой  
 влияние на кристаллизацию специфической геомет-  
 рии системы и наличие двух ограничивающих си-

стему графеновых плоскостей. И, наконец, третий аспект соотносится с влиянием на систему внешнего электрического поля (его величины и направления). Характерное время (скорость) кристаллизации, конечная кристаллическая фаза определяются этими тремя аспектами. Так, например, при увеличении размера системы влияние внешнего поля на кристаллизацию воды ослабевает. Так, в работе [55] сообщается о том, что в случае кристаллизации капель переохлажденной воды *миллиметрового размера* внешнее электрическое поле оказывает лишь незначительное влияние на скорость гомогенной кристаллической нуклеации льда. А в случае *объемной* воды скорость кристаллической нуклеации, размер критического зародыша определяются лишь переохлаждением и не зависят от величины поля [56]. Примечательно, что температура плавления воды возрастает с увеличением значения поля. Так, например, при значениях напряженности электрического поля порядка нескольких В/Å поляризованный кубический лед, или лед Ic<sub>f</sub> (фаза ферроэлектрического кубического льда – *ferroelectric cubic ice phase*), зарождается и растет при тех же термодинамических условиях, что и гексагональный лед (лед Ih) в отсутствие поля. В заключение отметим, что полученные результаты согласуются с выводами работы [57] о том, что кубический лед является наиболее предпочтительной кристаллической структурой для воды, ограниченной порами или тонкими пленками толщиной до 100 Å.

Работа поддержана Российским научным фондом (проект # 19-12-00022). Крупномасштабные молекулярно-динамические расчеты выполнены с использованием оборудования Центра коллективного пользования сверхвысокопроизводительными вычислительными ресурсами МГУ им. М. В. Ломоносова и на вычислительном кластере Казанского (Приволжского) федерального университета.

1. P. Gallo, K. Amann-Winkel, C. A. Angell et al. (Collaboration), *Chem. Rev.* **116**, 7463 (2016).
2. P. G. Debenedetti and H. E. Stanley, *Phys. Today* **56**, 40 (2003).
3. C. Yang, V. V. Brazhkin, M. T. Dove, and K. Trachenko, *Phys. Rev. E* **91**, 012112 (2015).
4. Yu. D. Fomin, V. N. Ryzhov, E. N. Tsiok, and V. V. Brazhkin, *Sci. Rep.* **5**, 14234 (2015).
5. R. M. Khusnutdinoff and A. V. Mokshin, *J. Non-Cryst. Solids* **357**, 1677 (2011).
6. R. M. Khusnutdinoff and A. V. Mokshin, *Physica A* **391**, 2842 (2012).

7. H. E. Stanley, C. A. Angell, U. Essmann, M. Hemmati, P. H. Poole, and F. Sciortino, *Physica A* **205**, 122 (1994).
8. H. Kanno and K. Miyata, *Chem. Phys. Lett.* **422**, 507 (2006).
9. P. M. G. L. Ferreira, M. S. Ishikawa, S. Kogikoski Jr, W. A. Alves, and H. Martinho, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **17**, 32126 (2015).
10. C. A. Cerdeirina, J. Troncoso, D. González-Salgado, P. G. Debenedetti, and H. E. Stanley, *J. Chem. Phys.* **150**, 244509 (2019).
11. D. Paschek, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 217802 (2005).
12. P. Jedlovsky and R. Vallauri, *J. Chem. Phys.* **122**, 081101 (2005).
13. J. L. F. Abascal and C. Vega, *J. Chem. Phys.* **134**, 186101 (2011).
14. J. N. Glosli and F. H. Ree, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4659 (1999).
15. D. J. Lacks, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4629 (2000).
16. I. Saika-Voivod, F. Sciortino, and P. H. Poole, *Phys. Rev. E* **63**, 011202 (2001).
17. Th. Loerting, V. V. Brazhkin, and T. Morishita, *Adv. Chem. Phys.* **143**, 29 (2009).
18. Th. Loerting and N. Giovambattista, *J. Phys.: Condens. Matter* **18**, R919 (2006).
19. A. Falenty, T. C. Hansen, and W. F. Kuhs, *Nature* **516**, 231 (2014).
20. Е. А. Желиговская, Г. Г. Маленков, *Успехи химии* **75**, 64 (2006).
21. О. В. Стальгорова, Е. Л. Громницкая, В. В. Бражкин, А. Г. Ляпин, *Письма в ЖЭТФ* **69**, 653 (1999).
22. N. Giovambattista, H. E. Stanley, and F. Sciortino, *Phys. Rev. E* **72**, 031510 (2005).
23. O. Mishima, *Adv. Chem. Phys.* **152**, 355 (2013).
24. G. Algara-Siller, O. Lehtinen, F. C. Wang, R. R. Nair, U. Kaiser, H. A. Wu, A. K. Geim, and I. V. Grigorieva, *Nature* **519**, 443 (2015).
25. N. Kastelowitz, J. C. Johnston, and V. Molinero, *J. Chem. Phys.* **132**, 124511 (2010).
26. M. Erko, G. H. Findenegg, N. Cade, A. G. Michette, and O. Paris, *Phys. Rev. B* **84**, 104205 (2011).
27. J. Bai and X. C. Zeng, *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **109**, 21240 (2012).
28. P. M. Хуснутдинов, *Коллоид. журн.* **75**, 792 (2013).
29. Z. Qian and G. Wei, *J. Phys. Chem. A* **118**, 8922 (2014).
30. X. Zhu, Q. Yuan, and Y.-P. Zhao, *Nanoscale* **6**, 5432 (2014).
31. J. Terrones, P. J. Kiley, and J. A. Elliott, *Sci. Rep.* **6**, 27406 (2016).
32. R. M. Khusnutdinoff and A. V. Mokshin, *J. Cryst. Growth* **524**, 125182 (2019).
33. S. O. Lumsdon, E. W. Kaler, and O. D. Velev, *Langmuir* **20**, 2108 (2004).
34. L. F. Alexander and N. Radacsi, *Cryst. Eng. Comm.* **21**, 5014 (2019).

35. J. L. F. Abascal, E. Sanz, R. G. Fernandez, and C. Vega, *J. Chem. Phys.* **122**, 234511 (2005).
36. C. Vega and J. L. F. Abascal, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **13**, 19663 (2011).
37. J. P. Ryckaert, G. Ciccotti, and H. J. C. Berendsen, *J. Comp. Phys.* **23**, 327 (1977).
38. G. Rajagopal and R. J. Needs, *J. Comp. Phys.* **115**, 399 (1994).
39. M. C. Gordillo and J. Marti, *J. Phys.: Condens. Matter.* **22**, 284111 (2010).
40. Р. М. Хуснутдинов, А. В. Мокшин, *Письма в ЖЭТФ* **100**, 42 (2014).
41. S. Nose, *J. Chem. Phys.* **81**, 511 (1984).
42. W. G. Hoover, *Phys. Rev. A* **31**, 1695 (1985).
43. А. В. Мокшин, Р. М. Хуснутдинов, А. Р. Ахмерова, А. Р. Мусабинова, *Письма в ЖЭТФ* **106**, 343 (2017).
44. W. Drost-Hansen and J. L. Singleton, *Fundamentals of Medical Cell Biology*, JAI Press, Greenwich, CT (1992).
45. M. Gavish, J. L. Wang, M. Eisenstein, M. Lahav, and L. Leiserowitz, *Science* **256**, 815 (1992).
46. A. M. Saitta, F. Saija, and P. V. Giaquinta, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 207801 (2012).
47. H. Qiu and W. Guo, *Phys. Rev. Lett.* **110**, 195701 (2013).
48. P. J. Steinhardt, D. R. Nelson, and M. Ronchetti, *Phys. Rev. B* **28**, 784 (1983).
49. W. Lechner and C. Dellago, *J. Chem. Phys.* **129**, 114707 (2008).
50. B. N. Galimzyanov, D. T. Yarullin, and A. V. Mokshin, *Acta Materialia* **169**, 184 (2019).
51. P. Geiger, C. Dellago, M. Macher, C. Franchini, G. Kresse, J. Bernard, J. N. Stern, and T. Loerting, *J. Phys. Chem. C* **118**, 10989 (2014).
52. Е. Л. Громницкая, О. В. Стальгорова, А. Г. Ляпин, В. В. Бражкин, О. Б. Тарутин, *Письма в ЖЭТФ* **78**, 960 (2003).
53. B. J. Murray, D. A. Knopf, and A. K. Bertram, *Nature* **434**, 202 (2005).
54. R. Wang, L.-M. Xu, and F. Wang, *Front. Phys.* **13**, 138116 (2018).
55. C. A. Stan, S. K. Y. Tang, K. J. M. Bishop, and G. M. Whitesides, *J. Phys. Chem. B* **115**, 1089 (2011).
56. A. Zaragoza, J. R. Espinosa, R. Ramos, J. A. Cobos, J. L. Aragoes, C. Vega, E. Sanz, J. Ramirez, and C. Valeriani, *J. Phys.: Condens. Matter* **30**, 174002 (2018).
57. G. P. Johari, *J. Chem. Phys.* **122**, 194504 (2005).