

**Transport of microparticles in electrohydrodynamic convection
of a twisted nematic liquid crystal**

**Транспорт микрочастиц при электрогидродинамической конвекции
закрученного нематического жидкого кристалла**

A. A. Asylgareev, R. V. Valeev, Y. A. Lebedev, M. V. Khazimullin, O. A. Skaldin *
А. А. Асылгареев, Р. В. Валеев, Ю. А. Лебедев, М. В. Хазимуллин, О. А. Скалдин *

Institute of Molecules and Crystals Physics, Ufa Federal Research Center of the Russian Academy of Sciences, Prosp. Otyabrya 151, Ufa, 450075, Russia

* scala@anrb.ru

Институт физики молекул и кристаллов Уфимского федерального исследовательского центра Российской академии наук, Россия, 450075, Уфа, пр. Октября, 151

* scala@anrb.ru

ABSTRACT

The dynamics of spherical dielectric particles of micron-sized silica (3 μm) in an electric field in twist structures of nematic liquid crystals (NLC) has been investigated. To improve the solubility of these particles in nematic, a technique has been developed for the functionalization of the surface of microparticles with a surfactant *n*, *n*-dimethyl-*n*-octadecyl-3-aminopropyltrimethoxysilyl chloride (DMOAP). The liquid crystal cell was assembled according to the standard scheme. Glass substrates with a conductive coating ensured homogeneous (planar) orientation of nematic molecules. The axes of the preferred orientation of molecules at the boundaries of the NLC layer were 90 degrees, so that, the structure corresponded to a quarter of the full rotation period of the director field. When an alternating voltage was applied and the threshold value was reached, a convective roll structure was formed, in which helicoidal flows of the liquid crystal were realized. Here the velocity of the axial component of the velocity of the nematic liquid reached its maximum value at the boundary of an individual roll. Two types of transport of spherical particles are observed experimentally. The first is a linear motion along the roll axis and the second is a spiral motion, which actually corresponds to the helicoidal flow of a nematic liquid. This behavior is explained by the competition between the electrophoretic mechanism and the helicoidal flow of the nematic.

KEYWORDS

Nematic liquid crystal; microparticles; electrohydrodynamic instability; domain structure.

АННОТАЦИЯ

Исследуется динамика сферических диэлектрических частиц кремнезема микронного размера (3 μm) в электрическом поле в твист-структурах нематических жидких кристаллов (НЖК). Для улучшения растворимости этих частиц в нематике разработана методика функционализации поверхности микрочастиц поверхностно-активным веществом *n*, *n*-диметил-*n*-октадецил-3-аминопропилтриметоксисилил-хлоридом (DMOAP). Ячейка с жидким кристаллом собиралась по стандартной схеме. Стеклоподложки с проводящим покрытием обеспечивали гомогенную (планарную) ориентацию молекул нематика. Оси преимущественной ориентации молекул на границах НЖК-слоя составляли 90 градусов, так что в результате структура соответствовала четверти полного периода поворота поля директора. При подаче переменного напряжения и достижении порогового значения формировалась конвективная ролловая структура, в которой реализуются геликоидальные течения ЖК, причем скорость аксиальной компоненты скорости нематической жидкости достигает своего максимального значения на границе отдельного ролла. Экспериментально наблюдаются два типа транспорта сферических частиц. Первый – это ли-

нейное движение вдоль оси ролла и второй – движение по спирали, которое фактически соответствует геликоидальному течению нематической жидкости. Что же касается линейного движения частиц, то оно связано с чисто аксиальной компонентой электроконвективного движения, которая максимальна в центре ролла.

КЛЮЧЕВЫЕ СЛОВА

Нематический жидкий кристалл; микрочастицы; электрогидродинамическая неустойчивость; доменная структура.

Введение

Проблема транспорта частиц, диспергированных в жидких средах, все больше привлекает внимание исследователей из различных отраслей науки. Возможность управления движением частиц имеет особенно важное значение для микро- и наноразмерных частиц, например, для целевой доставки лекарственных препаратов, прямой самосборки частиц для создания микроэлектронных и фотонных устройств, и многих других приложений. Контролируемый транспорт частиц может осуществляться с помощью использования «активных» объектов, таких как, молекулярные моторы, синтетические наномшины [1–4], либо с использованием внешнего воздействия. Классическим примером последнего является электрофорез, то есть движение заряженных частиц в электрическом поле. Недавно было обнаружено, что в нематических жидких кристаллах (НЖК) в электрическом поле могут наблюдаться транспортные процессы, отличные от обычного электрофореза [5]. Например, установлено, что незаряженные частицы или водные микрокапли в матрице НЖК могут в переменном электрическом поле двигаться в направлении, перпендикулярном полю [6]. Такая особенность электрофореза в НЖК основана на асимметричном искажении ориентации молекулы вокруг частицы или капли.

НЖК – это ориентационно упорядоченные жидкости, в которых стержнеобразные молекулы ориентированы вдоль общего направления, описываемого единичным вектором \mathbf{n} , называемым директором [7]. Поверхность частиц можно обработать таким образом, чтобы задать определенную ориентацию директору НЖК, находящемуся в контакте с поверхностью. Тогда в случае нормальной ориентации директора на поверхности сферической

частицы, погруженной в НЖК, вблизи нее возникает топологический точечный дефект силой -1 (гиперболический еж). Поскольку сама частица соответствует дефекту $+1$ (радиальный еж), то дефект и частица образуют своеобразный дефектный диполь. Результирующая конфигурация поля директора вокруг частицы имеет дипольную симметрию и приводит к анизотропным взаимодействиям, напоминающим взаимодействие между электрическими диполями. Парное взаимодействие имеет порядок нескольких тысяч $k_B T$, что приводит к образованию стабильных коллоидных структур в НЖК. Дипольный характер поля директора вокруг частицы также является источником аномального электрофореза в НЖК – из-за асимметрии ионного потока вблизи частицы, аналогичного случаю металлодиэлектрических частиц Януса [8], движение частицы в переменном электрическом поле происходит вдоль оси диполя, то есть линии, соединяющей точечный дефект и центр частицы, совпадающей с ориентацией \mathbf{n} в неискаженном нематике. Если матрица НЖК обладает отрицательной диэлектрической анизотропией, то ориентация директора и направление движения частицы перпендикулярно приложенному полю.

Другим примером механизма транспорта частиц в НЖК в электрическом поле является электрогидродинамическая (ЭГД) конвекция, которая может быть индуцирована переменным электрическим полем в НЖК с отрицательной диэлектрической анизотропией и исходной планарной ориентацией образца [7, 9]. Природа ЭГД неустойчивости и возникающей при этом системы конвективных роллов связана с конкуренцией упругих сил и гидродинамических потоков, индуцированных перераспределением пространственного заряда в слое НЖК. Внутри роллов имеет место

вихревое движение молекул, скорость которого составляет порядка десятков микрометров в секунду и зависит от величины приложенного электрического поля. Она максимальна в центрах вихрей, и здесь градиент скорости максимально искажает планарную ориентацию. Причем в соседних роллах направление вихревого движения различно. Обнаружено, что ЭГД конвекция в планарных слоях обеспечивает эффективный транспорт частиц и даже коллоидных цепочек как внутри одного ролла, так и между соседними роллами [10–12]. Продемонстрирована возможность использования подобных цепочек в качестве микродвижителей для перемещения различного вида «микрोगрузов» [13].

В отличие от планарного случая, имеющего только тангенциальную компоненту скорости конвективного течения в роллах, у закрученных нематиков появляется дополнительная аксиальная компонента скорости, которая меняет свой знак в соседних роллах [14, 15]. Можно предполагать, что наличие геликоидального характера течения в роллах будет приводить к реализации существенно иного типа неустойчивостей при внешнем воздействии по сравнению с обычным однородным случаем, к появлению разнообразных динамических структур, а также к новым механизмам транспорта частиц. Заметим, что исследования ЭГД конвекции в закрученных нематиках весьма немногочисленны [16–19], а работы по изучению особенностей транспорта коллоидных частиц в таких системах практически и вовсе отсутствуют.

1. Методика исследований

Для создания жидкокристаллических коллоидов использовались стеклянные частицы диаметром 3 мкм и нематический жидкий кристалл 4-метоксибензилиден-4'-бутиланилин (МББА) (Acros Org.), обладающий отрицательной диэлектрической анизотропией $\Delta\epsilon \sim -0,5$ при 25 °С и интервалом существования жидкокристаллического состояния 21–48 °С. Все эксперименты проводились при комнатной температуре. НЖК помещался в электрооптическую ячейку, составлен-

ную из стеклянных пластин, покрытых проводящим покрытием – оксидом индия-олова, и разделенных зазором 20–30 мкм. Величина зазора определялась по методике стандартной интерферометрии. Предварительно на стеклянные пластинки методом центрифугирования наносился тонкий слой полимерного ориентанта – полиимида (PI2574), который затем однонаправленно натирался с помощью бархатной ткани. Это обеспечивало однородную ориентацию ЖК молекул параллельно стеклянной поверхности и вдоль направления натирания. В большинстве экспериментов мы использовали монодисперсные частицы кремнезема (SiO_2) диаметром $D \sim 3$ мкм. Частицы обрабатывали специальным поверхностно-активным веществом (ПАВ) для создания вертикальной ориентации директора на поверхности частиц.

Для изучения поведения микрочастиц в электрическом поле к ЖК-слою прикладывалось переменное напряжение $V = V_0 \cos(2\pi ft)$ таким образом, чтобы электрическое поле было параллельно направлению z , частота варьировалась в интервале 20–400 Гц. Электрооптические измерения проводились с использованием поляризационно-оптического микроскопа AxioImage 1A (Carl Zeiss, Germany).

2. Результаты и их обсуждение

Рассмотрим развитие электроконвективных неустойчивостей в нематическом коллоиде на основе закрученного на $\pi/2$ нематика и микрочастиц кремнезема (SiO_2) во всем диапазоне частот переменного электрического поля. При малых амплитудах ниже порогового значения U_c (слабо зависящего от частоты), текстура ЖК-ячейки не меняется и остается однородной (рис. 1, *a*). При приложении к ЖК-ячейке переменного электрического напряжения выше порогового $U_{c1} = 5,6$ В ($f = 50$ Гц) в ней возникает система регулярных линейных доменов (аналогичных доменам Вильямса – Капустина), направление которых перпендикулярно ориентации директора в середине невозмущенного слоя НЖК (рис. 1, *b*), и составляет угол 45° к направле-

ниям натирания на подложках (рис. 1, з). В поляризационном микроскопе домены наблюдаются в виде темных линий со светлыми сопутствующими линиями по бокам. Ширина линий приблизительно равнялась толщине образца и не зависела от приложенного напряжения, но окраска, которая наблюдалась только в закрученной геометрии, менялась с изменением напряжения.

В отличие от планарного случая, имеющего только тангенциальную компоненту скорости конвективного течения в роллах, у закрученных нематиков появляется дополнительная аксиальная компонента скорости, которая меняет свой знак в соседних роллах [14, 15]. Причем ее скорость в целом растет с увеличением угла закрутки. Геликоидальный характер течения в роллах легко визуализируется при наблюдении за движением примесных частиц (диаметр ~ 1 мкм). Так как аксиальная компонента скорости гидродина-

мического потока в соседних роллах имеет противоположное направление, то в отличие от планарного случая «честный» пространственный период доменной структуры в закрученном нематике состоит из двух роллов. Физический механизм появления аксиальной компоненты скорости связан с сильным сцеплением между полем директора и полем гидродинамической скорости потока в НЖК [14]. При этом отклонение директора от исходного невозмущенного состояния $\mathbf{n}_0 = (n_{x0}, n_{y0}, n_{z0})$ является максимальным в середине ЖК-слоя, а именно, n_z -компонента максимальна в центре ролла, а тогда как отклонение n_y является максимальным между роллами. С увеличением частоты линейные домены существуют вплоть до пограничной частоты перехода системы ЭГД-конвекции в диэлектрический режим, которая в данном эксперименте составляла $f_{\text{cut-off}} \sim 60$ Гц.

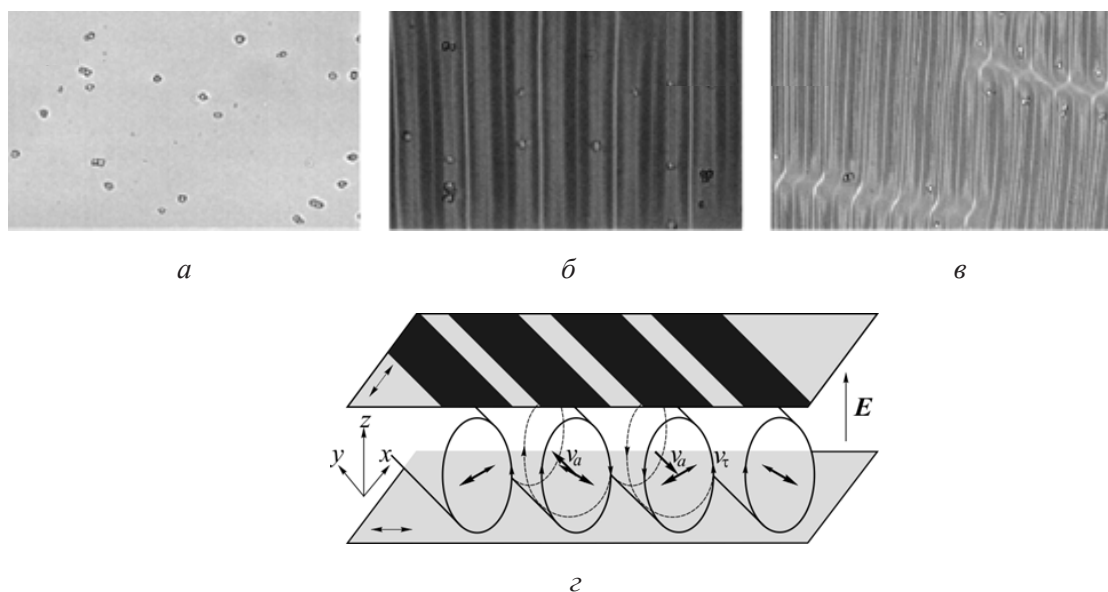


Рис. 1. Типичные микрофотографии закрученного на $\pi/2$ НЖК MBVA с коллоидными частицами: а – оптическая текстура при $U = 0$ В (естественный свет); б – стационарные конвективные роллы $U_{c1} \sim 8,5$ В; в – динамические конвективные роллы $U \sim 12,0$ В; з – геометрия распределения поля директора \mathbf{n} , аксиальной \mathbf{v}_a и тангенциальной \mathbf{v}_t компонент скорости гидродинамического потока в роллах, возникающих при электроконвекции в закрученном НЖК

Fig. 1. Typical optical micrographs of the twisted (on $\pi/2$) NLC MBVA with colloidal particles: а – optical texture at $U = 0$ V (natural light); б – stationary convective rolls $U_{c1} \sim 8.5$ V; в – dynamic convective rolls $U \sim 12.0$ V; з – geometry of the director field \mathbf{n} , axial \mathbf{v}_a and tangential \mathbf{v}_t components of the hydrodynamic flow velocity in rolls arising during electroconvection in a twisted NLC

При увеличении приложенного напряжения при низких частотах (в проводящем режиме электроконвекции) в закрученном нематике наблюдается более интересная эволюция доменных структур – регулярное расположение стационарных конвективных роллов нарушается – эти роллы искажаются, рвутся – появляются сингулярные и несингулярные дефекты (рис. 1, в), при дальнейшем увеличении напряжения возникают более сложные динамические структуры, которые в конечном итоге совершенно хаотизируются.

Рассмотрим более детально основные закономерности движения изолированных коллоидных частиц в конвективных роллах, начиная от порога их образования. Разумно предполагать, что траектория движения частиц соответствует гидродинамическому потоку в конвективных роллах при фиксированном напряжении. Так что для ЭГД-конвекции в закрученных нематиках экспериментально установлены три основных типа движения частиц: (1) частицы движутся вдоль направления осей роллов, (2) движение частиц происходит в направлении, перпендикулярном осям роллов, и (3) геликоидальное движение частиц вдоль направления осей роллов. И если первые два типа движения наблюда-

ются в системе конвективных роллов в планарных образцах НЖК [10, 11], то последний тип движения характерен только для закрученных нематиков [14, 15]. Вообще говоря, движение частиц при ЭГД конвекции может определяться как диэлектрофоретическим вкладом, так и гидродинамическим движением [5]. Однако, первый вклад имеет значение при напряжениях существенно меньше U_{c1} и в данном случае он не наблюдается. При напряжениях $U > U_{c1}$ гидродинамические потоки дают основной вклад в движение частиц.

Экспериментально установлено, что в большинстве случаев при электроконвекции в ЖК-слое движение частиц сконцентрировано в областях максимальной деформации поля директора и направление их движения совпадает с направлением осей конвективных роллов и гидродинамического потока в них (рис. 2, а). Причем скорость частиц меняется нелинейным образом с увеличением напряжения U (рис. 2, б) и составляет порядка 2–5 мкм/с, а именно, выше порога ЭГД неустойчивости и, соответственно, образования ролловой структуры величина скорости движения частиц достигает максимума, после чего стремительно уменьшается.

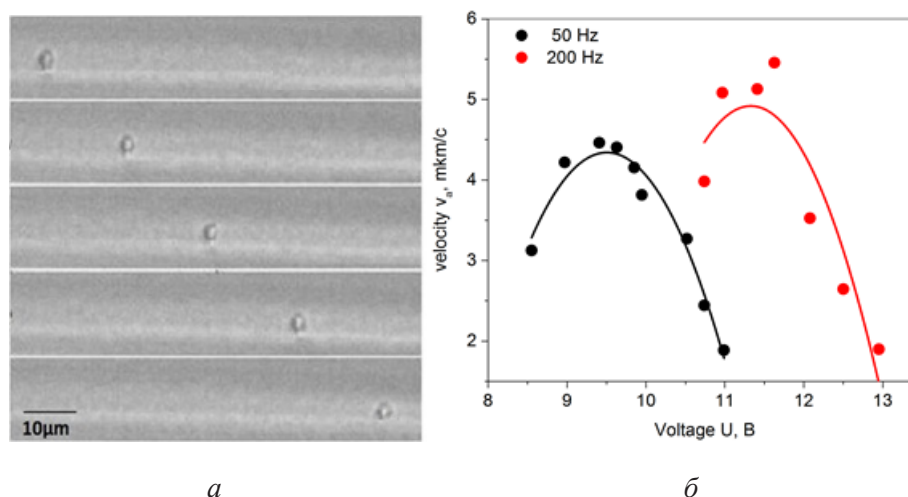


Рис. 2. Последовательность микрофотографий микрочастиц размером 3 мкм (а), движущихся вдоль конвективных роллов ($U \sim 9$ В, $f = 50$ Гц) и влияние напряжения U на скорость их движения для двух частот переменного электрического поля 50 и 200 Гц

Fig. 2. A sequence of micrographs of microparticles of 3 μm (а) moving along convective rolls ($U \sim 9$ V, $f = 50$ Hz) and the effect of voltage U on the speed of their movement for two frequencies of an alternating electric field – 50 and 200 Hz

Отметим, что в закритической области происходит развитие в роллах продольных ориентационных деформаций типа волнообразной неустойчивости с переходом к двумерной структуре (вторичная неустойчивость). Последнее фактически блокирует линейное движение частиц вдоль роллов, что ведет к резкому уменьшению значений их скорости. Теперь о механизме движения частиц. Согласно результатам работы [14] максимальное значение аксиальной компоненты скорости гидродинамического потока находится на границе ролла. В нашем случае мы иногда наблюдаем движение и в центре ролла.

Значительно реже, в отличие от планарного случая [11], в закрученном нематике наблюдается трансляционное движение частиц от одного конвекционного ролла к соседнему (рис. 3, *a*). Частицы могут быть захвачены

в одном ролле и совершить несколько вращений в нем и лишь затем перепрыгнуть в соседний (рис. 3, *b*, *в*). Причем, установлено, что предпочтительное направление прыжка отсутствует. Очевидно, что вертикальное положение частицы изменяется при пересечении двух противоположно вращающихся конвективных роллов как вверх, так и вниз относительно фокальной плоскости изображения.

Однако, наиболее ярко наличие аксиального гидродинамического потока в конвективных роллах в закрученном нематике демонстрируется геликоидальным движением коллоидных частиц (рис. 4, *a*, *b*). Такое движение удобно разложить на две компоненты – тангенциальную v_t , связанную с конвективной скоростью потока, и аксиальную v_a , связанную с гидродинамической скоростью потока вдоль ролла.

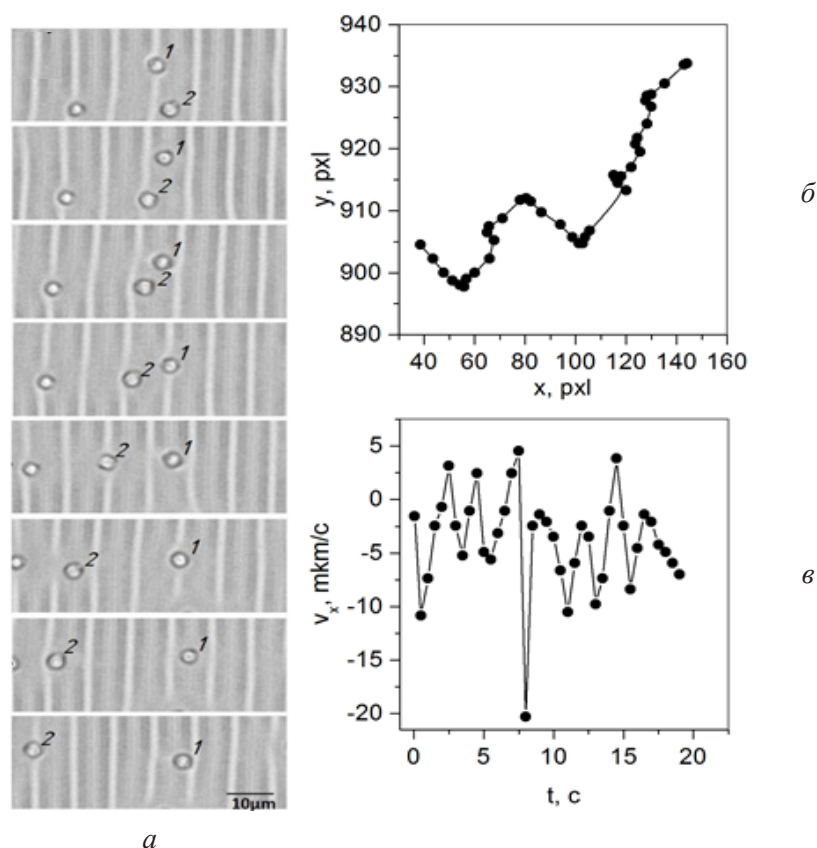


Рис. 3. Пример трансляционного движения частиц 1, 2 размером 3 мкм ($U \sim 10,5$ В, $f = 50$ Гц) (*a*), траектория частицы 2 (*b*) и вариация ее скорости со временем t (*в*)

Fig. 3. An example of the translational motion of particles 1, 2 with a size of 3 μm ($U \sim 10.5$ V, $f = 50$ Hz) (*a*), the trajectory of a particle 2 (*b*) and the variation of its velocity with time t (*в*)

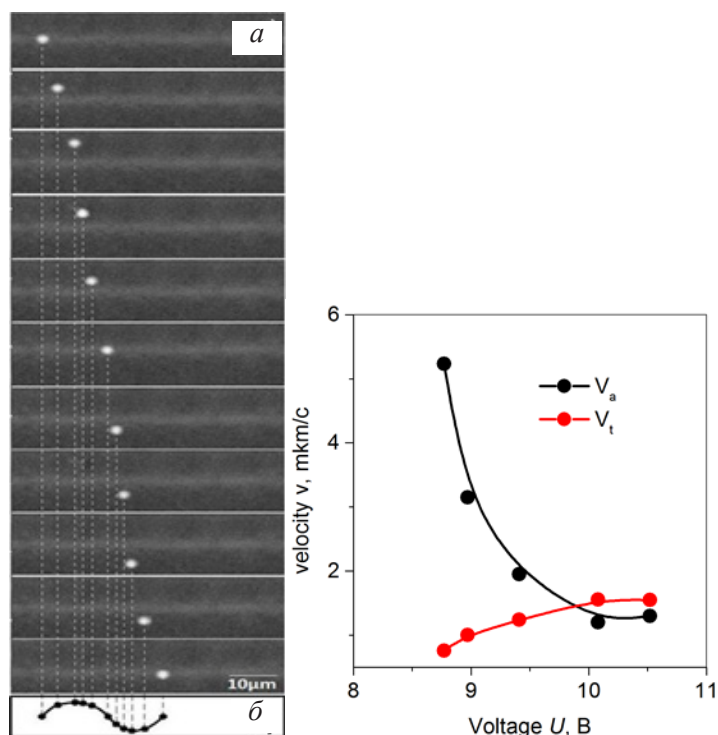


Рис. 4. Геликоидальное движение частиц размером 3 мкм ($U \sim 8,5$ В, $f = 50$ Гц) (а) со схемой траектории движения частицы (б); зависимость тангенциальной v_t и аксиальной v_a компонент скорости движения частицы от величины приложенного напряжения U (в)

Fig. 4. Helicoidal motion of particles 3 μm in size ($U \sim 8.5$ V, $f = 50$ Hz) (a) with a particle trajectory diagram (b); the dependence of the tangential v_t and axial v_a components of the particle velocity on the applied voltage U (c)

Типичные зависимости тангенциальной и аксиальной компонент скорости частиц от величины приложенного напряжения U приведены на рис. 4, в. Скорость конвективного потока в роллах имеет величину порядка $v_t \sim 1$ мкм/с и слабо возрастает с ростом приложенного напряжения. Тогда как скорость аксиального потока в ролле при $U = U_{c1}$ значительно превышает конвективную (почти на порядок), но быстро падает с ростом напряжения и в режиме «развитой» конвекции обе скорости имеют почти одинаковую величину и как в предыдущем случае причиной этому является возникновение вторичных неустойчивостей в ЭГД конвекции в закрученных нематиках.

Заметим, что, как правило, коллоидные частицы активно агрегируют при столкновениях друг с другом так, что можно наблюдать движение двух, трех и более слипшихся ча-

стиц кремнезема. К сожалению, «время жизни» коллоида ограничено – со временем все частицы осаждаются на поверхность подложки и «отказываются» участвовать в каком-либо движении.

Эксперименты показывают, что оторвать частицы от поверхности можно кратковременным приложением высокого напряжения (выше порога режима динамического рассеяния света > 20 В).

Выводы

Разработана методика создания нематических коллоидов на основе нематического жидкого кристалла МББА, закрученного на $\pi/2$, и частиц SiO_2 микронного размера и изучены особенности их динамики в электрогидродинамической конвекции.

Обнаружено, что в области существования проводящего режима электрогидродина-

мической (доменов Капустина – Вильямса), наблюдается три основных вида движения коллоидных частиц: 1) скольжение вдоль оси конвективных роллов; 2) трансляционное движение поперек роллов с конвективным вращением внутри роллов; 3) геликоидальное движение вдоль оси роллов, характерное только для закрученных нематиков. Превалирующими являются скольжение частиц вдоль осей роллов и их геликоидальное движение.

Установлено, что (i) скорость линейного скольжения составляет порядка 2–5 мкм/с и зависит нелинейным образом от величины приложенного напряжения; (ii) с ростом напряжения, приложенного к ячейке, вклад трансляционного движения частиц возрастает, и траектория движения частиц изменяется от одномерной до двумерной; (iii) тангенциальная и аксиальная компоненты геликоидального движения частиц принимают значения ~0,5 и 3 мкм/с соответственно; с ростом напряжения тангенциальная компонента медленно растет, а аксиальная – быстро падает, стремясь к величине тангенциальной скорости.

Также установлено, что в режиме электрогидродинамической конвекции в закрученных нематиках возникают пандемоторные силы, приводящие к скоплению и агрегированию частиц на границах электродной области, ориентированных нормально к направлению осей роллов или параллельно директору в середине слоя.

Список литературы

- Whitesides G. M., Grzybowski B. Self-Assembly at All Scales // *Science*. 2002. V. 295. P. 2418–2421. DOI: 10.1126/science.1070821.
- Vogel V., Hess H. NanoShuttles: Harnessing Motor Proteins to Transport Cargo In Synthetic Environments // *Lect. Notes Phys.* 2007. V. 711. P. 367–383. DOI: 10.1007/3-540-49522-3_17.
- Wang J. Cargo-towing synthetic nanomachines: Towards active transport in microchip devices // *Lab Chip*. 2012. V. 12. P. 1944–1950. DOI: 10.1039/C2LC00003B.
- Living Crystals of Light-Activated Colloidal Surfers / J. Palacci et al. // *Science*. 2013. V. 339, Iss. 6122. P. 936–940. DOI: 10.1126/science.1230020.
- Lavrentovich O. D. Transport of particles in liquid crystals // *Soft Matter*. 2014. V. 10, Iss. 9. P. 1264–1283. DOI: 10.1039/C3SM51628H.
- Lavrentovich O. D., Lazo I, Pishnyak O. P. Nonlinear electrophoresis of dielectric and metal spheres in a nematic liquid crystal // *Nature*. 2010. V. 467, Iss. 7318. P. 947–950. DOI: 10.1038/nature09427.
- De Gennes P. G., Prost J. *The Physics of Liquid Crystals*. 2ed. Oxford: Clarendon Press, 1993. P. 597.
- Induced-Charge Electrophoresis of Metallodielectric Particles / S. Gangwal et al. // *Phys. Rev. Lett.* 2008. V. 100, Iss. 5. Article number 058302. DOI: 10.1103/PhysRevLett.100.058302.
- Пикин С. А. Структурные превращения в жидких кристаллах. М.: Наука, 1981. 336 с.
- Takahashi K., Kimura Y. Dynamics of colloidal particles in electrohydrodynamic convection of nematic liquid crystal // *Physical Review E*. 2014. V. 90, Iss. 1. Article number 012502. DOI: 10.1103/PhysRevE.90.012502.
- Direct Visualization of Spatiotemporal Structure of Self-Assembled Colloidal Particles in Electrohydrodynamic Flow of a Nematic Liquid Crystal / Y. Sasaki et al. // *Langmuir*. 2015. V. 31, Iss. 13. P. 3815–3819. DOI: 10.1021/acs.langmuir.5b00450.
- Microscopic characterisation of self-assembled colloidal particles in electrohydrodynamic convection of a low-birefringence nematic liquid crystal / Y. Nishioka et al. // *Liquid Crystals*. 2016. V. 43, No. 4. P. 427–435. DOI: 10.1080/02678292.2015.1117146.
- Colloidal caterpillars for cargo transportation / Y. Sasaki et al. // *Soft Matter*. 2014. V. 10, Iss. 44. P. 8813–8820. DOI: 10.1039/c4sm01354a.
- Hertrich A., Krekhov A. P., Scaldin O. A. The electrohydrodynamic instability in twisted nematic liquid crystals // *J. Phys. II (France)*. 1994. V. 4, No. 2. P. 239–252. DOI: 10.1051/jp2:1994126.

15. Delev V. A., Toth P., Krekhov A. P. Electroconvection in twisted nematic liquid crystals // *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* 2000. V. 351, Iss. 1. P. 179–186. DOI: 10.1080/10587250008023267.
16. Wright J. J., Dawson J. F. Electric field induced domains in twisted nematic liquid crystals // *Physics Letters A.* 1973. V. 43, No. 2. P. 145–146. DOI: 10.1016/0375-9601(73)90585-9.
17. Скалдин О. А., Крехов А. П. Электрооптика закрученных нематиков в режиме ЭГД неустойчивости // *Письма в ЖТФ.* 1992. Т. 18, № 20. С. 24–28.
18. Periodic structures in a twisted nematic liquid-crystal cell under d.c. excitation / S. Frunza et al. // *Europhysics Letters.* 1992. V. 20, No. 5. P. 407–411. DOI: 10.1209/0295-5075/20/5/005.
19. Tatsumi S., Sano M., Rossberg A. G. Observation of stable phase jump lines in convection of a twisted nematic liquid crystal // *Physical Review E.* 2006. V. 73, Iss. 1. Article number 011704. DOI: 10.1103/PhysRevE.73.011704.