

01; 05.3

© 1993

КИНЕТИКА ОБРАЗОВАНИЯ КОМПАКТНЫХ КВАНТОВЫХ КЛАСТЕРОВ В СТОХАСТИЧЕСКИХ КОНСЕРВАТИВНЫХ СИСТЕМАХ

Э.Э. Л и н

В [1] предложено рассматривать необратимую агрегацию компактных кластеров с выраженными коллективными квантовыми свойствами как винеровский процесс, описываемый с помощью стохастического уравнения Фоккера-Планка [2], записанного в пространстве размеров кластеров l . Найденный асимптотический вид функции φ плотности распределения больших кластеров в консервативных системах в конце процесса агрегации $\varphi_f \propto l^{-3}$ находится в соответствии с экспериментальными данными для хвостов распределения ультрадисперсных детонационных алмазов [3, 4], частиц Al , полученных конденсацией пара [5], а также ядер тяжелых элементов, образовавшихся в глубоко неупругих реакциях [6].

В данной работе кинетика образования кластеров изучалась с помощью качественных аналитических методов. Примем среднюю скорость v кинематического переноса φ в пространстве l по порядку равной скорости роста среднего размера кластеров: $v = \frac{\langle dl \rangle}{dt} \sim \frac{d\langle l \rangle}{dt}$. Коэффициент диффузии ν в пространстве l составляет

$$\nu \approx \frac{(\Delta l)^2}{\Delta t} \sim \frac{h}{4\pi m}, \quad (1)$$

где m — масса кластера, h — постоянная Планка.

Основанием для приближения (1) может являться, например, следующий анализ взаимодействия ультрадисперсной алмазной частицы с малым зародышем алмазной фазы. Оценим приращение времени Δt как среднее время t_s поверхностной диффузии зародыша [7]. Выражение для t_s запишем в виде произведения минимального периода колебаний кристаллической решетки частицы на среднее число обменов местами зародыша на ее поверхности до образования устойчивых связей:

$$\Delta t \equiv t_s \sim \left(\frac{h}{k\theta} \right) \cdot \exp\left(\frac{\varepsilon_v - \varepsilon_s}{2kT} \right). \quad (2)$$

Здесь k — постоянная Больцмана, θ — дебаевская температура частицы, $\varepsilon_s, \varepsilon_v$ — энергии зародыша в окружающей среде и в объеме частицы соответственно, T — температура в системе. Так

как расстояния между соседними атомами и их взаимная ориентация в зародыше и в частице одинаковы, электронные члены в разности $\epsilon_{\sigma} - \epsilon_0$ сокращаются. В выражениях для ϵ_0 и ϵ_{σ} достаточно учесть колебательные члены, записав их в виде формул [5, 8, 9] для энергии многоатомных нелинейных молекул и средней энергии тепловых колебаний кристаллической решетки частицы. При характерных условиях детонационного синтеза алмазов ($T \approx 3500$ К, $\theta \approx 2000$ К) из шестиатомных молекул углеродного стекла циклогексана [10] получаем из (2) оценку $\Delta t \approx t_s \sim 3 \cdot 10^{-13}$ с. Полагая, что масса зародыша с размером $l_0 \ll l$ в результате захвата равномерно „размазывается“ по поверхности частицы, можно получить оценочное выражение для приращения размера $\Delta l \sim \frac{l_0^3}{3l^2}$. Вычисления показывают, что при взаимодействии алмазной частицы с размером $l = 4 \dots 20$ нм с зародышем размером $l_0 \approx 0.3$ нм соотношение (1) выполняется с точностью до 1.5–3 раз.

Будем рассматривать (1) как аналог соотношения неопределенностей [11] для координаты и импульса в пространстве размеров кластеров. Из (1) следует, что приращение координаты пропорционально корню квадратному из приращения времени: $\Delta l \propto \sqrt{\Delta t}$. Процесс роста l формально не имеет аналитической производной, а показатель дробной производной равен $\frac{1}{2}$. Тогда рост размеров кластеров можно рассматривать как стохастический винеровский процесс, аналогичный диффузионным процессам, исследованным в [2, 12, 13]. Для описания его с помощью любой аналитической функции $F(l)$ следует применять дифференциал Ито $dF = F' dl + \frac{1}{2} F'' (dl)^2$.

С учетом сказанного выше уравнение эволюции функции ρ запишем в приближенном безразмерном виде

$$\frac{\partial \varphi(\xi, \tau)}{\partial \tau} + \psi(\tau) \frac{\partial \varphi(\xi, \tau)}{\partial \rho} - \frac{1}{2} \beta \frac{\partial^2}{\partial \xi^2} [\varphi(\xi, \tau) \cdot \xi^{-3}] \approx 0. \quad (3)$$

Здесь $\xi = \frac{l}{l_0}$, $\tau = \frac{t}{t_0}$, t_0 – характерный масштаб времени процесса агрегации, $\psi(\tau) = \frac{d\langle \xi \rangle}{d\tau} = \frac{t_0}{l_0} \frac{d\langle l \rangle}{dt}$, $\beta \approx \frac{ht_0}{4\pi m_0 l_0^2}$, m_0 – масса зародыша. Среднюю скорость ψ по аналогии с [14] можно выразить как степенную функцию от τ : $\psi(\tau) = K_1 \tau^y$, K_1 и y – константы, $y < 0$ (из физического условия ограниченности ψ при больших τ). Произведя стандартное разделение переменных $\varphi(\xi, \tau) = T(\tau) \cdot P(\xi)$ [15], получаем частные решения уравнения (3) в случае больших ($\xi \gg 1$) и малых ($\xi < 1$) кластеров:

$$P_{\lambda} \approx C(\lambda) \cdot \exp[-\lambda^2(\xi - \langle \xi \rangle)], \quad \langle \xi \rangle = K\tau^z + \langle \xi \rangle_0, \quad \xi \gg 1; \quad (4)$$

$$\varphi_{\lambda} \approx B \cdot \xi^3 \cdot \left(1 - \frac{\lambda^2 \cdot \xi^5}{20}\right) \cdot \exp\left(-\frac{\lambda}{2} \beta r\right), \quad B = \text{const}, \quad \xi < 1. \quad (5)$$

Здесь $C(\lambda)$ – функция от произвольного действительного числа λ , $K = \frac{K_1}{z}$, $z = y + 1 < 1$, $\langle \xi \rangle_0$ – приведенный средний размер кластеров в начальный момент $\tau = 0$. Частное решение (4) для больших кластеров представляет собой бегущую в пространстве размеров волну плотности, автомодельную по переменной $\xi - \langle \xi \rangle$. Общее решение уравнения (3) для больших кластеров можно получить, записав его как сумму частных решений (4):

$$\varphi(\xi, z) \approx \int_{-\infty}^{\infty} C(\lambda) \exp[-\lambda^2 (\xi - \langle \xi \rangle)] d\lambda = A \cdot (\xi - \langle \xi \rangle)^{-3}, \quad \xi \gg 1. \quad (6)$$

Функция $C(\lambda)$ из соображений размерности выбрана в виде, удовлетворяющем закону сохранения массы в консервативной системе:

$$C(\lambda) = \frac{A}{2\lambda} \lambda^5, \quad A = \text{const}. \quad \text{Сравнивая (6) с асимптотическим рас-}$$

пределением $\varphi_f \propto l^{-3}$ получаем, что в конце процесса должно быть $\langle \xi \rangle_f \ll \xi_{\max}$. Функция плотности распределения имеет затянутый в сторону больших размеров хвост. Из закона сохранения массы следует, что максимальный размер кластеров в замкнутой системе – ограниченная величина (см. [1]). При малых $\xi < 1$ плотность распределения продуктов развала зародышей приблизительно пропорциональна их массам. Отмеченные особенности поведения φ не противоречат экспериментальным данным [3–6] для указанных выше примеров образования кластеров.

Вид функции φ вблизи максимума кривой плотности распределения по размерам приближенно можно определить, опустив в (3) члены с первой производной по ξ (в малой окрестности локального максимума аналитическая функция изменяется слабо: $\frac{\partial \varphi}{\partial \xi} \approx 0$). Для пространственного сомножителя $P(\xi)$ получаем уравнение

$$\frac{d^2 P}{d\xi^2} + \left(\frac{12}{\xi^2} + \frac{2\lambda^2 \xi^3}{\beta} \right) P = 0. \quad (7)$$

Решая (7) методом ВКБ, находим (см. [16, 17]):

$$P(\xi) \approx \frac{\delta \cdot \xi^{5/4}}{\sqrt[4]{a^2 + \xi^5}} \cdot \sin \left[\sqrt{a^2 + \xi^5} - \frac{a}{2} \cdot \ln \left(\frac{\sqrt{a^2 + \xi^5} + a}{\sqrt{a^2 + \xi^5} - a} \right) \right] + \text{const}, \quad (8)$$

где $\delta = \frac{2\sqrt{2} \cdot \sqrt{\lambda}}{5 \cdot \sqrt{\beta}}$, $a^2 = \frac{6\beta}{\lambda^2}$. Условие максимума функции (8) имеет вид

$$\sqrt{a^2 + \xi_n^5} - \frac{a}{2} \ln \left(\frac{\sqrt{a^2 + \xi_n^5} + a}{\sqrt{a^2 + \xi_n^5} - a} \right) + const = \left(n + \frac{1}{2} \right) \bar{x}, \quad n = 0, 1, \dots, \quad (9)$$

где ξ_n — координаты максимумов. Функция $\rho(\xi)$ в общем случае может иметь несколько локальных максимумов. Такой характер носит распределение по массам продуктов глубоко неупругих ядерных реакций $^{63}\text{Cu} + ^{197}\text{Au}$ [6].

Таким образом, полученные приближенные решения уравнений (3) позволяют качественно верно описать поведение функции ρ плотности распределения по размерам компактных кластеров различной физической природы.

Автор благодарен М.В. Горбатенко за внимание к работе.

С п и с о к л и т е р а т у р ы

- [1] Л и н Э.Э. // Письма в ЖТФ. 1992. Т. 18. В. 15. С. 82–85.
- [2] Д м и т р и е в В.П. Стохастическая механика. М.: Высшая школа, 1990. 64 с.
- [3] А н и с и ч к и н В.Ф., М а л ь к о в И.Ю., Т и т о в В.М. // ДАН СССР. 1988. Т. 303. В. 3. С. 625–627.
- [4] М а л ь к о в И.Ю. // ФГВ. 1991. Т. 27. В. 5. С. 136–140.
- [5] П е т р о в Ю.И. Физика малых частиц. М.: Наука, 1982. 360 с.
- [6] В а л а н т ь е н Л. Субатомная физика: ядра и частицы. Т. 2. М.: Мир, 1986. 330 с.
- [7] Ф о л ь м е р М. Кинетика образования новой фазы. М.: Наука, 1986. 206 с.
- [8] Ц я н ь С ю э с е н ь. Физическая механика. М.: Мир, 1965. 544 с.
- [9] Я к у б о в Т.С. // ДАН СССР. 1990. Т. 310. В. 1. С. 145–149.
- [10] О б р е и м о в И.В. ФЭС. Т. 1. М.: Советская энциклопедия, 1960. С. 41.
- [11] Ф о н Н е й м а н. Математические основы квантовой механики. М.: Наука, 1964. 368.
- [12] З е л ь д о в и ч Я.Б., С о к о л о в Д.Д. // УФН. 1985. Т. 146. В. 3. С. 493–506.
- [13] П у г а ч е в В.С., С и н и ц ы н И.Н. Стохастические дифференциальные системы. М.: Наука, 1990. 632 с.
- [14] Э р н с т М. В сб.: Фракталы в физике. М.: Мир, 1988. С. 399–429.
- [15] К о р н Г., К о р н Т. Справочник по математике для научных работников и инженеров. М.: Наука, 1973. 832 с.

- [16] Мэтьюз Дж., Уолкер Р. Математические методы физики. М.: Атомиздат, 1972. 400 с.
- [17] Двайт Г.Б. Таблицы интегралов и другие математические формулы. М.: Наука, 1973. 228 с.

Поступило в Редакцию
8 февраля 1993 г.