Письма в ЖТФ, том 18, вып. 16 12 августа 1992 г.

01; 05.3

АГРЕГАЦИЯ КВАНТОВЫХ КОМПАКТНЫХ КЛАСТЕРОВ В КОНСЕРВАТИВНЫХ СТОХАСТИЧЕСКИХ СИСТЕМАХ

Э.Э. Лин

Для исследования кинетики образования кластеров обычно применяется уравнение коагуляции Смолуховского, описывающее взаимодействия как больших кластеров между собой, так и больших кластеров с малыми [1, 2].

В данной работе предпринята попытка рассмотреть необратимую агрегацию компактных кластеров с выраженными квантовыми свойствами как винеровский процесс. Введем аналитическую функцию $\varphi(l, t)$ плотности распределения кластеров по размерам l в момент времени t. По аналогии с [3] эволюцию φ будем описывать с помощью стохастического переднего уравнения Фоккера-Планка, записанного в пространстве размеров l ($t > 0$):

$$\frac{\partial\varphi(l,t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial l}\left[\varphi(l,t)\cdot v\right] - \frac{1}{2}\frac{\partial^2}{\partial l^2}\left[\varphi(l,t)\cdot \nu\right] = 0, \tag{1}$$

где $v = \frac{\langle dl\rangle}{dt}$ – средняя скорость кинематического переноса φ, $\nu = \frac{\langle (dl)^2\rangle}{dt} \sim \frac{h}{4\pi m}$ – коэффициент диффузии, h – постоянная Планка, $m = \rho_0 l^3 \alpha$ – масса кластера, ρ_0 – плотность вещества, α – фактор геометрической формы кластера (например, у куба $\alpha = 1$, у шара $\alpha = \pi/6$). Функция φ с ограниченными производными удовлетворяет заданному начальному условию $\varphi(l,0) = \varphi_0(l)$, стандартному условию нормировки на полное число кластеров, а также условию сохранения полной массы M_0 вещества в консервативной системе:

$$M_j(t) + M_i(t) = M_j(t) + \rho_0\alpha\int_0^{l_{max}} l^3\cdot\varphi(l,t)\,dl = M_0 \equiv const. \tag{2}$$

Здесь $M_j(t)$ – текущая масса „исходного" материала, например, зародышей с размером l_0, интеграл M_i – масса кластеров, l_{max} – максимальный размер кластеров в системе.

В конце процесса необратимой агрегации (при $t \to t_f$, t_f – момент окончания агрегации) масса исходного материала исчезающе мала и первым членом в (2) можно пренебречь. Массу кластеров приближенно можно рассматривать как интеграл движения ($\Delta M_i(t \to t_f) = 0$) и условие сохранения (2) переписать в следующем виде:

$$\lim_{t \to t_f} \Delta \left[l^3 \cdot \varphi(l,t) \right] = 0. \qquad (3)$$

Раскрывая (3) по правилам взятия дифференциалов Ито [4], находим, что в конце процесса необратимой агрегации плотность распределения больших кластеров обратно пропорциональна их массам:

$$\varphi_f \propto l^{-3} \propto m^{-1} \; (l \gg l_0). \qquad (4)$$

Вид распределения (4) не зависит от начальных условий в консервативной системе, от конкретного характера взаимодействия кластеров и отличается от „универсального экспоненциального хвоста" [2].

Асимптотическое решение уравнения (1) в случае больших кластеров может быть записано в виде:

$$\varphi \propto \left(\frac{l}{l_0} - \left\langle \frac{l}{l_0} \right\rangle \right)^{-3}, \quad \frac{l}{l_0} \gg 1, \qquad (5)$$

где средний размер $\langle l \rangle$ кластеров растет со временем по степенному закону

$$\langle l \rangle = l_0 \cdot K \cdot \left(\frac{t}{t_0} \right)^{z} + \langle l \rangle_0, \quad z < 1. \qquad (6)$$

Здесь $\langle l \rangle_0$ – средний размер кластеров в момент $t = 0$, задаваемый начальным распределением $\varphi_0(l)$, t_0 – характерный масштаб времени процесса агрегации, K и z – постоянные. Сравнивая распределения (4) и (5) находим, что в конце процесса агрегации кластеров из малых зародышей ($l_0 \ll l$) средний размер много меньше максимального размера: $\langle l \rangle_f \ll l_{max}$.

Из оценочного выражения для коэффициента диффузии $\gamma = \frac{(\Delta \langle l \rangle)^2}{\Delta t} \sim \frac{h}{4\pi m}$, где $\Delta \langle l \rangle$ – приращение среднего размера, выражаемое в виде разложения Тейлора $\Delta \langle l \rangle = \frac{d\langle l \rangle}{dt} \cdot \Delta t + \ldots$,

и из закона роста (6) можно получить следующее соотношение для определения постоянных K и z:

$$z^2 \cdot K^{2/z} \sim \frac{h t_0^2}{4\pi m_0 l_0^2 \Delta t} \cdot \left(\frac{\langle l \rangle}{l_0} \right)^{2/z - 5}. \qquad (7)$$

Здесь $\Delta t \equiv t_i$ – время взаимодействия кластера с зародышем до образования устойчивых связей, m_0 – масса зародыша.

Величина z находится из условия $K \equiv Const$, т.е. правая часть соотношения (7) не должна зависеть от $\langle l \rangle$.

Асимптотические распределения (4), (5) находятся в соответствии с экспериментальной кривой [5] плотности распределения по размерам частиц ультрадисперсных алмазов с $l \cong 4...10$ нм, синтезированных при детонации твердых взрывчатых веществ, а также с экспериментальными распределениями по массам ядер тяжелых элементов с атомным числом А $\gtrsim 100$, образовавшихся в результате глубоконеупругих реакций $^{63}Cu + ^{197}Au$ [6].

Предельный закон роста (6), (7) среднего размера алмазных кластеров в детонационной волне при $t_0 \equiv t_i$ имеет вид

$$\langle l \rangle \sim l_0 \left(\frac{25k\theta}{16\pi m_0 l_0^2} \exp\left(\frac{\varepsilon_v - \varepsilon_0}{2kT} \right) \right)^{1/5} \cdot t^{2/5}.$$

Экспоненциальный множитель в (8) представляет собой среднее число обменов местами зародыша на поверхности кластера до образования устойчивых связей [7], ε_0 – энергия зародыша в окружающей среде, определяемая спектром колебаний атомов в многоатомных молекулах [8], ε_v – энергия зародыша в объеме кластера, определяемая спектром колебаний кристаллической решетки кластера [9, 10, 11] с дебаевской температурой θ, k – постоянная Больцмана, Т – температура в системе. В качестве зародыша алмазной фазы можно рассмотреть шестиатомную молекулу углеродного скелета циклогексана [12]. Тогда оцененное по формуле (8) время образования алмазных частиц с размером $l_* \approx 4$ нм, соответствующим максимуму экспериментального распределения [5], составляет $t_* \sim 2 \cdot 10^{-9}$ с. Отсюда следует, что значительная доля частиц детонационных алмазов может синтезироваться во фронте ударной волны.

Характерное время t_i единичного акта взаимодействия ядер в глубоко неупругих процессах можно оценить из приближенного выражения для коэффициента диффузии $\frac{(\Delta l)^2}{\Delta t} \sim \frac{h}{4\pi m}$, где Δl – приращение размера ядра, $\Delta t \equiv t_i$. Приняв по порядку величин $\Delta l \sim 10^{-13}$ см (т.е. порядка характерного радиуса сильного взаимодействия), $m \sim 10^{-22}$ г (масса тяжелого ядра с А ~ 100) получаем $t_i \sim 10^{-21}$ с. Эта величина примерно на два порядка больше характерного масштаба времени сильного взаимодействия, что связано с влиянием кулоновского потенциального барьера в месте контакта ядер при их столкновении на процесс диффузии протонов из одного ядра в другое.

Предложенный подход расширяет возможности исследования процессов в замкнутых системах кластеров с выраженными коллективными квантовыми свойствами.

Автор благодарит Н.А. Дмитриеву за ценные критические замечания, а также Б.А. Выскубенко и Э.Н. Пащенко за внимание к работе.

Список литературы

[1] Эрнст М. // Сб. „Фракталы в физике. М.: Мир, 1988 с. 399–429.
[2] Ван Донген П., Эрнст М. // Сб. Фракталы в физике. М.: Мир, 1988. С. 430–439.
[3] Дмитриев В.П. Стохастическая механика. М.: Высшая школа, 1990. 64 с.
[4] Пугачев В.С., Синицын И.Н. Стохастические дифференциальные системы. М.: Наука, 1990. 632 с.
[5] Титов В.М., Анисичкин В.Ф., Мальков И.Ю. // ФГВ. 1989. Т. 25. № 3. С. 117-126.
[6] Валантэн Л. Субатомная физика: ядра и частицы. М.: Мир. 1986. Т. 2. 330 с.
[7] Фольмер М. Кинетика образования новой фазы. М.: Наука, 1986. 206 с.
[8] Цянь Сюэ-Сень. Физическая механика. М.: Мир, 1965. 544 с.
[9] Якубов Т.С. // Докл. АН СССР. 1990. Т. 310. № 1. С. 145-149.
[10] Петров Ю.И. Физика малых частиц. М.: Наука, 1982. 360 с.
[11] Рычков С.Н. Некоторые физические свойства малых частиц. // Сб. „Ультрадисперсные материалы. Получение и свойства . Красноярск, КрПи. 1990. С. 64–78.
[12] Обреимов И.В. // ФЭС.М.: Советская энциклопедия 1960. Т. 1. С. 41.

Поступило в Редакцию
17 июля 1992 г.