

Фазовые переходы в системе нестабильных частиц

© В.И. Сугаков

Институт ядерных исследований Академии наук Украины,
252028 Киев, Украина

(Поступила в Редакцию 8 октября 1997 г.)

Изучены процессы расслоения на фазы системы частиц, генерируемые с постоянной скоростью и имеющих конечное время жизни. Показано, что 1) расслоение на фазы возможно при времени жизни частиц большем некоторого критического значения; 2) разница плотностей частиц в фазах зависит от времени жизни частиц; 3) корреляционная функция в двухфазной области осциллирует (затухая) как функция пространственных координат, что свидетельствует о корреляции в расположении фаз.

Обычно фазовые переходы наблюдаются и исследуются в системах частиц, время жизни которых бесконечно. Однако в физике существует большое количество явлений, в которых внешней накачкой создаются нестабильные частицы (или квазичастицы в кристаллах), имеющие конечное время жизни. Примерами таких систем могут служить: 1) электронно-дырочная жидкость в полупроводниках [1,2]; 2) диэлектрическая жидкость экситонов в кристаллах [3,4]; 3) сильно возбужденный газ, возбужденные атомы (молекулы) которого вследствие резонансного взаимодействия притягиваются к невозбужденным, что может привести к образованию новой фазы [5–7]; 4) система вакансий и междоузлий в кристаллах [8,9] и другие. В случаях 1–3 частицы (электроны и дырки, экситоны, возбужденные молекулы) создаются внешней световой накачкой, большая концентрация частиц в случае 4 (вакансий и междоузлий) может быть создана потоком высокоэнергетических частиц (протонов, нейтронов, ионов и др.), при этом наблюдаются процессы объединения вакансий (образования пор), процессы расслоения на разные фазы в многокомпонентных системах. Во всех приведенных случаях частицы (квазичастицы) живут конечное время: возбужденные молекулы и экситоны имеют естественное время жизни и, кроме того, разрушаются при разнообразных взаимодействиях; электроны и дырки, а также вакансии и междоузельные атомы захватываются на ловушки и стоки, рекомбинируют между собой.

При не зависящей от времени скорости генерации частиц в системе устанавливается стационарное состояние, в котором число рождаемых частиц в единицу времени равно числу погибших. Обычно при исследовании вышеназванные системы рассматриваются как равновесные с концентрацией, равной стационарной концентрации, созданной внешней облучением. Если концентрация частиц достаточно велика и между ними имеется притяжение, то в такой системе возможно существование различных фаз, при этом фазовое состояние будет меняться при изменении плотности частиц, т.е. фактически при изменении скорости их генерации. В определенной области концентраций частиц их полное число недостаточно для образования новой фазы во всем объеме системы. Тогда система разбивается на области с разными фазами.

Задача о свойствах такой системы подобна задаче о спиновом распаде в системе стабильных частиц. Типичная фазовая диаграмма (температура–концентрация) при спиновом распаде представлена на рис. 1. В области 1 существует одна фаза, в области 2 — две. Система, будучи в определенном состоянии при однородном распределении частиц и при высокой температуре (например, в точке *A*), быстро переводится в осажденное состояние (точку *B*), в котором возможно существование двух фаз. Дальнейшая динамика системы состоит в расслоении системы на фазы, состояние которых определяется точками c_1 и c_2 . Динамика системы при спиновом распаде, впервые рассмотренная в работах [10–13], детально изучена благодаря работам [14–17]. При $t \rightarrow \infty$ устанавливается стационарное состояние, в котором система расслаивается на бесконечно большие области различных фаз, в каждой из которых происходят флуктуации концентрации, так же как в данной фазе бесконечных размеров.

В рассматриваемой задаче о возникновении фаз в системе постоянно генерируемых нестабильных частиц внешним источником также создается однородное распределение частиц, которое соответствует, например, состоянию системы в точке *B*. В дальнейшем, как и при спиновом распаде, происходит расслоение фаз и движение системы к состоянию с фазами c_1 и c_2 . Однако вследствие конечности времени жизни частиц расслоение может произойти в меньшей степени или не произойти вообще, т.е. возникшее стационарное состояние является неравновесным, должно существенно зависеть от времени жизни частиц и может сильно отличаться от стационарного состояния, полученного из спиновой динамики для стабильных частиц. В данной работе изучаются характеристики состояния (функция распределения, корреляционная функция) в системе с нестабильными частицами. Очевидно, роль нестабильности зависит от соотношения времени жизни частицы и времени, необходимого для установления равновесия. Время установления равновесия можно разделить на время установления локального равновесия и время установления равновесия в пространстве. Последнее время велико по сравнению с первым и играет важную роль в области концентраций, при которых существует разделе-

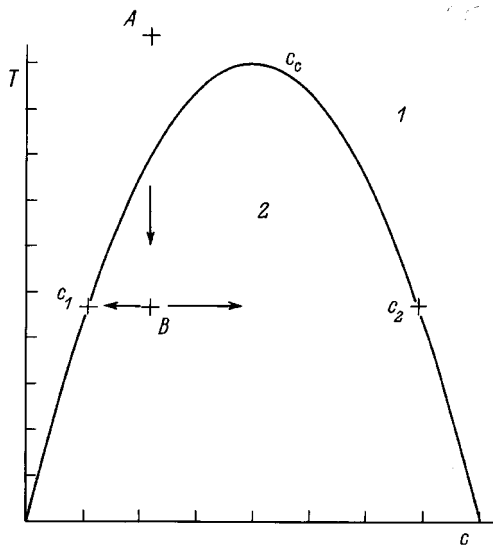


Рис. 1. Типичная фазовая диаграмма температура — концентрация для стабильных частиц.

ние фаз (в так называемой диффузионно-контролируемой области — в области между точками c_1 и c_2 на рис. 1). В данной области конечность времени жизни может играть важную роль, и эта область будет исследована в дальнейшем. Поскольку изучаемые фазовые состояния существуют только в неравновесных условиях (при наличии внешнего воздействия, создающего частицы), они являются, согласно терминологии Пригожина [18], диссипативными структурами.

1. Нахождение функции распределения частиц по плотности

Итак, рассматривается система частиц, которые взаимодействуют между собой, непрерывно создаются внешним источником и живут конечное время. Состояние системы в общем случае описывается функцией распределения $\rho(c(\mathbf{r}))$, зависящей от плотности частиц $c(\mathbf{r})$, которая является параметром порядка. Для нахождения $\rho(c(\mathbf{r}))$ следует решать кинетическое уравнение, детальный вид которого зависит от вида межчастичного взаимодействия. С целью рассмотрения задачи в более общем виде и на примере хорошо изученной в различных приложениях модели мы будем представлять зависимость свободной энергии от флуктуирующих полей $c(\mathbf{r})$ в форме Гинзбурга–Ландау. Функциональное уравнение Фоккера–Планка записывается в виде

$$\frac{\delta \rho}{\delta t} = - \int d\mathbf{r} \frac{\delta(j_d + j_\tau)}{\delta c(\mathbf{r})}, \quad (1)$$

где j_d — поток вероятности вследствие диффузионных процессов,

$$j_d(\mathbf{r}) = M\Delta \left(\frac{\delta F}{\delta c(\mathbf{r})} + kT \frac{\delta \rho}{\delta c(\mathbf{r})} \right), \quad (2)$$

M — подвижность, F — свободная энергия в форме Гинзбурга–Ландау,

$$F(c) = \int d\mathbf{r} \left[\frac{1}{2} K(\nabla c)^2 + f(c) \right], \quad (3)$$

j_τ — поток вероятности, обусловленный рождением и гибелью частиц, который вводится в данной работе в уравнение динамики спиноподобного распада,

$$j_\tau = - \frac{c(\mathbf{r}) - c_0}{\tau} - \frac{1}{2} \frac{\delta \left[\left(G + \frac{c(\mathbf{r})}{\tau} \right) \rho \right]}{\delta c(\mathbf{r})}, \quad (4)$$

τ — время жизни частиц, $c_0 = G\tau$ — среднее значение числа частиц, G — скорость генерации частиц — число частиц, рождаемых в единицу времени в единице объема; в дальнейшем будем предполагать, что G не зависит от координат, т.е. образец настолько тонок, что величина накачки не меняется в его пределах.

Соотношение (4) может быть получено в модели рождения–гибели для системы с большим числом частиц. В данной работе не учитывается слагаемое, квадратичное по концентрации, связанное с двухчастичной рекомбинацией частиц. Это слагаемое может быть важным при высокой плотности частиц, и его роль будет проанализирована в дальнейшем.

Введем величину, характеризующую флуктуацию параметра порядка,

$$u(\mathbf{r}) = c(\mathbf{r}) - c_0. \quad (5)$$

Уравнение (1) соответствует следующему стохастическому уравнению для поля u :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = M\Delta \frac{\delta F}{\delta u(\mathbf{r})} - \frac{u}{\tau} + \eta(\mathbf{r}, t), \quad (6)$$

где $\eta(\mathbf{r}, t)$ — флуктуационный член.

Введем коррелятор

$$S(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t) = \langle u(\mathbf{r})u(\mathbf{r}') \rangle$$

и его Фурье-компоненту

$$S(\mathbf{k}) = \int d\mathbf{r} S(\mathbf{r}) \exp[-i\mathbf{k}\mathbf{r}]. \quad (7)$$

Умножая уравнение (1) на $u(\mathbf{r})u(\mathbf{r}')$ и интегрируя по пространству функций u , получим уравнение для $S(\mathbf{k})$

$$\begin{aligned} \frac{dS(\mathbf{k})}{dt} = & -2M \left[\left(k^2 \left(Kk^2 + \frac{\partial^2 f}{\partial c_0^2} \right) + \frac{1}{\tau} \right) S(\mathbf{k}) \right. \\ & \left. + \frac{1}{2} \frac{\partial^3 f}{\partial c_0^3} S_3 + \frac{1}{6} \frac{\partial^4 f}{\partial c_0^4} S_4 + \dots \right] \\ & + 2 \left(\frac{c_0}{\tau} + MkTk^2 \right), \end{aligned} \quad (8)$$

где

$$S_n(\mathbf{r} - \mathbf{r}') = \langle u^{n-1}(\mathbf{r})u(\mathbf{r}') \rangle. \quad (9)$$

Чтобы выполнить вычисления до конца, в дальнейшем воспользуемся аппроксимацией двухчастичной функции распределения ρ_2 через одночастичную ρ_1 , предложенной в работе [14],

$$\rho_2(u(\mathbf{r}), u(\mathbf{r}')) = \rho_1(u(\mathbf{r}))\rho_1(u(\mathbf{r}')) \times \left[1 + \frac{S(\mathbf{r} - \mathbf{r}')}{\langle u^2 \rangle^2} u(\mathbf{r})u(\mathbf{r}') \right]. \quad (10)$$

Дальнейшие вычисления аналогичны проведенным в [14] (следует только учесть член j_τ в уравнении (1)). В результате получим уравнение

$$\frac{dS(\mathbf{k})}{dt} = -2M \left(k^2(Kk^2 + A) + \frac{1}{\tau} \right) S(\mathbf{k}) + 2 \left(\frac{c_0}{\tau} + MkTk^2 \right), \quad (11)$$

где

$$A = \frac{\left\langle u \frac{\partial f(c_0 + u)}{\partial u} \right\rangle}{\langle u^2 \rangle}. \quad (12)$$

Таким образом, нахождение $S(\mathbf{k})$ сводится к вычислению определенного среднего значения на одночастичной функции распределения. Уравнение для одночастичной функции распределения в модели ячеек получим подобно тому, как это сделано в [14]. Опуская вычисления, подобные выполненным в [14], получим

$$\frac{\partial \rho_1}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial u} \left[D \left(\frac{\partial f}{\partial u} - \left\langle \frac{\partial f}{\partial u} \right\rangle - \frac{u \left\langle \frac{\partial f}{\partial u} \right\rangle}{\langle u^2 \rangle} \right) - W - \frac{u}{M\tau} \right] \rho_1 + \frac{1}{l^2} \frac{\partial \left(kTD - \frac{1}{2M} \left(\frac{2c_0 + u}{\tau} \right) \right) \rho_1}{\partial u}, \quad (13)$$

где l — линейный размер ячейки, d — размерность системы,

$$\langle u^2 \rangle = S(0) = \int du u^2 \rho_1(u), \quad (14)$$

$$\left\langle \frac{\partial f}{\partial u} \right\rangle = \int du \frac{\partial f}{\partial u} \rho_1(u), \quad (15)$$

$$W = \frac{l^d}{(2\pi)^d} \int d\mathbf{k} S(\mathbf{k})(Kk^2 + A), \quad (16)$$

D — диагональный элемент оператора, являющегося аналогом оператора Лапласа в ячеечном представлении, определяемого соотношением

$$\Delta \psi(\mathbf{r})|_{\mathbf{r}=\mathbf{n}} \rightarrow \sum_{\mathbf{n}'} D_{\mathbf{n}\mathbf{n}'} \psi(\mathbf{n}'),$$

$$D_{\mathbf{n}\mathbf{n}'} = -\frac{l^d}{(2\pi)^d} \int d\mathbf{k} k^2 \exp(i\mathbf{k}(\mathbf{n} - \mathbf{n}')).$$

Интегрирование здесь проводится по ячейке Вигнера-Зейца.

Представим функцию f в виде

$$f = \frac{a}{2}(\Delta c + u)^2 + \frac{b}{4}(\Delta c + u)^4, \quad (17)$$

где $\Delta c = c_0 - c_c$, c_c — критическая концентрация.

Введем безразмерные переменные

$$\tilde{u} = \frac{u}{(-a/b)^{1/2}}, \quad \tilde{\mathbf{r}} = \frac{\mathbf{r}}{\xi}, \quad \tilde{T} = \frac{kb}{a^2 l^d} T, \quad (18)$$

$$\tilde{\tau} = \frac{l^{d-2} M a^2}{(b(-a))^{1/2} \tau},$$

где $\xi = (-K/a)^{1/2}$ — корреляционная длина.

Размер ячейки выберем порядка размеров границ переходного слоя между фазами (l — величина порядка ξ [14,16]). Величина u в последнем слагаемом формулы (13) опускается по сравнению с $2c_0$ (величина u в максимумах распределения, как показано далее, мала при небольших τ , при больших τ член $2c_0 + u$ вообще несуществен).

Стационарное решение уравнений (11), (13)

$$S(\tilde{\mathbf{r}}) = \frac{1}{(2\pi)^d} \int \frac{\left(\frac{\tilde{c}_0}{\tilde{\tau}} + \tilde{T} \tilde{k}^2 \right) \exp(i\tilde{\mathbf{k}}\tilde{\mathbf{r}})}{\left(\tilde{k}^4 + A\tilde{k}^2 + \frac{1}{\tilde{\tau}} \right)} d\tilde{\mathbf{k}}, \quad (19)$$

$$\rho_1 = \rho_0 \exp \left\{ -\frac{f(\tilde{u}) - \tilde{u} \left\langle \frac{\partial f}{\partial \tilde{u}} \right\rangle - \frac{\tilde{u}^2}{2} \left(A - \frac{\tilde{T} + \tilde{c}_0/\tilde{\tau} \tilde{D}}{\langle \tilde{u}^2 \rangle} \right)}{\tilde{T} + \tilde{\tau}_0/\tilde{\tau} \tilde{D}} \right\}, \quad (20)$$

где $\tilde{D} = |D|/l^2$, в одномерном случае $\tilde{D} = \pi^2/3$, в трехмерном $\tilde{D} = 3(3\pi^2)^{2/3}$.

Алгоритм определения параметров функции распределения (20) следующий. Величина $\langle \tilde{u}^2 \rangle = S(0)$ с использованием (19) выражается через A . После этого одночастичная функция распределения содержит два параметра: A и $\langle \partial f / \partial \tilde{u} \rangle$. Тогда уравнения (12) и (15) после подстановки явного вида функции распределения ρ_1 (20) представляют собой систему двух трансцендентных уравнений с двумя неизвестными A и $\langle \partial f / \partial \tilde{u} \rangle$. В дальнейшем эта система решалась численно.

2. Расчеты, анализ, обсуждение

По указанному выше алгоритму в работе рассчитывались $\rho_1(\tilde{u})$, $S(\tilde{\mathbf{r}})$, $S(\tilde{\mathbf{k}})$ в зависимости от $\tilde{\tau}$, \tilde{T} , \tilde{c}_0 . Наличие фазовых переходов в системе определялось по появлению (исчезновению) максимумов в зависимости $\rho_1(\tilde{u})$.

На рис. 2 показана одночастичная функция распределения в трехмерном случае при различных значениях $\tilde{\tau}$ при накачке, такой, что $\Delta c = 0$, т.е. накачкой создается концентрация, которая при бесконечном времени жизни квазичастиц соответствовала бы критической ($c_0 = c_c$) (рис. 1). При малых $\tilde{\tau}$ функция распределения имеет

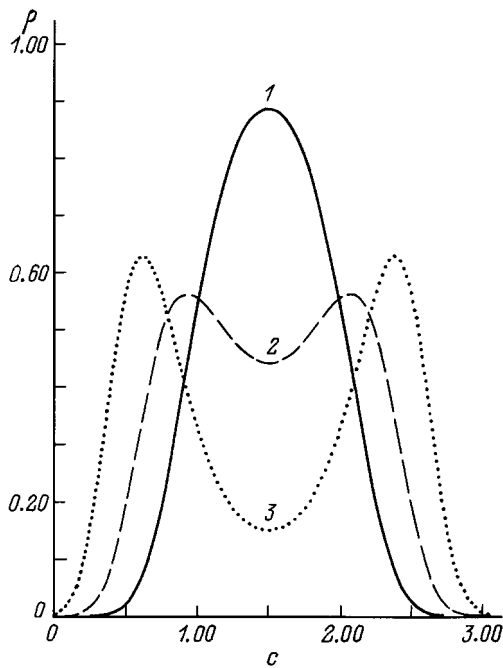


Рис. 2. Зависимость одночастичной функции распределения от плотности при $\tilde{T} = 0.1$, $\tilde{c}_0 = \tilde{c}_c = 1.5$ для различных значений времени жизни $\tilde{\tau}$: 1 — 10, 2 — 30, 3 — 1000 (трехмерный случай).

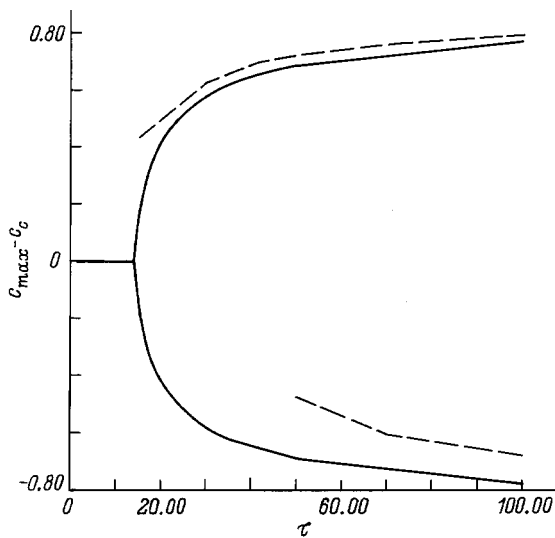


Рис. 3. Зависимость положения максимумов в одночастичной функции распределения в трехмерном случае от времени жизни частиц при $\tilde{T} = 0.1$ для различных значениях стационарной концентрации. $\tilde{c}_0 = 1.5$ (сплошная кривая) и 1.8 (штриховые кривые).

один максимум, и расслоения системы на фазы не происходит (кривая 1 на рис. 2). С ростом $\tilde{\tau}$ при некотором $\tilde{\tau} > \tilde{c}$ в функции распределения возникают два максимума (кривые 2, 3 на рис. 2), расстояние между которыми растет и положения которых стремятся к значениям $\tilde{u}_{\max} \approx \pm 1$ при $\tau \rightarrow \infty$. Появление двух максимумов

свидетельствует о разделении системы на фазы. Таким образом, разделение фаз возможно лишь в том случае, когда время жизни квазичастиц больше некоторого значения. Конечность времени жизни существенно сужает область концентраций, в которой происходит разделение фаз. Критическое значение $\tilde{\tau}$, при котором происходит разделение фаз, зависит от Δc (рис. 3, трехмерный случай). Оно наименьшее при $\Delta c = 0$. Кроме того, плотность частиц в фазах отличается от равновесного значения ($\tilde{u} \approx \pm 1$) и зависит от времени жизни. Из рис. 3 видно, что после возникновения двух фаз значение плотности в фазах сначала зависит от $\tilde{\tau}$ сильно, а затем очень слабо. Также видно, что независимо от накачки (C_0) при $\tau \rightarrow \infty$ плотность частиц в фазах стремится к одинаковым (равновесным) значениям. Однако достижение равновесного значения происходит при очень больших временах жизни.

Рис. 4 демонстрирует изменение функции распределения при фиксированном $\tilde{\tau}$ с увеличением накачки (концентрации частиц), т.е. при движении от точки c_1 к c_2 (рис. 1). При малых накачках существует один максимум в функции распределения (кривая 1), затем возникает второй максимум, с ростом накачки его величина растет и при некоторых накачках первый максимум исчезает и остается лишь второй (кривая 5).

Корреляционная функция $S(z)$ в области расщепления фаз осциллирует, затухая, как функция z (рис. 5). Это означает, что существует корреляция в расположении фаз. Период осцилляций при заданном τ зависит от накачки. Он минимален при накачках, таких, что $\Delta c = 0$. С ростом τ период увеличивается и стремится к беско-

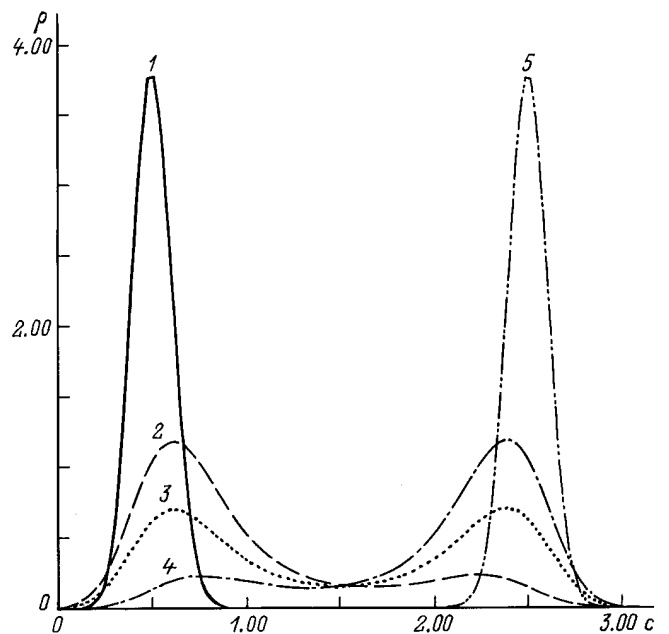


Рис. 4. Зависимость одночастичной функции распределения от плотности при $\tilde{T} = 0.1$, $\tilde{\tau} = 1000$ для различных значений концентрации \tilde{c}_0 (накачки): 1 — 0.5, 2 — 1.0, 3 — 1.5, 4 — 2.0, 5 — 2.5 (трехмерный случай).

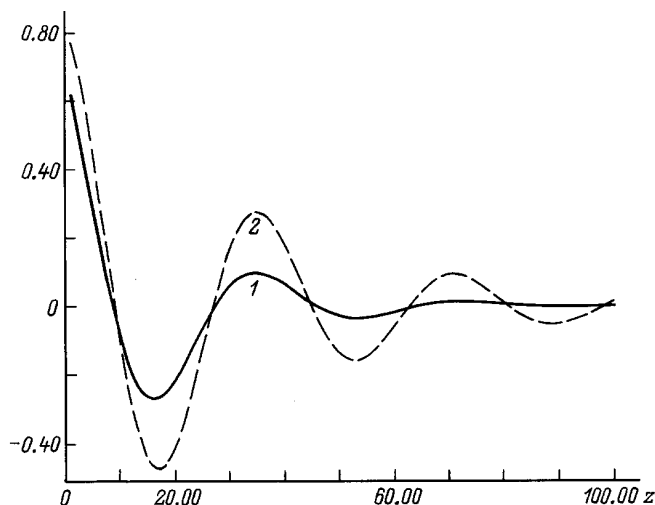


Рис. 5. Зависимость корреляционной функции от координат при заданной стационарной концентрации $\tilde{c}_0 = \tilde{c}_c = 1.5$, $\tilde{\tau} = 1000$ в одномерной системе для различных температур. $\tilde{T} = 0.05$ (штриховая кривая) и 0.1 (сплошная кривая).

нечности. Для спиноподобного распада в системе стабильных частиц возникновение периодичности было показано Каном и Хиллертом [10–13]. Дальнейшие строгие исследования показали [14–17], что при $t \rightarrow \infty$ для стабильных частиц система стремится к состоянию с бесконечно большими доменами и существование периодичности возможно лишь на определенных временах спиноподобного распада. В то же время в изучаемой в данной работе системе нестабильных частиц большие домены не успевают установиться, и образуется периодическое расположение фаз в стационарном состоянии. При $\tau \rightarrow \infty$ приходим к системе стабильных частиц, для которых периодичность отсутствует. Возникновение периодичности в стационарном состоянии в системе постоянно генерируемых нестабильных частиц (экситонов при световом возбуждении [19], вакансий и междоузлий при воздействии на кристалл ядерного облучения [20]) рассматривалось ранее без учета флуктуаций. Учет флуктуаций приводит к затуханию корреляционной функции. Затухание уменьшается с понижением температуры. Зависимость $S(z)$ в случае одномерной системы для двух температур представлена на рис. 5.

Работа выполнена при частичной поддержке Государственного фонда фундаментальных исследований Министерства науки Украины и CRDF США.

Список литературы

- [1] Л.В. Келдыш. Тр. IX Междунар. конф. по физике полупроводников. Наука, М. (1969). Т. 2. С. 1384.
- [2] Т. Райс, Дж. Хенсел, Е. Филлипс, Г. Томас. Электронно-дырочная жидкость в полупроводниках. Мир, М. (1980).
- [3] А.П. Силин. ФТТ **19**, 1, 134 (1977).

- [4] I.S. Gorban, M.M. Biliy, I.M. Dmitruk, O.A. Yesenko. Solid State Commun. **98**, 6, 489 (1996).
- [5] В.Н. Мальнев, С.И. Пекар. ЖЭТФ **51**, 6, 1811 (1966).
- [6] Ю.А. Вдовин. ЖЭТФ **54**, 445 (1968).
- [7] I.R. Yuchnovskii, O.V. Derzhko, K.K. Levitskii. Physica **A203**, 3–4, 381 (1993).
- [8] K.C. Russell. Prog. Mater. Sci. **28**, 229 (1984).
- [9] G. Martin. Phys. Rev. **B21**, 2122 (1980).
- [10] J.W. Cahn, J.E. Hillard. J. Chem. Phys. **28**, 258 (1958).
- [11] J.W. Cahn. Acta Met. **9**, 9, 795 (1961).
- [12] M.A. Hillert. Acta Met. **9**, 6, 525 (1961).
- [13] J.W. Cahn. Acta Met. **10**, 3, 179 (1962).
- [14] J.S. Langer, M. Bar-on, H.D. Miller. Phys. Rev. **A11**, 4, 1147 (1975).
- [15] K. Bidner. Phys. Rev. **B15**, 9, 4425 (1977).
- [16] G.F. Mazenko, O.T. Valls, M. Zannetti. Phys. Rev. **B38**, 520 (1988).
- [17] G.F. Mazenko. Phys. Rev. **B43**, 5747 (1991).
- [18] Г. Николис, И. Пригожин. Самоорганизация в неравновесных системах. М. (1979).
- [19] В.И. Сугаков. ФТТ **28**, 8, 2441 (1986).
- [20] V.I. Sugakov. In: Effects of Radiation on Materials: 14th Int. Symp. ASTM STP 1046 / Ed. N.H. Packan. American Society for Testing and Materials, Philadelphia (1989). V. 1. P. 510–527.