

П. Аргиракис, профессор; Е. Арапаки, науч. сотрудник (Университет имени Аристотеля, г. Салоники, Греция); Я. Г. Грода, канд. физ.-мат. наук

ДИФФУЗИЯ НЕВЗАИМОДЕЙСТВУЮЩЕГО РЕШЕТОЧНОГО ГАЗА НА ДВУХМЕРНОЙ СТАТИЧЕСКИ НЕУПОРЯДОЧЕННОЙ РЕШЕТКЕ

Diffusion properties of noninteracting lattice gases on a static disordered square lattice are investigated. It was established that the expressions for the corresponding regular lattices can be used for description of diffusion properties of disordered systems. It is shown that diffusion coefficients of disordered systems can be represented through those on the regular lattice.

Введение

В работах [1–4] было отмечено, что одним из простейших способов описания неупорядоченных систем является использование решеточной модели барьеров, в которой величины межузельных барьеров зависят от положения узлов и в общем случае от времени. Рассмотрение процесса диффузии невзаимодействующего решеточного газа на одномерной неупорядоченной решетке, проведенное в [5], показало, что хотя коллективная диффузия в такой системе носит обычный характер, одночастичная диффузия меченых атомов является аномальной:

$$\langle R^2 \rangle \approx D_{tr} t^\gamma, \quad (1)$$

где $\gamma \approx 0,5$. Также следует отметить обнаруженные количественные различия в диффузионных характеристиках статически и динамически неупорядоченных систем.

В настоящей работе с помощью развитых ранее аналитических подходов и метода компьютерного моделирования решеточных систем проведено рассмотрение процесса диффузии невзаимодействующего решеточного газа на плоской квадратной статически неупорядоченной решетке.

1. Коллективная диффузия системы

В работе [5] показано, что в случае барьеров, равномерно распределенных в интервале $2\delta\epsilon$, для кинетического коэффициента диффузии может быть записано следующее выражение:

$$D_J = D_0 \exp(-\beta\epsilon_0) \times \frac{\exp(\beta\mu)}{c} P(0;0) \frac{\sinh(\beta\delta\epsilon)}{\beta\delta\epsilon}, \quad (2)$$

где

$$D_0 = \frac{za^2}{2d} v, \quad \beta = \frac{1}{k_B T}, \quad (3)$$

z – число ближайших соседей; d – размерность пространства; a – расстояние между узлами решетки (длина прыжка частицы); k_B – постоянная Больцмана; T – температура; v – частота, имеющая порядок частоты колебаний частицы вблизи узла решетки и определяющая временную шкалу

диффузионных процессов; ϵ_0 – средняя величина межузельного барьера; μ и c – равновесное значение химического потенциала системы и концентрации частиц, соответственно; $P(0;0)$ – вероятность двум ближайшим узлам быть вакантными; $\delta\epsilon$ – максимальное отклонение высоты энергетического барьера ϵ_{ij} от среднего значения:

$$\epsilon_0 - \delta\epsilon \leq \epsilon_{ij} \leq \epsilon_0 + \delta\epsilon. \quad (4)$$

Входящие в соотношение (2) равновесные значения химического потенциала и функции вероятности могут быть вычислены с помощью диаграммного приближения [6]. Для системы невзаимодействующих частиц точные значения записываются в следующем виде:

$$\beta\mu = \ln c/(1-c), \quad P(0;0) = (1-c)^2. \quad (5)$$

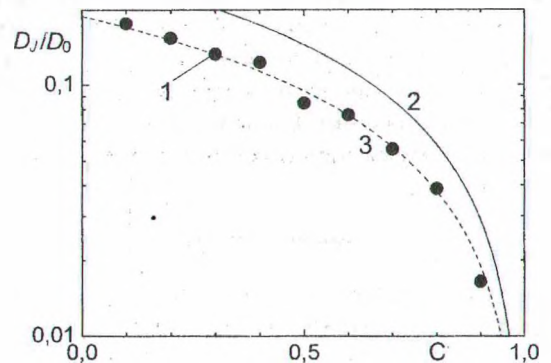


Рис. 1. Зависимость от концентрации кинетического коэффициента диффузии невзаимодействующего решеточного газа на статически неупорядоченной плоской квадратной решетке при $T = 0,30$:

1 – результаты компьютерного моделирования; 2 и 3 – аналитические результаты, вычисленные в соответствии с соотношениями (2) и (6), соответственно

На рис. 1 представлена зависимость от концентрации кинетического коэффициента диффузии невзаимодействующего решеточного газа на статически неупорядоченной плоской квадратной решетке при $T = 0,30$ ($\epsilon_0 = 0,5$, $\delta\epsilon = 0,5$, $k_B = 1$), определенная в ходе компьютерного моделирования системы по методу Монте-Карло [5], а также аналитически в соответствии с уравнением (2) и стандартным соотношением Жданова для упорядоченных решеточных систем [7]

$$D_J = D_0 \exp(-\beta \epsilon_0) \frac{\exp(\beta \mu)}{c} P(0;0). \quad (6)$$

Сопоставление результатов показало, что, как и в случае соответствующих одномерных систем [5], соотношение (2) дает завышение значения для кинетического коэффициента диффузии. В то же время стандартное соотношение Жданова для упорядоченных решеток (6) позволяет определять кинетический коэффициент диффузии с высокой степенью точности. При этом высота межузельного энергетического барьера для упорядоченной решетки принимается равной средней величине энергетического барьера ϵ_0 .

Зависимость кинетического коэффициента диффузии от концентрации при различных температурах приведена на рис. 2.

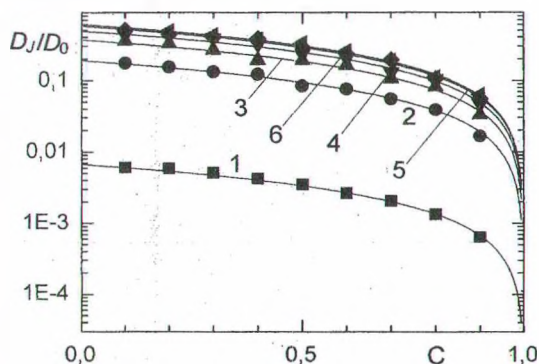


Рис. 2. Зависимость от концентрации кинетического коэффициента диффузии невзаимодействующего решеточного газа на статически неупорядоченной плоской квадратной решетке. Сплошной линией представлены результаты использования соотношения (6), точками – результаты МКМ. $T = 0,10$ (1); $0,30$ (2); $0,50$ (3); $0,70$ (4); $0,90$ (5); $1,00$ (6)

На рис. 3 представлена зависимость логарифма кинетического коэффициента диффузии от обратной температуры, найденная при различных концентрациях частиц.

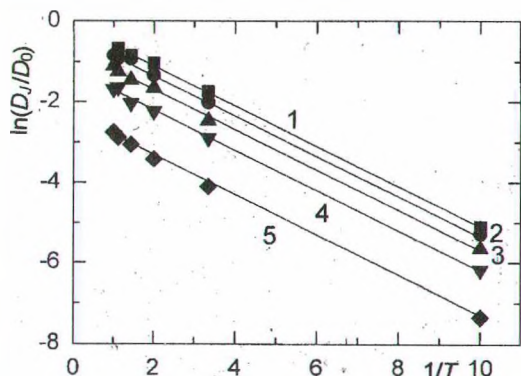


Рис. 3. Зависимость от обратной температуры логарифма кинетического коэффициента невзаимодействующего решеточного газа на статически неупорядоченной плоской квадратной решетке. $c = 0,10$ (1); $0,30$ (2); $0,50$ (3); $0,70$ (4); $0,90$ (5)

Данная зависимость носит линейный характер, что позволяет оценить величину энергии активации коллективной диффузии U_J , аппроксимируя результаты МКМ функцией вида

$$\ln D_J / D_0 = -U_J / k_B T + b. \quad (7)$$

Определенная таким образом зависимость энергии активации от концентрации представлена на рис. 4.

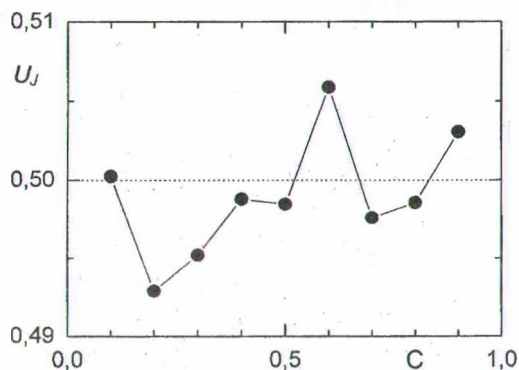


Рис. 4. Зависимость энергии активации от концентрации

Анализ полученных результатов позволяет сделать вывод, что энергия активации испытывает незначительные флуктуации вокруг ϵ_0 . Такие флуктуации обусловлены в первую очередь приближенным характером самой процедуры моделирования.

2. Диффузия меченых атомов

Наряду с кинетическим коэффициентом диффузии в ходе компьютерного моделирования по среднему квадрату смещения отдельных частиц может быть определен и коэффициент диффузии меченых атомов. Два этих коэффициента связаны друг с другом соотношением Даркена [8]:

$$D_{tr} = f_t(c) D_J, \quad (8)$$

где $f_t(c)$ – корреляционный фактор.

Поскольку выше было показано, что коллективная диффузия в изучаемой неупорядоченной системе хорошо описывается соотношением (6), полученным для упорядоченной решетки аналогичной геометрии, для оценки $f_t(c)$ также можно попытаться использовать известное выражение для корреляционного фактора невзаимодействующего решеточного газа на упорядоченной плоской квадратной решетке [9]:

$$f_t(c) = 1 - \frac{2c}{6 - c - \xi(2 - c)}, \quad (9)$$

где $\xi = 10\,440/9443$.

На рис. 5 и 6 представлены зависимости коэффициента диффузии меченых атомов от концентрации и температуры, соответственно. Как и в случае коллективной диффузии можно отметить полное соответствие результатов моделирования и аналитических расчетов.

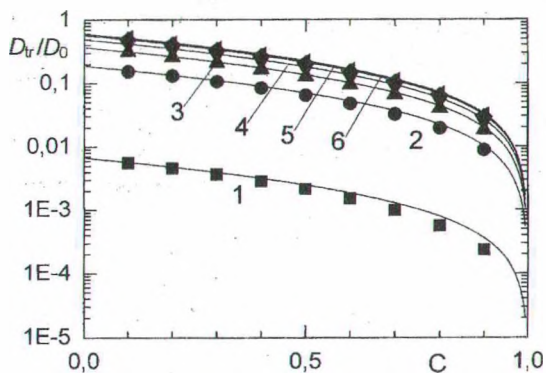


Рис. 5. Зависимость от концентрации коэффициента диффузии меченых атомов не взаимодействующего решеточного газа на плоской квадратной статически неупорядоченной решетке. $T = 0,10$ (1); $0,30$ (2); $0,50$ (3); $0,70$ (4); $0,90$ (5); $1,00$ (6)

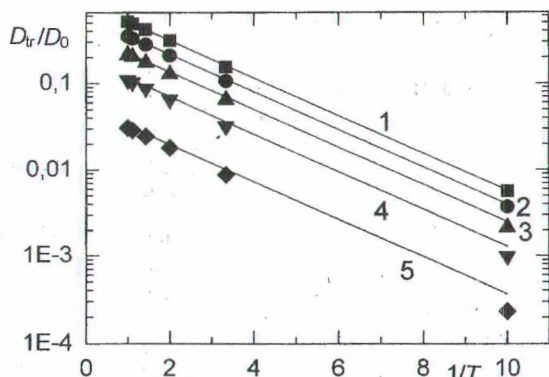


Рис. 6. Зависимость от обратной температуры коэффициента диффузии меченых атомов не взаимодействующего решеточного газа на плоской квадратной статически неупорядоченной решетке. $c = 0,10$ (1); $0,30$ (2); $0,50$ (3); $0,70$ (4); $0,90$ (5)

Заключение

Сопоставление результатов компьютерного моделирования и аналитических расчетов показало, что неупорядоченность решетки не оказывает влияния ни на коллективные диффузионные свойства, ни на диффузию отдельных не взаимодействующих частиц на плоской квадратной решетке. Данное утверждение справедливо, по крайней мере, при равномерном распределении высот межузельных барьеров.

Такое поведение системы может быть интерпретировано с точки зрения теории перколяции [10]. Как известно, порог перколяции p_c в случае задачи связей на квадратной решетке равен $0,5$. Применительно к исследуемой системе это означает, что, поскольку величины барьеров

распределены равномерно и имеется ровно половина барьеров с высотой меньше средней высоты энергетического барьера ϵ_0 , в системе образуется перколяционный кластер, состоящий из межузельных барьеров с высотой, меньшей средней высоты энергетического барьера. Иными словами, из 4-х энергетических барьеров, окружающих частицу на решетке, как правило, имеются барьеры с высотой меньше средней, и переход через такие барьеры является более вероятным. Это приводит к тому, что миграция частиц осуществляется преимущественно через менее высокие барьеры.

Приведенная интерпретация диффузионного процесса позволяет предположить, что при диффузии на простой кубической неупорядоченной решетке, которая характеризуется более низким порогом перколяции, неупорядоченность системы должна привести к снижению энергии активации по сравнению с упорядоченной решеткой с барьерами, равными средней высоте случайных барьеров. Предположительно энергия активации должна быть равна энергии, соответствующей концентрации перколяционного перехода на кубической решетке $p_c = 0,25$.

Литература

1. Avramov I., Milchev A., Argyrakis P. // Phys. Rev. E. – 1993. – Vol. 47. – P. 2303.
2. Argyrakis P., Milchev A., Pereyra V., Kehr K. W. // Phys. Rev. E. – 1995. – Vol. 52. – P. 3623.
3. Arapaki E., Argyrakis P., Avramov I., Milchev A. // Phys. Rev. E. – 1997. – Vol. 56. – P. R29.
4. Avramov I., Milchev A., Arapaki E., Argyrakis P. // Phys. Rev. E. – 1998. – Vol. 58. – P. 2788.
5. Грода Я. Г., Вихренко В. С. // Труды БГТУ. Сер. физ.-мат науки и информ. – 2006. – Вып. XIV.
6. Vikhrenko V. S., Groda Ya. G., Bokun G. S. // Phys. Let. A. – 2001. – Vol. 286. – P. 127.
7. Zhdanov V. P. // Surf. Sci. – 1985. – Vol. 149. – P. L13.
8. Danani A., Ferrando R., Scalas E., Torri M. // Int. J. Mod. Phys. B. – 1997. – Vol. 11. – P. 2217.
9. Tahir-Kheli R. A., Elliott R. J. // Phys. Rev. B. – 1983. – Vol. 27. – P. 844.
10. Тарасевич Ю. Ю. Перколяция: теория, приложения, алгоритмы. – М.: Едиториал УРСС, 2002. – 112 с.