

СООБЩЕНИЯ
ОБЪЕДИНЕННОГО
ИНСТИТУТА
ЯДЕРНЫХ
ИССЛЕДОВАНИЙ

Дубна

98-235

P14-98-235

Э.А.Айрян, Б.Ф.Костенко, А.В.Федоров

РАСЧЕТ ХИМИЧЕСКИХ ПОТЕНЦИАЛОВ
И ТЕПЛОЕМКОСТЕЙ ЭЛЕКТРОНОВ
В ОБЛАСТИ СИЛЬНОЙ ИОНИЗАЦИИ

1998

К настоящему времени опубликовано большое число теоретических и экспериментальных работ, в которых изучаются процессы релаксации концентрированной тепловой энергии, сосредоточенной первоначально почти полностью в электронных степенях свободы. В этой связи следует упомянуть расчеты радиационных разрушений герметизирующей оболочки ТВЭЛов в ядерных и проектирующихся в настоящее время электроядерных энергетических установках, радиобиологию, работы по определению постоянной электрон-фононного взаимодействия с помощью лазерной фемтосекундной техники, создание высокотемпературных сверхпроводников с высокими критическими токами за счет их облучения ускоренными ионами, расчеты характеристик ядерных фильтров и трековых детекторов и др. Теория этих явлений обсуждалась еще в работах [1,2] и затем была развита в ряде последующих публикаций (см., например, работы [3,4] и содержащиеся в них ссылки). В ее основе лежит связанная система нелинейных дифференциальных уравнений диффузионного типа, описывающая динамику изменения пространственных распределений температур электронов и ионов:

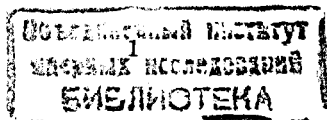
$$\rho C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial r} \left[K_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial r} \right] + \frac{K_e(T_e)}{r} \frac{\partial T_e}{\partial r} - g(T_e - T_i) + A(r, t),$$

$$\rho C_i(T_i) \frac{\partial T_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial r} \left[K_i(T_i) \frac{\partial T_i}{\partial r} \right] + \frac{K_i(T_i)}{r} \frac{\partial T_i}{\partial r} + g(T_e - T_i).$$

Здесь C_e, C_i и K_e, K_i — теплоемкости и теплопроводности электронной системы и решетки; ρ — плотность вещества; g — константа, определяющая обмен энергией между электронами и решеткой; $A(r, t)$ — мощность энерговыделения в момент времени t в точке r , где расстояние r отмеряется перпендикулярно траектории иона.

Расчеты [5,6] плотности энергии, выделяющейся в окрестности трека заряженного иона, дают величину порядка 100 эВ на одну молекулу, откуда следует, что рассматриваемые явления сопровождаются значительной ионизацией вещества. Последнее обстоятельство влияет на ряд характеристик процесса теплопереноса, таких как теплоемкость и теплопроводность, существенных при описании электрон-фононной релаксации¹. Понятно, что для описания ионизации использовать здесь известный подход [7], основанный на предположении о равенстве температур электронов и ионов и приводящий, в частности, к формуле Саха, нельзя. В настоящей работе предлагается простой метод расчета электронной теплоемкости в указанной области, основанный на численном решении уравнения для химического потенциала электронов.

¹ Согласно модели [1-2] характерное время τ электрон-фононной релаксации связано с теплоемкостью C_e электронов соотношением $\tau^{-1} = g/\rho C_e$, где g — не зависящая от температуры постоянная электрон-фононного взаимодействия. В опубликованных к настоящему времени расчетах зависимость τ от температуры либо просто игнорируется, либо учитывается на основе предположения о линейной зависимости C_e от температуры. Ни то ни другое, вообще говоря, не верно.



Так как в обсуждаемых явлениях значительная часть атомных уровней все же может оставаться невозбужденной, среднее число электронов в состоянии с энергией E следует описывать точно, используя распределение Ферми:

$$\langle N \rangle = \frac{1}{e^{(E-\mu(T))/K_B T} + 1}. \quad (1)$$

Далее, из того, что при $T = 0$ все электроны находятся в связанном состоянии следует, что значение химического потенциала μ при нулевой температуре равно наибольшей энергии связи электрона в молекуле. Выделяя в выражении для химического потенциала эту величину отдельным слагаемым,

$$\mu(T) = \mu(0) + \Delta\mu(T),$$

выражению (1) нетрудно придать вид

$$\langle N_{i,b} \rangle = \frac{1}{e^{-(\epsilon_i + \Delta\mu)/K_B T} + 1},$$

$$\langle N_{k,f} \rangle = \frac{1}{e^{(\epsilon_k - \Delta\mu)/K_B T} + 1},$$

соответственно для связанных и свободных состояний. Здесь

$$\epsilon_i = \mu(0) - E_i$$

— энергия связи, отвечающая i -му электронному уровню,

$$\epsilon_k = \frac{p_k^2}{2m}$$

— энергия свободного электрона. Зависящая от температуры поправка к химическому потенциалу $\Delta\mu(T)$ находится из условия сохранения полного числа электронов

$$\sum_i (1 - \langle N_{i,b} \rangle) = \sum_k \langle N_{k,f} \rangle. \quad (2)$$

Заменяя обычным образом [7] сумму по состояниям свободных электронов интегралом

$$\frac{\sqrt{2}vm^{3/2}}{\pi^2\hbar^3} \int_0^\infty \frac{\sqrt{\epsilon}d\epsilon}{e^{(\epsilon-\Delta\mu)/K_B T} + 1} = \frac{\sqrt{2}v(mK_B T)^{3/2}}{\pi^2\hbar^3} \int_0^\infty \frac{\sqrt{z}dz}{e^{z-\Delta\mu/K_B T} + 1},$$

получим уравнение для определения величины $\Delta\mu(T)$ (здесь v — объем, приходящийся на одну молекулу вещества).

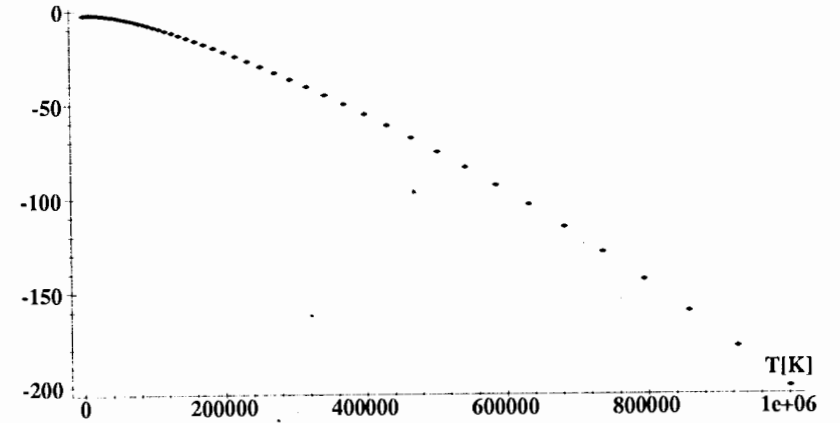


Рис. 1. Расчетная зависимость $\Delta\mu(T)$ для высокотемпературного сверхпроводника $YBa_2Cu_3O_7$

На рис. 1 показана расчетная зависимость $\Delta\mu(T)$ для высокотемпературного сверхпроводника $YBa_2Cu_3O_7$, время электрон-фононной релаксации которого измерялось в прямых лазерных экспериментах в работах [8-10], а процессы трекообразования, интересные с точки зрения возможности повышения критического тока (благодаря эффекту пиннинга), — в работе [11]. В качестве энергий связи ϵ_i электронов нами были взяты экспериментальные потенциалы ионизации [12] отдельных атомов, входящих с соответствующими кратностями (1, 2, 3 и 7 для Y, Ba, Cu и O) в химическую формулу вещества. При этом учитывались возбуждения только первых 11 уровней (потенциалы ионизации более глубоких уровней, существенные при более высоких температурах, могут быть найдены теоретически [13]). Тот факт, что поправка $\Delta\mu(T)$ имеет отрицательное значение, объясняется большим статистическим весом свободных состояний, приводящим к понижению температуры, при которой начинается эффективная ионизация уровня (см. рис. 2). Для сравнения на рис. 2 пунктиром показана зависимость $\langle N_{i,f}(T) \rangle$ без учета зависящей от температуры добавки к химическому потенциалу, т.е. при $\Delta\mu = 0$. Отклонением кривой $\Delta\mu(T)$ от линейной зависимости объясняется тот факт, что среднее число электронов, освобождающихся с i -го уровня

$$\langle N_{i,f} \rangle = 1 - \langle N_{i,b} \rangle$$

стремится при высоких температурах к единице (см. рис. 2). Картина последовательного возбуждения все более глубоких уровней, показанная на рис. 3, с качественной точки зрения вполне аналогична той, которая имеет место при ударной ионизации или в равновесной плазме.

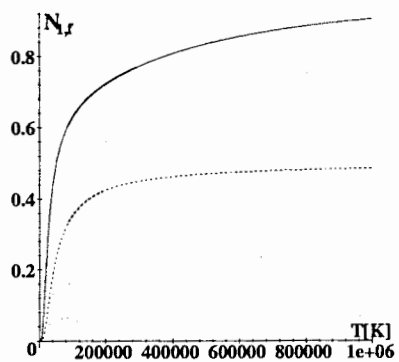


Рис. 2. Ионизация уровня 1 высокотемпературного сверхпроводника $YBa_2Cu_3O_7$

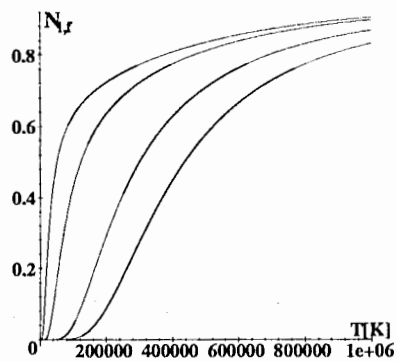


Рис. 3. Последовательное возбуждение уровней 1,5,10,15 высокотемпературного сверхпроводника $YBa_2Cu_3O_7$

Теплоемкость электронов (здесь и далее — отнесенная к одной молекуле вещества) может быть найдена прямым дифференцированием полной энергии свободных электронов:

$$C_V = \left(\frac{\partial U}{\partial T} \right)_V = \frac{3}{2} K_B \sum_i n_i \langle N_{i,f} \rangle + \sum_i n_i \epsilon_i \frac{d \langle N_{i,f} \rangle}{dT},$$

где суммирование идет по всем связанным состояниям электронов, а n_i — кратность вхождения атомов в формулу вещества. На рис. 4 представлена рассчитанная таким образом теплоемкость электронов в области ионизации для $YBa_2Cu_3O_7$. Видно, что она не может быть аппроксимирована линейной зависимостью, справедливой для вырожденного электронного газа, находящегося в широкой потенциальной яме с плоским дном. Так, для сравнения, на рис. 5 показана расчетная теплоемкость электронов для молекулы воды (важная, в частности, в радиобиологии [14] при моделировании радиационных повреждений ДНК), и линейная аппроксимация $C = \gamma T$, с постоянной Зоммерфельда γ рассчитанной обычным образом [7]:

$$\gamma = K_B^2 \left(\frac{\pi}{3} \right)^{2/3} \frac{m}{\hbar^2} N \left(\frac{v}{N} \right)^{2/3},$$

где N — полное число электронов в молекуле.

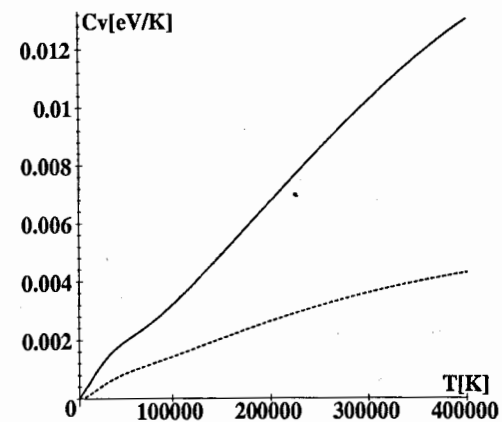


Рис. 4. Теплоемкость электронов в области ионизации для $YBa_2Cu_3O_7$. Пунктирная кривая отвечает расчету с $\Delta\mu = 0$

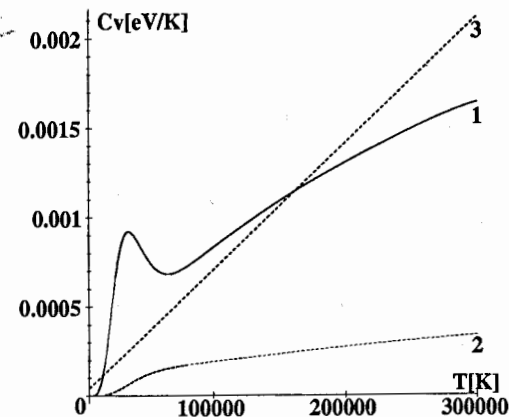


Рис. 5. Теплоемкость электронов для молекулы воды: 1—рассчитанная теплоемкость электронов, 2—рассчитанная теплоемкость электронов без учета поправки $\Delta\mu$, 3—линейная аппроксимация

На рис. 6 – 11 представлены электронные теплоемкости для ряда веществ, взаимодействия которых с ионизирующим излучением в настоящее время также широко обсуждаются в литературе.

Работа выполнена при поддержке РФФИ, грант N97-01-01023.

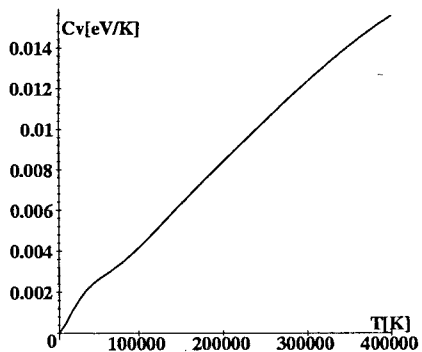


Рис. 6. $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$

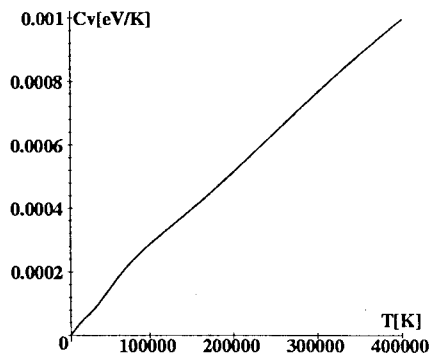


Рис. 7. Fe

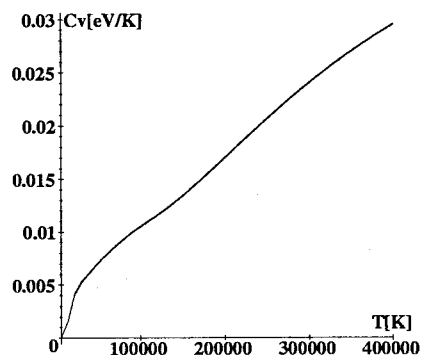


Рис. 8. $Fe_{17}B_3$

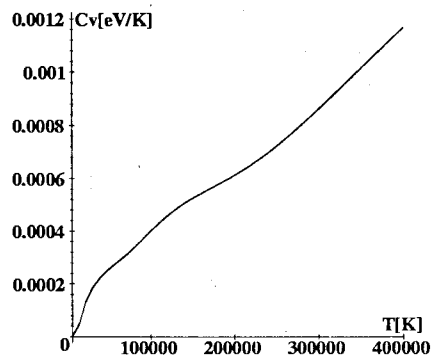


Рис. 9. Ge

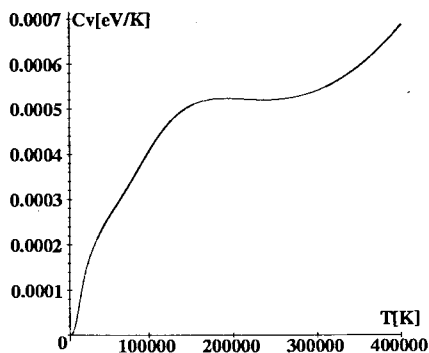


Рис. 10. Si

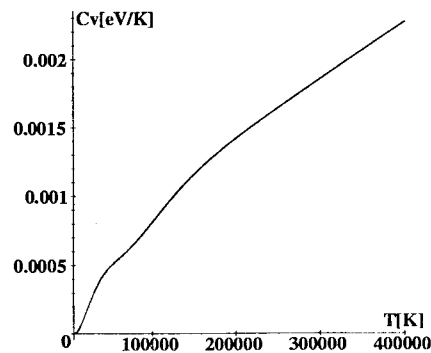


Рис. 11. SiO_2

Список литературы

- [1] Каганов М.И., Лифшиц И.М., Танатаров Л.В. // ЖЭТФ. 1956. Т.31. С.232.
- [2] Lifshits I.M., Kaganov M.I., Tanatarov L.V. // J.Nucl.Energy A. 1960. V.12. P.69.
- [3] Meftah A. et al. // Phys.Rev. B. 1992. V.46. P.14363; 1993. V.48. P.920.
- [4] Toulemonde M. et al. // Phys.Rev. B. 1994. V.49. P.12457.
- [5] Walligorski M.P.R., Hamm R.N., Katz R. // Nucl.Tracs. 1986. V.11. 309.
- [6] Баращенко В.С. // Химия высоких энергий. 1994. Т.28. С.229.
- [7] Ландау Л.Д., Лифшиц Е.М. // Статистическая физика, ч.1, М., Наука, 1976.
- [8] Brorson S.D. et al. // Solid State Comm. 1990. V.74. P.1305.
- [9] Chekalin S.V. et al. // Phys.Rev.Lett. 1991. V.67. P.3860.
- [10] Венгрус И.И. и др. // Письма в ЖЭТФ. 1995. Т.62. С.739.
- [11] Toulemonde M. et al. // Nucl.Instr. and Methods. B. 1994. V.91. P.108.
- [12] Справочник физических величин. Под ред. И.К. Киикоина, М., Атомиздат, 1976.
- [13] Илющенко В.И., Кочкин В.И. // Сообщения ОИЯИ, 7-7227, Дубна, 1973.
- [14] Тимофеев-Ресовский Н.В., Савич А.Б., Шальнов М.И. Введение в молекулярную радиобиологию, М., Медицина, 1981.

Рукопись поступила в издательский отдел
7 августа 1998 года.

Айрян Э.А., Костенко Б.Ф., Федоров А.В.

P14-98-235

Расчет химических потенциалов и теплоемкостей электронов
в области сильной ионизации

Путем прямого численного решения уравнения для химического потенциала произведен расчет теплоемкости электронов в области сильной ионизации атомов вещества на стадии, предшествующей возбуждению фоновых степеней свободы. Показано, что используемая часто линейная аппроксимация теплоемкости в этом случае, вообще говоря, не верна. Приведены расчетные значения электронных теплоемкостей для ряда веществ, необходимые для решения ряда актуальных вопросов радиационной физики и радиобиологии, а также при определении времени электрон-фононной релаксации методами лазерной фемтосекундной техники.

Работа выполнена в Лаборатории вычислительной техники и автоматизации ОИЯИ.

Сообщение Объединенного института ядерных исследований. Дубна, 1998

Перевод авторов

Ayrjan E.A., Kostenko B.F., Fedorov A.V.

P14-98-235

Calculation of Chemical Potentials and Electron's Specific Heat
in Strong Ionization Region

On the base of direct solution of equation for chemical potential, calculations of electron's specific heat in the multiple ionization region on the stage preceding to the excitation of phonon's degrees of freedom are fulfilled. It is shown that the well-known linear approximation for the specific heat is inapplicable here. Calculated values of the electron's specific heat for a number of substances (relevant for solution of some actual questions of radiation physics and biology as well as for determination of the electron-phonon relaxation time with the laser femtosecond technique) are given.

The investigation has been performed at the Laboratory of Computing Techniques and Automation, JINR.

Communication of the Joint Institute for Nuclear Research. Dubna, 1998