

УДК 539.216.2 : 548.526

© 1991

ДИФФУЗИОННЫЙ РОСТ ДВУМЕРНЫХ ФАЗ В АНСАМБЛЯХ

А. В. Коропов, П. Н. Остапчук, В. В. Слезов

В диффузионной кинетике роста островков двумерных фаз развито самосогласованное приближение эффективной среды. Оно обобщает традиционное приближение самосогласованного среднего поля на случай учета экранировки потоков частиц на данный растущий центр другими центрами. Найдены диффузионные потоки адсорбированных атомов (адатомов) на островок и скорости роста островков при различной их эффективной мерности d (2 или 3). Теория применима в области малых коэффициентов заполнения подложки островками Z и больших длин диффузии адатомов до испарения $\lambda_s \equiv \equiv (D_s \tau_s)^{1/2}$.

Исследование образования двумерных скоплений (островков) новой фазы и их последующего роста вызывает значительный интерес. Процессы такого типа происходят в разнообразных физических системах, в качестве примеров которых могут быть приведены островковые пленки, образующиеся на начальном этапе формирования сплошных пленок либо в результате распада сплошных пленок [1], круговые атомные ступени на грани кристалла, растущего по механизму послойного роста [2], плотные скопления (пятна) адсорбированной фазы в субмонослойных пленках [3].

Принципиальный путь к описанию кинетики диффузионного роста двумерных фаз из двумерного же поля адсорбированных на подложке атомов (адатомов) состоит в нахождении точного (учитывающего расположение всех островков) поля плотности адатомов $n_s(r, t)$ при наличии, вообще говоря, потока атомов на подложку $K(t)$. Этот путь, однако, является фактически неосуществимым уже в силу того обстоятельства, что начальное расположение всех островков и их размеры, как правило, неизвестны и меняются от образца к образцу.

В сформулированной задаче (для случая малых пересыщений) обычно используется приближение самосогласованного среднего поля [1, 4], которое предполагает отсутствие диффузионного взаимодействия отдельных центров и, следовательно, не учитывает экранировки потоков частиц на данный растущий центр другими центрами. Вопрос о том, как эффективно учесть эту экранировку для случайно расположенных островков в рамках самосогласованного поля и тем самым обобщить последнее на случай частиц конечных размеров, является предметом настоящей работы.

Используемый далее подход был развит применительно к задаче о диффузионной скорости роста макродефектов (пор, частиц выпавшей фазы, дислокационных петель, прямолинейных дислокаций) в массивных образцах [5-7]. Специфика рассматриваемой нами двумерной задачи связана прежде всего с наличием канала испарения адатомов, обладающих конечным временем жизни на подложке τ_s , и, следовательно, конечной диффузионной длиной $\lambda_s \equiv (D_s \tau_s)^{1/2}$.

1. Исходные соотношения

Будем рассматривать ансамбль макроскопических островков новой фазы, в котором представлены островки различных размеров, но вполне определенной геометрии (шаровой сегмент с произвольным краевым уг-

лом или цилиндр), одной и той же для всех островков. В частности, речь может идти о твердых металлических островках и жидких каплях сферической формы [1] или же о плоских островках сильно анизотропных веществ [2]. Форма островков предполагается неизменной в процессе их роста, что, как правило, выполняется [1]. Будем также считать, как это обычно имеет место, что плотность адатомов n_s достаточно велика (во всяком случае, существенно превосходит плотность островков), так что для описания адсорбированной фазы применимо приближение сплошной среды. Тогда динамику роста или растворения отдельного островка, как и временную эволюцию ансамбля островков, можно описывать уравнениями макроскопической кинетики.

Итак, зависимость плотности адатомов на подложке $n_s(\mathbf{r}, t)$ от координаты \mathbf{r} в плоскости подложки и времени t определяется уравнением диффузии, записанным с учетом потоков испарения ($K_{\uparrow} = n_s/\tau_s$) и конденсации ($K_{\downarrow} = \text{const}$)

$$\frac{\partial n_s}{\partial t} = -\text{div } \mathbf{j}_s - \frac{n_s}{\tau_s} + K_{\downarrow},$$

$$\mathbf{j}_s = -D_s \nabla n_s. \quad (1)$$

Граничное условие к уравнению (1), записанное на периметре основания P_i некоторого i -го островка, примем в виде [1, 2]

$$(\mathbf{j}_s \cdot \mathbf{n})/P_i = -\beta_s (n_s - n_{sR})/P_i. \quad (2)$$

Здесь \mathbf{n} — единичный вектор внешней нормали к границе островка; β_s — кинетический коэффициент, имеющий смысл скорости перехода атомов через границу подложка—островок; n_{sR} — термодинамически равновесное значение плотности адатомов вблизи контура основания островка радиуса R .

Для дальнейшего введем среднюю плотность адатомов

$$\bar{n}_s(t) \equiv \frac{1}{S} \int_{S'} n_s(\mathbf{r}, t) dS', \quad (3)$$

где S' — площадь поверхности подложки, свободной от островков, а S — ее полная площадь (эти величины считаем бесконечно большими). Тогда, интегрируя уравнение (1) по S' и воспользовавшись теоремой Гаусса, получим условие баланса адатомов

$$\frac{d\bar{n}_s}{dt} = K_{\downarrow}(1 - Z) - I - \frac{\bar{n}_s}{\tau_s}. \quad (4)$$

Здесь $Z \equiv (S - S')/S$ — коэффициент заполнения подложки островками,

$$I \equiv S^{-1} \sum_i \oint_{L_i} \mathbf{j}_s \cdot d\mathbf{l}_i$$

— суммарный поток на все островки, расположенные на единичной площадке подложки: контуры L_i охватывают отдельные островки, а векторы $d\mathbf{l}_i$ направлены по нормальям к этим контурам внутрь островков.

2. Приближенное уравнение диффузии окрестности выделенного островка

Исходная (многочастичная) задача состоит в решении уравнения (1) с граничными условиями (2), записанными для всех центров. Однако, как было отмечено уже в начале статьи, такая задача фактически нерешаема. Приближение самосогласованного среднего поля сводит, как известно, многочастичную задачу к одночастичной и позволяет описать основные физические процессы, протекающие в системе островков: обмен

атомами между островками разных размеров и рост островков за счет «накачки» вещества в систему [1, 8-10]. Мы построим такого рода приближение с учетом экранировки потоков адатомов на выделенный островок остальными центрами.

Качественные соображения, помогающие это осуществить, таковы. Для ансамбля островков диффузионное поле вблизи некоторого островка формируется преимущественно данным островком, и только с удалением от него постепенно начинает сказываться влияние всего окружения. Поэтому, как и в [5, 6], выделим область влияния данного островка, в которой нет других островков, а границу этой области будем аппроксимировать окружностью радиуса R_0 (R), который подлежит определению. В простейшем случае отсутствия испарения ($\tau_s \rightarrow \infty$) R_0 определяется тем, что все атомы, вносимые источником в область влияния данного островка, им же и поглощаются.

В области $R < r < R_0$ (область влияния островка) пользуемся уравнением (1) в квазистационарном приближении ($\partial n_s / \partial t \ll \text{div } \mathbf{j}_s$)

$$-\text{div } \mathbf{j}_s - \frac{n_s}{\tau_s} + K_{\downarrow} = 0. \quad (5)$$

В области $r \geq R_0$ перейдем от системы локализованных стоков (островков) для адатомов к «макроскопической» сплошной среде с непрерывно распределенными стоками (эффективная среда). Для этого проведем усреднение уравнения (1) во всякой «физически» бесконечно малой площади ΔS , содержащей большое число островков

$$\langle \dots \rangle' \equiv \lim_{\Delta S \rightarrow 0} \frac{1}{\Delta S} \overline{\int \dots dS'}, \quad (6)$$

где $\Delta S'$ — площадь, свободная от островков, а черта над интегралом означает усреднение по расположению и размерам всех островков, кроме выделенного. Подчеркнем, что всякий «физически» малый элемент площади в эффективной среде содержит достаточно большое число островков. В результате усреднения (1), согласно (6), приходим к «макроскопическому» уравнению

$$\frac{\partial \langle n_s \rangle}{\partial t} = -(\text{div } \langle \mathbf{j}_s \rangle)_{\text{макро}} - \bar{I} - \frac{\langle n_s \rangle}{\tau_s} + K_{\downarrow} (1 - Z), \quad (7)$$

$$(\text{div } \langle \mathbf{j}_s \rangle)_{\text{макро}} = \frac{1}{\Delta S} \overline{\oint_L \mathbf{j}_s \cdot d\mathbf{l}}, \quad \bar{I} = \frac{1}{\Delta S} \sum_i \oint_{L_i} \mathbf{j}_s \cdot d\mathbf{l}_i,$$

где L — линия, охватывающая область ΔS ; контуры L_i огибают отдельные островки и подразумевается, что $\Delta S \rightarrow 0$. Величины $\langle n_s \rangle$, $(\text{div } \langle \mathbf{j}_s \rangle)_{\text{макро}}$, \bar{I} в уравнении (7) зависят от «физической» точки \mathbf{r} ; $\langle n_s \rangle / \tau_s$ — поток испарения из этой точки; $\bar{I}(\mathbf{r})$ — суммарное поглощение в точке \mathbf{r} «размазанными» стоками (поток в поглощающую эффективную среду).

Поскольку, как будет видно ниже, основное пространственное изменение n_s происходит в области влияния островка, а в эффективной среде n_s отличается от \bar{n}_s только на длине экранировки диффузионных потоков окружающими центрами, в уравнении (7) заменим $\partial \langle n_s \rangle / \partial t$ на $d\bar{n}_s / dt$. Тогда от (5) и (7) приходим к искомому уравнению

$$\left[-\text{div } \mathbf{j}_s - \frac{n_s}{\tau_s} + K_{\downarrow} \right] \Theta(R_0 - r) + \left[-(\text{div } \langle \mathbf{j}_s \rangle)_{\text{макро}} - \bar{I} - \frac{\langle n_s \rangle}{\tau_s} + K_{\downarrow} (1 - Z) - \frac{d\bar{n}_s}{dt} \right] \Theta(r - R_0) = 0, \quad (8)$$

где $\Theta(x)$ — ступенчатая функция Хевисайда. Граничные условия к уравнению (8) при $r=R$ и $r \rightarrow \infty$ имеют вид

$$D_s \frac{dn_s}{dr} \Big|_{r=R} = \beta_s [n_s(R) - n_{sR}], \quad n_s|_{r \rightarrow \infty} = \bar{n}_s. \quad (9)$$

Уравнение (8), с одной стороны, учитывает индивидуальность выделенного островка (его конечный размер R), а с другой стороны, коллективный эффект формирования диффузионного поля на достаточном удалении от островка.

3. Метод решения приближенного уравнения диффузии

Для дальнейшего удобно представить плотность адатомов в виде $n_s = n_s^{(0)} + n_s^{(1)}$ и соответственно $\mathbf{j}_s = \mathbf{j}_s^{(0)} + \mathbf{j}_s^{(1)} = -D_s \nabla n_s^{(0)} - D_s \nabla n_s^{(1)}$. При этом, естественно, $\bar{n}_s = \bar{n}_s^{(0)} + \bar{n}_s^{(1)}$. Поток $\mathbf{j}_s^{(1)}$ определяется наличием только внешнего источника и усредненного внутреннего стока, связанного с испарением адатомов, и, естественно, он обращается в нуль, когда этот источник и сток равны нулю. Физический смысл потока $\mathbf{j}_s^{(1)}$ состоит в описании эффекта роста ($K_\downarrow > \bar{n}_s/\tau_s$) или растворения ($K_\downarrow < \bar{n}_s/\tau_s$) всех островков в открытой системе. Поток $\mathbf{j}_s^{(0)}$ тогда будет определять только обмен островков адатомами, и его можно назвать обменным потоком. Он связан только с неоднородными граничными условиями на островках и отличен от нуля как в области влияния данного островка, так и вне ее. Сама же область влияния (ее размер R_0) определяется условием $\mathbf{j}_s^{(1)}|_{r=R_0} = 0$, и, естественно, поток $\mathbf{j}_s^{(1)}$ физически определен только внутри области влияния данного островка, а в эффективной среде $\langle n_s^{(1)} \rangle = \bar{n}_s^{(1)}$. Таким образом, в ансамбле островков потоки $\mathbf{j}_s^{(1)}$ черпают адатомы только из «своих» областей влияния, перенося их на «свои» островки, что приводит к своеобразному разбиению системы на ячейки и установлению квазистационарного распределения плотности адатомов.

Уравнение для нахождения плотности $n_s^{(1)}$ при $R < r < R_0$ имеет вид

$$-\text{div } \mathbf{j}_s^{(1)} - \frac{n_s^{(1)}}{\tau_s} + \tilde{K} = 0, \quad (10)$$

где эффективный источник \tilde{K} , являющийся перенормированным потоком конденсации K_\downarrow , будет определен ниже (формула (16)). Граничное условие на границе островка ($r=R$) должно быть однородным по $n_s^{(1)}$; а на границе области влияния ($r=R_0$) иметь вид $n_s^{(1)}(R_0) = n_s^*$, где $n_s^* \propto \tilde{K}$. Такой вид граничных условий определяется требованием, чтобы $n_s^{(1)}=0$ было решением уравнения (10) в области $R < r < R_0$ и удовлетворяло обоим граничным условиям в том случае, когда $\tilde{K}=0$. Исходя из сказанного, имеем

$$D_s \frac{dn_s^{(1)}}{dr} \Big|_{r=R} = \beta_s n_s^{(1)}(R), \quad n_s^{(1)}|_{r=R_0} = n_s^*, \quad n_s^{(1)}|_{r>R_0} = \bar{n}_s^{(1)}. \quad (11)$$

Здесь величина R_0 определяется требованием

$$D_s \frac{dn_s^{(1)}}{dr} \Big|_{r=R_0} = 0, \quad (12)$$

а n_s^* — условием самосогласования

$$\int_0^\infty \pi R_0^2(R) f(R, t) dR = 1 \quad (13)$$

— области влияния отдельных островков покрывают всю поверхность подложки. Мы увидим, что действительно $n_s^* \propto \tilde{K}$ (формула (29)). Плотность $\bar{n}_s^{(1)}$ вычисляется как

$$\bar{n}_s^{(1)} = \int_0^{\infty} dR f(R, t) \int_R^{R_0(N)} 2\pi r n_s^{(1)}(r) dr. \quad (14)$$

Формулируя уравнения для $n_s^{(0)}$, заметим, что при однородных (не зависящих от R) граничных условиях на островках $n_s(R) = \text{const}$ обмен между островками или (в терминах развиваемого подхода) между данным островком и эффективной средой, конечно, отсутствует. В этом случае $n_s^{(0)} = \bar{n}_s^{(0)} = \text{const}$ должно быть точным решением соответствующего уравнения. Для этого в области влияния островка обмен атомов с газовой фазой следует учесть в виде $-n_s^{(0)}/\tau_s + \bar{n}_s^{(0)}/\tau_s$. Тогда, считая, что в эффективной среде $\langle j_s^{(1)} \rangle = 0$, получим следующее уравнение для $n_s^{(0)}$:

$$\left[-\text{div } \mathbf{j}_s^{(0)} - \frac{n_s^{(0)}}{\tau_s} + \frac{\bar{n}_s^{(0)}}{\tau_s} \right] \Theta(R_0 - r) + \left[-(\text{div } \langle \mathbf{j}_s^{(0)} \rangle)_{\text{макро}} - \bar{I} - \frac{\langle n_s \rangle}{\tau_s} + K_{\downarrow}(1 - Z) - \frac{d\bar{n}_s}{dt} \right] \Theta(r - R_0) = 0. \quad (15)$$

Поскольку уравнения (10) и (15) в сумме должны давать уравнение (8), то, очевидно,

$$\tilde{K} = K_{\downarrow} - \frac{\bar{n}_s^{(0)}}{\tau_s}. \quad (16)$$

Далее заметим, что в приближении самосогласованного среднего поля обмен атомами имеет место между выделенным островком и средним полем в «макроточке» r («макроскопическая» плотность $\langle n_s^{(0)}(r) \rangle$). Поэтому в эффективной среде поток на островок радиуса R естественно искать в виде отклонения $\langle n_s^{(0)} \rangle$ от n_{sR}

$$-\langle j_{sR}^{(0)}(r) \rangle = D_s \varphi(R) [\langle n_s^{(0)}(r) \rangle - n_{sR}], \quad (17)$$

где функция φ подлежит определению. Представим (17) как

$$-\langle j_{sR}^{(0)} \rangle \equiv D_s \varphi [\bar{n}_s^{(0)} - n_{sR}] + D_s \varphi [\langle n_s^{(0)} \rangle - \bar{n}_s^{(0)}] \equiv -\bar{j}_{sR}^{(0)} - \delta j_{sR}^{(0)}. \quad (18)$$

Здесь $-\bar{j}_{sR}^{(0)}$ — поток на островок радиуса R , усредненный по всем конфигурациям островков и их размерам; $-\delta j_{sR}^{(0)}(r)$ — отклонение от этого потока в результате усреднения по всем островкам, кроме выделенного. Далее в эффективной среде для случайного распределения островков по положениям и размерам

$$I = - \int_0^{\infty} 2\pi R [\bar{j}_{sR}^{(0)} + j_{sR}^{(1)}] f(R, t) dR, \quad (19)$$

$$\bar{I}(r) = - \int_0^{\infty} 2\pi R [\langle j_{sR}^{(0)}(r) \rangle + j_{sR}^{(1)}] f(R, t) dR, \quad (20)$$

где $f(R, t)$ — функция распределения островков по размерам [1, 8]. Комбинируя выражения (18), (19) и (20), получим

$$\bar{I} = I + \frac{D_s}{l^2} (\langle n_s^{(0)} \rangle - \bar{n}_s^{(0)}), \quad (21)$$

$$l^{-2} \equiv 2\pi \int_0^{\infty} R \varphi(R) f(R, t) dR.$$

Замечая, что в эффективной среде $\langle n_s \rangle = \langle n_s^{(1)} \rangle + \bar{n}_s^{(1)}$, воспользовавшись (21) и оставляя одни и те же обозначения $n_s^{(0)}$, $\mathbf{j}_s^{(0)}$ во всем пространстве, преобразуем (15) к виду

$$-\operatorname{div} \mathbf{j}_s^{(0)} - \frac{D_s}{\lambda_s^2} (n_s^{(0)} - \overline{n_s^{(0)}}) - \frac{D_s}{l^2} (n_s^{(0)} - \overline{n_s^{(0)}}) \Theta(r - R_0) + \\ + \left[K_\downarrow (1 - Z) - I - \frac{\overline{n_s}}{\tau_s} - \frac{d\overline{n_s}}{dt} \right] \Theta(r - R_0) = 0. \quad (22)$$

В уравнении (22) выражение в квадратных скобках не зависит от r и играет роль постоянного по всему пространству вне области влияния источника. Для существования физического (ограниченного при $r \rightarrow \infty$) решения (22) указанное выражение должно обращаться в нуль, что совпадает с условием баланса адатомов (4). Поэтому условие баланса (4) можно изначально не формулировать — оно естественно следует из физического требования ограниченного при $r \rightarrow \infty$ решения (22). Окончательно имеем

$$-\operatorname{div} \mathbf{j}_s^{(0)} - \frac{D_s}{\lambda_s^2} (n_s^{(0)} - \overline{n_s^{(0)}}) \Theta(R_0 - r) - \frac{D_s}{l^2} (n_s^{(0)} - \overline{n_s^{(0)}}) \Theta(r - R_0) = 0, \quad (23)$$

где $l^{-2} \equiv l^{-2} + \lambda_s^{-2}$. Граничные условия к (23) таковы:

$$D_s \frac{dn_s^{(0)}}{dr} \Big|_{r=R} = \beta_s [n_s^{(0)}(R) - n_{sR}], \\ n_s^{(0)} \Big|_{r \rightarrow \infty} = \overline{n_s^{(0)}}, \quad (24)$$

они дополнены условиями непрерывности $n_s^{(0)}$ и $\mathbf{j}_s^{(0)}$ при $r = R_0$. Как следует из формулы (6), производя такую «сшивку» при $r = R_0$, мы пренебрегаем величинами $\sim Z \ll 1$. Теперь явно видно, что $n_s^{(0)} = \overline{n_s^{(0)}}$ действительно является точным решением уравнения (23) с граничными условиями $n_s^{(0)}(R) = \overline{n_s^{(0)}}$ и $n_s^{(0)} \Big|_{r \rightarrow \infty} = \overline{n_s^{(0)}}$.

4. Диффузионные потоки адатомов на островок

Поскольку решение уравнений (10) и (23) оказывается достаточно громоздким, далее будем вести изложение результативным образом. Начиная такое изложение с диффузионной задачи для $n_s^{(1)}$, подчеркнем, что в уравнении (10) роль источника K_\downarrow (см. (16)) играет эффективный источник $\tilde{K} \equiv (K_\downarrow - \overline{n_s}/\tau_s) + \overline{n_s^{(1)}}/\tau_s$, а искомые величины $j_{sR}^{(1)}$, n_s^* , $\overline{n_s^{(1)}}$, $R_0(R)$ естественно выразить через $(K_\downarrow - \overline{n_s}/\tau_s)$. Тогда выражение для потока $j_{sR}^{(1)}$ в терминах безразмерных величин $a \equiv R/\lambda_s$, $b \equiv R_0/\lambda_s$, $\alpha \equiv D_s/\beta_s \lambda_s$ имеет вид

$$j_{sR}^{(1)} = \frac{-\tilde{K} \lambda_s [K_1(a) I_1(b) - I_1(a) K_1(b)]}{\alpha [K_1(a) I_1(b) - I_1(a) K_1(b)] + [I_0(a) K_1(b) + K_0(a) I_1(b)]}, \quad (25)$$

где I_n , K_n — модифицированные функции Бесселя n -го порядка,

$$\tilde{K} = \mathcal{J}^{-1}(K_\downarrow - \overline{n_s}/\tau_s), \\ \mathcal{J} \equiv \int_0^\infty \pi R^2 (1 + \psi^{-1}) f(R, t) dR, \quad (26)$$

$$\psi \equiv \frac{aa}{2} \left[1 + \frac{1}{\alpha} \frac{K_0(a) I_1(b) + I_0(a) K_1(b)}{K_1(a) I_1(b) - I_1(a) K_1(b)} \right]. \quad (27)$$

В пределе $\lambda_s \rightarrow \infty$ из формулы (25) получаем $j_{sR}^{(1)} \simeq -(K_\downarrow/2R)(R_0^2 - R^2)$. Смысл этого результата становится особенно наглядным при переходе к полному потоку на островок адатомов «сорта 1»

$$I_{sR}^{(1)} = -2\pi R j_{sR}^{(1)} = K_\downarrow (\pi R_0^2 - \pi R^2). \quad (28')$$

Именно в отсутствие испарения ($\tau_s \rightarrow \infty$) все атомы, вносимые источником K_\downarrow в область влияния островка площадью $(\pi R_0^2 - \pi R^2)$, поглощаются данным островком.

Величина n_s^* оказывается равной

$$n_s^* = \bar{K}\tau_s - \bar{K}\tau_s \{ \alpha b [K_1(a)I_1(b) - I_1(a)K_1(b)] + b [I_0(a)K_1(b) + K_0(a)I_1(b)] \}^{-1}, \quad (29)$$

а в пределе $\lambda_s \rightarrow \infty$ из формулы (29) следует

$$n_s^* = \frac{1}{2} (K_{\downarrow}\tau_s - \bar{n}_s) \left[\left(\frac{a}{b} - \frac{1}{2} \right) (b^2 - a^2) + b^2 \ln(b/a) \right]. \quad (30)$$

Отметим, что уравнения (13) и (29) полностью определяют n_s^* и $R_0(R)$.

Выражение для плотности $\bar{n}_s^{(1)}$, следующее из формулы (14), можно привести к виду

$$\bar{n}_s^{(1)} = (K_{\downarrow}\tau_s - \bar{n}_s) (\mathcal{J}^{-1} - 1), \quad (31)$$

где величина \mathcal{J} определена в (26) через функцию ψ (27). Отметим, что в пределе $\lambda_s \rightarrow \infty$ функция ψ принимает вид

$$\psi \simeq a^2 (b^2 - a^2)^{-1}. \quad (1)$$

Как следует из формул (25), (26), (29), (31), величины $j_{sR}^{(1)}$, n_s^* , $\bar{n}_s^{(1)}$ пропорциональны $(K_{\downarrow} - \bar{n}_s/\tau_s)$. При $K_{\downarrow} = \bar{n}_s/\tau_s$, что соответствует равновесию в среднем между испарением и конденсацией на подложке, указанные величины обращаются в нуль и происходит лишь обмен островков адатомами. Остановимся кратко на смысле потока K_{\downarrow} . В случае вакуумной конденсации (с полной откачкой испарившихся атомов) K_{\downarrow} — это внешний поток напыления на подложку. В другом случае конденсации без откачки K_{\downarrow} связан с потоком атомов K , накачиваемых в систему, и параметрами газовой фазы. Если число атомов в газовой фазе не меняется со временем, то $K = K_{\downarrow} (1 - Z) - \bar{n}_s/\tau_s$ и, считая $Z \ll 1$, как это делается в настоящем рассмотрении, следует положить $K = K_{\downarrow} - \bar{n}_s/\tau_s$. Именно эта величина фигурирует в полученных выше формулах.

Приведем еще формулы для $R_0(R)$ в пределе $\lambda_s \rightarrow \infty$. Здесь следует различать два случая. В том случае, когда $R \ll R_0$, имеем

$$R_0^2(R) = \frac{1}{\pi N} \frac{\ln Z^{-1/2}}{\ln(\pi N R^2)^{-1/2}} \quad (32)$$

(N — плотность островков). Из (32) видно, что R_0^2 слабо (логарифмически) возрастает с ростом R и, естественно, $R_0^2(R) = 1/\pi N$ (R — средний радиус островков). Тогда предполагавшееся неравенство $R \ll R_0$ означает $R \ll (\pi N)^{-1/2}$. В ином случае $R \rightarrow \infty$, как можно увидеть из формулы (30), $R_0/R \rightarrow 1$. Такой же результат ($R_0/R \rightarrow 1$ при $R \rightarrow \infty$) получается и в объемном случае (см. формулу (19) работы [6] в пределе $\beta \equiv 3DC^*/KR^2 \rightarrow 0$).

Перейдем к диффузионной задаче для $n_s^{(0)}$. Как было отмечено выше (см. (18)), поток $j_{sR}^{(0)}$ имеет вид

$$j_{sR}^{(0)} = -D_s \varphi(R) [\bar{n}_s^{(0)} - n_{sR}]. \quad (33)$$

Здесь $1/\varphi$ имеет смысл эффективной (с учетом экранировки диффузионных потоков) длины изменения плотности адатомов вблизи островка размера R . С другой стороны, этот же поток можно найти, непосредственно решая диффузионную задачу (23), и из сравнения полученных выражений определить φ . В результате получаем

$$\varphi^{-1} = \lambda_s \frac{-AI_0(a) + BK_0(a)}{AI_1(a) + BK_1(a)} + \frac{D_s}{\beta_s}, \quad (34)$$

где

$$A \equiv K_0(b) - K_1(b) \frac{b}{\delta} \frac{K_0(\delta)}{K_1(\delta)},$$

$$B \equiv I_0(b) + I_1(b) \frac{b}{\bar{b}} \frac{K_0(b)}{K_1(\bar{b})}, \quad (35)$$

$\bar{b} \equiv R_0/l$. Если $\beta_s \rightarrow 0$, то из формулы (33) следует $\overline{j_{sR}^{(0)}} = -\beta_s (\overline{n_s^{(0)}} - n_{sR})$, что естественно для случая, когда поглощение атомов островком определяется их «скоростью перехода» через границу подложка—островок β_s , а не диффузией по подложке в меру величины D_s .

Рассмотрим еще случай $l = \lambda_s$, реализуемый при $l \rightarrow \infty$ и конечной величине λ_s . В этом случае $A = 0$ (см. (35)), радиус области влияния b из формулы (34) «выпадает» и $\varphi^{-1} = \lambda_s K_0(a)/K_1(a) + D_s/\beta_s$. Если дополнительно положить $\overline{n_s^{(0)}} = \bar{n}_s$, что имеет место при $K_\downarrow = \bar{n}_s/\tau_s$, то формула (33) дает известное [1] выражение диффузионного потока на изолированный островок в замкнутой системе ($K = 0$). Действительно, если $l \rightarrow \infty$, а диффузионная длина λ_s конечна, то потоки на данный островок фактически не чувствуют экранировки иными островками. Иначе говоря, адатомы, диффундируя к выделенному островку по подложке, раньше успеют испариться в газовую фазу, чем почувствовать влияние экранировки со стороны других островков. Это и соответствует случаю изолированного островка.

При нахождении величины dR/dt представим объем островка в виде $V = \kappa R^d$. Здесь d — эффективная мерность растущего островка, κ — геометрический фактор. Так, для островков в форме шарового сегмента с крайним углом θ [1, 8]

$$d = 3, \quad \kappa = \frac{\pi}{3} \frac{2 - 3 \cos \theta + \cos^3 \theta}{\sin^3 \theta}, \quad (36)$$

для цилиндрических островков с постоянной высотой h [9]

$$d = 2, \quad \kappa = \pi h. \quad (37)$$

Если цилиндрические островки сохраняют подобие формы [11], то

$$d = 3, \quad \kappa = \pi \Gamma, \quad (38)$$

Γ — отношение высоты островка к радиусу его основания. Тогда

$$\frac{dR}{dt} = \frac{2\pi\omega}{\kappa d R^{d-2}} [-\overline{j_{sR}^{(0)}} - j_{sR}^{(1)}], \quad (39)$$

где ω — объем атома в островке, а величины κ, d для островков различной геометрии даются формулами (36)–(38).

Зададимся еще вопросом, когда $j_{sR}^{(1)} \ll \overline{j_{sR}^{(0)}}$, т. е. в формуле (39) можно пренебречь членами, пропорциональными K , и пусть для простоты $\lambda_s \rightarrow \infty$ (в этом случае $\bar{K} = K_\downarrow = K$). Ответ сводится к виду $K \ll D_s (\bar{n}_s - n_{sR})/L^2$, где L — среднее расстояние между центрами островков. Тогда, если $\tau_K \sim (\bar{n}_s - n_{sR})/K$ — время формирования избыточной относительно n_{sR} плотности адатомов за счет источника K , а $\tau_D \sim L^2/D_s$ — время диффузионного «рассасывания» адатомов на масштабе L , полученное неравенство означает $\tau_D \ll \tau_K$. Иначе говоря, островки успевают быстро поглощать «избыточные» адатомы, поставляемые внешним источником K .

5. Пределы применимости теории

Предлагаемая теория описывает два основных физических эффекта в системе островков: обмен атомами и рост островков за счет внешнего потока K . Поэтому и пределы применимости теории включают две группы неравенств.

1. Как уже отмечалось, прежде всего предполагается малость Z ($Z \ll 1$). Далее, если l — характерный масштаб изменения плотности $n_s^{(0)}$ в эффективной среде, то для описания последней как сплошной среды с непрерывно

распределенными стоками на площади $\simeq \pi l^2$ должно находиться большое число островков ($\pi l^2 N \gg 1$). В области же влияния радиуса R^0 , по определению, содержится лишь один островок, поэтому $\pi R^2 N \simeq 1$. Замечая, наконец, что $\pi \bar{R}^2 N \simeq Z \ll 1$, мы приходим к неравенствам

$$\bar{R}^2 \ll R_0^2 \ll l^2. \quad (40)$$

В пределе $\lambda_s \rightarrow \infty$, когда $l = l$, можно показать, что $l^2 \simeq (2\pi N)^{-1} \ln(2Z)^{-1/2}$. Тогда неравенство $R_0^2 \ll l^2$ непосредственно дает $(1/2) \ln(2Z)^{-1/2} \gg 1$. Последнее требование на малость Z является гораздо более жестким, чем $Z \ll 1$.

2. Неравенства (40) не связаны с величиной K . Ограничение на величину K сверху сформулируем из условия $n_s^* \ll 1/a_0^2$, где a_0 — параметр решетки подложки; $1/a_0^2$ — плотность позиций для адсорбции, равная плотности монослоя адатомов. Воспользовавшись выражением (30) для n_s^* в пределе $\lambda_s \rightarrow \infty$ и считая для простоты $\alpha/a \ll 1$ (рост островка лимитируется диффузией), положим $n_s^* \simeq (K \tau_s/2) b^2 \ln(b/a)$, что легко преобразовать к виду $n_s^* \simeq (K/2\pi N D_s) \ln(R_0/\bar{R})$. Тогда искомое неравенство имеет вид

$$K \ll 2\pi \bar{R} N \frac{D_s (1/a_0^2)}{\bar{R} \ln(R_0/\bar{R})}. \quad (41)$$

Величина, стоящая в правой части (41), по порядку величины есть полный поток адатомов на все островки, расположенные на единичной площадке подложки при максимальной плотности адатомов $n_s \simeq 1/a_0^2$. Физический смысл неравенства (41) состоит, следовательно, в том, что диффузионные потоки успевают отводить вещество, «накачанное» в систему внешним источником K , и накопления адатомов на подложке не происходит. Это и предполагается в теории.

6. Обсуждение результатов

Основным результатом настоящей работы являются аналитические выражения для диффузионных потоков на островок $\overline{j_{sR}^{(0)}}$ и $j_{sR}^{(1)}$, учитывающие как эффект экранировки ансамбля островков, так и внешний источник атомов K (см. формулы (25)—(27), (33)—(35)). Скорость роста островка dR/dt пропорциональна сумме этих потоков (формула (39)), а коэффициент пропорциональности зависит от конкретной геометрии островка, в частности от эффективной мерности островка d (2 или 3). Анализ пределов применимости самосогласованного приближения эффективной среды приводит к неравенствам (40). Замечая, что $l \sim \min\{l, \lambda_s\}$, $R_0 \sim L$, и вводя диффузионное время $\tau_D \sim L^2/D_s$, из (40) легко получить неравенство $\tau_D \ll \tau_s$. Оно означает, что адатомы, диффундируя к выделенному островку по подложке, раньше успеют почувствовать влияние экранировки со стороны иных островков, чем испариться в газовую фазу.

В области применимости теории (как это следует из формул (33)—(35)) поток $\overline{j_{sR}^{(0)}}$ равен

$$\overline{j_{sR}^{(0)}} = - \frac{D_s (\overline{n_s^{(0)}} - n_{sR})}{R \ln(l/R) + D_s/\beta_s}$$

и слабо (логарифмически) зависит от λ_s посредством $\ln(l/R)$. Поток же $j_{sR}^{(1)}$, как это видно из (28), в главном приближении по параметрам $R/\lambda_s \ll 1$, $R_0/\lambda_s \ll 1$ вообще не зависит от λ_s (такая зависимость появляется только в следующем, квадратичном, приближении). Таким образом, рассмотренный подход описывает диффузионный рост островков двумерных фаз в ансамблях при малых коэффициентах заполнения подложки Z и больших диффузионных длинах λ_s (соответствующие неравенства приведены выше). За счет эффекта экранировки, проявляющегося в появлении

дополнительной конечной длины l , формулы теории не содержат характерной для двумерной задачи логарифмической расходимости при $\lambda_s \rightarrow \infty$.

В заключение отметим, что полученные формулы для диффузионных потоков могут быть использованы в теории гетерогенного катализа при описании транспорта адсорбированных молекул на активные центры круговой формы [12].

Список литературы

- [1] Гегузин Я. Е., Кагановский Ю. С. // УФН. 1978. Т. 125. № 3. С. 489—525.
- [2] Чернов А. А. // Современная кристаллография. М.: Наука, 1980. Т. 3. С. 7—232.
- [3] Потехина Н. Д., Зандберг Э. Я., Рутьков Е. В., Тонтегоде А. Я. // ФТТ. 1977. Т. 19. № 7. С. 2078—2086.
- [4] Слезов В. В., Сагалович В. В. // УФН. 1987. Т. 151. № 1. С. 67—104.
- [5] Slyozov V. V., Verezhnyak P. A. // Physics of Radiation Effects in Crystals. Elsevier Science Publishers B. V., 1986. P. 575—620.
- [6] Слезов В. В. // ФТТ. 1989. Т. 31. № 8. С. 20—30.
- [7] Слезов В. В., Остапчук П. Н. // ФТТ. 1990. Т. 32. № 2. С. 1012—1020.
- [8] Chakraverty V. K. // J. Phys. Chem. Solids. 1967. V. 28. N 12. P. 2401—2412, 2413—2421.
- [9] Кацнельсон А. А., Олемской А. И. Микроскопическая теория неоднородных структур. М., 1987. Гл. IV. § 12.
- [10] Коропов А. В., Сагалович В. В. // Поверхность. 1987. № 6. С. 50—55; 1989. № 5. С. 55—63; 1990. № 2. С. 17—26.
- [11] Кукушкин С. А., Калинин И. П., Сергеева Л. А., Степанова Н. Д. // Поверхность. 1985. № 3. С. 84—90.
- [12] Жданов В. П. Элементарные физико-химические процессы на поверхности. Новосибирск: Наука, 1988. 320 с.

Харьковский
физико-технический институт
АН УССР

Поступило в Редакцию
1 августа 1990 г.

В окончательной редакции
22 февраля 1991 г.