01

Масштабная инвариантность континуального распределения по размерам при необратимом росте поверхностных островков

© *В.Г. Дубровский, Ж.В. Соколова*

Санкт-Петербургский Академический университет
Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе РАН, Санкт-Петербург
Санкт-Петербургский национальный исследовательский университет информационных технологий механики и оптики
Санкт-Петербургский государственный экономический университет
E-mail: dubrovskii@mail.ioffe.ru

Поступило в Редакцию 28 декабря 2014 г.

Проведен анализ континуального кинетического уравнения для необратимого гетерогенного роста поверхностных островков при специальном виде зависимости коэффициента захвата σ от размера s и степени покрытия поверхности Θ. Показано, что если $\sigma(s,\Theta)=\alpha(\Theta)(a+s)^{\beta}$, функция $\alpha(\Theta)$ произвольна и $0\leqslant\beta\leqslant 1$, решения континуального уравнения первого порядка удовлетворяют гипотезе о масштабной инвариантности распределения по размерам (скейлинге) в одном исключительном случае — при $\beta=1$. Полученные результаты свидетельствуют о наличии фундаментальной связи скейлинга и линейности зависимости $\sigma(s)$. Обсуждаются вопросы о связи функций распределения в континуальных и дискретных моделях роста и о применении полученных решений для моделирования и интерпретации экспериментальных данных в различных системах.

Принадлежащая Vishek и Family [1] гипотеза о скейлинге функции распредлеения (ФР) поверхностных островков $n(s,t)$ по числу адатомов в них („размеру") при необратимом росте формулируется следующим образом. В пределе больших отношений коэффициента диффузии адатомов D к газовому потоку F $(\Lambda=D/F\to\infty)$ ожидаемый вид ФР определяется выражением $n(x,\langle s\rangle,\Theta)=(\Theta/\langle s\rangle^2)f(x)$. Здесь $\langle s\rangle$, Θ есть зависящие от времени средний размер островков и степень покрытия поверхности островками соответственно, а $f(x)$ — некоторая универсальная функция приведенного размера $x = s/\langle s \rangle$, зависящая от параметров системы. С учетом нормировок плотностии среднего размера функция $f(x)$ должна удовлетворять условиям

$$\int_0^\infty dx\, f(x) = \int_0^\infty dx x\, f(x) = 1. \tag{1}$$

Скейлинг ФР имеет важное значение как для физических свойств двумерных дисперсных систем, так и для моделирования экспериментальных распределений по размерам [2–5].

Несмотря на почти 30-летнюю историю исследований, прекрасно отраженную в обзорах [2–5], многие важные вопросы остаются неразрешенными. Это относится, в частности, к методам построения аналитических ФР на основе балансных кинетических уравнений (БКУ) [6–11], аппроксимациям коэффициентов захвата как функции размера островков вне рамок приближения среднего поля [3–5,9], сравнительном анализу гомогенного и гетерогенного роста [12–14] и применимости БКУ для описания ФР одномерных цепочек адатомов [12,14] и непланарных структур типа нитевидных нанокристаллов [15,16]. В отличие от теории нуклеации с распадом частиц, где ФР довольно симметричны [17–20], ФР в моделях необратимого роста приобретают ярко выраженную асимметрию с „затянутым“ хвостом в области малых размеров [8,11]. Это приводит к неаналитическим скейлинговым функциям при стандартном масштабировании переменных [7,8,11]. Более того, применимость континуального приближения [7,9–11], насколько нам известно, ни в одном нетривиальном случае строго не рассматривалась.

В данной работе исследуется континуальное БКУ необратимого роста в случае, когда коэффициенты захвата являются степенными функциями размера. Задачей работы является нахождение точных решений БКУ и анализ их масштабной инвариантности. Для определенности рассматриваем случай гетерогенного роста двумерных поверхностных островков из s подвижных адатомов A_1, осаждаемых на поверхность из газового потока F и имеющих коэффициент диффузии D, на неподвижных центрах нуклеации B по схеме $A_sB + A_1 \to A_{s+1}B$, $s \geqslant 0$. В скейлинговом пределе $D/F \to \infty$ практически для всех времен роста t степень заполнения поверхности Θ равна произведению числа центров нуклеации $n_\mathrm{B}^{tot} = \mathrm{const}$ на средний размер островков $\langle s \rangle$: $\Theta \cong n_\mathrm{B}^{tot}\langle s \rangle$.

Как известно [11], континуальное БКУ первого порядка для ФР $n(s,t)$ имеет вид

$$\frac{\partial n(s,t)}{\partial t} = -Dn_{\mathrm{A}}\frac{\partial}{\partial s}\left[\tilde{\sigma}(s,\Theta)n(s,t)\right]. \tag{2}$$

Здесь $\tilde{\sigma}(s,\Theta)$ есть зависящий от размера и степени заполнения коэффициент захвата и n_{A} — зависящая от времени концентрация свободных мономеров (в соответствии с принятой в литературе нормировкой выражаем все концентрации в безразмерном виде, умножая их на площадь элементарной ячейки поверхности). В дальнейшем исследуется важный частный случай зависимости коэффициента захвата от s и Θ вида

$$\tilde{\sigma}(s,\Theta) = \alpha(\Theta)\sigma(s) \tag{3}$$

с пока произвольными функциями $\alpha(\Theta)$ и $\sigma(s)$.

Следуя общему методу решения уравнений типа (2) в теории нуклеации [11,17,19,20], вводим инвариантный размер ρ и зависящую от времени переменную z по определениям

$$\rho = \int\limits_0^s \frac{ds'}{\sigma(s')}, \quad \frac{dz}{dt} = Dn_{\mathrm{A}}\alpha, \quad z(t=0) = 0, \tag{4}$$

а также новую ФР $g(\rho,z)$ по инвариантному размеру ρ, удовлетворяющую условию нормировки $g(\rho,z)d\rho = n(s,z)ds$. Это сводит уравнение (2) с коэффициентом захвата (3) к каноническому виду $\partial g(\rho,z)/(\partial z = -\partial g(\rho,z)/\partial\rho$, откуда $g(\rho,z) = F(z-\rho)$. Очевидно, что в терминах инвариантного размера все островки имеют одинаковую скорость роста, при этом z есть максимальный размер островков, родившихся при $t=0$.

Конкретный вид функции F определяется граничным условием, которое требует равенства искомой ФР скорости нуклеации при $\rho=0$: $g(\rho=0,z) = dN/dz$, где N — полное число островков [11]. В гетерогенном случае островки рождаются только на свободных центрах нуклеации, откуда $dN/dz = \sigma_0 n_0 \equiv an_0$, где мы для краткости вводим обозначение $a \equiv \sigma_0$ для коэффициента захвата мономера. В свою очередь, убыль числа свободных центров нуклеации происходит только с их участием, поэтому $n_0(z) = n_{\mathrm{B}}^{tot}e^{-az}$, где n_{B}^{tot} — полное число центров нуклеации [14]. Следовательно, $F(z-\rho) = an_{\mathrm{B}}^{tot}\exp(\rho - z)$. С учетом нормировок отсюда следует точное решение БКУ (2) с коэффициентом захвата (3) вида

$$n(s,z,\Theta)=\begin{cases}\dfrac{\Theta}{\langle s\rangle}\,\dfrac{a}{\sigma(s)}\,e^{a(p-z)}, & \rho\leqslant z\\ 0, & \rho>z.\end{cases} \tag{5}$$

Равенство нулю ФР по размерам при $\rho > z$ отражает тот факт, что при детерминированном росте [19] максимальный размер имеют островки, родившиеся при $t = 0$. Средний размер по данной ФР определяется выражением

$$\langle s\rangle=\frac{1}{n_{\mathrm{B}}^{tot}}\int\limits_0^\infty dssn(s,z)=ae^{-az}\int\limits_0^z d\rho s(\rho)e^{a\rho}. \tag{6}$$

Рассмотрим теперь случай, когда зависимость $\sigma(s)$ степенная при больших s:

$$\sigma(s)=a+s^\beta/(1+\beta)\cong s^\beta/(1+\beta),\quad 0\leqslant\beta<1. \tag{7}$$

Такой вид коэффициента захвата получается в приближении среднего поля для уединенного островка, где степенной показатель β зависит от механизмов диффузионного транспорта адатомов в островок [17,19]. Из (4) имеем инвариантный размер вида $\rho = s^{1-\beta}$. Очевидно, максимальный размер островков равен $s_{\max} = z^{1/(1-\beta)}$, а коэффициент захвата адатомов островками максимального размера есть $\sigma_{\max} = s_{\max}^{1-\beta}/(1-\beta)$, откуда следует $\sigma_{\max}/s_{\max} \sim 1/s_{\max}^{1-\beta} \to 0$. После несложных преобразований из (6) получаем $\langle s\rangle = s_{\max} - \sigma_{\max}/a + \ldots \to s_{\max}$, т.е. средний размер по мере роста островков стремится к максимальному размеру. Физической причиной такого поведения является экспоненциальный характер ФР, в то время как зависимость $s(\rho)$ лишь степенная.

Учитывая, что $z \cong \langle s\rangle^{1-\beta}$ при больших s, получаем масштабированную ФР вида

$$n(x,\langle s\rangle,\Theta)\cong\frac{\Theta}{\langle s\rangle^2}\begin{cases}a(1-\beta)\,\dfrac{\langle s\rangle^{1-\beta}}{x^\beta}\,\exp\left[a\langle s\rangle^{1-\beta}(x^{1-\beta}-1)\right], & x\leqslant 1\\ 0, & x>1\end{cases}. \tag{8}$$

Совершенно ясно, что данная ФР не удовлетворяет гипотезе скейлинга, поскольку стоящая в правой части равенства функция зависит от $\langle s\rangle$

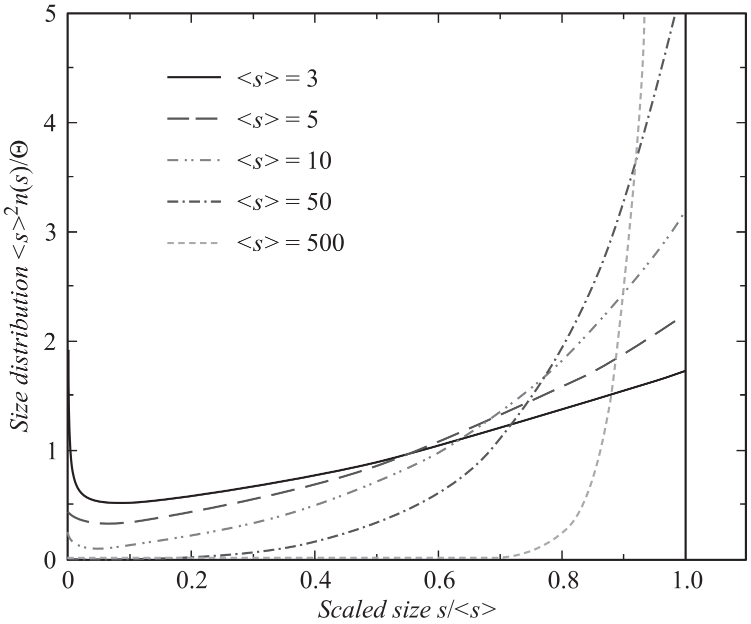

Рис. 1. Масштабированная ФР $\langle s\rangle^2 n(s)/\Theta$ как функция приведенного размера $s/\langle s\rangle$ при $\beta = 1/2$, $a = 2$ и различных значениях среднего размера $\langle s\rangle$, демонстрирующая отсутствие скейлинга $0 \leqslant \beta < 1$.

и, следовательно, не является универсальной (рис. 1). Неаналитический скейлинг в случае гомогенного роста при $\beta = 0$ отмечался ранее Bartelt и Evans [8], при $0 \leqslant \beta < 1/2$ — Vvedenski [7] и при $0 \leqslant \beta < 1$ — в работе [11], причем учет второй производной в континуальном БКУ не меняет ситуацию. Нами показано, что данное свойство остается в силе и для гетерогенного роста.

Поведение ФР радикально изменяется в случае, когда коэффициент захвата линеен по s:

$$\sigma(s) = a + s. \tag{9}$$

Именно такая зависимость следует из данных кинетического моделирования Монте-Карло [9] и из построения Вороного [3] при учете конкуренции между островками за захват адатомов, что весьма естественно в скейлинговом пределе больших подвижностей. Согласно (4),

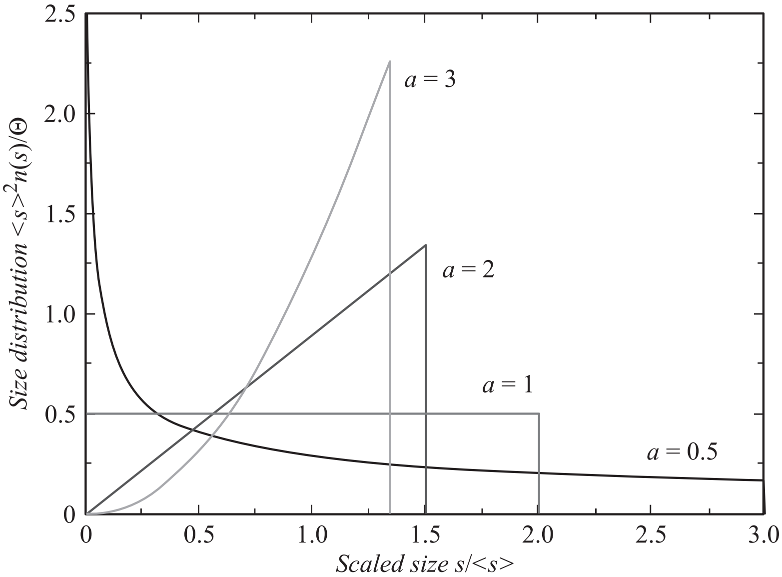

Рис. 2. Масштабно-инвариантные ФР при $\sigma(s) = a + s$ и различных значениях a.

инвариантный размер теперь равен $\rho = \ln[(a+s)/a] \cong \ln(s/a)$, откуда следует $s \cong a\exp(\rho)$ и $s_{\max} \cong a\exp(z)$. Используя (6), получаем: $\langle s\rangle \simeq [a^2/(a+1)]\exp(z) = [a/(a+1)]s_{\max}$. Экспоненциальный характер зависимости $s(\rho)$ приводит к тому, что частицы не „концентрируются" в крайней правой точке ФР, как в предыдущем случае, поэтому средний размер по ФР меньше максимального размера. Подчеркнем, что данное свойство уникально и имеет место исключительно для линейной зависимости коэффициента захвата от s. Это приводит к скейлинговой ФР вида

$$n(x, \langle s\rangle, \Theta) = \frac{\Theta}{\langle s\rangle^2}\begin{cases}\dfrac{a^{a+1}}{(a+1)^a}x^{a-1}, & x \leqslant \dfrac{a+1}{a}\\ 0, & x > \dfrac{a+1}{a}\end{cases}. \qquad (10)$$

Фигурирующая в правой части скейлинговая функция универсальна и в точности удовлетворяет обоим условиям нормировки (1). Данная ФР убывает при $a < 1$ и имеет немонотонный характер с максимумом в точке $x = (a+1)/a$ при $a > 1$ (рис. 2).

Таким образом, масштабная инвариантность ФР, определяемой на основе БКУ, тесно связана с линейностью коэффициента захвата по размеру. Этот результат важен с фундаментальной точки зрения и может служить объяснением масштабируемости экспериментальных ФР линейных рядов In адатомов на реконструированной поверхности $\mathrm{Si}(100) - 2 \times 1$ [12], а также в случае других металлов [13,14]. Вместе с тем отметим, что „треугольный" вид ФР, характерный для континуального приближения с первой производной по размеру [17], сильно отличается по форме от спектра, найденного на основе точных дискретных БКУ в той же задаче [13,14]. Этот вопрос будет рассмотрен в отдельном сообщении.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного фонда № 14-22-00018.

Список литературы

[1] *Vicsek T., Family F.* // Phys. Rev. Lett. 1984. V. 52. P. 1669.
[2] *Brune H.* // Surf. Sci. Rep. 1998. V. 31. P. 121.
[3] *Evans J.W., Thiel P.A., Bartelt M.C.* // Surf. Sci. Rep. 2006. V. 61. P. 1.
[4] *Dieterich W., Einax M., Maass P.* // Eur. Phys. J. Special Topics. 2008. V. 161. P. 151.
[5] *Einax M., Dieterich W., Maas P.* // Rev. Mod. Phys. 2013. V. 85. P. 921.
[6] *Amar J.G., Family F.* // Phys. Rev. Lett. 1995. V. 74. P. 2066.
[7] *Vvedensky D.D.* // Phys. Rev. B. 2000. V. 62. P. 15435.
[8] *Bartelt M.C., Evans J.W.* // Phys. Rev. B. 1992. V. 46. P. 12 675.
[9] *Korner M., Einax M., Maass P.* // Phys. Rev. B. 2012. V. 86. P. 085 403.
[10] *Bartelt M.C., Evans J.W.* // Phys. Rev. B. 1996. V. 54. P. R17 359.
[11] *Dubrovskii V.G., Sibirev N.V.* // Phys. Rev. B. 2014. V. 87. P. 195 426.
[12] *Javorský J., Setvin M., Ošťádal I.* et al. // Phys. Rev. B. 2009. V. 79. P. 165 424.
[13] *Дубровский В.Г.* // Письма в ЖТФ. 2014. Т. 40. В. 4. С. 79.
[14] *Dubrovskii V.G., Berdnikov Y.S.* // Mat. Phys. Mech. 2014. V. 21. P. 207.
[15] *Dubrovskii V.G.* // Phys. Rev. B. 2013. V. 87. P. 195 426.
[16] *Dubrovskii V.G., Xu T., Lambert Y.* et al. // Phys. Rev. Lett. 2012. V. 108. P. 105 501.
[17] *Kukushkin S.A., Osipov A.V.* // Prog. Surf. Sci. 1996. V. 51. P. 1.
[18] *Dubrovskii V.G.* // Phys. Stat. Sol. (b). 1992. V. 171. P. 345.
[19] *Dubrovskii V.G.* // J. Chem. Phys. 2009. V. 131. P. 164 514.
[20] *Dubrovskii V.G., Nazarenki M.V.* // J. Chem. Phys. 2010. V. 132. P. 114 507.