

具有排斥相互作用的原子团簇非平衡系统研究^{*}

翟国庆^{1,2)} 张邦俊¹⁾ 叶高翔²⁾

¹⁾ 浙江大学环境科学系 杭州 310028)

²⁾ 浙江大学物理系 杭州 310027)

(2004 年 7 月 5 日收到, 2004 年 8 月 11 日收到修改稿)

在无格点基底表面建立了存在排斥相互作用的原子团簇凝聚及扩散模型, 对沉积在均匀带电硅油基底表面的银原子凝聚过程进行了研究. 结果表明: 当沉积原子凝聚成稳定的原子团簇后, 由于带同种电荷, 团簇之间存在库仑排斥作用, 团簇数密度随时间呈指数形式衰减, 衰减时间常数为 O_a ; 两团簇相互离散的相对平均速率 V 与它们之间的相对距离 L 在统计意义上成正比, 即 $V = HL$. 停止沉积后初期, $H \approx O_a$, 然后随着扩散时间的增加, H 逐渐趋于零. 随着液体基底黏滞系数增加, 摩擦力增大, H 逐渐减小, 摩擦力与 H 基本满足线性关系, 其斜率为 0.10 ± 0.01 ; 原子团簇开始带电的临界半径 r_1 与沉积原子吸收电子的亲能和大小密切相关. 研究表明: H 与 O_a 均随 r_1 增加而缓慢增大, 斜率分别为 $1.2 \pm 0.3 \text{ s}^{-1} \mu\text{m}^{-1}$ 和 $1.6 \pm 0.6 \text{ s}^{-1} \mu\text{m}^{-1}$. 模拟结果与实验值基本一致.

关键词: 排斥相互作用, 团簇, 扩散

PACC: 3640J, 2160G, 8155, 8270

1. 引言

在过去 20 多年里, 人们致力于较小团簇(包括原子和原子团簇)在各种固体基底表面的扩散和凝聚行为研究, 在探索薄膜的成膜机理、表面形貌、结晶规律等方面取得了较大进展^[1-4]. 近年来, 有学者在液相基底表面制备金属薄膜获得成功^[5], 并揭示了沉积原子及其团簇的扩散、旋转、凝聚直至最后形成连续薄膜的诸多规律. 一般认为, 沉积原子及其团簇的凝聚过程主要受团簇的布朗运动、团簇间的相互吸引作用以及团簇与基底之间的相互作用三种因素的影响.

由于实验中不易原位观察团簇及其薄膜的形成过程, 人们提出了多种计算机模拟模型, 对薄膜的生长机理进行模拟. 主要的模型分为有格点模拟模型和无格点模拟模型两大类.

有格点模拟模型主要有受限扩散(diffusion limited aggregation)模型^[6](简称 DLA 模型)、团簇凝聚(cluster-cluster aggregation)模型^[7,8](简称 CCA 模型)、沉积扩散(deposition-diffusion aggregation)模型^[9](简称 DDA 模型). DLA 模型是在一个具有正方格点

和周期性边界条件的平面中心放一固定不动的粒子(称为种子), 然后每次随机投放一个粒子, 通过该粒子的随机运动与格点上已有粒子凝聚, 重复这一过程直到在平面中间长出分枝状凝聚体. CCA 模型则是在一个具有正方格点位置上随机放上许多粒子, 通过这些粒子及其团簇的随机运动凝聚形成一个包含所有粒子的凝聚体. DDA 模型以沉积速率 f_d 将粒子连续不断地沉积到正方格点基底表面, 同时, 通过沉积粒子与格点上已有团簇的随机运动凝聚成分枝状凝聚体. 上述建立在正方格点上的模拟模型均是通过粒子或团簇的随机运动对粒子的凝聚过程进行模拟.

无格点模拟模型^[10]是在无格点基底上随机投放 n 个直径为 d 的小圆盘(对应于其他模型中的粒子), 然后让这些圆盘在基底表面作随机扩散运动. 与 DDA 模型类似, 采用指数 γ 调节由团簇尺寸引起的扩散系数的变化, 其扩散系数 $D \propto S^{-\gamma}$, S 是团簇所包含的圆盘数. 另外, 所有团簇都能旋转, 其旋转扩散系数 $D_\theta \propto S^{-\gamma_\theta}$, γ_θ 为一常数^[11]. 如果两个团簇运动到相邻位置, 则粘合在一起而成为新的团簇. 模拟过程中每一次随机选择一个团簇运动(平移或旋转), 团簇被选择的概率 $P \propto S^{-\gamma}$, 运动步长从 l_1 ,

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 10204018, 10174063)资助的课题.

l_2, l_3, \dots, l_m 中随机选取, 其中 l_m 为最大扩散步长. 模拟结果表明, 形成的凝聚体分形维数 $D_f = 1.49 \pm 0.03$, 与圆盘直径、扩散步长、旋转步长均基本无关. 此模型的特点是计入了团簇扩散的随机步长和旋转, 它是描写在液相基底表面薄膜生长机理的有效模型^[12].

上述诸模型在研究薄膜的生长机理方面取得了很大成功, 它们的一个共同特点是均假设系统中团簇之间有一近程的吸引力, 通过粒子及其团簇的随机运动, 当两团簇占据临近位置时, 它们就粘在一起而不再分开.

然而, 在实际问题中, 原子团簇之间的相互作用相当复杂, 其凝聚机理也丰富多彩^[13-15]. 最近有学者通过阴极放电的方法让硅油基底表面均匀带电, 然后通过热蒸发方法沉积纯度为 99.99% 的银原子, 实验研究了液相基底表面具有排斥相互作用的银原子团簇的凝聚和扩散规律^[16].

本文在 DDA 模型的基础上, 根据银原子及其团簇在均匀带电硅油基底表面凝聚和扩散的诸多特征, 建立了无格点基底表面存在排斥相互作用的原子团簇形成及其扩散规律的模拟模型, 对实验过程进行了模拟, 揭示了存在排斥相互作用的原子及其团簇非平衡系统中的内在规律.

2. 具有排斥相互作用的原子团簇非平衡系统模型描述

1) 采用沉积速率 f_d 将半径为 r_0 、质量为 m_0 的“粒子”随机沉积到电荷面密度为 σ 、半径为 R_0 的无格点圆形基底上. 若沉积的粒子与基底上半径为 r' 、质量为 m' 的粒子相遇, 则合并成一个半径 $r = \sqrt{r_0^2 + (r')^2}$ 、质量 $m = m_0 + m'$ 的更大的粒子, 其圆心坐标根据质心定理计算. 若合并后某粒子的半径 r 不小于临界半径 r_1 , 则该粒子开始带电, 带电量 $q \propto S$, S 是该粒子所包含的半径为 r_0 的粒子数.

2) 粒子在基底表面作随机扩散运动, 若粒子带电, 它还将在基底电荷的电场力作用下作定向运动. 如果在运动过程中接触到基底边界, 那么该粒子便立即粘在基底边界上, 其速度 $v = 0$. 如果两粒子相遇, 且它们的半径乘积小于 r_2^2 ($r_2 > r_1$), 则合并成一个半径更大的粒子, 采用动量定理估计合并后粒子运动速度的大小和方向, 粒子圆心坐标根据质心定理计算, 若相遇的两粒子半径乘积不小于 r_2^2 , 则所

选粒子保持相遇前状态不变.

3) 粒子做随机扩散运动时, 采用指数 γ 调节由粒子大小引起的扩散系数的变化, 取扩散系数 $D \propto S^{-\gamma}$. 模拟过程中每一次随机选择一个粒子沿随机方向运动, 粒子被选择的概率 $P \propto S^{-\gamma}$, 运动的步长随机从 $l_1, l_2, l_3, \dots, l_i, \dots, l_m$ 中选取, 其中 l_m 为最大扩散步长, 粒子随机运动速度大小为 $l_i/\Delta t$, 其中 l_i ($1 \leq i \leq m$) 为该粒子某次随机运动步长. 将随机运动速度与粒子原有速度进行合成, 作为粒子实际运动速度的大小及方向.

4) 带电粒子在平行于基底表面的电场力 F (包括基底表面电荷和其余带电粒子对所选粒子的库仑力) 和摩擦力 f 作用下作定向运动时, 粒子所受合力 $F_c = F + f$, 若所选粒子质量为 M , 则在时间 Δt 内, 由

$$\begin{aligned} F_c \Delta t &= M(v_2 - v_1) = M\Delta v, \\ F_c \Delta s &= M(v_2^2 - v_1^2)/2 \\ &= M(v_2 + v_1)(v_2 - v_1)/2 \\ &\approx Mv_1\Delta v \end{aligned}$$

两式联立求得 Δv 和 Δs . 这里, v_1 为所选粒子初始速度, v_2 为经 Δt 时间后粒子运动速度, $\Delta v = v_2 - v_1$, Δs 为所选粒子在 Δt 时间内位移, 由 Δv 和 v_1 可确定 v_2 . 若所选粒子在运动方向上没有与其他粒子相遇, 则在 Δt 时间内该粒子的位移为 Δs .

5) 粒子的沉积和基底表面粒子的运动同时进行, 当沉积的粒子数达到 N 时停止沉积, 粒子只在基底表面按上述规则运动, 并记录每次运动后各粒子的位置、速度大小及方向.

3. 带电基底表面原子团簇非平衡系统模拟

3.1. 均匀带电硅油基底表面的银原子及其团簇

实验表明, 在均匀带电硅油基底表面沉积的银原子先形成直径约为 $1.2 \mu\text{m}$ 的银原子团簇, 随后由于这些团簇带同种电荷, 它们相互远离并向基底边缘扩散, 最后在基底边缘形成带状薄膜^[17].

3.1.1. 银原子团簇带电现象

对于单一银原子或较小的银原子团簇, 其电子亲和能 (即带一个额外电子所需要的能量) 一般大于硅油分子, 因此不可能带电^[17]; 随着银原子团簇直径的增加, 电子亲和能逐渐减小, 当达到临界半径

r_1 后,银原子团簇(粒子)开始吸收电子而带负电荷,然后在硅油基底表面电荷的电场力作用下向边缘扩散,银原子以及负电荷在硅油基底边缘逐渐累积.在硅油基底上进行二次银原子沉积的实验表明,银原子团簇仅带极少量负电荷^[16].由于团簇间相互远离,硅油基底中心区域银原子团簇数密度 n 随着时间 t 呈指数衰减,即满足 $n = n_0 e^{-\alpha t}$,其中 n_0 为停止沉积后 $t = 0$ 时刻的团簇数.

3.1.2. 带电银原子团簇受力分析

1)先分析电荷面密度为 σ 的圆盘形硅油基底对带电团簇的电场作用力.在实验过程中阴极向各方向发射电子的概率是相等的,这意味着圆形硅油基底表面的不同区域以相同的概率接受电子.由于硅油是绝缘体,电子到达硅油表面之后,电子随即被油分子俘获而不能自由运动.因此,模拟时我们假定圆形硅油表面将均匀分布负电荷而形成电场.同时,根据前面的分析,银原子团簇所带电量极少,由银原子团簇(粒子)向基底边缘扩散而带走的少量电荷对硅油表面电荷面密度 σ 的影响可以忽略不计.如图 1 所示,由圆盘形硅油基底的对称性可知:平行于硅油表面的电场强度是沿径向分布的,根据电磁学理论^[18],其大小可表述为

$$E(r) = \frac{\sigma}{4\pi\epsilon_0\epsilon_r} \int_0^{\pi} \frac{[r - R\cos(\theta)]RdRd\theta}{[R^2 + r^2 - 2rR\cos(\theta)]^{3/2}}, \quad (1)$$

式中 ϵ_0 为真空中的介电常数, ϵ_r 为硅油表面的相对介电常数, r 为带电粒子中心与圆形基底中心距离,硅油基底面积 $S' = S_1 + S_2 + S_3$. 由电荷面密度为 σ 的圆形硅油基底对带电量为 q_j 的第 j 颗粒子的库仑作用力为

$$F_0 = E(r)q_j. \quad (2)$$

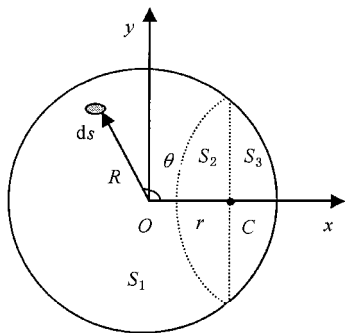


图 1 银原子团簇与带电的圆盘形硅油基底之间相互作用示意图

第 j 颗粒子的库仑作用力为

$$F_i = \frac{q_i q_j}{4\pi\epsilon_0 L_{ij}^2}, \quad (3)$$

式中 L_{ij} 为第 i 颗带电粒子与第 j 颗带电粒子间的相对距离.

3)下面分析粒子与硅油基底间的摩擦力 f . 根据流体摩擦理论^[19],粒子与硅油基底间的摩擦力可表示为

$$f = \eta \frac{s}{h} v, \quad (4)$$

式中 h 为硅油基底厚度, η 为硅油的黏滞系数, v 为粒子的运动速度, s 为粒子与基底接触面积.

因此,带电量为 q_j 的第 j 颗粒子所受合力

$$F_c = F_0 + \sum_{\substack{i=1 \\ i \neq j}}^{N_m} F_i + f, \quad (5)$$

式中 N_m 为基底表面粒子总数.

3.2. 模型主要参数取值及 $E(r)$, H , O_a 的模拟计算方法

3.2.1. 模型主要参数取值

为使模拟结果与已知实验结果具有可比性,模拟参数与实验参数的取值应基本一致^[16].在模拟中,取基底半径 $R_0 = 3.0$ mm,基底厚度 $h = 0.2$ mm,硅油黏滞系数 η 取 25 °C 时的 0.175 Pa·s, ϵ_r 取 2—3 (此参数变化对模拟结果没有明显影响).实验中钨丝距硅油基底距离约为 7 cm,其发射电流 $I = 1$ mA,充电时间 $t = 480$ s,由此估计电荷面密度 $\sigma \approx 0.008$ C·mm⁻².

3.2.2. $E(r)$ 计算方法

采用辛普申方法^[20]对积分(1)式进行数值求解,从而求得电场强度 $E(r)$.利用圆盘的对称性,把积分区间从整个圆盘表面等效转化为对 S_1 的积分(见图 1),以避免积分奇点.

3.2.3. H 值计算方法

采用两种方法模拟计算停止沉积后基底中心区域两粒子相对速度 V 与相对距离 L 的线性拟合斜率 H .方法一:跟踪两颗粒子,计算其不同时间 t 的相对速度 V 和相对距离 L ,对一系列 V 和 L 利用最小二乘法做线性拟合,给出线性拟合斜率 H .方法二:选取一定时间间隔的两张照片,任意选取具有不同的相对距离 L 和相对速度 V 的粒子对,然后对一系列 V 和 L 利用最小二乘法做线性拟合,给出线性拟合斜率 H .我们的模拟结果表明,上述两种方法

2)带电量为 q_i 的第 i 颗粒子对带电量为 q_j 的

所求得的 H 值基本一致.

3.2.4. O_a 值计算方法

为了估计停止沉积后基底中心区域粒子数密度的衰减时间常数 O_a , 用相等的时间间隔 Δt , 选取一组照片: $p_0, p_1, p_2, p_3, \dots$, 对应时间 t 分别为 $0, \Delta t, 2\Delta t, 3\Delta t, \dots$. 以基底中心为圆心, 任意选取中心区域内某一圆环 (圆环较窄), 分别统计不同时间拍摄照片中圆环内的粒子数, 并用公式 $n = n_0 e^{-O_a t}$ 和最小二乘法估算 $\ln\left(\frac{n}{n_0}\right)$ 与 t 的线性拟合斜率 O_a .

3.3. 模拟结果及分析

3.3.1. H 值的模拟计算

在基底中心区域任意选取不同距离的两带电粒子, 采用方法一模拟计算 H 值. 模拟计算结果如图 2 和图 3 所示. 由图 2 可知, 两团簇间的相对远离速度 V 与它们之间的距离 L 在一定范围内基本满足线性关系. 随着扩散时间 t 的增加, 比例系数 H 逐渐减小. 由图 3 可知, 团簇的布朗运动对 H 基本没有影响. 若采用上述所设的参数值, 则其结果均为 $H \approx 2.0 \times 10^{-4} - 3.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$, 且与所选取的两带电粒子位置及初始距离无关.

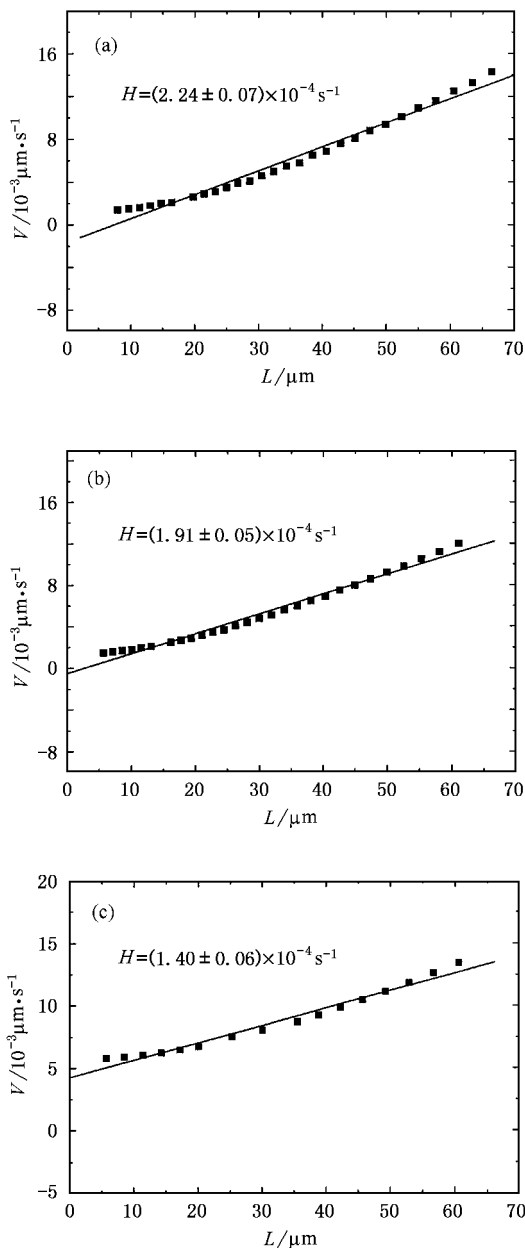


图 2 停止沉积后, 带电基底中心区域两带电粒子相对速度 V 与相对距离 L 的关系 (“方法一”模拟结果) (a) $t = 1000 \text{ s}$ (b) $t = 2500 \text{ s}$ (c) $t = 5000 \text{ s}$

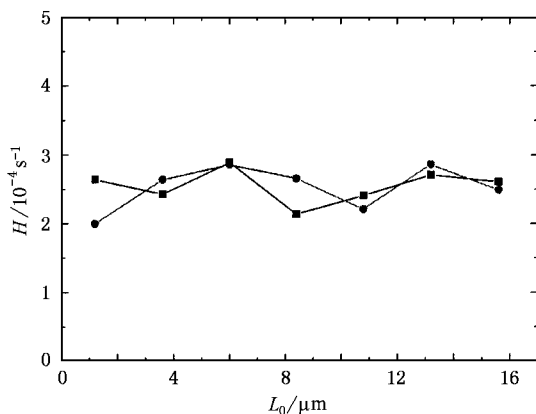


图 3 停止沉积后, 基底中心区域团簇扩散的 H 值与两带电团簇初始距离 L_0 的关系 (“方法一”模拟结果) ■ 为不计布朗运动的模拟值 ● 为计入布朗运动的模拟值

采用方法二模拟计算 H 与时间 t 的关系, 结果如图 4 所示. 图中的数据点是从两张拍摄时刻分别为 t 和 $t + 60 \text{ s}$ 的照片中获取的. 由图 4 可知, 随着扩散时间的增加, H 逐渐趋于零, 这一结论不仅与采用方法一得到的模拟计算结果基本一致, 而且与实验结果相符^[16].

3.3.2. O_a 值的模拟计算

图 5 给出了基底中心区域和偏离基底中心较远处的粒子数密度 n 随时间 t 变化的指数关系, 其中拟合直线的斜率即为时间常数 O_a . 模拟结果显示: 在基底的中心区域 (即远离边界的区域), 粒子数密度 n 均随时间 t 以指数形式衰减. 停止沉积后初期, $H \approx O_a$. 随着扩散时间 t 的增加, O_a 逐渐减小, 这些结果与实验事实相符^[16]. 从图 5 中可以看出, 距离基底中心较远处 O_a 较小, 很明显, 这一现象是基底的边界效应引起的. 换言之, 若基底不能被视为无穷

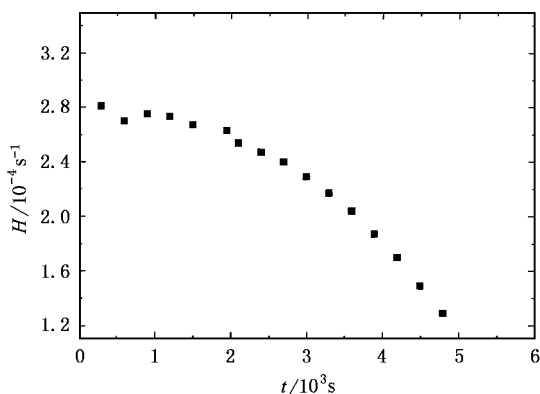


图4 停止沉积后 H 与时间 t 的关系(“方法二”模拟结果)

大, 则时间常数 O_a 在空间上不是处处均匀的。

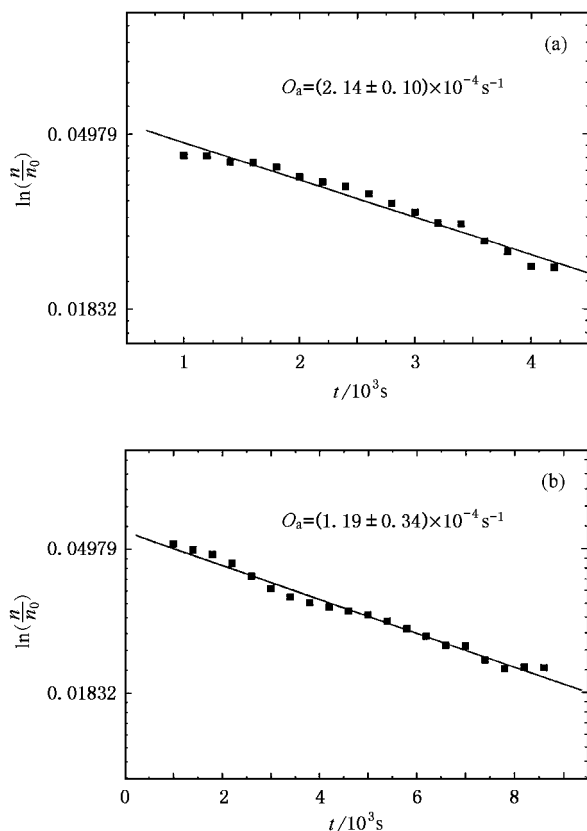


图5 粒子数密度 n 随时间 t 变化的指数关系, 时间常数 O_a 值由直线斜率给出。(a)基底中心区域模拟结果 (b)距基底中心较远区域模拟结果

3.3.3. 摩擦力 f 对 H 的影响

在保持其他参数不变的情况下, 改变黏滞系数 η 的大小, 模拟计算不同摩擦力 f 对 H 的影响, 图6给出了摩擦力 f 与 H 的关系。由图6可知, 随着摩擦力 f 的增大, H 逐渐减小, 它们之间基本满足线性关

系, 斜率为 0.10 ± 0.01 。这一结果符合实际情况, 因为当摩擦力 f 很大时, 即对应于固体基底的情况, $H \rightarrow 0$, 此时团簇间是不存在类似图2的扩散运动的。

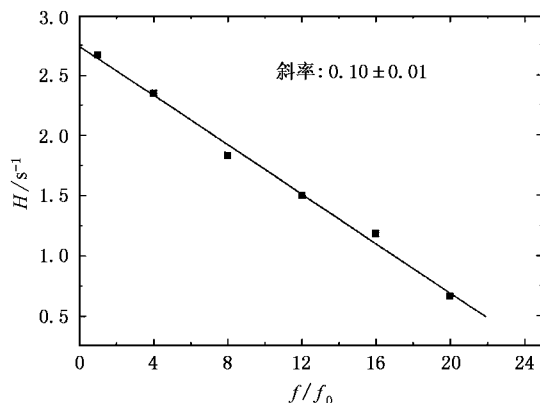


图6 在保持其他模拟参数不变的情况下, 摩擦力 f 与 H 的关系 (f 以常数 f_0 为单位)

3.3.4. 临界半径 r_1 对参数 H 和 O_a 的影响

模拟结果显示: 在保持其他模拟参数不变的情况下, 在 $0.1 \mu\text{m} < r_1 < 0.5 \mu\text{m}$ 范围内, H 和 O_a 均随临界半径 r_1 的增大而缓慢增大, 斜率分别为 $1.2 \pm 0.3 \text{ s}^{-1} \mu\text{m}^{-1}$ 和 $1.6 \pm 0.6 \text{ s}^{-1} \mu\text{m}^{-1}$, 结果如图7和图8所示。这一结果说明, 对于那些在扩散过程中质量和电荷增加较多的团簇(即 r_1 较小), 它们的 H 和 O_a 值较小, 由此可以看出沉积过程对团簇凝聚生长以及扩散过程的影响。另一导致图7和图8结果的因素是团簇与基底的摩擦力 f 。因为当 r_1 变化时, 由于团簇在电场力作用下加速时间不同, 团簇半径所对应的扩散速度也是不一样的, 因而导致了团簇受摩擦力阻碍的过程不同, 从而使 H 和 O_a 值改变。不过上述结论还有待于实验的进一步验证。

当原子团簇半径从小于 r_1 到大于 r_1 过渡时, 原子团簇吸收额外电子的亲能和由正向负转变, 对应于团簇内部的电荷极化以及表面电荷分布的突变, 它在一定程度上也反映了团簇微观结构的变化。因此, 如何从实验上精确测量原子团簇的 r_1 是一项十分有意义的工作。另一方面, 实验已经证明, 对于带电硅油表面的银原子团簇, 其 r_1 值小于亚微米尺度数量级, 从而使得在实验上动态观察和测量 r_1 值变得十分困难。图7和图8中的模拟结果给出了 r_1 与实验可测值 H 以及 O_a 的关系, 为间接获得原子团簇系统的 r_1 值进而研究原子团簇带电行为提供了新的方法。

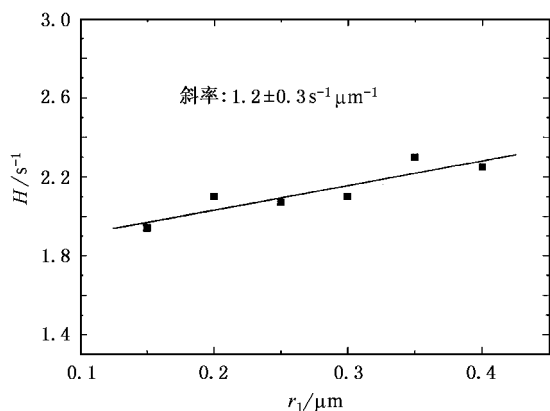


图7 在保持其他模拟参数不变的情况下,临界半径 r_1 与 H 的关系

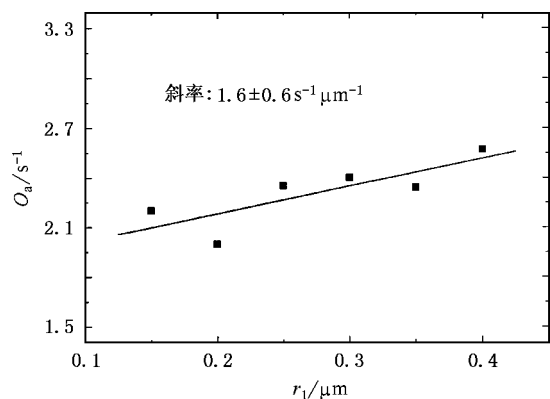


图8 在保持其他模拟参数不变的情况下,临界半径 r_1 与 O_a 的关系

4. 结 论

在无格点基底表面建立了存在排斥相互作用的原子团簇的形成及扩散模型,对沉积在均匀带电硅油基底表面的银原子及其团簇的凝聚和扩散过程进行了模拟,所得结果如下:

1) 基底表面的团簇数密度 n 随扩散时间 t 呈指数形式衰减,即 $n = n_0 e^{-O_a t}$; 两团簇相互离散的相对平均速率 V 与它们之间的相对距离 L 在统计意义上成正比,即 $V = HL$. 停止沉积初期 $H \approx O_a$, 随着扩散时间 t 的增加, H 和 O_a 逐渐趋于零.

2) 随着液体基底黏滞系数 η 增加,即摩擦力 f 的增大, H 逐渐减小,两者基本满足线性关系,斜率为 0.10 ± 0.01 .

3) 原子团簇开始带电的临界半径 r_1 与沉积原子吸收电子的亲能大小密切相关,在 $0.1 \mu\text{m} < r_1 < 0.5 \mu\text{m}$ 范围内, H 和 O_a 均随 r_1 增加而缓慢增大,斜率分别为 $1.2 \pm 0.3 \text{ s}^{-1} \mu\text{m}^{-1}$ 和 $1.6 \pm 0.6 \text{ s}^{-1} \mu\text{m}^{-1}$.

在带电液相基底表面沉积原子,并研究其成核、凝聚和扩散过程,为研究亚微米尺寸以下原子团簇带电机理提供了一种新的有效方法. 本文所提出的在无格点带电基底表面沉积的模拟模型,则是对这一新实验方法的补充,它将有助于此类问题的最终解决.

- [1] Mouritsen O G 1990 *Kinetics of Ordering and Growth at Surfaces* Lagally M G ed (New York: Plenum)
- [2] Lagally M G 1993 *Phys. Today* **46** 24
- [3] Bimberg D, Grandmann M, Ledentsov N 1999 *Quantum Dot Heterostructures* (Chichester: Wiley)
- [4] Meakin P 1998 *Fractals, Scaling and Growth Far from Equilibrium* (Cambridge: Cambridge University Press)
- [5] Ye G X, Yang B, Xia A G *et al* 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 1901 (in Chinese) [叶高翔、杨波、夏阿根等 1998 物理学报 **47** 1901]
- [6] Witten T A, Sander L M 1981 *Phys. Rev. Lett.* **47** 1400
- [7] Meakin P 1983 *Phys. Rev. Lett.* **51** 1119
- [8] Kolb M, Botet R, Jullien R 1983 *Phys. Rev. Lett.* **51** 1123
- [9] Jensen P, Barabasi A L, Larralde H *et al* 1994 *Phys. Rev. B* **50** 15316
- [10] Luo M B, Ye G X, Xia A G *et al* 1999 *Phys. Rev. B* **59** 3218
- [11] Yang B, Luo M B, Tao X M *et al* 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1523

(in Chinese) [杨波、罗孟波、陶向明等 1999 物理学报 **48** 1523]

- [12] Luo M B, Ye G X, Xia A G *et al* 1999 *Phys. Rev. B* **59** 3218
- [13] Repp J, Moresco F, Meyer G *et al* 2000 *Phys. Rev. Lett.* **85** 2981
- [14] Crommie M F, Lutz C P, Eigler D M 1993 *Nature* **363** 524
- [15] Crocker J C, Grier D G 1998 *MRS Bull.* **23** 24
- [16] Ye G X, Thomas M, Mathias W 2002 *Phys. Rev. B* **65** 205409
- [17] Lide D R 1997 *Handbook of Chemistry and Physics* (New York: CRC Press)
- [18] Jones D S 1964 *The Theory of Electromagnetism* (Oxford: Pergamon Press)
- [19] Weber R L, White M W 1957 *Physics for Science and Engineering* (New York: McGraw-Hill Book Company, Inc)
- [20] Yi D Y, Shen Y B, Li Y F 1989 *Computing Methods* (Hangzhou: Zhejiang University Press) (in Chinese) [易大义、沈云宝、李有法 1989 计算方法(杭州:浙江大学出版社)]

Studies on a nonequilibrium atomic cluster system with repulsive interactions *

Di Guo-Qing^{1,2)} Zhang Bang-Jun¹⁾ Ye Gao-Xiang²⁾

¹⁾(Department of Environment Science , Zhejiang University , Hangzhou 310028 , China)

²⁾(Department of Physics , Zhejiang University , Hangzhou 310027 , China)

(Received 5 July 2004 ; revised manuscript received 11 August 2004)

Abstract

A simulation model for diffusion and aggregation of atomic clusters with repulsive interactions on nonlattice substrates is established , and the aggregation process of the silver atoms on charged silicone oil surfaces has been studied . It was found that after the stable atomic clusters form , due to the repulsive interaction among the clusters , the number density of the atomic clusters decays with time exponentially and the time constant is O_a ; statistically , the relative speed V between two clusters increases linearly with their distance L according to $V = HL$, where the constant $H \approx O_a$ after deposition and then approaches zero with time . With the increase of the viscosity coefficient of liquid substrates , the friction force increases and H decreases . A linear relation between the friction force and H is found with the slope $k \approx 0.10 \pm 0.01$. We show that the critical radius r_1 of the clusters , above which the atomic clusters start to carry charges , is related nearly to the atomic affinity , i. e. , the energy needed for the cluster to carry an extra electron . It is found that H and O_a increase slowly with r_1 and their slopes are $1.2 \pm 0.3 \text{ s}^{-1} \mu\text{m}^{-1}$ and $1.6 \pm 0.6 \text{ s}^{-1} \mu\text{m}^{-1}$, respectively . Our simulation results are in agreement with the previous experimental findings .

Keywords : repulsive interactions , clusters , diffusion

PACC : 3640J , 2160G , 8155 , 8270

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 10204018 , 10174063) .