

无格点基底表面的杂质分布对分枝状凝聚体的影响^{*}

高国良¹⁾ 钱昌吉¹⁾ 李 洪²⁾ 谷温静¹⁾ 黄晓虹¹⁾ 叶高翔³⁾

1) 温州大学物理系, 温州 325035)

2) 温州大学信息学院, 温州 325035)

3) 浙江大学物理系, 杭州 310027)

(2005 年 12 月 23 日收到, 2006 年 4 月 7 日收到修改稿)

根据含杂质熔融玻璃表面金原子凝聚的实验规律, 在原子团簇具有随机的线扩散步长和刚性转动角的特征条件下, 建立了含杂质无格点基底表面上改进的杂质限制团簇-团簇(IRCCA)凝聚模型. 对团簇的扩散、刚性转动以及凝聚全过程进行了计算机模拟, 系统地研究了杂质区域分布情况对分枝状凝聚体诸多特性的影响. 结果表明规则分布的杂质对凝聚体生长的影响比随机分布的杂质大, 导致杂质规则分布的基底表面上的分枝状凝聚体的数密度更大, 分枝状凝聚体的回旋半径, 凝聚体平均大小及分形维数更小.

关键词: 薄膜生长, Monte Carlo 模拟, 分形, 杂质

PACC: 0555, 6855

1. 引 言

利用计算机模型研究薄膜的生长机理是当今表面科学的一个重要方向^[1-11]. 已有的实验结果表明: 在一定条件下, 原子或原子团簇均能在固体和液体基底表面无规扩散和凝聚, 并形成具有分形结构的分枝状凝聚体^[12-20]. 对固体基底表面薄膜生长机理的计算机模拟研究, 诸如扩散受限凝聚(DLA)模型^[1], 团簇-团簇凝聚(CCA)模型^[2,3]以及沉积扩散凝聚(DDA)模型^[5]等模拟研究, 均已取得了很好的成果. Luo 等人根据液相基底表面分形凝聚体形成的特点, 建立了无格点基底表面圆形团簇的扩散和凝聚模型^[6,7], 较好地解释了银原子在硅油表面上的凝聚规律. 然而上述诸多计算机模型均假设原子或原子团簇是在完全无杂质无缺陷的理想基底表面扩散和凝聚的.

事实上, 基底表面并非完美无缺的, 存在杂质区域是一种极为普遍的现象. 基底表面的原子点缺陷、线缺陷、表面吸附原子等等都可造成基底表面的不完整性. 基底上存在的杂质往往会对薄膜的生长机理产生很大影响^[21-25]. 例如 Hwang 等人发现在覆盖铅的 Si(111) 表面二维锗岛生长实验中, 其锗岛结构与没有铅原子时截然不同^[21,22]; 在熔融玻璃表面金

薄膜的生长机理受到杂质区域的明显影响也是一个例子^[20]. 因此上述计算机模型不能被用来解释含杂质基底表面上沉积原子的凝聚机理. 为了解释熔融玻璃表面金原子的凝聚特性, 我们最近建立了含杂质无格点基底表面的改进的杂质限制团簇-团簇(IRCCA)计算机模型^[25], 该模型由于考虑了团簇的无规扩散和刚性转动, 所以是格点上的 RCCA 模型^[26]的改进, 是 RCCA 模型^[26]与无格点 CCA 模型^[6,7]在含杂质基底表面上的结合. 模拟结果与实验相符合, 因而成功解释了熔融玻璃表面金原子凝聚机理.

为了进一步研究杂质的分布情况对无格点基底表面粒子的凝聚特性的影响, 以便为实际系统中人为引入杂质含量提供参考. 本文利用 IRCCA 计算机模型研究在无格点基底表面上杂质区域的大小和位置规则分布时的原子凝聚特性, 并与杂质随机分布的情况进行了比较. 结果表明, 杂质的规则分布对凝聚体的特性影响更大, 杂质的规则分布将增加分枝状凝聚体的数密度, 减小分枝状凝聚体的回旋半径, 凝聚体平均大小及分形维数.

2. 模型描述

Monte Carlo 模拟是在具有周期性边界条件的边

^{*} 浙江省自然科学基金(批准号:103096)资助的课题.

长为 $L = 400$ 的正方形无格点基底表面进行. 首先在基底表面放置 $M = N \times N$ 个规则分布的半径 R 相同的圆形杂质区域, 这些杂质在整个模拟过程中固定不动. 然后, 让 n 个半径 $r = 0.5$ 的粒子随机且不重叠地沉积在无格点的基底上. 若粒子落在杂质区域圆内, 则粒子沿径向被移到圆的边缘外侧(粒子间不得重叠). 间距为 1 的相邻两个或两个以上的粒子组成一个团簇. 单个粒子和团簇(以下统称为团簇)按如下规则运动:

1) 随机选择一个团簇, 等概率地在平移和转动中任意选择一种方式. 当团簇平移时, 在 $(\pm X, \pm Y)$ 四个方向中任选一个运动方向, 并在若干个步长 l ($l = 1, 2, 3, \dots, l_{\max}$) 中随机选择一个步长行走一步; 当团簇刚性转动时, 在若干个角度 α ($\theta = \pm 1^\circ, \pm 2^\circ, \dots, \pm \theta_{\max}$) 中随机选择一个角度作绕质心的刚性转动. 这里所选择的运动范围都以团簇不重叠为条件. 如果随机选择的运动量太大而导致两个团簇发生重叠, 则运动幅度将自动减小, 使两个团簇刚刚相遇而粘合在一起.

2) 如果两个团簇中任两个最近邻粒子之间的距离为 $2r = 1$ 时, 则两团簇便不可逆地粘合在一起, 组成一个新的团簇.

3) 原则上所有的团簇都参与随机平移或转动, 但是随机选中团簇的概率 P 与团簇的大小(用团簇中所含的粒子个数 m 表示)有关, 本文取 $P \propto 1/\sqrt{m}^{[6,7]}$.

4) 禁止团簇进入杂质区域, 若团簇按上述规则运动而要进入杂质区域, 则该团簇在杂质区域边缘自动停止此次行走.

5) 不断重复过程 1)–4), 直至不能形成更大的团簇为止. 把最后稳定下来的团簇称为凝聚体.

在模拟中表面覆盖率 ρ 定义为沉积的粒子数与可扩散区域的总面积之比, 即 $\rho = \frac{n}{L^2 - M\pi R^2}$; 凝聚

体的回旋半径定义为 $R_g = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n s_i^2}$, 其中 s_i 是第 i 个粒子离质心的距离. 模拟中, 扩散步长、杂质半径等物理量均为相对量. 模拟分表面覆盖率可变与不可变两种情况进行. 在表面覆盖率不变的情况下, 每次所沉积到基底表面的粒子数 n 随杂质区域总面积的增加而减小, 以保证表面覆盖率不变. 我们采用盒维数方法测量最后形成的分枝状凝聚体的分形维数 d_f (d_f 至少是 20 个模拟结果的平均值).

3. 结果与讨论

首先比较了杂质规则分布与随机分布的基底上所形成的凝聚体特性的差异. 对于 $L = 400, n = 5000, M = 49, l_{\max} = 10, \theta_{\max} = 10^\circ$, 杂质区域半径 $R = 20$ 分别对两者进行了模拟, 图 1 所示的分别是它们典型的最后形貌图. 从图 1 中可以发现, 杂质规则分布的基底上形成的凝聚体比较小, 但凝聚体的数密度较大. 模拟结果得到的凝聚体的分形维数 d_f 、凝聚体数目 N_t 、凝聚体的回旋半径 R_g 及凝聚体平均大小 S_t (由组成凝聚体的粒子数表示) 见表 1.

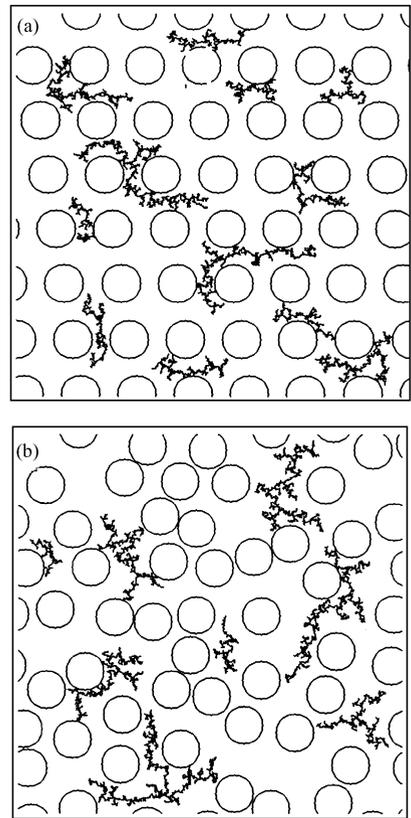


图 1 两种模拟模型的结果比较(其中 $n = 5000, L = 400, M = 49, R = 20, l_{\max} = 10, \theta_{\max} = 10^\circ$) (a) 规则分布的典型形貌图 (b) 随机分布的典型形貌图

表 1 两种杂质分布的凝聚体的特性比较

($n = 5000, M = 49, R = 15, l_{\max} = 10, \theta_{\max} = 10^\circ$)

	d_f	N_t	R_g	S_t
规则分布	1.35 ± 0.03	13 ± 2	25 ± 4	370 ± 50
随机分布	1.38 ± 0.02	8 ± 2	36 ± 5	600 ± 50

从表 1 可看出, 杂质规则分布的基底上形成的凝聚体的分形维数、凝聚体数目及凝聚体平均大小

与杂质随机分布的相比均存在着明显的差异. 杂质规则分布的基底上形成的凝聚体较小, 凝聚体数目较多, 这意味着规则分布的杂质对团簇扩散凝聚的屏蔽效应更加显著.

为了进一步比较两种杂质分布的凝聚体大小的分布情况, 我们计算了凝聚体大小的概率分布情况. 由图 2 可见, 杂质规则分布基底上形成的凝聚体的大小分布较窄, 在 200 左右出现的概率最大, 出现在 800 以上的概率很小; 而杂质随机分布基底上形成的凝聚体的大小分布较宽, 350 附近出现的概率最大, 凝聚体最大的可达 1600 左右. 可见, 团簇在杂质随机分布基底上趋向于形成较大的分形凝聚体. 这是由于杂质规则分布的基底表面上产生的空隙相对较小, 大小均匀, 不利于团簇的扩散, 而杂质随机分布的基底表面上产生的空隙大小不一, 对于大的空隙, 一开始就沉积了较多的粒子, 因而形成较大的团簇. 而在小的空隙中的团簇也小, 因此极易扩散到大的空隙中与大团簇结合, 从而可形成更大的凝聚体.

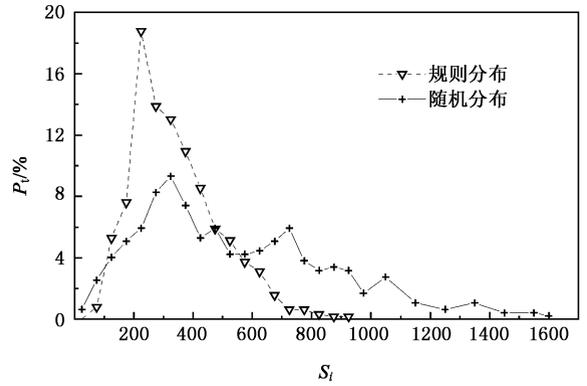


图 2 团簇大小 S_i 的概率分布(取样的间隔为 $\Delta S = 50$. 模拟的参数为 $n = 5000, L = 400, M = 49, R = 20, l_{\max} = 10, \theta_{\max} = 10^\circ$)

对于杂质规则分布的情况, 我们还研究了杂质数目 M 对凝聚体分形维数、凝聚体数及凝聚体平均大小的影响. 我们分以下两种情形加以研究: 1) 杂质数 $n = 5000$ 一定; 和 2) 表面覆盖率 $\rho = 0.03125$

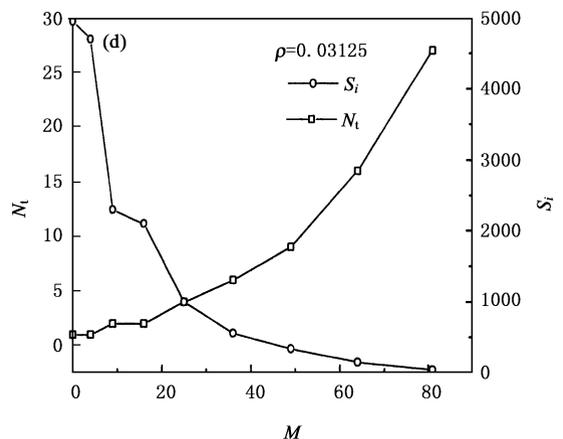
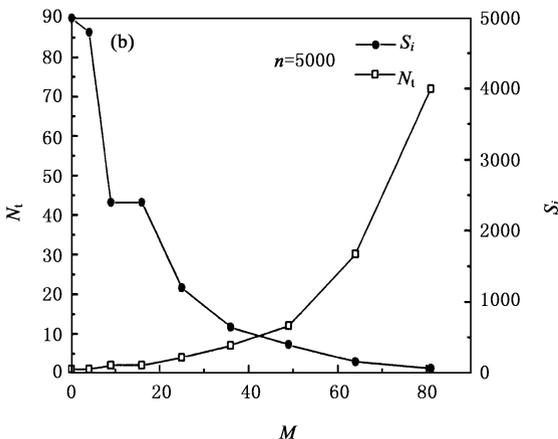
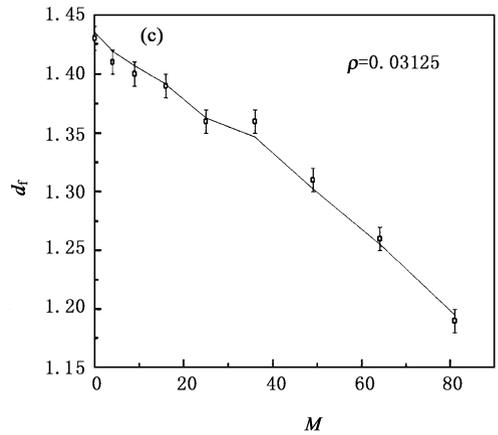
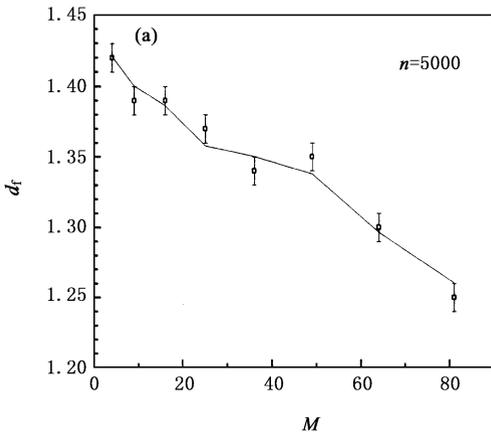


图 3 凝聚体的分形维数 d_f 和团簇数 N_t 随杂质数 M 的变化情况 (a) 粒子数 $n = 5000$ 时 d_f 随 M 的变化关系 (b) 粒子数 $n = 5000$ 时 N_t 和 S_i 随 M 的变化关系 (c) 表面覆盖率 $\rho = 0.03125$ 时 d_f 随 M 的变化关系 (d) 表面覆盖率 $\rho = 0.03125$ 时 N_t 和 S_i 随 M 的变化关系 ($L = 400, R = 15, l_{\max} = 10, \theta_{\max} = 10^\circ$)

一定.两种情形均取 $L = 400, R = 15, l_{\max} = 10, \theta_{\max} = 10^\circ$ 分别进行模拟.图 3 分别给出两种情形的分形维数 d_f 、凝聚体数 N_t 随杂质数 M 及凝聚体平均大小 S_i 的变化情况.这里分形维数随杂质数 M 的增加而减小,凝聚体数随 M 而增加, S_i 随 M 的增加而减小,这说明杂质区域及其分布在团簇的扩散和凝聚过程中扮演着很重要的角色.

随着杂质数 M 的增加,杂质区域之间形成了更多的、空间更小、更狭窄的空隙.由于团簇只能在狭窄的空隙中生长,所以大团簇被分割成了若干个小团簇,因而基底表面的凝聚体数随着增加,凝聚体平均大小随着减小.

我们还研究了表面覆盖率对凝聚体特性的影响.图 4 给出了杂质数 $M = 4, 25$ 及 49 时分形维数 d_f 随粒子数 n 的变化情况,模拟取 $R = 20, l_{\max} = 10, \theta_{\max} = 10^\circ, L = 400$ 进行.对于固定的杂质数,可以看到 d_f 随表面覆盖率 ρ (粒子数 n 成正比)而减小.而对于大杂质数,分形维数随表面覆盖率的增加非常不显著,这意味着在杂质对分形维数同样起着重要的作用.甚至在某些情况下,杂质比表面覆盖率起着更重要的作用.例如由图 3(a) 这里固定粒子数 $n = 5000$ 而增加杂质数 M ,可以看出 d_f 随杂质数 M 而减小.但由其定义式易于了解表面覆盖率 ρ 随 M 而增加.此结果显然与没有杂质的预期相反.

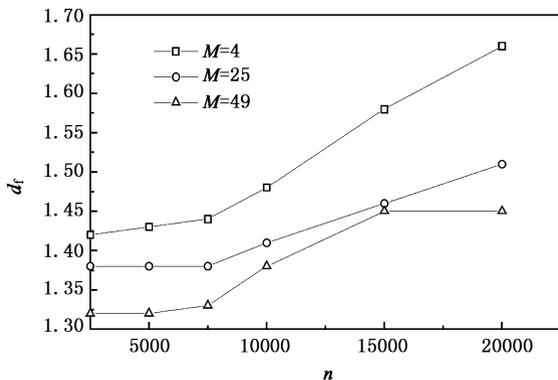


图 4 杂质数变化 ($M = 4, 25, 49$) 时凝聚体的分形维数 d_f 随粒子数 n 的变化情况 (其中 $R = 20$, 其余参数同图 3)

图 5 给出了总粒子数 $n = 5000$ 一定的情况下, N_t 与 R 和 d_f 与 R 之间的关系,模拟时所用的参数如下: $L = 400, M = 4, 9, 25, 36, 49, 64, 81, l_{\max} = 10, \theta_{\max} = 10^\circ$.从图 5 可以看出,凝聚体数 N_t 随 R 的增加在 M 较小时变化不大, M 较大时显著地增大.分形维数随 R 的变化,虽然随着 R 的增加,表面

(不含有杂质区域部分)的有效覆盖率 ρ 也随之增加,但凝聚体的分形维数并没有随 ρ 的增加而增加,而是随 ρ 的增加逐渐减小.再一次证明由基底杂质所引起的屏蔽效应是影响分枝状凝聚体 d_f 值的主要原因.

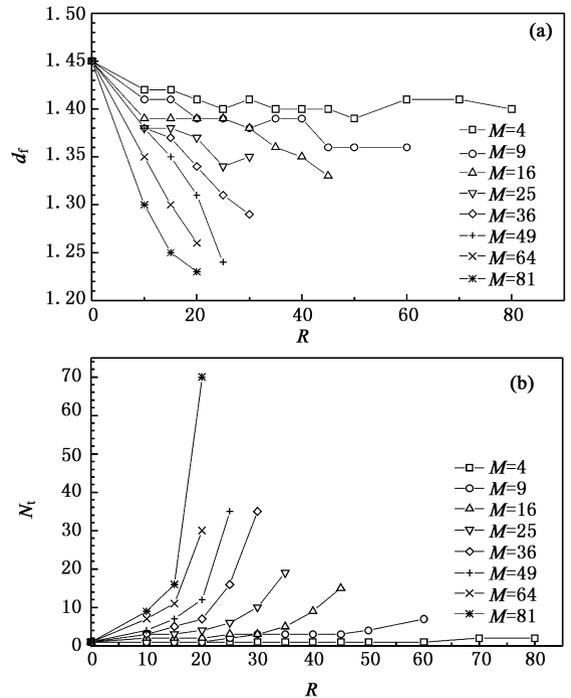


图 5 杂质数 M 变化时 d_f-R 和 N_t-R 的关系 (其中 $n = 5000, L = 400, l_{\max} = 10, \theta_{\max} = 10^\circ$) (a) d_f-R 的变化关系 (b) N_t-R 的变化关系

最后我们研究了随机转动对杂质规则分布的基底表面上凝聚体生长的影响.图 6 给出分形维数与最大转动角度 θ_{\max} 的变化关系.分形维数 d_f 随最大转动角度 θ_{\max} 的增大而呈现如下规律:当杂质数 $M = 64$ 时 d_f 随 θ_{\max} 基本不变,而当 $M = 9$ 时 d_f 随 θ_{\max} 的增大而减小.下面对以上的情形加以分析.

当 $M = 0, \theta_{\max} = 0$ 时,IRCCA 模型将变为无格点的 CCA 模型,此时模拟所得凝聚体的分形维数 $d_f = 1.45 \pm 0.03$ 与无格点的 CCA 模型一致^[6,7].当 $M = 0, \theta_{\max} \neq 0$ 时,IRCCA 模型也与无格点的 CCA 模型^[6] 的结果一致.从图 6 可以看出 $M = 0$ 时凝聚体的分形维数 d_f 随 θ_{\max} 几乎不变,这也与 LUIO 的结论相同^[6].当杂质数不多时,凝聚体的分形维数 d_f 随 θ_{\max} 的增大而减小,这是由于转动增加了团簇的外端与其他团簇凝聚的机会,杂质数比较多时,团簇可扩散的区域将变小,此时大角度的转动实际上难以发生,所以凝聚体的分形维数便不再随 θ_{\max} 而明显

变化.

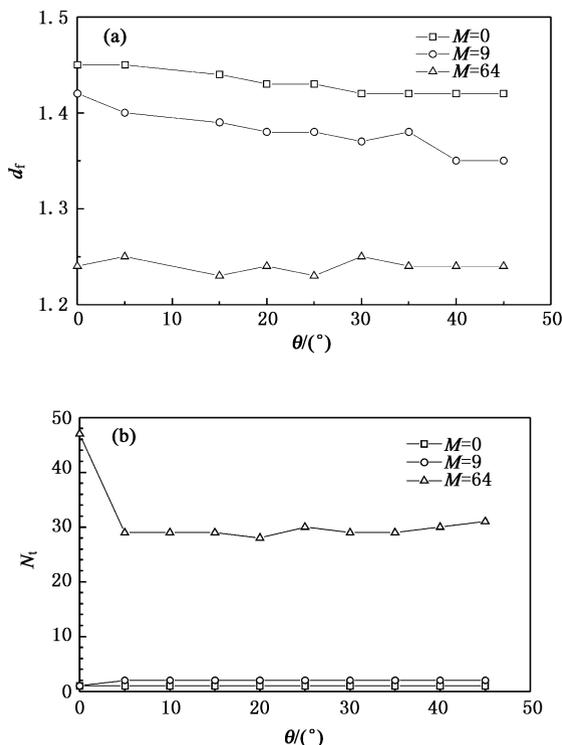


图 6 杂质区域数分别为 $M = 0, 9, 64$ 时凝聚体分形维数 d_f 和 N_t 与 θ_{\max} 的关系 (其中 $n = 5000, L = 400, R = 20, l_{\max} = 10$)
(a) $d_f - \theta_{\max}$ 的变化关系 (b) $N_t - \theta_{\max}$ 的变化关系

4. 结 论

为了可以在实际基底表面人为控制杂质含量,我们在无格点基底上引入规则分布的圆形杂质,研究了杂质半径 R 和数目 M 对粒子凝聚特性的影响,所得的结论如下:

1. 与杂质随机分布的基底上形成的凝聚体相比,杂质规则分布的基底上形成的凝聚体较小,凝聚体数目较多,表明规则分布的杂质对团簇扩散凝聚的屏蔽效应更加显著.

2. 无格点基底表面上的杂质引起附加的屏蔽效应,导致凝聚体分形维数随杂质数量和半径的增加而减小.在一定的杂质数 M 以及杂质半径范围内,屏蔽效应对 d_f 的影响要大于表面覆盖率 ρ 对 d_f 的影响.

3. 在一定情况下,团簇在含杂质的无格点基底上的刚性转动会导致凝聚体分形维数的减小.

4. 凝聚体数密度随杂质数 M 和半径 R 的增加而增加,但几乎不随最大转动角度 θ_{\max} ($\theta_{\max} \neq 0$) 而变化.

5. 凝聚体数及其凝聚体平均大小可以由杂质数目和它的分布来控制.

[1] Witten T A, Sander L M 1981 *Phys. Rev. Lett.* **47** 1400
 [2] Meakin P 1983 *Phys. Rev. Lett.* **51** 1119
 [3] Kolb M, Botet R, Julline R 1983 *Phys. Rev. Lett.* **51** 1123
 [4] Gomer R 1990 *Rep. Prog. Phys.* **53** 917
 [5] Jensen P, Barabasi A L, Larralde H, Havlin S, Stanley H E 1994 *Phys. Rev. B* **50** 15316
 [6] Luo M B, Ye G X, Xia A G, Jin J S, Yang B, Xu J M 1999 *Phys. Rev. B* **59** 3218
 [7] Luo M B, Ye G X, Tao X M, Xu J M, Jiao Z K 2000 *Chin. Phys.* **9** 414
 [8] Zhang Q Y, Ma T C, Pan Z Y, Tang J Y 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 297 [in Chinese] 张庆瑜、马腾才、潘正瑛、汤家镛 2000 物理学报 **49** 297
 [9] Yang N, Chen G H, Zhang Y, Gong W B, Zhu H S 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 2225 [in Chinese] 杨宁、陈光华、张阳、公维宾、朱鹤孙 2000 物理学报 **49** 2225
 [10] Wu F M, Shi J Q, Wu Z Q 2001 *Acta Phys. Sin.* **50** 1555 [in Chinese] 吴锋民、施建青、吴自勤 2001 物理学报 **50** 1555

[11] Qian C J, Gao G L, Li H, Ye G Y 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 1960 [in Chinese] 钱昌吉、高国良、李洪、叶高翔 2002 物理学报 **51** 1960
 [12] Ye G X, Zhang Q R, Feng C M, Ge H L, Jiao Z K 1996 *Phys. Rev. B* **54** 14754
 [13] Röder H, Hahn E, Brune H, Bucher J P, Kern K 1993 *Nature (London)* **366** 141
 [14] Wang S C, Ehrlich G 1997 *Phys. Rev. Lett.* **79** 4234
 [15] Jensen P 1999 *Rev. Mod. Phys.* **71** 1695
 [16] Hwang R Q, Schröder J, Günther C, Behm R J 1991 *Phys. Rev. Lett.* **67** 3279
 [17] Bott M, Michely Th, Comsa G 1992 *Surf. Sci.* **272** 161
 [18] Ye G X, Michely Th, Weidenhof V, I. Friedrich, M. Wuttig 1998 *Phys. Rev. Lett.* **81** 622
 [19] Michely Th, Ye G X, Weidenhof V, Wuttig M 1999 *Surf. Sci.* **432** 228
 [20] Ye G X, Xia A G, Gao G L, Lao Y F, Tao X M 2001 *Phys. Rev. B* **63** 125405

- [21] Hwang I S , Chang T C , Tsong T T 1998 *Phys. Rev. Lett.* **80** 4229
- [22] Chang T C , Hwang I S , Tsong T T 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1191
- [23] Liu B G , Wu J , Wang E G , Zhang Z 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1195
- [24] Wu J , Liu B G , Zhang Z , Wang E G 2000 *Phys. Rev. B* **61** 13212
- [25] Gao G L , Qian C J , Li H , Huang X H , Gu W J , Ye G X 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2600 (in Chinese) [高国良、钱昌吉、李洪、黄晓虹、谷温静、叶高翔 2005 物理学报 **54** 2600]
- [26] Qian C J , Gao G L , Li H , Luo M B , Ye G X 2002 *Phys. Lett. A* **299** 292

Distribution of impurities on nonlattice substrates influence for fractal aggregates *

Gao Guo-Liang¹⁾ Qian Chang-Ji¹⁾ Li Hong²⁾ Gu Wen-Jing¹⁾ Huang Xiao-Hong¹⁾ Ye Gao-Xiang³⁾

1 *Department of Physics , Wenzhou University , Wenzhou 325035 , China*

2 *College of Information , Wenzhou University , Wenzhou 325035 , China*

3 *Department of Physics , Zhejiang University , Hangzhou 310027 , China*

(Received 23 December 2005 ; revised manuscript received 7 April 2006)

Abstract

According to the experimental observation of Au atomic aggregations on a molten glass surface , we established a computational model to simulate Improved Restricted Cluster-Cluster Aggregation (IRCCA) on nonlattice substrates with regularly and randomly distributed impurities. In the model , the random diffusion step and rigidity rotation around the mass center of cluster were considered. The aggregation process was simulated and the influence of the distribution of impurity on the properties of aggregations was systemically investigated. The results show that regularly distributed impurities play a more important role in restricting the aggregation of clusters than randomly distributed impurities , resulting in a higher number density of fractal aggregates with smaller radius of gyration and fractal dimension.

Keywords : thin film growth , Monte Carlo simulation , fractal , impurity

PACC : 0555 , 6855