

非均质基底表面上团簇生长的 Monte Carlo 模拟*

高国良¹⁾ 钱昌吉¹⁾ 钟 瑞¹⁾ 罗孟波²⁾ 叶高翔²⁾

1) 温州大学物理系, 温州 325027)

2) 浙江大学物理系, 杭州 310027)

(2006 年 4 月 5 日收到, 2006 年 6 月 4 日收到修改稿)

Monte Carlo 方法模拟了在非均质基底表面上团簇的生长过程. 非均质基底由规则分布的 A, B 两类不同性质的物质(不同材料、不同温度等)组成. 沉积粒子的初动能为 E_0 . 在不同相基底上单位长度扩散的能耗为 E_A, E_B . 粒子从 A 经过相界扩散到 B 的能耗为 E_{AB} . 模拟中粒子的初动能 E_0 远大于 E_A, E_B . 粒子从 B 过相界到 A 能耗 E_{BA} 取为 0. 结果表明, 沉积在此类基底表面的粒子凝聚成具有分形结构的团簇. 当 E_{AB} 远大于 E_A, E_B 时, 团簇的数目、团簇的回旋半径、团簇的分形维数均随 E_0/E_{AB} 呈周期性变化.

关键词: 分形团簇, 非均质基底, Monte Carlo 模拟, 周期性

PACC: 0555, 6855

1. 引 言

薄膜生长的计算机模型和模拟在表面物理的发展中起了非常重要的作用, 它一方面能指导实验, 另一方面能检验理论的正确性, 成为当今表面物理的研究热点之一. 早期的许多计算机模型如扩散置限凝聚(DLA)^[1]模型, 团簇-团簇凝聚(CCA)模型^[2]以及沉积扩散凝聚(DDA)模型^[3]等, 能很好地解释许多实验现象.

在此基础上, 发展了考虑相互作用的动力学 Monte Carlo 模型^[4-6], 反应扩散置限的凝聚生长模型^[7,8], 扩散能量有限的多中心成核的改进的 DLA 模型^[9], 液面成核的无格点变步长的 CCA 模型^[10,11]等, 解释了许多实验现象. 我们也注意到, 基底的非均匀性(包括基底上的杂质和缺陷, 多晶表面, 表面的不同性质, 表面台阶等等)是不能完全消除的, 基底的这类非均匀性对粒子的扩散和生长均产生重要影响. 例如, 由于基底上不同区域的温度差异导致团簇大小和分布的不均匀^[12], 或者由于基底上存在杂质区域而导致原子只能在这些区域以外进行扩散和凝聚^[13,14].

本文研究粒子在这种非均匀基底上的扩散和凝聚, 分析基底性质对薄膜生长机理产生的影响. 我们

考虑两相(A 相和 B 相)周期性分布的非均匀基底, 粒子在不同相的基底上扩散一步需要消耗不同的能量 E_A 和 E_B , 而且考虑粒子经过相界需要克服一定的势垒而需要消耗能量 E_{AB} 和 E_{BA} . 计算机模拟表明, 非均质基底表面上生长的分枝状凝聚体与理想基底上的分枝状凝聚体有明显差异, 非均质基底表面上分枝状凝聚体生长遵循着特殊规律. 研究表明, 粒子克服相界势垒而消耗的能量对凝聚体的生长起着重要的作用, 分形团簇的密度、大小、分形维数、回旋半径均与克服相界势垒的能耗有关.

2. 计算机模拟模型和方法

模拟在正方点阵上进行, 在一个 $L \times L$ 的正方形区域上, 周期性分布 M 个边长为 a 的小正方形区域构成 B 相基底, 剩余部分则构成 A 相基底. 假定粒子在 A 相扩散与在 B 相扩散一步的能耗分别为 E_A 与 E_B . 粒子从 A 相基底越过相界进入 B 相基底时消耗的能量 E_{AB} , 粒子从 B 相基底越过相界进入 A 相基底时消耗的能量 E_{BA} . 本文设 $E_{BA} = 0$, 作为能量的参考点.

我们采用扩散能量有限的多中心成核的改进的 DLA 模型^[9]. 在这个模型中, 耗尽能量停止下来的粒子或相距为 1 的粒子的聚合物均称为团簇, 团簇是

* 浙江省自然科学基金(批准号: Y405406)资助的课题.

静止的.具体模拟时,先赋予每个沉积到基底上的粒子初能量为 E_0 ,然后令它在基底上作随机扩散.该粒子可向 $(\pm X, \pm Y)$ 四个方向中随机选择一个运动方向.粒子每次行走的步长为 1.当粒子走到与其最近的一个团簇相距为 1 的位置时,则此粒子停止行走,与团簇不可逆地黏合在一起,成为该团簇的一部分.若粒子完成一步行走后没有黏合上其他团簇,则继续随机地行走,直到粒子耗尽初动能 E_0 为止.若粒子耗尽初动能 E_0 还没有黏附上其他团簇,则此粒子停下来成为一个新团簇的种子.前一个粒子停下后,就沉积下一个粒子.计算机程序保证刚沉积的粒子不落在基底上已有的粒子之上.

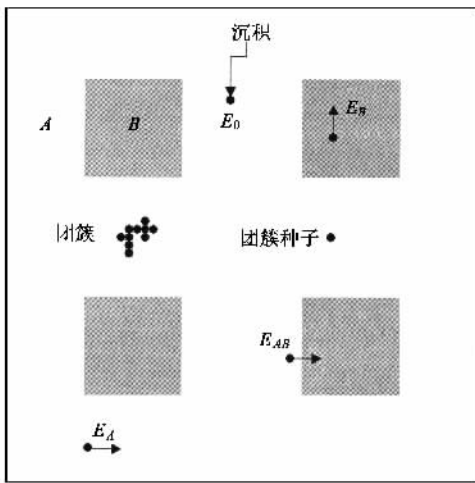


图 1 非均质基底表面上团簇生长模型的示意图(B 相基底周期性排列,剩余部分为 A 相基底.沉积到基底上的粒子初能量为 E_0 .粒子在 A 相扩散和在 B 相扩散一步的能耗分别为 E_A 与 E_B .粒子从 A 相基底越过相界进入 B 相基底时消耗的能量 E_{AB} .粒子从 B 相基底越过相界进入 A 相基底时消耗的能量 $E_{BA} = 0$)

模拟采取周期性边界条件.正方点阵的格点常数定义为长度单位,所有粒子的质量相等.粒子在 A 相扩散一步的能耗 $E_A = 1$ 作为能量单位.所有的模拟都在 $L = 400$ 的正方形系统中进行.

一个团簇的大小可以用团簇内的粒子数目 m 表示,也可以用回旋半径 R_g 来表示.回旋半径的计算如下:

$$R_g = \sqrt{\frac{1}{m} \sum_{i=1}^m r_i^2}, \quad (1)$$

其中 r_i 表示团簇内的粒子离团簇质量中心的距离.对于具有相同粒子数目的团簇,回旋半径 R_g 反映了粒子结合的紧密程度,粒子结合的越紧密则 R_g 越小,同时团簇的分形维数 D_f 也越大.团簇的分形

维数由盒维数方法^[15]测量.

3. 结果与讨论

我们首先分析了粒子从 A 相基底进入 B 相基底时消耗的能量 E_{AB} 的大小对凝聚体生长的影响.为此,我们固定粒子初始能量 $E_0 = 100000$,沉积的总粒子数 $n = 20000$,改变相界能耗 E_{AB} ,我们计算了对应的团簇个数 N ,团簇的平均回旋半径 R_g 和平均分形维数 D_f ,结果见图 2.可以看出,在曲线的开始阶段团簇的 N , R_g 以及 D_f 呈现单调变化,但随着 E_{AB} 的增大,团簇的 N , R_g 以及 D_f 均呈现周期性的变化.

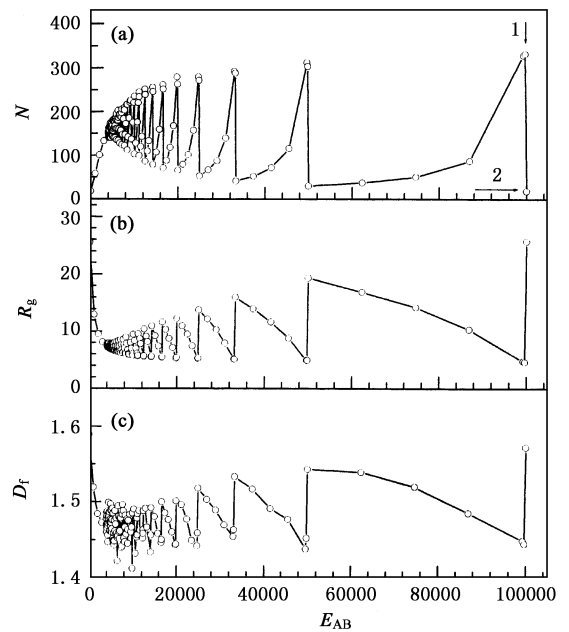


图 2 团簇个数 N (a),团簇的平均回旋半径 R_g (b)和平均分形维数 D_f (c)随粒子从 A 相基底进入 B 相基底时消耗的能量 E_{AB} 的变化(箭头所指的 1 为团簇个数 N 极大的位置,2 为 N 极小的位置,对应的 E_{AB} 分别为 99631 和 100000.模拟所用的参数: $L = 400$, $E_A = 1$, $E_B = 0.5$, $E_{BA} = 0$, $n = 20000$, $E_0 = 100000$, $M = 25$, $\alpha = 20$)

在均质基底上($E_{AB} = 0$),初动能 E_0 等于粒子可扩散的步数.团簇的数目 N 随 E_0 的增加而单调减小,团簇的 R_g 以及 D_f 随着初动能 E_0 的增加而单调增加.对非均质基底($E_{AB} > 0$),粒子每次从 A 相基底进入 B 相基底要消耗额外的能量 E_{AB} .在 $E_{AB} \ll E_0$ 时,粒子这种经 A 相到 B 相所损失能量,对粒子用于扩散的有效动能 E_0 减小的作用并非举足轻

重, 仅仅使粒子用于扩散的有效动能 E_0 逐渐减小, 或相当于粒子运动的总步长逐渐减少, 故随着 E_{AB} 逐渐增大时, 导致团簇数目 N 的逐渐增加和团簇的 R_g, D_f 的逐渐减小. 图 2 曲线的起始阶段显示团簇的 N 随 E_{AB} 单调增大, 团簇的 R_g 以及 D_f 随 E_{AB} 单调减小, 正是反映这一现象.

随着 E_{AB} 的不断增大, 粒子经 A 相到 B 相损失的能量对扩散产生的影响也显著增加. 当 E_{AB} 大到一定程度, 由于粒子从 A 相基底进入 B 相基底的一步内就损失巨大的能量, 导致粒子用于扩散的有效动能剧烈地变化, 即粒子运动的总步长剧烈地变化, 从而引起团簇的 N, R_g 以及 D_f 的突变. 我们发现, 这种突变均出现在 E_0/E_{AB} 为整数的位置附近. 当比值 E_0/E_{AB} 为整数时, 团簇个数 N 为极小值, 相应的 R_g 和 D_f 为极大. 图 3 给出团簇个数 N 随比值 E_0/E_{AB} 的变化情况. 图 3 还表明, 这种曲线的周期性变化与 E_0 的大小无关, 仅由比值 E_0/E_{AB} 决定.

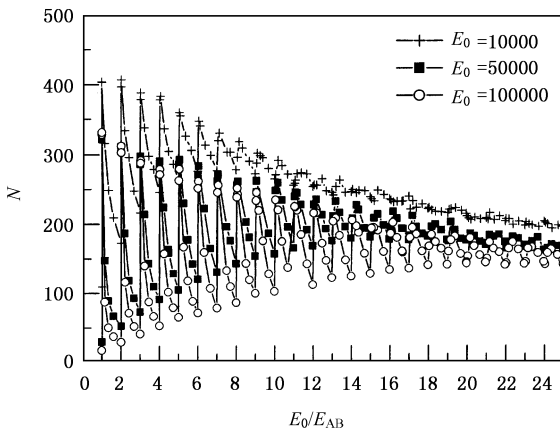


图 3 初始能量 E_0 固定时, 团簇个数 N 随比值 E_0/E_{AB} 的周期性变化(周期为 1 且与 E_0 的值无关. 模拟所用的参数: $L = 400, E_A = 1, E_B = 0.5, E_{BA} = 0, n = 20000, M = 25, \alpha = 20$)

对这一现象的定性解释如下. 当 $E_{AB} = E_0$ 时, 粒子几乎不可能从 A 相基底进入 B 相基底, 这时粒子的所有能量都参与在基底上的扩散, 导致团簇的数目极小; 当 $E_{AB} = E_0 - \epsilon$ (ϵ 相对于 E_{BA} 为小量) 时, 很多粒子有机会经历一次从 A 相基底进入 B 相基底过程, 由于在越过相界时消耗了绝大部分能量, 这些粒子剩余的用于扩散的能量 $E_0 - E_{AB} = \epsilon$ 很小, 它们很快停下而成为独立的新种子, 导致团簇的数目出现第一个极大, 从而形成了第一个突变. 同样, 当 $E_{AB} = E_0/2$ 时, 粒子经过 1 次 A 相到 B 相的过程

后剩余了约 $E_0/2$ 的能量参与扩散; 而当 $E_{AB} = E_0/2 - \epsilon$ 时, 粒子经历了 2 次 A 相到 B 相的过程, 仅剩余 2ϵ 的能量参与扩散, 这导致了第二个突变.

在普通的 DLA 模拟中, 团簇数目 N 、团簇的回旋半径 R_g 、团簇的分形维数 D_f 等物理量都随着粒子在基底表面扩散的初能量 E_0 而呈单调变化. 在我们的模型中, 对团簇生长起决定性作用的是粒子用于在基底上扩散的能量 E . E 可以表示为初能量 E_0 减去粒子从 A 越过相界进入 B 所消耗的能量, 即

$$\Delta E = E_0 - kE_{AB}, \quad (2)$$

k 为粒子从 A 相基底进入 B 相基底的次数. 由于对单个粒子来说, k 只能是正整数, 所以 k 不能连续变化, 而是按一种周期性规律而变化, 这使得所有随 E 呈单调变化的物理量都呈现出周期性. 考虑到剩余的能量 E 应大于 0, 粒子从 A 越过相界进入 B 的最大次数当 E_0/E_{AB} 为整数时, $k_{\max} = (E_0/E_{AB}) - 1, E_0/E_{AB} = 1, 2, 3, \dots$; 当 E_0/E_{AB} 为非整数时, $k_{\max} = \text{INT}(E_0/E_{AB})$ 这里 INT 是一个取整函数.

具体考察图 3 的第 1 个周期, 当 $E_{AB} = E_0$ 为 100000 时, 没有粒子会从 A 相基底越过相界进入 B 相基底, 粒子的初动能都用于扩散, 这时粒子的有效扩散能量为最大, 导致团簇数 N 为极小值; 当 E_{AB} 略小于 E_0 (如图 5 中为 99631) 时, 很多粒子经历了一次从 A 相基底越过相界进入 B 相基底的过程, 这些粒子的有效扩散能量仅为 369. 由于它们很快成为种子, 导致团簇数目突变为极大; 然后, 随着 E_{AB} 减小引起 E 的增加, 团簇数目也随着减小, 直到 E_{AB} 减小到 50000, 团簇数 N 出现下一个极小值. 这样, E_{AB} 从 E_0 减小到 $E_0/2$ 相应的 k 从 0 到 1, E 从 E_0 突变到一个很小值, 然后又逐渐增加到 $E_0/2$, 实现了一个完整的周期性变化.

从上面的分析可知, 有效扩散能量极大值对应于 E_0/E_{AB} 为整数, 团簇性质 (如团簇数目 N 等物理量) 相对 E_0/E_{AB} 以周期为 1 变化, 如图 3. 如果固定相界能耗 E_{AB} , 则团簇性质随初能量 E_0 的增加而周期性变化, 能量周期为 $\Delta E_0 = E_{AB}$; 如果固定初能量 E_0 , 则团簇性质随相界能耗 E_{AB} 的变化是非均匀的, 相邻两个极值对应的 E_{AB} 的差与 $E_0/E_{AB} = m$ 有关, 可表示为

$$\Delta E_{AB} = \left(\frac{1}{m} - \frac{1}{m+1} \right) E_0, \quad (3)$$

其中 m 是整数. 由 (3) 式可见, 随着 m 的增加, 即随

着 E_{AB} 的减小,相邻两个极值的间隔 ΔE_{AB} 也逐渐减小,如图 2 所示.同时,随着 E_{AB} 的减小,粒子的有效扩散能量 E 随 E_{AB} 的变化也逐渐减小.由于团簇性质的差异与粒子的有效扩散能量 E 的变化有关,所以不同 E_{AB} 所对应的团簇性质的差异也随着 E_{AB} 的减小而逐渐减小,如图 2,图 3 所示.

团簇个数 N ,团簇的回旋半径 R_g 和团簇的分形维数 D_f 随 E_0/E_{AB} 呈现周期性变化的性质与 B 相基底的数目和大小无关.不管基底上 B 相区域的数

目 M 及大小 a 如何变化,但团簇的数目 N 、团簇的回旋半径 R_g 和团簇的分形维数 D_f 随 E_0/E_{AB} 周期性变化的现象总是存在的.图 4 给出 B 相基底的数目 M 和大小 a 的变化对团簇的 N 的影响.团簇的 R_g 和 D_f 与 E_0/E_{AB} 也同样存在类似关系,这里不再详述.我们因此推论,与团簇相关的各物理量随 E_0/E_{AB} 周期性变化是不随 B 相区域不同形状(圆形、矩形、三角形等)、不同分布(随机分布、规则分布、正态分布等)而变化,进一步的研究还在进行中.

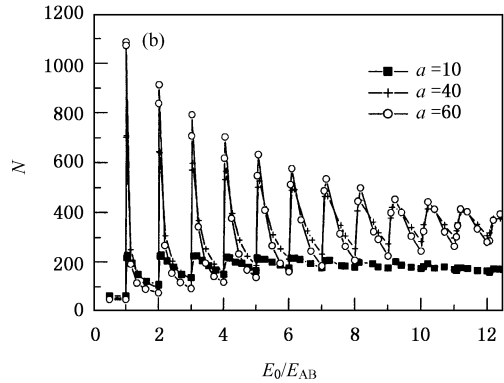
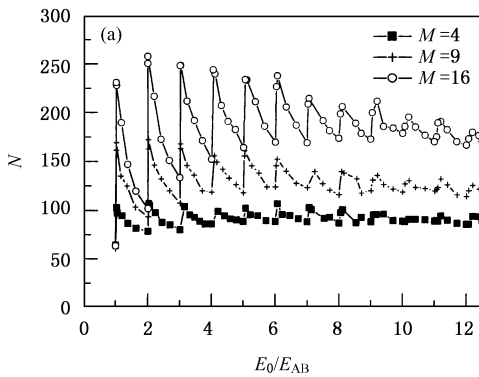


图 4 团簇个数 N 随比值 E_0/E_{AB} 的周期性变化与 B 相数目(a)和 B 相大小(b)无关(模拟所用的参数: $L=400, E_A=1, E_B=0.5, E_{BA}=0, n_0=20000$.(a) B 相大小为 $a=20$ (b) B 相数目 $M=25$)

图 5 给出 E_{AB} 分别为 99631 和 100000 时团簇生长的最终形貌图,可以看到两者有非常大的差别.结合图 2 中 E_{AB} 从 99631 增加到 100000 时,对应的团簇个数 N ,团簇的平均回旋半径 R_g 和平均分形维数 D_f 所呈现的突变,可说明我们上面的分析与实验结果符合.另外,从图 5 还可以看出,生长在 A 相基底上的粒子数远大于 B 相基底上的粒子数.这是

因为模拟时我们设定 $E_{AB} \gg E_{BA}$,使得粒子进入 B 相区域难,离开 B 相区域易所致.同样,当 $E_{AB} \ll E_{BA}$ 时,我们发现 B 相中的粒子数目就比 A 相中的多.结果表明,对于一定的初始能量 E_0 ,团簇的性质依赖于基底的性质 E_{AB} ;同理,对于相同的 E_{AB} ,团簇的性质依赖于粒子的初始能量 E_0 .

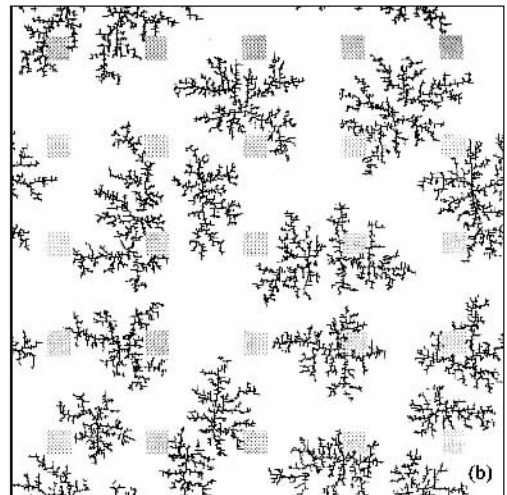
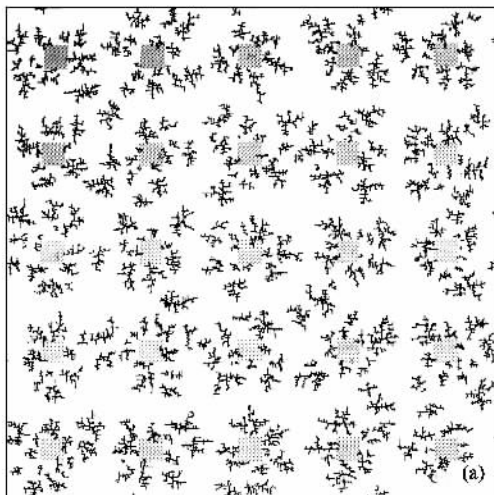


图 5 对应于图 1 中 1,2 两点的团簇形貌图 (a)对应的 $E_{AB}=99631$ (b)对应的 $E_{AB}=100000$

4. 结 论

根据基底表面客观存在杂相(不同材料、或同一材料的不同晶面等)的实验事实,考虑到粒子进出不同的相界具有不同的能耗,粒子在不同相基底上扩散具有不同的能耗,本文建立了非均质基底上扩散能量有限的多中心成核的 DLA 模型,对非均质基底上团簇的生长过程进行了 Monte Carlo 模拟.模拟的主要结果如下:

1. 当粒子从一相基底越过相界进入另一相基底所消耗的能量 E_{AB} 远大于扩散所需的能量时,非均质基底上生长的团簇的数目 N 、回旋半径 R_g 、分形维数 D_f 都随粒子 E_{AB} 而呈现一种准周期性的变化.而且,这种周期性仅由比值 E_0/E_{AB} 决定,与基底的其他因素无关.

2. 在团簇的数目、回旋半径、分形维数均随 E_0/E_{AB} 呈周期性的变化过程中,仅当比值 E_0/E_{AB} 为整数时,团簇个数 N 为极小值,回旋半径、分形维数为极大值.

-
- [1] Witten Jr T A , Sander LM 1981 *Phys. Rev. Lett.* **47** 1400
- [2] Meakin P 1983 *Phys. Rev. Lett.* **51** 1119
Kolb M , Botet R , Julline R 1983 *Phys. Rev. Lett.* **51** 1123
- [3] Jensen P , Barabasi A L , Larralde H , Havlin S , Stanley H E 1994 *Phys. Rev. B* **50** 15316
- [4] Salik J 1985 *Phys. Rev. B* **32** 1824
- [5] 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 **49** 297]
- [6] Xie G F , Wang D W , Ying C T 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2212 (in Chinese) [谢国锋、王德武、应纯同 2005 *物理学报* **54** 2212]
- [7] Wu F M , Zhu Q P , Shi J Q , Wu Z Q 1998 *Acta Phys. Sin.* **47** 542 (in Chinese) [吴锋民、朱启鹏、施建青、吴自勤 1998 *物理学报* **47** 542]
- [8] Tang J , Yang X Q , Qiu K 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3307 (in Chinese) [唐 军、杨先清、仇 康 2005 *物理学报* **54** 3307]
- [9] Wang X P , Zhao T X , Wu F M , Lin G , Wu Z Q 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1412 (in Chinese) [王晓平、赵特秀、吴锋民、林 罡、吴自勤 1999 *物理学报* **48** 1412]
- [10] Luo M B , Ye G X , Xia A G , Jin J S , Yang B , Xu J M 1999 *Phys. Rev. B* **59** 3218
- [11] Luo M B , Ye G X , Tao X M , Xu J M , Jiao Z K 2000 *Chin. Phys.* **9** 414
- [12] Tang X M , Wei S Z , Mao Z S , Chen X F , Zheng Y M 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** 1126 (in Chinese) [汤晓明、魏赛珍、毛祖遂、陈晓峰、郑永铭 1999 *物理学报* **48** 1126]
- [13] 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 **51** 1960]
- [14] 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]
- [15] Bunde A , Havlin S 1994 *Fractals in Science* (Berlin : Springer)

Monte Carlo simulation of cluster growth on an inhomogeneous substrate^{*}

Gao Guo-Liang¹⁾ Qian Chang-Ji¹⁾ Zhong Rui¹⁾ Luo Meng-Bo²⁾ Ye Gao-Xiang²⁾

¹⁾ Department of Physics, Wenzhou University, Wenzhou 325027, China)

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

(Received 5 April 2006 ; revised manuscript received 4 June 2006)

Abstract

The growth of clusters on an inhomogeneous substrate is simulated by using Monte Carlo method. The inhomogeneous substrate is composed of two different kinds of regularly distributed materials A and B with different physical properties. Deposited particles have initial energy E_0 . It consumes energies E_A and E_B when a particle diffuses one step on phases A and B , respectively, and it consumes energy E_{AB} when the particle passes through the phase boundary from A to B . In the simulation, E_0 is much bigger than E_A and E_B , and the energy needed for the particle to pass through the phase boundary from B to A is set as $E_{BA} = 0$. Results show that the clusters aggregated on the inhomogeneous substrate are of fractal structure. When E_{AB} is much bigger than E_A and E_B , the number, radius of gyration and fractal dimension of the cluster all vary periodically with ratio E_0/E_{BA} .

Keywords : fractal cluster, inhomogeneous substrate, Monte Carlo simulation, periodicity

PACC : 0555, 6855

^{*} Project supported by the Natural Science Foundation of Zhejiang Province, China (Grant No. Y405406).