

## a-Ge/Au 双层膜分形过程的计算机模拟

侯 建 国

中国科学院福建物质结构研究所,福州,350002

毕岭松 吴自勤

中国科学技术大学基础物理中心,合肥,230026

1989 年 10 月 5 日收到

从实验观察结果出发,提出与传统扩散控制聚集(DLA)模型不同的分形生长模型,用 Monte-Carlo 方法模拟了具有不同界面结构的 a-Ge/Au 双层膜在晶化过程的分形行为,得到了和实验结果相符合的分形结构.结果表明:在 a-Ge/Au 双层膜的退火过程中,由非晶化潜热形成的局域温度场在分形过程中起主要作用;密集分枝结构的出现是由粒子扩散的局域性引起的;模拟结果还表明 DLA 形态的分形结构也可以在粒子扩散距离相对短的条件下获得.

PACC: 0540; 6890

### 一、引 言

自从 Witten 和 Sander<sup>[1]</sup> 提出扩散控制聚集(DLA)模型以来,对于非平衡体系中的分形行为的研究引起了人们的很大兴趣,越来越多的工作把 DLA 以及其它相应的有关生长模型应用到不同的学科领域<sup>[2]</sup>.近年来,一些文献报道了在不同薄膜体系晶化过程的分形行为<sup>[3-5]</sup>,提出了一些不同的生长机制来解释各自的实验结果,但许多问题仍然很不清楚,特别是分形结构的微观生长机制以及它们对分形结构形态和维数的影响等重要问题,都需要进一步研究和探讨.

文献[6,7]报道了在非晶 Ge(a-Ge)/Au 双层膜退火过程中的分形行为.图1为样品在 100℃下退火 4h 后出现的典型的分形结构,这种特殊的分叉型结构与传统的 DLA 结构很不相同,分枝多而密集,且具有较高的分形维数,把这种结构称之为密集分枝结构以区别于传统的 DLA 结构.如果用小剂量的 Si<sup>+</sup> 离子在室温下轰击样品,退火后的分形结构形态发生了很大变化,图2为离子注入样品在 100℃下退火 4h 的电子显微镜形貌图,可见许多 DLA 形态的分形结构.对比图1和图2,立即产生这样一个问题:为什么这两种样品产生如此不同的分形结构?虽然它们在相同的温度下退火且具有相同的生长时间.对这一问题的研究有助于进一步了解薄膜中分形结构的形成机制.本文从实验观察的结果出发,提出具有不同界面形态样品的分形生长模型,用 Monte-Carlo 方法在计算机上模拟了分形生长过程,并对结果进行了讨论.

## 二、模 型

**物理背景** 样品的制备过程和实验过程见文献[6,7],非注入样品中分形区的平均尺寸约为  $5\mu\text{m}$ ,而离子注入样品中的分形区尺寸约为  $8\mu\text{m}$ ,两种样品的 a-Ge 膜厚为 25 nm, Au 膜为 30 nm,远远小于分形区的平均尺寸,因此, a-Ge/Au 双层膜体系的分形过程可近似看成是二维生长过程。

透射电子显微镜的电子衍射和高分辨形貌图表明,以上两种分形结构都是由大量的尺寸较小的 Ge 晶粒组成,X射线能谱定量分析结果表明,在分形区的形成过程中都伴随着 Au 和 Ge 原子的横向互扩散过程.在文献[7]中,根据结构和成份分析结果,从金属诱导晶化的原理出发,提出了 a-Ge/Au 双层膜中分形区的生长机制,其主要点如下:(1) Ge 原子在双层膜界面处的非均匀成核;(2) Ge 晶核的长大是由原子的界面扩散过程控制的;(3) 晶核长大时放出的潜热使晶核周围的温度升高,触发新的由界面扩散控制生长的晶核.根据非晶晶化理论<sup>[8]</sup>,非均匀成核率和晶体的生长速率都正比于扩散系数  $D$ ,由于晶化潜热使晶核周围的温度升高,局域扩散速率增大,促进了这些区域的晶化过程,因此可以认为晶化潜热形成的局域温度场在分形结构的生长过程中起主要作用.换一角度,分形结构的分数维所反映的空间相关不变性表明,在生长过程中存在着某种关联性,而这种关联性的最好解释是上面所描述的触发-生长-触发的链式生长过程,因此,同样能够得出局域温度场起主要作用的结论。

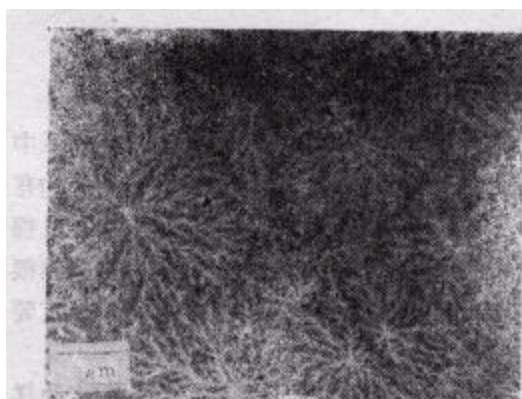


图1 a-Ge/Au 双层膜 100°C 退火 4h 后的形貌图

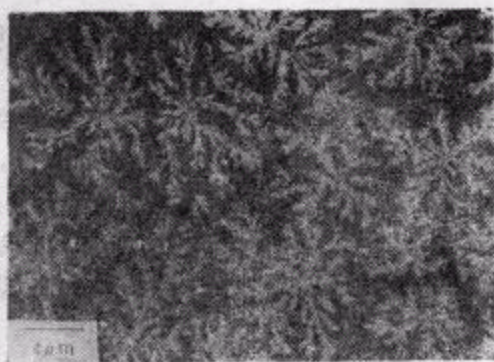


图2 离子注入 a-Ge/Au 双层膜 100°C 退火 4h 后的形貌图

以上所述对注入和非注入样品都是适用的,由于晶化潜热从晶粒向外传播时具有高斯分布的形式,有理由认为在晶化过程中,对分形区有贡献的扩散和成核过程仅发生在一定的范围内,在非注入样品中,这一范围很小,从图1中围绕分形区周围很狭窄的富 Au 区域也可以看出.离子注入时,由于  $\text{Si}^+$  离子的碰撞和能量淀积,在 a-Ge/Au 界面附近形成了一 Ge-Au 原子混合层,这一混合层的存在,大大提高了界面不稳定性,使 a-Ge 的晶化势垒和界面扩散势垒降低,因此在离子注入样品中,晶化温度约降低  $40^\circ\text{C}$ ,横向互扩散尺度增加近 10 倍<sup>[9]</sup>.也就是说离子注入使局域晶化潜热温度场的有效范围大大增加。

显然这一变化引起了分形结构在形态上的相应变化。

根据以上讨论,提出两种不同的模型,以模拟 a-Ge/Au 双层膜退火时的分形行为。

**模型 A** 在  $200 \times 200$  的二维正方格子的中心放置一粒子代表初始晶核,即令中心格点为 1,其它所有格点为 0。引入参数  $R_{\max}$  代表分形结构的最远点到中心的距离(此时为 0),在  $R_{\max} \leq r \leq R_{\max} + 5$  的范围内随机选择一格点  $(x_0, y_0)$  代表粒子位置,如果  $(x_0, y_0)$  恰好是中心点四个最近邻位置中的一个,则令它为 1,粒子成为分形体的一部分;否则让粒子进行随机行走:从粒子的四个最近邻位置中随机选择一位置  $(x, y)$ ,计算参数  $p = \{[x - (1 - 5/r_0)x_0]^2 + [y - (1 - 5/r_0)y_0]^2\}^{1/2}$ ,式中  $r_0 = (x_0^2 + y_0^2)^{1/2}$ ,若  $p \leq 5$ ,则粒子从  $(x_0, y_0)$  移动到  $(x, y)$ ;若  $p > 5$ ,则重新选择一新的位置直至粒子移动到一个允许位置,如此继续下去,当粒子移动到一个已占据格点的最近邻位置时,粒子停止扩散,成为分形区的一部分。然后重新确定  $R_{\max}$  的值,开始新的循环。这样粒子的扩散就被局限在一个以坐标  $[(1 - 5/r_0)x_0, (1 - 5/r_0)y_0]$  为中心,半径为 5 的圆形区域。在实际模拟过程中,为了节省计算机时,规定每一个粒子在移动过程中到达扩散区域边界 3 次而未能碰上分形结构的,当成无效粒子取消,重新产生一个新粒子。上述过程反复进行,直至得到一理想的分形结构。图 3 为上述模拟过程的早期示意图,图 3 中黑格点代表分形区;空白点代表粒子;折线代表粒子的扩散轨迹;虚线圆代表产生随机粒子的区域;实线圆则是粒子的扩散区域。

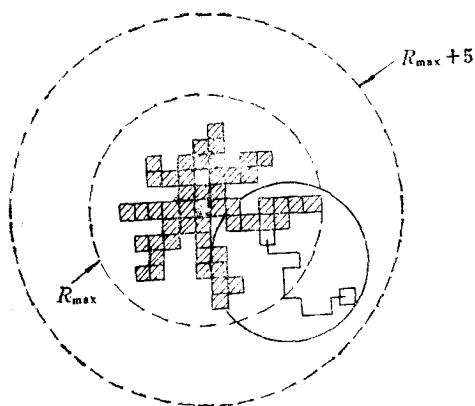


图 3 模型 A 模拟过程的早期示意图

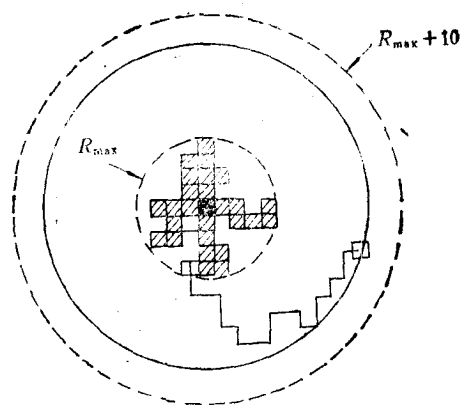


图 4 模型 B 模拟过程早期示意图

**模型 B** 这一模型是模拟离子注入样品的分形过程。同样在  $200 \times 200$  的正方格子中央放置一初始核,然后在  $R_{\max} \leq r \leq R_{\max} + 10$  的范围内随机产生一粒子,  $R_{\max}$  的含义和上面的相同,设粒子的位置坐标为  $(x_0, y_0)$ ,粒子可以在  $r \leq (x_0^2 + y_0^2)^{1/2}$  的范围内随机行走,直至碰上分形体,成为分形体的一部分。同样规定在扩散过程中,粒子碰到扩散区域边界 3 次而未能碰上分形区时,取消这一粒子,开始新的循环。图 4 为模型 B 生长初期的示意图,图 4 中符号所代表的含义同图 3。

### 三、模拟结果

图 5 为用模型 A 在  $200 \times 200$  正方格子上生长成的分形结构,其中总共包含 8000 个粒子.图 6 则表示用模型 B 在  $200 \times 200$  正方格子上生长成的分形结构,包含 6000 个粒子.可以很明显地看出,图 5 与图 1 中的密集分枝结构在形状上很相似,而图 6 的分形结构则相似于图 2 的 DLA 形态的分形结构.

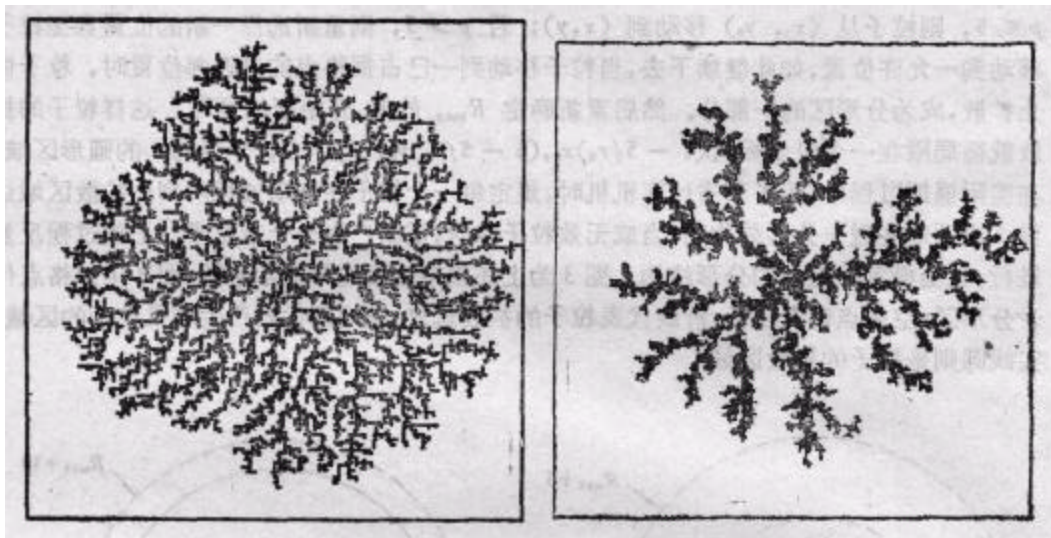


图 5 用模型 A 模拟生长的分形结构

图 6 用模型 B 模拟生长的分形结构

计算了上述两种模拟分形结构的密度相关函数  $C(r) = \frac{1}{N} \sum_{r'} \rho(r') \rho(r' + r)$ , 式中  $N$  为分形区格点总数,  $r'$  对所有格点求和. 结果表明: 模型 A 的分形结构,  $\ln C(r) - \ln(r)$  曲线中的线性区斜率为  $-0.23$ , 分形维数为  $1.77$ , 略小于实际分形结构的  $1.78^{[6]}$ . 而模型 B 的分形结构, 线性区斜率为  $-0.31$ , 分形维数为  $1.69$ , 与实际分形结构相符得很好<sup>[7]</sup>.

### 四、讨 论

与传统的 DLA 以及其它分形生长模型相比较<sup>[10,11]</sup>, 本文模型的主要不同点是粒子的扩散过程局限在一定的范围内. 模拟结果给出与实际观察结果基本相符的分形结构表明, 这两种模型确实反映了在 a-Ge/Au 双层膜晶化时的一些主要物理过程. 下面将结合 a-Ge/Au 双层膜的分形生长机制, 对模型中一些主要参数的物理意义以及它们对分形结构的影响进行一些讨论.

如上所述, 晶化潜热所形成的局域温度场在分形区的形成过程中起主要作用, 也就是说存在着一个有效范围, 在这个范围以内, Ge 原子在局域温度场的激发下能够克服扩散

或成核势垒,从而对分形生长做出贡献。在非注入样品中,这种范围较小,实验观察表明,在分形区的生长过程中,互扩散区域(围绕分形区周围的黑色富 Au 区)的宽度基本上保持不变,大致为  $0.1-0.2\mu\text{m}$  之间,而分形区大小的数量级为  $5\mu\text{m}$ ,相应的模拟分形结构的大小一般在 200 格矢左右,因此取扩散区域的半径为 5 个格矢,相应的参加生长的粒子也只能在离分形区 5 个格矢的范围内随机产生。在模拟中,发现改变扩散区域的大小,分形区的形态会发生相应的变化,区域半径大于 5 时,结构更开放,但由于机时的原因,未能对这一问题进行系统的研究。

离子注入样品,由于界面混合层的存在大大提高了系统的不稳定性,扩散尺度近 10 倍于非注入样品,因此在模型 B 中,没有设置特殊的区域来限制粒子的运动,但考虑到在实际过程中,由于分形区周围的温度梯度和成份梯度的存在,原子不可能向远离分形区的方向移动,因此在模型 B 中,粒子只能在初始位置以内的范围内移动。虽然模型 B 给出了 DLA 形态的结构,但在算法上除了上面所说的不同外,在 DLA 中,粒子是从很远的地方产生,而在模型 B 中,粒子仅在分形区的周围产生。

虽然本模型给出了与实验相符的结果,但有关分形生长的一些细节问题还不是很清楚,而且模型中的参数也仅仅是估计值。一些问题还需要进一步加以研究,如在实际体系中,分形区的形成是旧晶核生长和新晶核的产生之间的竞争过程,而晶核生长速率和晶核成核率都依赖于原子的扩散行为,在模拟过程中,仅考虑了一种生长方式,一个粒子经过扩散到达分形区边界,并成为分形区的一部分,这一过程即可以看成是由扩散控制的晶核长大过程,也可以看成是在一个由扩散过程选择的随机位置上产生了一个新的晶核。但无论如何,有一点是肯定的,那就是扩散过程的局域性决定了分形结构的形态。

## 五、结 论

在 a-Ge/Au 双层膜的晶化过程中,晶化潜热形成的局域温度均在分形结构的形成中起主要作用,密集分枝结构的出现是由于扩散的局域性引起的。在实际体系中,DLA 形态的分形结构可以在扩散距离相对短的情况下得到。

- [1] T. A. Witten and L. M. Sander, *Phys. Rev. Lett.*, **47**(1981), 1400.
- [2] L. M. Sander, *Nature*, **322**(1986), 7890.
- [3] Gy. Radnoczi *et al.*, *Phys. Rev.*, **A35** (1987), 4912.
- [4] Duan Jian-zhang and Wu Zi-qin, *Solid State Comm.*, **64**(1987), 1.
- [5] G. Deutscher *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **60**(1988), 1510.
- [6] 侯建国、吴自勤, *物理学报*, **37** (1988), 1735.
- [7] Hou Jian-guo and Wu Zi-qin, *Phys. Rev.*, **B40**(1989), 1008.
- [8] 郑兆勃, *非晶固态理论*, 科学出版社, (1987).
- [9] Hou Jian-guo and Wu Zi-qin, *Thin Solid Films*, **173** (1989), 78.
- [10] P. Meakin, *Phys. Rev.*, **B28** (1983), 5221; *Phys. Rev.*, **A27** (1983), 1495; *Phys. Rev.*, **A33**(1986), 3371.
- [11] T. A. Witten and L. M. Sander, *Phys. Rev.*, **B28**(1983), 5632.

## COMPUTER SIMULATION OF FRACTAL BEHAVIORS IN a-Ge/Au BILAYER THIN FILMS

HOU JIAN-GUO

*Fujian Institute of the Structure of Matter, Academia Sinica, Fuzhou, 350002*

BI LING-SON    WU ZI-QIN

*Center of Fundamental Physics, University of Science and Technology of China, Hefei, 230026*

(Received 5 October 1989)

### ABSTRACT

Based on the experimental observation, two models were proposed to describe the fractal formation in a-Ge/Au films with different interfacial structures. Computer simulations were done according to the above models, the results are in agreement with experimental observations. The results also show that the local latent temperature fields play a dominant role in the fractal formation process, and the appearance of dense branching morphology is due to the local diffusion effect.

**PACC:**    0540; 6890