

一维随机成核生长模型

吴锋民

(浙江工业大学, 杭州 310014)

王 衍 吴自勤

(中国科学技术大学基础物理中心, 合肥 230026)

(1995 年 3 月 13 日收到; 1995 年 12 月 29 日收到修改稿)

建立了一种一维随机成核生长模型, 在三种不同的近邻条件下进行模拟, 得到了一系列聚集生长图形, 并计算了相应的分形维数. 所得图形与多孔硅形成图样相似. 对分形维数 D 随生长概率 X 变化的 D - X 曲线性质以及分形结构转变为均匀结构的临界阈值等作了初步的讨论.

PACC: 0540

1 引 言

微小颗粒通过不可逆的聚集生长成一个大集团的过程是一种非常普遍的自然现象. 如汽相物理淀积、非晶态薄膜的晶化、液体界面上的电解淀积^[1]、溶液膜中的晶体生长、粘滞指凸^[2]、气相电介质膜中的电击穿等等. 这类非平衡过程的一个显著特点是生长成一个具有随机分形结构的集团. 自从 Witten 和 Sander^[3]提出扩散制限聚集(DLA)模型成功地模拟了不可逆聚集生长过程, 引起人们对这一领域的广泛兴趣, 越来越多的工作把 DLA 及其相应的其它生长模型应用到不同的学科领域之中.

金属锌在电解槽中随时间增长成为分形结构; 多孔硅(porous silicon)具有分形特征的结构^[4]; 在二维模具中用空气置换甘油的粘滞指凸(viscous fingering)也得到了具有分形结构的图形. 它们跟 DLA 模型一样, 都需要在长程场控制下聚集生长, 都满足长程的拉普拉斯方程, 称作拉普拉斯分形.

文献[5]报道了在非晶 a-Ge/Au 双层膜退火过程的分形行为, 并对其生长过程进行了计算机模拟^[6], 指出非晶态膜晶化过程中的分形的形成并不需要长程的拉普拉斯方程, 分形是在远离平衡状态的随机成核控制下形成的, 成核时释放的热量的扩散促使分形扩展, 但其作用范围是近程的, 相应的伴随成核长大的原子扩展也是近程的.

本文在文献[7]的随机逐次生长模型(random successive growth model)基础上, 忽略了原模型中的拥挤条件(crowding condition), 提出了一种更简单的一维随机成核生长模型, 在不同的条件下进行模拟, 得到一系列具有分形结构的聚集体图形, 并对结果进行了讨论.

2 模 型

如图 1, 建立一 $L \times H = 500 \times 400$ 的晶格, 在晶格底线放满种粒子, 称作生长衬底. 在底线上方水平直线上随机产生粒子. 令 I 为水平方向坐标, J 为竖直方向坐标. J 从底部开始每隔一个生长点大小连续取值. I 则在 1—500 之间随机取值, 先按随机数大小顺序调换 I 的次序, 再将打乱的次序随机更换 1500 次, 产生新的混乱的 I , 随机选用.

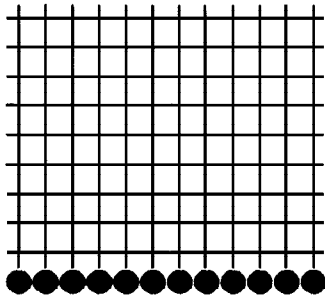


图 1 模型

给定某一生长概率 X 值, 当随机数小于 X 时, 格点有可能取 1, 相当于粒子可能在此点成核生长; 否则格点取 0, 即不生长. 实际的生长还需同时满足设定的近邻条件, 当随机选定的格点与已生长格点间的距离满足给定的近邻条件时, 该粒子在此处成核. 依次往上 ($j \rightarrow j+1$) 重复上述过程, 形成聚集的图形. 近邻条件可以仅取最近邻, 即若与随机选定的格点的距离在 1 以内至少有一个已成核的粒子时, 该随机格点在此处成核, 如图 2(a); 它也可以扩展到次近邻, 即上述距离为 $\sqrt{2}$ 以内至少有一个已成核的粒子时, 该点成核, 如图 2(b); 还可以扩展到第三近邻, 即上述距离为 2 以内至少有一个已成核的粒子时, 该点成核, 如图 2(c).

在两端、即 $I=1$ 或 $I=500$ 时, 设定周期性边界条件, 当 $I=1$ 时, 让 $(I-1, J)$ 成为 $(500, J)$; 而 $I=500$ 时, 让 $(I+1, J)$ 成为 $(1, J)$.

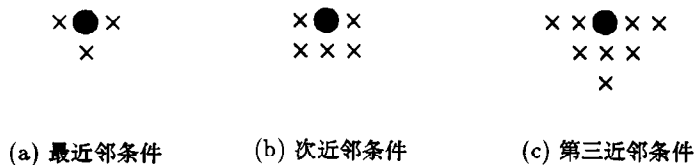


图 2 三种近邻条件

3 模拟结果

3.1 聚集体及其分维

图 3 给出了最近邻条件下聚集生长的图形. 生长衬底的尺寸为 $L = 500$ 格点, 图 3(a), (b), (c) 对应的成核概率为 0.75, 0.775, 0.80, 图上 N 为聚集体总的生长像素数. 从图 3 中可以看出, 当 $X=0.75$ 时, 聚集体生长一段后即中断, H 约为 180 个格点, 如图 3(a); 当 $X=0.775$ 时, 随着凝聚体的逐渐往上生长 (j 增大), 生长像素在总体趋势上逐渐减少, 图形变得稀疏, 如图 3(b); 当 $X=0.80$ 时, 生长相对容易, 聚集体长得较密且不

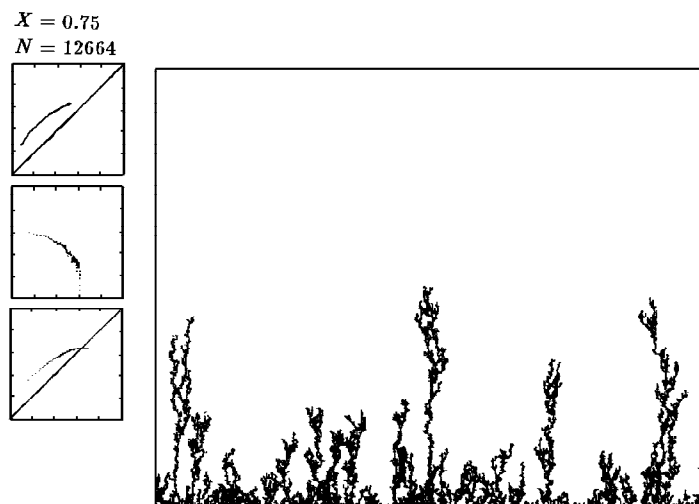
易中断,如图 3(c)。

利用文献[8]中分形维数的计算方法,计算凝聚体生长到高度为 j 时相对衬底线的回转半径为

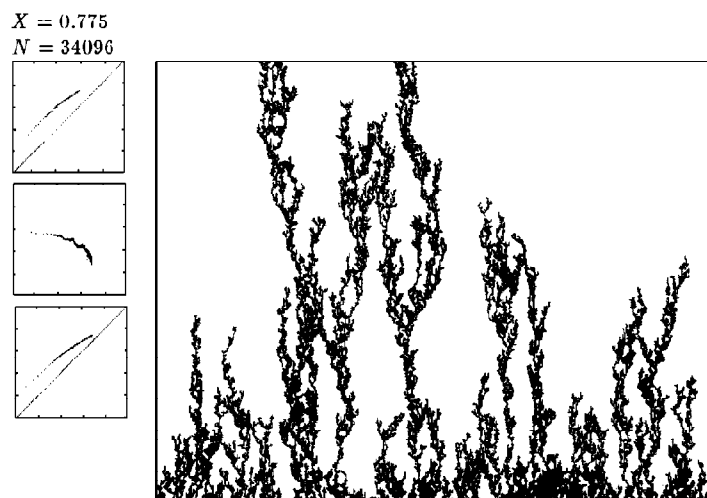
$$T_j = \sqrt{\sum_{j=1}^j \sum_{i=1}^L h_{ij}^2}, \quad (1)$$

式中 h_{ij} 为相应的聚集体各成核点的生长高度. 计算聚集体在 h_{ij} 高度以下总的生长象素数目 N_j ,

$$N_j = \sum_{j=1}^j \sum_{i=1}^L \rho(i, j), \quad (2)$$



(a)



(b)

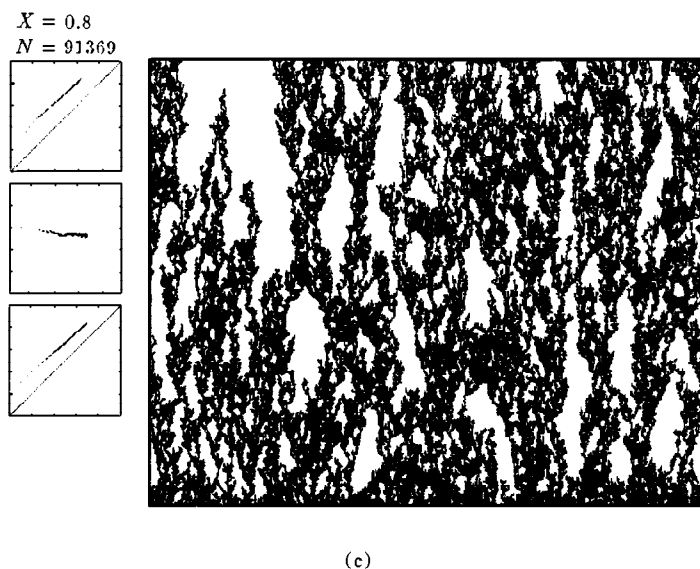


图3 最近邻条件下的聚集生长图形

式中 $\rho(i, j)$ 定义为: 若在 (i, j) 坐标处有成核格点, 则 $\rho(i, j) = 1$, 否则 $\rho(i, j) = 0$. 对 $X = 0.775$ 时的生长图形, 作 $\ln N_j - \ln T_j$ 曲线, 如图 4(a), 得斜率即其分形维数 $D = 0.74$.

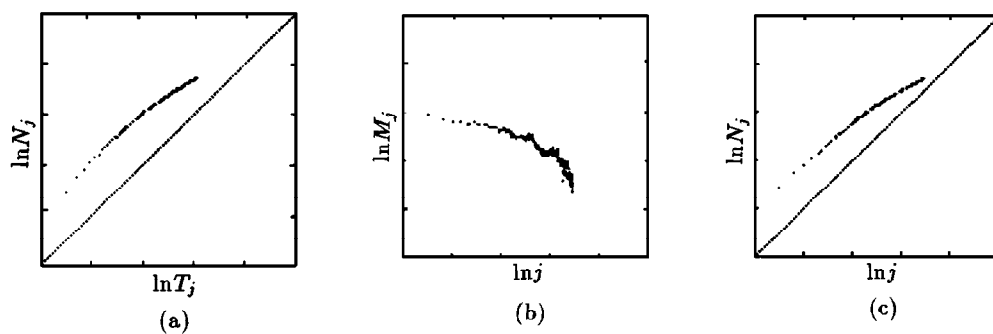
定义 M_j 为聚集体生长到第 j 行时, 该行上的成核格点数, 即

$$M_j = \sum_{i=1}^L \rho(i, j). \quad (3)$$

采用文献[9]中生长象素 M_j 与距衬底的距离 j 的函数关系

$$M_j \sim j^{-\alpha}, \quad (4)$$

作 $\ln M_j - \ln j$ 曲线, 如图 4(b) 所示. 求直线部分斜率得 $\alpha = 0.24$, 故分形维数 $D = 1 - \alpha = 0.76$. 这里的 D 值的算法与文献[7]中 $D = 2 - \alpha$ 不同, 这是因为我们取的是图形的零集 (zerosets, 即随机 contour 集) 的维数, 这样便于与其他两种方法比较.

图4 三种分形维数计算方法对应的曲线 ($X = 0.775$, $N = 34096$) (a) $\ln N_j - \ln T_j$; (b) $\ln M_j - \ln j$; (c) $\ln N_j - \ln j$

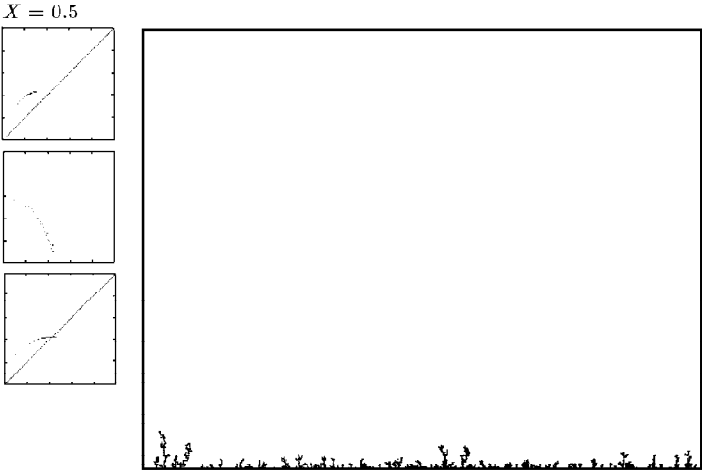
也可以将 Sandbox 法用于此一维生长的图形,即直接采用 $\ln N_j\text{-}\ln j$ 关系曲线,如图 4(c),得对应的分维为 $D=0.73$.图 3 及下述图 5,图 6 中左边三个小方框分别为对应的近邻条件及成核概率下,用上述三种方法计算分形维数的曲线.

表 1 给出了用以上三种方法计算的在三种近邻条件下不同生长概率 X 时聚集体的平均生长像素数目 $\overline{N}$ 及分形维数 D 的平均值(独立 10 次).

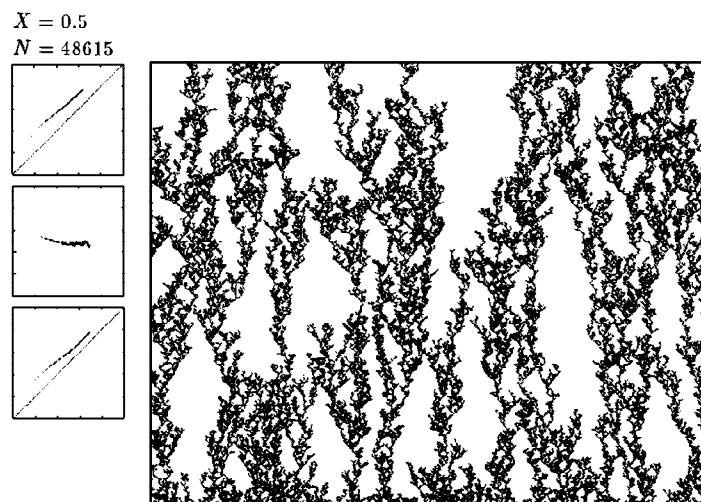
表 1 不同条件下聚集体平均生长像素数及分形维数

	X	$\overline{N}$	$\ln N_j\text{-}\ln j$	$\ln N_j\text{-}\ln T_j$	$\ln M_j\text{-}\ln j$	
			$D=\overline{D}\pm\Delta D$	$D=\overline{D}\pm\Delta D$	α	$D=\overline{D}\pm\Delta D$
最近邻	$P_c=0.825$	113054	1.00 ± 0.02	1.00 ± 0.03	0.00	1.00 ± 0.02
	0.800	91297	0.88 ± 0.03	0.90 ± 0.03	0.11	0.89 ± 0.02
	0.775	35021	0.73 ± 0.04	0.74 ± 0.03	0.24	0.76 ± 0.03
	0.750	13675	0.63 ± 0.03	0.65 ± 0.03	0.37	0.63 ± 0.03
次近邻	$P_c=0.53$	72135	1.00 ± 0.03	1.00 ± 0.03	0.00	1.00 ± 0.03
	0.525	57634	0.95 ± 0.03	0.96 ± 0.04	0.05	0.95 ± 0.04
	0.500	43537	0.82 ± 0.04	0.83 ± 0.03	0.15	0.85 ± 0.02
	0.475	9859	0.74 ± 0.03	0.76 ± 0.04	0.25	0.75 ± 0.04
第三近邻	$P_c=0.41$	63231	1.00 ± 0.04	1.00 ± 0.02	0.00	1.00 ± 0.02
	0.400	52132	0.95 ± 0.02	0.97 ± 0.03	0.04	0.96 ± 0.04
	0.375	42765	0.83 ± 0.03	0.85 ± 0.03	0.16	0.84 ± 0.03
	0.350	7456	0.62 ± 0.03	0.63 ± 0.04	0.38	0.62 ± 0.04

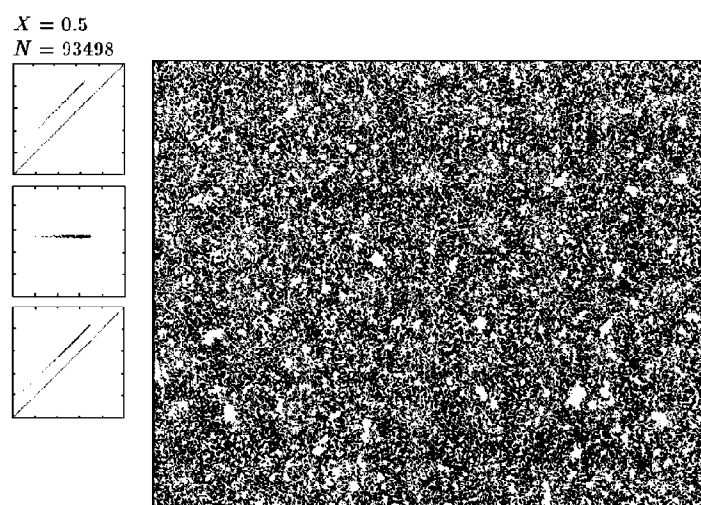
当改变近邻条件时,可以得到在几种不同的近邻条件下聚集生长的图形.图 5(a)表明,在最近邻条件下,聚集生长很快中断;图 5(b)是在次近邻条件下的聚集生长情况,由于近邻条件的放宽,粒子相对较容易附着于聚集体上,随着生长高度的增大,聚集体具有分形结构, $D<1$;图 5(c)所示的是在第三近邻条件下的生长图形,此时由于近邻条件的进



(a) 最近邻条件



(b) 次近邻条件



(c) 第三近邻条件

图 5 三种不同近邻条件下的聚集图形

一步放宽,生长变得更为容易,随着 j 的继续增大,聚集体可以连续地无限往上生长,此时 $D=1$,聚集体不具有分形结构.同样可以计算这些情况下的分形维数,见表 1.

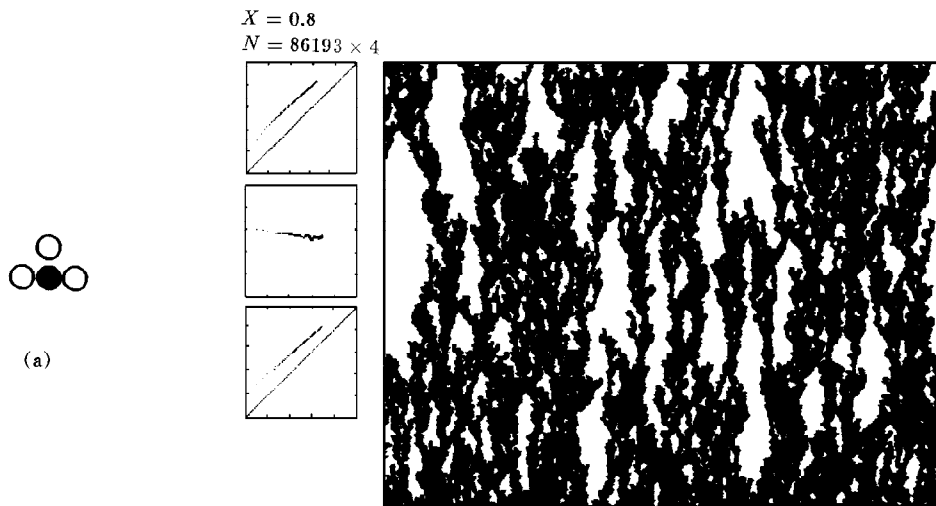
在聚集生长过程中还可以考虑其长大情况,即一粒子成核后,在其近邻位置上再附着几个粒子使长大.图 6(a)为在最近邻三个位置上各聚集一个粒子的示意,三种近邻条件下聚集长大的情况如图 6(b), (c), (d) 所示.

3.2 临界现象及其阈值

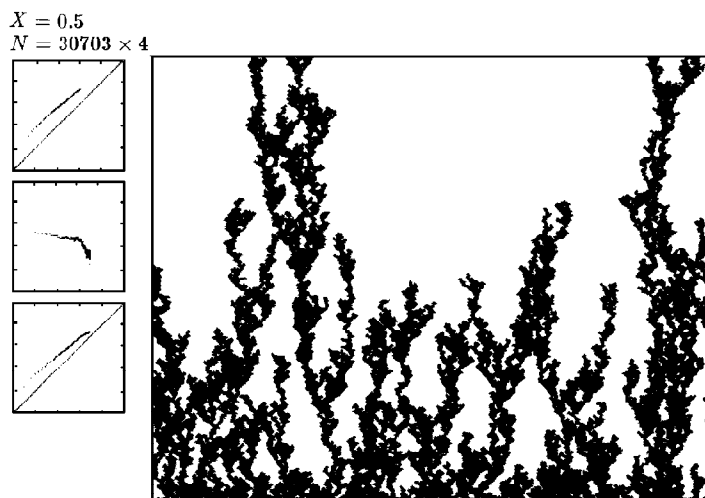
相变和临界现象是物理学中的重要领域,普适性和相变性质是临界现象研究中的中

心问题. 1980 年, Gefen 等^[10]的开创性工作揭示了分形物质上的临界性质与常规物质不同, 激发了人们的广泛兴趣. 人们试图通过对具有分数维的分形系统的研究, 考察临界特性对空间维数的依赖性, 揭示非整数维空间中的物理现象.

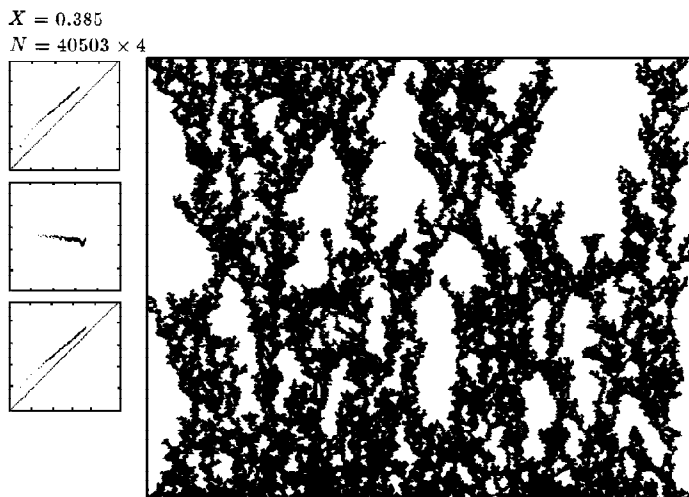
在本模型中, 生长概率 X 直接影响着聚集体能否长成及长成后的形态, 同时对聚集体的分形维数也有着重要的影响. 数值模拟结果表明, 在最近邻条件下, 当 X 较小 ($X < 0.45$) 时, 由于满足此时的最近邻条件的粒子数过少, 聚集体难以长成. 随着生长概率 X 的增大, 成核粒子数增多, 聚集变得容易, 聚集体逐渐从较小、较疏到较大、较密且不易中断, 对应的分形维数 D 也随之增大. 当 X 到达一定值 ($X = 0.825$) 时, $D = 1$. 此后, 随着 X 的继续增大, $D = 1$, 聚集体可以连续地均匀生长而不具有分形特征. 我们将 D 恰好达到 1



(b) 最近邻条件



(c) 次近邻条件



(d) 第三近邻条件

图6 成核点长大的情况

时的 X 值称作分形结构转变为均匀结构的临界阈值 P_c 。由此还可以得到,在最近邻条件下,具有分形结构的区域为 $0.45 < X < 0.825$ 。

图 7(a)中,在 $0.65 < X < 0.825$ 之间,(图中实线部分,根据计算结果描绘)分形维数随生长概率 X 增大而增大,临界阈值 $P_c = 0.825$ 。在 $X < 0.65$ 部分,由于聚集体生长很快中断,在用双对数曲线求分维时,因直线部分过短,不易精确计算分维数值。若将实线部分延长至 $D=0$ 处,此时对应的 $X=0.48$ 。即从图 7(a)中得知, $X < 0.48$ 时,聚集体难以长成。这与实际数值结果 $X < 0.45$ 基本一致。在 $0.48 < X < 0.65$ 之间(图中虚线部分),数值结果表明,尽管聚集体长得较小,但仍具有分形结构。

我们知道,分形的重要特征是具有标度不变性,即存在无标度区,如图 4 双对数曲线的直线部分。这是生长象素数的对数 $\ln N_j$ (或 $\ln M_j$)随观测尺度的对数 $\ln j$ (或 $\ln T_j$)线性变化的结果。分维仅在此范围内成立,分形维数是一定值(直线部分斜率),通常称此区域为渡越区。而在图 7(a)中,尽管也存在一个具有分维的区域,但其维数随生长概率 X 非线性地改变,分维不是常量。显然,这个区域跟通常意义上的渡越区不同。

同样地,可以得到在次近邻和第三近邻条件下,存在分维的区域 $0.19 < X < 0.53$ 和 $0.09 < X < 0.41$ (图中得到的区域为 $0.21 < X < 0.53$ 和 $0.10 < X < 0.41$)。临界阈值 P_c 分别为 0.53 和 0.41 。如图 7(b),(c)所示。比较图 7(a),(b),(c)不难看出,随着近邻条件的放宽,临界阈值 P_c 减小,即更容易从分形结构转变为均匀结构。在三种近邻条件下, D - X 曲线的形状大体相同,而存在分维的范围依次缩小。

在实际的聚集生长系统中,生长概率 X 往往对应一定的控制参量,具有特定的物理意义。如在金属-半导体薄膜晶化过程中,近程的晶核一方面会降低应变能不利于成核,另一方面会使非晶半导体短程扩散到枝叉,使枝叉间不能产生新的晶核。故在一定范围内晶核的数量会受到限制^[11]。在模拟该晶化过程时,这种限制可以通过设定成核条件和调整

生长概率来实现. 因此, 研究生长概率对聚集体生长行为的影响, 尤其是对分形存在区域的性质以及临界现象的影响, 将给人们以有益的启示.

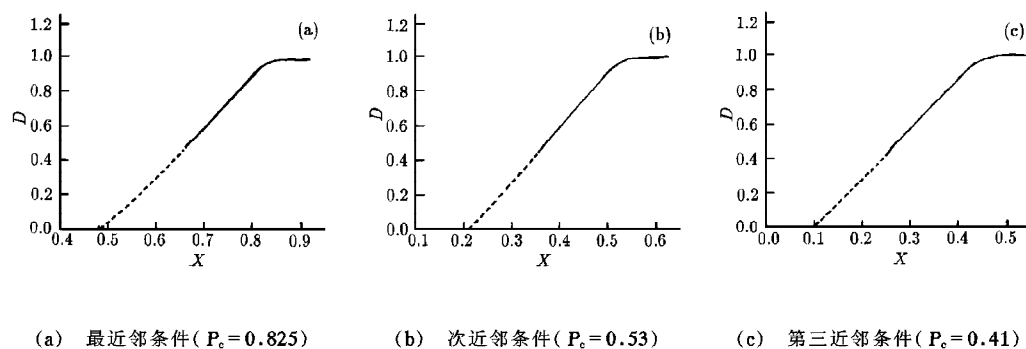


图 7 D-X 曲线

4 讨 论

我们的模拟忽略了文献[7]中的拥挤条件, 因此在成核概率 X 较大时分开的枝叉可以合并, 形成多孔状的图形(如图 3(c)), 这与文献[9]及[12]模拟多孔硅形成的图形相似. 如不忽略上述拥挤条件, 则图形分叉不合并, 其分叉情况与 DLA 图形相似.

本文用三种方法计算了各种情况下的分形维数. 从表 1 可以看出, 用三种方法计算得到的分数维数相同, 一般差别在 ± 0.02 范围之内. 但在聚集生长很快中断, 聚集体相对较小时, 用上述三种方法不易精确计算分形维数.

分形向均匀结构的转变阈值 P_c 的确定采用逼近方法, 即逐渐增大生长概率 X 值, 生长逐渐变得容易, 相应的分形维数也随之增大且逼近 1, 当 D 恰好达到 1 时, 对应的生长概率 X 值即为阈值 P_c . 原则上我们的模型也可定出逾渗阈值. 此值可以定义为图形高度可以达到最高值 400 时的 X 值, 但由于目前的程序难以在远超过 500×400 的范围内进行, 此值的确定有待于进一步的工作.

- [1] Matsushita *et al.*, *Phys. Rev.*, **A32**(1985), 3814.
- [2] Jens Feder, *Fractals* (Plenum Press, New York, 1988), p. 56.
- [3] T. A. Witten and L. M. Sander, *Phys. Rev. Lett.*, **47**(1981), 1400.
- [4] S. F. Chuang *et al.*, *Appl. Phys. Lett.*, **55**(1989), 1540.
- [5] 侯建国、吴自勤, 物理学报, **37**(1988), 1735.
- [6] 侯建国、吴自勤, 物理学报, **39**(1990), 1183.
- [7] Wu Ziqin, Li Baoquin, *Phys. Rev.*, **E51**(1995), 16.
- [8] P. Meakin, *Phys. Rev.*, **A27**(1983), 2616.
- [9] H. Yan, X. Hu, *J. Appl. Phys.*, **73**(1993), 4324.
- [10] Y. Gefen *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **45**(1980), 855.
- [11] 吴自勤、张人佶, 物理学进展, **14**(1994), 435.
- [12] 金耀辉等, 物理学报, **44**(1995), 590.

ONE-DIMENSIONAL RANDOM SUCCESSIVE NUCLEATION GROWTH MODEL

WU FENG-MIN

(*Zhejiang University of Technology, Hangzhou 310014*)

WANG YAN WU ZI-QIN

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

(Received 13 March 1995; revised manuscript received 29 December 1995)

ABSTRACT

A computer simulation model of one-dimensional random successive nucleation growth is presented. A series of patterns and their fractal dimensions are obtained for three near-neighbor conditions. The simulated structures are similar to those of porous silicon. The properties of the $D-X$ curve and the critical threshold of the cluster change from fractal to uniform structure are also discussed briefly.

PACC: 0540