Письма в ЖЭТФ, том 55, вып.6, стр.340 - 344 25 марта 1992 г.

КИНЕТИКА РОСТА КВАЗИПЕРИОДИЧЕСКИХ СТРУКТУР ПРИ МАЛЫХ ПЕРЕОХЛАЖДЕНИЯХ

А.В.Артемьев, М.А.Фрадкин

Институт кристаллографии РАН

117333, Москва

Поступила в редакцию 14 февраля 1992 г.

Методом Монте-Карло исследован рост квазипериодической структуры при малых переохлаждениях $\Delta\mu$. Показано, что в процессе роста реализуется широкий дискретный спектр высот зародышей, причем средняя высота расходится как $\Delta\mu^{-1/3}$ в согласии с результатами аналитических расчетов. Кинетика роста определяется зародышами с максимальной высотой, что приводит к особенностям в зависимости скорости роста от переохлаждения.

При изучении термодинамики поверхности кристалла, а также ее кинетики в процессах роста, широко используется феноменологическая модель с гамильтонианом, отвечающим уравнению sin-Гордона [1,2]:

$$H(z) = \frac{1}{2}\int (K(\nabla z)^2 + V(z))d^2\vec{r}, \tag{1}$$

где $z(\vec{r})$ - высота поверхности над некоторой плоскостью отсчета в зависимости от вектора $\vec{r}$ в этой плоскости, K - жесткость поверхности, а $V(z)$ - потенциал пиннинга поверхности. Для периодического кристалла обычно используется выражение:

$$V(z) = -V_0 \cos\left(\frac{2\pi}{a}z\right), \tag{2}$$

где a - период решетки в направлении оси z. Эта модель позволяет получить выражения для температуры огранения и соответствующей корреляционной длины. При этом критическое переохлаждение, отвечающее динамическому огрублению растущей поверхности, при котором послойный рост кристалла переходит в нормальный [3], определяется сопоставимостью радиуса критического зародыша с корреляционной длиной.

При изучении структуры поверхности квазикристаллов обнаружено [4–6], что она остается термодинамически гладкой при любых температурах. Это происходит из-за того, что высота элементарной ступени на грани квазикристалла может быть сколь угодно большой, поэтому энергия торца такой ступени не компенсируется конфигурационной энтропией [3]. Это приводит к тому, что при любых температурах найдется элементарная ступень с положительной линейной свободной энергией. Возможность образования на грани квазикристалла зародышей разной высоты также существенно меняет кинетику их роста.

Для изучения роста квазикристаллов при различных переохлаждениях Тонер [7] применил модель (1) с потенциалом пиннинга

$$V(z) = -V_G\left(\cos(Gz) + \cos\left(\frac{G}{\tau}z\right)\right), \tag{3}$$

где $\tau = (\sqrt{5}+1)/2$ - "золотое сечение", а вектор G определяется усилением V_G при увеличении масштаба поверхности. Им было показано, что при послойном росте высота критического зародыша минимальной энергии расходится как $h \propto \Delta\mu^{-1/3}$, а скорость роста зависит от переохлаждения по закону $R(\Delta\mu) \propto \exp(-C\Delta\mu^{-4/3})$, тогда как при послойном росте обычных кристаллов высота зародыша постоянна и равна периоду решетки, а скорость роста определяется зависимостью от переохлаждения по закону $R(\Delta\mu) \propto \exp(-C\Delta\mu^{-1})$. Фактически, в работе Тонера рассматривался рост квазикристалла с фиксированной высотой зародыша зависящей от переохлаждения. Однако ниже будет показано, что даже при постоянном переохлаждении реализуется широкий спектр высот зародышей, что проявляется в кинетике роста.

В настоящей статье модель (1) с потенциалом пиннинга

$$V(z) = -V_0 \left(\cos\left(\frac{2\pi}{a} z\right) + \cos\left(\frac{2\pi}{\tau a} z\right)\right), \tag{4}$$

исследована с помощью моделирования по методу Монте-Карло. При этом процесс роста предполагался последовательным, то есть зародыши могли возникать лишь на заполненном предыдущем слое (это отвечает скорости разрастания зародышей много большей чем скорость их образования).

При послойном росте обычного кристалла энергия образования зародыша критического размера равна:

$$E_b = \frac{\pi\alpha^2 h}{\Delta\mu}, \tag{5}$$

где α - поверхностная энергия фронта ступени, введенная формально через линейную ϵ_s : $\alpha = \epsilon_s/h$. В случае квазикристалла основное отличие заключается в том, что энергия поверхности V не является инвариантной по отношению к трансляционному переносу на какое-либо характерное расстояние по оси z. Из-за того, что энергия "основания" $V(z_0)$ и "крыши" зародыша $V(z_0 + h)$ различна, в его энергии появляется дополнительный вклад, пропорциональный площади, и в выражение (5) для критической энергии вместо $\Delta\mu$ входит эффективное переохлаждение $\Delta\mu_{eff}$, зависящее от высоты зародыша:

$$\Delta\mu_{eff}(h) = \Delta\mu - \Delta V(h)/h, \qquad E_b = \frac{\pi\alpha^2 h}{\Delta\mu_{eff}(h)}. \tag{6}$$

Поэтому, равновесная форма зародыша определяется возможностью изменения не только его радиуса, но и высоты. Очевидно, что в процессе роста реализуются зародыши, чья высота удовлетворяет условию $\Delta\mu > \Delta V(h)/h$, обеспечивающему термодинамический стимул для их разрастания. Возможные положения поверхности описываются набором минимумов зависимости $V(z)$. В ходе моделирования для каждого текущего положения поверхности определялся набор возможных высот зародышей h, для каждой из которых вычислялась вероятность критического зарождения $\exp\{-E_b(h)/kT\}$, а затем в соответствии со случайным числом определялась реализовавшаяся высота и новое положение поверхности квазикристалла. Процесс повторялся до прохождения поверхностью расстояния, содержащего 8000 минимумов потенциала пиннинга. Моделирование было осуществлено для диапазона переохлаждения 0,05 - 0,0002 в единицах $a\alpha^2/kT$, причем V_0 полагалось равным 1.

Полученные распределения высот реализовавшихся зародышей имеют при исследованных переохлаждениях дискретный характер, а наблюдаемые высоты с большой точностью соответствуют последовательным числам Фиббоначчи. На рис.1 приведены распределения высот зародышей полученные для переохлаждений 0,05 и 0,02. Изменение спектра высот в зависимости от переохлаждения происходит двояким образом: во-первых (при квазистационарном режиме) происходит лишь перераспределение интенсивностей уже имеющихся трех пиков спектра, а во-вторых имеет место качественное изменение, при котором происходит появление в спектре нового пика с большей высотой ступени. После исчезновения пика с наименьшей высотой зародыша, происходит квазистационарное изменение спектра до достижения очередного критического переохлаждения, при котором спектр смещается в область больших высот. Таким образом, можно ввести набор критических значений переохлаждения $\Delta\mu_i^c$, при которых в спектре появляются зародыши с высотой соответствующей i-му числу Фиббоначи.

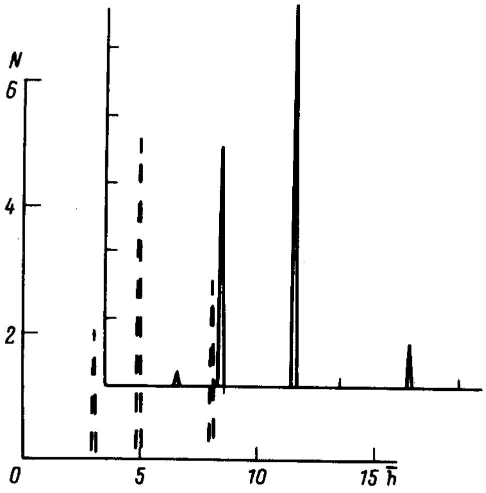

Рис.1.

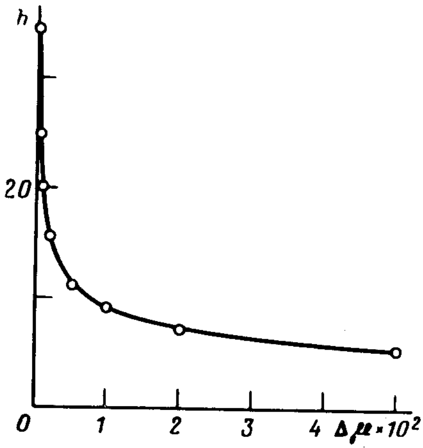

Рис.2.

Рис.1. Плотности распределения высот зародышей $N(h)$ в произвольных единицах, полученные для переохлаждений 0,05 (пунктир) и 0,02 (сплошная линия). Высота h приведена в единицах a
Рис.2.Зависимость средней высоты зародыша от переохлаждения. Сплошная линия отвечает кривой $\bar{h} = 9,1a\Delta\mu^{-1/3}$, а ○ - расчетным значениям

Средняя высота зародыша $\bar{h}$ возрастает при уменьшении $\Delta\mu$ (рис.2), причем полученные значения с хорошей точностью описываются зависимостью $\bar{h} = \bar{h}_0\Delta\mu^{-1/3}$; $\bar{h}_0 = 9,1a$, полученной аналитически Тонером [7]. Однако следует отметить, что одновременно и дисперсия распределения высот зародышей δh зависит от переохлаждения по степенному закону с тем же показателем и коэффициентом $\delta h_0 = 0,366$. Зависимость от переохлаждения средней энергии пиннинга, реализующейся при последовательном перемещении поверхности, описывается выражением $\bar{V} = -2 + 0,145\Delta\mu^{2/3}$, а для ее дисперсии получена оценка $\delta V = 4,095\Delta\mu^{2/3}$.

При анализе кинетики роста следует учитывать, что в рассматриваемой нами модели послойного роста образование зародышей с различной высотой происходит последовательно, а не одновременно. Появление зародышей большей высоты связано с тем, что при определенных положениях поверхности рельеф потенциала пиннинга таков, что образование зародыша меньшей высоты невозможно. Таким образом, процесс роста лимитируется самыми медленными стадиями. Время образования зародышей экспоненциально зависит от критической энергии зарождения, зависящей в свою очередь от его высоты. Вследствие этого, времена образования зародышей с различной высотой сильно различны, и уже при переохлаждении 0,05 отношение времен образования зародышей с высотами, равными 8 и 5 (см. рис.1) составляло $\approx 10^{2-3}$. При меньших переохлаждениях (что соответствует большей разнице между ближайшими в спектре высотами) это отношение резко возрастает. Таким образом, кинетика роста определяется в первую очередь зародышами с максимальной высотой в спектре h_{max}, даже когда их доля невелика. Временем образования зародышей с меньшими высотами можно пренебречь и считать, что поверхность после образования зародыша с $h = h_{max}$ мгновенно проскакивает расстояние до следующего положения, где необходимо ожидание появления следующего слоя с высотой h_{max}.

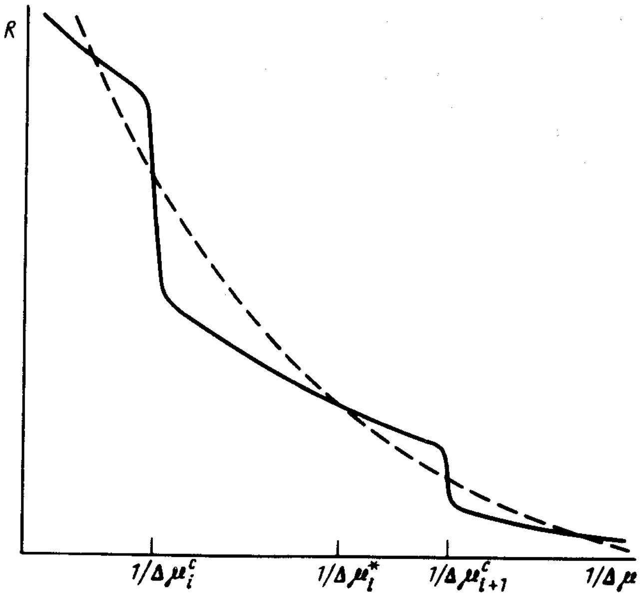

Рис.3. Качественный вид зависимости скорости роста R от переохлаждения $\Delta\mu$

Для оценки зависимости скорости роста R от переохлаждения (рис.3) проанализируем качественно два характерных случая. Сначала рассмотрим специальный набор значений переохлаждения $\Delta\mu_i^*$, каждое из которых отвечает квазистационарному участку зависимости спектра высот зародышей от переохлаждения ($\Delta\mu_i^c > \Delta\mu_i^* > \Delta\mu_{i+1}^c$), а максимальная высота зародышей может быть оценена как $h_{max}(\Delta\mu_i^*) = \bar{h}(\Delta\mu_i^*) + \delta h$. В этих точках R пропорциональна $\exp\{-\pi\alpha^2[\bar{h}(\Delta\mu_i^*) + \delta h]/(kT\Delta\mu_i^*)\} = \exp\{-\pi\alpha^2(\bar{h}_0 + \delta h_0)(\Delta\mu_i^*)^{-4/3}/kT\}$, то есть качественно совпадает с зависимостью $R(\Delta\mu)$ оцененной для средней величины высоты зародышей, отличаясь только коэффициентом при $\Delta\mu$. На рис.3 эта зависимость показана пунктиром. При изменении $\Delta\mu$ от $\Delta\mu_i^c$ до $\Delta\mu_{i+1}^c$ высота $h_{max}(\Delta\mu_i^*)$ зародышей определяющих кинетику роста не изменяется (как в кристалле) и скорость роста с точностью до предэкспоненциального степенного по $\Delta\mu$ множителя пропорциональна $\exp(-C\Delta\mu^{-1})$. Теперь рассмотрим окрестности критического переохлаждения $\Delta\mu_i^c$. В узком интервале $\Delta\mu$ появляются и начинают играть определяющую роль в кинетике зародыши с новой максимальной высотой h_{max}, отвечающей следующему значению $\Delta\mu_i^*$. Таким образом, в этой области переохлаждений скорость роста резко уменьшается. Зависимости $R(\Delta\mu)$ качественно представлена сплошной линией на рис.3. Видно, что учет реального характера спектра высот растущих зародышей приводит к флуктуациям около кривой $R(\Delta\mu) \propto \exp(-C\Delta\mu^{-4/3})$.

Таким образом, с помощью моделирования методом Монте-Карло нами показано, что в процессе роста квазипериодической структуры реализуется широкий дискретный спектр высот зародышей, причем средняя высота расходится как $\Delta\mu^{-1/3}$ в согласии с результатами аналитических расчетов. Кинетика роста определяется зародышами с максимальной высотой, что приводит к характерным особенностям в зависимости скорости роста от переохлаждения.

Авторы выражают признательность А.А.Чернову за полезные обсуждения затронутых в статье вопросов.

1. S.T.Chui and J.D.Weeks, Phys. Rev. B **14**, 4978 (1976).
2. P.Nosieres and F.Gallet, J.de Phys. **48**, 353 (1987).
3. А.А.Чернов., Современная кристаллография, т.3, М.: Наука, 1984.
4. A.Garg and D.Levine, Phys. Rev. Lett. **59**, 1683 (1987).
5. R.Lipowsky and C.L.Henley, Phys. Rev. Lett. **60**, 2394 (1988).
6. L.V.Mikheev, Phys. Lett. **132**, 137 (1988).
7. J.Toner, Phys. Rev. B **43**, 915 (1991).