Федеральное государственное образовательное учреждение
высшего образования
МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ
ИМЕНИ М.В.ЛОМОНОСОВА
ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

Анашкина Екатерина Ивановна

ЭПИТАКСИАЛЬНЫЙ РОСТ ОСТРОВКОВ ИЗ КЛАСТЕРОВ МЕТАЛЛОВ НА ПОВЕРХНОСТИ ВЫСОКООРИЕНТИРОВАННОГО ПИРОЛИТИЧЕСКОГО ГРАФИТА В СУБМОНОСЛОЙНОМ РЕЖИМЕ

Специальность 01.04.07 —
«Физика конденсированного состояния»

Диссертация на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Научный руководитель:
кандидат физико-математических наук, доцент
Карговский А.В.

Москва — 2017

Оглавление

Введение

Актуальность работы. Интенсивное развитие нанотехнологий в течение последних десятилетий привело к созданию наноструктур с уникальными, по сравнению с традиционными микрообъектами, свойствами. Наноструктуры, обладая специфическими оптическими, электрическими, магнитными и механическими свойствами, находят широкое применение в различных областях науки и техники. Особый интерес вызывают кластеросодержащие наноструктуры, называемые островками, образованные из крупных многоатомных частиц (кластеров) на подложке. Островки используются во многих областях: из упорядоченных островков формируются системы квантовых точек; островки с большой дисперсией размеров находят применение в фильтрующих системах; островки применяются в производстве магнитных наноструктур и для определения свойств подложек, на которых происходит рост. В разных задачах находят применение островки с различной поверхностной плотностью, размером и формой. Эти характеристики зависят от величины потока осаждаемых кластеров, химических свойств кластеров и подложки, размеров кластеров, температуры. Развитие технологий, связанных с получением кластеросодержащих островков, ставит новые задачи по исследованию поведения кластеров на плоской подложке и описанию формирования и роста островков.

Кластер представляет собой группу атомов, содержащую от десятков до тысяч атомов. Существуют разнообразные способы производства кластеров — газофазный синтез, механохимические методы, осаждение из коллоидных растворов и пр. Для задач, связанных с ростом кластеросодержащих структур, актуальны методы, в которых кластеры формируются до осаждения на подложку. После осаждения кластеры начинают диффундировать по подложке, при этом их движение — хаотическое. Перемещаясь по подложке, кластер может объединиться с близкорасположенным кластером или зафиксироваться в дефекте поверхности. Эти процессы приводят к формированию зародышей островков, которые впоследствии растут за счет присоединения к ним новых кластеров.

Методы расчета размеров и поверхностной плотности островков делятся на две группы: теоретические методы, основанные на решении уравнения диффузии, и численное моделирование движения кластера по подложке. Теоретические методы пригодны в основном для описания островков круглой формы, в то время как большинство получаемых в экспериментах островков имеют дендритную структуру. В свою очередь, численное моделирование ресурсозатратно, и, вдобавок, не позволяет вывести общую закономерность формирования островков.

В данной работе представлена модель, в основе которой лежат свойства кластеров, сформированных из атомов металлов и движущихся по подложке из высокоориентированного пиролитического графита (ВОПГ). Такое сочетание материала подложки и кластеров приводит к быстрой диффузии кластеров, что вызывает формирование крупных островков преимущественно дендритной структуры.

Кластеры движутся по подложке хаотически и прибывают к островку в случайные моменты времени, поэтому основанный на диффузии захват островками кластеров — стохастический процесс. В связи с этим в данной работе было решено разработать статистическую модель описания роста островков. При описании роста островка его размер рассматривается как нестационарная случайная величина; анализируется количество кластеров, присоединяющихся к отдельному островку. Изменение числа кластеров в составе островка описывается стохастическим дифференциальным уравнением (СДУ). Слагаемое, представляющее случайный процесс, должно содержать мультипликативный шум, так как кластеры присоединяются к границе островка, таким образом, скорость роста островка зависит от его размера. Вид уравнения позволяет учитывать разнообразие форм островков и режимов их роста. Выбирая соответствующий вид мультипликативного шума, можно учитывать технологию получения островков — к примеру, рассмотренный в работе импульсный процесс с фиксированными точками (ИПФТ) соответствуют импульсному режиму напыления кластеров, а пуассоновский процесс — задаче с непрерывным напылением. Также в работе описан импульсный пуассоновский процесс с задержкой (ИППЗ), соответствующий случаю, когда существует задержка между последовательными присоединениями кластеров к островку. Также СДУ с мультипликативным шумом было применено для описания изменения скорости кластера, диффундирующего по подложке.

Целью данной работы является построение модели, описывающей различные режимы роста островков. Модель должна учитывать различия в форме островков и в дисперсии размеров. Также в работе строится модель, учитывающая особенности изменения скорости кластера, диффундирующего по подложке.

Для достижения поставленной цели необходимо было решить следующие **задачи**:

1. Построить математическую модель, характеризующую движение кластеров по подложке, предложить и решить уравнение, описывающее изменение скорости кластера.

2. Определить вид уравнения, описывающего скорость роста островков в режиме квазистабильного роста и насыщения; определить статистические характеристики используемых шумов.

3. Получить функции плотности распределения вероятностей для размеров кластеросодержащих островков, решив уравнения Фоккера-Планка, соответствующие СДУ для представленных моделей, сравнить полученные результаты с результатами численного моделирования СДУ.

4. Дать физическую интерпретацию зависимости решений от параметров уравнений и параметров шумов.

Методы и методология исследования. Моделирование изменения скорости кластера на подложке и динамики скорости роста кластеросодержащего островка проводилось с помощью составления соответствующих рассматриваемому случаю СДУ с мультипликативным шумом. В работе решалось уравнение Фоккера-Планка, соответствующего СДУ. Также проводилось численное моделирование СДУ с использованием схемы Мильштейна порядка 1.0 и сильной схемы Тейлора порядка 1.5.

Основные положения, выносимые на защиту:

1. Рост наноразмерного островка, состоящего из кластеров металлов, на подложке из высокоориентированного пиролитического графита может быть описан СДУ с мультипликативным шумом, отвечающим за случайный характер присоединения кластеров к границе островка. С ростом фрактальной размерности островка понижается скорость его роста. Присоединение подвижных островков, состоящих из нескольких кластеров, приводит к увеличению скорости роста крупных неподвижных островков.

2. Динамика скорости свободного металлического кластера, движущегося по плоской горизонтально расположенной подложке из высокоориентированного пиролитического графита, может быть описана с помощью уравнения баланса для плотности скорости кластера. Распределение скоростей свободных кластеров, движущихся по подложке, определяется ускорением и поглощением кластеров. С уменьшением параметра поглощения информация о начальном распределении скоростей кластеров пропадает.

3. Средний стационарный размер кластеросодержащего островка, представляющий собой усредненное решение СДУ с мультипликативным шумом и диссипативным слагаемым, демонстрирует зависимость от параметра периодичности шума в случае, если в качестве шума рассматривается импульсный пуассоновский процесс с задержкой: средний стационарный размер убывает с увеличением параметра периодичности импульсного процесса с задержкой, в то время, как для импульсного процесса с фиксированными точками подобная зависимость не наблюдается.

Научная новизна:

1. Выполнено оригинальное исследование зависимости решения СДУ от корреляционных характеристик шума.

2. Проанализировано изменение стационарного размера островка в зависимости от случайного процесса в мультипликативном слагаемом.

3. Проведено рассмотрение распределения скоростей кластеров, движущихся по плоской горизонтальной подложке.

4. Исследована зависимость скорости роста островка от распределения размеров присоединяющихся к нему небольших подвижных островков.

Теоретическая и практическая значимость диссертационной работы вытекает из новизны полученных результатов. Теоретическая значимость диссертации заключается в том, что в ней было проведено численное моделирование СДУ для различных шумов и получены теоретические решения соответствующих уравнений Фоккера-Планка. В результате проведенной работы были сформулированы теоретически значимые выводы, касающиеся зависимости решений СДУ от характеристик шума.

Практическая значимость работы определяется тем, что ее результаты могут быть в дальнейшем использованы для предсказания особенностей роста кластеросодержащих структур.

Достоверность изложенных в работе результатов подтверждается совпадением результатов теоретических расчетов с численными экспериментами.

Апробация работы. Основные результаты работы докладывались на конференциях:

– ΣΦ2014 International Conference on Statisitcal Physics, Rhodes, Greece, 2014 [1];

– 7th International Conference on Unsolved Problems on Noise (UPoN 2015), Barcelona, Spain, 2015 [2];

Личный вклад. Представленные результаты диссертационной работы получены автором лично или при его определяющем участии. Задачи исследований были поставлены совместно с научным руководителем. Автор принимал активное участие в получении результатов и их интерпретации. Подготовка публикаций проводилась совместно с соавторами.

Публикации. Основные результаты по теме диссертации изложены в **семи** печатных работах, **пять** из которых опубликованы в следующих рецензируемых журналах: Physical Review E [3, 4], Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment [5, 6], International Journal of Modern Physics B [7], и **две** — в тезисах докладов конференций [1, 2].

Объем и структура работы. Диссертация состоит из введения, трех глав и заключения. Полный объем диссертации составляет 127 страниц с 49 рисунками. Список литературы содержит 140 наименований.

Глава 1

Формирование наноразмерных структур (литературный обзор)

Интенсивное развитие нанотехнологий в течение последних десятилетий привело к созданию наноструктур с уникальными, по сравнению с традиционными микрообъектами, свойствами. [8]. Наноструктуры обладают специфическими оптическими, электрическими, магнитными и механическими свойствами, благодаря чему они находят широкое применение в различных областях науки и техники, в частности, в машиностроении, электронике, информатике, энергетике, здравоохранении и экологии [9–11]. Для применения наноразмерных структур в любой из этих отраслей требуется обеспечить определенные свойства создаваемых наноструктур, в связи с чем за прошедшие годы были разработаны разнообразные методы их производства.

Технологии, направленные на получение наноструктурированных материалов, можно разделить на две группы [13] (рисунок 1.1):

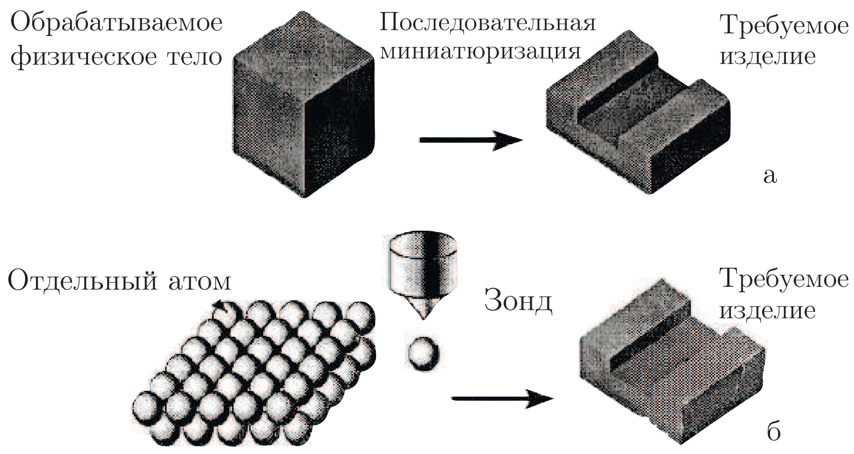

Рис. 1.1. Сверху — подход «сверху-вниз»(пример подхода — литография в полупроводниковой технике); снизу — подход «снизу-вверх»(пример подхода — обработка элементов поверхности при помощи зонда сканирующего туннельного микроскопа) [12].

- методы, реализуемые по принципу «сверху-вниз». Данный технологический подход основан на уменьшении размеров исходных заготовок путем их фрагментации [9]. К технологиям этого типа относятся методы, применяемые для получения компактных наноматериалов и нанопорошков из объемных заготовок: интенсивная пластическая деформация, электрохимическое травление и др. [13].

- методы, реализуемые по принципу «снизу-вверх». Данный подход к производству микро- и наноразмерных структур заключается в том, что создание структур происходит путем их сборки непосредственно из отдельных атомов или молекул, а также элементарных атомно-молекулярных блоков, структурных фрагментов биологических клеток и т.п. [9]. Типичным примером реализации таких технологий является поштучная укладка атомов на кристаллической поверхности при помощи сканирующих зондов [12], газофазный синтез, осаждение из коллоидных растворов, плазмы или жидких растворов.

Особый интерес вызывает изучение и анализ структур, образующихся в режимах, в которых количество напыляемого вещества меньше, чем требуется для напыления одного равномерного слоя (субмонослойное покрытие). Такие структуры, как будет показано в дальнейшем, широко применяются в различных областях науки, поэтому важно иметь возможность предсказывать особенности их формированиях. Также структуры, формирующиеся при субмонослойном нанесении вещества, представляют из себя начальную стадию формирования тонких и многослойных пленок, поэтому их изучение поможет лучше понимать процессы, происходящие при формировании многослойных структур пленок.

В данной работе основное внимание уделяется структурам, формирующимся из кластеров. В разделе 1.1 подробно рассказано о производстве кластеров и структур из них, приведены примеры наноразмерных структур, растущих на подложке и состоящих из кластеров (в дальнейшем в работе такие структуры называются «островками»). В разделе 1.2 приведены основные аналитические и численные методы, позволяющие вычислять плотность образующихся островков и распределение их размеров. В разделе 1.3 описываются понятия, относящиеся к численному решению стохастических дифференциальных уравнений, с помощью которых в данной работе определяются статистические характеристики кластеров и формирующихся из них островков.

1.1 Экспериментальное исследование роста островков из кластеров

1.1.1 Формирование кластеров

Кластеры представляют собой систему связанных атомов, насчитывающую от десятков до тысяч атомов [14, 15]. Кластеры могут быть металлическими или неметаллическими, гомогенными или гетерогенными, нейтральными или заряженными [8]. Кластеры занимают промежуточное положение между отдельными молекулами и конденсированным состоянием вещества, поэтому их исследование представляет особый интерес.

Получить кластеры, которые в дальнейшем будут сформированы в кластерный пучок, можно несколькими различными способами. Для этого необходимо либо разрушать большие скопления атомов, либо соединять малые объекты (атомы, молекулы, кластеры) [8, 16]. Можно выделить несколько наиболее известных методов производства наночастиц:

1. Газофазный синтез. Один из наиболее простых способов получения наночастиц заключается в конденсации пара вещества в разреженной инертной атмосфере. Этим методом можно получать наночастицы как простых, так и сложных веществ. Если необходимы наночастицы соединений металлов, например оксидов, нитридов, карбидов и т.д., то в атмосферу необходимо добавить соответствующий реакционный газ. Для получения пара вещества проще всего использовать процесс испарения. Атомы вещества, перешедшие в пар, из-за столкновений с атомами инертного газа быстро теряют кинетическую энергию и образуют наночастицы. В случае соединений металла происходит также взаимодействие металла с реакционным газом. Чтобы сформировались частицы нужного размера, необходимо подбирать давление инертного газа [13]. Метод охлаждения в буферном газе можно применить практически к любым атомам [17], молекулам и их кластерам независимо от состава или совмещать со сверхзвуковым расширением, получая высокоэффективное охлаждение [18–20]. При этом охлаждаемые частицы будут испытывать множественные столкновения с низкоэнергетическими атомами буферного газа. Возможности этого метода позволяют получать охлажденные частицы в больших количествах.

2. Плазмохимический синтез. Данная технология представляет собой наиболее распространенный метод получения высокодисперсных порошков боридов, карбидов, нитридов и оксидов [13]. В этом методе используют низкотемпературную ($4000 - 10000\,\mathrm{K}$)

азотную, аммиачную, водородную, углеводородную либо аргоновую плазму, которую создают с помощью дугового, тлеющего, высоко- или сверхвысокочастотного разрядов. Характеристики получаемых порошков зависят от используемого сырья, технологии синтеза и типа реактора. Частицы таких порошков чаще всего представляют собой монокристаллы размерами от 10 до 100 – 200 нм и более. Главные недостатки плазмохимического синтеза — широкое распределение частиц по размерам (т.е. низкая селективность процесса), а также большое содержание примесей в порошке. Разновидностью плазмохимического синтеза является газофазный синтез с использованием лазерного нагрева реагирующей смеси. Конкурентоспособность этого метода обусловлена его надежностью и экономичностью. При лазерном нагреве исключено загрязнение смеси и обеспечена возможность контроля гомогенного зародышеобразования.

3. Осаждение из коллоидных растворов [21,22]. Для получения наночастиц из коллоидных растворов химическую реакцию между компонентами раствора прерывают в нужный момент времени, после чего систему переводят из жидкого (коллоидного) в твердое (дисперсное) состояние. Наночастицы можно получать также с помощью ультразвуковой обработки коллоидных растворов, содержащих крупные частицы. Осаждение из водных коллоидных растворов применяют для получения различных халькогенидов (сульфидов, селенидов, теллуридов) металлов, обладающих полупроводниковыми свойствами [13]. Основная проблема данного метода связана с необходимостью предотвращения коалесценции полученных наночастиц.

4. Пиролиз [13]. При получении нанокристаллических порошков металлов и их соединений с помощью пиролиза (термического разложения) исходными веществами обычно служат сложные элементо- и металлоорганические соединения, полимеры, гидроксиды, карбонилы, формиаты, нитраты, оксалаты, амиды, имиды, азиды металлов. Эти вещества содержат все или почти все химические элементы, которые должны присутствовать в получаемом продукте. При нагреве до определенной температуры исходные вещества разлагаются с образованием синтезируемого продукта и выделением газообразных соединений. Высокодисперсные металлические порошки синтезируют путем термического разложения различных солей. Основным недостатком термического разложения является сравнительно невысокая селективность процесса.

5. Механосинтез. Суть метода заключается в том, что кластеры производятся из твердого тела или жидкости при эрозии поверхности, когда некое воздействие приводит к

распылению, в результате чего образуются различные осколки, включая и заряженные кластеры. Основой механосинтеза является механическая обработка твёрдых смесей, в результате которой происходит измельчение веществ [22]. Недостатком механосинтеза является большая дисперсия размеров получаемых частиц. Также используется метод детонационного синтеза — это еще один вид механического воздействия, при котором одновременно создаются условия как для размельчения исходных веществ, так и для синтеза конечного продукта, — воздействие ударной волны [13,22]. Детонация взрывчатых веществ достаточно широко используется для осуществления фазовых переходов в веществах и детонационного синтеза. Детонационный синтез как быстро протекающий процесс позволяет получать тонкодисперсные порошки в динамических условиях, когда важную роль играют кинетические процессы.

В настоящее время наиболее широко используются кластерные источники первого типа, поскольку их основным достоинством является возможность получения частиц, чьи размеры распределены в узком диапазоне, а состав и заряд заранее предсказуем. Для работы таких источников необходимо получить пары вещества, из которого впоследствии будут изготовлены кластеры. Выбор конкретного метода зависит от вида кластеров, которые необходимо получить [8]. Перечислим наиболее известные методы получения паров веществ для производства кластеров:

– Лазерная абляция. Интенсивный лазерный пучок фокусируется на поверхности, вследствие чего происходит нагрев некоторой области поверхности до высокой температуры. В процессе лазерной абляции образцов со сложным составом происходит образование побочных продуктов, которые состоят из молекул испаряемого вещества, их осколков, а так же молекулярных и атомарных ионов, которые участвуют в дальнейшем процессе охлаждения.

– Нагревание в печи или тигле. Интенсивность потока испаряемого вещества можно регулировать температурой тигля. К этой же группе методов можно отнести простые термические источники, представляющие собой открытые нагреватели без изолирующих экранов [23].

– Электродуговой разряд. При электродуговом испарении в вакууме помимо паров металла в состав продуктов эрозии катода входят капельная фракция и ионизированные частицы. Капельная фракция определяется свойствами материала катода и плотностью тока дуги разряда, что является серьезным недостатком метода.

– Магнетронный разряд. Действие магнетронной системы основано на распылении катода при его бомбардировке ионами рабочего газа, которые образуются в плазме аномального тлеющего разряда в скрещенных магнитных и электрических полях. При этом возникает вторичная электронная эмиссия, поддерживающая горение разряда. Магнетронное распыление на постоянном токе дает возможность получать пары из любых металлов, сплавов и полупроводниковых материалов, а использование высокочастотного разряда реализует возможность распыления диэлектрических материалов. Метод является сложным и дорогостоящим в применении.

– Электронно-лучевое испарение. Испарительные устройства, основанные на электронно-лучевом способе нагрева, направляют поток электронов на поверхность металла, сплава или какого-либо соединения, помещенного в тигель. Вещество быстро нагревается до температуры плавления и испаряется. При этом могут быть реализованы достаточно высокие скорости испарения различных материалов, в том числе и тугоплавких. Недостатками метода являются низкая производительность и возможность возникновения рентгеновского излучения, что может приводить к появлению радиационных дефектов [24].

После получения атомного пара или плазмы необходимо быстро уменьшить температуру в камере, чтобы инициировать формирование и рост кластеров. Стадию уменьшения температуры необходимо резко прервать в определенный момент, чтобы кластеры не превратились в макроскопические частицы. Для охлаждения пара используются два физических механизма: охлаждение, достигаемое путем его расширения, и охлаждение за счет столкновения атомов пара с холодным инертным газом.

Производить кластеры предпочтительно в виде кластерных пучков, так как кластерные пучки легко транспортировать, разделять и наносить на подложку. Формирование кластерных пучков осуществляется различными методами, выбор которых определяется конечными целями и зависит от требуемой интенсивности кластерного пучка, его энергии, распределения кластеров в пучке по типу и размеру, наличия ионизации и так далее. Источники кластерного пучка могут совмещать в себе различные методы получения кластеров. Их свойства могут меняться коренным образом при изменении параметров, влияющих на механизмы кластерообразования, в том числе и при изменении способов получения рабочего вещества, участвующего в процессе конденсации. Учитывая перечисленные выше методы получения атомного пара и его охлаждения, все кластерные источники можно условно разделить на три вида по способам получения кластеров:

– Источники поверхностного типа, основанные на воздействии на поверхность мишени, приводящем к ее разрушению. В качестве примера можно привести распылительный источник, в котором пучки кластерных ионов получают, бомбардируя поверхность мишени тяжелыми ионами с высокой энергией. Взаимодействие высокоэнергичных ионов с мишенью приводит к отрыву от поверхности атомов, ионов, молекул, нейтральных и заряженных кластеров. Этот метод позволяет создавать кластеры небольших размеров, так как интенсивность кластерных потоков экспоненциально уменьшается с увеличением размера кластера. Полученные таким образом кластеры имеют достаточно высокую температуру, сравнимую с температурой распыления мишени, и остывают в полете при распаде. Выбитые с поверхности мишени частицы характеризуются большим разбросом по энергиям, что препятствует мягкому осаждению кластерных ионов на подложку.

– Источники, работающие по принципу конденсации пара в охлажденном буферном газе. Работа таких источников основана на испарении рабочего вещества в объем с холодным инертным газом. Пар охлаждается за счет столкновений с атомами газа, становится пересыщенным и конденсируется в кластеры. Поток инертного газа захватывает кластеры, и через сопло они попадают в высоковакуумную область. В отличие от сверхзвуковых источников, формирование кластеров происходит перед расширением в высокий вакуум. Многократные столкновения кластеров с атомами инертного газа в объеме источника приводят к тому, что энергетическое распределение частиц в пучке зависит от размера кластера. Размер кластеров может меняться в широких пределах и достигать 10^5 атомов.

– Сверхзвуковые источники. Вещество (как правило, металл) испаряется в камеру, через которую проходит поток с газом-носителем. В результате сверхзвукового расширения из сопла происходит быстрое охлаждение смеси. Уменьшение температуры пучка приводит к возникновению возможности его конденсации и кластерообразованию. Если бы в вакуум расширялся только металлический пар, полученные кластеры имели размер в несколько атомов, поэтому с металлическим паром смешивают инертный газ, подающийся в камеру печи под давлением в несколько атмосфер. При расширении инертный газ будет быстро охлаждаться сам и охлаждать металлический пар. Полученные кластеры обычно содержат несколько сотен атомов и имеют небольшой разброс скоростей.

Разделяя методы осаждения кластеров по принципу величины энергии образованных кластеров, можно выделить две основные группы технологий [20]:

1. Осаждение пучка высокоэнергетичных кластеров (ОПВК). Пучок ускоренных (энергия $\sim 10^3$ эВ) кластеров направляется на подложку. В зависимости от конкретного метода кластеры могут быть как нейтральными, так и ионизованными. Кластеры разрушаются при соприкосновении с подложкой, и их кинетическая энергия передается адатомам. Это позволяет достичь эпитаксии при низкой температуре подложки, что предпочтительно для случаев, когда, к примеру, диффузия нежелательна. Также было показано [25], что при осаждении кластеров с энергией 0,1 эВ/атом полученную на подложке пленку легко стереть, но этого можно избежать, ускоряя кластеры перед осаждением до энергий порядка 10 эВ/атом. При использовании данного метода при столкновении с подложкой кластеры могут повредить ее или разрушиться сами, что нежелательно для многих приложений.

2. Осаждение пучка низкоэнергетичных кластеров (ОПНК) [18, 20, 26]. Здесь, напротив, кластеры нейтральны, и их энергия в момент соприкосновения с подложкой невелика. Данная технология подразумевает, что энергия, с которой кластеры выходят из сопла камеры, мала (5 мэВ/атом [27]). Нейтральные кластеры осаждаются на подложку, расположенную в камере, где поддерживается сверхвысокий вакуум ($\sim 10^{-10}$ торр). Скорость осаждения относительно высока и лежит в диапазоне от 0,1 нм/мин до 0,1 нм/с. Из-за того, что энергия кластера в момент соприкосновения с подложкой невелика, кластер не разрушается при осаждении и не повреждает подложку.

Выбор оптимального механизма из перечисленных в разделе способов получения кластерного потока производился таким образом, чтобы полученный пучок можно было использовать в технологии ОПНК. Выбор производился на основании следующих условий [20]:

1. для роста тонких пленок необходим поток кластеров большой интенсивности (иначе говоря, в единицу времени на подложку должно попадать большое количество кластеров);

2. метод должен позволять использовать различные химические элементы в составе мишени;

3. необходимо иметь возможность в различных приложениях получать кластеры разной массы, поскольку структура и свойства пленок сильно зависят от исходного размера кластера; при этом дисперсия размеров кластеров должна быть как можно меньше;

4. важна стабильность источника кластеров, поскольку время осаждения кластеров может достигать нескольких часов;

5. желательно, чтобы кластеры не содержали примесей.

В дальнейшем речь будет идти о технологии ОПНК. Выбор конкретного источника кластеров зависит от исходного вещества: к примеру, в работе [28] показано, что для получения потока кластеров Au используется лазерное испарение, в то время как для производства кластеров In был применен тепловой источник.

Преимущества метода ОПНК заключаются в следующем:

– он позволяет оптимизировать контроль размера структур и их положения на подложке;

– с помощью данного метода можно эффективно управлять размером и структурой производимых кластеров; к примеру, увеличение давления инертного газа, подаваемого в камеру с испаренными атомами мишени, приводит к уменьшению размера кластеров [20, 29];

– метод обладает высокой эффективностью, проявляющейся в большой скорости роста [30];

– получаемые кластеры являются очень чистыми; также за счет того, что осаждение проводится в изолированной камере с высоким вакуумом, получаемые островки не загрязняются примесями.

Технология получения кластерного пучка, для осуществления которой комбинируется лазерное испарение атомов с образца и конденсация с помощью инертного газа, позволяет изготавливать не только чистые кластеры, состоящие из атомов одного металла, но и биметаллические кластеры. Также можно управлять размерами получаемых наночастиц.

На рисунке 1.2 представлен пример экспериментальной установки, позволяющая реализовывать метод ОПНК [18]. Кластеры формируются предварительно, перед осаждением на подложку. В камеру помещается металлическая мишень, испаряемая Nd:YAG лазером ($\lambda = 532$ нм, длительность импульса — около 10 нс, частота 10 Гц) или Ti:Sapphire лазером

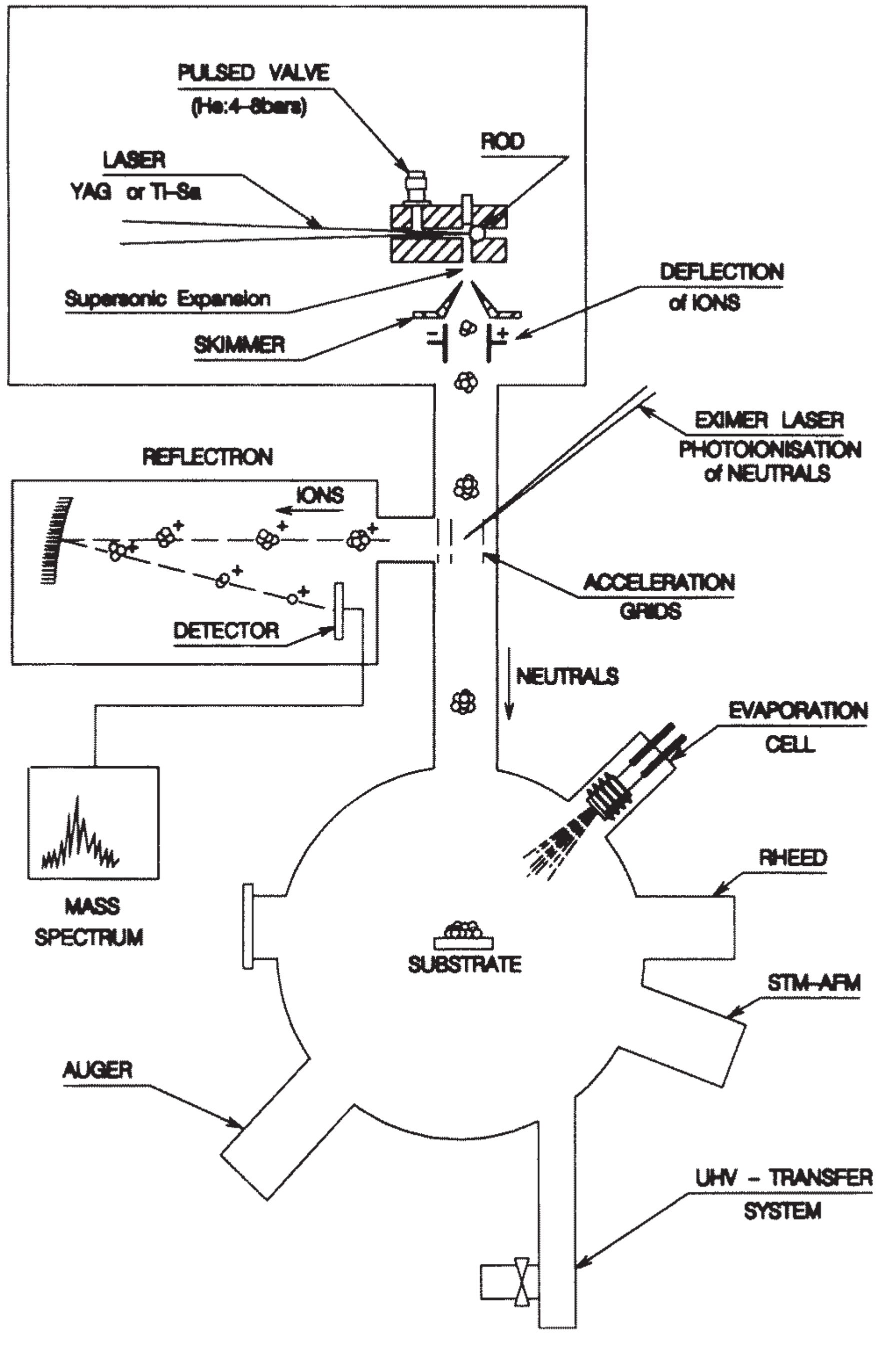

Рис. 1.2. Схема установки по производству и напылению кластеров [18].

с накачкой импульсной лампой (к примеру, в работе [31] характеристики лазера были следующие: $\lambda = 790$ нм, энергия до 400 мДж, длительность импульса 3 мкс, частоту можно было перестраивать в диапазоне от 0 до 20 Гц). Следует заметить, что использование Ti:Sapphire лазера позволило получить потоки кластеров большой интенсивности (поток кластеров оказался в 30 раз сильнее, чем в эксперименте с Nd:YAG лазером), также в этих пучках средний размер кластеров был больше (образовывались кластеры, состоящие из 1000 и более атомов). Одновременно с лазерными импульсами в камеру подается охлажденный газ под высоким давлением (для получения небольших кластеров используется He, от 3 до 6 бар, длительность от 200 до 500 мкс; для производства кластеров размером от 100 до 500 атомов используется Ar [29]). Газ быстро охлаждает плазму, образовавшуюся на поверхности мишени, и способствует образованию кластеров, которые впоследствии стабилизируются при ультразвуковом расширении в выходной диафрагме. Скорость охлаждения превышает 10^8 K/c [32]. Технология позволяет при необходимость вводить в экспериментальную установку время-пролётный масс-анализатор, который устанавливается вблизи сопла и применяется для анализа распределения размеров кластеров. Данное распределение зависит от параметров установки: частоты и длительности лазерных импульсов, периодичности введения газа в камеру и его давления, синхронизации между импульсами лазера и газа, геометрии сопла. Для анализа в масс-анализаторе нейтральные кластеры ионизируются, после чего отклоняются от потока нейтральных кластеров и ускоряются на входе в масс-анализатор.

Говоря о процессе формирования кластеров, следует отметить, что он может быть гетерогенным или гомогенным [8,33]. Гетерогенное формирование происходит на частицах примесей, а гомогенное — в однородном веществе. Теория, описывающая формирование кластеров, основывается на предположении, что зарождающиеся кластеры могут быть описаны моделью жидкой капли. Во время возникновения кластеров происходит два процесса. Один из них энергетически выгодный и связан с энергией, выделяемой при переходе в новую фазу во время образования жидкости из пара. Второй является энергетически невыгодным и связан с формированием поверхности раздела между двумя фазами. Для кластера, содержащего n_{cl} атомов, энергия межфазного взаимодействия равна

$$\sigma A(n_{cl}) = 4\pi\sigma(3\nu/4\pi)^{2/3} n_{cl}^{2/3}, \tag{1.1}$$

где σ — поверхностное натяжение на границе раздела, приходящееся на единицу площади, $A(n_{cl})$ — площадь поверхности кластера, ν — объем, приходящийся на одну молекулу жидкости, которой моделируется кластер [33].

Поскольку при формировании кластера n_{cl} атомов уходят из газа, объемный вклад в свободную энергию формирования кластера составляет $n_{cl}(\mu_l - \mu_\nu)$, где μ_l и μ_ν — химические потенциалы, приходящиеся на одну молекулу жидкости и пара соответственно. Сумма этого вклада и вклада из уравнения (1.1) представляет собой обратную работу $W(n_{cl})$, осуществленную при формировании кластера, содержащего n_{cl} атомов. Выражение для этой работы имеет вид

$$W(n_{cl}) = -n_{cl} k_B T \ln S + 4\pi\sigma(3\nu/4\pi)^{2/3} n_{cl}^{2/3}, \tag{1.2}$$

где T — температура, S — пересыщение. Мерой пересыщения служит отношение давления пара к давлению насыщенного пара, находящегося в равновесии с жидкой фазой.

Конкуренция между слагаемыми для объемной и поверхностной энергии определяет стабильность кластера и концентрацию кластеров в перенасыщенном паре. Наименьший размер кластера определяется из условия $\partial W/\partial n_{cl} = 0$.

1.1.2 Этапы формирования островка из кластеров

Осаждая заранее сформированные кластеры на подложку, можно получать наноструктуры двух типов:

- в режиме, когда количества осажденных кластеров недостаточно для формирования одного монослоя (субмонослойный режим), получаются островки, не объединенные между собой. При определенных условиях можно управлять их положением на подложке;

- в режиме, когда на подложку осаждается существенно бóльшее число кластеров, происходит формирование пленок с кластерной структурой.

В данной работе рассматривается режим, в котором количество осаждаемых кластеров недостаточно для формирования монослоя, и, таким образом, создаются условия для формирования отдельных островков.

В процессе формирования наноостровков на подложке можно выделить следующие стадии [32]:

- Осаждение кластеров на подложку. Данный этап характеризуется потоком осаждаемых кластеров J, т.е. числом кластеров, осаждаемых на единицу площади подложки в единицу времени. Обычно поток постоянный, но в ряде случаев использование импульсного напыления оказывается более эффективным [34].

- Диффузия осажденных кластеров по поверхности подложки. При этом движение кластеров — броуновское. Данный этап характеризуется коэффициентом диффузии кластеров по подложке D.

- Объединение двух оказавшихся рядом кластеров в островок. Помимо соединения кластеров в наноостровки с сохранением структуры первоначальных кластеров, в экспериментах также наблюдалось слияние кластеров в единую структуру, в которой невозможно различить отдельные кластеры. Энергетический барьер, препятствующий слияню кластеров, увеличивается с размеров кластера [33]. Форма получаемых островков может варьироваться от компактной до дендритной структуры [35, 36].

Иногда в этот список включают испарение кластеров с подложки, однако оно оказывает влияние на процесс роста островков только при высоких температурах [37].

Диффундируя по подложке, кластеры могут захватываться естественными или созданными искусственно дефектами подложки, после чего захваченный кластер становится зародышем нового островка. Такой механизм формирования островков называется гетерогенным. Также существует гомогенный механизм, реализующийся в случае, если кластеры осаждаются на подложку без дефектов. В этом случае кластеры будут диффундировать по подложке до тех пор, пока не встретят другие кластеры и не сформируют зародыш островка. Свойства полученной пленки из кластеров, а именно, поверхностная плотность кластеров и островков определяются конкуренцией между гетерогенным и гомогенным механизмом роста.

Механизм чисто гетерогенного роста реализуется, если характерное расстояние между дефектами существенно меньше, чем характерное расстояние между островками при гомогенном росте на чистой подложке. В этом случае формирование островков происходит преимущественно на дефектах подложки. Таким образом, можно получить организованный необходимым образом массив островков на подложке, предварительно нанеся дефекты на подложку.

Как было сказано выше, кластеры диффундируют по подложке. При определенных условиях подвижностью обладают и небольшие островки, состоящие из нескольких кластеров. Рассмотрим подробнее различные механизмы диффузии. Рассмотрение начинается с атомных механизмов диффузии, поскольку на них основываются механизмы диффузии кластеров и островков.

Атомные механизмы диффузии

Поверхностная диффузия может протекать за счет различных атомных механизмов [23]. В литературе выделяются следующие механизмы: прыжковый, атомного обмена (механизм обмена местами), туннелирования, вакансионный.

Прыжковый механизм — это диффузионный механизм, элементарным актом которого является термически активированный перескок из одного равновесного положения в другое. Эффект можно наблюдать визуально, например, в работе [38] был показан факт наличия таких перескоков для адатомов азота на поверхности Fe(100).

Механизм атомного обмена включает в себя обмен местами адатома и атома поверхности. Адатом замещает атом подложки, а высвободившийся атом подложки переходит в соседнее положение адатома. С помощью такого механизма, к примеру, реализуется самодиффузия на поверхностях (110) и (100) металлов Pt и Ir [39]. Если адатомом является чужеродный атом, то атомный обмен приведет к тому, что в результате адатомом станет атом подложки. В работе [40] подобный эффект был исследован экспериментально для адатома вольфрама на поверхности Ir(110).

Миграция частицы может происходить за счет туннелирования через диффузионный барьер. При достаточно низких температурах механизм туннелирования может доминировать над классическим прыжковым механизмом. В работе [41] в эксперименте была продемонстрирована диффузия одиночных атомов водорода на Cu(100). При температурах выше 60 K преобладала классическая прыжковая диффузия, а при более низких температурах миграция осуществлялась по механизму квантового туннелирования [23].

Вакансионный механизм проявляется, если миграция атомов происходит внутри заполненного атомного поверхностного слоя — в таком случае движение атома управляется образованием и миграцией вакансий. Движение вакансий наблюдалось в работе [42], где вакансия была создана искусственно с помощью иглы СТМ на поверхности Ge(111). Гетеродиффузия, основанная на таком же принципе, наблюдалась для атомов In и Pd, встроенных в верхний атомный слой поверхности Cu(100) [43, 44].

Поверхностная диффузия кластеров

Движение кластера может происходить различными способами, которые можно разделить на два основных типа: индивидуальные механизмы, основанные на движении одиночных атомов, и коллективные механизмы, включающие в себя одновременное перемещение группы атомов [23].

Индивидуальные механизмы движения кластера представлены на рисунке 1.3. Здесь показаны следующие механизмы:

– механизм последовательных перемещений, т.е. движение отдельных атомов один за другим;

– механизм краевой или периферийной диффузии, в котором перемещение краевых адатомов, вакансий или изломов вдоль края кластера вызывает перемещение центра масс кластера;

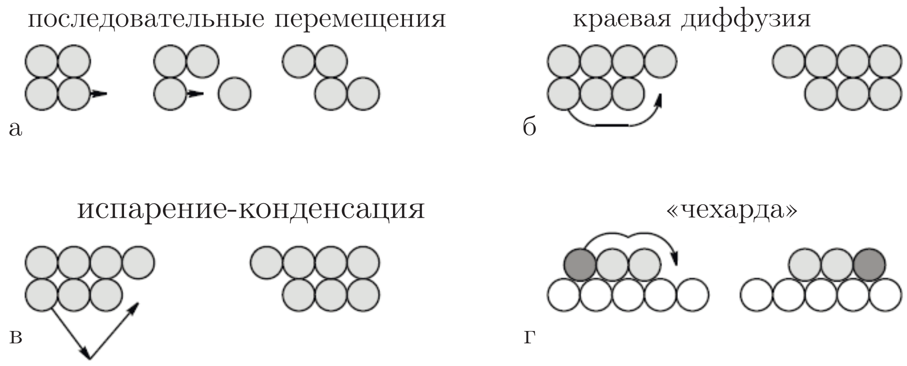

Рис. 1.3. Индивидуальные механизмы движения кластеров: а — последовательных перемещений, б — краевой диффузии, в — испарения-конденсации, г — «чехарды». Каждый рисунок иллюстрирует начальную и конечную стадии элементарного процесса. На рисунках а, б, в показан вид сверху, на рисунке г — вид сбоку [23].

– механизм испарения-конденсации, который описывает диффузию кластера за счет обмена атомов между кластером и двумерным газом адатомов; данный механизм может реализовываться как для одного атома (механизм скоррелированного испарения-конденсации или механизм «отделения-присоединения», так и для двух разных атомов, когда один атом покидает кластер, а другой присоединяется к этому же кластеру [45].

– механизм «чехарды», в котором один из краевых атомов проходит поверх кластера и встраивается с противоположной стороны.

Согласованные коллективные механизмы движения кластеров описывают ситуацию, когда перемещение кластера происходит за счет одновременного скоррелированного перемещения, по крайней мере, нескольких атомов кластера. В качестве примера можно привести следующие механизмы (рисунок 1.4):

– механизм скольжения, который относится к случаю, когда кластер скользит как целое;

– механизм сдвига, в котором группа атомов (например, один ряд) в кластере совершает согласованное движение [46];

– механизм переползания, когда происходит последовательный сдвиг соседних участков кластера, что приводит к змееподобному скользящему движению;

– дислокационный механизм, относящийся к случаю, когда два соседних участка кластера образуют дефект упаковки и разделены дислокацией несоответствия. Движение одного атомного ряда за другим этой дислокации устраняет дефект упаковки и приводит

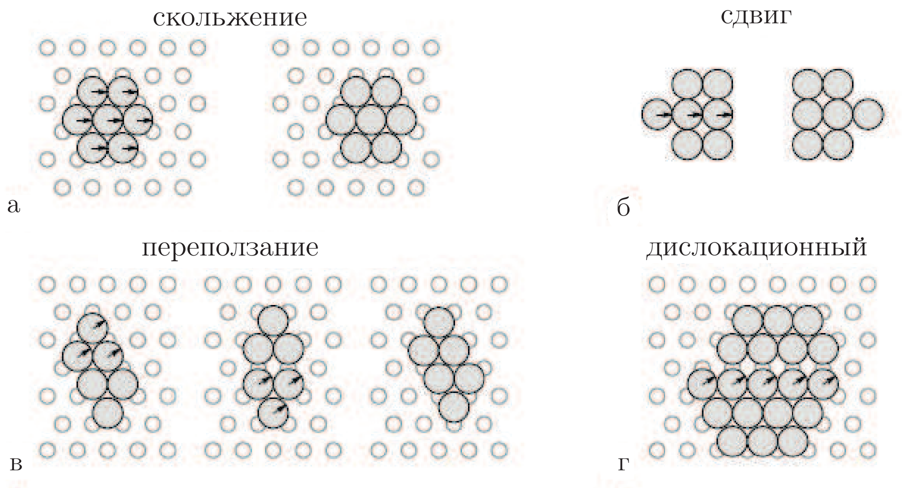

Рис. 1.4. Согласованные коллективные механизмы движения кластеров: а — скольжения, б — сдвига, в — переползания, г — дислокационный [23].

к смещению центра масс кластера. Диффузия такого кластера на большие расстояния происходит за счет зарождения и движения дислокаций несоответствия.

О конкретном механизме диффузии в той или иной задаче можно судить по косвенным данным, таким, как величина активационного барьера, зависимость подвижности от размера кластера, изменение формы кластера в процессе диффузии.

Следует отметить, что то, какие механизмы диффузии отвечают за движение кластеров по подложке в конкретном эксперименте, зависит от химического состава кластеров и подложки. К примеру, в работе [47] рассматривается движение кластеров золота по графитовой подложке, и диффузия в этом случае характеризуется механизмом скольжения [48].

Поверхностная диффузия небольших островков

В работе [49] было показано, что движение дислокаций может вызывать быструю диффузию небольших (от 5 до 15 атомов) гомоэпитаксиальных островков на ГЦК(111) поверхностях. В этой же работе были описаны два механизма диффузии. Первый заключается в том, что атомный ряд движется благодаря последовательным скоррелированным атомным движениям. Второй механизм предполагал, что все атомы островка двигаются одновременно. Моделирование методом молекулярной динамики (МД), а также простейшие теоретические расчеты показали, что для самых маленьких островков (число кластеров в островке $N < 20$) более вероятным является второй механизм, а для самых крупных ($N > 100$) — первый.

1.1.3 Специфические свойства графитовой подложки

Графит является термодинамически стабильной аллотропной модификацией углерода [50]. Атом углерода имеет три равноценные $\sigma_{x,y}$-связи, расположенные в одной плоскости под углом 120° друг к другу. Не участвующая в гибридизации p_z-орбиталь, расположенная перпендикулярно плоскости σ-связей, используется для образования π-связи с другими атомами.

В графите каждый атом углерода ковалентно связан с тремя другими окружающими его атомами углерода. Различают гексагональную и ромбоэдрическую модификации графита, которые различаются упаковкой слоев. У гексагонального графита половина атомов каждого слоя располагается над и под центрами шестиугольника (мотив ABABABA. . . , рисунок 1.5), в то время как у ромбоэдрического каждый четвёртый слой повторяет первый.

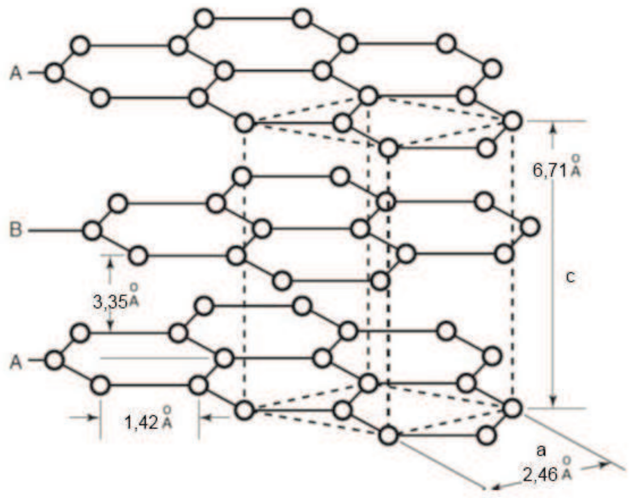

Рис. 1.5. Кристаллографическая решётка гексагонального графита [51].

Отдельные слои графита параллельны друг другу и связаны между собой Ван-дер-Ваальсовыми силами, образуя кристаллиты (кристаллические зерна). Кристаллиты — это параллельные, ориентированные относительно нормали к ним пачки из гексагональных плоскостей [52]. Кристаллиты связаны между собой нескомпенсированными валентностями угловых атомов. Как правило, в графите отдельные кристаллиты не упорядочены. Также в графите (особенно натуральном) наблюдается большое количество дефектов и включений. Существует ряд технологий, позволяющих создавать более приближенные к идеальным графитовые образцы; среди них самым распространенным и эффективным является пиролиз. При температуре выше 1600 – 1700°C структура углеродного материала начинает перестраиваться: базисные плоскости упорядочиваются, а межплоскостное расстояние уменьшается.

Выше примерно 2000°C происходит образование трехмерно-упорядоченной структуры кристаллитов, сопровождаемое резким ростом их высоты и диаметра (рисунок 1.6).

Пиролитический графит — это материал, отличающийся высокой степенью предпочтительной кристаллической ориентации, наблюдаемой в агрегатах кристаллитов. Он может быть получен двумя путями: карбонизацией (пиролитическим разложением углеродсодержащих материалов в конденсированной фазе) или осаждением углерода (гомогенным или гетерогенным разложением углеводородных газов) [52].

Высокоориентированный пиролитический графит (ВОПГ) — это высокоориентированная форма пиролитического графита. ВОПГ производится путем отжига пиролитического графита при температуре около 3300°C при приложении напряжения сжатия. ВОПГ в направлении, перпендикулярном слоям, похож на монокристалл, поскольку все слои регулярно уложены и практически параллельны друг другу. Сами слои не являются сплошными, а состоят из кристаллитов диаметрами от 2 до 10 мкм, повернутых относительно друг друга на различные углы. Межзеренные границы в этих структурах, как правило, неразличимы при использовании атомно-силового микроскопа, так как связанный с ними рельеф очень мал. Однако электронная плотность вблизи границ возрастает, поэтому они легко обнаруживаются методами сканирующей туннельной микроскопии и сканирующей резистивной микроскопии.

Образцы ВОПГ классифицируются по параметру мозаичности. Чем меньше угол мозаичности, тем более упорядочены слои в графите [53] и тем меньше высота ступеней скола. Исследования с помощью сканирующего зондового микроскопа на образцах с мозаичностью 0,4° и 0,8° показали, что для них длина ступеней скола на площади в 1 мкм^2 находится в пределах 1–3 мкм$^{-1}$ (определяется протяженностью, отнесенной к единице площади). Однако для образцов с мозаичностью 0,8° возрастает доля многослойных ступеней скола. Таким образом, чем меньше мозаичность, тем более гладкие сколы образуются.

ВОПГ занимает особое место среди углеродных материалов. По своим свойствам он близок к монокристаллическому графиту. Наряду с известными его применениями в качестве высококачественных монохроматоров рентгеновского излучения и эталонов атомно-гладкой поверхности для зондовой микроскопии, ВОПГ часто используют в качестве наиболее анизотропного и слоистого углеродного материала при синтезе и исследовании ионно-индуцированных наноструктур и модифицировании физико-химических свойств поверхности.

ВОПГ ведёт себя как очень чистый металл; он хорошо отражает свет и является хорошим проводником электричества, но очень ломкий. ВОПГ часто используется в качестве подложки в микроскопических исследованиях. ВОПГ также используется в качестве эталона длины нанометрового диапазона для калибровки сканеров сканирующего туннельного микроскопа и атомно-силового микроскопа. ВОПГ является материалом для изготовления графена методом механического отслоения.

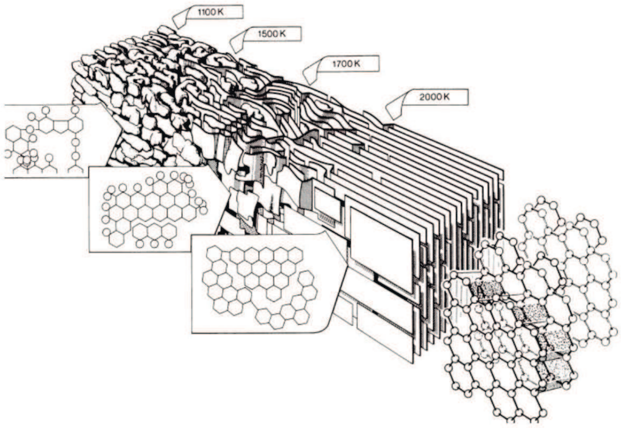

Рис. 1.6. Схема изменений мезоструктуры графита в процессе термической обработки (Properties and Characteristics of Graphite for Industrial Applications // POCO Graphite, Inc.1987 (www.poco.com)).

Важным свойством ВОПГ является аномально высокая диффузия кластеров металлов на подложках из ВОПГ [27, 54, 55]. Например, было обнаружено, что для кластеров Sb_{2300} на ВОПГ коэффициент диффузии аномально велик ($D = 10^{-8}$ см^{2}с$^{-1}$ при комнатной температуре), аналогичные результаты были получены для кластеров Ag_{500} [56]. Подробнее такие примеры будут рассмотрены в следующем подразделе.

1.1.4 Примеры полученных в экспериментах островков

В данном разделе приведены результаты нескольких экспериментов, в которых осуществлялся рост островков из кластеров на подложке из ВОПГ. В зависимости от химических свойств кластеров, подложки и окружающей ее среды [57] получающиеся островки могут быть компактными (1.7 а) или иметь дендритную структуру (1.7 б).

Для островков, сформированных из нейтральных кластеров платины методом ОПНК, в эксперименте было показано, что между двумя соседними кластерами сохраняется некоторое расстояние. В случае кластеров диаметром 2.2 нм и дисперсией размеров $\sim 10\%$ это расстояние составляло 3.4 нм [58] (см. рисунок 1.8). Также в этом случае наблюдалась диффузия вдоль границы островка, не замеченная в экспериментах с нейтральными отобранными по массе кластерами из других металлов (Au, Sb, Ag). Наличие диффузии вдоль границы и слабый контакт между соседними кластерами приводит к формированию компактных островков.

В эксперименте [59] обнаружена высокая мобильность кластеров Sb_{2300} на ВОПГ. Найденный коэффициент диффузии имеет порядок, сравнимый с величинами, получаемыми для движения атомов, а именно, 10^{-8} см^{2}с$^{-1}$ при комнатной температуре. Вдобавок, множитель D_0 уравнения Аррениуса $D = D_0 \exp(-E_a/kT)$ также велик: $D_0 = 10^4$ см^{2}с$^{-1}$.

При анализе изображения, приведенного на рисунке 1.9, было сделано два важных вывода. Во-первых, кластеры действительно не разрушаются при осаждении на подложку, как и предполагалось в описании метода ОПНК. Во-вторых, кластеры сурьмы примыкают друг к другу, образуя островок, но не сливаются в более крупные структуры. Было также показано, что в данном эксперименте испарением кластеров можно пренебречь и рассматривать рост островков как комбинацию осаждения, диффузии и примыкания друг к другу кластеров.

Еще один пример роста наноструктур из кластеров Sb_{2300} на ВОПГ был продемонстрирован в работе [27] . В данной работе рассматривалось изменение строения островка в зависимости от толщины получаемой пленки (рисунок 1.10), а также был проведен эксперимент по выращиванию островков при разной температуре подложки (рисунок 1.11). Было показано, что при уменьшении потока уменьшается поверхностная плотность островков, в то время как их ветвистость возрастает. Из этого факта были сделаны следующие выводы:

– осаждение, диффузия и присоединение кластеров сурьмы происходит одновременно;

– влияние наличия центров зарождения островков на графитовой подложке пренебрежимо мало (в отличие от случая, когда кластеры сурьмы осаждаются, например, на

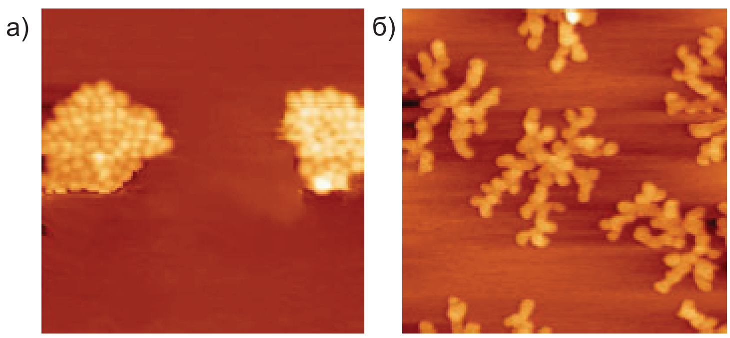

Рис. 1.7. Наноостровки, полученные при одинаковых условиях из кластеров платины (а) и кластеров золота (б) [57].

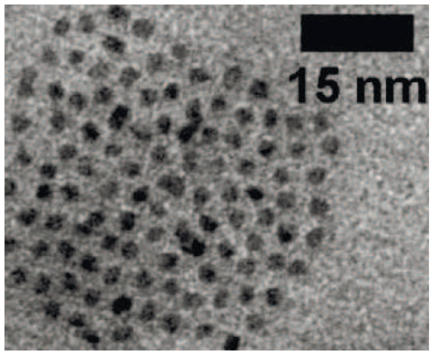

Рис. 1.8. Наноостровок из кластеров платины [58].

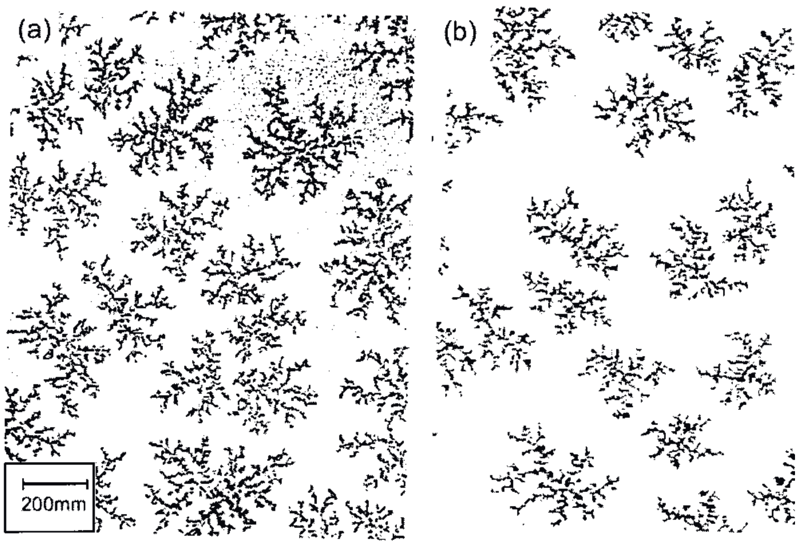

Рис. 1.9. Типичная структура островка, полученного в эксперименте (a) и компьютерным моделированием при тех же параметрах (b) [59].

аморфные поверхности, где центры зарождения играют роль ловушек для осаждаемых частиц, препятствуя их диффузии).

В работе [27] приводится также результат эксперимента по осаждению на графит кластеров Au_{250} (рисунок 1.12). Видно, что островки, сформированные из кластеров золота, имеют дендритную структуру; кластеры золота, как и кластеры сурьмы, не сливаются при контакте. Множитель D_0 уравнения Аррениуса $D = D_0 \exp(-E_a/kT)$ для кластеров золота составил $D_0 = 10^3$ см^2 с$^{-1}$.

В работе [56] рассматривался рост островков из кластеров Ag_{500} (рисунок 1.13). Хорошо видно, что наибольшее число островков расположено вдоль дефектов ВОПГ. На приведенных в нижней части рисунка 1.13 увеличенных изображениях подложки с островками можно видеть, как отличается поверхностная плотность, форма и размеры островков в разных областях подложки из ВОПГ. Учитывая, что поверхность ВОПГ состоит из чешуек, которые могут иметь различную кристаллографическую ориентацию, а также тот факт, что поток осаждаемых кластеров был одинаковым во всех рассматриваемых областях подложки, авторы объясняют приведенные выше отличия тем, что присутствует связь между подвижностью кластера и кристаллографической ориентацией поверхности ВОПГ. При этом различия между подвижностью кластеров для двух соседних чешуек могут быть настолько велики, что характер формирования островков на одной чешуйке может быть гетерогенным, а на соседней — гомогенным (рисунок 1.13, области a и b).

1.1.5 Применение островков

Отличие свойств малых частиц от свойств массивного материала известно уже достаточно давно и используется в разных областях техники. Примерами могут служить широко применяемые аэрозоли, красящие пигменты, получение цветных стекол благодаря окрашиванию их коллоидными частицами металлов. Суспензии металлических наночастиц (обычно железа или его сплавов) размером от 30 нм до 1–2 мкм используются как присадки к моторным маслам для восстановления изношенных деталей автомобильных и других двигателей непосредственно в процессе работы [22].

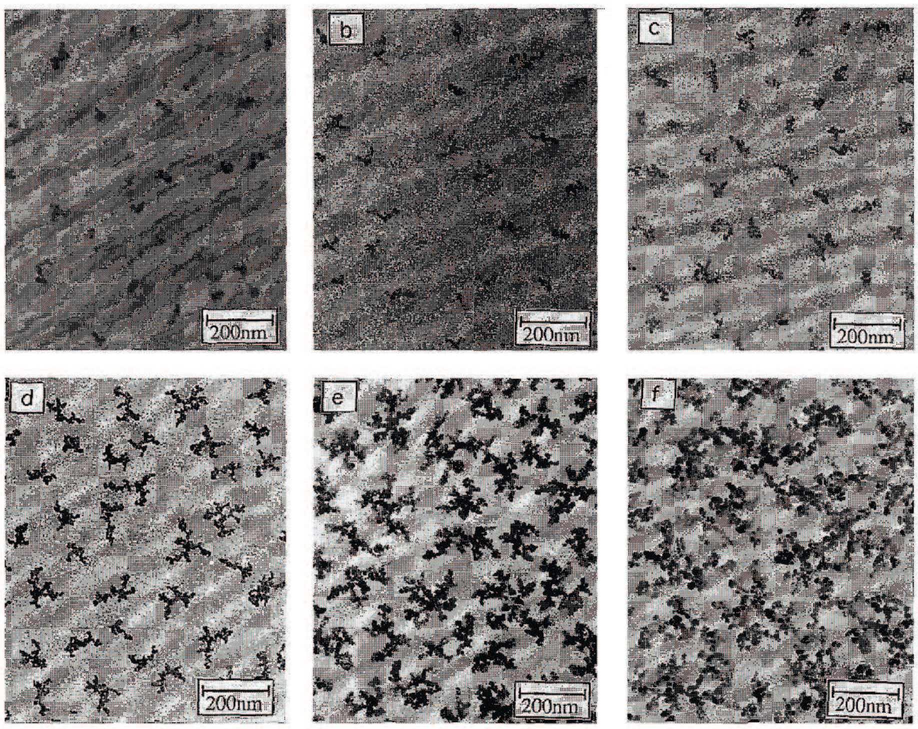

Рис. 1.10. Различия в строении островков в зависимости от толщины получаемой пленки: 0,1 нм (a), 0,2 нм (b), 0,4 нм (c), 0,5 нм (d), 1,5 нм (e), 3 нм (f). Изображения получены при комнатной температуре при одинаковом потоке [27].

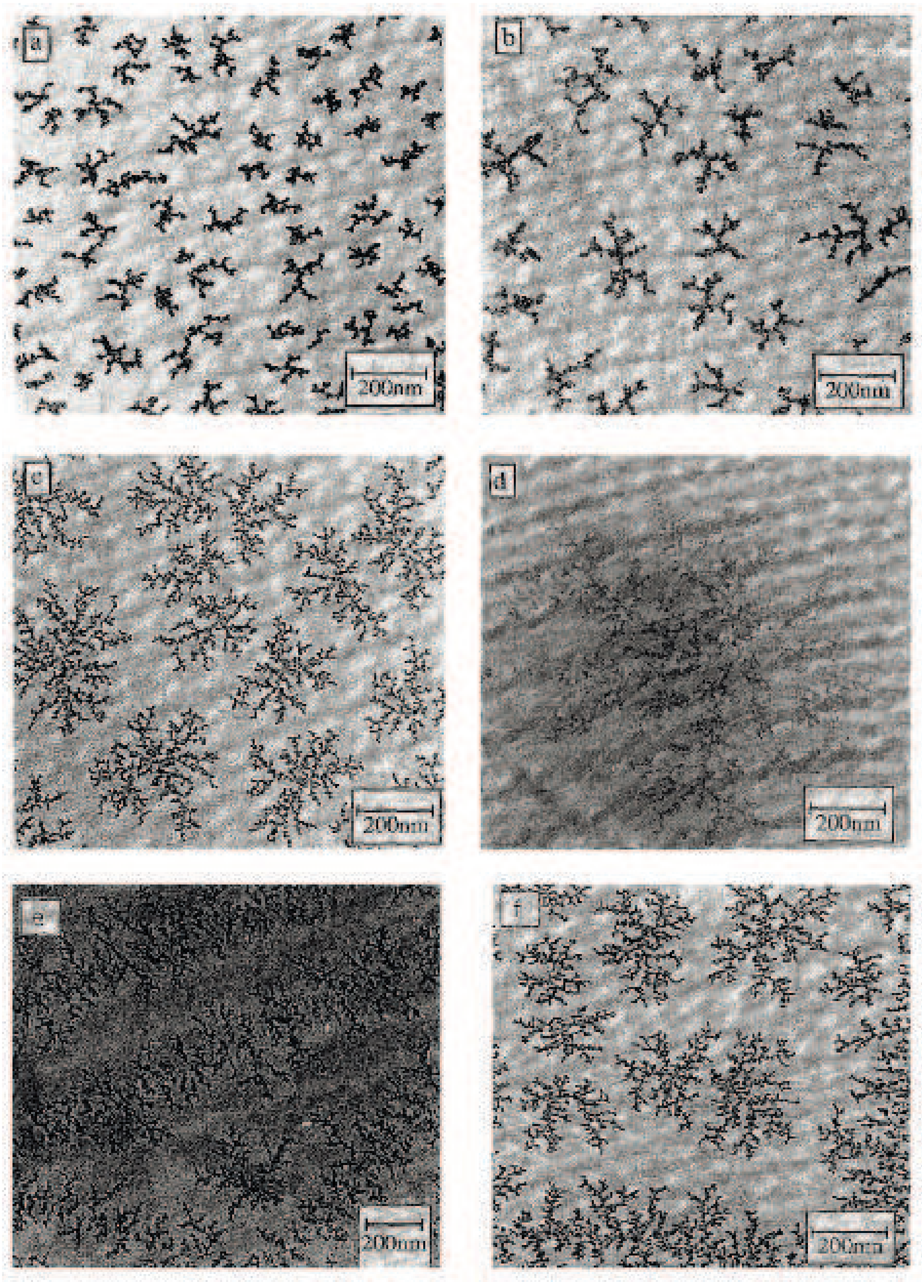

Рис. 1.11. Тонкие пленки толщиной 0,5 нм, полученные при постоянном потоке кластеров и различной температуре подложки: 300 K (a), 320 K (b), 353 K (c), 413 K (d), 353 K, причем островок расположен в небольшой области подложки, окруженной со всех сторон графитовыми ступеньками (e), 353 K, причем графитовый образец был отклонен во время осаждения кластеров на угол 30° от его обычного положения, т.е. перпендикулярно оси пучка кластеров (f) [27].

При использовании технологии ОПНК возможно, ограничивая процесс слияние кластеров, сохранять размеры и исходные свойства кластеров, что необходимо, в частности, для производства пленок с заданными свойствами. Устройства, в которых используются кластеры, находят применение во многих областях, к примеру, в нанооптике, наноэлектронике, нанобиологии, при этом необходима технология, позволяющая формировать массивы

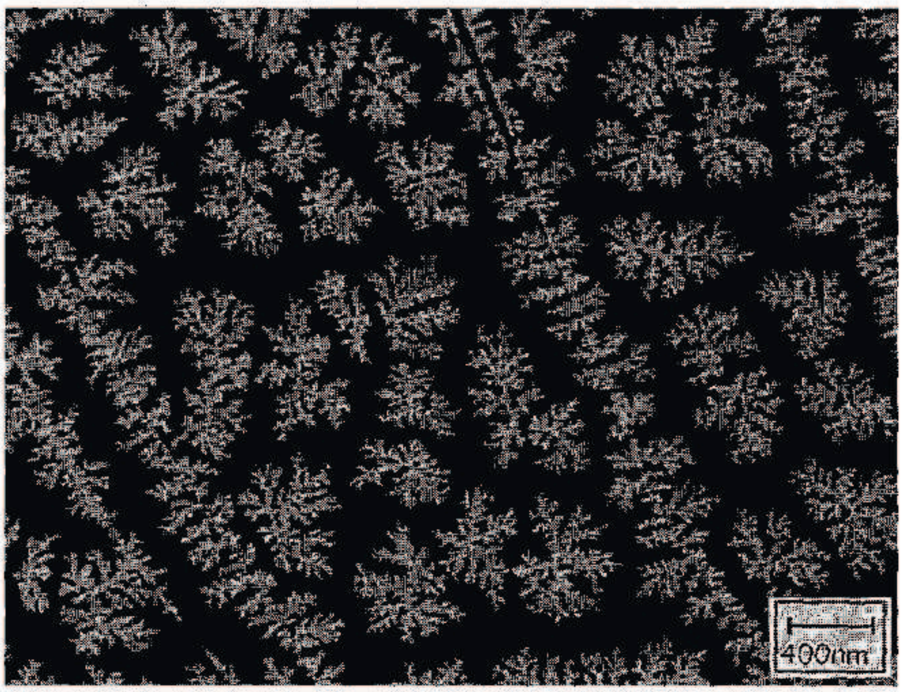

Рис. 1.12. Островки, сформированные кластерами Au_{250} для тонкой пленки толщиной 0,5 нм. Поток кластеров поддерживался постоянным [27].

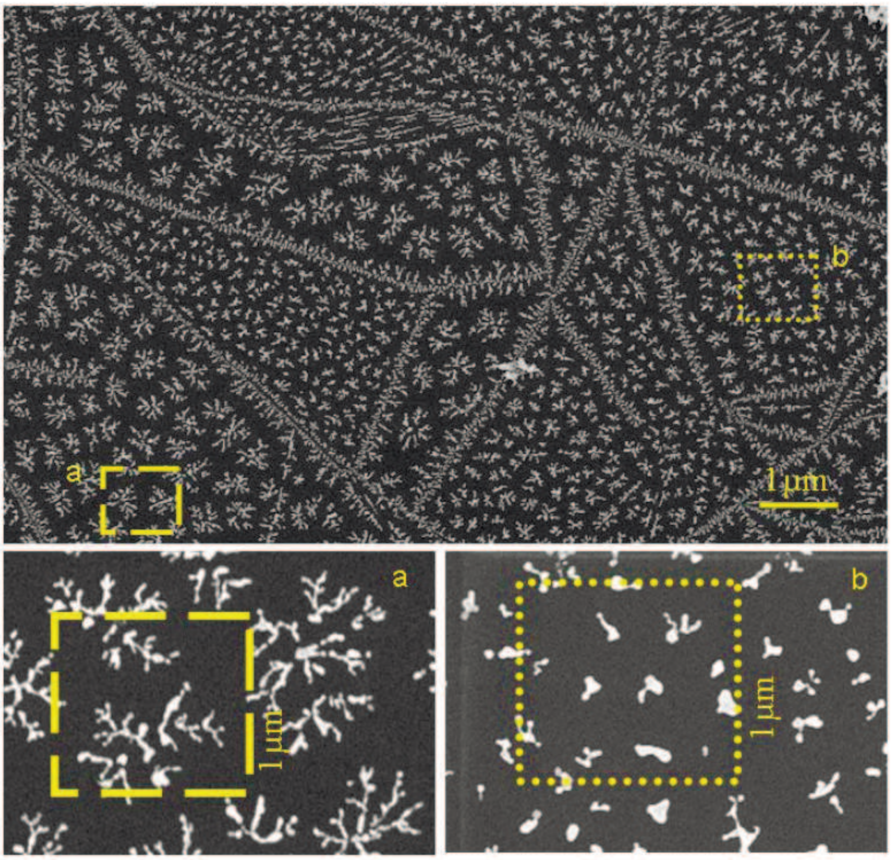

Рис. 1.13. Островки, сформированные кластерами Ag_{500} [56].

из наночастиц с регулируемой геометрией и периодичностью, и технология ОПНК может быть применена для осуществления такой задачи.

Также технология ОПНК позволяет производить островки с различной дисперсией размеров — одинаковые по размеру островки могут быть использованы в производстве квантовых точек [60], применяющихся, в частности, в наноэлектронике, производстве систем хранения информации большой плотности. Островки с большой дисперсией размеров могут образовывать фильтрующие системы при многослойном нанесении кластеров [33].

Упорядоченные островки нанометровых масштабов используются для производства миниатюрных электронных устройств [26]. Однако, следует отметить, что на нанометровых масштабах уменьшение размеров элементов изменяет их свойства. К примеру, полупроводники, чей размер составляет от единиц до десятков нанометров, демонстрируют интересные особенности: по мере уменьшения их размеров растет ширина запрещенной зоны. Также наличие связи между электронным свойствами материала и размерами образца из этого материала полезно при изготовлении квантовых точек [61, 62].

Малые частицы металлов, сплавов и полупроводников широко применяются в катализе химических реакций [22]. Геометрический эффект катализа связан с соотношением числа атомов, расположенных на поверхности (на гранях), на ребрах и вершинах малой частицы и имеющих различную координацию. Например, каталитическая активность наночастиц платины по отношению к окислению CO растёт при увеличении размера частиц от 10 до 60 нм. Это обусловлено тем, что молекулы CO и O_2, находящиеся на ребрах между гранями (100) и (111) наночастицы, менее подвижны и более прочно связаны с ребрами и близлежащими переходными участками между гранями, чем те же молекулы на гранях [63, 64]. В результате на более крупных наночастицах Pt, где преобладают грани, катализ окисления CO происходит лучше.

Большой интерес вызывает разработка и производство магнитных наноструктур и изучение присущих им свойств [32]. Среди возможных областей применения подобных структур особо выделяется хранение данных с высокой плотностью и производство спинтронных устройств. С помощью технологии ОПНК можно осуществлять производство различных магнитных наночастиц для изучения присущих им свойств и особенностей их взаимодействия друг с другом [18].

Нанокластеры могут играть роль идеальных наноконтактов [47] за счет того, что они сохраняют форму и размер при вынужденном движении, к примеру, с помощью атомно-силового микроскопа.

Отдельного упоминания заслуживает метод определения величины диффузии осажденных кластеров с помощью анализа поверхностной концентрации стабильных островков [23].

Как показано выше, состоящие из кластеров островки широко используются в различных областях. Для каждой области применения представляется важным получение островков с заранее предсказуемыми конкретными свойствами (определенная поверхностная плотность, форма, размер, расположение на подложке и пр.), в связи с чем необходимо получить теоретическое описание роста островков. В следующем разделе представлены некоторые теоретические методы описания роста.

1.2 Методы расчета роста островков

1.2.1 Теоретические методы

Наиболее известным и давно используемым способом теоретического описания роста наноструктур является метод, основанный на анализе кинетических уравнений. С их помощью описывается влияние элементарных процессов, выделяемых в процессе роста наноструктур, на число мономеров (отдельных частиц, движущихся по подложке) и рост островков определенного размера. Впервые такой подход для описания роста структур был применен в работах [65–68], где развивалась теория Френкеля [69]. В данных работах рассматривалось формирование тонких пленок из осаждаемых в условиях высокого вакуума атомов. Отдельные атомы способны перемещаться по подложке, более крупные объединения атомов считаются неподвижными. Была предложена следующая система стохастических уравнений для описания изменения концентрации атомов и островков на подложке:

$$
\begin{aligned}
\frac{dm_1}{dt} &= J - \frac{m_1}{\tau_a} - \lambda m_1^2 - m_1 \lambda \sum_{i=2}^{\infty} m_i \\
\frac{dm_2}{dt} &= \frac{\lambda}{2} m_1^2 - m_1 \lambda m_2 \\
\frac{dm_3}{dt} &= m_1 \lambda m_2 - m_1 \lambda m_3 \\
& \dots \\
\frac{dm_N}{dt} &= m_1 \lambda m_{N-1} - m_1 \lambda m_N
\end{aligned}
\tag{1.3}
$$

Здесь m_1 — концентрация отдельных атомов, m_N — концентрация островков из N атомов, λ — параметр столкновений, J — число осаждаемых атомов, $\frac{m_1}{\tau_a}$ характеризует число испаряющихся с подложки атомов, где τ_a — среднее время испарения атома с подложки. Слагаемое λm_1^2 отвечает за формирование стабильных пар атомов, становящихся зародышами островков, слагаемое $m_1 \lambda \sum_{i=2}^{\infty} m_i$ описывает количество атомов, присоединяющихся к островкам в единицу времени. Для второго и последующих уравнений системы изменение концентрации островков определенного размера вычисляется как разность между скоростью формирования островков этого размера и скоростью, с которой они увеличиваются.

Основным недостатком описанной выше модели было отсутствие зависимости вероятности присоединения атомов к островку от размера островка, в то время как в экспериментальных работах отмечалось наличие подобной зависимости. В связи с этим в работе [68] модель усложнилась за счет того, что параметр столкновений λ, бывший постоянным в уравнении (1.3), теперь начал считаться зависящим от диаметра островка или, что аналогично, от числа составляющих его атомов N, при этом зависимость имела вид $\lambda \sim N^{1/3}$. В результате поверхностная плотность островков стала возрастать медленнее, чем в случае постоянного параметра слияния, а распределение их размеров стало шире, однако по-прежнему не наблюдалось удовлетворительного совпадения с экспериментом, поскольку необходимо было также учитывать форму островка.

В 1970-х годах появились публикации, в которых уточнялись и совершенствовались выражения, описывающие поверхностную плотность островков. В качестве основных работ по этой теме стоит упомянуть статьи [70, 71], где предлагается более точное выражение для параметра, характеризующего присоединение атомов к островку (в работе [68] данный параметр назывался «параметром столкновений», в работе [70] он называется «параметром захвата» (ПЗ). Физический смысл этого параметра состоит в том, что вблизи и в отдалении от островка поверхностная плотность одиночных атомов различается, и данный параметр описывает, насколько эффективно островок конкурирует с другими островками за возможность захвата свободных атомов; он определяется для островка радиусом R, содержащего N атомов, как

$$\sigma_N = \frac{2\pi R}{m_1} \left(\frac{\partial m_1(\vec{r},t)}{\partial r} \bigg|_R \right). \tag{1.4}$$

Здесь считалось, что параметр захвата зависит только от размера островка и не зависит от окружения этого островка. В этом случае выражение для ПЗ можно записать следующим образом

$$\sigma_N = \frac{2\pi R}{\sqrt{D_a \tau_a}} \frac{K_1\left(\sqrt{\frac{R^2}{D_a \tau_a}}\right)}{K_0\left(\sqrt{\frac{R^2}{D_a \tau_a}}\right)}, \tag{1.5}$$

где D_a — коэффициент диффузии атомов, $K_j(z)$ — функция Макдональда порядка j.

Следующим шагом к созданию более точного описания стала работа [72], в которой была приведена система кинетических уравнений следующего вида

$$\frac{dm_N}{d\Theta} = \frac{D_a}{J}\sigma_{N-1}m_1m_{N-1} - \frac{D_a}{J}\sigma_{N-1}m_1m_N + k_{N-1}m_{N-1} - k_Nm_N, \quad N = 2,...,\infty, \tag{1.6}$$

где Θ — степень покрытия подложки, J — поток осаждаемых частиц (в данном случае атомов), коэффициент k_N определяет вероятность того, что на островок размера N будет осажден один атом из потока. Первое слагаемое в правой части уравнения — это скорость, с который диффундирующие атомы присоединяются к островку размером $N-1$, умноженная на поверхностную плотность островков этого размера. Второе слагаемое соответствует скорости присоединения диффундирующих атомов к островку размером N. Третье и четвертое слагаемое описывают захват осажденного (еще не успевшего начать диффундировать) атома островком размера $N-1$ и N соответственно. В рассмотренном в описываемой работе квазистатическом приближении $k_N \simeq N^{2/d_f}$, где d_f — фрактальная размерность островка.

Систему необходимо дополнить уравнением для поверхностной плотности мономеров

$$\frac{dm_1}{d\Theta} = 1 - 2\frac{D_a}{J}\sigma_1m_1^2 - \frac{D_a}{J}m_1\sum_{N=2}^{\infty}\sigma_Nm_N - k_1m_1 - \sum_{N=1}^{\infty}k_Nm_N \tag{1.7}$$

Здесь первое слагаемое соответствует потоку осаждаемых атомов, второе и третье слагаемое отвечают за формирование островков из двух атомов и за присоединение атомов к островкам соответственно. Четвертое слагаемое учитывает возможность немедленного закрепления осажденных атомов на подложке, и пятое слагаемое отвечает за атомы, осажденные непосредственно на поверхность уже существующих островков.

Система уравнений (1.6) – (1.7) дополнена выражением для ПЗ

$$\sigma_N = 2\pi\frac{R}{\xi}\frac{K_1(R/\xi)}{K_0(R/\xi)}, \tag{1.8}$$

где $\xi = \left(2\sigma_1m_1 + \sum_{N=2}^{\infty}\sigma_Nm_N + (D_a/J)k_1\right)^{-1/2}$. Данные выражения получены для круглых островков радиуса R. Важно отметить, что это выражение получено при условии, что окружение каждого островка (иными словами, размеры и форма соседних островков) не зависит от его размера и формы.

Для островков, чья форма отлична от круглой, радиус можно заменить эффективным радиусом, соответствующим геометрии островка [72]. В случае, когда диффузия атомов вдоль границы островка отсутствует, эффективный радиус можно представить через фрактальную размерность островка d_f:

$$R \sim N^{1/d_f}. \tag{1.9}$$

Здесь α — подгоночный параметр, слабо зависящий от времени.

Однако, несмотря на описанные выше уточнения, теория по-прежнему оставалась несовершенной [73–76]: особенно заметны были различия между полученным теоретически и экспериментально распределением размеров островков. Расхождение было связано с тем, что в теории не учитывалась связь между размером островка и его окружением. Учет таких корреляций особенно важен для описания двухмерной задачи, такой, как рост островков на подложке. Для решения данной проблемы было введено понятие зоны захвата (ЗЗ), которая изначально определялась, как область подложки, расположенная ближе к рассматриваемому островку, чем к другим островкам.

В работе [77] была предложена следующая модель для задания ЗЗ; она известна как модель точечных островков. В рамках данной модели считается, что все островки — точечные, а пространство подложки поделено на ячейки, в каждой из которых находится один островок, в соответствии с разбиением Вороного. Разбиение Вороного для конечного множества точек A на плоскости представляет такое разбиение плоскости, при котором каждая область этого разбиения образует множество точек, более близких к одному из элементов множества A, чем к любому другому элементу множества. Предполагается, что большая часть атомов, попавших в ячейку, присоединятся к находящемуся в этой ячейке островку. Искомое распределение размеров островков, а также поверхностной плотности островков различного размера находились с помощью моделирования Монте-Карло.

Очередной шаг в развитии теории был сделан в работе [76], где было предложено отказаться от модели точечных островков и осуществлять разбиение Вороного не для центров островков, а для их границ. Это будет оказывать существенное влияние на решение для случаев, когда соседние островки сильно различаются по размеру. Также было предложено еще более точное описание, связанное с разбиением подложки на диффузионные ячейки. Каждая точка поверхности может быть сопоставлена с определенным островком с помощью линий диффузионного потока от этой точки к островку. Диффузионный поток через границу диффузионной ячейки отсутствует.

На рисунке 1.14 из работы [76] показаны все три вышеперечисленных метода разбиения подложки, на которой находятся островки, на ячейки: ячейки Вороного, краевые ячейки и диффузионные ячейки.

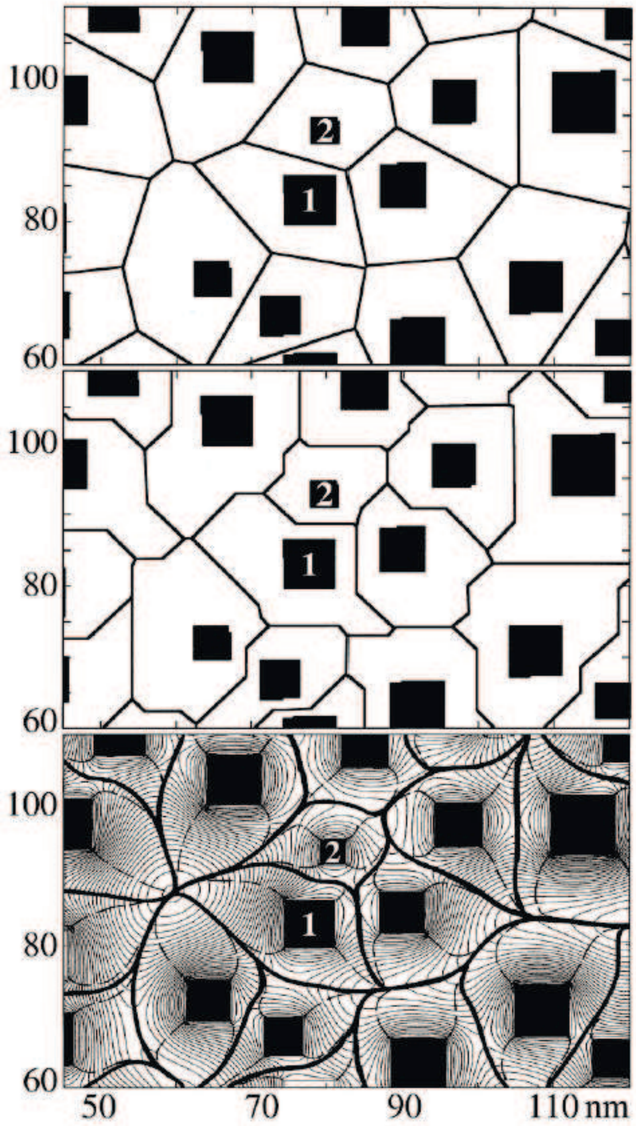

Рис. 1.14. Зоны захвата для островков на подложке: (сверху вниз) ячейки Вороного, краевые ячейки и диффузионные ячейки. [76].

Недавно был опубликован обзор основных теоретических направлений описания кинетики монослойного роста при неравновесных условиях [78]. Также следует отметить несколько попыток получения теоретического выражения для распределения размеров островков из адатомов [28, 72, 77, 79].

1.2.2 Численные методы

Другой группой методов, позволяющих описывать рост наноостровков, являются методы компьютерного моделирования описываемой системы. Среди них основными являются методы Монте-Карло и методы молекулярной динамики (МД).

Наиболее прямолинейным методом описания является метод МД, когда для конкретной системы заранее задаются все потенциалы, после чего моделируется движение каждой частицы системы по отдельности. Метод широко применялся для моделирования поведения кластеров на подложке, к примеру, для изучения диффузии кластеров [80–82] или для изучения слияния кластеров друг с другом [59]. Однако, хотя методы МД оказались очень полезны для определения и анализа микроскопических процессов, их основным недостатком при анализе роста наноостровков является ресурсозатратность, особенно при моделировании островков из кластеров, поскольку число кластеров на подложке велико, и при этом каждый из них может содержать тысячи атомов.

Другим распространенным численным методом является кинетический метод Монте-Карло (КМК). Кинетический метод Монте-Карло является усложненной версией обычного алгоритма Монте-Карло [83, 84] и позволяет описывать эволюцию сложной системы, в которой большое, но конечное число случайных процессов происходит с заданной скоростью. Метод КМК реализуется следующим образом: создается список всех возможных элементарных процессов и вероятностей в единицу времени, с которыми происходят эти процессы, после чего учитывается случайный характер этих процессов и создается описание эволюции

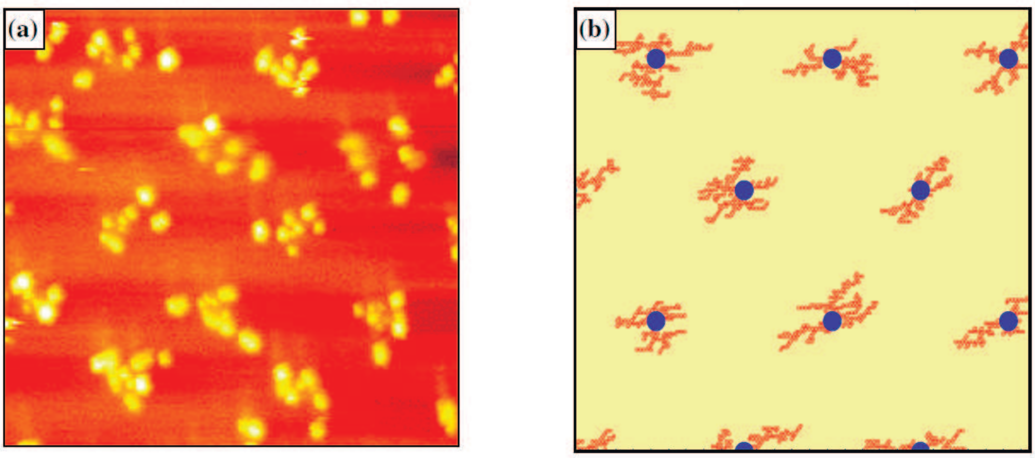

Рис. 1.15. Сравнение результатов эксперимента по выращиванию островков из кластеров Au_{750} (a) и КМК-моделирования процесса роста островков из этих кластеров (b) [60].

системы во времени. Наиболее простым способом применения метода КМК будет следующий [59]:

1. выбрать временной интервал, который будет меньше, чем характерные для данной задачи временные интервалы;
2. выбрать случайным образом частицу;
3. выбрать случайным образом один из возможных процессов для этой частицы (осаждение, движение по подложке, слипание с соседней частицей, присоединение к островку, испарение частицы);
4. вычислить вероятность того, что этот процесс произойдет в выбранный временной интервал;
5. выбрать случайным образом число и сравнить его с вычисленной вероятностью: если оно меньше, то осуществить процесс, если больше, то перейти к следующему шагу;
6. увеличить время на выбранный временной интервал и перейти к следующему шагу.

Описанный выше метод оказывается крайне времязатратным, особенно в случае большого разброса вероятностей на шаге 4. Для уменьшения времени вычисления в работе [85] был предложен другой подход, основанный на выборе не частицы, а процесса:

1. обновить список возможных способов осуществления всех процессов в системе;
2. случайным образом выбрать процесс;
3. случайным образом выбрать частицу, с которой будет происходить выбранный процесс;
4. передвинуть частицу;
5. увеличить время на временной интервал;
6. вернуться к пункту 1.

Метод КМК часто применяется для упрощенного описания роста пленок [72, 77, 86]. Методы КМК нашли широкое применение, в частности, для описания роста островков из кластеров. Для применения описанного выше метода необходимо выделить основные элементарные процессы, составляющих процесс роста островка. Говоря об определении элементарных процессов, следует выделить как наиболее популярную ОДП модель («осаждение-диффузия-присоединение») [27], в которой элементарными процессами являются осаждение кластеров, их диффузия и присоединение к островкам. Иногда в данную модель также включается испарение [59]. В модели ОДП используются следующие допущения:

- осажденный кластер не может немедленно отскочить от подложки;
- считается, что отсутствует диффузия кластеров вдоль границы островка и отделение кластеров от островка;
- отсутствует слияние между кластерами;
- диффузия кластера является броуновской.

Все вышеперечисленные требования выполняются, в частности, для тонких пленок из кластеров сурьмы, полученных методом ОПНК [27].

В качестве примера использования метода КМК можно привести моделирование, проведенное в работе [60]. На рисунке 1.15, полученном в этой работе, показано, что форма и поверхностная плотность островков, полученных в моделировании, очень близки к экспериментальным данным.

Следует отметить, что метод КМК оказывается крайне ресурсозатратным с точки зрения компьютерных вычислений [87]. При высоких температурах некоторые процессы в рассматриваемой системе могут проходить крайне быстро, что приводит к уменьшению шага по времени [88] и, в итоге, к еще большей времязатратности. Также отмечается, что времязатратность методов КМК существенно возрастает, если ведется рассмотрение частиц, успевающих пройти большое расстояние по подложке до момента присоединения [89].

Таким образом, основной недостаток существующих аналитических методов заключается в том, что для достижения точности в оценках распределения размеров растущих островков или их поверхностной плотности необходимо вводить в рассмотрение большое число параметров, тем самым сводя аналитические методы к численным. Недостаток же численных методов заключается в их большой ресурсо- и времязатратности. Необходим аналитический подход, который совмещал бы в себе точность и простоту, позволяющую легко оценить, как будет происходить рост структур при данных параметрах. В данной работе предложен метод, основанный на решении стохастического дифференциального уравнения для размера островка.

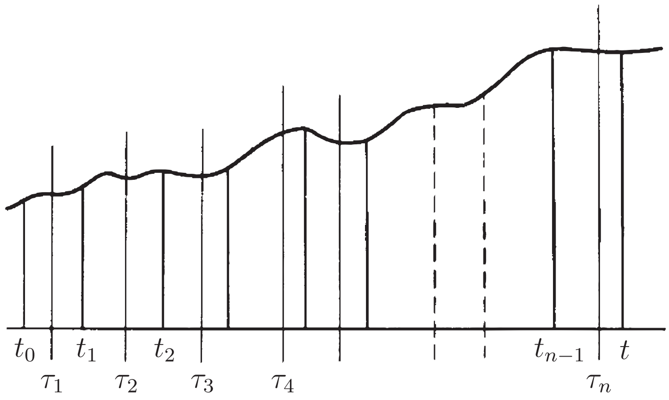

Рис. 1.16. Разбиение временного интервала, использованное в определении стохастического интегрирования [90].

1.3 Численное решение стохастических дифференциальных уравнений

1.3.1 Интеграл Ито и Стратоновича

Рассмотрим стохастическое дифференциальное уравнение

$$\dot{x} = f(x(t),t) + g(x(t),t)\zeta_w(t), \tag{1.10}$$

где $f(x(t),t)$ и $g(x(t),t)$ — некоторые известные функции, $\zeta_w(t)$ — флуктуирующий случайный член, такой, что $\langle \zeta_w(t) \rangle = 0$ и $\langle \zeta_w(t)\zeta_w(t') \rangle = \delta(t - t')$ [90]. Предполагается интегрируемость уравнения (1.10), в связи с чем интеграл

$$u(t) = \int\limits_0^t dt' \zeta_w(t') \tag{1.11}$$

существует. Можно показать, что $u(t) = W(t)$, т.е. является винеровским процессом [90].

Определим стохастический интеграл $\int\limits_{t_0}^{t} G(t')dW(t')$ как интеграл Римана-Стилтьеса. Разобьем интервал $[t_0,t]$ на n подынтервалов с помощью точек разбиения (рисунок 1.16) $t_0 \le t_1 \le t_2 \le \ldots \le t_{n-1} \le t$ и выберем промежуточные точки τ_i на каждом подынтервале: $t_{i-1} \le \tau_i \le t_i$.

Искомый стохастический интеграл $\int\limits_{t_0}^{t} G(t')dW(t')$ определяется как предел частичных сумм

$$S_n = \sum_{i=1}^{n} G(\tau_i)[W(t_i) - W(t_{i-1})]. \tag{1.12}$$

Интеграл, определенный как предел S_n, будет зависеть от конкретного выбора промежуточных точек τ_i. Будем выбирать эти точки так, чтобы $\tau_i = t_{i-1}$, таким образом, стохастический интеграл Ито от функции $G(t)$ будет определен как

$$\int\limits_{t_0}^{t} G(t')dW(t') = \underset{n\to\infty}{\text{ms-lim}} \left\{ \sum_{i=1}^{n} G(t_{i-1})[W(t_i) - W(t_{i-1})] \right\}, \tag{1.13}$$

где под ms-lim понимается среднеквадратичный предел. (2.9.2)

Для получения стохастического интеграла Стратоновича подынтегральная функция $G(t)$ представляется как полусумма $1/2[G(t_i) + G(t_{i+1})]$, отсюда

$$\int\limits_{t_0}^{t} G(t')dW(t') = \underset{n\to\infty}{\text{ms-lim}} \left\{ \sum_{i=1}^{n} \frac{G(t_i) + G(t_{i+1}))}{2}[W(t_i) - W(t_{i-1})] \right\}. \tag{1.14}$$

Путем преобразования слагаемого $f(x(t),t)$ можно легко перейти от формы Ито к форме Стратоновича [91].

В данной работе вычисление стохастических интегралов будет проводиться в форме Стратоновича.

1.3.2 Методы математического моделирования стохастических дифференциальных уравнений

Рассмотрим систему, на которую действует внешний шум. Для описания динамики системы используется стохастическое дифференциальное уравнение

$$dx(t) = f(x(t),t)dt + g(x(t),t) \circ dW(t), \tag{1.15}$$

где $W(t)$ — независимый винеровский процесс.

Рассмотрим три наиболее часто используемых метода математического моделирования, основанных на стохастическом аналоге разложения Тейлора [92]: схема Эйлера-Маруямы порядка 0.5, схема Мильштейна порядка 1.0 и сильная схема Тейлора порядка 1.5.

Самым простым методом является схема Эйлера-Маруямы порядка 0.5. Она имеет следующий вид

$$x(t_{n+1}) - x(t_n) = \left\{ f\Delta_n + g\Delta W_n \right\}_{t=t_n}, \tag{1.16}$$

где

$$\Delta_n = \int\limits_{t_n}^{t_{n+1}} dt = t_{n+1} - t_n$$

и величина

$$\Delta W_n = \int\limits_{t_n}^{t_{n+1}} dW(t)$$

распределена как $\mathcal{N}(0; \Delta_n)$.

Схема Мильштейна, являющаяся явным одношаговым сильным методом порядка 1.0 [93], также основана на использовании стохастического аналога ряда Тейлора. В ней используется на одно слагаемое больше, чем в предыдущем методе, и она формулируется следующим образом [91]

$$x(t_{n+1}) - x(t_n) = \left\{ f\Delta_n + g\Delta W_n + \frac{1}{2!} g \frac{\partial g}{\partial x} \Delta W_n{}^2 \right\}_{t=t_n}. \tag{1.17}$$

Сильная схема Тейлора порядка 1.5, также являющаяся одношаговым явным сильным методом, широко используется при решении стохастических дифференциальных уравнений. Данная схема получается из упомянутых выше путем добавления следующих членов разложения Тейлора. Вычисления с ее использованием проводятся следующим образом

$$\begin{aligned} x(t_{n+1}) - x(t_n) = \Bigg\{ & f\Delta_n + g\Delta W_n + \frac{1}{2!} g \frac{\partial g}{\partial x} \Delta W_n{}^2 + g \frac{\partial f}{\partial x} \Delta Z_n + \frac{1}{2} \left(\frac{\partial f}{\partial t} + f \frac{\partial f}{\partial x} \right) \Delta_n^2 \\ & + \left(\frac{\partial g}{\partial t} + f \frac{\partial g}{\partial x} \right) \Big[\Delta W_n \Delta_n - \Delta Z_n \Big] + \frac{1}{3!} g \frac{\partial}{\partial x} g \frac{\partial g}{\partial x} \Delta W_n{}^3 \Bigg\}_{t=t_n}, \end{aligned} \tag{1.18}$$

где величина

$$\Delta Z_n = \int\limits_{t_n}^{t_{n+1}} \int\limits_{t_n}^{s_2} dW(s_1) ds_2.$$

имеет нормальное распределение с нулевым средним, дисперсией $\sigma^2 = \frac{1}{3}\Delta_n^3$ и ковариацией $\langle \Delta Z_n \Delta W_n \rangle = \frac{1}{2}\Delta_n^2$.

1.4 Постановка задачи

Существует задача описания роста двухмерного островка, формирующегося на подложке из высокоориентированного пиролитического графита (ВОПГ) из заранее сформированных кластеров металлов, а также динамики скоростей движущихся кластеров. Кластеры имеют размер от десятков до тысяч атомов и осаждаются на поверхность ВОПГ с низкими энергиями, что позволяет обеспечивать отсутствие повреждения поверхности и разрушения кластеров. Осажденные кластеры диффундируют по подложке и либо объединяются в зародыши островков, либо присоединяются к уже имеющимся островкам.

В данной работе рассматривается субмонослойный режим роста, и не рассматривается начальный этап процесса формирования островков, когда кластеры формируют зародыши. Таким образом, в работе предполагается, что на поверхности уже имеются крупные островки, к которым присоединяются движущиеся кластеры или небольшие подвижные островки, обеспечивая тем самым их рост. Также не рассматривается ситуация, когда островки занимают настолько большую часть подложки, что нельзя пренебречь процессом объединения двух крупных островков. Формирующиеся островки являются двухмерными, таким образом, считается, что если при осаждении кластер попадает на поверхность островка, он движется по ней, пока не достигнет границы островка и присоединится к ней.

В описываемой модели отсутствует отделение уже присоединившихся кластеров от островка и распад островка, а испарение подвижных кластеров не рассматривается отдельно, так как может быть учтено за счет изменения потока осаждаемых кластеров.

Глава 2

Распределение скоростей кластеров в приближении медленного роста островка

Данная глава посвящена анализу распределения скоростей кластеров, движущихся по подложке из высокоориентированного пиролитического графита (ВОПГ) [6]. Рассмотрен ансамбль движущихся по подложке кластеров, являющийся открытой системой: новые кластеры появляются в ней в результате осаждения на подложку, а старые кластеры покидают систему, присоединяясь к островкам. Таким образом, динамику системы можно описать уравнением баланса. Состояние ансамбля свободных кластеров описывается зависящей от времени функцией распределения для скоростей кластеров и их времен жизни. Под временем жизни здесь понимается временной отрезок от момента осаждения кластера на подложку до момента его присоединения к островку. Также в дальнейшем будет использоваться термин «свободный кластер» — это кластер, движущийся по подложке, т.е. еще не успевший присоединиться к островку. Свободный кластер обладает возрастом — это время, прошедшее от момента осаждения кластера до настоящего момента времени или до момента присоединения к островку.

2.1 Уравнение баланса для скоростей кластеров

Жизненный цикл кластера можно разделить на несколько основных этапов, называемых также элементарными процессами [59]: осаждение кластера, его диффузия по подложке (в работе считается, что подложка плоская и расположена горизонтально) и присоединение кластера к островку (см. рисунок 2.1).

Начальным этапом жизни кластера является осаждение на подложку. Этот процесс характеризуется постоянным потоком осаждаемых кластеров J и распределением скоростей осаждаемых кластеров $f(v)$.

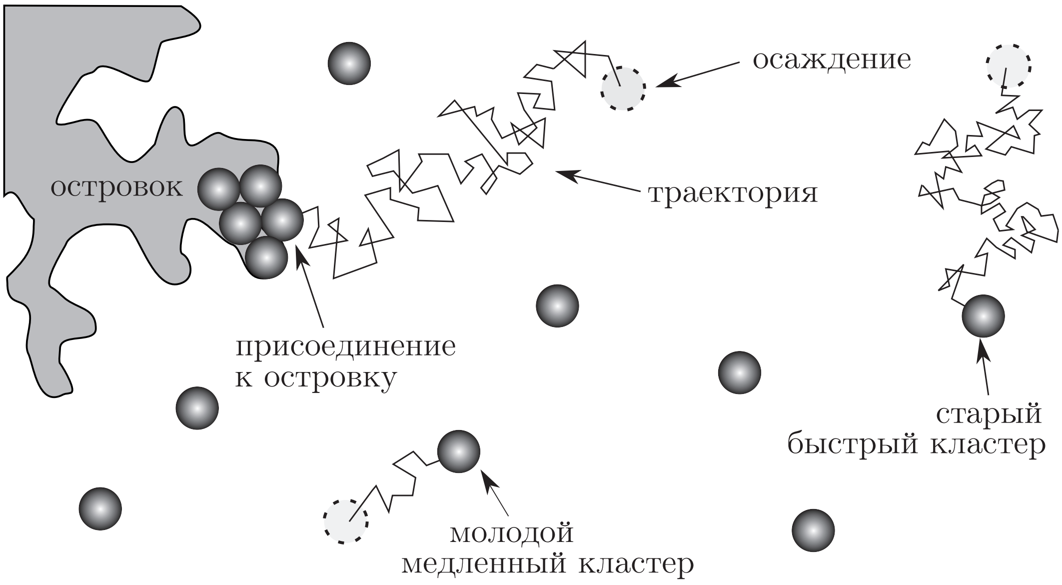

Рис. 2.1. Стадии жизненного цикла кластера: осаждение, диффузия, присоединение к островку.

После осаждения кластеры начинают диффундировать по подложке. В работе [94] было высказано предположение, что кластеры движутся по подложке с ускорением, поэтому в рассмотрение было включено постоянное ускорение a. Поскольку достоверная информация о зависимости ускорения от времени отсутствует, в данном рассмотрении ускорение в первом приближении считается постоянным. Можно легко перейти к описанию системы, в которой отсутствует ускорение, путем соответствующей замены параметров. Важно отметить, что для данной задачи факт наличия диффузии интересен только с точки зрения величины скоростей кластеров: неважно, какой конкретно механизм диффузии реализуется в данной задаче.

Для упрощения рассмотрения процесс движения кластера рассматривался как квазистабильный процесса [3]. Для этого было необходимо обеспечить постоянный баланс между случайной и детерминированной частями уравнения, что позволит определить стационарное распределение скоростей в ансамбле. Таким образом, составим стохастическое дифференциальное уравнение для скорости кластера $v(t)$, движущегося по подложке; рассмотрим его в интерпретации Стратоновича [3, 95]:

$$\dot{v}(t) = a + \sqrt{v(t)}\zeta_w(t), \tag{2.1}$$

где $\zeta_w(t)$ — стационарный гауссовский белый шум с $\langle\zeta_w(t)\rangle = 0$ и $\langle\zeta_w(t)\zeta_w(t+\tau)\rangle = 2D_v\delta(\tau)$. Средняя скорость растет линейно со временем $\langle v\rangle = (a + D_v/2)t$.

Последним этапом жизни кластера на подложке является его присоединение к островку. Так как во многих экспериментах было показано [32, 59], что кластеры на ВОПГ обладают аномально большим коэффициентом диффузии, задача рассматривается в приближении, когда скорость роста островка много меньше скорости, с которой движется кластер. Вероятность присоединения в единицу времени пропорциональна скорости кластера [96], коэффициент пропорциональности α, он же параметр захвата, зависит от концентрации островков, их размера и формы.

Таким образом, уравнение баланса для плотности скорости кластера выглядит следующим образом:

$$\frac{\partial n(v,t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial v}\left[\left(a+\frac{D_v}{2}\right)n(v,t)\right] + D_v\frac{\partial^2}{\partial v^2}\left[vn(v,t)\right] + Jf(v) - \alpha vn(v,t). \tag{2.2}$$

Первое и второе слагаемое уравнения (2.2) описывают динамику скорости кластера в соответствии с уравнением (2.1); эти слагаемые определяются кинетическими коэффициентам уравнения Фоккера-Планка, соответствующего уравнению (2.1). Третье слагаемое описывает процесс осаждения, четвертое — учитывает процесс захвата кластера островком.

Плотность скорости удовлетворяет начальным и граничным условиям

$$\begin{aligned} n(v,0) &= n_0(v), \\ \left[D_v\tfrac{\partial}{\partial v}\left[vn(v,t)\right] - \left(a+\tfrac{D_v}{2}\right)n(v,t)\right]_{v=0} &= 0, \\ n(\infty,t) &= 0. \end{aligned} \tag{2.3}$$

Перейдем к безразмерным переменным $\xi = \sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}v$, $\tau = \sqrt{\alpha D_v}t$, $\eta(\xi,\tau) = \sqrt{\frac{D_v}{\alpha}} \times n\left(\sqrt{\frac{D_v}{\alpha}}\xi, \frac{\tau}{\sqrt{\alpha D_v}}\right)$, после чего уравнение (2.2) примет вид

$$\frac{\partial \eta(\xi,\tau)}{\partial \tau} = \frac{\partial^2}{\partial \xi^2}\left[\xi\eta(\xi,\tau)\right] - \left(\frac{a}{D_v}+\frac{1}{2}\right)\frac{\partial \eta(\xi,\tau)}{\partial \xi} + \frac{J}{\alpha}f\left(\sqrt{\frac{D_v}{\alpha}}\xi\right) - \xi\eta(\xi,\tau), \tag{2.4}$$

с начальными и граничными условиями

$$\begin{aligned} \eta(\xi,0) &= \eta_0(\xi) \equiv \sqrt{\tfrac{D_v}{\alpha}}n_0\left(\sqrt{\tfrac{D_v}{\alpha}}\xi\right), \\ \left[\tfrac{\partial}{\partial \xi}\left[\xi\eta(\xi,\tau)\right] - \left(\tfrac{a}{D_v}+\tfrac{1}{2}\right)\eta(\xi,\tau)\right]_{\xi=0} &= 0, \\ \eta(\infty,\tau) &= 0. \end{aligned} \tag{2.5}$$

Решение задачи (2.4)–(2.5) может быть представлено в виде

$$\eta(\xi,\tau) = \frac{J}{\alpha}\int_0^\tau d\tau' \int_0^\infty G(\xi,\tau,\xi',\tau') f\left(\sqrt{\frac{D_v}{\alpha}}\xi'\right) d\xi' + \int_0^\infty G(\xi,\tau,\xi',0)\eta_0(\xi')d\xi'. \tag{2.6}$$

Здесь $G(\xi,\tau,\xi',\tau') \equiv G(\xi,\xi',\tau-\tau')$ — функция Грина для данной задачи. Функция $G(\xi,\xi',\tau)$ является решением уравнения

$$\frac{\partial G}{\partial \tau} = \frac{\partial^2}{\partial \xi^2}[\xi G] - \left(\frac{a}{D_v}+\frac{1}{2}\right)\frac{\partial G}{\partial \xi} - \xi G, \tag{2.7}$$

с начальными и граничными условиями

$$\begin{aligned} G(\xi,\xi',0) &= \delta(\xi-\xi'), \\ \left[\xi\tfrac{\partial G}{\partial \xi} - \left(\tfrac{a}{D_v}-\tfrac{1}{2}\right)G\right]_{\xi=0} &= 0, \\ |G| &< \infty,\, \tau>0. \end{aligned} \tag{2.8}$$

Решим задачу (2.7)–(2.8), используя преобразование Лапласа

$$p\bar{G} - \delta(\xi-\xi') = \frac{\partial^2}{\partial \xi^2}\left[\xi\bar{G}\right] - \left(\frac{a}{D_v}+\frac{1}{2}\right)\frac{\partial \bar{G}}{\partial \xi} - \xi\bar{G}, \tag{2.9}$$

$$\begin{aligned} \left[\xi\tfrac{\partial \bar{G}}{\partial \xi} - \left(\tfrac{a}{D_v}-\tfrac{1}{2}\right)\bar{G}\right]_{\xi=0} &= 0, \\ |\bar{G}| &< \infty. \end{aligned} \tag{2.10}$$

Здесь черта над символом обозначает преобразование

$$\bar{G}(\xi,\xi',p) = \int_0^\infty e^{-p\tau} G(\xi,\xi',\tau)d\tau. \tag{2.11}$$

Для каждой из областей $\xi<\xi'$ и $\xi'>\xi$ подстановка $\bar{G}=u(\xi)\xi^{\nu-1/2}$, где $\nu=\frac{a}{2D_v}-\frac{1}{4}$, сводит уравнение (2.9) к уравнению Уиттекера, таким образом, решение уравнения (2.9) представляет собой суперпозицию линейно независимых выражений $\xi^{\nu-1/2}M_{-p/2,\nu}(2\xi)$ и $\xi^{\nu-1/2}W_{-p/2,\nu}(2\xi)$, где $p>0$. Здесь $M_{k,m}(z)$ и $W_{k,m}(z)$ — функции Уиттекера [97]. Используя граничные условия (2.10), получаем

$$\bar{G}(\xi,\xi',p) = \xi^{\nu-1/2}\begin{cases} A(p)M_{-\frac{p}{2},\nu}(2\xi),\ \xi<\xi', \\ B(p)W_{-\frac{p}{2},\nu}(2\xi),\ \xi>\xi'. \end{cases} \tag{2.12}$$

Одна из неизвестных функций $A(p)$ и $B(p)$ находится из условия непрерывности функции Грина в $\xi = \xi'$. Чтобы найти вторую функцию, проинтегрируем уравнение (2.9) в окрестности точки $\xi = \xi'$ для получения условия сшивания

$$\left.\frac{\partial \bar{G}}{\partial \xi}\right|_{\xi=\xi'+0} - \left.\frac{\partial \bar{G}}{\partial \xi}\right|_{\xi=\xi'-0} = -\frac{1}{\xi'}.$$

Используя [97], получим выражение для преобразования функции Грина

$$\bar{G}(\xi,\xi',p) = \frac{1}{2\xi'}\left(\frac{\xi}{\xi'}\right)^{\nu-1/2} \frac{\Gamma\left(\frac{1}{2}+\nu+\frac{p}{2}\right)}{\Gamma(1+2\nu)} \begin{cases} M_{-\frac{p}{2},\nu}(2\xi)W_{-\frac{p}{2},\nu}(2\xi'),\ \xi<\xi', \\ W_{-\frac{p}{2},\nu}(2\xi)M_{-\frac{p}{2},\nu}(2\xi'),\ \xi>\xi', \end{cases} \tag{2.13}$$

или, в более компактной форме,

$$\bar{G}(\xi,\xi',p) = \frac{1}{2\xi'}\left(\frac{\xi}{\xi'}\right)^{\nu-1/2} \frac{\Gamma\left(\frac{1}{2}+\nu+\frac{p}{2}\right)}{\Gamma(1+2\nu)} M_{-\frac{p}{2},\nu}(2\xi_<)W_{-\frac{p}{2},\nu}(2\xi_>), \tag{2.14}$$

где $\xi_< = \min(\xi,\xi')$ и $\xi_> = \max(\xi,\xi')$.

В итоге, применяя обратное преобразование Лапласа, получим функцию Грина

$$G(\xi,\xi',\tau) = \frac{1}{2\pi i}\int_{c-i\infty}^{c+i\infty} e^{p\tau}\bar{G}(\xi,\xi',p)dp, \tag{2.15}$$

где $c > 0$. Интеграл в уравнении (2.15) — это интеграл Бромвича, его можно оценить с помощью теоремы о вычетах. Поскольку функции Уиттекера являются аналитическими функциями по первому индексу в $\mathbb{C}$, у преобразования функции Грина (2.14) есть только простые полюсы, возникающие из множителя $\Gamma\left(\frac{1}{2}+\nu+\frac{p}{2}\right)$: $p = -(2m+2\nu+1), m \in \mathbb{Z}^+$. Тогда

$$G(\xi,\xi',\tau) = \frac{e^{-(2\nu+1)\tau}}{\xi'\Gamma(1+2\nu)}\left(\frac{\xi}{\xi'}\right)^{\nu-1/2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(-1)^m}{m!} e^{-2m\tau} M_{\nu+\frac{1}{2}+m,\nu}(2\xi_<)W_{\nu+\frac{1}{2}+m,\nu}(2\xi_>). \tag{2.16}$$

Подставляя это выражение в уравнение (2.6) и возвращаясь к переменным v и t, получим

$$\begin{aligned} n(v,t) &= \frac{J}{D_v}v^\nu \int_0^\infty f(\tilde{v})\tilde{v}^{-\nu} I_\nu\left(\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}v_<\right) K_\nu\left(\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}v_>\right) d\tilde{v} \\ &+ \frac{e^{-(2\nu+1)\sqrt{\alpha D_v}t}}{\Gamma(1+2\nu)} v^{\nu-1/2} \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(-1)^m}{m!} e^{-2m\sqrt{\alpha D_v}t} \int_0^\infty \left[n_0(\tilde{v}) - \frac{Jf(\tilde{v})}{(2m+2\nu+1)\sqrt{\alpha D_v}}\right] \\ &\times \tilde{v}^{-\nu-1/2} M_{\nu+\frac{1}{2}+m,\nu}\left(2\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}v_<\right) W_{\nu+\frac{1}{2}+m,\nu}\left(2\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}v_>\right) d\tilde{v}, \end{aligned} \tag{2.17}$$

где $v_< = \min(v,\tilde{v})$ и $v_> = \max(v,\tilde{v})$. Функции $I_\nu(z)$ — функция Инфельда, $K_\nu(z)$ — функция Макдональда. Здесь было использовано соотношение между функциями Уиттекера и функциями Инфельда и Макдональда [97].

Отметим, что выражения (2.16) и (2.17) неудобны для анализа на малых временах. Для получения более практичного выражения используем соотношение между функциями Уиттекера и обобщенными полиномами Лагерра [97]. Получим

$$G(\xi,\xi',\tau) = 2e^{-\xi-\xi'}(2\xi)^{2\nu}\frac{e^{-(2\nu+1)\tau}}{\Gamma(1+2\nu)}\sum_{m=0}^{\infty}\frac{m!}{(2\nu+1)_m}e^{-2m\tau}L_m^{(2\nu)}(2\xi)L_m^{(2\nu)}(2\xi'). \tag{2.18}$$

Ряд можно просуммировать [98], в итоге получим

$$G(\xi,\xi',\tau) = \left(\frac{\xi}{\xi'}\right)^{\nu}\frac{e^{-(\xi+\xi')\coth(\tau)}}{\operatorname{sh}(\tau)}I_{2\nu}\left(\frac{2\sqrt{\xi\xi'}}{\operatorname{sh}(\tau)}\right). \tag{2.19}$$

Для достаточно больших времен ($t \gg 1/[(2\nu+1)\sqrt{\alpha D_v}]$) плотность скорости кластеров, выраженная уравнением (2.17), стремится к постоянному значению

$$n(v) = \frac{J}{D_v}v^{\nu}\left\{K_\nu\left(\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}v\right)\int_0^v \tilde{v}^{-\nu}I_\nu\left(\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}\tilde{v}\right)f(\tilde{v})d\tilde{v} + I_\nu\left(\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}v\right)\int_v^\infty \tilde{v}^{-\nu}K_\nu\left(\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}\tilde{v}\right)f(\tilde{v})d\tilde{v}\right\}. \tag{2.20}$$

Используя [99], получим стационарную концентрацию кластеров

$$n = \frac{J}{4D_v}\sqrt{\pi}\left(\frac{4D_v}{\alpha}\right)^{\frac{\nu+1}{2}}\Gamma\left(\nu+\frac{1}{2}\right)\int_0^\infty \tilde{v}^{-\nu}\left\{I_\nu\left(\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}\tilde{v}\right) - \mathbf{L}_\nu\left(\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}\tilde{v}\right)\right\}f(\tilde{v})d\tilde{v}, \tag{2.21}$$

где $\mathbf{L}_\nu(z)$ — модифицированная функция Струве [97].

Отметим, что функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров пропорциональна плотности скорости кластеров

$$w(v,t) = \frac{n(v,t)}{\int_0^\infty n(v,t)dv}. \tag{2.22}$$

Моменты распределения скоростей кластеров находятся из выражений (2.17) и (2.22) и позволяют характеризовать физические свойства рассматриваемой системы. В случае $f(v) = \delta(v)$ выражения (2.20) и (2.21) значительно упрощаются, что позволяет записать функцию плотности распределения вероятностей для стационарного случая как

$$w(v) = \frac{4\left(\frac{\alpha}{4D_v}\right)^{\frac{\nu+1}{2}}}{\sqrt{\pi}\Gamma\left(\nu+\frac{1}{2}\right)} v^{\nu} K_{\nu}\left(\sqrt{\frac{\alpha}{D_v}}v\right), \tag{2.23}$$

а ее моменты — как

$$\mu_m = 2\left(\frac{D_v}{\alpha}\right)^{\frac{m}{2}} \frac{\Gamma(m)}{\mathrm{B}\left(\nu+\frac{1}{2}, \frac{m}{2}\right)}. \tag{2.24}$$

Следует отметить, что рассмотрение стационарного случая особенно актуально для данной задачи, поскольку он представляет собой описание ситуации, в которой число осажденных на подложку кластеров равно числу кластеров, присоединившихся к островку.

2.2 Численное моделирование

В данном разделе приведены результаты численного моделирования динамики кластеров на подложке. Каждый кластер осаждается на подложку в случайный момент времени; скорость, с которой он начинает движение по подложке, подчиняется заданному распределению скоростей. Ускорение кластера описывается уравнением (2.1) в приближении Стратоновича. Вероятность того, что кластер присоединится к островку за время Δt, составляет $(1-\exp(-\alpha v \Delta t))$. В моделировании была использована схема Мильштейна с временным шагом 10^{-4}. Для получения псевдослучайных чисел был использован зиккурат-алгоритм Марсальи [100]. Общее число кластеров на единицу площади подложки составляло 10^5 в каждой реализации.

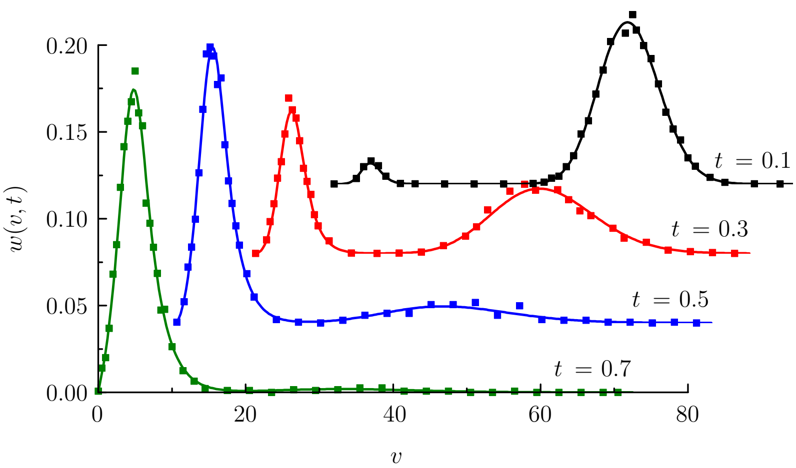

Рис. 2.2. Изменение функции плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров с течением времени ($a = 2$, $D_v = 2$, $\alpha = 0{,}2$, $J = 10^4$, распределение скоростей осаждаемых кластеров имеет вид $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$): результаты теоретического (линии) и численного (символы) расчета. Начальная плотность скорости $n_0\mathcal{N}_{[0;\infty)}(40,1)$ с $n_0 = 5 \cdot 10^4$.

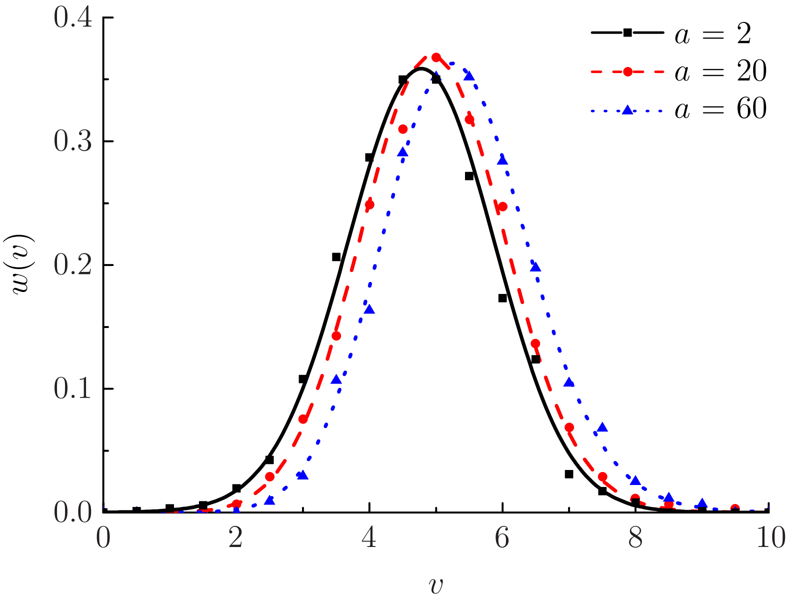

Рис. 2.3. Стационарная функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров при различных значениях параметра a при большом параметра захвата ($D_v = 2$, $\alpha = 20$, распределение скоростей осаждаемых кластеров $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$): результаты теоретического (линии) и численного (символы) расчета для следующих значений параметра a: $a = 2$ (сплошные линии и квадраты), $a = 20$ (прерывистые линии и круги), $a = 60$ (пунктирные линии и треугольники).

Сначала было рассмотрено изменение во времени функции плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров. Был рассмотрен случай, когда в начале рассмотрения на подложке уже находится некоторое количество движущихся кластеров. Начальное число этих кластеров, приходящихся на единицу площади подложки, составляло $n_0 = 5 \cdot 10^4$, а их распределение скоростей кластеров представляло собой обрезанное нормальное распределение $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(40, 1)$. Распределение скоростей осаждаемых кластеров имело вид $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$. Значения остальных параметров были следующими: $a = 2$, $D_v = 2$, $\alpha = 0{,}2$, $J = 10^4$. На рисунке 2.2 показано, что на достаточно больших временах ($t \sim 1$ при данных параметрах) информация о начальном распределении скоростей исчезает, и функция плотности распределения вероятностей стремится к стационарному распределению, зависящему от соотношения между осажденными и захваченными кластерами. Учитывая этот факт, в следующих вычислениях можно пренебречь начальным распределением скоростей и считать, что рассмотрение распределения скоростей свободных кластеров проводится по истечении достаточно продолжительного времени $t \gg 1/[(2\nu + 1)\sqrt{\alpha D_v}]$. В нижеприведенных вычислениях рассмотрение велось во временном интервале $[0, 5]$, а значение потока осаждаемых кластеров составляло $J = 2 \cdot 10^4$, чтобы сохранить значение общего числа кластеров в моделировании на уровне 10^5.

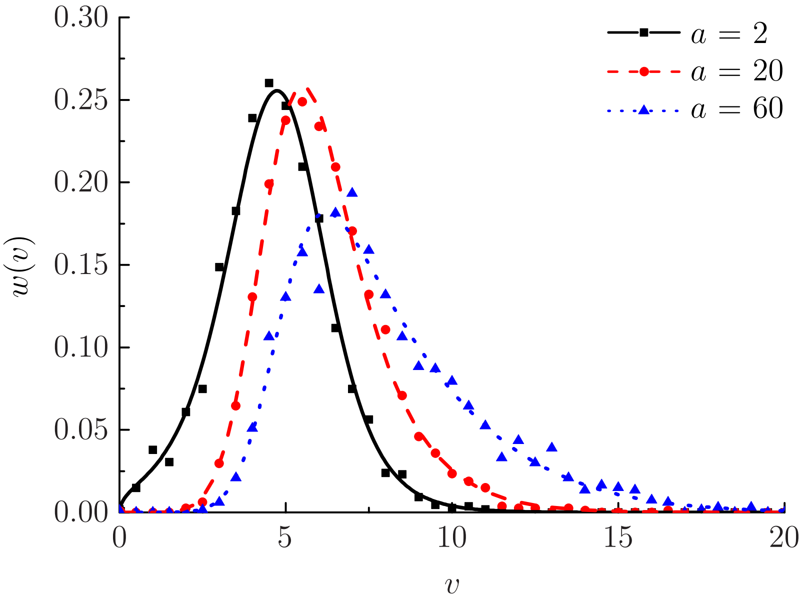

Рис. 2.4. Стационарная функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров при различных значениях параметра a при среднем значении параметра захвата ($D_v = 2$, $\alpha = 2$, распределение скоростей осаждаемых кластеров $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$): результаты теоретического (линии) и численного (символы) расчета для следующих значений параметра a: $a = 2$ (сплошные линии и квадраты), $a = 20$ (прерывистые линии и круги), $a = 60$ (пунктирные линии и треугольники).

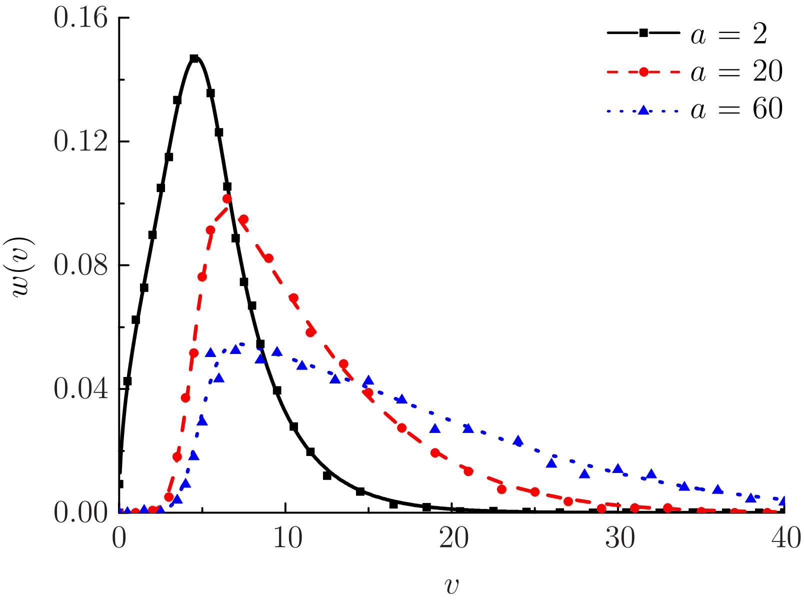

Рис. 2.5. Стационарная функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров при различных значениях параметра a при низком значении параметра захвата ($D_v = 2$, $\alpha = 0{,}2$, распределение скоростей осаждаемых кластеров $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$): результаты теоретического (линии) и численного (символы) расчета для следующих значений параметра a: $a = 2$ (сплошные линии и квадраты), $a = 20$ (прерывистые линии и круги), $a = 60$ (пунктирные линии и треугольники).

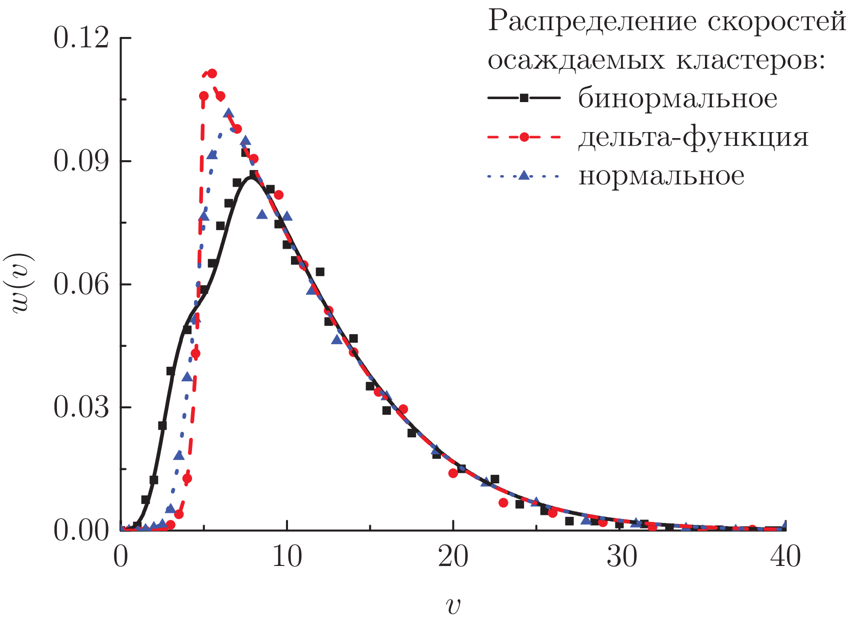

Рис. 2.6. Стационарная функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров для различных распределений скоростей осаждаемых кластеров при низком значении параметра захвата ($D_v = 2$, $\alpha = 0{,}2$, $a = 20$): результаты теоретического (линии) и численного (символы) расчета. Были использованы следующие распределения скоростей осаждаемых кластеров: бимодальная смесь положительных обрезанных нормальных распределений $1/2\mathcal{N}_{[0;\infty)}(3{,}1) + 1/2\mathcal{N}_{[0;\infty)}(7{,}1)$ (сплошные линии и квадраты), дельта-функция $\delta(v-5)$ (прерывистые линии и круги), положительное обрезанное нормальное распределение $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$ (пунктирные линии и треугольники).

На рисунках 2.3 – 2.5 показаны стационарные функции плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров при большом, среднем и низком значении параметра захвата ($\alpha/D_v = 10$; 1; 0,1, соответственно). Здесь $D_v = 2$, распределение скоростей осаждаемых кластеров является обрезанным нормальным распределением $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$. Результаты численного счета хорошо согласуются с функциями плотности распределения вероятностей, рассчитанными теоретически из уравнений (2.20) и (2.22). Отметим, что если значение параметра α/D_v достаточно велико (см. рисунок 2.3), влияние распределения скоростей осаждаемых кластеров значительно, в то время, как для низких значений параметра захвата конечный вид функции плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров мало схож с распределением скоростей осаждаемых кластеров (см. рисунок 2.5), так как среднее значение скорости возрастает. Данный эффект выражен более ярко для больших значений параметра a/D_v.

На рисунках 2.6 и 2.7 показаны стационарные функции плотности распределения вероятностей, полученные для различных распределений скоростей осаждаемых кластеров с одинаковым средним. Были использованы следующие распределения скоростей осаждаемых кластеров: дельта-функция $\delta(v-5)$, положительное обрезанное нормальное распределе-

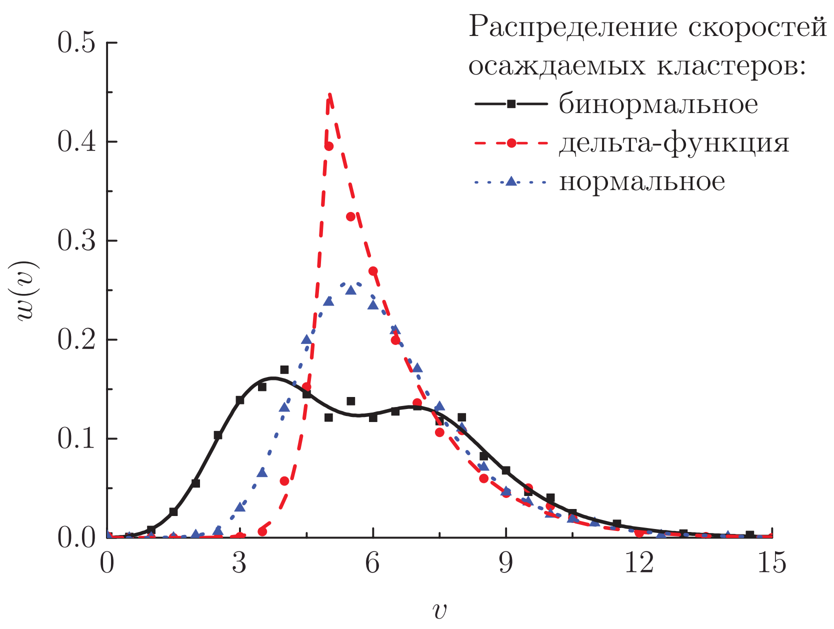

Рис. 2.7. Стационарная функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров для различных распределений скоростей осаждаемых кластеров при большом параметра захвата ($D_v = 2$, $\alpha = 2$, $a = 20$): результаты теоретического (линии) и численного (символы) расчета. Были использованы следующие распределения скоростей осаждаемых кластеров: бимодальная смесь положительных обрезанных нормальных распределений $1/2\mathcal{N}_{[0;\infty)}(3{,}1) + 1/2\mathcal{N}_{[0;\infty)}(7{,}1)$ (сплошные линии и квадраты), дельта-функция $\delta(v-5)$ (прерывистые линии и круги), положительное обрезанное нормальное распределение $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$ (пунктирные линии и треугольники).

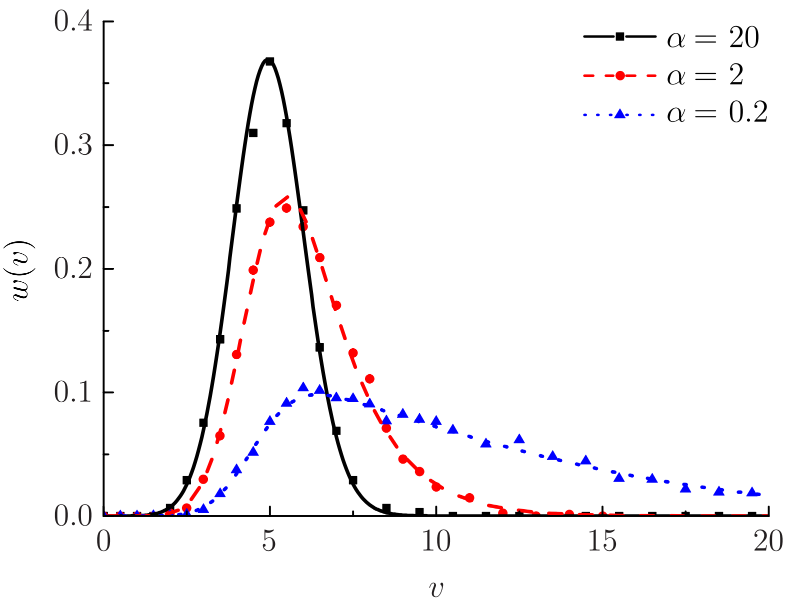

Рис. 2.8. Стационарная функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров при различных значениях параметра α ($D_v = 2$, $a = 2$, распределение скоростей осаждаемых кластеров $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$): результаты теоретического (линии) и численного (символы) расчета для следующих значений параметра α: $\alpha = 20$ (сплошные линии и квадраты), $\alpha = 2$, $\alpha = 0{,}2$ (пунктирные линии и треугольники).

ние $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$, бимодальная смесь положительных обрезанных нормальных распределений $1/2\mathcal{N}_{[0;\infty)}(3{,}1) + 1/2\mathcal{N}_{[0;\infty)}(7{,}1)$. Остальные параметры имели следующие значения: $D_v = 2$, $a = 2$, $\alpha = 0{,}2$ и 2 на рисунках 2.6 и 2.7, соответственно. Видно, что функции плотности распределения вероятностей совпадают на достаточно больших временах при небольших значениях параметра поглощения ($\alpha/D_v \ll a/D_v$) (см. рисунок 2.6), в то время, как при большом значении этого параметра ($\alpha/D_v \sim a/D_v$) стационарное распределение сохраняет основные черты распределения скоростей осаждаемых кластеров (см. рисунок 2.7). Наблюдаемый эффект связан с тем, что при низком значении эффективного поглощения кластеры движутся по подложке в течение продолжительного времени, и, поскольку изменение их скоростей в каждый момент времени происходит случайным образом, различия между разными распределениями скоростей осаждаемых кластеров сглаживаются. Таким образом, стационарное распределение скоростей кластеров в ансамбле долгоживущих кластеров слабо зависит от распределения скоростей осаждаемых кластеров.

Конкуренция между захватом кластеров и их диффузией в пространстве скоростей показана на рисунке 2.8. Были использованы следующие параметры: $D_v = 2$, $a = 2$, распределение скоростей осаждаемых кластеров $\mathcal{N}_{[0;\infty)}(5{,}1)$. Видно, что функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров становится тем шире, чем больше время жизни кластеров в ансамбле, также при этом увеличивается среднее значение скорости. Этот факт также связан с тем, что небольшая величина эффективного поглощения обеспечивает возможность более продолжительного движения кластера по подложке.

Заключение к главе 2.

В данной главе был рассмотрен ансамбль свободных кластеров, движущихся по плоской горизонтальной подложке и присоединяющихся к островкам. Было предложено уравнение для описания динамики скоростей кластеров из данного ансамбля; была получена функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров. Было проведено численное моделирование изменения скорости кластера при движении по подложке; результаты численного и теоретического расчета хорошо совпадают. Результаты были получены для различных значений параметров захвата и ускорения кластеров. Также расчеты были проведены для различных распределений скоростей осаждаемых кластеров, а именно, для распределения в виде дельта-функции, для положительного обрезанного нормального распределения и для бимодальной смеси положительных обрезанных нормальных распределений. Было показано, что при небольших значениях параметра поглощения стационарные функции плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров совпадают для различных распределений скоростей осаждаемых кластеров, в то время, как при большом значения этого параметра стационарное распределение сохраняет черты распределения для осаждаемых кластеров. Также было проанализировано влияние наличия на подложке в начале эксперимента движущихся кластеров: было показано, что на достаточно больших временах информация о начальном распределении скоростей пропадает, поэтому при рассмотрении стационарного распределения можно пренебречь начальным распределением скоростей кластеров.

Глава 3

Статистическая модель роста островков

В данной главе представлено описание роста островков из кластеров металлов на подложке из ВОПГ с помощью стохастического дифференциального уравнения $\dot{N} = N^{\gamma}\eta(t)$ [4], где N — размер островка (число кластеров в островке), $\eta(t)$ — случайный процесс с ненулевым средним, описывающий случайное присоединение кластеров к островку. Случайный процесс, как правило, является импульсным, и каждый импульс соответствует акту присоединения кластера к островку.

3.1 Теоретическое описание присоединения кластеров

Раздел посвящено описанию случайного присоединения кластера к островку. В подразделе 3.1.1 рассматриваются импульсные процессы, с помощью которых возможно описать присоединение одиночных кластеров для различных режимов их осаждения. В подразделе 3.1.2 была предложена модель импульсного процесса для описания задачи, в которой к островку могут присоединяться не только отдельные кластеры, но и островки из небольшого числа кластеров.

3.1.1 Присоединение одиночных кластеров

Данный подраздел посвящен описанию различных видов импульсных случайных процессов, которые были использованы в работе в качестве случайного процесса при описании роста островка. Сначала рассмотрены общие характеристики импульсного процесса, состоящего из дельта-импульсов, после чего проведен анализ обновляемых шумов (пуассоновского процесса без задержки и более общего случая с задержкой); в завершение раздела рассмотрен импульсный процесс с фиксированными точками.

Рассмотрим стохастический импульсный процесс $\eta(t)$, состоящий из дельта-импульсов с постоянной амплитудой f_0

$$\eta(t) = f_0 \sum_j \delta(t - t_j). \tag{3.1}$$

Данный случайный процесс характеризуется временным интервалом между двумя последовательными импульсами $\vartheta_j = t_j - t_{j-1}$, где ϑ — случайная величина, среднее значение которой стационарное и равно T.

Найдем спектральную плотность процесса, описываемого уравнением (3.1), для чего воспользуемся алгоритмом, предложенным в работе [101]. Рассмотрим импульсный стохастический процесс $\eta(t)$, состоящий из $2N+1$ дельта-функций, который может быть описан уравнением (3.1), где $j = [-N; N]$. Обозначим через $\mathcal{H}_N(\omega)$ преобразование Фурье от $\eta(t)$:

$$\mathcal{H}_N(\omega) = f_0 \sum_{j=-N}^{N} e^{-i\omega t_j}. \tag{3.2}$$

В соответствии с общим определением спектральной плотности мощности случайного процесса выражение для спектральной плотности мощности процесса $\eta(t)$ имеет вид

$$S_\eta(\omega) = \lim_{N\to\infty} \frac{2}{(2N+1)T} \left\langle |\mathcal{H}_N(\omega)|^2 \right\rangle \tag{3.3}$$

Для определения спектральной плотности мощности импульсного случайного процесса необходимо найти величину $\left\langle |\mathcal{H}_N(\omega)|^2 \right\rangle$:

$$\begin{aligned} \langle |\mathcal{H}_N(\omega)|^2 \rangle &= f_0^2 \left\langle \sum_{n=-N}^{N} \sum_{j=-N}^{N} e^{-i\omega(t_n - t_j)} \right\rangle = f_0^2 \sum_{n=-N}^{N} \sum_{j=-N}^{N} \Theta_{nj}(\omega) = \\ &= f_0^2 \left\{ (2N+1) + \sum_{m=1}^{2N} (2N+1-m) \left[\Theta_m(\omega) + \Theta_m(-\omega)\right] \right\}, \; m = n - j. \end{aligned} \tag{3.4}$$

Здесь $\Theta_{nj}(\omega)$ — характеристическая функция распределения временных интервалов между n-ым и j- ым импульсами. В данной работе рассматриваются такие случайные процессы, у которых вероятностные характеристики импульсов не зависят от того, какой из импульсов последовательности принят за нулевой. Для таких процессов характеристическая функция зависит только от разности номеров двух импульсов, поэтому оказывается возможным перейти от $\Theta_{nj}(\omega)$ к $\Theta_m(\omega)$.

В итоге, спектральная плотность мощности импульсного процесса выражается следующей формулой [101]:

$$S_\eta(\omega) = \frac{2f_0^2}{T}\left[1 + \sum_{m=1}^{\infty} \Theta_m(\omega) + \Theta_m(-\omega)\right], \tag{3.5}$$

где ряд $\sum\limits_{m=1}^{\infty} \Theta_m(\omega)$ сходится (строго говоря, предел в уравнении (3.5) может существовать в некоторых случаях, даже если ряд расходится).

Пуассоновский процесс

Начнем рассмотрение отдельных импульсных процессов с пуассоновского процесса [102]. Будем считать, что каждый импульс в сумме (3.1) возникает независимо от остальных. При этом времена появления импульсов и их число являются статистически независимыми случайными величинами. Будем считать, что появление каждого импульса в любой момент времени равновероятно. Распределение Пуассона характеризуется экспоненциальным распределением интервалов между соседними импульсами

$$w(\vartheta) = pe^{-p\vartheta}, \tag{3.6}$$

где p — вероятность появления импульса в единицу времени.

Пуассоновский процесс с задержкой

Перейдем к более общему описанию импульсных процессов, для чего добавим в систему некоторую задержку, возникающую после того, как появился новый импульс. В данной задаче каждый кластер движется независимо друг от друга, поэтому различные интервалы между импульсами в импульсном процессе, представляющем акты присоединения кластеров к островку, независимы друг от друга. В связи с этим фактом рассмотрение было проведено для обновляемых процессов.

Пуассоновский импульсный процесс с задержкой (ИППЗ) представляет собой обновляемый процесс с временной задержкой ϑ_0 после каждого импульса. В течение задержки новый импульс не может возникнуть. После окончания задержки вероятность появления следующего импульса в единицу времени p постоянна. Таким образом, задержка ϑ_0 представляет собой минимальный временной интервал между двумя соседними импульсами: $\vartheta_j \geq \vartheta_0$.

Введем параметр периодичности ϑ_0/T, характеризующий степень периодичности процесса. На графиках (a), (b), (c) рисунка 3.1 показаны три реализации пуассоновского процесса с задержкой при разных значениях параметра периодичности. С помощью ИППЗ можно

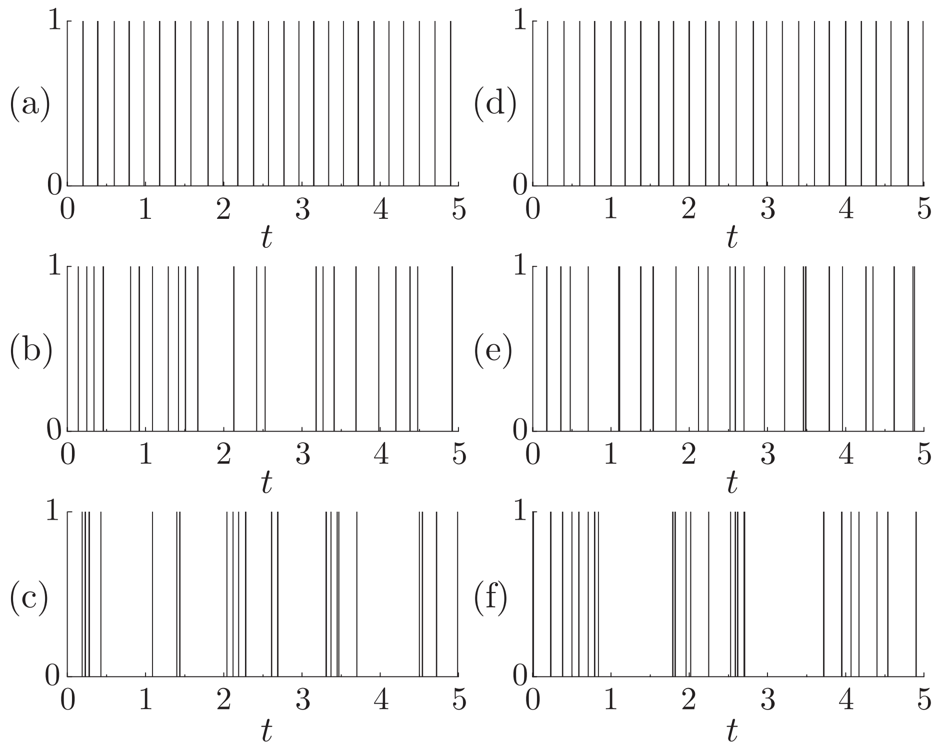

Рис. 3.1. ИППЗ (левый столбец) с $\vartheta_0/T = 0{,}9$ (a), 0,4 (b), 0 (c) и ИПФТ (правый столбец) с $\vartheta_T/T = 0{,}05$ (d), 0,3 (e), 4,9 (f), $T = 0{,}2$, $f_0 = 1$. Среднее $\langle\vartheta\rangle$ одинаково для всех процессов. Дисперсия распределения интервалов между соседними импульсами одинакова для процессов, находящихся в одном и том же ряду (например, (a) и (d)).

описывать источники шума с различной степенью случайности, изменяющейся от соответствующей белому шуму ($\vartheta_0/T = 0$)до квазипериодического процесса ($\vartheta_0/T \simeq 1$) [103].

Функция плотности распределения вероятностей для интервалов ϑ между соседними импульсами имеет следующий вид

$$w(\vartheta) = pe^{p(\vartheta_0-\vartheta)}, \tag{3.7}$$

где величина ϑ распределена в интервале $[\vartheta_0,\infty)$, а ее среднее и дисперсия выражаются как

$$\langle\vartheta\rangle = \vartheta_0 + \frac{1}{p},\ \ \sigma_\vartheta^2 = (T-\vartheta_0)^2. \tag{3.8}$$

Так как процесс является обновляемым, характеристическая функция для распределения интервалов ϑ обладает следующим свойством: $\Theta_m(\omega) = \Theta^m(\omega)$ — так как различные временные интервалы независимы. Легко видеть, что $\Theta(\omega) = pe^{i\omega\vartheta_0}/(p-i\omega)$. Используя уравнение (3.5), получим выражение для спектральной плотности ИППЗ (см. рисунок 3.2)

$$S_\eta(\omega) = \frac{2f_0^2}{T}\frac{1-|\Theta(\omega)|^2}{|1-\Theta(\omega)|^2} + \frac{4\pi f_0^2\delta(\omega)}{T^2}. \tag{3.9}$$

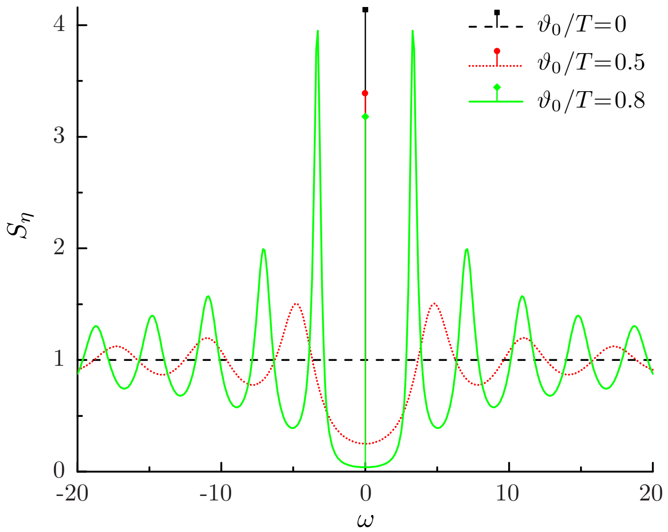

Рис. 3.2. Спектральная плотность ИППЗ для разных значений параметра периодичности ($T = 2,\ f_0 = 1$): $\vartheta_0/T = 0{,}8$ (сплошная зеленая линия и ромбы), $\vartheta_0/T = 0{,}5$ (пунктирная красная линия и круги), $\vartheta_0/T = 0$ (пунктирная черная линия и квадраты). Вертикальными линиями с символом соответствующей формы показаны дискретные части спектральной плотности, значения которых соответствуют амплитудам дельта-функций.

Используя представление характеристической функции через моменты, получим выражение для спектральной плотности процесса $\zeta(t) = \eta(t) - \langle\eta(t)\rangle$ при $\omega = 0$

$$S_\zeta(0) = \frac{2\sigma_\vartheta^2 f_0^2}{T^3}, \tag{3.10}$$

уменьшающееся с увеличением ϑ_0/T.

Корреляционная функция может быть записана в следующем виде [103]

$$K_\zeta(t) = \frac{f_0^2}{T}\left[\delta(t) + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{p^n(|t| - n\vartheta_0)^{n-1}}{(n-1)!} e^{-p(|t|-n\vartheta_0)} H(|t| - n\vartheta_0) - \frac{1}{T}\right], \tag{3.11}$$

где $H(x)$ — функция Хевисайда. На рисунке 3.3 видно, что время корреляции пуассоновского процесса с задержкой уменьшается с уменьшением ϑ_0/T.

Импульсный процесс с фиксированными точками

Рассмотрим другой тип импульсного процесса, известный как импульсный процесс с фиксированными точками (ИПФТ). В качестве одной из возможных технических реализаций ситуации, в которой акты присоединения кластеров к островку можно описывать с помощью ИПФТ, можно предложить режим импульсного напыления кластеров — тогда распределение временных интервалов между соседними импульсами будет связано с интервалами между актами напыления кластеров на подложку.

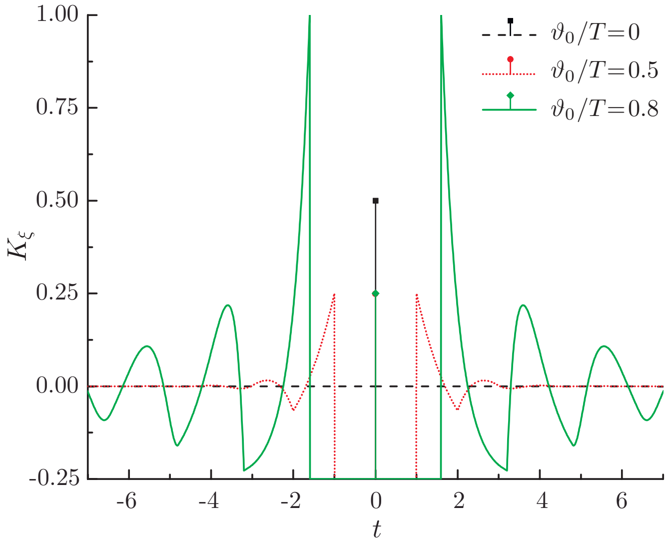

Рис. 3.3. Корреляционная функция пуассоновского процесса с задержкой для разных значений параметра периодичности ($T = 2,\ f_0 = 1$): $\vartheta_0/T = 0{,}8$ (сплошная зеленая линия и ромбы), $\vartheta_0/T = 0{,}5$ (пунктирная красная линия и круги), $\vartheta_0/T = 0$ (пунктирная черная линия и квадраты). Вертикальными линиями с символом соответствующей формы показаны дискретные части спектральной плотности, значения которых соответствуют амплитудам дельта-функций. Заметим, что дискретные части совпадают для $\vartheta_0/T = 0{,}8$ и $\vartheta_0/T = 0{,}5$.

ИПФТ задается следующим образом. Расположим точки на временной оси так, что между двумя соседними точками будет одинаковый интервал T. Каждый импульс моделируемой последовательности соответствует единственной точке и появляется в ее окрестности на расстоянии ν_n от нее. Здесь ν_n — случайная величина с характеристической функцией $\Theta_\nu(\omega)$. Таким образом, n-ый импульс возникает в момент времени $t_n = nT + \nu_n$. ИПФТ характеризуется плотностью распределения вероятностей ν; характеристическая функция для временного интервала между n-ым и j-ым импульсом имеет вид $\Theta_m(\omega) = e^{-i\omega mT} \left|\Theta_\nu(\omega)\right|^2,\ m = n - j$.

Плотность распределения вероятностей для положений импульса внутри некоторого временного интервала длиной $\vartheta_T \le T$ записывается как

$$w(\nu) = \frac{1}{\vartheta_T},\ |\nu| \le \frac{\vartheta_T}{2} \tag{3.12}$$

и $\Theta_\nu(\omega) = \mathrm{sinc}(\omega\vartheta_T/2)$. Отношение ϑ_T/T характеризует степень периодичности процесса.

Плотность распределения вероятностей для временных интервалов ϑ между двумя соседними импульсами описывается следующим выражением

$$w(\vartheta) = \frac{\vartheta_T - |\vartheta - T|}{\vartheta_T^2},\ \ |\vartheta - T| \le \vartheta_T. \tag{3.13}$$

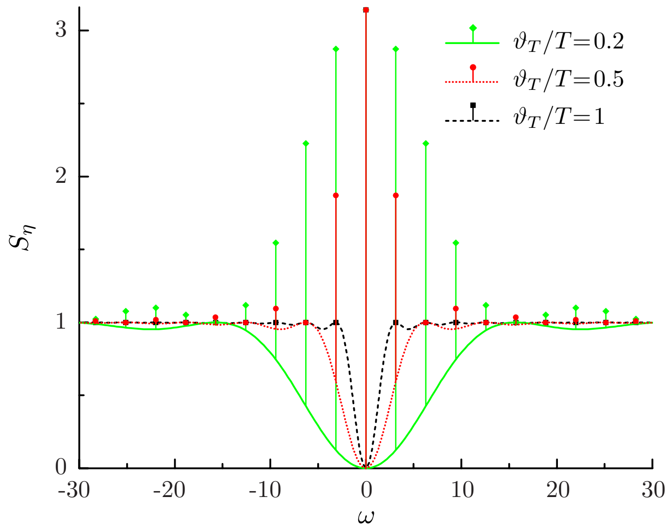

Рис. 3.4. Спектральная плотность ИПФТ для различных значений интервала ϑ_T ($T = 2$, $f_0 = 1$): $\vartheta_T/T = 0{,}2$ (сплошная зеленая линия и ромбы), $\vartheta_T/T = 0{,}5$ (пунктирная красная линия и круги), $\vartheta_T/T = 1$ (пунктирная черная линия и квадраты). Вертикальными линиями с символом соответствующей формы показаны дискретные части спектральной плотности, значения которых соответствуют амплитудам дельта-функций.

Среднее и дисперсия интервалов между соседними импульсами имеют вид, соответственно,

$$\langle\vartheta\rangle = T,\ \sigma_\vartheta^2 = \frac{\vartheta_T^2}{6}. \tag{3.14}$$

ИПФТ, как и описанный в предыдущем подразделе ИППЗ, может быть применен для моделирования стохастических процессов с разной степенью случайности. На рисунках 3.1(d), 3.1(e), 3.1(f) данный процесс показан при разных значениях ϑ_T/T. Несмотря на внешнее сходство с пуассоновским импульсным процессом с задержкой, можно отметить существенное отличие его корреляционных свойств от свойств импульсного процесса с фиксированными точками; также различным будет влияние этих импульсных процессов на решение СДУ, в которое они включены в качестве мультипликативного шума.

Используя уравнения (3.3) и (3.4), получим выражение для спектральной плотности импульсного процесса с фиксированными точками

$$S_\eta(\omega) = \frac{2f_0^2}{T}\left[1 - |\Theta_\nu(\omega)|^2 + \frac{2\pi}{T}|\Theta_\nu(\omega)|^2 \sum_{n=-\infty}^{\infty} \delta\left(\omega - \frac{2\pi n}{T}\right)\right]. \tag{3.15}$$

Спектральная плотность состоит из гребня Дирака или Ш-функции Ш $\left(\frac{\omega T}{2\pi}\right)$ (дискретная часть) и непрерывной части (см. рисунок 3.4). Стоит отметить, что $S_\varsigma(0) = 0$ всегда для этого типа шума.

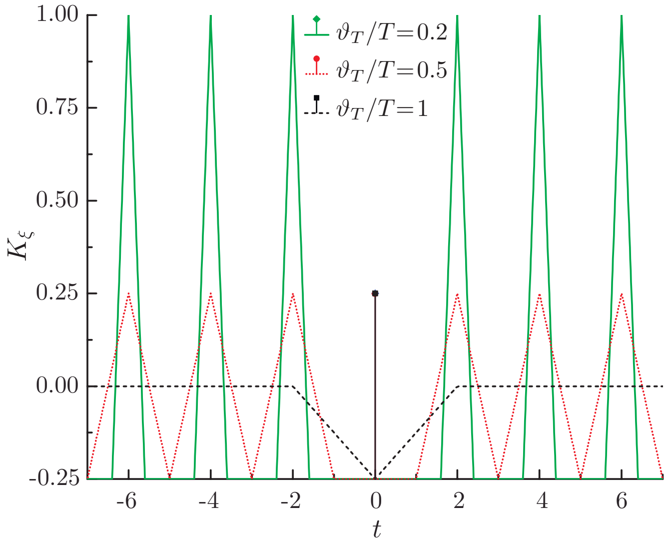

Рис. 3.5. Корреляционная функция процесса с фиксированными точками для различных значений интервала ϑ_T ($T = 2$, $f_0 = 1$): $\vartheta_T/T = 0{,}2$ (сплошная зеленая линия и ромбы), $\vartheta_T/T = 0{,}5$ (пунктирная красная линия и круги), $\vartheta_T/T = 1$ (пунктирная черная линия и квадраты). Вертикальными линиями с символом соответствующей формы показаны дискретные части спектральной плотности, значения которых соответствуют амплитудам дельта-функций. В данном случае дискретные части совпадают для всех трех случаев.

Корреляционная функция импульсного процесса с фиксированными точками выглядит следующим образом

$$K_\zeta(t) = \frac{f_0^2}{T}\left[\delta(t) + \frac{1}{\vartheta_T}\sum_{\substack{n=-\infty\\ n\neq 0}}^{\infty} \Lambda\left(\frac{t-nT}{\vartheta_T}\right) - \frac{1}{T}\right], \tag{3.16}$$

где $\Lambda(x)$ — треугольная функция. На рисунке 3.5 видно, что время корреляции бесконечно для всех случаев, кроме $\vartheta_T/T = 1$.

3.1.2 Присоединение небольших островков

Влияние подвижности небольших островков на динамику роста наноструктур редко подвергается анализу в связи с тем, что подвижность островков сложно учесть в рамках распространенного теоретического метода описания роста островка с помощью кинетических уравнений. Таким образом, во многих работах считалось, что островки, особенно растущие за счет присоединения атомов, а не кластеров, являются практически неподвижными, по крайней мере, в большинстве гомоэпитаксиальных систем [59]. Однако, следует выделить несколько работ, где было показано влияние мобильности островков для случая, когда между присоединяющимися островками отсутствует слияние и не учитывается испарение с подложки. Влияние оказывается следующим: во-первых, изменяется критическая плотность островков на подложке, при которой отмечается насыщение (иначе говоря, максимальное значение плотности островков) [86, 104–106]; было показано, что она может быть найдена с помощью формулы $N_{sat} = 0{,}3(F/D)^{0{,}42}$, если все островки подвижны, причем подвижность обратно пропорциональна их размеру [86]. Во-вторых, насыщение плотности островков достигается при очень низких значениях степени покрытия подложки [86]. Это явление может быть объяснено динамическим равновесием между двумя процессами: формированием островков и слиянием, происходящим при низких значениях степени покрытия благодаря диффузии островков. В случае, когда движение присуще только мономерам, а более крупные образования неподвижны, островки могут сливаться только при достаточно высоких значениях степени покрытия подложки (примерно 10–15% [28, 34]); такая коалесценция называется статической. Соответственно, при этих же значениях степени покрытия плотность островков на подложке достигает насыщения. В случае, когда островки тоже способны перемещаться, так называемая динамическая коалесценция начинается в начале процесса роста, и баланс, и, соответственно, насыщение, достигается при очень низких значениях степени покрытия (в [86] приводится оценка покрытия 0,25%). Также стоит отметить, что подвижность островков сужает распределение размеров островков [106, 107].

Перейдем к теоретическому описанию возможности присоединения небольших подвижных островков к большим. Пусть кластер или небольшой островок, состоящий из нескольких кластеров, присоединяется к большому островку в момент времени t_i. Этот процесс может быть представлен в виде импульсного процесса

$$\rho(t) = \sum_i f_i \delta(t_i - t). \tag{3.17}$$

Каждый импульс соответствуют захвату частицы (кластера или небольшого островка), амплитуда i-го импульса f_i пропорциональна числу кластеров в частице, присоединяющейся в момент времени t_i; таким образом, размер большого островка, иными словами, число кластеров в нем N изменяется: $\dot{N} = \rho(t)$. Этот импульсный процесс является пуассоновским процессом; расстояние между импульсами определяется вероятностью присоединения частицы в единицу времени. Данный процесс — нестационарный, так как вероятность присоединения зависит от периметра большого островка, к которому присоединяется частица, и, соответственно, от размера островка и возрастает как νN^γ, где ν постоянна (см. подробнее в разделе 3.2.1). Рассмотрен дельта-коррелированный импульсный процесс, определяющийся двумя параметрами: средним значением $\langle\rho\rangle = \langle f\rangle \nu N^\gamma$ и постоянной спектральной плотностью $S_\rho = \langle f^2 \rangle \nu N^\gamma$. Оба указанных выше параметра пропорциональны N^γ — таким образом, можно заменить аддитивный нестационарный процесс на мультипликативный стационарный процесс $\rho(t) = N^\gamma \eta(t)$ с параметрами $\langle \eta \rangle = \langle f \rangle \nu$ и $S_\eta = \langle f^2 \rangle \nu$. Средний временной интервал между импульсами обозначается переменной T.

Пусть небольшой движущийся островок содержит $\mathfrak{n}$ кластеров. Критический размер островка, при котором он еще способен перемещаться по подложке, ограничен величиной $\mathcal{N}$. Чтобы проанализировать влияние подвижности небольших островков на скорость роста больших островков, будем считать, что островки диффундируют так же, как и кластеры. Влияние диффузии кластеров на распределение размеров островков было проанализировано для случае необратимого роста компактных островков на двумерной подложке; было предложено несколько механизмов диффузии больших частиц на твердых поверхностях [108–113]. В работах показано, что коэффициент диффузии частицы зависит от размера частицы как $D \sim \mathfrak{n}^{-\mu}$, где D — коэффициент диффузии. В частности, были рассмотрены следующие случаи:

1. диффузия, вызванная нескоррелированным испарением и конденсацией ($\mu = 1/2$); этот случай соответствует броуновской двумерной диффузии;
2. диффузия, вызванная скоррелированным испарением и конденсацией ($\mu = 1$);
3. диффузия, вызванная граничной диффузией ($\mu = 3/2$).

В работе [114], где задача изучалась методом молекулярной динамики, было получено значение $\mu = 2/3$. Модель броуновской диффузии также подходит для описания движения островков, состоящих из кластеров.

В данной работе, как будет подробнее показано в разделе 3.2.2, рассмотрены два механизма роста островков. Первый механизм — это движение границы большого островка в результате роста. В этом случае вероятность захвата частицы пропорциональна c. Второй механизм связан с диффузией и последующим присоединением маленьких островков к границе большого. В соответствии с уравнениями, приведенными в разделе 3.2.1, вероятность того, что рост островка произойдет из-за присоединения к нему небольшого островка в результате диффузии последнего, пропорциональна $\mathfrak{n}^{-\mu/2}$. Таким образом, итоговое выражение для стационарного импульсного процесса, описывающего присоединение частиц к растущему островку, выглядит следующим образом

$$\eta(t) = f_0 \sum_i \mathfrak{n}_i \delta(t_i - t), \tag{3.18}$$

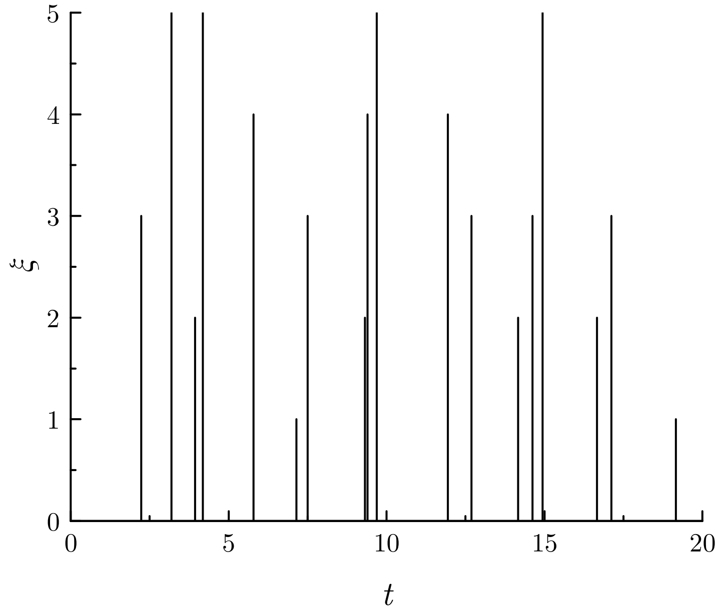

Рис. 3.6. Реализация импульсного случайного процесса $\xi(t)$ с распределением вероятности для амплитуд (3.19) ($T = 1,\ f_0 = 1,\ \mathcal{N} = 5,\ \mu = 2/3,\ c = 3^{-\frac{1}{3}}$).

где распределение вероятности для амплитуд импульсов $\mathfrak{n}_i$

$$P(\mathfrak{n}) = \frac{1}{\mathcal{N}c + H_{\mathcal{N}}^{(\mu/2)}} \left(c + \mathfrak{n}^{-\mu/2}\right). \tag{3.19}$$

Здесь $\left(\mathcal{N}c + H_{\mathcal{N}}^{(\mu/2)}\right)^{-1}$ — нормировочный коэффициент, $H_{\mathcal{N}}^{(\nu)} = \sum_{k=1}^{\mathcal{N}} k^{-\nu}$ — обобщенное гармоническое число [98] и $\mathfrak{n} \leq \mathcal{N}$.

В то же время вероятность встретить небольшой островок вблизи границы большого островка с дендритной структурой уменьшается с увеличением размера небольшого островка не только из-за того, что подвижность островка снижается, но также из-за фактора соревновательности.

В качестве дополнительного механизма уменьшения этой вероятности в работе [115] было высказано предположение, что корреляция между расположением островков влияет на скорость коалесценции. Островки «избегают» друг друга в процессе нуклеации, тем самым уменьшая скорость коалесценции при низких значениях степени покрытия подложки. Таким образом, коалесценция начинается при более высоких значениях степени покрытия, и когда этот процесс наконец начинается, он происходит быстрее, чем в случае отсутствия корреляций.

В данной работе для моделирования этих корреляций было использовано геометрическое распределение вероятности для размера захваченной большим островком частицы

$$P(\mathfrak{n}) = p(1-p)^{\mathfrak{n}-1}. \tag{3.20}$$

По сравнению с выражением для плотности распределения вероятностей (3.19) распределение (3.20) соответствует более быстрому убыванию вероятности присоединения с увеличением размера присоединяющейся частицы.

3.2 Динамика роста островков

В процессе формирования наноструктур на подложке можно выделить несколько стадий. На ранних стадиях островки растут за счет присоединения кластеров, также в это время увеличивается число островков на поверхности. На более поздних этапах роста плотность числа островков достигает максимума и остается практически постоянной в некотором диапазоне значений степени покрытия подложки (в работе [28] для модели, описывающий рост островков из атомов, указывается значение около 15%, в работе [54], касающейся кластеров сурьмы, указывается, что максимум плотности числа островков достигается при покрытии 10% площади подложки, однако в диапазоне от 5% до 15% плотность числа островков можно считать практически постоянной). В рассматриваемом в работе режиме число островков достигло постоянного значения, и производится анализ роста уже сформированных островков.

Процесс роста островка в результате захвата диффундирующих кластеров и островков имеет стохастическую природу. В связи с этим размер островка рассматривается как нестационарная случайная величина. Изменение числа кластеров в островке описывается стохастическим дифференциальным уравнением.

Для получения теоретического описания роста островка были учтены следующие предположения:

– рассматриваемая задача двумерная (не рассматривается рост островков вверх, предполагаем, что падающие на них сверху кластеры в процессе диффузии покидают поверхность островка, присоединяясь к его границе);

– кластеры присоединяются только к границе островка;

– после присоединения кластер не отделяется от островка;

– нет диффузии кластера вдоль границы островка;

– не описываются поздние стадии роста, когда рассматриваемый островок дорастает до соседнего большого островка и присоединяется к нему;

– не происходит распад островка.

При описании роста островков допустимо пренебречь внутренней структурой кластера и рассматривать его как не имеющую внутренней структуры классическую частицу.

В разделе 3.2.1 рассматривается более ранняя стадия роста островка, когда к островкам присоединяются только кластеры. В разделе 3.2.2 будет показано, что происходит на следующем этапе, когда островки достаточно велики для того, чтобы в описании их роста необходимо было учитывать присоединение к ним небольших диффундирующих островков. Диффузия больших островков не рассматривается [54]. Также необходимо отметить, что в данной работе не рассматривается процесс образования зародышей островков и изучается рост уже сформированных островков.

3.2.1 Влияние присоединения одиночных кластеров на динамику роста островка

Базовая модель

В работах [28,70,72,116] авторы рассматривали отдельный неподвижный островок круглой формы, растущий на двумерном субстрате за счет захвата диффундирующих кластеров. Для анализа концентрации кластера используется квазистатическое приближение, так как изменение границы островка за среднее время диффузии кластера пренебрежимо мало.

Пусть $N(t)$ — количество кластеров в островке (иначе говоря, размер островка, поскольку рассматриваемая модель является двумерной). Скорость роста островка зависит от потока кластеров через его границу $\dot{N} = \mathcal{P}(N,t)$. Средний поток $\Pi(t) = \langle \mathcal{P}(N,t) \rangle$. Получим выражение для этого потока, для чего рассмотрим отдельный неподвижный круглый островок, растущий за счет присоединения к нему диффундирующих по подложке кластеров. Используем квазистатическое приближение [117] для рассмотрения концентрации кластеров. Уравнение диффузии может быть решено точно в соответствии с граничным условием для неподвижной границы. Используя закон сохранения массы для общего периметра растущего островка, получим выражение для скорости роста движущейся границы. Задача рассматривается в предположении, что если кластер был осажден на поверхность островка, он будет диффундировать по ней, пока не достигнет границы островка, после чего, упав с поверхности островка на подложку, присоединится к границе островка, увеличивая его размер. Также кластеры могут испаряться с подложки с постоянной скоростью.

Уравнение диффузии для концентрации кластеров при условии наличия поглощающей границы может быть записано в виде

$$\frac{\partial c_i(r,t)}{\partial t} = D_i \Delta_2 c_i(r,t) + J - \frac{c_i(r,t)}{\tau_i} \tag{3.21}$$

с начальными и граничными условиями

$$\begin{aligned} c_i(r,0) &= 0, \\ c_i(R,t) &= 0, \\ \left.\frac{\partial c_1}{\partial r}\right|_{r=0} &= 0, \\ c_2(\infty,t) &< \infty. \end{aligned} \tag{3.22}$$

Здесь $c_i(r,t)$ — концентрация кластеров, D_i — коэффициенты диффузии, индексы $i = 1$ и $i = 2$ соответствуют диффузии по поверхности островка и подложки, J — поток осажденных кластеров, R — радиус островка, τ_i — время жизни, которое может быть представлено как $\tau_i = \left(\tau_{e_i}^{-1} + \tau_{d_i}^{-1}\right)^{-1}$, где τ_{e_i} — среднее время испарения, и τ_{d_i} — среднее время диффузии, т.е. время, проходящее с момента осаждения кластера до его присоединения к другому кластеру или островку. Величина τ_d зависит от времени, но в данной задаче предполагается, что она медленно изменяется со временем, в связи с чем она считается постоянной.

Изменение размера островка задается уравнением

$$\frac{dR}{dt} = \frac{\Pi(t) s_0}{2\pi R}, \tag{3.23}$$

$$\Pi(t) = \oint\limits_C \left(D_2 \frac{\partial c_2}{\partial r} - D_1 \frac{\partial c_1}{\partial r} \right) dl = 2\pi R \left(D_2 \frac{\partial c_2}{\partial r} - D_1 \frac{\partial c_1}{\partial r} \right)\Bigg|_{r=R(t)}, \tag{3.24}$$

где C — граница островка, и s_0 — эффективное увеличение площади островка, вызванное присоединением одного кластера.

Для решения задачи (3.21)–(3.22) введем преобразование Лапласа для концентраций

$$\bar{c}_i(r,p) = \int\limits_0^\infty e^{-pt} c_i(r,t) dt, \tag{3.25}$$

удовлетворяющее уравнениям

$$D_i \frac{1}{r}\frac{\partial}{\partial r}\left(r\frac{\partial \bar{c}_i}{\partial r}\right) - \left(p + \frac{1}{\tau_i}\right)\bar{c}_i = -\frac{J}{p}, \tag{3.26}$$

с граничными условиями

$$\begin{gathered} \bar{c}_i(R,p) = 0, \\ \left.\frac{\partial \bar{c}_1}{\partial r}\right|_{r=0} = 0, \\ \bar{c}_2(\infty,p) < \infty. \end{gathered} \tag{3.27}$$

Общее решение уравнения (3.26) имеет вид

$$\bar{c}_i(r,p) = \frac{J}{p(p+\tau_i^{-1})} + A_i(p)I_0(q_i r) + B_i(p)K_0(q_i r), \tag{3.28}$$

где $q_i = \sqrt{\frac{p+\tau_i^{-1}}{D_i}}$; $I_0(z)$ и $K_0(z)$ — функции Инфельда и Макдональда нулевого порядка. Используя уравнение (3.27), получим

$$\bar{c}_1(r,p) = \frac{J}{p(p+\tau_1^{-1})}\left[1 - \frac{I_0(q_1 r)}{I_0(q_1 R)}\right], \tag{3.29}$$

$$\bar{c}_2(r,p) = \frac{J}{p(p+\tau_2^{-1})}\left[1 - \frac{K_0(q_2 r)}{K_0(q_2 R)}\right]. \tag{3.30}$$

Подставляя уравнения (3.29) и (3.30) в уравнение (3.24), получим

$$\bar{\Pi}(p) = \frac{2\pi RJ}{p}\left[\frac{1}{q_1}\frac{I_1(q_1R)}{I_0(q_1R)} + \frac{1}{q_2}\frac{K_1(q_2R)}{K_0(q_2R)}\right]. \tag{3.31}$$

Используя [118, 119], получим

$$\begin{aligned} \bar{\Pi}(t) = 2\pi RJ \Bigg[&\sqrt{D_1\tau_1}\frac{I_1\left(\frac{R}{\sqrt{D_1\tau_1}}\right)}{I_0\left(\frac{R}{\sqrt{D_1\tau_1}}\right)} + \sqrt{D_2\tau_2}\frac{K_1\left(\frac{R}{\sqrt{D_2\tau_2}}\right)}{K_0\left(\frac{R}{\sqrt{D_2\tau_2}}\right)} \\ &- 2R\sum_{n=1}^{\infty}\frac{e^{-\frac{D_1 t}{R^2}\left(\gamma_n^2 + \frac{R^2}{D_1\tau_1}\right)}}{\gamma_n^2 + \frac{R^2}{D_1\tau_1}} - \frac{4R}{\pi^2}\int_0^{\infty}\frac{e^{-\frac{D_2 t}{R^2}\left(u^2 + \frac{R^2}{D_2\tau_2}\right)}du}{u\left[u^2 + \frac{R^2}{D_2\tau_2}\right]\left[J_0^2(u) + Y_0^2(u)\right]}\Bigg], \end{aligned} \tag{3.32}$$

где γ_n — корни уравнения $J_0(\gamma_n) = 0$. Для вычисления интеграла в последнем слагаемом, относящегося к интегралам типа Ягера, можно обратиться, к примеру, к работе [120].

Квазистатическое приближение (3.32) приводит к правильному решению при $R(t) \ll \sqrt{D_i t}$ [117]. Тогда полный поток кластеров через границу островка можно записать в следующем виде

$$\bar{\Pi}(t) = 2\pi RJ \left[\sqrt{D_1\tau_1} \frac{I_1\left(\frac{R}{\sqrt{D_1\tau_1}}\right)}{I_0\left(\frac{R}{\sqrt{D_1\tau_1}}\right)} + \sqrt{D_2\tau_2} \frac{K_1\left(\frac{R}{\sqrt{D_2\tau_2}}\right)}{K_0\left(\frac{R}{\sqrt{D_2\tau_2}}\right)} \right]. \tag{3.33}$$

В режиме, когда островок настолько велик, что $R \gg \sqrt{D_i\tau_i}$, можно упростить уравнение (3.33)

$$\bar{\Pi}(t) = 2\pi RJ \left[\sqrt{D_1\tau_1} + \sqrt{D_2\tau_2} \right]. \tag{3.34}$$

В уравнении (3.34) учитываются кластеры, осаждающиеся на другие островки. Эти островки не могут участвовать в процессе роста рассматриваемого островка, в связи с чем уравнение должно быть изменено следующим образом

$$\bar{\Pi}(t) = 2\pi RJ \left[\sqrt{D_1\tau_1} + (1-\Theta)\sqrt{D_2\tau_2} \right], \tag{3.35}$$

где Θ — степень покрытия подложки.

Параметр захвата может быть представлен как

$$\sigma_s = \frac{\bar{\Pi}(t)}{D\langle c\rangle}, \tag{3.36}$$

где $\langle c\rangle$ — концентрация кластеров вдали от островка. Видно, что выражения (3.33) и (3.36) согласуются с уравнениями, представленными в работах [35, 36] ($\langle c\rangle = c(\infty,t) = J\tau_d$ в отсутствии процесса, приводящего к отделению кластеров от островка).

В работе [72] для некруглых островков было предложено заменить радиус R в уравнении (3.35) на эффективный радиус, соответствующий структуре островка. При низких температурах или в отсутствие краевой диффузии, когда на подложке растут островки с дендритной структурой, эффективный радиус имеет степенную зависимость от площади островка $s(N)$

$$R_{eff} \sim s(N)^\gamma,$$

где N — число кластеров в островке. Важно отметить, что эффективный радиус пропорционален периметру островка.

Параметр $\gamma \in [1/2, 1)$ характеризует степень ветвистости островка (рисунок 3.7). Если $\gamma = 1/2$, островок имеет компактную форму. Если $\gamma \to 1$, островок представляет собой

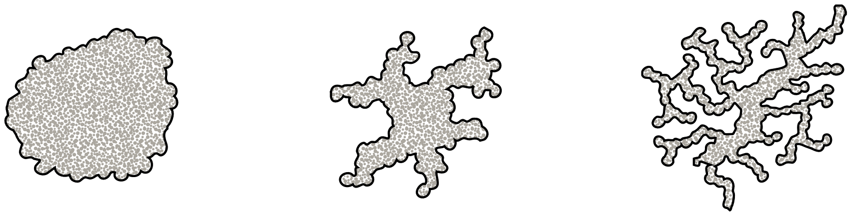

Рис. 3.7. Примеры островков, различающиеся параметром ветвистости γ.

дендритную структуру с тонкими ветвями, толщина каждой ветви стремится к размеру одиночного кластера. Необходимо отметить, что γ^{-1} соответствует фрактальной размерности островка [121]. Параметр γ определяется как

$$\gamma = \lim_{N\to\infty} \frac{\ln P(N)}{\ln s(N)}, \tag{3.37}$$

где $P(N)$ — периметр островка.

В итоге получаем

$$\Pi(t) \sim s^{\gamma} J \left[\sqrt{D_1\tau_1} + (1-\Theta)\sqrt{D_2\tau_2}\right]. \tag{3.38}$$

Таким образом, поскольку кластеры присоединяются только к границе островка, скорость роста островка зависит от длины его границы, и, в итоге, можно записать следующее выражение для изменения периметра островка

$$\Pi(t) \sim N^{\gamma} \left[\sqrt{D_1\tau_1} + (1-\Theta)\sqrt{D_2\tau_2}\right]. \tag{3.39}$$

Предполагается, что на рассматриваемом этапе роста γ не изменяется с течением времени [111, 122]. Для дендритной структуры это означает, что средняя толщина ветвей увеличивается по мере роста островка. Таким образом, стохастическое дифференциальное уравнение, описывающее размер островка, может быть записано следующим образом

$$\dot{N} = N^{\gamma}\eta(t), \tag{3.40}$$

где $\eta(t)$ — случайный процесс, зависящий от потока кластеров и коэффициента диффузии кластеров на подложке. Поскольку рассматривается необратимый рост, изменение размера островка может быть только неотрицательным, в связи с чем $\eta(t)$ может принимать только неотрицательные значения. Уравнение (3.40) рассматривается в приближении Стратоновича [123, 124].

Рассмотрим следующее СДУ

$$\frac{dx}{dt} = x^{\gamma}\eta_w(t), \quad x \in \mathbb{R}^+, \tag{3.41}$$

где $\eta_w(t)$ — стационарный гауссовский белый шум со средним $\langle \eta_w(t) \rangle = a > 0$ и автокорреляционной функцией $\langle \eta_w(t)\_w(t+\tau) \rangle = 2K\delta(\tau) + a^2$.

Соответствующее уравнение Фоккера-Планка для функции плотности распределения вероятностей $w(x,t)$ записывается как [123]

$$\frac{\partial w(x,t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x}\left[\left(ax^{\gamma} + K\gamma x^{2\gamma-1}\right)w(x,t)\right] + \frac{\partial^2}{\partial x^2}\left[Kx^{2\gamma}w(x,t)\right]. \tag{3.42}$$

Функция $w(x,t)$ удовлетворяет начальному и граничным условиям

$$\begin{aligned} w(x,0) = \psi(x), \\ \left[\left(ax^{\gamma} - K\gamma x^{2\gamma-1}\right)w - Kx^{2\gamma}\frac{\partial w}{\partial x}\right]_{x=0} = 0, \\ \lim_{x\to\infty}\left[\left(ax^{\gamma} - K\gamma x^{2\gamma-1}\right)w - Kx^{2\gamma}\frac{\partial w}{\partial x}\right] = 0. \end{aligned} \tag{3.43}$$

Здесь $\psi(x)$ — неотрицательная функция, удовлетворяющая условию нормировки и обеспечивающая согласование начальных и граничных условий. В соответствии с граничными условиями поток вероятности исчезает на границах $x = 0$ и $x = \infty$.

Переходя к новой переменной $\xi = x^{1-\gamma}/(1-\gamma)$, преобразуем уравнение (3.42) к виду

$$\frac{\partial w}{\partial t} = -a\frac{\partial w}{\partial \xi} + K\frac{\partial^2 w}{\partial \xi^2}. \tag{3.44}$$

Соответствующие начальные и граничные условия задаются следующими выражениями

$$\begin{aligned} w(\xi,0) = \chi(\xi) \equiv \psi(x(\xi))\left[(1-\gamma)\xi\right]^{\frac{\gamma}{1-\gamma}}, \\ \left[\frac{\partial w}{\partial \xi} - \frac{aw}{K}\right]_{\xi=0} = 0, \\ \lim_{\xi\to\infty}\left[\frac{\partial w}{\partial \xi} - \frac{aw}{K}\right] = 0. \end{aligned} \tag{3.45}$$

Решение третьей краевой задачи для параболического уравнения (3.44) с условиями (3.45) может быть получено с помощью преобразования Лапласа [125]. Переходя обратно к переменной x, получим решение уравнения (3.42)

$$w(x,t) = x^{-\gamma}\int\limits_0^\infty \left[\frac{1}{\sqrt{4\pi K t}} e^{-\frac{a^2 t}{4K} + \frac{a\left(x^{1-\gamma}-\zeta^{1-\gamma}\right)}{2K(1-\gamma)}} \left(e^{-\frac{\left(x^{1-\gamma}-\zeta^{1-\gamma}\right)^2}{4K(1-\gamma)^2 t}} + e^{-\frac{\left(x^{1-\gamma}+\zeta^{1-\gamma}\right)^2}{4K(1-\gamma)^2 t}}\right) - \frac{a}{2K} e^{\frac{a x^{1-\gamma}}{K(1-\gamma)}} \operatorname{erfc}\left(\frac{a(1-\gamma)t + x^{1-\gamma} + \zeta^{1-\gamma}}{\sqrt{4K(1-\gamma)^2 t}}\right)\right]\psi(\zeta)d\zeta. \quad (3.46)$$

Получим аналитическое выражение для моментов x. Проинтегрируем по x произведение степенной функции и первых двух слагаемых подынтегрального выражения для плотности распределения вероятностей (3.46) [99]. Третье слагаемое подынтегрального выражения интегрируем по частям, используя разложение неполной гамма-функции [97]. В итоге,

$$\mu_n(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\left[2K(1-\gamma)^2 t\right]^{\frac{n}{2-2\gamma}} \Gamma\left(\frac{n}{1-\gamma}+1\right) \times \int\limits_0^\infty \left[e^{-\frac{\left(a(1-\gamma)t+\zeta^{1-\gamma}\right)^2}{8K(1-\gamma)^2 t}} D_{-\frac{n}{1-\gamma}-1}\left(-\frac{a(1-\gamma)t+\zeta^{1-\gamma}}{\sqrt{2K(1-\gamma)^2 t}}\right) + e^{-\frac{\left(a(1-\gamma)t-\zeta^{1-\gamma}\right)^2}{8K(1-\gamma)^2 t} - \frac{a\zeta^{1-\gamma}}{K(1-\gamma)}} \sum_{k=0}^{\infty}\left(-\frac{2at}{\sqrt{2Kt}}\right)^k D_{-\frac{n}{1-\gamma}-1-k}\left(-\frac{a(1-\gamma)t-\zeta^{1-\gamma}}{\sqrt{2K(1-\gamma)^2 t}}\right)\right]\psi(\zeta)d\zeta, \quad (3.47)$$

где $D_\nu(z)$ — функция параболического цилиндра. Предполагается, что начальное распределение таково, что интегралы (3.46) и (3.47) сходятся (например, $\psi(x) \in \mathrm{L}^2(\mathbb{R}^+)$).

Если начальные условия представлены в виде дельта-функции $w(x{,}0) = \delta(x - x_0)$, выражение для плотности распределения вероятностей (3.46) приобретает вид

$$w(x,t) = \frac{x^{-\gamma}}{\sqrt{\pi K t}} e^{-\frac{\left(a(1-\gamma)t - x^{1-\gamma} + x_0^{1-\gamma}\right)^2 + 2(x x_0)^{1-\gamma}}{4K(1-\gamma)^2 t}} \operatorname{ch}\left(\frac{(x x_0)^{1-\gamma}}{2K(1-\gamma)^2 t}\right) - \frac{a x^{-\gamma}}{2K} e^{\frac{a x^{1-\gamma}}{K(1-\gamma)}} \operatorname{erfc}\left(\frac{a(1-\gamma)t + x^{1-\gamma} + x_0^{1-\gamma}}{\sqrt{4K(1-\gamma)^2 t}}\right), \quad (3.48)$$

и совпадает с распределением, полученным в работе [3] для $a = 0$. Тогда выражение для среднего значения $x(t)$

$$\langle x(t)\rangle = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\left[2K(1-\gamma)^2 t\right]^{\frac{1}{2-2\gamma}}\Gamma\left(\frac{2-\gamma}{1-\gamma}\right) \times\left[e^{-\frac{\left(a(1-\gamma)t+x_0^{1-\gamma}\right)^2}{8K(1-\gamma)^2 t}} D_{\frac{\gamma-2}{1-\gamma}}\left(-\frac{a(1-\gamma)t+x_0^{1-\gamma}}{\sqrt{2K(1-\gamma)^2 t}}\right)\right. \left. + e^{-\frac{\left(a(1-\gamma)t-x_0^{1-\gamma}\right)^2}{8K(1-\gamma)^2 t}-\frac{a x_0^{1-\gamma}}{K(1-\gamma)}}\sum_{k=0}^{\infty}\left(-\frac{2at}{\sqrt{2Kt}}\right)^k D_{\frac{\gamma-2}{1-\gamma}-k}\left(-\frac{a(1-\gamma)t-x_0^{1-\gamma}}{\sqrt{2K(1-\gamma)^2 t}}\right)\right]. \quad (3.49)$$

На больших временах $t \gg \frac{x_0^{1-\gamma}}{a(1-\gamma)}$ информация о начальном распределении исчезает, и плотность распределения вероятностей стремится к виду

$$w(x,t) = \frac{x^{-\gamma}}{\sqrt{4\pi K t}} e^{-\frac{\left(x^{1-\gamma}-a(1-\gamma)t\right)^2}{4K(1-\gamma)^2 t}}\left[1-\frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{at}{\sqrt{4Kt}}\right)\right]^{-1}. \quad (3.50)$$

Тогда асимптотические выражения для среднего и дисперсии соответственно приобретают вид

$$\langle x(t)\rangle = [a(1-\gamma)t]^{\frac{1}{1-\gamma}} \quad (3.51)$$

и

$$\sigma^2(t) = \frac{2K}{a(1-\gamma)}[a(1-\gamma)t]^{\frac{1+\gamma}{1-\gamma}}. \quad (3.52)$$

Если начальное распределение локализовано в области относительно небольших значений x, выражение (3.46) можно преобразовать в формулу (3.50) для достаточно больших времен.

Если размер островка N достаточно велик, относительное изменение N^γ за единицу времени мало, вследствие чего дискретный процесс, динамика которого описывается СДУ (3.40), может быть аппроксимирован непрерывным процессом и, соответственно, уравнением (3.41).

Обобщенная модель

В данном подразделе будут учтены некоторые влияющие на рост островков факторы, которые зависят от времени и которые считались постоянными в предыдущем разделе, такие, как поток температуры, число островков, окружающих рассматриваемый островок, или деформация подложки в результате роста островка.

Для учета зависящих от времени факторов была введена детерминированная фунция $\alpha(t)$, и СДУ приобрело вид

$$\frac{dx}{dt} = \frac{\mathcal{P}(x)}{\alpha(t)}\eta_w(t), \quad x \in \mathbb{R}^+, \tag{3.53}$$

где $\eta_w(t)$ — стационарный гауссовский белый шум с $\langle \eta_w(t) \rangle = a > 0$ и $\langle \eta_w(t)\eta_w(t+\tau) \rangle = 2K\delta(\tau)$, $\mathcal{P}(x)$ — общая функция геометрических параметров исследуемой системы.

Переходя к переменной $\xi = \int \mathcal{P}^{-1}(x)dx$, приведем уравнение Фоккера-Планка к виду

$$\frac{\partial w}{\partial t} = -\frac{a}{\alpha(t)}\frac{\partial w}{\partial \xi} + \frac{K}{\alpha^2(t)}\frac{\partial^2 w}{\partial \xi^2}. \tag{3.54}$$

Соответствующие начальное и граничные условия будут иметь следующий вид

$$\begin{aligned} w(\xi,0) = \chi(\xi) \equiv \psi(x(\xi))\left[(1-\gamma)\xi\right]^{\frac{\gamma}{1-\gamma}}, \\ \left[\frac{\partial w}{\partial \xi} - \frac{a\alpha(t)w}{K}\right]_{\xi=0} = 0, \\ \lim_{\xi\to\infty}\left[\frac{\partial w}{\partial \xi} - \frac{a\alpha(t)w}{K}\right] = 0. \end{aligned} \tag{3.55}$$

Решение третьей краевой задачи с зависящими от времени коэффициентами для параболического уравнения (3.54) с условиями (3.55) может быть получено с помощью потенциала простого слоя [126]. Фундаментальное решение уравнения 3.54 может быть записано в виде

$$\begin{aligned} \mathcal{E}(\xi,\lambda,t,\tau) = \frac{1}{\sqrt{4\pi K\theta_2(t,\tau)}}e^{-\frac{(\xi - a\theta_1(t,\tau)-\lambda)^2}{4K\theta_2(t,\tau)}}, t > \tau, \\ \theta_n(t,\tau) = \int_\tau^t \frac{d\tilde{t}}{\alpha^n(\tilde{t})}. \end{aligned} \tag{3.56}$$

Тогда получим

$$w(\xi,t) = \int_0^\infty \mathcal{E}(\xi,\lambda,t,0)\chi(\lambda)d\lambda + \int_0^t \mathcal{E}(\xi,0,t,\tau)\phi(\tau)d\tau, \tag{3.57}$$

где второе слагаемое — потенциал простого слоя с плотностью $\phi(t)$. Неизвестная функция $\phi(t)$ является решением интегрального уравнения Вольтерры второго рода

$$\phi(t) = \int_0^t \mathfrak{K}(t,\tau)\phi(\tau)d\tau + f(t), \tag{3.58}$$

где ядро $\mathfrak{K}(t,\tau)$ и неоднородность $f(t)$ задаются выражениями

$$\mathfrak{K}(t,\tau) = \frac{1}{\sqrt{\pi K \theta_2(t,\tau)}} e^{-\frac{a^2\theta_1^2(t,\tau)}{4K\theta_2(t,\tau)}} \left(\frac{a\theta_1(t,\tau)}{2K\theta_2(t,\tau)} - \frac{a\alpha(t)}{K} \right), \tag{3.59}$$

$$f(t) = \int_0^\infty \frac{1}{\sqrt{\pi K \theta_2(t)}} e^{-\frac{(a\theta_1(t)+\lambda)^2}{4K\theta_2(t)}} \left(\frac{a\theta_1(t)+\lambda}{2K\theta_2(t)} - \frac{a\alpha(t)}{K} \right) \chi(\lambda) d\lambda. \tag{3.60}$$

Здесь использовано обозначение $\theta_n(t) \equiv \theta_n(t,0)$. Ядро (3.59) является слабосингулярным, и, таким образом, решение уравнения (3.58) может быть получено методом последовательных приближений (см., например, [125]). Единственность решения обсуждается в монографии [126].

Решение уравнения (3.54) слишком громоздко, однако можно найти приближенное решение для достаточно больших времен t. Допустим, что

$$\lim_{t\to\infty} \frac{\theta_1^2(t)}{\theta_2(t)} = \infty. \tag{3.61}$$

Тогда составляющая потока вероятности, соответствующая первому слагаемому уравнения (3.57), стремится к нулю в связи с наличием в ней экспоненциальной функции. Учитывая условие нормировки, получим выражение для функции плотности распределения вероятностей

$$w(x,t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi K\theta_2(t)}\mathcal{P}(x)} \int_0^\infty \exp\left(- \frac{\left[\int_\zeta^x \mathcal{P}^{-1}(\tilde{x}) d\tilde{x} - a\theta_1(t) \right]^2}{4K\theta_2(t)} \right) \\ \times \left[1 - \frac{1}{2}\operatorname{erfc}\left(\frac{a\theta_1(t) + \int_0^\zeta \mathcal{P}^{-1}(\tilde{x}) d\tilde{x}}{\sqrt{4K\theta_2(t)}} \right) \right]^{-1} \psi(\zeta) d\zeta. \tag{3.62}$$

Для достаточно больших значений времени информация о начальном распределении исчезает, и функция плотности распределения вероятностей стремится к

$$w(x,t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi K\theta_2(t)}\mathcal{P}(x)} \exp\left(- \frac{\left[\int_0^x \mathcal{P}^{-1}(\tilde{x}) d\tilde{x} - a\theta_1(t) \right]^2}{4K\theta_2(t)} \right) \\ \times \left[1 - \frac{1}{2}\operatorname{erfc}\left(\frac{a\theta_1(t)}{\sqrt{4K\theta_2(t)}} \right) \right]^{-1}. \tag{3.63}$$

Следует отметить, что от функции $\alpha(t)$ зависит, насколько быстро исчезает информация о начальном распределении.

Ниже рассмотрим несколько вариантов функции $\mathcal{P}(x)$, которые могут быть применены для анализа роста островков.

1. $\mathcal{P}(x) = x^{\gamma}$

Данный случай соответствует модели, в которой скорость роста пропорциональна периметру островка. Такая модель описывает случай, рассмотренный в подразделе 3.2.1. Так же, как и в этом подразделе, проведем замену переменной $\xi = x^{1-\gamma}/(1-\gamma)$. Тогда функция плотности распределения вероятностей имеет следующий вид

$$w(x,t) = \frac{x^{-\gamma}}{\sqrt{4\pi K\theta_2(t)}} \int_0^{\infty} e^{-\frac{\left(x^{1-\gamma}-a(1-\gamma)\theta_1(t)-\zeta^{1-\gamma}\right)^2}{4K(1-\gamma)^2\theta_2(t)}} \times \left[1 - \frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{a(1-\gamma)\theta_1(t)+\zeta^{1-\gamma}}{\sqrt{4K(1-\gamma)^2\theta_2(t)}}\right)\right]^{-1} \psi(\zeta)d\zeta, \quad (3.64)$$

и ее моменты

$$\mu_n(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \left[2K(1-\gamma)^2\theta_2(t)\right]^{\frac{n}{2-2\gamma}} \Gamma\left(\frac{n}{1-\gamma}+1\right) \int\limits_0^{\infty} e^{-\frac{\left(a(1-\gamma)\theta_1(t)+\zeta^{1-\gamma}\right)^2}{8K(1-\gamma)^2\theta_2(t)}} \times D_{-\frac{n}{1-\gamma}-1}\left(-\frac{a(1-\gamma)\theta_1(t)+\zeta^{1-\gamma}}{\sqrt{2K(1-\gamma)^2\theta_2(t)}}\right) \left[1 - \frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{a(1-\gamma)\theta_1(t)+\zeta^{1-\gamma}}{\sqrt{4K(1-\gamma)^2\theta_2(t)}}\right)\right]^{-1} \psi(\zeta)d\zeta. \quad (3.65)$$

Для достаточно больших времен функция плотности распределения вероятностей стремится к

$$w(x,t) = \frac{x^{-\gamma}}{\sqrt{4\pi K\theta_2(t)}} e^{-\frac{\left(x^{1-\gamma}-a(1-\gamma)\theta_1(t)\right)^2}{4K(1-\gamma)^2\theta_2(t)}} \left[1 - \frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{a\theta_1(t)}{\sqrt{4K\theta_2(t)}}\right)\right]^{-1}. \quad (3.66)$$

Аналогично уравнениям (3.51) и (3.52) можно получить асимптотические выражения для среднего и дисперсии

$$\overline{x}(t) = \left[a(1-\gamma)\theta_1(t)\right]^{\frac{1}{1-\gamma}}, \quad (3.67)$$

$$\sigma^2(t) = 2K\theta_2(t)\left[a(1-\gamma)\theta_1(t)\right]^{\frac{2\gamma}{1-\gamma}}. \quad (3.68)$$

2. $\mathcal{P}(x) = \sqrt{x}\dfrac{K_1(\varkappa\sqrt{x})}{K_0(\varkappa\sqrt{x})}$

Такой вид функции $\mathcal{P}(x)$ возникает из приближения среднего поля для квазистатического роста круглого островка, когда поток кластеров через границу островка имеет вид

$$\Pi(R) = 2\pi R J \sqrt{D\tau} \frac{K_1\left(\frac{R}{\sqrt{D\tau}}\right)}{K_0\left(\frac{R}{\sqrt{D\tau}}\right)}. \tag{3.69}$$

Тогда функция плотности распределения вероятностей для стационарного случая

$$w(x,t) = \frac{K_0(\varkappa\sqrt{x})}{\sqrt{4\pi x K\theta_2(t)}K_1(\varkappa\sqrt{x})} \exp\left(-\frac{\left[-2/\varkappa \ln\left[\varkappa\sqrt{x}K_1(\varkappa\sqrt{x})\right] - a\theta_1(t)\right]^2}{4K\theta_2(t)}\right) \times \left[1 - \frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{a\theta_1(t)}{\sqrt{4K\theta_2(t)}}\right)\right]^{-1}. \tag{3.70}$$

На рисунке 3.8 представлены функции плотности распределения вероятностей, масштабированные на среднее значение, для различных значений $\varkappa$. Значения параметров $a = 10^{-3}$, $K = 10^{-4}$, $t = 10^5$; при расчете были использованы функции следующего вида: $\alpha(t) = 1$ и $\theta_n(t) = t$.

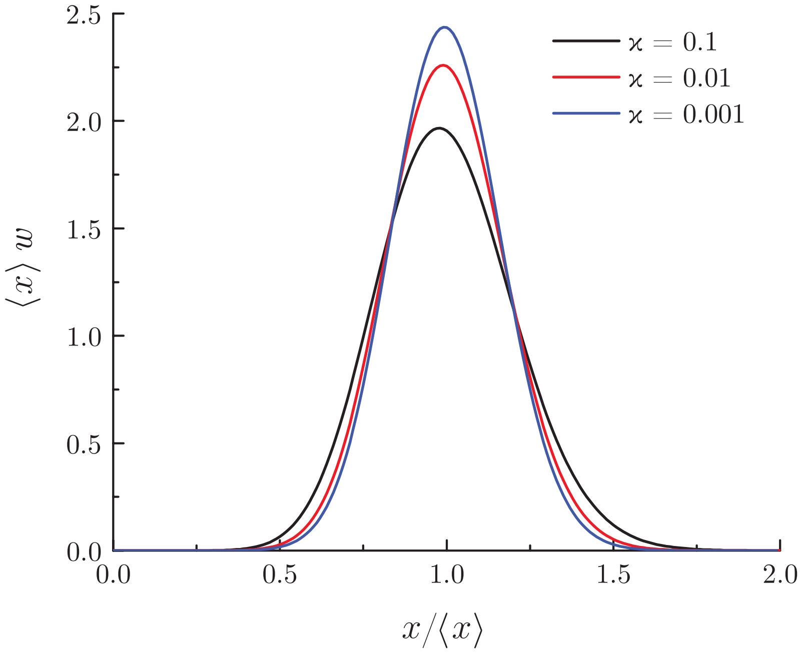

Рис. 3.8. Функция плотности распределения вероятностей для размеров островков при различных значениях $\varkappa$, полученные с помощью выражения (3.70) ($a = 10^{-3}$, $K = 10^{-4}$, $t = 10^5$).

3. $\mathcal{P}(x) = \lambda x^\beta + x^\gamma$, $\beta \neq \gamma$

Случай $\beta = 1$ соответствует ситуации, находящейся вне приближения среднего поля, когда скорость роста островков пропорциональна площади островка. Когда $\beta = 0$, уравнение (3.53) описывает формирование островков на дефекте подложки, при этом размерами дефекта нельзя пренебречь.

Для $\frac{\beta-1}{\gamma-\beta} \notin \mathbb{Z}^+$ функция плотности распределения вероятностей для стационарного случая

$$w(x,t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi K\theta_2(t)}(\lambda x^\beta + x^\gamma)} \exp\left(-\frac{\left[\frac{x^{1-\beta}}{\lambda(1-\beta)}{}_2F_1\left(1, \frac{1-\beta}{\gamma-\beta}, 1+\frac{1-\beta}{\gamma-\beta}; -\frac{x^{\gamma-\beta}}{\lambda}\right) - a\theta_1(t)\right]^2}{4K\theta_2(t)}\right) \times \left[1 - \frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{a\theta_1(t)}{\sqrt{4K\theta_2(t)}}\right)\right]^{-1}. \quad (3.71)$$

Если $\beta = 1$, выражение для функции плотности распределения вероятностей приобретает вид

$$w(x,t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi K\theta_2(t)}(\lambda x + x^\gamma)} \exp\left(-\frac{\left[\frac{\ln(\lambda x^{1-\gamma}+1)}{\lambda(1-\gamma)} - a\theta_1(t)\right]^2}{4K\theta_2(t)}\right) \times \left[1 - \frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{a\theta_1(t)}{\sqrt{4K\theta_2(t)}}\right)\right]^{-1}. \quad (3.72)$$

На рисунке 3.9 показаны функции плотности распределения вероятностей, масштабированные на среднее значение, для стационарного случая при различных значениях β. Значения других параметров $\gamma = 0.8$, $\lambda = 1$, $a = 10^{-3}$, $K = 10^{-4}$, $t = 10^5$; при расчете снова были использованы функции следующего вида: $\alpha(t) = 1$ и $\theta_n(t) = t$.

3.2.2 Влияние присоединения небольших островков на динамику роста островка

В данном подразделе рассматривается режим роста островка, в котором число островков на поверхности достигло постоянного значения, и начался процесс объединения островков, причем на начальных этапах происходит процесс присоединения небольших островков к крупным. Данный процесс может проходить двумя путями. Первый способ заключается в том, что в результате роста островка его граница движется и достигает соседних островков, что приводит к их слиянию. Второй способ связан с тем, что небольшие островки способны

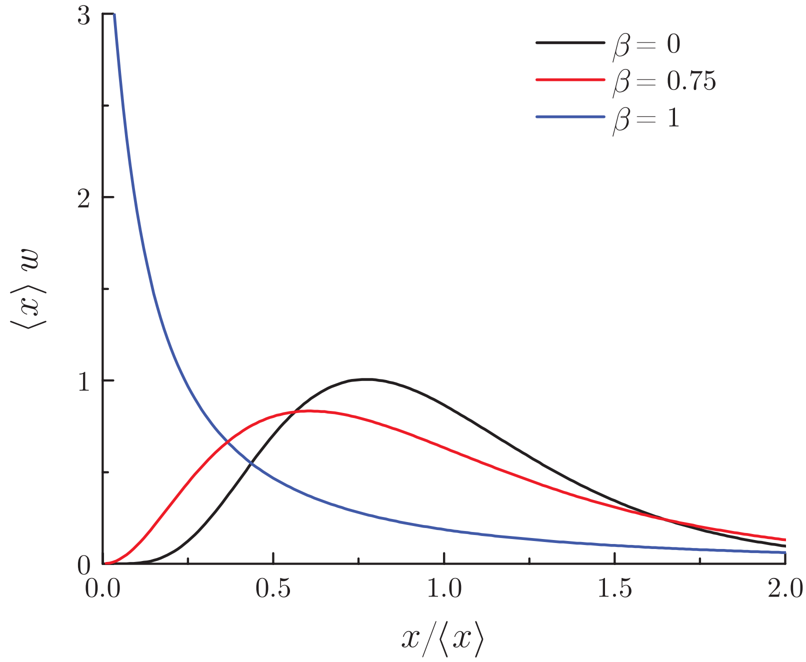

Рис. 3.9. Функция плотности распределения вероятностей для размеров островков при различных значениях β, полученные с помощью выражений (3.71) и (3.72) ($\gamma = 0{,}8$, $\lambda = 1$, $a = 10^{-3}$, $K = 10^{-4}$, $t = 10^{5}$).

диффундировать по поверхности подложки, достигая границы большого островка и присоединяясь к нему. Подобная мобильность небольших островков была отмечена на ВОПГ. В то же время диффузионное движение крупных островков незначительно [54].

Таким образом, рост уже сформированных на подложке островков может происходить как за счет присоединения кластеров, так и в результате присоединения небольших островков. Следует отметить, что процесс слияния островков и кластеров с другими островками необратим.

Процесс роста островка в результате захвата диффундирующих кластеров и островков имеет стохастическую природу. В связи с этим размер островка рассматривается как нестационарная случайная величина, изменение которой описывается с помощью СДУ. Для получения зависимости размера островка от времени акт присоединения кластера или небольшого островка к крупному островку был представлен в виде импульсного процесса (см. подраздел 3.1.2).

Было проведено численное интегрирование уравнения (3.40), в котором случайный параметр имел вид импульсного процесса (3.18) с двумя разными распределениями амплитуд, заданными уравнениями (3.19) и (3.20). В качестве генератора псевдослучайных чисел был использован вихрь Мерсенна [127]. Усреднение было проведено по 10^6 случайных реализаций для каждого рассмотренного случая. В качестве начального распределения было использо-

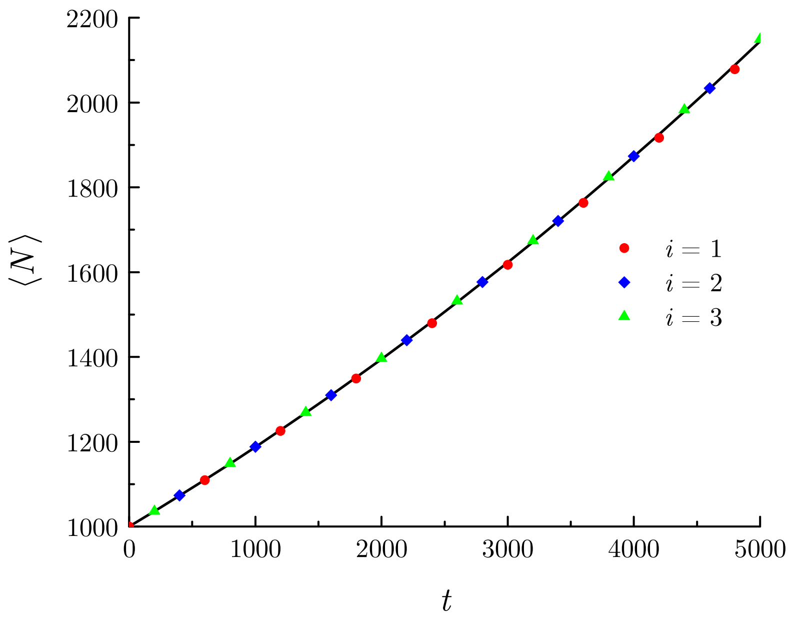

Рис. 3.10. Зависимость среднего размера островка от времени для различных значений начального критического размера островка i ($\gamma = 0{,}6$, $N_0 = 1000$, $\mathcal{N} = 5$, $\mu = 2/3$): результат теоретического (уравнение (3.47), непрерывные линии) и численного (уравнение (3.40), символы) расчета.

вано обобщенное гамма-распределение [128], где i — критический размер островка. Во всех последующих вычислениях средний временной интервал между двумя импульсами был равен $T = 1$, масштабирующий фактор для высоты импульса $f_0 = 0{,}001$. Импульсный процесс с вероятностью (3.19) характеризуется предельным числом $\mathcal{N}$ кластеров в захваченном островке и экспонентой μ. Значение c было выбрано таким образом, чтобы уравнять вероятности двух следующих событий:

1. захват небольшого островка, состоящего из трех кластеров, в результате движения границы большого островка;

2. захват этого небольшого островка в результате его движения к границе большого островка.

Среднее значение размера островка на рисунке 3.10 и его дисперсия на рисунке 3.11 были получены для начальных распределений (см. [128]) с начальным средним размером островка $N_0 = 1000$, $\gamma = 0{,}6$. Случайный процесс характеризовался следующими параметрами: $\mathcal{N} = 5$ и $\mu = 2/3$. Вычисление было проведено для различных критических размеров $i = 1$, 2, 3. Следует отметить, что можно легко объяснить тот факт, что три кривые перекрываются на рисунке 3.10, в то время, как на рисунке 3.11 этого не происходит: это связано

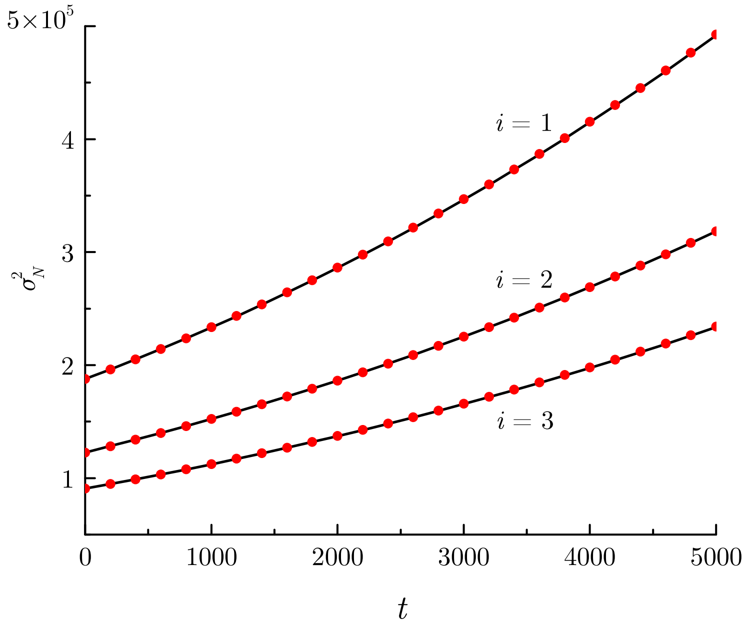

Рис. 3.11. Зависимость дисперсии размеров островка от времени для различных значений начального критического размера островка i ($\gamma = 0{,}6$, $N_0 = 1000$, $\mathcal{N} = 5$, $\mu = 2/3$): результат теоретического (уравнение (3.47), непрерывные линии) и численного (уравнение (3.40),символы) расчета.

с тем, что при изменении i среднее значение начального распределения остается постоянным, в то же время соответствующее среднеквадратичное отклонение изменяется, другими словами, изменение i не влияет на динамику среднего размера, но влияет на изменение дисперсии.

В работе проанализировано влияние изменения параметров случайного процесса на скорость роста островка. В частности, на рисунке 3.12 показано влияние изменения значения $\mathcal{N}$ на рост островка. Вычисления были проведены для $\mathcal{N} = 5$, 10, 15. Были использованы следующие значения других параметров: $\gamma = 0{,}6$, $\mu = 2/3$, начальное распределение [128] с параметрами $N_0 = 1000$, $i = 1$. На рисунке 3.12 показано, что скорость увеличения среднего размера островка увеличивается с ростом $\mathcal{N}$. Этот факт может быть легко объяснен, так как $\mathcal{N}$ соответствует предельному размеру небольшого островка, присоединяющегося к большому островку, и увеличение $\mathcal{N}$ позволяет большим островкам захватывать более крупные островки.

На рисунке 3.13 показано изменение среднего размера островка с течением времени для случайного процесса с распределением амплитуд импульсов, соответствующим уравнению (3.19); результат был получен для значений параметра $\mu = 0{,}5$, $\mu = 1$, $\mu = 1{,}5$. Значения других параметров были $\gamma = 0.6$, $\mathcal{N} = 5$, и начальное распределение [128] с $N_0 = 1000$ и $i = 1$. Здесь средний размер островка увеличивается быстрее с уменьшением μ и, следовательно,

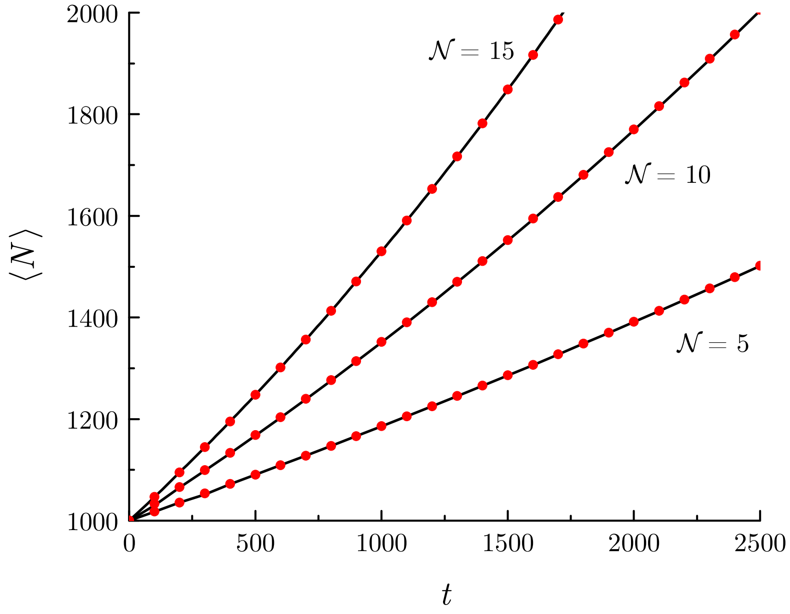

Рис. 3.12. Зависимость среднего размера островка от времени для различных значений $\mathcal{N}$ ($\gamma = 0{,}6$, $\mu = 2/3$, и начального распределения [128] с параметрами $N_0 = 1000$ и $i = 1$): результат теоретического (уравнение (3.47), непрерывные линии) и численного (уравнение (3.40), символы) расчета.

с увеличением вероятности присоединения более крупных островков. Этот результат также предсказуем: поскольку коэффициент диффузии увеличивается с уменьшением μ, среднее значение шума и, следовательно, скорость роста островка также растет. На том же рисунке 3.13 показаны результаты вычислений для импульсного процесса с геометрическим распределением амплитуд, соответствующим уравнению (3.20), с параметрами $p = 0{,}2$; $0{,}3$; $0{,}5$; $0{,}9$. Следует отметить, что увеличение p приводит к уменьшению скорости роста островка, так как с увеличением p среднее значение импульсного процесса, равное $1/p$, убывает, что приводит к замедлению роста островка.

На рисунке 3.14 показана зависимость скорости роста островка от степени его ветвистости γ. Видно, что скорость роста островка возрастает с увеличением γ. Другие параметры, использованные в вычислениях: $\mathcal{N} = 5$, $\mu = 2/3$, начальное распределение [128] с $N_0 = 1000$ и $i = 1$.

На рисунке 3.15 демонстрируется изменение с течением времени распределения размеров островков, полученного из уравнения (3.46). Параметры, при которых проводилось вычисление, были следующими: $\gamma = 0{,}6$, $\mathcal{N} = 5$, $\mu = 2/3$, начальное распределение [128] с $N_0 = 1000$ и $i = 1$. Можно видеть, что с течением времени распределение уширяется, а его максимум смещается в сторону больших значений N.

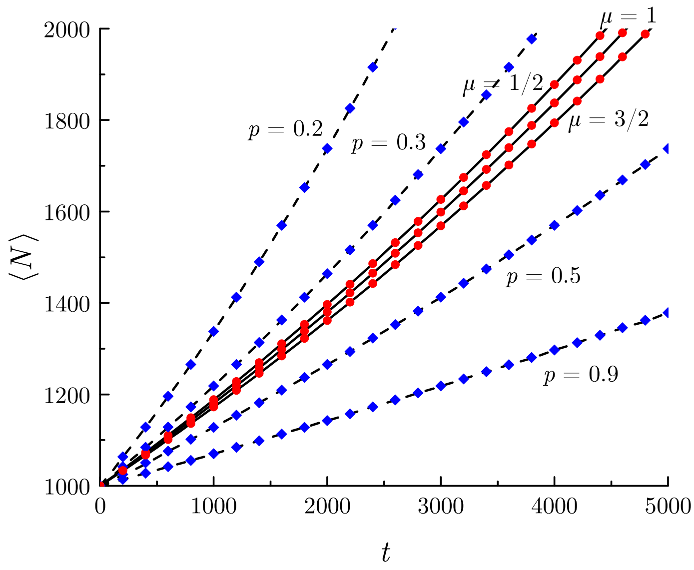

Рис. 3.13. Зависимость среднего размера островка от времени для различных распределений амплитуды случайного процесса ($\gamma = 0{,}6$, начальное распределение [128] с $N_0 = 1000$ и $i = 1$): результат теоретического (уравнение (3.47), непрерывные линии) и численного (уравнение (3.40), символы) расчета; распределение вероятности (3.19) с $\mathcal{N} = 5$ и $\mu = 1/2$, 1, 3/2 (непрерывные линии и точки), геометрическое распределение вероятности (3.20) со значениями параметра $p = 0{,}2$; 0,3; 0,5; 0,9 (пунктирные линии и ромбы).

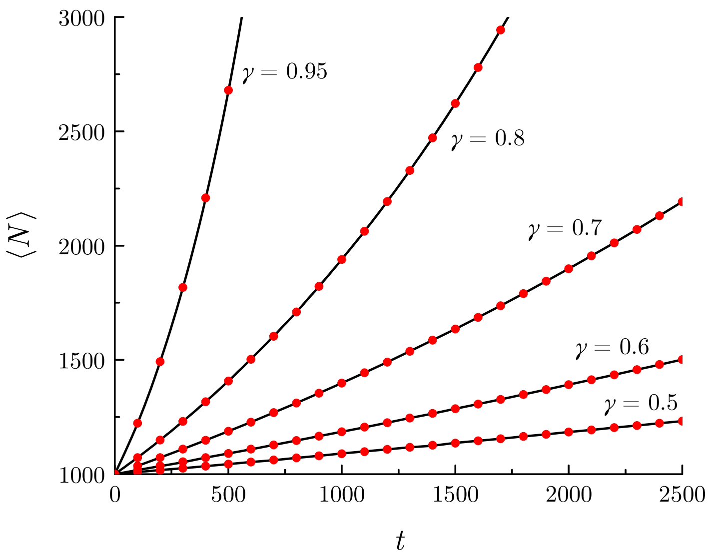

Рис. 3.14. Зависимость среднего размера островка от времени для различных значений γ ($\mathcal{N} = 5$, $\mu = 2/3$, начальное распределение [128] с $N_0 = 1000$ и $i = 1$): результат теоретического (уравнение (3.47), непрерывные линии) и численного (уравнение (3.40), символы) расчета.

Заключение к главе 3.

В данной главе была предложена полуфеноменологическая модель роста островков из кластеров, с помощью которой был описан процесс, в котором островки растут за счет присоединения кластеров и небольших подвижных островков. Для описания процесса роста островка, а именно, изменения количества кластеров в островке, было получено стохастическое дифференциальное уравнение с мультипликативным шумом. Было найдено решение соответствующего СДУ уравнения Фоккера-Планка для случая, когда в мультипликативном слагаемом содержится гауссовский белый шум, в том числе и для обобщенной модели. Было проведено численное моделирование СДУ с мультипликативным шумом для случая, когда небольшие островки движутся по подложке, и показано влияние изменения характеристик шумов на динамику роста островков; результаты численного и теоретического расчета хорошо совпадают.

Были рассмотрены различные типы случайных процессов (ИППЗ, ИПФТ, импульсный процесс, характеризующий присоединение небольших островков), были проанализированы их статистические характеристики, в частности, показано влияние изменения параметра периодичности на величину спектральной плотности в нуле.

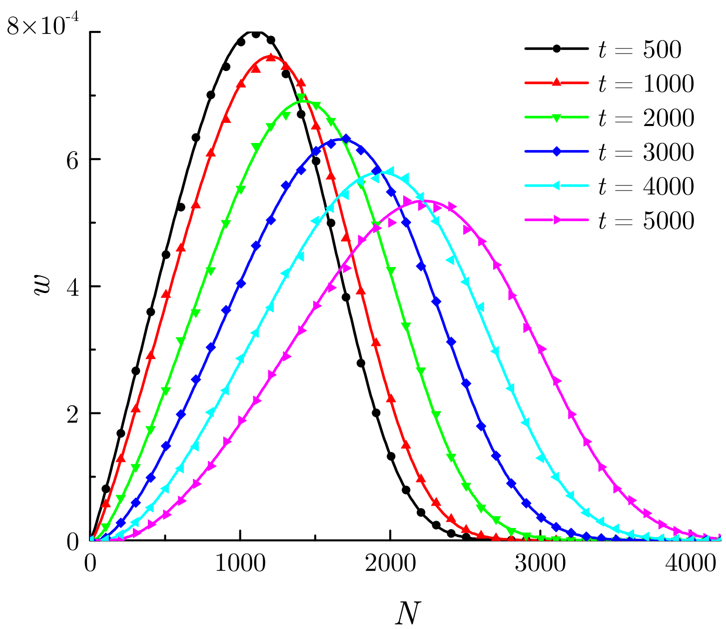

Рис. 3.15. Изменение распределения размеров островков со временем ($\gamma = 0{,}6$, $\mathcal{N} = 5$, $\mu = 2/3$, начальное распределение [128] с $N_0 = 1000$ и $i = 1$): результат теоретического (уравнение (3.46), непрерывные линии) и численного (уравнение (3.40), символы) расчета.

Глава 4

Режим насыщения

В данной главе предложена модель, характеризующая стационарный режим роста островка, а именно, достижение величиной, описывающей размер островка, стационарного значения. Данная модель может быть применена для описания задач и приложений, в которых необходимо в течение продолжительного времени обеспечивать постоянный размер островка.

4.1 Стохастическое дифференциальное уравнение в режиме насыщения

Аналогично задаче из предыдущей главы, СДУ, описывающее случай достижения островком постоянного размера [35], будет иметь вид

$$\frac{dx}{dt} = -bx + x^{\gamma}\eta(t), \tag{4.1}$$

где $0 \leq \gamma < 1$, $x \in \mathbb{R}^{+}$, $\eta(t)$ — случайный процесс с неотрицательным средним. Отличие от рассмотренного ранее случая роста островка заключается в добавлении слагаемого $(-bx)$, где $b \geq 0$. Это слагаемое отвечает за отделение уже присоединившегося кластера от островка. Данное уравнение описывает релаксацию системы к стационарному состоянию.

4.1.1 Белый гауссовский шум

Перепишем СДУ (4.1) в виде

$$\frac{dx}{dt} = ax^{\gamma} - bx + x^{\gamma}\zeta_w(t), \tag{4.2}$$

где $\zeta_w(t) = \eta(t) - \langle \eta(t) \rangle$ и $\langle \eta(t) \rangle = a \geq 0$. Здесь $\zeta_w(t)$ — стационарный гауссовский белый шум с $\langle \zeta_w(t) \rangle = 0$ и $\langle \zeta_w(t)\zeta_w(t+\tau) \rangle = 2D\delta(\tau)$.

Соответствующее уравнение Фоккера-Планка имеет вид

$$\frac{\partial w(x,t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x}\left[\left(ax^{\gamma} - bx + D\gamma x^{2\gamma-1}\right)w(x,t)\right] + \frac{\partial^2}{\partial x^2}\left[Dx^{2\gamma}w(x,t)\right]. \tag{4.3}$$

Функция плотности распределения вероятностей $w(x,t)$ и поток вероятности $\Pi_w(x,t)$ удовлетворяет следующим начальному и граничным условиям

$$\begin{aligned} w(x,0) &= \phi(x), \\ \Pi_w(0,t) &= 0, \\ w(\infty,t) &= 0. \end{aligned} \tag{4.4}$$

Здесь $\phi(x)$ — неотрицательная функция, удовлетворяющая условию нормировки и обеспечивающая согласование начальных и граничных условий.

Переходя к новым переменным $\xi = \beta\left(x^{1-\gamma} - \frac{a}{b}\right)$, $\beta = \sqrt{\frac{b}{D(1-\gamma)}}$ и $\tau = (1-\gamma)bt$, приведем уравнение (4.2) к виду

$$\frac{d\xi}{d\tau} = -\xi + \frac{\beta}{b}\zeta_w(\tau), \tag{4.2$'$}$$

где $\xi(\tau) \geq \xi_- = -\frac{\beta a}{b}$. Соответствующее уравнение Фоккера-Планка для новой функции распределения вероятности $w(\xi,\tau)$ имеет вид

$$\frac{\partial w(\xi,\tau)}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 w(\xi,\tau)}{\partial \xi^2} + \frac{\partial}{\partial \xi}[\xi w(\xi,\tau)] \tag{4.3$'$}$$

с начальными и граничными условиями

$$\begin{aligned} w(\xi,0) &= \chi(\xi) \equiv \frac{\phi(x(\xi))}{1-\gamma}\beta^{\frac{1}{\gamma-1}}\left(\xi - \xi_-\right)^{\frac{\gamma}{1-\gamma}}, \\ \Pi(\xi_-,\tau) &= 0, \\ w(\infty,\tau) &= 0. \end{aligned} \tag{4.4$'$}$$

Решение системы (4.3′)–(4.4′) может быть представлено в виде

$$w(\xi,\tau) = \int_{\xi_-}^{\infty} G(\xi,\tau,\xi',0)\chi(\xi')d\xi'. \tag{4.5}$$

Здесь $G(\xi,\tau,\xi',\tau')$ — функция Грина для данной задачи. Функция $G(\xi,\xi',\tau) \equiv G(\xi,\tau,\xi',0)$ является решением следующего уравнения

$$\frac{\partial G}{\partial \tau} = \frac{\partial^2 G}{\partial \xi^2} + \frac{\partial}{\partial \xi}(\xi G), \tag{4.6}$$

с начальными и граничными условиями

$$\begin{aligned} G(\xi,\xi',0) &= \delta(\xi-\xi'), \\ \tfrac{\partial G}{\partial \xi}+\xi G\big|_{\xi=\xi_-} &= 0, \\ |G| &< \infty, \tau>0. \end{aligned} \tag{4.7}$$

Решение системы (4.6)–(4.7) находится с помощью преобразования Лапласа

$$p\bar{G}-\delta(\xi-\xi') = \frac{\partial^2 \bar{G}}{\partial \xi^2}+\frac{\partial}{\partial \xi}(\xi\bar{G}), \tag{4.8}$$

$$\begin{aligned} \tfrac{\partial \bar{G}}{\partial \xi}+\xi \bar{G}\big|_{\xi=\xi_-} &= 0, \\ |\bar{G}| &< \infty. \end{aligned} \tag{4.9}$$

Здесь чертой обозначено преобразование

$$\bar{G}(\xi,\xi',p) = \int_0^\infty e^{-p\tau}G(\xi,\xi',\tau)d\tau. \tag{4.10}$$

Для каждой области значений $\xi<\xi'$ и $\xi'>\xi$ подстановка $\bar{G}=u(\xi)e^{-\xi^2/4}$ сводит уравнение (4.8) к уравнению Вебера, таким образом, решение уравнения (4.8) представляет собой суперпозицию линейно независимых решений $e^{-\xi^2/4}D_{-p}(\xi)$ и $e^{-\xi^2/4}D_{-p}(-\xi)$, причем $p>0$. Здесь $D_{-p}(\xi)$ — функции параболического цилиндра. Используя граничные условия (4.9), получим

$$\bar{G}(\xi,\xi',p) = \begin{cases} A(p)e^{-\xi^2/4}\Big(D_{-p}(\xi)D_{-p-1}(-\xi_-)+D_{-p}(-\xi)D_{-p-1}(\xi_-)\Big), & \xi<\xi', \\ B(p)e^{-\xi^2/4}D_{-p}(\xi), & \xi>\xi'. \end{cases} \tag{4.11}$$

Одна из неизвестных функций $A(p)$ и $B(p)$ находится из условия непрерывности функции Грина в $\xi=\xi'$. Чтобы найти вторую функцию, проинтегрируем уравнение (4.8) в окрестности точки $\xi=\xi'$ для получения условия сшивания

$$\frac{\partial \bar{G}}{\partial \xi}\bigg|_{\xi=\xi'+0}-\frac{\partial \bar{G}}{\partial \xi}\bigg|_{\xi=\xi'-0}=-1.$$

Используя [97], после алгебраических преобразований получим

$$\bar{G}(\xi,\xi',p) = e^{-(\xi^2-\xi'^2)/4}\frac{\Gamma(p)}{\sqrt{2\pi}}\begin{cases}\left(D_{-p}(\xi)D_{-p}(\xi')\dfrac{D_{-p-1}(-\xi_-)}{D_{-p-1}(\xi_-)} + D_{-p}(-\xi)D_{-p}(\xi')\right), \ \xi < \xi', \\ \left(D_{-p}(\xi)D_{-p}(\xi')\dfrac{D_{-p-1}(-\xi_-)}{D_{-p-1}(\xi_-)} + D_{-p}(\xi)D_{-p}(-\xi')\right), \xi > \xi', \end{cases} \tag{4.12}$$

или, в более компактной форме,

$$\bar{G}(\xi,\xi',p) = e^{-(\xi^2-\xi'^2)/4}\frac{\Gamma(p)}{\sqrt{2\pi}}\Bigg(D_{-p}(\xi)D_{-p}(\xi')\frac{D_{-p-1}(-\xi_-)}{D_{-p-1}(\xi_-)} \\ + H(\xi'-\xi)D_{-p}(-\xi)D_{-p}(\xi') + H(\xi-\xi')D_{-p}(-\xi')D_{-p}(\xi)\Bigg), \tag{4.13}$$

где $H(x)$ — функция Хевисайда. Используя обратное преобразование Лапласа, получим искомое распределение

$$w(\xi,\tau) = \int_{\xi_-}^{\infty} d\xi' \chi(\xi')\frac{1}{2\pi i}\int_{c-i\infty}^{c+i\infty} e^{p\tau}\bar{G}(\xi,\xi',p)dp, \tag{4.14}$$

где $c > 0$. Это интеграл Бромвича, и его значение можно вычислить с помощью теоремы о вычетах.

Случай $\xi_- < 0$

Преобразование Лапласа функции Грина (4.13) имеет два набора простых полюсов

– полюсы $\Gamma(p)$: $p \in \mathbb{Z}^-$;

– корни p_k уравнения

$$D_{-p_k-1}(\xi_-) = 0. \tag{4.15}$$

Действительные корни уравнения (4.15) отрицательны. В работе [129] было показано, что наибольший корень $p_1 < -1$ и $\lim\limits_{\xi_-\to-\infty} p_k = -k$. Тогда получим

$$w(\xi,\tau) = \sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{e^{-\xi^2/2}}{\operatorname{erfc}\left(\frac{\xi_-}{\sqrt{2}}\right)} + \frac{e^{-\xi^2/4}}{\sqrt{2\pi}}\sum_{k=1}^{\infty}\Gamma(p_k)D_{-p_k}(\xi)\frac{D_{-p_k-1}(-\xi_-)}{\frac{\partial}{\partial p}\left[D_{-p-1}(\xi_-)\right]_{p=p_k}}e^{p_k\tau}\int_{\xi_-}^{\infty} e^{\xi'^2/4}D_{-p_k}(\xi')\chi(\xi')d\xi'. \tag{4.16}$$

Получим выражение для производной функции параболического цилиндра $\partial D_{-p-1}(z)/\partial p$ методом, аналогичным представленному в работе [130]. Функции параболического цилиндра могут быть выражены через вырожденные гипергеометрические функции [97]:

$$D_{-p-1}(\xi_-) = 2^{-(p+1)/2} e^{-\xi_-^2/4} \left[\frac{\Gamma\left(\frac{1}{2}\right)}{\Gamma\left(\frac{p+2}{2}\right)} {}_1F_1\left(\frac{p+1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{\xi_-^2}{2}\right) + \frac{\xi_-}{\sqrt{2}} \frac{\Gamma\left(-\frac{1}{2}\right)}{\Gamma\left(\frac{p+1}{2}\right)} {}_1F_1\left(\frac{p+2}{2}, \frac{3}{2}, \frac{\xi_-^2}{2}\right) \right]. \tag{4.17}$$

Дифференцируя выражение (4.17) по p и учитывая, что производная вырожденной гипергеометрической функции по параметру может быть выражена через гипергеометрические функции двух аргументов, подобные функциям Кампе де Ферье $\Theta^{(1)}$ [131], найдем с учетом выражения (4.15)

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial p} D_{-p-1}(\xi_-)\Big|_{p=p_k} &= 2^{-(p_k+3)/2} e^{-\xi_-^2/4} \sqrt{\pi} \left\{ \frac{1}{\Gamma\left(\frac{p_k+2}{2}\right)} \left[\xi_-^2 \Theta^{(1)} \left(\begin{matrix} 1,1 | \frac{p_k+1}{2}, \frac{p_k+3}{2} \\ \frac{p_k+3}{2} | 2, \frac{3}{2} \end{matrix} \middle| \frac{\xi_-^2}{2}, \frac{\xi_-^2}{2} \right) \right.\right. \\ &\left.\left. - G\left(p_k+1\right) {}_1F_1\left(\frac{p_k+1}{2}, \frac{1}{2}, \frac{\xi_-^2}{2}\right) \right] - \frac{\sqrt{2}}{\Gamma\left(\frac{p_k+1}{2}\right)} \frac{\xi_-^3}{3} \Theta^{(1)} \left(\begin{matrix} 1,1 | \frac{p_k+2}{2}, \frac{p_k+4}{2} \\ \frac{p_k+4}{2} | 2, \frac{5}{2} \end{matrix} \middle| \frac{\xi_-^2}{2}, \frac{\xi_-^2}{2} \right) \right\}. \end{aligned} \tag{4.18}$$

Здесь $G(z)$ — G-функция Эрдейи [97].

Возвращаясь к переменной x, получаем

$$\begin{aligned} w(x,t) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} (1-\gamma) \beta x^{-\gamma} &\left\{ \frac{e^{-\left(\beta x^{1-\gamma} + \xi_-\right)^2/2}}{\operatorname{erfc}\left(\frac{\xi_-}{\sqrt{2}}\right)} \right. \\ &+ \frac{e^{-\left(\beta x^{1-\gamma} + \xi_-\right)^2/4}}{2} \sum_{k=1}^{\infty} \Gamma(p_k) D_{-p_k}\left(\beta x^{1-\gamma} + \xi_-\right) \frac{D_{-p_k-1}(-\xi_-)}{\frac{\partial}{\partial p}\left[D_{-p-1}(\xi_-)\right]_{p=p_k}} \\ &\left. \times e^{p_k b (1-\gamma) t} \int_0^{\infty} e^{\left(\beta x'^{1-\gamma} + \xi_-\right)^2/4} D_{-p_k}\left(\beta x'^{1-\gamma} + \xi_-\right) \phi(x') dx' \right\}. \end{aligned} \tag{4.19}$$

Выведем аналитическое выражение для моментов x. Сначала вычислим интеграл

$$\int_0^{\infty} z^{\mu-1} e^{-(z+z_0)^2/4} D_\nu(z+z_0) dz, \ \Re\mu > 0, \tag{4.20}$$

содержащий функцию параболического цилиндра.

Используем следующее интегральное представление для функции параболического цилиндра [132]:

$$D_\nu(z) = \frac{e^{z^2/4}}{\sqrt{2\pi} i} \int_{c-i\infty}^{c+i\infty} e^{-zt+\frac{1}{2}t^2} t^\nu dt, \quad |\arg t| < \pi/2, c > 0. \tag{4.21}$$

Меняя порядок интегрирования и используя [99], получим

$$\int_0^\infty z^{\mu-1}e^{-(z+z_0)^2/4}D_\nu(z+z_0)dz = \frac{1}{\sqrt{2\pi}i}\int_{c-i\infty}^{c+i\infty} e^{-z_0t+\frac{1}{2}t^2}\left[\int_0^\infty z^{\mu-1}e^{-zt}dz\right]t^\nu dt$$
$$= \frac{\Gamma(\mu)}{\sqrt{2\pi}i}\int_{c-i\infty}^{c+i\infty} e^{-z_0t+\frac{1}{2}t^2}t^{\nu-\mu}dt = \Gamma(\mu)e^{-z_0^2/4}D_{\nu-\mu}(z_0). \quad (4.22)$$

Используя [99] и полученный выше результат, будем иметь

$$\mu_n(t) = \sqrt{\frac{2}{\pi}}e^{-\xi_-^2/4}\beta^{-\frac{n}{1-\gamma}}\Gamma\left(\frac{n}{1-\gamma}+1\right)\left\{\frac{D_{-\frac{n}{1-\gamma}-1}\left(\xi_-\right)}{\operatorname{erfc}\left(\frac{\xi_-}{\sqrt{2}}\right)}\right.$$
$$+\frac{1}{2}\sum_{k=1}^\infty \Gamma(p_k)D_{-\frac{n}{1-\gamma}-1-p_k}\left(\xi_-\right)\frac{D_{-p_k-1}(-\xi_-)}{\frac{\partial}{\partial p}\left[D_{-p-1}(\xi_-)\right]_{p=p_k}}$$
$$\left.\times e^{p_kb(1-\gamma)t}\int_0^\infty e^{\left(\beta x'^{1-\gamma}+\xi_-\right)^2/4}D_{-p_k}\left(\beta x'^{1-\gamma}+\xi_-\right)\phi(x')dx'\right\}. \quad (4.23)$$

Для достаточно больших времен ($t \gg 1/[b(1-\gamma)]$) функция распределения вероятностей, приведенная в уравнении (4.19), стремится к стационарному распределению

$$w_{\mathrm{st}}(x) = \sqrt{\frac{2}{\pi}}(1-\gamma)\beta x^{-\gamma}\frac{e^{-\left(\beta x^{1-\gamma}+\xi_-\right)^2/2}}{\operatorname{erfc}\left(\frac{\xi_-}{\sqrt{2}}\right)}, \quad (4.24)$$

которое не зависит от начального распределения. Тогда стационарные моменты x имеют вид

$$\mu_n = \sqrt{\frac{2}{\pi}}\frac{e^{-\xi_-^2/4}}{\operatorname{erfc}\left(\frac{\xi_-}{\sqrt{2}}\right)}\left(\frac{D}{2b}\right)^n\Gamma\left(2n+1\right)D_{-2n-1}\left(\xi_-\right). \quad (4.25)$$

Для $\gamma = 1/2$ получим

$$\langle x\rangle = \frac{a^2}{b^2}+\frac{D}{2b}+\frac{a}{b}\sqrt{\frac{D}{\pi b}}\frac{e^{-\frac{a^2}{bD}}}{\operatorname{erfc}\left(-\frac{a}{\sqrt{bD}}\right)}. \quad (4.26)$$

Случай $\xi_- = 0$

В данном случае можно упростить уравнение (4.13), приведя его к виду

$$\bar{G}(\xi,\xi',p) = e^{-(\xi^2-\xi'^2)/4}\frac{\Gamma(p)}{\sqrt{2\pi}}\Big(D_{-p}(\xi)D_{-p}(\xi')+H(\xi'-\xi)D_{-p}(-\xi)D_{-p}(\xi')$$
$$+H(\xi-\xi')D_{-p}(-\xi')D_{-p}(\xi)\Big). \quad (4.27)$$

Преобразование Лапласа функции Грина (4.27) имеет простые полюсы $p \in \mathbb{Z}^-$. Тогда получим

$$G(\xi,\xi',\tau) = e^{-(\xi^2-\xi'^2)/4}\sqrt{\frac{2}{\pi}}\sum_{n=0}^{\infty}\frac{D_{2n}(\xi)D_{2n}(\xi')}{(2n)!}e^{-2n\tau}. \tag{4.28}$$

Используя соотношение между функциями параболического цилиндра и полиномами Эрмита [97], ряд (4.28) можно просуммировать [133]

$$G(\xi,\xi',\tau) = \sqrt{\frac{2}{\pi}}e^{-\xi^2/2}\frac{e^{\tau/2}}{\sqrt{2\,\mathrm{sh}\,\tau}}\exp\left(-e^{-\tau}\frac{\xi^2+\xi'^2}{4\,\mathrm{sh}\,\tau}\right)\mathrm{ch}\left(\frac{\xi\xi'}{2\,\mathrm{sh}\,\tau}\right),\ \tau > 0. \tag{4.29}$$

Возвращаясь к переменной x, получим

$$\begin{aligned} w(x,t) = {} & \sqrt{\frac{2}{\pi}}(1-\gamma)\beta x^{-\gamma}e^{-\beta^2x^{2-2\gamma}/2}\frac{e^{b(1-\gamma)t/2}}{\sqrt{2\,\mathrm{sh}[b(1-\gamma)t]}} \\ & \times\int_0^{\infty}\exp\left(-e^{-b(1-\gamma)t}\beta^2\frac{x^{2-2\gamma}+x'^{2-2\gamma}}{4\,\mathrm{sh}[b(1-\gamma)t]}\right)\mathrm{ch}\left(\frac{\beta^2(xx')^{1-\gamma}}{2\,\mathrm{sh}[b(1-\gamma)t]}\right)\phi(x')dx'. \end{aligned} \tag{4.30}$$

Используя [99], получим выражение для моментов x

$$\begin{aligned} \mu_n(t) = {} & \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\left(\frac{e^{b(1-\gamma)t}}{2\,\mathrm{sh}[b(1-\gamma)t]}\right)^{-\frac{n}{2-2\gamma}}\beta^{-\frac{n}{1-\gamma}}\Gamma\left(\frac{n}{1-\gamma}+1\right)\int_0^{\infty}\exp\left(-e^{-b(1-\gamma)t}\frac{\beta^2x'^{2-2\gamma}}{8\,\mathrm{sh}[b(1-\gamma)t]}\right) \\ & \times\left[D_{-\frac{n}{1-\gamma}-1}\left(\frac{\beta x'^{1-\gamma}e^{-b(1-\gamma)t/2}}{\sqrt{2\,\mathrm{sh}[b(1-\gamma)t]}}\right)+D_{-\frac{n}{1-\gamma}-1}\left(-\frac{\beta x'^{1-\gamma}e^{-b(1-\gamma)t/2}}{\sqrt{2\,\mathrm{sh}[b(1-\gamma)t]}}\right)\right]\phi(x')dx'. \end{aligned} \tag{4.31}$$

Для достаточно больших времен ($t \gg 1/[b(1-\gamma)]$) функция распределения вероятности (4.30) становится стационарным распределением

$$w_{\mathrm{st}}(x) = \sqrt{\frac{2}{\pi}}(1-\gamma)\beta x^{-\gamma}e^{-\beta^2x^{2-2\gamma}/2}, \tag{4.32}$$

и стационарные моменты x принимают вид

$$\mu_n = \frac{1}{\sqrt{\pi}}\left(\frac{\sqrt{2}}{\beta}\right)^{\frac{n}{1-\gamma}}\Gamma\left(\frac{n}{2-2\gamma}+\frac{1}{2}\right). \tag{4.33}$$

Легко видеть, что формулы (4.32) и (4.33) совпадают с уравнениями (4.24) и (4.25) в рассмотренном случае. К тому же, уравнение (4.32) при $\gamma = 0$ представляет собой полунормальное распределение [134].

4.1.2 Белый импульсный шум

Рассмотрим решение уравнения (4.1) с шумовым слагаемым, представленным случайным импульсным процессом $\eta(t)$, состоящим из дельта-импульсов с постоянной амплитудой f_0. Данный вид случайного процесса представлен в первой части раздела 3.1.1. Свойства случайного процесса характеризуются его спектральной плотностью. Как показано в разделе 3.1.1, спектральная плотность рассматриваемого процесса выражается формулой

$$S_\eta(\omega) = \frac{2f_0^2}{T}\left[1 + \sum_{m=1}^{\infty}\Theta_m(\omega) + \Theta_m(-\omega)\right]. \tag{4.34}$$

Необходимо определить, возможно ли применять полученные в предыдущем подразделе результаты (4.19) и (4.23) в случае, когда случайный процесс имеет вид импульсного процесса. Рассмотрим уравнение (4.1) с белым пуассоновским источником шума (т.е., величина интервалов между соседними импульсами ϑ имеет экспоненциальное распределение)

$$\frac{dx}{dt} = -bx + x^\gamma f_0 \sum_j \delta(t - t_j). \tag{4.35}$$

Переходя к переменным $\xi = \sqrt{\frac{2}{(1-\gamma)bT}}\left(\frac{bT}{f_0}x^{1-\gamma} - 1\right)$ и $\tau = (1-\gamma)bt$, совпадающим с обозначениями в уравнении (4.2′) при $D = f_0^2/2T$ и $a = f_0/T$, можно переписать уравнение (4.35) в виде

$$\frac{d\xi}{d\tau} = -\xi - \sqrt{\frac{2}{(1-\gamma)bT}} + \sqrt{2(1-\gamma)bT}\sum_j \delta(\tau - \tau_j). \tag{4.35′}$$

Функция распределения вероятностей $w(\xi,\tau)$ удовлетворяет следующему уравнению [135]

$$\frac{\partial w(\xi,\tau)}{\partial \tau} = \frac{\partial}{\partial \xi}\left[\left(\xi + \sqrt{\frac{2}{(1-\gamma)bT}}\right)w(\xi,\tau)\right] + \frac{w(\xi - \sqrt{2(1-\gamma)bT},\tau) - w(\xi,\tau)}{(1-\gamma)bT}. \tag{4.36}$$

Разложение в ряд Тейлора функции $w(\xi - \sqrt{2(1-\gamma)bT},\tau)$ по первому аргументу вблизи ξ приводит к следующему уравнению

$$\frac{\partial w(\xi,\tau)}{\partial \tau} = \frac{\partial}{\partial \xi}\left[\xi w(\xi,\tau)\right] + \frac{\partial^2 w(\xi,\tau)}{\partial \xi^2} + 2\sum_{n=3}\frac{(-1)^n}{n!}\left[2(1-\gamma)bT\right]^{\frac{n}{2}-1}\frac{\partial^n w(\xi,\tau)}{\partial \xi^n}. \tag{4.36′}$$

Видно, что уравнение (4.36′) сводится к уравнению Фоккера-Планка (4.3′), когда $(1-\gamma)bT \ll 1$. Сохраняя в уравнении (4.36′) слагаемое с производной третьего порядка и возвращаясь к переменной x, получим стационарное решение

$$w_{st}(x) = \mathcal{N} x^{-\gamma} e^{\frac{3}{2}\frac{x^{1-\gamma}}{(1-\gamma)f_0}} \mathrm{Ai}\left[\frac{\frac{6bTx^{1-\gamma}}{f_0} - \frac{15}{4}}{(6b(1-\gamma)T)^{\frac{2}{3}}}\right], \tag{4.37}$$

где $\mathrm{Ai}(z)$ — функция Эйри.

Для преобразования Лапласа стационарного решения уравнения (4.36) по переменной ξ получим

$$\bar{w}_{st}(p) = \int_0^\infty e^{-p\xi} w_{st}(\xi) d\xi = e^{-\frac{2}{bT}\mathrm{Ein}(f_0 p)}, \tag{4.38}$$

где $\mathrm{Ein}(z)$ — модифицированная интегральная показательная функция [132]. Тогда стационарные моменты ξ имеют следующий вид

$$\mu_n = (-1)^n \frac{d^n \bar{w}_{st}(p)}{dp^n}\bigg|_{p=0}. \tag{4.39}$$

Для $\gamma = 1/2$ получаем

$$\langle x \rangle = \frac{f_0^2}{b^2 T^2} + \frac{f_0^2}{4bT}. \tag{4.40}$$

Сравнивая уравнение (4.40) с уравнением (4.26), можно увидеть, что когда случайный процесс имеет вид гауссовского белого шума, возникает дополнительное слагаемое, пропорциональное $w_{st}(\xi_-)$. Появление этого слагаемого связано с наличием граничного условия для отражающей границы при $\xi = \xi_-$ (или $x = 0$). Следовательно, уравнения (4.26) и (4.40) совпадают (при соответствующем выборе параметров a и D), когда $\xi_- \to -\infty$ или, что то же самое, когда $bT \ll 1$, т.е. когда характерное время случайного процесса T много меньше, чем характерное время релаксации системы $1/b$.

4.1.3 Коррелированный импульсный шум

Уравнение (4.2′) отличается от хорошо известного уравнения, описывающего процесс Орнштейна-Уленбека, только тем, что $\xi \geq \xi_-$. Можно рассмотреть вопрос о том, допустимо ли пренебрегать этим условием напрямую для белого шума, используя неравенство $\sigma^2_{\xi W} \ll \xi_-^2$, асимптотически. Здесь $\sigma^2_{\xi W}$ — дисперсия белого гауссовского шума.

Если к белому шуму можно применить приближение линейного фильтра, его можно применить и к скоррелированному шуму, так как обычно его дисперсия σ^2_ξ меньше, чем $\sigma^2_{\xi W}$.

Рассмотрим случай $\gamma = 1/2$. Выведем следующее выражение для первого момента x

$$\langle x \rangle = \frac{a^2}{b^2} + \frac{\langle \zeta^2 \rangle}{\beta^2}, \tag{4.41}$$

где $D = \int_0^\infty K_\zeta(t)dt$ в β, $\zeta(t) = \eta(t) - \langle\eta(t)\rangle$, и $a = \langle\eta(t)\rangle$.

Используя определение спектральной плотности, получим для безразмерного времени τ и частоты Ω

$$\langle\zeta^2\rangle = K_\zeta(0) = \frac{\beta^2}{4\pi b^2}\int_{-\infty}^{\infty}\frac{S'_\zeta(\Omega)d\Omega}{1+\Omega^2} = \frac{\beta^2}{b^2}\int_0^\infty e^{-\tau}K'_\zeta(\tau)d\tau. \tag{4.42}$$

Здесь были использованы следующие обозначения: $\tau = \frac{b}{2}t$, $K'_\zeta(\tau) = K_\zeta(t)$, $\Omega = \frac{2}{b}\omega$, $S'_\zeta(\Omega) = \frac{b}{2}S_\zeta(\omega)$. Возвращаясь к времени t вместо τ, получим итоговое выражение для среднего значения x

$$\langle x\rangle = \frac{a^2}{b^2} + \frac{1}{2b}\int_0^\infty e^{-\frac{b}{2}t}K_\zeta(t)dt = \frac{a^2}{b^2} + \frac{\bar{K}_\zeta\left(\frac{b}{2}\right)}{2b}, \tag{4.43}$$

где чертой обозначено преобразование Лапласа.

Для случая, когда время корреляции шума достаточно мало $\tau_{cor} \ll 2/b$, можно упростить уравнение (4.43)

$$\langle x\rangle = \frac{a^2}{b^2} + \frac{1}{2b}\int_0^\infty K_\zeta(t)dt = \frac{a^2}{b^2} + \frac{S_\zeta(0)}{8b}. \tag{4.44}$$

Это выражение соответствует хорошо известному приближению для скореллированного процесса, когда он описывается марковским процессом [123]. Для временных интервалов, значительно превышающих время корреляции, процесс $\zeta(t)$ можно считать марковским, что означает, что процесс $\zeta(t)$ с корреляционными функциями $k_s(t_1,\ldots,t_s)$ может быть заменен дельта-коррелированным процессом с корреляционными функциями

$$K_s\delta(t_2 - t_1)\ldots\delta(t_s - t_1),$$

с такими же коэффициентами интенсивности K_s, как и у исходного процесса $\zeta(t)$.

Таким образом, полученное уравнение (4.44) демонстрирует сильную зависимость среднего решения уравнения (4.1) от корреляционных свойств рассматриваемого случайного процесса.

Уравнение (4.44) полностью соответствует уравнению (4.40) в случае пуассоновского белого импульсного процесса, но оно отличается от уравнения (4.26) для гауссовского белого шума тем, что в уравнении (4.44) возникает дополнительное слагаемое, пропорциональное $w_{st}(\xi_-)$. Это различие можно устранить, если учесть условие отражения на границе с помощью дополнительного слагаемого $-2\sum\limits_{0<s\leq t}\dot{\xi}(s-0)\mathbb{1}|_{\xi(s)=\xi_-}$ [136]. Для импульсного процесса

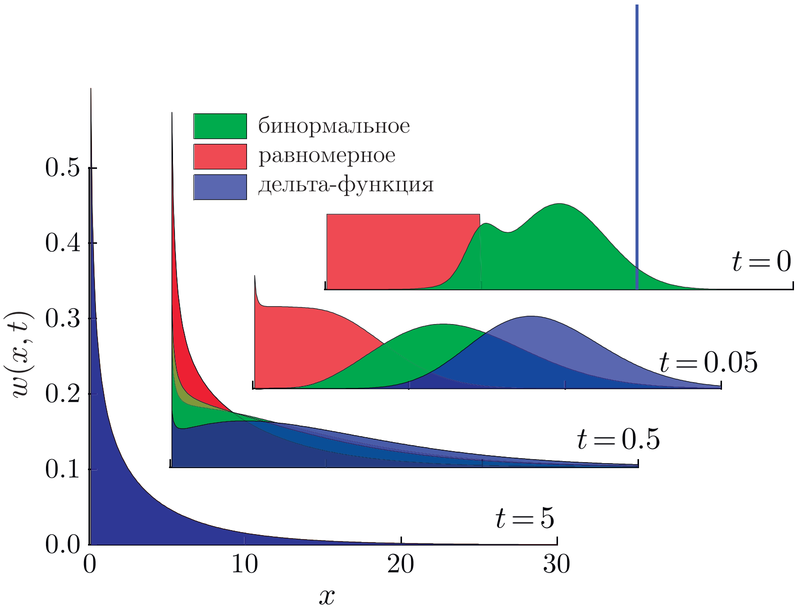

Рис. 4.1. Эволюция различных начальных распределений со временем из уравнения (4.45): усеченное двойное нормальное распределение (зеленый), равномерное распределение (красный), распределение в виде дельта-функции (синий). Использованные параметры: $\gamma = 1/2$, $b = 2$, $a = 1$, $D = 10$.

с положительными значениями высоты импульсов такая корректировка не требуется, так как $\dot{\xi}(t)$ неотрицательна при $\xi = \xi_-$.

В данной главе в уравнении (4.1) было рассмотрено два вида случайного процесса. Первый — пуассоновский процесс с задержкой [137], второй — импульсный процесс с фиксированными точками [101]. Оба типа случайных процессов подробно описаны в соответствующих подразделах раздела 3.1.1.

4.2 Численное моделирование

Как было отмечено выше, на достаточно большим временах ($t \gg 1/[b(1-\gamma)]$) функция плотности распределения вероятностей (4.19) переходит в стационарное распределение (4.24). На рисунке 4.1 показан переход к стационарному распределению (4.24) с течением временем для различных начальных распределений $w(x,0)$, а именно: распределения в виде дельта-функции $w_d(x,0)$, равномерного $w_u(x,0)$ и усеченного двойного нормального

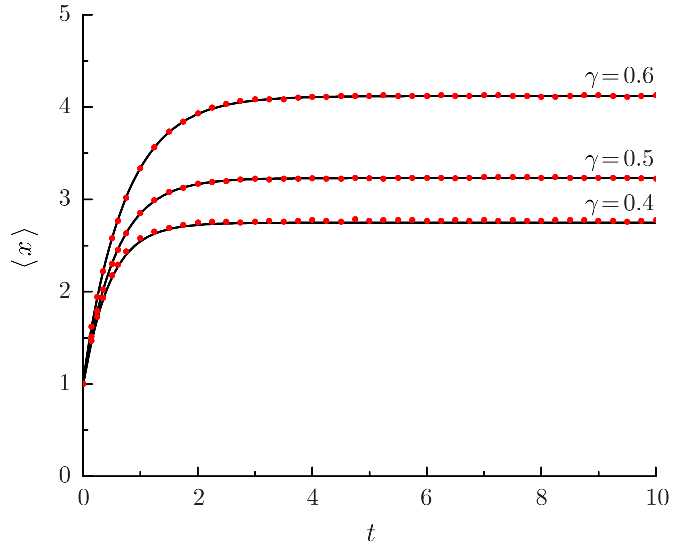

Рис. 4.2. Графики зависимости среднего значения x от времени для различных значений γ и постоянных значений других параметров: $a = 1$, $b = 2$, $D = 10$. Сравниваются результаты теоретического (сплошные линии) и численного (точки) расчета, полученные для случая гауссовского белого шума.

распределений $w_b(x,0)$

$$\begin{aligned} w_d(x,0) &= \delta(x - x_0), \\ w_u(x,0) &= \tfrac{1}{h}, x \in [0,h], \\ w_b(x,0) &= \frac{\kappa_1 \exp\left(-\frac{(x-\mu_1)^2}{2\sigma_1^2}\right)}{\sqrt{2\pi}\sigma_1 \left[1 - \frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{\mu_1}{\sqrt{2}\sigma_1}\right)\right]} + \frac{\kappa_2 \exp\left(-\frac{(x-\mu_2)^2}{2\sigma_2^2}\right)}{\sqrt{2\pi}\sigma_2 \left[1 - \frac{1}{2}\mathrm{erfc}\left(\frac{\mu_2}{\sqrt{2}\sigma_2}\right)\right]}, x \geq 0. \end{aligned} \tag{4.45}$$

Здесь $x_0 = 20$, $h = 10$, $\kappa_1 = 1/7$, $\mu_1 = 10$, $\sigma_1 = 1$, $\kappa_2 = 6/7$, $\mu_2 = 15$, $\sigma_2 = 3$.

Было проведено численное интегрирование уравнения (4.1). В вычислениях были использованы три типа случайного процесса: белый гауссовский шум с ненулевым средним; пуассоновский импульсный процесс с задержкой ϑ_0 и средним временным интервалом между соседними импульсами T; импульсный процесс с фиксированными точками, характеризуемый постоянным временным интервалом T и временным интервалом ϑ_T, внутри которого может возникнуть импульс.

Для нахождения численного решения уравнения (4.1) с белым гауссовским шумом была использована сильная схема Тейлора порядка 1.5 [138] с шагом по времени 10^{-6}. В случае пуассоновского процесса с задержкой и процесса с фиксированными точками было проведено прямое моделирование уравнения (4.1). В качестве генератора псевдослучайных чисел был использован вихрь Мерсенна [127]. Усреднение было проведено по 10^6 случайных реализаций.

На рисунках 4.2 и 4.3 показано среднее и дисперсия, полученные путем теоретического решения (4.23) и численного интегрирования уравнения (4.1) для случая, когда случайный

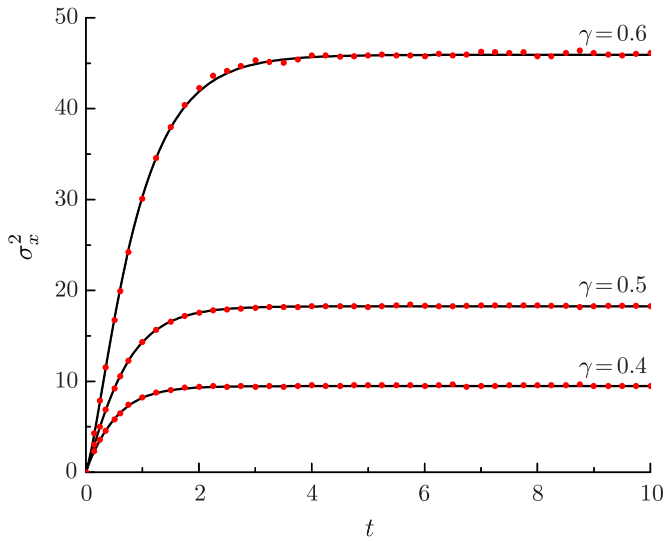

Рис. 4.3. Графики зависимости дисперсии x от времени для различных значений γ и постоянных значений других параметров: $a = 1$, $b = 2$, $D = 10$. Сравниваются результаты теоретического (сплошные линии) и численного (точки) расчета, полученные для случая гауссовского белого шума.

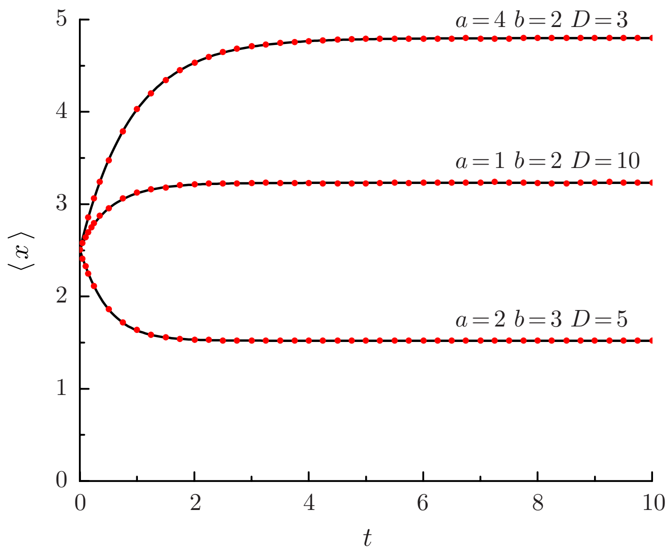

Рис. 4.4. Графики зависимости среднего значения x от времени для различных значений a, b, D и постоянного значения экспоненты $\gamma = 1/2$. Сравниваются результаты теоретического (сплошные линии) и численного (точки) расчета, полученные для случая гауссовского белого шума.

процесс представлен в виде гауссовского белого шума, для различных значений параметра γ. Значения для других параметров были зафиксированы: $a = 1$, $b = 2$, $D = 10$, начальное распределение имело вид дельта-функции с $x_0 = 1$.

На рисунках 4.4 и 4.5 также показаны результаты теоретического и численного расчета для уравнения (4.1) в случае, когда случайный процесс представлен в виде гауссовского белого шума. При этом $\gamma = 1/2$, и начальное распределение имело вид распределения Рэлея

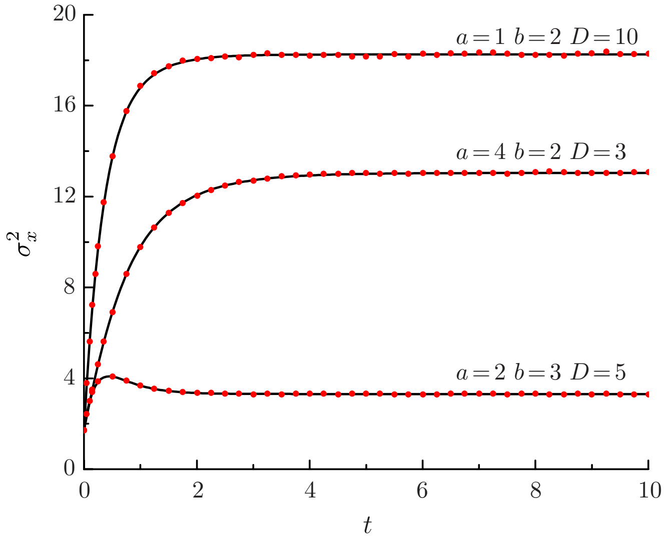

Рис. 4.5. Графики зависимости дисперсии x от времени для различных значений a, b, D и постоянного значения экспоненты $\gamma = 1/2$. Сравниваются результаты теоретического (сплошные линии) и численного (точки) расчета, полученные для случая гауссовского белого шума.

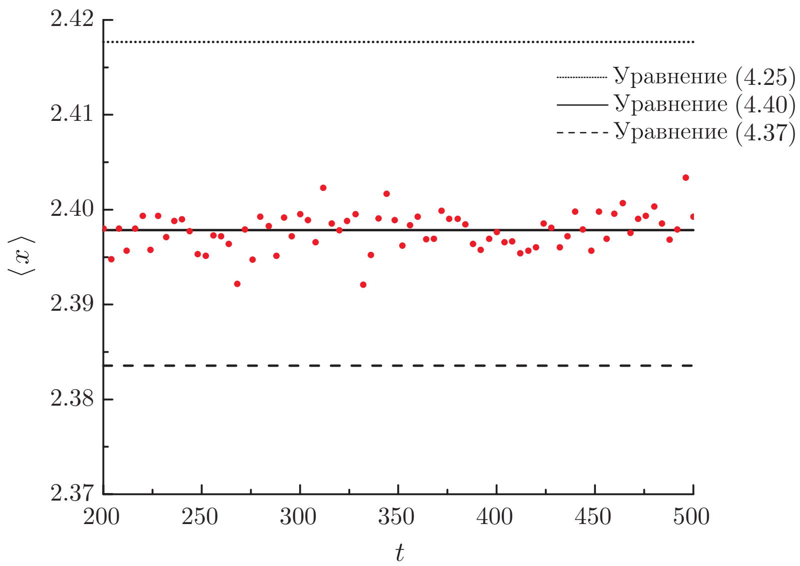

Рис. 4.6. Графики зависимости среднего значения x от времени для пуассоновского белого шума (точки), выведенный из стационарных решений, полученных в следующих уравнениях: уравнение (4.40) (сплошная линия), уравнение (4.37) (прерывистая линия), уравнение (4.25) (пунктирная линия). Значения параметров следующие: $\gamma = 1/2$, $b = 1$, $T = 0{,}7$, $f_0 = 1$.

с $\sigma = 2$. Значения для других параметров были зафиксированы: $a = 1$, $b = 2$, $D = 10$; $a = 4$, $b = 2$, $D = 3$; $a = 2$, $b = 3$, $D = 5$.

Было проведено сравнение теоретических решений, приведенных в уравнениях (4.25), (4.37) и (4.40), когда условие $(1-\gamma)bT \ll 1$ не выполняется. Были использованы следующие параметры: $f_0 = 1$, $T = 0{,}7$, $b = 1$, $\gamma = 1/2$. На рисунке 4.6 хорошо видно, что теоретическое решение (4.40) хорошо согласуется с численным моделированием уравнения (4.35), в то

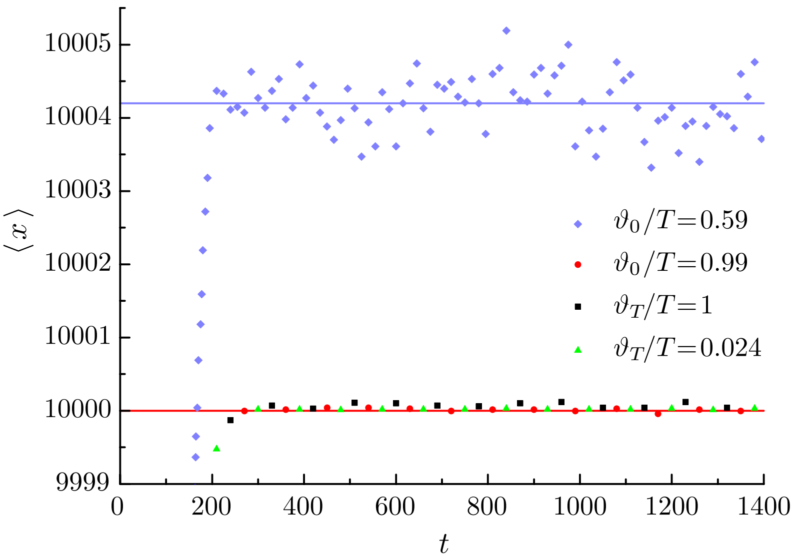

Рис. 4.7. Графики зависимости среднего значения x от времени для различных случайных процессов: пуассоновский процесс с задержкой при $\vartheta_0/T = 0{,}59$ (фиолетовые ромбы) и $\vartheta_0/T = 0{,}99$ (красные круги); процесс с фиксированными точками при $\vartheta_T/T = 1$ (черные квадраты) и $\vartheta_T/T = 0{,}024$ (зеленые треугольники). Значения остальных параметров были зафиксированы: $\gamma = 1/2$, $b = 0{,}1$, $T = 0{,}1$, $f_0 = 1$. Графики для стационарного теоретического решения, полученного из уравнения (4.25) с $D = S_\zeta(0)/4$ для $\vartheta_0/T = 0{,}59$ (фиолетовая линия), $\vartheta_0/T = 0{,}99$ и обеих реализаций процесса с фиксированными точками (красная линия).

время, как выражение (4.25) дает завышенную оценку величины $\langle x \rangle$, а уравнение (4.37) — заниженную.

На рисунке 4.7 показан результат численного моделирования для случаев, когда случайный процесс имел вид пуассоновского импульсного процесса с задержкой и импульсного процесса с фиксированными точками; также на нем изображены теоретические решения, полученные из уравнения (4.25). Были использованы следующие параметры: $\gamma = 1/2$, $f_0 = 1$, $b = 0{,}1$, $T = 0{,}1$, начальное распределение имело вид распределения Рэлея с $\sigma = 1$. Параметры ϑ_0 и ϑ_T были выбраны таким образом, чтобы дисперсия расстояния между соседними импульсами была одинакова для обоих случайных процессов. Случайные процессы, в свою очередь, были рассмотрены в случае сильной периодичности $\sigma_\vartheta^2 = 10^{-6}$ ($\vartheta_0/T = 0{,}99$ и $\vartheta_T/T = 0{,}024$) и слабой периодичности $\sigma_\vartheta^2 = 0{,}00167$ ($\vartheta_0/T = 0{,}59$ и $\vartheta_T/T = 1$). Среднее расстояние между соседними импульсами для обоих типов процессов было одинаково и составляло $\langle \vartheta \rangle = T$. При нахождении теоретического решения были использованы параметры $a = f_0/T$ и $D = S_\zeta(0)/4$ для соответствующих случайных процессов.

Отметим, что масштаб оси y на рисунках 4.6 и 4.7 выбран таким образом, чтобы было видно различие средних значений, полученных из уравнений (4.25), (4.37) и (4.40) для рисунка 4.6 и уравнения (4.25) для рисунка 4.7. Это позволяет подчеркнуть различия в средних

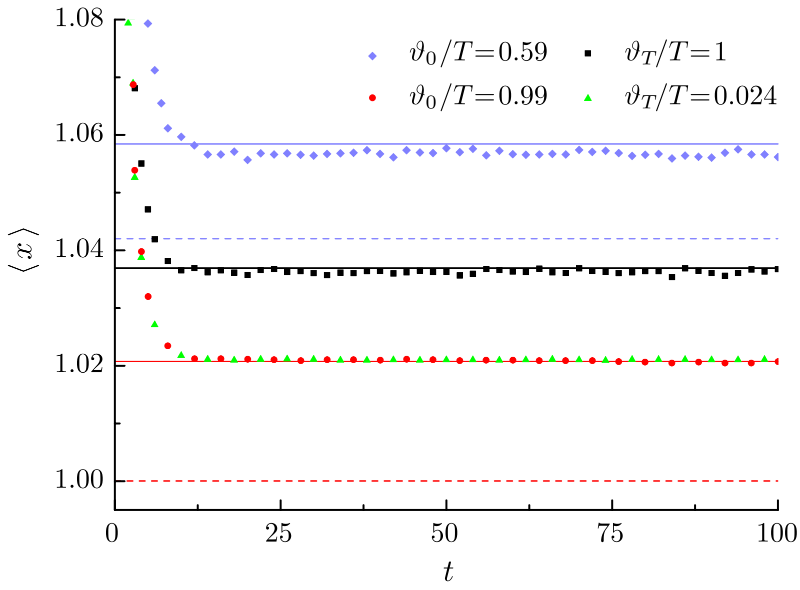

Рис. 4.8. Графики зависимости среднего значения x от времени для различных случайных процессов: пуассоновский процесс с задержкой при $\vartheta_0/T = 0{,}59$ (фиолетовые ромбы), и $\vartheta_0/T = 0{,}99$ (красные круги); процесс с фиксированными точками при $\vartheta_T/T = 1$ (черные квадраты), и $\vartheta_T/T = 0{,}024$ (зеленые треугольники). Значения остальных параметров были зафиксированы: $\gamma = 1/2$, $b = 1$, $T = 1$, $f_0 = 1$. Графики для стационарного теоретического решения, полученного из уравнения (4.25) с $D = \bar{K}_\zeta(b/2)$ для $\vartheta_0/T = 0{,}59$ (фиолетовая сплошная линия), $\vartheta_T/T = 1$ (черная сплошная линия), $\vartheta_0/T = 0{,}99$ и $\vartheta_T/T = 0{,}024$ (красная сплошная линия); и $D = S_\zeta(0)/4$ для следующих значений параметров: $\vartheta_0/T = 0{,}59$ (пунктирная фиолетовая линия), $\vartheta_0/T = 0{,}99$ и обеих реализаций процесса с фиксированными точками (пунктирная красная линия).

значениях, вызванные различными статистическими свойствами использованных случайных процессов. Однако, отклонения от результатов, полученных теоретически, не так велики, как они кажутся на первый взгляд. На рисунке 4.6 среднеквадратичное отклонение среднего, определяемое как $\sigma_{\langle x \rangle} = \sigma_x/\sqrt{N}$, составляет примерно 0,002 (0,08%). На рисунке 4.7 среднеквадратичное отклонение среднего составляет 0,4 (0,004%) для пуассоновского импульсного процесса с задержкой $\vartheta_0/T = 0{,}59$. Для пуассоновского импульсного процесса с задержкой $\vartheta_0/T = 0{,}99$ и импульсных процессов с фиксированными точками эта величина намного меньше: 0,01 и 0 (из уравнения (3.15)), соответственно. В итоге, эти отклонения сравнимы с результатами на других графиках, таких, как рисунок 4.4, где среднеквадратничное отклонение составляет порядка 0,07% для значений параметров $a = 4$, $b = 2$, $D = 3$. Результат, приведенный на рисунке 4.7, указывает на то, что в случае пуассоновского процесса с задержкой увеличения параметра периодичности, что соответствует увеличению задержки, уменьшает интенсивность флуктуаций среднего значения решения уравнения (4.1). Напротив, менее периодичный процесс приводит к увеличению стационарного значения и к уси-

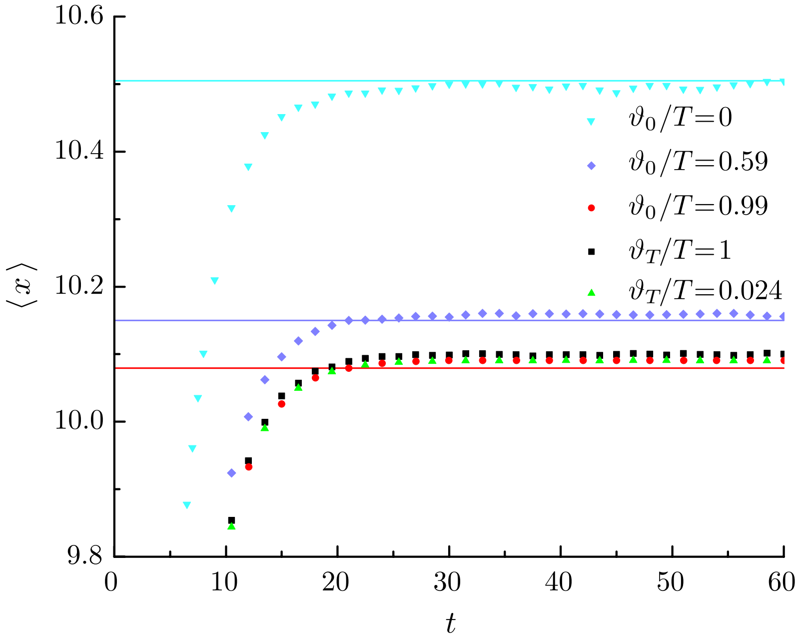

Рис. 4.9. Графики зависимости среднего значения x от времени для различных случайных процессов: пуассоновский процесс с задержкой при $\vartheta_0/T = 0$ (голубые треугольники, направленные вниз), $\vartheta_0/T = 0{,}59$ (фиолетовые ромбы), $\vartheta_0/T = 0{,}99$ (красные круги); процесс с фиксированными точками при $\vartheta_T/T = 1$ (черные квадраты) и $\vartheta_T/T = 0{,}024$ (зеленые треугольники, направленные вверх). Значения остальных параметров были зафиксированы: $\gamma = 0{,}4$, $b = 0{,}5$, $T = 0{,}5$, $f_0 = 1$. Графики для стационарного теоретического решения, полученного из уравнения (4.25) с $D = S_\zeta(0)/4$ для $\vartheta_0/T = 0$ (голубая линия), $\vartheta_0/T = 0{,}59$ (фиолетовая линия), $\vartheta_0/T = 0{,}99$ и обеих реализаций процесса с фиксированными точками (красная линия).

лению флуктуаций в решениях. Важно отметить, что в случае процесса с фиксированными точками изменение периодичности не влияет на стационарное значение решения.

Различия между результатами численного моделирования уравнения (4.1) для процесса с фиксированными точками с различными σ_ϑ^2 не всегда пренебрежимо малы. На рисунке 4.8 этот факт показан для параметров $\gamma = 1/2$, $f_0 = 1$, $b = 1$, $T = 1$ и начального распределения в виде распределения Рэлея с $\sigma = 1$. Сравнение с результатами численного моделирования и стационарными теоретическими решениями, полученными из уравнения (4.25) с различными аппроксимациями значения D из уравнений (4.43) и (4.44) ($D = \bar{K}_\zeta(b/2)$ и $D = S_\zeta(0)/4$, соответственно), показывает, что равенство $D = S_\zeta(0)/4$ неверно для $(1-\gamma)bT \sim 1$. Видно, что условие $(1-\gamma)bT \ll 1$ выполняется для параметров, использованных для вычислений, результаты которых показаны на рисунке 4.7, но не выполняется для параметров рисунка 4.8.

Покажем, что изменится, если результат численного моделирования с пуассоновским процессом с задержкой и процессом с фиксированными точками, а также теоретическое стационарное решение, получаемое из уравнения (4.25), будет найдено для случая, когда значение γ отличается 1/2 (см. рисунки. 4.9 и 4.10). Здесь были использованы параметры

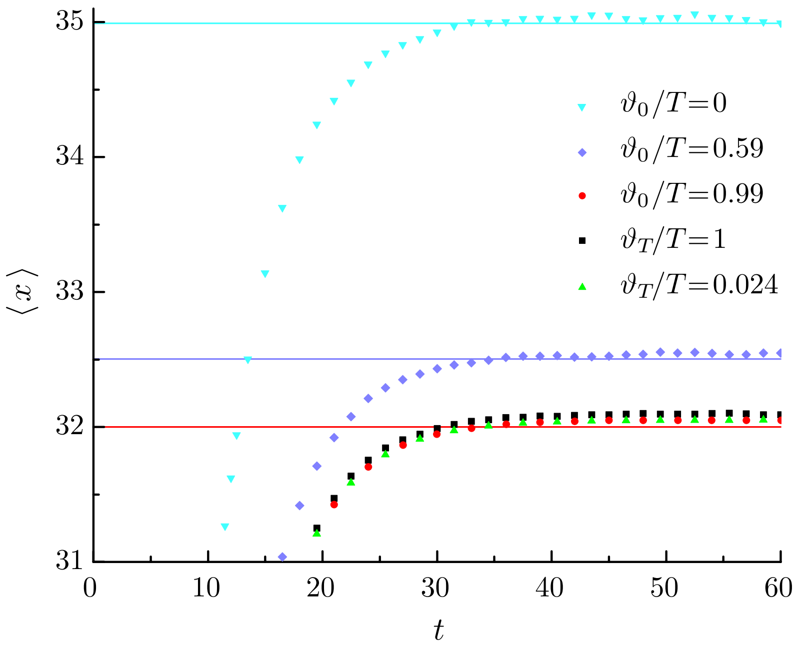

Рис. 4.10. Графики зависимости среднего значения x от времени для различных случайных процессов: пуассоновский процесс с задержкой при $\vartheta_0/T = 0$ (голубые треугольники, направленные вниз), $\vartheta_0/T = 0{,}59$ (фиолетовые ромбы), $\vartheta_0/T = 0{,}99$ (красные круги); процесс с фиксированными точками при $\vartheta_T/T = 1$ (черные квадраты) и $\vartheta_T/T = 0{,}024$ (зеленые треугольники, направленные вверх). Значения остальных параметров были зафиксированы: $\gamma = 0{,}6$, $b = 0{,}5$, $T = 0{,}5$, $f_0 = 1$. Графики для стационарного теоретического решения, полученного из уравнения (4.25) с $D = S_\zeta(0)/4$ для $\vartheta_0/T = 0$ (голубая линия), $\vartheta_0/T = 0{,}59$ (фиолетовая линия), $\vartheta_0/T = 0{,}99$ и обеих реализаций процесса с фиксированными точками (красная линия).

$f_0 = 1$, $b = 0{,}5$, $T = 0{,}5$; начальное распределение имело вид дельта-функции с $x_0 = 5$. Для теоретического решения снова считалось, что $a = f_0/T$ и $D = S_\zeta(0)/4$. Отметим, что теоретическое решение и результат численного моделирования удовлетворительно согласуются даже для случая $(1-\gamma)bT \lesssim 1$. Сравнение рисунков 4.9 и 4.10 показывает, что время релаксации к стационарному состоянию увеличивается с увеличением γ.

4.3 Случай нелинейной диссипации

Обобщим уравнение (4.1) на случай нелинейной диссипации

$$\frac{dx}{dt} = -bx^{\beta} + x^{\gamma}\eta(t), \quad x \in \mathbb{R}^{+}, \tag{4.46}$$

где $\eta(t)$ — стационарный белый гауссовский шум с ненулевым средним, а показатели степени подчиняются следующим неравенствам: $0 \leq \gamma < 1$ и $\beta > \gamma$.

Перепишем уравнение (4.46), выделяя ненулевое среднее из шумового слагаемого $a = \langle \eta(t) \rangle$. Тогда получим

$$\frac{dx}{dt} = ax^{\gamma} - bx^{\beta} + x^{\gamma}\zeta_w(t), \tag{4.47}$$

где $\zeta_w(t)$ — белый гауссовский шум, $\langle \zeta_w(t) \rangle = 0$ и $\langle \zeta_w(t)\zeta_w(t+\tau) \rangle = 2D\delta(\tau)$.

Соответствующее уравнение Фоккера-Планка для функции плотности распределения вероятностей $w(x,t)$ имеет следующий вид

$$\frac{\partial w(x,t)}{\partial t} = -\frac{\partial}{\partial x}\left[\left(ax^{\gamma} - bx^{\beta} + \gamma D x^{2\gamma-1}\right) w(x,t)\right] + \frac{\partial^2}{\partial x^2}\left[D x^{2\gamma} w(x,t)\right] \tag{4.48}$$

с отражающей границей в $x = 0$ (поток вероятности через границу равен нулю).

В общем случае получить решение уравнения (4.48) затруднительно, но можно найти стационарное решение:

$$w_{st}(x) = \lambda(1-\gamma)\left(\frac{b}{D\lambda(1-\gamma)}\right)^{\frac{1}{\lambda}} \frac{x^{-\gamma} e^{\frac{a}{D(1-\gamma)}x^{1-\gamma} - \frac{b}{D\lambda(1-\gamma)}x^{\lambda(1-\gamma)}}}{{}_1\Psi_0\left(\left.\begin{matrix}\left(\frac{1}{\lambda},\frac{1}{\lambda}\right)\\ -\end{matrix}\right|\kappa\right)}, \tag{4.49}$$

где $\lambda = \frac{\beta-\gamma}{1-\gamma} + 1$, ${}_p\Psi_q(\ldots|z)$ — обобщенная гипергеометрическая функция Райта [139] и

$$\kappa = \frac{a}{D(1-\gamma)}\left(\frac{b}{D\lambda(1-\gamma)}\right)^{-\frac{1}{\lambda}}. \tag{4.50}$$

Используя уравнение (4.49), найдем стационарное среднее значение x:

$$\langle x \rangle = \left(\frac{b}{D\lambda(1-\gamma)}\right)^{-\frac{1}{\lambda(1-\gamma)}} \frac{{}_1\Psi_0\left(\left.\begin{matrix}\left(\frac{1}{\lambda}+\frac{1}{\lambda(1-\gamma)},\frac{1}{\lambda}\right)\\ -\end{matrix}\right|\kappa\right)}{{}_1\Psi_0\left(\left.\begin{matrix}\left(\frac{1}{\lambda},\frac{1}{\lambda}\right)\\ -\end{matrix}\right|\kappa\right)}. \tag{4.51}$$

Получим выражение для стационарного среднего значения x при $\kappa \to \infty$

$$\langle x \rangle = \left(\frac{a}{b}\right)^{\frac{1}{\beta-\gamma}} \left\{ 1 + \frac{D}{2} \frac{\gamma + 1 - \beta}{\beta - \gamma} \left[\frac{b^{\frac{1}{\lambda}}}{a}\right]^{\frac{1}{1-\frac{1}{\lambda}}} \right\}, \tag{4.52}$$

используя асимптотическое разложение функции Райта для больших значений аргумента [140].

Заключение к главе 4.

В данной главе была рассмотрена задача о релаксации решения стохастического дифференциального уравнения к стационарному уровню, значение которого изменяется в зависимости от параметров мультипликативного шума. Было получено решение уравнения Фоккера-Планка, соответствующего рассматриваемому СДУ, для случая белого гауссовского шума и было показано, что теоретическое решение возможно получить и для случая коррелированного импульсного шума. Было проведено численное моделирование СДУ; его результаты хорошо совпадают с результатами теоретического вычисления. Анализ был проведен для двух видов импульсного шума: для импульсного пуассоновского процесса с задержкой и для импульсного процесса с фиксированными точками. Было показано, что в случае пуассоновского процесса с задержкой увеличение параметра периодичности, что соответствует увеличению задержки, уменьшает интенсивность флуктуаций среднего значения решения СДУ и понижает значение стационарного решения. В случае процесса с фиксированными точками изменение периодичности не влияет на стационарное значение решения. Также было найдено стационарное решение уравнения Фоккера-Планка, соответствующего СДУ с обобщенным диссипативным слагаемым.

Заключение

В главе 2 был рассмотрен ансамбль свободных кластеров, движущихся по плоской горизонтальной подложке и присоединяющихся к островкам. Было предложено уравнение для описания динамики скоростей кластеров из данного ансамбля; была получена функция плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров. Было проведено численное моделирование изменения скорости кластера при движении по подложке; результаты численного и теоретического расчета хорошо совпадают. Результаты были получены для различных значений параметров захвата и ускорения кластеров. Также расчеты были проведены для различных распределений скоростей осаждаемых кластеров, а именно, для распределения в виде дельта-функции, для положительного обрезанного нормального распределения и для бимодальной смеси положительных обрезанных нормальных распределений. Было показано, что при небольших значениях параметра поглощения стационарные функции плотности распределения вероятностей для скоростей кластеров совпадают для различных распределений скоростей осаждаемых кластеров, в то время, как при большом значения этого параметра стационарное распределение сохраняет черты распределения для осаждаемых кластеров. Также было проанализировано влияние наличия на подложке в начале эксперимента движущихся кластеров: было показано, что на достаточно больших временах информация о начальном распределении скоростей пропадает, поэтому при рассмотрении стационарного распределения можно пренебречь начальным распределением скоростей кластеров.

В главе 3 была предложена полуфеноменологическая модель роста островков из кластеров, с помощью которой был описан процесс, в котором островки растут за счет присоединения кластеров и небольших подвижных островков. Для описания процесса роста островка, а именно, изменения количества кластеров в островке, было получено стохастическое дифференциальное уравнение с мультипликативным шумом. Было найдено решение соответствующего СДУ уравнения Фоккера-Планка для случая, когда в мультипликативном слагаемом содержится гауссовский белый шум, в том числе и для обобщенной модели. Было проведено численное моделирование СДУ с мультипликативным шумом для случая, когда небольшие островки движутся по подложке, и показано влияние изменения характеристик шумов на динамику роста островков; результаты численного и теоретического расчета хорошо совпадают.

Были рассмотрены различные типы случайных процессов (пуассоновский процесс с задержкой, импульсный процесс с фиксированными точками, импульсный процесс, характеризующий присоединение небольших островков), были проанализированы их статистические характеристики, в частности, показано влияние изменения параметра периодичности на величину спектральной плотности в нуле.

В главе 4 была рассмотрена задача о релаксации решения стохастического дифференциального уравнения к стационарному уровню, значение которого изменяется в зависимости от параметров мультипликативного шума. Было получено решение уравнения Фоккера-Планка, соответствующего рассматриваемому СДУ, для случая белого гауссовского шума и было показано, что теоретическое решение возможно получить и для случая коррелированного импульсного шума. Было проведено численное моделирование СДУ; его результаты хорошо совпадают с результатами теоретического вычисления. Анализ был проведен для двух видов импульсного шума: для импульсного пуассоновского процесса с задержкой и для импульсного процесса с фиксированными точками. Было показано, что в случае пуассоновского процесса с задержкой увеличение параметра периодичности, что соответствует увеличению задержки, уменьшает интенсивность флуктуаций среднего значения решения СДУ и понижает значение стационарного решения. В случае процесса с фиксированными точками изменение периодичности не влияет на стационарное значение решения. Также было найдено стационарное решение уравнения Фоккера-Планка, соответствующего СДУ с обобщенным диссипативным слагаемым.

В заключение автор выражает благодарность своему научному руководителю Алексею Владимировичу Карговскому за помощь в получении и обсуждении результатов, представленных в диссертации; Ольге Александровне Чичигиной за постановку интересных научных задач и помощь в работе над ними; Юрию Михайловичу Романовскому, Николаю Николаевичу Брандту, Андрею Андреевичу Коновко, Андрею Юрьевичу Чикишеву, Анатолию Степановичу Чиркину, Александру Александровичу Дубкову и Александре Красновой за идеи и полезные дискуссии, а также своей семье за поддержку.

Список сокращений

ВОПГ высокоориентированный пиролитический графит (HOPG)

ГЦК гранецентрированная кубическая решетка

ЗЗ зона захвата (capture zone)

ИППЗ импульсный пуассоновский процесс с задержкой

ИПФТ импульсный процесс с фиксированными точками

КМК кинетический метод Монте-Карло
(kinetic Monte Carlo method, KMC)

МД молекулярная динамика

МС монослой

ОДП «осаждение-диффузия-присоединение»
(deposition-diffusion-aggregation, DDA)

ОПВК осаждение пучка высокоэнергетичных кластеров
(high energy cluster beam bombardment, HECBB)

ОПНК осаждение пучка низкоэнергетичных кластеров
(low-energy cluster beam deposition, LECBD)

ПЗ параметр захвата (capture number)

СДУ стохастическое дифференциальное уравнение

Список обозначений

J	поток осаждаемых частиц (кластеров или атомов)
D	коэффициент диффузии кластера по подложке
τ_{diff}	время, необходимое для перемещения кластера на расстояние одного диаметра кластера
E_a	энергия активации для диффузии кластера
n_{cl}	число атомов в кластере
N	число структурных единиц (атомов или кластеров, в зависимости от задачи) в островке (размер островка)
m_N	поверхностная плотность островков размера N
τ_a	среднее время нахождения атома на подложке в подвижном состоянии
D_a	коэффициент диффузии атома по подложке
σ_N	параметр захвата (ПЗ)
k_N	вероятность того, что на островок размера N будет осажден один атом из потока
λ	параметр столкновений
R	радиус островка
d_f	фрактальная размерность островка
θ	степень покрытия подложки
$f(v)$	распределение скоростей осаждаемых кластеров
a	ускорение кластера
D_v	диффузия скоростей кластеров
α	параметр захвата
$v(t)$	скорость свободного кластера
$n(v,t)$	плотность скорости кластера
n_0	начальное число кластеров, приходящихся на единицу площади подложки

$\mathcal{N}_{[0;\infty)}$	обрезанное нормальное распределение
$\zeta(t)$	случайный процесс с нулевым средним
$\zeta_w(t)$	белый гауссовский шум с нулевым средним
$\eta(t)$	случайный процесс с ненулевым средним
$\eta_w(t)$	белый гауссовский шум с ненулевым средним
f_i	амплитуда i-го импульса случайного процесса. При $i = 0$ все импульсы имеют одинаковую высоту.
p	вероятность появления импульса в единицу времени
ϑ_0/T	параметр периодичности для пуассоновского процесса с задержкой (ИППЗ)
ϑ_T/T	параметр периодичности для импульсного процесса с фиксированными точками (ИПФТ)
$\Pi(N,t)$	поток кластеров через границу островка
R_{eff}	эффективный радиус островка
τ	среднее время движения (время жизни) кластера
P	периметр островка
s	площадь островка
γ	параметр ветвистости островка
$w(N,t)$	плотность распределения вероятности размеров островков
N_{sat}	поверхностная плотность островков на подложке при достижении насыщения
T	средний временной интервал между двумя последовательными импульсами
$\mathcal{N}$	критический размер островка, при котором он еще способен перемещаться по подложке
$\mathfrak{n}$	размер движущегося по подложке островка

Список литературы

1. Anashkina E.I. et al. Predator population depending on lemming cycles / E.I. Anashkina, O.A. Chichigina. — ΣΦ2014 International Conference on Statistical Physics, 2014. — P. 12.

2. Anashkina E.I. et al. Quasi-stable PDF of velocities of accelerated metal clusters on graphite before joining an island / E.I. Anashkina, A.V. Kargovsky, O.A. Chichigina, A.K. Krasnova. — 7th International Conference on Unsolved Problems on Noise, 2015. — P. 147.

3. Kargovsky A.V. et al. Velocity distribution for quasistable acceleration in the presence of multiplicative noise / A.V. Kargovsky, E.I. Anashkina, O.A. Chichigina, A.K. Krasnova // Physical Review E. — 2013. — Vol. 87. — P. 042133.

4. Kargovsky A.V. et al. Relaxation dynamics in the presence of pulse multiplicative noise sources with different correlation properties / A.V. Kargovsky, O.A. Chichigina, E.I. Anashkina et al. // Physical Review E. — 2015. — Vol. 92. — P. 042140.

5. Kargovsky A.V. et al. Stochastic model for the epitaxial growth of two-dimensional islands in the submonolayer regime / A.V. Kargovsky, E.I. Anashkina, O.A. Chichigina et al. // Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment. — 2016. — P. 033211.

6. Anashkina E.I. et al. The distribution of velocities in an ensemble of accelerated particles on a surface / E.I. Anashkina, A.V. Kargovsky, O.A. Chichigina, A.K. Krasnova // Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment. — 2016. — P. 054007.

7. Anashkina E.I. et al. Predator population depending on lemming cycles / E.I. Anashkina, O.A. Chichigina, D. Valenti et al. // International Journal of Modern Physics B. — 2016. — Vol. 30. — P. 1541003.

8. Карпенко А.Ю. и др. Источники кластерного пучка. Часть 1. Методы получения кластерных пучков / А.Ю. Карпенко, В.А. Батурин // Журнал нано- и электронной физики. — 2012. — Т. 4.

9. Анищик В.М. и др. Наноматериалы и нанотехнологии / В.М. Анищик, В.Е. Борисенко, С.А. Жданок и др. — ред. В.Е. Борисенко, Н.К. Толочко. Минск: Издательский центр БГУ, 2008.

10. Внукова Н.Г. и др. Наноматериалы и нанотехнологии / Н.Г. Внукова, Г.Н. Чурилов. — Красноярск: СФУ, 2007.

11. Ткачев А.Г. и др. Аппаратура и методы синтеза твердотельных наноструктур / А.Г. Ткачев, И.В. Золотухин. — Москва: Машиностроение-1, 2007.

12. Кобаяси Н. Введение в нанотехнологию / Н. Кобаяси. — Москва: Бином. Лаборатория знаний, 2005. — С. 27.

13. Ремпель А.А. Нанотехнологии, свойства и применение наноструктурированных материалов / А.А. Ремпель // Успехи химии. — 2007. — Т. 76. — С. 474.

14. Bardotti L. et al. Deposition of preformed gold clusters on HOPG and gold substrates: influence of the substrate on the thin film morphology / L. Bardotti, B. Prével, M. Treilleux et al. // Applied Surface Science. — 2000. — Vol. 164. — P. 52.

15. Muetterties E.L. et al. Clusters and surfaces / E.L. Muetterties, T.N. Rhodin, E. Band et al. // Chemical Reviews. — 1979. — Vol. 79. — P. 91.

16. Карпенко А.Ю. и др. Источники кластерного пучка. Часть 2. Формирование кластерных пучков в сопловых источниках / А.Ю. Карпенко, В.А. Батурин // Журнал нано- и электронной физики. — 2012. — Т. 4.

17. Bunshah R.F. Handbook of deposition technologies for films and coatings: science, technology, and applications / R.F. Bunshah. — William Andrew, 1994.

18. Perez A. et al. Cluster assembled materials: a novel class of nanostructured solids with original structures and properties / A. Perez, P. Melinon, V. Dupuis et al. // Journal of Physics D: Applied Physics. — 1997. — Vol. 30. — P. 709.

19. Granqvist C.G. et al. Ultrafine metal particles / C.G. Granqvist, R.A. Buhrman // Journal of Applied Physics. — 1976. — Vol. 47. — P. 2200.

20. Melinon P. et al. From free clusters to cluster-assembled materials / P. Melinon, V. Paillard, V. Dupuis et al. // International Journal of Modern Physics B. — 1995. — Vol. 9. — P. 339.

21. Moskovits M. et al. Nanostructured materials: clusters, composites, and thin films / M. Moskovits, V.M. Shalaev. ACS Symposium Series (Book 679). — American Chemical Society, 1997.

22. Гусев Ф.И. Наноструктуры, наноматериалы, технологии / Ф.И. Гусев. — Москва: Физматлит, 2005.

23. Оура К. и др. Введение в физику поверхности / К. Оура, В.Г. Лифшиц, А.А. Саранин и др. — Москва: Наука, 2006.

24. Иванов А. и др. Электронно-лучевое напыление: Технология и оборудование / А. Иванов, Б Смирнов // Наноиндустрия. — 2012. — Т. 36. — С. 28.

25. Haberland H. et al. Thin films from energetic cluster impact: a feasibility study / H. Haberland, M. Karrais, M. Mall, Y. Thurner // Journal of Vacuum Science & Technology A. — 1992. — Vol. 10. — P. 3266.

26. Jensen P. et al. Growth and Properties of Nanostructured Films Prepared by Cluster Deposition / P. Jensen, L. Bardotti, J.L. Barrat et al. // Nanoclusters and Nanocrystals. — 2003.

27. Bardotti L. et al. Diffusion and aggregation of large antimony and gold clusters deposited on graphite / L. Bardotti, P. Jensen, A. Hoareau et al. // Surface Science. — 1996. — Vol. 367. — P. 276.

28. Jensen P. et al. Effect of monomer evaporation on a simple model of submonolayer growth / P. Jensen, H. Larralde, A. Pimpinelli // Physical Review B. — 1997. — Vol. 55. — P. 2556.

29. Fuchs G. et al. Cluster-beam deposition of thin metallic antimony films: Cluster-size and deposition-rate effects / G. Fuchs, P. Melinon, F. Santos Aires et al. // Physical Review B. — 1991. — Vol. 44. — P. 3926.

30. Bardotti L. et al. Spontaneous formation of size-selected bimetallic nanoparticle arrays / L. Bardotti, F. Tournus, M. Pellarin, M. Broyer // Surface Science. — 2012. — Vol. 606. — P. 110.

31. Pellarin M. et al. High-efficiency cluster laser vaporization sources based on Ti: sapphire lasers / M. Pellarin, E. Cottancin, J. Lermé et al. // Chemical Physics Letters. — 1994. — Vol. 224. — P. 338.

32. Perez A. et al. Functional nanostructures from clusters / A. Perez, P. Mélinon, V. Dupuis et al. // International Journal of Nanotechnology. — 2010. — Vol. 7. — P. 523.

33. Edelstein A.S. et al. Nanomaterials: synthesis, properties and applications / A.S. Edelstein, R.C. Cammaratra. — CRC Press, 1998.

34. Jensen P. et al. The effect of a modulated flux on the growth of thin films / P. Jensen, B. Niemeyer // Surface Science Letters. — 1997. — Vol. 384. — P. L823.

35. Krug J. et al. Islands, Mounds, and Atoms: Patterns and Processes in Crystal Growth Far from Equilibrium / J. Krug, T. Michely. — Berlin: Springer-Verlag, 2004.

36. Evans J.W. et al. Morphological evolution during epitaxial thin film growth: Formation of 2D islands and 3D mounds / J.W. Evans, P.A. Thiel, M.C. Bartelt // Surface Science Reports. — 2006. — Vol. 61. — P. 1.

37. Jensen P. et al. Growth of three-dimensional structures by atomic deposition on surfaces containing defects: simulations and theory / P. Jensen, H. Larralde, M. Meunier, A. Pimpinelli // Surface Science. — 1998.

38. Pedersen M. et al. Diffusion of N adatoms on the Fe (100) surface / M. Pedersen, L. Österlund, J.J. Mortensen et al. // Physical Review Letters. — 2000. — Vol. 84. — P. 4898.

39. Kellogg G.L. Field ion microscope studies of single-atom surface diffusion and cluster nucleation on metal surfaces / G.L. Kellogg // Surface Science Reports. — 1994. — Vol. 21. — P. 1.

40. Wrigley J.D. et al. Surface diffusion by an atomic exchange mechanism / J.D. Wrigley, G. Ehrlich // Physical Review Letters. — 1980. — Vol. 44. — P. 661.

41. Lauhon L.J. et al. Direct observation of the quantum tunneling of single hydrogen atoms with a scanning tunneling microscope / L.J. Lauhon, W. Ho // Physical Review Letters. — 2000. — Vol. 85. — P. 4566.

42. Mayne A.J. et al. An scanning tunnelling microscopy study of the diffusion of a single or a pair of atomic vacancies / A.J. Mayne, F. Rose, C. Bolis, G. Dujardin // Surface Science. — 2001. — Vol. 486. — P. 226.

43. Grant M.L. et al. Diffusion kinetics in the Pd/Cu (001) surface alloy / M.L. Grant, B.S. Swartzentruber, N.C. Bartelt, J.B. Hannon // Physical Review Letters. — 2001. — Vol. 86. — P. 4588.

44. Van Gastel R. et al. Nothing moves a surface: Vacancy mediated surface diffusion / R. Van Gastel, E. Somfai, S.B. Van Albada et al. // Physical Review Letters. — 2001. — Vol. 86. — P. 1562.

45. Antczak G. et al. Surface diffusion: metals, metal atoms, and clusters / G. Antczak, G. Ehrlich. — Cambridge University Press, 2010.

46. Trushin O.S. et al. Energetics and many-particle mechanisms of two-dimensional cluster diffusion on Cu (100) surfaces / O.S. Trushin, P. Salo, T. Ala-Nissila // Physical Review B. — 2000. — Vol. 62. — P. 1611.

47. Tripathi M. et al. Controlled AFM detachments and movement of nanoparticles: gold clusters on HOPG at different temperatures / M. Tripathi, G. Paolicelli, S. D'Addato, S. Valeri // Nanotechnology. — 2012. — Vol. 23. — P. 245706.

48. Guerra R. et al. Ballistic nanofriction / R. Guerra, U. Tartaglino, A. Vanossi, E. Tosatti // Nature Materials. — 2010. — Vol. 9. — P. 634.

49. Hamilton J.C. et al. Dislocation mechanism for island diffusion on fcc (111) surfaces / J.C. Hamilton, M.S. Daw, S.M. Foiles // Physical Review letters. — 1995. — Vol. 74. — P. 2760.

50. Жмуриков Е.И. и др. Графит в науке и ядерной технике / Е.И. Жмуриков, И.А. Бубненков, В.В. Дрёмов и др. — Новосибирск, 2013.

51. Кнунянц И.Л. Химическая энциклопедия / И.Л. Кнунянц. — Москва: Советская энциклопедия, 1990.

52. Фиалков А.С. и др. Пирографит. Получение, структура, свойства / А.С. Фиалков, А.И. Бавер, Н.М. Сидоров и др. // Успехи химии. — 1965. — Т. 34. — С. 132.

53. Синицына О.В. и др. Высокоориентированный пиролитический графит / О.В. Синицына, И.В. Яминский // Наноиндустрия. — 2011. — Т. 6. — С. 32–33.

54. Bardotti L. et al. Experimental observation of fast diffusion of large antimony clusters on graphite surfaces / L. Bardotti, P. Jensen, A. Hoareau et al. // Physical Review Letters. — 1995. — Vol. 74. — P. 4694.

55. Bardotti L. et al. Organizing nanoclusters on functionalized surfaces / L. Bardotti, B. Prevel, P. Jensen // Applied Surface Science. — 2002. — Vol. 191. — P. 205.

56. Kébaili N. et al. Diffusion of silver nanoparticles on carbonaceous materials. Cluster mobility as a probe for surface characterization / N. Kébaili, S. Benrezzak, P. Cahuzac et al. // The European Physical Journal D. — 2009. — Vol. 52. — P. 115.

57. Bardotti L. et al. Self organisation of Pt and Au clusters deposited on graphite: the role of reactivity / L. Bardotti, F. Tournus, P. Mélinon // The European Physical Journal D. — 2011. — Vol. 63. — P. 221.

58. Tainoff D. et al. Self-organization of size-selected bare platinum nanoclusters: toward ultra-dense catalytic systems / D. Tainoff, L. Bardotti, F. Tournus // The Journal of Physical Chemistry. — 2008. — Vol. 112. — P. 6842.

59. Jensen P. Growth of nanostructures by cluster deposition: Experiments and simple models / P. Jensen // Reviews of Modern Physics. — 1999. — Vol. 71. — P. 1695.

60. Perez A. et al. Quantum-dot systems prepared by 2D organization of nanoclusters preformed in the gas phase on functionalized substrates / A. Perez, L. Bardotti, B. Prevel et al. // New Journal of Physics. — 2002. — Vol. 4. — P. 1.

61. Alivisatos A.P. Semiconductor clusters, nanocrystals, and quantum dots / A.P. Alivisatos // Science. — 1996. — Vol. 271. — P. 933.

62. Bányai L. et al. Semiconductor quantum dots / L. Bányai, S.W. Koch. — World Scientific, 1993. — Vol. 2.

63. Briot P. et al. Effect of particle size on the reactivity of oxygen-adsorbed platinum supported on alumina / P. Briot, A. Auroux, D. Jones, M. Primet // Applied Catalysis. — 1990. — Vol. 59. — P. 141.

64. Goodman D.W. Catalysis: from single crystals to the ”real world” / D.W. Goodman // Surface Science. — 1994. — Vol. 299. — P. 837.

65. Zinsmeister G. A contribution to Frenkel's theory of condensation / G. Zinsmeister // Vacuum. — 1966. — Vol. 16. — P. 529.

66. Zinsmeister G. Theory of thin film condensation. Part B: Solution of the simplified condensation equation / G. Zinsmeister // Thin Solid Films. — 1968. — Vol. 2. — P. 497.

67. Zinsmeister G. Theory of thin film condensation part C: aggregate size distribution in island films / G. Zinsmeister // Thin Solid Films. — 1969. — Vol. 4. — P. 363.

68. Zinsmeister G. Theory of thin film condensation Part D: Influence of a variable collision factor / G. Zinsmeister // Thin Solid Films. — 1971. — Vol. 7. — P. 51.

69. Frenkel J. Theorie der Adsorption und verwandter Erscheinungen / J. Frenkel // Zeitschrift für Physik. — 1924. — Vol. 26. — P. 117.

70. Venables J.A. Rate equation approaches to thin film nucleation kinetics / J.A. Venables // Philosophical Magazine. — 1973. — Vol. 27. — P. 697.

71. Venables J.A. et al. Nucleation and growth of thin films / J.A. Venables, G.D.T. Spiller, M. Hanbucken // Reports on Progress in Physics. — 1984. — Vol. 47. — P. 399.

72. Bales G.S. et al. Dynamics of irreversible island growth during submonolayer epitaxy / G.S. Bales, D.C. Chrzan // Physical Review B. — 1994. — Vol. 50. — P. 6057.

73. Blackman J.A. et al. Scaling behavior in submonolayer film growth: A one-dimensional model / J.A. Blackman, P.A. Mulheran // Physical Review B. — 1996. — Vol. 54. — P. 11681.

74. Mulheran P.A. et al. Theory of the island and capture zone size distributions in thin film growth / P.A. Mulheran, D.A. Robbie // EPL (Europhysics Letters). — 2000. — Vol. 49. — P. 617.

75. Bartelt N.C. et al. Ostwald ripening of two-dimensional islands on Si (001) / N.C. Bartelt, W. Theis, R.M. Tromp // Physical Review B. — 1996. — Vol. 54. — P. 11741.

76. Bartelt M.C. et al. Adatom capture by arrays of two-dimensional Ag islands on Ag(100) / M.C. Bartelt, C.R. Stoldt, C.J. Jenks et al. // Physical Review B. — 1999. — Vol. 59. — P. 3125.

77. Bartelt M.C. et al. Exact island-size distributions for submonolayer deposition: Influence of correlations between island size and separation. / M.C. Bartelt, J.W. Evans // Physical Review B. — 1996. — Vol. 54. — P. R17359.

78. Einax M. et al. Colloquium: Cluster growth on surfaces: Densities, size distributions, and morphologies / M. Einax, W. Dieterich, P. Maass // Reviews of Modern Physics. — 2013. — Vol. 85. — P. 921.

79. Bartelt M.C. et al. Scaling analysis of diffusion-mediated island growth in surface adsorption processes. / M.C. Bartelt, J.W. Evans // Physical Review B. — 1992. — Vol. 46. — P. 12675.

80. Jensen P. et al. Diffusion of nanoclusters on non-ideal surfaces / P. Jensen, A. Clément, L.J. Lewis // Physica E. — 2004. — Vol. 21. — P. 71.

81. Lewis L.J. et al. Diffusion of gold nanoclusters on graphite / L.J. Lewis, P. Jensen, N. Combe, J.L. Barrat // Physical Review B. — 2000. — Vol. 61. — P. 16084.

82. Maruyama Y. et al. Truncated Lévy walk of a nanocluster bound weakly to an atomically flat surface: Crossover from superdiffusion to normal diffusion / Y. Maruyama, J. Murakami // Physical Review B. — 2003. — Vol. 67. — P. 085406.

83. Metropolis N. et al. Equation of state calculations by fast computing machines / N. Metropolis, A.W. Rosenbluth, M.N. Rosenbluth et al. // The Journal of Chemical Physics. — 1953. — Vol. 21. — P. 1087.

84. Binder K. Applications of Monte Carlo methods to statistical physics / K. Binder // Reports on Progress in Physics. — 1997. — Vol. 60. — P. 487.

85. Bortz A.B. et al. A new algorithm for Monte Carlo simulation of Ising spin systems / A.B. Bortz, M.H. Kalos, J.L. Lebowitz // Journal of Computational Physics. — 1975. — Vol. 17. — P. 10.

86. Jensen P. et al. Deposition, diffusion, and aggregation of atoms on surfaces: A model for nanostructure growth / P. Jensen, A.-L. Barabási, H. Larralde et al. // Physical Review B. — 1994. — Vol. 50. — P. 15316.

87. Petersen M. et al. Level set approach to reversible epitaxial growth / M. Petersen, C. Ratsch, R.E. Caflisch, A. Zangwill // Physical Review E. — 2001. — Vol. 64. — P. 061602.

88. Ratsch C. et al. Level-set method for island dynamics in epitaxial growth / C. Ratsch, M.F. Gyure, R.E. Caflisch et al. // Physical Review B. — 2002. — Vol. 65. — P. 195403.

89. Bezzola A. et al. Numerical Scaling Studies of Kinetically-Limited Electrochemical Nucleation and Growth with Accelerated Stochastic Simulations / A. Bezzola, B.B. Bales, L.R. Petzold, R.C. Alkire // Journal of The Electrochemical Society. — 2014. — Vol. 161. — P. E3001.

90. Гардинер К.В. Стохастические методы в естественных науках / К.В. Гардинер. — Москва: Мир, 1986. — Т. 528. — С. 526.

91. Garcia-Alvarez D. A comparison of a few numerical schemes for the integration of stochastic differential equations in the Stratonovich interpretation / D. Garcia-Alvarez // arXiv preprint arXiv:1102.4401. — 2011.

92. Кузнецов Д.Ф. Стохастические дифференциальные уравнения: теория и практика численного решения / Д.Ф. Кузнецов. — Санкт-Петербург: Издательство Политехнического университета СПб., 2010.

93. Кузнецов Д.Ф. Некоторые вопросы теории численного решения стохастических дифференциальных уравнений Ито / Д.Ф. Кузнецов // Дифференциальные уравнения и процессы управления. — 1998. — Т. 1. — С. 66.

94. Krasnova A.K. et al. Fermi acceleration as a possible mechanism of rapid diffusion of gold clusters on graphite / A.K. Krasnova, O.A. Chichigina // Moscow University Physics Bulletin. — 2012. — Vol. 67. — P. 48.

95. Valenti D. et al. Stochastic acceleration in generalized squared Bessel processes / D. Valenti, O.A. Chichigina, A.A. Dubkov, B. Spagnolo // Journal of Statistical Mechanics: Theory and Experiment. — 2015. — Vol. 2015. — P. P02012.

96. Loskutov A.Yu. et al. Superdiffusion in 2D open-horizon billiards with stochastically oscillating boundaries / A.Yu. Loskutov, O.A. Chichigina, A.K. Krasnova, I.M. Sokolov // EPL (Europhysics Letters). — 2012. — Vol. 98. — P. 10006.

97. Erdélyi A. et al. Higher Transcendental Functions / A. Erdélyi, W. Magnus, F. Oberhettinger, F. G. Tricomi. — New York-Toronto-London: McGraw-Hill, 1953.

98. Srivastava H.M. et al. A Treatise on Generating Functions / H.M. Srivastava, H.L. Manocha. — Chichester: Ellis Horwood, 1984.

99. Градштейн И.С. и др. Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений / И.С. Градштейн, И.М. Рыжик. — Москва: Государственное издательство физико-математической литературы, 1963. — С. 1108.

100. Marsaglia G. et al. A Fast, Easily Implemented Method for Sampling from Decreasing or Symmetric Unimodal Density Functions / G. Marsaglia, W.W. Tsang // SIAM J. Sci. Comput. — 1984. — Vol. 5. — Pp. 349–359.

101. Левин Б.Р. Теоретические основы статистической радиотехники / Б.Р. Левин. — Москва: Радио и Связь, 1989. — С. 655.

102. Ахманов С.А. и др. Статистическая радиофизика и оптика. Случайные колебания и волны в линейных системах. / С.А. Ахманов, Ю.Е. Дьяков, А.С. Чиркин. — Москва: Физматлит, 2010.

103. Chichigina O.A. et al. Stability in a system subject to noise with regulated periodicity / O.A. Chichigina, A.A. Dubkov, D. Valenti, B. Spagnolo // Physical Review E. — 2011. — Vol. 84. — P. 021134.

104. Villain J. et al. Terrace sizes in molecular beam epitaxy / J. Villain, A. Pimpinelli, L. Tang, D. Wolf // Journal de physique I. — 1992. — Vol. 2. — P. 2107.

105. Liu S. et al. Effect of small-cluster mobility and dissociation on the island density in epitaxial growth / S. Liu, L. Bönig, H. Metiu // Physical Review B. — 1995. — Vol. 52. — P. 2907.

106. Kuipers L. et al. Influence of island mobility on island size distributions in surface growth / L. Kuipers, R.E. Palmer // Physical Review B. — 1996. — Vol. 53. — P. R7646.

107. Furman I. et al. Effects of mobility of small islands on growth in molecular-beam epitaxy / I. Furman, O. Biham // Physical Review B. — 1997. — Vol. 55. — P. 7917.

108. Van Siclen C.D.W. Single jump mechanisms for large cluster diffusion on metal surfaces / C.D.W. Van Siclen // Physical Review Letters. — 1995. — Vol. 75. — P. 1574.

109. Khare S.V. et al. Diffusion of monolayer adatom and vacancy clusters: Langevin analysis and Monte Carlo simulations of their Brownian motion / S.V. Khare, N.C. Bartelt, T.L. Einstein // Physical Review Letters. — 1995. — Vol. 75. — P. 2148.

110. Sholl D.S. et al. Diffusion of clusters of atoms and vacancies on surfaces and the dynamics of diffusion-driven coarsening / D.S. Sholl, R.T. Skodje // Physical Review Letters. — 1995. — Vol. 75. — P. 3158.

111. Kryukov Y.A. et al. Effects of cluster diffusion on the island density and size distribution in submonolayer island growth / Y.A. Kryukov, J.G. Amar // Physical Review E. — 2011. — Vol. 83. — P. 041611.

112. Hamilton J. Magic Size Effects for Heteroepitaxial Island Diffusion / J. Hamilton // Physical Review Letters. — 1996. — Vol. 77. — P. 885.

113. Wu H.H. et al. Island shape controls magic-size effect for heteroepitaxial diffusion / H.H. Wu, A.W. Signor, D.R. Trinkle // Journal of Applied Physics. — 2010. — Vol. 108. — P. 023521.

114. Deltour P. et al. Fast Diffusion of a Lennard-Jones Cluster on a Crystalline Surface / P. Deltour, J.-L. Barrat, P. Jensen // Physical Review Letters. — 1997. — Vol. 78. — Pp. 4597–4600.

115. Liu S. et al. The effect of island coalescence on island density during epitaxial growth / S. Liu, L. Bönig, H. Metiu // Surface Science. — 1997. — Vol. 392. — P. L56.

116. Popescu M.N. et al. Rate-equation approach to island size distributions and capture numbers in submonolayer irreversible growth / M.N. Popescu, J.G. Amar, F. Family // Physical Review B. — 2001. — Vol. 64. — P. 205404.

117. Krapivsky P.L. Growth of a single drop formed by diffusion and adsorption of monomers on a two-dimensional substrate / P.L. Krapivsky // Physical Review E. — 1993. — Vol. 47. — P. 1199.

118. Davies B. Integral Transforms and Their Applications / B. Davies. — New York: Springer-Verlag, 2002.

119. Carslaw H. S. et al. Conduction of Heat in Solids / H. S. Carslaw, J. C. Jaeger. — Oxford: Clarendon Press, 1959.

120. Phillips W.R.C. et al. On approximations to a class of Jaeger integrals / W.R.C. Phillips, P.J. Mahon // Proceedings of the Royal Society of London A. — 2011. — Vol. 467. — P. 3570.

121. Борман В.Д. и др. Формирование ансамбля нанокластеров при быстром осаждении атомов на поверхность / В.Д. Борман, А.В. Зенкевич, В.Н. Неволин и др. // ЖЭТФ. — 2006. — Т. 130. — С. 984.

122. Amar J.G. et al. Dynamic scaling of the island-size distribution and percolation in a model of submonolayer molecular-beam epitaxy / J.G. Amar, F. Family, P.-M. Lam // Physical Review B. — 1994. — Vol. 50. — P. 8781.

123. Stratonovich R.L. Topics in the Theory of Random Noise / R.L. Stratonovich. — New York: Gordon and Breach, 1967.

124. Van Kampen N.G. Stochastic Processes in Physics and Chemistry / N.G. Van Kampen. — Amsterdam: Elsevier, 1992.

125. Карташов Э.М. Аналитические методы в теории теплопроводности твердых тел / Э.М. Карташов. — Москва: Высшая школа, 2001.

126. Friedman A. Partial differential equations of parabolic type / A. Friedman. — Courier Corporation, 2013.

127. Matsumoto M. et al. Mersenne twister: a 623-dimensionally equidistributed uniform pseudo-random number generator / M. Matsumoto, T. Nishimura // ACM Transactions on Modeling and Computer Simulation (TOMACS). — 1998. — Vol. 8. — P. 3.

128. Amar J.G. et al. Critical Cluster Size: Island Morphology and Size Distribution in Submonolayer Epitaxial Growth / J.G. Amar, F. Family // Physical Review Letters. — 1995. — Vol. 74. — P. 2066.

129. Dean P. The constrained quantum mechanical harmonic oscillator / P. Dean // Proceedings of the Cambridge Philosophical Society. — 1966. — Vol. 62. — P. 277.

130. Kargovsky A.V. Mean density of level crossings whose duration exceeds a certain value for a low-friction nonlinear oscillator / A.V. Kargovsky // Physical Review E. — 2012. — Vol. 86. — P. 061114.

131. Ancarani L.U. et al. Derivatives of any order of the confluent hypergeometric function F11(a,b,z) with respect to the parameter a or b / L.U. Ancarani, G. Gasaneo // Journal of Mathematical Physics. — 2008. — Vol. 49. — Pp. –.

132. Abramowitz M. et al. Handbook of Mathematical Functions: With Formulas, Graphs, and Mathematical Tables / M. Abramowitz, I.A. Stegun. — New York: Dover Publications, 1964.

133. Brychkov Y.A. Handbook of Special Functions: Derivatives, Integrals, Series and Other Formulas / Y.A. Brychkov. — Boca Raton: CRC Press, 2008.

134. Ciuchi S. et al. Nonlinear relaxation in the presence of an absorbing barrier / S. Ciuchi, F. De Pasquale, B. Spagnolo // Physical Review E. — 1993. — Vol. 47. — P. 3915.

135. Lax M. Classical Noise IV: Langevin Methods / M. Lax // Reviews of Modern Physics. — 1966. — Vol. 38. — P. 541.

136. Jacob E. A Langevin process reflected at a partially elastic boundary: I / E. Jacob // Stochastic Processes and their Applications. — 2012. — Vol. 122. — P. 191.

137. Müller J.W. Some formulae for a dead-time-distorted poisson process: To André Allisy on the completion of his first half century / J.W. Müller // Nuclear Instruments and Methods. — 1974. — Vol. 117. — P. 401.

138. Kloeden P.E. et al. Numerical solution of SDE through computer experiments / P.E. Kloeden, E. Platen, H. Schurz. — Springer Science & Business Media, 2012.

139. Wright E.M. The asymptotic expansion of the generalized hypergeometric function / E.M. Wright // Journal of the London Mathematical Society. — 1935. — Vol. 1. — P. 286.

140. Paris R.B. Exponentially small expansions in the asymptotics of the Wright function / R.B. Paris // Journal of Computational and Applied Mathematics. — 2010. — Vol. 234. — P. 488.