

УДК 517.957:541.1

## ФОРМИРОВАНИЕ ПРОСТРАНСТВЕННО-УПОРЯДОЧЕННЫХ СТРУКТУР РЕШЕТОЧНОГО ГАЗА В СПИНОДАЛЬНОЙ ОБЛАСТИ

© В.Г.Дубровский\*, Д.А.Бауман, В.В.Козачек, В.В.Мареев

\*Институт аналитического приборостроения РАН, Санкт-Петербург.  
Институт Высокопроизводительных Вычислений и Баз Данных

Поступила в редакцию 16 декабря 1997г.

Проведено исследование системы нелинейных динамических уравнений для плотности решеточного газа в дискретном и континуальном вариантах. Показано, что распад неустойчивого однородного состояния в спиновальной области приводит к образованию пространственно-упорядоченных структур. Для одномерного и двумерного случая изучена морфология стационарных структур и ее связь с физическими параметрами модели.

Исследование кинетики фазовых переходов первого рода в решеточных системах и морфологии пространственно-упорядоченных структур решеточного газа (РГ) представляет большой интерес в различных областях физики и физической химии. В качестве примеров можно привести теорию конденсации [1], адсорбцию на границе раздела газ - твердое тело [2], динамику автоэпитаксиальных и гетероэпитаксиальных систем [3], диффузионный распад твердых растворов [4]. Известные феноменологические подходы (классическая модель конденсации Зельдовича-Френкеля, геометрико-вероятностная модель кристаллизации Колмогорова, коалесценция Лифшица-Слезова, теория спиновального распада Кана-Хилларда) имеют ограниченные области применимости. С другой стороны, строгие микроскопические подходы [5] весьма сложны для исследования и сравнения с экспериментом.

В данной работе в рамках модели РГ предложено самосогласованное представление для диффузионного оператора с нелинейной зависимостью эффективного коэффициента диффузии от функции распределения. Анализируется связь кинетического уравнения с термодинамикой РГ. Исследуются бифуркационные свойства решений в окрестности критической точки. На основе континуального приближения изучена морфология стационарных квазиодномерных упорядоченных структур, которые возникают в результате аномальной диффузии в спиновальной области. В случае двумерного РГ получены численные решения системы дискретных нелинейных динамических уравнений для одночастичной функции распределения. В некоторой области параметров стационарные пространственные структуры РГ имеют вид упорядоченных массивов двумерных островков восьмиугольной формы, имеющих одинаковый латеральный размер.

### ОБЩИЕ ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИЕ СООТНОШЕНИЯ

Термодинамические свойства двумерного или трехмерного РГ с заданными значениями температуры  $T$ , объема  $V=v_0N_0$  ( $v_0$  — объем ячейки,  $N_0$  — число узлов) и химического потенциала

$$\mu = \tilde{\mu} - 3k_B T \ln \lambda$$

где  $\tilde{\mu}$  есть истинный химический потенциал РГ и  $\lambda = h/\sqrt{2\pi mk_B T}$  — тепловая длина волны, определяются большой статистической суммой

$$\Xi = \sum_{n_i=0,1} \exp\left(\beta\mu \sum_{i=1}^{N_0} n_i + \beta \frac{V}{2} \sum_{i,j \neq i} n_i n_j\right) \quad (1)$$

В (1) учитывается взаимодействие между ближайшими соседями,  $V$  есть взятый с обратным знаком потенциал взаимодействия,  $\beta \equiv 1/k_B T$  — обратная температура,  $n_i$  — числа заполнения. Давление  $P$  и заполненность  $\theta = v_0 \rho$  ( $\rho$  — плотность РГ) определяются согласно выражениям

$$P = \frac{1}{\beta v_0 N_0} \ln \Xi \quad \theta = v_0 \left( \frac{\partial P}{\partial \mu} \right)_T \quad (2)$$

В двумерном случае аналогом давления является поверхностная энергия  $\gamma$ , взятая со знаком минус. Интегрирование второго из уравнений (2) дает связь между зависимостями  $P(\theta)$  (или  $\gamma(\theta)$ ) и  $\mu(\theta)$

$$v_0 P(\theta) = \theta \mu(\theta) - \int_0^\theta \mu(\theta') \theta' + v_0 P(0) \quad (3)$$

Легко заметить, что статистическая сумма (1) инвариантна относительно замены  $n_i \rightarrow 1-n_i$  при

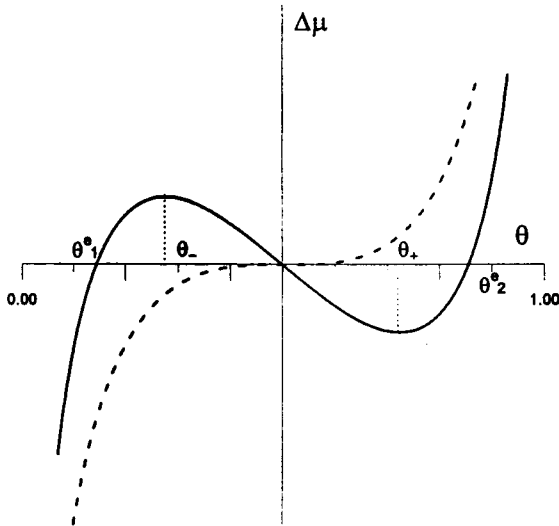


Рис.1. График функции  $\Delta\mu(\theta)$  при  $\varphi = 4.0$  (пунктирная линия) и  $\varphi = 5.0$  (сплошная линия)

значении химического потенциала, равном

$$\mu_c = -zV/2 \quad (4)$$

где  $z$  есть координационное число решетки. Выражение (4) определяет значение химического потенциала на кривой сосуществования разреженной ( $\alpha$ ) и плотной ( $\beta$ ) фаз.

Поскольку нашей целью является исследование динамического уравнения для плотности РГ в приближении среднего поля, приведем основные результаты термодинамики РГ в том же приближении. Для обеспечения нужного критического поведения плотности на кривой сосуществования используем "исправленный" вариант теории среднего поля

$$n_i n_j \cong n_i \left[ \frac{1}{2} + \Delta\theta \left( 1 + C \left[ \frac{T_c - T}{T_c} \right]^\nu \right) \right] \quad (5)$$

при  $T \leq T_c$ . Здесь  $\nu/2$  есть критический индекс в равновесной теории,  $\Delta\theta = \theta - 1/2$ ,  $C$  - числовой коэффициент. Очевидно, (5) совпадает с обычным приближением  $n_i n_j \cong n_i \theta$  при  $T = T_c$ .

Подстановка (5) в (1) с учетом (2), (4) приводит к следующему выражению для  $\Delta\mu = \mu - \mu_c$

$$\beta\Delta\mu(\theta) = -\varphi\Delta\theta + \ln\left(\frac{\theta}{1-\theta}\right) \quad (6)$$

Входящая в (6) константа взаимодействия  $\varphi$  имеет вид

$$\varphi = 4 \frac{T}{T_c} \left[ 1 + C \left( \frac{T_c - T}{T_c} \right)^\nu \right] \quad (7)$$

где  $T_c = zV/4k_B$  - критическая температура. Очевидно, в критической точке  $\varphi = 4$ ,  $\theta = 1/2$  и  $\Delta\mu = 0$ . Поскольку правая часть (6) - нечетная функция, выполняется правило площадей Максвелла, означающее в силу (3) равенство давлений (или поверхностных энергий)  $\alpha$  и  $\beta$  фаз. Для равновесных значений  $\theta_\alpha$  и  $\theta_\beta$  имеем два симметричных значения, определяемых как корни уравнения

$$\varphi = \frac{1}{\Delta\theta} \ln\left(\frac{\theta}{1-\theta}\right) \quad (8)$$

При  $T$  близких к  $T_c$  из (7), (8) следует

$$\Delta\theta_c = \frac{\sqrt{3}}{2} \left[ \frac{T_c - T}{T_c} + C \left( \frac{T_c - T}{T_c} \right)^\nu \right]^{1/2} \quad (9)$$

При  $C = 0$  это дает классический закон одной второй  $\Delta\theta_c = (1 - T/T_c)^{1/2}$ , а при  $C > 0$  и  $\nu < 1$  приводит к зависимости  $\Delta\theta_c \approx (1 - T/T_c)^{\nu/2}$ . В случае низких температур (практически уже начиная с  $T/T_c > 4$ ) вместо (6) можно использовать приближенное выражение  $\beta\Delta\mu = \ln(\zeta + 1)$ , где  $\zeta = \theta/\theta_\alpha - 1$  - пересыщение,  $\theta_\alpha = e^{-\varphi/2} \ll 1$ .

Производная  $(\partial\Delta\mu/\partial\theta)_T$  при  $T < T_c$  обращается в ноль в точках  $\theta_\pm$ , где

$$\theta_\pm = \frac{1}{2} \left( 1 \pm \sqrt{1 - \frac{4}{\varphi}} \right) \quad (10)$$

Спинодальная область  $(\theta_-, \theta_+)$  отвечает термодинамически неустойчивым состояниям с потоком частиц  $j \propto -\nabla\mu = -(\partial\Delta\mu/\partial\theta)\nabla\theta$ , направленным в сторону увеличения плотности. Физически это означает, что притяжение частиц доминирует над обычным диффузионным размытием, так что эффективный коэффициент диффузии становится отрицательным [4].

Зависимости химического потенциала от  $\theta$  при различных значениях  $\varphi$  представлены на рис.1. Отрезок  $(\theta_1^*, \theta_2^*)$  прямой  $\Delta\mu = 0$  на рис.1 отвечает скачку заполненности при фазовом переходе, участки  $(\theta_1^*, \theta_+)$  и  $(\theta_+, \theta_2^*)$  соответствуют метастабильным состояниям. Максимальное пересыщение, допустимое в системе с температурой  $T$ , определяется выражением

$$\zeta_{\max} = \frac{\theta_-}{\theta_\alpha} - 1 \quad (11)$$

Величина  $\zeta_{\max}$  резко возрастает с уменьшением  $T$ .

В зависимости от близости  $T$  к  $T_c$ , существуют принципиально различные картины кинетики фазового перехода, а также морфологии возникающих пространственно-упорядоченных структур. При низких температурах конденсация пересыщенной  $\alpha$ -фазы происходит в результате флуктуационного образования и последующего роста за-

родышей с ярко выраженной границей. Иерархия временных масштабов различных стадий процесса [6] позволяет аналитически исследовать нуклеацию, независимый рост [7] и коалесценцию [8] зародышей. Стадия непосредственного слияния зародышей друг с другом описывается с помощью самосогласованных геометрико-вероятностных моделей [9]. В случае высоких температур пространственное упорядочение по механизму спиноподобного распада приводит к появлению периодических структур, не имеющих ни при каких временах выраженной границы раздела [4].

Возможны и более сложные случаи, например, при низких температурах, когда начальное состояние  $\theta_0 = \text{const}$  находится внутри спиноподобной области и является неустойчивым. Тогда процесс самоорганизации происходит сначала в результате спонтанного спиноподобного распада неустойчивого состояния и приводит к возникновению нелинейных осцилляций плотности. На следующей стадии образуются островки  $\beta$ -фазы, которые, в зависимости от значения физических параметров, вступают или не вступают в процесс коалесценции. В результате устойчивое стационарное состояние представляет собой либо один большой островок, либо систему маленьких островков, находящихся в равновесии с разреженной  $\alpha$ -фазой РГ. Такая схема, по-видимому, осуществляется при молекулярно-пучковой эпитаксии в рассогласованных системах. На первой стадии происходит спонтанный распад плоского псевдоаморфного эпитаксиального слоя. При этом могут возникать квазиодномерные периодические распределения плотности адсорбата — "квантовые проволоки". Второй стадией процесса самоорганизации является образование упорядоченных массивов трехмерных островков нанометровых размеров — "квантовых точек" [10].

Таким образом, представляет интерес построение моделей, позволяющих исследовать стационарные и нестационарные пространственные структуры РГ как вблизи, так и существенно ниже критической температуры, а также при любых плотностях. Ниже предложена и исследована модель, приводящая к уравнению типа "диффузия плюс реакции" с нелинейным диффузионным оператором. Динамическое уравнение согласовано с термодинамикой и может быть при некоторых предположениях выведено из основного кинетического уравнения. Рассматриваемая модель является примером самоорганизации в системах с "восходящей диффузией".

### ДИФФУЗИОННЫЙ ОПЕРАТОР РЕШЕТОЧНОГО ГАЗА

Кинетическое уравнение для зависящей от времени заполненности узла  $i$   $\theta_i(t) = \sum_{\vec{n}} n_i P(\vec{n}, t)$  (здесь  $P(\vec{n}, t)$  — вероятность реализации микросо-

стояния  $\vec{n} = n_1, n_2, \dots, n_{N_0}$  в момент времени  $t$ , усреднение производится по всевозможным микросостояниям) в приближении среднего поля имеет вид

$$\frac{\partial \theta_i}{\partial t} = \hat{M}_i(\vec{\theta}) + A_i(\theta_i) \quad (12)$$

Здесь  $\hat{M}(\theta)$  — диффузионный оператор, функция  $A_i(\theta_i)$  описывает источники или реакции (например, адсорбцию-десорбцию). Представление для  $M(\theta)$  можно получить из основного кинетического уравнения для вероятностей  $P(n, t)$  микроскопических состояний  $\vec{n}$  в момент времени  $t$

$$\frac{dP(\vec{n}, t)}{dt} = \sum_{\vec{n}'} [W(\vec{n}', \vec{n})P(\vec{n}', t) - W(\vec{n}, \vec{n}')P(\vec{n}, t)] \quad (13)$$

Для этого нужно представить вероятности переходов  $W(\vec{n}, \vec{n}')$  в виде суммы вероятностей диффузионных скачков, использовать принцип детального баланса и пренебречь слагаемыми, содержащими парную корреляционную функцию. Подробный вывод можно найти в [11]. Аналогичное представление диффузионного оператора РГ можно получить и из наглядных соображений баланса частиц.

Очевидно, что диффузионный скачек из узла  $i$  в узел  $j$  возможен, если узел  $i$  занят, а узел  $j$  свободен. Вследствие взаимного притяжения частиц, характерное время жизни в узле  $i$  отличается от своего значения для идеального РГ  $t_D^{(0)} = \nu^{-1} \exp(\beta E_D^{(0)})$  ( $\nu$  — частота колебаний адсорбированной частицы,  $E_D^{(0)}$  — активационный барьер диффузии при  $\theta = 0$ ). На языке заполненностей  $\theta_i$  это означает, что число скачков  $i \rightarrow j$  в единицу времени равно  $\theta_i(1 - \theta_j)/t_D(\vec{\theta})$ . В простейшем варианте теории среднего поля [2, 11] полагают  $t_D(\vec{\theta}) \cong t_D(\theta_i)$ , учитывая зависимость от заполненности в активационном барьере  $t_D(\vec{\theta}) = t_D^{(0)} \exp[\beta(E_D(\theta) - E_D^{(0)})]$  (в предположении однородности решетки). В соответствии с (5), для  $E_D(\theta)$  примем аппроксимацию

$$E_D(\theta) = E_D^{(0)} + zV \left[ \frac{1}{2} + \Delta\theta \left( 1 + C \left[ \frac{T_c - T}{T_c} \right]^v \right) \right] \quad (14)$$

В результате для диффузионного оператора получим выражение

$$\hat{M}_i(\vec{\theta}) = \frac{1}{z t_D^{(0)}} \exp \left[ 4 \frac{T_c}{T} C \frac{T_c - T}{T_c} \right] \times \sum_{j \neq i} \left[ (1 - \theta_i) \theta_j e^{-\varphi \theta_j} - (1 - \theta_j) \theta_i e^{-\varphi \theta_i} \right] \quad (15)$$

где  $\varphi$  определяется формулой (7). Суммирование в (15) проводится по всем ближайшим соседям. Представление (15) — сугубо нелинейное, оно линеаризуется лишь в тривиальных случаях  $\theta \rightarrow 0$  или  $\varphi \rightarrow 0$ . Оператор (15) сохраняет среднее значение

$$\bar{\theta} = N_0^{-1} \sum_i \theta_i, \quad (16)$$

а также свойство  $0 \leq \theta \leq 1$ .

Переход к континуальному приближению (15) осуществляется стандартным способом. В случае кубической (или квадратной) решетки с безразмерными декартовыми координатами  $\vec{r}$ , выраженными в единицах шага решетки  $a$ , нетрудно получить

$$\hat{M}(\theta(\vec{r}, t)) = \frac{1}{z t_D^{(0)}} \bar{\nabla} \left[ D(\theta) \bar{\nabla} \theta(\vec{r}, t) \right] \quad (17)$$

$$D(\theta) = (1 - \varphi \theta + \varphi \theta^2) e^{-\varphi \theta} \quad (18)$$

Здесь  $\bar{\nabla}$  есть двух- или трехмерный оператор дифференцирования по пространственной переменной. Коэффициент диффузии всюду больше нуля при  $T > T_c$ , обращается в ноль в точке  $\theta = 1/2$  при  $T = T_c$  и отрицателен внутри спинодали при  $T < T_c$ .

При исследовании эффектов, связанных с нелинейностью диффузионного члена, для источника  $A(\theta)$  в (12) примем линейную аппроксимацию  $(\theta_0 - \theta)/[t_A(1 - \theta_0)]$ . Например, в случае монослойной адсорбции  $1/t_A = 2J a^2$ , где  $J$  — плотность потока частиц из газовой фазы,  $a^2$  — площадь адсорбционной ячейки. Тогда единственным стационарным пространственно-однородным решением (12) является решение  $\theta_0 = \text{const}$ .

Для отклонения

$$u(\vec{r}, \tau) = \theta(\vec{r}, \tau) - \theta_0 \quad (\vec{r} \rightarrow \frac{\vec{r}}{a} \sqrt{z t_D^{(0)}} / [t_A(1 - \theta_0)]),$$

$\tau = t/[t_A(1 - \theta_0)]$  имеем уравнение

$$\frac{\partial u}{\partial \tau} = \bar{\nabla} \left( D(\theta_0 + u) \bar{\nabla} u \right) - u \quad (19)$$

Подстановка в линеаризованное уравнение (19) решения в виде диффузионной волны  $u(\vec{r}, \tau) = u_k \exp(i \vec{k} \vec{r} + \omega \tau)$  приводит к дисперсионному соотношению  $\omega = -1 - D(\theta_0) k^2$ . Следовательно, состояние  $u = 0$  неустойчиво по линейному приближению внутри спинодали при  $k > 1/\sqrt{|D(\theta_0)|}$ , или для возмущений с пространственным масштабом

$$L < L_c = 2\pi a \sqrt{t_A(1 - \theta_0) |1 - \varphi \theta_0 + \varphi \theta_0^2| / z} \times \exp \left[ -\frac{1}{2} (\beta E_D^{(0)} + \varphi \theta_0) \right].$$

## СТАЦИОНАРНЫЕ РАСПРЕДЕЛЕНИЯ В СЛУЧАЕ ОДНОМЕРНОЙ ДИФФУЗИИ

Рассмотрим стационарное уравнение (19) в квазиодномерном случае  $u = u(x)$ . Такой случай физически соответствует двумерному РГ с начальным возмущением, наложенным вдоль одной из координат. Для исследования бифуркационного поведения решения вблизи критической точки положим  $\theta_0 = 1/2$  и запишем стационарное уравнение в виде

$$\frac{d}{dx} \left[ D(u, \lambda) \frac{du}{dx} \right] = u \quad (20)$$

$$D(u, \lambda) = \left( -\frac{\lambda}{4} + (\lambda + 4)u^2 \right) \exp(-(\lambda + 4)(u + 1/2)) \quad (21)$$

Здесь  $\lambda = \varphi - 4$  есть управляющий параметр, значение  $\lambda = 0$  соответствует критической температуре.

Рассмотрим ближайшую окрестность критической точки  $\lambda = 0$ ,  $u = 0$ , считая коэффициент диффузии функцией двух независимых переменных  $u$  и  $\lambda$ . В работе [12] было показано, что уравнению (20) соответствует система двух уравнений первого порядка, которая удовлетворяет всем условиям теоремы Ляпунова при  $\lambda > 0$ . Таким образом, было доказано существование периодических решений уравнения (20) и построено формальное решение в виде разложения в ряд по малому параметру (ряд Пуанкаре). В настоящей работе устанавливается связь данного параметра разложения с физическим параметром  $\lambda$ , имеющим смысл отклонения константы взаимодействия от ее критического значения.

Производя в (20) замену переменных

$$x = \zeta \sqrt{\frac{\lambda}{4}} \exp\left(-\frac{\lambda + 4}{4}\right), \quad (22)$$

$$u = v \sqrt{\frac{\lambda}{4(\lambda + 4)}}$$

получаем для  $v(\zeta)$  следующее уравнение

$$\frac{d}{d\zeta} \left[ (v^2 - 1) \exp(-v \sqrt{\lambda(\lambda + 4)}/2) \frac{dv}{d\zeta} \right] - v = 0 \quad (23)$$

Простейший случай  $\lambda = 0$  соответствует основному состоянию  $u = 0$ . В случае  $\lambda > 0$  пренебрегая малой величиной  $\sqrt{\lambda(\lambda + 4)}$  имеем

$$\frac{d}{d\zeta} \left[ (v^2 - 1) \frac{dv}{d\zeta} \right] - v = 0 \quad (24)$$

Уравнение (24) не содержит малого параметра  $\lambda$  и является эталонным для данной задачи. Его решение, записанное в виде обратной зависимости

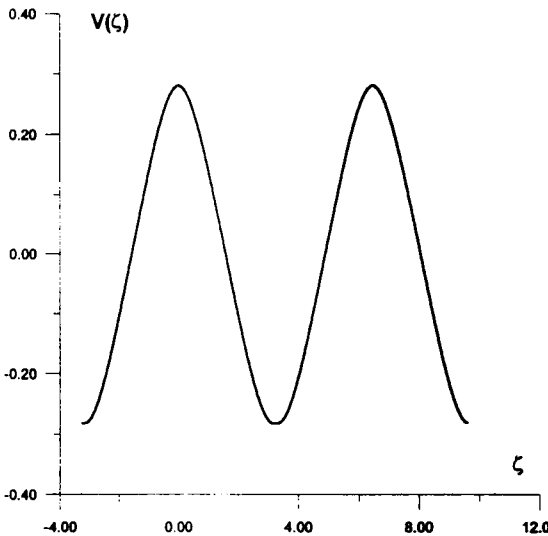


Рис. 2. Решение эталонного уравнения  $v(\zeta)$  при  $C = 0.25$ .

$\zeta(v)$ , сводится к эллиптическим интегралам 1-ого и 2-ого рода

$$\pm \zeta = \left( v_1 - \frac{1}{v_1} \right) F \left( \arcsin \frac{v}{v_2}, \frac{v_2}{v_1} \right) - v_1 E \left( \arcsin \frac{v}{v_2}, \frac{v_2}{v_1} \right), \quad v > 0 \quad (25)$$

$$\pm \zeta = \left( v_1 - \frac{1}{v_1} \right) F \left( \arcsin \frac{-v}{v_2}, \frac{v_2}{v_1} \right) + v_1 E \left( \arcsin \frac{-v}{v_2}, \frac{v_2}{v_1} \right), \quad v < 0 \quad (26)$$

где введены обозначения  $v_{1,2} \equiv 3/4(1 \pm \sqrt{1 - 8/3C})$ ,  $C$  — константа, произвольная внутри области  $0 < C < 3/8$ . Результаты численного решения обратной задачи (25), (26) для функции  $v(\zeta)$  приведены на рис. 2.

Возвращаясь к исходным обозначениям, видно, что зависимость искомой функции  $u$  от переменной  $x$  может быть представлена следующим образом ( $\lambda + 4 \equiv 4$ )

$$u(x) = \sqrt{\lambda} / 4 \left[ v \left( \frac{2x}{\sqrt{\lambda}} \exp[-(\lambda + 4)/4] \right) + O(\lambda) \right] \quad (27)$$

откуда следует, что в главном порядке по малому параметру  $\lambda$  решение уравнения (20) имеет вид нелинейных осцилляций с периодом, зависящим от  $\lambda$ .

Таким образом, критическая точка  $u = 0$ ,  $\lambda = 0$  является точкой бифуркации, в которой пространственно-однородное состояние теряет устойчи-

вость. От решения  $u = 0$  отходит новая ветвь, представляющая собой при малых  $(T_c - T)/T_c$  высокочастотные нелинейные осцилляции заполненности.

Для исследования стационарных распределений при возрастании амплитуды колебаний обратимся к прямому интегрированию одномерного уравнения. Умножая уравнение

$$\frac{d}{dx} \left( D(u) \frac{du}{dx} \right) = -A(u) \quad (28)$$

на  $D(u) du/dx$  и интегрируя, легко убедиться, что (28) имеет первый интеграл вида

$$K = \left( D(u) \frac{du}{dx} \right)^2 + 2 \int_0^u A(u') D(u') du' \quad (29)$$

Отсюда следует, что эквивалентная (28) система уравнений первого порядка является системой Ляпунова [13] (описывающей в окрестности  $u = 0$  нелинейное периодическое распределение), если  $D(0)$  и  $dA/du|_{u=0}$  имеют одинаковые знаки. Для  $A(u) = -u$  и  $D(u)$  в форме (18) при  $\theta = \theta_0 + u$  интеграл в (29) легко вычисляется

$$F(u) \equiv -2 \int_0^u u' D(u') du' = 2e^{-\varphi\theta_0} \left[ (u^3 + au^2 + \varphi cu + c) e^{-\varphi u} - c \right] \quad (30)$$

Коэффициенты  $a$  и  $c$  зависят от начального значения заполненности  $\theta_0$  и константы взаимодействия  $\varphi$

$$a = \frac{3 + \varphi(2\theta_0 - 1)}{\varphi}, \quad (31)$$

$$c = \frac{6 - \varphi + 4\varphi\theta_0 + \varphi^2\theta_0(\theta_0 - 1)}{\varphi^3}$$

Вместо (29) имеем

$$K = F(u) + \left( D(u) \frac{du}{dx} \right)^2 \quad (32)$$

Функция  $F(u)$  является аналогом потенциального поля в механической системе с полной энергией  $K$ , временем  $x$  и зависящей от координаты  $u$  массой  $2D^2(u)$ . При  $\varphi > 4$   $F(u)$  имеет максимумы в точках  $u = -\theta_0 + \theta_{\pm} \equiv \Delta\theta_{\pm}$  (нули  $D(u)$ ) и минимум при  $u = 0$ , соответствующий основному однородному состоянию. График для  $F(u)$  в случае  $\theta_0 = 1/2$  представлен на рис. 3. При  $\theta_0 = 1/2$  левый максимум выше правого и разность между ними возрастает с ростом  $\varphi$ .

Рассмотрим систему с "полной энергией"  $K$ , меньшей обоих максимумов  $F(u)$ . В такой системе возникает периодическая пространственно-упорядоченная структура. Уравнение  $K = F(u)$  имеет два решения:  $u_+(K)$  и  $u_-(K)$  — максимальные отклоне-

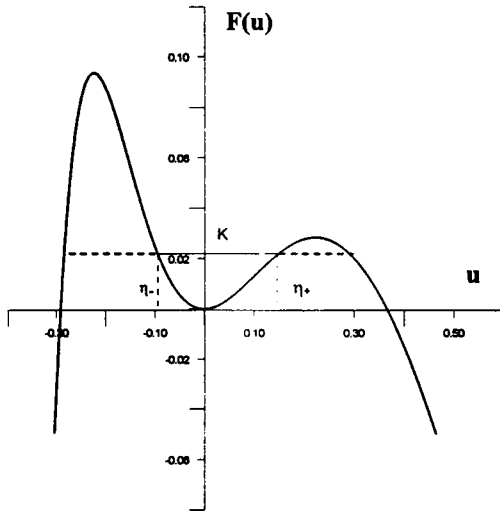


Рис. 3. График зависимости  $F(u)$  при  $\theta_0 = 0.5$  и  $\varphi = 5$ . Для  $K = 0.022$  максимальные отклонения  $u_-$  и  $u_+$  равны 0.19 и 0.30 соответственно.

ния заполненности от значения  $\theta_0$  влево и вправо (см. рис. 3). Полагая  $u|_{x=0} = u_-(K)$  и  $du/dx|_{x=0}$ , из (32) получим

$$x(u) = \pm \int_{u_-(K)}^u \frac{D(u') du'}{\sqrt{K - F(u')}} \quad (33)$$

Очевидно, амплитуда осцилляций есть  $u_+(K) - u_-(K)$ . Период осцилляций равен  $2xu_+(K)$ . Обе эти величины возрастают с ростом  $\varphi$ . Величина  $K$  должна выбираться таким образом, чтобы среднее по периоду значение  $u(x)$  обращалось в ноль. Это соответствует физическому смыслу  $u(x)$  как отклонения от среднего значения  $\theta_0$ . Зависимости  $u(x)$ , полученные в результате численного интегрирования (33), представлены на рис. 4 а) и б). При возрастании температуры (уменьшении константы взаимодействия  $\varphi$ ) увеличивается амплитуда и частота осцилляций. В свою очередь, с уменьшением "полной энергии"  $K$  при постоянной температуре уменьшается амплитуда и период структур, характер колебаний приближается к линейному.

Особый интерес представляет случай, когда значение  $K$  совпадает с меньшим из максимумов потенциальной энергии. Пусть для определенности  $F(\Delta\theta_-) > F(\Delta\theta_+)$  (как при  $\theta_0 = 1/2$ ),  $K = F(\Delta\theta_-)$  и  $u_+ = \Delta\theta_-$ . Так как  $D(\Delta\theta_-) = 0$ , скорость  $du/dx$  на границе спинодали может быть отличной от нуля. Из уравнения для интегральных кривых следует

$$\left. \frac{du}{dx} \right|_{u=\Delta\theta_-} = \pm \lim_{u \rightarrow \Delta\theta_-} \frac{\sqrt{F(\Delta\theta_+) - F(u)}}{D(u)} \quad (34)$$

Раскрывая неопределенность в правой части (34) с помощью (18), (30), получаем

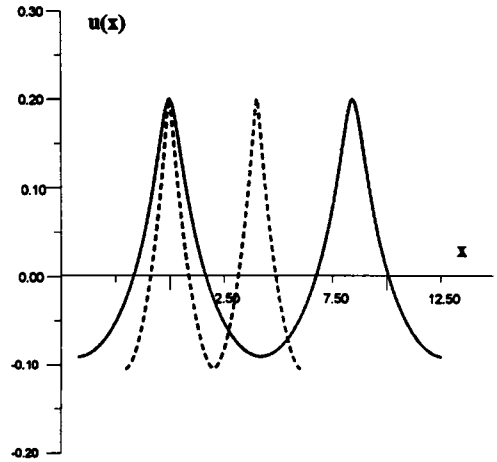


Рис. 4а). Профили распределения  $u(x)$  для фиксированного значения  $u_+ = 0.4$  при различных температурах:  $\varphi = 8.0$  (сплошная линия) и  $\varphi = 5.0$  (пунктирная линия). Соответствующие значения "полной энергии"  $K$  равны 0.028 и 0.104.

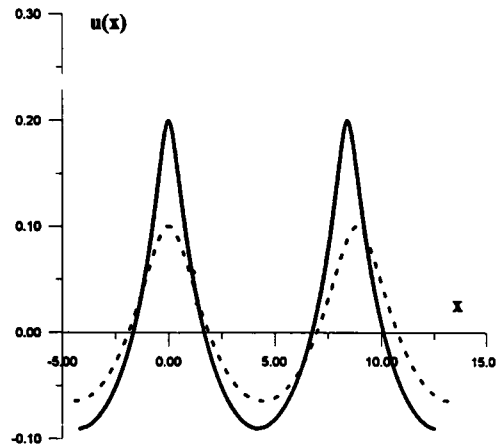


Рис. 4б). Профили распределения  $u(x)$  при фиксированной температуре ( $\varphi = 8.0$ ) и различных значениях "полной энергии"  $K$ :  $K = 0.104$  (сплошная линия) и  $K = 0.046$  (пунктирная линия).

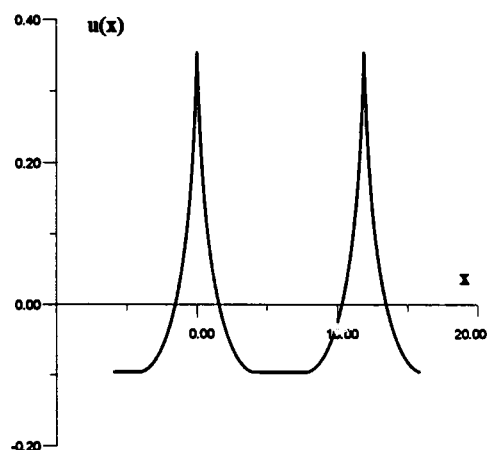


Рис. 4в). Профиль распределения  $u(x)$  в режиме с обострением для  $\varphi = 8.0$ .

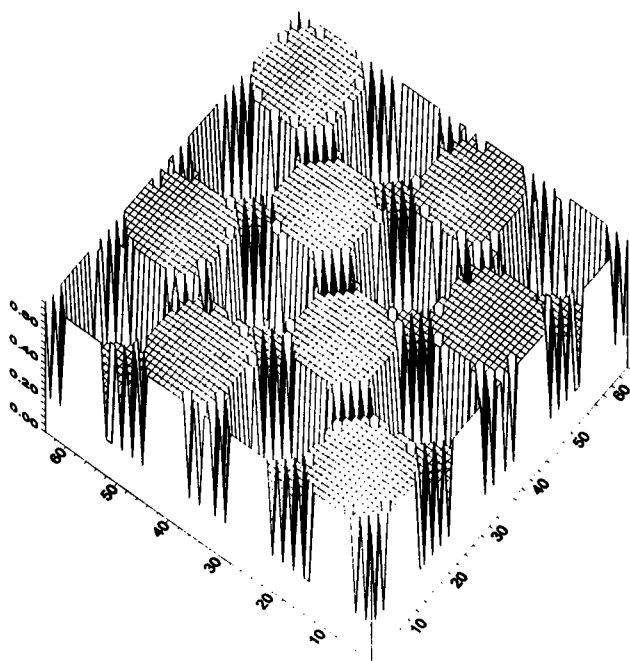


Рис. 5. Распад пространственно-однородного состояния  $\theta_0 = 0.5$ . Стационарное решение при  $\varphi = 4.5$ .

$$\left. \frac{du}{dx} \right|_{u=\Delta\theta_+} = \pm \sqrt{\frac{\Delta\theta_+}{D'(\Delta\theta_+)}} \quad (35)$$

где  $D'(\Delta\theta_+) > 0$ . Следовательно, в данной ситуации осуществляется режим с обострениями, когда профиль распределения в окрестности максимума имеет иглообразный вид. Поведение функции  $u(x)$  в случае  $K = F(\Delta\theta_+)$  представлено на рис. 4в). Все закономерности изменения параметров периодических структур, описанные выше, остаются справедливыми и в этом случае.

### САМООРГАНИЗАЦИЯ В ДВУМЕРНОЙ МОДЕЛИ

В двумерной системе эталонное уравнение для рассматриваемой модели (19) в стационарном случае имеет вид

$$\bar{\nabla} \left[ (v^2 - 1) \bar{\nabla} v \right] - v = 0, \quad \bar{\nabla} = \frac{\partial}{\partial \zeta}; \frac{\partial}{\partial \eta}, \quad (36)$$

$$\zeta = \frac{2x}{\sqrt{\lambda}} e^{(\lambda+4)/4}, \quad \eta = \frac{2y}{\sqrt{\lambda}} e^{(\lambda+4)/4}$$

Связь исходной функции  $u$  с функцией  $v$  выражается соотношением (22). В первом приближении при малых  $\lambda$  решение может быть представлено в виде

$$u(x) = \sqrt{\lambda} / 4 \left[ v \left( \frac{2x}{\sqrt{\lambda}} \exp[-(\lambda+4)/4], \frac{2y}{\sqrt{\lambda}} \exp[-(\lambda+4)/4] \right) + O(\lambda) \right] \quad (37)$$

где  $v(\zeta, \eta)$  есть периодическое решение уравнения (36).

Для изучения морфологии периодических пространственно-упорядоченных структур двумерного РГ было проведено численное исследование дискретного динамического уравнения на квадратной решетке размером  $64 \times 64$  узлов и получены его асимптотики при больших временах. Исходная система уравнений имеет вид

$$\frac{d\theta_i}{dt} = \hat{M}_i(\bar{\theta}) + \frac{1}{t_A} (\theta_0 - \theta_i) \quad (38)$$

где  $\hat{M}_i(\bar{\theta})$  есть двумерный диффузионный оператор РГ (15). На пространственно-однородное распределение  $\theta_i = \theta_0$  при  $t = 0$  накладывалось малое двоякопериодическое возмущение с периодом  $L < L_c$  и рассчитывалась его дальнейшая эволюция. На границах области ставились периодические граничные условия. Вычисления прекращались, когда относительная разность между решениями на предыдущем и последующем шагах по времени не превышала 0.1%. Результаты численных расчетов показывают, что для значений  $\theta_0$  внутри спиновальной области при  $\varphi > 2.0$  восходящая диффузия частиц РГ может приводить к образованию упорядоченных массивов плоских

островков, составляющих двумерную решетку, повернутую на  $45^\circ$  относительно исходной. Как видно из рис. 5, островки имеют форму правильных восьмиугольников, ярко выраженную границу с областью разрежения и практически одинаковый латеральный размер.

### ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Предложенная нелинейная модель позволяет исследовать кинетику образования пространственно-упорядоченных структур в решеточных системах. Модель дает возможность определять морфологические характеристики стационарных распределений плотности как вблизи, так и вдали от критической точки. В данной работе рассматривался процесс спонтанного распада неустойчивого однородного состояния в спиновальной области. Представляет интерес также исследование нелинейных эффектов вне спинодали (например, для метастабильной системы со слабым межмолекулярным взаимодействием) и связанный с этим вопрос о согласовании модели с классической теорией нуклеации.

Результаты, полученные для двумерного случая, будут применены для исследования процессов самоорганизации в гетероэпитаксиальных системах. Имеются возможности для построения моде-

лей самоорганизации в многослойных адсорбционных системах [14], по-существу представляющих собой иерархию двумерных решеточных моделей. Более сложные проблемы возникают при попытке последовательного учета рассогласования решеток и релаксации упругих напряжений в неравновесной теории [15].

Авторы выражают благодарность В.Л.Кузьмину и Г.Э.Цырлину за ценные обсуждения затронутых в работе вопросов.

Данная работа была частично поддержана Российским Фондом Фундаментальных Исследований в рамках грантов № 98-01-01086 и № 98-01-01109.

#### ЛИТЕРАТУРА

1. *Abraham F.F.* Homogeneous Nucleation Theory. 1974. New York: Academic Press.
2. *Bogdanov A.V., Dubrovskii G.V., Krutikov M.P., et al.* Interaction of Gases with Surface. Detailed Description of Elementary Processes and Kinetics. 1995. Heidelberg: Springer.
3. Molecular Beam Epitaxy 1990. Eds. C.W.Tu, J.S.Harris. 1991. Amsterdam: North Holland.
4. *Kukushkin S.A., Osipov A.V.* // Progress in Surface Science. 1996. V.51, №1. P.1.
5. *Kreuzer H.J.* // Phys.Rev. B. 1991. V.44. P.1232.
6. *Куни Ф.М., Гринин А.П.* // Вестник ЛГУ. 1982. №22. С.10.
7. *Куни Ф.М., Новожилова Т.Ю., Терентьев И.А.* // ТМФ. 1986. Т.60, №2. С.276.
8. *Лифшиц И.М., Слезов В.В.* // ЖЭТФ. 1958. Т.35, вып.2. С.479.
9. *Dubrovskii V.G.* // Phys.Stat.Sol.(b). 1992. V.171. P.345.
10. *Cirlin G.E., Guryanov G.M., Golubok A.O., et. al.* // Appl.Phys.Lett. 1995. V.67. P.97.
11. *Дубровский Г.В., Кузьменко А.В., Марков Ю.Г.* // ТМФ. 1995. Т.105, №130. С.130.
12. *Дубровский В.Г., Козачек В.В.* // Научное Приборостроение. 1996. Т.6, №1-2. С.14.
13. *Мусеев Н.Н.* Асимптотические методы нелинейной механики. 1969. М.: Наука.
14. *Dubrovskii V.G., Cirlin G.E., Kozachek V.V., Mareev V.V.* // Czech. J. Phys. 1997. V.47, №4. P.389.
15. *Shchukin V.A., Ledentsov N.N., Kop'ev P.S., Bimberg D.* // Phys. Rev. Lett. 1995. V.75. P.2968.

## FORMATION OF SELF-ARRANGED STRUCTURES OF LATTICE GAS IN THE SPINODAL REGION

V.G.Dubrovskii\*, D.A.Bauman, V.V.Kozachek, V.V.Mareev

\*Institute for Analytical Instrumentation RAS, Saint-Petersburg  
Institute for High Performance Computing and Data Bases

A system of non-linear dynamical equations for lattice gas density distribution has been studied in discrete and continual forms. It is shown that the instability of space homogeneous states in the spinodal region leads to the formation of self-arranged periodic structures. For one- and two-dimensional cases the morphological characteristics of stationary structures and their relationship with the physical parameters of the model have been studied.