

Р.Д. Венгреневич, Б.В. Іванський, А.В. Москалюк До теорії Ліфшица-Сльозова-Вагнера

*Чернівецький національний університет ім. Ю. Федьковича
вул. Коцюбинського 2, м. Чернівці, 58012*

Запропоновано механізм оствальдівського дозрівання частинок у об'ємних матрицях і острівців у тонких плівках та гетероструктурах в умовах одночасної дії дифузійного і вагнерівського механізмів росту. Розраховано функції розподілу за розмірами і відповідні часові залежності для середніх (критичних) та максимальних розмірів частинок. Зіставлення експериментальних гістограм з розрахованими кривими підтверджує можливість реалізації на практиці запропонованого механізму росту у процесі оствальдівського дозрівання.

Стаття поступила до редакції 16.06.08; прийнята до друку 15.12.08.

Вступ

Минуло 50 років від часу опублікування відомої роботи Ліфшица і Сльозова [1] і трохи менше від публікації праці Вагнера [2], які заклали основи теорії оствальдівського дозрівання (ОД). Явище ОД описує останню, так звану пізню стадію розпаду пересиченого твердого розчину, яку, власне, і відкрив Оствальд [3]. Вона полягає в тому, що внаслідок дифузійного масопереносу речовини від кластерів з більшою кривизною поверхні до кластерів з меншою кривизною поверхні (ефект Гіббса-Томсона) менші кластери розчиняються і щезають, а більші за їх рахунок ростуть, що веде до неперервного зростання середнього розміру кластерів. В рамках теорії ОД, яку називають ще теорією Ліфшица-Сльозова-Вагнера або теорією ЛСВ, удається розрахувати не тільки як змінюється з часом середній розмір (радіус) кластерів, але й часову залежність їх кількості в одиниці об'єму, функцію розподілу за розмірами, зміну з часом пересичення твердого розчину тощо.

Першопочатково теорія ЛСВ була створена для аналізу структури та прогнозування її зміни під час ОД в металевих сплавах, зміцнених дисперсними фазами, з метою покращення їх експлуатаційних характеристик. Пізніше у рамках цієї теорії був розв'язаний ряд інших задач [4-13], які за механізмами масопереносу між кластерами відрізнялися від тих, що були розглянуті в [1, 2]. Зокрема, це дифузія по границях зерен і дислокаційних трубках, а також ОД дисипативних структур у нерівноважних напівпровідникових системах.

В останній час цікавість до теорії ЛСВ різко

зростає у зв'язку з її поширенням на поверхневі дисперсні системи і, зокрема, на острівцеві плівки і напівпровідникові гетероструктури з квантовими точками, які отримують у процесі самоорганізації в режимі Странскі-Крастанова [14-32].

Аналітичний вигляд функції розподілу за розмірами, яка містить всю інформацію про дисперсну систему, про еволюцію її структури з часом, визначається механізмом масопереносу між кластерами. В цьому зв'язку на перший план виступає дослідження механізмів росту (розчинення) частинок (кластерів, виділень) в процесі ОД.

Першими такими механізмами, які розглядалися в теорії ЛСВ були – дифузійний механізм росту кластерів [1] і механізм, контрольований швидкістю утворення хімічних зв'язків на поверхні кластерів [2]. Його ще називають вагнерівським механізмом росту. В роботах [1, 2] функції розподілу за розмірами розраховані саме для цих крайніх механізмів росту. Проте подібно до того, як кристалічні ґратки твердих тіл утворюються при одночасній дії різних типів хімічного зв'язку, так і ріст кластерів, в реальних умовах відбувається при одночасній дії різних механізмів росту.

Метою даної роботи є розрахунок функції розподілу кластерів за розмірами за умови одночасної дії двох механізмів росту – дифузійного і вагнерівського, у випадку сплавів і острівцевих плівок та гетеросистем з квантовими точками.

I. Сплави. Постановка задачі

При дифузійному механізмі масопереносу атоми

розчиненої речовини, які досягають кластерів дифузійним шляхом повністю поглинаються ними, так що ріст кластерів контролюється матричною дифузією, і зокрема, коефіцієнтом об'ємної дифузії D_v [1]. Вагнер [2] вперше зазначив, що це можливо, якщо атоми, які перетинають межу розділу кластер-матриця і попадають за одиницю часу на їх поверхню, встигають утворювати хімічні зв'язки, необхідні для відтворення структури речовини кластерів. Якщо це не так, то навколо межі розділу кластер-матриця відбувається накопичення розчинених атомів, з деякою невідомою концентрацією C_x . При цьому процес росту контролюється уже не коефіцієнтом об'ємної дифузії D_v , а кінетичним коефіцієнтом β . В даній роботі розрахунки виконані за умови, що $C_x = \langle C \rangle$, де $\langle C \rangle$ – середня концентрація розчину.

Правильність чи неправильність такого припущення може бути перевірена шляхом співставлення результатів розрахунків з експериментальними даними та теоретичними розрахунками інших авторів.

За Вагнером, кількість атомів, які перетинають межу розділу кластер-матриця і потрапляють на поверхню кластера за одиницю часу j_1 , рівна:

$$j_1 = 4\pi r^2 \beta \langle C \rangle, \quad (1)$$

а кількість атомів, що залишають його за одиницю часу:

$$j_2 = 4\pi r^2 \beta C_r, \quad (2)$$

так що сумарний потік атомів, які беруть участь в утворенні хімічних зв'язків рівний:

$$j_i = j_1 - j_2 = 4\pi r^2 \beta (\langle C \rangle - C_r), \quad (3)$$

де $C_r = C_\infty e^{\frac{2\sigma v_m}{kTr}} \approx C_\infty \left(1 + \frac{2\sigma v_m}{rkT}\right)$ – концентрація атомів розчиненої речовини на межі з кластером, радіуса r , C_∞ – рівноважна концентрація при даній температурі T , σ – міжфазна поверхнева енергія, v_m – об'єм атома розчиненої речовини, k – стала Больцмана.

Потоки j_1 (до кластера) та j_2 (від кластера) обумовлені тепловим рухом атомів. Потік j_1 пропорційний середній концентрації розчину $\langle C \rangle$, потік j_2 – концентрації C_r , яка повинна встановитися на межі з кластером у відповідності з формулою Гіббса-Гомсона ($C_r = C_\infty e^{\frac{2\sigma v_m}{kTr}}$).

У виразах (1) і (2) для потоків j_1 та j_2 кінетичний коефіцієнт β чисельно рівний густині потоку при одиничній концентрації. Тому, з врахуванням природи потоків, ці коефіцієнти вважаються однаковими.

Введення кінетичного коефіцієнта β , що визначає потік j_i , обумовлене нерівноважністю процесів, які протікають як на поверхні кластерів, так

і на межах розділу з матрицею. У зв'язку з цим виразити потік j_i через градієнт концентрації на межі розділу неможливо. Формально його можна записати через градієнт концентрації:

$$j_i = 4\pi r^2 \beta (\langle C \rangle - C_r) = 4\pi r^2 \beta r \frac{\langle C \rangle - C_r}{r}, \quad (4)$$

де $-\beta \cdot r$ – має розмірність коефіцієнта дифузії, проте такий коефіцієнт дифузії $D^* = \beta r$ не має фізичного змісту. Тому переходять до кінетики.

У стані рівноваги:

$$j_i = j_v = j, \quad (5)$$

тому потік j атомів до (від) кластера може бути виражений як:

$$j = \frac{1}{2}(j_i + j_v), \quad (6)$$

де j_v – потік атомів, які досягають поверхні кластера за одиницю часу шляхом дифузії.

У загальному випадку потік j рівний:

$$j = j_i + j_v \quad (7)$$

Отже, при розрахунку функції розподілу за розмірами необхідно врахувати, що загальний потік до кластера (від кластера) задається формулою (7).

II. Швидкість росту. Часові зміни r_k

та r_k

Для визначення функції розподілу частинок за розмірами $f(r, t)$ необхідно знати швидкість росту частинок $\dot{r} = \frac{dr}{dt}$, які пов'язані між собою рівнянням неперервності:

$$\frac{\partial f(r, t)}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial r}(f(r, t)\dot{r}) = 0. \quad (8)$$

Швидкість росту визначається із умови:

$$\frac{d}{dt}\left(\frac{4}{3}\pi r^3\right) = j v_m, \quad (9)$$

де j – задається рівнянням (7). Враховуючи дифузійну частину потоку:

$$j_v = 4\pi r^2 D_v \left(\frac{dC}{dr}\right)_{R=r} = 4\pi r^2 D_v \frac{\langle C \rangle - C_r}{r}, \quad (10)$$

і вагнерівську (4), із (9) отримуємо вираз для швидкості росту [32]:

$$\frac{dr}{dt} = \frac{\sigma C_\infty v_m^2 D_v}{kT} \frac{1}{r^2} \left(\frac{1-x}{x} \frac{r}{r_g} + 1 \right) \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right), \quad (11)$$

де,

$$x = \frac{j_v}{j}, \quad 1-x = \frac{j_i}{j}, \quad \frac{j_v}{j_i} = \frac{x}{1-x}, \quad (12)$$

r_k – критичний радіус, який у рамках теорії ЛСВ співпадає з середнім радіусом частинок, $r_k = \langle r \rangle$, x – частка j_v у загальному потоці j , $(1-x) = j_i$ у загальному потоці j .

Рівняння (11) відповідає швидкості росту кластерів в умовах матричної дифузії, з внеском $(1-x)$ тієї частки потоку, який контролюється кінетичним коефіцієнтом β .

Швидкість росту кластерів в умовах контрольованих кінетичним коефіцієнтом β , з внеском x матричної дифузії має вигляд:

$$\frac{dr}{dt} = \frac{C_{\infty} \sigma v_m^2 \beta}{kT} \frac{1}{r} \left(\frac{x}{1-x} \frac{r_g}{r} + 1 \right) \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right). \quad (13)$$

У рівняннях для швидкості росту (11) або (13), які є комбінацією вагнерівського і звичайного дифузійного механізмів укрупнення кластерів припускається, що ні одним із доданків у загальному потоці j (7) нехтувати не можна. Це значить, що потоки j_v та j_i повинні бути порівняльні між собою. Проте, складність полягає у тому, що утворення хімічних зв'язків є електронним процесом, а класична дифузія – атомним активаційним процесом з іншим часовим масштабом. Виникає питання, за яких умов два якісно різних часи релаксації $\tau_{\text{хім.зв}}$ та $\tau_{\text{диф}}$ виявляються порівняльні між собою? Таким чином, питання про співвідношення між потоками j_v та j_i зводиться фактично до відношення між часами релаксації $\tau_{\text{хім.зв}}$ та $\tau_{\text{диф}}$, а в кінцевому рахунку до питання про можливість реалізації на практиці запропонованого механізму росту кластерів.

Дати відповідь на виникаюче питання, у загальному випадку, важко.

Очевидно, часи релаксації $\tau_{\text{хім.зв}}$ та $\tau_{\text{диф}}$ порівняльні, якщо електронний процес утворення хімічних зв'язків є активаційним і якщо енергії активації обох процесів – електронного і дифузійного порівняльні між собою.

У [2] отримані розв'язки для крайніх випадків: $x = 0$, $\tau_{\text{диф}} \ll \tau_{\text{хім.зв}}$ (вагнерівський механізм росту); $x = 1$, $\tau_{\text{хім.зв}} \ll \tau_{\text{диф}}$ (дифузійний механізм росту). Звернемо увагу, що у [2] часи релаксації не обговорюються.

У розглядуваному нами випадку, коли розв'язок шукається для будь-якого значення x в інтервалі $0 < x < 1$, часи релаксації повинні бути порівняльні між собою, хоча б для таких систем, для яких експериментальні гістограми описуються розрахованими нами кривими.

Одним із основних параметрів теорії ЛСВ є відношення $\frac{r_g}{r_k}$ (у термінах роботи [1] запираюча точка u_0), знання якого, разом з рівнянням для швидкості росту (11) або (13), дозволяє проінтегрувати рівняння (8), після розділення у ньому змінних, і визначити аналітичний вигляді функції розподілу за розмірами. Це відношення можна визначити із кривої залежності питомої швидкості росту $\frac{\dot{r}}{r}$ від r , схематично зображеної на

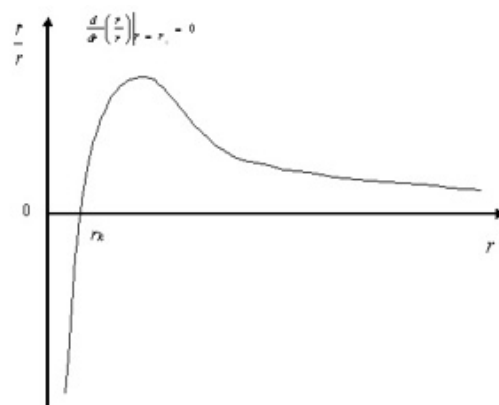


Рис. 1. Схематична залежність питомої швидкості росту $\frac{\dot{r}}{r}$ від r .

рис. 1, де \dot{r} визначається рівнянням (11) або (13) [9].

У точці, де швидкість росту на одиницю довжини радіуса кластера досягає максимуму похідна рівна нулю:

$$\frac{d}{dr} \left(\frac{\dot{r}}{r} \right) \Big|_{r=r_g} = 0, \quad (14)$$

$$\text{де } -\frac{\dot{r}}{r} = \frac{\sigma C_{\infty} v_m^2 D_v}{kT} \frac{1}{r^3} \left(\frac{1-x}{x} \frac{r}{r_g} + 1 \right) \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right).$$

Фізично це означає, що максимального розміру r_g досягає та із частинок, для якої швидкість росту одиниці довжини її радіуса найбільша. Із (14) отримуємо:

$$\frac{r_g}{r_k} = \frac{2+x}{1+x}. \quad (15)$$

Підставивши у рівнянні (14) $r = r_g$ і замінивши відношення $\frac{r_g}{r_k}$ його значенням (15), після інтегрування отримаємо:

$$r_g^3 = A^* \frac{t}{x(1+x)}, \quad (16)$$

де $-A^* = \frac{6\sigma v_m^2 C_{\infty} D_v}{kT}$, або:

$$r_k^3 = A^* \frac{(1+x)^2}{x(2+x)^3} t. \quad (17)$$

При $x = 1$ ріст частинок повністю контролюється коефіцієнтом об'ємної дифузії:

$$r_g^3 = \frac{1}{2} A^* t, \quad r_k^3 = \frac{4}{27} A^* t, \quad \frac{r_g}{r_k} = \frac{3}{2}. \quad (18)$$

Аналогічно із рівняння (13):

$$r_g^2 = B^* \frac{t}{1-x^2}, \quad (19)$$

де $-B^* = \frac{4\sigma v_m^2 C_{\infty} \beta}{kT}$, або

$$r_k^2 = B^* \frac{1+x}{(1-x)(2+x)^2} t. \quad (20)$$

Рівняння (19) і (20) описують зміну з часом розмірів кластерів, коли їх ріст контролюється кінетичним коефіцієнтом β , з внеском x матричної дифузії. Якщо $x = 0$, то процес повністю контролюється кінетикою переходу через межу розділу кластер-матриця:

$$r_g^2 = B^* t, r_k^2 = \frac{1}{4} B^* t, \frac{r_g}{r_k} = 2 \quad (21)$$

III. Узагальнений розподіл Ліфшица-Сльозова-Вагнера. Центральні та початкові моменти

Функцію розподілу кластерів за розмірами, згідно [9], в інтервалі значень $0 \leq x \leq 1$, будемо шукати у вигляді добутку:

$$f(r, t) = \varphi(r_g) g'(u), \quad (22)$$

де $g'(u)$ – розподіл кластерів за відносними розмірами, $u = \frac{r}{r_g}$. Функцію $\varphi(r_g)$ знаходимо із закону збереження маси дисперсної фази:

$$M = \frac{4}{3} \pi \rho \int_0^{r_g} r^3 f(r, t) dr, \quad (23)$$

після підстановки у нього $f(r, t)$ з (22):

$$\varphi(r_g) = \frac{Q}{r_g^4}, \quad (24)$$

$$\text{де } Q = \frac{M}{\frac{4}{3} \pi \rho \int_0^1 u^3 g'(u) du}.$$

Врахувавши (24) рівняння (22) переписеться

$$f(r, t) \frac{1}{r_g^4} Q \cdot g'(u) = \frac{1}{r_g^4} g(u), \quad (25)$$

де

$$g(u) = Q \cdot g'(u). \quad (26)$$

Для визначення $g'(u)$ скористаємося рівнянням неперервності (8), підставляючи у нього замість

$f(r, t)$ і їх значення з (11) (або (13)) та (22). Переходячи потім від диференціювання по r і t до диференціювання по u у ньому розділяються змінні:

$$\frac{dg'(u)}{g'(u)} = - \frac{4v_g - \frac{1}{u^2} \frac{dv}{du} + 2 \frac{v}{u^3}}{uv_g - \frac{v}{u^2}} du. \quad (27)$$

Інтегрування (27) дозволяє отримати аналітичний вигляд узагальненого розподілу Ліфшица-Сльозова-Вагнера [32]:

$$g'(u) = u^2 (1-u)^{-B} (u+x^2+x)^D \exp\left[\frac{C}{1-u}\right], \quad (28)$$

де:

$$\begin{aligned} B &= \frac{2x^4 + 4x^3 + 12x^2 + 10x + 5}{F}, \\ C &= - \frac{3x^2 + 3x + 3}{F}, \\ D &= - \frac{4x^4 + 8x^3 + 6x^2 + 2x + 1}{F}, \end{aligned} \quad (29)$$

$$F = x^4 + 2x^3 + 3x^2 + 2x + 1.$$

При $x = 1$, $B = 11/3$, $C = -1$, $D = -7/3$ і вираз (28) відповідає розподілу Ліфшица-Сльозова:

$$g'(u) = u^2 (1-u)^{-11/3} (u+2)^{-7/3} \exp\left(-\frac{1}{1-u}\right). \quad (30)$$

При $x = 0$, $B = 5$, $C = -3$, $D = -1$ і вираз (28) переходить у розподіл Вагнера:

$$g'(u) = u(1-u)^{-5} \exp\left(-\frac{3}{1-u}\right). \quad (31)$$

В інтервалі $0 \leq x \leq 1$ розподіл за розмірами описується узагальненою функцією Ліфшица-Сльозова-Вагнера (функцією ЛСВ).

Зазвичай правильність теорії перевіряється шляхом співставлення результатів розрахунку з експериментальними даними. Наявність розрахованого сімейства теоретичних кривих, у вигляді узагальненого розподілу ЛСВ (28), дозволяє провести співставлення з експериментальними гістограмами. Нижче ми проведемо таке порівняння.

Проте можливий і розв'язок оберненої задачі: за експериментально розрахованими моментами для конкретного розподілу за розмірами встановити аналітичний вигляд функції розподілу. На практиці, в

Таблиця 1

	α_0	α_1	α_2	α_3	α_4	μ_2	μ_3	μ_4
$x=0$	0,084	0,041	0,019	0,018	$5,669 \cdot 10^{-3}$	$2,323 \cdot 10^{-3}$	$-4,529 \cdot 10^{-4}$	$1,864 \cdot 10^{-4}$
$x=0,1$	0,068	0,036	0,018	0,018	$5,923 \cdot 10^{-3}$	$1,661 \cdot 10^{-3}$	$-2,708 \cdot 10^{-4}$	$1,2 \cdot 10^{-4}$
$x=0,2$	0,059	0,032	0,017	0,017	$6,15 \cdot 10^{-3}$	$1,354 \cdot 10^{-3}$	$-2,038 \cdot 10^{-4}$	$9,603 \cdot 10^{-5}$
$x=0,3$	0,052	0,029	0,016	0,016	$6,353 \cdot 10^{-3}$	$1,16 \cdot 10^{-3}$	$-1,665 \cdot 10^{-4}$	$8,229 \cdot 10^{-5}$
$x=0,4$	0,046	0,027	0,016	0,016	$6,538 \cdot 10^{-3}$	$1,022 \cdot 10^{-3}$	$-1,423 \cdot 10^{-4}$	$7,299 \cdot 10^{-5}$
$x=0,5$	0,042	0,025	0,015	0,015	$6,707 \cdot 10^{-3}$	$9,166 \cdot 10^{-4}$	$-1,251 \cdot 10^{-4}$	$6,61 \cdot 10^{-5}$
$x=0,6$	0,039	0,024	0,015	0,014	$6,862 \cdot 10^{-3}$	$8,328 \cdot 10^{-4}$	$-1,122 \cdot 10^{-4}$	$6,067 \cdot 10^{-5}$
$x=0,7$	0,036	0,023	0,015	0,014	$7,004 \cdot 10^{-3}$	$7,64 \cdot 10^{-4}$	$-1,02 \cdot 10^{-4}$	$5,623 \cdot 10^{-5}$
$x=0,8$	0,034	0,022	0,014	0,014	$7,136 \cdot 10^{-3}$	$7,063 \cdot 10^{-4}$	$-9,374 \cdot 10^{-5}$	$5,247 \cdot 10^{-5}$
$x=0,9$	0,032	0,021	0,014	0,013	$7,257 \cdot 10^{-3}$	$6,57 \cdot 10^{-4}$	$-8,686 \cdot 10^{-5}$	$4,924 \cdot 10^{-5}$
$x=1$	0,03	0,02	0,014	0,013	$7,37 \cdot 10^{-3}$	$6,142 \cdot 10^{-4}$	$-8,101 \cdot 10^{-5}$	$4,639 \cdot 10^{-5}$

Таблиця 2

	$\langle u \rangle$	D_x	σ_x	S_x	E
$x=0$	0,488	0,028	0,167	-1,163	-9,963
$x=0,1$	0,529	0,024	0,155	-1,065	-9,872
$x=0,2$	0,542	0,023	0,152	-0,991	-9,518
$x=0,3$	0,558	0,022	0,148	-0,995	-9,726
$x=0,4$	0,587	0,022	0,148	-0,948	-9,408
$x=0,5$	0,595	0,022	0,148	-0,917	-9,195
$x=0,6$	0,615	0,022	0,148	-0,894	-9,04
$x=0,7$	0,639	0,021	0,145	-0,932	-9,424
$x=0,8$	0,647	0,021	0,145	-0,916	-9,316
$x=0,9$	0,656	0,021	0,145	-0,902	-9,221
$x=1$	0,667	0,021	0,145	-0,889	-9,134

більшості випадків так і поступають.

В таблиці 1 приведені результати розрахунку деяких моментів початкових:

$$\alpha_s(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} r^s f(r, t) dr \quad (32)$$

і центральних S -того порядку:

$$\mu_s(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} (r - \langle r \rangle)^s f(r, t) dr, \quad (33)$$

які визначають найбільш важливі і вживані характеристики дисперсної системи, такі як: середній розмір кластерів ($\langle r \rangle = \frac{\alpha_1(t)}{\alpha_0(t)}$), їх число в одиниці

об'єму ($N(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(r, t) dr$), поверхню ($S = 4\pi\alpha_2(t)$) і

об'єм частинок ($\Phi = \frac{4}{3}\pi\alpha_3(t)$) в розрахунку на одиницю об'єму, дисперсію ($D_x = \frac{\mu_2}{\alpha_0}$), коефіцієнт

асиметрії ($S_k = \frac{\mu_3}{\alpha_0\sigma^3}$), гостровершинність

($E_x = \frac{\mu_4}{\alpha_0\sigma^4} - 3$) тощо.

Для проведення конкретних розрахунків, результати яких приведені в таблицях 1 і 2, у формулах (32) і (33) треба перейти до змінної u :

$$\alpha_s(x) = \frac{\mu_s(t)}{r_g^{s-3}} = Q \int_0^1 u^s g'(u) du, \quad (34)$$

$$\mu_s(x) = \frac{\mu_s(t)}{r_g^{s-3}} = \int_0^1 \left(u \frac{2+x}{1+x} - 1 \right)^s \left(\frac{1+x}{2+x} \right)^s g'(u) du. \quad (35)$$

Знаючи дані таблиці 1 можна визначити вказані характеристики дисперсної системи.

IV. Острівцеві плівки та гетероструктури з квантовими точками. Механізми росту

Чаक्रверті (Chakraverty) вперше застосував теорію ЛСВ для описання еволюції структури дискретних плівок, які складаються з окремих

острівців (кластерів) і мають форму сферичних сегментів, рис. 2 [33]. Розроблена ним теорія також може бути використана для описання ОД квантових точок, у вигляді когерентних напівпровідникових острівців, що не містять дефектів невідповідності ґраток, отриманих в процесі самоорганізованого росту за механізмом Странського-Крастанова. В запропонованій моделі вважається, що ріст (розчинення) острівців відбувається на підстильному шарі постійної товщини в двовимірному газі адсорбата.

Згідно [33] плівка складається з окремих куполоподібних острівців рис. 2, статистично однорідно розподілених по поверхні підкладки у пересиченому морі (розчині) адсорбованих підкладкою атомів (адатомів). Із рисунка видно, що куполоподібні кластери, у вигляді сегментів, є частиною сфери радіуса R_c , з крайовим кутом θ .

Тому радіус основи острівця r , довжина кола l , поверхня S та об'єм V можуть бути виражені через R_c : $r = R_c \sin \theta$, $l = 2\pi R_c \sin \theta$, $S = 4\pi R_c^2 \alpha_2(\theta)$,

$$V = \frac{4}{3} \pi R_c^3 \alpha_1(\theta), \quad \text{де } \alpha_1(\theta) = \frac{2 - 3 \cos \theta + \cos^3 \theta}{4},$$

$$\alpha_2(\theta) = \frac{1 - \cos \theta}{2} \quad [34].$$

Концентрація адатомів біля основи кластерів C_r задається формулою Гіббса-Томсона:

$$C_r = C_\infty e^{\frac{\Delta P v_m}{kT}} \approx C_\infty \left(1 + \Delta P \frac{v_m}{kT} \right), \quad (36)$$

де C_∞ – рівноважна концентрація при температурі T , v_m – об'єм адатома, k – постійна Больцмана, ΔP – Лапласівський тиск, обумовлений кривизною поверхні острівця. Його можна визначити прирівнявши роботу, яку необхідно виконати для зменшення об'єму острівця на величину dV до викликаного нею зменшення вільної енергії поверхні острівця:

$$\Delta P dV = \sigma dS \text{ або } \Delta P = \sigma \frac{dS}{dV} = 2 \frac{\sigma}{R_c} \frac{\alpha_2(\theta)}{\alpha_1(\theta)}. \quad (37)$$

Враховавши (37) формула (36) перепишеться:

$$C_r = C_\infty e^{\frac{2\sigma v_m \alpha_2(\theta)}{R_c kT \alpha_1(\theta)}} = C_\infty e^{\frac{2\sigma v_m \sin \theta \alpha_2(\theta)}{r kT \alpha_1(\theta)}} = C_\infty \left(1 + \frac{2\sigma v_m \sin \theta \alpha_2(\theta)}{r kT \alpha_1(\theta)} \right) \quad (38).$$

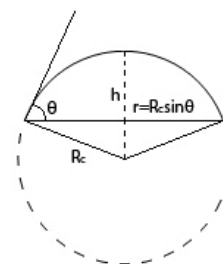


Рис. 2. Острівцеві (кластер) у вигляді сферичного сегменту, який є частиною сфери, радіуса R_c .

Слід зазначити, що формула Гіббса-Томсона у вигляді (38) представлена вперше.

Таким чином, концентрація адатомів на межі кластер-підкладка вздовж лінії розділу (вздовж периметра кластера), визначається радіусом кривизни основи кластера r , як і повинно бути для плоскої задачі. Чим менший радіус кластера r , тим більшою повинна бути концентрація адатомів на межі розділу. І, навпаки, чим більший радіус кластера, тим менше C_r . На підкладці ж встановлюється деяка середня концентрація $\langle C \rangle$, яка визначається критичним радіусом r_k :

$$\langle C \rangle = C_\infty e^{\frac{2\sigma \sin \theta \alpha_2(\theta)}{r_k kT \alpha_1(\theta)}} \approx C_\infty \left(1 + \frac{2\sigma \sin \theta \alpha_2(\theta)}{r_k kT \alpha_1(\theta)} \right). \quad (39)$$

Ті кластери, для яких $C_r > \langle C \rangle$ будуть розчинятися. Кластери, для яких $C_r < \langle C \rangle$ будуть рости. У рівновазі з розчином адатомів знаходяться кластери критичного розміру, радіус яких визначається рівнянням (39):

$$r_k = \frac{\alpha}{\Delta}, \quad (40)$$

де
$$-\alpha = \frac{2\sigma C_\infty v_m \sin \theta \alpha_2(\theta)}{kT \alpha_1(\theta)},$$
 пересичення $\Delta = \langle C \rangle - C_\infty$.

При дифузійному механізмі росту куполоподібних кластерів масоперенос між ними здійснюється шляхом поверхневої дифузії в умовах самоузгодженого дифузійного поля [35-36], яке характеризується коефіцієнтом поверхневої дифузії D_s . Адатоми, досягнувши шляхом поверхневої дифузії периметра острівців, долаючи потенціальний бар'єр на межі розділу острівць-підкладка, потрапляють на їх поверхню. Перерозподіл адатомів по поверхні кластерів здійснюється капілярними силами (силами поверхневого натягу).

Згідно Вагнера, дифузійний механізм росту із збереженням форми острівців, тобто із збереженням крайового кута θ можливий, якщо атоми, які перетинають межу розділу острівць-підкладка і попадають на їх поверхню в одиницю часу, встигають утворювати хімічні зв'язки, необхідні для відтворення структури речовини острівця. Якщо це не так, то навколо межі розділу острівць-підкладка відбувається накопичення адатомів з концентрацією C , рівною середній концентрації розчину $\langle C \rangle$. При цьому процес росту уже не контролюється коефіцієнтом поверхневої дифузії D_s , а кінетичним коефіцієнтом β' .

За Вагнером число адатомів, які перетинають межу між острівцем і підкладкою та потрапляють на поверхню острівця за одиницю часу, визначається:

$$j_i = 4\pi R_c \alpha_2(\theta) \beta' \langle C \rangle = 4\pi r^2 \frac{\alpha_2(\theta)}{\sin^2 \theta} \beta' \langle C \rangle, \quad (41)$$

а число атомів, які його залишають за одиницю часу:

$$j_2 = 4\pi r^2 \frac{\alpha_2(\theta)}{\sin^2 \theta} \beta' C_r, \quad (42)$$

так що сумарний потік атомів, які беруть участь в утворенні хімічних зв'язків, рівний:

$$j_i = j_1 - j_2 = 4\pi r^2 \frac{\alpha_2(\theta)}{\sin^2 \theta} \beta' (\langle C \rangle - C_r), \quad (43)$$

де C_r – задається формулою (38).

У той же час, дифузійний потік j_s адатомів до острівця (від острівця), визначається градієнтом концентрації $\left(\frac{dC}{dR} \right)_{R=r}$ на межі розділу острівць-підкладка:

$$j_s = 2\pi r D_s \left(\frac{dC}{dR} \right)_{R=r}. \quad (44)$$

Його можна знайти розв'язавши рівняння Фіка, яке описує концентрацію адатомів навколо окремого острівця, і яке приймає в умовах стаціонарності і радіальної симетрії вигляд:

$$\frac{1}{R} \frac{d}{dR} \left(R D_s \frac{dC}{dR} \right) = 0, \quad (45)$$

де R змінюється у межах $r \leq R \leq lr$, $l = 2, 3$ (екрануюча відстань [34]).

Розв'язок (45) може бути представлений як:

$$C(R) = C_1 \ln \frac{R}{r} + C_2, \quad (46)$$

де константи C_1 і C_2 визначаються із граничних умов:

$$C(R) = C_r, \text{ якщо } R = r, \quad (47)$$

$$C(R) = \langle C \rangle, \text{ якщо } R = lr, \quad (48)$$

звідки отримуємо:

$$C_1 = \frac{\langle C \rangle - C_r}{\ln l}, C_2 = C_r. \quad (49)$$

Таким чином, розв'язок (46) буде мати вигляд:

$$C(R) = \frac{\langle C \rangle - C_r}{\ln l} \ln \frac{R}{r} + C_r. \quad (50)$$

Знаючи $C(R)$ визначаємо j_s :

$$j_s = \frac{2\pi D_s}{\ln l} (\langle C \rangle - C_r). \quad (51)$$

У стані рівноваги:

$$j_i = j_s = j \quad (52)$$

тому потік j до кластера (від кластера) може бути виражений як:

$$j = \frac{1}{2} (j_i + j_s) \quad (53)$$

У загальному випадку потік j рівний:

$$j = j_i + j_s \quad (54)$$

V. Швидкість росту острівців. Узагальнений розподіл Чакраверті-Вагнера

Швидкість росту окремого острівця знаходиться із умови:

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{4}{3} \pi R_c^3 \alpha_1(\theta) \right) = \frac{d}{dt} \left(\frac{4}{3} \pi \frac{r^3}{\sin^3 \theta} \alpha_1(\theta) \right) = j v_m, \quad (55)$$

де j задається рівнянням (54).

Враховавши (43) і (51) із (55) знаходимо швидкість росту острівця:

$$\frac{dr}{dt} = \frac{1}{2} \frac{1}{4\pi r^2} \frac{\sin^3 \theta}{\alpha_1(\theta)} v_m \times \left[4\pi r^2 \frac{\alpha_2(\theta)}{\sin^2(\theta)} \beta' (\langle C \rangle - C_r) + \frac{2\pi D_s}{\ln l} (\langle C \rangle - C_r) \right], \quad (56)$$

або:

$$\frac{dr}{dt} = \frac{A^*}{r^3} \left(\frac{1-x}{x} \frac{r^2}{r_g^2} + 1 \right) \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right), \quad (57)$$

$$\text{де } -A^* = \frac{\sigma C_\infty v_m^2 D_s \sin^4 \theta \alpha_2(\theta)}{2kT \alpha_1^2(\theta) \ln l}, \quad \frac{j_s}{j_i} = \frac{x}{1-x} \quad [37].$$

Рівняння (57) визначає швидкість росту острівців в умовах поверхневої дифузії, з внеском $(1-x)$ -ї частини потоку, який контролюється кінетичним коефіцієнтом β' .

Недифузійний вагнерівський механізм росту острівців, з внеском x поверхневої дифузії описує рівняння (58):

$$\frac{dr}{dt} = \frac{B^*}{r} \left(\frac{x}{1-x} \frac{r_g^2}{r^2} + 1 \right) \left(\frac{r}{r_k} - 1 \right), \quad (58)$$

$$\text{де } -B^* = \frac{\sigma C_\infty v_m^2 \beta \sin^2 \theta \alpha_2^2(\theta)}{kT \alpha_1(\theta)}.$$

Маючи \dot{r} можна знайти питому швидкість росту $\frac{\dot{r}}{r}$ і згідно [9] визначити u_0 , тобто відношення $\frac{r_g}{r_k}$:

$$u_0 = \frac{r_g}{r_k} = \frac{2x+2}{2x+1}. \quad (59)$$

Використовуючи (59) шляхом інтегрування рівнянь (57) і (58) знаходимо часові залежності для

r_g і r_k в залежності від того, який із механізмів росту переважає – дифузійний чи вагнерівський:

$$r_g^4 = 4 \frac{A^*}{x(2x+1)} t, \quad r_k^4 = 4A^* \frac{(2x+1)^3}{x(2x+2)^4} t. \quad (60)$$

При $x=1$ ріст острівців повністю контролюється коефіцієнтом поверхневої дифузії [33]:

$$r_g^4 = \frac{4}{3} A^* t, \quad r_k^4 = \frac{27}{64} A^* t, \quad \frac{r_g}{r_k} = \frac{4}{3}. \quad (61)$$

Аналогічно:

$$r_g^2 = 2 \frac{B^*}{(1-x)(2x+1)} t, \quad r_k^2 = 2 \frac{B^* (2x+1)}{(1-x)(2x+2)^2} t. \quad (62)$$

Рівняння (62) описують ріст острівців в умовах, контрольованих кінетичним коефіцієнтом β' , з внеском x поверхневої дифузії. Якщо $x=0$, то процес росту повністю контролюється кінетикою переходу через межу розділу острівцев-підкладка [2]:

$$r_g^2 = 2B^* t, \quad r_k^2 = \frac{1}{2} B^* t, \quad \frac{r_g}{r_k} = 2. \quad (63)$$

Функцію розподілу за відносними розмірами $g_{пл}(u)$ знайдемо подібно до того, як ми визначали її для сплавів, з допомогою методу роботи [9]. Знаючи \dot{r} і u_0 шляхом інтегрування рівняння неперервності знаходимо аналітичний вигляд узагальненого розподілу Вагнера-Чакраверті [37]:

$$g'_{пл}(u) = \frac{u^3 (u^2 + 2ux^2 + 2x^2 + x)^{D/2}}{(1-u)^B} \times \exp \left(\frac{F - Dx^2}{\sqrt{2x^2 + x - x^4}} \operatorname{arctg} \frac{u+x^2}{\sqrt{2x^2 + x - x^4}} \right) \times \exp \left(\frac{C}{1-u} \right), \quad (64)$$

де:

$$B = \frac{32x^4 + 16x^3 + 48x^2 + 13x + 5}{A},$$

$$C = -\frac{12x^2 + 3x + 3}{A},$$

$$D = -\frac{80x^4 + 40x^3 + 15x^2 + x + 2}{A}, \quad (65)$$

Таблиця 3

	α_0	α_1	α_2	α_3	α_4	μ_2	μ_3	μ_4
$x=0$	0,084	0,042	0,019	0,01	$5,669 \cdot 10^{-3}$	$2,323 \cdot 10^{-3}$	$-4,529 \cdot 10^{-5}$	$1,864 \cdot 10^{-4}$
$x=0,1$	0,055	0,03	0,017	0,01	$6,167 \cdot 10^{-3}$	$1,003 \cdot 10^{-3}$	$-8,95 \cdot 10^{-5}$	$5,336 \cdot 10^{-5}$
$x=0,2$	0,044	0,026	0,016	0,01	$6,553 \cdot 10^{-3}$	$7,522 \cdot 10^{-4}$	$-5,593 \cdot 10^{-5}$	$3,928 \cdot 10^{-5}$
$x=0,3$	0,037	0,023	0,015	0,01	$6,875 \cdot 10^{-3}$	$6,184 \cdot 10^{-4}$	$-4,307 \cdot 10^{-5}$	$3,259 \cdot 10^{-5}$
$x=0,4$	0,032	0,021	0,014	0,01	$7,147 \cdot 10^{-3}$	$5,305 \cdot 10^{-4}$	$-3,622 \cdot 10^{-5}$	$2,835 \cdot 10^{-5}$
$x=0,5$	0,029	0,02	0,014	0,01	$7,381 \cdot 10^{-3}$	$4,665 \cdot 10^{-4}$	$-3,185 \cdot 10^{-5}$	$2,525 \cdot 10^{-5}$
$x=0,6$	0,026	0,018	0,013	0,01	$7,584 \cdot 10^{-3}$	$4,17 \cdot 10^{-4}$	$-2,876 \cdot 10^{-5}$	$2,283 \cdot 10^{-5}$
$x=0,7$	0,024	0,017	0,013	0,01	$7,761 \cdot 10^{-3}$	$3,772 \cdot 10^{-4}$	$-2,64 \cdot 10^{-5}$	$2,083 \cdot 10^{-5}$
$x=0,8$	0,023	0,017	0,013	0,01	$7,917 \cdot 10^{-3}$	$3,443 \cdot 10^{-4}$	$-2,45 \cdot 10^{-5}$	$1,913 \cdot 10^{-5}$
$x=0,9$	0,022	0,016	0,013	0,01	$8,055 \cdot 10^{-3}$	$3,166 \cdot 10^{-4}$	$-2,292 \cdot 10^{-5}$	$1,767 \cdot 10^{-5}$
$x=1$	0,02	0,015	0,012	0,01	$8,177 \cdot 10^{-3}$	$2,927 \cdot 10^{-4}$	$-2,156 \cdot 10^{-5}$	$1,639 \cdot 10^{-5}$

Таблиця 4

	$\langle u \rangle$	D_x	σ_x	S_x	E_x
$x=0$	0,5	0,028	0,167	-1,17	-0,111
$x=0,1$	0,545	0,018	0,135	-0,661	-0,077
$x=0,2$	0,591	0,017	0,131	-0,567	0,038
$x=0,3$	0,621	0,017	0,131	-0,538	0,139
$x=0,4$	0,656	0,017	0,131	-0,531	0,236
$x=0,5$	0,689	0,016	0,127	-0,536	0,333
$x=0,6$	0,692	0,016	0,126	-0,546	0,432
$x=0,7$	0,708	0,016	0,126	-0,56	0,533
$x=0,8$	0,739	0,015	0,124	-0,576	0,637
$x=0,9$	0,727	0,015	0,124	-0,593	0,744
$x=1$	0,75	0,015	0,124	-0,611	0,855

$$F = -\frac{32x^6 + 16x^5 + 54x^4 + 34x^3 + 8x^2}{A},$$

$$A = 16x^4 + 8x^3 + 9x^2 + 2x + 1.$$

При $x = 0$ маємо: $B = 5$, $C = -3$, $D = -2$, $F = 0$ і вираз (64) відповідає розподілу Вагнера [2]:

$$g'(u) = u(1-u)^{-5} \exp\left(-\frac{3}{1-u}\right). \quad (66)$$

При $x = 1$ маємо: $B = 19/6$, $C = -1/2$, $D = -23/6$, $F = -4$ і вираз (64) переходить у розподіл Чакраверті [33]:

$$g'(u) = \frac{u^3 \exp\left(-\frac{1}{2(1-u)}\right) \exp\left(-\frac{1}{6\sqrt{2}} \arctg \frac{u+1}{\sqrt{2}}\right)}{(1-u)^{19/6} (u^2 + 2u + 3)^{23/12}}. \quad (67)$$

З врахуванням закону збереження маси

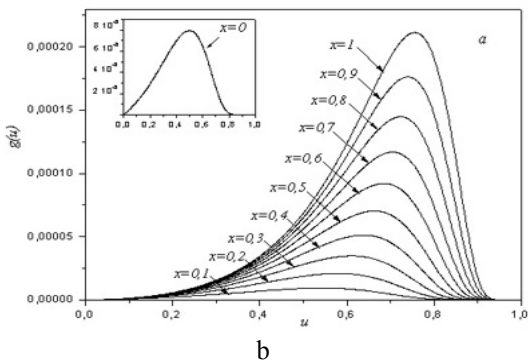
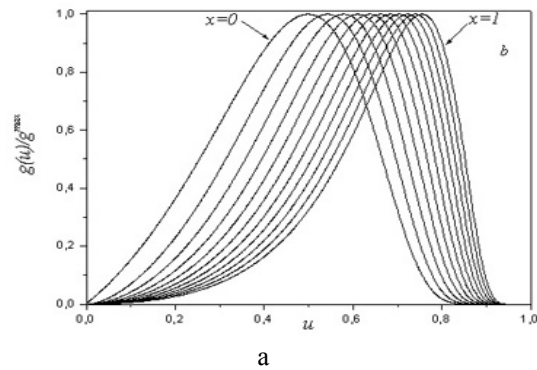


Рис. 3. Розрахована крива (26) у залежності від x (а), криві (26) нормовані на свої максимуми, при різних значеннях x (б).

острівцевого конденсату функція розподілу кластерів за відносними розмірами визначається як:

$$g_{пл.}(u) = Q \cdot g'_{пл.}(u), \quad (68)$$

$$\text{де } Q = \frac{\Phi}{\frac{4}{3} \pi \alpha_1(\theta) \frac{1}{\sin^3 \theta} \int_0^1 u^3 g(u) du} = \frac{\Phi'}{\int_0^1 u^3 g(u) du}.$$

Значення початкових і центральних моментів, а також інших числових характеристик розподілу (68) приведені в таблицях 3 і 4.

VI. Обговорення

На рис. 3,а зображені криві, які відповідають розподілу (26), розраховані при різних значеннях параметра x , через інтервал $\Delta x = 0,1$. Окремо, на вставці, зображена функція Вагнера ($x = 0$), оскільки у вибраному масштабі показати її на основному рисунку неможливо. Спостерігається плавний перехід від розподілу Ліфшица-Сльозова (30) до розподілу Вагнера (31).

Ці ж криві нормовані на свої максимуми показані на рис. 3,б. У такому нормованому по координатних осях вигляді, вони зручні для порівняння з аналогічно нормованими експериментальними гістограмами.

На рис. 4 зображені результати порівняння теоретичної кривої (26) з експериментальними гістограмами нанорозмірних частинок Al_3Sc у сплавах $Al-Sc$ [38], які відповідають температурі $300^\circ C$ і годинам витримки: а – 6, б – 72, с – 350 годин; температурі $400^\circ C$ і витримці: d – 1, е – 5 годин.

Видно, що збільшення часу витримки при температурі $300^\circ C$ до 350 годин приводить до зміни механізму росту частинок від лімітованого, переважно, дифузійними процесами масопереносу, рис. 4,а – $x = 0,8$; рис. 4,б – $x = 0,9$, до контрольованого переважно кінетикою на межі розділу виділення-матриця, рис. 4,с – $x = 0,2$.

Збільшення температури витримки до $400^\circ C$ сприяє росту частинок в умовах, контрольованих переважно кінетикою на межі розділу фаз, рис. 4,д – $x = 0,3$; рис. 4,е – $x = 0,2$.

Використовуючи з результатів порівняння значення x можна визначити відсоткове співвідношення між потоками ($x \cdot 100\%$) і встановити таким чином, який із механізмів росту частинок є визначальним. Крім того, знаючи x можна знайти відношення $\frac{\Gamma_g}{\Gamma_k}$, яке може бути використане

потім, як оціночний параметра при виборі теоретичної кривої для порівняння з потрібною гістограмою.

Іншим важливим оціночним параметром, який часто використовується на практиці при виборі теоретичної кривої для порівняння з експериментальною гістограмою, є дисперсія D_x або

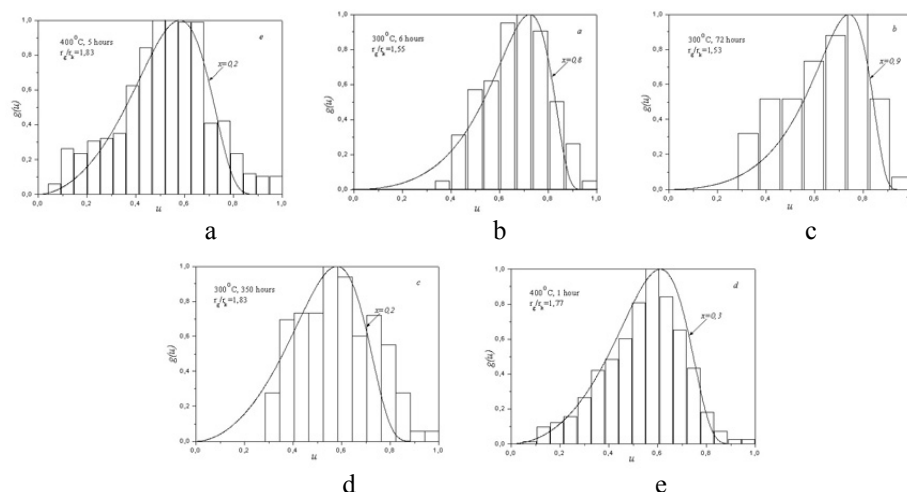


Рис. 4. Порівняння кривої (26) з експериментальними гістограмами нанорозмірних частинок Al_3Sc [38] у сплавах $Al-Sc$ при різних температурах і часах витримки, вказаних на рис. a, b, c, d, e.

середньоквадратичне відхилення σ_x . Їх значення, поряд зі значеннями інших моментів, розрахованими з використанням розподілу (26), включно з кривими на рис. 4, приведені в таблицях 1 і 2. Знаменно, що ці дані досить добре узгоджуються з аналогічними даними, розрахованими безпосередньо з експериментальних гістограм, зображених на рис. 4. Це означає, що розрахувавши з експериментальних гістограм початкові та центральні моменти можна відтворити сам розподіл за розмірами, а відповідно встановити механізм росту кластерів.

Розглянуті приклади порівняння з експериментом дозволяють зробити висновок, що розподіл (26) добре описує експериментальні гістограми, якщо ріст частинок у процесі ОС контролюється одночасно двома механізмами масопереносу, розглянутим раніше окремо Ліфшицем, Сльозовим і Вагнером.

Аналогічна картина має місце і у випадку острівцевих плівок і напівпровідникових гетеросистем з квантовими точками.

Наведені на рис. 5,а криві відповідають розподілу за розмірами (68), при різних значеннях x . Крайні криві $x=0$ і $x=1$ описують розподіл Вагнера і Чакраверті відповідно [2, 33]. Всі інші криві, в інтервалі значень $0 < x < 1$, описують розподіл острівців за розмірами при одночасній дії

вагнерівського та дифузійного механізмів росту кластерів.

Ці ж криві, нормовані на свої максимуми, показані на рис. 5,б.

Для розрахованого сімейства розподілів (68) значення запираючої точки змінюється згідно (59) у межах $2 \leq u_0 \leq 4/3$. При значенні $x=0,5$, $u_0 = \frac{3}{2}$, що співпадає з аналогічним значенням для розподілу Ліфшица-Сльозова. У той же час крива (68) при $x=0,5$ не являється розподілом Ліфшица-Сльозова:

$$g(u) = \frac{u^3 \exp[-1,084435 \arctg(1,032795u + 0,258199)]}{(1-u)^{\frac{22}{5}} (u^2 + 0,5u + 1)^{\frac{4}{3}}} \times \exp\left(-\frac{1,2}{1-u}\right)$$

Це означає, що судити про характер розподілу за значенням запираючої точки u_0 не можна. Вона може служити оціночним параметром, при виборі теоретичної кривої із сімейства (68), для порівняння з потрібною експериментальною гістограмою.

Ще одна важлива властивість розрахованого розподілу (68) полягає у тому, що ним можна користуватися не тільки для порівняння з

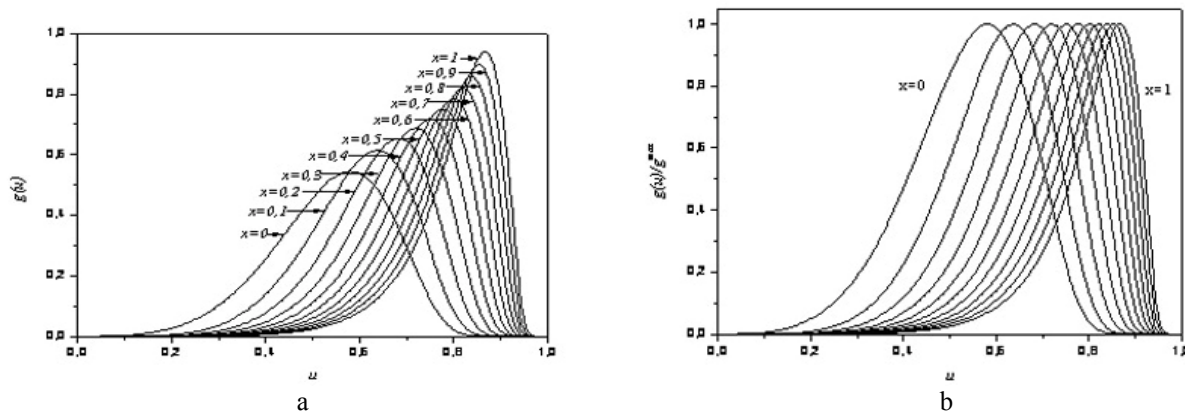


Рис. 5. Розрахована за виразом (68) функція $g_{пл.}(u)$ (а), розрахована за виразом (68) функція $(g_{пл.}(u)/g_{пл.}^{max})$ (б).

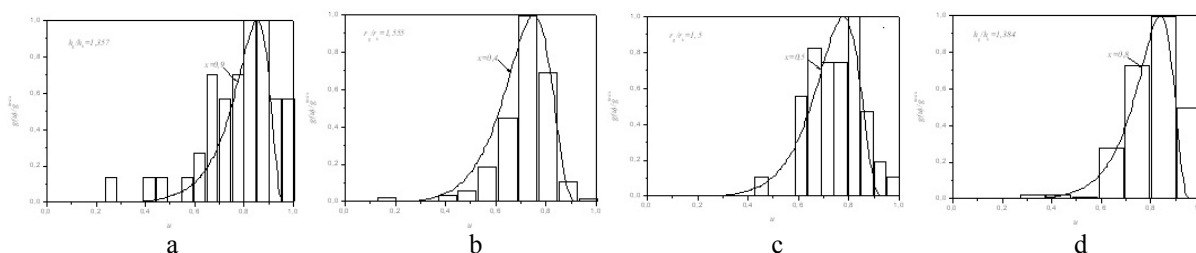


Рис. 6. Порівняння кривої (68) з експериментальними гістограмами за діаметрами d і висотами h наноточок Mn при різних температурах і товщинах моношарів Mn (ML): а) кімнатна, Mn 0,21 ML, $\frac{r_g}{r_k} = 1,555$; б) 180°C , $\frac{r_g}{r_k} = 1,5$; в) кімнатна, Mn 0,21 ML, $\frac{h_g}{h_k} = 1,384$; д) 180°C , $\frac{h_g}{h_k} = 1,357$.

експериментальними гістограмами у вигляді розподілу частинок за радіусами r , але і для описання розподілу частинок за висотами h . Із рис. 2 видно, що висота острівця рівна:

$$h = R_c (1 - \cos \theta) = r \frac{1 - \cos \theta}{\sin \theta},$$

так що відношення $\frac{r}{r_g} = \frac{h}{h_g} = u$

На рис. 6 показано порівняння експериментальних гістограм наноточок Mn на підкладці Si за діаметрами (а і б) і висотами (с і д), що отримані методом молекулярно-променевої епітаксії при різних температурах: кімнатній (а, в) і при температурі 180°C – б, д, а також при різних товщинах молекулярних шарів Mn (ML) [39], з теоретичною кривою (68). Із результатів порівняння видно, що у випадку експериментальних розподілів за діаметрами внесок кожного із механізмів росту, вагнерівського і дифузійного, приблизно однаковий:

рис. 6,а, $x = 0,4$; рис. 6,б, $x = 0,5$. У той же час, у випадку розподілів за висотами переважає дифузійний механізм росту: рис. 6,с, $x = 0,8$; рис. 6,д, $x = 0,9$. Це означає, що у своєму рості розмір наноточок Mn по висоті випереджає латеральний розмір d , так що $\frac{h}{d} > 1$. Можливо ця обставина і пояснює форму наноточок Mn, отриманих авторами роботи [39].

Розглянуті приклади порівняння розрахованих і експериментальних даних дозволяють зробити висновок про можливість реалізації на практиці одночасної дії двох механізмів росту, вагнерівського та дифузійного. Більш того, мабуть, така ситуація, коли одночасно діють два механізми росту є більш загальною, ніж прояв одного з двох механізмів, раніше розглянутих Вагнером і Чакаверті, окремо.

- [1] И.М. Лифшиц, В.В. Слёзов. О кинетике дифузного распада пересыщенных твердых растворов // *ЖЭТФ* **35** (2), сс. 479-492 (1958).
- [2] C. Wagner. Theorie der Alterung von Niederschlagen durch Umlösen (Ostwald Reifung) // *Zs. Electrochem.* **65** (7/8), сс. 581-591 (1961).
- [3] W. Ostwald. Über die Vermeintliche Isometric des roten undgelben Quecksilberxyds und die Oberflächenspannung fester Körper // *Zs. phys. Chem.* **34**, pp. 495-503 (1900).
- [4] В.В. Слезов. Коалесценция пересыщенного твердого раствора в случае диффузии по границам блоков или дислокационным линиям // *ФТТ* **9**, сс. 1187-1191 (1967).
- [5] H.O.K. Kirchner. Coarsening of grain-boundary precipitates. Metallurgical Transactions // *Metall. Trans.* **2**, pp. 2861-2864 (1971).
- [6] H. Kreye. Einfluss von Versetzungen auf die Umlosung von Teilchen // *Zs. Metallkunde.* **61**(2), pp. 108-113 (1970).
- [7] A.J. Ardell. On the coarsening of grain boundary precipitates // *Acta Metall.* **20**, pp. 602-609 (1972).
- [8] Р.Д. Венгреневич. О кинетике коалесценции дисперсных выделений на дислокационной сетке // *ФММ* **39**(2), сс. 436-439 (1975).
- [9] R.D. Vengrenovitch. On the Ostwald ripening theory. Overview 20 // *Acta metall.* **30**, pp. 1079-1086 (1982).
- [10] Р.Д. Венгреневич, Ю.В. Гудыма, С.В. Ярема. Рост частиц второй фазы в условиях нарушения когерентности // *ФММ* **91**(3), сс. 16-20 (2001).
- [11] R.D. Vengrenovich, Yu.V. Gudyma and S.V. Yarema. Ostwald Ripening under dislocation diffusion // *Scripta Materialia* **46**(5), pp. 363-367 (2002).
- [12] Р.Д. Венгреневич, Ю.В. Гудыма. Кинетика оптического теплового пробоя тонкой полупроводниковой плёнки // *ФТТ* **7**(43), сс. 1171-1175 (2001).
- [13] R.D. Vengrenovich, Yu.V. Gudyma, D.D. Nikirsa. Kinetics of the photoinduced phase transition at the surface of a semiconductor with renormalized bandgap // *J. Phys.: Condens Matter.* **13**(13), pp. 2947-2953 (2001).

- [14] В.И. Веттегрень, Е.А. Бакулин, Ю.В. Коваленко. Ансамбли "островков" алюминия на поверхности деформированных пленок полиэтилентерефталата // *ФТТ* **44**(4), сс. 765-766 (2002).
- [15] Е.К. Гольман, Р.Н. Ильин, Д.А. Плоткин, С.В. Разумов, В.И. Сахаров, И.Т. Серенков. Рост сверхтонких $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ пленок на подложке SrTiO_3 // *ФТТ* **42**(3), сс. 397-399 (2000).
- [16] Д.А. Олянич, Д.Н. Чубенко, Д.В. Грузнев, А.В. Зотов, А.А. Саранин. Исследования методом сканирующей туннельной микроскопии роста наноструктур Cu на поверхности Si (100) – $c(4 \times 12) - \text{Al}$ // *Письма в ЖТФ* **33**(21), сс. 31-36 (2007).
- [17] M.C. Bartelt, J.W. Evans. Scaling analysis of diffusion-mediated island growth in surface adsorption processes // *Phys. Rev. B* **46**(19), pp. 12675-12687 (1992).
- [18] N.C. Bartelt, W. Theis, R.M. Tromp. Ostwald ripening of two-dimensional islands on Si(001) // *Phys. Rev. B* **54**(16), pp. 11741-11751 (1996).
- [19] I. Goldfarb, P.T. Hayden, J.H.G. Owen, G.A.D. Briggs. Nucleation of "Hut" Pits and Clusters during Gas-Source Molecular-Beam Epitaxy of Ge/Si(001) in In Situ Scanning Tunneling Microscopy // *Phys. Rev. Lett.* **78**(20), pp. 3959-3962 (1997);
- [20] Competing growth mechanisms of Ge/Si(001) coherent clusters // *Phys. Rev. B* **56**, pp. 10459-10468 (1997).
- [21] B.A. Joyce, D.D. Vvedensky, A.R. Avery, J.G. Belk, H.T. Dobbs, T.S. Jones. Nucleation mechanisms during MBE growth of lattice-matched and strained III-V compound films // *Appl. Surf. Sci.* **130-132**, pp. 357-366 (1998).
- [22] T.I. Kamins, G. Medeiros-Ribeiro, D.A.A. Ohlberg, R. Stanley Williams. Evolution of Ge islands on Si(001) during annealing // *J. Appl. Phys.* **85**(2), pp. 1159-1171 (1999).
- [23] Р.Д. Венгреневич, Ю.В. Гудыма, С.В. Ярема. Оствальдовское созревание наноструктур с квантовыми точками // *ФТП* **35**(12), сс. 1440-1444 (2001).
- [24] R.D. Vengrenovich, Yu.V. Gudyma and S.V. Yarema. Quantum dot formation in heteroepitaxial structures // *Phys.stat.sol. (b)* **242**, pp. 881-889 (2005).
- [25] Пчеляков О.П., Болховитянов Ю.Б., Двуреченский А.В., Соколов Л.В., Никифоров А.И., Якимов А.И., Фойхтлендер Б. Кремний-германиевые наноструктуры с квантовыми точками: механизмы образования и электрические свойства // *ФТП* **34**(11), сс. 1281-1299 (2000).
- [26] Н.Н. Леденцов, В.М. Устинов, В.А. Щукин и др. Гетероструктуры с квантовыми точками: получение, свойства, лазеры // *ФТП* **32**(4), сс. 385-410 (1998).
- [27] Р.Д. Венгреневич, А.В. Москалюк, С.В. Ярема. Оствальдовское созревание в условиях смешанного типа диффузии // *ФТТ* **49**(1), сс. 13-18 (2007).
- [28] Венгреневич Р.Д., Москалюк А.В., Ярема С.В. Распределение островков по размерам в условиях дислокационно-поверхностной диффузии для полупроводниковых гетероструктур // *ФТП*, **40**(3), сс. 276-280 (2006).
- [29] Венгреневич Р.Д., Москалюк А.В., Ярема С.В. В. Оствальдівське дозрівання гетероструктур з квантовими точками в процесі дислокаційно-поверхневої дифузії // *УФЖ* **51**(3), сс. 307-310 (2006).
- [30] П.П. Мальцев. Нанотехнологии. Наноматериалы. Наносистемная техника. Мировые достижения – 2008 год. Техносфера, М. 432с. (2008).
- [31] А.А. Ахкубеков, Т.А. Орквасов, В.А. Созаев. *Контактное плавление металлов и наноструктур на их основе*. Физматлит, М. 152с. (2008).
- [32] В.И. Балабанов. *Нанотехнологии. Наука будущего*. Эксмо, М. 256с. (2009).
- [33] Венгреневич Р.Д., Иванский Б.В., Москалюк А.В. Обобщенное распределение Лифшица-Сльозова-Вагнера // *ЖЭТФ* **131**(6), сс. 1040 (2007).
- [34] V.K. Chakraverty. Grain size distribution in thin films - 1. Conservative systems // *J. Phys. Chem. Solids* **28**, pp. 2401-2412 (1967).
- [35] Hirth J.P. and Pound G.M. *Condensation and Evaporation, Progress in Materials Science* **11**, Pergamon Press, Oxford pp. 59(1963).
- [36] В.В. Слезов, В.В. Сагалович. Диффузионный распад твердых растворов // *УФН* **151**(1), сс. 67-103 (1987).
- [37] С.А. Кукушкин, А.В. Осипов. Процессы конденсации тонких пленок. (Обзоры актуальных проблем) // *УФН* **168**(10), сс. 1083-1116 (1998).
- [38] Р.Д. Венгреневич, Б.В. Иванський, А.В. Москалюк. Узагальнений розподіл Чакаверті-Вагнера // *УФЖ* **53**(11), сс. 1102-1110 (2008).

Р.Д. Венгреневич, Б.В. Иванський, А.В. Москалюк

R.D. Vengrenovych, B.V. Ivanskiy, A.V. Moscalyuk

To the Lifshitsa-Slozova-Vagnera theory

*Yu. Fedcovykh Chernivtsi National University
voul. Kotsyubinskogo 2, Chernivtsi, 58012*

A mechanism of the Ostwald ripening of particle in bulk matrixes and of islands in thin films and heterostructures under the simultaneous action of the diffusion and Wagner growth mechanisms is proposed. The size distribution function and the corresponding time dependences for the average (critical) and maximal dimensions of particles are calculated. The comparison of the experimental histograms with the calculated curves confirms the possibility of practical realization of the proposed growth mechanism in the process of Ostwald ripening.