

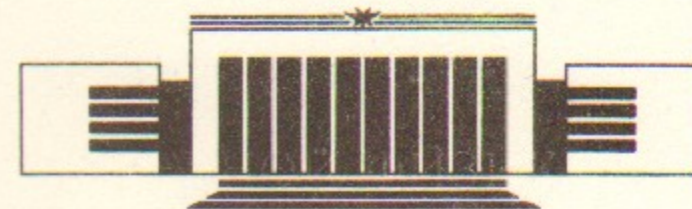


ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ СО АН СССР

А.Н. Филонов

**ОБ ОЖИДАЕМЫХ ОСОБЕННОСТЯХ
В КИНЕТИКЕ РОСТА
ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ НАНОКРИСТАЛЛОВ**

ПРЕПРИНТ 91-17



НОВОСИБИРСК

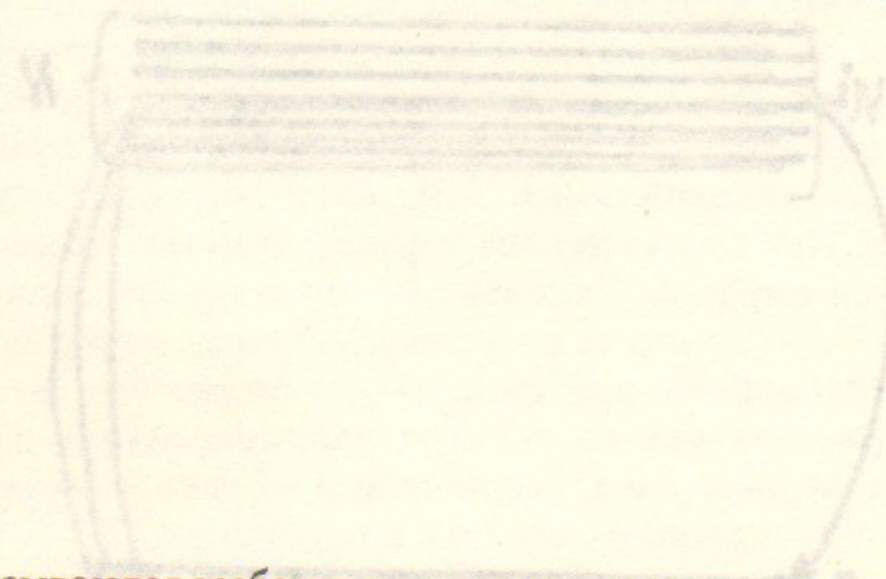
Ф.Н.А. ФОНОВ

РОСТА ДИЭЛЕКТРИЧЕСКИХ НАНОКРИСТАЛЛОВ
ОБ ОСОБЕННОСТЯХ КИНЕТИКИ

ПРЕПРИИТ 91-13

НОВОСИБИРСК

1991



Предсказываются особенности в кинетике роста диэлектрических нанокристаллов и обсуждается эксперимент по синтезу ультрадисперсных кристаллов алмаза и графита взрывом углеродосодержащих веществ.

До настоящего времени процесс роста кристаллов и образование их зародышей не рассматривался с точки зрения электронной квантовой теории, представляющей несомненный интерес для микроскопического понимания этих физических явлений. В настоящей работе сделана попытка рассмотреть рост кристаллов с позиций радиационных электронных переходов, что может стать существенным дополнением к уже имеющимся теориям роста кристаллов. Под нанокристаллом мы понимаем кристалл, для которого существенную роль играет его поверхностная энергия.

Проведенные в последние годы теоретические исследования открытых квантовых систем [1, 2] и полученные в них результаты позволяют ожидать в экспериментах по росту диэлектрических кристаллов ряд особенностей. Наши утверждения основываются на следующих результатах работ [1, 2]. Первое — в системе из N энергетических уровней, имеющих один канал распада, рис. 1 (переход с данного уровня в основное состояние), при пересечении ширин уровней спектр системы перестраивается в том же интервале энергий следующим образом — выделяется один быстрораспадный уровень, ширина которого равна сумме первоначальных ширин всех уровней. Ширины остальных $N-1$ уровней уменьшаются в N раз. Второе — если имеется l каналов распада, то число когерентных быстрораспадных уровней равно l и ширины их в l раз меньше, чем ширина быстрораспадного уровня в первом случае. При этом предполагается, что все N уровней системы имеют одинаковые квантовые числа, кроме энергетических.

Имея все это в виду, рассмотрим процесс роста кристалла. В процессе роста за счет квантового тунелирования каждый электронный уровень

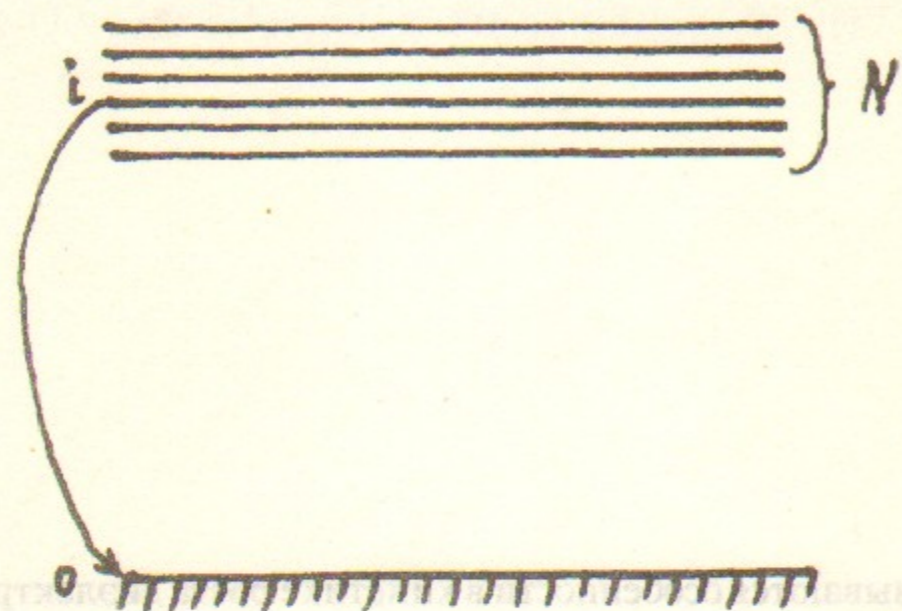


Рис. 1.

свободного атома расщепляется, образуя зону из N уровней, где N —число атомов в кристалле. В случае большого кристалла использовать результаты работ [1, 2] нельзя, так как все N уровней системы имеют разные значения квазиимпульса k , нового квантового числа, отражающего периодичность структуры. Если же размер кристалла мал, то велика роль поверхностной энергии, в связи с чем электронным уровням кристалла нельзя приписывать какое-либо значение квазиимпульса, так как отсутствует периодическая симметрия. Это тот случай, когда можно воспользоваться результатами работ [1, 2]. Процесс роста кристалла мы представляем следующим образом—электрон, подошедшего к кристаллу атома, переходит на более низкий энергетический уровень. Время перехода определяется шириной возбужденного уровня кристалла, совпадающего с электронным уровнем атома. Для случая диэлектрических кристаллов основным переходом является переход в основное состояние (рис. 1). Для металлов, переход возбужденного электрона равновероятен на все свободные уровни валентной зоны (рис. 2), поэтому число каналов распада в этом случае пропорционально N и когерентное состояние практически не реализуется. По мере роста кристалла наступает момент, когда ширины уровней в зоне начинают перекрываться и тогда, следуя утверждениям [1, 2], время перехода в основное состояние для диэлектриков резко возрастает, так как маловероятно, что атомный уровень совпадает с быстрораспадным. Для металлов резкого изменения в скорости роста не ожидается. В дальнейшем, по мере роста кристалла и уменьшения роли поверхностной энергии, разрушается когерентное состояние и скорость роста диэлектрического кристалла вновь возрастает.

Этот механизм роста кристаллов, как мы надеемся, может решить

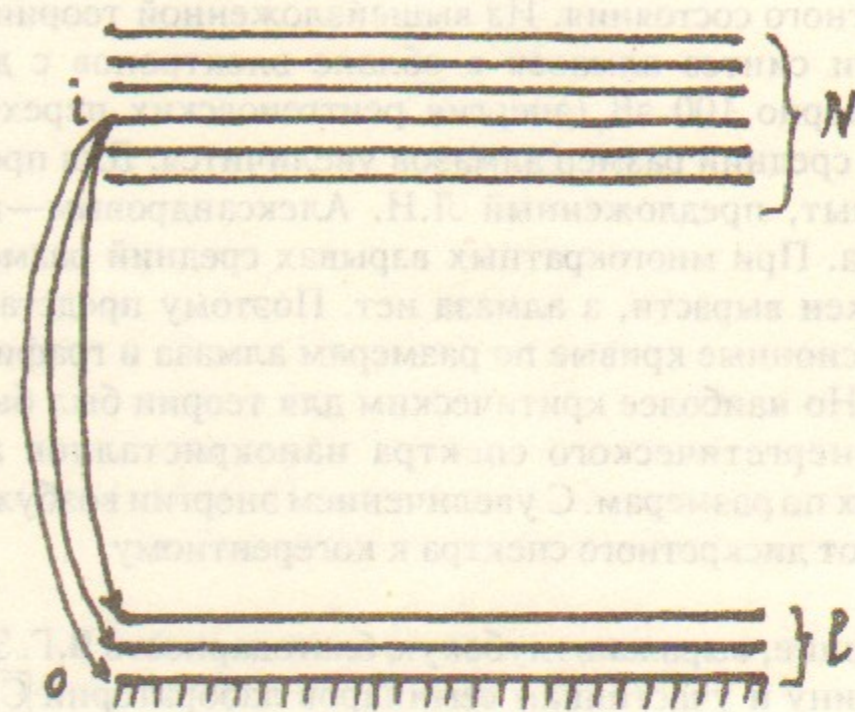


Рис. 2.

проблемы эксперимента [3] (синтез ультрадисперсных алмазов и графита взрывом из углеродосодержащих веществ). Известно, что за время синтеза, $2 \cdot 10^{-7}$ с, в примерно равных количествах возникают кристаллы алмаза и графита, но размеры кристаллов графита на порядок больше, чем алмаза. Средний размер алмаза 40 \AA , графита— 300 \AA . Если размер кристалла графита, являющегося проводником, получается в предположении, что рост одного слоя кристалла занимает примерно $0,5 \cdot 10^{-8}$ с, т. е. обусловлен естественной шириной высоковозбужденного электронного уровня атома углерода, то причина замедления скорости роста кристаллов алмаза и отсутствие эффективных методов воздействия на увеличение их размеров была не ясна. В настоящее время отсутствуют надежные данные о высокоэнергетическом спектре алмаза. Известно, что ширина первой возбужденной зоны примерно $5,5 \text{ эВ}$, но, так как во время синтеза выделяется рентгеновское излучение, то можно сделать вывод, что синтез идет через высокоэнергетичную зону. Если предположить, что во время взрыва электрон возбуждается и попадает в зону шириной $0,1 \text{ эВ}$, то 40 \AA —этот тот размер алмаза, с примерно 10^4 атомов углерода, при котором в зоне высоковозбужденных электронов начинают перекрываться ширины уровней и перестраиваться спектр. При этом ширины большинства уровней сужаются в 10^4 раз, что ведет к практическому прекращению роста кристалла. При равновесном синтезе алмаза процесс роста идет через первую возбужденную зону, что позволяет преодолеть нанокристаллический интервал размеров алмаза без реализации в этой

зоне когерентного состояния. Из вышеизложенной теории следует, что, если провести синтез алмазов в облаке электронов с дисперсией по энергии примерно 100 эВ (энергия рентгеновских переходов), то есть надежда, что средний размер алмазов увеличится. Для проверки теории интересен опыт, предложенный Л.Н. Александровым—многократный синтез алмаза. При многократных взрывах средний размер кристаллов графита должен вырасти, а алмаза нет. Поэтому представляет интерес иметь дисперсионные кривые по размерам алмаза и графита после каждого взрыва. Но наиболее критическим для теории был бы эксперимент по снятию энергетического спектра нанокристаллов алмаза, отсепарированных по размерам. С увеличением энергии возбуждения ожидается переход от дискретного спектра к когерентному.

В заключение, выражаю глубокую благодарность В.Г. Зелевинскому, С.А. Кукушкину и участникам семинаров лабораторий С.И. Стенина и А.М. Ставера за полезное обсуждение работы.

ЛИТЕРАТУРА

1. V.V. Sokolov, V.G. Zelevinsky. Nucl. Phys. A504 (1989) 562.
2. В.Г. Зелевинский, В.В. Соколов. Материалы XXIV зимней школы ЛИЯФ, Ленинград, 1989.
3. А.И. Лямкин и др. ДАН СССР, 1988, т.302, с.611.

А.Н. Филонов

Об ожидаемых особенностях
в кинетике роста диэлектрических нанокристаллов

Ответственный за выпуск: С.Г. Попов

Работа поступила 13 февраля 1991 г.

Подписано в печать 14.02 1991 г.

Формат бумаги 60 × 90 1/16. Объем 0,7 печ.л., 0,6 уч.-изд.д.

Тираж 150 экз. Бесплатно. Заказ № 17.

Ротапринт ИЯФ СО АН СССР, г. Новосибирск, 90.