



INSTITUTO DE FÍSICA
Universidade Federal Fluminense

Efeitos de Grãos na Superfície na Escala da Rugosidade

Tiago José de Oliveira

Orientador: **Fábio D. A. Aarão Reis**

Dissertação apresentada ao Curso de Pós-Graduação em Física da Universidade Federal Fluminense, como requisito parcial para obtenção do título de Mestre em Física.

Niterói - RJ

Outubro de 2006

Ao meu avô

Divino Andrade dos Santos †

Agradecimentos

Agradeço à Deus por estar aqui.

Agradeço ao professor Fábio pela orientação e sobretudo pela confiança.

Agradeço aos meus pais por não saberem o que é física e muito menos o que é esse "negócio de mestrado", mas sempre acreditarem em mim quando eu digo que estou estudando.

Agradeço aos poucos amigos do Rio pelas poucas bebedeiras.

Agradeço aos amigos de Minas pelas muitas bebedeiras (nas férias).

Agradeço aos amigos de Viçosa por lerem meus longos emails. Agradeço em particular ao Gianex por ser o único da minha turma a se formar antes de eu entrar no doutorado.

Agradeço à todas as cariocas... .

Agradeço à CAPES pela bolsa.

Resumo

Em superfícies reais formadas por grãos, um *crossover* é observado na escala da rugosidade local em função do tamanho de janela R , de um crescimento rápido com expoente α_1 para um crescimento mais lento com um expoente α_2 , em um tamanho característico R_c . Neste trabalho nós estudamos a escala da rugosidade local e global em diversos modelos estatísticos de crescimento com grãos na superfície. O resultado $\alpha_1 \approx 1$ é explicado pelas grandes diferenças de altura nas bordas dos grãos quando comparadas à rugosidade interna do grão, independentemente da dinâmica de crescimento interna deste. Grãos com superfícies arredondadas produzem expoentes menores, mas próximos de 1. O tamanho R_c onde ocorre o *crossover* fornece uma boa estimativa do tamanho médio do grão, inclusive nos casos onde temos largas distribuições de tamanho de grãos. O expoente α_2 mede as correlações entre grãos. Em modelos KPZ, encontramos $\alpha_2 \approx 0.40$ para as superfícies mais suaves e $0.1 \lesssim \alpha_2 \lesssim 0.2$ para sistemas com grandes diferenças de alturas entre grãos. Possíveis aplicações de nossos resultados à sistemas reais que apresentam esse efeito de *crossover* são discutidas ao longo dessa dissertação.

Abstract

In real surfaces with grains a crossover is observed in the scaling of the local roughness as a function of window size R , from a rapid increase with exponent α_1 to a slower increase with exponent α_2 , at a characteristic length R_c . In this work we study the local and global roughness scaling in growth models with grains at film surfaces. The result $\alpha_1 \approx 1$ is explained by the large height differences in the borders of the grains when compared to intragrain roughness, independently of the intragrain dynamics of growth. Grains with rounded surface shape produce smaller exponents, but close to 1. The crossover length R_c provides reasonable estimates of the average grain size, including the cases of wide grain size distributions. The exponent α_2 measures the correlations between grains. In KPZ models, we find $\alpha_2 \approx 0.40$ for the smoothest surfaces and $0.1 \lesssim \alpha_2 \lesssim 0.2$ in systems with large cliffs separating the grains. Possible applications to real systems which show this crossover are discussed.

Sumário

Índice	v
1 Introdução	1
2 Revisão Bibliográfica	4
2.1 Introdução	4
2.2 Relações de Escala	5
2.2.1 Relações de Escala da Rugosidade	7
2.2.2 Relações de Escala da Rugosidade Local	12
2.2.3 Correções de Escala e Efeitos de <i>crossover</i>	15
2.3 Classes de Universalidade e Equações de Crescimento	19
2.3.1 A Equação de Crescimento Aleatória	21
2.3.2 A Equação EW	22
2.3.3 A Equação KPZ	25
2.3.4 A Equação de Wolf-Villain	27
2.4 Modelos de Crescimento Discretos	29
2.4.1 Deposição Aleatória	30
2.4.2 Deposição Aleatória com Relaxação Superficial	32
2.4.3 Deposição Balística	34
2.4.4 Modelo de Crescimento Restrito	36

2.5	Resultados Experimentais para Superfícies com Grãos	38
3	Modelos Simples de Superfícies com Grãos	43
3.1	Rede de Grãos Periódicos	43
3.1.1	Rede de grãos retangulares	43
3.1.2	Rede de grãos em forma de paralelepípedos	45
3.1.3	Rede de grãos trapezoidais	50
3.2	Modelos Ampliados	53
3.2.1	Resultados para o Modelo RSOS Ampliado	56
3.2.2	Resultados para o Modelo RDSR Ampliado	58
3.2.3	Rugosidade média \times Rugosidade rms	61
4	Modelo de Deposição de Grãos	64
4.1	Introdução	64
4.2	Resultados em $d=1+1$	67
4.3	Resultados em $d=2+1$	77
4.4	Dependência com a Distribuição de Tamanhos de Grãos	84
4.5	Distribuições de Rugosidade	87
5	Conclusão	92
A	Momentos das distribuições Delta, Poisson e Gaussiana	95

Lista de Figuras

2.1	a) Exemplo de interface para um substrato de largura $L = 16000$. b) Ampliação do <i>inset</i> de (a) com uma largura $L' = 4000$ mantendo flutuações de altura estatisticamente semelhantes.	6
2.2	Exemplo de evolução temporal de um depósito em $d = 1 + 1$, para um substrato de tamanho $L = 150$. As variações nas cores preto-cinza ocorrem a cada 10 camadas depositadas.	8
2.3	Típica variação temporal da rugosidade, para sistemas com correlação lateral, para um tamanho de substrato $L = 4096$	9
2.4	Rugosidade <i>versus</i> tempo para diferentes tamanhos de substrato: $L = 256(\nabla)$, $L = 512(\triangle)$, $L = 1024(\diamond)$, $L = 2048(\square)$ e $L = 4096(\circ)$	11
2.5	Colapso das curvas da figura 2.4 usando $\alpha = 0.5$ e $z = 1.5$	12
2.6	Variação típica da rugosidade local com o tamanho da janela, para os tempos: $t = 1000(\triangle)$, $t = 2000(\square)$ e $t = 4000(\circ)$	14
2.7	Curvas esquemáticas da variação da rugosidade local com o tamanho da janela, nos tempos $t_0(\triangle)$, $2t_0(\square)$ e $4t_0(\circ)$, em um sistema com escala anômala da rugosidade.	15
2.8	Curva típica da rugosidade em função do tempo de um sistema com <i>crossover</i> de EW para KPZ [1].	17
2.9	Típica variação da rugosidade local em superfícies com grãos.	18

2.10	Esquema ilustrativo do crescimento lateral de uma superfície.	26
2.11	Esquema ilustrativo do número de ligações de um sítio, para diferentes curvaturas da superfície.	29
2.12	Esquema ilustrativo do modelo de deposição aleatória. A', B' e C' representam as partículas A, B e C após serem agregadas.	30
2.13	Exemplo de evolução temporal de uma superfície, obtida da simulação do modelo de DA, em $d = 1 + 1$, para um substrato $L = 150$. As variações nas cores preto-cinza ocorrem a cada 500 passos de tempo.	31
2.14	Esquema ilustrativo do modelo RDSR. As partículas A', B', C' e D' representam A, B, C e D após serem depositadas.	33
2.15	Esquema ilustrativo do modelo de DB. As partículas A', B', C' e D' representam A, B, C e D após se agregarem.	34
2.16	Evolução temporal de um agregado produzido por DB, em $d = 1 + 1$, para um substrato de tamanho $L = 250$. As variações nas cores preto-cinza ocorrem a cada 5000 passos de tempo.	35
2.17	Esquema ilustrativo do modelo RSOS. As partículas A' e D' representam A e D após serem agregadas. As tentativas de deposição das partículas B e C são rejeitadas.	36
2.18	a)Variação da rugosidade local com o tamanho de janela, para um filme de espessura $1 \mu\text{m}$ e uma taxa de deposição $f = 7.5 \text{ ml min}^{-1}$. Imagens de AFM para as taxas: b) $f = 5 \text{ ml min}^{-1}$; c) $f = 7.5 \text{ ml min}^{-1}$ (Figuras retiradas da ref. [2]).	39
2.19	Imagens obtidas por AFM de superfícies de eletrodepósitos de ligas de Ni-Zn para as velocidades de crescimento: a) $v = 0.16 \mu\text{m/s}$; b) $v = 0.44 \mu\text{m/s}$ (retirada da ref. [3]).	40

2.20	Imagens obtidas por AFM de superfícies de depósitos de NiO_x para os fluxos de oxigênio: a) $f = 2.0$ scc/min; b) $f = 4.0$ scc/min. A altura dessas amostras são a) 17 e b) 12 nm. (retirada da ref. [4]).	41
3.1	a) Rede periódica de grãos retangulares. b) Esquema ilustrativo da janela sobre a borda do grão.	44
3.2	Esquema ilustrativo de uma rede periódica, tipo tabuleiro de xadrez, com grãos em forma de paralelepípedo.	46
3.3	a) Regiões da superfície do grão com diferentes rugosidades. Esquema ilustrativo da variação da janela (linhas pontilhadas) na região: b) I; c) II.	46
3.4	a) Grão trapezoidal. b) Janela de altura média $h/2$	50
3.5	Exemplo de ampliação de um agregado RSOS por um fator $l = 4$.	54
3.6	a) Esquema ilustrativo do procedimento usado para arredondar a superfície do grão. b) Exemplos de grãos de tamanho 32 suavizados.	55
3.7	Rugosidade local variando com o tamanho de janela para o modelo RSOS ampliado em $d = 1 + 1$ e $t = 500$	56
3.8	Rugosidade local variando com o tamanho de janela para o modelo RSOS ampliado em $d = 2 + 1$ e $t = 350$	57
3.9	Corte de uma interface obtida pelo modelo RSOS ampliado em $d = 2 + 1$	58
3.10	Rugosidade local variando com o tamanho de janela para o modelo RDSR ampliado em $d = 2 + 1$	59
3.11	Rugosidade local variando com o logaritmo do tamanho da janela para o modelo RDSR ampliado em $d = 2 + 1$	60
3.12	W_{loc} (\circ) e $W_{rms,loc}$ (\square), variando com o tamanho da janela R em $d = 1 + 1$, para o modelo RSOS ampliado.	62

3.13	W_{loc} (\circ) e $W_{rms,loc}$ (\square), variando com o tamanho da janela R em $d = 2 + 1$, para o modelo RSOS ampliado.	62
3.14	W_{loc} (\circ) e $W_{rms,loc}$ (\square), variando com o tamanho da janela R em $d = 2 + 1$, para o modelo RDSR ampliado.	63
4.1	Esquema ilustrativo do processo de deposição de grãos em $d = 1 + 1$. Com linhas contínuas temos grãos já agregados. Os grãos com linha pontilhada representam as posições de agregação dos grãos incidentes (com setas).	65
4.2	Curvas de rugosidade <i>versus</i> tempo, para $\bar{l} = 16$ e para substratos de larguras: $L = 1024(+)$, $L = 2048(\nabla)$, $L = 4096(\Delta)$, $L = 8192(\diamond)$, $L = 16384(\circ)$ e $L = 32678(\square)$	68
4.3	Curvas de rugosidade <i>versus</i> tempo, para $L = 16384$ e os tamanhos médios de grão $\bar{l} = 8(\diamond)$, $\bar{l} = 16(\circ)$ e $\bar{l} = 32(\square)$	69
4.4	Evolução temporal do agregado formado pela deposição de grãos, em $d = 1 + 1$ para $L = 128$ e $\bar{l} = 8$	70
4.5	Expoentes de crescimento efetivos β_L , para os tamanhos médios de grão $\bar{l} = 8(\circ)$, $\bar{l} = 16(\square)$ e $\bar{l} = 32(\Delta)$	70
4.6	Rugosidade de saturação em função do tamanho do substrato para os tamanhos médios de grão $\bar{l} = 8(\circ)$, $\bar{l} = 16(\square)$ e $\bar{l} = 32(\Delta)$, em $d = 1 + 1$	72
4.7	Expoentes da rugosidade efetivos em função do inverso da largura média para $\bar{l} = 8(\circ)$, $\bar{l} = 16(\square)$ e $\bar{l} = 32(\Delta)$, em $d = 1 + 1$	72
4.8	Variação da rugosidade local com o tamanho de janela para substratos de largura: $L = 1024(+)$, $L = 2048(\nabla)$, $L = 4096(\Delta)$, $L = 8192(\diamond)$, $L = 16384(\circ)$ e $L = 32678(\square)$. Para os tamanhos médios de grão: $\bar{l} = 8(a)$, $\bar{l} = 16(b)$ e $\bar{l} = 32(c)$	74

- 4.9 Expoentes da rugosidade efetivos α_{ef} para tamanhos médios de grão: $\bar{l} = 8(\circ)$, $\bar{l} = 16(\square)$ e $\bar{l} = 32(\triangle)$ 75
- 4.10 Variação da rugosidade local com o tamanho de janela para um tamanho de grão médio $\bar{l} = 16$, um tamanho de substrato $L = 16384$ e tempos: $t = 1000(\diamond)$, $t = 3000(\triangle)$, $t = 9000(\circ)$ e $t = 27000(\square)$ 76
- 4.11 Variação da rugosidade local com o tamanho de janela para um tamanho de grão médio $\bar{l} = 8$ e um tamanho de substrato $L = 32768$. As retas tracejadas são ajustes em regiões distintas do domínio $\bar{l} \ll R \ll L$ 77
- 4.12 Curvas de rugosidade *versus* tempo, em $d = 2 + 1$, para $\bar{l} = 16$ e substratos de largura: $L = 512(\nabla)$, $L = 1024(\diamond)$, $L = 2048(\circ)$ e $L = 4096(\square)$ 78
- 4.13 Curvas de rugosidade *versus* tempo, para $L = 4096$ e os tamanhos de grão médio: $\bar{l} = 8(\diamond)$, $\bar{l} = 16(\circ)$ e $\bar{l} = 32(\square)$ 79
- 4.14 Rugosidade de saturação em função do tamanho do substrato para os tamanhos de grão médio: $\bar{l} = 8(\diamond)$, $\bar{l} = 16(\circ)$ e $\bar{l} = 32(\square)$ 80
- 4.15 Variação da rugosidade local com o tamanho de janela no estado estacionário, para substratos de largura: $L = 1024(+)$, $L = 2048(\nabla)$, $L = 4096(\triangle)$, $L = 8192(\diamond)$, $L = 16384(\circ)$ e $L = 32678(\square)$. Para os tamanhos médios de grão: $\bar{l} = 8(a)$, $\bar{l} = 16(b)$ e $\bar{l} = 32(c)$ 81
- 4.16 Variação da rugosidade local com o tamanho de janela para um tamanho de grão médio $\bar{l} = 16$, um tamanho de substrato $L = 4096$ e tempos: $t = 200(\triangle)$, $t = 400(\circ)$ e $t = 800(\square)$ 82
- 4.17 Seção reta de uma superfície, em $d = 2 + 1$ e $t = 500$, dos modelos: a) deposição de grãos; b) deposição balística. 83

4.18	Distribuição de Poisson (linha tracejada) e distribuição Gaussiana, com $\sigma = \bar{l}/3$ (linha pontilhada), para um tamanho médio de grão $\bar{l} = 32$	85
4.19	Variação da rugosidade (a) global <i>versus</i> tempo e (b) local <i>versus</i> tamanho de janela. Para as distribuições de tamanho de grão: Delta (+), Poisson (o) e Gaussiana (\square), com um tamanho médio de grão $\bar{l} = 32$	86
4.20	Distribuições de rugosidade normalizadas no estado estacionário: para o modelo de deposição de grãos, com $\bar{l} = 8$ e distribuições de Poisson (círculos) e Gaussiana (quadrados), e para o modelo RSOS (linha contínua).	88
4.21	Distribuições de rugosidade da figura 4.20 em escala MonoLog. . .	89
4.22	Distribuições de rugosidade normalizadas no estado estacionário: para o modelo de deposição de grãos com distribuição de Poisson e diferentes tamanhos médios de grão; e para o modelo RSOS. . .	90

Lista de Tabelas

2.1	Varição de alguns parâmetros da superfície de ZnO em função da taxa de deposição (retirada da ref. [2]).	40
-----	--	----

Capítulo 1

Introdução

A dinâmica de superfícies está presente desde processos naturais como a formação de nuvens, o crescimento de colônia de bactérias e a erosão do solo, até processos experimentais avançados de crescimento de filmes finos, como MBE¹ [5, 6, 7, 8]. Por isso, a pesquisa em superfícies tem recebido grande atenção por parte dos pesquisadores nas últimas décadas.

Uma característica marcante de processos de crescimento de superfícies é a presença de invariância de escala e universalidade, fatores muito comuns na teoria de fenômenos críticos [9, 10]. Superfícies produzidas por diferentes métodos podem apresentar relações de escala com mesmos expoentes para algumas grandezas macroscópicas. Nesse contexto, a modelagem teórica de processos de crescimento de superfícies se torna imprescindível na tentativa de determinar os parâmetros microscópicos relevantes para a forma final da superfície e também na busca de grandezas adequadas para quantificar essas formas.

Há uma variedade de grandezas utilizadas para caracterizar uma superfície, como a rugosidade global, a rugosidade local, a função de auto correlação e/ou

¹Do inglês: *Molecular Beam Epitaxy* (*Epitaxia por Feixe Molecular*)

densidades espectrais, distribuições de rugosidade etc. Dessas últimas, a rugosidade local W_{loc} é uma das mais utilizadas nos trabalhos experimentais e o expoente característico extraído dela é o expoente da rugosidade α . Na maioria das superfícies obtidas experimentalmente e em basicamente todas produzidas por modelos de crescimento, a rugosidade local medida em diferentes tamanhos de janela R se comporta como $W_{loc} \sim R^\alpha$. Porém, em alguns trabalhos experimentais, nos quais as superfícies são formadas por grãos [2, 4, 11, 12, 13, 14, 15, 16, 17], é encontrado um *crossover* na escala da rugosidade local: mede-se um expoente da rugosidade grande ($\alpha_1 \approx 1$) para R pequeno e outro menor quando R é grande, este último se aproximando dos expoentes usualmente associados a alguma classe de universalidade, como a classe KPZ. Em todos os casos, esse *crossover* ocorre num tamanho de janela da ordem da largura média dos grãos.

Alguns modelos de crescimento de filmes finos mostraram a formação de grãos na superfície [18, 19, 20, 21, 22, 23]. A presença do *crossover* na escala da rugosidade local foi ilustrada com um modelo bastante simplificado por Vásquez e outros [18, 19]. Porém, nenhuma análise sistemática desse *crossover* foi apresentada em um trabalho teórico.

Nessa dissertação estudamos modelos de crescimento de depósitos com grãos sem levarmos em conta os mecanismos microscópicos de formação destes grãos. Para explorar os vários aspectos da sua presença na superfície, nós utilizamos três modelos. Inicialmente estudamos modelos de redes de grãos periódicos, onde não há correlação entre as alturas e as posições dos grãos, mas nos quais a rugosidade local pode ser calculada analiticamente, explicando o seu crescimento linear com o tamanho de janela, ou seja, $\alpha \approx 1$ para R pequeno. A influência da forma do grão na escala da rugosidade local foi estudada usando o mesmo modelo proposto por Vásquez e outros [18]: produzimos uma superfície com algum modelo de

crescimento (em nosso caso usamos o modelo de crescimento restrito RSOS [24] e a deposição aleatória com relaxação superficial RDSR [25]) e posteriormente, transformamos cada partícula em um grão cuja superfície tenha a forma - mais ou menos arredondada - que desejamos. Para analisar efeitos de tamanhos de grãos e da distribuição destes tamanhos em torno do tamanho médio, propomos um modelo de crescimento em que ao invés de depositarmos partículas que representam átomos ou moléculas, nós depositamos grãos formados por várias partículas.

Trabalhos recentes mostraram que o estudo de distribuições de rugosidade são uma boa técnica para determinar a classe universalidade de vários modelos [26, 27], por apresentarem correções de escala bem mais fracas que aquelas encontradas na medida de expoentes [28, 29]. Como nosso modelo de deposição de grãos apresenta correções de escala muito fortes para a rugosidade, nós estudamos distribuições de rugosidade para confirmar sua classe de universalidade.

O restante dessa dissertação está dividido como segue. No capítulo II, revisamos o formalismo teórico utilizado no estudo de superfícies, apresentamos exemplos de alguns modelos de crescimento bastante comuns na literatura e que são estudados ou citados ao longo dessa dissertação e apresentamos uma revisão de alguns trabalhos experimentais onde superfícies formadas por grãos são observadas. No capítulo III, apresentamos os resultados para os nossos modelos de redes periódicas de grãos e também para os modelos com ampliação da superfície, com os quais testamos os efeitos da forma dos grãos. No Capítulo IV, apresentamos nossos resultados para o modelo de deposição de grãos e fazemos uma breve discussão sobre suas distribuições de rugosidade. No Capítulo V, apresentamos nossas conclusões e discutimos perspectivas do trabalho.

Capítulo 2

Revisão Bibliográfica

2.1 Introdução

Nesse capítulo apresentamos uma revisão do ferramental teórico utilizado no estudo da cinética de superfícies. Introduzimos o conceito de escala e apresentamos as principais classes de universalidade e alguns modelos de crescimento, bastante comuns na literatura, que serão importantes ao longo dessa dissertação. Além disso, uma revisão de vários trabalhos experimentais onde superfícies com grãos foram observadas, é apresentada no final desse capítulo.

Uma superfície, ou interface, nada mais é do que a separação entre dois meios materiais diferentes. Em objetos com cavidades internas ou reentrâncias laterais, podemos definir uma superfície interna e uma externa. Por exemplo, na maioria dos processos de deposição na presença de catalisadores o agregado formado é poroso pois, geralmente, o próprio catalisador é um material poroso. Apesar de muitos processos de crescimento de materiais produzirem superfícies com reentrâncias laterais e cavidades internas, vários instrumentos de análise de morfologia de superfícies comuns, como o perfilômetro, o microscópio de força atômica

(AFM-*Atomic Force Microscope*) e o microscópio de tunelamento (STM-*Scanning Tunelling Microscope*), não costumam dar informações sobre superfícies internas, mas apenas da altura máxima da interface, ao longo de sua superfície externa. Nos modelos de crescimento que vamos estudar, a superfície será sempre tomada como o conjunto de partículas de maior altura do agregado. Em modelos em rede, como os que estudaremos aqui, esta será representada por um conjunto de alturas $\{h_i\}$, onde i indica cada sítio do substrato. Em modelos contínuos a superfície é descrita por um campo de alturas $h(\vec{x})$, onde \vec{x} é uma posição medida ao longo do substrato.

2.2 Relações de Escala

Inicialmente proposto por Widom (1965) [30] como um *ansatz* e posteriormente validado com o advento da teoria do Grupo de Renormalização, o conceito de escala (*scaling*) se tornou uma grande ferramenta no estudo de fenômenos críticos [9, 10]. A emergência de invariância de escala se deve ao fato de o único comprimento relevante para um sistema, próximo a criticalidade, ser o seu comprimento de correlação, que diverge no ponto crítico.

A invariância de escala é também uma característica comum em uma grande variedade de interfaces [5]. Por exemplo, na figura 2.1(a) apresentamos um perfil de alturas ($P1$) para um substrato de tamanho $L = 16000$. Um perfil similar a $P1$ (com as mesmas propriedades geométricas e estatísticas) pode ser obtido da ampliação do *inset* da figura 2.1(a), conforme mostrado na figura 2.1(b). Observamos que para obter esse perfil similar ($P2$), com um tamanho $L' = 4000$, precisamos de um intervalo vertical $\Delta h' = 100$, enquanto em $P1$ temos $\Delta h = 200$. Assim, reduzimos a largura do agregado por um fator 4 e reduzimos o eixo verti-

cal (flutuações de altura) por um fator 2 apenas. Logo os eixos se transformam de forma desigual (transformação auto-afim)

$$L \rightarrow L' \equiv bL \quad \text{e} \quad \Delta h \rightarrow \Delta h' \equiv b^\alpha \Delta h \quad (2.1)$$

onde α é o expoente da rugosidade e b um parâmetro arbitrário. Essa invariância, frente a uma transformação de escala anisotrópica, caracteriza uma superfície auto-afim. Quando a superfície é invariante frente a uma transformação dos eixos pelo mesmo fator, na direção vertical e horizontal, esta é auto-similar. Quase todas as superfícies obtidas em processos de crescimento são auto-afins.

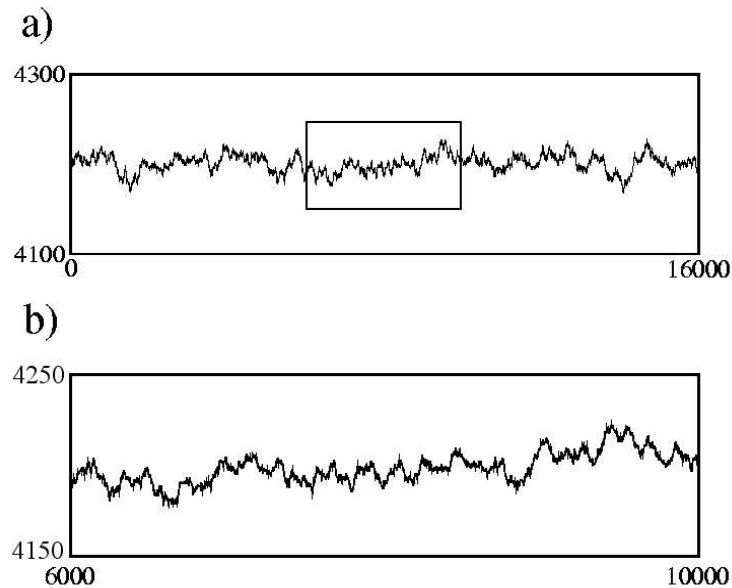


Figura 2.1: a) Exemplo de interface para um substrato de largura $L = 16000$. b) Ampliação do *inset* de (a) com uma largura $L' = 4000$ mantendo flutuações de altura estatisticamente semelhantes.

Podemos notar na figura 2.1 que a grandeza que se mantém invariante frente a transformação de escala é a largura da interface ou rugosidade W , ou seja,

$W \sim \Delta h$ e podemos escrever uma transformação de auto-afinidade

$$L \rightarrow L' \equiv bL \quad \text{e} \quad W \rightarrow W' \equiv b^\alpha W. \quad (2.2)$$

Na figura 2.1, temos $\alpha = 1/2$.

Todas as figuras e gráficos que serão apresentados nessa seção foram obtidos da simulação do modelo RSOS em um substrato unidimensional, este modelo será apresentado na subseção 2.4.4 desse capítulo.

2.2.1 Relações de Escala da Rugosidade

Na maioria dos modelos de crescimento de filmes finos, partículas (átomos, ou moléculas) são agregadas em um substrato inicialmente liso. A altura média e a rugosidade superficial devem crescer a medida que partículas vão sendo depositadas. Na figura 2.2 ilustramos esse regime inicial de crescimento de um depósito. A altura média da superfície é dada por

$$\bar{h}(t) \equiv \frac{1}{L^{d_s}} \sum_i h_i(t), \quad (2.3)$$

onde \sum_i representa a soma sobre todos os sítios i do substrato, e d_s a dimensão deste, ou seja, temos um crescimento em $d = d_s + 1$ dimensões. A largura da interface, ou sua rugosidade global, é definida como o desvio quadrático médio das alturas

$$W(L, t) \equiv \left\langle \left[\frac{1}{L^{d_s}} \sum_i [h_i(t) - \bar{h}(t)]^2 \right]^{1/2} \right\rangle, \quad (2.4)$$

onde os *brackets* representam uma média sobre várias amostras. Muitas vezes ao invés de calcular a rugosidade calcula-se a rugosidade ao quadrado, definida por

$$W_2(L, t) \equiv \left\langle \frac{1}{L^{d_s}} \sum_i [h_i(t) - \bar{h}(t)]^2 \right\rangle \quad (2.5)$$

e é esperado que os comportamentos de escala da raiz da rugosidade ao quadrado sejam os mesmo da rugosidade ($W_2^{1/2} \sim W$).

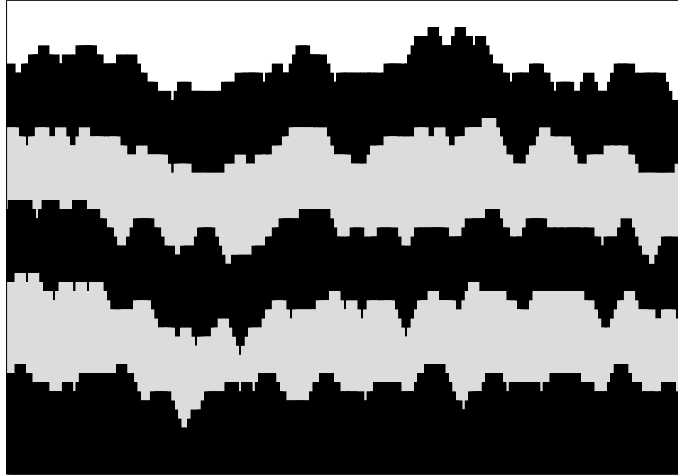


Figura 2.2: Exemplo de evolução temporal de um depósito em $d = 1 + 1$, para um substrato de tamanho $L = 150$. As variações nas cores preto-cinza ocorrem a cada 10 camadas depositadas.

A figura 2.3 mostra o comportamento típico da rugosidade com o tempo para modelos de crescimento com correlação lateral. Nessa figura observamos que a rugosidade cresce até um tempo de *crossover* t_x e então se mantém constante (satura) em um valor W_{sat} . Para $t \ll t_x$ temos a relação

$$W(L, t) \sim t^\beta, \quad (2.6)$$

onde β é o expoente de crescimento e a unidade de tempo ($\Delta t = 1$) é, geralmente, definida como a deposição de uma monocamada de partículas.

A saturação da rugosidade é uma característica de processos de crescimento em que a agregação de uma partícula depende da sua vizinhança. Essa dependência introduz uma correlação lateral no sistema que é quantificada por um comprimento de correlação $\xi_{||}$. No início da deposição o sistema é descorrelacionado ($\xi_{||} \approx 0$) e a medida que partículas são depositadas as correlações locais se

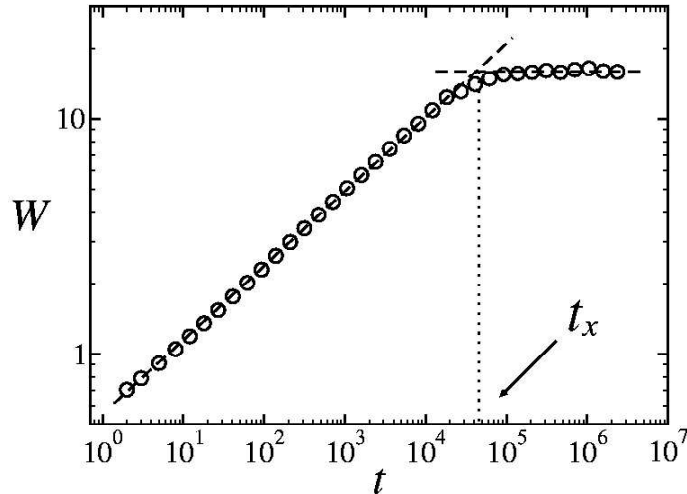


Figura 2.3: Típica variação temporal da rugosidade, para sistemas com correlação lateral, para um tamanho de substrato $L = 4096$.

propagam pelo sistema, de modo que $\xi_{||}$ cresce no tempo

$$\xi_{||} \sim t^{1/z} \quad (2.7)$$

onde z é o expoente dinâmico. Quando este comprimento de correlação se torna da ordem do tamanho lateral do sistema ($\xi_{||} \approx L$) temos a relaxação da rugosidade e a partir desse regime

$$\xi_{||} \sim L. \quad (2.8)$$

Podemos então concluir que a saturação da rugosidade nada mais é do que um efeito de tamanho finito [5].

A característica principal de um filme fino produzido experimentalmente, como o próprio nome sugere, é que sua espessura é muito menor que seu tamanho lateral. Dessa forma, estamos sempre no regime de crescimento ($t \ll t_x$) quando tratamos de filmes finos reais. A saturação da rugosidade corresponde, tipicamente, à deposição de um número de monocamadas bem maior que o tamanho lateral do sistema e é, em geral, observada apenas em modelos teóricos de

crescimento.

O comportamento do comprimento de correlação $\xi_{||}$ nos sugere que a rugosidade de saturação W_{sat} e o tempo de *crossover* t_x dependem do tamanho L do sistema. Na figura 2.4 apresentamos a variação da rugosidade no tempo, para diferentes tamanhos de substrato e verificamos essas dependências. Para a rugosidade de saturação, temos

$$W_{sat}(L) \sim L^\alpha, \quad (2.9)$$

onde α é o expoente da rugosidade, que foi introduzido na discussão da auto-afinidade (eq. 2.2). Sistemas com escala anômala apresentam valores diferentes de α nessas diferentes relações de escala [31, 32]. Para o tempo de *crossover* temos

$$t_x \sim L^z. \quad (2.10)$$

Podemos também definir um comprimento de correlação na direção perpendicular ao crescimento ξ_{\perp} , que é a própria rugosidade, ou seja, mede as flutuações de altura do depósito.

Note que as eqs. 2.9 e 2.10 envolvem quantidades medidas em tempos longos, além do regime típico de filmes finos reais. Portanto, experimentalmente, α e z são medidos por outros métodos (sec. 2.2.2).

Das equações 2.6, 2.9 e 2.10 podemos verificar que os expoentes α , β e z não são independentes entre si pois, em $t \approx t_x$

$$W \approx W_{sat} \Rightarrow t_x^\beta \approx L^\alpha \sim t_x^{\alpha/z} \Rightarrow t_x^\beta \approx t_x^{\alpha/z}, \quad (2.11)$$

de onde vem a lei de escala

$$\alpha = \beta z. \quad (2.12)$$

Como o tempo t , em processos de crescimento, é proporcional ao número de partículas agregadas ao depósito, o sistema deve ser invariante frente a uma

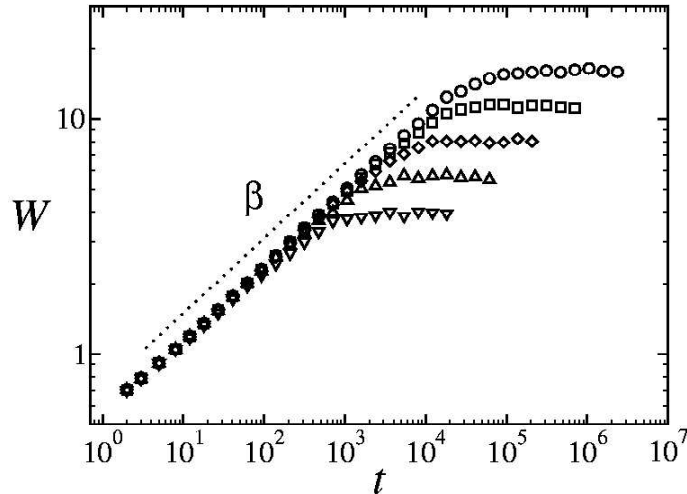


Figura 2.4: Rugosidade *versus* tempo para diferentes tamanhos de substrato: $L = 256(\nabla)$, $L = 512(\triangle)$, $L = 1024(\diamond)$, $L = 2048(\square)$ e $L = 4096(\circ)$.

reescala no tempo ($t \rightarrow t' \equiv b^z t$). Acrescentando essa invariância à transformação de auto-afinidade (eq. 2.2) podemos escrever

$$W(bL, b^z t) = b^\alpha W(L, t). \quad (2.13)$$

Como b é um parâmetro arbitrário, podemos escolher $b = 1/L$ e logo

$$W\left(1, \frac{t}{L^z}\right) = \frac{1}{L^\alpha} W(L, t), \quad (2.14)$$

de onde obtemos a relação de escala de Family e Vicsek [33]

$$W(L, t) \sim L^\alpha f\left(\frac{t}{L^z}\right). \quad (2.15)$$

$f(x \equiv t/L^z)$ é uma função de escala que pelas equações 2.6, 2.9, 2.10 e 2.12 deve se comportar como

$$f(x) \sim \begin{cases} x^\beta, & \text{para } x \ll 1, \\ \text{cte}, & \text{para } x \gg 1. \end{cases} \quad (2.16)$$

A relação de escala 2.15 pode ser confirmada se reescalamos os eixos da figura 2.4 por $W \rightarrow W/L^\alpha$ e $t \rightarrow t/L^z$. Como mostrado na figura 2.5, as curvas para

diferentes tamanhos de substrato da fig. 2.4 colapsam em uma curva universal com a escolha adequada dos expoentes α e z , mostrando a validade da relação 2.15.

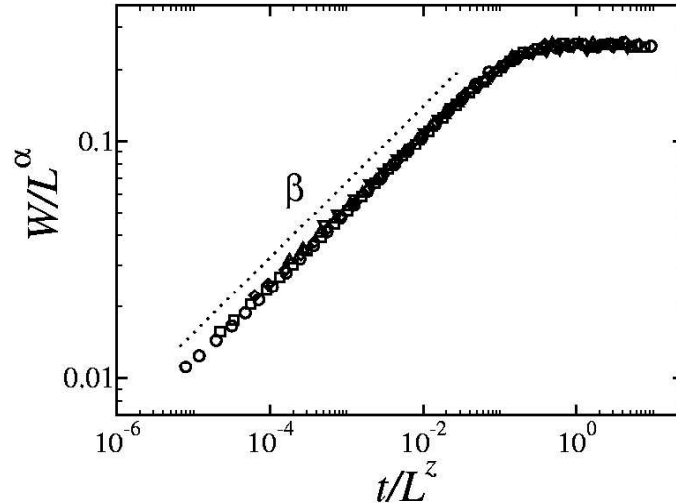


Figura 2.5: Colapso das curvas da figura 2.4 usando $\alpha = 0.5$ e $z = 1.5$.

2.2.2 Relações de Escala da Rugosidade Local

Com base na equação 2.9, para determinarmos o expoente da rugosidade α , basta crescermos depósitos, para diferentes tamanhos de substrato L , até o regime estacionário e mensurar o valor da rugosidade de saturação. Porém, como discutimos anteriormente, experimentalmente os filmes finos são crescidos até tempos muito anteriores à saturação da rugosidade, tornando impraticável o uso da relação 2.9. Então, uma forma de se determinar o expoente da rugosidade é através da rugosidade local W_{loc} . Para um substrato de tamanho L em um tempo t qualquer, nós calculamos a rugosidade local em janelas de largura R bem menor que o substrato

($R \ll L$):

$$W_{loc}(R) \equiv \left\langle \frac{1}{M} \sum_{\vec{x}_0} \left[\frac{1}{R^{d_s}} \sum_i [h_i - \bar{h}_{\vec{x}_0}]^2 \right]^{1/2} \right\rangle, \quad (2.17)$$

onde $\bar{h}_{\vec{x}_0}$ é a altura média em uma janela definida a partir da posição inicial \vec{x}_0 e o \sum_i representa uma soma sobre os R^{d_s} sítios dessa janela. Assim, a expressão entre colchetes é exatamente a rugosidade ao quadrado medida no interior da janela que começa em \vec{x}_0 . O somatório em \vec{x}_0 representa a média sobre as rugosidades das $M = L^{d_s}$ janelas de tamanho R possíveis para condições de contorno periódicas, ou $M = (L-R)^{d_s}$ para condições de contorno abertas. Os *brackets* representam a média sobre várias configurações, ou seja, vários depósitos diferentes varridos pela janela de tamanho R . Da mesma forma que fizemos para a rugosidade global, podemos definir uma rugosidade local ao quadrado

$$W_{2_{loc}}(R) \equiv \left\langle \frac{1}{MR^{d_s}} \sum_{\vec{x}_0} \sum_i [h_i - \bar{h}_{\vec{x}_0}]^2 \right\rangle \quad (2.18)$$

e novamente seu comportamento de escala esperado é $W_{2_{loc}}^{1/2} \sim W_{loc}$. A raiz quadrada de $W_{2_{loc}}$ é a rugosidade rms ($W_{rms,loc} \equiv W_{2_{loc}}^{1/2}$).

Na ampliação da fig. 2.1, temos um exemplo de medida da rugosidade local. Se ampliarmos partes do perfil com $L' = R$, devemos obter uma relação de auto-afinidade análoga a da equação 2.2, ou seja

$$R \rightarrow R' \equiv bR \quad \text{e} \quad W_{loc} \rightarrow W'_{loc} \equiv b^\alpha W_{loc}. \quad (2.19)$$

Para um tempo t fixo podemos escrever

$$W_{loc}(bR) = b^\alpha W_{loc}(R) \quad (2.20)$$

e tomando $b = R_0/R$, onde R_0 é uma constante, obtemos

$$W_{loc}(R_0) = \frac{R_0^\alpha}{R^\alpha} W_{loc}(R). \quad (2.21)$$

Encontramos assim, a relação de escala

$$W_{loc}(R) \sim R^\alpha. \quad (2.22)$$

Na figura 2.6 apresentamos um exemplo típico da variação de W_{loc} em função de R , para um substrato de tamanho $L = 2048$ em diferentes tempos, sendo estes anteriores à saturação da rugosidade ($t \ll t_x$). Em $R \sim \xi_{||}$, a rugosidade local se torna constante em um valor igual à rugosidade global da superfície naquele instante de tempo,

$$W_{loc} \sim W \quad \text{para} \quad R \gg \xi_{||}. \quad (2.23)$$

Para $R \ll \xi_{||}$ estamos na região onde a relação de escala 2.22 se aplica.

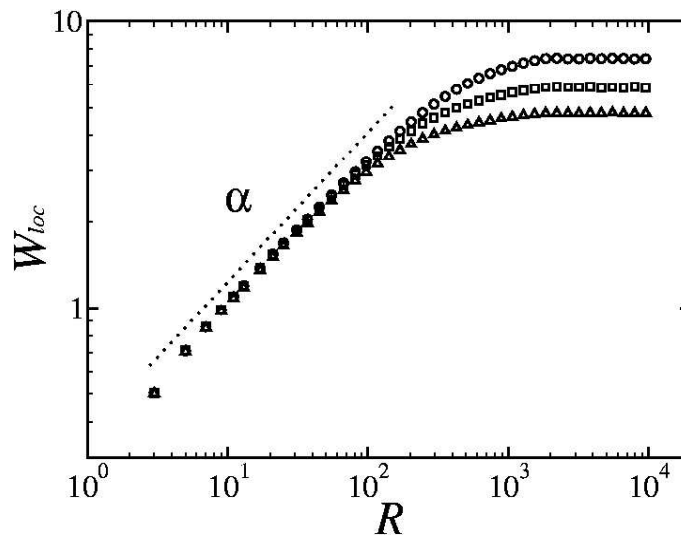


Figura 2.6: Variação típica da rugosidade local com o tamanho da janela, para os tempos: $t = 1000(\triangle)$, $t = 2000(\square)$ e $t = 4000(\circ)$.

Podemos observar na figura 2.6 que o comportamento da rugosidade local na região de escala ($R \ll \xi_{||}$) independe do tempo, ou seja, as flutuações de altura num determinado tamanho de janela não variam no tempo. Porém, em sistemas

com escala anômala da rugosidade¹ isso não é verificado e as flutuações locais de altura crescem com o tempo, o que faz com que a rugosidade cresça com o tempo em um determinado tamanho de janela, mas mantendo o mesmo comportamento de escala. A figura 2.7 mostra essa variação da rugosidade local para diferentes tempos em um sistema com rugosidade anômala.

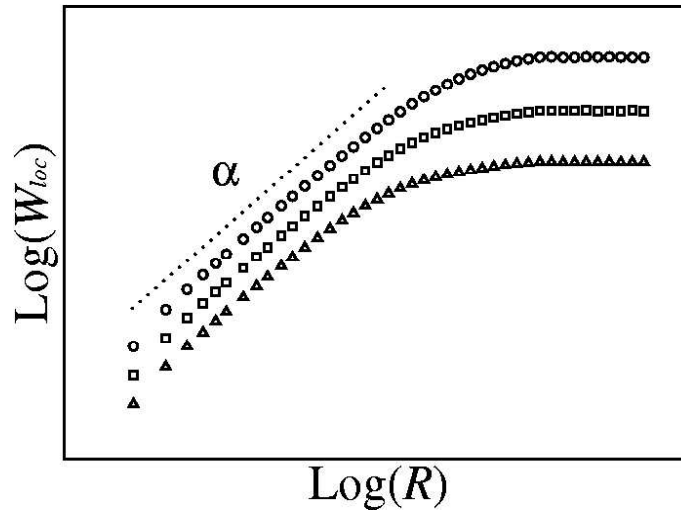


Figura 2.7: Curvas esquemáticas da variação da rugosidade local com o tamanho da janela, nos tempos $t_0(\triangle)$, $2t_0(\square)$ e $4t_0(\circ)$, em um sistema com escala anômala da rugosidade.

2.2.3 Correções de Escala e Efeitos de *crossover*

Quando temos relações de escala da forma $Y \sim X^\gamma$, é importante notar que se tratam de relações assintóticas, ou seja, são realmente precisas somente em determinados limites, por exemplo quando o sistema é muito grande ou o tempo é muito longo. Fora desses limites a dependência completa de Y com X deve ser

¹também conhecida como rugosidade anômala.

da forma

$$Y \approx AX^\gamma [1 + b_1X^{\gamma_1} + b_2X^{\gamma_2} + \dots] \quad (2.24)$$

onde os $b_iX^{\gamma_i}$, com $i = 1, 2, \dots$, são correções de escala e A é a amplitude do termo dominante.

As amplitudes b_i dependem dos mesmos parâmetros que Y (que não X). Por exemplo, em processos de crescimento, onde $Y = W$, se X representa o tempo ($X = t$) elas podem depender de L e ao contrário se $X = L$, elas podem depender de t . Os expoentes γ_i geralmente são negativos, o que faz com que as correções se anulem no limite assintótico ($X \rightarrow \infty$).

No estudo de modelos de crescimento, trabalhamos com substratos de tamanho finito, portanto sempre teremos correções de escala, que dependem do processo de crescimento. O modelo de crescimento RSOS (ver subseção 2.4.4), por exemplo, apresenta correções de escala muito fracas, mesmo para pequenos tamanhos L e tempos t . Por outro lado, no modelo de deposição balística, apresentado na subseção 2.4.3, essas correções são muito fortes [28, 29], principalmente em dimensões $d > 1 + 1$. Nesses modelos o efeito dessas correções é mascarar o valor do expoente assintótico γ , de forma que quando calculamos o expoente de escala através da inclinação de um gráfico $\log(Y)$ x $\log(X)$, o que obtemos é um expoente efetivo γ_{ef} que geralmente depende de L . A forma de determinarmos o valor assintótico de γ é calcular expoentes efetivos para diferentes tamanhos L e extrapolarmos γ_{ef} para o limite $L \rightarrow \infty$, buscando as correções de tamanho finito adequadas.

Correções de escala também podem produzir efeitos de *crossover*, onde verificamos duas regiões de escala bem definidas com expoentes (aparentes) distintos. Esse efeito de *crossover* é bastante comum em modelos de crescimento competitivos, onde dois ou mais tipos de partículas se agregam seguindo as regras de

modelos de diferentes classes de universalidade (ver seção 2.3), e conseqüentemente, com diferentes expoentes de escala [1, 34, 35]. Por exemplo, em modelos onde temos a competição de uma dinâmica linear (classe EW) e uma não-linear (classe KPZ), esperamos que o expoente assintótico seja $\beta = 1/3$ (KPZ) e a correção principal $\gamma_1 = -1/12$ na eq. 2.24, com $Y = W$ e $X = t$, mas com $b_1 \gg 1$, de forma que em tempos curtos a rugosidade cresce aproximadamente com $t^{1/4}$ (EW), e em tempos longos temos $W \sim t^{1/3}$. Esse efeito de *crossover* sempre é observado na curva da rugosidade global *versus* tempo (ver figura 2.8).

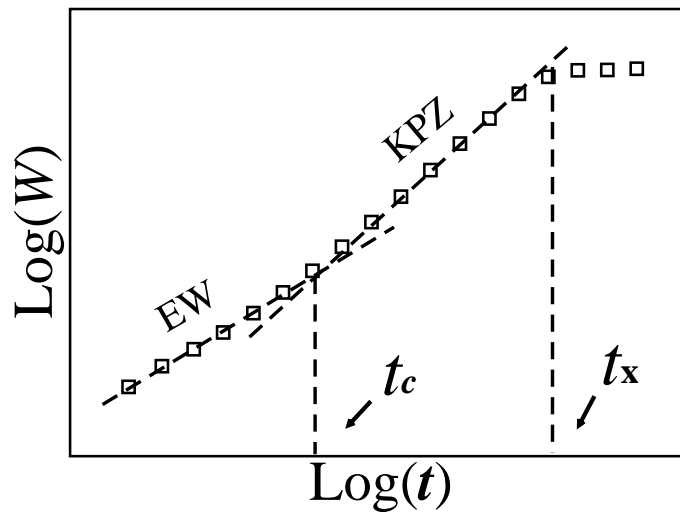


Figura 2.8: Curva típica da rugosidade em função do tempo de um sistema com *crossover* de EW para KPZ [1].

Efeitos de *crossover* também ocorrem na escala da rugosidade local W_{loc} em superfícies onde há a presença de grãos. Nesse caso há um crescimento inicialmente rápido da rugosidade local com um expoente α_1 e um *crossover* em $R \approx l$, onde l é o tamanho médio do grão, para um crescimento mais lento com um expoente α_2 (figura 2.9). Mostraremos nos próximos capítulos que a origem desse efeito na rugosidade local não é a competição entre diferentes dinâmicas de cres-

cimento, mas simplesmente a geometria da superfície com grandes diferenças de alturas entre os grãos.

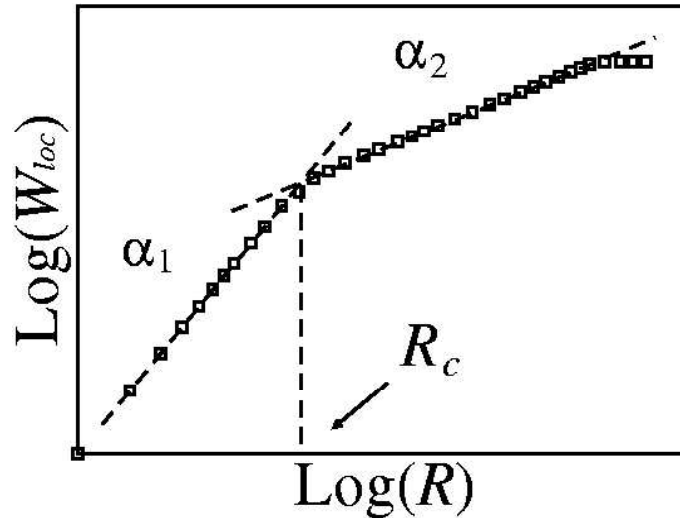


Figura 2.9: Típica variação da rugosidade local em superfícies com grãos.

Finalmente, é importante comentar aqui que em praticamente todos os modelos de deposição de partículas encontramos efeitos de *crossover* na escala da rugosidade global e local, que são simples produtos do processo. Por exemplo, para tempos muito pequenos o comprimento de correlação lateral na superfície é praticamente nulo e assim a rugosidade tem um crescimento inicial aproximadamente com $t^{1/2}$, característico de um sistema descorrelacionado (ver subseção 2.4.1). Como esse *crossover* aparece naturalmente em alguns processos e costuma ter pequena duração, ao contrário dos modelos competitivos, este é sempre considerado como um transiente e é desprezado na maioria dos problemas.

2.3 Classes de Universalidade e Equações de Crescimento

O conceito de classe de universalidade também teve origem no estudo de fenômenos críticos e expressa o fato de que apenas algumas simetrias fundamentais são relevantes na determinação dos expoentes críticos, ou seja, estes independem de detalhes das interações do sistema. Dessa forma, uma variedade de processos a princípio distintos podem apresentar um mesmo conjunto de expoentes críticos, que definem uma classe de universalidade.

No estudo de superfícies também encontramos classes de universalidade bem definidas, como a classe KPZ [36], a classe EW [37], entre outras. A dinâmica de uma superfície pode ser descrita no limite contínuo (limite *hidrodinâmico*), onde o tamanho do sistema L e o tempo t tendem a infinito, por equações diferenciais estocásticas, do tipo Langevin. Estas equações descrevem as flutuações na superfície em grandes comprimentos de escala e são construídas considerando-se as simetrias que devem ser satisfeitas pela superfície. Assim, estas equações são os modelos mais representativos das classes de universalidade, e por isso cada classe tem o nome associado a uma equação de crescimento. Por exemplo, na classe KPZ encontramos uma série de modelos discretos, como deposição balística [5], o modelo RSOS [24], o modelo de *etching* de Mello et al [38] etc, que no limite contínuo são representados pela equação KPZ. Além disso uma variedade de processos reais [5, 7] apresenta os mesmos expoentes da classe KPZ.

No limite contínuo, a superfície é representada por um campo de alturas $h(\vec{x}, t)$, onde \vec{x} é uma posição do substrato. A forma geral de uma equação de crescimento deve ser

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = F + \Phi(\{h\}, \vec{x}, t) + \eta(\vec{x}, t), \quad (2.25)$$

onde F é o fluxo médio de partículas que chegam ao depósito (em geral, $F =$ constante), $\Phi(\{h\}, \vec{x}, t)$ é um funcional que representa as correlações da superfície e $\eta(\vec{x}, t)$ é um ruído branco, ou seja, com média nula

$$\langle \eta(\vec{x}, t) \rangle = 0 \quad (2.26)$$

e covariância

$$\langle \eta(\vec{x}, t) \eta(\vec{x}', t') \rangle = D \delta^{d_s}(\vec{x} - \vec{x}') \delta(t - t'), \quad (2.27)$$

que dá o caráter aleatório da superfície.

Todo o problema de se construir uma equação de crescimento está em determinar $\Phi(\{h\}, \vec{x}, t)$, ou seja, quais são as correlações importantes do sistema. De um modo geral, $\Phi(\vec{x}, t)$ pode depender de $(\vec{x})^i$, h^i , t^i e de derivadas espaciais de h como $(\nabla^i h)$, $(\nabla h)^i$ e $(\nabla^i h)(\nabla h)^j$, com $i, j = 1, 2, 3, \dots$. Porém, na maioria das situações de interesse, uma superfície deve satisfazer algumas simetrias básicas que reduzem drasticamente as dependências explícitas de Φ . São elas:

a) Invariância sob uma translação no tempo ($t \rightarrow t + \delta_t$), que elimina a dependência temporal.

b) Invariância sob uma translação na direção do crescimento ($h \rightarrow h + \delta_h$), que elimina a dependência em h .

c) Invariância sob uma translação na direção perpendicular ao crescimento ($\vec{x} \rightarrow \vec{x} + \delta_{\vec{x}}$), que elimina a dependência em \vec{x} .

d) Simetria de inversão ($\vec{x} \rightarrow -\vec{x}$), que elimina a dependência com derivadas de ordem ímpar de h .

As simetrias de (a) a (c) são necessárias porque a superfície não pode depender da escolha das origens (t_0 , h_0 e \vec{x}_0). Por outro lado, a superfície não deve mudar se fazemos uma rotação de 180° em torno do eixo perpendicular a ela. Fazendo essa inversão ($\vec{x} \rightarrow -\vec{x}$) as derivadas de ordem ímpar tem o seu sinal invertido,

portanto tais derivadas não devem aparecer na equação 2.25 e esta equação se reduz a

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = F + \Phi [\nabla^{2i} h, (\nabla h)^{2j}, (\nabla^{2k} h)(\nabla h)^{2j}] + \eta(\vec{x}, t). \quad (2.28)$$

Dependendo do sistema, pode haver outras simetrias que sejam satisfeitas pela interface, como a simetria *up-down* que leva à equação EW [37], discutida a seguir.

2.3.1 A Equação de Crescimento Aleatória

A forma mais simples de uma equação de crescimento é aquela onde não há correlações na superfície, ou seja, $\Phi = 0$ na eq. 2.28, que se torna simplesmente

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = F + \eta(\vec{x}, t). \quad (2.29)$$

Como F é uma constante, o único termo relevante para a evolução da superfície é o ruído, ou seja, a aleatoriedade, daí o nome crescimento aleatório.

Como a superfície é descorrelacionada não podemos obter os expoentes da rugosidade α e dinâmico z , conforme discutido na seção 2.2.1. O expoente de crescimento β dado pela equação 2.6 pode ser facilmente obtido através da equação 2.29. Integrando essa equação em relação ao tempo, temos

$$h(\vec{x}, t) = Ft + \int_0^t dt' \eta(\vec{x}, t'), \quad (2.30)$$

tomando o valor médio de h e usando a equação 2.26 encontramos

$$\langle h(\vec{x}, t) \rangle = Ft. \quad (2.31)$$

Elevando a equação 2.30 ao quadrado e usando a equação 2.27 obtemos também

$$\langle h^2(\vec{x}, t) \rangle = F^2 t^2 + 2Dt. \quad (2.32)$$

A rugosidade, definida na equação 2.4, pode ser escrita em termos dos dois primeiros momentos da distribuição de alturas,

$$W^2(t) = \langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2, \quad (2.33)$$

e assim encontramos

$$W^2(t) = 2Dt, \quad (2.34)$$

que pela equação 2.6 nos dá o expoente de crescimento $\beta = 1/2$ para qualquer dimensão d_s do substrato. Os expoentes $\beta = 1/2$ e α e z indeterminados definem a classe de universalidade do crescimento aleatório.

2.3.2 A Equação EW

Um modelo contínuo foi proposto por Edwards e Wilkinson em 1982 [37] para representar interfaces que apresentam simetria de reflexão em torno da altura média, ou seja, invariantes sob a transformação $h \rightarrow -h$ (conhecida como simetria *up-down*). Essa transformação muda o sinal do lado esquerdo da equação 2.28 e para garantir a invariância dessa equação termos não-lineares do tipo $(\nabla h)^{2i}$ com $i = 1, 2, \dots$ não podem aparecer do seu lado direito, o que nos dá

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = F + a_1(\nabla^2 h) + a_2(\nabla^4 h) + \dots + b_1(\nabla^2 h)(\nabla h)^2 + b_2(\nabla^2 h)(\nabla h)^4 + \dots + \eta(\vec{x}, t), \quad (2.35)$$

onde os coeficientes a_i e b_i , com $i = 1, 2, \dots$, são constantes.

No limite hidrodinâmico as derivadas de ordens mais altas ficam desprezíveis em relação às de ordem mais baixa. De fato, a superfície deve ser auto-afim e, portanto, invariante frente à transformação de auto-afinidade (eq. 2.2). Com essa transformação os termos $\nabla^2 h$ e $\nabla^4 h$, por exemplo, se reescalam como:

$$\nabla'^2 h' \rightarrow b^{\alpha-2} \nabla^2 h \quad (2.36)$$

e

$$\nabla'^4 h' \rightarrow b^{\alpha-4} \nabla^4 h. \quad (2.37)$$

No limite hidrodinâmico $b \rightarrow \infty$, então o termo $\nabla^4 h$ tende a zero muito mais rápido que o laplaciano. Pelo mesmo procedimento podemos mostrar que todas as outras derivadas também são irrelevantes em relação à $\nabla^2 h$ naquele limite. Neste contexto, alguns termos são considerados irrelevantes sob o ponto de vista do grupo de renormalização, ou seja, eles não afetam os expoentes de escala (α, β, z) , apesar de poderem afetar as amplitudes das relações de escala (A, b_1, b_2, \dots) na eq. 2.24. Desprezando esses termos encontramos a equação de Edwards e Wilkinson [37] (equação EW)

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = \nu \nabla^2 h(\vec{x}, t) + \eta(\vec{x}, t), \quad (2.38)$$

onde ν é uma constante conhecida como tensão superficial, pois o laplaciano tende a suavizar a superfície. A constante F não aparece na equação EW porque estamos no referencial de altura média $h \rightarrow h - Ft$, ou seja, a velocidade média v da superfície é

$$v \equiv \int_0^L d^d \vec{x} \left\langle \frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} \right\rangle = 0, \quad (2.39)$$

considerando condições de contorno periódicas, que anulam a contribuição do laplaciano (usamos a equação 2.26).

Por ser linear, a equação EW pode ser resolvida através de uma análise de Fourier, e tanto os expoentes α , β e z quanto a relação de escala de Family e Vicsek (eq. 2.15) podem ser calculados exatamente (ver refs. [5] e [8]). Uma forma alternativa e mais simples de determinar os expoentes de escala é explorar a auto-afinidade da superfície. Pela transformação de auto-afinidade dada na equação 2.19 temos

$$\vec{x} \rightarrow \vec{x}' \equiv b\vec{x}, \quad h \rightarrow h' \equiv b^\alpha h \quad \text{e} \quad t \rightarrow t' \equiv b^z t. \quad (2.40)$$

Para o ruído, considerando a equação 2.27 e a propriedade das funções delta $\delta^d(a\vec{x}) = a^{-d}\delta^d(\vec{x})$, obtemos

$$\left\langle \eta(b\vec{x}, b^z t) \eta(b\vec{x}', b^z t') \right\rangle = D \delta^{d_s}(b\vec{x} - b\vec{x}') \delta(b^z t - b^z t') = b^{(-d_s - z)} \left\langle \eta(\vec{x}, t) \eta(\vec{x}', t') \right\rangle. \quad (2.41)$$

O laplaciano se transforma de acordo com 2.36 e

$$\frac{\partial h'}{\partial t'} = b^{\alpha - z} \frac{\partial h}{\partial t}, \quad (2.42)$$

de onde obtemos a equação EW reescalada

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = \nu b^{z-2} \nabla^2 h(\vec{x}, t) + b^{-\frac{d}{2} + \frac{z}{2} - \alpha} \eta(\vec{x}, t). \quad (2.43)$$

Para que a invariância seja satisfeita, essa equação deve ser igual à equação EW original, o que implica

$$b^{z-2} = 1 \quad \text{e} \quad b^{-\frac{d_s}{2} + \frac{z}{2} - \alpha} = 1 \quad (2.44)$$

para qualquer b , ou seja, os expoentes do fator de escala b devem ser nulos, o que nos dá

$$z = 2, \quad \alpha = \frac{2 - d_s}{2} \quad \text{e} \quad \beta = \frac{2 - d_s}{4}. \quad (2.45)$$

Como podemos verificar na equação acima, o expoente da rugosidade α e o expoente de crescimento β dependem da dimensão do substrato. Em $d = 1 + 1$, temos $\beta = 1/4$ e $\alpha = 1/2$, e em $d = 2 + 1$ temos $\alpha = \beta = 0$, o que significa que a rugosidade tem comportamento logarítmico

$$W^2(L, t \ll t_x) \sim \log(t) \quad \text{e} \quad W^2(L, t \gg t_x) \sim \log(L). \quad (2.46)$$

Para $d > 2 + 1$ esses expoentes são negativos, o que faz com que qualquer flutuação da interface seja amortecida pela tensão superficial e esta permaneça sempre lisa (W finito mesmo para $L, t \rightarrow \infty$).

Como vemos acima, os expoentes de escala são completamente diferentes daqueles encontrados para a equação aleatória (2.29). Portanto, estes expoentes devem definir uma nova classe de universalidade e esta é conhecida como a classe EW.

2.3.3 A Equação KPZ

Conforme discutimos na subseção anterior, a simetria *up-down* é o fator diferenciador da teoria de Edwards e Wilkinson. Mas em muitos processos de crescimento, a agregação de partículas pode depender da normal local (próxima ao ponto de agregação) e a simetria *up-down* é quebrada. Em 1986 Kardar, Parisi e Zhang [36] propuseram uma extensão da equação EW, para descrever tais processos.

Se não há o requisito da simetria *up-down*, termos não lineares do tipo $(\nabla h)^{2i}$ com $i = 1, 2, \dots$ podem estar presentes na equação de crescimento. Como fizemos para o laplaciano na seção anterior, podemos mostrar por argumentos de escala que no limite hidrodinâmico o termo $(\nabla h)^2$ é dominante em relação aos termos de ordem superior. Adicionando esse termo à equação EW, encontramos a equação de KPZ [36]

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = \nu \nabla^2 h + \frac{\lambda}{2} (\nabla h)^2 + \eta(\vec{x}, t), \quad (2.47)$$

onde λ é conhecido como excesso de velocidade. Esse nome se deve ao fato de que mesmo estando no referencial de altura média constante a velocidade média da superfície não é nula

$$v \equiv \int_0^L d^d \vec{x} \langle (\nabla h)^2 \rangle, \quad (2.48)$$

ou seja, o crescimento lateral produz uma velocidade adicional na superfície.

Podemos também construir a equação KPZ por considerações geométricas. Na figura 2.10 mostramos um esquema de crescimento lateral de uma interface.

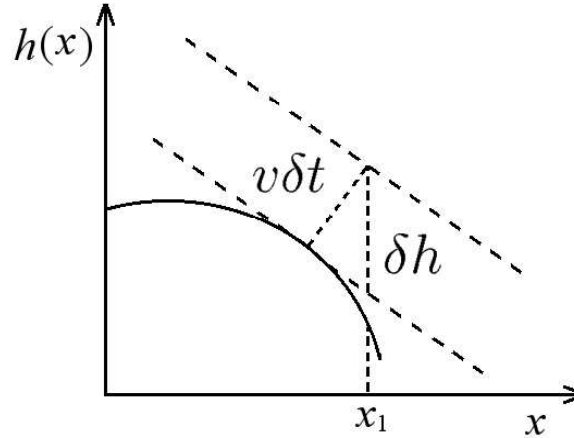


Figura 2.10: Esquema ilustrativo do crescimento lateral de uma superfície.

Um incremento $v\delta t$ na direção da normal local, produz um incremento aproximadamente δh na altura em $x = x_1$, e pelo teorema de Pitágoras temos

$$\delta h = v\delta t[1 + (\nabla h)^2]^{1/2}. \quad (2.49)$$

Se consideramos $|\nabla h| \ll 1$ podemos fazer a expansão

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = v + \frac{v}{2}(\nabla h)^2 + \dots, \quad (2.50)$$

sugerindo que o termo $(\nabla h)^2$ deve estar presente na equação de crescimento.

Devido à sua não linearidade a equação KPZ não pode ser resolvida por análise de Fourier. Além disso, se usamos a transformação de auto-afinidade, como fizemos para a equação EW, encontramos três equações para determinar apenas dois expoentes (α e z), impossibilitando o cálculo destes. Por outro lado, pode ser mostrado por invariância galileana (ver refs. [5, 8]) que

$$\alpha + z = 2 \quad (2.51)$$

em qualquer dimensão. Cálculos de grupo de renormalização, em $d = 1 + 1$,

mostraram que [5]

$$\alpha = 1/2, \quad \beta = 1/3 \quad \text{e} \quad z = 3/2, \quad (2.52)$$

consistentes com a equação 2.51.

Para $d > 1 + 1$, nenhum resultado analítico exato é conhecido para os expoentes. Soluções analíticas aproximadas [39] e resultados de simulações [40, 41] em $d = 2 + 1$ indicam um expoente

$$\alpha \approx 0.39, \quad (2.53)$$

pelas equações 2.12 e 2.51 devemos ter

$$z \approx 1.61 \quad \text{e} \quad \beta \approx 0.24 \quad (2.54)$$

Como os expoentes encontrados acima diferem daqueles que definem a classe EW e a classe DA, estes devem representar uma nova classe de universalidade, sendo esta conhecida classe KPZ.

2.3.4 A Equação de Wolf-Villain

Uma característica fundamental do crescimento de superfícies por MBE é a difusão de partículas já depositadas (adsorvidas) na interface do agregado [5, 8, 42]. Essa difusão coletiva produz uma corrente $\vec{J}(\vec{x}, t)$ na interface e, se considerarmos que uma vez adsorvida a partícula nunca mais deixa o depósito, o número de partículas é constante durante o processo de difusão e essa corrente deve obedecer à equação de continuidade

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\nabla \cdot \vec{J}(\vec{x}, t). \quad (2.55)$$

Comparando essa equação com a eq. 2.28 podemos imediatamente associar o termo $-\nabla \cdot \vec{J}(\vec{x}, t)$ ao funcional Φ . A corrente $\vec{J}(\vec{x}, t)$ deve ser direcionada pelo

gradiente de potencial químico local $\mu(\vec{x}, t)$ da interface

$$\vec{J}(\vec{x}, t) \propto -\nabla\mu(\vec{x}, t). \quad (2.56)$$

O potencial químico na superfície está relacionado ao número de ligações que uma partícula deve romper para que possa difundir. Portanto, este não deve variar se inclinamos nosso eixo de coordenadas, ou seja, $\mu(\vec{x}, t)$ não deve depender de $(\nabla h)^i$, com $i = 1, 2, \dots$. A difusão de uma partícula também não deve depender da altura h desta, então o termo de ordem mais baixa para o potencial químico deve ser $(\nabla^2 h)$. De fato, o número de ligações de uma partícula aumenta com a curvatura da interface naquele ponto (ver figura 2.11). Se essa curvatura tem uma concavidade positiva ($\nabla^2 h > 0$) o número de vizinhos de uma partícula é grande. Por outro lado, se a concavidade é negativa ($\nabla^2 h < 0$), o número de vizinhos é pequeno, portanto

$$\mu(\vec{x}, t) \propto -\nabla^2 h(\vec{x}, t). \quad (2.57)$$

Combinando as equações de 2.55 a 2.57, nós obtemos a equação de difusão superficial

$$\frac{\partial h(\vec{x}, t)}{\partial t} = -K\nabla^4 h + \eta(\vec{x}, t), \quad (2.58)$$

que é conhecida como equação de Wolf-Villain [43, 44]. Essa equação é similar a equação EW e podemos determinar os expoentes de escala usando a transformação de auto-afinidade. Seguindo o mesmo procedimento usado para a equação EW, os expoentes obtidos são

$$z = 4, \quad \alpha = \frac{4 - d_s}{2} \quad \text{e} \quad \beta = \frac{4 - d_s}{8}. \quad (2.59)$$

Em $d = 1 + 1$ temos $\alpha = 3/2$ e $\beta = 3/8$, e em $d = 2 + 1$ temos $\alpha = 1$ e $\beta = 1/4$. Como esses expoentes diferem daqueles encontrados nas outras classes de universalidade, eles devem caracterizar uma nova classe.

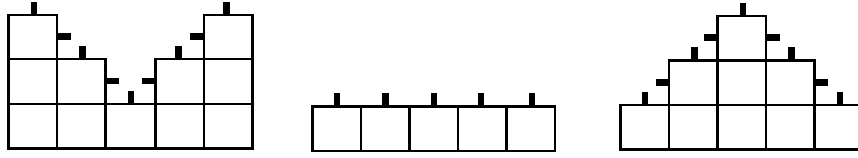


Figura 2.11: Esquema ilustrativo do número de ligações de um sítio, para diferentes curvaturas da superfície.

2.4 Modelos de Crescimento Discretos

A modelagem teórica da dinâmica de superfícies se dá pelo estudo de equações contínuas, como discutido na seção anterior, ou pelo estudo de modelos discretos (atomísticos) de deposição de partículas. Estes últimos podem ser divididos em duas classes: modelos com mobilidade limitada e modelos com difusão coletiva. Modelos de difusão coletiva geralmente são mais complexos, envolvendo difusão, agregação e desagregação de todas as partículas simultaneamente. Portanto, são os modelos que mais se aproximam da dinâmica de processos de crescimento reais [8, 5, 42]. Modelos com mobilidade limitada são mais simples: partículas incidem na superfície e se agregam, caso a regra de deposição seja satisfeita, de forma seqüencial, ou seja, uma partícula de cada vez. Apesar desses últimos modelos serem bastante simplificados, podem descrever bem algumas propriedades de processos reais de crescimento. Todos os modelos apresentados nessa dissertação são de mobilidade limitada.

Na simulação de modelos de crescimento em $d = d_s + 1$ dimensões, partículas são agregadas a uma superfície de dimensão d_s inicialmente lisa, o substrato, em posições sorteadas aleatoriamente. Esses modelos podem ser definidos em rede, ou fora de rede. Em modelos em rede, como todos que estaremos tratando nessa dissertação, o substrato é sempre uma rede hipercúbica de lado L e as partículas

tem tamanho unitário, igual ao parâmetro de rede. A unidade de tempo, geralmente é definida como uma camada de partículas depositadas, ou seja, em um substrato de tamanho L uma unidade de tempo corresponde à deposição de L^d partículas.

2.4.1 Deposição Aleatória

O modelo de crescimento de superfícies conhecido como Deposição Aleatória (DA) é o modelo discreto mais simples que se pode implementar. Nesse modelo, cada partícula se agrega ao topo da coluna sorteada, qualquer que seja o estado da vizinhança, conforme ilustrado na figura 2.12.

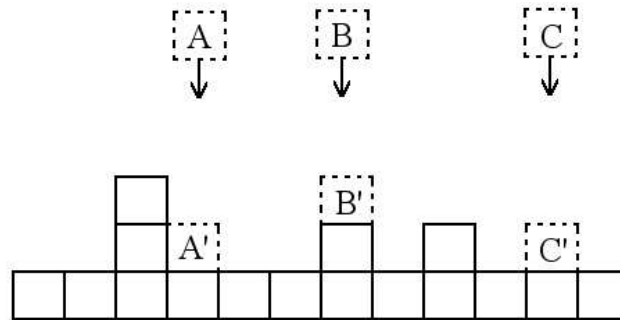


Figura 2.12: Esquema ilustrativo do modelo de deposição aleatória. A', B' e C' representam as partículas A, B e C após serem agregadas.

Como a agregação de uma partícula independe da sua vizinhança, o sistema é lateralmente descorrelacionado ($\xi_{||} = 0$) e, conforme discutido na seção 2.2.1, se $\xi_{||} = 0$ não deve haver saturação da rugosidade e não podemos definir os expoentes da rugosidade (α) e dinâmico (z) para esse modelo.

Na figura 2.13 mostramos a evolução temporal de uma superfície produzida por DA. Como não há buracos no agregado, trata-se de um processo de deposição

sólido sobre sólido (SOS²).

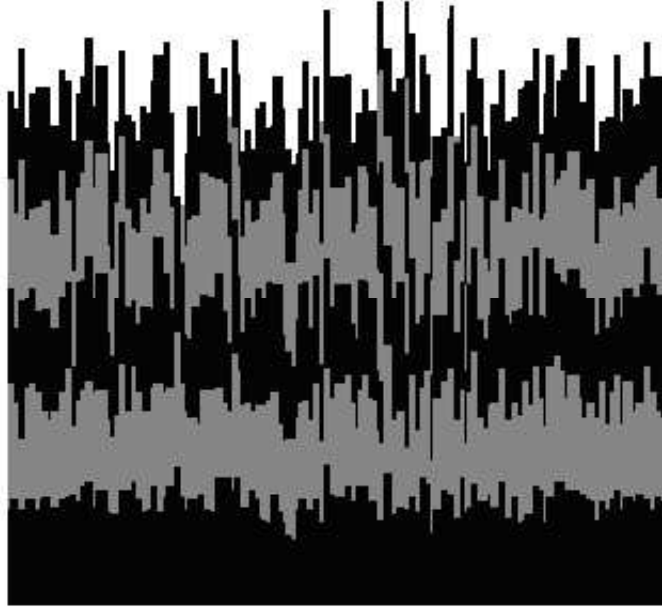


Figura 2.13: Exemplo de evolução temporal de uma superfície, obtida da simulação do modelo de DA, em $d = 1 + 1$, para um substrato $L = 150$. As variações nas cores preto-cinza ocorrem a cada 500 passos de tempo.

Pela simplicidade do modelo, o valor do expoente β pode ser calculado exatamente. Como discutimos anteriormente, nosso tempo é definido como $t = N/L^{d_s}$, onde N é o número de partículas depositadas. Se nos concentramos apenas em um sítio i do substrato, a probabilidade de que ele seja sorteado para receber uma partícula é $p = 1/L^{d_s}$ e a probabilidade de que sua altura seja h , após a deposição de N partículas, é dada pela distribuição binomial

$$P(h, N) = \frac{N!}{h!(N-h)!} p^h (1-p)^{N-h}. \quad (2.60)$$

²Do inglês: *solid-on-solid*

Calculando o primeiro e o segundo momento dessa distribuição, obtemos

$$\langle h \rangle = \sum_{h=1}^N hP(h, N) = Np = t \quad (2.61)$$

e

$$\langle h^2 \rangle = \sum_{h=1}^N h^2P(h, N) = Np(1-p) + N^2p^2 = t \left(1 - \frac{1}{L}\right) + t^2. \quad (2.62)$$

Então, pela equação 2.33, obtemos

$$W^2(t) = t \left(1 - \frac{1}{L}\right) \quad (2.63)$$

e da relação de escala 2.6 temos $\beta = 1/2$.

Podemos verificar que o expoente $\beta = 1/2$ é o mesmo encontrado na seção 2.3.1 para a equação de crescimento aleatório. De fato, a característica fundamental de ambos os modelos é o fato de não haver correlações ao longo da superfície. Assim a equação 2.29 é uma representação do modelo DA no limite contínuo e podemos concluir que esse modelo pertence a classe de universalidade do crescimento aleatório.

2.4.2 Deposição Aleatória com Relaxação Superficial

O modelo de deposição aleatória com relaxação superficial (RDSR³), também conhecido como modelo de Family [25], é um modelo mais realista, pois há também difusão das partículas depositadas. Conforme ilustrado na figura 2.14, ao atingir um sítio i do substrato a partícula pode difundir para a coluna vizinha de menor altura, desde que $h_{i+1} < h_i$ ou $h_{i-1} < h_i$. Se $h_{i-1} = h_{i+1} < h_i$, a partícula pode ir para qualquer um dos vizinhos com igual probabilidade. Enfim, a partícula sempre se deposita no mínimo local.

³Do inglês: *Random Deposition with Surface Relaxation*.

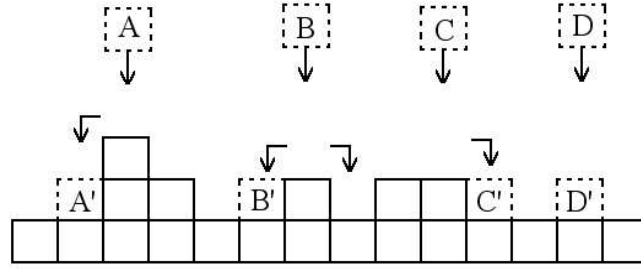


Figura 2.14: Esquema ilustrativo do modelo RDSR. As partículas A', B', C' e D' representam A, B, C e D após serem depositadas.

Numa extensão desse modelo, a partícula pode ter um comprimento de difusão maior, e difundir até uma distância máxima m , desde que a altura do novo sítio vizinho seja menor que a do sítio atual. Mas os expoentes de escala desse modelo independem do valor de m , e geralmente é usado $m = 1$.

Como as partículas se depositam umas sobre as outras, o agregado formado é SOS. O processo de difusão introduz uma correlação lateral no sistema, pois a altura de uma coluna depende das alturas de seus vizinhos e, assim, temos saturação da rugosidade. Por ser um modelo mais complexo, a RDSR não pode ser resolvida analiticamente como a DA. As primeiras simulações computacionais em $d = 1 + 1$ dimensões [25] resultaram nos expoentes de escala $\alpha = 0.48 \pm 0.02$ e $\beta = 0.24 \pm 0.01$. Recentemente, os mesmos expoentes da classe EW em $d = 1 + 1$ e $d = 2 + 1$ foram obtidos com boa precisão [45, 46].

Como vimos na seção 2.3.2, a equação EW é caracterizada por uma tensão superficial, produzida pelo laplaciano, que tende distribuir as flutuações da superfície. O processo de difusão do modelo RDSR tem este papel na relaxação da superfície. Enfim, como o mecanismo de relaxação é análogo e os expoentes de escala coincidem, podemos concluir que o modelo RDSR está na classe EW.

2.4.3 Deposição Balística

O modelo de crescimento conhecido como deposição balística (DB) foi inicialmente introduzido para o estudo de agregados coloidais [47, 48] e posteriormente a cinética de sua superfície também se tornou objeto de estudo [5]. Nesse modelo uma partícula, ao chegar na superfície, cola no seu primeiro contato com esta, mesmo que esse contato seja lateral. Em outras palavras, a altura da partícula será igual a maior entre a de seus dois primeiros vizinhos ou a da sua própria posição acrescida de uma unidade (ver figura 2.15).

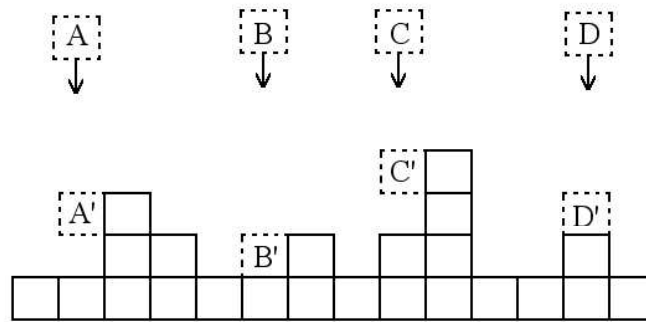


Figura 2.15: Esquema ilustrativo do modelo de DB. As partículas A', B', C' e D' representam A, B, C e D após se agregarem.

Como mostrado na figura 2.16, o mecanismo de agregação lateral faz com que o agregado formado por DB seja poroso e com reentrâncias laterais na superfície, formadas por partículas suspensas, portanto esse modelo não é SOS. Claramente a agregação lateral introduz uma correlação lateral no sistema que leva à saturação da rugosidade.

Analogamente ao modelo RDSR, a DB também não pode ser resolvida analiticamente. Simulações recentes [28] em $d = 1 + 1$ sugerem os seguintes expoentes

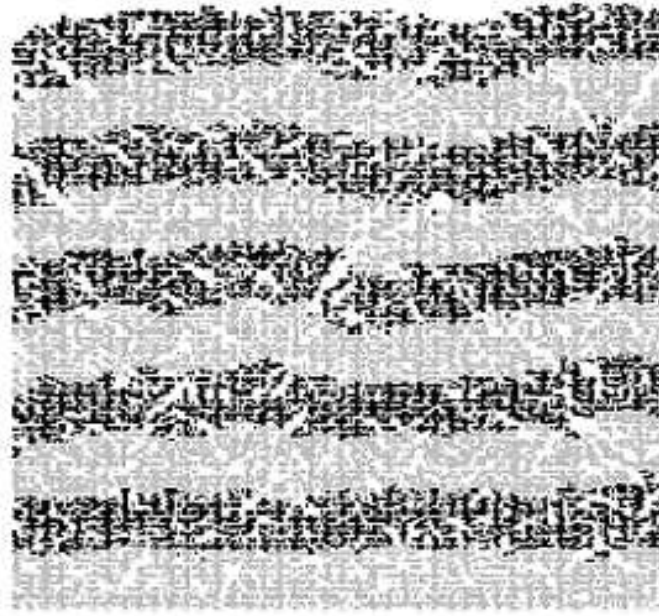


Figura 2.16: Evolução temporal de um agregado produzido por DB, em $d = 1 + 1$, para um substrato de tamanho $L = 250$. As variações nas cores preto-cinza ocorrem a cada 5000 passos de tempo.

de escala para esse modelo

$$\alpha \approx 0.50 \quad \text{e} \quad \beta \approx 0.33. \quad (2.64)$$

Em $d = 2 + 1$ o modelo apresenta correções de escala muito fortes [28, 29] que mascaram o valor assintótico do expoente de crescimento β . Para o expoente da rugosidade, estimativas numéricas apontam $\alpha \approx 0.38$ [41, 26].

O processo de agregação lateral do modelo de DB produz um excesso de velocidade na superfície pois, ao colar lateralmente em uma coluna ($i \pm 1$) mais alta que a de incidência (coluna i), uma partícula de tamanho unitário leva a um incremento $(h_{i\pm 1} - h_i) > 1$ na altura da coluna, ou seja, a velocidade média da superfície é maior que o fluxo F de partículas depositadas.

Como vimos anteriormente, na subseção 2.3.3, crescimento na direção da nor-

mal local e um conseqüente excesso de velocidade da superfície são as características fundamentais da teoria de Kardar, Parisi e Zhang [36]. Além disso, os expoentes de escala encontrados para a DB concordam muito bem com aqueles obtidos com a equação KPZ. Isso nos leva a concluir que o modelo de DB pertence a classe de universalidade KPZ.

2.4.4 Modelo de Crescimento Restrito

O modelo de crescimento restrito (RSOS⁴) proposto por Kim e Kosterlitz [24] é um modelo com recusa de agregação de partículas, pois a diferença de altura máxima entre primeiros vizinhos não pode ultrapassar um determinado valor m . Como ilustrado na figura 2.17, para o caso $m = 1$, são aceitas para a deposição apenas aquelas tentativas em que a diferença de alturas $|\Delta h|$ entre a coluna de deposição e seus primeiros vizinhos seja menor ou igual a 1 (um) após a partícula ser depositada ($|\Delta h| \leq 1$). O valor de m não altera os expoentes de escala do modelo e geralmente é tomado como $m = 1$.

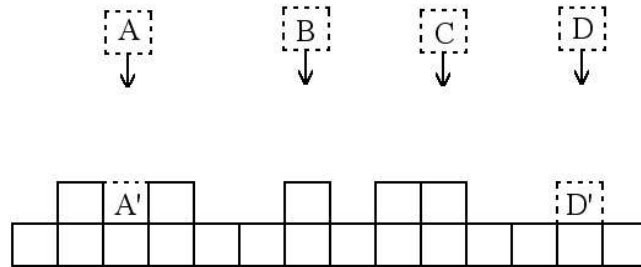


Figura 2.17: Esquema ilustrativo do modelo RSOS. As partículas A' e D' representam A e D após serem agregadas. As tentativas de deposição das partículas B e C são rejeitadas.

⁴Do inglês: *Restricted Solid-on-Solid*. Também conhecido na literatura como Modelo KK.

Como o próprio nome sugere esse modelo é SOS. Um exemplo de evolução temporal de um depósito foi apresentado na figura 2.2 (subseção 2.2.1), bem como exemplos de curvas da rugosidade em função do tempo (figuras 2.3 e 2.4) e da rugosidade local em função do tamanho da janela (fig. 2.6 da subseção 2.2.2).

Simulações numéricas do trabalho original de Kim e Kosterlitz [24] em $d = 1 + 1$ sugerem os expoentes de escala

$$\alpha \approx 0.50 \quad \text{e} \quad \beta \approx 0.33, \quad (2.65)$$

e em $d = 2 + 1$ foi obtido

$$\alpha \approx 0.40 \quad \text{e} \quad \beta \approx 0.25, \quad (2.66)$$

em bom acordo com os expoentes característicos da classe KPZ.

Analogamente ao modelo de DB, o modelo RSOS também apresenta um excesso de velocidade, mas nesse caso esse excesso se deve a recusa de partículas. A quantidade de partículas depositadas é menor que a quantidade de partículas que chegam ao substrato, logo a velocidade média da superfície é menor que o fluxo F de partículas e temos um excesso de velocidade negativo. Ao invés de um crescimento lateral temos uma recusa de crescimento lateral, mas de qualquer forma a deposição de uma partícula depende diretamente da normal local (normal inclinada geralmente implica em recusa da tentativa de deposição). Por essas características do modelo RSOS e pelos valores dos expoentes de escala podemos concluir que este está na classe KPZ. Como esse modelo apresenta correções de escala muito fracas [24], ele é o modelo mais representativo dessa classe, e é muitas vezes usado como um padrão para a comparação com outros modelos.

2.5 Resultados Experimentais para Superfícies com Grãos

Uma variedade de processos experimentais tais como eletrodeposição, corrosão de estruturas cristalinas, deposição por rf sputtering, entre outras, podem produzir superfícies formadas por grãos, ou seja, pequenos domínios da amostra que se caracterizam por ter a forma de montes que, geralmente, têm orientações cristalográficas diferentes. Arranjos desses grãos na superfície produzem uma interface formada por estruturas como vales e morros (ver figuras 2.18, 2.19 e 2.20). A formação destes grãos, por sua vez, pode depender de mecanismos microscópicos bastante complicados, que estão relacionados às propriedades do material depositado, das condições de nucleação, enfim, vários processos podem ser responsáveis pela formação de grãos num filme fino. Alguns modelos teóricos para o crescimento de filmes policristalinos mostraram a formação de grãos [22, 21, 20]. Como não estamos interessados em modelar os mecanismos de formação de grãos, mas simplesmente estudar os efeitos destes na escala da rugosidade, não discutiremos aqui detalhes dos mecanismos de crescimento, mas apresentaremos apenas os resultados obtidos para a escala da rugosidade.

Uma característica comum a todos os trabalhos que serão apresentados aqui é a presença de um *crossover* na escala da rugosidade local, como discutido na seção 2.2.3, que geralmente ocorre em um tamanho de janela da ordem do tamanho médio dos grãos da superfície.

Na deposição de óxido de zinco (ZnO) por pulverização pirolítica (*spray pyrolysis*), Ebothé et al [2] observaram dois comportamentos para a escala da rugosidade: para taxas de deposição pequenas a rugosidade escala com um expoente da rugosidade $\alpha \approx 0.40$ que foi associado à classe KPZ; com o aumento da taxa

de deposição um *crossover* foi observado de um expoente α_1 , que aumenta com a taxa de deposição, para um expoente $\alpha_2 \approx 0.16$, como mostrado na figura 2.18(a). A tabela 2.1 apresenta os valores dos expoentes medidos para cada taxa de deposição. O efeito de *crossover* foi associado à escala anômala da rugosidade [31, 32]. Na figura 2.18 mostramos imagens para pequenas (b) e grandes (c) taxas de deposição. Nesta última situação, é mais aparente a forma granular da superfície, com grandes diferenças de alturas locais entre grãos e a forma facetada destes. Podemos notar na tabela 2.1 que o tamanho de janela em que ocorre o *crossover* (L_0) é um pouco maior do que o tamanho médio do grão $\langle d \rangle$, mas da mesma ordem de grandeza. $\langle d \rangle$ é medido com um tratamento da imagem que isola as protuberâncias da superfície.

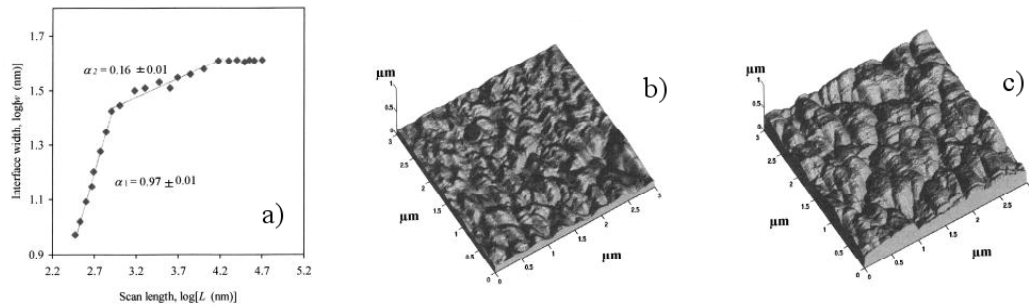


Figura 2.18: a)Variação da rugosidade local com o tamanho de janela, para um filme de espessura $1 \mu\text{m}$ e uma taxa de deposição $f = 7.5 \text{ ml min}^{-1}$. Imagens de AFM para as taxas: b) $f = 5 \text{ ml min}^{-1}$; c) $f = 7.5 \text{ ml min}^{-1}$ (Figuras retiradas da ref. [2]).

Na eletrodeposição de ligas binárias de Ni-Zn, feita por Hiane e Ebothé [3], também foi observada uma dependência da forma do grão com a velocidade de deposição. Na figura 2.19 mostramos superfícies obtidas para duas velocidades, sendo que em (a) podemos observar uma flutuação de alturas maior que em (b).

Flow rate, f (ml min^{-1})	Roughness exponent (α)	L_0 (μm)	$\Delta L = L_c - L_0$ (μm)	L_c/L_0	$\langle d \rangle$ (μm)
2.00	$\alpha = 0.40 \pm 0.03$	0.71
2.50	$\alpha = 0.41 \pm 0.02$	0.63
3.70	$\alpha = 0.40 \pm 0.01$	0.51
5.00	$\alpha_1 = 0.46 \pm 0.02$ $\alpha_2 = 0.16 \pm 0.01$	0.45	10.14	3.55	0.32
6.20	$\alpha_1 = 0.48 \pm 0.03$ $\alpha_2 = 0.16 \pm 0.02$	0.66	13.56	6.12	0.46
7.00	$\alpha_1 = 0.94 \pm 0.03$ $\alpha_2 = 0.15 \pm 0.03$	0.73	19.14	24.63	0.57
7.50	$\alpha_1 = 0.97 \pm 0.01$ $\alpha_2 = 0.16 \pm 0.01$	0.81	19.32	31.66	0.68

Tabela 2.1: Variação de alguns parâmetros da superfície de ZnO em função da taxa de deposição (retirada da ref. [2]).

Os expoentes da rugosidade obtidos nesses dois casos são (a) $\alpha_1 = 0.97 \pm 0.01$ e (b) $\alpha_1 = 0.83 \pm 0.02$. O expoente α_2 não foi mensurado nesse trabalho.

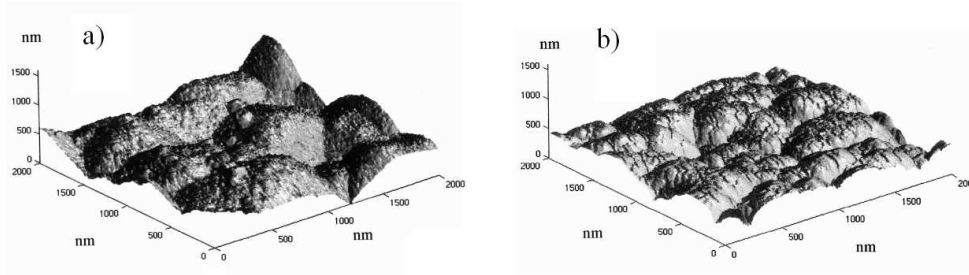


Figura 2.19: Imagens obtidas por AFM de superfícies de eletrodepósitos de ligas de Ni-Zn para as velocidades de crescimento: a) $v = 0.16 \mu\text{m/s}$; b) $v = 0.44 \mu\text{m/s}$ (retirada da ref. [3]).

Um aumento do expoente α_1 com o tamanho do grão, ou seja, com o aumento nas flutuações de alturas, também foi observado no crescimento camada-por-camada de filmes de poly(allylamine hydrochloride) [14], variando no intervalo $0.53 < \alpha_1 < 0.81$. O expoente α_2 encontrado nesse trabalho foi $\alpha_2 \approx 0.4$, que foi associado à classe KPZ.

Na deposição por rf sputtering de oxido de níquel NiO_x , Cruz et al [4] obser-

varam duas conformações de interfaces variando o fluxo de oxigênio no processo de deposição. Na figura 2.20 mostramos superfícies obtidas nessas duas situações e podemos observar que a estrutura granular é mais aparente em (b). Novamente foi encontrado um expoente α_1 maior nesse caso: $\alpha_1 = 0.70$, enquanto $\alpha_1 = 0.52$ em (a). Após o *crossover* foram obtidos os expoentes $\alpha_2 = 0.19$ em (a) e $\alpha_2 = 0.32$ em (b).

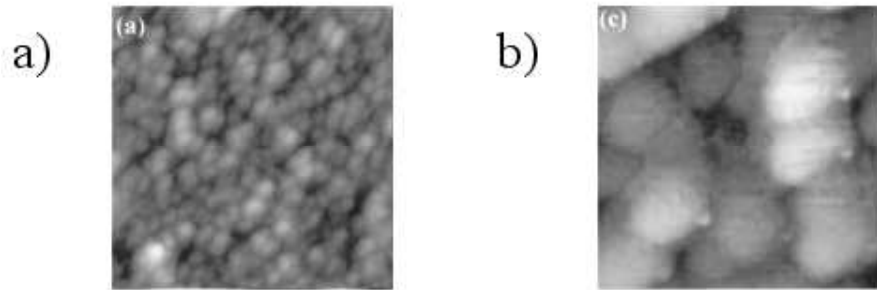


Figura 2.20: Imagens obtidas por AFM de superfícies de depositos de NiO_x para os fluxos de oxigênio: a) $f = 2.0$ scc/min; b) $f = 4.0$ scc/min. A altura dessas amostras são a) 17 e b) 12 nm. (retirada da ref. [4]).

Dotto e Kleinke [13] observaram expoentes $\alpha_1 \approx 0.8$ e $\alpha_2 \approx 0.4$ em corrosão de superfícies de silício. O expoente α_2 foi associado à escala KPZ e a variação no expoente $\alpha_1 < 1$ foi associada à diferença de altura abrupta na borda do grão. Além disso, eles explicaram o efeito de *crossover* como escala anômala da rugosidade.

Em uma série de outros trabalhos foram obtidos expoentes $\alpha_1 \approx 1$ e $\alpha_2 \approx 0.4$. Alguns deles são: *annealing*⁵ de filmes de LiCoO_x [12], eletrodeposição de filmes de ouro [18], deposição por sputtering de Al policristalino [15, 16] e ainda o crescimento camada-por-camada de filmes de poly(allylamine hydrochloride) [14]

⁵recozimento

que já citamos anteriormente. Uma característica comum à todos esses trabalhos é associar o expoente $\alpha_1 \approx 1$ à uma dinâmica de crescimento intra-grão dominada por difusão, ou seja, regida pela equação de crescimento de Wolf-Villain (ver subseção 2.3.4). De fato, para $d = 2 + 1$, aquela equação prevê $\alpha = 1$ exatamente. Na maioria desses trabalhos o expoente α_2 é associado à classe KPZ, descrevendo as correlações de larga escala.

O *crossover* de $\alpha_1 \approx 1$ para escala logarítmica (classe EW) foi sugerido em deposição por laser pulsado de perovskites [11] e em eletrodeposição de cobre com aditivos [17]. Nesse último trabalho é interessante comentar que, para o caso de eletrodeposição sem aditivos, a rugosidade satura aproximadamente no tamanho médio de grão, não sendo possível estimar o expoente α_2 . O expoente de crescimento β obtido nesse processo foi $\beta = 0.63 \pm 0.08$. No caso da deposição com aditivos, o *crossover* de crescimento linear para logarítmico é intermediado por uma região linear. Além disso, é observado também um *crossover* na escala da rugosidade com o tempo de um expoente $\beta \approx 0.25$ para crescimento logarítmico.

Capítulo 3

Modelos Simples de Superfícies com Grãos

3.1 Rede de Grãos Periódicos

Para analisar as propriedades do crescimento inicial da rugosidade local em superfícies com grãos, nós estudamos dois modelos bastante simples, consistindo de redes periódicas de grãos, onde não há correlações entre estes e nem dinâmica de crescimento, mas nos quais é possível se calcular a rugosidade analiticamente.

3.1.1 Rede de grãos retangulares

Nesse modelo nós consideramos como superfície uma onda quadrada, em $d = 1+1$, de amplitude h e período $2l$, como mostra a figura 3.1(a). Estando essa sobre um substrato discreto, com parâmetro de rede igual a um, de forma que um grão corresponde a l sítios do substrato com altura h . A rugosidade local W_{loc} é calculada em janelas de tamanho R varrendo todo o substrato. Podemos notar que a rugosidade calculada em janelas cuja posição inicial x_0 está sobre o topo

de um único grão se repete em janelas com x_0 sobre o vale. Assim, a rugosidade média do sistema, para um tamanho de janela R fixo, é igual à rugosidade média calculada de janelas com x_0 variando sobre o topo de um único grão.

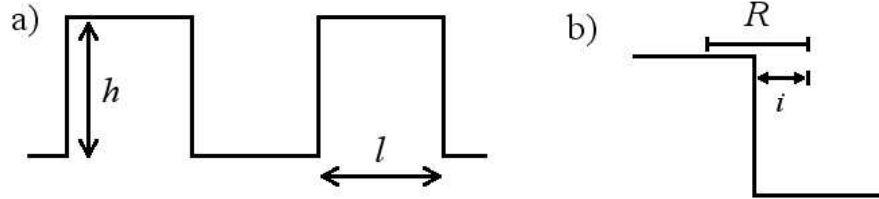


Figura 3.1: a) Rede periódica de grãos retangulares. b) Esquema ilustrativo da janela sobre a borda do grão.

Considerando então x_0 sobre o topo de um grão, temos $l - R + 1$ janelas totalmente sobre a superfície do grão, cuja rugosidade é nula, e temos $R - 1$ janelas cobrindo parcialmente tanto o grão quanto o vale, com rugosidade não nula. Se temos i sítios sobre o vale (ver fig. 3.1(b)), o que implica em $R - i$ sítios sobre o grão, a altura média dessa janela é

$$\langle h \rangle = \frac{(R - i)h}{R} \quad (3.1)$$

e a altura média ao quadrado

$$\langle h^2 \rangle = \frac{(R - i)h^2}{R}. \quad (3.2)$$

Então temos a rugosidade ao quadrado

$$W_{loc_i}^2 = \langle h^2 \rangle - \langle h \rangle^2 = \frac{i(R - i)h^2}{R^2}. \quad (3.3)$$

O seu valor médio é dado por

$$\langle W_{loc}^2 \rangle = \frac{1}{l} \sum_{i=1}^{R-1} W_{loc_i}^2 = \frac{h^2}{lR^2} \sum_{i=1}^{R-1} i(R - i). \quad (3.4)$$

No limite de janelas grandes, temos $R \gg 1$ e, sem perda de generalidade, podemos transformar a soma em uma integral, logo

$$\langle W_{loc}^2 \rangle = \frac{h^2}{lR^2} \int_0^R i(R-i) = \frac{h^2 R}{6l}, \quad (3.5)$$

que é a rugosidade quadrática local.

Porém, é mais comum que se meça a rugosidade (dimensão física de comprimento) dentro de cada janela e depois se calcule uma média, em vez de se calcular uma média de rugosidades quadráticas (dimensão física de área). Pela equação 3.3 temos a rugosidade

$$W_{loc_i} = \frac{h\sqrt{i(R-i)}}{R} \quad (3.6)$$

na janela i , então no limite em que $R \gg 1$

$$W_{loc} = \langle W_{loc_i} \rangle = \frac{h}{lR} \int_0^R di \sqrt{i(R-i)}. \quad (3.7)$$

Resolvendo essa integral encontramos

$$W_{loc} = \frac{\pi h R}{8l}. \quad (3.8)$$

Enfim, a rugosidade W_{loc} e a rugosidade ao quadrado $W_{2_{loc}}$, locais, escalam com o tamanho da janela,

$$W_{2_{loc}} \sim W_{loc} \sim R, \quad (3.9)$$

como consequência da média configuracional sobre uma fração de janelas de alta rugosidade proporcional à R .

3.1.2 Rede de grãos em forma de paralelepípedos

Generalizando a rede de grãos retangulares para $d = 2 + 1$, nós consideramos esta na forma de um tabuleiro de xadrez (ver figura 3.2), com grãos de base quadrada de lado l e com altura h .

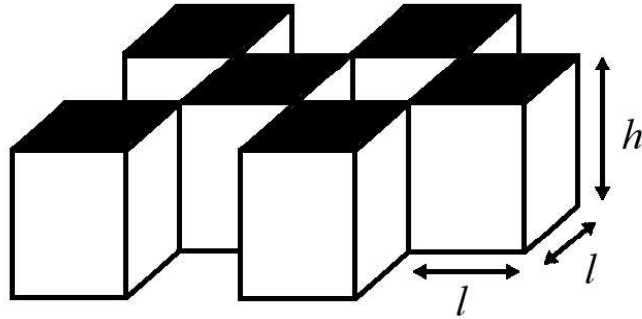


Figura 3.2: Esquema ilustrativo de uma rede periódica, tipo tabuleiro de xadrez, com grãos em forma de paralelepípedo.

Analogamente ao caso unidimensional, podemos calcular a rugosidade média usando janelas que tenham o sítio inicial na superfície de um único grão, pois as posições restantes serão repetições dessa configuração. Podemos dividir o topo do grão em três regiões com contribuições distintas para a rugosidade, conforme indicado pelas linhas pontilhadas da figura 3.3(a).

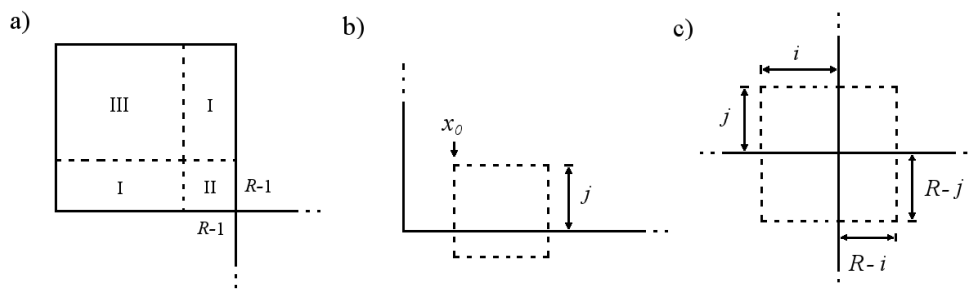


Figura 3.3: a) Regiões da superfície do grão com diferentes rugosidades. Esquema ilustrativo da variação da janela (linhas pontilhadas) na região: b) I; c) II.

Na região III temos a janela totalmente sobre o grão, o que nos dá uma rugosidade nula.

Nas regiões I a janela cobre sítios sobre um grão e sobre um vale, conforme

mostramos na figura 3.3(b). Se fixarmos uma posição inicial x_0 para a janela e a fizermos correr ao longo de j , com $1 \leq j \leq R - 1$, é fácil notar que teremos exatamente a rugosidade calculada no caso unidimensional. Além disso, como temos duas regiões I idênticas, cada uma com $l - R + 1$ posições possíveis para x_0 , temos $\langle W^I \rangle = \frac{2(l-R+1)}{l} W_{(d=1+1)}$. Então pelas equações 3.5 e 3.8, temos a contribuição para a rugosidade quadrática média

$$W_{2_{loc}}^I = \frac{(l - R + 1)h^2 R}{3l^2} \quad (3.10)$$

e a contribuição para a rugosidade média

$$W_{loc}^I = \frac{(l - R + 1)\pi h R}{4l^2}. \quad (3.11)$$

Na região II temos a janela com pontos sobre dois grãos e dois vales. Conforme mostrado na figura 3.3(c), se temos ij sítios de uma janela sobre um grão, teremos $(R - i)(R - j)$ sobre o outro, o que nos dá $R^2 + 2ij - R(i + j)$ sítios de altura h , com $i, j = 1, \dots, R - 1$. Então podemos escrever a rugosidade

$$(W_{loc}^{II})_{ij}^2 = \frac{(R^2 + 2ij - R(i + j))h^2}{R^2} - \frac{(R^2 + 2ij - R(i + j))^2 h^2}{R^4} \quad (3.12)$$

logo

$$(W_{loc}^{II})_{ij}^2 = h^2 \left\{ \frac{-4ij}{R^2} + \frac{i}{R} + \frac{j}{R} - \frac{4i^2 j^2}{R^4} + \frac{4i^2 j}{R^3} + \frac{4ij^2}{R^3} - \frac{i^2}{R^2} - \frac{j^2}{R^2} \right\}. \quad (3.13)$$

Assim, a contribuição da região II para o valor médio da rugosidade ao quadrado é

$$W_{2_{loc}}^{II} = \langle (W_{loc}^{II})_{ij}^2 \rangle = \frac{1}{l^2} \sum_{i=1}^{R-1} \sum_{j=1}^{R-1} (W_{loc}^{II})_{ij}^2. \quad (3.14)$$

Novamente tomando o limite de janelas grandes ($R \gg 1$), temos

$$W_{2_{loc}}^{II} = \frac{h^2}{l^2} \int_0^R di \int_0^R dj \left\{ \frac{-4ij}{R^2} + \frac{i}{R} + \frac{j}{R} - \frac{4i^2 j^2}{R^4} + \frac{4i^2 j}{R^3} + \frac{4ij^2}{R^3} - \frac{i^2}{R^2} - \frac{j^2}{R^2} \right\}. \quad (3.15)$$

Resolvendo a integral dupla obtemos

$$W_{2_{loc}}^{\text{II}} = \frac{2h^2 R^2}{9l^2}. \quad (3.16)$$

Podemos reescrever a rugosidade ao quadrado (eq. 3.13) na forma

$$(W_{loc}^{\text{II}})_{ij}^2 = h^2 \left\{ -i^2 \left[\frac{4j^2}{R^4} - \frac{4j}{R^3} + \frac{1}{R^2} \right] + iR \left[\frac{4j^2}{R^4} - \frac{4j}{R^3} + \frac{1}{R^2} \right] + \frac{j}{R} - \frac{j^2}{R^2} \right\}, \quad (3.17)$$

então definindo $a_j^2 \equiv \left[\frac{4j^2}{R^4} - \frac{4j}{R^3} + \frac{1}{R^2} \right]$ temos a rugosidade da janela ij

$$(W_{loc}^{\text{II}})_{ij} = ha_j \sqrt{\frac{1}{4a_j^2} - \left(i - \frac{R}{2} \right)^2}. \quad (3.18)$$

No limite contínuo, temos a contribuição para a rugosidade média

$$W_{loc}^{\text{II}} = \langle (W_{loc}^{\text{II}})_{ij} \rangle = \frac{h}{l^2} \int_0^R dj a_j \int_0^R di \sqrt{\frac{1}{4a_j^2} - \left(i - \frac{R}{2} \right)^2}. \quad (3.19)$$

Resolvendo a integral em i obtemos

$$W_{loc}^{\text{II}} = \frac{h}{4l^2} \int_0^R dj \left[R \sqrt{1 - (a_j R)^2} + \frac{\sin^{-1}(a_j R)}{a_j} \right]. \quad (3.20)$$

Integrando $\sqrt{1 - (a_j R)^2}$ obtemos o valor $\frac{\pi R^2}{4}$. Por outro lado, temos

$$\int_0^R dj \frac{\sin^{-1}(a_j R)}{a_j} = R^2 \int_0^1 du \frac{\sin^{-1}(u)}{u} = \frac{\pi \ln 2}{2} R^2. \quad (3.21)$$

Dessa forma, encontramos

$$W_{loc}^{\text{II}} = \frac{hR^2}{4l^2} \left(\frac{\pi}{2} \right) \left(\ln 2 + \frac{1}{2} \right). \quad (3.22)$$

Agora, como $W = W^{\text{I}} + W^{\text{II}}$, pelas equações 3.10 e 3.16 obtemos

$$W_{2_{loc}} = \left(\frac{h^2}{3l} \right) R \left[1 - \left(\frac{1}{3l} \right) R \right] \quad (3.23)$$

e de 3.11 e 3.22 temos

$$W_{loc} = \left(\frac{\pi h}{4l} \right) R \left[1 - \left(\frac{3 - 2 \ln 2}{4l} \right) R \right]. \quad (3.24)$$

Enfim, analogamente ao caso unidimensional, a rugosidade e a rugosidade ao quadrado escalam com o tamanho da janela. A rugosidade escalando linearmente com R nos dá o expoente $\alpha = 1$. Esse valor é geralmente associado à um processo dominado por difusão (equação de Wolf-Villain) na dinâmica dentro do grão, como discutimos na seção 2.5. Porém, em nosso modelo a rugosidade interna do grão é nula, pois sua superfície é lisa, e mesmo assim obtemos $\alpha = 1$ pois, esse expoente se origina das grandes diferenças de altura nas bordas dos grãos e não da dinâmica de crescimento interna deste. Isso se confirma pela rugosidade ao quadrado, que também cresce linearmente com R , devido aos grandes desníveis entre grãos e vales. Podemos então concluir que o expoente $\alpha = 1$ é simplesmente um efeito da geometria do grão e não está relacionado à uma dinâmica particular de crescimento interno do grão. Ou seja, independentemente da dinâmica, se temos uma superfície formada por grãos teremos $\alpha \approx 1$. Assim, não podemos, com base apenas no expoente α , inferir sobre a dinâmica de crescimento interna do grão e tão pouco afirmar que o grão se forma num processo dominado por difusão (classe de Wolf-Villain) como é sugerido em muitos trabalhos experimentais.

Podemos notar nas eqs. 3.23 e 3.24 que aparecem correções de escala na rugosidade com amplitudes negativas, ou seja, que tendem a diminuir o valor da rugosidade. Porém, essas correções têm valores de aproximadamente $0.33R/l$ e $0.40R/l$ para $W_{2_{loc}}$ e W_{loc} , respectivamente. Por exemplo, para $R/l \approx 0.2$ temos um desvio menor que 10% na rugosidade, ou seja, o efeito dessas correções é pequeno para janelas bem menores que o tamanho do grão. De fato, isso será confirmado nas próximas seções e no próximo capítulo com modelos de crescimento.

3.1.3 Rede de grãos trapezoidais

No grão retangular e no paralelepípedo, apresentados nas subseções anteriores, há uma diferença de alturas abrupta entre o topo do grão e o vale, que não deve corresponder ao que acontece em um grão real. Para levar em conta essa propriedade nós calculamos a rugosidade em uma rede de grãos com forma trapezoidal, ou seja, com a altura variando mais lentamente entre o topo de um grão e um vale.

Nós consideramos trapézios de altura h e bases l e $l + 2a$, como mostramos na figura 3.4(a). Pela periodicidade da rede, podemos calcular a rugosidade média apenas sobre janelas com posições x_0 variando sobre um vale e sobre um trecho inclinado do trapézio, pois todas as outras configurações são repetições destas. Assim, sobre o vale temos $l - R + 1$ janelas, com rugosidade nula e temos $a + R - 1$ janelas com sítios na região inclinada e no vale e/ou topo do grão, com rugosidade não nula. Vamos considerar janelas de tamanho $R > a$, para que esta possa sempre cobrir todo o trecho inclinado.

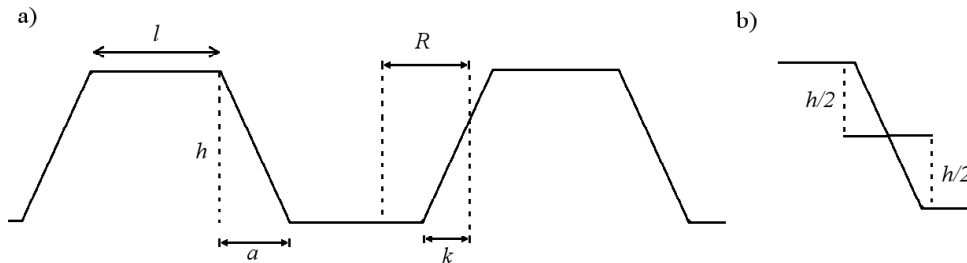


Figura 3.4: a) Grão trapezoidal. b) Janela de altura média $h/2$.

Conforme mostrado na figura 3.4(a), se temos k sítios da janela sobre a região inclinada, com $k \leq a$, teremos $R - k$ sítios sobre o vale (altura nula). Então, para

a janela com posição final k temos

$$\langle h_I \rangle = \frac{h}{2aR}(k^2 + k) \quad (3.25)$$

e

$$\langle h_I^2 \rangle = \frac{h^2}{6a^2R}(2k^3 + 3k^2 + k). \quad (3.26)$$

O que nos dá a rugosidade ao quadrado

$$(W_{loc}^I)_k^2 = \frac{h^2}{4a^2R^2} \left\{ -k^4 + \frac{4R-6}{3}k^3 + (2R-1)k^2 + \frac{2R}{3}k \right\}. \quad (3.27)$$

Porém, se temos $k > a$ haverá, também, $k - a$ sítios com altura h , então

$$\langle h_{II} \rangle = \frac{h(a+1)}{2R} + \frac{h(k-a)}{R} \quad (3.28)$$

e

$$\langle h_{II}^2 \rangle = \frac{h^2(2a^2 + 3a + 1)}{6aR} + \frac{h^2(k-a)}{R}. \quad (3.29)$$

Então, temos a rugosidade ao quadrado

$$(W_{loc}^{II})_k^2 = \frac{h^2}{R^2} \{ b - k^2 + (R+a-1)k \}. \quad (3.30)$$

com

$$b \equiv R \left(\frac{-2a}{3} + \frac{1}{2} + \frac{1}{6a} \right) - \frac{a^2}{4} + \frac{a}{2} - \frac{1}{4}. \quad (3.31)$$

Podemos notar que a rugosidade de uma janela com altura média $h/2 - s$ é igual à rugosidade de uma janela cuja altura média é $h/2 + s$, ou seja, há uma simetria em torno da altura $h/2$ (ver fig. 3.4(b)). Então, a rugosidade média calculada com k variando de 1 até $R+a$, para a janela varrer toda a região inclinada (o que significa que a altura média varia de 0 até h), é igual à duas vezes a rugosidade média calculada com k variando de 1 a $(R+a)/2$. Assim, temos a rugosidade ao quadrado média

$$W_{2_{loc}} = \frac{2}{l+a} \left\{ \sum_{k=1}^a (W_{loc}^I)_k^2 + \sum_{k=a+1}^{\frac{R+a}{2}} (W_{loc}^{II})_k^2 \right\}, \quad (3.32)$$

e para janelas grandes ($R \gg 1$) podemos escrever

$$W_{2_{loc}} = \frac{2}{l+a} \left\{ \int_0^a dk (W_{loc}^I)_k^2 + \int_a^{\frac{R+a}{2}} dk (W_{loc}^{II})_k^2 \right\}. \quad (3.33)$$

Resolvendo essas integrais obtemos

$$W_{2_{loc}} = \frac{h^2 R}{6(l+a)} \left[1 + \frac{3}{2R} - \frac{3}{2R^2} + \frac{a^2}{2R^2} - \frac{a^3}{10R^3} + \frac{a}{2} \left(\frac{1}{R^3} - \frac{2}{R^2} - \frac{2}{R} \right) + \frac{1}{aR} \right] \quad (3.34)$$

e no limite de $R, a \gg 1$, com a/R finito, obtemos

$$W_{2_{loc}} = \frac{h^2 R}{6(l+a)} \left[1 - \left(\frac{a}{R} \right) + \frac{1}{2} \left(\frac{a}{R} \right)^2 - \frac{1}{10} \left(\frac{a}{R} \right)^3 \right] \quad (3.35)$$

É interessante notar que fazendo $a = 0$, ou seja, no caso do grão retangular, recuperamos o resultado obtido anteriormente para aquela configuração (eq. 3.5).

A rugosidade local para uma dada janela numa posição determinada por k é a raiz quadrada das equações 3.27 e 3.30. Então, para janelas grandes, temos a rugosidade média

$$W_{loc} = \frac{2}{l+a} \left\{ \int_0^a dk (W_{loc}^I)_k + \int_a^{\frac{l+a}{2}} dk (W_{loc}^{II})_k \right\}, \quad (3.36)$$

A primeira integral pode ser escrita como

$$\int_0^a dk (W_{loc}^I)_k = \frac{h}{2R} \int_{\frac{1}{2} - \frac{2R}{3}}^{a + \frac{1}{2} - \frac{2R}{3}} dx \sqrt{\left(\left[\frac{x}{a} + \frac{2R}{3a} \right]^2 - \frac{1}{4a^2} \right) (u^2 - x^2)}, \quad (3.37)$$

onde $u \equiv \frac{4R^2}{9} + \frac{1}{4}$. A solução exata dessa integral é bastante complicada e como estamos interessados no limite de $R, a \gg 1$ com a/R finito, podemos fazer $\frac{1}{4a^2} \approx 0$, logo

$$\int_0^a dk (W_{loc}^I)_k = \frac{h}{2R} \int_{\frac{1}{2} - \frac{2R}{3}}^{a + \frac{1}{2} - \frac{2R}{3}} dx \left(\frac{x}{a} + \frac{2R}{3a} \right) \sqrt{u^2 - x^2} \quad (3.38)$$

cuja solução assintótica é

$$\int_0^a dk (W_{loc}^I)_k = \frac{hR}{8} \left[\frac{16\sqrt{3}}{15} \left(\frac{a}{R} \right)^{\frac{3}{2}} + O \left(\left(\frac{a}{R} \right)^{\frac{5}{2}} \right) \right] \quad (3.39)$$

Para a segunda integral temos

$$\int_a^{\frac{R+a}{2}} dk (W_{loc}^{II})_k = \frac{hR}{8} \left[\frac{\pi}{2} - \frac{4\sqrt{2}}{3} \left(\frac{a}{R}\right)^{\frac{3}{2}} + O\left(\left(\frac{a}{R}\right)^{\frac{5}{2}}\right) \right]. \quad (3.40)$$

Então, temos a rugosidade média

$$W_{loc} = \frac{\pi h}{8(l+a)} R \left[1 - \left(\frac{8\sqrt{2}}{3\pi} - \frac{32\sqrt{3}}{15\pi} \right) \left(\frac{a}{R}\right)^{\frac{3}{2}} + O\left(\left(\frac{a}{R}\right)^{\frac{5}{2}}\right) \right]. \quad (3.41)$$

Analogamente ao grão retangular, a rugosidade e a rugosidade ao quadrado escalam com R , para o grão trapezoidal. Nas eqs. 3.35 e 3.41 verificamos a presença de correções de escala da ordem de potências de $\frac{a}{R}$, ou seja, correções que tendem a tornar o valor do expoente efetivo ($\alpha_{1_{ef}}$) menor que o valor assintótico $\alpha_1 = 1$. Como estamos interessados em situações onde $R \gg a$ o efeito dessas correções é pequeno para a rugosidade ao quadrado. Além disso, para a rugosidade temos aproximadamente $0.02 \left(\frac{a}{R}\right)^{\frac{3}{2}}$, ou seja, correções sempre menores que 2% para qualquer $a < R$ e que para $R \gg a$ se tornam praticamente desprezíveis. Podemos concluir então, que o crescimento linear da rugosidade com o tamanho de janela é pouco influenciado pela forma das bordas dos grãos.

3.2 Modelos Ampliados

Nos modelos que estudamos na seção anterior não havia nenhum tipo de correlação entre as alturas dos grãos, logo a rugosidade local atingia o valor da rugosidade global em um tamanho de janela próximo do tamanho do grão ($R \approx l$) e, portanto, nenhum *crossover* poderia ser observado. Aqui nós estudaremos dois modelos onde geramos superfícies com correlações entre os grãos, a partir de superfícies obtidas com os modelos RSOS e RDSR (ver seção 2.4). Esses modelos foram escolhidos por serem representativos das classes de universalidade KPZ e

EW, respectivamente, e por não produzirem grandes diferenças de altura locais na superfície.

Para obter a superfície com grãos nós simulamos os modelos RSOS e RDSR, em um substrato de tamanho L' , até tempos suficientemente longos para que altas correlações (KPZ ou EW) fossem atingidas, mas bem anteriores à saturação da rugosidade, de forma a paralelizarmos as condições dos filmes finos reais, onde o comprimento de correlação é sempre muito menor que o tamanho do substrato ($1 \ll \xi_{||} \ll L'$). Então nós ampliamos cada partícula da superfície por um fator l , em todas as suas $d = 2 + 1$ dimensões, obtendo uma superfície com grãos de tamanho l em um substrato de largura $L = L'l$. Na figura 3.5 mostramos um exemplo de ampliação de parte de uma superfície RSOS por um fator $l = 4$ em $d = 1 + 1$.

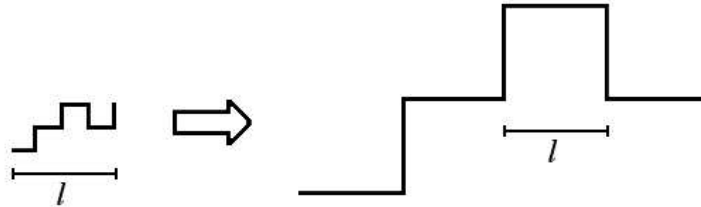


Figura 3.5: Exemplo de ampliação de um agregado RSOS por um fator $l = 4$.

Para analisar a influência da forma da superfície do grão na escala da rugosidade local, além de ampliar a superfície com grãos hipercúbicos de face lisa, nós também usamos grãos cuja face superior tem a forma arredondada. Este 'truque' de ampliar uma superfície normal (formada por partículas) com grãos de forma arredondada se assemelha ao procedimento de Vázquez et al [18] para explicar o *crossover* na rugosidade local em um processo de eletrodeposição de filmes de ouro. Porém, nenhuma análise sistemática do efeito da forma do grão foi feita

naquele trabalho, que sequer cita o modelo que foi usado para a ampliação.

Para obter o grão com a superfície arredondada, em $d = 1 + 1$, nós cortamos o topo do grão quadrado com um semicírculo de raio r e descartamos a parte do grão que fica fora dele (ver figura 3.6(a)). Nesse procedimento, quanto menor o raio r do semi-círculo, mais arredondado é o grão. Em nossas simulações usamos sempre grãos de tamanho $l = 32$ e semi-círculos de raio $r = 16, 22, 28$ e 34 , cujas formas são mostradas na figura 3.6(b). Em $d = 2 + 1$, o procedimento para produzir grãos arredondados é o mesmo, mas nesse caso cortamos o grão cúbico por uma semi-esfera de raio r . Novamente usamos um tamanho de grão $l = 32$ e simulamos os casos $r = 22, 28$ e 34 .

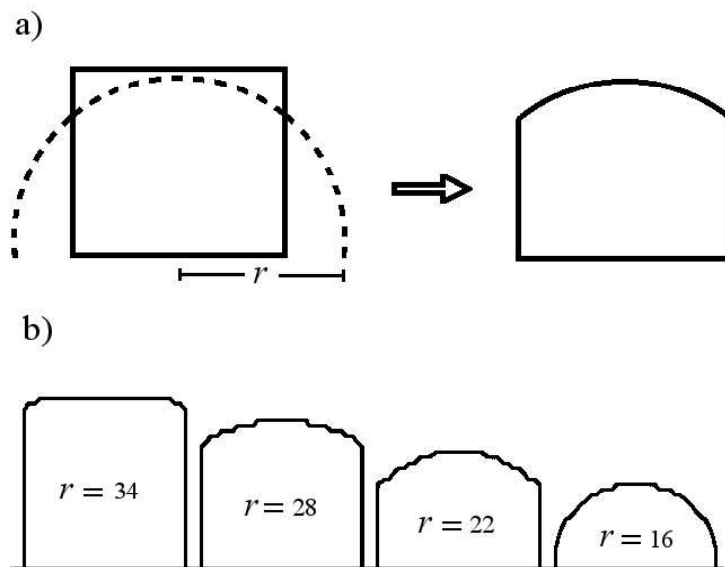


Figura 3.6: a) Esquema ilustrativo do procedimento usado para arredondar a superfície do grão. b) Exemplos de grãos de tamanho 32 suavizados.

Ambos os modelos foram crescidos em um substrato de tamanho $L' = 1024$ em $d = 1 + 1$ e $L' = 128$ em $d = 2 + 1$, obtendo-se assim substratos ampliados de tamanhos $L = 32768$ e $L = 4096$, respectivamente. Em $d = 1 + 1$ crescemos

500 amostras, e em $d = 2 + 1$ foram crescidas 100 amostras. Os resultados dessas simulações estão apresentados nas próximas subseções.

3.2.1 Resultados para o Modelo RSOS Ampliado

As superfícies RSOS foram crescidas até um tempo $t = 500$ e então foi feita a ampliação, em $d = 1 + 1$. Na figura 3.7 mostramos as curvas da rugosidade local W_{loc} em função do tamanho da janela para diferentes raios de corte r . O caso $r = \infty$ corresponde ao grão quadrado. Podemos observar nessas curvas um *crossover* de um crescimento rápido de W_{loc} com R para um crescimento mais lento. Estimamos o tamanho de janela R_c no qual ocorre esse *crossover* através do ponto onde as retas de ajuste das regiões lineares $R \ll R_c$ e $R_c \ll R \ll L$ se cruzam (como ilustrado na fig. 2.9). Obtemos R_c variando de $R_c = 40$, para $r = \infty$, até $R_c = 28$, para $r = 16$.

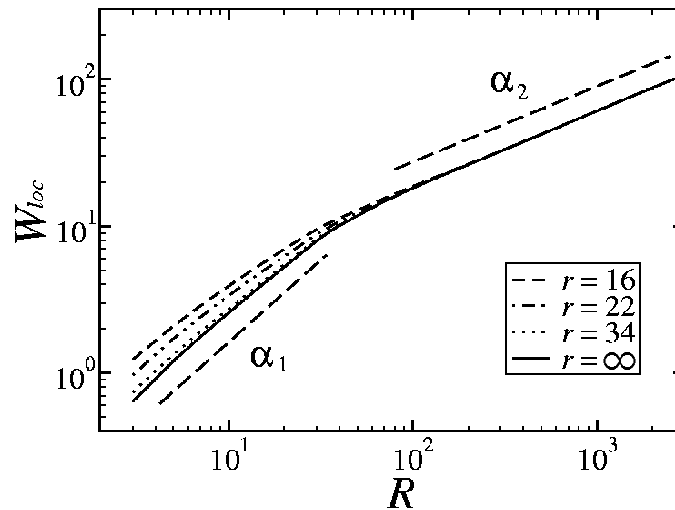


Figura 3.7: Rugosidade local variando com o tamanho de janela para o modelo RSOS ampliado em $d = 1 + 1$ e $t = 500$.

Após o *crossover*, a rugosidade local não depende da forma do grão, ou seja,

flutuações de altura de pequena escala não são percebidas. Então, fazendo ajustes lineares na região $R_c \ll R \ll L$ obtemos o expoente $\alpha_2 = 0.50 \pm 0.01$, que está de acordo com o valor esperado para a classe KPZ em $d = 1 + 1$.

Em pequenos tamanhos de janela ($R \ll R_c$), a escala da rugosidade local apresenta uma dependência significativa com a forma do grão. Para o grão quadrado ($r = \infty$), temos o crescimento linear de W_{loc} com R ($\alpha_1 = 1.00 \pm 0.03$) e a medida que tornamos o grão mais arredondado, este crescimento se torna gradualmente mais lento. Para o grão com a superfície mais curvada ($r = 16$), temos um expoente $\alpha_1 = 0.87 \pm 0.02$.

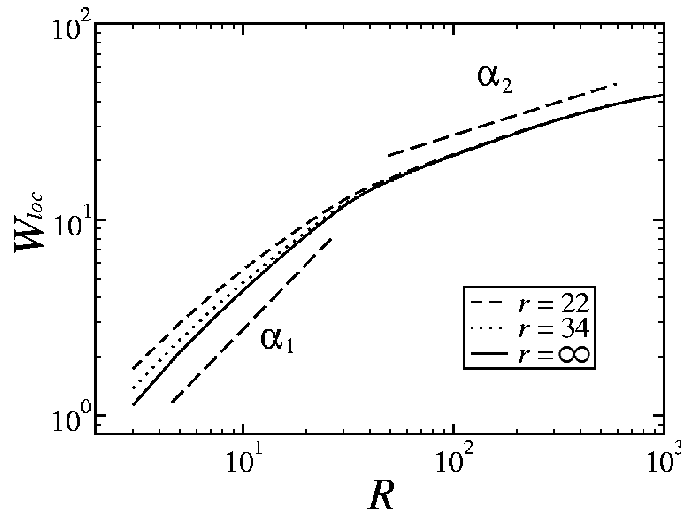


Figura 3.8: Rugosidade local variando com o tamanho de janela para o modelo RSOS ampliado em $d = 2 + 1$ e $t = 350$.

Em $d = 2 + 1$, crescemos o depósito RSOS até 350 camadas de partículas. A variação da rugosidade local com R está mostrada na figura 3.8. Assim como em $d = 1 + 1$, nós observamos um *crossover*, que aqui ocorre em $R_c = 30 \pm 2$, portanto, com fraca dependência em r . Para o grão cúbico ($r = \infty$), W_{loc} cresce linearmente com R em pequenos tamanhos de janela, e para o grão mais arredondado ($r = 22$)

temos $\alpha_1 = 0.85 \pm 0.02$. Na região $R_c \ll R \ll L$ obtivemos o expoente $\alpha_2 = 0.40 \pm 0.01$, conforme esperado para a classe KPZ, para todo r .

Os expoentes $\alpha_1 \approx 1$ e $\alpha_2 \approx 0.4$ estão em bom acordo com aqueles encontrados na maioria dos trabalhos experimentais com a presença de grãos na superfície. Assim, esse modelo está confirmando que, de fato, as correlações entre grãos podem ser associadas à classe KPZ nesses trabalhos.

Um corte de uma interface obtida com esse modelo, em $d = 2 + 1$, está mostrada na figura 3.9, onde podemos notar que as variações de altura entre grãos não são muito grandes (característica do modelo RSOS). Essa figura se assemelha bastante com cortes de superfícies de filmes finos reais mostrados nas refs. [18, 14, 16], onde os expoentes encontrados concordam com $\alpha_1 \sim 1$ e $\alpha_2 \sim 0.4$.

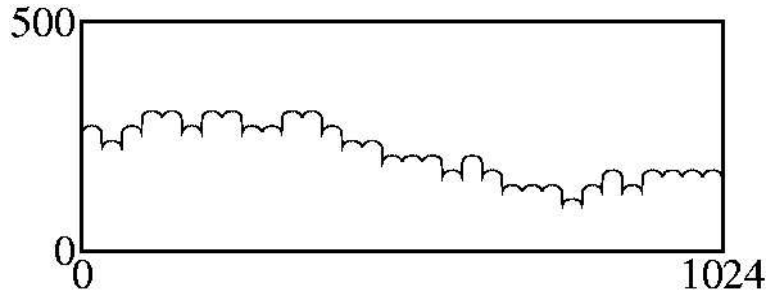


Figura 3.9: Corte de uma interface obtida pelo modelo RSOS ampliado em $d = 2 + 1$.

3.2.2 Resultados para o Modelo RDSR Ampliado

Nós construímos também superfícies na classe EW, para verificar a influência da classe de universalidade do modelo ampliado nos resultados obtidos na subseção anterior. Em $d = 1 + 1$, nós crescemos a superfície para o modelo RDSR até

um tempo $t = 1000$. As curvas da rugosidade local são praticamente idênticas àquelas mostradas na figura 3.7, para o modelo RSOS. O tamanho de janela em que ocorre o *crossover* (R_c) varia no intervalo $31 \leq R_c \leq 46$, novamente diminuindo com r .

Os expoentes obtidos nas regiões anterior e posterior ao *crossover* também são iguais (dentro das barras de erro) aos obtidos para o modelo RSOS. Isso sugere que esses expoentes, para $R \ll R_c$, só dependam da forma do grão e não sofram nenhuma influência das correlações entre grãos. Lembramos que, em $d = 1 + 1$, o expoente da rugosidade da classe EW (modelo RDSR) é igual ao da classe KPZ (modelo RSOS).

Em $d = 2 + 1$, crescemos a superfície RDSR até um tempo $t = 500$ e, como mostramos na figura 3.10, o comportamento da região $R \ll R_c$ é idêntico ao do modelo RSOS, com expoentes variando no intervalo $0.85 \lesssim \alpha_1 \lesssim 1$.

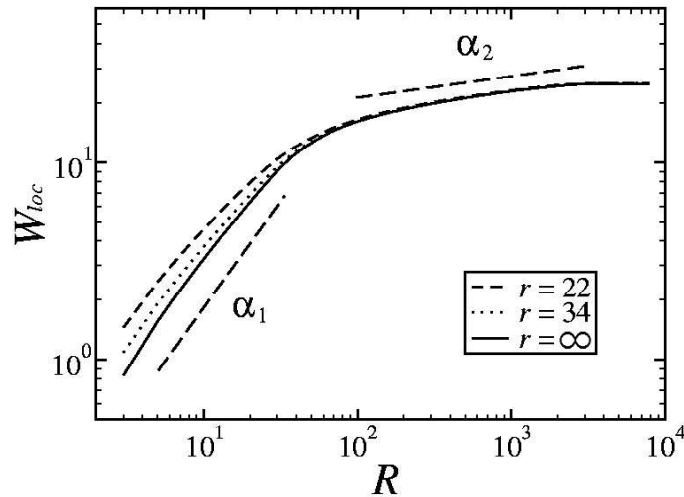


Figura 3.10: Rugosidade local variando com o tamanho de janela para o modelo RDSR ampliado em $d = 2 + 1$.

Estimando o tamanho de janela onde ocorre o *crossover* encontramos valores

no intervalo $40 \leq R_c \leq 50$, um pouco acima do tamanho médio do grão. Isso pode estar ligado ao fato de que não devemos ajustar a região $R_c \ll R \ll L$ por uma reta no gráfico Log-Log, pois, como discutimos na seção 2.4, em $d = 2 + 1$ esperamos um comportamento logarítmico da rugosidade na classe EW. Esse comportamento é observado na figura 3.11, onde mostramos W_{loc} versus $\text{Log}(R)$ e obtemos uma reta em uma pequena região onde $R_c \ll R \ll L$.

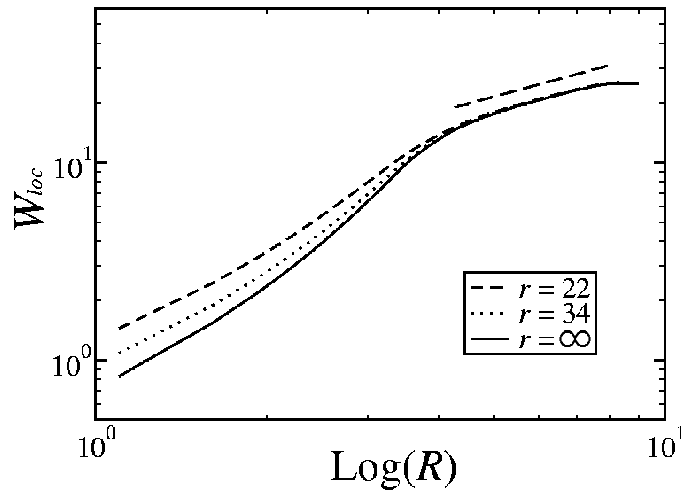


Figura 3.11: Rugosidade local variando com o logaritmo do tamanho da janela para o modelo RDSR ampliado em $d = 2 + 1$.

Os resultados para $R \ll R_c$, que são idênticos para ambos os modelos RSOS e RDSR ampliados, estão mostrando que o expoente α_1 efetivo menor que um, encontrado na maioria dos trabalhos experimentais, se deve à forma da superfície do grão. Isso explica porquê em muitos trabalhos esse expoente cresce à medida que o grão se torna maior e mais facetado. Expoentes próximos de 1(um) indicam que a superfície do grão é praticamente lisa. Por outro lado, expoentes menores sugerem que o grão tenha uma forma mais arredondada. Além disso, como vimos na seção anterior para o grão trapezoidal, um arredondamento da

borda do grão também pode levar à redução de α_1 efetivo. Isso nos leva à inferir que expoentes (α_1) menores do que 0.85, encontrados em vários trabalhos, devem estar associados à grãos cuja superfície é arredondada, assim como sua borda.

Outra conclusão importante que podemos tirar desses resultados é que a escala da rugosidade em $R \ll R_c$ não é influenciada significativamente pelo tipo de correlação existente entre os grãos. Da mesma forma, a escala em $R \gg R_c$ é independente da forma do grão. O tamanho de janela onde ocorre o *crossover*, por outro lado, apresenta uma pequena variação com a forma do grão, mas é sempre da mesma ordem do tamanho deste ($R_c \sim l$). Para o modelo RSOS em $d = 2 + 1$, este apresenta variações muito pequenas com a forma do grão o que sugere que estimativas de R_c podem ser boas estimativas de l . Isso será confirmado por resultados com outros modelos no próximo capítulo.

3.2.3 Rugosidade média \times Rugosidade rms

Também calculamos a rugosidade quadrática local nos modelos anteriores, para verificar se o comportamento previsto nos modelos de rede periódica de grãos ($W_{2_{loc}}$ escalando com R) se confirma para a região $R \ll R_c$.

Na figura 3.12 mostramos as curvas de W_{loc} e $(W_{2_{loc}})^{1/2} \equiv W_{rms,loc}$ para o modelo RSOS ampliado em $d = 1 + 1$, e na figura 3.13 em $d = 2 + 1$. Para $R \gg R_c$, as curvas são praticamente idênticas, como deveríamos esperar. Porém, para $R \ll R_c$, essas curvas diferem, com $W_{loc} \sim R$ e $W_{rms,loc} \sim R^{1/2}$, o que indica que $W_{2_{loc}} \sim R$, como obtivemos para as redes periódicas de grãos.

Podemos notar ainda na fig. 3.12 que a curva de $W_{rms,loc}$ cresce sem apresentar *crossover* e este é difícil de ser notado em 3.13. Isso se deve ao fato de que $\alpha_2 \approx 0.5$ em $d = 1 + 1$, $\alpha_2 \approx 0.4$ em $d = 2 + 1$ e $\alpha_1 \approx 0.5$, deixando o *crossover* imperceptível. Esse resultado sugere que estimar expoentes de escala a partir da

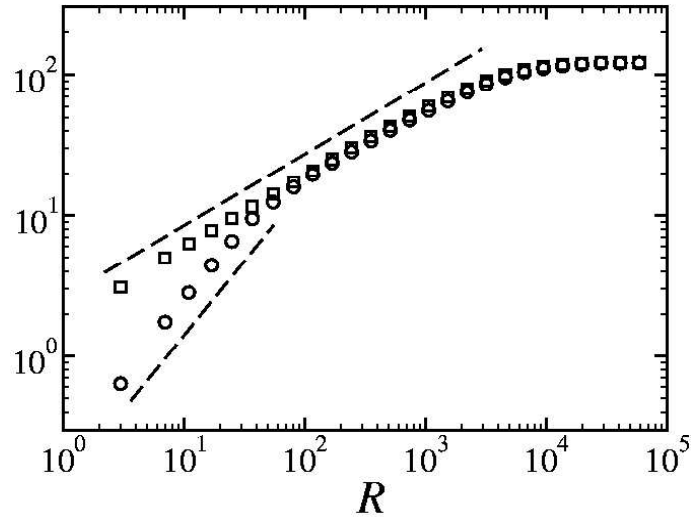


Figura 3.12: W_{loc} (\circ) e $W_{rms,loc}$ (\square), variando com o tamanho da janela R em $d = 1 + 1$, para o modelo RSOS ampliado.

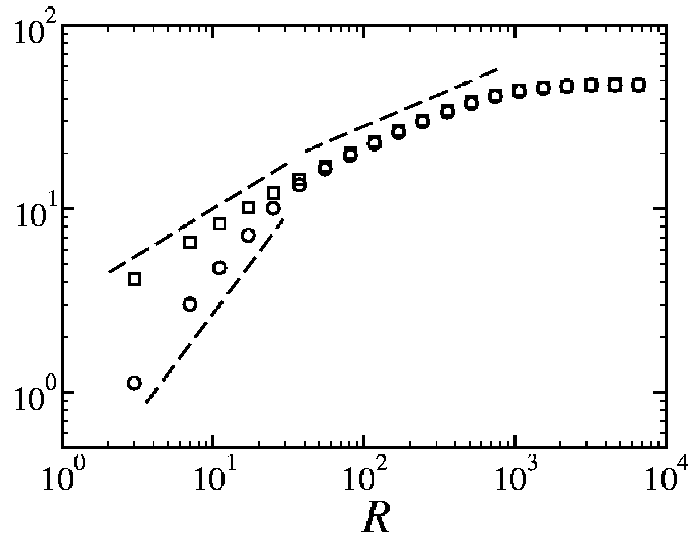


Figura 3.13: W_{loc} (\circ) e $W_{rms,loc}$ (\square), variando com o tamanho da janela R em $d = 2 + 1$, para o modelo RSOS ampliado.

rugosidade rms local em superfícies com grãos pode levar ao desaparecimento do *crossover*.

Para o modelo RDSR, observamos um comportamento idêntico ao encontrado para o modelo RSOS na curva $W_{rms,loc}$ (fig. 3.12), em $d = 1 + 1$. Em $d = 2 + 1$ o comportamento da rugosidade ao quadrado também é análogo ao do modelo RSOS, mas podemos ver na figura 3.14 que nesse caso o *crossover* é mais pronunciado pois, passamos de um expoente $\alpha_1 \approx 0.5$ para $\alpha_2 \approx 0$.

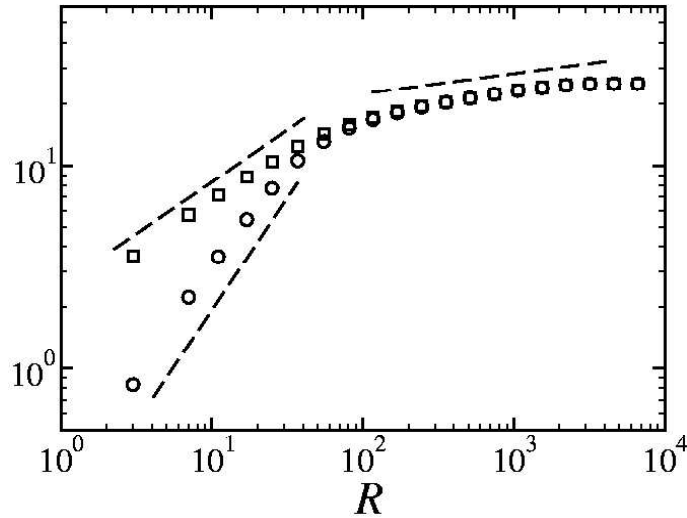


Figura 3.14: W_{loc} (\circ) e $W_{rms,loc}$ (\square), variando com o tamanho da janela R em $d = 2 + 1$, para o modelo RDSR ampliado.

Esses resultados confirmam o resultado obtido para as redes periódicas de grãos e corroboram a conclusão de que o crescimento linear da rugosidade é apenas um efeito geométrico e não uma consequência de uma dinâmica particular de crescimento interno do grão. Além disso, esse efeito de *crossover* não têm nenhuma relação com escala anômala, como é sugerido em alguns dos trabalhos discutidos na seção 2.5.

Capítulo 4

Modelo de Deposição de Grãos

4.1 Introdução

Os modelos apresentados no capítulo anterior, apesar de explicarem as principais propriedades da escala da rugosidade em superfícies com grãos, eram bastante simplificados e não tinham dinâmica de crescimento que dependesse da presença dos grãos. Nesse capítulo apresentaremos um modelo de deposição de grãos que nos permite estudar também efeitos de sua distribuição de tamanhos em torno do tamanho médio. Além disso, como obtemos correções de escala muito fortes nesse modelo em $d = 2 + 1$, uma análise de distribuições de rugosidade é feita para confirmar sua classe de universalidade.

Como discutimos na seção 2.4, em praticamente todos os modelos de crescimento de filmes finos em rede, consideramos a deposição de partículas de tamanho unitário (igual ao parâmetro de rede). Nesse trabalho propomos um modelo de crescimento em que, ao invés de depositarmos partículas, nós depositamos grãos, ou seja, blocos formados por várias partículas de tamanho unitário. Por simplicidade, nós consideramos grãos hipercúbicos, ou seja, em $d = 1 + 1$ o grão é

um quadrado de lado l , e em $d = 2 + 1$ é um cubo de lado l . O processo de deposição é parecido com uma deposição aleatória (ver seção 2.4.1), onde grãos são agregados aleatoriamente uns sobre os outros, com duas faces paralelas ao substrato e sem a interpenetração dos grãos, conforme ilustramos na figura 4.1. Em $d = 1 + 1$, o algoritmo de deposição é o seguinte: para um grão de tamanho l , inicialmente sorteamos aleatoriamente a posição i de início do grão, e verificamos qual é a maior altura h_{max} do agregado no intervalo $[i, i + l - 1]$ (com condições de contorno periódicas). Então, a altura de todo esse intervalo se torna igual à maior altura dele acrescida do tamanho do grão:

$$h_j = h_{max} + l, \quad j \in [i, i + l - 1]. \quad (4.1)$$

Em $d = 2 + 1$, o procedimento de deposição é o mesmo: sorteamos a posição de um canto do grão definida por (i, j) , verificamos qual é a altura máxima h_{max} no intervalo $\{[i, i + l - 1], [j, j + l - 1]\}$ e a altura deste intervalo se torna $h_{max} + l$.

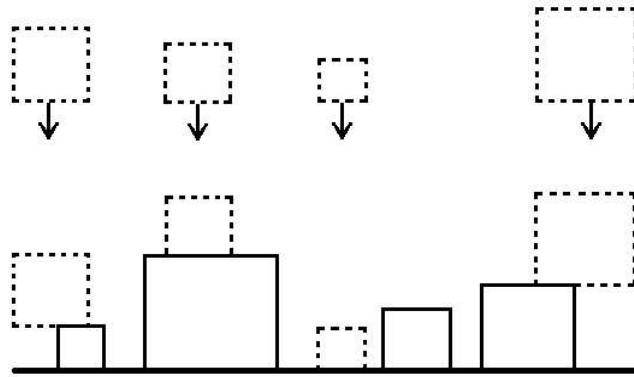


Figura 4.1: Esquema ilustrativo do processo de deposição de grãos em $d = 1 + 1$. Com linhas contínuas temos grãos já agregados. Os grãos com linha pontilhada representam as posições de agregação dos grãos incidentes (com setas).

Como podemos verificar na figura 4.1, apesar de não haver agregação lateral de grãos, como no modelo de deposição balística (DB - seção 2.4.3), o agregado formado pela deposição de grãos é poroso e o modelo não é SOS. Ao depositarmos um grão de tamanho l , sobre outro de tamanho l' , se $l > l'$ teremos no mínimo $(l^{d_s} - l'^{d_s})$ partículas do grão suspensas. Além disso, independentemente dos tamanhos l e l' , se o grão de tamanho l se agregar próximo à lateral do outro grão, poderá haver até $l^{d_s} - 1$ partículas suspensas. Enfim, há um excesso de velocidade muito grande no processo de crescimento e quanto maior o gradiente de alturas local maior será esse excesso de velocidade, analogamente a DB. Assim, devemos esperar que o modelo esteja na classe KPZ, como a DB.

Em superfícies reais formadas por grãos, estes têm diferentes tamanhos em torno de um tamanho médio \bar{l} . Para reproduzir essa propriedade, nós depositamos grãos de tamanhos variados, determinados pela distribuição de Poisson. A escolha dessa distribuição é arbitrária e, como mostraremos na seção 4.4, a escala da rugosidade e da rugosidade local independem dessa escolha. A distribuição de Poisson é dada por

$$P(l) = \frac{\lambda^l e^{-\lambda}}{l!} \quad (4.2)$$

onde λ é exatamente o tamanho de grão médio ($\lambda = \bar{l}$), como mostrado no Apêndice A. Para evitarmos que grãos muito maiores que \bar{l} (que têm probabilidade muito pequena de ocorrer) apareçam no sistema, nós truncamos a distribuição em $l_{max} = 2\bar{l}$. Por exemplo, para um tamanho médio igual a 8 o maior grão que pode ser depositado é um grão de tamanho 16.

Para fazer o sorteio do tamanho de grãos nós mapeamos a distribuição em um vetor V , de tamanho T , cujas posições guardam os possíveis tamanhos l , na quantidade determinada por sua probabilidade. Por exemplo, para um tamanho médio de grão igual a 8, a probabilidade de ocorrer um tamanho $l = 5$ é

$P(5) = 0.09160366\dots$; então, se $T = 100000$ teremos $T \cdot P(5) = 9160$ posições de V com o valor 5. Se preenchemos V com todos os possíveis valores de l , para determinarmos o tamanho do grão a ser depositado basta sortearmos aleatoriamente uma posição de V .

A unidade de tempo foi definida como usualmente, ou seja, uma camada de *partículas* depositadas. Em $d = 1 + 1$, essa camada corresponde à L partículas, e como os grãos têm em média \bar{l}^2 partículas, uma unidade de tempo equivale à deposição de L/\bar{l}^2 grãos. Da mesma forma, em $d = 2 + 1$ uma unidade de tempo equivale à L^2/\bar{l}^3 grãos depositados. Com essa definição, em ambos os casos, \bar{l} passos de tempo correspondem em média à uma camada de grãos depositados.

Os resultados e discussões da simulação desse modelo em $d = 1 + 1$ e $d = 2 + 1$ são apresentados nas seções que se seguem.

4.2 Resultados em $d=1+1$

Em nossas simulações nós consideramos tamanhos de grão médio \bar{l} iguais a 8, 16 e 32. São usados substratos de tamanho $L = 512, 1024, \dots, 32768$ para $\bar{l} = 8$ e 16, e $L = 1024, 2048, \dots, 65536$ para $\bar{l} = 32$. Simulamos o seguinte número de amostras:

- $L = 512$: 10000 amostras;
- $L = 1024$ a 4096 : 5000 amostras;
- $L \geq 8192$: 1000 amostras.

Na figura 4.2 apresentamos curvas da rugosidade global W em função do tempo t , para $\bar{l} = 16$. Verificamos que há um *crossover* de um crescimento inicialmente rápido da rugosidade, para um crescimento mais lento e finalmente a saturação desta em tempos muito longos.

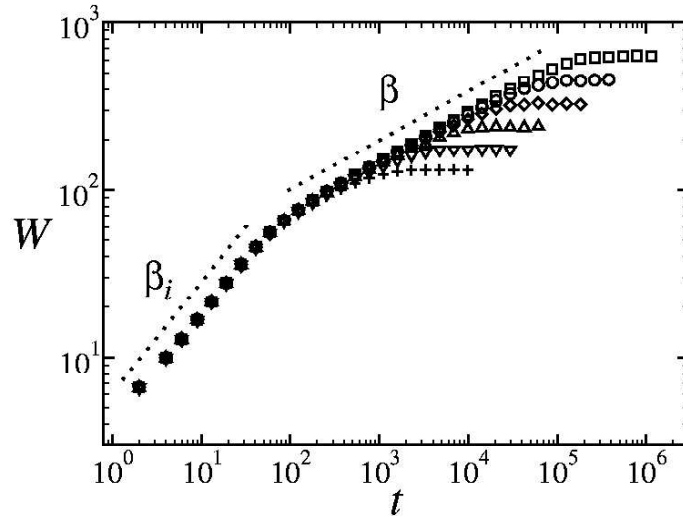


Figura 4.2: Curvas de rugosidade *versus* tempo, para $\bar{l} = 16$ e para substratos de larguras: $L = 1024(+)$, $L = 2048(\nabla)$, $L = 4096(\Delta)$, $L = 8192(\diamond)$, $L = 16384(\circ)$ e $L = 32678(\square)$.

As curvas da rugosidade *versus* tempo para $\bar{l} = 8$ e 32 , são parecidas com a de $\bar{l} = 16$ (figura 4.2). Isso pode ser verificado na figura 4.3, onde comparamos curvas para os três tamanhos médios de grão, em um substrato de tamanho $L = 16384$. O efeito do tamanho do grão é apenas aumentar o valor da rugosidade, o que é esperado uma vez que quanto maiores são os grãos, maiores serão as diferenças de altura entre eles. Podemos notar também na figura 4.3 que o tempo de *crossover* aumenta com \bar{l} , ocorrendo aproximadamente no tempo $t = 5\bar{l}$, que corresponde a cerca de 5 camadas de grãos depositadas.

Na figura 4.3, podemos ver que a inclinação da região inicial ($t \ll 5\bar{l}$) é praticamente a mesma para todos os valores de \bar{l} . O expoente de crescimento β é dado pela inclinação da reta de $W \times t$ num gráfico Log-Log. Então, nessa região inicial, encontramos um expoente de crescimento $\beta_i = 0.66 \pm 0.02$ para todos os tamanhos de grão médio. Esse expoente de crescimento grande, para

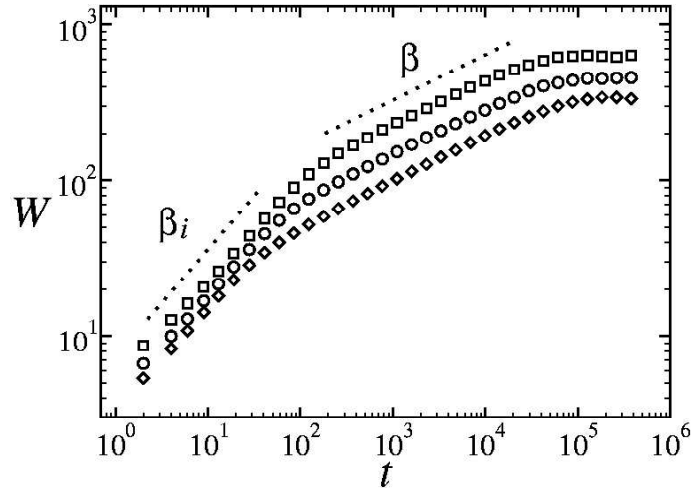


Figura 4.3: Curvas de rugosidade *versus* tempo, para $L = 16384$ e os tamanhos médios de grão $\bar{l} = 8(\diamond)$, $\bar{l} = 16(\circ)$ e $\bar{l} = 32(\square)$.

tempos pequenos, está associado a um crescimento colunar da superfície, onde algumas posições do substrato permanecem descobertas, enquanto a altura média do sistema cresce linearmente com o tempo. Este tipo de crescimento implica em uma rugosidade crescendo linearmente com o tempo ($\beta = 1$). Porém, em nosso modelo também temos regiões onde as correlações laterais já se estabeleceram, o que no caso de um modelo KPZ leva à $\beta \approx 0.33$ em $d = 1 + 1$. Logo, o expoente $\beta_i \approx 0.66$ é um expoente intermediário entre β_{KPZ} e $\beta_{colunar}$. Na figura 4.4 mostramos os estágios iniciais de um depósito gerado com o nosso modelo e podemos notar claramente um crescimento colunar.

Para $t \gg 5\bar{l}$, as correlações no sistema já se estabeleceram e temos, no mínimo, duas décadas de região linear nas figuras 4.2 e 4.3, antes da saturação da rugosidade. Estimativas de expoentes de crescimento efetivos (β_L) para diferentes tamanhos do substrato mostram um forte efeito de tamanho finito no sistema. Na figura 4.5 mostramos os expoentes efetivos β_L em função de $1/L^\Delta$, para os três tamanhos de grão médio. Testamos vários valores para o expoente Δ , e o que

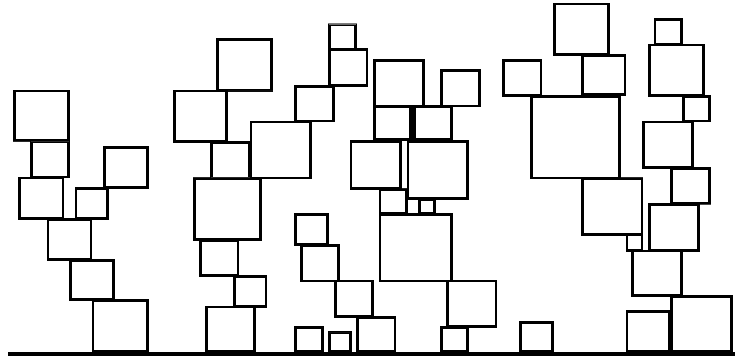


Figura 4.4: Evolução temporal do agregado formado pela deposição de grãos, em $d = 1 + 1$ para $L = 128$ e $\bar{l} = 8$.

melhor ajustou os pontos numa reta foi $\Delta = 1/5$. As linhas tracejadas mostram o ajuste linear desses pontos. Fazendo uma extrapolação para $L \rightarrow \infty$, ou seja, $1/L \rightarrow 0$, obtemos um expoente $\beta = 0.331 \pm 0.005$ para qualquer \bar{l} , que está bastante próximo do esperado pra classe KPZ.

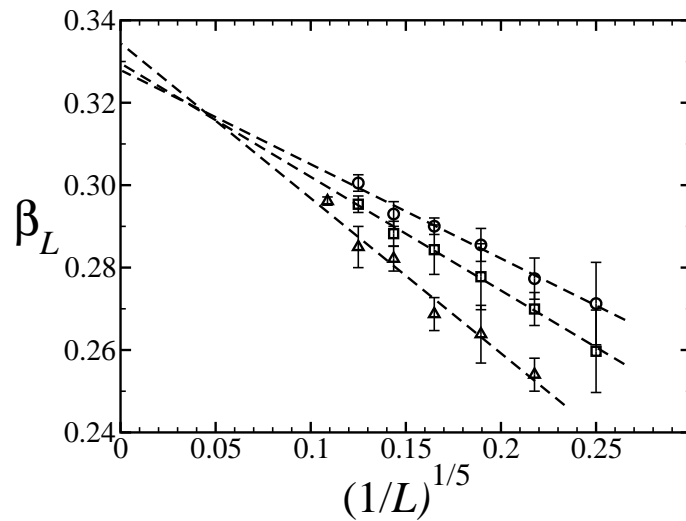


Figura 4.5: Expoentes de crescimento efetivos β_L , para os tamanhos médios de grão $\bar{l} = 8$ (\circ), $\bar{l} = 16$ (\square) e $\bar{l} = 32$ (\triangle).

Podemos verificar ainda na figura 4.5 que, quanto maior o tamanho do grão, mais afastados os expoentes efetivos estão do valor assintótico. Por exemplo, para $L = 2048$ temos $\beta \approx 0.28$ para $\bar{l} = 8$, $\beta \approx 0.27$ para $\bar{l} = 16$ e $\beta \approx 0.25$ para $\bar{l} = 32$. De fato, podemos pensar que na média todos os grãos têm o mesmo tamanho \bar{l} . Então, se fizéssemos um procedimento contrário ao do capítulo anterior e transformássemos cada grão de tamanho \bar{l} em uma partícula de tamanho unitário, um substrato de tamanho L (com grãos) seria mapeado em um substrato de tamanho $L' = L/\bar{l}$. Dessa forma, quanto maior o grão, menor será o substrato correspondente em uma superfície de partículas unitárias e assim, maior será o efeito de tamanho finito.

A barra de erro no valor de β_i , bem como a de β_L , foi determinada fazendo ajustes lineares de diferentes intervalos das regiões $t \ll 5\bar{l}$ e $5\bar{l} \ll t \ll t_x$, respectivamente. Apesar desse erro parecer grande na figura 4.5, o maior erro relativo foi de aproximadamente 3%, que é razoavelmente pequeno.

Nós estimamos também o expoente da rugosidade α , tomando a inclinação de um gráfico Log-Log da rugosidade de saturação W_{sat} para diferentes tamanhos do substrato L (figura 4.6). Além da média sobre as várias amostras crescidas, nós também fizemos uma média temporal da rugosidade de saturação, calculando esta em 2000 passos de tempo para cada amostra, para $t \gg t_x$. Portanto, o valor de W_{sat} é bastante preciso e as suas barras de erro são menores que os símbolos na figura 4.6. O expoente da rugosidade obtido do ajuste linear (retas tracejadas), para os três tamanhos médios de grão estão no intervalo $0.44 < \alpha < 0.46$.

Para verificarmos o valor assintótico ($L \rightarrow \infty$) de α , nós calculamos expoentes efetivos

$$\alpha_{ef} = \frac{\log [W_{sat}(L)/W_{sat}(L/2)]}{\log [2]} \quad (4.3)$$

para os dados da figura 4.6. Na figura 4.7 mostramos esses expoentes, em função

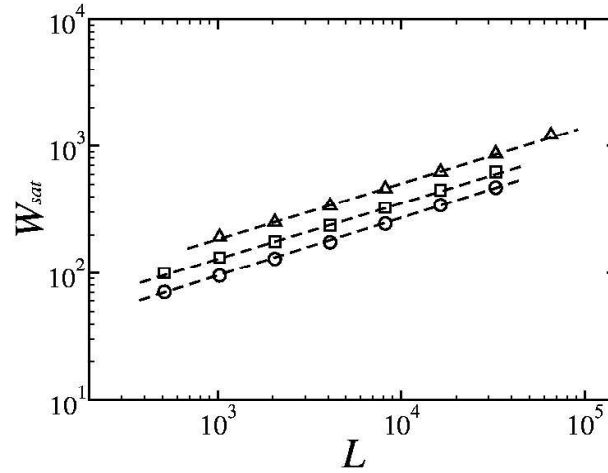


Figura 4.6: Rugosidade de saturação em função do tamanho do substrato para os tamanhos médios de grão $\bar{l} = 8(\circ)$, $\bar{l} = 16(\square)$ e $\bar{l} = 32(\triangle)$, em $d = 1 + 1$.

de $\bar{L} = (L + L/2)/2$. Apesar da grande flutuação, podemos notar que estes expoentes se aproximam do valor esperado $\alpha = 1/2$ com o aumento de \bar{L} , ficando em torno de 0.48 para os maiores tamanhos \bar{L} .

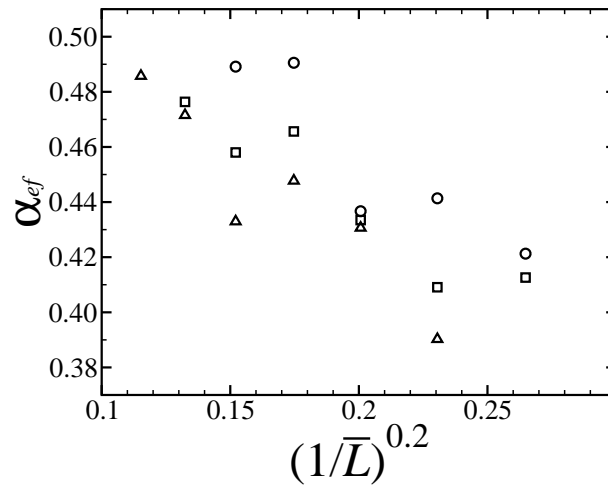


Figura 4.7: Expoentes da rugosidade efetivos em função do inverso da largura média para $\bar{l} = 8(\circ)$, $\bar{l} = 16(\square)$ e $\bar{l} = 32(\triangle)$, em $d = 1 + 1$.

Estimativas do expoente dinâmico z , determinado através do tempo de relaxação da rugosidade t_x para diferentes tamanhos do substrato L , revelam uma concordância com o valor deste expoente determinado pelos expoentes α e β , utilizando a lei de escala 2.12.

Como deveríamos esperar, por sua semelhança com a DB, nosso modelo apresenta um forte efeito de tamanho finito [28, 29], mas mesmo assim conseguimos estimativas dos expoentes de escala ($\alpha \approx 0.48$ e $\beta \approx 0.331$), próximos dos expoentes esperados para a classe KPZ ($\alpha = 1/2$ e $\beta = 1/3$), o que nos leva à conclusão de que esse modelo está na classe KPZ.

A Rugosidade Local

Nas figuras 4.8 (a), (b) e (c) mostramos as curvas de W_{loc} em função do tamanho da janela R para tamanhos médios de grão 8, 16 e 32, respectivamente. Como podemos ver em todas essas figuras, nosso modelo produz um *crossover* na rugosidade local, e este ocorre aproximadamente no tamanho de grão médio ($R_c = \bar{l} \pm 2$).

Na região $R \ll \bar{l}$, obtemos $\alpha_1 = 1.0 \pm 0.03$ para todos os tamanhos médios de grão, independentemente do tamanho do substrato L . Este resultado confirma aqueles do capítulo anterior e mostra que nossas conclusões anteriores se aplicam a sistemas com a presença de grãos de diferentes tamanhos e desordem nas suas posições relativas.

Para $R \gg \bar{l}$ a janela cobre regiões envolvendo vários grãos e assim W_{loc} quantifica as correlações locais entre grãos. Novamente encontramos um forte efeito de tamanho finito no sistema, e estimando expoentes efetivos (α_L) para diferentes tamanhos L do substrato, nós obtemos os pontos da figura 4.9. Nessa figura, plotamos esses expoentes efetivos em função de $1/L^\Delta$ e, analogamente ao caso

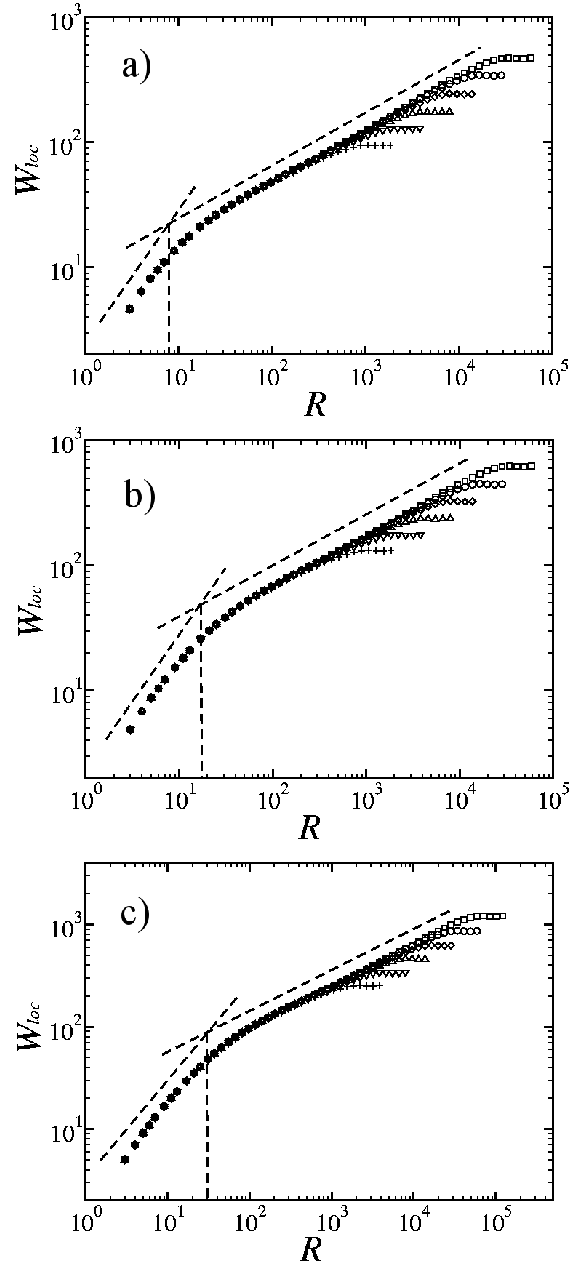


Figura 4.8: Variação da rugosidade local com o tamanho de janela para substratos de largura: $L = 1024(+)$, $L = 2048(\nabla)$, $L = 4096(\triangle)$, $L = 8192(\diamond)$, $L = 16384(\circ)$ e $L = 32678(\square)$. Para os tamanhos médios de grão: $\bar{l} = 8$ (a), $\bar{l} = 16$ (b) e $\bar{l} = 32$ (c).

do expoente de crescimento, o expoente $\Delta = 1/5$ foi o que melhor ajustou esses expoentes (α_L) numa reta. Fazendo a extrapolação para $L \rightarrow \infty$ obtemos o valor assintótico do expoente da rugosidade $\alpha_2 = 0.483 \pm 0.004$ para todos os tamanhos de grão médio. Esse valor é próximo de $\alpha_2 = 0.5$ para a classe KPZ em $d = 1 + 1$.

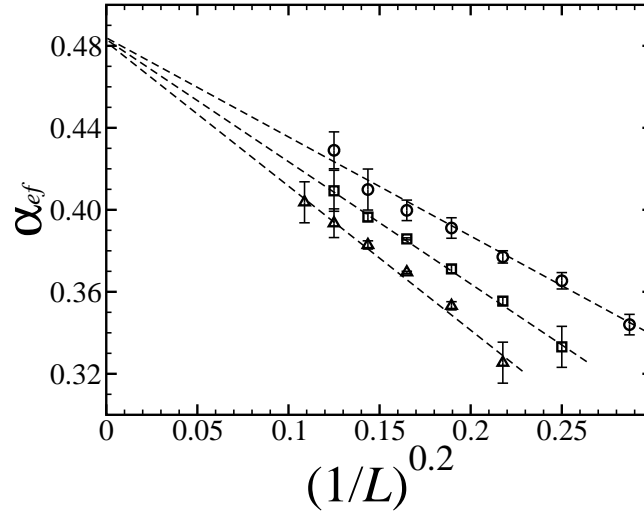


Figura 4.9: Expoentes da rugosidade efetivos α_{ef} para tamanhos médios de grão: $\bar{l} = 8(\circ)$, $\bar{l} = 16(\square)$ e $\bar{l} = 32(\triangle)$.

As barras de erro dos expoente efetivos α_L na fig. 4.9, bem como a do expoente inicial α_1 (fig. 4.8) foram determinadas fazendo vários ajustes em diferentes intervalos das regiões $R \ll \bar{l}$ e $\bar{l} \ll R \ll L$, respectivamente. O tamanho de janela de *crossover* R_c e sua barra de erro foram determinados pela intersecção das várias retas de ajuste destas regiões.

As curvas da figura 4.8 foram obtidas calculando a rugosidade local no estado estacionário ($t \gg L^z$). Curvas obtidas para a rugosidade local em diferentes tempos, no regime de crescimento da rugosidade global, quando as correlações laterais já se estabeleceram no sistema ($5\bar{l} \ll t \ll L^z$), estão mostradas na figura 4.10. Podemos observar que a rugosidade, na região de escala ($R \ll \xi_{||}$), é a

mesma para todos os tempos, o que é uma característica de um sistema com escala normal (não anômala). Esse resultado aliado ao fato do expoente α obtido pela rugosidade de saturação ser igual ao obtido através da rugosidade local, mostra que não há escala anômala no sistema e confirma nossa conclusão de que o efeito de *crossover* na escala da rugosidade local não tem nenhuma relação com escala anômala, como sugerido em alguns trabalhos experimentais.

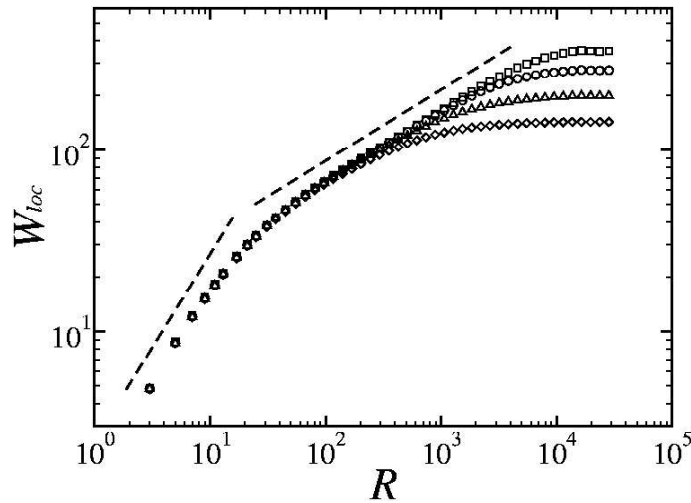


Figura 4.10: Variação da rugosidade local com o tamanho de janela para um tamanho de grão médio $\bar{l} = 16$, um tamanho de substrato $L = 16384$ e tempos: $t = 1000(\diamond)$, $t = 3000(\triangle)$, $t = 9000(\circ)$ e $t = 27000(\square)$.

É importante notarmos na figura 4.9 que a barra de erro para os maiores tamanhos de substrato (L) são bem maiores que aquelas dos tamanhos intermediários. Para L pequeno, uma barra de erro grande se justifica porque a região de escala é muito pequena, mas a medida que aumentamos L , a região de escala ($\bar{l} \ll R \ll L$) se torna maior, como vemos na figura 4.8, e deveríamos esperar que a barra de erro diminuisse. De fato, isso ocorre para tamanhos intermediários do sistema. Porém, para os tamanhos maiores, na região $\bar{l} \ll R \ll L$ obser-

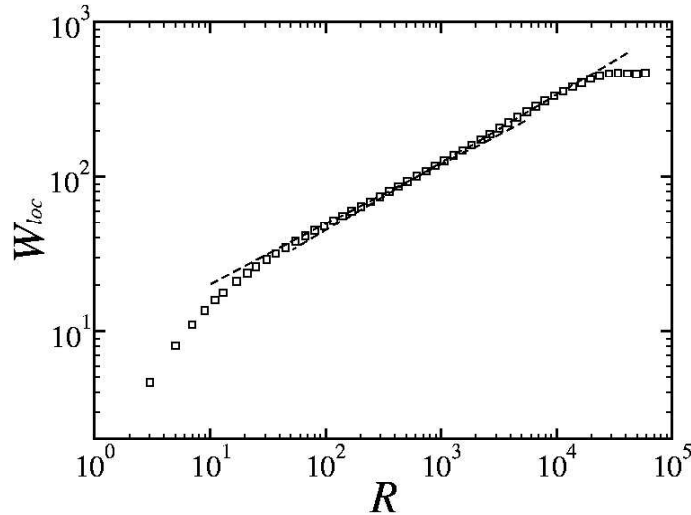


Figura 4.11: Variação da rugosidade local com o tamanho de janela para um tamanho de grão médio $\bar{l} = 8$ e um tamanho de substrato $L = 32768$. As retas tracejadas são ajustes em regiões distintas do domínio $\bar{l} \ll R \ll L$.

vamos regiões com diferentes inclinações, como mostramos na figura 4.11. Os expoentes obtidos nessa figura ($\bar{l} = 8$) para as duas inclinações foram $\alpha_2^* \approx 0.40$ e $\alpha_2 \approx 0.45$. Acreditamos que o expoente α_2^* seja apenas um efeito transiente, conforme discutido na seção 2.2.3.

4.3 Resultados em $d=2+1$

Novamente trabalhamos com tamanhos de grão médio \bar{l} iguais a 8, 16 e 32, com substratos de tamanho L variando de 256 a 4096, para $\bar{l} = 8$ e 16, e $L = 512$ a 8192 para $\bar{l} = 32$. O número de amostras simuladas foi:

- $L = 256$ e 512 : 200 amostras;
- $L = 1024$ a 4096 : 100 amostras;
- $L = 8192$: 50 amostras.

A variação da rugosidade global em função do tempo, para diferentes tamanhos de substrato, está mostrada na figura 4.12, para $\bar{l} = 16$. Analogamente à $d = 1 + 1$, temos um *crossover* num tempo $t \approx 5\bar{l}$, de um crescimento rápido da rugosidade, independente da largura do substrato, para um crescimento bem mais lento.

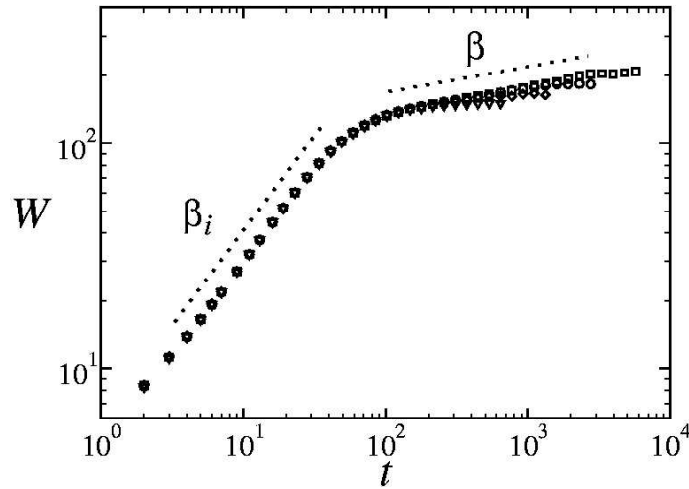


Figura 4.12: Curvas de rugosidade *versus* tempo, em $d = 2 + 1$, para $\bar{l} = 16$ e substratos de largura: $L = 512(\nabla)$, $L = 1024(\diamond)$, $L = 2048(\circ)$ e $L = 4096(\square)$.

Na figura 4.13 mostramos as curvas da rugosidade *versus* tempo para $\bar{l} = 8, 16$ e 32 , em um substrato de largura $L = 4096$. Podemos verificar que para $t \gg 5\bar{l}$ a rugosidade aumenta com o tamanho médio do grão, pois grãos maiores produzem diferenças de alturas locais maiores no sistema. Por outro lado, para $t \ll 5\bar{l}$, a rugosidade independe do tamanho do grão e cresce com um expoente $\beta_i = 0.90 \pm 0.02$.

Como discutimos anteriormente, o crescimento inicial rápido da rugosidade se deve ao crescimento aproximadamente colunar do depósito, que se estabelece no sistema nos estágios iniciais da deposição e faz com que a rugosidade tenda a crescer linearmente no tempo.

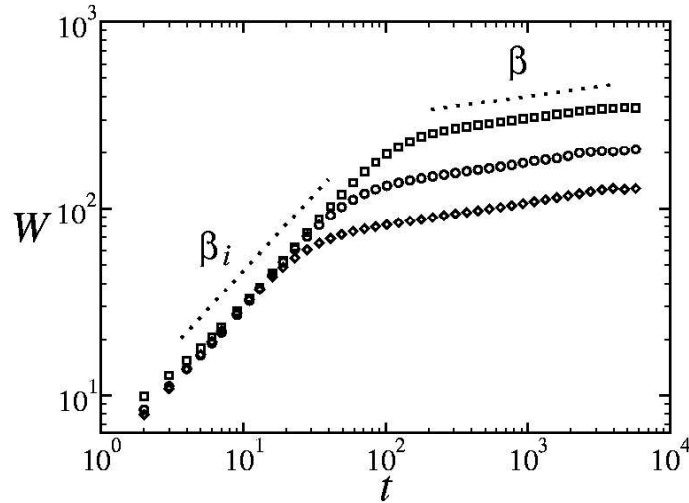


Figura 4.13: Curvas de rugosidade *versus* tempo, para $L = 4096$ e os tamanhos de grão médio: $\bar{l} = 8(\diamond)$, $\bar{l} = 16(\circ)$ e $\bar{l} = 32(\square)$.

Para $t \gg 5\bar{l}$, podemos notar nas figs. 4.12 e 4.13 que a rugosidade cresce muito lentamente com o tempo. Além disso, para os menores tamanhos de substrato temos uma região muito pequena (menor que uma década) antes da relaxação da rugosidade ($5\bar{l} \ll t \ll t_x$). Assim, estimativas de expoentes efetivos β_L , como as da seção anterior, se tornam muito imprecisas. O valor desse expoente para os maiores tamanhos de substrato é $\beta = 0.11 \pm 0.02$, para todos os tamanhos médios de grão. Esse valor está bem abaixo do esperado para a classe KPZ ($\beta \approx 0.24$). Porém, como mostraremos na seção 4.5, o modelo está na classe KPZ e esse expoente tão pequeno se deve à correções de escala muito fortes.

Como discutimos na seção 2.5, um expoente de crescimento grande ($\beta \approx 0.63$) foi encontrado na ref. [17], onde também se observou um *crossover* na escala da rugosidade com o tempo de um expoente $\beta_i \approx 0.25$ para $\beta \approx 0$. Nossos resultados sugerem que algum mecanismo de crescimento colunar pode estar presente naquele sistema. Esse *crossover* foi observado, também, no modelo de crescimento

de filmes policristalinos apresentado na ref. [22].

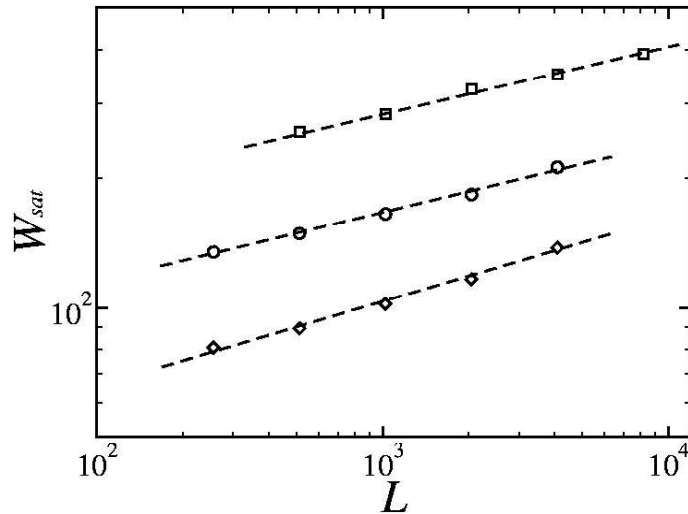


Figura 4.14: Rugosidade de saturação em função do tamanho do substrato para os tamanhos de grão médio: $\bar{l} = 8(\diamond)$, $\bar{l} = 16(\circ)$ e $\bar{l} = 32(\square)$.

A rugosidade de saturação variando com o tamanho do substrato está mostrada na figura 4.14, para os três tamanhos de grão médio. O expoente da rugosidade α , obtido da inclinação da reta que melhor se ajusta os pontos, está no intervalo $0.15 \leq \alpha \leq 0.19$, para todos os valores de \bar{l} . Esses expoentes estão muito abaixo do valor esperado para a classe KPZ ($\alpha \approx 0.39$). O cálculo de inclinações sucessivas, como fizemos em $d = 1 + 1$, não fornece nenhuma indicativa de que esses expoentes possam se aproximar de 0.39.

A Rugosidade Local

Nas figuras 4.15 (a), (b) e (c) mostramos as curvas de W_{loc} em função do tamanho da janela R em $t \gg L^z$ para tamanhos médios de grão 8, 16 e 32, respectivamente. Mais uma vez, observamos o *crossover* na rugosidade local, que ocorre aproximadamente no tamanho de grão médio ($R_c = \bar{l} \pm 2$). Isso mostra que o tamanho de

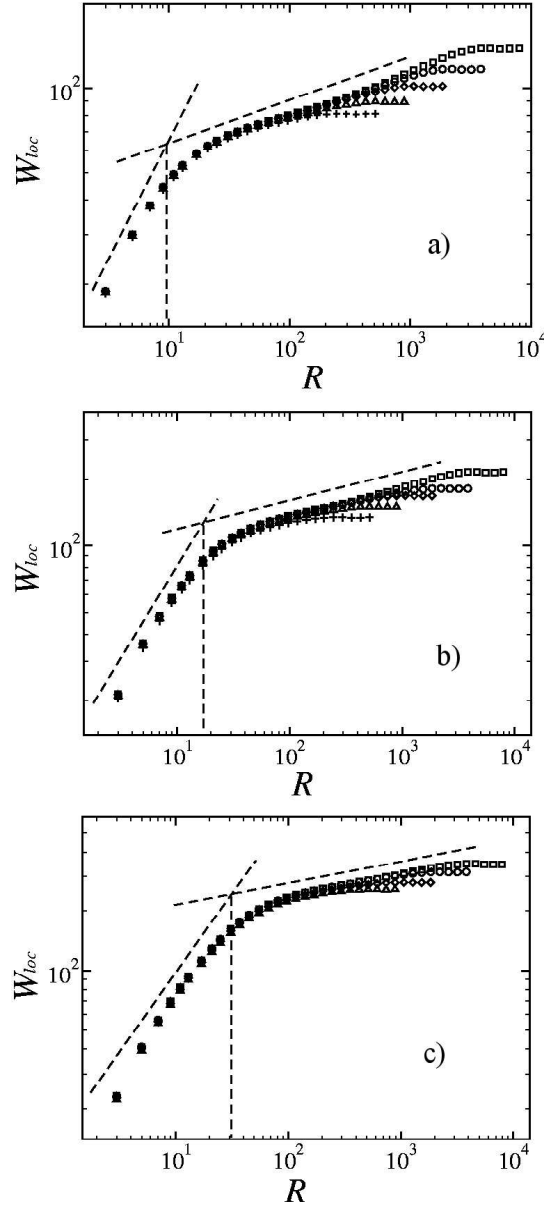


Figura 4.15: Variação da rugosidade local com o tamanho de janela no estado estacionário, para substratos de largura: $L = 1024(+)$, $L = 2048(\nabla)$, $L = 4096(\Delta)$, $L = 8192(\diamond)$, $L = 16384(\circ)$ e $L = 32678(\square)$. Para os tamanhos médios de grão: $\bar{l} = 8$ (a), $\bar{l} = 16$ (b) e $\bar{l} = 32$ (c).

grão médio pode ser estimado com bastante precisão através de R_c .

O expoente encontrado na região $R \ll R_c$ foi $\alpha_1 = 1.00 \pm 0.03$, novamente concordando com os modelos do capítulo anterior. Para $R_c \ll R \ll L$ podemos verificar que a rugosidade local cresce lentamente com R , assim como observado para a rugosidade global. Como temos uma região linear pequena ($R_c \ll R \ll L$) o cálculo de expoentes efetivos α_L fica muito impreciso. Para os maiores tamanhos de substrato, encontramos expoentes α_2 entre 0.11 e 0.20, para todos os valores de \bar{l} . Essa variação de α_2 se deve à mudança de inclinação nessa região, análoga àquela mostrada na figura 4.11, como podemos ver nas figs. 4.15(a) e 4.15(b). De qualquer forma esse expoente é bem menor que o valor esperado para a classe KPZ.

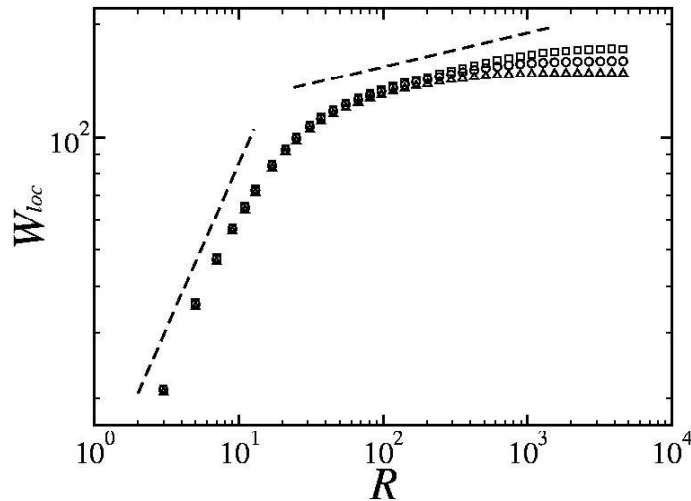


Figura 4.16: Variação da rugosidade local com o tamanho de janela para um tamanho de grão médio $\bar{l} = 16$, um tamanho de substrato $L = 4096$ e tempos: $t = 200(\triangle)$, $t = 400(\circ)$ e $t = 800(\square)$.

É interessante notarmos que o expoente obtido através da rugosidade de saturação é, aproximadamente, o mesmo obtido para as maiores inclinações (na região

$R_c \ll R \ll L$) na curva da rugosidade local, o que confirma nossa idéia de que as inclinações menores são apenas um transiente. Além disso, esse resultado mostra que não há escala anômala no sistema, o que se confirma pelo comportamento da rugosidade local calculada em diferentes tempos no regime de crescimento da rugosidade global (fig. 4.16).

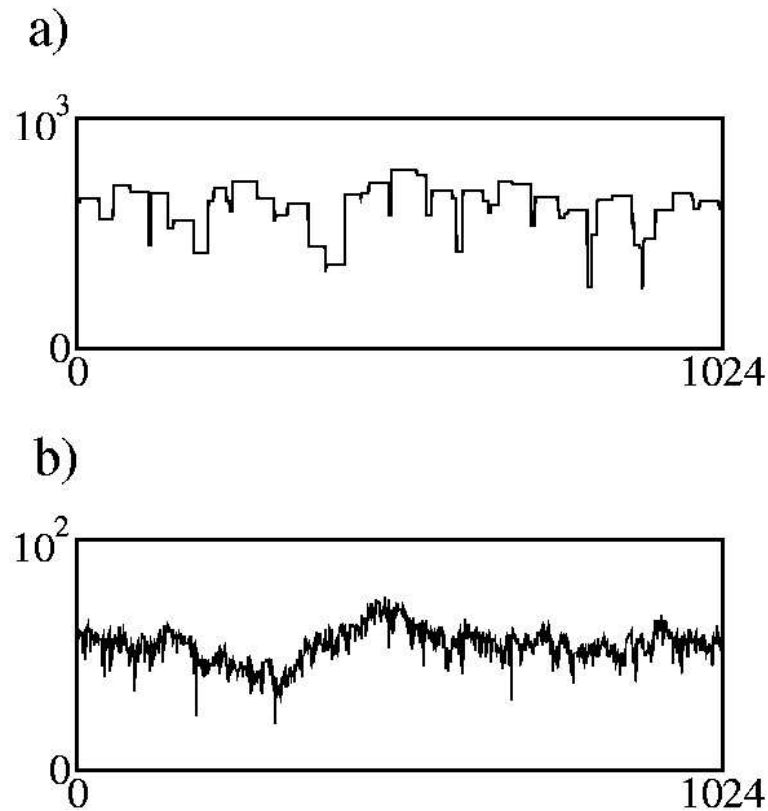


Figura 4.17: Seção reta de uma superfície, em $d = 2 + 1$ e $t = 500$, dos modelos: a) deposição de grãos; b) deposição balística.

Na figura 4.17(a), mostramos cortes de uma superfície produzida pelo nosso modelo, e em 4.17(b) por deposição balística, ambos em $d = 2 + 1$ e para um tempo $t = 500$. Podemos notar nessas figuras que as diferenças de altura locais são muito grandes quando comparadas àquelas do perfil obtido para o modelo RSOS ampliado (fig. 3.9). Além disso, essas diferenças são bem maiores para o

modelo de deposição de grãos do que para a deposição balística. Por outro lado, as correções de escala para o modelo RSOS, ou seja, correções nos expoentes medidos são muito fracas, enquanto para deposição balística essas correções são fortes e em nosso modelo também são muito fortes. Isso indica que quanto maiores as diferenças de alturas locais maiores serão as correções de escala para a rugosidade.

4.4 Dependência com a Distribuição de Tamanhos de Grãos

Para analisar a influência da distribuição dos tamanhos de grão em torno do valor médio, nós utilizamos duas outras distribuições de probabilidade para determinar o tamanho do grão a ser depositado. Nós consideramos o caso mais simples onde depositamos grãos de tamanho fixo \bar{l} , ou seja, uma distribuição Delta de Dirac

$$P(l) = \delta(l - \bar{l}), \quad (4.4)$$

com valor médio \bar{l} e todos os demais momentos nulos, conforme mostrado na apêndice A.

Nós usamos também a distribuição Gaussiana

$$P(l) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(l-\mu)^2}{2\sigma^2}}, \quad (4.5)$$

onde μ é o valor médio e σ^2 é o segundo momento da distribuição.

A raiz quadrada do segundo momento de uma distribuição está associada à sua largura (dispersão). No apêndice A, mostramos que para a distribuição de Poisson o segundo momento vale \bar{l} , o que nos dá uma dispersão igual a $\sqrt{\bar{l}}$. A largura da distribuição Delta é nula. Para a distribuição Gaussiana, usamos $\sigma = \bar{l}/3$. Dessa forma, para o tamanho $\bar{l} = 32$, a dispersão da distribuição

Gaussiana é, aproximadamente, o dobro da dispersão da distribuição de Poisson (ver figura 4.18).

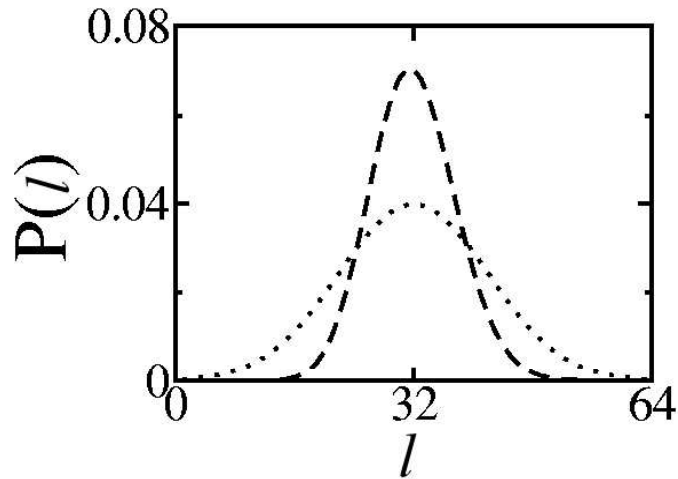


Figura 4.18: Distribuição de Poisson (linha tracejada) e distribuição Gaussiana, com $\sigma = \bar{l}/3$ (linha pontilhada), para um tamanho médio de grão $\bar{l} = 32$.

Na figura 4.19 mostramos o comportamento temporal da rugosidade global e espacial da rugosidade local, em $d = 2 + 1$, para $\bar{l} = 32$ usando os três tipos de distribuições. Como podemos ver, o único efeito da distribuição é mudar um pouco o valor da rugosidade, mas mantendo as propriedades de escala inalteradas. Esse aumento na rugosidade se deve à maior deposição de grãos grandes no sistema. Para a distribuição Delta, os grãos depositados têm um tamanho único $l = 32$. Para a distribuição de Poisson, existe a probabilidade de depositarmos grãos grandes ($l \approx 64$) e, como vemos na figura 4.18, para a distribuição Gaussiana essa probabilidade é consideravelmente maior. Assim, a quantidade de grãos de tamanho $l \approx 64$ presente numa superfície gerada com a distribuição Gaussiana é maior do que naquela gerada com a distribuição de Poisson, que por sua vez é maior do que com a distribuição Delta.

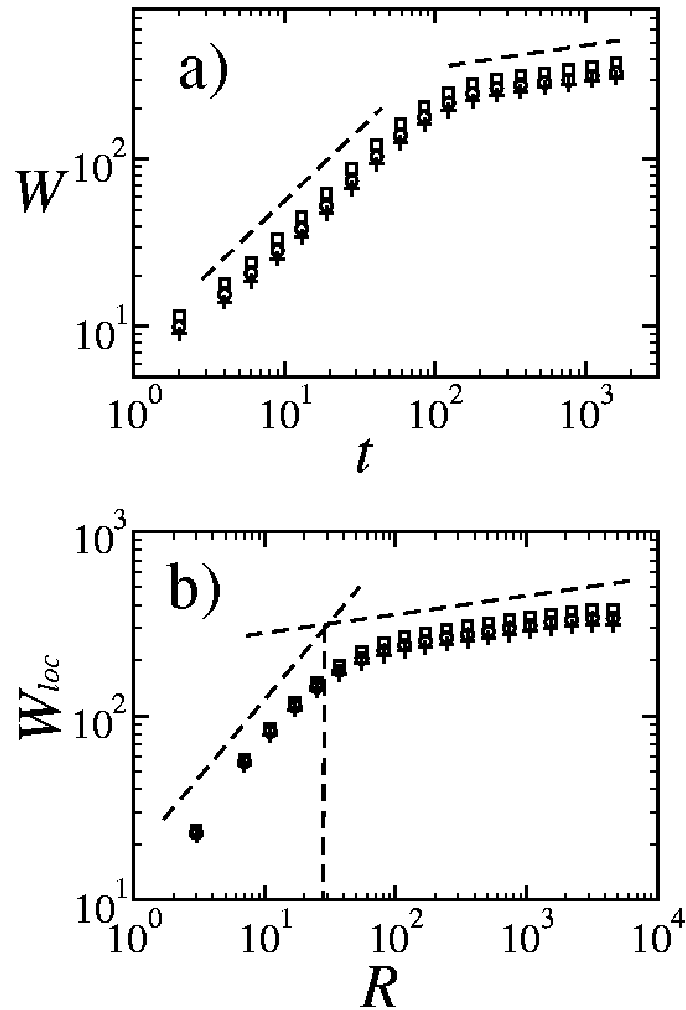


Figura 4.19: Variação da rugosidade (a) global *versus* tempo e (b) local *versus* tamanho de janela. Para as distribuições de tamanho de grão: Delta (+), Poisson (o) e Gaussiana (\square), com um tamanho médio de grão $\bar{l} = 32$.

As curvas da rugosidade global e rugosidade local para $d = 1 + 1$ são análogos às de $d = 2 + 1$ (fig. 4.19), e toda a discussão anterior se aplica também nesse caso. O fato de os expoentes de escala da rugosidade não dependerem de como os tamanhos de grãos estão distribuídos em torno do tamanho médio é um resultado importante pois, na maioria dos processos de crescimento de fil-

mes finos policristalinos, essa distribuição deve estar associada aos mecanismos de difusão e nucleação nos estágios iniciais do crescimento. Tais mecanismos são frequentemente difíceis de serem modelados.

4.5 Distribuições de Rugosidade

Trabalhos recentes têm mostrado que uma forma alternativa para determinar a classe de universalidade de um processo de crescimento, bem mais precisa que a escala da rugosidade, é a comparação de distribuições de rugosidade ao quadrado, no estado estacionário. Mesmo em processos de crescimento onde a escala da rugosidade apresenta correções de tamanho finito muito fortes, como no modelo de deposição balística, foi mostrado por Aarão Reis [26] que as distribuições de rugosidade apresentam correções fracas.

No estado estacionário ($t \gg L^z$), a rugosidade de saturação ao quadrado (que chamaremos aqui de W_2) apresenta flutuações em torno do valor médio $\langle W_2 \rangle$ para diferentes tempos e para diferentes amostras. Então se crescemos depósitos até tempos $t \gg L^z$ e a partir daí coletamos valores de W_2 , podemos construir uma distribuição de probabilidade $P(W_2)$, tal que $P(W_2)dW_2$ é a probabilidade de ocorrer um valor de rugosidade ao quadrado no intervalo $[W_2, W_2 + dW_2]$.

Cada classe de universalidade tem uma distribuição de rugosidade com forma característica. Em modelos de crescimento lineares como a equação EW ou a de Wolf-Villain, essas distribuições podem ser obtidas exatamente em $d = 1 + 1$ e computadas com bastante precisão em $d = 2 + 1$ [49, 50, 51]. Porém, em interfaces descritas por equações não-lineares, como a KPZ, essas distribuições não são conhecidas exatamente. Simulações de modelos na classe KPZ [49, 51, 27, 26],

mostraram a existência de uma distribuição universal, que escala como

$$P_L(W_2) = \frac{1}{\sigma} \Psi \left(\frac{W_2 - \langle W_2 \rangle}{\sigma} \right), \quad (4.6)$$

onde $\sigma \equiv \sqrt{\langle W_2^2 \rangle - \langle W_2 \rangle^2}$ é a flutuação rms da distribuição.

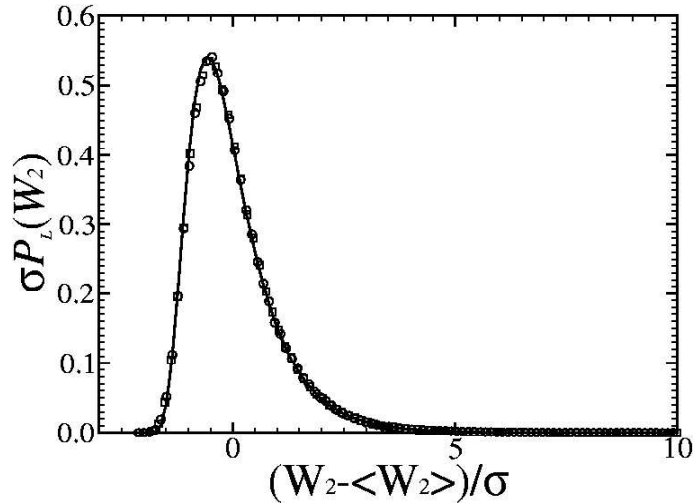


Figura 4.20: Distribuições de rugosidade normalizadas no estado estacionário: para o modelo de deposição de grãos, com $\bar{l} = 8$ e distribuições de Poisson (círculos) e Gaussiana (quadrados), e para o modelo RSOS (linha contínua).

Nós calculamos distribuições de rugosidade para o modelo de deposição de grãos, em $d = 2 + 1$, para substratos de tamanho $L = 1024$ usando as distribuições de Poisson e Gaussiana para determinar os tamanhos dos grãos incidentes. Para cada uma dessas distribuições, foram crescidos 500 depósitos e para cada depósito 2000 amostras de W_2 foram coletadas no regime estacionário, em intervalos de 10 passos de tempo. Na figura 4.20 nós mostramos essas distribuições para um tamanho médio de grão $\bar{l} = 8$, bem como a distribuição obtida para o modelo RSOS em um substrato de tamanho $L = 256$, que, como discutimos anteriormente, é o modelo que fornece resultados mais precisos da classe KPZ. Como

podemos verificar nessa figura, há um bom colapso dos dados para o modelo de deposição de grãos com os do modelo RSOS. Isso pode ser confirmado na figura 4.21, onde apresentamos o logaritmo de σP_L para tornar o comportamento da cauda da distribuição mais visível. Esse bom colapso com os dados do modelo RSOS indica que o nosso modelo de deposição de grãos está na classe KPZ.

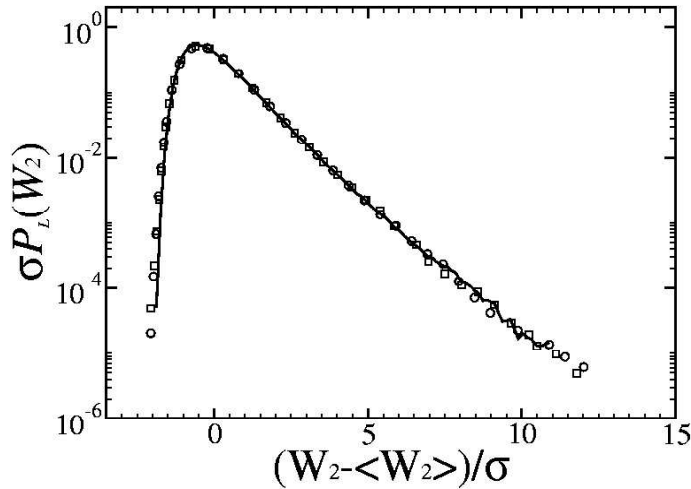


Figura 4.21: Distribuições de rugosidade da figura 4.20 em escala MonoLog.

Para obtermos informações quantitativas sobre a forma das distribuições podemos usar razões adimensionais dos momentos centrais desta, sendo estes definidos por $M_n(L) \equiv \int_0^\infty (W_2 - \langle W_2 \rangle)^n P_L(W_2) dW_2$. O coeficiente de assimetria (skewness) da distribuição, $S \equiv \frac{M_3}{M_2^{3/2}}$, é uma medida de quanto a distribuição é assimétrica em relação ao seu valor médio. A kurtose da distribuição $K \equiv \frac{M_4}{M_2^2} - 3$, é uma medida do achatamento da distribuição em relação à uma Gaussiana com mesma dispersão. Apesar dessas duas quantidades não serem suficientes para caracterizar completamente a distribuição, elas são bastante úteis para comparações de suas formas. Na referência [27] foram obtidos os seguintes valores de skewness e kurtose, para distribuições na classe KPZ: $S = 1.70 \pm 0.02$ e $K = 5.4 \pm 0.3$. Em nossos modelos com distribuições de tamanho de grão Gaussiana (G) e de

Poisson (P) nós encontramos: $S_G = 1.65 \pm 0.08$, $S_P = 1.66 \pm 0.07$, $K_G = 5.1 \pm 0.6$ e $K_P = 5.2 \pm 0.7$. A concordância desses resultados é uma confirmação da escala KPZ do nosso modelo.

Como discutimos nas seções anteriores, o aumento do tamanho médio dos grãos, para um tamanho de substrato fixo, implica em correções de escala mais fortes para a rugosidade. De fato, observamos também pequenos desvios nas distribuições de rugosidade em relação àquela do modelo RSOS, que aumentam com o tamanho do grão (figura 4.22). Porém, é interessante notar que esses desvios são pequenos e para o tamanho $\bar{l} = 8$ as curvas estão praticamente colapsadas (fig. 4.21).

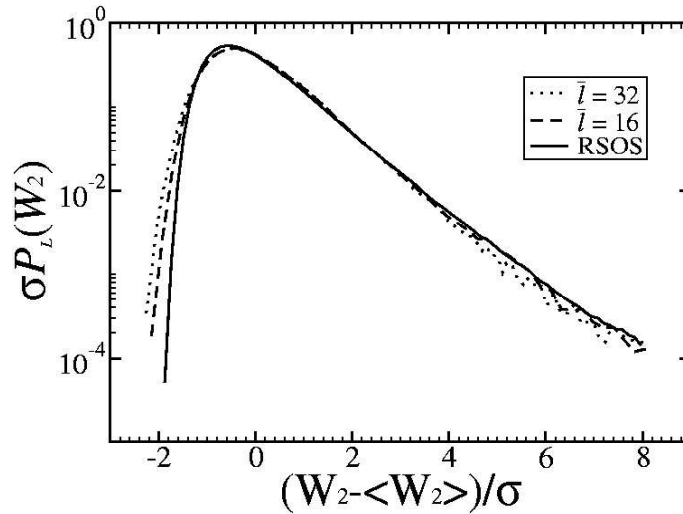


Figura 4.22: Distribuições de rugosidade normalizadas no estado estacionário: para o modelo de deposição de grãos com distribuição de Poisson e diferentes tamanhos médios de grão; e para o modelo RSOS.

A confirmação de que nosso modelo está na classe KPZ é um resultado importante em vista dos desvios no expoente α_2 apresentado acima. Em alguns trabalhos experimentais, expoentes no intervalo $0.15 \leq \alpha_2 \leq 0.19$ são encontra-

dos, assim como em nosso modelo. Isso mostra que aqueles sistemas podem estar relacionados à classe KPZ, e que uma análise de outras quantidades que não expoentes de escala é necessária para analisarmos a questão. Além disso, expoentes pequenos podem facilmente ser confundidos com escala logarítmica da rugosidade (classe EW). Assim, nos trabalhos onde essa escala é sugerida, deve-se investigar a possibilidade de o sistema pertencer à classe KPZ.

Capítulo 5

Conclusão

Nossos resultados para os modelos de redes periódicas de grãos mostraram que o crescimento linear da rugosidade local ($\alpha_1 \approx 1$) para tamanhos de janela (R) pequenos se deve às grandes diferenças de altura nas bordas dos grãos, ou seja, é um efeito puramente geométrico que não está associado à dinâmica de crescimento interno do grão. Esta interpretação é diferente do que se afirma em praticamente todos os trabalhos experimentais que encontram $\alpha_1 \approx 1$. Essa conclusão se confirma pelo fato de que a rugosidade ao quadrado também cresce linearmente com R . Além disso, esse efeito de *crossover* não têm nenhuma relação com escala anômala da rugosidade, como também é afirmado em alguns trabalhos experimentais.

Os expoentes da rugosidade menores mas próximos de 1 (um) para pequenos tamanhos de janela estão associados à forma da superfície do grão e também à quão suaves ou abruptos são os desníveis de alturas nas bordas dos grãos.

O *crossover* em um tamanho de janela R_c aproximadamente igual à largura do grão, observado nos modelos RSOS e RDSR ampliados e também no modelo de deposição de grãos, confirma que o tamanho de grão pode ser estimado com

precisão através de R_c . Além disso, R_c é praticamente independente de propriedades da superfície como a forma do grão e a distribuição de tamanhos destes em torno da média.

Os expoentes α_2 obtidos para os modelos RSOS e RDSR ampliados, consistentes com aqueles esperados para as classes KPZ e EW, respectivamente, mostram que esse expoente está associado apenas às correlações entre grãos na superfície, não sofrendo nenhuma influência da forma do grão. Expoentes α_2 obtidos em superfícies reais, próximos àqueles valores, devem realmente ser associados à essas classes de universalidade.

O crescimento aproximadamente colunar do depósito do modelo de deposição de grãos em tempos pequenos, onde obtemos um expoente de crescimento β grande, sugere que o expoente β igualmente grande encontrado na ref. [17] possa estar associado ao mesmo mecanismo de crescimento.

Os expoentes $0.11 \lesssim \alpha_2 \lesssim 0.20$ obtidos para o modelo de deposição de grãos em $d = 2 + 1$, são bem próximos do encontrado em alguns trabalhos experimentais. Esses expoentes pequenos podem facilmente ser confundidos com escala logarítmica. Assim, um outro tipo de análise, como a de distribuições de rugosidade, se faz necessária antes de concluir que as correlações entre os grãos são do tipo EW ou KPZ. Isso mostra que no trabalho de Ebothé et al [2] a escala KPZ, observada para pequenas taxas de deposição, também pode se manter para grandes taxas, onde $\alpha_2 \approx 0.16$ é obtido.

As fortes correções de escala encontradas no modelo de deposição de grãos e também encontradas na deposição balística estão associadas às grandes diferenças de altura locais que se formam nas superfícies produzidas por esses modelos. A comparação de distribuições de rugosidade confirma que esse tipo de análise se aplica muito bem para determinar a classe de universalidade de modelos com

correções de escala muito fortes, como já tinha sido observado para a deposição balística.

Para o futuro pretendemos estudar a escala da rugosidade em alguns modelos com redução de ruído, apresentados na ref. [23], onde o crescimento de montes (*mounds*) é observado. Um breve estudo de nosso modelo de deposição de grãos incluindo sua difusão, indicou expoentes na classe EW em $d = 1 + 1$, mesmo com um excesso de velocidade presente no sistema, então pretendemos fazer uma análise mais aprofundada desse modelo.

Apêndice A

Momentos das distribuições Delta, Poisson e Gaussiana

Se temos uma distribuição de probabilidade normalizada $P(x)$, onde x é uma variável contínua definida no intervalo $[a,b]$, o seu primeiro momento, ou o valor médio de x , será dado por

$$\langle x \rangle = \int_a^b xP(x)dx. \quad (\text{A.1})$$

O momento central de ordem n é

$$\langle (\Delta x)^n \rangle = \int_a^b (x - \langle x \rangle)^n P(x)dx. \quad (\text{A.2})$$

No caso em que x é uma variável aleatória discreta ($x = x_i$), que pode assumir M valores no intervalo $[a,b]$, temos a média

$$\langle x \rangle = \sum_{i=1}^M x_i P(x_i) \quad (\text{A.3})$$

e os momentos de ordem mais alta são dados por

$$\langle (\Delta x)^n \rangle = \sum_{i=1}^M (x_i - \langle x \rangle)^n P(x_i), \quad (\text{A.4})$$

onde os $P(x_i)$ são probabilidades ($0 \leq P(x_i) \leq 1$).

Distribuição Delta

A distribuição de probabilidade do tipo Delta pode ser escrita como

$$P(l) = \delta(l - s), \quad (\text{A.5})$$

com l definido no intervalo $(-\infty, \infty)$ e s uma constante. Pela propriedade da função δ

$$\int_{-\infty}^{\infty} f(y)\delta(y - y')dy = f(y'), \quad (\text{A.6})$$

podemos ver que o primeiro momento dessa distribuição é

$$\bar{l} \equiv \langle l \rangle = s. \quad (\text{A.7})$$

Para todos os momentos centrais obtemos

$$\langle (\Delta l)^n \rangle = (\bar{l} - \bar{l})^n = 0 \quad (\text{A.8})$$

Distribuição Gaussiana

A distribuição Gaussiana é dada por

$$P(l) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} e^{-\frac{(l-\mu)^2}{2\sigma^2}} \quad (\text{A.9})$$

onde σ e μ são constantes. O seu primeiro momento é

$$\bar{l} = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \int_{-\infty}^{\infty} l e^{-\frac{(l-\mu)^2}{2\sigma^2}} dl = \mu. \quad (\text{A.10})$$

Para o segundo momento temos

$$\langle (\Delta l)^2 \rangle = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} \int_{-\infty}^{\infty} (l - \mu)^2 e^{-\frac{(l-\mu)^2}{2\sigma^2}} dl = \sigma^2. \quad (\text{A.11})$$

Distribuição de Poisson

Ao contrário das distribuições Delta e Gaussiana, a distribuição de Poisson é usualmente definida para valores discretos, inteiros e positivos da variável aleatória.

Esta distribuição é dada por

$$P(l) = \frac{\lambda^l e^{-\lambda}}{l!}, \quad (\text{A.12})$$

onde λ é uma constante. Seu primeiro momento é

$$\bar{l} = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{l \lambda^l e^{-\lambda}}{l!} = \lambda. \quad (\text{A.13})$$

Para o segundo momento nós temos

$$\langle (\Delta l)^2 \rangle = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{(l - \bar{l})^2 \lambda^l e^{-\lambda}}{l!} = \bar{l}. \quad (\text{A.14})$$

Referências Bibliográficas

- [1] T. J. Oliveira, K. Dechoum, J. A. Redinz e F. D. A. A. Reis. *Phys. Rev. E* **74**, 011604 (2006).
- [2] J. Ebothé, A. E. Hichou, P. Vautrot e M. Addou. *J. Appl. Phys.* **93**, 632 (2003).
- [3] M. Hiane e J. Ebothé. *Eur. Phys. J. B* **22**, 485 (2001).
- [4] T. G. S. Cruz, M. U. Kleinke e A. Gorenstein. *Appl. Phys. Lett.* **81**, 4922 (2002).
- [5] A.-L. Barabási e H. E. Stanley. *Fractal Concepts in Surface Growth*. Cambridge University Press, Cambridge (1995).
- [6] F. Family e T. Vicsek. *Dynamics of Fractal Surfaces*. World Scientific (1991).
- [7] P. Meakin. *Fractals, Scaling and Growth Far from Equilibrium*. Cambridge University Press (1998).
- [8] J. Krug. *Advances in Physics* **46**, 139 (1997).
- [9] H. E. Stanley. *An Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena*. Oxford University Press (1971).
- [10] K. Huang. *Statistical Mechanics*. John Wiley, New York (1987).

- [11] E. Vasco, C. Polop e C. Ocal. *Eur. Phys. J. B* **35**, 49 (2003).
- [12] M. U. Kleinke, J. Davalos, C. P. da Fonseca e A. Gorenstein. *Appl. Phys. Lett.* **74**, 1683 (1999).
- [13] M. E. R. Dotto e M. U. Kleinke. *Phys. Rev. B* **65**, 245323 (2002).
- [14] N. C. de Souza, V. Zucolotto, J. R. Silva, F. R. Santos, D. S. dos Santos Jr., D. T. Balogh, O. N. O. Jr. e J. A. Giacometti. *J. Coll. Int. Sci.* **285**, 544 (2005).
- [15] A. E. Lita e J. E. S. Jr. *Phys. Rev. B* **61**, 7692 (2000).
- [16] A. E. Lita e J. E. S. Jr. *J. Appl. Phys.* **85**, 876 (1999).
- [17] S. Mendez, G. Andreasen, P. Schilardi, M. Figueroa, L. Vázquez, R. C. Salvarezza e A. J. Arvia. *Langmuir* **14**, 2515 (1998).
- [18] L. Vázquez, R. C. Salvarezza, P. Herrasti, P. Ocón, J. M. Vara e A. J. Arvia. *Phys. Rev. B* **52**, 2032 (1995).
- [19] L. Vázquez, R. C. Salvarezza, P. Herrasti, P. Ocón, J. M. Vara e A. J. Arvia. *Surf. Sci.* **345**, 17 (1996).
- [20] J. E. Rubio, M. Jaraiz, I. Martin-Bragado, J. M. Hernandez-Mangas, J. Barbolla e G. H. Gilmer. *J. Appl. Phys.* **94**, 163 (2003).
- [21] C. M. Huang, C. L. Joanne, B. S. V. Patnaik e R. Jayaganthan. *Appl. Surf. Sci.* **252**, 3997 (2006).
- [22] E. V. Albano, R. C. Salvarezza, L. Vázquez e A. J. Arvia. *Phys. Rev. B* **59**, 7354 (1999).

- [23] P. P. Chatrathorn, Z. Toroczkai e S. D. Sarma. *Phys. Rev. B* **64**, 205407 (2001).
- [24] J. M. Kim e J. M. Kosterlitz. *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2289 (1989).
- [25] F. Family. *J. Phys. A* **19**, L441 (1986).
- [26] F. D. A. A. Reis. *Physica A* **364**, 190 (2006).
- [27] F. D. A. A. Reis. *Phys. Rev. E* **72**, 032601 (2005).
- [28] F. D. A. A. Reis. *Phys. Rev. E* **63**, 56116 (2001).
- [29] E. Katzav e M. Schwartz. *Phys. Rev. E* **70**, 061608 (2004).
- [30] B. Widom. *J. Chem. Phys.* **43**, 3892, 3898 (1965).
- [31] W. Schwarzacher. *J. Phys. Condens. Matter* **16**, R859 (2004).
- [32] J. M. López. *Phys. Rev. Lett.* **83**, 4594 (1999).
- [33] F. Family e T. Vicsek. *J. Phys. A* **18**, L75 (1985).
- [34] A. Chame e F. D. A. A. Reis. *Phys. Rev. E* **66**, 051104 (2002).
- [35] C. M. Horowitz, R. A. Monetti e E. V. Albano. *Phys. Rev. E* **63**, 66132 (2001).
- [36] M. Kardar, G. Parisi e Y.-C. Zhang. *Phys. Rev. Lett.* **56**, 889 (1986).
- [37] S. F. Edwards e D. R. Wilkinson. *Proc. R. Soc. London* **17**, 381 (1982).
- [38] B. A. Mello, A. S. Chaves e F. A. Oliveira. *Phys. Rev. E* **63**, 41113 (2001).
- [39] F. Colaiori e M. A. Moore. *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3946 (2001).

- [40] E. Marinari, A. Pagnani e G. Parisi. *J. Phys. A* **33**, 8181 (2000).
- [41] F. D. A. A. Reis. *Phys. Rev. E* **69**, 021610 (2004).
- [42] F. Family. *Annual Reviews of Computational Physics VIII*. World Scientific Publishing Company (2000).
- [43] D. Wolf e J. Villain. *Europhys. Lett.* **13**, 389 (1990).
- [44] Z.-W. Lai e S. D. Sarma. *Phys. Rev. Lett.* **66**, 2348 (1991).
- [45] A. Chame e F. D. A. A. Reis. *Surface Science* **553**, 145 (2004).
- [46] F. D. A. A. Reis. *Physica A* **316**, 250 (2002).
- [47] M. J. Vold. *J. Coll. Sci.* **14**, 168 (1959).
- [48] M. J. Vold. *J. Phys. Chem.* **63**, 1608 (1959).
- [49] G. Foltin, K. Oerding, Z. Rácz, R. L. Workman e R. K. P. Zia. *Phys. Rev. E* **50**, 639 (1994).
- [50] M. Plischke, Z. Rácz e R. K. P. Zia. *Phys. Rev. E* **50**, 3589 (1994).
- [51] Z. Rácz e M. Plischke. *Phys. Rev. E* **50**, 3530 (1994).