

# Динамический хаос и низкотемпературная поверхностная диффузия малых кластеров адсорбированных атомов

А. С. Ковалев

*Физико-технический институт низких температур им. Б. И. Веркина  
НАН Украины, пр. Ленина, 47, г. Харьков, 61103, Украина  
E-mail: kovalev@ilt.kharkov.ua*

А. И. Ландау

*Mivza Berosh 11/24, Beer Sheva 84799, Israel*

Статья поступила в редакцию 13 февраля 2002 г.

Методом численного моделирования рассматривается нелинейная одномерная динамика двухатомных адатомных кластеров на бороздчатой поверхности кристалла. Показано, что при начальных условиях, при которых данная динамическая гамильтонова система обладает хаотическим поведением в фазовом пространстве, в координатном пространстве динамический хаос проявляется как диффузионное движение кластера. Рассмотренный процесс принципиально отличается от обычной тепловой диффузии и, по-видимому, может проявляться при низких температурах.

Методом чисельного моделювання розглядається нелінійна одновимірна динаміка двохатомних адатомних кластерів на бороздчатій поверхні кристала. Доведено, що за початкових умов, при яких ця динамічна гамільтонова система має хаотичну поведінку у фазовому просторі, у координатному просторі динамічний хаос проявлюється як дифузійне переміщення кластера. Розглянутий процес принципово відрізняється від звичайної теплової дифузії і, мабуть, може проявитися при низьких температурах.

PACS: 03.40.Kf

## Введение

В настоящее время одним из новых направлений теоретической и математической физики является исследование хаотического поведения нелинейных динамических моделей с конечным числом степеней свободы и, в частности, гамильтоновых неинтегрируемых систем. Известно [1], что даже в случае нелинейных консервативных систем с двумя степенями свободы при отсутствии второго интеграла движения (кроме энергии) динамика частицы при некоторых начальных условиях может носить сложный, хаотический характер [2]. При этом, однако, обычно исследуют динамику системы в конечной области фазового пространства и не обсуждают вопрос о макроско-

пическом проявлении такого хаотического поведения.

В данной работе изучена одномерная динамика двухатомного кластера на поверхности идеального кристалла как пример нелинейной динамической системы с двумя степенями свободы, допускающей инфинитное движение в конфигурационном пространстве, и рассмотрен вопрос о возможности диффузионного движения таких кластеров при низких температурах и связи диффузионного режима с динамическим хаосом в фазовом пространстве.

Многочисленные эксперименты [3,4] по поверхностной адсорбции атомов щелочных (Li, Na, K, Cs) и щелочноземельных (Mg, Sr, Ba) элементов на бороздчатых гранях W, Mo, Re, Ni и Si, а также на поверхностных ступеньках Ge

показали, что адсорбированные атомы (в дальнейшем — адатомы) занимают позиции в бороздках и около ступенек и перемещаются в основном вдоль них. То есть движение (и, в частности, диффузия) адатомов носит преимущественно одномерный характер. При малых степенях покрытия на поверхности образуется газ изолированных адатомов. Однако вследствие сложного характера взаимодействия адсорбированных атомов через металлическую подложку, с ростом их плотности на поверхности вначале (при малых степенях покрытия) образуются одномерные адатомные кластеры из 2–6 адатомов, а затем целые цепочки, периодически расположенные на больших расстояниях друг от друга. Эти линейные кластеры и цепочки ориентированы либо перпендикулярно бороздкам (в случае подложки из W, Mo и Re), либо вдоль бороздок (на поверхности Ni и Si) и вдоль атомных ступенек на поверхности. Однако во всех перечисленных случаях движение этих объектов происходит вдоль бороздок и вне зависимости от ориентации кластеров может быть описано в рамках подобных одномерных моделей.

Диффузия адатомов и адатомных кластеров имеет ряд необычных черт [5–7]. В частности, коэффициент диффузии сильно (и немонотонно) зависит от степени покрытия [4], что, несомненно, определяется взаимодействием адатомов и может существенно зависеть от механизма образования кластеров и изменения их размеров. С другой стороны, экспериментально наблюдалось [8] быстрое (недиффузионное) перемещение очень больших металлических кластеров по поверхности графита. Теоретическому исследованию структуры и динамики одномерных адатомных цепочек конечной длины посвящено большое число работ [9–11]. В частности, в [9] был предложен солитонный механизм перемещения кластеров конечной длины.

Обычно диффузионное движение адатомов и кластеров обусловлено их взаимодействием с подложкой: адатомы испытывают случайные толчки со стороны термических фононов в объеме подложки. При этом с понижением температуры и вымерзанием объемных возбуждений коэффициент обычной диффузии линейно убывает с температурой, и такая диффузия прекращается. При этом сохраняется возможность регулярного движения (колебательного или «пролетного») отдельных адатомов, возбужденных при редких столкновениях с фононами или под действием внешнего облучения.

В данной статье рассмотрена возможность принципиально другого механизма диффузии кластеров, который возникает с ростом степени покрытия при переходе от изолированных адатомов к малым адатомным комплексам. При возбуждении изолированного атома в отсутствие диссипации при  $T = 0$  возможно лишь регулярное его движение. Однако, как будет показано ниже, при возбуждении комплексов атомов возникает возможность их стохастического движения, приводящего к диффузии. Такая «аномальная» диффузия, отличная от нуля и при нулевой температуре, отсутствует для отдельных атомов и должна наблюдаться для комплексов с ростом степени покрытия подложки.

С точки зрения теории нелинейной регулярной и стохастической динамики, эта задача также имеет фундаментальное значение. Как правило, принципиальные вопросы стохастической динамики гамильтоновых систем рассматриваются на примерах консервативных систем с двумя степенями свободы. При этом считается, что стохастический режим возникает вследствие неустойчивости движения системы в ограниченной области фазового пространства. В нашей модели допускается неограниченное перемещение центра тяжести адатомного комплекса в координатном пространстве, и можно рассмотреть принципиальный вопрос о связи хаотического характера динамики механической системы с диффузионным перемещением центра масс этого комплекса. Отметим, что для упомянутых экспериментов по поверхностной диффузии адатомных комплексов идеальной является модель связанных математических осцилляторов: атомы располагаются вдоль бороздок на поверхности и их движение носит одномерный характер, а атомная структура подложки создает вдоль бороздок периодический потенциал, который можно моделировать тригонометрической функцией.

### Формулировка модели

Исследуем одномерное движение двухатомного комплекса. Для простоты рассмотрим случай, когда атомы кластера двигаются строго вдоль бороздок на поверхности кристалла, и в равновесии кластер ориентируется в направлении, перпендикулярном бороздкам (рис. 1). (Более адекватно одномерная модель описывает ситуацию, когда адатомный комплекс ориентирован вдоль бороздок. Однако при этом возникает проблема с возможным «перескакиванием» атомов друг через друга при больших энергиях. Поэтому в этом случае полученные нами результаты применимы

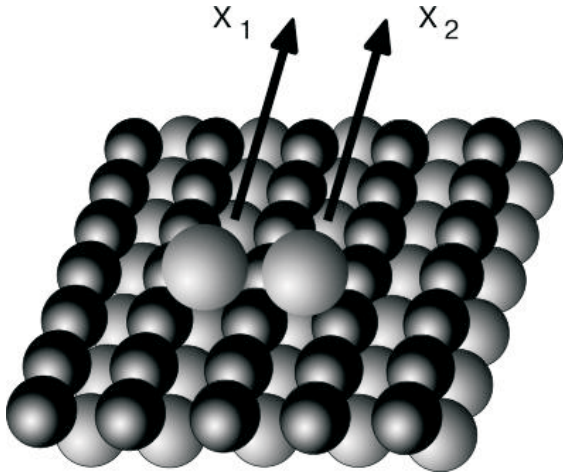


Рис. 1. Двухатомный комплекс на бороздчатой поверхности кристалла.

лишь при не очень больших энергиях. Однако, как будет показано ниже, в этот интервал энергий попадают некоторые важные сценарии движения кластеров.) Обозначим через  $X_1$  и  $X_2$  координаты атомов и ограничимся гармоническим межатомным взаимодействием и синусоидальным потенциальным рельефом подложки для каждого атома. Полная энергия такой системы имеет вид

$$\tilde{E} = \sum_{i=1}^2 \left\{ \frac{m}{2} \left( \frac{dX_i}{dt} \right)^2 + U_0 \left[ 1 - \cos \frac{2\pi X_i}{a} \right] \right\} + \frac{\alpha}{2} (X_1 - X_2)^2, \quad (1)$$

где  $m$  — масса атомов,  $U_0$  — амплитуда потенциала подложки и  $\alpha$  — характеристика межатомного взаимодействия в кластере. Равновесному состоянию двухатомной «молекулы» соответствуют значения  $X_1 = X_2 = na$ . Параметрам  $\alpha$  и  $U_0$  можно сопоставить соответствующие частоты  $\omega_0 = \sqrt{2\alpha/m}$  и  $\omega_1 = \sqrt{U_0/m}$ . Ниже мы будем предполагать, что частоты  $\omega_0$  и  $\omega_1$  имеют один порядок величины. Система динамических уравнений имеет следующий вид:

$$m \frac{d^2 X_1}{dt^2} + \frac{2\pi U_0}{a} \sin \frac{2\pi X_1}{a} + \alpha (X_1 - X_2) = 0, \quad (2)$$

$$m \frac{d^2 X_2}{dt^2} + \frac{2\pi U_0}{a} \sin \frac{2\pi X_2}{a} + \alpha (X_2 - X_1) = 0. \quad (3)$$

Если измерять смещения в межатомных единицах  $x_i = X_i/a$ , а время — в единицах  $\sqrt{2}/\omega_0$ , то единственным параметром остается безразмерная величина  $A = (\omega_1/\omega_0)^2/\pi$ , определяющая отношение энергии взаимодействия с подложкой к энергии взаимодействия внутри кластера. Все численные расчеты проводились нами для значения  $A = 1$ , хотя очень интересным представляется также случай  $A \gg 1$ , при котором динамика системы должна иметь сходные черты со стохастическим движением в модели «газа Лоренца». В обсуждаемом случае уравнения (2), (3) можно записать в безразмерном виде

$$\frac{d^2 x_1}{dt^2} = (x_2 - x_1) - \sin(2\pi x_1), \quad (4)$$

$$\frac{d^2 x_2}{dt^2} = (x_1 - x_2) - \sin(2\pi x_2), \quad (5)$$

и ввести безразмерную энергию

$$E = \tilde{E}/E_* = \sum_{i=1}^2 \left\{ \frac{1}{2} \left( \frac{dx_i}{dt} \right)^2 + \frac{1}{2\pi} [1 - \cos(2\pi x_i)] \right\} + \frac{1}{2} (x_1 - x_2)^2, \quad (6)$$

где  $E_* = \alpha a^2$ .

Энергия (6) является единственным интегралом движения динамической системы (4), (5) с двумя степенями свободы. Поскольку второй интеграл отсутствует, система допускает стохастическое поведение [1].

Фрагмент топографии соответствующей (6) поверхности потенциальной энергии (ППЭ)  $U(x_1, x_2)$  приведен на рис. 2. Одномерное движение двухатомного кластера можно представить как двумерное движение частицы по этой ППЭ. Абсолютным минимумам энергии соответствуют точки  $x_1 = x_2 = n$  с нулевой энергией. Кроме них существуют относительные минимумы ППЭ в точках  $x_1 \approx 1/2 \pm 0,368 + n$ ,  $x_2 \approx 1/2 \mp 0,368 + n$  с энергией  $E_0 \approx 0,374$ . (Все характерные энергии приведены для  $E = \tilde{E}/E_*$  (см. (6)). Локальным максимумам ППЭ отвечают точки  $x_1 = x_2 = n + 1/2$  с энергией  $E_m = 2/\pi \approx 0,637$ . При превышении этой энергии возможно чисто «пролетное» движение с  $x_1 = x_2$ , при котором не возбуждаются внутренние колебания кластера. Между минимумами ППЭ лежат седловые точки  $x_1 = 1/12 + n$ ,  $x_2 = 7/12 + n$ ;  $x_1 = 7/12 + n$ ,  $x_2 = 1/12 + n$ ;  $x_1 = 11/12 + n$ ,  $x_2 = 5/12 + n$  и  $x_1 = 5/12 + n$ ,  $x_2 = 11/12 + n$  с энергией  $E_s = 1/\pi + 1/8 \approx 0,443$ . Это значение энергии играет важную роль в динамике кластера: при

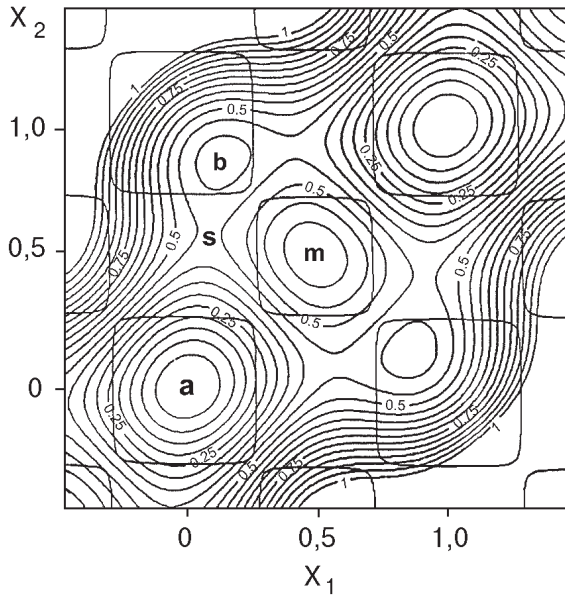


Рис. 2. Топография поверхности потенциальной энергии системы. Особые точки соответствуют абсолютным минимумам (а), относительным минимумам (b), относительным максимумам (m) и седлам (s). Нулевой гауссовой кривизне ППЭ отвечают замкнутые почти квадратные линии со сторонами, параллельными осям.

энергиях  $E < E_s$  возможно лишь колебание кластера, и только при  $E > E_s$  возникает возможность инфинитного перемещения димера. При слабом превышении энергией значения  $E_s$  происходит зигзагообразное движение изображающей точки через седловые точки, которому соответствует эстафетное одномерное движение двухатомного комплекса. Наконец, очень важное значение имеет энергия  $E_t$ , при которой область в пространстве  $(x_1, x_2)$ , доступная для движения димера, начинает пересекаться с областью отрицательной гауссовой кривизны ППЭ, в которой  $K = (rt - s^2) \times (1 + p^2 + q^2)^{-2} < 0$ , где  $r = \partial^2 U / \partial x_1^2$ ,  $t = \partial^2 U / \partial x_2^2$ ,  $s = \partial^2 U / \partial x_1 \partial x_2$ ,  $p = \partial U / \partial x_1$  и  $q = \partial U / \partial x_2$ . Линии нулевой кривизны ППЭ на рис. 2 имеют вид почти квадратов со сторонами, параллельными осям  $x_1$  и  $x_2$ . (С величиной  $E_t$  связан критерий Тоды начала стохастизации движения в неинтегрируемых нелинейных динамических системах [12,13].) При нашем выборе параметров  $E_t \approx 0,2$ . Мы численно моделировали движение двухатомного комплекса с энергиями  $E \geq 0,5$ . При таких энергиях уже возможно инфинитное перемещение димера, и траектории «захватывают» области отрицательной кривизны ППЭ, что может приводить к стохастическому движению.

При малых энергиях  $E \ll E_t$ , согласно теории Колмогорова–Арнольда–Мозера [14], подавляющее большинство начальных условий приводит к регулярной динамике кластера: происходит лишь относительное колебание атомов в димере и колебание его центра тяжести относительно рельефа подложки. При превышении энергии  $E_t$  начинается быстрый рост веса начальных условий, приводящих к хаотическому движению. Но в интервале  $E_t < E < E_s$  движение происходит в ограниченной области координатного пространства. При этом среднее значение координаты центра тяжести димера  $x = (x_1 + x_2) / 2$  и среднее значение его скорости  $v = (v_1 + v_2) / 2$  равны нулю, а среднеквадратичное отклонение центра не превышает межатомного расстояния (единицы в безразмерных переменных). Хаотическое движение в подобной ситуации исследовалось широко и подробно многими авторами [1,15].

Наиболее интересной представляется область энергий  $E > E_s$ , в которой возможно инфинитное движение димера. При этом центр его тяжести перемещается на расстояния, существенно превышающие межатомные расстояния на поверхности кристалла, и можно поставить принципиальный вопрос о влиянии стохастизации движения в неинтегрируемой системе на характер макроскопического перемещения адатомных кластеров. В частности, можно ответить на вопрос: приводит ли эта стохастизация к диффузии кластеров и каковы свойства такой диффузии. (Подчеркнем, что речь идет о диффузии в обычном координатном пространстве, а не о диффузии Арнольда в фазовом пространстве [1].)

### Постановка численного эксперимента

Исследование описанной теоретической модели было проведено путем численного решения системы нелинейных уравнений (4), (5) с помощью ЭВМ. Компьютерные расчеты проводили методом конечных разностей с дискретным шагом по времени  $\Delta$ . Величина  $\Delta$  уменьшалась с ростом энергии и обычно выбиралась в интервале 0,025–0,01. В реальном времени такому шагу соответствует временной интервал  $\tau = \Delta \sqrt{2} / \omega_0$ . Использовалась скоростная формула алгоритма Верле, которая не приводит к накоплению погрешности округления.

Все вычисления выполнены при одинаковых начальных значениях координат атомов димера  $x_1^{(0)} = x_2^{(0)} = 0$ , однако начальные значения скоростей частиц  $v_1^{(0)}$  и  $v_2^{(0)}$ , а следовательно, и полная энергия кластера варьировались в широких пре-

Таблица 2

делах. Практически вместо величин  $v_1^{(0)}$  и  $v_2^{(0)}$  задавались связанные с ними величины «быстрот»  $E_i^{(0)} = \text{sgn}(v_i^{(0)})[(v_i^{(0)})^2/2]$  обеих частиц. При этом, естественно,  $E = |E_1^{(0)}| + |E_2^{(0)}|$ . Исследования проводили в широком интервале энергий от  $E = 0,5$  до 100. Хотя реально при больших энергиях нарушается наше предположение об одномерном характере движения и происходит разрыв кластера, тем не менее рассмотрение высоких энергий возбуждения оказалось полезным с методической точки зрения. Результаты рассмотренных случаев приведены в табл. 1–6. При энергиях  $E = 0,5; 1,0; 1,5; 2,0; 2,5; 3,0; 3,5; 4,0; 4,5; 5,0; 5,5; 6,0; 10,0; 20,0; 30,0$  и  $40,0$  были выбраны начальные условия  $E_1^{(0)} = -E_2^{(0)} = E/2$ , соответствующие относительным внутренним колебаниям димера с неподвижным центром тяжести в начальный момент (табл. 1). Для энергий  $E = 1,125; 2,0; 4,5; 10,0; 20,0; 30,0; 40,0; 50,0; 60,0$  и  $100$  выбирали начальные условия  $E_1^{(0)} = 0$ ,  $E_2^{(0)} = E$ , соответствующие движению в начальный момент лишь одного атома в димере (табл. 6). Наконец, для энергий 10, 20, 30 и 40 (табл. 2–5 соответственно) выбраны несколько начальных условий от внутреннего колебания димера до чисто «пролетного» движения:  $E_1^{(0)} = -E/2 + n$ ,  $E_2^{(0)} = E - |E_1^{(0)}|$ ,  $n = 0, 1, \dots, E$ .

Таблица 1

$E_1$	$E_2$	$E$	Тип динамики
-0,25	0,25	0,5	Локальные осцилляции
-0,50	0,50	1,0	Хаос
-0,75	0,75	1,5	Хаос
-1,00	1,00	2,0	Хаос
-1,25	1,25	2,5	Хаос
-1,50	1,50	3,0	Хаос
-1,75	1,75	3,5	Хаос
-2,00	2,00	4,0	Локальные осцилляции
-2,25	2,25	4,5	Локальные осцилляции
-2,50	2,50	5,0	Хаос
-2,75	2,75	5,5	Хаос
-3,00	3,00	6,0	Хаос
-5,00	5,00	10,0	Хаос
-10,00	10,00	20,0	Хаос
-15,00	15,00	30,0	Хаос
-20,00	20,00	40,0	Хаос

$E_1$	$E_2$	$E$	Тип динамики
-5	5	10	Хаос
-4	6	10	Хаос
-3	7	10	Хаос
-2	8	10	Квазирегулярная
-1	9	10	Хаос
0	10	10	Квазирегулярная
1	9	10	Квазирегулярная
2	8	10	Регулярная
3	7	10	Регулярная
4	6	10	Регулярная
5	5	10	Регулярная

Таблица 3

$E_1$	$E_2$	$E$	Тип динамики
-10	10	20	Хаос
-8	12	20	Хаос
-6	14	20	Хаос
-4	16	20	Хаос
-3	17	20	Хаос
-2	18	20	Квазирегулярная
-1	19	20	Хаос
0	20	20	Квазирегулярная
1	19	20	Квазирегулярная
2	18	20	Регулярная
4	16	20	Регулярная
6	14	20	Регулярная
8	12	20	Регулярная
10	10	20	Регулярная

Таблица 4

$E_1$	$E_2$	$E$	Тип динамики
-15	15	30	Хаос
-14	16	30	Квазирегулярная
-13	17	30	Регулярная
-12	18	30	Регулярная
-11	19	30	Квазирегулярная
-10	20	30	Квазирегулярная
-9	21	30	Регулярная
-8	22	30	Регулярная
-7	23	30	Квазирегулярная
-6	24	30	Квазирегулярная
-5	25	30	Регулярная
-4	26	30	Регулярная
-3	27	30	Квазирегулярная
-2	28	30	Регулярная
-1	29	30	Квазирегулярная
0	30	30	Квазирегулярная
1	29	30	Регулярная
2	28	30	Регулярная
3	27	30	Регулярная
15	15	30	Регулярная

Таблица 5

$E_1$	$E_2$	$E$	Тип динамики
-20	20	40	Хаос
-18	22	40	Хаос
-16	24	40	Хаос
-14	26	40	Квазирегулярная
-12	28	40	Регулярная
-10	30	40	Квазирегулярная
-9	31	40	Квазирегулярная
-8	32	40	Квазирегулярная
-7	33	40	Регулярная
-6	34	40	Квазирегулярная
-5	35	40	Хаос
-4	36	40	Квазирегулярная
-3	37	40	Регулярная
-2	38	40	Квазирегулярная
-1	39	40	Квазирегулярная
0	40	40	Хаос
1	39	40	Квазирегулярная
2	38	40	Регулярная
3	37	40	Регулярная
4	36	40	Регулярная
20	20	40	Регулярная

Таблица 6

$E_1$	$E_2$	$E$	Тип динамики
0	1,125	1,125	Хаос
0	2,0	2,0	Хаос
0	4,5	4,5	Хаос
0	10,0	10,0	Квазирегулярная
0	20,0	20,0	Квазирегулярная
0	30,0	30,0	Квазирегулярная
0	40,0	40,0	Хаос
0	50,0	50,0	Квазирегулярная
0	60,0	60,0	Квазирегулярная
0	100,0	100,0	Хаос

Вместо координат атомов  $x_1$  и  $x_2$  удобно воспользоваться координатой центра тяжести димера  $x = (x_1 + x_2)/2$  и характеристикой относительного расстояния между атомами  $y = (x_1 - x_2)/2$ . В новых переменных мы имеем двумерное движение изображающей точки на плоскости  $(x, y)$ , где область, допустимая для движения, представляет собой гофрированный «коридор», открытый в направлении оси  $x$  (см. рис. 3). При этом в начальный момент времени при заданной энергии частица стартует из точки  $(0, 0)$  со скоростью  $\sqrt{2E}$  вдоль разных направлений, что изображено веером стрелок в левой части рис. 3. Стрелке  $a$  отвечает условие  $E_1^{(0)} = -E_2^{(0)} = E/2$ , а стрелке  $b$  — условие  $E_1^{(0)} = E_2^{(0)} = E/2$ . На этом же рисунке схематически изображены основные типы возможных движений. Во-первых, возможны (осо-

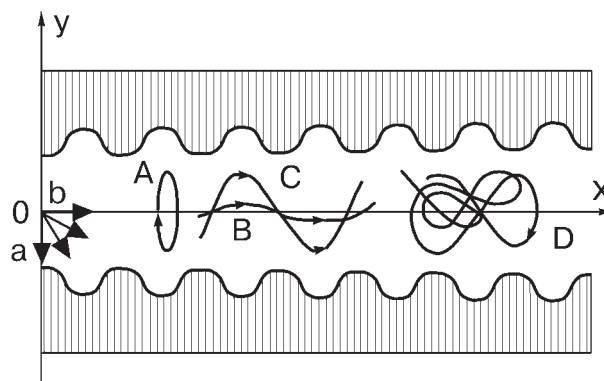


Рис. 3. Схематический вид возможных типов движения изображающей точки. Описание в тексте.

бенно при малых энергиях) регулярные колебания в пределах одного периода структуры подложки (кривая  $A$  на рис. 3). Во-вторых, при начальных условиях типа  $b$  при больших энергиях возможно регулярное «пролетное» движение, изображенное на рисунке в виде кривой  $B$ . В частности, при малом превышении энергией величины  $E_s$  эта траектория имеет вид линии  $C$ , которой отвечает эстафетное перемещение димера. Поскольку траектории типа  $B$  и  $C$  проходят через области отрицательной кривизны ППЭ, они в конечном итоге, по-видимому, также перейдут в стохастический режим, но на очень больших временах (в особенности это касается траекторий типа  $B$ , захватывающих очень небольшую часть поверхности с  $K < 0$ ). Наконец, наиболее часто встречающейся оказалась ситуация со стохастическим поведением траектории (линия  $D$ ).

При численном счете рассматривались очень длинные траектории движения, полученные при числе вычислительных итераций порядка  $10^8$ . Этому числу итераций отвечали максимальные безразмерные времена движений димера (безразмерные физические времена) порядка  $t_{\max} \approx 10^6$ , что соответствует  $10^5$  собственных периодов колебаний атомов в рельефе подложки. При этом в хаотическом режиме центр масс димера перемещался на расстояния до  $4 \cdot 10^4$  периодов этого потенциального рельефа.

Основными вычисляемыми величинами были следующие: зависимость координаты центра димера от времени  $x = x(t)$ , зависимость от времени числа поворотов направления скорости димера и координаты в моменты поворотов, временная зависимость дисперсии  $D = \sqrt{\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2}$  для траектории  $x(t)$  комплексов, совершающих хаотическое движение, и параметр  $p = \ln D(t) / \ln(t)$ ,

определяющий характер макроскопического движения димера. Кроме того, для сравнения полученных результатов с традиционными методами исследования хаотической динамики были построены сечения Пуанкаре для найденных траекторий и одномерные точечные отображения для координат поворотов центра масс комплекса.

Следует подробнее остановиться на способе усреднения при вычислении дисперсии траектории. Эту величину вычисляли тремя способами. В первом случае усреднение проводили по времени движения от начального  $t_0 = 0$  до текущего момента времени и принимали, что

$$\langle x \rangle = \frac{1}{n} \sum_{k=0}^n x(t_k)$$

и

$$\langle x^2 \rangle = \frac{1}{n} \sum_{k=0}^n x^2(t_k),$$

где  $t_k = k\Delta$  и  $\Delta$  — итерационный шаг. Однако этот способ нахождения зависимости  $D = D(t)$  дает неустойчивые и, следовательно, недостаточно достоверные результаты даже при рассмотрении очень длинных траекторий движения, полученных в результате порядка  $10^8$  вычислительных итераций. При использовании этого метода временная зависимость  $p(t)$  оказалась весьма медленной, и за разумные времена счета трудно получить выход этой величины на ее предельное значение. Другой способ заключался в одновременном усреднении по различным реализациям: проводилось «разрезание» траектории на шесть временных интервалов одинаковой длины, наложение их друг на друга с последующим усреднением по этим шести реализациям. Поскольку этот метод давал лучшие результаты, были проведены расчеты с усреднением по большому числу реализаций с практически идентичными начальными условиями. Для получения хорошо сходящихся и устойчивых результатов при разумной длительности счета рассматривали пучки из 400–500 траекторий. В начальные условия движения, т.е. в первоначально выбранные значения  $E_1^{(0)}$  и  $E_2^{(0)}$ , для рассматриваемых  $m$  траекторий пучка с помощью датчика случайных чисел вносились небольшие различия, величина которых составляла  $10^{-8} - 10^{-9}$  от абсолютного значения величин  $E_i^{(0)}$  (при этом, естественно, строго соблюдалось условие  $E^{(0)} = \text{const}$ ). Таких малых различий в начальных условиях движения оказалось достаточно для того, чтобы хаотические траектории быстро (экспоненциально) расходились между собой, образуя расширяющийся пучок

траекторий. В этом случае усреднение величин  $x$  и  $x^2$  производилось по поперечным сечениям пучка траекторий:

$$\langle x \rangle (t_n) = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m x(i, n)$$

и

$$\langle x^2 \rangle (t_n) = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m x^2(i, n),$$

где  $x(i, n)$  — координата центра тяжести  $i$ -й молекулы в момент времени  $t_n = n\Delta$ . Этим методом были получены более достоверные данные для временной зависимости  $D(t)$ .

### Основные результаты

Двухатомная молекула в рассматриваемой системе может совершать четыре принципиально различных вида движений: локализованное колебание двух типов, регулярное поступательное движение и, наконец, хаотическое движение. При локализованных колебаниях первого типа молекула периодически пульсирует, но ее центр масс при этом не сдвигается (т.е.  $x = \text{const}$  и  $v = 0$ ). При локализованных колебаниях второго типа центр тяжести молекулы совершает периодические колебания, так что  $x = \langle x \rangle + x_0 \sin \omega t$ , тогда как движение каждого атома комплекса может быть более сложным. Поступательное движение характеризуется тем, что центр масс молекулы не меняет направления движения, хотя его скорость  $v$  не обязательно остается постоянной. Если  $v = \text{const}$ , то можно говорить о регулярном поступательном движении или квазирегулярном, если изменения скорости малы. Наконец, при хаотическом движении молекула многократно изменяет направление движения своего центра тяжести, а ее траектория движения  $x = x(t)$  имеет случайный характер.

Регулярное поступательное движение («пролетные» траектории) наблюдалось, как правило, при больших энергиях (в частности, при значениях  $E = 10; 20; 30; 50$  и  $60$ ). Однако детальный микроскопический анализ сечения Пуанкаре показал, что и этом случае происходит медленное увеличение и хаотизация области движения в фазовом пространстве. При этом любопытно, что со временем эта область пульсирует, и ее объем изменяется немонотонно. Вторым важным моментом, обнаруженным в ходе машинного эксперимента, было нахождение «окон непрозрачности», когда даже при очень больших энергиях (в частности, при энергиях  $E = 40$  и  $100$ ) наблюдалась

быстрая перекачка энергии из поступательного движения центра тяжести во внутренние колебания димера и быстрая стохастизация движения. По-видимому, это явление связано с внутренним параметрическим резонансом в системе: при «пролете» комплекса над периодическим рельефом возникает периодическая сила, параметрически воздействующая на внутреннюю степень свободы димера.

Наиболее интересны результаты, касающиеся хаотического движения димера. Такой вид движения наиболее часто встречался в численном эксперименте. При этом монотонному изменению параметра  $E_i^{(0)}$  соответствует немонотонное чередование различных видов движения молекулы. При хаотическом движении вычисление временного изменения дисперсии при усреднении по 400–500 реализациям давало быстрый выход на стационарное значение параметра  $p$ . При значениях энергии  $E = 0,5$  и  $1$  было найдено, что зависимость дисперсии от времени удовлетворяет стандартному соотношению  $D \sim t^p$  с  $p \approx 0,5$ , характерным для броуновского движения частицы.

Таким образом, нами показано, что динамический хаос в фазовом пространстве приводит к пространственной диффузии в конфигурационном пространстве и возникновению броуновского движения адатомных кластеров. Этот результат представляет исключительный интерес, так как демонстрирует, что при определенных условиях диффузия кластера может происходить при нулевой температуре (но конечной энергии) в отсутствие тепловых толчков за счет термостата. В данном случае роль термостата в некотором смысле играет внутренняя степень свободы кластера, и поступательное его движение может обмениваться энергией с внутренними колебаниями. При этом вследствие нелинейности системы этот обмен может происходить случайным образом.

При исследовании хаотического движения кластера вдоль траектории  $x = x(t)$  мы также измеряли значения координат его центра тяжести  $x^{(1)}, x^{(2)}, \dots, x^{(N)}$  в последовательные моменты времени  $t_k = k\delta$  с заданным шагом во времени  $\delta$  и определяли изменения координат  $\Delta x^{(k)} = x^{(k+1)} - x^{(k)}$ . Совокупность полученных величин  $\Delta x^{(k)}$  подвергалась дальнейшей обработке стандартными методами математической статистики с целью определения закона распределения этой случайной величины. Такие исследования были проведены для энергий  $E = 1$  и  $20$ , которым отвечали соответственно объемы статистических выборок  $N = 581$  и  $410$ . Было установлено, что с высоким уровнем значимости по  $\chi^2$ -критерию величины

$\Delta x^{(k)}$  распределены по нормальному (гауссовому) закону, т.е. обладают такими же свойствами, что и для траекторий классического броуновского движения.

Однако в ряде случаев случайное блуждание димера в некоторые моменты сменялось на быстрый «пролетный» режим, продолжавшийся конечное время. При этом в более крупном масштабе в эти моменты возникают макроскопические скачки траектории. То есть движение носит характер не столько броуновского движения, сколько является реализацией процесса Коши. Вероятно, с этим связан следующий результат: было обнаружено, что при энергии  $E = 10$ , т.е. в области энергий, высоких по сравнению с энергией  $E_m$ , аппроксимация зависимости  $D(t)$  степенным соотношением  $D \sim t^p$  привела к показателям  $p \approx 0,65-0,8$ , заметно превышающим величину  $0,5$  и характерным для процесса обобщенной диффузии. Более того, если аппроксимацию зависимости  $D(t)$  проводили для разных интервалов времени, то получали различные значения  $p$ , и зависимость этой величины от временного интервала оказалась немонотонной. Таким образом, при больших значениях энергии рассматриваемый процесс, являясь стохастическим, не соответствует классическому броуновскому движению, а возможно, и обобщенному броуновскому процессу.

Авторы благодарны В. И. Белану за помощь в проведении численных расчетов. Работа выполнена при частичной поддержке программой INTAS в рамках гранта № 99-0167.

1. А. Лихтенберг, М. Либерман, *Регулярная и стохастическая динамика*, Москва, Мир (1984).
2. М. Henon and C. Heiles, *Astron. J.* **69**, 73 (1964).
3. И. Ф. Люксютов, А. Г. Наумовец, В. Л. Покровский, *Двумерные кристаллы*, Киев, Наукова думка (1988).
4. А. Г. Наумовец, *ФНТ* **20**, 1091 (1994).
5. А. G. Naumovets and Yu. S. Vedula, *Surf. Sci. Rep.* **4**, 365 (1984).
6. R. Kern, G. Le Lay, and J. J. Metois, in: *Current Topics in Material Science*, Vol. 3, E. Kaldis (ed.), North-Holland, Amsterdam (1979).
7. D. W. Bassett, in: *Surface Mobilities on Solid Materials*, Yu. Thien Binh (ed.), Plenum, New York (1983).
8. G. Honjo, K. Takayanagi, K. Kobayashi, and K. Yagi, *Phys. Status Solidi* **A55**, 353 (1979).
9. А. С. Ковалев, *ФТТ* **21**, 1729 (1979).
10. S. Stoyanov and H. Muller-Krumbhaar, *Surface Sci.* **159**, 49 (1985).
11. O. M. Braun, *Surface Sci.* **230**, 262 (1990).



12. М. Тода, *Теория нелинейных решеток*, Москва, Мир (1984).
13. I. V. Krivoshey, *Sov. Sci. Rev. Solid State Chemistry*, M. E. Vol'pin (ed.), **V11**, 125 (1988).
14. В. И. Арнольд, *Математические методы классической механики*, Москва, Наука (1974).
15. Г. М. Заславский, *Стохастичность динамических систем*, Москва, Наука (1984).

crystal surface is investigated by computer simulations. It is shown that for initial conditions for which this dynamic Hamiltonian system possesses a chaotic behavior in the phase space, the dynamical chaos manifests itself in the coordinate space as a diffusion of a cluster. The above process differs principally from the usual temperature diffusion and may show itself at low temperatures.

#### Dynamical chaos and low-temperature surface diffusion of small adatom clusters

A. S. Kovalev and A. I. Landau

The nonlinear one-dimensional dynamics of diatomic adatom clusters on the corrugated