

# Самоорганизация квазиравновесных систем плазма—конденсат

© В.И. Перекрыстов, А.И. Олемской, А.С. Корнющенко, Ю.А. Косминская

Сумский государственный университет,  
Сумы, Украина  
Институт прикладной физики Национальной академии наук Украины,  
Сумы, Украина  
E-mail: perv@phe.sumdu.edu.ua

(Поступила в Редакцию 9 июля 2008 г.)

Показано, что стационарный режим конденсации в условиях, близких к фазовому равновесию, обеспечивается самоорганизацией системы плазма—конденсат. Эта самоорганизация обусловлена тем, что наличие плазмы приводит к значительному повышению энергии адатомов, благодаря чему их конденсация увеличивает температуру ростовой поверхности, повышение которой компенсируется потоком десорбции адатомов, ответственных за пересыщение. Продемонстрировано, что близость системы к фазовому равновесию обеспечивает селективный режим конденсации, в процессе которой адатомы выстраиваются на активных центрах ростовой поверхности, образуя различные трехмерные структуры.

Работа выполнена при финансировании Министерства образования и науки Украины (проект № 71.03.03.07-08).

PACS: 05.65.+b, 68.55.-a, 81.15.Aa

## 1. Введение

Развитие нанотехнологий, связанных с конденсацией вещества, сводится к решению двух основных проблем: поддержанию стационарного режима конденсации, с одной стороны, и обеспечению условий, близких к фазовому равновесию, с другой [1–4]. Благодаря чувствительности квазиравновесного процесса конденсации к выбору технологических параметров первая из указанных проблем решается поддержанием постоянного пересыщения. При малых значениях последнего система незначительно удалена от равновесия, вблизи которого обеспечивается самоорганизованное течение конденсации, выражающееся в том, что на ростовой поверхности закрепляются только адатомы, образующие наиболее прочные химические связи. В результате термодинамический потенциал системы приобретает минимальное значение, как это имеет место для энергии упругих напряжений на границе раздела конденсат—подложка [5].

В настоящее время технологическое решение указанных проблем найдено в рамках метода молекулярно-лучевой эпитаксии, а также при конденсации, обусловленной взаимодействием химически активной среды с ростовой поверхностью (CVD-технологии, конденсации при разложении металлоорганических соединений, кристаллизация в слабо пересыщенных растворах и электролитическое осаждение). При этом отклонения  $\Delta T$ ,  $\Delta P$  от равновесных значений температуры ростовой поверхности  $T$  и давления молекулярного потока  $P$  приводят к разности химических потенциалов  $\Delta\mu \equiv \mu_c - \mu_v$  конденсата и пара осаждаемого вещества [6,7]

$$\Delta\mu = q \frac{\Delta T}{T} - T \frac{\Delta P}{P}, \quad (1)$$

где  $q$  — теплота испарения атома (здесь мы пренебрегаем атомным объемом конденсата и приняли пар

за идеальный газ. Согласно (1), условия, близкие к фазовому равновесию, относительно легко реализуются в летучих веществах, которые даже при относительно низких температурах ростовой поверхности обладают высокими давлениями насыщающего пара. Такие условия значительно ограничивают возможности метода молекулярно-лучевой эпитаксии, в связи с чем представляются более предпочтительными химические методы, при которых равновесное состояние достигается не только за счет повышения температуры и ослабления осаждаемых потоков, но и благодаря десорбции атомов при обратных химических реакциях.

Обеспечение самоорганизации во всех указанных технологиях требует жесткого контроля условий стационарного процесса конденсации. Поэтому мы исходим из схемы, в рамках которой самоорганизация обеспечивается естественным течением процесса конденсации, для которого квазиравновесное состояние достигается благодаря наличию плазмы, повышающей эффективную температуру ростовой поверхности [1–4].

С микроскопической точки зрения воздействие низкотемпературной плазмы, приближающее систему плазма—конденсат к равновесию, обусловлено тем, что ее частицы, сталкиваясь с ростовой поверхностью, способствуют испарению и распылению слабо связанных адатомов. Пример такого воздействия дает процесс гомонуклеации нанотрубок и фуллеренов в дуговом разряде, где воздействие плазмы способствует разрушению всех химических связей, кроме максимально прочных  $sp^2$ -гибридизированных. Другим примером является образование алмазоподобных наноструктур под воздействием плазменных потоков [1]. Характерно, что в обоих случаях наблюдается конденсация углерода, слабая летучесть которого компенсируется воздействием плазмы, повышающей эффективную температуру

ростовой поверхности. Однако дуговой разряд не обеспечивает стационарного течения процесса, препятствуя выращиванию монокристаллов, формированию статистически однородных островковых структур и пористых образований.

Настоящая работа предпринята с целью выяснения природы процесса самоорганизации, лежащего в основе экспериментальной методики, реализованной в [1–4]. В разделе 2 показано, что напылительная система, содержащая анод со встроенным магнитом и полый катод, во внутренней части которого расположена подложка, позволяет получить вблизи ростовой поверхности концентрированную плазму, обеспечивающую стационарную конденсацию адатомов, обладающих малым переизбытком. В разделе 3 развита синергетическая схема, согласно которой наличие плазмы приводит к такому повышению энергии адатомов, что их конденсация повышает температуру ростовой поверхности, увеличение которой компенсируется десорбцией адатомов. В рамках такой схемы подраздел 3.1 содержит кинетическую картину, представляющую самоорганизацию потоков, а подраздел 3.2 дает картину термодинамического типа, объясняющую распределение концентраций напыляемого вещества. Наконец, в разделе 4 продемонстрировано, что близость системы к фазовому равновесию приводит к тому, что на ростовой поверхности закрепляются только адатомы, образующие наиболее прочные связи. В результате обеспечивается селективный режим конденсации, в процессе которой адатомы выстраиваются на активных центрах ростовой поверхности.

## 2. Обеспечение самоорганизации в напылительной системе

Самоорганизованный режим квазиравновесной стационарной конденсации реализован в ионно-плазменных системах, блок-схема которых приведена на рис. 1. Одним из основных элементов самоорганизованной распылительной системы является анод со встроенным в него магнитом, действие которого способствует многократному росту плотности плазмы в среде инертного газа. Другой принципиально важный элемент представляет собой полый катод, во внутренней части которого расположена подложка, отделенная от анода выходным отверстием и заслонкой (такая конструкция позволяет получить вблизи ростовой поверхности высококонцентрированную плазму, состоящую из ионов распыляемого вещества и инертного газа). Сначала в камере достигается высокий вакуум (около  $10^{-8}$  Па), а затем производится напуск инертного газа до давления 20–40 Па и выполняется его очистка (столь высокое давление понижает длину свободного пробега до микрометров). Под действием тлеющего разряда происходит распыление мишени, стационарное течение которого обеспечивается магнетронным эффектом и кумулирующим действием полого катода.

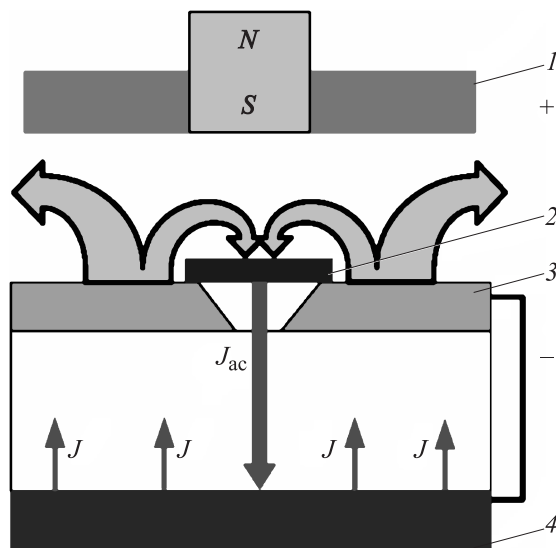


Рис. 1. Блок-схема самоорганизованной распылительной системы. 1 — анод с магнитом, 2 — заслонка, 3 — распыляемый катод, 4 — подложка.

При закрытой заслонке стационарный режим обеспечивается благодаря тому, что все распыляемое вещество, поток которого определяется мощностью разряда, конденсируется на прилегающих частях вакуумной камеры. С открытием входного отверстия электрическое поле втягивает положительные ионы во внутреннюю часть катода, в которой изначально находился инертный газ. Благодаря относительно малому объему ( $10\text{--}380\text{ см}^3$ ) дрейф ионов приводит к быстрому повышению давления в системе накопления. При этом изменение суммарной концентрации  $N_{ac}$  атомов и ионов распыляемого вещества внутри катода определяется уравнением

$$\dot{N}_{ac} = L^{-1}(J_f - J_p) + l^{-1}(J_{in} - J_{ad}). \quad (2)$$

Здесь и далее точка над символом означает дифференцирование по времени  $t$ , дрейфовые потоки  $J_f$  и  $J_p$  обусловлены изменением электрического поля и перепадом давления на характерных длинах  $L$ , а диффузионные потоки  $J_{in}$  и  $J_{ad}$ , действующие на расстояниях порядка  $l$ , — притоком через входное отверстие и адсорбцией на подложку. Благодаря ограниченному объему системы накопления два первых потока очень быстро уравниваются ( $J_f = J_p$ ), и дальнейшее изменение концентрации  $N_{ac}$  определяется взаимной диффузией инертного газа и распыленного вещества благодаря входящему потоку  $J_{in}$  и адсорбционному  $J_{ad}$ . Независимо от внешнего потока в отсутствие адсорбции ( $J_{ad} = 0$ ) процесс диффузии приводит к выравниванию концентраций на входе в полый катод и внутри него, в результате чего поток накопления приобретает значение  $J_{in} = 0$ . Стационарный процесс адсорбции, в ходе которого концентрация напыляемого вещества в накопительной системе сохраняется неизменной ( $\dot{N}_{ac} = 0$ ),

обеспечивается при условии, что диффузионные потоки, обусловленные притоком через входное отверстие и адсорбцией на подложку, уравниваются друг друга

$$J_{in} = J_{ad}. \quad (3)$$

Адсорбция ионов напыляемого вещества на ростовой поверхности обеспечивается процессами, протекающими в катодном пространстве тлеющего разряда. Толщина прикатодного слоя, где происходит основное падение потенциала, определяется дебаевской длиной экранирования  $\lambda$ , которая наряду с коэффициентом диффузии  $D$  задается равенствами [6,8]

$$\lambda^2 = \frac{\varepsilon T_p}{4\pi e^2 N_i}, \quad D = \frac{\sigma T_p}{e^2 N_i}. \quad (4)$$

Здесь  $\varepsilon$ ,  $\sigma$  — диэлектрическая проницаемость и проводимость плазмы,  $T_p$  — ее температура, измеренная в энергетических единицах,  $e$ ,  $N_i$  — заряд и суммарная концентрация ионов осаждаемого вещества и инертного газа в системе накопления. Концентрация атомов напыляемого вещества на верхней границе прикатодного слоя сводится к накопленному значению  $N_{ac}$ , определенному уравнением (2). Нижняя граница этого слоя представляет собой ростовую поверхность, на которой объемная концентрация атомов составляет  $N$  (в квазиравновесных условиях ее значение  $N \geq N_e$  незначительно превышает равновесную концентрацию  $N_e$ ). Благодаря условию (3) адсорбируемый поток сводится к диффузионной составляющей, определяемой соотношением Онзагера

$$J_{ad} \equiv D|\nabla N| \simeq \frac{D}{\lambda}(N_{ac} - N). \quad (5)$$

В начале конденсации, когда реализуются равновесные условия, этот поток имеет значение

$$J_{ac} = \frac{D}{\lambda}(N_{ac} - N_e), \quad (6)$$

величина которого несущественно превышает стационарный поток (5)

$$J_{ac} - J_{ad} \ll J_{ac}. \quad (7)$$

Условие квазиравновесия

$$N - N_e \ll N_e \quad (8)$$

обеспечивает высококонцентрированная плазма, наличие которой настолько повышает температуру подложки, что приближает к фазовому равновесию не только вещества, обладающие высокой летучестью, но и металлы и полупроводники, в которых она весьма низка.

Как видно из рис. 2, приток осаждаемого вещества обеспечивается диффузионной составляющей (6), действие которой компенсируется встречным потоком (5) адатомов, испаренных подложкой под воздействием плазмы. При этом структура прикатодного слоя определяется тем обстоятельством, что адсорбируются ионы, а десорбируются нейтральные атомы осаждаемого

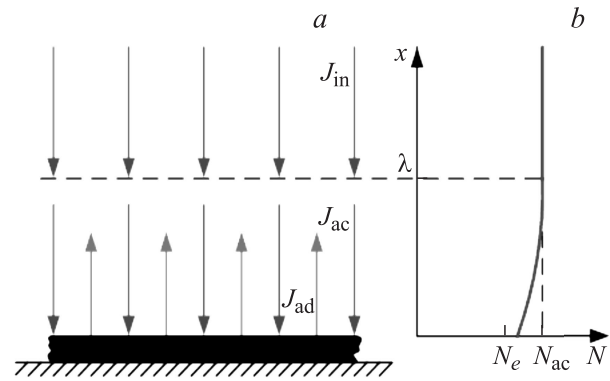


Рис. 2. Распределение потоков (а) и концентраций (б) в приповерхностном слое.

вещества. Благодаря столкновениям с частицами плазмы происходит ионизация этих атомов, интенсивность которой повышается с ростом давления рабочего газа. В результате с удалением от подложки объемная концентрация ионов увеличивается от минимального значения  $N$  до максимального  $N_{ac}$ , которое достигается на характерном расстоянии  $\lambda$ , определяющем ширину приповерхностного слоя. Такое изменение концентрации обеспечивает диффузионный поток (5).

### 3. Самоорганизация системы плазма–конденсат

Поскольку самоорганизация обусловлена процессами, протекающими на ростовой поверхности, далее следует перейти от объемной концентрации  $N$  к поверхностной  $n \equiv Na$ , где масштабный фактор  $a$  определен равенством (17). Как известно, исследование процесса самоорганизации может быть достигнуто в рамках пары сопряженных представлений [9]. Изложению картины самоорганизации, основанной на рассмотрении потоков, посвящен подраздел 3.1, а в подразделе 3.2 исследовано соответствующее распределение концентраций.

3.1. Самоорганизация потоков. Процесс самоорганизации определяется пересыщением  $n - n_e$  адатомов на ростовой поверхности, где его спадание обеспечивается потоком десорбции  $J$ , а прирост — диффузионной составляющей  $J_{ad}$ , определенной потоком адсорбции (5).<sup>1</sup> В присутствии конденсата, когда все адатомы испаряются с подложки, для первой составляющей выполняется условие  $J = -J_{ac}$ , где накопленный поток  $J_{ad}$  определен равенством (6). Для диффузионной компоненты уравнение непрерывности  $\dot{n}/a + \nabla \mathbf{J}_{ac} = 0$ , в котором действие источника определяется оценкой  $|\nabla \mathbf{J}_{ad}| \simeq J_{ad}/\lambda \simeq (D/\lambda^2)(n - n_e)/a$ , дает  $\dot{n} \simeq -(D/\lambda^2)(n - n_e)$ . Под действием обеих составляющих потока изменение концентрации  $n(t)$  описывается

<sup>1</sup> Поскольку поток десорбции  $\mathbf{J}$  направлен от ростовой поверхности, его величина  $J < 0$ , а значение адсорбционного потока  $J_{ad} > 0$ .

уравнением

$$\dot{n} = \frac{n_e - n}{\tau} - J, \quad (9)$$

где время релаксации определяется равенствами

$$\tau \equiv \frac{\lambda^2}{D} = \frac{\varepsilon}{4\pi\sigma}, \quad (10)$$

второе из которых учитывает соотношения (4). В стационарном режиме, где  $\dot{n} = 0$  и отсутствует самоорганизация ( $J = -J_{ac}$ ), устанавливается пересыщение

$$n_{ac} - n_e = \tau J_{ac}, \quad (11)$$

задаваемое действием потока накопления (3) в течение времени релаксации  $\tau$ . Согласно уравнению (9), с отклонением от стационарного состояния пересыщение (11) достигается в результате дебаевской релаксации со временем (10).

Процесс самоорганизации инициируется тем, что с ростом пересыщения  $n - n_e$  конденсированные адатомы передают ростовой поверхности избыток своей энергии, увеличивая ее температуру  $T$ . Это усиливает испарение атомов осаждаемого вещества, которое обеспечивается ростом потока десорбции  $J$ , компенсирующим начальное пересыщение.<sup>2</sup> Представление последовательной картины квазиравновесного процесса конденсации требует самосогласованного описания временных зависимостей концентрации адатомов  $n(t)$ , температуры ростовой поверхности  $T(t)$  и потока десорбции  $J(t)$ . В рамках синергетического подхода уравнения эволюции содержат диссипативные вклады указанных величин и слагаемые, представляющие положительную и отрицательную обратные связи, баланс которых обеспечивает процесс самоорганизации [10]. Так, в уравнении (9) вклад диссипации представляет первое слагаемое, а второе дает линейную связь между скоростью изменения концентрации и потоком десорбции. Подобным образом описывается изменение температуры ростовой поверхности

$$\tau_T \dot{T} = -T - a_T n J, \quad (12)$$

где  $\tau_T$  — соответствующее время релаксации,  $a_T > 0$  — константа связи. В отличие от уравнения (9) здесь полагается, что диссипация приводит к релаксации температуры не к конечному, а к нулевому значению; последнее слагаемое представляет нелинейную связь концентрации и потока, которая уменьшает скорость изменения температуры. Для обеспечения самоорганизации требуется компенсировать отрицательные связи в выражениях (9), (12) положительной составляющей в уравнении эволюции потока

$$\tau_J \dot{J} = -(J_{ac} + J) + a_J n T. \quad (13)$$

Здесь  $\tau_J$  представляет время релаксации к обратному значению  $-J_{ac}$  потока накопления,  $a_J > 0$  — константа

<sup>2</sup> Повышение температуры подложки  $T$  усиливает также испарение атомов инертного газа, однако это лишь незначительно изменяет температуру плазмы  $T_p$ , не сказываясь на потоке  $J$ .

связи, обеспечивающей рост потока за счет взаимного влияния концентрации адатомов и температуры ростовой поверхности.

Уравнения (9), (12), (13) представляют синергетическую систему Лоренца, в рамках которой пересыщение  $n - n_e$  сводится к параметру порядка, температура ростовой поверхности  $T$  — к сопряженному полю, поток десорбции  $J$  — к управляющему параметру [10]. В состоянии динамического равновесия, когда отсутствует зависимость от времени, уравнение (9) дает постоянное пересыщение (11), величина которого определяется потоком накопления (3). Соответственно равенство (12) приводит к зависимости  $T = a_T n |J|$ , согласно которой температура ростовой поверхности повышается в результате взаимного увеличения концентрации адатомов и потока их десорбции. И наконец, уравнение (13) определяет стационарный поток  $J = -J_{ac} + a_J n T$ , величина которого повышается от значения  $-J_{ac}$ , определяемого системой накопления, благодаря совместному росту концентрации адатомов и температуры.

Обычно при конденсации выполняются адиабатические условия

$$\tau_T \tau_J \ll \tau, \quad (14)$$

означающие, что в ходе эволюции системы температура  $T(t)$  и поток  $J(t)$  следуют за изменением концентрации адатомов  $n(t)$ . Благодаря этому в (12), (13) можно пренебречь временными производными, и эти уравнения приводят к простым зависимостям

$$T = a_T J_{ac} \frac{n}{1 + a^4 n^2}, \quad (15)$$

$$J = \frac{-J_{ac}}{1 + a^4 n^2}, \quad (16)$$

где введен характерный размер

$$a \equiv (a_T a_J)^{1/4}. \quad (17)$$

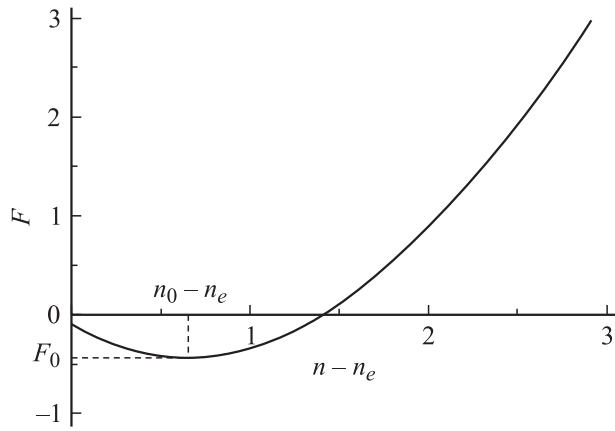
Равенства (15), (16) показывают, что рост концентрации адатомов приводит сначала к линейному увеличению температуры ростовой поверхности, которое при  $n = a^{-1}$  выходит на насыщение, отвечающее максимальному значению  $T_{\max} = \sqrt{a_T / a_J} J_{ac} / 2$ . При этом поток десорбции возрастает от значения  $J_{\min} = -J_{ac}$  до  $J_{\max} = -J_{ac} / 2$ .

Подстановка выражения (16) в уравнение (9) показывает, что адиабатическая эволюция системы описывается уравнением Ландау–Халатникова

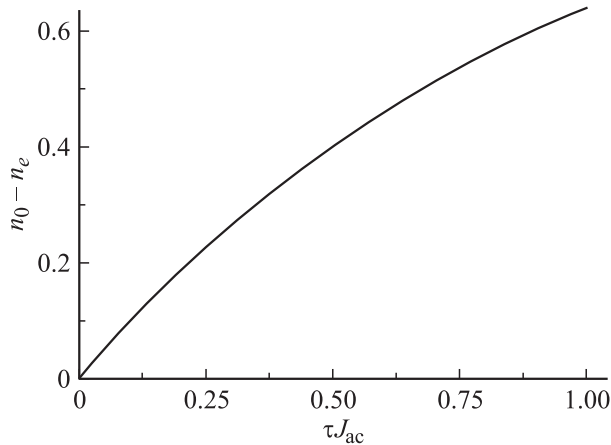
$$\tau \frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{\partial F}{\partial n}, \quad (18)$$

в котором эффективный потенциал имеет вид

$$F = \left( \frac{n^2}{2} - n_e n \right) - \frac{\tau J_{ac}}{a^2} \arctg(a^2 n). \quad (19)$$



**Рис. 3.** Зависимость эффективного потенциала от пересыщения при  $a = 1$ ,  $n_e = 0.1$ ,  $\tau J_{ac} = 1$ .



**Рис. 4.** Стационарное значение пересыщения в зависимости от накопленного потока  $J_{ac}$  и времени релаксации  $\tau$  при  $a = 1$ ,  $n_e = 0.1$ .

Согласно рис. 3, его минимальное значение  $F_0$  достигается в стационарной точке  $n_0$ , положение которой определяется уравнением

$$(n_0 - n_e)(1 + a^4 n_0^2) = \tau J_{ac}. \quad (20)$$

Его решение, приведенное на рис. 4, показывает, что с ростом накопленного потока  $J_{ac}$  и времени релаксации  $\tau$  стационарное значение пересыщения  $n_0$  сначала нарастает от равновесного значения  $n_e$  линейным образом, а затем этот рост замедляется. Поскольку пересыщение намного меньше равновесного значения ( $n_0 - n_e \ll n_e$ ), в последнем множителе уравнения (20) концентрацию можно принять равновесной, в результате чего стационарное пересыщение принимает вид

$$n_0 - n_e \leq \frac{\tau J_{ac}}{1 + a^4 n_e^2} \leq \tau J_{ac}. \quad (21)$$

Согласно рис. 5, стационарное значение эффективного потенциала (19) монотонно падает с ростом накопленного потока  $J_{ac}$ , времени релаксации  $\tau$  и равновесной

концентрации  $n_e$ . Такое поведение обусловлено оценкой

$$F_0 \simeq -\frac{n_0^2}{2} \simeq -\frac{1}{2}(n_e + \tau J_{ac})^2. \quad (22)$$

Характерно, что стационарное уравнение (9) при потоке  $J = -J_{ac}$  дает последнее выражение в (21), сводящееся к соотношению (11), которое отличается от предпоследнего равенства в (21) отсутствием знаменателя, определяемого равновесной концентрацией  $n_e$  и масштабом  $a$ . Этот знаменатель описывает эффект самоорганизации, которая с согласия с принципом Ле Шателье подавляет прямое действие потока. Однако данный эффект не сказывается принципиальным образом в силу малости величины  $\tau J_{ac}$ . Действительно, при больших значениях  $\tau J_{ac}$  зависимость  $n_0(n_e)$ , следующая из предпоследнего выражения в (21), должна приобретать немонотонный характер, тогда как исходное уравнение (20) всегда обладает единственным корнем.

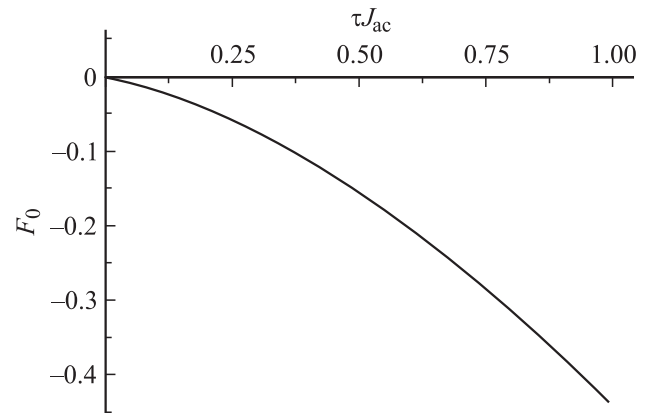
Согласно равенствам (15), (16) и последней оценке (21), в стационарном состоянии абсолютное значение потока десорбции  $|J_0|$  и температура ростовой поверхности  $T_0$  принимают значения

$$|J_0| = \frac{n_0 - n_e}{\tau} \leq J_{ac}, \quad T_0 = \frac{aT}{\tau} n_0(n_0 - n_e) \leq aT n_e J_{ac}. \quad (23)$$

Отсюда следует важное заключение: самоорганизованный процесс конденсации протекает таким образом, что поток десорбции  $J_0$  практически компенсирует накопленный поток  $J_{ac}$ , слабо изменяя начальную температуру ростовой поверхности  $T_{ac} = aT n_e J_{ac}$ . Поскольку разность

$$J_c \equiv J_{ac} + J_0 = J_{ac} - |J_0| \quad (24)$$

обеспечивает приток напыляемого вещества в конденсат, ее малость ( $J_c \ll J_{ac}$ ) отражает квазиравновесный характер процесса самоорганизации. С другой стороны, оценки (21), (23) показывают, что стационарные величины  $n_0$ ,  $|J_0|$  и  $T_0$  определяются не распыляемой мишенью, расположенной вне пределов полого катода, а потоком



**Рис. 5.** Стационарное значение эффективного потенциала в зависимости от накопленного потока  $J_{ac}$  и времени релаксации  $\tau$  при  $a = 1$ ,  $n_e = 0.1$ .

накопления  $J_{ac}$  в его объеме. Поскольку величина  $J_{ac}$  зависит только от конструкции напылительной системы, процесс конденсации сохраняет стационарный режим независимо от работы распылителя.

3.2. Самоорганизация концентраций. Представленная картина самоорганизации основывается на том, что конденсация адатомов, обладающих повышенной энергией, приводит к увеличению температуры ростовой поверхности  $T$ , а поток десорбции  $J$  адатомов, ответственных за пересыщение, компенсирует этот рост. Согласно (24), только малая часть  $J_c$  адсорбируемого потока  $J_{ac}$  расходуется на приток конденсируемых адатомов, а основная его составляющая компенсируется потоком десорбции  $J$ . Такое разделение удобно представить (рис. 6, *a*) наличием кольцевых потоков, интенсивность которых определяется десорбционной составляющей  $J$ . Как видно из рис. 6, *b*, кольцевые потоки не вносят вклады в конденсацию, поскольку формирующие их ионы ускоряются электрическим полем настолько сильно, что их энергия становится достаточной для интенсивной миграции по поверхности подложки в процессе которой адатомы сначала испаряются, а затем ионизируются под воздействием налетающих частиц плазмы. В результате процесс самоорганизации определяется концентрацией кольцевых потоков, повышение которой компенсирует увеличение температуры ростовой поверхности при конденсации адатомов. Поскольку концентрация кольцевых потоков  $\nu$  монотонно нарастает с пересыщением адатомов, можно использовать ее вместо потока десорбции  $J$ , что обеспечивает переход от изложенного выше кинетического представления к термодинамическому [9].

С учетом стандартной синергетической схемы [10] рассмотрим самосогласованное изменение концентраций адатомов  $n$  и кольцевых потоков  $\nu$  с изменением температуры ростовой поверхности  $T$ . Временные зависимости этих величин определяются системой

$$\tau \dot{n} = (n_e - n) + \nu, \quad (25)$$

$$\tau_T \dot{T} = -T + b_T n \nu, \quad (26)$$

$$\tau_\nu \dot{\nu} = (\nu_{ac} - \nu) - b_\nu n T, \quad (27)$$

которая сводится к уравнениям (9), (12) и (13) при замене  $\nu$  на  $\tau |J|$  (здесь, кроме того, перенормированы константы обратной связи  $b_T$  и  $b_\nu$ ). Равенства (6), (10) отражают накопленное содержание кольцевых потоков

$$\nu_{ac} \equiv \tau J_{ac} = \lambda (N_{ac} - N_e), \quad (28)$$

величина которого определяет поведение системы. В адиабатических условиях  $\tau_T, \tau_\nu \ll \tau$  уравнения (26), (27) приводят к зависимостям типа (15), (16)

$$T = b_T \nu_{ac} \frac{n}{1 + b^4 n^2}, \quad \nu = \frac{\nu_{ac}}{1 + b^4 n^2} \quad (29)$$

с характерным масштабом  $b \equiv (b_T b_\nu)^{1/4}$ . С увеличением концентрации адатомов  $n$  от нуля до предельного значения  $b^{-2}$  температура конденсата  $T$  достигает

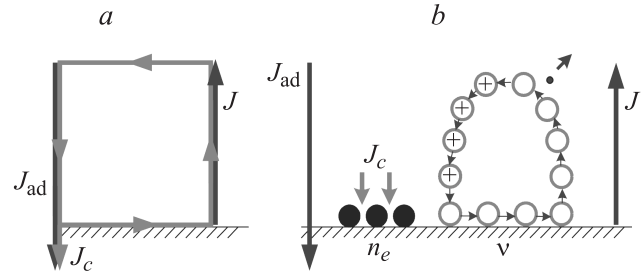


Рис. 6. Формирование кольцевых потоков вблизи ростовой поверхности (*a*) и разделение атомов на конденсат  $n_e$  и компоненту пересыщения  $\nu$  (*b*).

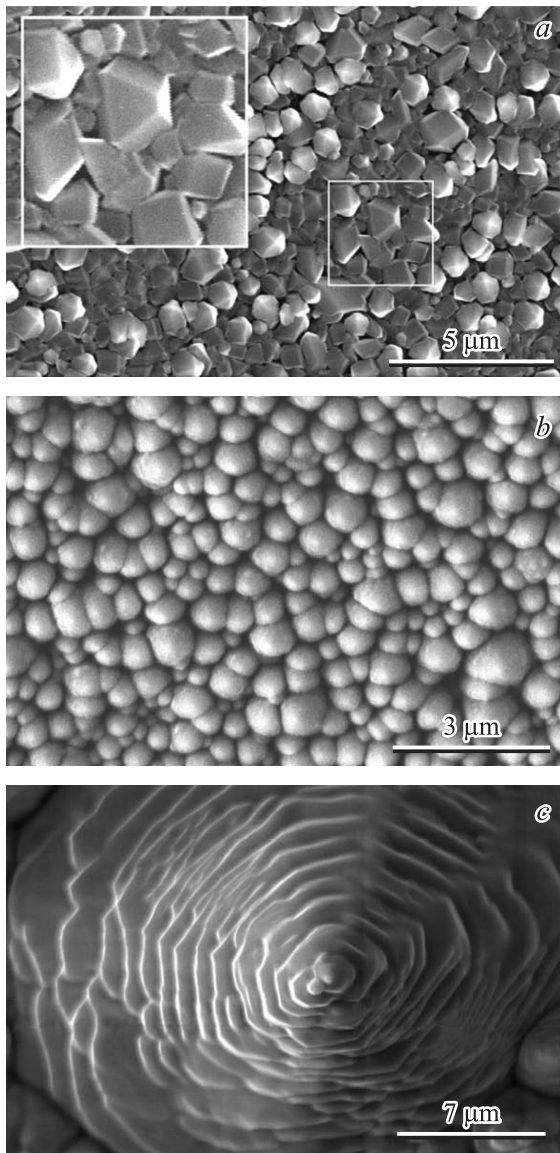
максимальной величины  $T_{max} = \sqrt{b_T/b_\nu} \nu_{ac}/2$ , а концентрация кольцевых потоков  $\nu$  спадает от накопленного значения  $\nu_{ac}$  до  $\nu_{ac}/2$ . Постановка последнего равенства (29) в выражение (25) приводит к уравнению Ландау–Халатникова (18) с эффективным потенциалом (19), где вместо  $\tau J_{ac}$  следует взять накопленную концентрацию кольцевых потоков (28). В результате приходим к соотношениям

$$\nu_0 = n_0 - n_e \leq \frac{\nu_{ac}}{1 + a^4 n_e^2} \leq \lambda \left( N_{ac} - \frac{n_e}{a} \right), \quad (30)$$

первое из которых показывает, что концентрация кольцевых потоков сводится к пересыщению адатомов со стационарным значением, определяемым накопленной концентрацией ионов напыляемого вещества  $N_{ac}$  по отношению к равновесному значению  $n_e/a$ . Согласно (4), рост суммарной концентрации ионов  $N_i$  в системе накопления приводит к спаданию дебаевской длины экранирования  $\lambda$ , что в свою очередь уменьшает стационарное пересыщение (30).

## 4. Осуждение

Проведенное исследование показывает, что самоорганизация системы плазма–конденсат обеспечивает стационарный режим конденсации в условиях слабого пересыщения, близких к фазовому равновесию. Эта самоорганизация обусловлена тем, что наличие плазмы приводит к повышению энергии адатомов, благодаря чему их конденсация способствует увеличению температуры ростовой поверхности, которое компенсируется потоком десорбции адатомов, ответственных за пересыщение. При этом только малая часть адсорбируемого потока расходуется на приток конденсируемых адатомов, а основная его составляющая компенсируется потоком десорбции. Такое поведение объясняется наличием кольцевых потоков, которые не вносят вклада в конденсацию, поскольку формирующие их ионы интенсивно мигрируют по поверхности подложки, а затем испаряются под воздействием налетающих частиц плазмы. В результате процесс самоорганизации определяется концентрацией кольцевых потоков, повышение которой компенсирует



**Рис. 7.** Примеры структур, полученных при квазиравновесной стационарной конденсации. *a)* — структура слоев алюминия с габитуальной плоскостью микрокристаллов (210); *b)* — структура слоев меди с атомно-шероховатой поверхностью; *в)* — монокристалл никеля, выращенный в условиях полевой селективности.

увеличение температуры ростовой поверхности при конденсации адатомов.

Близость системы к фазовому равновесию, обеспечиваемая процессом самоорганизации, приводит к тому, что на ростовой поверхности закрепляются только адатомы, образующие с ней наиболее прочные связи. В результате реализуется селективный режим конденсации, в процессе которой адатомы выстраиваются на активных центрах ростовой поверхности — изгибах моноступенек роста кристаллов, дефектах кристаллической решетки, границах сращивания зерен и т.п. Из микрофотографии конденсата алюминия, полученной методом растровой

электронной микроскопии, видно (рис. 7, *a*), что на расстояниях менее  $5\ \mu\text{m}$  картину кристаллизации определяет послыйный рост кристаллографической плоскости (210), который обеспечивается первым из указанных центров. С другой стороны, крупномасштабная картина определяется опережающим ростом конденсата на различных центрах кристаллизации, что приводит к образованию мозаичной структуры. Наиболее ярким образом действие таких центров проявляется при переходе от послыного роста кристаллов к нормальному, который наблюдается при застройке атомно-шероховатой поверхности (рис. 7, *b*). И наконец, при низких давлениях рабочего газа и повышенном напряжении на аноде картина конденсации определяется полевой селективностью, обеспечивающей конденсацию адатомов на участках ростовой поверхности, обладающих максимальной кривизной (рис. 7, *c*).

Приведенные на рис. 7 примеры показывают, что самоорганизация системы плазма–конденсат обеспечивает стационарный режим конденсации, в процессе которой адатомы выстраиваются на активных центрах кристаллизации, образуя структуры с различной архитектурой. Последовательность образования этих структур определяется энергией связи адатомов с ростовой поверхностью. Анализ данных [1–4] позволяет сделать вывод о том, что с ростом энергии связи действие различных центров кристаллизации сменяется согласно следующему ряду: 1) послыйная кристаллизация на изгибах моноступенек роста кристаллов; 2) нормальный рост кристаллов на атомно-шероховатой поверхности; 3) опережающий рост конденсата на различных центрах кристаллизации; 4) конденсация в условиях полевой селективности.

## Список литературы

- [1] В.И. Перекрестов, Ю.А. Косминская. Письма в ЖЭТФ **78**, 4, 258 (2003).
- [2] В.И. Перекрестов. Письма в ЖЭТФ **31**, 19, 41 (2005).
- [3] В.И. Перекрестов, А.С. Корнющенко, Ю.А. Косминская. Письма в ЖЭТФ **32**, 20, 1 (2006).
- [4] В.И. Перекрестов, А.С. Корнющенко, Ю.А. Косминская. ФТТ **50**, 1304 (2008).
- [5] O.P. Pchelyakov, Yu.B. Bolkhovityanov, A.V. Dvurechenskii, A.I. Nikiforov, A.I. Yakimov, B. Voigtländer. Thin Solid Films **367**, 75 (2000).
- [6] Л.Д. Ландау, Е.М. Лифшиц. Статистическая физика. Наука, М. (1976). Ч. 1. 584 с.
- [7] С.А. Кукушкин, А.В. Осипов. УФН **168**, 1983 (1998).
- [8] Е.М. Лифшиц, Л.П. Питаевский. Физическая кинетика. Наука, М. (1979). 528 с.
- [9] A.I. Olemskoi. Physica A **310**, 223 (2002).
- [10] А.И. Олемской, А.А. Кацнельсон. Синергетика конденсированной среды. Едиториал УРСС, М. (2003). 335 с.